

## 学位論文及び審査結果の要旨

横浜国立大学

氏名	福崎 有希子
学位の種類	博士（環境学）
学位記番号	環情博甲第 2212 号
学位授与年月日	令和 3 年 3 月 25 日
学位授与の根拠	学位規則（昭和 28 年 4 月 1 日 文部省令第 9 号）第 4 条第 1 項及び 横浜国立大学学位規則第 5 条第 1 項
学府・専攻名	環境情報学府 人工環境専攻
学位論文題目	Source area identification and source estimation of alkenes in the Tokyo Bay coastal area, Japan（東京湾岸地域におけるアルケン発 生源地域及び発生源推定）
論文審査委員	主査 横浜国立大学 教授 中井 里史 横浜国立大学 教授 雨宮 隆 横浜国立大学 教授 本藤 祐樹 横浜国立大学 教授 亀屋 隆志 横浜国立大学 准教授 小林 剛

## 論文及び審査結果の要旨

光化学スモッグは、オゾン（ $O_3$ ）を主成分とする光化学オキシダント（ $Ox$ ）の蓄積から発生する。そして  $O_3$  は、温室効果ガスとして気候変動にも関与する。このため、光化学スモッグと気候変動の両方の側面から、短期および長期の  $O_3$  削減が必要となる。 $Ox$  は、揮発性有機化合物（VOCs）と  $OH$  ラジカルとの光化学反応によって生成され、関東地方南部では、これまでの研究で、1,3,5-トリメチルベンゼンや  $m, p$ -キシレンなどの芳香族化合物や、エチレンやプロピレンなどのアルケンが光化学反応に大きく寄与していることが判明している。しかし、1,3,5-トリメチルベンゼンや  $m, p$ -キシレンなどの芳香族化合物は、PRTR の届け出対象となっている成分が多いため発生源を特定することが比較的容易であるのに対し、アルケンは PRTR 届け出対象となっている成分がほとんどなく発生源が不明で、排出対策がなされているかも不明である。そのため本研究は、アルケンの主要発生源を調べることを目的とし、アルケン発生源地域、及び発生源推定を行い、各主要発生源の光化学反応性を比較している。

博士論文の構成は以下の通りである。

第一章では、本研究の背景および目的を述べた。

第二章では、関東南部における高オキシダント濃度現象の分析のため、既存の常時監視データを用いた  $Ox$  高濃度解析を行い非メタン炭化水素（NMHC）が高濃度化しやすい測定局を抽出するとともに、Conditional Probability Function（CPF）解析を用いて VOC 主要発生源の予測を行い、調査地点の選定を行っている。 $Ox$ 、NMHC、 $NOx$  が高濃度化した時間数を算出した結果、 $Ox$  濃度の上昇は NMHC の蓄積及び濃度上昇に大きく寄与している可能性が高いことを示唆した。光化学スモッグ注意報発令日に NMHC が高濃度化する時間数をもっとも多い測定局は、本牧、大師、東糀谷、市原の 4 局であり、これらの 4 局における CPF 解析結果から、主要な NMHC 発生源は、本牧周辺、川崎市臨海部、市原臨海部に存在する可能性が高く、アルケンの影響が大きいと判断し、これらの地域から調査地点を選定することとした。

第三章では、主風向別のアルケン濃度割合を用いる方法の検討を行い、その妥当性を評価した上で、アルケンの発生源地域の推定をおこなった。発生源地域の推定手段として、少数の VOC データセットを使用して、総 VOC 濃度に対する VOC 濃度割合と卓越風向を組み合わせた方法の有効性を調べた。より具体的には、総 VOC 濃度に対する 16 風向別の VOC 濃度割合を、16 風向別の PRTR データベースによる距離加重排出量割合と比較した。東京湾岸地域の VOC 濃度は固定発生源の影響を受けるため、16 風向による VOC 濃度割合は、16 風向による固定発生源の排出率に比例すると予想され、解析結果はこれとほぼ同様の傾向を示した。サンプル数が少なくても一定の傾

向が見られたため、東京湾岸地域の VOC 濃度は地域の固定発生源と風向の影響を受けていること、さらには総 VOC 濃度に対する 16 の風向に応じた VOC 濃度割合を使用する方法で VOC 発生源地域の推定が可能であることを認めた。次いで、アルケンの発生源地域を推定するために、16 方位別アルケン濃度割合を用いてアルケン発生源地域の推定を行ったところ、各調査地点でアルケン濃度割合が最も高くなる方角は、1,3-ブタジエンの排出地域と一致した。アルケンは、1,3-ブタジエンと同じ発生源、もしくは同業種から排出されている可能性が高いことを示した。

第四章では、Positive Matrix Factorization (PMF) 解析を用いた発生源寄与解析を行い、アルケンの発生源推定を行った。PMF 解析によって得られた因子は、LPG + 産業、時間の経過した大気塊 (aged air masses)、燃料蒸発、石油化学工業、芳香族化合物、および溶剤使用の 6 因子であった。16 方位別のアルケン濃度割合と因子寄与率との比較により、アルケンの主要発生源は川崎市沿岸部に存在する石油化学工業である可能性が高く、石油化学工業からの排出を制御することにより、Ox 濃度を最大約 30% 削減できると推定した。また、川崎市沿岸部の石油化学コンビナート及び本牧周辺の製油所の OH ラジカル消失速度を算出、比較したところ、石油化学工業の OH ラジカル消失速度が製油所の 10 倍以上高いことが分かった。芳香族化合物の主要発生源も考慮すると、川崎市沿岸部の石油化学コンビナートは、川崎・横浜沿岸部における主要 VOC 発生源の OH ラジカル消失速度の約 67% を占めることを見いだした。

第五章では、研究の総括を行った。

本研究は、横浜から川崎にかけての東京湾岸地域におけるアルケンの主要発生源を推定し、光化学反応への寄与が大きい石油化学コンビナート及び製油所の光化学反応性を算出した初めての研究であり、今日なかなか改善しない光化学オキシダントの濃度レベルを効果的に低減するためには、石油化学産業によって放出されるアルケンのレベルを制御することが重要であることを示した点で評価できる。以上の点から、本論文は博士 (環境学) の学位論文として十分な内容を有すると審査委員全員が一致して認めた。

また公聴会等で提出論文関連分野に関する質疑に対して極めて的確な回答をしており、優れた専門的学力を有すると判定した。語学については、学位論文を英語で執筆していること、そして国際誌に投稿論文が受理されていることから、十分な能力を有すると認めた。以上より、最終試験に合格と判定した。

注 論文及び審査結果の要旨欄に不足が生じる場合には、同欄の様式に準じ裏面又は別紙によること。