

36. 太平洋赤道域における微量温暖化ガス（亜酸化窒素）の挙動

Characteristics of N_2O distributions near air-sea interface on the equator area

今村 正裕*, 森 信人*, 下島 公紀*, 山本 亮介*

Masahiro IMAMURA, Nobuhito MORI, Kiminori SHITASIMA, Ryosuke YAMAMOTO

ABSTRACT: We observed nitrous oxide on the equator area from sea surface to deep water Jan.1999 and Dec.1999. Nitrous oxide gas were greenhouse effect gas for earth, appear of 320-340ppbV in the atmosphere (before the industrial revolution it was 290ppbV), very long live in the atmosphere. Nitrous oxide gas generally was produced by biological reaction in sediments and combustion of biomes. It was, however, unknown shirk or source area in the earth. The air-sea interactions were very important for some elements cycle (carbon and nitrogen) in the earth. But, boundary condition and phenomenon were not clarified. In this observation, nitrous oxide of sea surface were about less than 10nM, MAX value were 40-50nM in depth of 500-1000m. Gas solubility was affected by water temperature and salinity, going east area nitrous oxide was increasing, as water temperature was decrease. All line of equator nitrous oxide concentration was changed by some meteorological condition (wind speed, wave height, water temperature *et al.*). Gas solubility changing was not only due to water temperature but wind speed and wave height. Nitrous oxide gas saturation value and sea metrology (wind speed, wave height) were correlation.

KEYWORDS: N_2O , equator area, gas solubility, wind speed, wave height

1. はじめに

地球温暖化ガスの問題は、全地球レベルの環境問題として解決しなければならない急務な課題の一つである。京都会議 (COP3) では、主要な温暖化ガス (CO_2 , CH_4 , N_2O , SF_6 等) の削減目標が発表されたが、地球上における温暖化ガスの絶対量や循環サイクル等については、未解明な点が多い。海洋はガス吸収・放出源としての大きな役割を果たしていると考えられ (Khalil and Rasmussen(1992), Bouwman *et al.*(1995)), そのため海洋における温暖化ガスの時空間分布特性の調査・解明は、大気-海洋間における温暖化ガス循環サイクルを知る上でも重要である。

大気-海洋のガス交換は、海面粗度の変化・海洋の物性・対象とするガス物性の変化で大きく変化しいると考えられ、室内実験・現地観測結果から風速約 10(m/s) 以上でガス交換係数が大きく増加することが明らかにされている (例えば Liss, (1997)). Liss and Merlivant(1986), Wanninkhof(1992) らは、風速とガス交換係数に関する計測を行い、両者の関係についてモデル化した。このモデルが現在の大気-海洋間におけるガス交換予測計算でほとんど用いられている。しかしながら、全球における CO_2 循環の予測はモデルにより数倍異なる結果が得られており (Peng, (1990)), 現地観測結果による検証が必要不可欠となっている。近年、観測船および貨物船を利用した海水の分析や海象状況等から、ガス交換ポテン

* 財) 電力中央研究所 Central Research Institute of Electric Power Industry, Abiko 1646, Abiko-shi, Chiba, Japan 270-1194.

シャルが測定されている。しかし観測の多くは、海面近傍のみにとどまっており、ガス循環サイクルの現象解明に必要な中層～下層かけての物質状態を把握するにはいたっていない。また、そのほとんどが CO_2 に関するもので、その他の微量温暖化ガスを対象にした広域的な観測例は少ない。

微量温暖化ガスの中でも窒素の循環過程から発生する N_2O は、人為的な燃焼系統からの発生が最も大きく、その発生現象解明は以前から研究が進んでいる。一方、自然界における N_2O に関しては、そのソース・シンク源やポテンシャルに関する情報が少ない。特に、全球レベルでの収支を算出する上で面的な影響を与えると考えられる、海洋における調査は栄養塩の豊富な北太平洋に集中している。

そこで、本研究ではこの N_2O に注目し、栄養塩が比較的低く海水温も高い（西太平洋部）太平洋赤道域を対象に N_2O の挙動を検討した。観測は、1999 年 1 月（航海名：MR98-K02）、1999 年 11-12 月（MR99-K07）2 回にわたる太平洋赤道域の水質、海象観測航海の結果をもとに、微量温暖化ガスである亜酸化窒素（ N_2O ）の鉛直分布およびその挙動について検討した。さらに、海上風・波高等の気象・海象条件との関係について考察した。

2. 観測地点および分析方法

観測は海洋科学技術センター観測船「みらい」で実施された赤道域観測航海にて行った。センターで観測された物理量は、1 時間毎の気温・湿度・大気圧・時間雨量・日射量・表層水温・風向・風速および 3 時間毎の有義波高・有義周期である。採水地点および採水層は、図 1 に示す採水場所において、表層 10 m 毎、中層以下で 100m 毎に Bottom（海底 - 約 200m）まで実施した。海水は 125ml ガラスバイアルビンに採取し、さらに HgCl_2 （50 %飽和）を $50\mu\text{l}$ 添加した後、ただちにゴムセプタム及びアルミキャップにより密栓した。これらを、船上備え付けの $\text{ECD}^{63}\text{Ni} - \text{GC14B}$ （島津製作所；カラム Molecular sieve 5A 60/80 $\times$ 2m, Column Temp. 200 $^{\circ}\text{C}$, Inj/Det Temp. 300 $^{\circ}\text{C}$, gas flow rate 20ml/min.）を使い、ヘッドスペース法により分析した。分析は、試料と純窒素ガスを置換し 20ml 程度のヘッドスペースを作り、バイアル瓶を 40 $^{\circ}\text{C}$ の恒温水槽内で 4 時間浸し十分な気液平衡状態を保持させた。

気-液平衡状態に達した瓶中の気体を分析し、海水中の N_2O 濃度を算出した。

3. 赤道域における N_2O 分布

海水中の N_2O 濃度を図 2,3 に示す。1999 年 1 月（以下 K02）は、海水表層（0 ~ 10m）で 4 ~ 9nM であり、100 m 付近まではどの地点も鉛直方向への変化は小さかった。しかし、100m 以深から徐々に増

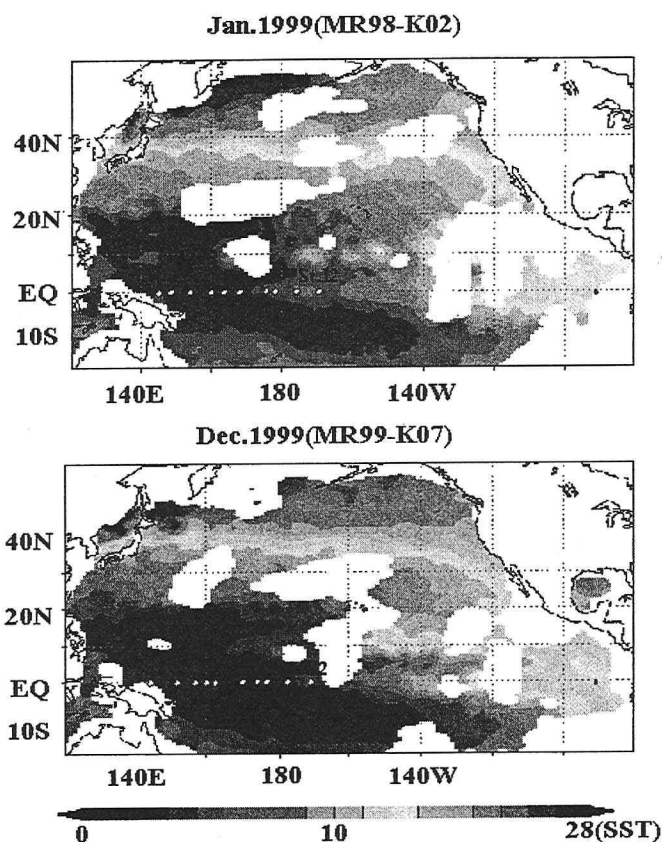


図 - 1 観測地点と観測時月平均表層水温（NOAA 観測）

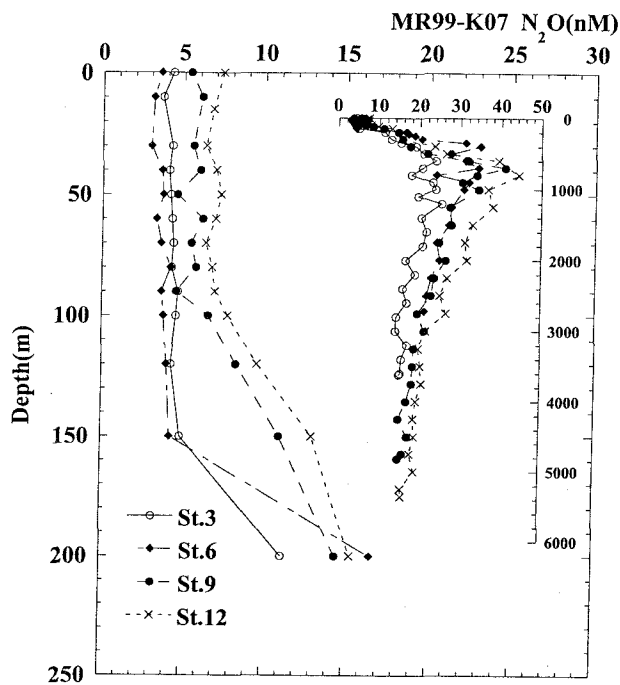
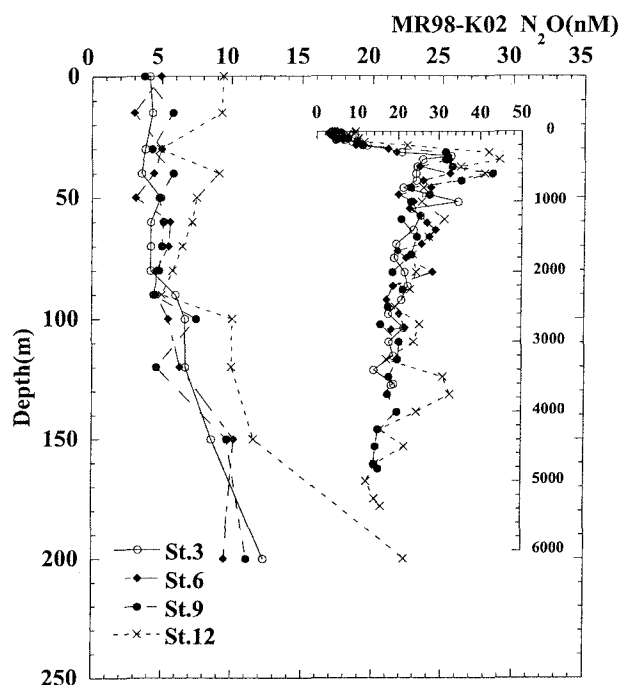


図 - 2 海水中の N_2O 濃度鉛直分布 (MR98-K02)

図 - 3 海水中の N_2O 濃度鉛直分布 (MR99-K07)

加し、300 ~ 500 mでは極大層 (30 ~ 40nM) が見られ、深層付近では20nMと安定した値を見せていた。しかし、St.12だけは海水表層、水柱全体の濃度さらに極大層における N_2O 濃度が観測地点中で最も高い値を示した。後述するが、1998年12月から赤道域海水温はエルニーニョからラニーニャに移行していた時期で、東方向に進むにつれ表層海水温の低下も見られた。さらに、下層からの栄養塩湧昇が確認でき、窒素循環の中間生成物である N_2O も高い値を示したと考えられる。一方、1999年12月 (以下K07) は海水表層の濃度が3 ~ 8nMとK02より低い値となったが、St.9、St.12では表層部 (0 ~ 約100 m) で高くなる傾向がみられた。K07では、高濃度栄養塩水塊の下層からの影響がSt.9 (180° E) でも見られ、その影響が表層に及んだと考えられる。両観測を比較すると、極大値にはそれほど大きな変化が見られないが、極大層の発生位置がK02は300 m付近、K07では900 m付近と変化している。中層における N_2O 極大層の形成は、 N_2O の生物学的な反応過程の関与が知られている (Yoshinari(1976))。海水の中では、下層方向への溶存酸素濃度低下に伴い、硝化反応活性 ($NH_4 - N \rightarrow NO_2 - N \rightarrow NO_3 - N$) が徐々に低下し、中間生成物である N_2O 生成が考えられる。さらに溶存酸素濃度が0では、脱窒反応 ($NO_3 - N \rightarrow NO_2 - N \rightarrow N_2$) が進む。しかし、溶存酸素濃度が低い状態では脱窒活性は抑制され、中間生成物である N_2O が発生しやすい。本観測域の溶存酸素濃度は水深100 ~ 200 m付近で低下しており、特にこの状況下においては硝化・脱窒の両反応が同時に進行し、 N_2O 極大層の形成が見られたと考えられる。一方、経度方向の濃度分布は、場の水温や塩分さらに下層のプランクトンや微生物の活動によって変化すると考えられる。特に、ガス交換速度を左右する水温・塩分は空間的に変化している。

図4に海水表層の水温 (SST) と同層における N_2O 飽和度 (SN_2O) を示す. 飽和度の計算は, 水温と塩分による溶解度を Weiss and Pric (1980) の関係式を使って算出した. K02 では, $160^\circ E$ までは水温が $30^\circ C$ で, それより以東では $27^\circ C$ まで急激に低下した. SN_2O もそれに伴い変化し, $170^\circ W$ では 120% と高飽和度を示した. NOAA の観測では, 海面水温が低い海域は南米ペルー沖からほぼ赤道に沿って中部太平洋まで広がっていることが指摘されており, スクリップス海洋研究所でも 1998 年 12 月から 1999 年 2 月にかけて低温傾向がはっきりすることを予測していた. 一方, K07 でも $160^\circ E$ 前後から水温が低下し $170^\circ W$ では $25^\circ C$ まで低下した. K02 の同じ地点 (St.12) と比較すると, 海水温が約 $2^\circ C$ 低いにもかかわらず, 飽和度は K02 より高い値を示した. これは, SN_2O が水温だけではなく, 風・波高などの外的要因による影響を受け変化していることを示唆するものである. 最終的に大気-海洋境界層でのガスのやりとりを評価する上では, これら外的物理量も重要なものとなる. 本赤道観測で得られた N_2O 濃度分布の結果と, Hashimoto(1998) や Hein(1997) が行ったその他の海域における N_2O 観測結果と比較すると, 赤道海域の極大値が若干低いものの, 鉛直方向の分布特性はほぼ同傾向を示した. また, 海水表層の N_2O 濃度は赤道上の方が低かった. 赤道海域は他の地点と比較し栄養塩濃度が低いこと, さらに $30^\circ C$ 近い表層海水温やその場の海象も, 濃度が低い要因の一つと考えられる.

4. 赤道域の海象と表層 N_2O 濃度の関係

海面のガス交換に関しては, Liss and L.Merlivant(1986) や Jähne(1990) が, ガス交換速度の風速依存性について詳細な検討を行っている. 本観測は定点ではないため, N_2O のガス交換速度を推定することは出来ないが, 採水時の平均風速および有義波高 ($H_{1/3}$) の観測値について考察する (図5). 両観測の St.12 を比較すると, 風速はほぼ等しいのに対し, 波高は K07 の方が高い. 同地点の水温は, 両観測時とも低いものの, SN_2O は K07 の方が低くなっている. 風速が大きく波高も高い状況では碎波に代表されるような外的要因が海面に加わり, ガス交換が促進されたと考えられる. さらに, K07 の St.4 ($150^\circ E$) 付近では水温に大きな変化が見られな

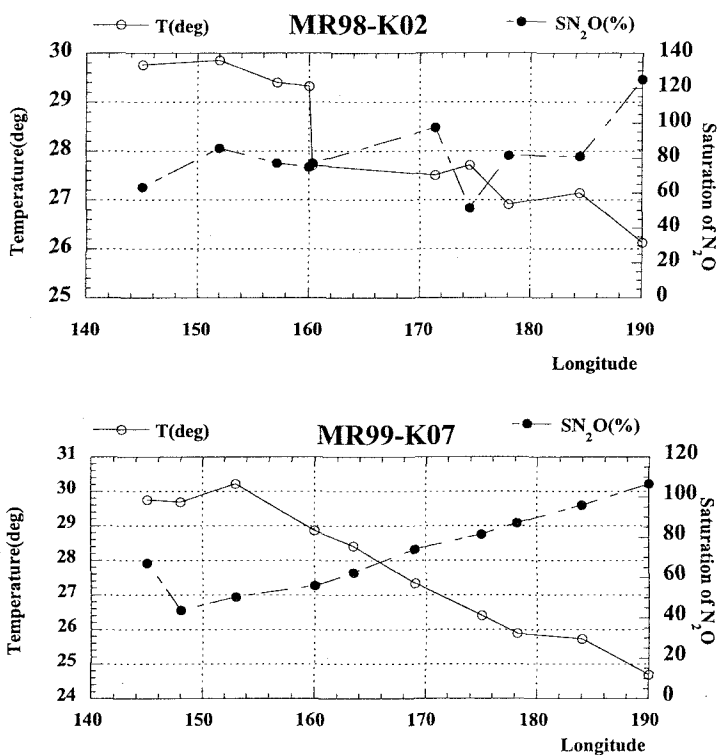


図 - 4 海水表層水温 (SST) と N_2O 飽和度の変化

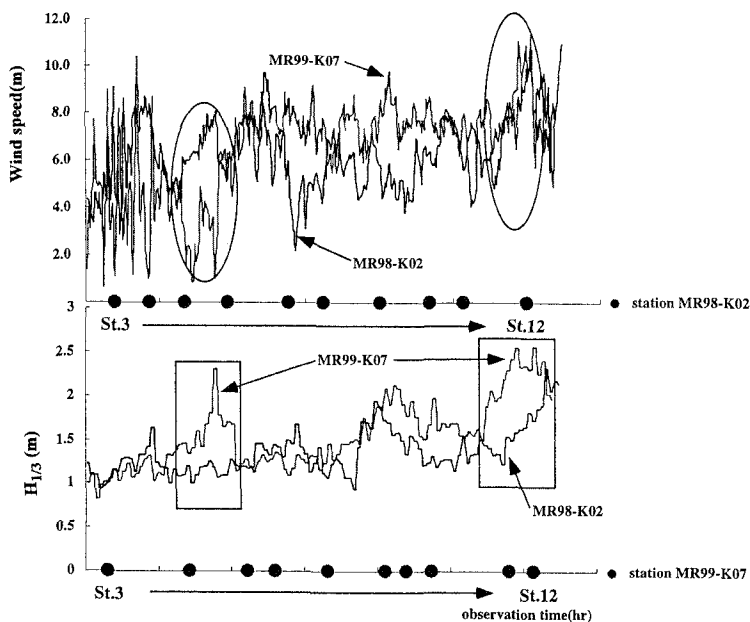


図 - 5 観測海域の風速と有義波高

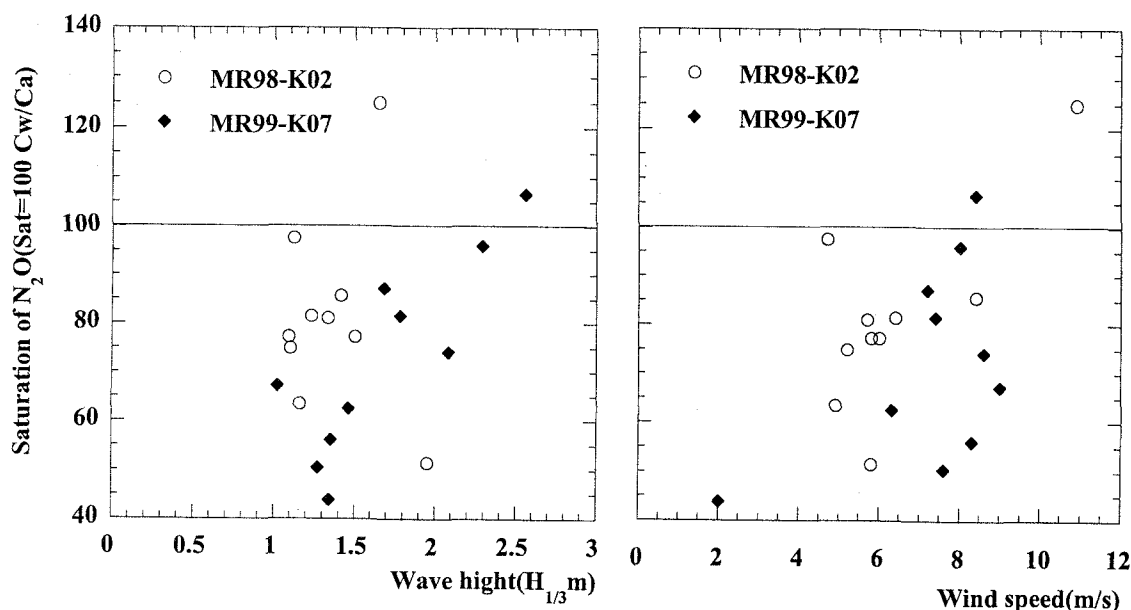


図 - 6 N_2O 飽和度と風速・有義波高の関係

いにも関わらず、 SN_2O の低下が見られた。海上風は $3 \sim 4(m/s)$ と碎波が起こるような状況ではなかったが、波高が最大 $2m$ と高くなっていた。外洋では、短い周期の波が存在する場合、風速が遅くても碎波が見られることがあり、その影響に加え水温が高いことで放出傾向が見られらた可能性も考えられる。Drennan (1992) は、碎波等の海面の乱れは、鉛直方向に波高の数倍まで達するとの報告を行っている。そこで、 $0-50m$ までの飽和度の平均値を表層における代表飽和度とし、これと採水の前 9 時間の平均風速および有義波高 $H_{1/3}$ と比較した結果を図 6 に示す。

風速と N_2O 飽和度との間には、最大風速時と最小風速時を除くとほぼ負の相関が見られた。また、風速との関係が強い有義波高と飽和度の関係も同様であった。つまり、海水中に飽和近くあった N_2O が風や波の影響で放出され、飽和度が小さくなっている傾向が見られた。しかしながら、風速が大きくても飽和状態であったり、小さくても飽和状態でない場合も見られる。実際に海表面を観察すると、風速が小さくても波高が高い状態でも海面には多数の白波が確認できた。Monahan and Woolf(1989) により白波によりガス交換が促進されるとの報告があるが、今回の観測では、波浪については有義波高・有義周期に限り観測が行われたため、次回以降の詳細な波浪観測さらに海面状況（白波面積等）の把握が望まれる。上記の結果から、この海域では海洋から大気へ N_2O 放出の可能性があり、 N_2O 飽和度は風速・有義波高 $H_{1/3}$ と弱い負の相関を持つことがわかった。

5. おわりに

観測結果より、太平洋赤道線上における N_2O の水平・鉛直方向の空間分布特性と気象・海象条件の関係について検討を行った。その結果、赤道域海水表層付近の N_2O は $3 \sim 10nM$ であり、中層付近 ($300m \sim 500m$) に $30 \sim 40nM$ と高い濃度の極大層が存在することがわかった。さらに、栄養塩や水温等の要因が影響し N_2O の濃度・飽和度が時空間的に変動していることを示した。さらに、表層から $50m$ までの飽和度平均値は風速・波高 $H_{1/3}$ と弱相関の関係にあることがわかった。K02 ではエルニーニョからラニーニャに移行している時期と重なっており、ラニーニャによる深層からの栄養塩の供給等さらには、気象的な要素も含めて今後の継続的な観測、さらに表層での白波の面積・波浪スペクトル等、界面状態のより詳細な情報の取得が必要である。

参考文献

- Bouwman, A., K. VanderHoke, and J. Oliver (1995). Uncertainties in the global source distribution of nitrous oxide. *Journal of Geophysical Research* 100, 2785–2800.
- Drennan, W. (1992). Observations of the enhancement of kinetic energy dissipation beneath breaking wind waves. In M. Banner and R. Grimshaw (Eds.), *In breaking wave*. IUTAM Sympo.
- Hashimoto, S., Y. Kurita, Y. Takasu, and A. Otsuki (1998). Significant difference in the vertical distribution of nitrous oxide in the central bay of bengal from that in the western area. *Deep-sea Research I* 45, 301–316.
- Hein, P. D. and W. Helder (1997). Nitrous oxide in the somali basin :the role of upwelling. *Deep-sea Research II* 44(6-7), 1319–1340.
- Jahne, B. (1990). New experimental results on the parameters influencing air-sea gas exchange. In P.S.Liss and R.A.Duce (Eds.), *In the sea surface and global change*, pp. 582–591. Cambridge University press.
- Khalil, M.A.K. and Rasmussen, R. (1992). The global sources of nitrous oxide. *Journal of Geophysical Research* 97, 14651–14660.
- Liss, P.S. and Mwrivant, L. (1986). Air-sea gas exchange rates: introduction and synthesis. In P.Buat-Menard (Ed.), *In the role of air-sea exchange in Geochemical cycling*, pp. 113–127. Dordrecht, Holland: Kluwer Academic.
- Liss, P. (1997). Physical process in the microlayer and the air-sea exchange of trace gases. In P.S.Liss and R.A.Duce (Eds.), *In the sea surface and global change*, pp. 1–34. Cambridge University press.
- Monahan, E. and D. Woolf (1989). Coments on 'variations of whitecap coverage with wind stress and water temperature. *J. Phys. Oceanogr* 19, 706–711.
- Peng, T. (1990). Oceanic CO_2 uptake and future atomospheric CO_2 concentrations. In S.C.Wilhelms and J.S.Gullver (Eds.), *In Air-water mass trasfer*, pp. 618–635. ASCE.
- Wanninkhof, R. (1992). Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *Journal of Geophysical Research* 97, 7373–7382.
- Weiss, R. and B. A. Price (1980). Nitrous oxide solubility in water and seawater. *Marine Chemistry* 8, 347–359.
- Yoshinari, T. (1976). Nitrous oxide in the sea. *Marine Chemistry* 4, 189–202.