

地球一括計上

課題名	二酸化炭素の全球収支解明のための大気中酸素および炭素同位体の長期観測研究		
担当研究機関	独立行政法人国立環境研究所		
研究期間	平成21－25年度	合計予算額 (当初予算額 ベース)	140,491千円（うち25年度 27,494千円）
研究体制	(1) 二酸化炭素の全球収支解明のための大気中酸素および炭素同位体の長期観測研究（独立行政法人国立環境研究所、一部名古屋大学へ研究委託）		
研究概要	<p>1. 序（研究背景等）</p> <p>二酸化炭素情報分析センター（CDIAC）がまとめた全世界の化石燃料起源 CO₂ の年間排出量の推定によると、1990 年に 6.1 Pg-C yr⁻¹であったものが、2000 年には 6.8 Pg-C yr⁻¹、2010 年には 9.2 Pg-C yr⁻¹、さらに、2012 年には 9.7 Pg-C yr⁻¹と着実に増加していることが示されている。特に 2003 年以降の増加率の上昇は著しく、発展途上国の経済成長に伴う化石燃料消費量の急増が主な原因と考えられている。一方、このような CO₂ 排出量の増加にもかかわらず大気中 CO₂ 濃度の増加率は 2000 年以降約 2ppm yr⁻¹ に抑えられており、陸域生物圏と海洋が CO₂ を継続的に吸収していることが示唆される。しかし、最近の研究によると地球温暖化によって陸域生物圏や海洋の炭素吸収量が低下する可能性が指摘されており、将来の大気中 CO₂ 濃度を予測する上で大きな不確定要因となっている。したがって、陸域生物圏および海洋の長期的な炭素吸収量の変化や、吸収量の年々変動と気象変化との関連を解明することは将来の気候変化に伴う吸収量変化の予測に資すると考えられる。</p> <p>植物が CO₂ を吸収する場合、軽い炭素同位体を含む CO₂ を重い炭素同位体を含む CO₂ よりも優先的に吸収する（同位体分別効果）。一方、海洋が CO₂ を吸収する場合は同位体分別効果が小さい。したがって、大気中 CO₂ の同位体比の変化から陸域生物圏と海洋のそれぞれの吸収量を推定することができる。また、陸域生物圏が CO₂ を吸収する際にはほぼ同じモル数の酸素を大気中に放出するが、海洋が吸収する際は酸素を放出も吸収もしない。そこで、大気中の酸素濃度の変化からも炭素収支を推定することが可能となる。さらに、炭素には微量の放射性炭素（¹⁴C）が含まれているが、化石燃料中には ¹⁴C は含まれていない。そこで、大気中 CO₂ の ¹⁴C を測定することで化石燃料起源 CO₂ の寄与率を推定できる。このように、同位体組成や酸素を測定することで、CO₂ の観測からだけでは分からない地球表層における炭素循環の詳細を明らかにすることが期待される。</p> <p>しかし、同位体や酸素濃度の観測網はその測定の困難さのために、CO₂ の観測と比べてあまり整備されていないのが現状である。環境研はこれまで地上ステーションおよび定期貨物船を利用した CO₂ 同位体比および酸素濃度の広域観測網を構築してきた。この観測網は世界的にも非常に貴重なものとなっており、大気中の CO₂ 同位体比や酸素濃度の観測結果から炭素循環を高精度で推定するためには観測期間が長くなるほど推定精度が相対的に高まることから、観測を継続することが望まれている</p> <p>2. 研究目的</p> <p>本研究では、2つの地上モニタリングステーション（波照間島・落石岬）と、日本－オセアニア（豪州・ニュージーランド）間・日本－北米間・日本－東南アジア間を定期運行する貨物船を利用して大気試料のフラスコサンプリングを実施し、CO₂ の安定同位体比、¹⁴C、さらに、酸素濃度の精密観測を継続することを目的とする（図 1）。酸素濃度については、2つの地上ステーションとオセアニア航路を運航する貨物船において連続観測を実施する。また、¹⁴C については波照間島においてイベントサンプリングシステムを設置して汚染イベント時の大気試料を採取し、東アジア地域からの化石燃料の寄与率を推定する。これらの観測により、南北両半球の中緯度帯までをカバーする広い領域における酸素濃度や CO₂ の同位体の空間分布やその時間変動を把握する。本研究による観測にこれまで実施してきた観測結果を加えることで、過去 10 年以上の期間における陸域生物圏および海洋の炭素吸収の定量的評価を行い、吸収量の長期的な変化傾向や、年々変動を明らかにする。特に、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と炭素収支変動との関係を明らかにする。また、放射性炭素の観測結果から化石燃料の燃焼起源 CO₂ の寄与率の評価を試みる。</p> <p>さらに、同位体を用いた炭素収支推定の精度を向上させるために、大気との非平衡値や放射性同位体による大気-海洋間の CO₂ 交換についての知見を集積する。そのために、少量の海水から溶存無機炭素を抽出し同位体比を測定する方法を開発し、北太平洋や西部太平洋における貨物船を用いた海水試料のサンプリングから、表層水中の同位体比の時空間変動を明らかにする。</p>		

3. 研究の内容・成果

(1) 酸素濃度の観測と炭素収支の推定

2014年1月までに西部太平洋域で観測された酸素濃度（実際には O_2/N_2 比として測定される）の緯度分布の時間変化を図2に示す。酸素濃度が夏に極大、冬に極小となる季節変動を示しながら経年的に減少してゆく様子が明らかとなった。また、オセアニア航路で実施されている酸素および CO_2 濃度の船上連続観測から計算されたAPO（大気ポテンシャル酸素、 $APO=O_2+1.1\times CO_2$ ）の緯度分布の時間変化を図3に示す。図3では季節変動の詳細を強調するために経年的な減少トレンドを除去してある。APOの季節変動は中高緯度帯の大気-海洋間ガス交換によって引き起こされるが、本観測により冬季の極小値および夏季の極大値が赤道方向に伝搬する様子が細部まで明らかにされた。特に、APOの冬季の極小値が赤道方向に速やかに伝播するのに対し、夏季の極大値は赤道に近づくにつれて位相が遅れることが分かった。また、APOの年平均値の緯度分布が赤道域で極大となり北半球中緯度付近に深い谷を見せることも本研究から明らかにされた。

観測された CO_2 と酸素濃度の変化から海洋および陸域生物圏の炭素吸収量の推定を行った。計算は、(1)化石燃料の燃焼では排出される CO_2 の1.4倍（モルベース）の酸素が消費され、(2)陸域生物圏の光合成/呼吸では CO_2 とその1.1倍の酸素との交換が起こるが、(3)海洋の CO_2 吸収では O_2 の交換を伴わない、という事実に基づき実施される。なお、化石燃料の燃焼に伴う CO_2 排出量としてはCDIACによる推定値を用いた。また、海洋の温暖化に伴う酸素放出量については水温測定測に基づく海洋貯熱量の変化と酸素/熱フラックス比を用いて推定される値を用いた。なお、本研究で用いた海洋酸素放出量は、炭素量に換算して約 $0.5Pg-C\ yr^{-1}$ となった。実際の計算では、観測された酸素と CO_2 濃度に基づく方法（酸素法）と、APOと CO_2 濃度に基づく方法（APO法）の2通りについて実施した。なお、APO法の場合、酸素の観測とは独立した CO_2 の観測結果が使えるため、ここではNOAA/ESRLの観測による CO_2 濃度の全球平均値を用いた。酸素法とAPO法から求められる海洋の炭素吸収量の違いはほとんどないが、陸域生物圏の炭素吸収量には最大で $0.4\ PgC\ yr^{-1}$ の違いがあった。この違いは主に CO_2 濃度増加率の違いに起因し、NOAA/ESRLの観測結果の方がより全球平均濃度を正しく反映していることから、APO法の方が若干正確な全球炭素収支を反映しているものと考えられた。計算結果の代表例を表1に示す。

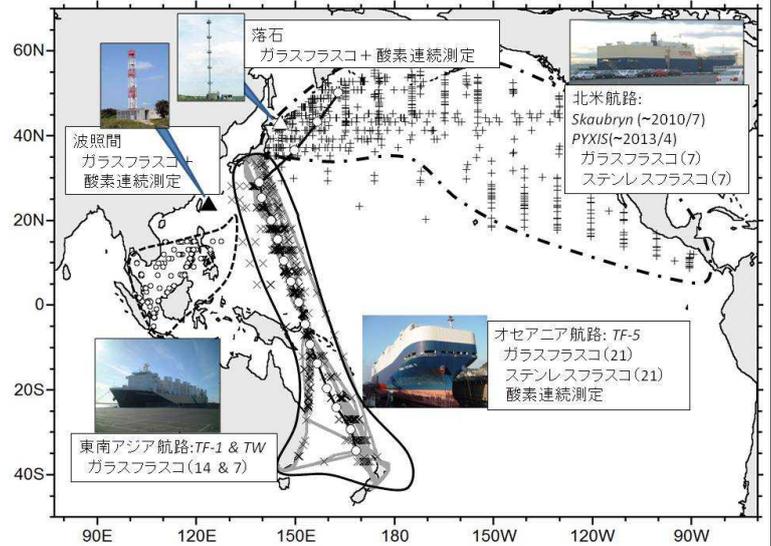


図1. 本研究におけるフラスコサンプリングによる大気試料の採取地点と、酸素の連続測定実施地点。

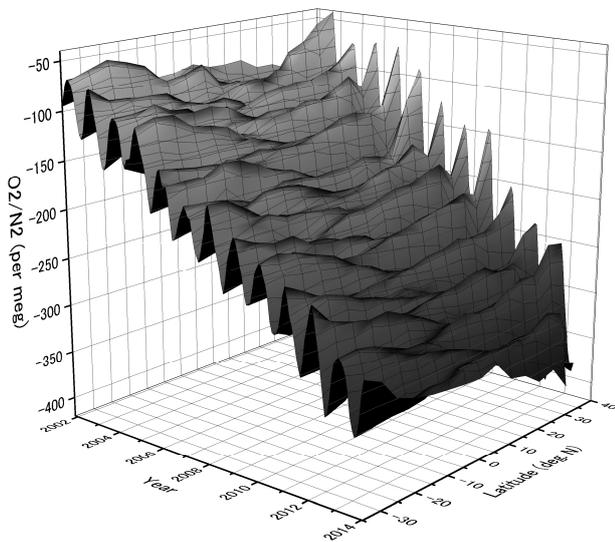


図2. 西部太平洋域で採取された大気試料の酸素濃度(実際には O_2/N_2 比として測定される)の緯度分布の時間変化。

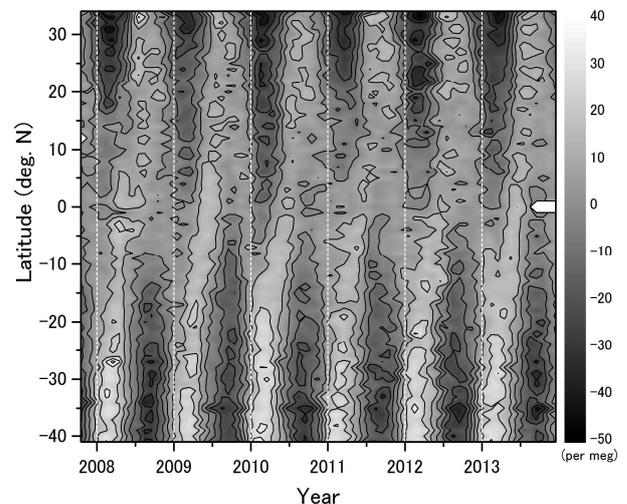


図3. オセアニア航路での大気中酸素および CO_2 濃度の船上観測から求められた APO の緯度分布の時間変化。トレンドは除去されている。

表 1. 大気中 O₂/N₂ 比および CO₂ 濃度の観測に基づく炭素収支計算結果^a

Time period	Sampling Location	ΔAPO (per meg yr ⁻¹)	ΔCO ₂ (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)
1998.5-2013.5	HAT	-9.98	1.99	8.11	1.370	0.55	2.55	1.33
1999.5-2013.5	HAT+COI	-9.63	1.98	8.22	1.359	0.59	2.50	1.50
1999.5-2006.5	HAT+COI	-9.34	1.90	7.36	1.386	0.58	2.41	0.91
2006.5-2013.5	HAT+COI	-9.91	2.06	9.08	1.355	0.59	2.45	2.24
2002.5-2013.5	Ship(40°S-30°N)	-9.14	2.09	8.59	1.363	0.55	2.15	2.00
2002.5-2013.5	HAT+COI+Ship	-9.30	2.09	8.59	1.363	0.55	2.21	1.94

^a 計算は APO に基づく方法 (APO 法) によって行い、ΔCO₂ は NOAA/ESRL の観測網から得られる全球平均濃度から求められる増加率、F は化石燃料起源 CO₂ 放出量 (セメント生成による放出を含む)、Z_{eff} は大気-海洋間の正味の O₂ 交換量、O は海洋による炭素吸収量、B は陸域生物圏による炭素吸収量、をそれぞれ表す。

波照間のデータに基づく1998年から2013年の15年間の海洋および陸域生物圏の炭素吸収量はそれぞれ2.6 Pg-C yr⁻¹および1.3 Pg-C yr⁻¹であった。また、波照間と落石の観測結果から1999年から2013年の14年間の海洋および陸域生物圏の炭素吸収量を計算すると、それぞれ2.5 Pg-C yr⁻¹および1.5 Pg-C yr⁻¹となった (14年間の炭素収支の計算を図解したものを図4に示す)。さらに、波照間・落石に加えて西太平洋域 (南緯40度~北緯30度) のデータを用いて2002年から2013年までの11年間の海洋および陸域生物圏の炭素吸収量を計算するとそれぞれ2.2 Pg-C yr⁻¹および1.9 Pg-C yr⁻¹となった。

(2) 大気中 CO₂ 安定同位体 (¹³C) の観測

陸域生物圏と海洋では CO₂ を吸収する際の炭素同位体に関する同位体分別効果が違うため、大気 CO₂ の炭素安定同位体 (¹³C) の時間変化を精密に観測することで、炭素収支を推定することができる。そこで、酸素同様に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大気試料のサンプリングを行い、¹³C の観測を実施した。西部太平洋域で観測されたデータを緯度帯毎にまとめて時系列解析を行い、緯度分布の時間変化を求めたものを図5に示す。

緯度帯毎にトレンド成分を抽出し、緯度帯別の空気量で重み付けした平均操作によって CO₂ 濃度および炭素同位体比の全球平均のトレンドを求める。このようにして求められた CO₂ 濃度と ¹³C の変化を基に、過去 18 年間 (1995-2013 年) の海洋および陸域生物圏への CO₂ 吸収量の分別を行った。計算の際の条件として、海洋と大気の交換量は濃度依存し、345ppm に対して 90Pg-C yr⁻¹ とした。非平衡値は年間の海洋の同位体比変化が -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。陸域生態系との交換量を 125 Pg-C yr⁻¹ に固定して、非平衡値としては 1995 年の初期値を 0.125permil に固定した。この時 1995 年初期のトータルの同位体比フラックスは 89‰・ppm yr⁻¹ であり、この時の平均の海洋吸収量は約 2 Pg-C yr⁻¹ である。今年度は大気の変化に対して陸上炭素の何%が大気に追従できないかをパラメータとして、海洋吸

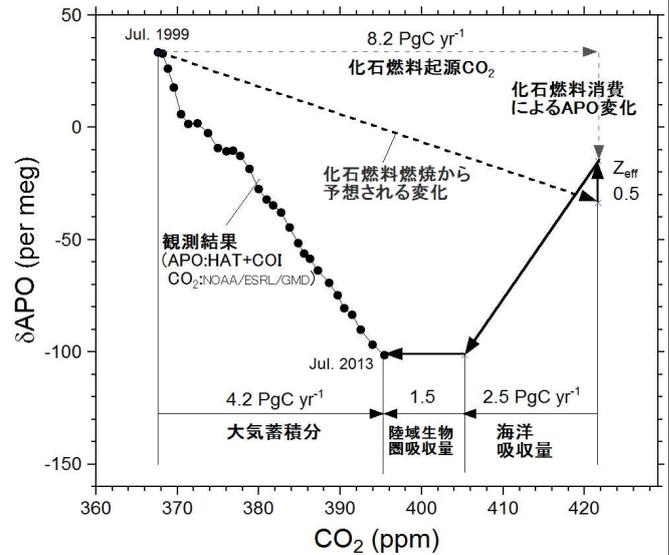


図 4. 波照間・落石での観測に基づく 13 年間 (1999-2012) の炭素収支計算の図解。黒丸は CO₂ 濃度と APO の変化を、破線矢印は化石燃料の消費によって予想される変化を表す。

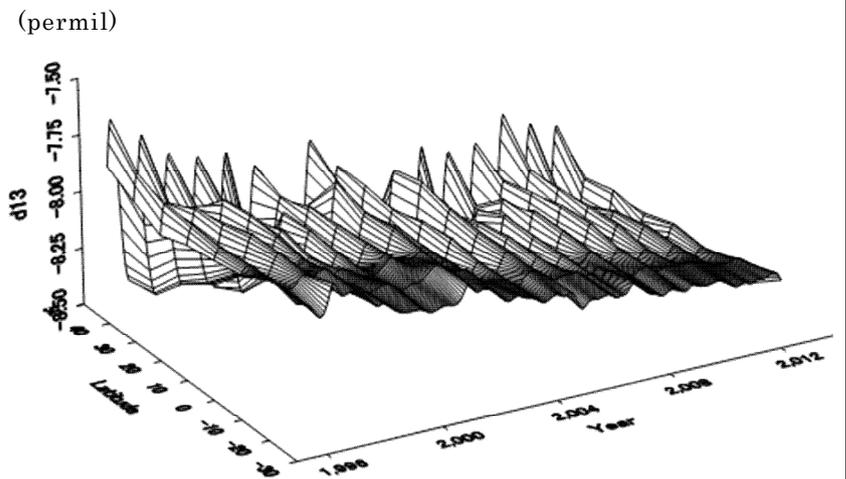


図 5. 西部太平洋域における大気中 ¹³C の緯分布の時間変化

収が酸素の観測結果と合うように値を決定することにした。図6に推定された海洋および陸域生物圏のCO₂吸収量の時系列を、化石燃料起源CO₂放出量および大気中のCO₂蓄積量の時系列と同時に示す。なお、図6で正の値は大気への放出・蓄積を、負の値は吸収（つまり、大気から除去）を表す。

化石燃料起源のCO₂排出量は、中国などの途上国の急激な経済発展に伴い、2003年以降急増しているにもかかわらず、大気中のCO₂蓄積量は2003年以降も特に目立った増加傾向が認められない。これに対して、図6に示した¹³Cの観測に基づく海洋の炭素吸収量の長期変化傾向を見ると、過去18年で2 Pg-C yr⁻¹から3 Pg-C yr⁻¹へと徐々に増加していることが分かる。一方、陸域生物圏の炭素吸収量は気候変動に伴って大きく変動していることが分かる。例えば、1998年および2002年のエルニーニョの時には陸域生物圏のCO₂吸収量は大きく減少し、2000年のラニーニャ時には逆に吸収量が増加した。しかし、全体的傾向としては陸域生物圏の吸収量も増加傾向を示し、過去18年間で約1.5 Pg-C yr⁻¹増加したように見える。このように、海洋および陸域生物圏の両方の吸収量が増加したことで、大気中のCO₂増加率が抑制されているものと考えられる。

(3) 波照間における放射性炭素同位体比(¹⁴C)の観測結果

波照間におけるバックランド大気中のCO₂濃度と¹⁴Cの時系列のトレンド成分から計算されたそれぞれの変化率を図7に示す。波照間の $\Delta^{14}\text{C}$ は2004年から2012年の間に平均で -4 ‰ yr^{-1} の減少トレンドを示すことが分かった。この間、年平均 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、2005年の58‰から2012年の28‰に減少した。 $\Delta^{14}\text{C}$ には大きな年々変動があり（2009年中頃に $2 \sim 4 \text{ ‰ yr}^{-1}$ 、2010年末に -10 ‰ yr^{-1} ）、CO₂濃度の年々変動と逆相関の関係が見られた。また、 $\Delta^{14}\text{C}$ には振幅が約7‰で、冬期(1月)に最小、夏期(7月)に最大となる明瞭な季節変動が観測された。冬期の $\Delta^{14}\text{C}$ 減少は、波照間では季節風の影響で冬期に東アジアの化石燃料起源CO₂の影響がより強くなることを反映していることがわかった。

波照間ステーションで冬期に観測される高CO₂イベント時の大気試料を採取するた

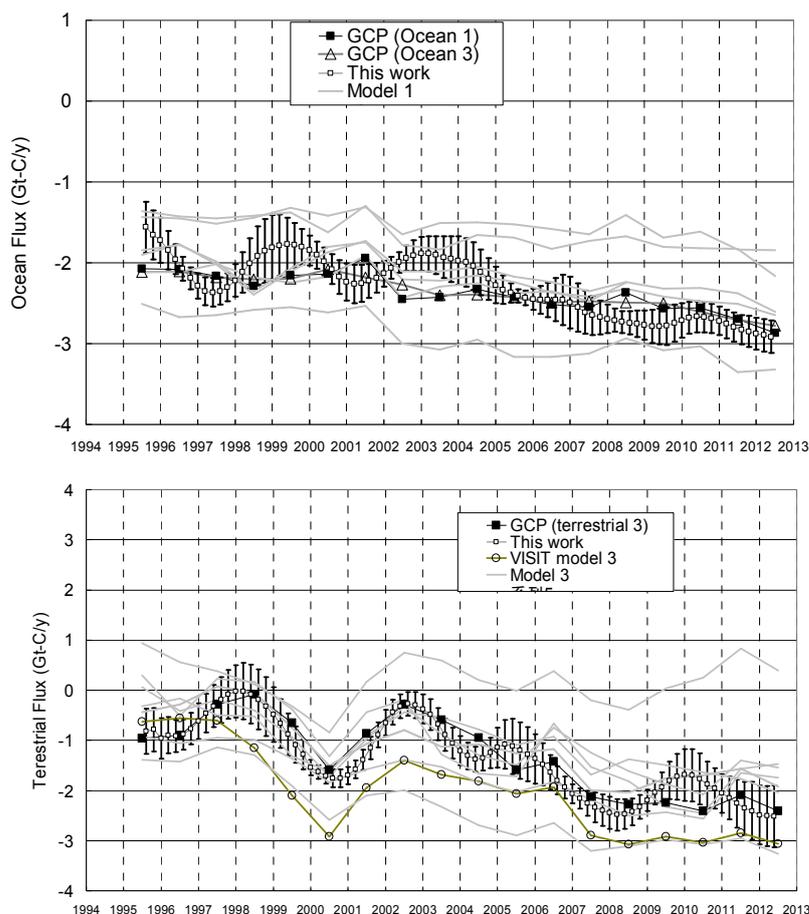


図6. ¹³C 観測から推定された(上)海洋、および、(下)陸域生物圏の炭素吸収量の時間変動。比較のために Global Carbon Project がまとめたモデル研究に基づく炭素吸収量の時間変化もプロットした。

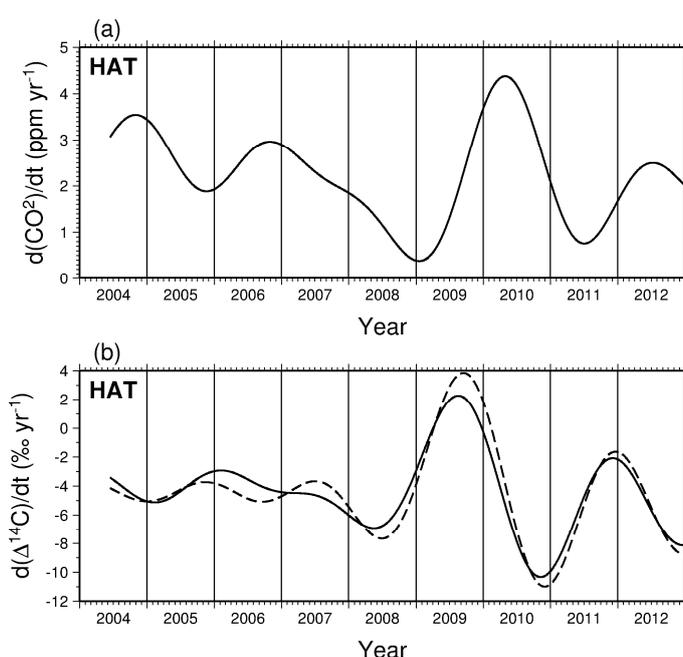


図7. 波照間で観測された(a) CO₂濃度と(b) $\Delta^{14}\text{C}$ の年変化率。

めに、イベントサンプリングシステムを開発した。これまでに、2010年3月から2013年4月までに採取した計13イベントの $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ の分析が完了した。 $\Delta^{14}\text{C}$ から求めた化石燃料起源 CO_2 を求めた結果、化石燃料起源 CO_2 の割合は空気塊の地理的起源によって異なり、中国大陸由来の空気塊では平均で61% (53~73%)、それ以外 (朝鮮半島や日本) の空気塊では平均で81% (67~93%) であることが明らかになった (表2)。大気輸送モデルの結果も、この観測結果を支持していた。これらから、冬期の中国大陸起源の空気塊は、陸域生態系から放出された CO_2 を40%ほど含んでいるが、半島や諸島では陸域生態系からの冬期の CO_2 放出が非常に小さく、 CO_2 放出の大部分が化石燃料起源であることが推察された。また、キーリングプロットから推定した CO_2 放出源における $\delta^{13}\text{C}$ 推定値にも地域差が見られ、多くのイベントが $-24\sim-29\text{‰}$ であるのに対し、黄海や中国華東沿岸を經由した空気塊では、 $-20\sim-23\text{‰}$ であることが明らかになった。これは、中国華東におけるセメント生産起源の CO_2 を捉えている可能性がある。

表2. 波照間で観測された高 CO_2 イベント空気塊の、流跡線解析から推測された空気塊の起源領域、 CO_2 増加量に対する $\Delta^{14}\text{C}$ から求めた C_{ff} 比の平均 \pm 標準偏差、ならびにKeeling plotから求めた放出源の $\delta^{13}\text{C}$

EventID	Date	Air mass from	$C_{\text{ff}}/d\text{CO}_2$ (%)	$^{13}\text{C}_{\text{source}}$ (‰)
1A	2010/03/07-09	Korea	75 \pm 6	-29.0
1B	2010/03/09-11	East China	63 \pm 0	-24.5
2	2010/04/22-23	Philippine	81 \pm 6	-28.1
3	2010/12/13-14	Japan	81 \pm 5	-23.9
4	2011/03/01-02	North China	53 \pm 6	-24.2
5	2011/04/11-12	Yellow Sea	93 \pm 10	-20.3
6	2012/01/19-20	Japan/Yellow Sea	92 \pm 7	-22.8
7	2012/02/15-16	Japan/Korea	82 \pm 6	-28.6
8	2012/03/07-10	Korea	86 \pm 11	-25.8
9	2012/11/11-12	East China	58 \pm 5	-23.7
10	2013/01/22-25	East China	73 \pm 6	-22.6
11	2013/03/01-02	Yellow Sea/N. China	76 \pm 3	-24.1
12	2013/03/13-14	North China	59 \pm 13	-26.6
13	2013/04/25-26	Japan/Yellow Sea	67 \pm 11	-22.5

(4) 西部太平洋における表層水中の $\delta^{13}\text{C}$ 測定

北太平洋における広域の表層水中 $\Delta^{14}\text{C}$ について、最近6年間の変動傾向を調べたところ、それまでの減少傾向が停滞していることが明らかとなった。表層水中 $\Delta^{14}\text{C}$ は大気・海洋間の二酸化炭素ガス交換と観測海域の海水循環のバランスによって決定されるので、大気-海洋間で $\Delta^{14}\text{C}$ が平衡に達していることを反映している可能性がある。今後も、継続的に観測を実施することで各海域におけるガス交換速度や海水循環機構の相違、あるいは経年・季節変動を把握することを可能にすると考えられる。

また、海水100mL程度で海水中の無機炭素に含まれる炭素同位体 (^{13}C 及び ^{14}C) を測定するための前処理装置を開発した。これを、西太平洋を航行する貨物船で得た表層海水試料の分析に適用した。得られた $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\Delta^{14}\text{C}$ データは、いずれも緯度帯によって大きく変動することが分かった (図8)。これらのデータは、各緯度帯における CO_2 濃度変化に及ぼす植物プランクトンの影響の度合いや CO_2 交換速度や海水の上下混合の度合いなどについて、海域的及び季節的な変動を明らかにするための重要なツールになると考えられる。

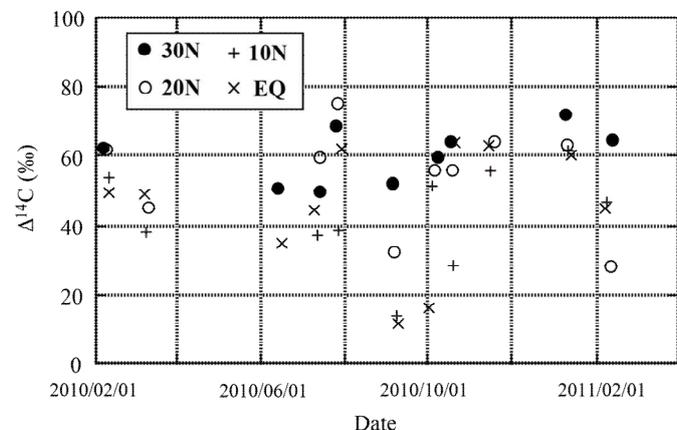


図8. 2010年2月から2011年2月の1年間に、北緯30、20、10度及び赤道付近で得られた西太平洋表層水中 $\Delta^{14}\text{C}$ の時系列変化

4. 考察

大気中酸素濃度の観測結果に基づく海洋および陸域生物圏の炭素吸収量の推定を、前半(1999-2006)と後半(2006-2013)の2つの期間に分けて計算すると、前半はそれぞれ 2.4 Pg-C yr^{-1} および 0.9 Pg-C yr^{-1} で、後半はそれぞれ 2.5 Pg-C yr^{-1} および 2.2 Pg-C yr^{-1} であった。この2つの期間の吸収量を比べると、海洋の吸収量がほとんど変化しないのに対して陸域生物圏の吸収量が増加したように見えることが分かった。また、大気 CO_2 の ^{13}C の変動から炭素収支を計算すると、陸域生物圏の炭素吸収量がエルニーニョ・ラニーニャ時にそれぞれ減少・増加しており、陸域生物圏の炭素吸収量の変動が大気中 CO_2 濃度の増加率の変動の主な要因となっていることが分かった。さらに、 ^{13}C に基づく炭素収支からは、海洋および陸域生物圏の吸収量が長期的に増加している可能性が高く、特に陸域生物圏の炭素吸収量が増加傾向にあることを強く示唆するものであった。Global Carbon Project(GCP)がまとめたモデル計算結果に基づく海洋および陸域生物圏の吸収量変化と比較すると、陸域生物圏の吸収量の年々変化が本研究に比べて強めに出ていることや、海洋の吸収量の長期的な増加トレンドが本研究と比べて小さいという違いはあるが、おおむね一致していることが分かった。これらの結果から、2000年代中ごろより中国をはじめ途上国の著しい経済発展に伴い化石燃料起源 CO_2 の排出量が急増したにも関わらず大気中の CO_2 濃度増加率を抑制している原因は、海洋・陸域生物圏それぞれの吸収量の増加、特に陸域生物圏の吸収量の増加によるものと推定された。

波照間のバックグランド大気の $\Delta^{14}\text{C}$ には大きな年々変動が観測され、特に2009年に観測された 0‰ /年の減少トレンドは前年のリーマンショックの影響で化石燃料起源 CO_2 の排出量が減少したことを反映していると考えられた。また、波照間で採取された高 CO_2 イベント時の大気試料の ^{14}C と ^{13}C の分析結果から、中国起源のイベントでセメント起源 CO_2 の寄与率が高いと推定された。このように、2つの同位体に関する情報を組み合わせることで、化石燃料起源 CO_2 の起源を詳細に分離する可能背が示唆された。このように、今後のデータ蓄積によって炭素循環の解明がさらに進むものと期待される。

5. 波及効果

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るようになってきた。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、ニュージーランドのNIWAのS. Mikaloff Fletcher博士に提供され、大気輸送モデルや海洋モデルを使った研究に利用されている。