

様式 C-19

科学研究費補助金研究成果報告書

平成23年4月1日現在

機関番号：15301

研究種目：特定領域研究

研究期間：2006～2010

課題番号：18067010

研究課題名（和文）微量気体成分の海面乱流フラックス直接測定法の開発

研究課題名（英文）Direct measurement of trace gas air-sea fluxes

研究代表者

塚本 修 (TSUKAMOTO OSAMU)

岡山大学・大学院自然科学研究科・教授

研究者番号：40027298

研究成果の概要（和文）：

地球温暖化に直接関わる二酸化炭素が海面を通して吸収・放出される量を、現場で短時間に直接測定できる渦相関法の手法を用いて測定する手法の開発を行った。陸面に比べて微小なCO₂交換量を高精度に算定するには、測定器の光学系の管理、またフラックス補正項の評価が不可欠であることがわかった。また、海面から放出され、上空での雲の形成に関わる硫化ジメチル(DMS)について、これまでできなかった渦相関法での放出量評価に取り組んだ。

研究成果の概要（英文）：

In the global warming, carbon dioxide(CO₂) plays an important role and its transport through air-sea interface should be quantitatively evaluated. We have developed on-board eddy-covariance system including energy and trace gas fluxes. Air-sea CO₂ flux is less than an order of magnitude smaller than vegetation over land and should be evaluated very accurately. Eddy-covariance measurement of DMS flux is also tried as well as successful vertical profile method.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2006年度	12,100,000	0	12,100,000
2007年度	8,500,000	0	8,500,000
2008年度	6,000,000	0	6,000,000
2009年度	4,400,000	0	4,400,000
2010年度	3,000,000	0	3,000,000
年度			
総計	34,000,000	0	34,000,000

研究分野：気象学

科研費の分科・細目：地球惑星科学 {気象・海洋物理・陸水学}

キーワード：気候変動，地球温暖化，二酸化炭素，海面フラックス，地球観測，地球変動予測

1. 研究開始当初の背景

地球規模の気候変動を考える場合に、二酸化炭素の増加に伴う地球温暖化のメカニズム解明はもっとも大きなテーマの1つであり、緊急に作業を進める必要がある。しかし、地球上で最も広い表面積を占める海面と大気との二酸化炭素交換量の正確な把握はまだできていない。また、他の地球温暖化気体については、さらに研究が遅れている。とくに大気中で硫酸エアロゾルを生成し、雲量をコントロールするといわれる「硫化ジメチル(DMS)」については最近注目されているところであり、この海洋からの放出量の評価が重要な問題と認識されるようになった。

2. 研究の目的

このような背景の下に、本研究代表者たちがこれまで進めてきた、海洋上を航行する船舶で「渦相関法」の手法を用いてこれら微量気体の海面交換量を直接測定し、吸収量・放出量を高精度に評価する手法を確立することが本研究の目的である。この方法は陸上での二酸化炭素吸収・放出の測定には世界標準の方法としてすでに、広く行われるようになってきたが、海洋上への応用については世界的にも進んでいないのが現状である。本研究グループではこれまでに海面上で渦相関法を適用できる、国内では唯一の研究グループとして実績をあげてきた。これまでは主として海面上での熱エネルギー交換量を中心に研究を進めてきたが、本研究により微量気体成分の海面交換量を高精度に測定できるような、また広く普及できるような手法を確立し、データを蓄積することが目的である。

3. 研究の方法

(1)海面乱流フラックス測定のための船舶動

揺補正技術の開発・改良

海面で吸収・放出される熱やガスのフラックスを渦相関法で算定するには、風速3成分の乱流変動を超音波風速計で測定する必要がある。船舶を用いた観測では船体の動揺に伴う見かけの風速成分を除去する必要があり、本研究グループでは従来からこの手法開発に取り組んできた。動揺計測器の改良も含めてより高精度に、またより広範囲のデータに適用できるよう手法の改良・修正を行った。

(2)渦相関法によるCO₂フラックス測定

赤外線ガス分析計を用いて海面CO₂フラックスを測定できるようになったが、従来から海洋化学的手法で行われてきたフラックスの値と比べ、桁違いに大きな数値を示すことがわかった。どちらが正しいのかについてはまだ不明であるが、渦相関法の立場から精度検証を様々な方法で行った。

①オープンパス型ガス分析計

CO₂の乱流変動を野外大気で直接的に測定するオープンパス型ガス分析計は、渦相関法の標準的な測器である。しかし、海上で長期に使用すると海塩粒子が光学窓に付着し、これが赤外線吸収特性を変化する可能性が指摘されていた。この点に的を絞って様々な観点から定量的評価をおこなった。

②クローズドパス型ガス分析計

サンプル大気を直接測定するのではなく、野外からチューブで吸引し室内のガス分析計で測定するクローズドパス型ガス分析計が従来から、ガス濃度の平均値測定に用いられてきた。これを渦相関法に使うCO₂乱流変動測定に用いるグループがあり、この結果は従来のCO₂フラックスと整合的であると報告している。これは上述のオープンパス型とは大きく異なる

る結果で、この違いを解明するために空気を吸引するチューブ内での信号の減衰、時間遅れについて詳細な検討をした。

③空気密度変動に伴うWPL補正

これらのガス分析計は空気の単位体積(空間)あたりのガス濃度を測定するが、気温や水蒸気量の時間変化に伴って空気の体積、つまり空気密度は変動する。空気単位質量あたりのガス濃度は一定でも、この空気密度変動のために見かけ上ガス濃度が変動しているように見える。この効果を算定するのがWPL補正で、海面のような微小なCO₂フラックスでは大きな寄与を占めると考えられるので、これを定量的に評価する手法を検討した。

④プロフィール法によるCO₂フラックス測定

これら渦相関法によるCO₂フラックスの精度検証のため、CO₂濃度の鉛直分布を用いるプロフィール法でフラックス算定を試みた。

(3)DMSフラックスの渦相関法による直接測定

これまで得られているクローズドパス渦相関法によるDMSフラックス測定では濃度変動の減衰、位相遅延についての評価が不確定である。そこで本グループで開発中のオープンパス型DMS変動計測器を渦相関法システムに組み込み、船舶で運用することを試みた。

(4)モバイルフラックスシステムの構築

これまで海洋地球観測船「みらい」で定常的に行ってきた渦相関法による海面乱流フラックス測定を他の船舶にも応用できるように、設置・撤収が簡単に行えるモバイルフラックスシステムを構築する。これを実際の観測船に設置して実用可能なフラックス測定システムとして構築した。

4. 研究成果

これまでの研究で以下のような成果があった。

(1)海面乱流フラックス測定のための船舶動揺補正技術の開発・改良

①船体の傾斜角測定には従来傾斜計を用いていたが、加速度の影響を含まないように3次元角速度計の信号を時間積分して求める手法が有効であることがわかった。

②水平風速の低周波成分について、船首方位と船速の信号を併用することで、有効な動揺補正を行えることがわかった。

(2)渦相関法によるCO₂フラックス測定

①オープンパス型ガス分析計

研究者が観測船に乗船中、ガス分析計の光学窓を何度か清掃した前後のデータから、窓の汚れに伴って、CO₂濃度の絶対値が低下することと変動の振幅が増大することがわかった。また、CO₂変動と水蒸気変動の相関係数に明瞭な違いがみられ、これが窓の汚れを把握する指標になることが示唆された。

②クローズドパス型ガス分析計

オープンパス型・クローズドパス型の併用観測から水蒸気変動の高周波成分について明瞭な信号減衰が見られた。CO₂変動については温度変動の減衰もあるのでWPL補正に関わる空気密度変動も影響してくる。そのためと濃度変動が微小であることから単純には評価が難しいが、数mという短いチューブでもCO₂フラックスの過小評価を示した。

③空気密度変動に伴うWPL補正

WPL補正項は渦相関法による顕熱フラックスと水蒸気フラックスから得られるが、この補正項を加えるとCO₂の吸収を示していた結果が、放出側に転じるケースがあった。この結果をバルク法を比較するとどちらも微小ではあるが、やはり渦相関法が大きな値を示した。また、このWPL補正を施す代わりに、CO₂の質量混合比に直接変換して渦相関法を適用することも試みた。WPL補正の結果とよく対応し、

両者は整合的であることがわかった。ただより厳密には大気中の気圧変動を考慮する必要があることが示唆された。

④プロファイル法によるCO₂フラックス測定

船舶の周囲ではガス濃度の鉛直分布に船体の影響が現れるので、船体から少し離れた位置にブイを係留し、ここでガス濃度の鉛直分布測定を行った。CO₂だけでなくDMSについても測定できることがわかり、これらの結果から輸送速度は従来の値よりも2倍程度大きくなることが示された。

(3)DMSフラックスの渦相関法による直接測定

蛍光を利用したオープンパス型のDMS変動測定器を試作し、船舶での観測に応用した。水蒸気変動と相関の高いDMS変動を測定することができ、渦相関法で暫定的にフラックス値を算定することができた。今後引き続いて精度検証が必要になる。

(4)モバイルフラックスシステムの構築

本システムを構築し、陸上での試験運用の後、実際の船舶に設置して運用した。岡山大学理学部付属の牛窓臨海実験所の「マリナス」、神戸大学の「深江丸」、東京大学の「淡青丸」、白鳳丸」に設置しそれぞれに最適な設置場所を選定することができ、他の船舶への応用について実績をつむことができた。

5. 主な発表論文等

[雑誌論文] (計 20 件)

- ① Tsukamoto, O. and F. Kondo (2011): Accurate Measurement of Air-Sea CO₂ Flux with Open-path Eddy-Covariance Proceeding of the 10th International Symposium on Gas Transfer at Water Surfaces, Kyoto University Press, 154-164, 査読有
- ② O. Tsukamoto, T. Takeda, Y. Kamei, J. Miura, F. Kondo and H. Ishida (2010): Mobile Platform for on-board Eddy Flux

Measurements of Energy, CO₂ and Momentum. Proceedings of TECHNO-OCEAN 2010, pp4 査読有

- ③ H. Ishida, K. Kobayashi and T. Hiraki (2010): Estimation of Dry Deposition Flux of Sulfur Dioxide to the Sea Water Surface. Proceedings of TECHNO-OCEAN 2010, pp4, 査読有
- ④ Murata, A., Y. Kumamoto, K. Sasaki, S. Watanabe, and M. Fukasawa, (2010): Decadal increases in anthropogenic CO₂ along 20°S in the South Indian Ocean, Journal of Geophysical Research, 査読有, 115, doi:10.1029/2010JC006250
- ⑤ Cai, W.-J., L. Chen, B. Chen, Z. Gao, S. H. Lee, J. Chen, D. Pierrot, K. Sullivan, Y. Wang, X. Hu, W.-J. Huang, Y. Zhang, S. Xu, A. Murata, J. M. Grebe, E. P. Jones, and H. Zhang (2010), Decrease in the CO₂ uptake capacity in an ice-free Arctic Ocean basin, Science, 査読有, 329, 556 - 559
- ⑥ Murata, A., Y. Kumamoto, K. Sasaki, S. Watanabe, and M. Fukasawa (2009), Decadal increases of anthropogenic CO₂ along 149° E in the western North Pacific, Journal of Geophysical Research, 114, 査読有, C04018, doi:10.1029/2008JC004920
- ⑦ I. Nagao, S. Hashimoto, K. Suzuki, S. Toda, Y. Narita, A. Tsuda, H. Saito, I. Kudo, S. Kato, Y. Kajii, and M. Uematsu (2009): Responses of DMS in the seawater and atmosphere to iron enrichment in the subarctic western North Pacific (SEEDS-II), Deep Sea Research II, 56, 2899-2917, 査読有
- ⑧ S. Kato, M. Watari, I. Nagao, M. Uematsu, Y. Kajii (2009): Atmospheric trace gas measurements during SEEDS-II over the Northwestern Pacific, Deep Sea Research II, 56, 2918-2927, 査読有
- ⑨ S. Hashimoto, S. Toda, K. Suzuki, S. Kato, Y. Narita, M. K. Kurihara, Y. Akatsuka, H. Oda, T. Nagai, I. Nagao, I. Kudo, M. Uematsu (2009): Production and air-sea flux of methyl halides in the western subarctic Pacific in relation to phytoplankton pigment concentrations during iron fertilization experiment (SEEDS II), Deep Sea Research II, 56, 2928-2935, 査読有
- ⑩ S. Saito, I. Nagao (2009): Characteristics of ambient C₂-C₁₁ non-methane hydrocarbons in metropolitan Nagoya, Japan, Atmospheric Environment, 43, 4384-4395, 査読有

- ⑪ 近藤文義(2009) : 大気-海洋間の二酸化炭素交換量の直接評価手法に関する研究, 八雲環境科学振興財団研究レポート集 94-99, 査読無
- ⑫ F. Kondo and O. Tsukamoto(2008) : Evaluation of Webb Correction on CO₂ Flux by Eddy Covariance Technique Using Open-Path Gas Analyzer over Asphalt Surface, *Journal of Agricultural Meteorology*, Vol. 64(1), 1-8, 査読有
- ⑬ Murata, A., Shimada, S., Nishino, and M. Itoh, (2008) : Distributions of surface water CO₂ and air-sea flux of CO₂ in coastal regions of the Canadian Beaufort Sea in late summer, *Biogeosciences Discussions*, 5, 5093-5132, 査読有
- ⑭ F. Kondo, O. Tsukamoto, H. Ishida and K. Yoneyama(2008) : On-board Direct CO₂ Flux Measurement Technique over the Open Ocean, *Proceedings of TECHNO-OCEAN '08*, pp. 4, 査読有
- ⑮ 小林賢, 平木隆年, 石田廣史(2008) : 西部太平洋上における夏季と冬季の表層大気中オゾン濃度について, 環境技術学会「環境技術」, 37(5), 28-35, 査読有
- ⑯ F. Kondo and O. Tsukamoto(2007) : Air-Sea CO₂ Flux by Eddy Covariance Technique in the Equatorial Indian Ocean, *Journal of Oceanography*, 37(3), 449-456, 査読有
- ⑰ Tsuda, A., I. Nagao et al. (2007), Evidence for the grazing hypothesis: Grazing reduces phytoplankton responses of the HNLC ecosystem to iron enrichment in the western subarctic Pacific (SEEDS II) *Journal of Oceanography*, 63, 983-994, 査読有
- ⑱ 小林賢, 平木隆年, 石田廣史(2007) : 大気中SO₂の海洋への乾性沈着フラックスの推定 *大気環境学会誌*, 42(6), 321-326, 査読有
- ⑲ K. Kobayashi, T. Hiraki, E. Yamashita and H. Ishida(2006) : Characteristics of Chemical Constituents of Rain in the Western Pacific Equatorial Ocean Sampled by the Sequential Constant Volume Method, *Proceedings of Techno-Ocean 2006/19th JASNAOE Ocean Engineering Symposium*, pp. 3, 査読有
- ⑳ T. Takashima, H. Ishida and R. Welch (2006) : Optical Characteristics of Atmosphere-Surface Derived from Hyper Spectral Polarimeter, *J. The Remote Sensing Soc. of Japan*, 26(5), 374-383, 査読有

[学会発表] (計 20 件)

- ① F. Kondo, F. Griessbaum, O. Tsukamoto, and M. Uematsu: Direct Measurement of Turbulent Particle and Gas Fluxes by Eddy Covariance Technique over the Open Ocean, 2010 AGU Fall Meeting, San Francisco USA, 2010/12/13-17
- ② T. Iwata, S. Kameyama, H. Tanimoto, CO₂ and DMS Flux measurement by the profiling buoy system, 2010 AGU Fall Meeting, San Francisco USA, 2010/12/13-17
- ③ I. Nagao(2010) : Photochemical oxidants and their precursors in an urban air of Nagoya, Japan, The 2nd Nanjing Univ.-Nagoya Univ. Joint Workshop on Climate and Environment, 2010/12/5, 名古屋市
- ④ 小野珠実, 根田昌典, 塚本修, 近藤文義, 植原量行, 岩坂直人 : KT09-21 淡青丸観測航海における乱流熱フラックス直接観測, 日本海洋学会 2010 年度秋季大会, 網走, 2010/9/26
- ⑤ O. Tsukamoto and F. Kondo: Accurate Measurement of Air-Sea CO₂ Flux with Open-Path Eddy-Covariance, Abstracts of the 6th International Symposium on Gas Transfer at Water Surfaces, Kyoto Japan, 2010/5/20
- ⑥ I. Nagao(2010) : Behaviors of photochemical oxidants and their precursors in urban air of Nagoya, Japan, The 1st Nanjing Univ.-Nagoya Univ. Joint Workshop on Climate and Environment, 2010/3/1, 中国・南京市
- ⑦ T. Iwata, Air-Ocean CO₂ flux by the gradient method, SOLAS Open Science Meeting 2009, 2009/11/15-19, Barcelona, Spain
- ⑧ Saito, S. and A. Murata, Decadal changes in CaCO₃ saturation state along 179° E in the Pacific Ocean, *PICES Annual Meeting*, Jeju, Korea, October, 27, 2009.
- ⑨ 岩田徹, 廣江秀俊, プロファイリングブイによる海表面ガスのサンプリング, 2009 年度日本地球化学会年会, 2009/9/15-17, 東広島市
- ⑩ Saito, S. and A. Murata, Decadal changes in CaCO₃ saturation state along 179° E in the Pacific Ocean, *8th International Carbon Dioxide Conference*, Jena, Germany, September 13, 2009.
- ⑪ 永尾一平, 齊藤伸治(2009) : 名古屋の都市大気 of 芳香族炭化水素の日変化, 日本地球惑星科学連合 2009 年合同大会, 2009 年 5 月 20 日, 千葉市

- ⑫永尾一平, 岩本洋子, 川名佳織, 植松光夫, 加藤俊吾, 村田昌彦(2009): 2007年夏季北部北太平洋の大気と海水DMS分布と大気DMSの酸化条件, *Blue Earth 09* (みらいシンポジウム) 2009/3/12, 東京都
- ⑬T. Iwata, Air-Ocean CO₂ flux by the gradient method, AGU fall meeting 2008, 2008/12/15-19, San Francisco, USA
- ⑭永尾一平, 岩本洋子, 加藤俊吾, 村田昌彦, 川名佳織, 植松光夫(2008): 夏季北部北太平洋の大気と海水の高濃度DMSについて, 第14回大気化学討論会, 2008/10/29, 横浜市
- ⑮F. Kondo and O. Tsukamoto: Comparative Eddy Covariance CO₂ Flux Measurements Using Open- and Closed-Path Gas Analyzers over the Equatorial Pacific Ocean, Abstracts CD-ROM of 8th Annual Meeting of the European Meteorological Society, Vol. 5, EMS2008-A-00334, Amsterdam Netherlands, 2008/9/18
- ⑯永尾一平, 近藤文義, 加藤俊吾, 岩本洋子(2008): フッ素との蛍光反応を利用したDMS濃度の高速測定装置の開発, 地球惑星科学連合2008合同大会, 2008/5/27, 千葉市
- ⑰永尾一平, 近藤文義: MR07-04における大気・海水DMS濃度分布と大気へのDMS放出量の測定, W-PASS Eddy-Covariance Workshop, 新宿, 2008/3/26
- ⑱永尾一平, 植松光夫(2007): 北太平洋のDMS放出量の測定 第13回大気化学討論会 2007/11/27 名古屋市
- ⑲Murata, A., Summertime CO₂ sources and sinks in the eastern Bering Sea shelf, *Surface Ocean CO₂ Variability and Vulnerability Workshop*, Paris, France, 2007/4/20.
- ⑳T. Iwata, C. Watanabe, O. Tsukamoto, CO₂ profile in the lower atmosphere and CO₂ flux by the gradient method, *Surface Ocean CO₂ Variability and Vulnerability Workshop*, 2007/4/11-14, Paris, France

[図書] (計 1 件)

- ①Tsukamoto, O. and F. Kondo, Kyoto University Press, Proceeding of the 10th International Symposium on Gas Transfer at Water Surfaces, 2011, 154-164.

[産業財産権]

- 出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

なし

6. 研究組織

(1) 研究代表者

塚本 修 (TSUKAMOTO OSAMU)
岡山大学・大学院自然科学研究科・教授
研究者番号: 40027298

(2) 研究分担者

石田 廣史 (ISHIDA HIROSHI)
神戸大学理事
研究者番号: 60031473

村田 昌彦 (MURATA AKIHIKO)
海洋開発研究機構・地球環境変動領域・
チームリーダー
研究者番号: 60359156

永尾 一平 (NAGAO IPPEI)
名古屋大学・大学院環境科学研究科・助教
研究者番号: 00252297

岩田 徹 (IWATA TOORU)
岡山大学・大学院環境学研究科・准教授
研究者番号: 10304338

近藤 文義 (KONDOU FUMIYOSHI)
東京大学・大気海洋研究所・特任研究員
研究者番号: 40467725

(3) 連携研究者 なし