

令和 4 年 6 月 13 日現在

機関番号：11302

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19K03963

研究課題名（和文）マルチクロックトレーサーを用いた成層圏大気年齢の観測

研究課題名（英文）Measurements of age of air by multi-clock tracers in stratosphere

研究代表者

菅原 敏（Sugawara, Satoshi）

宮城教育大学・教育学部・教授

研究者番号：80282151

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：補助事業期間の2年目である2020年7月に、成層圏大気の採取を目的とした気球実験を北海道大樹町において実施した。予定した全ての高度で空気サンプルを採取することができ、気球実験は成功した。この成層圏大気サンプルを用いて、合計20種類以上の気体濃度や同位体の分析を実施した。その結果、従来からのクロックトレーサーであるCO<sub>2</sub>、SF<sub>6</sub>に加えて、CO<sub>2</sub>の炭素同位体比、ハロカーボン類からも平均年代の推定が可能となり、マルチクロックトレーサーによる平均年代の推定という目標は達成できた。また、過去の気球実験のデータを利用し、熱帯成層圏における平均年代を数値モデルで理論的に計算し、その成果を論文として発表した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

地球温暖化に伴う成層圏の変化、特に、成層圏の大規模な子午面循環であるブリューワ・ドブソン循環が、温暖化にどのように応答するのかという問題は気象学の重要な課題である。これを解決するためには、大気年齢（空気が熱帯域において対流圏から成層圏へ流入した時点を起点とした経過時間）を観測し、その長期変化を明らかにする必要がある。しかし、従来の方法では、観測した大気年齢の不確かさが大きな問題であった。本研究では、より多くの気体成分から平均年齢を推定するマルチクロックトレーサー法を確立し、新たな気球実験で得られた大気試料にこれを適用した結果、大気年齢の推定精度を高めることができた。

研究成果の概要（英文）：In July 2020, the second year of the project period, a balloon experiment was conducted in Taiki, Hokkaido for the purpose of collecting the stratospheric air samples. As a result, it was confirmed that the air samples were successfully collected at all planned altitudes, and their amounts were enough to analyze various gases. Using this stratospheric air sample, a total of more than 20 species of gas concentrations and isotopes, such as greenhouse gases and their related gases, halocarbons, atmospheric major components and noble gases, were analyzed. We estimated the mean ages from the carbon isotope ratio of CO<sub>2</sub> and halocarbons in addition to the conventional clock-tracers CO<sub>2</sub> and SF<sub>6</sub>, and the goal of estimating the mean age by the multi-clock-tracers can be achieved. Using the data of past balloon experiments, the mean ages in the tropical stratosphere was theoretically calculated with a numerical model, and the results were published as a paper.

研究分野：大気科学

キーワード：成層圏 平均年代 重力分離

### 1. 研究開始当初の背景

人類の活動に伴って大気中に排出されている二酸化炭素をはじめとする温室効果気体の増加は、地球温暖化を急激に進行させつつある。この地球温暖化が気候システムに与える影響は多岐にわたり、海水面の上昇や、雪氷の減少など、人類にとって極めて深刻な問題となっている。危惧されている様々な気候変動の中でも、その実態がほとんど解明されていない未解決課題の一つが、温暖化に伴う成層圏の変化である。特に、成層圏における物質輸送を支配している大規模な子午面循環であるブリューワ・ドブソン循環が、温暖化に対してどのように応答するのかという問題が、極めて重要と考えられている。なぜなら、成層圏における物質循環が、地球温暖化と将来のオゾン層回復プロセスの両者に対して大きな影響を持つためである。温室効果気体であるメタンや一酸化二窒素は、成層圏内において大気の運動によって輸送されながら光化学反応によって消滅することが知られている。したがって、成層圏の子午面循環が、これらの物質を大気中から除去する速度を決めている。また、フロンなどのオゾン層破壊物質も、成層圏の子午面循環がその除去速度を左右している。破壊が進んでいる成層圏オゾンが将来回復する時期は、成層圏の子午面循環に大きく依存すると考えられている。このように、地球環境の諸問題が成層圏の大気循環を通じて密接に関わっており、両者の将来予測のためには、成層圏における子午面循環の変化を解明することが必要となる。しかしながら、成層圏の子午面循環の強さの経年的な変化を直接観測で検出することは困難である。そこで間接的な方法として、「大気の年齢」（空気が熱帯域において対流圏から成層圏へ流入した時点を中心とした経過時間）を推定する方法が用いられてきた。すなわち、成層圏の特定の場所の大気年齢が増加または減少することは、循環の速さの減少または増加を意味する。この大気年齢は、二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) や六フッ化硫黄 (SF<sub>6</sub>) などの「クロックトレーサー」の濃度から推定することができる。この原理をもとにして、我々の研究を含む日本・ドイツ・アメリカの気球観測データから、成層圏大気の平均年齢が長期的に変化していないことが報告された。この結果は、近年の気候モデルを用いた理論的研究の結果と食い違っており、論争となっている。気候変動に関する政府間パネル第5次報告書 (IPCC AR5) でも、成層圏の循環の長期変化に関する研究成果がまとめられているが、現時点ではブリューワ・ドブソン循環の長期変動に関する研究結果の信頼度は低いことが指摘されており、喫緊の課題となっている。この信頼度を低くしている大きな原因は、大気年齢の不確かさである。特に問題となっているのは、研究代表者が最近報告した、「CO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>の濃度から独立に推定した大気年齢の不一致」である (Sugawara et al., 2018)。これによって、「CO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>の濃度から推定した大気年齢は本当に正しいのか？なぜ両者が一致しないのか？」という核心的な問いが生じた。この課題を解決するためには、現在行われているクロックトレーサーの観測を発展させて、大気年齢推定の精度を高める新たな観測手法が不可欠である。

### 2. 研究の目的

本研究では、新規に日本上空において成層圏大気のサンプリングを実施し、最新の大気試料を用いて、同時に複数のクロックトレーサーを計測することで大気年齢を高精度で推定することを目的とする。これまでの研究では、CO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>の濃度だけを用いて大気年齢の推定が行われてきた。しかも、大気年齢の計算方法は研究者によって違っていたため、大気年齢を相互に比較することも困難であった。本研究では、一般的にクロックトレーサーとして用いられてきたCO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>に加えて、新たなクロックトレーサーとして、CO<sub>2</sub>の安定炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ )、酸素・窒素比 (O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>比)を加えて年齢推定に用いる。これらは、CO<sub>2</sub>やSF<sub>6</sub>が人間活動に伴って単調に増加していることとは異なり、人類の化石燃料消費に伴って大気中において減少傾向にある成分である。原理的にはクロックトレーサーとして利用できる成分であったが、成層圏大気の $\delta^{13}\text{C}$ やO<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>比を高精度で計測することが難しかったために、これまで大気年齢推定に利用されたことはなかった。さらに、大気年齢と関係が深い重力分離、ハロカーボン類も分析し、多種類のクロックトレーサーを利用して大気年齢の高精度化を図ることが本研究の目的である。

### 3. 研究の方法

最新の大気試料を得るために、新規に日本上空において成層圏大気のサンプリングを実施した。当初は研究期間の初年度に気球実験を実施する予定であったが、世界的なヘリウムガスの枯渇によって、国内の気球実験が困難な状況になり、やむを得ず翌年度に実施した。この気球実験はJAXA 宇宙科学研究所が北海道大樹町において行っているものであり、これに応募して採択されることで実施が可能となった。この大気試料を様々な研究機関に配分し、同時に複数の気体成分を計測することで数多くのデータが得られた。SF<sub>6</sub>濃度は宮城教育大、CO<sub>2</sub>濃度をはじめとする温室効果気体濃度とCO<sub>2</sub>の安定炭素同位体比 ( $\delta^{13}\text{C}$ )は主に東北大、O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>と重力分離に関わる成分は産業技術総合研究所、ハロカーボン類は国立環境研究所において、それぞれ高精度分析が行われた。これらの多種類のクロックトレーサーから最適な大気年齢を計算する手法として「コンボリャーション法」を用いた。それぞれの成分について、まず熱帯対流圏におけるリファレンスとなる長期データレコードを作成した。次に、1次元拡散大気モデルから理論的に導出される年齢スペクトルを逆ガウス分布関数で与えて、対流圏リファレンスとのコンボリャーションを計算

した。観測された濃度等がこのコンボリューションの値と一致するための平均年齢を求めた。さらに、大気3次元モデル (ACTM) やトラジェクトリモデルを用いた数値計算により、理論的に大気年齢を計算し、過去の大気年齢の観測値との比較も行った。さらに、新たなクロックトレーサーである  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{O}_2/\text{N}_2$  比では、分子の質量に応じて成分の分離を引き起こす重力分離の効果が存在するため、大気主成分の同位体比や  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の測定値から得られる重力分離データを補正に用いた。この研究の過程で、成層圏の  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の重力分離が対流圏における  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比に影響を及ぼすことが理論的に予測された。そこで、新たに2次元大気モデル (SOCRATES) に  $\text{Ar}/\text{N}_2$  の重力分離効果を組み込み、成層圏循環の様々な長期変化に対応した重力分離効果の変動を理論的に予測し、対流圏  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の観測結果の解釈を試みた。

#### 4. 研究成果

2020年7月25日に、成層圏大気の採取を目的とした気球実験を北海道大樹町において実施した。液体ヘリウムを使用したクライオジェニックエアサンプラーを飛揚し、高度15kmから35kmの間の異なる11高度において、上昇中に10本、最高高度でのレベルフライト中に1本の空気採取を実施し、予定した全ての高度での空気採集に成功した。採取された空気の量は、最も少ないもので高度33km付近における10L(STP)、最も多いものでは高度23km付近における28L(STP)であり、各種の大気年代トレーサーとそれらの関連気体の濃度・同位体の解析が可能となった。試料空気の分析は、大きく3つのカテゴリ、すなわち(1)温室効果気体と関連成分、(2)ハロカーボン類、(3)大気主成分と希ガスであり、分析項目は合計約20項目以上に大幅に拡充された。特に、理想的なクロックトレーサーとして利用可能な  $\text{CO}_2$ 、 $\text{SF}_6$ 、 $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\text{O}_2/\text{N}_2$  についての分析を終え、その結果から平均年代を推定することが可能となった。また、 $\delta^{13}\text{C}$  と  $\text{O}_2/\text{N}_2$  から正確な大気年代を推定するためには、それらの重力分離効果を明らかにする必要があり、そのための大気主成分同位体分析や希ガス分析の結果をもとに重力分離のモデル計算による理論研究を進めた。2次元大気モデルに  $\text{Ar}$  と  $\text{N}_2$  の分子拡散を組み込み、成層圏の平均子午面循環の盛衰を仮定したシミュレーションを繰り返した結果、成層圏の循環が強化される時には、平均年代が小さくなるとともに成層圏の重力分離も小さくなり、その結果、対流圏におけるわずかな重力分離も小さくなることがわかった。このことから、対流圏における  $\text{Ar}/\text{N}_2$  比の長期的な変動に対して、成層圏における重力分離が重要であること示し、その成果を国際雑誌に研究論文として発表した (Ishidoya et al., 2021)。さらに、気球実験によって得られた大気サンプルを使用して、2021年度までに未分析だったハロカーボンの分析を最終年度に実施した。国立環境研究所の分析システムを用いて、CFCs、HCFCs、HFCs、PFCs の合計15種類の成分について、それぞれの成層圏における鉛直プロファイルを明らかにした。この中で、長寿命の成分のみを用いて平均年代の推定を行い、既存の  $\text{CO}_2$ -age、 $\text{SF}_6$ -age と比較した。その結果、ハロカーボンによる平均年代は高度25km以下においては  $\text{CO}_2$ -age、 $\text{SF}_6$ -age とよく一致した。一方、高度25km以上では  $\text{CO}_2$ -age とよく一致したものの、 $\text{SF}_6$ -age はそれらよりも過大評価であった。 $\text{SF}_6$  による平均年代推定は、より上層の中間圏における消滅の影響を受けていることが示唆されていることを考慮すると、ハロカーボンがマルチクロックトレーサーとして極めて有効であることが明らかになった。過去にインドネシアのピアクで行われたクライオジェニックサンプリング実験による大気サンプルから推定された平均大気年齢の高度分布について、ACTMを用いたBIER法とラグランジュ後方流跡線解析の二つの方法を適用して検証した。二つの方法による年齢を  $\text{CO}_2$ -age と比較すると、ラグランジュ法の結果が比較的良い再現性を示した。ラグランジュ法の年齢はやや小さくなるバイアスが見られたが、このことは流跡線計算を一定の有限時間で停止させているためであると考えられる。一方、BIER法の年齢は、高度25km以上において  $\text{CO}_2$ -age よりも大きくなっており、モデルの拡散の効果が大きい可能性が示唆された。これらのモデルの結果は、観測された大気サンプルがやはり  $\text{SF}_6$  消失の影響を受けた中間圏大気との混合の影響を受けているために平均年齢が過大評価になっているという仮説を裏付けている。この研究成果は論文として発表された (Hanh et al., 2021)。

#### <引用文献>

Sugawara, S., Ishidoya, S., Aoki, S., Morimoto, S., Nakazawa, T., Toyoda, S., Inai, Y., Hasebe, F., Ikeda, C., Honda, H., Goto, D., and Putri, F. A.: Age and gravitational separation of the stratospheric air over Indonesia, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 1819–1833, <https://doi.org/10.5194/acp-18-1819-2018>, 2018.

Ishidoya, S., Sugawara, S., Tohjima, Y., Goto, D., Ishijima, K., Niwa, Y., Aoki, N., and Murayama, S.: Secular change in atmospheric  $\text{Ar}/\text{N}_2$  and its implications for ocean heat uptake and Brewer–Dobson circulation, *Atmos. Chem. Phys.*, 21, 1357–1373, <https://doi.org/10.5194/acp-21-1357-2021>, 2021.

Hanh T. N., K. Ishijima, S. Sugawara, F. Hasebe, Application of a Nudged General Circulation Model to the Interpretation of the Mean Age of Air Derived from Stratospheric Samples in the Tropics, *J. Meteor. Soc. Japan Ser. II*, 99, 1149–1167, <https://doi.org/10.2151/jmsj.2021-056>, 2021.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Ishidoya Shigeyuki, Sugawara Satoshi, Tohjima Yasunori, Goto Daisuke, Ishijima Kentaro, Niwa Yosuke, Aoki Nobuyuki, Murayama Shohei	4. 巻 21
2. 論文標題 Secular change in atmospheric Ar/N2 and its implications for ocean heat uptake and Brewer-Dobson circulation	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Atmospheric Chemistry and Physics	6. 最初と最後の頁 1357 ~ 1373
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5194/acp-21-1357-2021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 NGUYEN T. Hanh, ISHIJIMA Kentaro, SUGAWARA Satoshi, HASEBE Fumio	4. 巻 99
2. 論文標題 Application of a Nudged General Circulation Model to the Interpretation of the Mean Age of Air Derived from Stratospheric Samples in the Tropics	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of the Meteorological Society of Japan. Ser. II	6. 最初と最後の頁 1149 ~ 1167
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.2151/jmsj.2021-056	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計10件（うち招待講演 1件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 S. Ishidoya, K. Ishijima, S. Sugawara, Y. Niwa, Y. Tohjima, D. Goto, K. Tsuboi, S. Murayama, N. Aoki, T. Maki, Y. Tanaka and T. Nakamura
2. 発表標題 Seasonal variations in the atmospheric Ar/N2 ratio observed at ground-based stations in Japan and Antarctica and its application to an evaluation of the air-sea heat flux
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 菅原 敏, 青木 周司, 森本 真司, 本田 秀之, 豊田 栄, 石戸谷 重之, 後藤 大輔, 梅澤 拓, 長谷部 文雄, 石島 健太郎, 飯嶋 一征, 吉田 哲也
2. 発表標題 マルチクロックトレーサーによる大気年代推定(B20-04結果速報)
3. 学会等名 大気球シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 石戸谷重之、遠嶋康徳、石島健太郎、菅原敏、丹羽洋介、後藤大輔、村山昌平、坪井一寛、青木伸行、中村貴
2. 発表標題 大気中アルゴン・窒素比を用いた大気ポテンシャル酸素の変動要因の評価 -季節変動と緯度分布-
3. 学会等名 第25回大気化学討論会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Ishidoya, S., S. Sugawara, S. Morimoto, D. Goto, Y. Tohjima, K. Ishijima, D. Belikov, F. Hasebe, K. Tsuboi, S. Murayama, N. Aoki, S. Aoki, T. Nakazawa
2. 発表標題 Observations of elemental and isotopic ratios of atmospheric major components and its application to detect atmospheric circulation and ocean heat uptake changes
3. 学会等名 AGU Fall Meeting (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 S. Sugawara and S. Ishidoya
2. 発表標題 Possible Ar/N <sub>2</sub> variations caused by the molecular diffusive separation in stratosphere
3. 学会等名 Small APO workshop in Japan (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 S. Ishidoya, S. Sugawara, Y. Tohjima, S. Murayama, D. Goto, K. Tsuboi and H. Matsueda
2. 発表標題 Variations in Ar/N <sub>2</sub> observed at Japanese air monitoring networks -its interpretation from viewpoints of changes in the ocean heat content and diffusive separation of the atmosphere-
3. 学会等名 small APO workshop in Japan (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石戸谷重之、菅原敏、遠嶋康徳、後藤大輔、村山昌平、坪井一寛、丹羽洋介、青木伸行
2. 発表標題 大気中アルゴン濃度の高精度観測に基づく海洋貯熱量および大気拡散分離の評価
3. 学会等名 第24回大気化学討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石戸谷重之、森本真司、坪井一寛、菅原敏、後藤大輔、青木伸行、村山昌平、丹羽洋介、青木周司、松枝秀和、石島健太郎
2. 発表標題 Preparation of O2/N2 dataset from the surface to the middle stratosphere around Japan traceable to NMIJ gravimetric scale
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2021年大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石戸谷重之、菅原敏、青木周司、森本真司、本田秀之、豊田栄、遠嶋康徳、後藤大輔、石島健太郎、長谷部文雄、丹羽洋介、青木伸行、村山昌平、飯島一征、吉田哲也
2. 発表標題 成層圏大気重力分離と空気年齢の新たな応用 ~海洋貯熱量変動評価における重要性~
3. 学会等名 大気球シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 菅原敏、青木周司、森本真司、本田秀之、中澤高清、豊田栄、石戸谷重之、後藤大輔、梅澤拓、長谷部文雄、石島健太郎、飯島一征、福家英之、吉田哲也
2. 発表標題 クライオサンプリングによる成層圏大気の長期観測と今後の展開
3. 学会等名 大気球シンポジウム
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	森本 真司  (Morimoto Shinji)  (30270424)	東北大学・理学研究科・教授   (11301)	
研究 分担者	石戸谷 重之  (Ishidoya Shigeyuki)  (70374907)	国立研究開発法人産業技術総合研究所・エネルギー・環境領域・研究グループ長   (82626)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------