

令和 3 年 6 月 21 日現在

機関番号：82101

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K18342

研究課題名(和文) フィルン試料のハロカーボン測定を利用した過去50年のメタン同位体変動の高精度復元

研究課題名(英文) Accurate reconstruction of variations of methane isotopes over the last 50 years using halocarbon measurements of firn air

研究代表者

梅澤 拓 (Umezawa, Taku)

国立研究開発法人国立環境研究所・地球システム領域・主任研究員

研究者番号：00570508

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：極域氷床上部の空隙層(フィルン)では深度とともに空気の年代が古くなり、原理的には深度分布から大気成分の時間変化を復元できるが、そのためにはフィルン固有の拡散係数の深度分布を正確に決定する必要がある。本研究では、ハロカーボン類の測定システムを構築し、グリーンランドで採取されたフィルン試料を分析した。そのハロカーボン類データを利用してフィルン空気拡散モデルの拡散係数の精度を向上させ、フィルン内の鉛直分布を用いて過去50年程度のメタン濃度変動を復元した。その結果、フィルンデータを用いた北極域のメタン濃度の正確な復元は1970年半ばまでは可能であることがわかった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

重要な温室効果気体であるメタンは人為的には化石燃料消費や農業に起因して大気に放出される。大気中メタン濃度の観測は1980年代に始まったが、観測された濃度変化の要因についての理解は不十分で、放出量削減策の立案にとっても課題となっている。過去の変動を読み解くことも温室効果気体の循環の理解に重要であり、極域氷床コアやその上部の空隙層(フィルン)を利用した研究が行われてきた。本研究は、様々な大気成分のフィルン内での輸送過程を検討し、現在の観測データをもとに過去どの程度遡ってメタン濃度が復元できるかを厳密に評価したものであり、今後の氷床コアやフィルン研究の推進に重要な示唆を与えている。

研究成果の概要(英文)：Air from porous layers above ice sheets (firn) is valuable for reconstructing atmospheric composition from the present to up to about 100 years back in time. Accurate estimation of diffusivity profile in the firn is key to reliable reconstruction of atmospheric history of trace gases. In this study, we set up a measurement system for halocarbons and analyzed air samples collected from firn in the Greenland. Using the measurement halocarbon data, we constrained diffusivity profile in the firn to reconstruct the methane concentration over the last 50 years. It is shown that reliable reconstruction of the Arctic methane concentration is possible back to 1970s.

研究分野：大気科学

キーワード：メタン フィルン ハロカーボン 同位体

1. 研究開始当初の背景

メタン (CH_4) は重要な温室効果気体であり、その主な人為起源放出は化石燃料消費や農業に密接に関連している。1980年代に始まった大気観測により、過去数十年にわたる大気中 CH_4 濃度の変動が明らかにされているが、 CH_4 濃度の長期変動の要因については共通理解が得られておらず問題となってきた。申請者らは、過去 100 年を対象とした CH_4 濃度変動のシミュレーション研究を実施し、化石燃料消費や農業などの人為放出源の増加の重要性を指摘したが、観測データによる検証は不十分であった (Ghosh et al. 2015)。このため、過去の CH_4 濃度変動やその重要なトレーサーとなる同位体などの観測データの取得が必要である。

そのためには、極域氷床上部の空隙層(フィルン)から採取される空気試料の分析が有用である。フィルンでは主に分子拡散によって気体が輸送されるため、深度とともに空気の年代は古くなり、最深部では最大百年前の空気が存在する。したがって、原理的にはフィルン空気の深度分布から過去の大气組成が復元できる。ところが、深度を年代に変換して大気成分の時間変動を復元するためには、フィルン空気拡散モデルとその入力となる正確な拡散係数の深度分布が必要である。すなわち、あるガス成分の時間変動を復元するためには、フィルンの物理特性の正確な把握が不可欠である。従来手法では、過去の濃度変動が良くわかっている単一成分(例えば CO_2) に基づいてフィルンの拡散係数の深度分布を最適化し、この拡散係数の初期的深度分布を分子量でスケールリングすることで様々な大気成分の拡散係数を推定してきた。しかし、最近の研究では、過去の濃度変動(大気ヒストリ)が比較的精度良く推定可能な人為起源ハロカーボン類を複数組み合わせることで、フィルンの拡散係数の推定精度が向上し、フィルン空気拡散モデルの再現性も向上することが明らかになってきた。申請者らも、研究協力者の開発したフィルン空気拡散モデル (Sugawara et al. 2003) を用いた初期的な計算を行ったが、特に CH_4 の同位体については、拡散係数の不確実性を低減することが過去の時間変動の正確な復元の鍵であることが確認された。

2. 研究の目的

本研究では、第一に、真空系濃縮ラインによるハロカーボン類の測定システムを構築し、フィルン空気試料の分析を実施する。第二に、フィルン空気拡散モデルをハロカーボン類の計算が可能なように拡張し、実際のハロカーボン類の分析データにもとづいてフィルンの拡散係数の最適化を試みる。最適化された拡散係数を利用して、 CH_4 を含めた大気成分や同位体の過去の時間変動を復元する。第三に、特に過去の CH_4 濃度の変動に着目し、復元された濃度や同位体データを再現し得る CH_4 放出源の時間変動について考察を行う。

3. 研究の方法

保存されているフィルン試料は非常に貴重であり、分析に使用する試料量は可能な限り削減すべきである。本研究では、デッドボリュウムを最小化するため、真空系のハロカーボン類の濃縮ラインを構築した。分析の効率化のため、自動制御による分析システムを開発し、十分な試験測定を経て、保存されているフィルン試料の分析を行った。

本研究で使用するフィルン空気拡散モデルは、主要な温室効果気体 ($\text{CO}_2/\text{CH}_4/\text{N}_2\text{O}$ やその同位体) の計算に用いられてきた。ハロカーボン類のモデリングに追加で必要となる入力パラメータや大気成分別の大気ヒストリを検討し、さらに、先行研究のフィルンデータ (Buizert et al. 2012) を利用して、モデル性能の評価も行った。その後、対象とするフィルンについて、新たなハロカーボン類の分析データを利用して拡散係数の最適化を行い、 CH_4 濃度や同位体の時間変動の復元を試みた。

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) 従前のハロカーボン類の測定システムに自動制御可能な真空系濃縮ラインを増設し、多様なハロカーボン類をターゲットに分析条件を最適化するため、濃縮トラップの充填剤・温度・処理時間などの検討を行った。その結果、約 300 mL の空気試料を使用して、分析対象とする複数のクロロフルオロカーボン (CFC) について 1% 以下、メチルクロロホルム (CH_3CCl_3) について 3% 程度の繰り返し再現性が達成された。そこで、2001 年にグリーンランドの NGRIP サイトで採取されたフィルン空気試料の分析を実施した。得られた深度分布は、多くの人為起源ハロカーボン類について、深さとともに徐々に減少し、圧密を受けて空隙が気泡へと変化する (クローズオフ) 深度に至ると急激な減少を見せた。このような深度分布は、過去のハロカーボン類の排出履歴や濃度の時間変動を考慮すると非常に整合的と考えられた。

(2) 上述のハロカーボン類の分析データを活用するため、フィルン空気拡散モデルでハロカーボン類の計算を行うための検討を行った。具体的には、先行研究を調査して、最新の各種入力パラメータや成分別の大気ヒストリを入手してモデルへ適切に入力できるように整備した。まず、先行研究で報告されたグリーンランドの NEEM フィルン (Buizert et al. 2012) についてハロカー

ボン類の計算を実施し、我々のフィルン空気拡散モデルでも NEEM サイトでの様々な大気成分の深度分布が再現できることを確認した。その結果、我々のモデルも NEEM フィルンにおける様々な大気成分の深度分布を再現でき、その再現性を評価したところ、国外の他の研究グループのモデルと比較しても全く遜色がないことがわかった。

(3)本研究で新しくハロカーボン類の分析を行った NGRIP フィルンについて、上述の NEEM サイトと共通の大気ヒストリを使用した深度分布のモデル計算を実施した。モデルの入力データとなる NGRIP サイトでの拡散係数の深度分布を調整することによって、ハロカーボン類を含む複数成分 (CO_2 、 SF_6 、CFC-11、CFC-12、CFC-113、 CH_3CCl_3) のモデル再現性を向上させることができた。しかし、 CH_4 については拡散係数の調整のみで十分な再現性を得ることが難しく、モデルに使用していた大気ヒストリを再検討する必要性が生じた。そこで、NEEM と NGRIP の両サイトのフィルンについて整合性を保持できる大気ヒストリについて検討した。その結果、過去の CH_4 濃度については、比較的小さい不確実性で濃度復元が可能なのは 1970 年代の半ばまでであり、それ以前の濃度変動について、現在利用可能なフィルンデータで十分な検証を行うことは難しいと結論づけた。既往研究では北極域の CH_4 濃度変動を表す大気ヒストリが使用されてきたが、その大気ヒストリが実際にはこれまでの想定以上の不確実性があることが示された。

(4)本研究で測定したハロカーボン類の濃度に加え、同じ NGRIP 試料から過去に測定されたその他の微量気体濃度や同位体データを合わせた統合データセットを作成し、国立極地研究所のデータベース（北極域データアーカイブ ADS）において一般公開した。また、これらのデータセットについて、データの詳細を記述したデータ論文を執筆し、極域科学に関するデータジャーナル「Polar Data Journal」に投稿した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計1件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Taku Umezawa
2. 発表標題 Past variations of atmospheric methane and its isotope ratios reconstructed from firn air and ice core measurements
3. 学会等名 the 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium/15th IGAC Science Conference (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

本研究で測定したハロカーボン類の濃度に加え、同じグリーンランドのNGRIP試料から過去に測定されたその他の微量気体濃度や同位体データを合わせた統合データセットを作成し、国立極地研究所のデータベース（北極域データアーカイブADS）において一般公開した。また、これらのデータセットについて、データの詳細を記述したデータ論文を執筆し、極域科学に関するデータジャーナル「Polar Data Journal」に投稿した。

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
---------------------------	-----------------------	----

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
---------	---------