

定期航空機を用いた上部対流圏における

微量気体分布の観測研究

—1999年度堀内賞受賞記念講演—

松 枝 秀 和*

1. はじめに

この度は、1999年度堀内賞を頂き誠に有難うございます。受賞の対象となりました定期航空機の観測研究はまだ未熟であるにもかかわらず、栄えある堀内賞として評価して頂いたことは身に余る光栄と恐縮しております。今後の研究への叱咤激励の意味であると受け止め、推薦・選考頂きました諸先生方、並びに学会員の皆様に厚く御礼申し上げます。

航空機による微量気体観測に関連する多くの研究については後述の論文を参考にして頂くことにし、ここでは私のこれまでの研究内容を中心に、エピソードなどを交えて紹介します。特に、研究を進めてきた過程を辿りながら、どのような事を考えてきたかを見つめ直し、今後の方向性を考えていく一助にしたいと思います。なお、上空という言葉が以下に頻繁に出てきますが、ここでは定期航空機の観測高度である約10 km前後の領域を指します。

2. 航空機観測との出会い

上空における微量気体の分布に興味をもつ発端は、1989年から1990年にかけて行われた航空機観測 (INSTAC: InterNational Strato/Tropospheric Air Chemistry) のキャンペーンに参加し、メタンの濃度を分析したことでした。このキャンペーンの最初のフライトである INSTAC-I では、日本とインドネシアの間の比較的狭い領域に限られたデータしか得られませ

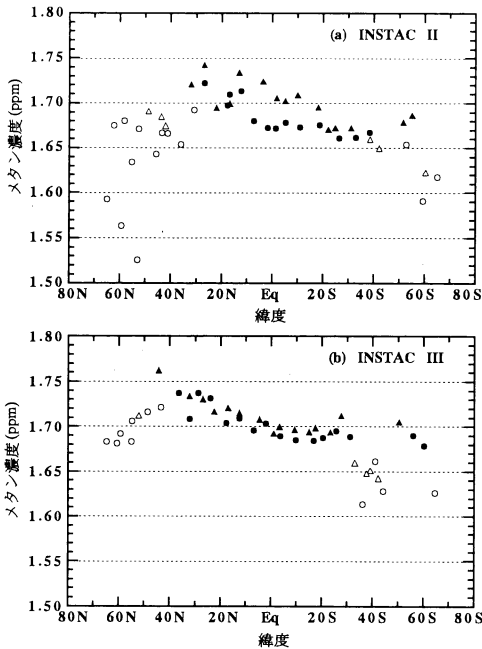
んでした (Inoue *et al.*, 1991)。しかし、INSTAC-II, IIIの2回のフライトでは、太平洋上空の北緯65度から南緯65度に及ぶ広域のメタン濃度を測定する機会に恵まれました。第1回は、その時得られた高度11-13 kmのメタン濃度の分布を示したものです (Matsueda *et al.*, 1993)。これらの結果は上空における緯度・経度方向の変化や、対流圏と成層圏との濃度差を示す一例ですが、私にとっては、上空の微量気体の循環を考えるきっかけとなった最初の観測データです。また、微量気体の精密な測定法と濃度を決定するための標準ガスの大切さを痛感し、他の研究機関との比較実験を始めたのもこの頃でした (Matsueda, 1993)。

当時、全世界に展開されていた地上の観測網に比べ、上空のデータは時間的にも空間的にも断片的で、観測結果の乏しい未知の領域でした。3次元の全球化学輸送モデルの結果も発表されていましたが、上空に関しては検証データが少なく、その実態については推定の域を出ていませんでした。そのような状況の中で、東北大学の中澤先生のグループが1984~85年にかけて日本と豪州を結ぶ旅客機を利用して、定期的に二酸化炭素濃度を精密に観測された研究論文 (Nakazawa *et al.*, 1991)を知りました。この論文は、定期航空機による通年の観測が、輸送メカニズムの解明に極めて有効であることを実証した先駆的な研究でした。これをきっかけに、上空の系統的かつ長期的な観測の必要性を強く認識するようになりました。

偶然に、1991年1月頃から日航財団を中心に旅客機を観測に活用することが検討され始め、その年の9月から日航財団、日本航空、運輸省、気象庁の共同による上空の微量気体観測プロジェクトが正式に発足しました。私も、このプロジェクトに参加させて頂き、最

* 気象研究所地球化学研究部、
hmatsued@mri-jma.go.jp

—2000年6月27日受領—
—2000年8月25日受理—

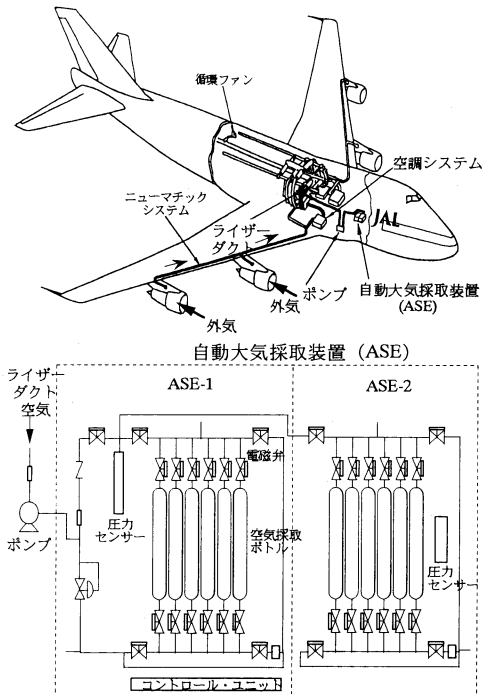


第1図 INSTAC キャンペーンで観測された高度11~13 kmにおけるメタン濃度(縦軸, ppm)の緯度分布。(a)は1990年2月20日から3月7日,(b)は1990年10月15~22日の観測結果。三角と丸印は、それぞれ太平洋の西側と中央の航路の違いを示し、白抜き印のデータは、オゾン濃度が100 ppb以上の成層圏の影響が強いと考えられる領域の結果を示す。濃度の単位 ppm (parts per million) と ppb (parts per billion) は、それぞれ乾燥空気における100万分の1及び10億分の1の混合比を表わす。Matsueda *et al.* (1993) より引用。

初の装置開発から取り組む機会を与えられました。特に開発研究では、航空機の専門家の方々と数多くの議論を重ねながら進めることができ、本格的な共同研究の楽しさを味わう経験ができました。

3. 空気採取装置の開発

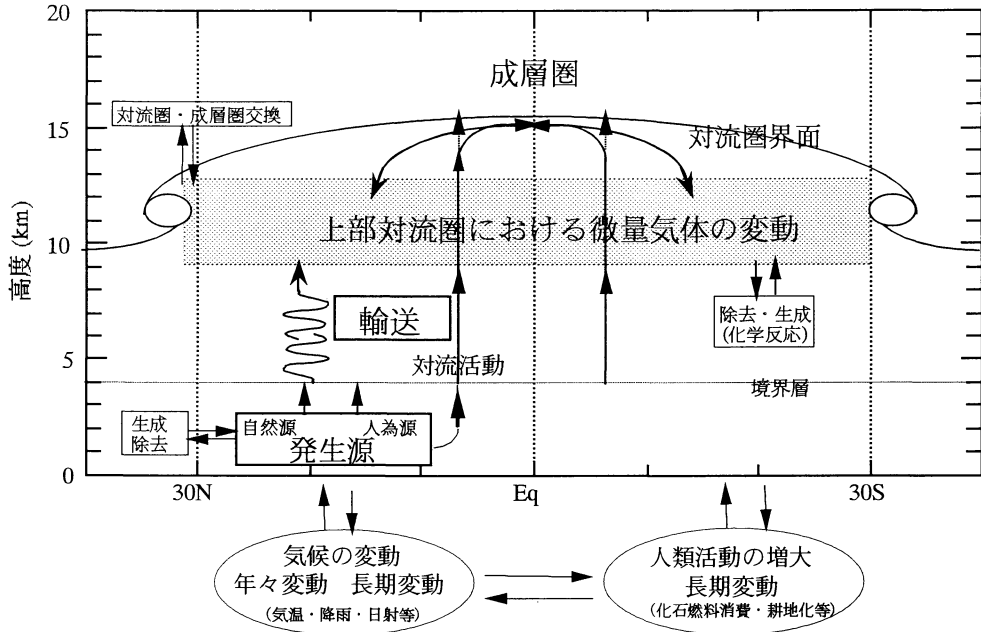
航空機による微量気体濃度の観測には、空気試料をボトルに詰めて地上で測定するフラスコ・サンプリング法と、もう1つは測定器を搭載して機上で測定する現場法があります。定期航空機の過密な運航スケジュールの中でも、精密な測定結果を長期間にわたって安定して収集することを重視し、フラスコ・サンプリングの方法を採用することになりました。大気採取システムの開発の過程では解決すべき数多くの問題に



第2図 ボーイング747型機の空調システムにおける空気の流れ、及び自動大気採取システムの概略図。Matsueda and Inoue (1996) より引用。

直面しましたが、そのなかでも、以下の3つの課題が最も重要なポイントとなりました。今振り返ってみると、旅客機と観測専用機では同じ航空機でも、全く別の設計思想が必要であることを強く実感させられました。また、旅客機の場合には、航空機エンジニアの方々と密接な共同開発が不可欠であると言えます。

第1の課題として、機体のどこから空気を採取するか、という最も根本的な問題に直面しました。旅客機の機体に観測専用の空気取り入れ口を設置するには、極めて難しい状況にありました。第2図に示す通り、エンジンの燃焼に使われない外気は、空調システムを通して圧力や温度が調整され、ライザー・ダクトに流れ込むため、これを測定試料に使うことを検討することになりました。開発の第一歩は、1992年1月29日の日本航空のボーイング747型機による試験飛行から始まりました。このフライトでは、特別に外気採取用のウィンドー・プラグを取り付けて、外気と空調システムの空気を同時に採取する実験を行うことができました。その結果、観測対象とする微量気体の濃度は、ライザー・ダクトと外気との間に全く差がなく、空調シ



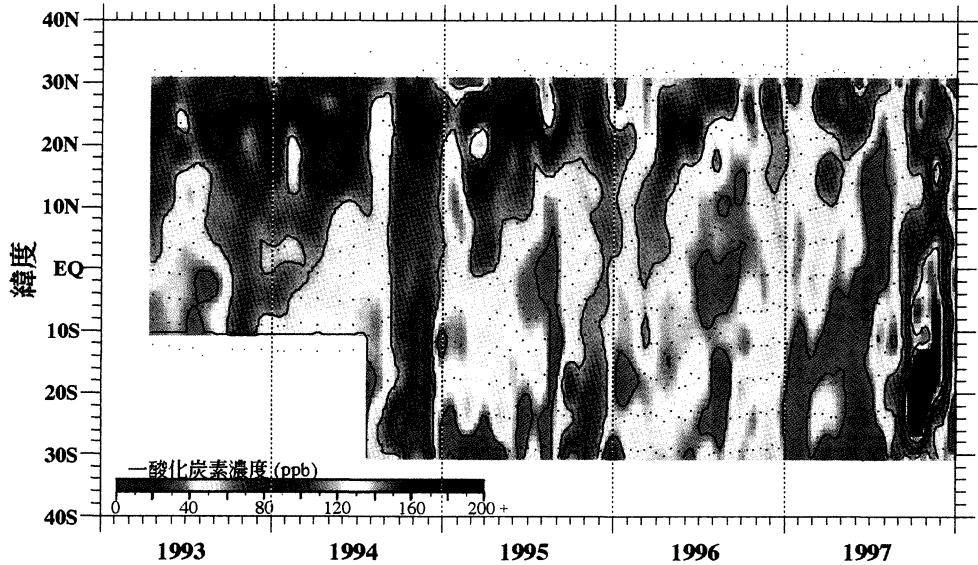
第3図 上部対流圏における微量気体の変動を支配する主なプロセスを示す模式図. 微量気体の主要な発生源が地上にあること, 並びに日本と豪州を結ぶ定期航空路を想定.

システムを通過する際に変質を受けていないことを実証することができました (Matsueda and Inoue, 1996). それまで, このような大がかりな実機による実験はほとんど行われておらず, 今後旅客機の空調システムを利用した観測を行う上で貴重な検証データを得ることができました.

第2の課題は, 搭乗常務員の手を一切煩わすことなく, 自動で起動し停止する自動大気採取装置 (ASE: Automatic air Sampling Equipment) にすることでした. 第2図に, ASEの概略図を示してあります. 装置は2つのボックス (ASE-1, 2) で構成されており, それぞれ6個のチタン製の空気採取ボトルが組み込まれています. この両端の電磁弁の開閉を通して, 空気試料が順次ポンプで加圧封入される単純な仕組みです. ASEの開発で最も問題となった点は, 旅客機の出発時刻が遅延しても, 自動で採取を開始させる方式でした. 航空機の航法システムからの情報を取り込めれば, 高度や対地速度の変化から装置の始動を容易に行えますが, 安全性面から観測装置と連動させることは困難でした. そこで, ASE-2に圧力センサーを装備し, 機内の圧力が離陸後低下することを検知して, システムを始動させる方法を採用しました. 一方, ASE-1の圧力センサーはボトル内の空気圧力を制御すると同時に,

管路内の異常な圧力上昇を監視する役割も担っています. これらの作動はすべて ASE-1に取り付けられたコントロール・ユニットで制御されています. さらに, センサーやコントロール・ユニットが不能な状態に陥っても, 機械的に異常事態を解除する二重の安全対策が施されました. また, 乗客に対する配慮も, 旅客機ならではの重要な搭載条件であることを経験しました. 装置の作動試験の際, 電磁弁が開閉する時の「カチッ」と鳴る音や空気の「シュー」という排気音が, 乗客に不快感と不安感を与えるのではないかと問題になりました. 幸い, 飛行している機内では騒音に紛れてほとんど気にならないことが確認され, その対策には及びませんでした.

第3の課題は, 様々な対空性試験を実施し, 航空局の使用承認審査に合格することでした. 装置の試験検査は主に1992年11月から1993年4月にかけて実施し, その内容は米国航空局が用いている航空機部品のための環境試験要綱に準じて行われました (松枝・吉川, 1995). この試験の基本的な考え方は, 起こりうる最悪の状況下でも装置が正常に作動することを実証するものです. このため, 実際の試験は想像以上に過酷な条件が課せられ, 装置がいつ壊れてもおかしくない状況の連続でした. 最後の試験は, 実際の運航環境下にお



第4図 西部太平洋上の高度8~13 kmにおける一酸化炭素濃度の緯度分布(縦軸)の時間変動(横軸). 等濃度線(ppb;スケールは左下)は, 観測結果の時系列解析で平均化されたデータを基に描いた. 図中の点は測定データが得られた場所を示す. Matsueda *et al.* (1999) より引用.

ける大気採取システム全体の影響を評価することを目的として, 検査飛行が1993年4月9日に行われました. これら一連の試験検査を通して, 航空局の航空機修理改造審査の承認を受け, 定期旅客便での運用が実現することになりました. これは, 全世界で運航されているすべての旅客機に本装置が搭載できる可能性を示すもので, 今後の上空のサンプリング観測網を構築していくための手がかりを与える意義があったと考えています.

4. 観測の目的

第3図には, 私自身が観測の目的を設定するに当たり, 考え方の基本とした微量気体の循環像を概念的に示してあります. 上空の変動を導く主要因としては, 発生源の地理的分布や上空への輸送過程, 並びに大気中における光化学反応や成層圏との交換などがあります. 今回の観測対象となった二酸化炭素, メタン, 一酸化炭素などの主要な発生源はいずれも地上にあります. 従って, 微量気体がいつどこで発生した場合に, どのような輸送過程が連動して上空に変動がもたらされるのかを解明することが, 研究の重要な目的の1つであると考えました. そのためには, 個別に微量気体の変動を捉えていくのではなく, 同時に観測される複

数の気体の変動を相互に比較しながら, 総合的に解析していくことが必要です. さらに, 観測を長期的に継続することによって, 年々変動の要因や人類活動の増大による影響を解明することが期待されました. 特に, 気候の年々変動と連動した自然発生源や大気輸送の変化が, どの程度上空の大気化学環境の変動に影響を及ぼしているのかが注目されました. 当初, 観測の目的はもっと漠然としたもので, 観測データを蓄積していくなかで徐々に明確になってきた部分が多々あります. 事前に, 観測の目的意識をもつことは必要ですが, 一方で, 予測できない現象に出会う期待感が観測研究の醍醐味であることも事実です.

定期航空機によるフラスコ・サンプリングの観測では, 研究目的とする変動の時間や空間スケールは路線と頻度によっておおよそ決まってきます. 日本と豪州を結ぶ西太平洋上空の路線は, 赤道をはさんで南北両半球を同時に観測できる利点があるため, 日本航空のオセアニア便で1993年4月から観測を開始することになりました. 1994年の6月までは, 豪州のケアンズと成田を結ぶ航路において毎月1回の観測を実施しましたが, その後の1994年7月以降は, シドニーと成田間の路線に切り替えました. これによって, 南半球の観測空域が広がると同時に, この機会に頻度も毎月2回に

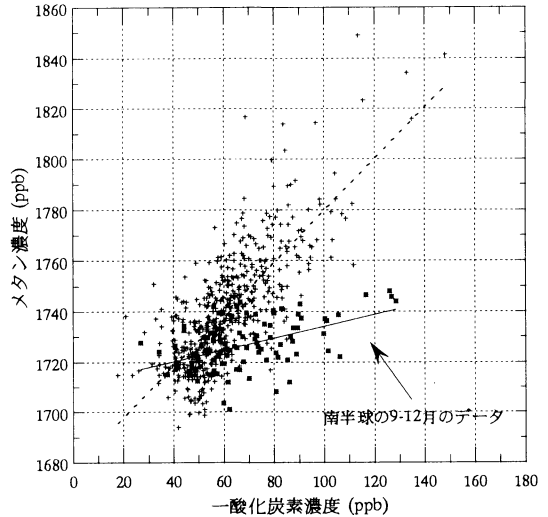
増やすことができました。空気採取は旅客機の巡航高度 8~13 km の範囲で実施しています。大部分の試料は対流圏界面より低い上部対流圏に相当する空気でした。但し、日本付近では圏界面高度が低くなるため、季節によって成層圏大気の影響を受けることとなります。

5. 一酸化炭素の季節変化

第4図は、1993年から1997年まで観測したデータを基に、上空における一酸化炭素 (CO) の平均的な濃度分布とその変動を解析した結果を示しています。この図で最も特徴的な CO 濃度の変動は、南半球において毎年10月頃を中心に顕著な濃度上昇が現れる現象です。この現象は、1993年のケアンズ路線の観測では観測緯度幅が短くはつきりと捉えることができませんでしたが、シドニー路線に切り替わった1994年になって初めて、南半球の全体像が明瞭に観測されました。そして、翌年の1995年に再び同じ季節に CO 濃度の増大が認められ、その季節性に着目するようになりました。特に興味をひいた点は、季節変動のパターンが北半球と大きく異なる事と、上空の最高濃度が南半球の地上付近の値を上回っている事でした。

南半球上空の季節変動には、輸送過程よりも発生源の寄与が大きいと考え、CO の起源について順次検討を始めました。まず最初に、大気中メタンの酸化分解による CO の生成過程を評価してみました。メタンは OH ラジカルとの反応によって CO を生成することから、同時に観測しているメタン濃度と室内実験で得られている反応速度定数を用いて、およその量を見積ってみました。計算の結果、実際に観測された濃度と比較すると、量的にも季節性の点からも、メタンの酸化プロセスではとても説明できませんでした。一方、海洋も CO の放出源となっていますが、海洋から大気へのフラックスは上空の濃度上昇をもたらす程の大きいものではないと考えられました (Matsueda *et al.*, 2000)。従って、南半球の季節的増加の原因は、燃焼起源の CO の供給によるものと判断されました。

燃焼起源の CO としては、主に北半球で発生する化石燃料燃焼と、熱帯の森林火災や焼畑などのバイオマス燃焼の2つが知られています。バイオマス燃焼の場合、化石燃料の燃焼とは異なり人為的にコントロールされていない火災のために、不完全燃焼の状態が継続する特徴があることに注目しました。このことは、発生ガスの化学組成の違いから、燃焼起源の CO を区別

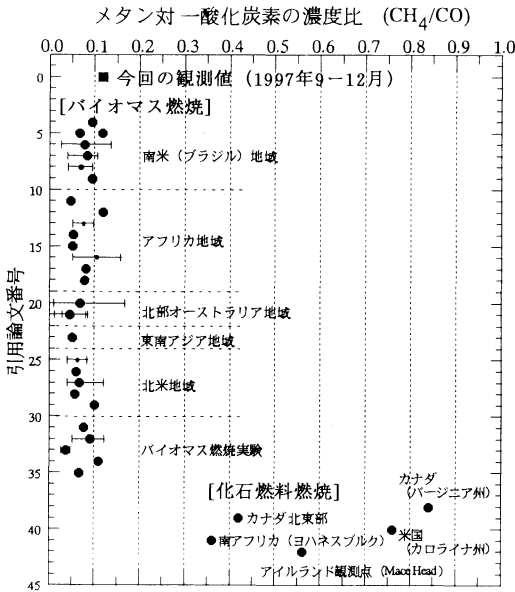


第5図 1993年4月から1996年7月までに観測された一酸化炭素濃度(横軸; ppb)とメタン濃度(縦軸; ppb)との関係。一酸化炭素の季節的増大が見られた南半球の9~12月のデータは黒四角印にて他と区別して示している。なお、すべてのデータについて長期的な濃度の増減傾向(トレンド)を補正してある。Matsueda *et al.* (1998) より引用。

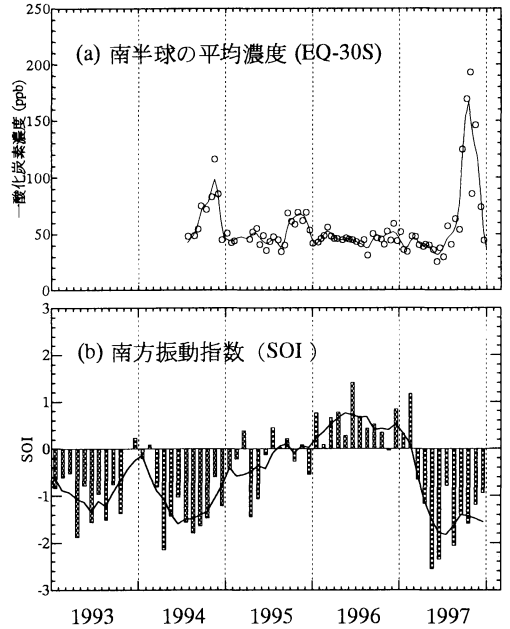
できる可能性を意味していました。同時に観測しているメタン(CH₄)濃度とCO濃度との関係から、大気化学組成の季節的な変化を調べてみました。第5図に示す通り、COの増大がみられた9月から12月の南半球のデータは、明らかに他の時期とは異なり、CH₄対CO比が大きく低下している事実が見い出されました。これは、バイオマス燃焼に起因する不完全燃焼の影響をより強く受けていることを示唆するものでした。そのことを確かめるために過去の論文を詳細に調べ、バイオマス燃焼のCH₄/COの放出比と、化石燃料燃焼の影響を強く受けたエアマスで観測されたデータを比較してみました(第6図)。バイオマス燃焼のCH₄/COの放出比は極めて低い値であり、明らかに化石燃料燃焼とは異なることがわかりました。これら一連の考察を通して、南半球上空の季節変動の特徴とその原因となるバイオマス燃焼の重要性について、論文にまとめることができました (Matsueda *et al.*, 1998)。

6. 年々変動と気候変化との関連

観測を継続していくうちに、南半球春季のCOピークの大きさが、年によって大きく変動していることがわかってきました(第4図)。特に、1997年の10月頃に



第6図 バイオマス燃焼と、化石燃料燃焼を主体とする人類活動の影響を受けた空気塊におけるメタン (CH₄) と一酸化炭素 (CO) の濃度比の違い。■は1997年9~12月の上空大気における CH₄/CO 比を示す。バイオマス燃焼の影響を強く受けた気塊のデータ (図中の引用論文番号4 から35まで) は際立って低い比を示す。データの出典は Matsueda *et al.* (1999) を参照。



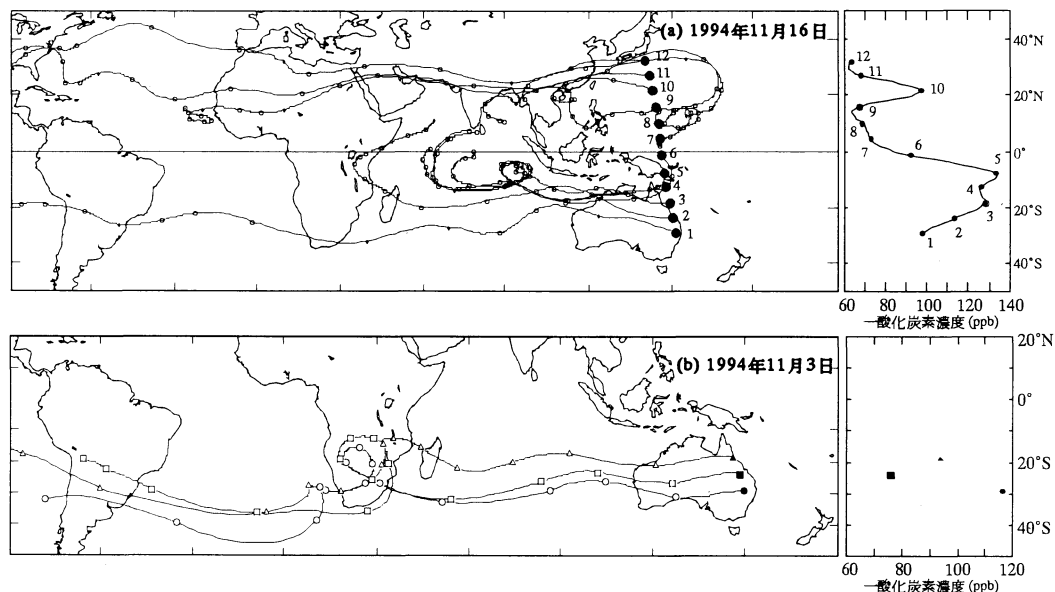
第7図 (a) 1994年から1997年にかけての西部太平洋上空で観測された南半球 (赤道から南緯30度) の一酸化炭素濃度 (ppb) の月平均値。 (b) 観測期間中における南方振動指数 (SOI)。実線は5か月の移動平均を示す。負値はエルニーニョ的、正値はラニーニャの状態に各々対応する。Matsueda *et al.* (1999) より引用。

は、過去最高の CO 濃度の増加が観測されました。一方、前年の1996年は、逆に CO のピークが最も減衰した年でした。この対照的な2年の結果は、年々変動の原因を特定する上で重要な意味をもつ観測例となりました。第7図に示した南方振動指数の変遷に見られる通り、上空に異常な CO の上昇がみられた97年は、97/98年の大規模なエルニーニョ期に相当していたのに対し、逆に96年は弱いラニーニャ状態となった年でした。この関係は、94年のエルニーニョが発生した年にも当てはまり、平年と比べてより顕著な季節的増大が見られています。従って、エルニーニョが強まると上空の CO 濃度が上昇するという、明瞭な対応関係があることがわかってきました (松枝, 1998)。

少し話が前後しますが、97年の濃度上昇は事前にある程度予測していました。そのきっかけは、1995年7月にボルダーの米国海洋大気庁を訪ねた時に、偶然見せてもらった1枚の図です。その図は、エルニーニョが起こった1994年に行われたスペース・シャトルからの観測結果で、インドネシアの森林火災の影響と思わ

れる CO の増加を明瞭に捉えたものでした (Connors *et al.*, 1996)。これと我々の年々変動の結果を突き合わせていくと、次のエルニーニョには上空の CO 濃度が上昇するに違いないと直感しました。事実、97年の9月から観測値が上昇し始めましたが、その程度は予想をはるかに上回る勢いでした。また、インドネシアの大森林火災による深刻な被害も次々に報道されるようになり、当時、状況の悪化に戸惑いを感じたことは今でも忘れられません。事態が深刻化する中で、10月にシンガポールやインドネシア上空への緊急の航空機観測が実施され、森林火災の影響による微量気体分布についての貴重なデータも収集することができました (Matsueda and Inoue, 1999; Sawa *et al.*, 1999)。

熱帯地域ではエルニーニョ現象によって様々な気候変化が起こりますが、特に、降雨量の変化は、バイオマス燃焼の規模を大きく左右する要因であると考えました。そこで、全球の外向長波放射 (OLR) データを指標として、対流性降雨の分布パターンの変化とバイオマス燃焼との関連性を調べてみました。すでに良く



第8図 (a) 1994年11月16日の観測で採取された空気塊の等温面のバックワード・トラジェクトリー解析の結果。流跡線上の印の間隔は1日を示す。右図に、各地点で観測された一酸化炭素濃度を示す。(b) (a)と同様、ただし1994年11月3日の観測の解析結果。Matsueda *et al.* (1998) より引用。

知られている通り、最も顕著な OLR のアノマリーは、熱帯アジアを中心とした西太平洋から東インド洋で見られます。この地域ではエルニーニョ現象によって降雨量が激減し、インドネシアでは大森林火災に発展しています。一方、大規模なバイオマス燃焼は、アマゾンを中心とする南米や南部アフリカ地域でも毎年発生することが知られています (Andreae, 1993)。これらの地域では局地的に OLR パターンの年変化がみられましたが、発生地域全体としては、エルニーニョ現象とそれ程強い相関性は認められませんでした。このような降雨パターンとの関連性からみる限り、インドネシアを中心とした熱帯アジア地域のバイオマス燃焼が、エルニーニョ現象によって拍車がかかり、西太平洋上空に大きな年々変動をもたらしたものと考えられました (Matsueda *et al.*, 1999)。今後、地球規模のバイオマス燃焼の発生量とその長期的変動を正確に見積もることが重要な研究課題になると言えます。

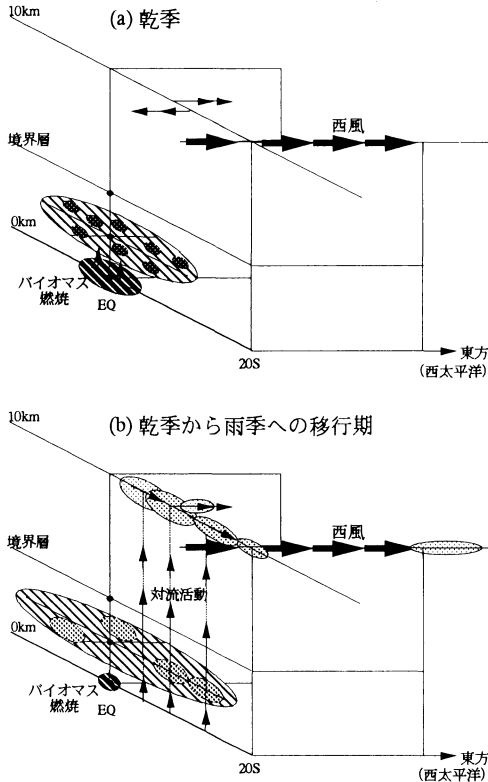
7. 輸送過程の問題

観測された春季の CO 増大の位置に着目すると、南緯20度付近の亜熱帯地域に高い濃度が出現する傾向が毎年見られました(第4図)。このような分布の偏在化を導く要因に興味をもち、バイオマス燃焼起源の CO

の輸送メカニズムの問題を考え始めました。

第8図は、トラジェクトリー解析を行った結果の一例を示したものです。多くの解析結果に共通していた点は、高濃度の CO を含む気塊が、上空の亜熱帯ジェット付近の強い西風に沿って西太平洋に向けて移動していることでした。ちなみに、南インド洋上空を通過するのに要する時間は1週間弱であるのに対して、CO の大気寿命は数か月程度と十分長いものです。従って、亜熱帯地域上空での濃度増加には、CO が強い西風によって迅速に水平輸送されることが重要な条件の一つであると理解しました。もう1つ注目した点は、観測された濃度とトラジェクトリーとの対応関係です。トラジェクトリーは非常に似通っていても、観測地点の濃度レベルは大きく異なっていることがしばしば見られました。これは、トラジェクトリー解析の不確かさに起因する面もありますが、むしろ、強い西風の経路に運ばれるまでに起こったプロセスの違いを反映しているのではないかと考えています。つまり、熱帯の対流活動やバイオマス燃焼の発生が、時間的にも空間的にも大きな不均一性をもっているためではないかと推察しています。

今回の結果とこれまでの知見も総合して、バイオマス燃焼起源の CO の輸送過程を論文で提案しました



第9図 熱帯のバイオマス燃焼から放出された微量気体の西部太平洋上空への輸送過程を示す模式図。(a)は乾季で、(b)は乾季から雨季への移行期を示す。Matsueda *et al.* (1998) より引用し、若干の改訂を加えた。

(Matsueda *et al.*, 1998). 第9図は、発表した模式図に多少の改訂を加えたものを示しています。基本的な3つの要素としては、1) バイオマス燃焼の発生、2) 迅速な鉛直輸送、3) 亜熱帯上空の強い西風です。そして、これらが相互に連動した時にはじめて、西部太平洋上空においてCO濃度の上昇が起こる点が、最も重要であると考えました。その条件が揃う時期は、バイオマス燃焼が活発に起こる乾季の真っ最中ではなく、強い上昇流の発生しやすい乾季から雨季への移行期ではないかと推定しています。

輸送過程についてはまだまだ不明な点が多くあり、さらに長期の観測や、化学輸送モデルと観測結果の比較などを通じて、より確かなメカニズムを理解していきたいと思っています。

8. おわりに

今後、熱帯地域ではバイオマス燃焼に加えて化石燃料消費も増大し、微量気体の発生源分布は北半球の中・高緯度から対流活動の活発な地域へと大きく移行すると考えられます。上空における微量気体の循環には、これまでとは異なる様々な変化が地球規模で起こることが予想されると同時に、その気候への影響についても懸念されます。上空の大気化学環境については不明な点が多く残されており、観測事実を1つでも多く積み上げていくことが必要です。旅客機による微量気体観測は欧州でも本格的に始まっており (Dias-Lalcaca *et al.*, 1998; Marenco *et al.*, 1998; Brenninkmeijer *et al.*, 1999)、今後上空の大気化学環境に対する理解が急速に進展していくものと期待されます。

謝辞

今回の研究に共に携わってもらい、常に協力と励ましを頂いた気象研究所の吉川久幸室長、並びに石井雅男氏、堤之智氏、澤庸介氏に心より感謝の意を表します。研究の土台となった観測プロジェクトでは、その推進に御努力頂いた日航財団の関係者の方々、並びに機器の開発と運用の御支援を頂いた日本航空株式会社の多くの関係者の方々に深く感謝の意を表します。気象研究所地球化学研究部の方々には、常に有益な助言と活発な議論をして頂き研究成果を深めることができました。気象研究所の中澤哲夫氏には、OLRデータの解析に全面的に協力して頂きました。工藤明宏氏、中井加代子女史、石川武司氏には観測・分析作業を助けて頂きました。また、多くの気象学会員の方々から専門分野の知見を教わると同時に、運輸省や気象庁の多くの方々からプロジェクト運営の支援をして頂きました。ここに深く感謝の意を表します。

参考文献

- Andreae, M. O., 1993: Global distribution of fires seen from space (abstract), *Eos Trans. AGU*, **74**, 129-135.
- Brenninkmeijer, C. A. M., P. J. Crutzen, H. Fisher, H. Gusten, W. Hans, G. Heinrich, J. Heitzenberg, M. Hermann, T. Immelmann, D. Kersting, M. Maiss, M. Nolle, A. Pitscheider, H. Pohlkamp, D. Scharffe, K. Specht and A. Weidensohler, 1999: CARIBIC-Civil aircraft for global measurement of trace gases and aerosols in the tropopause region, *J. Atmos.*

- Oceanic Technol., **16**, 1373-1383.
- Connors, V. S., P. C. Novelli and H. G. Reichle Jr., 1996 : Space Shuttle views changing carbon monoxide in lower atmosphere (abstract), AGU, Eos Trans. **77**, 466-467.
- Dias-Lalcaca, P., D. Brunner, W. Imfeld, W. Moser and J. Staehelin, 1998 : An automated system for the measurement of nitrogen oxides and ozone concentrations from a passenger aircraft : Instrumentation and first results of the NOXAR project, Environ. Sci. Technol., **32**, 3228-3236.
- Inoue, H. Y., H. Matsueda, T. Midorikawa and Y. Sugimura, 1991 : Atmospheric CO₂ and CH₄ observed during the Flight of International Strato/Tropospheric Air Chemistry I, Pap. Meteor. Geophys., **42**, 45-56.
- Marengo, A., V. Thouret, P. Nedelec, H. Smit, M. Helten, D. Kley, F. Karcher, P. Simon, K. Law, J. Pyle, G. Poschmann, R. V. Wrede, C. Hume and T. Cook, 1998 : Measurement of ozone and water vapor by Airbus in-service aircraft : The MOZAIC airborne program, An overview, J. Geophys. Res., **103**, 25631-25642.
- Matsueda, H., 1993 : Intercalibration experiment of methane standard gas scale between NOAA/CMDL and MRI/GRL, Pap. Meteor. Geophys., **44**, 45-56.
- Matsueda, H., H. Inoue and M. Ishii, 1993 : Latitudinal distributions of methane in the upper troposphere and marine boundary air over the Pacific in 1990, Geophys. Res. Lett., **20**, 695-698.
- 松枝秀和, 吉川久幸, 1995 : 旅客機観測のための自動大気採取装置の開発, 気象, **39** (7), 4-8.
- Matsueda, H. and H. Y. Inoue, 1996 : Measurements of atmospheric CO₂ and CH₄ using a commercial airliner from 1993 to 1994, Atmos. Environ., **30**, 1647-1655.
- 松枝秀和, 1998 : 森林火災と地球環境, 森林科学, **24**, 29-34.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue, Y. Sawa, Y. Tsutsumi and M. Ishii, 1998 : Carbon monoxide in the upper troposphere over the western Pacific between 1993 and 1996, J. Geophys. Res., **103**, 19093-19110.
- Matsueda, H. and H. Y. Inoue, 1999 : Aircraft measurements of trace gases between Japan and Singapore in October of 1993, 1996, and 1997, Geophys. Res. Lett., **26**, 2413-2416.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue, M. Ishii and Y. Tsutsumi, 1999 : Large injection of carbon monoxide into the upper troposphere due to intense biomass burning in 1997, J. Geophys. Res., **104**, 26867-26879.
- Matsueda, H., H. Y. Inoue, I. Asanuma, M. Aoyama and M. Ishii, 2000 : Carbon monoxide and methane in surface seawater of the tropical Pacific Ocean, In Dynamics and Characterization of Marine Organic Matter, edited by N. Handa, E. Tanoue, and T. Hama, 485-507, Terra Scientific Publishing Company (TERAPUB), (in press) .
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, 1991 : Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide, Tellus, **43B**, 106-117.
- Sawa, Y., H. Matsueda, Y. Tsutsumi, J. B. Jensen, H. Y. Inoue and Y. Makino, 1999 : Tropospheric carbon monoxide and hydrogen measurements over Kalimantan in Indonesia and northern Australia during October 1997, Geophys. Res. Lett., **26**, 1389-1392.

Observational Study for Trace Gases in the Upper Troposphere Using a Commercial Airliner

Hidekazu Matsueda*

* *Geochemical Research Department, Meteorological Research Institute, Tsukuba, 305-0052, Japan.*

(Received 27 June 2000 ; Accepted 25 August 2000)