

数百 ppm レベルの大気水素の迅速同位体比測定

Rapid isotope analysis of the deuterium/hydrogen ratio of hydrogen in atmosphere at several hundreds ppm levels

山田 桂大 [1]; 林田 茉莉子 [2]; 豊田 栄 [3]; 吉田 尚弘 [4]

Keita Yamada[1]; Mariko Hayashida[2]; Sakae Toyoda[3]; Naohiro Yoshida[4]

[1] 東工大・総理・化学環境; [2] 東工大・総理工・環境創造; [3] 東工大・総理工・化学環境; [4] 東工大・総合理工

[1] Environ. Chem. and Engr, Tokyo Tech.

; [2] Env. Sci. Tech., Tokyo Tech.; [3] Environmental Chemistry and Engineering, Tokyo Tech; [4] IGSSE, Tokyo Institute of Technology

現在水素は対流圏大気中にメタンの次に多く存在する微量気体であり、その濃度はおおよそ 500ppb である (例えば、Novelli et al., 1999)。化石燃料に代わる次世代燃料としての水素の普及に伴い、近い将来、大気水素に寄与する人為的放出源に変化が起こりうる可能性、あるいは大気水素濃度レベルが上昇する可能性がある。大気中の水素濃度の上昇は、例えば、水素との反応によって消費される大気中の OH ラジカルが増加することによって、対流圏大気中の重要な温室効果気体であるメタンや間接的に温室効果に關与する一酸化炭素などの重要な微量気体の大気寿命を増加させたり、成層圏大気中の水収支に影響を与えるなど、大気環境に重要な影響を及ぼすと考えられている。将来起こりうる大気水素濃度レベルの増加原因を特定したり、その増加がもたらす大気化学的影響を識別するためには、現在の大気水素の局所的、地域的そして全球的収支を把握することが必要である。

大気水素および個々の発生源・消滅過程における安定同位体比は、大気水素の局所的、地域的そして全球的収支を把握するために有用な情報を与えると認識されている。しかしながら、これまで大気水素や各発生源についての安定同位体比計測例は非常に限られてきた。これは、同位体比質量分析計による計測に先立って行われる大気試料の前処理操作が煩雑であり、かつ 1000L 以上の大量の大気試料を必要としていたことに起因する (例えば、Ehhalt, 1966; Friedman and Scholz, 1974; Gerst and Quay, 2000)。

最近、大気から水素をオフラインで分離し、その後に連続フロー型の同位体比質量分析計に導入して水素同位体比を計測する方法 (Rahn et al., 2002) や大気からの水素ガスの分離・濃縮システムをオンラインでガスクロマトグラフィー同位体比質量分析計 (GC-IRMS) に接続して水素同位体比を計測する方法 (Rhee et al., 2004) が開発された。これらの測定法は、分析に必要とする大気試料の量を 1L 以下にまで削減することを可能としたばかりでなく、水素を水にした後に濃縮し、さらに水素に還元して同位体比を計測するという従来の煩雑な前処理を必要としない方法を実現した。しかしながら、これらの計測法は、30 から 60K という超低温で利用する冷却トラップを備え付けた真空システムを必要とする。

本研究では、30 から 60K という超低温冷却トラップを利用しない、迅速かつ簡便な水素同位体比計測方法を検討した。用いたシステムは、GC-IRMS システム (HP6890 GC と Finnigan Delta plus-XL を GC-III interface 介して結合したシステム) のみである。GC に備え付けられたキャピラリーカラム (スペルコ社製 CARBOXENTM 1010PLOT, 30m) の先端部分 (20cm) を液体窒素に浸して 77K に冷却し、ガスタイトシリンジを用いて 1cc の大気試料を GC 導入部分にスプリットレスモードで導入した。このシステムを用いることで、数百 ppm の水素濃度の大気試料について、 ± 2 パーミルの精度で同位体比を計測することが可能であった。この方法を用いて、バックグラウンド大気濃度レベルの水素同位体比を計測することはまだ出来ないが、例えばバイオマス燃焼由来の大気試料など、比較的高い濃度をもつ発生源の同位体的特徴づけに適用が可能である。