

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 3月31日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010～2012

課題番号：22560518

研究課題名（和文） 波浪特性に基づいた大気-海洋間の二酸化炭素交換速度の評価法に関する研究

研究課題名（英文） STUDY ON WAVE-BASED DESCRIPTION OF AIR-SEA TRANSFER VELOCITY OF CARBON DIOXIDE

研究代表者

杉原 裕司（SUGIHARA YUJI）

九州大学・総合理工学研究院・准教授

研究者番号：70243970

研究成果の概要（和文）：海洋観測塔でのフィールド観測を実施し、大気-海洋間 CO_2 交換速度に及ぼす波浪特性の効果について検討を行った。海水中の溶存 CO_2 分圧の測定には LED による光学的原理に基づく液-液平衡式海洋 CO_2 センサーを用いた。観測で得られた CO_2 フラックスおよび大気-海洋間 CO_2 分圧差 $\Delta p\text{CO}_2$ から CO_2 交換速度を算定した。 CO_2 交換速度は風速 6～7m/s 付近から急激に増大し、波齢が大きいほど相対的に大きくなる挙動を示すことを確認した。また、従来の経験式と比較すると、本観測で得られた交換速度はかなり大きな値を示した。さらに、Woolf (2005) and Soloviev et al. (2007) の知見に基づいて、砕波による乱流機構を取り込んだ CO_2 交換速度のハイブリッドモデルに関する研究を進め、波齢によって風速依存性が変化する交換速度モデルの検討を行った。 CO_2 交換速度に対する波浪場の影響について種々の知見が得られ、特に純粋な風波波浪場に対しては交換速度を定量化するための基本フレームを構築することができた。

研究成果の概要（英文）：Characteristics of wave-dependent gas transfer velocity of CO_2 at air-sea interface are investigated by means of field measurements at a sea observation tower. The partial pressure of CO_2 in seawater is measured by using a liquid-liquid equilibrator. The CO_2 transfer velocity is estimated from the CO_2 flux and the air-sea difference of the partial pressure of CO_2 . The present results indicate that the transfer velocity increases rapidly at wind speeds beyond 6 or 7m/s and increases relatively with the wave age. The transfer velocity obtained from the present measurements becomes quite large in comparison with existing empirical relations. A new model of the transfer velocity describing the effects of wave breaking is formulated on the basis of hybrid models of Woolf (2005) and Soloviev et al. (2007). The present model shows that variations of wind-speed dependence of the transfer velocity may be based on the wave age. Based on the present results, we can build the basic framework for quantifying the CO_2 transfer velocity for pure windsea.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	2,600,000	780,000	3,380,000
2011年度	500,000	150,000	650,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	3,600,000	1,080,000	4,680,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：土木工学・水工学

キーワード：海面境界過程、気体交換、地球温暖化、二酸化炭素

1. 研究開始当初の背景

気液界面を通しての物質輸送の理解と予測は、水工学、化学工学、大気海洋科学などの様々な分野の研究対象となっている。CO₂やO₂のような高シュミット数気体の界面輸送現象は、非常にマイクロな乱流過程に支配されているにも関わらず、グローバルな環境水圏の物質収支を規定している。大気海洋界面でのCO₂の鉛直フラックス F ($\mu\text{mol}/\text{m}^2/\text{s}$)とガス交換速度 k_L (m/s)は、次式によって関係づけられている。

$$F = k_L \cdot S \Delta p\text{CO}_2 \quad (1)$$

ここで、 S ($\text{mol}/\text{m}^3/\text{atm}$)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。地球温暖化の予測精度を向上させるためには、大気-海洋間のCO₂交換速度を正確に評価する必要がある。しかし、従来のCO₂交換速度の評価式の多くは海上風速との単なる相関式である。経験式ごとの推定値のバラツキもかなり大きく、海上風速だけで交換速度を定量化するには無理があるように思われる。波浪場の吹送距離依存性を考えたとき、大気-海洋間におけるCO₂交換速度が海上風速のみの関数ではなく、波浪状態に関わる特性量に依存すると考えるのは自然なことである。従って、交換速度は、本来、波浪特性を考慮して定量化されるべきものと考えられる。ただし、従来の観測データは波浪情報を伴わないものが多いため、このアイデアを検証することはそれほど容易ではないことに注意が必要である。このような背景から、交換速度の波浪依存性については未解明な点が多く、その評価法も十分に検討されていないのが現状である。

2. 研究の目的

本研究では、先進的な観測機器を用いて沖合海洋観測塔でのフィールド観測を実施する。観測データにより大気-海洋間CO₂交換速度に及ぼす波浪特性の効果を定量的に示すと共に、波浪特性に基づいた交換速度の評価法について検討する。本研究では、先行研究に倣って、フラックスの算定に渦相関法(ECM)と慣性散逸法(IDM)の同時併用法を用いる。また、海水中の溶存CO₂分圧の測定には、LEDによる光学的原理を用いた液-液平衡式海洋CO₂センサーを利用する。さらに、観測研究と平行して、波浪特性量を組み込んだ新しいCO₂交換速度のモデル化に関する研究を行う。その際、海上風速のみに基づく代表的な従来の経験式の風速依存性の違いが波の発達状態(波齢)に起因することを説明する。これらの成果に基づいて、波浪特性を

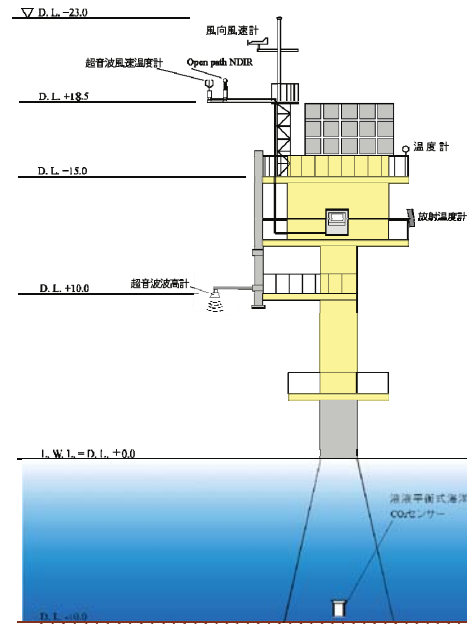


図1 観測塔および観測システムの概略図

考慮した交換速度の評価法について検討を行う。

3. 研究の方法

本研究は大きく2つのテーマから構成されている。1つ目は、CO₂交換速度およびフラックスの波浪特性に対する変化を検討するためのフィールド観測研究である。本研究では、近年開発されたLEDによる光学的原理を用いた液-液平衡式海洋CO₂センサーを使用した。この液-液平衡式海洋CO₂センサーについては、海洋研究開発機構の研究グループからシステムの使用を含めて技術協力を受けた。2つ目のテーマは、ハイブリッドモデルの概念に基づいた、交換速度の波浪依存性に関するモデル化の研究である。これは数理モデルの観点から、交換速度の波浪特性への依存性を検討するものである。

フィールド観測は、全国共同利用施設である京都大学防災研究所・白浜海象観測所所有の田辺中島高潮観測塔において行われた。観測期間は、2011年3月1日から同31日までの31日間と9月1日から11月27日までの88日間であった。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18.5m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)を用いて大気中のCO₂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、CO₂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。これらのフラック

スを用いて、次式の WPL 補正による大気中の CO₂ フラックスの算定を行った。

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

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、 $\overline{\quad}$ は時間平均を示す。また、 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。ECM と IDM による同時併用を実施し、両者の測定値が統計的に一致する時間帯のデータを抽出することで、測定誤差の小さなフラックスのデータセットを作成することを試みた。海洋中の溶存 CO₂ 分圧を評価するために、水深 10m の位置に観測塔に固定する形で、液-液平衡式海洋 CO₂ センサーを設置した。このセンサーは海洋研究開発機構の研究グループが開発したもので、海水中の CO₂ とセンサー内部溶液中の CO₂ を透過膜を介して液-液平衡状態にし、内部溶液の pH を分光学的な方法で測定することで間接的に海水中の CO₂ 分圧を算定する。これらの計測システムを用いて大気側と海洋側の同時観測を実施し、観測で得られた CO₂ フラックスおよび大気-海洋間 CO₂ 分圧差 $\Delta p\text{CO}_2$ から CO₂ 交換速度を算定した。また、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。ただし、液-液平衡式海洋 CO₂ センサーでは、観測初期にデータのドリフトが見られたため、それが治まった以降の 2011 年 10 月 4 日～11 月 8 日を解析対象とした（なお、ドリフト後に全体的に値がシフトしたとして、過去の周辺海域のデータに基づいて補正を行った）。本研究では、得られた観測データに基づいて CO₂ 交換速度の波齢依存性について検討を行った。

理想的な純粋な風波波場における交換過程の場合、ECM と IDM によるフラックスの算定値が定量的に一致することが期待される。従って、両者の適合性を乱す要因を調べることで、交換過程に影響を及ぼす因子を見出すことができると思われる。ここでは、運動量フラックスおよび CO₂ フラックスに関する ECM と IDM の適合性を乱す要因として、風速や CO₂ 濃度の非定常性と波浪状態、特にならぬ影響に着目した。なお、変動因子に関する検討では、波浪の方向スペクトルが得られている 2007 年 1 月 24 日から 3 月 14 日までの 50 日間の観測データを対象に検討を行っている（ただし、その際のフラックス測定点は、海上高度 12.5m であった）。

次に、CO₂ 交換速度の評価法を検討するためのモデル化に関する研究について述べる。Woolf (2005) および Soloviev et al. (2007) のハイ

ブリッドモデルの知見に基づいて、大気海洋界面における CO₂ 交換速度 k_L の新しいハイブリッドモデルの構築を試みた。ハイブリッドモデルとは、交換速度 k_L の評価法として、 k_L を、非砕波による寄与 k_t と砕波による寄与 k_b とに分離して見積もるモデル化手法である。本研究でのモデル化やモデルパラメータはその妥当性が十分に吟味されているとはいえないが、風波乱流の力学機構を取り込んでいるという意味では従来の経験式よりも物理的に妥当なモデルになっているものと思われる。さらに本研究では、各経験式の違いが波の発達状態（波齢）に起因することについても検討を行った。

4. 研究成果

図 2 (a), (b) に、式(2)の CO₂ フラックスにおける各項の寄与の時系列および大気中の CO₂ 分圧 $p\text{CO}_2$ (μatm) と海水中の CO₂ 分圧 $p\text{CO}_2$ (μatm)、気象庁が観測した和歌山県白浜における雨量の時系列を示す。ここでは、液-液平衡式海洋 CO₂ センサーで計測を行った 2011 年 10 月 4 日～11 月 8 日までの観測期間の結果のみを使用している。図 2 の (a) より、 $\overline{w'C'}$ は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 $\overline{w'C'}$ とほぼ同程度の大きさを示している。従って、これらの総和として算出される CO₂ フラックスの値は非常にデリケートであることがわかる。なお、式(1)から交換速度を算定する際に、フラックスと CO₂ 分圧差の符号が不整合のデータは算定対象から除外されている。図 2 の (b) より、大気中の CO₂ 分圧は概ね 400 μatm を少し下回る程度の値を中心に振動していることがわかる。これは、海上からの“きれい”な気塊の移流と、陸風による“汚れた”気塊の移流が交互に発生するためである。図からわかるように、大気中の CO₂ 分圧は降雨時においてデータが大きく散乱している。この原因としては、Open path 型 NDIR の検出部を水滴が通過することによって赤外線吸収が乱されたこと、また NDIR のガラス面に水滴が付着したことなどが考えられる。一方、海水中の CO₂ 分圧は、10 月中は概ね 360 μatm 程度で安定しており、11 月に入ると 400 μatm 近くにまで増大している。また、海水中の CO₂ 分圧においても降雨に反応する挙動が見られる。これは、降雨および河川からの淡水流入によって海水中の pH が変化し、それによって海水中の CO₂ 濃度が変化したことによると思われる。これらの結果より、降雨は、大気中の CO₂ 分圧と海水中の CO₂ 分圧の測定に大きな影響を与えており、観測データを分析する際に注意が必要であることがわかった。

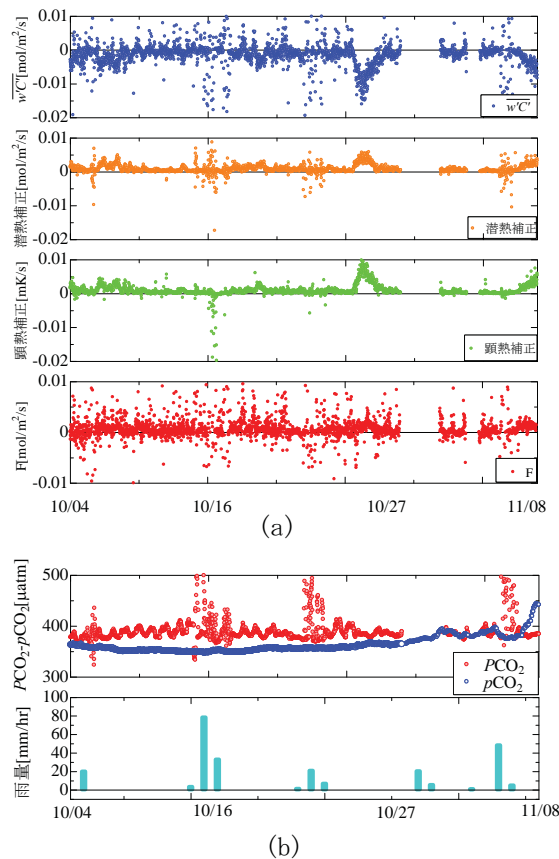


図2 (a) CO₂フラックスにおける各項の寄与、
(b)大気中CO₂分圧PCO₂、海水中CO₂分
圧pCO₂および雨量

図3に、ガス交換速度 $k_{L,660}$ と摩擦速度 u_* の関係を示す。ここでは、波齢 $c_p u_*$ によってデータを4つのグループに分類した。なお、 c_p はピーク波の位相速度である。また、図中の実線は、それぞれの波齢グループのデータの挙動を経験的に示したものである。この図より、データのバラツキは見られるが、同程度の摩擦速度で比較した場合、 $c_p u_*$ が大きいほど交換速度が増大していることがわかる。このことは、波齢、すなわち波のスケールが大きいほどガス交換が促進することを意味している。Sugihara et al. (2007)は、波齢が大きいほど、白波被覆率が增大すると報告している。このことは、波齢が大きいほど、気泡生成を伴うような砕波の発生が活発化することを意味している。本研究の結果も、砕波の発生臨界値に概ね対応する海上風速6~7m/s付近から交換速度が急激に増大しており、砕波による物質交換の促進がその原因であると思われる。今回の観測では最終的なデータ数がそれほど多くないため、観測データのみから確定的な結論を述べるのは難しいが、定性的には、波齢が大きいほど、すなわち波が発達するほど、CO₂交換速度が増大すると考えてよいと思われる。ただし、本観測結果は、外洋を対象とした従来の観測結果に比べて、交換速度の絶

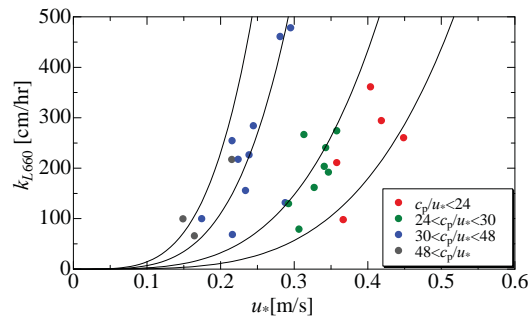


図3 CO₂交換速度の波齢依存性

対値がかなり大きい。沿岸域では渦相関法で測定されたフラックスの値が相対的に大きくなるのがこれまでも指摘されているが、その原因は十分に解明されていない。

大気海洋界面における運動量およびCO₂フラックスをECMとIDMの2つの手法によって算定し、各フラックスについて両手法の適合性に影響を及ぼす力学的要因を検討した。本研究では、そのような因子として、風速とCO₂濃度の非定常性および波浪状態に着目した。その結果、両手法の適合性は、主風向に対する海面風応力の偏向度に顕著に依存することを確認した。さらに、主風向とうねりの伝播角との関係を調べた結果、風向に対してうねりが斜めに伝播する場合に風応力が偏向することがわかった。このことは、両手法の適合性、すなわち大気-海洋間の交換過程の変動機構にうねりの力学的作用が大きな影響を及ぼすことを示唆している。その他の因子の影響については今後の課題としたい。

次に波浪特性量を組み込んだCO₂交換速度のモデル化の結果について述べる。モデルの導出過程は省略するが、Woolf (2005)およびSoloviev et al.(2007)のハイブリッドモデルの知見に基づいて、次のような大気海洋界面のCO₂交換速度を記述する新しいハイブリッドモデルを定式化した。

$$\begin{aligned}
 k_L &= k_t + k_b \\
 k_t &= b[\varepsilon v_w S c^{-2}]^{1/4} \\
 k_b &= c \left(\frac{Ke_w / Ke_{wcr}}{1 + Ke_w / Ke_{wcr}} \right)^{1/2} u_{*w} R_H^\gamma \\
 \varepsilon &= \frac{u_{*w}^4}{\kappa c_1 v_w (1 + Ke_w / Ke_{wcr})^2} \\
 &\quad + \frac{\alpha (Ke_w / Ke_{wcr})^{3/2} u_{*w}^3}{\kappa c_b (1 + Ke_w / Ke_{wcr})^{3/2} H_s}
 \end{aligned} \tag{3}$$

ここで、 ε は海面極近傍のエネルギー散逸率、 $Ke_w = u_{*w}^3 / g v_w$ は風波クーリガン数、 $R_H = u_* H_s / v_a$

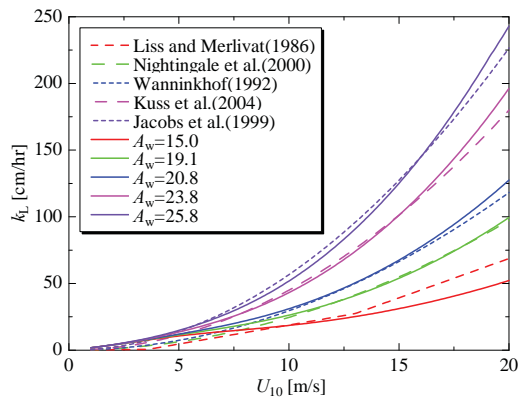


図4 本研究の交換速度モデルと経験式の適合性

は風波レイノルズ数, Sc はシュミット数, Ke_{wcr} は碎波発生の臨界風波クーリガン数, $A_w = g/\omega_p u_*$ は波齢である (u_* : 気流側の摩擦速度, u_{*w} : 水側の摩擦速度, H_s : 有義波高, ω_p : 風波のピーク角周波数, ν_a : 空気の動粘性係数, ν_w : 水の動粘性係数, g : 重力加速度). また, 式中の $b, c, c_1, c_b, \alpha, \gamma$ はモデル定数である ($b=0.2, c_1=10, 1/\kappa c_b=0.3, \alpha=100$).

図4に k_L と海上風速 U_{10} の経験式の関係に対する本モデルの適合性を示す。ただし, U_{10} は海上高度 10m での風速である。ここでは, Zhao and Xie(2010)が推定した経験式の波齢の値を参考にして, 交換速度モデルを経験式に適合させることにより, モデルパラメータ ($c=5.56 \times 10^{-8} A_w^{2.79}, \gamma=0.3$) の同定を行った。ただし, c は波齢の関数として表された。なお, Nightingale et al.(2000)と Jacobs et al.(1999)以外の経験式では波齢の値が明確ではないため, その他の波齢の値は経験式に適合するように決定した。この図より, Liss and Merlivat(1986)の高風速領域以外では本モデルと経験式は非常によく適合していることがわかる。これは本モデルの物理表現の妥当性を示唆するものである。さらに, モデルの適合度から見ても, 経験式のバラツキの原因が波浪状態 (主として波齢) の違いによって生じていると考えることは妥当であるように思われる。ただし, 経験式の風速依存性は Liss and Merlivat(1986)を除いて比較的単純であり, そのことが, このような波齢による整理を容易にしている点にも注意が必要である。なお, 本研究の観測データは, 従来の経験式よりもかなり大きな値を示しているため, ここではそれらのデータへのモデルの適合は行っていない。いずれにしても, 多様な波浪条件下の観測データに基づくチューニングによるモデル定数の検討が不可欠であるが, その点については今後検討を行う。

本研究を通じて, CO_2 交換速度に対する波浪場の影響について種々の有用な知見を得ており, 特に純粋な風波波浪場に対しては波浪

特性を考慮した CO_2 交換速度を定量化するための基本フレームを構築することができたと考えられる。本モデルは気象モデルによる海上風の計算と波浪推算を連成させることにより, 数値流体力学的に, 交換速度の広域マッピングを可能とするものであり, 有用性が高いと思われる。より実用的な交換速度モデルを確立するには, 本研究において定式化した交換速度のハイブリッドモデルをうねりの作用場に拡張する必要がある, そのための基礎研究も重要であると思われる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 8 件)

- ①中川大輔, 杉原裕司, Koji Shiono, 気液界面におけるガス交換速度の乱流スケールングについて, 日本流体力学会年会 2012 拡張要旨集, 査読無, CD-ROM, 1-3, 2012.
- ②森塚 陽, 杉原裕司, 宮崎大輔, 平石哲也, 馬場康之, 久保輝広, 大気海洋界面における運動量・ CO_2 フラックスの評価, 日本流体力学会年会 2012 拡張要旨集, 査読無, CD-ROM, 1-3, 2012.
- ③宮崎大輔, 杉原裕司, 平石哲也, 馬場康之, 久保輝広, 風波界面におけるガス交換速度のモデル化に関する研究, 土木学会論文集 B1 (水工学), 査読有, Vol.68, No.4, I_1699 -I_1704, 2012.
- ④杉原裕司, 中川大輔, Koji Shiono, 直接数値シミュレーションによる気液界面のガス交換機構に関する研究, 土木学会論文集 B2 (海岸工学), 査読有, Vol.67, No.2, I_071 -I_075, 2011.
- ⑤宮崎大輔, 杉原裕司, 平石哲也, 馬場康之, 久保輝広, 大気海洋界面におけるガス交換速度のモデル表現について, 日本流体力学会年会 2011 拡張要旨集, 査読無, CD-ROM, 1-4, 2011.
- ⑥中川大輔, 杉原裕司, Koji Shiono, 気液界面のスカラー輸送を支配する乱流機構に関する考察, 日本流体力学会年会 2011 拡張要旨集, 査読無, CD-ROM, 1-3, 2011.
- ⑦杉原裕司, 安東卓哉, 佐伯拓朗, 芹澤重厚, 吉岡洋, 風波特性能に基づく海面粗度・海面抵抗係数のパラメタリゼーション, 土木学会論文集 B2 (海岸工学), 査読有, Vol.66, No.1, 96-100, 2010.
- ⑧佐伯拓朗, 杉原裕司, 安東卓哉, 海面交換係数の波浪依存性のモデル化について, 日本流体力学会年会 2010 拡張要旨集, 査読無, CD-ROM, 1-4, 2010.

[学会発表] (計 10 件)

- ①中川大輔, 杉原裕司, 気液界面における高

- シミュット数ガス交換の計算モデル，平成24年度土木学会西部支部研究発表会，2013年3月9日，熊本大学黒髪北キャンパス。
- ②宮崎大輔，杉原裕司，平石哲也，馬場康之，久保輝広，風波界面におけるガス交換速度のモデル化に関する研究，第57回水工学講演会（招待講演），2013年3月5日，名城大学天白キャンパス
- ③中川大輔，杉原裕司，Koji Shiono，気液界面におけるガス交換速度の乱流スケーリングについて，日本流体力学会年会2012，2012年9月17日，高知大学朝倉キャンパス
- ④森塚 陽，杉原裕司，宮崎大輔，平石哲也，馬場康之，久保輝広，大気海洋界面における運動量・CO₂フラックスの評価，日本流体力学会年会2012，2012年9月17日，高知大学朝倉キャンパス。
- ⑤宮崎大輔，杉原裕司，平石哲也，馬場康之，久保輝広，風波界面におけるガス交換速度のモデル化に関する研究，第56回水工学講演会，2012年3月8日，愛媛大学城北キャンパス。
- ⑥杉原裕司，中川大輔，Koji Shiono，直接数値シミュレーションによる気液界面のガス交換機構に関する研究，第58回海岸工学講演会，2011年11月9日，アイーナ岩手。
- ⑦宮崎大輔，杉原裕司，平石哲也，馬場康之，久保輝広，大気海洋界面におけるガス交換速度のモデル表現について，日本流体力学会年会2011，2011年9月9日，首都大学東京南大沢キャンパス。
- ⑧中川大輔，杉原裕司，Koji Shiono，気液界面のスカラ輸送を支配する乱流機構に関する考察，日本流体力学会年会2011，2011年9月7日，首都大学東京南大沢キャンパス。
- ⑨杉原裕司，安東卓哉，佐伯拓朗，芹澤重厚，吉岡洋，風波特性量に基づく海面粗度・海面抵抗係数のパラメタリゼーション，第57回海岸工学講演会，2010年11月10日，京都テルサ。
- ⑩佐伯拓朗，杉原裕司，安東卓哉，海面交換係数の波浪依存性のモデル化について，日本流体力学会年会2010，2010年9月10日，北海道大学札幌キャンパス。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉原 裕司 (SUGIHARA YUJI)
九州大学・総合理工学研究院・准教授
研究者番号：70243970

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：