

表 4-4 2002 年における日本の硫黄化合物総沈着量に対する月別発生源別寄与率の推計<sup>33)</sup>  
(%)

	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	年平均
中国北部	4	5	3	2	2	3	3	2	3	4	5	3	3.3
中国中央	24	28	21	14	16	13	17	9	9	21	23	17	17.7
中国南部	10	11	10	10	7	8	5	3	3	6	8	6	7.3
朝鮮半島	3	4	4	5	4	4	5	5	5	5	5	4	4.3
日本	38	36	47	57	64	61	61	73	75	55	38	45	54.2
その他	21	16	15	12	7	11	10	7	6	10	22	24	13.4

また、排出インベントリ REAS (4.2 参照) による 1980~2000 年排出量と 1995 年のソース・リセプターマトリックスを使って日本の  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  沈着量の寄与率の経年変化を推計した結果<sup>41)</sup>によると、1980 年には日本と中国の寄与率がほぼ同じ (35%) であったが、その後、中国の  $\text{SO}_2$  排出量が増加し日本の排出量は逆に減少したことに伴って、中国の寄与率は 1990 年には 43% に増加し、1992 年以降は 45~50% で推移している。

化学輸送モデル CMAQ と REAS を使用した 1995~2003 年の計算結果<sup>45)</sup>によると、モデルは日本における  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  月間湿性沈着量 (環境省酸性雨調査 18 地点の平均値) の経年・経月変動を良く再現し (図 4-14)、東アジアにおける  $\text{SO}_2$  排出量 (三宅島の影響を除く。) の増加によって 2000 年以降、沈着量が急増していることを示している (図 4-15)。このことは、 $\text{SO}_2$  排出量が中国では増加しているのに対して、日本や韓国では減少していることから、中国からの越境汚染の影響が増加していることを示唆する。

一方、日本の  $\text{NO}_3^-$  沈着量に対する越境汚染の寄与率は文献により  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  と同程度の幅で推定されているが、日本と中国における  $\text{NO}_x$  排出量の最近の動向 (4.2 参照) を考慮すると、沈着量が増加するとともに、越境汚染の寄与率が上昇している可能性が高い<sup>46)</sup>。

以上のことから、研究結果によって異なるものの、発表年が 2000 年以降のモデル計算によれば、我が国の酸性沈着量に対する近年の越境汚染の影響は、非海塩性硫酸イオン  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  が約 30~65% (うち中国が約 15~50%)、硝酸イオン  $\text{NO}_3^-$  が約 35~60% (うち中国が約 20~35%) と推計され、特に冬季の北日本において影響が大きいと考えられる。

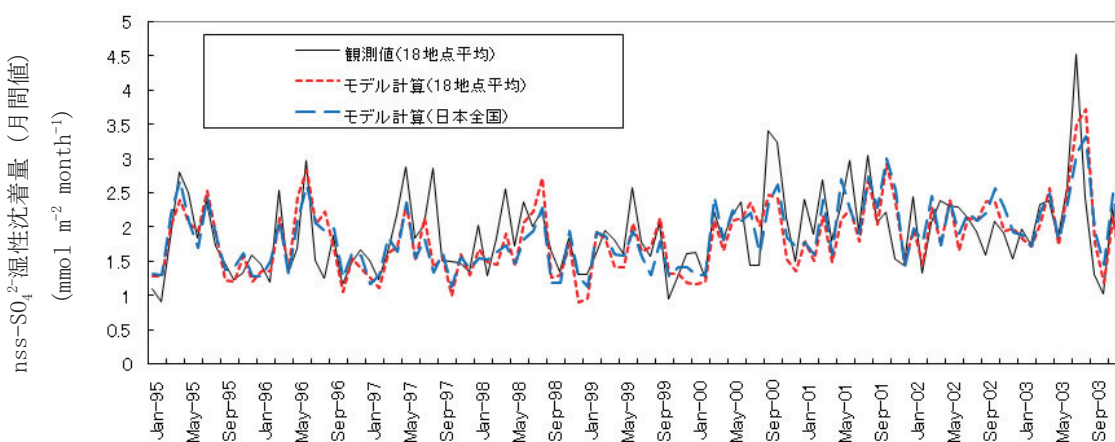


図 4-14 1995~2003 年の非海塩性  $\text{SO}_4^{2-}$  湿性沈着量 (月間値) の実測とモデルの比較<sup>45)</sup>

実線は環境省酸性雨調査による全国 18 地点で観測された平均値、赤点線は 18 地点におけるモデル計算結果の平均値、青破線は日本全域におけるモデル計算結果の平均値を示す。

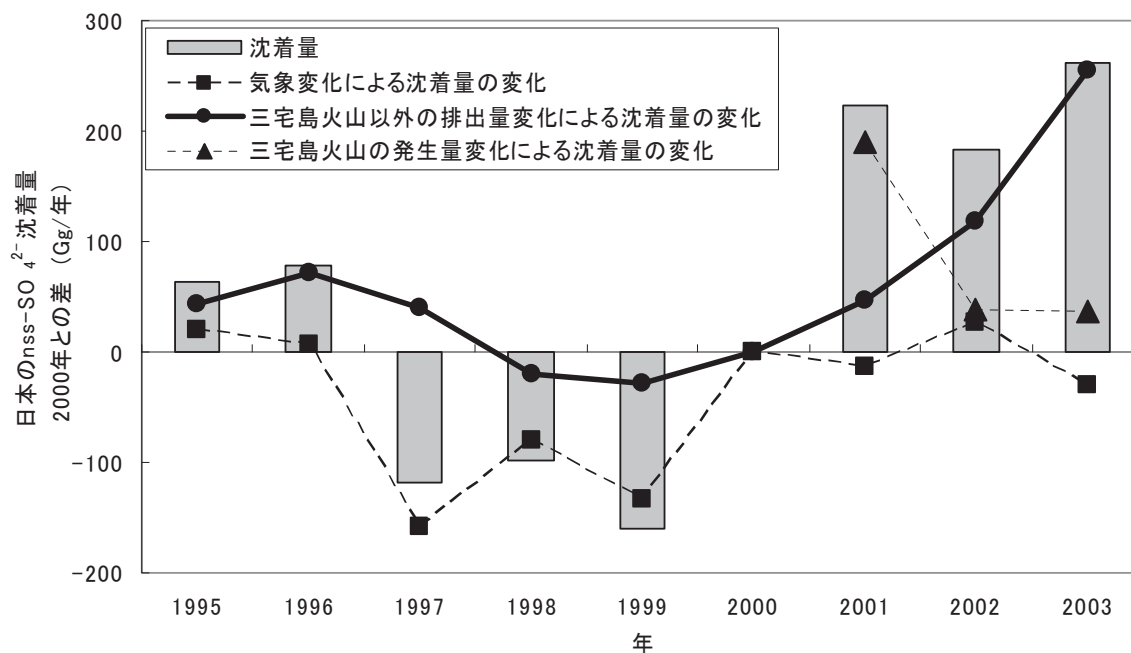


図 4-15 日本における非海塩性  $\text{SO}_4^{2-}$  沈着量の 1995～2003 年の変化の推計<sup>45)</sup>

図中の線はそれぞれ、気象変化による沈着量の変化（細い破線）、三宅島火山以外の  $\text{SO}_2$  排出量変化による沈着量の変化（太い実線）、三宅島火山の  $\text{SO}_2$  発生量変化による沈着量の変化（細い点線）を示す。

## ②硫黄同位体比<sup>2</sup>による越境汚染の影響評価

また、日本における硫黄同位体比 ( $\delta^{34}\text{S}$ ) の観測データをもとに、越境汚染の影響を評価した研究もある。新潟県内に湿性沈着した  $\text{SO}_4^{2-}$  及び  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の硫黄同位体比は、冬季に高く夏季に低くなる季節変動を示し、冬季に高くなる原因として、北東アジアの石炭燃焼起源の影響が大きくなるため ( $\text{SO}_4^{2-}$  に占める寄与率は約 20%) と考えられた<sup>47)</sup>。また、冬季に全国 19 地点で同様の解析を行った結果によると、 $\text{nss-SO}_4^{2-}$  の硫黄同位体比は北日本ほど高くなり、その値が東アジアで産出した石炭の値に近いことから、冬季に北日本に湿性沈着した  $\text{nss-SO}_4^{2-}$  は大陸からの長距離輸送による影響を受けていることが示唆された<sup>48)</sup>。

<sup>2</sup> 硫黄同位体比 ( $^{34}\text{S}/^{32}\text{S}$ ) は、起源の違いにより、異なった値を持つため、同位体比を比較することにより、環境中での硫黄の循環や発生源についての情報を得ることができる。 $\delta^{34}\text{S}$  は、標準物質との偏差の千分率を表し、単位は‰である。

#### 4.3.2 我が国への影響の将来予測

越境大気汚染の我が国への影響を予測するためには、各国の社会経済活動の将来動向を考慮した排出量予測値を入力データとして用いて、化学物質輸送モデルにより大気物質濃度の変動予測が重要である。海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター、国立環境研究所等による研究グループは、4.2 節で紹介されたアジア地域排出インベントリ REAS<sup>3), 13)</sup>と領域化学物質輸送モデル CMAQ<sup>49)</sup>を利用し、東アジアにおける大気汚染物質濃度の将来予測を進めてきた。

領域化学輸送モデルによる 2000-2020 年の対流圏オゾン濃度の増加予測量を図 4-16<sup>50)</sup>に示す。2020 年の REAS 排出量は、中国に対しては 3 種類の排出シナリオ : PSC (対策強化型)、REF (持続可能性追求型)、PFC (現状推移型) を採用し、他国に対しては国際エネルギー機関 (IEA) のエネルギー需要予測に基づく基準排出シナリオを採用している<sup>4)</sup>。中程度の排出シナリオ (REF) に従うと、我が国の対流圏オゾン濃度は、2000-2020 年の間に、年平均値が 0-4ppbv 増加すると予測された。排出量増加の少ないシナリオ (PSC) は、年平均値が 2ppbv 程度以下の増加を示した。最も排出量増加の多いシナリオ (PFC) に従うと、年平均値が 2-6ppbv、対流圏オゾン濃度の高くなる 6 月の月平均値が 2-14ppbv 増加すると予測された<sup>50)</sup>。特に本州中部のオゾンは、我が国自身の NO<sub>x</sub> の排出量が減少すると予測されるにも関わらず、夏季 (6~8 月) の 3 ヶ月平均で約 6ppbv 増加すると予測された<sup>51)</sup>。中国以外の国の将来排出量はシナリオ間に差がないことから、中国の排出量の将来変動が、将来、我が国の対流圏オゾン濃度に大いに影響することが予測される。さらに、REAS の将来排出量シナリオは 2000 年を基準年としており、2000 年以降の中国における排出量の急激な伸び<sup>4), 52)</sup>が十分に考慮されていないことに注意しなければならない。仮に、

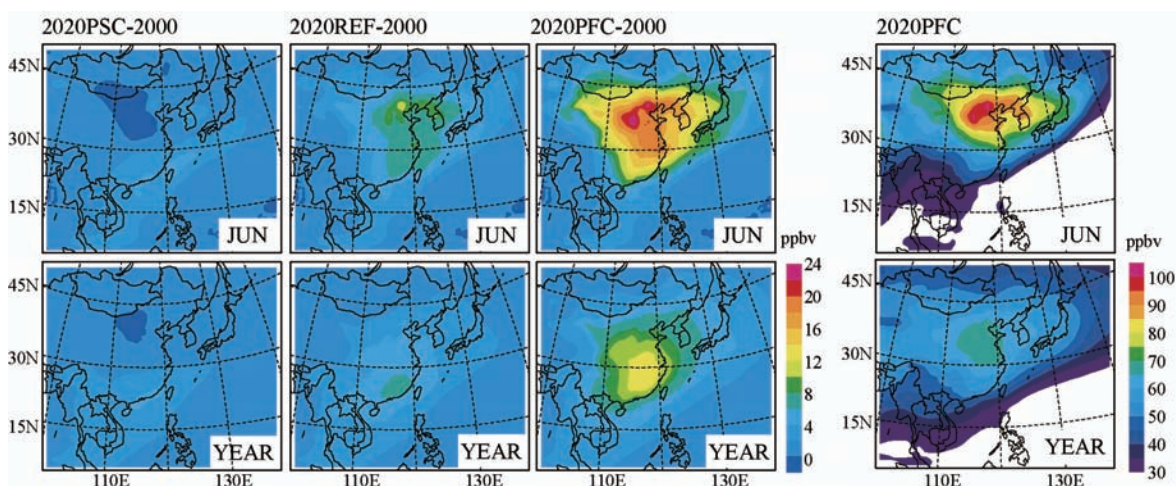


図 4-16 REAS(PSC, REF, PFC)を用いた対流圏オゾン濃度予測<sup>50)</sup>

2020PSC-2000: PSC による 2000-2020 年の間のオゾン濃度増加量、2020REF-2000: REF による 2000-2020 年の間の濃度増加量、2020PFC-2000: PFC による 2000-2020 年の間のオゾン濃度増加量 2020PFC: 2020 年のオゾン濃度(PFC)

急激な成長が今後も続き、PFCのシナリオが現実となれば、2020年には日本の対流圏オゾン濃度は、年平均値が45-60ppbv、6月の月平均値が50-75ppbvに達すると予測され(図4-16)、我が国のオゾン汚染が深刻なレベルに達することが懸念される<sup>53)</sup>。これらの結果は、将来の中国におけるNO<sub>x</sub>などの排出削減対策が、中国国内の環境保護のためばかりでなく、我が国の光化学汚染対策にとっても重要であることを示している<sup>51)</sup>。

また、IPCC第4次評価報告書作成に向けた中期将来予測実験が、26種類の全球大気化学輸送モデルによって行なわれた。この一連のモデル実験では、統一した3種類の排出シナリオ：CLE (current legislation)、MFR (maximum feasible reduction)、IPCC-A2が用いられた。各排出シナリオに従うと、2000-2030年の間に、東アジア(東南アジアを含む。)の地表オゾンの年平均濃度は、 $3.8 \pm 0.7$ ppbv (CLE) 及び  $7.7 \pm 1.8$ ppbv (A2) 増加すると予測され、MFRを用いたモデル実験のみがオゾン濃度の減少 ( $-3.6 \pm 0.5$ ppbv) を予測した<sup>54), 55)</sup>。さらに、これらのモデル実験に基づくと、我が国の窒素・硫黄の年間沈着量は、2000-2030年の間に、CLEに従うと微量変化 (NO<sub>y</sub>:  $-3.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、NH<sub>x</sub>:  $+47.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-18.5$ mg-S m<sup>-2</sup>)、MFRに従うと大幅に減少 (NO<sub>y</sub>:  $-249.8$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-404.3$ mg-S m<sup>-2</sup>)、A2に従うと大幅に増加 (NO<sub>y</sub>:  $+278.6$ mg-N m<sup>-2</sup>、NH<sub>x</sub>:  $+135.0$ mg-N m<sup>-2</sup>、SO<sub>x</sub>:  $-782.6$ mg-S m<sup>-2</sup>) するという予測結果が発表された<sup>56)</sup>。

これらの全球モデルでは、現状の再現実験でさえもモデル間に大きなばらつきがあり、同じ排出量シナリオを用いたとしても、大気汚染物質濃度の将来予測結果にはさらに大きな差が生じることに注意しなければならない。また、最新のモデル実験結果にも関わらず、2000年以降、特に東アジア域の排出量は予測値を超過する勢いであり、上述のモデル実験に利用された多くの排出シナリオが、この期間の排出量急増を考慮していない可能性があることにも留意しなければならない。しかしながら、これらのモデル実験結果に基づくと、排出抑制が今後著しく強化されない限り、東アジア域の大気環境が憂慮すべきレベルに達するものと予測され、我が国の越境大気汚染問題もますます深刻化する可能性があることが示唆された。

## 東アジア長距離輸送モデル比較研究（MICS-Asia）の概要

北半球の中でも東アジアは、越境大気汚染問題の深刻さに比べ、その理解に対する国際合意形成はほとんどなされていない状況にある。越境大気汚染の国際合意形成には、長距離輸送モデルによるシミュレーションが重要な役割を担うが、東アジア各国及び欧米の研究者によって開発されている東アジア規模での大気質や酸性雨を対象とした長距離輸送モデル間には、計算結果の有意な差が生じており、今後の国際的合意形成の妨げとなることが予想される。このような背景のもと、「東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究（MICS-Asia : Model Inter-Comparison Study in Asia）」が立ち上げられ、2003年から同プロジェクトのPhase 2として、硫黄化合物、窒素化合物及びオゾンなどを対象としたモデルの精度比較が進められている。

Phase 2 プロジェクトは酸性雨研究センターと国際応用システム分析研究所（オーストリア）との共同プロジェクトである。同プロジェクトでは、アジアや欧米から20もの研究機関が参加しており、それぞれが開発を進めている発生源インベントリーや長距離輸送モデルの比較が進められてきた。各モデルによる計算結果は、提供されたデータ・プロトコルに従って報告され、最終的に8つのモデルを対象とした比較研究が実施された。計算対象期間は2001年3月、7月、12月と2002年3月の4ヶ月であり、黄砂の飛来や北東アジアにおける高濃度オゾンの出現、夏季・冬季における大気汚染物質の挙動等をターゲットとしている。また、モデル結果の検証には「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）」の公開データが活用されている。

MICS-Asia Phase 2の成果は、プロジェクトの参加者によって8本の論文にとりまとめられ、国際誌「Atmospheric Environment」から特別論文集として出版されている。また、2008年からは同プロジェクトのPhase 3が稼動しており、Phase 2で扱えなかった「東アジア地域における発生源寄与率」の解析や、「北半球モデルとの比較検討」、「東アジアのメガシティの解析」、「大気汚染と気象の関係」、「新規エミッションインベントリーの開発」などが進められている。

参考資料：MICS-Asia Phase 2 ウェブサイト

(<http://www.adorc.gr.jp/adorc/mics.html>)

## 4.4 大陸間輸送と半球汚染

### 4.4.1 半球輸送タスクフォース (CLRTAP/TF-HTAP)

大気汚染物質の大陸間輸送に関する科学的関心は 1990 年代の後半に高まり、1990 年代の末頃から多くの研究成果が発表されるようになってきた<sup>57)</sup>。大陸間輸送としてはアジア大陸からの黄砂が太平洋を越えて北米に達する現象が比較的初期に着目されている<sup>58), 59), 60), 61), 62)</sup>。また、同時に米国では、アジアに起因するオゾンが米国の環境基準の達成に無視し得ない影響を及ぼすとの議論がなされるようになり<sup>63), 64), 65), 66)</sup>、これに平行して、ヨーロッパでは大西洋を渡る北米からのオゾンの影響が議論されるようになった<sup>67), 68), 69), 70)</sup>。一方、ヨーロッパからユーラシア大陸をまたいでアジアへ到達するオゾンの大陸間輸送の研究により、ヨーロッパのみならず北米からの影響もこれに匹敵するくらい大きく、ヨーロッパと北米からのオゾンは合わせて、日本の環境基準値(60ppb)に比べて無視し得ない影響があることが分かってきた<sup>71), 72), 73)</sup>。このように北半球では、それぞれの大陸からの大気汚染物質の影響が巡り巡ってお互いに影響し合っていることが明らかになり、ここに「半球輸送、半球汚染」という概念が生まれてきている。

こうした科学的研究成果を受けて 2004 年に米国と EC の主導により長距離越境大気汚染条約 (CLRTAP) の下に「大気汚染の半球輸送に関するタスクフォース (TF-HTAP)」が正式に発足し、US/EPA と UN/ECE とに事務局が置かれた。タスクフォースは、大気汚染物質の北半球輸送を理解するために必要な技術的問題を扱うとされ、政策立案に必要な科学的サポートを得て、最終的に条約の議定書に反映させることを目的としている。半球輸送の対象物質としては現在オゾン、エアロゾルの他に水銀と残留性有機汚染物質 (POPs) が扱われている。タスクフォースは条約加盟国の専門家から構成されているが、北半球の条約非加盟国の専門家を招くことが推奨されている。これまで、年に 1 回のタスクフォース会合と一連のワークショップが開催されており、我が国を初めとするアジア諸国からも研究者、行政官が参加している。また、大気汚染物質の排出をテーマにした 2006 年のワークショップは条約加盟国以外の中国・北京で開催された。TF-HTAP では 2007 年に中間報告書を取りまとめており、最終報告書を 2009 年にとりまとめることになっている。

ここではこの中間報告書に取り上げられている文献レビューの一部を紹介する。表 4-5 は地表オゾンに対しヨーロッパ及び米国を受容 (リセプター) 領域とみたとき、発生源 (ソース) 領域である北米、アジア、ヨーロッパからの影響による増加分がどれだけになるかのモデル計算結果をまとめたものである。例えばヨーロッパに対する北米からの影響は、年平均値では 2-4ppb、イベント的には 10-15ppb、アジアからの影響は年平均で 0.8-数 ppb と報告されている。また、アジアから米国への影響も年平均では 1-4ppb であるが、イベント的には 3-10ppb、場合によっては 30ppb に達するという報告もある。ここにはヨーロッパ、北米からアジアへの影響は掲げられていないが、それぞれ年平均では 2-3ppb 程度である<sup>72), 73)</sup>。このように、大陸間輸送の影響は年平均、季節平均では一般に 1-5ppb 程度であるが、季節的には晩春に最も大きくなることで、これまでの研究の結果は一致している。大西洋をわたる距離が太平洋、ユーラシア大陸に比べて相対的に短いことから、大陸間輸送は北米からヨーロッパへの影響が最も大きい。

表 4-5 北半球中緯度の大陸間輸送に関する既存文献による、それぞれのリセプター領域に対するソース領域からの影響による地表オゾンの増加の計算結果

リセプター領域	ソース領域	オゾン濃度の増加	方法	文献
欧州	米国	2	a)	Wild and Akimoto(2001)
欧州	北米	2-4	b)	Auvray and Bey(2005)
欧州	北米	5.8-12.2	c)	Derwent et al.(2004)
欧州	北米	3-5(夏平均); 5-10(イベント)	b)	Guerova et al.(2006)
欧州(夏)	北米	2-4(昼平均); 5-10(イベント)	b)	Liu et al.(2002)
欧州(年平均)	北米	18(大西洋沿岸); 10-15(欧州中部)	c)	Derwent et al.(2002)
欧州(高々度)	北米	10-12(イベント)	d)	Huntrieser et al.(1998)
Mace Head(アイルランド)	北米	0.4(冬);0.2(春); -0.3(夏);-0.9(秋)	e)	Derwent et al.(1998)
欧州	アジア	0.8	a)	Wild and Akimoto(2001)
欧州	アジア	9(大西洋沿岸); 5-7(欧州中部)	c)	Derwent et al.(2002)
欧州	アジア	3.5-6.6	c)	Derwent et al.(2004)
欧州	アジア	1.5-4	b)	Auvray and Bey(2005)
米国	アジア	1	a)	Wild and Akimoto(2001)
米国北西部(春)	アジア	4(平均); 7.5(最大)	b)	Berntsen et al.(1999)
米国北西部(春)	アジア	4	f)	Jaegle et al.(2003)
米国西部(春)	アジア	3-10(平均、アジア汚染 イベント)	g)	Yienger et al.(2000)
米国	アジア(将来)	2-6(米国西部); 1-3(米国東部); 最大4-6月	h)	Jacob et al.(1999)
米国西部(春)	アジア(将来)	30-40(最大、アジア汚染 イベント)	i)	Yienger et al.(2000)
米国	欧州	0.9	a)	Wild and Akimoto(2001)
米国(夏)	アジア+欧州	4-7(午後の代表レン ジ); 14(最大)	b)	Fiore et al.(2002a;2002b)
米国	バックグランド(1980-1998)	3-5(春、秋)	j)	Lin et al.(2000)
米国(2001年3-10月)	バックグランド(半球汚染)	4-12(午後の平均の代 表レンジ)	k)	Fiore et al.(2003)
米国(夏)	バックグランド(人為メタン)	6(午後平均)	l)	Fiore et al.(2002a;2002b)
米国西海岸	バックグランド(1984-2002)	10	m)	Jaffe et al.(2003)
アジア	欧州	1.1	a)	Wild and Akimoto(2001)
東アジア(春)	欧州	3(昼平均)	b)	Liu et al.(2002)
日本	欧州	0.2-2.5	b)	Wild et al.(2004a)
東シベリア	欧州	2(年間); 3(春-夏)	n)	Pochanart et al.(2003)
アジア	米国	0.8	a)	Wild and Akimoto(2001)

- a)ソース領域からの排出が10%増加した場合のSensitivity Simulationによる年平均の増加; 結果はソース領域からの人為的発生量の全体効果を見積もるために10倍されている。  
b)人為的排出量をゼロとしたSensitivity Simulation(メタン排出量は含まない)  
c)ソース領域の対流圏で生成されたオゾン  
d)北米ブルームでの発生源と月平均値の測定値の比較  
e)北米、カナダとアイスランド、グリーンランドからのエアマス中の1990-1994年の平均オゾン濃度の比較  
f)Cheeka Peek観測点での標識化されたオキシダントトレーサシミュレーション  
g)全ての発生源排出量をゼロとしたSensitivity Simulation  
h)3倍したアジアでのNO<sub>x</sub>とNMVOCs排出量でのSensitivity Simulation  
i)標識化されたCOトレーサとパラメータ化したオゾン化学; アジアでの排出量を4倍としたシナリオ  
j)ルーラルサイトでのオゾンの頻度分布の低四分位の測定値のトレンド  
k)4倍したアジアでの排出量でのSensitivity Simulation  
l)メタンの人為起源の排出量がグローバルで50%減少した場合のSensitivity Simulation; 結果は人為的メタンからの全体の増加を見積もるために2倍されている。  
m)地表及び飛行機からの排出からの測定値のトレンド(1984-2002)  
n)欧州とシベリア、高緯度地域からのエアマス中の実測オゾン濃度の中央値の比較

#### 4.4.2 大陸間輸送モデルによる解析

オゾン、一酸化炭素、エアロゾルなど数日から1ヶ月以上の大気寿命を持つ大気汚染物質濃度の季節変動・トレンドなどに対する大陸間長距離輸送・変質過程の研究は、上に述べたように1990年末頃から研究結果が発表されるようになってきた。図4-17には、全球三次元化学輸送モデルによって明らかにされた、対流圏オゾンのヨーロッパからアジアへの trans-Eurasia、アジアから北米への trans-Pacific、北米からヨーロッパへの trans-Atlantic 大陸間輸送の特質を示している<sup>72)</sup>。同図は各大陸からの人為起源のNO<sub>x</sub>、VOC、COの排出量を10%増加させたときに増加するオゾンがどのように半球規模で輸送されるかを示したものである。図にみられるようにアジアで生成するオゾンは活発な鉛直輸送によって上部対流圏に効率的に運ばれ、その影響は半球スケールに広がる。これに対し、ヨーロッパで生成されたオゾンは鉛直輸送が活発でないため、増加したオゾンは対流圏の中部・下部に留まり、アジアへの大陸間輸送も対流圏の比較的下層で起こっている。北米で生成したオゾンはこれらのほぼ中間のケースとなっている。この差は主として、それぞれの大陸の主要大気汚染地域の緯度の差に起因しており、アジアの場合比較的緯度が低いため鉛直輸送が活発に起こり、北米、ヨーロッパと緯度が高くなるにつれて対流圏下層に留まる傾向がみられる。

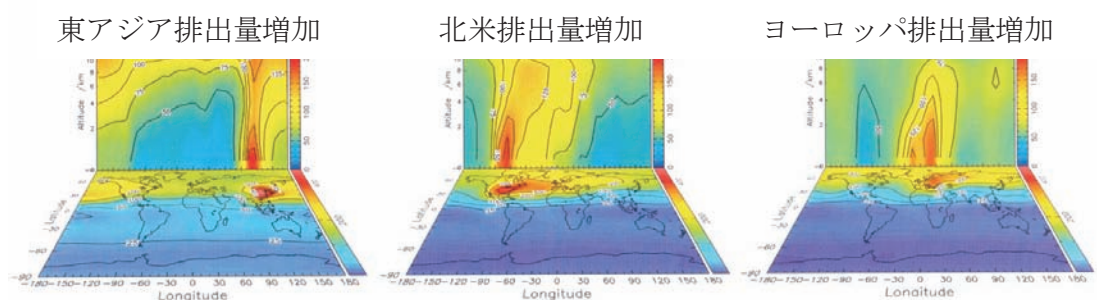


図4-17 各大陸からの人為汚染物質の排出量をそれぞれ10%増加させたときに増加するオゾンの大陸間輸送・変質<sup>72)</sup>

この結果に基づいて、特にヨーロッパ及び北米から我が国の八方尾根に対する、オゾンとCOの影響を高度別・月別に調べた結果を図4-18に示す<sup>73)</sup>。COに対するヨーロッパの影響は2～3月に境界層内部で最大となり、予想されるようにヨーロッパからの影響が北米よりも大きい。これに対してオゾンについては、ヨーロッパ、北米ともその影響は中部対流圏の春季4、5月に最大となり、両者の影響は同程度である。地表付近に関してはヨーロッパからの影響は3、4月、北米からの影響は2、3月に最大となっており、北米からの影響がヨーロッパからの影響と同程度（月平均値で2-3ppb）であることが分かった。遙かに遠い北米からの影響がヨーロッパからの影響と同程度である理由としては、上にみたように北米で生成