

## 二酸化炭素のゆくえについて\*

青木 周 司\*\*

### 1. はじめに

大気中における二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) 濃度の増加にともなう気候の温暖化が多くの人々の関心を集めている。温暖化のシナリオを描くためには、地球上の炭素循環を定量的に明らかにする必要がある。この談話室では、定量化に関して、CO<sub>2</sub> 中に含まれる炭素の安定同位体を用いた研究と、大気中の酸素濃度を用いた研究を紹介する。

CO<sub>2</sub> は現在の大気中における存在量が体積比で約 0.036% (=360 ppm) の微量成分であるが、水蒸気に次いで温室効果気体としての能力が高い。現在 CO<sub>2</sub> は化石燃料消費によって炭素量に換算して平均 5.6 Gt yr<sup>-1</sup> (Gt=1×10<sup>15</sup>g, 今後炭素量に換算した CO<sub>2</sub> 量を GtC: ギガトンカーボン単位で表すことにする) 大気に放出されており、大気中の濃度が急激に増加しつつある。CO<sub>2</sub> は、大気中の存在量が微量であるために人間活動の影響を受けやすく、温室効果能力が高いためその濃度変化が気候に大きな影響を与える。

さて、化石燃料消費によって大気中に放出された CO<sub>2</sub> のゆくえはどうなっているのでしょうか。最近の CO<sub>2</sub> 濃度増加率は平均 1.5 ppm yr<sup>-1</sup> であり、これは 3.2 GtC が毎年大気に残留していることに相当する。したがって、残りの 2.4 GtC は海洋と生物圏によって吸収されていることになる。現在の評価では、1年間に海洋が吸収できる CO<sub>2</sub> 量は約 2 GtC であるため、残りの 0.4 GtC は生物圏によって吸収されなければつじつまが合わない。一方、ランドサットなどの人工衛星画像データから、熱帯域の森林地帯が近年の大規模な開発や焼き畑によって広域に破壊されている実態

が明らかになり、生物圏は CO<sub>2</sub> の吸収源ではなく、逆に 1.6 GtC yr<sup>-1</sup> 程度の CO<sub>2</sub> を放出していると森林生態学者は主張している。したがって、これまでの知識ではかなりの量 (0.4+1.6=2.0 GtC yr<sup>-1</sup>) の CO<sub>2</sub> が行方不明になったままなのである。このため、将来人間活動によってどの程度の CO<sub>2</sub> を放出すればどのくらい大気中の CO<sub>2</sub> 濃度増加が起こるか、といった最も基本的な問題にまだ明確な解答を出せないのが現状である。

CO<sub>2</sub> のゆくえを明確にするために、地球規模の炭素循環に関する研究がさまざまな方法により精力的におこなわれている。その中でも、生物圏と大気の CO<sub>2</sub> 交換および海洋と大気の CO<sub>2</sub> 交換をどのように分離して定量化するかということに多くの関心が集まっている。換言すれば、行方不明となっている CO<sub>2</sub> 約 2 GtC yr<sup>-1</sup> の自然界への配分・吸収を定量的に明らかにすることが中心課題となっている。ここで紹介する2つの研究は、この未解決の問題を全く異なった方法で追求している。

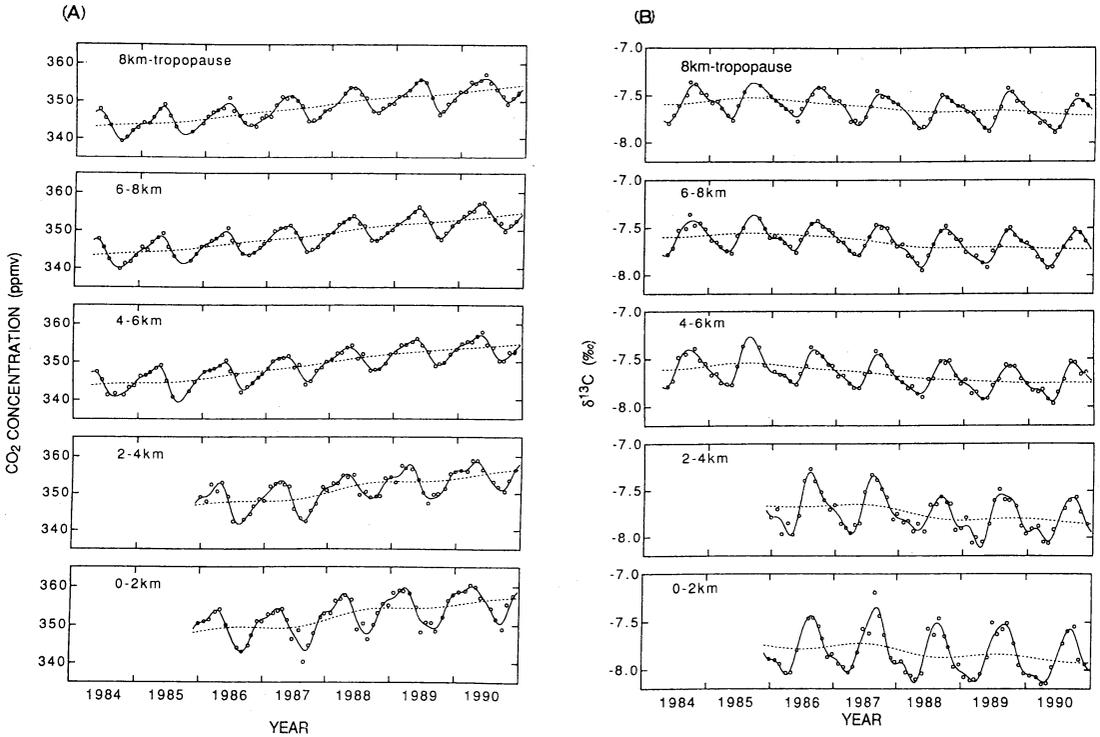
### 2. 大気中の CO<sub>2</sub> に含まれる炭素同位体変化からみた CO<sub>2</sub> 交換

CO<sub>2</sub> は炭素原子と酸素原子が結合した分子であり、炭素および酸素ともに質量数が異なる同位体をもっている。炭素原子の場合、自然界には安定同位体として質量数12の炭素 (<sup>12</sup>C) が98.89%、質量数13の炭素 (<sup>13</sup>C) が1.11%存在している。その他、放射性同位体として年代測定に使用される<sup>14</sup>Cなどが知られているが、その存在比は安定同位体に比べてはるかに小さい。

CO<sub>2</sub> に含まれる炭素の安定同位体比の測定には、質量分析計が用いられる。一般に、安定同位体比は標準物質を用いて次のような式で表される。

\* Atmospheric CO<sub>2</sub> and global carbon cycle.

\*\* Shuhji Aoki, 国立極地研究所.



第1図 日本上空対流圏各層における  $\text{CO}_2$  濃度の変化 (A), および  $\delta^{13}\text{C}$  の変化 (B). 白丸は観測値, 実線は観測値へのベストフィットカーブと季節変化を除去した経年変化を表わす.

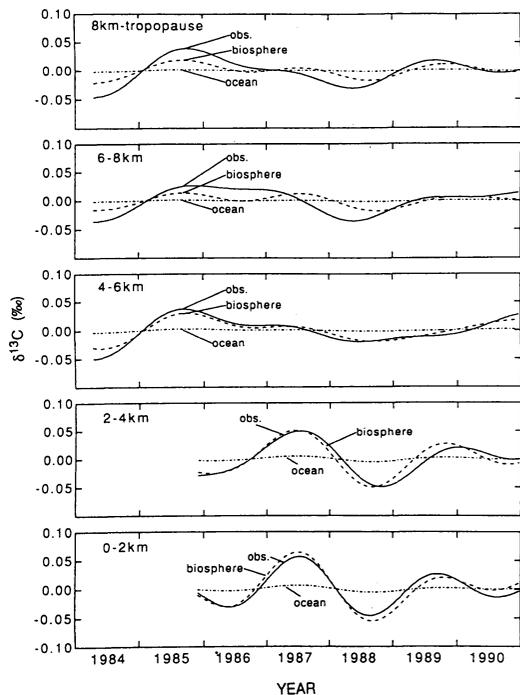
$$\delta^{13}\text{C} = \left( \frac{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{SA}}}{(^{13}\text{C}/^{12}\text{C})_{\text{ST}}} - 1 \right) \times 1000$$

式の ST, SA はそれぞれ標準物質およびサンプルのことであり, 求められた結果は千分率‰ (パーミル) で表わされる.

$\text{CO}_2$  が大気と生物圏間あるいは大気と海洋間で交換された場合, やりとりの過程で安定同位体比が変化する. この現象を同位体分別効果 (Fractionation) とよんでいる. 大気中の  $\text{CO}_2$  が光合成によって植物に取り込まれるときには, 植物は  $^{13}\text{CO}_2$  よりも  $^{12}\text{CO}_2$  をより多く固定する. その割合は, 現在の対気に対して  $-0.05\%/ppm$  である. すなわち光合成によって大気中の  $\text{CO}_2$  が  $1\text{ ppm}$  減少すれば  $\delta^{13}\text{C}$  は  $0.05\%$  増加することになる. 植物の呼吸作用, 土壌酸化および森林破壊によって大気中の  $\text{CO}_2$  が  $1\text{ ppm}$  増加すれば, 逆に  $\delta^{13}\text{C}$  は  $0.05\%$  減少する. 一方, 大気中の  $\text{CO}_2$  が海洋に取り込まれる場合, 大気中の  $\delta^{13}\text{C}$  変化は  $-0.005\%/ppm$  であり, 海洋から  $\text{CO}_2$  が放出される場合, 大気中の  $\delta^{13}\text{C}$  変化は  $-0.002\%/ppm$  となる. したがって, 大気と海洋間の  $\text{CO}_2$  交換にともなう

$\delta^{13}\text{C}$  変化は, 大気と生物圏間の  $\text{CO}_2$  交換にともなう  $\delta^{13}\text{C}$  変化に比べて  $1$  桁小さい. また, 化石燃料消費にともなう  $\delta^{13}\text{C}$  変化は, 生物圏とはほぼ同じになる. もともと化石燃料が生物起源であることを考慮すれば, このことはうなずけるであろう. これらの特性を考慮しながら大気中の  $\text{CO}_2$  濃度変化と  $\delta^{13}\text{C}$  の変化をながめれば, 生物圏と海洋の役割を定量的に分離して議論することができるであろう.

第1図に東北大学の中澤・森本・田中のグループと筆者によって, 航空機観測から求められた日本上空における  $\text{CO}_2$  濃度変化と  $\delta^{13}\text{C}$  変化の様子を示す.  $\text{CO}_2$  濃度はどの高度でも季節変化をとめないながら, 経年的に増加している. 濃度変化を詳しく見てみると, 季節変化は高度とともに減衰し, 最高濃度および最低濃度が出現する時期も高度とともに少しずつ遅れる傾向があることがわかる. このことは,  $\text{CO}_2$  の季節変化を引き起こす原因が地上付近に存在することを示唆している. 一方,  $\delta^{13}\text{C}$  も季節変化しながら経年変化しているが, 変化傾向は  $\text{CO}_2$  濃度と逆になっている. すなわち  $\delta^{13}\text{C}$  は夏に高く冬から春にかけて低くなり, 経年



第2図 日本上空対流圏各層における  $\delta^{13}\text{C}$  経年変化の不規則成分の実測値 (obs.) および海洋との交換 (ocean) と生物圏との交換 (biosphere) だけを考慮した場合の  $\delta^{13}\text{C}$  経年変化の不規則成分の計算値.

的に減少傾向をみせている。

第1図から季節変化成分だけをとりだして、 $\text{CO}_2$  濃度と  $\delta^{13}\text{C}$  の関係のみをみよう。これらの間にはどの高度でも直線関係が成り立っており、最小自乗法によって得られた直線の傾きはいずれの高度でも約  $-0.05\text{‰}/\text{ppm}$  で、相関係数は0.98以上であった。このことは、日本上空で観測された  $\text{CO}_2$  濃度の季節変化がまさに陸上植物活動および土壌の有機物分解を反映したものであることを証明している。

つぎに  $\text{CO}_2$  濃度および  $\delta^{13}\text{C}$  両者に共通して見られる経年変化について考えてみよう。 $\text{CO}_2$  濃度は一方的に上昇し、 $\delta^{13}\text{C}$  は一方的に低下している。これらの変化は人間活動にともなう自然界へのたゆまぬ  $\text{CO}_2$  放出の結果であることは疑う余地がない。しかし、経年変化を詳しく見ると長期トレンドのなかに不規則な成分が含まれていることに気づくであろう。この不規則な変化の原因について考察してみる。まず  $\text{CO}_2$  濃度に関していえば、エルニーニョ現象が起こるとそのしばらく後の  $\text{CO}_2$  増加率が異常に大きくなるのが以前

から知られていた。このため、この現象を海洋と大気間の  $\text{CO}_2$  交換のアンバランスで説明しようとする試みが多数なされたが、満足するような説明はいまだに得られていない。その後、 $\text{CO}_2$  濃度の経年変化率が準2年振動をしていることが我々の観測により明らかになった。もともと  $\text{CO}_2$  濃度上昇はおもに化石燃料消費によって起こっていることは明らかだが、その消費量の伸び率は世界大戦やオイルショックなどにより一時的に停滞したことはあるものの、それらを除けばこれまでほぼ順調に増大し続けてきており、経年変化の不規則成分に関しては両者間に相関は見られない。したがって、濃度の不規則成分は大気と生物圏間および大気と海洋間における  $\text{CO}_2$  交換の不規則変化を反映していることは確かであろう。

$\text{CO}_2$  経年変化に含まれる不規則成分の原因をさぐするために、まず日本上空で得られた  $\text{CO}_2$  濃度および  $\delta^{13}\text{C}$  の経年変化データから化石燃料による寄与を差し引いた。こうして求められた  $\text{CO}_2$  濃度の残差に  $-0.05\text{‰}/\text{ppm}$  をかけて生物圏だけが経年変化異常に寄与した場合と、 $-0.005\text{‰}/\text{ppm}$  をかけて海洋だけが経年変化異常に寄与した場合にそれぞれ期待される  $\delta^{13}\text{C}$  の変化を計算した。その結果を第2図に示す。図によれば、6 km 以下の高度の  $\delta^{13}\text{C}$  の不規則成分はほぼ完全に大気と生物圏のみの  $\text{CO}_2$  交換によって説明できることが明らかになった。また、6 km 以上の高度でも生物圏からの寄与が非常に大きいことがわかる。したがって、日本上空の  $\text{CO}_2$  経年変化に含まれる不規則成分は、主に大気と生物圏間の  $\text{CO}_2$  交換によって引き起こされていることになる。このような不規則な  $\text{CO}_2$  変化は、エルニーニョ現象やその他さまざまな要素に関連した地球規模の気候変化が陸上植物に影響を与えることによって作り出されているものと推定される。

### 3. 大気中の酸素濃度変動からみた $\text{CO}_2$ 交換

地球大気には体積比で20.946%の酸素が含まれている。化石燃料消費や森林伐採によって大気中の  $\text{CO}_2$  濃度はここ100年で急激に上昇してきたが、それにとまって大気中の酸素濃度も微妙に変化してきたはずである。これらの酸化反応では  $\text{CO}_2$  濃度とともに酸素濃度も変化するが、 $\text{CO}_2$  が海洋に取り込まれる場合には大気中の酸素濃度には変化が見られないはずである。したがって、酸素濃度変化を明らかにすることは、地球の炭素循環にまったく新しい情報を提供することに

なる。この点を明らかにすべく、大気中の酸素濃度の微小な変化をとらえるための技術が Ralph F. Keeling (CO<sub>2</sub> 研究で有名な Charles D. Keeling の息子) たちや Michael Bender たちによってそれぞれ独自に開発され、これらの測器を用いた研究が進行しつつある。ここでは R. F. Keeling たちによって得られた成果について紹介する。

R. F. Keeling は大気中に最も多く存在する窒素の濃度が酸素の濃度に比べてはるかに安定である点に着目し、窒素を基準として酸素の変動を求める方法を用いている。さらに、酸素濃度の変動が非常に小さいため、炭素の安定同位体を求める場合と同じように基準となるガスをあらかじめ用意することにより、つぎのような式で酸素濃度の変化量を定義した。

$$\delta(O_2/N_2) = \left[ \frac{(O_2/N_2)_{SA} - 1}{(O_2/N_2)_{ST}} \right] \times 10^6$$

式の ST, SA はそれぞれ標準物質およびサンプルのことであり、求められた結果は per meg で表わされる。酸素は大気中に 20.95% 含まれているため、 $1/0.2095 = 4.8$  per meg が 1 ppm に相当する。すなわち、炭素の燃焼によって大気中の CO<sub>2</sub> が 1 ppm 増加することは、大気中の酸素が 4.8 per meg 減少することを意味する。

カナダの北極圏にあるエルスミア島のアラート、米国カリフォルニア州のラホイアおよびオーストラリアのタスマニア島にあるケープグリムで採取された空気サンプルの測定結果を第 3 図に示す。これらの 3 地点とも  $\delta(O_2/N_2)$  の季節変化がきわめて明瞭である。さらにラホイアで得られたデータから大気中の酸素濃度が経年的に低下していることも明らかになった。ただし、酸素濃度の低下はその存在量に対してきわめて小さいものであるため、我々の生存や地球環境に影響を与えるようなことはまったくないことを付け加えておく。

まず、 $\delta(O_2/N_2)$  の季節変化について考えてみよう。北半球では 2 地点とも  $\delta(O_2/N_2)$  の季節変化が CO<sub>2</sub> の季節変化と強い逆相関を示すことがわかる。一方、南半球では  $\delta(O_2/N_2)$  は非常に大きな季節変化を示すが、CO<sub>2</sub> はきわめて小さな季節変化しか示さない。前章の炭素安定同位体のところでふれたように、CO<sub>2</sub> 濃度の季節変化は陸上植物活動および土壌の有機物分解によって引き起こされている。この場合、大気中の CO<sub>2</sub> 濃度 1 ppm の変化に対して、大気中の酸素濃度は -1.05 ppm, すなわち約 -5 per meg 変化する。CO<sub>2</sub>

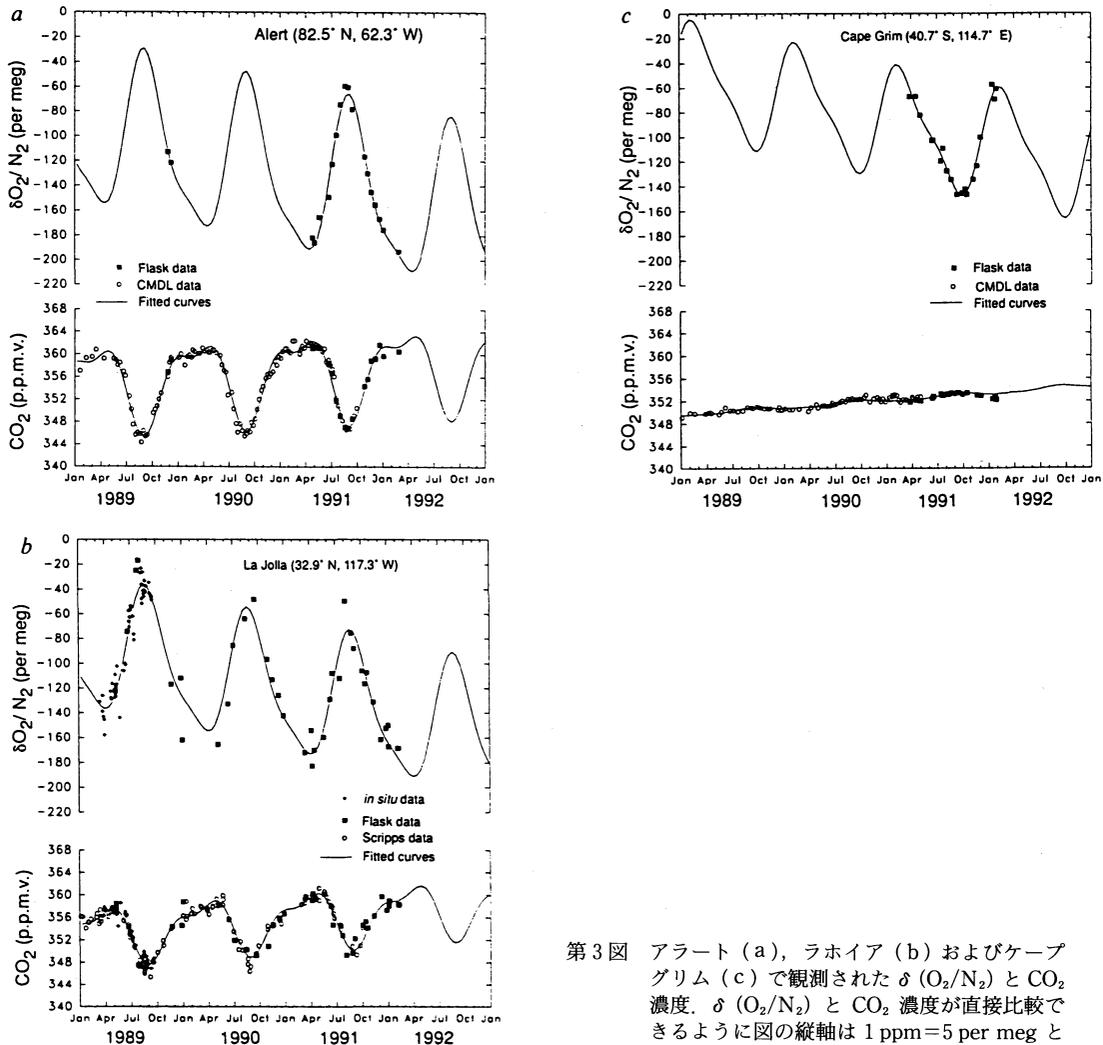
濃度変化に対する酸素濃度変化は、北半球のアラートとラホイアでは約 -10 per meg/ppm であり、南半球のケープグリムでは約 -96 per meg/ppm となっている。したがって、酸素濃度変化に占める陸上生物圏の影響は北半球で 50%, 南半球で 5% 程度と評価できる。季節変化の残りは海洋と大気間の酸素交換によって引き起こされている。これには、海水温の変化にともなう表層海洋中の溶存酸素濃度の変化、および海洋有光層における生物活動にともなう酸素生成量の変化が関係している。すなわち、海水温が低い冬季には海水の溶解度が増大して大気中の酸素が海洋に取り込まれ、逆に夏季には溶解度が低下するため海洋から大気へ酸素が放出される。また、中・高緯度では春から夏にかけて海洋中の生物活動が活発になり酸素の生成がもっとも大きくなり、秋から冬にかけて生物活動が低下するとともに海洋の鉛直混合が盛んになり、酸素濃度の低い深層水が表層にあらわれるようになる。両者とも暖候期に酸素が大気に向かい、寒候期に酸素が海洋に向かうように競合している。海洋中の生物活動によって CO<sub>2</sub> の生成も起こるが、CO<sub>2</sub> の場合は溶解度と海洋生物による生成がお互い打ち消し合うように働き、さらに CO<sub>2</sub> は海水中に多量に存在する無機炭酸 (HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>, CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>) と平衡状態にあり、それがバッファーとして働くため、海洋中の CO<sub>2</sub> 変化は大気にほとんど影響を及ぼさない。

次に  $\delta(O_2/N_2)$  の長周期成分すなわち経年減少について考える。この場合、海洋生物による総生産 (net community production) の経年変化は無視できると仮定する。大気中の CO<sub>2</sub> および酸素の経年変化率をそれぞれ  $\Delta CO_2$  および  $\Delta O_2$  とすると、グローバルな収支として、それぞれ次のような式が成り立つ。

$$\Delta CO_2 = F + C - O + B \quad (1)$$

$$\Delta O_2 = -F - H - \alpha B \quad (2)$$

ここで、F と C はそれぞれ化石燃料消費およびセメント工業による CO<sub>2</sub> の放出、O は海洋による CO<sub>2</sub> の固定、B は陸上生物圏による CO<sub>2</sub> の放出をあらわしており、H は化石燃料中の炭素以外の可燃物質 (ほとんどが水素) である。 $\alpha$  は陸上生物圏の炭素に対する酸素の交換比 (=1.05) である。この中で陸上植物の放出・固定 (+, - 両方の可能性がある) と海洋の固定が未知数である。酸素濃度変化について、ラホイアのデータはあまりにも観測期間が短いため十分に信頼できるデータではないが、R. F. Keeling はこれまでに得られた値を用いてごくおおざっぱな見積りをおこなった。

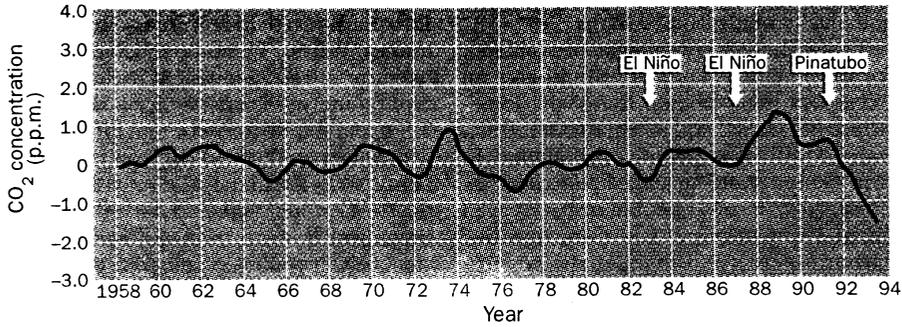


第3図 アラート (a), ラホイア (b) およびケープグリン (c) で観測された  $\delta(O_2/N_2)$  と  $CO_2$  濃度.  $\delta(O_2/N_2)$  と  $CO_2$  濃度が直接比較できるように図の縦軸は  $1\text{ ppm} = 5\text{ per meg}$  となるように値付を行った.

$\Delta O_2 : -6.7 \pm 1.7$ ,  $\Delta CO_2 : 2.3 \pm 0.3$ ,  $F : 4.85 \pm 0.32$ ,  $H : 2.01 \pm 0.17$ ,  $C : 0.12 \pm 0.01$ , をあてはめて計算すると  $B : -0.2 \pm 1.7$ ,  $O : 2.5 \pm 1.7$  という値が得られた. ただし, これらの値は1990年のものであり, 単位は  $10^{14}\text{ mol yr}^{-1}$  である. よって, 1990年には海洋の  $CO_2$  取り込みが  $3.0\text{ GtC yr}^{-1}$  であり, 陸上生物圏への  $CO_2$  取り込みは測定精度以内で  $0\text{ GtC yr}^{-1}$  であると評価された. したがって, 酸素濃度の経年変化から導かれた海洋の  $CO_2$  吸収能力は, 1章で述べたモデルによる海洋の  $CO_2$  吸収能力の上限である  $2\text{ GtC yr}^{-1}$  を1.5倍も越えることになる. もしもこの評価が

正しいとすれば, モデルでは見過ごされた大きな  $CO_2$  吸収のメカニズムが海洋に存在することになる. さらに, 陸上生物圏は大規模な熱帯森林の破壊にともなう  $CO_2$  放出をキャンセルするほどの強い  $CO_2$  吸収源にもなっていることになる. ただし, この計算の誤差は現在のところ  $\pm 2\text{ GtC yr}^{-1}$  にも達するため, 必ずしも現時点での評価が正しいとは限らない. 信頼性の高い結果を得るためには, より精度の高い長期的な観測が必要であろう.

本章の最後に, 1992年以来続いている大気中における  $CO_2$  濃度上昇率の異常について紹介する. 1992年か



第4図 マウナロアにおけるCO<sub>2</sub>アノマリー。アノマリーは実測データから季節変化成分を取り除き、化石燃料消費によるCO<sub>2</sub>の大気残留率を58.58%として化石燃料消費による経年変化成分を除去することによって求められた。

ら1993年にかけて北半球における大気中のCO<sub>2</sub>濃度上昇率が、C. D. Keelingによる系統的な観測が始まって以来35年間に見られなかったほど大きなぶりを見せている。第4図にハワイのマウナロア観測所で得られたCO<sub>2</sub>アノマリー（濃度偏差）を示す。前にも説明したとおり、大気中のCO<sub>2</sub>はエルニーニョ現象が起るとしばらく後に濃度上昇率が異常に大きくなることが指摘されていた（第4図参照）。最も新しいエルニーニョ現象は1991年に始まり1992年中続いたが、この現象に対応するようにマウナロアにおけるCO<sub>2</sub>アノマリーは1991年のはじめ頃少し上昇しかかった。ところが、CO<sub>2</sub>アノマリーは1991年なかばより一転して下降をはじめ、1993年5月には-1.5 ppmにも達している。このためマウナロアにおける大気中のCO<sub>2</sub>上昇はほぼストップしてしまった。これを北半球全体に適用すれば1.6 GtCのCO<sub>2</sub>がどこかへ吸収されたことになり、これまでに見られたエルニーニョにともなうCO<sub>2</sub>の正のアノマリーを適用すると、この量はさらに大きなものになる。Sarmientoは、このアノマリーが発生した時期がちょうどフィリピンのピナツボ火山の噴火時期（1991年6月14、15日）と重なることから“ピナツボ炭素アノマリー”と名付けた。R. F. Keelingらはラホイアでの最新の酸素濃度観測データから、このアノマリーに対応した正の酸素濃度アノマリーを見いだしており、しかもその大きさは負のCO<sub>2</sub>アノマリーの2倍であると報告している。陸上植物の場合、生産量増加に対する酸素とCO<sub>2</sub>のアノマリー比はほぼ1になるが、海洋生物の場合この比は2～8になる。したがって、彼らは陸上植物による固定がアノマリーの一部を担っている可能性はあるものの、原因の大部分は海洋

生物生産量の増大にともなう海洋へのCO<sub>2</sub>取り込みにあると結論づけている。一方、父親のC. D. Keelingや東北大学の中澤らのグループはそれぞれ独自にCO<sub>2</sub>の炭素同位体測定を続けており、このアノマリーに対応した $\delta^{13}\text{C}$ の正のアノマリーを見いだしている。したがって、このアノマリーが主に陸上生物圏によるCO<sub>2</sub>の取り込みに起因していると結論づけている。その結果、酸素濃度から導かれた結論と $\delta^{13}\text{C}$ から導かれた結論が相反するものとなった。酸素濃度の観測はまだ測定期間が短く、精度も十分ではないことを考慮すれば、このアノマリーは主に陸上生物圏に起因していると考えたほうが妥当ではないだろうか。それでは、1992年から1993年にかけて陸上生物圏でいったい何が起こったのであろうか。この間に対する明確な解答は未だ得られていない。ピナツボ火山噴火によって特に北半球の気温が長期的に低下したため、気温に敏感な植物の呼吸作用が半球規模で抑えられたこと、また、場所によっては降水量が増加したためこれまで土壌水分が光合成の抑制因子となっていた地域の光合成活動が活発化したことなどが考えられる。

#### 4. おわりに

CO<sub>2</sub>のゆくえを明確にするための研究のいくつかをここで紹介したが、これらの研究は現在進行中であり、わからないことが多い。しかし、炭素の安定同位体を用いた研究や大気中の酸素濃度の研究は確実に進歩しており、さらにここでは紹介できなかったさまざまな研究が世界中の数多くの研究者によっておこなわれている。したがって、“将来人間活動によってどの程度のCO<sub>2</sub>を放出すればどのくらい大気中のCO<sub>2</sub>濃度

上昇が起こるか”という最も基本的な問題に明確な解答を出せる日が、必ず近いうちにくることを筆者は確信している。

#### 後日談

1994年3月7日から10日にかけて仙台市において、東北大学主催の温室効果気体に関する国際シンポジウムが開催された。上記の R. F. Keeling も招待者の一人として来日し、講演をおこなった。この講演で R. F. Keeling は、最近新たに展開された観測点のデータも加えることにより、グローバルな酸素濃度分布とその変動を明らかにした。さらに、この変動からみた1992年以降の CO<sub>2</sub> アノマリーに関する新しい解釈も紹介した。年平均酸素濃度は北半球中・高緯度が低く、南半球に向かうにつれて高くなっている。CO<sub>2</sub> 濃度は、以前からよく知られていたように、北半球中・高緯度が高く、南半球に向かうにつれて低くなっている。詳しい議論は省略するが、R. F. Keeling は、これらの分

布が1991年と1992年半ば以降でどう変化したかを考えることにより、ごく最近の CO<sub>2</sub> アノマリーは北半球の陸上植物の CO<sub>2</sub> 取り込みと北半球の海洋による CO<sub>2</sub> 取り込みがほぼ同じ規模で起きたために生じたと結論づけた。このため、R. F. Keeling も以前に比べれば陸上植物の重要性をより強く主張するようにならなると筆者は感じた。

#### 参考文献

- Nakazawa, T., Morimoto, S., Aoki, S. and Tanaka, M., 1993 : Time and space variations of the carbon isotopic ratio of tropospheric carbon dioxide over Japan, *Tellus* 45B, 258-274.
- Keeling, R. F. and Shertz, S. R., 1992 : Seasonal and interannual variations in atmospheric oxygen and implications for the global carbon cycle, *Nature* 358, 723-727.
- Sarmiento, J. L., 1993 : Atmospheric CO<sub>2</sub> stalled, *Nature* 365, 697-698.