

九州大学工学部 ○山西博幸 楠田哲也 大石京子
九州大学大学院工学研究科 李 昇潤 東 修

1. はじめに 海洋や河川での水-大気界面を通してガス輸送量を求め得るようになることは、環境中での物質循環や大気環境へのイパクトを考える上で重要な課題である。本研究では現地にて開空間の状態でのガス濃度測定を行い、これより水表面を通してのガスフラックスを算出し、これに関わる流体力学的要素との関係性を求めることを目的とする。

2. 水-大気界面を通じたガスフラックスの算定 水-大気界面を通してのガスフラックス

F の基本式（例えば、Liss & Merlivat (1986)）は、

$$F = k(C_w - C_a^*) \quad (1)$$

ここに、 F : 水-大気界面を通してのガスフラックスで、水から大気中への輸送を正とする、 k : ガス輸送係数、 C_w : 水面下の濃度境界層よりも下層の空間的に一様とみなせる対象ガスの中濃度、 C_a^* : 大気中の対象ガスの分圧 p_a と平衡を保つ水中でのガス濃度に換算したもので、これは界面での濃度となる。なお、平衡濃度 C_a^* の算出の際、ガス分圧 p_a は $z=0.1\text{m}$ での値を用い、気体の溶解度は Weiss and Price(1980)に従い、温度と塩分の関数として求めた。一方、対象ガスの濃度は、非定常状態にあるとき、風の影響により風下で増減する。大気中の対象ガス濃度に関する物質収支式は以下の通りである（図-1 参照）。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(Cu)}{\partial x} + \frac{\partial(Cv)}{\partial y} + \frac{\partial(Cw)}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) + r \quad (2)$$

ここに、 C : 対象ガスの平均濃度、 u, v, w : x, y, z 方向の平均風速成分、 K : 乱流拡散係数、 r : 内部生成速度である。

(2)式にて、 y （図-1 紙面奥行き方向）方向の現象は一樣であり、 y, z 方向の平均風速はなく、しかも x 方向の拡散項は移流項に比べ小さく、かつ対象ガスの内部生成はないものとして次式が得られる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \frac{\partial(Cu)}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) \quad (3)$$

(3)式を検査体積内において積分することで、水表面または地表面を通してのガスフラックス F を求めることができる。

$$F = \frac{1}{L} \left[\int_0^{H_2} C_2 u_2 dz - \int_0^{H_1} C_1 u_1 dz - \int_{L'}^{L+L'} \left[C(x, H(x)) u(x, H(x)) \frac{\partial H(x)}{\partial x} + K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right]_{z=H(x)} dx + \int_{L'}^{L+L'} dx \int_0^{H(x)} \frac{\partial C}{\partial t} dz \right] \quad (4)$$

ここに、 $H(x)$: 任意の場所 x における測定上端高、 L : 測定区間の水平距離、 L' : 基準地点から断面①までの水平距離、添字1、2: それぞれ断面①、②である。

十分に境界層が発達し、時間的・空間的に定常の場合、 x 方向の分布は一定となり、(4)式の右辺分子の移流項と時間変化項を除いて、ガスフラックス F を算出できる。一方、境界層が十分に発達していない場合、水表面上で濃度変化した対象ガス塊が測定地点での高さまで輸送されない場合がある。この境界層の高さ δ は吹送距離とともに増加するため、 δ を考慮したガスフラックスを計算する必要がある（図-1 参照）。また、次のようにしてガスフラックスを推定することも可能である。すなわち、時間的に定常な現象を空間的変動だけで捉えるものとするれば、(3)式は次のようになる。

$$u(z) \frac{\partial C}{\partial x} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z(z) \frac{\partial C}{\partial z} \right) \quad (5)$$

(5)式を差分化し、数値計算によって任意の場所での対象ガスの濃度分布を求め、これを実測した濃度分布と合

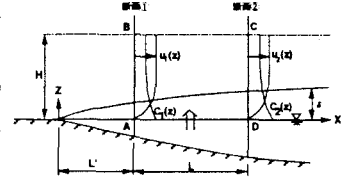


図-1 ガスフラックス算定模式図

うようにガスフラックス F を定める。

3. 現地調査 3.1 調査方法 調査は、平成9年1月27～28日（調査Ⅰ）と8月29～30日（調査Ⅱ）に行った。調査地点として福岡市東区を流れる都市河川である多々良川と宇美川の合流地点を選定した。ここでは、河口から吹送る風に影響を与えるような障害物もなく十分な境界層の発達が見込まれる。また、調査場所のすぐ近くには福岡市東部下水処理場の放流口があり、場内の処理過程で生成された N_2O を含んだ処理水が流れ込んでいる（李ら、1997）。これらの調査では、河道内に2測点のステーションを設置し、風向・風速・ガス濃度（ N_2O 、 CO_2 ）及び水質（ N_2O 、IC、pH、水温、塩分）の24時間調査（2時間毎）を実施した。調査Ⅰでは、沖側をSt.No.1、岸側をSt.No.2とし、その測定区間長 L を30mとした。2測点の設置方向は、NW-SE向きとした。風速計は7mの各ボールの頂点に固定した。ガスサンプリング高さは水表面から0.1m、地表面から1.5m、3.5m、7mの計4点とし、10分間で1リットルのガスをトラップに採取した。調査Ⅱでは、St.No.1を岸から20m離れた沖側に固定し、St.No.2は観測時の

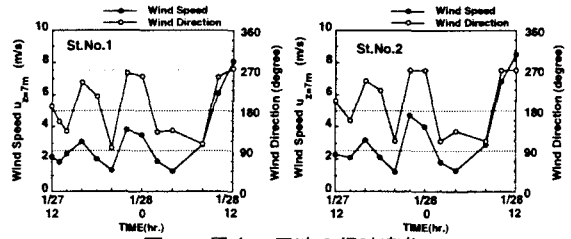


図-2 風向・風速の経時変化

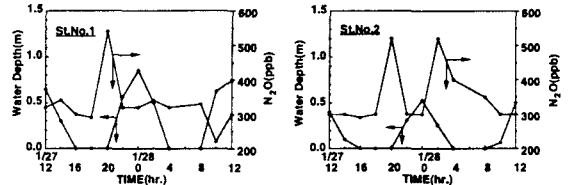


図-3 N_2O 濃度と水深の経時変化

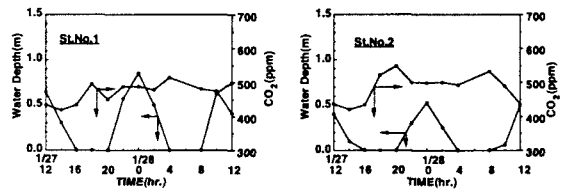


図-4 CO_2 濃度と水深の経時変化

風向に合わせて常にSt.No.1の風下側に移動させ、測定区間長 L が20mになるようにガスサンプリング用のボールを配置した。風速計はSt.No.1の地表面から3mと水表面から0.5mに設置した。ガスサンプリング高さはSt.No.1、2ともに水表面から0.1、0.2、0.5m、地表面から3mの計4点とした。さらに調査Ⅱでは、St.No.1、2の区間で、チャンバー（底面積 $S=0.143m^2$ 、高さ $h=0.14m$ ）によるガス濃度の測定も行った。

3.2 調査結果及び考察 図-2は調査Ⅰの風向・風速の経時変化である。図-3、4は調査Ⅰでの N_2O と CO_2 濃度（ $z=0.1m$ ）を水深とともに経時的に表したものである。また、図-5、6は、それぞれ調査Ⅱの風向・風速の経時変化、 N_2O 濃度（ $z=0.1m$ ）と水深の経時変化である。 N_2O 濃度は極端な場合を除いては300～350ppbvとはほぼ一定になっている。調査ⅠとⅡでは、夏場の調査Ⅱの方が平均的にはやや大きな値を示している。水表面あるいは地表面での N_2O 濃度が極端に大きくなる理由として、①風速が弱まり、大気の安定とともに鉛直混合が弱まる、②底泥内に蓄積された N_2O が土中内を浸透する水の水位上昇によって大気へ押し出される、③河道内を水位変動にともなって移動する N_2O の高濃度水塊の影響（李ら、1997）、などが考えられるものの、現時点で明確な理由は不明である。 CO_2 の値は夜間やや大きく500ppmv台となり、日中は400ppmv台で、1月28日には12:00に最低となっている。また干潟が現れるときに比較的高く、水面が現れてくると小さくなる傾向がある。

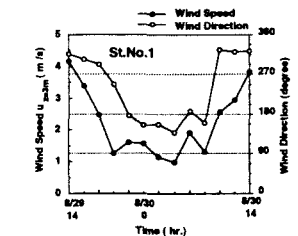


図-5 風向・風速の経時変化

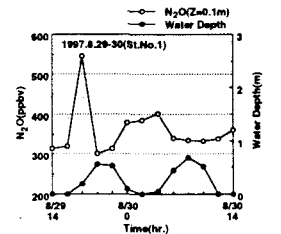


図-6 N_2O 濃度と水深の経時変化

次に、水表面もしくは地表面からのガスフラックス F を求める。a)時間的・空間的定常状態を仮定し、(4)式を用いて F を求める。b)(4)式の移流効果を考慮した F を求める。b)によるガスフラックス算定に当たっては、次のように仮定した。①境界層外縁から外部への輸送はない。②風速は対数分布則に従う。③検査体積内でのガスの生成・消滅はない。④濃度分布、速度分布ともに、空間平均値を用いて差し支えない。c)(5)式の数値計算によって実測濃度分布との比較から F を求める。なお、乱流拡散係数は高さに比例するとして $K_z = \kappa u_{*z}$ とした。

図-7は調査Ⅱにおける N_2O 濃度分布を数値計算と比較を行なった一例である。なお、境界条件として、 $x>0$ 、

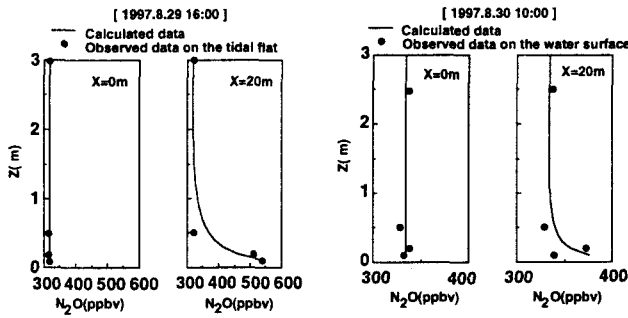


図-7 N_2O 濃度分布と数値計算との比較の一例

$z=0$ (水表面または地表面) においてガスフラックス F を与え、 $z=H$ (測定上限高) においては $\partial C / \partial z = 0$ とした。このとき推定される水表面あるいは地表面からの F は、8月29日16:00では $F = 4.55 \times 10^{-8} \text{ mol/m}^2/\text{s}$ ($u_{*s} = 0.23 \text{ m/s}$)、8月30日10:00では $F = 1.82 \times 10^{-8} \text{ mol/m}^2/\text{s}$ ($u_{*s} = 0.12 \text{ m/s}$) であった。

図-8は、摩擦速度 u_{*s} と水面からのガスフラックス F との関係を示したものである。図より、 N_2O と CO_2 の F は、 u_{*s} の増加とともに急速に増加する傾向が読みとれる。また、図-8の関係から $u_{*s} = 0$ においても $F \neq 0$ であることが予想される。図-9はチャンバーによる濃度測定から求めた F の経時変化である。今回の調査では $0.2 \sim 3.2 \times 10^{-9} \text{ (mol/m}^2/\text{s)}$ の範囲で

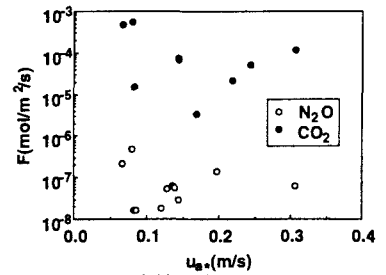


図-8 摩擦速度とフラックスとの関係

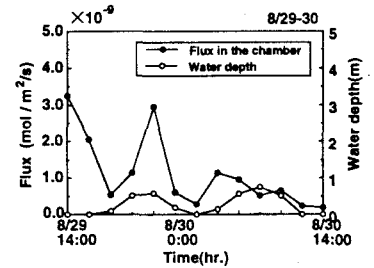


図-9 チャンバー内のガスフラックス F の経時変化

変動しているが、平均的には $0.7 \sim 0.8 \times 10^{-9} \text{ (mol/m}^2/\text{s)}$ 程度であり、図-8との比較からも妥当な値である。さらに、上記 a)、b)、c) の手法で求めた F から (1) 式を用いて k を算出することが可能である。図-10はこのようにして求めたガス輸送係数 k と摩擦速度 u_{*s} との関係をまとめたものである。 k と風速といった微気象学要素との関係は従来、Liss and Merlivat (1986) の実験式を用いることが多いが、ここでは、詳細な室内実験から導かれた Komori and Shimada (1995) の実験式を図中に示した。データのばらつきはみられるものの、 u_{*s} の増加とともに k も増加する傾向がみられる。ただし、各算出方法で値に差が生じており、特に、(4) 式の移流効果のみで計算したものと他の方法との差が顕著であった。これらがフラックス F 及びガス輸送係数 k の算出に当たって、今回は入力すべき情報に対し、十分な精度で与えられなかったことは歪めない。しかしながら、海洋や湖で調査された過去のデータの多くをみても、最大で1オーダー程度の変動幅を有している。したがって、今後は水-大気界面からのガスフラックス F やガス輸送係数 k をいかに評価し工学的に利用すべきかについての検討が必要である。

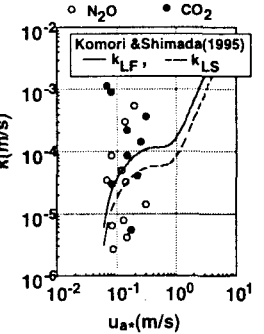


図-10 摩擦速度とガス輸送係数との関係

4. まとめ 大気中の N_2O 、 CO_2 濃度の日変動の傾向や水表面・地表面から放散する N_2O 濃度の特異的な挙動が明らかとなった。また、水-大気界面からのガスフラックス F を検査体積内の物質収支式より、3通りの手法を用いて求めた。いずれの場合においても、摩擦速度 u_{*s} の増加とともにガスフラックス F が増加する傾向がみられた。さらに、ガス輸送係数 k と摩擦速度 u_{*s} との関係も同様の傾向がみられた。一方で、このように現地調査で得られたガスフラックス F やガス輸送係数 k を環境内での物質循環や大気環境への影響を評価する上で、工学的にいかにつ利用していくかについての課題が残る。

謝辞 本研究全般にわたり、文部省科学研究費補助金基盤研究(B)(2)(代表：楠田哲也)より援助を受けた。ここに記して謝意を表します。また、多くの観測機器の借用を快く承諾していただいた(財)日本気象協会福岡本部、ガス分析に当たりご指導くださった本学大学院総合理工学研究科谷本潤講師、さらに、現地観測に直接ご協力いただいた建設都市工学科都市環境工学研究室の堂園洋昭、原田智彦両君をはじめとする研究室学生諸氏に深く感謝いたします。

参考文献 竹内清秀・近藤純正(1981) 地表面に近い大気、東京大学出版会、226p. 李ら(1997) 第52回年講 VII, pp.170-171. Komori S. & Shimada T.(1995) Air-Water Gas Transfer, pp.553-569. Liss P.S. & Merlivat L. (1986) The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling, pp. 113-129. Weiss R.F. & Price B.A. (1980) Marine Chem., 8, pp.347-359.