

対流圏大気中 N₂O のアイソトポマー比の分布と経年変動Distribution and temporal variation of isotopomer ratios in tropospheric N₂O

豊田 栄 [1]; 吉田 尚弘 [2]; 町田 敏暢 [3]; 遠嶋 康徳 [3]; 高橋 善幸 [4]

Sakae Toyoda[1]; Naohiro Yoshida[2]; Toshinobu Machida[3]; Yasunori Tohjima[3]; Yoshiyuki Takahashi[4]

[1] 東工大・総理工・化学環境; [2] 東工大・総合理工; [3] 環境研; [4] 国立環境研・大気

[1] Environmental Chemistry and Engineering, Tokyo Tech; [2] IGSSE, Tokyo Institute of Technology; [3] NIES; [4] NIES

一酸化二窒素 (N₂O) は対流圏では温室効果、成層圏ではオゾン破壊に関与している微量成分であるが、自然起源、人為起源のフラックスの見積りには大きな幅があり、全球収支は十分明らかになっていない。近年 N₂O の起源や生成・輸送・消滅過程の推定に安定同位体比の情報が有効であることが報告されている。われわれは従来行ってきた元素別 (N, O) 同位体比に加え、非対称直線 3 原子分子 (NNO) の分子内同位体分布も求めることが可能なアイソトポマー (分子内に種々の同位体を含む分子種) 計測法を新たに開発し、対流圏、成層圏におけるアイソトポマーの分布や発生・消滅過程におけるアイソトポマーの分別を調べ、N₂O の収支の解明を試みている。ここでは、局地的な発生源の影響の少ない清浄大気中の N₂O アイソトポマー比の分布と経年変動の解明を目的として沖縄・波照間島 (24N, 124E) およびシベリア・ノボシビルスク市近郊 (55N, 83E) で行っているモニタリング結果について報告する。

大気試料は波照間島の環境研モニタリングステーションの鉄塔 (海拔 46.5m) および環境研の航空機を用いたシベリア観測 (高度 500m および 7000m) を利用して、前者は 1999 年 9 月から、後者は 2005 年 5 月から、毎月ステンレスまたはガラス製の 1 ~ 3 L 容器にポンプを用いて 1.5 ~ 3 気圧採取している。環境研にて各種微量成分 (CO₂, CH₄, N₂O など) の濃度測定を行った後、東工大にて N₂O アイソトポマー比 (d¹⁵N^{bulk}, d¹⁸O, Site preference: 分子内中央の N と端の N の同位体比の差) を測定する。約 300mlSTP の試料に対する分析精度はそれぞれ 0.1 ‰、0.2 ‰、0.5 ‰である。

波照間島では風向によって日本、朝鮮半島、中国の発生源の影響が見られる場合があるため、後方流跡線解析により海洋性の気塊を観測したと考えられるデータを抽出した。7 年間で N₂O 濃度は約 0.6 ppb/年で増加傾向を示したが、d¹⁵N^{bulk} に 0.3~0.4 ‰の減少が見られた。d¹⁸O と Site preference は回帰分析ではそれぞれ減少、増加傾向が得られたが、データのばらつき、測定精度を考慮するとまだ有意な変化とはいえない。これらの傾向は南極フィルン大気分析により報告された、過去約 100 年間のアイソトポマー比の変化から推定される年変化率 [Sowers et al., 2002; Roeckmann et al., 2003] や南極の最近 12 年間の保存大気試料の分析から得られた年変化率 [Roeckmann and Levin, 2005] と矛盾しない。d¹⁵N^{bulk} の減少傾向は、N₂O の濃度増加の主要因が自然・農業土壌中の微生物により生成される 15N に乏しい N₂O であることを示唆する。

シベリアの観測結果は同時期の波照間と測定精度の範囲内でほぼ一致しており、経年変化はまだ認められない。したがって、N₂O アイソトポマー比の緯度勾配は十分小さいと考えられる。ただし、高度 500m と 7000m のデータに違いがみられる場合があり、地表付近の発生源や成層圏からの N₂O の流入の影響を反映している可能性がある。