

氏名・(本籍)	ごとう だいすけ 後藤 大輔
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	理博第2650号
学位授与年月日	平成23年9月8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	Observations of temporal and spatial variations of the atmospheric oxygen concentration and estimation of global carbon budget (大気中酸素濃度の時空間変動の観測と全球炭素収支の推定)
論文審査委員	(主査) 教授 中澤 高 清 教授 青木 周 司 教授 早坂 忠 裕 教授 川村 宏 准教授 森本 真 司(国立極地研究所)

論 文 目 次

CHAPTER 1	
INTRODUCTION	1
CHAPTER 2	
EXPERIMENTAL METHODS	7
2-1. FLASK SAMPLE COLLECTION	8
2-2. MASS SPECTROMETER ANALYSIS OF THE ATMOSPHERIC O ₂ /N ₂ RATIO.....	10
2-2-1. Analytical instrument and standard gas	10
2-2-2. Evaluation of analytical precision	12
2-3. CONTINUOUS MEASUREMENT SYSTEM OF THE ATMOSPHERIC O ₂ /N ₂ RATIO AND CO ₂ CONCENTRATION	12
2-3-1. System configuration	12
2-3-2. Measurement procedures of O ₂ and CO ₂	15
2-3-3. Evaluation of analytical precision	16
2-3-4. Standard gas for O ₂ analyzer	17
CHAPTER 3	
TEMPORAL VARIATIONS OF ATMOSPHERIC O₂ AND CO₂ MEASURED CONTINUOUSLY AT SUBURBAN AND COASTAL SITES IN NORTHEASTERN JAPAN	39
3-1. SITE DESCRIPTION AND OBSERVATIONS.....	40
3-2. SEASONAL AND DIURNAL CYCLE AND TREND	41
3-3. SHORT-TERM VARIATION OF APO	44

CHAPTER 4	
TEMPORAL VARIATIONS OF ATMOSPHERIC O₂ AND CO₂ CONTINUOUSLY MEASURED AT SYOWA STATION, ANTARCTICA	73
4-1. OBSERVATIONS AT SYOWA STATION, ANTARCTICA	74
4-2. DIURNAL AND SEASONAL CYCLE AND TREND	75
4-3. SHORT-TERM VARIATION	78
CHAPTER 5	
VARIATIONS OF THE ATMOSPHERIC O₂/N₂ RATIO, CO₂ CONCENTRATION AND APO FROM LONG-TERM FLASK MEASUREMENTS AND ESTIMATION OF GLOBAL CARBON BUDGET	95
5-1. TEMPORAL AND SPATIAL VARIATIONS OVER JAPAN AND IN POLAR REGIONS	96
5-1-1. <i>Seasonal cycle</i>	96
5-1-2. <i>Latitudinal distribution and vertical profile over Japan</i>	97
5-1-3. <i>Comparison of observed and model-simulated APO</i>	98
5-2. ESTIMATION OF RECENT GLOBAL CO ₂ BUDGET	100
5-2-1. <i>Budget equations of atmospheric O₂ and CO₂</i>	100
5-2-2. <i>Estimation of oceanic and terrestrial carbon uptake</i>	102
CHAPTER 6	
CONCLUSIONS	125
REFERENCE	131

論文内容要旨

大気に放出された化石燃料起源 CO₂ の約半分は海洋と陸上生物圏によって吸収されている。これらの吸収量の定量的な理解は、将来の CO₂ 濃度増加の推移やそれに伴う気候変動を予測する上で重要な情報となるが、その推定値には依然として大きな不確実性が残されている。本研究では、大気中 O₂ 濃度 (δ (O₂/N₂) として定義する) の変動の観点から全球炭素循環の理解を促進させるため、大気中 δ (O₂/N₂) の高精度連続測定システムを開発し、仙台市青葉山、三陸沖江島および南極昭和基地で系統的な連続観測を実施した。さらに、北極スバル諸島 Ny-Ålesund 基地、青葉山、昭和基地および日本上空の対流圏においては、フラスコサンプリング法による δ (O₂/N₂) の観測も1999年以来実施してきた。これらの観測から得られた結果を基にして大気中の δ (O₂/N₂) の時空間変動を明らかにし、その要因について考察した。また、長期にわたるフラスコサンプリング法による観測の結果を解析することにより、 δ (O₂/N₂) の広域にわたる時空間変動の実態を把握するとともに、最近の全球炭素収支を推定した。以下に得られた成果をまとめる。

- 燃料セル O₂ 分析計を利用して大気中 δ (O₂/N₂) の高精度連続測定システムを開発した。本システムには、CO₂ 濃度も同時に測定するために CO₂ 分析計も組み込んだ。高精度で δ (O₂/N₂) を測定するために、流量制御バルブや精密差圧計を用いて分析計に導入する大気試料や標準ガスの圧力変動を 10⁻³ Pa

台で厳密に制御した。また、分析計を断熱材で覆った上に、温度調節器による温度制御を行い、分析計内部を $32 \pm 0.1^\circ\text{C}$ で一定に保った。装置の配管系は全てステンレスに統一し、材質の違いによる O_2 と N_2 の分別効果を低減した。さらに、大気試料を取入れる際の熱拡散による O_2 と N_2 の分別効果を防止するため、大気試料採集口に aspirated intake を採用した。その結果、同一試料の繰返し分析の精度（標準偏差 1σ ）が、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ については ± 1.4 per meg、 CO_2 濃度については ± 0.03 ppm という高精度連続測定を可能にした。

- $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の測定に使用する標準ガスを自然空気から製造する手法を確立した。標準ガス中に含まれる水分は可能な限り取り除く必要があるため、Russian-doll-type trap (RDT) を採用した。RDT による除湿能力は、RDT を通過させた空気の露点温度を測定することによって検討し、12 L/min の流量で -80°C 以下まで露点を低下させることを確認した。RDT を用いて除湿した空気は圧縮機によってアルミ製高圧ガス容器に充填され、適量の純 O_2 を添加することによって $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ を調整し、標準ガスとした。このようにして製造した標準ガスは、温度変化や重力分離に伴う O_2 と N_2 の分別を低減するため、断熱材で覆ったラックに水平に静置させて保管した。標準ガスの $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は、繰返し検定を行うことにより、少なくとも440日間にわたって20 per meg 以内で安定していることを確認した。
- 開発した $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の高精度連続測定システムを用いて、2007年2月から仙台市青葉山で大気中の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ と CO_2 濃度の系統的な同時連続観測を実施した。 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は、経年的に減少すると共に、3月下旬から4月上旬に最小、7月下旬から8月上旬に最大となる明瞭な季節変化を示した。一方、 CO_2 濃度は経年的に増加し、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ とは逆位相の季節変化を示した。また、数時間から数日スケールの短周期変動も明瞭に観測された。冬期には短時間に $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ が急激に減少すると同時に CO_2 濃度が増加し、その状態が数時間から数日継続するという現象が観測された。このような不規則変動について $-\text{O}_2:\text{CO}_2$ 交換比を求めると1.39-1.38 ppm/ppm となった。これらの値は日本における平均的な化石燃料消費から期待される交換比と良く一致しており、観測された O_2 の減少は、人間活動の影響を受けた都市域の空気塊が輸送されてきたことによって生じたものと考えられる。一方夏期には、主に観測サイト周辺の陸上植物活動に起因する明瞭な $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ と CO_2 濃度の日変化が観測された。2007年から2010年の夏期における平均的な $-\text{O}_2:\text{CO}_2$ 交換比は、日中については -1.08 ± 0.10 ppm/ppm、夜間については -1.08 ± 0.10 ppm/ppm となり、植物活動から期待される -1.10 ± 0.05 ppm/ppm と良く一致した。
- 大気中の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ と CO_2 濃度の連続観測は2008年10月から三陸沖江島でも実施した。江島で観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ と CO_2 濃度は青葉山と同様の季節変化を示したが、主に海洋との O_2 交換に起源を持つ APO (Atmospheric Potential Oxygen) の季節変化の振幅は江島の方が青葉山より2倍大きく、江島の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の季節変化には、大気-海洋間の O_2 交換の影響が強く現れていることが明らかとなった。また、明瞭な季節変化に加えて、APO の不規則な短周期変動が、特に春から夏にかけて観測された。後方流跡線解析の結果と衛星観測データから推定された日本近海の海洋生物の純一次生産量 (NPP) の比較から、APO の短周期変動は海洋生物の生産活動による海洋からの O_2 放出と密接に関係していることが示唆された。
- 南極域における初めての試みとして、2008年1月から南極昭和基地において大気中の $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ を連続的に観測した。南半球の夏期である11月から2月には、 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ は日中に高く夜間に低くなる明瞭な日変化を示した。一方、 CO_2 濃度は一年を通じてまったく日変化を示さなかった。 $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の変動と昭和基地で観測された気象要素を比較することにより、南半球の夏期に観測された $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ の日変化は、昭和基地周辺の海の表層における海洋生物活動に伴う O_2 放出に起因していることが示唆された。さらに、南半球の夏期に $\delta(\text{O}_2/\text{N}_2)$ が CO_2 濃度と同期して不規則に変動している様子も時々観測され

た。後方流跡線解析の結果と南半球の海洋生物の NPP 分布の比較から、そのような不規則な $\delta(O_2/N_2)$ 変動は、 $40^\circ - 60^\circ S$ の緯度帯での海洋生物活動に伴う海洋からの O_2 放出の影響を受けた空気塊が輸送されてきたためと考えられる。一方、夏期には極域と比べると $40^\circ - 50^\circ S$ では CO_2 濃度は低下しているので、昭和基地で観測された CO_2 濃度の不規則変動は、これら低緯度からの大気輸送によるものと考えられる。さらに、南半球の秋から冬にかけて、 CO_2 濃度が比較的一定であるにもかかわらず、 $\delta(O_2/N_2)$ が急激に低下する不規則な変動も観測された。このような $\delta(O_2/N_2)$ の短期変動は、海水の湧昇や鉛直混合によって深層の貧 O_2 海水が表層に輸送されることにより、海洋が大気中の O_2 を吸収し、それに伴って低下した $\delta(O_2/N_2)$ を有する空気塊が輸送されてきたために生じたものと考えられる。

- Ny-Ålesund、青葉山、昭和基地、日本上空対流圏における長期のフラスコ観測の結果から、大気中の $\delta(O_2/N_2)$ および CO_2 濃度の時空間変動を明らかにした。全ての観測サイトにおいて $\delta(O_2/N_2)$ と CO_2 濃度がそれぞれ経年的に減少および増加していた。また、季節に依存する陸域生態系の活動や大気-海洋間の O_2 交換に起因する明瞭な季節変化も全ての観測サイトで確認された。 $\delta(O_2/N_2)$ の年平均値は、北半球における大量の化石燃料消費を反映して、南半球より北半球で低くなっており、 CO_2 濃度とは逆の緯度分布を示した。さらに、主に地表の人間活動による O_2 消費と CO_2 放出により、日本上空の $\delta(O_2/N_2)$ の年平均値は高度とともに増加し、 CO_2 濃度の年平均値は減少することが明らかになった。
- 観測から得られた APO の緯度分布と大気化学輸送モデルを用いて計算した APO の緯度分布を比較したところ、青葉山で観測した APO の年平均値はモデル計算値よりも低いことが分かった。また、日本上空で観測した APO の年平均値は高度とともに徐々に増加したが、モデル計算はそのような高度勾配をほとんど示さなかった。これらの結果から、 $30^\circ - 40^\circ N$ の日本近海は、現在考えられているよりも強い O_2 の吸収域になっていることが示唆される。また、観測とモデルの高度勾配の違いは、冬から春にかけて生じる成層圏大気の大気対流圏上部への流入も原因となっている可能性がある。
- Ny-Ålesund、青葉山、昭和基地、日本上空対流圏で観測した大気中の $\delta(O_2/N_2)$ および CO_2 濃度の長期変動を解析することによって、2001年7月から2009年7月の8年間の平均的な全球炭素収支として、海洋について 2.6 ± 0.6 PgC/yr、陸域生態系について 1.0 ± 0.7 PgC/yr の正味吸収と推定された。各観測サイトのデータを単独で使用した場合でも、使用する観測サイトのデータの組み合わせを変化させた場合でも、推定した収支はほぼ同じ値を示すので、本研究から得られたデータセットは全球的な代表性が高く、したがって推定結果の信頼性も高いと考えられる。

論文審査の結果の要旨

大気中 δ (O_2/N_2) の時空間変動とその要因を明らかにし、全球炭素収支を推定するために、高精度連続測定技術を開発し、仙台市青葉山、三陸沖江島および南極昭和基地で系統的な観測を行うとともに、グラブサンプリングによる長期観測を北極 Ny-Ålesund 基地、青葉山、昭和基地および日本上空で実施し、得られた結果を詳細に解析した。

本研究によって、(1) 精度 ± 1.4 per meg という世界最高性能の δ (O_2/N_2) 連続測定システムが開発され、自然空気を原料とする標準ガスの大量製造が可能となった。また、(2) δ (O_2/N_2) の季節変化は、大気-陸上植物間と大気-海洋間の O_2 交換によるものであるが、それぞれの寄与は場所によって大きく異なる、(3) 数時間から数日という短周期変動もしばしば観測され、青葉山においては冬には都市域からの空気塊の輸送によって、夏には近傍の植物活動によって主に生じており、江島の春から夏および昭和基地の夏にしばしば観測される短周期変動は、海洋生物の生産活動と密接に関係している、(4) 昭和基地においてはさらに、夏に基地周辺の海洋生物活動に起因する日変化や、秋から冬にかけて海水の湧昇や鉛直混合に関係した短周期変動が時々観測されることも明らかにした。さらに、グラブサンプリング観測の結果を基に、(5) δ (O_2/N_2) の緯度分布や日本上空での高度分布を明らかにし、その形成要因を大気化学輸送モデルによる計算結果と照らして考察するとともに、(6) δ (O_2/N_2) および CO_2 濃度の長期変動の解析から、2001年7月から2009年7月の平均的な海洋と陸域生態系の正味吸収を、それぞれ 2.6 ± 0.6 PgC/yr と 1.0 ± 0.7 PgC/yr と推定した。

以上の結果は、後藤大輔が自立して研究活動を行うために必要な高度の研究能力と学識を有していることを示している。したがって、後藤大輔提出の博士論文を博士(理学)の学位論文として合格と認める。