

論文審査の結果の要旨

氏名 宮崎 雄三

本論文は4章で構成されている。第1章は、イントロダクションとして対流圏の大気化学反応系および総観規模の大気の輸送について書かれている。第2章と3章では、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の解析をもとに行った研究結果について述べられている。第2章では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についての研究成果がまとめられている。第3章では温暖コンベアーベルト(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についての研究成果がまとめられている。第4章ではこれらの研究から得られた結論が述べられている。

近年、東アジアからの人為起源物質の大気への排出量の増加が、大気質や気候変動など大気環境に与える影響について懸念されている。本論文で論文提出者は、1998年4月の航空機観測によるオゾン観測結果と、過去の航空機やオゾンゾンデ観測との比較から、冬季から春季への季節進行による濃度増大を示した。また一酸化炭素(CO)は対流圏全般にわたって2-3月の値より有意に高く、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している。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を明らかとした。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。

本論文では、また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と5日間の後方流跡線解析等を用いることにより、WCB および積雲対流活動(COF)によって自由対流圏に上方輸送された空気塊の特性とその輸送経路を同定した。この結果、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ことが示された。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。また顕著な事例についての詳しい事例解析も行った。さらに前方流跡線解析により、

東アジアからの 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。

本論文ではまた WCB および COF により輸送された空気塊中における窒素酸化物の分配比率を調べ、硝酸ペルオキシアセチル (PAN)が WCB、COF における支配的な NO_y 成分 (~50-80%) であることを明らかにした。また 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 NO_y の割合(輸送効率)は 10-20%と見積もった。同様に境界層における輸送効率は 30%と見積もられた。これは 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 HNO_3 の重要な消失源となることを示唆する。

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 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 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。

なお本論文の2章、3章は、複数の研究者との共同研究であるが、多くの共同研究者は単なるデータの提供者である。本研究の成果は論文提出者が主体となった解析から得られたものであり、穂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)の学位を授与できると認める。