

審査の結果の要旨

氏名 林 梅 云

主に燃料の燃焼によって生じる二酸化硫黄や窒素酸化物は、大気中に放出されてエアロゾルとなり、約 1~2 週間の浮遊期間中に数千 km も輸送され、越境大気汚染の現況となっている。窒素酸化物は対流圏オゾン生成の触媒となり、対流圏オゾン濃度を増加させている。工業化が進んだ国々では窒素酸化物濃度は減少する傾向にあるが、今後発展が期待されるアジアの途上国では窒素酸化物の放出量が増加する恐れがある。

「Long-range Transport and Source-receptor Relationships of Acidifying Substances in East Asia」(東アジアにおける酸性化物質の長距離輸送と排出-受容関係)と題する本研究は、越境大気汚染の総合的なアセスメントを可能とするために、東アジア、東南アジアの各地域から排出される二酸化硫黄、反応性の窒素酸化物が、どの場所に乾性沈着、湿性沈着として受容されるのかを推定する手法を確立したものである。

東アジアにおける硫黄酸化物の越境輸送に関してはこれまでもラグランジュ型の輸送モデルを用いて研究されてきているが、より正確に汚染物質の輸送を扱うことができるオイラー型の 3 次元輸送モデルを用いて、反応性の窒素酸化物の輸送を取り扱った研究はこれまでなされていなかった。本研究では最新のオイラー型の 3 次元大気化学輸送モデルである CMAQ を東アジア、東南アジアの領域に空間解像度 27km、81km で適用している。大気場に関しては NCEP/NCAR のグローバル再解析データを初期値、ならびに境界条件としてメソスケール領域大気モデル MM5 を用いて 2001 年の 1 年分が計算されている。

二酸化硫黄、窒素酸化物の大気への排出量については様々なインベントリデータに基づいて季節変化や大きな点源については鉛直分布も含めて新たに推定され、格子点化して用いられた。大気化学反応輸送モデルの側方境界条件は、global Model for Ozone and Related Chemical Tracers (MOZART) の算定値の空間解像度、化学物質分類などを CMAQ 用に変換して与えられている。これにより、オゾンや一酸化炭素、peroxyacetyl nitrate (PAN) など大気中での寿命が長く長距離輸送される物質の対象領域外からの影響を考慮することが可能となっている。このように境界条件を与えることにより、特に冬季においてモデルのオゾン濃度の推定精度を向上させることが確認されている。また、夏のオゾン濃度に関しては、光化学反応過程に鋭敏で、CBIV と SAPRC99 の 2 つの光化学反応過程モデルが試され、SAPRC99 の方が揮発性有機化合物の分類は多いものの CBIV の方が概ね観測をよく再現することが検証されている。

さらに、こうして構築された東アジア、東南アジアの越境大気化学物質輸送モデルの推定結果は、Acid Deposition Monitoring Network in East Asia (EANET)ならびに Global Ozone Monitoring Experiment (GOME)センサによる観測データと比較されている。それによると、モデルの推定結果は、EANETの地点観測結果と比べて、季節変動、日々変動、日周変動をよく捕らえているが、モデルの空間解像度が81kmの場合、地形が十分に表現されないため、推定精度が落ちることが示されている。窒素酸化物に関しては日本中南部でモデルがやや過小評価しているものの、衛星観測と比較すると、対象領域内の鉛直積分された窒素酸化物濃度の空間分布はよく捕らえられている。窒素酸化物濃度の過小評価はGOMEと比較して冬の中国東部の工業化地帯でも観察され、インベントリーデータにおいて、家庭からの暖房に伴う窒素酸化物の排出量がやや低めなのではないか、ということが示唆されている。夏の中国西部やモンゴルにおける過小評価に関しては、土壌からの生化学的な窒素酸化物の排出を過小評価しているためではないかと推察されている。

降水中の濃度に関しては、硫酸ならびにアンモニアの濃度は概ね適切に再現されているものの、硝酸濃度に関しては排出量の不確実性を除いてもやや過小評価する傾向にあり、CMAQの化学反応過程を評価し改良するためには、より包括的な反応性窒素酸化物とエアロゾルの観測が必要であることが指摘されている。

このように精度が検証された越境大気化学物質輸送モデルを用いて東アジアにおける汚染物質の排出一受容関係が推定された。様々な感度分析の結果、アンモニア排出量を減らすと大気化学過程の非線形効果によって硫酸化物や反応性窒素酸化物の沈着量も大きく変化してしまうことがわかった。こうした知見に基づき、二酸化硫黄や反応性窒素酸化物の排出量を特定地域についてのみ25%削減するといった摂動を与えてコントロール実験との沈着量の差をとり、排出一受容関係が月ごとに推定された。

中国東部からの排出量はアジア全体における人為起源硫黄沈着のかなりの量を占める一方で、中国北部では硫黄沈着、窒素沈着のかなりの部分をインド亜大陸など国外の排出から受容していること、三宅島の火山の影響が日本における硫黄沈着の半分を占めること、アジアモンスーンの季節変化に従い、乾季に長距離輸送が顕著であることなどが明快に示されている。

このように、本研究は、最新のオイラー型3次元大気化学輸送モデルと新たに構築した排出量データセットを用いて東アジア地域の排出一受容関係を推定する枠組みを構築したもので、地上観測、衛星観測を用いた丁寧な精度の検証もなされており、定量的な信頼性も高く、有用性に富む研究成果と評価できる。よって本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。