

阪神地方のメタンの分布・発生について

村松 久史

DISTRIBUTION AND FLUX OF METHANE OVER HANSHIN DISTRICT

By Hisafumi MURAMATSU

Synopsis

The spatial distributions of methane over Hanshin district (Osaka, Kobe and neighborhood) in cold season were observed, when the release of methane due to the biosphere such as lakes, marshes and rice fields was negligible. Air samples were collected on an aircraft and on the ground in early morning and afternoon. The concentration of methane was determined by gas chromatography in the laboratory.

During observations the temperature inversion persisted at the altitude of 1.5–2.0 km through which the upward transport of methane was negligible. Below that layer high concentration of methane was observed with the maximum methane mixing ratio over the central part of Osaka City. The methane flux from the surface was estimated to be 0.27 g/m²/day in the central part of Osaka City, which is comparable with the most intense flux from the ecosystems or vegetation such as lakes, marshes, or rice fields.

1. はじめに

赤外領域に吸収帯をもつ気体が地球大気中に存在すると、(いわゆる温室効果により)地球大気・地表の温度を上昇させる。特に大気の窓領域といわれている7–13 μ mに吸収帯をもつ種類の気体は温室効果に対して有効に働く。この種類に属するものにメタン(CH₄)、フロン類(CF₂Cl₂, CFCI₃等)、亜酸化窒素(N₂O)などがある^{1), 2), 3)}。メタンはまた大気中での化学過程で重要な役割を果たす。成層圏では塩素(Cl)と反応してこれをHClに変換する。この反応は(フロンから生成される)Clによるオゾン破壊を抑制する。また成層圏内の水蒸気の分布は対流圏からの輸送と成層圏内でのメタンの酸化からの寄与でまゐる。対流圏ではメタン、OH(水酸基)、CO(一酸化炭素)間の反応が重要である。COのかなりの部分はメタンとOHの反応から生成される。OHはClを含んでいる人工(例えばCH₃CCl₃, CHClF₂)、及び自然(たとえばCH₃Cl)の微量気体の除去の主要成分であり、OHの濃度は主としてメタン、COとの反応で決められる。

近年大気中のメタン濃度は1–2% /年の割合で増加していることが知られているが^{4), 5), 6)}その原因は明かでない。メタンの短期的および長期的な変動の原因を解明するためにはメタンの発生・消滅を定量的に知る必要がある。生物起源としては嫌気菌の発酵に起因する田圃、沼・湿地、家畜(反すう動物)があり、非生物起源としては天然ガスの遺漏、採鉱、工業活動などがある。

地球全体でのメタンの発生量の見積は225–1210 Tg/年の範囲にばらついている⁷⁾。消滅は大部分がOHとの反応によるもので、500–1880 Tg/年と見積られている^{8), 9)}。そのほか土壌での消滅がわずかに

認められている¹⁰⁾。

人間活動起源のメタンの都市からの発生はほとんど分かっていない。それを明らかにするため大阪を中心とした大都市の上空のメタンの分布の測定を行なったのでその結果を報告する。

2. 測定方法

水田・湿地などの自然発生源からのメタンの発生の少ない冬季に、大阪上空のメタンの濃度の空間分布を測定した。そのために航空機及び地上で空気試料を採取し実験室でガスクロマトグラフをもちいて分析した。試料の採取には、地上ではテドラーバック（弗化ビニール樹脂製、1000 ml）を、航空機ではステンレス製シリンダー（内容積 400 ml、両端にバルブ NUPRO B-4 HG 付）を用いた。テドラーバックではガラス製注射器を用い、またステンレス製シリンダーでは加圧ポンプ（GAST, DOA-101-AF 型）を用いて空気を採取した。ガスクロマトグラフによる分析には高田・村松（1988）¹¹⁾と同じ方法を用いた。

航空機による試料採取は午前、午後の2回行ない（地上では1時間毎に採取した）、濃度分布の変化から発生量の見積を行なう。この目的のために実験は風が弱くかつ高度1-2 km に気温の逆転層が存在する日を選んで行なった。これは気温の逆転層を通してメタンの上方への輸送が少なく地上で発生したメタンが逆転層以下の層に蓄積されることをねらったものである。

3. 結果

3.1 気象概況

測定は1988年10月8日と12月13日の各々午前・午後を実施した。10月8日には台風24号が潮岬の南方北緯30度付近にあり（Fig. 1）、このため大阪付近の地上では北-北東の風が午前から午後にかけて強まった。Fig. 2 (a), (b)は気象庁の地域気象観測所の資料（アメダス）による風向・風速の午前（09時）および午後（15時）の分布を示す。矢印の方向は風向を示す。矢印に付随する数値は風速（m/sec）を示し矢印の長さは風速に比例する。

12月13日は前日（12日）西日本を覆っていた高気圧の中心が東方海上へ去ったが西日本は弱いながら高気圧におおわれており（Fig. 3）おだやかな天気であった。アメダスによる大阪付近の風の分布はFig. 4 (a), (b)に示すように午前（09時）は北東、午後（15時）は南-南西の方向で、風速は2 m/sec 以下であった。

3.2 メタン濃度、気温、湿度の高度分布

10月8日の観測は航空機では羽曳野（34°33' N, 135°37' E）、枚方（34°48' N, 135°37' E）、難波（34°39' N, 135°30' E）、大阪湾（34°37' N, 135°19' E）の4地点上空の4高度（0.45, 0.91, 1.83, 2.74 km）で試料の採取を行い、地上では八尾空港と大阪管区気象台で採取した。4地点上空のメタンの体積混合比の高度分布をFig. 5に示す。羽曳野及び難波の地上の値は各々八尾空港及び大阪管区気象台での地上の値を使用した。航空機に搭載した白金温度計で得られた気温分布の逆転層が1.3-2.0 km にあった。（ビニール管で外気を機内に導入して気温、湿度を

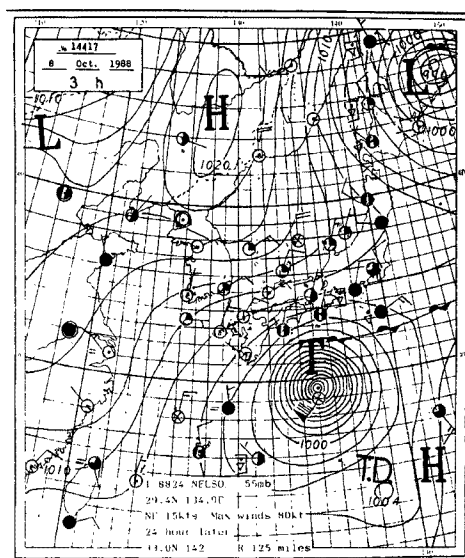


Fig. 1. Weather chart(sea level) at 3h (JST) on 8 October 1988.

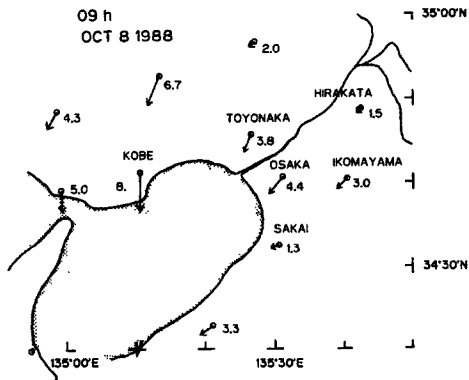


Fig. 2 (a). Wind on the surface in the morning (9h) on 8 October 1988. The arrow shows the direction and speed. The length of an arrow is proportional to the wind speed (m/s) attached to it.

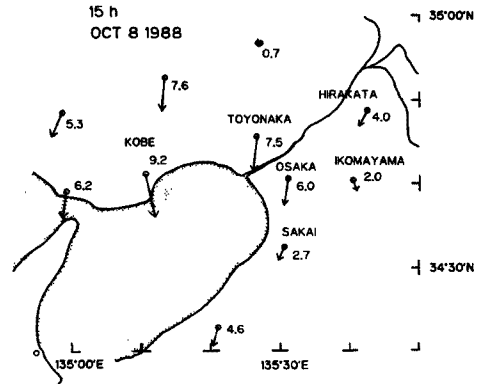


Fig. 2 (b). Same as Fig. 4 (a), except for in the afternoon (15h).

測定したため外気温の正確な絶対値は得られなかった。測定器はChino Model HN-Kである。

12月13日の観測は航空機では柏原 (34°35' N, 135°38' E), 枚方 (34°48' N, 135°38' E), 難波 (34°39' N, 135°30' E), 西宮 (34°44' N, 135°20' E), 大阪湾 (34°35' N, 135°20' E) の5地点上空の4高度 (0.45, 0.91, 1.83, 2.74 km) で試料の採取を行い, 地上では八尾空港, 枚方, 大阪管区气象台, 西宮の4地点で試料の採取を行なった。得られたメタンの高度分布を Fig. 6 に示す。難波及び柏原の地上の値は各々大阪管区气象台及び八

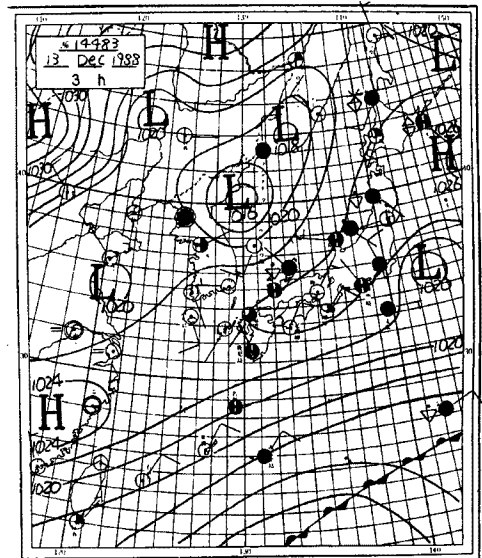


Fig. 3. Weather chart(sea level) at 3h (JST) on 13 December 1988.

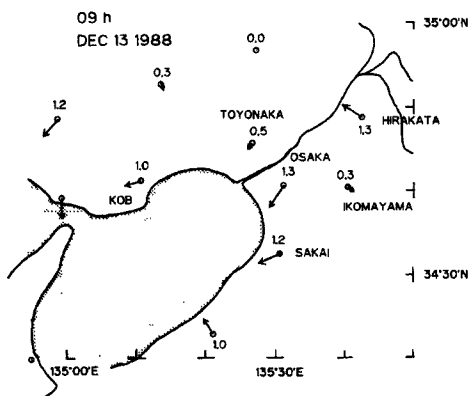


Fig. 4 (a). Wind on the surface in the morning (9h) on 13 December 1988. The arrow shows the direction and speed. The length of an arrow is proportional to the wind speed (m/s) attached to it.

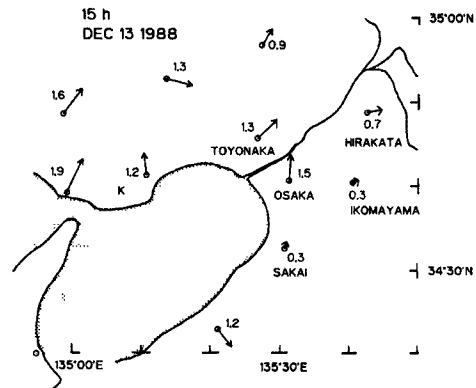


Fig. 4 (b). Same as Fig. 4 (a), except for in the afternoon (15h).

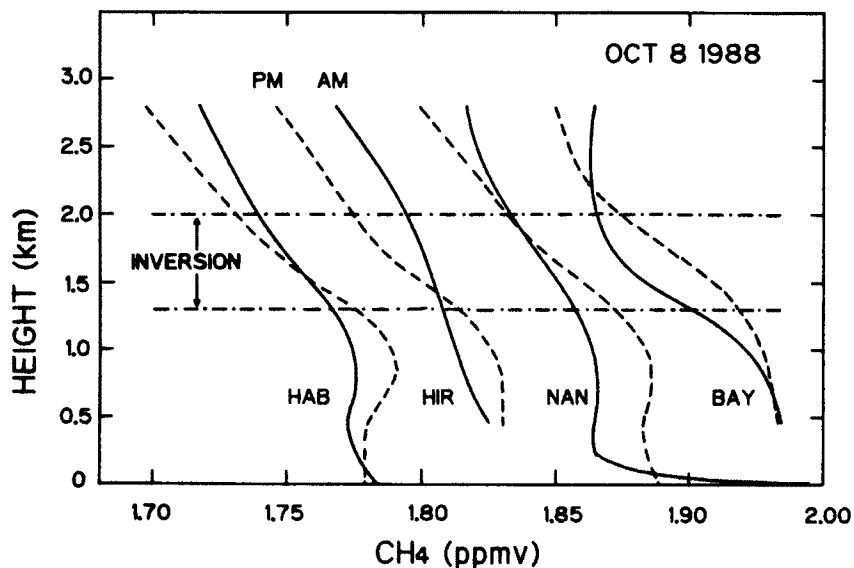


Fig. 5. Vertical profiles of methane volume mixing ratio(ppmv) observed on 8 October 1988. Solid and broken curves show the profiles obtained in the morning and in the afternoon, respectively. HAB, HIR, NAN and BAY stand for Habikino, Hirakata, Nanba and Osaka Bay, respectively. Profiles other than HAB are displaced successively toward the right a distance corresponding to 0.05ppmv.

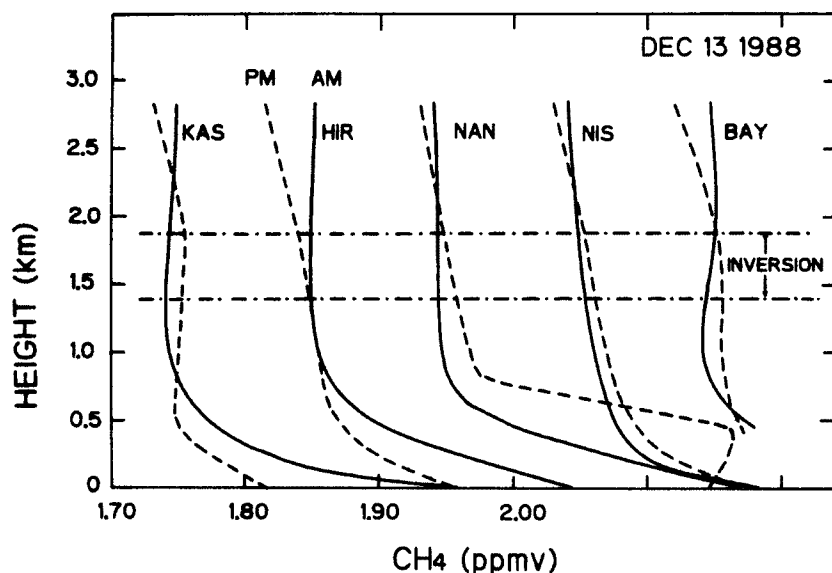


Fig. 6. Same as Fig. 5, except for 13 December 1988. KAS and NIS stand for Kashiwara and Nishinomiya, respectively. Profiles other than KAS are displaced successively toward right a distance corresponding to 0.1ppmv.

尾空港での試料を使っている。気温 T ($^{\circ}\text{C}$) 及び相対湿度 RH (%) の午前・午後的高度分布を Fig. 7(a), (b)に示す。12月13日の観測ではRS 2-80型レーウィンゾンデに使用している気温、湿度センサーを機外に取り付けて測定を行なった。

気温の逆転層が午前 (Fig. 7(a)) では高度 1.36-1.83 km に、午後 (Fig. 7(b)) では 1.53-1.93 km にある。午前の観測では地上から高度約 0.4 km に気温の逆転があり、午後には解消している。Fig. 6 には午前、午後平均の上空の逆転層を示した。なお、Fig. 7 の水平の矢印は試料採取の高度を示す。

10月8日のメタンの高度分布 (Fig. 5) の横軸のメタン混合比の目盛りは羽曳野 (HAB) に対するもので枚方 (HIR), 難波 (NAN), 大阪湾 (BAY) の分布は1目盛 (0.05 ppmv) ずつ右に移動してある。実線は午前の、また破線は午後の分布をしめす。これらの分布の特徴は気温の逆転層の下層で混合比が極大値を持つこと、難波 (NAN)

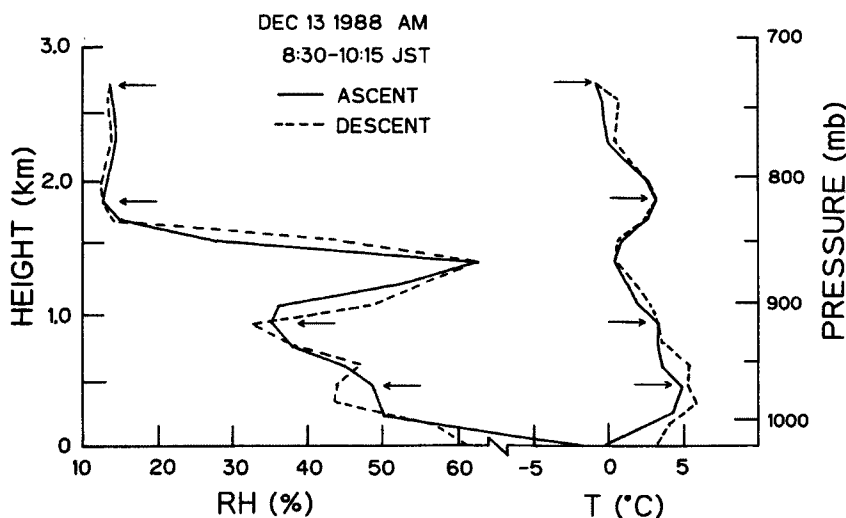


Fig. 7(a). Vertical profiles of temperature $T(^{\circ}\text{C})$ and relative humidity $\text{RH}(\%)$ observed in the morning of 13 December 1988. The horizontal arrows show the levels of collection of air samples.

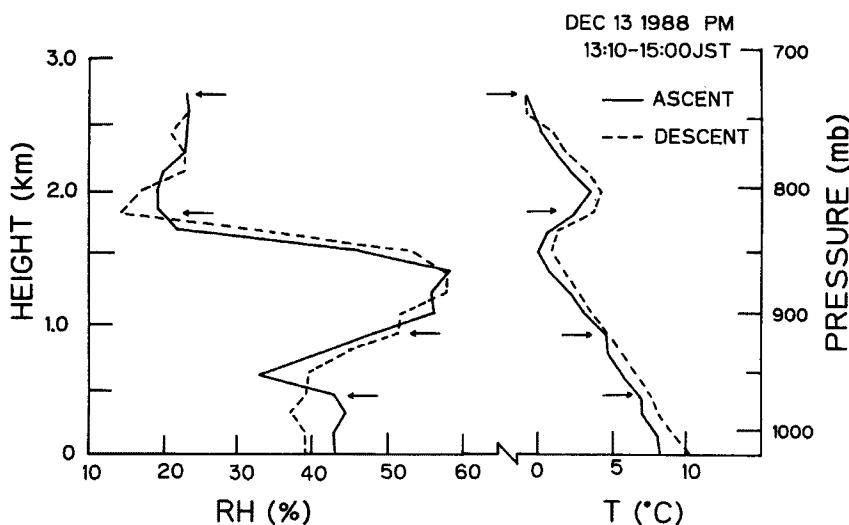


Fig. 7(b). Same as Fig. 7(a), except for in the afternoon.

の午前の分布で地上で高い濃度を示すこと、逆転層より下層では午前より午後の方が高濃度であること等である。

一方12月13日の分布 (Fig. 6) をみると、(1) 難波 (NAN) の午後 (破線) は高度約5 kmで極大を示すが、その他は地上で濃度が最大であること、(2) 高度1 km以上で混合比がほとんど一定であること、(3) 柏原 (KAS) ・大阪湾 (BAY) の午後の分布 (破線) に逆転層付近の高度に弱いながらも濃度の極大が認められること、等の特徴がみられる。

10月8日と12月13日で共通しているのは逆転層の上方でメタンの混合比の高度に対する減少率が午前より午後の方が急激であること、難波 (NAN) 上空では逆転層以下の高度でメタンの混合比が午前より午後の方が大きいこと等である。両

日のメタン分布の相違点、共通点については後で検討する。

3.3 メタン濃度の水平分布

メタンの水平分布は高度により、また10月8日と12月13日の午前・午後、で異なる。主な特徴をあげると、まず12月13日には逆転層より下層で大阪市の上空にメタン濃度の極大が存在することである。Fig. 8(a), (b)は高度0.45 kmでの午前および午後の分布をしめす。大阪市の周辺の柏原 (KAS)、西宮 (NIS) 等では午前、午後で濃度は変化していないが大阪市の中心部では大きな増加をしめす。図の中で斜線でハッチした部分は1.80 ppmv以上の領域で午前から午後にかけて拡大している。このことは大阪市の中心部にしてメタンの発生源の存在を示唆するもので、発生量の大きさについては次の節で検討する。

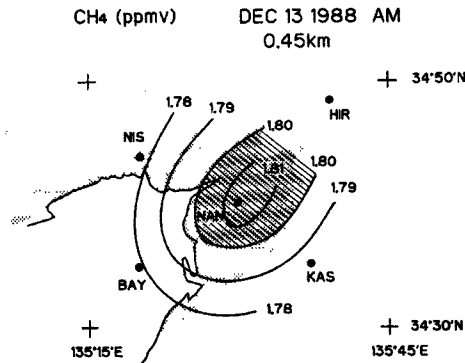


Fig. 8(a). Horizontal distribution of methane volume mixing ratio at the altitude of 0.45 km in the morning on 13 December 1988. Stippled area shows the cities of Hanshin. KAS, HIR, NAN, NIS and BAY stand for Kasihwara, Hirakata, Nanba, Nishinomiya and Osaka Bay, respectively.

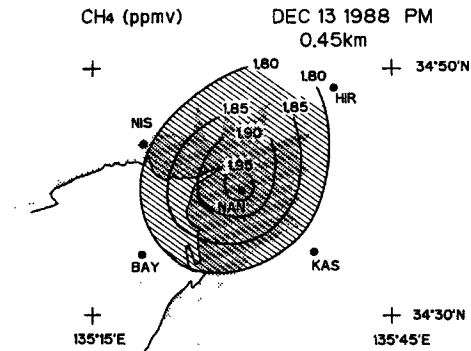


Fig. 8(b). Same as Fig. 8 (a), except for in the afternoon. The area of slanting lines where mixing ratio is higher than 1.80 ppmv expanded compared to Fig. 8 (a) in the morning.

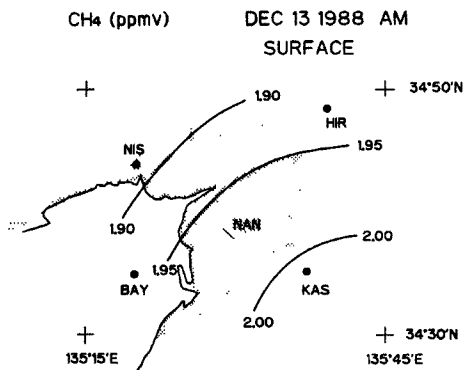


Fig. 9(a). Horizontal distribution of methane volume mixing ratio on the surface in the morning of 13 December 1988.

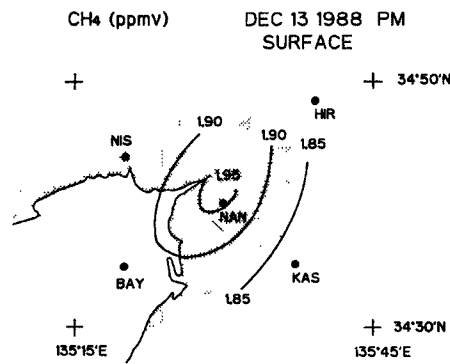


Fig. 9(b). Same as Fig. 9 (a), except for in the afternoon.

地上の濃度分布を Fig. 9 (a), (b) に示す。午後 (Fig. 9 (b)) には大阪市の中心に極大が存在するが、午前 (Fig. 9 (a)) には極大は存在せず大阪市の南東方向で高濃度で北西方向で低濃度である。これは地上風の方向、接地逆転層の強さに関係するものと推測される。地上風は4時から8時の期間、豊中では北—北西から約1 m / 秒、大阪管区気象台では北北東—北東から1-3 m / 秒であった。接地逆転層の強さについては八尾空港での観測があるだけなので、メタン濃度と接地逆転層の関係は明らかにできない。

10月8日の0.45 kmの分布を Fig. 10 (a), (b) に示す。午前(a)には大阪市上空に弱い極小がみられるが午後(b)には極小が解消してほとんど一様となっている。

高度0.45 kmでの10月8日と12月13日とのメタンの分布の違いは風速の差に原因があるものと推測される。即ち10月8日には大阪付近の地上では北—北北東4-8 m / 秒の風が吹いており (Fig. 2 (a),

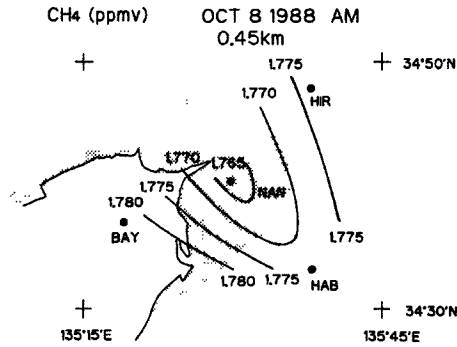


Fig. 10 (a). Horizontal distribution of methane volume mixing ratio at the altitude of 0.45 km in the morning of 8 October 1988.

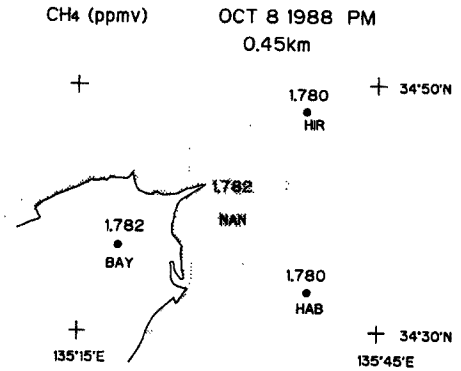


Fig. 10 (b). Same as Fig. 10 (a), except for in the afternoon.

(b), また大阪の午前9時のパイロット観測によると高度1 km 以下では北東—北北東の10 m/秒の風である。一方12月13日には大阪付近の地上では午前中は北東2 m/秒以下の、午後には南—南東2 m/秒以下の風が吹いており、また午前9時の大阪のパイロット観測では高度1 km 以下では北東3 m/秒以下の風である。12月13日には地上付近では風が弱く、また風向は午前と午後で反対になっているため発生したメタンが水平方向に流されることなく発生地点上空に蓄積された。一方10月8日は地上、上空とも風が強くまた風向は午前、午後で同じであったので午後には大阪上空にメタン濃度の極大が見られなかったものと推測される。

高度0.91 kmでのメタン濃度の水平分布にも0.45 kmと同様の特徴がみられるが0.45 kmほど顕著ではない。高度1.83 km (気温の逆転層内) および2.74 km (気温の逆転層の上) のメタンの水平分布は一樣に近いが、12月13日には大阪市の風上で濃度が低く、風下で高いという傾向がみられる。

3.4 濃度の午前、午後の差および発生量の見積

前節で指摘したごとく高度1 km 以下では大阪市上空でメタン濃度の極大が見られ、午前より午後に一層顕著となる。このことは午後と午前の濃度の差をみればさらにはっきりする。高度0.45 kmでのメタン濃度の差 (午前に対する午後の増加量) を Fig. 11 (10月8日) と Fig. 12 (12月13日) に示す。両日もとも大阪市の上空に極大が存在するが12月13日の方がはるかに顕著である。この違いは前節で触れた

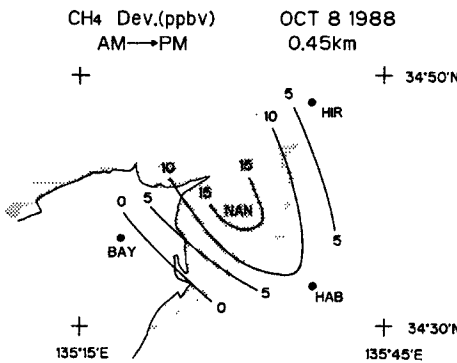


Fig. 11. Increase in methane volume mixing ratio (ppbv) between the two observations in AM and PM on 8 October 1988.

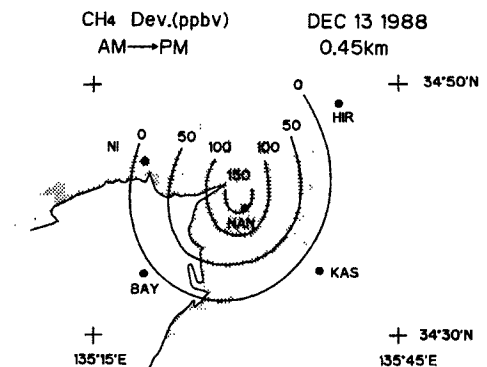


Fig. 12. Same as Fig. 11, except for 13 December 1988.

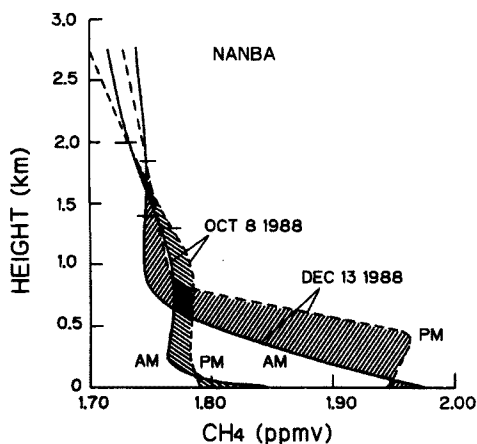


Fig. 13. Vertical profiles of methane volume mixing ratio over Namba. Difference between the mixing ratio in the morning (AM) and in the afternoon (PM) are shown by hatching. Horizontal lines crossing the methane curves show the upper and bottom boundaries of the temperature inversion.

ごとく風の影響と解釈できる。高度 0.91 km でも同様の傾向が見られ、12月13日の増加量は10月8日と同じ程度(最大 20 ppbv)である。

大阪の中心難波上空のメタン濃度の午前、午後的高度分布を Fig. 13 に示す。図の中で分布曲線に交わる水平の短い直線は、気温の逆転層の下限及び上限をしめす。地上付近を除き気温の逆転層以下で午前から午後にかけて濃度の増加がみられる。

次にこの濃度差からメタンの発生量の見積を行なう。条件として気温の逆転層から上方へのメタンの拡散を無視し、さらに水平方向の移流も無視する。この条件で見積られた大阪市でのメタンのフラックスは12月13日では、 $0.011 \text{ g/m}^2/\text{hr}$ (一日に換算すると、 $0.267 \text{ g/m}^2/\text{day}$ 、また一年間に換算すると $97 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ となる)、10月8日では $0.0036 \text{ g/m}^2/\text{hr}$ (一日に換算すると $0.86 \text{ g/m}^2/\text{day}$ 、一年間に換算すると $31 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ となる) が得られる。

同様の計算を他の地点について行いその結果を10月8日については Fig. 14 に、また12月13日については Fig. 15 に示す。(両図では一年間に換算した値で示したがこれは他の報告と比較する便宜のためである。

両日も大阪市上空に極大があるがフラックスの値は12月が10月の2倍以上である。さらに両者の違いは12月には東側の柏原 (KAS)、枚方 (HIR) でマイナスの値を示すことである。これらの差異は主として風の分布の違いによるものと考えるのが妥当である。

上で得られたフラックスを他の報告と比較する。Sheppard et al. (1982)¹²⁾ のまとめた報告によると、最も大きなフラックスを与えるのは、湖・河・運河で平均 $102 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ で、次が淡水の沼地の $78.8 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ である。大阪市の12月の値はこれらに匹敵する。次に大きなフラックスは落葉樹林内湿地の $23.5 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ ¹²⁾ であるが、10月の大阪の値はこれに匹敵する。水田からのフラックスとしては、Cicerone et al. (1983)¹³⁾ は稲の生長期間の平均値として $0.25 \text{ g/m}^2/\text{day}$ を得ており、生長期 (100日間) の全量は 25 g/m^2 と報告している。また A.H-Pschon and Seiler (1986)⁷⁾ は稲の生長する140日間の平均とし

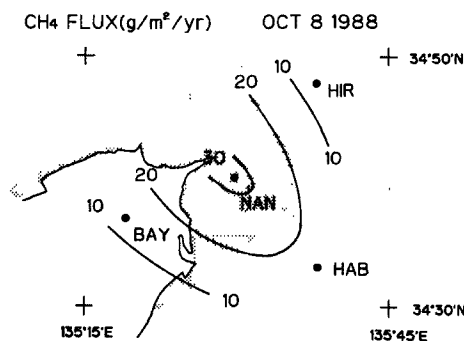


Fig. 14. Methane flux ($\text{g/m}^2/\text{yr}$) on 8 October 1988.

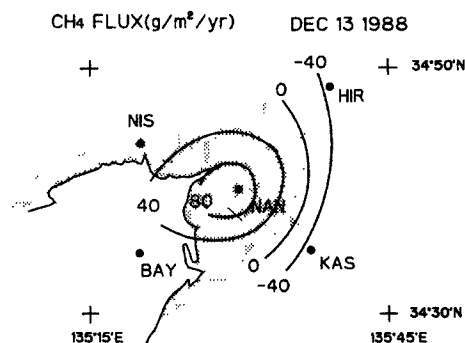


Fig. 15. Same as Fig. 14, except for 13 December 1988.

て $0.384 \text{ g/m}^2/\text{day}$ を、全量として $54 \text{ g/m}^2/\text{yr}$ を得ている。Harriss et al. (1985)¹⁴⁾ は Minnesota の泥炭地の夏のフラックスとして $0.337 \text{ g/m}^2/\text{day}$ を得ている。ツンドラ地帯の夏のフラックスとして Sebacher et al. (1986)¹⁵⁾ は $0.049 - 0.289 \text{ g/m}^2/\text{day}$ を報告している。

大阪で測定されたメタンのフラックスは生態系からの発生で最も大きな値に匹敵する。

4. 検 討

午前・午後のメタン濃度の分布の変化からフラックスを見積るさいに前提条件として、高度約 1.3–2.0 km に存在した気温の逆転層を通して上方へのメタンの輸送と水平方向のメタンの輸送は無視した。これらの条件が妥当であるかどうかを検討する。

まず上方への輸送についてであるが、Fig. 16 (12月13日)、Fig. 17 (10月8日) に大阪上空の発散

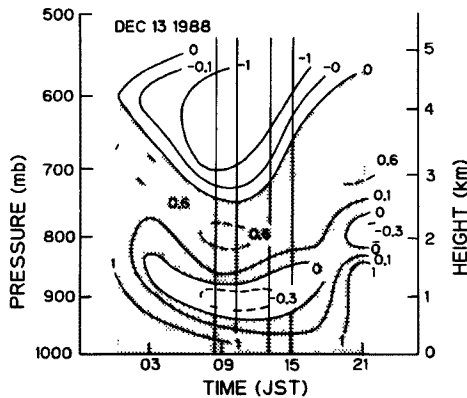


Fig. 16. Time cross section of horizontal divergence ($10^{-5}/\text{s}$) over Osaka on 13 December 1988. Shading shows the area where divergence is positive. Vertical parallel lines around 9h and 15h show the interval of the observation.

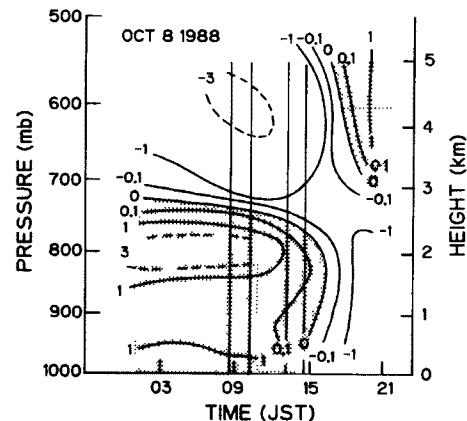


Fig. 17. Same as Fig. 16, except for on 8 October 1988.

($10^{-5}/\text{s}$) の時間断面図を示す。風速分布は米子、輪島、潮岬の高層観測資料からもとめた。鉛直の2本の平行線は午前・午後の観測の時間範囲を示し、また発散が正の領域に影をつけてある。

12月13日 (Fig. 16) では高度 1.5 km から 2.5 km (午前) – 3 km (午後) の範囲で発散が正である。Fig. 7 (a), (b)に見られる気温の逆転層の高度および相対湿度が急激に低下する高度と発散が正の高度範囲が一致している。このことはこの領域の大気は沈降していることを示す。(Fig. 7 (a), (b)で高度 1.5 km 付近に見られる相対湿度の極大は Fig. 16に見られる収束 (発散が負) に対応している。) したがって気温の逆転層を通過して輸送されるメタンの量は無視できる。

10月8日 (Fig. 17) の発散の断面図をみると高度 2.5 km 以下で発散 (正) それ以上で収束 (負) となっている。気温・湿度の正確な測定値が得られなかったが高度 1.3–2 km の気温逆転層の存在、高度 2 km 以上での相対湿度の減少 (図には示していない) を考慮すると、気温逆転層を通してのメタンの上方への輸送は無視できる。

次に大阪上空の風から水平方向の輸送を検討する。12月13日の場合は地上では午前8時から10時の平均風速は 1.3 m/秒であり、午後14時–16時の平均風速は 1.5 m/秒で午前と午後で風向は逆転している。高度 0.63 km の生駒山の風は8時から16時の間では平均風速は 1 m/秒以下で風向は西–北北西である。大阪での9時のパイロット観測によると、高度 0.5 km および 1.0 km では風向は北東、風速は各々 1 m/秒および 3 m/秒である。高度 1.5 km では風向北で、10 m/秒の極大風速をしめす。米子・輪島・潮岬の高層風から求めた大阪上空の15時の風速は高度 1.5 km 以下では 1 m/秒以下であり、2 km では約 3 m/秒である。メタン濃度が高いのは地上–1 km の高度

であり地上から発生したメタンを一定方向へ輸送する平均風速は1 m/秒以下とみてよい。すると午前と午後の観測の期間内(4.67時間)には水平方向に約17 km 移流することになる。(難波—柏原の距離が約16 km である。)地上付近の風向は午前、午後で逆になっていること、地上でメタン濃度が最大(難波での午後の場合を除き)であることを考慮すると大阪市の中心で放出されたメタンは観測期間内には我々の観測領域内にとどまっていたとみられる。

10月8日の場合は大阪の地上風は午前9時には北東4 m/秒、15時には北北東、6 m/秒であり、高度0.63 km の生駒山では8時から16時の間では風向は北東から北北西へ変わり風速は2-3 m/秒である。9時の大阪でのパイロット観測によると高度1.5 km 以下の平均風は北東10 m/秒である。定まった方向の強い風による輸送のため高度1 km 以下のメタン濃度は12月13日の場合より低く (Fig. 13), また午前から午後への濃度増加も小さい (Fig. 11 と Fig. 12 を比較)。

以上の検討からいえることは、12月13日の場合は地上から放出されたメタンは水平方向の輸送距離は小さくまた気温の逆転層を通しての上方への輸送も小さい。従って午前と午後の濃度差から求めたメタンのフラックスの値、 $0.267 \text{ g/m}^2/\text{day}$ は実際の値に非常に近い。10月8日の場合は地上付近の強い風のため水平方向の輸送が無視できないので同様な方法で求めた $0.086 \text{ g/m}^2/\text{day}$ は、実際の発生量より小さい。

謝 辞

試料空気の採取及びメタンの分析に対する高田久美子氏の協力および航空機観測についての昭和航空株式会社の協力に対し感謝します。本研究は63年度文部省科学研究費重点領域研究(課題番号63602522)の援助を受けて行なった。

参 考 文 献

- 1) Tricot, Ch and A. Berger: Modelling the equilibrium and transient responses of global temperature to past and future trace gas concentrations, *Climate Dynamics*, Vol. 2, 1987, pp. 39-61.
- 2) Ramanathan, V., L. Callis, R. Cess, J. Hansen, I. Isaksen, W. Kuhn, A. Lacis, F. Luther, J. Mahlman, R. Reck, and M. Schlesinger: Climate-chemical interactions and effects of changing atmospheric trace gases, *Rev. Geophys.*, Vol. 25, 1987, pp. 1441-1482.
- 3) Bruhl, C. and P. J. Crutzen: Scenarios of possible changes in atmospheric temperatures and ozone concentrations due to man's activities, estimated with a one-dimensional coupled photochemical climate model, *Climate Dynamics*, Vol. 2, 1988, pp. 173-203.
- 4) Khalil, M. A. K. and R. A. Rasmussen: Sources and sinks and seasonal cycles of atmospheric methane, *J. Geophys. Res.*, Vol. 88, 1983, pp. 5131-5144.
- 5) Ehhalt, D. H., R. J. Zander and R. A. Lamontagne: On the temporal increase of tropospheric CH_4 , *J. Geophys. Res.*, Vol. 88, 1983, pp. 8442-8446.
- 6) Stephens, E. R.: Tropospheric methane: Concentrations between 1963 and 1970, *J. Geophys. Res.*, Vol. 90, 1985, pp. 13076-13080.
- 7) Holzappel-Pschorn, A. and W. Seiler: Methane emission during a cultivation period from an Italian Rice Paddy, *J. Geophys. Res.*, Vol. 91, 1986, pp. 11803-11814.
- 8) Ehhalt, D. H. and U. Schmidt: Sources and sinks of atmospheric methane, *Pure Appl. Geophys.*, Vol. 116, 1978, pp. 452-464.
- 9) Logan, J. A., M. J. Prather, S. C. Wofsy and M. B. McElroy: Tropospheric chemistry: A global perspective, *J. Geophys. Res.*, Vol. 86, 1981, pp. 7210-7254.

- 10) Keller, M., W. A. Kaplan and S. C. Wofsy: Emissions of N_2O , CH_4 and CO_2 from tropical forest soils, *J. Geophys. Res.*, Vol. 91, 1986, pp. 11791 – 11802.
- 11) 高田久美子・村松久史: 大気メタン濃度の測定について, 京都大学防災研究所年報, 第 31 号, B-2, 1988, pp. 201 – 208.
- 12) Sheppard, J. C., H. Westberg, J. F. Hopper, K. Ganesan and P. Zimmerman: Inventory of global methane sources and their production rates, *J. Geophys. Res.*, Vol. 87, 1982, pp. 1305 – 1312.
- 13) Cicerone, R. G., R. D. Shetter and C. C. Delwiche: Seasonal variation of methane flux from a California rice paddy, *J. Geophys. Res.*, Vol. 88, 1983, pp. 11022 – 11024.
- 14) Harriss, R. C., E. Gorham, D. I. Sebacher, K. B. Bartlett and P. A. Flebbe: Methane flux from northern peatlands, *Nature*, Vol. 315, 1985, pp. 652 – 654.
- 15) Sebacher, S. I., R. C. Harriss, K. B. Bartlett, S. M. Sebacher and S. S. Grice: Atmospheric methane sources: Alaskan tundra bogs, an alpine fen, and a subarctic boreal marsh, *Tellus*, Vol. 38 B, 1986, pp. 1 – 10.