氏 名 山 本 浩 平

学位(専攻分野) 博士 (工学)

学位記番号 論工博第3478号

学位授与の日付 平成12年1月24日

学位授与の要件 学位規則第4条第2項該当

学位論文題目 東アジア地域における自然・人為起源酸性物質の長距離輸送と沈着特性に関す

る研究

--- 硫黄化合物を対象として ----

(主 査) 論文調査委員 教授髙木興一 教授笠原三紀夫 教授松岡 譲

論文内容の要旨

本論文は、東アジア地域における酸性雨・酸性沈着問題による環境影響評価手法の確立を目指し、酸性雨原因物質の長距離輸送数値モデルの開発、客観解析法による風速場の推定、及び大気汚染物質の排出量推計について検討したものであり、9章と付録から成っている。

第1章は序論であり、研究の背景、目的と本研究の流れ、本論文の構成についてまとめている。

第2章は日本における酸性雨問題の現況,酸性物質による広域大気汚染問題の特性,さらにこの分野における研究の現状について述べている。大気中における物理・化学的変質過程は複雑で未知なことが多いが,それぞれの過程の現象解明を目的としたモデルなども検討されており,これらを紹介している。また,長距離輸送モデル開発の歴史は,特に酸性沈着による影響が早くから顕在化した欧米において長いため,その代表的なものを挙げ,また最近の東アジア地域における研究例についても紹介している。

第3章では大気拡散場を支配する最も重要な因子である風速場の推定手法について、客観解析法を改良した新しい手法について述べている。客観解析法は観測データを取り込み、計算空間上における風速場を得る手法を意味するが、従来の長距離輸送モデルにおける客観解析法では、スケールや格子解像度などの関係から地形が考慮されることはなかった。そこで本論文では、地形(標高)を考慮した客観解析法を東アジア地域に適用することを試みている。特に東アジア地域では、中国中西部、日本本州などに高さの無視できない山岳地帯が存在するため、その影響を考慮することは、より確かな風速場の推定につながると考えられる。その結果、地形を考慮しないときと比較して定性的、定量的に現象に近い風速場を推定することが可能になることを明らかにしている。

第4章では酸性物質汚染の原因となる汚染物質の排出量について、各種資料から間接的に推定する手法について述べている。人為発生源からの排出については、その排出の原因となる化石燃料の使用量などの社会・経済データから、また、自然起源の放出量については観測が難しく既存の研究がほとんど存在しないこともあり、研究者により観測されたデータを本研究で用いる長距離輸送モデルへ適用可能な形に整理することにより、それぞれ排出量データを整備している。その結果、人為起源物質に関しては日本、韓国などは石油燃焼に伴う排出が大きいのに対し、中国は石炭による排出が圧倒的に多いことを示した。また中国・台湾などでは大気汚染物質排出量の増加傾向があることを明らかにしている。自然発生源からの放出については、火山からの放出量がほぼ日本からの人為起源物質排出量と同程度であること、また海洋、土壌からの放出に関しては広大な面積を持つ東アジア地域においても人為起源物質排出量に比べかなり少ない量であることなどを明らかにしている。

第5章では本研究の中心である大気輸送モデルに関し、まずモデルの構成等について概説した後、湿性沈着過程以外の大気中における物理・化学的変質過程について説明している。移流・拡散においては長距離輸送問題の特性を考慮し、反復風上差分法と Crank-Nicolson の陰解法を用いたスキームを採用して、解の安定性と積分時間刻みの自由度を向上させること

を可能にしている。また、乾性沈着モデルについても、土地利用形態や季節別の詳細なモデルを構成し、また観測により得られる気象データをパラメーターとして記述することにより、より現実的なモデル化と汎用性の向上を目指している。本研究では自然起源の硫黄化合物も対象物質としているので、それらの変質過程、転換速度についても検討し、気象条件をパラメーターとしてモデル化することにより、輸送過程など他のモジュールとの統合を可能にしている。

第6章では、大気輸送モデルのうち、特に湿性沈着過程のみを取り上げ、現象を詳細に記述したモデルについて述べている。湿性沈着過程は大きく雲内洗浄と雲底下洗浄に分けられるが、従来の研究では雲内洗浄についてはほとんど検討されていない。本研究では雲水層におけるエアロゾルの生成機構として大気エアロゾルが凝結核として取り込まれる過程やガス吸収により雲水層に移動したものの酸化反応などを取り上げ、これらをモデル化し、雲中への取り込み過程や降水による雲内の除去過程、降水による雲底下の除去過程を考慮した詳細湿性沈着モデルを構築している。本モデルのように雲内変質過程や雲内洗浄機構を取り入れたもので、長距離輸送モデルへの適用を目指したものは過去には存在しない。また湿性沈着モデルについても、各現象を気象パラメーターの関数として記述することにより汎用性の向上を図っている。

第7章では、シミュレーションの結果得られた大気中酸性物質濃度、沈着量に関して、モニタリングデータとの比較を行い、モデルの妥当性について検討している。本研究で開発したモデルによる計算結果は実観測データとかなり良い相関を示し、モデルの実用性が確かめられている。さらに、第6章で述べた湿性沈着モデルの長距離輸送モデル全体に及ぼす影響についても検討している。従来用いてきた簡便モデルは、降雨強度を唯一の雲物理に関するパラメーターとして扱っているため、大気中の水分を適切に評価できておらず湿性沈着速度や沈着量の定量性に問題があったが、本研究で開発したモデルはこれらの点について改良されており、東アジア地域における酸性物質の挙動に関するより精度の高い定量的把握が可能となっている。

第8章では,長距離大気輸送シミュレーションの応用として,新しい気象データを用いて東アジア地域における大気輸送シミュレーションを行い,酸性物質濃度,沈着量の季節変動,また自然・人為発生源が日本における酸性物質沈着量に及ぼす寄与の推定,各国で排出された酸性物質の日本への沈着量について検討している。東アジア地域全体として,特に秋,冬季については中国中部の工業地域からの汚染物質が広域に輸送されている状況を示し,また夏季に湿性沈着量が増加することを明らかにした。日本における酸性物質の沈着特性としては,冬季2月に大気汚染物質濃度が日本全域にわたり最も高く,8月に最も低くなる傾向があること,地域内に大規模な工業発生源の存在する関東,関西地方においては年間を通して沈着量が多いことを示している。さらに,日本における総沈着量の85~95%程度が SO_2 の沈着によるものであること,また,総沈着量の $60\sim80\%$ が湿性沈着によるものであり,特に夏季はその比率が大きいことを明らかにした。

また、自然発生源による寄与については、火山から放出された SO₂ による寄与が特に夏季に大きいことを明らかにし、さらに各国排出源が日本の沈着量に及ぼす影響の解析からは、従来報告されているように、冬季の日本海側で中国、韓国由来の酸性物質が多量に沈着している結果を得ている。

第9章は結論であり、本研究のまとめと今後の課題について論じている。

論文審査の結果の要旨

本論文は、東アジア地域における酸性物質の人間・生活環境や自然生態系に及ぼす影響を評価したり、大気汚染物質の排出源抑制策を策定する上で必要となる、酸性物質の動態や沈着特性を解明することを目的に、大気汚染物質排出量の推計、広域拡散場における風速場の推定を含む大気汚染物質の長距離大気輸送モデルを開発し、酸性物質の汚染特性、沈着特性を評価したもので、得られた主な成果は以下の通りである。

- 1) 長距離大気輸送モデル開発において、大気中における諸過程を気象データのパラメーターとして統一的に記述することにより、モデルの汎用性を高めた。
- 2) 風速場の推定において、従来は考慮されなかった地形因子による影響を考慮した客観解析を行い、定性的により実状に即した風速場の推定が可能であることを明らかにし、また定量的にも精度が向上することを示した。
- 3) 東アジア諸国における大気汚染物質の排出量推計を新たに行い、人為起源に関しては、日本や韓国では石油燃焼に伴う排出が多いのに対し、中国では石炭燃焼による排出が圧倒的に多いことを示した。また従来の研究と比較して中国、台湾などでは排出量の増大が認められたが、この傾向は右炭消費量の動向により説明できることを明らかにした。一方、自然起

源に関しては、火山からの放出量が日本の人為起源排出量とほぼ同程度であること、その他の自然起源に関しては海洋起源の DMS が比較的多い他は、排出量はかなり少ないことなどを明らかにした。

- 4) 湿性沈着過程に関して、大気中の含水量を評価することにより雲内変質過程も考慮したモデルを開発し、輸送モデルと結合させた統合モデルを開発した。このモデルを用いて実観測データと比較を行ったところ、相関は良好であった。また、従来広く用いられてきた簡易湿性沈着モデルと比較した結果、本論文で開発した湿性沈着モデルにより、定量性が大きく向上することが明らかとなった。
- 5) これらを統合したモデルを用いて大気輸送シミュレーションを行い、酸性物質濃度や沈着量の季節的変動、また日本における酸性物質沈着量に及ぼす各種発生源別、国別の寄与を推定し、日本における硫黄化合物に係る総沈着量の $85\sim95\%$ は SO_2 によるものであること、総沈着量の $60\sim80\%$ が湿性沈着によるものであり、夏季にはその比率が特に高いことなどを明らかにした。

自然起源の硫黄酸化物が日本の酸性沈着に及ぼす寄与については、夏季においては火山による寄与が大きいが、その他の 起源に関しては全体に寄与が小さいこと、また冬季の日本海側においては中国や韓国起源の酸性物質の沈着が大きく寄与し ていることなどを明らかにした。

以上,要するに本論文は,酸性大気汚染物質の長距離輸送現象の解析手法を確立し,東アジア地域における酸性物質による大気汚染の実態把握を可能にしたものである。また本論文による手法は,大気環境の将来予測や酸性物質の環境影響評価を可能にし,大気汚染物質排出量削減対策の策定において必要な多くの知見を与えるもので,得られた成果は学術上,実際上寄与するところが少なくない。よって本論文は,博士(工学)の学位論文として価値あるものと認める。また,平成11年11月2日,論文内容とそれに関連した事項について諮問を行った結果,合格と認めた。