地表面フラックス推定のための密度変動補正

小野圭介[†]

(独立行政法人農業環境技術研究所)

Derivations and applications of the density correction for estimating surface flux

Keisuke ONO[†]

(National Institute for Agro-Environmental Sciences, Tsukuba, Ibaraki, 305-8604, Japan)

Abstract

The density correction, which is widely used in eddy covariance calculations to compensate for density fluctuations arising from heat and water vapor transfer in order to determine the surface (ecosystem) flux of a gaseous constituent such as CO₂, was revisited based on its historical background and recent discussions. Firstly, the derivations previously published were categorized into three by their prerequisites: (1) mean vertical wind (the conventional Webb-Pearman-Leuning derivation), (2) expansion/compression of air parcel, and (3) the mass balance and continuity of both the target constituent and dry air. All the categories of derivation implicitly or explicitly assume no sink/source of dry air at the surface and arrive at the same equation for the correction, which relates an eddy covariance flux from mass or molar density measurements to the corresponding mixing ratio flux. Secondly, we examined the underlying assumptions or concepts used in those derivations, especially mean vertical wind to compensate for the turbulent flux of dry air. Thirdly, practical aspects of the density correction were considered for both open- and closed-path eddy covariance, and critical problems such as sensor heating of an open-path IRGA were also discussed. Our conclusions were that the density correction is theoretically sound as long as there is no sink/source of dry air at the surface but difficult to apply correctly because, in disagreement with its theory, different sensors with different time constants, which are usually positioned separately, are used in actual eddy covariance systems to calculate the correction terms. Closed-path systems are advantageous over open-path systems under such a condition that the surface flux is expected to be an order smaller in magnitude than the correction terms, due to their ability to point-by-point convert density measurements to the mixing ratios using the temperature, pressure and water vapor density that are simultaneously measured in the gas analyzer.

Key words: CO₂ flux, Density correction, Eddy covariance, WPL correction.

キーワード: 渦相関法, CO₂ フラックス, WPL 補正, 密度変動補正

1. はじめに

渦相関法に代表される微気象学的手法を用いた CO₂ フラックスおよび蒸発散量の計測は、今日の生態系の炭素・水循環プロセスの実証研究で中心的な役割を果たしている (e.g., Saigusa *et al.*, 2008; Hirata *et al.*, 2008; Ohta *et al.*, 2008)。しかし、微気象学的手法は、原理的には大気中の乱流フラックスを計測する方法であり、それを地表面フラックス(生態学的フラックス)と見なすためには測定を追加したりデータ

処理を適切に行ったりする必要がある。例えば、森林サイトでは、群落内の CO₂ 濃度プロファイルから推定した貯留変化量を乱流フラックスに加えることが一般に行われている (e.g., Ohkubo *et al.*, 2007)。また、タワー周囲の植生がパッチ状に分布するサイトでは、乱流フラックスに寄与したエリアの分布と強度を推定するためにフットプリント解析が必要となる (e.g., Lloyd, 1995)。さらに、顕熱・潜熱輸送が生じているところでは、赤外線ガス分析計 (IRGA) で測定した CO₂ 密度に地表面フラックスに起因しない変動が加わるため、実測したフラックスに対して密度変動補正が必要となる。

密度変動補正とは、測定された CO₂ 密度変動から

2012 年 1 月 30 日 受付, 2012 年 3 月 30 日 受理

[†]Corresponding Author: onok@affrc.go.jp

熱や水蒸気による乾燥空気の密度変動を取り除く操作である。一般には Webb *et al.* (1980) の Eqs. 24, 25 を指し、筆頭著者にちなんで Webb 補正、あるいは共著者の姓の頭文字を取って WPL 補正と呼ばれる。しかし、本稿では、Webb *et al.* (1980) の基礎となる平均鉛直風速の概念を検証する目的もあり、その概念から導かれた Webb *et al.* (1980) の Eqs. 24, 25 のみを WPL 補正とし、同じ式が導かれたとしても前提条件が異なる他の導出についてはより一般的な密度変動補正という呼称を用いる。WPL 補正については 1980 年前後にほぼ確立されており (Smith and Jones, 1979; Webb *et al.*, 1980)、補正式自体に誤りはないが、解釈や適用条件については現在に至るまで議論が続けられている (Leuning, 2004; Massman, 2004; Liu, 2005; Massman and Tuovinen, 2006; Kowalski and Serrano-Ortiz, 2007; Leuning, 2007; Kondo and Tsukamoto, 2008; Lee and Massman, 2010)。Webb *et al.* (1980) が発表されて 30 年となる 2010 年には、Webb *et al.* (1980) が公表される経緯にも言及した総説的な論文 (Lee and Massman, 2010) が発表された。このように注目を浴び続けている背景として、1990 年中盤以降、EUROFLUX, AmeriFlux, AsiaFlux 等の枠組みの中で、生態系炭素収支の長期変動の把握に渦相関法で測定された CO₂ フラックスが重用されたこと、それらのプロジェクトの成功によって渦相関法が本来想定していない条件・サイトでフラックスモニタリングが行われるようになったこと、さらに測器の進歩により密度変動補正を必要とするオープンパス型渦相関法が急速に普及したことが挙げられる。分スケールの CO₂ フラックスの積算値として年スケールの生態系炭素収支を算出するアプローチでは、CO₂ フラックス測定値のわずかな誤差が様々に伝播する可能性があるため、補正まで含めた個々の測定値の精度向上が求められた。また、Webb *et al.* (1980) は定常状態の 1 次元の流れを前提としているが、現実にはそのような条件を満たすサイトは少なく、3 次元、非定常の流れについても適用可能なことを厳密に検証する必要があった。水面でも熱や水蒸気の交換が生じている限りは密度変動補正は必須である。1970 年代、渦相関法によるフラックス計測の黎明期には、海洋を対象としている研究者が密度変動補正の確立に大きく貢献した (e.g., Smith and Jones, 1979)。海面では CO₂ フラックスが絶対的に小さいため、密度変動補正の精度に関連した議論は、海洋分野のコミュニティでも盛んに続けられている (e.g., Prytherch *et al.*, 2010; Tsukamoto and Kondo, 2011)。

これまでの密度変動補正に関する議論は全体として収束される方向にあるが、未だ十分な合意が得ら

れていない部分もある。Webb *et al.* (1980) が補正式を導出する際に用いた平均鉛直風速の概念、およびクローズドパス型への適用方法である。さらに、密度変動補正が加減の演算で成り立っているという点も、密度変動補正の精度を議論する際に十分に考慮されていない。そこで本稿では、これらに対して一定の見解を示すこと、およびそれに基づいて密度変動補正の本質についての理解を深めることを目的として、密度変動補正の論点を原理と適用方法に分けて整理し解説する。まず、第 2 節では、大気中の CO₂ 密度変動の内訳を明らかにし、微気象学的手法で地表面フラックスを推定する際に CO₂ 混合比が決定的に重要であることを示す。次に、第 3 節では、複数ある密度変動補正の導出方法がいずれも最終的には CO₂ 密度変動から CO₂ 混合比変動を求める作業であることを示し、加えて、平均鉛直風速等の理解が容易でない概念について詳説する。このような理論的な背景に基づいて、第 4 節では、密度変動補正を適用する際の留意点を、オープンパス型とクローズドパス型に分けて解説する。近年、渦相関法への適用を想定したオープンパス型の CH₄ 分析計が市販化され、より小さいフラックスを測定するために密度変動補正の重要性はますます高まっている。本稿は CO₂ を対象とするが、水蒸気も含めて他の気体についても問題の本質は同一であり、CO₂ を他の気体読み替えることで適用可能である。

2. 密度変動補正の理論と導出

密度変動補正は、単位体積中の CO₂ の分子数または質量と鉛直風速 w の共分散として算出した鉛直乱流フラックスを地表面での CO₂ 吸収・放出強度 (地表面フラックス) に関係づけるための操作である。CO₂ に対してアクティブではない地表面上であっても、測定高度近傍の温度勾配 (顕熱フラックス) によって CO₂ 密度が変動することから明らかのように、大気中で測定した CO₂ 密度の変動は、地表面での CO₂ の吸収・放出と必ずしも一致しない。本節では、まず、地表面でのプロセスと関連づけるために CO₂ 混合比の変動を求める必要があることを示す。次に、CO₂ の密度変動と混合比変動の関係式から、大気中の密度フラックスと地表面フラックスとを関連づける式を導出する。この導出は、これまで複数の研究により試みられているが、ここでは 3 種類に類型化し論点を整理する。このうちの 하나가、いわゆる WPL 補正 (Webb *et al.*, 1980) である。

2.1 大気中の CO₂ 密度変動の内訳

微気象学的手法によるフラックス計測で用いられる CO₂・H₂O 分析計は、赤外線の吸光度から CO₂

(あるいは H_2O) の分子数密度を高速で計測する。 CO_2 分子数密度は、混合比の定義より

$$\rho_c = \bar{\rho}_d \chi_c \quad (1)$$

と表せる。ここで、 ρ は気体の分子数密度、 χ は気体の体積混合比、添え字 d と c は、各々乾燥空気と CO_2 を示す。式を簡略化するため、本稿では Leuning (2004) あるいは Ibrom *et al.* (2007) に倣って気体密度を質量ではなく分子数を用いて表す。また、Webb *et al.* (1980) と同様に、乾燥空気には CO_2 (あるいは対象とする大気成分) を含まない。式 (1) をレイノルズ分解し、変動成分を取り出すと

$$\rho'_c = \bar{\rho}_d \chi'_c + \bar{\chi}_c \rho'_d \quad (2)$$

を得る。式 (2) は、 CO_2 密度の変動が混合比のみならず乾燥空気密度の影響を受けることを意味する。混合比はその定義より熱または水蒸気の出入りによらず保存される量であり、 CO_2 分子の実質的な増減に対応する (Kowalski and Serrano-Ortiz, 2007; Lee and Massman, 2010)。したがって、IRGA で測定した ρ'_c のうち、地表面の CO_2 交換に対応するのは $\bar{\rho}_d \chi'_c$ であり、 $\bar{\chi}_c \rho'_d$ は熱または水蒸気の出入りにともなう変動とみなすことができる。

さらに両辺に鉛直風速 w の変動成分 w' を乗じて平均操作を行うと、

$$\overline{w' \rho'_c} = \bar{\rho}_d \overline{w' \chi'_c} + \bar{\chi}_c \overline{w' \rho'_d} \quad (3)$$

となり、地表面で $\overline{w' \rho'_d} = 0$ と見なせる場合は、地表面の CO_2 交換に対応するのは $\bar{\rho}_d \overline{w' \chi'_c}$ となる。そのため、大気中では、IRGA で測定した $\overline{w' \rho'_c}$ から $\bar{\chi}_c \overline{w' \rho'_d}$ を差し引いて $\bar{\rho}_d \overline{w' \chi'_c}$ を求める必要がある。

一般に、 ρ'_d を直接測定することは容易ではなく、他の要素から算出する必要がある。湿潤空気を乾燥空気、 H_2O 、 CO_2 の混合気体と見なせば、

$$\bar{\rho}_m = \bar{\rho}_d + \bar{\rho}_v + \bar{\rho}_c \quad (4)$$

$$\rho'_m = \rho'_d + \rho'_v + \rho'_c \quad (5)$$

となる。ここで、添え字の v と m はそれぞれ水蒸気と湿潤空気を表す。通常 $\bar{\rho}_c$ は $\bar{\rho}_v$ より 1 桁以上小さく、 ρ'_c は相対的にさらに影響が小さいため (Lee and Massman, 2010)、以後は省略する。 ρ_c 自身の効果を加味した厳密な導出は Fuehrer and Friehe (2002) に示されている。 p を気圧、 T を気温、 R^* を普遍気体定数とすると、理想気体の状態方程式から

$$\rho_m = \frac{p}{R^* T} \quad (6)$$

を得る。式 (6) の変動成分は、 $T'/\bar{T} \ll 1$ 、 $\bar{\chi}_v \approx \bar{\rho}_v / \bar{\rho}_d$ を仮定し

$$\rho'_m = \bar{\rho}_d (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{p'}{\bar{p}} - \frac{T'}{\bar{T}} \right) \quad (7)$$

となり、式 (7) を式 (5) に代入することで、 ρ'_d を

$$\rho'_d = -\rho'_v + \bar{\rho}_d (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{p'}{\bar{p}} - \frac{T'}{\bar{T}} \right) \quad (8)$$

と表せる。省略した T' の高次の項については、影響が極めて限定的であることが実測データから確認されている (Lee and Massman, 2010)。式 (8) および式 (2) より

$$\bar{\rho}_d \chi'_c = \rho'_c + \bar{\chi}_c \rho'_v + \bar{\rho}_c (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{T'}{\bar{T}} - \frac{p'}{\bar{p}} \right) \quad (9)$$

を得る。乱流フラックスについては、式 (9) に w' を乗じて平均操作を行うか、式 (3) に式 (8) を代入して、

$$\bar{\rho}_d \overline{w' \chi'_c} = \overline{w' \rho'_c} + \bar{\chi}_c \overline{w' \rho'_v} + \bar{\rho}_c (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{\overline{w' T'}}{\bar{T}} - \frac{\overline{w' p'}}{\bar{p}} \right) \quad (10)$$

の関係を導くことができる。共分散どうしの演算によって密度フラックスから混合比フラックスを推定するこの式を、通常、フラックスの密度変動補正 (式) と呼ぶ。より高次のモーメントに対する密度変動補正は、Detto and Katul (2007) の Eq. 9 等と同様に、式 (2) に基づいて導出できる。以上から明らかなように、密度変動補正の実体は CO_2 密度変動と混合比変動の関係式 (式 2) であり、風速場やその定常性とは直接関係しない。式 (3)、式 (10) では乱流フラックスベクトルの鉛直成分のみを示したが、水平成分についても同様である。また、厳密には、密度変動補正は、測器の不完全性あるいは誤差を修正するための「補正」ではなく、測定した密度フラックスと地表面フラックスを関係づけるために必要な「adjustment」 (Suyker and Verma, 1993) である (Massman, 2004)。

なお、海洋を対象とした研究分野では、式 (2) と式 (8) を用いて、 CO_2 混合比の変動およびフラックスをそれぞれ

$$\bar{\rho}_d \chi'_c = \rho'_c + \left[\frac{\rho'_v}{\bar{\rho}_d} + (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{T'}{\bar{T}} - \frac{p'}{\bar{p}} \right) \right] \bar{\rho}_c \quad (11)$$

$$\bar{\rho}_d \overline{w' \chi'_c} = \overline{w' \rho'_c} + \left[\frac{\overline{w' \rho'_v}}{\bar{\rho}_d} + (1 + \bar{\chi}_v) \left(\frac{\overline{w' T'}}{\bar{T}} - \frac{\overline{w' p'}}{\bar{p}} \right) \right] \bar{\rho}_c \quad (12)$$

と表す場合もある。ここで、右辺第 2 項は希釈効果

(dilution effect) に対する補正と位置づけられている (e.g., Fairall *et al.*, 2000; McGillis *et al.*, 2001)。一方、陸域を対象としたフラックス計測分野では、希釈効果は、クローズドパス型ガス分析計を用いた際の水蒸気の増減の影響のみを指す場合が多い (e.g., Ibrom *et al.*, 2007; Haslwanter *et al.*, 2009)。

2.2 密度変動補正の導出パリエーション

前項では、CO₂ 密度変動の内訳を明らかにすることで、地表面フラックスを推定するために混合比フラックスを求める必要があることを直感的に示した。本項では、地表面フラックスと混合比フラックスの等価性をより理論的に導出する。この導出は、1970年代から最近に至るまで様々な方法により試みられてきたが、一部を除いて最終的には同一の式(式 10)に到達している。これらは、平均鉛直風速、気塊の圧縮・膨張、質量保存の式のいずれかを用いて式を展開しており、この観点から類型化が可能である。そこで、以下ではこの 3 類型について、各々の仮定、展開、論点について詳述する。

2.2.1 平均鉛直風速を利用した導出

最初は、乾燥空気分子の乱流フラックスを平均鉛直風速に読み替えて

$$\overline{wp_c} = \overline{w'\rho'_c} + \bar{w} \bar{\rho}_c \quad (13)$$

の $\bar{w}$ に代入する方法で、密度変動補正が提案された当時から導入されており、認知度は最も高い。これを採用した Webb *et al.* (1980) の式(WPL 補正)は、密度変動補正の代名詞となっている。ただし、後述(3.2)のように、ここで定義される平均鉛直風速 $\bar{w}$ は必ずしも実体を伴わないものであり、解釈には注意を要する。

渦相関法によるフラックス計測において、平均鉛直風速の重要性を最初に指摘したのは Webb and Pearman (1977) であった。Webb and Pearman (1977) は、収束・発散が生じていない場所でも上向きの水蒸気輸送を補償する平均鉛直風速 $\bar{w}$ が存在し得るとして、この流れによる CO₂ 輸送を考慮する必要があることを強調した。Webb and Pearman (1977) は、乾燥空気には正味の輸送が生じないこと ($\overline{wp_d} = 0$) を明示し、 $\overline{wp_m} - \overline{wp_v} = \overline{wp_d} = 0$ から、 $\bar{w}$ を

$$\bar{w} = \frac{\overline{wp_v}}{\bar{\rho}_m} \quad (14)$$

と表したが、ここで $\overline{w'\rho'_m} / \bar{\rho}_m = 0$ とされ、暗に水蒸気輸送がすべてが平均流によることが仮定されている。これに対して、Jones and Smith (1978) は、水蒸気よりむしろ熱あるいは圧力の変動が $\bar{w}$ を生じさせると考えた。Jones and Smith (1978) は、海面あるいは

は地表面での $\overline{wp_m} = 0$ を境界条件とし、 $\bar{w}$ を

$$\bar{w} = \frac{\overline{w'\rho'_m}}{\bar{\rho}_m} \quad (15)$$

と表した。式(7)を用いると、式(15)は

$$\bar{w} = \left(\frac{\overline{w'T'}}{\bar{T}} - \frac{\overline{w'p'}}{\bar{p}} \right) \quad (16)$$

となり、温度と圧力のみの関数となる。ただし、Jones and Smith (1978) の原著では、 ρ'_m の導出において ρ'_m を ρ'_d と混同してしまったため、式(16)の右辺に $w'\rho'_v$ が含まれてしまっている。Jones and Smith (1978) と同年には、Bakan (1978) も式(16)を得ている。Bakan (1978) は ρ'_m の展開において ρ'_m と ρ'_d の混同はない。境界条件から明らかなように、式(14)は地表面で顕熱フラックスが存在しない場合、式(15)は地表面で潜熱フラックスが存在しない場合を想定しているが、実際の多くの地表面では顕熱フラックスと潜熱フラックスが同時に生じているため、これらの補正式の実用性は低い。

地表面で顕熱フラックスと潜熱フラックスが同時に生じている場合、 $\overline{wp_d} = 0$ を境界条件として湿潤空気と乾燥空気を厳密に区別した導出が必要である。Smith and Jones (1979) は、 $\overline{wp_d} = 0$ を境界条件とし、 $\bar{w}$ を

$$\bar{w} = \frac{\overline{w'\rho'_d}}{\bar{\rho}_d} \quad (17)$$

と表した。 ρ'_d については、湿潤空気を乾燥空気と水蒸気の混合気体と仮定して式(8)を導き、最終的に式(10)と同等の式に到達した。Webb *et al.* (1980) では圧力相関項 $\overline{w'p'}/\bar{p}$ を省略しており、この点で Smith and Jones (1979) は Webb *et al.* (1980) より厳密に密度変動補正を導出したと言える。ただし、Smith and Jones (1979) は、実測できる要素から各項を計算できるように式中で湿潤空気の密度(分子量)を用いており、Webb *et al.* (1980) に比べ一般化が十分ではない。

Webb *et al.* (1980) (WPL 補正) は密度変動補正の標準のリファレンスとして確固たる地位を築いているが (Lee and Massman, 2010)、境界条件、導出された式は Smith and Jones (1979) とほぼ同一であり、むしろ最終的に $\overline{w'p'}/\bar{p}$ を含めたという点では Smith and Jones (1979) がより正確である。両者ともに、混合比の計測により密度変動補正が不要になるという指摘を行っており、問題の核心についての理解は一致している。受理は、厳密には Webb *et al.* (1980) が 1 日早い、相互に引用を行っていないことから、Smith and Jones (1979) と Webb *et al.* (1980) は本来独立して

同等に評価されるべき研究である。

2.2.2 気塊の圧縮・膨張の概念を利用した導出

次は、測定高度周りに存在する温度、気圧、水蒸気の勾配の中を気塊が移動することで生じる圧縮・膨張の効果を ρ'_c から差し引く方法で、密度変動補正の必要性が認識される契機 (Desjardins and Lemon, 1974; Jones and Smith, 1977) となった概念である。2.1 で示した導出と同様に、WPL 理論が必要とした平均鉛直風速の概念を用いない点に最大の特徴がある。ただし、 ρ'_c から差し引くべき体積変動の効果を乾燥空気のそれと同一とみなしている点で地表面で乾燥空気の交換がないことを暗に前提としている。

この概念では、大気中の CO_2 密度変動 ρ'_c を

$$\rho'_c = \rho'_{c,\text{sur}} + \rho'_{c,\text{ext}} \quad (18)$$

と表す (Massman and Tuovinen, 2006; Detto and Katul, 2007)。ここで、 $\rho'_{c,\text{sur}}$ は地表面フラックスに起因した変動、 $\rho'_{c,\text{ext}}$ は気塊の圧縮・膨張にともなう変動である。 $\rho'_{c,\text{ext}}$ を

$$\frac{\rho'_{c,\text{ext}}}{\bar{\rho}_c} = \frac{\rho'_d}{\bar{\rho}_d} \quad (19)$$

と表せば、 $\bar{\chi}_c \approx \bar{\rho}_c / \bar{\rho}_d$ より、式(18)は式(2)と同等と見なせる。すなわち、 $\rho'_{c,\text{sur}} = \bar{\rho}_d \chi'_c$ である。さらに、式(18)および式(19)に式(8)を代入し w を乗じると、式(10)を得る。

近年、この概念に基づいた新たな補正方法が提案された (Liu, 2005)。Liu (2005) は、 $\rho'_{c,\text{ext}}$ が体積 V の変化 V' によると仮定し、それを

$$\frac{V'}{V} = \frac{\rho'_m}{\bar{\rho}_m} \quad (20)$$

で表した。しかし、式(19)と比較しても明らかなように、式(20)には H_2O の増減の効果が含まれておらず、暗に地表面での $w\rho_m = 0$ を前提としてしまっている。さらに、体積変化と密度変化の式を混用してしまったため、最終的に誤った補正式 (Liu, 2005, Eq. 17) を導いている。前者の過誤については紙上討論となり (Kowalski, 2006a, b; Liu, 2006)、後者については Massman and Tuovinen (2006) により問題のポイントが示されている。

2.2.3 質量保存の式を利用した導出

上記の 2 つの導出方法は、地表面で $w\rho_d = 0$ とする境界条件を巧みに利用し、混合比フラックスが地表面フラックスと等価であることを示した。これらは、いずれも密度変動補正の式として正しく、実用上は問題ない (Kowalski and Serrano-Ortiz, 2007)。しかし、仮想的な平均鉛直風速を移流項に組み入れる

こと、あるいは乾燥空気の変動をすべて圧縮・膨張に起因するものとして乾燥空気フラックスに関する境界条件の明記を避けることは、いずれも導出方法としてやや奇抜である。より整合性のある展開を行うためには、質量保存の式に立ち返り、乾燥空気のソース・シンクが存在しないこと

$$\frac{\partial \rho_d}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u} \rho_d) = 0 \quad (21)$$

を明示的に用いる必要がある。ここで、 $\mathbf{u}$ は風速ベクトルである。厳密には、植物の光合成あるいは土壌中の脱窒により O_2 、 N_2 が生成されるため地表面では式(21)の右辺は 0 ではないが、下のように CO_2 の質量保存を考える上では $\bar{\chi}_c$ 倍となるため実用上は問題ない (Leuning, 2004; Lee and Massman, 2010)

Paw U *et al.* (2000), Massman and Lee (2002), Leuning (2004) は、 CO_2 に関する質量保存の式

$$\frac{\partial \rho_c}{\partial t} + \nabla \cdot (\mathbf{u} \rho_c) = S_c \quad (22)$$

に式(21)を組み込み、その結果として密度変動補正項が現れること示した。ここで、 S_c は CO_2 のソース・シンク項を表す。これらの研究では、近似方法等が各々で異なるため、最終的に得られる式の形態にも若干の相違がある。本稿では、仮定がより少ない Massman and Lee (2002) の導出について簡潔に説明する。

まず、式(21)および式(22)を各々レイノルズ分解・平均し、

$$\frac{\partial \bar{\rho}_d}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\mathbf{u}}' \bar{\rho}'_d + \bar{\mathbf{u}} \bar{\rho}_d) = 0 \quad (23)$$

$$\frac{\partial \bar{\rho}_c}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\mathbf{u}}' \bar{\rho}'_c + \bar{\mathbf{u}} \bar{\rho}_c) = \bar{S}_c \quad (24)$$

を得る。続いて、式(23)に $\bar{\chi}_c$ を乗じ、式(24)から差し引き整理すると、

$$\bar{\rho}_d \frac{\partial \bar{\chi}_c}{\partial t} + \nabla \cdot (\bar{\mathbf{u}}' \bar{\rho}'_c - \bar{\chi}_c \bar{\mathbf{u}}' \bar{\rho}'_d) + \bar{\mathbf{u}} \bar{\rho}_d \cdot \nabla \bar{\chi}_c = \bar{S}_c \quad (25)$$

となる。ただし、式(25)は Massman and Lee (2002) と異なり、空気の非圧縮性 ($\nabla \cdot \bar{\mathbf{u}} = 0$) を仮定していない (Massman and Tuovinen, 2006)。地表面での CO_2 の交換が乱流輸送によらない ($(w' \rho'_c - \bar{\chi}_c w' \rho'_d)_0 = 0$) と仮定し、式(25)を地表面から測定高度 z_m まで積分すると、

$$\int_0^{z_m} \left(\bar{\rho}_d \frac{\partial \bar{\chi}_c}{\partial t} \right) dz + \left(\bar{w}' \bar{\rho}_c' - \bar{\chi}_c \bar{w}' \bar{\rho}_d' \right)_{z_m} \quad (26)$$

$$+ \int_0^{z_m} \nabla_H \cdot (\bar{u}' \bar{\rho}_c' - \bar{\chi}_c \bar{u}' \bar{\rho}_d') dz \approx \int_0^{z_m} \bar{S}_c dz$$

となる。ここで、 ∇_H は水平方向のナブラ演算子である。式(26)の左辺第1項は貯留項、左辺第2項は z_m での鉛直乱流フラックス、左辺第3項は水平方向のフラックス発散項を地表面から z_m まで積分したもので、右辺は地表面フラックス(生態系フラックス)に相当する。式(3)と比べて明らかなように、左辺第2項、第3項は、3次元の流れであっても生態系フラックスと関係する乱流輸送として CO_2 の混合比フラックスが適当であることを示している。また、平均鉛直風速を用いた導出では $w_p d = 0$ が用いられたが、ここでは乾燥空気に関して用いられたのは式(21)のみである。なお、 $\bar{u}_p d \cdot \nabla \bar{\chi}_c$ はquasi advectionと呼ばれる項を含む移流項で、実測は困難であるが質量保存の式を完全に閉じさせる場合には何らかの方法で評価する必要がある(Massman and Lee, 2002; Lee and Massman, 2010)。様々な条件における式(25)の空間積分についてはLeuning (2004)またはLee and Massman (2010)に詳しく記されている。

3. 密度変動補正の理論に関する論点

以上のように、いずれの方法においても最終的に導かれる補正式は式(10)であり、地表面で乾燥空気フラックスが存在しない限りはこの理論に誤りはない。しかしながら、導出方法によっては解釈が容易でない概念を用いており、相互関係も理解しづらい。ここでは、誤解が生じやすい概念について、上記の導出方法に照らし合わせて検討する。

3.1 乾燥空気ゼロフラックスの制約

乾燥空気ゼロフラックス($w_p d = 0$)の制約を課す位置(地表面あるいは測定高度)によらず補正式としては式(10)が導出される。しかし、適用条件を決定する上でこの区別は重要である。平均鉛直風速を用いた導出では、基本的に地表面での $w_p d = 0$ を境界条件としており、大気中(例えば測定高度)において $w_p d = 0$ が満たされる必要はない。これに対し、Kowalski and Serrano-Ortiz (2007)は、Webb *et al.* (1980)が大気中での $w_p d = 0$ を用いたと指摘している。確かに、Webb *et al.* (1980)のこの点に関する記述は明快ではないが、“there is no source or sink of air at the ground”とも記されており、少なくとも地表面では $w_p d = 0$ であることを前提としていることから、Kowalski and Serrano-Ortiz (2007)の指摘は正確ではない。通常、地表面では $w_p d = 0$ であり、WPL理論は

有効である。

3.2 平均鉛直風速の解釈

一方、平均鉛直風速 $\bar{w}$ の解釈については若干の注意を要する。平均鉛直風速 $\bar{w}$ の導入はWPL補正の最大の特徴であるが、Webb *et al.* (1980)を始めとして、 $\bar{w}$ の概念を用いる研究のほとんどは $\bar{w}$ が補償流として同じ平均化時間内に実在することを前提としている(e.g., Webb and Pearman, 1977; Jones and Smith, 1978; Smith and Jones, 1979; Paw U *et al.*, 2000; Kowalski and Serrano-Ortiz, 2007)。Kowalski and Serrano-Ortiz (2007)では、測高公式により $\bar{w}$ の大きさが詳細に見積もられている。しかし、WPL補正が必要とする $\bar{w}$ は、式(17)から明らかなように、乾燥空気分子の乱流フラックスの影響を打ち消すために必要な仮想的な流れであり、 $w_p c$ のレイノルズ分解・平均に現れる $\bar{w}$ とは本質的に異なる。温度あるいは水蒸気(厳密には乾燥空気以外のすべての大気成分)の鉛直分布に勾配が生じている条件下では、乾燥空気に密度勾配が生じ、乱渦により乾燥空気分子が鉛直方向に輸送される。この $w' \rho_d' \neq 0$ となる状況に対して $w_p d = 0$ たる境界条件を満たすため、 $\bar{w} \neq 0$ を認める必要があった。WPL理論での $\bar{w}$ は、あくまで $w' \rho_d'$ に対して定義されるものであり、時間あるいは空間平均の結果として現れる移流項の $\bar{w}$ ではない。 $-w' \rho_d' / \bar{\rho}_d$ としての $\bar{w}$ は、現実の非定常条件下において、超音波風速計によって測定される必要はない。測定高度において $w_p d = 0$ が成立する場合にはWPL理論における $\bar{w}$ は移流項の $\bar{w}$ と一致するが、地表面フラックスを推定する上での境界条件はあくまで地表面における $w_p d = 0$ である。

3.3 非定常条件での適用

日射あるいは放射冷却等により接地気層の密度が時間とともに変化する非定常な状態であっても、その影響は乾燥空気と CO_2 の両方に現れるため、式(10)はやはり有効である。平均鉛直風速を用いた導出でも同様のことが言える。Leuning (2007)は、地表面から測定高度までの密度変化の効果を平均鉛直風速に組み込み、それが地表面 CO_2 フラックスの推定には影響しないことを明らかにした。ただし、いずれの場合も、平均化の操作は式(10)に関わるすべての項に対して同一の方法で行われなければならない。ある変数(例えば T)に対してのみトレンド除去等の異なる平均化操作を行うことは、式(2)が閉じない原因となる。

3.4 熱収支インバランスの影響

渦相関法で測定した顕熱フラックス H と潜熱フラックス λE の和が有効エネルギー(正味放射量と地中熱流量の和)と一致しない熱収支インバランスは世

界の多くのタワー観測サイトで報告されており、現在に至るまで根本的な解決に至っていない(Foken *et al.*, 2011)。とくにオープンパス型では、密度変動補正に用いる $\overline{w'\rho'_v}$ 、 $\overline{w'T'}$ が熱収支観測と共用される場合がほとんどであるため、熱収支インバランスが密度変動補正に及ぼす影響については関心が高い(Twine *et al.*, 2000; Liu *et al.*, 2006)。しかし、熱収支インバランスがすべて密度変動補正に影響を及ぼすわけではない。

熱収支インバランスが密度変動補正に及ぼす影響を考えるには、やはり式(10)に立ち返る必要がある。熱収支インバランスの原因が風速との相関を含む個々の測器の問題に起因する場合、式(10)を通じて密度変動補正に影響を及ぼす。例えば、何らかの問題で超音波風速計による T' が過小評価された場合、 $\overline{w'T'}$ の過小評価を通じて $\overline{\rho_d w'\chi'_c}$ が過小に算出され、密度変動補正に負のバイアスが生じる。このときの誤差の伝播は Liu *et al.* (2006) に詳しく記されている。一方、熱収支インバランスの原因が平均化操作で失われた低周波領域の過小評価にある場合、同じ平均化操作を行う限り対象となる周波数帯が一致するため、 $\overline{w'\rho'_v}$ 、 $\overline{w'T'}$ と同様に $\overline{w'\rho'_c}$ も過小評価となり、密度変動補正には影響しない。むしろ、Twine *et al.* (2000) のように、 $\overline{w'\rho'_v}$ 、 $\overline{w'T'}$ に対してのみ補正を行うことは、密度変動補正を過大評価することになる。近年、熱収支インバランスの原因は主に平均化時間より長周期の輸送の過小評価にあると考えられており(Foken, 2008)、その限りでは、地表面熱収支インバランスの密度変動補正への直接の影響は限定的と見なせる。

4. 密度変動補正の適用に関する論点

4.1 密度変動補正の適用原則

地表面で乾燥空気が交換されていないと見なせる限り、密度変動補正の式自体は、導出方法によらず理論的に誤りが無いことはこれまでに述べた通りである。したがって、密度変動補正に関する過誤は、ほぼすべて適用時に生じる。

上記の導出から明らかなように、密度変動補正は、大気境界層内のある点における CO_2 密度変動と混合比変動の関係式(式 2)に基づいており、原理的には式(10)右辺の各変数が、同一点で同時に同一の周波数応答特性を持った測器で計測され、同一の平均化操作を受けなければならない。しかしながら、実際は、 ρ_c と ρ_v を測定するオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計と w を測定する超音波風速計との間には距離がある上、各々の測器で測定パスの長さやノイズ処理方法も一様ではない。これらはコスペクトルの高周

波側の減衰に相違を生じさせる。通常、鉛直風速 w と温度 T (厳密には音仮温度 T_s) は同じ超音波風速計で測定されるため、 $\overline{w'T'}$ の高周波減衰は最も小さい。したがって、いずれの共分散にも周波数応答補正が行われない場合、 $\overline{w'\rho'_c}$ あるいは $\overline{w'\rho'_v}$ を含む項に対して、 $\overline{w'T'}$ を含む項が過大評価となる(e.g., Kondo and Tsukamoto, 2008)。同様に、いずれかの共分散のみ周波数応答補正が行われたり、誤った方法で周波数応答補正が行われたりした場合にも、各々の項が整合しなくなる。一方、測器のドリフトによらない時系列のトレンドを何らかの方法で除去することは低周波減衰を生じさせる(Moncrieff *et al.*, 2004)。例えば温度信号 T についてのみトレンドを除去した場合、 $\overline{w'T'}$ が他の項に比べて過小評価となる。また、超音波風速計とオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計のように、厳密に同一の空気を測定していない場合には、各々が異なる変動を捉えている可能性もある。後述するオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の熱源問題がこれに相当する。平均値の項についても同様に、精度と測定位置が重要となる。オープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の光学窓の汚れは平均値を変化させるため、程度によっては致命的となる。複数の測器を用いて密度変動補正を行う場合には、各々の精度を十分に保ち、各信号に適切な処理(主に周波数応答補正)を行い、1つの測器で $\overline{\rho_d w'\chi'_c}$ が測定されたと見なせるようにすることが適用上の原則である。これは、次に述べるように、 CO_2 フラックスが小さい場所ではとくに重要となる。

密度変動補正の最大の特徴は、共分散どうしの演算により混合比フラックスが求まる点であるが、補正式が共分散の和の形で表されるため、支配項の誤差の大きさが補正後も保たれるという側面も持つ。例えば、日中の裸地土壌面で、 $\overline{w'\rho'_c}$ が $-10.0 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 、 $\overline{\chi_c w'\rho'_v}$ が $+1.0 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 、 $\overline{\rho_c (1+\overline{\chi_v}) (\overline{w'T'}/\overline{T} - \overline{w'p'}/\overline{p})}$ が $+10 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ のとき、すべての項が正しく測定されていれば補正後の CO_2 フラックス $\overline{\rho_d w'\chi'_c}$ は $+1.0 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ である。しかし、何らかの原因で $\overline{w'\rho'_c}$ が $-10.5 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ と見積もられた場合、 $\overline{\rho_d w'\chi'_c}$ は $+0.5 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ となり、密度変動補正を通じて 5% の誤差が 50% ($+1.0 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ に対して $-0.5 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$) に増幅されたことになる。 $\overline{\rho_c}$ が 5% 過小評価された場合も同様の誤差割合の増幅が生じる。また、オープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計について、超音波風速計とのセンサー間の距離に起因して生じた 5% の高周波減衰が補正されなかった場合は、 $\overline{\rho_d w'\chi'_c}$ が $+1.45 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ となり、45% の誤差 ($+1.0 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$ に対して $+0.45 \mu\text{mol m}^{-2} \text{s}^{-1}$) となる。したがって、各測器が入念に校正されていることは

もちろんであるが、各種補正を含めた支配項の誤差にはとくに注意を払う必要がある。密度変動補正適用後のフラックスに対するサンプリング誤差 (e.g., Finkelstein and Sims, 2001) を評価する場合は、各項のサンプリング誤差が平方和で加算されるため、支配項の影響がさらに強まる。

上述の思考実験から明らかなように、地表面フラックスに対して補正項が桁違いに大きい場合、密度変動補正を通じて補正後のフラックスの精度が桁落ちの状態となる。このような状態になりやすい冬季の裸地、雪面、あるいは絶対的に CO_2 フラックスが小さい海面では、密度変動補正の精度が著しく低下する。また、補正項の係数を考慮すると、 λE と H が同じ大きさであれば、 $w'T'$ を含む項が約 4~5 倍寄与が大きいいため、ボーエン比 ($H/\lambda E$) が大きいサイトも注意が必要である。今後、 CO_2 濃度の高まりとともに $w'T'$ を含む項の影響はさらに増大する。

4.2 圧力相関項の影響

気体の状態方程式が示すように、密度は温度のみならず圧力によっても変化するため、厳密には式 (10) の気圧変動の項 $w'p'$ を評価する必要がある。しかし、一般的な気象条件では $|w'p'|/p \ll |w'T'|/T$ であること (Webb *et al.*, 1980)、 $w'p'$ の計測自体が困難あることから、通常の密度変動補正では評価の対象とされない場合がほとんどであった。これに対し、Massman and Lee (2002)、Zhang *et al.* (2010) は、 p' の測定を試み、その結果から、とくに長期連続測定における $w'p'$ の重要性を主張している。 $w'p'$ の評価は今後も検討を継続しなければならないが、現段階で大気中の p' を精度良く測定するのは容易ではないため、 $w'p'$ が大きくなるとされる高風速、あるいは粗度の大きい場所での長期連続測定では、クローズドパス型渦相関法の利用も考慮されるべきである。Massman (2004) はクローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の測定セル内において w と相関を持つ圧力変動が増幅される可能性を指摘しているが、現在広く使われているクローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計 (LI-6262, LI-7000, LI-7200; LI-COR) はセル内の気圧変動を測定するためのセンサーを備えており (LI-6262 の場合はオプション)、それが適切に動作している限りは問題にはならない。

4.3 実際の適用方法

渦相関法はオープンパス型とクローズドパス型に大別できる。これらはいずれも赤外線吸光度により CO_2 密度を計測する IRGA を用いるため、地表面フラックスを推定する際は密度変動補正が必須である。ただし、フラックス計測に常用されているクローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計 (LI-6262, LI-7000 ; LI-

COR) は、測定セル内の温度、気圧変動 (に近いもの) の測定値を用いた内部演算によって混合比あるいはモル分率を出力するモードを備えており、そのモードを適用した場合には、出力値を混合比に変換した上で $\bar{\rho}_d w' \chi_c$ に代入することで密度変動補正を介さずに地表面フラックスを直接推定することができる (Leuning, 2004; Ibrom *et al.*, 2007; Ono *et al.*, 2007)。近年、後述するセンサーの汚れや熱源問題の対策としてオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の測定パスをチャンバーで閉鎖して使用するタイプの分析計 (LI-7200 ; LI-COR) が市販されたが、本質的にはクローズドパス型であり、適切な演算によって混合比 χ_c および χ_v を得ることができる (Nakai *et al.*, 2011; Burba *et al.*, 2012)。なお、オープンパス型渦相関法においても超音波風速計の T_s を用いて生データの段階で混合比への換算を試みることは可能である。しかし、風向、風速による超音波風速計とオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の信号のずれを同期させるべく、また測器の応答特性を考慮しづらいため、短時間の実験的な解析 (e.g., Ono *et al.*, 2008) を除いて、絶対値の精度が求められる長期連続測定には適していない。

オープンパス型とクローズドパス型のいずれも適用時には個々のシステムの特性に応じて考慮すべき点が多くあり、これらを統一的に理解することは容易ではない。そこで、これまで提案されてきた適用方法を整理しつつ、現時点で最も適切と思われる手順と留意点を以下に示す。さらに、発売から間もない分析計、および今後利用が増えると思われる CO_2 、 H_2O 以外の分析計への適用についても言及する。

4.3.1 オープンパス型渦相関法への適用

オープンパス型渦相関法は、超音波風速計に併置したオープンパス型のガス分析計を用いて CO_2 等の大気成分の密度変動をその場で測定する方法で、現時点では H_2O 、 CO_2 、 CH_4 フラックスの測定が可能である。オープンパス型ガス分析計のうち最も普及している LI-COR 社の LI-7500 は ρ_c 、 ρ_v 、 p を同時に測定でき、音仮温度が測定できる超音波風速計と組み合わせることで各種補正を適用した顕熱フラックス H 、潜熱フラックス λE 、 CO_2 フラックスの算出が可能である。以下では、LI-7500 の使用を想定し、密度変動補正をオープンパス型渦相関法へ適用する際の手順と注意点を説明する。

適切な座標変換により鉛直風速 w が得られているとき、オープンパス型渦相関法システムの実測データに対する密度変動補正は、式 (10) を書き改め

$$\begin{aligned}\bar{\rho}_d \overline{w'\chi'_c} = & A_c^{-1} \overline{(w'\rho'_c)_m} \\ & + \bar{\chi}_c A_v^{-1} \overline{(w'\rho'_v)_m} \\ & + \bar{\rho}_c (1 + \bar{\chi}_v) \left[A_T^{-1} \frac{\overline{(w'T')_m}}{\bar{T}} - A_p^{-1} \frac{\overline{(w'p')_m}}{\bar{p}} \right]\end{aligned}\quad (27)$$

となる (Massman, 2004)。同様に、地表面の水蒸気フラックス (蒸発散量) $E = \bar{\rho}_d \overline{w'\chi'_v}$ は、

$$\begin{aligned}\bar{\rho}_d \overline{w'\chi'_v} = & (1 + \bar{\chi}_v) A_v^{-1} \overline{(w'\rho'_v)_m} \\ & + \bar{\rho}_v (1 + \bar{\chi}_v) \left[A_T^{-1} \frac{\overline{(w'T')_m}}{\bar{T}} - A_p^{-1} \frac{\overline{(w'p')_m}}{\bar{p}} \right]\end{aligned}\quad (28)$$

と書ける。ここで、 A_x は高周波あるいは低周波成分の欠損による共分散の減少の割合を示す係数で、添え字 x は各々のスカラーを表す。例えば、 CO_2 の場合、 $A_c = (\overline{w'\rho'_c})_m / \overline{w'\rho'_c}$ で、添え字の m は超音波風速計とオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計による実測値を意味する。 T の推定に超音波風速計が出力する音板温度を用いる場合、 $(\overline{w'T'})_m$ にはセンサー間の距離 (センサーセパレーション) による高周波減衰が存在しないため、 A_T^{-1} は A_c^{-1} あるいは A_v^{-1} より小さくなる。したがって、密度変動補正の適用後のフラックスではなく適用前の各項に周波数応答補正 A_x^{-1} を適用しておく必要がある。 A_x の求め方には、(a) 既知の伝達関数を組み合わせる方法 (e.g., Moore, 1986; Massman, 2000), (b) 周波数領域における正味の減衰を指数関数等で近似する方法 (e.g., Aubinet *et al.*, 2000), (c) 欠損のない周波数帯との比較によって推定する方法 (バンドパスコバリアンス法) (e.g., Watanabe *et al.*, 2000; Asanuma *et al.*, 2005) が主に用いられる。方法 (a), (b) では、実測ではなくモデル化されたコスベクトルを用いて A_x を求める場合が多い。一方、方法 (c) では、平均化時間毎にフーリエ変換を行い、 $(\overline{w'\rho'_c})_m$ などの減衰したコスベクトルを $(\overline{w'T'})_m$ のコスベクトルと一致するように欠損部分を復元することによって A_x を求める。用いる仮定はバンドパス周波数帯とそれより高周波側でのスカラー輸送の相似性のみで、各項の補正係数 A_x^{-1} の不整合が発生しにくい。また、周波数応答特性が十分に検証されていない測器、あるいは伝達関数が想定していないような設置状況にも有効である。4.1 で示されたように密度変動補正を行う上で、補正係数 A_x^{-1} の不整合に対しては最も慎重にならなければならない。そのため、密度変動補正の適用という観点

では方法 (c) が最も適していると思われる。ただし、フラックスが小さいときにはフーリエ変換の不確実性が高くなり現実的ではない係数が算出される。そのような条件では前もって作成しておいた補正係数と風速・安定度の関係式を利用する方法もある (e.g., Takagi *et al.*, 2009)。

他の項についても基本的に LI-7500 の出力を用いて計算される。ただし、Webb *et al.* (1980) あるいは Leuning (2004) は簡便法として、式 (27) において $(\overline{w'\rho'_v})_m$ の代わりに E を用いているが、導出の原理にしたがえば密度変動補正を適用する前の $(\overline{w'\rho'_v})_m$ を用いるべきである。また、超音波風速計の T_s を用いた場合には、水蒸気の効果を除くために

$$\overline{w'T'_s} = \overline{w'T'_s} - 0.321 \overline{w's'_v} \quad (29)$$

の補正式 (Schotanus *et al.*, 1983; Aubinet *et al.*, 2000) を適用する必要があるが、湿潤空気に対する水蒸気モル分率 $s_v (= \rho_v / \rho_m)$ のフラックス $\overline{w's'_v}$ は、式 (28) の $\overline{w'\chi'_v}$ を用いて、例えば

$$\overline{w's'_v} = (1 - 2\bar{\chi}_v) \overline{w'\chi'_v} \quad (30)$$

のように算出されるため、厳密には、式 (29) と式 (30) を式 (28) に代入し、 $\overline{w'\chi'_v}$ について整理した式で評価する。水蒸気が多い条件で $\overline{w'T'_s}$ の代わりに $\overline{w'T'_s}$ を用いた場合には、 $\overline{w'\chi'_v}$ が 2% 近く過大評価となる。なお、 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計 (IRGA) では CO_2 と H_2O がわずかに影響を及ぼし合うが (cross sensitivity)、現行の主要なモデルでは各々測器に固有の係数を用いて内部的に補正されている。

2004 年以降、オープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計のセンサーヘッド部分が放射等により正負の熱源となりフラックス推定値に影響を及ぼすいわゆる熱源問題が広く知られるようになった (e.g., Massman, 2004; Ono *et al.*, 2004; Amiro *et al.*, 2006; Burba *et al.*, 2008; Ono *et al.*, 2008)。これは、物理的に異なる複数のセンサーを用いて密度変動補正を行う現在のオープンパス型渦相関法が潜在的に抱える問題でもある。LI-7500 の場合、センサーヘッドは白色に塗装され消費電力も測器全体で 10 W に押さえられているが、とくに低温時に、センサーヘッド表面の温度と気温の差が大きくなり、測定パス内に追加的な熱フラックス $\Delta w'T'$ が生じる (e.g., Grelle and Burba, 2007; Burba *et al.*, 2008)。この追加的な $\Delta w'T'$ は超音波風速計では検知されないため、日中は CO_2 フラックスを吸収側に過大評価する。対策として、 $\Delta w'T'$ を小さくするような測器または測器配置とすること、あるいは $\Delta w'T'$ を実測または推定し式 (27) の $(\overline{w'T'})_m$ に加えることが考えられる。前者は、センサーを小型化し

たり、放射の影響を小さくするために表面反射率を高めたり、あるいは射出率を小さくしたりすることが有効である。密度変動補正を厳格に適用するという観点では、オープンパス型渦相関法と超音波流速計のセンサー距離を縮めることも有効であるが(例えば、Campbell Scientific 社から発売された IRGASON)、 $\Delta w'T'$ が光学窓近傍で局所的に発生している可能性もあるため熱源問題に対しての効果は未知数である(Ono *et al.*, 2009)。また、流れを乱す影響も懸念される。後者については、細線熱電対あるいは細線白金抵抗温度計を用いた実測の例が発表されているが、いずれもセンサーの強度に問題があり長期連続測定には向いていない。 $\Delta w'T'$ を推定するモデルは、現時点では Burba *et al.* (2008) と Heusinkveld *et al.* (2008) が提案している。Burba *et al.* (2008) は、過去のデータにも適用できるように一般的な気象要素から $\Delta w'T'$ の推定を試みているが、センサーヘッド表面の温度と気温との差を気象要素の重回帰式で表すなど大胆な簡略化がなされている。一方、Heusinkveld *et al.* (2008) は、センサーヘッドの熱収支に基づいて算出した表面温度を用いて $\Delta w'T'$ を推定しており、Burba *et al.* (2008) に比べて精度が高いと思われる。両推定モデルともセンサーヘッドで発生した熱がすべて測定パス内を通過することが仮定されているが、測定パスを通過する熱の割合が風速によって大きく変動するという報告もある(Ono *et al.*, 2009)。また、適用できるセンサーの設置角度にも制限がある。いずれにせよ、4.1 で示されたように、地表面 CO_2 フラックスが小さい雪面等では密度変動補正に関わる誤差が大幅に増大するため、これらの補正はとりわけ慎重に適用する必要がある。

近年、LI-7500 について、光学窓に付着した汚れによって ρ_c と ρ_v の出力の絶対値が 10% 以上変化する現象が報告されており(Serrano-Ortiz *et al.*, 2008; Prytherch *et al.*, 2010)、この値を密度変動補正の $\bar{\rho}_v$ 、 $\bar{\rho}_c$ に用いる場合は注意を要する。LI-7500 を含むほぼすべてのオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計は、同じ測定パスで分子の赤外線吸収帯と非吸収帯の光量を測定しその違いから密度の絶対値を算出しているが、両波長帯は近接しているため光学窓の汚れは通常打ち消される。しかし、両波長帯で吸収率が大きく異なる付着物の場合、絶対値の測定に影響を及ぼしうる。Serrano-Ortiz *et al.* (2008) は、乾燥地域での測定から、鉱物由来の付着物でそのような現象が生じたこと、その影響が LI-7500 が採用している波長では ρ_c が過小評価、 ρ_v が過大評価となること、したがって別の温湿度センサーの出力と比較することで $\bar{\rho}_c$ と $\bar{\rho}_v$ の両方が補正されうることを示した。

Prytherch *et al.* (2010) も海洋で類似の測定結果を得ている。原理的には、Serrano-Ortiz *et al.* (2008) の方法で補正可能と思われるが、付着物によって両者の関係が変化する可能性は十分にあるためサイト毎に経験式を作成する必要がある。一方、Serrano-Ortiz *et al.* (2008) の実験ではこの影響はスパン(検量線の傾き)には見られなかったと明記されているが、海洋では、連続測定中に海塩粒子の付着が原因と思われる絶対値の低下とともに ρ_c の変動が増大する現象も確認されている(Tsukamoto and Kondo, 2011)。こちらは共分散に基づいてフラックスを算出する渦相関法の根幹に関わるため、クローズドパス型との比較観測などに基づいた実態の解明が急がれる。いずれにせよ、現時点では、光学窓を定期的に清掃し、可能であれば絶対値が安定して測定できる湿度センサー等を併用することが取り得る唯一の対策である。光学窓の汚れについては、海面あるいは乾燥地のように元々 CO_2 フラックスが小さい場所とくに生じやすいと考えられ、このようなサイトでは密度変動補正の適用にはより一層の注意が必要である。

現在市販されている唯一のオープンパス型 CH_4 分析計(LI-7700; LI-COR)についても、上記の問題はほぼすべて当てはまる。まず測定システムとしては、 $w'\rho'_v$ を測定するために LI-7500 等を併用する必要がある。LI-7500 等を用いて $w'\rho'_v$ を同時に測定し、式(28)、式(29)、式(30)を用いて密度変動補正を行う。LI-7700 は測定パスが他の測器に比べ長く(50 cm)断面積も大きいので、周波数応答補正は、不整合が生じないように LI-7500 の場合以上に慎重に行う必要がある。LI-7500 については、近年改良が加えられ、センサーヘッド内部のチョッパー収納部の温度を 2 段階(5℃と 30℃)に設定できるものが市販化された(LI-7500A)。この追加機能は、消費電力と熱源問題の両面において、中高緯度域の冬季の測定では有用である。

4.3.2 クローズドパス型渦相関法への適用

クローズドパス型渦相関法は、超音波流速計の測定パス近傍に設置した吸入口からチューブとポンプを用いて空気を引き込み、タワー基部等に設置したクローズドパス型分析計で分析した濃度を用いてフラックスを算出する方法で、近年の技術的な進歩により、現在では H_2O 、 CO_2 のほか、 CH_4 、 N_2O 、さらには安定同位体比の測定も可能となっている。チューブ内での高周波減衰が場合によっては大きくなるが、 CO_2 に関しては、安定した分析計が 1990 年頃から市販化されていたため、商用電源が得られる森林のサイトを中心に現在でも広く利用されている(Mizoguchi *et al.*, 2009)。クローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot$

H_2O 分析計も原理的には赤外線吸光度から CO_2 と H_2O 分子数密度を測定するものであるが、オープンパス型と異なり、測定セルの気圧と気温の変動、あるいはそれに準ずるものを内部で測定できるため、実用上問題のない精度で混合比 χ_c , χ_v を求めることが可能である (Ibrom *et al.*, 2007)。新たに市販されたモデル (LI-7200) は、オープンパス型の LI-7500 がベースとなっているため小型で、チューブ長を数 10 cm 程度まで短縮でき、混合比への変換も問題ない (Nakai *et al.*, 2011; Burba *et al.*, 2012)。したがって、 CO_2 , H_2O フラックスをクローズドパス型渦相関法で測定する場合、基本的に密度変動補正を適用する必要がない。しかし、これらの大気成分以外では、場合によっては必要となるため、クローズドパス型渦相関法に密度変動補正を適用する際のポイントを説明する。

クローズドパス型渦相関法では、地表面 CO_2 フラックスは、オープンパス型 (式 27) とほぼ同様に

$$\begin{aligned}
 \bar{p}_d \overline{w'\chi'_c} = & A_c^{-1} (\overline{w'\rho'_c})_m + \bar{\chi}_c (A_v)_c^{-1} (\overline{w'\rho'_v})_m \\
 & + \bar{p}_c (1 + \bar{\chi}_v) \left[(A_T)_c^{-1} \frac{(\overline{w'T'})_m}{\bar{T}} - (A_p)_c^{-1} \frac{(\overline{w'p'})_m}{\bar{p}} \right]
 \end{aligned}
 \quad (31)$$

と表せる。オープンパス型と異なるのは、 $(\overline{w'\rho'_c})_m$ 以外の共分散に掛かる周波数応答補正が $(A_v)_c^{-1}$, $(A_T)_c^{-1}$, $(A_p)_c^{-1}$ となっている点である。ここで、 $(A_v)_c = (\overline{w'\rho'_v})_m / (\overline{w'\rho'_v})_c$, $(A_T)_c = (\overline{w'T'})_m / (\overline{w'T'})_c$, $(A_p)_c = (\overline{w'p'})_m / (\overline{w'p'})_c$ である。 $(\overline{w'\rho'_v})_c$, $(\overline{w'T'})_c$, $(\overline{w'p'})_c$ は、クローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の測定セルに入る直前の空気の H_2O , 温度, 気圧の変動に基づく共分散である。クローズドパス型では、クローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の測定セル (オープンパス型の測定パスに相当) が有限の体積を持つことのほか、空気がチューブ内を移動することによっても変動の減衰が生じる。これは ρ_c , ρ_v , T , p のすべてに当てはまるが、密度変動補正では、 ρ_v , T , p については、チューブ内での減衰は補正する必要がない。これは、密度変動補正の原則が CO_2 密度変動と混合比変動の関係式 (式 2) であり、クローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の測定セル直前の ρ'_c に影響を及ぼした $\bar{\chi}_c \rho'_d$ のみ取り除けばよいためである。したがって、 A_c^{-1} はチューブによる減衰まで考慮する必要があるが、 $(A_v)_c^{-1}$, $(A_T)_c^{-1}$, $(A_p)_c^{-1}$ は、測定セルの体積平均の効果と信号処理に関わる減衰のみ考慮すればよい (Massman, 2004; Ibrom *et al.*, 2007)。同様の理由で、平均値 $\bar{p}_c$, $\bar{T}$, $\bar{p}$ は、大気ではなく、測定セル内での値を用いる。ただし、測定セル内の

温度あるいは気圧が吸入口と大きく異なっている場合は、式 (31) の右辺に $\bar{p}_d / (\bar{p}_d)_c$ を乗じる (Leuning and Moncrieff, 1990)。ここで、 $(\bar{p}_d)_c$ は測定セル内の温度と気圧から求めた乾燥空気密度である。ところで、式 (31) では、チューブによる遅れ時間、すなわち空気がチューブ内を移動することで生じる w 信号との時系列のずれがあらかじめ修正されていることが暗に仮定されている (周波数応答補正に遅れ時間による減衰も含める場合もある)。各々について、平均化時間毎に w (あるいは T_s) との相互相関が最大になるように時系列をずらすという方法が一般に取られている (e.g., Moncrieff *et al.*, 1997)。これは、引き込む空気の相対湿度によって遅れ時間が変化すること、その程度が ρ_c と ρ_v で異なることによる (Ibrom *et al.*, 2007)。しかし、密度変動補正を適用する場合は、 ρ'_c を生じさせた ρ'_v が問題となるゆえ、 $(\overline{w'\rho'_v})_m$ の遅れ時間は、 $(\overline{w'\rho'_c})_m$ が最大になる時のものでなければならない (Ibrom *et al.*, 2007)。 $(\overline{w'T'})_c$ と $(\overline{w'p'})_c$ については、実際の密度変動補正では適用されていない場合が多かったが (Leuning and Judd, 1996)、条件によっては無視できないことが明らかになってきたため (Leuning, 2004; Massman, 2004; Burba *et al.*, 2012), T , p とともに生データを記録し共分散を評価できるようにしておくことが望ましい。なお、水蒸気フラックス $E (= \bar{p}_d \overline{w'\chi'_v})$ については、

$$\begin{aligned}
 \bar{p}_d \overline{w'\chi'_v} = & \left[A_v^{-1} + \bar{\chi}_v (A_v)_c^{-1} \right] (\overline{w'\rho'_v})_m \\
 & + \bar{p}_v (1 + \bar{\chi}_v) \left[(A_T)_c^{-1} \frac{(\overline{w'T'})_m}{\bar{T}} - (A_p)_c^{-1} \frac{(\overline{w'p'})_m}{\bar{p}} \right]
 \end{aligned}
 \quad (32)$$

となる。

いずれにしても、現在渦相関法に用いられるクローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計については生データの段階で実用上問題のない精度で混合比に変換できるため、上述の密度変動補正 (式 31, 32) は必要ない。また、例えば、 H_2O の同時測定ができないクローズドパス型 CH_4 分析計を除湿を行わない渦相関法システムで使用した場合でも、クローズドパス型 CH_4 分析計とクローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計が測定ラインの中で一体と見なせる配置であれば、密度変動補正を避け、混合比の換算を試みた方がよいと思われる。一方、このようなシステムにおいて、クローズドパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の代わりに LI-7500 等のオープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計を用いることは、 $(A_v)_c^{-1}$ の評価が著しく困難なため、勧められない。

生データの段階で混合比が算出できる通常のク

ローズドパス型システムについては、

$$\bar{\rho}_d \overline{w' \chi_c'} = \bar{\rho}_d A_c^{-1} (\overline{w' \chi_c'})_m \quad (33)$$

$$\bar{\rho}_d \overline{w' \chi_v'} = \bar{\rho}_d A_v^{-1} (\overline{w' \chi_v'})_m \quad (34)$$

を用いて地表面 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ フラックスを推定する。 A_c^{-1} , A_v^{-1} は、4. 3. 1 で紹介した (a), (b), (c) のいずれかを用いて推定する。先に遅れ時間を修正する場合は、 χ_c , χ_v の時系列を使って w (あるいは T_s) との相互相関を各々計算する。LI-7200 は測器内部で演算を行い χ_c , χ_v を出力可能である。一方、LI-6262 および LI-7000 の出力は、 CO_2 , H_2O とともに湿潤空気に対するモル分率であるため (Ibrom *et al.*, 2007), $\chi_c = s_c / [1 + s_c (1 - s_v)]$, $\chi_v = s_v / (1 - s_v)$ を用いて混合比に変換したあと式 (33), 式 (34) によりフラックスを算出する。ここで、 $s_c (=p_c/p_m)$ は湿潤空気に対する CO_2 モル分率である。なお、LI-6262 は、設定を変更することで CO_2 についてのみ測器内部で演算した χ_c を出力させることが可能である (Ibrom *et al.*, 2007)。

5. おわりに

渦相関法に用いられる密度変動補正の本質は極めてシンプルで、一言で表せば、乾燥空気の質量(分子数)保存則に基づいた共分散どうしの演算により密度フラックスを混合比フラックスに変換するための操作ということになる。本稿は、その本質の理解の一助となることを目的に、導出方法を類型化し各々の論点を整理した。さらに、オープンパス型とクローズドパス型に分けて実際の適用方法と留意点について議論した。密度変動補正は共分散の和として表されるため、地表面 CO_2 フラックスに対して補正項が大きくなりやすい冬季の裸地、雪面、あるいは絶対的に CO_2 フラックスが小さい海面では、密度変動補正の精度が著しく低下する恐れがある。ただし、クローズドパス型は、高周波の減衰は大きい、生データの段階で実用上問題のない精度で混合比が得られるため、そのような条件でもある程度の精度が保てると思われる。密度変動補正、および生データでの混合比変換のいずれの場合も、複数のセンサー・測器を用いるため、各々の応答特性を十分に把握し、整合性のある周波数応答補正を行う必要がある。現時点で最も懸念されることは、オープンパス型ガス分析計の光学窓の汚れが密度の絶対値測定に及ぼす影響である。密度変動補正では、密度、混合比、気温、気圧の絶対値が必要であるが、そのうち CO_2 密度は補正項に直接掛かるため影響が大きい。変動(スパン)への影響も含めて、まずは知見の蓄積が急務である。オープンパス型 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分析計の

熱源問題は、影響の程度がおおよそ把握されつつあるが、補正モデルの開発が遅れている。数値流体力学モデル等を利用することで、さまざまな設置角度・方位に対応した補正モデルが確立される可能性がある。 CO_2 , H_2O 以外の大気成分への適用も含め当面は渦相関法による生態系一大気間フラックスの測定は関連する様々な分野で活用されることが予想され、密度変動補正を含めた地表面フラックス推定のためのフレームワークについて理解を深めることは今後も重要であろう。一方、本稿で明らかになったように密度変動補正の精度には限界があるため、今後開発されるガス分析計は、混合比の利用を前提としたものとなることを期待したい。

謝 辞

本稿をまとめるに当たり、宮田 明博士には示唆に富むアドバイスを多数頂戴しました。また、間野正美博士、滝本貴弘博士には、原稿を校閲いただきました。ここに記して御礼申し上げます。

引用文献

- Amiro, B., Orchansky, A., and Sass, A., 2006: A perspective on carbon dioxide flux measurements using an open-path infrared gas analyzer in cold environments. *Proceedings of the American Meteorological Society's 27th Conference on Agricultural and Forest Meteorology*, P4. 7.
- Asanuma, J., Ishikawa, H., Tamagawa, I., Ma, Y., Hayashi, T., Qi, Y., and Wang, J., 2005: Application of the band-pass covariance technique to portable flux measurements over the Tibetan Plateau. *Water Resour. Res.*, **41**, W09407.
- Aubinet, M., Grelle, A., Ibrom, A., Rannik, U., Moncrieff, J., Foken, T., Kowalski, A. S., Martin, P. H., Berbigier, P., Bernhofer, C., Clement, R., Elbers, J., Granier, A., Grünwald, T., Morgenstern, K., Pilegaard, K., Rebmann, C., Snijders, W., Valentini, R., and Vesala, T., 2000: Estimates of the annual net carbon and water exchange of forests: The EUROFLUX methodology. *Adv. Ecol. Res.*, **30**, 113–175.
- Bakan, S., 1978: Note on the eddy correlation method for CO_2 flux measurements. *Boundary-Layer Meteorol.*, **14**, 597–600.
- Burba, G. G., McDermitt, D. K., Grelle, A., Anderson, D. J., and Xu, L., 2008: Addressing the influence of instrument surface heat exchange on the measurements of CO_2 flux from open-path gas analyzers. *Global Change Biol.*, **14**, 1854–1876.

- Burba, G., Schmidt, A., Scott, R., Nakai, T., Kathilankal, J., Fratini, G., Hanson, C., Law, B., McDermitt, D., Eckles, R., Furtaw, M., and Velgersdyk, M., 2012: Calculating CO₂ and H₂O eddy covariance fluxes from an enclosed gas analyzer using an instantaneous mixing ratio. *Global Change Biol.*, **18**, 385–399.
- Desjardins, R. L., and Lemon, E. R., 1974: Limitations of an eddy-correlation technique for the determination of the carbon dioxide and sensible heat fluxes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **5**, 475–488.
- Detto, M., and Katul, G. G., 2007: Simplified expressions for adjusting higherorder turbulent statistics obtained from open path gas analyzers. *Boundary-Layer Meteorol.*, **122**, 205–216.
- Fairall, C., Hare, J., Edson, J., and McGillis, W., 2000: Parameterization and micrometeorological measurement of air-sea gas transfer. *Boundary-Layer Meteorol.*, **96**, 63–106.
- Finkelstein, P. L., and Sims, P. F., 2001: Sampling error in eddy correlation flux measurements. *J. Geophys. Res.*, **106**, 3503–3509.
- Foken, T., 2008: The energy balance closure problem: an overview. *Ecol. Appl.*, **18**, 1351–1367.
- Foken, T., Aubinet, M., Finnigan, J. J., Leclerc, M. Y., Mauder, M., and Paw U, K. T., 2011: Results of a panel discussion about the energy balance closure correction for trace gases. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, **92**, ES13–ES18.
- Fuehrer, P. L., and Friehe, C. A., 2002: Flux corrections revisited. *Boundary-Layer Meteorol.*, **102**, 415–457.
- Grelle, A., and Burba, G., 2007: Fine-wire thermometer to correct CO₂ fluxes by open-path analyzers for artificial density fluctuations. *Agric. For. Meteorol.*, **147**, 48–57.
- Haslwanter, A., Hammerle, A., and Wohlfahrt, G., 2009: Open-path vs. closed-path eddy covariance measurements of the net ecosystem carbon dioxide and water vapour exchange: A long-term perspective. *Agric. For. Meteorol.*, **149**, 291–302.
- Heusinkveld, B. G., Jacobs, A. F. G., and Holtslag, A. A. M., 2008: Effect of open-path gas analyzer wetness on eddy covariance flux measurements: A proposed solution. *Agric. For. Meteorol.*, **148**, 1563–1573.
- Hirata, R., Saigusa, N., Yamamoto, S., Ohtani, Y., Ide, R., Asanuma, J., Gamo, M., Hirano, T., Kondo, H., Kosugi, Y., Li, S. -G., Nakai, Y., Takagi, K., Tani, M., and Wang, H., 2008: Spatial distribution of carbon balance in forest ecosystems across East Asia. *Agric. For. Meteorol.*, **148**, 762–775.
- Ibrom, A., Dellwik, E., Larsen, S., and Pilegaard, K., 2007: On the use of the Webb-Pearman-Leuning theory for closed-path eddy correlation measurements. *Tellus B*, **59**, 937–946.
- Jones, E. P., and Smith, S. D., 1977: A first measurement of sea-air CO₂ flux by eddy correlation. *J. Geophys. Res.*, **82**, 5990–5992.
- Jones, E. P., and Smith, S. D., 1978: The air density correction to eddy flux measurements. *Boundary-Layer Meteorol.*, **15**, 357–360.
- Kondo, F., and Tsukamoto, O., 2008: Evaluation of Webb correction on CO₂ flux by eddy covariance technique using open-path gas analyzer over asphalt surface. *J. Agric. Meteorol.*, **64**, 1–8.
- Kowalski, A. S., 2006a: Comment on “An alternative approach for CO₂ flux correction caused by heat and water vapour transfer” by Liu. *Boundary-Layer Meteorol.*, **120**, 353–355.
- Kowalski, A. S., 2006b: Further comment on “Reply to the comment by Kowalski on ‘An alternative approach for CO₂ flux correction caused by heat and water vapour transfer’ by Liu”. *Boundary-Layer Meteorol.*, **120**, 365–366.
- Kowalski, A. S., and Serrano-Ortiz, P., 2007: On the relationship between the eddy covariance, the turbulent flux, and surface exchange for a trace gas such as CO₂. *Boundary-Layer Meteorol.*, **124**, 129–141.
- Lee, X., and Massman, W., 2011: A perspective on thirty years of the Webb, Pearman and Leuning density corrections. *Boundary-Layer Meteorol.*, **139**, 37–59.
- Leuning, R., 2004: Measurements of trace gas fluxes in the atmosphere using eddy covariance, WPL corrections revisited. In *Handbook of Micrometeorology, A Guide for Surface Flux Measurements and Analysis* (ed. by Lee, X., Massman, W., and Law, B.). Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, pp. 119–132.
- Leuning, R., 2007: The correct form of the Webb, Pearman and Leuning equation for eddy fluxes of trace gases in steady and non-steady state, horizontally homogeneous flows. *Boundary-Layer Meteorol.*, **123**, 263–267.
- Leuning, R., and Judd, M. J., 1996: The relative merits of open- and closed-path analysers for measurement of eddy fluxes. *Global Change Biol.*, **2**, 241–253.
- Leuning, R., and Moncrieff, J., 1990: Eddy-covariance CO₂ flux measurements using open- and closed-path CO₂ analysers: Corrections for analyser water-vapour sensitivity and damping of fluctuations in air sampling tubes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **53**, 63–76.
- Liu, H. P., 2005: An alternative approach for CO₂ flux correction caused by heat and water vapour transfer.

- Boundary-Layer Meteorol.*, **115**, 151–168.
- Liu, H. P., 2006: Reply to the comment by Kowalski on “An alternative approach for CO₂ flux correction caused by heat and water vapour transfer”. *Boundary-Layer Meteorol.*, **120**, 357–363.
- Liu, H. P., Randerson, J. T., Lindfors, J., Massman, W. J., and Foken, T., 2006: Consequences of incomplete surface energy balance closure for CO₂ fluxes from open-path CO₂ /H₂O infrared gas analysers. *Boundary-Layer Meteorol.*, **120**, 65–85.
- Lloyd, C. R., 1995: The effect of heterogeneous terrain on micrometeorological flux measurements: a case study from HAPEX-SAHEL. *Agric. For. Meteorol.*, **73**, 209–216.
- Massman, W., 2000: A simple method for estimating frequency response corrections for eddy covariance systems. *Agric. For. Meteorol.*, **104**, 185–198.
- Massman, W., 2004: Concerning the measurement of atmospheric trace gas fluxes with open- and closed-path eddy covariance system: The WPL terms and spectral attenuation. In *Handbook of Micrometeorology, A Guide for Surface Flux Measurements and Analysis* (ed. by Lee, X., Massman, W., and Law, B.). Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, pp. 133–160.
- Massman, W., and Lee, X., 2002: Eddy covariance flux corrections and uncertainties in long-term studies of carbon and energy exchanges. *Agric. For. Meteorol.*, **113**, 121–144.
- Massman, W., and Tuovinen, J. -P., 2006: An analysis and implications of alternative methods of deriving the density (WPL) terms for eddy covariance flux measurements. *Boundary-Layer Meteorol.*, **121**, 221–227.
- McGillis, W., Edson, J., Hare, J., and Fairall, C., 2001: Direct covariance air-sea CO₂ fluxes. *J. Geophys. Res.*, **106**, 16729–16745.
- Mizoguchi, Y., Miyata, A., Ohtani, Y., Hirata, R., and Yuta, S., 2009: A review of tower flux observation sites in Asia. *J. For. Res.*, **14**, 1–9.
- Moncrieff, J., Clement, R., Finnigan, J., and Meyers, T., 2004: Averaging, detrending, and filtering of eddy covariance time series. In *Handbook of Micrometeorology, A Guide for Surface Flux Measurements and Analysis* (ed. by Lee, X., Massman, W., and Law, B.). Kluwer Academic Publishers, Dordrecht, pp. 7–31.
- Moncrieff, J. B., Massheder, J. M., de Bruin, H., Elbers, J., Friborg, T., Heusinkveld, B., Kabat, P., Scott, S., Soegaard, H., and Verhoef, A., 1997: A system to measure surface fluxes of momentum, sensible heat, water vapour and carbon dioxide. *J. Hydrol.*, **188–189**, 589–611.
- Moore, C. J., 1986: Frequency response corrections for eddy correlation systems. *Boundary-Layer Meteorol.*, **37**, 17–35.
- Nakai, T., Iwata, H., and Harazono, Y., 2011: Importance of mixing ratio for a long-term CO₂ flux measurement with a closed-path system. *Tellus B*, **63**, 302–308.
- Ohkubo, S., Kosugi, Y., Takanashi, S., Mitani, T., and Tani, M., 2007: Comparison of the eddy covariance and automated closed chamber methods for evaluating nocturnal CO₂ exchange in a Japanese cypress forest. *Agric. For. Meteorol.*, **142**, 50–65.
- Ohta, T., Maximov, T., Dolman, A., Nakai, T., van der Molen, M., Kononov, A., Maximov, A., Hiyama, T., Iijima, Y., Moors, E., Tanaka, H., Toba, T., and Yabuki, H., 2008: Interannual variation of water balance and summer evapotranspiration in an eastern Siberian larch forest over a 7-year period (1998–2006). *Agric. For. Meteorol.*, **148**, 1941–1953.
- Ono, K., Hirata, R., Mano, M., Miyata, A., Saigusa, N., and Inoue, Y., 2007: Systematic differences in CO₂ fluxes measured by open- and closed-path eddy covariance systems: Influence of air density fluctuations resulting from temperature and water vapor transfer. *J. Agric. Meteorol.*, **63**, 139–155.
- Ono, K., Mano, M., Hirata, R., and Miyata, A., 2009: A validation study of the practical corrections for sensor heating at open-path surfaces using computational fluid dynamics. *Proceedings of AsiaFlux Workshop 2009*, **92**.
- Ono, K., Miyata, A., and Yamada, T., 2008: Apparent downward CO₂ flux observed with open-path eddy covariance over a non-vegetated surface. *Theor. Appl. Climatol.*, **92**, 195–208.
- Ono, K., Miyata, A., Yamada, T., Nagai, H., Yoshikoshi, H., Mano, M., and Saito, M., 2004: Downward CO₂ flux observed over a bare field by the eddy covariance method using an open-path infrared gas analyzer. *Proceedings of American Geophysical Union 2004 Fall Meeting*, B51C-0965.
- Paw U, K. T., Baldocchi, D. D., Meyers, T. P., and Wilson, K. B., 2000: Correction of eddy-covariance measurements incorporating both advective effects and density fluxes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **97**, 487–511.
- Prytherch, J., Yelland, M., Pascal, R., Moat, B., Skjelvan, I., and Neill, C., 2010: Direct measurements of the CO₂ flux over the ocean: Development of a novel method. *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L03607.
- Saigusa, N., Yamamoto, S., Hirata, R., Ohtani, Y., Ide, R., Asanuma, J., Gamo, M., Hirano, T., Kondo, H., Kosugi, Y., Li, S. -G., Nakai, Y., Takagi, K., Tani, M., and

- Wang, H., 2008: Temporal and spatial variations in the seasonal patterns of CO₂ flux in boreal, temperate, and tropical forests in East Asia. *Agric. For. Meteorol.*, **148**, 700–713.
- Schotanus, P., Nieuwstadt, F. T. M., and De Bruin, H. A. R., 1983: Temperature measurement with a sonic anemometer and its application to heat and moisture fluxes. *Boundary-Layer Meteorol.*, **26**, 81–93.
- Serrano-Ortiz, P., Kowalski, A. S., Domingo, F., Ruiz, B., and Alados-Arboledas, L., 2008: Consequences of uncertainties in CO₂ density for estimating net ecosystem CO₂ exchange by open-path eddy covariance. *Boundary-Layer Meteorol.*, **126**, 209–218.
- Smith, S. D., and Jones, E. P., 1979: Dry-air boundary conditions for correction of eddy flux measurements. *Boundary-Layer Meteorol.*, **17**, 375–379.
- Suyker, A. E., and Verma, S. B., 1993: Eddy correlation measurement of CO₂ flux using a closed-path sensor: Theory and field tests against an open-path sensor. *Boundary-Layer Meteorol.*, **64**, 391–407.
- Takagi, K., Fukuzawa, K., Liang, N., Kayama, M., Nomura, M., Hojyo, H., Sugata, S., Shibata, H., Fukazawa, T., Takahashi, Y., Nakaji, T., Oguma, H., Mano, M., Akibayashi, Y., Murayama, T., Koike, T., Sasa, K., and Fujinuma, Y., 2009: Change in CO₂ balance under a series of forestry activities in a cool-temperate mixed forest with dense undergrowth. *Global Change Biol.*, **15**, 1275–1288.
- Tsukamoto, O., and Kondo, F., 2011: Accurate measurement of air-sea CO₂ flux with open-path eddy-covariance. In *Gas Transfer at Water Surfaces 2010* (ed. by Komori, S., McGillis, W., and Kurose, R.). Kyoto University Press, Kyoto, pp. 485–495.
- Twine, T. E., Kustas, W. P., Norman, J. M., Cook, D. R., Houser, P. R., Meyers, T. P., Prueger, J. H., Starks, P. J., and Wesely, M. L., 2000: Correcting eddy-covariance flux underestimates over a grassland. *Agric. For. Meteorol.*, **103**, 279–300.
- Watanabe, T., Yamanoi, K., and Yasuda, Y., 2000: Testing of the bandpass eddy covariance method for a long-term measurement of water vapour flux over a forest. *Boundary-Layer Meteorol.*, **96**, 473–491.
- Webb, E. K., and Pearman, G. I., 1977: Correction of CO₂ transfer measurements for the effect of water vapor transfer. In *Second Australasian Conference on Heat and Mass Transfer* (ed. by Bilger, R. W.). The University of Sydney, Sydney, pp. 469–476.
- Webb, E. K., Pearman, G. I., and Leuning, R., 1980: Correction of flux measurements for density effects due to heat and water-vapor transfer. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, **106**, 85–100.
- Zhang, J., Lee, X., Song, G., and Han, S., 2011: Pressure correction to the long-term measurement of carbon dioxide flux. *Agric. For. Meteorol.*, **151**, 70–77.