

氏 名	北 田 敏 廣 きた だ とし ひろ
学位の種類	工 学 博 士
学位記番号	論 工 博 第 1164 号
学位授与の日付	昭 和 54 年 3 月 23 日
学位授与の要件	学 位 規 則 第 5 条 第 2 項 該 当
学位論文題目	大気汚染物質の光化学反応のモデル化とシミュレーションに関する研究

(主 査)
論文調査委員 教授 平岡正勝 教授 高橋幹二 教授 橋本健治

論 文 内 容 の 要 旨

本論文は、大気汚染物質の関与する光化学反応のモデル化とシミュレーションを取りあげており、都市規模の現象では、炭化水素-NO_x系の光化学スモッグについて、反応速度に影響する諸要因に関する実験、およびコンパクトなモデル化について、また、地球規模の現象としては、CO-CH₄系の化学反応、および輸送過程のモデル化と数値計算についての結果をまとめたもので、2編11章からなっている。

第I編は、都市規模の現象で光化学スモッグに関するものである。第1章は緒言で、光化学スモッグについてこれまで行われてきた研究の範囲および目的に触れ、本研究の位置づけを行っている。第2章では、大気中で起る反応について、その反応機構および反応速度定数を広範にまとめている。第3章では、小型のスモッグチェンバーを用いた炭化水素（あるいはアルデヒド）-NO系の反応実験の結果について述べており、光量、温度および反応物質の初期濃度比（炭化水素とNOの比）の反応速度に及ぼす影響を考察している。また、アルデヒドを出発物質とする系では、アルデヒドの直接光分解が重要な意味を持つことをモデル計算で示している。第4章では、光化学反応が反応物質の濃度と反応速度によって構成されるフィードバックループを持つということを指摘し、簡単な反応系にできる正ループと負ループについて考察している。また、これらのループが、反応系のダイナミクスを作り出すことを指摘している。第5章では、いくつかの光化学スモッグモデルのループ構造を考察し、光化学スモッグの典型的な濃度変化パターンを生みだすのに必要な正負ループが存在すること、この構造を含めることにより簡単なモデルが構成できることを指摘している。第6章では、第I編で得られた結果をまとめ、また、今後光化学スモッグの研究でなされるべき課題を示している。

第II編では、CO-CH₄系の地球規模での輸送現象のモデル化を行っている。第1章は緒言で、大気中での一酸化炭素に関する最近の認識について述べ、対流圏での一酸化炭素の三次元分布を計算することの意義について述べている。すなわち、一酸化炭素は、それ自身大気汚染物質の一つであると同時に、ヒドロキシルラジカル(OH)との比較的大きな反応性のゆえに、このラジカルのグローバルな濃度分布を決め

一つの重要な要素となっていること等である。第2章では、CO-CH₄ グローバル分布の計算のための基礎式を提示している。拡散方程式および渦拡散係数を与えるモデルの整理・光化学反応モデルの提示、地表および海表面における境界条件の考察、同じく圏界面における境界条件の考察を行っている。また、地形および圏界面の不規則性を除くための変数変換に伴う種々の項の大きさを比較した。第3章では、偏微分方程式の大規模な3次元計算に適した数値計算法を考察し、fractional steps (あるいは splitting scheme) の概念と一次元有限要素法を組み合わせる方法を提案、これを第2章で得られた基礎式に適用した。また、ペクレ数の大きな場合には、非対称な重み関数を用いて解の振動を防ぐ方法の有効性を調べている。この方法は、定常問題において、空間的な解の振動を抑えるために提案されたものであるが、非定常問題における時間的振動にも有効であることを示した。第4章では、第2章で提案した反応モデルによる各物質濃度の計算結果を示し、H₂O, NO_x, O₃ などの入力データに対する OH 濃度の感度を調べている。また、反応モデルを含む鉛直方向一次元拡散方程式を計算し、得られた OH ラジカル濃度の鉛直分布を実測値と比較した。結果の一致は満足すべきものである。さらに、仮想的な地球上の三次元流れ場を用いて、第3章で述べた数値計算法により三次元計算を実行している。地表面および圏界面でのグローバルな CO₂, CH₄, および OH 濃度, CO および CH₄ 反応速度の分布を計算している。また、75°W での子午面内での CO および CH₄ 反応速度と OH 濃度分布を計算している。圏界面での CO フラックスの分布は、緯度 30°N, 30°S における圏界面のギャップを通じて成層圏-対流圏間の mass の交換がおこなわれるという仮設と一致している。第5章では、第II編の総括を行い、本研究を通じて得られた重要な成果をまとめて示している。

論文審査の結果の要旨

大気汚染物質の光化学反応は、極めて複雑であるが、都市規模の大気汚染では、炭化水素-NO_x 系の光化学反応が重要なものの一つであり、地球的な規模の汚染では、最近米国において対流圏における、O₃ の光分解に始まる CO-CH₄-H₂O 系の反応が注目されている。

本論文は、大気汚染制御を目的として、炭化水素-NO_x 系の光化学反応のモデル化とシミュレーションおよび CO-CH₄-H₂O 系の反応モデルを含めた地球規模の輸送現象のモデル化とシミュレーションに関する研究をまとめたものであって、得られた主な成果は次のようである。

1) 小型のスモッグチェンバーを用いた炭化水素系およびアルデヒド-NO_x 系の光化学反応実験を行い、光化学反応に及ぼす要因について検討した。とくに、炭化水素-NO_x 系では炭化水素と NO の初期濃度比 ((HC)i/(NO)i) が O₃ の生成および反応速度にとって重要な因子であり、(HC)i/(NO)i が 1 ブテンの場合 4~6 で O₃ の最大生成量が得られることを示し、このことから、O₃ 濃度を減少させるために、炭化水素を減らそうとする制御は、(HC)i/(NO)i をかなり小さい値にできるときにのみ有効であることを示唆した。

2) アルデヒド-NO_x 系では、アルデヒドの光分解が大きな効果をもち、NO₂ の最大濃度出現時間を指標にとれば、アルデヒドはオレフィン系炭化水素と同程度の反応性を示すことを明らかにした。

3) 反応系の解析にシステムダイナミックスの考えを導入することによって、複雑な反応系の解析およ

びモデル化に関する新しい手法を提案し、この手法を適用して、現在までに発表されている代表的な光化学反応モデルの構造解析を行い、光化学スモッグに関連する反応系に特徴的な濃度パターンは、3つの基本的モデルにより説明でき、 NO_2 、 O_3 および炭化水素の挙動をシミュレートする目的には9個の反応式で十分であることを示した。

4) 著者の構成したモデルを種々の手法でシミュレートし、著者の提案したモデルは、 NO_2 および O_3 の最大濃度とその出現時間の予測に十分使用し得ることを示した。

5) 同じ手法を適用して、対流圏における O_3 の光分解を開始反応とする $\text{CO-CH}_4\text{-H}_2\text{O}$ 系の反応モデルを構成し、このモデルで計算した対流圏における CO の滞留時間等の値と他の研究者によって測定、あるいは推定されている諸データと比較することによって、モデルの妥当性を示した。

6) 拡散方程式の大規模な三次元計算に有利な方法として、fractional steps の概念と有限要素法を組み合わせた方法を提案し、基礎式の数値解析に適用した。また、局所的なペクレ数が大きな場合に生ずる空間的な解の振動を抑えるために考案された非対称重み関数の使用が、解の時間的振動を抑えることにも有効であることを明らかにした。

7) 一次元および風場を仮定した地球規模での三次元計算を行い、圏界面でのフラックス分布は、対流圏と成層圏の mass 交換の一つの仮説によく一致していることを示した。

以上を要するに本論文は、光化学スモッグの制御に必要なとされる実用的な反応モデル、および人為的な CO 排出源の地球規模汚染に対するインパクトを明らかにするのに役立つ $\text{CO-CH}_4\text{-H}_2\text{O}$ 系反応および輸送現象のモデルを開発したもので、学術上はもとより、大気汚染の制御という工学的課題の解決に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として価値あるものと認める。