

## 都市・広域大気汚染の研究

若松伸司 (国立環境研究所)

### 1. はじめに

大都市やその周辺地域における大気汚染は産業や民生活動により発生するが、その出現形態は、それぞれの都市の発生源の特性や立地条件、気象条件により異なる。この為、適切な対策を進めるに当たっては大気汚染の生成機構についての正しい理解が必要となる。特に光化学大気汚染は反応と気象が共に影響する複雑な現象である為、立体的なフィールド観測やモデル研究が役に立つ。本稿においては光化学反応が各種の大気汚染に及ぼす影響を著者等のこれ迄の研究を中心に示し今後の研究課題を展望する。

### 2. 夏季の大気汚染

1970年の夏に千葉県と東京都において光化学オゾンによると考えられる人体への影響が顕在化した。それから約30年経た今日に於いても依然として未解決の問題として残されている。神奈川県では光化学大気汚染の生成機構解明の為にヘリコプターによる観測を1970年から1975年にかけて50回以上実施し、わが国で初めて光化学大気汚染の立体分布の特徴を把握する事が出来た。これにより地上よりも上空で高濃度の光化学大気汚染が存在し、その生成には風と気温の立体構造が密接に関係している事が分かった。

□若松伸司 (1975): オゾンの平面分布と気流の観測、日本気象学会誌、天気、22巻8号,60-65.

□若松伸司 (1975): 接地境界層内部でのオゾンの鉛直分布、日本気象学会誌、天気、22巻9号,38-44.

□Wakamatsu,S. and Okita,T.(1976): Vertical and Horizontal Distribution of Ozone covering Kanagawa Prefecture,Japan. Memories of Faculty of Engineering,Hokkaido University,XIV-3、15-24.

この調査は首都圏の一都三県による大気汚染立体分布共同調査や、神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会に於いて展開され東京首都圏地域に於ける光化学大気汚染の地域特性や時刻変化に関する気象との関連性に関する知見が得られた。これらの蓄積された情報や技術を基に国立環境研究所では1978年から数年間に亘り環境庁や地方自治体の研究者の協力の下に航空機を用いた大規模な立体分布観測を体系的に展開した。この一連の研究により東京首都圏地域に於ける大気汚染物質の循環と蓄積のメカニズムが解明された。即ち気圧傾度が弱い時には海陸風循環により日中は光化学大気汚染気塊が内陸地域に輸送され、これが夜間には陸風により再び海方向に戻される事、日中は混合層が発達するので高濃度は上空にまで拡がる事、一方、夜間は地上付近では一次汚染物質である一酸化窒素との反応によりオゾンの濃度は低下するものの上空においては日中に生成した二次汚染物質が残存しており、これが翌日の日中には混合層に取り込まれる事により、前日より早い時刻に更に高濃度のオゾンが生成する事、また気圧傾度が強い時には東京首都圏地域の大気汚染は内陸の山岳地域に輸送される事などが解明された。最近の研究により気象条件によっては局地的な海陸風循環よりも更に大きな大気汚染循環が存在する事が分かった。

□若松伸司、五井邦宏、油本幸夫、畠野昌治、小川靖、奥田典夫 (1981): 関東地方における光化学大気汚染質の地域分布と局地気流、大気汚染学会誌、16巻3号、146-157.

□若松伸司、小川靖、村野健太郎、奥田典夫、鶴田治夫、五井邦宏、油本幸夫 (1981): 東京首都圏地域における光化学スモッグの航空機観測について、大気汚染学会誌、16巻4号,199-214.

□若松伸司、畠野昌治 (1981): 関東地方における局地風系パターン、大気汚染学会誌、16巻6号,371-378.

□若松伸司、畠野昌治 (1981): 主成分分析による局地風系解析、大気汚染学会誌、16巻6号,379-386.

□若松伸司、鈴木睦、鶴野伊津志、小川靖、畠野昌治、奥田典夫(1983): 環境大気中におけるO<sub>3</sub>濃度の時刻変化と立体分布、国立公害研究所研究報告、44,5-29.

- Wakamatsu,S.,Ogawa,Y.,Murano,K.,Goi,K. and Aburamoto,Y (1983): Aircraft survey of the secondary photochemical pollutants covering the Tokyo metropolitan area. *Atmospheric Environment*,17,827-835.7-27.
- 若松伸司、鶴野伊津志、鈴木睦、小川靖、村野健太郎、昆野信也、古塩英世(1984): 航空機を用いた汚染気塊のラグランジュ的観測、国立公害研究所研究報告, 61,47-69.
- 若松伸司、鶴野伊津志、鈴木睦、小川靖、村野健太郎、昆野信也、古塩英世(1984): 首都圏地域における1981年7月の光化学スモッグエピソード、国立公害研究所研究報告, 61,71-81.
- Uno,I.,Wakamatsu,S.,Suzuki,M. and Ogawa,Y. (1984): Three-dimensional behavior of photochemical pollutant over the Tokyo metropolitan area. *Atmospheric Environment*,18,751-761.
- 若松伸司、鶴野伊津志、小川靖、鈴木睦、村野健太郎、古塩英世、須山芳明、坂本和彦(1985): 大気汚染物質濃度の立体分布と発生源との関係、国立公害研究所研究報告, 72,21-65.
- Kurita,H.,Sasaki,K.,Muroga,H.,Ueda,H. and Wakamatsu,S. (1985): Long-range transport of air pollution under light gradient wind conditions. *J. Climate and Applied Meteor.*,24,425-434.
- Wakamatsu,S.,Uno,I and Suzuki,M. (1990): A field study of photochemical smog formation under stagnant meteorological condition. *Atmospheric Environment*,24A,1037-1050.
- Wakamatsu,S. (1997): High concentrations of photochemical ozone observed over sea and mountainous regions of the Kanto and eastern Chubu districts, *J.Jpn.Soc. Atmos. Environ.*, 32(4),309-314.

### 3、冬季および春季の大気汚染

冬季および春季においても光化学反応による影響を考える必要がある。環境基準が定められている二酸化窒素は、その大部分が環境中で反応により生成する。この時オゾンが重要な働きをする。冬季および春季には成層圏からの沈降によるオゾンと対流圏において生成する光化学オゾンが共に影響を及ぼす。航空機を用いたフィールド観測や、モデル研究によれば冬季においても光化学オゾンが生成している事が明らかとなった。二酸化窒素濃度は12月を中心とした冬季に高濃度となるのが一般的であるが、関西地域においては4月を中心とした春季にも濃度が上昇する。

地上や山頂での観測により春季に高濃度のオゾンが出現する事が知られている。成層圏からの沈降による寄与が大きい。オゾンゾンの連続観測から成層圏から対流圏低層へのオゾンの沈降は、2段階のプロセスで起きる事が分かった。すなわち、寒冷前線に吹き込む下降流により対流圏上層に輸送されたオゾンは引き続き移動性高気圧の影響下でゆっくりと地上付近に達する為、事前の予測が可能である。これとともに移動性高気圧の圏内では弱風、安定で日射量が多いため、光化学オゾンが生成し易い条件も揃っている。すなわち光化学反応が起こりやすい気象条件もまた輸送される事になる。春季の関西地域におけるフィールド観測により、この共者の寄与がほぼ半々である事が分かった。

- 鶴野伊津志、若松伸司、植田洋匡(1988): 夜間の都市境界層と大気汚染質の動態. *大気汚染学会誌*, 23巻2号, 103-114.
- Wakamatsu,S.,Uno,I.,Ueda,H.,Uehara,K. and Tateishi,H. (1989): Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposphere. *Atmospheric Environment*,23,1815-1826.
- Ohara,T.,Uno,I. and Wakamatsu,S. (1989): Observed structure of a land breeze head in the Tokyo metropolitan area. *J. Appl. Meteor.*,28,693-704.
- 鶴野伊津志、植田洋匡、若松伸司(1989): 夜間の都市域におけるNO<sub>2</sub>の高濃度発現メカニズム. *大気汚染学会誌*, 24巻2号, 130-143.
- 大原利眞、鶴野伊津志、若松伸司 (1990): 陸風前線通過に伴うNO<sub>x</sub>高濃度汚染現象の観測、*大気汚染学会誌*, 25巻1号, 66-76.
- 若松伸司、鶴野伊津志、須山芳明、阿相敏明、牧野宏 (1990): 飛行船を利用した大気汚染物質分布の観測、*大気汚染学会誌*, 25巻1号, 97-101.
- 若松伸司、上原清、鶴野伊津志編 (1994): 都市域における冬期を中心とした高濃度大気汚染の予測と制御に関する研究、国立環境研究所特別研究報告、S R-18-94, pp34.

- Uno, I., Ohara, T. and Wakamatsu, S. (1996): Analysis of wintertime NO<sub>2</sub> pollution in the Tokyo metropolitan area. *Atmospheric Environment*, 30, 703-713.
- Wakamatsu, S., Uno, I. and Ohara, T. (1998): Spring time photochemical air pollution in Osaka - Field observation-. *Journal of Applied Meteorology*, 37, 1100-1106.

#### 4. 大気汚染の長距離輸送

東京首都圏地域の大気汚染物質が、太平洋海上や、長野県、山梨県方面まで輸送されている事が明らかとなったが、これとともに、中国大陸と日本列島との間で大気汚染の授受がある事が、フィールド観測より分かった。夏季においては鹿児島県の桜島の煙が、九州北部地域に達し地上での二酸化イオウの高濃度をもたらす事や、冬季、春季を中心に大陸方面からの汚染が我が国に達しており、光化学オゾンのベースの上昇やエアロゾルによる大気汚染をもたらしている事が解明された。

- 若松伸司 (1990): 広域汚染、空気調和・衛生工学、64-9、723-727.
- Wakamatsu, S., Murano, K., Uno, I. and Ueda, H. (1990): Aircraft survey of three dimensional aerosol distribution. *Aerosols: Science, Industry, Health and Environment*, Vol. 2, 978-981.
- 若松伸司編 (1991): 雲物理過程を伴う列島規模大気汚染に関する研究、国立環境研究所特別研究報告、SR-7-'91, pp61.
- 山下敬則、森淳子、本多雅幸、鶴野伊津志、若松伸司 (1991): 長崎県における高濃度 SO<sub>2</sub> 汚染の解析. *大気汚染学会誌*、26 巻 5 号, 320-332.
- Wakamatsu, S., Utsunomiya, A., Han, J. S., Mori, A., Uno, I. and Uehara, K. (1996): Seasonal variation in atmospheric aerosols concentration covering northern Kyushu, Japan and Seoul, Korea. *Atmospheric Environment*, 30, 2343-2354.
- 鶴野伊津志、若松伸司 (1996): 桜島からの火山ガスブリエームの輸送・拡散過程の解析、土木学会論文集、NO.552/VII-1, 53-63.
- 森淳子、宇都宮彬、鶴野伊津志、若松伸司、大原利眞 (1997): 九州北部地域におけるエアロゾル濃度変動と高濃度エピソードの解析. *大気環境学会誌*、32 巻 2 号, 73-89.
- 鶴野伊津志、若松伸司、植田洋匡、村野健太郎、酒巻史郎、栗田秀實、薩摩林光、寶来俊一 (1997): 春季の移動性高気圧通過時の九州地域での二次汚染物質と火山性 SO<sub>2</sub> の挙動、*大気環境学会誌*, 32 巻 6 号, 404-424.
- 森淳子、鶴野伊津志、若松伸司、村野健太郎 (1999): 雲仙野岳で観測された SO<sub>2</sub> エアロゾル組成. *大気環境学会誌*、34 巻 3 号, 176-191.

#### 5. 大気汚染のトレンド解析とモデリング研究

光化学オキシダントの地域分布に関するトレンド解析の結果、高濃度の出現地域が北関東地域や京都府、奈良県等において相対的に増加の傾向にあることがわかった。また窒素酸化物、非メタン炭化水素濃度に関しては低減、窒素酸化物濃度に関しては増加の傾向が認められた。これに伴って非メタン炭化水素濃度と窒素酸化物濃度の比は小さくなりつつある。窒素酸化物の排出量の増加は、オゾン生成ポテンシャルを増加させ、非メタン炭化水素排出量の減少は環境大気中でのオゾン生成速度を減少させる。このため、最高オゾン濃度が出現する時刻が遅くなる。関東地域におけるこれまでのフィールド観測結果によれば、一般的には午前中は沿岸地域でオゾンの高濃度が観測され、海風が侵入するに伴って高濃度出現地域が内陸部に移動することがわかっている。このような気象状態の時には、最高オゾン濃度が出現する時刻が遅くなることは、内陸にオゾンの高濃度域が移動することを意味しており、モデルによる解析結果と実測結果とは良く対応している。

- 若松伸司、鈴木睦、畠野昌治 (1983): 低層大気中における光化学反応モデル評価— OZIP モデルと CBMII モデルの適用例について—、*大気汚染学会誌*、18 巻 2 号, 164-174.
- Wakamatsu, S., Uno, I. and Schere, K.L. (1988): Application of a three-dimensional photochemical smog formation model to the Tokyo metropolitan area. *Air Pollution Modeling and its Application*, VI, 259-270.
- Wakamatsu, S. and Schere, K.L. (1991): A study using a three dimensional photochemical smog formation model under

conditions of complex flow.-Application of the Urban Air shed Model to the Tokyo metropolitan area-, US-EPA Report, EPA/600/3-91/015,1-84.

- Wakamatsu,S.,Uno,I and Wadden,R.A. (1991): Specification of source characteristics for ozone prediction in complex air shed. Air Pollution Modeling and its Application,VIII,453-462.
- Wakamatsu,S.,Ohara,T.and Uno,I. (1996): Recent trend in precursor concentrations and oxidant distribution in the Tokyo and Osaka areas. Atmospheric Environment,30,715-721.
- 若松伸司 (1996): 大気汚染のシミュレーション、空気調和・衛生工学、70-11、879-887.
- 若松伸司ほか編 (1998): 環境負荷の構造変化から見た都市の大気と水質問題の把握とその対応策に関する研究、国立環境研究所特別研究報告、S R-26-'98, pp94.
- 鶴野伊津志、大原利眞、森淳子、宇都宮彬、若松伸司、村野健太郎 (1997): 東アジアスケールの長距離物質輸送、変質過程の数値解析、大気環境学会誌,32 巻 4 号,267-285.
- Wakamatsu,S.,Ohara,T. and Uno,I. (1998): Spring time photochemical air pollution in Osaka - Model analysis-.Journal of Applied Meteorology.,37,1107-1116.
- Wakamatsu,S.,Uno,I and Ohara,T. and Kenneth L. Schere (1999): A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in the Tokyo area. Atmospheric Environment,33,3097-3108.

## 6、今後の課題 -VOC 研究の重要性を中心として-

これ迄に述べて来た様に光化学反応過程は都市・広域大気汚染のすべての部分に深く関係している。対策シナリオの議論を行うにあたっては、大気汚染物を相互に関連するものとして把握することが必要である。定量的な評価にあたっては発生源の空間分布や時刻変動に対する情報が不可欠である。中でも炭化水素成分 (VOC) に関する情報は極めて限られており環境データに関するも今後は、自動分析システムの導入等により、より精度の高いデータを蓄積して行く必要がある。

- 若松伸司、鶴野伊津志、Wadden,R.A.(1984): 非メタン炭化水素の発生源組成分布と光化学反応性の研究、国立公害研究所研究報告、61,7,27.
- 若松伸司、鶴野伊津志 (1985): 各種発生源から排出される炭化水素の光化学反応性の評価、国立公害研究所研究報告、72,7-19.
- Uno,I.,Wakamatsu,S.,Wadden,R.A., Konno,S. and Koshio,H. (1985): Evaluation of hydrocarbon reactivity in urban air. Atmospheric Environment,19, 1283-1293.
- Wadden,R.A.,Uno,I. and Wakamatsu,S. (1986) Source discrimination of short-term hydrocarbon samples measured aloft. Environ. Sci. Tech.,20,473-483.
- Wakamatsu,S.,Uno,I. and Wadden,R.A. (1989) Specification of boundary values and source characteristics of ozone prediction in a complex air shed. 82nd Ann.Meet. Air and Waste Management., U.S.A.,89-42A.1,1-14.
- Tanaka,M.,Kamiura,T.,Warashina,M.,Maeda,Y.,Uno,I. and Wakamatsu,S. (1995): Vertical Distribution of Ambient Hydrocarbon and Carbon Monoxide Concentrations Measured Aloft over Kansai Area. Environ.Sci.,8-4、387-396.
- 森川多津子、若松伸司、前田恒昭 (1995): 大気中C 2-C 9 炭化水素類の全自動モニタリングシステムの試作、大気環境学会誌,30 巻 5 号,344-350.
- Morikawa,T., Wakamatsu,S., Tanaka,M.,Uno,I., Kamiura,T. and Maeda,T. and Ohara,T. (1998): C2-C5 hydrocarbon concentration in central Osaka. Atmospheric Environment,32,2007-2016.

更に今後の研究課題として s p m の研究や、途上国大気汚染研究が上げられる。我が国の都市・広域大気汚染対策を進めて行く上でもアジアスケール、地球スケールの視点は必須である。Think Locally act Globally の精神が今後のキーワードとなろう。