

# 論文審査の結果の要旨

氏名 竹川 暢之

バイオマス燃焼は、全球対流圏大気環境に大きな影響を与えている。バイオマス燃焼の多くは熱帯または亜熱帯域で発生しており、このバイオマス燃焼は CO、NO<sub>x</sub> や炭化水素類の重要な供給源であり、その領域の温暖化物質であるオゾン濃度に重要な影響を与える。また、バイオマス燃焼は二酸化炭素やメタンなどの温暖化ガスの放出源としても重要であり、地球の放射収支に大きな影響を与えている。近年、熱帯域のバイオマス燃焼に注目した観測やモデル計算が行われているが、光化学過程、輸送過程に関しての定量的な理解はまだ十分ではない。アフリカやアマゾンにくらべて、オーストラリアにおける観測データはほとんどない。

対流圏において、CO はオゾンや OH ラジカルにたいして強い影響をおよぼす気体である。また、CO の寿命は 1-3 ヶ月と比較的長いので、空気塊のトレーサーとして有用であるので、航空機を用いた CO の測定が必要不可欠である。本論文の 2 章では、そのことをふまえて、真空紫外共鳴蛍光法を用いた高速、高精度の測定器を新しく作成したことが述べられている。CO 共鳴ランプは波長 150nm 付近の CO 共鳴線を強く放射する光源であり、その光のうち適切な波長域のみを分光器により選択して蛍光セル内に照射する。136nm より短波長の光が引き起こす水蒸気の干渉を確実に押さえるために、ランプ窓に 147nm 以上を透過する特殊な石英を用いることを独自に考案している。これにより水蒸気の干渉を最小限におさえ、1 秒の積算時間で 1-2ppbv という高速、高精度の測定器をつくることに成功した。また下記に述べる実際の観測においても同様な高い性能を発揮する安定なシステムであることを実証している。

3 章においては、1999 年 8 月 30 日- 9 月 14 日に行われた航空機観測の結果が述べられている。この期間においてはオーストラリア北部において安定な高気圧が発達しており、強い下降流が卓越していた。温度観測によると、高度 2-3km 付近に安定な逆転層があり、境界層を形成しており、境界層内の化学過程、輸送過程を解明している。境界層内では、バイオマス燃焼の一次放出成分である CO、NO<sub>x</sub>、非メタン炭化水素 (NMHC) の濃度におおきな増大がみられ、それ以高の自由対流圏では清浄な空気の濃度と同程度であった。これらから、バイオマス燃焼の影響はほとんど境界層内に閉じ込められており、境界層内では東風または南東風が卓越していた。そのため、観測された空気塊の 90%以上がオーストラリア東方の南大平洋に起源をもっている。

このような輸送パターンに基づいて空気塊の分類を行い、相関解析を用いて NO<sub>x</sub>、NO<sub>y</sub> の消滅過程、およびオゾン生成過程を調べている。CO と NMHC との相関関係は境界層内ではほぼ一定であることから、バイオマス燃焼の放出比がほぼ一定であることを示し、この地域の植生の均一性を反映していると考えられる。

NO<sub>x</sub> と CO、NMHC との相関関係から、日中における NO<sub>x</sub> の光化学寿命が 0.4 日と見積もられ、それが OH との反応で決まることを示している。これにより、不均一反応がこの領域では有効ではないことを示した。また NO<sub>y</sub> と CO との相関関係により、NO<sub>y</sub> の消失過程が 2-3 日であることを示し、これが乾性沈着で消失していることを明らかにしている。

NO<sub>x</sub> 濃度に対するオゾン生成率およびオゾン濃度の関係を比較することで、オゾン生成がバイオマス燃焼放出源の周辺で起こっていることを示している。このオゾン増大量は、光化学モデルによるオゾン生成率と輸送時間 (2-3 日) から見積もられる生成量とほぼ一致している。またこの地域でのオゾンフラックスが 1Gmol/day 程度であることを見積もっている。オーストラリアのバイオマス燃焼は境界層内のオゾン収支には大きな影響を与えているが、自由対流圏への直接的影響はおおきくないものと思われる。

以上のような結果は、大気化学の研究に重要な貢献をするものと思われ、新しい知見をあたえ、大気化学の発展に大きく寄与したと判断する。

なお、論文 2 章は、北和之氏ほかとの共同研究であるが、論文提出者が主体となって開発をおこなったものであり、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士 (理学) を授与できると認める。