

地球一括計上

課題名	南鳥島における微量温室効果ガス等のモニタリング		
担当研究機関	国土交通省気象庁気象研究所 独立行政法人国立環境研究所 独立行政法人産業技術総合研究所		
研究期間	平成23-25年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	36,138千円（うち25年度 11,435千円）
研究体制	国土交通省気象庁気象研究所 独立行政法人国立環境研究所 独立行政法人産業技術総合研究所 国土交通省気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官温室効果ガス観測係（協力）		
研究概要	<p>1. 序（研究背景等）</p> <p>南鳥島気象観測所（以下、「南鳥島」）は、日本の最東端にある北西太平洋上の孤島に位置し、大陸の人為的な影響が殆ど及ばない清浄大気（バックグラウンド）の観測に最も適した国内唯一の観測施設である。また、南鳥島は北西太平洋上の貴重な日本の観測点であり、中央太平洋に位置する米国のマウナロア（ハワイ）の観測データと比較することで、温室効果ガスの動態をより詳細に把握することが可能となる。日本のバックグラウンド観測の強化・充実を図るためには、従来から気象庁が実施してきた定常観測に加え研究観測で培われた高度な測定を新たに導入・統合することが必要となっている。</p> <p>南鳥島では、気象庁が二酸化炭素（CO<sub>2</sub>）など主要な温室効果ガスの濃度について、長期的なトレンドや季節的な変動を観測しているが、その他の温暖化関連物質の観測例はない。このため、高い観測技術を保有する研究機関と連携して、温室効果ガス関連物質の観測を含めた包括的なデータを収集することにより、温室効果ガスの濃度変動の要因である産業活動、陸域生態系、海洋の寄与を見積ることが可能となる。また、京都議定書の削減対象であるHFC、PFC等の温室効果ガスのモニタリング技術を南鳥島に導入することによって、局地的な汚染の影響を排除して、正確な濃度上昇トレンドの把握と全球的な放出量の評価が可能となる。これらを通して、今後の離島における総合的な観測システムの確立と、バックグラウンド観測所の有効活用を促進することが期待できる。</p> <p>2. 研究目的</p> <p>本研究では、気象庁と国内の複数研究機関の連携によるバックグラウンド大気を監視する総合的なモニタリング・システムの構築と運用体制の確立を目的とする。このため、気象庁が温室効果ガスの定常観測に利用している大気環境観測システムに連動した統合システムの構築に重点を置き、本研究の実施に必要な知見、技術及びデータを共有し、研究観測と現業観測が併合できる運用体制を確立することを目指す。</p> <p>本研究では、4つの観測技術の導入を実施する。第1は温室効果ガス関連のトレーサーとして、水素（H<sub>2</sub>）とラドン（Rn）を対象とした観測で、気象庁の大気環境観測システムを共有した連続測定システムを構築し、観測データを収集する。これによって、観測された大気の起源を分別し、観測データのバックグラウンド代表性を評価する。第2は、炭素循環に関わる酸素（O<sub>2</sub>）の観測で、南鳥島の大气採取鉄塔を利用したフラスコ大気採取システムを構築し、その濃度を超精密分析装置で測定し、観測データベースを作成する。このデータベースを利用して、CO<sub>2</sub>収支を中心とした炭素循環の解明に関する知見を得る。第3は、主として冷媒や工業プロセスに用いられるHFCやPFC等のハロカーボン類の観測で、南鳥島の大气採取鉄塔を利用したフラスコ大気採取システムを構築し、その濃度を極微量分析装置で測定して観測データベースを作成する。このデータを利用して、増加トレンドと季節変動の解析を行う。第4は、化石燃料消費などのCO<sub>2</sub>収支の解明の指標となるCO<sub>2</sub>の安定同位体比の観測で、炭素と酸素の高精度同位体比測定を行う。このためにフラスコ・サンプリング法による大気採取方法を構築する。また、開発した同位体比連続測定装置を清浄大気測定用に改良して連続測定技術を高度化し、フラスコ観測との比較検証を行う。これらの同位体比観測データとCO<sub>2</sub>濃度との関係を解析し、南鳥島での安定同位体観測の有効性を評価する。</p>		

### 3. 研究の内容・成果

#### (1) 南鳥島気象観測所の概要

南鳥島は、東京から約1900km離れた北緯24度17分、東経153度59分に位置するサンゴ礁の孤島で、面積は約1.5km<sup>2</sup>、海拔は高い所で9mの平坦な小島である。常駐するのは、気象庁職員と海上自衛隊南鳥島航空派遣隊及び関東地方整備局東京港湾事務所南鳥島港湾保全管理員30名程度のみで、物資の補給には防衛省のYS機とC-130H輸送機がそれぞれ週1回と月1回往復し、年に1回は備船による物資の輸送も行われている。気象庁の庁舎と防衛省の施設は島の北東部に位置し、東側に滑走路がある。平成24年度、気象庁庁舎の東側で港湾事務所の新庁舎建設工事が実施された。

気象庁は、南鳥島気象観測所において、大気環境観測システムを設置し温室効果ガス等の濃度を長期連続観測している。CO<sub>2</sub>濃度の観測が1993年から開始され、1994年以降はメタン(CH<sub>4</sub>)、一酸化炭素(CO)、地上オゾン(O<sub>3</sub>)が追加され、観測が継続して行われている。これらのモニタリング観測のために、大気を採取するための観測用鉄塔が庁舎に隣接して設置されている。鉄塔は高さ20mで、その最上部に空気取り入れ口が2つ設置してある。1つは、現在の気象庁のモニタリング観測に使用している1/2インチのステンレス製の配管ラインで、もう1つは予備のラインとして同様の配管が敷設してある。本研究で実施するO<sub>2</sub>とハロカーボン類の観測には、この予備ラインを使用することとした。上記港湾事務所の影響を避けるため、工事に合わせて新しい観測鉄塔が設置された。なお、空気取り入れ口が地上20mの高さにあることから、観測に対する島内の人間活動や生態系による局地的な影響は極めて少ない<sup>1)</sup>。

#### (2) 測定方法

本研究では、①H<sub>2</sub>、②O<sub>2</sub>、③ハロカーボン類、④CO<sub>2</sub>安定同位体、⑤Rnの観測を行うにあたり、以下の測定方法を用いた。①、⑤は連続観測、②、③、④はフラスコ・サンプリング観測である。

- ① H<sub>2</sub>測定は、南鳥島の気象庁の大気環境観測システムに導入されている還元性ガス検出器(RGD)を備えたガスクロマトグラフ(GC)を利用し、気象研究所の観測スケールにより高精度な濃度決定を実施した標準ガスを定期的に導入して、大気中のH<sub>2</sub>濃度を決定した。
- ② O<sub>2</sub>の測定は、国立環境研究所で独自に開発されたTohjima(2000)<sup>2)</sup>の方法を用い、熱伝導検出器(TCD)を備えたガスクロマトグラフ(GC)を用いて実施した。
- ③ ハロカーボン類の測定には、国立環境研究所で開発された小型冷凍器とマイクロトラップを利用した低温濃縮装置及び、キャピラリーカラムを用いたガスクロマトグラフ(GC)とマススペクトロメーター(MS)を組み合わせたGC/MS法を用いた<sup>3)</sup>。
- ④ CO<sub>2</sub>の炭素( $\delta^{13}\text{C}$ )および酸素( $\delta^{18}\text{O}$ )同位体比の分析は、気体成分毎の昇華点の違いを利用した真空精製ラインを用いてCO<sub>2</sub>を抽出・精製し、Murayama et al. (2010)<sup>4)</sup>の手法に従い、Nier-McKinney型質量分析計によって行った。
- ⑤ Rnの測定は、産業技術総合研究所と気象研究所が共同で開発した高精度Rn観測装置<sup>5)</sup>を用いて実施した。
- ⑥ CO<sub>2</sub>安定同位体比連続測定装置の改良を行い、レーザ光源の波長を変化させることにより、CO<sub>2</sub>各同位体の吸収線の減衰を分離して測定できることが確認できた。さらなる試験・高精度化を進め、南鳥島における清浄大気観測への適用を目指す。

#### (3) 大気採取方法の確立

平成25年度は、①H<sub>2</sub>観測、⑤Rnの連続観測、②O<sub>2</sub>、③ハロカーボン類、④CO<sub>2</sub>安定同位体のフラスコ観測について、観測開始時に確立した大気採取方法を継続した。また3ヵ年弱継続できた観測データから、2013年1月に切替えた新鉄塔からの試料採取には大きな問題がないと考えられた。

### 4. 考察

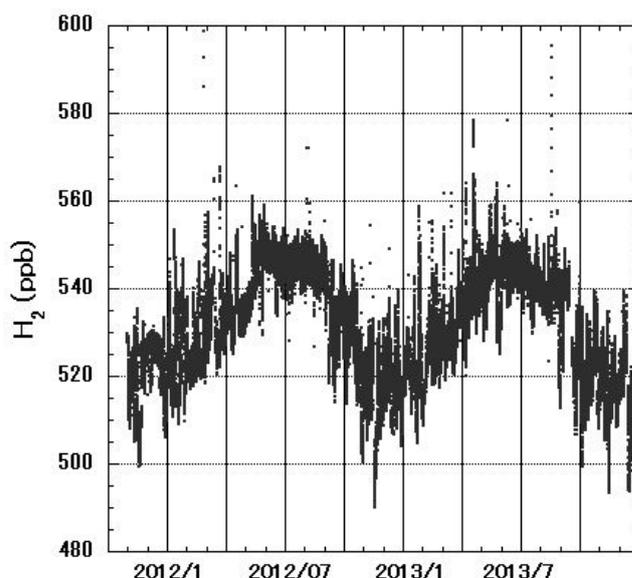
#### (1) フラスコ・サンプリングの実績

南鳥島の温室効果ガス観測は、気象庁地球環境・海洋部環境気象管理官温室効果ガス観測係の職員が3ヶ月毎の交替勤務で実施しており、観測所でのフラスコ・サンプリング等の作業は、この職員に全て依頼した。ハロカーボン類は2011年6月から毎月2回の頻度で継続し、これまでに合計209個のサンプルを得た。毎回のサンプリングでは、3個の試料を採取し、比較測定した。O<sub>2</sub>用のフラスコ・サンプリングは2011年9月から開始し、合計120個の大気試料を得た。毎回のサンプリングでは、2個の試料を採取し、比較測定に供した。CO<sub>2</sub>安定同位体用のフラスコ・サンプリングは6月から開始し、毎週1回の頻度で2014年2月までに合計149個の試料を得た。これらの試料採取の手順については初年度に観測実施マニュアルを整備し、職員交替時にも問題なく継続できる体制を構築され、順調に進められている。また配管継手等の摩耗等により採取時にリークが見つかった事例もあり、問題が生じた際にはその都度適切に対処してきている。

## (2) 観測結果

① H<sub>2</sub>の観測結果

図1に、2011年11月から2013年12月の期間に南鳥島で観測された大気中H<sub>2</sub>濃度の10分値の変動を示す。この期間のH<sub>2</sub>濃度は約490ppbから560ppbの範囲で変動し、平均すると約520ppb前後の値を示した。1年間の観測を通じて、夏季高濃度、冬季低濃度の明瞭な季節変化を捉えることができた。2012年1月から5月頃まで期間は周期的に大きな濃度の上昇が発生していることが明瞭に認められた。これらH<sub>2</sub>濃度変動の特徴は、同じ南鳥島で観測されているCO濃度の変動と非常に良い対応関係にあることから、この濃度上昇の現象は、東アジア大陸から長距離輸送された汚染空気塊が南鳥島を通過することによって引き起こされていると考えられる。また6月から8月にかけての夏期は、高濃度で比較的安定したH<sub>2</sub>濃度が観測された。これらは、H<sub>2</sub>の大きな吸収源である土壌の吸収の影響を受けていない海洋性大気を観測していることが考えられる。

図1. H<sub>2</sub>濃度観測結果② O<sub>2</sub>の観測結果

期間中に観測された大気中のCO<sub>2</sub>濃度、O<sub>2</sub>濃度および二酸化炭素と酸素の和として求められる大気ポテンシャル酸素 (APO=O<sub>2</sub>+1.1×CO<sub>2</sub>)の時系列を図2に示す。APOは酸素濃度の変動から陸上植物圏の影響を取り除いたもので、主に大気-海洋間のガス交換を反映した変動成分に相当する。大気中のCO<sub>2</sub>濃度が5月に極大値、9月に極小値となる季節変動を示すのに対し、O<sub>2</sub>濃度は3月に極小値、9月に極大値となる季節変動を示すことが分かった。APOの季節変化を調べると、O<sub>2</sub>と同様に3月に極小値、9月に極大値となり、南鳥島では夏から秋にかけてあまり変化しないことが分かった。

同じ緯度帯に位置する波照間島の観測結果と比較すると(図2の灰色の曲線)、CO<sub>2</sub>については、6~7月は南鳥島の濃度の方が高くなるが、それ以外は年間を通じて南鳥島の方が低く、O<sub>2</sub>濃度については年間を通じて南鳥島の方が波照間より高いことが分かった。これは、大陸縁辺域に位置する波照間島では南鳥島に比べて、秋から冬にかけて東アジア域からのCO<sub>2</sub>放出(つまり、O<sub>2</sub>吸収)の影響をより強く受けることが原因と考えられる。<sup>6)</sup>一方、APOの季節変動について波照間島での観測結果と比較すると、冬季の極小値はよい一致を示すが、夏季~秋季にかけて4ppm程度南鳥島の方が高いことが分かった。この原因として南鳥島の方が波照間島よりより海洋からのO<sub>2</sub>放出の影響を受けていることが考えられる。観測されたO<sub>2</sub>濃度について、季節変化の他に経年減少傾向が認められた。時系列解析によりCO<sub>2</sub>およびO<sub>2</sub>濃度のトレンド曲線を計算し(図2の直線)、2012年1月から2014年1月までの2年間の濃度変化率を計算すると、CO<sub>2</sub>およびO<sub>2</sub>濃度の変化率はそれぞれ2.7ppm yr<sup>-1</sup>および-4.8ppm yr<sup>-1</sup>となった

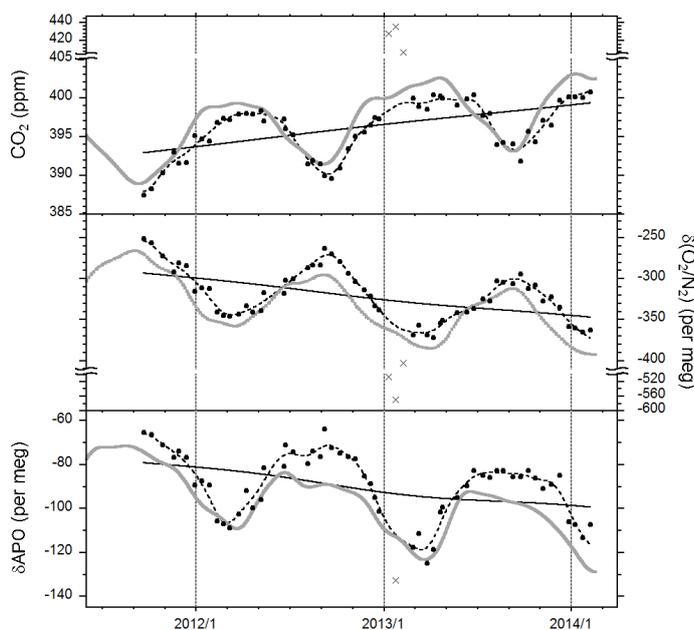


図2. 南鳥島で観測された(上)二酸化炭素、(中)酸素濃度、(下)APO(酸素濃度変動の海洋成分)の観測結果(白丸)。酸素濃度およびAPOはある基準から偏差の百万分率(単位 per meg)として表示している。なお、4.8per megが1ppmに相当する。点線は南鳥島の観測結果のフィッティングカーブを、灰色線は波照間島の観測結果のフィッティングカーブをそれぞれ表す。

図2. 南鳥島で観測された(上)二酸化炭素、(中)酸素濃度、(下)APO(酸素濃度変動の海洋成分)の観測結果(白丸)。酸素濃度およびAPOはある基準から偏差の百万分率(単位 per meg)として表示している。なお、4.8per megが1ppmに相当する。点線は南鳥島の観測結果のフィッティングカーブを、灰色線は波照間島の観測結果のフィッティングカーブをそれぞれ表す。

## ③ ハロカーボン類の観測結果

図3はハロカーボン類の測定結果で、期間中に観測されたHFC、PFC及び六フッ化硫黄 ( $\text{SF}_6$ ) 濃度の時系列変動を示す。HFC類の年平均濃度 (2013年1月～12月) は、高い方からHFC-134a : 76.3ppt、HFC-23 : 27.1ppt、HFC-143a : 15.4ppt、HFC-125 : 14.5ppt、HFC-32 : 8.3ppt、HFC-152a : 8.2pptであった。いずれのHFCも増加傾向を示し、前年と比較して求めた年増加率と年増加量 (括弧内) は、増加率の高い方からHFC-32 : 16.6% (1.2ppt)、HFC-125 : 14.1% (1.8ppt)、HFC-143a : 7.1% (1.0ppt)、HFC-134a : 7.4% (5.3ppt)、HFC-23 : 5.4% (1.4ppt)であった。HCFC-22に代わる新しいエアコン用冷媒として急速に普及しているHFC-32とHFC-125の年増加率が特に高いが、最大の増加量を示したHFCはカーエアコンに使われるHFC-134aであった。季節変動をみると、ほとんどのHFC成分が夏よりも冬に高濃度となる傾向を示し、特にHFC-152aの冬季濃度は夏季の約1.6倍であった。このようなHFC濃度の季節変動をもたらしているのは、主にHFC濃度の南北差 (緯度分布) であると考えられる。我が国は、夏には低緯度の太平洋、冬にはアジア大陸からの影響を受けやすいため、北半球高緯度で多く排出される人為起源物質は、一般に夏よりも冬に高濃度で観測されやすい。比較的大気寿命の短いHFC-152aは南北の濃度差が大きく、またOH反応による消失速度が夏に増すことも加わって、大きな季節変動を示したと考えられる。

PFC類の2013年の年平均濃度は、高い方からPFC-116 : 4.2ppt、PFC-318 : 1.4ppt、PFC-218 : 0.61pptであった。いずれも増加傾向を示し、年間の増加率と増加量 (括弧内) はそれぞれ2.5% (0.10ppt)、3.2% (0.04ppt)、2.3% (0.01ppt)であった。季節変化はほとんど認められず、長い大気寿命を持つPFC類が地理的にもかなり均一の濃度で分布していることが示唆される。 $\text{SF}_6$ の2013年平均濃度は8.3pptであり、年増加率は4.7%、増加量は0.37pptであった。この化合物はPFC類と同様に極めて長寿命であるが、夏に冬よりも低濃度となる季節変化を示した。このことは、 $\text{SF}_6$ の方がPFC類よりも大気中濃度の南北差が大きい、おそらく排出源の分布により大きな偏りがあることを示唆している。

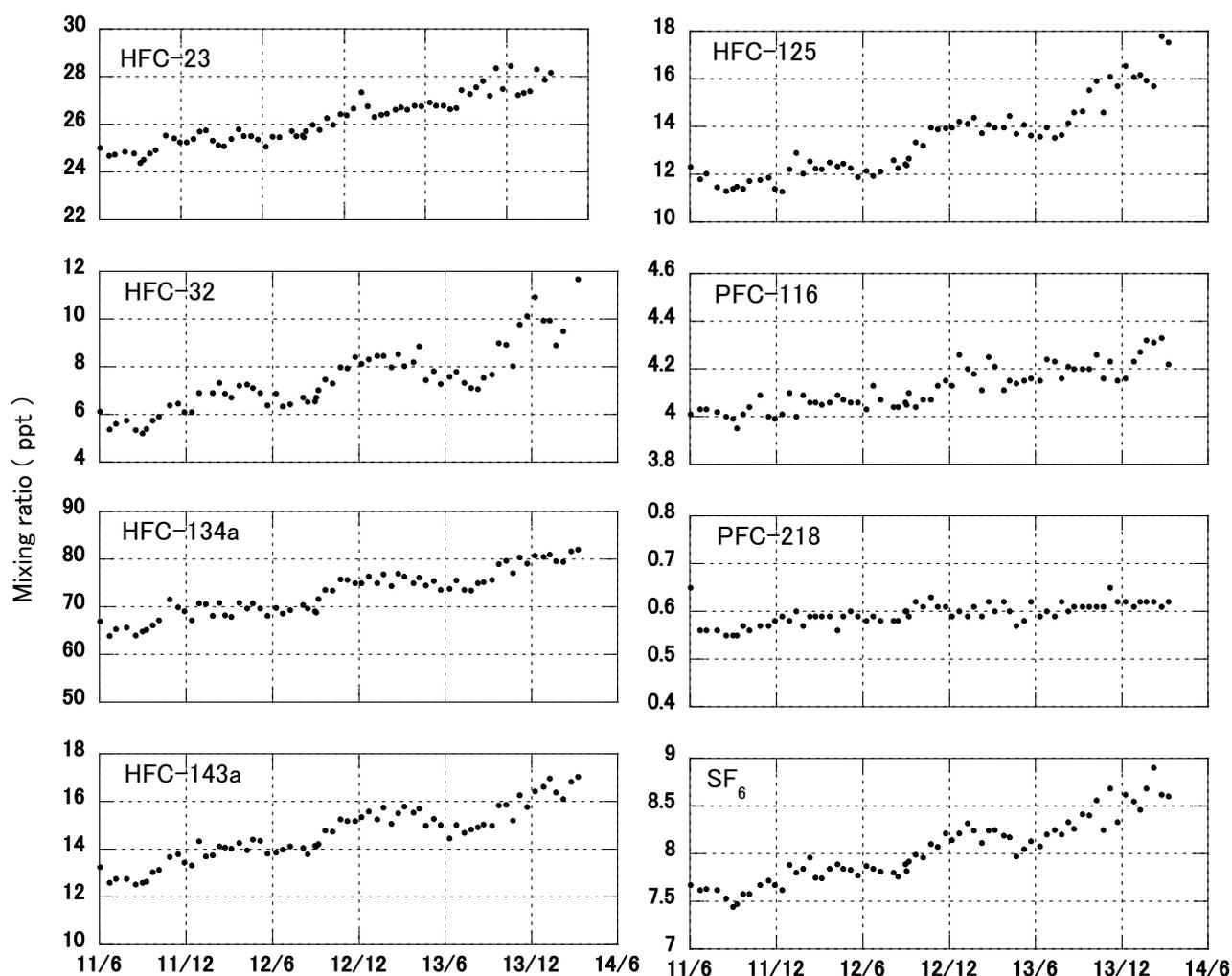


図3. 南鳥島で観測されたハロカーボンの濃度変動(2011年6月～2014年3月)

#### ④ CO<sub>2</sub>安定同位体の観測結果

図4に2011年6月からこれまでに得られた観測結果を示す。CO<sub>2</sub>濃度については、温室効果ガス世界資料センター（WDCGG）から入手した連続観測データも比較のためにプロットされている。また、データへのベストフィットカーブと長期トレンドも示されている。本研究で得られたCO<sub>2</sub>濃度の観測結果は、連続観測結果と変動パターンが良く一致していることが確認されたが、気象庁と産総研で使われている濃度基準の違いや分析計の機種の違いに起因すると推察される、フラスコ・サンプリングによる値が平均0.2～0.3ppm程度連続観測値より高い傾向が昨年度同様に見られた。CO<sub>2</sub>濃度については、晩春～初秋にかけて減少し、晩秋～初春にかけて増加する顕著な季節変動が見られ、ベストフィットから求められた2年半の間の平均的な振幅（最高・最低値の差）は、7.9 ppmだった。一方、 $\delta^{13}\text{C}$ の変動は、CO<sub>2</sub>濃度と逆相関を示し、晩春～初秋にかけて増加、晩秋～初春にかけて減少する季節変動を示し、平均的な振幅0.44‰であった。CO<sub>2</sub>濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の季節変動の原因を調べるために、季節変動成分に対してキリング・プロット（KP）と呼ばれる手法を適用して、変動を引き起こしているCO<sub>2</sub>の同位体比を求めたところ、主に北半球中高緯度の陸上生物活動の季節変動あるいは化石燃料燃焼起源のCO<sub>2</sub>の輸送の季節変動の影響を受けていることが示唆されたが、6～10月の期間は、熱帯草原の多くが属し構成する炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 値が高いC<sub>4</sub>植物あるいは海洋との交換も反映している可能性が示唆された。また、化石燃料燃焼が起源と考えられるCO<sub>2</sub>濃度の経年増加（平均2.6ppm/年）、 $\delta^{13}\text{C}$ の経年減少（-0.056‰/年）も見られた。一方、 $\delta^{18}\text{O}$ については、CO<sub>2</sub>濃度が急減する夏に最高値、濃度が急増する晩秋に最低値を示し、CO<sub>2</sub>濃度や $\delta^{13}\text{C}$ と明瞭な相関が見られなかった。これは、 $\delta^{18}\text{O}$ の変動は、CO<sub>2</sub>の交換過程だけでなく、水循環等の他の過程も関係しているためである。 $\delta^{18}\text{O}$ の変動は正味のCO<sub>2</sub>交換でなく、陸上生物圏の光合成によるCO<sub>2</sub>吸収と土壌呼吸によるCO<sub>2</sub>放出の影響を個別に反映していると考えられており、一般的に前者が活発なときには大気中CO<sub>2</sub>の $\delta^{18}\text{O}$ は増加し、後者が活発なときには減少する。また、降水の $\delta^{18}\text{O}$ の緯度分布の影響を受け、年平均の大気中CO<sub>2</sub>の $\delta^{18}\text{O}$ の緯度分布は北半球高緯度ほど低くなる傾向がある。ハワイマウナロアやアラスカバローにおける大気中CO<sub>2</sub>の $\delta^{18}\text{O}$ の季節変動の解析が既往研究で行われており、それらによると、冬～初夏の増加は、北半球中高緯度の冬季の土壌呼吸の弱まり、及び春～初夏の光合成の活発化の影響を受けた高 $\delta^{18}\text{O}$ のCO<sub>2</sub>の輸送、晩夏～秋の減少は土壌呼吸の活発化、及び光合成の弱まりの影響を受けた低 $\delta^{18}\text{O}$ のCO<sub>2</sub>の輸送をそれぞれ反映したものと推察されている。今回、南鳥島で得られた結果は、両観測点における季節変動と類似の変動を示しているため、上記の過程が影響しているものと考えられるが、変動要因を明らかにするには、数値シミュレーション等による詳細な解析が必要である。

#### ⑤ ラドン（Rn）の観測結果

2012、2013年の大気中Rn濃度観測結果を図5に示す。Rn観測開始の準備・調査試験として、2011年末から設置していた気象研所有の同型Rn計の結果も合わせて2年分のデータとなっている。大陸から離れた洋上の観測点であるため、年間を通して2.0Bq/m<sup>3</sup>以下の非常に低濃度な観測結果が得られている。また濃度が低いながらも、5月～10月中旬頃にかけての夏季中心に海洋性大気に覆われ安定した低濃度が継続し、冬から春先を中心に周期的にピークが見られる。これは前線通過等に伴い、大陸からの汚染気塊が流入していることを示唆していると考えられる。今後は、これらのデータの蓄積と同時に、大陸起源の空気塊の指標に用い、多成分のガス観測結果の解析等に利用できると期待される。

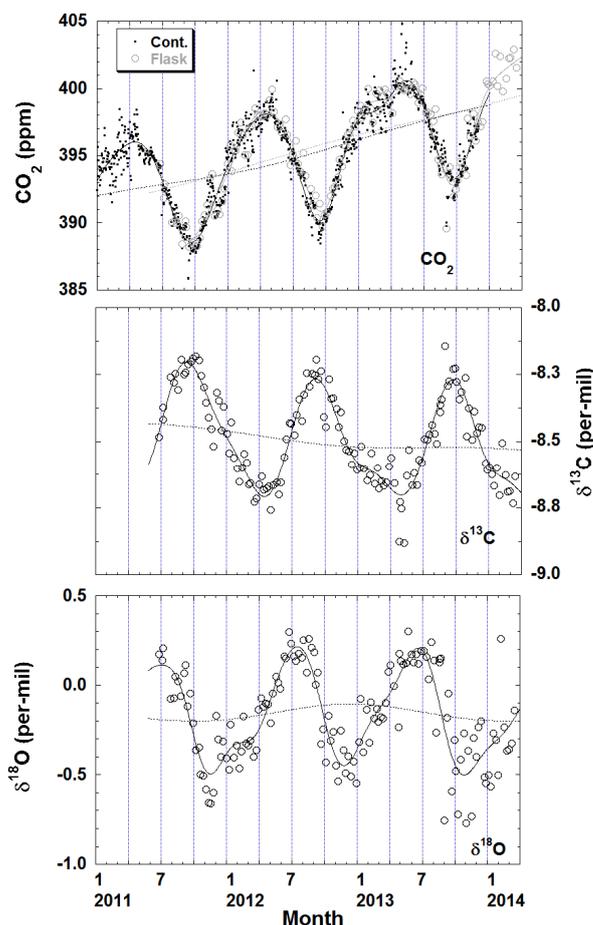


図4. 南鳥島での観測で得られた（上）大気中CO<sub>2</sub>濃度、（中）CO<sub>2</sub>の $\delta^{13}\text{C}$ 及び（下） $\delta^{18}\text{O}$ の変動。CO<sub>2</sub>濃度については、連続観測データもプロットされている。また、各データへのベストフィットカーブと長期トレンドも示されている。

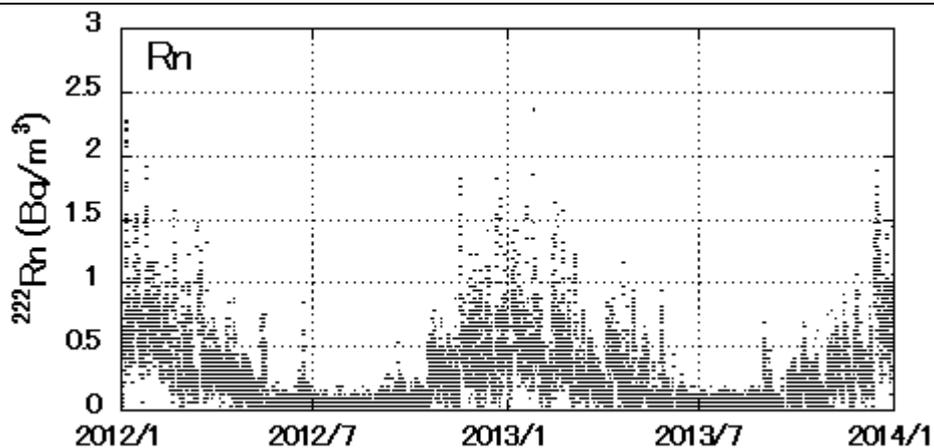


図 5. 南鳥島で観測された2012, 2013年の大気中ラドン濃度 (Bq/m<sup>3</sup>)

## 5. 引用文献

- 1) Wada, A., and Coauthors, 2007: Influence of continental air mass transport on atmospheric CO<sub>2</sub> in the western North Pacific. *J. Geophys. Res.*, 112, D07311, doi:10.1029/2006JD007552.
- 2) Tohjima, Y., 2000: Method for measuring changes in the atmospheric O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> ratio by a gas chromatograph equipped with a thermal conductivity detector, *J. Geophys. Res.*, 105, 14575-14584.
- 3) Yokouchi, Y., and Coauthors, 2005: Estimates of ratios of anthropogenic halocarbon emissions from Japan based on aircraft monitoring over Sagami Bay, Japan. *J. Geophys. Res.*, 110, D06301, doi:10.1029/2004JD005320.
- 4) Murayama, S., and Coauthors, 2010: Seasonal variations of atmospheric CO<sub>2</sub>, δ<sup>13</sup>C, and δ<sup>18</sup>O at a cool temperate deciduous forest in Japan: Influence of Asian monsoon. *J. Geophys. Res.*, 115, D17304, doi:10.1029/2009JD013626.
- 5) Wada, A., and Coauthors, 2010: Development of a Compact and Sensitive Electrostatic Radon-222 Measuring System for Use in Atmospheric Observation, *Journal of the Meteorological Society of Japan*, Vol. 88, No. 2, pp. 123-134, 2010.
- 6) Minejima, C., and Coauthors, 2012: Analysis of ΔO<sub>2</sub>/ΔCO<sub>2</sub> ratios for the pollution events observed at Hateruma Island, Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 1-11. [www.atmos-chem-phys.net/12/1/2012/](http://www.atmos-chem-phys.net/12/1/2012/), doi:10.5194/acp-12-1-2012.