#### 文 (Original article) 論

# 森林総合研究所構内における 1989 年~ 2004 年の大気 CO, 濃度の観測

松本 陽介<sup>1)</sup>\*・上村 章<sup>2)</sup>・矢崎 健一<sup>3)</sup>・原山 尚徳<sup>3)</sup>・小池 信哉<sup>3)</sup>・ 石田 厚<sup>3)</sup>・丸山 温<sup>4)</sup>・河原崎 里子<sup>5)</sup>・田中 憲蔵<sup>1)</sup>・米田 令仁<sup>1)</sup>

## Observation of ambient air CO<sub>2</sub> concentration at the campus of FFPRI, Tsukuba, Japan from 1989 to 2004

MATSUMOTO Yoosuke<sup>1)\*</sup>, UEMURA Akira<sup>2)</sup>, YAZAKI Kenichi<sup>3)</sup>, HARAYAMA Hisanori<sup>3)</sup>, KOIKE Nobuya<sup>3</sup>, ISHIDA Atsushi<sup>3</sup>, MARUYAMA Yutaka<sup>4</sup>, KAWARASAKI Satoko<sup>5</sup>, TANAKA Kenzo<sup>1)</sup>, and YONEDA Reiji<sup>1)</sup>

#### Abstract

To monitor the long-term fluctuation of CO<sub>2</sub> concentration in the air, ambient air CO<sub>2</sub> concentration observation system with an infrared CO<sub>2</sub> gas analyzer (IRGA) installed with automatic daily calibration co-system was developed. The reappearance of IRGA for one hour was  $\pm 0.15$  ppm by preventing temperature change. The maximum error of each hourly reading for a long term (1 year) was approximately  $\pm 3.1$  ppm; the error was mainly due to the changes in air temperature and atmospheric pressure, interference gas influence, and chart reading error.

The long-term observation of ambient air CO<sub>2</sub> concentration (16.5 m above the ground) at Forestry and Forest Products Research Institute, Tsukuba, Ibaraki, Japan (36°0'18"N, 140°8'04"E, 22 m asl.) from 1989 June to 2004 December, was performed using this observation system. Monthly average CO<sub>2</sub> concentration changed approximately 20 - 40 ppm within a year. The annual average CO<sub>2</sub> concentrations at Tsukuba were higher approximately 20 ppm than those at Mauna Loa, Hawaii. The annual increments of CO2 concentrations at Tsukuba (1.77 ppm/yr, during 1990 to 2004) were also higher than those at Mauna Loa (1.62 ppm/yr, during 1989 to 2003). The results indicated that Tsukuba area has been the source of  $CO_2$  release.

Key words: CO<sub>2</sub> monitoring, observation system, long-term fluctuation, *elnino*, Kanto Plain, Japan

## 要旨

赤外線 CO,分析計 (IRGA) を組込んだ比較的低価格の大気 CO,濃度観測システムを開発し、その 性能の評価を行った。IRGA の恒温対策や 24 時間に一度の自動校正などを行うことにより、本シ ステムの1時間の大気 CO₂濃度測定の再現性は±0.15 ppmと向上した。 観測システムの温度、気圧、 干渉ガス、およびチャート読取りによる長期間の再現性は± 3.1 ppm 程度と推定された。この観測 システムを用いて森林総合研究所構内(茨城県つくば市松の里1、標高約22m、東経140°8'04"、 北緯 36° 0'18")の地上高 16.5m での大気 CO2 濃度を約 16 年間に渡って観測した。1989 年 6 月~ 2004年12月の月平均大気 CO2 濃度はマウナロアの月平均大気 CO2 濃度に比べ、2~4倍の変動幅 を示し、年平均濃度が約 20 ~ 40 ppm 高いことが明らかになった。また、1990 年から 2004 年の間 の年間大気 CO2 濃度上昇は 1.77 ppm/year で、ハワイ島のマウナロアの 1.62 ppm/year よりも高かっ た。これらの結果から、当観測地周辺は CO₂ のソースとなっている可能性が示された。

キーワード:大気 CO, 濃度観測、観測システム、バックグラウンド濃度変動、エルニーニョ、関東平野

#### 1. はじめに

地球温暖化に影響を及ぼす温室効果ガスには、二酸化 炭素 (CO<sub>2</sub>)、メタン (CH<sub>4</sub>)、一酸化二窒素 (N<sub>2</sub>O)、クロ ロフルオロカーボン (CFC-11)、ハイドロフルオロカー ボン (HFC-23)、および四フッ化炭素 (CF<sub>4</sub>) などがある (松本、2001)。このうち、CO2以外のガスは、濃度は 低いが対流圏での寿命が長いため比較的大きな温室効果を 示す。一方、CO,はその大気中の量や増加量が多いため、 温暖化寄与率が約54%と推定される(井上元、1994; 2003)

このCO<sub>2</sub>は、化石燃料の燃焼、セメント生産、および 森林伐採など、人間活動によって大気中に放出され年々

- 森林総合研究所海外研究領域 〒 305-8687 茨城県つくば市松の里 1 Department of Global Forest Research, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI), 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki 305-8687, Japan, e-mail: ymat@ffpri.affrc.go.jp
- 1) 森林総合研究所海外研究領域 Department of Global Forest Research, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI) 2) 森林総合研究所北海道支所 Hokkaido Research Center, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)
- 3) 森林総合研究所植物生態研究領域 Department of Plant Ecology, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

原稿受付:平成 17 年 10 月 17 日 Received Oct, 17, 2005 原稿受理:平成18年2月27日 Accepted Feb, 27, 2006

<sup>4)</sup> 森林総合研究所企画調整部 Research Planning and Coordination Division, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI) 5) 成蹊大学理工学部 Faculty of Science and Engineering, Seikei University

濃度が上昇している (IPCC, 2001; Keeling, 2004)。最初の大気 CO<sub>2</sub> 濃度の長期観測は、合衆国の Charls D.
 Keeling 博士の提唱により、ハワイ島マウナロアにおいて 1958 年に始められた (Keeling et al., 1982, 1984)。長期観測の結果得られた CO<sub>2</sub> 濃度の変化曲線、年ごとに小さな波動をもつ右上がりの曲線は、博士にちなんで Keeling 曲線とよばれている。

しかし、大気 CO<sub>2</sub> 濃度には地域間差があり (Komhyr et al., 1985)、特定の地域が CO<sub>2</sub> 発生のシンクかソー スかの判断は、それぞれの地域で観測する以外に方法 は見つからない。このため CO<sub>2</sub> 濃度の観測点も世界各 地で年々増加し、2004 年 9 月時点では世界気象機関 (WMO)の温室効果ガス世界資料センター (WDCGG) に自主的に登録している件数は 134 にのぼる (気象庁、 2005c; 温室効果ガス世界資料センター、2005)。

森林は多くの場合 CO<sub>2</sub> のシンクと考えられる。CO<sub>2</sub> は光合成反応の基質(原料)物質のため、植物の一次生 産に大きく影響する。植物種にもよるが、概ね 400 ~ 900 ppm までは個葉の光合成速度は周囲の CO<sub>2</sub> 濃度に 対してほぼ線形に増加する。また、個体や森林レベル では水利用効率(光合成生産量/水消費量)が増加する (小池、2004)。このため、CO<sub>2</sub> 濃度上昇は植物の成長 に影響を与えるだけでなく、生育適地の移動をもたら すとも考えられる。

大気 CO<sub>2</sub> 濃度の変化は森林の CO<sub>2</sub> シンク能に影響を もたらす可能性があり、植物の一次生産や群落動態、植 生分布など自然環境に関する研究分野においても大気の CO<sub>2</sub> 濃度の変動傾向を認識することは不可欠である。ま た、化石燃料の使用などの人間活動は CO<sub>2</sub> のソースで ある。温暖化の防止策として、京都議定書 (COP-3) が 2005 年 2 月に発効したが、実効的な CO<sub>2</sub> 排出対策が批 准国で行われているかどうかの検証データとして、世界 各地での長期にわたる大気 CO<sub>2</sub> 濃度観測が有効である。

ここでは、観測のために開発した測定精度が高く、安 定的で、かつ比較的低コストである大気 CO<sub>2</sub> 濃度長期 観測システムの紹介と、1989 年 6 月 1 日~2004 年 12 月 31 日の間に森林総合研究所構内で行った大気 CO<sub>2</sub> 濃 度の観測結果について報告する。

#### 2. 観 測 地

森林総合研究所構内(茨城県つくば市松の里1、地上 標高約22m)の研究南棟5階の樹木生理研究室(旧:環 境生理研究室)内に、大気中のCO2濃度の長期観測シ ステム(後述)を1989年5月に設置し、6月1日から 本格的な観測を開始した。分析空気の取入口は、観測シ ステムから水平に約40m離れた場所(地上高16.5m、 標高38.5m、東経140°8'04"、北緯36°0'18")である。 なお、分析空気取入口の位置は、1989年4月末~5月 末の約1ヶ月間の探索の結果、観測機器の設置場所から 比較的近く、研究所職員や各種実験機器から排出される CO<sub>2</sub>の影響を最も受けにくい場所を選定した。以後、取り入れ口の変更は行っていない。

森林総合研究所の位置を Fig. 1 に位置を示す。東方約 70km に太平洋が広がり (Fig. 1 の A と B 図 )、大半が標 高 200m 以下の低地である日本最大の平野、関東平野の 中に位置している (B 図 )。北方約 23 km に筑波山 (標 高 877m)、南方には約 90 ~ 100 km 離れて清澄山 (標 高 377 m)や愛宕山 (標高 408 m)に代表される房総丘陵 が位置しているが、これらを除いた東北東~南南東およ び西南西~西北西の方角の半径 100 km の範囲内に標高 100 m 以上の土地はない。半径 20 km の範囲内では、北 西から南東につながる標高 15 ~ 30 m の波丘状の土地が 分布し、本観測地はこの波丘地の比較的高い場所に位置 している。

森林総合研究所の周囲約3kmの範囲では、おおむね北 西~南東方向に流れる小河川沿いに水田(C図では黄土色 の帯状に見える)が並行して広がっている。野菜畑、果 樹園、および芝生産地も分布している。ほとんど手入れ をしていない常緑針葉樹のアカマツやスギの人工林(図 中の緑色)が比較的広く広がっている。また、宅地、店 舗、小さな工場、学校、研究所などの建物が点在してい る。当研究所の東側は国道408号線に面している。さらに、 比較的交通量の多い道路として、約2km南東方向に国 道6号線がほぼ南北方向に、北西方向の約4km先には 南西~北東に流れる常磐自動車道が、北方約5km先に 県道土浦野田線がほぼ東西にそれぞれ通っている。

#### 3. 観測システムの開発

## 3.1 開発目標

大気中の CO<sub>2</sub> 濃度の検出には赤外線式の CO<sub>2</sub> 濃度分 析計(赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計)を用い、気圧や温度による 影響が比較的少なく、観測再現性が±2 ppm 程度以内 で長期間安定した観測が可能な観測システムを構築す ることを目標にした。なお、赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計の精度 は校正ガスの精度によっても影響されるため、分析計の "精度"に関した記述には"再現性"を用いる。

観測装置システムの再現性を低くする要因には、赤外 線 CO<sub>2</sub> 分析計の再現性以外にも、結露発生、配管継手 のリーク発生があるが、これらが生じないように配管内 部の圧力を低くする構成の実現を心がけた。さらに、シ ステムの故障頻度は、用いている部品の信頼性が低いほ ど、部品数が多いほど高くなる。このため、本観測装置 システムは、信頼性の高い部品を必要最小限の個数で構 成することとした。

#### 3.2 観測システムの構成

開発した観測システムは、赤外線 CO<sub>2</sub> 濃度分析計、空 気ポンプ、アナログ記録計、背圧調節器、流量モニター (ボールフロート式、測定レンジ:0.5~2 litter/min)、 ディスポーザブル・エアーフィルター (SLFH-05010、



Fig. 1. 観測地の位置(観測を行った森林総合研究所(FFPRI)の位置は B および C 図に黄色の丸印で示した。B および C 図はランド サット衛星データを加工した画像(宇宙からみた日本(関東編):ランド撮図(サット)、写真化学㈱)を利用している。緑色: 高台の人工林や川沿いの自然植生、黄土色~薄緑色:水田、畑、芝生産地などの農地、紫色:市街・都市域、青色:水面) Observation site. (The location of Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI) was shown in figures B and C by the yellow circle. Figures B and C were modified the picture from Landsat data (Shashin Kagaku CO., LTD., Kyoto, Japan). Green: planted forest on hills, and natural vegetation along rivers; light green and ocher: farmlands, such as paddy fields, truck gardens, and lawns; purple: town areas, blue: water surface.) 日本ミリポア(㈱など:ポア径 0.5 µm、メンブレン直径 50 mm)、三方電磁弁、24 時間型 On/Off タイマー、ゼロ・ スパンガスボンベ、および保温容器などで構成した(Fig. 2)。主要な部品の規格や実績耐久年数などを Table 1 に 示した。消耗品は、記録計のチャート紙とカートリッジ 式ペン、エアフィルター、ゼロ・スパンガスである。

配管は、各部品の接続のため一部に細いチューブを短 く用いたが、大半は内径 10 mm ×外経 15 mm の軟質塩 化ビニル (PVC) チューブを用い、流路抵抗が大きくなら ないようにした。大気取入口から装置の最初の空気フィ ルター (Fig.2 の左側の F) まで 50 m、最初の空気フィ ルターから分析計の出口までは約 1.5 m である。なお、 PVC チューブは CO<sub>2</sub> の吸着・透過が極めて少なく、か つ安価な部材である。

各部品と PVC チューブの接合には、シリコンコーキ ング剤を使い、適度な太さの銅線を2周回して締める 方法で固定した。コーキング剤が固まった後には、-0.5 kg/m<sup>2</sup>(陰圧)または1kg/m<sup>2</sup>の圧力をかけてもガスのリ ークがないことを確認した。以下に主な構成部品につい て Fig. 2 の左側から順に述べる。

#### 1) 空気ポンプ系

空気ポンプは無負荷で 5 litter/min の吐出能力を持ち、 脈動も比較的少なく安定した空気の流れを作る能力があ る。空気ポンプ(図中のP)の前後にバイパス流路を設け、 そのバイパス流量をバルブ V によって調節し大気取込 流量を調節できる。この方法ではポンプ出口の圧力を低 く保てる。なお、ポンプの固定には減振動ゴムを用い振 動の低減化を行った。

#### 2) 校正ガスの自動制御系

校正用のゼロガスボンベ (Zero gas cylinder)・スパ

ンガスボンベ (Span gas cylinder)、2つの三方電磁弁 (SV)、2台の24時間繰返しタイマー (T)を用い、ガス ボンベと電磁弁を PVC チューブでそれぞれ接続し、タ イマーによって三方電磁弁の On/Off を制御できる構成 とした。これにより、自動的に定刻にゼロガスとスパン ガスを分析計に送ることが可能である。校正ガスが流れ ているときでも大気の吸引は連続的に行われているの で、大気は Fig. 2 の "a" の流路を通り、背圧調節器 (後 述)を経て排気されるが、校正が終わり観測に戻った際 の応答時間は約 20 秒であった。

#### 3) 背圧調節器

CO<sub>2</sub>分析計に送る分析ガスの圧力と流量を一定に保つ ために背圧調整器 (BPC、Fig. 2 と 3) を考案し用いた。 この器具は、大気圧を基準とし、水深を利用した圧力調 整器で、単純であるが物理法則にかなったものである。 これにより、分析計に送られる分析ガスの圧力は、大気 圧よりも Fig. 3 の中の深さ hb に相当する圧力に保つこ とができ、不要分は Fig. 2 の中の"b"の流路を通り背圧 調節器から排出される。背圧調節器の容器は透明ガラス 製のメスシリンダーを利用し、背圧調節の様子をモニタ ーできるようにした。なお、ここで必要な背圧は 30hPa 程度であったが、本装置を設計・製作した 1989 年当時 には、廉価で実用に耐えられる背圧調節器は見あたらな かった。

## 4) CO2 分析計系

赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計は、気体(ここでは CO<sub>2</sub>)が赤外 線を吸収するという性質を利用し、一定体積中の CO<sub>2</sub> 分子モル数を検出する測定器である。CO<sub>2</sub> 濃度(通常、 モル比 (= 体積比)で ppm:百万分率を用いる)を知る ために、標準ガス(通常、ゼロガスとスパンガス)によ



Fig. 2. 自作の CO<sub>2</sub> 濃度観測装置の部品構成と分析空気の流れ(F:空気フィルター、P:ダイアフラム空気ポンプ、V:流量調節バルブ、BPC: 背圧調節器、SV:三方電磁弁、T:校正ガス用タイマー、M:流量モニター、IRGA:赤外線式 CO<sub>2</sub> 濃度分析計、R:ペン式アナログ記録計、HRB:保温容器)
Diagram of hand-made Monitoring system for CO<sub>2</sub> concentration in ambient air. (F: Disposable air filter (0.45 micro-m), P: Diaphragm air pump (max: 5 litter/min), V: Air flow control valve, BPC: Back pressure controller, SV: 3-way solenoid valve, T: Daily timer for calibration, M: Flow rate monitor, IRGA: Infra red CO, gas analyzer, R: Pen recorder, HRB: Heat retention box)

部品の名称	仕様	製造メーカー	型番	消費電力	数量	実績耐用年数(年)
Name of Parts	Specifications	Manufacturer	Parts No.	など	Quan-tity	Actual life span
	-			Supply	-	(Years)
$CO_2$ 分析計	非分散赤外線方式	富士電気システム	ZFP-1,	18w	1	12
Infrared CO <sub>2</sub> gas	測定範囲:0-3000ppm	ズ(株)	ZFP-9	AC100v		
analyzer	再現性:± 1%FS			50Hz		
	ゼロドリフト:± 10% 以内 /6 ヶ月					
	セル密閉型					
空気ポンプ	ダイアフラム式定流量空気ポン	㈱榎本マイクロポ	GA-	33w	1	10
Air pump	プ	ンプ製作所	380V-05	AC100v		
	最大吐出量:5 litter/min			50Hz		
	最大吐出圧力:0.5 kg/cm <sup>3</sup>					
三方電磁弁	直道型ポペット弁	高砂電気工業㈱	YDV-3	5w	2	10
3way solenoid valve	オリフス経: $arphi$ 3mm			AC100v		
				50Hz		
タイマー	24 時間タイマー	ナショナル		約 2w	2	16
On/Off timer	1 分単位の設定可能			AC100v		
	リレー接点容量:約 100v × 3A			50Hz		
記録計	自動平衡方式ペンレコーダ	東亜電波工業㈱	EPR-10	約 10w	1	12
Analog pen recorder	入力レンジ:± 5mv ~ 1v (5 段			AC100v		
	階レンジ )			50Hz		
	入力抵抗:約 1M Ω					
	ドリフト:5 μ v/℃					
	記録幅:150mm					

Table 1. 主要構成部品の諸表 List of main component parts.

る校正が必要である。また、分析出力が非直線形である ため、標準校正曲線式を用いた計算を必要とする。

ここでは、シングルセル方式の非分散型赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計 (ZFP-1、後継モデルの ZFP-9、富士電機システ ムズ (㈱)、Fig. 2 の IRGA) を用いた。これは施設園芸 などにおける CO<sub>2</sub> 施肥の制御用などとして市販されて いるもので、分析セルの温度制御機能やセルの密閉など を省略することで、 $\pm$  10 ppm 程度の再現性(周囲温度 0 ~ 40 °C)が保証された比較的低価格な赤外線 CO<sub>2</sub> 分 析計である。

本分析計はシングルセル方式であるが、検出器やチョ ッパーモーターなど極めて安定した部品が用いられ、長 期安定性と耐久性に優れている。分析セルの恒温化など の対策(次項参照)をとり、振動と電磁波のためノイズ を発生させる内蔵ポンプをはずし、実験室条件(25℃) で作動させた場合の短時間再現性は、±0.15 ppm/hr と メーカー保証値(±10 ppm 程度)よりもはるかに高い 再現性が得られる。

流量モニター (M) は、分析セルに送られる分析ガス流 量を監視するために設けた。流路抵抗の低減のためテー パー管とフロートだけの構成で、PVC チューブを直接 テーパー管に接続した。

#### 5) 分析計の恒温容器

通常、赤外線 CO<sub>2</sub>分析計は正確な分析を行うために 精度 1/100 ℃以上でセル温度の恒温化制御を行っている が、廉価な測定装置システムでは温度制御系の採用は 困難である。ここでは、自己発熱する分析計全体を発泡 スチロール製の保温容器 (HRB) に入れる方法を採った。 結露の危険がなく電子部品の誤動作も招きにくい温度

Bulletin of FFPRI, Vol.5, No.2, 2006

として約45 ℃を選び目標温度とした。ほぼ、この温度 に保てるように容器の大きさを、厚さ約3 cm、内寸約 40 cm(H) ×約28 cm(W) ×約35 cm(D)(内容積:約40 litter)とした。この部材の厚さと大きさは試行実験によ って定めた。

数種類の恒温装置を試作し保温箱を使って温度制御の 評価試験をしている際に、熱源のスイッチを切った後の 方がハンチングのない安定した出力が得られることを見 つけた。赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計自体の自己発熱量が安定し ているからであった。

#### 6) 分析計の分析空気によるパージ

Fig. 2 に示すように、分析セル出口からのガスは保温 容器の中で排気させた。このため、保温容器内を毎分 1.5 litter の分析空気で換気(パージ)していることにな る。ここで用いた分析計のチョッパーは分析セルと一体 化されて密閉されていないため、分析計周囲の CO<sub>2</sub> 濃 度にある程度の影響を受ける。分析ガスと周囲空気の濃 度差が100 ppm 程度以内であれば、あるいは数分程度 の短時間以内であれば数 ppm 程度以内の再現性が得ら れるが、観測システムを設置している室内で人が活動し ているとき、室内の CO<sub>2</sub> 濃度はしばしば数千~約3万 ppm に達し、再現性が無視できないほど悪化する。分 析ガスによるパージは、分析計周囲の CO<sub>2</sub> 濃度が極端 に変動しないための対策として有効であった。

#### 7) 記録計

記録チャートの有効幅が 150 mm のペン式アナログ記 録計 (Fig. 2 の R)を用い、チャート送り速度を 20 mm/ hr で記録させた。チャートから、ゼロとスパンガス (い ずれも日に一回)、および毎時の大気 (瞬間値、日に 24



Fig. 3. 水圧を利用した物理学的に単純で精度の良い背圧調節器 の模式図(容器は1リットル用のメスシリンダーである。 深さ hb を 25 ~ 27cm に保った。これにより、CO<sub>2</sub>分析 計に送られる分析ガスの圧力は大気圧+15hPa 程度以下 に保つことができた。)

> Scheme of a back pressure controller using water pressure with simple structure and good precision. (Depth of "hb" was kept in 25-27 cm. The additional pressure of the analysis gas sent to the CO2 analyzer could be kept constantly less than 15 hPa by this device.)

回)の分析計出力を 0.1 mv 単位 (チャート上で 0.3 mm 単位)で読み取ることが可能であった。

#### 3.3 CO<sub>2</sub> 濃度の計算方法の工夫

赤外線 CO<sub>2</sub> 濃度分析計の出力は非直線形のため、標 準校正曲線を用いて CO<sub>2</sub> 濃度を求めることが一般的で ある。出力-CO<sub>2</sub> 濃度関係を直線化するためにリニヤ ライザーを利用することがあるが、これは校正曲線の逆 関数に相当する電圧(電流)を加える方式のため分析計 が正確に校正されていることが必要条件である。観測期 間中に分析計出力に変化があればその都度再校正する必 要があり、長期間のモニタリングを省力的に行う場合に は不向きである。

筆頭著者の松本は、数種類の濃度の標準ガスと精密 分圧器を用いて、本観測システムの赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計 の標準校正曲線式(分析計のゼロとスパンが正確に校正 されている場合に適用可能な校正曲線式)を独自に求め た。この式は、ゼロ点を通り、観測濃度域(350~450 ppm)での当てはまりが良いように定めた。

 $CO_2 concentration (ppm) =$ 

 $10.297 \cdot X + 0.304994 \cdot X^2 - 0.0078134 \cdot X^3 +$ 

0.0000730993 • X <sup>4</sup> ---- 1

CO<sub>2</sub>concentrarion: 分析ガスの CO<sub>2</sub> 濃度 (ppm)

X:分析計出力(mv)

しかしながら、分析計の校正を分析計自体(実際は内蔵の増幅回路)で行っていない場合でも、計算により正確な CO<sub>2</sub> 濃度を求めることが出来る。以下にその手順も含めて、本観測システムにおける CO<sub>2</sub> 濃度の計算方法を述べる。

1) 1 式の標準校正曲線式の逆近似式 (2 式)を用いて、 用いたスパンガス濃度に対応する分析計標準出力電圧 (*V*standerd・span:mv)を求めておく。

Vstanderd • span(mv) = 70.456 •

(1- (-0.000153062 • *PPM*span) – EXP(-0.00101455 • *PPM*span)) --- 2

PPMspan:スパンガスのCO,濃度(ppm)

 次に、標準校正されていない分析計で、ゼロ ガス (Vmes・zero: mv、Fig. 4のA) とスパンガス (Vmes・span: mv、Fig. 4のB) を流した時の実測電圧か ら実質のゼロースパン幅値 (Fig. 4のC) と2式で求めた 値の比 (Vspan・ratio: 補正係数) を求める。

Vspan • ratio = (Vmes • span - Vmes • zero) / Vstanderd • span - 3

3) ここで、標準校正が行われている分析計での正し い出力電圧 (*V*standerd・air: mv) が計算できる。

Vstanderd • air(mv) = (Vmes • air – Vmes • zero) • Vspan • ratio - 4

*V*mes・air:分析ガスのチャート上の電圧 (mv)。

4) 最後に、4 式で求めた値を1 式の標準校正曲線式に 当てはめ、分析ガスの CO, 濃度を求めることができる。

 $CO_2 concentration =$ 

 $\begin{array}{l} 10.297 \cdot \textit{V} standerd \cdot air + 0.304994 \cdot \textit{V} standerd \cdot air^2 - \\ 0.0078134 \cdot \textit{V} standerd \cdot air^3 + 0.0000730993 \cdot \\ \textit{V} standerd \cdot air^4 - 5 \end{array}$ 

このような、分析計側の機械的操作によらない校正方 法は、以下のような利点がある。

1)分析計に附属のゼロおよびスパン調節用のポテン ショメータは、頻繁に操作を重ねることにより摩耗し、 回転角度と抵抗値が一致しなくなりがち(故障のリスク を高め、結果的に欠測頻度を高める)である。さらに、 ここで用いた廉価な機種では多回転ポテンショメータで はなく可動角 270°程度の可変抵抗器を用いており、1 ppm 精度で調節することはかなり難しく、操作中に保 温箱内の温度も大きく低下してしまい、結果的に正確な 測定が出来なくなるが、このような不都合を排除するこ とが出来る。

2) 任意の時間間隔 (本観測装置システムでは毎日1回の割り) で省力的にゼロ・スパン校正が可能になる。

## 4. 方 法

#### 4.1 開発システムの再現性の検討

恒温対策の効果を判定するため、高純度乾燥 N<sub>2</sub> ガス (日興酸素㈱など)、CO<sub>2</sub> 濃度 300 ppm、350 ppm、お よび 450 ppm の標準ガス(いずれも N<sub>2</sub> バランス、住友 精化㈱など)をそれぞれ流量 1.5 litter/min で約 30 時間 流しアナログ記録計で記録した。同時に、実験室内温度 および赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計の分析セル温度を熱電対(銅 コンスタンタン、米国オメガ社)によって測定した(実 証試験 1)。



Recorded Value(A and B) and Calculated Value(C) (mv)

Fig. 4. 2000 年における読み取りゼロガス (0ppm) 値 (A)、読み取りスパンガス (450ppm) 値 (B)、およびゼ ロースパン幅 (0-450ppm) 値 (C)

Reading values of zero gas (A) and span gas (B), and calculated zero-span value (C) in year 2000.

実験室内温度約25℃(約70%RH)において、乾燥 N<sub>2</sub> ガス(0%RH)、これを密閉容器内の脱気水にくぐらせた 加湿 N<sub>2</sub> ガス(約80%RH)、およびこの加湿 N<sub>2</sub> ガスを 乾燥剤の過塩素酸マグネシウムを通した再乾燥 N<sub>2</sub> ガス (約2%RH)の3種類のガスを用い、自動切替器(自作) を用いて5分ごとに切り換えて分析計に流した。実証試 験1と同様に実験室温度および分析セル温度を記録した (実証試験2)。

## 4.2 観測方法

2004年2月28日までの間は、赤外線CO<sub>2</sub>分析計 (ZFP-1とZFP-9、富士電気システムズ㈱)を用いた筆 頭著者自作による観測装置システムを、以降は左記シス テムと同等以上の性能を有するよう筆頭著者が設計し特 注した観測システム(自動CO<sub>2</sub>濃度観測装置、小糸工 業㈱)を用いた。いずれの観測システムにおいても、観 測機器の設置場所と大気取入口の場所は同じである。こ の間を内径10 mm、長さ50 mのPVCチューブで配管 した。大気取込流量は2~2.5 litter/minで、採取から の分析遅れは約2分(実測値)である。記録の読取り間 隔は1時間ごとで、毎正時の瞬間値である。

## 1) 赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計の出力調節

分析計の出力を観測開始時に調節・設定した。出力が 一定以上変化した場合には再調整を行ったが、約16年 間でその必要があったのは10回ほどであった。その多 くはゼロ点ドリフトによるものであった。

#### 2) 校正ガス

ゼロガスは高純度乾燥 N<sub>2</sub> ガス (日興酸素㈱など)を 用いた。スパンガスは N<sub>2</sub> ガスとの混合ガスで、CO<sub>2</sub> 濃 度 450 ppm 前後の濃度(16 年間の実績で 447 ~ 454 ppm)の標準ガス(住友精化㈱社製など)を特注して使用した。それぞれのボンベからガスが流れているときの二次圧を 0.5 kg/m<sup>2</sup>(レギュレーターの流量調整用ニードルバルブの入口側の圧力)、流量を 2 ~ 2.5 litter/min に調節した。

ゼロガスを毎日 12:02 から 5 分間、スパンガスを 13:02 から 7 分間流し、分析計からの出力をアナログ記 録計のチャート上に記録させた。流す時間が異なるの は、チャート読取の便宜のためである。上記の頻度で校 正を行った結果、7 m<sup>3</sup>充填されたガスボンベの交換は 約半年ごとであった。また、数ヶ月に一回程度の確認作 業を行い、必要に応じてレギュレータバルブなどの調節 を行った。

## 3) 結露防止

一般的に、空気ポンプやニードル弁の出口側で結露が 発生しやすい。CO<sub>2</sub>ガスは水に溶け、その量は圧力と 温度に影響されるため、配管内部の結露は観測値に影響 する。しかし、用いた観測システムではポンプにバイパ スを設けた方式で流量調節を行っているので、入口と出 口の圧力差が小さく、急速減圧による結露が発生しにく い。このため、観測装置の配管内の結露はほとんど発生 しなかったが、夏季の室内冷房時に、室温が大気(分析 空気)の露点温度より低下することがあり、結露しやす い配管部位に黒色または赤色のPVC 粘着テープを張り、 100 w の白色ランプで照射して、必要に応じて配管を暖 めることで結露を防いだ。

## 4) 分析ガスの圧力・流量調整

背圧調整器における水深を約26 cm に調整し、大気

圧 (1,013 hPa) より約 26 hPa 高い圧力に保った。背圧調 節器の気泡発生の様子および分析計直前の流量モニター を日常的にモニターしながら、流量 1.5 litter/min で分 析空気を分析計に送った。設定値から 0.1 litter/min の ズレが生じたら再調整を行った。ボンベ交換や各種部品 交換の際には必ず再調整を行ったが、再調整の必要があ ったのは年に数回程度であった。

## 5) 記録の読みとりと計算

記録チャートの有効幅が 150 mm のペン式アナログ記 録計を用い、チャート送り速度を 20 mm/hr で記録させ た。チャートから、ゼロとスパンガス(いずれも日に一 回)、および毎時の大気(瞬間値、日に 24 回)の分析計 出力を 0.1 mv 単位(チャート上で 0.3 mm)で読みとっ た。

#### 5. 結果および考察

#### 5.1 開発システムの再現性の検討

#### 1) 校正値の安定性

開発した CO<sub>2</sub> 濃度観測システムは、24 時間を単位と して校正を行うため、大気圧や測定システム周辺温度に 依存する測定誤差を少なくすることを実現した。森林総 合研究所で行った観測において、ゼロガスやスパンガス を流した際の値の変動を、2000 年分を一例として Fig. 4 に示す。ゼロガスやスパンガスの値は、CO<sub>2</sub> 濃度に換 算して約 10 ppm/week の小刻みな変動や季節的な大き な変動を示すことがあったが、ゼロースパン幅は安定し ていた。このことから、ゼロガスによる校正を頻繁に行 なっておけばスパン校正は1月に一度でも大きな影響は ないと考えられた。

実際に観測した結果の一例を Fig. 5 に示す。A 図は3 日間、B 図は30 日間の大気 CO<sub>2</sub> 濃度変動を示している。 CO<sub>2</sub> 濃度は一日の中でも大きく変動していることが明 らかである。なお、すでに述べたように、校正は12 時 過ぎ(ゼロ校正)と13 過ぎ(スパン校正)にそれぞれ行 い、その校正値は毎日0時から23 時の測定値に適用し ている。したがって、毎日0時で校正し直していること になるが、Fig. 5 の A に明らかなように、通常の天候の 場合は日付変更時に不自然な観測値のズレは認められな かった。

観測誤差の発生要因は、分析空気取込口の位置、観測 装置の動作安定性、分析空気のコンタミネーション、チ ャート読み取りなど様々なレベルで考えられるが、日常 的に誤差が発生しやすい要因は、赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計の 再現性とチャート読取りである。そこで、以下では要因 ごとの再現性(誤差)を検討する。

## 2) 温度・圧力が赤外線 CO2 分析計におよぼす影響

赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計は、温度、圧力(気圧)、および干 渉ガスの影響を受ける。ここでは、気体の性質から一般 的な影響を検討する。一般に気体の状態は以下の関係式 で表される。

$$P \cdot V = n \cdot r \cdot T$$

 $n = (P \cdot V) / (r \cdot T) --- 6$ 

ただし、*P*:気体の圧力(気圧)、*V*:気体の体積 (litter)、*n*:気体のモル数、*r*:気体定数、*T*:気体の絶 対温度(*K*)

赤外線 CO<sub>2</sub>分析計は、温度と圧力で体積変化を起こ しにくい金属製の分析セル内における CO<sub>2</sub>分子数に比 例した"ある値"を検出する機器である。"ある値"を CO<sub>2</sub> 濃度に変換するために標準ガスを用いている。こ こで、分析セル内のガスに注目して1式を書き換えると 下記のようになる。

$$n_{\text{Cell}} = (P_{\text{Cell}} \cdot V_{\text{Cell}}) / (r \cdot T_{\text{Cell}}) ---7$$

ただし、n<sub>cell</sub>:分析セル内の気体のモル数、P<sub>cell</sub>: 分析セル内の気体の圧力、V<sub>cell</sub>:分析セルの体積(赤 外線 CO<sub>2</sub>分析計の機種ごとの定数)、T<sub>cell</sub>:分析セル 内の気体の絶対温度

ここで、 $(n_{Cell} = n_{CO2} + n_{non-CO2})$ とおけば、セル内の CO<sub>2</sub> 濃度 (*CO*<sub>2</sub>*conc*<sub>Cell</sub>, ppm) は、

 $CO_2 conc_{Cell} = n_{CO2} / n_{Cell} \cdot 10^{-6}$ 

ただし、*n*<sub>CO2</sub>:分析セル内の CO<sub>2</sub> のモル数、*n*<sub>non-CO2</sub>: 分析セル内の CO<sub>2</sub> 以外の気体のモル数、

--- 8

と書ける。8式に7式を代入して、

 $\begin{aligned} CO_2 conc_{Cell} &= n_{CO2} / \{ (P_{Cell} \cdot V_{Cell}) / (r \cdot T_{Cell}) \} \cdot 10^{-6} \\ CO_2 conc_{Cell} &= n_{CO2} \cdot r \cdot T_{Cell} / (P_{Cell} \cdot V Cell) \cdot 10^{-6} & --9 \\ 9 式の右辺を変数だけで示せば、 \end{aligned}$ 

 $CO_2 conc_{Cell} \propto n_{CO2} \cdot T_{Cell} / P_{Cell}$  --- 10

となる。10 式から、赤外線 CO<sub>2</sub> の分析計のセル内の CO<sub>2</sub>濃度は、セル内のCO<sub>2</sub>のモル数と絶対温度に比例し、 圧力に反比例することがわかる。

正しく校正された分析計では、例えば分析セル内の温 度が45℃の時、+1℃のセル内空気の温度変化は、CO<sub>2</sub> 濃度の読値を約+0.32%(真値が350 ppmの場合約+1.1 ppmに相当)の誤差を生む。一方、気圧に関しては、 +1 hPaの変化は約-0.1%(真値350 ppmの場合-0.35 ppm)の誤差となる。

#### 3) 恒温対策の効果

仮に分析セルの温度に $\pm 2 \%$  /day の変動が生じた場 合、上述の検討結果から試算すると、CO<sub>2</sub> 濃度の再現 性は $\pm 2.2$  ppm/day となり、温度変化の影響は大きい。 このため、校正インターバル中の分析セルの温度変化が 大きくならないようにする必要がある。ここで、実証試 験 1 の結果は、室温は 21 ~ 28 \% /day の範囲で変動し たが、分析セルの温度変化は 44.8  $\pm$  0.4 % /day であっ た。その時の CO<sub>2</sub> 濃度の 24 時間の再現性は、N<sub>2</sub> ガス (0 ppm)、300 ppm、350 ppm、および 450 ppm の標準 ガスのいずれとも $\pm$  0.3ppm/day であった。本観測シス テムにおける CO<sub>2</sub> 分析計の恒温対策は、実用上問題の ない効果が得られていると言えよう。

## 4) 気圧変動影響

本観測装置システムではハードウエア上の気圧補正を



Hours from 1<sup>st</sup> of January, 2000

Fig. 5. 2000 年 1 月 1 日から 3 日間 (A)、および 30 日間 (B) の 大気 CO<sub>2</sub> 濃度の観測結果 Observation results of ambient air CO<sub>2</sub> concentration at Forestry and Forest Products Research Institute, Japan (FFPRI) in 3 days (A) and 30 days (B) from New Years

行っていないため、大気圧変動の影響を直接受ける。以 下にその影響を見積もる。

day of year 2000.

大気圧変動をもたらす要因は台風の接近と前線の通過 である。台風の上陸数は 1989 年~2004 年の間では年 間 0~10(平均 3.5)であり (気象庁、2005b)、このうち、 本観測地に大きな気圧低下をもたらした台風はほとんど なかった。しかし、30 hPa 程度の気圧変化をもたらす 前線の通過はまれにある。本観測の自作の観測システ ムでは大気圧観測を行っていないが、980 hPa~1,025 hPa 程度の幅で大気圧の変動は起こりうると考えられ る。この場合、校正を 1,013 hPa (1 気圧時)のときに 行っていれば、約 -3.3% (低気圧時)~約+1.2%(高気 圧時)の大気圧差が生じ、CO<sub>2</sub> 濃度の真値が仮に 350 ppm とすると、約+11.6(低気圧時)~4.2(高気圧時) ppm という大きな測定誤差が生じる。

しかし、本観測装置システムでは、温度と圧力という 誤差発生要因をリセットできるように自動的校正を日に 一度行う仕組みのため、24時間を超えた観測誤差は発 生しにくい。また、通常の天候で24時間内の気圧変動 幅は±3hPa以内と見積もられ、この場合の観測の再現 性は±1 ppm/day 程度と見積もられる。

#### 5) 干渉ガス影響

一般に、CO<sub>2</sub>ガスの赤外線の吸収帯は、分析空気中

の H<sub>2</sub>O や大気汚染ガスである NOx などと一部重なって いるため、高性能で高価な赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計では、光 学的フィルターなどを用い、これら干渉ガスの影響の少 ない狭い赤外帯域を使う工夫をしている。しかし、H<sub>2</sub>O についてはその干渉を排除しにくいため、分析ガスの除 湿が一般に必要である。

一方、ここで用いた分析計 (ZFP-1、ZFP-9) は、高価 な赤外線 CO<sub>2</sub> 分析計に比べて極めて広い赤外線帯域を 使用することで干渉ガスの影響を少なくする工夫をして いる。この方式では干渉ガスの影響を完全には排除出来 ないが、実用上問題がないとして設計されている。

一方、全国 423 カ所の自動車排出ガス測定局における NO<sub>2</sub>の年平均濃度は、1992 年~ 2001 年では 0.030~ 0.033 ppm の範囲 (大気汚染法令研究会、2003) であり、 この程度の濃度では CO<sub>2</sub> 濃度測定に大きな影響を及ぼ さないと思われる。

ここで、 $H_2O$ の影響について検討するために行った実 証試験2の結果は、乾燥 $N_2$ ガス (0%RH)、加湿 $N_2$ ガス (約80%RH)、および再乾燥 $N_2$ ガス (約2%RH)の3種 類の違いは24時間を通じて $CO_2$ 濃度換算で±0.3 ppm 以下であった。従って、 $H_2O$ の影響は実用上問題がな いと言えよう。

#### 6) チャート読取り誤差の影響

チャート読み取り時に1単位程度の読取り誤差は生じ やすい。ここでの読み取り単位は0.1 mv(チャート上で 0.3 mm)のため、CO<sub>2</sub> 濃度換算で1.0(CO<sub>2</sub> 濃度0 ppm の時)~1.5 ppm(CO<sub>2</sub> 濃度450 ppmの時)に相当する。 したがって、チャート読取りによる誤差は約±1.5 ppm と見積もられる。

#### 7) 本観測システムの性能の検討

実証試験1および2の結果を総合した温度変化、気圧 変化、干渉ガス影響、およびチャート読み取り誤差によ る CO<sub>2</sub> 濃度観測の再現性の見積もりは、それぞれ±0.3 ppm/day、±1 ppm/day、±0.3 ppm/day、および±1.5 ppm/ 毎読取、であった。単純に積算すれば観測システ ムの再現性は±3.1 ppm/dayとなる。また、再現性の悪 化は24 時間以内の±3 hPa 程度の気圧変化、およびラ ンダムに起こると思われるチャートの読取り誤差の影響 が大きいと言えよう。本観測システムは、時として±3 ppm 程度以上の再現性の悪化が見込まれるものの、長 期間の安定性が実証され、比較的低コストで作成できる ことが特長と言えよう。

#### 5.2 観測結果

1989年6月1日から2004年12月31日の間の観測 結果をTable2に示す。2002年以降は観測装置の老朽 化のため欠測が多くなった。表において、月平均値は観 測のあった時刻の単純平均である。その数値の単純平均 も合わせて示したが、年平均値は月平均と同様に観測の あった時刻の単純平均である。年間の中央値(median値)、

	1989	1990	1991	1992 <sup>1)</sup>	1993	1994	1995	1996 <sup>1)</sup>	1997	1998	1999	2000 <sup>1)</sup>	2001	2002	2003	2004 <sup>1)</sup>
Hours of year (hr/year)	$5280^{2}$	8760	8760	8784	8760	8760	8760	8784	8760	8760	8760	8784	8760	8760	8760	8784
Observation (time/yr)	$5221^{2}$	8584	8600	8749	8606	8750	8725	8746	8756	8679	8611	8767	8753	8367	8113	8097
Non-observation (time/yr)	59 <sup>2)</sup>	176	160	35	154	10	35	38	4	81	149	17	L	393	647	687
Non-observation rate $(\%)$	$1.1^{2}$	2.0	1.8	0.4	1.8	0.1	0.4	0.4	0.0	0.9	1.7	0.2	0.1	4.5	7.4	7.8
Monthly average of CO <sub>2</sub> conc	centration (	(udd														
January		377.9	377.7	385.8	380.2	383.7	384.4	386.4	394.8	397.7	394.0	393.8	397.0	405.7	410.4	416.8
February		370.9	380.1	381.9	379.9	374.9	382.3	388.6	388.7	393.6	393.9	392.4	402.3	401.0	398.0	405.1
March		369.1	378.8	376.1	377.5	374.1	378.9	383.5	385.3	388.6	387.0	391.1	395.2	396.5	396.3	390.3
April		367.6	374.0	374.0	376.2	376.3	378.5	382.3	384.3	386.2	382.9	387.8	390.7	392.5	392.9	387.7
May		368.3	373.4	372.3	376.1	372.3	373.8	382.4	382.7	383.0	386.5	385.1	387.2	389.1	388.8	391.8
June	358.7	363.1	368.4	368.1	371.5	368.8	368.4	373.6	376.1	380.1	377.2	382.3	386.5	385.8	383.4	380.0
July	354.8	357.4	368.3	373.1	365.2	367.5	371.0	373.4	373.7	377.1	371.9	379.5	378.5	388.2	375.2	382.9
August	360.3	356.9	359.0	361.3	365.1	367.4	376.0	366.1	371.1	378.2	370.8	378.2	372.3	389.8	378.1	382.4
September	360.3	364.9	364.9	365.1	373.1	369.3	372.5	381.6	373.3	376.7	378.5	382.2	382.3	386.1	378.7	381.2
October	370.0	369.8	371.4	373.9	378.0	376.9	382.0	387.7	392.4	387.4	386.7	390.9	392.7	392.4	393.4	395.2
November	379.5	381.0	385.4	387.2	391.4	390.6	389.2	391.1	391.5	399.4	397.8	395.6	410.3	398.9	404.8	406.0
December	377.5	385.8	388.1	387.5	384.8	391.2	389.3	398.4	396.7	401.5	401.1	401.1	404.2	405.5	415.9	415.3
Average <sup>3)</sup> (ppm)	366.0	369.4	374.1	375.5	376.6	376.1	378.9	382.9	384.2	387.5	385.7	388.4	391.6	394.3	393.0	394.5
Annual average <sup>4)</sup> (ppm)	366.0	369.4	374.0	375.5	376.5	376.1	378.9	382.9	384.2	387.4	385.6	388.4	391.5	394.1	392.9	394.3
Annual median (ppm)		365	370	371	372	371	374	378	380	382	381	385	387	391	388	389
Annual minimum (ppm)		328	336	331	344	339	335	345	345	351	351	353	355	357	354	352
Annual Maximum (ppm)		469	477	512	494	495	498	495	505	494	478	496	513	496	510	526
Annual Fluctuation (ppm)		141	141	181	150	156	163	150	160	143	127	143	158	139	155	174
1) Leap year, 2) Observation si	tart 1 <sup>st</sup> June	e in 1989,	3) Calcu	lated fron	n monthly	average,	4) Calcu	lated from	n all obser	rved data.						

Table 2.  $CO_2$  濃度の観測結果 ( 気圧未補正値 ) Results of observation. (before calibration on atmospheric presser)

森林総合研究所研究報告第5巻2号,2006

年間最低値、年間最高値、および年間変動幅をそれぞれ 示した。

Fig. 6 に 16 年間の毎時間の CO<sub>2</sub> 濃度の変動を示す。 一日のうちでも 10 ppm 以上の変動が観測される日もあ り、また、短時間であるが 400 ppm 以上になることも 少なくなかった。図に明らかなように、年間の変動幅は 141 ~ 181 ppm と大きかった (Table 2)。

しかし、CO<sub>2</sub> 濃度は高くなるときは短時間で一定の規 則性は認められないが、低くなるときはある一定値以下 にならず、あるベースラインが引かれているように見 える。そのベースラインは年々高まっているように見 え、1997 年までは 350 ppm 以下になることもあったが、 1998 年以降でこれ以下にはなっていない。

Fig. 7 に 1996 年を例にとり、毎時間の CO<sub>2</sub> 濃度を 5 ppm ごとにくくり、出現頻度を示した。頻度分布型は、 非対称の"t"型であった。1996 年の年平均値は 383 ppm で、中央値 (median) は年平均より約 5 ppm 低い 378 ppm であり、いずれも頻度分布のピーク(最頻値)より 高値側であった。ちなみに、この年の年変動は 345 ~ 495 ppm(変動幅 150 ppm)であったが、低値および高値 の累積頻度をそれぞれ 1% はずすと 351 ~ 448 ppm(同 97 ppm)、また 3% ずつはずすと 356 ~ 430 ppm(同 74 ppm)であった。

Fig. 8 に本観測における月平均値(●)、年平均値(○)、 および月最低値(◇;月ごとの1時間値の最低値)を示 した。また、マウナロアにおける月平均値(灰色の三角 形;Keeling, 2004)を合わせて示した。季節ごとの増減 を繰り返しながら年々 CO<sub>2</sub> 濃度が上昇する Keeling 曲 線 (University of California, San Diego, 2002)と同様な 結果が本観測でも得られた。マウナロアとの違いは、年 平均値が毎年約 20 ppm 高いこと、および月平均値にお ける年間変動幅がおおよそ2~4倍と大きいことであ る。Keeling は大気のバックグラウンドの CO<sub>2</sub> 濃度を観 測するために太平洋の中央に位置し、植生のほとんどな いハワイ島のマウナロア山を選んでいる。一方、本観測 地の周囲には人工林、自然植生、農地、宅地、道路、お よび工場が点在している (Fig. 1c)。土地利用の相違が 原因と考えられる。

マウナロアでは年間最低値は9月もしくは10月に、 同最高値は5月を中心に4月~6月に記録されている。

一方、本観測では年間の最低値は概ね7月か8月に、 同最高値は11月~1月に観測されている。年最低値で はマウナロアより約2ヶ月、年最高値では約5ヶ月早 いことになる。この違いは、マウナロアでは光合成植物 が豊富に分布する大陸から遠く離れているために大気循 環に遅れが生じ、北半球の夏季に光合成が活発な中緯度 地域から低い CO<sub>2</sub> 濃度の空気が遅れて到着するのに対 し、本観測では周囲のシンク・ソース源の影響を受けた 空気が直ちに到着するためと考えられる。

また、本観測において CO2 濃度が低い月 (7 月か 8 月)

の値は、マウナロアの値と数 ppm の違いにまで低下する ことが図から読み取れる。さらに、図示した月最低値( 図中の令)は概ね毎年のように7月と8月を中心に6月 ~9月の間にマウナロアで観測されている大気のバック グラウンド CO<sub>2</sub> 濃度より大きく低下することが明らか である。この時期は月平均値が低い時期と概ね対応して いる。ちなみに、本観測地内の樹木園に生育している温 帯性落葉広葉樹では6月初旬~下旬に、温帯性常緑広葉 樹では6月下旬~7月下旬に当年生葉の光合成速度が 高い(松本ほか、1999)。5月の段階では、スギ、アカ マツ、カシ類では旧年葉である程度の光合成が行われて いるが、ほとんどの樹種では当年生葉の展開時期にあた るため、光合成による大きな CO<sub>2</sub> 吸収は始まっていな いと思われる。

これらのことから、高い CO<sub>2</sub> 濃度をしめす原因はソ ース源である車両・工場・家庭からの排気や人間を含め た生物の呼吸により、また、低い CO<sub>2</sub> 濃度は樹木や農 作物などの光合成によると考えられる。そして、本観測 地ではその両方が発生しているために CO<sub>2</sub> 濃度の変動 が大きくなっていると考えられる。

Fig. 9 に本観測による CO<sub>2</sub> 濃度の年平均値( $\oplus$ )を、 マウナロアのデータ( $\phi$ ; Keeling, 2004)とともに示 した。年平均 CO<sub>2</sub> 濃度は年々上昇していることが明ら かである。年平均 CO<sub>2</sub> 濃度が前年より低下した年が、 1994年、1999年、および 2003年の3回みられ、4~5 年周期で発生していた。一方、マウナロアの観測データ からエルニーニョ年に CO<sub>2</sub> 濃度上昇が大きい (Komhyr et al., 1985)ことが指摘されている。本観測期間では、 1991年4月~'92年7月、'93年3月~同8月、'97年 4月~'98年6月、2002年4月~'03年2月にエルニー ニョが発生しており (気象庁、2005a)、本観測結果でも Fig. 9に示したようにエルニーニョに対応して年 CO<sub>2</sub> 濃度が高くなる傾向が見られる。

気象庁 (2005a) の統計的な解析によれば、本観測地が 位置する東日本の天候は、夏の平均気温が平年並みか低 く・降水量が平年並みか多い傾向、秋の気温が平年より 低く・降水量は平年並みか低い傾向が明瞭、冬の気温は 平年並みか高い傾向・降水量は平年並みか多い傾向が明 瞭であるとのことである。すなわち、エルニーニョ発生 時の本観測地は、冷夏・暖冬、夏・冬の多雨という点で 平年の天候と異なる。このことは、本観測地周辺の植生 や農作物の光合成生産速度(呼吸速度)、有機物の分解 速度、土壌呼吸速度、および、建物・車両の冷暖房によ る化石燃料消費速度にも影響があり、それぞれの影響が 統合されて CO<sub>2</sub> 濃度の上昇を招いたと考えられる。

冷夏・暖冬の条件では冷暖房用の化石燃料消費量が低下すると思われる。有機物の分解速度や土壌呼吸速度は 一般に温度に比例するので、冷夏・暖冬の年の大気中の CO<sub>2</sub> 濃度は、例年よりも夏に低く冬に高くなることが 考えられるが、冬季は低温のため呼吸速度の違いが大き



元旦からの時間

Fig. 6. 森林総合研究所における 1989 年から 2004 年までの CO<sub>2</sub> 濃度の連続観測結果(1 時間値、時間軸は元旦からの時刻である。縦の補助線は 30.5 日 (732 時間) ごとに示されているので厳密な月の変わり目ではない。) Fluctuations of CO<sub>2</sub> concentration at FFPRI, Japan from 1989 to 2004. (1-hour value, The x-axis is the hours from the New Year's Day. Since the vertical auxiliary lines are shown in every 30.5 days (732 hours), it is not the change of month, strictly.)



元旦からの時間

Fig. 6. 森林総合研究所における 1989 年から 2004 年までの CO<sub>2</sub> 濃度の連続観測結果(つづき)(1 時間値、時間軸は元旦からの時刻である。縦の補助線は 30.5 日 (732 時間) ごとに示されているので厳密な月の変わり目ではない。)
Fluctuations of CO<sub>2</sub> concentration at FFPRI, Japan from 1989 to 2004. (Coutinued) (1-hour value, The x-axis is the hours from the New Year's Day. Since the vertical auxiliary lines are shown in every 30.5 days (732 hours), it is not the change of month, strictly.)



Fig. 7. 1996年における CO<sub>2</sub> 濃度の1時間値の観測頻度(CO<sub>2</sub> 濃度を 5ppm ごとに括って示した。)
Frequency of 1-hour value of CO<sub>2</sub> concentration in 1996. (Frequency was shown every 5 ppm in CO<sub>2</sub> concentration.)

な CO<sub>2</sub> 濃度の変化として現れにくいであろう。

一方、緑色植物の光合成生産速度は、日射量、土壌水 分、および飽差によっても大きく影響され、温度だけで 単純には推計できない。エルニーニョ発生時の本観測地 周辺における何らかの天候変化により、緑色植物の光合 成生産速度が低下したことが予見されたが、今後の詳細 な検討を待ちたい。

Fig. 9 において、1990 年から 2004 年までの 15 年間 に 24.9 ppm の CO<sub>2</sub> 濃度上昇がみられ(単純計算による 年間上昇濃度は 1.78 ppm/年)た。また、図に示したよ うに直線回帰式の勾配(年間上昇濃度)は 1.77 ppm/年 であり、単純計算値とほぼ同じであった。

一方、マウナロアの観測では勾配は 1.62 ppm/yr であ り、本調査地の濃度上昇のほうが若干大きい。このこと は、当観測地周辺では CO<sub>2</sub> のシンク機能の低下、ソー スの増加、あるいはその両方が進んでいることによる CO<sub>2</sub> のソース源となっていると考えられる。京都議定 書 (COP3) が守られ、CO<sub>2</sub> 放出の低減が進んだかどうか は、今後の観測値に現れるものと思われ、今後も観測を 継続することが重要である。





Fig. 8. 森林総合研究所における 1989 年から 2004 年までの CO<sub>2</sub> 濃度の月平均値、年平均値、および月最低値 (マウナロアにおける 1989 年から 2003 年の間の月平均値 (Keeling, 2004) を合わせて示した。-●-:月平均値、○:年平均値、-◇-:月最低値、
 ▲:マウナロアの月平均値、横線:エルニーニョ期間)

Monthly average, annual average, and the monthly minimum values of  $CO_2$  concentration in Forestry and Forest Products Research Institute from 1989 to 2004. (The monthly average of  $CO_2$  concentration at Mauna Loa (from Keeling, 2004) from 1989 to 2003 was shown as well in same figure. -  $\bigcirc$  -: Monthly average value,  $\bigcirc$  : Annual average value, -  $\bigcirc$  -: Monthly minimum value,  $\blacktriangle$  : Monthly average value at Mauna Loa, Hawaii, ber: Period of El Nino)



Year

- Fig. 9. 森林総合研究所における 1989 年から 2004 年までの CO<sub>2</sub> 濃度の年平均値、およびマウナロアにおける 1989 年から 2003 年の間の年平均値 (Keeling, 2004) (●:森林総合研究所、◆:マウナロア、横線:エルニーニョ期間)
- Annual average of CO<sub>2</sub> concentration at Forestry and Forest Products Research Institute from 1989 to 2004 and at Mauna Loa from 1989 to 2003 (from Keeling, 2004). (● : Forestry and Forest Products Research Institute, Japan, ◆ : Mauna Loa, Hawaii, ber: Period of El Nino)

温暖化・大気汚染・森林衰退・熱帯林減少などの地球環 境問題の研究を行っている者として CO<sub>2</sub> 濃度変動に関 心を持ち、1989 年 4 月に観測装置の設計・試作に取り かかり、同年 5 月に性能試験と改良を行い、同年 6 月 以降から長期連続観測を継続してきた。

今回の報告で、比較的単純で廉価な装置システムで CO<sub>2</sub> 濃度の長期観測が可能であることから、より多く の方の観測参加のきっかけになることを期待している。

また、観測データの公表にあたり、新たな発見につな がることを期待している。

この観測の計画および装置製作の動機付けは、森川靖 環境生理研究室長(現:早稲田大学教授)によってなさ れたものである。また、観測システムの日常的監視や記 録チャートの読取りなどに、非常勤職員の斉藤順子さ ん、川又康子さん、および酒井恵子さんの協力があった。 記して感謝の意を表したい。

#### 引用文献

- 井上 元 (1994) 温室効果ガスとその種類(地球環境ハンドブック),朝倉書店,東京,114-117
- 井上 元 (2003) 気候を変える大きな要因としての大気 中の温室効果ガス・エアロゾル濃度は、どの様に 変化してきたか?これからどうなるか?(地球温 暖化研究の最前線一環境の世紀の知と技術 2002 一),財務省印刷局,東京, 23-30
- IPCC (2001) Climate change 2001: The scientific basis (Houghton, J. T. et al. eds). Cambridge University Press, Cambridge, 881pp.

- Keeling, C. D. (2004) Atomospheric CO<sub>2</sub> concentrations (ppmv) derived from in situ air samples collected at Mauna Loa Observatory, Hawaii. インターネット版 (http://cdiac.esd.ornl.gov/ftp/trends/co2/maunaloa. co2)
- Keeling C. D., Bacastow R. B. and Whorf R. P. (1982) Measurements of the concentration of carbon dioxide at Mauna Loa observatory, Hawaii. (in Carbon dioxide review:1982). Clarendon Press, New York, 377-384
- Keeling C. D., Carter A. F. and Mook W. G. (1984) Seasonal, latitudinal and secular variations in the abundance and isotopic ratios of atmospheric CO<sub>2</sub>. J. Geophys. Res., **89**, 4629-4637
- 気象庁 (2005a) エルニーニョ / ラニーニャ現象の情報, インターネット版 (http://www.data.kishou.go.jp/ climate/elnino/index)
- 気象庁 (2005b) 過去の台風資料, インターネット版 (http://www.data.kishou.go.jp/yohou/typhoon/index)
- 気象庁 (2005c) 大気・海洋環境観測報告,第5号,イ ンターネット版 (http://www.data.kishou.go.jp/obsenv/cdrom/report/html/A2)
- 小池孝良 (2004) 樹木生理生態学, 朝倉書店, 東京, 264pp.
- Komhyr, W.D. et al. (1985) Global atmospheric CO<sub>2</sub> distribution and variations from 1968-1982 NOAA/ GMCC flack sample data. J. Geophys. Res., 90, 5567-5596

- 松本陽介 (2001) 温室効果 (森林·林業百科事典), 丸善, 東京, 95-96
- 松本陽介・田中格・小菅進吉・丹原哲夫・上村章・重永 英年・石田厚・奥田史郎・丸山温・森川靖 (1999) 日本産広葉樹 41 樹種の当年生陽葉における最大ガ ス交換速度のスクリーニング,森林立地, 41(2), 113-121
- 温室効果ガス世界資料センター (2005) 観測所リスト,
   インターネット版 (http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg\_j)
- 大気汚染法令研究会(監修)(2003)平成14年度版日本 の大気汚染状況, ぎょうせい,東京,937pp.
- University of California, San Diego (2002) Keeling Curve, インターネット版 (http://earthguide.ucsd. edu/globalchange/keeling curve/01)