



## 海洋表層・大気下層の物質循環に関する研究

植松 光 夫\*

### 1. はじめに

地球温暖化で気温が上昇しているが、地球全体で蓄積される 93% のエネルギーは海洋が吸収している。その主要因である人類によって放出された二酸化炭素も、海洋が約 30% を吸収している。また、地球上の酸素のほぼ半分は、海洋植物によって作られている。

海洋は地球表面の 71% を占めている。地球表面は 100%、大気によって覆われている。鉛直方向にどこまでが陸であり、海であるのかの違いをみると、地球中心部へ向かっては海底下の地殻から上部マントル中の深度 100 km ~ 300 km の間に存在するアセノスフェアまでその違いが存在する。また、上空を覆う大気は、地表から高度約 10 km までの対流圏で陸上大気と海洋大気として区別することができる。地球上の海洋環境を知るためには、海水内だけではなく、海水と海底、海水と陸地、そして海水と大気との境界面を通じた物質循環を把握しなければいけない。

既に顕在化しつつある地球環境変化に対して、自然がどのように応答し、新たなる変化を引き起こすのか。地球がもう後戻りもできない実験場のような環境下で、人類がいかに持続的な発展をしていくべきかということは、21 世紀の科学にとって最も重要な課題である。地球環境問題には、陸圏、大気圏、水圏にかかわる問題があり、それぞれ独立に研究が進められてきた。しかし、各圏間には密接な相互作用（リンケージ）が存在する。私の研究領域は海洋表層と大気下層の間で生じて

いる物質循環において、重要な役割を担う海水中の懸濁粒子と大気中のエアロゾル粒子の化学成分を中心としたものである。

この度、私の取り組んできた海洋化学と大気化学という境界分野での研究について、海洋化学の顕著な功績として認めていただき、第 33 回海洋化学学術賞（石橋賞）を授与されたことに大きな喜びと感謝の意を表す。本稿は、私がすでに総説（植松、2005、2014）として執筆した内容と重複する箇所もあるが、新たな知見や私見を加えて記述するものである。

### 2. 大気と海洋間の物質交換過程

大気中の気体は、海水中において未飽和で平衡状態に達していない場合、海水面から直接吸収される。また、白波や海水の泡立ちなどで、気泡に含まれた気体が水面下に運ばれ、水圧により溶け込む。大気から海洋へ液体として加わるのは、降水現象による。雨粒、雪粒、霧粒などが生成される時や、これらの粒が降下中に気体や浮遊する粒

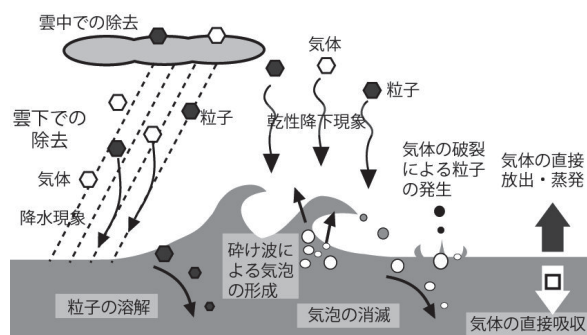


図 1. 大気と海洋間の物質の沈着と放出。

\*東京大学大気海洋研究所 名誉教授

子を取り込んで海水面へ沈着する(図1)。浮遊している粒子状物質(固体、液体)は、エアロゾルと呼ばれ、乾性沈着か、降水とともに大気中から除去される湿性沈着で海洋環境に入る。乾性沈着は継続して生じている。湿性沈着は断続的に発生し、雲形成の段階でエアロゾルが雲核として取り込まれる場合と雲の下で落下する粒子に衝突し除かれる場合がある。その除去過程は、化学成分によって異なる。また、黄砂現象や火山噴火、宇宙塵などによる突発的な物質供給も存在する。

海水中においては、有機物分解過程や生物活動中において生物起源気体が生成される。温暖化効果気体である二酸化炭素・メタン・亜酸化窒素・一酸化炭素・揮発性有機化合物(VOC)などが大気中へ放出される。VOCであるハロカーボン類は、ハロゲン原子(フッ素、塩素、臭素など)が結びついた炭素化合物の総称である。自然界には、塩化メチルや臭化メチルなどのハロカーボンが存在し、海洋から放出され、大気中でオゾン破壊やエアロゾル生成に関与する。またVOCは、大気中で酸化され、微小エアロゾルを形成する。これらの海水中で生成した気体成分は、大気中に放出されるが、放出量は、風速に大きく左右される。海洋大気中のエアロゾルの大部分を占める海塩粒子は、風などによって生成される気泡の破裂や砕け波などの過程を通して、大気中へ放出される。海塩粒子の化学成分は、海水成分とは異なり、微量元素や有機物質が濃縮されている。これは海面薄膜層(マイクロレイヤー)に、微量金属元素や溶存有機物質、そして破砕物やバクテリアなどを含む微小粒子が濃縮され、気泡の破裂とともに大気中に粒子として放出されるからである。洋上ではこれらの粒子は再び海面へ沈着し、循環しているが、大気中に浮遊中、放射強制力に影響を与えたり、大気中物質の除去や風系によって海面での成分の再分布を促したりする。

### 3. 大気を通して海洋へ輸送される陸起源物質

地球上でのエアロゾルの発生量は、海塩粒子が

年間3,340 Tg(10<sup>12</sup> g)とエアロゾル成分の中で最も大きい。大気中の平均滞留時間は、わずか1日程度である。洋上の微小粒子や気体を海洋へ効率よく取込む掃除役でもある。鉱物粒子発生量は、年間2,150 Tgと自然起源、人為起源を含めて海塩粒子に次いで二番目に大きく、平均滞留時間は4日程度である(IPCC, 2001)。陸起源物質、特に鉱物粒子は、発生源からそれほど遠くまでは運ばれていないと考えられていた。

#### 3.1. 自然起源物質

陸に主な起源を持つ気体やエアロゾルは陸から離れ外洋へ向かうに伴い、指数関数的に濃度が減少する傾向を示す(成田ら, 2005)。また、黄砂や、火山噴火、森林火災などの突発的な事象によって大気中へ放出される物質も海洋大気組成や海洋生態系に影響を与える。

Duceらは1979年に、北太平洋のマーシャル諸島のエニウエトク環礁で、大気エアロゾルの化学成分濃度を測定した。夏に比べて春に鉱物の指標である粒子状アルミニウム濃度が2桁も高く、それが8,000 kmも離れたアジア大陸の黄砂に由来するものだと結論した(Duce et al., 1980)。1981年には北太平洋上の島々に、大気エアロゾル採取装置と全降水採取器を設置して、時空間変動を測定した。その結果、春先に頻繁にアジア大陸で発生する砂嵐(黄砂)の鉱物粒子が、偏西風によって運ばれ、中緯度帯の北太平洋中央部を中心に、北はベーリング海、南は赤道付近まで広がっていることを明らかにした(Uematsu et al., 1983, 1985a)。海洋への鉱物粒子沈着量を見積もり、北太平洋中央部の海水中を沈降する陸起源物質の粒子束の大部分が、大気を通して運ばれていることを見出した(Uematsu et al., 1985b)。さらにAsian Dust Input to Oceanic System(ADIOS)航海では、北太平洋中央部の貧栄養海域において、降水、大気粒子状物質、セジメントトラップや現場濾過器を用いた海洋粒子状物質を採取し、アジア大陸からの大気物質の海洋環境へ

の影響を観測した結果、100  $\mu\text{m}$  に近い鉱物粒子が約 7,000 km も運ばれ、短時間で観測海域の海水中の粒子組成を大きく変化させたことを見出した (Betzer et al., 1988). この黄砂飛来時の荒天下で溶存酸素の鉛直分布は均一化され、基礎生産量は大きく増加していた (Young et al., 1991). 自然界で海洋に鉄が加わり、栄養塩が消費され、植物プランクトンのブルームとその終焉を迎えた過程を、初めて観測した例である。

これら一連の黄砂の発生と輸送過程について、気象観測結果を含めて、気象学的な解析を行った (Merrill et al., 1989). 成層圏、対流圏上部に起源を持つ天然放射性核種ベリリウム-7を用いて、太平洋中央部でその前駆体が陸起源物質である硝酸塩エアロゾルが、対流圏上部を經由して輸送されていることを示した (Uematsu et al., 1994; Uematsu, 1998). 1986年に起きたチェルノブイリ原発事故によって、人工放射性物質は地球を半周し、日本上空を越え、北太平洋上の観測網や米国研究船でも検出されたことなど (Uematsu et al., 1988) によって、大気物質長距離輸送モデルの基礎と検証の先鞭をつけた。

大気中エアロゾルは、湿性沈着か乾性沈着によって海洋に除去される。自動降水連続採取装置を太平洋横断定期貨物船上に搭載して一年間稼働させた結果、降水中の不溶性粒子化学組成は季節的に変動し、一回の降水時に除去される粒子数に

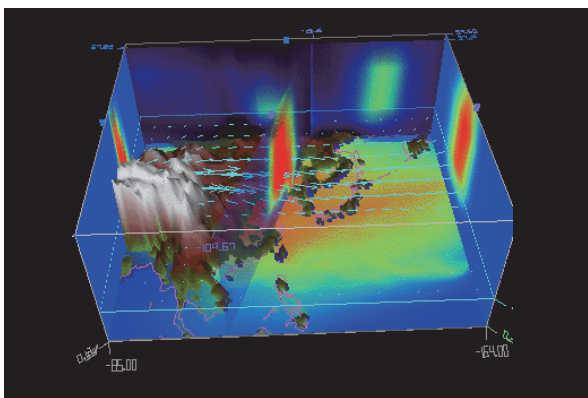


図2. アジア大陸の砂漠地帯から発生した黄砂が偏西風により日本上空、高度 2-7 km を太平洋へ東に輸送され、沈着する概念図。(Uematsu et al., GRL, 2003)

大きな変動がないことなどを見出した (Uematsu et al., 2000). このことから降水量ではなく、降水頻度によって鉱物粒子の沈着量が左右されることを明らかにした。さらに、黄砂輸送について、札幌において実測の降下量を基に輸送フラックスや降下量分布 (図2) を再現した (Uematsu et al., 2003). その後、2007年5月に発生した大規模な黄砂の場合、タクラマカン砂漠から上空 8-10 km まで運び上げられた黄砂が、13日間で地球を一周し、さらに東進し、北太平洋高気圧の縁辺で降下し、北太平洋上へ沈着したりする事例 (Uno et al., 2009) が、衛星観測やモデルによって再現された (図3). Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II (SEEDS II) による鉄散布実験 (Tsuda et al., 2007; Uematsu et al., 2009) では、人為的に加えた鉄を含む水塊内で、懸濁粒子の乾重量、個数濃度、体積濃度がクロロフィル濃度の増加と連動したが、特に有機物粒子が顕著に増加することを、個々の粒子の化学組成分析によって明らかにした (Iwamoto et

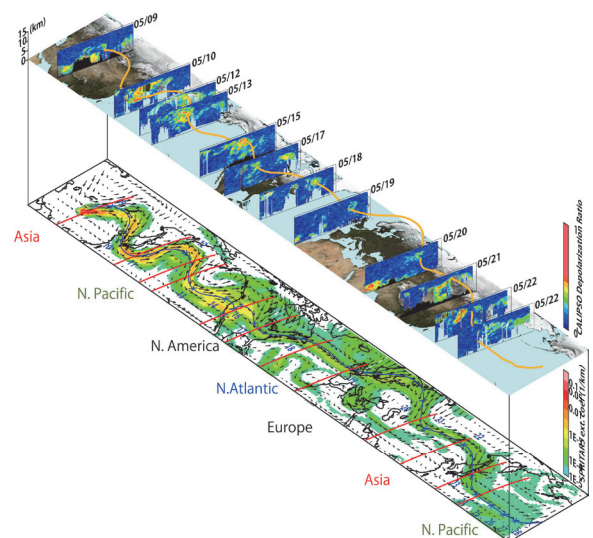


図3. 地球を一周する黄砂。流跡線: 2007/5/8 12:00 UTC に 40°N, 80°E 高度 6,000 m をスタートする (Uno et al., 2009). NASA 衛星搭載レーザーレーダーで計測されたダストの分布 (カラー) と、タクラマカン砂漠起源のダストの流跡線 (黄色)、全球エアロゾル輸送モデルのダスト濃度 (等値線) の 3次元表示. 上段はレーザーレーダーで検出された非球形粒子 (ダスト) の位置. 下段はダスト濃度。(九州大学鶴野教授提供)



al., 2009). 西部北太平洋亜寒帯海域では、黄砂の飛来時に発生した海霧によって、一気に大気中の鉱物粒子が、海洋に除去沈着した。その結果、海水中懸濁鉱物粒子が増加したことを実測し、鉄散布実験で添加された鉄と同程度の溶存態鉄が、自然界においても供給されていると結論づけた (Iwamoto et al., 2011)。

### 3.2. 人為起源物質

近年、東アジアでは、人為起源の窒素化合物の大気への放出量が、増加傾向にあり、海洋、特に東シナ海や日本海など縁辺海を中心とした西部北太平洋域において、沈着量の増加が認められている (Uno et al., 2007)。また、気象庁の栄養塩データを中心に、海洋表層水中の窒素化合物濃度についても、1980年以降増加の傾向を示し、その増加が大気からの窒素沈着によるものであることが示されている (Kim et al., 2011)。

長崎での集中観測によって、硫酸塩粒子などの人為起源物質が、寒冷前線直前の湿った空気塊に含まれ、その後から黄砂粒子が、乾燥した空気塊によって運ばれることを、高時間分解のサンプリングと X 線マイクロアナライザを用いた個別粒子化学分析によって明らかにした (Uematsu et al., 2002)。また鉱物粒子表面には硫酸ガスよりも、同じ人為起源である硝酸ガスの方が、吸着しやすいことを確かめた (Ooki and Uematsu, 2005)。さらに海洋エアロゾル中の無機窒素化合物の粒径分布を実測し、大気中濃度の高いアンモニウム微小粒子よりも、大気中濃度の低い硝酸塩大粒子の方が沈着速度が速いことから、硝酸塩の乾性沈着量がより大きいことを明らかにし、海洋への全無機窒素沈着量を見積もった (Matsumoto and Uematsu, 2009)。東シナ海においては、大気から東シナ海へのアンモニウム塩、硝酸塩の沈着量が、長江からの流入量に匹敵し、大気が海洋への栄養素の重要な供給経路であることを示した (Nakamura et al., 2005)。さらに水溶性有機態窒素は、陸に主な発生源を持ち、大気中で鉱物粒子

に特異的に吸着し、輸送されていることが分かった。全窒素に対する水溶性有機態窒素の割合は、平均 22% を占め、東アジアの影響を受ける海域では、水溶性有機態窒素が窒素循環に大きく影響を与えるものであることを示した (Nakamura et al., 2006)。大気中エアロゾル中のリンについても、西部北太平洋で高濃度であり、人為起源の水溶性成分の占める割合が高いことを見出した (Furutani et al., 2010)。東シナ海でのエアロゾル中の微量金属成分については、鉱物の指標元素の一つであるマンガンを含め、鉛、亜鉛、セレンなどが、非海塩性硫酸塩粒子と相関が高く、人為起源元素として微小粒子に存在する (Uematsu et al., 2010) ことを明らかにした。また、単一微粒子質量分析法 (ATOFMS) による個々の粒子の粒径と化学成分を解析し、東アジア縁辺海での鉄を含んだ微小エアロゾルは、大陸由来の石炭燃焼起源が多く、外洋大気中ではバナジウムが指標となる船舶の排気起源の鉄含有微小粒子の存在を指摘した (Furutani et al., 2011)。さらに微小粒子を粗大粒子である海塩粒子が取込み、微小粒子の除去が加速されていることを見出した。こうして太平洋上の海洋大気境界層に流入した気体やエアロゾルは、海塩粒子や鉱物粒子と共に海洋表面へ沈着し、鉱物粒子や人為起源粒子から溶け出した鉄や、海洋大気エアロゾルに吸着した硝酸やアンモニアが、海洋生物の栄養塩として利用される。

北太平洋亜寒帯に多発する海霧の pH は、日本海で 2.6、北太平洋北西部でも平均 4.0 という酸性であり (Sasakawa and Uematsu, 2002; 2005)、人為起源物質だけではなく、オホーツク海では海洋生物から放出される自然起源の硫黄化合物による場合もあることを示した (Ooki et al., 2003)。また、硝酸イオンが硫酸イオンに比べて、海霧に約 2 倍の効率で除去されていることがわかった (Sasakawa et al., 2003)。生物生産の高い亜寒帯海域で多発する海霧は、陸起源の窒素化合物を海洋へ供給する反面、硫酸塩微小粒子となる硫黄化合物を除去する存在である。大気から供給される

人為起源窒素化合物による海洋基礎生産に対する寄与の割合は、現時点で平均すると、新基礎生産量の10%以下程度であると見積もられている。

今まで窒素が不足気味の海域では、大気中の窒素を固定して生息する植物プランクトン中心の海洋生態系が維持されていた。しかし、大気からの窒素供給と、地球温暖化による表面水温の上昇に伴う海洋成層化の強まりと相まって、変化が生じ始めている可能性が考えられる。

Duceら(2008)は、地球規模の物質循環モデルによって、全海洋への窒素化合物の沈着量と、その将来予測をまとめた。2030年にはインド洋や西部太平洋域において、窒素供給量が数倍程度まで増加し、植物プランクトンも増加する。それによって大気中の二酸化炭素が海洋に吸収されるが、その約10%が大気からの窒素化合物の沈着による施肥効果の寄与であるとみなされる。しかし同時に、二酸化炭素の約300倍の地球温暖化指数を持つ一酸化二窒素が、海水中で生成、そして大気中に放出され、二酸化炭素減少による温暖化抑制効果の3分の2が相殺されると見積もった。

#### 4. 海洋から大気へ放出される海洋生物起源物質

海洋生態系の変化は、化学物質の供給や物理的な過程によっても引き起こされるが、海洋生物の生命活動や、死亡、腐敗によって、様々な気体が

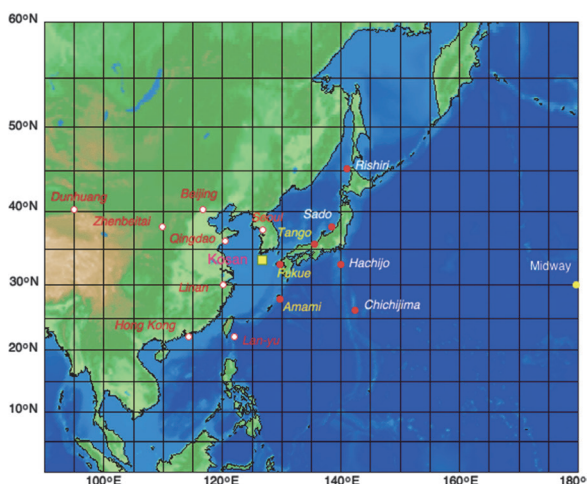


図4. ACE-Asia 国際集中観測網での東経140度線に沿ったVMAP大気観測局，利尻島，佐渡島，八丈島，父島。

吸収され、生成される (Kameyama et al., 2009; 2010)。その結果、二酸化炭素が大気から吸収され、硫化ジメチル (DMS) をはじめとする VOC (Hashimoto et al., 2009; Kurihara et al., 2010) が、海水中で生成され、大気中に放出 (Nagao et al., 2009)、粒子化されて、二次生成エアロゾルとして、大気エアロゾル組成に変化をもたらす (Ooki et al., 2007)。この定量的な議論は、現在、海面での二酸化炭素やDMSフラックスの実測 (Griessbaum et al., 2010) や、エアロゾルの鉛直フラックス測定によって取組まれている。特に南太平洋での外洋大気においては、北半球の海洋大気と比べ、人為起源物質の影響は極めて小さく、エアロゾル数濃度も低い (Jung et al., 2011)。そのような海洋大気環境下で、もし海洋生物生産が低下すれば、海洋生物起源エアロゾルの減少を導き、雲粒数濃度が低くなって、雲粒粒径が大きくなり、雲の寿命が短くなるなどから、温暖化が一層促進されることになる。仮説としては興味深いですが、定量的に評価する必要があるであろう。

生物生産性の高い東部太平洋赤道海域において海洋表層におけるリンの化学形態の観測を行った。その結果、リンの溶存態は赤道域で高く、粒子態濃度はほぼ同じレベルであった。太平洋赤道域の一つの観測点において、リン濃度は2-3桁濃度が高く、非常に濃縮されている事例が見つかった。この海域は一部の栄養塩が不足している。しかし、

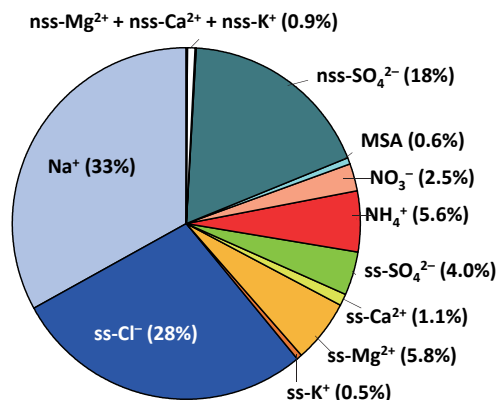


図5. 北西太平洋亜寒帯海域における大気エアロゾル中の主要無機イオン平均成分組成。(ss: 海塩性, nss: 非海塩性成分)

この観測点では、微量栄養塩の不足が緩和されていた。大気からの供給や珪藻などの粒子にリンが吸着し、濃縮係数の増加につながる事が考えられた。海面薄膜層においては、リンは濃縮されており、それが海洋大気へさらに濃縮されて供給、循環するが、その濃縮されたリンが別の海域へ大気を通して輸送され、生物生産へ使われる可能性を示唆した (Bureekul et al., 2014)。

## 5. 海洋大気エアロゾル組成の海域での特徴

海洋大気エアロゾル組成の平均的分布を把握するために、科学技術振興事業団（現、科学技術振興機構）による戦略的基礎研究「海洋大気エアロゾル組成の変動と影響予測」（FY1998-2003）では、日本の東経140度線に沿って、北緯45度の利尻島、佐渡島、八丈島、北緯25度近くの父島にまで大気観測局（図4）を設け、主要無機イオン組成を長期にわたり測定した（図5）。その後、2006年度から5年間行った特定領域研究「海洋表層・大気下層間の物質循環リンケージ（W-PASS）」（図6）において、研究船による海洋大気観測を行った（図7）。

## 5.1. 南北太平洋

南北太平洋における大気中の窒素化合物の特徴を船舶観測により明らかにした（図8）。南北太平洋におけるアンモニウムイオンと硝酸塩は、北太平洋での濃度が南太平洋での濃度より高く、似たような濃度変化傾向を示したが、北太平洋が南太平洋より窒素化合物の陸起源の影響を強く受けていることを示唆した (Jung et al., 2014)。南太平洋における大気エアロゾル中のアンモニウムイオン濃度は、南太平洋で人為起源由来のアンモニウムイオンだけを考慮して算定された濃度より1.2-6.3倍高く、海洋生物活動によって大気へ放出されたアンモニアガスである可能性を示した。

南北太平洋における雨水中の全無機窒素化合物に対するアンモニウムイオンと硝酸塩の寄与率は、それぞれ87%、13%であり、湿性沈着によって太平洋へ供給される無機窒素化合物の中にアンモニウムイオンが硝酸塩より重要であることが示唆された。また、南太平洋で採取した雨水中のアンモニウムイオンは、メタンスルホン酸と高い相関関係を示し、この海域では海洋生物の活動によって大気へ放出されたアンモニアガスが降水中に存

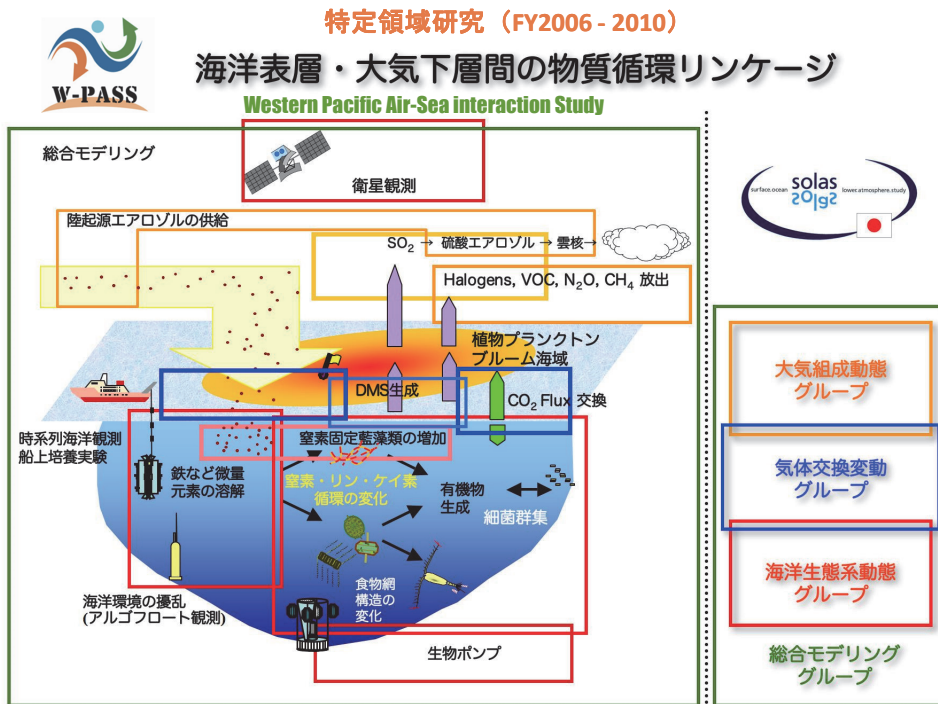


図6. 特定領域研究「海洋表層・大気下層間の物質循環リンケージ（W-PASS）」（FY2006-2010）の概念図。



SOLAS-Japan Major cruises

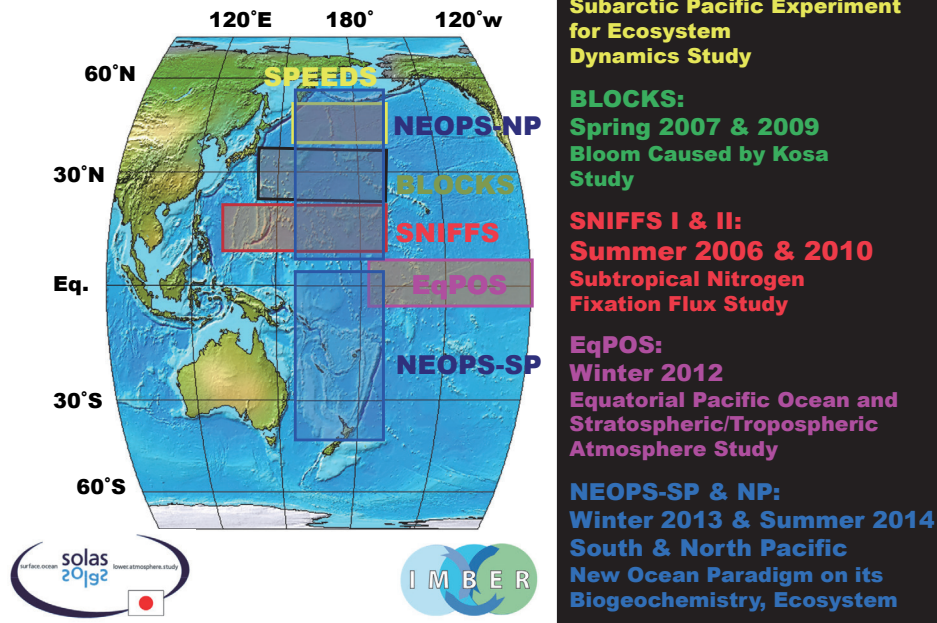


図7. 特定領域研究「大気海洋物質循環」以降からの研究航海の海域。

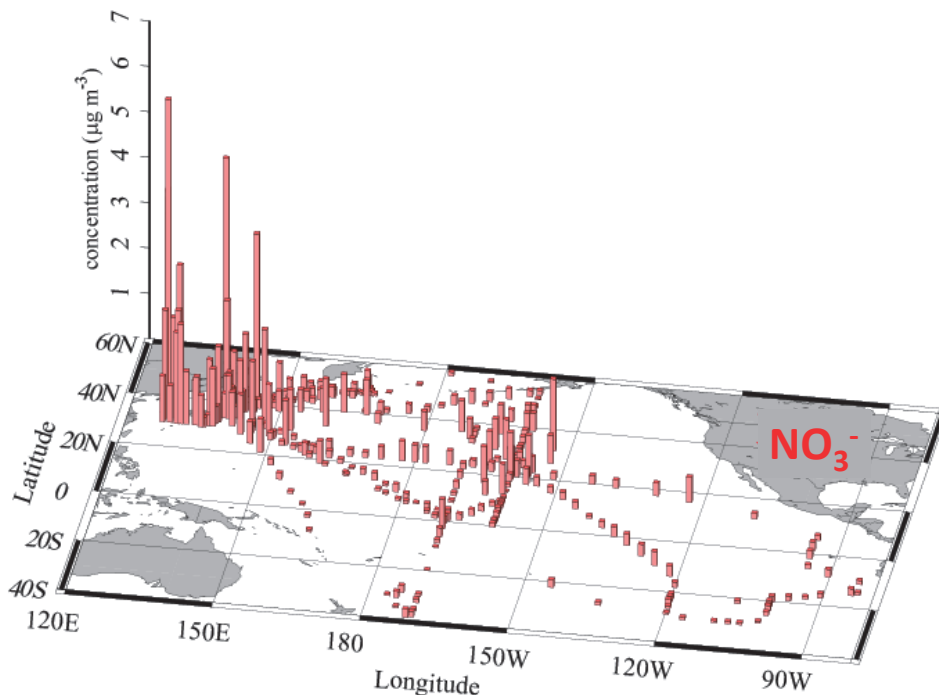


図8. 太平洋上の大気エアロゾル中の硝酸塩濃度の分布. 学術研究船「白鳳丸」の2003年から2014年までの結果を示す。

在するアンモニウムイオンの重要な起源であることを示唆した。南北太平洋における見積もられた全無機窒素化合物の平均乾性沈着量は、硝酸塩が主な無機窒素化合物であったが、湿性沈着にとってはアンモニウムイオンが重要な無機窒素化合物であった。南北太平洋における無機窒素化合物の

海洋生態系への影響として、南北太平洋における約0.86-1.7%の一次生物生産に寄与すると見積もられた。しかし、ダストイベントに伴う突発的な窒素化合物の沈着は短期間に多量の窒素化合物を海洋へ供給することができる。また、人為起源の窒素化合物の放出量は増加し続けている。従って

海の成層化による窒素が枯渇する海域では、大気からの窒素化合物の沈着は重要な窒素の供給源であり、海洋生態系を変える可能性がある。

北太平洋表面水中の懸濁粒子の粒子数・体積は、生物生産の高い亜寒帯海域で大きく、生物生産の低い亜熱帯海域で小さいという傾向が示された (Iwamoto and Uematsu, 2014)。いずれの海域においても、粒子数には有機物粒子、粒子体積には生物起源のケイ素・カルシウムを主成分とする粒子の占める割合が大きいことも明らかにした (図9)。これらの北太平洋における懸濁粒子の化学組成に関する広範囲のデータは1970年代以降得られておらず、詳細な分布を示すデータとして貴重である。大気からのアジア大陸起源物質の供給量の小さい夏季の北太平洋においても、陸起源鉍物粒子がバックグラウンドレベルで存在することが示された。鉍物粒子の化学組成が海洋大気エアロゾル中の鉍物粒子とは異なることが明らかにされた。海水中での鉍物粒子と他の粒子または溶存成分の吸着や粒子の溶解、異なる起源の粒子の水平方向の輸送などが原因として挙げられた。これらの結果は個別粒子分析によって初めて得られたものであり、今後海水中の溶存成分と粒子成分の相

互作用を明らかにする上での重要な知見を与えた。

## 5.2. インド洋

インド大陸に近い北インド洋海域では、南半球に位置する南インド洋海域と比べてアルミニウムと亜鉛などの微量元素は数倍～数十倍高濃度であった。これは、インド亜大陸からの鉍物起源と人為起源両方からの大気エアロゾルの流出が北インド洋海域で見られたためである。中国をはじめとする東アジアの影響を強く受けていた春季の西部北太平洋と同じ傾向が見られた。インド亜大陸から北インド洋へのアルミニウムと亜鉛の乾性沈着フラックスは、東部地中海沿岸での沈着量に匹敵する。一方、南インド洋海域は北インド洋海域と比べ、微量元素濃度は一桁低く、太平洋でのバックグラウンド濃度レベルであった。北インド洋においては、インド亜大陸から放出される人為起源微量元素の海洋環境へ与える影響が非常に大きいことを示唆していた。また、アラビア海では地殻起源の元素 (アルミニウム、カルシウム、鉄等) は80%以上が粗大粒子に存在していた。しかし、南インド洋では地殻起源元素は微小粒子に占める割合が多くなっており、これはアルミニウ

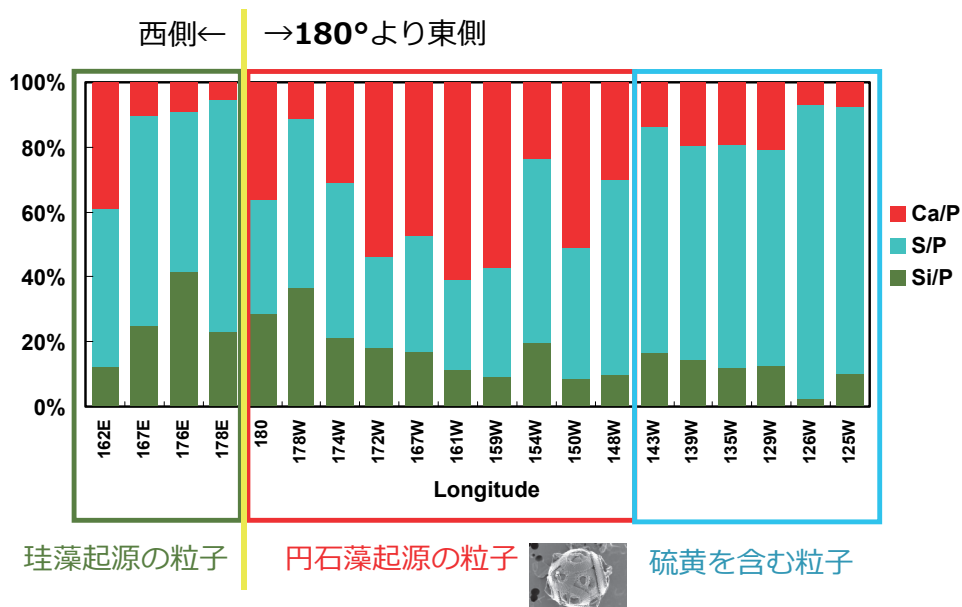


図9. 北部北太平洋における表面海水中の個々の懸濁粒子のリンとケイ素、イオウ、カルシウムの比の経度変化を示す。180°よりも西側で珪藻類が、東側の海域では円石藻起源の粒子の割合が大きいことがわかる。海洋生物起源気体の発生量にも関係すると考えられる。(Iwamoto and Uematsu, 2014 より一部改定)



ム等の地殻起源の粗大粒子が大陸から離れている為、選択的に除去されたことを示唆していた。一方、亜鉛など人為起源元素は南インド洋で粗大粒子の割合が少し増加しており、地殻起源の亜鉛の寄与の割合も増加していたことから、アラビア海に比べ相対的に人為起源粒子の寄与の割合が減少し、南インド洋固有の鉱物組成の影響が反映されていると考えられる。そして、南インド洋では、北インド洋で高かったアルミニウムに対する人為起源元素の重量比が赤道を境に南インド洋で急激に値が低くなっていた。これは北インド洋から輸送されてきた粒子が熱帯収束帯 (ITCZ) の降水現象等により除去され、南インド洋と北インド洋で空気塊や物質交換が遮られ、それぞれ特徴のある海洋大気環境を形成していると示唆される (成田ら, 2016)。成田ら (2016) の論文のアラビア海での鉛の平均滞留時間が2日と記述されているが、これは再計算により約100日であることが判明した。この場をお借りして訂正する。

## 6. 自然界の突発的現象とその影響

外洋域において、陸起源物質の濃度が急に高くなることが見られる。これは低気圧や高気圧の移動に伴って、陸起源空気塊が運ばれてくる場合や、陸上で上昇流によって対流圏上層まで運ばれた空気塊が洋上の高気圧縁辺域の下降流によって海洋大気境界層に降下する経路も存在する。

海洋上での突発的自然現象は、生物地球化学的物質循環にも大きな影響を与える。私が今まで関わったプロジェクトや研究航海で、予期せぬ突発的な現象を経験したことは、他の研究者よりも多いと思う。放射能物質やテフロンが発見に繋がるような serendipity (偶然に大発見をする幸運) とまではいかないが、こういった現象に遭遇したことは幸運であったとしかいいようがない。1986年の ADIOS 航海時の黄砂巨大粒子 (Betzer et al., 1988) やチェルノブイリ事故による人工放射性物質の飛来 (Uematsu et al., 1988) を始めとして、2001年の三宅島噴火による窒素化合物の供

給 (Uematsu et al., 2004)、2007年の黄砂と霧の出現 (Iwamoto et al., 2011)、2008年のアリューシャン列島の火山噴火による鉄供給、キラウエア火山噴煙による硫酸塩微小粒子生成 (Eguchi et al., 2011)、そして台風による海洋環境の擾乱など、これらの現象を確認したのは、現場観測だけではない。航海中の船上での衛星による大気や海洋の観測によって、これらの現象を確認し、その規模を把握することができたこともあった。これまでの観測データや衛星画像解析、モデルグループと連携し、洋上での突発的現象をモデルで再現できるかについて、定量的な議論が可能となってきた。大気科学と海洋科学のグループが互いに理解し合い、共通の課題に取り組み始めたのは、大気と海洋間の物質循環の重要性が認識されてきたからだと考えている。

## 7. 福島原発事故による空と海への汚染

2011年3月12日、私は地中海にあるマルタ島での GESAMP の会議が終わり、空港へ向かった。妻からは大きな地震があったと電話で確認したが、マンガ本がトイレに落ち、金魚の水槽の水がこぼれた程度だとの認識であった。マルタ島の空港でのテレビニュースでは、SF映画かと思うような日本からの悲惨な映像が延々と流れ続けていた。ドバイ経由で成田空港へは予定通り到着したが、空港はガラガラで寝袋が散乱していた。電車は動いてはおり、空いていたので、なかなかその被害の大きさを実感するには時間がかかった。この後、福島第一原子力発電所の事故により、大気中に放射性物質が放出され、海洋に高濃度汚染水の直接漏洩が生じた。ともかく3月23日から柏市の大気海洋研究所の屋上にエアサンプラを設置し、空気中のエアロゾルをフィルターで集め、ただちにガンマ線測定を始めた。なぜか柏地区は測定当初から濃度が高く、驚いた。海水の放射能測定は同じ頃、文部科学省が「海域モニタリング計画」を開始した。それからはあちらこちらで大気中や海水中の放射能が測定され始め、日本海洋学会の

震災対応ワーキンググループで、私はそのサンプリングと分析を誰がどこでやるのかのまとめ役を務めた。海洋の放射能汚染は我が国だけの問題ではなく、近隣諸国はもちろんのこと、環太平洋の国々へ不安をもたらすものである。にもかかわらず政府は、積極的な海洋放射能汚染についての公式見解を公表せず、海外のマスコミからの取材を個々の海洋化学者が受ける状況であった。当時、私は日本海洋学会長であったので、学会として積極的に国際学会やシンポジウム、会議などで震災関連セッションを持ち、特に世界の一般の方々に現状を知ってもらう努力をした。福島原発事故起源の放射性物質の海洋での拡散状況 (e.g., Aoyama et al., 2016) や、海洋での事故対応調査の経緯は植松ら (2014) に詳しい。

## 8. 世界を見て育つ

自分の研究を超えた幅広い国際的な活動への貢献という点、1996年2月に東京の国立オリンピック記念青少年総合センターで開かれた政府間海洋学委員会 (IOC) 第3回西太平洋地域委員会 (WESTPAC) 小委員会による政府間会合に、何かよくわからないまま参加したことに始まる。1994年に設立された東京大学海洋研究所の海洋科学国際共同研究センターの助教授として1997年に札幌の北海道東海大学から着任した。当時から国際センターが中心となって、東アジア諸国の人材育成に努めていた複数の二国間研究交流を支援し、2000年には10年間の沿岸海洋学 (CMS) プログラムが立ち上がるのをお手伝いした。その後は300名近いアジア諸国の研究者のネットワークが維持されている。国際センターはアジアの海洋研究の優秀な人材を育て、研究を進展させていたのだと、関係された多く先生方の先見の明と尽力に、改めて深い感銘を受けた。アジアも目に見えて進歩し、日本は育てる立場から、真のライバルとして向き合う時期が来たように感じている。

また、1960年にユネスコ総会でIOCの設立が認められて以来、東京大学海洋研究所、その後の

大気海洋研究所の国際センター教員はIOCの日本政府代表団の中心として、パリのユネスコ本部で毎年交互に開かれる執行情事と総会に出席し、日本の存在感を示しつつ、貢献してきた。アルゴフロートを使って全世界の海洋の状況をリアルタイムで監視・把握するシステムを構築する国際科学プロジェクトや津波早期警戒システムはIOCの主導した大きな成果といえる。現在ではアルゴフロートに生物地球化学的センサーを取り付け、観測することも149の加盟国から認められる状況にある。海洋の研究は一つの研究室、一つの研究機関、一つの国、一つの大洋には収まらず、すべての海洋を国際的な連携で進めなければならない。—One Planet, One Ocean— 世界をつなぐ海には国境はない。

## 9. おわりに

戦略的基礎研究「海洋大気エアロゾル組成の変動と影響予測 (VMAP)」(FY1998-2003) や、特定領域研究「海洋表層・大気下層間の物質循環リネージュ (W-PASS)」(FY2006-2010) などの大型研究計画の研究代表者として、大気と海洋間の物質循環の研究を化学だけではなく、物理、生物、地質、モデリング分野など多くの研究者と共に取り組むことができた。また、海洋化学の研究に大気化学との連携が不可欠であるとの認識も広まってきたと信じている。教育において、東京大学在職の21年間に修士号を19名、博士号を7名が取得した。ポスドクは8名、外国人研究者を6名受け入れ、学生も含めると8カ国のメンバーと過ごしたことになる。その前の北海道東海大学では海洋開発工学科の設立時からの10年間に学士が31名、修士5名、卒業後、他大学で博士号取得者4名が育った。教員1名で跡取りを残せない一代年寄の研究室であったが、見るに見かねて多くの方々が支えてくださり、このような人材が育ってくれたとひたすらに感謝するばかりである。これからも日本で育つ海洋化学分野の若手研究者が国際的な活躍をされることを祈念している。

## 参考文献

- Aoyama, M., Hamajima, Y., Hult, M., Uematsu, M., Oka, E., Tsumune, D. and Kumamoto, Y. (2016) <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the North Pacific Ocean derived from the March 2011 TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan: Part One - Surface pathway and vertical distributions, *J. Oceanogr.*, **72**, 53–65.
- Betzer, P. R., Carder, K. L., Duce, R. A., Merrill, J. T., Tindale, N. W., Uematsu, M., Costello, D. K., Young, R. W., Feely, R. A., Breland, J. A., Bernstein, R. E. and Greco, A. M. (1988) Long-range transport of giant mineral aerosol particles. *Nature*, **336**, 568–571.
- Bureekul, S., Murashima, Y., Furutani, H., Uematsu, M. (2014) Enrichment of particulate phosphorus in a Sea-Surface Microlayer over the Eastern Equatorial Pacific Ocean. *Geochem. J.*, **48**, e1-e7.
- Duce, R. A., Unni, C. K., Ray, B. J., Prospero, J. M., and Merrill, J. T. (1980) Long-range atmospheric transport of soil dust from Asia to the tropical North Pacific: temporal variability. *Science*, **209**, 1522–1524.
- Duce, R. A., LaRoche, J., Altieri, K., Arrigo, K. R., Baker, A. R., Capone, D. G., Cornell, S. R., Dentener, F., Galloway, J. N., Ganeshram, R. S., Geider, R. J., Jickells, T., Kuypers, M. M., Langlois, R., Liss, P. S., Liu, S. M., Middelburg, J. J., Moore, C. M., Nickovic, S., Oschlies, A., Pedersen, T. F., Prospero, J. M., Schlitzer, R., Seitzinger, S. P., Sorensen, L. L., Uematsu, M., Ulloa, O., Voss, M., Ward, B. and Zamora, L. (2008) Impacts of Atmospheric Anthropogenic Nitrogen on the Open Ocean. *Science*, **320**, 893–897.
- Eguchi, K., Uno, I., Yumimoto, K., Takemura, T., Nakajima, T. Y., Uematsu, M. and Liu, A. (2011) Modulation of Cloud Droplets and Radiation over the North Pacific by Sulfate Aerosol Erupted from Mount Kilauea. *SOLA*, **7**, 077–080.
- Furutani, H., Meguro, A., Iguchi, H. and Uematsu, M. (2010) Geographical distribution and sources of phosphorus in atmospheric aerosol over the North Pacific Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **37**, L03805, doi:10.1029/2009GL041367.
- Furutani, H., Jung, J., Miura, K., Takami, A., Kato, S., Kajii, Y. and Uematsu, M. (2011) Single-Particle Chemical Characterization and Source Apportionment of Iron-Containing Atmospheric Aerosols in Asian Outflow. *J. Geophys. Res.*, **116**, D18204, doi:10.1029/2011JD015867.
- Griessbaum, F., Moat, B. I., Narita, Y., Yelland, M. J., Klemm, O. and Uematsu, M. (2010) Uncertainties in wind speed dependent CO<sub>2</sub> transfer velocities due to airflow distortion at anemometer sites on ships. *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 5123–5133.
- Hashimoto, S., Toda, S., Narita, Y., Kurihara, M. K., Akatsuka, Y., Oda, H., Nagai, T., Nagao, I., Kato, S., Kudo, I., Suzuki, K. and Uematsu, M. (2009) Production and air-sea flux of methyl halides in the western subarctic Pacific in relation to phytoplankton pigment concentrations during iron fertilization experiment (SEEDS II). *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2928–2935.
- IPCC (2001) *Climate Change 2001: The Scientific Basis*, edited by J. T. Houghton et al., Cambridge Univ. Press, New York, 896 pp.
- Iwamoto, Y., Narita, Y., Tsuda, A. and Uematsu, M. (2009) Single particle analysis of oceanic suspended matter during the SEEDS II iron fertilization experiment. *Mar. Chem.*, **113**, 212–218.



- Iwamoto, Y., Yumimoto, K., Toratani, M., Tsuda, A., Miura, K., Uno, I. and Uematsu, M. (2011) Biogeochemical implications of increased mineral particle concentrations in surface waters of the northwestern North Pacific during an Asian dust event. *Geophys. Res. Lett.*, **38**, L01604, doi:10.1029/2010GL045906.
- Iwamoto, Y., and Uematsu, M. (2014) Spatial variation of biogenic and crustal elements in suspended particulate matter from surface waters of the North Pacific and its marginal seas. *Prog. Oceanogr.*, **126**, 211–223.
- Jung, J., Furutani, H. and Uematsu, M. (2011) Atmospheric inorganic nitrogen in marine aerosol and precipitation and its deposition to the North and South Pacific Oceans. *J. Atmos. Chem.*, **68**, 157–181.
- Jung, J., Furutani, H., Uematsu, M., Park, J. (2014) Distributions of atmospheric non-sea-salt sulfate and methanesulfonic acid over the Pacific Ocean between 48°N and 55°S during summer. *Atmos. Environ.*, **99**, 374–384.
- Kameyama, S., Tanimoto, H., Inomata, S., Tsunogai, U., Ooki, A., Yokouchi, Y., Takeda, S., Obata, H. and Uematsu, M. (2009) Equilibrator inlet-proton transfer reaction-mass spectrometry (EI-PTR-MS) for sensitive, high-resolution measurement of dimethyl sulfide dissolved in seawater. *Anal. Chem.*, **81**, 9021–9026.
- Kameyama, S., Tanimoto, H., Inomata, S., Tsunogai, U., Ooki, A., Yokouchi, Y., Takeda, S., Obata, H. and Uematsu, M. (2010) High-resolution measurement of multiple volatile organic compounds dissolved in seawater using equilibrator inlet-proton transfer reaction-mass spectrometry (EI-PTR-MS). *Mar. Chem.*, **122**, 59–73.
- Kim, T.-W., Lee, K., Najjar, R. G., Jeong, H.-D. and Jeong, H. J. (2011) Increasing N abundance in the Northwestern Pacific Ocean due to atmospheric nitrogen deposition. *Science*, **334**, 505–509.
- Kurihara, M. K., Kimura, M., Iwamoto, Y., Narita, Y., Ooki, A., Eum, Y.-J., Tsuda, A., Suzuki, K., Tani, Y., Yokouchi, Y., Uematsu, M. and Hashimoto, S. (2010) Linkage between ocean and air in short-lived iodocarbons and oceanic distributions of biogenic trace gases in the western North Pacific. *Mar. Chem.*, **118**, 156–170.
- Matsumoto, K., and Uematsu, M. (2009) Geographical distribution of particle number density in the accumulation mode range over the North Pacific Ocean. *Atmos. Res.*, **92**, 251–257.
- Merrill, J. T., Uematsu, M. and Bleck, R. (1989) Meteorological analysis of long range transport of mineral aerosols over the North Pacific. *J. Geophys. Res.*, **94**, 8584–8598.
- Nagao, I., Hashimoto, S., Toda, S., Narita, Y., Suzuki, K., Tsuda, A., Saito, H., Kudo, I., Kato, K., Kajii, Y. and Uematsu, M. (2009) Responses of seawater and atmospheric DMS to iron enrichment experiment (SEEDS-II) in the subarctic western North Pacific. *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2899–2917.
- Nakamura, T., Matsumoto, K. and Uematsu, M. (2005) Chemical properties of aerosols and transport from the Asian continent to the East China Sea in autumn. *Atmos. Environ.*, **39**, 1749–1758.
- Nakamura, T., Ogawa, H., Kumar, D. M. and Uematsu, M. (2006) Contribution of water soluble organic nitrogen to total nitrogen in marine aerosols over the East China Sea and western North Pacific. *Atmos. Environ.*, **40**, 7259–7264.

- 成田祥, 宇井剛史, 植松光夫 (2005) 2001 年春季におけるアジア大陸から西部北太平洋への地殻起源元素及び人為起源元素の大気輸送. 地球化学, **39**, 1-15.
- 成田祥・森本大介・植松光夫 (2016) インド洋における海洋エアロゾル中の化学成分の特徴と分布. 月刊海洋 / 号外 **58**, 111-116.
- Ooki, A., Miura, K. and Uematsu, M. (2003) The increase of biogenic sulfate and particle number over the high primary productive region in the northwestern North Pacific. *J. Oceanogr.* **59**, 799-807.
- Ooki, A. and Uematsu, M. (2005) Chemical interactions between mineral dust particles and acid gases during Asian dust events. *J. Geophys. Res.* **110**, doi:10.1029/2004JD004737.
- Ooki, A., Uematsu, M. and Noriki, S. (2007) Size-resolved sulfate and ammonium measurements in marine boundary layer over the North and South Pacific. *Atmos. Environ.*, **41**, 81-91.
- Sasakawa, M. and Uematsu, M. (2002) Chemical composition of aerosol, sea fog, and rainwater in the marine boundary layer of the northwestern North Pacific and its marginal seas. *J. Geophys. Res.* **107**, 4783, doi:10.1029/2001JD001004.
- Sasakawa, M., Ooki, A. and Uematsu, M. (2003) Aerosol size distribution during sea fog and its scavenge process of chemical substances over the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002JD002329.
- Sasakawa, M. and Uematsu, M. (2005) The acidifying process of sea fog over the northern North Pacific and its marginal seas. *Atmos. Environ.* **39**, 1357-1362.
- Tsuda, A., Takeda, S., Saito, H., Nishioka, J., Kudo, I., Nojiri, Y., Suzuki, K., Uematsu, M., Wells, M.L., Tsumune, D., Yoshimura, T., Aono, T., Aramaki, T., Cochlan, W.P., Hayakawa, M., Imai, K., Isada, T., Iwamoto, Y., Johnson, W.K., Kameyama, S., Kato, S., Kiyosawa, H., Kondo, Y., Levasseur, M., Machida, R., Nagao, I., Nakagawa, F., Nakanishi, T., Nakatsuka, S., Narita, A., Noiri, Y., Obata, H., Ogawa, H., Oguma, K., Ono, T., Sakuragi, T., Sasakawa, M., Sato, M., Shimamoto, A., Takata, H., Trick, C.G., Watanabe, Y.Y., Wong, C.S. and Yoshie, N. (2007) Evidence for the grazing hypothesis: Grazing reduces phytoplankton responses of the HNLC ecosystem to iron enrichment in the western subarctic Pacific (SEEDS II). *J. Oceanogr.*, **63**, 983-994.
- 植松光夫 (2005) 海洋大気エアロゾルの挙動と組成変動に関する地球化学的研究 -2004 年度日本地球化学会賞受賞記念論文. 地球化学, **39**, 197-208.
- 植松光夫 (2013) 大気圏を通して海洋に運ばれる化学物質に関する研究 -2009 年度日本海洋学会賞受賞記念論文. 海の研究, **22**, 35-45.
- 植松光夫・河野健・津田敦 (2014) 海洋上での緊急震災対応調査. 原発事故環境汚染—福島第一原発事故の地球科学的側面, 中島映至, 大原利真, 植松光夫, 恩田裕一 編, 東京大学出版会, 241-250.
- Uematsu, M., Duce, R. A., Prospero, J. M., Chen, L. Q., Merrill, J. T. and McDonald, R. L. (1983) Transport of mineral aerosol from Asia over the North Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.*, **88**, 5343-5352.
- Uematsu, M., Duce, R. A., Nakaya, S., and Tsunogai, S. (1985a): Short-term temporal variability of eolian particles in surface waters of the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.*, **90**, 1167-1172.
- Uematsu, M., Duce, R. A., and Prospero, J. M. (1985b) Deposition of atmospheric mineral

- particles in the North Pacific Ocean. *J. Atmos. Chem.*, **3**, 123–138.
- Uematsu, M., Merrill, J. T., Patterson, T. L., Duce, R. A. and Prospero, J. M. (1988) Aerosol residence times and iodine gas/particle conversion over the North Pacific as determined from Chernobyl radioactivity. *Geochem. J.*, **22**, 157–163.
- Uematsu, M., Merrill, J., Patterson, T., Duce, R. and Prospero, J. (1988) Aerosol residence times and iodine gas/particle conversion over the North Pacific as determined from Chernobyl radioactivity. *Geochem. J.*, **22**, 157–163.
- Uematsu, M., Duce, R. A. and Prospero, J. M. (1994) Atmosphere beryllium-7 concentrations over the Pacific Ocean. *Geophys. Res. Lett.*, **21**, 561–564.
- Uematsu, M. (1998) Distribution and characterization of Asian aerosols over the Western North Pacific region. *Global Environ. Res.*, **2**, 39–45.
- Uematsu, M., Kinoshita, K. and Nojiri, Y. (2000) Scavenging of insoluble particles from the marine atmosphere over the sub-Arctic North Pacific. *J. Atmos. Chem.*, **35**, 151–164.
- Uematsu, M., Yoshikawa, A., Muraki, H., Arao, K. and Uno, I. (2002) Transport of mineral and anthropogenic aerosols during a Kosa event over Asia. *J. Geophys. Res.*, **107**, 10.1029/2001JD000333.
- Uematsu, M., Wang, Z., and Uno, I. (2003) Atmospheric input of mineral dust to the western North Pacific based on direct measurements and a regional chemical transport model” *Geophys. Res. Lett.*, **30**, 1342, doi:10.1029/2002GL016645.
- Uematsu, M., Toratani, M., Kajino, M., Narita, Y., Senga, Y. and Kimoto, T. (2004) Enhancement of primary productivity in the western North Pacific caused by the eruption of the Miyake-jima Volcano. *Geophys. Res. Lett.*, **31**, doi:10.1029/2003GL018790.
- Uematsu, M., Wells, M. L., Tsuda, A., and Saito, H. (2009) Introduction to Subarctic iron Enrichment for Ecosystem Dynamics Study II (SEEDS II). *Deep-Sea Res. II*, **56**, 2731–2732.
- Uematsu, M., Hattori, H., Nakamura, T., Narita, Y., Jung, J., Matsumoto, K. and Kumar, D. (2010) Atmospheric transport and deposition of anthropogenic substances from the Asia continent to the East China Sea. *Mar. Chem.*, **120**, 108–115.
- Uno, I., Uematsu, M., Hara, Y., He, Y. J., Ohara, T., Mori, A., Kamaya, T., Murano, K., Sadanaga, Y. and Bandow, H. (2007) Numerical Study of the Atmospheric Input of Anthropogenic Total Nitrate to the Marginal Seas in the Western North Pacific Region. *Geophys. Res. Lett.*, **34**, L17817, doi:10.1029/2007GL030338.
- Uno, I., Eguchi, K., Yumimoto, K., Takemura, T., Shimizu, A., Uematsu, M., Liu, Z., Wang, Z., Hara, Y. and Sugimoto, N. (2009) Asian dust transported one full circuit around the globe. *Nature Geoscience*, **2**, 557–560.
- Young, R., Carder, K., Betzer, P., Costello, D., Duce, R., Ditullio, J., Tindale, N., Laws, E., Uematsu, M., Merrill, J. and Feely, R. (1991) Atmospheric iron inputs and primary productivity: phytoplankton responses in the North Pacific. *Global Biogeochem. Cycles*, **5**, 119–134.