

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 4月30日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22310003

研究課題名（和文） 南極・グリーンランド氷床コアを用いた過去13万年間のメタン循環の解明

研究課題名（英文） A study of global methane cycle over the last 130 kyrs based on Antarctic and Greenland deep ice cores

研究代表者

中澤 高清 (NAKAZAWA TAKAKIYO)

東北大学・大学院理学研究科・名誉教授

研究者番号：30108451

研究成果の概要（和文）：南極ドームふじおよびグリーンランド NGRIP・NEEM で掘削された深層氷床コアを高時間分解能で分析し、過去13万年間にわたる大気中の CH₄ 濃度変動を復元した。得られた両極域における CH₄ 濃度差を大気モデルで解析することにより、自然起源 CH₄ 放出の時間空間変動を明らかにした。また、ドームふじコアについては CH₄ の δ¹³C と δD の分析も実施し、両者の時間変動を復元するとともに、それを基にして CH₄ 濃度に影響を及ぼしたと考えられる自然放出源を推定し、氷期-間氷期における CH₄ 濃度変動の解釈を行った。

研究成果の概要（英文）：Temporal variations of atmospheric CH₄ concentration over the last 130 kyrs were reconstructed from deep ice cores drilled at Dome Fuji, Antarctica and NGRIP and NEEM, Greenland. By analyzing the reconstructed differences of CH₄ concentration between north and south polar regions using an atmospheric model, spatiotemporal variations of CH₄ emissions from natural sources were closely examined. The values of δ¹³C and δD of atmospheric CH₄ were also reconstructed using the Dome Fuji deep ice core. Based on their temporal variations, causes of glacial/interglacial variations in atmospheric CH₄ were discussed especially in terms of changes in CH₄ emissions from natural sources.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2011年度	4,100,000	1,230,000	5,330,000
2012年度	3,900,000	1,170,000	5,070,000
総計	14,100,000	4,230,000	18,330,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：メタン、氷床コア、氷期、間氷期、物質循環

1. 研究開始当初の背景

CH₄ は、地球温暖化にとって CO₂ に次いで重要な気体である。大気中の CH₄ 濃度は、極域で掘削された氷床コアの分析から、産業革命

以前には約 700 ppb であったが、現在では2倍を超す 1750 ppb にまで達したことが明らかとなっている。氷床コア分析は、人間活動が無かったはるか昔の大気中の CH₄ 濃度も復

元することができ、最新の過去 80 万年に及ぶ分析によると、CH₄濃度は氷期に低く、間氷期に高く、気候と同期した変動を繰り返してきたことが明らかであり、CH₄濃度は自然界に存在する放出源の影響も強く受けていることを示している。しかしながら、さまざまな自然放出源からの CH₄ 放出の評価については不確定が大きく、またそれぞれの放出源が気候変動に対して如何に反応してきたか未だよく理解されていない。

2. 研究の目的

南極およびグリーンランドで掘削された深層氷床コアを分析し、大気中の CH₄ 濃度を、高分解能で過去 13 万年にわたって復元する。また、南極コアを用いて CH₄ の $\delta^{13}\text{C}$ と δD の時間変動を明らかにする。両極域のコアから得られた濃度を解析することにより、変動の特徴を詳細に明らかにするとともに、自然起源 CH₄ の放出が、氷期-間氷期といった大規模な気候変動と呼応して如何に変化したかを明らかにし、その原因を考察する。

3. 研究の方法

濃度と同位体の分析精度を向上させ、分析に供する氷床コア試料量の低減およびコア空気抽出の効率化のために計測技術の改良を図る。改良された技術を基に南極ドームふじおよびグリーンランド NGRIP・NEEM で掘削された氷床コアを分析し、過去 13 万年間にわたる CH₄ 濃度を高時間分解能で復元にする。ドームふじ氷床コアについては CH₄ の $\delta^{13}\text{C}$ と δD も分析する。また、消滅化学・輸送過程を含むボックスタイプの大気モデルを用いて、両コアから得られた CH₄ 濃度の南北差を解析し、自然起源 CH₄ の放出の時間空間変動を推定する。さらに、コアの $\delta^{18}\text{O}$ や本研究で復元された CH₄ の $\delta^{13}\text{C}$ と δD を基にして、CH₄ 濃度の変動の原因および気候との関わりについて検討・考察する。

4. 研究成果

本研究から得られた成果の概要は以下の通りである。

(1) 氷床コア試料からの空気抽出を効率化するために、新たな装置を製作するとともに、濃度分析に必要とするコア試料量を低減するために、現有設備であるガスクロマトグラフを改造し、サンプルループ内の試料空気が負圧であっても高精度の測定を可能とした。また、濃度の測定を終了した後、引き続き同位体比分析を可能とするために、残留試料を効率的に質量分析計に転送できる構造を有する容積 100 ml のサンプルチューブを新たに開発した。さらに、少量の試料について高精度の同位体比分析を実現するために、現有設備である連続フローガスクロマトグラフ

質量分析計 (GC-C/P-IRMS) の調整を行った。標準空気を用いて分析手順や精度を確認した結果、総合精度 (1σ) は、CH₄ 濃度については ± 3.6 ppb、 $\delta^{13}\text{C}$ については 0.49 ‰、 δD については 2.3 ‰と評価された。これらの精度は、関連要素の氷期-間氷期変動を復元するには十分である。

(2) 以上のような計測技術を用いて Eemian 間氷期から今日までの CH₄ 濃度の変動を復元するために、NGRIP コアについては 112 試料、NEEM コアについては 79 試料、ドームふじコアについては 114 試料の分析を行った。また、ドームふじコアについては、 $\delta^{13}\text{C}$ と δD のためにそれぞれ 31 試料が分析され、氷期-間氷期わたる変動を初めて復元した。グリーンランドコアから抽出された空気の年代は、氷床の流動モデルと圧密モデルを用いて推定し、ドームふじコアの氷年代は、表層から 800 m (約 4 万年前) までは氷床流動モデル、それ以下については抽出空気の O₂/N₂ 比を用いて推定し、氷と空気の年代差は圧密モデルにより計算した。

(3) グリーンランドコアから推定された CH₄ 濃度は、気温の指標となる氷の $\delta^{18}\text{O}$ と高い相関を持ち、氷期には 400~600 ppb、間氷期には 600~800 ppb を示した。また、CH₄ 濃度は、氷期から間氷期への移行期や Dansgaard-Oeschger イベントの昇温期において急激な上昇を示し、北半球の一時的な寒の戻りである Younger Dryas 期に対応する一時的な落ち込みも確認された。しかし、Holocene には気温がほぼ安定していたにもかかわらず、CH₄ 濃度は初期から中期にかけてゆっくりと 150 ppb ほど低下し、その後上昇するという変動が見られ、気温以外の要因が関わっていることが示唆された。同様な CH₄ 濃度の時間変動はドームふじコアからも得られたが、ドームふじコアの濃度は 380~720 ppb の範囲で変動しており、グリーンランドコアの方がほぼ常に高濃度であり、人間活動が無い時代においても濃度の南北勾配が存在していたことが明らかとなった。また、グリーンランドコアとドームふじコアの濃度差は、氷期最盛期には 0~30 ppb、Holocene には 25~70 ppb であり、寒冷な時期に比べて温暖な時期の方が濃度の南北差が大きいことが分かった。このことは、CH₄ の主要な放出源である湿地が北半球に偏在しているために、温暖期に湿地起源の CH₄ 放出が活発になり、それに伴って大気中の CH₄ 濃度の南北差が拡大したと考えられる。

(4) 北半球中高緯度、低緯度、南半球中高緯度を 3 つのボックスとする大気輸送モデルを用いて、グリーンランドコアとドームふじコアから復元された CH₄ 濃度の差を解析し、CH₄ 放出量の緯度・時間変動を推定した。その結果、Wisconsin 氷期においては熱帯の湿地

からの CH₄ 放出量は時間によらずほぼ一定であり、全球の CH₄ 濃度の変動を支配していた主たる要因は、北半球中高緯度の湿地からの CH₄ 放出の変化にあったことが示唆された。また、氷期最盛期に比べて、氷期の温暖期（亜間氷期）には北半球中高緯度の湿地からの CH₄ 放出量が 2~3 倍に増加していたことを示した。亜間氷期における CH₄ 放出量は、氷期最盛期に向かって減少しており、北半球の湿地が徐々に氷床に覆われたためと考えられ、それに伴って全球の CH₄ 濃度が低下したと推測される。北半球中高緯度が徐々に氷床に覆われたことは、コアから抽出した空気中の δ¹⁸O の分析結果が間氷期から氷期最盛期に向かって重くなっているという事実からも支持される。一方、氷期最盛期から Bølling/Allerød 期への CH₄ 濃度の急上昇や Younger Dryas 期の濃度の一時的な落ち込みには低緯度の CH₄ 放出源が寄与しており、その後の Preboreal 期への濃度上昇には、低緯度の放出源とともに、氷床の後退による北半球中高緯度の CH₄ 放出の強化が大きな役割を果たしている。CH₄ 濃度の低下が見られた Holocene 中期には、北半球中高緯度の CH₄ 放出には変化が見られておらず、低緯度からの放出が弱まっており、乾燥化に伴う熱帯の湿地からの CH₄ 放出が低下したためと思われる。

(5) ドームふじコアから得られた過去 13 万年の δ¹³C は、-50~-45 ‰ の範囲で変動しており、Wisconsin 氷期初期の -50 ‰ からゆるやかに上昇し、70 kyrBP 頃に -45 ‰ へと大幅な上昇を示した。その後、多少の変動を示しながら約 15 kyrBP まで高い値を維持し、5-6 kyrBP にかけて -47 ‰ まで急激に低下し、現在に向かって停滞あるいは漸増する傾向が見られた。一方、δD は -100~-55 ‰ の範囲で変動しており、Wisconsin 氷期初期の -100 ‰ から、比較的大きな変動を伴いながら、氷期最盛期の -70 ‰ に向かってゆるやかに上昇し、その後、Holocene の -90 ‰ へと減少する変動が見られた。

特にデータの密度が高い過去 2 万年に注目すると、Younger Dryas 期には、CH₄ 濃度と δ¹³C が負相関を示すことが分かった。その後、δ¹³C と濃度は共に 3 kyrBP まで減少し、再び緩やかに上昇していた。δD については、Younger Dryas 期には全く変化が見られなかったが、CH₄ 濃度が漸減している Holocene 初期から中期にかけて低下傾向を示しており、それ以降には濃度と δD の間に比較的明瞭な負相関が見られた。

(6) Eemian 間氷期から Wisconsin 氷期へ向かっては CH₄ 濃度が漸減し、δ¹³C と δD がゆるやかに上昇しているため、北半球中高緯度の湿地からの CH₄ 放出の減少が濃度変動の主要因と考えられる。Wisconsin 氷期から Termination を経て Holocene に至る期間につ

いては、まず δ¹³C が上昇するが、δD はほぼ一定であったので、この期間の変動の主要因としては、バイオマス燃焼による CH₄ 放出が考えられる。その後は、δ¹³C と δD がともに減少しているため、北半球中高緯度での氷床の後退に伴って湿地からの CH₄ 放出が増加したためと考えられる。

(7) 先行研究によって提案されている CH₄ の放出・消滅に係る同位体情報および量に関するシナリオを基に、Preindustrial Holocene、Wisconsin 氷期、Eemian 間氷期における δ¹³C と δD を推定した。その結果、Holocene においては、観測値と比べると、δ¹³C は 0.9 ‰ 重く、δD は 12.6 ‰ 軽く見積もられた。すなわち、δ¹³C は概ね一致しているが、δD は一致しているとは言えない。Wisconsin 氷期の δ¹³C は観測値に比べて 1.4 ‰ 重くなっていたが、δD はよく一致していた。一方、Eemian 間氷期では、δ¹³C の推定値は観測値より 2.6 ‰ 重くなっているが、δD はよく一致していた。これらの結果から、Preindustrial Holocene、Wisconsin 氷期、Eemian 間氷期のいずれの期間についても、従来の放出・消滅シナリオを見直す必要があることが判明した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 9 件)

(1) 中澤高清, 温室効果気体の変動と循環 ~ その理解に向けた研究の歩み~, 天気, 60, 査読有, 145-163, 2013.

(2) T. Umezawa, T. Machida, S. Aoki and T. Nakazawa, Contributions of natural and anthropogenic sources to atmospheric methane variations over Western Siberia estimated from its carbon and hydrogen isotopes, Global Biogeochem. Cycles, 査読有, 26, GB4009, doi:10.1029/2011GB004232, 2012.

(3) T. Umezawa, T. Machida, K. Ishijima, H. Matsueda, Y. Sawa, P. K. Patra, S. Aoki and T. Nakazawa, Carbon and hydrogen isotopic ratios of atmospheric methane in the upper troposphere over the western Pacific, Atmos. Chem. Phys., 査読有, 12, 8095-8113, doi:10.5194/acp-12-8095-2012, 2012.

(4) E. Witrant, P. Martinerie, C. Hogan, J. C. Laube, K. Kawamura, E. Capron, S. A. Montzka, E. J. Dlugokencky, D. Etheridge, T. Blunier and W. T. Sturges, A new multi-gas constrained model of trace gas non-homogeneous transport in firn: evaluation and behaviour at eleven polar sites, Atmos Chem Phys, 査読有, 12, 11465-11483, Doi 10.5194/Acp-12-11465-2012, 2012.

(5) 中澤高清, 過去数十万年にわたる温室効果

ガス変動の復元, 計測と制御, 査読有, 50, 869-876, 2011.

(6) T. Umezawa, S. Aoki, Y. Kim, S. Morimoto, and T. Nakazawa, Carbon and hydrogen stable isotopic ratios of methane emitted from wetlands and wildfires in Alaska: aircraft observations and bonfire experiments, *J. Geophys. Res.*, 査読有, 116, D15305, doi.10.1029/2010JD015545, 2011.

(7) T. Kobashi, K. Kawamura, J. P. Severinghaus, J. M. Barnola, T. Nakaegawa, B. M. Vinther, S. J. Johnsen, and J. E. Box, High variability of Greenland surface temperature over the past 4000 years estimated from trapped air in an ice core, *Geophys. Res. Lett.*, 査読有, 38, 2011.

(8) C. Buizert, P. Martinerie, V. V. Petrenko, J. P. Severinghaus, C. M. Trudinger, E. Witrant, J. L. Rosen, A. J. Orsi, M. Rubino, D. M. Etheridge, L. P. Steele, C. Hogan, J. C. Laube, W. T. Sturges, V. A. Levchenko, A. M. Smith, I. Levin, T. J. Conway, E. J. Dlugokencky, P. M. Lang, K. Kawamura, T. M. Jenk, J. W. C. White, T. Sowers, J. Schwander, and T. Blunier, Gas transport in firn: multiple-tracer characterisation and model intercomparison for NEEM, Northern Greenland, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 査読有, 11, 15975-16021, 2011.

(9) 森本真司, 石戸谷重之, 石島健太郎, 八代尚, 梅澤拓, 菅原敏, 橋田元, 青木周司, 中澤高濤, 山内恭, 南北両極域における大気中の温室効果気体と関連気体の変動, *南極資料*, 査読有, 54, 374-409, 2010.

[学会発表] (計21件)

(1) A. Ghosh, P. K. Patra, K. Ishijima, S. Morimoto, K. Kawamura, S. Sugawara, A. Ito, S. Aoki and T. Nakazawa, Global methane simulation for the period 1910-2010 using atmospheric general circulation model based chemistry transport model, Third International Symposium on the Arctic Research, Tokyo, January 16, 2013.

(2) K. Ishijima, P. K. Patra, A. Ghosh, S. Morimoto, T. Machida, M. Sasakawa, Y. Tojima, A. Ito, S. Aoki and T. Nakazawa, Model resolution comparison for methane simulation in the Arctic region, Third International Symposium on the Arctic Research, Tokyo, January 16, 2013.

(3) S. Sugawara, T. Umezawa, T. Sugiyama, K. Kawamura, S. Morimoto, S. Aoki and T. Nakazawa, Reconstruction of past variations of $\delta^{13}\text{C}$ and δD in atmospheric CH_4 from its vertical distribution observed in NGRIP firn, Third International Symposium on the Arctic Research, Tokyo, January 15, 2013.

(4) K. Kawamura, S. Aoki, T. Nakazawa, F. Parrenin, K. Suzuki, R. Uemura, A. Abe-Ouchi

and H. Motoyama, Climatic and atmospheric histories over the past 700,000 years from the Dome Fuji deep ice core, Antarctica, 第3回極域科学シンポジウム, 東京, 2012年11月28日.

(5) K. Kawamura, S. Aoki, T. Nakazawa, F. Parrenin, K. Suzuki, R. Uemura, A. Abe-Ouchi, M. Raymo, Accurately dated 700,000-year climatic record from the Dome Fuji ice core, Antarctica, International Partnerships in Ice Core Sciences First Open Science Conference, Presqu'île de Giens, Côte d'Azur, France, October 4, 2012.

(6) K. Kawamura, S. Aoki, T. Nakazawa, K. Matsumoto, H. Nakata, H. Matsushima, Y. Kikuchi, H. Motoyama, Y. Fujii, O. Watanabe, Climatic and atmospheric histories over the past 700,000 years from the Dome Fuji deep ice core, Antarctica, G-COE 2012 Symposium, Sendai, September 25-28, 2012.

(7) T. Umezawa, T. S. Sugawara, T. Sugiyama, K. Kawamura, S. Aoki, and T. Nakazawa, Histories of atmospheric methane and its carbon and hydrogen isotopic ratios over the last 250 years obtained from an ice core and firn air, EGU General Assembly 2012, Vienna, Austria, April 24, 2012.

(8) K. Kawamura, S. Aoki, T. Nakazawa, K. Suzuki, and F. Parrenin, Accurate age scale of the Dome Fuji ice core, Antarctica from O_2/N_2 ratio of trapped air, EGU General Assembly, Vienna, Austria, April 22, 2012.

(9) 青木周司, 森本真司, 橋田元, 菅原敏, 八代尚, 石戸谷重之, 梅澤拓, 山内恭, 中澤高濤, 極域における温室効果気体の観測, 第2回極域科学シンポジウム, 立川, 2011年11月14日.

(10) 森本真司, 梅澤拓, 青木周司, 中澤高濤, 北極域における大気中メタン濃度と同位体比の変動, 第2回極域科学シンポジウム, 立川, 2011年11月14日.

(11) 川村賢二, 青木周司, 中澤高濤, 気泡空気の酸素濃度を用いたドームふじ氷床コアの正確な年代決定, 第2回極域科学シンポジウム, 立川, 2011年11月14日.

(12) 川村賢二, 青木周司, 中澤高濤, 阿部彩子, 齋藤冬樹, ドームふじ氷床コアの O_2/N_2 年代から見た間氷期のタイミングと長さ, 第四紀学会2011年大会, 徳島, 2011年8月27日.

(13) K. Kawamura, F. Parrenin, S. Aoki, T. Nakazawa, K. Suzuki, A. Abe-Ouchi and F. Saito, Timing and duration of the last four interglacial periods in marine $\delta^{18}\text{O}$ constrained by the Dome Fuji ice core, Antarctica, INQUA Congress, Bern, Switzerland, July 24, 2011.

(14) 川村賢二, 青木周司, 中澤高濤, 阿部彩子, 齋藤冬樹, 鈴木香寿恵, 南極ドームふじ氷床コアの O_2/N_2 年代による北大西洋の海底

コア年代の束縛，地球惑星科学連合2012年大会，幕張，2012年5月23日。

(15) 川村賢二，青木周司，中澤高清，氷床コアから見た南北気候のつながり，日本気象学会春季大会シンポジウム「変動する地球気候の鍵－南極・北極－」，東京，2011年5月20日。

(16) S. Morimoto，T. Umezawa，L. Huang，S. Aoki，T. Nakazawa and T. Yamanouchi，Interannual variations of the atmospheric methane concentration and its stable isotopes observed at Ny Aalesund, Svalbard and Churchill, Canada. 2nd International Symposium on Arctic Research, Tokyo, December 8, 2010.

(17) 青木周司，森本真司，橋田元，菅原敏，八代尚，石戸谷重之，梅澤拓，山内恭，中澤高清，極域における温室効果気体の観測，第1回極域科学シンポジウム，立川，2010年12月2日。

(18) K. Kawamura，S. Aoki，T. Nakazawa and A. Abe-Ouchi，Timing and duration of the last four interglacial periods, 3rd workshop of PAGES working group on past interglacial climates (PIGS), New York, USA, October 21, 2010.

(19) 青木周司，川村賢二，中澤高清，松本康志，仲田久和，松島寛尚，菊地佑斗，本山秀明，藤井理行，渡辺興亜，ドームふじ深層氷床コアから求められた過去72万年間の大気成分の変動，日本雪氷学会，平成22年度秋季大会，仙台，2010年9月27日。

(20) K. Kawamura，S. Aoki，T. Nakazawa，J. Severinghaus，A. Abe-Ouchi and F. Saito，Greenhouse gases, nitrogen, oxygen and noble gas variations over glacial-interglacial cycles, 10th International Conference on Paleoclimatology, La Jolla, USA, September 3, 2010.

(21) K. Kawamura and the Dome Fuji Ice Core Project Members，Millennial-scale climatic changes during the last seven glacial periods: perspective from the Dome Fuji ice core records, PAGES Regional Workshop, Nagoya, June 6, 2010.

[図書] (計1件)

(1) 川村賢二 (共著)，極地研ライブラリー，アイスコア-地球環境のタイムカプセル-，85-100 & 153-167，268，成山堂書店，2011.

[その他]

ホームページ等

<http://tgr.geophys.tohoku.ac.jp/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

中澤 高清 (NAKAZAWA TAKAKIYO)

東北大学・大学院理学研究科・名誉教授
研究者番号：30108451

(2) 連携研究者

青木 周司 (AOKI SHUJI)

東北大学・大学院理学研究科・教授

研究者番号：00183129

森本 真司 (MORIMOTO SHINJI)

国立極地研究所・研究教育系・准教授

研究者番号：30270424

川村 賢二 (KAWAMURA KENJI)

国立極地研究所・研究教育系・准教授

研究者番号：90431478

梅澤 拓 (UMEZAWA TAKU)

東北大学・大学院理学研究科・特別教育研究教員

研究者番号：00570508

(2012年10月より研究協力者)