

平成 30 年 6 月 12 日現在

機関番号：62611

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K16119

研究課題名(和文)大気中アルゴン濃度測定システムの開発と海洋・陸上生物圏のCO₂吸収量定量評価研究課題名(英文)Development of a measurement system for atmospheric Ar and estimation of oceanic and terrestrial biospheric CO₂ uptake

研究代表者

後藤 大輔 (Goto, Daisuke)

国立極地研究所・研究教育系・助教

研究者番号：10626386

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、海洋貯熱量の変化にのみ起因して変動するAr濃度変動を利用して、大気中O₂・CO₂濃度変動に基づく海洋と陸上生物圏のCO₂吸収量の推定精度を向上させるために、大気中Ar濃度の計測システムを構築し、標準偏差1sigmaで21 per megの精度での測定を可能にした。さらに、南極昭和基地で観測したO₂、CO₂濃度の長期変動を解析することにより、2000-2016年の平均として、海洋と陸上生物圏のCO₂吸収量はそれぞれ 2.4 ± 0.8 、 1.6 ± 0.7 GtC/yr (1 GtCは炭素換算で10の12乗kg)と推定した。

研究成果の概要(英文)：To improve the uncertainty in the estimation of global carbon uptake based on the atmospheric CO₂ and O₂ by using the atmospheric Ar that varies with only the change in oceanic heat content, we developed a measurement system for atmospheric Ar. The precision of the system was estimated to be 21 per meg (1 sigma). By analyzing the long-term variations of the atmospheric CO₂ and O₂ observed at Syowa Station, Antarctica, oceanic and terrestrial biospheric CO₂ uptake were estimated to be 2.4 ± 0.8 and 1.6 ± 0.7 GtC/yr, respectively.

研究分野：大気科学

キーワード：全球炭素収支 炭素循環 大気中アルゴン濃度 大気中酸素濃度 海洋貯熱量

1. 研究開始当初の背景

化石燃料起源二酸化炭素 (CO₂) 排出量の増加に伴う気候変動、いわゆる地球温暖化は、早急に解決しなければならない課題である。この問題に対応するためには、CO₂ がどれだけ大気に放出され、海洋や陸上生物圏にどれだけ吸収されているか、という地球表層の CO₂ 収支の定量的な理解が不可欠であり、1990 年代以降、大気中 CO₂ および酸素 (O₂) 濃度 ($\delta(O_2/N_2)$) として定義) 変動観測に基づく海洋と陸上生物圏による CO₂ 吸収量の定量評価が行なわれている^①。しかし、温暖化に伴う海洋貯熱量 (海水温) 上昇による溶解度減少により、海洋は O₂ の放出源となっている可能性が指摘され^②、それが CO₂ 吸収量評価の大きな誤差要因となり、海洋からの O₂ 放出量を補正することが CO₂ 吸収量を正確に推定する上で大きな課題となっている。

この課題の解決に有効とされるのが、大気中アルゴン (Ar) 濃度変動の観測である。大気中 Ar 濃度は、海洋の貯熱量変動による溶解度の変化のみに起因して変動するため、海洋貯熱量変動を反映する指標として利用可能であり^③、その季節・長期変動から、大気中 O₂ 濃度変動のうち貯熱量変動による海洋からの O₂ 放出による影響を評価して、大気中 CO₂・O₂ 濃度を利用した CO₂ 吸収量推定の精度向上が期待できる。これまでに大気中 Ar 濃度の長期的な増加/減少傾向を報告した例は一つもなく、大気中 Ar 濃度の精密観測手法の確立と、長期的・系統的な観測の実現が求められている。

2. 研究の目的

本研究では、大気中 CO₂・O₂ 濃度を利用して CO₂ 吸収量のより正確な推定に貢献するため、海洋貯熱量の変化にのみ起因して変動する大気中 Ar 濃度の計測システムを開発し、これまで採取/保管されてきた南極・昭和基地の大気試料を分析することで、これまでに報告例のない長期間の大気中 Ar 濃度変動の実態を明らかにすること、さらに、明らかになった大気中 Ar 濃度の長期変動から、海洋の貯熱量変化およびそれに起因する海洋からの O₂ 放出量を評価し、大気中 CO₂・O₂ 濃度観測にその影響を補正して CO₂ 吸収量を推定することを目的とした。

3. 研究の方法

- (1) 質量分析計「Isoprime100」を検出器とした計測システムを構築し、大気試料の導入方法や導入量を検討して高精度計測のための最適な条件を探求し、大気中 Ar 濃度の高精度計測手法を確立する。遠隔地で採取した大気試料の分析だけではなく、観測地現場での連続観測も想定し、連続観測が可能な試料導入システムも検討・構築する。大気中 Ar 濃度変動はある基準

からの偏差 ($\delta(Ar/N_2)$) として表記される^④が、その基準は世界的に統一されたものが存在せず、各研究機関によって異なる。本研究では、-80°C に冷却した水トラップを通過させて除湿した天然空気を、48L 高圧シリンダーに充填し、それを基準として使用する。

- (2) 本研究で対象にしている観測地・南極昭和基地では、1995 年から年に 6 回程度大容量大気採取を実施しており、採取された大気試料 (アーカイブ大気) は、将来新たな成分の分析手法が確立された場合に、過去にさかのぼってその成分を分析し、過去の大気組成を復元できるように保管されている。これらアーカイブ大気を本研究で開発する Ar 濃度計測システムで分析することで、過去約 20 年間の南極地域における大気中 Ar 濃度の変動傾向を明らかにする。
- (3) 測定した大気中 Ar 濃度の変動から海洋の貯熱量変動を見積もり、それをもとに大気中 O₂ 濃度変動に対する海洋貯熱量変動の寄与を評価して、大気-海洋間の O₂ 交換量を推定する。昭和基地において CO₂ 濃度および O₂ 濃度の観測をそれぞれ 1984 年および 2000 年から実施しており、その結果を利用してすでに報告されている 2001-2009 年の CO₂ 吸収量の推定結果^⑤を、本研究から推定される大気-海洋間の O₂ 交換量を用いて再評価し、最新の CO₂・O₂ データも利用して禁煙の CO₂ 吸収量を定量評価する。

4. 研究成果

- (1) Isoprime Ltd. 製質量分析計 Isoprime を検出器とした大気中 Ar 濃度分析システムを構築した。装置の大気試料導入部は、一定流量で定期的に流れる大気試料の一部を、内径 25 μ m、長さ 1.0m の細管を通じて分析計に導入する構成に改造した。さらに、その細管周辺のわずかな温度変化で分析計の出力が不安定になることが見出されたため、大気試料側、参照空気側の両方の細管を一本のデカボンチューブで保護するとともに、そのデカボンチューブを断熱材で覆うことで、細管周辺の温度変化を低減させ、温度勾配によって生じる空気分子の分別を防止した。また、導入試料の流量変化に伴う出力変化への応答を確認し、分析時の最適な大気試料流量を 12 ml min⁻¹ とした。また、大気試料採取装置として、スターリング式冷却機を利用した水トラップ二つを並列に設置した除湿システムを製作し、6 時間おきに両トラップを切り替えることで、将来的に実施することを計画している現場での大気中 Ar 濃度連続観測に対応す

る大気試料除湿システムを構築した。以上の改良を加えた後に、同一試料を繰り返し分析することにより、本システムの測定精度は標準偏差 1σ で 21 per meg (≈ 0.2 ppm) と評価した。ただし、この測定精度は、海洋貯熱量変動で生じると考えられる大気中 Ar 濃度の長期的な変動を検出するためにはまだ不十分であり、今後、導入する試料圧力の厳密に制御するなどし、測定精度のさらなる向上が必要である。

- (2) 高圧ガスシリンダーに充填された試料を計測システムに接続して分析した結果、高圧ガスシリンダーから試料を導入した場合、試料導入開始から 10~24 時間は緩やかな出力ドリフトが続くことが明らかになった。これは、高圧ガスシリンダー内の高圧ガスが、接続した調圧器に導入される際に空気分子の分別が生じているためであると考えられる。分別が平衡状態に達し、出力が安定するまで 10~24 時間必要であるため、1995 年以来南極昭和基地で採取されてきた約 120 本のアーカイブ大気を全て分析するには長期の時間が必要であり、今後、時間をかけて分析することで、過去約 20 年というこれまでに報告されたことのない長期間の大気中 Ar 濃度変動が明らかになることが期待される。

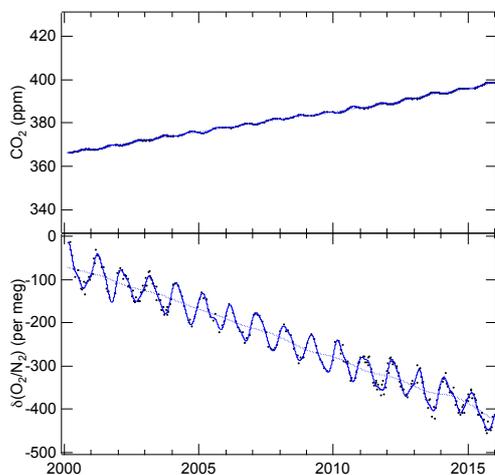


図 1. 南極昭和基地で観測された大気中 CO_2 濃度 (上)、および O_2 濃度 (下) の変動

- (3) 南極昭和基地で 2000 年から実施している大気中 O_2 濃度の観測を本研究期間中にも実施し、2016 年までの 16 年間の大気中 O_2 濃度変動を明らかにした (図 1)。この大気中 O_2 濃度の長期的な変動傾向を、同じく昭和基地で実施されている大気中 CO_2 濃度の長期変動と組み合わせて解析することにより、2000-2016 年の平均として、海洋と陸上生物圏の CO_2 吸収量を

それぞれ 2.4 ± 0.8 、 1.6 ± 0.7 GtC yr^{-1} (GtC は炭素換算で 10^{12}kg) と推定された。本研究で開発した大気中 Ar 濃度計測システムを用いて引き続きアーカイブ大気や現在の大気中 Ar 濃度を測定することにより、長期的な Ar 濃度変動を明らかにし、それにもとづいて評価される大気-海洋間の O_2 交換量を補正することで、 CO_2 吸収量の推定精度が向上することが期待される。

<引用文献>

- ① Keeling et al. (1993), What atmospheric oxygen measurements can tell us about the global carbon cycle, *Global Biogeochemical Cycles*. **7**, 37-67.
- ② Bopp et al. (2002), Climate-induced oceanic fluxes: implications for the contemporary carbon budget, *Global Biogeochemical Cycles*. **16**, doi: 10.1029/2001GB001445.
- ③ Nevison et al. (2012), Estimation net community production in the southern ocean based on atmospheric potential oxygen and satellite ocean color data, *Global Biogeochemical Cycles*. **26**, GB1020. Doi: 10.1029/2011GB004040.
- ④ Keeling et al. (2004), Measurement of changes in atmospheric Ar/ N_2 ratio using a rapid-switching, single-capillary mass spectrometer system, *Tellus* **56B**, 322-338.
- ⑤ Ishidoya et al. (2012), "Oceanic and terrestrial biospheric CO_2 uptake estimated from atmospheric potential oxygen observed at Ny-Ålesund, Svalbard and Syowa, Antarctica, *Tellus* **64B**, 18924.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 0 件)

[学会発表] (計 14 件)

- ① Daisuke Goto, Terrestrial Biospheric and Oceanic CO_2 Uptake Estimated from Long-term Measurements of Atmospheric CO_2 Mole Fraction, $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ at Ny-Alesund, Svalbard, Fifth International Symposium on Arctic Research, 2018 年
- ② Daisuke Goto, Short-term variations in atmospheric potential oxygen at Ny-Alesund, Svalbard, 8th Symposium on Polar Science, 2017 年
- ③ Daisuke Goto, Japanese observation programs of atmospheric greenhouse gases in polar regions, 19th WMO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other

- Greenhouse Gases, and Related Measurement Techniques, 2017 年
- ④ Daisuke Goto, Temporal variations of atmospheric O_2 and CO_2 at a coastal site in the northeastern part of the main island of Japan, 10th International Carbon Dioxide Conference 2017, 2017 年
 - ⑤ Daisuke Goto, Temporal Variations of the Atmospheric CO_2 Concentration and Its Carbon Isotope Ratio at Ny-Ålesund, Svalbard and Estimation of Global Carbon Budget, 2016 AGU Fall Meeting, 2016 年
 - ⑥ Shigeyuki Ishidoya, Year-to-year variations of the atmospheric Ar/N_2 and O_2/N_2 ratios observed in the northern mid-to-high latitudinal region for the period 2012-2016, 7th Symposium on Polar Science, 2016 年
 - ⑦ Daisuke Goto, Monitoring of the atmospheric greenhouse gases at Syowa Station, Antarctica, 7th Symposium on Polar Science, 2016 年
 - ⑧ 森本真司、南極昭和基地における大気中の酸素・二酸化炭素の変動、日本気象学会 2016 年度秋季大会、2016 年
 - ⑨ 石戸谷重之、スバルバール諸島ニーオルスンにおける大気主成分濃度・同位体比の観測から示唆される下層大気のみ分子拡散分離、日本惑星科学連合大会、2016 年
 - ⑩ 石戸谷重之、気候変動と炭素循環の包括的評価を目指した大気中アルゴン濃度と酸素濃度の高精度観測、日本気象学会 2015 年度秋季大会、2015 年
 - ⑪ Shinji Morimoto, Temporal variations of $\delta(O_2/N_2)$ and Atmospheric Potential Oxygen (APO) observed at Syowa Station, Antarctica, APO Workshop, 2015 年
 - ⑫ Daisuke Goto, Continuous measurements of APO at Ny-Ålesund, Svalbard, APO Workshop, 2015 年
 - ⑬ 石戸谷重之、北極域における船舶および地上観測による大気ポテンシャル酸素の変動要因の解明、日本気象学会 2015 年度春季大会、2015 年
 - ⑭ 石戸谷重之、大気重力分離の観測に基づく成層圏大気循環の研究とその今後の展望、日本気象学会 2015 年度春季大会、2015 年

〔図書〕 (計 0 件)

〔産業財産権〕

○出願状況 (計 0 件)

○取得状況 (計 0 件)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

後藤 大輔 (GOTO, Daisuke)

国立極地研究所・研究教育系・助教

研究者番号：10626386