

学位論文題名

大気汚染に伴う中緯度対流圏光化学環境の
変化に関する基礎的研究

学位論文内容の要旨

近年、人間活動の拡大にともない、地球温暖化、成層圏オゾン層の破壊など、地球規模で大気環境の悪化が進行しつつある。これらの大気環境問題には、発生源から直接排出される汚染物のみならず、対流圏大気中で光化学反応によって生成されるオゾンを中心とする大気微量成分が大きな役割を果たしている。そのため、地球規模の大気環境問題に対する現状の理解および将来に対する予測評価を行うためには、これらの微量成分の存在量ならびに大気中での生成消滅機構を解明することが必要不可欠であり、それには数値モデルを用いた解析を行うことが有効である。本研究においては、人間活動が集中し、汚染物の排出量が地球上で最も多い北半球中緯度域を対象として、対流圏内の微量成分の反応-輸送過程を詳細に記述することのできるモデルを作成し、それを用いて対流圏オゾンを中心とする光化学大気成分の挙動を解明し、また大気汚染の進行にともなう濃度変化の予測を行うことを目的とした。

以下に本研究の内容をまとめる。

第1章では、地球規模の環境問題に対する対流圏オゾンを中心とする対流圏内の大気微量成分の重要性を示し、対流圏オゾン濃度の時空間変動に関して現在得られている知見を示した。また、本論文の目的と構成を述べた。

第2章では、大気微量成分の光解離定数の計算に用いられる光化学作用フラックスの計算法として、 $\delta-P3$ 近似法を提案した。 $\delta-P3$ 近似法はエアロゾルや雲によるミー散乱の phase function および放射強度をルジャンドル関数の3次までの項を用いて展開近似する放射伝達方程式の解法であり、本研究ではこの $\delta-P3$ 近似法を用いて光化学作用フラックスを計算し、その精度を検証した。

光化学作用フラックスの計算における $\delta-P3$ 近似法の厳密解法によるものとの誤差は、雲とエアロゾルが存在する大気ではほぼ全域で5%以下、エアロゾルのみが存在する大気では10%以下となった。ただし誤差が最大となる領域では光解離定数が小さい値を取るため、反応計算時における誤差の影響は小さくなる。したがって、 $\delta-P3$ 近似法は、地球規模の反応輸送モデルにおける光解離定数の計算法としては十分な精度を持っていることが明らかにされた。

第3章では、北半球中緯度対流圏を対象とした経度-高度方向の2次元反応輸送モデルを提案し、その概要を述べた。本モデルは、緯度方向は北緯 30° から 60°、経度方向は全経度、鉛直方向は地表から 250hPa(11km)までを対象とし、大気微量成分の風による輸送、拡散、反応、発生、沈着、積雲による鉛直輸送の各過程を考慮したモデルである。特に、雲を考慮した光解離定数の計算、積雲による大気微量成分の輸送計算、および成層圏からのオゾンの流入の計算において、これまでのモデルと比べてより詳細な取り扱いを行っており、精度の高い計算を行うことができる。また、本モデルは北半球中緯度対流圏における発生源強度の経度方向の多様性に対応できるモデルであり、反応性に富み対流圏内の寿命の短い光化学大気成分の分布を、3次元の全球モデルに比べて短い時間で計算することが可能である。

第4章では、第3章で述べたモデルを用いて1年間の計算を行い、北半球中緯度の対流圏における大気微量成分の濃度分布に関して以下の知見を得た。

オゾンについては、対流圏各層における濃度の季節変化をほぼ再現することができ、北半球中緯度の対流圏全域において、年間を通じて人為汚染に伴う反応の寄与が 10~20ppb (現状のオゾン濃度の 20~60%程度) あることがわかった。このようなオゾン濃度への反応の寄与は NO_x の濃度に決定的に依存していることを明らかにした。すなわち、人為汚染地域の対流圏下層においては、夏季には、 NO_x 濃度が 1ppb を上回るため、光化学反応によってオゾンが 30~40ppb 生成される。一方、夏季の海上の対流圏下層では NO_x 濃度が 10ppt 以下となり、オゾンは反応により破壊されていることがわかった。PANについては、清浄地域の地表濃度の季節変化をほぼ再現することができたが、人為汚染地域においては過小評価となった。人為汚染地域でPAN濃度が観測値と一致しない原因は、低級炭化水素の発生源データの不備にあると考えられ、今後これらのデータの整備が必要不可欠である。また、PAN濃度には発生源強度の寄与よりも気温の寄与の方が大きく、同じ緯度帯でも東アジアはアメリカやヨーロッパと比べて気温が低いため、冬季のPAN濃度が高くなることがわかった。さらに、乾性沈着速度と発生源強度について感度解析を行い、特に、オゾンとCOの乾性沈着速度が計算結果に大きな影響を与えること、発生源強度を変化させた場合、その影響は冬季には対流圏の全域におよぶが、夏季には発生源の近傍の下層大気に限られることを示した。

第5章では、東アジアの人為発生源からの汚染物質の排出量を増加させ、東アジアの工業化にともなう影響について評価した。冬季には大気成分の反応速度が小さくなるため、 NO_x などの一次汚染物質の濃度は日本付近で最大となる。その結果、一次汚染物質から生成される二次汚染物質の濃度も同様に日本付近で最大となり、特に硝酸濃度は約4倍にまで増加した。夏季には影響のおよぶ範囲は縮小されるが、発生源の近傍(中国東岸)における影響の大きさは非常に大きくなり、硝酸濃度は約4倍、PAN濃度は約7倍に増加した。オゾンは、夏季には東アジアから北米の西岸にかけて濃度が10%以上増加し、東アジアの汚染物排出量増加の影響が地球規模におよぶことを示した。

以上のように、本研究では人間活動の大気環境への影響を評価するために、北半球の中緯度対流圏を対象とした2次元の反応-輸送モデルの開発を行い、現状の対流圏光化学大気成分の挙動をほぼ再現することができた。また、東アジアの工業化にともない、日本付近で大気汚染物質の濃度が非常に増加するとともに、その影響が地球規模におよぶ恐れのあることを示した。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 太 田 幸 雄
副 査 教 授 高 桑 哲 男
副 査 教 授 伊 藤 獻 一
副 査 助 教 授 村 尾 直 人

学 位 論 文 題 名

大気汚染に伴う中緯度対流圏光化学環境の 変化に関する基礎的研究

近年、人間活動の拡大に伴い、地球の温暖化、降水の酸性化など地球規模で大気環境の悪化が問題となっているが、これらの大気環境問題においては、二酸化炭素や窒素酸化物等の発生源から直接排出される一次汚染物質のみならず、対流圏内で光化学反応により生成されるオゾンを始めとする二次大気汚染成分もまた重要な役割を果たしている。しかしこの二次大気汚染成分（光化学大気微量成分）は反応により容易に生成・消滅する成分であるため、その濃度分布は空間的・時間的に変動が大きく、それ故その地球規模での挙動の解明は観測だけでは困難であり、モデル計算による解明もまた重要な研究手法となる。

本論文においては、このような現状に鑑み、対流圏内の大気微量成分の反応・輸送過程を詳細に記述できる数値モデルを作成し、計算を行って、光化学大気微量成分の挙動の解明および人間活動の益々の拡大に伴うそれらの将来の濃度変動の予測評価を行った。

研究の主な成果とその評価は以下に要約される。

1. 人間活動が集中し大気汚染物質の排出量が最も多い北半球中緯度の北緯30～60度帯を対象とした、経度-高度方向の2次元モデルを採用した。3次元モデルに比べて輸送過程に要する計算時間が少なくすむため、反応過程を厳密に計算することができる。
2. これまで考慮されてこなかった、光解離過程に及ぼす雲による日射の散乱吸収効果、経度・季節別の成層圏からのオゾンの流入、および経度・季節別の積雲による汚染物質の鉛直輸送効果について考慮し、現時点において考え得る最も精密な対流圏光化学反応・輸送モデルを構築した。
3. 特に、雲による日射の散乱吸収効果については、日射の伝達計算に対してデルタP3近似解法を用いた高速かつ高精度な計算スキームを開発した。
4. 本モデルを用い、現状の大気汚染物質の排出量を与えて数値計算を行った結果、北半球中緯度の対流圏におけるオゾンおよびPAN（パーオキシアセチルナイトレート）の

実測結果をほぼ再現することができた。

5. これまで不明であった対流圏オゾン濃度に及ぼす光化学反応の寄与が、年間を通じて20~60%に及ぶこと、さらにこのようなオゾン濃度への光化学反応の寄与は、窒素酸化物の濃度に決定的に依存していることを明らかにした。
6. PANは、対流圏内においてこの窒素酸化物を長距離輸送する重要な物質であるが、このPANの濃度変動には、大気汚染物質の排出量よりも気温の及ぼす効果の方が大きく、同じ緯度帯でも東アジア地域は北米地域やヨーロッパと比べて気温が低いため冬季のPAN濃度が高くなることを明らかにした。
7. 東アジアの窒素酸化物や炭化水素類等の大気汚染物質の排出量が、現在の北米やヨーロッパと同程度にまで増加した場合について計算をおこなったところ、オゾンについては夏季には発生源近傍で現状に比べて約50%増加するが、冬季には反応の結果逆に発生源近傍で50%減少するという複雑な変動を示すこと、硝酸については夏季に発生源の近傍において現状の4倍にまで増加すること、およびPANについては夏季に発生源の近傍において7倍にまで増加し、一方冬季には全経度にわたって濃度が10%以上増加して影響が地球規模にまで及ぶことを明らかにした。

これを要するに、著者は、現時点で考え得る最も精密な中緯度対流圏光化学反応・輸送モデルを構築し、中緯度対流圏内のオゾン、PAN、硝酸等の光化学大気微量成分の挙動の解明を行い、さらに今後の人間活動の拡大に伴う対流圏光化学大気環境の変化に関する定量的な予測評価を行っており、大気環境保全工学の発展に対して貢献するところ大なるものがある。

よって著者は、北海道大学博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。