科学研究費補助金研究成果報告書

平成 21年 4月 2日現在

研究種目:若手研究(B)研究期間:2006~2008課題番号:18710004

研究課題名(和文) 日本上空の対流圏・成層圏における酸素濃度の変動と炭素収支の解明に

関する研究

研究課題名(英文) A study about variations of the atmospheric O_2 concentration in the troposphere and the stratosphere over Japan and the estimated global carbon budget

研究代表者 石戸谷 重之 (Ishidoya Shigeyuki)

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:70374907

研究成果の概要:

大気中酸素濃度を高精度で計測し二酸化炭素濃度と組み合わせて解析することにより、陸上生物圏と海洋による人為起源二酸化炭素の吸収量を見積もることができる。本研究では、これまで酸素濃度の高精度測定例が無かった上部対流圏や成層圏においても観測を実施し、その時空間変動を明らかにした。観測結果を用いて1993-2008年の人為起源二酸化炭素収支の解析を行った。また、成層圏における大気主要成分の重力分離効果を初めて捉えることに成功した。

交付額

(金額単位:円)

	直接経費	間接経費	合 計
2006 年度	1, 400, 000	0	1, 400, 000
2007 年度	1, 100, 000	0	1, 100, 000
2008 年度	800,000	240, 000	1, 040, 000
年度			
年度			
総計	3, 300, 000	240, 000	3, 540, 000

研究分野:物質循環学

科研費の分科・細目:環境学・環境動態解析

キーワード:物質循環、気候変動、大気中酸素濃度高精度計測、人為起源二酸化炭素収支、成層圏大気主要成分重力分離

1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素(CO_2)は、人為起源温室効果気体の中で地球温暖化への影響が最も大きく、今後の大気中濃度を正確に予測し、また濃度増加の抑制対策を可能にすることは、将来の気候変動へ対処するために不可欠である。しかしながら現状では、人間活動によって大気に放出された CO_2 のうち、主要なリザーバーである海洋と陸上植物圏に吸収される量が十分な精度で見積もられておらず、早急に解決すべき大きな課題となっている。

この問題の解決にあたって、大気中の酸素 (O_2) 濃度を高精度で測定することにより、地球規模の CO_2 循環を定量化する方法が新たな手法として期待されており、幾つかの研究機関によって試みられている。この方法は、次のような O_2 の特性を利用したものである。大気と海洋間の CO_2 交換には大気中の O_2 は関与しないが、陸上生物圏が CO_2 を吸収または放出すると、それに応じて大気中の O_2 も変化する。また、化石燃料の消費によっても大気中の CO_2 と O_2 は、上記とは異なる関係

を示して変化する。したがって、大気中の O_2 濃度を CO_2 濃度とともに測定し解析することによって、人為起源 CO_2 の各リザーバー間の収支を見積もることが可能となる。しかし、この方法を有効に活用するためには、約 210000ppm の背景 O_2 濃度に重畳する数 ppm の変動を正確に検出する必要があり、極めて高度な計測技術を要する。

申請者は、質量分析計を応用して、 O_2 濃度を世界最高水準である ± 1.1 ppm で測定する計測法を既に開発し、地上での観測を試みてきた。

2. 研究の目的

大気中における O2 濃度の観測は今日まで主 に地表で行われており、本研究で試みる自由 対流圏にわたる系統的観測の例はない。した がって、地表に加え、対流圏各層での大気試 料の分析を行うことにより、対流圏における O₂ 濃度の高度分布を初めて明らかにする。 ま た、保存試料の分析によって得られる結果か ら、対流圏各層における長期にわたる変動の 実態をも明らかにする。これらのデータから、 全球規模の CO2 収支の詳細な解析が可能に なる。さらに、本研究で取り組む成層圏大気 の O₂ 濃度測定は前例が無く、南北両半球の 成層圏における O_2 濃度の分布を初めて明ら かにする。また本研究では、O2濃度の鉛直分 布のみならず、大気中の窒素 (N_2) と O_2 の 同位体比も測定し、成層圏における質量数の 違いによる N2と O2の重力分離の影響を評価 できるので、その効果を補正することによっ て成層圏における O2 濃度の経年的減少を検 出し、CO2循環の観点から解釈することも試 みる。したがって、本研究によって、成層圏 の物質輸送過程に関しても重要な知見が得 られると期待される。

3. 研究の方法

本研究では、全球 CO2 循環の解明を目的とし、日本上空の対流圏において航空機を用いた大気試料の系統的採取を実施し、開発した計測法による高精度分析を行い、O2濃度の分布と変動を明らかにする。また、1999 年から保存されている試料についても分析を行う。なお、日本上空の対流圏における CO2濃度に関しては、申請者が所属する研究室において1979 年以来観測が継続されている。これらの観測から得られる O2濃度と CO2濃度の経年変化を併せて解析することによって、近年の大気・海洋・陸上生物圏間の人為起源 CO2の収支を評価する。

また、申請者が所属する研究室は、大気球を用いた成層圏大気の採集を継続実施しており、日本上空のみならず北極や南極上空で採集された貴重な大気試料を保存している。これらの大気試料の分析も行い、対流圏の観

測結果と併せ、地表から成層圏までの O₂濃度の鉛直分布を世界に先駆けて明らかにし、 その解釈を行う。

4. 研究成果

図1に、仙台市郊外青葉山、および日本上空 対流圏の高度 2km、4km、8km-対流圏界面にお いて 1999-2008 年に観測された大気中 O_2 濃 度 $(\delta(O_2/N_2))$ と CO_2 濃度を示す。

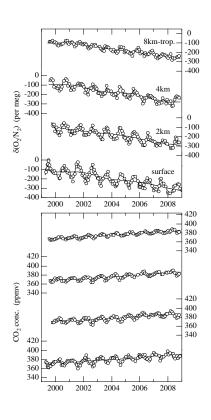


図 1:地上(仙台市青葉山) および日本上空の各高度における $\delta(O_2/N_2)$ (上図) と CO_2 濃度(下図)の変化。 \bigcirc は濃度の観測値、実線はフィッティング曲線を、破線は経年変動成分を示す。

 $\delta(O_2/N_2)$ は各高度とも春に極小値、夏に極大値となる明瞭な季節変化を示した。その位相は、地上では7月中旬に極大値が現われるのに対し、最上層の極大値は2ヶ月ほど遅れて現われており、上層ほど位相が遅れる傾向にあった。振幅は、地上では約130 per meg、最上層では約50 per meg であり、上層ほど小さくなることが観測された。また $\delta(O_2/N_2)$ は、 CO_2 濃度に対して各高度とも明らかな逆位相の季節変化を示していた。地上の季節変化における $\delta(O_2/N_2)$ / CO_2 の比は、陸上植物の呼吸・光合成活動から予測される値より約1.9倍大きかった。この原因は、 $\delta(O_2/N_2)$ の季節変化が、陸上植物活動に加えて大気—海洋

間での季節的な O₂ 交換による影響を受けている事にあると考えられる。

全期間を通して、各高度とも経年的な $\delta(O_2/N_2)$ の減少が観測された。また、 $\delta(O_2/N_2)$ の年平均値は、上層ほど高い値を示した。一方、同期間の CO_2 濃度は経年的に増加し、 CO_2 濃度の年平均値は上層ほど低い値となった。このような $\delta(O_2/N_2)$ と CO_2 との対照的な変化傾向から、 $\delta(O_2/N_2)$ の吸収源は地表付近に存在し、人為起源の化石燃料消費や森林破壊に伴う O_2 の消費がその主要因である事が強く示唆された。

観測された $\delta(O_2/N_2)$ と CO_2 濃度の経年変化を組み合わせて解析し、化石燃料消費量の統計量を用いることで、1999-2008 年の期間における人為起源 CO_2 の陸上植物圏と海洋による吸収量をそれぞれ 0.8GtC/yr および 2.8GtC/yr と見積もった。Manning and Keeling (2006) によって見積もられた1993-2003 年の期間における見積もりと比較すると、陸上生物圏の吸収量はほぼ同程度であり、海洋の吸収量が本研究において0.6GtC/yr 大きくなっている。地球温暖化のより信頼できる予測のために今後も本観測を継続し、全球 CO_2 循環の変化を明らかにしていくことが不可欠である。

図 2 に、日本三陸および南極昭和基地上空の成層圏において観測された大気中 δ (O_2/N_2)、 N_2 および O_2 の安定同位体比(δ ¹⁵N および δ ¹⁸O)の高度分布を示す(Ishidoya et al. 2006)。

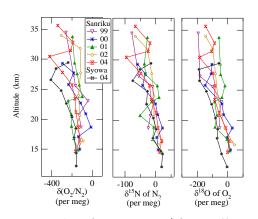
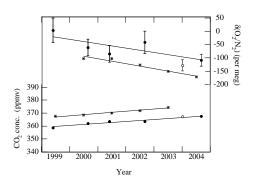


図 2: 日本三陸上空および南極昭和基地上空において観測された $\delta(0_2/N_2)$ 、 $\delta^{15}N$ および $\delta^{18}0$ の高度分布。

観測値はいずれも高度上昇に伴う値の減少を示した。本研究で関心のある数年から十数年の時間スケールにおいて8¹⁵N および8¹⁸0値は対流圏で一定であると考えられるため、成層圏での値の変化は何らかの同位体分別効果を反映していると考えられる。さらに、

高度の上昇にともなう値の減少は1次元の渦拡散及び分子拡散モデルによって推定される減少傾向に近い。また、観測された δ^{15} Nと δ^{18} 0の変化量の比はそれらの質量数の違いから予測される値とよく一致していた。これらのことから、成層圏内における本観測の高度分布は重力場における大気成分の拡散分離の影響を反映していると考えられ、成層圏の高度帯における大気主要成分の重力分離が初めて観測されたことになる。

重力分離効果が $\delta(0_2/N_2)$ へ及ぼす影響を、 $\delta^{15}N$ および $\delta^{18}O$ の観測値を用いて補正した。図 3 に示す補正された $\delta(0_2/N_2)$ の 20-25km 以上の高度における平均値は、同時期に観測された日本上空上部対流圏における $\delta(0_2/N_2)$ の年平均値に比べて常に高く、 $\delta(0_2/N_2)$ の対流圏における経年減少量から推定された成層圏と対流圏の年代差は約 4 年と計算された。



この結果は CO_2 濃度の観測値から推定される 年代差と整合的である。また、ばらつきは大きいものの、対流圏と同様に成層圏においても $\delta(O_2/N_2)$ の経年的な減少傾向が見られ、化 石燃料消費による O_2 消費の影響が成層圏にも及んでいる可能性が示唆された。

さらに、成層圏と対流圏の空気塊の年代差を用いることで、本研究で観測した成層圏空気塊が対流圏に存在していた時の年代を推定し、対流圏における過去の $\delta(0_2/N_2)$ の経年変化を再現した。このようにして得られた $\delta(0_2/N_2)$ と CO_2 濃度の経年変化を組み合わせて解析し、化石燃料消費量の統計量を用いることで、1993-2001年の期間における人為起源 CO_2 の陸上植物圏と海洋による吸収量をそれぞれ 1.1GtC/yr および 1.8GtC/yr と見積

もった。

成層圏におけるδ¹⁵N およびδ¹⁸O の分析は極 渦内で観測が行われた北極キルナ上空の大 気試料についても行われた。日本上空や南極 上空との高度分布の違いから、重力分離の程 度が緯度と時期によって異なり、極渦内で空 気塊の沈降が顕著であるキルナ上空でもっ とも分離が大きいことが見出された (Ishidoya et al., 2008a,b)。このことから、 成層圏における重力分離のさらなる観測は 成層圏大気輸送に関する新たな情報をもた らす可能性をもっており、また、成層圏空気 塊の年代の推定や大気微量成分の濃度およ び同位体の測定値にも重力分離が影響を与 えると考えられるため、今後も成層圏大気の 観測を長期広域にわたり継続する必要があ る。

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3件)

全て査読有

- 1. <u>Ishidoya, S.</u>, S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki, and T. Nakazawa, Gravitational separation of major atmospheric components of nitrogen and oxygen in the stratosphere, Geophys. Res. Lett., 35, L03811, doi:10.1029/2007GL030456, 2008.
- 2. <u>Ishidoya, S.</u>, S. Morimoto, S. Sugawara, T. Watai, T. Machida, S. Aoki, T. Nakazawa, and T. Yamanouchi, Gravitational separation suggested by O_2/N_2 , $\delta^{15}N$ of N_2 , $\delta^{18}O$ of O_2 , Ar/ N_2 observed in the lowermost part of the stratosphere at northern middle and high latitudes in the early spring of 2002, Geophys. Res. Lett., 35, L03812, doi:10.1029/2007GL031526, 2008.
- 3. <u>Ishidoya, S.</u>, S. Sugawara, G. Hashida, S. Morimoto, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Vertical profiles of the O₂/N₂ ratio in the stratosphere over Japan and Antarctica, *Geophys. Res. Lett.*, 33, L13701, doi:10.1029/2006GL025886, 2006.
- → Editor's Highlight (*Geophys. Res. Lett.*, 33, L13701, doi:10.1029/2006GL025886, 2006.)

〔学会発表〕(計9件)

1. 菅原敏、<u>石戸谷重之</u>、青木周司、中澤高 清、成層圏空気年代の推定に対する重力分離 の影響、日本気象学会 2008 年度秋期大会, 仙台, 2008 年 11 月 19 日

- 2. 菅原敏、<u>石戸谷重之</u>、青木周司、中澤高 清、成層圏大気中の微量成分に対する重力分 離の影響の評価、第 14 回大気化学討論会、 横浜、2008 年 10 月 31 日
- 3. Sugawara, S., <u>S. Ishidoya</u>, S. Aoki and T. Nakazawa, Possible gravitational separation effect on the mean age of stratospheric air in the Arctic polar vortex, *10th International Global Atmospheric Chemistry Conference*, Annecy, France, September 8, 2008
- 4. <u>石戸谷重之</u>、菅原敏、森本真司、青木周司、中澤高清、成層圏における大気主要成分の重力分離、日本地球惑星科学連合 2008 年大会、幕張メッセ国際会議場、2008 年 5 月 29 日
- 5. <u>石戸谷重之</u>、中澤高清、青木周司、森本 真司、仙台市青葉山、スバルバール諸島ニー オールスン、および南極昭和基地における大 気中酸素濃度の変動から見積もられた全球 炭素収支、日本気象学会 2008 年度春期大会, 横浜, 2008 年 5 月 18 日
- 6. 石戸谷重之、森本真司、菅原敏、渡井智則、町田敏暢、青木周司、中澤高清、山内恭、北極域航空機観測計画(Arctic Airborne Measurement Program 2002, AAMPO2)において観測された極渦内下部成層圏における大気主要成分の重力分離、日本気象学会 2007年度秋期大会、札幌、2007年10月15日
- 7. Ishidoya, S., S. Sugawara, S. Morimoto, S. Aoki and T. Nakazawa, Gravitational separation of major atmospheric components and secular trend of the O_2/N_2 ratio in the stratosphere, EASTEC symposium 2007 "Dynamic Earth –its origin and future-", Sendai, Japan, September 20, 2007.
- 8. <u>石戸谷重之</u>、菅原敏、森本真司、青木周司、中澤高清、成層圏において観測された大気主要成分の重力分離、日本気象学会 2007 年度春期大会,東京,2007年5月14日
- 9. <u>石戸谷重之</u>、菅原敏、森本真司、青木周司、中澤高清、本田秀之、豊田栄、橋田元、町田敏暢、川村賢二、井筒直樹、並木道義、飯島一征、山内恭、山上隆正、成層圏で初めて見出された大気成分の重力分離、大気球シンポジウム、相模原、2007 年 1 月 15 日

研究者番号: