

名古屋市東部における大気中の二酸化炭素の濃度と同位体比の変化（2）

高橋 浩（名古屋大学大学院理学研究科地球惑星理学専攻）

はじめに

地球温暖化防止のために、年々増加する傾向にある大気中の二酸化炭素濃度を減少させるために、その排出量の規制と植林や森林維持などによる吸収を促す措置をとる動きが、多くの国において見られる。しかしながら、森林による二酸化炭素の吸収量を把握することは難しいため、世界各国の政策決定が同調せず、二酸化炭素の正味の放出量（吸収を考慮した値）を算定するための見解にも多くの相違がある。現在の森林による二酸化炭素の吸収量を見積もることや今後の地球環境の変化が森林に対してどのような影響を与えるのかなどを把握することが強く求められている。これには二酸化炭素の動態研究が不可欠であり、大気をバックへ捕集して、その中の二酸化炭素の濃度や同位体比（ $\Delta^{14}\text{C}$ ・ $\delta^{13}\text{C}$ ・ $\delta^{18}\text{O}$ ）を測定する研究手法がよく用いられている。

著者は昨年度の本報告書に大気中の二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の変化を報告した（青木他、1998）が、1回のサンプリングが数分で終了してしまうことから試料の代表性について問題がある可能性を示唆した。そこで、1回のサンプリング時間を極端に長くすることでこの問題を解決し、得られた知見について報告を行う。

真空ラインへの導入時における同位体分別について

本研究では、一度バックに捕集した大気を真空ライン（図1）へ導入して、大気から二酸化炭素を分離している。この時の気体の流れは、大量の窒素と酸素の中に微量の二酸化炭素という状態であり、二酸化炭素はそれらの気体とともに真空ラインへ導入されることや、導入時の圧力が1気圧であること、図1の真空ラインでの最下流のトラップに二酸化炭素がほとんど無い（導入したガスの全量が回収できている）ことなどから、真空ラインへの導入時には同位体分別がないと考えられる。昨年度の報告では実際にこれを測定していなかったが、今回これを確認するために実験を行った。

濃度の異なる2種類のガス（248 ppmと444 ppm）を10リットルのテドラーバックへ充填し，3回に分けて真空ラインへ導入し，その同位体比を測定した．表1にその結果を示す．測定の結果，3回の導入ごとに同位体比の違いは見られなかった．従って真空ラインに導入する際に，導入されたガスとバック内に残留したガスとの間に同位体比の違いは見られないと言える．

テドラーバック・アルミバックの試料ガスの保持について

観測に先立って，テドラーバックなどがサンプリングした大気をどの程度保持することができるのかを検討した．テドラーバックとアルミバックの2つのバックにシリコンチューブとファームドチューブをつけ，各バックの中に二酸化炭素濃度が既知なボンベガス（248 ppm）を導入した．その後，ピンチコックで栓をして数日間放置し，二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ を測定した．

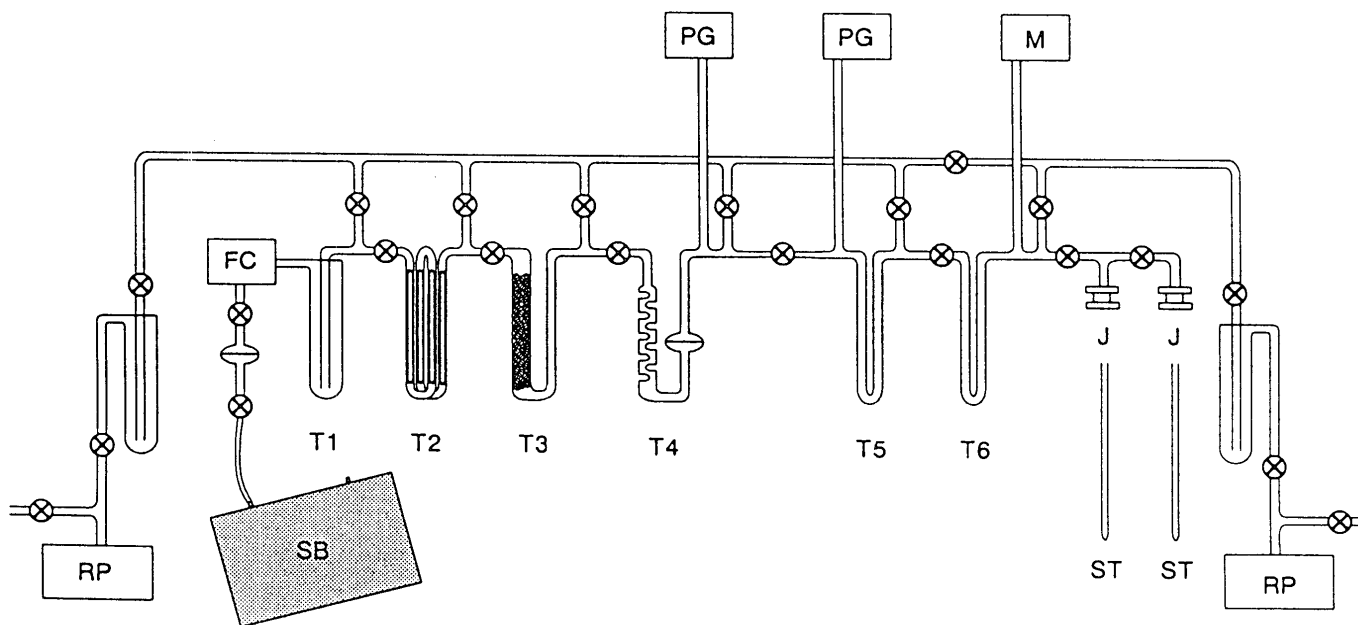


図1. 大気中二酸化炭素の分離・精製ライン RP: ロータリポンプ, FC: マスフローコントローラー, SB: サンプルバック, T1-6: トラップ, J: ケイジョンジョイント, ST: サンプルチューブ, PG: ピラニゲージ, M: マノメーター

表1. バックから真空ラインへ段階導入した二酸化炭素の同位体比の変化

	$\delta^{13}\text{CPDB}$ (‰)	$\delta^{18}\text{OPDB}$ (‰)
GAS 1 (248 ppm)		
0~27%	-24.66 ± 0.02	-3.33 ± 0.02
27~65%	-24.69 ± 0.02	-3.34 ± 0.03
65~100%	-24.71 ± 0.03	-3.34 ± 0.04
GAS 2 (444 ppm)		
0~30%	-24.75 ± 0.03	-3.39 ± 0.02
30~65%	-24.73 ± 0.02	-3.38 ± 0.03
65~100%	-24.72 ± 0.01	-3.35 ± 0.04

二酸化炭素の濃度を大気水圏科学研究所に設置のLI-6262 (NDIR・非分散赤外線吸収法) により測定した後, 試料ガスを真空ライン (図1) へ導入して二酸化炭素を分離し, ガス型の質量分析計で $\delta^{13}\text{C}$ を測定した. 測定の条件と測定結果を表2と図2へ示す.

バックの中の二酸化炭素は, 導入されたボンベガスと実験室内の空気が交換していくにつれて, 濃度と $\delta^{13}\text{C}$ が変化していくと考えられる. このような交換が起これば, 変化したバック内の二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ は, バックを放置した実験室の値とボンベガスの値を結んだ直線付近にプロットされるはずであり, 本研究の結果もそのような傾向を示している. 今回の実験では実験室内の空気の測定を1回のみしか行っていない. 実際の実験室内の二酸化炭素の濃度や $\delta^{13}\text{C}$ は大きな範囲で変動していると思われる. これが, バック内部のガスの変動に若干のばらつきが見られる理由であると考えられる. 同じテドラーバック

表2 バックの気体保持能力の検証測定における条件設定

バックの種類	Capping tubeの種類	放置日数
テドラーバック (1リットル)	シリコンチューブ	1
テドラーバック (1リットル)	ファーマドチューブ	1
テドラーバック (1リットル)	シリコンチューブ	2
テドラーバック (10リットル)	ファーマドチューブ	2
テドラーバック (10リットル)	ファーマドチューブ	4
テドラーバック (10リットル)	ファーマドチューブ	7
アルミバック (10リットル)	ファーマドチューブ	10

クであっても、ふたをするためのチューブをシリコンチューブからファームドチューブにすることで、ガスの保持能力は飛躍的に増大した。テドラーバックとアルミバックを比較すると、アルミバックの方が気体保持の能力が高い。今回の実験では、二酸化炭素の濃度や $\delta^{13}\text{C}$ がバックの外のものと比較して大きく異なる値をとるガスを導入している。実際の試料の場合でのバックの内外のガス交換による影響は、今回の実験のものより十分に低いと思われ、観測に使用することに差し支えがないものと考える。

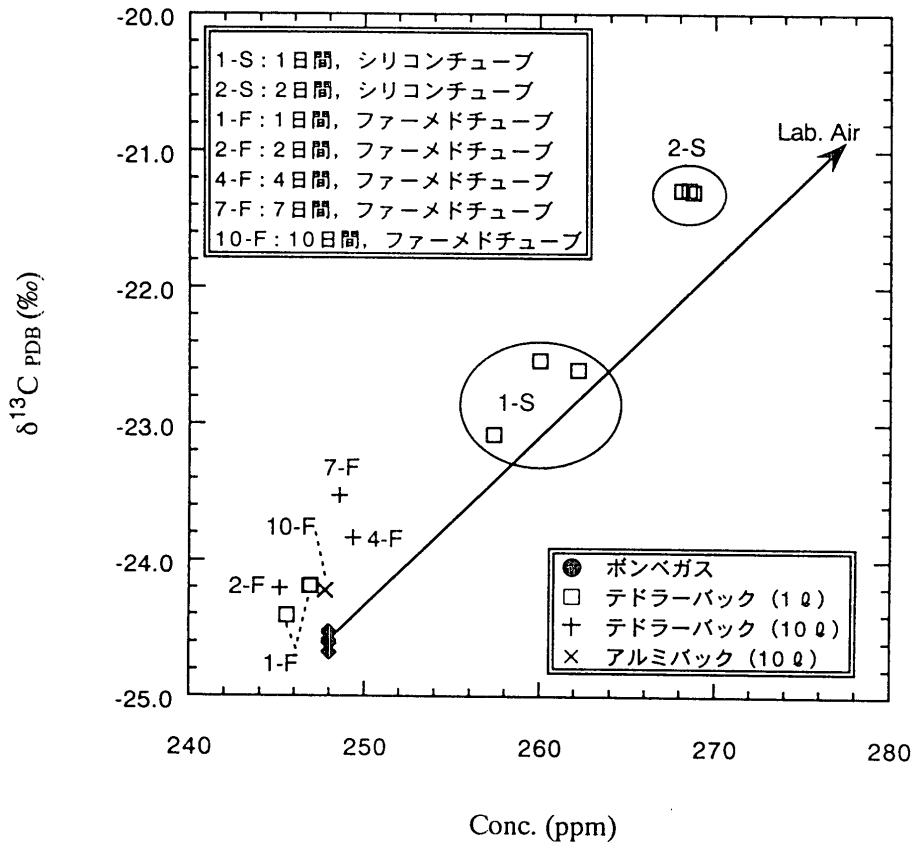


図2 バックとキャッピングチューブの種類による二酸化炭素濃度と炭素同位体比の変化

林地における観測

名古屋大学構内の二次林内にある観測タワー（図3）の最上部（21m）から大気をダイヤフラムポンプを用いて低速で吸引し、アルミバック（20リットル）に捕集した。大気のサンプリングは日の出から日の入りの日中のみ行っている。観測は1998年6月27日～1999年2月5日まで行った。

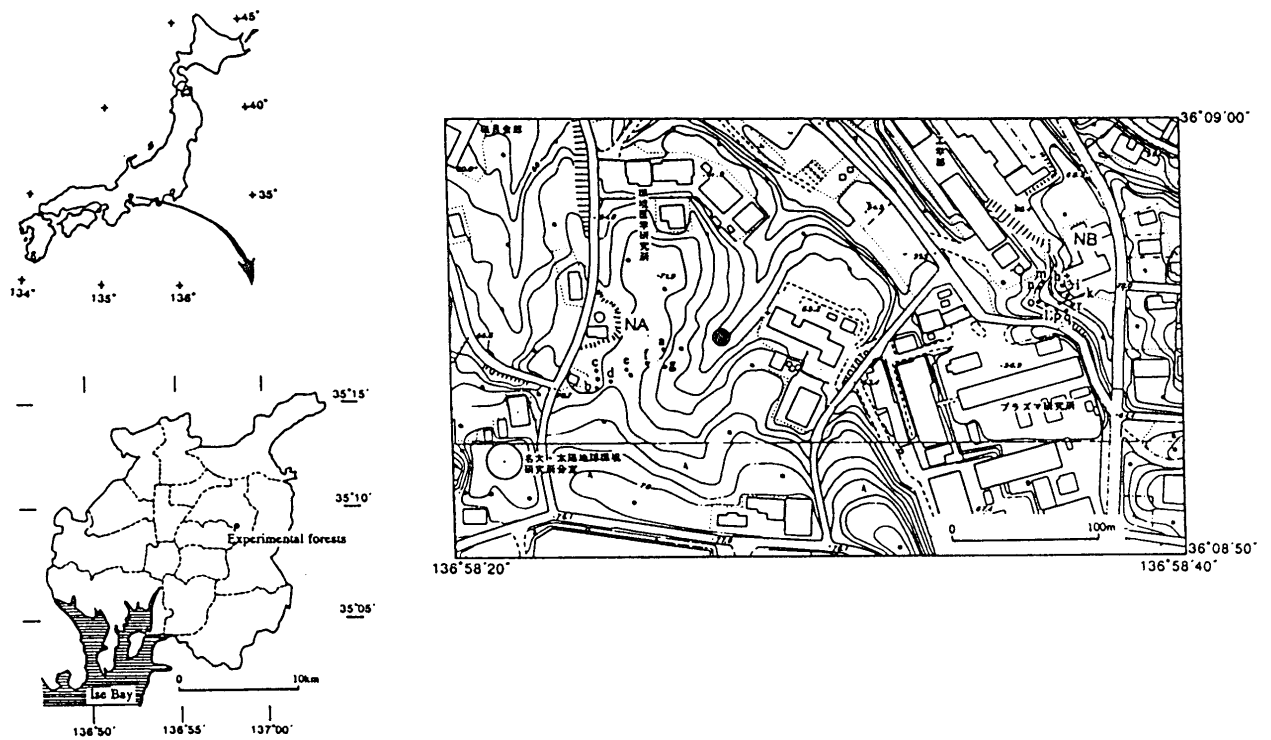


図3 大気のサンプリング地点 (●)

サンプリング後、濃度を大気水圏科学研究所に設置のLI-6262 (1998年11月5日まで) と年代測定資料研究センター設置のLI-6252 (1998年11月10日から) により測定したのち、大気を真空ラインへ導入して二酸化炭素を分離し、ガス型の質量分析計で同位体比を測定した。樹冠上部の大気中の二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の変化を図4へ示す。一般に、大気中の二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の間には逆相関の関係があり、本研究の測定結果もその傾向を示している (図5)。図4に示すように大気中の二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の変化は、なめらかな季節変動を示さずに、観測期間を通じてほぼ一定な値を示す。林地における二酸化炭素の放出と吸収は、夏期に強くなるが相対的に見ると吸収が放出を上回ると考えられる。しかしながら、今回観測された二酸化炭素の濃度や $\delta^{13}\text{C}$ に大きな季節変動が見られないため、植生の影響より人為起源の二酸化炭素の影響を強く受けていると考えられる。

図5に大気中の二酸化炭素の濃度の逆数と $\delta^{13}\text{C}$ の関係を示す (相関係数=0.87)。このときの切片が大気に付加された二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ を示すことが知られている (Keeling, 1958)。これを数式化したものが式(1)となる。

$$\delta^{13}\text{C} = I(^{13}\text{C}) + M / (\text{CO}_2) \quad (1)$$

このとき、 M は定数で $I(^{13}\text{C})$ は大気に付加された二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ 、 (CO_2) は大気中の二酸化炭素の濃度である。これを本研究の結果に当てはめて、大気に付加された二酸化炭素の

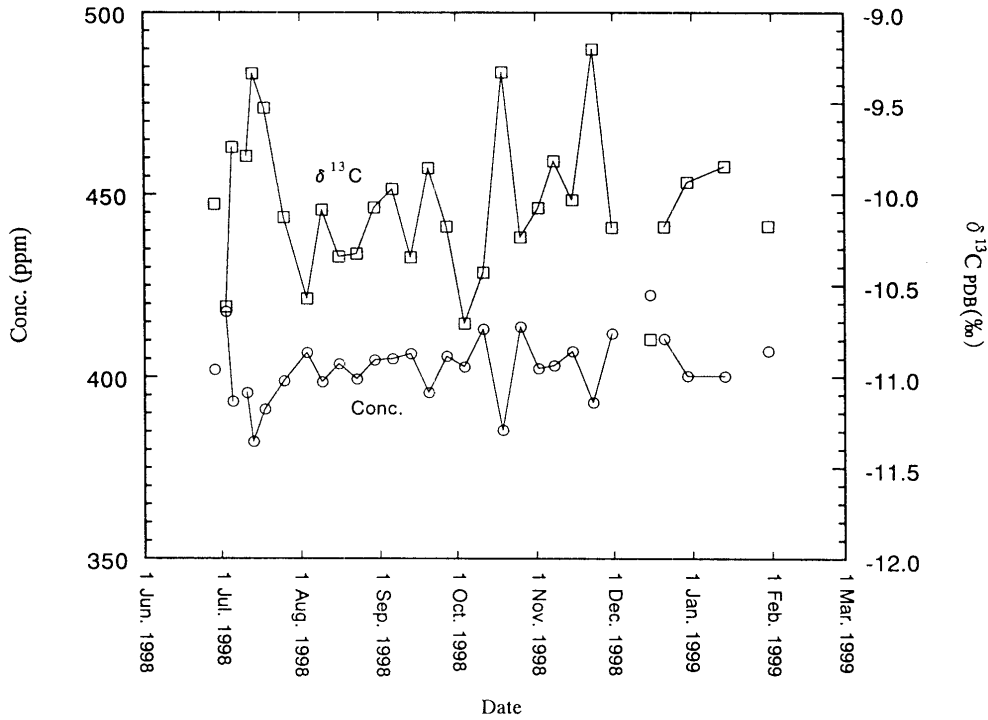


図4 都市2次林上空における二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の変化

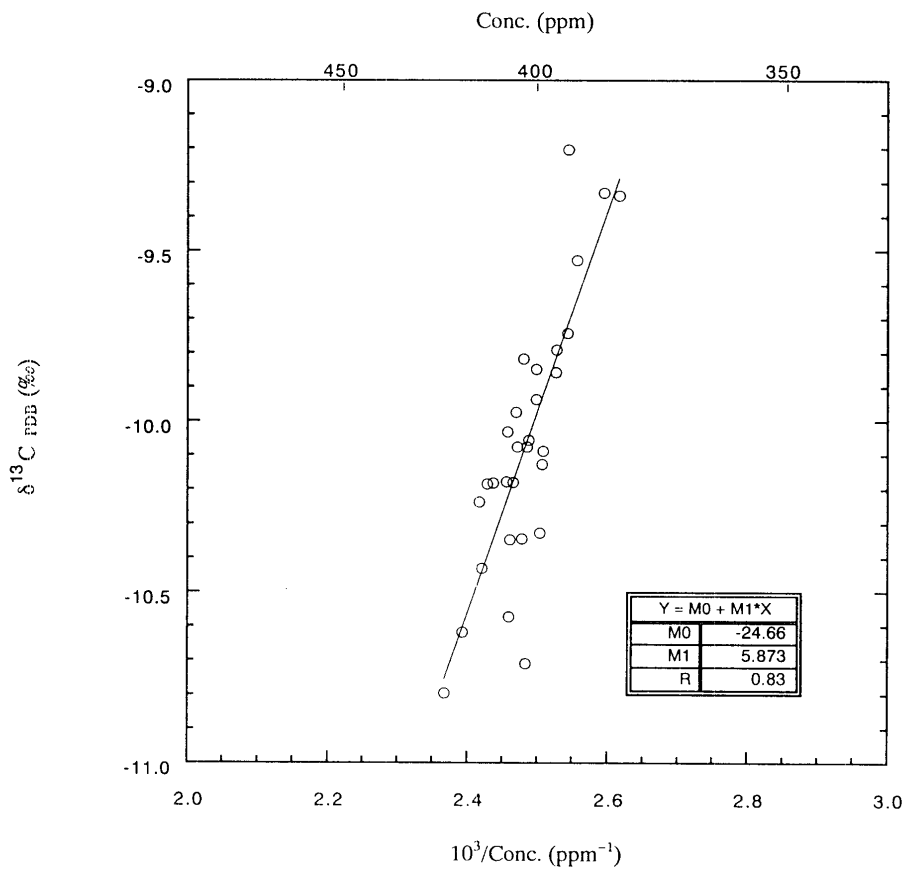


図5 都市2次林上空における二酸化炭素の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の関係

$\delta^{13}\text{C}$ を計算すると式(2)となる。

$$\delta^{13}\text{C} = -24.66 + 5873/(\text{CO}_2) \quad (2)$$

よって、大気に付加された二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ は-24.7‰であったことが推定される。この値は青木他(1998)に示された1997年度の推定と同様な結果である。

このようにして推定された端成分としての二酸化炭素は、土壌呼吸起源と化石燃料の消費のような人為起源による放出と光合成による負の放出が混合した結果である。土壌呼吸と化石燃料機嫌の二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ はほぼ等しいと考えられることや、土壌呼吸により放出される二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ は、土壌中に含まれる有機物の $\delta^{13}\text{C}$ に等しいと考えられる。従って、このような関係から光合成の寄与を把握することが困難である。本研究で採られた二酸化炭素はすべて $\Delta^{14}\text{C}$ 測定用に試料ガスとして保管されている。年代測定資料研究センターに設置された第2世代のタンデトロン加速器の稼働を待って測定を行う計画である。これによりまず、人為起源の二酸化炭素の寄与を把握することが可能となると期待される。

謝辞

本研究におけるサンプリング装置の設置に当たり、橋本 哲博士(名古屋大学大気水圏科学研究所・COE研究員)の協力を得たことに、謝意を表す。本稿は、平成10年度の笹川科学研究助成により得た研究成果の一部をまとめたものである。

引用文献

- 青木 浩・吉田尚弘・中村俊夫(1998) 名古屋市東部における大気中の二酸化炭素の濃度と同位体比の変化 名古屋大学加速器質量分析計業績報告書, **9**, 171-178.
- Keeling, C. D. (1958) The concentration and isotopic abundance of atmospheric carbon dioxide in rural areas. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **13**, 322-334.

Concentration and carbon isotopic ratio of the atmospheric carbon dioxide in Nagoya City (II)

Hiroshi Aoki TAKAHASHI

Earth and Planetary Sciences, Graduate School of Science, Nagoya University

abstract

In order to understanding about the effect of forest to the movement of carbon in the ecosystem, concentration and carbon isotopic ratio of carbon dioxide of urban air was measured. The basic measurements about atmospheric carbon dioxide analysis were also presented in this study. The weekly or bi-weekly averaged air samples wear taken into Tedler bag made of polyester film over the canopy of a mixed secondary forest in Nagoya City, central Japan. The experimental term is June 27, 1998 to February 5, 1989.

The concentration and carbon isotopic ratio of atmospheric carbon dioxide show a negative correlation and range from 382 ppm to 424 ppm and from -10.8 ‰ to -9.2 ‰, respectively. The carbon isotopic ratio of carbon dioxide added as an end member of mixing to initial air are estimated to -24.7 ‰. This values are consist with that of the interval from summer to winter in 1997.

学会等発表

高橋 浩・高橋厚裕・木平英一・南 雅代・檜山哲哉・中村俊夫・吉田尚弘 「都市二次林における大気中の二酸化炭素の炭素同位体組成の変化」 日本地球化学会.
1998年10月. 九州大学