

氏名・(本籍)	むら やま しょう へい 村 山 昌 平
学位の種類	博 士 (理 学)
学位記番号	理博第1255号
学位授与年月日	平成4年3月27日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
研究科専攻	東北大学大学院理学研究科 (博士課程)地球物理学専攻
学位論文題目	南極域における温室効果気体の挙動に関する研究
論文審査委員	(主査) 教 授 田 中 正 之      教 授 福 西      浩 教 授 近 藤 純 正 助 教 授 中 澤 高 清

## 論 文 目 次

### 第I章. 緒言

### 第II章. 昭和基地における地上CO<sub>2</sub>濃度の変動

- 1) 昭和基地の概略
- 2) CO<sub>2</sub>濃度の測定方法
  - 2-1. 観測システム
  - 2-2. 標準ガス
- 3) 結果と考察
  - 3-1. データのフィッティング方法
  - 3-2. データセレクション
  - 3-3. CO<sub>2</sub>濃度の日変動
  - 3-4. CO<sub>2</sub>濃度の季節変動
  - 3-5. CO<sub>2</sub>濃度の1週間から20日周期の変動

3-6. CO<sub>2</sub>濃度の経年変動

3-7. 南半球中高緯度におけるCO<sub>2</sub>濃度の時間・空間分布

図

### 第III章. 昭和基地における地上CH<sub>4</sub>濃度の変動

1) CH<sub>4</sub>濃度の測定方法

1-1. 観測システム

1-2. 標準ガス

2) 結果と考察

2-1. データセレクション

2-2. 日変動

2-3. 季節変動

2-4. 1週間から20日周期の不規則変動

2-5. 経年変動

2-6. 南半球中高緯度におけるCH<sub>4</sub>濃度の時間・空間分布

表

図

### 第IV章. 昭和基地における地上O<sub>3</sub>濃度の変動

1) 地上O<sub>3</sub>濃度の連続観測

2) 結果と考察

2-1. データセレクション

2-2. 日変動

2-3. 季節変動

2-4. 不規則変動

2-5. 経年変動

図

### 第V章. 昭和基地における大気中CO<sub>2</sub>の炭素同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ と酸素同位体比 $\delta^{18}\text{O}$ の変動

1) 測定方法

1-1. 試料大気の採集およびCO<sub>2</sub>の精製

1-2. 質量分析計

1-3. 標準試料と同位体比分析

2) 結果と考察

2-1. 試料の長期保存の影響

2-2.  $\delta^{13}\text{C}$ の季節変動

2-3.  $\delta^{13}\text{C}$ の経年変動

2-4.  $\delta^{18}\text{O}$ の変動

図

## 第VI章. 昭和基地上空における温室効果気体濃度の変動

### 1) 観測手法

1-1. 航空機観測

1-2. グラブサンプリング

1-3. 対流圏 O<sub>3</sub>濃度観測

### 2) 結果と考察

2-1. CO<sub>2</sub>濃度の鉛直分布

2-2. CH<sub>4</sub>濃度の鉛直分布

2-3. 大気中 CO<sub>2</sub>の  $\delta^{13}\text{C}$  および  $\delta^{18}\text{O}$  の鉛直分布

2-4. 対流圏 O<sub>3</sub>の鉛直分布

図

謝辞

参考文献

参考論文

- 1 The concentration of atmospheric carbon dioxide at the Japanese Antarctic Station, Syowa
- 2 Distribution of elemental and organic carbon aerosols in the atmosphere between Japan and Antarctica
- 3 東京-昭和基地間における大気中メタン濃度

# 論文内容要旨

## 第1章. 緒言

大気中の  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ , 対流圏  $\text{O}_3$  などの温室効果気体は気候の形成, 維持に大きな役割を担っている。近年の人間活動に伴う大気中の温室効果気体の濃度の著しい増加が気候に与える影響について評価するためには, 将来の温室効果気体の濃度予測が必要であり, そのためには, それぞれの気体について放出・吸収あるいは発生・消滅の各量を定量的に見積ることが不可欠である。

南極域は, その地理的立地を考慮すると, 温室効果気体のバックグラウンド濃度の観測には極めて適したところであると考えられ, 将来の濃度予測に重要である濃度の経年増加およびその年々変動などの実態を詳細に把握できると期待される。しかし, 南半球の観測網は希薄であり, また南極域における大気の輸送過程について十分な理解が得られていないために, 南極域の温室効果気体の分布と変動に関して不明な点が多く指摘されている。

本研究においては, 以上の観点を踏まえ, 南極昭和基地で, (1)  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  および地上  $\text{O}_3$  濃度の連続測定, (2) グラブサンプリングによる大気中  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$  および  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の測定, (3) 航空機を用いた  $\text{CO}_2$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{O}_3$  濃度および  $\delta^{13}\text{C}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  の鉛直分布の観測を実施し, それぞれの成分の時間的・空間的変動の実態を明らかにした。また, 他の南半球における観測データと比較することによって, 南極域におけるこれらの成分の挙動について考察した。

## 第II章. 昭和基地における地上 $\text{CO}_2$ 濃度の変動

1984年2月より南極昭和基地においてなされた  $\text{CO}_2$  濃度の高精度連続観測から得られたデータを詳細に解析した。その結果, 人為的汚染を受けたデータが少ないこと, 日変動の振幅が極めて小さいことなどが判明し, 昭和基地は  $\text{CO}_2$  のバックグラウンド濃度観測に非常に適した場所であることが分かった。1週間から20日周期の不規則な濃度変動が観測されたが, この変動はシノプティックスケールの気象擾乱に伴って異なった  $\text{CO}_2$  濃度をもつ気塊が交替することによって生じていることが判明した。平均的な  $\text{CO}_2$  濃度の季節変動の振幅は, 基地周辺および南半球の生物活動の影響が少ないことを反映して, 1.15 ppmv と小さく, 最高濃度および最低濃度はそれぞれ9月下旬と3月上旬に現われた。しかし, 最低濃度の出現日はここ数年で2カ月近くも早くなっており, 夏における低緯度側からの大気の輸送が, 近年活発化していることを示唆している。また南半球中高緯度における  $\text{CO}_2$  濃度は年間を通して南極域より中緯度で低く, 季節変動が中緯度で早く進行し, 振幅も小さいことが分かった。このことを考慮すると, モンスーン循環によって対流圏上部を通して極域に輸送された高緯度の  $\text{CO}_2$  を持つ北半球大気と, 南半球中緯度より対流圏下部を通して輸送された低濃度の大気が相互に関連し, 昭和基地における  $\text{CO}_2$  濃度の季節変動を形成していると推定される。なお, 南極域において  $\text{CO}_2$  濃度の年平均値が高いという理由の一つに, この対流圏上部を通した北半球大気の輸送の効果が

あげられるだろう。観測期間中の平均的な濃度増加率は 1.55 ppmv/年であるが、増加率は準 2 年周期的な変動を示した。一般的には南方振動指数(SOI)の極小に対応して増加率は極大を示したが、SOI に変化がみられない1985年にも増加率が極大を示したことから、海況変動そのものというよりもむしろ全球規模の気候変動に起因した変動であることが示唆される。

### 第III章. 昭和基地における地上 CH<sub>4</sub>濃度の変動

1988年2月より昭和基地においてCH<sub>4</sub>濃度の高精度連続観測を実施し、得られたデータを検討した結果、CH<sub>4</sub>についても昭和基地はバックグラウンド濃度観測に適した場所であることが分かった。平均的な季節変動の振幅は、周囲に季節的な変化を伴うCH<sub>4</sub>の発生源がないことを反映して、29.8 ppbvと小さく、最高濃度と最低濃度はそれぞれ9月下旬と3月上旬に現われた。他の観測結果との比較から、南半球中高緯度においては濃度はほとんど一様であるが、秋から冬にかけて中緯度が、他の季節は極域がわずかに高い傾向がみられた。また、季節変動の振幅と位相にも大きな違いはなかった。これらの事実およびVI章で述べるCH<sub>4</sub>の鉛直分布から、昭和基地におけるCH<sub>4</sub>の季節変動はII章で述べた大気輸送過程およびOHラジカルによる消滅反応によって説明されると考えられる。平均的なCH<sub>4</sub>濃度の増加率は10.1 ppbv/年であり、今日までに提出された値よりかなり小さく、近年、CH<sub>4</sub>濃度の増加が鈍化していることを示唆している。増加率の年々変動はCO<sub>2</sub>のそれとよく対応していたが、CH<sub>4</sub>の場合、変動の位相が1年ほど遅れていた。これは、全球規模の気候変動によってCH<sub>4</sub>の放出が増加するまでにCO<sub>2</sub>以上に時間を要するためと考えられるが、OHラジカルのフィールドが変化した可能性もあるので、今後、CH<sub>4</sub>の $\delta^{13}\text{C}$ の測定による検証が望まれる。

### 第IV章. 昭和基地における地上 O<sub>3</sub>濃度の変動

1988年2月より昭和基地において地上O<sub>3</sub>濃度の連続観測を行なった。春から初夏の期間、日にわずかに低濃度を示す日変動も見られたが、その振幅は1 ppbv程度であったので、昭和基地において観測されるO<sub>3</sub>はバックグラウンド濃度を十分に反映していると判断された。平均的な季節変動の振幅は19.6 ppbvであり、最高濃度と最低濃度はそれぞれ7月上旬と1月下旬に現われた。地上O<sub>3</sub>濃度とO<sub>3</sub>全量の季節変動は全く異なる変動を示した。VI章で述べるように、対流圏上部のO<sub>3</sub>濃度は全量の変動とよく対応しており、下層より濃度が高いこと、また南半球では高緯度ほど地上O<sub>3</sub>濃度が高いことを考慮すると、地上O<sub>3</sub>濃度の季節変動は、上空からの高濃度のO<sub>3</sub>を持つ大気の沈降と低緯度からの対流圏下部を通した低濃度のO<sub>3</sub>大気の輸送によって決定されており、秋から初春には前者の効果が後者を凌駕するために地上O<sub>3</sub>濃度は増加し、他の季節は後者の効果が卓越するために濃度が減少すると考えられる。なお、春から夏にかけての濃度の減少には光化学反応によるO<sub>3</sub>消滅も関与している可能性もある。また、特に冬から春にかけて気温の低下とともに著しく濃度が低下することがあったが、これは、接地逆転層が強く発達したために上空からのO<sub>3</sub>の供給が抑制され、地上付近での分解が進んだことによって

起きたと考えられる。一方、気温上昇に伴って濃度が減少することがあったが、これは低気圧などの擾乱によって低緯度から低濃度の  $O_3$  を持つ大気が輸送されてきた結果である。地上  $O_3$  についても経年変動と SOI との相関がみられ、全球規模の気候変動の影響を受けていることが示唆される。

## 第 V 章. 昭和基地における大気中 $CO_2$ の $\delta^{13}C$ と $\delta^{18}O$ の変動

1986年2月～1991年1月に採取された試料大気を分析することによって得られた  $\delta^{13}C$  の平均的季節変動の振幅は0.036%であり、最高値と最低値はそれぞれ5月中旬と9月下旬に現われた。振幅が非常に小さい理由は植物活動の影響をあまり受けていないことによる。 $CO_2$ 濃度および  $\delta^{13}C$  の平均的季節変動について、濃度に対する  $\delta^{13}C$  の変化率 ( $d\delta^{13}C/dC$ ) を求めたところ、 $-0.025\%/ppmv$  となった。この値は、大気-植物圏間で  $CO_2$  の交換が行なわれた場合と大気-海洋間で交換が行なわれた場合の中間値である。 $CO_2$ 濃度と  $\delta^{13}C$  の変動をさらに詳細に比較し、II章で述べた大気輸送過程に照らし合わせてみたところ、北半球の大気が輸送されてくると考えられる5～11月には  $d\delta^{13}C/dC$  の絶対値が大きくなり、南半球中緯度の大気が輸送されてくると考えられる他の時期には小さくなることが分かった。このような現象は、前者は北半球の植物圏との交換あるいは化石燃料消費の影響を強く受けた  $CO_2$  を多く含む大気であり、後者は海洋と十分に交換がなされた  $CO_2$  を多く含む大気である、と考えると整合性がとれる。従って、 $\delta^{13}C$  の結果からも、昭和基地における  $CO_2$ 濃度の変動が季節によって異なる大気の輸送過程に支配されているということが示唆される。観測期間中の  $\delta^{13}C$  の平均的な増加率は化石燃料消費を反映して $-0.019\%/年$ であり、 $CO_2$ 濃度の増加率の年々変動とよく対応した変化がみられた。各リザーバー間の  $CO_2$ 交換によって生ずる同位体分別を考慮することによって、この経年変動の不規則変化の原因は全球規模の気候変動に関係した大気-植物圏間の  $CO_2$ 交換の不均衡によるものであることが判明した。なお、 $\delta^{18}O$  の1989年の年平均値は1.15%、平均的な季節変動の振幅は0.27%であり、最高値と最低値はそれぞれ1月下旬、7月下旬に現われた。

## 第 VI 章. 昭和基地上空における温室効果気体濃度の変動

昭和基地上空における航空機観測の結果は各章で述べられた輸送過程の根拠となった。結果を要約すると以下の通りとなる。(1)  $CO_2$ 濃度の季節変動の振幅は5 km 以上で小さく、最高濃度の出現日は下層より1カ月以上早かった。また、年間のほとんどの期間、上空ほど濃度は高く、夏から初冬にかけて鉛直濃度勾配は増大した。(2)  $CH_4$ 濃度の平均的季節変動の振幅は2.5 km 以上では上空ほど小さく、最高濃度と最低濃度の出現日は各高度でほとんど同じであった。0～2.5 km の年平均濃度は他の高度より低かったが、その高度を除くと上空ほど濃度が高かった。夏から秋には下層の OH ラジカルによる消滅を反映して鉛直濃度勾配は急であり、他の季節には濃度勾配はほとんど観測されなかった。(3)  $\delta^{13}C$  の年平均値は、周辺の海水温度が低いた

めに、大気-海洋間の CO<sub>2</sub> の同位体分別の温度依存性によって下層で低い値を示した。また、季節変動の位相は上空ほど早かった。(4)  $\delta^{18}\text{O}$  は、対流圏上空を通しての低緯度大気の輸送を反映して、上空 5 km 以上では下層より低い値を示した。(5) 対流圏上部の O<sub>3</sub> 濃度は成層圏下部の O<sub>3</sub> 濃度および O<sub>3</sub> 全量の変動とよく一致していた。このことから年間を通して成層圏から対流圏上部へ O<sub>3</sub> が輸送されていると考えられる。

## 論文審査の結果の要旨

南極域は、その地理的立地から、温室効果気体のバックグラウンド濃度の観測にはきわめて適したところであると考えられている。特に将来の濃度予測に必要な経年的な濃度増加や増加率の年々変動などの実態は、南極域での観測によってより詳細に把握できるものと期待されている。しかし、一方、南半球の観測網は希薄であり、また南極域での大気輸送過程についての理解もまだ不十分であるため、南極域での温室効果気体の変動の実態や機構についての理解は、まだほとんど得られていない状況である。本論文においては、この状況を踏まえ、南極昭和基地において

- (1) CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>および地上 O<sub>3</sub>濃度の連続観測,
- (2) グラブサンプリングによる大気中 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>および CO<sub>2</sub>中の同位体比  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  の測定,
- (3) 航空機を用いた CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, O<sub>3</sub>濃度および CO<sub>2</sub>中の同位体比  $\delta^{13}\text{C}$ ,  $\delta^{18}\text{O}$  の鉛直分布の観測

を実施し、それら各成分の不規則変動、季節変化、経年変動の実態を明らかにした。また、得られた結果を南半球における他の観測データと比較することにより、南極域における温室効果気体濃度の変動が、半球規模の大気輸送過程との関連において統一的に説明できることを明らかにした。

以上の内容は、著者が自立して研究活動を行うに必要な高度の研究能力と学識を有することを示している。よって村山昌平提出の論文は博士（理学）の学位論文として合格と認める。