

機関番号：62611

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2007～2010

課題番号：19310016

研究課題名（和文） 炭素・水素同位体比を用いたカナダ亜北極域における大気中メタンの変動に関する研究

研究課題名（英文） A study on temporal variations of the atmospheric methane concentration at Canadian sub-Arctic region using its carbon and hydrogen isotope ratios

研究代表者

森本 真司 (MORIMOTO SHINJI)

国立極地研究所・研究教育系・准教授

研究者番号：30270424

研究成果の概要（和文）：重要な温室効果気体であるメタンについて、重要な放出源の一つと考えられているカナダ亜北極域（マニトバ州チャーチル：北緯58度、西経94度）において、定期的に大気試料を採取し、メタン濃度とその炭素・水素の安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD ）の分析を行うことにより、カナダ亜北極域での $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の世界で最初の時系列データを得た。観測されたデータと CH_4 濃度データを詳細に解析することによって、チャーチルでのメタン濃度変動に湿地域起源のメタンが重要な役割を果たしておりことが明らかになった。

研究成果の概要（英文）：Atmospheric methane is one of the most important greenhouse gases and Canadian sub-Arctic is considered to be an important source region of it. We have maintained systematic air sampling at Churchill (58°N, 94°W) and subsequent analyses for stable isotopes of carbon and hydrogen ($\delta^{13}\text{C}$, δD) in methane for 4 years. By analyzing their seasonal cycles, it is implied that methane emission from wetland plays an important role in the CH_4 concentration variation.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	4,800,000	1,440,000	6,240,000
2008年度	3,300,000	990,000	4,290,000
2009年度	3,100,000	930,000	4,030,000
2010年度	2,600,000	780,000	3,380,000
年度			
総計	13,800,000	4,140,000	17,940,000

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：物質循環、温室効果気体、メタン、同位体比、北極

1. 研究開始当初の背景

大気中のメタン（ CH_4 ）濃度は、産業革命以降の人間活動の活発化によって急激に増加してきたことが氷床コア中の気泡分析で明らかにされており、二酸化炭素（ CO_2 ）に次いで重要な温室効果気体としてその動態が注目されている。しかしながら、 CH_4 の放

出源が水田を含む湿地域での有機物の嫌気性分解や反芻動物の腸内発酵から、石炭・天然ガスの採掘、そして森林・泥炭火災にまで非常に広範囲に及ぶことから、観測された大気中 CH_4 の濃度変動のみからその変動原因を解釈することは非常に困難であった。 CH_4 を構成する炭素と水素の安定同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ 、

δD) は、それぞれの CH_4 放出源によって値が大きく異なっているため、大気中の CH_4 濃度と $\delta^{13}C$ 、 δD の同時高精度観測を行うことによって、 CH_4 濃度の変動にどの放出源が寄与したかに関する情報が得られる。しかし、 CH_4 の安定同位体比の分析には高度な技術が必要であり、かつ大量 ($\delta^{13}C$: 10L、 δD : 100~400L) の大気試料が必要であったため、これまで系統的な時系列観測を維持している研究機関は極めて限られていた。

我々はこれまでに、連続フロー式質量分析計を用いた CH_4 の $\delta^{13}C$ 、 δD 分析方法の開発を行い、少量 (約 100cc) の大気試料から従来方法と同程度の精度で同位体分析が可能なシステムを実現した。また、南極・昭和基地と北極ニーオルスン観測拠点 (ノルウェー) において、それぞれ 1987 年及び 1991 年から CH_4 濃度観測を継続実施しており、近年の CH_4 濃度増加の鈍化傾向や、経年変化に見られる不規則な変動を検出し報告してきた。さらに、両極域サイトの大気試料を用いて、 CH_4 の $\delta^{13}C$ 、 δD の高精度観測データを蓄積しつつあった。

2. 研究の目的

カナダ亜北極域は湿地帯・ツンドラ帯が広大に広がる領域であり、 CH_4 を大量に放出していると考えられてきた。しかし、アクセスの困難さや設営的基盤の貧弱さのため、これまで系統的な温室効果気体の観測は行われておらず、観測の空白域になっていた。

本研究では、カナダ亜北極域において CH_4 の $\delta^{13}C$ 、 δD の系統的な観測を行うことにより、観測空白域での $\delta^{13}C$ 、 δD の変動を初めて明らかにする。また、カナダ側研究協力者から提供を受ける CH_4 濃度データと $\delta^{13}C$ 、 δD を用いて、 CH_4 、 $^{13}CH_4$ ($\delta^{13}C$)、 CH_3D (δD) それぞれの収支式を連立させて解くことにより、観測された CH_4 濃度変動への各 CH_4

放出源グループの寄与を分離して評価することを目的とする。

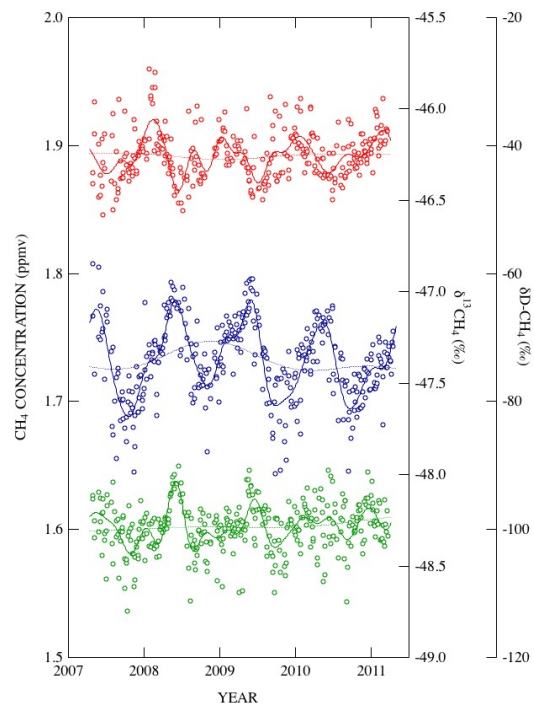
3. 研究の方法

カナダ側共同研究者が、カナダ・マニトバ州チャーチル (北緯 58 度、西経 94 度) において週に 2 度採取した大気試料について、カナダ側での温室効果気体濃度 (CO_2 、 CH_4 、 N_2O 、 SF_6) 分析終了後に日本に送付する。次に、我々が独自に開発した連続フロー式ガスクロマトグラフ質量分析計 (国立極地研究所及び東北大学理学研究科に設置) による CH_4 の $\delta^{13}C$ 、 δD 分析システムを用いて同位体分析を行った後、試料容器をカナダ側に返送する。更に、大気試料分析と平行して、 $\delta^{13}C$ 、 δD 分析の高度化と同位体比標準ガスの整合性確認実験を実施する。観測された CH_4 濃度、 $\delta^{13}C$ 、 δD 時系列データを用いて、チャーチルにおける CH_4 濃度の変動原因に関する知見を得る。

4. 研究成果

2007 年 4 月から 2011 年 3 月までの 4 年間に観測された、チャーチルにおける CH_4 濃度と $\delta^{13}C$ 、 δD の変動を図 1 に示す。この図から明らかなおり、 CH_4 濃度、 $\delta^{13}C$ は、長期変化に重畳した明瞭な季節変化を示している。一方の δD については、不明瞭ながらも夏期に極大となる季節変化が見られる。季節変化の振幅 (peak-to-peak) は、 CH_4 、 $\delta^{13}C$ 、 δD それぞれ、30-50ppbv、0.5-0.6‰、5-10‰であった。

図 1 チャーチルで観測された CH_4 濃度 (赤) と CH_4 の $\delta^{13}C$ (青) 及び δD (緑) の変動。フーリエ級数、スプライン関数とローパスフィルタを用いて計算したベストフィット曲線 (実線) と長期変化成分 (破線) も併せて示す。



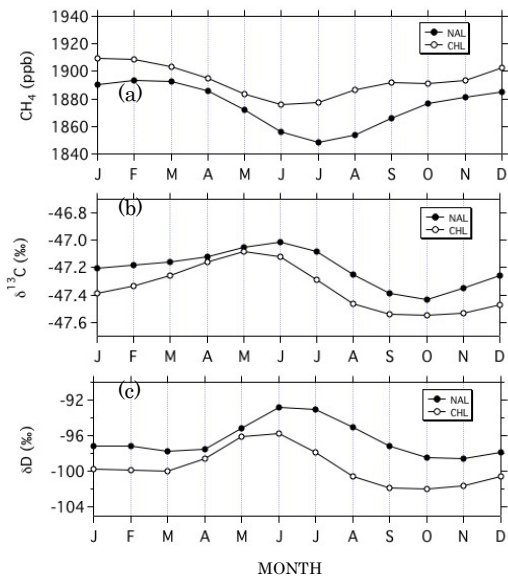


図2 チャーチル (CHL: 白丸) とスバルバル諸島ニーオルスン (NAL: 黒丸) で観測された CH_4 濃度 (a) と CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ (b) 及び δD (c) の平均的な季節変化。

季節変化を詳細に調べるため、2次までのフーリエ関数とスムージングスプライン関数、ローパスフィルタを用いて導出した平均的な季節変化成分に、平均濃度・平均同位体比を加えたものを図2に示す。図2には、北極域のバックランド大気（放出源領域から遠く離れて良く混合された大気）観測値として、我々がスバルバル諸島ニーオルスン（北緯79度、東経13度）で観測した平均的な季節変化も併せて示している。この図から、チャーチルで観測された CH_4 濃度は、一年を通して北極域バックランド大気（ニーオルスン）よりも高く、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD は低い（同位

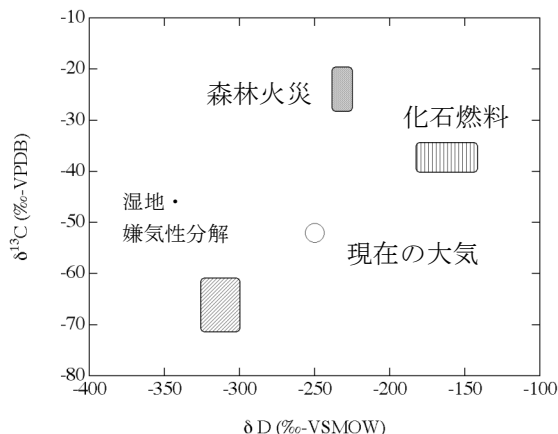


図3 各放出源から大気中へ放出される CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 値と、現在の大気中 CH_4 の同位体比 (CH_4 消滅反応による同位体比の変化を補正したもの)

体的に軽い) ことが分かる。図3には、各 CH_4 放出源グループから大気中に放出される CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 値（文献値）を示す。この図から分かるとおり、大気中 CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD よりも同位体的に軽い CH_4 放出源は湿地（有機物の嫌気性分解）のみであるため、チャーチルでの CH_4 濃度変動には湿地起源の CH_4 が大きな役割を果たしておりことが分かる。また、チャーチルにおける CH_4 濃度の極小値、及び $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の極大値は、ニーオルスンと比較して約1ヶ月早く出現しており、それぞれの振幅も小さくなっている。

CH_4 濃度の季節変化について、それぞれの CH_4 放出源グループ（湿地、化石燃料、森林火災）の寄与を調べるため、図1に示した各放出源の $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 値と図3に示した平均的な季節変化を用いて CH_4 、 $^{13}\text{CH}_4$ ($\delta^{13}\text{C}$)、 CH_3D (δD) それぞれについて収支式を立て、大気中の CH_4 が OH ラジカルと反応して消滅する量も考慮して、三変数一次連立方程式を解いた。このようにして求められたチャーチルとニーオルスンにおける各 CH_4 放出源からの放出量の季節変化を図4に示す。図4から、チャーチルでは6-9月に湿地起源の CH_4 の影響が大きいこと、化石燃料起源の CH_4 は初冬に大きな影響を与えること、そして森林火災起源 CH_4 には顕著な季節変化が見られないことが分かる。ニーオルスンにおける各 CH_4 放出源の影響の季節変化と比較

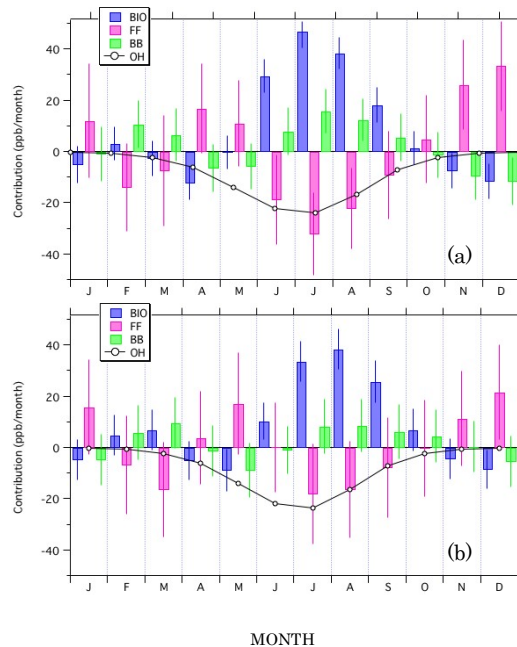


図4 チャーチル(a)とニーオルスン (b) で観測された CH_4 濃度の季節変化に対する各 CH_4 放出源グループの寄与の推定値。放出源グループとして、湿地: BIO (青)、化石燃料: FF (赤)、森林火災: BB (緑) を考慮した。OH ラジカルとの反応による消滅量推定値は黒線で示す。

すると、チャーチルでの湿地起源 CH₄ の影響はニーオルスンよりも約1ヶ月早く、量も多くなっている。これは、チャーチルでの湿地起源 CH₄ の影響がニーオルスンより大きいこと、そして、北極域よりも低緯度にあるチャーチルではより早く湿地からの CH₄ 放出が始まるためと考えられる。一方、ニーオルスンでは、9月にもある程度の湿地起源 CH₄ の影響が見られるが、これは北半球高緯度域での湿地凍結時に土壌から大気へ押し出される CH₄ の影響を受けている可能性もある。

世界各地の地上観測所で観測されているバックランド大気中の CH₄ 濃度は、2000-2006年にはほとんど増加が止まっていたが、2007年以降、再度濃度増加が観測されている。しかしながら、本研究で観測されたチャーチルでの2007年以降の CH₄ 濃度には増加傾向は見られない(図1)。これは、我々の観測が全球で CH₄ 濃度が急増した2007年に開始されたこと、及びデータ長がまだ4年間しかないことが原因として考えられる。2007年の δ¹³C 値がその後と比較して小さい(同位体的に軽い)ことから、チャーチルにおいても2007年に湿地域から大量に放出された CH₄ の影響を受けている可能性がある。

CH₄ の安定同位体比の高精度時系列観測を実施し、CH₄ 放出源の変動に関する知見を得るという研究を実施しているのは、国内では我々の研究グループのみであり、海外でも他に数グループからの報告例があるにすぎない。また、CH₄ 同位体比データは、現在開発が進められている全球 CH₄ 循環モデルの検証を行う上で、非常に強力な拘束条件となる。

今後起こりうる気候変化に対するメタン循環の応答・変動を検出するために、また、今後 CH₄ 循環モデルを用いた逆計算によって CH₄ 放出源分布と変動を求めるためにも、本観測的研究を長期にわたって継続する必要がある。更に、他に観測例のないカナダ亜北極域での観測データは非常に貴重なものであり、カナダ側研究協力者も観測の継続を強く求めている。

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4件)

- ① 森本真司、石戸谷重之、石島健太郎、八代尚、梅澤拓、菅原敏、橋田元、青木周司、中澤高漬、山内恭、南北両極域における大気中の温室効果気体と関連気体の変動、南極資料、54、374-409、2010。(査読有り)

- ② Morimoto, S., S. Aoki and T. Nakazawa, High-precision measurements of the carbon isotope ratio of atmospheric methane using a continuous flow mass spectrometer, *Antarctic Record* 53, 1-8, 2009. (査読有り)

- ③ Umezawa, T., S. Aoki, S. Morimoto and T. Nakazawa, A high-precision measurement system for carbon and hydrogen isotopic ratios of atmospheric methane and its application to air samples collected in the western Pacific region, *J. Meteorol. Soc. Japan* 87, 365-379, 2009. (査読有り)

- ④ Sasaki, M., S. Imura, S. Kudoh, T. Yamanouchi, S. Morimoto and G. Hashida, Methane efflux from bubbles suspended in ice-covered lakes in Syowa Oasis, East Antarctica, *J. Geophys. Res.* 114, doi:10.1029/2009JD011849, 2009. (査読有り)

[学会発表] (計5件)

- ① Morimoto, S., T. Umezawa, L. Huang, S. Aoki, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Interannual variations of the atmospheric methane concentration and its stable isotopes observed at Ny Aalesund, Svalbard and Churchill, Canada. 2nd International Symposium on Arctic Research, Tokyo 7-9 December 2010.

- ② Morimoto, S., D. Goto, S. Ishidoya, T. Nakazawa and S. Aoki, Continuous measurement of the atmospheric O₂/N₂ ratio at Syowa Station, Antarctica, 8th International Carbon Dioxide Conference, Jena Germany, 10-18 Sep., 2009.

- ③ Umezawa, T., S. Aoki, Y. Kim, S. Morimoto and T. Nakazawa, Estimation of carbon and hydrogen isotopic ratios of methane from wetlands and wildfires in Alaska based on aircraft observations and on a bonfire experiment, IGAC 10th International Conference, Annecy France, 7-12 Sep., 2008.

- ④ Umezawa, T., S. Aoki, S. Morimoto, T. Nakazawa and T. Yamanouchi, Temporal variations of CH₄ and its δ¹³C and δD at Ny Aalesund, Svalbard, International Symposium on Isotopomers 2008, Tokyo Oct. 4-8, 2008.

- ⑤ 梅澤拓、青木周司、森本真司、山内恭、ニーオルスンにおけるメタンの水素同位体比の変動、地球惑星科学連合2008年大会、千葉、幕張メッセ、2008.5.25-30.

[その他]

2009. 8. 31 及び 2010. 7. 24

国立極地研究所一般公開において、分析装

置および研究内容の一般向け展示・解説を行った。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

森本 真司 (MORIMOTO SHINJI)
国立極地研究所・研究教育系・准教授
研究者番号：30270424

(2) 研究分担者

青木 周司 (AOKI SHUJI)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：00183129

(H20-H22：連携研究者)

中澤 高清 (NAKAZAWA TAKAKIYO)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号：30108451

(H20-H22：連携研究者)

(3) 研究協力者

リン・ファン (Lin Huang)
カナダ環境省研究所・研究員
ダグ・ワルシー (Doug Worthy)
カナダ環境省研究所・研究員