

北海道利尻島における大気中 CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO と Black Carbon の変動吉川久幸<sup>1</sup>、遠嶋康徳<sup>2</sup>、入野智久<sup>1</sup>、朱春茂<sup>3</sup><sup>1</sup>北海道大学 環境科学院<sup>2</sup>国立環境研究所 地球環境研究センター<sup>3</sup>海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野Variations in atmospheric CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, CO and BC on Rishiri Island, northern JapanHisayuki Yoshikawa<sup>1</sup>, Yasunori Tohjima<sup>2</sup>, Tomohisa Irino<sup>1</sup>, and Chunmao Zhu<sup>3</sup><sup>1</sup>Graduate School of Environmental Science, Hokkaido University<sup>2</sup>Center for Global Environmental Research, National Studies for Environmental Studies<sup>3</sup>Department of Environmental Geochemical Cycle Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Continuous measurements of atmospheric CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, and CO were made using a Cavity Ring-Down Spectrometer (CRDS analyzer G1401, Picarro, USA) along with the measurements of equivalent black carbon (eBC), <sup>222</sup>Rn, and O<sub>3</sub> in the seasonal snowpack area in northern Japan (Rishiri Island, 45°07'N, 141°11'E, 40 m asl) since December 2012. Atmospheric CO<sub>2</sub> varied from diurnal to inter-annual time scales. During a diurnal variation atmospheric CO<sub>2</sub> is positively correlated with <sup>222</sup>Rn, indicating CO<sub>2</sub> and <sup>222</sup>Rn emission into the nocturnal boundary layer. On the basis of positive relationship between CO<sub>2</sub> and <sup>222</sup>Rn and <sup>222</sup>Rn exhalation rate from Rishiri Island, CO<sub>2</sub> flux from ecosystem was estimated to be low in winter (less than 1 μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>) and high in summer (larger than 4 μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>) (Q<sub>10</sub>=3.0, H Yoshikawa-Inoue and Zhu, 2013). Seasonally, the maximum CO<sub>2</sub> mixing ratio appeared in the beginning of April, and the minimum in the middle of August. This seasonal variation implied the natural cycle of terrestrial biological activities of the boreal forest, mostly in the east Eurasia (Zhu et al., 2015). During the diurnal variation, we found a good negative relationship between CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> throughout the year, suggesting CH<sub>4</sub> uptake by the surface. And we also found a good negative relationship between CO<sub>2</sub> and CO in spring. In summer CO remained fairly constant against the increases in CO<sub>2</sub> mixing ratio. These results suggest decomposition process caused by the biological activities and the (thermal) production of CO. Over a few days, atmospheric CO<sub>2</sub> sometimes showed a positive correlation with CH<sub>4</sub>, CO, and eBC. High concentration events lasting over hours are caused by the long-range transport of air mass contaminated over the Eurasia continent. Back trajectory analysis indicates that air mass originated from latitudinal zones of Eurasia continent equal to or lower than Rishiri Island or moved from northwest over Eurasia continent to Rishiri Island. The former could be caused by the anthropogenic sources and the latter at least partially by biomass burning over Siberia (Zhu et al., 2014). It is necessary to measure these greenhouse gases and eBC to examine variations in sources in mid- to high- latitudes.

2012年12月より季節雪氷域である北海道利尻島(45°07'N、141°11'E、40 m asl)において、キャビティリングダウンスペクトル分析計(CRDS analyzer G1401, Picarro, USA)を用いて大気中の二酸化炭素(CO<sub>2</sub>)、メタン(CH<sub>4</sub>)及び一酸化炭素(CO)の測定を、ブラックカーボン(equivalent BC)、ラドン(<sup>222</sup>Rn)、オゾン(O<sub>3</sub>)とともに継続的に行ってきた。大気中のCO<sub>2</sub>は日から年々に至る時間スケールで変動した。例えば、日変化の際には大気中のCO<sub>2</sub>濃度は<sup>222</sup>Rn濃度と正の相関を示しながら変動した。このことは、夜間の接地境界層への土壌と植生によるCO<sub>2</sub>と<sup>222</sup>Rnの放出を示している。日変化におけるCO<sub>2</sub>と<sup>222</sup>Rnの間の正の相関と利尻島からの<sup>222</sup>Rn放出フラックス評価に基づいて、陸域生態系からのCO<sub>2</sub>フラックスは冬季に低く(<1 μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>)、夏季に高い(>4 μmol m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>)ことが示された(Q<sub>10</sub>=3.0 H, Yoshikawa-Inoue and Zhu, 2013)。大気中のCO<sub>2</sub>濃度は4月初旬に極大、8月中旬に極小を示し、その振幅の年々変動は主にユーラシア大陸の陸上植生により支配されていた(Zhu et al., 2015)。日変化のなかでCH<sub>4</sub>はほぼ年間を通じてCO<sub>2</sub>と負の相関を示した。このことは、利尻島の地表面がCH<sub>4</sub>のシンクであることを示している。その一方でCOは春季にCO<sub>2</sub>との負の相関が明瞭に認められる傾向があったが、夏季にははっきりとした傾向は見られなかった。これらのことは、細菌によるCH<sub>4</sub>の分解と熱的なCO生成過程の存在によるためと考えられた。また、少なくとも十数時間の間、大気中のCO<sub>2</sub>は、CH<sub>4</sub>、CO、そしてeBCと正の相関を示す事例があった。数時間にわたって持続するこうした高濃度イベントは、ユーラシア大陸で汚染の影響を受けた空気塊の長距離輸送によって引き起こされると解される。後方流跡線解析によれば、高濃度イベントを示した空気塊は、ユーラシア大陸上に利尻島と同じか低い緯度帯に起源を有する場合(人為起源発生源)と北西から利尻島に移動する場合があった。後者は少なくとも一部はシベリア森林火災の影響を受けていたと考えられる。今後の気候変化に伴う発生源の空間的、質的な変化を的確に捉えていくことが重要である。