

4. 大気成分の観測

—大気成分変動の研究と航空機観測への期待—

吉田 尚 弘*

1. はじめに

社会的にも広く関心を集めるようになった地球変化は、おもに大気成分の変動によって、引き起こされていることには異論がない。しかしながら、大気成分の変動が何によっているのかを理解するためには、大気成分の起源と循環の全体像が描かれなければならない。そのためには、(a) 大気・海洋・陸域の各サブシステムにおける、各大気成分が関わる循環プロセス、(b) 各循環プロセス間の相互作用、(c) サブシステム間の相互作用、という各レベルにおいて、現象の認識が深められ、集積されていかなければならない。

地球変化の将来予測の基礎となるべき観測についても、最近でこそ比較的多種の大気成分が観測されるようになったが、後述する同位体を含めて、十分な観測がなされていないというのが現状である。重要な大気成分について、濃度、フラックス、同位体比がセットで観測されるようになると、循環の理解が格段に進むと考えられる。このような状況の中で、大気化学成分の観測、とくに航空機による観測は非常に重要である。

2. 大気成分の変動

第1表 (吉田・和田 (1990) に加筆修正) に地表付近の平均大気組成と各成分の循環過程を示した。表の H_2O 以外は乾燥大気中の地表付近の濃度、 H_2O は湿潤大気中の対流圏内平均濃度を示している。また、希ガスを除く H_2O 以下の成分は、地域的、季節的および鉛直的変動があるので、1990年時点における全球平均として示している。1ppb を下回る大気成分については、主な生成源は自然か人工起源かを示し、消滅先はほとんど物理・化学過程なので反応の場を示した。対流圏ではおもに OH などのオキシダントとの反応で

消滅し、成層圏と電離圏では主に光分解で消滅する。

結果として現れている地球変化は、これら大気成分の変動によるわけであるが、大気成分によって、変動のモードが異なっている。大別すると、次のような変動の現象が、上述した (a), (b), (c) の各レベルを通して、解明されなければならない。(1) 成層圏オゾンの変動と、その消長に關与する大気成分の変動、(2) 気候変動の主体ともなる水蒸気の循環の変動、(3) CO_2 、メタン、 N_2O などの温室効果ガスの変動、(4) 対流圏オゾン、OH、 H_2O_2 などのオキシダントの変動、(5) エーロゾルの変動。さらに、これらの大気成分の循環は相互に關係しているので、その相互作用についても解きほぐされなければならない。

最近進められているそのような研究のよい例として、酸素の例があげられる。酸素の循環は、1000万年程度の地質学的サイクルと約2000年の生物地球化学的サイクルから成り立っている。産業革命以降の化石燃料の燃焼により、 CO_2 が増加しているが、この増加に見合う (実際には三倍の変動量の) 減少が理論的には予想されていた。しかしながら、その変動量 (数 ppm/yr) があまりにも大気濃度 (210×10^3 ppm) に比べて小さいので、計測は $\pm 10^{-5}$ の精度が要求され、測定が試みられることすらなかった。近年、Keeling and Shertz (1992) や、Bender *et al.* (1996) によって測定が進められ、第1図 (Keeling and Shertz, 1992) に示されるように、 CO_2 の循環に関する大きな制限要素を与えつつある。

3. 水循環と物質循環の相互作用としての温室効果ガスの循環

大気水圏において、水と水以外の物質のサイクルは、相互に深く関わっている。第1表中に乾燥大気の成分に加えて、わざわざ水蒸気の全球平均値を与えているのは、第4の主要成分であることに加えて、その変動が地

* 名古屋大学大気水圏科学研究所。

© 1997 日本気象学会

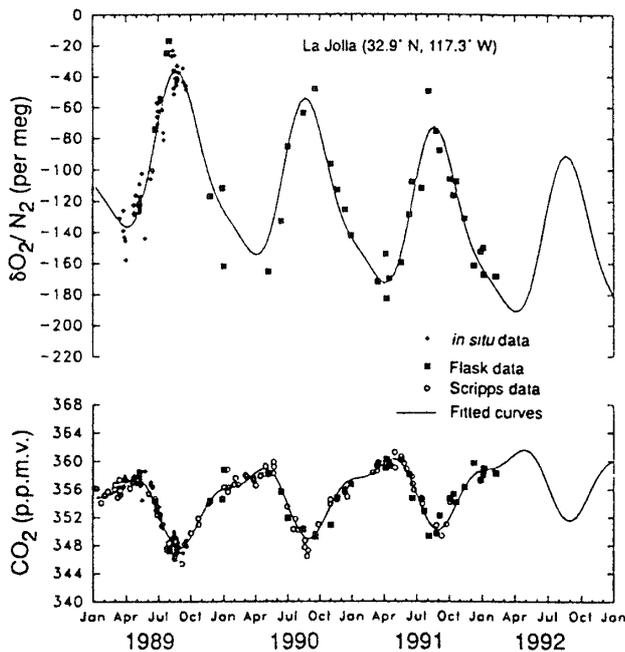
第 1 表 地表付近の1990年における全球平均大気組成と循環過程.

成分	濃度/体積 ppb	平均滞留時間/年	主な生成源	主な消滅先
N ₂	780.84×10 ⁶	2×10 ⁷	生物過程	生物過程
O ₂	209.46×10 ⁶	2.2×10 ³	生物過程	生物過程
Ar	9.34×10 ⁶	—	物理・化学過程	なし
H ₂ O	4.83×10 ⁶	0.03	物理・化学過程	物理・化学過程
CO ₂	350×10 ³	~2	生物過程	生物過程
Ne	18.18×10 ³	—	物理・化学過程	なし
He	5.24×10 ³	3×10 ⁷	物理・化学過程	物理・化学過程
CH ₄	1.65×10 ³	5~10	生物過程	物理・化学過程
Kr	1.14×10 ³	—	物理・化学過程	なし
H ₂	560	~2	生物過程	生物過程
N ₂ O	310	100~120	生物過程	生物過程
CO	90	0.3	物理・化学過程	物理・化学過程
Xe	87	—	物理・化学過程	なし
O ₃	25	0.1~0.3	物理・化学過程	物理・化学過程
NH ₃	1	0.01	生物過程	物理・化学過程
NO, NO ₂	0.05	10 ⁻³	人工	対流圏
COS	0.52	~1	人工	対流圏
CS ₂	0.05	~1	人工	対流圏
SO ₂	0.1	10 ⁻³	人工	対流圏
H ₂ S	0.05	10 ⁻³	自然	対流圏
CF ₄	0.1	>500	人工	電離圏
C ₂ F ₆	0.01	>500	人工	電離圏
SF ₆	0.001	>500	人工	電離圏
CClF ₃	0.01	400	人工	成層圏
CCl ₂ F ₂	0.3	110	人工	成層圏
CHClF ₂	0.1	20	人工	対流圏
CCl ₃ F	0.2	65	人工	成層圏
CF ₃ CF ₂ Cl	0.01	380	人工	成層圏
CClF ₂ CClF ₂	0.02	180	人工	成層圏
CCl ₂ FCClF ₂	0.03	90	人工	成層圏
CH ₃ Cl	0.6	1.5	自然	対流圏
CH ₂ Cl ₂	0.03	0.6	人工	対流圏
CHCl ₃	0.01	0.7	人工	対流圏
CCl ₄	0.1	~40	人工	成層圏
CH ₂ ClCH ₂ Cl	0.03	0.4	人工	対流圏
CH ₃ CCl ₃	0.1	8	人工	対流圏
C ₂ HCl ₃	0.01	0.02	人工	対流圏
C ₂ Cl ₄	0.03	0.5	人工	対流圏
CH ₃ Br	0.01	2	自然	対流圏
CBrF ₃	0.001	100	人工	成層圏
CH ₂ BrCH ₂ Br	0.02	0.4	人工	対流圏
CH ₃ I	0.002	0.02	自然	対流圏
C ₂ H ₆	0.8	0.3	自然	対流圏
C ₂ H ₂	0.1	0.3	人工	対流圏
C ₃ H ₈	0.05	0.03	自然	対流圏
HCHO	0.2	10 ⁻³	自然	対流圏
CH ₃ CHO	0.02	10 ⁻³	自然	対流圏

球変化に与える影響の大きさを考慮してのことである。水蒸気の起源と輸送変質過程は、それ自体、大気水圏科学の基本的命題で古くて新しい問題である。水蒸気の循環の変動としての、乾湿が陸域および海洋の物質循環系に影響を与え、その結果、温室効果ガスの

循環に変動を与える。

一方、CO₂、メタン、N₂Oなどの温室効果ガス分子を構成する水素・酸素はまさに水を構成する元素である。したがって、第2図に示したように、温室効果ガスの水素・酸素同位体組成は、環境水の同位体組成と深



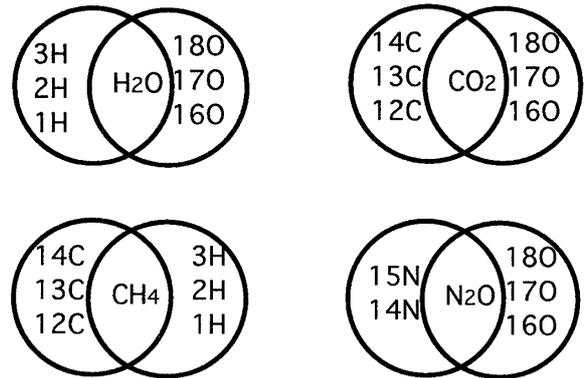
第1図 La Jolla における O₂/N₂ 比と CO₂ 濃度の変動 (Keeling and Shertz, 1992).

く関わっている。環境水の同位体比は、その起源となる水蒸気・降水の挙動を反映して、一般に低緯度から高緯度に向けて低下する傾向がある。温室効果気体の活発なソースとシンクである、熱帯と寒帯の陸域生態系において環境水の酸素・水素安定同位体組成は顕著に異なっている。したがって、温室効果ガスの酸素・水素安定同位体比は、循環過程の活発な場について、緯度方向の有用な情報を与えることが期待される。

このように温室効果気体とその起源物質の同位体比は、一般に大気・海洋・陸域生態系の各サブシステムで非常に異なっており、温室効果気体が生成・消滅あるいはサブシステム間で交換する際に大きな同位体分別を受ける。したがって、温室効果気体のソース、シンクの強度、交換のフラックスを評価する際に重要なパラメータとなる。

4. アイソトポマーの計測

前項で示した同位体を用いた解析のように、地球変化を引き起こす物質循環の量的変動の中身を理解するには、環境物質の質的情報を得ることが重要である。環境物質の主要構成成分である生元素には、¹H, ²H, ¹²C, ¹³C, ¹⁴N, ¹⁵N, ¹⁶O, ¹⁷O, ¹⁸O, ³²S, ³⁴S など種々の安定同位体と、³H, ¹⁴C などの宇宙線起源放射性同位体がある比率で存在している。環境物質のアイソトポマー(同位体を含む分子種)も同位体のある自然存在比で分



第2図 水蒸気, 温室効果気体の構成同位体.

子内に包含している。アイソトポマーを構成している同位体は同一元素であれば、化学的挙動がほぼ同一であるため、元素内トレーサーとして、環境物質の質的情報、即ち、(1) 起源物質は何で、その同位体組成はいくらか、(2) どのような環境で生成されたか、(3) 生成後にどのように変質したか、(4) どのような過程で、どのような環境で消滅しているのか、といった複雑な履歴を記録している。

これまで環境物質は、概ね混合物あるいは分子全体について、単一元素の同位体比を精密に(安定同位体については、0.01~4%程度の同位体自然存在比を±10⁻⁴の高精度で)計測し、解析するにとどまっていた。濃度のみを計測する解析法と比較すれば、このレベルでも、定量的な質的情報を加えているという点で、次元上位の解析法といえる。著者らは、さらに高次の解析法として、分子内の同位体分布を縦糸とし、多元素の同位体を横糸として構成されている、環境物質の豊富な履歴情報のほとんど全てを引き出す新しい方法論を創出することを目指している。現在、アイソトポマーの計測による環境物質の循環の解明を目指して、5年計画の研究計画を練っている。計画では、新たな計測器の開発により、まず、航空機により、採取された試料を地上のラボで精密に測定することから始める。将来的には、計測可能な化学種については、航空機搭載型の計測器を開発し、in situ の観測を可能にしたいと考えている。

5. 大気成分変動の研究に果たす航空機観測の役割

地上、船舶、気球、飛行船、航空機、衛星など様々なプラットフォームの中で、航空機観測が、大気成分変動の研究に果たす役割は大変大きい。概略は、地上と衛星の中間的なプラットフォームであることに間違

いがないが、航空機でなければなし得ない観測もある。観測でカバーする面積が $10^3 \sim 10^6 \text{km}^2$ 、時間が数時間から数十時間で、細かな時空間分解能をもち、広範にわたる観測が可能である。高速であることは、前述した観測したい目的の分子種により、一長一短がある。この分野でも先導的な役割を果たすアメリカにおいては、NASA の ER-2, DC-8, P-3に加えて、NCAR で計画・開発中の成層圏高度の観測が可能で、WB-57F や無人航空機 UAV が大気成分の観測に利用されている。翻って、観測用の航空機をいまだに持っていないわが国においては、散発的に、しかしながら頻りに観測が行われている。また、地道であるが、この欠点を乗り越える試みとして、航空路線の定期航路を利用して一定時間間隔で試料を採取する観測も進められており、対象によっては非常に有効な観測となっている。

大気成分変動の研究に果たす航空機観測の役割として、大きく、in situ 計測と試料採取があげられる。これまで、航空機搭載の観測器としては、圧倒的に物理計測関係が進んでおり、化学計測器は非常に限られた分子種にのみ有効であった。このような中で、最近、OH, HO₂, RO₂ (R は炭化水素) や NO, NO₂ や, ClO などの高感度測定器が開発されるようになった。しかし、まだまだ、多くの大気成分については、in situ 計測は不可能で、かなりの大気成分については、航空機により、試料を採取して、地上の実験室において、精密な測定をすることが必要である。

温室効果ガスについては、残念ながら、CO₂ にとって、よい計測器である NDIR (非分散型赤外分光分析計) と同様な計測器がメタン, N₂O についてはない。これらは現状では試料採取して持ち帰り、ラボで FID

(水素炎イオン化検出器)あるいは ECD (電子捕獲検出器) のガスクロマトグラフにより濃度測定するより他はない。FT-IR (フーリエ変換赤外分光分析計) あるいは、現在検討中の航空機搭載型近赤外レーザー分光器により、濃度の測定が可能となると、飛躍的にこれらの化学種のサイクルの解明が進むはずである。また、質量分析計も地道な進歩の結果、100ccSTP (標準状態) 程度の大気が試料採取されれば、同位体比が測定可能となってきている。

このように、航空機観測による大気成分の変動の研究は、大変遅い歩みであるが、この数年間とこれからの数年間に比較的大きな進歩が期待される。以上述べてきたように、重要な大気成分について、濃度、フラックス、同位体、そしてさらにアイソトポマーの、広い時空間における計測が航空機観測により、行われるようになることを期待してやまない。

なお、本研究の一部は、科学技術振興事業団の戦略的基礎研究に平成8年度より採択され、5年間の研究計画の中で進行中である。

参 考 文 献

- 吉田尚弘, 和田英太郎, 1990: 大気の化学 (日本化学会編), 学会出版センター, 46-61.
- Bender, M., T. Ellis, P. Tans, R. Francey and D. Lowe, 1996: Variability in the O₂/N₂ ratio of southern hemisphere air, 1991-1994: Implications for the carbon cycle, *Global Biogeochem. Cycles*, **10**, 9-21.
- Keeling, R. F. and S. Sherts, 1992: Seasonal and inter-annual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle, *Nature*, **358**, 723-727.