

# 日本上空の対流圏における CO<sub>2</sub> の炭素同位体比の変動

—1995年度山本・正野論文賞受賞記念講演—

森 本 真 司\*

## 1. はじめに

この度は平成7年度の山本・正野論文賞を頂き、誠にありがとうございました。受賞の知らせは、私が第36次南極地域観測隊の一員として南極昭和基地で越冬中に受け取りました。刺激の少ない環境の中で、受賞を伝える「天気」のコピーは越冬後半を乗り切る大きな励みとなりました。

受賞対象となりました論文 (Nakazawa *et al.*, 1993) は、重要な温室効果気体である CO<sub>2</sub> の炭素同位体比を観測することにより、CO<sub>2</sub> の地球規模の循環について調べたものです。

皆様ご存じの通り、氷床コア中の気泡の分析 (Neftel *et al.*, 1985) 及び1958年から開始されたハワイ・マウナロア観測所での連続観測 (Keeling *et al.*, 1989) は、人間活動が活発になる前の大気中の CO<sub>2</sub> 濃度が約 280 ppmv であったこと、そして産業革命以降その濃度が年々急激に増加していることを明らかにしました。このような大気中の CO<sub>2</sub> 濃度の増加は、温室効果の強化による気候変動を引き起こすと懸念されています。将来の濃度予測を行う上での基礎的な知見を得るために、1970年代中葉から世界各地で大気中の CO<sub>2</sub> 濃度の観測が始められました。その結果、現在では60近くの観測点が設けられ、地球表層での炭素循環を調べる上で重要なデータが得られています (Boden *et al.*, 1992)。しかしながら、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度データのみからは地球表層での巨大な炭素リザーバーである陸上植物と海洋の寄与を分離出来ないため、CO<sub>2</sub> の放出源・吸収源の情報を持つ炭素同位体比の観測が求められていました。(Pearman and Hyson, 1986; Tans *et al.*, 1989)。

天然の炭素には、質量数が12と13の安定同位体が存在します。それぞれの同位体に対応して CO<sub>2</sub> にも質量数12の炭素を含むもの (<sup>12</sup>CO<sub>2</sub>) と13の炭素を含むもの (<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>) が存在し、その存在比はおおよそ0.989 : 0.011になっています。慣例として、試料中 (sample) の炭素同位体比は (1) 式のように表現されます。

$$\delta^{13}\text{C} = \left\{ \frac{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{sample}}}{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{standard}}} - 1 \right\} \times 1000 (\text{‰}) \quad (1)$$

ここで、分母の標準物質 (standard) としては、米国サウスカロライナ州 PeeDee 層から産出された矢石化石 (PDB) が用いられています。この表記法を用いると、現在の大气、表層海洋、そして陸上植物に含まれる炭素の  $\delta^{13}\text{C}$  は、それぞれ約-8, 1.5, -25‰になります。また、化石燃料消費によって大気中に放出される CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  は約-27‰と見積もられています (Tans, 1981)<sup>1)</sup>。質量数の異なる CO<sub>2</sub> は、その物理的・化学的性質が多少異なるために、大気と各炭素リザーバー間で CO<sub>2</sub> が交換される際には大気中の CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  が変化します。大気-陸上植物間で CO<sub>2</sub> が交換される時には、大気中の CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  は単位濃度あたり -0.05‰/ppmv だけ変化しますが、大気-表層海洋間で CO<sub>2</sub> が交換される時には、この変化率は1桁小さくなります (Siegenthaler and Münnich, 1981)。以上のことを考慮すると、大気中の CO<sub>2</sub> の炭素同位体比を精密に観測することによって、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度の変動に対する陸上植物と海洋の寄与を分離できると考えられます。

世界で最初に大気中の CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  の系統的な観測を始めたのは、マウナロア・南極点で CO<sub>2</sub> 濃度の観測を行っていた C. D. Keeling のグループでした (Mook

\* 国立極地研究所北極圏環境研究センター。

—1996年11月7日受領—

—1997年1月29日受理—

<sup>1)</sup>最近, Andres *et al.* (1993) によって約-28‰という見積りが提出された。

*et al.*, 1983; Keeling *et al.*, 1984). 彼らは, アラスカ・バーロー岬から南極点までの4つの観測地点及び東太平洋の船上で得られた大気試料を分析することにより, 中部太平洋の赤道域の海洋から CO<sub>2</sub> が放出されていることを明らかにしました. その後, 1983年から R. J. Francey らがオーストラリア・ケープグリムをはじめとする4つの地上観測点で  $\delta^{13}\text{C}$  の観測を開始しました (Francey, 1985; Francey *et al.*, 1990). 以上の2つのグループは現在まで観測を継続しています. しかし, 全球の  $\delta^{13}\text{C}$  の分布と変動を把握するためには, 未だ十分なデータが蓄積されているとはいえません.

東北大学のグループは, これまでデータの空白域であった日本上空で1979年より航空機を用いて CO<sub>2</sub> 濃度の観測を開始しました. さらに, 1982年からは西太平洋域で船舶を用いた同様の観測を開始しました (中澤, 1989). その後1984年からは, 採取した大気試料から CO<sub>2</sub> を抽出し,  $\delta^{13}\text{C}$  測定のために保存してきました. 本研究では, これら CO<sub>2</sub> 試料の  $\delta^{13}\text{C}$  を分析することにより, 日本上空における CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  の変動の様子を明らかにし, 地球規模の炭素循環について考察を加えました.

## 2. 炭素同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ の測定

$\delta^{13}\text{C}$  の分析には, Finnigan 社製質量分析計 MAT- $\delta\text{E}$  を用いました. 同位体分析を行うためには, 質量分析計各部の調整以外に, 大気試料からの CO<sub>2</sub> の精製, 標準試料の作成, 各種補正値の導出等が必要でした.

CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  を高精度で測定するためには, 大気試料から CO<sub>2</sub> のみを分離抽出しなければなりません. そのため, 各気体成分の凝固点の違いを利用して CO<sub>2</sub> を分離するクライオジェニック法 (Keeling, 1958) を用いました. すなわち,  $-100$ 度及び $-197$ 度に冷却した2段のトラップ中に大気試料を低圧で流すことにより, 1段目のトラップには水蒸気を, 2段目のトラップには CO<sub>2</sub> を凝結させ, 純粋な CO<sub>2</sub> のみをガラス管に封入して取り出すという方法です.

質量分析計で測定できるのは試料の標準試料に対する相対的な同位体比偏差であるため, Coplen *et al.* (1983)の手順に従って, PDB に対して  $\delta^{13}\text{C}$  値の付けられた炭酸カルシウムを100%リン酸と反応させ, 得られた CO<sub>2</sub> を1次標準試料としました. 更に, 2次標準試料, 作業用標準試料を工業的に作られた CO<sub>2</sub> ガス及び大気から精製し, 1次標準試料を用いてそれぞれの

PDB に対する  $\delta^{13}\text{C}$  値を決定しました. 標準試料を数種類作成したのは, できるだけ1次標準試料の消費を抑えること, 及び標準試料の相互比較によってその安定性を確認することが目的でした. 1990年から1993年にかけて行った標準試料の相互比較の結果, 三者間の  $\delta^{13}\text{C}$  値はほとんど変化していないことを確認しています.

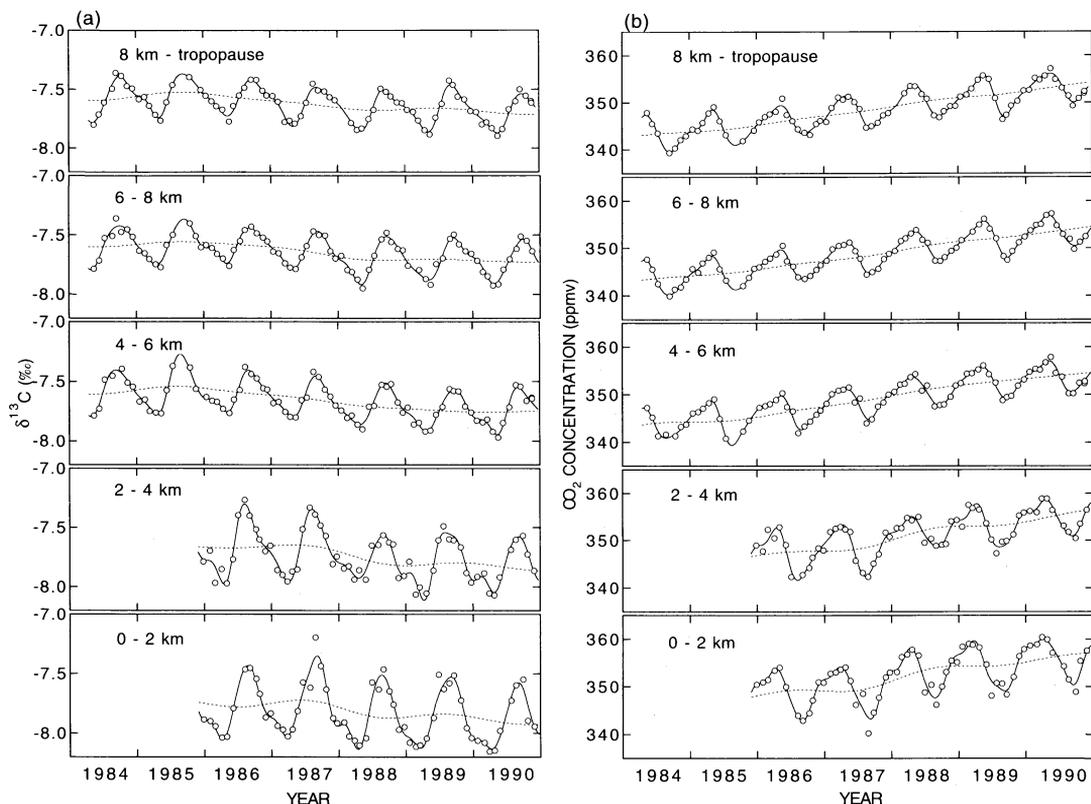
クライオジェニック法で精製した CO<sub>2</sub> 試料中には, CO<sub>2</sub> と凝固点の近い N<sub>2</sub>O が混入します. 大気中の N<sub>2</sub>O の濃度は CO<sub>2</sub> 濃度よりも3桁ほど小さいのですが, 両者の質量数が同じであるために CO<sub>2</sub> 試料に混入した N<sub>2</sub>O は CO<sub>2</sub> の同位体比を精密に測定する上での誤差要因となります. この影響を取り除くため, 質量分析計に固有の補正値を Mook and van der Hoek (1983) と同様の手法により実験的に求めました.

更に質量分析計の最適な分析条件を探した結果,  $\delta^{13}\text{C}$  の分析精度として約0.02‰を得ました. この値は他のグループの測定精度と比較して同程度あるいはそれより良くなっており, 大気中の CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  における季節変化, 経年変化及びその分布を捉えるために十分満足できる値です.

## 3. 日本上空における CO<sub>2</sub> の炭素同位体比 $\delta^{13}\text{C}$ の変動

本研究では, 1984年から1990年にかけて航空機を用いて日本上空の対流圏で採取された大気試料を用いました. 第1図aに対流圏各高度での  $\delta^{13}\text{C}$  観測値, 観測値に対するベストフィットカーブ及び経年変化を示します. また第1図bには CO<sub>2</sub> 濃度の観測値を示します. これらの図から,  $\delta^{13}\text{C}$ , CO<sub>2</sub> 濃度共に各高度で明瞭な季節変化を示すこと, そして CO<sub>2</sub> 濃度が年々増加する一方で,  $\delta^{13}\text{C}$  は経年的に減少していることがわかります.

まず, 季節変化について詳しく見ていきます. 対流圏各高度の CO<sub>2</sub> 濃度,  $\delta^{13}\text{C}$  のデータから季節変化成分のみを取り出し, 1年及び半年周期のフーリエ級数でフィッティングを行ったものを第2図に示します. CO<sub>2</sub> 濃度の季節変化は, これまで報告されているとおり, 極大値, 極小値がそれぞれ春先と初秋に出現します (Tanaka *et al.*, 1987). 一方,  $\delta^{13}\text{C}$  の季節変化は CO<sub>2</sub> 濃度の変化に非常によく対応しており, 符号のみが逆になっていることがわかります. すなわち,  $\delta^{13}\text{C}$  の極大値は初秋に, 極小値は春先に現れています. また, 季節変化の振幅が下層ほど大きいこと, 極大値・



第1図 日本上空の対流圏各高度における δ<sup>13</sup>C (a) 及び CO<sub>2</sub> 濃度 (b) の変化。白丸が観測値、実線は観測値に対するベストフィットカーブ、点線は経年変化成分を示す。

極小値が高度と共に遅れて現れる傾向があることから、季節変化を引き起こす原因が地表にあると考えられます<sup>12)</sup>。CO<sub>2</sub> 濃度と δ<sup>13</sup>C の季節変化の関係を調べるために、大気中の<sup>13</sup>CO<sub>2</sub>量の季節変化について収支式をたててみると (2) 式ようになります。

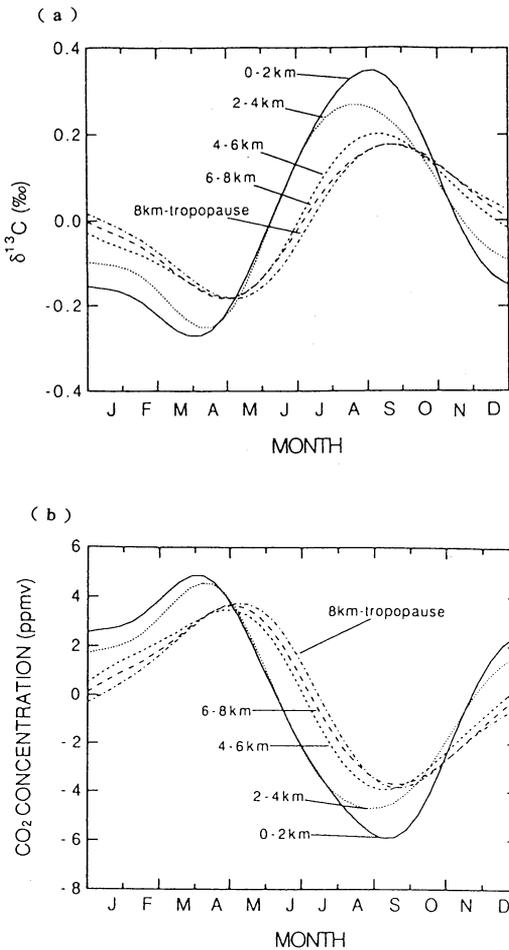
$$C\delta^{13} = C_0\delta_0^{13} + \delta_1^{13} (C - C_0) \quad (2)$$

ここで、C<sub>0</sub>、C は大気にある量の CO<sub>2</sub> が加えられる前と後の大気中の CO<sub>2</sub> 濃度 (ppmv)、δ<sub>0</sub><sup>13</sup>、δ<sub>1</sub><sup>13</sup> はそれに対応する大気中の δ<sup>13</sup>C (‰)、δ<sub>1</sub><sup>13</sup> は大気に加えられた CO<sub>2</sub> の δ<sup>13</sup>C を示します。(2) 式を C で微分することにより、

$$\frac{d\delta^{13}}{dC} = \frac{\delta_1^{13} - \delta^{13}}{C} \quad (3)$$

が得られます。(3) 式の右辺に、現在の大気中の CO<sub>2</sub> 濃度と δ<sup>13</sup>C 及び陸上植物の δ<sup>13</sup>C としてそれぞれ 350 ppmv、-7.8‰、-25‰を代入すると、大気と陸上植物の間で CO<sub>2</sub> が交換されたときの δ<sup>13</sup>C の変化率として -0.05‰/ppmv が得られます。一方、大気と表層海洋間でやりとりされる CO<sub>2</sub> の δ<sup>13</sup>C を、大気と表層海洋間における <sup>12</sup>CO<sub>2</sub> と <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> の交換速度の比 (動的同位体分別係数: Siegenthaler and Münnich, 1981) と表層海洋中の δ<sup>13</sup>C (Quay *et al.*, 1992) から計算して (3) 式に代入すると、δ<sup>13</sup>C の変化率はおよそ -0.005‰/ppmv となります。これらの値と観測値を比較するために日本上空における CO<sub>2</sub> 濃度と δ<sup>13</sup>C の季節変化の関係をプロットしたのが第3図です。この図から、両者の関係は各高度共にほぼ直線であることが分かります。最小2乗法で求めたこの直線の傾きは全ての高度で -0.05‰/ppmv であり、相関係数の大き

<sup>12)</sup> 0-2 km において δ<sup>13</sup>C の極大値及び CO<sub>2</sub> 濃度の極小値が 2-4 km よりも遅れて出現しているが、これは 0-2 km におけるデータのばらつきによると考えられる。1986~1996年のデータを解析した結果によると、季節変化の位相は対流圏最下層で最も早い。



第2図 日本上空の対流圏各高度における  $\delta^{13}\text{C}$  (a) 及び  $\text{CO}_2$  濃度 (b) の平均的な季節変化成分。

きは0.98以上でした。このことから、日本上空における  $\text{CO}_2$  濃度の季節変化は、大気と陸上植物間の  $\text{CO}_2$  交換量の変動、つまり光合成による  $\text{CO}_2$  固定量や植物の呼吸及び土壌有機物の分解による  $\text{CO}_2$  放出量の季節変化によって生じていることが分かります。

次に、 $\text{CO}_2$  濃度及び  $\delta^{13}\text{C}$  の経年変化を見ていきます。第1図から明らかなように、対流圏各高度で  $\text{CO}_2$  濃度は経年的に増加し、 $\delta^{13}\text{C}$  は減少しています。これは、化石燃料消費及び森林破壊によって  $^{12}\text{C}$  を多く含む  $\text{CO}_2$  が大気に加えられている結果と考えられます。1984年から1990年までの日本上空における  $\text{CO}_2$  濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の平均増加率は、それぞれ1.7 ppmv/年及び-0.035‰/年となっています。これらの値を用いると、経年変化成分について  $\text{CO}_2$  濃度の変化に対する  $\delta^{13}\text{C}$

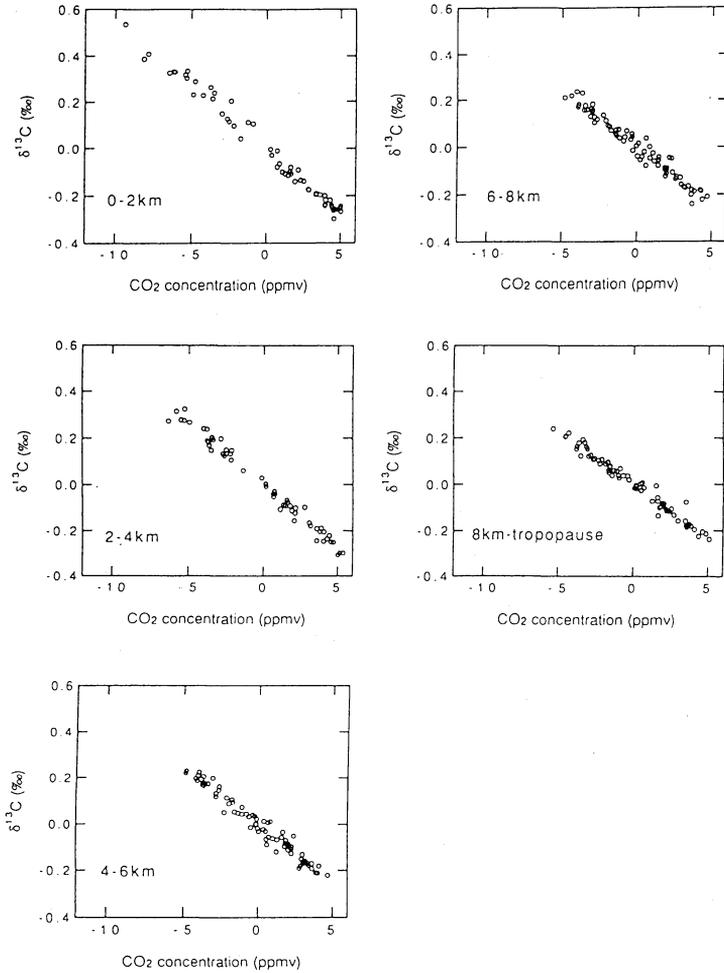
の変化率は-0.02‰/ppmvとなり、化石燃料起源の  $\text{CO}_2$  または森林破壊によって放出される  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  から(3)式によって計算される変化率、-0.05‰/ppmvよりも小さな値となります。これは、大気と表層海洋・陸上植物の間で  $^{13}\text{C}$  は非平衡状態にあり、しかも各リザーバー間の  $\text{CO}_2$  交換総量が大変大きいことに関係しています。すなわち、 $\text{CO}_2$  濃度が各リザーバー間の  $\text{CO}_2$  交換総量の差によってしか変化しないのに対し、 $\delta^{13}\text{C}$  が各リザーバー間の  $\text{CO}_2$  交換総量に応じて変化することに原因があります (Siegenthaler and Oeschger, 1987)。大気中の  $\text{CO}_2$  と  $^{13}\text{CO}_2$  の経年変化における収支を考えるとそれぞれ(4)(5)式のように表現できます。

$$\frac{dC}{dt} = F_f + F_b^{\text{net}} + F_m^{\text{net}} \quad (4)$$

$$\frac{d(C\delta)}{dt} = F_f\delta_f + F_b^{\text{net}}\delta_{ab} + F_m^{\text{net}}\delta_{am} + F_{ba}(\delta_{ba} - \delta_{ab}) + F_{ma}(\delta_{ma} - \delta_{am}) \quad (5)$$

ここで、 $C$ は大気中の  $\text{CO}_2$  濃度、 $\delta$ は  $\delta^{13}\text{C}$ 、 $F$ はリザーバー間の  $\text{CO}_2$  フラックスを、添字  $a, f, b, m$  はそれぞれ大気、化石燃料、陸上植物圏、表層海洋を示します。また、 $F_{ma}$ 、 $F_{ba}$ はそれぞれ表層海洋及び陸上植物から大気への  $\text{CO}_2$  フラックス、 $F^{\text{net}}$ は大気向きを正とした正味の  $\text{CO}_2$  フラックス、 $\delta_{ma}$ 、 $\delta_{am}$ 、 $\delta_{ba}$ 、 $\delta_{ab}$ は各リザーバー間を移動する  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  を表します。これらの関係を第4図に示します。(4)式に示されているとおり、 $\text{CO}_2$  濃度の変化は単純なソース・シンク項の足し算で表せますが、 $^{13}\text{CO}_2$  の変化を表すためにはソース・シンク項の他に(5)式の右辺第4、5項で表現される大気-陸上植物間及び大気-表層海洋間の  $^{13}\text{CO}_2$  量の非平衡による項を含める必要があります。産業革命以降の化石燃料消費及び森林破壊によって大気中の  $\text{CO}_2$  の  $\delta^{13}\text{C}$  が急激に減少したことにより、現在の大気-陸上植物間及び大気-表層海洋間の  $^{13}\text{CO}_2$  量は非平衡状態にあります。つまり、表層海洋及び陸上生物圏が吸収する  $\text{CO}_2$  よりも放出する  $\text{CO}_2$  の方が  $\delta^{13}\text{C}$  が大きいと考えられます。そのために(5)式の右辺第4、5項が正となり、化石燃料消費による大気中の  $\delta^{13}\text{C}$  の減少を緩和する方向に作用します。このことから、観測される  $\delta^{13}\text{C}$  の変化率は化石燃料消費のみを考慮した場合よりも小さくなります。

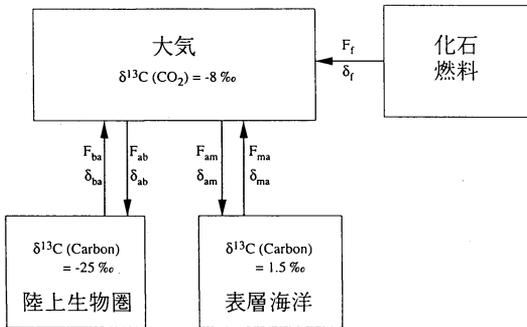
これまで世界各地で行われた  $\text{CO}_2$  濃度の観測から、 $\text{CO}_2$  濃度の経年変化には不規則な成分が含まれるこ



第3図 日本上空の対流圏各高度における CO<sub>2</sub> 濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  それぞれの季節変化成分間の関係。

と、そしてエル・ニーニョ現象に伴ってその変化率が一時的に大きくなることを見いだされています (Bacastow and Keeling, 1981; Thompson *et al.*, 1986; Conway *et al.*, 1988; Nakazawa *et al.*, 1991). 経年変化の不規則成分の位相が赤道域で最も早いこと、太平洋赤道域で顕著な海況変動が見られることなどの観測事実から、これまでは大気-海洋間の CO<sub>2</sub> 交換量の変動がその不規則成分の原因になっていると一般的に考えられていました。そこで、日本上空における CO<sub>2</sub> 濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の不規則変動の関係を詳しく調べてみました。まず観測値から季節変化成分を除去した後、低周波フィルタを用いて経年変化成分を求め、それぞれの増加率を計算しました (第5図 a, b)。第5図 b から、日本上空での CO<sub>2</sub> 濃度は単調増

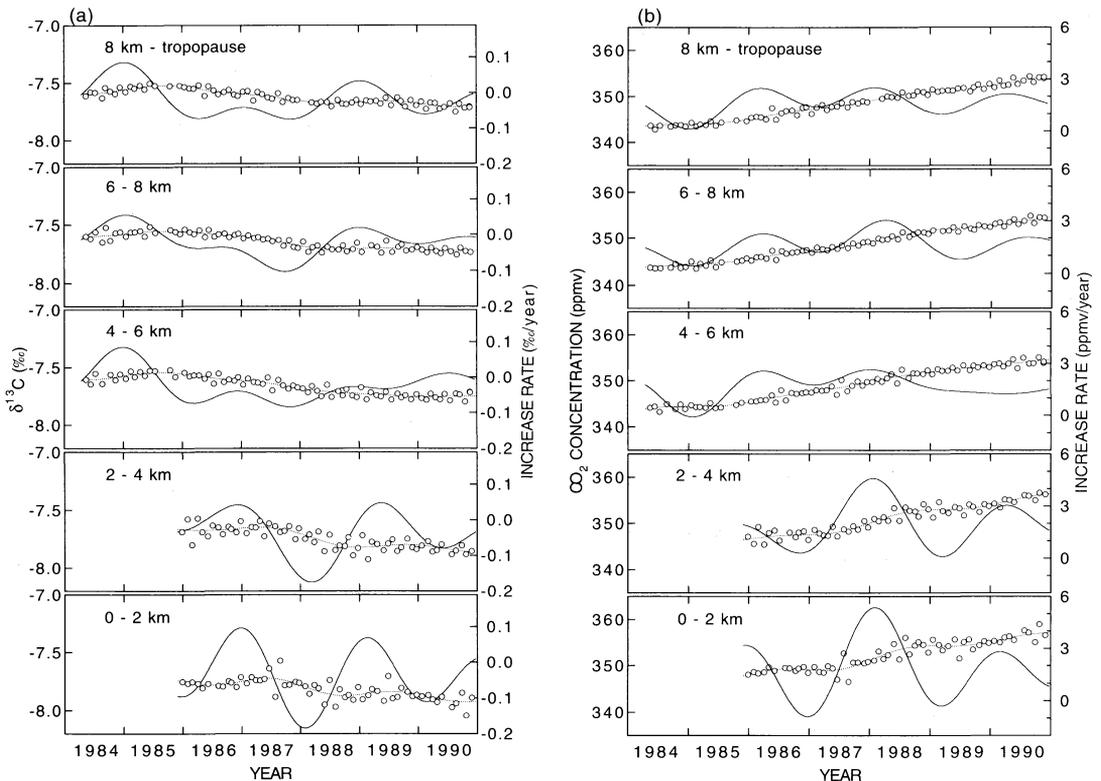
加とほぼ2年周期の変動とが重畳した変動を示しており、増加率の極大が1986年、1988年及び1990年の始めに現れていることがわかります。1988年始めの極大は、1987年に発生したエル・ニーニョ現象に対応していると考えられますが、その他の極大はエル・ニーニョ現象の発生していない時期に現れています。同様な変動は第5図 a に示した  $\delta^{13}\text{C}$  の経年変化成分にも見られ、CO<sub>2</sub> 濃度の増加率が極大を示した時に  $\delta^{13}\text{C}$  の減少率も極大を示しています。このような  $\delta^{13}\text{C}$  の経年変化の不規則変化は、ハワイ・マウナロア山、南極点 (Keeling *et al.*, 1989)、オーストラリア・ケープグリム (Francey *et al.*, 1990) での観測結果にも見られ、1987年から1988年にかけて  $\delta^{13}\text{C}$  が急減したことが報告されています。しかし、その不規則変動の振幅につ



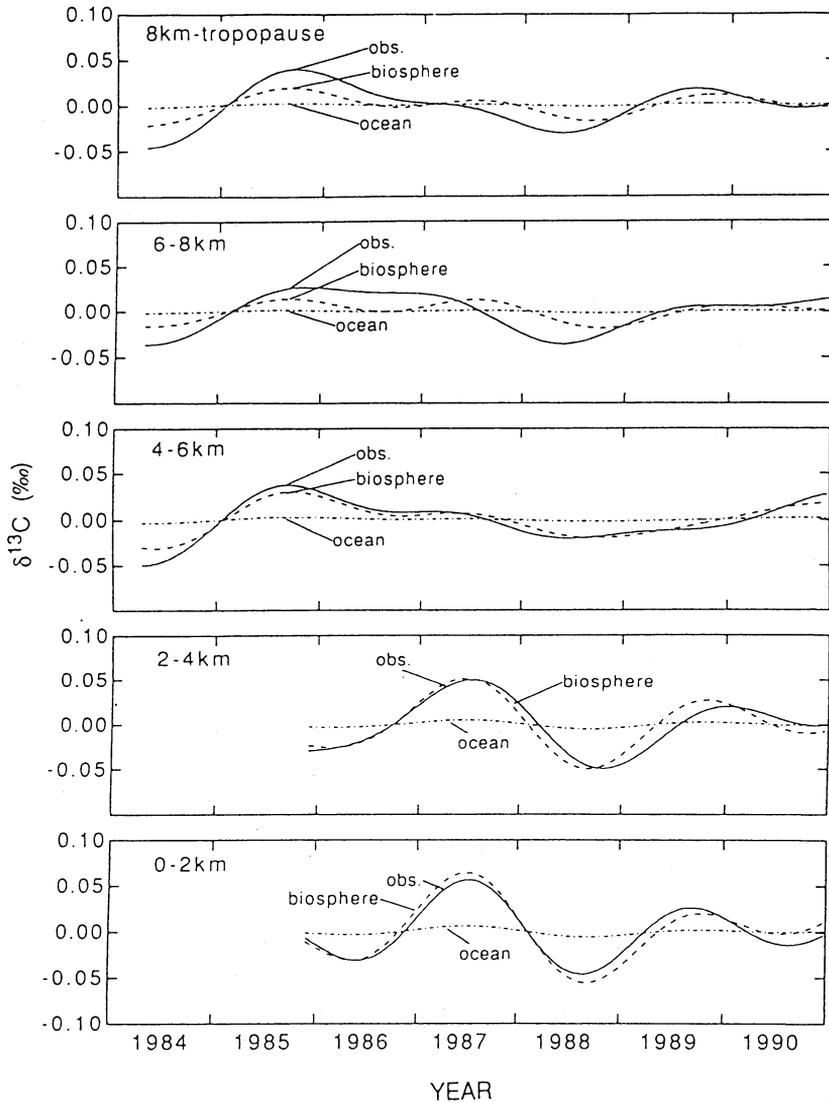
第4図 リザーバー間でやり取りされるCO<sub>2</sub> フラックス ( $F$ ) とその  $\delta^{13}\text{C}$  ( $\delta$ )。添字  $a$ ,  $f$ ,  $b$ ,  $m$  はそれぞれ大気, 化石燃料, 陸上植物圏, 表層海洋を示し, 添字の並びでCO<sub>2</sub> フラックスの方向を表している。例えば,  $F_{ma}$ ,  $\delta_{ma}$  はそれぞれ表層海洋から大気へのCO<sub>2</sub> フラックスとその  $\delta^{13}\text{C}$  を示す。

いて両者の観測結果は大きく異なっており, Keeling らによる観測結果が0.12‰程度を示しているのに対し, Francey らは0.015‰程度であったと述べています。一方, 我々の観測結果は不規則変動の振幅が0.04~0.10‰程度であったことを示しており, 上記2グループの中間の値が得られました。

次に日本上空におけるCO<sub>2</sub> 濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の不規則変動の原因を調べるために, まずそれぞれの経年変化成分から化石燃料消費とリザーバー間の同位体非平衡の寄与を取り除き, 不規則変動成分のみを取り出しました。その際に, 我々のデータ長が比較的短いこと, 化石燃料消費量が1983年以降ほぼ直線的に増加していることを考慮し, また同位体非平衡の年々変動は小さいと仮定して, 経年変化成分にカットオフ周期7年のスプライン関数<sup>13)</sup>をあてはめたものを化石燃料消費と同位体非平衡の寄与としました。そして, これを経年変化成分から差し引いたあとの残差を不規則変動成分としました。前にも述べたとおり, CO<sub>2</sub> 濃度,  $\delta^{13}\text{C}$  が現



第5図 日本上空の対流圏各高度における  $\delta^{13}\text{C}$  (a) 及びCO<sub>2</sub> 濃度 (b) の経年変動, それぞれの観測値から季節変化成分を取り除いた経年変化成分 (白丸: 縦軸左), それらのフィッティングカーブ (点線: 縦軸左) 及び推定されたそれぞれの増加率 (実線: 縦軸右)



第6図 日本上空の対流圏各高度における CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動が、表層海洋起源の CO<sub>2</sub> によって引き起こされた場合(一点鎖線)、及び陸上生物圏起源の CO<sub>2</sub> によって引き起こされた場合(破線)にそれぞれ期待される δ<sup>13</sup>C の変動と、観測値(実線)との比較。

在の値である時に、CO<sub>2</sub> 濃度の変動に対する δ<sup>13</sup>C の変化率は海洋起源及び陸上植物起源の CO<sub>2</sub> に対してそれぞれ -0.005 と -0.05‰/ppmv になります。これらの値と CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動成分を用いて、CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動がすべて海洋起源の CO<sub>2</sub> によって引

き起こされた場合と、すべて陸上植物起源の CO<sub>2</sub> によって引き起こされた場合にそれぞれ期待される δ<sup>13</sup>C の変動を計算し、観測された δ<sup>13</sup>C の変動と比較したのが第6図です。この図から、高度6 km以下では陸上植物起源の CO<sub>2</sub> を仮定して計算した δ<sup>13</sup>C の変動が、δ<sup>13</sup>C の観測値と非常に一致していることが明らかになりました。また、高度6 km以上においても陸上植物起源の CO<sub>2</sub> の寄与が非常に大きいことがわかり

<sup>13)</sup> 硬さ (stiffness) を決めるパラメータを調節し、スプライン関数にカットオフ周期7年の低周波フィルタと同様の特性を持たせた。

ます。これは、日本上空での CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動が大気と陸上植物間の CO<sub>2</sub> 交換量の変動によって引き起こされていることを示しています。したがって、このような変動は、エル・ニーニョ現象や他の要因によって生じる地球規模の気候変化が陸上植物の CO<sub>2</sub> 固定量に影響を与えたことによって引き起こされたものと考えられます。Keeling ら (1989) は、マウナロアと南極点での CO<sub>2</sub> 濃度及び  $\delta^{13}\text{C}$  の観測によって、1980、1983、1988年に CO<sub>2</sub> 濃度の急増と  $\delta^{13}\text{C}$  の急減が起こったことを発見し、これらの年に陸上植物圏起源の CO<sub>2</sub> が大気中に大量に放出されたと述べています。さらに彼らは、1983年の CO<sub>2</sub> 濃度観測データに  $\delta^{13}\text{C}$  の変動を説明できるだけの濃度上昇が見られなかったことから、陸上植物圏起源の CO<sub>2</sub> の増加と同時に海洋が大量の CO<sub>2</sub> を吸収したと主張しています。

#### 4. まとめと最近の話題

日本上空において大気中の CO<sub>2</sub> の  $\delta^{13}\text{C}$  を精密に測定することにより、CO<sub>2</sub> 濃度の変動における表層海洋と陸上植物の寄与を分離するための情報を得ることが出来ました。本研究で得た日本上空の  $\delta^{13}\text{C}$  データは、CO<sub>2</sub> 濃度の季節変化だけでなく、数年周期の不規則変動も大気-陸上植物間の CO<sub>2</sub> 交換量の変動で説明できることを示しています。また、西太平洋域における我々の  $\delta^{13}\text{C}$  の観測からも同じような結論を導きました (Nakazawa *et al.*, 1997)。しかしながら前節でも述べましたように、CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動の原因については現在もまだ議論が続いています。Keeling *et al.* (1995) は、1994年までのマウナロアと南極点での  $\delta^{13}\text{C}$  データを解析することにより、1983年だけでなく1988年の CO<sub>2</sub> 濃度の急増についても、陸上植物による CO<sub>2</sub> の放出と表層海洋による吸収が同時に起こったと述べています。その一方で、Francey *et al.* (1995) はケープグリムでの  $\delta^{13}\text{C}$  観測データから海洋起源の CO<sub>2</sub> が CO<sub>2</sub> 濃度の不規則変動に大きな影響を与えていると結論づけています。このようにそれぞれのグループで海洋と陸上植物の寄与の見積もりが異なることについて、 $\delta^{13}\text{C}$  データの取られた観測点が CO<sub>2</sub> の放出源・吸収源の変動をよく反映している場所であるか、同位体非平衡の大きさの見積もり問題はないかなど、さらに検討すべき課題が残されています。またこの問題を解決するためにも、時間的に密に、かつ地理的に広い範囲における精密な  $\delta^{13}\text{C}$  の観測を継続する必要があります。

#### 謝 辞

最後になりましたが、大気中の CO<sub>2</sub> 問題について研究する機会を与えて下さり、大学院入学時より今日まで一貫してご指導下さいました、東北大学理学部田中正之教授、中澤高清教授、青木周司助教授に心から感謝いたします。質量分析計 MAT- $\delta\text{E}$  の使用にあたり、便宜を図って下さいました国立極地研究所渡辺興亜教授、そして国立極地研究所気水圏実験室の皆様にも感謝いたします。東北大学理学部大気海洋変動観測研究センターの諸先輩方には、微量気体分析についての基本を教えていただきました。この場をお借りしてお礼申し上げます。

#### 参 考 文 献

- Andres, R. J., G. Marland, T. Boden, and S. Bishoff, 1993 : Carbon dioxide emissions from fossil fuel combustion and cement manufacture 1751-1991 and an estimate of their isotopic composition and latitudinal distribution. *The Carbon Cycle*, Cambridge University Press, New York.
- Bacastow, R. B. and C. D. Keeling, 1981 : Atmospheric CO<sub>2</sub> and the Southern Oscillation : Effects associated with recent El Niño events. *Proceedings of WMO/ICSU/UNEP Scientific Conference on Analysis and Interpretation of Atmospheric CO<sub>2</sub> data*. Bern, WCP 14, WMO, Geneva, 109-112.
- Boden, T. A., R. J. Sepanski and F. W. Stoss, 1992 : TREND '91 : A compendium of data on global change-Highlights. ORNL/CDIAC-049 Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, U. S. A., 665 pp.
- Conway, T. J., P. P. Tans, L. S. Waterman, K. W. Thoning, K. A. Masarie and R. H. Gammon, 1988 : Atmospheric carbon dioxide measurements in the remote global troposphere, 1981-1984. *Tellus*, **40B**, 81-115.
- Coplen, T. B., C. Kendall and J. Hopple, 1983 : Comparison of stable isotope reference samples. *Nature*, **302**, 236-238.
- Francey, R. J. 1985 : Cape Grim isotopic measurements—a preliminary assessment, *J. Atmos. Chem.*, **3**, 247-260.
- Francey, R. J., F. J. Robbins, C. E. Allison and N. G. Richards, 1990 : The CSIRO global survey of CO<sub>2</sub> stable isotopes. In *Baseline Atmospheric Program (Australia) 1988*, (eds. S. R. Wilson and G. P.

- Ayers). Department of Administrative Service/Bureau of Meteorology in cooperation with CSIRO Division of Atmospheric Research Cape Grim BAPS, Tasmania, Australia, 16-27.
- Francey R. J., P. P. Tans, C. E. Allison, I. G. Enting, J. W. C. White and M. Troler, 1995 : Changes in oceanic and terrestrial carbon uptake since 1982. *Nature*, **373**, 326-330.
- Keeling, C. D. 1958. The concentration and isotopic abundances of atmospheric carbon dioxide in rural areas. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **13**, 322-334.
- Keeling, C. D. A. F. Carter and W. G. Mook, 1984 : Seasonal, latitudinal and secular variations in the abundance and isotopic ratios of carbon dioxide 2. results from oceanographic cruises in the tropical Pacific Ocean, *J. Geophys. Res.*, **89**, 4615-4628.
- Keeling, C. D., R. B. Bacastow, A. F. Carter, S. C. Piper, T. P. Whorf, M. Heimann, W. G. Mook and H. Roeloffzen, 1989 : A three-dimensional model of atmospheric CO<sub>2</sub> transport based on observed winds : 1. Analysis of observed data. *AGU Monograph*, **55**, Washington, Ameri. Geophys. Union, 165-236.
- Keeling, C. D., T. P. Whorf, M. Wahlen and J. van der Plicht, 1995 : Interannual extremes in the rate of rise of atmospheric carbon dioxide since 1980. *Nature*, **375**, 666-670.
- Mook, W. G. and S. van der Hoek, 1983 : The N<sub>2</sub>O correction in the carbon and oxygen isotopic analysis of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Isotope Geosci.*, **1**, 237-242.
- Mook, W. G., M. Koopmans, A. F. Carter and C. D. Keeling, 1983 : Seasonal, latitudinal and secular variations in the abundance and isotopic ratios of carbon dioxide 1. results from land stations. *J. Geophys. Res.*, **88**, 10915-10933.
- 中澤高清, 1989. 大気中の二酸化炭素濃度のグローバル観測, *天気*, **36**, 669-674.
- Nakazawa, T., K. Miyashita, S. Aoki and M. Tanaka, 1991 : Temporal and spatial variations of upper tropospheric and lower stratospheric carbon dioxide. *Tellus*, **43B**, 106-117.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka, 1993 : Time and space variations of the carbon isotopic ratio of tropospheric carbon dioxide over Japan. *Tellus*, **45B**, 258-274.
- Nakazawa, T., S. Morimoto, S. Aoki and M. Tanaka, 1997 : Temporal and spatial variations of the carbon isotopic ratio of atmospheric carbon dioxide in the western Pacific region, *J. Geophys. Res.*, **102**, 1271-1285.
- Neftel, A., E. Moor, H. Oeschger and B. Stauffer, 1985 : Evidence from polar ice cores for the increase in atmospheric CO<sub>2</sub> in the past two centuries. *Nature*, **315**, 45-47.
- Pearman, G. I. and P. Hyson, 1986 : Global transport and inter-reservoir exchange of carbon dioxide with particular reference to stable isotopic distributions, *J. Atmos. Chem.*, **4**, 81-124.
- Quay, P. D., B. Tilbrook and C. S. Wong, 1992 : Oceanic uptake of fossil fuel CO<sub>2</sub> : Carbon-13 evidence. *Science*, **256**, 74-79.
- Siegenthaler, U. and K. O. Münnich, 1981 : <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C fractionation during CO<sub>2</sub> transfer from air to sea. In *SCOPE 16 : Carbon Cycle Modeling* (ed. B. Bolin), John Wiley and Sons, Chichester, 246-257.
- Siegenthaler, U. and H. Oeschger, 1987 : Biospheric CO<sub>2</sub> emissions during the past 200 years reconstructed by deconvolution of ice core data. *Tellus*, **39B**, 140-154.
- Tanaka, M., T. Nakazawa and S. Aoki, 1987 : Time and space variations of tropospheric carbon dioxide over Japan. *Tellus*, **39B**, 3-12.
- Tans, P. P. 1981. <sup>13</sup>C/<sup>12</sup>C of industrial CO<sub>2</sub>. *Carbon Cycle Modeling*. In *SCOPE 16 : Carbon Cycle Modeling* (ed. B. Bolin), John Wiley and Sons, Chichester, 127-129.
- Tans, P., T. J. Conway and T. Nakazawa, 1989 : Latitudinal distribution of the sources and sinks of atmospheric carbon dioxide derived from surface observations and an atmospheric transport model, *J. Geophys. Res.*, **94**, 5151-5172.
- Thompson, M. L., I. G. Enting, I. G. Pearman and P. Hyson, 1986 : Interannual variation of atmospheric CO<sub>2</sub> concentration. *J. Atmos. Chem.*, **4**, 125-155.

## Variations of the Carbon Isotopic Ratio of Tropospheric Carbon Dioxide over Japan

Shinji Morimoto\*

\* *Arctic Environment Research Center, National Institute of Polar Research, Tokyo 173, Japan.*

(Received 7 November 1996 ; Accepted 29 January 1997)

### 国際学術研究集会への出席補助金受領候補者の募集のお知らせ

—国際学術交流委員会—

国際交流事業(天気32巻5号p232)の一環として国際学術交流運用規定(天気41巻7号p444)に基づき、国際学術研究集会への旅費もしくは滞在費の補助を下記により行いますので、希望者は期日までに応募願います。

#### 記

#### 1. 対象の集会

1997年12月1日～1998年5月31日の期間外国で開催される国際学術研究集会

#### 2. 応募資格

日本気象学会会員で国際学術研究集会に出席し論文の発表もしくは議事の進行に携わる予定のもの。ただし、ほかから援助のあるものは除く。

#### 3. 募集人員

若干名

#### 4. 補助金額

開催地域を考慮し最高15万円程度

#### 5. 応募手続

所定の申請書類(日本気象学会事務局備付)を期日までに国際学術交流委員会(〒100東京都千代田区大手町1-3-4 気象庁内日本気象学会気付)に提出する。大学院生は指導教官の推薦状を併せて提出する。

期日:1997年9月15日

注:申請書は最新の様式のを日本気象学会事務局から取り寄せること。申請書の様式は断りなく変更することがある。古い様式の申請書で応募しても受理しない。

#### 6. 補助金受領者の義務

当該集会終了後30日以内に集会出席の概要を「天気」に掲載可能な形式で1ページ(2000字)程度にまとめ、報告書として委員会に提出する。