

炭素循環の気候応答解明を目指した大気中酸素・二酸化炭素同位体の統合的観測研究

環境省 国立研究開発法人国立環境研究所

環境計測研究センター 動態化学研究室 遠嶋康徳・保科優

地球環境研究センター エミッションインベントリ連携グループ 野尻幸宏

地球環境研究センター 炭素循環研究室 向井人史・荒巻能史・寺尾有希夫・野村渉平

2014-18年度合計予算額 119,942千円
 (うち、2018年度当初予算額 21,298千円)

【要旨】 本研究は全球規模の炭素循環が気候変動に対してどのように応答するかを解明するために、地球表層の炭素循環の指標となる大気中の酸素濃度や二酸化炭素(CO₂)の炭素安定同位体(¹³C)、放射性炭素同位体(¹⁴C)の広域観測を実施した。産業革命以降の全球平均気温の上昇を2°C以下に抑えるためには、大気中のCO₂濃度を適切なレベルに安定化させる必要があるが、その実現には人為的なCO₂排出量を陸域生物圏や海洋が吸収できるレベルにまで漸次減少させる必要がある。このような人為起源CO₂の削減策を策定するにあたり、自然吸収源(陸域生物圏と海洋)の炭素吸収量が地球温暖化に対してどの様に影響を受けるかを解明することは、喫緊の課題となっている。本研究では、アジア・太平洋地域に展開した地上観測点や日本とオセアニア・北米・東南アジア間を運行する定期貨物船を利用して、炭素循環の指標となる各種成分の広域観測を実施し、先行する観測結果も加えた統合的な解析から長期的な炭素収支を明らかにするとともに、気候変動に対する炭素循環の応答を推定した。

大気中酸素濃度の観測に基づいて過去18年間(2000年1月~2017年12月)の海洋および陸域生物圏の正味のCO₂吸収量を推定すると、それぞれ $2.5 \pm 0.6 \text{ PgC yr}^{-1}$ および $1.6 \pm 0.8 \text{ PgC yr}^{-1}$ となった。また、年々の炭素収支について5年間の移動平均を求めて経時的な変化傾向を調べたところ、海洋の炭素吸収量は2000年以降一貫して増加傾向にあるが、陸域生物圏の炭素吸収量は2000年から2009年までは増加傾向であったものが2009年以降は減少傾向が見られる結果となった。このような炭素収支の経年的な変化傾向は¹³Cの観測からも明瞭に確認された。¹³Cの観測結果から求められた炭素収支を見ると、海洋のCO₂吸収量はモデル推定よりも若干大きめの吸収量($2 \sim 4 \text{ GtC yr}^{-1}$)を示しつつ徐々に吸収量が増加するパターンを示した。一方、陸域生物圏の吸収量は大きくは気温変化に影響されており、1998年以降の15年間に温暖化が小休止した期間(ハイエイタス)には、炭素吸収量が徐々に増加する傾向が観測された。しかし、2015-2017年に気温の高温化が再び顕著になり、2015/2016年のエルニーニョの影響も受けて吸収量は減少傾向となったと推定された。こうした炭素吸収量の気温に対する応答は将来の温暖化に対して大きな懸念材料を提供することになり、今後の継続的な監視の必要性を示す結果となった。

【キーワード】 二酸化炭素、酸素、炭素安定同位体、放射性炭素同位体、炭素循環、気候応答

1. はじめに

IPCCの報告によると、気候システムの温暖化は疑う余地がなく、20世紀半ば以降の温暖化は人類活動に伴う二酸化炭素（CO₂）等の温室効果ガスの排出に起因する可能性が極めて高いとしている。図1はグローバル・カーボン・プロジェクト（GCP）がまとめた化石燃料起源CO₂（化石燃料起源+セメント製造起源）の全世界での放出量、および、大気中への蓄積量の経年変化を示す¹⁾。化石燃料起源CO₂の排出量は、世界経済状況による一時的な減少（2008-2009年のリーマンショック時の減少）や2014年以降も増加傾向の停滞がみられたが、2017年以降再び放出量が増加した可能性が指摘されている。このように化石燃料消費量の増加傾向が続くことは、経済成長と化石燃料消費抑制を同時に達成することの困難さを示すものと言える。

一方、図1にCO₂の大気中蓄積量の経年変化（図1のatmCO₂）も同時に示されているが、(1)大気中のCO₂蓄積量は人為起源CO₂排出量の半分程度であり、(2)大気中のCO₂蓄積量には大きな年々変動が見られることが分かる。(1)については、炭素循環のリザーバーである海洋および陸域生物圏がCO₂を吸収したためと説明され、(2)については海洋および陸域生物圏のCO₂吸収量が大きな年々変動を示すためとされている。図1の下方にはエルニーニョ・ラニーニャ現象の指標であるNiño3インデックスを同時に示したが、Niño3インデックスはCO₂の大気蓄積量の変化と正の相関をしているように見える。つまり、Niño3の正偏差が大きい時、すなわちエルニーニョ的状況の時、自然の炭素吸収量が減少するため大気中のCO₂増加率が高まったと考えられる。このような気候変動に対する炭素循環の応答を詳細に調べることで、将来の温暖化に対して炭素循環がどのように応答するかを解明する手掛かりを与えてくれる可能性がある。

COP21で採択された「パリ協定」では全球平均気温の産業革命以後の上昇を2°C未満に抑えるために、今世紀末までに人為的な温室効果ガスの排出量を自然吸収源による除去と均衡するまで削減する必要があることが示された。しかし、この排出量削減の実際の道筋を策定するに際し、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は非常に重要となる。地球温暖化が進むと、地温上昇による土壌有機物の分解促進や、森林火災の発生頻度の上昇といった効果によって陸域生物圏の吸収量を減少させる可能性が指摘されている。したがって、気候変動に対する炭素吸収量の応答を解明することは喫緊の課題となっている。

2. 研究目的

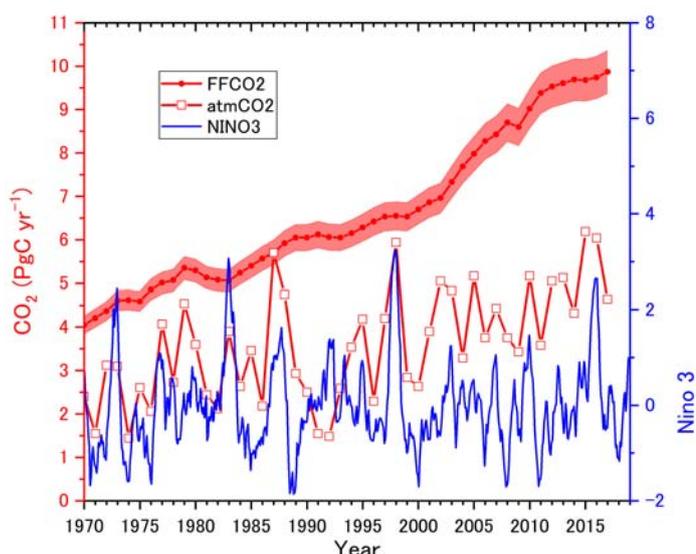


図1. 過去50年間の化石燃料起源CO₂排出量（化石燃料起源（FF）+セメント起源（Cement））、および大気中のCO₂蓄積量（atmCO₂）の経年変化（GCP2018より作図）。図の下の青色はENSOインデックス（Niño-3）の月別値を示し、+がEl Niño的状況を-がLa Niña的状況を表す。

本研究では、地球表層における炭素循環に関する指標成分である CO_2 の放射性炭素同位体 (^{14}C) や炭素安定同位体 (^{13}C)、さらに、酸素濃度の時空間分布の長期観測を実施し、全球規模の炭素収支の変動と気候変動の関係を明らかにすることを目的とする。

化石燃料起源の CO_2 には ^{14}C が含まれないため、大気 CO_2 の ^{14}C の変化を精密に測定することで、化石燃料起源の影響を推定できる。また、大気-海洋間および大気-陸上生物圏間で CO_2 が交換する際の同位体分別効果に違いがあるため、大気 CO_2 の濃度および同位体比の変化を精密に測定することで、 CO_2 濃度変化に対する海洋と陸上生物圏の寄与を分離することが可能となる。さらに、化石燃料の燃焼や陸上生物の呼吸・光合成では CO_2 と酸素がそれぞれ固有の比率で交換するため、大気中の酸素濃度の変化からも炭素循環に関する付加的な情報を得ることができる。

本研究では、アジア・太平洋域に広く展開する地上サイトおよび太平洋上を定期運航する貨物船を利用して大気試料をボトルサンプリングし、大気中の CO_2 同位体組成や酸素濃度の広域観測を行う。また、一部の地上サイトおよび貨物船では酸素濃度の連続観測を実施し、詳細な時間・空間変動の観測を行う。観測結果からはグローバルな海洋・陸上生物圏の吸収量の推定を試みる。また、酸素と CO_2 の和として定義される大気ポテンシャル酸素 (APO, Atmospheric Potential Oxygen) ⁴⁾ の空間分布の年々変化から、大気-海洋間のガス交換の変動を明らかにする。さらに、波照間・落石ステーションにおいてはイベントサンプリングを実施し、その ^{14}C の測定から大陸からの汚染空気における化石燃料起源 CO_2 の寄与率を調べる。上記の大気観測に加えて、貨物船を利用して表層海水を採取し、海水試料中に溶存する無機炭酸中の炭素同位体比 ($^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ 、 $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$) の測定を実施する。海洋表層における無機炭酸中の炭素同位体比を長期観測することで、大気-海洋間の CO_2 交換速度や海洋表層循環の地域的・季節的変動や、 CO_2 フラックスにおける海洋生態系の影響を定量的に解析することができる。これらのアジア・太平洋を中心とした広域観測から時間・空間的に高密度のデータベースを構築し、全球規模の炭素循環の詳細を明らかにするとともに、気候変動との関係を明らかにする。

3. 研究方法

(1) 大気観測

本研究における大気観測の実施地点を図2に示した。各観測地点において大気試料を気密性の高い容器(ボトル)に加圧採取し、研究所に持ち帰った後に酸素濃度、 CO_2 濃度、 CO_2 同位体等の各種成分の分析を実施した。また、酸素に関しては、波照間・落石モニタリングステーションおよび北米航路・オセアニア航路を航行する貨物船(NC2およびTF5)に分析装置を設置し、現場連続観測も実施した。観測を実施した地上サイトおよび貨物船の情報を表1にま

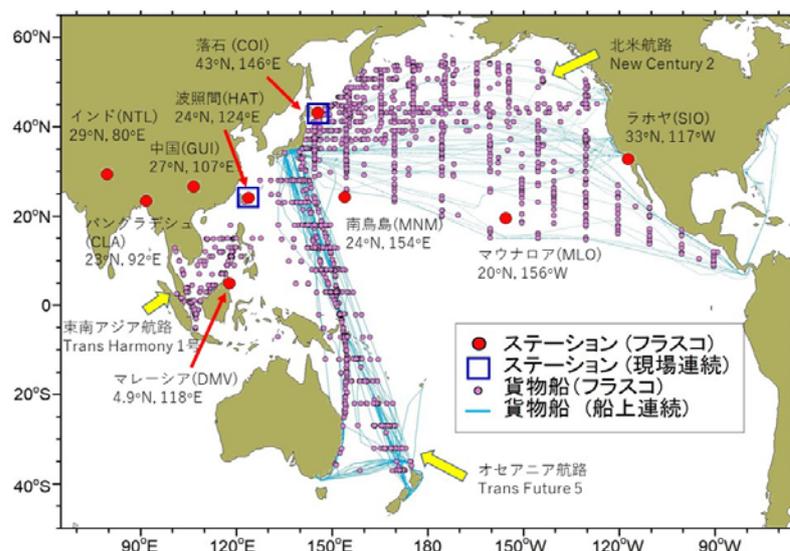


図2. 本研究における CO_2 同位体および酸素の観測地点。

とめた。波照間・落石のモニタリングステーションにおいては、短期的な 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、ネットワークを介して研究所から任意の時間に大気試料のボトルサンプリングを実施するためのイベントサンプリングシステムを設置し、高頻度サンプリングも実施した。

表 1. 本研究における観測地点のまとめ

名称	コード	国	場所	ボトル種類	備考
波照間	HAT	日本	24°N, 124°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂ , O ₂ 連続
落石	COI	日本	43°N, 146°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂ , O ₂ 連続
南鳥島	MNM	日本	24°N, 154°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂
マウナロア	MLO	米国	20°N, 156°W	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂
ラホヤ	SIO	米国	33°N, 117°W	ガラス	O ₂
ナイニタール	NTL	インド	29°N, 80°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂
コミラ	CLA	バングラデシュ	23°N, 91°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂
貴陽	GUI	中国	27°N, 107°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂
ダンナバレー	DMV	マレーシア	5°N, 118°E	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, ¹⁴ C
New Century 2	NC2	—	北米航路	ガラス, SUS	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂ , O ₂ 連続
Trans Future 5	TF5	—	オセアニア航路	ガラス, SUS	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂ , O ₂ 連続
Fujitrans World	FW	—	東南アジア航路	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂ 航路変更のため終了 (2017/4)
Trans Harmony 1	HT1	—	東南アジア航路	ガラス	¹³ C, ¹⁸ O, ¹⁴ C, O ₂

(2) CO₂濃度の測定

CO₂ 濃度の測定には赤外線吸収量の違いを検出する非分散型赤外分析計 (NDIR) を用いた。NDIR は、CO₂ 濃度が既知の標準ガスを定期的に分析することで検定を実施し、その結果に基づいて大気試料の CO₂ 濃度が決定された。NDIR による分析精度は 0.01ppm であった。なお、本研究では国立環境研究所スケール (NIES09 スケール) に基づく CO₂ 濃度が用いられた²⁾。

(3) 大気中酸素濃度の観測

大気の主成分である酸素の濃度表示にモル分率を用いると希釈効果のため変動量が分かりにくいという問題があるため、O₂ 濃度の変化を試料空気と任意に定めた参照空気 (O₂/N₂ 比の偏差として表し、 $\delta(O_2/N_2)$ を次式のように定義する。

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

$\delta(O_2/N_2)$ は per meg という単位で表され、4.8per meg が微量気体成分の濃度 1ppm に相当する³⁾。また、大気—海洋間のガス交換を反映したトレーサー APO (Atmospheric Potential Oxygen、大気ポテンシャル酸素)⁴⁾ は $\delta(O_2/N_2)$ を使って次式のように計算される：

$$\delta APO = \delta(O_2/N_2) + \alpha_B \times X_{CO_2} / S_{O_2} - 1850 \quad (2)$$

ここで、 α_B は陸上生物圏における光合成・呼吸の際の -O₂:C 交換比率 ($\alpha_B = 1.10 \pm 0.05$)、 X_{CO_2} は CO₂

濃度（モル分率、単位：ppm）、 S_{O_2} は大気中の O_2 濃度（ $S_{O_2}=0.2094$ ）をそれぞれ表す。また、(2)式の最終項 1850 は計算結果を見易くするために国立環境研究所（以下、環境研）で独自に定めた定数である。

本研究における酸素濃度の分析では、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）⁵⁾を用いた。GC/TCD法では、GCによって分離された試料中の O_2 と N_2 をTCDで検出することで O_2/N_2 比を求め、試料空気と標準ガスを交互に分析することで O_2/N_2 比の偏差を計算する。大気試料を測定する場合、大気試料と参照空気を交互に繰り返し分析して統計的に精度を高めている。容積2~2.5Lのボトルに採取された大気試料の場合、14回測定を繰り返し標準誤差が約1ppmであった⁶⁾。

また、環境研でのボトル分析に加えて、GC/TCD法による分析装置を波照間・落石ステーションおよび貨物船・TF5に設置し、現場での連続観測も実施した。さらに、貨物船NC2では燃料電池式酸素計を応用した高精度連続測定装置による大気観測を実施した。

（4）大気中二酸化炭素の安定同位体および放射性同位体の観測

アジア・太平洋地域で採取され研究室に返送された大気試料は、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に CO_2 が抽出された。なお、抽出の過程で CO_2 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 CO_2 を捕集した。 CO_2 安定同位体（ ^{13}C および ^{18}O ）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を用いたが、老朽化が進んできたため、MAT253へ移行した。

また、波照間および落石ステーションにおいて、研究所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 CO_2 イベントが観測された時の大気試料のボトルサンプリングを行った。 $^{14}CO_2$ の分析には、環境研に導入された小型加速器質量分析計（NIES-CAMS）を用いた。高精度分析を可能にするために、サンプル量、バックグラウンド試料、スタンダード試料、大気リファレンス試料について検討を行い、誤差評価を行った。

（5）表層海水中の溶存ガスの観測

観測は、日本と米国（北米航路）及び日本と豪州・ニュージーランド（オセアニア航路）をおおよそ1~2ヶ月で往復する自動車運搬船の航海を利用して実施した。 ^{14}C 分析試料は、二酸化炭素分圧測定のために船外（水深7m程度）から引き込まれた試料海水の一部を、航走中に12時間に1度ずつ、大気と触れないようにして採取し、飽和塩化水銀溶液を添加して実験室に持ち帰った。この採水により経度方向にほぼ5°おきの観測を行ったことになる。持ち帰った海水試料は、真空ガラスライン中で、試料中無機炭酸を二酸化炭素ガスとして抽出したのち、水素を用いてグラフアイトに還元し、環境研所有の加速器質量分析装置を用いて試料中の $^{14}C/^{12}C$ 比を計測した。 ^{14}C 濃度は標準物質と試料との間の $^{14}C/^{12}C$ 比のずれ分の千分率（ $\Delta^{14}C$ 値）として表現した。

4. 結果・考察

（1）大気中酸素濃度（ O_2/N_2 比）の観測結果

①ボトルサンプリングの結果

地上サイトおよび貨物船におけるボトルサンプリングによって2019年1月までに得られた CO_2 濃度（赤）、 O_2/N_2 比（青）、APO（緑）の観測結果を、これまで得られたデータと合わせて、図3に示す。なお、定期貨物船のデータについては緯度帯毎にまとめて（北米・オセアニア航路では

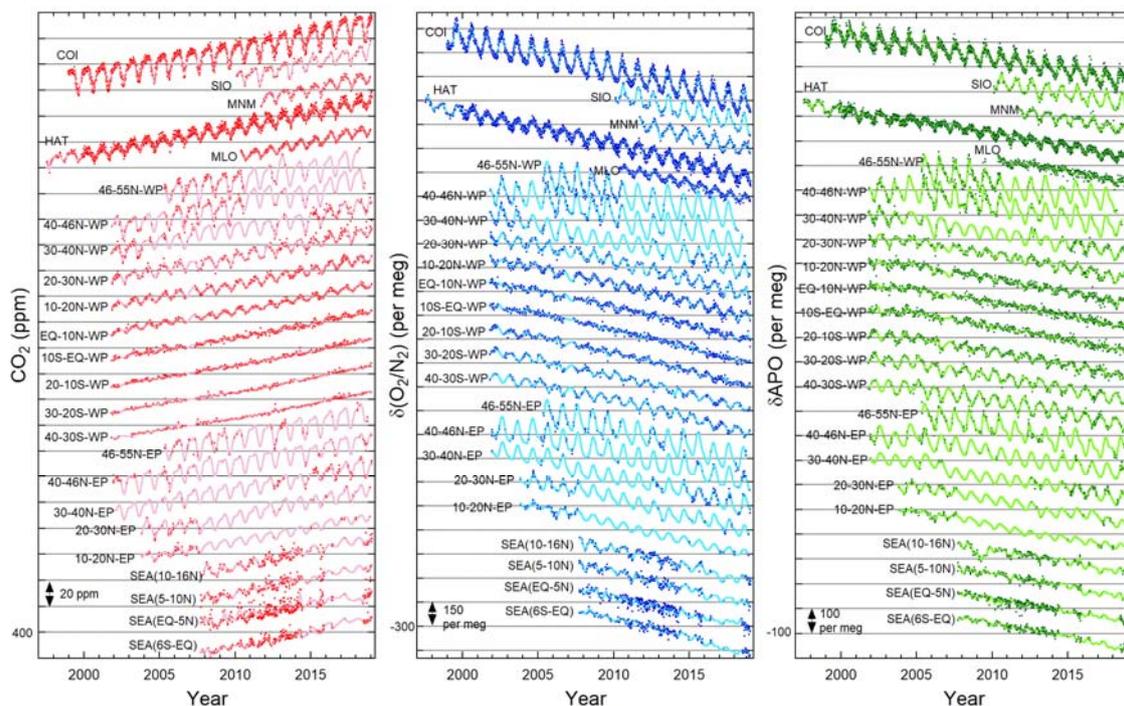


図3. 地上ステーションおよび太平洋を定期運航する貨物船を利用して採取された大気試料の(左) CO_2 濃度、(中) O_2/N_2 比、および(右) APO の時系列。図中の薄線は観測結果のベストフィット曲線を表す。

約 10° 、東南アジア航路では約 5°) にまとめて表示している。また、東南アジア以外の太平洋上の観測結果については 180° を境に西と東に分けて、それぞれ緯度帯の後に'W'および'E'と表示して図中に示した。なお、図中のピンク、水色、黄緑色の実線は CO_2 濃度、 O_2/N_2 比、APOのベストフィット曲線を表わしている。

波照間および落石でのこれまでの観測から CO_2 濃度の増加量と、 O_2 濃度の減少量を求めると、2017年1月から2018年1月までの1年間で酸素濃度は 4.73 ppm 減少し CO_2 濃度は 2.07 ppm 増加したことが分かった。一方、貨物船を用いた太平洋上の観測では2017-2018年の1年間で 4.40 ppm の O_2 濃度の減少および 1.68 ppm の CO_2 濃度の増加が確認された。前年(2016-2017年)の変化と比べると、 CO_2 濃度の増加量および O_2 濃度の減少量が小さいことが分かった。また、2000年1月から2018年1月までの18年間の大気中 O_2 濃度の平均減少率を計算すると 4.60 ppm yr^{-1} 、 CO_2 の平均増加率は 2.21 ppm yr^{-1} であった。

②GC/TCD法による O_2/N_2 比の連続観測

落石・波照間ステーションにおいて2019年2月までに観測された大気中 O_2/N_2 比および CO_2 濃度の連続測定の結果を図4に示す。図4には比較のためボトルサンプリングの結果も同時にプロットしたが、 O_2/N_2 比および CO_2 濃度とも連続観測結果と概ねよい一致を示した。これらの連続観測では短期的な変動を検出することで、地域的な発生源からの影響を調べることが可能となる。例えば、落石ステーションでは春から夏にかけてステーション付近の海域で植物プランクトンの増殖(春季ブルーミング)に伴う酸素の放出の影響をとらえることができた⁷⁾。また、波照間では中国、韓国、日本を起源とする汚染イベント時の CO_2 と O_2 濃度の変動比($-\Delta\text{O}_2/\Delta\text{CO}_2$)が、

各国の化石燃料の種類別消費統計から予想される変動比と整合的な値を示すことが確認されている。

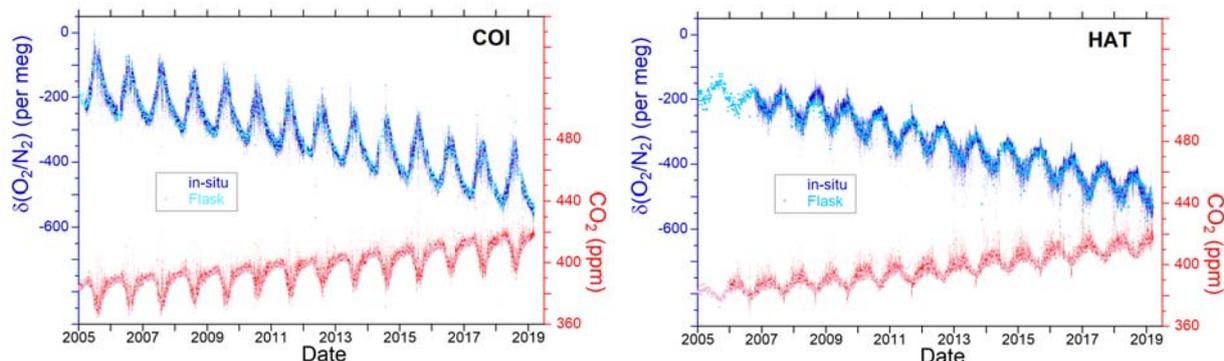


図4. (左) 落石ステーション、および、(右) 波照間ステーションにおける O_2/N_2 比 (青線) および CO_2 濃度 (赤線) の連続観測の結果。図中の水色およびピンクの×印はボトルサンプリングに基づく O_2/N_2 比および CO_2 濃度の分析結果を表す。

GC/TCD 法による大気中酸素濃度の連続測定はオセアニア航路を航行する貨物船 (TF5) でも 2007 年 10 月より開始し、現在まで継続している⁸⁾。観測開始時から 2018 年 12 月までに得られた APO の緯度-時間分布 (41°S から 34°N) を 3 次元表示したものを図 5 に示す。この連続観測によって西部太平洋の赤道域から両半球中緯度における APO の時空間分布の詳細を明らかにすることが可能となった^{9,10)}。なお、定期貨物船を利用した大気酸素の連続測定は本研究課題によるものが世界初の試みであり、後述するように APO 年平均値の緯度分布の年々変動と ENSO サイクルとの関係に関する解析等からも明らかになっている¹¹⁾。

③燃料電池式酸素計を用いた北米航路における酸素連続測定

北太平洋の高緯度および東部北太平洋におけるデータ取得頻度を増やすため北米航路を運航する NC2 においても船上連続測定を実施した。なお、NC2 での観測用に使用許可されたスペースは GC/TCD 法の装置を設置するには不十分であるため、省スペースで観測を実現するため燃料電池式酸素計を用いた新たなシステムを開発した。

図 6 に NC2 での船上観測用

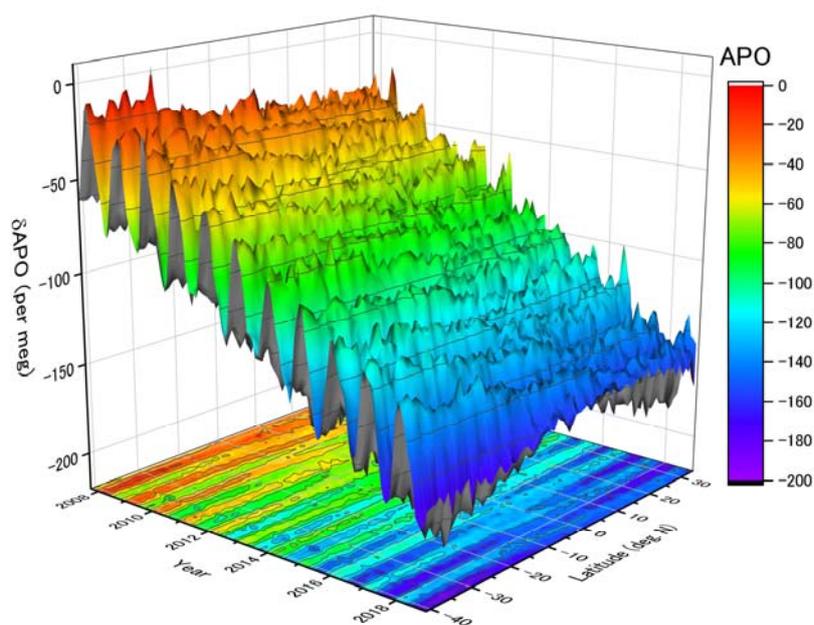


図5. 西部太平洋を航行する貨物船 (TF5 号) での船上連続観測から得られた APO の緯度-時間分布の 3 次元プロット。

に開発された大気中酸素濃度測定装置の概略を示す。酸素の分析には燃料電池式酸素計 (Oxzilla II) を、CO₂の測定にはNDIR (LI-840) を用いた。分析時の空気流量を10ml/minと極めて低い流量に設定し、使用する参照空気や標準ガスのボンベ数になるべく少なくなるようにした。

今回新たに開発された酸素濃度連続測定システムを2015年12月にNC2に設置し、船上連続観測を開始した。観測開始直後に航行時の揺れが酸素計のセンサーに見かけの変動を生じさせるという問題に直面したが、時間の平均を取ることで揺れの影響はかなり抑えることができることが分かった。また、短期間で大気試料の除湿用低温トラップの入口部分が氷で詰まるという問題も発生したが、トラップの形状を改良するなどの対策により2016年9月以降はトラップの詰まりによるデータ欠損はほぼなくなった。

図7に貨物船NC2での船上連続観測で得られた大気中のCO₂濃度、O₂/N₂比、およびAPOの時系列を示す。図中には比較のためにボトルサンプリングによって得られた値も同時にプロットした。連続測定結果とボトル分析結果の差 (連続-ボトル) の平均値と標準偏差を求めると、O₂/N₂比で -2.1 ± 9.2 per meg、CO₂濃度で -0.02 ± 0.33 ppmとなった。NC2の連続観測の結果から、北太平洋ではAPOの季節振幅は中緯度帯ではほぼ一定であり、振幅は主に緯度によって決まる (高緯度ほど大きい) という過去の研究結果が追認された。なお、NC2による連続測定手法および初期解析結果については、Atmospheric Chemistry and Physics誌に掲載された (Hoshina et al., 2018)。

④O₂/N₂比の変化に基づく炭素収支計算

ボトルサンプリングにより得られた大気試料の酸素およびCO₂濃度の経年変化からグローバルな炭素収支計算を行った。なお、実際に炭素収支を計算する方法としては、O₂およびCO₂濃度の変化量に基づく方法 (酸素法) と、APOの変化から計算する方法 (APO法) の2つのアプローチがあるが、本稿ではより信頼性の高い結果が得られるとされるAPO法による計算を行った¹²⁾。

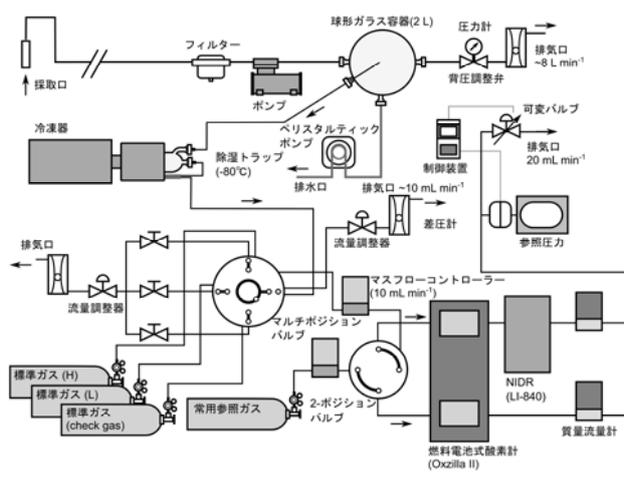


図6. 北米航路を定期運航する貨物船 (NC2) の船上観測用に開発された大気中酸素濃度連続測定装置。酸素計には燃料電池式酸素計 (Oxzilla II) が用いられる。

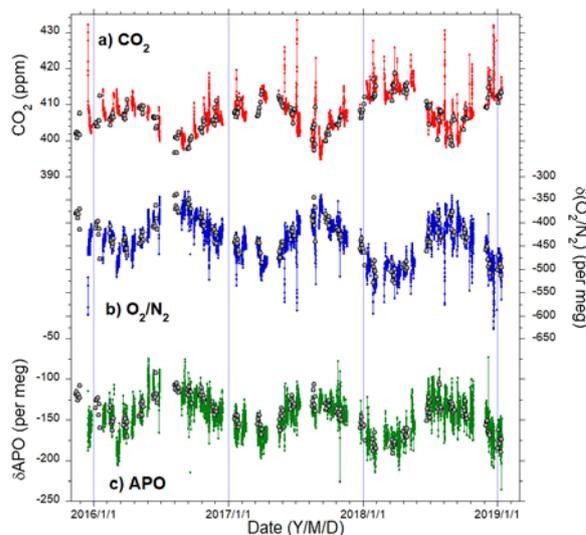


図7. 北米航路 (NC2) における大気中 (上) CO₂濃度、(中) 酸素濃度 (O₂/N₂比)、および (下) APO の観測結果。丸印はボトルサンプリングの結果。

大気中の CO₂ 濃度および APO の年間変化率を ΔX_{CO_2} および $\Delta(\delta APO)$ とし (単位 : ppm yr⁻¹ および per meg yr⁻¹)、陸域生物圏および海洋の炭素吸収量をそれぞれ B と O (単位 : PgC yr⁻¹) としたとき、APO 法による炭素収支計算式は次のようになる。

$$O = \left\{ -(\alpha_F - \alpha_B)F - (S_{O_2}/\beta) \times \Delta(\delta APO) + Z_{eff} \right\} / \alpha_B \quad (3)$$

$$B = \left\{ \alpha_F F + (S_{O_2}/\beta) \times \Delta(\delta APO) - (\alpha_B/\beta) \times \Delta X_{CO_2} - Z_{eff} \right\} / \alpha_B \quad (4)$$

ここで、 F は化石燃料の消費による炭素放出量 (単位 : PgC yr⁻¹)、 α_F は化石燃料燃焼時の -O₂:C 交換比率 (酸化比と同じで、現在の世界平均値は約 1.4)、 β は 1PgC の CO₂ が大気に放出された場合の大気中濃度を ppm に変換する係数 ($\beta=0.470$ ppm/PgC)、 Z_{eff} (単位 : PgC yr⁻¹) は O₂ および 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す。

Z_{eff} については観測結果が存在しないので、大気-海洋間でのガス交換と熱量交換が比例関係にあると仮定し、海洋貯熱量の変化量 (Q) を用いて次式から計算される¹³⁾ :

$$Z_{eff} = (\gamma_{O_2} - \gamma_{N_2} \times S_{O_2}/S_{N_2}) \times Q \times m_c \times 10^{-15} \quad (5)$$

ここで、 S_{O_2} および S_{N_2} は大気中の O₂ および N₂ 濃度を ($S_{O_2}=0.2094$ 、 $S_{N_2}=0.7809$)、 γ_{O_2} および γ_{N_2} は O₂ および N₂ についての単位熱量当たりの海洋からの脱ガス量 (単位 mol J⁻¹) を表す。 γ_{N_2} の値としては 2.2 nmol J⁻¹ を γ_{O_2} の値としては 4.9 nmol J⁻¹ を用いた¹³⁾。また、全海洋の貯熱量については Levitus et al. (2009)¹⁴⁾ が海洋観測結果から推定した深度 0~2000m についての値を用いた。なお 2005 年までは 5 年間平均値を、2006 年以降は年平均値を用いた。

炭素収支計算には 2018 年 1 月までに取得された波照間・落石ステーションおよびオセアニア航路のボトルサンプルの分析結果を用い、2017 年までの炭素収支計算を行った。また、化石燃料起源 CO₂ の排出量 (セメント製造起源 CO₂ を含む) については GCP がまとめた 2017 年までの推定値を用い、化石燃料燃焼時の酸化比 ($\alpha_F = -O_2/CO_2$) は化石燃料の種類別排出量と化石燃料の種類別酸化比から計算した。

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 2017 年の 18 年間の炭素収支という場合、2000 年 1 月 1 日から 2018 年 1 月 1 日までの期間の収支を意味し、計算ではそれ

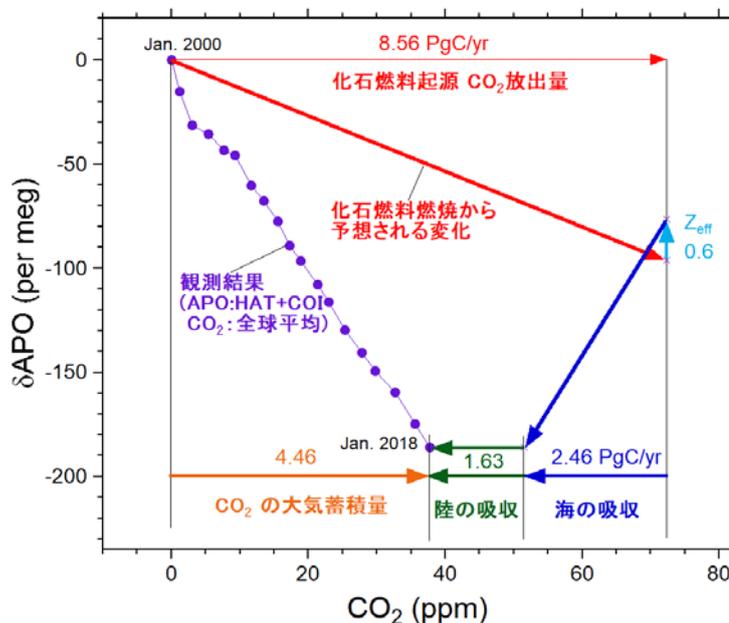


図 8. 波照間・落石での観測結果に基づく 2000 年 1 月から 2018 年 1 月までの 18 年間にわたる炭素収支計算の図解。縦軸・横軸はそれぞれ APO と CO₂ 濃度を表わし、紫丸は観測値、太線破線矢印は化石燃料の消費によって予想される変化をそれぞれ表わす。

表 2. APO の変化に基づく炭素収支計算結果

Time period	Sampling Location	ΔAPO (per meg yr ⁻¹)	ΔCO_2 (NOAA) (ppm yr ⁻¹)	F (Pg C yr ⁻¹)	α_F (mol mol ⁻¹)	Z_{eff} (Pg C yr ⁻¹)	O (Pg C yr ⁻¹)	B (Pg C yr ⁻¹)
1998-2017	HAT	-10.38	2.09	8.36	1.381	0.43	2.50	1.40
1999-2017	HAT	-9.92	2.06	8.45	1.380	0.44	2.31	1.76
2000-2017	HAT+COI	-10.33	2.10	8.56	1.379	0.45	2.46	1.63
2003-2017	HAT+COI	-10.03	2.15	8.90	1.379	0.44	2.28	2.04
2003-2017	Ship(40°S-30°N)	-10.07	2.15	8.90	1.375	0.44	2.30	2.02
2000-2004	HAT+COI	-9.15	1.85	7.11	1.399	0.48	2.26	0.91
2004-2008	HAT+COI+Ship	-9.24	1.92	8.21	1.383	0.22	1.86	2.28
2008-2012	HAT+COI+Ship	-10.42	1.97	9.05	1.370	0.43	2.44	2.42
2013-2017	HAT+COI+Ship	-11.50	2.47	9.72	1.371	0.60	2.87	1.58

それぞれの時点における年平均値（前後 6 ヶ月の平均）を用いた。一例として、波照間・落石の観測結果に基づく 2000 年から 2017 年までの 18 年間の海洋および陸域生物圏の CO₂ 吸収量を求めると、それぞれ 2.46 PgC yr⁻¹ および 1.63 PgC yr⁻¹ となった。また、この時の APO 法による炭素収支計算の図解を図 8 に示す。表 2 から、一時期（2004-2008 年）を除いて海洋の方が陸域生物圏よりも一般に炭素吸収量が大きく、これまでの他の研究機関による報告結果と一致している。なお、本研究で求められた海洋および陸上生物圏の炭素吸収量に付随する不確かさとしてはそれぞれ ± 0.6 および ± 0.8 PgC yr⁻¹ と推定されていることに注意する必要がある。さらに、長期的な炭素収支の変化傾向を調べるために、2000 年から 2017 年までの期間で 5 年間の平均炭素収支を求めた結果を見ると、2004 年以降海洋の吸収量は増加傾向を示し、陸域生物圏の吸収量は 2000-2012 年の期間は増加傾向にあったものが、2013 年以降減少傾向にあるように見える。そこで、次に炭素循環の長期的な変化傾向について詳しく見てみる。

図 9 にボトル観測から求められた年々の炭素収支を細点線で示したが、見て分かる通り非現実的な大きさの年々変動が現れる。このような年々変動が生じる原因は、季節的な大気-海洋間の酸素交換量が 1 年間のサイクルで必ずしもバランスしないため、見かけの変動を生み出すと考えられている。しかし、図 9 の赤丸で示したように、5 年間の平均を計算することで年々変動が効果的に抑えられたことが分かる。また、海洋吸収量の推移を見ると、2004 年までは減少したものがそれ以降増加傾向を示していることが分かる。一方、5 年平均による陸域生物圏の吸収量の推移を見ると 2009 年頃までは増加傾向にあったが、それ以降は減少に転じている。

比較のために GCP がまとめた炭素収支の結果を図 9 にプロットしたが、GCP の推定した海洋の吸収量は微増傾向にあるのに対し、陸域生物圏は比較的大きな年々変動を示しているが、5 年平均を計算した結果を見ると、2000 年から 2009 年にかけては増加傾向にあり、2009 年以降は減少傾向に転じているように見える。この 5 年平均値の変化傾向は本研究による陸域生物圏の吸収量の 5 年平均値の変動と比較的よい一致を示していることが分かった。2000 年代は化石燃料起源 CO₂ 排出量が急増したにもかかわらず大気中の CO₂ 濃度増加率が一定に保たれた時期として知られているが、本研究の結果は海洋の炭素吸収量の増加だけでなく、陸域生物圏の吸収量の増加も増加率が低く抑えられていた原因である可能性を示唆するものである。

陸域生物圏の炭素吸収量が増加した理由について、Keenan et al. (2016) は同時期に観測された

地表平均気温の上昇傾向の停滞（いわゆるハイエイタス）によって土壤有機物の分解の増加傾向が減速し、さらに大気中の CO_2 濃度が増加し続けたため施肥効果による吸収量の増加傾向が顕著に現れたためとしている。一方、 CO_2 の施肥効果だけでは吸収量の増加は説明できず、土地利用変化に伴う CO_2 放出量の減少や、森林の再成長の効果によるものとの研究もある。2010 年以降は

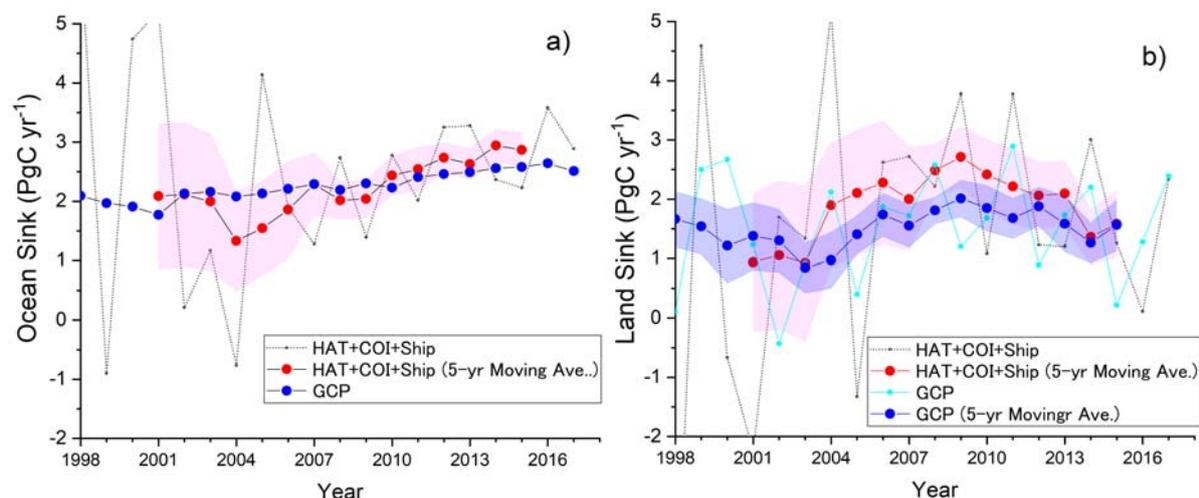


図9. 波照間・落石およびオセアニア航路の貨物船での観測結果に基づく (a) 海洋および (b) 陸域生物圏の炭素吸収量の年々変化。黒点線および赤丸は波照間・落石・船舶の観測から計算される炭素収支の年々変動およびその5年間の移動平均をそれぞれ表す。また、青丸はGCPの推定結果の5年間移動平均を表す。薄い赤および青の領域は5年間の標準偏差を表す。なお、図bの水色はGCPの推定結果（陸域生物圏の吸収量）の年々変動を表す。

GCPの結果も本研究の結果でも陸域生物圏の炭素吸収量は減少傾向を見せるが、2014年頃から世界平均気温が再び上昇傾向に転じ、そのことで土壤の分解が再び活発になったため陸域生物圏の吸収が減少傾向を示した可能性が考えられる。さらに、2015年から2016年にかけて1998年以降では最大のエルニーニョ現象が発生し、バイオマス燃焼による CO_2 放出量の増加も一因と考えられる。以上の結果から、大気酸素の観測は海洋および陸域生物圏の炭素吸収量の変化傾向をある程度捉えることができたと考えられる。しかしながら、APO法による炭素収支には依然として大きな不確かさが伴うため、これをいかに小さくするかが今後の最大の問題である。

⑤APO年平均値の緯度分布の年々変動の解析

2001年11月に開始した貨物船を用いたボトルサンプリングや、2007年9月以降の貨物船TF5号による船上連続観測、さらには貨物船NC2号による船上連続観測によって、西部および北部太平洋におけるAPOの季節変動や年平均値の詳細な分布を明らかにしてきた。中でも、西部太平洋におけるAPOの年平均値の緯度分布については、赤道付近に極大値をもつことを世界で始めて明らかにした (Tohjima et al., 2005)。APO年平均値の赤道極大は O_2 および CO_2 が中・高緯度の海域で海洋に吸収され赤道域で大気に放出されるという大規模循環の存在を支持する結果であり、重要な観測成果と言える。さらに、APOの赤道極大が2009/2010年のEl Niño時に小さくなったことを世界で始めて明らかにした (Tohjima et al., 2015)。

このような状況の中、2015-2016年には1997/1998年以来最大規模となる El Niño 現象が発生し、2016年の春に終息した。そこで、2015/2016年の El Niño 現象に対して西部太平洋域の APO の緯度分布がどのように応答したかを解析した。

APO 年平均値の赤道極大の時間変化をより詳しく調べるため、25°S-赤道間、および、赤道-20°N 間の緯度勾配の時間変化を図 10 にプロットした。また、図中には ENSO イベントとの関連を調べるために Niño 4 インデックス（+が El Niño、-が La Niña 的状況を示す）も同時にプロットした。全観測期間にわたって、25°S-赤道間および赤道-20°N 間の緯度勾配は Niño 4 インデックスと逆相関および正相関していることが明らかとなった。2009/2010年の El Niño ピーク時には南北半球の勾配が一致することはなかったが、2015/2016年の El Niño ピーク時には南北半球の勾配がゼロ付近で重なり、APO の緯度分布がほぼフラットな状態になったことが分かる。このことは、2015/2016年の El Niño の方がより規模が大きかったことと整合的である。2016年以降、再び南北半球の勾配が元に戻る動きを見せ、2017年頃には赤道極大が回復したことが分かる。今回観測された APO の年平均値の緯度勾配の変化に対して、大気輸送や大気-海洋間のガス交換の年々変動がどの程度寄与しているのかを今後解明する必要がある。

(2) 大気 CO₂ の安定炭素同位体の観測結果

①大気中 CO₂ の同位体比の変化

日本とオーストラリア間の太平洋上を航行する貨物船において採取された大気試料の CO₂ 濃度ならびに炭素・酸素同位体比 ($\delta^{13}\text{C-CO}_2$ と $\delta^{18}\text{O-CO}_2$) を分析した結果を図 11 に示した。なお、分析結果は 60°N から 40°S までを 10°ずつの緯度帯に区分して示されている。また、図中の細線は観測値のベストフィット曲線を、太線は観測値のトレンド曲線を示している。

年変動について、CO₂ 濃度は北半球では光合成によると考えられる濃度の低下が夏期に生じ冬期に濃度の増加が見られた。南半球は夏冬が逆転しているものの、濃度や同位体比の季節変化は北半球に比べ小さかった。これは南半球の陸域生態系の面積比率が海に対して大きくないために南北の差が出るとされている。 $\delta^{13}\text{C-CO}_2$ は CO₂ 濃度と逆相関になるが、これは陸上生物圏における光合成で大気中の CO₂ を取り込む際、¹³CO₂ より ¹²CO₂ を優先的に取り込むためである。炭素同位体比の季節変化とその大きさは、CO₂ 濃度のそれらと同調している。

一方、 $\delta^{18}\text{O-CO}_2$ は、季節変化の大きさは、南半球に行ってもそれほど小さくはならず相対的に大きな変動を示している。 $\delta^{18}\text{O-CO}_2$ は光合成速度の最も大きくなる夏前に最大を示したのち、呼吸が増える時期に下がって行く季節変化を繰り返している。南半球は高緯度に陸域が少ない

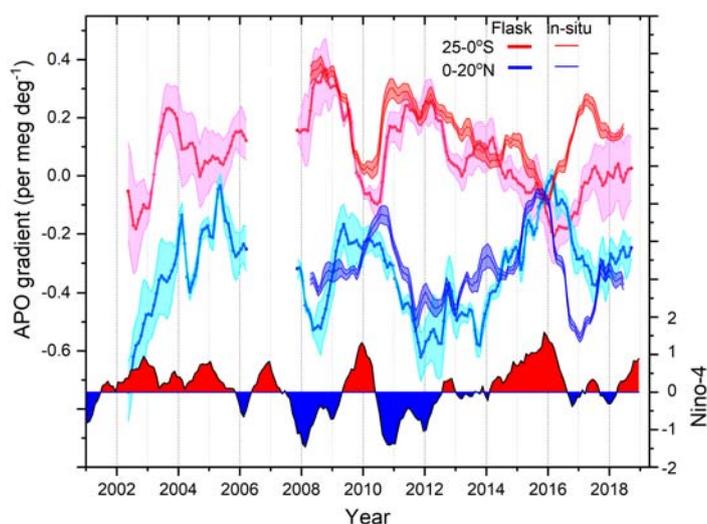


図 10. APO 年平均値の緯度勾配 (25-0°S と 0-20°N) の年々変動。実線および破線は北および南半球を、太線および細線はボトル分析および船上観測をそれぞれ表す。

ために、季節的に夏の CO₂ 吸収量こそ少ないが、土壌や植物体との間の水との接触による低緯度帯での $\delta^{18}\text{O-CO}_2$ の季節変化が現れることになる。

長期トレンドについて、緯度帯に関わらず CO₂ 濃度は長期的に増加するのに対し $\delta^{13}\text{C-CO}_2$ は長期的に軽くなる傾向がある。グローバルな炭素循環を議論する際には、CO₂ 濃度と $\delta^{13}\text{C-CO}_2$ の全球のトレンドを観測する必要があるが、ここで大気採取に利用している貨物船の航路が 60°N～30°N の範囲を航行する機会が近年減少したため、平均を考える際は 30°N から 30°S までを平均することにした。

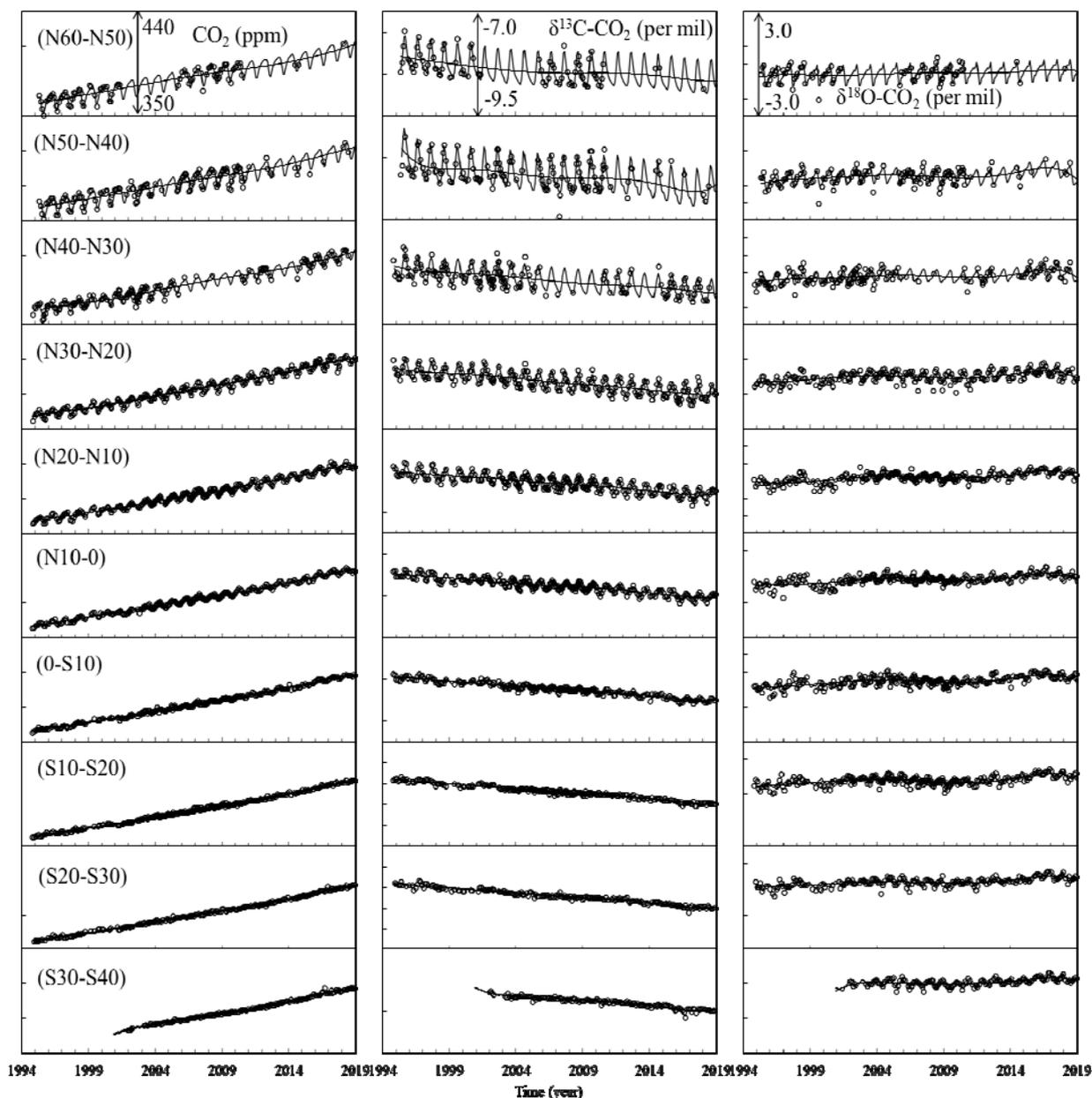


図 1 1. 日本ーオーストラリア間を航行する貨物船において採取された大気試料の CO₂ 濃度 (左列)、CO₂ の炭素同位体比 ($\delta^{13}\text{C}$ 、中列)、酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$ 、右列) の時系列

酸素同位体比は 2010-2012 年に低く推移し、最近 2015 年は高めに推移している傾向があった。これは、気象要因やエルニーニョ現象とともに変化していると考えられ、海洋温度の高温化や陸域の乾燥化などの影響を部分的に受けていると思われる。

図 1 1 で示した CO₂ 濃度と $\delta^{13}\text{C}$ -CO₂ について、緯度帯別に季節変動を除いた長期トレンドを微分し変化率を求め、それぞれ図 1 2 a と 1 2 b に示した。図中太線で示した平均値は 30°N から 30°S の値を用い、それぞれの緯度帯の大気量を考慮し算出した。CO₂ 濃度増加率は 2000-2001 年、2008-2009 年、2016-2017 年に減少し、1998 年、2002 年、2011-2013 年、2015-2016 年に増加した。

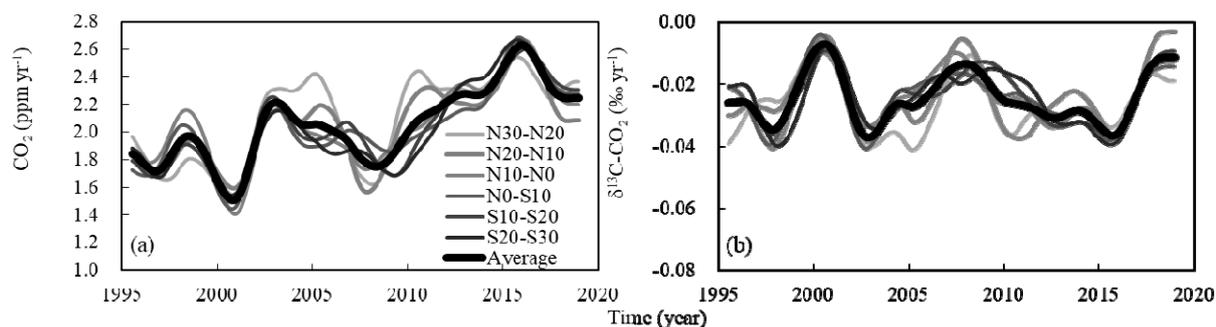


図 1.2. 緯度帯別 CO₂ 濃度の増加率と δ¹³C-CO₂ の変化率

②観測値を用いた海洋と陸上生物圏の CO₂ flux の推計

大気と海洋、大気と陸上生物圏との間で 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太平洋上航路上の大気中の CO₂ 濃度と δ¹³C-CO₂ の値を仮にグローバルな平均的トレンドと解釈して、海洋と陸上生物圏による CO₂ flux を解析し図 1.3 に示した。同図には人為起源で放出された CO₂ 量と大気に蓄積する CO₂ 量も併記した。

図 1.3 での解析は次のような仮定の下で行っている。まず、現在の全球の CO₂ の収支は、各リザーバのフラックスと濃度 (Ca) 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 は実際動いているグロスの交換量を表わす。

$$dC_a/dt = C_F + C_{N_s} + C_{N_b} \quad (6)$$

$$d\delta^{13}C_a/dt = C_F\delta_F + C_{N_s}(\delta_a + \epsilon_{as}) + C_{G_s}(\delta_s - \delta_a) + C_{N_b}(\delta_a + \epsilon_{ab}) + C_{G_b}(\delta_b - \delta_a) \quad (7)$$

人為起源の二酸化炭素放出量は CDIAC データベースによっているが、2018 年データは集計されていないため、2018 年に関しては 2017 年と同一として計算した。図中の推定された海洋と陸上生物圏の CO₂ flux の誤差は、CO₂ 濃度および δ¹³C の変化率の各緯度の違いを基に、そのばらつきとして 1 シグマで示している。推計する際、海洋や陸上生物圏からのグロスの同位体比交換による同

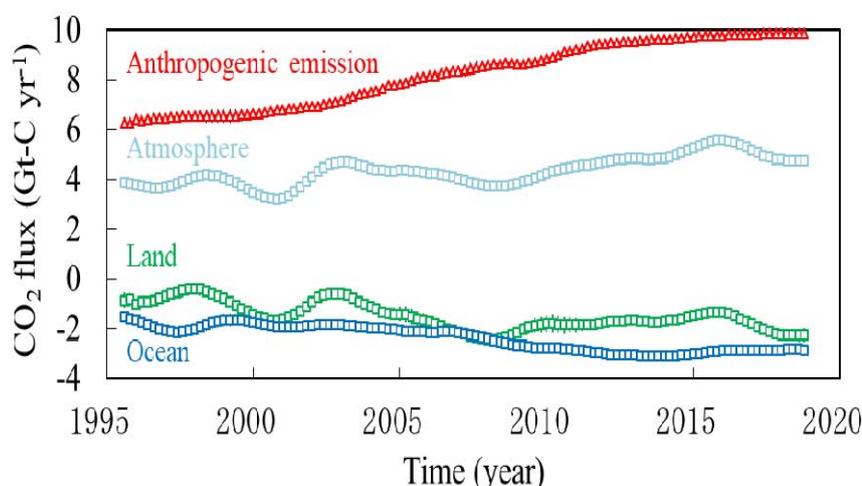


図 1.3. CO₂ 濃度と炭素同位体比から計算された長期的収支変

位体フラックスは 1995 年を基準として大気同位体比の変化に応答したとして計算した。陸上生物圏は、交換量を変化させずに有機物 (C3 植物と仮定) の 25%が大気に追従できないと仮定し、海洋は年間の同位体変化が-0.016‰として、大気同位体比変化分と合わせて追従できない分をその非平衡値の広がりとした。人為起源の石油、石炭、天然ガス、セメントからのそれぞれの比率と量的関係は CDIAC のデータベースを用いた。同様に、発生源の同位体比も考慮した。

$$\delta^{13}\text{C} = (-24.1\text{C} - 26.5\text{P} - 44.0\text{G} + 0\text{Ce} - 44.0\text{Fl}) / (\text{C} + \text{P} + \text{G} + \text{Ce} + \text{Fl}) \quad (8)$$

(C:石炭 P:石油 G:天然ガス Ce:セメント Fl:フレアガス)

1995 年から 2018 年の海洋と陸上生物圏の CO₂ flux はそれぞれ常に吸収(マイナス値)であった。海洋の吸収量は、1995 年では-1.5GtC/yr であったが、2018 年では-2.8GtC/yr と拡大傾向にあった。特に 2007 年以降海洋の吸収量が強まり 2015 年までその傾向が継続している。

陸上生物圏の吸収量は、海洋の吸収量より相対的に大きく増減した。これはエルニーニョ現象などによる影響を相対的に強く受けているためである。また陸上生物圏の吸収量は、海洋と同様に 1995 年では-0.9GtC/yr であったが、2018 年では-2.3GtC/yr と陸上生物圏の吸収が強化されている。

我々が観測により得られた値から海洋と陸上生物圏の CO₂ flux を推計した値と GCP で参照された複数のモデル (海洋では 7 つ、陸上生態圏では 17 つのモデル) により求められた海洋と陸上生物圏のそれぞれの CO₂ flux の比較を図 14a と 14b に示した。海洋の CO₂ flux について、1995-2007 年において我々が観測値から推計した CO₂ flux 値は、比較で用いた 7 つのモデルの CO₂ flux 平均値とほぼ同じであったが、2008 年以降両者の差が 0.5GtC/yr 程度と拡大し、我々の推計した CO₂ flux が相対的に強い海洋吸収を示した。2015-2018

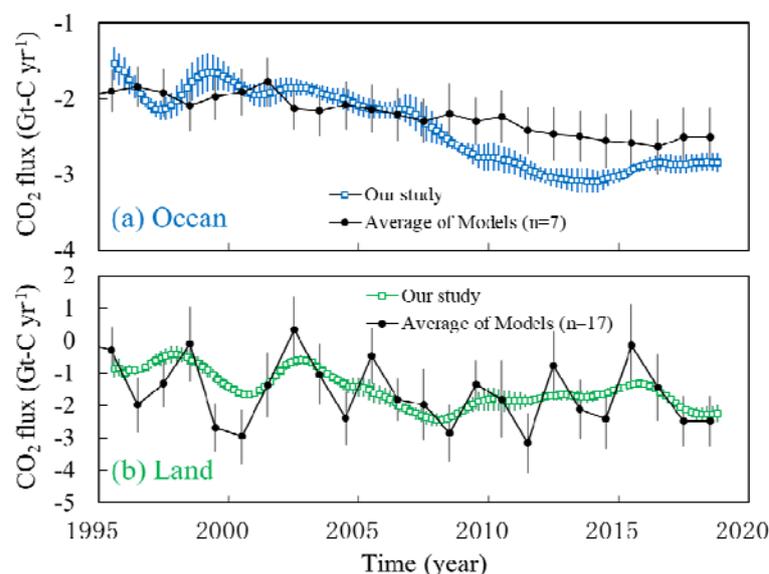


図 1 4 . 海洋(a)と陸上生物圏(b)の CO₂ flux の観測とモデルとの比較

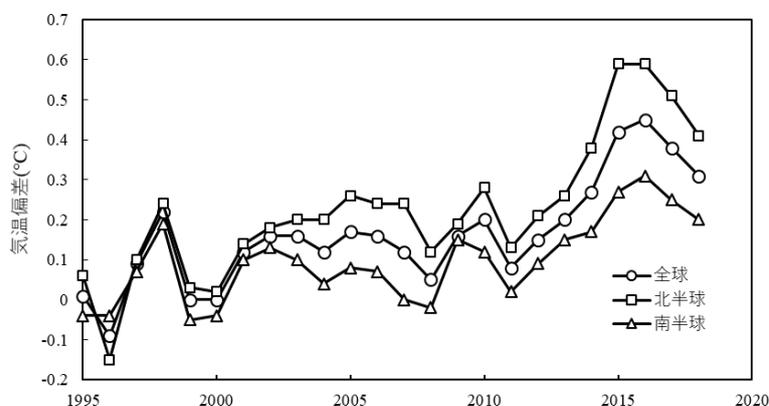


図 1 5 . 世界の気温変化 (1981-2010 年の平均からのずれを偏差としている) (気象庁 WEB データ)

年はわずかながら海洋吸収が弱まったように見える。2015年以降はエルニーニョが発生しており、それによる吸収の低下も理由の1つとして考えられる。全体的に、モデルの海洋吸収と本研究の海洋吸収の変動パターンは、少し異なっており観測前半には逆相関になっているところもある。これらの結果から、太平洋上でサンプリングしている本研究のデータは、より海域の吸収変化パターンが同位体比にも現れる可能性があるとも思われる。その他、非平衡の推定の仕方、グロスの交換量の推定など検討すべき点もある。

陸上生物圏のCO₂ fluxについてはここで推計したCO₂ flux値の変動は、解析の際に2年程度のフィルターをかけているため、モデル結果より小さいが、GCPや17つのモデルのCO₂ flux平均値と良く一致していた。特に特記すべきは、2017-2018年の吸収量の回復である。2015年の高温期で吸収量が大きく落ち込んだが、それ以降気温は下がっており、それに対応するように吸収量がその後微増していることがわかった。

陸域吸収フラックスの変化を世界の気温変化(図15)と比べると、吸収フラックスは気温が低い時期に大きく、気温が高い時期に小さくなる傾向が見られた。1998年は最大規模のエルニーニョ現象が発生した年であり、世界的に気温が高かったことが知られている。2006年から2013年までは、2010年を除いてあまり気温が高く推移する年は無く、気温の上がらない期間(ハイエイタス)として知られている。この間、陸域生態系の吸収はCO₂濃度の増加と共に大きな吸収量を示していたと考えて良い。これは、エルニーニョに伴う森林火災の発生もこの時期少なかったことも同時に効果的に吸収量を増やす結果となっている。しかし、2015年を境に、気温が急激に上昇し、特に北半球の気温上昇は2014

年に比べて、0.2°Cほどの大きな上昇が見られる。このことが、陸域生態系の面積の広い北半球でのCO₂吸収量を減らす大きな要因になっていると思われる。今後の炭素収支を議論する際に、このような近年の応答を考えるならば、パリ協定での目標である2°C以内の気温上昇(現在からみると1°C程度の平均気温変化に相当)にとどめるとしても、その際は陸域の自然生態系からのCO₂の放出の可能性を示唆していると思われる。

③アジア地上各地点での同位体比変化の地域性

インド・Nainital (NTL) とバングラデシュ・Comilla (CLA) でのCO₂濃度および $\delta^{13}\text{C}-\text{CO}_2$ の観測結果を、太平洋におけるほぼ同じ緯度帯での観測結果と比較すると、NTLとCLAにおける

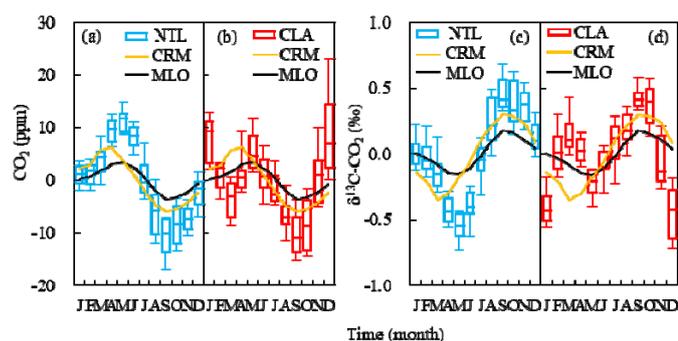


図16. NTLとCLAのCO₂濃度と $\delta^{13}\text{C}-\text{CO}_2$ の季節変化

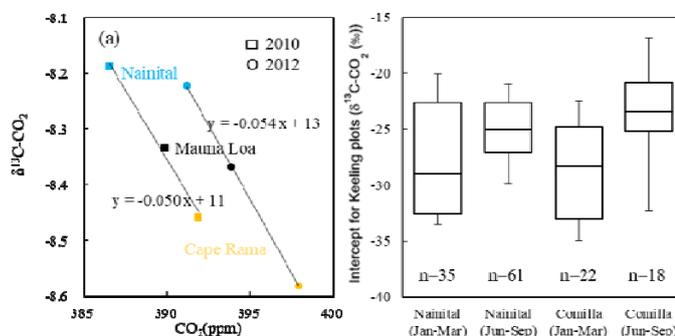


図17. NTLとCLAのCO₂濃度と $\delta^{13}\text{C}-\text{CO}_2$ の変化量の関係および1-3月と6-9月のKeeling plotsの切片

CO₂濃度と δ¹³C-CO₂の季節変動幅は、太平洋のそれらより大きかった。これは NTL と CLA 周辺での植生の呼吸と光合成による CO₂の放出と吸収の影響が相対的に強いためである。ここでは、同位体比に表れる炭素吸収放出の地域性を解析した。

NTL と CLA の CO₂濃度（と δ¹³C-CO₂）はそれぞれ1年に2回の低下時期（と増加時期）を示した（図16）。これは現地の二期作あるいは二毛作による植生の光合成による CO₂吸収の影響を強く受けているためだと考えられた。

南アジア域で CO₂濃度のバックグラウンドを示すインドの Cape Rama および北半球中緯度の平均的な CO₂濃度を示す Mauna Loa と NTL の CO₂濃度と δ¹³C-CO₂の年平均値の関係をプロットすると傾きは 0.05‰ppm⁻¹であった（図17（左））。この値は CO₂濃度の場所ごとの差異が大気-陸上生物圏間の CO₂交換の度合いによって生じていることを意味する。さらに1-3月の CO₂濃度と δ¹³C-CO₂および6-9月の CO₂濃度と δ¹³C-CO₂からそれぞれの Keeling plots の切片を求めたところ、6-9月の Keeling plots の切片は1-3月のそれより重い値を示した（図17（右））。これは6-9月に NTL と CLA 周辺で栽培されている C4 植物（トウモロコシやサトウキビなど）の比率が高いことが影響していると考えられた。

（3）大気 CO₂の放射性炭素同位体の観測結果

①バックグラウンド大気 CO₂の放射性炭素同位体比

波照間と落石ステーションでは、バックグラウンド大気¹⁴CO₂測定のために、月に1度の定常サンプリングを行っている。これまでに、2004年から2012年の9年分については、パレオ・ラボの CAMS を用いて¹⁴CO₂分析を行ったが、2013年以降のサンプルについて、NIES-CAMS を用いて¹⁴CO₂分析を行った。図18と図19に、2004年から2017年3月の波照間と落石における CO₂濃度と Δ¹⁴Cの時系列を示した。サンプルと同時に測定している大気リファレンス試料に

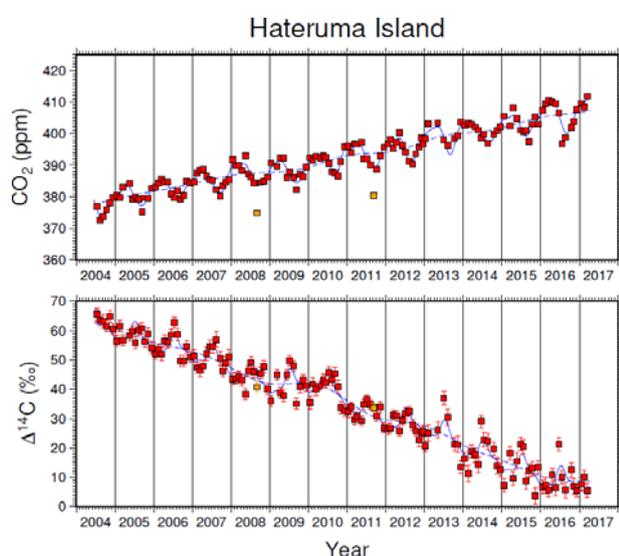


図18. 波照間で観測された CO₂濃度（上）と Δ¹⁴C（下）の時系列。現場連続観測で得られた CO₂濃度を線で、大気サンプリングで得られた CO₂濃度と Δ¹⁴Cを■で示した。なお、■は CO₂濃度の外れ値を示す。

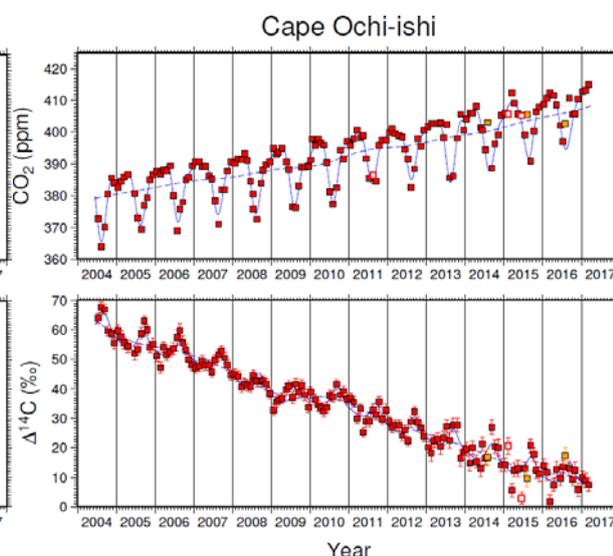


図19. 落石で観測された CO₂濃度（上）と Δ¹⁴C（下）の時系列。

よる補正は行っていないにもかかわらず、2012年以前と2013年以降で $\Delta^{14}\text{C}$ 値の系統的な差は無く、異なる機関・装置による分析結果を合わせて波照間、落石ステーションのバックグラウンド大気試料の $^{14}\text{CO}_2$ レコードを13年分取得することに成功した。

2004年から2012年の9年間の $^{14}\text{CO}_2$ 減少トレンドは、波照間と落石ステーションでほぼ一緒であったが、2013年から2016年にかけては、波照間の方が落石よりも大きな $^{14}\text{CO}_2$ 減少トレンドを示した。これまで波照間と落石の平均 $\Delta^{14}\text{C}$ 値にはほとんど差が無かったが、2016年については波照間が落石より約5‰低い値を示した。また、2013年以降の波照間では、夏に、平均的な季節変動より数‰～10‰ほど高い $\Delta^{14}\text{C}$ 値が観測された。波照間と落石の定常サンプリング大気試料は、毎月2本採取される（通常は連続する2日で1回ずつ）ため、高 $\Delta^{14}\text{C}$ だった試料の前日や翌日の試料の分析を行ったが、前日や翌日の試料でも同様の高 $\Delta^{14}\text{C}$ 値が観測され、これは個々の分析エラーではなく、観測事実であることが明らかになった。この波照間の高 $\Delta^{14}\text{C}$ 値イベントを説明するための解析を進める必要がある。

南鳥島では、2週間に1回、 $^{14}\text{CO}_2$ と酸素分析用に2本ずつの定常サンプリングを行っている。南鳥島で観測された CO_2 濃度と $\Delta^{14}\text{C}$ の時系列を、波照間の観測データと比較した図を図20に示した。南鳥島の $^{14}\text{CO}_2$ 分析は、2012年8月から2015年8月採取分まで終了した。南鳥島と波照間の CO_2 濃度を比較すると、夏の濃度はほぼ一致するのに対し、秋から春の期間は南鳥島の方が波照間と比べ、数ppm低い。 $\Delta^{14}\text{C}$ は、これに対応して、秋から春の期間は南鳥島の方が波照間と比べ高くなっていた。これは、秋から春の期間は波照間の方が南鳥島より化石燃料起源 CO_2 が多いためと考えられる。例えば、2012年10月から2013年6月は、波照間が南鳥島より CO_2 濃度が約2ppm高く $\Delta^{14}\text{C}$ が約5‰低い。この波照間の $\Delta^{14}\text{C}$ の減少は、南鳥島の CO_2 濃度に2ppmの化石燃料起源 CO_2 を加えた時の減少と定量的に一致する。また、2013年冬季は、2012年と2014年と比べて CO_2 濃度と $\Delta^{14}\text{C}$ の差が大きい、といった年々変動も検出された。このことから、南鳥島と東アジアに近い波照間の差を観測することで、東アジアの化石燃料起源 CO_2 量の季節変動や年々変動を広域で捉えることができる可能性が示された。

②イベントサンプリングで観測された大気 CO_2 の放射性炭素同位体比の短期変動

図21に、波照間ステーションのイベントサンプリングで2016年から2018年に観測された6つの高 CO_2 濃度イベントにおける CO_2 濃度、 $\Delta^{14}\text{C}$ 、 $\Delta^{14}\text{C}$ から推定した化石燃料起源 CO_2 、 CO_2 増分に対する化石燃料起源 CO_2 の割合を示す。各イベントにおける化石燃料起源 CO_2 の割合はそれぞれ、イベント#14で76～94%、イベント#15で64～90%、イベント#16で65～89%、イベント

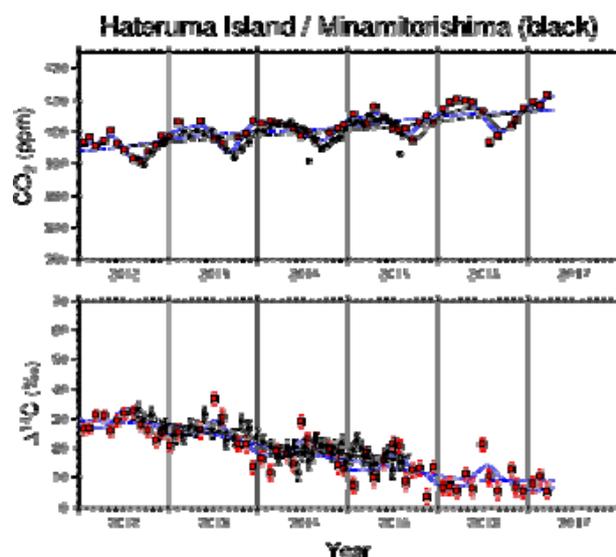


図20. 南鳥島で観測された CO_2 濃度(上)と $\Delta^{14}\text{C}$ (下)の時系列(黒)。比較として波照間の観測データ(赤、図18再掲)を示した。

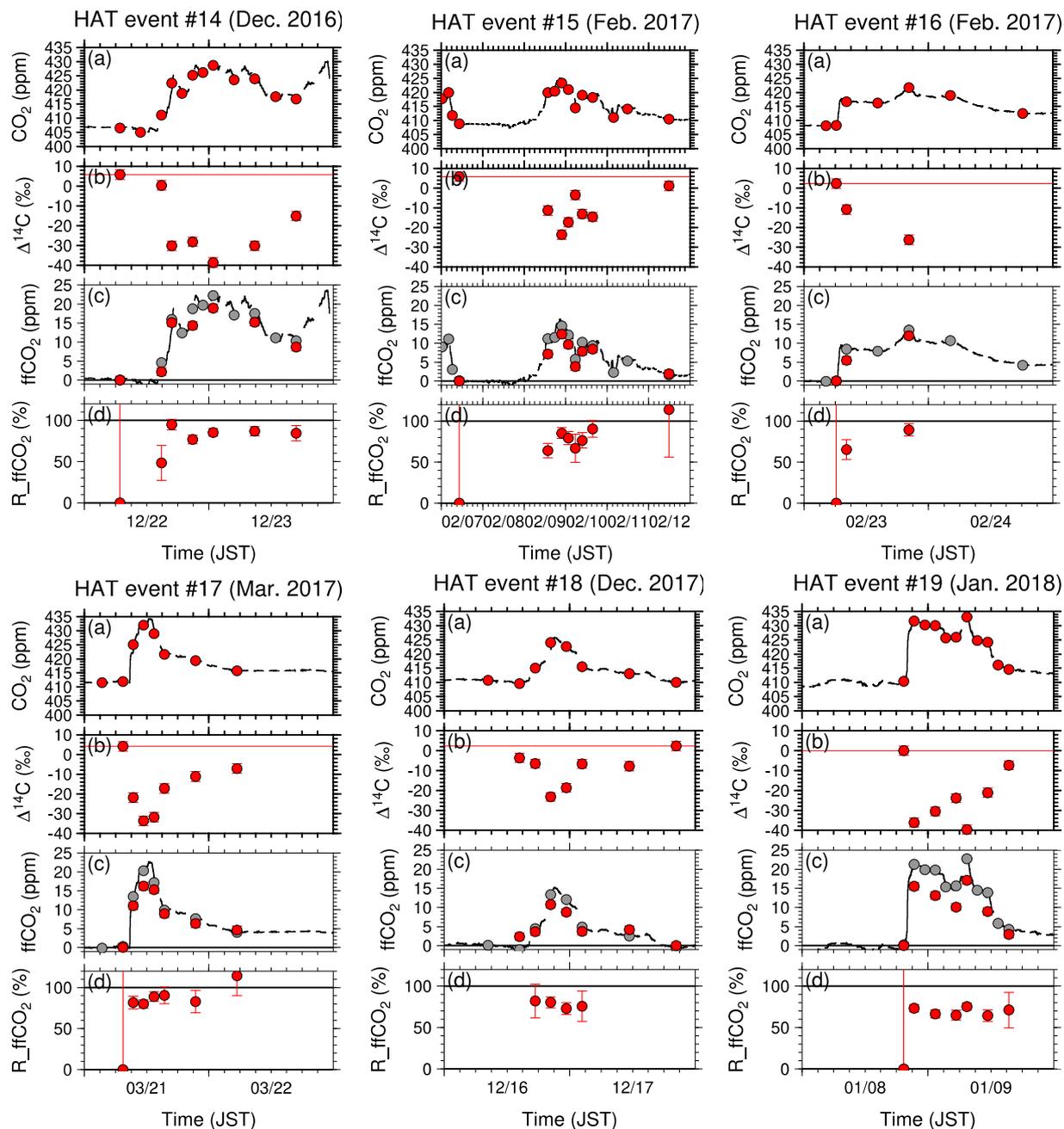


図 2 1. 波照間ステーションのイベントサンプリングで 2016 年から 2018 年に観測された 6 つの高 CO_2 濃度イベントにおける (a) CO_2 濃度、(b) $\Delta^{14}\text{C}$ 、(c) $\Delta^{14}\text{C}$ から推定した化石燃料起源 CO_2 、(d) CO_2 増分に対する化石燃料起源 CO_2 の割合。時刻は日本標準時 (JST)。

#17 で 80~90%、イベント#18 で 72~82%、イベント#19 で 64~75%であった。 $\Delta^{14}\text{C}$ の分析が終わっているこれら 6 イベントの中では、イベント#17 が平均で 85%と化石燃料起源 CO_2 の割合が高く、イベント#19 が化石燃料起源 CO_2 の割合が低かった(平均で 70%)。流跡線解析の結果から、イベント#19 は中国華北部から流入した空気塊で、イベント#17 は朝鮮半島や南西諸島を經由した空気塊であると推察され、これまでに得られた知見(大陸起源の空気塊は陸上生物圏起源の CO_2 をより含んでいる)と整合的であった。今後、イベントサンプルの $\Delta^{14}\text{C}$ 分析を進めるとともに、 CO_2 濃度に対する地上フラックスの寄与の度合いを示すフットプリントの計算を行い、起源別の

フラックス推定に新たな拘束条件を加えるべく、解析を進める必要がある。

また、陸域生態系が放出する CO_2 を捉えた例として、落石ステーションで 2015 年 6 月 10～11 日（イベント#1）と 9 月 29 日～10 月 2 日（イベント#2）に観測された CO_2 濃度と $\Delta^{14}\text{C}$ を図 2 に示す。イベント#1 では陸域生態系に起因する CO_2 濃度の日変動を捉えることに成功した。19 時頃に 402.4ppm だった CO_2 濃度が急激に増加し、1 時頃に最大 411.2ppm に達し、9 時頃にかけて CO_2 濃度が減少した。この間に、 $\Delta^{14}\text{C}$ は $11.5\pm 2.5\%$ から増加して、9 時に最大 $18.4\pm 2.5\%$ に達し、その後 $12.1\pm 2.5\%$ に減少した。イベント#2 では、9 月 29～30 日の夜間には約 8ppm の CO_2 濃度増加が観測され、 $\Delta^{14}\text{C}$ は $18.2\pm 2.5\%$ （17 時）から $24.0\pm 2.5\%$ （20 時）に増加した。これは、イベント#1 と同様に、陸域生態系が放出した CO_2 を捉えていると考えられた。

一方、10 月 1～2 日の夜間は CO_2 濃度の変動は観測されなかったが、 $\Delta^{14}\text{C}$ は $20.3\pm 2.6\%$ （16 時）から $11.8\pm 2.5\%$ （1 時）に減少した。これは、陸域生態系の影響を受けていない、 $\Delta^{14}\text{C}$ が低い別の空気塊の移流が起こっていたことを示唆していた。また、10 月 1 日 10 時に、スパイク状の CO_2 濃度増加が観測されたが、 $\Delta^{14}\text{C}$ は増加していた。このようなスパイク状の CO_2 濃度増加は、化石燃料起源の人為的な汚染であることが多いが、このケースでは陸域生態系に起因していることが示唆された。

これまでに、波照間における冬期のイベントサンプリングの ^{14}C の観測結果から、化石燃料起源 CO_2 の割合ならびに CO_2 放出源での ^{13}C 値は空気塊の地理的起源によって異なることが明らかになった。この時、 CO_2 濃度が増加するとともに $\Delta^{14}\text{C}$ が減少していた。一方、落石でのイベントサンプリングからは、陸域生態系が CO_2 を放出するとともに大気 $^{14}\text{CO}_2$ が増加することが明らかになった。また、 CO_2 濃度が明け方にかけて減少している時も $\Delta^{14}\text{C}$ は増加を続けており、これは $\Delta^{14}\text{C}$ がグロスの CO_2 放出を捉えていることを反映していると考えられた。サンプリングを継続して $\Delta^{14}\text{C}$ 分析結果を増やしていくことで、陸域生態系が放出する CO_2 の同位体特性とグロスの CO_2 放出量の推定を行うことが可能になると期待される。

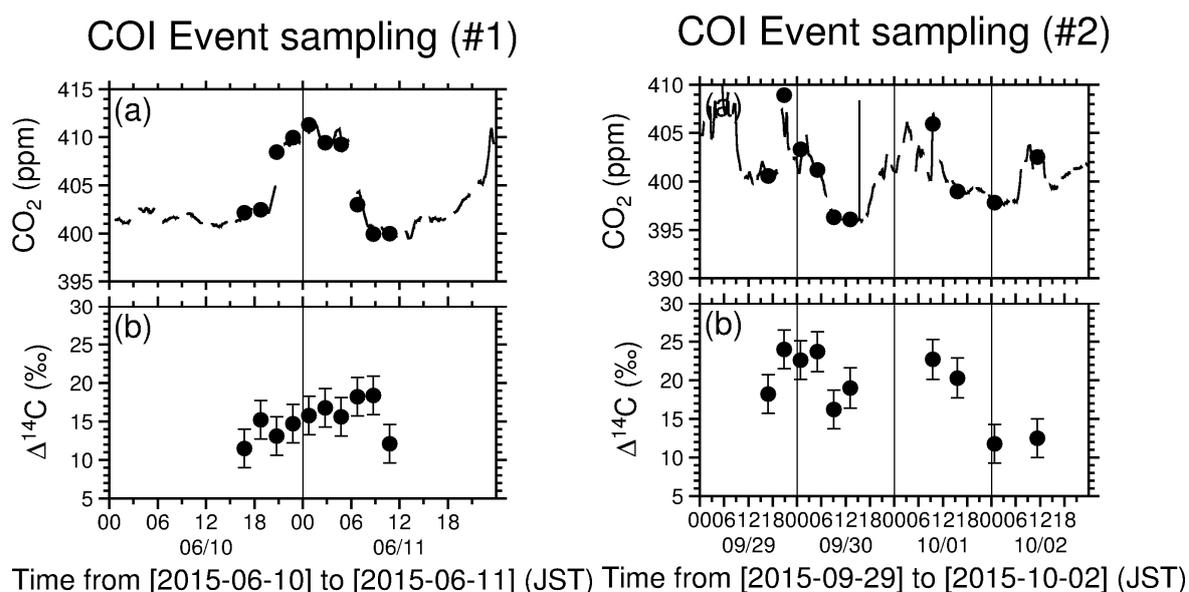


図 2 2. 落石ステーションで 2015 年 6 月 10～11 日（左）と 9 月 29 日～10 月 2 日に観測された (a) CO_2 濃度と (b) $\Delta^{14}\text{C}$ 。時刻は日本標準時 (JST)。

(4) 海洋表層水中溶存 CO₂ 同位体・酸素の観測

本研究では、北米航路およびオセアニア航路を航行する貨物船を用いて、表層海水試料の採取および表層海水の溶存 CO₂ の炭素同位体比の測定を行った。特に、北太平洋表層における放射性炭素 (¹⁴C) の長期的時間変動を評価するために、海洋表層が成層化する夏季（便宜上 5~9 月と定義）に北米航路で採取された試料の ¹⁴C 測定を優先的に進め、調査を開始した 2003 年から 2016 年までの測定が終了した。

2018 年度についても、北米航路およびオセアニア航路を航行する貨物船を用いて表層海水試料の採取および表層海水の溶存酸素濃度の測定を実施した。昨年度までに、調査を開始した 2003 年から 2016 年までの夏季航海（便宜上 5~9 月と定義）で採取された ¹⁴C 測定が終了した。今年度は、これらデータの解析を進めて夏季の表層 $\Delta^{14}\text{C}$ 値の長期間時間変動を明らかにした。

北米航路では、大圏コースで米国西海岸へ向かう「西岸航路」と 10°N 付近に位置するパナマ運河を經由して米国東海岸へ向かう「東岸航路」の 2 つの航路が利用される。したがって、得られた表層の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は北太平洋の非常に広い緯度帯（20~50°N）をカバーしており、その値は -55 ~ +108‰ と大きな変動幅を持っていた。過去の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の広域観測（1970 年代の GEOSECS や 1990 年代の WOCE など）の結果から、北太平洋の 40°N 以北の高緯度域表層では、冬季の強い鉛直混合の影響を受けて、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値が 40°N 以南に比べて著しく低くなることが明らかになっている。このように、海洋表層の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は表層流や海水の鉛直混合、あるいは大気海洋間の CO₂ 交換速度など、各海域の特徴によって大きく変動する。そこで我々は、¹⁴C 分析試料と同時に得られた海水の塩分・水温、これらデータから算出されるポテンシャル密度、さらには試料が採取された地点の緯度・経度と、観測された $\Delta^{14}\text{C}$ 値との関係から、北米航路で得られた $\Delta^{14}\text{C}$ 値を A：黒潮・黒潮続流域、B：北太平洋海流域、C：カリフォルニア海流域、D：冷水塊と暖水塊が複雑に入り交じる混乱水域、E：亜寒帯海流域、F：アラスカ海流域の 6 つの海域に大別した。図 2 3 には 2004~2016 年の最近 13 年間における各海域の $\Delta^{14}\text{C}$ 平均値の長期時間変動を示した。なお、2003 年分についてはデータ数に限りがある上に試料採取された海域が限定されていたため、今回のデータ解析からは割愛した。1970 年代後半から続く亜熱帯域表層の $\Delta^{14}\text{C}$ 値の長期減少傾向は現在でも継続しており、黒潮・黒潮続流域、北太平洋海流域及びカリフォルニア海流域における減少速度は、それぞれ -3.3、-5.2、-3.3‰/yr と計算された。しかしながら、2012

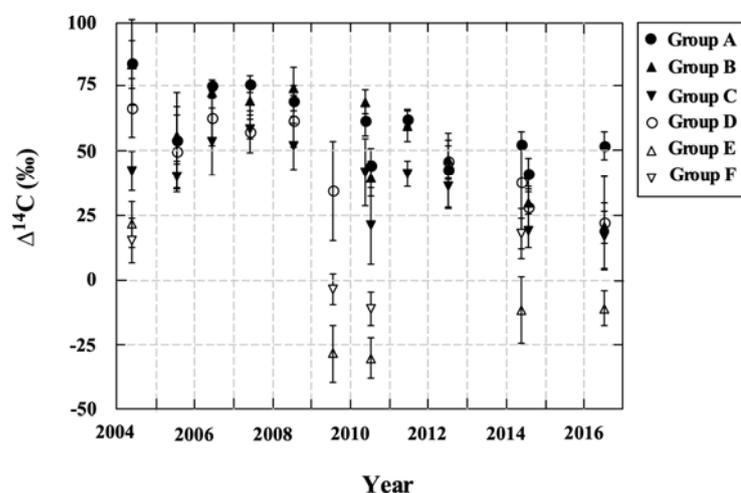


図 2 3. 2004~2016 年間の北太平洋における表層 $\Delta^{14}\text{C}$ 値の長期時間変動

●：A（黒潮・黒潮続流域）、▲：B（北太平洋海流域）、▼：C（カリフォルニア海流域）、○：D（混乱水域）、△：E（亜寒帯海流域）、▽：F（アラスカ海流域）を示す。X 軸の目盛りは各年の 1 月 1 日を示す

年以降については黒潮・黒潮続流域ではおおよそ+50%で一定となっていた。これは西部北太平洋の亜熱帯域表層の $\Delta^{14}\text{C}$ 値が、2012年には大気中の $\Delta^{14}\text{CO}_2$ と平衡に達したことを示唆したものと考えられる。一方、亜寒帯海域やアラスカ海流域の $\Delta^{14}\text{C}$ 値は亜熱帯域に比べて著しく低い値を示したが、2010年以降は減少傾向が増加傾向に転じた可能性が強く示唆された。これは数十年前に混合層下に蓄積された核実験由来の ^{14}C が、冬季の深い鉛直混合によって表層へ再循環した可能性が考えられる。

5. 成果

- 波照間および落石の大気酸素観測に基づく2000年1月から2018年1月までの18年間の海洋および陸上生物圏の炭素吸収量はそれぞれ $2.5 \pm 0.6 \text{ PgC yr}^{-1}$ および $1.6 \pm 0.8 \text{ PgC yr}^{-1}$ であった。
- 大気酸素観測に基づく炭素収支計算結果について、5年間の移動平均によって経年変化傾向を詳しく調べたところ、海洋の吸収はこの10年間増加傾向を示しているのに対し、陸域生物圏の吸収は2009年頃までは増加傾向にあったが、それ以降は減少に転じていると推定された。GCPがまとめた海洋および陸域生物圏の吸収量の結果と比較すると、本研究に基づく吸収量の変化傾向はGCPの結果とよく一致することが分かった。
- APOの緯度分布に現れる赤道極大が、2015/2016年のEl Niño現象時にほぼ消滅したことが分かった。APOの25°S-赤道間、および、赤道-20°N間の緯度勾配の時間変化を調べると、Niño 4インデックスと前者が逆相関、後者が正の相関を示すことが確認された。
- 燃料電池式酸素計を利用した大気中酸素濃度の連続測定方法を確立し、北米航路を運航する貨物船で船上連続観測を実施した。その結果、太平洋中緯度帯のAPOの季節振幅が経度方向であり変化がないことが分かった。また、これらの結果について学術論文で発表した。
- 1994年から2018年間に大気中CO₂濃度は360ppmから410ppmまで増加した。これらの濃度データと安定炭素同位体比を用いた収支解析方法を検討し、グローバルなCO₂収支変動を明らかにした。これを22年間にわたるデータに適用し、海洋、陸域の吸収量の変動について検討を行った。
- 海洋のCO₂吸収量はモデル推定よりも、若干大きめの吸収量(2~4GtC)を示しつつも、徐々に吸収量が増加するパターンを示した。一方で、陸域の吸収量は大きくは気温変化に影響されており、ハイエイタスと考えられる時期には、吸収量は徐々に増加傾向(2GtC)が観測された。しかし一方で、気温の高温化が顕著になった2015-2017年には、吸収量がゼロかむしろ放出になるといった大きな気温応答が見られた。これらは、将来の吸収量変化に対して大きな懸念材料を提供し、今後の継続的な監視が有効であることを示した。
- インドおよびバングラデシュにおけるCO₂濃度および同位体比の観測から、同地域の濃度の季節変動が二毛作の影響を受けて2~3月と9月に極小値を示すことや、北半球低緯度帯における濃度勾配が主に陸域生物圏の影響によって生じていることが明らかとなった。
- 2004~2016年間の北太平洋における表層 $\Delta^{14}\text{C}$ 値の長期変動を解析したところ、海域によって特徴的な変化傾向を示すことが明らかとなった。

6. 引用文献

- 1) Le Quere, et al., (2018), Global Carbon Budget 2017, Earth Syst. Sci. Data, 10, 405-448,

doi:10.5194/essd-10-405-2018.

- 2) Machida, T., Tohjima, Y., Katsumata, K., and Mukai, H. (2011), A new CO₂ calibration scale based on gravimetric one-step dilution cylinders in National Institute for Environmental Studies-NIES 09 CO₂ scale, 165-169, 2011.
- 3) Keeling, R. F. and Shertz, S. R. (1992), Seasonal and interannual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle. *Nature* 358, 723–727.
- 4) Stephens, B. B., Keeling, R. F., Heimann, M., Six, K. D., Murnane, R. and Caldeira, K. (1998), Testing global ocean carbon cycle models using measurements of atmospheric O₂ and CO₂ concentration. *Glob. Biogeochem. Cycles* 12, 213–230.
- 5) Tohjima, Y. (2000), Method for measuring changes in the atmospheric O₂/N₂ ratio by a gas chromatograph equipped with a thermal conductivity detector. *J. Geophys. Res.* 105, 14,575–14,584.
- 6) Tohjima, Y., H. Mukai, Y. Nojiri, H. Yamagishi, and T. Machida (2008), Atmospheric O₂/N₂ measurements at two Japanese sites: estimation of global oceanic and land biotic carbon sinks and analysis of the variations in atmospheric potential oxygen (APO), *Tellus*, doi:10.1111/j.1600-0889.2007.00334.x.
- 7) Yamagishi, H., Y. Tohjima, H. Muki, and K. Sasaoka (2008), Detection of regional scale sea-to-air oxygen emission related to spring bloom near Japan by using in-situ measurements of the atmospheric oxygen/nitrogen ratio, *Atmos. Chem. Phys.*, 8, 3325-3335
- 8) Yamagishi, H., Y. Tohjima, H. Mukai, Y. Nojiri, C. Miyazaki, and K. Katsumata (2012), Observation of atmospheric oxygen/nitrogen ratio aboard a cargo ship using gas chromatography/thermal conductivity detector, *J. Geophys. Res.*, 117, D04309, doi:10.1029/2011JD016939.
- 9) Tohjima Y., H. Mukai, T. Machida, Y. Nojiri, and M. Gloor (2005), First measurements of the latitudinal atmospheric O₂ and CO₂ distributions across the western Pacific, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L17805, doi:10.1029/2005GL023311.
- 10) Tohjima, Y., C. Minejima, H. Mukai, T. Machida, H. Yamagishi, and Y. Nojiri (2012), Analysis of seasonality and annual mean distribution of atmospheric potential oxygen (APO) in the Pacific region, *Global Biogeochem. Cycles*, 26, GB4008, doi:10.1029/2011GB004110.
- 11) Tohjima, T., Y. Terao, H. Mukai, T. Machida, Y. Nojiri, and S. Makyutov, ENSO-related variability in latitudinal distribution of annual mean atmospheric potential oxygen (APO) in the equatorial Western Pacific, *Tellus-B*, **67**, 25869, doi:10.3402/tellusb.v67.25869.
- 12) Manning, A. C. and R. F. Keeling (2006), Global oceanic and biotic carbon sinks from the Scripps atmospheric oxygen flask sampling network, *Tellus* 58B, 95-116.
- 13) Keeling, R. F., and Manning, A. C.: Studies of recent changes in atmospheric O₂ content, in *Treatise on Geochemistry*, vol. 5, 2nd ed., pp. 385-404, Elsevier, Amsterdam, 2014.
- 14) Levitus, S., J. I. Antonov, T. P. Boyer, R. A. Locamini, H. E. Garcia, and A. V. Mishonov (2009), Global ocean heat content 1955-2008 in light of recently revealed instrumentation problems, *Geophys. Res. Lett.*, 36, L07608, doi:10.1029/2008GL037155.

[研究成果の発表状況] (課題開始年度－2018年度)

(1) 誌上発表 (学術誌)

- 1) Tohjima T., Terao Y., Mukai H., Machida T., Nojiri Y., Makyutov S. (2015), ENSO-related variability in latitudinal distribution of annual mean atmospheric potential oxygen (APO) in the equatorial Western Pacific. *Tellus-B*, 67, 25869.
- 2) Yu Hoshina, Yasunori Tohjima, Keiichi Katsumata, Toshinobu Machida, and Shin-ichiro Nakaoka, In situ observation of atmospheric oxygen and carbon dioxide in the North Pacific using a cargo ship, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 9283-9295, 2018, <https://doi.org/10.5194/acp-18-9283-2018>.
- 3) Takafumi Aramaki, Shin-ichiro Nakaoka, Yukio Terao, Seiko Kushibashi, Toshiyuki Kobayashi, Yumi Osonoi, Hitoshi Mukai and Yasunori Tohjima, Variation of surface radiocarbon in the North Pacific during summer season, 2004-2016, *Radiocarbon*, 2019, <http://dx.doi.org/10.1017/RDC.2019.32>.
- 4) Yasunori Tohjima, Hitoshi Mukai, Toshinobu Machida, Yu Hoshina, Shin-ichiro Nakaoka, Global carbon budgets estimated from atmospheric O₂/N₂ and CO₂ observations in the western Pacific region over a 15-year period, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, 2019, <https://doi.org/10.5194/acp-2019-69>.

(2) 口頭発表

- 1) 遠嶋康徳、寺尾有希夫、向井人史、野尻幸宏、町田敏暢、西部太平洋で観測された APO の年平均値の緯度分布の ENSO イベントに関連した変動について、日本地球化学会第 61 回年会、2014 年 9 月 16-18 日、富山
- 2) 遠嶋康徳、向井人史、町田敏暢、寺尾有希夫、野尻幸宏、2009/2010 年のエルニーニョ時に西部太平洋で観測された年平均 APO の赤道極大の平坦化、日本地球惑星科学連合 2014 年度連合大会、2014 年 4 月 28-5 月 2 日、横浜
- 3) Y. Tohjima, H. Mukai, T. Machida and Y. Terao, Inter-annual variation in seasonal cycle of APO observed at Cape Ochi-ishi and its relationship with SST and NPP, The 5th Symposium on Polar Science, Dec. 2-5, 2014, Tachikawa.
- 4) Y. Tohjima, Observation of atmospheric potential oxygen and air-sea gas exchange, Surface Ocean pCO₂ Mapping intercomparison (SOCOM) meeting, Feb. 11-13, 2015.
- 5) 荒巻能史、寺尾有希夫、中岡慎一郎、串橋聖子、遅野井祐美、遠嶋康徳、野尻幸宏、向井人史、北太平洋表層水中における炭素 14 の 10 年間の変動、日本海洋学会 2015 年度春季大会、2015 年 3 月 21-25 日、品川
- 6) 遠嶋康徳、向井人史、町田敏暢、寺尾有希夫 (2015) 落石岬における APO トレンド変化率の年々変動と PDO の関係、日本地球惑星科学連合 2015 年大会、2015 年 5 月 24-28 日、幕張.
- 7) Tohjima Y., Keeling R., Mukai H., Machida T., 2015: Preliminary results on O₂/N₂ scale comparison between SIO and NIES based on flask sampling at La Jolla, 18th WMO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other Greenhouse Gases, and Related Measurement Techniques (GGMT), Scripps Institution of Oceanography, La Jolla, California. (Sep. 13-17, 2015).
- 8) Tohjima Y., Mukai H., Machida T., Terao Y., Maksyutov S., Nojiri Y., 2015: Spatiotemporal variability in APO in the western Pacific region observed from the NIES observing network. APO workshop, Scripps Institution of Oceanography, La Jolla, California. (Sep. 18-20, 2015).
- 9) 遠嶋康徳、勝又啓一、保科優、町田敏暢、低流量型大気中酸素濃度連続測定装置の開発、大

気化学討論会 2015、2015 年 10 月 19-21 日、東京工業大学

- 10) 遠嶋康徳、大気中酸素濃度の観測に基づく研究と課題、日本気象学会 2015 年度秋季大会、2015 年 10 月 28-30 日、京都
- 11) 野村渉平・向井人史・寺尾有希夫・西橋政秀・遠嶋康徳・町田敏暢・谷本浩志・野尻幸宏、東南アジア域の温室効果ガス濃度、日本気象学会 2016 年度秋季大会、2015 年 10 月 28-30 日、京都
- 12) 寺尾有希夫・遅野井祐美・向井人史、加速器質量分析装置で見る大気の炭素循環の世界、国立環境研究所公開シンポジウム、2015 年 6 月、東京、大阪
- 13) Terao Y., H. Mukai, Fossil fuel and biogenic partitioning in CO₂ emissions from East Asia determined by high-frequency radiocarbon measurements at Hateruma Island. 18th WNO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other Greenhouse Gases, and Related Measurement Techniques (GGMT), 2015 年 9 月, La Jolla
- 14) 遅野井祐美・寺尾有希夫・向井人史・小林利行・荒巻能史・近藤美由紀・内田昌男・柴田康行、国立環境研究所における CAMS 導入と現状、第 28 回タンデム加速器及びその周辺技術の研究会、2015 年 7 月、仙台
- 15) Osonoi Y., Terao Y., Mukai H., Aramaki T., Kondo M., Uchida M., Kobayashi T., Shibata Y., Installation and current status of CAMS system at NIES. 18th WNO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other Greenhouse Gases, and Related Measurement Techniques (GGMT), 2015 年 9 月, La Jolla
- 16) 遠嶋康徳、向井人史、町田敏暢、中岡慎一郎：日本地球惑星科学連合 2016 年大会、2016 年 5 月 22-26 日、幕張、「大気中の酸素および二酸化炭素の観測に基づく過去 15 年間の炭素収支推定」
- 17) 遠嶋康徳、向井人史、町田敏暢、中岡慎一郎：大気化学討論会 2016、2016 年 10 月 12-14 日、札幌 2015/2016、「エルニーニョ現象の際に観測された年平均 APO の緯度分布の変化について」
- 18) 保科優、遠嶋康徳、勝又啓一、町田敏暢、中岡慎一郎：大気化学討論会 2016、2016 年 10 月 12-14 日、札幌、「貨物船を利用した北太平洋における大気中酸素濃度の連続測定」
- 19) 保科優、遠嶋康徳、寺尾有希夫、勝又啓一、向井人史、町田敏暢、遅野井祐美：日本気象学会 2016 年度秋季大会、2016 年 10 月 26-28 日、名古屋、「酸素や炭素同位体の測定に基づく大気 CO₂ 濃度変動成分の起源推定法の開発」
- 20) Yasunori Tohjima, Hitoshi Mukai, Toshinobu Machida, Yu Hoshina and Shin-ichiro Nakaoka, Atmospheric O₂/N₂ and CO₂ observation in the Pacific region and its application to the global carbon budget estimation, 10th International Carbon Dioxide Conference, Interlaken, Switzerland, 21-25 August 2017. ICDC, Aug. 2. 1, 2017 (Aug. 21 presentation)
- 21) Yu Hoshina, Yasunori Tohjima, Yukio Terao, Keiichi Katsumata, Hitoshi Mukai, Toshinobu Machida, Yumi Osonoi, Separating short-term CO₂ variation into biotic and fossil fuel components based on the atmospheric O₂ and CO₂ continuous measurements, 10th International Carbon Dioxide Conference, Interlaken, Switzerland, 21-25 August 2017. ICDC, Aug. 2. 1, 2017 (Aug. 22 presentation)
- 22) Yu Hoshina, Yasunori Tohjima, Kei-ichi Katsumata, Toshinobu Machida, and Shin-ichiro Nakaoka Continuous observation of atmospheric oxygen concentration onboard a cargo ship sailing between Japan and North America, 19th WMO/IAEA Meeting on Carbon Dioxide, Other Greenhouse Gases,

- and Related Measurement Techniques (GGMT-2017), 27-31 August 2017, Empa Dubendorf, Switzerland. (27-28, Aug)
- 23) 遠嶋康徳, 保科優, 向井人史, 町田敏暢, 中岡慎一郎, 勝又啓一, 石澤みさ, 白井知子, Shamil Maksyutov, 北太平洋における大気中ポテンシャル酸素 (APO) の分布について, 第 23 回大気化学討論会 2017、2017 年 10 月 2-4 日、高松 (サンポートホール高松、発表は 10 月 2-3 日)
- 24) 保科優, 遠嶋康徳, 寺尾有希夫, 勝又啓一, 高橋善幸, 向井人史, 町田敏暢, 遅野井祐美, 荒巻能史, 大気中酸素濃度や炭素同位体比等を用いた化石燃料起源 CO₂ の分離手法の検討, 第 23 回大気化学討論会 2017、2017 年 10 月 2-4 日、高松 (サンポートホール高松、発表は 10 月 2-3 日)
- 25) Terao Y., Mukai H., Osonoi Y., Observations of atmospheric radiocarbon in carbon dioxide at Hateruma Island and Cape Ochi-ishi, Japan., 10th International Carbon Dioxide Conference, Interlaken, Switzerland, 21-25 August 2017.
- 26) 保科優, 遠嶋康徳, 寺尾有希夫, 町田敏暢, 東京における人為起源 CO₂ 推定のための O₂、CO₂ 連続測定、日本気象学会 2018 年度秋季大会、2018 年 10 月 29 日～11 月 1 日、仙台。
- 27) Takafumi Aramaki, Shin-ichiro Nakaoka, Yukio Terao, Seiko Kushibashi, Toshiyuki Kobayashi, Yumi Osonoi, Hitoshi Mukai and Yasunori Tohjima, Variations of surface radiocarbon of the North Pacific in summer season during the past decade, 23rd International Radiocarbon Conference, 2018 年 6 月 18～22 日、トロンハイム、ノルウェイ。
- 28) Yasunori Tohjima, Land-ocean flux partitioning, Regional Carbon Cycle Assessment and Processes-2, 2019 March 18-21, Gotemba, Japan.

(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。また、本研究で得られた酸素濃度広域観測の結果の一部は、独・マックスプランク研究所のC.

Rödenbeck博士や、米・スクリップス海洋研究所のR. Keeling教授らのグループ、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、さらに米・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。

(7) 政策への寄与・貢献

本研究により気候変動と海洋・陸上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。