

平成 27 年 5 月 13 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B)

研究期間：2011～2014

課題番号：23310012

研究課題名(和文)炭素・水素同位体比観測による北半球高緯度での大気中メタン変動の解明

研究課題名(英文)Studies on temporal and spatial variations of atmospheric methane in the Arctic region using carbon and hydrogen isotopes

研究代表者

森本 真司(Morimoto, Shinji)

東北大学・理学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30270424

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,700,000 円

研究成果の概要(和文)：本研究では、重要な温室効果気体である大気中のメタン(CH₄)の北極域における濃度変動原因についての知見を得ることを目的として、北半球高緯度の4地点においてCH₄濃度とCH₄放出源に関する情報を持つC₁H₄の炭素・水素同位体比の系統的な時系列観測を実施した。その結果、北極域のCH₄濃度の季節変化には湿地及び化石燃料起源CH₄放出量の季節変化が大きな影響を与えていること、そしてCH₄濃度の経年変化に見られる複雑な変動は、湿地起源CH₄放出量の年々変化の寄与が大きいことが明らかになった。

研究成果の概要(英文)：The aim of this research is to obtain knowledge about the cause of temporal and spatial variation of atmospheric methane, which is one of the most important greenhouse gases after carbon dioxide. Systematic observations for the atmospheric CH₄ concentration and its carbon and hydrogen isotope ratios had been carried out at four sites in the northern high latitudes. Since the isotope ratios of CH₄ have information about CH₄ sources, high-precision and systematic observation of both the CH₄ concentration and the isotope ratios provide us an insight about the cause of the CH₄ concentration variation. It was found from the observation that the CH₄ released from wetland and fossil fuel contributed on the seasonal variation of the CH₄ concentration. In addition, it is suggested that CH₄ emission increase from wetland could be a dominant factor for the CH₄ concentration increase observed after 2006.

研究分野：大気科学

キーワード：物質循環 環境計測 温室効果気体 同位体比

1. 研究開始当初の背景

大気中の 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及び大気の直接観測によって明らかになっている¹。しかしその濃度変動を詳細に調べると、2000 年から 2006 年まで大気中の CH_4 濃度の増加はほとんど停止していたが、2006 年以降再び濃度の急上昇が観測されており、その動態は非常に複雑である²。このような CH_4 濃度変動の原因、つまり地球表層での CH_4 収支の変化を解明することは将来の CH_4 濃度予測の高精度化に不可欠であるが、 CH_4 の放出源が湿地域での有機物分解や反芻動物の腸内発酵から、化石燃料採掘や森林・泥炭火災まで非常に多岐にわたるため、観測された大気中 CH_4 濃度の変動のみからその変動原因を解釈することは困難であった。北極域は、今後の気候温暖化によって最も気温上昇が大きいと予測されている地域であり、永久凍土の融解や湿地域の拡大によって大量の CH_4 が大気に放出される可能性が指摘されている。しかし、観測データが不十分であることから、 CH_4 放出源の現状についても知見が不足している。

2. 研究の目的

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、 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 $\delta^{13}\text{C}$, 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。しかしながら、 $\delta^{13}\text{C}$ と δD の高精度分析には高度な技術と大量の大気試料 ($\delta^{13}\text{C}$: 10L、 δD : 100~400L) が必要であったため、これまで系統的な観測を維持してきた研究機関は極めて限られていた^{3,4}。本研究では、北極域の 4 地点 (スバルバル諸島・ニーオルスン、カナダ・チャーチル、ロシア・スルグート、及び北太平洋域) において、 CH_4 濃度と CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$, δD の高精度時系列観測を実施し、北半球高緯度における CH_4 放出源それぞれの寄与と変動を明らかにすることを目的とする。

3. 研究の方法

ニーオルスン (スバルバル諸島: 北緯 79 度、東経 12 度)、チャーチル (カナダ: 北緯 58 度、西経 94 度)、スルグート (ロシア: 北緯 61 度、東経 73 度)、北太平洋上 (北緯 45~54 度、東経 165 度~西経 150 度) において、大気中の CH_4 濃度及び炭素・水素同位

体比 ($\delta^{13}\text{C}$, δD) の時系列観測を実施し、 CH_4 放出源である湿地域 (チャーチル、スルグート) 近傍及び北半球高緯度のバックグランド大気観測に適したニーオルスンと北太平洋域における CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$, δD の変動を明らかにする。 CH_4 濃度と $\delta^{13}\text{C}$, δD に関する収支式を解くことにより、各地点で観測された CH_4 濃度変動におけるそれぞれの CH_4 放出源の寄与を推定する。また、各 CH_4 放出源の変動と客観解析データから抽出した気温・降水量の変化を解析し、気象・環境条件の変化に対する CH_4 放出源の応答とその地域的な差異を明らかにする。

4. 研究成果

まず、各観測地点での CH_4 濃度、同位体比変動の特徴と CH_4 放出源の寄与について述べ、次に最も長い時系列観測データが取得されているニーオルスンについて、北半球高緯度域バックグランド大気中での CH_4 濃度の変動原因について考察する。

(1) スバルバル諸島・ニーオルスンで観測された CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$, δD の観測値と、観測値へのあてはめ曲線及びデジタルフィルタ処理によって求めた長期変化成分の変動を図 1 に示す。この図に示すように、 CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$, δD それぞれに明瞭な季節変動が観測され、 CH_4 濃度は 1~3 月になだらかな極大、7 月に鋭い極小を示すが、 $\delta^{13}\text{C}$ の極大・極小値はそれぞれ 6 月と 9~10 月に観測された。 δD の季節変動はほぼ CH_4 濃度と逆位相であった。 CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$, δD の平均的な季節振幅は、それぞれ 45ppb、0.42‰、5.9‰であった。 CH_4 濃度と同位体比の季節変動を解析することにより、 CH_4 濃度の季節変動には、OH ラジカルとの反

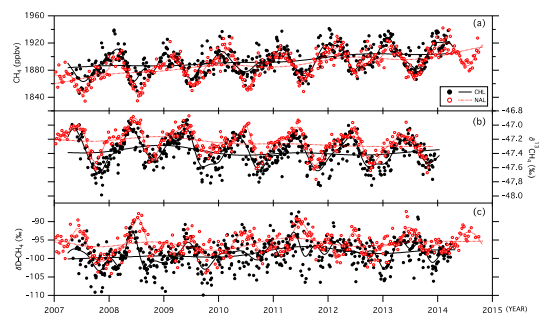


図 1 ニーオルスン (赤)、チャーチル (黒) における CH_4 濃度 (上図)、 $\delta^{13}\text{C}$ (中図)、 δD (下図) の観測値 (○、●) とあてはめ曲線 (実線) 及び長期変動成分 (破線) を示す。

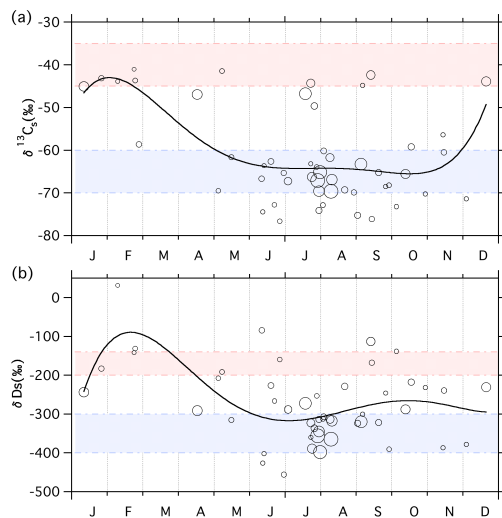


図2 チャーチルで観測された CH_4 濃度短周期変動について、変動の原因となった CH_4 放出源の $\delta^{13}\text{C}$ (上) と δD (下)。赤帯と青帯はそれぞれ化石燃料起源 CH_4 、湿地起源 CH_4 の $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD を示す。

応による CH_4 消滅量の季節変動に加えて、夏期には微生物起源、冬期には化石燃料起源の CH_4 放出が寄与していることが示唆された。

(2) カナダ・チャーチルにおける CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の観測値、あてはめ曲線および経年変化も図1に示している。この図から分かるとおり、チャーチルでの観測値は、北極域のバックランド大気の観測値と考えられるニーオルスンと比較して、 CH_4 濃度は高い値、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD は同位体的に軽い値を示していた。これは、チャーチル周辺の湿地から大量の CH_4 が放出されていることを反映していると考えられる。チャーチルで観測された CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の季節変動についてニーオルスンと比較すると、 CH_4 濃度の極小値、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の極大値の出現時期が全て1ヶ月程度早いことが明らかとなった。また、 CH_4 、 δD の季節変動の平均振幅は、それぞれ37.8ppb、4.5‰であり、ニーオルスンよりも小さくなっていたが、 $\delta^{13}\text{C}$ の振幅は0.44‰と同程度であった。 CH_4 、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の収支解析から、チャーチルでの湿地起源 CH_4 放出量の極大がニーオルスンよりも1ヶ月早いことが、季節変化の違いを作り出していることが明らかになった。

チャーチルにおいて年間を通じて観測される短周期の CH_4 濃度変動イベントを抽出し、原因となる CH_4 放出源の同位体比を求めた。その結果を図2に示す。この図から、冬期には $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 共に同位体的に重い化石燃料起源の

CH_4 が、夏期には共に同位体的に軽い湿地起源の CH_4 が短周期の濃度増加を引き起こしていることが明らかになった。後方流関線解析の結果から、冬期の化石燃料起源 CH_4 はヨーロッパ・北米からの汚染大気の長距離輸送、夏期の湿地起源 CH_4 は近傍の湿地の影響を受けていることが示唆された。

(3) 西シベリア・スルグートにおいて小型航空機を用いて系統的に採取された大気試料を分析し、2012-2014年の高度1000mと4000mにおける CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の変動を明らかにした。高度4000mでは、 CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 全てに明瞭な季節変動が観測された。一方、高度1000mでは $\delta^{13}\text{C}$ のみ夏期に極小値を示す季節変動を示したが、 CH_4 濃度と δD は特に夏期のばらつきが大きく、明瞭な季節変動は観測されなかった。 CH_4 濃度は、バックランド大気観測地点であるニーオルスンと比較して1年を通じて高く、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD は同位体的に軽い値を示した。このことから、スルグートでは、チャーチルと同様に湿地からの CH_4 放出の影響を受けていることが示唆された。夏期に観測される短周期変動に注目し $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD 収支を解析した結果、特に高度1000mでは湿地起源の CH_4 放出の影響を強く受けていることが明らかになった。

(4) 北太平洋域(北緯45度~54度、東経165度~西経150度)を航行する民間商船上で採取された大気試料を分析し、2013-2014年の CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD の変動を明らかにした。観測された季節変動の平均振幅は、 CH_4 濃度、 $\delta^{13}\text{C}$ 、 δD についてそれぞれ41.1ppb、0.37‰、6.2‰であり、位相は、ニーオルスンよりも半年~1ヶ月、チャーチルよりも1ヶ月~2ヶ月遅れていた。その原因として、北太平洋域では春期に低緯度側でのバイオマス燃焼の影響を受けること、夏期の湿地起源 CH_4 の影響が北半球高緯度域よりも小さいことが考えられる。また、2013年の夏期から2014年の夏期にかけて、 CH_4 濃度が約+20 ppbv、 $\delta^{13}\text{C}$ が約-0.3‰の大きな変動を示した。 $\delta^{13}\text{C}$ の収支解析から、微生物起源 CH_4 がこのような濃度変動に寄与していることが示唆される。しかしながら、 CH_4 濃度の年々変動の原因を議論するためには、さらに長期間の時系列データの蓄積が必要である。

(5) ニーオルスンで観測された CH_4 濃度は2000年までは年々増加していたが、2000年から2005年までは濃度増加が停滞し、その後

2006年から再度増加するという複雑な変動を示している。CH₄放出源のうち、バイオマス燃焼によるCH₄放出量およびOHラジカルとの反応によるCH₄消滅量に経年的な変化がなかったと仮定した上で、本研究で得られたCH₄濃度とδ¹³Cの観測値を矛盾なく説明するためには、1999年以前と比較して、2000-2005年の期間には化石燃料起源と湿地起源のCH₄放出量が共に減少していた必要があることが明らかになった。同様の解析を2006年以降のデータを用いて行ったところ、2006年以降のCH₄濃度の再上昇は、湿地起源CH₄放出量の増加のみで説明が可能であった。また、濃度増加が停滞していた2000-2005年の期間中、2003年のみCH₄濃度の一時的な上昇が観測された。2003年についてもCH₄濃度とδ¹³Cの収支解析を行ったところ、湿地起源のCH₄放出量増加が濃度の一時的な増加に寄与していたことが明らかになった。2003年はヨーロッパが異常高温であった年であり、また2007年は北半球高緯度で高温、2007-2008年には熱帯域で降水量が多かったこと、湿地からのCH₄放出量は、気温と地下水位の変動に非常に敏感であるという事実等も、湿地起源のCH₄放出量の増加がこれらの変動を引き起こしているという本研究の結論を傍証するものである。

<引用文献>

- ¹Aoki et al., Measurements of atmospheric methane at the Japanese Antarctic Station, Syowa, Tellus 44B, 273-281, 1992.
- ²Dlugokencky et al., Observational constraints on recent increases in the atmospheric CH₄ burden, Geophys. Res. Lett. 39, L18803, doi://10.1029/2009GL039780, 2009.
- ³Bergamaschi et al., Measurements of the carbon and hydrogen isotopes of atmospheric methane at Izaña, Tenetire' Seasonal cycles and synoptic-scale variations, J. Geophys. Res. 105, 14531- 14546, 2000.
- ⁴Quay et al., The isotopic composition of atmospheric methane Global. Biogeochem. Cycles 13, 445-461, 1999.

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5件)

Umezawa, T., D. Goto, S. Aoki, K. Ishijima, P.K. Patra, S. Sugawara, S. Morimoto and T.

Nakazawa, Variations of tropospheric methane over Japan during 1988–2010, Tellus 66B, 23837, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v66.23837>, 2014. (査読あり)

Goto, D., S. Morimoto, S. Aoki and T. Nakazawa, High precision continuous measurement system for the atmospheric O₂/N₂ ratio at Ny Alesund, Svalbard and preliminary observational results., Antarctic Record, 57, 17-27, 2013. (査読あり)

Ishidoya, S., S. Morimoto, S. Aoki, S. Taguchi, D. Goto, S. Murayama and T. Nakazawa, Oceanic and terrestrial biospheric CO₂ uptake estimated from atmospheric potential oxygen observed at Ny-Alesund, Svalbard and Syowa, Antarctica. Tellus 64B, 1-8, <http://dx.doi.org/10.3402/tellusb.v64i0.18924>, 2012. (査読あり)

[学会発表](計7件)

藤田 遼、森本 真司ほか、カナダ・チャーチルにおける大気中メタン濃度とその炭素・水素同位体比の変動、日本地球惑星科学連合大会、2015/5/23-26、幕張メッセ(神奈川県・横浜市)

藤田 遼、森本真司ほか、チャーチルにおけるCH₄同位体比の変動、大気化学討論会、2014/10/27-29、府中グリーンプラザ(東京都・府中市)

Morimoto, S. et al., Temporal variations of concentration and isotope ratios of atmospheric methane observed at Ny-Ålesund, Svalbard, 9th International Carbon Dioxide Conference, 2013/6/3-7, Beijing (China)

森本真司、大気観測に基づく地球規模炭素循環の研究、日本気象学会秋季大会シンポジウム、2013/11/19-21、仙台国際センター(宮城県・仙台市)(招待講演)

森本真司ほか、スバルバル諸島ニーオルスにおける大気中メタン濃度と同位体比の変動、第19回大気化学討論会、和倉温泉のと楽(石川県・七尾市) 2013年11月6-8日

[その他]

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究代表者

森本 真司 (MORIMOTO, Shinji)
東北大学・大学院理学研究科・教授
研究者番号： 3 0 2 7 0 4 2 4

(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： 0 0 1 8 3 1 2 9

山内 恭 (YAMANOUCHI, Takashi)
国立極地研究所・研究教育系・教授
研究者番号： 0 0 1 4 1 9 9 5

(平成25年度より研究分担者)

(3) 連携研究者

八代 尚 (YASHIRO, Hisashi)
理化学研究所・計算科学研究機構・研究員
研究者番号： 8 0 4 5 1 5 0 8