

## 論文の内容の要旨

論文題目 A Study on Chemistry and Transport of Tropospheric Ozone  
and Reactive Nitrogen over the Western Pacific in Spring

(春季西太平洋域における対流圏オゾン・反応性窒素酸化物の  
化学・輸送過程に関する研究)

氏 名 宮 崎 雄 三

東アジア-西太平洋域は人為起源物質の大気への排出量の増加とあわせて、春季には光化学反応の活性化や対流活動と西風ジェットにより太平洋域への輸送が顕著となることから、対流圏オゾンを中心とした大気質・気候変動への影響を評価する上で全球的にみても特殊な環境である。こういった大気成分を輸送する過程の中でも温帯低気圧システムにおける個々の相対的な気流(例えば温暖コンベアーベルト(Warm Conveyor Belt (WCB))の起源と輸送経路が、中緯度対流圏中の大気微量成分の輸送と化学組成を支配する鍵となることが最近の観測研究で示唆されている。このような輸送過程は、西太平洋域におけるオゾンやその前駆物質として重要な反応性窒素酸化物( $\text{NO}_x$ ,  $\text{NO}_y$ )といった大気微量成分の大気境界層-自由対流圏間の輸送・化学過程、さらには長距離輸送(大陸間規模)への寄与を知る上で極めて重要である。しかしながら、これまで東アジア-西太平洋域においては対流圏全般にわたる大気微量成分観測データが乏しく、西太平洋域の春季における対流圏オゾンの発生源についての定量的な議論、オゾンとその前駆物質の輸送過程についての解明には至っていない。本論文は春季の西太平洋域において行われた2度の航空機観測によって取得した大気微量成分データをもとに行った(1)対流圏オゾンとその生成を引き起こす前駆物質分布の成因の解明とオゾン光化学生成の寄与の定量化、(2)WCB及び対流輸送による、陸域境界層から自由対流圏への上方輸送過程とそれに伴う窒素酸化物の化学過程の解明、という内容により構成される。

春季の西太平洋域における対流圏オゾンとその前駆物質分布、オゾン光化学生成の寄与を定量

的に明らかにするために、東京大学、宇宙開発事業団、及び国内外の研究機関と共同で 1998 年 4 月に日本上空で航空機観測を行った。対流圏オゾン及び前駆物質の太平洋域への流出が最も効率的におこる 4 月に行った、西太平洋域における航空機観測による研究としてはこれが初めてである。得られた大気微量成分データを、1994 年 2-3 月に行われた過去の航空機観測結果(PEM-West B)と比較した結果、本研究で得られたオゾン混合比は中・上部対流圏において、PEM-West B より高い値を示した。オゾンゾンの 5 ヶ年平均値との比較から、これは冬季から春季への季節進行による濃度増大と解釈できる。一酸化炭素(CO)は対流圏全般にわたって PEM-West B より有意に高く、対流活動により地表付近の影響が上部対流圏にまで及んでいたことを示す。また、オゾンやその前駆物質の相関解析から、窒素酸化物の発生源として地上起源の寄与が大きく、春季西太平洋域の上部対流圏においてオゾンの光化学生成が進行していることが明らかになった。さらに観測データの値を組みこんだ光化学ボックスモデルを用いて対流圏オゾンの光化学生成率を求めた。その結果、高度積算生成率は北半球における成層圏からの平均流入フラックスと比べて 3-20 倍高い値を示し、上部対流圏での正味の生成率は 0.5-4.4 ppbv/day であった。このことから春季の西太平洋域において光化学生成過程が対流圏オゾン濃度増大の支配的な要因であることが明らかになった。

上記で明らかになったオゾンの光化学過程をふまえ、その生成関連物質の陸域境界層から自由対流圏への輸送手段として、温帯低気圧に伴う WCB、及び対流輸送(Convective Outflow, COF) という 2 つの上方輸送過程に着目した。これら輸送過程に伴うアジア大陸上から西太平洋域自由対流圏への気塊の輸送経路と排出源、及び各々の輸送が窒素酸化物の化学組成に与える影響を明らかにすることを目的として、大気組成データの解析及び気象解析を行った。解析には 2001 年春季(2-4 月)に西太平洋域で行われた NASA の航空機観測 Transport and Chemical Evolution over the Pacific (TRACE-P) で取得した大気微量成分データを用いた。あわせて ECMWF データを用いて観測点より計算した 5 日間の後方流跡線(水平分解能  $1^{\circ} \times 1^{\circ}$  の Florida State University モデル)、GMS 赤外雲画像、地上天気図(JMA)を用いることにより、航空機観測地点と対応する WCB、COF を同定し、大気微量成分データの抽出を行った。また、NO<sub>y</sub> の各成分がどのような化学組成で上方輸送されているかを知ることは NO<sub>y</sub> の化学変換過程を知る上で重要であるため、同定された全ての WCB、COF における NO<sub>y</sub> の組成について調べた。

観測が行われた時期はシベリア高気圧の弱まりとともに、太平洋高気圧の発達に伴って対流圏下層の南風が強まり、東-東南アジア域での温帯低気圧及び対流活動が活発になることが知られている。後方流跡線によって同定したアジア大陸からの上方輸送を示す気塊のうち 73% が東南アジア域の広範囲に起源をもつ結果となった。陸域境界層から自由対流圏への輸送の時間スケールは 1-3 日であり、東南アジア域における WCB、COF の支配的な排出源は、年間を通してこの時期にもっとも活発となるバイオマス燃焼であることが明らかになった。一方、27% は中国北東沿岸部に起源をもち、排出源としては都市大気の影響が支配的であることがわかった。

WCB、COF の具体的な例として 4 月 4 日に観測された事例について解析したところ、中国南部の

バイオマス燃焼という同一の発生源から WCB 及び停滞前線に伴う COF という2つの輸送過程により、気塊が西太平洋域の上部対流圏まで輸送されていることが明らかになった。また、同一の温帯低気圧システム中、寒冷前線後面の中・上部対流圏で成層圏の影響を強く受けた乾燥気流(DA)も同時に観測され、COF のすぐ近傍に位置していた。これはバイオマス燃焼起源の気塊と成層圏起源の気塊の混合が起こりうることを示唆する。

観測期間において WCB、COF により境界層の気塊が自由対流圏へ輸送された頻度を、前方流跡線解析により調べた。その結果、WCB による上方輸送の頻度は平均で 20-30%、COF によるものが 10-15%と見積もられ、WCB が東アジア域における地表付近の気塊の自由対流圏への輸送過程として重要である、ということが明らかになった。

航空機観測点において同定された WCB、COF において  $\text{NO}_x$  の  $\text{NO}_y$  に占める割合は高度7kmより上の上部対流圏で 3%と極めて低かった(図1)。これは時間スケールが 1-3 日の輸送過程で、 $\text{NO}_x$  の大部分が酸化により他の  $\text{NO}_y$  成分に変換されたが、硝酸( $\text{HNO}_3$ )との間で化学平衡に達しておらず、かつ上部対流圏における  $\text{NO}_x$  発生源(雷、航空機の排出)の影響は小さいため、と解釈できる。また、硝酸ペルオキシアセチル (PAN)が WCB、COF における支配的な  $\text{NO}_y$  成分(～50-80%)であることが明らかになった。これはバイオマス燃焼、都市大気といった排出源の近傍で生成された PAN が自由対流圏へ輸送されてきたと考えられ、 $\text{NO}_x$  のリザーバー(貯留成分)としての PAN 輸送の重要性を示す結果である。一方、 $\text{HNO}_3$  の  $\text{NO}_y$  に占める割合は 15-20%と低く、輸送過程でその大部分が除去されていたことを示唆する。

観測された気塊中の  $\text{NO}_y$ 、CO の増分比とアジア大陸における排出量比の推計値との比較より、WCB、COF によって排出源領域から自由対流圏まで輸送された  $\text{NO}_y$  の割合(輸送効率)は 10-20%と見積もられた。同様にして境界層における輸送効率は 30%と見積もられた。これは  $\text{HNO}_3$  の  $\text{NO}_y$  に占める割合が小さかった結果とあわせて、 $\text{NO}_y$  の境界層－自由対流圏の輸送過程において、降水を伴う WCB や COF は境界層においてと同様に  $\text{HNO}_3$  の重要な消失源となることを示唆する。さらに後方流跡線の計算結果より、輸送過程で降水が起きていたことを示す高度領域は WCB、COF ともに 2-4km付近であり、 $\text{HNO}_3$  の除去は境界層及びこの高度領域(自由対流圏下部)で起きていたことを示す結果となった。

本研究で明らかになった WCB、COF による輸送過程と、それに伴う  $\text{NO}_y$  の組成について図2に示す。都市大気とあわせて、東南アジア域でのバイオマス燃焼というアジア域特有の排出源と WCB、COF という2つの具体的な経路による気塊の陸域境界層から自由対流圏への上方輸送過程、及びそれらに伴う  $\text{NO}_y$  の変換・除去過程を観測データから明らかにしたのは本研究が初めてである。これらの結果は長距離輸送に伴う遠隔地での  $\text{NO}_y$  の化学過程とその収支、光化学生成による対流圏オゾン変動を考える上で極めて重要である。

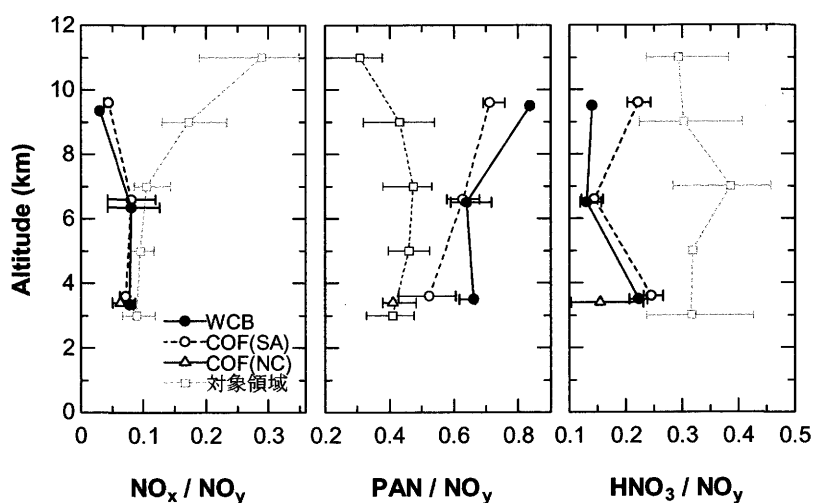


図1. TRACE-P 期間中に観測された WCB, COF-東南アジア起源(Southeast Asia, SA), COF-中国北東部起源(Northeast China, NC)中の NO<sub>x</sub>/NO<sub>y</sub>, PAN/NO<sub>y</sub>, HNO<sub>3</sub>/NO<sub>y</sub> のメディアン値の高度分布。比較のため、同期間に対象領域(120°-170°E, 22°-42°N)の自由対流圏(高度 2-12km)で観測された全データのメディアン値を示した。

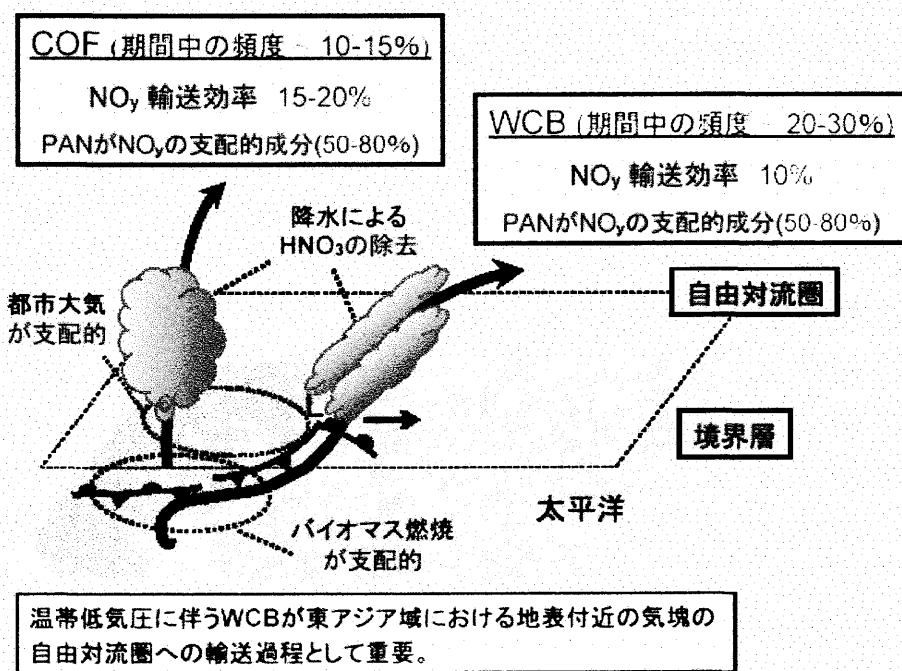


図2. 本研究で明らかになった西太平洋域における WCB, COF に伴う境界層から自由対流圏への輸送過程と窒素酸化物の化学過程。