

大気-海洋間における CO₂交換速度の波浪条件依存性

津守博通¹・志賀 慧²・畠山文香³
杉原裕司⁴・芹澤重厚⁵・吉岡 洋⁶

海洋観測塔において風速、波浪、CO₂濃度、水蒸気濃度等の現地観測を行い、WPL 補正に基づく渦相関法から CO₂フラックスを算定した。得られた CO₂フラックスと大気-海洋間の CO₂分圧差から CO₂の気体交換速度を評価し、その波浪条件依存性を検討した。その結果、うねりが卓越する波浪場の CO₂交換速度は、風波が卓越する波浪場に比べて相対的に小さくなることがわかった。また、風波が卓越する波浪場のデータに着目した場合、波齢が大きいほど交換速度は大きくなる傾向を示した。さらに、CO₂交換速度の波齢依存性が摩擦速度と有義波高で定義されるレイノルズ数によって記述でき、交換速度のデータの分散が碎波と密接に関わることがわかった。

1. はじめに

大気-海洋間における二酸化炭素 (CO₂) の気体交換速度を正確に見積もることは、地球温暖化を精度よく予測する上で重要である。これまでに提案されてきた交換速度の推定式の多くは、海上風速との関係を多項式やべき乗式の形で表した単なる相関式 (例えば, Liss・Merlivat, 1986; Wanninkhof・Bliven, 1991; Nightingale ら, 2000) であり、推定式ごとにばらつきが見られる。その理由として、海上風速が同じでも吹送距離や吹送時間によって波の発達状況が大きく異なるため、交換速度もそれらに依存して変化することが考えられる。また、海洋表面には風と直接結合した風波と他の風域から伝播してきたうねりが混在した波浪場が形成されている。従来の研究において、Sugihara ら (2006) はうねりの存在により白波碎波が抑制されることを指摘している。白波碎波は、海洋表層の乱流を強化し、気泡の生成を伴うことから、気体交換を著しく促進させるものと考えられている。これらのことは、うねりの存在によって気体交換速度が減少することを示唆する。

本研究の目的は、現地観測を通して、波の発達状況 (波齢) およびうねりの存在が CO₂ の気体交換速度に及ぼす影響を明らかにすることである。海洋観測塔において、風速、波浪、CO₂濃度、水蒸気濃度等の計測を行い、WPL 補正を施した渦相関法から CO₂フラックスを算定する。得られた CO₂フラックスと大気-海洋間の CO₂分圧差から交換速度を評価し、その波浪条件依存性

を検討する。さらに、碎波に密接に関連する無次元パラメータを用いて、交換速度の普遍表示を試みる。

2. CO₂フラックスと気体交換速度の算定方法

本研究では、海洋表面での CO₂の鉛直フラックス F ($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$) を算定するために渦相関法を用いた。CO₂フラックス F は接水大気境界層内で測定された鉛直風速 w と CO₂濃度 C を用いて次式のように表される。

$$F = \overline{w'C'} + \overline{w} \overline{C'} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 w' (m/s) は鉛直風速変動、 C' ($\mu\text{mol}/\text{m}^3$) は大気中の CO₂濃度変動、一は時間平均を示す。乱流拡散による輸送が卓越する場合、右辺第 2 項の移流の効果は無視できる場合が多い。しかし、海上では水蒸気の蒸発が盛んで空気の密度変動が大きいため、この仮定が成立しない。Webb ら (1980) は、潜熱および顕熱フラックスからこの項を評価し、次式を提案した。

$$F = \overline{w'C'} + \frac{m_a}{m_v} \frac{\overline{C}}{\rho_a} \overline{w'\rho'_v} + \left(1 + \frac{m_a}{m_v} \frac{\rho_v}{\rho_a}\right) \frac{\overline{C}}{T} \overline{w'T'} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 m_a , m_v (kg/mol) および ρ_a , ρ_v (kg/m³) はそれぞれ乾燥空気および水蒸気の分子量と密度であり、 T (K) は絶対温度である。式 (2) の第 2 項は潜熱補正項を、第 3 項は顕熱補正項を示す。

海洋表面での CO₂フラックス F ($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$) と気体交換速度 k_L (m/s) は、次式によって関係づけられる。

$$F = k_L \cdot S \cdot \Delta p \text{CO}_2 \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 S (mol/m³/atm) は CO₂の海水への溶解度、 $\Delta p \text{CO}_2$ (μatm) は大気-海洋間の CO₂分圧差である。本研究では、式 (2) から CO₂フラックスを算定し、大気側・海水側の CO₂濃度測定から CO₂分圧差を算定する。これらの結果と式 (3) を用いて気体交換速度を評価する。

1 正会員 博(工) (独)国立環境研究所 地球環境研究センター
2 九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻
3 九州経済産業局 資源エネルギー環境部
4 正会員 博(工) 九州大学助教授大学院総合理工学研究院流体環境理工学部門
5 京都大学助手 防災研究所流域災害研究センター
6 正会員 理博 愛知県立大学教授 情報科学部地域情報科学科

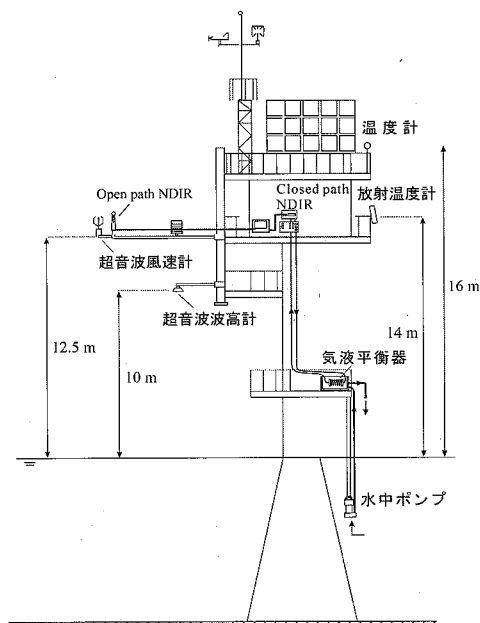
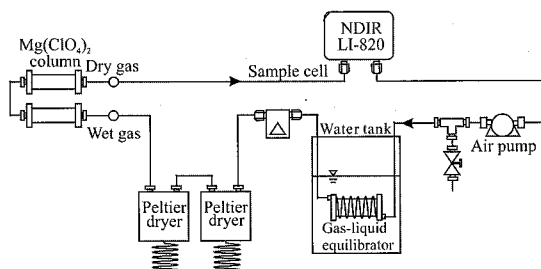


図-1 観測塔および観測システムの概略図

3. 観測の概要およびデータ解析

現地観測は、和歌山県西牟婁郡白浜町の田辺湾沖合 2 km (東経 135°19'58", 北緯 33°42'32") に位置する田辺中島高潮観測塔 (京都大学防災研究所流域災害研究センター所有) において行われた。観測期間は 2005 年 9 月 13 日 17 時から同 16 日 17 時までの 72 時間であった。図-1 に観測塔および観測システムの概略図を示す。平均海面からの高度 (以下、高度) 12.5 m の位置に超音波風速温度計を設置し、風速の 3 成分および温度変動の瞬時値を測定した。また、同じ位置の Open path 型非分散赤外線ガス分析計 (NDIR: LI-COR Li-7500) を用いて大気中の CO_2 濃度と水蒸気濃度を測定した。これらの出力値を 15 分毎のブロックに分けて、平均風速・風向、 CO_2 渦相関フラックスおよび潜熱・顕熱フラックスを算定した。海水中の CO_2 濃度については、疎水性多孔質膜チューブから成る気液平衡器を用いて評価した。図-2 に海水側 CO_2 濃度測定システムの概略図を示す。図に示すように、気液平衡器を経由する閉管路を構築し、エアポンプで内部の気体を循環させた。気液平衡器は下部デッキに置かれた水槽内に設置されており、管路内の気体の CO_2 分圧は海水中の CO_2 分圧と平衡状態になる。得られた平衡気体をペルチエドライヤーと過塩素酸マグネシウム ($\text{Mg}(\text{ClO}_4)_2$) で除湿した後に Closed path 型 NDIR (LI-COR Li-820) に取り込み、この平衡気体の CO_2 濃度を測定することによって海水中の溶存 CO_2 濃度を推定した。なお海水はポンプで下

図-2 海水側 CO_2 濃度測定システムの概略図

部デッキの水槽まで揚水され、水槽内には常に新しい海水が供給されている。気象データとして、高度 14 m に設置された放射温度計を用いて海面温度 T_s ($^{\circ}\text{C}$) を、高度 16 m の位置に設置された温度計を用いて気温 T_a ($^{\circ}\text{C}$) を測定した。また、高度 10 m の位置に設置された超音波波高計を用いて水位変動を測定し、有義波高 H_s 、ピーク波周期 T_p を評価した。

4. 観測結果および考察

(1) 気象・波浪特性

図-3 (a), (b) に、平均風速 U_{10N} (m/s)・風向 WD (deg)、有義波高 H_s (m)、ピーク波周期 T_p (s) の時系列を示す。ここで、 U_{10N} は高度 12.5 m の超音波風速温度計によって得られた主流方向の平均風速の値を高度 10 m に外挿し、中立状態に換算した風速を示す。平均風速は、観測開始直後は 2 m/s 前後と小さいが、14 日 0 時から 15 日 12 時までは概ね 4~8 m/s の範囲にあり、この間の風速の変化は比較的小さい。一方、観測期間後半においては、ほぼ無風から 12 m/s にわたる幅広い風速の変化が見られ、風の非定常性が大きいことがわかる。風向は、観測期間を通じて概ね南から北西寄り、次いで北東寄りへと変化している。観測塔周辺の地理的状況から、南および西寄りの風は海側からのもの、北および東寄りの風は主に陸側からのものであると推察される。有義波高は観測開始時には 0.1~0.2 m 程度であるが、これらは次第に増大し、14 日 15 時前後には 1 m 程度に達している。しかし、その後は 16 日 9 時前後で一時的に増加するものの、観測終了まで減少傾向にあった。一方、ピーク波周期は期間後半から緩やかに増大する傾向にあり、その値は 4.5~10.5 s の範囲にあることがわかる。

(2) 大気-海洋間の CO_2 分圧差およびフラックス

図-4 (a), (b) に、大気中の CO_2 分圧 $p\text{CO}_2$ (μatm)、海水中の CO_2 分圧 $p\text{CO}_2$ (μatm) および大気-海洋間の CO_2 分圧差 $\Delta p\text{CO}_2$ (μatm) の時系列を示す。ここで、各々の値の変化が大きく明らかに異常と思われる時間帯のデータは除外している。これらの図より、大気中の CO_2 分圧は観測開始時には 370 μatm 程度であり、緩や

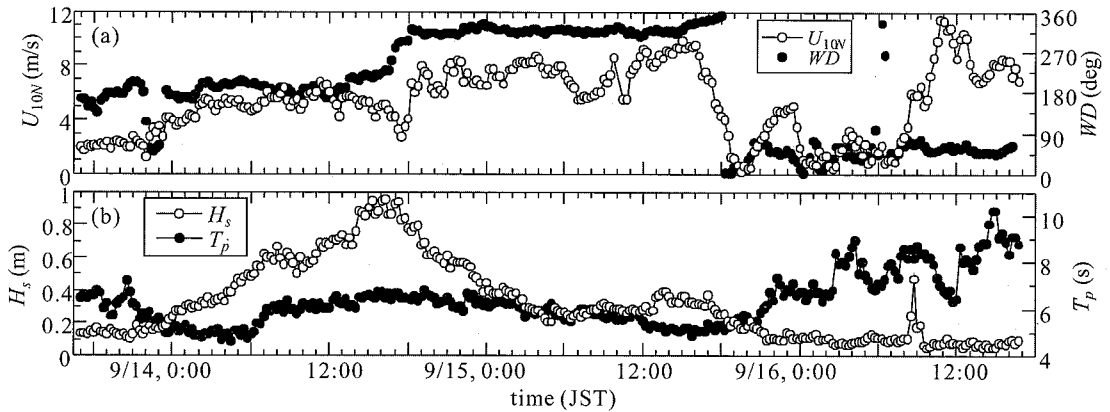


図-3 気象・波浪データの時系列
(a) 海上高度 10 m における風速 U_{10m} ・風向 WD , (b) 有義波高 H_s およびピーク波周期 T_p

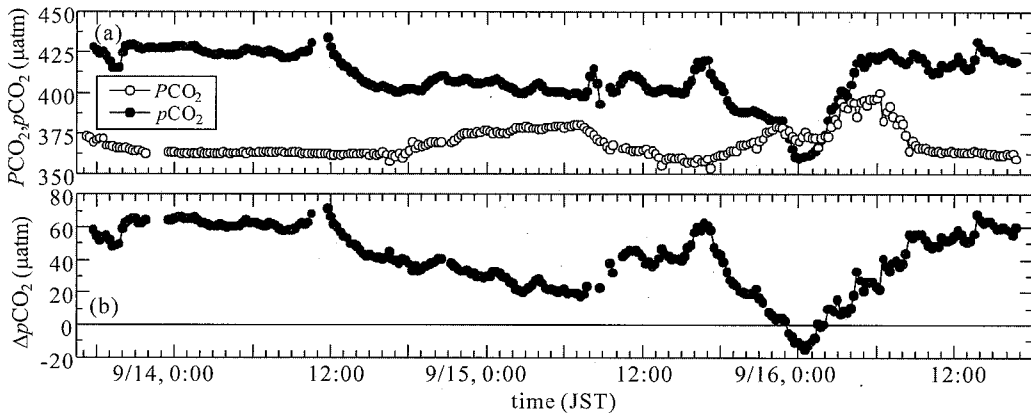


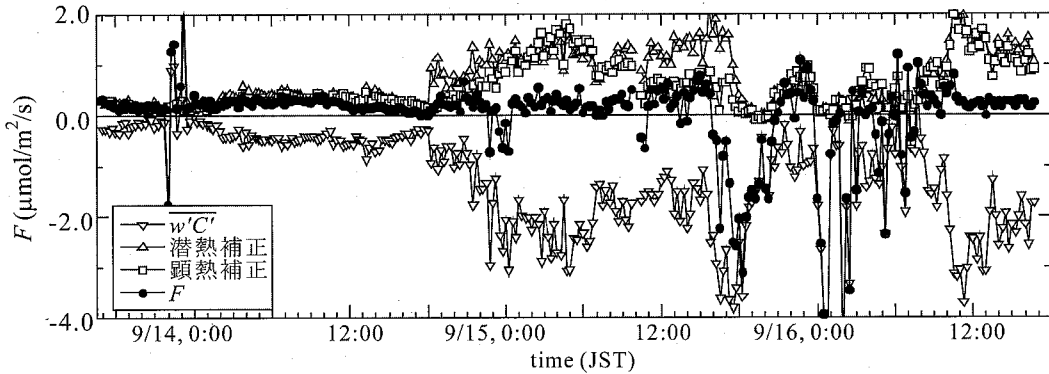
図-4 CO_2 データの時系列
(a) 大気中の CO_2 分圧 PCO_2 および海水中的 CO_2 分圧 pCO_2 , (b) 大気-海洋間の CO_2 分圧差 ΔpCO_2

かな増減を経て観測期間後半で一時的に大きな値をとることがわかる。しかし、この時間帯を除けば、 CO_2 濃度の値は概ね $350 \sim 375 \mu\text{atm}$ の範囲にあり、その変動の幅は比較的小さいと言える。一方、海水中的の CO_2 分圧は観測開始時に $430 \mu\text{atm}$ 程度であったが、その後は $360 \mu\text{atm}$ 付近まで下がっており、その変動の幅は大気側に比べて相対的に大きい。また、 CO_2 分圧差 ΔpCO_2 は、最大で $60 \mu\text{atm}$ 程度の値を示し、16 日 0 時頃を除いてほぼ正の値であった。このことは、観測期間のほとんどの時間帯において、 CO_2 が海洋から大気中へ放出されていたことを示している。図-5 には WPL 補正に基づいて算出された CO_2 フラックス F およびフラックスに対する渦相関量、潜熱補正量、顕熱補正量の寄与 ($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$) を示す。これらの時系列より、渦相関量がほぼ常に負の値をとっており、乱流拡散の効果は下向きのフラックスに寄与していることがわかる。一方、潜熱および顕熱補正量は正の値をとっており、それらの合計は渦相関量とほぼ同程度の大きさを示している。このこ

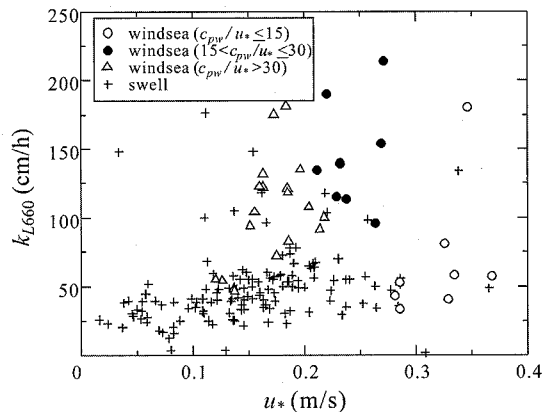
とから、海洋から大気中への CO_2 の放出には潜熱と顕熱が大きく関与しているものと思われる。また、 CO_2 フラックス F と CO_2 分圧差の向きは観測期間を通してほぼ一致するが、渦相関量だけに着目した場合、ほとんど一致していない。このことは、海上において CO_2 フラックスを算定する際の WPL 補正の重要性を示唆する。なお、観測後半においてフラックスの向きと分圧差の向きが一致しない時間帯が見られるが、その原因として風速が小さい場合や風の非定常性が大きい場合に、フラックス算定の前提条件である接水乱流境界層が十分発達していることや平均風速・風向の定常性が破綻していることが考えられる。

(3) 気体交換速度の波浪条件依存性

渦相関法を用いた従来の現地観測研究 (例えば、Donelan・Drennan, 1995; McGillis ら, 2001; Jacobs ら, 2002) では、気体交換速度の海上風速や粗度レイノルズ数に対する依存性を検討するに止まっている。以下では、得られたデータを波浪状況を表す指標で分類し、

図-5 CO₂フラックスおよび各項の寄与の時系列

波浪条件が交換速度に及ぼす影響について検討する。図-6に、20℃の海水におけるシュミット数 $Sc=660$ に換算された気体交換速度 k_{L660} (cm/h) と摩擦速度 u_* (m/s) の関係における波浪条件の依存性を示す。平均波の位相速度 c と U_{10N} の比 c/U_{10N} の値によって、風波とうねりのどちらが卓越する波浪場であるかをある程度判断することができる。本研究では、 c/U_{10N} が 1.0 未満のものを風波が卓越する波浪場 (windsea), 1.0 以上のものをうねりが卓越する波浪場 (swell) と定義した。上記の分類方法の妥当性を検証するために、局所平衡下の風波の相似則 (Toba, 1972) について検討した結果、windsea と判断された場合の無次元波高は無次元周期の $3/2$ 乗に概ね比例していることを確認した。図-6より、摩擦速度とともに顕著に増大するのは windsea のデータであり、swell のデータはその依存性が小さいことがわかる。これは、波浪場が風と直接結合しているか否かが交換速度の挙動として観察されたものと解釈できる。また、このような傾向は、うねりが白波砕波に及ぼす効果を調べた従来の研究結果から予想される、うねりの存在が気体交換を抑制するという仮説を支持する。ここでは、波の発達状況が交換速度に及ぼす影響を調べるために、windsea のデータを波齢 c_{pw}/u_* が 15 以下のもの、15 より大きく 30 以下のもの、30 より大きいものの3つのグループに分類した。ただし、 c_{pw} は波高のスペクトルから風波成分波のピーク周波数 f_{pw} を読み取り、その値を用いて改めて算出された風波成分ピーク波の位相速度である。また、 u_* は摩擦速度を示す。波齢 c_{pw}/u_* は、風波の発達状況を表す最も代表的な指標であり、この値が大きいほどより発達した風波であるとみなされる。これより、データの数が多いわけではないが、windsea のデータでは、波齢が大きいほど交換速度が相対的に大きくなる傾向を示すことがわかる。このことは、摩擦速度が同じ条件であれば、波のスケールが大きいほど気体交換が促進することを示している。

図-6 気体交換速度 k_{L660} の波浪条件依存性

Woolf (2005) の研究において、気体交換速度と風速の関係は砕波過程の波浪依存によって様々に変化するという可能性が指摘されている。彼は、従来の研究で取得された交換速度とそのときの風波特性量を検討し、以下のような推定式を示した。

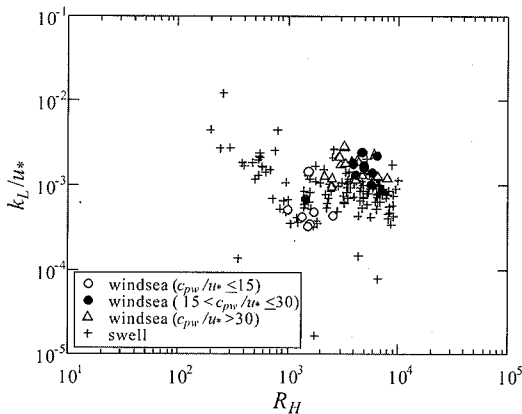
$$k_L = k_0 + 2 \times 10^{-5} R_{Hw} \quad (4)$$

ここで、 R_{Hw} は、摩擦速度 u_* 、有義波高 H_s 、水の動粘性係数 ν_w を用いて表される無次元数である。しかし、次元量である k_L と無次元量である R_{Hw} を結び付けているため、式 (4) は厳密な普遍表示であるとは言えない。よって、式 (4) を多様な波浪条件下の実海洋にそのまま適用することには疑問が残る。

図-7に、摩擦速度により無次元化された気体交換速度 k_L/u_* とレイノルズ数 R_H との関係を示す。ここで、 R_H は、次式によって定義される。

$$R_H = \frac{u_* H_s}{\nu_a} \quad (5)$$

ただし、 ν_a (m²/s) は空気動粘性係数である。 R_H は R_{Hw} とほぼ同義の無次元量であるが、砕波と結合した乱

図-7 k_L/u_* と R_L の関係

流過程を記述するパラメータと考えられる。図-7より、低風速領域では k_L/u_* は R_H の増大にともなって減少するが、 $R_H = 10^3$ 付近を境に増加し始めることがわかる。 $R_H = 10^3$ は、おおよそ砕波発生の臨界値に相当しており、このような挙動は砕波による気体交換の促進と密接に関係しているものと考えられる。 R_H が大きい領域では swell のデータも R_H と共に増加する傾向が見られるが、それでも windsea の場合に比べると相対的に小さな値をとっている。これは、風波成分波の砕波によって k_L/u_* が増大するが、白波砕波を抑制するうねりも同時に存在するために、windsea のデータに比べて砕波の効果が相対的に小さくなるためと考えられる。また、windsea のデータを R_H に対してプロットした場合、摩擦速度に対しては波齢の違いによって分離していたデータ群が、同一の普遍的な挙動を示していることがわかる。このことは、気体交換速度の波齢依存性が R_H という無次元パラメータによって記述でき、交換速度のデータの分散が砕波と密接に関わることを示唆する。

5. 結 論

本研究では、海洋観測塔において現地観測を実施し、WPL 補正に基づく渦相関法から CO₂ フラックスを算定した。得られた CO₂ フラックスと大気-海洋間の CO₂ 分圧差から気体交換速度を評価し、その波浪条件依存性について検討した。本研究で得られた結果を要約すると以下ようになる。

- (1) 本研究の観測期間において、CO₂ 分圧差は概ね正の値を示し、CO₂ は海洋から大気中へと放出されていることがわかった。また、海上では空気密度変動に起因する移流効果 (WPL 補正量) が、CO₂ フラックスに大きく寄与していることが示された。
- (2) 気体交換速度の波浪条件依存性を検討した結果、うねりが卓越した波浪場での交換速度の方が、風波が卓

越した波浪場に比べて相対的に小さな値を示すことがわかった。さらに、風波が卓越する波浪場のデータに着目した場合、同じ摩擦速度では、波齢が大きいかほど交換速度は増大することが明らかとなった。

- (3) 摩擦速度で無次元化された気体交換速度と、摩擦速度および有義波高で定義されるレイノルズ数の関係を調べた。その結果、風波が卓越する波浪場の交換速度をレイノルズ数に対してプロットした場合、摩擦速度に対しては波齢の違いによって分離していたデータ群が、一つの普遍的な関係を示すことが明らかとなった。このことは、交換速度のデータの分散が、砕波と密接に関わっていることを示唆する。

本研究を行うにあたり、九州大学松永信博教授にご助言を頂きました。本研究の一部は、科学研究費補助金 (基盤研究 (C) 代表者: 杉原裕司)、笹川科学研究助成 (代表者: 志賀慧)、総理工奨励研究費 (代表者: 杉原裕司) の援助の下で行われました。記して謝意を表します。

参 考 文 献

- Donelan, M. A. and W. M. Drennan. (1995) : Direct field measurements of the flux of carbon dioxide, Air-Water Gas Transfer, edited by B. Jähne and E. C. Monahan, AEON, pp. 677-683.
- Jacobs, C., J. F. Kjeld, P. Nightingale, R. Upstill-Goddard, S. Larsen and W. Oost. (2002) : Possible errors in CO₂ air-sea transfer velocity from deliberate tracer releases and eddy covariance measurements due to near-surface concentration gradients, J. Geophys. Res., Vol. 107, 3128, doi : 10.1029/2001JC000983.
- Liss, P. S. and L. Merlivat. (1986) : Air-sea gas exchange rates: Introduction and synthesis. The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling, edited by P. Baut-Menard, D. Reidel, pp. 113-127.
- McGillis, W. R., J. B. Edson, J. E. Hare and C. W. Fairall. (2001) : Direct covariance air-water CO₂ fluxes, J. Geophys. Res., Vol. 106, pp. 16729-16754.
- Nightingale, P. D., G. Malin, C. S. Law, A. J. Watson, P. S. Liss, M. I. Liddicoat, J. Boutin and R. C. Upstill-Goddard. (2000) : In situ evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers, Global Biogeochem. Cycles, Vol. 14, pp. 373-387.
- Sugihara, Y., H. Tsumori, T. Ohga, H. Yoshioka and S. Serizawa. (2006) : Variation of whitecap coverage with wave-field conditions, J. Mar. Systems. (to be published)
- Toba, Y. (1972) : Local balance in the air-sea boundary processes. I. On the growth process of wind waves, J. Oceanogr. Soc. Japan, Vol. 28, pp. 109-120.
- Wanninkhof, R. H. and L. F. Bliven. (1991) : Relationship between gas exchange, wind speed and radar backscatter in a large wind-wave tank, J. Geophys. Res., Vol. 96, pp. 2785-2796.
- Webb, E. K., G. I. Pearman and R. Leuning. (1980) : Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapour transport, Q. J. R. Met. Soc., Vol. 106, pp. 85-100.
- Woolf, D. K. (2005) : Parameterization of gas transfer velocities and sea-state-dependent wave breaking, Tellus, Vol. 57 B, pp. 87-94.