

気候に影響する大気中の微量成分：二酸化炭素，成層圏 オゾンとそれを破壊する化学物質，およびエアロゾル

三 崎 方 郎*

1. はじめに

人間が大気中に放出している汚染物質の量はたかの知れたもので、大気の主成分の量に比べたら全くとるに足りぬ程の微量である。しかしながら如何に微量なりとも、大気構造に重大な影響をもたらす物質がある。それらはやがては取り返しのつかない気候変動をもたらしたり、あるいは人間の生存にとって必要な大気環境の条件を破壊しかねない。こうした虞れからWMOはICSU（国際学術連合会議）と提携して世界気候研究計画（World Climate Research Programme-WCRP）を提案し、加盟各国に対して参加協力を勧告している。この稿ではそうした微量成分の大気中における動向と、大気構造への影響のしかたについて、できるだけ平易にまとめて解説して見たい。

2. 大気中の微量成分

大気の主成分は窒素分子（容積比で78%）と酸素分子（21%）で、残りの1%も殆んどがアルゴンで占められている。したがってその他の成分は量から云えば無視し得る程の微量にすぎない。そうした微量成分のなかで大気の温度構造を左右する程の影響力を持ち、その動向が気候変動に結びつきかねないものを挙げると下記の3種がある。

1. 二酸化炭素
2. 成層圏オゾン，およびそれを破壊する物質（亜酸化窒素，フロン-11，12等）
3. エアロゾル。

二酸化炭素（CO₂）は大気中に現在約 330ppm（330/10⁶，すなわち0.033%，容積比）程存在している。二酸化炭素は大気圏と海洋，または植物圏との間を出入りす

るが、大気圏にある限りは化学的に安定であるので、かくはんによってはほぼ一様に分布（混合比**一定）されるに至る。したがって上記の値は大まかに云えば、地球大気中鉛直方向にも水平方向にも、ほぼ似た値をとっていると云ってよい。

成層圏オゾンはオゾン層という名で知られているように層状に分布している。その濃度の極大は25kmあたり（混合比で云えば極大は35kmあたり）で、数十kmの厚さをもっている。厚さが数十kmもあると云っても、実際は極く稀薄に分布しているので、もし成層圏からすべてのオゾンを地上に引き降ろし集めたとすると、その厚さは僅かに3mm前後にすぎない。大気のスケーラハイトが8.4kmであることを考えれば、オゾン全量は大気全量の3mm/8.4km \div 4/10⁷倍、すなわち千万分の4程度である。

昨今、成層圏オゾンを破壊するという事で問題になっているフロン-11の混合比に到っては数百pptしか

** 空気密度は高度とともに減少しているのでもし大気中の「かくはん作用」が充分に行われているならば、微量成分の濃度（単位体積の空気中に含まれている着目成分の分子数、もしくは質量）も、空気密度の減少と同じ比率で減少する。そこで微量成分の存在量を空気密度を基準とした相対量（例えば、単位体積中の空気分子数に対する着目成分の分子数の比）で表わし、これを混合比と呼ぶ。（混合比には容積混合比と重量混合比の別がある。）

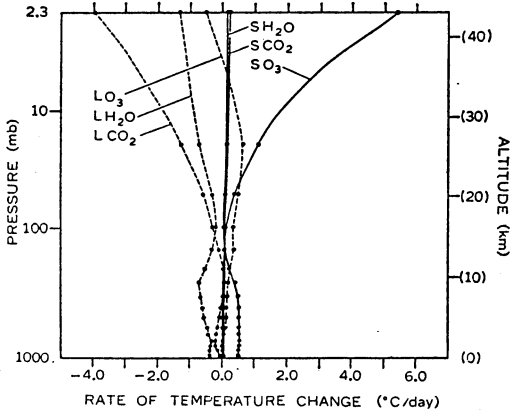
微量成分の鉛直分布を議論する場合には、濃度より混合比を用いた方が便利ながが多い。例えば、拡散による微量成分の鉛直輸送量は、濃度ではなく混合比の鉛直傾度に比例する。濃度と混合比の鉛直分布は一致しないことに注意されたい。

（一般論文の中では濃度という用語で実は混合比を表わしていることも多いが、この稿では両者を区別して用いる。）

* Masao Misaki, 気象研究所。

い. ppt とは $1/10^{12}$ の単位であるから、フロンは二酸化炭素のさらに百万分の1という極微量である。フロンはまた二酸化炭素と同様に化学的に安定であるので、対流圏の内では混合比がほぼ一定である。しかしながら成層圏では紫外線により分解されるので、高度とともに減少する。

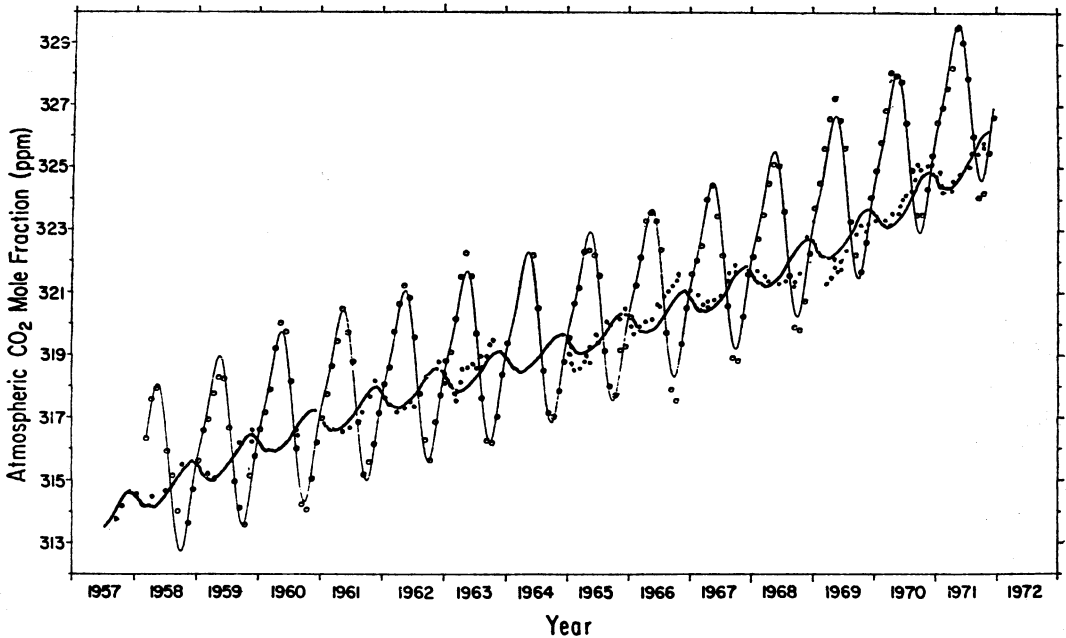
さて終りに大気中におけるエアロゾルの濃度であるが、対流圏内では地域的にも時間的にも大きな変動があるので、上記のような表現は全く意味をなさないが、成層圏ではかなり安定している。成層圏のエアロゾルはオゾンと同様に層状に分布しており、ユンゲ層とも呼ばれている。その混合比(空気1mg中に含まれている粒子数)の極大はオゾン層のそれよりやや低く、20kmあたりにあり、厚さもオゾン層に比べて薄く、約10kmばかりである。その全量は断面積 1cm^2 の気柱内にほぼ 1×10^6 個(ただし、直径 $0.3\mu\text{m}$ 以上の粒子について)の桁であると観測されている。 1cm^3 中の個数について云えば、ユンゲ層内の濃度最大の高度でも、平均1個前後の見当である。



第1図 二酸化炭素、オゾン、水蒸気による気温変化率の均り合い。
(Manabe and Strickler, 1964)

3. 問題のあらまし

良く知られているように、対流圏では高度とともに温度が低下し、圏界面で最低温となる。圏界面を越えて下部成層圏では温度は一定で、中部、上部成層圏にまで上ると温度は逆に増加してくる。このような特異な温度構造は、実は主として大気中に含まれている二酸化炭素とオゾンの働きによっているのである。



第2図 ハワイ、マウナロアおよび南極点における二酸化炭素濃度の経年変化。
振巾の小さい曲線が南極点の観測。
(Keeling et al, 1976a, 1976b)

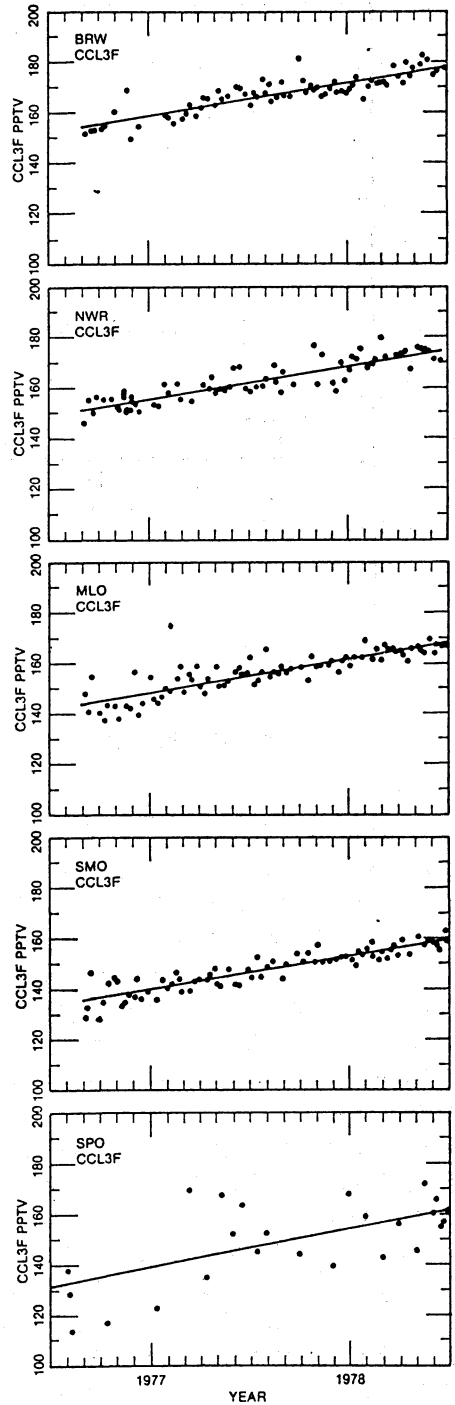
二酸化炭素には後にも述べるように、温室効果と称して、地表面および大気の下層を保温する作用があるが、成層圏では二酸化炭素自身からエネルギーが赤外線形で宇宙空間へ放射されるために、その場所の大気を冷却する。これに対して成層圏オゾンは太陽から来る紫外線を吸収し、その熱を周辺の空気に伝えるので成層圏は加熱される。

第1図は二酸化炭素(CO₂)、オゾン(O₃)、および水蒸気(H₂O)のそれぞれが赤外放射と紫外吸収によって、大気を冷却しあるいは加熱する率の均り合い状況の高度による変化を画いたものである(Manabe and Strickler, 1964)。図中各成分の頭につけてあるLとSの記号はそれぞれ長波放射(赤外線)と短波放射(この場合紫外線)を表わしている(長波放射の効果は必ずしも冷却と限らず、物質の高度分布によっては加熱ともなりうる。図中のLO₃曲線の35km以下がその例である。)この図を概観すれば、高度20~40kmの間では、大気を加熱している主因はSO₃、すなわちオゾンの紫外吸収であり、大気を冷却している主因はLCO₂、すなわち二酸化炭素の長波放射であるということが読みとれよう。そしてその両者、つまり加熱率と冷却率が各高度で均り合うように温度の高度分布が調整されている。

このように、二酸化炭素とオゾンとはともに極微量でありながら、地球大気の世界分布をつくり上げるのに決定的な役割りを果たしているのである。成層圏は全くオゾンの産物で、もしオゾン層がなければ成層圏は消失し、今の成層圏界面(約50km)あたりまで対流圏が延長されてしまうであろう。

このようなことから容易に想像されるように、仮りにオゾン、もしくは二酸化炭素の濃度や高度分布が変えられるようなことがあれば、大気の世界構造が変わってくる。温度構造の変化は気候変動につながるであろう。ところがそのようなことが実際に起こりつつあるのである。あるいは控え目に云っても、そのようなことが懸念される十分な事由が発生しているのである。

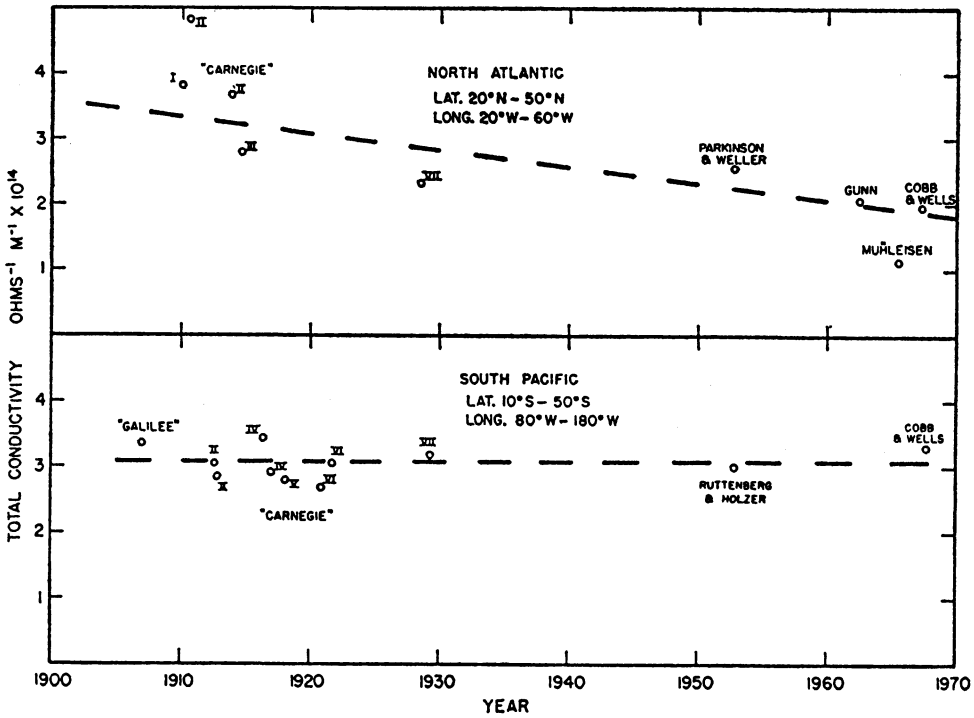
1957年の国際地球観測年(IGY)以来、米国はハワイ島のマウナロア観測所と南極の極点基地で二酸化炭素の地上濃度を続けて測定しているが、第2図はその結果である。マウナロア観測所は南極に比べて植物圏に近い



第3図 南北両半球各地におけるフロン-11濃度の経年変化。

BRW: Barrow Obs., Alaska, NWR: Niwot Ridge, Colo., MLO: Mauna Loa Obs., Hawaii, SMO: Samoa Obs., American Samoa, SPO: South Pole Obs., Antarctica

(Summary Report 1977, GMCC, NOAA, No. 6)



第4図 北大西洋および南太平洋における大気電気伝導率の経年変化。
(Cobb and Wells, 1970)

め、植物の成育に伴う同化作用に由来する季節変化が繰り返されているが、それに重畳した経年変化は明らかに見られる。この年毎の増加傾向は南極でも殆んど同じで、この図に見られる20年間にいずれも20ppm近くの増加量を示している。人間活動がまだ活発でなかった1800年代の濃度レベルはよくわからないが、1900年代の始めには290ppmであったのが、現在では330ppmを超えており、一つの予測では2045年には600ppmに達するという。

成層圏オゾンは自然の産物である。近年地表附近ではいわゆる光化学スモッグとともにオゾンが人間活動により生成されているが、成層圏では人為的な生成より人為的な消滅の方が問題になっている。その一つは超音速機(SST)の成層圏飛行によって、排気中に含まれているNO_xが成層圏に直接注入される問題がある。NO_xは後にも述べるように、オゾンを破壊する作用をもっている。この問題が議論された直後に、さらに大きな影響をもつものとして大気中に放出されているフロン問題が登場した。フロンは冷凍機の冷媒として、また化粧品類エアゾルの噴射剤として人間が作り出した化学

物質であるから、昔は全く存在しなかったものであるが、それが近年地球上いたるところで検出され、その濃度が急増しつつあることが確認されている。第3図は南北両半球にわたる各地で観測されたフロン-11の記録であるが、これには二酸化炭素のような季節変化もなく、一途に年約10%の増加をつけている。

さて最後にエアロゾルの問題がある。エアロゾルの気候に与える影響については、二酸化炭素やオゾン関連物質のように確立した筋書きが出来ているわけではなく、その効果についても疑問がある。しかしいろいろな可能性は考えられることであり、少なくともそれが日射を散乱し、また吸収する効果は無視できない。

エアロゾル濃度の経年変化については、これまた二酸化炭素やフロンのような明確な証拠がない。エアロゾルはこれらの物質のように安定した状態にないので、大気中における寿命が短く、ために大気中の分布が決して一様にならないということが、経年変化の確認をさまたげている原因であろう。しかし極めて大ざっぱながら、大昔に比べると大気はエアロゾルで可成り汚染されたということを示す観測もある。第4図は洋上における大気

電気伝導率の経年変化を示したものである。大気電気伝導率とエアロゾル濃度の増減は逆関係にあるので、図にみられるその減少はエアロゾル濃度の増加を示すと見てよい。またこの図にみられるように、大気電気伝導率の減少傾向は北半球だけであって、南半球に現われていないことは注意を要する。恐らくはエアロゾルが短寿命のため、二酸化炭素のような汎世界的な分布には到らないのであろう。

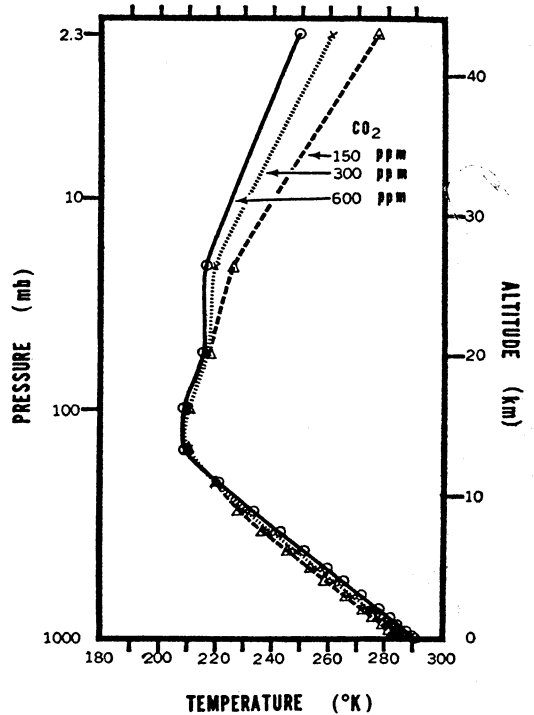
さて、この二酸化炭素問題、オゾン問題、エアロゾル問題がそろっていずれも最近甚だ面白い事態になった。この3つの問題に対してそれぞれ定説化しつつあった理解が大きく後退してしまったのである。以下の各論ではこうしたことを話題の中心として概説したい。

4. 二酸化炭素問題

4.1. 二酸化炭素の放射に対する効果

二酸化炭素は赤外域に強い吸収帯 ($15\mu\text{m}$ 附近) をもつので、その波長帯の光を吸収し、また放射する。しかし日射 (波長 $4\mu\text{m}$ 以下) に対しては透明であるので、日射は遮ぎられることなく地表面に到達する。日射により温められた地表面は空に向けてその温度に応じた強さの赤外放射を行う。この放射の主要部分はたまたま $15\mu\text{m}$ 附近にあるので、二酸化炭素に吸収され、その再放射によってその多くの部分が地表に送り返される。結局その差額だけが実効的に上空に向けて逃れ去るのである。これを地表面の立場から見ると、自らの温度に相当する量の放射を充分に行えなかったことになる。換言すれば、二酸化炭素の存在によって地表面は赤外射出の能率を見掛け上低下されたとも云える。一方地表面への日射の入射量は二酸化炭素量に関係しないから、赤外射出の能率低下を補って日射入射に均し合うためには、地表面温度は上昇しなければならない。大気の下層も温まった地表面からの対流による熱輸送で効果的に昇温される。これが温室効果と呼ばれる二酸化炭素の働きである*。しかしながら第1図に見られるように、均り合いの状態では二酸化炭素は本来は冷却体であり、成層圏ではその増加が温度低下をもたらすことはさきに述べた通りである。

第5図は Manabe and Wetherald (1967) によって示された二酸化炭素増加の気温高度分布への影響であ



第5図 種々の二酸化炭素量に対する放射対流平衡温度の高度分布。

(Manabe and Wetherald, 1967)

る。二酸化炭素が 300ppm から 600ppm に増加すると、地表付近の気温は 2.4K 昇温し、高度 40km では約 10K 降温するということが示されている。

4.2. 二酸化炭素の大気と植物圏、海洋との交換

さて、二酸化炭素の増加に伴う大気温度構造の変化は、上に述べたように Manabe を始めとする人々によりその後も推論されているが (例えば Manabe and Wetherald, 1975, 1980)、二酸化炭素の大気中濃度についての将来予測は大変な難物である。この予測には植物圏および海洋と大気との間の二酸化炭素循環の実態が正確に知られていなければならぬからである。

第2図に見られる二酸化炭素の逐年増加の原因は、もっぱら人間の化石燃料の消費にあると考えられてきた。石油石炭を燃焼するとき発生する年間の二酸化炭素量は、炭素量にして約50億トンと見積られている。そのうち大気中に残留する量は第2図の大気中濃度の増加率からみて約25億トンだから放出量の半分である。残りの半分はしたがって海洋が植物圏に吸収されていると見なければならぬ。

* 温室効果をもつ気体は二酸化炭素だけではない。水蒸気、オゾン、亜酸化窒素、フロン等も赤外域に吸収帯をもっているので、同様にこの効果をもっている。

植物圏に保持されている二酸化炭素の総量は大気中のその1~2倍、海洋中には50~60倍もあると推定されるから、大気から海洋への吸収は容易に行われそうに思われるが実際はそうでない。海洋化学者の研究によると次のことがわかった。

海洋の表層から深層への垂直混合が大変緩慢であるために、海洋水の大部分を占める深層海洋は二酸化炭素の貯蔵庫としての能力を制約されている。百年程度より速い変動に対して二酸化炭素の吸収層として応答するのは、実効的にはたかだか200m程の表層(混合層と呼ばれる)にすぎない。こうしたことから二酸化炭素の大気中への年間放出量と大気中残留量の差は、海洋がいくらでも仕末できるものではなく、例えば海洋が6割、植物圏が4割を受けもって吸収しているのだというのが従来理解であった。

4.3. 植物圏は二酸化炭素の吸収源か、発生源か?

大気中の二酸化炭素の吸収源であると位置づけられてきた植物圏が実際は発生源で、しかもその発生量はちょうど化石燃料からの発生量に匹敵するという意見が森林生態学者から出されたのは極く最近のことである(Woodwell, 1978)。これは1800年代後半より進行している森林破壊が原因で、伐採された樹木の燃焼によるばかりでなく、森林下の厚い堆積層中の有機物の分解によって大量の二酸化炭素が大気中に放出されているというのである。

Woodwell等の説が正しいとすれば、海洋が引き受けなければならない二酸化炭素の量は、従来考えられていたその吸収能力の4倍にもなる。この矛盾は解決されておらず、二酸化炭素の収支に関する従来理解は全く崩壊してしまっただけである。

二酸化炭素の循環収支には何か大きな見落としがあるにちがいない。それを洗い直すにはWMOが提案しているmulti-media monitoring(大気のみならず、海洋、植物圏にまでモニタリングの網を拡げること)が先ず必要であろう。そしてさらに二酸化炭素の大気中における濃度の将来を合理的に予測するためには、それぞれのmediumにおける二酸化炭素貯蔵量、multi-media間の出入りの仕組み、その速さの精度を、大気中におけるそれらと同程度にまで近づけることが必要である。

5. 成層圏オゾン問題

5.1. 成層圏オゾン減少の影響

オゾンは250~280nmの紫外線を強く吸収する性質が

ある。太陽から到来する紫外線のうち280nm以下(UV-Cと呼ばれる)はオゾンおよび酸素によって、すべて成層圏で吸収されてしまう。成層圏はこの吸収によって加熱される。したがって成層圏オゾンの増減は、気象学にとって重大な関心事である。例えばその濃度が減少したとすると、成層圏の上部での紫外線吸収が弱まり、その生き残りがより下層で吸収される。当然温度の高度分布は変わってくる。

ところで成層圏オゾンの減少は生物学にとっても重大な関心事である。UV-Cに隣接する波長280~320nmの領域はUV-Bと呼ばれている。ここはオゾンのもっとも強い吸収領域を少しはずれているので、一部は地上に到達しているが、発癌性があるなど生物にとって有害な紫外線である。成層圏オゾンは地上の生物にとってはUV-Bに対する日傘の役割りをしているわけである。成層圏オゾンが1%減少すると、中緯度の地上ではUV-Bが2%増加し、その結果皮膚癌の発生率は4%増加するとも云われている。フロンの大気中への放出が現状のままに続くとすると、成層圏オゾンの減少は16%にも達すると予測されているので、事柄は大変重大である。UV-Bの影響は人間だけに限らない。地上および水中の動植物の生態、農業への影響なども論ぜられている。

5.2. 成層圏オゾンの消滅反応

成層圏では紫外線の作用によって、酸素からオゾンが生成されているが、そのオゾンは同時に種々の因子により消滅されつつあり、この両者のつり合いの結果としてオゾン層が形成されているのである。消滅の因子にはどのようなものがあるか、そしてそのうち人間活動にもとづくものは何か、についてできるだけ簡単に述べよう。

(i) 純酸素大気中の反応系

大気は主成分である窒素と酸素のみより成り立っており、水蒸気や窒素酸化物等の微量成分は含まれていないとする。そういう大気の中でのオゾン層形成の理論はChapman機構として知られているが、この理論でオゾンを実質的に消滅させる反応は

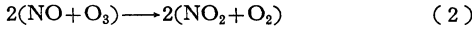


である。しかしながらこの反応だけでは消滅作用が充分でなく、オゾン濃度の予測値は実測値の約2倍になる(第6図参照)。

(ii) NO_x (NO, NO₂)の触媒連鎖反応系

Chapman機構の予測値と実測値の食い違いを説明するためにCrutzenやJohnstonによって導入された考

えて、これにより上述の喰い違いは定量的には説明された。



O_3 を消滅させる (2) の反応で消費される NO は (3) と (4) とで再生される。(2)~(4) の総合結果は $2\text{O}_3 \longrightarrow 3\text{O}_2$ となり、 NO_x は O_3 を O_2 に変えることに働いたが、それ自身の量に変化はない。つまり触媒として反応系に介入しただけである。

成層圏における NO_x は対流圏から侵入したものではない。 NO_x は不安定で、成層圏に入る前に化学反応によって消滅してしまう。成層圏の NO_x のそもそもの起源は、地中のバクテリアが関係する脱窒作用で生じた亜酸化窒素 (N_2O) である。 N_2O は化学的に安定であるから何時かは結局成層圏に侵入し、そこで O_3 の光解離で生じた $\text{O}({}^1\text{D})^*$ と反応して NO が遊離される。

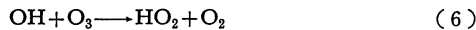


農業肥料の使用量増加は N_2O の大気への放出率増大につながるので、 N_2O は必ずしも自然源ばかりとは云えない。

また超音速機 (SST) は成層圏に直接 NO_x を注入するので問題となり、1972~74 に米国で CIAP と称する総合研究が行われた。このことについては後で再び触れる。

(iii) HO_x (OH , HO_2) の触媒連鎖反応系

HO_x も NO_x と同様に触媒として働く。

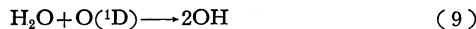


(6) と (7) を併せれば $2\text{O}_3 \longrightarrow 3\text{O}_2$ となり、この間 HO_x の量に変化はない。

OH の起源は中間圏では

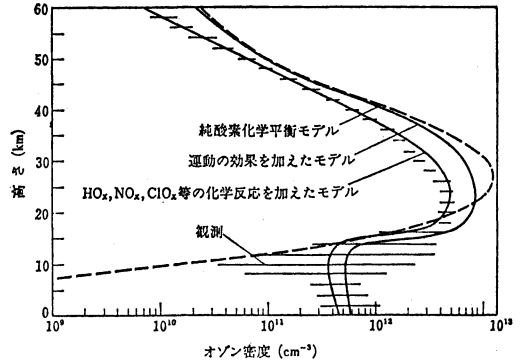


成層圏と対流圏では



(8) の紫外線は成層圏以下には入ってこないで、 O_3 と HO_x の反応が重要なのは中間圏だけだと考えられていたが、近年 (9) の反応が重要であることがわかり、 HO_x の触媒連鎖反応は成層圏や対流圏でも問題となっ

* $\text{O}({}^1\text{D})$ は励起状態の酸素原子で、 ${}^1\text{D}$ はそのエネルギー単位を示している。励起していない酸素原子 O と N_2O との反応もあるが、反応速度が遅すぎて問題とならない。この場合、酸素原子が励起された状態にあると反応が著しく速くなる。



第6図 成層圏オゾンの高度分布 (水平横線) と種々のモデルとの比較。

(島崎, 1979)

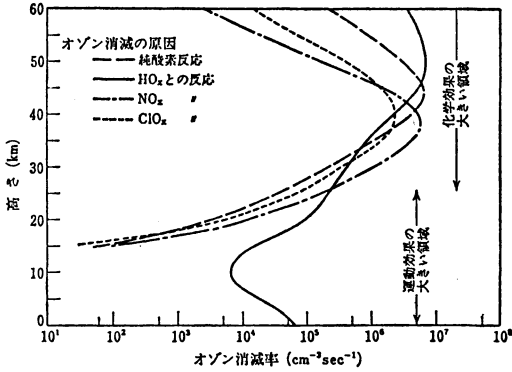
た。このことによりオゾン化学の様相が可成り変わった。(iv) ClO_x (Cl , ClO) の触媒連鎖反応系 ClO_x も同様な働きをすることが近年わかった。すなわち、



この結果は $\text{O}_3 + \text{O} \longrightarrow 2\text{O}_2$ で ClO_x の量に変化はない。 ClO_x の起源は、自然のものとしては海藻から発生する塩化メチル (CH_3Cl) もあるが、殆んどは人工の所産である化学物質で、中でももっとも重視されているのがクロロフルオロメタン (CFM_6) のうちのフレオン-11 (CCl_3F) とフレオン-12 (CCl_2F_2) である (Molina and Rowland, 1974, Rowland and Molina, 1975)。これらは対流圏内では化学的に全く安定で、降水にも溶けず、植物圏や海洋からのとり込みもない。したがって放出されたフレオンは対流圏に蓄積するばかりで、やがては成層圏に侵入し、そこで紫外線により解離されて遊離ラジカル ClO_x を生ずる。

第6図は一次元モデルによる成層圏オゾンの高度分布である。Chapman 機構 (破線) が実測 (水平横線) と比べて大きすぎることは先に述べたが、 NO_x , HO_x , ClO_x を考慮に入れることによって、モデルは実測と殆んど一致したことが示されている。

しかしながら、第6図ではどの成分がどれほど効いたかわからないので、成分別に効率を画いたのが第7図である。これによると、純酸素反応が卓越するのは40~45km であって、それより上では HO_x 、それより下では NO_x の効果が卓越していることがわかる。25km 以下になると、 HO_x が再び主役となる。このように、下部成



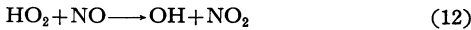
第7図 種々の化学反応系によるオゾン消滅率の比較, (島崎, 1979)

層圏ではHO_x系の消滅反応が主体であるということは、次に述べる SST の影響評価に重要な関係をもつのである。

5.3. SST の影響の評価

一次元モデルといっても、それは数十種の原子、分子間に起こる100を越える解離作用や化学反応を含んだ複雑な反応系をとり扱っている。CIAP ではこうした一連の研究の結果、SST 就航の影響として、「飛行高度の差によって著しい違いはあるが、オゾン濃度の変化は大気の全高度にわたって減少の方向に起こる」というのが結論であった。

ところで驚いたことには、ここ数年の間にこの結果が大幅に修正されたのである。SST の就航は、下部成層圏ではオゾン濃度を減少させるのではなく、逆に増加させるというのである。このように話が変わったポイントは、

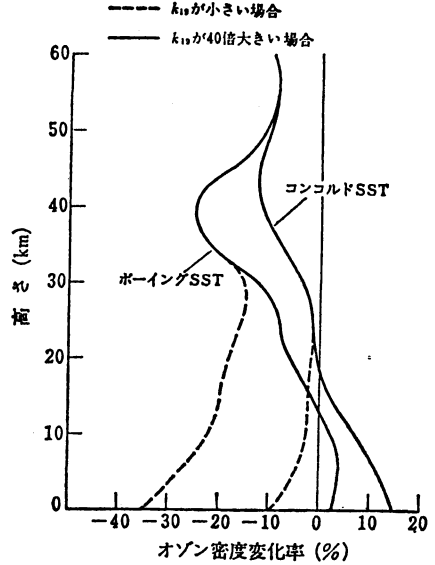


の反応速度が、以前に考えられていた値の40~50倍も大きく訂正されたことにある。

さきに述べたように、下部成層圏(25km以下)でO₃の消滅に主役を果たしているのは、HO_x系の反応(6)と(7)であった。ところで、ここにSSTから多量のNOが排出され、かつそれとHO₂との反応速度が速いとなると、(12)の反応が(7)にとって代ることになる。つまり、O₃を破壊すべきHO₂がNOに横取りされることになる。そして(12)で生じたNO₂から



によってO₃が再生される*。だからこの2つの式と(6)、



第8図 SST が排出するNO_xによるオゾン濃度の変化率,

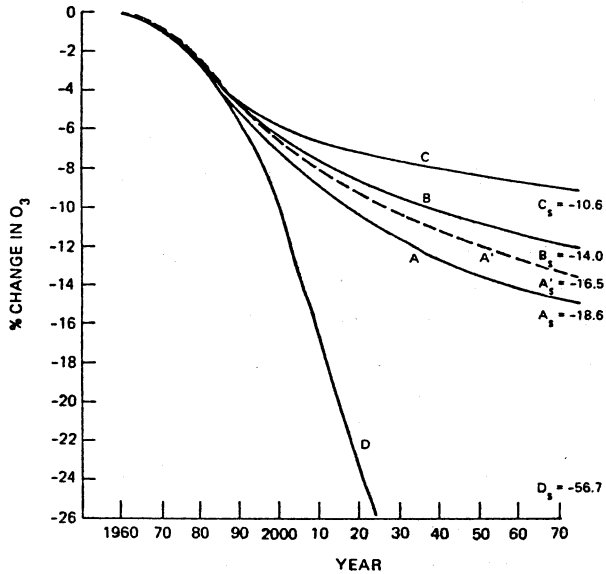
破線はCIAPの結論、実線はHO₂+NO→OH+NO₂の反応速度定数の見直しによる修正値 (島崎, 1979)

(12)を併せると、O₃には何ら増減がないことになる。さらにそれだけでなく、(12)で生じたOHがメタンに反応し、それから始まる光化学スモッグ反応と称されている一連の反応によって、O₃がさらに生成されるというのである。

NO_xとオゾンとの関係は、成層圏と地上とでは見掛け上逆になっている。つまり、前節で述べたように、触媒連鎖反応によって成層圏ではNO_xはO₃を消滅させるが、これが地上に加えられた時には光化学スモッグで知られているようにO₃を生成している。この消滅か生成かの境界高度は従来約10kmと考えられていたが、(12)の反応の見直しの結果、その高度が高まった形となったのである。

第8図はSSTにより、各高度でオゾンが如何に変る

* (13)式のように三個の原子または分子間に起る反応は、Mを第三体とする三体反応と呼ばれる。MはOとO₂の間に起る二体反応の生成物(O₃)が持つ過剰エネルギーを受け取って、反応の逆行(再びOとO₂に分解する)を阻止し、その結果としてO+O₂→O₃の反応を促進する。Mとしてはどんな分子でもよいが、大気中では最も多いN₂やO₂がその役割をする。



第9図 フレオンの放出による成層圏オゾンの濃度減衰の予想経過,

- A : 1977年の放出率を続けた場合
 - A' : Aにおいて、対流圏に成種の吸収源を想定した場合
 - B : 1977年の放出率を1983年まで続け、その後は放出率を25%減少させた場合
 - C : Bにおいて、1988年後は更に25%減少させた場合
 - D : 1977年の放出率を1980年まで続け、以後年毎に7%増加させ、2000年以後は一定におさえた場合
- 添字 S はそれぞれのケースにおける平衡状態での減衰率 (%)を示す。

(National Academy of Science, 1979)

かを示したもので、図中の破線は CIAP 当時の結論であり、実線は反応 (12) の見直しの結果である。高さ 20 km 以上では NO_x の影響はオゾン濃度減少となっているが、20km 以下では逆に増加をもたらしている。

5.4. フレオンの影響の評価

さて、フレオンの話に移るが、この問題の深刻な点は、対流圏中での吸収源が見当らず、かつ成層圏への侵入が極めて緩慢なため、大気中への放出を今直ちに停止したとしても、成層圏における量は今後さらに10年は増加を続ける。そしてまたそこでの消滅率も低いため、今後100年以上は成層圏にあって、触媒作用によりオゾン破壊しつづけるという点にある。

全米科学アカデミー (NAS) は、1976年の報告書で、その時点までの研究を総括した結論として、もし1973年のフレオンの年間放出量が将来も続けられたとすると、成層圏オゾンは最終的に6~7.5%減衰すると述べた。このような予想は研究が進むにつれてさほどのことはな

かったとなるのが一般であるが、フレオンについては逆であった。ここでも反応 (12) の見直しの結果、予想はさらに深刻なことになった。

第9図は1979年に再び出された NAS 報告書に示された成層圏オゾン減衰の予想経過である。図中の曲線 A は、フレオンの大気中への年間放出量が将来とも1977年のレベル (1973年のそれを5%とは越えていない) をつづけた場合の経過である。半減期30年という緩慢な減衰で、終局的減衰は18.5%に達する。なお、前回の報告では考慮しなかった要素であるが、何らかの未確認吸収源 (例えば砂漠の砂を触媒とする光解離があるという説もある) を考慮するとすれば、多少任意ではあるが補正を加えて減衰は16.5%となる。この値は前回の報告書の約2倍である。

さて、SST の影響にしても、フレオンの影響にしても、さきに述べたように考慮されている反応式が100を超えるような複雑な系の中で、如何にそれが重大なキー

ポイントである反応であるにせよ、一、二の反応速度定数が変わったことで結果がこうも変わるようでは、この結論も未だ流動的なものに過ぎないのではないかと疑われよう。しかし NAS 報告書はそれを否定し、その理由として次のように述べている。前回と今回の報告の間になされた測定法の進歩にはめざましいものがあった。従来は間接的な測定から推定せざるを得なかった反応の速度定数も、現在では直接法によって高い精度で決定できるようになったので、今では疑わしい要素は殆んど残されていない。したがって今後は予想が大きく変るようなことはあり得ないというのである。

フロンについては最後にそれが放射に及ぼす影響に再び触れておこう。フロンは赤外に吸収帯をもつので、二酸化炭素と同様に温室効果をもち、地上気温を高める。しかしその効果は CO_2 の 10% 程度であると言う。また再三述べたように、フロンはオゾン減衰という過程を通して間接的に成層圏の気温を低下させる。しかしその地表気温への影響は僅かであり、それも加熱か冷却かさえまだ不明である。

6. エアロゾル問題

6.1. エアロゾルの成因と粒径

エアロゾルを成因にしたがって区別して見ると、固体または液体塊が破碎され粉末化したものと、気体分子が凝結により粒子化したものとに 2 大別できる。前者の自然界における代表例は風塵と海塩粒子である。自然界に見られる半径 $1 \mu\text{m}$ 以上の粒子（巨大粒子と呼ばれる）はすべて破碎粉末化により生じたものと見てよいであろう。一方、気体が粒子化して生じたものの代表例は硫酸粒子である。火山噴火により、または化石燃料の使用に伴って大気中に放出された SO_2 が、種々の酸化反応によって SO_3 になり、水とされて H_2SO_4 となる。硫酸蒸気は飽和蒸気圧が極めて低いので、液化しやすい性質を持っているが、水と適当な混合比率（臨界モル分率）で混合した溶液面での蒸気圧はさらに低下する。硫酸蒸気と水蒸気の混合体の中で、臨界モル分率をもち、かつ一定の半径をもった分子集団（臨界エンブリオと呼ぶ）が分子相互の衝突によってたまたま生れたとすると、この分子集団は再び分散することなく、硫酸および水分子をさらにとり込んで成長しはじめ、ここに 1 個のエアロゾル粒子が誕生する。その最も普通な粒子は、硫酸分子 1、水分子 2 の比率からなる（重量比にして硫酸 75%）硫酸粒子である。

この粒子には空気中のさまざまな蒸気がさらに凝結し、他成分と化学反応し、また互いに凝集し合ってより大きな、より複雑な組成をもった粒子に成長して行く。自然大気中で、半径 $0.1 \mu\text{m}$ 以下の粒子（エートケン粒子と呼ばれる）は、多くがこのような過程で生じたものと考えられている。

半径 $0.1 \mu\text{m}$ と $1 \mu\text{m}$ の間（大粒子と呼ばれる）には、破碎粉末化で生じた粒子と、気体分子の粒子化で生じた粒子とが混在しているばかりでなく、濃度測定や化学分析も厄介であるので、研究が最も困難な領域となっている。

巨大粒子は大気中での落下速度が大きいので、滞留時間が短い。したがって、砂塵嵐とか煤煙発生源の附近を除いては、大粒子やエートケン粒子に比べると数密度が極めて低い。数密度がもっとも高いのはエートケン粒子である。エートケン粒子はその表面への蒸気の凝結、もしくは相互衝突による凝集によって成長し、大粒子に移行して行くので、その意味では重要な存在である。しかし後にも述べるように、日射の吸収散乱に関する粒子は半径 $0.1 \mu\text{m}$ 以上であり、雲形成に関する粒子は小さくてもたかだか $0.01 \mu\text{m}$ までであるので、当面の気候問題で考慮の対象となるのはエートケン粒子でも $0.01 \mu\text{m}$ 以上と大粒子とである。

6.2. Mie 散乱と大気混濁

エアロゾルによる汚染が進むと空は濁って見えてくる。これは太陽放射のエアロゾルによる散乱（Mie 散乱）が増すためである。（Mie 散乱とは分子のオーダーより大きい粒子による散乱であって、気体分子による散乱を論じた Rayleigh 散乱の理論を一般化して得られたものである。）

太陽から来る放射（日射）は大気を通過する際に減衰をうけながら地表に達する。簡単のために太陽が天頂にある場合を考えよう。大気外における波長 λ の日射強度を $I_{\lambda 0}$ 、地表面がうけるその強度を I_{λ} とすると

$$I_{\lambda} = I_{\lambda 0} \exp(-\tau_{\lambda})$$

日射を減衰させる原因には、(i) 大気分子による散乱（Rayleigh 散乱）、(ii) 大気中の水蒸気、二酸化炭素、オゾン等による選択吸収、(iii) エアロゾルによる吸収と散乱（Mie 散乱）があり、これらの作用が強い程 τ_{λ} （光学的厚さと呼ぶ）は大きい。 τ_{λ} は (i)、(ii)、(iii) の効果それぞれに分解できる。

$$\tau_{\lambda} = \tau_{R\lambda} + \tau_{a\lambda} + \tau_{M\lambda}$$

右辺の 3 つの項はそれぞれ (i)、(ii)、(iii) に対応する

ものである。

これからの議論は τ_{MA} を問題とするわけである。 τ_{MA} と波長との関係は

$$\tau_{MA} = \beta \lambda^{-\alpha}$$

と表わすことができる*。 そうすると β はエアロゾルの大気中（単位断面積の気柱）における総量に対応する量で、Ångström の混濁係数と呼ばれる。

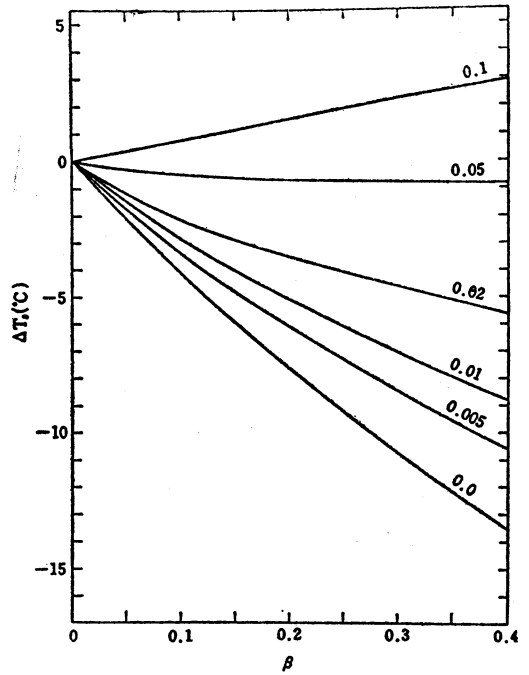
6.3. エアロゾルが放射エネルギー収支に及ぼす影響
— 気候寒冷化か、温暖化か？

エアロゾル粒子は日射を散乱し、また吸収するので、その濃度の増加は気候変動の上で重要な問題である。

今かりに、エアロゾル粒子が非吸収性であるとすれば、日射の一部は上方へも下方へも散乱される。下方への散乱（前方散乱）によっては放射エネルギーの空間分布が変わるだけで、大気を受けるエネルギー量に損失はないが、上方への散乱（後方散乱）は虚空へ逃れ去ってしまう。この結果は地球—大気系の総アルベドの増加であり、地球に到達する日射量の減少となつて、この系は総じて冷却される。

これに対し、エアロゾル粒子が放射エネルギーの一部を吸収する場合には、粒子自身が暖まり、その熱を周囲の空気に伝える。この結果は総アルベドを減少させたことになる。アルベドを増加させる（冷却）か、それとも減少させる（加熱）かは、粒子による日射の吸収量と後方散乱量との比率次第である。さらに換言すれば、粒子の複素屈折率の虚数部（吸収係数に比例する量）の値次第である。

このことに関して、Yamamoto and Tanaka (1972) は放射伝達の式を解いて重要な結果を得たので、結果のみ紹介しよう。第10図はエアロゾル総量によって、地表温度がどのように変わるかを示したもので、横軸の β はさきに述べた大気中の混濁係数であつて、エアロゾル総量の指標として用いられている。曲線の上の数字は粒子の複素屈折率の虚数部 (n_i) の値、すなわち吸収の度合いを示している。 n_i が 0.1 ならエアロゾル濃度が増加する



第10図 大気中の混濁係数 β と地表温度変化 ΔT_s との関係。

曲線に添えた数字は複素屈折率の虚数部の値。

(Yamamoto and Tanaka, 1972)

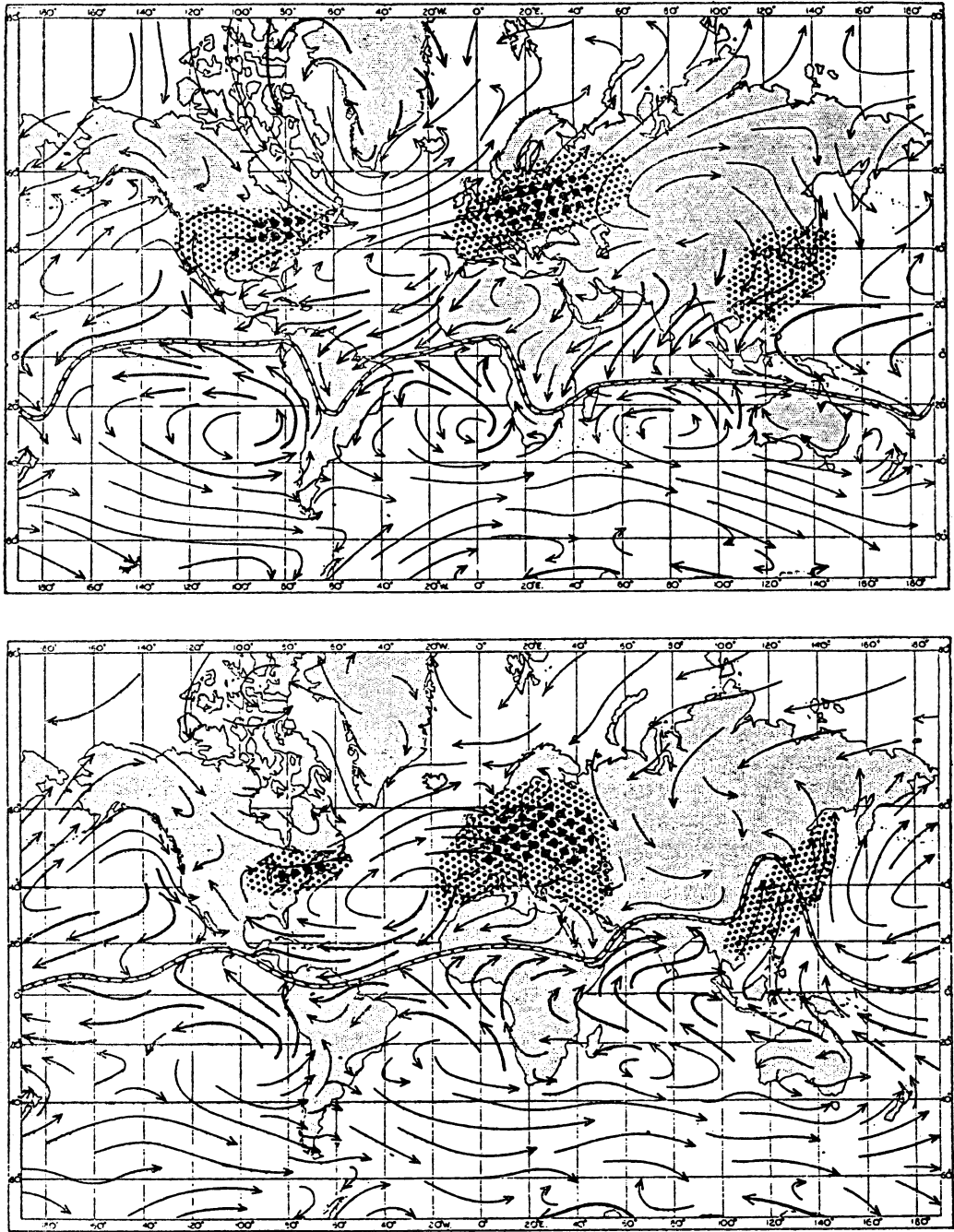
程昇温、0.05以下なら降温という結果である。

さて、エアロゾルが放射収支に及ぼす影響を考えると、一番大きな問題は n_i の決定である。それは n_i の効果が大きいにもかかわらず、実測データが不足しているからである。今までのところ一応 n_i は 0.01~0.03の間と推定されているが、それが正しいならば、第10図が語る所は、エアロゾルの増加によって地表温度が低下するということになる。

ところで、上記の計算には地表アルベドの設定が重要である。上述の場合には地表アルベドとして、海陸分布を考慮した全地球表面についての平均アルベドを採用している。このことはエアロゾルが全地球表面に均等に拡散分布していることを暗に前提としていると云えよう。

Kellogg (1977) は地球上の地表卓越風の分布と、エアロゾルの寿命とを併せ考えれば、エアロゾルの定常分布は地球上様ではなく、その発生源に近い陸地の上に偏在していると推定されることから、エアロゾルの増加はむしろ気候温暖化をもたらす可能性の方が高いと推論

* エアロゾルの光学的厚さ τ_{MA} は粒子濃度ばかりでなく、粒径分布にも依存する量である。粒径分布が Junge 分布 $n(r) = Cr^{-p}$, $n(r)$: 粒径分布関数, r : 半径, c , p : 定数) で表わせるとき、 τ_{MA} は上に述べた Ångström の形式で書け、 β は粒子濃度のみの関数となる。 α は p の値により定まる数で、経験的な平均値は 1.3 である。後に述べる Yamamoto and Tanaka の議論では $p=4$ としているので、 $\beta=1$ となっている。



第11図 人間活動に起因するエアロゾルの世界分布の推定図.

上は1月, 下は7月

(Kellogg, 1977)

した。Kellogg の議論は次の通りである。

これから考えるのは人間活動の影響であるから、エアロゾルも人工起源のもののみを対象とする。そこで各国における発生量はそれぞれの国民総生産高に比例するものとする。さらに、エアロゾルの寿命は平均5日とする。

これを地表面の風系図に乗せると、第11図に示したようなエアロゾルの定常的滞留地域が決定される。ここで注目すべきことがある。エアロゾルの一部は確かに洋上へも流れ出ているが、主体は工業地域の近傍の陸地に局限されているということである。

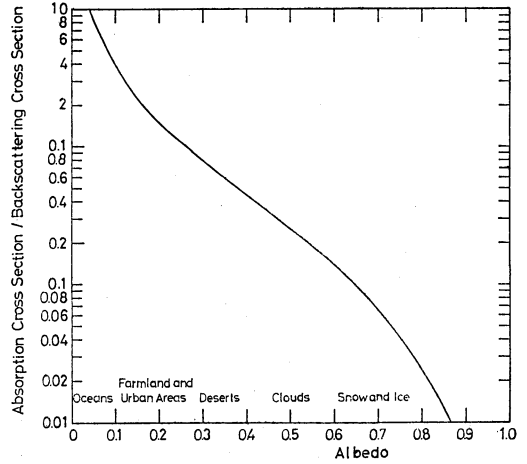
さてここで、Chylek and Coakley (1974) が画いた第12図を見よう。この図の縦軸 a/b はエアロゾルによる吸収量 a と、後方散乱量 b との比で、その臨界値と地表面アルベドとの関係が画かれてある。つまり、この曲線で2分された上半分は加熱で、下半分は冷却の領域である。たとえば雲（アルベド 0.5）の上で、 a/b が 0.27以上ならエアロゾルの効果は加熱で、それ以下ならば冷却だということである。海の上ではアルベドが零に近いから、吸収がよほど強くない限り散乱の方が効いて冷却されるし、雪氷の上では反対にアルベドが1に近いから、エアロゾルの散乱があったとしてももともとで、僅かでも吸収があると大気を含めたアルベドが減少して加熱となる。

さて、人工起源のエアロゾルの吸収は、自然のそれより強いと考えられている。さらにその分布が第11図に見られるように陸地に偏しているのです、 a/b の値は陸地の表面アルベド ($\alpha=0.2$) に対する a/b の臨界値を超え、結局気候温暖化につながるというのである。

この問題の結論は現在においてもまだ流動的である。Kellogg は第1近似としてエアロゾルの平均寿命を5日としたが、寿命には粒径依存性があるし、粒径が異なればまた化学組成、したがって屈折率も異なると考えられる。近似の度をさらに進めれば、問題はどちら側に転ぶか、定かな予想は現状ではまだ立て難い。

6.4. 雲物理を通しての気候への影響

エアロゾルの放射への影響は、前節に述べたようなエアロゾルの直接効果よりは、雲物理を通しての間接効果の方が重大だと説く人々もいる。要約すれば、放射収支に与える影響は雲の方がエアロゾルより大きい。雲は日射に対しては強い反射体である一方、赤外放射に対しては完全に不透明だからである。したがって人間活動による汚染粒子が雲の形成を左右し、あるいは雲の光学的性



第12図 エアロゾルの吸収断面積と後方散乱断面積の比の臨界値と地表面アルベドとの関係。(Chylek and Coakley, 1974)

質を変えたとすれば重大なことだというのである。

同じような問題は二酸化炭素にもある。二酸化炭素の増加は下層大気の上昇を呼び、その結果は大気中に含まれる水蒸気量の増加を促す。そこで雲の分布や性質に変化を生ずることになる。二酸化炭素と雲の間にはこのような因果関係があるが、この両者の放射収支へ与える影響のからみ合いは大変複雑である。これからの二酸化炭素問題で中心課題の一つになるであろう。

7. おわりに

人間活動が大気に放出する微量成分のなかで、気候への影響が懸念される物質として重視されている二酸化炭素、成層圏オゾン破壊物質、およびエアロゾルについて、現在の問題点のあらましを述べたが、いずれも極く近年に到って、従来の説についての重大な見直しが行われ、問題によっては混沌の状態におちたと云わざるを得ない。それにもかかわらず、上記の3種の汚染物質は確実に逐年増加をつづけているのである。WCRP(世界気候研究計画)なる国際協同研究で、独り大気物理学者のみならず、海洋、生物関係の学者も抱含した総合研究が発案しようとしていることは、まさに時宜を得た計画であると云えよう。

この解説を用意するに当たって、下記の著書に負うたところが大きい。厚く謝意を表するとともに、この問題に興味を感じられた読者には、さらに進んでこれらの著書を勉強されることを強くおすすめする(巻末文献参照)。

- (i) 二酸化炭素問題については
田中正之 (1979 a, 1979 b, 1980), 山本義一(1979),
吉良竜夫 (1980), 北野 康 (1980)
- (ii) 成層圏オゾン問題については
島崎達夫 (1979), F.S. Rowland (1979), 小川利紘
(1979)
- (iii) エアロゾル問題については
小野 晃 (1979), 三崎方郎ほか (1981)

文 献

- Chylek, P and J.A. Coakley, 1964: Aerosols and climate, *Science*, **183**, 75-77.
- Cobb, W.E. and H.J. Wells, 1970: The electrical conductivity of oceanic air and its correlation to global atmospheric pollution. *J. Atmos. Sci.*, **27**, 814-819.
- Keeling, C.D., R.B. Bacastow, A.E. Bainbridge, C.A. Ekdahl, JR., P.R. Guenther, and L.S. Waterman, 1976a: Atmospheric carbon dioxide variations at Mauna Loa Observatory, Hawaii, *Tellus*, **28**, 538-551.
- Keeling, C.D., J.A. Adams, JR., C.A. Ekdahl, JR., and P.R. Guenther, 1976b: Atmospheric Carbon dioxide variations at the South Pole. *Tellus*, **28**, 552-564.
- Kellogg, W.W., 1977: Effects of human activities on global climate. WMO Technical Note, No. 156 (WMO-No. 486) 47pp.
- 吉良竜夫, 1980: 大気中の二酸化炭素と森林. 学術月報, 日本学術振興会, **32**, 814-819.
- 北野 康, 1980: 大気中の二酸化炭素と海洋, 学術月報, 日本学術振興会, **32**, 826-830.
- Manabe, S. and R.F. Strickler, 1964: Thermal equilibrium of the atmosphere with a convective adjustment. *J. Atmos. Sci.*, **21**, 361-385.
- Manabe, S. and R.T. Wetherald, 1967: Thermal equilibrium of the atmosphere with a given distribution of relative humidity. *J. Atmos. Sci.*, **24**, 241-259.
- Manabe, S. and R.T. Wetherald, 1975: The effects of doubling the CO₂ concentration on the climate of a general circulation model. *J. Atmos. Sci.*, **32**, 3-15.
- Manabe, S. and R.T. Wetherald, 1980: On the distribution of climate change resulting from an increase in CO₂ content of the atmosphere. *J. Atmos. Sci.*, **37**, 99-118.
- 三崎方郎, 中谷茂, 内藤恵吉, 1981: エアロゾル特集—基礎編—, 気象研究ノート, 142.
- Molina M.J. and F.S. Rowland, 1974: Stratospheric sink for chlorofluoromethanes: chlorine atom catalysed destruction of ozone. *Nature*, **249**, 810-812.
- National Academy of Sciences, 1979: Stratospheric ozone depletion by halocarbons: chemistry and transport. 238pp. Available from Committee on Impacts of Stratospheric Change, 2101 Constitution Avenue, Washington, D.C. 20418.
- National Oceanic and Atmospheric Administration, 1979: Geophysical Monitoring for Climatic Change No. 7, Summary Report 1978, 131pp.
- 小川利紘, 1979: 成層圏オゾン. 大気環境の科学, **2**, 大気汚染物質の動態, 211-244, 東京大学出版会.
- 小野 晃, 1979: エアロゾル, 大気環境の科学, **2**, 大気汚染物質の動態, 85-133, 東京大学出版会.
- Rowland, F.S., 1979: Stratospheric ozone: earth's fragile shield. 1979 Yearbook of Science and Future, 170-191, Encyclopedia Britannica, Inc.
- Rowland, F.S. and M.J. Molina, 1975: Chlorofluoromethanes in the environment. *Rev. Geophys. Space Phys.* **13**, 1-35.
- 島崎達夫, 1979: 成層圏オゾン. 184pp. 東京大学出版会.
- 田中正之, 1979 a: 二酸化炭素. 大気環境の科学, **2**, 大気汚染物質の動態, 49-84, 東京大学出版会.
- 田中正之, 1979 b: 気候変動モデル—熱平衡モデル. 大気環境の科学, **4**, 気候変動, 136-166, 東京大学出版会.
- 田中正之, 1980: 二酸化炭素の増加と懸念される気候問題. 学術月報, 日本学術振興会, **32**, 806-813.
- Woodwell, G.M., 1978: The carbon dioxide question. *Scientific American*, **238**, 34-43, 日本版: 北野康訳 (1978), サイエンス, **8**(3), 20-31.
- Yamamoto, G. and M. Tanaka, 1972: Increase of global albedo due to air pollution. *J. Atmos. Sci.*, **29**, 1405-1412.
- 山本義一, 1979: 気候変動と人間活動. 大気環境の科学, **4**, 気候変動, 71-95, 東京大学出版会.