

平成 22 年 6 月 30 日現在

研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19710025
 研究課題名（和文） 化学気候モデル及び同位体を用いた北半球高緯度域における一酸化二窒素循環の解明
 研究課題名（英文） Elucidation of nitrous oxide cycles at high-latitudes in the northern hemisphere using a chemistry climate model and isotopes
 研究代表者
 石島 健太郎（ISHIJIMA KENTARO）
 独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境変動領域・ポストドクトラル研究員
 研究者番号：90399494

研究成果の概要（和文）：地表付近における大気中 N_2O 濃度変動への成層圏の影響を N_2O 安定同位体を用いて調べることを目的として、 N_2O 同位体モデルを開発し、大気球により観測された成層圏における N_2O 同位体比の高度分布をほぼ再現できるようになった。さらに、新たにモデル中で成層圏 N_2O に印（タグ）を付けて成層圏起源の N_2O を区別するタグ付き計算法を開発し、航空機観測データと比較することにより対流圏大気中の N_2O 濃度の季節変化における成層圏の影響を見積もった。

研究成果の概要（英文）：We have developed a nitrous oxide (N_2O) isotope model, for the purpose of estimating the stratospheric influences on N_2O concentration variations at the surface using the isotopes, and could successfully reproduce vertical profiles of N_2O isotope ratios in the stratosphere observed by balloons. Additionally, we have newly develop a method to tag the stratospheric N_2O and separate the stratospheric N_2O in the model, and estimated the stratospheric influences on N_2O seasonal cycles in the troposphere, by comparing with the aircraft observations.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	1,600,000	0	1,600,000
2008年度	900,000	270,000	1,170,000
2009年度	800,000	240,000	1,040,000
総計	3,300,000	510,000	3,810,000

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：一酸化二窒素、同位体、同位体モデル、成層圏-対流圏交換、季節変動、航空機観測

1. 研究開始当初の背景

近年、二酸化炭素 (CO_2) を始めとする温室効果気体の増加による大幅な気候変動が危惧されている。中でも一酸化二窒素 (N_2O) は CO_2 の 300 倍の温室効果能力を持つ温室効果気体であると同時に、成層圏では一酸化窒素 (NO) 生成を通してオゾン破壊にも関

与しているため、地球環境にとって極めて重要な気体である。大気中 N_2O 濃度は、農地における窒素肥料使用や化石燃料燃焼などの人為的 N_2O 放出により産業革命以後増加し続けている。このような N_2O 増加は食糧生産と直結しており、また大気中での寿命も約 120 年と非常に長いため、将来的にも放射収

支と大気化学の両面において影響を及ぼし続けると考えられる。N₂Oの主な人為放出源は農業活動であり、消滅源は成層圏における光化学反応であるということは知られているが、全球的なN₂O循環や人為・自然放出源の定量的な理解は未だ不十分である。

大気中N₂O濃度の観測は1970年代後半から行われているが、最近は特に観測サイト数の増加と測定精度の向上がめざましい。その結果、大気中N₂O濃度の変動には、人為的N₂O放出による経年的な増加に加えて、より短周期の年々変動や、北半球高緯度においては夏から秋にかけて極小となる明瞭な季節変動があることが明らかとなってきた。しかし、N₂Oの季節変動については、成層圏のN₂O低濃度気塊が地表付近に運ばれてくるためと推測されているが、詳細は不明である。また、N₂Oフラックスの季節変動や対流圏内における南北方向の大気交換なども原因と考えられているが、それらの寄与は全く分かっていない。

濃度に加え、放出源の研究も行われてきている。N₂O放出源ごとあるいは地域ごとのN₂Oフラックスを全球にわたって定量化することは非常に重要であるため、これまでチャンパー法などを用いて直接測定し、ボトムアップ的に全球に拡張する方法がとられてきた。しかし、この方法ではN₂Oフラックス測定の誤差が全球値に直接反映されるため、定量化に大きな不確定性を伴う。そこで最近注目されているのが、大気中のN₂O濃度から3次元大気輸送モデルを用いてトップダウン的に地表N₂Oフラックスを推定する「逆計算法」である。逆計算によるCO₂フラックス推定は既に良く知られているが、N₂Oに関しては未だに1例報告されているのみである(Hirsh et al., 2006)。逆計算法においては、「地表フラックス(放出・吸収両方)」と「大気輸送」の2つの要素が大気中濃度を変動させていることを考慮して、濃度のモデル計算値と観測値の差が最小になるように地表フラックスを調整する。しかし、N₂Oの場合消滅源は成層圏にあり、そこでのN₂O低濃度気塊が地表にまで到達することにより地表N₂O濃度に影響を与える。従って、N₂Oの逆計算を行う際は、濃度観測値に含まれている成層圏の影響を差し引かないと、地域ごとに成層圏影響の強弱に応じたバイアスが生じ、得られるフラックスの水平分布は非現実的なものとなる。この効果を補正するためには地表N₂O濃度への成層圏の影響の定量的評価が必要不可欠である。

以上を踏まえ本研究では、大気大循環モデルに成層圏N₂O光化学反応を組み込んだ化学・気候結合モデルを用い、北半球高緯度の地表付近で見られる大気中N₂O濃度変動への成層圏大気の影響を定量的に評価するこ

とを目指す。さらに本研究では、濃度に加えてN₂Oの安定同位体も用いる。同位体(実際には存在量比である「同位体比」)を測定するのは放出源や反応経路の情報を数値として記録しているため、物質の起源を特定する上で非常に強力な道具となる。本研究代表者がこれまで行ってきたN₂O濃度及び安定同位体比の分析装置開発・分析・データ解析の経験と、現在携っている数値シミュレーションの技術を生かして、N₂O循環を多方面から総合的に考察する。

2. 研究の目的

現在使用している化学・気候結合モデルは全成層圏をカバーしており(鉛直67層、高度約90km)、オゾンを含むN₂O消滅に関する全反応が組み込まれている。地表N₂O放出源(インベントリー)としてGEIA(Global Emission Inventory Activity)やEDGAR(Emission Database for Global Atmospheric Research)を入力し、また気象データ(ECMWF: European Centre for Medium-Range Weather Forecasting及びNCEP2: National Center for Environmental Prediction/Department of Energy 2)によるNudgingと呼ばれる気象データ同化技術を用いたシミュレーションを行った結果、成層圏濃度は気球観測データ・衛星データと比較しても良い一致が得られており、本モデルの成層圏における力学過程・反応スキームの妥当性は既に確認されている。対流圏についてもNOAA/GMD(National Oceanic and Atmospheric Administration/Global Monitoring Division)、AGAGE(Advanced Global Atmospheric Gases Experiment)及び東北大学のデータと比較した結果、全球的な濃度分布はほぼ一致しており、また北半球高緯度域における季節変動もモデルでよく再現された。これは本モデルのN₂O反応スキームや成層圏-対流圏交換を含めた力学過程が現実的であることを意味している。

上記を踏まえた上で、1年目は成層圏N₂Oに印(タグ)を付けて成層圏起源のN₂Oを区別する技術を完成させる。これを用いて、対流圏N₂O濃度の季節変動をモデルでシミュレートし、北半球高緯度域における成層圏N₂Oの寄与を定性的・定量的に評価する。また、対流圏N₂O濃度の年々変動に対する成層圏及び放出源の寄与についても検討する。

2年目は、本モデルにN₂OのNとOの同位体を組み込む。東北大学が主導する成層圏大気球観測から東工大が得たN₂O同位体比データや、申請者が蓄積しつつある北極ニューオルスン基地におけるN₂O濃度及び同位体比データが利用可能であるため、モデル結果を比較・検証する。同時に、タグ法によって地

表における N_2O 同位体比への成層圏影響も定性的・定量的に評価する。

3年目は、濃度・同位体のシミュレーション及び観測データを用いた総合的解析を行う。同位体収支計算が可能なボックスモデルを利用して、成層圏以外の寄与、すなわち地表 N_2O 濃度・同位体比変動に対する地表フラックスの寄与も推定する。

3. 研究の方法

本研究で使用するモデルは、大気循環モデルに成層圏における N_2O とオゾンの光化学反応を組み込んだ化学・気候結合モデル (CCSR/NIES/FRCGC AGCM v5.7) (Takigawa et al., 1999) である。分解能は水平: T42 (約 $2.8^\circ \times 2.8^\circ$)、鉛直: 67層 (0~90 km) で、地上から中間圏までをカバーする。 N_2O 濃度計算についてはすでに地上観測および成層圏における衛生あるいは気球による観測値と比較してほぼ妥当な結果が得られている。本研究では、上記モデルを用いて (1) N_2O 同位体モデル、(2) タグ付き計算スキーム、の開発を行った。以下にそれらの詳細を記す。

(1) N_2O 同位体モデル

モデル計算は、存在量が多く測定も多く行われている、 $^{14}N^{14}N^{16}O$ (質量数 44)、 $^{14}N^{15}N^{16}O$ (質量数 45, α)、 $^{15}N^{14}N^{16}O$ (質量数 45, β)、 $^{14}N^{14}N^{18}O$ (質量数 46) の4種について行った。このうち質量数 45 は2種あるがこれらは ^{15}N の位置が違う。このような分子位置置換種の同位体をアイソトポマーと呼ぶ。これら3種の同位体の存在量は質量数 44 の種に対する比の標準値からのずれで表し、それぞれ $\delta^{15}N^\alpha$ 、 $\delta^{15}N^\beta$ 、 $\delta^{18}O$ とパーミル単位 (千分率, ‰) で表す。また2つの $\delta^{15}N$ の平均値を $\delta^{15}N^{Bulk}$ と表す。

本研究以前の開発段階において、成層圏における N_2O 同位体比の過小評価はモデルの光分解反応計算における波長分解能の低さが主要因と推測していた。そこで本研究ではその改善を目的とした。これまで N_2O の光分解計算は波長帯 185-200nm、200-230nm、230-278nm の3バンドで行われていたが

(Model 1)、IPCC 第5次報告書用に開発されていた MIROC モデル (v4.0) の新放射・化学計算スキーム部分のみを導入することにより、新たに 217nm における区切りが加わり、4バンドで光分解反応計算が行われるよう変更を加えた (Model 2)。結果は大きく改善したが、依然として過小評価を示した。そこで次に、オゾンと N_2O の吸収断面積のパラメタライズの方法に変更を加えた (Model 3, 4, 5) 変更した。これにより、成層圏の N_2O アイソトポマー比をほぼ再現するようになった (図1)。ここで濃度が高度とともに増加するのは、主には紫外線による光化学反応に

より N_2O が壊されているためである。同位体比が増加しているのは反応時に強く同位体分別を受けするためである (軽い同位体が優先的に反応する)。

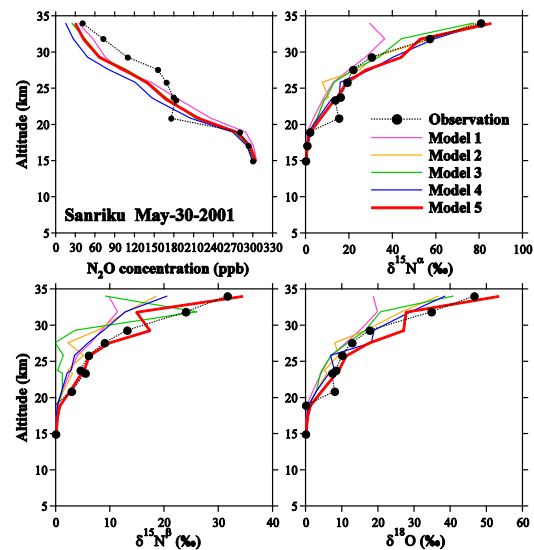


図1 三陸上空における気球観測から得られた N_2O 濃度と各アイソトポマー比の高度分布とそれらのモデル計算結果の比較。黒丸は観測、線はモデル結果を表す。

(2) タグ付き計算手法

対流圏中の N_2O の変動に対する成層圏の影響、すなわち図1のように成層圏では N_2O 濃度高度とともに減少しているが、その成層圏気塊が対流圏に流入することで対流圏 N_2O 濃度を薄める効果を検証するために、成層圏の N_2O にタグを付けて対流圏中でそれを追跡できる手法を開発した。具体的には、まず通常通り計算される N_2O の圏界面より上の部分を別の第一の成層圏トレーサー (ST) として定義する。第二の成層圏トレーサーも同様に定義するが、圏界面より上の濃度は対流圏濃度で置き換える (STT)。これら通常の N_2O と2つの成層圏トレーサーを毎計算タイムステップ毎に更新しながらオンライン計算することで、2つの成層圏トレーサーが対流圏に流入してくるようすが捉えられる。この時 STT のほうが濃度が高いためより多く流入する。STT は成層圏における N_2O 濃度が対流圏と同じだった場合の流入量を表すため、ここで $-(STT-ST)$ は対流圏 N_2O 変動に対する正味の影響とみなせる (負とするのは濃度を下げる方向に働くため)。

4. 研究成果

(1) 地表における N_2O 同位体変動の推定
本研究で開発した N_2O 同位体モデルを用いて地表観測ステーション、ニーオルスン ($79^\circ N, 12^\circ E$) における N_2O 濃度および同位体比の変動を計算した。図2から N_2O 濃度は比較的よく再現できていることがわかる。冬から春にかけて極大、夏に極小となる季節変

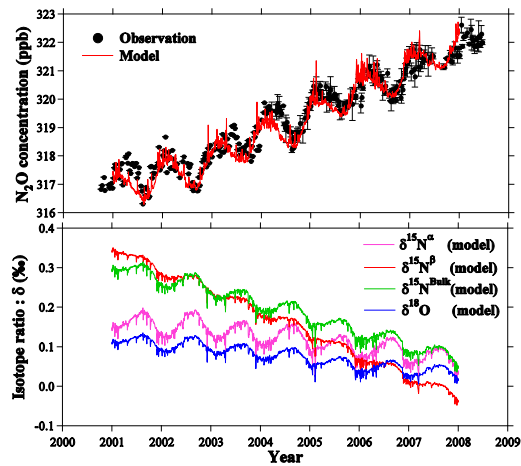


図2 ニーオルスン (79°N, 12°E) における濃度の観測値およびモデル計算値 (上段) と各同位体比のモデル計算 (下段)。 $\delta^{15}\text{N}^{\alpha}$ 、 $\delta^{15}\text{N}^{\beta}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{15}\text{N}^{\text{Bulk}}$ はそれぞれ -15.6、+2.7、-6.4、-44.6‰ のオフセットを加えてある。

動や、経年増加は妥当な結果を示している。同位体比は観測結果がないが、経年減少する傾向や、濃度とは逆の夏に極大、冬から春にかけて極小となる季節変動が計算されている。経年減少は放出される N_2O の同位体比値が対流圏大気中の値より低いためである (Ishijima et al., 2007)。地表の同位体放出にはこれを考慮して経年変化は与えてあるが季節変化は与えていない。従ってモデル計算された対流圏の同位体比の季節変動は主に成層圏の影響により生じていると考えられる。夏の濃度減少が成層圏の影響だとすると、同位体比は増加しているため、図1の高度分布から考えると整合的である。しかしここで注目すべきはその季節変動の振幅である。Ishijima et al. (2007)による測定精度は $\delta^{15}\text{N}^{\text{Bulk}}$ が 0.1‰、 $\delta^{18}\text{O}$ が 0.2‰ であるが、計算では 0.05‰ 程度の季節変動振幅しか見られない。これは同位体比を測定しても成層圏影響のシグナルを得ることは非常に難しいということを示している。この結果から、本研究において同位体を用いて成層圏影響を見積もるというアプローチについては再考を要するという結論に至った。

(2) タグ付き計算手法を用いた成層圏影響の評価

(1) の結果を受けて、次に航空機観測で得られた地表付近～上部対流圏の N_2O 濃度変動をモデル計算結果と比較し、さらにタグ法を用いてその季節変動における成層圏影響を調べるという解析を行った。

ここでは西シベリアのスルグート (61°N, 73°E)、日本 (34–38°N, 130–141°E)、ケープグリム (41°S, 145°E) の上空で行われた 3 セットの航空機観測データを用いた。観測期間はいずれも 3 年以上であり、季節変動を調べる上で統計的信頼性は十分と考え

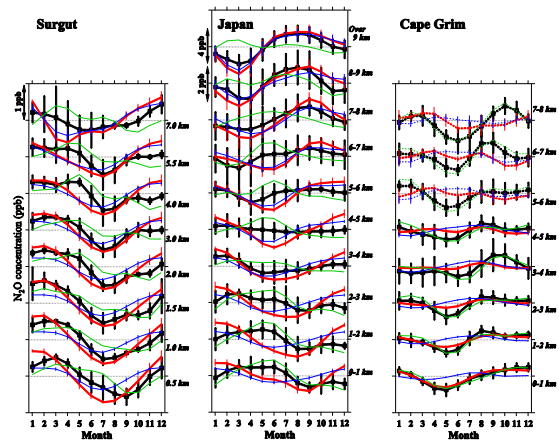


図3 各ステーション上空における航空機観測から得られた高度毎の観測値、モデル計算値、成層圏影響の季節変動。対流圏影響 (観測値－成層圏影響) も示してある。ケープグリム上空 5 km 以上は観測データ数が少なく統計的信頼性が低い点線で示してある。

られる。図3に各ステーションにおける高度毎の観測値、モデル計算値、成層圏影響の季節変動を示す。対流圏影響 (観測値－成層圏影響) も示しているが、これは対流圏内の輸送に加え、地表放出の影響もある程度反映していると考えられる。

スルグート上空では夏に極小となる明瞭な季節変動が見られるが、モデルもそれらを比較的よく再現している。成層圏影響も観測、モデルと同様な変動を示しており、このことからスルグート上空における季節変動は成層圏からの N_2O 低濃度空気の影響により形成されている可能性が高いといえる。一方南半球のケープグリム上空では成層圏影響は不明瞭あるいは弱いことが分かる。高度 3 km 以下の結果を見ると観測・モデル・対流圏影響がよく一致している。モデル計算では海洋からの N_2O 放出にしか季節変動を与えていないため、本結果はおそらく海洋からの放出量の季節変動が濃度変動を駆動しているということを示している。日本上空は前者二つと異なっている。高度 7 km 以上では成層圏の影響が非常に強く支配的である。これはこの地域では亜熱帯ジェットや極ジェットの活動が活発なため圏界面高度の変動や圏界面褶曲が生じて成層圏空気が入りやすいためと考えられる。その効果は春に強まり、成層圏影響を含めたモデル計算結果はそれらをよく捉えている。高度 3 km 以下では対流圏影響から判断すると春から初夏にかけて地表放出が強まる可能性を示している。しかもそれらのモデルによる再現性は良くない。この付近は大陸の強い N_2O 放出源の影響下にあるが、モデル計算では陸上放出に季節変動を与えていないことが要因と考えられる。背景でも述べたように N_2O の地表放出の季節変動は未だによく理解されてい

ないため、今後この分野の研究は必要不可欠と考えられる。

以上を簡潔にまとめると、スルグート上空では成層圏影響が主な変動要因で、日本上空では上部対流圏では成層圏、下部対流圏では地表放出の影響が強く、ケープグリムでは海洋からの放出の影響が強いことが本研究から分かった。

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 2 件)

- ① Kentaro Ishijima, Prabir K. Patra, Toshinobu Machida, Hidekazu Matsueda, Yosuke Sawa, Masayuki Takigawa, Takakiyo Nakazawa, N₂O behavior between the lower stratosphere and the surface suggested by aircraft observations and model, Fifth International Symposium on Non-CO₂ Greenhouse Gases extended abstract, 査読なし、2009
- ② Kentaro Ishijima, Sakae Toyoda, Masayuki Takigawa, Prabir K. Patra, Takakiyo Nakazawa, Shuji Aoki, Shinji Morimoto, Chisato Yoshikawa, Satoru Arihara, Naohiro Yoshida, Three-dimensional model simulation of atmospheric nitrous oxide isotopes: comparison with balloon-observed profiles and estimation of the stratospheric effect on the surface, The 4th International Symposium on Isotopomers extended abstract, 査読なし、2008

[学会発表] (計 11 件)

- ① Ishijima K., S. Toyoda, K. Sudo, C. Yoshikawa, S. Nanbu, S. Aoki, T. Nakazawa and N. Yoshida, Development of atmospheric N₂O isotopomers model based on a chemistry-coupled atmospheric general circulation model, AGU Fall Meeting, San Francisco, U.S.A., 2009 年 12 月 15 日
- ② Ishijima K., S. Sugawara, K. Kawamura, G. Hashida, S. Morimoto, S. Murayama, S. Aoki and T. Nakazawa, Temporal variations of the atmospheric nitrous oxide concentration and its $\delta^{15}\text{N}$ and $\delta^{18}\text{O}$ for the latter half of the 20th century reconstructed from firn air analyses, The 2nd international symposium on Dome Fuji ice core and related topics, Tokyo, Japan, 2009 年 11 月 18 日
- ③ 石島健太郎、豊田栄、吉川知里、須藤健悟、南部伸孝、青木周司、中澤高、吉田尚弘、「N₂O アイソトポマー化学輸送モデルの開発」、第 15 回大気化学討論会、つくば、2009 年 10 月 21 日

- ④ Ishijima K., P. K. Patra, M. Takigawa, T. Machida, H. Matsueda, Y. Sawa, T. Nakazawa and S. Aoki, N₂O behavior between the lower stratosphere and the surface suggested by aircraft observation and model, Fifth International Symposium on Non-CO₂ Greenhouse Gases, Wageningen, Netherlands, 2009 年 7 月 1 日
- ⑤ 石島健太郎、Prabir K. Patra、町田敏暢、松枝秀、澤庸介、滝川雅之、中澤高、青木周司、「地表—上部対流圏における大気中一酸化二窒素濃度の季節変動 ~ 航空機観測およびモデル計算結果の解析 ~」、日本気象学会 2009 年度春季大会、つくば、2009 年 5 月 28 日
- ⑥ Kentaro Ishijima, Prabir K. Patra, Toshinobu Machida, Hidekazu Matsueda, Yosuke Sawa, Masayuki Takigawa, Takakiyo Nakazawa and Shuji Aoki, Nitrous oxide seasonal variations between the surface and the upper troposphere, 日本地球惑星科学連合 2009 年大会、幕張、2009 年 5 月 18 日
- ⑦ 石島健太郎、豊田栄、滝川雅之、中澤高、森本真司、吉川知里、在原悟、吉田尚弘、モデル計算による大気中 N₂O 同位体時空間変動の推定、第 14 回大気化学討論会、横浜、2008 年 10 月 30 日
- ⑧ Kentaro Ishijima, Sakae Toyoda, Masayuki Takigawa, Prabir K. Patra, Takakiyo Nakazawa, Shinji Morimoto, Approaches to three-dimensional simulation of atmospheric nitrous oxide isotopes by a chemistry-coupled atmospheric general circulation model, IGAC 10th International Conference, Annecy, France, 2008 年 9 月 10 日
- ⑨ Ishijima K., T. Nakazawa, S. Aoki, P. K. Patra and M. Takigawa, Latitudinal patterns of N₂O concentration variations over the northern and western Pacific for 1992-2006, AGU Fall Meeting, San Francisco, U.S.A., 2007 年 12 月 12 日
- ⑩ 石島健太郎、Patra Prabir、滝川雅之、中澤高、青木周司、町田敏暢、森本真司、大気中 N₂O 濃度への自然土壌・海洋及び人為放出源からの N₂O 放出の影響：AGCM シミュレーションを用いた考察、日本地球惑星科学連合 2007 年大会、幕張、2007 年 5 月 21 日
- ⑪ Ishijima K., P. K. Patra, M. Takigawa, K. Miyazaki, T. Nakazawa, T. Machida and S. Morimoto, Effect of atmospheric transport on seasonal and interannual variations in the atmospheric nitrous oxide concentration, EGU General Assembly Meeting 2007, Vienna, Austria, 2007 年 4 月 19 日

6. 研究組織

(1) 研究代表者

石島 健太郎 (ISHIJIMA KENTARO)
独立行政法人海洋研究開発機構・地球環境
変動領域・ポストドクトラル研究員
研究者番号：90399494

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者