

## マルチクロックトレーサーによる大気年代推定 (B20-04 結果速報)

菅原敏<sup>1</sup>, 青木周司<sup>2</sup>, 森本真司<sup>2</sup>, 本田秀之<sup>2</sup>, 豊田栄<sup>3</sup>, 石戸谷重之<sup>4</sup>,

後藤大輔<sup>5</sup>, 梅澤拓<sup>6</sup>, 長谷部文雄<sup>7</sup>, 石島健太郎<sup>8</sup>, 飯嶋一征<sup>9</sup>, 吉田哲也<sup>9</sup>

<sup>1</sup>宮城教育大学, <sup>2</sup>東北大学大学院理学研究科, <sup>3</sup>東京工業大学物質理工学院, <sup>4</sup>産業技術総合研究所, <sup>5</sup>国立極地研究所, <sup>6</sup>国立環境研究所, <sup>7</sup>北海道大学大学院地球環境科学研究院, <sup>8</sup>気象研究所, <sup>9</sup>宇宙科学研究所

## 1. はじめに

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 循環 (BDC) 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 BDC 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、BDC の変動とその要因を解明することが不可欠とされている。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単調な増加または減少の長期トレンドを有し、かつ、成層圏において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、その大気塊の年代を知ることができる。これまでに、理想的なクロックトレーサーに近いもの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、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、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。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。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 ( $^{13}\text{C}$ )、 $\text{O}_2/\text{N}_2$  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  $\text{CO}_2$  と  $\text{SF}_6$  に加えて、炭素同位体、 $\text{O}_2/\text{N}_2$  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現する。これらからは、相互に独立な年代データが得られるため、 $\text{CO}_2$  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。

本研究の目的は成層圏大気年代推定の高精度化であるが、成層圏大気クライオサンプリング実験自体は1985年から日本上空において継続してきた。国内観測に加えて、南極昭和基地、スウェーデン・キルナ、東太平洋赤道域の観測船上、インドネシアなどの海外実験も数多く成功させてきた。国内実験では、2015年に実施したB15-03の成功が直近に実施された実験であるが、その後新たな成層圏大気サンプルの取得のために2018年、2019年に実験実施を試みたものの、気象条件の不適合や世界的なヘリウム枯渇問題のために実施できなかった。今回のB20-04のサンプリングの成功により、およそ5年の期間を経て、新たな成果が得られることになった。ただし、得られた成層圏大気サンプルの分析は未だ途中段階にあるため、ここでは大気サンプリングの結果と現時点で得られている分析成果の概略を速報として報告する。

## 2. 実験概要

B20-04成層圏大気サンプリング実験は2020年7月25日に実施された。気球の高度の時間変化を図1に示す。気球の上昇速度や、レベルフライトの精密なコントロールにより、当初予定していた11の異なる高度において計画通りにサンプリングを実施することができた。特に、最高高度の35km付近においては気圧が低いためサンプリング速度が小さくなり、サンプリングに時間を要するが、25分間の十分な採集時間を確保できた。回収した試料容器を研究室に持ち帰り、大気試料の圧力を測定した結果(図2)、最低量は高度33kmにおける10.4L(STP)、最大量は高度22kmにおける28L(STP)であった。レベルフライト時以外は、全て気球上昇中にサンプリングを実施したため、気圧の低下とともにサンプリング速度は低下する。したがって、上昇中の高高度のサンプル量は少なくなる。しかし、全ての高度において予定していた大気採取に成功していることが確認され、大気採取自体は最高水準の成功であった。この大気試料の一部は将来の分析のためのアーカイブ空気として別途用意した金属容器に分取された。その長期保存用のアーカイブ試料を除いた本試料を用いて、東北大学、宮城教育大学、東京工業大学、産業技術総合研究所、国立極地研究所、国立環境研究所、名古屋大学のそれぞれの研究機関に試料を配分し、現在も種々の気体の分析が進められている。

## 3. 分析作業の進捗状況と結果速報

本研究では、成層圏大気年代の推定に直接関わる成分とその関連成分(主に重力分離に関わる成分)を中心に、これまで計測されていなかった気体成分を新規の対象成分として大幅に拡充している。それらを分類すると、(1)温室効果気体とその関連成分の濃度および同位体、(2)ハロカーボン類の濃度、(3)大気主成分と希ガスの成分比、元素比、同位体比、の3つになる。これにより分析項目の予定数は総数で40を超えている。現時点では温室効果気体とその関連成分の濃度と一部の同位体、大気主成分と希ガスの質量分析など、ほぼ全体の半分程度の分析が終了しており、それ以外の項目についても分析中、あ

るいは分析準備中となっている。現状では、分析によって得られた結果は全て確定したものではないが、口頭発表においてはそれらの一部を速報として示す予定である。分析の結果、11高度の全てサンプルについて、全ての分析項目に影響を及ぼすようなサンプルの汚染や変質は認められておらず、極めて高い成功水準の到達が期待される。ただし、CO<sub>2</sub>濃度では、複数のサンプルについて異常な低濃度を示しており、実際の成層圏大気の濃度ではないことが明らかであるため、このままでは大気年代推定には使えない。この濃度異常を示したサンプルについては、同時に O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 比にも明らかな異常が表れており、どちらも大気年代推定のための成分であるという点から、問題解決の努力を現在継続している。なお、この異常の原因はまだ解明されていない。異常の一部の傾向は、過去のクライオ実験でも見られており、それらの補正の可能性を含めて対応を検討中である。一方、大気年代推定の対象成分の一つである SF<sub>6</sub> については、CO<sub>2</sub> や O<sub>2</sub>/N<sub>2</sub> 比のような異常は確認されておらず、11高度全てで高精度の濃度分析結果が得られている。これらの結果から大気年代をそれぞれ推定することが可能であるが、そのためには、年代推定のリファレンスとなる熱帯対流圏界面付近の直近までの長期レコードが必要となるため、今後順次進める予定である。現時点では、主にそれぞれの鉛直分布や成層圏における長期変化傾向などを中心に解析を進めている。特に、CO<sub>2</sub> や SF<sub>6</sub> などの温室効果気体の成層圏での長期トレンドは研究例が少ない。本研究の結果を、これまでの過去の国内気球実験の結果と併せることで、数十年間の長期変化を明らかにすることができると期待される。本研究の結果から成層圏における明瞭な増加傾向が見られており、高度20 km 以上の大気では、対流圏の増加傾向に追随しながら、5年程度の遅れを伴って増加していることが明瞭となっている。今後、さらにハロカーボンや希ガスの分析結果と合わせて解析し、大気年代を高精度で推定する新たな手法の開発を進めていく。

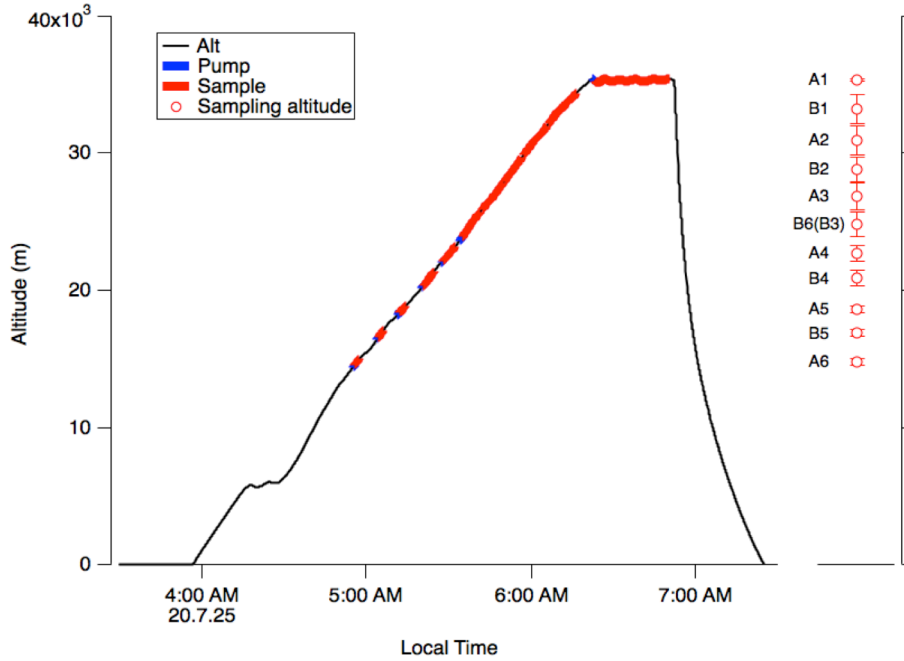


図 1. B20-04 気球実験（大気年代推定の高精度化）における気球の高度の時間変化と大気サンプリングが実施された高度。A1～B6 は採取容器の番号を表す。ポンプは配管の中に残っている大気をサンプリングに先立って除去するために用いる。

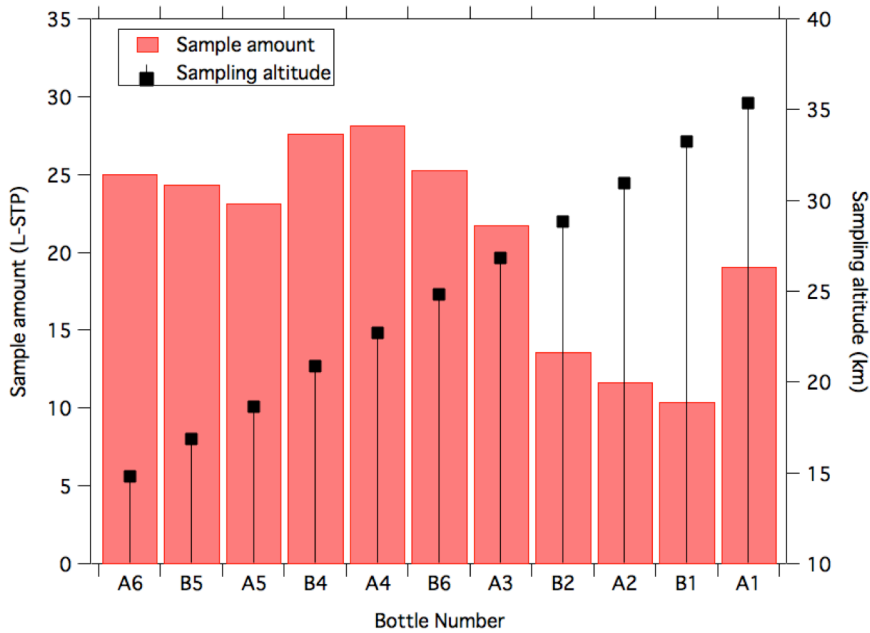


図 2. B20-04 気球実験（大気年代推定の高精度化）によって採取された容器ごとの大気試料の量と採取中心高度。