地球表層環境への温暖化影響の監視を目指した酸素・二酸化炭素同位体の長期広域観測

環境省 国立研究開発法人国立環境研究所

地球システム領域	動態化学研究室	遠嶋康徳
地球システム領域	炭素循環研究室	寺尾有希夫・荒巻能史・
		向井人史
地球システム領域	大気・海洋モニタリング推進室	中岡慎一郎

気象庁気象研究所

気候・環境研究部 第三研究室

坪井一寛

平成31-令和5年度合計予算額 104,231千円 (うち、令和5年度当初予算額 22,678千円)

[要旨]過去10年間の世界平均気温は非常に高い値を示しながら推移してきたが、2023年に は観測史上最高値を示し、二酸化炭素(CO₂)等の温室効果ガスの増加に起因する温暖化傾 向が明らかとなってきた。地球システムモデル等の研究から地球温暖化は地球表層環境に 様々な影響を与えることが予想され、中でも炭素循環に対する影響では、陸域生物圏や海 洋のCO2吸収量を低下させ、大気中のCO2濃度の増加を加速する可能性が指摘されている。 本研究では、炭素循環の指標となる大気や海水中のCO2の安定同位体や放射性同位体、さら に、大気中酸素濃度を観測し、炭素循環への温暖化影響を監視することを目的とする。そ の目的実現のため、アジア・太平洋域に展開する地上ステーションや太平洋上を定期運航 する貨物船を利用して広域観測を実施した。2023年末までの観測結果に加えて、これまで に蓄積した観測結果も用いて、過去20年以上にわたる全球炭素収支の変動を明らかにした。 大気中の酸素濃度の観測から2000年から2022年にかけての23年間の平均的な炭素収支を 求めると、化石燃料起源CO2の平均排出量8.9 PgC yr⁻¹に対し、海洋及び陸域生物圏の吸収 量はそれぞれ3.0 ± 0.8 PgC yr⁻¹及び1.3 ± 1.0 PgC yr⁻¹となった。一方、CO₂の安定同 位体の観測から海洋の炭素吸収量の時間変化を調べると、1995年以降増加傾向を示したが、 2010年以降は増加傾向が停止した。しかし直近の2年間では再び増加傾向が見られること が分かった。また、陸域生物圏の吸収量は世界平均気温が低い時に増加し、高い時に減少 する傾向が認められた。全体としてここ10年吸収量は増加傾向にはなかった。

[キーワード] 地球温暖化、炭素循環、大気酸素、炭素安定同位体、放射性炭素同位体

1. はじめに

人為起源 CO₂(化石燃料起源及び土地利用変化に伴う CO₂)の排出量を削減するための様々 な努力が続けられているが、CO₂排出量は経済活動と密接に関連しており、大気中の世界平 均 CO₂濃度は毎年最高値を更新し続けている。グローバルカーボンプロジェクト(GCP)の推 定によると、新型コロナウイルス感染症(COVID-19)が全世界に拡大した 2020 年には世界 規模での経済活動の停滞により化石燃料起源 CO₂ 排出量は 5.5%減少したと推定されたが、 2021 年には 2019 年レベルの排出量まで回復し、2022 年には差はわずかではあるが過去最高 の排出量が推定されるに至っている¹⁾。COVID-19 が及ぼした大気中の CO₂ 濃度への影響につ いての研究報告によると、地域・領域規模では CO₂ 濃度の減少が検出された例もあるが^{2.3)}、 CO₂ 濃度トレンドに COVID-19 の影響を見いだすことは難しいとされている⁴⁾。COVID-19 感染 拡大時のロックダウン等での日常生活の制限を考えると、人為起源 CO₂ を削減し、大気中の CO₂ 濃度の増加を止めることが容易ではないことが想像できる。

大気中の CO₂ 濃度の着実な増加を反映し、世界の平均気温は多少の揺らぎを伴いながらも 長期的には一貫して増加傾向にある。特に、2010 年以降は気温上昇速度が加速し、2023 年 は観測史上最高温度となり、観測開始以降で気温の正偏差が高かった上位9番が 2015 年か ら 2023 年までの9年間に生じている⁵⁾。(なお、2023 年の全球平均気温は 1850-1900 年と比 較して 1.45±0.12°Cの上昇となり、これは後述するパリ協定での全球平均気温上昇の上限に 極めて近い値であることが分かる。)こうした温暖化の進行に伴い、災害を引き起こすよう な豪雨や熱波等の極端な気象現象が世界各地で増加し、北極海での海氷の縮小や生態系の変 化等の影響が認められるようになってきた。さらに、温暖化は地球表層の陸域生物圏や海洋 の炭素循環にも影響を与える可能性が指摘されている。

現在、大気中のCO2増加量は排出される人為起源CO2の半分程度でしかないが、これは残りの 人為起源CO2を陸域生物圏と海洋が吸収したためである。つまり、こうした自然のCO2吸収源が 大気中の濃度増加のブレーキの役割を果たし、ひいては地球温暖化の進行を抑制している。 しかし、温暖化は様々なプロセスを通じて自然吸収源の吸収能力に影響を及ぼす可能性があ る。例えば、温度上昇は土壌有機物の分解速度の上昇を、乾燥化は森林火災の増加を引き起 こし、高緯度帯に存在する凍土が温暖化で融解すると凍土中に閉じ込められていた有機物の 分解が進み、また凍土中に含まれているCO2やメタン(CH4)が大気中に放出されることになる。 さらに、温暖化により海洋表層ほど水温上昇が顕著になることで海洋の成層化が強化されて 海洋の鉛直混合が抑制されるため、海洋のCO2吸収能力が減少する可能性がある。

2015年にCOP21で採択された「パリ協定」では産業革命以後の全球平均気温上昇の上限を 2 ℃未満とし、可能な限り1.5 ℃とすることが求められた。一方、2023年3月20日に公表さ れた気候変動に関する政府間パネル(IPCC)第6次評価報告書 統合報告書によると、1.5 ℃及 び2 ℃目標を達成するためにはそれぞれ2050年代初頭及び2070年初頭に世界全体のCO₂排出 量の正味ゼロを達成する必要があることが示された。したがって、パリ協定で合意された目 標達成のための実効的な排出削減策計画の策定が急務となっている。こうした状況のなか、 地球温暖化の影響によって海洋・陸域生物圏のCO₂吸収量が将来どのように変化するかを予測 することは極めて重要な課題である。それは、温暖化によって自然吸収源の吸収量が減少し た場合、大気中からのCO₂除去などの追加的な措置が必要となる可能性があるからである。ま た、CO₂の自然吸収源の将来予測は温暖化の進行速度とも密接に関連するため、温暖化に対す る適応計画を実施する速度を考える上でも重要である。

2. 研究目的

本研究では、これまでの地球環境保全試験研究費計上課題を通じて構築してきたアジア・ 太平洋地域に広く展開する大気観測網を活用し、炭素循環に対する温暖化の影響を監視する ことを目標とする。具体的には、大気試料を密閉できるフラスコに採取し(フラスコサンプ リング)、炭素循環の指標となる CO2の炭素安定同位体(¹³C)及び放射性炭素同位体(¹⁴C)、 さらに、酸素濃度の広域観測を実施し、炭素循環の時空間的な変化を解明する。フラスコサ ンプリングは、日本-オセアニア(豪州・ニュージーランド)、日本-北米、日本-東南アジ ア間をそれぞれ定期運行する貨物船と、インド、バングラデシュ、中国、マレーシア、日本 (波照間島、落石岬、南鳥島)、米国(ハワイ、ラホヤ)に設定された地上観測地点において 行う。なお、波照間島及び落石岬に国環研が所有する地上ステーションと日本-オセアニア 間及び日本-北米間を運航する貨物船では酸素濃度の連続観測も実施し、より詳細な時間・ 空間変動を明らかにする。また、¹³C や¹⁴C についても詳細な時間変化を調べるために、大気 試料を任意の時間にサンプリングできるイベントサンプリングシステムを活用し、波照間・ 落石ステーションにおける CO2 濃度変動時の同位体の変化と濃度の関係を調べる。さらに、 大気-海洋間の CO2 の交換を詳しく解析するために、日本-オセアニア間と日本-北米間を 航行する貨物船を利用して表層海水試料を採取し、表層海水に溶存する無機炭酸中の¹⁴C及 び¹³Cの観測を行う。これまでの地球環境保全試験研究費計上課題における観測結果と合わ せることで、最終的にはアジア・太平洋域を広くカバーし、過去 20 年以上の長期間にわたる 同位体及び酸素濃度のデータセットを構築する。

観測された同位体や酸素濃度の時空間変動から、グローバルな海洋・陸域生物圏の吸収量 の年々変動や長期的な変化傾向を推定する。このようにして得られた炭素循環の時空間変動 と、エルニーニョ・ラニーニャサイクルのような気候変化や大規模な干ばつ等の異常気象、 長期的な温暖化傾向等との関係から、温暖化の炭素循環に及ぼす影響を明らかにする。

さらに、本研究で蓄積される大気中の酸素濃度及び CO2 の同位体に関する長期データについて、国内外の研究機関によるモデル研究の利活用を積極的に推進し、炭素循環に対する温暖化影響の解明の深化や新たな現象の把握、さらには地球システムモデルの検証などを進め、最終的には温暖化に対する炭素循環の応答の推定精度が高まることを目標とする。

3. 研究方法

(1) 大気及び海水試料の採取

本研究における大気観測のフラスコサンプリング及び現場連続測定地点を図1に、また各 地点での分析項目を表1に示した。フラスコサンプリングによって採取された大気試料は、 国環研で酸素濃度、CO2濃度、CO2同位体等の分析を実施した。また、酸素濃度の連続測定を、 波照間・落石ステーション、及び北米航路・オセアニア航路を航行する貨物船(NC2及びTF5) において実施した。

フラスコサンプリングには両端に高気密性のバルブが取り付けられたフラスコを使用し、 材質がパイレックスガラス(容量:1L、2L、2.5L、酸素・同位体測定用)又は内面を複合 電解研磨したステンレス(容量:3.3L、主に同位体測定用)の2種類を用いた。大気試料は、 地上サイトの場合は鉄塔の最上部や建物の屋上に、また貨物船の場合は前方デッキ等にそれ ぞれ設置された採取口から、ポンプを用いて採取された。採取された大気試料は、容器内の 結露を防ぐため-40℃の低温トラップを通して除湿した後にフラスコに加圧充填された。大気 試料の充填圧力は酸素測定の場合+1 気圧(絶対圧で2気圧)、同位体比測定の場合+2-2.5気 圧(絶対圧で3-3.5気圧)であった。



図1 本研究における CO₂同位体及び酸素の観測地点。赤丸はフラスコサンプリングを実施し ている地上サイトを、青四角は酸素の連続測定を実施している地上サイトをそれぞれ示す。 ピンク色の丸及び青線は本研究課題の5年間(2019-2023 年)に実施された貨物船でのフラ スコサンプリング及び酸素の船上連続測定地点をそれぞれ示し、灰色の丸および灰色線はそ れ以前に実施されたものを示す。

~ · ·					
コード	王	位置	分析項目		
HAT	日本	24N, 124E	CO2同位体,	02,	0₂連続
COI	日本	43N, 146E	CO2同位体,	02,	0₂連続
MNM	日本	24N, 154E	CO₂同位体,	02	
MLO	米国	20N, 156W	CO2同位体,	02	
SIO	米国	33N, 117W	02		
NTL	インド	29N, 80E	CO2同位体,	02	
CLA	バングラデシュ	23N, 91E	CO₂同位体,	02	
GUI	中国	27N, 107E	CO2同位体,	02	
DMV	マレーシア	5N, 118E	CO2同位体		
NC2	_	北米航路	CO2同位体,	0 ₂ ,	0₂連続
TF5	_	オセアニア航路	CO2同位体,	02,	0₂連続
FW	—	東南アジア航路	CO2同位体,	02	
	⊐ — F HAT COI MNM MLO SIO NTL CLA GUI DMV NC2 TF5 FW	コード国HAT日本COI日本MNM日本MLO米国SIO米国NTLインドCLAバングラデシュGUI中国DMVマレーシアNC2-FW-	コード国位置HAT日本24N, 124ECOI日本43N, 146EMNM日本24N, 154EMLO米国20N, 156WS10米国33N, 117WNTLインド29N, 80ECLAバングラデシュ23N, 91EGUI中国27N, 107EDMVマレーシア5N, 118ENC2-北米航路TF5-オセアニア航路FW-東南アジア航路	コード国位置分析項目HAT日本24N, 124ECO2同位体,COI日本43N, 146ECO2同位体,MNM日本24N, 154ECO2同位体,MLO米国20N, 156WCO2同位体,S10米国33N, 117WO2NTLインド29N, 80ECO2同位体,CLAバングラデシュ23N, 91ECO2同位体,GUI中国27N, 107ECO2同位体,DMVマレーシア5N, 118ECO2同位体,NC2-北米航路CO2同位体,FW-東南アジア航路CO2同位体,	コード国位置分析項目HAT日本24N, 124ECO2同位体, 02,COI日本43N, 146ECO2同位体, 02,MNM日本24N, 154ECO2同位体, 02,MLO米国20N, 156WCO2同位体, 02SIO米国33N, 117W02NTLインド29N, 80ECO2同位体, 02CLAバングラデシュ23N, 91ECO2同位体, 02GUI中国27N, 107ECO2同位体, 02DMVマレーシア5N, 118ECO2同位体, 02,TF5-オセアニア航路CO2同位体, 02,FW-東南アジア航路CO2同位体, 02

表1. 本研究における観測地点のまとめ

さらに、波照間、落石のモニタリングステーションにおいては、エアマスの入れ替わりに よる CO2 濃度変動に対応する¹³C や¹⁴C の変動を調べることを目的として、高頻度サンプリン グが可能なイベントサンプリングシステムによる採取を実施した。このイベントサンプリン グシステムを用いるとネットワークを介して国環研から任意の時間に大気試料のフラスコサ ンプリングを実施することが可能となる。

本研究では表層海水に溶存するガス中の炭素同位体や酸素濃度を測定するため、海水試料の採取も実施した。採水は、北米航路及びオセアニア航路において実施され、航走中に船外 (水深7m程度)から引き込まれた海水試料の一部を大気と触れないようにして採取した。

(2) 各種成分の分析方法

①大気中酸素濃度(0₂/N₂比)の測定

大気中の酸素濃度の変動の表示には、試料空気(sample)の窒素(N_2)と O_2 の比について、 任意に定めた参照空気(reference)の偏差の100万分率で計算される $\delta(O_2/N_2)$ を用いた。 $\delta(O_2/N_2)$ は次式のように定義される⁶⁾。

$$\delta(O_2/N_2) = \{(O_2/N_2)_{sample} / (O_2/N_2)_{reference} - 1\} \times 10^6$$
 (1)

 $\delta(0_2/N_2)$ はper meg という単位で表され、4.8 per meg が微量気体成分のモル分率1 ppm(= μ mo/mol)に相当する。なお、大気の主成分である酸素濃度の変化をモル分率で表示した場合、 酸素が大気の主成分であることから、希釈効果の影響によっても濃度が変化するため、濃度 変化の理解が複雑になる。そのため、酸素濃度の表示には $0_2/N_2$ 比が一般に用いられる。さら に、大気中の $CO_2 モル分率(XCO_2、単位:ppm) と \delta(O_2/N_2)$ を用いて APO (Atmospheric Potential Oxygen、大気ポテンシャル酸素)⁷⁾を次式のように定義する:

$$\delta APO = \delta(O_2/N_2) + \alpha_B \times X_{CO2}/S_{O2} - 1850$$
(2)

ここで、 α_B は陸域生物圏における -0_2 :0 交換比率 ($\alpha_B = 1.10 \pm 0.05$)、 S_{02} は大気 0_2 濃度 ($S_{02}=0.2094$)、また 1850 は計算結果を見易くするために独自に定めた定数をそれぞれ表す。 APO は陸域生物圏のガス交換に対して保存量となるように定義されており、大気-海洋間の ガス交換や炭素収支研究に対して有用なトレーサーとなっている。

0₂/N₂比の分析には熱伝導度検出器(TCD)とガスクロマトグラフ(GC)を組み合わせた測定 法(GC/TCD 法)を用いた⁸⁾。容積 2-2.5 L のフラスコに採取された大気試料の分析では 14 回 測定を繰り返し、その標準誤差が約 1 ppm であった。また、波照間・落石ステーション及び 貨物船 TF5 では GC/TCD 法による現場連続観測も実施した^{9,10)}。さらに、貨物船 NC2 では燃料 電池式酸素計による大気観測を実施し¹¹⁾、2022 年 6 月からは貨物船 TF5 でも GC/TCD 法に代 わって燃料電池式酸素計による連続観測を実施した。

最近、産総研/計量標準総合センター(AIST/NMIJ)の青木らは重量充填法によって酸素標 準ガスの調整に成功し、各研究機関の酸素濃度スケールの巡回比較実験(ラウンドロビン実 験)を実施した¹²⁾。その結果、国環研の酸素濃度のスパン感度が約3.4%低い(100 per meg の変化が97 per meg として計測される)ことがわかった。スパン感度の違いは炭素収支計算 にも影響することから、計算の際は0₂/N₂比に1.034 を掛けた値を用いることとした。 ②大気中二酸化炭素の安定同位体及び放射性同位体の観測

アジア・太平洋地域で採取され国環研に送付された大気試料からは、各種温室効果気体の 濃度測定後、ガラス真空ラインを用いて同位体分析用の CO₂が抽出された。なお、抽出の過程 で CO₂ の同位体比が変化しないようガラスラインの洗浄等の操作を慎重に実施しながら、液 体窒素温度で CO₂ を補集した。CO₂安定同位体 (¹³C 及び ¹⁸0)の分析にはサーモフィッシャー サイエンティフィック社製 MAT252 を用いた。

また、波照間・落石ステーションにおいて、国環研から操作可能なイベントサンプリング システムを用いて、高 CO₂ イベントが観測された時の大気試料のフラスコサンプリングを行 った。¹⁴CO₂の分析には、小型加速器質量分析計(NIES-CAMS)を用いた。

③表層海水中の溶存ガスの観測

貨物船で採水された海水試料は飽和塩化水銀溶液を添加して国環研に持ち帰った後、真空 ガラスライン中で試料中の無機炭酸を CO₂ ガスとして抽出し、水素を用いてグラファイトに 還元したものを、国環研所有の加速器質量分析装置を用いて試料中の¹⁴C/¹²C 比を計測した。 ¹⁴C 濃度は標準物質と試料との間の¹⁴C/¹²C 比のずれ分の千分率(Δ¹⁴C 値)として表現した。 また、表層溶存酸素濃度はオプトードセンサーによって測定された。

(3)炭素収支計算方法

①大気酸素観測に基づく炭素収支計算方法

APO 法による海洋及び陸域生物圏の炭素吸収量、 $0 \ge B$ (単位 : PgC yr⁻¹)、は次式によって 計算される¹³⁾。

$$O = \left\{ -\left(\alpha_F - \alpha_B\right)F - \left(S_{O2}/\beta\right) \times \Delta(\delta APO) + Z_{eff}\right\} / \alpha_B$$
(3)

$$B = \left\{ \alpha_F F + \left(S_{O2} / \beta \right) \times \Delta \left(\delta APO \right) - \left(\alpha_B / \beta \right) \times \Delta X_{CO2} - Z_{eff} \right\} / \alpha_B$$
(4)

ここで、Fは化石燃料消費による炭素放出量 (PgC yr⁻¹)、 Δ XCO₂ 及び Δ (δ APO) はそれぞれ 大気中の CO₂ 濃度及び APO の年間変化率 (ppm yr⁻¹ 及び per meg yr⁻¹)、 α_F は化石燃料燃焼時 の-O₂:C 交換比率 (現在の世界平均値は約 1.4)、 β は大気に放出された炭素 (PgC) を大気中 濃度 (ppm) に変換する係数 (β =0.470 ppm PgC⁻¹)、S₀₂ は大気中の O₂ 濃度 (S₀₂=0.2094) をそ れぞれ表す。また、 Z_{eff} (単位: PgC yr⁻¹) は O₂ 及び N₂ の海洋からの放出が大気中の O₂/N₂比 に及ぼす正味の影響を表し、海洋貯熱量の変化 (Q:J yr⁻¹) を用いて次式から推定値された ¹⁴。

$$Z_{\rm eff} = (Y_{02} - S_{02} \times Y_{02} / S_{N2}) \times Q \times m_c \times 10^{-15}$$
(5)

ここで、 S_{N2} は大気中のN₂濃度(S_{N2}=0.7809)、m_cは炭素の原子量(m_c=12.01)、 γ_{02} 及び γ_{N2} はそれぞれ大気 – 海洋間の熱・ガス交換の際の $0_2/熱フラックス比及びN_2/熱フラックス比(<math>\gamma_{02}$ =4.9 nmol J⁻¹、 γ_{N2} =2.2 nmol J⁻¹)の推定値をそれぞれ表す。全海洋の貯熱量の変化に

ついては海洋観測結果から推定された深度0-2000 mについての値を用いた (<u>https://www.ncei.noaa.gov/access/global-ocean-heat-content/</u>)¹⁵⁾。本研究における炭 素収支計算に用いた化石燃料起源CO₂放出量、及び大気中へのCO₂蓄積量、海洋脱ガスの正味の 影響(Z_{eff}/β)について、1998年から2022年までの時系列を図2に示した。化石燃料起源放 出量及び大気中蓄積量についてはGlobal Carbon Budget 2023¹⁾でまとめられた値を採用した。



図 2 Global Carbon Budget 2023¹⁾に基づく 1998 年から 2022 年までの化石燃料起源 CO₂ 放 出量(赤)、および CO₂ の大気中蓄積量(灰色)。また、全海洋の貯熱量変化から推定された海 洋脱ガスの正味の影響(Z_{eff}/α_B 、青)の年々変化。ぞれぞれの不確かさは影の部分として示 されている。これらの値を本研究における全球炭素収支計算に用いた。

②炭素安定同位体観測に基づく炭素収支計算方法

大気と海洋、大気と陸域生物圏との間で CO₂ が交換される際、それぞれ異なる同位体効果 が生じる。この特性を利用して本研究で観測される CO₂ 濃度と δ¹³C-CO₂の値をグローバルな 平均的トレンドと仮定して、海洋と陸域生物圏による CO₂ フラックスを求める。

まず、現在の全球の CO_2 の収支は、各リザーバのフラックスと濃度(C_a)の変動との関係から式(6)のように表すことができる。さらに炭素同位体比 δ の時間変化は、化石燃料(δ F)からの供給に対して、大気から海洋が吸収する同位体効果(ϵ_{as})と植物が吸収する同位体効果(ϵ_{ab})によって、分別吸収されているように表される(式(7))。ここで a、s、b はそれぞれ大気、海洋、陸域生物圏を、また F は化石燃料、N は正味の放出量、G は実際のグロスの交換量を表す。

 $dC_a/dt = C_F + C_{Ns} + C_{Nb}$

(6)

$$d\delta^{13}C_a/dt = C_F \delta_F + C_{Ns}(\delta_a + \varepsilon_{as}) + C_{Gs}(\delta_s - \delta_a) + C_{Nb}(\delta_a + \varepsilon_{ab}) + C_{Gb}(\delta_b - \delta_a)(7)$$

海洋・陸域生物圏の炭素吸収量を推計する際、海洋や陸域生物圏からのグロスの同位体比交 換による同位体フラックスは1995年を基準として大気の同位体比の変化に応答したとして計 算した。陸域生物圏は、交換量を変化させずに有機物の25%が大気に追随できないと仮定し、 海洋は年間の同位体変化が-0.016‰として、大気の同位体比変化分と合わせて追随できない 分をその非平衡値の広がりとした。

4. 結果·考察

(1)大気中酸素濃度の観測①フラスコサンプリングの結果



図3 本研究課題の5年間(2019-2023年)に、波照間(HAT)、落石(COI)、南鳥島(MNM)、 ラホヤ(LJO)、マウナロア(MLO)、ナイニタール(NTL)、コミラ(CLA)、貴陽(GUI)、貨物 船 TF5、NC2 及び FW で実施されたフラスコサンプリング(丸印)及び船上連続観測(灰色線) の状況。色は 0₂/N₂ 比の違い(右カラーコード)を示す。

2019年1月から2023年12月までに各地上サイト及び貨物船におけるフラスコサンプリング 及び連続酸素観測の実施状況を図3に示す。ほぼ全てのサイトにおいてサンプリング・連続 観測が順調に実施された。ただし、2022年11月におけるマウナロアの噴火によりマウナロア 観測所が一時閉鎖となったため2022年12月から2023年7月までの期間サンプリングが実施で きなかった。また、貨物船NC2(北米航路)及びFW(東南アジア航路)では、航路の不規則 な変更等により、十分な観測を実施することができなかった。なお、近年NC2はしばしばパ ナマ運河経由でアメリカ東海岸まで到達するようになり、往復に時間がかかるようになった ため、太平洋の横断頻度は低下傾向にある。また、FWは日本に寄港しない場合が増え、サン プリング頻度が低い状況が続いている。



図4 地上サイト(波照間:HAT、落石:COI、南鳥島:MNM、ラホヤ:LJO、マウナロア:MLO、ナ イニタール:NTL、コミラ:CLA、貴陽:GUI) で 2023 年 12 月までに実施されたフラスコサンプ リングで得られた大気中(左) CO₂濃度、(中)酸素濃度(O_2/N_2 比)、(右) APO の時系列。



図5 2023年12月までに貨物船におけるフラスコサンプリングで得られた大気中(左)CO₂濃度、(中)酸素濃度(O₂/N₂比)、(右)APOの時系列。なお、データは各緯・経度帯ごとにプロットされている。

地上サイト(波照間:HAT、落石:COI、南鳥島:MNM、ラホヤ:LJO、マウナロア:MLO、ナイニ タール:NTL、コミラ:CLA、貴陽:GUI)において、2023年12月までに得られたCO2濃度、O2/N2比、 APOの観測結果を、これまで得られたデータと合わせて、図4に示す。いずれの地点でもCO2の 増加傾向が観測され、またO2/N2比及びAPOについては減少傾向が確認された。地上サイトでは 高頻度の観測が実現しているが、貴陽・コミラ・ナイニタールといった内陸部のデータを見 るとばらつきが大きいことがわかる。こうした内陸のデータは、海洋の季節変動シグナルが どのように内陸へ輸送されるかを調べるのには適しているが、CO2やO2/N2比の経年変化傾向を 調べるためにはデータのばらつきによる誤差に注意する必要がある。

貨物船を利用したフラスコサンプリングによって、2023年12月までに得られたCO2濃度、 02/N2比、APOの観測結果を、これまで得られたデータと合わせて、図5に示す。なお、貨物 船のデータについては、北米・オセアニア航路では約10度、東南アジア航路では約5度の緯 度帯ごとにまとめて表示している。また、太平洋上の観測結果については東経180度を境に 西東に分けて図中に示した。

2023年の貨物船によるデータを確認すると、北緯30度から40度帯のデータはある程度定期 的にサンプリングが実施されているが、北緯40度以北のデータはほとんど取得することがで きない状況が続いた。これは、貨物船が高緯度帯の荒れた天候を避ける傾向にあることや、 貨物船の目的地が東海岸になることが多く、パナマ運河を通過する低緯度帯の航路になるこ とが多いためである。なお、貨物船による観測結果を見ると、東南アジア航路を除き、どの 地点でも比較的ばらつきの少ないデータが得られていることがわかる。

②連続観測結果

大気中の酸素濃度についてより詳細な時間・空間変動の観測を行うために、波照間・落石 モニタリングステーションと、オセアニア航路及び北米航路を運航する貨物船(TF5及び NC2)において連続観測を実施した。波照間・落石及びTF5ではGC/TCDを用いた観測を、また NC2では燃料電池式酸素計を利用した観測を実施した。なお、TF5のGC/TCDシステムが2022年 4月に故障したため、前述したように2022年6月に新たに燃料電池式酸素計による観測を開 始した。



図 6 (a) 波照間島(HAT) および(b) 落石岬(COI) で 2023 年 12 月までに実施された大気中 酸素濃度(0₂/N₂比、青) および CO₂ 濃度(赤)の現場連続測定による時系列。

2023年12月までに波照間および落石岬で観測された大気中酸素濃度およびCO2濃度の時間 変化を図6に、また、2007年10月から2023年12月までに貨物船で観測されたO2/N2比の緯度-時間分布を3次元表示したものを図7に示す。観測システム変更後も順調に連続測定を実施 することができた。貨物船を利用したO2/N2比の連続観測は地球環境保全試験研究費課題によ って開始された世界初の試みであり、これまでにも太平洋の広い領域における酸素及びAPOの 時空間分布の詳細を明らかにすることに成功してきた。



図7 西部太平洋を航行する貨物船(TF5)で、2023 年 12 月までに実施された船上連続観測 から得られた 0₂/N₂比の緯度-時間分布の3次元プロット。

こうした連続観測では時空間的に高密度の観測が実施されるため、例えば落石の観測では 初夏の植物プランクトンの爆発的増殖(ブルーミング)に伴う海洋からの酸素放出が見られ ることや⁹⁾、波照間の観測では中国と韓国・日本で化石燃料の混合比が異なるため(中国では 石炭の占める割合が高い)、エアマスの起源によって02とC02濃度の変動比に違いが見られる ことを明らかにした¹⁶⁾。また、船上連続観測によって太平洋の広い領域における酸素及びAPO の時空間分布の詳細を明らかにすることに成功してきた^{17,18)}。今後も観測を継続することで 海洋循環や大気ー海洋間のガス交換等に関する情報が得られるものと期待される。

③大気酸素濃度に基づく炭素収支

波照間、落石、南鳥島ステーション及びオセアニア航路(TF5、北緯30度以南)の分析結果 を用い、2023年1月までの炭素収支計算を実施した。なお、炭素収支計算にはAPO法を用い、 酸素濃度については産総研・青木らの研究結果に基づく重量法スケールからのズレの補正(ス パン感度を約3%増加させる)を行った。また、昨年度の報告では陸域生物圏の-02:CO2交換比 率(α_β)をα_β=1.05±0.05として炭素収支計算を行ったが、今年度の計算では一般的に用い

られている値、 $\alpha_{\beta}=1.10\pm0.05$ 、を使って計算を行った。しかし、全球平均した α_{β} の値に関 する議論はまだ決着していないため¹⁴⁾、今後も最新の研究結果に注意する必要がある。計算 に用いたAPOの年平均値の経年変化を図8(a)にプロットした。



図8 (a)全球炭素収支計算に用いた波照間、落石、南鳥島、貨物船(40°S-30°N)でのフラ スコサンプルから得られた APOの年間減少量の時系列。(b)2000年1月から2023年1月まで の APO変化、および図I-Xに示された化石燃料起源CO2放出量、CO2の大気中蓄積量、海洋脱 ガス量に基づき計算された炭素収支計算の模式図。

本研究の観測結果を用いていくつかの期間について求めたグローバルな炭素収支を表2に まとめた。なお、本稿では "2000 年から 2022 年の 23 年間の炭素収支" という場合、2000 年 1月1日から 2023 年1月1日までの期間の収支を意味する。一例として、2000 年から 2022 年までの 23 年間の海洋及び陸域生物圏の CO₂吸収量を求めると、それぞれ 3.0 ± 0.8 Pg C yr⁻¹及び 1.3 ± 1.0 Pg C yr⁻¹となった (図8 (b))。

APO 法で求められた年々の炭素収支には非現実的な大きさの変動が現れるが、5年間の平 均値を用いて炭素収支を計算すると、そうした変動はかなりの程度抑えられることが先の研 究で示された¹³⁾。そこで、炭素収支の長期的な変化傾向を調べるため、5年間の平均値から 計算された海洋及び陸域生物圏の炭素吸収量の時系列を図9に示す(図中ではマイナスの値 が大気から各吸収源(陸域生物圏又は海洋)への吸収を表す)。また、いくつかの期間に対す る5年平均炭素収支については表2にも掲載した。なお、比較のためグローバルカーボンプ ロジェクト(GCP)¹⁾による炭素収支の結果も図9にプロットした。海洋の吸収量は長期的に 増加傾向を示しており、GCPによる吸収量の変化傾向とよく一致することがわかる。ただし、 2010年以降は本研究による海洋吸収量の方がGCPの推定値よりも大きな値を示す傾向が続い ている。一方、陸域生物圏の吸収を見ると2009年頃までは増加傾向にあるように見え る。これに対し GCPによる陸域生物圏の吸収は2009年から2017年頃に停滞しているが、そ れ以外の期間では微増傾向にあり、本研究による吸収量の変化傾向との最大の違いとして挙 げることができる。

表2. 本研究における 2023 年 12 月までに得られた APO に基づく炭素収支計算結果

· · · ·		Atm.	Fossil			Sink of	this study	Sink of GCP ^d		
Period	∆APO °	$CO_2{}^d$	fuel ^d	α_F^{e}	$Z_{\text{eff}}\!/1.1^{f}$	Ocean	Land	Ocean	Land	Carb. ^g
1998-2022	-11.4(0.7)	4.59	8.70	1.37	0.54	3.03(0.74)	1.13(0.94)	2.53	1.71	0.15
2000-2022	-11.5(0.7)	4.60	8.89	1.37	0.56	3.03(0.75)	1.30(0.95)	2.56	1.78	0.15
2003-2022	-11.3(0.7)	4.70	9.18	1.37	0.55	2.91(0.76)	1.59(0.97)	2.66	1.93	0.17
2000-2004	-9.4(0.9)	3.95	7.30	1.39	0.59	2.50(0.70)	0.84(0.86)	2.13	1.29	0.09
2005-2009	-11.1(0.9)	4.12	8.48	1.37	0.31	2.75(0.62)	1.60(0.84)	2.42	1.61	0.13
2009-2013	-11.1(0.9)	4.48	9.27	1.36	0.68	2.99(0.83)	1.78(1.02)	2.58	1.93	0.16
2013-2017	-12.1(0.9)	5.28	9.72	1.36	0.71	3.31(0.84)	1.11(1.05)	2.82	1.93	0.19
2018-2022	-13.1(0.9)	5.04	9.96	1.37	0.56	3.45(0.79)	1.49(1.01)	2.88	2.22	0.21

^a表中の単位は per meg yr⁻¹ (Δ APO)、mol mol⁻¹ (α_{F})、PgC yr⁻¹ (左記以外) である。^b括弧内の数字は不確かさを 表す。 Δ APO は波照間、落石、南鳥島および貨物船 (40°S-30°N)での観測結果に基づく。カッコ内の不確かさは観 測に伴う不確かさ、O₂/N₂ スケールの安定性、 限られたサンプリングに伴う不確かさを含む。^d これらの数字は GCP が取りまとめたデータセットから計算されたものである。不確かさは±0.2 PgC yr⁻¹ (大気 CO₂ 濃度)、±5% (化 石燃料起源放出量)、±0.4 PgC yr⁻¹ (海洋吸収量)、±0.9 PgC yr⁻¹ (陸域吸収量) である (Friedlingstein, et al., 2020).^e a_F の不確かさは±0.04 mol mol⁻¹ である(Tohjima et al., 2008)。 ^fZ_{eff}は全球海洋温暖化の効果 (Z_{gow}) および人為起源窒 素沈着による効果 (Z_{anthN})の両方を含み、不確かさは±100% と見積もられている。^f これらの数字はセメントの 炭酸化による炭素吸収量を表す。



図9 波照間、落石、南鳥島ステーション及び貨物船における 2023 年 12 月までの大気観測 結果に基づく(a)海洋及び(b)陸域生物圏の炭素吸収量(フラックス)の年々変化。赤点 線及び赤丸は本研究で推定された炭素吸収量の年々変動及びその5年間平均値を表す。また、 水色丸及び青丸は GCP¹⁾による推定結果及びその5年平均値をそれぞれ表す。

(2)大気中CO2の安定同位体の観測

①フラスコサンプリングによる大気中 CO2 安定同位体比の観測結果

オセアニア航路および北米航路を定期運航する貨物船を利用して航路上で採取された大気 サンプルの CO₂ 濃度並びに炭素・酸素同位体比(δ¹³C-CO₂と¹⁸0-CO₂)の分析結果を図 10 に示し た。図には 1995 年から 2023 年夏までの 28 年のデータがプロットされており、図中の細線は 観測値のベストフィット曲線とトレンド曲線を示している。なお、データは 10 度毎の緯度帯 別に平均されている。図にプロットされた北緯 40 度以南のデータは東経 180 度以西のもの のみが用いられている。しかし、酸素の項でも述べたように、北緯 40 度以北に貨物船の航路 が到達する頻度が 2010 年以降著しく減少したため、北緯 40 度以北については太平洋の全経 度帯のデータをプロットした。また、波照間、落石、マウナロア、マレーシア、インド、中 国、バングラデッシュの地上ステーションで採取されたフラスコサンプリング大気の炭素お よび酸素同位体比を図 11 に示した。



図 10 オセアニア航路および北米航路を航行する貨物船において採取された大気試料の(左 列) CO₂濃度、CO₂の(中列)炭素同位体比(δ¹³C)、および(右列)酸素同位体比(δ¹⁸O)の 時系列

これらの CO₂ 濃度と δ¹³C-CO₂の季節変動を見ると、北半球では 4-8 月に、南半球では 10-3 月に CO₂ 濃度が低下するが、それに対応し陸上生物圏における光合成で大気中の CO₂ を取り 込む際、軽い¹²CO₂ を優先的に取り込むため、δ¹³C-CO₂については CO₂ 濃度と逆位相となる季 節変動が見られた。また、濃度・同位体比の季節変動の振幅は、緯度帯によって異なり、北 半球高緯度で大きな季節変化が見られるが、これは南半球に比べて北半球で陸上植生が多い ことに起因する。緯度帯による季節変動の違いを分かり易くするため、海洋データのフィッ ティング結果を図 12 に示した。さらに、季節変動の振幅は、海洋のデータより陸域のステー ション(中国、インド、マレーシア、バングラデッシュ)で大きいことがわかる。これは、 吸収源がそばにあり、その吸収・排出が大きな季節変動を作っているためである。



図 11 陸上ステーションで採取された大気試料中 $CO_2 \sigma$ (左列)炭素同位体比 (δ^{13} C)、およ

び(右列)酸素同位体比(δ¹⁸0)の時系列

一方、酸素同位体比は南半球で全般的に高く北半球で低いことがわかるが、季節変化の振幅は北半球の方が大きく、北半球の季節変動の位相が南半球に半年遅れて伝播しているよう に見える(図 13)。北半球の高緯度は6月に高く、その後9月10月に向けて低下しているが、 他の陸域のサイトではもっと低下しているようにも見える。これらの酸素同位体比の低下は 土壌呼吸からの CO₂ が影響している可能性があり、降水量の変化などが酸素同位体比になん らか影響することが予想される。

次に、濃度と炭素同位体比のトレンド成分を調べると、緯度帯や場所に関わらず CO₂ 濃度 は長期的に増加し、δ¹³C-CO₂は軽く(低く)なっていることが分かる。炭素同位体比の低下は、 化石燃料起源の軽い CO₂ の排出による効果と、海洋や生物圏との交換により同位体比が動く 効果で決まる。グローバルな炭素循環を議論する際には、長期的な記録がある海洋データ(北 緯 50-60 度帯を除く緯度帯)と波照間、落石の CO₂ 濃度と δ¹³C-CO₂ のトレンドを比較しなが ら、各種の平均を用いてグローバル平均として評価することとした。なお、トレンド成分は、 データから季節変化成分を差し引いた後、S-Plus によるスプラインスムージング(自由度を ほぼ2年程度になるように設定)を用いて計算した。





図 12 カーブフィッティングされた CO2 と炭素同位体比の緯度変化

図 13 カーブフィッティングされた酸素同位体比の緯度方向変化

図 10、11 で示した海洋と波照間、落石の CO_2 濃度と $\delta^{13}C-CO_2$ について、緯度帯別トレンド

成分を微分し求めた変化率を図 14 に示した。図中太線で示した平均値 (avg) は北緯 50 度か ら南緯 40 度までの値を用い、それぞれの緯度帯の大気の量を考慮し算出した。なお、北緯 50-60 度の緯度帯のデータは後半にデータ数が少ないためにおおよその傾向はその他と一致 しているが、細かな変動傾向がかなり異なることがわかる。CO₂ 濃度増加率は 2000-2001 年、 2008-2009 年に減少し、1998 年、2002 年、2011-2013 年、2015-2016 年に増加した。2020 年 以降は高緯度では 2022 年あたりに小さな増加が見られるが他の緯度帯では明瞭ではなかっ た。また 2022-2023 年にかけては緯度帯ごとにばらつきが大きいことがわかるが、スムージ ングにおいても端の部分には変動が大きく出る傾向がある。波照間、落石に関しては海洋よ りデータ密度が高いものであるが、ほぼ他の海洋データと近い変化を示している。ただ炭素 同位体比の 2020 年以降の変化を比べると、波照間のデータは他のデータと異なる傾向を示し ていた。



図 14 緯度帯別 CO₂濃度の増加率と δ¹³C-CO₂の変化率

一方、 δ¹⁸0-CO₂ の長期トレンドは、2002-2004 年付近や 2015-2017 年付近にピークを示し ながら、徐々に増加傾向を示していることが分かる (図 15)。こうした変化は気温上昇 (図 16) や降水量変化になんらかの関係があると考えられる。例えば、このピークが見られる時期に 干ばつが世界規模で起こっていることと無縁ではないと推察される。



図 15 緯度別酸素同位体比の経年変化傾向



図 16 世界の気温変化(1991-2020年の平均からのずれを偏差としている) (気象庁 WEB データ)

②観測値を用いた海洋と陸上生物圏の CO2 フラックスの推計

グローバルな炭素収支を評価するために太平洋上の緯度帯別大気サンプル並びに波照間、 落石の大気サンプルの CO₂ 濃度と る¹³C-CO₂ の値を用いて、グローバルな平均的トレンドを評 価した。海洋航路のデータはこれまで南緯 30 度-北緯 30 度のデータ を用いていた(AVG(30S-30N))。しかし図 14 の評価から南緯 40 度-北緯 50 度のデータが広く扱えることがわかった ので、より広範なデータを用いたグローバル平均(AVG(40S-50N))を用いることとした。さ らに波照間・落石のデータはそれぞれが位置する北緯 20-30 度帯と北緯 40-50 度帯 のデー タに追加して平均することでグローバル平均値としたもの(AVG(40S-50N+HC)についても検 討した。なお、各緯度帯を平均する際には、それぞれの緯度帯の空気量で重み付けして平均 している。

大気への蓄積分(a)、海洋への吸収分(b)、陸域生態系への吸収分(c)を図 17 に示した。1995 年以降の大気への毎年の蓄積量は増加傾向を示してきた。波照間、落石、それから半球ごと の平均を比較すると若干の違いが見られるが、これは緯度ごとのトレンドに差があることを 示している。一方で、3つのグローバル平均(AVG(30S-30N)、AVG(40S-50N)、AVG(40S-50N+ HC))の間での差は少ないこともわかった。

海洋の吸収パターンをみると、28年の長期的傾向としてはは少しずつ吸収量が増加してき ているように見える。しかし、細かく見ると2010年以降の吸収量は-3Gt-C/y前後の値で一 定となり、増加傾向が一休みしたようにも見える。さらに、特徴的に吸収量がここ1-2年増 加しているようにみえる。これは、データの端の効果により各緯度での変動パターンが大き く変わってしまうこともあり簡単に結論を出すことはできないが、波照間、落石のようにデ ータが密にあるケースをグローバルに見たてて計算してもその傾向があるので、グローバル 平均でも海洋吸収がここ1-2年結果的に増えているといったことが推察される。

陸域吸収は、海洋より大きな変動を持ちながら変化しているが、特に 1998 年、2003 年、 2005 年、2010 年、2016 年、2020 年には陸域吸収量の低下が起こっていることがわかる。こ れらは、気温偏差がプラスになっている期間と一致している(図 16)。一方で、相対的に気温 が低かった 2000、2008、2011、2018 年には吸収量の増加が見られる。2020 年以降も 2Gt-C/y 程度の吸収が見られるが、全体としてはそれほど吸収量が増加していない。陸域吸収フラッ クスの変化を、世界の気温変化と比べると、2015 年を境に、気温が急激に上昇し、2021 年は 少し下がったものの、特に北半球の気温上昇は 2000 年に比べて、0.4℃以上上昇しているこ とがわかる。気温上昇による土壌呼吸の増加や乾燥化により森林での光合成量の低下、また 気温の高い年は森林火災が頻発しているために、気温の上昇は陸域吸収に対してマイナスの 影響が強く警戒される。一方で、気温上昇により高緯度帯へ植生が移動することで炭素収支 が変化することも考えられるため量的な評価が必要であるが、いまのところ拮抗しているよ うに見える。ただ、陸域吸収があまり増えていないといった傾向は注意する必要があり、海 洋吸収がここ1-2年増加しているという計算結果はいわば「逆説的」であり、陸域が吸収し ないなら、海洋に吸収するしかないといった計算モデルの結果と考えなければならない。



図 17 大気蓄積(a)、海洋(b)、および陸上生物圏(c)の CO₂フラックスの推定: グローバル平 均として海洋観測値の各種の比較:HAT; 波照間島、COI; 落石岬; AVG(40S-50N+HC); 40S-50N の 20N-30N に加えて波照間(24N)、40N-50N に落石(43N)を平均して混合した場合の平均



図 18 本事業(酸素と同位体比観測)でのグローバル収支と GCP による全球炭素収支(GCB2023) との比較

(GCB2023 のデータについては2年移動平均をプロットしている、酸素観測は5年の移動平均が行われている)

本事業で長期間行ってきたグローバル収支の変化と GCP が発表している炭素収支(Global Carbon Budget 2023)の結果を図 18 にプロットした。GCP のデータは海洋や陸域生態系のモデルを用いて毎年の収支を計算したものであるが、本事業での観測は約2年の移動平均がなされているので GCP の結果についても2年の移動平均をしてある。これによると両者はほぼ整合的な結果となっていることがわかった。細かな違いとしては、1998 年の大気蓄積量が GCP で大きいことに対応して吸収量も大きい。それ以降では 2005 年から 2015 年にかけての海洋吸収でみると、本事業での海洋吸収が大きいことがわかる。GCP の海洋モデルではゆっくりしか吸収量が増加していない。2015-2020 年には両者ともほぼ 3Gt-C/y の吸収量で一致している。その後、本事業の吸収量は増加傾向にあるが GCP ではその傾向は現れていない。

一方で陸域吸収を見ると全体の傾向はよく合っていた。しかし 2011 年以降 GCP の陸域吸収 量が本事業の結果より大きく見積もられていることがわかる。その差は 0.5Gt-C/y 以内では あるが、明らかに GCP モデル結果の方が常に大きい値を保っている。GCP では人為起源であ る土地利用変化による CO₂ 排出量(約 1.5Gt-C/y)に対して、生態系の総吸収量(約 -3.5Gt-C/y)を独立に計算している。本事業では陸上生態系の吸収量はその両者の和(約 -2.5Gt-C/y)になっている。GCP での土地利用変化による CO₂ 排出量は、統計上ゆっくり低下してい る。一方生態系による吸収量はそれほど上昇していることはないようである。

同位体比観測の結果と酸素観測の結果を比較すると、酸素観測は5年移動平均であるから 年々変動の比較はできないが、その絶対値や大きな傾向を比較できる。図 18 を見ると、同位 体比の傾向で現れているのと同様に前半(2000-2013 年)に吸収量の増加が見られ、また後半 2015-2020 年の5年間の吸収量の鈍化傾向が見えることは共通していることがわかる。2015-2020 年の大気への CO₂ 排出量は漸増しているものの、エルニーニョ現象や気温変化が大きか ったことなどと関連し、この間の吸収量は増加しなかったようである。

(3) 大気中CO₂の放射性炭素同位体の観測

2023年度も順調にΔ¹⁴C分析用のサンプリング(波照間・落石ステーションにおける定期 サンプリングとイベントサンプリング、南鳥島、定期船舶)を実施し、試料前処理を進め た。

2020 年から 2022 年に波照間のイベントサンプリングで採取された CO₂ 高濃度イベントの Δ^{14} C 分析を行った。図 19 に、波照間で 2020 年 1 月 8-9日、2021 年 1 月 28-29 日、2021 年 3 月 12-13 日、2021 年 12 月 29-30 日、2022 年 1 月 11-12 日、2022 年 2 月 19-20 日に観測さ れた高濃度 CO₂ イベント 6 例における CO₂ 濃度、 Δ^{14} C 値、化石燃料起源 CO₂ 濃度、CO₂ 濃度増 加分における化石燃料起源 CO₂ 濃度の割合を示す。化石燃料起源 CO₂ 濃度は、CO₂^{ff} = CO₂^{obs} (Δ^{14} C^{bg}- Δ^{14} C^{obs})/(Δ^{14} C^{bg}+1000)で算出した(Levin et al., 2003)。ここで、上付き文字 obs, bg, ff はそれぞれ観測した値、大気のバックグラウンド、化石燃料燃焼を表している。バッ クグラウンドは CO₂ 濃度増加前(イベント#33 は CO₂ 濃度増加イベント終了後)のサンプルと した。

化石燃料起源 CO₂比はそれぞれのイベントで異なり、化石燃料起源 CO₂比の最大値はイベント#32(89%)、イベント#34(91%)、イベント#35(93%)、イベント#36(89%)で高く、イベン

ト#33(79%) とイベント#37(79%) で低かったことが観測された。これら化石燃料起源 CO2比の最大値は CO2 濃度増加が最大となる時に出現する傾向があり、CO2 濃度増加前後は化石燃料 起源 CO2比が低い大気が混合していると考えられた。

今後、これまでに得られた 36 例のイベント解析結果を合わせて、空気塊の起源よる特徴の 検出、上述の式ではなく Keeling プロットを用いた化石燃料起源 CO₂ 濃度の推定、bg として 定期サンプリングから得られたバックグラウンド大気の CO₂ 濃度と Δ¹⁴C を用いた場合との差 の評価を行う。



図 19 波照間のイベントサンプリングで観測された 2020 年 1 月から 2022 年 2 月の高濃度 CO₂ イベント 6 例における (a) CO₂ 濃度、(b) Δ¹⁴C 値、(c) 化石燃料起源 CO₂ 濃度、(d) CO₂ 濃度増 加分における化石燃料起源 CO₂ 濃度の割合(赤丸)。黒線は NDIR による CO₂ 濃度の連続観測結 果を示す。

(4) 海洋表層水中溶存CO2同位体の観測

日豪航路の海水 CO₂ 同位体観測は、2010 年 2 月より M/STF5 による日本とオーストラリア・ ニュージーランド間を往復する航海を利用して開始された。本年度までに、2020 年 4 月末ま での航海における北緯 30 度、北緯 20 度、北緯 10 度、赤道、南緯 10 度、南緯 20 度、南緯 30 度、及び南緯 40 度付近で得たすべての海水試料の¹⁴C 分析が完了した。図 20 には各緯度帯 における Δ¹⁴C の経時変化を示した。なお、2012 年 7 月から 2013 年 11 月までの航海につい ては、分析前処理ラインの不具合で海水採取を停止していたために観測値が得られていない。

この前後、すなわち 2010-2012 年と 2014-2015 年の平均値を比較すると観測されたすべての 海域において Δ¹⁴C が 10-20‰減少したことはすでに報告した。しかしながら、本年度までの 継続した分析の結果、2014年以降は僅かな増減を示すものの△¹⁴Cに大きな変動が見られず、 2020 年4月時点では緯度帯によらず約 33‰程度と極めて均一の濃度であることが明らかに なった。大気圏核実験が繰り返された 1950 年代後半以降、大気中で爆発的に増加した¹⁴0 が 大気海洋間の CO2 ガス交換によって海洋表層にもたらされたため、海洋表層 Δ¹⁴C は 1960 年 代頃から増加して 1970 年代前半に最大値を示し、その後は亜表層海水との混合などの影響を 受けて減少傾向に転じたことが、サンゴ年輪の Δ¹⁴C 観測などから明らかになっている。 海洋 における ¹⁴C の起源は大気 CO2 にあるために、海洋表層 Δ¹⁴C は大気 Δ¹⁴C よりも遅れて増加 を始め、大気よりも常に低い値を示してきた。しかしながら、日米航路の観測結果により太 平洋表層では 2012 年頃には大気と海洋表層の Δ¹⁴C が同等になったことが明らかになってい る。 本課題で実施している波照間と落石の大気 Δ¹⁴C の観測結果によれば、2010-2011 年の大 気 Δ¹⁴C は 30-40‰程度であり一定の速度で減少して 2016-2017 年には 0‰程度になってい る。したがって、西部太平洋表層では観測を開始した 2010 年時点ですでに大気と海洋表層の Δ^{14C} が逆転しており、それ以降は大気中 Δ^{14C} の減少に伴って海洋表層>大気の濃度勾配が 拡大し続けていることになる。

海洋表層△¹⁴C変動は、上述のように、大気・海洋間のCO₂ガス交換と表層・亜表層間の海水 混合のバランスによって決定される。また、赤道太平洋ではエルニーニョ現象の影響も強く 受けることが予想される。観測期間2010-2020年のおよそ10年間には、2009-2010年、2014-2016 年及び2018-2019 年の3期間でエルニーニョ現象が起こったことが報告されている。 そこで、エルニーニョ現象の起こった期間と通常期に分けて緯度帯ごとに表層Δ¹⁴Cを平均し た値を表3にまとめた。なお、2010-2011 年は通常期であった2011 年採取データが数多く含 まれるので通常期として取り扱う。大気と海洋表層のΔ¹⁴C濃度勾配が逆転した2010 年以降、 少なくとも北緯30度から南緯10度の緯度帯ではエルニーニョ期に表層Δ¹⁴Cは減少して通常 期に増加傾向に転じる傾向が見受けられる。一方で南緯20度より高緯度の南半球ではエルニ 一二ョ現象に影響を受けずほぼ単調減少傾向であった。通常期の西部赤道域では貿易風によ る東風が卓越しており、赤道付近の表層海水はエクマン吹送流と呼ばれる、風の向きに対し て北半球では直角右向き、南半球では直角左向きに運ばれることになる。その結果として、 赤道域表層では赤道湧昇と呼ばれる亜表層から冷たい海水が湧き上がる現象が起こっている。 亜表層には1960 年代から蓄積された核実験由来¹⁴Cが含まれており、現在では表層に比べて Δ^{14} C濃度が高い傾向にある。したがって表3は、通常期には赤道湧昇により核実験由来 14 Cが 表層へ再循環されてΔ¹4C濃度が増加し、エルニーニョ期には赤道湧昇が弱化するために大 気・海洋間のCO2ガス交換が支配的になり大気から低いΔ¹⁴Cを持つCO2がもたらされる影響で △¹⁴C濃度が減少したことを示唆しているものと考えられる。通常期2020 年のデータは1月 から4月の限られたデータセットであり増加傾向が明確とは言えないが、今後のデータ蓄積 によって明らかになってくるものと期待したい。他方、南緯40度では東経145度付近のオース トラリア本土とタスマニア島の間のバス海峡と、東経170度付近のタスマン海で得られた試料 が混在しており、両者のΔ¹⁴C濃度や時系列変化の傾向に大きな差異があることが分かってい る。そこで、表3ではバス海峡とタスマン海をそれぞれ40S_Wと40S_Eと記載した。当該海域

はデータ数に限りがあるものの(図3参照)、バス海峡では観測期間を通してほぼ一定であり、 タスマン海では北緯30度から南緯10度の緯度帯で見られた、エルニーニョ期/通常期の増減 と同じ変動をしていることが明らかになった。今後は同時に得られている水温・塩分データ とともに解析を進めることで、各緯度帯の季節変動を含むΔ¹⁴Cの変動要因の解析をさらに詳 細に進めていきたい。



図20 2010年2月から2020年4月までの北緯30度、北緯20度、北緯10度、赤道、南緯10度、 南緯20度、南緯30度、及び南緯40度付近における表層海水中のΔ¹⁴C(‰)の変動

表3 各緯度帯におけるエルニーニョ期と通常期の表層海水中の Δ¹⁴C(‰) 平均値。網掛け のカラムがエルニーニョ期を示す。南緯 40 度については、40S_W はバス海峡、40S_E はタス マン海で得られた試料を示す。

Latitudes	2010-2011		2014-2016			2017			2018-2019			2020			
30N	59.6	±	7.1	39.5	±	10.0	41.3	±	8.7	32.0	±	7.9	33.6	±	9.0
20N	55.8	±	10.3	35.0	±	7.0	39.2	±	7.7	33.6	±	4.5	29.2	±	5.0
10N	49.9	±	10.0	36.0	±	8.4	39.2	±	9.5	32.9	±	7.1	32.9	±	3.4
$\mathbf{E}\mathbf{Q}$	53.4	±	8.7	36.3	±	9.1	38.0	±	6.4	32.6	±	7.4	34.5	±	2.1
10S	50.4	±	7.0	35.3	±	7.5	40.8	±	9.0	33.2	±	8.9	32.1	±	8.3
20S	55.0	±	7.3	38.8	±	7.8	39.1	±	9.4	35.7	±	7.5	33.6	±	5.1
30S	62.0	±	10.4	47.5	±	8.3	49.6	±	8.3	40.6	±	10.3	35.4	±	2.3
40S_W				38.1	±	11.6	39.9	±	14.1	39.9	±	7.8			
$40S_E$	50.3	±	7.3	43.2	±	7.0	47.8	±	9.3	35.5	±	10.5			

5.成果本研究によって以下の成果が得られた。

・大気酸素の観測結果から炭素収支を求めると、2000年1月から2023年1月までの23年間の 化石燃料起源CO₂の平均排出量が8.9 Pg C yr⁻¹であるのに対し、海洋及び陸域生物圏の炭素吸 収量はそれぞれ3.0 ± 0.8 Pg C yr⁻¹及び1.3 ± 1.0 PgC yr⁻¹となった。また、直近の5年 間 (2018年1月-2023年1月)海洋及び陸域生物圏の炭素吸収量は、化石燃料起源CO₂の排出量 が10.0Pg C yr⁻¹に対し、それぞれ3.5 ± 0.8 Pg C yr⁻¹及び1.5 ± 1.0 PgC yr⁻¹となった。 炭素収支の経年変化傾向を詳しく調べたところ、海洋は観測期間を通じて増加傾向を示して いるが、陸域生物圏は2009年頃までは増加傾向にあったものの、2009年から2014年にかけて 吸収量が減少し、2014年以降は再度吸収量が増加傾向にあるように見えることがわかった。 ・ δ^{13} C-CO₂の長期トレンドの解析から全球炭素収支を求めると、海洋の炭素吸収量は1995年 以降増加傾向にあったが、2010年以降は3 Pg C yr⁻¹程度で増加傾向が一旦停止したように見 えた。しかし、直近の2年間で海洋の吸収量に増加傾向が見られる。一方、陸上生物圏は、 相対的に気温が高かった1998年、2003年、2005年、2010年、2016年、2020年に炭素吸収量が 低下し、相対的に気温が低かった2000年、2008年、2011年、2018年には吸収量の増加が見ら れた。2020年以降も2Gt-C/y程度の吸収が見られるが、全体としてはそれほど吸収量が増加し ていないことが示唆された。

・2020 年から 2022 年の冬季(12-2月)に波照間のイベントサンプリングで採取された CO₂ 高濃度イベントの Δ¹⁴C 分析を実施し、CO₂ 濃度増加分における化石燃料起源 CO₂ 濃度の割合 を調べたところ、その割合はイベント毎に異なり、最大で 89%、最小で 79%であることが分か った。また、各高濃度イベントで化石燃料起源 CO₂の割合が最大となるのは、CO₂ 濃度増加が 最大となる時に出現する傾向があり、CO₂ 濃度増加前後は化石燃料起源 CO₂比が低い大気が混 合していると考えられた。

・日豪航路で得られた2010年1月から2020年4月までの表層海水中の¹⁴C分析が終了した。大 気と海洋表層のム¹⁴C濃度勾配が逆転した2010年以降、少なくとも北緯30度から南緯10度では エルニーニョ期に表層ム¹⁴Cが減少して通常期に増加傾向に転じる傾向があることが分かっ た。

 本研究費で実施されたフラスコサンプリングに基づく大気中酸素とCO2濃度の観測結果については、国環研が運営する地球環境データベース(Global Environmental Database (GED), https://db.cger.nies.go.jp/ged/ja/)よりDOIを付与して公開を進めた。

落石岬: https://doi.org/10.17595/20230830.001

- 波照間:https://doi.org/10.17595/20230830.002
- 南鳥島: https://doi.org/10.17595/20230830.003
- 貨物船:https://doi.org/10.17595/20230830.004

6. 引用文献

- Friedlingstein, P., et al. (2023), Earth Syst. Sci. Data, 15, 5301-5369, 2023, https://doi.org/10.5194/essd-15-5301-2023.
- 2) Tohjima, Y., et al. (2020), Sci. Rep., 10, 18688, <u>https://doi.org/10.1038/s41598-</u>

020-75763-6.

- 3) Tohjima, Y., et al. (2022), Meteor. Soc. Jpn., 100(2), 437-444, https://doi.org/10.2151/jmsj.2022-021.
- 4) Lovenduski, N.S., et al. (2021), Geophys. Res. Lett., 48, e2021GL095396, https://doi.org/10.1029/2021GL095396.
- 5) <u>気象庁 | 世界の年平均気温 (jma.go.jp)</u>
- 6) Keeling, R. F. and Shertz, S. R. (1992), Nature 358, 723-727.
- Stephens, B. B., Keeling, R. F., Heimann, M., Six, K. D., Murnane, R. and Caldeira, K. (1998), Glob. Biogeochem. Cycles 12, 213-230.
- 8) Tohjima, Y. (2000), J. Geophys. Res. 105, 14, 575-14, 584.
- Yamagishi, H., Y. Tohjima, H. Muki, and K. Sasaoka (2008), *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3325-3335
- Yamagishi, H., Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, C. Miyazaki, and K. Katsumata (2012), J. Geophys. Res., 117, D04309, dio:10.1029/2011JD016939.
- 11) Hoshina, Y., Y. Tohjima, K. Katsumata, T. Machida, and S. Nakaoka (2018), Atmos. Chem. Phys., 18, 9283-9295, 2018, <u>https://doi.org/10.5194/acp-18-9283-2018</u>.
- 12) Aoki, N., S. Ishidoya, Y. Tohjima, S. Morimoto, R. F. Keeling, A. Cox, S. Takebayashi, and S. Murayama (2021), Atmos. Meas. Tech., 14, 6181-6193, https://doi.org/10.5194/amt-14-6181-2021.
- 13) Tohjima, Y., H. Mukai, T. Machida, Y. Hoshina, S. Nakaoka (2019), Atmos. Chem. Phys., 19, 9269-9285, doi:10.5194/acp-19-9269-2019.
- 14) Keeling, R. F., and Manning, A. C. (2014), Treatise on Geochemistry, vol. 5, 2nd ed., pp. 385-404, Elsevier, Amsterdam, 2014.
- 15) Levitus, S., J. I. Antonov, T. P. Boyer, R. A. Locamini, H. E. Garcia, and A. V. Mishonov (2009), Geophys. Res. Lett., 36, L07608, doi:10.1029/2008GL037155.
- 16) Minejima, C., M. Kubo, Y. Tohjima, H. Yamagishi, Y. Koyama, S. Maksyutov, K. Kita, and H. Mukai (2012), Atmos. Chem. Phys., 12, 2713-2723, doi:10.5194/1cp-12-2713-2012.
- 17) Tohjima, Y., C. Minejima, H. Mukai, T. Machida, H. Yamagishi, and Y. Nojiri (2012), *Global Biogeochem. Cycles*, 26, GB4008, doi:10.1029/2011GB004110.
- 18) Tohjima, Y., Y. Terao, H. Mukai, T. Machida, Y. Nojiri, and S. Makyutov (2015), Tellus-B, 67, 25869, doi:10.3402/tellusb.v67.25869.

[研究成果の発表状況] (課題開始年度-令和5年度) (1) 誌上発表(学術誌)

 Tohjima, Y., Niwa, Y., Patra, P. K., Mukai. H., Machida, T., Sasakawa, M., Tsubo i, K., Saito, K., Ito, A.: Near-real-time estimation of fossil fuel CO₂ emissi ons from China based on atmospheric observations at Hateruma and Yonaguni Isla nds, Japan, Progress in Earth and Planetary Science 10, 10 (2023). https://do i. org/10. 1186/s40645-023-00542-6.

2)Rödenbeck, C., Adcock, K. E., Eritt, M., Gachkivskyi, M., Gerbig, C., Hammer S., Jordan, A., Keeling, R. F., Levin, I., Maier, F., Manning, A. C., Moossen, H., Munassar, S., Pickers, P. A., Rothe, M., Tohjima, Y., and Zaehle, S., The suitability of atmospheric oxygen measurements to constrain western European fossil-fuel CO₂ emissions and their trends, Atmos. Chem, Phys., 23, 15767-15782, 2023, https://doi.org/10.5194/acp-23-15767-2023.

(2)口頭発表

- 1)寺尾有希夫,向井人史,遅野井祐美,丹羽洋介,笹川基樹,町田敏暢,遠嶋康徳(2022) 波照間島と落石岬で観測されたバックグラウンド大気中二酸化炭素の放射性炭素同位体 比.日本気象学会 2022 年度秋季大会,2022 年 10 月 24~27 日、北海道大学(10 月 26 日 発表)
- Tohjima, Y., Patra, P.K., Niwa, Y., Mukai, H., Tsuboi, K., Saito, K., Sasakawa, M., and Machida, T., Recovery of CO₂ emissions from China after COVID-19 lockdown estimated from the atmospheric observation at Yaeyama Islands, JPGU 2022, May 22-27, Makuhari (Hybrid) (presentation on May, 26)
- 3)遠嶋康徳,丹羽洋介,Prabir K. Patra,向井人史,笹川基樹,町田敏暢,坪井一寛,齋藤和幸,伊藤昭彦、大気観測に基づく中国からの人為起源二酸化炭素排出量変化の準リアルタイム推定法、第27回大気化学討論会、つくば、2022年11月16~18日、つくば国際会議場(ハイブリッド開催)(11月16日発表)
- Tohjima, Y., Niwa, Y., Patra, P.K., Mukai, H., Machida, T., Sasakawa, M., Tsuboi, K., Saito, K., Ito, A., Near-real-time estimation of fossil fuel CO₂ emissions from China based on atmospheric observations at remote islands in Japan, AGU Fall meeting, December 12-16, 2022 (presentation on December 12).
- 5) Tohjima, Y., Shirai, T., Ishizawa, M., Mukai, H., Machida, T., Sasakawa, M., Terao, Y., Tsuboi, K., and Nakaoka, S., Average seasonal cycles of atmospheric potential oxygen (APO) in the Pacific region: possible autumn oceanic O₂ emissions, APO workshop (WAO4), Aug. 23-25, 2023, Bowdoin College, ME (presentation on August 24).
- 6) Tohjima, Y., Sasakawa, M., Nakaoka, S.-I., Terao Y. Tsuboi, K., Mukai, H, and Machida, T., Global carbon budgets for a recent two decadal period based on atmospheric O₂ and CO₂ observations in the western Pacific region, JPGU, 2023 (presentation on May 26).
- 7) 遠嶋康徳、丹羽洋介、向井人史、笹川基樹、町田敏暢、伊藤昭彦、P.K. Patra、坪井一 寛、齊藤和幸、大気観測に基づく中国からの人為起源二酸化炭素の 2020-2023 年におけ る排出量変化の推定、第 70 回日本地球化学会年会、2023 年 9 月、品川(9月 23 日発表).

(3) 出願特許

なし。

- (4)受賞等
- なし。
- (5) 一般への公表・報道等
- なし。
- (6)研究分野における成果の発展・牽引

本研究の中で作成してきた同位体比の比較参照物質(NARCIS-IとII)が、WMO等での専門家 によって使用されており、世界の同位体比分析の実用的な参照物質として認識されている。

本研究で得られた波照間・落石ステーション及び貨物船で得られた酸素濃度の観測結果に ついては、独・マックスプランク研究所のC. Röedenbeck博士や、ニュージーランド・NIWAの S. Mikaloff Fletcher博士、ノルウェイ・NILUのRona Thompson博士、米・コロラド大学のC. Nevison教授に提供され、大気輸送モデルや海洋モデルを使った研究への利用が始まっている。 また、独・マックスプランク研究所のC. Röedenbeck博士はAPOを用いた逆計算によって(波 照間・落石のデータも利用されている)、化石燃料起源CO₂の変化を推定する研究に取り組み、 その結果は論文(Rödenbeck et al., 2023; 誌上発表 2)として発表されていた。さ らに、波照間・落石・南鳥島ステーションおよび貨物船のAPOデータが英国・エクセ ター大学のA. Watson博士らのグループに提供され、海洋の炭素吸収量の精緻化に関 する研究が進められている。

産総研の石戸谷博士と、波照間・落石・南鳥島ステーションにおいて、共同サンプリング を実施し、酸素濃度についての比較実験を継続中である。また、米・スクリップス海洋研究 所のR. Keeling教授らのグループともLa Jollaにおいて大気試料の共同サンプリングを実施 し、酸素濃度の比較実験が継続中である。

(7) 政策への寄与・貢献

我が国では北海道落石岬、沖縄県波照間島、東京都南鳥島で定期的な大気採取観測及び現 場観測をしているほか、アジアを中心とした6カ国において定期的な大気採取観測を行い、 アジア・太平洋地域のデータ蓄積に貢献している。また、落石岬及び波照間島では温室効果 ガスの挙動に影響する関連ガス等の高精度連続観測を国内の定点観測としては最も長期間に わたり実施している。

これらの観測データの解析は人為的な地球環境の変動の把握及び気候変動の予測精度の向 上に資するものであり、地球温暖化に関連する温室効果ガスについて、国際的協調の下、包 括的、継続的に観測し、それらの及ぼす影響と地球温暖化プロセスの理解を深め、必要な気 候変動対策の検討に役立つことが期待される。具体的な例としては、現在環境研究総合推進 費課題(SII-8-1課題)でグローバルストックテイクの対応をするためのアジア域の温室効果 ガス収支の推定において、本研究課題で取得された各地の観測データが活用されており(例 えば、Tohjima et al., 2023)、UNFCCCのポータルサイトから公表された国環研のGHG収支レ ポートでも使用されている。また、昨年公表されたIPCC第6次評価報告書(第1作業部会) においても、本地球環境保全試験研究費課題による成果が2件(Tohjima et al., 2019;

Tohjima et al., 2020) 引用されており、引き続きIPCC第7次評価報告書に対する貢献も期 待される。

本研究により気候変動と海洋・陸域生物圏それぞれの吸収量の関連や、長期的な変化傾向 を観測から明らかにすることができれば、将来の地球環境変化に伴う吸収量変化の予測の高 精度化に資すると期待され、温室効果ガス排出量の削減対策の道筋を考える上で重要な情報 を提供することが可能となる。