

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 5月30日現在

機関番号：62611

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2009～2012

課題番号：21310014

研究課題名（和文） 小型成層圏大気サンプラーを用いた南極域成層圏における温室効果気体の変動の解明

研究課題名（英文） Temporal and spatial variations of stratospheric greenhouse gases over the Antarctica revealed by using small-size stratospheric air samplers.

研究代表者

山内 恭 (YAMANOUCHI TAKASHI)

国立極地研究所・研究教育系・教授

研究者番号：00141995

研究成果の概要（和文）：南極域成層圏における温室効果気体の分布と変動を明らかにするため、様々な改良を加えた小型成層圏大気サンプラーを南極・昭和基地から小型気球を用いて飛揚し、14-29kmの4高度においてそれぞれ10.7から7.0L（標準状態）の大気試料を採取することに成功した。大気試料の精密分析によって、CO₂、CH₄、N₂O、SF₆濃度、及びO₂/N₂比、Ar/N₂比の鉛直分布と経年変化が明らかになった。

研究成果の概要（英文）： To elucidate vertical distributions and temporal variations of stratospheric greenhouse gases over Antarctic region, whole air samples of 10.7-7.0 L_{STP} were collected at 4 altitudes from 14 to 29 km above Syowa Station, Antarctica, by using balloon-borne compact cryogenic air samplers. The air samples were analyzed for concentrations of CO₂, CH₄, N₂O and SF₆ and ratios of O₂/N₂ and Ar/N₂ in Japan and vertical distributions and secular trends of each component were obtained.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	7,300,000	2,190,000	9,490,000
2010年度	2,900,000	870,000	3,770,000
2011年度	2,700,000	810,000	3,510,000
2012年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
総計	14,300,000	4,290,000	18,590,000

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：成層圏、南極、温室効果気体

1. 研究開始当初の背景

地球表層における数10年～100年スケールの温室効果気体の循環を定量的に明らかにし、今後起こりうる気候変化への温室効果気体循環系の応答に関する知見を得るためには、まず温室効果気体濃度と同位体比の3次元的な分布と変動を把握する必要がある。そのために我々を含む世界各国の研究機関が、地上基地、航空機、船舶等を使用した対流圏

での温室効果気体の長期観測を拡充・維持してきた。その一方で、成層圏における温室効果気体の観測も大気球を用いた大気採取や航空機機上での連続観測などにより行われてきた。しかし、そのほとんどがキャンペーンの観測であり、系統的な観測例は非常に限られていることから、更なる時系列観測データの蓄積が求められている。また、化学的に安定な温室効果気体である二酸化炭素（CO₂）

と六フッ化硫黄 (SF₆) は、成層圏での物質輸送に関するトレーサーとしても重要である。これらの気体は主に熱帯域対流圏界面から成層圏に注入された後ゆっくりと両極域に輸送されるため、成層圏での CO₂、SF₆ 濃度の分布から成層圏での滞留時間、つまり「年齢 (age)」についての知見が得られる。今後地球温暖化が進んだ場合に成層圏への物質輸送がどのように変化するか調べる上で、成層圏での CO₂、SF₆ 濃度の高精度時系列データは非常に有効な診断データとなりうる。

我々は、1998年と2004年の2回、南極昭和基地において満膨張時 30,000m³ の大気球と大型クライオサンプラー (液体ヘリウムで冷却した試料容器で成層圏大気を固化採取：重量 350kg) を用いた成層圏大気採取実験を実施し、高度 10-30km の南極成層圏における温室効果気体濃度と同位体比の鉛直分布と経年変化を世界で初めて明らかにした。また、簡易な方法で成層圏大気を採取する手法の開発に着手し、「液体窒素温度に冷却した高圧ネオンガスの断熱膨張時に発生する寒冷を用いて成層圏大気を固化・液化採取する」という、全く新しい原理に基づいた小型軽量のクライオサンプラーの開発を進めてきた。2008年1月には、この小型クライオサンプラーを南極昭和基地に持ち込んで満膨張時容積 1,000-2,000m³ の小型気球で成層圏まで飛揚させ、高度 18km と 25km において標準状態で 2.5-5.0L の大気試料を採取することに成功している。

本研究は、このような背景の元に実施するものである。

2. 研究の目的

本研究では、まず現有の小型クライオサンプラーを改良して大気採取動作の信頼性をより高めると共に、より高高度での成層圏大気試料の採取量、採取数を増加させる。そして、第54次南極地域観測隊の夏期観測 (2013年1月) として、改良型小型クライオサンプラーを昭和基地から成層圏に飛揚させ、高度 14-29km の間の 8 高度で大気採取を行う。採取された大気試料を国内に持ち帰った後、温室効果気体 (CO₂、CH₄、N₂O、SF₆) および大気主成分 (O₂、N₂) 濃度と同位体比の高精度分析を行い、南極域成層圏におけるそれらの分布を明らかにする。さらに、得られたデータを過去 (1998、2004、2008年) の観測データと併せて解析し、温室効果気体の経年変動に関する知見を得ることを目的とする。

3. 研究の方法

(1) 小型クライオサンプラーの改良

現有の小型クライオサンプラー (以下、小

型サンプラー) の信頼性を高めるため、サンプラー構成部品の低温低圧耐性の向上と、試料容器内面処理方法の検討、新たな気球搭載コントローラの開発を行う。また、成層圏大気試料の採取量を最大化するために、ネオンガス流量と圧力の最適化を行う。更に、1機の気球放球によって複数の試料採取が可能なサンプラーゴンドラを新たに開発する。

(2) テストフライト

改良した小型サンプラーのテストフライトを行い、成層圏でのサンプリング動作と改良の効果を検証する。さらに、昭和基地実験に向けて必要な改良点を抽出する。

(3) 昭和基地における成層圏大気採取

第54次南極観測隊における夏期研究プロジェクトの一課題として、満膨張時容積 5000-9000m³ のプラスチック気球を用いて小型サンプラーを成層圏まで飛揚する。あらかじめ設定した高度 (14-29km) の成層圏大気試料を採取した後に、海氷上にパラシュート降下した小型サンプラーをヘリコプターで回収する。

(4) 試料分析と解析

国内に持ち帰った成層圏大気試料について、東北大学・東京工業大学・産業技術総合研究所において精密分析を行い、南極域成層圏における温室効果気体濃度・同位体比、大気主成分濃度・同位体比の鉛直分布を明らかにする。また、過去に実施した南極域成層圏観測結果と併せて解析し、成層圏における温室効果気体の経年変化を明らかにする。

4. 研究成果

(1) 小型クライオサンプラーの改良

現有の小型サンプラー (図 1) を構成する各部品の内部パーツを低温特性の優れた部品に交換し、更に必要な改修を行うことにより、ヒーターによるバルブ類の保温が不要になり、搭載電池の小型軽量化が可能になった。また、小型サンプラー試料容器の内面処理方法を改良し、試料容器内に保存した大気試料が変質する問題 (CO₂ 濃度が変化する) を解決した。

小型サンプラーによる成層圏大気の採取量を増やすため、サンプラーの寒冷発生部に供給する高圧ネオンガス圧力・流量と供給シーケンスの最適化を行った。実験室内で低圧大気採取実験を実施し、これら最適化の結果を確認したところ、高度 25km 相当の低圧大気 (気圧 25hPa) の採取量をこれまでより約 50% 増加させることに成功した。また、大気試料をほとんど採取できなかった高度 30km 相当の低圧大気 (気圧 12hPa) を標準状態で

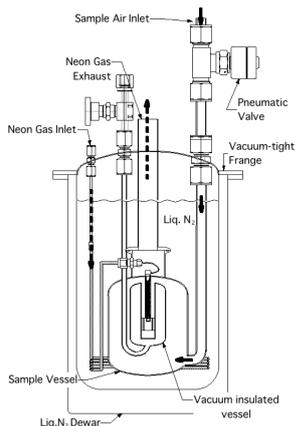


図1 小型クライオサンプラーの構造。破線矢印方向に高压ネオンガスを流し、試料容器中心部分を液体ネオン温度に冷却する。実線矢印が大気試料の流れ。

約 3L 以上採取可能であることを確認した。

1 機の気球放球によって複数の成層圏大気試料を採取するため、複数の小型サンプラーを制御可能な気球搭載コントローラを新たに開発した。コントローラは CPU 及び周辺部品と GPS 受信機・テレメータデータ用モデムで構成され、気球飛揚中の GPS 位置情報を元にあらかじめ設定した高度で小型サンプラーを動作させる自律型の仕様とした。気球飛揚中に自動的に大気採取動作を行うため、地上からコマンドを送信する必要がなくなり、簡易な地上設備で成層圏大気採取実験を行うことが可能になった。成層圏雰囲気（低温・低圧）チャンバーを用いて、完成したコントローラの実験を行い、気圧 13hPa 以上、気温 -50 度以上の環境下で正常に動作することを確認した。

改良・開発の修了した小型サンプラー 2 台、搭載コントローラ及びテレメータ送信機、電池等各 1 式を一体化してアルミフレーム製のゴンドラに納め、気球で飛揚可能な形態とした（図 2）。1 基のゴンドラに 2 台の小型サンプラーを搭載したため、1 回の気球放球で 2 高度の成層圏大気試料を採取可能である。1 ゴンドラあたりの総重量は、搭載する液体窒素 10L、衝撃吸収用クラッシュパッドを含めて約 40kg であった。

(2) テストフライト

JAMSTEC 白鳳丸による研究航海 KH12-1 の一課題として、2012 年 2 月に、ペルー沖赤道域航行中の白鳳丸後部甲板からプラスチック気球を用いて小型サンプラーを計 4 機放球し、赤道域上空の高度 20-30km において成層圏大気試料を採取した。大気試料採取後、小型サンプラーを海洋上にパラシュート降下させ、白鳳丸で回収した。その結果、全ての小型サンプラーが成層圏高度で問題なく動作し、標準状態で 4.7-8.2L の大気試料採取に成功した。このテストフライトによって、これまで実績のなかった低温（南極域よりも低温の赤道上空圏界面を通過）及び低圧（こ

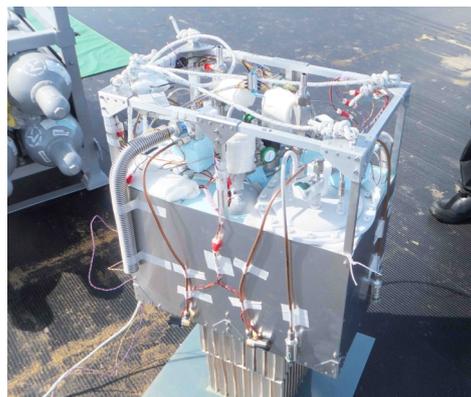


図2 放球直前の小型クライオサンプラーゴンドラ。ゴンドラ下部に地上着陸時の衝撃吸収用紙ハニカム製クラッシュパッドを付加している。

れまでの最高高度は 25km）雰囲気下でも。小型サンプラーが予定通り動作することを確認した。また、赤道域成層圏において大量の大気試料採取に成功したことにより、対流圏から成層圏への物質輸送に関する貴重なデータを得た。

(3) 昭和基地における成層圏大気採取

第 54 次南極地域観測隊（54 次隊）の夏期研究プロジェクトの一課題として、2012 年 12 月 31 日と 2013 年 1 月 10 日に、満膨張時容積 5,000-9,000m³ のプラスチック気球を用いて南極・昭和基地から計 4 機（計 8 サンプラーを搭載）のサンプラーゴンドラを放球した。放球時の様子を図 3 に示す。地上からのテレメータ監視によると、全てのサンプラーが気球上昇中に目的高度で正常な大気採取動作を実行した後、気球を切り離して昭和基地近傍の海氷上にパラシュート降下した。残念ながら一部のサンプラーゴンドラについて、パラシュート不開傘による自由落下と

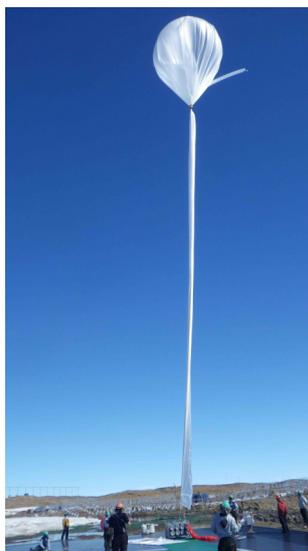


図3 昭和基地での気球放球風景。右下に小さく写っているのがサンプラーゴンドラ

パドル（海水上の湖）への降下により大気試料が失われたが、全てのサンプラーの回収に成功し国内に持ち帰った。

(4) 試料分析と解析

国内に持ち帰った南極域成層圏大気試料について、試料採取量の測定と温室効果気体（CO₂, CH₄, N₂O, SF₆）濃度及び大気主成分濃度（O₂, Ar）・同位体比（N₂, O₂）の精密分析を行った。

表1に成層圏大気試料の回収に成功した小型サンプラーそれぞれの試料採取日時、採取高度、採取量（標準状態）を示す。

表1 昭和基地上空成層圏で採取した大気試料 採取量は標準状態での体積を示す

容器ID	採取日	採取高度	採取量
No. 9	2013. 1. 10	14. 6 km	10. 7 L
No. 7	2013. 1. 10	22. 2 km	7. 0 L
No. 8	2013. 1. 10	27. 2 km	7. 5 L
No. 11	2012. 12. 31	28. 5 km	7. 0 L

本研究における小型サンプラーの改良が奏功し、2008年（第49次南極地域観測隊）に実施した成層圏大気採取実験と比較して、約3倍～1.5倍の大気試料が採取された。また、2008年に採取した大気試料の最高高度は25kmであったが、今回は更に高々度（28.5km）での大気採取に成功した。

採取された大気試料のN₂O濃度とCH₄濃度の関係を図3（黒丸）に示す。図4には、これまで日本上空や赤道上空（本研究のテストフライト）、及び昭和基地上空成層圏で観測されたN₂OとCH₄濃度の関係も示している。N₂OとCH₄濃度は、それぞれ成層圏における化学反応と光解離によって高度と共に減少しており、両者の関係はほぼ直線上に載ることが知られている。図4に示されているとおり、

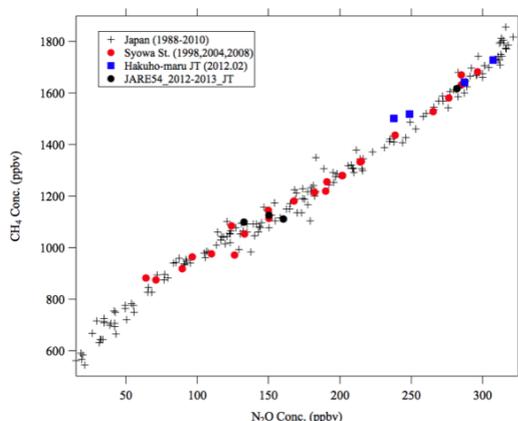


図4 日本、昭和基地及び赤道上空成層圏におけるCH₄, N₂O濃度の関係

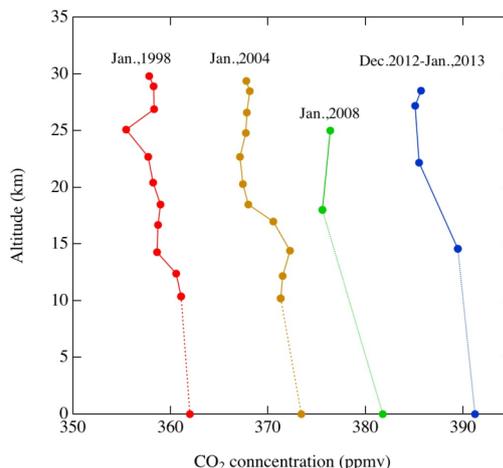


図5 昭和基地上空の成層圏におけるCO₂濃度の鉛直分布。地上でのCO₂濃度観測値も共に示す。

今回採取した大気試料の分析結果も過去のN₂OとCH₄濃度の分布上に載ることから、正常な成層圏大気試料の採取に成功していることが分かる。

図5に今回の実験で観測されたCO₂濃度の鉛直分布を示す。この図には過去の昭和基地実験で得られたCO₂濃度観測値も共に示している。今回観測された昭和基地上空成層圏でのCO₂濃度は、高度14.6kmで濃度が高く、22.2km以上28.5kmまではほぼ一定の値であった。このような分布は過去の昭和基地上空及び日本上空成層圏での観測結果と一致しており、成層圏下部ではCO₂濃度の高い対流圏大気の流入が生じていることが示唆される。

高度20km以上におけるCO₂濃度を平均し、過去の昭和基地上空での観測結果と比較した結果を図6に示す。1998年1月に高度20～30kmで平均358.2ppmvであった高度20km以上でのCO₂濃度は、2013年1月には385.4ppmvに達しており、地上での化石燃料消費・森林破壊によって放出されたCO₂が成層圏のCO₂濃度を増加させていることが分かる。この間のCO₂濃度平均増加率は1.85ppmv/yrである。

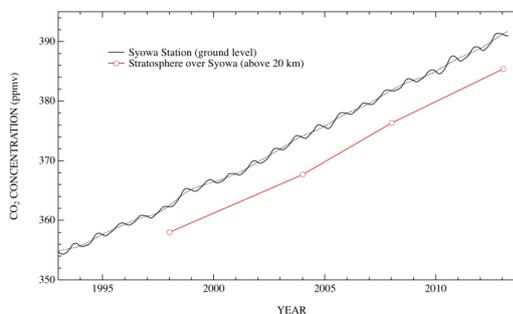


図6 昭和基地地上（黒）と高度20km以上の成層圏（赤）におけるCO₂濃度の変化

り、昭和基地地上での1998-2013年の平均増加率である1.88 ppmv/yrと推定誤差の範囲内で一致している。また、昭和基地上空の高度20-30 kmにおけるCO₂濃度、SF₆濃度から推定した成層圏大気のAge（赤道域で成層圏に注入されてからの経過時間）推定値（暫定値）は5.0年であり、これまでに経年的な変動は見られていない。昭和基地上空成層圏での観測データがまだ少ないことに注意する必要があるが、これらの結果は赤道域から南極域成層圏への物質輸送が、過去15年間にわたって変化していないことを示唆するものである。

今回の54次隊実験において大量の成層圏大気試料が採取されたことにより、放射性CO₂（¹⁴ΔC）やCH₄、N₂O同位体比の分析も可能であり、成層圏での物質輸送や光化学的活性気体の分解過程に関する情報が得られることが期待される。また、最近になって精密分析が可能になったO₂濃度（O₂/N₂比）やアルゴン濃度（Ar/N₂比）、大気主成分（O₂、N₂）同位体比の分析結果からは、気体の質量の違いによる各成分の重力分離についての知見が得られる。成層圏各高度における重力分離の大きさは、その空気塊が輸送されてくるまでの履歴に関する情報を持っている可能性があり、現在様々な議論が行われている。今後、更に他成分の濃度や同位体比の分析を行い、南極域成層圏における大気化学反応や物質輸送について、引き続き解析を進めていく予定である。

成層圏における温室効果気体の系統的な時系列観測例は極めて限られており、特に南極域成層圏での温室効果気体観測は我々の観測以外には実施されていないため、今後引き続き観測を継続することが期待されている。我々が開発・改良し、赤道域・南極域での成層圏大気試料の採取に成功した小型クライオサンプラーは、比較的小型のプラスチック気球と簡易な受信・放球設備によって成層圏大気を大量に採取することが可能である。今後、赤道域や極域などの遠隔地において成層圏大気の観測を行う際には、本小型サンプラーが非常に強力なツールになると考えられる。

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9件）

① Hara, K., Osada, K. and Yamanouchi, T., Tethered balloon-borne aerosol measurements: seasonal and vertical variations of aerosol constituents over Syowa Station, Antarctica. Atmos. Chem.

Phys. Discuss. 13, 8153-8211, doi:10.5194/acpd-13-8153-2013, 2013.（査読有り）

② Ishidoya, S., Morimoto, S. et al., (他5名、3番目) Gravitational Separation in the Stratosphere - A New Tracer of Atmospheric Circulation. Atmos. Chem. Phys. Discuss. 13, 4839-4861, doi:10.5194/acpd-13-4839-2013, 2013.（査読有り）

③ Yamanouchi, T., Early 20th century warming in the Arctic: A review. Polar Science 5, 53-71, doi:10.1016/j.polar.2010.10.002, 2011.（査読有り）

④ Hara, K., Yamanouchi, T. et al., (他2名、4番目) Seasonal variations and vertical features of aerosol particles in the Antarctic troposphere. Atmos. Chem. Phys. 11, 5471-5484, doi:10.5194/acp-11-5471-2011, 2011.（査読有り）

⑤ Morimoto, S., Yamanouchi, T. et al., (他7名、1、2番目) A new compact cryogenic air sampler and its application in stratospheric greenhouse gas observation at Syowa Station, Antarctica, J. Atmos. Ocean Tech. 26, 2182-2191, doi:10.1175/2009JTECHA1283.1, 2009（査読有り）

〔学会発表〕（計3件）

① 青木周司、森本真司、他、白鳳丸による東部太平洋赤道上で気球を用いた総合観測、平成24年度大気球シンポジウム、2012.10.17、神奈川県相模原市。

② 森本真司、山内恭、他、南極域成層圏大気の直接採取による温室効果気体の観測、平成23年度大気球シンポジウム、2011.10.7、神奈川県相模原市。

③ 森本真司、山内恭、他、成層圏大気の直接採取による温室効果気体の観測、第3回南極観測シンポジウム、2009.12.10、東京都立川市。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

山内 恭 (YAMANOUCHI TAKASHI)

国立極地研究所・研究教育系・教授

研究者番号：00141995

(2) 研究分担者

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

(3) 連携研究者

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

菅原 敏 (SUGAWARA SATOSHI)
宮城教育大学・教育学部・准教授
研究者番号 : 80282151