

総観規模気象と関連する広域高濃度大気汚染機構の解明

学位論文内容の要旨

環境基準の未達成率の面からみて、大都市域における二酸化窒素(NO_2)および浮遊粒子状物質(SPM)汚染は、夏季の光化学オキシダント汚染とならんで現在のわが国の都市大気汚染問題における最も緊急性の高い課題である。一方、国境を越えて長距離輸送される大気汚染物質に関して、1980年代より環境庁(現、環境省)および電力中央研究所が個別に展開した広域的な降水組成のモニタリング・ネットワークでは、降水による単位面積当たりの硫酸イオン(SO_4^{2-})の降下量は冬季の日本海側で多いとの共通の結果が得られた。これらの問題を考える上でともに重要となるのが現象の時間および空間スケールであるが、以前の研究のなかでは現実の現象の時・空間スケールに対応した気象および大気化学的なメカニズムを解明する取り組みが十分に行われてきたとはいえず、その実態には未解明な点が多かった。

以上のような状況に鑑み、本研究は大都市域における NO_2 および SPM 汚染について、環境基準を超過するような汚染が生じるメカニズムについて観測的に明らかにするとともに、汚染の現況を再現し大気中濃度削減のための発生源対策立案に用いることが可能となる数値モデルを開発することを目的とした。さらに、わが国の都市大気汚染を解析する上で外部境界条件を与えるアジア大陸からの大気汚染物質の輸送に関して、輸送パターンの解明、および輸送される汚染物質の特徴を明らかにすることを目的とした。以下、本論文各章の概要を示す。

第1章は序論であり、わが国における大気汚染問題を概観しつつ既往の関連研究の問題点を指摘し、本研究の背景および目的を提示する。

第2章では、大都市域における NO_2 および SPM 汚染のメカニズムのうち重要な要素を占める「冬季の光化学反応」について、関東平野において実施した1990年および1991年の観測結果からその存在の実証を行い、この反応メカニズムを含む冬季の高濃度大気汚染の特徴を示す。

第3章では、初冬季のSPM高濃度汚染に対して、数値モデル構築時の検証データとすることを視野に入れながら実施した広域・高時間分解のフィールド観測の結果を示し、関東平野におけるSPM汚染について化学組成の面からみた特性を解析する。また、(通常は汚染物質と見なされないため)その存在が重視されていないエアロゾル中の水分に関して、除湿器を装着した β 線吸収式

SPM 計の長期運転により、大気汚染常時監視局等で得られる自動測定値に対する相対湿度の影響を調べた。さらに、フィールド観測で得られたデータを用いて、数値モデルでの計算時に必要となる含水補正式の適用条件に関して考察する。

第4章では、前章の広域・高時間分解観測で得られた知見をもとにして、冬季のSPM汚染を再現する非定常型3次元数値モデルを構築する過程を述べる。発生源モデルにおいては、従来整備されてこなかった炭素系粒子などの一次粒子およびアンモニアなどの前駆ガス成分の発生源インベントリに、また反応モデルにおいては二次粒子生成モデルに重点を置いて記述を行い、最後に予備的計算結果について検討する。

第5章では、これら都市大気汚染問題の外部境界条件を与えることになる、アジア域からの大気汚染物質の長距離輸送現象に対して、観測的にそのメカニズムを解明する。まず、1991年から1993年にかけて長崎県五島列島沖、日本海から東シナ海にかけて実施した航空機および船舶観測の結果を示し、冬季季節風と汚染物質輸送のパターンについて検討する。

第6章では、琉球列島の宮古島および奄美大島で実施した長期の定点観測の結果から、アジア大陸から輸送されたエアロゾル成分の特徴を示し、さらに東経175度線上を航海した船舶観測の結果から、太平洋中心部まで長距離輸送されたエアロゾルの緯度分布の特徴および超長距離輸送のメカニズムを議論する。また、定点観測および船舶観測で採取された堆積物サンプルで共通に測定された有機物より、北太平洋に対する汚染物質沈着に関する考察を加える。

第7章は結論であり、本研究の成果を総括しつつ、研究の現在の状況を概観し今後の展開を展望する。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 太 田 幸 雄
副 査 教 授 窪 田 英 樹
副 査 教 授 藤 田 修
副 査 助 教 授 村 尾 直 人

学 位 論 文 題 名

総観規模気象と関連する広域高濃度大気汚染機構の解明

わが国の冬季の大都市域における二酸化窒素(NO_2)および浮遊粒子状物質(SPM)汚染は、環境基準が未達成であり、夏季の光化学オキシダント汚染とならんで、現在の都市大気汚染問題における最も緊急性の高い課題となっている。一方、1980年代より環境省および電力中央研究所により行われている広域的な降水組成のモニタリングでは、単位面積当たりの降水による硫酸イオン(SO_4^{2-})の降下量は冬季の日本海側で高く、大気汚染物質の国境を越えた長距離輸送が大きな問題となっている。これらの問題を扱った従来の研究では、現象の時間・空間スケールに対応した気象および大気化学メカニズムの解明が不十分であり、その結果、大都市域における NO_2 およびSPMの時間・空間濃度変動の実態、およびそれらと大気汚染物質の長距離輸送との関連性が十分に解明されていない。

以上のような状況から著者は、まず、大都市域において冬季に環境基準を超過するような高濃度の NO_2 およびSPM汚染が生じるメカニズムについて、観測に基づき明らかにすることを第一の目的としている。次に、高濃度汚染の状況を再現することができ、これらの汚染物質濃度を低減するための発生源対策の立案に用いることが可能な数値モデルを開発することを第2の目的としている。さらに、わが国の大都市域での大気汚染物質の濃度変動に大きな影響を与えている、アジア大陸からの大気汚染物質の長距離輸送過程について、そのメカニズムを明らかにすることを第3の目的としている。

すなわち著者は、関東平野において実施した1990年および1991年の観測結果を基に、大都市域における NO_2 およびSPM汚染のメカニズムのうち重要な要素を占める「冬季の光化学反応」について、その存在を実証した。さらにその反応メカニズムを含む冬季の高濃度大気汚染の特徴を初めて明らかにしている。

次に、初冬季に実施した広域・高時間分解能の観測の結果を基に、関東平野におけるSPM汚染

について化学組成の面からみた特性を解析している。また、通常は汚染物質と見なされないためその存在が重視されてこなかったエアロゾル中の水分について、除湿器を装着した β 線吸収式SPM計の長期運転により、大気汚染常時監視局等で得られる自動測定値に対する相対湿度の影響を検討した。その上で、実測結果を基に、数値モデル計算時に必要となるエアロゾルの含水補正式の適用条件を明らかにしている。

さらに、前述の広域・高時間分解能観測で得られた知見を基にして、冬季のSPM汚染を再現するための非定常型3次元数値モデルを構築している。このモデルは、発生源モデルにおいてはこれまで不十分であった炭素系粒子などの一次粒子およびアンモニアなどの前駆ガス成分の発生源インベントリーをあらたに整備しなおし、また反応モデルにおいては二次粒子生成モデルを組み込んだもので、これまでよりもより精度の高いモデルであり、現在、関東地域のSPM濃度予測に用いられている。

わが国の都市大気汚染問題においては、外部境界条件として、アジア大陸から長距離輸送された大気汚染物質が今後大きな影響を及ぼすことが予想される。著者は本論文の後半において、このアジア大陸域からの大気汚染物質の長距離輸送過程のメカニズムの解明を行っている。すなわち、1991年から1993年にかけて長崎県五島列島沖および日本海から東シナ海にかけて実施した航空機および船舶観測、1993年から1996年にかけて行われた船舶による日本と太平洋中央部との往復観測、さらに沖縄県宮古島および鹿児島県奄美大島で実施している長期定点観測などの結果から、冬季から春季にかけて、煤や硫酸などの人為起源エアロゾルが、半日程度の時間にスパイク状に大都市なみの高濃度を示す場合があることを見いだした。さらにこれらの現象は、総観規模での気象サイクルにより、大陸域から大気汚染物質が東シナ海海域にかけて長距離輸送される結果生じるものであることを明らかにしている。すなわち、大陸上で停滞した高気圧下で大気汚染物質が地表付近に蓄積される。次に、アジア太平洋の沿岸部において低気圧が発生し、日本列島北東の北太平洋上で発達するに伴って、大陸上で蓄積されていた大気汚染物質が東シナ海海上へ流出し、その結果、北太平洋上への間欠的な輸送が生じることになる。なお、定点観測により得られた大気サンプルおよび船舶観測で採取された堆積物サンプルから分析された有機物(多環芳香族炭化水素類)構成比より、汚染物質が北太平洋中心部まで長距離輸送され、海底に沈着していることも明らかにしている。

これを要するに、著者は、大都市域の冬季高濃度大気汚染メカニズムを明らかにし、その予測モデルの開発をおこない、さらにその誘因となるアジア大陸からの大気汚染物質の間欠的輸送メカニズムを解明したものであり、大気環境保全工学の進展に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。