

2004年度日本地球化学会賞受賞記念論文

## 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

植松光夫\*

(2005年9月13日受付, 2005年10月26日受理)

### Geochemical studies on the variability of chemical composition and behavior of marine atmospheric aerosols

Mitsuo UEMATSU\*

\* Ocean Research Institute, The University of Tokyo,  
1-15-1 Minamidai, Nakano-ku, Tokyo 164-8639, Japan

The biogeochemical interactions and feedbacks between the ocean and the atmosphere affect and are affected by climate and environmental changes. I have been studying the variability of chemical composition and behavior of marine atmospheric aerosols from the biogeochemical point of view since the early 1980's. My contributions to our understanding of atmospheric aerosol processes are reviewed here: Anthropogenic and mineral dust aerosols from the Asian continent are found to be transported over the large area of the North Pacific Ocean and to affect the global radiation budget and climate. Atmospheric transport of the aerosols, their chemical and physical interactions and scavenging processes within the marine boundary layer are explained in detail. The impact of atmospheric deposition flux over the sea surface is also found to strongly influence chemical and biological processes in water column and affect rates of marine biological activities. Marine aerosol properties are suggested to be altered by feedbacks from marine biological processes. To achieve the quantitative understanding of the linkages among the ocean, the atmosphere and climate, it is necessary to collaborate with groups of marine biology, physical oceanography, meteorology and modeling.

Finally, I am indeed honored to have been selected to receive the 2004 Geochemical Society of Japan Award.

**Key words:** marine atmosphere, aerosol, mineral dust, anthropogenic materials, atmospheric transport

#### 1. はじめに

グローバルという言葉が多くの研究者に使われるようになったのは、1980年代に入ってからではないだろうか。その頃まで地球規模の物質循環を対象とした研究は、少数の研究グループによってしか取り組まれていなかったと記憶している。グローバルという単語も

耳慣れないものだった。1987年に Global を冠した学術雑誌が米国で出版されるに至った。その頃までは、海洋においても大気においても、地球規模というと、広大な外洋域での研究であり、人為起源の直接的影響のないとされるようなバックグラウンド大気中での研究であると考えられていた。地域規模での研究は、海洋においては沿岸域や湾での観測などであり、大気においては都市大気の発生源と拡散などというスケールで、個々の事象がそれぞれ独立して取り上げられていた。その結果、地域的な研究成果は国際的な関心を集

\* 東京大学海洋研究所  
〒164 8639 東京都中野区南台1 15 1  
E-mail: uematsu@ori.u-tokyo.ac.jp

めることが極めて難しい時代であったかもしれない。

いまや地域で起こることは地域だけの問題ではなく、地球規模の問題へとつながり、また逆に地球規模での変化が地域に大きな影響を及ぼすというリンケージの存在が認識され始めた。例えば、大気汚染問題について、日本はいち早く実態把握とその改善に努力を払い、酸性雨問題とともに対処して来た。当時、都市域の大気環境ということを中心に、観測や対策が講じられたが、しだいに都道府県の境を越え、さらに国を越えての越境大気汚染、今や大洋を挟んだ大陸間での長距離大気汚染が取り沙汰されるようになった。

大気中で物質のもっとも顕著な長距離輸送の例は、陸上の人類活動から大気に放出された二酸化炭素が挙げられる。大気中の二酸化炭素の寿命は50~200年と見積られており、全球の大気中二酸化炭素濃度が季節変動を伴いながら、年々増加しているのは周知のとおりである。しかし、北太平洋亜熱帯海域のマーシャル諸島周辺で行われた核実験は、発生源周辺域に影響を与えるだけのものと信じられており、大気物質が地球規模での放射能汚染を引き起こすとは想像もしていなかった。エアロゾルに関しては、その平均滞留時間も数日のオーダーであるため、1980年以前には、ほとんど誰も地球規模で拡散しているとは考えていなかったのだろう。

大気で生じる現象は、例えば、毎年日本周辺を脅かす台風のように、規模、発生頻度、経路など大きく異なり、各台風の名前が付けられるくらい個性的で、一過性のものであり、再現性に乏しい。海の上での大気、特に海面から1~2 kmまでの海洋大気境界層内でのエアロゾルが、どんな化学組成を持って、どのように挙動をしているのか、また、それはいったい何によって左右されているのだろうか。

地球表面の3分の2を占める海洋上での大気化学研究は、船舶、航空機、離島を用いる極めて限られた条件での野外調査が必要であり、平均滞留時間の短いエアロゾルの時空間的変動は、陸上域ほどよく知られていない。降水現象や海霧の中では、当然エアロゾルの化学組成も濃度も変化する。そんな中で、海洋大気エアロゾルの平均的な時空間的変動を描くためには、ともかく、まず測ってみることから始めるしかなかった。

振り返ってみると、なぜか私が関わるプロジェクトや観測航海などに限って、予期せぬ自然現象が発生し、その発見によって私の自然観が形成され続けてい

るように感じる。新しい分析装置を使って、誰も測ったことのない成分や超微量成分を測定するというアプローチも魅力的だ。だが学生実験でも十分測定可能な主要成分を、誰も採取できないような場所や時間スケールで測定し、自然現象を解き明かす手法もひとつのやり方である。大気中で生じる化学的な反応だけでは説明のつかない自然現象に、私は取り組んできたように思う。本稿では、普段論文では書けない話題も入れて記述することにした。

## 2. 大気を通して海洋へ輸送される陸起源物質

私は1980年3月に、海洋における鉄、マンガン、アルミニウムの挙動についての研究で、北海道大学から水産学博士を授与された。海水中の懸濁粒子や沈降粒子中の地殻起源の元素を測定し、深さとともに鉄やマンガンが粒子に濃縮され、フラックスが増加することや、海底から底層水へのマンガンの溶出量などを定量的に議論した(Tsunogai and Uematsu, 1978; Tsunogai *et al.*, 1980; Tsunogai *et al.*, 1982; Uematsu and Tsunogai, 1983)。修士2年の頃、修了後に一年ぐらい留学したいと思った。これはと感じた米国の研究者達に手紙を出し、断られはしたが、誠実な返事を何人かからいただいた。そんなこともあって、日本で研究者としての免許である博士号を取ってからだと考え直した。いよいよ学位論文もまとまりつつあった1978年に、米国NSF, NOAA, ONRが中心となって、海洋化学分野で新しく学位を取る予定者と取得直後の者を集めて第1回DISCO(Dissertations Symposium on Chemical Oceanography)シンポジウムが開催されることになり、名古屋大学の田上英一郎さんと応募したところ、2人一緒に招待された。米国側からは日本に一番近いハワイから開催地のマイアミまでの旅費を、研究室では日本で一番離れている沖縄へ行く援助ということで、渡航旅費をなんとか捻出していただいた。今の妻である彼女に見送られて、羽田空港から中華航空で飛び立った記憶がある。シンポジウム終了後、米国東海岸を北上し、Skidaway Institute of Oceanography, University of Maryland, University of Rhode Island, Woods Hole Oceanographic Instituteの4カ所をポストドックとしての職探しもかねて訪問した。

学位取得後、URIのBob Duce教授が中心となったSEAREX(Sea-Air Exchange)計画申請がNSF

を通り、Research Associateとして採用決定となった。故郷の岸和田祭りを結婚直後の妻に見せた翌日、1980年9月16日に、2人で渡米した。研究室は、Narragansett 湾の研究船用埠頭が目の前にある Bay Campus の州立原子炉センターに継ぎ足されたトレーラーハウス群の個室が割り当てられた。そして2 MW の研究用原子炉と4台のガンマ線測定装置が、中性子放射化分析のために、ほとんど自由に使えることになった。

Duceらは1979年に、北太平洋のマーシャル諸島の Enewetak Atoll で、全く汚染されていない大気エアロゾルの化学成分濃度、バックグラウンド濃度を測定しようと、高さ25 m のタワーを建て、観測を開始した。夏に比べて春に鉱物粒子濃度が二桁も高く、それが8,000 km も離れたアジア大陸の黄沙に由来するものだと結論した (Duce *et al.*, 1980)。タワー建設中に台風が襲い、作業が大幅に遅れ、観測が春にずれ込んだことがこの発見を導いた。これがきっかけとなり、黄沙がどの季節にどこまで輸送されているのか確かめるため、最終的には南北両太平洋の島嶼に観測点を設けることになった (Fig. 1)。1981年1月に、University of Miami の Joe Prospero 教授のハイポリウムエアサンプラーと、私自作の全沈着物採取装置をハワイに送り、そこから、Midway Island, Palau へ設置に出かけた。Fanning Island には、自家用航空機を持つ University of Hawaii の教授に依頼し、設置していただいた。その結果、春先に頻繁にアジア大陸で

発生する砂嵐 (黄沙) 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; Uematsu *et al.*, 1985a)。また、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)。

クリーンルームで、ハワイの Oahu Island から送られてきたフィルターを1枚ずつ開いて観察すると、本当にきれいな濃い黄土色をしているのに見とれてしまった。しかし、他の Al 濃度の高いフィルター試料の色がなぜか灰色で、その濃淡と Al 濃度と相関があるように感じていたが、当時確かめる術はなかった。太平洋の島々で採取された全沈着物質試料は、折畳み式のプラスチック容器で送り戻される。容器の中で、種が試料水の中で芽を出してもやしのように漂っていたり、蜂が浮いていたりで、設置に出かけた島々の風景が思い出された。現場を訪れておくという主義はとても大事なことだと思う。これらの混入物のいくつかは個々に放射化分析をしたが、興味ある元素については、ほとんど検出限界以下であった。

渡米後、最初の発表は SEAREX の Workshop であった。メンバーの Yale University の Karl Turekian 教授から、お前はドーナツの穴を見ていると一喝された。反論して発表を終わったら、15分の予定が1時間になり、後で周囲の連中に good fight と言われ、Karl から、ええ仕事してるでと褒められた。日本の研究室での議論の応酬が身に付いていたせいかもしれない。自分の英語が通じているのと、質問者達の興奮気味の英語がよくわかったことに驚いてしまった。

苦い思い出は、1982年2月 AGU/ASLO Joint meeting で、Scripps Institution of Oceanography の Ed Goldberg 教授の招待講演後、引き続いて発表した時である。まだ会場は満席でぎっしり立っている聴衆の前で、私のスライドがスタートした。スクリーンに映し出された映像は順番も裏表もぐちゃぐちゃ。会場からはそれは俺のスライドやという声。発表は直ちに中止され、休憩。会場係が直前にスライドケースをひっくり返し、ばらばらに落ちたスライドを手当たり次第突っ込んだというお粗末が原因だった。かくして米国の学会デビューは、会場の四分の一程度に残った本当に興味を持って来ていた、もしくは以降の講演に関



Fig. 1 SEAREX Pacific Dust Network (US) and the western North Pacific network (Japan) (after Uematsu, 1992; Tsunogai *et al.*, 1985).

心のある聴衆の前で、粛々と再開されたのだった。

1986年には北太平洋中央部の貧栄養海域において、降水や大気粒子状物質、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する ADIOS (Asian Dust Input to Oceanic System) 計画に参加した。その結果、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)。なぜ巨大粒子が運ばれたかの理論的な解釈はいまでもないままだが、観測事実は強い。この時の荒天下で溶存酸素の鉛直分布や基礎生産量も大きく変化していた (Young *et al.*, 1991)。自然界で鉄が加わり、栄養塩が消費され、ブルームの終焉を迎えた過程を初めて観測した例である。

この航海では前線の移動に伴って陸起源物質が運ばれてくることを目の当たりに見た。PMEL (Pacific Marine Environmental Laboratory) の Dick Feely 博士が現場大量濾過器で採取したフィルター上できらきら光る石英の粒子に、みんな驚いた。それがコンタミではない証拠に、船首に取り付けた10 m のタワー上で、直径1 m の大型ロータを使った沈着粒子採集器でも見つかった。ほぼ1ヶ月間、船を一観測定点にとどめて時系列観測するという初めての試みとその重要性を知った。翌年、私の帰国後、同じ時期に同様の

航海が行われたが、黄砂は観測されず、空振り、柳の下に2匹目のどじょうはいなかったとの話であった。

また Miami での降水に取り込まれたサハラ砂漠からの鉱物粒子の主成分であるアルミニウムが、pH と高い相関を示して溶出することと、その影響について明らかにした (Prospero *et al.*, 1987)。黄砂の場合、春の降水量は少なく、エアロゾルの除去は乾性沈着か、少量の雨でも効率良く除かれているように見える。日本でも春先、小雨の後、よく自動車のボディに雨滴の跡が泥の跳ねたようになっていることがある。降水量よりも、降水頻度と降下量に相関があると考えている。

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)。天然放射性核種で成層圏、対流圏上部に起源を持つ Be 7 との相関から、太平洋中央部での硝酸塩エアロゾルは、その前駆体が陸起源物質であるが、対流圏上部を経由して輸送されていることを示した (Uematsu *et al.*, 1994; Uematsu, 1998)。

1986年の ADIOS 航海の leg 1 が終了し、ハワイに寄港したが、私は原因不明の歯痛に悩まされた。leg 2 の乗船をあきらめ、ロードアイランドに戻った。アパートにたどり着いてドアを開けた途端、電話が鳴った。日本から新しくできる北海道東海大学の海洋開発工学科に就職しないかという打診であった。ひと月も

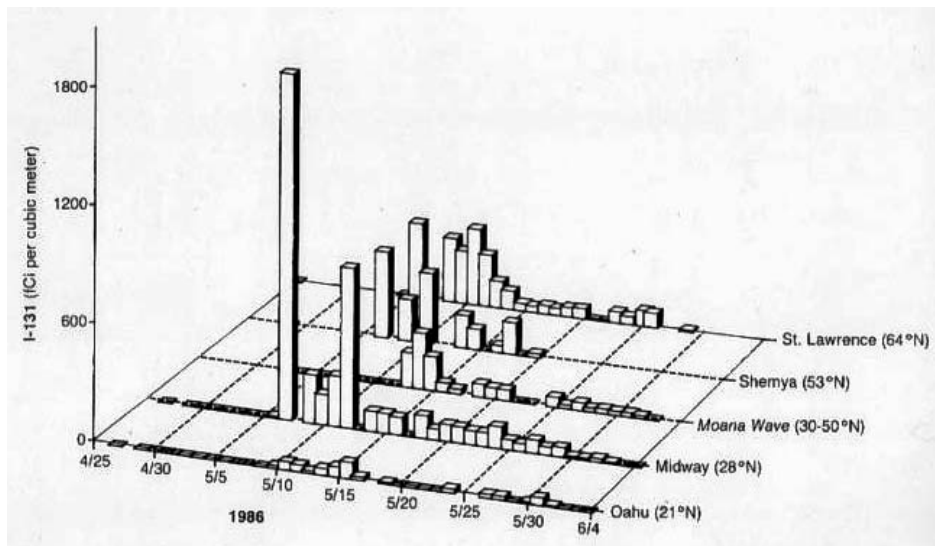


Fig. 2 Daily atmospheric concentrations of I-131 (half-life 8.0 d) measured at the SEAREX Network in the North Pacific during from 25 April to 4 June in 1986. An explosion occurred at the Chernobyl nuclear power complex, the former Soviet Union on 26 April 1986 (after Uematsu *et al.*, 1988).

経たないある日、Duce 教授からチェルノブイリの原子力発電所の爆発事故が米国に影響がないか、いくら金がかかってもええから測ってくれるかと頼まれた。間違いなく飛んで来るとちがいますかと、その日から太平洋の観測点での1週間に1回のフィルター試料交換を毎日してもらい、ガンマ線を片っ端から測定し続けた。その結果、人工放射性物質はチェルノブイリから地球を半周し、日本上空を越え、Midwayをはじめとする観測網やADIOS 航海中のR/V Moana Wave 船上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 (Fig. 2)。

在米中、多くの世界的に有名な研究者達に出会うことができた。ノーベル化学賞を受賞する前の Sherry Rowland 教授や Paul Crutzen 教授も URI の研究室を訪れた。Duce 教授はその度に、私を含めた研究室の研究員と個別に話し合える機会を設けてくれた。そして夜は Duce 教授宅でパーティー。California Institute of Technology の Claire Patterson 博士からは、会った途端に、これについてあんたはよう知っているやろ、教えてくれへんかと訊かれた。即座にその答えはわかれへんと答えると、じゃあ、これはどういうこっちゃ、これはどう思うねんなどと、次々質問を投げ掛けられる。それにはなんとか答え続けていける。突然、なるほど、そういうこっちゃと彼は一人、合点する。気がつくとあんたがわかれへんと言ってはいたが、実はあんたはちゃんと答えることができる経験と知識があったんやと解説してくれる。うまく質問をするというのも大事なことだと思った。

### 3. 大陸から大気を通して輸送される人為起源物質

1987年11月、米国で生まれた娘2人を含め、家族4人で米国東海岸から2週間かけて車で大陸横断し、西海岸 Los Angeles に到着。空港で出発2時間前に愛車を売り飛ばし、機上で妻の誕生日を迎えた。12月からは札幌の東海大学に勤務し、1988年4月に発足する北海道東海大学工学部海洋開発工学科の助教授として着任した。私の研究室には、学科で成績上位者か、浪人、留年組で成績も文句なく底辺という両極端な輩が集まってきた。今では学位を取得して研究者、それを目指している者やそれを支える仕事に従事する者もいて、人を育て、人に育てられている果報者だと実感している。

帰国してまもなく、ロシア、Nakhodka での国際会議に招待され、それがきっかけとなり、ロシア太平洋海洋研究所と大気共同観測を行った。その結果、アジア大陸からの人為起源物質は、偏西風により広範囲に広がっていることが、衛星画像と地上観測から確認できた (Uematsu *et al.*, 1992)。また長崎での集中観測によって、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)。これらの自然起源や人為起源物質の北太平洋上での輸送・降水による除去過程について、太平洋横断定期貨物船上に搭載した自動降水連続採取装置を1年間稼働させ、降水中の不溶性粒子成分が季節的に変動し、1回の降水時に除去される粒子数に大きな変動がないことなどを見出した (Uematsu *et al.*, 2000)。このことは、降雨頻度によってフラックスが左右するということである。

貨物船上での降水と同時に、船上で採取したエアロゾルの主要イオン組成を比較した。エアロゾルの組成は春と夏に大きな違いがないのに、夏の降水中の硝酸塩が非常に少なかった。エアロゾルが降水に取り込まれるなら、エアロゾルの化学組成が降水の組成に反映されていいはずである。この不一致は、北太平洋亜寒帯で夏に多発する海霧による硝酸の選択的な除去のせいではないか、と考え始めた。

### 4. 海洋大気エアロゾルと海霧の化学組成

1997年春に、私は人の住める街、札幌を離れ、東京大学海洋研究所の新しい環境で、研究を続けることになった。雑用もないが、一緒に研究する学生もいない時期がしばらく続いた。海洋研ではイオンクロマトを手に入れ、下層雲である海霧とエアロゾル、そして降水の化学組成の関係について取り組んだ (Fig. 3)。北太平洋亜寒帯に多発する海霧のpHは、日本海では2.6、北太平洋北西部でも平均4.0という酸性であり、人為起源物質だけではなく、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 (Sasakawa and Uematsu, 2002; 2005; Ooki *et al.*, 2003)。また、硝酸イオンが硫酸イオンに比べて、海霧に約二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の多発する海霧は、陸起源の窒素化合物を海洋へ

供給する反面、硫酸塩微粒子となる硫黄化合物を除去する存在である。

これからの観測は時間をかけた試料採取も大事だが、リアルタイムで時間分解能を上げた多成分同時測定が必要だと感じていた。そんな折りに、申請していた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」が採択され、研究環境が激変してしまったのである。また、国際的なIGBP（International Geosphere-Biosphere Programme）のコアプロジェクトであるIGAC（International Global Atmospheric Chemistry）やSOLAS（Surface Ocean-Lower Atmosphere Study）と深く係わっていく。

## 5. 海洋大気エアロゾル組成の変動と輸送

今までは世界各地の研究グループが、それぞれの分析装置や手法を用いて、エアロゾルの化学分析を進めていた。だが同じ地点で別のグループと同時観測して、得られたデータを比較してみると、全く異なる結果が出ている状態であった（e.g., Carmichael *et al.*, 1997）。それならば、一つの研究室で同じ装置を用い、同じ手法で測定する大気観測網を作って、日本周辺海域のエアロゾルの特徴と時空間変動を把握し、その物質循環を体系づけようと目論んだ。

日本で春霞という風物詩を起こすエアロゾルには、アジア大陸で巻き上げられた砂漠の鉱物粒子が偏西風によって日本に運ばれる黄砂や、東アジア域で排出される人為起源物質など、さまざまな物質が含まれている。この春霞を2001年春、陸海空から集中的に観測する国際共同研究プロジェクト（ACE-Asia: Asian Pacific Regional Aerosol Characterization Experiment）の陸と海の観測に我々は取り組んだ（Huebert *et al.*, 2003）。東経140度線に沿って北緯45度の利尻島から佐渡島、八丈島、そして北緯27度に位置する父島までVMAP（Variability of Marine Aerosol Properties）海洋大気地上観測網によって、緯度による大気エアロゾル組成を解析し、船舶での観測によって、そのプロセスを押さえようとした。冬の利尻島に保守点検に出かけたら、悪天候の為、1週間以上滞在し、コンビニから食品がなくなったという話。佐渡島の観測局の隣がキャンプ場で、毎週決まった曜日に、真夜中突然、ポンプの唸り出すという苦情。父島では強烈な日射で装置内の温度が上がり、パソコンがダウンし、夜しかデータが取れていなかったとか、ネズミに

チューブを囓られて室内オゾン濃度を測定していたとか、このプロジェクトに携わった研究員、技術員、そして学生達はそれぞれの思い出話を持っている。周囲の研究者に新しいプロジェクトを認識してもらうためには、呼びやすく覚えやすい頭字語（acronym）の命名が重要である。そのロゴ作成やTシャツ作成も不可欠で、参加研究者の結束を高める効果があるように感じている。私がこれまで関わってきたプロジェクトのいくつかのロゴマークを紹介する（Fig. 4）。

アジア大陸から西部北太平洋上へ輸送される黄砂と、それに伴って運ばれる人為起源物質の時間的、地理的分布が、このVMAP観測網で明らかになった。また、エアロゾルの輸送過程においては、以下の点が明らかになった。(1)日本列島周辺海域では硝酸イオンの吸着物質として黄砂粒子が重要な役割（Fig. 5）を担っている（Ooki and Uematsu, 2005）、(2)海洋上を輸送中に生成される硝酸ガスの海塩粒子などへの取り込みにより、外洋上に存在する粒子状硝酸イオンが生成される（Matsumoto *et al.*, 2004）、(3)森林火災によって放出された炭素質成分が、シベリア方面から到達する空気塊中に高濃度に含まれている（Matsumoto *et al.*, 2003a）、(4)同じ人為起源物質である非海塩性硫酸イオン、硝酸イオン、炭素質成分は、その発生源地域や輸送メカニズムに差異があり、挙動は必ずしも一致していない、(5)炭素質成分はエアロゾル個数濃度に大きな寄与を及ぼしている、(6)東アジア地域から西部北太平洋上への人為起源エアロゾルの輸送経路には、日本列島の北方を経由する場合と、南方の海上を経由する場合の2つがある（Matsumoto *et al.*, 2003b）、など。

これらの物質が前線を伴う低気圧などの移動により、アジア大陸の広い範囲から大規模に運び出されている。しかし、各観測点での濃度変化を見るとその現象の時間のずれや濃度に違いが生じている。黄砂や海塩粒子などの自然起源物質と人為起源物質との混合や変質、除去には、空気塊の混合に係わるそれなりの時間がかかることを示している。

## 6. 化学天気図予報モデルによる再現と予測

これらの観測測定結果を基に、陸起源物質が大気經由でどれだけの量、海洋大気中へ運ばれているのか見積る必要がある。観測点は4点、地理的には広範囲に存在し、気象条件も大きく異なる。しかし、西部北太平洋での大気化学物質輸送を把握するには、大気中で

の物理・化学的要因だけではなく、物質の発生強度と地理的分布、総観スケールの大気運動による輸送などを組み入れたモデルが不可欠である。九州大学応用力学研究所の鶴野伊津志教授グループとの連携で、彼らのCFORS (Chemical weather FORcasting System) という3次元の気象成分の時間変化をシミュレートし、化学物質の輸送、拡散、反応、除去過程を計算するモデル結果と我々の結果を検証し、モデルの高精度化を図った。VMAP 観測網の測定データを用

いたモデル検証は、元素状炭素、非海塩性硫酸イオン、アルミニウム、一酸化炭素、ラドンなど異なる発生源を持つ多成分の時間変動が見事に再現 (Fig. 6) されるようになった (Uno *et al.*, 2003a; 2003b)。黄砂輸送について、実測の降水量を基に輸送フラックスや降水量分布 (Fig. 7) を再現した (Uematsu *et al.*, 2003)。他の成分についても西部北太平洋への輸送量やフラックス鉛直断面図などが計算され、陸上で発生した物質の洋上での輸送のパターン (Fig. 8) が明らかにされた (Satake *et al.*, 2004)。近年、気象予報のデータが公開されるに至り、CFORS によって、数日間先の予報も可能となった。研究航海などでも、黄砂出現の予報を基に船を定点に停め、洋上でその通過時の時間変化を追うことに成功した。あまりの良い一致に、もう観測は必要ではなくなるのではないかという冗談も出てくるほどである。この「化学天気予報図」は、野外集中観測時の体制作りや、環境汚染の事前把握にも、大きく貢献している。

地球化学の研究者だけで化学を中心としてこの課題に取り組んでいたのならば、決して到達することの出来なかった成果であるし、モデル研究者だけでは、動きが取れなかった課題であった。ある省庁の会議の合

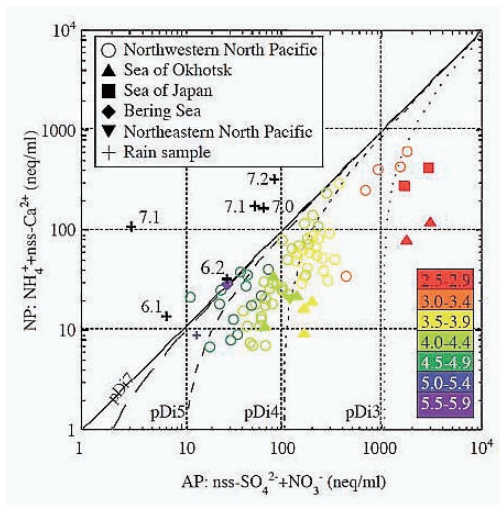


Fig. 3 Relationship between AP ( $\text{nss-SO}_4^{2-} + \text{NO}_3^-$ ) and NP ( $\text{NH}_4^+ + \text{nss-Ca}_2^+$ ) in fog water and rainwater samples collected over Northern North Pacific, Solid and dotted lines indicate the value of pDi. Each color means measured pH values (after Sasaki and Uematsu, 2005).

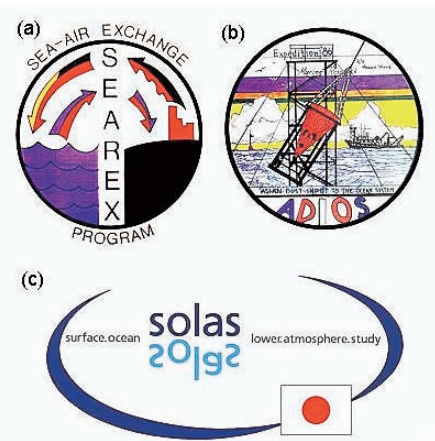


Fig. 4 Logs for (a) SEAREX, (b) ADIOS, and (c) SOLAS related to subjects of sea/air exchange of materials.

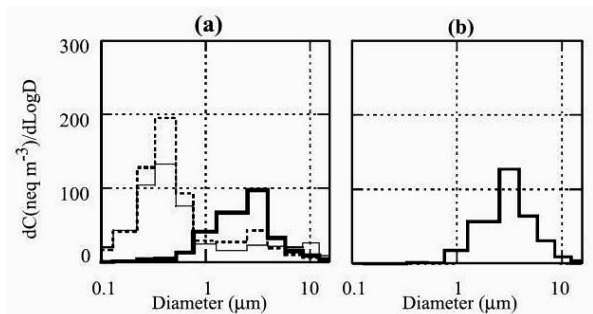


Fig. 5 Size distributions of ionic components in the marine air during the Asian dust event observed over Sagami Bay on 6 March 2001. (a)  $\text{NH}_4^+$  (thin solid line),  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  (dashed line), and  $\text{NO}_3^-$  (thick solid line), and (b)  $\text{nss-Ca}_2^+$  (solid line). Gaseous  $\text{HNO}_3$  can heterogeneously react with the surface of sea-salt or mineral dust particles and forms particulate  $\text{NO}_3$  in the coarse mode range, while the large fractions of  $\text{NH}_4^+$  are combined with  $\text{SO}_4^{2-}$  and form  $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$  or  $\text{NH}_4\text{HSO}_4$  in the accumulation mode range in marine air (modified Ooki and Uematsu, 2005).

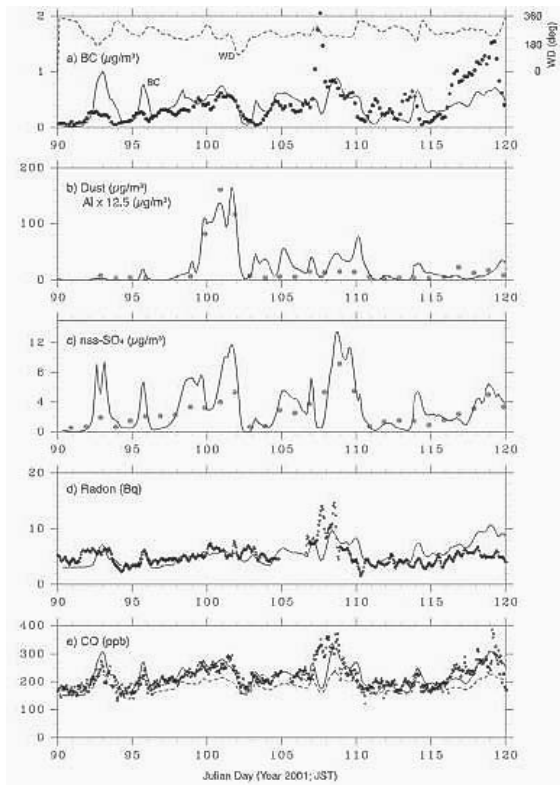


Fig. 6 Comparison between observed concentrations at Rishiri station and CFORS model output (a) black carbon, (b) dust and Al, (c) nss-SO<sub>4</sub><sup>-</sup>, (d) Rn-222, and (e) CO (after Uno *et al.*, 2003a).

間、アイウエオ順で隣り合わせた「うの」「うえまつ」の雑談からこの連携が始まった。ちょっとした出会いが新しい流れを作ったといえる。

### 7. 無人海洋大気観測艇「かんちゃん」の開発と活躍

洋上の島における観測定点の設置は、大気物質の時間変動の測定に有効であるが、地理的な分布や変動に対応するためには島の存在場所による制限がある。島の存在しない北緯30度から50度にかけての北太平洋中緯度帯では、船舶による観測とサンプリングや係留ブイに頼るしかない。しかし、船は複数の研究分野による共同航海が多く、また運行計画が1年以上前から決められるため、航海中に出現する現象に対応して独立した大気観測はあまり期待できない。

そこで、大気エアロゾルや気体成分と海洋表層の物理・生物パラメーターを、無人で自動航走や定点保持をして連続測定するプラットフォームとして無人海洋

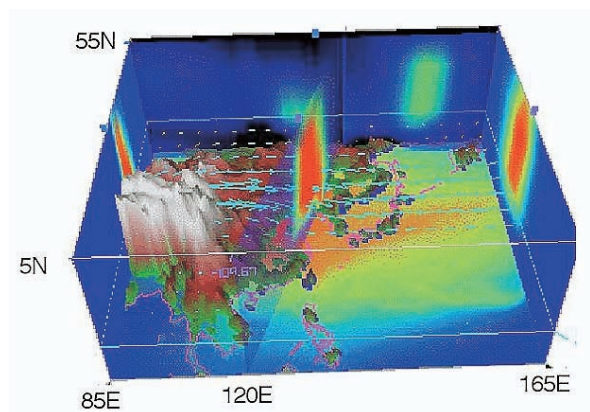


Fig. 7 Schematic pattern of Asian mineral dust transport and its deposition (after Uematsu *et al.*, 2003).

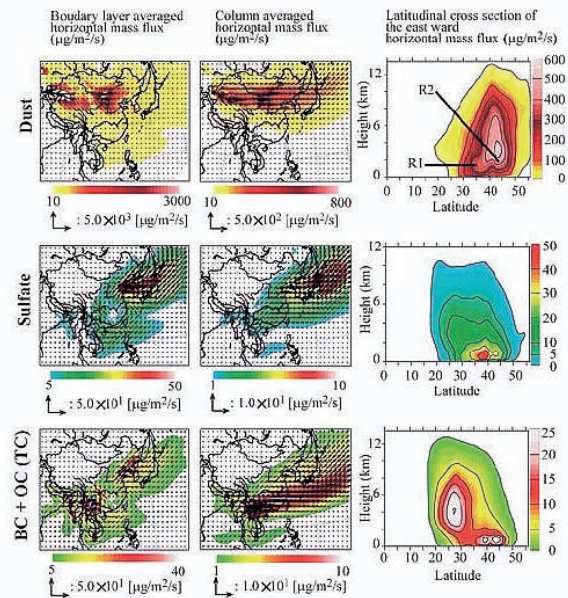


Fig. 8 Boundary layer (below 1,000 m) averaged horizontal mass flux (left column), the column averaged horizontal mass flux (middle column) and the latitudinal cross section of the eastward horizontal mass flux at 130°E (right column) during spring 2001 for mineral dust, sulfate and carbonaceous aerosols (after Satake *et al.*, 2004).

大気観測艇「かんちゃん」(観測の「観ちゃん」、環境の「環ちゃん」、還っておいでの「還ちゃん」、地球を看病する「看ちゃん」、勇敢な「敢ちゃん」、肝いりの「肝ちゃん」、汗かく「汗ちゃん」.....)を開発した (Fig. 9)。全長8 m、幅2.8 mの単艇体ヨットを





Fig. 9 Self Cruising Ocean Observation Platform (SCOOP). “Kan-chan” is a Japanese nickname.

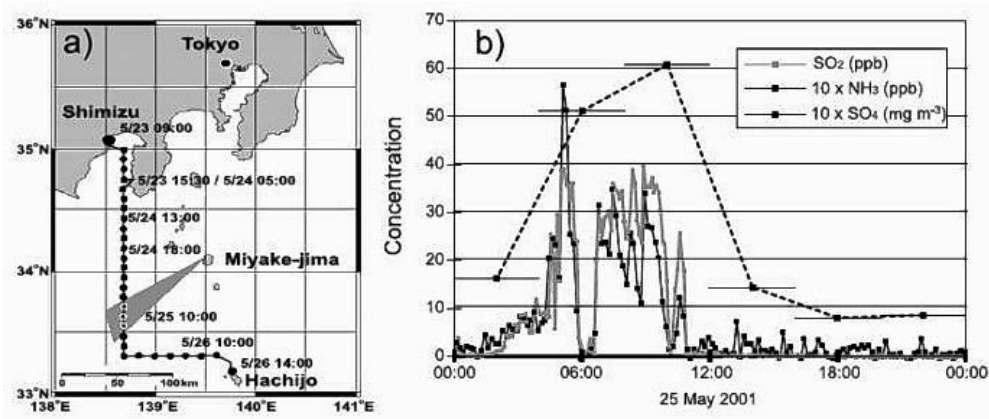


Fig. 10 Reactive gases and aerosol in the volcanic plume from Miyake-jima volcano on 25 May. (a) ship track of the cruise SCOOP 01-01 from Shimizu to Hachijo-jima (176 nautical miles), and (b) temporal change of gaseous SO<sub>2</sub>, NH<sub>3</sub> and Particulate SO<sub>4</sub> concentrations. Particulate SO<sub>4</sub> concentration for continuous 4 hr-filter sampling period shown is the fraction of aerosol smaller than 2.5 μm in diameter (after Uematsu *et al.*, 2004).

ベースとしている。デッキは完全に密閉され、艇内部に大気・海洋観測測定装置、制御コンピュータ、衛星通信設備などを装備している。計画当初は北米西海岸まで到達を目指す目標だったが、ハワイまでの6,300 km 移動できる設計となった。この開発は、東海大海洋学部の千賀康弘教授が、今まで培ったノウハウと情熱を注ぎ込み、船体設計はヤマハ発動機、制御システムと大気観測機器は紀本電子工業、海洋表層観測装置はアレック電子が担当した (Senga *et al.*, 2000)。大

槌での定期定線観測では、5日間に水深100 m まで68回の水温、塩分の鉛直分布計測を行い、2時間毎での連続測定などが無人で可能となった。船で研究者が6名でワッチを組んで5日間休まずやると、完全にグロッキーであろう。VMAP プロジェクト終了まで2年半計13回、2,500海里を越える観測航海 (エンジン稼働時間2,080時間) を行った。

「かんちゃん」を使って大気成分の計測をすることによって、地上でのサンプリングや船上での観測にお

いて生じる周辺の地面から放出される物質，水際や船の航行に伴う大気の大攪乱による海塩粒子などの生成や分布への影響を最小限に抑えることができる。そんな中で「かんちゃん」の海洋大気観測によって，三宅島の火山噴煙から二酸化硫黄とともにアンモニアガスが放出され，海洋生物への栄養塩としての供給が，無視できない可能性を見出した (Fig. 10)。そして，衛星画像解析から夏季の西部北太平洋の生物生産が増加していることを確かめた (Uematsu *et al.*, 2004)。残念ながら，「かんちゃん」二世，三世の建造は，叶わず，複数の「かんちゃん」が太平洋上に列をなして同時観測する夢は，いまま夢のままである。

## 8. おわりに

地球化学は，地球科学の根幹をなす基礎分野として存在している。その基本は化学であり，ものを正しくはかることが原点である。この測定値に信頼性がなければ，あとの議論はむなしいものである。日本の地球化学は多くの分析化学研究室によって発展し，その分析技術は世界に誇れるものである。それを支えるように，競争的大型研究資金なども地球環境科学に導入されつつある。その結果，いまままで不可能と思われていた超微量物質や存在状態の測定が，大型分析装置の開発により可能となり，あらたな地球化学的パラメーターとして利用できるようになってきた。一方，自然界でいま起こっている現象を物質循環の観点から捉えるには，標準化された観測測定を，地球規模で広く進めなければならない。さらに，それを長期的に推し進めるプロジェクトや，支援する機関や研究予算の枠組みの構築が必要ではないだろうか。これは大学の研究室単位での取り組みを越えるものであるし，世界中の国の理解と協力が不可欠である。

これからの地球化学を考えると，どの分野でもいわれるように若い優秀な人材を獲得し，養成していく必要がある。分析化学関係の基礎的な教育が薄まる中，高度に自動化された機器分析を駆使することが要求されている。難易度の高い分析技術を武器に，地球化学のあらゆる分野に挑戦することもひとつである。しかし，その中で育った研究者は，その装置がない研究室では，なにもできないことになっていくのではないだろうか。昨今，インターネットによる地球環境科学についての情報知識は，学生のレポート作成にはほとんど困らないほどあふれている。その中で，なにに自分が興味を持って，なにを武器に取り組むのか，物知り

少年達の知的好奇心をいかに刺激するかが，我々の仕事のひとつかもしれない。

自然界の物質循環の一層の理解と将来予測については，地球化学的手法に加えて，様々な物理，生物過程をパラメーター化し，定量的にかつ総合的に解析していかなばならない。他分野の研究を幅広く理解し，連携を強め，それと同時に地球化学の魅力をもっとわかりやすく知ってもらおう努力が必要だろう。

最後にこの荣誉ある賞に値すると評価された業績は，一緒に研究を進めてきた学生や，多くの共同研究者達の協力や，恵まれた指導者の先生方の教唆なしではあり得なかった。ここに今までお世話になった皆様のお名前を列記して，私の住所録をお見せすることを敢えて控えさせていただきたい。皆様に深く感謝し，今後，ますます私の住所録を分厚くし，これからの大気と海洋間の物質循環を中心とした新しい領域と，地球科学における地球化学の発展に尽力していきたい。

## 引用文献

- 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.
- Carmichael G. R., Hong M. S., Ueda H., Chen L. L., Murano K., Park J. K., Lee H., Kim Y., Kang C. and Shim S. (1997) Aerosol composition at Cheju Island, Korea. *J. Geophys. Res.* **102**, 6047–6061.
- 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.
- Huebert B., Bates T., Russell P., Shi G., Kim Y. J., Kawamura K., Carmichael G. R. and Nakajima T. (2003) An overview of ACE-Asia: strategies for quantifying the relationships between Asian aerosols and their climatic impacts, *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2003JD003550.
- Matsumoto K., Uematsu M., Hayano T., Yoshioka K., Tanimoto H. and Iida T. (2003a) Simultaneous measurements of particulate elemental car-

- bon on the ground observation network over the western North Pacific during the ACE-Asia campaign. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002 JD 002744.
- Matsumoto K., Uyama Y., Hayano T., Tanimoto H., Uno I. and Uematsu M. (2003b) Chemical properties and outflow patterns of anthropogenic and dust particles in Rishiri Island during the ACE-Asia Experiment. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2003 JD 003426.
- Matsumoto K., Uyama Y., Hayano T. and Uematsu M. (2004) Transport and chemical transformation of anthropogenic and mineral aerosol in the marine boundary layer over the western North Pacific Ocean. *J. Geophys. Res.* **109**, doi:10.1029/2004 JD 004696.
- 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.
- Ooki A. and Uematsu M. (2005) Chemical interactions between mineral dust particles and acid gases during Asian dust events. *J. Geophys. Res.* **110**, doi:10.1029/2004 JD 004737.
- 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.
- Prospero J. M., Nees R. T. and Uematsu M. (1987) Deposition rate of particulate and dissolved aluminum derived from Saharan dust in precipitation at Miami, Florida. *J. Geophys. Res.* **92**, 14723-14731.
- 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:10.1029/2001 JD 001004.
- 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.
- Sasakawa M., Ooki A. and Uematsu M. (2003) Aerosol size distribution during sea fog and its scavenger process of chemical substances over the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002 JD 002329.
- Satake S., Uno I., Takemura T., Carmichael G., Tang Y., Streets D., Sugimoto N., Shimizu A. and Uematsu M. (2004) Characteristics of Asian Aerosols Transport simulated with a Regional Scale Chemical Transport Model during the ACE-Asia observation. *J. Geophys. Res.* **109**, doi:10.1029/2003 JD 003997.
- Senga, Y., Uematsu, M., Suemori, M., Kimoto, T. and Konashi, S. (2000) Self Cruising Ocean Observation Platform (SCOOP). *Proceedings of Techno-Ocean 2000 International Symposium*, **3**, 635-638.
- Tsunogai S. and Uematsu M. (1978) Particulate manganese, iron, and aluminum in coastal water, Funaka Bay, Japan. *Geochem. J.* **12**, 39-46.
- Tsunogai S., Uematsu M., Tanaka N., Harada K., Tanoue E. and Handa N. (1980) A sediment trap experiment in Funaka Bay, Japan: upward flux of particulate matter in seawater. *Mar. Chem.* **9**, 321-334.
- Tsunogai S., Uematsu M., Noriki S., Tanaka N. and Yamada M. (1982) Sediment trap experiment in the northern North Pacific: Undulation of settling particles. *Geochem. J.* **16**, 129-147.
- Tsunogai S., Suzuki T., Kurata T. and Uematsu M. (1985) Seasonal and areal variation of continental aerosol in the surface air over the western North Pacific region. *J. Oceanogr. Soc. Jpn* **41**, 427-434.
- Uematsu M. (1992) Mineral aerosol over and deposition to the Pacific Ocean. In: *Oceanic and Anthropogenic Controls of Life in the Pacific Ocean* (ed. V. I. Ilyichev and V. V. Anikiev), 45-69. Kluwer Academic Publishers.
- Uematsu M. (1998) Distribution and characterization of Asian aerosols over the Western North Pacific region. *Global Environ. Res.* **2**, 39-45.
- Uematsu M. and Tsunogai S. (1983) Recycling of manganese in the coastal sea, Funaka Bay, Ja-

- pan. *Mar. Chem.* **13**, 1–14.
- 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. and Prospero J. M. (1985a) Deposition of atmospheric mineral particles in the North Pacific Ocean. *J. Atmos. Chem.* **3**, 123–138.
- Uematsu M., Duce R. A., Nakaya S. and Tsunogai S. (1985b) Short-term temporal variability of eolian particles in surface waters of the northwestern North Pacific. *J. Geophys. Res.* **90**, 1167–1172.
- 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., Sugita T., Anikiev V. V. and Medvedev A. N. (1992) Large-scale transport of pollution aerosol over the East Coast of Asia. *Geophys. Res. Lett.* **19**, 2219–2221.
- 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., 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 region 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 Miyakejima Volcano. *Geophys. Res. Lett.* **31**, doi:10.1029/2003GL018790.
- Uno I., Carmichael G. R., Streets D. G., Tang S. Y., Yienger J. J., Satake S., Wang Z., Woo J. -H., Guttikunda S., Uematsu M., Matsumoto K., Tanimoto H., K. Y. and Iida T. (2003a) Regional Chemical Weather Forecasting using CFORS: Analysis of Surface Observations at Japanese Island Stations During the ACE-Asia Experiment. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002JD002845.
- Uno I., Carmichael G. R., D. S., Satake S., Takemura T., Woo J. -H., Uematsu M. and Ohta S. (2003 b) Analysis of Surface Black Carbon Distributions during ACE Asia using a Regional Scale Aerosol Model. *J. Geophys. Res.* **108**, doi:10.1029/2002JD003252.
- 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.