Environment Research and Technology Development Fund

環境研究総合推進費　終了研究成果報告書

2-1802　GOSAT-2と地上観測による全球のメタン放出量推定と評価手法の包括的研究

(JPMEERF20182002)

平成30年度～令和３年度

Estimation of Regional-Global Methane Emissions and Refinement of Its Estimate by GOSAT-2 and Surface Observations

〈研究代表機関〉
千葉大学

〈研究分担機関〉
奈良女子大学
国立研究開発法人海洋研究開発機構
東京学芸大学
国立研究開発法人国立環境研究所

○図表番号の付番方法について
「Ⅰ．成果の概要」の図表番号は「０．通し番号」としております。なお、「Ⅱ．成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。
「Ⅱ．成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号．通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和４年５月

目次

Ⅰ．成果の概要 ・・・・・・・・ 1
１．はじめに（研究背景等）
２．研究開発目的
３．研究目標
４．研究開発内容
５．研究成果
５－１．成果の概要
５－２．環境政策等への貢献
５－３．研究目標の達成状況
６．研究成果の発表状況
６－１．査読付き論文
６－２．知的財産権
６－３．その他発表件数
７．国際共同研究等の状況
８．研究者略歴

Ⅱ．成果の詳細
Ⅱ－１　GOSAT/GOSAT-2による全球3次元メタン濃度の高精度導出と評価 ・・・・・・・・ 20
（千葉大学）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅱ－２　衛星データと地上観測データの複合利用によるメタン濃度の地域別特性抽出 ・・・・・・・・ 33
（奈良女子大学）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅱ－３　全球メタン放出量推定におけるGOSAT/GOSAT-2及び地上観測データの有効性の評価 ・・・・・ 46
（国立研究開発法人海洋研究開発機構）
要旨

１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅱ－４　メタン発生量評価のための南アジア域メタン濃度連続観測　・・・・・・・・　61
（東京学芸大学）
要旨
１．研究開発目的
２．研究目標
３．研究開発内容
４．結果及び考察
５．研究目標の達成状況
６．引用文献

Ⅱ－５　南アジア域の大気中メタン濃度及び関連物質の高精度計測　・・・・・・・・　77
（国立研究開発法人国立環境研究所）
要旨
1)　研究開発目的
2)　研究目標
3)　研究開発内容
4)　結果及び考察
5)　研究目標の達成状況
6)　引用文献

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細　・・・・・・・・　87

Ⅳ．英文Abstract　・・・・・・・・　96

Ⅰ．成果の概要

課題名　　2-1802　GOSAT-2と地上観測による全球のメタン放出量推定と評価手法の包括的研究
課題代表者名　齋藤　尚子　（千葉大学環境リモートセンシング研究センター准教授）

重点課題　　主：【重点課題8】地球温暖化現象の解明・予測・対策評価

副：選択なし

行政要請研究テーマ（行政ニーズ）　（2－4）GOSAT-2等を利用したメタン放出量推定の精緻化と検証

研究実施期間　平成30年度～令和３年度
但し、新型コロナウィルスの影響のため、令和３年度まで延長

研究経費
104,400千円（合計額）
（各年度の内訳：平成30年度：32,400千円、令和元年度：36,000千円、令和２年度：32,352千円、令和３年度：3,648千円）

研究体制
（サブテーマ１）GOSAT/GOSAT-2による全球3次元メタン濃度の高精度導出と評価（千葉大学）
（サブテーマ２）衛星データと地上観測データの複合利用によるメタン濃度の地域別特性抽出（奈良女子大学）
（サブテーマ３）全球メタン放出量推定におけるGOSAT/GOSAT-2及び地上観測データの有効性の評価（国立研究開発法人海洋研究開発機構）
（サブテーマ４）メタン発生量評価のための南アジア域メタン濃度連続観測（東京学芸大学）
（サブテーマ５）南アジア域の大気中メタン濃度及び関連物質の高精度計測（国立研究開発法人国立環境研究所）

研究協力機関
研究協力機関はない。

本研究のキーワード　物質循環、地球温暖化、リモートセンシング、メタン、GOSAT/GOSAT-2、地上観測、化学輸送モデル

１．はじめに（研究背景等）

2015年12月に「パリ協定」が採択され、各国が温室効果ガス（GHG）の排出量削減に取り組むことが義務付けられている。2023年にはパリ協定の実施状況を確認し各国が目標を見直すための第1回グローバルストックテイクが実施されることが予定されており、各国は最良の科学的根拠に基づいてGHG排出量と削減目標に向けた進捗状況を報告する義務がある。そのため、我が国もより精緻なGHG排出インベントリの構築が急務となっている。

大気中のメタン（CH_4）は、放射強制力において二酸化炭素(CO_2)に次ぐ主要な人為起源GHGであるが、CH_4の放出源は多岐にわたっており、その多くはCH_4生成菌等の生物由来であるため、発生プロセスも極めて複雑である。アジア域はCH_4の一大放出源であり、ヒマラヤ山脈の南側に位置するインド・ガンジス平原は広大な水田地帯であるとともに人口密集地域でもあるため、南アジアの水田や家畜からは膨大な量のCH_4が放出されている。さらに、アジア域はモンスーン循環に伴う強い上昇流のため、地上で放出された物質が容易に上空に輸送される特異的な領域であり、上空に輸送された高濃度のCH_4はOHラジカルとの消失反応を経ながら水平方向に広域に輸送される。このため、南アジアは全球スケールの大気中CH_4濃度やCH_4放出量を解明する上で重要な地域であるが、長期的なCH_4の濃度および放出量（フラックス）の観測データが乏しく、地上観測の空白域となっている。

大気中のGHGの全球分布の把握において衛星観測は極めて有効な手段であり、近年、複数の衛星で大気中のCH_4の気柱平均濃度の観測が行われている。GHG観測に特化した世界初の衛星である温室効果ガス観測技術衛星「いぶき」（GOSAT）およびその後継機GOSAT-2は、CH_4の気柱平均濃度および鉛直濃度分布を同時・同視野で観測できる唯一の衛星である。また、地上観測においては、多岐にわたるCH_4の放出源を分離するための新たな観測や、重要な人為CH_4放出源の一つである水田からのCH_4放出メカニズムを解明するためのCH_4フラックスと大気中CH_4濃度の同時観測の重要性が指摘されている。

全球スケールでGHGの排出量を推定する手法として、大気化学輸送モデルによる「トップダウン手法」が有効である。「トップダウン手法」では、モデルによるGHG濃度の計算において大気中のGHG濃度の観測データを参照することで、GHGの排出量を逆推定する（インバース解析）。「トップダウン手法」によるCH_4放出量の推定においては、CH_4の多岐にわたる放出源、複雑な発生プロセス、大気中の水平・鉛直輸送過程が大きな誤差要因となっており、地上と上空の両方の観測データがCH_4放出量推定の精緻化には欠かせない。全球のCH_4放出量推定の精緻化を図る上で、特に、放出量が多くその推定値の不確定性も大きい南アジアにおけるCH_4収支推定の高精度化は極めて重要である。

２．研究開発目的

本課題は、GOSAT/GOSAT-2で得られるCH_4の全球3次元濃度の時系列データを活用し、トップダウン手法に基づいた全球のCH_4放出量推定の確度および精度を改善することを目的とする。さらに、南インドの水田で土壌、CH_4フラックス、大気CH_4濃度の長期・連続観測を実施し、重要な人為CH_4放出源の一つである水田からのCH_4放出メカニズムを明らかにする。加えて、地上観測の空白域である南アジアで大気中のGHGと関連物質の長期・高精度観測を実施し、データが蓄積されつつある衛星観測によるCH_4の気柱平均濃度と地上観測によるCH_4の地表濃度の相関性を確認するとともに、CH_4の発生源が多様で複雑に分布している南アジアの特性を明らかする。本課題で、地上観測・衛星観測・モデル計算を複合的に組み合わせ、CH_4の放出プロセスの理解と放出量推定の精緻化を図ることを目的とする。

サブテーマ（1）では、GOSAT、GOSAT-2の熱赤外バンド（TIRバンド）の高波数分解能を活かしてCH_4の鉛直濃度分布を全球で高精度に導出し、航空機観測やサブテーマ（5）の地上観測との比較を通して検証した上で、サブテーマ（3）の大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMのCH_4の鉛直・水平輸送過程を評価することを目的とする。また、サブテーマ（4）と連携してインド南部の水田で土壌の採取およびCH_4生成量等の測定を実施し、水田の土壌の理化学性とCH_4放出量の関係性を明らかにすることで、全球で水田由来の

CH_4放出量を把握するために利用できる新たな知見を得ることを目的とする。

サブテーマ（2）では、北インド水田地域で採取された大気について、それぞれの空気塊の起源を明らかにする目的で後方流跡線解析を行い、さらに2017年に打ち上げの欧州の地球観測衛星センサーTROPOMIとGOSATおよびGOSAT-2のCH_4データとの比較解析を行って、南アジアのCH_4発生の地域的特性や時間変動を解明することを目的とする。

サブテーマ（3）では、MIROC4-ACTMの鉛直輸送過程の改良を行い、航空機観測データ等との比較を通してモデルのGHG濃度の再現性を評価した上でインバース解析システムを構築し、CH_4および一酸化二窒素（N_2O）の全球・領域別の収支評価を行う。さらに、局所アンサンブルカルマンフィルター（LETKF）ベースのデータ同化システムを開発してより小さな空間スケールでCH_4収支を評価するとともに、CH_4安定炭素同位体比（$\delta^{13}C$-CH_4）の2次元ボックスモデルを開発してシミュレーション計算を実施することで、CH_4放出量推定の精緻化を図ることを目的とする。

サブテーマ（4）では、インド南部の水田地帯で大気CH_4濃度およびCH_4フラックスを連続観測し、大気CH_4濃度およびCH_4フラックスの短期的～長期的な時間変化パターンとそのメカニズム、大気CH_4濃度に与える水田からのCH_4放出の影響を明らかにすることを目的とする。

サブテーマ（5）では、南アジアでフラスコサンプリングを実施し、他サブテーマの衛星データ、モデルデータを検証するためのCH_4と一酸化炭素（CO）の濃度の直接観測データを提供するとともに、採取大気中のCH_4、CO、$\delta^{13}C$-CH_4の関係性から南アジアのメタン発生源の推定を行うことを目的とする。

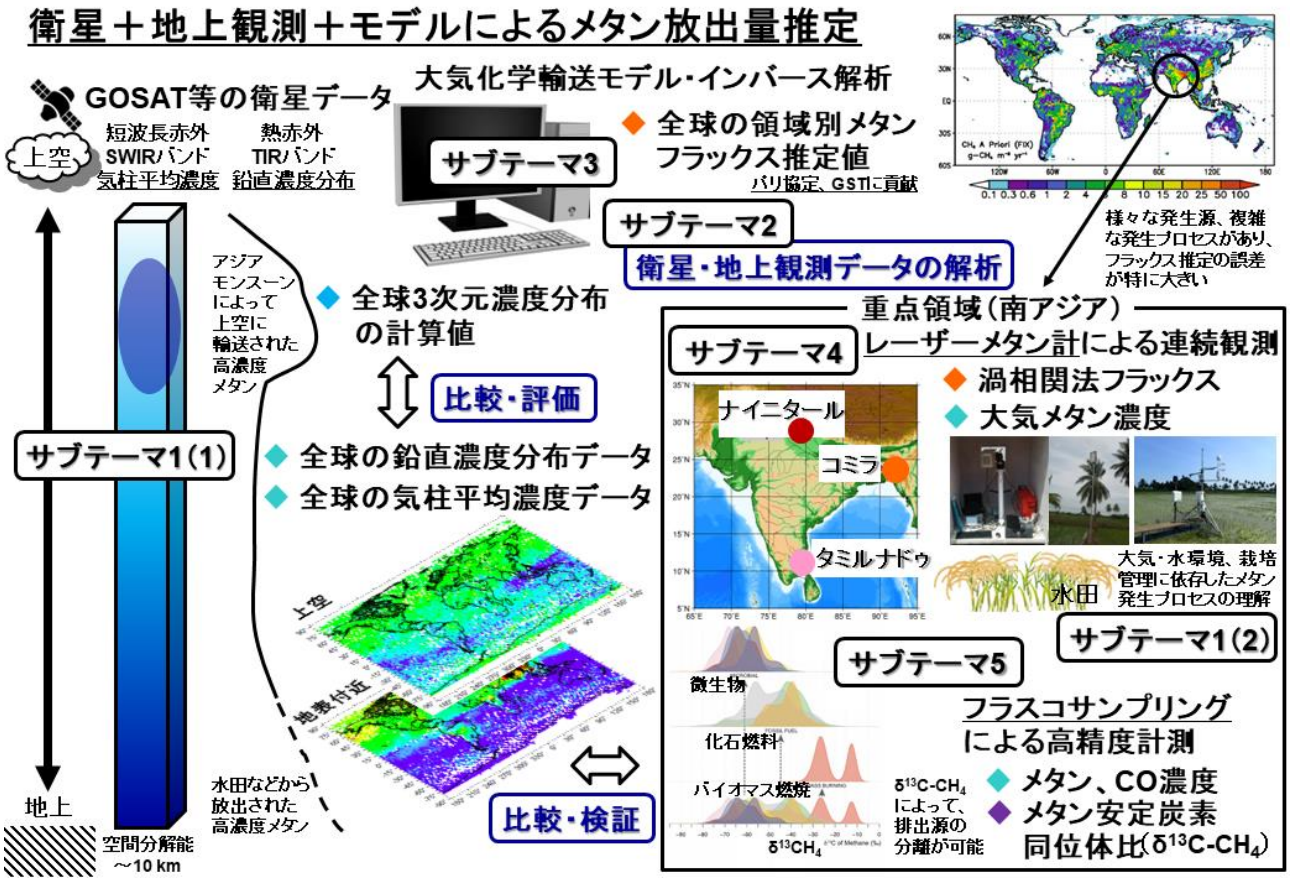


図0．1　本課題の各サブテーマの研究開発目的とサブテーマ間の関係性。

３．研究目標

全体目標	GOSAT、GOSAT-2と地上観測によるメタン濃度データを用いて大気輸送モデルを評価し、従来のモデルよりも濃度の再現性を向上させた上で、観測データをトップダウン手法によるメタン放出量推定のインバース解析に投入し、全球でメタン放出量の推定を行う。インバース解析で推定されたフラックスおよび推定フラックスをもとに計算したメタン濃度を、実測のフラックスデータおよび時空間スケールの異なる地上観測や衛星観測のメタン濃度データと比較することで、包括的なメタン放出量推定の検証を行う。

サブテーマ１	GOSAT/GOSAT-2による全球3次元メタン濃度の高精度導出と評価
サブテーマリーダー/所属機関	齋藤尚子/千葉大学
目標	GOSAT、GOSAT-2から地表および大気下層も含めたメタン鉛直濃度分布を1%程度の精度で導出し、全球で地上観測および航空機観測との比較に基づいたデータ質の検証を行った上で、大気輸送モデルの水平・鉛直輸送過程を評価する。また、南アジアにおいて土壌とメタン等の温室効果気体の放出量の関係を評価し、得られた知見を全球に展開するための方法論を提案する。

サブテーマ２	衛星データと地上観測データの複合利用によるメタン濃度の地域別特性抽出
サブテーマリーダー/所属機関	久慈誠/奈良女子大学
目標	メタン濃度の地域別特性の抽出を行い、時空間スケールの異なる地上観測データおよび複数の衛星観測データを複合的に解析することによって、GOSAT、GOSAT-2のメタンデータの検証方法を確立するとともに、南アジアの季節ごとのメタン発生源と発生プロセスを推定する。

サブテーマ３	全球メタン放出量推定におけるGOSAT/GOSAT-2及び地上観測データの有効性の評価
サブテーマリーダー/所属機関	Prabir Patra/国立研究開発法人海洋研究開発機構
目標	大気輸送モデルの改良を行い、地上・航空機・衛星観測のメタン等の長寿命気体データとの比較を通して改良したモデルを評価した上で、全球でメタン放出量の推定を行う。並行して、LETKFベースのデータ同化システムを開発し、種々の観測データを投入・同化することで、より細かい時空間スケールでメタンの収支を評価し、メタンの放出量推定を精緻化する。

サブテーマ４	メタン発生量評価のための南アジア域メタン濃度連続観測
サブテーマリーダー/所属機関	山本昭範/東京学芸大学
目標	南アジアで地上メタン濃度とフラックスの同時連続観測を実施し、メタン濃度およびフラックスと水田の栽培管理や環境要因（土壌、微気象など）との関係やそのメカニズムを明らかにする。得られた連続観測データをもとに大気輸送モデルで計算されたフラックスの妥当性を評価し、さらにGOSAT、GOSAT-2等の衛星観測の地表および大気下層のメタン濃度データを検証する。

サブテーマ５	南アジア域の大気中メタン濃度及び関連物質の高精度計測
サブテーマリーダー/所属機関	寺尾有希夫/国立研究開発法人国立環境研究所
目標	南アジアでフラスコサンプリングを実施し、メタン濃度およびCO濃度の高精度計測（メタンは±2 ppbの精度）とメタン安定炭素同位体比（$\delta^{13}C$-CH_4）の高精度分析（±0.1‰以下の精度）を行う。それぞれのデータの季節変動と相関から化石燃料起源、微生物起源等のメタンの排出源の分離・評価を行う。特に、南アジアにおける$\delta^{13}C$-CH_4の季節変動の観測は世界初となる。さらに、得られたデータを他サブテーマに提供し、大気輸送モデルの計算データおよびGOSAT、GOSAT-2の観測データの比較・評価に活用する。

４．研究開発内容

本課題では、GOSAT、GOSAT-2の短波長赤外バンド（SWIRバンド）およびTIRバンドから得られるCH_4の3次元濃度分布データを活用し、トップダウン手法に基づいた全球のCH_4放出量推定の確度および精度を改善することを目的とする。まず、GOSAT、GOSAT-2のSWIRバンドおよびTIRバンドから地上の発生源の情報をより反映した下層CH_4濃度を導出し、南アジア（インド、バングラデシュ）で実施するレーザー分光計やフラスコサンプリングによる地上観測データと比較して、GOSAT、GOSAT-2の下層CH_4濃度データを検証する。次に、TIRバンドの鉛直濃度分布データを用いて、発生源からアジアモンスーン循環によって上空・広範囲に輸送されたCH_4の特徴を解析し、大気輸送モデルのCH_4濃度分布の再現性からモデルの鉛直・水平輸送過程の評価および改良を行って、地上で放出されたCH_4の大気中の輸送過程の詳細を明らかにする。また、衛星観測によるCH_4の気柱平均濃度（XCH_4）と地上観測によるCH_4の地表濃度の相関性を確認するとともに、フラスコサンプリングによるCH_4とCOの濃度ならびに$\delta^{13}C$-CH_4の関係性からCH_4発生源の特定を図り、現地での観測に基づいて水田等の人為CH_4放出源からのCH_4放出プロセスの理解を進める。その上で、地上観測・衛星観測のCH_4データをトップダウン手法によるCH_4収支解析システムに投入し、全球CH_4放出量推定における衛星観測データのインパクト評価を行う。このように、地上観測・衛星観測・モデル計算を複合的に組み合わせ、CH_4の放出プロセスの理解と放出量推定の精緻化を図るとともに、包括的なCH_4放出量推定の検証を実施する。

衛星による全球3次元CH_4濃度分布データと大気中の輸送過程について、サブテーマ（1）では、GOSAT、GOSAT-2から地表および大気下層も含めたCH_4鉛直濃度分布を導出するアルゴリズムを開発・改良し、導出されたGOSATのTIRバンドのCH_4データ（GOSAT-TIR CH_4）を航空機観測データ（HIPPO、CONTRAIL/ASE、CARIBIC、JMA）と比較して検証した。また、GOSAT-TIRデータの大気第一層のCH_4濃度と、サブテーマ（5）によって実施された2地点のフラスコサンプリングおよび他の3地点の地上観測のCH_4データを比較した。なお、GOSAT-2については、研究開始当初、TIRバンドの観測輝度スペクトルの精度がCH_4濃度の導出には

十分ではなかったために包括的な検証解析には至っていない。さらに、GOSAT-TIR CH_4データからXCH_4を算出し、同期するSWIRバンドのXCH_4と比較して、SWIRバンドとTIRバンドのCH_4濃度データの同質性を評価した。次に、南アジアを10領域に分けて、GOSAT-TIR、サブテーマ（3）で開発・改良した大気化学輸送モデルMIROC4-ACTM、旧モデルのAGCM-ACTMのXCH_4、5つの高度層の部分気柱濃度（$XpCH_4$）、およびXCH_4の季節変動に占める各高度層の$XpCH_4$の季節変動の割合（寄与率）を比較し、モデルの鉛直輸送の評価を行うとともに南アジアのCH_4濃度の季節変動に影響を与える要因を調査した。さらに、サブテーマ（3）と協力し、MIROC4-ACTMモデルを用いて全球および54領域別に2000-2020年のCH_4放出量を推定するインバース解析を実施した。インバース解析はGCP（Global Carbon Project）のプロトコルに倣い、60サイトの地上観測データを使用した。また、サブテーマ（5）で実施したフラスコサンプリングのCH_4観測データをインバース解析に導入した場合のCH_4収支推定へのインパクトを評価した。

CH_4等の収支解析を行うにあたり、サブテーマ（3）では、まず、大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMによる六フッ化硫黄（SF6）、CH_4、CO_2、N_2Oの濃度のシミュレーション結果と、日本－欧州間、日本－オーストラリア間の航空機観測（CONTRAIL ASE/MSE）による濃度を、緯度帯別、季節別、温位別に比較し、モデルの濃度再現性を評価した。その上で、MIROC4-ACTMベースのインバース解析システムを構築し、陸域の53領域でCH_4のインバース解析を行い、月別の総CH_4排出量を推定した。また、陸域の54領域、海洋の30領域の計84領域でN_2Oのインバース解析を行った。さらに、より小さな空間スケールでCH_4収支を評価するためにLETKF（Local Ensemble Transform Kalman Filter）ベースのデータ同化システムを開発し、アンサンブルスプレッドの縮退を緩和する方法である二種類のインフレーション法（FM法、RTPS法）の効果を比較するとともに、地上観測のCH_4データおよびGOSATのSWIRバンドのXCH_4データ（疑似観測データ）を同化するシミュレーションを行った。また、2次元ボックスモデルを用いて、各半球のCH_4濃度と$\delta^{13}C$-CH_4のシミュレーション計算を実施した。その際、工業由来のCH_4排出量の事前推定値を修正したケースについても計算を行い、従来のCH_4排出インベントの妥当性の評価を行った。

衛星観測のXCH_4と地上観測のCH_4地表濃度の解析では、サブテーマ（2）で、北インドでサンプリングされた空気塊の時系列と3日間の流跡線解析による空気の起源解析を行った。サンプリングは2014年にKarnalで、2015-2017年にSonepatで実施されたものである。さらに、Sentinel-5P/TROPOMIの衛星XCH_4データの解析、全球およびインド上空でTROPOMIとGOSATおよびGOSAT-2のSWIRバンドのXCH_4、XCOデータの統計比較を行った。GOSAT-2については、カラム平均気体濃度プロダクト(V01.04)、クロロフィル蛍光・proxy法プロダクト（V01.03）の二種のプロダクトを比較対象とした。

南アジアの水田からのCH_4放出プロセスの理解のために、サブテーマ（1）では、インド南部の2地点（タミルナドゥ水稲研究所（TRRI）と土壌・水管理研究所（SWMRI）で土壌を採取し、常法でpH（H_2O）、pH（KCl）、電気伝導度（EC）、全炭素量、全窒素量、水溶性炭素量、遊離鉄含量、粒径組成、土色（マンセル土色帳と分光測色計）を測定した。また、水田土壌で湛水嫌気培養を行ってCH_4生成量を測定した。また、CH_4生成量に及ぼす影響因子を探るために、水田土壌に稲わら、バイオ炭、化学肥料（尿素）を添加し、潜在的なGHG生成量（CH_4、CO_2、N_2O）を測定した。

サブテーマ（4）では、TRRIにおいて1年間に2回から3回の水稲栽培を行い、大気CH_4濃度とCH_4フラックスの連続観測を実施した。大気CH_4濃度の測定にはオープンパス方式のレーザー分光計を用い、気象データ（気温、相対湿度）と大気サンプリングによる大気CH_4濃度データを用いた密度補正を行った。CH_4フラックスについては、観測タワーの風上側の平均的なフラックスを30分単位で連続測定できる渦相関法を用いて測定した。測定機器としてオープンパス方式のCH_4分析計と超音波風速温度計・CO_2/H_2O分析計を使用した。さらに、一次元大気境界層モデルを用いて大気CH_4濃度の日変化に対する水田からのCH_4フラックスの影響を評価し、DNDC-Riceモデルを用いてCH_4フラックスの季節変化を詳細に解析した。

南アジアのCH_4発生源の特定を図るために、サブテーマ（5）では、国立環境研究所でそれぞれ2006年、2012年から実施しているヒマラヤ山麓・ナイニタール（NTL）およびバングラデシュ水田地帯・コミラ

（CLA）における大気サンプリングを継続して行い、実験室で高精度に大気中CH_4濃度とCO濃度を分析した。さらに、CH_4発生源を分離評価するために、NTLとCLAで採取した大気試料のCH_4のδ^{13}C-CH_4の高精度分析を行った。大気試料の採取は週に1回、NTLでは毎週水曜の現地時間14時に、CLAでは毎週金曜の現地時刻14時から16時に行った。CH_4については±2 ppbの精度で、δ^{13}C-CH_4についてはNTLとCLAの大気試料を平均で0.1‰以下の標準偏差で分析を行った。

５．研究成果

５－１．成果の概要

本課題では、サブテーマ（1）でGOSATのTIRバンドの高波数分解能を活かしてCH_4の鉛直濃度分布を全球で高精度に導出し、得られたCH_4の全球3次元濃度の時系列データ（GOSAT-TIR CH_4データ）を活用して、サブテーマ（3）で開発した大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMの輸送過程を評価し、トップダウン手法に基づく全球のCH_4放出量推定の確度および精度を改善した。

サブテーマ（1）では、GOSAT-TIR CH_4データと航空機観測CH_4データの比較(631-237 hPa)から、GOSAT-TIR CH_4データの導出精度はどの高度層でも低緯度では概ね10-15 ppb程度、中緯度では概ね20 ppb（約1%）程度であること、また、同期するSWIRバンドのXCH_4とGOSAT-TIR CH_4データから算出したXCH_4の比較から、バックグラウンド領域では両者が1%以内で一致していることを確認した。GOSAT-TIRデータの大気最下層のCH_4濃度とサブテーマ（5）で実施したインドのNTLとバングラデシュのCLAのフラスコサンプリングのCH_4濃度の比較では、図1．7に示す通り、CLAにおいてはGOSAT-TIRデータはCH_4濃度の絶対値を過小評価する傾向にあるが、NTLにおいてはCH_4濃度の季節変動、絶対値ともにGOSAT-TIRデータはフラスコサンプリングのCH_4濃度とよい一致を示していた。一方、SWIRバンドによるXCH_4の観測ではNTL、CLAのいずれにおいても地表のCH_4濃度およびその変動を過小評価していた。

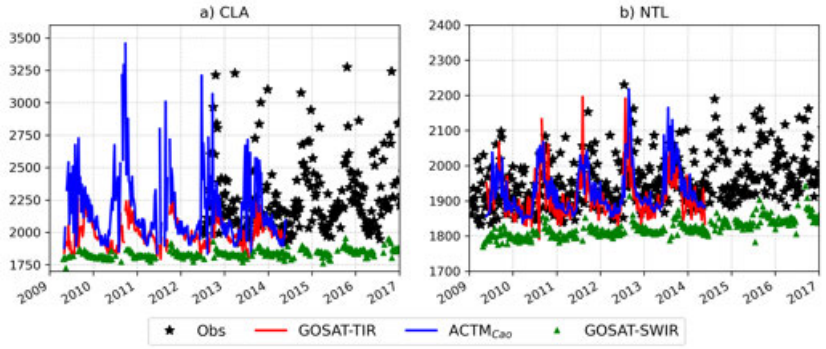


図1．7　NTLとCLAにおける地表CH_4濃度の週平均値の比較結果。赤線、黒シンボル、青線はそれぞれGOSAT-TIRデータの大気第一層、フラスコサンプリング、MIROC4-ACTMのCH_4濃度。緑シンボルがGOSATのSWIRバンドのXCH_4。

南アジアの各領域で、GOSAT-TIR、MIROC4-ACTM、旧モデルのAGCM-ACTMのXCH_4の季節変動に対する各高度層の$XpCH_4$の季節変動の寄与率を比較したところ(図1．8)、特に発生源がある陸域においてMIROC4-ACTMとGOSAT-TIRのXCH_4に対する下部対流圏（LT層）の寄与率がよい一致を示しており、MIROC4-ACTMとGOSAT-TIRのXCH_4とその季節変動はAGCM-ACTMと比べると互いに近い特徴を持っていたことから、上空へのCH_4の輸送は新たに開発・改良されたMIROC4-ACTMの方が従来のAGCM-ACTMと比べてより現実的であることがわかった。南アジアでは、モンスーン循環に伴う上昇流のために上空でCH_4が高濃度になっているが、GOSATの観測によって先験値が「修正」され、GOSAT-TIR CH_4データは上空でより高濃度となっており、結果としてGOSAT-TIR CH_4データとMIROC4-ACTM CH_4データが互いによい一致を示すようになったことで、両者のCH_4の水平・鉛直輸送の妥当性が例証された。

また、輸送過程を評価したMIROC4-ACTMによるインバース解析において、GCP(Global Carbon Project)の60サイトの地上観測データのみを用いた場合と、60サイトに加えてNTLおよびCLAのフラスコサンプ

リングのCH_4観測データを用いた場合を比較したところ、中央アジアおよび東アジアの広い領域でのCH_4収支推定の不確実性が5-20%と大きく減少していることがわかった（図1. 13）。このことから、本研究で実施した南アジアの大気観測が、南アジアのみならず、CH_4排出量が特に大きいアジア域全体のCH_4収支推定にとって有益であることが示された。

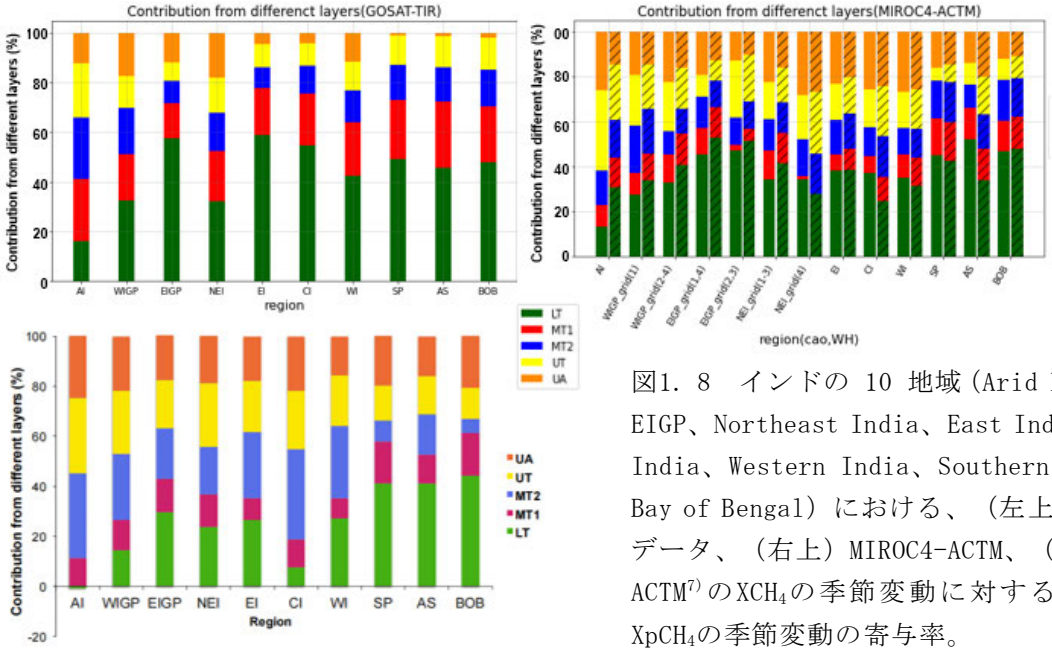


図1. 8　インドの 10 地域（Arid India、WIGP、EIGP、Northeast India、East India、Central India、Western India、Southern Peninsula、Bay of Bengal）における、（左上）GOSAT-TIR データ、（右上）MIROC4-ACTM、（左下）AGCM-ACTM[7] のXCH_4の季節変動に対する各高度層の$XpCH_4$の季節変動の寄与率。

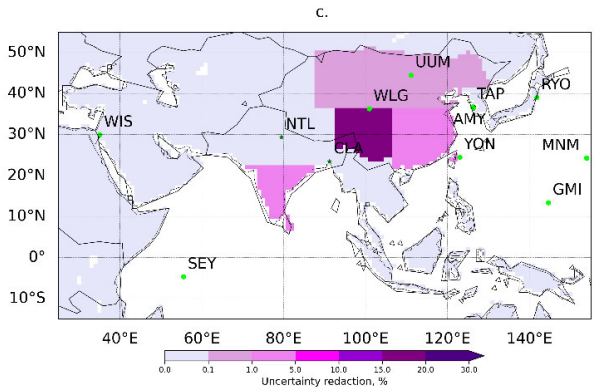


図1. 13　GCPの60サイトの観測データにNTLとCLAの観測データを追加した場合のMIRC4-ACTMのインバース解析によるCH_4放出量推定の不確実性の低減率（%）。

サブテーマ（3）で、CONTRAIL航空機観測とMIROC4-ACTMシミュレーションによるGHG濃度を温位別に比較した結果、モデルが概ね観測値の変動範囲内でGHG濃度を再現できていること、モデルと観測のCH_4濃度の差は両者の経年変動の濃度幅の範囲に収まっており、観測、モデルともに325 K以上のCH_4濃度は明瞭な季節変動を示していることがわかった。GHG濃度再現性を評価したMIROC4-ACTMによるインバース解析システムを構築し、N_2Oの全球・領域別の収支評価を行った結果、1997-2019年のN_2O排出量の事後推定値は陸域の多くの領域で大きな経年変動と系統的な増加を示しており、系統的な増加はほとんどの領域で排出量シナリオの事前推定値と同様であったが、熱帯アメリカや中央アフリカでは排出量の事後推定値の増加率が事前推定値の2倍以上の速さとなっていた。これは、一部の地域で農地への施肥の1 kgあたりのN_2O排出係数が過小評価されているためであると考えられる。

また、より小さな空間スケールでCH_4収支を評価するために開発したLETKF（Local Ensemble Transform Kalman Filter）ベースのデータ同化システムでCH_4フラックスの再現性を評価したところ、多くの領域で事前推定値と比較して事後推定フラックスが真値フラックスとよい一致を示していることがわかり（図3. 3）、本研究で開発したLETKFシステムが地上観測データの同化のみで大陸のCH_4フラックスの空間パターンを再現できることが示された。一方、GOSATのSWIRバンドのXCH_4疑似観測デ

ータの同化の場合、密な観測を同化する場合に比べて誤差が大きくなるが、これは観測が疎であることに加えて観測に含まれるCH_4フラックスのシグナルが比較的希薄であるためと考えられ、SWIRバンドのXCH_4データとともにTIRバンドのCH_4鉛直濃度分布を同化することで改善できる可能性が示された。

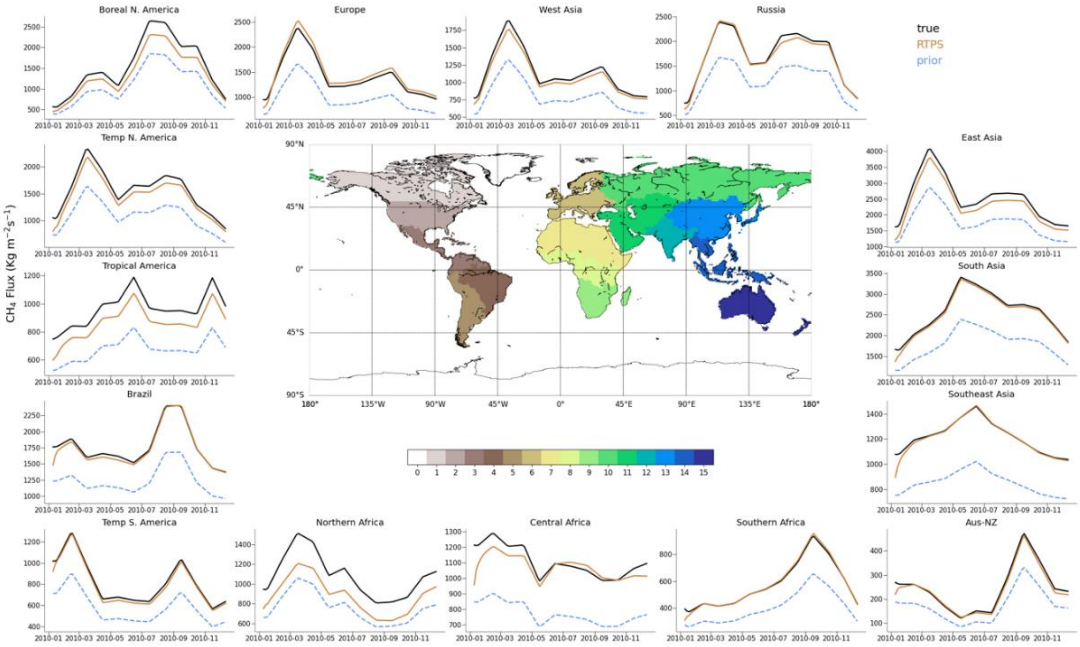


図3．3　15領域におけるCH_4の地上観測データ同化後の年間総CH_4フラックスの季節サイクル。真値(黒)、事前推定値（青破線）、LETKFのRTPSインフレーション法による事後推定値（橙）。

さらに、2次元ボックスモデルシミュレーションによるδ^{13}C-CH_4の事前推定値および事後推定値と観測値の時系列を比較して全球CH_4排出トレンドの整合性を検証したところ（図3．7）、事前推定値の排出源セクターを用いたモデル（A prior）は、観測されたδ^{13}C-CH_4の1988-1998年の増加と1999-2006年の準定常状態は十分に再現できていたが（～0.05 ‰以内）、2008年以降のδ^{13}C-CH_4の急激な減少を再現することはできないことがわかった。そこで、事前推定値であるEDGAR v4.3.2の漏洩排出（fugitive emissions）の排出トレンドを中国本土のより新しい排出量インベントリで調整し、さらに2011年の排出量を88.6 Tg/yrから2016年の83.5 Tg yr^{-1}へと徐々に削減したところ、観測値のδ^{13}C-CH_4減少に対するモデルの再現性が向上することがわかった(A prior+PRO)。このことより、EDGAR v4.3.2の漏洩排出の増加量は過大評価（～20.8 Tg yr^{-1}）である可能性が示された。

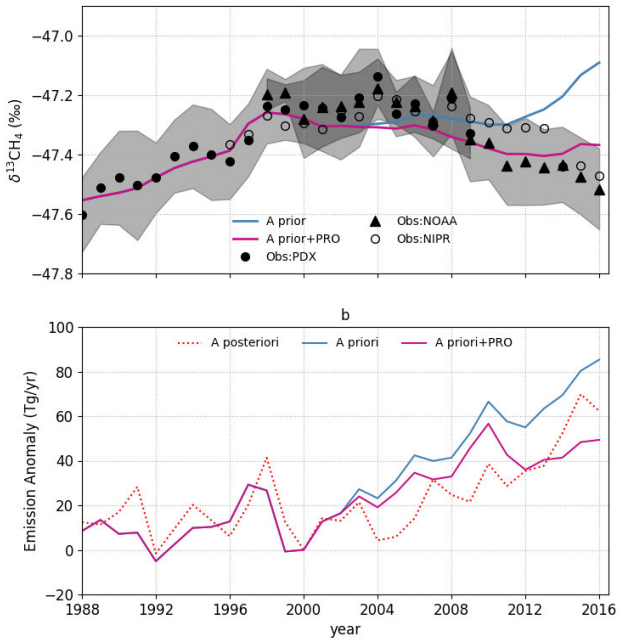


図3．7　δ^{13}C-CH_4の時系列シミュレーション。（a）北半球における観測値（シンボル）とモデル値（線）。2つの異なる事前推定値の排出量について計算した結果を示す。ここで、工業排出源セクター（PRO）は、EDGAR v4.3.2の全球排出量を2003年から2010年までの期間について中国本土のより新しい排出量インベントリで調整し、さらに排出量を2010年の90 Tg yr^{-1}から2016年の85 Tg yr^{-1}まで緩やかに減少させた。（b）全球の総排出量のアノマリー。

サブテーマ（2）では、北インドの水田地帯で採取された大気の起源を明らかにするとともに、データが蓄積されつつあるCH_4気柱平均濃度の衛星観測データの解析により南アジアのCH_4発生の地域的特性や時間変動を解明した。

サブテーマ(2)で、KarnalとSonepatのサンプリングで採取された大気のCH_4濃度の時系列を解析し、全体の傾向として冬季、特に12月や1月に高濃度になっている特徴を見出した。冬季に見られる高濃度CH_4の原因を探るために3日間の後方流跡線解析を行ったところ、高濃度イベントが多く観測されている12月では北西方向からの空気塊の流入が示されていた。そこで、観測地点を中心として、北西・北東・南東・南西方向に空気塊が位置した時間によって、方向を場合分けして分類した。滞留時間の閾値を75%とした場合と閾値なしの結果を図2.4を示す（上段は75%以上滞在、下段は閾値なし）。複数の閾値の結果も総合的に調べたところ、モンスーン時期に南西からの流入傾向が明瞭で、それ以外の期間は全体に北西からの流入が卓越していることが示された。インド北西部に何らかのCH_4の発生源が存在する可能性が考えられる。またサンプリングで同時に得られたCOについても同様に冬季に高濃度であり、両者に正の相関が確認された。

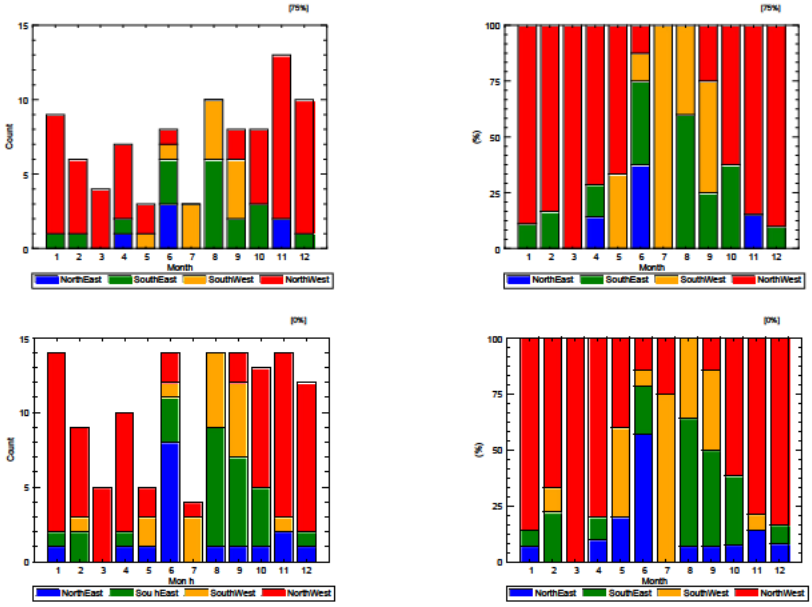


図2. 4　3日間の空気塊分類による空気塊起源分類。4つの色は方向を表す。青：北東、緑：南東、橙：南西、赤：北西。左パネルは流跡線の数、右パネルは相対値（%）を示す。

2019年3月から10月までの全期間についてGOSAT、GOSAT-2とTROPOMIのXCH_4の統計比較を行った結果、全球ではGOSAT、GOSAT-2とTROPOMIの相関は0.8近くあり、バイアスも極めて小さく、両者の一致は良好であることがわかった（表2. 3）。インド上空に限った場合、バイアスについては全球に比べて大きくなっているが、最も絶対値が大きい場合でも-5.7 ppbv（GOSAT SWFP-RA）であり、全体にはよく一致しているといえる。一方、XCOの全期間の比較では、GOSAT-2がTROPOMIより高い傾向を示していた。

表2. 3　全球のGOSAT、GOSAT-2の各プロダクトとTROPOMIの比較（XCH_4）。

GOSAT Product	Version	Data Count	R	R^2	BIAS (ppb)
GOSAT-2 SWFP	01.04	19405	0.785	0.617	-5.00
GOSAT-2 SWPR	01.03	28074	0.781	0.610	-2.00
GOSAT-1 SWFP-RA	02.90	19628	0.819	0.671	-2.00
GOSAT-1 SWFP-GUsub	02.95	15105	0.826	0.683	0.00

南アジアの水田からのCH_4放出プロセスの理解のために、サブテーマ（1）とサブテーマ（4）が連携して、南インドの水田で土壌の採取およびCH_4生成量等の測定、CH_4フラックスおよび大気CH_4濃度の長期・連続観測を実施し、重要な人為CH_4放出源の一つである水田からのCH_4放出メカニズムを解明するとともに、CH_4放出量低減の可能性を示した。

サブテーマ（1）で、インド南部の水田および水田以外の土壌を採取し、土色を測定したところ、鉄含量と赤さの間に有意な相関関係は見出されなかった。一方、全炭素量と明度の間には負の相関があり決定係数も高いことから、インドの水田土壌でも有機物量の予測に使える可能性が示唆された（図1．15）。このことにより、土色はこのままでは鉄含量の指標とはできないが、土壌有機物量と組み合わせてCH_4放出量推定の指標となることがインドの水田土壌において確認され、東南アジア4か国の水田土壌での結果と類似の傾向が見られることから、今後、リモートセンシングの土色データなどと組み合わせて全球CH_4放出量の推定を可能にする方法論が提案できた。

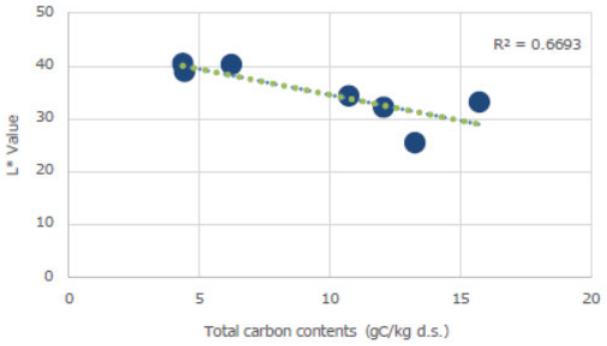


図1．15　土色と土壌全炭素含量の関係。

さらに、2地点の水田土壌の理化学性および稲わら、バイオ炭、化学肥料の施用によるCH_4生成量の変化への影響を調べた結果、両土壌ともCH_4生成量は稲わらにより促進されたが、バイオ炭で抑制された（図1．18）。一方、CO_2生成量は稲わらによる促進は認められたが、バイオ炭による抑制は認められなかった。このことより、南インド水田土壌中で稲わら添加はGHG生成を促進するが、バイオ炭を併用すればCH_4生成を抑制すること、また尿素施用の影響はわずかであることが見出された。これらの知見から、CH_4放出量推定の精緻化には土色以外の土壌の理化学性や施肥管理も考慮する必要があることを示唆された。

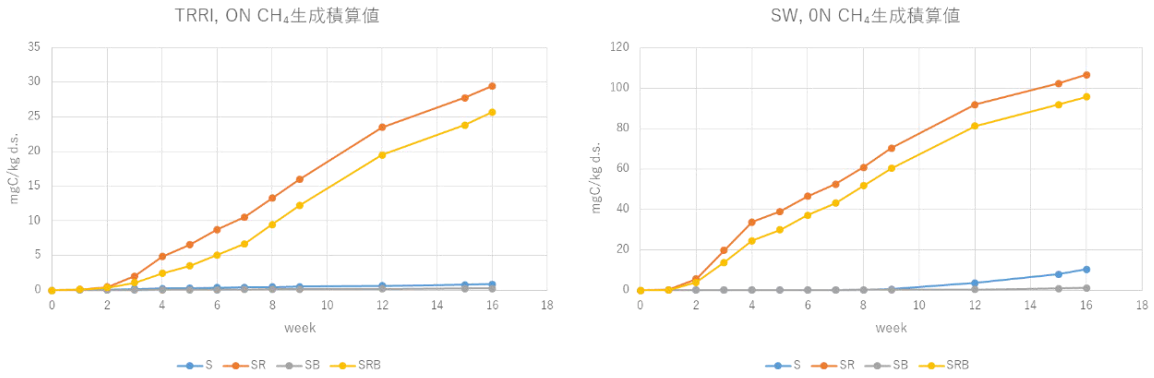


図1．18　南インド水田土壌中のCH_4生成積算量に及ぼす稲わら、バイオ炭施用の影響。（S：土壌のみ、SR：土壌＋稲わら、SB：土壌＋バイオ炭、SRB：土壌＋稲わら＋バイオ炭）。

サブテーマ（4）で、インド南部の水田地帯で大気CH_4濃度およびCH_4フラックスの連続観測を実施したところ、観測地域の大気CH_4濃度は6月から10-11月頃にかけて増加し、その後減少するという季節変化を示すことが明らかになった（図4．4a）。一方、渦相関法によるCH_4フラックスは、水稲栽培期間（*Thaladi*2016、*Samba*2018、*Summer rice*2019、*Summer rice*2020、*Samba*2020）に着目すると、水稲の栽培開始から徐々にCH_4フラックスが増加し、期間の後半に減少する時間変化を示した（図4．4c）。

また、水稲栽培と水稲栽培の間の期間（栽培間期）において、CH_4フラックスが突発的に増加することが明らかになった。

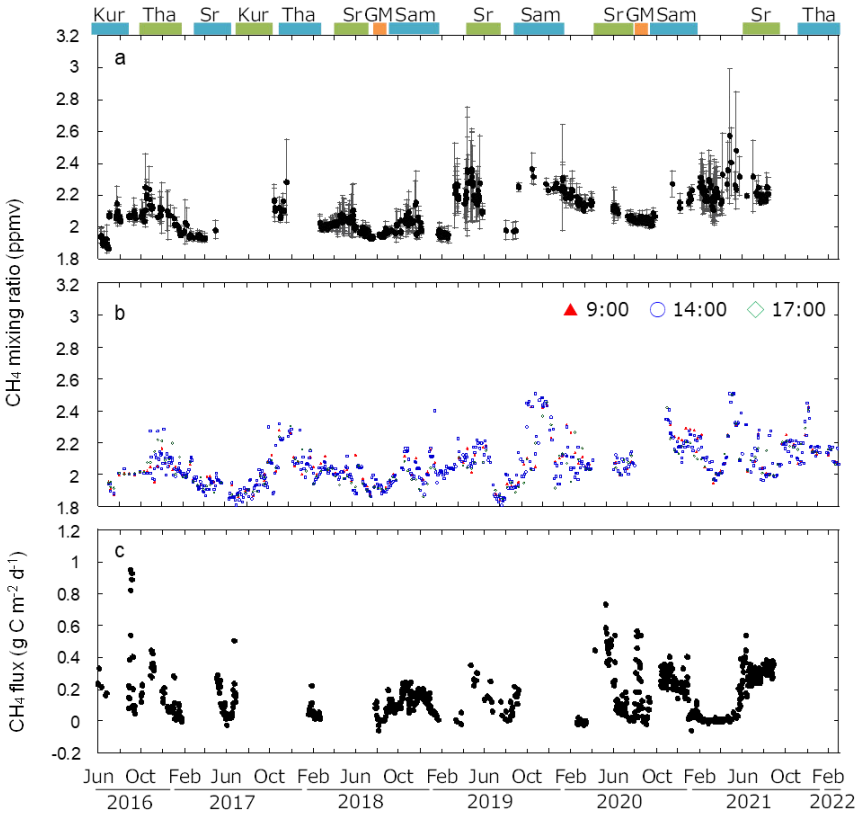


図4. 4 (a)レーザーCH_4計による大気CH_4濃度、(b)大気サンプリングによる大気CH_4濃度、(c)CH_4フラックスの季節変化。「Kur」は*Kuruvai*、「Tha」は*Thaladi*、「Sr」は*Summer rice*、「Sam」は*Samba*（調査地域の作期の現地名称）、GMは緑肥栽培を示す。カラーバーは各作期および緑肥栽培の期間を示す。

季節変化スケールにおける大気CH_4濃度（日中の10時から16時の濃度平均値）とCH_4フラックスの関係を調べたところ、大気CH_4濃度はCH_4フラックスの増加に伴い増加することが明らかになった（図4. 5）。大気CH_4濃度の増加傾向は作期によって異なり、緑肥期間における増加傾向は水稲栽培期間よりも小さかった。このように、各期間における大気CH_4濃度の季節的な時間変化には、水田からのCH_4放出の変化が重要な因子であると考えられる。

日変化については、大気CH_4濃度は全ての期間において日中に低下し、夕方から早朝にかけて増加する変化を示した（図4. 7a）。風速の低下に伴って大気CH_4濃度が増加しており、風速の低下に伴って地表面付近の大気の混合が抑制されたことが要因と考えられる。一方、CH_4フラックスは期間によって日変化パターンが異なり、水稲栽培期間におけるCH_4フラックスは日中に最大となる明瞭な変化を示した（図4. 8a）。緑肥期間の日変化パターンは水稲栽培期間ほど明瞭でなく、CH_4フラックスの最大値も水稲期間に比べて低かった。

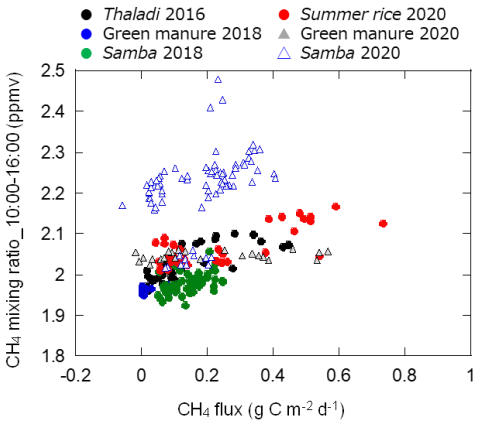
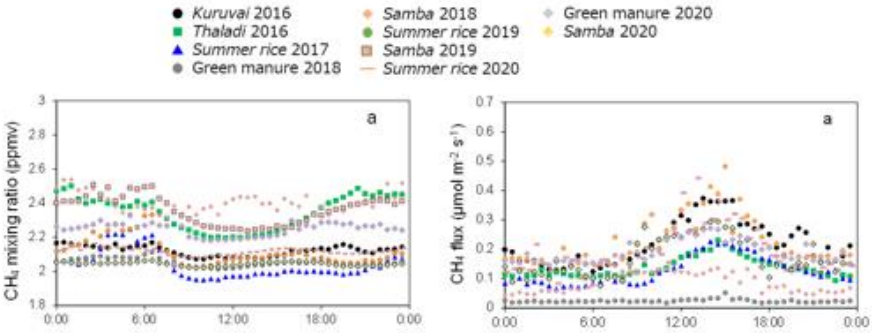


図4. 5 各栽培期間におけるCH_4フラックスと大気CH_4濃度（10:00-16:00の平均値）の関係。*Thaladi*、*Summer rice*、*Samba*は調査地域の作期の現地名称、Green manureは緑肥栽培を示す。



Kuruvai、*Thaladi*、*Summer rice*、*Samba*は調査地域の作期の現地名称、Green manureは緑肥栽培を示す。

図4．7a　大気CH_4濃度の日変化。　　図4．8a　CH_4フラックスの日変化。

大気CH_4濃度の日変化に対する水田からのCH_4フラックスの影響を評価するため、一次元大気境界層モデルによる解析を行ったところ、実測のCH_4フラックスの大きさや日変化パターンに差があるにも関わらず、一次元大気境界層モデル解析による大気CH_4濃度の時間変化が同程度であることから、大気CH_4濃度の日変化に対するCH_4フラックスの影響は小さいことがわかった。一方、風速の影響を考慮することによって、モデル解析による大気CH_4濃度の日変化が実測の大気CH_4濃度の日変化と似た時間変化パターンを示したことから、大気CH_4濃度の日変化には移流の影響が大きいことが明らかになった。

サブテーマ（5）では、地上観測の空白域である南アジアで大気中のCH_4とCOの濃度およびδ^{13}C-CH_4の長期・高精度観測を実施して南アジアのCH_4発生源の分離を行った。コロナ禍であったが、北インド山岳地帯NTLとバングラデシュ水田地帯CLAにおいて、大きな欠測なく順調に大気サンプリングと濃度分析を進めることができた。特にNTLは南アジアにおけるGHG観測データとして最長レコードであることに加え、南アジアでのδ^{13}C-CH_4観測はこれまでに例がなく、世界的に見ても非常に重要な観測データとなった。また、NTLとCLAのフラスコ観測データ計16件をDOI付きで一般公開した。

CH_4濃度について、NTLは7-9月のモンスーン期に極大となる季節変動パターンが観測された。CLAは7-9月のモンスーン期に極小(だかNTLと同程度の濃度)となり、秋と12-１月にNTLより高濃度の極大が観測された。また、CO濃度については、CLAにおいて冬期に濃度の増大が観測され、MTLにおいてもCLAより濃度は低いものの冬期のCO濃度増大が観測された。7-9月のモンスーン期は、NTLとCLAともに極小を取っていた。

NTLとCLAで観測されたCH_4とCOの濃度の季節変動はアジアモンスーンに伴う大気循環場と農業形態の変動で説明できると考えられるため、NTLについては7-9月のモンスーン期（ガンジス川流域空気塊）とそれ以外、CLAについては4-7月のモンスーン期（洪水）、8-11月の秋季稲作期、12-3月の冬季稲作期に分けてCH_4排出源の解析を行った。CH_4濃度変動とδ^{13}C-CH_4変動の関係性を調べたところ、NTLとCLAともにCH_4濃度変動に相関したδ^{13}C-CH_4変動が観測されたが、CLAでは1500 ppb程度のCH_4濃度変動に対応してδ^{13}C-CH_4も-51‰から-47‰の間で大きく変動している一方、NTLではCH_4濃度変動幅が200 ppb程度であるのに対してδ^{13}C-CH_4の変動幅は約1‰と比較的小さいことがわかった（図5．6）。δ^{13}C-CH_4変動とCH_4排出源との関係を探るために、CH_4濃度とδ^{13}C-CH_4のキーリングプロット解析をモンスーン循環と農業形態を考慮した季節区分ごとに行ったところ（図5.7）、NTLでは、CH_4濃度が増加するとδ^{13}C-CH_4が小さくなることが明らかとなった。NTLで観測されたCH_4濃度変動を引き起こす排出源は年間を通じて-53.8±0.3‰の同位体の特徴を示すことから、この地域の代表的な値を捉えていると考えられた。一方、CLAでは、秋季稲作期（8-11月）のCH_4濃度増大を引き起こした排出源のδ^{13}C-CH_4は-52.6±0.8‰と推定され、微生物起源（コミラの環境を考慮すると水田起源）が主であることが強く示唆された（微

生物起源73%、バイオマス燃焼起源15%と推定）。一方、冬季稲作期（12-3月）のCH_4濃度増大を引き起こした排出源のδ^{13}C-CH_4は-46.5±0.8‰と推定され、高いδ^{13}C-CH_4値を持つ排出源の影響を受けていることが示唆された（微生物起源56%、バイオマス燃焼起源32%と推定）。

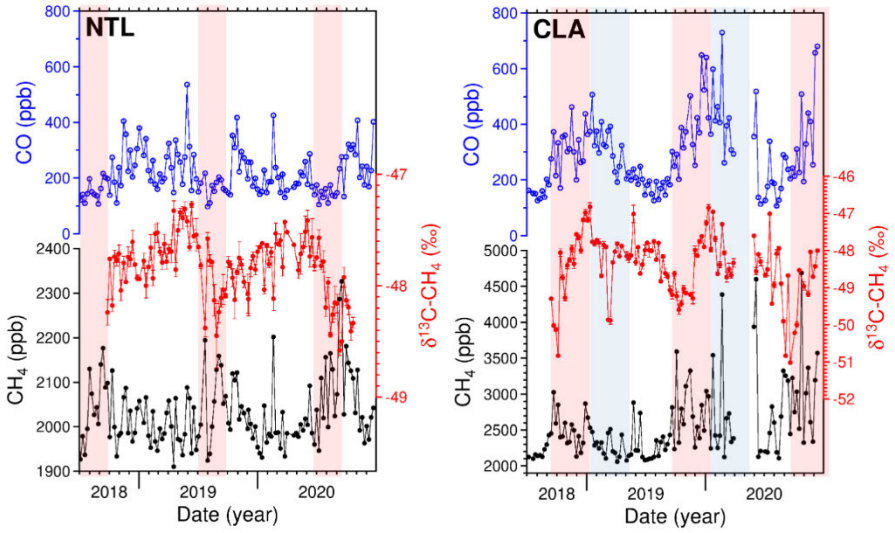


図5．6　ナイニタール（左）とコミラ（右）で観測されたメタン濃度（黒）、CO濃度（青）とδ^{13}C-CH_4（赤）の時系列。ナイニタールのピンクハッチ（7-9月）はガンジス川流域空気塊を、コミラのピンクハッチ（8-11月）は秋季稲作期、水色ハッチ（12-3月）は冬季稲作期を示す。

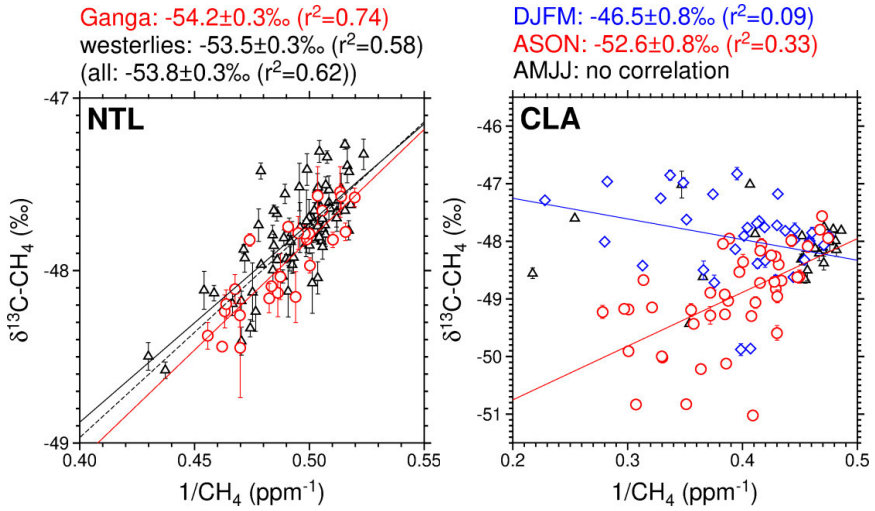


図5．7　ナイニタール（左）とコミラ（右）で観測されたメタン濃度とδ^{13}C-CH_4のキーリングプロット。直線は、最小二乗回帰直線を表す。色はモンスーン循環と農業形態を考慮した季節区分を表し、ナイニタールの赤が7-9月、黒がそれ以外、コミラの赤が8-11月、青が12-3月、黒が4-7月を示す。

CO濃度は、観測された空気中の微量成分が燃焼起源であるかどうかを示すトレーサとして有効である。そこで、CLAのCO濃度の変動に着目すると、秋季稲作期と比べて冬季稲作期はCO濃度が増大していることが観測された。この結果は、δ^{13}C-CH_4観測結果から得られた冬季稲作期のバイオマス燃焼起源CH_4の割合の増大と整合的である。

また、EDGAR v5.0インベントリにおけるインドとバングラデシュのCH_4排出源を微生物起源、化石燃料起源、バイオマス燃焼起源に分け、それぞれのδ^{13}C-CH_4を-60‰、-40‰、-25‰と仮定すると、EDGAR v5.0インベントリから推測されるCH_4排出源のδ^{13}C-CH_4はインドで-55.4‰から-53.9‰、バングラデシュで-57.6‰から-57.2‰となった。NTLの観測で得られたCH_4排出源のδ^{13}C-CH_4はEDGARインベントリと

近い値であったが、CLAの観測結果はEDGARインベントリと大きく異なった。CLAの観測がどれだけバングラデシュ国を捉えているのかはさらなる解析が必要だが、この結果は、EDGARインベントリはバングラデシュのバイオマス燃焼もしくは化石燃料起源のCH_4放出を過小評価している可能性があることを示唆している。

以上述べた通り、本課題の5つのサブテーマの研究によって、地上観測・衛星観測・モデル計算を複合的に組み合わせ、CH_4の放出プロセスの理解と放出量推定の精緻化を図ることができた。

５－２．環境政策等への貢献

＜行政等が既に活用した成果＞

特に記載すべき事項はない。

＜行政等が活用することが見込まれる成果＞

本課題により、大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMにより従来の手法で推定した領域別のCH_4およびN_2Oの収支（排出量・吸収量）、開発したLETKFベースのデータ同化システムによりさらに細かい空間スケールで評価できるようになったCH_4収支の情報は、GCP（Global Carbon Project）やIPCC（Intergovernmental Panel on Climate Change）の評価報告書に提供する予定である。すでに、本課題の成果はIPCC第6次報告書に引用されており、本課題で実施したインバース解析による最新（2000-2020年）のCH_4収支の推定結果はGCPプロジェクトに提供済である。本課題の成果は、国際研究コミュニティと共有することで国際的な環境研究に貢献するとともに、2023年に予定されている第1回グローバルストックテイクにおける排出削減効果の評価のためのベースとなりうる情報であり、環境政策にも大いに貢献できるものと考える。

さらに、南アジアにおいて本課題で実施した地上観測によるGHGデータは、当該地域の国別のGHG排出インベントリ作成に貢献する貴重な基礎データであり、DOI付きで公開したナイニタールやコミラのデータはすでに多くの機関で引用・利用されている。また、本課題の現地測定によって得られた知見は水稲収量維持とCH_4放出量低減の両立を実現する緩和策オプションを提示するものであり、世界の一大食糧庫である南アジアへのこれらの知見の提供は当該地域のみならず我が国の食糧安全保障政策上においても重要な施策である。

５－３．研究目標の達成状況

GOSATからCH_4鉛直濃度分布を導出して、航空機観測データおよび本課題で実施した南アジアの地上観測データのCH_4濃度との比較に基づいてデータ質の検証を行い、GOSATから対流圏のCH_4濃度を全球で1%程度の精度で導出できていることを例証した上で、大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMの輸送過程の精度が従来のモデルよりも向上していることを確認することができた。その上で、MIROC4-ACTMを用いたインバース解析システムを構築して全球および領域別にCH_4等のフラックスを推定し、さらに、LETKFベースのCH_4データ同化システムを開発して従来より細かい時空間スケールで排出源別にCH_4フラックスを推定できることを示した。また、高空間分解能衛星データの活用と地上観測データで得られた空気塊の流跡線解析によって、南アジアのCH_4濃度の地域別特性の抽出および季節別のCH_4発生源の推定を行うことができた。

南アジアでは、水田地帯で地上付近の大気CH_4濃度とCH_4フラックスの連続観測を実施し、大気CH_4濃度とCH_4フラックスの季節変化・日変化等の時間変化パターンとその要因、濃度およびフラックスの栽培管理や環境要因との関係を明らかにすることができた。さらに、水田における土壌とCH_4等のGHGの

放出量の関係を定量的に評価し、得られた知見を用いて全球に展開するための方法論を提案することができた。また、観測空白域である南アジアの2地点で、フラスコサンプリングによるCH_4濃度およびCO濃度の高精度計測とδ^{13}C-CH_4の高精度分析を着実に実施してCH_4排出源の分離評価のための貴重なデータを取得し、データを一般公開するところまでに至った。

インバース解析による推定フラックスをもとに計算したCH_4濃度とGOSATおよび南アジアの地上観測のCH_4濃度との比較、LETKFデータ同化システムにGOSAT XCH_4データを同化した場合のCH_4収支推定結果の評価、南アジアの地上観測データをインバース解析によるCH_4収支推定に利用した場合の不確実性の低減率の評価など、本課題では地上観測・衛星観測・モデル計算を複合的に組み合わせて研究を行った。これにより、CH_4の放出プロセスの理解と放出量推定の精緻化を図り、包括的なCH_4放出量推定の検証を行うことができた。以上のことから、研究目標を十分達成したと考える。

６．研究成果の発表状況

６－１．査読付き論文

＜件数＞

13件

＜主な査読付き論文＞

1) P. K. PATRA, E. J. DLUGOKENCKY, J. W. ELKINS, G. S. DUTTON, Y. TOHJIMA, M. SASAKAWA, A. ITO, R. F. WEISS, M. MANIZZA, P. B. KRUMMEL, R. G. PRINN, S. O'DOHERTY, D. BIANCHI, C. NEVISON, E. SOLAZZO, H. LEE, S. JOO, E. A. KORT, S. MAITY, M. TAKIGAWA: J. Meteorol. Soc. Japan, Ser. II, 100, 2, in press, https://doi.org/10.2151/jmsj.2022-018 (2022) (IF: 2.2)
Forward and inverse modelling of atmospheric nitrous oxide using MIROC4-atmospheric chemistry-transport model.

2) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: Remote Sensing, 13(9), 1677 (2021) (IF: 4.848)
GOSAT CH_4 vertical profiles over the Indian subcontinent: effect of a priori and averaging kernels for climate applications.

3) J. S. H. BISHT, T. MACHIDA, N. CHANDRA, K. TSUBOI, P. K. PATRA, T. UMEZAWA, Y. NIWA, Y. SAWA, S. MORIMOTO, T. NAKAZAWA, N. SAITOH, M. TAKIGAWA: J. Geophys. Res., 126, 4, e2020JD033541, https://doi.org/10.1029/2020JD033541 (2021) (IF: 4.3)
Seasonal variations of SF6, CO_2, CH_4 and N_2O in the UT/LS region due to emissions, transport and chemistry.

4) N. CHANDRA, P. K. PATRA, J. S. H. BISHT, A. ITO, T. UMEZAWA, N. SAIGUSA, S. MORIMOTO, S. AOKI, G. JANSSENS-MAENHOUT, R. FUJITA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, N. SAITOH, J. G. CANADELL: J. Meteorol. Soc. Jpn.. Ser. II, 99, 2309-2337, https://doi.org/10.2151/jmsj.2021-015 (2021) (IF: 2.2)
Emissions from the Oil and Gas Sectors, Coal Mining and Ruminant Farming Drive Methane Growth over the Past Three Decades.

5) S. NOMURA, M. NAJA, M. K. AHMED, H. MUKAI, Y. TERAO, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, P. K. PATRA: Atmos. Chem. Phys., 21, 16427-16452 (2021) (IF 6.133)
Measurement report: Regional characteristics of seasonal and long-term variations in greenhouse gases at Nainital, India, and Comilla, Bangladesh.

6) A. Z. OO, S. SUDO, T. FUMOTO, K. INUBUSHI, K. ONO, A. YAMAMOTO, S. D. BELLINGRATH-

KIMURA, K. T. WIN, C. UMAMAGESWARI, K. S. BAMA, M. RAJU, K. VANITHA, P. ELAYAKUMAR, V. RAVI, V. AMBETHGAR: Agriculture, 10, 355, p16, doi:10.3390/agriculture10080355 (2020) (IF: 2.925)
Field validation of the DNDC-Rice model for methane and nitrous oxide emissions from double-cropping paddy rice under different irrigation practices in Tamil Nadu, India.

7) A. Z. OO, S. SUDO, K. INUBUSHI, U. CHELLAPPAN, A. YAMAMOTO, K. ONO, M. MANO, S. HAYASHIDA, V. KOOTHAN, T. OSAWA, Y. TERAO, J. PALANISAMY, E. PALANISAMY, R. VENKATACHALAM: Agronomy, 8, 202, https://doi.org/10.3390/agronomy8100202 (2018) (IF: 3.417)
Mitigation Potential and Yield-Scaled Global Warming Potential of Early-Season Drainage from a Rice Paddy in Tamil Nadu, India.

６－２．知的財産権

特に記載すべき事項はない。

６－３．その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0件
その他誌上発表（査読なし）	7件
口頭発表（学会等）	54件
「国民との科学・技術対話」の実施	10件
マスコミ等への公表・報道等	5件
本研究に関連する受賞	3件

７．国際共同研究等の状況

１）「南インドにおける農業起源の温室効果ガス放出に関する研究」（サブテーマ1からの委託）
カウンターパート： V. Ravi・タミルナドゥ水稲研究所 所長・インド
南アジア稲作研究の中心地であるタミルナドゥ水稲研究所（Tamil Nadu Rice Research Institute; TRRI）が属するタミルナドゥ農業大学（Tamil Nadu Agricultural University; TNAU）と千葉大学間で共同研究契約（MOU）を締結しており、緊密な連携を図りながら共同研究を行った。サブテーマ（1）では水田土壌中のメタン生成の要因調査、サブテーマ（4）ではメタンフラックスと大気メタン濃度の連続観測、サブテーマ（5）では大気サンプリングを共同研究として実施した。複数のサブテーマ間で連携して共同研究を実施しているため、2018年8月4-9日にRavi所長（当時）を招聘し、関係者間で現地での観測項目・検証方法・観測計画など具体的な共同研究の打ち合わせを実施した。また、研究参画者も現地を訪問し、共同研究の打ち合わせの他、現地の研究スタッフに対して測定方法の講習会を開催し、TNAU主催のオンライン国際会議で講演するなど、温室効果ガス観測の指導・支援も行った。

２）「南インドにおける農業を地球環境と地域経済から考える」（平成30年度千葉大学国際交流公募事業）
カウンターパート： K. Ramaraj、B.J. Pian、V. Ravi・タミルナドゥ農業大学 副学長、所長、

タミルナドゥ水稲研究所 所長・インド

推進費の委託研究において千葉大学とMOUを締結しているTNAUとの連携を加速すべく、平成30年度千葉大学国際交流事業「海外との組織的教育研究交流支援プログラム」に応募した。当該プログラムの支援を受けて2019年1月28日-2月5日に上記のカウンターパート3名を招聘し、一般公開シンポジウムへのゲスト参加、推進費研究参画機関および研究協力者機関（国立環境研究所、海洋研究開発機構、東京学芸大、農業・食品産業技術総合研究機構）への訪問が実現し、現地での測定手法などについてさらなる意見交換を行うことができた。

３）「南アジアにおける温室効果ガス観測の共同実施」

カウンターパート： Manish Naja・アリヤバータ観測科学研究所 研究員・インド
カウンターパート： Kawser Ahmad・ダッカ大学 教授・バングラディシュ

サブテーマ（5）では、インドのアリヤバータ観測科学研究所（Aryabhatta Research Institute of Observational Sciences）およびバングラデシュのダッカ大学（The University of Dhaka）と共同で、大気のフラスコサンプリング観測を実施した。

８．研究者略歴

研究代表者

齋藤　尚子

奈良女子大学理学部卒業、奈良女子大学大学院人間文化研究科修了、博士（理学）、国立環境研究所NIESポストドクフェロー、東京大学気候システム研究センター特任助教、千葉大学環境リモートセンシング研究センター助教、現在、千葉大学環境リモートセンシング研究センター准教授

研究分担者

1）犬伏　和之

東京大学農学部卒業、東京大学大学院農学研究科修了、農学博士、東京大学助手、三重大学助教授、千葉大学園芸学研究科教授、現在、千葉大学名誉教授・特任研究員

2）林田　佐智子

京都大学理学部卒業、名古屋大学大学院理学研究科博士後期課程単位取得満了、理学博士、国立環境研究所主任研究員、現在、総合地球環境学研究所教授、奈良女子大学研究院自然科学系教授

3）久慈　誠

東北大学理学部卒業、東北大学大学院理学研究科博士後期課程中途退学、博士（理学）、現在、奈良女子大学研究院自然科学系准教授

4）Prabir K. Patra

Vidyasagar University卒業、Jadavpur University大学院修士課程修了、Gujarat University大学院博士課程修了、博士（物理学）、Physical Research Laboratoryポストドクトラルフェロー、IBM India Research Laboratory研究員、現在、海洋研究開発機構地球環境部門地球表層システム研究センターグループリーダー代理

5）山本　昭範

北海道教育大学卒業、筑波大学大学院生命環境科学研究科博士後期課程修了、博士（環境学）、農業環境技術研究所特別研究員、現在、東京学芸大学自然科学系准教授

6）寺尾　有希夫

筑波大学第一学群自然学類卒業、筑波大学大学院地球科学研究科博士課程修了、博士（理学）、国立環境研究所NIESポストドクフェロー、ハーバード大学工学応用科学部ポストドクトラルフ

ェロー、現在、国立環境研究所地球システム領域主任研究員

7）梅澤　拓

東北大学大学院理学研究科博士後期課程修了、博士（理学）、東北大学特別教育研究教員、マックスプランク化学研究所ポスドク研究員、国立環境研究所特別研究員、現在、国立環境研究所地球システム領域主任研究員

Ⅱ．成果の詳細

Ⅱ－１　GOSAT/GOSAT-2による全球3次元メタン濃度の高精度導出と評価

千葉大学
環境リモートセンシング研究センター　　齋藤　尚子
園芸学研究科　　犬伏　和之
＜研究協力者＞
環境リモートセンシング研究センター　　Dmitry Belikov（令和元年～令和３年度）

［要旨］

大気中のメタン（CH_4）の放出源の多くは生物由来で多岐にわたっており、モンスーン循環に伴う強い上昇流でしばしば高濃度のCH_4が上空に輸送されるため、全球3次元濃度分布の把握はCH_4の全球収支解析に不可欠である。本研究で、GOSATから全球でCH_4の鉛直濃度分布を高精度に導出し、複数の航空機観測および地上観測のCH_4濃度と比較したところ、対流圏の広い高度範囲（631-237 hPa）でGOSATと航空機観測のCH_4濃度が10-20 ppbの精度で一致していること、GOSATが地上観測のCH_4濃度に見られる明瞭な季節変動の特徴を捉えていることがわかった。GOSATから地表および大気下層も含めたCH_4の鉛直濃度分布を1%程度の精度で導出できていることが例証されたことから、南アジアおよび全球で大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMのCH_4濃度と比較したところ、両者のCH_4濃度の水平・鉛直パターンが互いによい一致を示しており、MIROC4-ACTMのCH_4の水平・鉛直輸送が旧来のモデル（AGCM-ACTM）よりも改善されていることが示された。輸送過程を評価したMIROC4-ACTMで過去20年間のインバース解析を実施し、全球の総CH_4放出量が2000-2005年から2015-2020年で平均42 Tg/yr増加していたことが明らかになった。また、本課題で実施した南アジアでの地上観測のCH_4データをインバース解析に導入したところ、CH_4収支推定の不確定性が大幅に低減したことから、南アジアでの地上観測がCH_4放出量の特に大きいアジア域全体のCH_4収支解析にとって有用であることが示された。

水田はCH_4の重要な人為放出源の一つであり、特にインド南部では、水田由来のCH_4が多く放出されている。CH_4生成量は鉄含量と有機物量のバランスで決まることから、南インドの水田土壌で土壌の採取・CH_4生成量等の測定を実施した。本研究の結果、土色と土壌有機物量を組み合わせることでCH_4放出量の指標となることがインドの水田土壌においても確認され、リモートセンシングの土色データを利用することによる全球CH_4放出量推定の可能性が示された。さらに、南インド水田土壌中で稲わらの添加は温室効果ガス生成を促進するが、バイオ炭を併用すればCH_4生成を抑制できること、また尿素施用の影響はわずかであることが見出されたことから、CH_4放出量推定の精緻化には土色以外の土壌の理化学性や施肥管理も考慮する必要があることが示唆された。

１．研究開発目的

大気中の温室効果ガス濃度の全球分布の把握において衛星観測は極めて有効な手段である。特に、CH_4の放出源の多くはCH_4生成菌等の生物由来であるため、放出源が多岐にわたっており発生プロセスも複雑である。CH_4の一大放出源であるアジア域はモンスーン循環に伴う強い上昇流のため、地上で放出されたCH_4が上空に輸送され、上空でもしばしば高濃度のCH_4が観測されている。上空に輸送されたCH_4はOHラジカルとの消失反応を経ながら水平方向に輸送される。このため、CH_4については、気柱平均濃度の情報だけではローカルな放出源の影響（地表付近が高濃度）と輸送の影響（上空が高濃度）を区別することができないという点で不十分であり、鉛直濃度分布の把握が不可欠である。大気化学輸送モデルによるインバース解析でCH_4の全球・領域別収支解析を行う際にも、モデルが大気中のCH_4の鉛直・水平輸送過程を正しく表現できていることが収支推定の精緻化には不可欠であり、CH_4の全球3次元濃度分布を把握することはモデルの検証・評価においても重要である。サブテーマ（1）では、フーリエ分光計である

GOSAT/TANSO-FTSおよびGOSAT-2/TANSO-FTS-2の熱赤外バンド(TIRバンド)の高波数分解能を活かしてCH_4の鉛直濃度分布を全球で高精度に導出し、航空機観測やサブテーマ（5）で実施している地上観測との比較を通して検証した上で、サブテーマ（3）で開発・改良している大気化学輸送モデルのCH_4の鉛直・水平輸送過程を評価することを目的としている。

メタンの一大放出源であるアジア域において、水田はCH_4の重要な人為放出源の一つである。特に、インド南部では、水田由来のCH_4が多く放出されている。水田由来のCH_4放出量は不確定性も大きく、全球で水田由来のCH_4放出量を把握することは極めて困難である。そこで、サブテーマ（1）では、サブテーマ（4）と連携してインド南部の水田で土壌の採取およびCH_4生成量等の測定を実施し、水田の土壌の理化学性とCH_4放出量の関係性を明らかにすることで、全球で水田由来のCH_4放出量を把握するために利用できる新たな知見を得ることを目的としている。

２．研究目標

GOSAT、GOSAT-2から地表および大気下層も含めたメタン鉛直濃度分布を1%程度の精度で導出し、全球で地上観測および航空機観測との比較に基づいたデータ質の検証を行った上で、大気輸送モデルの水平・鉛直輸送過程を評価する。また、南アジアにおいて土壌とメタン等の温室効果気体の放出量の関係を評価し、得られた知見を全球に展開するための方法論を提案する。

３．研究開発内容

GOSATのメタン鉛直濃度分布の導出と検証解析

GOSAT、GOSAT-2から地表および大気下層も含めたCH_4鉛直濃度分布を導出するアルゴリズムを開発・改良し、導出されたGOSATのTIRバンドのCH_4データ（GOSAT-TIR CH_4）を航空機観測および地上観測のCH_4データと比較して、GOSATのCH_4鉛直濃度分布のデータ質を検証した。ここで、航空機観測データは、HIPPO(HIAPER Pole-to-Pole Observations)キャンペーン観測[1]、CONTRAILプロジェクト[2]のASE(Air Sampling Equipment)観測、CARIBICプロジェクト[3]、厚木基地－南鳥島間の気象庁（JMA）航空機観測[4]のCH_4データを使用した。航空機観測がない上空のCH_4濃度は、ACE-FTSの気候値データセット[5]とCarbon Tracker EuropeのCH_4データ[6]を用いて仮定した。地上観測データは、フラスコサンプリングによる、BKT（インドネシア）、CRI（インド）、SEY（セーシェル）の地表CH_4濃度の月平均値およびのインドのナイニタール（NTL）とバングラデシュのコミラ（CLA）の地表CH_4濃度の週平均値を使用した。なお、NTLとCLAのフラスコサンプリングはサブテーマ5によって実施されたものである。また、検証済みのTIRバンドのCH_4鉛直濃度分布データからCH_4気柱平均濃度（XCH_4）を算出して、同期する短波長赤外バンド（SWIRバンド）のXCH_4と比較し、SWIRバンドとTIRバンドのCH_4濃度データの同質性を評価した。

GOSATと大気化学輸送モデルのメタンの水平・鉛直輸送過程の比較・評価

南アジアをCH_4の放出源・大気輸送を考慮して複数の領域に分け（図1．1）、検証済のGOSATのTIRバンドのCH_4鉛直濃度分布データを用いて、気柱平均濃度(XCH_4)および5つの大気層（下部対流圏(LT)(σ＝1.0-0.8)、中部対流圏下部(MT1)(σ＝0.8-0.6)、中部対流圏上部(MT2)(σ＝0.6-0.4)、上部対流圏(UT)(σ＝0.4-0.2)、上層大気(UA)(σ＝0.2-0.0)）の部分気柱平均濃度($XpCH_4$)を算出した。XCH_4の季節変動に占める各高度層の$XpCH_4$の季節変動の割合を各高度層の「寄与率」と定義し[7]、インドにおけるCH_4濃度の季節変動に影響を与える要因について、サブテーマ3で開発されたMIROC4-ACTMモデル[8]のCH_4データ（MIROC4-ACTM CH_4）との比較を通して考察した。さらに、南アジアの各領域について、GOSAT-TIR CH_4とMIROC4-ACTM CH_4の鉛直濃

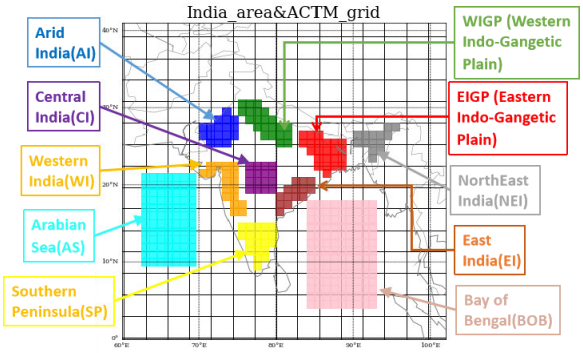


図1．1　南アジアの10領域。

度分布をプレモンスーン期（4-6月）、モンスーン期（7-9月）、ポストモンスーン期（10-12月）に分けて比較し、モデルの水平・鉛直輸送過程を評価するとともに、南アジアにおけるCH_4の大気輸送に対するモンスーン循環のインパクトとCH_4放出量[9]、およびCH_4の半球輸送（inter-hemispheric transport: IHT）について定量的な評価を行った[10]。

メタンの全球・領域別収支解析における南アジア観測のインパクト評価

サブテーマ3と共同で、大気輸送を評価したMIROC4-ACTMモデルを用いて、全球および領域別の2000-2020年のCH_4放出量を推定するインバース解析を実施した。式（1. 1）に、インバース解析で求めるCH_4の月平均エミッションSと誤差共分散C_sを示す[11]。ここで、S_0は各領域のCH_4放出量の先験値、D_{obs}、D_{ACTM}は観測データおよびMIROC4-ACTMモデルによるフォワード計算データのCH_4濃度、C_{S0}、C_DはCH_4放出量の先験値およびCH_4観測データの誤差共分散、Gは領域ごとのソース・レセプター関係を定義するグリーン関数である。本研究では、グローバルカーボンプロジェクト（Global Carbon Project: GCP）のプロトコル[12]に倣い、全球を54領域に分けて（図1. 2）、CH_4エミッションの先験値を7パターン、先験値および観測データの誤差をそれぞれ3パターンずつ設定し、インバース解析を行った。

$$S = S_0 + \left(G^T C_D^{-1} G + C_{S_0}^{-1}\right)^{-1} G^T C_D^{-1} (D_{obs} - D_{ACTM}) \qquad \text{式（1. 1）}$$
$$C_S = \left(G^T C_D^{-1} G + C_{S_0}^{-1}\right)^{-1}$$

観測データとして、60サイト（図1. 2）でNOAA（National Oceanic and Atmospheric Administration）[13]、CSIRO（Commonwealth Scientific and Industrial Research Organisation）[14]、AGAGE（Advanced Global Atmospheric Gases Experiment）[15]が実施している地上観測のCH_4データを用いた。インバース解析は1997-2021年の24年間について実施し、2000-2020年の計算結果について解析した。さらに、GCPの60サイトのCH_4観測データに加えて、サブテーマ5で実施しているNTL（2006年-）とCLA（2012年-）のフラスコサンプリングのCH_4観測データをインバース解析に導入した場合のCH_4収支推定へのインパクトを評価した。

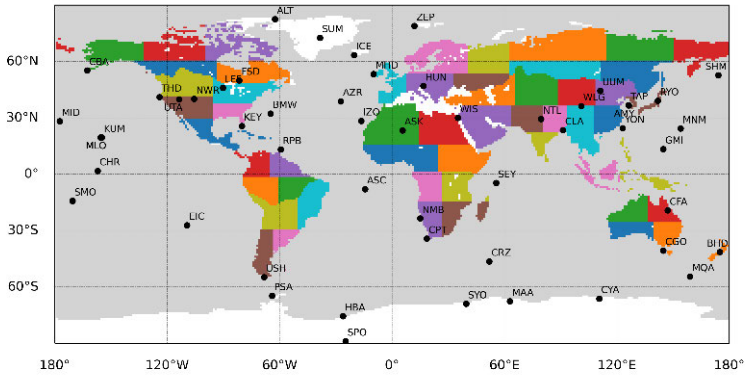


図1. 2 CH_4のインバース解析を実施した全球54領域と1997-2021年の解析に使用した地上観測の60地点（黒丸）。

南アジアにおける土壌とメタン等の温室効果気体の放出量の関係性の評価

土壌中のCH_4生成量は土壌中の鉄が抑制するほか、水稲の障害や窒素固定にも関係することから鉄が重要な元素の1つとして注目されている。土壌の赤さと鉄には関係があると指摘されているが、定量的な検討は多くない。一方、土色が有機物含量の定量的指標となることが国内で報告されているが、CH_4生成量は鉄含量と有機物量のバランスで決まることから、この関係を土色から推定できれば有用と考えた。そこで南インドの水田土壌におけるCH_4生成ポテンシャルと関連する理化学性について解析するとともに、土色が土壌理化学性やCH_4生成量推定の定量的指標になりうるか検討することを目的として、インド南部のTamil Nadu Rice Research Institute（A: TRRI）およびSoil and Water Management Research Institute（B: SWMRI）の2か所（図1. 3）から水田、綿花、油やし、豆類（緑肥）栽培畑および路盤土壌（図1. 4）を採取し風乾後、常法でpH（H_2O）、pH（KCl）、EC、全炭素量、全窒素量、水溶性炭素量、遊離鉄含量、粒径組成、土色（マンセル土色帳と分光測色計）を測定した。水田土壌は8週間30℃で湛水嫌気培養を行い、CH_4生成量を測定した。また、土色以外にCH_4生成量に及ぼす影響因子を探るため、Aお

よびBの水田土壌に稲わら（R）、バイオ炭（もみ殻燻炭、B）、化学肥料（尿素）を添加し無添加（S）と比較して、同様に16週間嫌気培養実験を行い、潜在的な温室効果ガス生成量（CH_4、CO_2、N_2O）および関連する土壌理化学性として水分、pH、EC（電気伝導度）、遊離鉄、全炭素・全窒素量（TC・TN）、および土性を測定した。

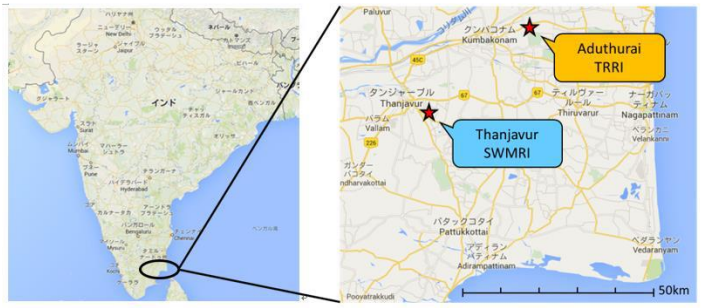


図1．3　供試土壌の採取地点。

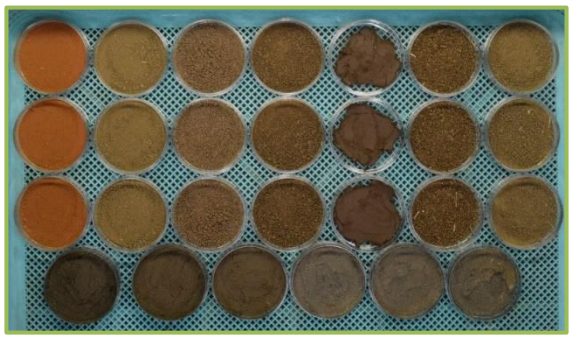


図1．4　供試土壌の土色。

４．結果及び考察

GOSATのメタン鉛直濃度分布の導出と検証解析

GOSAT-TIR CH_4データと航空機観測CH_4データを、低緯度、中緯度、高緯度に分けて、高度層別(631-237 hPa)に比較したところ、低緯度ではTIRバンドのCH_4濃度はどの高度層においても概ね10-15 ppb程度の精度で航空機のCH_4濃度と一致していることがわかった（図1．5）。対流圏界面高度が低い高緯度での比較は成層圏性の大気の影響もあり両者の濃度差のバラつきは大きくなっていたが、中緯度においてはGOSAT-TIR CH_4データの精度はどの高度層でも概ね20 ppb（約1%）程度であった。また、同期するSWIRバンドとTIRバンドのXCH_4は、バックグラウンド領域では互いに1%以内で一致していることを確認できた。

図1．6に、BKT、CRI、SEYにおける地表メタン濃度の月平均値の比較結果、図1．7に、インドのNTLとバングラデシュのCLAにおける地表メタン濃度の週平均値の比較結果を示す。なお、GOSAT-TIR CH_4データについては、大気第一層すなわちCH_4リトリーバルグリッドの最下層である地表から858 hPaのCH_4濃度を示している。月平均値の比較結果（図1．6）から、CRIとSEYにおいて、GOSAT-TIR データ、フラスコサンプリングデータ、MIROC4-ACTMデータのCH_4濃度が互いによい一致を示していることがわかる。特に、CRIは秋季に地表のメタンが極めて高濃度になっているが、TIRバンドによる観

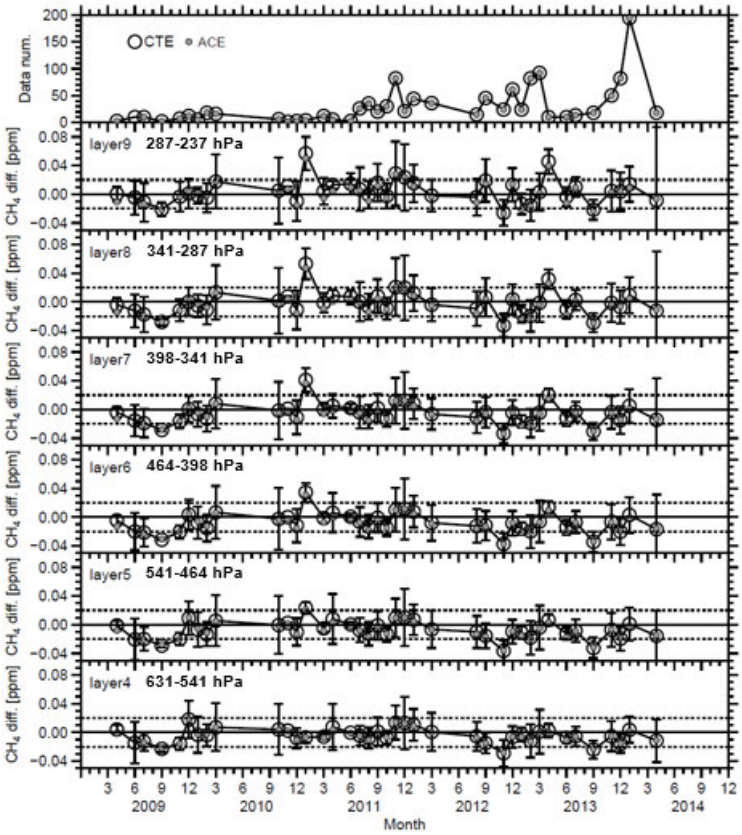


図1．5　低緯度におけGOSAT-TIRデータとCONTRAIL/ASEデータおよびCARIBICデータのCH_4鉛直濃度分布の濃度差分の高度層別(631-237 hPa)の時系列。シンボルは差分の月平均値(オープン丸: Carbon Tracker Europe、クローズ丸: ACE-FTSの気候値)、縦棒はその標準偏差。一番上は比較したデータ個数。

測は地表のメタン高濃度の特徴をよく捉えていることがわかる。CRIにおいては、TANSO-FTSのCH_4リトリーバルの先験値に用いているNIES-TM05[16]のCH_4濃度も同様に高くなっていたが、GOSAT-TIRデータは先験値よりやや低濃度になっており、よりフラスコサンプリングのCH_4濃度に近づいていたことがわかった。一方、SWIRバンドによるXCH_4の観測では秋季における地表CH_4の極端な濃度を十分に捉えられておらず、この領域におけるCH_4の季節変動の振幅を過小評価していることがわかった。週平均値の比較結果（図1.7）から、NTLやCLAなど、地表の放出と輸送の両方の効果で季節によっては極めて高濃度のCH_4が観測される領域では、GOSAT-TIRデータの大気最下層のCH_4濃度にも同様に明瞭な季節変動が見られる。CLAにおいては、GOSAT-TIRデータはCH_4濃度の絶対値を過小評価する傾向にあるが、NTLにおいては、CH_4濃度の季節変動、絶対値ともにGOSAT-TIRデータはフラスコサンプリングのCH_4濃度とよい一致を示している。このことから、GOSATから地表および大気下層も含めたメタン鉛直濃度分布を1%程度の精度で導出できていることが例証された。

GOSAT-2については、研究開始当初、TIRバンドの観測輝度スペクトルの精度がCH_4濃度の導出には十分ではなかったため、GOSAT-2から導出されたCH_4の鉛直濃度分布（GOSAT2-TIR CH_4）の包括的な検証解析には至っていないが、GOSAT-TIR CH_4データ等との比較から、GOSAT2-TIR CH_4についても概ねGOSATと同程度のデータ質であることは確認できた。

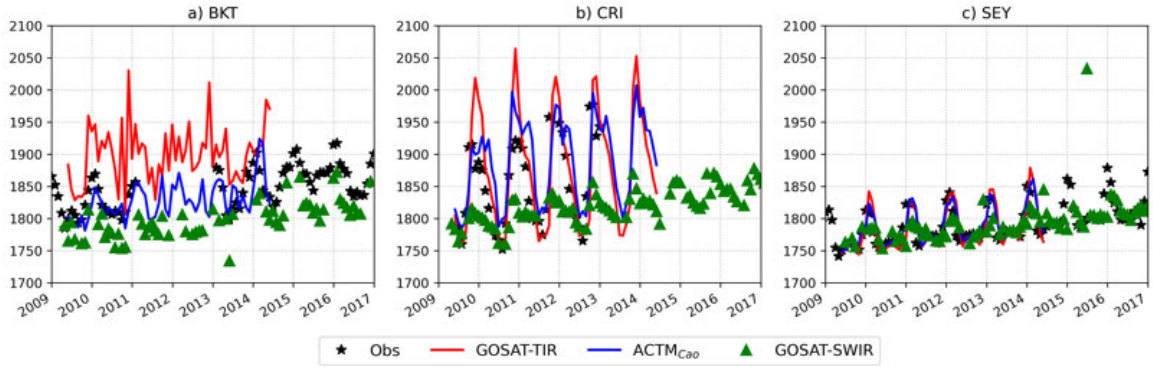


図1.6　BKT（インドネシア）、CRI（インド）、SEY（セーシェル）における地表CH_4濃度の月平均値の比較結果。赤線がGOSAT-TIR CH_4データの大気第一層（地表から858 hPa）のCH_4濃度、緑シンボルがGOSAT/TANSO-FTS SWIR V2.90 XCH_4データ、黒シンボルがフラスコサンプリングデータ、青線がMIROC4-ACTMデータ（Caoスキーム[17]）のCH_4濃度。

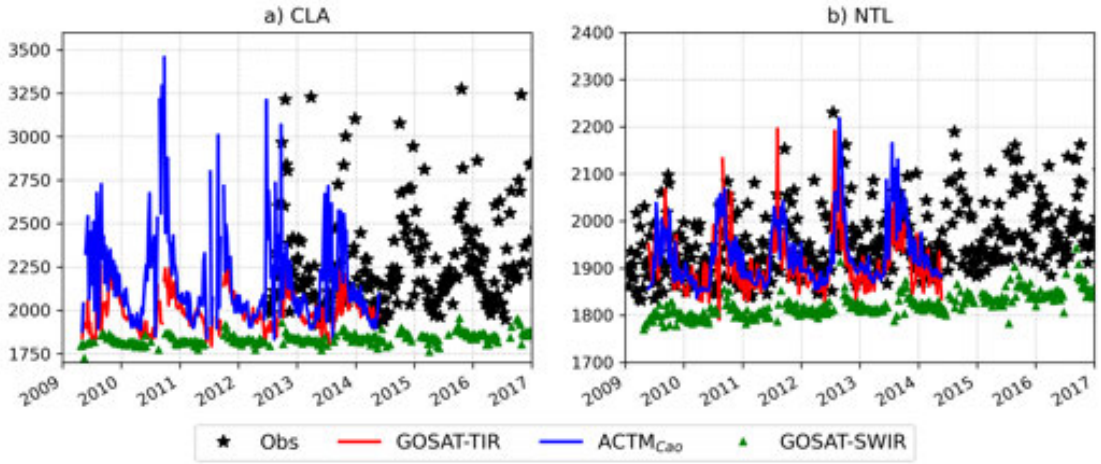


図1.7　図1.6と同様、インドのナイニタール（NTL）とバングラデシュのコミラ（CLA）における地表CH_4濃度の週平均値の比較結果。

GOSATと大気化学輸送モデルのメタンの水平・鉛直輸送過程の比較・評価

図1. 8に、GOSAT-TIRおよびMIROC4-ACTMの各領域のXCH_4の季節変動に対する各高度層の$XpCH_4$の季節変動の寄与率を示す。GOSAT-TIR、MIROC4-ACTM、旧モデルのAGCM-ACTM[7]のXCH_4の濃度および季節変動は概ね一致を示していたが、各高度層の$XpCH_4$の特徴は異なっていることがわかった。XCH_4の季節変動に対する上空のUT層、UA層の寄与率については、MIROC4-ACTMとAGCM-ACTMが互いによい一致を示しているのに対し、GOSAT-TIRデータでは両モデルより寄与率が低くなっていた。一方、XCH4の季節変動に対するLT層の寄与率はMIROC4-ACTMがAGCM-ACTMと比べて高く、GOSAT-TIRと近い値を取っていた。特に、発生源がある陸域において、MIROC4-ACTMのCaoスキーム[17]とGOSAT-TIRのLT層の寄与率がよい一致を示していた。比較の結果、MIROC4-ACTMとGOSAT-TIRのXCH_4の季節変動はAGCM-ACTMと比べると互いに近い特徴を持っており、上空へのCH_4の輸送は新たに開発・改良されたMIROC4-ACTMの方が従来のAGCM-ACTMと比べてより現実的であることが示された。

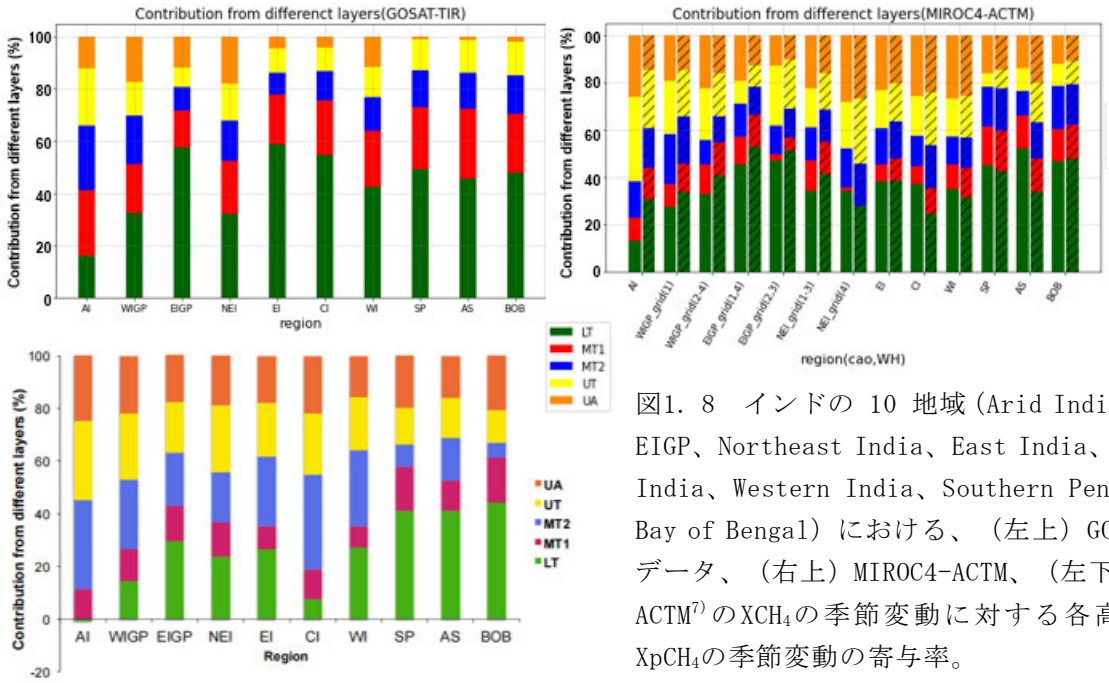


図1. 8　インドの 10 地域（Arid India、WIGP、EIGP、Northeast India、East India、Central India、Western India、Southern Peninsula、Bay of Bengal）における、（左上）GOSAT-TIRデータ、（右上）MIROC4-ACTM、（左下）AGCM-ACTM[7]のXCH_4の季節変動に対する各高度層の$XpCH_4$の季節変動の寄与率。

図1. 9に、GOSAT-TIR、GOSAT-TIRの先験値であるNIES-TM05[16]、MIROC4-ACTMの（a）アラビア海、（b）Arid India（インド北西部の乾燥地帯）、（c）インド・ガンジス平野東部におけるCH_4の鉛直濃度分布の時系列を示す[9]。インド・ガンジス平野東部は農業が盛んであり伝統的なバイオ燃料が使用されていることからCH_4の発生量が多く、下部対流圏（～850 hPa）の卓越風が北風・北西風であり風速も弱いことから地表付近に高濃度のCH_4が溜まる傾向にある。一方、Arid IndiaにおいてはCH_4の発生量は極端に多くないものの、上昇流によってCH_4が上空に輸送されて上空で比較的高濃度になっている。どの領域においても、先験値は対流のパラメタリゼーションが不十分なためにモンスーン循環に伴う上昇流が明らかに弱いことがわかるが、GOSAT-TIRの観測によって先験値が「修正」されて、モンスーン循環に伴う上昇流でCH_4がより上空に輸送され、結果としてGOSAT-TIRとMIROC4-ACTMがよい一致を示すようになったことで、両者のCH_4の水平・鉛直輸送の妥当性が例証された。2009-2014年のGOSAT-TIRとMIROC4-ACTMのCH_4データの比較解析に基づいて算出されたインドからのCH_4排出量は51.2±4.6 Tg/yrであった。

図1. 10に、GOSAT-TIRおよびMIROC4-ACTMの上部対流圏のCH_4濃度の帯状平均値からの差分（アノマリー）の緯度・経度断面図を示す。冬季・夏季とも、両者のCH_4アノマリーの水平分布が互いによい一致を示していることがわかる。GOSAT-TIRとMIROC4-ACTMのCH_4データの解析により、IHTが最も活発に起こる領域は熱帯の150 hPaより下部の上部対流圏であること、IHTは熱帯南アメリカ、熱帯アフリカ、東南アジアで活発に起こっていること、南アメリカおよびアフリカではほぼ一年を通してIHTが活発である一

方、アジアでは北半球の夏季のモンスーンによって強いIHTが引き起こされるなど季節性が大きいことなどがわかった。本研究により、経度方向に非対象なモンスーンによる加熱がIHTに与える影響や、モンスーンによって引き起こされる渦循環が熱帯アフリカや東南アジアにおけるCH_4の南北輸送において重要な役割を果たしていることが明らかになった。なお、この結果はJGR Atmosphere誌に投稿中である。

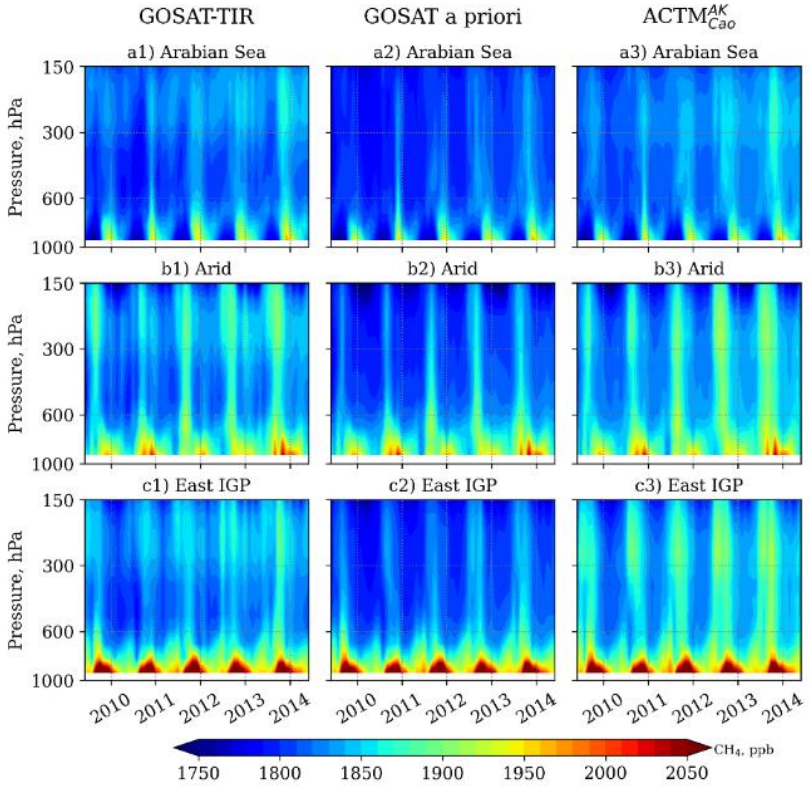


図1. 9　a）アラビア海、b）Arid India、c）EIGPにおけるGOSAT-TIR、GOSAT先験値（NIES-TM05）[16]、MIROC4-ACTMのCH_4の鉛直濃度の時系列[9]。

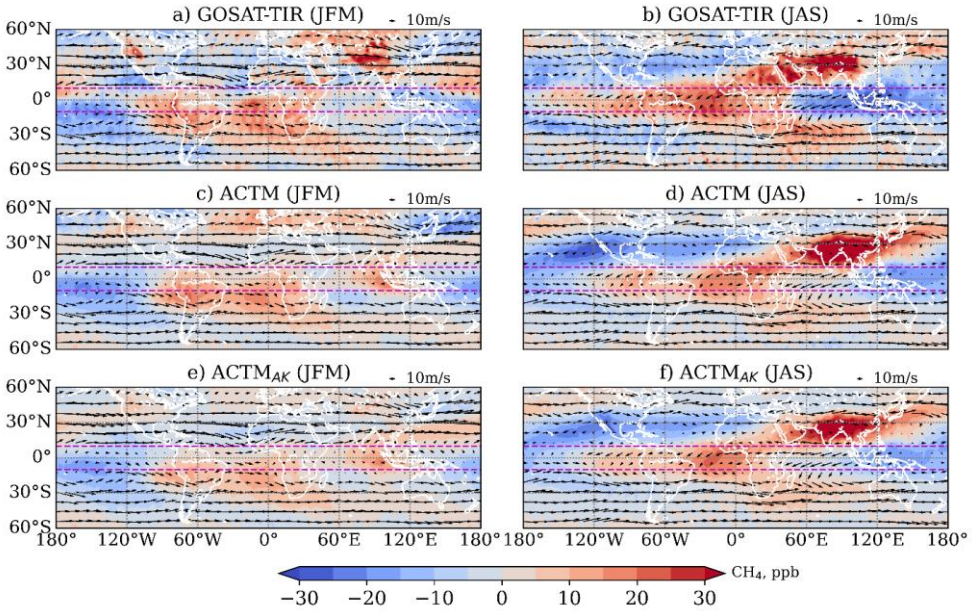


図1. 10　2010-2013年の冬季（JFM）と夏季（JAS）のGOSAT-TIRデータ、MIROC4-ACTMオリジナルデータ、GOSAT-TIRのアベレージングカーネル（AK）を適用したMIROC4-ACTMデータの上部対流圏（対流圏界面＋200 hPa）におけるCH_4濃度の帯状平均値からの差分（アノマリー）と風速の緯度・経度断面図。

メタンの全球・領域別収支解析における南アジア観測のインパクト評価

図1．11に、MIROC4-ACTMによるインバース解析で推定された2000-2020年のCH_4放出量（Tg/yr）を示す。全球平均総CH_4放出量は、2000-2005年の526 Tg/yrから2015-2020年の568 Tg/yrに増加していた。東アジア、東南アジア、南アジア、ブラジル、中央アフリカの5つの地域が総CH_4放出量を支配しており、全球の総CH_4放出量の2000-2005年は46％、2015-2020年は48％を占めていた。2000-2020年の総CH_4放出量の増加率は平均で42 Tg/yrであり、この間のCH_4放出量増加の最大の寄与はブラジル（3.2 Tg）、温帯北アメリカ（3.2 Tg）、ロシア（3.6 Tg）、南アジア（5.8 Tg）、東南アジア（8.1 Tg）、東アジア（9.4 Tg）、および西アジア（9.7 Tg）であった。一方、ヨーロッパ（4.1 Tg）、北方北アメリカ（3.5 Tg）、オーストラリアおよびニュージーランド（1.3 Tg）の3つの地域でCH_4放出量の減少が見られた。

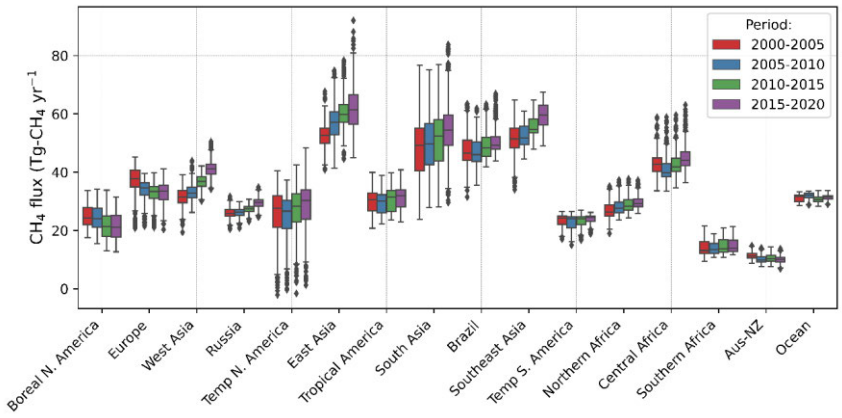


図1．11　地域別に推定した2000-2020年の5年ごとの年間CH_4放出量（Tg/yr）の箱ひげ図。計63のMIROC4-ACTMによるインバース解析のアンサンブル計算結果から算出。

図1．12に、60サイトの観測データのみを用いてインバース解析を実施した結果（GCP）と、60サイトに加えてNTLおよびCLAのフラスコサンプリングのCH_4観測データを用いてインバース解析を実施した結果（CLA/NTL）を比較した結果、図1．13に、NTLとCLAのフラスコサンプリングを追加した場合のCH_4収支推定の不確実性の低減率を示す。NTLでの観測が開始された2006年以降、インバース解析で推定されたCH_4排出量に変化が表れており、中央アジアおよび東アジアの広い領域でのCH_4収支推定の不確実性が5-20%と大きく減少していることがわかる。このことから、本研究で実施した南アジアの大気観測が、南アジアのみならずCH_4排出量が特に大きいアジア域全体のCH_4収支推定にとって有益であることが示された。

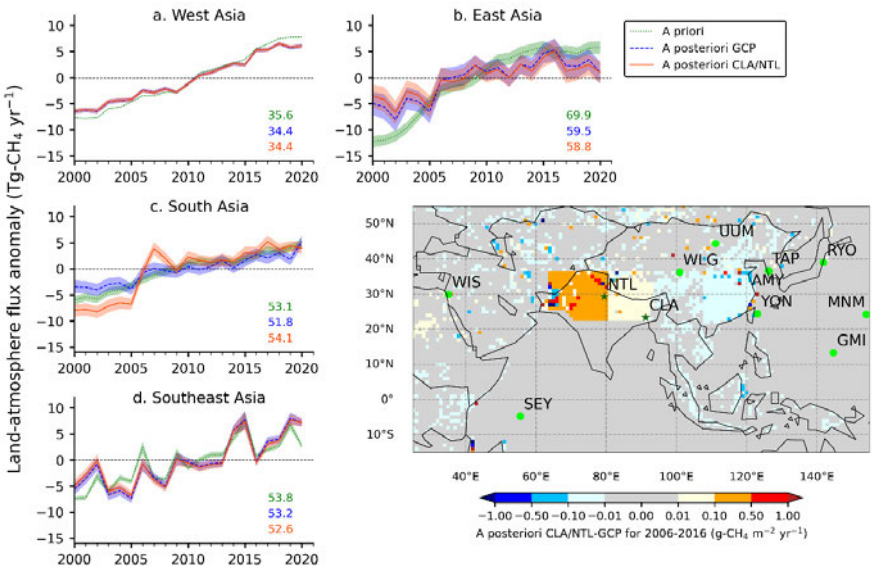


図1．12　アジア各地域の2000-2020年の年間CH_4放出量のアノマリー（Tg/yr）。緑線が先験値、青線がGCPの60サイトの観測データのみ、赤線がGCPにNTLとCLAの観測データを追加して使用した場合。右下図はGCPの観測データのみ使用した場合とGCPにNTLとCLAの観測データを追加して使用場合の2006-2016年の年間CH_4放出量の差分。

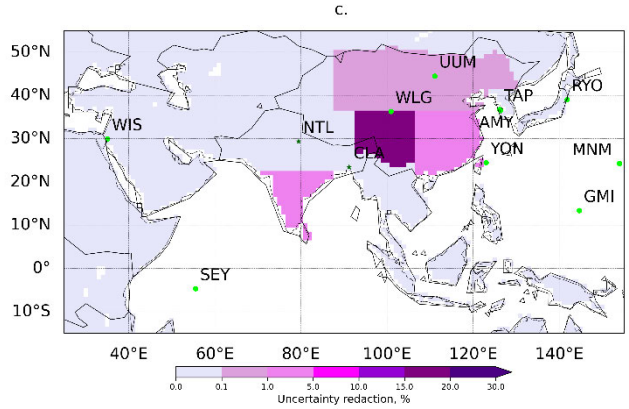


図1．13　GCPの60サイトの観測データにNTLとCLAの観測データを追加した場合のMIRC4-ACTMのインバース解析によるCH_4放出量推定の不確実性の低減率（%）。

南アジアにおける土壌とメタン等の温室効果気体の放出量の関係性の評価

採取した2地点の土壌は同一河川流域から採取したが、水田Aの方が水田Bに比べ無機成分が多く粘土含量も多かったため、より風化が進んでいる土壌であると考えられた（表1．1、表1．2）。土色は水田Aが水田Bよりも明度（L*）が低くこれは有機物量が多いことに由来するものである可能性が高い（表1．2）。水田土壌以外も含めて土色を測定したところ、鉄含量と赤さ（a*）の間に有意な相関関係は見出されなかった（図1．14）。一方、全炭素量と明度の間には負の相関があり決定係数も高いことから、インドの水田土壌でも有機物量の予測に使える可能性が示唆された（図1．15）。培養期間中のCH_4生成は両水田土壌で有意な差は見られなかった（図1．16、図1．17）。有機物量では有意な差が見られたため、これは鉄によるCH_4生成の抑制が起きたものと考えられる。以上の結果より、土色はこのままでは鉄含量の指標とはできないが、土壌有機物量と組み合わせてCH_4放出量推定の指標となることがインドの水田土壌において確認され、東南アジア4か国の水田土壌での結果[18]と類似の傾向がみられ、今後リモートセンシングの土色データなどと組み合わせて全球CH_4放出量の推定を可能にする方法論が提案できた。また水田A（TRRI）から放出された温室効果ガスとしてはCH_4が主要であり、一酸化二窒素（N_2O）の寄与は小さいことが確認された[19]。

表1．1　供試土壌の化学性。

	pH(H_2O)	pH(KCl)	EC(mS/m)	全炭素量 (gC/kg d.s.)	全窒素量 (gN/kg d.s.)	水溶性炭素量 (mgC/kg d.s.)	遊離鉄 (gFe/kg d.s.)
水田A	8.1	6.8	20.2	13	1.5	237	25.3
水田B	6.6	5.3	6.70	6.2	0.9	158	12.0

表1．2　供試土壌の物理性。

	粒形組成（%）			マンセル値	分光測色計		
	砂	シルト	粘土		L*	a*	b*
水田A	53	20	27	10YR3/2	25.6	3.2	8.5
水田B	83	5	12	2.5Y5/2	40.3	3.6	11.8

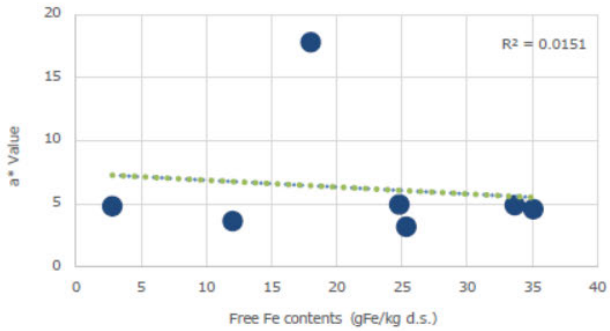


図1．14　土色と遊離鉄含量の関係。

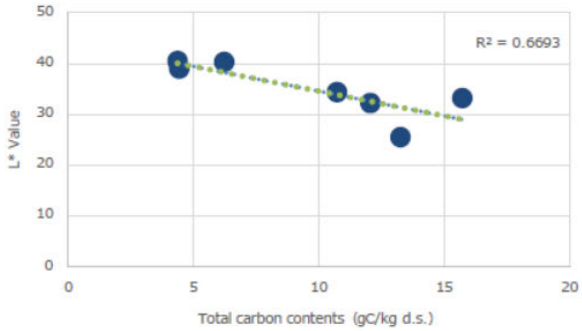


図1．15　土色と土壌全炭素含量の関係。

次に、タミルナドゥ州の2地点の水田土壌の理化学性および稲わら、バイオ炭、化学肥料の施用によるCH_4放出量の変化への影響を調べた結果を示す。まず、両土壌とも中性でEC、遊離鉄、全炭素・全窒素量（TC・TN）はすべてTRRI（水田A）＞SWMRI（水田B）であった（表1．1）。土性はTRRIで粘土含量が、またSWMRIで砂含量が多かった（表1．2）。CH_4生成量はSWMRI ＞ TRRIで、CO_2生成量は逆にTRRI ＞ SWMRIであった（図1．18）。これは遊離鉄含量の違いによると思われる。また添加物の影響については両土壌ともCH_4生成量はSR＞SRB＞SB＝Sで、稲わらにより促進されたが、バイオ炭で抑制された（図1．18）。一方、CO_2生成量はSRB ＞ SR ＞ SB ＝ Sとなり、稲わらによる促進は認められたが、バイオ炭による抑制は認められなかった（図1．19）。N_2Oの生成は化学肥料添加でのみ認められたが、温室効果係数を考慮したCO_2当量ではCH_4およびCO_2に比べて微量であった。以上より南インド水田土壌中で稲わら添加は温室効果ガス生成を促進するが、バイオ炭を併用すればCH_4生成を抑制すること、また尿素施用の影響はわずかであることが見出された。これらの知見からCH_4放出量推定の精緻化には土色以外の土壌の理化学性や施肥管理も考慮する必要があることを示唆された。

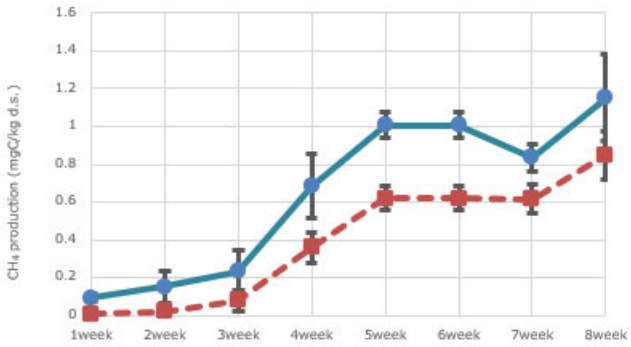


図1．16　CH_4生成速度。データはいずれも3反復の平均でエラーバーは標準偏差。

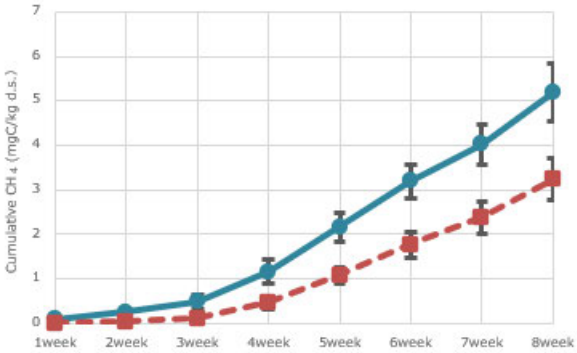


図1．17　CH_4生成積算量。データはいずれも3反復の平均でエラーバーは標準偏差。

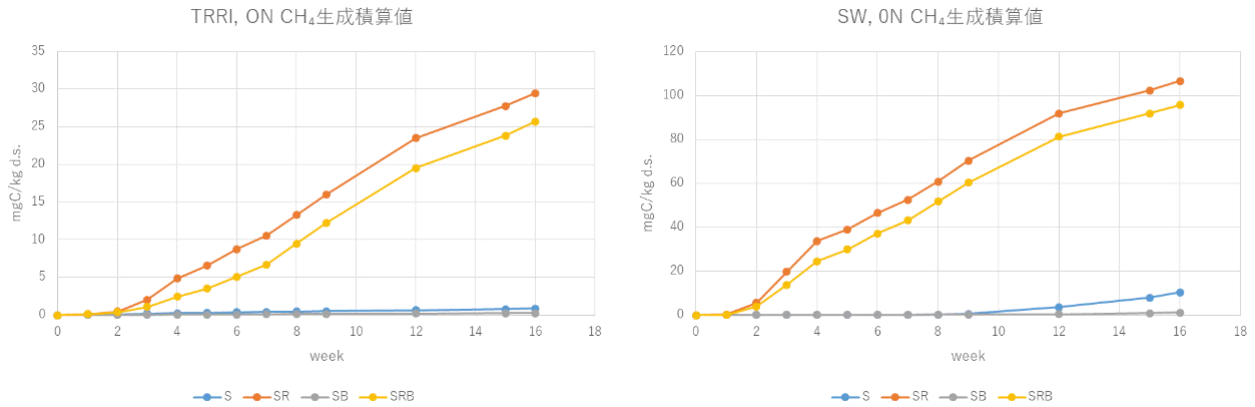


図1. 18　南インド水田土壌中のCH_4生成積算量に及ぼす稲わら、バイオ炭施用の影響。（S: 土壌のみ、SR: 土壌＋稲わら、SB: 土壌＋バイオ炭、SRB: 土壌＋稲わら＋バイオ炭）

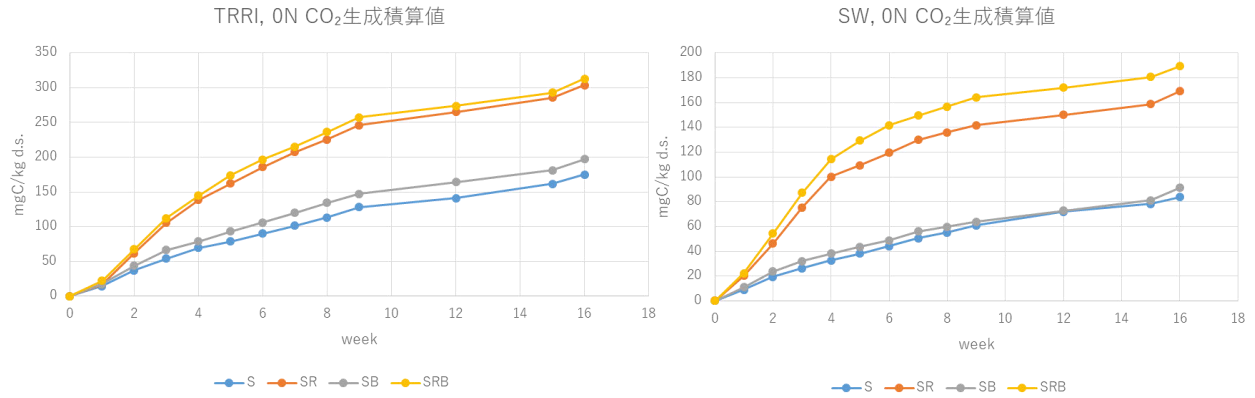


図1. 19　南インド水田土壌中のCO_2生成積算量に及ぼす稲わら、バイオ炭施用の影響。（S: 土壌のみ、SR: 土壌＋稲わら、SB: 土壌＋バイオ炭、SRB: 土壌＋稲わら＋バイオ炭）

５．研究目標の達成状況

GOSATから地表および大気下層も含めたCH_4鉛直濃度分布を導出して、地上観測および航空機観測のCH_4データとの比較に基づいたデータ質の検証を行い、全球でGOSATから対流圏のCH_4濃度を1%程度の精度で導出できていることを例証した。その上で、GOSATのCH_4濃度と大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMのCH_4濃度の3次元分布を比較して、両者のCH_4濃度の水平・鉛直分布が互いによい一致を示すことを確認し、モデルの水平・鉛直輸送過程の妥当性を評価することができた。GOSAT-2についても、GOSATのCH_4データと概ね同程度のデータ質であることが確認できたことから、研究目標を十分に達成できたと考える。さらに、GOSATデータとの比較により評価したモデルにより最新（2000-2020年）の全球および領域別の年間CH_4放出量を推定し、本課題で実施した南アジアの地上観測の有用性を示すことができたことは当初の研究目標以上の成果である。

また、南アジアにおいて土壌とメタン等の温室効果気体の放出量の関係が定量的に評価でき、得られた知見を用いて全球に展開するための方法論が提案できたことから、研究目標を十分達成したと考える。

６．引用文献

1) S. C. WOFSY: Phil. Trans. Roy. Soc. A: Math. Phys. Eng. Sci., 369, 2073-2086 (2011), HIAPER

Pole-to-Pole Observations (HIPPO): fine-grained, global-scale measurements of climatically important atmospheric gases and aerosols.

2) T. MACHIDA et al.: J. Atmos. Ocean Tech., 25, 1744-1754 (2008), Worldwide measurements of atmospheric CO_2 and other trace gas species using commercial airlines.

3) C. A. M. BRENNINKMEIJER et al.: Atmos. Chem. Phys., 7, 4953-4976 (2007), Civil Aircraft for the regular investigation of the atmosphere based on an instrumented container: The new CARIBIC system.

4) Y. NIWA et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn., 92, 1, 55-70 (2014), Seasonal Variations of CO_2, CH_4, N_2O and CO in the Mid-Troposphere over the Western North Pacific Observed Using a C-130H Cargo Aircraft.

5) JA-HO KOO et al.: J. Quant. Spectros. Radiat., 186, 52-62 (2016), Global climatology based on the ACE-FTS version 3.5 dataset: Addition of mesospheric levels and carbon-containing species in the UTLS.

6) A. TSURUTA et al.: Geosci. Model Dev., 10, 1261-1289 (2017), Global methane emission estimates for 2000-2012 from CarbonTracker Europe-CH_4 v1.0.

7) N. CHANDRA, S. HAYASHIDA, T. SAEKI, P. K. PATRA: Atmos. Chem. Phys., 17, 12633-12643 (2017), What controls the seasonal cycle of columnar methane observed by GOSAT over different regions in India?

8) P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, N. CHANDRA, K. ISHIJIMA, Y. YAMASHITA: Atmos. Chem. Phys., 17, 12633-12643 (2018), Improved chemical tracer simulation by MIROC4.0-based atmospheric chemistry-transport model (MIROC4-ACTM).

9) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: Remote Sens., 13(9), 1677 (2021), GOSAT CH_4 vertical profiles over the Indian subcontinent: effect of a priori and averaging kernels for climate applications.

10) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA: submitted to J. Geophys. Res. (2022), An analysis on inter-hemispheric transport pathways based on 3-dimensional methane data by GOSAT observations and model simulations.

11) P. K. PATRA et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn., 94, 1, 91-113 (2016), Regional methane emission estimation based on observed atmospheric concentrations (2002-2012).

12) M. SAUNOIS et al.: Earth Syst. Sci. Data, 12(3), 1561-1623 (2020), The global methane budget 2000-2017.

13) E. J. DLUGOKENCKY, L. P. STEELE, P. M. LANG, K. A. MASARIE: J. Geophys. Res., 99, D8, 17021-17043 (1994), The growth rate and distribution of atmospheric methane.

14) R. FRANCEY et al.: WMO, 97-106 (2003), The CSIRO (Australia) measurement of greenhouse gases in the global atmosphere.

15) R. G. PRINN et al.: Earth Syst. Sci. Data, 10(2), 985-1018 (2018), History of chemically and radiatively important atmospheric gases from the Advanced Global Atmospheric Gases Experiment (AGAGE).

16) T. SAEKI, R. SAITO, D. BELIKOV, S. MAKSYUTOV: Geosci. Model Dev., 6, 81-100 (2013), Global high-resolution simulations of CO_2 and CH_4 using a NIES transport model to produce a priori concentrations for use in satellite data retrievals.

17) M. CAO, S. MARSHALL, K. GREGSON: J. Geophys. Res., 101, 14399-14414 (1996), Global carbon exchange and methane emissions from natural wetlands: Application of a process based model.

18) K. INUBUSHI, H. SAITO, H. ARAI, K. ITO, K. ENDOH, M. M. YASHIMA: Soil Sci. Plant Nutr., 64:1, 84-89 (2018), Effect of oxidizing and reducing agents in soil on methane production

in Southeast Asian paddies.
19) A. Z. OO et al.: Agronomy, 8, 202 (2018), Mitigation potential and yield-scaled global warming potential of early-season drainage from a rice paddy in Tamil Nadu, India.

Ⅱ－２　衛星データと地上観測データの複合利用によるメタン濃度の地域別特性抽出

国立大学法人奈良女子大学
研究院自然科学系環境科学領域 准教授　久慈　誠
研究院自然科学系環境科学領域 教授　　林田　佐智子

［要旨］

サブテーマ2では、メタンの大発生域である南アジア（インド領域）に特に焦点をあて、メタン発生の地域的特性や時間変動の解明を行った。まず、北インド水田地域（Karnal・Sonepat）における空気採集の結果に基づき、それぞれの空気塊の起源を明らかにする目的で後方流跡線解析を行った。高濃度が得られる事例では多くが北西からの流入であったことを流跡線解析の事例数に基づき定量的に示した。さらに2017年に打ち上げられたTROPOMI(TROPOspheric Monitoring Instrument)のメタンデータを使ってメタンの広域分布を調べた結果、流跡線解析で得られた高濃度メタンの流入方向に高濃度域が対応しているように見られた。特に12月に観測場所の北西でメタンが高濃度であり、GOSAT-2でも対応する事例に注意する必要があるだろう。また、今後GOSAT-2データを活用するためには、観測データの信頼性を確認する必要がある。そこで、TROPOMIとGOSAT/GOSAT-2の複数プロダクツとの比較解析を詳細に行った。この比較結果はメタン濃度の高精度導出のための基礎データとなるであろう。

１．研究開発目的

GOSATのSWIR（短波長赤外）における分光観測では、メタン気柱平均混合比(XCH_4)が得られるが、メタンの場合はOHラジカルとの消滅反応によって対流圏内での寿命が比較的短く、地理的分布が不均一である上、成層圏では高高度になるに従って消滅反応が早くなるため濃度が減少するという特徴的な高度分布を持つ。また圏界面高度付近のメタン濃度の変動によってもXCH_4は大きく変化する。このため、地上からのメタン発生量の地理分布や時間変動性を気柱平均混合比と単純に関連づけるのは極めて困難である。

なかでもヒマラヤ山脈の南側に位置するインドガンジス河平原(以下IGP)は広大な水田地帯であると共に人口密集地域でもあり、SCIAMACHYやGOSAT１号機で観測されたXCH_4が他地域に比べて極めて高いことが知られている[1), 2)]。またモンスーン時期にはこの領域では強い上昇気流があることがわかっており、しばしば高濃度のメタンが上空で観測されている[3),4)]。平成29年度まで実施した推進費課題「GOSAT等を応用した南アジア域におけるメタンの放出量推定の精緻化と削減手法の評価」（通称AMASAプロジェクト(2015-17)）において、ChandraらがJAMSTECのACTMの結果を活用した解析を行った[5)]。その結果によると、IGPではXCH_4はモンスーン期に最大値をとるが、その時期にはメタン分布は中・上部対流圏で高濃度であり、XCH_4値の大部分が中・上部対流圏のメタン分布を反映しており、必ずしも地上付近のメタンが高濃度であることを示していない。すなわち、地上からの発生量の多い時期にXCH_4が高くなる訳ではない。さらにAMASAプロジェクトでは、XCH_4と地上メタン濃度との関係を調べるため、北インドで空気採集を行ってきた（寺尾：平成29年度推進費最終報告書サブテーマ２）。約４年間のデータの蓄積から、地上メタン濃度は、発生量が最大になると期待されるモンスーンの時期ではなく、冬季に最大になることが示されたが、その理由はまだ未解明である。以上に述べた通り、XCH_4に基づいてメタン放出量を推定する上で、インバースモデルでは反映できない過程の不整合がまだ多く、推定量を改善するためには、鉛直構造と時間変化についての地域的特性をさらに解明することが必要である。

サブテーマ２では、メタンの大発生域である南アジアに特に焦点をあて、メタン発生の地域的特性や時間変動の解明を行う。まずこれまでに行った北インド水田地域における空気採集の結果に基づき、それぞれの空気塊の起源を明らかにする目的で後方流跡線解析を行った。さらに2017年に打ち上げられ最近初めて公開されたTROPOMI(TROPOspheric Monitoring Instrument)のメタンデータとGOSAT/GOSAT-2との比較解析を行った。

２．研究目標

メタン濃度の地域別特性の抽出を行い、時空間スケールの異なる地上観測データおよび複数の衛星観測データを複合的に解析することによって、GOSAT、GOSAT-2のメタンデータの検証方法を検討するとともに、南アジアの季節ごとのメタン発生源と発生プロセスを推定する。

３．研究開発内容

3.1　サンプリングされた空気塊の時系列と流跡線解析による空気の起源解析

空気採集は、2014年にKarnal（29.7N, 76.9E）で国際稲研究所インドオフィスの協力で実施され、2015年から2017年はSonepat（29.0N, 77.2E）でAMASAプロジェクトのもと、デリー大学・東京大学との協力で実施された。採集されたフラスコは国立環境研究所においてガスクロマトグラフ（GC－FID）で、NIES 94 CH4 スケールに基づいて分析された。メタン濃度データのうちKarnalの28例とSonepat 102例の計130の事例すべてについて、観測地点から３日間の後方流跡線解析を行った。流跡線解析には、これまで本研究室で開発したツールSPIRALを用いて来た。オリジナルツールであるため、複数地点からの計算が可能であることや、鉛直高度の決め方（鉛直風を用いるか等温位面を用いるか）などを自分で選択できるメリットがある。これまで、AMASAプロジェクトの最終報告書などで報告してきたのはすべてSPIRALの結果であった。一方NOAAが提供しているツールHYSPLITが現在では広く研究者に使われており、大気研究分野で標準的なツールになりつつある。そこで今回はSPIRALとHYSPLITの両方を使って計算結果を比較・検討した。

3.2　TROPOMIで観測されたメタン分布

TROPOMIは 欧州宇宙機関ESAが2017年10月13日に打ち上げたSentinel-5 Precursor (Sentinel-5P)搭載の紫外可視センサーで、オゾン、二酸化窒素などに加え、メタンの観測を行っている。メタンについては、2018年11月29日以降の観測データが2019年になって公開された。瞬時視野3.5×7 km^2 (across×along track)とこれまでの衛星観測にくらべて極めて高分解能である。ここでは、メタンのバイアス補正済みLevel2データを用いた。

3.3　GOSAT-2とTROPOMIの比較

温室効果ガス観測技術衛星GOSAT-2によって観測されたメタン気柱量(XCH_4)および一酸化炭素気柱量(XCO)のうち、 TANSO-FTS-2 SWIR レベル２カラム平均気体濃度プロダクト(V01.04) ［以下GOSAT-2 SWFP]およびTANSO-FTS-2 SWIRレベル2クロロフィル蛍光・proxy法プロダクト (V01.03) ［以下GOSAT-2 SWPR]、について、Copernicus Sentinel-5 Precursor 衛星に搭載のTROPOspheric Monitoring Instrument (TROPOMI) センサーのL2プロダクトとの比較を行った。参照データとして、GOSAT一号機のプロダクツも併せて解析した。全球平均での比較に加え、本研究の解析対象としているインド上空について比較を行った。

表2.1 解析に使用したデータ

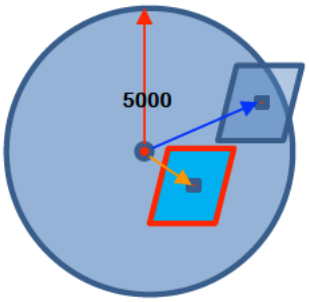
Instrument	データ種類	化学種	バージョン	期間（自）	期間（至）
GOSAT2	SWFP	CH_4, CO	V01.04	2019/3/1	2019/10/31
	SWPR	CH_4, CO	V01.03	2019/3/1	2019/10/31
GOSAT	SWFP-RA	CH_4	V02.90	2019/3/1	2019/10/31
	SWFP-GUsub[BC]	CH_4	V02.95	2019/3/1	2019/10/31
TROPOMI	OFFLINE	CH_4, CO		2019/3/1	2019/10/31

GOSAT-2 SWFP: TANSO-FTS-2 SWIR レベル２カラム平均気体濃度プロダクト
GOSAT-2 SWPR: TANSO-FTS-2 SWIRレベル2クロロフィル蛍光・proxy法プロダクト
GOSAT SWFP-RA：TANSO-FTS SWIR レベル２カラム平均気体濃度プロダクト RA
GOSAT SWFP-GUsub[BC]：TANSO-FTS SWIR レベル２カラム平均気体濃度プロダクト GUsub Bias Corrected

3.3.1　２種類のデータのマッチングの方法

GOSATまたはGOSAT2の観測点に対して、5000m以内のTROPOMI観測点のうち最も近いものをペアとする。

(右)図2.1　GOSATとTROPOMIの比較ペアを決定方法を示す概念図。●はGOSAT/GOSAT2の観測点、■はTROPOMIの観測点（中心）を示す。図中、赤い矢印でTROPOMI観測点の検索範囲の半径(5000m）を示している。四角形はTROPOMIの観測範囲であり、→ はGOSAT/GOSAT観測点からTROPOMI観測点（中心）までの距離を示す。また、そのうちで最短なものを→ で示す。このように、中心が円内にあるものの中で、最も距離の近い観測点同士を「ペア」と定義する。



3.3.2　比較する範囲

(1)全球

(2)インド付近（インドの国境線内）。

3.3.3　比較方法

２つのデータの相関を取る。また、両者の差を、(GOSAT観測値)-（TROPOMI観測値)と定義し、差の分布を調べる。

表2.2 比較を行うペア

1	GOSAT-2 SWFP CH_4	TROPOMI CH_4
2	GOSAT-2 SWPR CH_4	
3	GOSAT SWFP-RA CH_4	
4	GOSAT SWFP-GUsub[BC] CH_4	
5	GOSAT-2 SWFP CO	TROPOMI CO
6	GOSAT-2 SWPR CO	

４．結果及び考察

4.1　サンプリングされた空気塊の時系列と流跡線解析による空気の起源解析

図2.2にKarnalとSonepatでサンプリングされたデータの時系列を示す。合わせてJAMSTECのACTMの結果を示している。全体の傾向として観測された結果は冬季、特に12月や１月に高濃度になっている。一方モデルの方は10月に濃度が高くなっていることがわかる。この不一致は今のところ、まだ解消しておらず、未知の発生源があるのではないかと考えられる。

この冬季に見られる高濃度メタンの原因を探るため、空気塊の起源の分析を、後方流跡線解析に基づいて行った。今回、二つの流跡線解析ツールSPIRALとHYSPLITの結果の比較を行ったところ、海洋上および自由対流圏での解析ではほぼ完全に両者の結果が一致したが、ヒマラヤ山麓周辺での結果には有意な差が見られた。検討の結果、地形情報がSPIRALに入っていないことが原因であることが判明した。モンスーン時期に南西の海洋から風が吹き込んでいる事例では、両者の解析結果に有意な差異は認められなかったが、冬季においては、高地から吹き下ろしてくる場合が多く、HYSPLITを用いるべきであることが明らかになった。そのため、全てのケースについて計算をやり直し、整理した。概ね、南西モンスーンの時期に南西方向からの空気流入が明瞭である結果には変わりがなかった。この時期には、海洋や半乾燥地域を通ってSonepatに到達している空気塊が多く、メタン濃度は2200ppbを下回った。同時期にはSonepat周辺では稲作期間中であり、最もメタンの放出量が多いと推定される時期であるが、予想に反して大気中濃度は低めであった。一方、南西モンスーン時期以外（1～6月と10～12月）では、空気の流入の多くは北西からであった。北東からの流入の場合はポストモンスーン時期に見られ、風速が極めて弱いのが特徴である。高濃度が得られる事例では多くが北西からの流入であった。

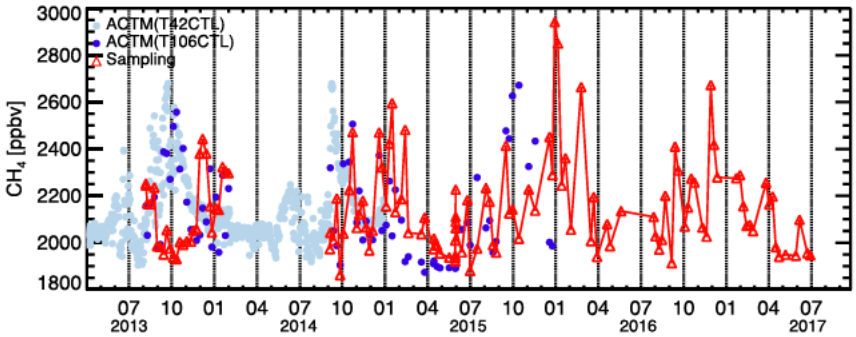


図2.2 赤：Karnal（29.7°N, 76.9°E）（2014年）とSonepat（29.0°N, 77.2°E）（2015年から2017年）でサンプリングされたメタンデータの時系列。淡青で描かれているのはJASTECのACTMのT42CTLの結果（2013-2014年）を日毎（午後１時に対応）に示したもの。濃青（●）は、JASTECのACTMのT106CTLの結果で、サンプリングに対応したデータのみが抽出してある。

図2.3に、後方流跡線解析の結果の一部を示す。高濃度イベントが多く観測されている12月では、北西方向からの流入が示されている（図左端）。そこで、観測地点を中心として、北西・北東・南東・南西方向に空気塊が位置した時間によって、方向を場合分けし分類した。滞留時間の閾値を75%とした場合と閾値なしの結果を図2.4に示す。上段は、75%以上滞在、下段は閾値なしである。他にも閾値を50%、30%でも計算した。この分類では、観測値を中心に円を描いている場合などは分類不可能となってしまう。閾値を上げると、分類不可能な流跡線が多数出てくる。しかし、複数の閾値の結果も総合的に調べたところ、モンスーン時期に南西からの流入傾向が明瞭で、それ以外の期間は全体に北西からの流入が卓越していることが示された。インド北西部に何らかのメタンの発生源が存在する可能性がある。また空気サンプリングで同時に得られた一酸化炭素についても、先のAMASAプロジェクト最終報告書に記されている通り、冬季にメタンと共に高濃度であり、両者に正の相関が確認されている。この原因についてはまだ未解明である。

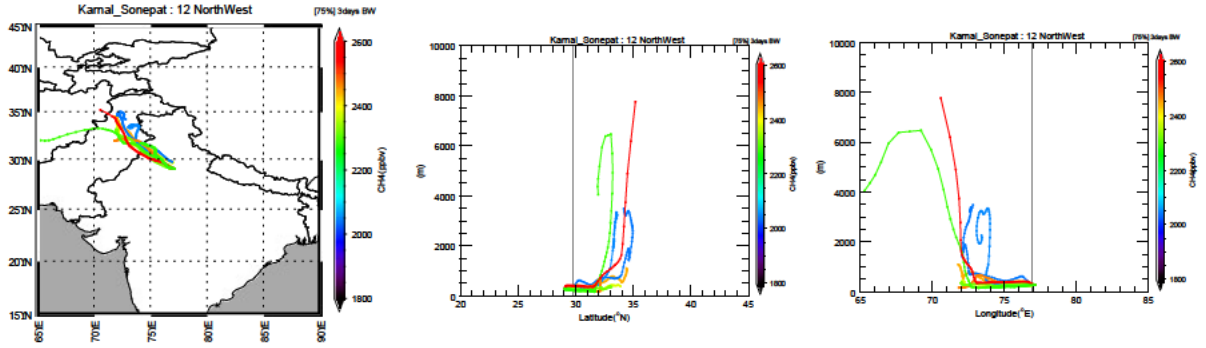


図2.3 空気塊の起源を示すHYSPLITによる後方流跡線解析（3日間）の結果。左：平面図、中央：高度緯度断面、右：高度軽度断面。色はメタン濃度を表す。

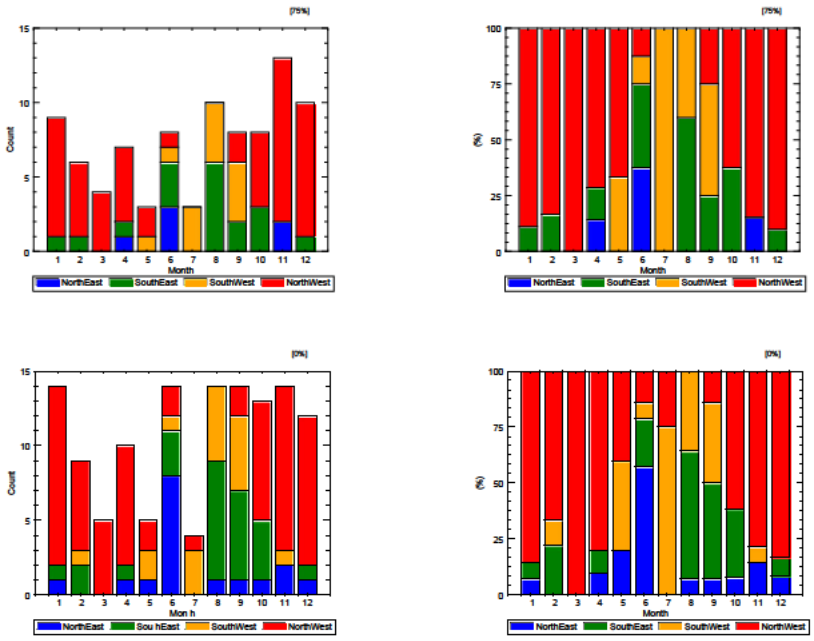


図2.4　３日間の空気塊分類による空気塊起源分類。４つの色は方向を表す。青：北東、緑：南東、橙：南西、赤：北西。左パネルは流跡線の数、右パネルは相対値（%）を示す。

4.2　TROPOMIで観測されたメタン分布

図2.5は、TROPOMIで観測された全球のメタン分布の月平均値である。Level 2のswathデータを0.25度毎にグリッド化した。図から、全体に空間分布がよく表現されているように見られる。さらに12月のswathデータを、南アジアに特化して拡大し、日毎に表示したのが図2.6である。12月にインド北西部（パンジャーブ地方周辺）でメタン濃度が高くなっている。このメタンの発生源については、にわかに判断しかねる。ただし、上述の通り、Karnal/Sonepatで12月に得られた高濃度メタンの流入方向とは対応しているように見られる。TROPOMIについては、まだ観測が緒についてところであるので、現時点で確定的な結論は導けないが、毎年12月にこの地域でメタンが高濃度になるかどうか、GOSAT-2のデータについてもこのような事例に注意する必要がある。

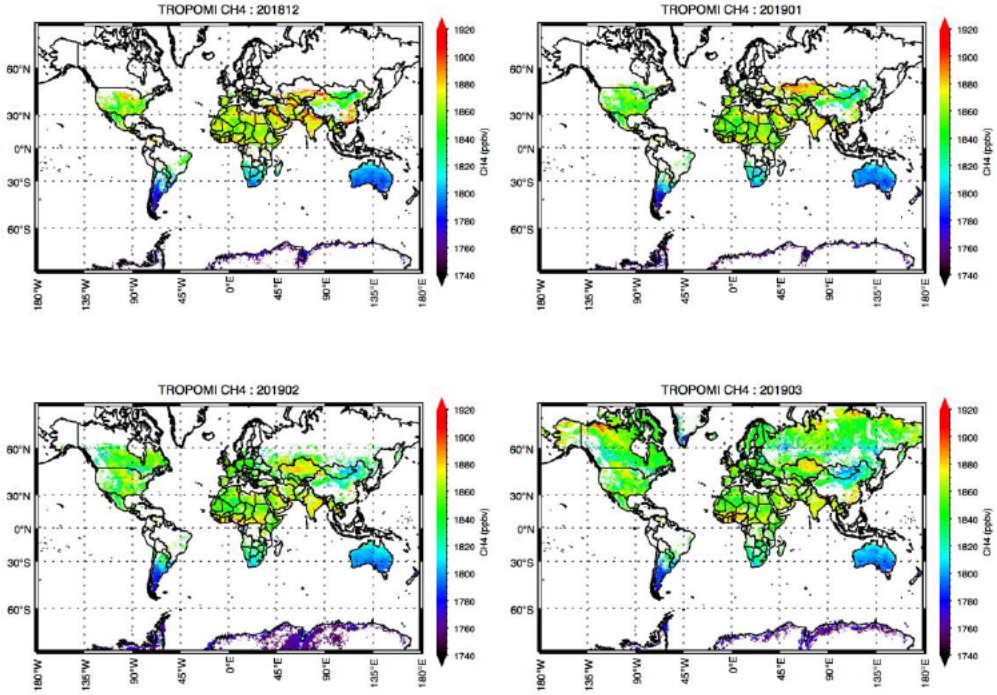


図2.5 TROPOMIで観測された全球メタン分布の月平均値。0.25度グリッドに平均したもの。左:上：2018年12月、右上：2019年1月、左下：2019年2月、右下：2019年3月。

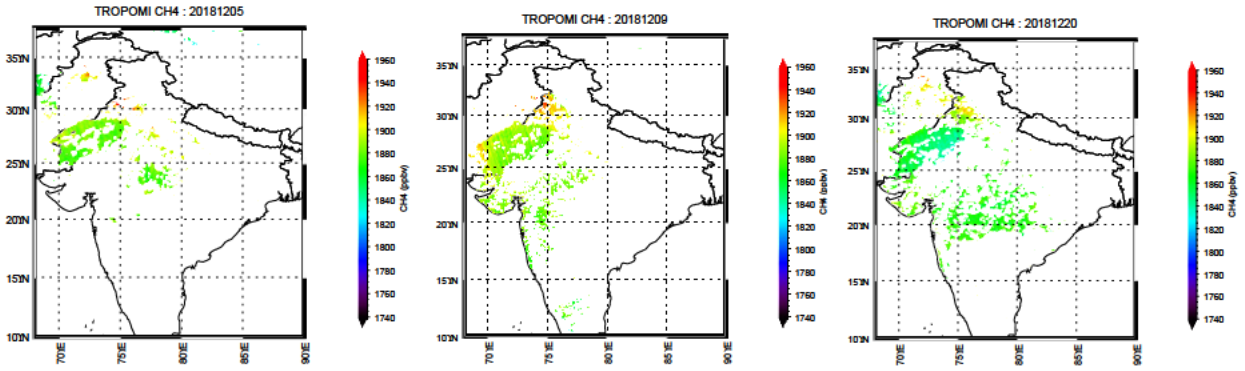


図2.6 TROPOMIで観測された12月の観測事例。インド北西部（パンジャーブ地方周辺）で高濃度メタンが観測されている。左から12月5日、12月9日、12月20日の事例。

4.3　GOSAT-2とTROPOMIの比較

本節では、2019年3月から2019年10月までの全期間について、表2.2で示したペアについて比較を行った結果を示す。4.3.1節では、全期間を通してGOSAT/GOSAT-2のプロダクツとTROPOMIとの相関および差の分布ヒストグラムを示す。4.3.2では各月ごとにデータ数とバイアスを示す。また両節とも(1)にメタンを、(2)に一酸化炭素のデータを示している。

4.3.1　全期間の比較

（1）メタンの解析結果

前半に全球解析の結果（図2.7）を、後半にインド上空の解析結果(図2.8)を示す。それぞれ、データ数、相関係数(R)、決定係数（R^2）を表2.3、表2.4にまとめた。

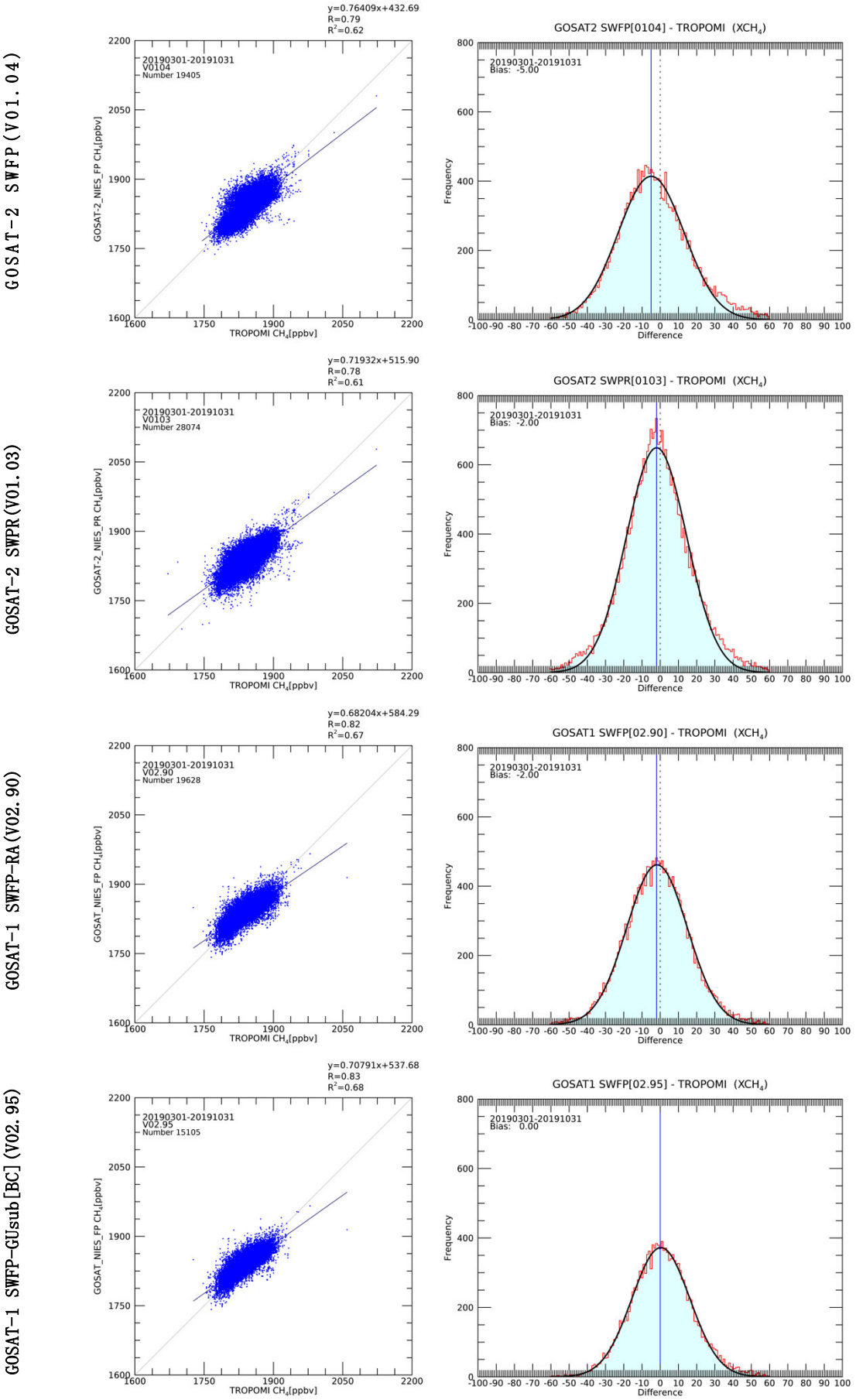
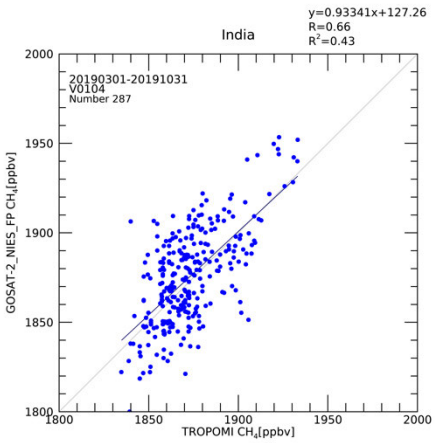
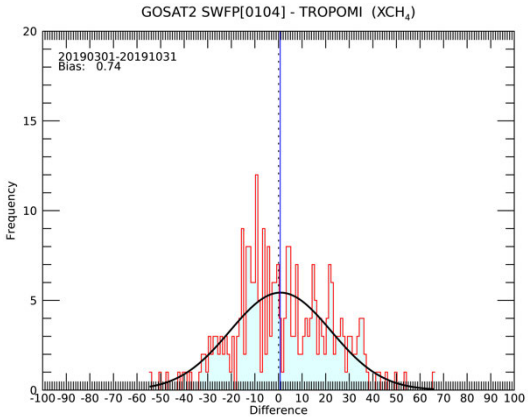


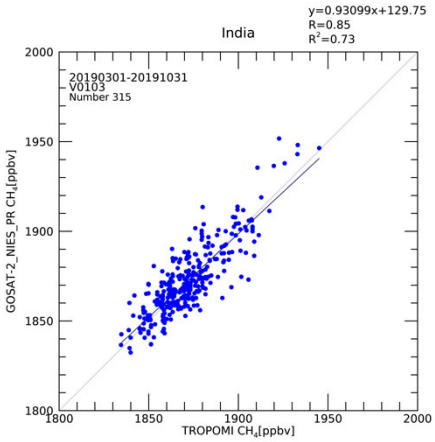
図2.7 全球におけるGOSATとTROPOMIのXCH_4の比較。
全球におけるGOSATとTROPOMIのXCH_4の（左）相関と（右）差の分布*（*横軸はppbv）

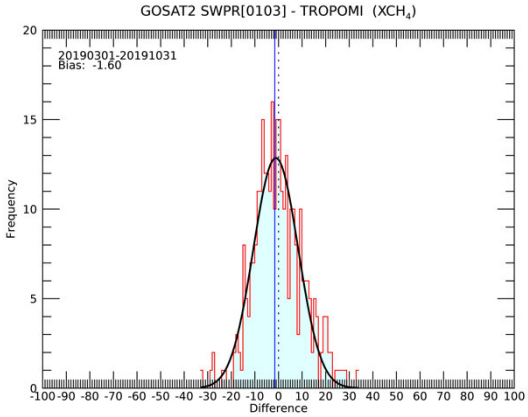
GOSAT-2 SWFP(V01.04)



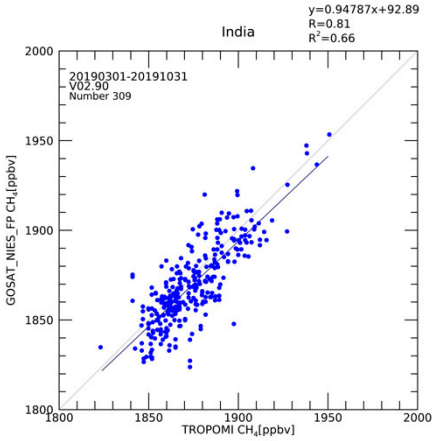


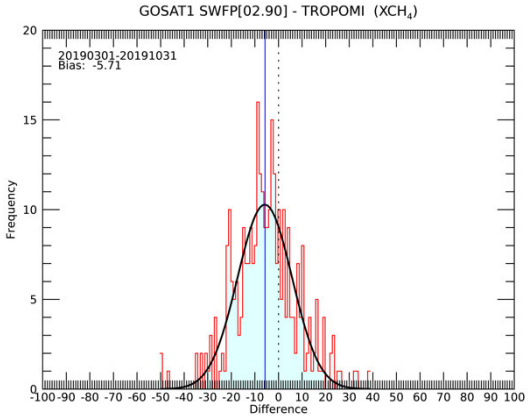
GOSAT-2 SWPR(V01.03)



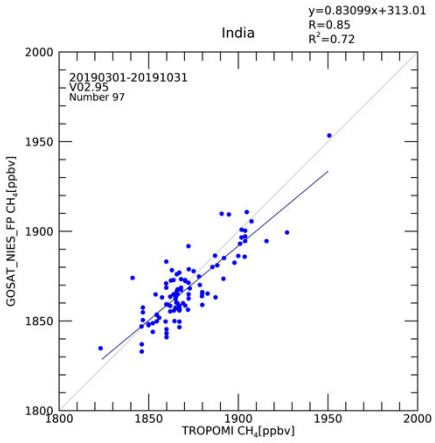


GOSAT-1 SWFP-RA(V02.90)





GOSAT-1 SWFP-GUsub[BC](V02.95)



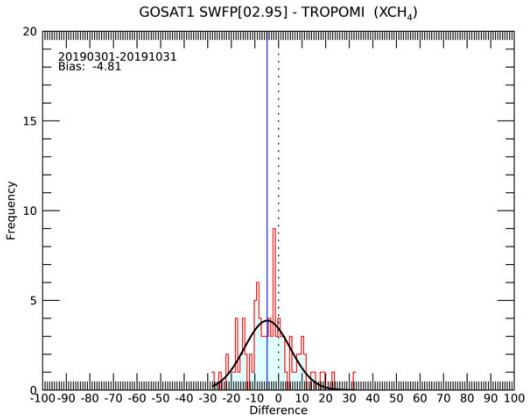


図2.8 インド領域におけるGOSATとTROPOMIのXCH_4の比較。
インド領域におけるGOSATとTROPOMIのXCH_4の（左）相関と（右）差の分布*（*横軸はppbv）

表2.3 全球のGOSATとTROPOMIの比較（XCH_4）

GOSAT Product	Version	Data Count	R	R^2	BIAS (ppb)
GOSAT-2 SWFP	01.04	19405	0.785	0.617	-5.00
GOSAT-2 SWPR	01.03	28074	0.781	0.610	-2.00
GOSAT-1 SWFP-RA	02.90	19628	0.819	0.671	-2.00
GOSAT-1 SWFP-GUsub	02.95	15105	0.826	0.683	0.00

表2.4 インドのGOSATとTROPOMIの比較（XCH_4）

GOSAT Product	Version	Data Count	R	R^2	BIAS (ppb)
GOSAT-2 SWFP	01.04	287	0.658	0.433	0.74
GOSAT-2 SWPR	01.03	315	0.853	0.727	-1.60
GOSAT-1 SWFP-RA	02.90	309	0.810	0.656	-5.71
GOSAT-1 SWFP-GUsub	02.95	97	0.849	0.721	-4.81

（２）一酸化炭素の解析結果

同様に前半に全球解析の結果（図2.9）を、後半にインド上空の解析結果(図2.10)を示す。それぞれ、データ数、相関係数(R)、決定係数（R^2）を表2.5、表2.6にまとめた。

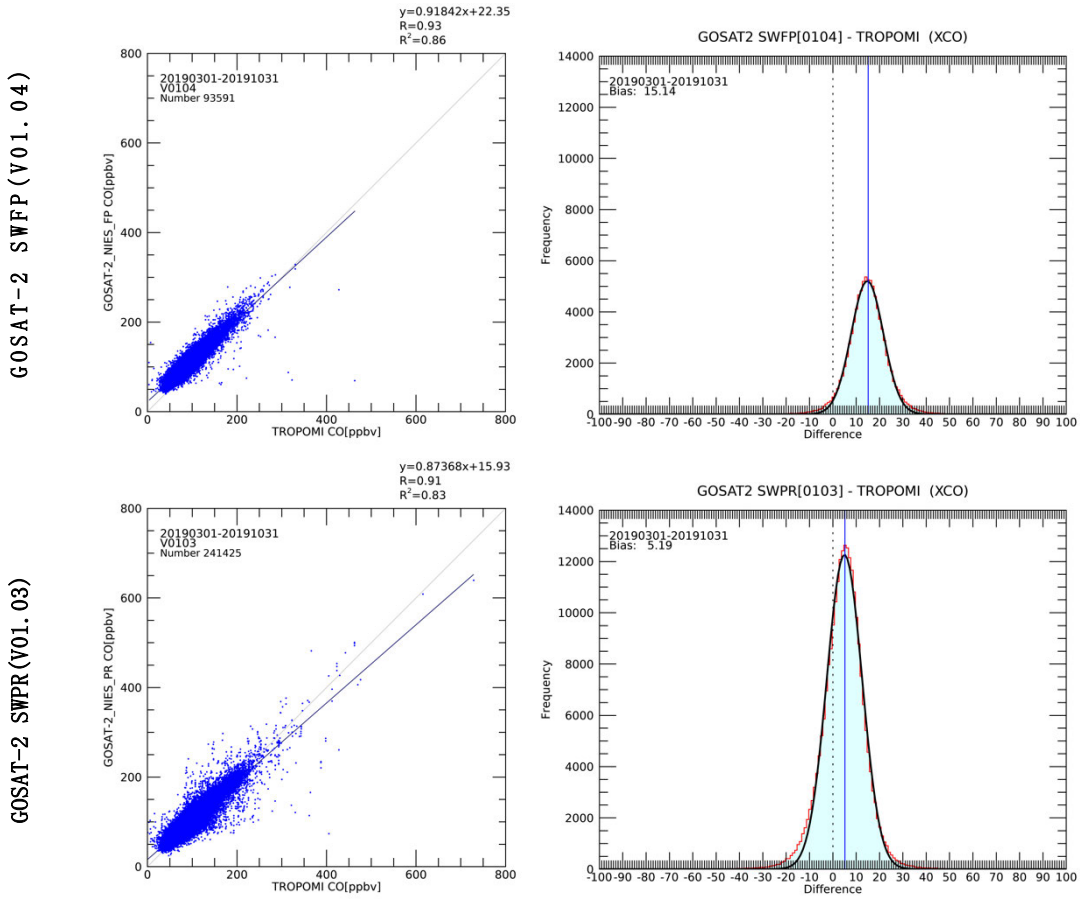


図2.9 全球におけるGOSATとTROPOMIのXCOの比較。
全球におけるGOSATとTROPOMIのXCOの（左）相関と（右）差の分布*（横軸は差をppbvで示す）

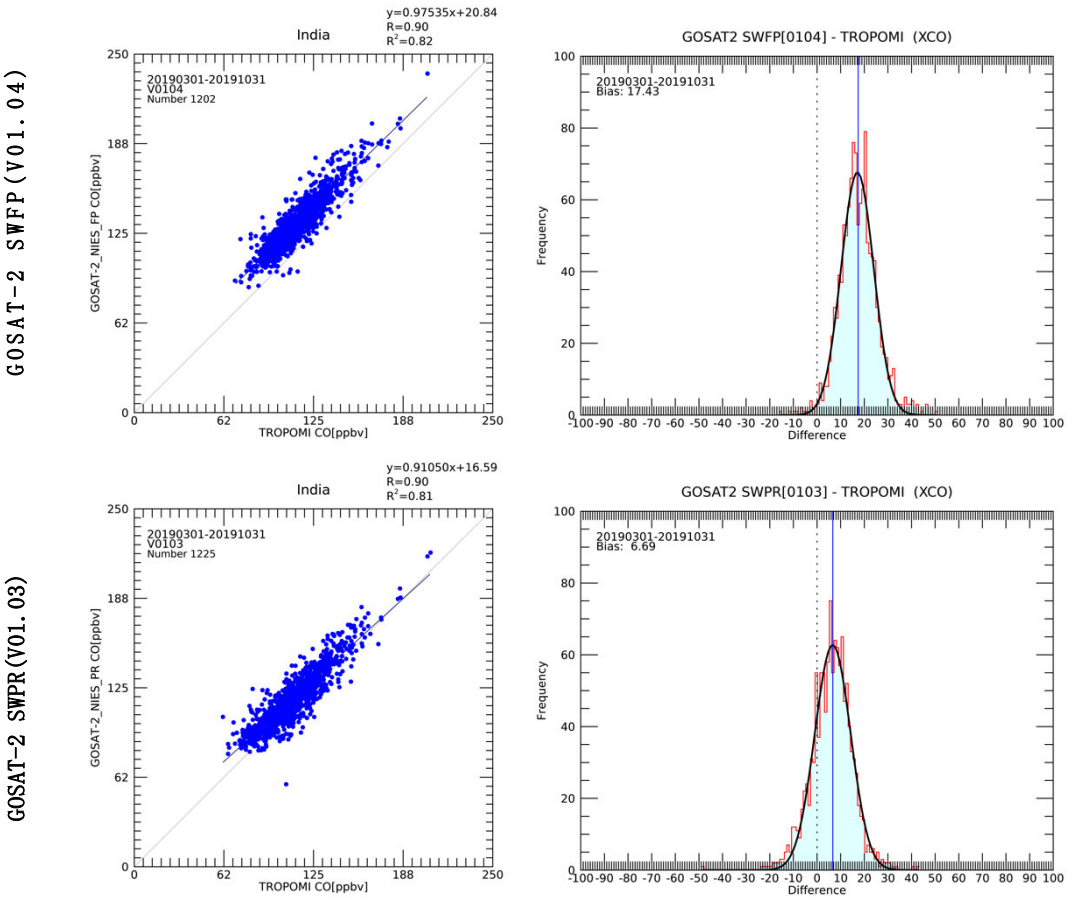


図2.10 インド領域におけるGOSATとTROPOMIのXCOの比較。
インド領域におけるGOSATとTROPOMIのXCOの（左）相関と（右）差の分布*（横軸は差をppbvで示す）

表2.5 全球のGOSATとTROPOMIの比較（XCO）

GOSAT Product	Version	Data Count	R	R^2	BIAS (ppb)
GOSAT-2 SWFP	01.04	93591	0.926	0.857	15.14
GOSAT-2 SWPR	01.03	241425	0.912	0.832	5.19

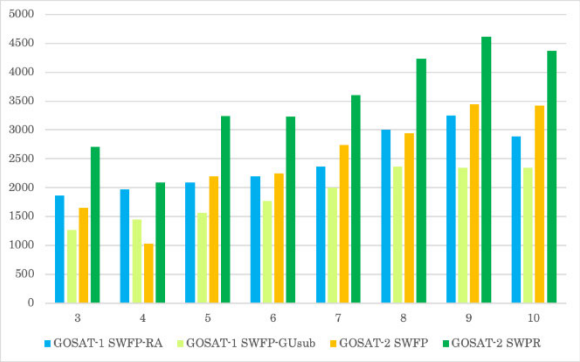
表2.6 インドのGOSATとTROPOMIの比較（XCO）

GOSAT Product	Version	Data Count	R	R^2	BIAS (ppb)
GOSAT-2 SWFP	01.04	1202	0.904	0.817	17.43
GOSAT-2 SWPR	01.03	1225	0.898	0.806	6.69

4.3.2　各月ごとの比較

前節では全期間を通しての比較であったが、この節では月毎にデータ数(図2.11および図2.13)とバイアス（図2.12および図2.14）を調べた。ここでバイアスとは、前節で求めた差の頻度分布をガウス関数でフィッティングしたときの中央値と定義した。前節と同様、(1)にメタン、（2）に一酸化炭素の結果を示す。

(1) メタンの解析結果



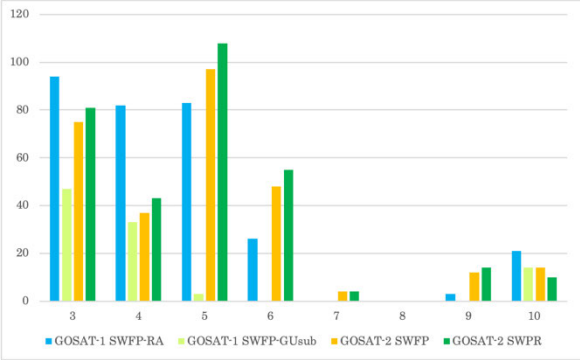
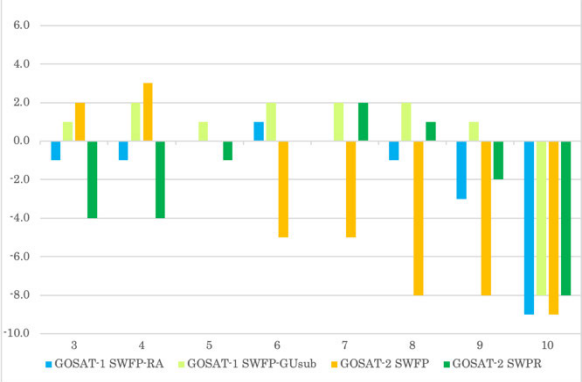


図2.11（左）全球の月ごとのデータ数(XCH_4)、（右）インド領域の月ごとのデータ数(XCH_4)



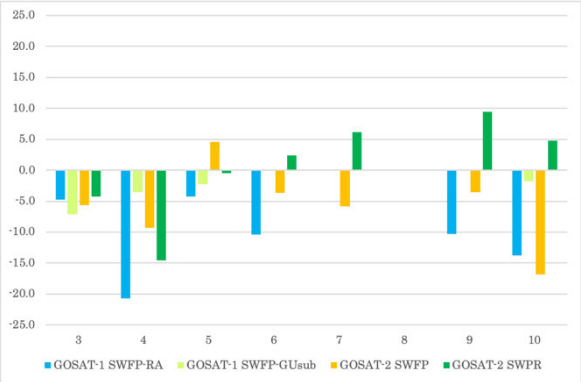
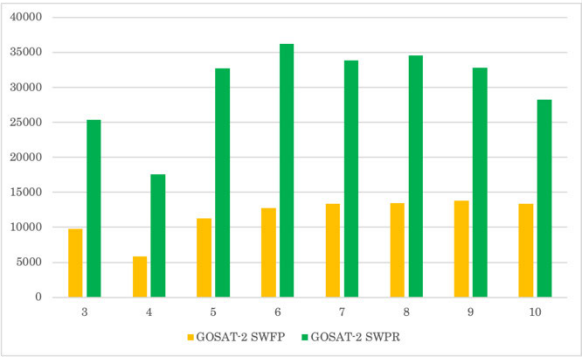


図2.12（左）全球の月ごとのXCH_4バイアス*（GOSATデータからTROPOMIデータを引いた残差の頻度分布の中央値に相当）。（右）インド領域の月ごとのバイアス（XCH_4）*バイアスがゼロである場合は図中に描かれていないことに注意。（プロダクツについては表2.2を参照されたい。）

(2) COの解析結果



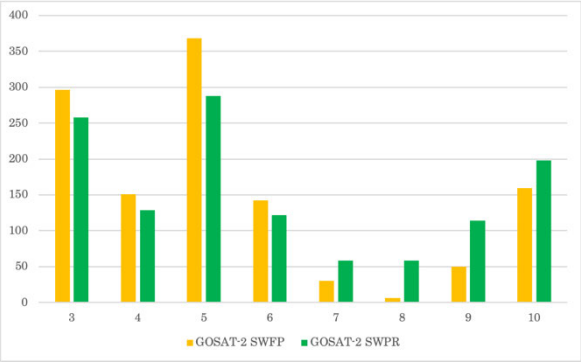


図2.13　（左）全球の月ごとのデータ数（XCO)、（右）インド領域の月ごとのデータ数(XCO)

図2.14　GOSATデータからTROPOMIデータを引いた残差。（左)全球の月ごとのバイアス（XCO)、（右）インド領域の月ごとのバイアス（XCO)。（プロダクツについては表2.2を参照されたい）

4.3.3　GOSAT/GOSAT-2とTROPOMI比較のまとめ

本報告では,GOSATおよびGOSAT-2で公表されている複数のプロダクツ(表2.1) とTROPOMIとのプロダクツのXCH_4とXCOの比較を行った。比較したペアのまとめは表2.2に示している通りである。

メタンについて(表2.3と表2.4を参照のこと)

全球解析において、GOSAT/GOSAT-2とTROPOMIの相関は0.8近くあり(0.78-0.83)相関は良好であった。バイアスは極めて小さく、両者の一致は良好であった。最も差が大きいのはGOSAT-2 SWFP (V01.04) であったが、5ppbv (TROPOMIの方が高濃度) という結果であった。GOSAT-1 SWFP-GUsubでは、ほぼTROPOMIとの差はないと判断された。

月別のバイアス (図2.12) を見ると、プロダクツ毎に異なる季節性が見られる。GOSAT-2 SWFPには3-4月に正バイアス、6-10月に負バイアスがみられるが、GOSAT-2 SWPRでは、逆に3-5月に負バイアス、7-8月には正バイアスが見られる。プロダクツ毎にバイアスにばらつきが異なることから、TROPOMIの側に系統的なバイアスがあるというより、GOSAT/GOSAT-2のプロダクツ毎に差があると見ることができるだろう。ただし、10月だけはすべてのプロダクツで負バイアスが目立っておりTROPOMIの側に問題がある可能性も示唆される。

インド上空に限った場合、GOSAT-2 SWFPのみ相関は0.66で、それ以外は0.8以上であった(表2.4)。バイアスについては、全球に比べて大きくなっている。しかし、最も絶対値が大きい場合でもGOSAT-1 SWFP-RA (V02.90)の-5.7ppbvであり、全体にはよく一致しているといえよう。ただし、月別に見ると、4月にデータ数がそれほど少なくないにもかかわらずバイアスが大きくなっており、系統的な問題が示唆される。

一酸化炭素について(表2.5と表2.6を参照のこと)

XCOの全期間の比較では、GOSAT-2の二つのプロダクトとも、TROPOMIより高い傾向を示した。二つのプロダクトのうちでは、GOSAT-2 SWFPのほうが、差が大きく、全球で15ppbv, インド上空で17ppbの差がみられた。常にTROPOMIの方が低い値であることから、TROPOMIの側に系統的な負バイアスが潜んでいる可能性がある。

なお、すでに知られていることであるが、インド上空では7月～９月の雨季には極端にデータ数が減少するため、バイアスなどは有意な結果になっていないであろう。全期間を通しての分析結果も、雨季以外の季節に偏った結果であることに注意が必要である。

５．研究目標の達成状況

4.2節で示した通り、TROPOMIで観測されたメタン分布は空間分解能がよいため、メタン濃度の地域別特性の抽出を行うことができた。また、地上観測データの流跡線解析による空気塊起源の分析を行ったことで、季節ごとにメタン発生源を推定できた。今後、GOSAT/GOSAT-2のデータを活用するために、空間分解能のよいTROPOMIの比較を詳細に行った。この結果は、今後リトリーバル方法の改善に寄与できると考えられる。以上のことから、研究目標にあげた内容は概ね達成したと考える。

６．引用文献

1) C. FRANKENBERG et al.: J. Geophys. Res., 116, D4 (2011), Global column-averaged methane mixing ratios from 2003 to 2009 as derived from SCIAMACHY: Trends and variability.
2) S. HAYASHIDA et al.: Remote Sens. Environ., 139, 246-256 (2013), Methane concentrations over Monsoon Asia as observed by SCIAMACHY: Signals of methane emission from rice cultivation.
3) X. XIONG et al.: Atmos. Chem. Phys, 9, 783-794 (2009), Methane plume over south Asia during the monsoon season: satellite observation and model simulation.
4) A. K. BAKER et al.: Geophys. Res. Lett., 39, 10 (2012), Estimating the contribution of monsoon-related biogenic production to methane emissions from South Asia using CARIBIC observations.
5) N. CHANDRA, S. HAYASHIDA, T. SAEKI, P. K. PATRA: Atmos. Chem. Phys., 17, 12633-12643 (2017),

What controls the seasonal cycle of columnar methane observed by GOSAT over different regions in India?

Ⅱ－３　全球メタン放出量推定におけるGOSAT/GOSAT-2及び地上観測データの有効性の評価

国立研究開発法人海洋研究開発機構
地球環境部門 地球表層システム研究センター　PATRA K. Prabir
＜研究協力者＞
地球環境部門 地球表層システム研究センター　Jagat S.H. Bisht（平成31年～令和２年度）

［要旨］

トップダウン手法によるメタン（CH_4）放出量推定の精緻化には、大気中のCH_4濃度のシミュレーション計算を行う大気化学輸送モデルとインバース解析システムの改良および高度化が不可欠である。本研究では、大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMの鉛直輸送過程を改良し、CONTRAILによる航空機観測の温室効果ガス（GHG）データと比較したところ、春から夏にかけてはGHG濃度の再現性が悪くなるものの、秋冬季についてはモデルが観測値の濃度変動の範囲内でGHG濃度を再現できていることが示された。また、六フッ化硫黄（SF6）と二酸化炭素（CO_2）のモデル計算値から算出した大気年代（Age）は、春から夏にかけては過小評価、秋から冬にかけては観測値から算出した値とよい一致を示した。MIROC4-ACTMを用いたインバース解析システムで、全球・領域別の一酸化二窒素（N_2O）の1997-2019年の排出量の推定したところ、陸域の多くの領域でN_2O排出量は系統的な増加を示しており、熱帯アメリカや中央アフリカで排出量の事後推定値の増加率が事前推定値（アプリオリ）の増加率の2倍以上となっていることがわかった。さらに、LETKF（Local Ensemble Transform Kalman Filter）ベースのCH_4データ同化システムを開発し、グリッドごとにCH_4排出量を推定する同化実験を実施したところ、事後推定値が真値のCH_4フラックスの空間的なパターンをよく再現していることが確認でき、開発したLETKFデータ同化システムが地上観測データの同化のみで大陸のCH_4フラックスの空間パターンを再現できることを示すことができた。一方、GOSATの気柱平均濃度（XCH_4）観測データのみを同化する実験では、一部の領域のCH_4フラックスの推定が難しいことがわかった。また、CH_4安定炭素同位体比（$\delta^{13}C$-CH_4）の2次元ボックスモデルを開発し、シミュレーションを行った結果と観測値を比較したところ、従来のインベントリデータ（EDGAR v4.3.2）の漏洩排出（fugitive emissions）の排出量が過大評価である可能性が示された。

本研究で開発・改良したシステムにより、全球でCH_4およびN_2Oの放出量推定を行い、さらに従来より細かい時空間スケールで排出源別にCH_4収支の評価を行えることを示すことによって、CH_4の放出量推定を精緻化することができた。

１．研究開発目的

本課題では、衛星観測および地上観測の濃度データを活用して、トップダウン手法に基づいた全球のCH_4放出量推定の確度および精度を改善することを目的としている。トップダウン手法によるCH_4放出量推定の精緻化のためには、大気化学輸送モデルとインバース解析システムの改良および高度化が必要である。

この目的のために、サブテーマ（3）では、MIROC4-ACTM（Model for Interdisciplinary Research On Climate Earth System Model, version 4 - Atmospheric Chemistry-Transport Model)の鉛直輸送過程の改良を行い、航空機観測データ等との比較を通して、モデルのGHG濃度の再現性を評価する。改良・評価済のMIROC4-ACTMによるインバース解析システムを構築し、サブテーマ（1）とも協力して、CH_4およびN_2Oの全球・領域別の収支評価を行う。さらに、より小さな空間スケールでCH_4収支を評価するために、LETKF（局所アンサンブル変換カルマンフィルター）ベースのデータ同化システムの開発を行う。また、CH_4放出量推定の精緻化を目的として、$\delta^{13}C$-CH_4の2次元ボックスモデルを開発し、シミュレーション計算を実施する。

２．研究目標

大気輸送モデルの改良を行い、地上・航空機・衛星観測のメタン等の長寿命気体データとの比較を通して改良したモデルを評価した上で、全球でメタン放出量の推定を行う。並行して、LETKFベースのデータ同化システムを開発し、種々の観測データを投入・同化することで、より細かい時空間スケールでメタンの収支を評価し、メタンの放出量推定を精緻化する。

３．研究開発内容

MIROC4-ACTMの構成

大気中のGHGの濃度は、JAMSTECの気候モデルであるModel for Interdisciplinary Research on Climate（MIROC、バージョン4.0）ベースのACTM（以下、MIROC4-ACTMと記載する）を使用して計算する。モデルのシミュレーション計算は、水平解像度T42の分解能（緯度・経度2.8° グリッド）で、地表から0.0128 hPaまで67レベルのハイブリッド垂直座標で行う。ハイブリッド座標系とは、地表付近ではシグマ気圧面（=(P-PT)/(PS-PT)；Pはモデルの各大気層の気圧、PSおよびPTはモデルの地表面と大気上端の気圧）で、高度329 hPa以上では気圧層が徐々に変化する座標系である[1)]。大気中の各グリッドおよび各高度におけるCO_2、CH_4、N_2O量（B_{ACTM}）の時間発展について、以下の連続方程式を解く。

$$\frac{dB_{ACTM}(x,y,z,t)}{dt} = S_0(x,y,t) - L(x,y,z,t) - \nabla.\phi(x,y,z,t) \qquad (1)$$

ここで、S_0はボトムアップの排出量インベントリと陸域生態系モデルのシミュレーションから得られたCO_2、CH_4、N_2Oの排出量（事前推定値）、LはCH_4については水酸化ラジカル（OH）、塩素原子（Cl）、励起状態の酸素（$O(^1D)$）との反応による消失、N_2Oについては紫外線による光分解（j_{N2O}）と化学反応（$O(^1D)$）による消失を表している。

$CH_4 + O(^1D) \rightarrow$ Products	(k_{01D} =1.75×10^{-10}	[cm^3 $molecule^{-1}$ s^{-1}])	(R1)
$CH_4 + OH \rightarrow CH_3 + H_2O$	(k_{OH}= 2.45×10^{-12} $e^{-1775/T}$)	[cm^3 $molecule^{-1}$ s^{-1}])	(R2)
$CH_4 + Cl \rightarrow CH_3 + HCl$	(k_{Cl}=7.3×10^{-12} $e^{-1280/T}$)	[cm^3 $molecule^{-1}$ s^{-1}])	(R3)
$N_2O + h\nu$ (uv) $\rightarrow N_2 + O(^1D)$			(j_{N2O})
$N_2O + O(^1D) \rightarrow 2NO$	(k_a=0.73×10^{-10} × $e^{20/T}$)	[cm^3 $molecule^{-1}$ s^{-1}])	(R4)
$N_2O + O(^1D) \rightarrow N_2 + O_2$	(k_b=0.46×10^{-10} × $e^{20/T}$)	[cm^3 $molecule^{-1}$ s^{-1}])	(R5)

$\nabla\phi$はすべての化学種に共通の移流、対流、拡散による輸送であり、x、y、z、tはそれぞれ、経度、緯度、高度、時刻を表す。計算されたB_{ACTM}の全球平均値が大気中濃度D_{ACTM}となる。

MIROC4-ACTMの水平風（U、V）と気温（T）は、総観スケールの輸送の特性をより正確に表現するために、すべての高度で気象庁の長期再解析データ（JRA-55）[2)]でナッジングされている。MIROC4-ACTMでは、対流圏の大規模半球間輸送についてはSF_6を用いて、成層圏のブリュワー・ドブソン循環についてはSF6とCO_2から算出した大気年代（Age）を用いて、包括的な検証を行っている[3)]。また、大気中の化学的消失を算出するため、3次元のOH濃度データ[4)]が使用されている。全球平均のOH濃度については、対流圏で観測されたメチルクロロホルム（CH_3CCl_3）の減衰率を再現するために、OH濃度の月別値にスケーリング係数0.92を適用して最適化している。北半球と南半球（NH/SH）のOH濃度比は1に近いため[4)]、この条件を「cntl」ケースとする。OH、$O(^1D)$、Clラジカルとの反応による成層圏CH_4の消失は、ACTMモデルの成層圏シミュレーション[5)]で計算された濃度場から算出した。

CH_4に対するLETKFデータ同化システムの定式化

LETKFをCH_4フラックス推定に適用した場合について簡単に述べる（図3. 1）。LETKFでは、局所領域の背景アンサンブル（行列の列要素x^b）は、一連の初期条件の摂動の集合から進展する。アンサンブル状態は以下のように書ける。

$$x^b = \bar{x}^b + X^b \tag{2}$$

ここで、$\bar{x}^b$はアンサンブル平均を含む列ベクトルであり、X^bは行列で各列はアンサンブル平均からの背景アンサンブル摂動を表す。m次元アンサンブルにおける背景誤差の共分散行列P^bは以下で定義される。

$$P^b = \frac{1}{m-1} X^b \left[X^b\right]^T \tag{3}$$

解析アンサンブル平均$\bar{x}^a$は、背景アンサンブル平均$\bar{x}^b$とアンサンブル摂動X^bを用いて以下のように表せる。

$$\bar{x}^a = \bar{x}^b + X^b \tilde{P}^a \left(Y^b\right)^T R^{-1} \left(y^o - H\bar{x}^b\right) = \bar{x}^b + X^b w^a \tag{4}$$

ここで、H、Y、R、および$\tilde{P}^a$はそれぞれ、線形観測演算子、観測空間におけるアンサンブル摂動行列（Y ≡ HX）、観測誤差共分散行列、アンサンブル空間における解析誤差共分散行列を表す。上付き文字'o'、'b'、'a'はそれぞれ、観測、背景（事前）、解析（事後）を表す。w^aは、観測空間における解析増分（または解析重み）を定義し、観測増分$y^o - H\bar{x}^b$に関する情報とともに導き出される。m次元のアンサンブル空間における解析誤差の共分散行列($\tilde{P}^a$)はアンサンブル摂動によって張られ、以下により定義される。

$$\tilde{P}^a = \{(m-1)I + \left(HX^b\right)^T R^{-1} HX^b\}^{-1} \tag{5}$$

最後に、中心グリッド点での解析アンサンブル摂動X^aは以下のように導出できる。

$$X^a = X^b \{(m-1)\tilde{P}^a\}^{1/2} \tag{6}$$

ここで、$\{(m-1)\tilde{P}^a\}^{1/2}$は、アンサンブル空間における局所解析誤差共分散行列の対称平方根の倍数であり、特異値分解により算出できる。EnKFでは、分散不足の条件下でアンサンブルを緩和するために分散インフレーションが必要である。固定倍率（FM）インフレーション法は、式（2）で定義された背景誤差共分散行列P^bをインフレーションさせることにより、背景アンサンブルを以下のようにインフレーションさせる方法である。

$$P^b_{inf} = \gamma P^b_{tmp} \tag{7}$$

ここで、P^b_{tmp}はFMファクターγでインフレーションさせた一時的な背景誤差の共分散行列を表す。一般的な方法としては、解析ステップごとに観測空間統計値を用いてすべてのグリッド点で乗法的なインフレーション係数を決定して実装される。アンサンブルスプレッドの低下を防ぐために用いられる他のインフレーション法として、Relaxation-to-Prior Perturbation(RTPP)、Relaxation-to-Prior Spread(RTPS)がある。RTPP法では、背景アンサンブルと解析アンサンブルの摂動をブレンドしたアンサンブル摂動を更新した後、アンサンブルスプレッドの縮退を緩和する。ここで、α_{RTPP}はRTPPの緩和パラメータを表す。

$$X^a_{inf} = \alpha_{RTPP} X^b + (1 - \alpha_{RTPP}) X^a_{tmp} \tag{8}$$

RTPSインフレーション法は、解析スプレッドを背景スプレッドに緩和することによって、アンサンブルスプレッドの縮退を緩和する方法である。

$$X^a_{RLX} = \left(\frac{\alpha_{RTPS}\sigma^b + (1 - \alpha_{RTPS})\sigma^a}{\sigma^a}\right) X^a_{tmp} \tag{9}$$

ここで、σ、α_{RTPS}はそれぞれ、RTPSのアンサンブルスプレッド、緩和パラメータを表す。パラメータα_{RTPS}の範囲は0-1で設定する。本研究では、主にFMとRTPSの共分散インフレーション法を用いる。

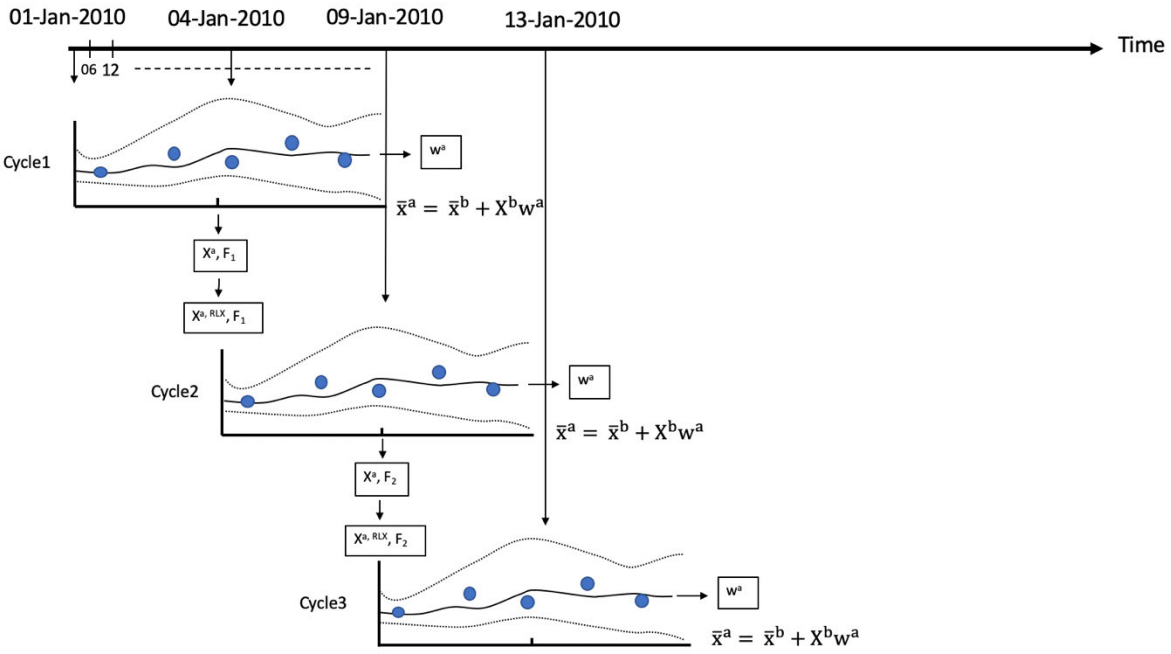


図3．1　LETKFサイクルの時間発展を示す模式図。最初の同化ウィンドウ（Cycle 1）で、破線はCH_4濃度のアンサンブル予測（2つのアンサンブルメンバー）、実線は予測の線形結合、丸印はCH_4濃度の観測値を示している。データ同化では、同化ウィンドウ全体を通して、観測値に最も適合する重み（w^a）を推定することで、アンサンブル予報の線形結合を求める。解析重みは、データ同化ウィンドウの中間時刻における最適なCH_4の地表フラックス（F）と濃度（x^a）を得るために適用する。更新された濃度アンサンブルは、次のアンサンブル予測のために緩和後の初期条件（$Xa^{,RLX}$）として使用される。アンサンブルメンバーのスプレッドは予測誤差を表す。

<u>全球・領域別インバース解析（CH_4: 53地域、N_2O: 84地域）</u>

ベイズ理論に基づいたインバース解析は、データの同化によって事前情報（事前推定）を修正・改良する強力な統計ツールの一つである。我々は、先行研究[6]をもとに事後推定による消失の補正の修正を加えた[7]、時間依存のベイズ理論インバースモデルを使用する。本研究では、陸域の53領域でインバース解析を行い、月別の総CH_4排出量を推定した。すなわち、どの排出源が変化しているかという解釈は事前推定値からの変化ということになる。なお、海洋は地球全体のCH_4放出量に対する寄与が少ないため（～18 Tg yr^{-1}）、海洋ではCH_4排出量の最適化は行わない。排出源の強度は、排出量（S）と濃度（D）の間に線形関係を仮定し、G.S = Dの最小二乗解によって予測される。ここで、Gは各領域のソース・レセプターの関係性を定義するグリーン関数である。CH_4排出量（S）とその共分散（Cs）は以下の式で計算できる。

$$S = S_0 + \left(G^T C_D^{-1} G + C_{S_0}^{-1}\right)^{-1} G^T C_D^{-1} (D_{Obs} - D_{ACTM}) \quad (10)$$

$$C_S = \left(G^T C_D^{-1} G + C_{S_0}^{-1}\right)^{-1} \quad (11)$$

ここで、S_0は各領域のCH_4排出量の事前推定値、C_{S0}はCH_4排出量の事前推定値の共分散（不確実性の二乗）、D_{Obs}は大気観測データ、D_{ACTM}はCH_4排出量の事前推定値を用いたフォワードモデルシミュレーション、C_Dは観測データの共分散である。なお、N_2Oのインバース解析システムも、陸域54領域、海洋30領域からの排出量を最適化するという点を除き、基本的にCH_4のインバース解析システム同様である[8]。

δ ^{13}C-CHの2次元ボックスモデルの開発

2次元ボックスモデルを用いて、各半球のCH_4濃度とδ ^{13}C-CH_4のシミュレーション計算を実施した。シミュレーションでは下記の連続方程式を解く。

$$\frac{d[C]_{NH}}{dt} = E_{NH} - (k_{OH}\,[OH]_{NH})[C]_{NH} - k_{IH}\,([C]_{NH} - [C]_{SH}) \tag{12}$$

$$\mathrm{S}\frac{d[C]_{SH}}{dt} = E_{SH} - (k_{OH}\,[OH]_{SH})[C]_{SH} + k_{IH}\,([C]_{NH} - [C]_{SH}) \tag{13}$$

下付き文字のNHとSHは、北半球と南半球を表す。第一項（E）は各半球での排出、第二項（k_{OH} [OH][C]）はOHによる消失、最後の項（k_{IH}([C]$_{NH}$-[C]$_{SH}$)）は両半球間の輸送を表す。[C]は各半球のCH_4（^{12}C-CH_4）および^{13}C-CH_4の濃度を表す。δ ^{13}C-CH_4の値は、^{12}C-CH_4および^{13}C-CH_4のシミュレーション計算結果を用いて算出した[7]。

全球の大気中のδ ^{13}C-CH_4は、全球エミッションE（δ $^{13}C_E$）とCH_4消失過程（ε_L^{13C}）に伴う速度論的同位体効果の同位体特性から算出する。ボトムアップ推定の個々の排出区分（E_i）を用いて、δ $13C_E$ − CH_4を算出する。

$$\delta^{13}\mathrm{C} - \mathrm{CH4} = \delta^{13}C_E + \varepsilon_L^{13C} \tag{14}$$

$$\delta^{13}C_E = \frac{\sum_i(\delta^{13}C_{Ei} \times E_i\ )}{\sum_i E_i} \tag{15}$$

$$\varepsilon_L^{13C} = \frac{\sum_j(\varepsilon_{L_j}^{13C} \times L_j\ )}{\sum_j L_j} \tag{16}$$

ここで、δ $^{13}C_{Ei}$および$\varepsilon_{L_j}^{13C}$は、それぞれの排出区分（E_i）と消失区分（L_j）の同位体特性と速度論的同位体効果である。OH、Cl、O(^{1}D)によるCH_4の化学的消失は、1988年から2016年について最適化された排出量を用いたACTMシミュレーションから計算されたものである。

モデルは1年ごとの時間間隔で実行した。半球間輸送のタイムスケールは1年とし、地球平均のOH濃度の数密度は～1×10^6 cm^{-1}とした。CH_4排出量の事前推定値のほかに、工業由来の排出量を修正したケースも用意し、観測された変化に対して最適なモデル計算を実施できるようにした。

上部対流圏（UT）および下部成層圏（LS）の観測とモデルの比較解析

CONTRAILプロジェクトでは、2012年から日本航空の日本－欧州間と、1993年から日本－オーストラリア間の民間旅客機を利用して、自動大気サンプリング装置（Automatic air Sampling Equipment: ASE）および手動大気サンプリング装置（Manual air Sampling Equipment: MSE）による大気サンプリングを実施している。図3. 2の飛行経路に沿って、ASEとMSEは高度7-12 kmの範囲でフラスコサンプリングを実施しており、ここでは2012年4月から2016年12月までのASE/MSEのデータを使用した。ASEの測定精度は、CO_2が0.03 ppm、CH_4が1.7 ppb、N_2Oが0.3 ppb、SF6が0.3 pptと評価されている[9]。本研究では、UT（対流圏中部から対流圏界面まで）についてはeq-10°N、10°N-20°N、20°N-30°N、50°N-70°Nの4つの緯度帯で、LS（対流圏界面より上）については50°N-70°Nで、観測とモデルのGHG濃度の時系列の比較解析を行った。なお、30°N-50°Nについては、観測データ数が少ないため解析対象から除外した。比較にあたり、モデルのシミュレーション結果は各観測の飛行位置と時刻に補間した。力学的対流圏界面は亜熱帯緯度のポテンシャル渦度（PV）の閾値により定義した。UTの解析では、モデルおよび観測のN_2O濃度が低い場合は成層圏データとして除外した。10°N-20°N、20°N-30°N、50°N-70°Nでは、N_2O濃度がeq-10°NのN_2O濃度の月平均値に対して1.5 ppb以上低い場合は全データを成層圏とみなした。各緯度帯のGHGデータの時系列は、デジタルフィルタリングとフィッティングの手法を用いて季節変動と長期トレンドを解析した[10]。この方法では、カットオフ値の長さは24ヶ月で、3つの高調波を持つバターワースフィルタを用いて、すべてのデータ点をフィットさせる。季節周期は、観測データとモデルシミュレーションの時系列から長期トレン

ドを引いて算出した。温位（Θ）は、観測された温度（T）と圧力（P）から、$\Theta = T(1000/P)^{0.286}$の式を用いて算出した。ここでは、力学的対流圏界面を定義するために、ECMWF再解析データ（ERA-interim）[11]のPVデータを使用した。

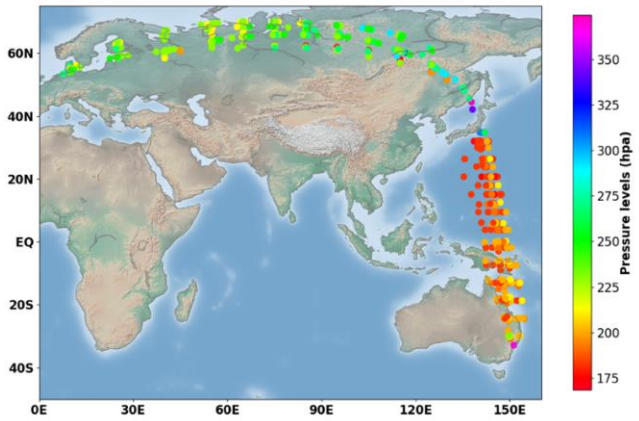


図3．2　CONTRAILプロジェクトによる日本-欧州間および日本-豪州間の航空機観測の大気サンプリング位置。飛行高度を気圧の単位で色分けしている。

４．結果及び考察

LETKFデータ同化システムを用いて推定したグリッドごとのCH_4排出量

図3．3に、陸域の15地域におけるCH_4フラックスの事後推定値（RTPS）、事前推定値（prior）、真値（true）の季節サイクルの比較を示す。多くの領域で、RTPSインフレーション法で算出した事後推定フラックスが真値フラックスとよい一致を示していることがわかる。地上生物圏のCH_4サイクルの理解において、これらの領域で地上観測データを用いたLETKFによるフラックスの事後推定値が真値を再現できることを示すことは重要であり、図3．3の結果はRTPSインフレーション法がFMインフレーション法と比較してCH_4フラックス推定において優位性があることを示している。

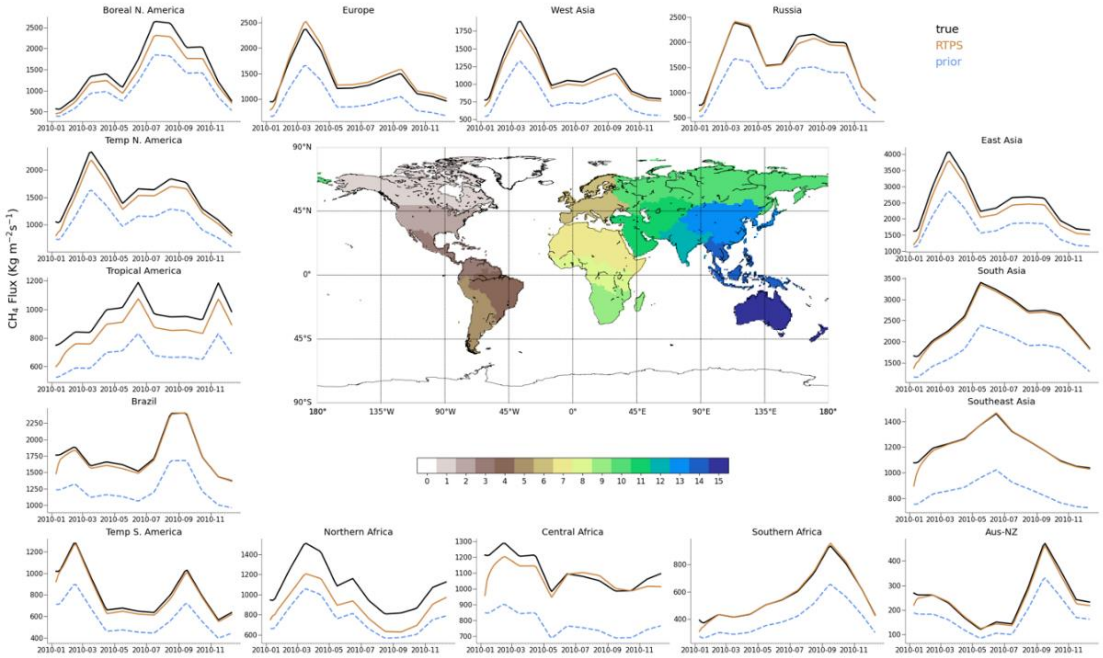


図3．3　15領域におけるCH_4の地上観測データ同化後の年間総CH_4フラックスの季節サイクル。真値(黒)、事前推定値（青破線）、LETKFのRTPSインフレーション法による事後推定値（橙）。

CH_4フラックスの事後推定値と真値の類似度を比較するため、6月の月平均CH_4フラックス分布と事前推定値と事後推定値のバイアス分布を示す（図3．4）。真値フラックスの空間的なパターンが概ねよく再現されていることがわかる。これらの結果から、本研究で開発したLETKFシステムが地上観測データの同化のみで大陸のCH_4フラックスの空間パターンを再現できることが示された。3月については、真値フラックスには北半球の中緯度から高緯度にかけて大規模なソースがあり、この特徴はRTPS、FMインフレーション法のいずれを用いたLETKFフラックス推定においても十分に再現されている（図3．3）。ただし、アジアおよび南米では、FMインフレーション法よりもRTPSインフレーション法を用いた推定の方がバイアスが少ないなど、両者のフラックス推定に明らかな差異が見られた。

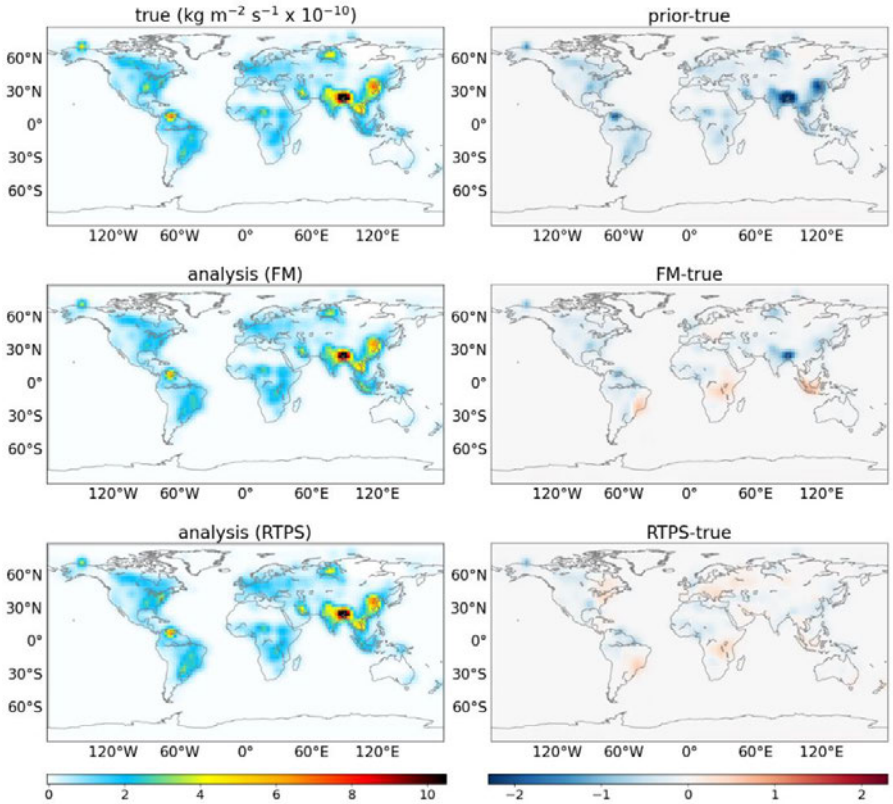


図3．4　2010年6月のCH_4フラックスの空間分布（左上：真値、左中：FM事後推定値、左下：RTPS事後推定値）およびCH_4フラックスの事前推定値（右上）、FM事後推定値（右中）、RTPS事後推定値（右下）の真値に対するバイアス。

次に、GOSAT/TANSO-FTSの短波長赤外バンド（SWIR）バンドのXCH_4の疑似観測データを同化した場合のLETKFフラックス推定について詳述する。図3．5は、2010年1月および7月のGOSAT観測地点を時空間的にサンプリングしてモデルによって計算したXCH_4のシミュレーション結果である。RTPSインフレーション法では、最適なα_{RTPS}（式9）の値は異なる領域でのフラックス推定の精度に基づいて0から1の範囲で設定される。RTPSインフレーション法による正規化RMSEは、数回繰り返すと大幅に改善されることがわかっている。RTPSインフレーション法では、最初の数回のうちは冬季の北半球の観測が疎であるため合理的な結果は得られないが、多くの観測が同化されるとフラックス推定の堅牢性が向上する。GOSATのSWIRバンドのXCH_4疑似観測データの同化の場合、密な観測を同化する場合に比べて誤差が大きいが、これは観測が疎であることに加えて観測に含まれるCH_4フラックスのシグナルが比較的希薄であるためと考えられる。このような制約は、GOSATのSWIRバンドのXCH_4データとともに熱赤外バンド（TIRバンド）のCH_4鉛直濃度分布を同化することで大幅に緩和されると期待できる。

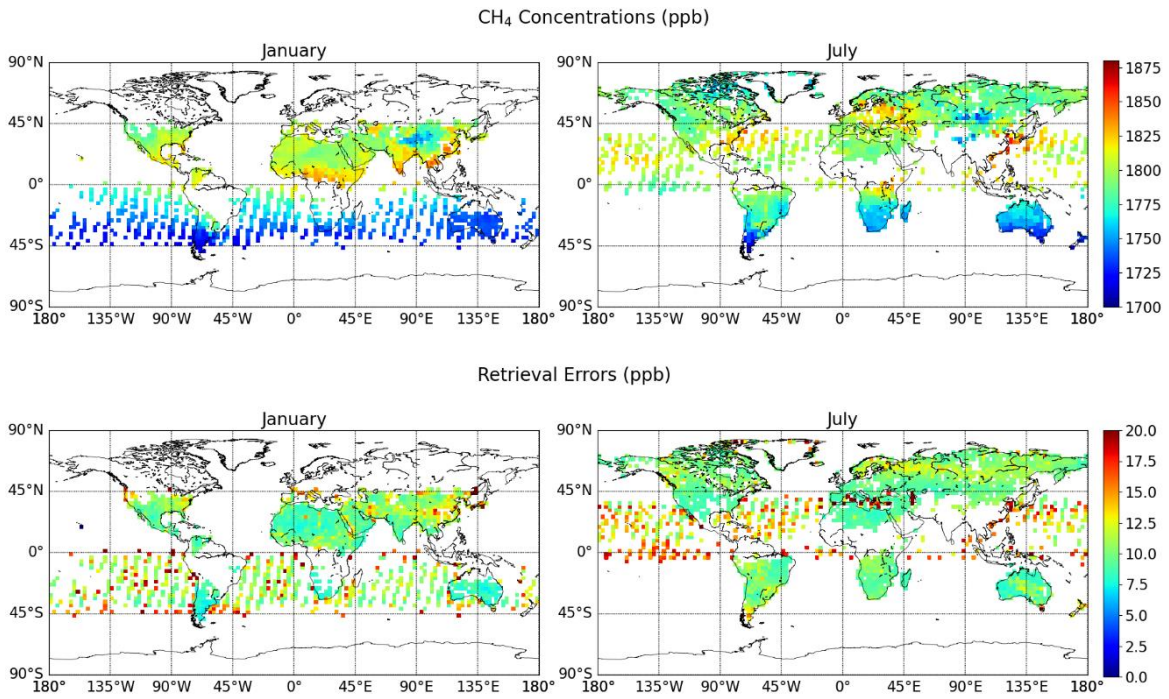


図3. 5 GOSAT/TANSO-FTSのSWIRバンドの観測地点で計算されたXCH_4月平均値のモデルシミュレーション結果（2010年）。同化されるデータとなる。

図3. 6は、6月についてGOSATのXCH_4疑似観測データを同化した場合の、CH_4フラックスの真値と推定値の空間パターンを示したものである。RTPSインフレーション法は、FMインフレーション法よりも、真値のフラックスパターンをより適切に再現できる可能性が示された。RTPSインフレーション法の空間パターンでは推定フラックスに正と負のバイアスが見られるが、フラックスの季節サイクルは真値とほぼ一致していた。一方、CH_4フラックスの過大評価については、バングラデシュやその周辺地域でCH_4フラックスが非常に大きくなる6月に顕著であった。我々が実施したGOSATの疑似観測データを同化するEnKF CH_4データの同化実験では、最新のRTPSインフレーション法を実装することで、ほとんどの領域で地表面CH_4フラックスの時間発展を良好に推定できた。一部の領域の地表面CH_4フラックスの推定は難しいが、地上観測データも併せて同化する、CH_4フラックスの気候値情報を利用するなど、ほかの方法を適用することで問題を解消できる可能性はある。

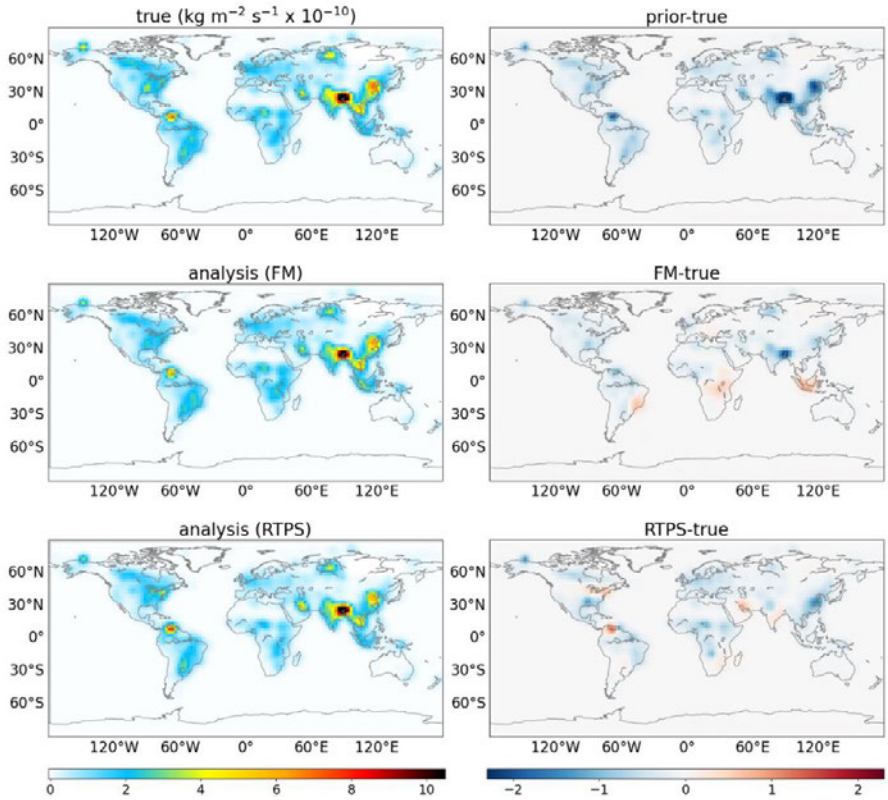


図3．6　FMおよびRTPSインフレーション法を用いて、6月のGOSATのSWIRバンドのXCH_4疑似観測データ（図3．5）を同化した場合のCH_4フラックスの空間分布（左上：真値、左中：FM事後推定値、左下：RTPS事後推定値）およびCH_4フラックスの事前推定値（右上）、FM事後推定値（右中）、RTPS事後推定値（右下）の真値に対するバイアス。

<u>$\delta^{13}C$-CH_4の推定値と観測値の整合性の評価</u>

CH_4排出源の種類によってCH_4同位体比は異なり、現代大気と比較して、生物起源のCH_4は$\delta^{13}C$-CH_4が低く、燃料の燃焼など有機物の熱分解で生じるCH_4は$\delta^{13}C$-CH_4が高いことが特徴である。本研究では、2次元ボックスモデルシミュレーションを用い、$\delta^{13}C$-CH_4に基づいて全球CH_4排出トレンドの整合性を検証した[7]。図3．7に、$\delta^{13}C$-CH_4の事前推定値および事後推定値と観測値の時系列の比較結果を示す。事前推定値の排出源セクターを用いたモデル（A prior）は、観測された$\delta^{13}C$-CH_4の1988-1998年の増加と1999-2006年の準定常状態は十分に再現できていたが（～0.05 ‰以内）、2008年以降の$\delta^{13}C$-CH_4の急激な減少を再現することはできなかった。$\delta^{13}C$-CH_4の同位体特性の不確実性のため、様々な排出源セクターの排出強度の組み合わせに対して一意に解を出すことは困難である。そこで、事前推定値であるEDGAR v4.3.2の漏洩排出（fugitive emissions）の排出トレンドを、中国本土のより新しい排出量インベントリ（2002-2010年のみ入手可能）[12]で調整し、さらに2011年の排出量を88.6 Tg/yrから2016年の83.5 Tg yr^{-1}へと徐々に削減した。その結果、観測値の$\delta^{13}C$-CH_4減少に対するモデルの再現性が向上したことから（A prior+PRO）、EDGAR v4.3.2の漏洩排出の排出量は過大評価（～20.8 Tg yr^{-1}）となっているものの、2002-2010年の漏洩排出の排出量増加（～10.9 Tg yr^{-1}）がCH_4増加の要因であると考えられる。一方、他研究で示唆されているように2000年頃からOH濃度が増加したと仮定すると、生物起源のCH_4排出量が大幅に増加しなくても大気中の$\delta^{13}C$-CH_4は2007年以降に増加傾向を示すということに留意が必要である。これは、2000年代には観測では$\delta^{13}C$-CH_4は増加傾向も減少傾向も見られないことから、漏洩排出の排出量増加がOH濃度の増加による消失量増加で相殺されるというシナリオとは矛盾している。

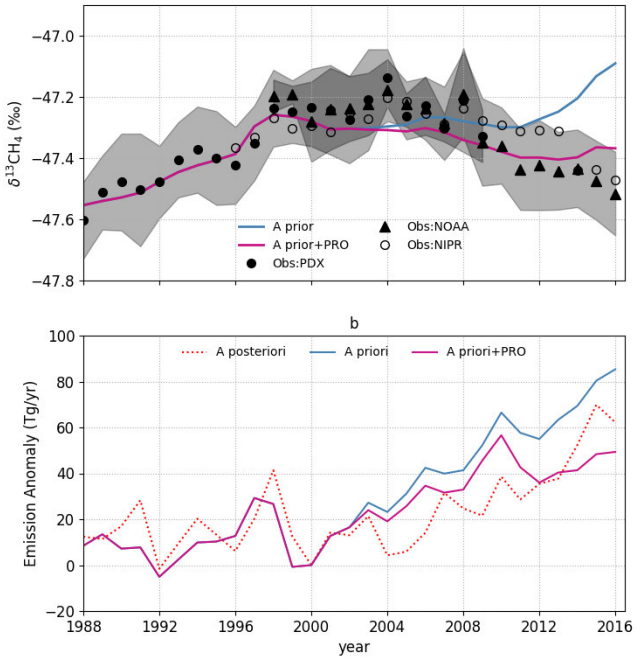


図3．7 δ ^{13}C-CH_4の時系列シミュレーション[7]。（a）北半球における観測値（シンボル）とモデル値（線）。2つの異なる事前推定値の排出量について計算した結果を示す。ここで、工業排出源セクター（PRO）は、EDGAR v4.3.2の全球排出量を2003年から2010年までの期間について中国本土のより新しい排出量インベントリ[12]で調整し、さらに排出量を2010年の90 Tg yr^{-1}から2016年の85 Tg yr^{-1}まで緩やかに減少させ、2016年時点での差を35 Tg yr^{-1}とした。（b）全球の総排出量のアノマリー（事前推定値と事後推定値がほぼ一致した2000年に対する値）。

トップダウン手法に基づくN_2O排出量推定

図3．8に、陸域のN_2Oの領域別排出量とその年間平均値のアノマリーを示す。1997-2019年のN_2O排出量の事後推定値は陸域の多くの領域で大きな経年変動と系統的な増加を示し（カラー線）、系統的な増加はほとんどの領域で排出量シナリオの事前推定値と同様である（灰線）。このことは、FAOSTATからの施肥データを用いたVISITモデルが、農業によるN_2O排出を合理的にシミュレーションできていることを示唆している。例外は、熱帯アメリカや中央アフリカで、排出量の事後推定値の増加率が事前推定値の増加率の2倍以上の速さである点である（図3.8d，h）。これは、一部の地域では、農地への施肥の1 kgあたりのN_2O排出係数が過小評価されているという考え方を裏付けるものである[13]。ENSOなどの自然気候変動によると思われる経年変動については、ほとんどの領域で事前推定値と事後推定値の一致が悪くなっているが、温帯北米地域、南・東・東南アジア地域では例外的によい相関が見られた（図 3.8b，l，m，n）。本研究のインバース解析の結果から、解析期間中に欧州からのN_2O排出量が減少していたことが示された[14]。この欧州におけるN_2O排出量減少の理由は、肥料製造を主な用途とする硝酸とナイロン製造を主な用途とするアジピン酸を製造していた化学工業で新たな技術が採用されたことが大きいと思われる（EDGAR v5.0）。

大気中のN_2O濃度の変動要因を理解するためには、全球および地域的なN_2O排出量の季節サイクルが重要である。N_2O濃度は季節的な輸送（成層圏での消失の影響を含む鉛直・水平方向の輸送）と地表からの排出量の変動によって変動しうる。N_2Oについては地表からの排出量の変動が比較的小さいため、鉛直輸送（成層圏-対流圏交換）が主要な濃度の変動要因の1つである。図 3．9は、1997-2019年の全球の陸域と海洋の月ごとのN_2O排出量のシミュレーション結果である。cntlケースと輸送感度シミュレーションケースによるインバース解析から、5月と6月の陸域におけるN_2O排出量の推定値は事前推定値と比べて4 Tg N yr^{-1}以上増加すること、陸域のN_2O排出量は従来の8月の鋭いピークではなく5-8月に幅広い排出量のピークを取ることが示された（PFU = 100%ケース）。一方、海洋についてはN_2O排出量の事前推定値の基本モードがインバース解析によって修正されることはなかった（排出量の系統的な下方修正のみが見られた）。

全球の陸域と海洋のN_2O排出量の最良事後推定値は、2000-2009年はそれぞれ12.99±0.22、2.74±0.27 Tg yr^{-1}、2010-2019年はそれぞれ14.30±0.20、2.91±0.27 TgN yr^{-1}であった[8]。全球の総N_2O排出量は、グローバルカーボンプロジェクト（Global Carbon Project: GCP）によるN_2O収支評価で推定された2007-2016

年の17.0（12.2-23.5）Tg N yr^{-1}（ボトムアップ推定）と16.9（15.9-17.7）Tg N yr^{-1}（トップダウン推定）と同等である[15)]。本研究のインバース解析の結果は、GCPによるN_2O収支のボトムアップ推定の海洋のN_2O排出量の下限値3.6（2.7-4.5）TgN yr^{-1}を強く裏付けるが、GCPによるトップダウン推定では1998-2016年の海洋のN_2O排出量は5.1（3.4-7.1）TgN yr^{-1}と高い値を示していた（図3. 10）。

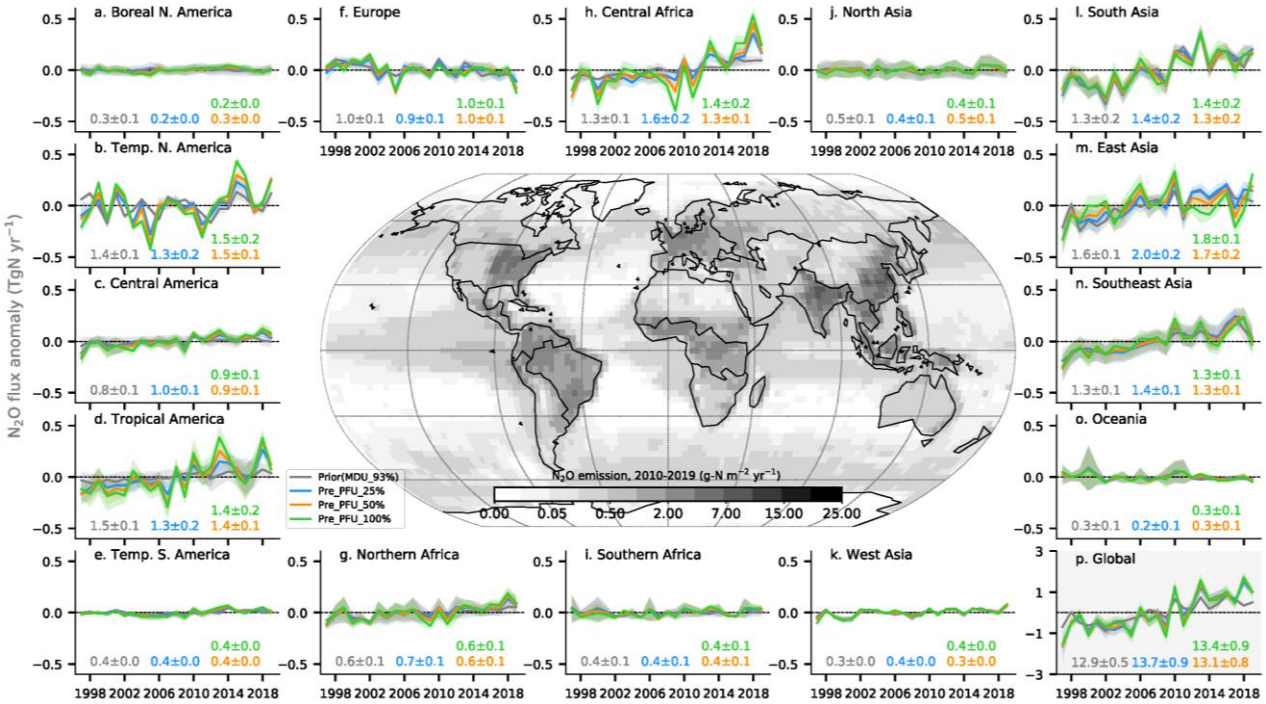


図3. 8　陸域の領域別N_2O排出量の事前推定値と事後推定値（MDU = 93%, PFU = 25%-100%）。各パネルに長期（1997-2019年）平均領域別N_2O排出量のアノマリーと標準偏差（1σ）を示す。中央に各グリッドのN_2O排出量を示す。

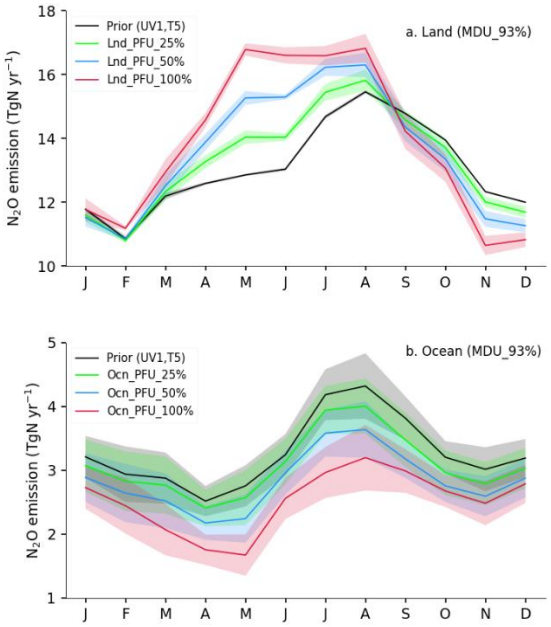


図3. 9　MIROC4-ACTMによる1997-2019年の全球の陸域（上）と海洋（下）の月ごとのN_2O排出量のシミュレーション結果。

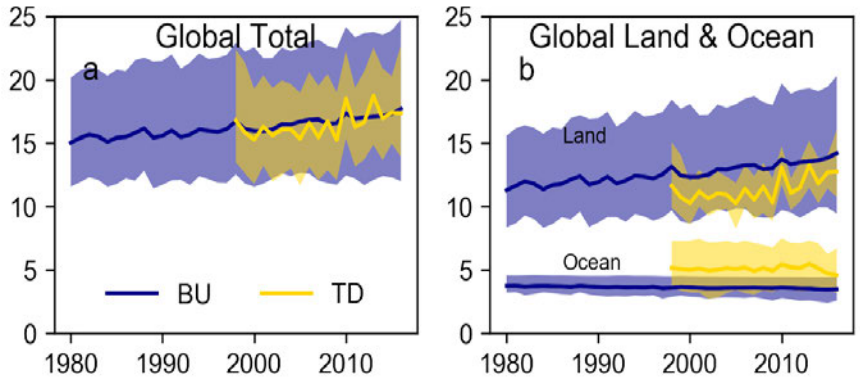


図3. 10　ボトムアップアプローチ（BU）とトップダウンアプローチ（TD）によって推定された全球および陸域・海洋の年間総N_2O排出量の比較（単位: TgN yr^{-1}）。青線、黄線はそれぞれ、BU推定法、TD推定法によるN_2O排出量の平均値、斜線部は最小値と最大値を表す。

CO_2、CH_4、N_2O、SF6を用いたMIROC4-ACTMモデルの検証

図 3. 11に、2012-2016年の北半球の冬（12-2月）、春（3-5月）、夏（6-8月）、秋（9-11月）の CONTRAIL観測とMIROC4-ACTMシミュレーションによるGHG濃度の平均値と標準偏差（トレンド除去済み）を示す。GHGデータは温位300 Kから380 Kまで10 K間隔でグループ化されている。標準偏差は増加トレンドを除去された時系列から算出しており、ある季節の経年変動による濃度幅を代表するものである。高緯度熱帯域のUT/LSにおいては、温位320 K、4 PVU以上の領域では成層圏の輸送過程（ブリュワー・ドブソン循環）がGHG変動に主に寄与しているため[16]、図3. 11にPVを濃淡（茶色: PV = 4-8 PVU、灰色: PV > 8 PVU）で示した。

まず、MIROC4-ACTMは、秋冬季は観測値の変動範囲内でGHG濃度を再現できていることがわかる。SF6については（図3. 11a）、対流圏混合が支配的な325 K以下（PV < 4 PVU）では観測値とモデル値がよい一致を示しており、モデルのSF6の地表エミッションが合理的であることが示唆された。一方、325 K以上（PV > 4 PVU）ではモデルがSF6濃度が過大評価しており、この傾向は春から夏にかけて顕著であった。CO_2については（図3. 11b）、秋冬季はすべての温位範囲でモデルの再現性は高かったが、春と夏にはモデルの系統的な過大評価が見られた。CO_2濃度の変動は、325 K以下（PV < 4P VU）では季節的なサイクルが優勢であり、夏に最も低く、春に最も高くなる。夏季にどの高度においてもCO_2鉛直濃度がモデルで系統的に過大評価されているということは、低緯度から下部成層圏への若い空気の流入を示唆するものである。CH_4濃度については（図3. 11c）、325 K以下ではすべての季節でモデルの過小評価が見られるものの、両者の差はモデルと観測の経年変動の濃度幅の範囲に収まっていた。一方、325 K以上では、観測、モデルともにCH_4濃度は明瞭な季節変動を示しており、春には大きな負の鉛直勾配が見られ、夏に負の勾配は小さくなり、秋に最も勾配が小さくなって冬に再び大きくなっていた。

図3. 12に示す通り、SF6とCO_2のモデル計算値から算出した大気年代（Age）は、両期間（2012-2013年、2014-2015年）とも春から夏にかけては過小評価、秋から冬にかけては観測値から算出した値とよい一致を示した。モデル内の輸送が速いことがSF6とCO_2のモデル値と観測値の季節差をもたらしていると考えられる（図3. 11a, b, PV > 4 PVU）。また、理想的なトレーサーから計算された大気年代とSF6から計算された大気年代は、排出量の季節性など対流圏の境界条件が似ているためによい一致を示しているが、季節的に変化する地表フラックスに境界条件が影響されるCO_2から計算された大気年代とは異なっていた。また、2014-2015年のCO_2による大気年代の計算結果（図 3. 12c）は、5-7月にかけて非常に若くなっていた（観測では0に近く、モデルでは5月にマイナス）。これは、この時期に対流圏大気の流入があることを示しており、CO_2の鉛直濃度分布（図3. 11b）や下部成層圏の季節変動にも反映されている。

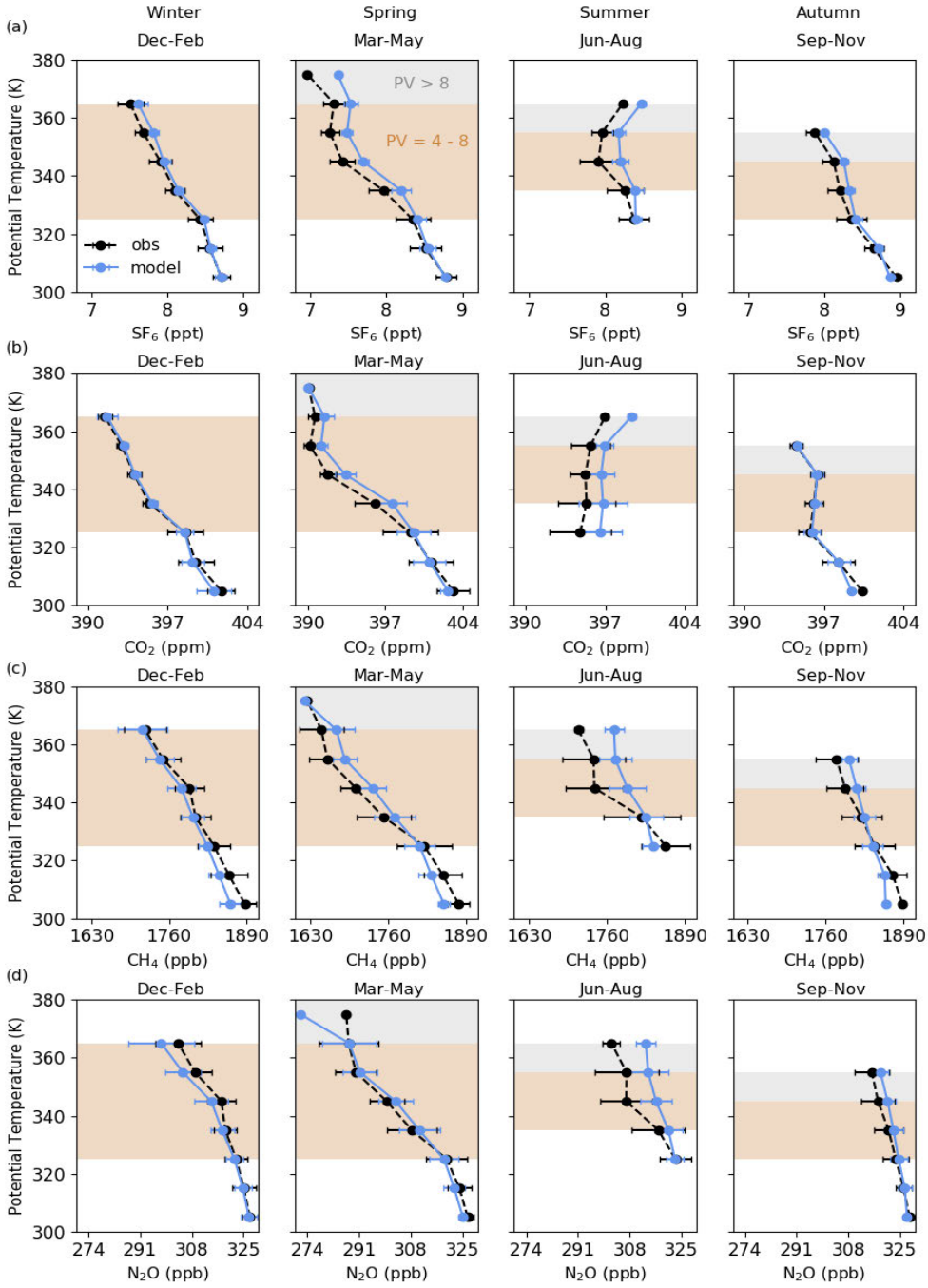


図3. 11　2012-2016年の（a）SF6、（b）CO_2、（c）CH_4、（d）N_2Oの温位別のCONTRAIL観測（黒）とMIROC4-ACTMモデル（青）の濃度平均値。エラーバーは各成分のトレンドを除去したデータから求めた標準偏差を示す。左から、冬（12-2月）、春（3-5月）、夏（6-8月）、秋（9-11月）の濃度。茶色と灰色のハッチは、それぞれ4-8 PVUと8 PVUの平均的な温位範囲を表している。

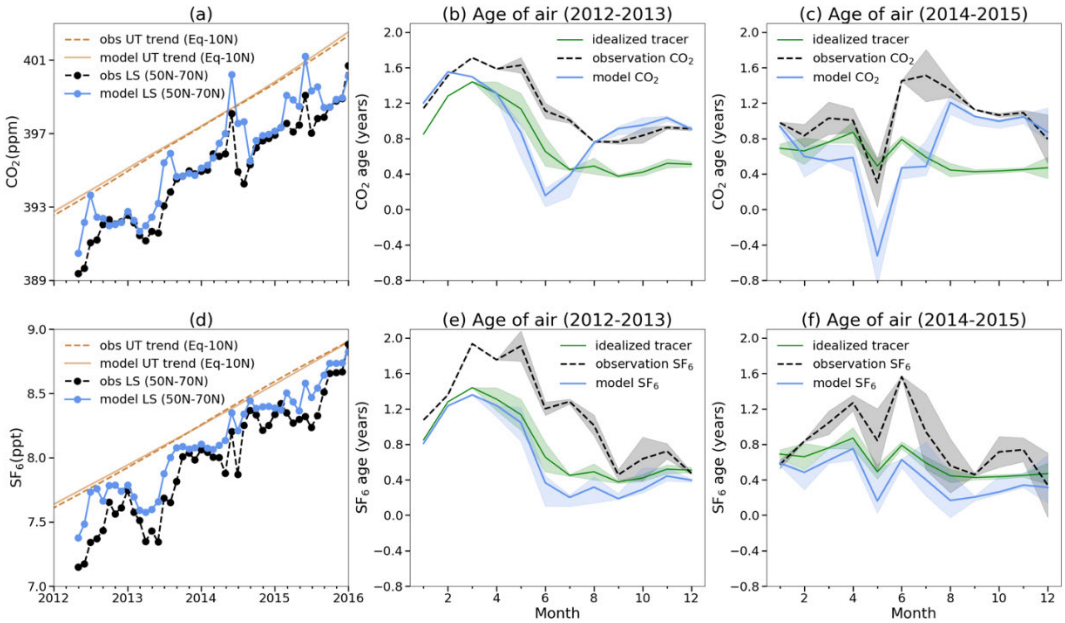


図3. 12　(a, d) 上部対流圏（UT）/下部成層圏（LS）におけるCO_2とSF6濃度の観測値とモデル値。ユーラシア大陸上のEq-10°NのUTにおける濃度の観測値（破線）とモデル値（実線）の線形トレンド、50°N-70°NのLSにおける月平均濃度の観測値（黒破線）とモデル値（青実線）。(b, c, e, f) CO_2、SF6、モデルベースの理想化トレーサーから算出した高緯度のLSにおける大気年代（Age）の季節変動。

５．研究目標の達成状況

大気化学輸送モデルMIROC4-ACTMの改良を行い、地上・航空機・衛星観測のSF6、CO_2、CH_4等の長寿命気体データとの比較に基づいて評価を行ったうえで、MIROC4-ACTMを用いたインバース解析システムを構築し、全球および領域別にCH_4およびN_2Oの放出量の推定を行った。LETKFベースのCH_4データ同化システムを開発することで、従来より細かい時空間スケールで排出源別のCH_4収支を評価することができることを示し、さらにδ^{13}C-CH_4の2次元ボックスモデルを開発してシミュレーション計算を行ったことで、従来のインベントリデータの排出量が過大評価である可能性を指摘することができた。本研究により、CH_4の放出量推定を精緻化することができ、研究目標を十分に達成できたと考える。

６．引用文献

1) S. WATANABE et al.: J. earth simul, 9, 27-35 (2008), Development of an Atmospheric General Circulation Model for Integrated Earth System Modeling on the Earth Simulator.
2) S. KOBAYASHI et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn., https://doi.org/10.2151/jmsj.2015-001 (2015), The JRA-55 reanalysis: General specifications and basic characteristics.
3) P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, N. CHANDRA, K. ISHIJIMA, Y. YAMASHITA: SOLA, 14, 91-96, https://doi.org/10.2151/SOLA.2018-016 (2018), Improved chemical tracer simulation by MIROC4.0-based atmospheric chemistry-transport model (MIROC4-ACTM).
4) P. K. PATRA et al.: Nature, 513, 219-223 (2014), Observational evidence for interhemispheric hydroxyl-radical parity.
5) M. TAKIGAWA, M. TAKAHASHI, H. AKIYOSHI: J. Geophys. Res. Atmos., 104(D11), 14003-14018, https://doi.org/10.1029/1998JD100105 (1999), Simulation of ozone and other chemical species using a Center for Climate System Research/National Institute for Environmental

Studies atmospheric GCM with coupled stratospheric chemistry.

6) P. K. PATRA et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn., 94(1), 91-113, https://doi.org/10.2151/jmsj.2016-006 (2016), Regional methane emission estimation based on observed atmospheric concentrations (2002-2012).

7) N. CHANDRA et al.: J. Meteorol. Soc. Jpn. Ser. II, 99, 2309-2337 https://doi.org/10.2151/jmsj.2021-015 (2021), Emissions from the oil and gas sectors, coal mining and ruminant farming drive methane growth over the past three decades.

8) P. K. PATRA et al.: J. Meteorol. Soc. Japan, Ser. II, 100, 2, in press, https://doi.org/10.2151/jmsj.2022-018 (2022), Forward and inverse modelling of atmospheric nitrous oxide using MIROC4-atmospheric chemistry-transport model.

9) Y. SAWA et al.: Geophys. Res. Lett., 42(6), 2001-2008, https://doi.org/10.1002/2014GL062734 (2015), Seasonal changes of CO_2, CH_4, N_2O, and SF6 in the upper troposphere/lower stratosphere over the Eurasian continent observed by commercial airliner.

10) T. NAKAZAWA, M. ISHIZAWA, K. HIGUCHI, N. B. A. TRIVETT: Environmetrics, 8(3), 197-218, https://doi.org/10.1002/(SICI)1099-095X(199705)8:3<197::AID-ENV248>3.0.CO;2-C (1997), Two curve fitting methods applied to CO_2 flask data.

11) D. P. DEE et al.: Qurt. J. Royal Meteorol. Soc., https://doi.org/10.1002 /qj.828 (2011), The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system.

12) S. PENG et al.: Atmos. Chem. Phys., 16, 14545-14562 (2016), Inventory of anthropogenic methane emissions in mainland China from 1980 to 2010.

13) R. L. THOMPSON et al.: Nature Climate Change, 9(12), 993-998, https://doi.org/10.1038/s41558-019-0613-7 (2019), Acceleration of global N_2O emissions seen from two decades of atmospheric inversion.

14) A. M. R. PETRESCU et al.: Earth Syst. Sci. Data, 13, 2307-2362 (2021), The consolidated European synthesis of CH_4 and N_2O emissions for EU27 and UK: 1990-2018.

15) H. TIAN et al.: Nature, 586(7828), 248-256, https://doi.org/10.1038/s41586-020-2780-0 (2020), A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks.

16) Y. INAI et al.: Atmos. Chem. Phys., 19(10), 7073-7103, https://doi.org/10.5194/acp-19-7073-2019 (2019), Seasonal characteristics of trace gas transport into the extratropical upper troposphere and lower stratosphere.

Ⅱ－４　メタン発生量評価のための南アジア域メタン濃度連続観測

東京学芸大学
　自然科学系　　山本　昭範
＜研究協力者＞
東京学芸大学
　自然科学系専門研究員　　Aung Zaw Oo（平成30年度）
　自然科学系専門研究員　　Rahman Mohammed Mahabubur（令和元年度）
　自然科学系専門研究員　　岡　碧幸（令和2年度）
国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構
　農業環境研究部門 気候変動緩和策研究領域　　須藤　重人
　農業環境研究部門 気候変動適応策研究領域　　小野　圭介

［要旨］

南アジア域は全球スケールの大気メタン濃度やメタン放出量の解明に重要な地域であるが、大気メタン濃度やメタンフラックスの長期地上観測の空白地域となっている。そこで本研究は、特に水田からのメタン放出ポテンシャルが高く、長期の地上観測データが少ないインド南部のタミルナドュ州の水田地帯において、大気メタン濃度およびメタンフラックスを連続観測し、大気メタン濃度およびメタンフラックスの短期的～長期的な時間変化パターンとそのメカニズムを明らかにすること、また、大気メタン濃度に与える水田からのメタン放出の影響を評価することを目的とした。

大気メタン濃度とメタンフラックスは観測期間を通して短期的・長期的な時間変化を示した。季節変化スケールにおいて、大気メタン濃度は6月から10-11月頃にかけて増加し、その後減少する時間変化を示した。また、水稲栽培期間のメタンフラックスは、水稲の栽培開始から徐々にメタンフラックスが増加し、期間の後半に減少する時間変化を示した。加えて、水稲栽培と水稲栽培の間の期間において、メタンフラックスの突発的な増加が見られた。このような季節変化スケールにおける大気メタン濃度は、メタンフラックスの増加に伴い増加することが明らかになった。以上から、大気メタン濃度の季節的な時間変化には、水田からのメタン放出の変化が重要な因子であると考えられた。

次に、日変化スケールにおける大気メタン濃度は、濃度の程度や日変化の幅は各栽培期間によって異なったが、観測期間を通して日中に低下し、夕方から早朝にかけて増加する変化を示した。大気メタン濃度の日変化は風速と相関関係が見られ、風速の低下に伴い、地表面付近の大気の混合が抑制されたことが要因と考えられた。一方、メタンフラックスは、各栽培期間によって日変化パターンが異なった。水稲栽培期間におけるメタンフラックスは日中に最大となる明瞭な変化を示したが、緑肥期間には明瞭な変化が見られなかった。水稲栽培期間のメタンフラックスの日変化は気温と正の相関関係を示したが、緑肥期間は水稲栽培期間に比べて明瞭な関係は見られなかった。このような大気メタン濃度の日変化に対する水田からのメタンフラックスの影響を評価するため、一次元大気境界層モデルによる解析を行った。その結果、大気メタン濃度の日変化に対する水田からのメタンフラックスの影響は小さく、移流の影響が大きいと考えられた。

また、メタンフラックスの連続観測データとDNDC-Riceモデルを用いて、観測地域の水田からのメタン放出量を定量評価した。水稲の3期作と2期作では年間のメタン放出量に明らかな違いは見られないが、3期作と2期作の栽培体系によってメタン放出が増減する期間（時期）が異なることが明らかになった。このことから、インド南部の水田地帯では、地域毎の水稲栽培体系がメタンの放出量や時空間変動パターンの解明に重要な要素であることが示唆された。上記の研究内容と得られた成果を鑑み、本サブテーマは目標の達成に至ったと自己評価する。

１．研究開発目的

南アジア域は全球スケールの大気メタン濃度やメタン放出量を解明する上で重要な地域であるが、大気メタン濃度やメタン放出（メタンフラックス）の長期地上観測の空白地域である。水田は主要な人為由来メタンの発生源であり、インド南部のタミルナドュ州は約1990Mhaの水田を有している[1)]。また、インド南部は水稲の2期作-3期作が可能であることから、水田のメタン放出ポテンシャルが高い地域であると考えられる。そのため、インド南部（タミルナドュ州）の水田地帯における大気メタン濃度やメタンフラックスの長期的な観測に基づく経時変化の解明は、水田からのメタン放出量やその変動が大気メタン濃度の時間変動に与える影響を明らかにするために不可欠であり、加えて、全球スケールのメタン放出量の評価においても重要である。

大気メタン濃度の時間変動と水田からのメタン放出の関係を明らかにするには、大気メタン濃度とメタンフラックスの両者の観測が必要である。大気メタン濃度およびメタンフラックスは様々な手法により観測が行われており、空間的、時間的な変動が非常に大きいことが明らかになっている。そのため、大気メタン濃度やメタン放出量、これらの時間変動を正確に評価するためには長期間かつ高頻度の観測が必要である。そこで、本サブテーマは、水田由来メタンの重要な発生源にも関わらず地上観測データの少ないインド南部の水田地帯において、大気メタン濃度およびメタンフラックスを連続観測し、大気メタン濃度およびメタンフラックスの短期的～長期的な時間変化パターンとそのメカニズム、また、大気メタン濃度に与える水田からのメタン放出の影響を明らかにする。

２．研究目標

南アジアで地上メタン濃度とフラックスの同時連続観測を実施し、メタン濃度およびフラックスと水田の栽培管理や環境要因（土壌、微気象など）との関係やそのメカニズムを明らかにする。得られた連続観測データをもとに大気輸送モデルで計算されたフラックスの妥当性を評価し、さらにGOSAT、GOSAT-2等の衛星観測の地表および大気下層のメタン濃度データを検証する。

３．研究開発内容

3.1　観測地概要

大気メタン濃度とメタンフラックスの観測は、インド南部タミルナドュ州のタミルナドュ稲研究所（Tamil Nadu Rice Research Institute、以降、TRRI）で行った。TRRIにおける大気メタン濃度の観測地点は北緯10° 59′ 54.3″、東経79° 28′ 47.5″、メタンフラックスの観測地点は北緯11° 00′ 01.3″、東経79° 28′ 47.8″であり、2つの観測地点間の距離は約300mである。観測地では、現地の慣行的な栽培体系に基づいて、1年間に2回から3回の水稲栽培を行った。それぞれの水稲作期は、現地で*Kuruvai*、*Thaladi*、*Summer rice*、*Samba*と呼ばれている。全ての水稲栽培期間において、灌水はポンプを用いて生育期間の水位を5-10cmに維持した。各年の各作期の品種、施肥体系、栽培管理は現地の慣行管理に従った（表4. 1）。

3.2　大気メタン濃度の連続観測

<u>大気メタン濃度の測定機器</u>

大気メタン濃度の測定機器には、オープンパス方式のレーザー分光計であるLaser Methane miniG（model SA3C50A、東京ガスエンジニアリング株式会社・アンリツ株式会社、以後、レーザーメタン計）を用いた。レーザーメタン計は、近赤外レーザー（λ=1.65μm）を利用して大気中のメタンを2Hzで測定する。レーザーメタン計は、反射板にレーザー光を放射して受光強度を測定し、その減衰から光路中の平均的なメタン濃度を出力する。本研究においてレーザーメタン計は、レーザー放射角度を精緻に調整できる専用の三脚ケースに入れ、ケース内部温度は温調装置（クーレットクーラー、温度コントローラー、温度センサーの構成）により制御した。レーザーメタン計はレーザー光が水田圃場の上を通るよう

にTRRIの研究本館バルコニーに設置した。水田圃場にはレーザー光と垂直になる位置に反射板を設置した。反射板の設置位置は、地上高約6m、レーザーメタン計と反射板の距離（ミラー間距離）は約60mである（図4．1）。レーザーメタン計の制御や観測データ収集はGasviewソフトウエア（東京ガスエンジニアリングソリューションズ）により行った。

表4．1　タミルナドュ稲研究所の調査期間における栽培管理日程

			田植え	収穫	品種
2016	*Kuruvai*	水稲	2016.5.16	2016.8.16	ADT43
	Thaladi	水稲	2016.9.26	2017.1.23	ADT46
2017	*Summer rice*	水稲	2017.2.28	2017.6.12	ADT43
	Kuruvai	水稲	2017.6.27	2017.10.4	ADT43
	Thaladi	水稲	2017.10.28	2018.2.23	ADT46
2018	*Summer rice*	水稲	2018.4.3	2018.7.3	ATD43
	Green manure	緑肥	2018.7.24 （播種）	2018.8.29 （すき込み）	*Crotalaria juncea*
	Samba	水稲	2018.9.4	2019.1.24-25	ADT51
2019	*Summer rice*	水稲	2019.4.12	2019.7.11	ADT53
	Samba	水稲	2019.8.22		ADT51
2020	*Summer rice*	水稲	2020.4.6	2020.7.21	ADT53
	Green manure	緑肥	2020.7.28 （播種）	2020.9.3 （すき込み）	*Sesbania aculeata*
	Samba	水稲	2020.9.11	2021.1.26-27	ADT51
2021	*Summer rice*	水稲	2021.5.31	2021.9.13	ADT53
	Thaladi	水稲	2021.11.5	2022.3.16	ADT46

図4．1　TRRIにおける大気メタン濃度、メタンフラックス、環境要因の連続測定システム
大気メタン濃度の連続測定システム（上段左）、反射板（上段中央）、専用三脚ケース内部（上段右）、大気メタン濃度の観測機器類の全景（下段左）、メタンフラックスと環境要因の連続測定システム（下段右）

レーザーメタン計の補正

レーザーメタン計を用いる大気メタン濃度測定には、レーザーメタン計の補正が不可欠である[2), 3)]。一般的に、気温と水蒸気の影響によって大気成分（CO_2やメタンなど）の密度が変動することが知られている[4)]。しかし、レーザーメタン計には密度補正の機能がないため、気象データ（気温、相対湿度）と大気サンプリングによる大気メタン濃度を用いた密度補正が必要である。気象データは、渦相関法によるメタンフラックス観測タワーのデータを使用した（下記、3.3 メタンフラックスの連続観測を参照）。大気サンプリングによる大気メタン濃度データを得るため、フラスコサンプリング法によりレーザーメタン計設置場所の近くの周囲空気を採取した。大気サンプリングは通常14:00に1日1回行い、少なくとも月に1回は9:00、14:00、17:00の1日3回行った。採取したガスサンプルは日本に輸送し、水素炎イオン化型検出器を搭載したガスクロマトグラフィー（GC-2014、島津製作所）を用いて分析した。本サブテーマでの大気サンプリングによる大気メタン濃度データに加えて、サブテーマ5で得られたTRRIの大気メタン濃度データもレーザーメタン計の補正に使用した。大気メタン密度は式（1）により求めた。

$$\rho_{\mathrm{CH_4}} = \rho_a \times [\mathrm{CH_4}]_\mathrm{f} \qquad (1)$$

$\rho_{\mathrm{CH_4}}$は大気サンプリングによるメタン密度（μmol m^{-3}）、ρ_aは乾燥空気密度（mol m^{-3}）、$[CH_4]_f$は大気サンプリングによるメタン濃度（ppmv）である。また、乾燥空気にはメタンが含まれないと仮定した[4)]。

3.3　メタンフラックスの連続観測

メタンフラックスと環境要因の測定

メタンフラックスは、観測タワーの風上側の平均的なフラックスを30分単位で連続測定できる渦相関法を用いて測定した。測定機器としてオープンパス方式のメタン分析計（LI-7700, LI-COR Inc., USA）と超音波風速温度計・CO_2/H_2O分析計（IRGASON, Campbell Scientific. Corp., USA）を使用し、土壌面から高さ約3.2mに設置した（図4. 1）。これらの測定機器による測定値（出力信号）は10Hzでデータロガー（CR6, Campbell Scientific Corp., USA）に記録した。また、メタンフラックスの観測タワーでは、気温・相対湿度（HMP155, Vaisala, Helsinki, Finl）、日射量（SR05, HukseFlux Inc., Delft, Netherls）、正味短波放量・正味長波放量（CNR2, Kipp and Zonen Corp., Delft, Holl）、地温（107-L, Campbell Scientific, USA）、土壌含水率（SDI-12, Acclima Inc., USA）、水位（田面水位、FL-C001, Keyence）等の環境要因を1Hzで計測し、その30分間の統計値（平均値と標準偏差）をデータロガー（CR1000, Campbell Scientific, USA）に記録した。その他、専用のデータロガーを必要とする降水量（CEM-TBRG, クリマテック）、水位（地下水位、SE-TR/WT500、セネコム）、酸化還元電位（FV-702, 藤原製作所）は、それぞれに適したデータロガーに計測値を記録した。

メタンフラックスの計算方法と品質管理

メタンフラックスの計算には世界的観測ネットワーク（FLUXNET）で採用されている標準的な渦相関法の手続き[5)]を用いた。メタンフラックスの計算には、フラックスタワーで測定する気象要因（気温、相対湿度）に加えて、水稲の植生高データが必要である。植生高データには、TRRIの現地協力者が経時的に測定した実測値を用いた。渦相関法の平均化時間を30分として、一般的に用いられている平均化方法（ブロック平均）と風速の座標変換（ダブルローテーション）を採用した[5), 6)]。また、ガスフラックス計算に標準的に適用される乾燥空気の密度補正[4)]、ガスフラックスの高周波・低周波の損失量の補正[7), 8)]、メタンフラックスの補正に特有のスペクトロスコピック効果の補正[6)]を行った。メタンフラックスの符号は、上向き（地表面から大気への移動）をプラス、下向き（大気から地表面への移動）をマイナスとした。メタンフラックスの単位にはFLUXNETの標準的単位系を採用した（30分値：μmol(CH_4) m^{-2} s^{-1}、日積算値：g C m^{-2} d^{-1}）。計算したメタンフラックスの妥当性を検証する品質管理として、0.1秒ごとの生データの統計値を調べる検査[9)]、データが渦相関法の測定前提である定常性・接地境界層の乱流理論を満

たしているかどうかを確認する検査[10]を実施し、Maunder・Fokenの方法[11]に従って品質を判断した。最終的なメタンフラックスデータの品質は、高品質・通常の品質・解析不可の3段階で示され、解析不可となったデータは欠損値とした。有効なメタンフラックスのデータ数が十分ある場合、平均日変化法[12]により欠損値を補間し、日積算値を算出した。

3.4　一次元大気境界層モデル

大気メタン濃度の日変化に対する水田からのメタンフラックスの影響を評価するため、一次元大気境界層モデル[13]を用いた。一次元大気境界層モデルによる解析において、必要となるメタンフラックスや熱フラックスはフラックスタワーの観測データ、大気メタン濃度はレーザーメタン計の観測データ、気温などの気象要因はフラックスタワーの観測データを用いた。一次元大気境界層モデルは、大気境界層（以下、境界層）内の大気が平均的に拡散することを仮定しているため、混合の弱まる夜間からの時間の解析には適していない。そこで、本研究では午前6時（6:00）から午後5時（17:00）を解析対象とした。

一次元大気境界層モデルにおいて、境界層の高さの時間変化は式（2）により求めた。

$$\frac{\mathrm{d}h}{\mathrm{d}t} = \frac{H_v}{C_p \rho_a h \gamma_v} \qquad (2)$$

hは境界層の高さ、H_vは顕熱フラックス、C_pは空気の比熱、ρ_aは空気密度、γ_vは仮温度勾配である。
また、境界層内の温位変化とメタン濃度の時間変化は、それぞれ式（3）、式（4）により求めた。

$$\rho_a C_p h \frac{\theta_m}{dt} = H + \rho_a C_p (\theta_e - \theta_m) \frac{dh}{dt} \qquad (3)$$

$$\rho_a h \frac{[CH_4]_m}{dt} = F_{CH_4} + \rho_a ([CH_4]_e - [CH_4]_m) \qquad (4)$$

θ_mは境界層の温位、θ_eはエントレインメント（entrainment、自由大気から境界層へ流入する気塊）の温位、$[CH_4]_m$は境界層内のメタン濃度、$[CH_4]_e$はエントレインメントのメタン濃度、F_{CH_4}は地表面のメタンフラックスである。本研究では、午前6時の境界層の高さを300m（初期値）とした。また、エントレインメントの影響は考慮せずに、水田からの影響のみで一次元大気境界層モデルの計算を行った。本研究において、γ_vは0.004 K m^{-1}とした。

また、大気メタン濃度の日変化に対する風速の影響を明らかにするため、一次元大気境界層モデルの開始時間である午前6時を基準として、基準時（午前6時）の大気メタン濃度や風速に対する各時間の大気メタン濃度や風速の比を求めた。それぞれを大気メタン濃度の変化率（Relative change in $[CH_4]$）、風速の変化率（Relative change in wind speed）とし、式（5）および式（6）により算出した。

$$Relative\ chnage\ in\ [CH_4] = \frac{[CH_4]\ at\ each\ time}{[CH_4]\ at\ 0600\ local\ time} \qquad (5)$$

$$Relative\ chnage\ in\ wind\ speed = \frac{Wind\ speed\ at\ each\ time}{Wind\ speed\ at\ 0600\ local\ time} \qquad (6)$$

$[CH_4]$は大気メタン濃度（ppmv）、$[CH_4]$ at 0600 local timeは基準（午前6時）の大気メタン濃度（ppmv）、$[CH_4]$ at each timeは一次元大気境界層モデルで計算対象とした午後5時までの各時間の大気メタン濃度、Wind speed at 0600 local timeは基準（午前6時）の風速（m s^{-1}）、Wind speed at each timeは一次元大気境界層モデルで計算対象とし午後5時までの各時間の風速（m s^{-1}）である。

3.5　DNDC-Riceモデル

メタンフラックスの季節変化を詳細に解析するため、DNDC-Riceモデル[14), 15)]を用いた。DNDC-Riceモデルは、水田のメタン放出量の変化を推定する数理モデルであり、多くの先行研究で水田のメタン放出量評価に利用されている。DNDC-Riceモデルは土壌環境、作物成長、土壌の生物地球化学プロセスを推定するサブモデルで構成されている。作物成長のサブモデルには、経験的サブモデル（empirical submodel）と生理学/生物季節学サブモデル（physiology/phenology submodel）がある。経験的サブモデルでは、日々のバイオマス成長が、積算温度、最適な成長条件下での最大バイオマス生産、水と窒素のストレスに基づいて計算される。生理学/生物季節学サブモデルでは、日々の光合成や呼吸、炭素の分配が気象要因や水と窒素の利用性に基づいて算出される。生理学/生物季節学サブモデルにおける作物生育パラメータは、水稲の栄養成長期を表す係数（DRCV）および水稲の生殖成長期を表す係数（DRCR）により変更できる。本研究では、DRCVとDRCRを実測の水稲の生育調査データを用いて算出した。DNDC-Riceモデルによるメタンフラックスは、式（7）の二乗平均平方根誤差（RMSE）により評価した[16)]。

$$\mathrm{RMSE} = \sqrt{\frac{\sum(F_{CH4} - A_{CH4})^2}{N}} \qquad (7)$$

F_{CH4}はDNDC-Riceモデルによるメタンフラックスの推定値、A_{CH4}は渦相関法によるメタンフラックスの実測値、Nはサンプル数である。

４．結果及び考察

4.1　気象環境要因

最高気温と最低気温の季節変化パターンは、調査期間の各年で明らかな差はなかった（図4. 2）。2016年から2021年の平均最高気温と平均最低気温は、それぞれ33.2℃、23.1℃であった。年間降水量は各年で異なり（2016年-2021年で530.1mm-2014.0mmの範囲）、6年間の平均値（2016年-2021年）は1201.6±516.7mmだった。また、乾季・雨季に相当する明瞭な降水パターンが見られ、調査期間を通して1月-7月に降水が少なく、8月-12月に多かった。

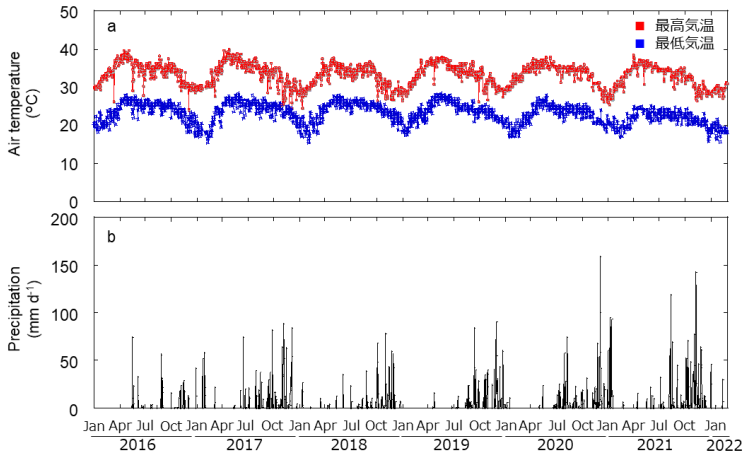


図4. 2　TRRIにおける(a)最高気温、最低気温、(b)日積算降水量の時間変化

4.2　大気メタン濃度とメタンフラックスの連続観測

大気メタン濃度の連続観測において、レーザーメタン計の補正・校正方法を検証した。まず、気象観測データ（気温・相対湿度）を用いて大気中の水分量の変化に伴うメタン密度変化の影響を補正した。次に、定期的な大気サンプリングによる大気メタン濃度データを用いてレーザーメタン計の値を校正し

た。この補正・校正方法により、レーザーメタン計を用いた大気メタン濃度の測定値補正が大きく改善した（図4. 3）。また、渦相関法による高精度のメタンフラックスの連続観測には、メタン分析計（LI-7700)の受光強度をメタンフラックスの計算に必要な基準以上に維持する必要がある。メタン分析計(LI-7700）の受光強度の判断基準にはrelative signal strength indicator values（RSSI)を用い、一般的にRSSIで60-70%以上が必要となる。RSSIは、メタン分析計（LI-7700）のミラーの汚れにより低下する。調査地のインド南部の水田地帯において、RSSIの低下を最小限にして、安定したメタンフラックス観測を実施するためにRSSIの日変化パターンを評価した。その結果、RSSIは日中だけでなく、夜間においても徐々に低下することが明らかになった。そこで、この時間変化パターンに基づいて、RSSIが基準以下となる時間が最小限となるように現地協力者によるミラー清掃の実施時間を修正した。さらに、現地協力者によるミラー清掃頻度を増やすことでメタンフラックス観測に適した受光強度を長時間維持することが可能となった。メタン分析計（LI-7700）の管理法の修正により、本研究期間（2018年以降）は以前と比べて安定したメタンフラックスの連続データが得られた。

レーザーメタン計による大気メタン濃度の連続観測において、Gasviewソフトウエア（レーザーメタン計の制御など）のエラーやレーザーメタン計本体の誤作動・不調、設置位置のずれに伴うレーザー強度の低下により欠測が生じた。また、2020年2月以降の研究期間（1年間の延長期間を含む）は、新型コロナウィルス感染症のために現地での調査・調整ができなかった。そのため、現地協力者によるレーザーメタン計の位置調整などの簡易的な対応を行ったが、データ取得率が改善しない期間が多く生じた。そこで、レーザーメタン計による大気メタン濃度は2021年2月までを解析対象として、2021年3月以降は参考データとした（2021年9月以降は制御コンピューターの故障により欠測）。また、メタンフラックスの連続観測において、データロガーの故障、超音波風速温度計・CO_2/H_2O分析計の故障などによる短期および長期の欠測が生じた。また、新型コロナウィルス感染症の影響により、現地協力者の簡易的な対応を除いて、十分なメンテナンスが実施できなかった。特に、2021年5月以降は取得データの欠損が増加し、2021年9月以降は一部データが取得できない状態となった。そこで、メタンフラックスもレーザーメタン計による大気メタン濃度と期間を合わせて2021年2月までを解析対象とした。大気サンプリングによる大気メタン濃度は、新型コロナウィルス感染症による現地のロックダウンや輸送停滞による大気採取容器が不足した期間を除き、安定してデータが得られた。

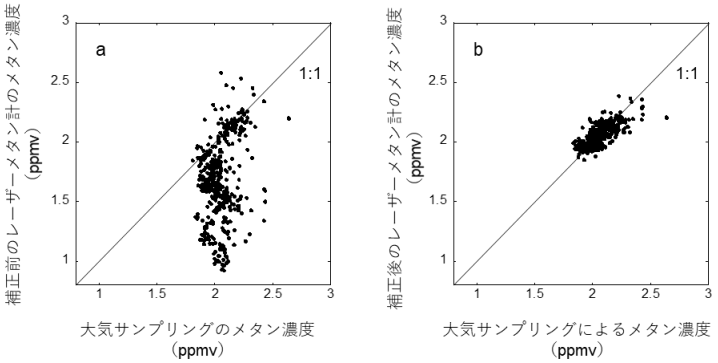


図4. 3　大気サンプリングによるメタン濃度と(a)補正前のレーザーメタン計によるメタン濃度および(b)補正後のレーザーメタン計によるメタン濃度の関係

4.3　大気メタン濃度とメタンフラックスの季節変化

図4. 4aは、レーザーメタン計による大気メタン濃度の季節変化を示している。大気メタン濃度は観測期間を通して日変化（下記、4.5を参照）を伴いながら長期的にも時間変化した。レーザーメタン計による大気メタン濃度観測には欠測があるが、大気サンプリングによる大気メタン濃度データを考慮すると（図4. 4b）、観測地域の大気メタン濃度は6月から10-11月頃にかけて増加し、その後減少するという季節変化を示すことが明らかになった。図4. 4cは渦相関法によるメタンフラックスの季節変化を示して

いる。作期を通してメタンフラックスデータが得られた水稲栽培期間（*Thaladi*2016、*Samba*2018、*Summer rice*2019、*Summer rice*2020、*Samba*2020）に着目すると、水稲の栽培開始から徐々にメタンフラックスが増加し、期間の後半に減少する時間変化を示した。また、水稲栽培と水稲栽培の間の期間（栽培間期）において、メタンフラックスが突発的に増加することが明らかになった。このメタンフラックスの増加は、落水や注水といった水田の水管理、耕起や代掻きなどの栽培管理に伴って一時的に土壌中のメタンが放出されたことなどが要因と考えられる。

季節変化スケールにおける大気メタン濃度とメタンフラックスの関係の解析は、作期を通して大気メタン濃度とメタンフラックスの観測値が得られた6つの期間を対象とした（*Thaladi*2016、*Green manure*2018、*Samba*2018、*Summer rice*2020、*Green manure*2020、*Samba*2020）。また、大気メタン濃度は夕方から早朝にかけて増加する変化を示すため（下記、4.5を参照）、季節変化スケールにおいては、日中の10時から16時の安定した状態の大気メタン濃度の平均値を用いた。その結果、大気メタン濃度はメタンフラックスの増加に伴い増加することが明らかになった（図4. 5）。この大気メタン濃度の増加傾向は期間によって異なり、緑肥期間における増加傾向は水稲栽培期間よりも小さかった。このように、各期間における大気メタン濃度の季節的な時間変化には、水田からのメタン放出の変化が重要な因子であると考えられる。一方、各水稲栽培期間でメタンフラックスが同程度の場合においても大気メタン濃度が異なった。そのため、図4. 5の関係が生じるのは、ある程度の連続する期間を通したメタン放出の増加が関係している可能性も考えられる。

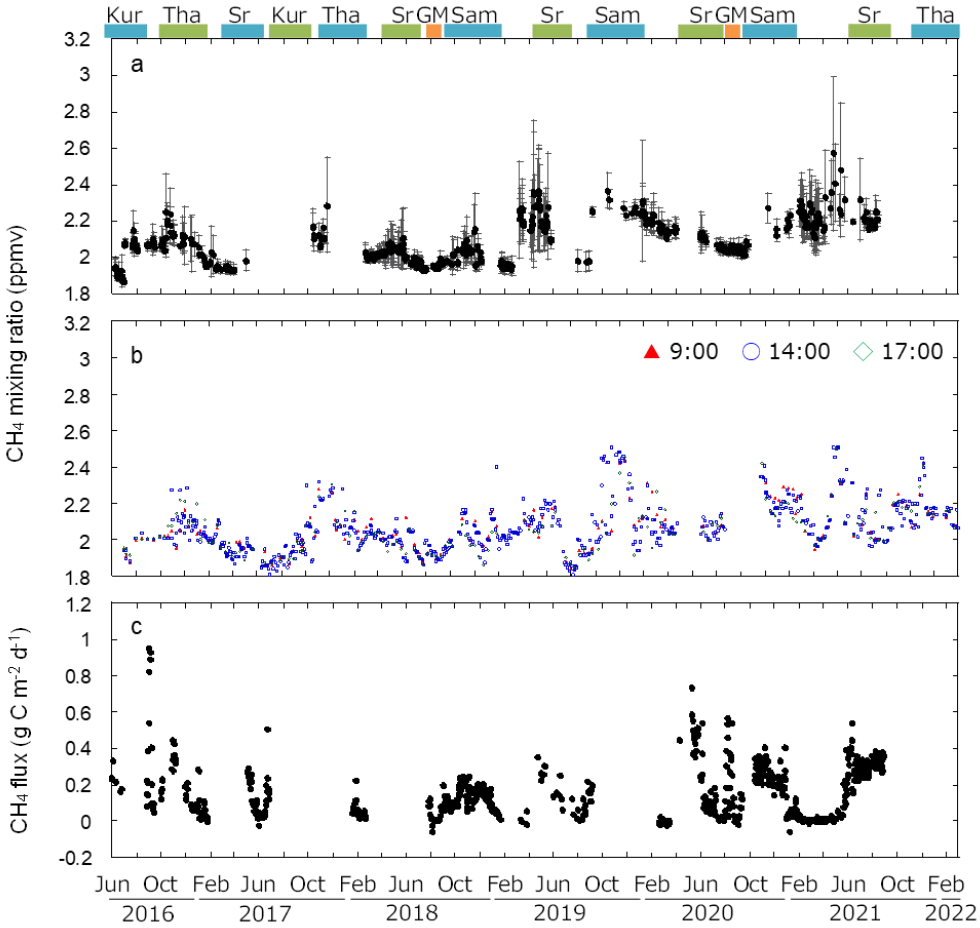


図4. 4　(a)レーザーメタン計による大気メタン濃度、(b)大気サンプリングによる大気メタン濃度、(c)メタンフラックスの季節変化

Kurは*Kuruvai*、Thaは*Thaladi*、Srは*Summer rice*、Samは*Samba*（調査地域の作期の現地名称）、GMは緑肥栽培を示す。カラーバーは各作期および緑肥栽培の期間を示す。

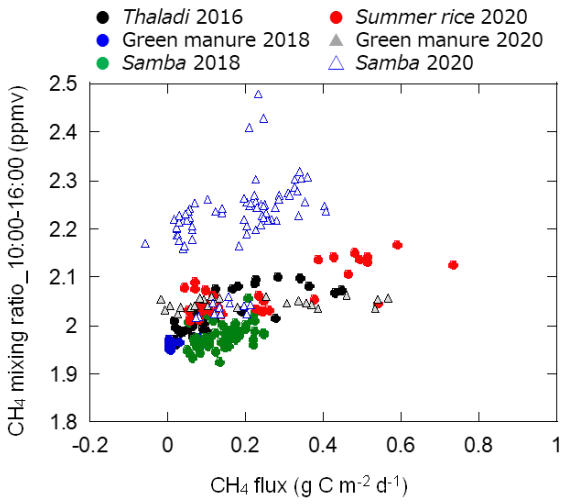


図4. 5　各栽培期間におけるメタンフラックスと大気メタン濃度（10:00-16:00の平均値）の関係
Thaladi、*Summer rice*、*Samba*は調査地域の作期の現地名称、Green manureは緑肥栽培を示す。

4.4　DNDC-Riceモデルを用いたメタンフラックスの推定

本研究では、メタンフラックス観測装置の管理法の調整によって、メタンフラックス観測の安定性が大幅に向上した（上述の4.2を参照）。しかし、期間によってはメタン放出量の定量評価に十分な実測値が得られていない。そこで、本研究はDNDC-Riceモデルを用いてメタンフラックスの推定を行った。

DNDC-Riceモデルによるメタンフラックスの推定精度は、作物成長サブモデルの違いや土壌三価鉄濃度の変動の影響によって異なった。DNDC-Riceモデル内の作物成長サブモデルに経験的サブモデルを用いた推定値は、生理学/生物季節学サブモデルを用いた推定値に比べてメタン放出を過大評価する傾向が見られた（図4. 6a）。この過大評価の程度は、特に水稲の生育期間の後半に顕著だった。DNDC-Riceモデル推定の評価指標であるRMSEは、生理学/生物季節学サブモデルで低くなった（経験的サブモデルのRMSE：1.25、生理学/生物季節学サブモデルのRMSE：0.92、すなわち生理学/生物季節学サブモデルを用いた推定値の予測精度が高い）。作物成長サブモデルによる予測精度の変化は、用いたサブモデル間での作物生育シミュレーションの違いによると考えられる。生理学/生物季節学サブモデルは、資源（窒素、水）利用や温度など環境因子に加え、生理学的/生物気候学的な因子（光利用効率、葉の光合成の最大効率など）に基づいて、光合成や呼吸、炭素配分、作物成長を計算する。水田において、作物の光合成産物は土壌でのメタン生成の重要な基質の一つである。つまり、実測した水稲の生育調査データから求めたDRCVとDRCRによって、圃場固有の作物成長の影響がモデルのメタン生成に考慮されたことで推定精度が変化したと考えられる。また、モデルの推定精度は土壌三価鉄濃度によっても変化した（図4. 6b）。湛水した水田土壌では、O_2の消失、脱窒、Mn^{2+}生成、Fe^{2+}生成、H_2S生成、メタン生成という酸化還元反応が逐次的に出現する。特に、メタン生成過程の進行を考える上では二価鉄（被還元性鉄）の生成（三価鉄の還元）の影響が大きい。本研究において、実測の土壌三価鉄濃度（土壌二価鉄濃度から算出）を用いた推定はメタン放出を過大評価する傾向があり、特に水稲生育期間の初期に実測値との差が大きかった。空間変動を考慮した土壌三価鉄濃度（実測の土壌三価鉄濃度±50%の平均値[14]）を用いた推定ではメタン放出の過大評価の程度が減少し、RMSEも実測の土壌三価鉄濃度の場合に比べて低くなった（実測の土壌三価鉄濃度のRMSE：0.92、実測の土壌三価鉄濃度±50%の平均値のRMSE：0.86）。水田土壌における三価鉄濃度は時空間変動が大きいことが報告されているが、実測の土壌三価鉄濃度はポイントデータであるため、圃場における時空間変動の評価に十分ではない。実測の土壌三価鉄濃度±50%の平均値を用いることで、土壌三価鉄濃度の時空間変動の影響が考慮され、モデルの推定精度が改善したと考えられる。

作物成長サブモデルと実測の土壌三価鉄濃度±50%の平均値を用いたモデル推定のRMSEは、日本や中国の水田を対象とした先行研究の範囲内となり[14),17)]、作物成長と土壌三価鉄濃度の入力パラメータを

対象水田の実測値を基に調整することで、インド南部の水田のメタンフラックス評価にDNDC-Riceモデルが適用できることが明らかになった。しかし、DNDC-Riceモデルの推定精度は水稲期間と間期で明らかに異なり、本研究では間期に観測されたメタン放出の増加（例：*Kuruvai*2016後の間期、*Summer rice*2018後の間期、*Summer rice*2020後の間期）は再現できなかった。本研究で観測された間期におけるメタン放出の増加は、排水に伴う水位低下や土壌物理性の変化によって土壌中に蓄積されていたメタンが一時的に放出されたものと考えられる。このようなメタン放出の増加を再現するためには、DNDC-Riceモデルの改良が必要であり、本研究の実測メタンフラックスは、その検証においても重要なデータである。

水稲期間における推定メタンフラックスの積算値は112.1-318.1 kg C ha^{-1}であった（表4. 2）。また、3期作（2017年）と2期作（2018年、2019年、2020年）の水稲期間の積算メタン放出は533.2 kg C ha^{-1}と463.3-569.7 kg C ha^{-1}であった。一方、3期作と2期作における1水稲期間あたりの積算メタン放出は177.7 kg C ha^{-1}と231.8-284.8 kg C ha^{-1}であった（1期間の水稲栽培は118-122日間）。このように、水稲の3期作と2期作では年間のメタン放出量に明らかな違いは見られないが、3期作と2期作の栽培体系によってメタン放出が増減する時期や増減の程度が異なることが明らかになった。以上から、インド南部の水田地帯では、地域毎の水稲栽培体系がメタンの放出量や時空間変動パターンの解明に重要な要素であることが示唆された。本研究の水稲期間における積算メタン放出の平均値（218.1±65.0 kg C ha^{-1}）を渦相関法による先行研究と比較すると、バングラデシュの水田における水稲栽培期間の積算メタン放出の最大値（50-250 kg C ha^{-1}）と同程度であった[18]。また、日本の水田（間期を含む）における積算メタン放出（93.9 kg C ha^{-1}）より大きく[19]、イタリアの水田（間期を含む）における積算メタン放出（279 kg C ha^{-1}）より僅かに低かった[20]。

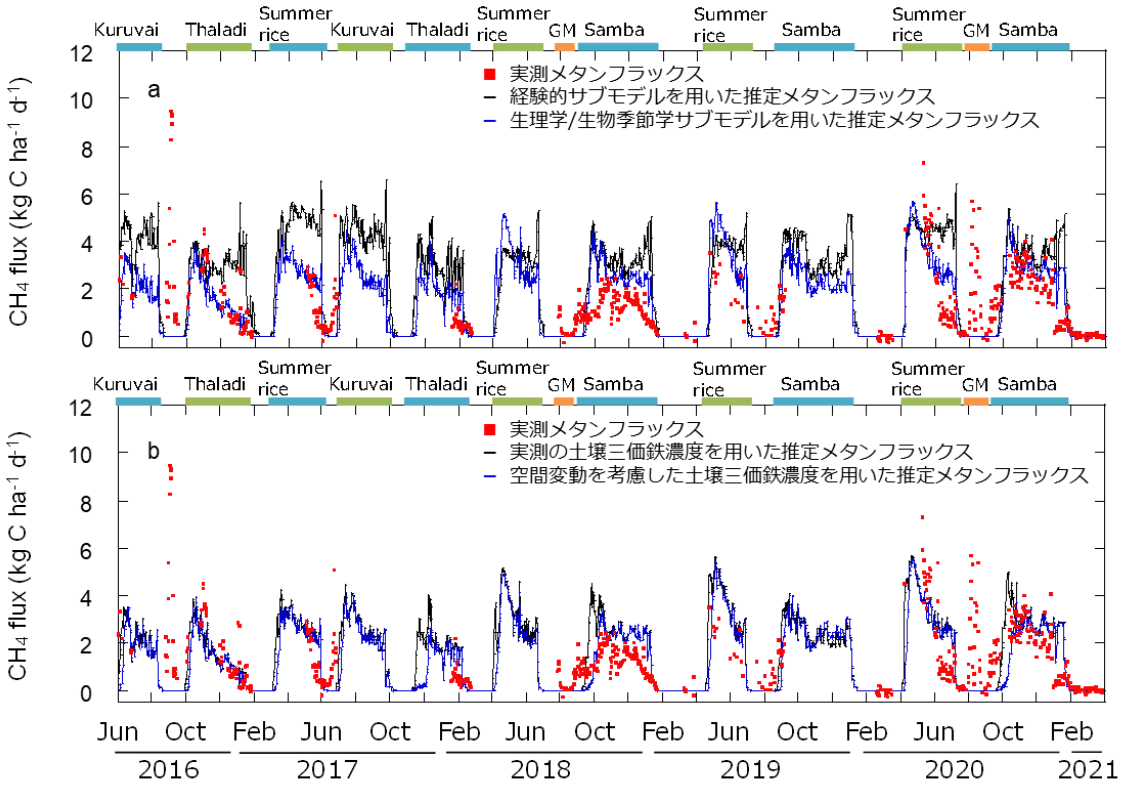


図4. 6 (a)異なる作物成長サブモデル、(b)異なる土壌三価鉄濃度を用いたDNDC-Riceモデルによるメタンフラックスと実測メタンフラックスの時間変化

Kuruvai、*Thaladi*、*Summer rice*、*Samba*は調査地域の作期の現地名称、GMは緑肥栽培を示す。カラーバーは各作期および緑肥栽培の期間を示す。

表4. 2　DNDC-Riceモデルによる各期間の平均メタンフラックスと積算メタンフラックス

作期名称	作物タイプ	開始日	終了日	期間	平均推定CH_4フラックス	積算推定CH_4フラックス
		（田植え日と収穫日を基準）		（日）	(kg C ha^{-1} d^{-1})	(kg C ha^{-1})
Kuruvai	水稲	2016/5/27	2016/8/23	85†	1.59±0.99	135.31
	間期	2016/8/24	2016/9/25	33	0	0
Thaladi	水稲	2016/9/26	2017/1/30	127	1.23±0.93	155.99
	間期	2017/1/31	2017/2/27	28	0.0007±0.003	0.02
Summer rice	水稲	2017/2/28	2017/6/12	105	2.00±1.22	210.03
	間期	2017/6/13	2017/6/26	14	0	0
Kuruvai	水稲	2017/6/27	2017/10/4	100	2.11±1.10	211.09
	間期	2017/10/5	2017/10/27	23	0.005±0.01	0.11
Thaladi	水稲	2017/10/28	2018/2/23	119	0.94±0.84	112.08
	間期	2018/2/24	2018/4/2	38	0	0
Summer rice	水稲	2018/4/3	2018/7/3	92	2.36±1.45	217.17
Green manure	緑肥	2018/7/4	2018/9/3	62	0	0
Samba	水稲	2018/9/4	2019/1/25	144	1.71±1.05	246.44
	間期	2019/1/26	2019/4/20	85	0.0001±0.001	0.01
Summer rice	水稲	2019/4/21	2019/7/11	82	2.72±1.61	223.17
	間期	2019/7/12	2019/8/21	41	0	0
Samba	水稲	2019/8/22	2020/1/9	141	2.26±0.86	318.11
	間期	2020/1/10	2020/4/6	88	0.008±0.03	0.74
Summer rice	水稲	2020/4/7	2020/7/21	106	2.83±1.51	299.92
Green manure	緑肥	2020/7/22	2020/9/10	51	0.0002±0.001	0.01
Samba	水稲	2020/9/11	2021/1/26	138	1.95±1.14	269.76

†2016年の*Kuruvai*は観測開始前に観測対象範囲の一部が田植え実施後であったため、観測機器設置から収穫日までの期間とした。

4.5　大気メタン濃度とメタンフラックスの日変化

大気メタン濃度とメタンフラックスの日変化は、データ取得数の多い期間（大気メタン濃度：合計10期間、メタンフラックス：合計9期間）を解析対象とした。大気メタン濃度は、濃度の程度や日変化の幅は期間によって異なったが、全ての期間において日中に低下し、夕方から早朝にかけて増加する変化を示した（図4. 7a）。この大気メタン濃度の日変化は風速の変化と関係があり、風速の低下に伴って大気メタン濃度が増加した（図4. 7b）。この関係は、風速の低下に伴い、地表面付近の大気の混合が抑制されたことが要因と考えられる。一方、メタンフラックスは、期間によって日変化パターンが異なった。水稲栽培期間におけるメタンフラックスは日中に最大となる明瞭な変化を示した（図4. 8a）。緑肥期間においては、日変化パターンは水稲栽培期間ほど明瞭でなく、メタンフラックスの最大値も水稲期間に比べて低かった。水稲栽培期間におけるメタンフラックスの日変化は、気温と正の相関関係にあった（図4. 8b）。しかし、緑肥期間では水稲栽培期間と比べて明瞭なメタンフラックスと気温の関係は見られなかった。また、同程度の気温や風速における大気メタン濃度やメタンフラックスが異なることから（図4. 7b、図4. 8b）、季節的な経時変化（各期間の差）には気温や風速に加えて、各栽培期間における圃場の状態や栽培管理などの周囲環境の違いも影響していると考えられた。

このような大気メタン濃度の日変化に対する水田からのメタンフラックスの影響を評価するため、一次元大気境界層モデルによる解析を行った。一次元大気境界層モデル解析には、メタンフラックスや熱フラックス、大気メタン濃度、気温などの気象要因が必要となる。そのため、本研究では解析の対象時間（午前6時から午後5時）に必要データが得られた期間についてモデル解析を行った。このモデル解析の期間には、調査地域の水田における主な栽培管理（水稲栽培期間・緑肥期間・水稲と水稲の栽培間期）が含まれている。

一次元大気境界層モデル解析の対象期間におけるメタンフラックスの程度や日変化パターンは期間によって異なった。水稲栽培期間では日中に最大となる時間変化パターンを示したが、緑肥期間では水

稲栽培期間に比べて時間変化の程度は小さかった（図4．9）。大気メタン濃度は、期間によって変化の程度に差はあるが、全ての期間で日中に低下する日変化パターンを示した（図4．10）。このような実測値の変化に対して、水田の影響のみを考慮した一次元大気境界層モデルによる大気メタン濃度の日変化パターンは、実測の大気メタン濃度と異なった。各期間において、実測のメタンフラックスの大きさや日変化パターンに差があるにも関わらず、一次元大気境界層モデル解析による大気メタン濃度の時間変化が同程度であることから、大気メタン濃度の日変化に対するメタンフラックスの影響は小さいと考えられた。

大気メタン濃度の時間変化には、メタンフラックスを含めた様々な要因が影響を与えることが指摘されている。移流量の程度（多寡）は、大気メタン濃度やその時間変化を制御する要因の一つである。そこで、移流にも関わる要因である風速の大気メタン濃度の日変化パターンに対する影響を解析した。その結果、同じ栽培期間の測定日間の風速や大気メタン濃度の差に関わらず、大気メタン濃度の変化率は風速の変化率の増加に伴い減少した（図4．11、2016年6月･8月、2017年1月、2018年8月、2019年8月、2020年2月･8月、2021年1月を例に示す）。このことから、ある程度連続した期間において、周囲環境の状況の不均一性に大きな差がない場合は、風速の変化と大気メタン濃度の変化には一定の関係性があると考えられた。また、栽培期間によって、大気メタン濃度の変化率と風速の変化率の関係（回帰直線の傾き）が異なった。これは、栽培管理（水田の状態）の違い、風速や風速の時間変化パターンの程度の差など、各期間における環境や周辺状況の違いが影響しているものと考えられた。

次に、一次元大気境界層モデルで求めた大気メタン濃度に、変化率の関係から求めた係数によって風速の影響を考慮して大気メタン濃度の時間変化を解析した。その結果、風速の影響を考慮することによって、モデル解析による大気メタン濃度の日変化は実測の大気メタン濃度の日変化と似た時間変化パターンを示した（図4．12）。この結果は、変化率の関係から求めた係数を用いることで、水平方向の移流と鉛直方向の移流の両方の影響が大気メタン濃度の時間変化に反映されたことが要因と考えられる。一般的に、日中は境界層が拡大することで、徐々に自由大気からの影響が境界層内に入り、それが境界層の下層に伝搬していくことで風速が変化（増加）する。その風速の変化によって境界層内の混合の程度が影響を受け、結果的に大気メタン濃度も変化するために、風速と大気メタン濃度に関係が見られたと考えられる。現時点では鉛直方向の移流（すなわち上述のエントレインメント）の評価に必要な上空のメタン濃度のデータが得られていないために水平移流と鉛直移流の影響を区別することができないが、本研究の解析によって、この水田地帯の大気メタン濃度の日変化（午前6時から午後5時）には、メタンフラックスの影響よりも、移流の影響の方が重要であることが示唆された。

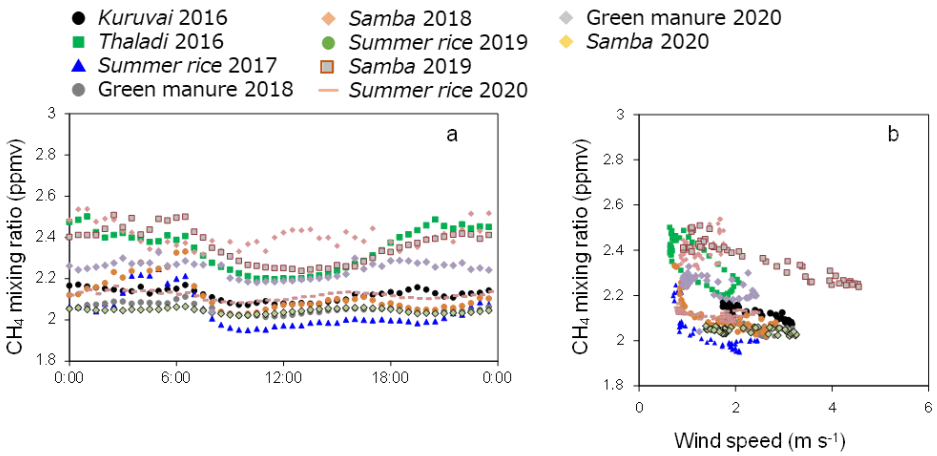


図4．7　(a)大気メタン濃度の日変化と(b)大気メタン濃度と風速の関係
大気メタン濃度は各時間における平均値を示す。*Kuruvai*、*Thaladi*、*Summer rice*、*Samba*は調査地域の作期の現地名称、Green manureは緑肥栽培を示す。

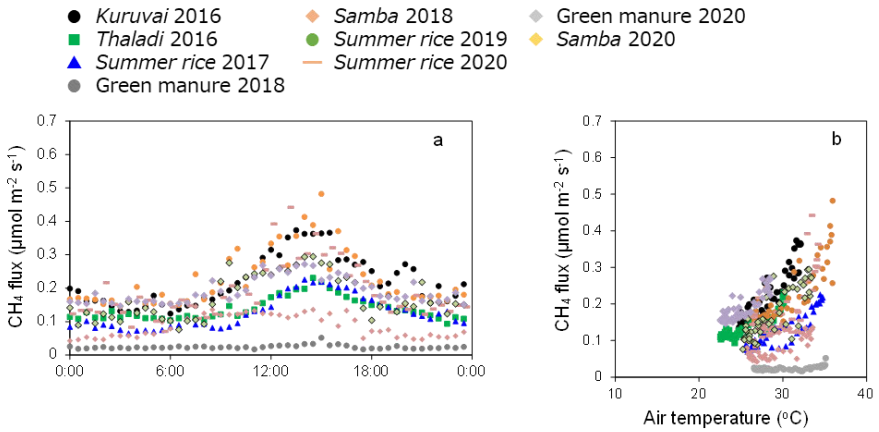


図4．8　(a)メタンフラックスの日変化と(b)メタンフラックスと気温の関係
メタンフラックスは各時間における平均値を示す。*Kuruvai*、*Thaladi*、*Summer rice*、Sambaは調査地域の作期の現地名称、Green manureは緑肥栽培を示す。

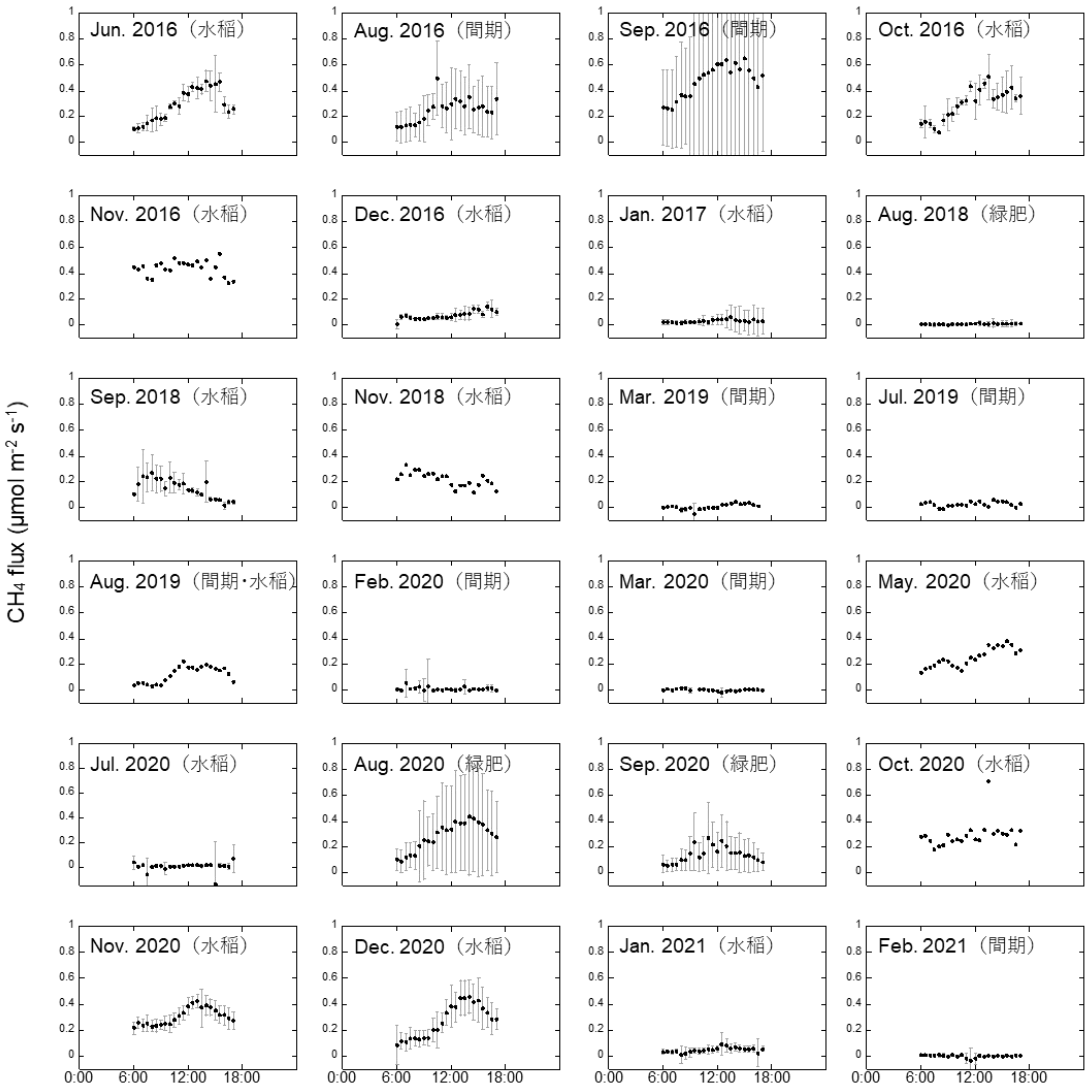


図4．9　一次元大気境界層モデルの各解析期間における実測メタンフラックスの日変化
メタンフラックスは平均値±標準偏差を示す。水稲・間期・緑肥は、各月の解析対象日の圃場の状態が水稲栽培、水稲と水稲の間、緑肥期間であることを示す。

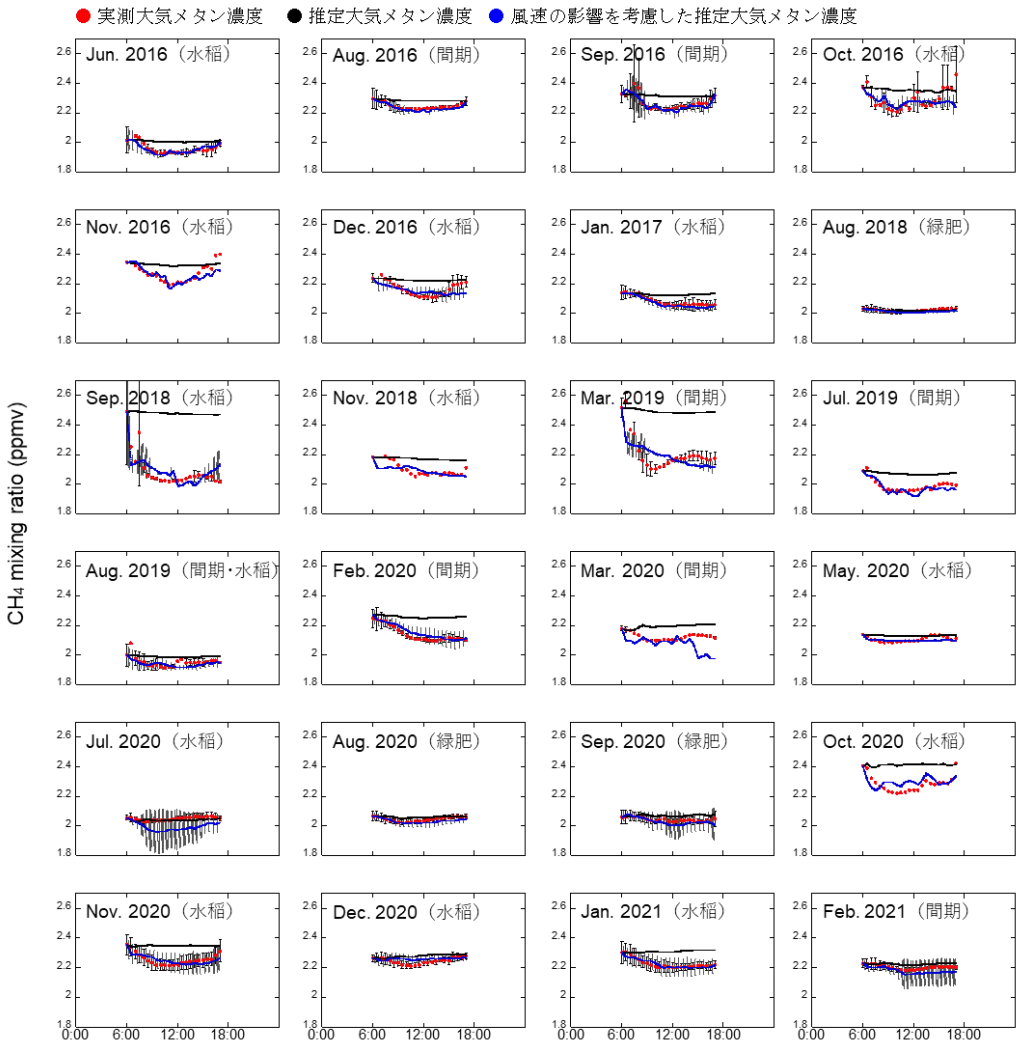


図4. 10　一次元大気境界層モデルの各解析期間における実測大気メタン濃度、推定大気メタン濃度、風速の影響を考慮した推定大気メタン濃度の日変化
大気メタン濃度は平均値±標準偏差を示す。水稲・間期・緑肥は、各月の解析対象日の圃場の状態が水稲栽培、水稲と水稲の間、緑肥期間であることを示す。

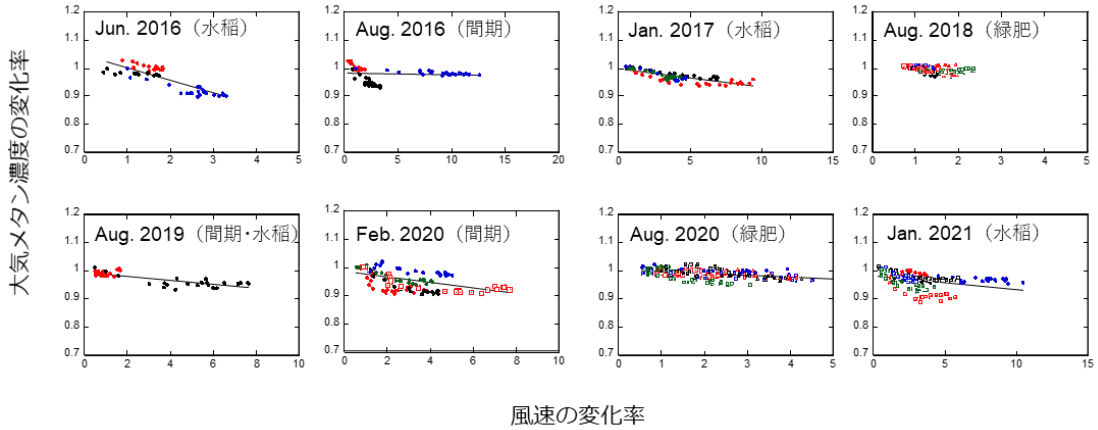


図4. 11　2016年6月･8月、2017年1月、2018年8月、2019年8月、2020年2月･8月、2021年1月における大気メタン濃度の変化率と風速の変化率の関係
凡例は各解析期間における異なる測定日を示す。水稲・間期・緑肥は、各月の解析対象日の圃場の状態が水稲栽培、水稲と水稲の間、緑肥期間であることを示す。

５．研究目標の達成状況

目標通りの成果を上げた。第一に、インド南部タミルナドュ州の水田地帯において、大気メタン濃度とメタンフラックスの連続観測を実施し、水田地帯の異なる栽培管理（水稲栽培期間、水稲と水稲の間の期間、緑肥期間）における大気メタン濃度とメタンフラックスの短期的・長期的な時間変動パターンを明らかにした。また、大気メタン濃度およびメタンフラックスと栽培管理や環境要因との関係を解析し､水田の栽培管理による時間変化パターンの差､時間変化に与える気温や風速の影響を明らかにした。第二に、異なる時間変化スケール（季節変化、日変化）における大気メタン濃度とメタンフラックスの制限要因を相関分析と一次元大気境界層モデルにより解析した。この解析により、季節変化においては大気メタン濃度の時間変化に対する水田からのメタンフラックスの影響が大きいこと、一方、日変化においては大気メタン濃度の変化に対する水田からのメタンフラックスの影響は小さく、移流の影響が大きいことを明らかにした。第三に、メタンフラックスの連続観測データを用いてDNDC-Riceモデル解析を行い、インド南部タミルナドュ州の水田地帯におけるメタン放出量を定量評価した。

６．引用文献

1) A. UPALI, K. PALANISAMI, O. P. SINGH, R. SAKTHIVADIVEL: Research Papers in Economics, 53-81 (2009), State of Irrigation in Tamil Nadu.
2) T. ISEKI: Environ. Geol., 46, 1064-1069 (2004), A portable remote methane detector using an InGaAsP DFB laser.
3) Y. MATSUMI, T. HIDEMORI, T. NAKAYAMA, R. IMASU, S. K. DHAKA: SPIE, doi: 10.1117/2.1201601.006283 (2016), Measuring methane with a simple open-path gas sensor.
4) E. K. WEBB, G. I. PEARMAN, R. LEUNING: Quart. J. R. Met. Soc., 106, 85-100 (1980), Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapor transfer.
5) T. FOKEN: Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 305 (2008), Micrometeorology.
6) G. BURBA: Li-Cor Biosciences, Lincoln, 331 (2013), Eddy Covariance Method for Scientific, Industrial, Agricultural and Regulatory Applications.
7) J. B. MONCRIEFF et al.: J. Hydrol., 589-611 (1997), A system to measure surface fluxes of momentum, sensible heat, water vapor and carbon dioxide.
8) J. B. MONCRIEFF, R. CLEMENT, J. FINNIGAN, T. MEYERS: Kluwer Academic, 7-31 (2004), Averaging, detrending and filtering of eddy covariance time series.
9) D. VICKERS, L. MAHRT: J. Atmos. Ocean. Tec., 14, 512-526 (1997), Quality control and flux sampling problems for tower and aircraft data.
10) T. FOKEN, B. WICHURA: Agric. Forest Meteorol., 78, 83-105 (1996), Tools for quality assessment od surface-based flux measurements.
11) M. MAUDER, T. FOKEN: Meteorokogische Zeitschrift, 15, 597-609 (2006), Impact of post-field data processing on eddy covariance flux estimates and energy balance closure.
12) E. FALGE et al.: Agric, Forest Meteorol., 107, 43-69 (2001), Gap filling strategies for defensible annual sums of net ecosystem exchange.
13) K. G. MCNAUGHTON, T. W. SPRIGGS: Bound-Lay, Meteorol., 34, 243-262 (1986), A mixed-layer model for regional evaporation.
14) T. FUMOTO, K. KOBAYASHI, C. LI, K. YAGI, T. HASEGAWA: Glob. Chang. Biol., 14, 382-402 (2008), Revising a process-based biogeochemistry model DNDC to simulate methane emission from paddy fields under various residue managements.
15) T. FUMOTO, T. YANAGIHARA, T. SAITO, K. YAGI, T. HASEGAWA: Glob. Chang. Biol., 16, 1847-1859 (2010), Assessment of the methane mitigation potentials of alternative water regimes

in rice fields using a process-based biogeochemistry model.

16) N. KATAYANAGI, Y. FURUKAWA, T. FUMOTO, Y. HOSEN: Soil Sci. Plant Nutr., 58, 360-372 (2012), Validation of the DNDC-Rice model by using CH_4 and N_2O flux data from rice cultivated in pots under alternate wetting and drying irrigation management.

17) K. MINAMIKAWA, T. FUMOTO, M. ITOH, M. HAYANO, S. SUDO, K. YAGI: Biol. Fertil. Soils, 50, 879-889 (2014), Potential of prolonged midseason drainage for reducing methane emission from rice paddies in Japan: a long-term simulation using the DNDC-Rice model.

18) M. MANO et al.: Proceedings of Joint conference of the AsiaFlux Workshop 2015 and ISPRS, TC WG VIII/3：Weather, Atmosphere and Climate Studies Weather, Atmosphere and Climate Studies, Challenges and Significance of Ecosystem Research in Asia to Better Understand Climate Change, 5-3, P40 (2015), Continuous CH_4 flux measurement of a double-crop paddy field in Bangladesh.

19) H. IWATA, M. MANO, K. ONO, T. TOKIDA, T. KAWAZOE, Y. KOSUGI, A. SAKABE, K. TAKAHASHI, A. MIYATA: Atmos. Environ., 179, 156-165 (2018), Exploring sub-daily to seasonal variations in methane exchange in a single crop rice paddy in central Japan.

20) A. MEIJIDE, G. MANCA, I. GODED, V. MAGLIULO, P. DI TOMMASI, G. SEUFERT, A. CESCATTI: Biogeosciences, 8, 3809-3821 (2011), Seasonal trends and environmental controls of methane emissions in a rice paddy field in Northern Italy.

Ⅱ－５　南アジア域の大気中メタン濃度及び関連物質の高精度計測

国立研究開発法人国立環境研究所
地球システム領域　炭素循環研究室　寺尾　有希夫
動態化学研究室　梅澤　拓
＜研究協力者＞
地球システム領域　衛星観測研究室　大山　博史

［要旨］

南アジア（インド・ナイニタールとバングラデシュ・コミラ）のフラスコサンプリング観測を定期的に実施し、他サブテーマが実施する衛星観測データ解析とモデル解析の結果を検証するためのメタンと一酸化炭素(CO)濃度の直接観測データを提供した。また、観測データをDOI付きで一般公開した。観測されたメタンとCOの濃度データ、ならびにメタン安定炭素同位体比の観測データを活用し、モンスーン循環や農業形態を考慮した季節区分でメタン排出源を解析した。その結果、バングラデシュ・コミラでは、秋に微生物起源73%、バイオマス燃焼15%で、冬になるとバイオマス燃焼の割合が増加する(32%)ことがわかった。このバイオマス燃焼の寄与率はEDGARインベントリより高く、既存のインベントリはバングラデシュのバイオマス燃焼に伴うメタン放出を過小評価している可能性があることが示唆された。インド・ナイニタールでは、年間を通じて似た同位体の特徴を持ち、この地域の代表的な値を捉えていると考えられた。

１．研究開発目的

これまで我々は、環境研究総合推進費A-1202課題（H24-26年度実施）及び2-1502課題（H27-29年度実施）において、シベリアや南アジアに着目した地上観測を実施し、GOSATデータ解析やモデル解析を行ってきた。これらの研究から、モンスーン循環が卓越するアジア域から大量に放出されるメタンの動態を明らかにするためには、GOSAT等の衛星観測の気柱平均濃度データだけでは不十分であることがわかった。そこで、本推進費では、GOSAT/GOSAT-2の短波長（SWIR）バンド及び熱赤外（TIR）バンドから得られるメタン等の3次元濃度データを活用し、トップダウン手法に基づいた全球のメタン放出量の推定確度及び精度を改善することを目的とした。

本サブテーマ（５）の１つめの目的は、他サブテーマが実施する衛星観測データ解析とモデル解析の結果を検証するためのメタンと一酸化炭素(CO)濃度の直接観測データを提供することである。我々は、メタンの大放出地帯であるにもかかわらず観測空白域である南アジア（インド、バングラデシュ）において、10年以上にわたり、温室効果ガスと関連物質の高精度観測を実施してきた。本サブテーマで得られた直接観測データは、サブテーマ（１）でGOSAT/GOSAT-2から導出した地上の発生源の情報をより反映した下層メタン濃度の検証、サブテーマ（２）で実施した衛星データと地上観測データの複合利用によるメタン濃度の地域別特性解析、サブテーマ（３）の大気輸送モデル計算の濃度場の再現性の検証、サブテーマ（４）のレーザー分光観測の検証に利活用される。

本サブテーマの２つめの目的は、メタン中の安定炭素同位体比の分析にもとづいて、南アジアのメタン発生源の推定を行うことである。フラスコサンプリングによるメタンとCOの濃度ならびにメタンの安定炭素同位体比の関係性から、メタン発生源が多様で複雑に分布している南アジアの発生源別のメタン放出特性を明らかにし、メタン放出量推定の精緻化に向けたプロセスの理解を進める。

２．研究目標

南アジアでフラスコサンプリングを実施し、メタン濃度およびCO濃度の高精度計測（メタンは±2 ppbの精度）とメタン安定炭素同位体比（$\delta^{13}C\text{-}CH_4$）の高精度分析（±0.1‰以下の精度）を行う。それぞれ

のデータの季節変動と相関から化石燃料起源、微生物起源等のメタンの排出源の分離・評価を行う。特に、南アジアにおける$\delta^{13}C$-CH_4の季節変動の観測は世界初となる。さらに、得られたデータを他サブテーマに提供し、大気輸送モデルの計算データおよびGOSAT、GOSAT-2の観測データの比較・評価に活用する。

３．研究開発内容

国立環境研究所で2006年から実施しているヒマラヤ山麓・ナイニタール、および2012年から実施しているバングラデシュ水田地帯・コミラにおける大気サンプリングを継続して行い、実験室で高精度に大気中メタン濃度と一酸化炭素(CO)濃度を分析した[1)]。また、サブテーマ４で実験を行っている南インド・アドゥトゥライ(Aduthurai)のタミルナドゥ水稲研究所（TRRI）においては研究者が訪問した際に大気サンプリングを行い、大気中メタン濃度の分析を行った。図5.1に、本研究で大気サンプリングを行った位置を示す。

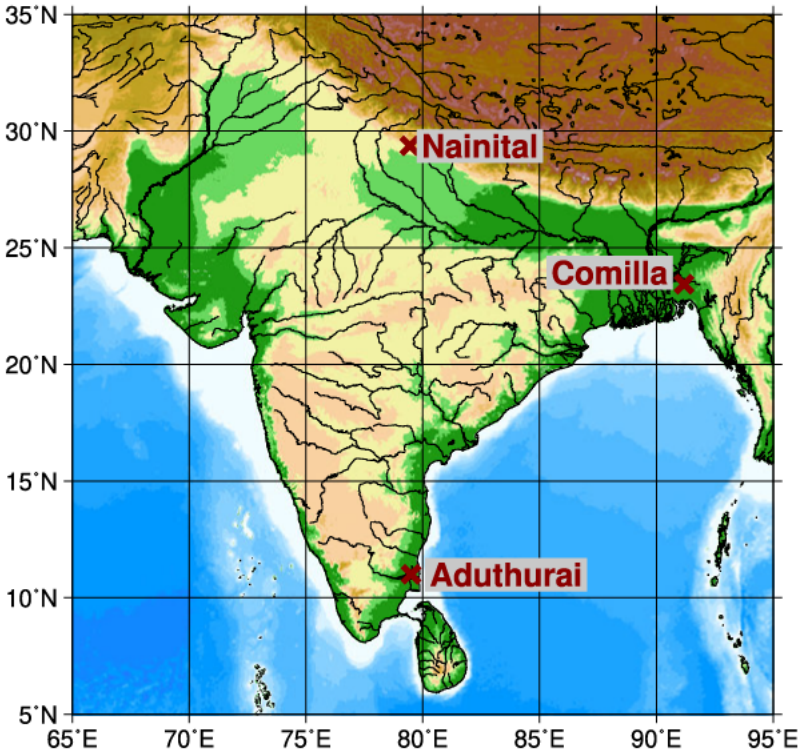


図5.1 本研究で大気サンプリングを行った地点。

ナイニタールとコミラでは、屋上に設置したポールの先端に大気採取口を取り付け、そこから大気をポンプで引き、流量を毎分2～3Lに調整し、-30℃の冷凍トラップで除湿した後、1.5Lのガラスフラスコに+0.1MPaで加圧充填した。図5.2(a)にフラスコサンプリングのライン図を示す[1)]。大気試料は、現地協力者により週１回採取され、４本採取したのち梱包して日本に返送されるように手配した。ナイニタールでは、アリヤバータ観測科学研究所の Manish Naja博士によって、毎週水曜の現地時間14時に大気サンプリングを行った。コミラでは、ダッカ大学の Kawser Ahmad教授によって、時刻は多少前後するものの、毎週金曜の現地時刻14時から16時に大気サンプリングを行った。こうして、ほぼひと月に１回、各サイトに対して、ガラスフラスコ４本の発送と、採取した大気試料の受取を行い、週１回のサンプリング観測を維持した。

採取した大気試料のメタン濃度とCO濃度分析は、国立環境研究所のガスクロマトグラフ-水素炎イオン化型検出器（GC-FID）を用いて行い、メタンについては±2 ppbの精度でNIES 94 CH_4スケールでモル比を決定した。また、本研究はメタンとCOが対象なので詳細は省略するが、採取された大気試料について、二酸化炭素(CO_2)、水素（H_2）、一酸化二窒素（N_2O）、六フッ化硫黄（SF_6）といった微量成分の分析

も行った。図5.2(b)に、フラスコ分析システムの概略図を示す[1)]。

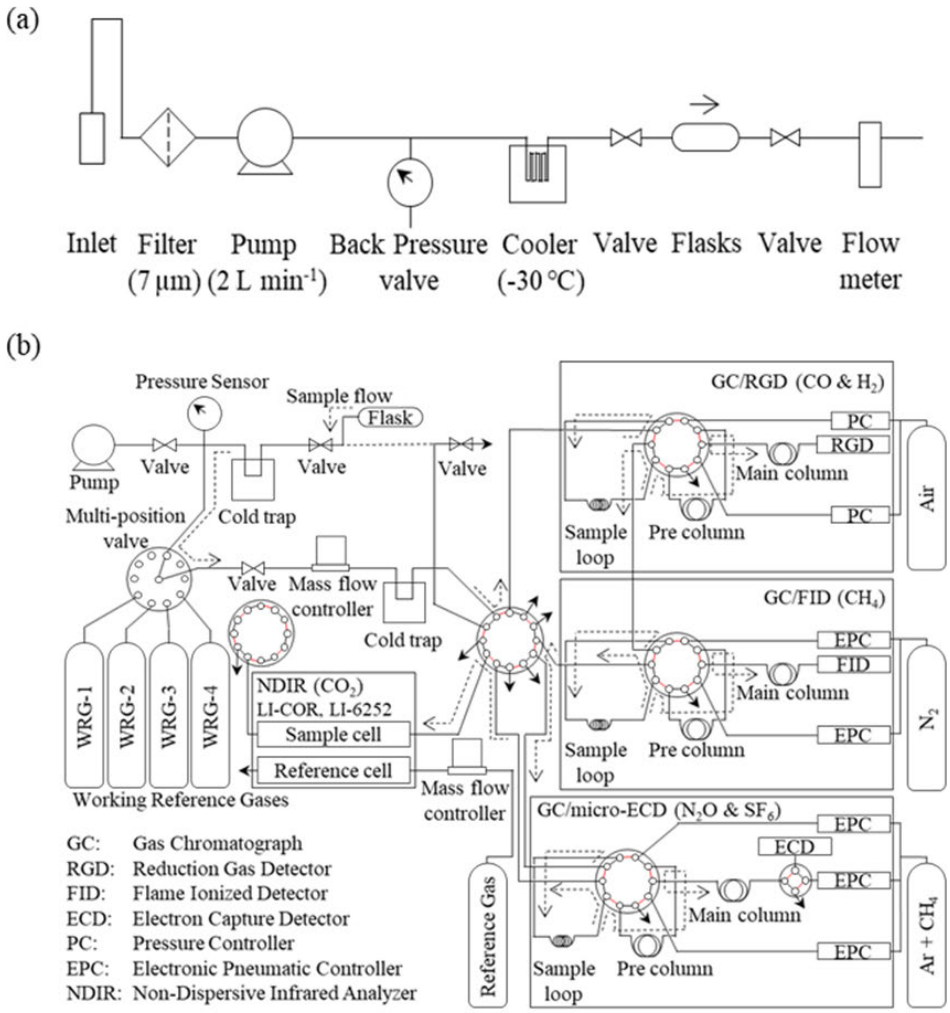


図5.2 (a)フラスコサンプリングと(b)フラスコ分析システムのライン図[1)]。

本研究ではさらに、南アジアにおけるメタン発生源を分離評価するために、ナイニタールとコミラで採取した大気試料のメタンの安定炭素同位体比δ^{13}C-CH_4の高精度分析を行った。δ^{13}C-CH_4（δ^{13}Cは、大気試料の^{13}C/^{12}Cと標準物質の^{13}C/^{12}Cの比）は排出源によってその値が大きく異なり、代表的な値として、水田等の微生物起源のメタンは-60‰、化石燃料起源は-40‰、バイオマス燃焼起源は-25‰と考えられている。^{13}C-CH_4分析システム（CPR-GC-IRMS）は、環境研究総合推進費2-1710「メタンの合理的排出削減に資する東アジアの起源別収支監視と評価システムの構築」で開発されたもので、２段階の冷凍濃縮トラップ、ガスクロマトグラフ法による分離、燃焼炉、そして同位体質量分析計から構成される[2)]。CPR-GC-IRMSを用いて、ナイニタールとコミラの大気試料を平均で0.1‰以下の標準偏差で分析を行った。

2021年度以降、インドおよびバングラデシュのフラスコサンプリング観測は、戦略的研究開発課題（推進費SII-8課題）テーマ1「地上観測・航空機による大気中のGHG動態の把握」によって引き続き継続実施され、メタンとCO濃度ならびにメタン安定炭素同位体比の高精度計測を実施している。

４．結果及び考察

図5.3にナイニタールとコミラで観測されたメタン濃度の時系列と季節変動を示す[1)]。観測期間中において大きな欠測はなく、順調に大気サンプリングと濃度分析を進めることができた。北半球のバックグランドを代表するマウナロアや、インド亜大陸西岸で清浄なCape Ramaにおける観測データと比較する

と、ナイニタールとコミラのメタン濃度は、濃度が高いことに加え、年々変動も大きい。また、コミラのメタン濃度はナイニタールより高濃度で、3ppmを超えるメタン濃度がしばしば観測された。北半球のバックグランド大気のメタン濃度は夏に極小となる季節変動パターンを示すが、ナイニタールのメタン濃度は9月に極大となる季節変動パターンが観測された。一方コミラでは8月くらいからメタン濃度の増加がはじまり、秋に極大になったのち、12月～１月に再び極大になった。7-9月のモンスーン期に着目すると、ナイニタールが極大、コミラが極小であるが、そのメタン濃度はほぼ同レベルであった。

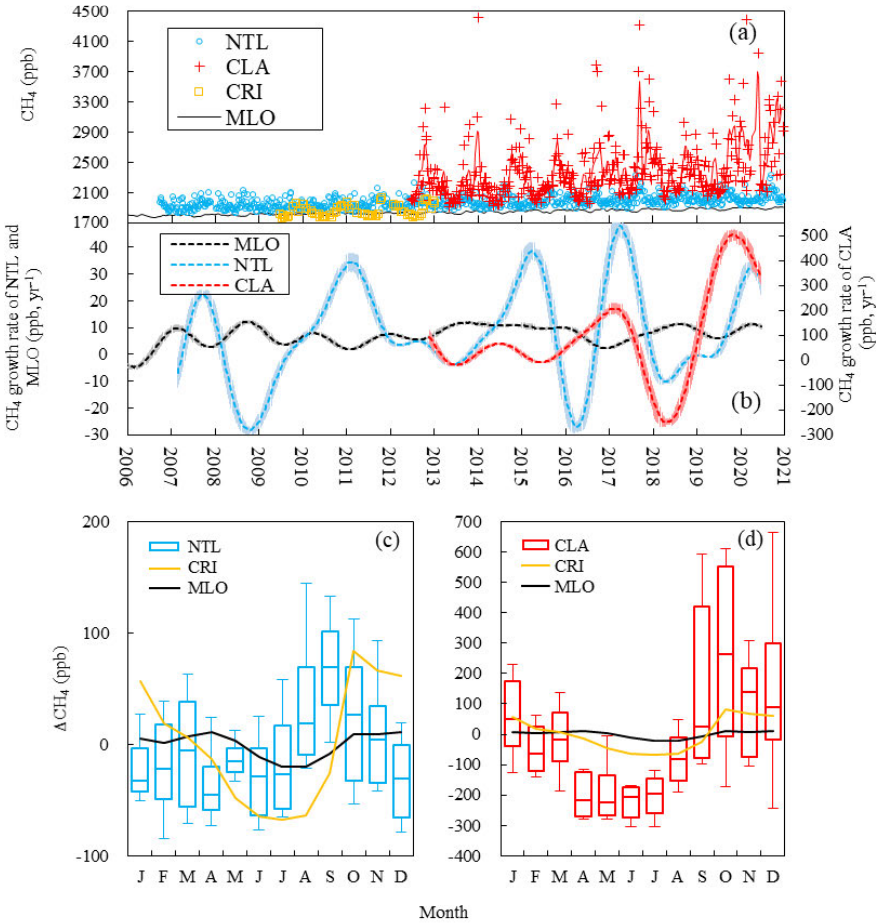


図5.3　観測されたメタン濃度の(a)時系列、(b)年変化率、(c)ナイニタールの季節変動、(d)コミラの季節変動。青がナイニタール、赤がコミラ、黒がマウナロア、黄色がCape Ramaのデータを示す[1)]。

図5.4にナイニタールとコミラで観測されたCO濃度の時系列を示す[1)]。マウナロアと比較すると、ナイニタールとコミラのCO濃度は高かったが、Cape Ramaとナイニタールは同程度であった。また、コミラにおいて冬期にCO濃度の顕著な増大が観測されたが、メタンと比べるとその差は小さく、ガンジス川流域を含むインド亜大陸全体でCO濃度が高くなっていると推察された。また、ナイニタールにおいても、コミラより濃度は低いものの、冬期のCO濃度増大が観測された。7-9月のモンスーン期に着目すると、ナイニタールとコミラともに極小をとり、CO濃度は平均で100～150ppbで、マウナロアのバックグランド大気と近い濃度だった。

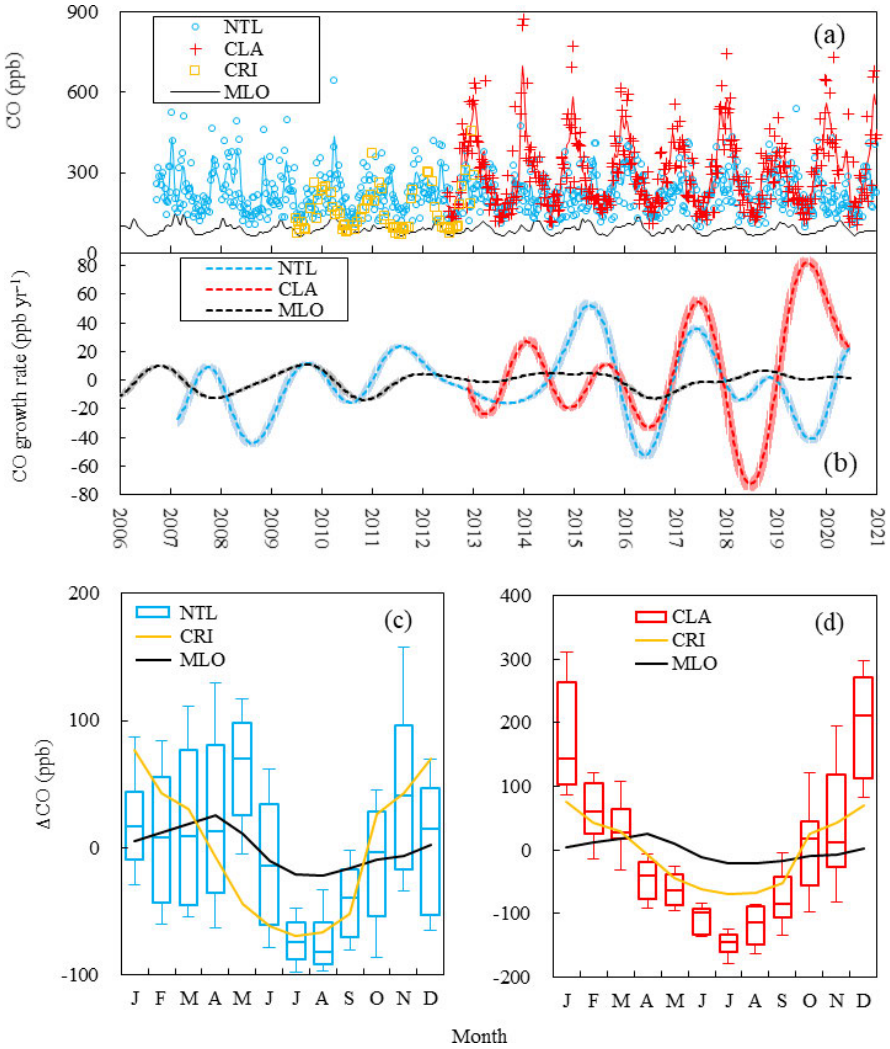


図5.4　図5.3と同じ（ただしCO濃度）

ナイニタールとコミラで観測されたメタンとCO濃度の季節変動は、アジアモンスーンにともなう大気循環場と農業形態の変動で説明できると考えられた。図5.5に、ナイニタールとコミラで観測された大気の72時間後方流跡線を示す。ナイニタールは山岳に位置するため偏西風の影響を強く受け、北インド地域の清浄大気を観測していると考えられるものの、7-9月のモンスーン期のみガンジス平野からの空気が流入していた。よって、ナイニタールの7-9月に観測されたメタン高濃度は、ガンジス平野での稲作に起因する高メタンが輸送されていると推察された。コミラでもモンスーンによる大気循環場の季節変化があり、4月から9月はベンガル湾からの空気塊が流入しているのに対し、10月から3月は内陸側の狭い範囲の空気塊を捉えていると考えられた。また、コミラの現地調査から、コミラ周辺ではモンスーン初期である4月から7月は洪水が多発しほぼ水田等は水没していること、8月と12月に２回の田植えを行うことが明らかになった。以上をふまえ、モンスーン循環と農業形態を考慮した以下の季節区分を基にメタン排出源の解析を行った。

ナイニタール：7-9月モンスーン期（ガンジス川流域空気塊）とそれ以外

コミラ：4-7月モンスーン期（洪水）、8-11月秋季稲作期、12-3月冬季稲作期

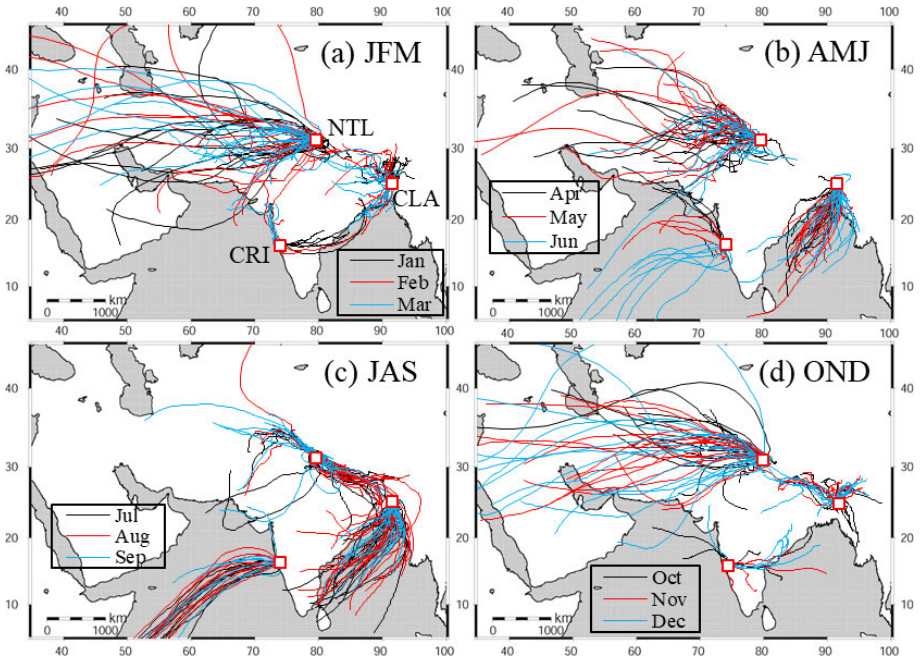


図5.5 ナイニタールとコミラで観測された大気の72時間後方流跡線。(a)1-3月、(b)4-6月、(c)7-9月、(d)10-12月。

2018年9月から、ナイニタールとコミラで採取した大気試料の$\delta^{13}C$-CH_4の分析を開始した。図5.6に、ナイニタールとコミラで観測された$\delta^{13}C$-CH_4（暫定スケールでの分析値）、メタン濃度、CO濃度を表す。ナイニタールとコミラの両サイトで、メタン濃度変動に相関した$\delta^{13}C$-CH_4変動が観測されたが、その変動幅は大きく異なった。コミラでは、1500 ppb程度のメタン濃度変動に対応して、$\delta^{13}C$-CH_4も-51‰から-47‰の間で大きく変動した。一方、ナイニタールでは、メタン濃度変動幅が200 ppb程度で、$\delta^{13}C$-CH_4の変動幅は約1‰と比較的小さかった。

コミラとナイニタールで観測された$\delta^{13}C$-CH_4変動とメタン排出源との関係を探るために、メタン濃度と$\delta^{13}C$-CH_4のキーリングプロット解析をモンスーン循環と農業形態を考慮した季節区分ごとに行った（図5.7）。ナイニタールでは、メタン濃度が増加すると$\delta^{13}C$-CH_4が小さくなることが明らかとなった。メタン排出源の$\delta^{13}C$-CH_4値（キーリングプロットにおける最小二乗回帰直線のy切片）は、モンスーン期で-54.2±0.3‰、その他の偏西風下で-53.5±0.3‰で、明瞭な季節変化は観測されなかった。ナイニタールでは、年間を通じて-53.8±0.3‰の同位体の特徴を示すことから、この地域の代表的な値を捉えていると考えられた。

一方コミラでは、8月から11月の秋季稲作期と12月から3月の冬季稲作期で、メタン排出源の$\delta^{13}C$-CH_4が明瞭に異なることが観測された。秋季稲作期のメタン濃度増大を引き起こした排出源の$\delta^{13}C$-CH_4は-52.6±0.8‰と推定され、微生物起源（コミラの環境を考慮すると水田起源）の排出源が主であることが強く示唆された。一方、冬季稲作期のメタン濃度増大を引き起こした排出源の$\delta^{13}C$-CH_4は-46.5±0.8‰と推定され、高い$\delta^{13}C$-CH_4値を持つ排出源の影響を受けていることが示唆された。ここで、微生物起源メタンの$\delta^{13}C$-CH_4を-60‰、化石燃料起源を-40‰、バイオマス燃焼起源を-25‰と仮定し、EDGAR v5.0インベントリ[3)]から推定されるバングラデシュにおける化石燃料起源メタンの割合を10%と仮定すると、観測されたメタン排出源の$\delta^{13}C$-CH_4を説明するには、秋季稲作期の各メタン排出源の相対的寄与は微生物起源が73%、バイオマス燃焼起源が15%であるのに対し、冬季稲作期のメタン排出源は微生物起源が56%、バイオマス燃焼起源が32%であると推定された。

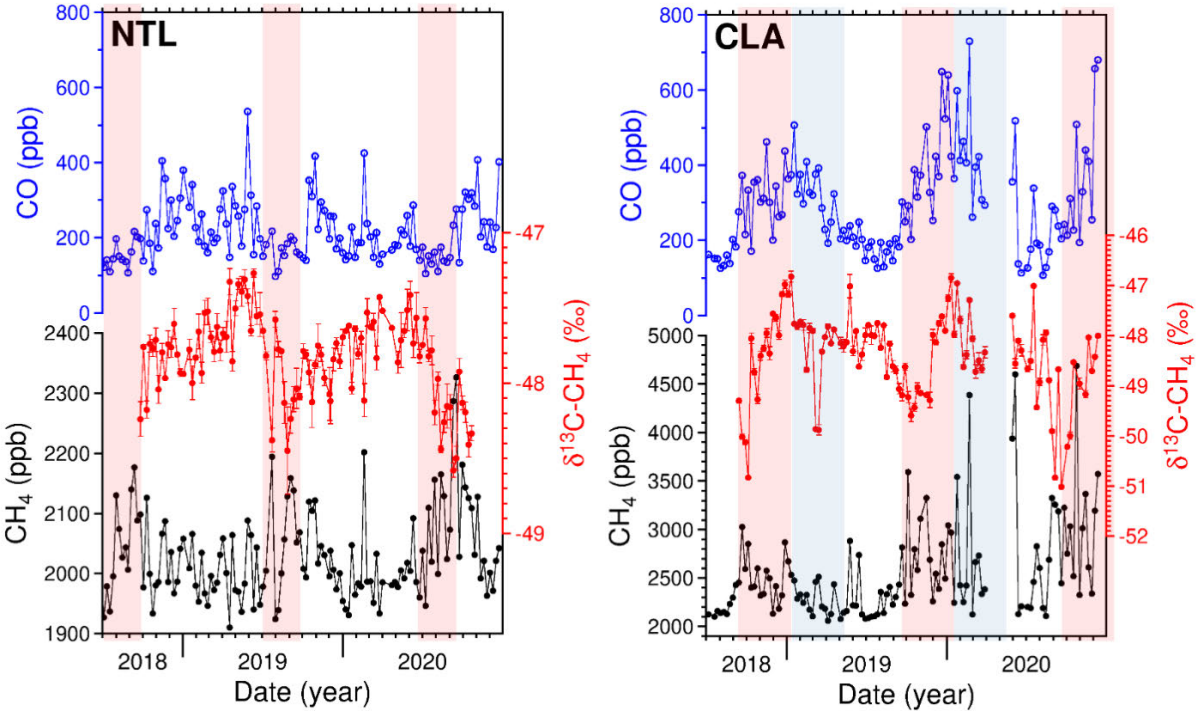


図5.6 ナイニタール（左）とコミラ（右）で観測されたメタン濃度（黒）、CO濃度（青）とδ^{13}C-CH_4（赤）の時系列。ナイニタールのピンクハッチ（7-9月）はガンジス川流域空気塊を、コミラのピンクハッチ（8-11月）は秋季稲作期、水色ハッチ（12-3月）は冬季稲作期を示す。（δ^{13}C-CH_4比は暫定スケールでの分析値であることに注意）

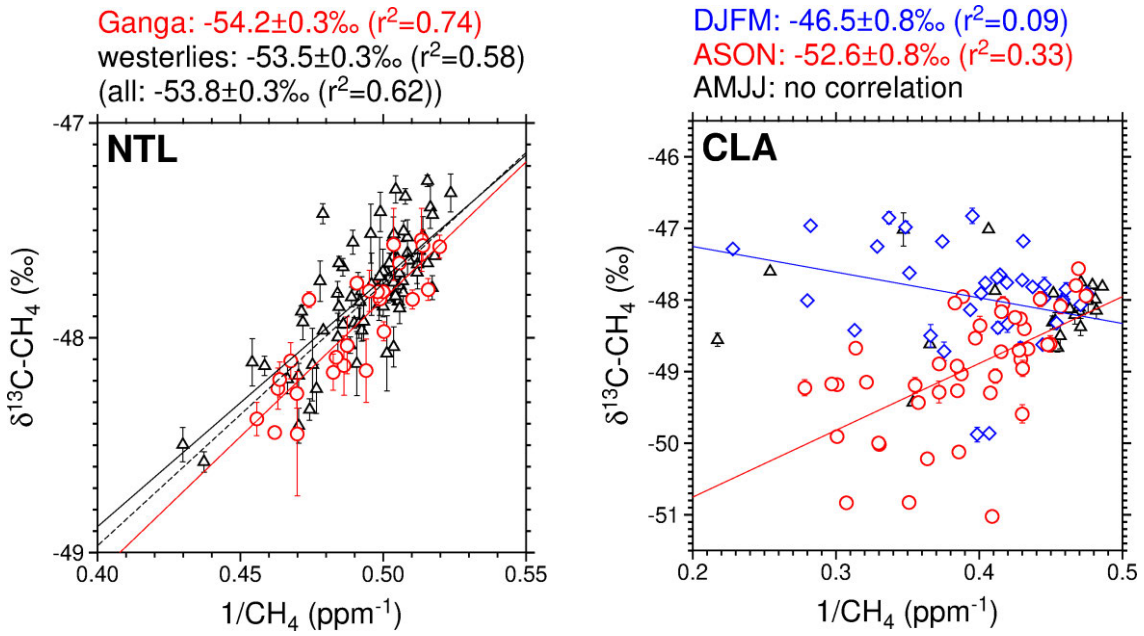


図5.7 ナイニタール（左）とコミラ（右）で観測されたメタン濃度とδ^{13}C-CH_4のキーリングプロット。直線は、最小二乗回帰直線を表す。色はモンスーン循環と農業形態を考慮した季節区分を表し、ナイニタールの赤が7-9月、黒がそれ以外、コミラの赤が8-11月、青が12-3月、黒が4-7月を示す。（δ^{13}C-CH_4比は暫定スケールでの分析値であることに注意）

CO濃度は、観測された空気中の微量成分が燃焼起源であるかどうかを示すトレーサとして有効である。そこで、コミラのCO濃度の変動に着目すると、秋季稲作期と比べ冬季稲作期はCO濃度が増大していることが観測された。この結果は、δ^{13}C-CH_4観測結果から得られた冬季稲作期のバイオマス燃焼起源メタンの割合の増大と整合的である。

また、本研究で得られたメタン排出源のδ^{13}C-CH_4を、EDGAR v5.0インベントリ[3)]と比較した。インベントリにおけるインドとバングラデシュのメタン排出源（図5.8）を、微生物起源、化石燃料起源、バイオマス燃焼起源に分け、それぞれのδ^{13}C-CH_4を-60‰、-40‰、-25‰と仮定すると、EDGAR v5.0インベントリから推測されるメタン排出源のδ^{13}C-CH_4はインドで-55.4‰から-53.9‰、バングラデシュで-57.6‰から-57.2‰となった。ナイニタールの観測で得られたメタン排出源のδ^{13}C-CH_4（-53.8±0.3‰）はEDGARインベントリと近い値であったが、コミラの観測結果（秋季-52.6±0.8‰、冬季-46.5±0.3‰）はEDGARインベントリと大きく異なった。この結果は、EDGARインベントリはバングラデシュのバイオマス燃焼もしくは化石燃料起源のメタン放出を過小評価している可能性があることを示唆している。ただし、ナイニタールの観測データは地域の代表的な値を示していると考えられるのに対し、コミラの観測がどれだけバングラデシュ国を捉えているのかは明らかでない。よって、今後、国レベルではなく、観測データのフットプリントを考慮したグリッドベースでのインベントリ比較解析が必要である。

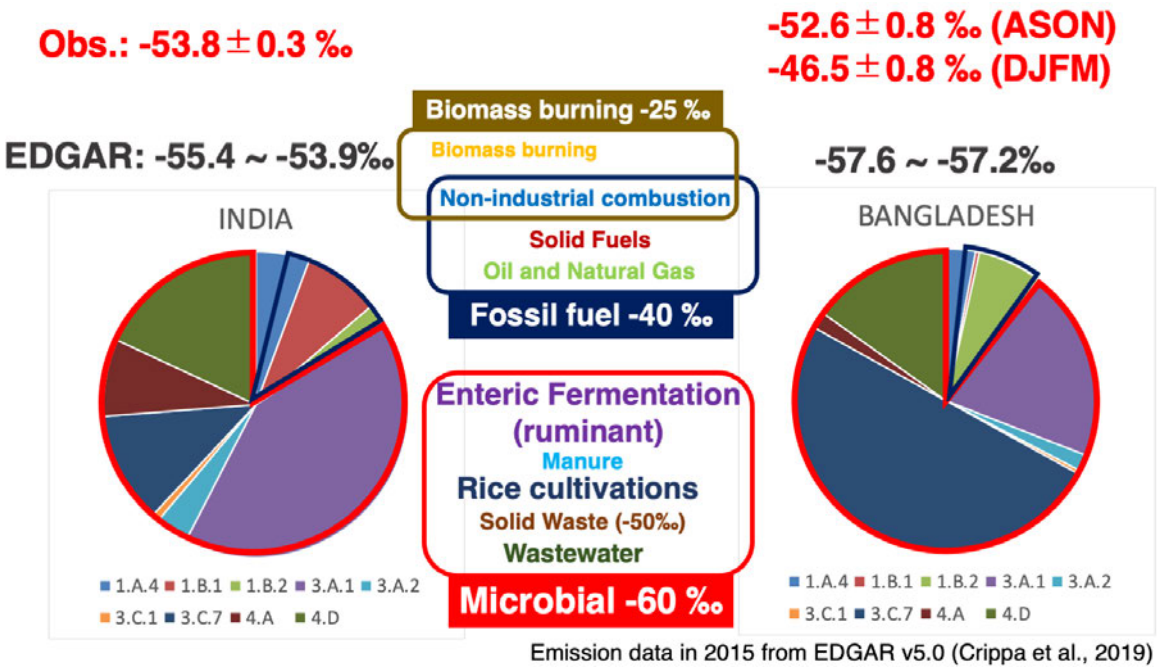


図5.8　EDGAR v5.0におけるインド（左）とバングラデシュ（右）のメタン排出源の割合と、そこから推測されるδ^{13}C-CH_4値。

本研究で実施したナイニタールとコミラのメタンとCO観測データは、サブテーマ（１）のGOSAT/GOSAT-2から導出した下層メタン濃度の検証、サブテーマ（２）で実施したTROPOMI衛星観測との比較、サブテーマ（３）の大気輸送モデル計算の濃度場の再現性の検証に利用された。サブテーマ（４）のレーザー分光観測を実施しているインドのタミルナドゥ稲作研究所においても大気試料採取を行い、高精度でメタン濃度分析を行い、レーザー分光観測の校正に寄与した。

また、本研究で実施したナイニタールとコミラのCO_2，CH_4，CO，H_2，N_2O，SF_6，^{13}C-CO_2，^{18}O-CO_2観測データ計16件を、DOI付きで一般公開した[4),5),6),7),8),9),10),11),12),13),14),15)16),17),18),19)]。これらの観測データは、観測空白域である南アジアにおける貴重な直接観測データとして、今後も多く活用されることが期待される。

５．研究目標の達成状況

観測空白域である南アジアの２地点（インドのナイニタールおよびバングラデシュのコミラ）でフラスコサンプリングを実施し、メタン濃度およびCO濃度の高精度計測（メタンは±2 ppbの精度）とメタン安定炭素同位体比（$\delta^{13}C$-CH_4）の高精度分析（±0.1‰以下の精度）を着実に実施した。特にナイニタールは2006年から16年以上欠測なく観測を続けており、南アジアにおける温室効果ガス観測データとして最長レコードを誇る。また、南アジアでの$\delta^{13}C$-CH_4観測はこれまでに例がなく、既存のEDGARインベントリではバングラデシュのバイオマス燃焼もしくは化石燃料に伴うメタン放出を過小評価している可能性があることが示唆されるなど､メタン発生源の分離評価のための貴重なデータを取得することができた。得られたデータは他サブテーマに提供し、大気輸送モデルの計算データおよびGOSAT、GOSAT-2の観測データの比較・評価に活用された。また、研究目標には設定していなかったが、ナイニタールとコミラのフラスコ観測データ計16件をDOI付きで一般公開した[4),5),6),7),8),9),10),11),12),13),14),15)16),17),18),19)]。以上のことから、研究目標を十分達成したと考える。

６．引用文献

1) S. NOMURA, M. NAJA, M. K. AHMED, H. MUKAI, Y. TERAO, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, P. K. PATRA: Atmos. Chem. Phys., 21, 16427-16452, https://doi.org/10.5194/acp-21-16427-2021 (2021), Measurement report: Regional characteristics of seasonal and long-term variations in greenhouse gases at Nainital, India, and Comilla, Bangladesh.
2) T. UMEZAWA, S.J. REWS, T. SAITO: J. Meteorol. Soc. Japan., 98, 1, 115-127, https://doi.org/10.2151/jmsj.2020-007 (2020), A Cryogen-Free Automated Measurement System of Stable Carbon Isotope Ratio of Atmospheric Methane.
3) M. CRIPPA, E. SOLAZZO, G. HUANG, D. GUIZZARDI, E. KOFFI, M. MUNTEAN, C. SCHIEBERLE, R. FRIEDRICH, G. JANSSENS-MAENHOUT: Nature Scientific Data, doi:10.1038/s41597-020-0462-2 (2019), High resolution temporal profiles in the Emissions Database for Global Atmospheric Research (EDGAR).
4) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Carbon Dioxide Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.001.
5) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Carbon Dioxide Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.002.
6) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Methane Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.003.
7) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Methane Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.004.
8) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Carbon Monoxide Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.005.
9) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Carbon Monoxide Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.006.
10) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Molecular Hydrogen Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0,

NIES, DOI:10.17595/20220301.007.
11) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Molecular Hydrogen Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.008.
12) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Nitrous Oxide Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.009.
13) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Nitrous Oxide Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.010.
14) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Atmospheric Sulfur Hexafluoride Dry Air Mole Fraction at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.011.
15) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Atmospheric Sulfur Hexafluoride Dry Air Mole Fraction at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.012.
16) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Carbon Isotopic Ratio (C13/C12) of Carbon Dioxide at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.013.
17) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Carbon Isotopic Ratio (C13/C12) of Carbon Dioxide at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.014.
18) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. NAJA (2022), Oxygen Isotopic Ratio (O18/O16) of Carbon Dioxide at Nainital, India, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.015.
19) Y. TERAO, S. NOMURA, H. MUKAI, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, M. K. AHMED, P. K. PATRA (2022), Oxygen Isotopic Ratio (O18/O16) of Carbon Dioxide at Comilla, Bangladesh, ver.2022.0, NIES, DOI:10.17595/20220301.016.

Ⅲ．研究成果の発表状況の詳細

（１）誌上発表

＜査読付き論文＞

【サブテーマ１】

1) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: Remote Sens., 13, 9, 1677, https://doi.org/10.3390/rs13091677 (2021) (IF:4.848), GOSAT CH_4 vertical profiles over the Indian subcontinent: effect of a priori and averaging kernels for climate applications.
2) D. BELIKOV, M. ARSHINOV, B. BELAN, D. DAVYDOV, A. FOFONOV, M. SASAKAWA, T. MACHIDA: Atmosphere, 10(11) 689, https://doi.org/10.3390/atmos10110689 (2019) (IF:2.869), Analysis of the diurnal, weekly, and seasonal cycles and annual trends in atmospheric CO_2 and CH_4 at tower network in Siberia from 2005 to 2016.

【サブテーマ２】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ３】

1) P. K. PATRA, E. J. DLUGOKENCKY, J. W. ELKINS, G. S. DUTTON, Y. TOHJIMA, M. SASAKAWA, A. ITO, R. F. WEISS, M. MANIZZA, P. B. KRUMMEL, R. G. PRINN, S. O'DOHERTY, D. BIANCHI, C. NEVISON, E. SOLAZZO, H. LEE, S. JOO, E. A. KORT, S. MAITY, M. TAKIGAWA: J. Meteorol. Soc. Japan, Ser. II, 100, 2, in press, https://doi.org/10.2151/jmsj.2022-018 (2022) (IF: 2.2), Forward and inverse modelling of atmospheric nitrous oxide using MIROC4-atmospheric chemistry-transport model.
2) J. S. H. BISHT, T. MACHIDA, N. CHANDRA, K. TSUBOI, P. K. PATRA, T. UMEZAWA, Y. NIWA, Y. SAWA, S. MORIMOTO, T. NAKAZAWA, N. SAITOH, M. TAKIGAWA: J. Geophys. Res., 126, 4, e2020JD033541, https://doi.org/10.1029/2020JD033541 (2021) (IF:4.3), Seasonal variations of SF_6, CO_2, CH_4 and N_2O in the UT/LS region due to emissions, transport and chemistry.
3) N. CHANDRA, P. K. PATRA, J. S. H. BISHT, A. ITO, T. UMEZAWA, N. SAIGUSA, S. MORIMOTO, S. AOKI, G. JANSSENS-MAENHOUT, R. FUJITA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, N. SAITOH, J. G. CANADELL: J. Meteorol. Soc. Jpn.. Ser. II, 99, 2309-2337, https://doi.org/10.2151/jmsj.2021-015 (2021) (IF: 2.2), Emissions from the Oil and Gas Sectors, Coal Mining and Ruminant Farming Drive Methane Growth over the Past Three Decades.
4) P. K. PATRA, M. C. KROL, R. G. PRINN, M. TAKIGAWA, J. MUHLE, S. A. MONTZKA, S. LAL, Y. YAMASHITA, S. NAUS, N. CHANDRA, R. F. WEISS, P. B. KRUMMEL, P. J. FRASER, S. O'DOHERTY, J. W. ELKINS: J. Geophys. Res., 126, e2020JD033862, https://doi.org/10.1029/2020JD033862 (2021) (IF:4.3), Methyl Chloroform Continues to Constrain the Hydroxyl (OH) Variability in the Troposphere.
5) S. NAUS, S. A. MONTZKA, P. K. PATRA, M. C. KROL: Atmos. Chem. Phys., 21, 4809-4824, https://doi.org/10.5194/acp-21-4809-2021 (2021) (IF: 6.1), A three-dimensional-model inversion of methyl chloroform to constrain the atmospheric oxidative capacity.
6) H. TIAN, R. XU, J. G. CANADELL, R. L. THOMPSON, W. WINI- WARTER, P. SUNTHARALINGAM, E. A. DAVIDSON, P. CIAIS, R. B. JACKSON, G. JANSSENS-MAENHOUT, M. J. PRATHER, P. REGNIER, N. PAN, S. PAN, G. P. PETERS, H. SHI, F. N. TUBIELLO, S. ZAEHLE, F. ZHOU, A.

ARNETH, G. BATTAGLIA, S. BERTHET, L. BOPP, A. F. BOUWMAN, E. T. BUITENHUIS, J. CHANG, M. P. CHIPPERFIELD, S. R. S. DANGAL, E. DLUGOKENCKY, J. W. ELKINS, B. D. EYRE, B. FU, B. HALL, A. ITO, F. JOOS, P. B. KRUMMEL, A. LOLFI, G. G. LARUELLE, R. LAUERWALD, W. LI, S. LIENERT, T. MAAVARA, M. MACLEOD, D. B. MILLET, S. OLIN, P. K. PATRA, R. G. PRINN, P. A. RAYMOND, D. J. RUIZ, G. R. VAN DER WERF, N. VUICHARD, J. WANG, R. F. WEISS, K. C. WELLS, C. WILSON, J. YANG, Y. YAO: Nature, 586, 248-256, 2020 (IF: 50), A comprehensive quantification of global nitrous oxide sources and sinks.

7) R. L. THOMPSON, L. LASSALETTA, P. K. PATRA, C. WILSON, K. C. WELLS, A. GRESSENT, E. N. KOFFI, M. P. CHIPPERFIELD, W. WINIWARTER, E. A. DAVIDSON, H. TIAN, J. G. CANADELL: Nature Climate Change, 9, 993-998 (2019) (IF:21), Acceleration of global N_2O emissions seen from two decades of atmospheric inversion.

8) P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, N. CHANDRA, K. ISHIJIMA, Y. YAMASHITA: SOLA, 14, 91-96 (2018), Improved Chemical Tracer Simulation by MIROC4.0-based Atmospheric Chemistry-Transport Model (MIROC4-ACTM).

【サブテーマ４】

1) A. Z. OO, S. SUDO, T. FUMOTO, K. INUBUSHI, K. ONO, A. YAMAMOTO, S. D. BELLINGRATH-KIMURA, K. T. WIN, C. UMAMAGESWARI, K. SATHIYA BAMA, M. RAJU, K. VANITHA, P. ELAYAKUMAR, V. RAVI, V. AMBETHGAR: Agriculture, 10, 355, doi:10.3390/agriculture10080355 (2020) (IF:2.925), Field validation of the DNDC-Rice model for methane and nitrous oxide emissions from double-cropping paddy rice under different irrigation practices in Tamil Nadu, India.

2) A. Z. OO, S. SUDO, K. INUBUSHI, C. UMAMAGESWARI, A. YAMAMOTO, K. ONO. M. MANO, S. HAYASHIDA, K. VANITHA, T. OSAWA, Y. TERAO, P. JOTHIMANI, P. ELAYAKUMAR, V. RAVI: Agronomy, 8, 202, doi:10.3390/agronomy8100202 (2018) (IF:3.417), Mitigation potential and yield-scaled global warming potential of early-season drainage from a rice paddy in Tamil Nadu, India.

【サブテーマ５】

1) S. NOMURA, M. NAJA, M. K. AHMED, H. MUKAI, Y. TERAO, T. MACHIDA, M. SASAKAWA, P. K. PATRA: Atmos. Chem. Phys., 21, 16427-16452 (2021) (IF 6.133), Measurement report: Regional characteristics of seasonal and long-term variations in greenhouse gases at Nainital, India, and Comilla, Bangladesh.

＜査読付論文に準ずる成果発表＞

特に記載すべき事項はない。

＜その他誌上発表（査読なし）＞

【サブテーマ１】

1) 犬伏和之、谷道琢朗、山本昭範、小野圭介、須藤重人、林田佐智子、齋藤尚子、V. AMBETHGAR: 熱帯農業研究, 14(1), 36-37 (2021)
「南インド農耕地土壌における土色と鉄含量およびメタン生成との関係」

2) K. INUBUSHI, D. TAKEUCHI, K. SENARI, T. TANIMICHI, H. ARAI, M. MANO, A. YAMAMOTO, S. SUDO, A.Z. OO, K. ONO, S. HAYASHIDA, N. SAITOH, V. AMBETHGAR, V. RAVI: Tropical Agriculture and Development, 14(1), 17-18 (2021)

"Greenhouse-gasses emissions, their influencing factors and sustainable mitigation options in paddy fields in south India"

3) 瀬成桂太、犬伏和之、山本昭範、小野圭介、須藤重人、林田佐智子、齋藤尚子、V. AMBETHGAR: 熱帯農業研究, 13(1), 73-74 (2020)
「南インド水田土壌中の温室効果ガス生成に及ぼす稲わら・生物炭・窒素の影響(第2報)」

4) K. INUBUSHI, K. SENARI, A.Z. OO, A. YAMAMOTO, K. ONO, S. SUDO, S. HAYASHIDA, N. SAITOH, V. RAVI: 熱帯農業研究, 12(1) 67-68 (2019)
"Effect of rice straw, biochar and nitrogen on greenhouse gases production in paddy soils in south India"

【サブテーマ２】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ３】

1) P. K. PATRA, T. UMEZAWA: SPARC Newsletters, No. 57, 36-38 (2021)
"Multi-species analysis key for testing chemistry-transport models in the upper-troposphere and lower stratosphere (UT/LS)"

2) J. G. CANADELL, H. TIAN, P. PATRA, R. THOMPSON: The Conversation, 19 Nov. 2019, https://theconversation.com/nitrogen-fertilisers-are-incredibly-efficient-but-they-make-climate-change-a-lot-worse-127103 (2019)
"Nitrogen fertilisers are incredibly efficient, but they make climate change a lot worse"

【サブテーマ４】

1) M. M. RAHMAN, A. YAMAMOTO: Agrometeorology, Ram Swaroop Meena, IntechOpen, DOI: 10.5772/intechopen.94200 (2020)
"Methane Cycling in Paddy Field: A Global Warming Issue"

【サブテーマ５】

特に記載すべき事項はない。

（２）口頭発表（学会等）

【サブテーマ１】

1) N. SAITOH, R. IMASU, K. SHIOMI: AGU Fall Meeting 2021 (2021)
"GHG and temperature profiles retrieved from GOSAT-2/TANSO-FTS-2 TIR spectra"

2) D. BELIKOV, N. SAITOH, Y. TERAO, P. K. PATRA: AGU Fall Meeting 2021 (2021)
"Regional characteristics of CO_2 and CH_4 in South Asia derived by GOSAT and ground-based observations"

3) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA: 17th International Workshop on Greenhouse Gas Measurements from Space (2021)
"An analysis of interhemispheric transport pathways of methane as observed by GOSAT-TIR"

4) N. SAITOH, R. IMASU, K. SHIOMI: 日本地球惑星科学連合2021年大会 (2021)
"Data quality of GOSAT-2/TANSO-FTS-2 GHG profile data retrieved from the V102.102 radiance spectra"

5) 張鼎坤, 齋藤尚子, D. BELIKOV, P. K. PATRA, N. CHANDRA: 日本地球惑星科学連合2021年大会 (2021)
「MIROC4-ACTMモデルを用いたインド上空のメタン高度分布の特徴解析」
6) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA: 日本地球惑星科学連合2021年大会 (2021)
"The interhemispheric transport pathways of methane as observed by GOSAT and simulated by ACTM"
7) K. INUBUSHI, D. TAKEUCHI, K. SENARI, T. TANIMICHI, H. ARAI, M. MANO, A. YAMAMOTO, S. SUDO, A.Z. OO, K. ONO, S. HAYASHIDA, N. SAITOH, V. AMBETHGAR, V. RAVI: 130th Annual Meeting of Japanese Society for Tropical Agriculture (2021)
"Greenhouse-gasses emissions, their influencing factors and sustainable mitigation options in paddy fields in south India"
8) 犬伏和之、谷道琢朗、山本昭範、小野圭介、須藤重人、林田佐智子、齋藤尚子、V. AMBETHGAR: 日本熱帯農業学会第129回講演会 (2021)
「南インド農耕地土壌における土色と鉄含量およびメタン生成との関係」
9) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA: 第25回大気討論会討論会 (2020)
"Study the methane interhemispheric transport pathway using observations by the GOSAT/TANSO-FTS thermal infrared sensor"
10) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA: ENVIROMIS-2020 (2020)
"Study of greenhouse gases in Siberia using ground-based and satellite observations"
11) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: JpGU-AGU joint meeting 2020 (2020)
"Methane vertical profiles over the Indian subcontinent derived from the GOSAT/TANSO-FTS thermal infrared sensor"
12) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: 16th International Workshop on Greenhouse Gas Measurements from Space (2020)
"Methane vertical profiles over India derived from GOSAT/TANSO-FTS TIR"
13) D. BELIKOV, N. SAITOH, P. K. PATRA, N. CHANDRA: EGU2020 (2020)
"CH_4 variability over India derived from the GOSAT/TANSO-FTS TIR observations and simulated by MIROC4-ACTM model"
14) K. INUBUSHI: International Webinar on Advances in Rice Researches for Food Security and Environmental Sustainability (2020)
"Recent Rice Research and Future Climate Change"
15) K. INUBUSHI, A. YAMAMOTO, N. SAITOH, V. AMBETHGAR, and PROJECT MEMBERS: International Conference on Tropical Agriculture and Climate Change (2020)
"Soil Microbiology and Climate Change"
16) 瀬成桂太、犬伏和之、山本昭範、小野圭介、須藤重人、林田佐智子、齋藤尚子、V. AMBETHGAR: 日本熱帯農業学会第127回講演会 (2020)
「南インド水田土壌中の温室効果ガス生成に及ぼす稲わら・生物炭・窒素の影響(第2報)」
17) N. SAITOH, K. KITAMURA, R. IMASU, K. SHIOMI, A. KUZE, F. KATAOKA: AGU Fall Meeting 2019 (2019)
"Vertical profiles of CO_2 and CH_4 retrieved from the TIR bs of GOSAT/TANSO-FTS and GOSAT-2/TANSO-FTS-2"
18) 齋藤尚子、D. BELIKOV、小林陽菜子: 2019年度日本気象学会秋季大会 (2019)
「GOSATメタン鉛直濃度分布データを用いたインド上空のメタン季節変動の解析」
19) 犬伏和之: 日本気象学会2019年度秋季大会 (2019)
「土壌から大気へのメタンの発生メカニズム」

20) N. SAITOH, D. BELIKOV, K. INUBUSHI, S. HAYASHIDA, P. K. PATRA, A. YAMAMOTO, Y. TERAO: iLEAPS/IGAC-Japan Joint Workshop 2019 (2019)
"Estimation of Regional-Global Methane Emissions and Refinement of Its Estimate by GOSAT-2 and Surface Observations"
21) N. SAITOH, S. KOSAKA, H. KOBAYASHI: 15th International Workshop of Greenhouse Gas Measurements from Space (2019)
"Variations in CO_2 and CH_4 in upper atmosphere: the effects of biomass burning and Asian monsoon transport inferred from GOSAT/TANSO-FTS TIR data"
22) 齋藤尚子、小坂真悟、小林陽菜子、白木雅人: 日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
「GOSAT/TANSO-FTSの熱赤外バンドの観測から得られた科学的成果」
23) K. INUBUSHI, A. Z. OO, S. SUDO, S. HAYASHIDA, V. RAVI: 106th Indian Science Congress (2019)
"Sustainable rice production under limited water to minimize greenhouse gas emissions"
24) K. INUBUSHI, K. SENARI, A.Z. OO, A. YAMAMOTO, K. ONO, S. SUDO, S. HAYASHIDA, N. SAITOH, V. RAVI: 日本熱帯農業学会第125回講演会 (2019)
"Effect of rice straw, biochar and nitrogen on greenhouse gases production in paddy soils in south India"
25) N. SAITOH, R. IMASU, K. SHIOMI, A. KUZE, M. NAKAJIMA, Y. NIWA, T. MACHIDA, Y. SAWA, H. MATSUEDA, K. TSUBOI, A. TSURUTA: OSA Light, Energy and the Environment Congress 2018 (2018)
"CO_2 and CH_4 observations by the thermal infrared b of GOSAT/TANSO-FTS and GOSAT-2/TANSO-FTS-2"
26) 齋藤尚子、犬伏和之、林田佐智子、P. K. PATRA、山本昭範、寺尾有希夫: 2018年度日本気象学会秋季大会 (2018)
「GOSAT-2と地上観測による全球のメタン放出量推定と評価手法の包括的研究（その1）」

【サブテーマ２】

1) 林田佐智子、白井玖実、寺尾有希夫、野村渉平、松見豊、斎藤尚子: 日本気象学会2019年度秋季大会 (2019)
「北インドにおけるメタン発生と輸送：衛星観測と地上観測からの一考察」
2) S. HAYASHIDA, Y. TERAO, P. K. PATRA, Y. MATSUMI, R. IMASU, S. NOMURA, S. K. DHAKA, J. JAGMOHAN, S. SHARMA: 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference (2018)
"Seasonal variation of surface methane observed in North India: An investigation on the contributions of emissions and transport"
3) 林田佐智子、椙村淑未、白井玖実、新田佳歩、寺尾有希夫、野村渉平、P. K. PATRA、松見豊、今須良一、S. K. DHAKA: 日本気象学会2018年度秋季大会 (2018)
「北インドで観測されるメタン季節変動の解析」
4) 白井玖実、林田佐智子、松見豊、寺尾有希夫、野村渉平: 日本気象学会2019年度秋季大会 (2018)
「インド北部におけるレーザメタン計観測結果の解析」

【サブテーマ３】

1) P. K. PATRA, Japan Pavilion: COP26 (invited) (2021)
"Satellite data helping estimation and evaluation of regional CO_2 and CH_4 fluxes"
2) J. S. H. BISHT, P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, T. SEKIYA, Y. KANAYA, N. SAITOH: 第26回大

気化学討論会 (2021)
"CH_4 surface flux estimation using local ensemble transform Kalman filter"

3) J. S. H. BISHT, P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, T. SEKIYA, Y. KANAYA, N. SAITOH: 17th International Workshop on Greenhouse Gas Measurements from Space (2021)
"Estimation of CH_4 emissions based on LETKF data assimilation technique"

4) J. S. H. BISHT, P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, T. SEKIYA, Y. KANAYA, N. SAITOH: 日本地球惑星科学連合2021年大会(2021)
"CH_4 surface flux estimation based on local ensemble transform Kalman filter"

5) J. S. H. BISHT, P. K. PATRA, N. CHANDRA, T. MACHIDA, N. SAITOH: JPGU-AGU Joint Meeting 2020 (2020)
"Process analysis of GHGs seasonal variability in the UT/LS region on account of emissions, dynamics and atmospheric chemistry"

6) P. K. PATRA: 2019年度日本気象学会秋季大会 (2019)
"Regional budgets of 3 major greenhouse gases －implications CH_4 emissions for the Paris Agreement"

7) P. K. PATRA: 16th AOGS Annual meeting (2019)
"Paris Agreement: Tracking of Greenhouse Gases (CO_2, CH_4 and N_2O) by Inverse Modelling"

8) J. S. H. BISHT, N. CHANDRA, P. K. PATRA, A. ITO, S. MORIMOTO, T. UMEZAWA, E. DLUGOKENCKY, G. JANSSENS-MAENHOUT, M. TAKIGAWA, S. WATANABE, R. FUJITA, S. AOKI, N. SAITOH, N. SAIGUSA: 16th AOGS Annual Meeting (2019)
"Methane growth rate variation in regards of its sources and sinks during 2000-2016"

9) J. S. H. BISHT, P. K. PATRA, N. CHANDRA, S. GROMOV, T. UMEZAWA: 日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
"Evaluation of MIROC4-ACTM reanalysis of GHGs concentrations using aircraft observations"

10) P. K. PATRA: AGU Fall meeting 2018 (2018)
"Top-down Estimates Of N_2O Emissions Over The Past Two Decades"

11) P. K. PATRA, M. TAKIGAWA, S. WATANABE: 日本地球惑星科学連合2018年大会 (2018)
"MIROC4.0 based atmospheric chemistry-transport model (MIROC4-ACTM): Improved dynamical features for greenhouse gases modelling"

【サブテーマ４】

1) 山本昭範、小野圭介、犬伏和之、寺尾有希夫、須藤重人、齋藤尚子、P. ELAYAKUMAR、C. UMAMAGESWARI、V. AMBETHGAR: 2022年度日本土壌肥料学会東京大会 (2022)
「インド南部水田地帯における大気メタン濃度の日内および季節的な変化の特徴－地表面フラックスとの対応－」

2) 岡碧幸、山本昭範、麓多門、小野圭介、犬伏和之、須藤重人、齋藤尚子、P. ELAYAKUMAR、C. UMAMAGESWARI、V. AMBETHGAR: 第68回日本生態学会大会 (2021)
"Evaluation of long-term simulation of methane fluxes in paddy fields in South India using DNDC-rice"

3) K. ONO, A. Z. OO, A. YAMAMOTO, C. UMAMAGESWARI, M. MANO, K. VANITHA, P. ELAYAKUMAR, M. RAJU, K. INUBUSHI, S. SUDO, N. SAITOH, S. HAYASHIDA, V. RAVI, V. AMBETHGAR: International Symposium on Agricultural Meteorology (2021)
"Seasonal carbon flux and ecosystem water use efficiency in a triple cropping rice paddy"

4) 山本昭範、小野圭介、犬伏和之、寺尾有希夫、須藤重人、齋藤尚子、P. ELAYAKUMAR、C. UMAMAGESWARI、V. AMBETHGAR: 2020年度日本土壌肥料学会岡山大会 (2020)
「インド南部水田地帯におけるメタンフラックスと大気メタン濃度の日内および季節的な変化の特徴」
5) A. Z. OO, S. SUDO, K. INUBUSHI, M. MANO, A. YAMAMOTO, K. ONO, T. OSAWA, S. HAYASHIDA, P. ELAYAKUMAR, V. RAVI: 2018年度日本土壌肥料学会神奈川大会 (2018)
"Early season water management strategies mitigate methane and yield-scaled CO_2-eq emission from paddy rice soil: Emissions from double rice seasons"

【サブテーマ５】
1) 大山博史, 吉田幸生, 松永恒雄: AGU Fall Meeting 2021 (2021)
"Megacity and wildfire XCO, XCO_2, and XCH_4 observed by GOSAT-2"
2) 梅澤拓, 遠嶋康徳, 野村渉平, 西橋政秀, 寺尾有希夫, 向井人史, 中岡慎一郎, 笹川基樹, 町田敏暢, MUELLER Astrid, 奈良英樹, 杉田考史, 谷本浩志, 丹羽洋介, 伊藤昭彦, 大山博史, 森野勇, 佐伯田鶴, 野田響, 齊藤誠, 松永恒雄: 第26回大気化学討論会 (2021)
「全球メタン濃度の2020年の急増加の原因を探る -NIES観測ネットワークによるメタン濃度の時空間変動の解析-」
3) 梅澤拓, 寺尾有希夫, 遠嶋康徳, 丹羽洋介, 伊藤昭彦, 森本真司, C. NAVEEN, P. K. PRABIR: 日本地球化学会第68回年会 (2021)
「大気中のメタン濃度の変動と現代の同位体測定の課題」
4) 寺尾有希夫, 梅澤拓, M. NAJA, MD. K. AHMED, 野村渉平, 町田敏暢, 笹川基樹, 向井人史, PRABIR PATRA: 日本地球惑星科学連合2021年大会 (2021)
"Seasonal variations of methane sources in South Asia inferred from observations of stable carbon isotope ratio of atmospheric methane"
5) Y. TERAO, M. K. AHMED, M. NAJA, S. NOMURA, T. UMEZAWA, T. MACHIDA, H. MUKAI, P. K. PATRA (invited): International Conference on Earth and Environmental Sciences & Technology for Sustainable Development (2020)
"Greenhouse gases and related tracer measurements in the atmosphere over South Asia"
6) 寺尾有希夫、梅澤拓、M. NAJA、MD. K. AHMED、野村渉平、町田敏暢、向井人史、P. K. PATRA: 日本気象学会2019年度秋季大会 (2019)
「南アジアにおけるメタン排出の起源別推定のための大気中メタン安定炭素同位体比観測」
7) T. UMEZAWA, T. SAITO: 日本地球惑星科学連合2019年大会 (2019)
"A cryogen-free automated measurement system of stable carbon isotope ratio of atmospheric methane"
8) M. NAJA, H. MUKAI, T. MACHIDA, S. BALLAV, Y. TERAO, S. NOMURA, R. KUMAR, P. SRIVASTAVA: 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference (2018)
"Observations of long-lived trace gases over the central Himalayas"

（３）「国民との科学・技術対話」の実施
【サブテーマ１】
1) （独）環境再生保全機構「環境研究総合推進費」2-1802課題 公開シンポジウム「温室効果ガス、メタンを探る　ー人工衛星・地上観測から何がわかるかー」（主催：国立大学法人千葉大学環境リモートセンシング研究センター、2019年2月3日（日）13:30-15:30、千葉大学けやき会館レセプションホール、聴講者約40名）にて講演。
2) オンラインフォーラム「世界の一酸化二窒素収支2020年版」と食料システムを公開（Global

Nitrous Oxide Budget 2020 and our food system）」（主催：NIES・CGER・GCP（Global Carbon Project）つくば国際オフィス・海洋研究開発機構・国立環境研究所・Future Earth共同、2020年10月29日（木）9:30-11:30（日本語）、13:00-16:30（英語）、オンライン、参加者331名）にて「土壌の視点から見る一酸化二窒素（N_2O）発生プロセスと実現可能な緩和」、「Soil perspective -Processes and feasible mitigation」と題した講演を行う。

3) 4大学連携「地球気候系の診断に関わるバーチャルラボラトリー（VL）の形成」プロジェクト2020年度講習会、齋藤尚子「衛星リモートセンシングによるGHG観測」（主催：国立大学法人千葉大学環境リモートセンシング研究センター、2021年3月8-9日（日）13:00-17:00、オンライン、参加者約100名）にて研究成果の紹介を交えた講義。

【サブテーマ２】

1) 奈良女子大学理学部公開講座「今どきの環境教育を考える」林田佐智子「地球温暖化問題をどう伝えるか」（主催：国立大学法人奈良女子大学理学部、2018年8月19日（日）13:30-16:00、奈良女子大学理学部G棟1階、聴講者28名）にて講演。

【サブテーマ３】

1) オンラインフォーラム「世界の一酸化二窒素収支2020年版」と食料システムを公開（Global Nitrous Oxide Budget 2020 and our food system）」（主催：NIES・CGER・GCP（Global Carbon Project）つくば国際オフィス・海洋研究開発機構・国立環境研究所・Future Earth共同、2020年10月29日（木）9:30-11:30（日本語）、13:00-16:30（英語）、オンライン、参加者331名）にて「『世界の一酸化二窒素（N_2O）収支2020年版』概要」、「Global Nitrous Oxide Budget 2020」と題した講演を行う。
2) 第18回「地球環境シリーズ」講演会「カーボンニュートラルの科学（P.K. Patra: 温室効果ガス増加の主要因は人間活動による排出)」（2021年10月28日、参加者約500名）
3) オンラインセミナー「温室効果ガス研究の最前線 -パリ協定の目標達成に向けて-（P.K. Patra: 大気観測に基づいた主要な温室効果ガス3種の地域別収支見積もり)」（2022年02月10日、聴講者約500名）

【サブテーマ４】

1) 令和元年度成人大学講座「100年後の地球に引き継ぐ環境問題」（主催：小金井市公民館、2019年12月7日・12月14日・12月21日、東京学芸大学、定員100名）、2019年12月14日（土）「温室効果ガスの観測と削減対策の現状」において推進費成果を含めて講演。

【サブテーマ５】

1) 国立環境研究所夏の大公開（主催：国立研究開発法人国立環境研究所、2018年7月21日（土）9:30-16:00、来場者5320名）にて成果紹介（「メタンを知ろう、測ろう！」）。
2) 国立環境研究所夏の大公開（主催：国立研究開発法人国立環境研究所、2019年7月20日（土）9:30-16:00、来場者6165名）にて成果紹介（「メタンを知ろう、測ろう！２」）。

（４）マスコミ等への公表・報道等＞

【サブテーマ１】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ２】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ３】

1) 成果の記者発表（筑波研究学園都市記者会、環境省記者クラブ、環境記者会、文部科学記者会、科学記者会同時配布）（2020年10月5日、「世界の一酸化二窒素（N_2O）収支2020年版を公開」）
2) 成果の記者発表 （筑波研究学園都市記者会、環境省記者クラブ、環境記者会、千葉県政記者クラブ、文部科学記者会、科学記者会同時配布）（2021年1月29日、「過去30年間のメタンの大気中濃度と放出量の変化: 化石燃料採掘と畜産業による人間活動が増加の原因に」）
3) 東京新聞（2021年2月2日、全国版、6頁、「メタン、アジアで放出増」）
4) NDTV（2021年8月9日、「Global Warming is now faster. Will India step up action?」に協力）https://www.youtube.com/watch?v=u0QufVtu9X4
5) The Third Pole（2021年12月2日、web版、「Why India is neglecting its methane problem」に協力）
https://www.thethirdpole.net/en/climate/why-india-neglecting-methane-problem/

【サブテーマ４】

特に記載すべき事項はない。

【サブテーマ５】

特に記載すべき事項はない。

（５）本研究費の研究成果による受賞

1) 山本昭範、2020年度日本土壌肥料学会奨励賞（農耕地における一酸化二窒素の生成経路の解明と発生削減策に関する研究）、2020年5月
2) 須藤重人、2020年度日本土壌肥料学会技術賞（農耕地温室効果ガスの高精度測定法開発と温暖化緩和策研究への活用）、2020年5月
3) 梅澤拓、2020年度日本気象学会正野賞（メタン等の長寿命大気微量気体の動態解明に関する観測的研究）、2020年10月27日

Ⅳ. 英文Abstract

Estimation of Regional-Global Methane Emissions and Refinement of Its Estimate by GOSAT-2 and Surface Observations

Principal Investigator: Naoko Saitoh
Institution: Chiba University
1-33, Yayoi-cho, Inage-ku, Chiba-shi, Chiba, JAPAN
Tel: +81-43-290-3843 / Fax: +81-43-290-3843
E-mail: nsaitoh@faculty.chiba-u.jp
Cooperated by: Nara Women's University, Japan Agency for Marine-earth Science and Technology, Tokyo Gakugei University, and National Institute for Environmental Studies

[Abstract]

Key Words: Biogeochemical cycle, Global warming, Remote sensing, Methane, GOSAT/GOSAT-2, Surface observation, Chemical transport model

Methane (CH_4) is the second major anthropogenically produced greenhouse gas, after carbon dioxide. The objective of this study is to improve the accuracy of regional-global CH_4 emissions estimation through "top-down approach" using a chemical transport model, MIROC4-ACTM, and atmospheric observations. We retrieved CH_4 profiles from GOSAT, and estimated retrieval accuracy of 1% throughout the troposphere through comparisons with aircraft measurements and South Asian ground-based observations from our study. After validating the vertical and horizontal transport processes of MIROC4-ACTM through comparisons with aircraft and GOSAT measurements, we performed inversion analysis to estimate total CH_4 and nitrous oxide emissions. The inversion results are used in the IPCC 6th assessment report and could support the first global stocktake (GST). We also developed a LETKF data assimilation system for CH_4 flux estimation on model grid scale, and demonstrated that it was capable of reproducing known CH_4 flux patterns by assimilating pseudo-observations. We applied a two-box model simulation of carbon isotope of CH_4, $\delta^{13}C$-CH_4, for both hemispheres, and evaluated the consistency of global emission trends based on *a priori* and simulated *a posteriori* emissions with observed $\delta^{13}C$-CH_4 timeseries; the results suggested overestimation of CH_4 fugitive emissions in the EDGAR v4.3.2 inventory.

To better understand various types of regional CH_4 sources, particularly in South Asia, we have conducted long-term surface observations of CH_4, carbon monoxide (CO), and $\delta^{13}C$-CH_4 at Nainital, India and Comilla, Bangladesh. Simultaneous measurements of CH_4 atmospheric concentrations and fluxes from rice paddies in Tamil Nadu, India were also conducted. We evaluated the relationship between soil microbiology and greenhouse gases emissions quantitatively, and proposed a methodology for estimating global CH_4 emissions from rice paddies using information on soil microbial properties. The simultaneous measurements of concentrations and fluxes suggested that fluctuations in CH_4 emissions from rice paddies were an important factor in the seasonal variation of atmospheric CH_4 concentrations at the rice cultivation area. Diurnal variations in atmospheric CH_4 concentrations were less affected by CH_4 emissions from rice paddies than atmospheric transport in a one-dimensional advection model. Our trajectory analysis showed that most air masses with high CH_4 concentrations in

northern India (Karnal and Sonepat) originated from the northwest, suggesting CH_4 sources in northwestern India. Analysis of the observed CH_4, CO, and $\delta^{13}C$-CH_4 timeseries at Comilla showed that 73% of CH_4 sources were of microbial origin and approximately 15% originated from biomass burning in autumn. The proportion of biomass burning sources increased to 32% in winter.