

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 18 日現在

機関番号：10106

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24656132

研究課題名(和文)湖沼メタンの炭素14年代測定による永久凍土融解速度推定技術の開発

研究課題名(英文)Development of thaw speed estimate methods of permafrost by AMS14C analysis

研究代表者

佐々木 正史(Sasaki, Masafumi)

北見工業大学・工学部・教授

研究者番号：10322885

交付決定額(研究期間全体):(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文): 1. AMS14C測定に向けて前処理で必要となる溶存メタンの抽出・濃縮・酸化ラインの製作を進めた。メタンの酸化効率は、ほぼ100%に近いことが確認され、実サンプルでの実施が可能となった。アラスカの湖沼水の全炭酸の14C測定を実施した結果、ツンドラ域のサーモカルスト湖において、直下の凍土層に存在する古い炭素の寄与を示唆する結果を得た。また、好氣的湖水中溶存メタンを常温・暗室において約30日間固定する手法を確立した。

2. 有限要素法による非定常熱伝導解析を行った結果、現在の気温レベルでは永久凍土の融解面は安定しており、通常の湖水中溶存メタンには永久凍土起源の溶存メタンは存在しないことが示唆された。

研究成果の概要(英文): 1. For the preparation of AMS radiocarbon analysis of dissolved methane(DM), the methods of extraction, purification, and oxidation of the DM were carried out. The yields of oxidation of extracted methane was achieved to 100%, which gives enough amount of carbon from actual samples for microscale 14C AMS analysis. Radiocarbon contents of dissolved inorganic carbon(total carbon) in lake water in Alaskan thermokarst lakes were measured. The results showed contribution of fossil carbon derived from sources of both methane and respired CO₂ preserved in permafrost layers under lake floor. We established technique to maintain dissolved methane concentrations in an aerobic condition for approximately 30 days.

2. As a result of the transient heat transfer analysis by the finite element method, the depth of the permafrost table is very stable at the current air temperature level. Thus, it was suggested that dissolved methane caused by thaw permafrost does not exist in normal lake waters.

研究分野：熱工学

キーワード：溶存メタン 湖沼 永久凍土 炭素14年代

1. 研究開始当初の背景

アラスカ、シベリアの北極圏には永久凍土地帯の存在が認められている。この永久凍土層の融解に伴い、大量のメタンの発生が促され、温暖化の正のフィードバック機構が演じられるとされているが、その発生量増加率と温暖化との関連性は明らかにされていない。森林火災や温暖化による永久凍土の融解に伴う大量のメタンの大気への放出が論じられている一方、この約十年來(2000年～)大気中メタンCH₄濃度は殆ど増加せず2006年のグローバル平均濃度は誤差範囲(-1 ppb)とはいえ、前年比初めてマイナスの増加率となった(WMO)。これはCO₂濃度の増加率が長年の1.5 ppm/yrから2006年ついに前年比2.0 ppm/yrまで急増したのと対照的である。大気中CO₂とCH₄とは地球温暖化を論ずる際、常に正の相関かつ正のフィードバックを示すセットとして提示されてきたが、この十年來のCH₄のCO₂との非同調的な挙動が何を意味し、将来どのように推移するのかがIPCCの第5次報告書(AR5, 2014)[1]でも明らかにされていない。温暖化に伴う永久凍土の融解、それに伴う大気へのメタンフラックスの増加という機構は、そのプロセスに関する理解が不十分なために、全球気候変動予測モデリングに組み込まれておらず、今後現地での観測に基づいて急速に理解を深めることが世界的課題となっている。

2. 研究の目的

本研究では凍土地帯上の湖沼に着目し湖水中の溶存メタンおよび近傍の永久凍土の放射性炭素同位体を利用する加速器質量分析計による年代測定(AMS14C)から、永久凍土起源(年代的には湖底堆積層で生成されるメタンより古い)の溶存メタン比率を明らかにし、永久凍土の融解が湖沼水中溶存メタン濃度増加(∝大気への拡散メタンフラックス)に寄与する程度を定量的に決定する手法を確立する。そのために先ず湖水中溶存メタンの抽出・濃縮・グラファイト化技術を確立する。

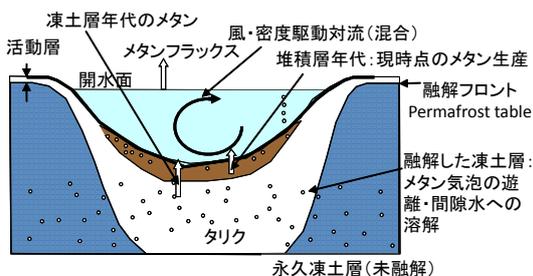


図1 永久凍土地帯の湖沼とメタンの挙動

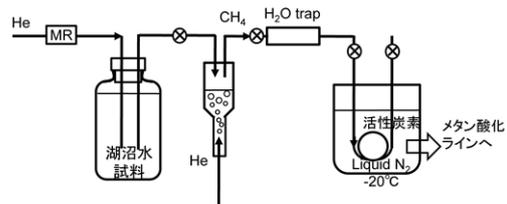
3. 研究の方法

3.1 湖水中DMのAMS14C年代分析方法

AMSで14C分析を実施するためには、試料を

前処理でガス化(CO₂)し、グラファイト化する必要がある。国環研所有のAMSでは、14C測定において10 μg C以上の炭素量が必要となるため、①湖沼水からの溶存メタンの抽出および濃縮、②極微量炭素量での14C測定のためのグラファイトラインの生成真空ラインの作成を行った。①で用いる真空前処理ラインは、湖沼水からの溶存メタンの抽出は、外径1/8インチのステンレス配管をベースにして、マスフローコントローラー、圧力計、溶存メタン脱気、脱気メタンの活性炭トラップおよび熱脱着、さらにメタンの酸化炉からなる装置を作成した(図2)。②のグラファイトラインに関しては、Uchida et al. 2004[5]を基に、電気炉および反応部の圧力変化をモニタリング出来る様改良を加えた。

▼溶存メタン抽出・濃縮ライン



▼メタン酸化ライン

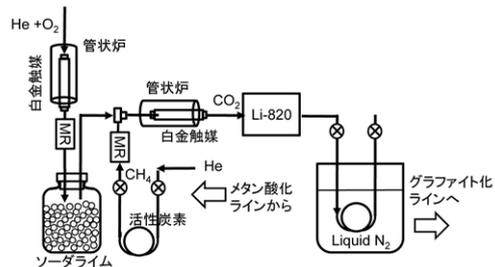


図2 溶存メタン濃縮装置および酸化装置

3.2 湖底堆積物および湖水全炭酸14C年代測定方法

湖底堆積物の年代測定を行うため、湖が結氷する3月に試料採取を実施した。凍土採取用のエンジン付コアラーを用いて、2013年の3月にフェアバンクス近郊の3つの湖でコア試料採取を行った。これらを日本に持ち帰り、分割後凍結乾燥させ、元素分析計でCO₂化したのちグラファイト化させ、AMS測定を実施した。また、2014年9月にアラスカ・ノーススロープのツンドラにある3つの湖、およびフェアバンクス近郊の湖の合計4カ所で、湖沼水を採取し、全炭酸の14C測定を実施した。

3.3 水中溶存メタン濃度DMの測定方法および固定方法

北見市で比較的高濃度のDMが得られる常盤公園において、1試料あたり減圧した127 mlのバイアル瓶にニードルで約35 mlの湖水を採取した。これを一か所から16本採取したため、分析は採水順位の早い試料と遅い試料2本の組合せとした。ヘッドスペース(窒素充填)に40°C一定×20分でメタンを平衡

させた後、ヘッドスペースガス 2 ml を水素炎イオン検出器 (FID) 付きガスクロマトグラフィー (島津 GC-14B) にインジェクションした。好氣的試料における溶存メタンは塩化第二水銀 HgCl_2 を添加して固定した。

3.4 永久凍土の融解解析方法

汎用有限要素法ソフト ANSYS ver. 13 を用いて円錐形湖沼とその周辺を含む 2 次元軸対称モデルの非定常熱伝導解析を実行した。上面に風による線形熱伝達、外周および底面には断熱の境界条件とした。気象条件 (気温および風速) は北極海沿岸地域を代表してポイント・バロー (Point Barrow 以下 PB と略記) およびツンドラ内陸を代表してサグワンヒルズ (Sagwon Hills 以下 SH と略記) の近年 10 年間のデータをそれぞれ平均して境界条件として用いた。気温および熱伝達率は半月毎に変更し、平均気温が零下の期間には 0.5m の積雪を付与した。計算ステップは 1 時間とした。

4. 研究成果

4.1 水中溶存メタンの濃縮・グラファイト化方法の開発

溶存メタンの抽出ラインの製作を進め、溶存メタンの抽出条件、活性炭の吸着・脱着の条件検討およびメタン酸化条件について検討を行った。本研究で最も重要であった、抽出したメタンの酸化ラインについて酸化効率の確認実験を実施した結果、ほぼ全量が酸化されることが確認されたため、実サンプルでの実施にめどが立った。また、極微量炭素での 14C 測定が実施出来るよう改良を加えたグラファイトラインについて条件検討した結果、 $50 \mu\text{g C}$ の 14C 測定を 1% 程度での測定誤差で測定が可能であることが確認された。2015 年 3 月に、溶存メタンの 14C 分析用に、フェアバンクス近郊の 3 カ所の湖で、結氷下にある湖沼水を採取した。溶存メタン濃度分析の結果、 $100 \mu\text{g C}$ 以上の炭素が抽出出来ることが確認され、これらの 14C 分析を進めている。

4.2 採水試料の DM 固定方法の開発

海外フィールドにおける DM の抽出・濃縮は現状の開発装置では当面困難であることが判明したため。塩化第二水銀 HgCl_2 による常温・暗所にて長期的に保存できる DM 固定

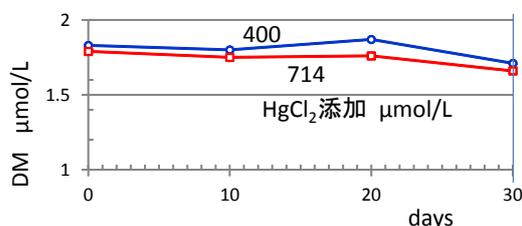


図3 溶存メタン(DM)固定結果

法を検討した。その結果 HgCl_2 濃度 $400 \mu\text{mol/L}$ の場合約 30 日間常温暗室にて DM を固定できた (30 日目は-6%と有意の減少)。これは一般に推奨される濃度[2]の 2 倍である。より高濃度の HgCl_2 ($=714 \mu\text{mol/L}$) でも効果は同等であった。この結果、例えばアラスカで採取したサンプルを日本国内で分析することが可能になった。

4.3 永久凍土の融解解析

アラスカ湖沼の DM 観測において、連続的に永久凍土が存在するツンドラ地帯の湖沼にもかかわらず、永久凍土の無い欧州北部の湖沼の DM[3]と同等のレベルであることが分かった[4]。その原因を明らかにするために、現在のアラスカ北極圏有限要素法 (FEM) による永久凍土の融解解析を実施した。その結果、初期土壌温度を与えて計算を開始してからおよそ 10 年以内に地中温度分布の季節変動は安定化し、その後は現在の気象条件では永久凍土が新規には融解しないことが示された。さらに気温データを年間にわたり $+1^\circ\text{C}$ ステップ上昇させたところ、やはり 10 年以内に永久凍土面 (permafrost table) は安定化し、融解深度の増加はごく僅かであることが示唆された。永久凍土の上の湖沼にもかかわらず永久凍土の存在しない北極圏の DM と差異が認められないのは、メタンを大量に含むとされる永久凍土の融解が近年の気候変動では極めて限定的であることが原因だと考えられる。

従って、今後は活発な融解が観測されているサーモカルスト湖 thermokarst lake (凍土融解湖) などを重点的に観測する必要がある。

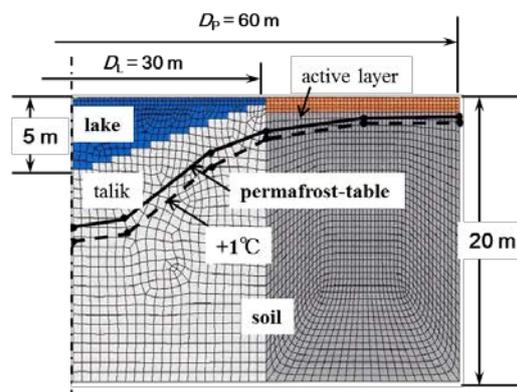


図4 有限要素法によるアラスカツンドラの湖沼周辺における永久凍土面の予測 (初期条件: $t_0=0^\circ\text{C}$ 、気象条件: ポイント・バロー): 湖沼部は 1 月末、周辺部は 8 月末 (いずれも計算開始後 10 年目)

破線: 気象条件として全期間一律気温を 1°C 上昇させた場合

2059-2072

- ⑧ Parsekian A. D., Grosse G., Walbrecker G. O., Müller-Petke M., Keating K., Liu L., Jones B. M., Knight R. Detecting unfrozen sediments below thermokarst lakes with surface nuclear magnetic resonance. *GEOPHYSICAL RESEARCH LETTERS*, 40, 2013, 535-5402013

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1件)

- ① Masafumi Sasaki, Noboru Endoh. Exchanges of Methane between Lakes and the Atmosphere in Hokkaido, Subarctic Climate Region, Japan. *Journal of Water Resources and Ocean Science*. Vol. 3, No. 6, 2014, pp. 89-94. doi: 10.11648/j.wros.20140306.14

[学会発表] (計5件)

- ① Masafumi Sasaki, Masao Uchida, Miyuki Kondo, Motoo Utsumi, Seiichiro Yonemura and Keisuke Nakayama, Influence of the thawing permafrost on methane diffusion flux from lakes in the Alaskan Arctic Zone., *Proceedings of the ISAR-4 / ICARP III, session A6-3*, April, 2015.
- ② Masafumi Sasaki, Masao Uchida, Motoo Utsumi, Miyuki Kondo, Yong-Won Kim and Noboru Endoh. Methane flux from lakes in the Alaskan Arctic Zone. *Proceedings of 30th Intern. Symposium on Okhotsk Sea and Sea Ice*, B-10, pp.83-86, (2015.2)
- ③ 米村正一郎、内田昌男、近藤美由紀、自動測定システムによるアラスカ凍土コアサンプルの各種微量ガス交換量測定、日本地球惑星科学連合 2014 年大会、2014 年 4 月 30 日、パシフィコ横浜 (横浜)
- ④ 米村正一郎、内田昌男、近藤美由紀、アラスカ凍土コアサンプルのガス交換特性実験、第 4 回極域科学シンポジウム、2013 年 11 月 12 日、極地研 (立川)
- ⑤ Amano S. C., Utsumi M., Uchida M., Kondo M., Adachi M., Yamamoto T. CO₂, CH₄ fluxes and bacterial diversities at terrestrial ecosystem along the trans-Alaska pipeline in tundra and boreal forest, Alaska. *AGU fall meeting 2012*, 2012 年 12 月 03 日、サンフランシスコ (米国)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

佐々木 正史 (SASAKI, Masafumi)
北見工業大学工学部・教授
研究者番号：10322885

(2) 研究分担者

近藤 美由紀 (KONDO, Miyuki)
国立環境研究所・研究員
研究者番号：30467211

(3) 連携研究者

内田 昌男 (UCHIDA, Masao)
国立環境研究所・主任研究員
研究者番号：50344289