

B-5. 二酸化炭素の大気・海洋間交換の解明に関する研究

(1) 広域における二酸化炭素の大気・海洋間交換の研究

研究代表者 気象庁気象研究所 杉村行勇

気象庁

気象研究所地球化学研究部

杉村行勇

吉川(井上)久幸

松枝秀和

鈴木 欸

研究期間 昭和62年度～平成2年度

2年度当初予算額 11,973千円

Evaluation of Exchange of Carbon Dioxide between the Atmosphere and the Ocean

(FY1987-1991)

Y. Sugimura, H. Yoshikawa Inoue, H. Matsueda, and Y. Suzuki

Meteorological Research Institute, Japan

Meteorological Agency, Ministry of Transportation

The purpose of this study is to clarify the role of ocean for stabilizing the CO₂ concentration in the atmosphere in the global climate system. Since 1987, measurements of pCO₂ in air and surface sea water in wide area of the Pacific Ocean were made on research vessels to estimate CO₂ flux between the atmosphere and the ocean. The exchange coefficient was also conducted by a experimental method.

The concentrations of atmospheric CO₂ over the Pacific Ocean show a seasonal variation and a increase year by year. The ¹³C/¹²C of CO₂ in air suggests the importance of exchange process between air and sea for the temporal variation of atmospheric CO₂ in the equatorial Pacific. On the other hand, a significant difference in the distribution of pCO₂ in surface sea was observed in the equatorial Pacific between 1987 (El Niño Period) and 1989 (La Niña period). On the basis of these results, CO₂ fluxes between air and sea for 1987 and 1989 were estimated to be 0.48 Gt-C/yr and 1.0 Gt-C/yr in the equatorial Pacific, respectively.

In the laboratory on land, experiments of CO₂ exchange between air and sea water were carried out using the circular wind water tunnel. The exchange coefficient clearly depends on the wind speed.

1. 序

現在、大気中の二酸化炭素 (CO₂) の濃度は毎年約1.5 ppm増加している事が知られており、その温室効果 (グリーンハウスエフェクト) による地球規模での気候変動の可能性が指摘されている。二酸化炭素増加による気候変動を解明するためには、まず将来の大気中の二酸化炭素濃度を正確に予測する事が必要である。そのためには、現在の二酸化炭素濃度の増加に関わる因子について理解を深める事が不可欠である。

石油や石炭などのいわゆる化石燃料の燃焼によって大気中に放出される二酸化炭素のうち、およそ50%が大気中にとどまっている事が観測や統計データからわかっているものの、残りの50%の行く先については、意見の分かれるところである。海洋あるいは陸の植生が、行く先として最も可能性が高いが、そのどちらに大気中に放出された二酸化炭素が蓄積されているのかは、未だによく理解されていない状態である。こうした現況では、将来の大気中の二酸化炭素増加率を予測する事はたいへん困難である。したがって、大気中及び海水中の二酸化炭素の濃度や、その炭素同位体比などを観測し、地球表面での二酸化炭素循環の実態を明らかにしてゆく事が必要である。大気中の二酸化炭素は化石燃料の消費、植生の光合成と呼吸、さらには海洋との相互作用によって変動するため、精密な計測が必要とされている。また化石燃料の消費によって放出された二酸化炭素が海洋中に溶入しているのであれば、海水中の二酸化炭素濃度は当然増加していると予測され、この増加量を求める事が可能になれば、大気から海水への二酸化炭素溶入量を見積もる事ができる。

二酸化炭素の炭素安定同位体比 (¹³C/¹²C) の測定は、大気と海洋、あるいは大気と陸の植生との間の二酸化炭素交換の研究に極めて重要な情報を与えると考えられている新しい方法のひとつである。海洋に溶存している炭素物質の炭素安定同位体比は約2‰で、植生や化石燃料のそれはおよそ-25‰である。一方大気中の二酸化炭素の炭素安定同位体比は-8‰であり、それぞれが異なった値を有している。したがって大気中の二酸化炭素の濃度と炭素安定同位体比の測定を継続して行えば、大気と植生および大気と海洋の二酸化炭素交換についての情報を得る事が可能になると考えられている。

また本研究では、円形回転水槽を整備し、二酸化炭素の気液交換に関する実験を行った。現在、この交換係数は風速の関数として表されているが、定量的に確立された関係式は報告されていない。

2. 観測システム

大気および表面海水中の二酸化炭素濃度を、船上で連続的に測定するシステムを開発した。装置はおもに三つのユニットから成っている。一つは検出器の非分散型赤外分光光度計 (NDIR Analyzer) であり、あとの二つは、NDIR Analyzer の出力を記録し保存するユニットと、電磁弁、エアポンプ、水蒸気トラップなどから成り立つユニットである。水蒸気は、NDIR Analyzer のセルの中で二酸化炭素による赤外線エネルギー吸収に付随的な変化を与え、測定値に誤差をもたらす。したがって水蒸気は、電子冷却装置、パーマビュアドライヤー、過塩素酸マグネシウムなどで除去するようになっている。大気は毎分約0.5リットルの流量で NDIR Analyzer に導入した。一方、海水中の二酸化炭素濃度 (海水と平衡になった乾燥空気中の二酸化炭素濃度で表す) の測定は、船底より海水を汲み上げ、これを平衡器に導く事により行った。平衡器内で、閉じた回路にある空気と海水の間で二酸化炭素交換がおり、平衡に達した空気を NDIR Analyzer に導入して二酸化炭素濃度を測定するようになっている。

大気中の二酸化炭素の濃度及び炭素同位体比を測定するため、5リットルのサンプリングフラスコ (ハイルックスガラス製) を製作し、大気試料を採取した。持ち帰った試料は、二酸化炭素、メタンの濃度を測定した後、炭素同位体比を測定するため、真空ラインを用いて、二酸化炭素を分離精製した。精製した二酸化炭素は質量分析計 (フィカソット250) を使用して炭素安定同位体比を測定した。

3. 観測結果

(1) 観測海域

図-1 に本研究で測定を行った海域を示した。

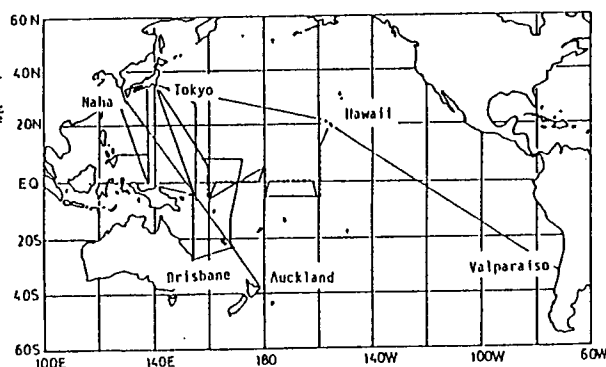


図-1 研究海域

(2) 大気中の二酸化炭素分布とその増加

1987年11月から12月に東京～ハワイ～バルパライソ間で大気中の二酸化炭素濃度を測定した。大気中の二酸化炭素濃度の季節変化をフーリエ項(1年、半年)で近似して11月後半の濃度を求めた結果が図-2である。北半球の低緯度で濃度が低いのは、夏期の植生の光合成の影響が残っているためである。図には世界のバックグラウンドステーションでの測定値を併記したが、本研究の測定値とよく一致している。

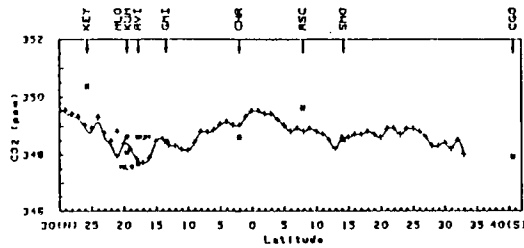


図-2 大気中の二酸化炭素濃度分布
(東京～バルパライソ 1987年11月後半
季節変化をフーリエ項で近似して補正した結果)

図-3に1987年および1989年1月後半の、160°Wに沿った大気中の二酸化炭素濃度の緯度平均を示した。図-4には1987年から1989年の同時期の、137°Eに沿った大気中の二酸化炭素濃度の分布を示した。濃度は1987年から1989年にかけて全体的に4~5ppm増加している。これはエル・ニーニョに特徴的な増加パターンによるものである。また160°Eは137°Eに比べて南北の濃度勾配は緩やかであった。137°Eに沿っての15°N付近以北に存在する急な濃度勾配は、この時期に卓越した北西風によるものと考えられる。

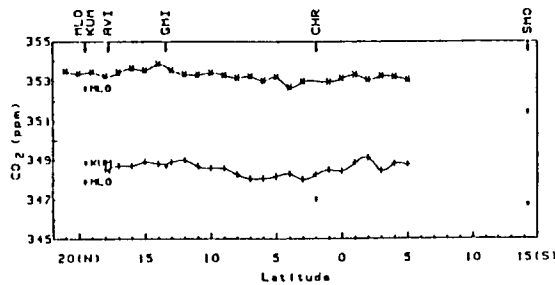


図-3 大気中の二酸化炭素濃度の緯度平均
160°W、1987年1月後半、1989年1月後半

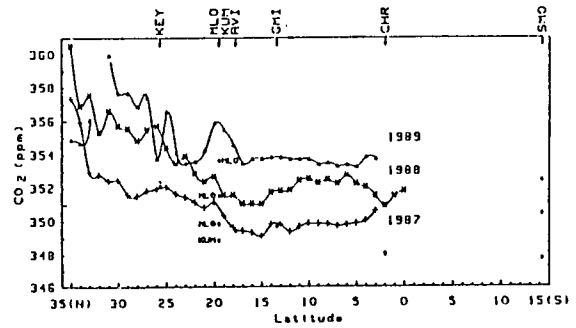


図-4 大気中の二酸化炭素分布
137°E、1987年-1989年、1月後半

これまでに得た大気中の二酸化炭素の炭素安定同位体比($\delta^{13}C$)のデータをもとに、二酸化炭素の季節変化について検討した。経年変化については、二酸化炭素濃度1ppmあたり $\delta^{13}C$ が0.02%減少するとして(Mook et al., 1983)季節変化をSingle Mixing Equation (1)により取り扱った。

$$\delta^{13}C = I(^{13}C) + M / (CO_2) \quad (1)$$

ここで $I(^{13}C)$ は大気に入りにしている二酸化炭素の炭素安定同位体比であり、 M は経験的に求めたパラメータである。5°幅で求めた $I(^{13}C)$ の値を表-1に示す。北半球の中緯度では $I(^{13}C)$ は-25%程度の値になっており、植生による二酸化炭素交換の値と一致している。一方赤道付近では、 $I(^{13}C)$ は値が大きく(絶対値は小さく)なっていることが分かる。二酸化炭素の大気/海洋間の交換に伴う動的なfractionationは、大気/植生間の交換よりも小さい事が、これまでの研究で分かっている(Inoue and Sugimura, 1985)。この結果は、相対的に大気/海洋間の季節変化への寄与が赤道付近で大きくなっている事を示している。

表-1 季節変化にともなう $I(^{13}C)$ と M

Lat	$I(^{13}C)$	1σ	M	1σ	γ	No.
30 N	-25.7	1.9	6178	659	0.979	13
25 N	-25.3	2.0	6072	698	0.969	16
20 N	-25.6	3.8	6172	1311	0.899	17
15 N	-22.0	6.5	4893	2277	0.726	15
10 N	-19.2	7.2	3933	2533	0.590	16
5 N	-18.2	6.7	3572	2355	0.530	19
0	-21.0	5.5	4576	1915	0.747	15

$I(^{13}C)$ は%, M はppm%で表わした。

(3) 熱帯太平洋における表面海水中の二酸化炭素分圧

本研究がスタートした1987年は、ちょうど 1986/87 ENSO Event (エル・ニーニョ) の期間中であった。ENSO Event により大気中の二酸化炭素の濃度増加率は、ある特徴的な変化をする事が知られている。しかしながら、その変動が何に由来するのかは未だ明かではない。大気/海洋間での二酸化炭素交換の変動がひとつの有力な説ではあるが、交換量を検討するために必要な表面海水中の二酸化炭素分圧の時間的・空間的変動はほとんど報告されていない。

図-5は1987年1月から2月にかけての表面海水中の二酸化炭素分圧の測定結果である。表面海水中の二酸化炭素分圧の分布は、160°Wとその他ではかなり異なっている。

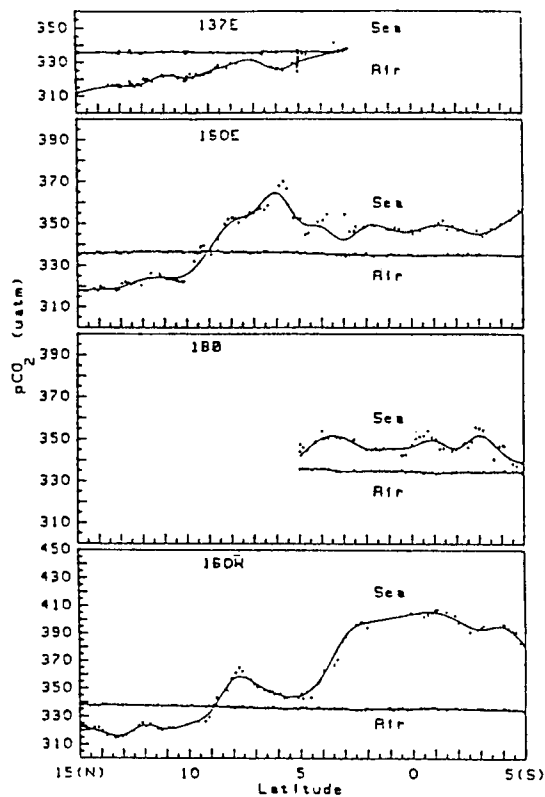


図-5 表面海水中の二酸化炭素分圧
1987年1-2月

160°Wにそった表面海水中の二酸化炭素分圧は、1°S付近で極大を示し、3°N以南では380µatmを越える値を示した。一方、160°Eと180°では二酸化炭素分圧の値は350µatm付近の値を示し、明かな極大は示さなかった。この明かな差は5°Sにそった161°W付近の比較的狭い範囲で観測され

た。これらの観測結果から、熱帯太平洋の二酸化炭素分圧が、1986/87 ENSO Eventのために通常の年 (non-ENSO period) とは異なっていた事がわかる。しかしその変動自体は1982/83 ENSO Event のときほど大きくはなっていないようである。

1986/87 エル・ニーニョが終了すると、中部及び東部熱帯太平洋の表面海水温度のアノマリーは、-2°Cから-1°Cの範囲となった (コールドイベント)。そして 1988/89年には、ラ・ニーニャの発生が認められた。

1989年の1月から2月にかけてのラ・ニーニャ期間中に再び、西部及び中部熱帯太平洋において二酸化炭素分圧の測定を行った。その結果、図-6に示すように1987年1月と比較して 160°W、180°、160°Eでは、水温の低下とともに二酸化炭素分圧は増加している事が分かった。

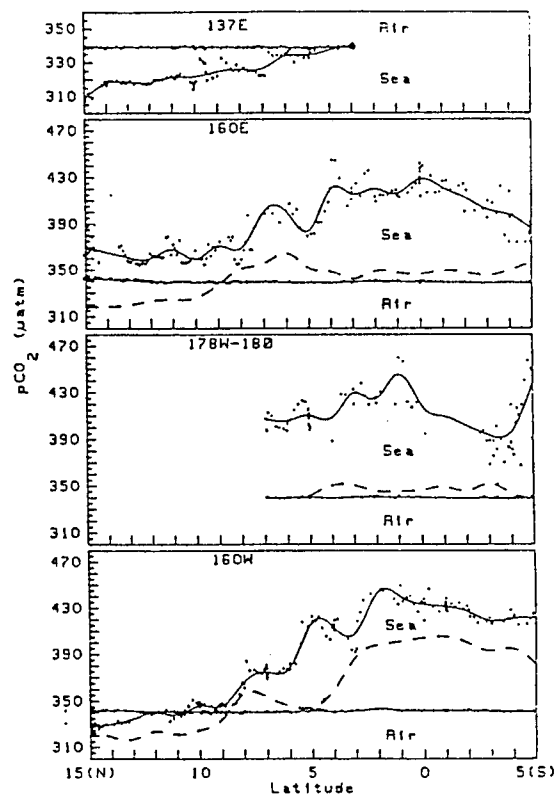


図-6 表面海水中の二酸化炭素分圧
1989年1月-2月

特に160°Eでは、最大値が約450µatmになり約100µatmも増加していた。また180°でもかなりの増加が観測された。160°Wでは、もともと1987年のエル・ニーニョ期間中でもかなり高い値を示していたので、その変化率はそれほど

大きくないが、値自体は、他の測線に比べて最も高くなっている。これに比べて、137°Eでは、1987年と1989年ではほとんど変化が見られなかった。160°E以東の海域では、炭酸ガス分圧の増加とラ・ニーニャに伴い貿易風が強くなった事により、1989年1月にはかなりの量の炭酸ガスがこの海域から大気に放出されたと考えられる。

(4) 表面海水中の二酸化炭素分圧の季節変化

海水中の二酸化炭素分圧の季節変動を明らかにするために、日本の南、32°N~29°N、134°E~138°Eの海域で観測を行った。32°Nから29°Nにおいては、表面海水中の二酸化炭素分圧は、主に温度による効果と冬季の深層水との混合及び生物活動により変動しており、年間を通じて見ると、夏に分圧は大きく、逆に冬には小さくなっていった(表-2)。ただし冬期には、表面海水温度の下降とともに分圧は上昇しており、深層水の影響を受けていることも分かった。全炭酸濃度やイオン強度が一定の条件下では、温度1度の上昇あたり二酸化炭素分圧は約4%上昇するが、この海域で観測された変動はおよそ3%とそれほど大きくなく、生物活動による影響を主に受けたと考えられる。

表-2 表面海水中のpCO₂の季節変化
(29°N~32°N、134°E~138°E)

pCO ₂	No.	SST(°C)	Date
287.8±2.5	22	20.3±0.2	19 Jan. 1985
285.7±1.9	23	19.9±0.3	16 Jan. 1987
292.2±2.2	14	18.9±0.3	22 Feb. 1984
293.6±2.2	13	19.1±0.5	1 March 1987
332.0±1.2	9	24.5±0.8	29 June 1985
359.5±6.9	24	27.7±0.6	24 July 1987

pCO₂は海水と平衡になった空気のドライベースでのモル分率で表わした

この表面海水の二酸化炭素分圧の季節変化は、大気中の二酸化炭素濃度の振幅及び位相とは全く異なっている。日本付近での大気中の季節変化の振幅は、約15ppm程度である事が報告されている。また大気中の二酸化炭素は、春から夏にかけて植生の光合成のために濃度が減少し、逆に秋から春先にかけて植生及び土壌の呼吸作用により濃度が増加する。表-2から明らかなように、表面海水中の二酸化炭素分圧の季節変化の振幅は、大気中のそれよりもかなり大きく、しかも位相は全体として逆である。したがって冬の期間には、この海域は二酸化炭素の吸収域になっており、夏には発生源と成っている事が分かる。

また東シナ海での観測によると、夏に二酸化炭素分圧は低く(275ppm未満)、冬に高い値を示していた。この結果は、二酸化炭素分圧が沿岸域においては外洋とは位相の異なる変動をしている事を示唆するもので、その変動過程を明らかにしておく必要がある。

これまでに報告された表面海水中の二酸化炭素分圧の変動は、一般的に言って、高緯度では冬に二酸化炭素分圧が高く、低緯度では夏に高い。高緯度では深層水との混合や、生物活動による影響が主な役割を果たしているのに対して、低緯度での変動は、温度の効果が卓越している。

(5) 熱帯太平洋域の二酸化炭素フラックス

1987年1月~2月および1989年1月~2月の熱帯太平洋域の二酸化炭素フラックス(F(CO₂))を以下の二通りの式により評価した。

$$F(CO_2) = E \cdot \Delta pCO_2 \quad (2a)$$

$$E = 0.016 (U - 3) \quad (2b)$$

ここでEはガス移動係数、 ΔpCO_2 は大気中と表面海水中の二酸化炭素分圧の差、Uは風速であり、Eの次元は mol m⁻² μatm yr⁻¹ である。

$$F(CO_2) = k \cdot S \cdot \Delta pCO_2 \quad (3a)$$

ここでkは交換係数であり、Sは二酸化炭素の海水への溶解度である。この交換係数は風速と Schmidt Number (Sc) の関数であり、次のように表される。(Liss and Merlivat, 1986)

$$k = 0.17 U_{10} (600/Sc)^{2/3} \quad (3b)$$

(0 ≤ U₁₀ ≤ 3.6ms⁻¹)

$$k = [2.85 U_{10} - 9.65] (600/Sc)^{1/2} \quad (3c)$$

(3.6 < U₁₀ ≤ 13ms⁻¹)

$$k = [5.9 U_{10} - 49.3] (600/Sc)^{1/2} \quad (3d)$$

(U₁₀ > 13ms⁻¹)

(2)式を用いて評価したフラックスと(3)式を用いて評価したフラックスを比較してみると、(2)式から評価した方がおよそ2倍大きくなり、交換係数と風速の関係は依然としてよく理解されていない状況にある。

これまでに報告された熱帯太平洋域からの二酸化炭素フラックスは、通常の年で0.6Gt-C/yrから0.8Gt-C/yrである。また1982/83 ENSO の年には ΔpCO_2 がゼロに近くなったため、0.02Gt-C/yr程度であったと報告されている。本研究では、1987年11月に測定した東部太平洋のpCO₂と1987年1月~2月、1989年1月~2月のpCO₂のデータを組み合わせ、1986/88 ENSO period と 1988/89 La Niña period の二酸化炭素フラックスを評価した。風速データ

はGANLデータセット（気象庁）を使用した。 ΔpCO_2 の分布については東部熱帯太平洋での温度依存性を2通りの方法（詳細は略す）で評価した。計算に用いた ΔpCO_2 の分布を図-7に示す。(3)式より評価したフラックス(2)式より評価したフラックスの約半分になり、ラ・ニーニャ期間であっても通常の年のフラックスより小さくなってしまった。したがって以後(2)式より求めたフラックスをもとにして議論を進める。それぞれの ΔpCO_2 に対するフラックスを表-3に示す。

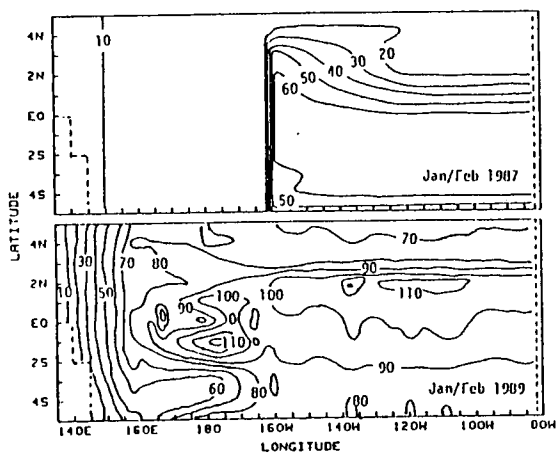


図-7 フラックス計算に用いた ΔpCO_2 の分布

表-3 熱帯太平洋域における二酸化炭素フラックス
5.5°S~5.5°N、134.5°E~80.5°W、
1987年1月~2月、1989年1月~2月、

1987年 1月~2月				
	135.5°E ~159.5°E	159.5°E ~160.5°W	160.5°W ~80.5°W	Total
E (mol/m ² yr)	0.028	0.063	0.049	0.049
ΔpCO_2 (μ atm)	8.0	14.6	46.4	31.0
Flux (Gt-C)	0.01	0.05	0.34	0.41

E (mol/m ² yr)	0.028	0.063	0.049	0.049
ΔpCO_2 (μ atm)	8.0	14.6	46.2	30.9
Flux (Gt-C)	0.01	0.05	0.34	0.41
1989年 1月~2月				
	135.5°E ~159.5°E	159.5°E ~160.5°W	160.5°W ~80.5°W	Total
E (mol/m ² yr)	0.028	0.063	0.049	0.049
ΔpCO_2 (μ atm)	36.7	81.5	93.1	80.2
Flux (Gt-C)	0.04	0.35	0.59	0.98

E (mol/m ² yr)	0.028	0.063	0.049	0.049
ΔpCO_2 (μ atm)	36.7	81.5	90.9	78.9
Flux (Gt-C)	0.04	0.35	0.57	0.97

E は(2b)式により計算した

表-3より明らかなように熱帯太平洋では、二酸化炭素のフラックスが大きく変動している。1986/88 ENSO 期間中の二酸化炭素フラックスは、通常の年に比べて少なくなっているが、1982/83 ENSO 期間中ほど少なくはない。また、ラ・ニーニャ期間中の二酸化炭素フラックスは、約1Gt-C/yrと大きく増加している。この放出が1年間続けば、化石燃料の消費による年間放出量の約20%に匹敵する二酸化炭素がこの海域から放出される事になる。

(6) 二酸化炭素及びその炭素同位体の気液相間の分配

図-8に示す円形回転水槽を製作し、大気/海洋間の二酸化炭素交換に関する実験を行った。その結果、再現性には若干の問題があるものの、ある回転数以上になると、交換係数が急速に増加する事が分かった。気液相間の二酸化炭素交換にともなう気相中の二酸化炭素濃度の変化例を図-9に示す。

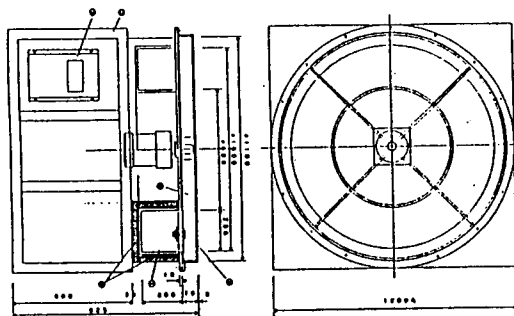


図-8 円形回転水槽

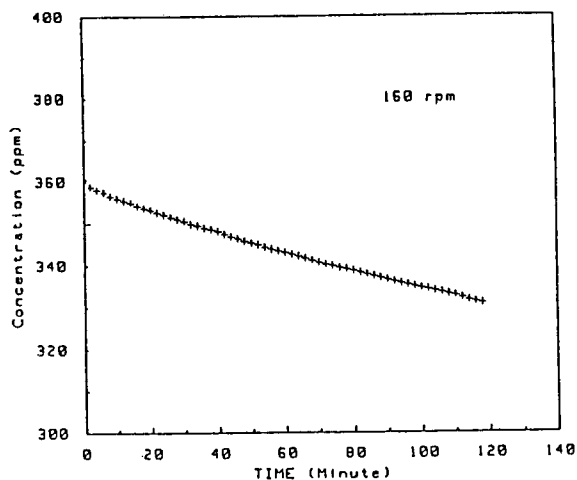


図-9 気液相間の二酸化炭素交換にともなう気相中の二酸化炭素濃度の変化例

4. 本研究により得られた成果

本研究は、大気中の二酸化炭素の増加に対し、海洋が果たす役割を明らかにする事を目的として実施した。まず、大気と表面海水中の二酸化炭素濃度を連続的に船上測定するシステムを開発し、西部太平洋を中心に太平洋広域にわたって観測を行った。そして、これらの観測結果をもとに大気/海洋間の交換量を定量的に算定した。また、円形の回転水槽を整備し、二酸化炭素の気液交換に関する実験を実施した。その結果、以下の事柄が明らかになった。

- ① 大気中の二酸化炭素濃度は特徴的な季節変化を示し、1987年から1989年にかけて4~5ppm増加した。二酸化炭素の炭素安定同位体比の測定結果から、低緯度では高緯度に比べて、二酸化炭素濃度の変動に対する大気/海洋間の交換の寄与が大きい事が示唆された。
- ② 表面海水中の二酸化炭素分圧の季節変動は約290ppmから360ppmと大気中に比べて大きく、位相も異なっていた。中部熱帯太平洋ではエル・ニーニョやラ・ニーニャの発生に伴い、二酸化炭素分圧が最大約100 μ atm変化した。
- ③ ①と②の観測結果をもとに熱帯太平洋全域の二酸化炭素放出量を評価した結果、エル・ニーニョ期間では、約0.4Gt-C/yr、ラ・ニーニャ期間では約1Gt-C/yrと、大きく変動する事が分かった。
- ④ 円形回転水槽を用いた実験の結果、大気/海洋間の二酸化炭素交換係数は、ある風速以上になると急速に増加した。

5. 参考文献

- ・ Inoue, H. and Sugimura, Y. (1985) Carbon isotopic fractionation during the CO₂ exchange process between air and sea water under equilibrium and kinetic conditions., *Geochim. Cosmochim. Acta*, **49**, 2453-2460.
- ・ Liss, P. and Merlivat, L., (1986) Air-sea gas exchange rates: Introduction and synthesis. In the *Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, Adv. Sci. Inst. Ser., Ed. Buat-Menard, Reidel D. Pub Co.
- ・ Mook, W.G., Koopmans, M., Carpenter, A.F. and Keeling, C.D., (1983) Seasonal, latitudinal and secular variations in the abundance and isotopic ratios of atmospheric carbon dioxide. 1. Results from land stations. *J. Geophys. Res.*, **88**, 10915-10933.

6. 研究発表

(論文)

- ・ Distribution of the pCO₂ in surface seawater of the western and central equatorial Pacific during the 1986/87 ElNino/Southern oscillation event. H.Inoue and Y.Sugimura, *Geophys. Res. Lett.*, **15**, 1499-1502 (1988).
- ・ Distribution of the pCO₂ in surface sea water of the western and central equatorial Pacific during the 1986/87 ENSO event and the cold event in 1989. H.Inoue and Y.Sugimura, 3rd International Conference on analysis and evaluation of atmospheric CO₂ data. Present and Past. Extended Abstracts, 170-175 (1989).
- ・ Increasing CO₂ in air and oceanic carbon cycle. Y.Sugimura, 1st International Conference on Marine Biotechnology, Abstract, p4 (1989).

(講演)

- ・ 広域における二酸化炭素の大気/海洋間交換に関する研究 井上久幸、松枝秀和、杉村行勇、第15回環境保全公害防止研究発表会 (1989年1月)。
- ・ Increasing CO₂ in air and oceanic carbon cycle. 1st International Conference on Marine Biotechnology, Tokyo, September, 1989.
- ・ Distribution of the pCO₂ in surface sea water of the western and central equatorial Pacific during the 1986/87 ENSO event and the cold event in 1989. H. Inoue and Y. Sugimura, 3rd International Conference on analysis and evaluation of atmospheric CO₂ data. Present and Past. Hinterzarten, F.R.G, October, 1989.
- ・ 中部熱帯太平洋で観測された表面海水中のpCO₂ 井上久幸、石井雅男、杉村行勇、1990年度日本地球化学会年会 (新潟、1990年10月)。
- ・ 太平洋における表面海水中のメタンについて、松枝秀和、吉川久幸、杉村行勇、1990年度日本海洋学会秋期大会 (神戸、1990年11月)。