

氏名（本籍）	桐山悠祐（新潟県）
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	甲第1069号
学位授与の日付	平成27年3月20日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
学位論文題目	<b>Study on properties and factors of high concentration ozone in summertime in Kanto region of Japan</b> (夏季の関東地方における高濃度オゾンの特徴と要因に関する研究)

論文審査委員 (主査) 教授 三浦 和彦  
教授 本間 芳和 教授 渡辺 一之  
教授 坂田 英明  
連携大学院 物理学専攻 客員教授 速水 洋  
東京農工大学大学院農学研究院 教授 嶋山 史郎

## 論文内容の要旨

成層圏に存在するオゾンはオゾン層と呼ばれる高濃度領域を形成しており、太陽光に含まれる紫外線を減衰させる働きをしている。そのため地上で生活している動植物に対して非常に有益な物質であると広く認識されている。その一方で地表付近にもオゾン層と比較すると微量ではあるがオゾンが存在する。オゾンの性質として非常に強い酸化力を示すため、健康、環境に対して悪影響を及ぼすことが多くの研究によって報告されている。

日本においても'70年代から光化学スモッグの主要成分として高濃度オゾンの観測例が報告されており、以降観測および数値シミュレーションによる研究が精力的になされてきた。同時に大気環境改善のためオゾンの前駆物質（窒素酸化物; NO<sub>x</sub> および揮発性有機化合物; VOC) を含めた大気汚染物質の人為的な排出を規制するため、種々の政策が実施されてきた。その結果、オゾン前駆物質の大気中濃度は国内平均で年々減少している。しかしオゾン濃度は長期的に増加の傾向を示しており、国内のオゾンに対する大気環境基準達成率も依然として極めて低い状態にある。夏季の関東地方を対象として考える場合、太平

洋に高気圧が張り出し海洋性の清浄な季節風が支配的になることが多い。そのため、大陸から汚染物質が流入する越境大気汚染の影響は他の季節と比較すれば小さいことが推測される。また、成層圏から対流圏へのオゾンの流入も重要な要因として考えられているが、春季にその影響が最も大きくなり、夏季では支配的な要因とは考えにくい。したがって夏季の関東地方に出現する高濃度オゾンに関しては外部からの流入ではなく領域内において生じたオゾン前駆物質および領域内でのローカルな輸送が強く影響していると推測される。国内発生源に対する規制は工場などの固定排出源および自動車などの移動排出源に対して、国や各自治体を実施してきた。しかし、実際にオゾン濃度に対してどの程度効果があったかを明確に示した例はない。またオゾンとその前駆物質の間には非線形的な関係が存在するため、排出規制の効果が地域によって違いが生じる可能性が大いに存在する。したがって排出規制の効果を明確にし、更なる改善策につなげることが長期的な大気環境改善のために必要である。関東地方では海と陸での比熱の違いによって引き起こされる海風が汚染物質を沿岸部から内陸に向かい輸送することで、オゾン濃度の時間、空間変化に対し重要な役割を果たすことが知られている。特に関東地方の内陸部での高濃度オゾンは、都心周辺で排出された前駆物質およびそれらから生じたオゾンが海風によって輸送されることでもたらされると指摘されている。しかし、海風の到達以前の時間帯でもオゾンが高濃度となる事例も報告されている。この現象の原因として関東内陸部で排出されたオゾン前駆物質による二次生成あるいは混合層の発達による上空の残留オゾンの取り込みが指摘されているが詳細明らかでない。午前中からオゾンが高濃度になると、海風の輸送によってもたらされる高濃度オゾンと相俟って長時間、高濃度のオゾンに暴露される事になる。その結果、健康および環境への影響がより深刻になることが懸念されるため、早急な改善が望まれる。

そこで本研究では関東地方を対象として、排出規制によるオゾン前駆物質の減少に対するオゾン濃度の変動から排出規制策の効果を検証した。さらに関東内陸部における特に午前中の高濃度オゾンの発生要因について、汚染物質の排出地域ごとの寄与と上空の残留オゾンの地表への影響を評価した。本研究では数値モデルを用いた手法を採用した。使用したモデルは気象場を計算するモデルとして Weather Research and Forecasting (WRF) model を使用した。また大気中における、物質の化学反応、移流・拡散等の挙動の計算するモデルとして Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model を使用した。

#### (1) 排出量削減策のオゾン濃度に対する効果の検証

本研究では 2000 年および 2005 年の排出量を元に夏季を対象とした、排出量削減のオゾン濃度に対する効果の検証を行った。解析対象期間は 6 月から 9 月の 4 ヶ月間とした。この期間での、2000 年におけるオゾン前駆物質の一次排出量は関東地方全体で

NO<sub>x</sub>が $15.1 \times 10^{10}$  g、VOCが $19.6 \times 10^{10}$  gであり、2005年はNO<sub>x</sub>が $14.3 \times 10^{10}$  g、VOCが $16.4 \times 10^{10}$  gであった。それぞれの2000年から2005年にかけての排出量はNO<sub>x</sub>が約6%、VOCが約20%減少していた。このシミュレーションでは気象条件の経年的な変化および関東外からの流入の影響を排除し、関東地方内での排出量の変化のみを考えている。そのため気象場および初期値、境界値は全て同じデータを使用してWRFおよびCMAQを用いたシミュレーションを実施した。その結果、NO<sub>x</sub>およびVOC排出量を同時に削減した場合、つまり実際の排出量削減を模擬した場合では関東地方のほぼ全域で日中最高オゾン濃度は減少する傾向を示したが、都心周辺地域の一部で増加する様子が見られた。またNO<sub>x</sub>排出量のみを削減しVOC排出量は固定した場合、都心を中心に関東の平野部でオゾン濃度が増加する様子が見られた。これはNOがオゾンと反応してオゾンが消失する効果が、NO<sub>x</sub>の削減によって弱まったため生じたと判断できる。一方でVOCの排出量のみを削減した場合、特に大宮付近を中心に関東一円でオゾン濃度の減少が見られた。よって関東地方での排出削減のみを考えればオゾン濃度を減少させる効果があり、それはVOCの排出削減によるものが大きいと考えられる。しかし、内陸部に着目すればNO<sub>x</sub>を削減した場合でもオゾン濃度が減少する地域が見られる。そのため、地域ごとにどちらの前駆物質がオゾン生成に対して効果的かを示す必要がある。シミュレーションの結果を用いて判定を行った結果、内陸部における日中最高濃度に対してはNO<sub>x</sub>が有効に作用しており、午後のオゾン濃度に対しても同様であった。ゆえに海風によって輸送される都心周辺のNO<sub>x</sub>を削減する事が内陸部で効果を持つことが示された。一方で都心周辺から埼玉県中部付近まではVOCの排出量削減がオゾン濃度減少に対して効果的な地域が広がっており、NO<sub>x</sub>およびVOCの排出量削減の地域的な有効性の差異が示された。

## (2) 関東内陸部における高濃度事例の検証

関東内陸部における午前中の高濃度オゾンの原因を明らかにするため、汚染物質を排出する領域ごとの寄与を見積もった。本研究では関東地方をNO<sub>x</sub>排出量の差異を基準として、都心から半径約40kmの範囲をmetropolitan area、それ以外の領域をnon-metropolitan areaと区別した。また、モデル内の計算プロセスから化学反応の過程を除外することで、鉛直、水平方向からの移流・拡散のみによるオゾン濃度の変化量を評価できる。さらに、オゾン濃度が水平方向に一様かつ風速が遅いという条件であれば、水平方向のオゾンの移流・拡散がオゾン濃度の変化に与える影響も小さくなり、鉛直方向のオゾンの輸送がオゾン濃度の変化に与える影響を評価できる。そのため、上空に前日から残留しているオゾンが地表に与える効果を検証するため、化学反応が起きないように計算条件を設定したシミュレーションを行った。その結果、関東内陸部における午前中のオゾン濃度に対しては

non-metropolitan area で排出された前駆物質の影響が大きく、午後には海風によって輸送された metropolitan area の前駆物質の寄与が増大していた。また、化学反応を除外した場合でも混合層の発達とともに上空からオゾンが取り込まれ、オゾン濃度が増加する様子が示された。さらに十分に混合層が発達し、上空に高濃度のオゾンが残留していれば 10 時までのオゾン濃度の 4 割から 8 割が説明されることが示された。この夜間上空に残留しているオゾンについても non-metropolitan area で排出された前駆物質が大きく寄与していることも示された。

以上のように夏季の関東地方に対して 2 種類の数値モデルシミュレーションを行い、関東地方における短期的、長期的な観点からのオゾンによる大気汚染の改善に資する結果を示した。これら 2 種類のシミュレーションの結果から、1 日から数日にわたって繰り返し発生する日中高濃度オゾンは、都心周辺地域では VOC の削減によって 2.5ppb 改善しているが、NOx 削減により 1.3ppb 程度の増加が見られ、全体として一部増加する地域があるがおおよそ 2.3ppb オゾン濃度が減少した。一方関東の内陸部では海風により都心周辺からの輸送される NOx の減少により日中最高濃度が 2ppb 程度減少するが、海風の到達前に内陸部で独自に濃度が増加する要因があることが明確になった。したがって内陸部での日中のオゾン濃度低減に対しては関東全域での排出削減が必要になる。また、夏季全体を通して考えた場合でも、それら排出量の削減がオゾン濃度を 2.3ppb 低減させる効果が示された。なお、NOx および VOC の排出量を削減した場合の、オゾン濃度の増減の空間分布は、夏季全体を考えた場合および高濃度日に着目した場合で、同様のパターンを示していた。それゆえ中・長期的なオゾンの大気汚染改善を考えた場合でも NOx および VOC に対する感度の地域的な違いを考慮した排出削減を実施する必要がある。したがって、関東地方でのオゾンによる大気汚染は大都市部のみの排出削減では部分的な改善にとどまり、根本的な解決には各都県相互の協力的な排出削減対策が必要となる。

## 論文審査の結果の要旨

本論文は、重要な大気汚染物質であるオゾンが高濃度となる夏の関東地方を対象に、オゾン汚染対策に資する研究成果をまとめたものである。わが国はオゾンの生成に関与する原因物質の排出量を減らす努力をしてきたが、施策の効果について十分な検証はなされていない。本論文は、数値シミュレーションによりその効果を初めて定量的に評価した。また、関東内陸部ではオゾンの高濃度が長時間持続することが観測的に知られていたが、本論文は数値シミュレーションにより高濃度オゾンの生成メカニズムを解明した。以下、本論文の各章の概要を述べる。



第 1 章では、本研究の背景としてまず、重要な大気汚染物質であるオゾンの大気中濃度が全国的に上昇傾向にあることを示した。地表付近のオゾンは成層圏のオゾンと異なり、窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) と揮発性有機化合物 (VOC) が関与する反応で生成する。わが国では数々の環境施策により自動車や工場などからの NO<sub>x</sub> と VOC の排出量が減少し、大気中濃度を引き下げることに成功している。にもかかわらずオゾン濃度は上昇を続けている。本研究はその理由を反応系から説明した。そして、施策の効果について検証が必要であり、それには越境流入の影響が少ない夏の関東を対象として最適であることを述べた。その夏の関東では、内陸部でオゾンが長時間にわたって高濃度で維持されることが知られている。このうち午後から夕方の高濃度は、海風により輸送されてきた都心由来の汚染物質の影響とされているが、午前中の高濃度については未解明であることを指摘した。

第 2 章では、本論文で使用する数値気象モデルと大気質モデルについて、基本方程式から説明した。また、入力となる排出量データを示した。続いて、夏の関東地方を対象とした二種類の数値シミュレーション (排出施策の効果検証、午前中のオゾン濃度上昇解明) の計算条件およびモデルの設定について、詳述した。

第 3 章では、排出量削減策のオゾン濃度に対する効果を検証した。2005 年を基準年とし、排出量のみ 2000 年当時のままと仮定したシミュレーション計算を実施した。この 5 年間で関東地方における排出量は、NO<sub>x</sub> が約 6%、VOC は約 20% も減少した。シミュレーションの結果、関東地方のほぼ全域で日中最高オゾン濃度が 2~5 ppb 減少したが、都心周辺地域の一部で 1~3 ppb 増加する様子が見られた。次に、NO<sub>x</sub> と VOC のどちらかのみ排出量を 2000 年に戻した計算を行ったところ、関東の全域的なオゾン濃度の減少は VOC 排出量の削減が有効であることが判明した。ただし、関東内陸部の日中最高濃度に対しては NO<sub>x</sub> の排出量削減が有効に作用しており、NO<sub>x</sub> および VOC の排出量削減の有効性が地域により異なることを明らかにした。

第 4 章では、夏の関東内陸部における午前中の高濃度オゾンの原因を明らかにした。シミュレーションでは、高濃度のオゾンが頻発した 2010 年 7 月下旬から 8 月上旬について、東京都区部を中心とする半径 40 km の“都心域”とそれ以外の“非都市域”に位置する発生源の影響を調べた。シミュレーションの結果、関東内陸部における午前中のオゾン濃度に対しては非都市域で排出された NO<sub>x</sub> と VOC の影響が大きいことがわかった。また、夜間上空に滞留していたオゾンが日射とともに発達する混合層に取り込まれ、午前中のオゾン濃度を上昇させる様子を示し、それにより午前 10 時までのオゾン濃度の 4 割から 8 割が説明されることを示した。この残留オゾンに対しても非都市域から排出された NO<sub>x</sub> と VOC が強く影響しており、関東内陸部の午前中のオゾン濃度上昇は関東内陸部の発生源の影響が大きいと結論づけた。

第 5 章では、本論文を総括し、特に関東内陸部でのオゾン濃度を改善するには、都心部のみではなく関東全域での取り組みが必要であると提言している。

以上のように本論文は、わが国で実施されてきた環境施策がオゾン濃度の低減に有効であったことを初めて定量的に評価するとともに、さらなる改善には広域的な対策が必

要であることを述べており、わが国の大気環境保全に大いに資するものである。  
よって、本論文は学位（博士）論文として十分価値あるものと認める。