

(シンポジウム)

201 (大気化学; 温室効果気体; 対流圏オゾン; 硫黄サイクル;
窒素サイクル; エアロゾル; 雲化学; CACGP シンポジウム)

地球大気化学国際シンポジウム報告*

小川利紘^{*1}・松枝秀和^{*2}

近藤 豊^{*3}・田中 浩^{*4}・河村公隆^{*5}

1. はじめに

地球大気化学国際シンポジウムは1994年9月5日～9日の5日間にわたって山梨県富士吉田市のホテル・ハイランドリゾートで開催された。参加登録者数は260名で、27か国からの参加があった。日本からの参加者は延べ81名で、次いで米国の62名、以下ドイツ21名、英国13名、スウェーデン10名、カナダとオーストラリア各9名、フランス7名、イタリア5名と続く。アジアでは、中国、韓国、インド、フィリピン、インドネシアから1～4名の参加で、アジア地域ではまだ大気化学の研究者数は少ないようである。発表論文数は口頭80篇、ポスター195篇、計275篇であったが、ポスター論文は展示していないものがかなりあった。日本からの発表論文は口頭14篇(共著論文を含む)、ポスター44篇で計58篇。従って日本の発表論文数は米国とほぼ同じであるが、この数字は地の利によるもので、実態は、研究者数からいっても研究活動度からいっても日本はまだ米国の比べものにならないし、ドイツにも及ばない。

この国際シンポジウムは、IAMAS (国際気象学・大気科学協会、1993年の横浜大会の際 IAMAP を改名した) 傘下の CACGP (大気化学・地球規模汚染委員会) が4年毎に開くシンポジウムの8回目と、IGAC (地球大気化学国際協同研究計画) の2回目の科学会議とを一緒にして開催することになったため、円高に不平を言いながらも欧米から大勢参加してくれたので、大変

盛会であった。CACGP のシンポジウムが欧米以外で開催されるのは今回初めてであり、富士吉田市という場所柄と地元の協力もあって参加者からは好評であった。

IGAC の科学会議は第1回が昨年4月イスラエルのエイラートで開かれたばかりなので(プロシーディングスは J. Geophys. Res., Vol. 99, No. D8, 1994 に掲載) 語るまでもないが、ここで CACGP のシンポジウムの歴史には触れておこう。第1表には CACGP シンポジウムの開催年と開催地が示してある。1957年に CACGP の前身の CACR (大気化学・放射能委員会) が設立され、第1回目から第3回目まではこの委員会が主催した。CACGP と改名したのは1971年で、第3回から第4回には10年の間隔がある。この間、1973年にドイツのマインツでシンポジウムを開いているし(プロシーディングスは Tellus, 26, No. 1, 1974)、また1976年には東ドイツのドレスデンでオゾン委員会と合同でシンポジウムを開いているのだが、大気化学全般をカバーするシンポジウムでなかったというので正統のシンポジウムには数えないらしい。もっとも1962、1965、1969年のシンポジウムは第何回というふうには謳っておらず、1979年のポウルダーの時から第4回となっている。したがって、第1回～第3回を第1表のように当てるのがみんなの一致した見解であるかどうか疑問は残る。

ちなみに CACR 時代からの CACGP の会長は

W. Bleeker	(1957-63, オランダ)
B. Bolin	(1964-67, スウェーデン)
C. Junge	(1967-71, ドイツ, 1971まで CACR)
C. Junge	(1971-75, ドイツ, 1971以降 CACGP)
E. Martell	(1975-79, 米国)
P. Goldsmith	(1979-83, 米国)

* Report on 1994 CACGP/IGAC Symposium.

^{*1} Toshihiro Ogawa, 東京大学理学系研究科.

^{*2} Hidekazu Matsueda, 気象研究所地球化学研究部.

^{*3} Yutaka Kondo, 名古屋大学太陽地球環境研究所.

^{*4} Hiroshi Tanaka, 名古屋大学大気水圏科学研究所.

^{*5} Kimitaka Kawamura, 東京都立大学理学部.

© 1995 日本気象学会

第1表 CACGP シンポジウムの歴史.

回数	開催年	開催地	開催国	プロシーディングス
1	1962	ユトレヒト	オランダ	J. Geophys. Res. 68 (1963) 3745-
2	1965	ヴィスビー	スウェーデン	Tellus 18 (1966) 153-
3	1969	ハイデルベルグ	ドイツ	J. Geophys. Res. 75 (1970) 1700-
4	1979	ボウルダー	米国	J. Geophys. Res. 85 (1980) 7399-
5	1983	オックスフォード	英国	Atm. Environ. 18 (1984) 1715-
6	1987	ピーターバラ	カナダ	Tellus 40B (1988) 321-
7	1990	シャムルース	フランス	J. Atm. Chem. 14 (1992) 1-
8	1994	富士吉田	日本	Atm. Environ. 29 (1995) 予定

R. Duce (1983-90, 米国)
 H. Rodhe (1990-94, スウェーデン)
 H. Rodhe (1994- , スウェーデン)

である。どうも CACR から CACGP への改名の時期、すなわち C. Junge が会長に再任され E. Martell へと会長が移って行く時期に何かが起こったらしい。そういえばこの時期は大気化学の体質が随分変質した時期に当たるのではないか。

話を1994年にもどして、本番のシンポジウムと前後して、IGAC のいくつかのアクティビティの会合が開かれ、また IGAC の科学執行委員会（日本からは秋元肇、東京大学先端科学技術研究センター教授が委員）も開催された。さらに CACGP の委員会も平行して開催され、秋元肇教授が副会長に選出され、小川利紘は委員を再任された。今回の委員の選出に当たって、女性と若い研究者を数多く抜擢したことは歓迎すべきである。また次回の CACGP シンポジウムは米国のシアトルで開くことに決まった。(小川利紘)

2. セッション1 温室効果気体

このセッションは大会初日の9月5日から9月6日の午前の一部にわたって開かれ、口頭による論文発表が24件続いた。また、このセッションに直接関連するポスター発表が40件近くあり、他のセッションでも温室効果気体に係わる発表が行われた。ここで発表された気体の種類は、二酸化炭素 (CO₂) をはじめ、メタン (CH₄)、一酸化炭素 (CO)、一酸化二窒素 (N₂O) 及び多種のハロカーボンと多岐にわたっていた。研究手法の分野別からみても、1) 対流圏を中心とした大気変動の観測、2) 地上放出源のフラックス測定と地球規模の評価、及び 3) モデルによるアプローチなど幅広い分野の研究成果が報告された。関連する全ての研究テーマについて報告するには手に余るものがあるので、ここでは著者が特に印象に残った話題について紹

介する。

ドイツの Crutzen は冒頭のレビューの中で、最近のトピックの一つとして、これまで増加の一途を辿ってきた多くの温室効果気体が1990年前後に増加速度が急激に低下していることを紹介した。本大会でも、東京大学の巻出らや英国の Penkett のグループの Oram ら及びドイツの Fabian らにより、ハロカーボンの増加率が排出規制の効果によって低下していることが報告された。また、米国の Khalil らは、大気中の CO 濃度が過去の増加から一転して最近では減少傾向にあることを示し、その原因と考えられる放出量の減少と OH ラジカルの増加について考察した。大気中の CH₄ については、特に1992年頃に濃度増加が停止するほどの急激な異変が観測されている。英国の Law らはこの現象について二次元の光化学モデルを用いて解明する試みを行ったが、原因については CO と同様にまだまだ明確な解答が得られていないのが現状である。いづれにしても、最近の増加率の激変が一時的か長期化するのかについては、大気濃度の測定を地道に続けている研究の今後の結果が待たれるところである。

増加率の変動を探る研究分野では、いくつかの新しい成果が発表された。ニュージーランドの Manning らは大気中の CH₄ に含まれる炭素の同位体比を長期にわたって測定した結果を示し、同位体によるアプローチが有効な手段であることを紹介して強い関心を惹いた。ニュージーランドでは大気中の CO についても長期の同位体比の測定に関する興味深い結果が得られている。ポスターでは、名古屋大学の森泉らが CH₄ の放射性同位体に関する結果を報告し、さらに長期にわたって観測が続けられることが期待された。CO₂ については濃度とともに同位体比の観測結果がすでに多く蓄積されており、それらの結果を大気循環モデルで取り扱う研究が進んでいることが、米国の Erickson III らや米国の Dignon らによって紹介された。Man-

ning が指摘したように、 CH_4 や CO などの微量ガスの同位体観測をさらに拡充させて、モデルの精密・高度化を計っていく研究がこれから盛んに行われるものと思われる。一方、ドイツの Levin のグループの Maiss は、温室効果気体としては比較的馴染みの薄い六フッ化硫黄 (SF_6) を長期にわたって観測した結果を示し、このガスが大気及び海水のトレーサーとして極めて有用であることを紹介して注目を集めた。特に SF_6 と CH_4 の大気中での変動の關係に微妙な時間的差異が見いだされた点が非常に示唆に富んでいて印象に残った。 SF_6 に代表されるような温室効果気体と関連の深い他の気体の観測も、今後の研究の重要な課題の一つになるとと思われる。

地上から大気へ放出される温室効果気体の量的評価に関する研究は、ポスターを含めると最も発表件数が多い分野であった。特に、水田から放出される CH_4 や N_2O のフラックス測定が日本・中国を中心としたアジアの国々で活発に行われており、多くの成果が今回報告された。国際農林水産業研究センターの陽は、以前に見積もられた水田からの CH_4 放出量が過大評価であったことを報告するとともに、水田からのフラックスが時・空間的に大きく変動するため全世界の年間代表値を正確に見積もる困難さを指摘した。また、水田では放出量を抑制するための研究がすでに進んでいることが紹介された。

現在、最も注目されている放出源としては、最近の大気中の CH_4 の異変の原因として取りざたされているロシアの天然ガス生産などに伴う人為的放出がある。ロシアから参加した Fridman らは、経済危機の影響で国内の CH_4 発生量が近年 8-9% 程度減少している興味深い結果を報告した。また、他にもロシアの研究者による自然発生源の評価に関する結果が発表され、情報の少ないロシアの現状を理解する良い機会が得られた。一方、国立環境研究所のグループはロシアとの共同研究において地上及び航空機による多角的観測を実施し、シベリア地域からの温室効果気体の発生量に関する結果をポスターにおいて精力的に発表した。広大なツンドラ地帯を有するロシアは将来の温暖化にともなって誘発される発生源が眠っている重要な地域であり、さらに詳しい放出過程に関する観測・研究が必要であることを窺わせた。

熱帯域におけるバイオマス燃焼は、急速に進行している熱帯雨林の開発にともなって将来大気濃度に重要な影響を及ぼす放出源と考えられている。米国の Hao

は、バイオマス燃焼の時間・空間的発生を丹念に調べ、燃焼過程に伴う CO_2 , CH_4 , CO 及び炭化水素のグローバルな評価を行った結果を発表した。ポスターでは、米国の Holland のグループの Twonsend らが、熱帯雨林の伐採と耕地化に伴う生態系の変化が大気中の CO_2 に含まれる炭素の安定同位体比に大きな影響を及ぼしている可能性があることを発表し強い興味を惹いた。この研究は、熱帯域からの温室効果気体の発生が土地利用形態の変化に伴って量的にも質的にも変化することを指摘するもので、生物地球化学的研究によるアプローチも今後必要であることを強く示唆した。

今回のシンポジウムで象徴されるように、これまでの温室効果気体の研究は、大気観測、地上放出源の評価、及びモデルによるシミュレーションなどの各々の分野で大きな成果があげられてきた。しかし一方で、陸地から離れたバックランド中心の大気観測とフラックス測定に代表される地上発生源の観測との間には、観測の時間・空間スケールに大きな違いがあり、相互の研究結果の関連が極めて乏しく、これがモデルの精密化への大きな障壁になっていたことも事実である。最近、大気観測網は急速に発生源に近い陸上へと展開されつつある。また、地上発生源の研究では、航空機やタワーを利用したより大きいスケールを対象にした観測が試みられつつある。今後の温室効果気体の研究において、大気-陸上生態系との関係が重要視される中、すでに新たな展開が始まっていることを今回強く感じた。また、Crutzen が紹介したオゾンの研究計画 (International Tropospheric Ozone Years, ITOY) にもからんで、特に反応性の高い温室効果気体である CO や CH_4 及びハロカーボンなどの研究が熱帯地域を中心に新たな進展をみせていくと思われる。最近では特定の課題に限定して開催される研究集会も多い中で、本大会では様々な専門分野の研究者が一同に会し、広範な情報交換と将来の研究動向について議論ができた点で、非常に意義深いシンポジウムであった。(松枝秀和)

3. セッション2 対流圏オゾン

対流圏中のオゾンは大気の化学、物理に重要な働きをしている。まず、対流圏オゾンは赤外放射の吸収により、大気を加熱する作用があり大気の熱収支にとって重要である。またオゾンは化学反応性が強く、対流圏の光化学反応を駆動することを通し大気中の反応性成分の化学的な変質に大きな影響を及ぼす。

オゾンの光解離により生成される励起状態の酸素原子 $O(^1D)$ は水蒸気と反応して水酸分子(OH)を生成する。この反応はOHの主要な生成源である。OHは強い酸化力があり炭化水素をはじめとして多くの気体を、大気中から除去する作用をもっている。

対流圏におけるオゾンを中心とした化学反応系を理解するには、オゾンを生成・消滅させる化学反応に関わる物質の収支を知る必要がある。このような、反応系に関与している重要な気体には、窒素酸化物(NO_x , NO_y), PAN(パーオキシアセチル硝酸), 硝酸(HNO_3), 一酸化炭素(CO), メタン(CH_4), 非メタン炭化水素(NMHC), 水蒸気(H_2O), HO_x (OH, HO_2), H_2O_2 などがある。セッション2ではオゾン及びオゾンの前駆気体に関する研究発表がなされた。筆者の印象に残った研究発表について述べてみたい。

このセッションの冒頭にNOAAのFred FehsenfeldによってNorth Atlantic Regional Experiment(NARE)の研究成果の報告があった。NAREは北米大陸から放出された大気汚染物質(オゾンの前駆気体)がどのように大西洋に輸送され、大西洋上空の大気化学にどのような影響を与えているかを、評価しようとする研究プロジェクトである。引き続きNOAAのBuhrの講演では、NARE航空機観測の結果が紹介された。地上及び航空機観測の結果では、COとオゾンに強い相関があること、空気塊の東方への移動に伴ってCOとオゾンが相関を保ちつつ、大西洋上を輸送されることが見いだされた。この結果はオゾンの光化学生成・長距離輸送を調べる上でCOが重要なパラメータであることを強く印象づけた。オゾンの生成領域では窒素酸化物が重要な働きをしているが、 NO_x の HNO_3 への酸化及び引き続き HNO_3 の異相間反応過程による除去の時定数が短いため、生成領域から離れた場所でのオゾンと窒素酸化物の相関はより複雑になる。Buhrの講演では窒素酸化物の測定の報告があった。このプロジェクトで実施されている観測項目の豊富さ、化学・輸送モデルによる定量的なアプローチ、観測結果の解釈など、本セッションで最も優れた内容の講演であった。NAREに関しては、他の成分の観測やモデルの結果についての更にいくつかの報告があった。

IGACの中でNAREに相当する太平洋域の海洋大気化学プロジェクトとしてはEast Asian/North Pacific Regional Experiment(APARE)がある。Pacific Exploratory Mission(PEM-West)は多くの

点でNAREに匹敵する太平洋域の大気化学プロジェクトである。NASAは太平洋域、特に西太平洋域での大気化学環境の本格的航空機観測であるPEM-WestをGlobal Tropospheric Experiment(GTE)の一環として1991年及び1994年に実施した。この計画は、IGBP/IGACのAPAREの活動として位置付けられた。PEM-Westの大きな特長は1)大気微量成分を測定するグループ、2)詳細な気象解析、流跡線解析を行なうグループ、3)大気組成、気象データを用いてモデル計算を行なうグループに組織化されている点である。15のグループがそれぞれの測定器により航空機観測に参加した。この結果、NO, NO_y の他にオゾン、メタン、一酸化炭素、水蒸気、炭化水素、硫黄化合物、などが測定された。日本からは、我々名古屋大学と国立環境研究所のグループが参加した。ロードアイランド大学のBrian HeikesによりPEM-Westのoverviewが話された。西太平洋域においてもアジア大陸における人間活動により、オゾンや前駆気体が大きな影響を受けていることが、近藤豊、小池真、Brian Heikes等により報告された。豊橋技術科学大学の北田敏広により化学・輸送モデルの結果が示された。

アフリカや南アメリカなどの熱帯域におけるバイオマス燃焼のオゾンに及ぼす効果の研究は、1992年にアメリカ・ヨーロッパ合同のSTARE/SAFARI/TRACE-Aプロジェクトにより実施された。TRACE-AもPEM-Westと同様NASAがGTEの一環として行ったものである。これまでにNASAのJack Fishmanが行った、TOMS, SAGE等の人工衛星によるオゾン観測データの解析により、対流圏オゾンが熱帯域のバイオマス燃焼時に増加するということが知られていた。これをふまえて、熱帯域において航空機、地上から大気化学成分観測を大規模に展開したのが上記プロジェクトである。バイオマスの燃焼領域付近及びその下流域における大気組成の変成の様子が、Ann Thompson, Jack Fishmanらにより報告された。バイオマス燃焼の化学効果を定量化する上で大きな進展があったことを示した。また更に、NCARを中心にしたEXPRESSO(Experiment for Regional Sources and Sinks of Oxidants)が南アフリカを中心に1996-1997年に実施されようとしていることがPat Zimmermanにより紹介された。これもバイオマス燃焼の効果を調べるための大規模な航空機、地上観測を中心としたプロジェクトである。インドネシアにおけるバイオマスの燃焼については東京大学の小川利紘、LAPANの

Ninong Komala の発表があり、バイオマス燃焼の研究者の関心を引いた。

このほか、数値モデルによるグローバルなあるいはリージョナルな規模での大気化学・輸送の研究発表が NCAR の Guy Brasseur, Claire Granier などによりなされた。グローバルな観測が実施されつつある現在、これに対応してモデルの対象領域も拡大しつつある。グローバルなモデルはこれから発展する重要な分野であり、これと比較されるべき観測データの整備も今後ますます重要になる。

10年程前、筆者が Middle Atmosphere Program (MAP) 航空機観測により初めて本格的に対流圏大気化学の研究を始めた頃、対流圏化学の世界は、成層圏化学に比べ極めて曖昧模糊としたものだった。これは、対流圏の多くの成分のソースやシンクが空間的及び時間的に極めて変動が大きいことに起因している。しかし、この10年間の研究の進展により、対流圏化学の系統的な研究の方法ができつつあるように見える。その1つの理由として、成層圏化学の研究及び方法論の確立が大きな影響を及ぼしているように思える。成層圏化学においては各種レベルでの化学・輸送モデルが精密化され、観測との対応により化学・輸送過程を深く理解することが可能になっている。同様なモデルが対流圏に適用され、対流圏化学の世界をより整理した形で理解する方向に向かいつつある。また、観測技術の面でも、成層圏の観測のために開発された測定法が、対流圏の測定でも用いられ始めている（その逆もあるが）。対流圏化学は古くからの分野ではあるが、新しい視点からの研究により、大きな発展の時を迎えようとしていると考える。

本報告はアメリカの大型プロジェクトの研究発表を中心にまとめたので、国内及びヨーロッパの研究者の重要な研究成果を紹介することが出来なかったことを付記しておきたい。（近藤 豊）

4. セッション3 硫黄と窒素のサイクル

本セッションは大会3日目の9月8日（木）に行われ、Duce, Akimoto, Andrea の3氏による司会によって進行された。『硫黄と窒素のサイクル』がセッションのテーマではあるが、反応性窒素酸化物である窒素酸化物 (NO_x) やパーオキシアセチル硝酸 (PAN) はオゾンと密接に関連するため、前日の『対流圏オゾン』のセッションに組み込まれていた。従って、本セッションでは人為起源、あるいは海洋や土壌起源の窒素化合

物の大気への放出に関する発表が多かった。

秋元肇（東京大学）は冒頭に、アジア地域の工業化による硫黄酸化物や窒素酸化物（主としてサルフェート SO_4^{2-} とナイトレート NO_3^- ）の放出がいまや西欧諸国と同じレベルに達しており、降水の酸性化も急速に拡大していることを警告した。ただ、降水の酸性度が汚染物質の放出量ばかりでなく、土壌のアルカリ度にも強く依存する事実には興味を引かれた。P.S. Liss (East Anglia 大学) は、海洋大気中のエアロゾルと降水の中に、窒素と硫黄がモル比にしてそれぞれ1:1と2:1の割合で含まれていること、その含有比は前駆気体である硫化ジメチル (DMS) やアンモニア (NH_3) の海洋からの放出量の比率に対応していることを指摘し、大気と海洋を含んだ系で窒素サイクルと硫黄サイクルの相互作用を研究する必要性を強調した。海洋起源のアンモニアやアミン類の測定の重要性を遅まきながら感じさせられた。J.N. Galloway (Virginia 大学) と Z. Dianwoo (中国科学院) は、現在と将来の中国における肥料から出る窒素 (1990年に 18 TgN, 2020年に 50 TgN 以上) は米国を凌駕し、大気環境に大きな影響を与える危険性を指摘している。その他に、ベネズエラのサバンナから発生する酸化窒素 (NO) や、コスタリカの椰子林から発生する一酸化二窒素 (N_2O) と NO についてそれぞれ発表があったが、あまり印象に残っていない。

以上が窒素関連の発表であり、以後はすべて硫黄関連の発表である。次の『エアロゾルと雲化学』のセッションにおける硫黄化合物の研究を含めて、硫黄サイクルの人気は高い。硫黄は大気化学において決して主要なサイクルを構成してはいないが、硫酸が粒子化してエアロゾルとなり、さらに雲凝結核 (CCN) として雲粒を形成するという特殊な性質を持つためであろう。近年、硫黄循環とその気候への影響が興味の焦点となり、観測ばかりでなく、輸送モデルや大循環モデルを使ったシミュレーションが活発に行われるようになった。

Brasseur 氏のグループである M. Pham (Service d'Aeronomie) らは、三次元対流圏化学輸送モデル (IMAGES) により、各種硫黄化合物 (DMS, SO_2 , SO_4^{2-} , COS, DMSO, MSA, H_2S , CS_2) の酸化による硫酸エアロゾルの増加と太陽光反射による気候へのインパクトを調べ、産業革命前と現在とで比較した。北半球の工業地域を中心にかなり大きな負の放射強制力が得られていたが、具体的な値は覚えていない。また、

現在では OH などによる酸化能力が変化しているため、生物起源の硫黄化合物の分布にまでその影響が及んでいるという指摘は面白かった。Rodhe 氏のグループである J. Feichter (Max-Planck-Institute for Meteorology) らは三次元 GCM (ECHAM) を使い、エアロゾル分布の変化による気候システムの感度を調べた。硫黄化合物としては DMS, SO_2 , SO_4^{2-} の 3 種類であるが、OH による気相反応と H_2O_2 や O_3 による雲粒中の液相反応を取り入れている。やはり、北半球の三つの工業地域を中心に詳細な数値は忘れたが予想以上の気温低下が起きていた。これらの二つのエアロゾル-雲-気候のリンクの問題に関しては、後でやや詳しく述べてみたい。

S. Rapsomanikis and M.O. Andrea (Max-Planck-Institute for Chemistry), A.R. Bandy (Drexel 大学) ら、及び J. Hjorth and A. Saltelli (JRC) による三つの DMS 観測の講演が続いた。特に Bandy らは、 SO_2 , DMS, MSA (メタンスルホン酸), nss-SO_4^{2-} (non sea salt Sulfate) の他に DMSO や DMSO_2 などの中間体の測定も行っていたのは注目に値する。DMSO などは MSA よりも多量に発生している可能性もあるからである。これらの研究から、DMS から硫酸への分岐経路に関する理解が固まりつつある。C. Leck (Stockholm 大学) らは、夏の北極海で、大気境界層の DMS と CCN の濃度観測から、両者に非線形な関係が存在することを報告した。

Duce 氏のグループである J.M. Prospero (Miami 大学) らは、北大西洋のいくつかの島で 1989 年から連続的にエアロゾル中の nss-SO_4^{2-} と NO_3^- を測定してきた。その結果、陸を遠く離れた南太平洋に比べて、 NO_3^- で 5-17 倍、 nss-SO_4^{2-} で 2-7 倍の平均濃度が測定された。これらの 50-90% が人為起源であり、海洋大気汚染が拡大している証拠でもある。タイの降水の化学組成や中国における硫酸エアロゾルの増加についての発表があったが省略する。

日本から、島山史郎 (国立環境研究所) ら及び渡辺修三 (北海道大学) の二つの発表があった。前者は、APARE/PEACAMPOT による NO_x と SO_x の航空機観測について、後者は船舶による北太平洋の大気と海洋の DMS の観測についてである。ともに重要なデータであり、アーカイブされていくべきである。特に、海水中よりも大気中の DMS 濃度の変動がより大きい事実から、風による鉛直輸送の重要性が示唆されている。

本セッションの最後に、R.J. Delmas (CNRS) は、最終氷期の MSA と nss-SO_4^{2-} の増加が、海洋生産量の増加ではなくむしろ大気化学過程に起因すると述べていたが、残念ながらポイントを聞き逃してしまった。もしこれが本当なら、古気候変動論に一石を投じる重大な指摘である。

この会議の発表件数が多すぎてポスターセッションに回されたものも少なくなかった。海洋大気における硫黄化合物の季節変化をうまくモデルで表現した私どもの発表 (古賀聖二・田中浩) もその例外ではなかった。DMS の重要性を最初に指摘した Nguyen 氏もポスターに回されていたのはいささか気の毒だった。

大気の硫黄循環とそれに付随する研究は近年著しい発展の様相を呈している。まず、産業革命以前の人為的汚染のまったくない状況下の硫黄循環の様相はどのようになっていたのだろうかという素朴な疑問が研究の推進力となっている側面がある。次に、エアロゾル-雲-気候というリンクに基づく地球寒冷化 (あるいは温暖化の緩和) の可能性に対する興味である。前者の研究には、現在大気汚染を免れている外洋域における DMS とその酸化過程の研究が欠かせない。産業革命以前には、硫黄のソースの大部分は DMS (約 70% で残りは火山噴火など) である。しかし、現在では DMS は 15% ほどになり、人為起源が 70% を越えている。将来、地球全体が汚染されてしまうと、もはや自然状態を復元できなくなる恐れがあり、研究者に焦りがある。DMS を出発点とする硫黄循環は、数千年を越える時間規模 (例えば古気候変動) では大きく変化するかもしれないが、数 100 年の規模ではほとんど変化はないはずである。数 100 年規模の気候変化に影響するのは DMS ではなくずっと放出量の大きい人為起源の硫黄である。DMS を単純に短期の気候変化と結び付けるのは誤解を与える。

CCN はかつて降水物理学の視点から盛んに研究されたが、いまは雲と放射の視点からの研究に焦点が移っている。前者は『現状』の研究であったが、後者は『昔の状態との違い』の研究である。Twomey 氏は太陽光と雲アルベドの研究を数多く行ったが、GCM に組み込まなかったため、グローバルな結論を得ることができなかった。Rodhe 氏らのグループの研究によると、人為起源の硫黄放出の影響によりヨーロッパ、北米、東アジアを中心に、大きな冷却域が形成されている。この効果は、放射強制にして北半球で温暖化の約 50%、地球全体で約 25% となっている。ヨーロッパ

では、温暖化を上回る寒冷化が起きていることになっている。ただ、雲粒形成の非線形過程の解明が未だ十分でないこともあり、大きな不確定さを内蔵している『いま雲物理学が面白い』とは、まさにこの状況を指しているのである。

DMSの3人の神様、Bates氏、Andrea氏、Nguyen氏に会って、彼らが神様でないこともわかった。相変わらずBrasseur氏は物質循環モデルのマジシャンであったし、Rodhe氏は測定器にはまったく興味を示さない大気化学者（彼自身の言によると化学気象学者）であった。測定のみ固執することなく、概念展開やモデルに長けた化学者が外国に多いのは、歴史が育んだ土壌が背景にあるからだろうか。（田中 浩）

5. セッション4 エアロゾルと雲化学

このセッションは、17件の口頭発表（一件は未発表）からなっていた。また、本セッションに関するポスター発表は、雨、雪、雪氷を含めると約70件であった。雲物理学という言葉はよく耳にするが、雲化学はこれまであまり馴染みのなかった用語である。本セッションが設けられたことは、雲凝結核（CCN）など雲の諸過程においてエアロゾルの化学成分と化学反応が重要な役割を果たしているとの認識の反映であろう。このセッションにおける基調報告は、オーストラリアCSIROのG. Ayersによっておこなわれたが、その表題は「エアロゾルと雲化学：気候を支配する役割」であった。

口頭発表の多くは、硫黄化合物と雲過程に関するものであったが、その背景は、Charlsonら（1987）による硫化ジメチル（DMS）—雲—気候モデルがあると思われる。このモデルでは、海洋植物プランクトン起源のDMSが大気中で酸化を受け、 SO_2 、メタンスルホン酸（MSA）を経由して最終的に硫酸まで酸化される。海洋大気中でエアロゾルとして存在するMSA、硫酸は、高い吸湿性のために水蒸気が過飽和にある大気中ではCCNとして作用し、雲粒の形成に関与する。その結果、海洋生物起源のDMSの大気中での増加は、硫酸エアロゾル量を増大させ、雲のアルベド（太陽光

の反射率）を大きくし地表を冷却する。このモデルでは、生物と化学過程が気候という物理現象をコントロールするのである。

発表で議論された化合物は、海洋生物起源の硫化ジメチルの光化学反応生成物であるメタンスルホン酸及び硫酸、主要陽イオン、陰イオンである。対象とされたエアロゾルの採取は、太平洋、大西洋、南大洋など広い海域にわたっており、島での定点観測から研究船、航空機を使用したものまで含まれる。これらの結果は、エアロゾルの化学成分や光学的性質、粒子の粒径毎の数濃度、気温や風速との関係、日変化など様々な角度から解析された。しかし、海洋の生物活動、大気中の化学的諸過程および気候との関連は、複雑な諸過程からなっており、その理解はそう簡単ではないようだ。

一方、人為起源エアロゾルの長距離輸送に関する報告もいくつかあった。興味深かったのは、北太平洋上では生物起源のMSAよりむしろブラックカーボンや人間活動に由来する硫酸の方が、CCNの濃度に影響を与える、との報告である。南半球では、1970年以降急激な気温上昇を記録しているのに対して、北半球での気温上昇はそれほど顕著でない。北半球においては、人間活動に起因するエアロゾル粒子は、海洋大気中で、温室効果気体の増加による温暖化を打ち消す程の冷却効果をもっている可能性が高い。

本セッションでは無機成分に関する報告が大部分であるとはいえ、カルボン酸など有機物や全有機態炭素の報告もおこなわれた。エアロゾル中には、炭素化合物が質量として10%から多い場合には50%近く含まれる。最近、エアロゾルの粒径分布と数密度の研究から、炭素化合物は微細な粒子として存在し、無機物に比べCCNとしてより効果的に作用するとの報告がある。有機物は大気中で光化学的酸化を受けやすく、カルボン酸など水に容易に溶ける化合物に変化する。したがって、これら有機物は有力なCCNとして雲化学の諸過程に関与するものと考えられ、今後の研究の展開が期待される。（河村公隆）