

## マルチクロックトレーサーによる大気年代の推定

菅原敏（宮城教育大学）、青木周司、森本真司、中澤高清、稲飯洋一（東北大学大学院理学研究科）、豊田栄（東京工業大学大学院総合理工学研究科）、石戸谷重之（産業技術総合研究所）、後藤大輔（国立極地研究所）、梅澤拓（国立環境研究所）、長谷部文雄（北海道大学）、石島健太郎（海洋研究開発機構）

### Estimation of 'Age of Air' from Multi-Clock-Tracers

S. Sugawara (Miyagi University of Education), S. Aoki, S. Morimoto, T. Nakazawa, Y. Inai (Tohoku University), S. Toyoda (Tokyo Institute of Technology), S. Ishidoya (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), D. Goto (National Institute of Polar Research), T. Umezawa (National Institute for Environmental Studies), F. Hasebe (Hokkaido University), K. Ishijima (Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology)

#### 1. 「マルチクロックトレーサー」観測の目的

温室効果気体の増加によって引き起こされる地球温暖化は、単に地球表層の気温の上昇にとどまらず、地球環境全体に様々な変調をもたらすと考えられている。成層圏大気におけるその影響は、成層圏気温の長期的な低下として顕著に現れているが、大気の循環がどのように変化するのは未解決の課題となっている。成層圏の平均的な子午面循環の描像は Brewer-Dobson (BD) 循環として知られており、熱帯の上部対流圏から下部成層圏へと流入した大気が、比較的緩やかに高緯度側へと輸送されている。この BD 循環は、成層圏オゾンや水蒸気、温室効果気体といった物質の空間分布や時間変動に極めて重要な働きをしており、BD 循環の変動とその要因を解明することが必要とされている。この目的のために、近年注目されているのが「クロックトレーサー」の観測と、それによる大気年代の推定である。クロックトレーサーとは、対流圏内において主に人為的な影響により増加または減少の既知の長期トレンドを有し、かつ、成層圏において比較的安定な物質のことを指す。成層圏内におけるこのトレーサーの濃度等を観測することにより、その大気塊の年代、すなわち、何年前に対流圏から成層圏に流入したか、を知ることができる。これまでに、クロックトレーサーとして用いられてきたのが  $\text{CO}_2$  と  $\text{SF}_6$  の濃度であり (Engel et al., 2009, Stiller et al., 2012)、本研究グループのこれまでの成果もその研究に貢献してきた。特に、Engel らによる大気年代の長期変化に関する研究結果は、近年の数値モデルに基づく予測と一致しておらず、大きな謎として研究の進展が望まれている。しかし、実際の大気年代の観測研究は極めて限られており、また、 $\text{CO}_2$  と  $\text{SF}_6$  の 2 種から得られた大気年代に系統的な差異があるケースが報告されている (Andrews et al., 2001, Sugawara et al., 2017)。この事実は、大気年代の観測的研究の信頼性を揺るがしかねない問題である。本研究グループでは、長期にわたる成層圏大気観測の結果から、「 $\text{CO}_2$  と  $\text{SF}_6$  の大気年代は成層圏の高高度ほど差が大きく、

SF<sub>6</sub>-age は過大評価になっている」、という仮説を立てている。この仮説の真偽を確かめ、その原因を明らかにするためには、これまでとは異なるクロックトレーサーの観測が不可欠である。そこで、本研究では、クライオ実験の多成分ガス解析の利点をさらに発展させて、新たなクロックトレーサーの観測を切り開き、「マルチクロックトレーサー」観測を実現する。新たなクロックトレーサーとは、炭素同位体 (<sup>13</sup>C)、O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>比、ハロカーボン類の濃度である。これらのいずれの物質も対流圏において人間活動に伴う長期的な増加・減少のトレンドが知られているが、成層圏での観測例が少ないことや、極めて高度な測定技術が必要であることなどにより、これまではクロックトレーサーとして考えられていなかった。本研究では、液体ヘリウムを使用した大量エアサンプリングを可能とするクライオ実験と、参加研究機関の高精度分析能力を基盤として、従来のCO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>に加えて、炭素同位体、O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub>比、ハロカーボン類から構成されるマルチクロックトレーサー観測を実施する。これらからは、相互に独立な年代データが得られるため、CO<sub>2</sub>とSF<sub>6</sub>の大気年代の違いに関する仮説を検証するとともに、複数データに基づいて大気年代を高精度で決定できるものと期待される。なお、本研究グループでは、これまでに、日本上空だけではなく、北極、南極、赤道域においても気球観測を実施し、成功させている。また、宇宙研の小規模プロジェクトとして採択されたインドネシアでの成層圏大気観測プロジェクトの一環として、2015年2月に実験を行い、成功している。これらの結果から得られている大気年代のデータと比較することで、長期的な変動やグローバルな緯度分布についても研究を進展させることができると期待される。さらに、総合的に研究を進めるために、観測に加えて、数値モデルによる研究を同時に進行させる。観測によって得られた結果は、3次元大気輸送モデルを用いたシミュレーションの結果と比較し、成層圏大気年代の空間分布や長期傾向などが再現できるかを検証する。これにより、現在問題となっている理論と観測の相違の原因を明らかにする。

## 2. 大気採集実験の方法

実験に用いるクライオジェニックサンプラー(直径 0.9 m、高さ 1.6 m、重量 250 kg)

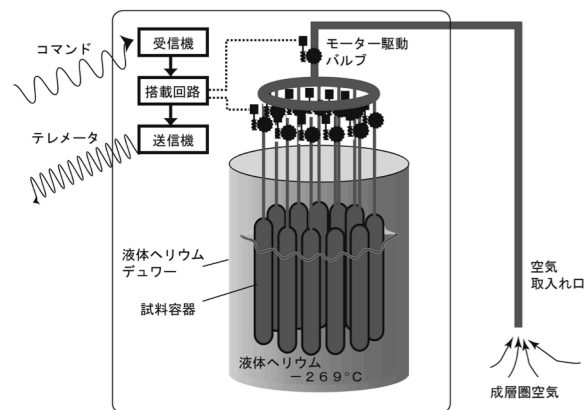


図1 クライオジェニックサンプラーの概略図

の概略図を図1に示す。この装置については、これまでの国内気球実験において繰り返し使用してきた実績があり、特に変更はない。本サンプラーは、12本の試料採集容器を有しており、それらはデュワー内に収納され、さらに回路系やバッテリーとともにアルミニウム製のゴンドラに収納されている。試料容器の入口はモーター駆動のバルブを介してマニホールドでまとめられ、さらにゴンドラ外に配置された試料取入れ口に接続されている。放球前にデュワーに液体ヘリウムを満たすことにより試料容器を $-269^{\circ}\text{C}$ に冷却し、各高度において司令電波により採集開始の指示を出すことで、以降は自動的にモーター駆動バルブを開閉することによって、希薄な成層圏大気を容器内に固化させて採集する。図2に示すように、大気試料採集は、気球が上昇、水平浮遊、下降している際に実施し、試料採集間隔は約2 kmに設定する予定であり、15~35 kmの各高度で採集される大気試料の量は20~30 LSTPである。また、採集された試料は各研究室で分析されるので、ゴンドラが洋上に着水した後、回収されることが必須の条件となる。

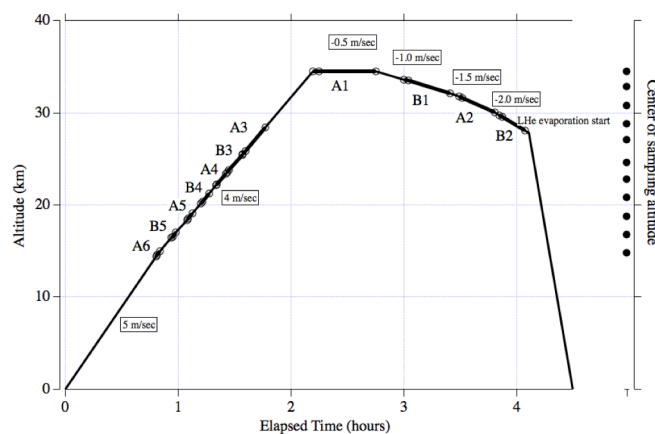


図2 希望する大気採取ダイアグラムの例

### 3. 大気試料の分析と研究の展開

本研究における気体分析については、東北大学、東京工業大学、産業技術総合研究所、宮城教育大学、国立極地研究所、国立環境研究所、名古屋大学年代測定総合研究センターが共同して実施する。実験室に持ち帰った試料空気は、各種分析装置を用いて高精度で分析される。従来のクロックトレーサーである  $\text{CO}_2$  と  $\text{SF}_6$  の濃度は、東北大学と宮城教育大学において実施する。また、炭素同位体については、成層圏での  $\text{CH}_4$  の酸化にともなう  $\text{CO}_2$  生成の効果を考慮するため、 $\text{CO}_2$  と  $\text{CH}_4$  の両者の炭素同位体測定が必要となる。これらは、東北大学と国立極地研究所において実施する。 $\text{O}_2/\text{N}_2$  比は産業技術総合研究所において分析を実施する。炭素同位体と  $\text{O}_2/\text{N}_2$  比から正確に年代を決定するためには、重力分離の補正が不可欠である。そのため、大気主成分の  $^{15}\text{N}$ 、 $^{18}\text{O}$ 、 $\text{Ar}/\text{N}_2$  の質量分析も

産業技術総合研究所において行う。ハロカーボン類の濃度の分析は国立環境研究所において実施する。ハロカーボン類には、フロン類 CFC や代替フロン類 HFC など、多種の気体が含まれるため、この分析に成功した場合には、年代データの大幅な増大が期待される。ただし、国立環境研究所における成層圏大気ハロカーボン類分析はこれまでに経験がないため、その観測の成功は最大成功基準として位置づける。観測と同時に数値モデルを用いた理論的研究を進める。北海道大学や海洋研究開発機構と協力し、3次元大気輸送モデルや大気大循環モデルを用いて、成層圏大気平均年代や重力分離のシミュレーションを行う。観測結果をシミュレーションから得られた結果と比較し、年代や重力分離の分布の違いなどを詳細に検討する。それぞれの機関が担当する研究課題を表1に示す。

表1 本研究に関わる機関と担当分野

研究機関	主な担当分野
東北大学大学院理学研究科 国立極地研究所	二酸化炭素、メタン、一酸化二窒素、一酸化炭素、SF <sub>6</sub> の濃度、メタンの炭素・水素同位体比、二酸化炭素の安定炭素同位体比
東京工業大学物質理工学院	一酸化二窒素のアイソトポキキュール
名古屋大学年代試料研究センター	二酸化炭素の放射性炭素同位体比
産業技術総合研究所	O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> 分析 O <sub>2</sub> /N <sub>2</sub> 年代の評価 <sup>15</sup> N、 <sup>18</sup> O、Ar/N <sub>2</sub> の重力分離・熱拡散の評価と補正
宮城教育大学	炭素同位体比年代の評価 SF <sub>6</sub> 濃度分析と年代評価
国立環境研究所	ハロカーボン類の濃度と年代評価
北海道大学 海洋研究開発機構	年代と重力分離の数値モデル

## 参考文献

- Andrews, A. E., Boering, K. A., Daube, B. C., Wofsy, S. C., Loewenstein, M., Jost, H., Podolske, J. R., Webster, C. R., Herman, R. L., Scott, D. C., Flesch, G. J., Moyer, E. J., Elkins, J. W., Dutton, G. S., Hurst, D. F., Moore, F. L., Ray, E. A., Romashkin, P. A., and Strahan, S. E.: Mean ages of stratospheric air derived from in situ observations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and N<sub>2</sub>O, *J. Geophys. Res.*, **106**, 32,295-32,314, 2001.
- Engel, A., Möbius, T., Bönisch, H., Schmidt, U., Heinz, R., Levin, I., Atlas, E., Aoki, S., Nakazawa, T., Sugawara, S., Moore, F., Hurst, D., Elkins, J., Schauffler, S., Andrews, A., and Boering, K.: Age of stratospheric air unchanged within uncertainties over the past 30 years, *Nature Geoscience*, **2**, 28–31, doi:10.1038/ngeo388, 2009.
- Ishidoya, S., Sugawara, S., Morimoto, S., Aoki, S., Nakazawa, T., Honda, H., and Murayama, S.: Gravitational separation in the stratosphere – a new indicator of atmospheric circulation, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 8787-8796, doi:10.5194/acp-13-8787-2013, 2013.
- Stillier, G. P., Von Clarmann, T., Haenel, F., Funke, B., Glatthor, N., Grabowski, U., Kellmann, S., Kiefer, M., Linden, A., Lossow, S., and López-Puertas, M.: Observed temporal evolution of global mean age of stratospheric air for the 2002 to 2010 period, *Atmos. Chem. Phys.*, **12**, 3311–3331, doi:10.5194/acp-12-3311-2012, 2012.
- Sugawara, S., Ishidoya, S., Aoki, S., Morimoto, S., Nakazawa, T., Toyoda, S., Inai, Y., Hasebe, F., Ikeda, C., Honda, H., Goto, D., and Putri, F. A.: Age and gravitational separation of the stratospheric air over Indonesia, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2017-583>, in review, 2017.
- Toyoda, S., Yoshida, N., Morimoto, S., Aoki, S., Nakazawa, T., Sugawara, S., Ishidoya, S., Uematsu, M., Inai, Y., Hasebe, F., Ikeda, C., Honda, H., and Ishijima, K.: Vertical distributions of N<sub>2</sub>O isotopocules in the equatorial stratosphere, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, <https://doi.org/10.5194/acp-2017-272>, in review, 2017.