

論文審査の結果の要旨

氏名 中村憲司

本論文は、東アジア・西太平洋域における冬季から春季にかけてのオゾン濃度の変動要因を、オゾンおよびその前駆物質の高精度観測に基づいた解析と、三次元化学輸送モデルを用いた解析から論じたものである。論文は4章と付録からなり、第1章は東アジア・西太平洋域を中心とした対流圏オゾンの研究背景、第2章は航空機観測に基づいたオゾンの光化学的生成過程とその緯度・季節変化、第3章は三次元化学輸送モデルを用いた解析結果、第4章は全体のまとめである。また付録では本研究の重要な大気組成である二酸化窒素の測定法についてまとめている。

対流圏オゾンは重要な温室効果気体であると同時に、高濃度になると人間の健康や植生に悪影響を与える。オゾンは前駆気体である窒素酸化物(NO_x)や揮発性有機化合物(VOCs)などの光化学反応により生成されるが、近年、アジアにおけるこれらの前駆気体の放出量は著しく増大しており、今後20年間にわたり一層の増大が予測されている。将来のオゾン濃度の変動を正確に予測するためには、アジアにおける前駆気体の発生量および輸送過程・化学的変質過程を定量的に理解する必要がある。

本論文では、西太平洋域(123-145°E, 20-45°N)において2002年1月及び4-5月に実施されたPEACE航空機観測(PEACE-A, B)と、2001年3月に実施されたTRACE-P航空機観測に基づき、オゾンの光化学生成・消失および輸送過程の解析を行った。この解析の結果、冬季のアジアではシベリア高気圧による強い季節風(速い輸送)と、低いOH濃度(長い NO_x 寿命)に起因して大気境界層内で NO_x 濃度が高く維持されていることが分かった。この結果、光化学ボックスモデル計算から推定されたオゾン生成速度 $F(\text{O}_3)$ は2-5 ppbv day⁻¹と大きい値となった。太陽放射が弱いのでオゾン破壊速度 $D(\text{O}_3)$ は1 ppbv day⁻¹以下と小さい。結果として、境界層内における正味のオゾン生成速度 $P(\text{O}_3)$ は2-4 ppbv day⁻¹と大きな値となり、冬季に光化学的にオゾンを生成していることが光化学ボックスモデル計算から推定された。一方、春季では風速は弱まり NO_x の寿命も短くなるため NO_x 濃度が低下し、また太陽放射が強くなるために $D(\text{O}_3)$ が大きくなり、これにともない $P(\text{O}_3)$ は大きく減少する。このため、20-30°Nでは3月に生成から消失へと移行した。一方、30-45°Nでは20-30°Nに比べ NO_x が高く、また太陽放射は弱いため、4-5月まで正味で光化学的に O_3 が生成され続けていることがわかった。

観測が行われた領域の風上に当り、汚染物質の大きな排出源である東アジアの大陸上、及び風下に当るより遠方の太平洋域における大気微量成分の高精度の観測例は少ない。そこで三次元化学輸送モデルGEOS-CHEMによる2002年1月及び4月の計算結果を基に、

東アジアから西太平洋域におけるオゾンの光化学過程を検証した。GEOS-CHEMによるモデル計算結果は、PEACE航空機観測から得られたオゾン、オゾン前駆物質及び $P(O_3)$ と比較することで再現性を確認した。境界層内(0-2.1 km)で NO_x 濃度が数百pptvから数ppbvと高濃度で存在する大陸上ではオゾン生成が強い。 NO_x 濃度は季節と共に減少するが、光化学反応の活発化に伴い過酸化ラジカル濃度が増加するため、 $P(O_3)$ は冬季から春季にかけて増加した。一方、太平洋上では、 NO_x 濃度は数十pptvと低くオゾン生成は弱い、冬季には $P(O_3)$ が正の領域は160°E付近まで広がっていた。この領域は太陽放射と NO_x 濃度の変化により4月にはより大陸近傍へと移動した。

冬季・春季ともにオゾン濃度は $P(O_3)$ が最大となる領域の風下で最大値を示す。このことは、冬季・春季に大陸性の空気塊の輸送中にオゾンの生成・蓄積が起きていることを示唆している。 $P(O_3)$ が正である領域を輸送される間、冬季には常にオゾン濃度が増加する傾向が見られるが、春季には海洋性の気塊との混合によるとみられるオゾン濃度の減少傾向が現れていた。大陸起源の NO_x 排出に対するGEOS-CHEMの感度実験から、このオゾン最大領域には大陸から排出された汚染物質の寄与があることが示された。

以上の研究成果は、従来観測のなかった冬季や晩春季の観測と三次元化学輸送モデルを駆使することによって、東アジア・西太平洋域のオゾン濃度を、光化学反応と輸送過程の季節進行という観点から体系的に解釈した点が学術的に極めて高い価値をもつものとして認められる。特にこのような解析から得られた窒素酸化物の輸送領域とオゾンの正味の生成領域、そしてオゾンの最大濃度領域の関係とその季節進行は、従来にないオゾンの時空間変動の解釈として大変独創的である。

なお、本論文の第2章は近藤、Chen、竹川、小池、宮崎、北、Crawford、Ko、Blake、川上、白井、Liley、Wang、小川との共同研究であるが、論文提出者が主体となって解析・解釈を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

従って、博士(理学)の学位を授与できると認める。