

## 特集「海洋気象業務に関する最新の技術的動向」

## 全球における大気－海洋間二酸化炭素交換量推定手法の開発

飯田 洋介 \*1・小嶋 惇 \*1・中野 俊也 \*1・杉本 裕之 \*2・石井 雅男 \*3

## 要 旨

大西洋, インド洋及び南大洋の表面海水中二酸化炭素分圧 ( $p\text{CO}_2\text{s}$  [ $\mu\text{atm}$ ]) を, 海面水温 (SST [ $^{\circ}\text{C}$ ]), 海面塩分 (SSS) 及び海面クロロフィル濃度 (Chl- $a$  [ $\text{mg}/\text{m}^3$ ]) から経験的に見積もる手法を開発し, Sugimoto *et al.* (2012) による太平洋域の手法と合わせ, 全球の大気－海洋間  $\text{CO}_2$  交換量を見積もる手法を開発した. 月ごとの SST, SSS 及び Chl- $a$  から推定された  $p\text{CO}_2\text{s}$  の分布は, 観測に基づいた他の手法による結果と定性的に良い一致をみた. 観測値に対する推定値のバイアスは全球平均でおよそ  $-0.8 \mu\text{atm}$  と小さく, 観測値に対する推定値の平均二乗誤差 (RMSE) は, 中緯度域 ( $50 \sim 10^{\circ}\text{S}$ ,  $10 \sim 40^{\circ}\text{N}$ ) でおよそ  $10 \sim 20 \mu\text{atm}$ , 赤道域 ( $10^{\circ}\text{S} \sim 10^{\circ}\text{N}$ ) で  $20 \sim 25 \mu\text{atm}$  程度であり, 全球平均で  $17.5 \mu\text{atm}$  であった. 活発な生物活動により二酸化炭素が消費される高緯度では, 特に海氷等の影響を大きく受ける南北  $65^{\circ}$  以上で誤差が大きくなるものの, 推定式に SST, SSS のみならず Chl- $a$  を使用することにより, RMSE はおおむね  $20 \sim 30 \mu\text{atm}$  程度に小さくなった.

本手法により得られた  $p\text{CO}_2\text{s}$  を基に, 1990～2011年の月ごとの緯度  $1^{\circ} \times$  経度  $1^{\circ}$  格子の  $\text{CO}_2$  交換量を求めた. 全球の  $\text{CO}_2$  交換量積算値の平均値は,  $-1.85 \pm 0.41 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  (負の値は海洋による吸収を表す) であり, Wanninkhof *et al.* (2013) により比較された様々な手法による気候的な  $\text{CO}_2$  交換量 ( $-1.4 \sim -2.6 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$ ) と同様の値であった. 全海洋の  $\text{CO}_2$  吸収量は, エルニーニョ・南方振動などの気候システムの変動に関連した数年から 10 年規模の変動を伴いつつ, 1990 年から 2011 年の期間で見ても  $0.13 \text{ PgC}\cdot 10\text{yr}^{-1}$  の早さで有意に増加していることが確認された.

## 1. はじめに

化石燃料の燃焼や土地利用の変化など, 産業活動に伴って排出された二酸化炭素 ( $\text{CO}_2$ ) は, 一部は海洋や陸域のリザーバへと吸収され, 残りは大気中に残存することにより, 温室効果の強化をもたらす. 人為起源  $\text{CO}_2$  がそれぞれのリザーバ

にどのように分配されるかを正確に見積もることが, 地球温暖化予測の不確実性を低減させる上で重要な課題の一つとなっている.  $\text{CO}_2$  の海洋への吸収量を見積もるためには, 表面海水中  $\text{CO}_2$  分圧 ( $p\text{CO}_2\text{s}$ ) の時空間的な変動や分布を正確に把握することが必要である.

\*1 地球環境・海洋部海洋環境解析センター

\*2 地球環境・海洋部気候情報課

\*3 気象研究所海洋・地球化学研究部

$p\text{CO}_2\text{s}$  の連続的な観測が行われるようになったのは、1950年代後半の国際地球観測年 (IGY) であり、60年代に入ると、各大洋をカバーするような海域での観測が行われるようになった (Takahashi, 1961; Keeling, 1968). 以降、 $p\text{CO}_2\text{s}$  の観測は、海洋観測船はもとより、一般商船の篤志観測船による定期航路上での観測や、定置及び漂流ブイ等の観測により、現在までに膨大な数の観測値が蓄積されてきた。これらのデータを、統一的な手法に基づき品質管理を行い、一つのデータベースとしたのが、Surface ocean  $\text{CO}_2$  Atlas (SOCAT) である。1968年から2007年までの40年間にわたる800万以上の観測値が収録されたバージョン1.5 (SOCAT V1.5; Pfeil *et al.*, 2012) が2011年に初めて一般向けに公開された。続いて2013年には、2011年までの観測値を含むバージョン2 (SOCAT V2; Bakker *et al.*, 2013) が公開され、データの拡充が図られ1000万を超える観測値が利用できるようになった。 $p\text{CO}_2\text{s}$  観測データベースとしては、2007年にLDEOデータベース (Takahashi *et al.*, 2007) も公開され、年を追ってバージョンが改められている。このようなデータベースが作成されたことにより、観測値に基づいた $p\text{CO}_2\text{s}$  の気候値的な空間分布が、次第に明らかになってきた (Takahashi *et al.*, 2009; Takahashi and Sutherland, 2013 など).

しかし、 $p\text{CO}_2\text{s}$  の年々や季節変動は非常に大きく、観測値に基づく気候値の確からしさは、それぞれの海域の観測の時空間的密度に左右される。北大西洋や北太平洋など、多くの観測が行われている海域では、時空間的に小さな不確かさで気候的な $p\text{CO}_2\text{s}$  の分布が求められる一方、南大西洋や南太平洋 (特に東部)、及びインド洋域を中心とした、観測の少ない海域では、 $p\text{CO}_2\text{s}$  分布の確からしさが小さい。また、北大西洋や北太平洋を含む多くの海域において、観測データのある年や季節には偏りがあり、 $p\text{CO}_2\text{s}$  の年々や季節変動を監視し、大気-海洋間の $\text{CO}_2$  交換量の長期変化傾向を定量的に評価するためには、時間的な観測密度が不足している。

このため、観測値のない期間や海域を補完して、 $p\text{CO}_2\text{s}$  を面的に見積もるため、これまでに、

$p\text{CO}_2\text{s}$  と水温や塩分、クロロフィル濃度といった他の要素との関係を用いて、経験的に $p\text{CO}_2\text{s}$  を見積もる手法が開発されてきた。Park *et al.* (2010) は、経度 $5^\circ \times$  緯度 $4^\circ$  の格子ごとに、Takahashi *et al.* (2002) の気候値を基準とした $p\text{CO}_2\text{s}$  と海面水温 (SST) の関係を調査し、SSTの分布から1982年以降の全球における $p\text{CO}_2\text{s}$  を見積もる手法を開発した。また、Nakaoka *et al.* (2013) は、ニューラルネットワークの手法を用い、SSTに加え、海面塩分 (SSS)、海面高度 (SSH)、海面クロロフィル濃度 (Chl-*a*) 及び混合層深度 (MLD) から、北太平洋における $p\text{CO}_2\text{s}$  の分布を推定した。Sasse *et al.* (2013) は、同じくニューラルネットワークの手法を用い、海洋内部の観測データに基づいて全球の $p\text{CO}_2\text{s}$  分布を求めた。その他にも、特定の海域において $p\text{CO}_2\text{s}$  を表現する回帰式を導出した研究は数多く存在する (例えば南大洋: Cherici *et al.*, 2012, 北大西洋北部: Olsen *et al.*, 2008, 大西洋赤道域: Lefèvre *et al.*, 2010, インド洋: Sabine *et al.*, 2000; Bates, 2006 など)。しかしながら、海域ごとの $p\text{CO}_2\text{s}$  の長期的な変化傾向や物理的及び生物地球化学的な年々や季節の変動を表現するには十分でなく、海域ごとに異なる $p\text{CO}_2\text{s}$  の変動要因を詳細に分析して、全球のより現実に近い $p\text{CO}_2\text{s}$  分布を推定するための手法の開発が課題となっている。

気象庁では、観測データに基づき、月ごとから年々の大気-海洋間の $\text{CO}_2$  交換量の変動を監視し、長期的な交換量の変化を捉えるため、これまで国内外で行われている研究成果を踏まえ、SSTやSSS、Chl-*a*等のパラメータと $p\text{CO}_2\text{s}$  の関係を用いた $p\text{CO}_2\text{s}$  推定手法の開発を進めてきた。重回帰分析を用いるこのような手法は、 $p\text{CO}_2\text{s}$  の変動の要因を、海洋の物理的及び生物地球化学的変動と関連するSSTやSSS、Chl-*a*等から考察できるという利点がある。村田ほか (1996) は北太平洋亜熱帯域、増田ほか (2004) は北太平洋亜寒帯域、中舘・石井 (2007) は太平洋赤道域における炭酸系とSSTやSSSとの関係をそれぞれ調査した。Sugimoto *et al.*, (2012) は、さらにChl-*a*を利用し、これらの調査を総合する形で太平洋全域における $p\text{CO}_2\text{s}$  推定手法を開発した。気象庁では、

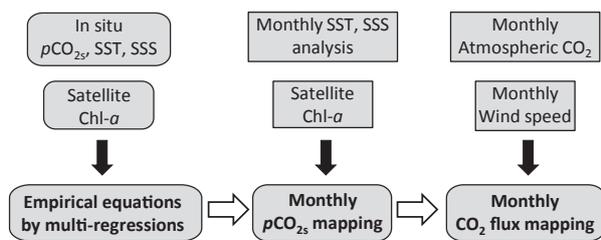
これらの調査で得られた手法を使用して、「海洋の健康診断表 (<http://www.data.kishou.go.jp/kaiyou/shindan/index.html>)」を通じて、毎年太平洋における大気-海洋間の CO<sub>2</sub> 交換量に関する情報を提供しており、その海域の拡大を順次図ってきた。

今般、大西洋及びインド洋及び南大洋における pCO<sub>2s</sub> 及び CO<sub>2</sub> 交換量を見積もる手法を新たに開発し、1990 年から 2011 年の全球の大気-海洋間の CO<sub>2</sub> を推定し、その確からしさについて評価したので報告する。

## 2. 手法及びデータ

### 2.1 推定手法の概要

pCO<sub>2s</sub> は、水温や塩分、生物活動といった様々な影響を受けて変動する。SST や SSS が上昇すると、CO<sub>2</sub> の海水に対する溶解度が減少するため、pCO<sub>2s</sub> は上昇する。赤道湧昇や沿岸湧昇、冬季の鉛直混合により CO<sub>2</sub> を多く含む下層の海水の影響を受けて pCO<sub>2s</sub> は上昇する。生物活動の盛んな海域では、植物プランクトンの光合成により二酸化炭素が消費されることで、pCO<sub>2s</sub> が低下する。また、大河川の河口からの低塩分海水の広がり、pCO<sub>2s</sub> の分布に大きく影響する。本研究では、沿岸域や縁辺海の一部を除いた全海洋を、pCO<sub>2s</sub> と関連して変動する SST、SSS 及び Chl-*a* の変動特性に応じて 40 以上の領域に分割し、それぞれの海域の観測値を基に、これらのパラメータを変数とした重回帰分析を行うことにより、pCO<sub>2s</sub> を求める推定式を作成した。得られた推定式に、SST と SSS の解析値及び衛星観測から得られる Chl-*a* 解析値を代入することにより、時空間的に連続な pCO<sub>2s</sub> 分布が得られる (第 1 図)。



第 1 図 pCO<sub>2s</sub> 及び CO<sub>2</sub> 交換量推定のデータ処理フロー

## 2.2 使用データ

### 2.2.1 pCO<sub>2s</sub> 推定式作成に使用したデータ

本研究で使用したデータセットを第 1 表に示す。pCO<sub>2s</sub>、SST 及び SSS の現場観測値として、SOCAT V2 を使用した。SOCAT V2 は、1968 ~ 2011 年までの 40 年以上にわたって、海洋観測船、一般商船及び係留ブイや漂流ブイによって得られた観測値を含む。収録された CO<sub>2</sub> 観測データは、メタデータの状況や、SST・SSS 等の要素との比較を通じ品質管理が行われ、統一的な手法で CO<sub>2</sub> フガシティー (fCO<sub>2s</sub>[µatm]) の形に再計算されている。観測は北大西洋や北太平洋に多く集中し、南大西洋、南太平洋及びインド洋には観測密度の比較的小さい海域が広がっている。しかし、重回帰分析を用いて pCO<sub>2s</sub> 推定式を作成するためには、十分な数を有している。南大洋における観測数は、近年、特に 2000 年以降に増加している。pCO<sub>2s</sub> 推定のための経験式の作成には、SOCAT V2 に収録されている fCO<sub>2s</sub>、SST 観測値及び海面気圧解析値を用い、Dickson *et al.* (2007) の式により CO<sub>2</sub> モル分率 (χCO<sub>2s</sub>[ppm]) に換算した。

Chl-*a* は、Ocean Biology Processing Group (OBPG, <http://oceancolor.gsfc.nasa.gov>) から公開されている SeaWiFS 及び MODIS/Aqua Level 3 標準プロダクト (Feldman and McClain, 2010; 2012) を用いた。これらの Chl-*a* を平均し、緯度 0.25° × 経度 0.25° 格子の月ごとのデータとして pCO<sub>2s</sub> 推定式作成に使用した。

### 2.2.2 pCO<sub>2s</sub> 及び CO<sub>2</sub> 交換量マッピングに使用したデータ

SST 解析値は、全球日別表面海水温データ (Merged satellite in situ data Global Daily Sea Surface Temperature, MGDSST; 栗原ほか, 2006), SSS 解析値は、全球海洋同化システム (Multivariate Ocean Variational Estimation system / Meteorological Research Institute Community Ocean Model, MOVE/MRI.COM-G; Usui *et al.*, 2006) を用いた。Chl-*a* については、推定式の作成に使用したものと同一データであるが、SeaWiFS による観測は 1997 年 9 月 ~ 2010 年 12 月、MODIS/Aqua による観測は 2002 年 7 月以降であるため、1997 年以前の

$p\text{CO}_2\text{s}$  を求める際には、気候値（1998～2011年の月ごとの平均値）を用いた。また、雲などによる欠測格子についても、同気候値を使用した。

月ごとの海面気圧及び風速データは、気象庁及び電力中央研究所が共同で開発した長期再解析データ及び気象庁気候データ同化システム (Japanese Re-analysis 25 years / JMA Climate Data Assimilation System, JRA25/JCDAS; Onogi *et al.*, 2007, 以降 JRA25) を使用した。風速については、ガス交換速度に大きく影響を与えるため、他に米国環境予測センターによる長期再解析データ (National Center for Environmental Prediction / National Center for Atmospheric Research Reanalysis I, NCEP/NCAR R1; Kalnay *et al.*, 1996, 以降 NCEP1) 及び衛星による海上風データ (Cross-calibrated, multi-platform, multi-instrument ocean surface wind velocity, CCMP; Ardizzone *et al.*, 2009) を、比較のために使用した。大気中の二酸化炭素濃度は、温室効果ガス世界資料センター (World Data Centre for Greenhouse Gases, WDCGG) から公開されている大気中二酸化炭素濃度観測値と化学輸送モデルから逆解析法により解析された、気象庁全球二酸化炭素解析値 (Maki *et al.*, 2010) を用いた。

2.2.1 項及び2.2.2 項に掲げたこれらのデータは、異なる時空間的解像度を有しているため、内挿或いは平均化により、緯度  $1^\circ \times$  経度  $1^\circ$  格子に変換して用いた。

第 1 表  $p\text{CO}_2\text{s}$  推定及び  $\text{CO}_2$  交換量解析に用いたデータ

要素及びデータ名の略称は本文を参照。

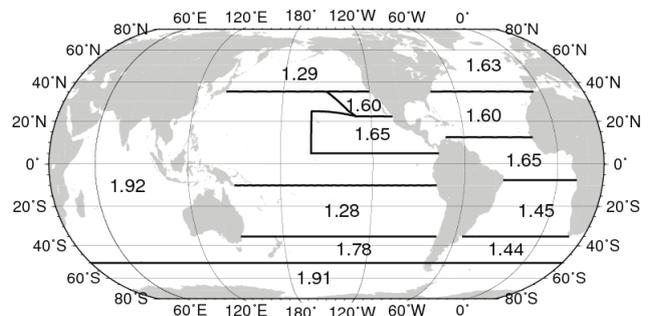
要素	データ名	参照
$p\text{CO}_2\text{s}$ , SST, SSS 現場観測値	SOCAT V2	Bakker <i>et al.</i> (2013)
月ごと SST	MGDSST	栗原ほか (2006)
月ごと SSS	MOVE/MRI.COM-G	Usui <i>et al.</i> (2006)
Chl- <i>a</i>	SeaWiFS, MODIS/Aqua	Feldman & McClain (2010, 2012)
海面気圧	JRA25/JCDAS (JMA)	Onogi <i>et al.</i> (2007)
10m 風速	JRA25/JCDAS NCEP/NCAR reanalysis I CCMP	Onogi <i>et al.</i> (2007) Ardizzone <i>et al.</i> (2009) Kalnay <i>et al.</i> (1996)
大気中 $\text{CO}_2$ 濃度	気象庁全球 $\text{CO}_2$ 解析値	Maki <i>et al.</i> (2010)

### 3. $p\text{CO}_2\text{s}$ 推定手法各論

#### 3.1 $p\text{CO}_2\text{s}$ の年増加率

大気中の  $\text{CO}_2$  濃度は増加を続けており、近年の増加速度は、平均すると  $2.02 \mu\text{atm/yr}$  である (WDCGG, 2013)。 $p\text{CO}_2\text{s}$  も大気中の  $\text{CO}_2$  濃度の増加に伴い増加を続けている。したがって、観測年の異なる  $p\text{CO}_2\text{s}$  観測値を同時に扱うためには、期間中の平均的な  $p\text{CO}_2\text{s}$  増加速度を求め、これを基にしてある基準年における  $p\text{CO}_2\text{s}$  を算出して規格化することが必要となる。Takahashi *et al.* (2009) は、平均的な  $p\text{CO}_2\text{s}$  増加速度を、全球で  $1.5 \pm 0.5 \mu\text{atm}$  と仮定し、2000 年に規格化した値を算出している。しかし、 $p\text{CO}_2\text{s}$  増加速度は海域によって異なることが知られている (e.g. Lenton *et al.*, 2012; Fay and McKinley, 2013)。Sugimoto *et al.* (2012) では、太平洋における  $p\text{CO}_2\text{s}$  推定式作成のため、北太平洋亜寒帯域及び亜熱帯域、並びに南太平洋亜寒帯域及び亜熱帯域の 4 海域において、緯度  $1^\circ$  ごとの  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  増加速度を平均することにより、海域の平均増加速度を算出した。

本研究では、以下のように  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  増加速度の海域平均値を求めた。Schuster *et al.* (2009) の手法に基づき、緯度  $1^\circ \times$  経度  $1^\circ$ 、1 月ごとに平均化した  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  データを用いて緯度  $5^\circ \times$  経度  $10^\circ$  格子ごとの  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  増加速度を求めた。 $\chi\text{CO}_2\text{s}$  増加速度は、海洋の物理的及び生物地球化学的な違いにより区分された海域 (Biome) ごと異なる (McKinley *et al.*, 2011; Fay and McKinley, 2013)。Biome はおおむね緯度帯にそって現れるため、Sugimoto *et al.* (2013) の手法に倣い、第 2 図に示すように緯度帯によって海域を区切り、 $\chi\text{CO}_2\text{s}$



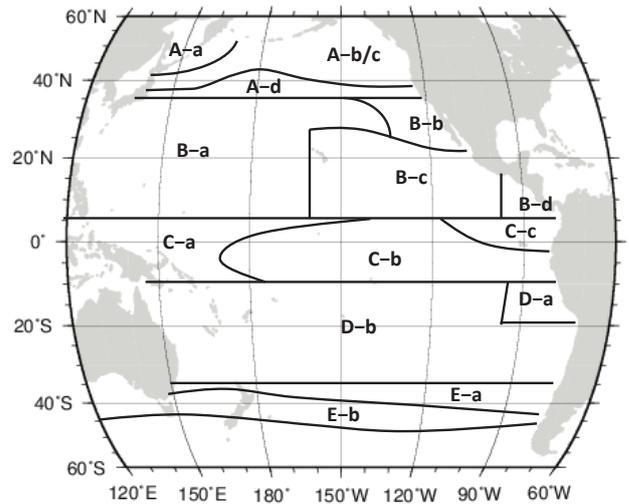
第 2 図 海域ごとの  $p\text{CO}_2\text{s}$  増加率推定値 [ $\mu\text{atm/yr}$ ]

増加速度の平均を、海域ごとの  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  増加速度とし、2000 年基準の  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  を算出した。

### 3.2 $\chi\text{CO}_2\text{s}$ 推定式の作成

#### 3.2.1 太平洋

Sugimoto *et al.* (2012) の手法について、最新の観測データベースによる推定式の更新を行った。また、3.2.4 項で後述するように、南太平洋の一部を南大洋の区分にしたことに伴い、SST で決めている南太平洋の亜熱帯域と亜寒帯域の境界を一部改変した。太平洋を 14 の海域 (第 3 図) に分け、それぞれの海域で重回帰分析を行い、 $\chi\text{CO}_2\text{s}$  を推定する式を導出した。重回帰分析には、南太平洋亜寒帯域、赤道域及び北太平洋亜熱帯域では SST と SSS を用い、さらに生物活動による  $\text{CO}_2$  の消費を考慮するため、亜寒帯域では  $\text{Chl-}a$  を補正として用いた。北西太平洋においては、気象庁は  $137^\circ\text{E}$  線及び  $165^\circ\text{E}$  線に沿った観測を毎年行っているため、各年の緯度  $1^\circ$  ごとの  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の SST 依存性を、観測に基づいて求めることができる。村田ほか (1996) の手法に基づき、この関係を利用して  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  を推定する。第 2 表に各海域に



第 3 図  $p\text{CO}_2\text{s}$  推定における海域分けの模式図 (太平洋) 曲線は水温及び塩分による境界、直線は緯度経度による境界を示す。英字は本文中の記述に対応。

A-a : 北太平洋亜寒帯北部, A-b/c : 北太平洋亜寒帯中部, A-d : 北太平洋亜寒帯南部, B-a : 北太平洋亜熱帯西部, B-b : 北太平洋亜熱帯北東部, B-c : 北太平洋亜熱帯南東部, B-d : コスタリカ沖, C-a : 赤道太平洋西部暖水域, C-b : 赤道太平洋湧昇域, C-c : 赤道太平洋東部低塩分域, D-a : ペルー沖, D-b : 南太平洋亜熱帯域, E-a : 南太平洋亜寒帯北部, E-b : 南太平洋亜寒帯南部

第 2 表 太平洋の各海域の  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の推定式

#### A 北太平洋亜寒帯域 (35°N 以北)

##### (a) 亜寒帯北部 (SST < 5°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 313 - 11.2 \cdot (\text{SST} - 10) + 1.29 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (1)$$

$$\text{Bio} = -42.6 - 41.6 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (2)$$

##### (b) 亜寒帯中部・夏季 (5°C ≤ SST < 16°C, Jul.-Sep.)

$$\chi\text{CO}_2 = 359 - 2.05 \cdot (\text{SST} - 10) + 1.29 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (3)$$

$$\text{Bio} = -43.4 - 35.2 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (4)$$

##### (c) 亜寒帯中部・秋～春季 (5°C ≤ SST < 16°C, Oct.-Jun.)

$$\chi\text{CO}_2 = 345 - 3.73 \cdot (\text{SST} - 10) + 1.29 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (5)$$

$$\text{Bio} = -33.4 - 32.7 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (6)$$

##### (d) 亜寒帯南部 (SST ≥ 16°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 255 + 9.20 \cdot (\text{SST} - 10) - 12.3 \cdot (\text{SSS} - 33) + 0.746 \cdot (\text{lone} - 160) + 1.29 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (7)$$

#### B 北太平洋亜熱帯域 (6~34°N)

##### (a) 亜熱帯西部 (160°W より西, 及び 160°W 以東の塩分極大域以北の SSS ≥ 34.6)

$$\chi\text{CO}_2 = A_{\text{lat,lon,year}} + B_{\text{lat,year}} \cdot (\text{SST} - 25) \quad (8)$$

##### (b) 亜熱帯北東部 (160°W 以東の塩分極大域以北の SSS < 34.6)

$$\chi\text{CO}_2 = 408 + 11.0 \cdot (\text{SST} - 25) - 23.7 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.60 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (9)$$

##### (c) 亜熱帯南東部 (160°W 以東の塩分極大域より南 (海域 d を除く))

$$\chi\text{CO}_2 = 367 + 7.47 \cdot (\text{SST} - 25) + 12.7 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.65 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (10)$$

##### (d) コスタリカ沖 (100°W 以東)

$$\chi\text{CO}_2 = 515 - 33.6 \cdot (\text{SST} - 25) + 52.5 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.94 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 2.15 \cdot (\text{SSS} - 25)^2 - 7.84 \cdot (\text{SST} - 25) \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.65 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (11)$$

第 2 表 太平洋の各海域の  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の推定式 (つづき)

C 太平洋赤道域 (10°S~5°N)

$$\text{SSS}_{\text{bnd}} = \begin{cases} 35 & (160^\circ\text{W より西}) \\ 35 + (\text{lonw} - 160)/40 & (160 \sim 120^\circ\text{W}) \\ 34 & (120^\circ\text{W 以東}) \end{cases} \quad (12)$$

(a) 西部暖水域 (140°W より西の  $\text{SSS} < \text{SSS}_{\text{bnd}}$ )

$$\chi\text{CO}_2 = 457 - 22.8 \cdot (\text{SST} - 25) + 79.4 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.93 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 9.92 \cdot (\text{SSS} - 25)^2 - 9.93 \cdot (\text{SST} - 25) \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.39 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (13)$$

(b) 赤道湧昇域 ( $\text{SSS} \geq \text{SSS}_{\text{bnd}}$ )

$$\chi\text{CO}_2 = 471 - 10.6 \cdot (\text{SST} - 25) + 12.2 \cdot (\text{SSS} - 35) - 0.725 \cdot (\text{SST} - 25)^2 - 77.1 \cdot (\text{SSS} - 25)^2 + 3.19 \cdot (\text{SST} - 25) \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.67 \cdot (\text{year} - 2000) + 15.1 \cdot \sin(2\pi (\text{month} - 0.504)/12) \quad (14)$$

(c) 東部低塩分域 (140°W 以東の  $\text{SSS} < \text{SSS}_{\text{bnd}}$ )

$$\chi\text{CO}_2 = 434 - 1.06 \cdot (\text{SST} - 25) + 69.2 \cdot (\text{SSS} - 35) + 0.679 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 14.8 \cdot (\text{SSS} - 25)^2 - 0.986 \cdot (\text{SST} - 25) \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.58 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (15)$$

D 南太平洋亜熱帯域 (35~11°S)

(a) ペルー沖 (20°S 以北の 95°W 以東, Jul.-Dec.)

$$\chi\text{CO}_2 = A_{\text{lat}} + B_{\text{lat}} \cdot (\text{SST} - 25) + 1.28 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (16)$$

(b) 亜熱帯域 ((a) を除く海域)

$$\chi\text{CO}_2 = A_{\text{lat,lon}} + B_{\text{lat}} \cdot (\text{SST} - 25) + 1.28 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (17)$$

E 南太平洋亜寒帯域 (36°S 以南)

$$\text{SST}_{\text{bnd}} = \begin{cases} 16 & (140^\circ\text{E より西}) \\ 16 - (\text{lone} - 140) \cdot 6/150 & (140^\circ\text{E} \sim 170^\circ\text{W}) \\ 14 & (170^\circ\text{W 以東}) \end{cases} \quad (18)$$

(a) 亜寒帯北部 ( $\text{SST} \geq \text{SST}_{\text{bnd}}$ )

$$\chi\text{CO}_2 = 230 + 6.95 \cdot \text{SST} - 6.64 \cdot (\text{SSS} - 33) + 0.0650 \cdot (\text{lone} - 180) + 1.78 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (19)$$

(b) 亜寒帯南部 ( $\text{SST} < \text{SST}_{\text{bnd}}$ )

$$\chi\text{CO}_2 = 360 - 4.03 \cdot \text{SST} - 0.164 \cdot (\text{SSS} - 33) - 20.1 \cdot \log(\text{Chl-}a + 0.01) + 1.78 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (20)$$

における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  推定式を記す. 詳細は Sugimoto *et al.* (2012) を参照されたい.

### 3.2.2 大西洋

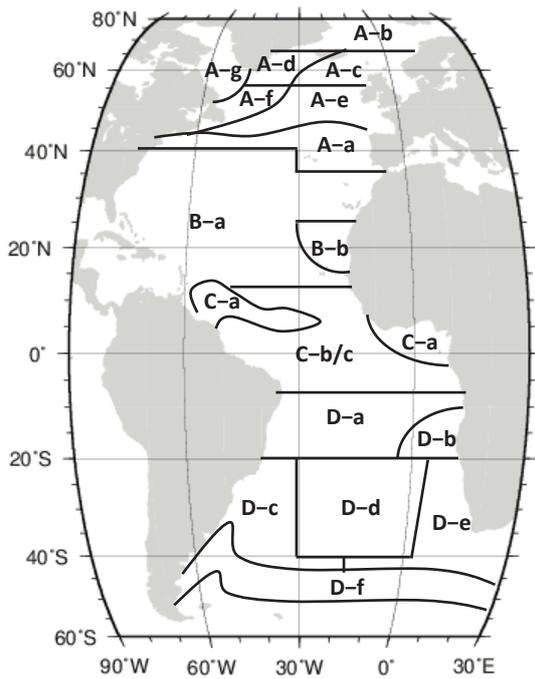
大西洋における  $p\text{CO}_2\text{s}$  の緯度帯分布は太平洋と基本的に同様であるが, 太平洋と比較して東西幅が狭いために特に北大西洋で東西の SST 及び SSS のコントラストが強くみられるほか, 高緯度での一次生産が大きいこと, 赤道湧昇が顕著ではないこと, アマゾン川やコンゴ川など, 大きな河川からの淡水の流入の影響があることなどの特徴がある. この特徴を考慮し, 緯度経度や SST, SSS で第 4 図に示すように海域を分割し, それぞれ推定式を作成した.

#### A 北大西洋亜寒帯域 (35°N 以北)

北大西洋亜寒帯・寒帯域における SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  (2000 年の値に規格化したもの. 以下同様) の関

係を第 5 図 a に示す (図は 45 ~ 55°N). SST が 17°C 以上の海域で, SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  との間に正相関が見られる. この関係は, 後述する亜熱帯域でみられるものと同様である. 第 2 表に記した北大西洋ではその境界を 16°C と設定したように, 北大西洋中緯度域においては, SST が 17°C 以上の海域で, 表面海水中の栄養塩がほぼ枯渇状態にあると考えられる (Inoue *et al.*, 2003; van de Poll *et al.*, 2013). なお, 40°N より南の 30°W より西は湾流の流路にあたり, 亜熱帯的な特徴を持つ海域であるため, 後述の亜熱帯域と同一に扱う (第 3 表, 式 (21)).

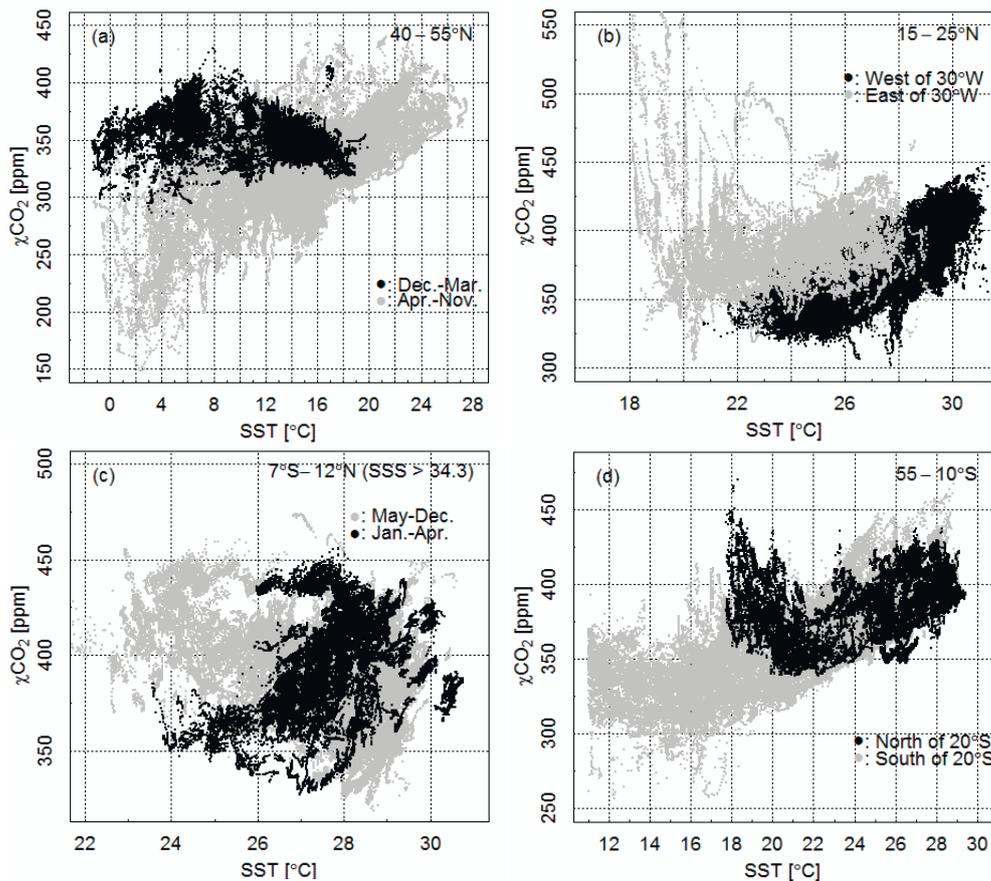
SST が 17°C 未満の海域においては, 生物活動の影響により, 冬季とそれ以外の季節とでは,  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と他パラメータとの関係が異なる. このため, 冬季については SST や SSS のパラメータから経験式を作成する一方, 生物活動が活発な春



第4図  $p\text{CO}_2\text{s}$  推定における海域分けの模式図 (大西洋)

曲線は水温及び塩分による境界, 直線は緯度経度による境界を示す. 英字は本文中の記述に対応.

A-a: 北大西洋亜寒帯南部, A-b: 北大西洋寒帯域, A-c: 北大西洋亜寒帯北東部, A-d: 北大西洋亜寒帯北西部, A-e: 北大西洋亜寒帯中東部, A-f: 北大西洋亜寒帯中西部, A-g: ラブラドル海, B-a: 北大西洋亜熱帯域, B-b: ギニア沖, C-a: 赤道大西洋低塩分域, C-b/c: 赤道大西洋高塩分域, D-a: 南大西洋亜熱帯北部, D-b: アンゴラ沖, D-c: 南大西洋亜熱帯西部, D-d: 南大西洋亜熱帯中部, D-e: 南大西洋亜熱帯東部, D-f: 南大西洋亜寒帯域



第5図 大西洋における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と SST の関係

(a): 40 ~ 55°N, (b): 15 ~ 25°N, (c): 8°S ~ 12°N, (d): 55 ~ 10°S

(a) の黒は冬季 (12 ~ 3月), 灰色は春~秋季 (4 ~ 11月) のプロット, (b) の黒は 30°W より西, 灰色は 30°W 以東, (c) の黒は非湧昇季 (1 ~ 4月), 灰色は湧昇季 (5 ~ 12月) のプロット, (d) の黒は 20° 以北, 灰色は 20° より南のプロットを示す.

～秋季には、Chl-*a* から生物活動の影響を見積もり、冬季の経験式を補正することとした。Chl-*a* や  $p\text{CO}_2\text{s}$  の変動に基づき、12～3月を冬季とした。まず冬季のデータを見ると、およそ 6～8°C程

第 3 表 大西洋の各海域の  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の推定式

A 北大西洋亜寒帯域 (35°N 以北)

(a) 亜寒帯南部 (SST $\geq$ 17°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 395 + 7.93 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (21)$$

(b) 寒帯域 (65°N 以北)

$$\chi\text{CO}_2 = 327 + 1.67 \cdot \text{SST} + 0.417 \cdot \text{SST}^2 + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (22)$$

$$\text{Bio} = -90.7 - 38.1 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (23)$$

(c) 亜寒帯北東部 (55~64°N, SST $\geq$ 7.8°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 428 - 4.91 \cdot \text{SST} + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (24)$$

$$\text{Bio} = -64.6 - 28.0 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (25)$$

(d) 亜寒帯北西部 (55~64°N, SST $<$ 7.8°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 382 + 0.632 \cdot \text{SST} + 19.9 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (26)$$

$$\text{Bio} = -65.9 - 41.2 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (27)$$

(e) 亜寒帯中東部 (55°N より南, SST $\geq$ 6.9°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 398 - 3.45 \cdot \text{SST} + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (28)$$

$$\text{Bio} = -45.4 - 23.1 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (29)$$

(f) 亜寒帯中西部 (55°N より南, SST $<$ 6.9°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 352 + 1.19 \cdot \text{SST} + 0.414 \cdot \text{SST}^2 + 5.84 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (30)$$

$$\text{Bio} = -65.9 - 30.9 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (31)$$

(g) ラブラドル海 (52°N 以北かつ 45°W より西の, SST $<$ 7.0°Cかつ SSS $<$ 34.5)

$$\chi\text{CO}_2 = 364 + 4.19 \cdot \text{SST} + 22.8 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.63 \cdot (\text{year} - 2000) + \text{Bio} \quad (32)$$

$$\text{Bio} = -85.5 - 24.9 \cdot \log(\text{Chl-}a) \quad (\text{本項は 4} \sim 11 \text{ 月のみ適用し, } \text{Bio} \geq 0 \text{ の場合は } \text{Bio} = 0 \text{ とする}) \quad (33)$$

B 北大西洋亜熱帯域 (13~34°N)

(a) 北大西洋亜熱帯域 ((b)を除く海域 (35~39°N の 30°W より西の SST $\geq$ 17°Cの海域を含む))

$$\chi\text{CO}_2 = A_{\text{lat,lon}} + B_{\text{lat}} \cdot (\text{SST} - 25) + 1.60 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (34)$$

(b) ギニア沖 (13~24°N の 30°W 以東の SST $<$ 22°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 382 - 27.0 \cdot (\text{SST} - 20) + 15.1 \cdot (\text{SST} - 20)^2 + 1.60 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (35)$$

C 大西洋赤道域 (7°S~12°N)

(a) 低塩分海域 (SSS $<$ 34.3)

$$\chi\text{CO}_2 = 330 + 11.1 \cdot (\text{SST} - 25) + 9.2 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.65 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (36)$$

(b) 高塩分域非湧昇季 (SSS $\geq$ 34.3, Jan.-Apr.)

$$\chi\text{CO}_2 = 342 + 12.1 \cdot (\text{SST} - 25) + 26.6 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.65 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (37)$$

(c) 高塩分域湧昇季 (SSS $\geq$ 34.3, May-Dec.)

$$\chi\text{CO}_2 = 388 - 6.2 \cdot (\text{SST} - 25) + 18.3 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.65 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (38)$$

D 南大西洋 (8°S 以南)

(a) 亜熱帯北部 (20°S 以北, SST $\geq$ 22°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 383 + 5.81 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.45 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (39)$$

(b) アンゴラ沖 (20°S 以北, SST $<$ 22°C)

$$\chi\text{CO}_2 = 317 - 11.5 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.45 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (40)$$

(c) 亜熱帯西部 (SST $\geq$ 15.5°C, 40°S 以北の 30°W より西あるいは 40°S より南の 15°W より西)

$$\chi\text{CO}_2 = 364 + 5.83 \cdot (\text{SST} - 25) + 3.24 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.45 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (41)$$

(d) 亜熱帯中部 (SST $\geq$ 15.5°C, 40°S 以北の 30°W~5°E)

$$\chi\text{CO}_2 = 429 + 10.5 \cdot (\text{SST} - 25) - (0.0714 \cdot (\text{SST} - 25)^2 - 18.1 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.45 \cdot (\text{year} - 2000)) \quad (42)$$

(e) 亜熱帯東部 (SST $\geq$ 15.5°C, 40°S 以北の 5°E 以東あるいは 40°S より南の 15°W 以東)

$$\chi\text{CO}_2 = 378 + 3.45 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.45 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (43)$$

(f) 亜寒帯域 (SST $<$ 15.5°C)

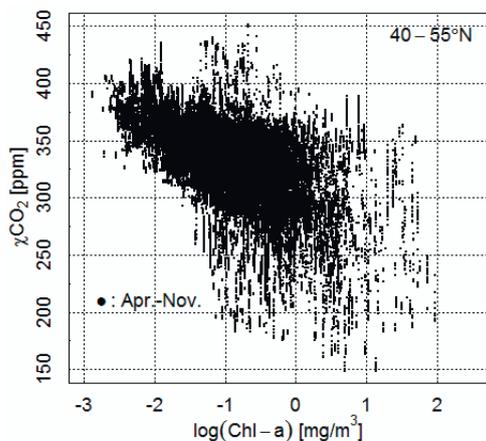
$$\chi\text{CO}_2 = 314 + 0.605 \cdot (\text{SST} - 15) + 1.42 \cdot (\text{SST} - 15)^2 - 12.8 \cdot \log(\text{Chl-}a + 0.01) + 1.44 \cdot (\text{year} - 2000) \quad (44)$$

度を境界として、高 SST 側で負相関、低 SST 側で正相関がみられる。高 SST の海域は、亜熱帯循環から分岐した北大西洋海流の影響を強く受ける東部に、低 SST の海域は、亜寒帯循環が形成される西部に対応する。高緯度では一般に  $pCO_2s$  と SST が負相関となり、SST が非常に低くなる海域で正相関となることは、バレンツ海における観測 (Nakaoka *et al.*, 2006) 等でも報告されている。相関が変化する SST の境界は、亜寒帯域中部 (55 ~ 65°N) で 7.8°C、南部 (55°N より南) で 6.9°C である。その他、SST と SSS がともに低いことで特徴付けられるラブラドル海付近の海域を区分した。

SST が 17°C 未満の海域では、春季から秋季にかけては、植物プランクトンによる一次生産が活発であり、 $CO_2$  が消費されて  $pCO_2s$  の顕著な低下がみられる。一次生産による  $CO_2$  の消費は Chl-*a* と関係があり、 $pCO_2s$  と Chl-*a* は負相関を示すため (第 6 図)、Chl-*a* を用いて  $pCO_2s$  の低下を補正する。冬季の推定式を用いて計算された  $pCO_2s$  と実際の  $pCO_2s$  観測値の差に対して、Chl-*a* の対数を独立変数とした回帰分析を行い、補正式 (*Bio*) を作成した。補正式による値が負であった場合にのみ、計算された  $pCO_2s$  に補正值を加え、 $pCO_2s$  推定値とした (第 3 表, 式 (22) ~ (33))。

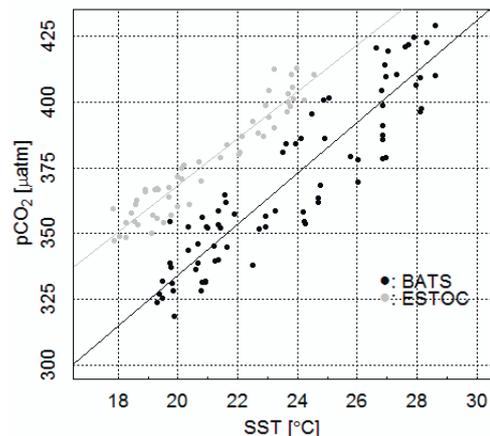
**B 北大西洋亜熱帯域 (13 ~ 34°N)**

北大西洋亜熱帯域における SST と  $\chi CO_2s$  の関



第 6 図 北大西洋北部 (40 ~ 55°N) の 4 ~ 11 月における  $\chi CO_2s$  と Chl-*a* の関係

係を第 5 図 b に示す。SST と  $\chi CO_2s$  との間に正相関がみられる。同一の SST に対し、 $\chi CO_2s$  のとる範囲は大きく、太平洋と同様に  $\chi CO_2s$  の SST に対する依存性が緯度や経度ごとに異なっているためであると考えられる。第 7 図に、長期にわたり定点観測が行われていた、バミューダ諸島沖に位置する Bermuda Atlantic Time-Series (BATS) 及びカナリア諸島沖の European Station for Time-series in the Ocean (ESTOC) の 2 つの時系列観測点における SST と  $pCO_2s$  との関係 (2005 ~ 2009 年) を示す。なお、BATS の  $pCO_2s$  は、全炭酸濃度及び全アルカリ度の観測値から、炭酸系平衡計算により求めた値である。両観測点はほぼ同様の緯度帯 (BATS: 30°40'N, ESTOC: 29°30'N) に位置しており、それぞれ大陸東岸、大陸西岸に位置する。それぞれのプロットはほぼ同じ傾きを示しているが、切片が異なっており、北大西洋亜熱帯域東部に位置する ESTOC の方が 25°C において 30  $\mu atm$  ほど高い。北太平洋亜熱帯域西部では、SST と  $\chi CO_2s$  の関係が、各緯度帯に固有の傾きと、経度によって異なる切片によって表されることが分かっており (村田ほか, 1996)、同様な関係が大西洋にもみられる。北太平洋亜熱帯域西部では、気象庁の 137°E の定線観測値を用いて SST と  $\chi CO_2s$  の緯度ごとの傾きを計算し、他の定線観測値によってさらに



第 7 図 BATS 及び ESTOC における  $pCO_2s$  と SST の関係

黒 : BATS, 灰色 : ESTOC. BATS の  $pCO_2s$  は全炭酸と全アルカリ度より計算した値である。BATS のデータは Bates *et al.* (2012), ESTOC は González-Dávila and Santana-Casiano (2009) に基づく。2005 ~ 2009 年の値を使用。

経度ごとに切片を毎年決定する手法により  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  を推定している (3.2.1 項参照). 北大西洋亜熱帯域においては, 毎年定常的な観測の行われている南北定線はないが, 特に西部では観測点が時空間的に比較的偏りなく分布しているため,  $60^\circ\text{W}$  より西の観測データを用いて各緯度帯の傾きを決定し, さらに他の観測値も用いて経度ごとに切片を推定した (第3表, 式 (34)).

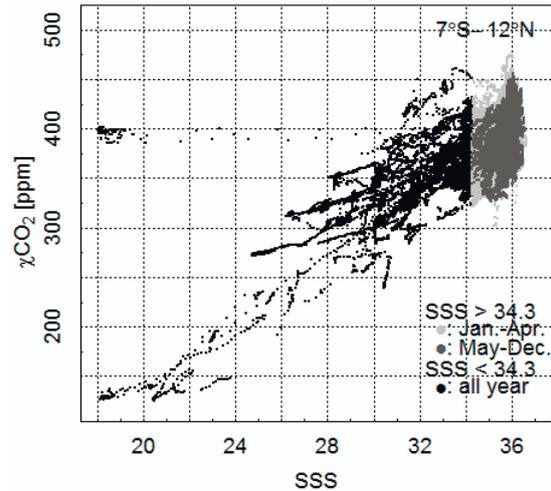
第5図bにおいて, SSTが  $22^\circ\text{C}$  以下の領域で顕著な負相関を示すプロットがある. この関係は, Oudot *et al.* (1987) や Lefèvre *et al.* (1998) で報告されている SST 及び  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  観測値と同様, 沿岸湧昇の活発なギニア沖にみられるため, この海域を区分した (第3表, 式 (35)).

また,  $25^\circ\text{W}$  より西の  $20^\circ\text{N}$  より南には, アマゾン川の淡水の流入による影響で, 塩分の低い海域が存在する. この緯度経度範囲の SSS が 34.3 以下の海域については, 後述の赤道域の低塩分海域として推定式を作成した.

### C 大西洋赤道域 ( $7^\circ\text{S} \sim 12^\circ\text{N}$ )

大西洋赤道域における SST 及び SSS と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の関係を第5図c及び第8図に示す. 低塩分の領域を中心に, SSS と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  との間に, 顕著な正相関がみられる. 低塩分の海域は, アマゾン川やコンゴ川等の大河川からの淡水の流入の影響で, 南米大陸沿岸とアフリカ大陸沿岸を中心に, 赤道収束帯に沿って東西に分布し, その低い  $p\text{CO}_2\text{s}$  から,  $\text{CO}_2$  の吸収域となっている (Lefèvre *et al.*, 2010). 低塩分海域は SSS が 34.3 以下の海域と定義して区分し, SSS 及び SST を変数とした  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  への線形重回帰分析を行い, 以下の推定式を作成した (第3表, 式 (36)).

一方, 赤道域の高塩分の海域は, 湧昇の影響を大きく受け, 季節変動が大きい. 湧昇の影響の小さい1~4月には  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  は SST と正相関をとり, その傾きは熱力学的な上昇率である  $4.3\%/^\circ\text{C}$  (Takahashi *et al.*, 1993) に近い. 湧昇の影響の大きい5~12月には, 下層の海水の影響を受け, SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  との間に負相関, SSS と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  との間に正相関がみられる (第5図c, 第8図). 湧昇の影響の大きい季節に SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の間に顕



第8図 大西洋赤道域における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と SSS の関係  
黒は低塩分域 (SSS > 34.3), 濃灰色は高塩分域 (非湧昇季: 1~4月), 淡灰色は高塩分域 (湧昇季: 5~12月) を示す.

著な負相関がみられるのは,  $6^\circ\text{S} \sim 10^\circ\text{W}$  に位置する漂流ブイ (PIRATA) における観測結果 (Parard *et al.*, 2010) と同様の傾向である. SSS が 34.3 以上の海域を高塩分海域とし, 湧昇の影響の大きさによって季節を分け, SSS 及び SST を独立変数とした  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  への重回帰分析を行い, 推定式を作成した (第3表, 式 (37), (38)).

### D 南大西洋 ( $8^\circ\text{S}$ 以南)

南大西洋域における SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の関係を第5図dに示す.  $20^\circ\text{S}$  以北では, 北大西洋と同様に正相関がみられる海域が多い. アンゴラ沖では, 沿岸湧昇の影響を受け, SST が  $22^\circ\text{C}$  以下の領域で負相関となる海域があるため, 海域を区分した.

$20^\circ\text{S}$  より南では, SST が  $15.5^\circ\text{C}$  以上の海域で, 正相関がみられる. 西岸境界と亜熱帯循環の東側とでは  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の SST 依存性が異なることから,  $40^\circ\text{S}$  以北では  $30^\circ\text{W}$ ,  $40^\circ\text{S}$  より南では  $15^\circ\text{W}$  を境界として, 以下の (c), (d) 海域に東西に区分する. さらに東部には, インド洋からの影響を受けて  $p\text{CO}_2\text{s}$  変動特性が異なる海域があるため,  $40^\circ\text{S}$  以北では  $5^\circ\text{E}$ ,  $40^\circ\text{S}$  より南では  $15^\circ\text{W}$  以東を (e) 海域として区分した.  $15.5^\circ\text{C}$  未満の海域 (以下の (f) 海域) では, 北大西洋と同様に,  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と SST が負相関を示す. 生物活動の影響で  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と Chl-*a* の自然対数が負相関を示すため, SST 及

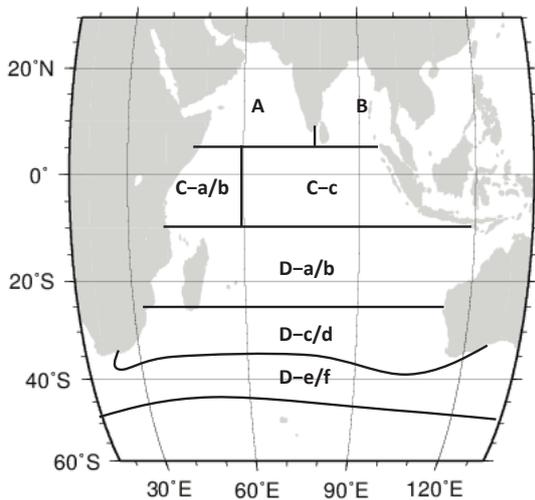
び Chl-*a* を変数として回帰分析を行った. SST 依存性の非直線性を考慮して, (d) 及び (f) 海域では SST の二次の回帰式を用いるとともに, SSS との相関を考慮し, (c) 及び (d) 海域では SST に加え SSS を変数として用いた (第 3 表, 式 (39) ~ (44)).

### 3.2.3 インド洋

南インド洋では,  $p\text{CO}_{2s}$  が基本的には太平洋や大西洋と同様の緯度帯分布を示すが, 赤道域以北では, インドモンスーンの影響を強く受ける. これらを考慮し, 第 9 図のように海域を分け,  $p\text{CO}_{2s}$  推定式作成を行った.

#### A アラビア海 (5°N 以北, 80°E より西)

アラビア海は, 冬の北東モンスーン季, 春のプレモンスーン季, 夏の南西モンスーン季及び秋のポストモンスーン季に季節区分される. 冬及び夏, 特に夏のモンスーン季には風が強く, 湧昇が盛んになる. アラビア海の  $p\text{CO}_{2s}$  の変動は, モンスーンによる 4 つの季節に従って大きく変化する (Sabine *et al.*, 2000; Sarma *et al.*, 2003; Bates *et al.*, 2006). なお, SOCAT V2 には, 南西モンスーン



第 9 図  $p\text{CO}_{2s}$  推定における海域分けの模式図 (インド洋)

曲線は水温及び塩分による境界, 直線は緯度経度による境界を示す. 英字は本文中の記述に対応.

A : アラビア海, B : ベンガル湾, C-a/b : 赤道インド洋西部, C-c : 赤道インド洋東部, D-a/b : 南インド洋亜熱帯北部, D-c/d : 南インド洋亜熱帯南部, D-e/f : 南インド洋亜寒帯域

季以外のアラビア海の観測が少ないため, アラビア海の推定式作成には, 1995 年に行われた U. S. Joint Global Ocean Flux Study (U. S. JGOFS; Millero *et al.*, 1998) の観測データを利用した.

アラビア海における SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  の関係を, 季節別に第 10 図 a-d に示す. 季節の区分は, (a) 北東モンスーン季: 12~3 月 (ただし 12 月及び 3 月は  $\text{SST} < 26^\circ\text{C}$ ), (b) プレモンスーン季: 3~5 月 (ただし 3 月は  $\text{SST} \geq 26^\circ\text{C}$ ), (c) 南西モンスーン季: 6~9 月及び (d) ポストモンスーン季: 10~12 月 (ただし 12 月は  $\text{SST} \geq 26^\circ\text{C}$ ) とした.

北東モンスーン季には湧昇の影響を受ける海域が現れ, SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が負相関を示す. 湧昇の影響の現れない海域は, 熱力学的な効果により, SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が正相関を示す. 湧昇の影響が現れる北東部 (64°E 以東あるいは 21°N 以北) と, 影響の現れない南西部 (64°E より西の 21°N より南) に区分し, 推定式を作成した (第 4 表, 式 (45), (46)).

プレモンスーン季は, アラビア海全域で, 湧昇の影響を受けず, SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が正相関を示す (第 4 表, 式 (47)).

南西モンスーン季は, 再び湧昇の影響を受ける海域が現れ, SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が負相関を示す. 北西部では湧昇の影響が特に顕著であり,  $\text{SST} \geq 28^\circ\text{C}$  の海域では負相関がみられないため, これらの海域を区分して推定式を作成した (第 4 表, 式 (48) ~ (50)).

ポストモンスーン季は, 再び湧昇の影響を受けない海域が広がり, SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が正相関を示す. 東西で SST 依存性が異なっているため, 64°E で東西に海域を区分して推定式を作成した (第 4 表, 式 (51), (52)).

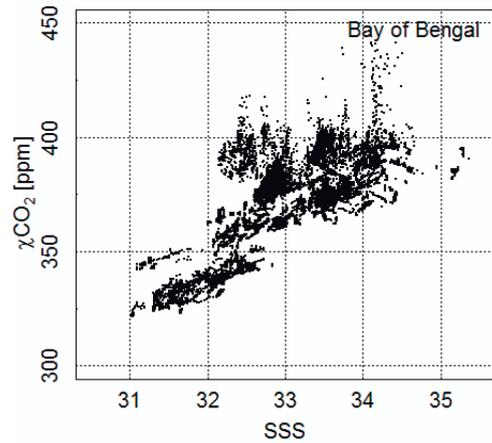
#### B ベンガル湾 (5°N 以北, 80°E 以東)

ベンガル湾における SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  及び SSS と  $\chi\text{CO}_{2s}$  の関係を第 10 図 e 及び第 11 図に示す.  $\chi\text{CO}_{2s}$  は SST 及び SSS と顕著な正相関を示す. ベンガル湾は, ガンジス・ブラマプトラ川やエーヤワディー川などから河川水が多く流入し, インド洋で最も低塩分となる海域である. これらの淡水の影響を受けて SSS と  $\chi\text{CO}_{2s}$  が正相関を示す

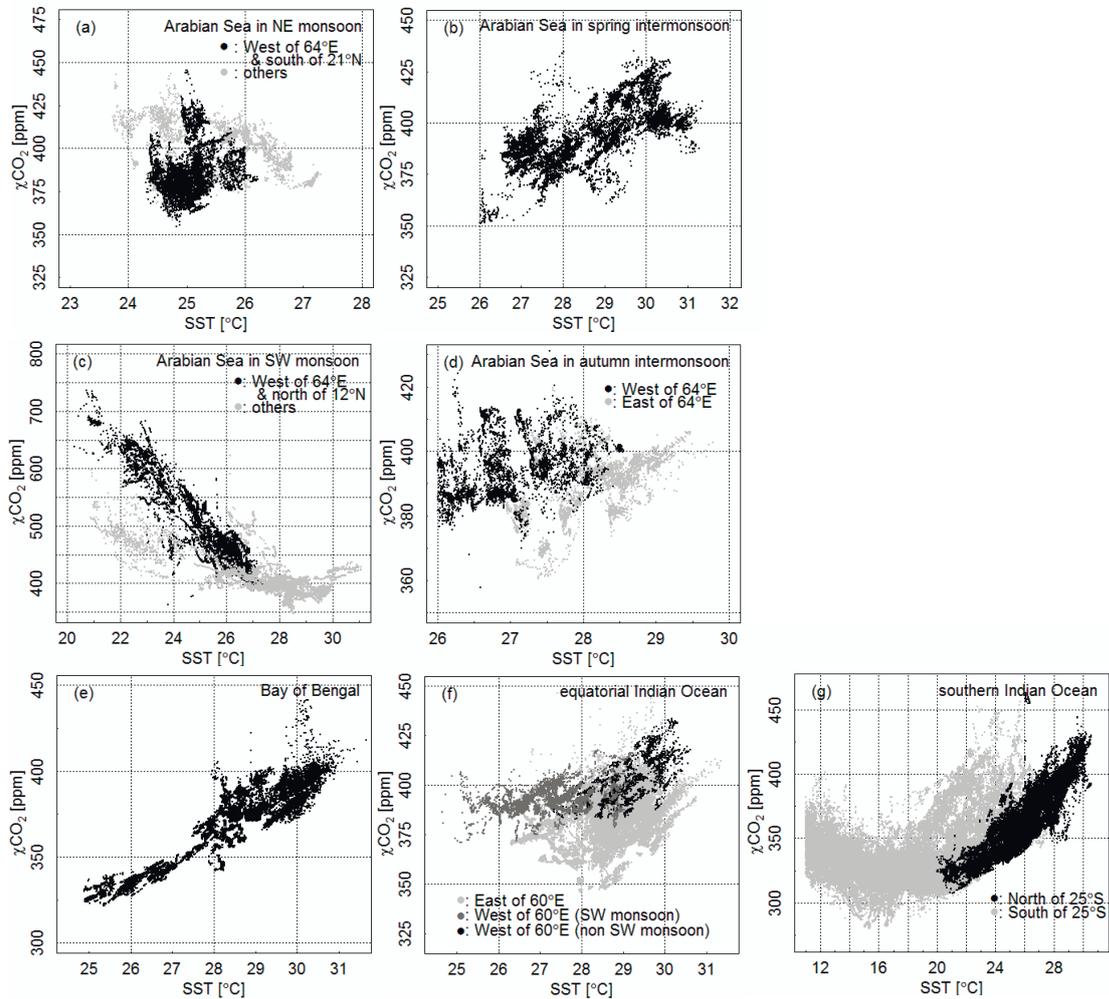
ことが知られている (Kumar, 1996). これらの関係は季節を通じてあまり変化しないため, 通年で一つの推定式とした (第4表, 式 (53)).

C インド洋赤道域 (10°S ~ 4°N)

インド洋赤道域における SST と  $\chi\text{CO}_{2s}$  の関係を第10図 f に示す. 赤道湧昇の影響はあまりみられず, 亜熱帯域と同様に SST との正相関が卓越する. 西部のソマリア沖では, 夏季の南西モンスーン季には, 湧昇の影響を受けて SST が低くなる. この影響で,  $\chi\text{CO}_{2s}$  と SST の関係は, 熱力学的な上昇率に比べて傾きの値が小さくなってい



第11図 ベンガル湾における  $\chi\text{CO}_{2s}$  と SSS の関係



第10図 インド洋における  $\chi\text{CO}_{2s}$  と SST の関係

(a-d): アラビア海 (a: 北東モンスーン季, b: プレモンスーン季, c: 南西モンスーン季, d: ポストモンスーン季), (e): ベンガル湾, (f): インド洋赤道域, (g): 南インド洋.

(a) の黒はアラビア海南西部, 灰色はアラビア海その他, (c) の黒はアラビア海北西部, 灰色はアラビア海南東部, (d) の黒はアラビア海西部, 灰色は東部, (f) の黒は西部 (南西モンスーン季), 濃灰色は西部 (南西モンスーン季以外), 淡灰色は赤道域東部, (g) の黒は 25°S 以北, 灰色は 25°S より南をそれぞれ示す.

る. ここでは, 60°E で東西に分割し, また, それぞれの海域で SSS と正の相関がみられるため, SST に加え SSS も変数として用いて推定式を作成した (第 4 表, 式 (54) ~ (56)).

**D 南インド洋 (11°S 以南)**

インド洋の 11°S 以南の海域における SST と

$\chi\text{CO}_2\text{s}$  の関係を第 10 図 g に示す. 太平洋や大西洋と同様, SST が 15 ~ 20°C 付近を境に, 低温側で負相関, 高温側で正相関を示す. 表面海水中の栄養塩が枯渇して生物活動が不活発な海域で正相関, 栄養塩が豊富で生物活動が活発な海域で負相関を示している. これらの境界の SST はおよそ亜熱帯前線帯にみられるが, 季節により前線帯を

第 4 表 インド洋の各海域の  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の推定式

A アラビア海 (5°N 以北, 80°E より西)	
(a-1) 北東モンスーン季北東部 (64°E 以東あるいは 21°N 以北)	
$\chi\text{CO}_2 = 403 - 6.51 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(45)
(a-2) 北東モンスーン季南西部 (64°E より西かつ 21°N より南)	
$\chi\text{CO}_2 = 387 + 8.29 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(46)
(b) プレモンスーン季	
$\chi\text{CO}_2 = 367 + 7.70 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(47)
(c-1) 南西モンスーン季北西部 (64°E より西かつ 12°N 以北, SST < 28°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 501 - 44.6 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(48)
(c-2) 南西モンスーン季南東部 (64°E 以東あるいは 12°N より南, SST < 28°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 437 - 15.6 \cdot (\text{SST} - 25) + 0.296 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(49)
(c-3) 南西モンスーン季高水温域 (SST ≥ 28°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 382 + 2.33 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(50)
(d-1) ポストモンスーン季西部 (64°E より西)	
$\chi\text{CO}_2 = 386 + 4.12 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(51)
(d-2) ポストモンスーン季東部 (64°E 以東)	
$\chi\text{CO}_2 = 362 + 8.64 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(52)
B ベンガル湾 (5°N 以北, 80°E 以東)	
(a) ベンガル湾	
$\chi\text{CO}_2 = 351 + 10.3 \cdot (\text{SST} - 25) + 8.92 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(53)
C インド洋赤道域 (10°S-4°N)	
(a) 西部湧昇季 (60°E より西, Jun.-Oct.)	
$\chi\text{CO}_2 = 387 + 2.23 \cdot (\text{SST} - 25) + 0.713 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(54)
(b) 西部非湧昇季 (60°E より西, Nov.-May)	
$\chi\text{CO}_2 = 356 + 10.6 \cdot (\text{SST} - 25) + 15.1 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(55)
(c) 東部 (60°E 以東)	
$\chi\text{CO}_2 = 380 + 3.54 \cdot (\text{SST} - 25) + 15.8 \cdot (\text{SSS} - 35) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(56)
D 南インド洋 (11°S 以南)	
(a) 亜熱帯北部冬季 (25°S 以北, May-Nov.)	
$\chi\text{CO}_2 = 346 + 8.20 \cdot (\text{SST} - 25) + 0.623 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(57)
(b) 亜熱帯北部夏季 (25°S 以北, Dec.-Apr.)	
$\chi\text{CO}_2 = 360 + 1.76 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.83 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(58)
(c) 亜熱帯南部冬季 (25°S より南, May-Nov., SST ≥ 18°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 353 + 11.7 \cdot (\text{SST} - 25) + 1.01 \cdot (\text{SST} - 25)^2 + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(59)
(d) 亜熱帯南部夏季 (25°S より南, Dec.-Apr., SST ≥ 16°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 320 + 2.92 \cdot (\text{SST} - 25) - 20.7 \cdot \log(\text{Chl-}a + 0.01) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(60)
(e) 亜寒帯域冬季 (25°S より南, May-Nov., SST < 18°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 328 - 3.16 \cdot (\text{SST} - 15) + 0.452 \cdot (\text{SST} - 15)^2 + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(61)
(f) 亜寒帯域夏季 (25°S より南, Dec.-Apr., SST < 16°C)	
$\chi\text{CO}_2 = 294 - 4.51 \cdot (\text{SST} - 15) - 27.1 \cdot \log(\text{Chl-}a + 0.01) + 1.92 \cdot (\text{year} - 2000)$	(62)

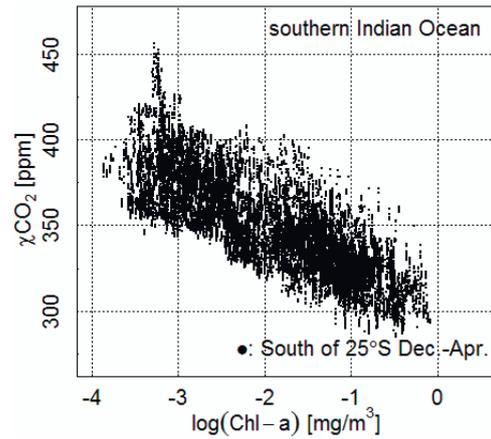
超えて南北に振れる (Poisson *et al.*, 1993) ため、ここでは、冬季 (5 ~ 11) 月と夏季 (12 ~ 4 月) に分けた上で、SST との関係性が変化する水温を冬季は 18°C、夏季は 16°C として海域を分割した。 $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と SST との関係における非直線性を考慮し、推定式の作成には、SST との二次式を用いた。夏季の南部については、生物活動の影響で  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と Chl-*a* の自然対数との間に負相関がみられるため (第 12 図)、Chl-*a* を変数として用いた (第 4 表、式 (57) ~ (62))。

### 3.2.4 南大洋

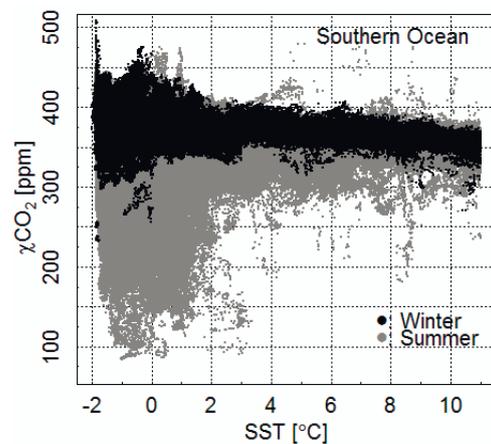
南大洋は、低緯度方向への  $\text{CO}_2$  の輸送と南極中層水や亜南極モード水の形成を通じ、人為起源  $\text{CO}_2$  の海洋中への蓄積に大きな役割を持つ (Khaliwala *et al.*, 2013)。また、冬季に鉛直混合の発達により  $p\text{CO}_2\text{s}$  が上昇し、大気中へ放出される一方、春季から秋季にかけては生物活動が非常に活発となって大きな  $\text{CO}_2$  吸収が行われるため、季節変動が大きな海域でもある (Chierici *et al.*, 2012)。したがって、 $p\text{CO}_2\text{s}$  の季節変動や年々変動が大きく、観測値から  $p\text{CO}_2\text{s}$  を精度よく推定することが難しい海域の一つとなっている。

南大洋における SST と  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の関係を第 13 図に示す。ここでは、南大洋を SST が 11°C 未満の海域とした。冬季は  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  変動が相対的に小さく、SST と負相関を示し、SST への依存性が 8°C 及び 3°C 付近で変化する。これらの水温で海域を分割し (第 14 図)、推定式を作成した。SST が 3°C 未満の海域における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の SST 依存性を適切に表すため、冬季においても  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  の変動の大きい SST が 0.7°C 未満の海域の観測値を除いて推定式を作成した。

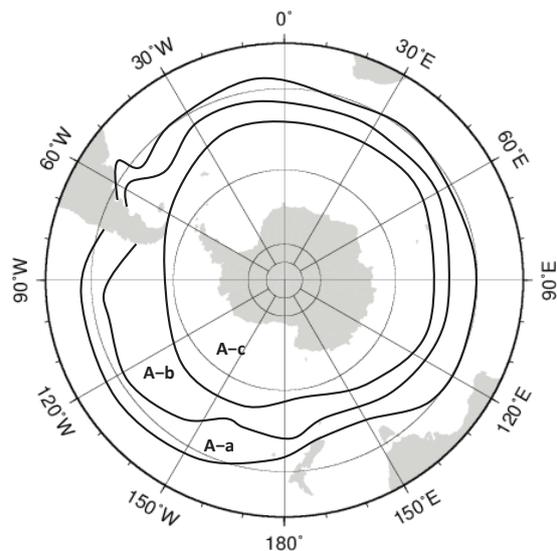
春季から秋季には、生物活動に伴って  $p\text{CO}_2\text{s}$  が大きく低下する。第 15 図に、南大洋における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と Chl-*a* の自然対数との関係を示す。北大西洋と同様に Chl-*a* を用いて冬季の推定式を補正した (第 5 表)。



第 12 図 南インド洋における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と Chl-*a* の関係



第 13 図 南大洋における  $\chi\text{CO}_2\text{s}$  と SST の関係  
黒は冬季、灰色は夏季を示す。



第 14 図  $p\text{CO}_2\text{s}$  推定における海域分けの模式図 (南大洋)

曲線は水温による境界を示す。英字は本文中の記述に対応。A-a : 南大洋北部、A-b : 南大洋中部、A-c : 南大洋南部

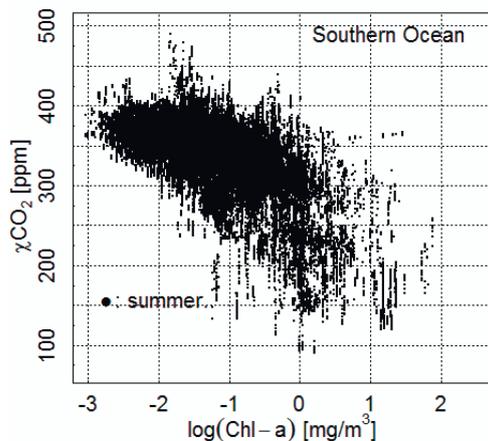
4.  $pCO_{2s}$  推定に伴う不確かさの評価

第3章で記した手法に基づき、1990年から2011年までの月ごとの緯度 $1^\circ \times$ 経度 $1^\circ$ 格子の $pCO_{2s}$ 分布を作成した。これを、同じく月ごとの $1^\circ \times 1^\circ$ に格子点化した観測値と比較し、観測値に対する推定値の平均二乗誤差 (RMSE) 及び平均偏差 (Bias) を得た。RMSE 及び Bias は以下の式で表すものとする。

$$RMS = (\sum(pCO_{2est} - pCO_{2obs}) / N)^{1/2} \quad (69)$$

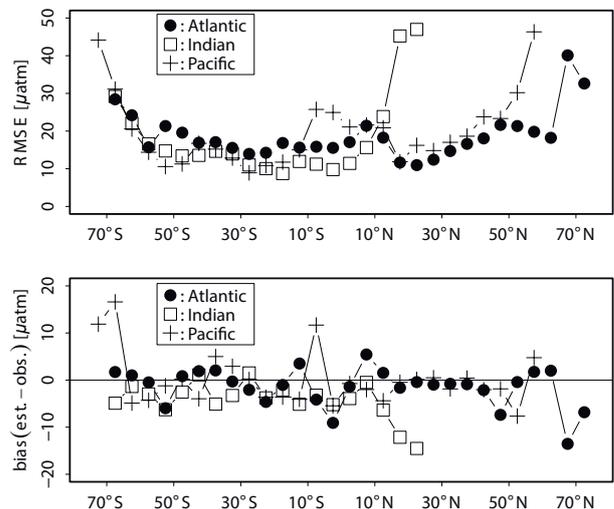
$$Bias = \sum(pCO_{2est} - pCO_{2obs}) / N \quad (70)$$

ここで  $pCO_{2est}$  は  $pCO_{2s}$  推定値,  $pCO_{2obs}$  は  $pCO_{2s}$  観測値, N は観測値の数を表す。第16図に RMSE 及び Bias の大洋別の $5^\circ$ 緯度帯ごとの分布を示した。Bias は多くの緯度帯で $\pm 10 \mu atm$ 以内, 特に北半球の中緯度では $\pm 2 \sim 3 \mu atm$ 程度である。RMSE は, 中緯度域 ( $50 \sim 10^\circ S$ ,  $10 \sim 40^\circ N$ ) でおよそ  $10 \sim 20 \mu atm$ , 太平洋の赤道



第15図 南大洋の夏季 (10 ~ 4月) における  $\chi CO_{2s}$  と Chl-a の関係

域 ( $10^\circ S \sim 10^\circ N$ ) で  $20 \sim 25 \mu atm$  程度, 高緯度域では, 南北  $65^\circ$  以上概ね  $20 \sim 30 \mu atm$  程度であった。南西モンスーンに伴う高い  $pCO_{2s}$  が観測されるアラビア海を含むインド洋の北緯  $10^\circ$  以北の緯度帯で  $-10 \mu atm$  を下回る Bias となり, RMSE も  $24 \sim 47 \mu atm$  程度と他の緯度帯と比べて大きかった。観測された短い時間スケールで起こる湧昇による SST の大きな低下とそれに伴う  $pCO_{2s}$  の上昇を, 月平均の解析値からは捉えにくい。そのため,  $pCO_{2s}$  が過小評価になったものと考えられる。赤道湧昇による  $pCO_{2s}$  の大きな変動が広く観測される太平洋赤道域では, 海域の境界や周辺付近で推定値と観測値の差が大きくなる場合があり, Bias の絶対値及び RMSE が大きくなっ



第16図  $pCO_{2s}$  推定値の観測値に対する平均二乗誤差 (RMSE) (上) 及び平均偏差 (Bias) (下) の大洋ごと緯度帯別分布

●は大西洋, □はインド洋, +は太平洋のプロットを示す。

第5表 南大洋の各海域の  $\chi CO_{2s}$  の推定式

(a) 南大洋北部 ( $8^\circ C \leq SST < 11^\circ C$ )

$$\chi CO_2 = 400 - 4.14 \cdot SST + 1.91 \cdot (\text{year} - 2000) + Bio \quad (63)$$

$$Bio = -34.6 - 15.7 \cdot \log(\text{Chl-a}) \quad (10 \sim 4 \text{月のみ適用し, } Bio \geq 0 \text{ の場合は } Bio = 0 \text{ とする}) \quad (64)$$

(b) 南大洋中部 ( $3^\circ C \leq SST < 8^\circ C$ )

$$\chi CO_2 = 378 - 1.61 \cdot SST + 1.91 \cdot (\text{year} - 2000) + Bio \quad (65)$$

$$Bio = -53.2 - 24.7 \cdot \log(\text{Chl-a}) \quad (10 \sim 4 \text{月のみ適用し, } Bio \geq 0 \text{ の場合は } Bio = 0 \text{ とする}) \quad (66)$$

(c) 南大洋南部 ( $SST < 3^\circ C$ )

$$\chi CO_2 = 378 - 4.86 \cdot SST + 1.91 \cdot (\text{year} - 2000) + Bio \quad (67)$$

$$Bio = -86.1 - 42.8 \cdot \log(\text{Chl-a}) \quad (10 \sim 3 \text{月のみ適用し, } Bio \geq 0 \text{ の場合は } Bio = 0 \text{ とする}) \quad (68)$$

た。高緯度では、推定式に Chl-*a* を利用している。Chl-*a* は解析には緯度 1° × 経度 1° の月平均値を使用しているが、Chl-*a* は、より短い時間スケールの現象により大きく変動しており、それと伴い変動する  $p\text{CO}_2\text{s}$  の観測値と比較して、高緯度で RMSE が大きくなる。

全緯度帯にわたり、面積を考慮した重みづけ平均を求めると、Bias は  $-0.8 \mu\text{atm}$ 、RMSE は  $17.5 \mu\text{atm}$  となった。

## 5. 大気－海洋間の $\text{CO}_2$ 交換量推定

### 5.1 $\text{CO}_2$ 交換量推定手法及びその不確かさ

大気－海洋間  $\text{CO}_2$  交換量は、バルク法により、以下の式で求めることができる。なお、この手法で求められる  $\text{CO}_2$  交換量は、産業革命以前における自然の  $\text{CO}_2$  放出を含んだ交換量 (contemporary flux) である。人為起源  $\text{CO}_2$  交換量 (anthropogenic flux) を求めるには、自然の放出すなわち河川から流入する  $\text{CO}_2$  量を加える必要がある。

$$F = k \cdot L \cdot (p\text{CO}_{2\text{s}} - p\text{CO}_{2\text{a}}) \quad (71)$$

ここで、 $k$  は 10m 風速 ( $U_{10}$ ) の関数で表されるガス交換速度、 $L$  は溶解度である。

$k$  と  $U_{10}$  の関係を適切に表現するために、様々な定式化が行われているが (e.g., Liss and Merlivat, 1986; Nightingale *et al.*, 2000; Woolf, 2005), ここでは、全球・海盆規模での  $\text{CO}_2$  交換量推定に広く使用されている、 $U_{10}$  の 2 乗  $\langle U_{10}^2 \rangle$  に比例する Wanninkhof (1992) による式を用いた。

$$k = a \cdot \langle U_{10}^2 \rangle \cdot (\text{Sc}/660)^{-0.5} \quad (72)$$

$a$  は、 $k$  の値と、解析に使用する  $U_{10}$  の時空間的分布に依存する (Naegler, 2006)。ある  $k$  の値に対し、風速の強い風のデータセットを用いれば  $a$  の値は小さくなり、風速の弱いデータセットを用いれば  $a$  は大きくなる。Naegler (2009) は、核実験由来放射性炭素 ( $^{14}\text{C}$ ) をトレーサーにして全球における  $k$  を見積もった 4 つの研究の比較及び再検討を行って  $k$  の推奨値 ( $k=16.5$ ) を導き、全球における  $k$  の値を用いて、風速場が異なることによる  $a$  の値の違いを調整するための式 (73) を

示した。

$$a = k \cdot (\langle U_{10}^2 \rangle \cdot (\text{Sc}/660)^{-0.5})^{-1} \quad (73)$$

本研究では、 $k$  の値として、Sweeney *et al.* (2007) によって決定された  $^{14}\text{C}$  のインベントリから求められる値を用い、JRA25, NCEP1 及び CCMP の各風速データに対し、式 (73) を用いて調整した  $a$  の値、それぞれ 0.275, 0.273 及び 0.253 を用いた。

$\text{Sc}$  はシュミット数であり、海水の動粘性係数に対する  $\text{CO}_2$  の分子拡散係数の比の逆数である。大気－海洋間の  $\text{CO}_2$  交換過程は海洋表面での分子拡散過程が律速するため、 $\text{Sc}$  が小さいほどガス交換速度は大きくなる。 $\text{Sc}$  は、Wanninkhof (1992) の式を用い、SST から計算される。また、 $\text{CO}_2$  の海水に対する溶解度  $L$  は、Weiss (1974) の式を利用して、SST 及び SSS から求めた。

式 (71) 及び (72) より、 $\text{CO}_2$  交換量の不確かさは、各項の不確かさの重ね合わせで表現することができる。ここで溶解度やシュミット数の不確かさは特に考慮しないものとする、 $a$ 、 $U_{10}$  及び  $\Delta p\text{CO}_2$  の不確かさをそれぞれ見積もる必要がある。

$\Delta p\text{CO}_2$  の不確かさは、 $p\text{CO}_{2\text{a}}$  と  $p\text{CO}_{2\text{s}}$  の不確かさによって決まる。 $p\text{CO}_{2\text{s}}$  の不確かさを、第 4 章で議論した RMSE とすれば、およそ  $17.5 \mu\text{atm}$  である。一方、 $p\text{CO}_{2\text{a}}$  の不確かさは  $0.5 \sim 1 \text{ ppm}$  程度 (Maki *et al.*, 2010) であり、 $p\text{CO}_{2\text{s}}$  に比べて小さく無視できる。 $p\text{CO}_{2\text{s}}$  の標準的な値を  $350 \mu\text{atm}$  程度とすると、不確かさはおよそ 5% と見積もられる。なお、Takahashi *et al.* (2009) の手法による観測値のバイアス補正は行わない。

$U_{10}$  の不確かさは、Takahashi *et al.* (2009) では 20% ( $U_{10}^2$  で 20%) とされている。これを再検討した Wanninkhof *et al.* (2013) では、用いる風速場の違いによる  $\text{CO}_2$  交換量の違いをおよそ 15% としている。また、Naegler *et al.* (2006) では、いくつかの風速データセットの  $U_{10}^2$  のばらつきを 14% と求めている。これらを参考に、本研究では  $U_{10}^2$  の不確かさとして、 $\sigma = 15\%$  を用いる。

Takahashi *et al.* (2009) では、 $a$  の不確かさとして 30% を見積もっているが、これを再検討した

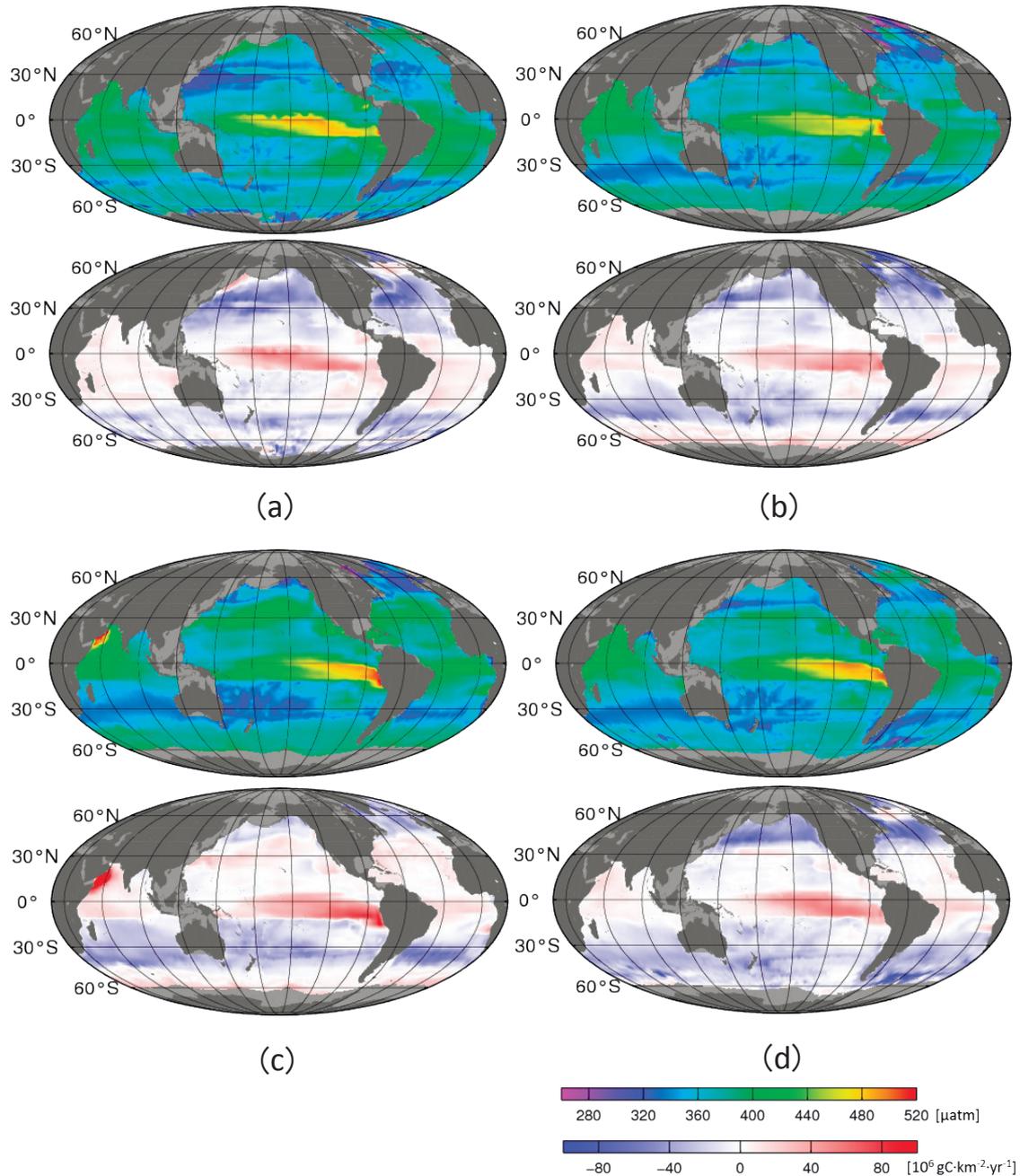
Wanninkhof *et al.* (2013) では, Ho *et al.* (2010) の SF<sub>6</sub> と <sup>3</sup>He をトレーサーとして用いた研究を参考に, 不確かさを 10 ~ 20% としている. この議論に基づき, 本研究では a の不確かさを  $\sigma = 15\%$  程度を用いる.

以上の不確かさを合成すると, CO<sub>2</sub> 交換量全体の不確かさは 22% で, 1990~2011 年の CO<sub>2</sub> 交換量年積算値の平均  $-1.85 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  に対し,  $\sigma = 0.41$

$\text{PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  の不確かさとなる.

## 5.2 CO<sub>2</sub> 交換量の分布・気候値・経年変動及び風速場の違いによる影響

第 5.1 節に基づき, 全海洋の 1990 ~ 2011 年における CO<sub>2</sub> 交換量を算出した. 例として 2011 年における  $p\text{CO}_{2s}$  及び CO<sub>2</sub> 交換量の分布図を第 17 図に示す. 分布は, 観測値に基づいた解析である



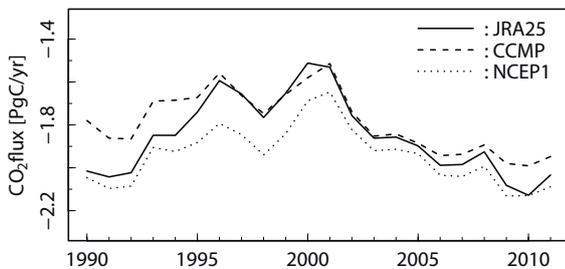
第 17 図 2011 年における  $p\text{CO}_{2s}$  及び CO<sub>2</sub> 交換量推定値の分布

(a) 2 月, (b) 5 月, (c) 8 月, (d) 11 月. 上が  $p\text{CO}_{2s}$ , 下が CO<sub>2</sub> 交換量. CO<sub>2</sub> 交換量は, 正の値が大気への放出, 負の値が大気からの吸収を表す.

Takahashi *et al.* (2009) による気候値に類似し、おおむね妥当な分布であるといえる。

第 5.1 節で述べたように、本研究では、JRA25、NCEP1 及び CCMP の 3 種類の風速データセットをそれぞれ用いて全球の大気-海洋間 CO<sub>2</sub> 交換量を算出した (3 種類を以降 F<sub>j</sub>, F<sub>n</sub>, F<sub>c</sub> と記す)。3 種類の CO<sub>2</sub> 交換量の全球積算値の経年変化を第 18 図に示す。1990～2011 年の解析期間の平均値については、大きい方から順に F<sub>n</sub>, F<sub>j</sub>, F<sub>c</sub> となり、F<sub>n</sub> と F<sub>c</sub> の差はおよそ 0.15 PgC·yr<sup>-1</sup> (8%) であった。Sugimoto *et al.* (2012) では、CO<sub>2</sub> 交換量を計算する際のガス交換速度の係数 a の値を固定してこの比較を行っていたため、最大 20% 程度の差が生じていたが、本研究では Naegler (2009) に基づいた適切な a の値の評価を行ったことにより、どの風速データセットを用いても同程度の CO<sub>2</sub> 交換量を得ることができた。

CO<sub>2</sub> 交換量の全球積算値の経年変化については、F<sub>j</sub>, F<sub>n</sub>, F<sub>c</sub> ともほぼ同様の变化傾向を示した (第 18 図)。1990 年代初頭に吸収量が多く、1990 年代半ば以降吸収量が増加傾向にある。これは、Wanninkhof *et al.* (2013) や Le Quéré *et al.* (2013) によるアセスメントの傾向と一致している。南大洋やインド洋 (主に北部) の海域で 1990 年代初頭に吸収量が多かったことと、北大西洋や南太平洋・南大西洋の亜寒帯域における 1990 年代後半以降の吸収量の増加傾向に加え、大規模なラニーニャ現象に伴う赤道太平洋付近における 2000 年前後の放出量の大きな増加が重なって、このような傾向がみえているものと考えられる。CCMP の風速は、1990 年代から強化傾向にあることから、F<sub>c</sub> に比べ、F<sub>j</sub> や F<sub>n</sub> は、1990 年代の初めの CO<sub>2</sub>



第 18 図 全球 CO<sub>2</sub> 交換量積算値の経年変化

実線は JRA25、破線は CCMP、点線は NCEP1 を用いて計算された CO<sub>2</sub> 交換量を示す。

吸収量を過大評価している可能性がある。この過大評価がない F<sub>c</sub> は、1990～2011 年の期間を通じての増加傾向が有意 ( $p < 0.01$ ) である。

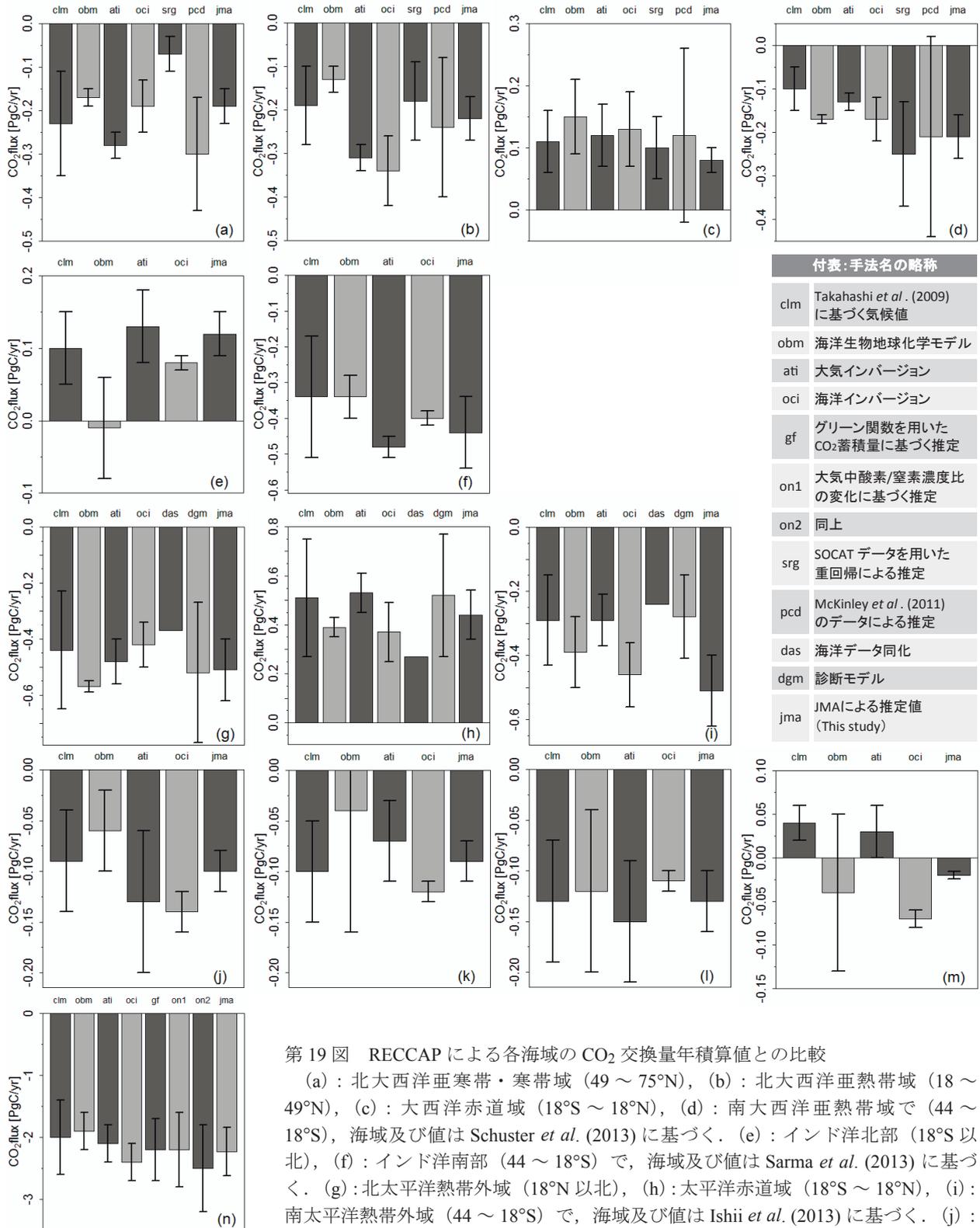
1990～2011 年の期間について、F<sub>c</sub> の長期変化傾向は  $-0.13 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  である。人為起源 CO<sub>2</sub> 排出量の増加率の  $1 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  (Le Quéré *et al.*, 2013) の 1 割程度であり、全排出量に対して占める海洋による吸収量の割合が小さくなっている。長期的に海洋による CO<sub>2</sub> 吸収量がどのように変化していくのかを監視するため、最新の観測データにより、 $p\text{CO}_{2s}$  の長期変化傾向や海域特性の変化について、継続的に監視を行っていくことが必要である。

### 5.3 他の CO<sub>2</sub> 交換量見積もりとの比較

本手法で得られた CO<sub>2</sub> 交換量の積算値 (F<sub>c</sub>) を、地域炭素収支評価 (Regional Carbon Cycle Assessment and Processes (RECCAP); Cannadel *et al.*, 2011) によるアセスメントと比較した。各大洋 (太平洋: Ishii *et al.*, 2013, 大西洋: Schuster *et al.*, 2013, インド洋: Sarma *et al.*, 2013, 南大洋: Lenton *et al.*, 2013,) においてさらに細分化された海盆ごと及び全球 (Wanninkhof *et al.*, 2013) の積算値との比較によって評価する。用いられた手法は各論文で異なるが、Takahashi *et al.* (2009) による気候値、大気インバージョン、海洋インバージョン、海洋生物地球化学モデルの手法は、全ての論文で用いられている。

第 19 図に、各海盆における比較結果を示す。本研究の CO<sub>2</sub> 交換量積算値は、多くの海域で、他の手法による値のばらつきの範囲内に収まり、整合性が取れていることが示された。

一方、年々変動の幅や長期変化傾向には他の手法との違いがみられた。エルニーニョ現象は、赤道湧昇を不活発にさせるため、太平洋赤道域での CO<sub>2</sub> 放出を弱め、全球における CO<sub>2</sub> 吸収量を増加させる。大規模なエルニーニョ現象が現れた 1997～1998 年にかけては、多くの手法で、CO<sub>2</sub> 吸収量の顕著な増加が現れている (Wanninkhof *et al.*, 2013)。また、CO<sub>2</sub> 吸収量の極大が 1997 年に現れた手法と 1998 年に現れた手法がある。海洋生物地球化学モデルによる手法では、吸収量の極



第 19 図 RECCAP による各海域の CO<sub>2</sub> 交換量年積算値との比較

(a) : 北大西洋亜寒帯・寒帯域 (49 ~ 75°N), (b) : 北大西洋亜熱帯域 (18 ~ 49°N), (c) : 大西洋赤道域 (18°S ~ 18°N), (d) : 南大西洋亜熱帯域 (44 ~ 18°S), 海域及び値は Schuster *et al.* (2013) に基づく. (e) : インド洋北部 (18°S 以北), (f) : インド洋南部 (44 ~ 18°S) で, 海域及び値は Sarma *et al.* (2013) に基づく. (g) : 北太平洋熱帯外域 (18°N 以北), (h) : 太平洋赤道域 (18°S ~ 18°N), (i) : 南太平洋熱帯外域 (44 ~ 18°S) で, 海域及び値は Ishii *et al.* (2013) に基づく. (j) : 南大洋大西洋セクター, (k) : 南大洋インド洋セクター, (l) : 南大洋太平洋セクター (以上 58°S 以北), (m) : 南大洋南部 (58°S 以南) で, 海域及び値は Lenton *et al.* (2013) に基づく. (n) : 全球は Wanninkhof *et al.* (2013) に基づく. 棒グラフ上の英字は, 手法名の略称を表している (付表参照).

全球については Anthropogenic flux, 他は contemporary flux の値である. jma については RECCAP との整合のため,  $F_c$  の値を用い, 全球の値には河川からの流入量 ( $-0.45 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$ ) を加えてある. jma の不確かさは  $\sigma=22\%$  を適用している.

大値 (1998 年) と 1996 年の吸収量との差が最大  $1.0 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  に上るのに対し, SST の変動を反映させた Park *et al.* (2010) による手法では, 極大値 (1997 年) と 1996 年の差は  $0.3 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  であった. また, 大気インバージョンのいくつかの手法では, この時期のエルニーニョによるシグナルが現れていない. 本手法では,  $\text{CO}_2$  吸収量の減少の最大偏差は 1997 年ではなく 1998 年に現れており, 1996 年との差は  $0.19 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  (第 18 図) と, 他の手法に比べて小さかった. この偏差の約 80% は, 太平洋における  $\text{CO}_2$  吸収量の偏差によるものであり, そのほとんどは赤道域に求められる.

## 6. まとめ

長期にわたり蓄積された  $p\text{CO}_2\text{s}$  観測データを基に, SST, SSS 及び Chl-*a* から経験的に  $p\text{CO}_2\text{s}$  を推定し,  $\text{CO}_2$  交換量を求める手法を開発した. 全球を 40 以上の海域に分け, それぞれの海域において適切なパラメータを変数として用い, 重回帰分析をすることにより適切な推定式を導いた.

MGDSST, MOVE/MRI.COM-G の SSS 及び衛星による Chl-*a* から推定された  $p\text{CO}_2\text{s}$  の分布は, Takahashi *et al.* (2009) による気候値的分布と定性的によい一致をみた. 観測値に対する推定値の平均偏差は, 全球で  $-0.8 \mu\text{atm}$ , 平均二乗誤差は全球平均で  $17.5 \mu\text{atm}$  であり, 平均二乗誤差でみて 5% 程度の不確かさで,  $p\text{CO}_2\text{s}$  を推定することができた.

求められた  $\text{CO}_2$  交換量の分布から, 海洋による年間の  $\text{CO}_2$  吸収量を求めると, 1990 ~ 2011 年の平均で,  $1.85 \pm 0.41 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  ( $\pm$  は  $1\sigma$ ) となった. これは, Takahashi *et al.* (2009) 気候値や, 他の手法により求められた値の不確かさの範囲内にあり, それらと矛盾しない値であった. ガス交換速度の係数を適切に評価したため, 用いた風速場の違いによる差は 8% 程度に抑えられた. 風速場として CCMP を用いると, 1990 ~ 2011 年の期間において吸収量の有意な増加トレンドがみられ, その増加速度は  $0.13 \text{ PgC}\cdot\text{yr}^{-1}$  と見積もられた.

今回開発を行った大気-海洋間  $\text{CO}_2$  交換量の解析は, 気象庁の全球大気  $\text{CO}_2$  分布解析へ取り込むことが計画されている. また, 今回得られ

た  $p\text{CO}_2\text{s}$  及び  $\text{CO}_2$  交換量の分布は, 年々変動や長期変動要因の解析を通じて地球上の炭素循環の解明に役立つとともに, 海洋酸性化の面的情報を得るための要素としても活用を図っていく. さらに不確かさの低減に向けた解析手法の改善を図るため, 海面高度や混合層深度といったパラメータの利用や, SOCAT データベースの更新による観測データのさらなる集積を基にした, 海域分割や経験式の見直しを進めていくとともに, 世界の多くの大学・研究機関が参加する表面海水中二酸化炭素マッピング相互比較 (Surface Ocean  $p\text{CO}_2$  Mapping Intercomparison, SOCOM) の活動への参加を通じ, 推定の妥当性を確認していく.

## 謝辞

本報告では,  $\text{CO}_2$  交換量推定手法を作成するため, SOCAT データベースを使用しました. 本データベースに収録されているクルーズデータの各 PI をはじめ, 観測に携わった多くの方々に敬意を表します. また, SOCAT V2 全球グループの D. Bakker 氏をはじめ, データベース作成にかかわった SOCAT グループのメンバー諸氏に深く感謝します.

## 参 考 文 献

- Ardizzone, J., R. Atlas, R. N. Hoffman, J. C. Jusem, S. M. Leidner and D. F. Moroni (2009): New multiplatform ocean surface wind product available. EOS Trans., 90, 231.
- Bakker, D. C. E., B. Pfeil, K. Smith, S. Hankin, A. Olsen, S. R. Alin, C. Cosca, B. Hales, S. Harasawa, A. Kozyr, Y. Nojiri, K. M. O'Brien, U. Schuster, M. Telszewski, B. Tilbrook, C. Wada, J. Akl, L. Barbero, N. Bates, J. Boutin, W.-J. Cai, R. D. Castle, F. P. Chavez, L. Chen, M. Chierici, K. Currie, H. J. W. De Baar, W. Evans, R. A. Feely, A. Fransson, Z. Gao, N. Hardman-Mountford, M. Hoppema, W.-J. Huang, C. W. Hunt, B. Huss, T. Ichikawa, A. Jacobson, T. Johannessen, E. M. Jones, S. Jones, S. Jutterström, V. Kitidis, A. Körtzinger, S. K. Lauvset, N. Lefèvre, A. B. Manke, J. T. Mathis, L. Merlivat, N. Metzl, P.

- Monteiro, A. Murata, T. Newberger, T. Ono, G.–H. Park, K. Paterson, D. Pierrot, A. F. Ríos, C.L. Sabine, S. Saito, J. Salisbury, V. V. S. S. Sarma, R. Schlitzer, R. Sieger, I. Skjelvan, T. Steinhoff, K. Sullivan, S. C. Sutherland, T. Suzuki, A. J. Sutton, C. Sweeney, T. Takahashi, J. Tjiputra, N. Tsurushima, S. M. A. C. van Heuven, D. Vandemark, P. Vlahos, D. W. R. Wallace, R. Wanninkhof and A. J. Watson (2013): An update to the Surface Ocean CO<sub>2</sub> Atlas (SOCAT version 2). *Earth Sys. Sci. Data Discuss.*, 6, 465–512, doi:10.5194/essdd-6-465-2013.
- Bates, N. R., A. C. Pequignet and C. L. Sabine (2006): Ocean carbon cycling in the Indian Ocean: 1. Spatiotemporal variability of inorganic carbon and air-sea CO<sub>2</sub> gas exchange, *Global Biogeochem. Cycles*, 20, GB3020, doi:10.1029/2005GB002491.
- Bates, N. R., M. H. P. Best, K. Neely, R. Garley, A. G. Dickson and R. J. Johnson (2012): Detecting anthropogenic carbon dioxide uptake and ocean acidification in the North Atlantic Ocean. *Biogeosciences*, 9, 2509–2522.
- Canadell, J. G., P. Ciais, K. Gurney, C. Le Quéré, S. Piao, M. R. Raupach and C. L. Sabine (2011): An international effort to quantify regional carbon fluxes, *EOS*, 92, 81–82, doi:10.1029/2011EO100001.
- Chierici, M., S. R. Signorini, M. Mattsdotter–Bjork, A. Fransson and A. Olsen (2012): Surface water fCO<sub>2</sub> algorithms for the high–latitude Pacific sector of the Southern Ocean, *Remote Sensing of Environment* 119 184–196.
- Dickson, A. G., C. L. Sabine and J. R. Christian, eds. (2007): *Guide to Best Practices for Ocean CO<sub>2</sub> Measurements*. PICES Special Publication, 3, 191 pp.
- Fay, A. R. and G. A. McKinley (2013): Global trends in surface ocean pCO<sub>2</sub> from in situ data. *Global Biogeochem. Cycles*, 27, doi:10.1002/gbc.20051.
- Feldman, G. C. and C. R. McClain (2010): Ocean Color Web, SeaWiFS Reprocessing 2010.0, NASA Goddard Space Flight Center. Eds. Kuring, N., Bailey, S. W., (<http://oceancolor.gsfc.nasa.gov/>, accessed Sep. 2012).
- Feldman, G. C. and C. R. McClain (2012): Ocean Color Web, MODIS–Aqua Reprocessing 2012.0, NASA Goddard Space Flight Center. Eds. Kuring, N., Bailey, S. W., (<http://oceancolor.gsfc.nasa.gov/>, accessed Sep. 2012).
- González–Dávila, M. and J. M. Santana–Casiano, (2009): Sea surface and atmospheric fCO<sub>2</sub> data measured during the ESTOC Time Series cruises from 1995–2009. CDIAC, Oak Ridge National Laboratory, US Department of Energy, Oak Ridge, Tennessee. doi: 10.3334/CDIAC/otg.TSM\_ESTOC ([http://cdiac.ornl.gov/ftp/oceans/ESTOC\\_data/](http://cdiac.ornl.gov/ftp/oceans/ESTOC_data/) accessed Sep. 2013).
- Ho, D. T., R. Wanninkhof, P. Schlosser, D. S. Ullman, D. Hebert and K. F. Sullivan (2011): Towards a universal relationship between wind speed and gas exchange: Gas transfer velocities measured with 3He/SF<sub>6</sub> during the Southern Ocean Gas Exchange Experiment. *J. Geophys. Res.*, 116, C00F04, doi:10.1029/2010JC006854.
- Inoue, Y. H., M. Ishii, H. Matsueda, T. Kawano, A. Murata and Y. Takasugi, (2003): Distribution of partial pressure of CO<sub>2</sub> in surface water (pCO<sub>2w</sub>) between Japan and the Hawaiian Islands: pCO<sub>2w</sub>–SST relationship in the winter and summer. *Tellus*, 55B, 456–565.
- Ishii, M., R. A. Feely, K. B. Rodgers, G.–H. Park, R. Wanninkhof, D. Sasano, H. Sugimoto, C. E. Cosca, S. Nakaoka, M. Telszewski, Y. Nojiri, S. E. Mikaloff–Fletcher, Y. Niwa, P. K. Patra, V. Valsala, H. Nakano, I. Lima, S. C. Doney, E. T. Buitenhuis, O. Aumont, J. P. Dunne, A. Lenton and T. Takahashi, (2013): Air–sea CO<sub>2</sub> flux in the Pacific Ocean for the period 1990–2009. *Biogeosciences Discuss.*, 10, 12155–12216, doi:10.5194/bgd-10-12155-2013.
- Kalnay, E., M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski,

- J. Wang, A. Leetmaa, R. Reynolds, R. Jenne and D. Joseph (1996): The NCEP/NCAR 40-Year Reanalysis Project. *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, 77, 437–472.
- Keeling, C. D., (1968): Carbon dioxide in surface ocean waters. *J. Geophys. Res.*, 73, 4543–4553.
- Khatiwala, S., T. Tanhua, S. Mikaloff-Fletcher, M. Gerber, S. C. Doney, H. D. Graven, N. Gruber, G. A. McKinley, A. Murata, A. F. Ríos and C. L. Sabine (2013): Global ocean storage of anthropogenic carbon, *Biogeosciences*, 10, 2169–2191, doi:10.5194/bg-10-2169-2013.
- Kumar, M. D., S. W. A. Naqvi, M. D. George and D. A. Jayakumar (1996): A sink for atmospheric carbon dioxide in the northeast Indian Ocean. *J. Geophys. Res.*, 101, 18121–18125.
- 栗原幸雄・桜井敏之・倉賀野連 (2006) : 衛星マイクロ波放射計, 衛星赤外放射計及び現場観測データを用いた全球日別海面水温解析, 測候時報, 73 特別号, S1–S18.
- Lefèvre, N., G. Moore, J. Aiken, A. Watson, D. Cooper and R. Ling (1998): Variability of pCO<sub>2</sub> in the tropical Atlantic in 1995. *J. Geophys. Res.*, 103, 5623–5634.
- Lefèvre, N., D. Diverre and F. Gallois, (2010): Origin of CO<sub>2</sub> undersaturation in the western tropical Atlantic. *Tellus*, 62B, 595–607.
- Lenton, A., N. Metzl, T. Takahashi, M. Kuchinke, R. J. Matear, T. Roy, S. C. Sutherland, C. Sweeney and B. Tilbrook (2012): The observed evolution of oceanic pCO<sub>2</sub> and its drivers over the last two decades. *Global Biogeochem. Cycles*, 26, GB2021, doi:10.1029/2011GB004095.
- Lenton, A., B. Tilbrook, R. M. Law, D. Bakker, S. C. Doney, N. Gruber, M. Ishii, M. Hoppema, N. S. Lovenduski, R. J. Matear, B. I. McNeil, N. Metzl, S. E. Mikaloff-Fletcher, P. M. S. Monteiro, C. Rödenbeck, C. Sweeney and T. Takahashi (2013): Sea-air CO<sub>2</sub> fluxes in the Southern Ocean for the period 1990–2009. *Biogeosciences*, 10, 4037–4054, doi:10.5194/bg-10-4037-2013.
- Le Quéré, C., R. J. Andres, T. Boden, T. Conway, R. A. Houghton, J. I. House, G. Marland, G. P. Peters, G. R. van der Werf, A. Ahlström, R. M. Andrew, L. Bopp, J. G. Canadell, P. Ciais, S. C. Doney, C. Enright, P. Friedlingstein, C. Huntingford, A. K. Jain, C. Jourdain, E. Kato, R. F. Keeling, K. Klein-Goldewijk, S. Levis, P. Levy, M. Lomas, B. Poulter, M. R. Raupach, J. Schwinger, S. Sitch, B. D. Stocker, N. Viovy, S. Zaehle and N. Zeng, (2013): The global carbon budget 1959–2011, *Earth Syst. Sci. Data*, 5, 165–185, doi:10.5194/essd-5-165-2013.
- Liss, P. S. and L. Merlivat (1986): Air-sea gas exchange rates: Introduction and synthesis, in *The Role of Air-Sea Exchange in Geochemical Cycling*, ed. P. Buat-Menard, pp. 113–127, Springer, New York.
- Maki, T., M. Ikegami, T. Fujita, T. Hirahara, K. Yamada, K. Mori, A. Takeuchi, Y. Tsutsumi, K. Suda and T. J. Conway (2010): New technique to analyse global distributions of CO<sub>2</sub> concentrations and fluxes from non-processed observational data. *Tellus*, 62B, 797–809, doi:10.1111/j.1600-0889.2010.00488.x.
- 増田真次・緑川貴・石井雅男・村田昌彦 (2004) : 北太平洋亜寒帯域の春季における二酸化炭素分圧の変動の特性について. 測候時報, 71 特別号, S111–S119.
- McKinley, G. A., A. R. Fay, T. Takahashi and N. Metzl (2011): Convergence of atmospheric and North Atlantic carbon trends on multidecadal timescales. *Nat. Geosci.*, doi:10.1038/ngeo119.
- Millero, F. J. E. A. Degler, D. W. O’Sullivan, C. Goye and G. Eiseid (1998): The carbon dioxide system in the Arabian Sea. *Deep-Sea Res.* II, 45, 2225–2252.
- 村田昌彦・伏見克彦・吉川久幸・廣田道夫・根本和宏・岡邊光邦・矢吹英雄・浅沼市男 (1996) 北西太平洋における大気–海洋間の CO<sub>2</sub> の交換についての評価 —  $\Delta$ pCO<sub>2</sub> の分布と CO<sub>2</sub> フラックス —. *研究時報*, 48, 33–58.
- Naegler, T., P. Ciais, K. Rodgers and I. Levin (2006): Excess radiocarbon constraints on air-

- sea gas exchange and the uptake of CO<sub>2</sub> by the oceans. *Geophys. Res. Lett.*, 33, L11802, doi:10.1029/2005GL025408.
- Naegler, T. (2009): Reconciliation of excess 14C-constrained global CO<sub>2</sub> piston velocity estimates. *Tellus*, 61B, 372–384
- Nakaoka, S., A. Aoki, T. Nakazawa, G. Hashida, S. Morimoto, T. Yamanouchi and H. Y. Inoue, (2006): Temporal and spatial variations of the oceanic pCO<sub>2</sub> and air-sea CO<sub>2</sub> flux in the Greenland Sea and Barents Sea. *Tellus* 58B, 148–161.
- Nakaoka, S., M. Telszewski, Y. Nojiri, S. Yasunaka, C. Miyazaki, H. Mukai and N. Usui (2013): Estimating temporal and spatial variation of ocean surface pCO<sub>2</sub> in the North Pacific using a self-organizing map neural network technique. *Biogeosciences*, 10, 6093–6106, doi: 10.5194/bg-10-6093-2013.
- 中舘明・石井雅男 (2007) : 太平洋赤道域における大気-海洋間の二酸化炭素フラックスの推定. 測候時報, 74 特別号, S163-S176.
- Nightingale, P. D., G. Malin, C. S. Law, A. J. Watson, P. S. Liss, M. I. Liddicoat, J. Boutin and R. C. Upstill-Goddard (2000): In situ evaluation of air-sea gas exchange parameterizations using novel conservative and volatile tracers. *Global Biogeochem. Cycles*, 14, 373–387.
- Olsen, A., K. R. Brown, M. Chierici, T. Johannessen and C. Neill (2008): Sea-surface CO<sub>2</sub> fugacity in the subpolar North Atlantic. *Biogeosciences*, 5, 535–547.
- Onogi, K., J. Tsutsui, H. Koide, M. Sakamoto, S. Kobayashi, H. Hatsushika, T. Matsumoto, N. Yamazaki, H. Kamahori, K. Takahashi, S. Kadokura, K. Wada, K. Kato, R. Oyama, T. Ose, N. Mannoji and R. Taira (2007): The JRA-25 Reanalysis. *J. Meteor. Soc. Japan*, 85, 369–432.
- Oudot, C., C. Andrieu, and Y. Montel (1987): Evolution du CO<sub>2</sub> océanique et atmosphérique sur la période 1982–1984 dans l'Atlantique tropical. *Deep-Sea Res.*, 34, 1107–1137.
- Parard, G., N. Lefèvre and J. Boutin (2010): Sea water fugacity of CO<sub>2</sub> at the PIRATA mooring at 6°S, 10°W, *Tellus*, 62B, 636–648
- Park, G.-H., R. Wanninkhof, S. C. Doney, T. Takahashi, K. Lee, R. A. Feely, C. Sabine, J. Triñanes and I. Lima (2010): Variability of global air-sea CO<sub>2</sub> fluxes over the last three decades. *Tellus*, 62B, doi: 10.1111/j.1600-0889.2010.00498.x, 352–368.
- Pfeil, B., A. Olsen, D. C. E. Bakker, S. Hankin, H. Koyuk, A. Kozyr, J. Malczyk, A. Manke, N. Metzl, C. L. Sabine, J. Akl, S. R. Alin, N. Bates, R. G. J. Bellerby, A. Borges, J. Boutin, P. J. Brown, W.-J. Cai, F. P. Chavez, A. Chen, C. Cosca, A. J. Fassbender, R. A. Feely, M. González-Dávila, C. Goyet, B. Hales, N. Hardman-Mountford, C. Heinze, M. Hood, M. Hoppema, C. W. Hunt, D. Hydes, M. Ishii, T. Johannessen, S. D. Jones, R. M. Key, A. Körtzinger, P. Landschützer, S. K. Lauvset, N. Lefèvre, A. Lenton, A. Lourantou, L. Merlivat, T. Midorikawa, L. Mintrop, C. Miyazaki, A. Murata, A. Nakadate, Y. Nakano, S. Nakaoka, Y. Nojiri, A. M. Omar, X. A. Padin, G.-H. Park, K. Paterson, F. F. Perez, D. Pierrot, A. Poisson, A. F. Ríos, J. M. Santana-Casiano, J. Salisbury, V. V. S. S. Sarma, R. Schlitzer, B. Schneider, U. Schuster, R. Sieger, I. Skjelvan, T. Steinhoff, T. Suzuki, T. Takahashi, K. Tedesco, M. Telszewski, H. Thomas, B. Tilbrook, J. Tjiputra, D. Vandemark, T. Veness, R. Wanninkhof, A. J. Watson, R. Weiss, C. S. Wong and H. Yoshikawa-Inoue (2013): A uniform, quality controlled Surface Ocean CO<sub>2</sub> Atlas (SOCAT). *Earth Syst. Sci. Data*, 5, 125–143, doi:10.5194/essd-5-125-2013.
- Poisson, A., N. Metzl, C. Brunet, B. Schauer, B. Bres, D. Ruiz-Pino and F. Louanchi (1993): Variability of Sources and Sinks of CO<sub>2</sub> in the Western Indian and Southern Oceans During the Year 1991. *J. Geophys. Res.*, 98, 22759–22778
- Sabine, C. L., R. Wanninkhof, R.M. Key, C. Goyet and F. J. Millero (2000): Seasonal CO fluxes in the tropical and subtropical Indian Ocean 2. *Marine*

- Chemistry, 72, 33–53.
- Sarma, V. V. S. S. (2003): Monthly variability in surface  $p\text{CO}_2$  and net air-sea  $\text{CO}_2$  flux in the Arabian Sea. *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2001JC001062.
- Sarma, V. V. S. S., A. Lenton, R. Law, N. Metzl, P. K. Patra, S. Doney, I. D. Lima, E. Dlugokencky, M. Ramonet and V. Valsala (2013): Sea-air  $\text{CO}_2$  fluxes in the Indian Ocean between 1990 and 2009. *Biogeosciences*, 10, 7035–7052, doi:10.5194/bg-10-7035-2013.
- Sasse, T. P., B. I. McNeil and G. Abramowitz (2013): A new constraint on global air-sea  $\text{CO}_2$  fluxes using bottle carbon data, *Geophys. Res. Lett.*, 40, 1594–1599, doi:10.1002/grl.50342.
- Schuster, U., A. J. Watson, N. Bates, A. Corbière, M. González-Dávila, N. Metzl, D. Pierrot and J. M. Santana-Casiano (2009): Trends in North Atlantic sea surface  $p\text{CO}_2$  from 1990 to 2006. *Deep-Sea Res. II*, 56, 620–629.
- Schuster, U., G. A. McKinley, N. Bates, F. Chevallier, S. C. Doney, A. R. Fay, M. González-Dávila, N. Gruber, S. Jones, J. Krijnen, P. Landschützer, N. Lefèvre, M. Manizza, J. Mathis, N. Metzl, A. Olsen, A. F. Rios, C. Rödenbeck, J. M. Santana-Casiano, T. Takahashi, R. Wanninkhof and A. J. Watson (2013): An assessment of the Atlantic and Arctic sea-air  $\text{CO}_2$  fluxes, 1990–2009. *Biogeosciences*, 10, 607–627, doi:10.5194/bg-10-607-2013.
- Sugimoto, H. N. Hiraishi, M. Ishii and T. Midorikawa, (2012): A method for estimating the sea-air  $\text{CO}_2$  flux in the Pacific Ocean. *Tech. Rep. Meteor. Res. Inst.*, 66, 32pp.
- Sweeney, C., E. Gloor, A. R. Jacobson, R. M. Key, G. McKinley, J. L. Sarmiento and R. Wanninkhof (2007): Constraining global air-sea gas exchange for  $\text{CO}_2$  with recent bomb  $^{14}\text{C}$  measurements. *Global Biogeochem. Cycles*, 21, GB2015, doi:10.1029/2006GB002784.
- Takahashi, T. (1961): Carbon dioxide in the atmosphere and in Atlantic Ocean water. *J. Geophys. Res.*, 66, 477–494.
- Takahashi, T. and S., C., Sutherland (2013): Climatological mean distribution of pH and carbonate ion concentration in global ocean surface waters in the unified pH scale and mean rate of their changes in selected areas, final report submitted to the NSF, Washington, 33 pp.
- Takahashi, T., J. Olafsson, J. Goddard, D. W. Chipman and S. C. Sutherland (1993): Seasonal variation of  $\text{CO}_2$  and nutrients in the high-latitude surface oceans: A comparative study. *Global Biogeochem. Cycles* 7, 843–878.
- Takahashi, T., S. C. Sutherland, C. Sweeney, A. Poisson, N. Metzl, B. Tilbrook, N. Bates, R. Wanninkhof, R. A. Feely, C. Sabine, J. Olafsson, and Y. Nojiri (2002): Global sea-air  $\text{CO}_2$  flux based on climatological surface ocean  $p\text{CO}_2$ , and seasonal biological and temperature effects. *Deep-Sea Res. II*, 49, 1601–1622.
- Takahashi, T., S. C. Sutherland and A. Kozyr (2007): Global Ocean Surface Water Partial Pressure of  $\text{CO}_2$  Database: Measurements Performed during 1968–2006 (Version 1.0). ORNL/CDIAC–152, NDP–088, Carbon Dioxide Information Analysis Center, Oak Ridge National Laboratory, U. S. Department of Energy, Oak Ridge, TN, 20 pp.
- Takahashi, T., S. C. Sutherland, R. Wanninkhof, C. Sweeney, R. A. Feely, D. W. Chipman, B. Hales, G. Friederich, F. Chavez, C. Sabine, A. Watson, D. C. E. Bakker, U. Schuster, N. Metzl, H. Yoshikawa-Inoue, M. Ishii, T. Midorikawa, Y. Nojiri, A. Körtzinger, T. Steinhoff, M. Hoppema, J. Olafsson, T. S. Arnarson, B. Tilbrook, T. Johannessen, A. Olsen, R. Bellerby, C. S. Wong, B. Delille, N. R. Bates and H. J. W. de Baar (2009): Climatological mean and decadal changes in surface ocean  $p\text{CO}_2$ , and net sea-air  $\text{CO}_2$  flux over the global oceans. *Deep-Sea Res. II*, 56, 554–577.
- Usui, N., S. Ishizaki, Y. Fujii, H. Tsujino, T. Yasuda and M. Kamachi (2006): Meteorological Research Institute multivariate ocean variational estimation

- (MOVE) system: Some early results. *Adv. Space Res.*, 37, 806–822.
- van de Poll, W. H., G. Kulk, K. R. Timmermans, C. P. D. Brussaard, H. J. van der Woerd, M. J. Kehoe, K. D. A. Mojica, R. J. W. Visser, P. D. Rozema and A. G. J. Buma (2013): Phytoplankton chlorophyll a biomass, composition, and productivity along a temperature and stratification gradient in the northeast Atlantic Ocean. *Biogeosciences*, 10, 4227–4240, doi:10.5194/bg-10-4227-2013.
- Wanninkhof, R. (1992): Relationship between wind speed and gas exchange over the ocean. *J. Geophys. Res.*, 97, 7373–7392.
- Wanninkhof, R., G.-H. Park, T. Takahashi, C. Sweeney, R. Feely, Y. Nojiri, N. Gruber, S. C. Doney, G. A. McKinley, A. Lenton, C. Le Quéré, C. Heinze, J. Schwinger, H. Graven and S. Khatiwala, (2013): Global ocean carbon uptake: magnitude, variability and trends. *Biogeosciences*, 10, doi: 10.5194/bg-10-1983/2013.
- WDCGG (2013): WMO greenhouse gas bulletin, 9, 4 pp.
- Weiss, R. F. (1974): Carbon dioxide in water and seawater: the solubility of a nonideal gas. *Mar. Chem.*, 2, 203–215.
- Woolf, D. K. (2005): Parameterization of gas transfer velocities and sea–state–dependent wave breaking. *Tellus*, 57B, 87–94.