

冬期の都市森林における 人為起源・生物起源二酸化炭素の寄与の評価

高橋 浩¹・木平英一²・檜山哲哉²・南 雅代¹
高橋厚裕¹・小栗秀之¹・中村俊夫³

¹名古屋大学大学院理学研究科地球惑星理学専攻 〒464-8602 名古屋市千種区不老町

²名古屋大学大気水圏科学研究所 〒464-8601 名古屋市千種区不老町

³名古屋大学年代測定資料研究センター 〒464-8602 名古屋市千種区不老町

1. はじめに

大気中の二酸化炭素 (CO₂) は年々増加する傾向にあり, 近年, 地球温暖化問題がクローズアップされるなかで, 温室効果ガスの代表である CO₂ の動態を知ることは, 地球環境の変化を考える上で不可欠である. また, 森林による CO₂ 吸収を理解するは, 実効的な地球温暖化防止の対策を講じるためにも強く求められている. 都市においては人間活動により非常に大量の CO₂ の放出があり, 都市域の森林は人為起源 CO₂ の影響を強く受ける特異的なフィールドとして注目される.

森林内部の CO₂ 循環を知ることにより, 森林に対する人間活動や生物活動の関わりを把握できる. 著者らは, 名古屋大学構内の二次林内に設置されたタワーでの林内大気 CO₂ の濃度・ $\delta^{13}\text{C}$ 観測を 1998 年 3 月より開始した. その結果は, 光合成や呼吸といった生物活動よりも人間活動によるインパクトが非常に強いことを示していた. そこで, 第一に人為起源 CO₂ の影響を把握することとし, 多くのエンドメンバーが存在する状態での観測結果の解析が困難であることから, 光合成の寄与の低い冬期に行った観測時に採取した試料についての ¹⁴C 濃度測定を行った. その結果から, 都市域の森林における人為起源と生物起源の CO₂ の寄与を見積もり, 冬期における都市森林への CO₂ の供給過程を推定した.

2. 冬期における大気中の二酸化炭素の濃度・同位体比

2-1. サンプルングと試料処理

試料のサンプルングは, 名古屋大学東山キャンパス (名古屋市東部) 内の落葉広葉樹を主体とする林内に設置されたタワー (図 1 : A 地点) とそこから 600m ほど南南西へ向かった地点にある中京テレビ放送の商業用タワー (図 1 : B 地点) の 2 地点で, 1998 年 2 月 9 日に行った. サンプルング高度は 85m (中京テレビ) ・ 23.75m ・ 21.00m ・ 19.00m ・ 14.75m ・ 9.10m ・ 5.60m ・ 1.55m (大学構内の二次林) の 7 高度で, サンプルング時間は中京テレビタワーでは 0・6・9・12・15・18・24 時で, 二次林では, 0・3・6・8・10・12・14・16・18・21・24 時である.

大気はダイヤフラムポンプを用いて吸引し, 10 リットルのテドラーバックに捕集した.

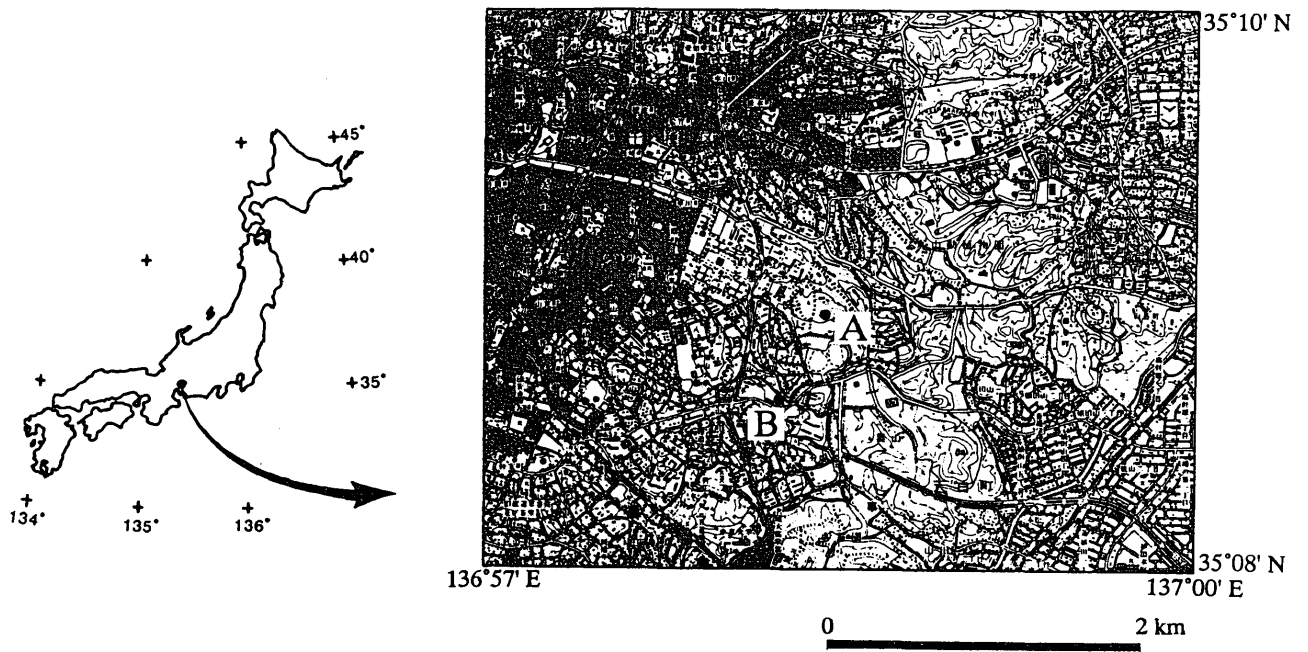


Fig. 1 The study sites, located in Nagoya City, central Japan.

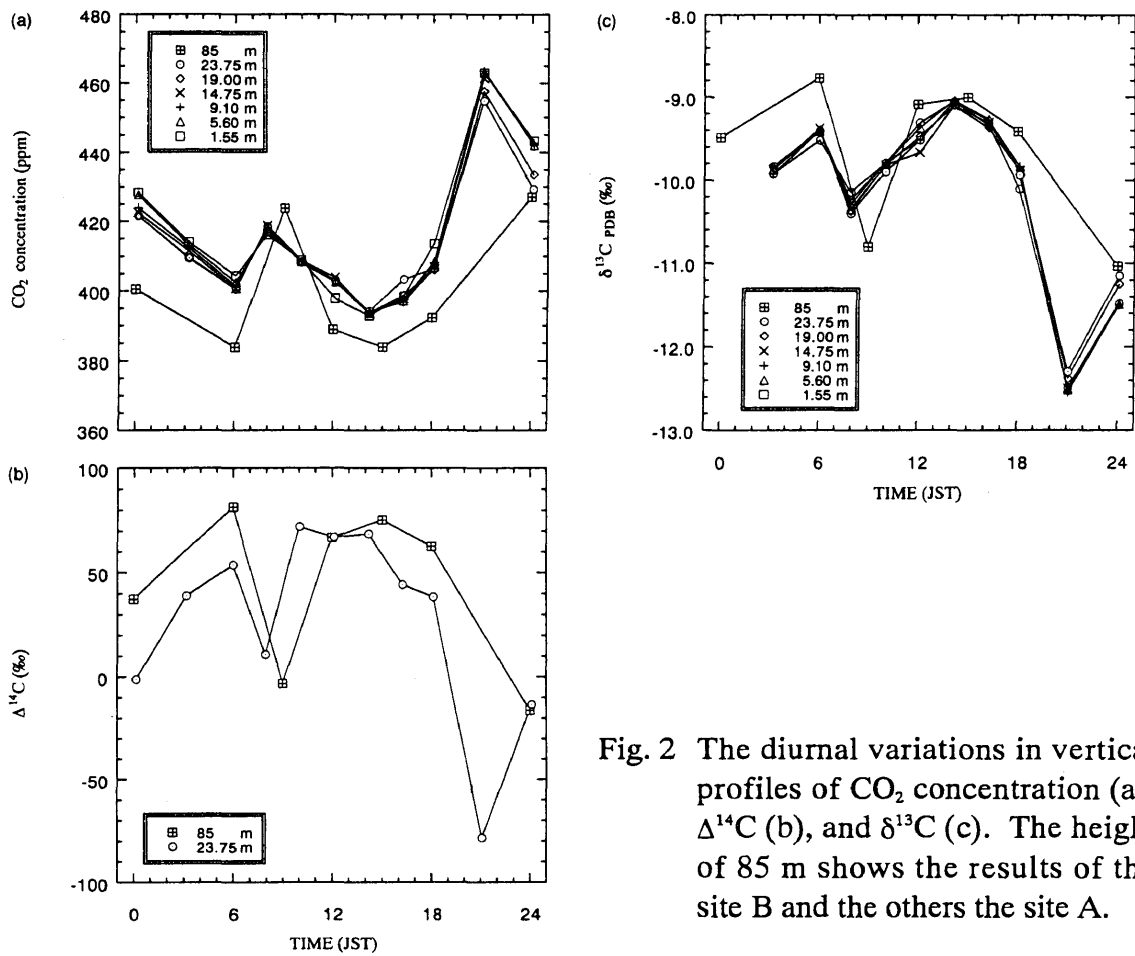


Fig. 2 The diurnal variations in vertical profiles of CO₂ concentration (a), Δ¹⁴C (b), and δ¹³C (c). The height of 85 m shows the results of the site B and the others the site A.

サンプリング直後に CO₂濃度を NDIR (LI-6262) により測定したのち、大気試料を真空ラインへ導入して冷媒を用いて CO₂を分離し、ガラス管に封入して保存した。

δ¹³C をガス型の質量分析計 (Finnigan MAT-252) により測定した (青木, 1997) 。 δ¹³C 測定時のリファレンスガスには、名古屋大学構内の観測タワーにおいてサンプリングした大気から分離した CO₂を用い、その同位体比は NBS-19 を用いて決定し、PDB 表記した (Craig, 1957) 。また、N₂O の濃度測定は行っていないため、リファレンスガスの値に 0.2‰の補正を行っている (Mook and Jongsma, 1987) 。また、林冠直上と中京テレビタワーでサンプリングした試料については、δ¹³C に加えて ¹⁴C の測定を行った。なお、中京テレビタワーの ¹⁴C 測定用は 20 リットルのアルミバックへサンプリングした ¹⁴C 測定用 CO₂から、水素還元法によりグラファイトターゲットを調製し (Kitagawa et al., 1993) 、名古屋大学年代測定資料研究センターのタンデトロン加速器質量分析計にて測定した (Nakamura et al., 1985) 。¹⁴C 測定用のスタンダードには試料と同様の手法で調整した NIST シュウ酸を用い、Δ¹⁴C 表記した (Stuiver and Polach, 1977) 。

2-2. 測定結果

名古屋大学構内のタワーと中京テレビタワーにおける観測結果を図 2 へ示す。測定値全体では、都市大気 CO₂はバックグラウンド大気と比較して、濃度が高くて同位体比が低い結果が得られた。Δ¹⁴C がバックグラウンドと比較して低い値を示しており、都市大気の濃度上昇が化石燃料の消費による CO₂の付加が原因となっていることがわかる。一般に、大気 CO₂の濃度は夜間に上昇し、昼間に減少することが報告されている (Inoue and Sugimura, 1984 ; Aikawa et al., 1995) 。本研究の測定結果も同様の日変動を示している。また、林冠と林床の濃度差が夜に大きく、δ¹³C・Δ¹⁴C は濃度の変動とは逆相関の関係にあり、相関係数は-0.96 (δ¹³C) と-0.95 (Δ¹⁴C) である。大きな濃度上昇が観測された 8 時と 9 時の値は、通勤時の渋滞による人為起源 CO₂の放出が原因と考えられる (Aikawa et al., 1995) 。これは、同時刻の Δ¹⁴C が著しく低下していることとも矛盾しない。

3. 冬期の大気に占める人為起源・生物起源二酸化炭素の寄与

3-1. 人為起源・生物起源二酸化炭素の寄与の推定方法

本研究では冬期における観測であることから光合成の大気 CO₂動態に対する影響は非常に小さいものと考えられる (Sirisanpan, 1999) 。従って、観測した CO₂はバックグラウンドに人為起源と生物起源の CO₂放出が加算されたものであると考えられ、式 (1) のように 3 成分のガス混合で示すことができる。これにより、それぞれの寄与を見積もることができる。

$$I_M \cdot C_M = I_A \cdot C_A + I_F \cdot (C_M - C_A) \cdot f + I_B \cdot (C_M - C_A) \cdot (1-f) \quad (1)$$

I は同位体比を C は濃度を、M は試料、A はバックグラウンド大気、B は生物起源、F は人為起源の CO₂をそれぞれ示している。f は、大気 CO₂の日変動量に対して占める化石燃料起源 CO₂の割合である。この式から人為起源と生物起源の CO₂の寄与を見積もるた

めには、それぞれのリザーバーのもつ同位体比 ($\delta^{13}\text{C} \cdot \Delta^{14}\text{C}$) を把握する必要がある。バックグラウンドについては世界各地で測定が行われており、化石燃料起源 CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ は理論上 -1000% とできることから、生物起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C} \cdot \Delta^{14}\text{C}$ と化石燃料起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ を求めることにより、それぞれのリザーバーからの CO_2 の寄与を見積もることができる。

3-2. 二酸化炭素の $\Delta^{14}\text{C}$ と濃度による各成分の寄与の推定

式(1)を大気 CO_2 の“ $\Delta^{14}\text{C}$ と濃度”の関係に適応して各成分の寄与を推定するためには、生物起源 CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ を求める必要がある。そこで1999年7月6日に土壤表層から放出される CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ 測定のためのサンプリングを行った。サンプリングは、名古屋大学構内の観測タワーの直下でチャンバー法により行った。チャンバーの設置後に窒素ガスでサンプリング系内にある大気 CO_2 を排気弁から系外へ排出した。そして、排気弁を閉じた後の濃度上昇分は土壤表層から放出された CO_2 によるものと考え、 $\Delta^{14}\text{C} = -32 \pm 9\%$ を得た。この値を生物起源 CO_2 の $\Delta^{14}\text{C}$ として計算に用いることとした。他の成分を含めて、表1にエンドメンバーの値をまとめた ($\delta^{13}\text{C}$ については後述)。本研究で推定した人為起源と生物起源の CO_2 の日変動を図3に示す。それぞれの成分の日変動を見ると、生物起源 CO_2 は1日を通じて大きな変動を示さず、逆に人為起源 CO_2 は大きく変動している。上下方向には、2つの成分ともに林冠上 (23.75m) の濃度が上空 (85m) よりも高濃度である (表2)。

3-3. 二酸化炭素の $\delta^{13}\text{C}$ と濃度による各成分の寄与の推定

大気 CO_2 の“ $\delta^{13}\text{C}$ と濃度”による各成分の寄与を推定する際に用いるバックグラウンド・生物起源と人為起源の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ について、観測地域でのそれぞれの値が不明である。バックグラウンドについては、 CO_2 発生源の $\delta^{13}\text{C}$ に $\Delta^{14}\text{C}$ とは異なりばらつきがあることから、地域間の同位体的不均質が問題となり、他の地域の値を引用することはできない。

2つの $\delta^{13}\text{C}$ の異なるガスの混合を考えたとき、その濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の関係から、それぞれの成分の $\delta^{13}\text{C}$ を推定することは可能である (Keeling, 1958)。しかしながら、3つの異なる $\delta^{13}\text{C}$ を持つガスの混合では、この手法を用いることができない。ただし、生物起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ については、チャンバー法により推定が可能である。そこで、今回のバックグラウンド・生物起源・人為起源の3成分から生物起源を除いて2成分とした上で、Keeling (1958) により、バックグラウンドと人為起源の CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ を推定することとした。

生物起源についてはチャンバーを用いた観測を1998年2月7日に行った。 $\Delta^{14}\text{C}$ の観測とは異なり、サンプリング系内にある大気を排出せず、チャンバー内の CO_2 濃度の上昇と $\delta^{13}\text{C}$ の変化を元に Keeling Plot (Keeling, 1958) により生物起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ を計算した。その結果、 $\delta^{13}\text{C} = -27.5 \pm 0.4\%$ ($N=4$; $r=1.000$) を得た。観測タワーのある二次林内で優先樹種であるアベマキとコナラの樹幹セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ は5個体の平均値で $-26.0 \pm 0.4\%$ である (Aoki, 1997; Takahashi et al., 1998)。樹木の葉の $\delta^{13}\text{C}$ は樹幹

Table 1 Carbon isotopic composition and concentration of each component CO₂. (*: Levin and Kromer, 1997; †: Uhse *et al.*, 1998)

	$\Delta^{14}\text{C}$ (‰)	$\delta^{13}\text{C}$ (‰)	concentration (ppm)
background air	99±3*	-7.9±0.1	370.42†
anthropogenic component	-1000	-32.6±1.0	-
biogenic component	-32±9	-27.5±0.5	-

Table 2 Contribution of each component at the height of 85 m (site B) and 23.75 m (above the forest canopy; site A), and total CO₂ concentration at the each site.

	anthropogenic component	biogenic component	total
urban air (85m)	5-43 ppm (1.3-10.1 %)	6-16 ppm (1.6-3.8 %)	382.4-427.1 ppm
forest canopy (23.75m)	6-72 ppm (1.5-15.8 %)	12-32 ppm (2.7-7.8 %)	394.2-452.8 ppm

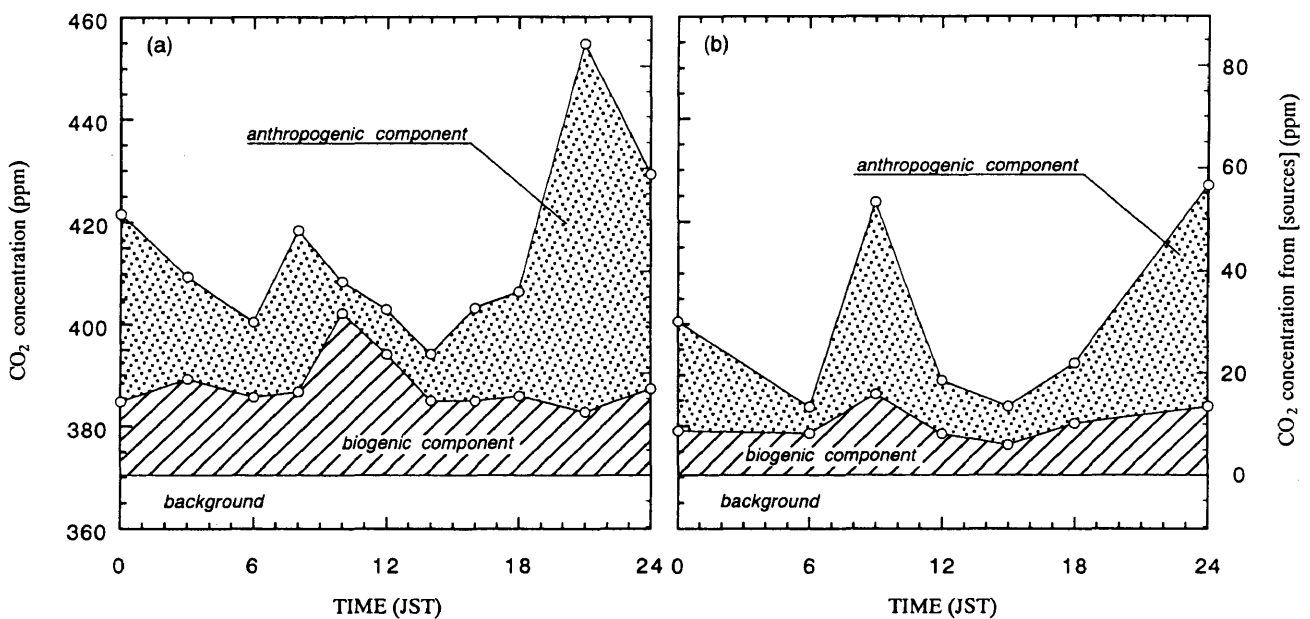


Fig. 3 The diurnal variations of CO₂ concentration from anthropogenic and biogenic sources, at the site A (a) and the site B (b).

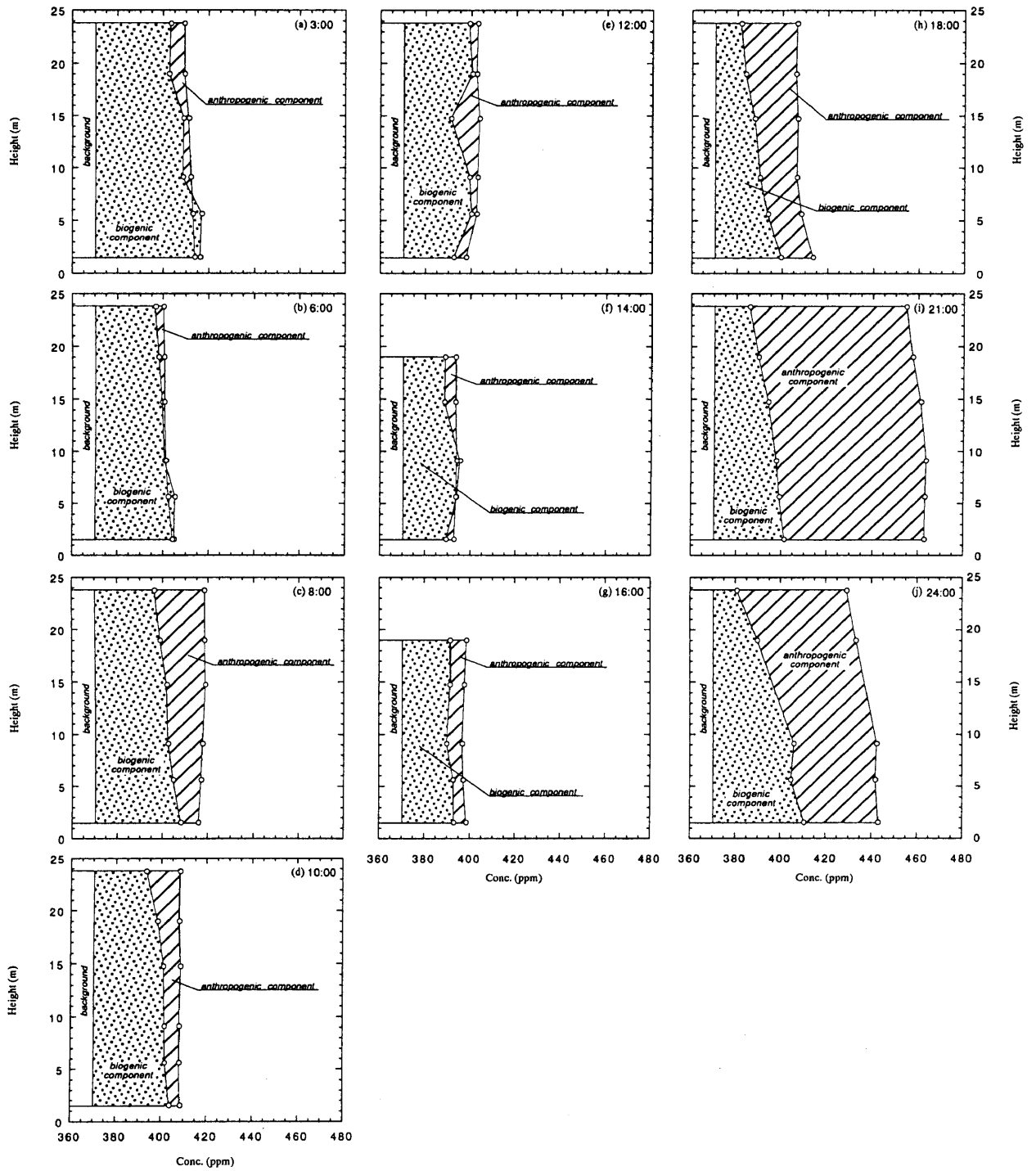


Fig. 4 The vertical profiles within the forest in anthropogenic and biogenic CO₂. (a) 3:00; (b) 6:00; (c) 8:00; (d) 10:00; (e) 12:00; (f) 14:00; (g) 16:00; (h) 18:00; (i) 21:00; (j) 24:00

セルロースの $\delta^{13}\text{C}$ よりも低く、Leavitt and Long (1982) では、その差を 2% と報告している。よって本研究で求められた生物起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ の値は妥当なものである。

大気試料の 3 成分から生物起源を除くために、次の式 (2)・式 (3) を用いた。

$$\delta^{13}\text{C}_{[A+F]} \cdot C_{[A+F]} = \delta^{13}\text{C}_M \cdot C_M - \delta^{13}\text{C}_B \cdot C_B \quad (2)$$

$$C_{[A+F]} = C_M - C_B \quad (3)$$

[A+F] は生物起源を取り除いた後のバックグラウンドと人為起源の混合成分で、他のパラメーターは式 (1) と同様である。 $\delta^{13}\text{C}_B$ には -27.5% を用い、 C_B には前節で $\Delta^{14}\text{C}$ を用いて計算して得た濃度を用いた。林冠上 (23.75m) におけるデータに対して、式 (2) を用いて得たバックグラウンドと人為起源の混合成分の濃度と $\delta^{13}\text{C}$ の関係を元に Keeling Plot (Keeling, 1958) により人為起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ を推定した結果、 $-32.6 \pm 1.0\%$ ($N=8$; $r=0.996$) を得た。この $\delta^{13}\text{C}$ が一般的なケロジェン物質の値と比べて若干低めになっているが、その理由として都市ガス燃焼の寄与が挙げられる。名古屋市に供給されている都市ガスの $\delta^{13}\text{C}$ は $-40.8 \pm 3.0\%$ であり (Moriizumi et al., 1998)、通産省とガス会社の資料では都市ガスは原油の 10% ほどの消費量がある。これらの資料からおおよそ見積もられる人為起源 CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ と本研究による推定はほぼ一致する。また、バックグラウンドの濃度レベルでの $\delta^{13}\text{C}$ を計算した結果、バックグラウンド CO_2 の $\delta^{13}\text{C}$ は $-7.9 \pm 0.1\%$ となった。本研究で推定した人為起源・生物起源 CO_2 の林内における鉛直プロファイルを図 4 に示す。

4. 冬期の都市森林における二酸化炭素の供給源と供給過程

4-1. 森林における二酸化炭素濃度の日変動

図 2 に示したように、 CO_2 の濃度は夜間に上昇し、昼間に減少することが日変動を示した。この変動をもたらす主な要因は大気安定度であると考えられる (図 5)。大気安定度は、正のときが大気が安定、負になると不安定を示している。夜間には大気は安定な状態であるが、日照により地表が暖められるにつれて大気の状態が不安定になる。大気が安定な状態であると、地表で発生した CO_2 はそのままとどまることとなり、都市大気の CO_2 濃度が上昇する。逆に、大気が不安定なときには大気の上下混合が活発になり、 CO_2 濃度の高い都市大気が上空へ運ばれるため、都市大気の CO_2 濃度は低くなる。これは、大気 CO_2 全体の濃度変動が大気の状態によって変化することを示すが、どの成分の濃度が上昇しているのか不明である。一方、特異的に濃度が上昇している 8 時や 9 時では通勤時の渋滞による人為起源 CO_2 の放出が原因であると考えられるが、濃度観測のみでは定量性を持った議論が難しい。

本研究により、この濃度変動を生物起源と人為起源の CO_2 に分離することができた (図 3・図 4)。これらの結果を都市大気全体の CO_2 濃度変動と各成分の濃度変動の関係に表し直したものが図 6 になる。生物起源 CO_2 は都市大気全体の CO_2 の濃度上昇とは無関係に、ある幅を持って一定な値をとっていることがわかる。一方、人為起源 CO_2 は全体の濃度変化と正の相関関係が見られ、その回帰直線の傾きは 0.98 ($r=0.92$) である。つまり、森林における CO_2 の濃度の変化は、主として人為起源 CO_2 の濃度が変動すること

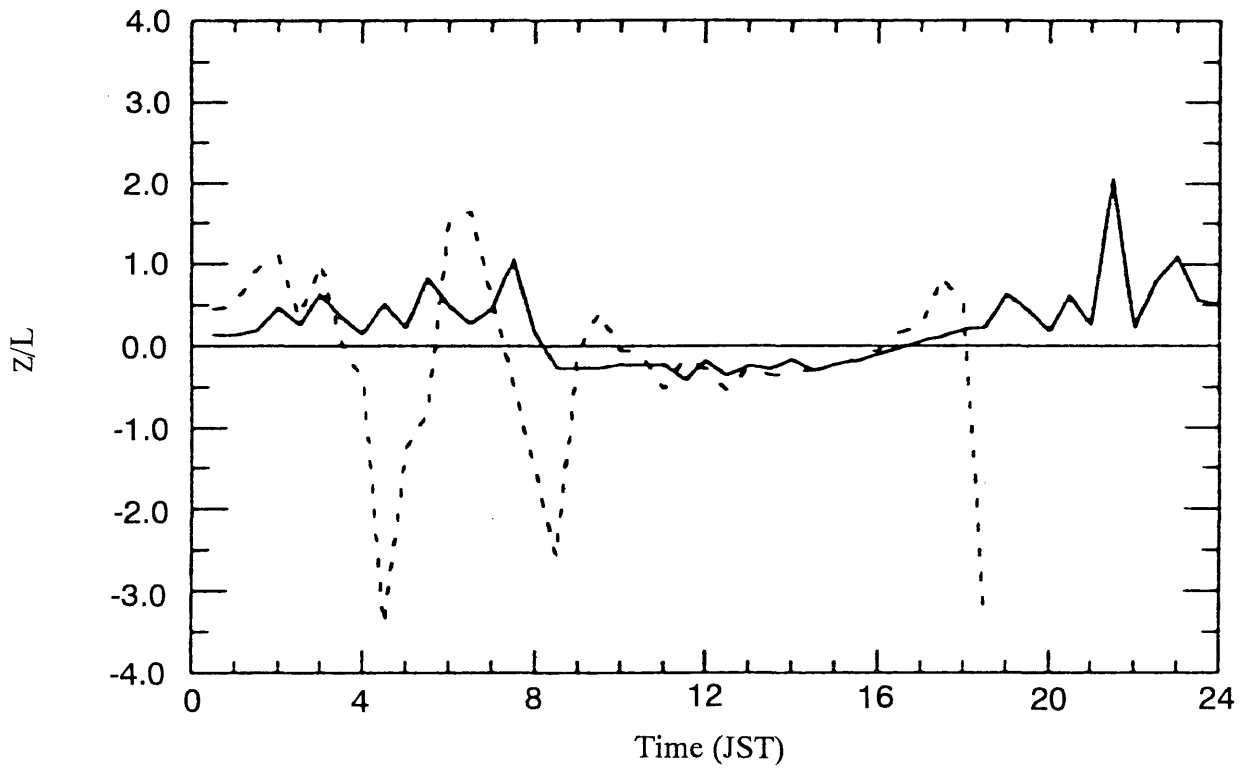


Fig. 5 The diurnal change of atmospheric stability at the forest canopy (solid line) and within the forest (dotted line).

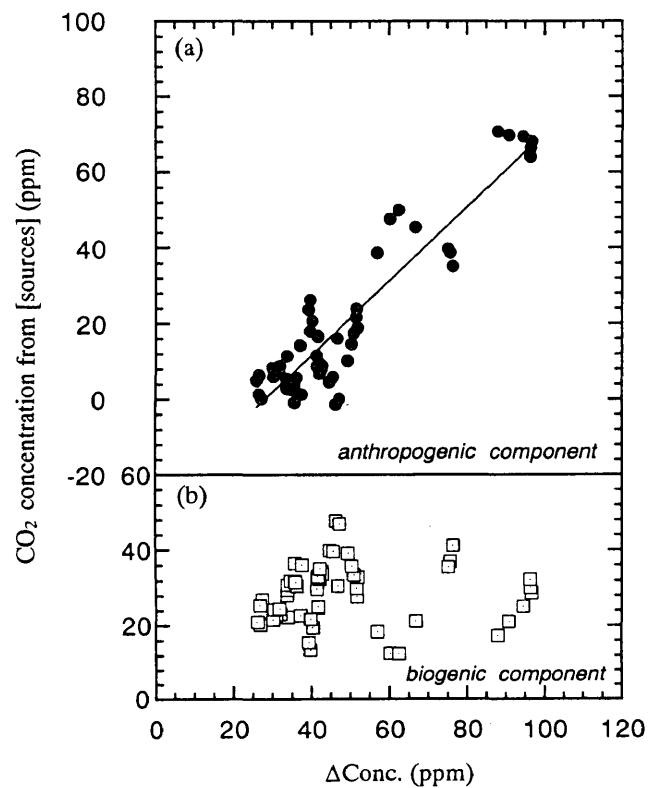


Fig. 6 The relationship between CO₂ concentration derived from anthropogenic and biogenic sources and the deviation of total CO₂ from background level ($\Delta\text{Conc.}$)

によってもたらされていることが説明できる。

4-2. 森林内部での二酸化炭素濃度の鉛直プロファイル

森林内部における CO₂ 濃度の鉛直プロファイルを、森林内部の大気全体の傾向(図2)と各成分ごとの傾向(図4)を、昼夜ごと(昼:8時~16時, 夜:3時~6時・18時~24時)に平均したものを図7へ示す。林床部から林冠部へ高度が上がるにつれて、人為起源 CO₂ は増加し、生物起源 CO₂ は減少している。図7はそれぞれの成分の濃度(つまり CO₂ の量)を示すものであり、両者の割合を示したものでいため、一方の増加がもう一方の減少の理由にならない。

人為起源と生物起源の CO₂ は、ともに地表に発生源があるために通常では、CO₂ 鉛直プロファイルは、低高度ほど高濃度を示すと思われる。それに対して本研究の結果では、生物起源 CO₂ の濃度変化は、地表に CO₂ の発生源があることと調和的であるが、人為起源 CO₂ は林冠より上に発生源があるように見える。この両者の違いは、2つの成分それぞれの CO₂ 発生源が林内にあるかどうかによって生じている可能性がある。林内に発生源のある生物起源のプロファイルは、林床部ほど濃度が高い。このことは、森林内部にある生物起源 CO₂ のほとんどが同じ森林から発生したことを示している。一方、人為起源 CO₂ が林冠ほど高濃度のプロファイルを示していることは、人為起源 CO₂ の大部分が森林上空から供給されているためと考えることができる。このことは、森林における水平方向の大気移流が、林内の CO₂ 鉛直プロファイルに影響を与えるほど大きなも

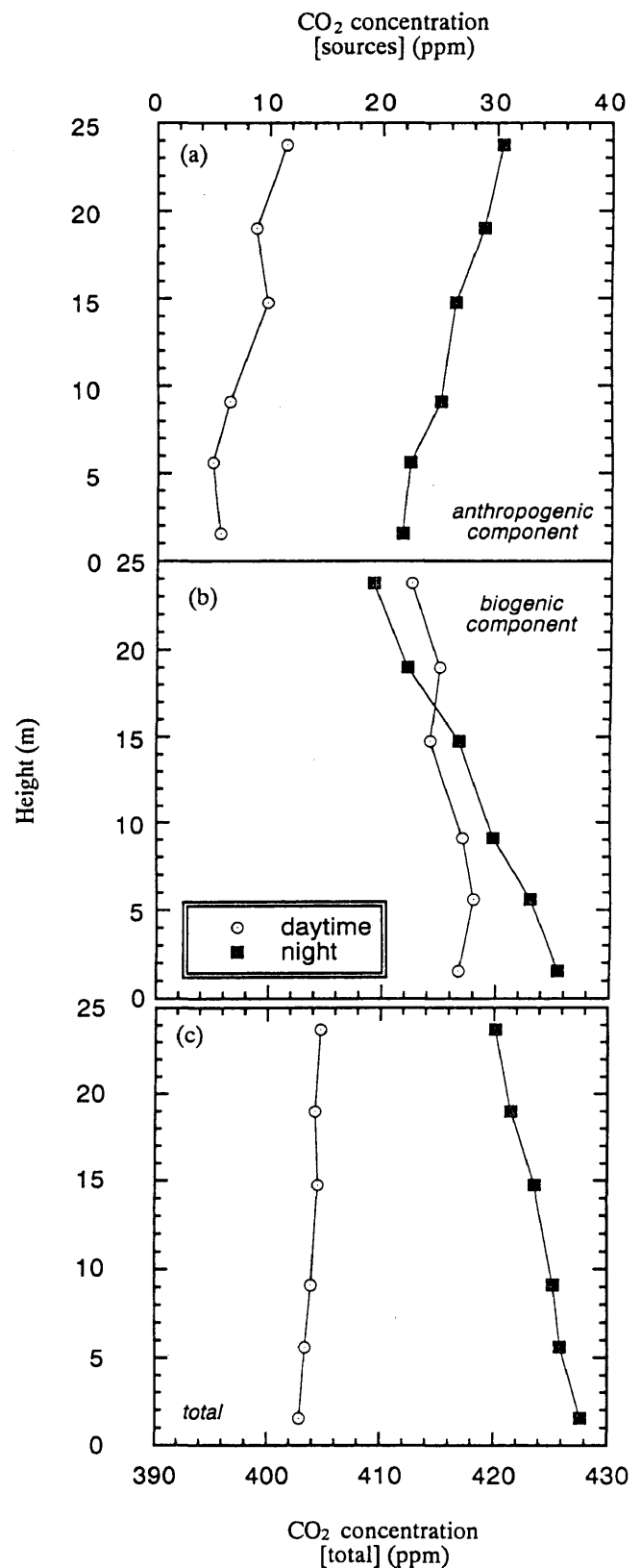


Fig. 7 The vertical profiles of mean concentration for anthropogenic (a), biogenic (b) and total CO₂ (c) components during the daytime (circle) and night (square).

のではないことを示している。

5. まとめ

本研究の同位体をもちいたアプローチにより、冬期の都市森林における CO₂ を供給源ごとに分離した。その結果、都市における CO₂ 濃度変動は人為（化石燃料）起源 CO₂ の濃度変動によって説明できることがわかった。森林内部での CO₂ 鉛直プロファイルは、人為起源と生物起源のそれぞれで異なる傾向を示した。森林内部での CO₂ 鉛直プロファイルから、森林内部にある生物起源 CO₂ が同じ森林から発生したこと、人為起源 CO₂ が森林上空から供給されていると考えられる。また、水平方向の大気移流は森林内の CO₂ 鉛直プロファイルに影響を与えるほど大きなものではないことが示唆された。

謝辞

本研究を行うにあたり、中京テレビ放送（株）には、試料採集のための鉄塔への立ち入りなどの便宜を図って頂いた。サンプリングには、名古屋大学大気水圏科学研究所陸域表層変動分野のメンバーの協力を頂いた。なお、本研究の一部には文部省科学研究費（課題番号 11213209/10144103）及び笹川科学研究助成費（10-258K）の一部を使用した。記して謝意を表します。

引用文献

- Aikawa, M., Yoshikawa, K., Tomida, M., Aotsuka, F. and Haraguchi, H. (1995) Continuous monitoring of the carbon dioxide concentration in the urban atmosphere of Nagoya, 1991-1993. *Analytical Sciences*, 11, 357-362.
- 青木 浩 (1997) 名古屋大学年代測定資料研究センター・MAT-252 における炭素・酸素の安定同位体組成測定について. *名古屋大学加速器質量分析計業績報告書*, 8, 68-80.
- Aoki, H. (1997) Bi-weekly variations of stable carbon isotopic composition within tree rings using the shot pinning method and their correlation with environmental factors, *M.S. thesis, Graduate School of Sciences, Nagoya University, Nagoya*, p.32.
- Craig, H. (1957) Isotopic standards for carbon and oxygen and correction factors for mass-spectrometric analysis of carbon dioxide, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 12, 133-149.
- Inoue, H. and Sugimura, Y. (1984) Diurnal change in $\delta^{13}\text{C}$ of atmospheric CO₂ at Tsukuba, Japan, *Geochem. Jour.*, 18, 315-320.
- Keeling, C. D. (1958) The concentrations and isotopic abundances of atmospheric carbon dioxide in rural areas. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 13, 322-334.

- Kitagawa, H., Masuzawa, T., Nakamura, T. and Matsumoto, E. (1993) A batch preparation method for graphite targets with low background for AMS ^{14}C measurements, *Radiocarbon*, 35, 295–300.
- Mook, W. G. and Jongsma., J. (1987) Measurement of the N_2O correction for $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios of atmospheric CO_2 by the removal of N_2O , *Tellus*, 39B, 96–99.
- Moriizumi, J., Nagamine, K., Iida, T. and Ikebe, Y. (1998) Carbon isotopic analysis of the atmospheric methane in urban and suburban areas: fossil and non-fossil methane from local sources, *Atmospheric Environment*, 17, 2947–2955.
- Nakamura, T., Nakai, N., Sakase, T., Kimura, M., Ohishi, S., Taniguchi, M. and Yoshioka, S. (1985) Direct detection of radiocarbon using accelerator techniques and its application to age measurements, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 24, 1716–1723.
- Leavitt, S. W. and Long, A. (1982) Evidence for $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ fractionation between tree leaves and wood, *Nature*, 298, 742–744.
- Levin, I. and Kromer, B. (1997) Twenty years of high precision atmospheric $^{14}\text{CO}_2$ observations at Schauinsland station, Germany. *Radiocarbon*, 39, 205–218.
- Sirisampan, S. (1999) Diurnal and seasonal variations of stomatal conductance in six plant species composing warm-temperate forest, *M.S. thesis, Graduate School of Sciences, Nagoya University, Nagoya*, p.93.
- Stuiver, M. and Polach, H. A. (1977) Reporting of ^{14}C Data, *Radiocarbon*, 19, 355–363.
- Takahashi, H. A., Yonenobu, H., Nakamura, T. and Wada, H. (1998) Bi-weekly variations of stable carbon isotope in oak tree rings, *Chinese Sci. Bull.*, 43, 126.
- Uhse, K., Schmidt, M. and Levin, I. (1998) Atmospheric CO_2 records from sites in the UBA air sampling network In: *Trends: A Compendium of Data on Global Change*. Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tenn. (<http://cdiac.esd.ornl.gov/ftp/trends/co2/schauinsland.co2>)

Contributions of anthropogenic and biogenic CO₂ to the atmosphere at an urban forest in winter season and their diurnal variations of vertical profiles

Hitoshi A. Takahashi¹, Eiichi Konohira², Tetsuya Hiyama², Masayo Minami¹, Atsuhiko Takahashi¹, Hideyuki Oguri¹ and Toshio Nakamura³

¹ Earth and Planetary Sci., Grad. School of Sci., Nagoya Univ., Nagoya 464-8602, Japan

² Inst. Hydrospheric-Atmospheric Sci, Nagoya Univ., Nagoya 464-8601, Japan

³ Dating and Materials Research Center, Nagoya Univ., Nagoya 464-8602, Japan

Abstract

Diurnal variations of carbon isotopic compositions ($\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$) of atmospheric CO₂ as well as concentration in an urban area on 9 February, 1999 were measured. The carbon isotopic approach in the present study discriminated quantitative contributions from the several CO₂ sources, *i.e.*, background, anthropogenic and biogenic components, in the urban atmosphere. The diurnal variations in vertical profiles in anthropogenic and biogenic components within the forest were estimated, and their contributions were ranged from 1.3 to 15.8 % and from 1.6 to 7.8 %, respectively. There was a little variation vertically at each time in the respective components, whereas anthropogenic CO₂ fluctuated largely according to the total atmospheric CO₂ variation. On the other hand, the biogenic CO₂ concentration remained relatively constant throughout the day. With regard to the vertical profiles, the biogenic contribution increases from the top to the floor of the forest with smooth gradient, while the anthropogenic contribution shows the mirror image profile against biogenic one. Both of them showed the large gradual change especially during the night.