

## 光化学オキシダント及び対流圏オゾンに係る主な知見の整理

1. 光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況
  - 1.1 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況
    - 1.1.1 我が国における監視測定体制
    - 1.1.2 全国の状況
    - 1.1.3 遠隔地域における状況
  - 1.2 オゾン濃度の状況
    - 1.2.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制
    - 1.2.2 東アジアの状況
    - 1.2.3 半球規模での状況
2. 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の特徴
  - 2.1 概論
  - 2.2 最近の越境汚染の事例
  - 2.3 都市域（関東・関西）における汚染の特徴
3. 光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因（既存知見の整理）
  - 3.1 東アジア等から排出される大気汚染物質との関係
  - 3.2 光化学オキシダントの前駆物質（NO<sub>x</sub>及びVOC）の濃度変化との関係
  - 3.3 気象状況の変化との関係
  - 3.4 ヒートアイランド現象との関係
  - 3.5 成層圏オゾン降下との関係

「検討会において検討すべき事項（案）」（第1回検討会の資料4）との対応表

検討会において検討すべき事項（案）	整理項目
(1) 我が国における光化学オキシダント(Ox)の 状況(地域、季節による特性、経年的推移)	1.1.2 全国の状況
(2) 対流圏オゾンの状況 (地域、季節による特性、経年的推移)	1.1.3 遠隔地域における状況
	1.2.2 東アジアの状況 1.2.3 半球規模での状況
(3) Oxの高濃度状態の出現特性 (高濃度イベントの出現特性)	2.1 概論 2.2 最近の越境汚染の事例 2.3 都市域(関東・関西)における汚染の特徴
(4) Oxの濃度レベルの変化に関わる要因 ( 増加要因及びその寄与の程度) ( 減少要因及びその寄与の程度)	3.1 東アジア等から排出される大気汚染 物質との関係 3.2 光化学オキシダントの前駆物質 (NOx及びVOC)の濃度変化との 関係 3.3 気象状況の変化との関係 3.4 ヒートアイランド現象との関係 3.5 成層圏オゾン降下との関係
(5) Oxの予測モデル (Oxの予測モデルの開発状況と課題)	(今後の課題)
(6) 広域的な観点からのOx(オゾン)の監視のあ り方	1.1.1 我が国における監視測定体制 1.2.1 東アジア及び半球規模での監視 測定体制 (今後の課題)
(7) Ox(オゾン)の動態の解明等に当たってさら に必要な調査研究等の課題	(今後の課題)

## 1. 光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況

### 1.1 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況

#### 1.1.1 我が国における監視測定体制

##### 論点

測定局数

測定方法

トレ - サビリティ

較正

##### 収集・整理した知見

###### 【測定局数】

- ・ 昭和45年に関東地方で光化学スモッグによるものと思われる被害が発生して以来、光化学オキシダントの測定体制は、全国的に整備されてきている。平成17年度末現在、大気汚染防止法に基づく常時監視の測定として、一般局で全国616市町村に1157測定局、自排局で25市町村に27測定局が設置されている<sup>(1)</sup>。
- ・ 日本の遠隔地域におけるオゾンの測定体制としては、国設酸性雨測定所9地点（利尻・竜飛岬・佐渡関岬・八方尾根・隠岐・梶原・対馬・小笠原・辺戸岬）があり、その他、気象庁における3地点（綾里、南鳥島、与那国島）での観測、国立環境研究所における落石岬での観測が行われている。

###### 【測定方法】

- ・ 光化学オキシダントの測定方法は、大気汚染に係る環境基準についての告示の中で、「中性ヨウ化カリウム溶液を用いる吸光光度法若しくは電量法、紫外線吸収法又はエチレンを用いる化学発光法」により測定するとしている<sup>(2)</sup>。
- ・ 我が国における光化学オキシダントの常時監視は、吸光光度法自動測定機（湿式）：10%中性ヨウ化カリウム溶液法〔～1977年〕、2%中性ヨウ化カリウム溶液法+動的校正〔1978～1983年〕、2%中性ヨウ化カリウム溶液法+動的校正+自動洗浄機能の付加〔1984～1996年の間に徐々に〕を経て、現在は、紫外線吸収法自動測定機（乾式）：UV法〔1996年～徐々に〕へと変遷してきている。からへの変更は、少なくとも1990年度以降の光化学オキシダント濃度の上昇に関しては、自動洗浄機能の影響は考えられない。からへの変更については、切り替え後は切り替え前に比べ、測定値が若干大きめに測定される傾向がみられたが、その程度は小さいことから、湿式法から乾式法への測定法切り替えは、首都圏で観測されている近年のオキシダント濃度上昇の主原因ではないものと考えられる<sup>(3)</sup>。
- ・ 全国及び関東近県におけるオゾン計（紫外線吸収法）導入率の経年変化を見ると、1997年度以降、年々増加しており、2004年度では関東近県では78%となっており、

全国平均では 58%となっている。全国的に見ても導入率に偏りが見られる<sup>(4)</sup>。

#### 【トレーサビリティ】

- ・ 大気中のオゾン濃度の増加率はせいぜい年率数パーセントであり、高精度な検出と早期の対策には高精度標準に基づく国内・国際的な観測網のネットワーキングが不可欠であるが、日本においては大気中濃度の測定自体は研究観測ならびに現業観測で行われているものの、オゾンの国家標準とそれをを用いたトレーサビリティシステムが存在しない<sup>(5,6)</sup>。

#### 【較正】

- ・ JIS ではオゾン（オキシダント）計の較正方法として、中性ヨウ化カリウムによる方法、気相滴定法による方法、紫外線吸光光度計による方法が規定されている<sup>(7)</sup>。
- ・ 2007 年に環境省では「オキシダント自動計測器の較正に関する実態調査」で全国の自治体の基準器の所有や管理状況、較正方法等の調査を行っている（現在取りまとめ中）。45 都道府県からの回答では、基準器の較正方法は中性ヨウ化カリウムによる方法が過半数、紫外線吸光光度計による方法が 1/3 程度となっている<sup>(8)</sup>。
- ・ 国内のいくつかの研究機関が有する基準と米国標準技術研究所の標準参照光度計との相互比較実験を行った結果、用いる基準や手法によって数パーセントの差が生じる可能性が示された<sup>(5)</sup>。

### 1.1.1 主な知見

#### 【測定局数】

- ・ 平成 17 年度末現在、大気汚染防止法に基づく常時監視の測定として、一般局で全国 616 市町村に 1157 測定局、自排局で 25 市町村に 27 測定局においてオキシダントの自動測定機が設置されている。
- ・ 日本の遠隔地域におけるオゾンの測定体制としては、国設酸性雨測定所で 9 地点があり、その他、気象庁における 3 地点（綾里、南鳥島、与那国島）での観測、国立環境研究所における落石岬での観測が行われている。

#### 【測定方法】

- ・ 紫外線吸収法によるオゾン計導入率の状況を見ると、2004 年度には全国平均で 58%となっており、導入地域は全国的に偏りが見られる。
- ・ 東京都の報告では、吸光光度法から紫外線吸収法への切り替えによる測定値の差は小さいことから、測定法の切り替えは、首都圏で観測されている近年の光化学オキシダント濃度上昇の主原因ではないものと考えられる。

#### 【トレーサビリティ】

- ・ 光化学オキシダントの観測は、環境基準の告示や J I S 等に基づき測定方法、較正方法等が定められているが、今後の対策検討のためには高精度標準に基づく国内・国際的な観測網のネットワークが不可欠であり、日本においては国家標準とそれを用いたトレーサビリティシステムが必要である。

#### 【較正】

- ・ 谷本らの報告によると、現在の日本における基準器の較正は、中性ヨウ化カリウムによる方法が過半数、紫外線吸光光度計による方法が 1/3 程度となっており、用いる基準や手法によって測定結果に数パーセントの差が生じる可能性があるとしている。

#### < 1 . 1 . 1 の参考文献 >

- (1) 環境省;平成 17 年度 大気汚染状況報告書,2006
- (2) 大気の汚染に係る環境基準について 昭和 48 年 5 月 8 日環境庁告示 25 号
- (3) 東京都;光化学オキシダント対策検討会報告書,2005
- (4) 阿相敏明;増える光化学オキシダント注意報 - 1970 年からの遷移と今後の課題, 資源環境対策,42,45-52,2006
- (5) 谷本浩志, 向井人史;日本におけるオゾン標準とトレーサビリティシステムの構築, 大気環境学会誌, 41,123-134,2006
- (6) 谷本浩志, 向井人史;日本におけるオゾン観測の現状と課題及び展望, 資源環境対策,43,42-48,2007
- (7) 日本規格協会;JIS ハンドブック 2007 52 環境測定 大気・騒音・振動
- (8) 向井人史,橋本茂,谷本浩志;大気中のオゾンやその他の温室効果ガスモニタリングのための標準濃度スケールについて,第 48 回大気環境学会年会講演要旨集,2007

## 1.1.2 全国の状況

### 論点

環境基準の達成状況及び注意報等発令状況  
全国的な光化学オキシダント濃度の経年変動  
地域別の光化学オキシダント濃度の経年変動  
光化学オキシダント濃度の季節変動

### 収集・整理した知見

#### 【環境基準の達成状況及び注意報等発令状況】

- ・ 一般局でのOxの環境基準達成率0.3%、自排局で0%と低い水準である<sup>(1)</sup>。
- ・ 注意報等発令延日数の推移を見ると、気象等の影響を受けるため、年による変動が大きい。発令延日数は昭和48年の328日をピークに昭和50年代にかけて減少し、近年は200日程度で推移している<sup>(2)</sup>。
- ・ 平成16年度～平成18年度の光化学オキシダント注意報等の月別発令延日数を見ると、日本全体では、平成16年度は7月に最も多く発令され88日、平成17年度は7月に最も多く発令され68日、平成18年度は8月に最も多く発令され91日であった。その他に多く発令された月も6月～9月に集中しており、日本の都市及び都市近郊で注意報が発令されるレベルの高濃度が観測されるのは、光化学反応が活発に行われる夏季に集中している<sup>(2)</sup>。

#### 【全国的な光化学オキシダント濃度の経年変動】

- ・ 全国の昼間の日最高1時間値の経年変動は、昭和51～55年度にかけて減少し、その後しばらくは横ばいであったが、近年は漸増傾向である<sup>(1)</sup>。
- ・ 全国の測定局において、光化学オキシダント濃度60ppb超過時間数を有効測定時間数で除し、60ppb超過時間比率を集計した結果では、測定局数が最大となる超過時間比率は、1980年代は2%未満が最頻階級であったが、その後、年度の経過に伴い時間比率の最頻階級は2%以上にシフトし、2004年度では7～8%が最頻階級となっている<sup>(3)</sup>。
- ・ 全国の41都道府県のデータによる1985年度から2004年度における光化学オキシダント年平均濃度の経年変化を見ると、全日、昼間、夜間に係わらず、ほぼ単調に上昇している。その上昇率は20年間で約5ppbである<sup>(4)</sup>。
- ・ 1985～1999年度の15年間において、測定局別に光化学オキシダント濃度をトレンド解析し、その年変化率(ppb/年)の全国分布図を見ると、光化学オキシダント年変化率が正となっている測定局が圧倒的に多く、光化学オキシダントは全国的に増加傾向にあるといえる<sup>(5)</sup>。
- ・ 上記の期間において、年変化率の頻度分布を見ると、全測定局のうち年変化率が正

の測定局は全体の 82% であり、年変化率の算術平均値は 0.33ppb/年(年率 1.2%)、最高値は 1.56ppb/年(年率 6.0%)、最低値は-0.42ppb/年(年率-1.4%)である<sup>(5)</sup>。

- ・ 日本のオゾンゾンデによる境界層オゾンの濃度の状況を見ると、1970～80年代のほぼ 10 年間に全ての地点(鹿児島、つくば、札幌)で地表付近のオゾンが平均的に見て約 8ppb 増加している。オゾンの増加は境界層内で最も大きく、上空に行くにしたがって小さくなっている。このことは対流圏オゾン増加の原因が地表からの人為起源汚染物質の排出量の増加によるものであることを強く示唆している<sup>(7)</sup>。

#### 【地域別の光化学オキシダント濃度の経年変動】

- ・ 日本全国を地勢、都道府県区分および測定局分布を考慮して 8 地域に区分した場合の地域別光化学オキシダント平均濃度の経年変動を見ると、中国地域を除いた 15 年間(1985～1999 年度)の濃度上昇が明らかである。地域別には四国と九州における増加が大きい。一方で、関東や関西の内陸域及び瀬戸内海地域においては年変化率が負となっている測定局も存在する<sup>(5)</sup>。

#### 【光化学オキシダント濃度の季節変動】

- ・ 全国の光化学オキシダント濃度の季節変動を、「春型(春の一山型)」、「春+夏型(春に引き続き夏も高濃度の時間が出現)」、「春+夏+秋型(春から秋まで高濃度の時間が出現)」、「春+秋型(春と秋の二山型)」の 4 パターンに分類すると、関東及び中部では多くの地点が「春+夏型」を示したのに対し、関西では「春+夏+秋型」がほとんどを占めた。また、「春+秋型」は関西以西を中心に広く観測されており、経年変化を見ると西日本では「秋型」の割合が増加していることから、大陸影響が経年的に増加していることが示唆される<sup>(4,6)</sup>。
- ・ 1985～1987 年度、1997～1999 年度における全国平均の光化学オキシダント月平均濃度の経月変動を比較すると、梅雨期にあたる 6 月を除く暖候期(3～8 月)に濃度の上昇傾向がやや大きくなっている<sup>(4)</sup>。

### 1.1.2 主な知見

#### 【環境基準の達成状況及び注意報等発令状況】

- ・ 光化学オキシダントの環境基準の達成状況は低い水準で推移しており、注意報等発令延日数は近年 200 日程度で推移している。
- ・ 平成 16～18 年度の光化学オキシダント注意報等の月別発令延日数を見ると、6 月～9 月に集中しており、日本の都市及び都市近郊で注意報レベルの高濃度が観測されるのは、光化学反応が活発に行われる夏季に集中している。

#### 【全国的な光化学オキシダント濃度の経年変動】

- ・ 全国的に昼夜を問わず、光化学オキシダント濃度は経年的に増加傾向であり、20年間で約5ppb上昇している。年変化率の全測定局の平均は0.33ppb/年である。鹿児島、つくば、札幌におけるオゾンゾンデによる境界層オゾンの濃度の状況では、1970～80年代のほぼ10年間におけるオゾンの増加は境界層内で最も大きく、上空に行くにしたがって小さくなっており、このことは対流圏オゾン増加の原因が地表からの人為起源汚染物質の排出量の増加によるものであることを強く示唆している。

#### 【地域別の光化学オキシダント濃度の経年変動】

- ・ 地域別に15年間の経年変動を見ると、四国と九州における増加が大きい。

#### 【光化学オキシダント濃度の季節変動】

- ・ 全国の光化学オキシダント濃度の季節変動を、「春型（春の一山型）」「春+夏型（春に引き続き夏も高濃度の時間が出現）」「春+夏+秋型（春から秋まで高濃度の時間が出現）」「春+秋型（春と秋の二山型）」の4パターンに分類すると、関東及び中部では多くの地点が「春+夏型」を示したのに対し、関西では「春+夏+秋型」がほとんどを占めた。また、「春+秋型」は関西以西を中心に広く観測されている。
- ・ 経年変化を見ると、西日本では秋に濃度が高くなる「秋型」の割合が増加していることから、大陸影響が経年的に増加していることが示唆される。一方で、全国的には6月を除く暖候期（3～8月）に濃度の増加傾向がやや大きい。

#### < 1 . 1 . 2 の参考文献 >

- (1) 環境省,平成 17 年度大気汚染状況について
- (2) 環境省; 光化学大気汚染の概要 - 緊急時発令状況、被害届出状況 -  
<http://www.env.go.jp/air/osen/photochemi.html>
- (3) 早崎将光; 0x および SPM の環境基準非達成状況の過去・現在 - 常時監視局 1 時間値から得られる情報 - ,第 48 回大気環境学会年会講演要旨集,2007
- (4) 大原利真編; 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究,国立環境研究所研究報告第 195 号 ( R -195-2007 )
- (5) 大原利真,坂田智之; 光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析,大気環境学会誌,

38, 47-54, 2003

- (6) 大原利真；光化学オキシダントと浮遊粒子状物質の全国的・地域的特性, 第 48 回大気環境学会  
年会講演要旨集, 2007
- (7) 秋元肇；東アジアオゾン汚染の日本への影響, 資源環境対策, 39, 90-96, 2003
- (8) 酸性雨研究センター；増えつづける対流圏オゾンの脅威, 2005

### 1.1.3 遠隔地域における状況

#### 論点

我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経年変動

我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の季節変動

遠隔地域で観測される高濃度

#### 収集・整理した知見

##### 【我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経年変動】

- ・ 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の 1998～2005 年度の経年変動を見ると、北方（利尻・竜飛岬）及び日本海側（佐渡関岬・隠岐・対馬）の地点は、横ばい～緩やかな増加傾向にある<sup>(1)</sup>。
- ・ 高山（標高 1,850m）である八方尾根では、緩やかな増加傾向にある<sup>(1)</sup>。
- ・ 太平洋側の地点である檜原では、近年、顕著な増加傾向にある<sup>(1)</sup>。
- ・ 太平洋上の地点（小笠原・辺戸岬）では、小笠原が近年増加傾向にあるのに対し、辺戸岬は減少傾向にある<sup>(1)</sup>。

##### 【我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の季節変動】

- ・ 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の月変動を見ると、全体的な傾向として、春季に濃度が高くなり、夏季に濃度が低くなっている<sup>(1)</sup>。
- ・ 低緯度に位置する辺戸と小笠原では、春季の濃度上昇は小さく、一方で夏季の濃度下降が顕著であったが、これは、低緯度では大陸からの輸送現象が顕著でないこと、また、夏季には太平洋高気圧による海洋性の比較的清浄な気団の流入が顕著であることが要因として挙げられる<sup>(2)</sup>。

##### 【遠隔地域で観測される高濃度】

- ・ 隠岐における 1995 年 5 月のオゾンの 1 時間平均濃度変動を見ると、ほとんどが 50ppb 以上であり、60ppb を超える時が度々ある。また、夜間低くなる日変化が見られず、夜間も昼間の濃度がそのまま維持されている<sup>(3)</sup>。

### 1.1.3 主な知見

#### 【我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経年変動】

- ・ 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経年変動の推移（1998～2005年度）を見ると、全体的には増加傾向であるが、辺戸岬のように減少傾向の地点もある。

#### 【我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の季節変動】

- ・ 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の月変動を見ると、全体的な傾向として、春季に濃度が高くなり、夏季に濃度が低くなっており、北半球の中高緯度の遠隔地域と同様の傾向を示している。
- ・ 低緯度の遠隔地域では、春季の濃度上昇は小さく、一方で夏季の濃度下降が顕著であったが、これは、低緯度では大陸からの輸送現象が顕著でないこと、また、夏季には太平洋高気圧による海洋性の比較的清浄な気団の流入が顕著であることが要因として挙げられる。

#### 【遠隔地域で観測される高濃度】

- ・ 隠岐で見られるように、日本に流入するバックグラウンドオゾンが既に環境基準(60ppb)を超えている時が見られる。

#### < 1.1.3の参考文献 >

- (1) 第1回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料,対流圏オゾンの状況,2007
- (2) 桜井達也, 仲山伸次; 東アジア地域のリモートサイトにおける大気濃度モニタリングの結果概要,第48回大気環境学会年会講演要旨集,2007
- (3) 秋元肇; 東アジアオゾン汚染の日本への影響,資源環境対策,39,90-96,2003

## 1.2 オゾン濃度の状況

### 1.2.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制

#### 論点

東アジア及び半球規模での広域的な観測体制

国際的な協力体制

衛星観測、航空機観測の現状

#### 収集・整理した知見

##### 【東アジア及び半球規模での広域的な観測体制】

- ・ 東アジアでは、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）の枠組みで日本、韓国、タイ、ロシアがオゾン測定している。その他、海洋研究開発機構における中国、ロシアでの観測などがある。アジアにはヨーロッパの欧州モニタリング評価プログラム（EMEP）に相当する対流圏大気化学観測の包括的地上ネットワークが存在せず、現状では組織的な研究観測体制の整備が不十分といえる。今後、アジア諸国との協力の下で、観測拠点の強化を通して観測網の整備をさらに進めることが望まれる<sup>(1,2,3)</sup>。
- ・ 必要に応じて、台湾、ヨーロッパなどで特筆すべきモニタリング体制について知見を収集・整理する。

##### 【国際的な協力体制】

- ・ 「酸性雨及び黄砂モニタリング・ネットワーク整備計画」に対する無償資金協力において、中国国内 23 観測地点にオゾン測定機器を平成 19 年度中に設置し、その後 3 年間データを共有する予定である。
- ・ オゾンのような化学的非線形性の大きいものでは、モデル計算結果の不確実性評価が不可欠になる。大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース（TF HTAP）では観測の空白域（高度方向も含む）を埋める戦略と協力が話し合われており、モデリングの方では、不確実性の評価を行うために TF HTAP のフレームワークの中で相互比較実験が行われているところである<sup>(4)</sup>。
- ・ 近年、国際度量衡局（BIPM）が国家標準の等価性と国際的コンパラビリティの確保を目的とする大気オゾンの標準に関するプログラム「大気レベルにおけるオゾン標準の国際相互比較実験のパイロットスタディ」（CCQM-P28）を行った。国立環境研究所は 2004 年 7 月に同プログラムの相互比較実験に参加し、参加 23 ヶ国の計量研究機関や国際機関との比較を行った結果、非常に良い一致を得ることができた<sup>(5)</sup>。

##### 【衛星観測、航空機観測の現状】

- ・ 宇宙空間から対流圏の化学成分を測定する衛星センサーの技術的進歩によって、関

連データが充実してきており、2004年、NASAが打ち上げたOMI(Ozone Monitoring Instrument)は、宇宙から地球を見下ろして1日で地球を1周するものであり、13km×25kmの空間分解能でオゾン等に関する光学的データを取得することができる<sup>(4)</sup>。

- ・ また、欧州では全球をカバーするSCIAMACHY(SCanning Imaging Absorption SpectroMeter for Atmospheric Chartography)により観測が行われている<sup>(6)</sup>。
- ・ オゾンとその前駆物質の大陸内・大陸間長距離輸送の寄与は必ずしも大きくないため、地上ステーションやゾンデなどの観測データのみからではその同定と定量が困難であったが、化学輸送モデルと対流圏化学衛星センサーの急速な進歩により、地球規模かつ詳細な現象解明が進みつつある<sup>(4)</sup>。
- ・ 日本国内の発生源の影響を受けない測定を行い、国外からの流入の実態を明らかにするには航空機観測が必要であるが、日本には環境観測専用の航空機が無く、環境観測専用の航空機の整備が必要とされている<sup>(2,7,8)</sup>。

#### 1.2.1 主な知見

##### 【東アジア及び半球規模での広域的な観測体制】

- ・ 東アジアにおいては、EANET参加国の一部でオゾンの観測が行われているが、オゾンを測定している国は少なく、また、ヨーロッパのEMEPのような包括的地上ネットワークが無く、観測体制は十分とは言えない。

##### 【国際的な協力体制】

- ・ TF HTAPでは観測の空白域埋める戦略等の話し合いが行われており、モデルにおいても相互比較実験が行われている。
- ・ 大気オゾンの標準に関する国際相互比較実験として、2004年に国立環境研究所が参加したパイロットスタディでは参加23ヶ国の計量研究機関や国際機関との比較で非常に良い一致を得ることができている。

##### 【衛星観測、航空機観測の現状】

- ・ OMI、SCIAMACHYなど、近年衛星観測技術の進歩により、衛星観測データが充実してきており、モデルの進歩とともに詳細な現象解明が進みつつある。
- ・ 日本には環境観測専用の航空機が無く、整備が望まれる。

#### < 1.2.1の参考文献 >

- (1) EANET ; <http://www.eanet.cc/jpn/>

- (2) 文部科学省;「平成 19 年度の我が国における地球観測のあり方」 別表  
[http://www.mext.go.jp/b\\_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/shiryo/06070715/004/008/003.htm](http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/shiryo/06070715/004/008/003.htm)
- (3) 中根英昭;アジア地域の対流圏大気変化把握のための辺戸岬スーパーサイトの共同運用,  
[http://www.mext.go.jp/b\\_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/shiryo/023/07060508/002.pdf](http://www.mext.go.jp/b_menu/shingi/gijyutu/gijyutu2/shiryo/023/07060508/002.pdf)
- (4) 谷本浩志;地球環境問題としてのオゾン汚染, 資源環境対策, 43, 21-27, 2007
- (5) 谷本浩志, 向井人史;日本におけるオゾン観測の現状と課題及び展望, 資源環境対策, 43, 42-48, 2007
- (6) 海洋研究開発機構プレスリリース;中国における NO<sub>2</sub> 濃度の増加を衛星データで実証, 平成 17 年 6 月 17 日, <http://www.jamstec.go.jp/frcgc/jp/press/050617/index.html>
- (7) 畠山史郎;酸性雨 誰が森林を傷めているのか?, 日本評論社, 2003
- (8) 若松伸司;VOC とオゾン・微小粒子 PM<sub>2.5</sub>, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, 2007

## 1.2.2 東アジアの状況

### 論点

観測値による東アジア地域のオゾン濃度の現状

モデルによる東アジア地域のオゾン濃度の現状

### 収集・整理した知見

#### 【観測値による東アジア地域のオゾン濃度の現状】

- ・ E A N E Tの枠組みでは、韓国が3地点（リモート1地点、ルーラル2地点）でオゾンを観測しており、季節変動については春と秋にオゾン濃度が高く、夏に濃度が低くなる傾向がある。また、ロシアではモンディ（リモート）1地点でオゾンを観測しており、2002～2005年における濃度の経年変動は横ばいであり、季節変動は春に濃度が高くなる傾向がある。
- ・ 中国・泰山、韓国、台湾等の観測値について知見を収集・整理する。

#### 【モデルによる東アジア地域のオゾン濃度の現状】

- ・ 化学輸送モデルによって描いた東アジアの地表付近のオゾン濃度を見ると、冬季と比べて春や夏といった暖候期はオゾンの濃度が概して高いことが分かる<sup>(1)</sup>。
- ・ 日本の大都市域で高濃度の光化学オキシダントが出やすい夏季の7、8月は、太平洋高気圧によるモンスーンの影響で、日本全体の平均濃度は春季～初夏に比べて低くなっているが、アジア大陸においては非常に高くなる事が分かる<sup>(1,2)</sup>。

### 1.2.2 主な知見

#### 【観測値による東アジア地域のオゾン濃度の現状】

- ・ E A N E Tの枠組みでは、韓国が3地点（リモート1地点、ルーラル2地点）でオゾンを観測しており、季節変動については春と秋にオゾン濃度が高く、夏に濃度が低くなる傾向がある。また、ロシアではモンディ（リモート）1地点でオゾンを観測しており、2002～2005年における濃度の経年変動は横ばいであり、季節変動は春に濃度が高くなる傾向がある。

#### 【モデルによる東アジア地域のオゾン濃度の現状】

- ・ 化学輸送モデルによって描いた東アジアの地表付近のオゾン濃度を見ると、冬季と比べて春や夏といった暖候期はオゾンの濃度が概して高い。
- ・ 夏季の7、8月は、太平洋高気圧の影響で、日本全体の平均濃度は春季～初夏に比べて低くなっているが、アジア大陸においては非常に高くなる。

#### < 1.2.2の参考文献 >

- (1) 谷本浩志；地球環境問題としてのオゾン汚染，資源環境対策,43,21-27,2007
- (2) 酸性雨研究センター；増えつつける対流圏オゾンの脅威,2005

## 1.2.3 半球規模での状況

### 論点

半球規模でのオゾン濃度の経年変動

半球規模でのオゾン濃度の季節変動

### 収集・整理した知見

#### 【半球規模でのオゾン濃度の経年変動】

- ・ ヨーロッパ及び最近の我が国の観測値を基にした北半球中高緯度における 19 世紀末からの春季における地表付近オゾンの濃度トレンドを見ると、最近の遠隔地域でのオゾン濃度は工業化以前の 2 倍以上に増加していることは明らかである<sup>(1)</sup>。
- ・ 近年の北半球リモート地点における地表オゾンの増加はヨーロッパ、アジア、北米の全ての大陸で同程度に起こっている。ただし、オゾン濃度の上昇が各大陸で同程度に起こっていることが、大陸間輸送によるオゾン濃度の均一化の結果であるとするのは早計である。世界各地のリモート地点に対し、成層圏オゾン降下、大陸間輸送、大陸内輸送がそれぞれどれだけ寄与しているかの定量的評価は、なお今後の研究課題である<sup>(1)</sup>。

#### 【半球規模でのオゾン濃度の季節変動】

- ・ 衛星観測によって得られた対流圏オゾンのカラム密度の全球分布を見ると、北半球・中高緯度の夏季にオゾンカラム密度が最大となり、春季、秋季には北米東部から北西部太平洋という人間活動の最も盛んな地域とその東側（風下側）に高濃度のオゾンが分布している<sup>(3)</sup>。
- ・ 北半球の中高緯度の遠隔地域(アイルランドの Mace Head、ハワイの Mauna 等)において、春季に最大、夏季に最小となる季節変化が広く観測される。この春季ピークの原因については定量的には決定的な結論が出されていないが、定性的には主要なオゾン生成地域からの長距離輸送がその主因であることが考えられる。夏季にはオゾンの大気寿命が短いため、生成されたオゾンは長距離輸送の途中で消滅し、遠隔地域に達する量は少ない。これに対し、春季や秋季にはオゾン寿命は十分長く、遠隔地域まで効率よく長距離輸送される<sup>(3)</sup>。
- ・ 大陸規模で人間活動の影響を強く受けているヨーロッパ大陸や北米大陸北東部のルーラル地点においては、夏季のブロードなピークが観測されている。これは、ヨーロッパ大陸等が人為起源前駆体物質の影響を強く受けており、光化学オゾンの生成が夏季に卓越するためと考えられる<sup>(3)</sup>。
- ・ 米国、西部大西洋、日本における高度別オゾンの季節変化を見ると、800hPa（高度約 2km）では季節変化は地表とほとんど違いがない。その他の高度においては一般的に以下のような傾向が見られる<sup>(3)</sup>。

500hPa (高度約 5.5km): 春季から夏季にかけて高原状のピーク

300hPa (高度約 9km): 春季から夏季にかけて高原状のピークが春季にシフト

200hPa (高度約 11.5km): 春季がピーク

- ・ 北半球中高緯度の対流圏内では、上層に行くほど季節変化のパターンに地域差がなくなり、共通性が見られるようになる<sup>(3)</sup>。

### 1.2.3 主な知見

#### 【半球規模でのオゾン濃度の経年変動】

- ・ 北半球中高緯度の遠隔地域における地表オゾン濃度は工業化以前の2倍以上に増加している。
- ・ 近年の北半球リモート地点における地表オゾンの増加はヨーロッパ、アジア、北米の全ての大陸で同程度に起こっているが、大陸間輸送によるオゾン濃度の均一化の結果であるとするのは早計であり、世界各地のリモート地点に対し、成層圏オゾン降下、大陸間輸送、大陸内輸送がそれぞれどれだけ寄与しているかの定量的評価は、なお今後の研究課題である。

#### 【半球規模でのオゾン濃度の季節変動】

- ・ 対流圏オゾンの全球分布では、北半球・中高緯度の夏季に最大となっており、春季、秋季には北米東部や北西部太平洋など人間活動が盛んな地域の風下側に高濃度のオゾンが分布している。また、中高緯度の遠隔地域では、春季に最大、夏季に最小となる季節変化が広く観測される。
- ・ 高度別オゾンの季節変化を見ると、高度が高くなるにつれて、春季～夏季のピークが春季へシフトしている。

#### < 1.2.3の参考文献 >

- (1) 秋元肇；大気汚染物質の大陸間輸送と半球規模汚染，大気環境学会誌，41，A1-A8，2006
- (2) 秋元肇；第1回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料，2007
- (3) 秋元肇・河村公隆・中澤高次・鷲田伸明編；対流圏大気の化学と地球環境，学会出版センター

## 2. 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の特徴

### 2.1 概論

日本の地理的な特徴としては、西側はアジア大陸、東側は太平洋に面しており、風の流れは、冬季はアジア大陸からの西風、夏季は太平洋からの南風、春季・秋季は、冬季より風は弱いですが西風が卓越している。このため、日本に流入する気塊が産業活動の活発な地域を通過してきた場合、大気汚染物質が運ばれてくることが推察される。日本は急速な社会経済活動の発展を遂げている東アジアの風下側に位置しており、当該地域の影響を直接的に受けることが、大気汚染物質の越境輸送として近年注目されている。

また、アジア大陸からの輸送の他、ヨーロッパ、北米からの輸送、その他の地域（中央アジア、中東地域等）からもオゾンが輸送されている。この他にも成層圏から降下するオゾンが一定量存在し、これらに加えて、日本自身の発生源による局地汚染を積み上げることで、日本における地表オゾンの濃度となる。

光化学スモッグの急性被害がクローズアップされた 1970 年代に比べ、近年は前駆物質（ $\text{NO}_x$ 、 $\text{VOC}$ ）の削減は進んでいるが、一方で全国的なオキシダント濃度の増加やオキシダント注意報の発令日数が増加するなど、光化学オキシダント濃度のベース及び高濃度日の増加が顕在化している。全体的なオキシダント濃度の増加傾向や高濃度の出現には、東アジアの前駆物質排出量増加、 $\text{NMHC}/\text{NO}_x$ 比の変化、気象の変化など、様々な要因が考えられているが、まだ十分な定量的解析はなされていない。確たる証拠は得られておらず、また、光化学オキシダントの高濃度の出現には、日々の気象要因に伴うこの他にも日本国内の他地域からの広域移流や局地循環による蓄積なども複雑に関係していることがものと考えられ、これら様々な大気輸送・化学プロセスのこの増加要因の寄与に関する定量的な解明が急務となっている。

## 2.2 最近の越境汚染の事例

### 論点

最近の広域的な高濃度出現時の状況

大陸からの流跡線

夜間の高濃度出現状況

### 収集・整理した知見

#### 【最近の広域的な高濃度出現時の状況】

- ・ 国立環境研究所と九州大学応用力学研究所の研究グループにおいて、2007年5月8日から9日にかけて九州から東日本の広い範囲で光化学スモッグ注意報が発令された光化学オキシダント汚染状況について、数値シミュレーションを行った結果によると、5月8日は越境汚染の影響が特に大きく、5月9日は越境汚染に加えて都市大気汚染の影響が大きかったことが推測されている。光化学オキシダントのピーク時刻を見ると、5月8日は同じ頃であり、9日はピーク時刻が内陸側に行くにつれ遅れが見られた<sup>(1,2)</sup>。

#### 【大陸からの流跡線】

- ・ 春先に対馬で100ppbを超えるような高濃度になった日は、概ね流跡線は大陸方向を示しており、大陸からの影響が強いと考えられる。その典型的な事例である2004年5月7日の状況を見ると、九州の南方に移動性高気圧が通過しており、それに併せて流跡線は大陸方向を示している<sup>(4)</sup>。
- ・ 福岡県で2007年4月26日、5月8日、9日、27日の注意報が発令された日前後の硫酸イオン濃度を見ると、いずれも非常に高濃度となっている。夜間に高濃度が継続されること、流跡線がいずれも大陸方向を指していること、県内の測定局のOx濃度が壱岐の値と同じ程度で推移していること、硫酸イオンの濃度が高いことなどから大陸からの影響を受けていると推察できる<sup>(5)</sup>。
- ・ 2003年～2006年の間に福岡県で80ppbを5局以上で超過した高濃度日を分類すると、主要因と考えられる割合は成層圏からの下降が10%程度、大陸からの移流、地域汚染、複合影響と考えられる不明分がそれぞれ30%程度となっており、近年では高濃度日に占める移流の割合が上昇している<sup>(4)</sup>。

#### 【夜間の高濃度出現状況】

- ・ 一般的に光化学オキシダントは日射のある昼間に高濃度となり、夜間には低濃度となる。しかし近年、昼間だけでなく夜間においても全国的に経年的な上昇傾向が見られている。夜間に高濃度となる日数は、島根県や鳥取県などの西日本の日本海側で多く見られ、これらの地域では12月でも60ppb超過日がみられるなど非常に特

微的で、成層圏あるいは大陸など他地域からの影響が懸念される。なお、日本国内の特に海風による移流の影響を強く受けていると考えられるパターンもあることや、近年のNO<sub>x</sub>の濃度低下により消費されるオゾンが減少することで夜間の光化学オキシダント濃度が増加していることも考えられることから、それぞれの地域にあった検討が望まれる<sup>(3)</sup>。

## 2.2 主な知見

### 【最近の広域的な高濃度出現時の状況】

- ・ 2007年5月8日、9日に全国的な高濃度O<sub>x</sub>が観測されたが、モデルや観測結果などの状況から、8日は越境汚染の影響が大きく、9日は越境汚染に加えて都市大気汚染の影響を受けていると考えられる。

### 【大陸からの流跡線】

- ・ 福岡県において流跡線が大陸方向を示している時に現れる高濃度日では、硫酸イオンの濃度が高くなるなどの傾向が見られ、大陸からの移流の影響が推察される。

### 【夜間の高濃度出現状況】

- ・ 近年、昼間だけでなく夜間においても全国的に経年的な濃度の上昇傾向が見られ、夜間に高濃度になる要因として、大陸からの輸送などの他、海風による移流の影響、NO<sub>x</sub>濃度の減少による影響など、地域ごとに特徴があると考えられ、それぞれの地域にあった検討が必要といえる。

## < 2.2の参考文献 >

- (1) 国立環境研究所記者発表；2007年5月8、9日の広域的な光化学オキシダント汚染について 国立環境研究所及び九州大学が数値シミュレーションによる再現に成功 ，平成19年5月21日
- (2) 大原利真；第1回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料,2007
- (3) 大原利真編；日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究,国立環境研究所研究報告第195号(R-195-2007)
- (4) 岩本真二；大陸からの移流についてのモニタリングに関する最近の話題，第48回大気環境学会年会講演要旨集,2007
- (5) 岩本真二；2007年のオキシダント高濃度について，(投稿準備中)

## 2.3 都市域（関東・関西）における汚染の特徴

### 論点

内陸部による高濃度出現  
高濃度出現の長時間化・広域化  
週末に濃度が高くなる状況

### 収集・整理した知見

#### 【内陸部による高濃度出現】

- ・ 1997年に環境庁（当時）で奥日光地域でのオゾンの観測を行い、6月に150ppbを超える高濃度のオゾンを検出している。この結果を予測モデルで評価したところ、その72%が南関東域で出された汚染物質が内陸に運ばれていく途中で、光化学反応を受けたためにできたものと推定されている。関東平野では「陸風・海風循環」という空気の循環が1日単位で起こっており、東京湾や相模湾から入ってくる海風が東京周辺で大量に放出された大気汚染物質を北の方に運んでいる。この大気の輸送過程で光化学反応が起こり、オゾンなどが生成される<sup>(1)</sup>。
- ・ 関東・関西地方において内陸地域で日最高濃度が出現する傾向が年々増加する傾向にある<sup>(2)</sup>。

#### 【高濃度出現の長時間化・広域化】

- ・ 東京都において、高濃度出現時刻のピークが14時であることは1980年代と変わらないが、16時頃まで高濃度が残るのが近年の特徴である<sup>(3)</sup>。
- ・ 大阪府の光化学オキシダントの日最高濃度出現時刻は経年的に遅くなっており、この一因として、陸筋においては海風の到達が経年的に遅れを生じる傾向にあることから、海風の遅れによる影響が考えられる。一方で、海風到達に遅れが見られない川筋においても光化学オキシダントの日最高濃度出現時刻は遅れていることから、光化学オキシダントの生成反応の遅れなど他の要因も考えられる<sup>(4)</sup>。

#### 【週末に濃度が高くなる状況】

- ・ 関東・関西地域における1990～2002年度にかけての調査結果から週末効果（平日から週末にかけてNO<sub>x</sub>やNMHCといった前駆体濃度が減少するのに対して、逆にオゾン濃度が増加する現象）がほぼ全ての測定局で認められた<sup>(5)</sup>。同様の事例はアメリカやヨーロッパ、日本においても大阪府<sup>(6)</sup>、兵庫県<sup>(7)</sup>での解析が報告されている。
- ・ 光化学オキシダントの週末効果は、関西地方周辺の多数の測定局において確認される。一方、ほとんどのケースにおいて、光化学オキシダントの前駆物質であるNO<sub>x</sub>およびNMHC濃度は週末に減少している。光化学オキシダントの週末効果が確

認められる測定局数を季節別に見ると、光化学反応が最も活発な夏季に最も少なくなる。また、光化学生成ポテンシャルオゾン  $PO$  ( $[PO] = [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times [NO_x]$ ) は、ほとんどの測定局において週末の方が低濃度であり、光化学オキシダント生成量は週末よりも平日に大きい。これらのことから、光化学反応による光化学オキシダント生成は、前駆物質濃度が高い平日に大きいと考えられる。一方、 $O_3 / PO$  比は  $NO_x$  濃度と負の相関、すなわち、 $NO_x$  濃度の減少に伴い  $PO$  に占める  $O_3$  の割合が増加する。この関係は、 $O_3 - NO$  反応による光化学オキシダントの分解を表しており、 $NO$  濃度が低い週末には平日よりも、光化学オキシダント分解量が減少すると考えられる。以上のことから、光化学オキシダントの週末効果は、これまでの定説（オゾン生成変化説）とは異なり、 $NO$  による光化学オキシダント分解量の平日・週末差が主因であると結論づけられる<sup>(4)</sup>。

#### ポテンシャルオゾン（ $PO$ ）

光化学反応によって生成した  $O_3$  は、 $NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2$  の反応により、 $NO$  を消失する反応に一部消費されるといわれており、この消失分を補正したもの<sup>(8)</sup>。

### 2.3 主な知見

#### 【内陸部による高濃度出現】

- ・ 陸風・海風循環の中で、沿岸部に位置する都市の汚染物質が内陸に運ばれ、内陸側で光化学オキシダントの高濃度が観測される。関東・関西地方において内陸地域で日最高濃度が出現する傾向が年々増加する傾向にある。

#### 【高濃度出現の長時間化・広域化】

- ・ 都市近郊では、近年光化学オキシダントの高濃度地域が広域化し、夕方まで高濃度が見られる、ピーク時間の遅れが見られるなど、海風の遅れや光化学オキシダント生成反応の遅れなど様々な要因によると思われる現象が現れている。

#### 【週末に濃度が高くなる状況】

- ・ 関東及び関西地域では光化学オキシダント濃度が週末高くなる週末効果の出現が認められており、これについては、 $NO$  による光化学オキシダント分解量の平日・週末差が主因であると考えられる。

### < 2 . 3 の参考文献 >

- (1) 畠山史郎；酸性雨 誰が森林を傷めているのか？, 日本評論社, 2003
- (2) 若松伸司；都市・広域大気汚染の生成機構解明に関する研究, 大気環境学会誌, 36, 125-136, 2001
- (3) 東京都；光化学オキシダント対策検討会報告, 2005
- (4) 大原利真編；日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究, 国立環境研究所研究報告第 195 号 ( R -195-2007 )
- (5) 神成陽容；関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 1 報 二種類の週末効果反転現象の発見, 大気環境学会誌, 41, 209-219, 2006
- (6) 濱名実, 定永靖宗, 竹中規訓, 坂東博；大阪府におけるオゾンと前駆体濃度の平日 / 週末間の違い 現状とその要因について , 大気環境学会誌, 41, 300-308, 2006
- (7) 坂本美德, 吉村陽, 小坂浩, 平木隆年；兵庫県における週末オキシダント濃度に関する一考察, 大気環境学会誌, 40, 201-208, 2005
- (8) 若松伸司編；西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究, 国立環境研究所研究報告第 184 号 ( R -184-2004 )

### 3. 光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因（既存知見の整理）

#### 3.1 東アジア等から排出される大気汚染物質との関係

##### 論点

半球規模でのオゾンの輸送状況

オゾン前駆物質排出量の経年変動

東アジアから輸送される汚染気塊とオゾン濃度の関係

アジアの排出量将来シナリオとオゾン濃度の関係

##### 収集・整理した知見

###### 【半球規模でのオゾンの輸送状況】

- ・ アジアから北米への大陸間輸送は、アジアで放出された汚染物質が自由対流圏へ効率よく運ばれるため、オゾンの生成・輸送は上部対流圏で活発に起こり、アジア大気汚染の影響は北半球全域に広がることを示されている。これに対し、ヨーロッパからアジアへの大陸間輸送は、自由対流圏へは余り広がらず、オゾン輸送も主として境界層内部から下部対流圏で起こる。北米からヨーロッパへの輸送はこれらの中間で、中部対流圏での輸送が主である。こうした大陸間輸送の差異はそれぞれの大陸における前駆体物質発生源地域の緯度の差によるところが大きいものと考えられる<sup>(7)</sup>。
- ・ 全球モデルを用いたタグ付きトレーサー実験の結果からは、ヨーロッパから東アジアへの影響は、例えば鹿児島境界層内のオゾンに対し、4月に2～2.5ppb程度で、7月に1ppb以下に減少した。また、北米からの影響も、4月に1～2ppb程度で、7月に0.5ppb以下に減少を示した。中国の境界層内で生成したオゾンは春季には15ppbに達し、夏季にもアジアの自由対流圏で生成したオゾンと合わせて15ppbに達することが分かった<sup>(6)</sup>。
- ・ 東アジアのオゾン観測の山岳における遠隔地域である Mondy と八方、ヨーロッパの山岳の遠隔地域である Arosa と海面レベルの Mace Head を比較すると、東アジアのバックグラウンド濃度はヨーロッパに比べて約10ppb高い。この差のうち2～3ppbは中央アジア付近で成層圏から降りてくる量があるためであり、残りがヨーロッパ等で生成されたオゾンが輸送されてくるものである<sup>(5)</sup>。
- ・ 隠岐における春季のオゾンは月平均で55～60ppbに達し、環境基準60ppbを超えるケースがしばしば観測されているが、これに対する成層圏オゾン降下、大陸間輸送、大陸内輸送の寄与は、これまでのモデル計算と観測データ解析を合わせると、春季に月平均でそれぞれおよそ15, 5, 15ppb程度と推定できるが、これらを合わせても40ppb以下にしかならず、実際に観測される60ppb近いオゾン濃度を説明できない。こうしたオゾンのミッシングソースについては、これまで考慮されてこなかつ

たヨーロッパ、北米、東アジア以外の地域からの寄与も意外に大きい可能性もあり、その解明は今後の研究に残されている<sup>(7)</sup>。

#### 【オゾン前駆物質排出量の経年変動】

- ・ 産業革命以降の化石燃料の大量消費に伴い、NO<sub>x</sub>の排出量は20世紀当初以来全球的に増加の一途をたどってきたが、1980年代以降ヨーロッパ及び北米大陸のNO<sub>x</sub>排出量はおおむね横ばいで推移しており、早くから大気汚染物質の排出規制に取り組んできたヨーロッパ大陸では、90年代以降、NO<sub>x</sub>排出量が減少傾向に転じた。一方、70年代のアジア大陸のNO<sub>x</sub>排出量(約10Tg)は、両大陸の排出量(各々23~27Tg)に比べてはるかに少なかったが、その後の急激な増加により、90年代半ばには両大陸の排出量を凌ぐに至っている<sup>(6)</sup>。
- ・ 1980~2003年の地域別NO<sub>x</sub>排出量の経年変化を見ると、アジア全体のNO<sub>x</sub>排出量はこの四半世紀で2.8倍増加しており、中でも中国における増加は3.8倍(平均年率6%)と非常に大きい<sup>(1)</sup>。
- ・ 対流圏観測衛星GOMEによるNO<sub>2</sub>の1月の対流圏カラム濃度分布の結果を見ると、中国東部の華北平原を中心とした領域においてNO<sub>2</sub>濃度が極めて高く、1996年に比べて2002年には高濃度領域がさらに広がっている<sup>(3)</sup>。

#### 【東アジアから輸送される汚染気塊とオゾン濃度の関係】

- ・ 隠岐における後方流跡線解析を行った結果、隠岐における気塊は東アジア地域汚染気塊、中間気塊、東アジア大陸性清浄気塊、海洋性汚染気塊、海洋性清浄気塊に分けられる。気塊ごとのオゾン濃度を見ると、東アジア地域汚染気塊中のオゾン濃度は春季から夏季、秋季にかけて高原状に最大値を示し、月平均で約55ppbである。東アジア大陸性清浄気塊中のオゾンは4月に春季ピークを示し、その月平均値は約45ppbである。中間地域は濃度や季節変化が清浄気塊中のものに近く、人間活動の影響がそれほど大きくないことを示している。夏季の海洋性汚染気塊中のオゾンは約20ppbであり、大陸性気塊に比べるとずっと低い。沖縄で見られる海洋性清浄気塊中のオゾン濃度の約10ppbに比べるとかなり高くなっている。隠岐で見られたオゾン濃度の日々の変動はこれらの異なった気塊が日々交代されるために見られる<sup>(2)</sup>。
- ・ 隠岐で観測される海洋性気塊は、観測地点に到達する以前に日本列島の上を通過するか対馬海峡を通過するので、人間活動の影響を受けた海洋性汚染気塊となっているが、沖縄ではより清浄な海洋性気塊が捉えられ、利尻ではほとんど通年に渡って清浄な大陸性気塊が捉えられるといったように、緯度によって観測される気塊が大きく異なるのが日本の特色である<sup>(2)</sup>。
- ・ 隠岐と沖縄について大陸性地域汚染気塊中のオゾン濃度の季節変化を見ると、大陸性地域汚染気塊に被われる期間は、これら1000km以上離れた地点でもほぼ等しく、日本のリモート地点におけるオゾン濃度が大陸からの長距離輸送によって決まっ

ていることが明らかになっている<sup>(2)</sup>。

- 化学輸送モデルによって再現した4月の地表オゾンの平均分布と、そのうち北東アジア起源のオゾンの寄与を見ると、北東アジアからのオゾン前駆物質を起源とするオゾンは5~10ppb程度の寄与を占め、特に本州など中緯度帯で大きい。本州付近のオゾン濃度が約50~60ppbであることを考慮すると、平均で約1/10~1/6が東アジア起源であり、都市以外での環境基準超過に寄与していることが考えられる<sup>(4)</sup>。
- 全球モデルによる首都圏グリッド(180km)に対する日中オゾンの発生源別寄与の計算結果(2~4月)を見ると、中国からの寄与濃度は2~18ppb程度の非常に大きな日変動があり、中国からの影響がほとんど無い時、大きな影響がある時など、日により影響割合に大きな差があることが分かる<sup>(5)</sup>。
- 長距離輸送されてくる汚染気団に含まれるVOC成分(一次及び二次生成VOC)やその他のガス成分(一次、二次ガス成分やラジカル類)が、日本の発生源が原因で発生するオゾン生成ポテンシャルを上昇させていることも考えられ、この検証が必要といえる<sup>(8)</sup>。

#### 【アジアの排出量将来シナリオとオゾン濃度の関係】

- アジア(東アジア、東南アジア、南アジアを含む)の排出量推計(REAS)の持続可能性追求型シナリオ(Reference Case: REF)では、アジアのNO<sub>x</sub>排出量は25.1Tg(2000年)から36.1Tg(2020年)まで増大する。この将来排出量と領域化学輸送モデルを用いて行った2020年の地表オゾン濃度予測結果を見ると、5~6月および7~8月の日本域の地表オゾン濃度は20年の間に2~5ppb増加する。特に5~6月に、東北地域北部を除く本州と四国・九州の北部で、オゾン濃度の2ヶ月平均値が65ppbを超えることが予測されている<sup>(6)</sup>。

### 3.1 主な知見

#### 【半球規模でのオゾンの輸送状況】

- ・ アジアから北米への大陸間輸送は、上部対流圏で活発に起こり、アジア大気汚染の影響は北半球全域に広がることを示されている。これに対し、ヨーロッパからアジアへの大陸間輸送は、境界層内部から下部対流圏で起こる。北米からヨーロッパへの輸送はこれらの中間で、中部対流圏での輸送が主である。こうした大陸間輸送の差異はそれぞれの大陸における前駆体物質発生源地域の緯度の差によるところが大きいものと考えられる。
- ・ 全球モデルを用いたタグ付きトレーサー実験の結果からは、ヨーロッパから東アジア（鹿児島）への影響は、4月に2～2.5ppb程度、北米からの影響も、4月に1～2ppb程度であった。中国の境界層内で生成したオゾンは春季には15ppbに達した。
- ・ アジアの遠隔地域においては、ヨーロッパ等の越境輸送や成層圏オゾンの降下などの影響を受け、ヨーロッパの遠隔地域より10ppb程度オゾンの濃度が高く、この差のうち2～3ppbは中央アジア付近での成層圏オゾン降下によるものあり、残りがヨーロッパ等で生成されたオゾンが輸送されてくるものである。
- ・ 隠岐におけるモデル計算値の解析からは、観測値を説明できないことから、これまで考慮されてこなかったヨーロッパ、北米、東アジア以外の地域からの影響も大きいことが考えられる。

#### 【オゾン前駆物質排出量の経年変動】

- ・ NO<sub>x</sub>の排出量は、1980年代以降ヨーロッパ及び北米大陸のNO<sub>x</sub>排出量はおおむね横ばいで推移しており、早くから大気汚染物質の排出規制に取り組んできたヨーロッパ大陸では、90年代以降、NO<sub>x</sub>排出量が減少傾向に転じた。一方、70年代のアジア大陸のNO<sub>x</sub>排出量は、両大陸の排出量に比べてはるかに少なかったが、その後の急激な増加により、90年代半ばには両大陸の排出量を凌ぐに至っている。
- ・ 1980～2003年の地域別NO<sub>x</sub>排出量の経年変化を見ると、アジア全体のNO<sub>x</sub>排出量はこの四半世紀で2.8倍増加しており、中でも中国における増加は3.8倍と非常に大きい。

- ・ 観測衛星の結果からは、中国東部の華北平原を中心とした領域においてNO<sub>2</sub>濃度が極めて高く、1996年に比べ2002年には高濃度領域がさらに広がっている。

#### 【東アジアから輸送される汚染気塊とオゾン濃度の関係】

- ・ 隠岐における後方流跡線解析を行った結果、隠岐における気塊は東アジア地域汚染気塊、東アジア大陸性清浄気塊など複数の気塊に分類され、これらの異なった気塊が日々交代することによりオゾン濃度の日々の変動が現れている。
- ・ 緯度によって観測される気塊が大きく異なるのが日本の特色であり、地域によって東アジアの影響割合は大きな差があると考えられる。
- ・ 4月の日本において、北東アジア起源のオゾン寄与は5~10ppb程度の寄与を占めており、都市以外での環境基準超過に寄与していることが考えられる。
- ・ 全球モデルによる首都圏グリッドに対する日中オゾンの発生源別寄与の計算結果(2~4月)を見ると、中国からの寄与濃度は影響がほとんど無い時、大きな影響がある時など、日により影響割合に大きな差があることが分かる。
- ・ 長距離輸送されてくる汚染気団に含まれるVOC成分等が、日本の発生源が原因で発生するオゾン生成ポテンシャルを上昇させていることも考えられ、この検証が必要といえる。

#### 【アジアの排出量将来シナリオとオゾン濃度の関係】

- ・ アジアの排出量推計(REAS)の持続可能性追求型シナリオ(Reference Case)と領域化学輸送モデルを用いて行った2020年の地表オゾン濃度予測結果を見ると、5~6月および7~8月の日本域の地表オゾン濃度は20年の間に2~5ppb増加し、特に5~6月に、東北北部を除く本州と四国・九州の北部で、オゾン濃度の2ヶ月平均値が65ppbを超えることが予測されている。

### < 3 . 1 の参考文献 >

- (1) 大原利真；日本における光化学オゾンの上昇 - アジアにおける排出量の増加と越境汚染の影響

- ,生活と環境,52,90-95,2007

- (2) 秋元肇；東アジアオゾン汚染の日本への影響,資源環境対策,39,90-96,2003
- (3) 酸性雨研究センター；増えつづける対流圏オゾンの脅威,2005
- (4) 谷本浩志；地球環境問題としてのオゾン汚染,資源環境対策,43,21-27,2007
- (5) 秋元肇；第1回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料,2007
- (6) 山地一代,秋元肇；最近のモデル研究による東アジアオゾン汚染の現状と将来予測,資源環境対策,43,28-35,2007
- (7) 秋元肇；大気汚染物質の大陸間輸送と半球規模汚染,大気環境学会誌,41,A1-A8,2006
- (8) 若松伸司；VOC とオゾン・微小粒子  $PM_{2.5}$ ,第48回大気環境学会年会講演要旨集,2007

### 3.2 光化学オキシダントの前駆物質（NO<sub>x</sub>及びVOC）の濃度変化との関係

#### 論点

光化学オキシダント濃度と前駆物質の濃度比の関係

VOCの観測に関する現状

VOC組成変化の影響

#### 収集・整理した知見

##### 【光化学オキシダント濃度と前駆物質の濃度比の関係】

- ・ 東京都をはじめとする首都圏においては、光化学オキシダントの原因物質である窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度が低下してきているにもかかわらず、光化学オキシダントについては濃度が再び上昇し、2000年以降、注意報発令レベルの0.12ppm以上となる頻度が急激に増加している<sup>(2)</sup>。
- ・ 光化学オキシダントの生成量は、前駆体であるNO<sub>x</sub>とNMHCの濃度に対して複雑な応答を示し、大別すると光化学オキシダント生成量がNO<sub>x</sub>濃度に敏感に応答する領域、NMHC濃度に敏感に応答する領域がある<sup>(1)</sup>。
- ・ NMHC/NO<sub>x</sub>比が6以上の場合、1都6県解析エリア（13～16時の光化学オキシダントが比較的高濃度になる地域）においては高濃度の光化学オキシダントの出現割合が大きくなっている<sup>(2)</sup>。
- ・ NO<sub>x</sub>排出削減量と比較して、NMHC排出の削減量の割合が相対的に小さいことから、東京都区部、川崎、横浜などの高濃度発生源エリアにおけるNMHC/NO<sub>x</sub>比が上昇傾向にあり、2000年以降の急激な高濃度の光化学オキシダントの出現頻度増加をもたらしている可能性が大きい<sup>(2)</sup>。
- ・ 東京都の報告では、NMHC/NO<sub>x</sub>比が現況よりも大きくなるように原因物質濃度が低下した場合は、濃度比が大きいほど高濃度の光化学オキシダントの出現の減少効果が小さくなるよう試算された。このことから、高濃度の光化学オキシダントの出現日数を効果的に減少させるには、NO<sub>x</sub>濃度の低下に加え、NMHC濃度をNO<sub>x</sub>濃度の低下率以上に低減させていくことが必要である<sup>(2)</sup>。
- ・ オゾン/全硝酸塩濃度比の実測により、関東地方における高オゾンポテンシャル日（日射が強く・気温が高い）のオゾン濃度の前駆物質排出量に対する感度の推定を行った報告があり、この結果からは、東京都荒川区や埼玉県川口市などの都心部ではVOCを削減することでオゾン濃度を減少させられる地点・時間が多いと判定され、埼玉県川越市や本庄市などの郊外ではVOCを削減することでオゾン濃度を減少させられる可能性は低く、これらの地域のオゾン濃度を減少させるためには、NO<sub>x</sub>を削減すべきであるということが示唆されている。<sup>(3)</sup>

#### 【VOCの観測に関する現状】

- ・ 大気中のVOCには種々の物質が存在し、物質により大気中での反応性が大きく異なるため、VOC削減効果をシミュレーションで検証する上で、実際のVOC組成の把握が不可欠である。
- ・ 大気汚染常時監視局ではNMHCが連続モニタリングされているが、NMHCの測定値では反応性の高いVOC成分は十分に捉えられておらず、また、VOC各種成分の動態に関しては極めて限定的な情報しか蓄積されていない<sup>(5)</sup>。

#### 【VOC組成変化の影響】

- ・ 環境大気中のNMHC(23物質)の組成の変化について、1992年度と2003年度の調査結果を用いて両年度の結果を比較したところ、濃度が増加している成分(プロピレン、c-2-ブテンなど)と、濃度が減少している成分(トルエン、キシレンなど)があることが推定された。HCとOHラジカルとの反応の速度定数と、NMHCの成分濃度との積の和から求められるHC総体での反応性ポテンシャルの変化をHCの種類別にみると、オレフィン類は21 44%に増加しているが、パラフィン類は16 12%に、芳香族は63 44%にそれぞれ減少し、全体ではこの間に約40%減少していることがわかった。これらのことから、NMHCの組成変化が、近年のオキシダント濃度の上昇に影響を及ぼしているとは考えられない<sup>(2)</sup>。
- ・ 一方で、上記調査ではアルデヒド類が含まれておらず、2005年に実施された埼玉県夏季調査の結果では、アルデヒド類は24時間平均のO<sub>3</sub>生成能に30%程度の寄与をすることが示されており、VOCとともにアルデヒド類の測定も必要である。アルデヒド類は日中に濃度が上昇し、光化学オキシダントの濃度の経時変化に類似していた<sup>(4)</sup>。
- ・ これまでの閉鎖系大気場での観測やモデル解析研究によれば、光化学オキシダント発生の翌日には、上空にアルデヒド類等の二次生成大気汚染物質が残存しており、これが、翌日の日中に大気境界層内に取り込まれて混合し、OHラジカルを発生させ、このことによりVOCからのラジカル生成サイクルが速やかにスタートし、光化学オキシダント濃度を、より早い時刻に上昇させることが明らかとなっている。光化学大気汚染の長距離輸送時にもこのような状況は発生している可能性がある<sup>(5)</sup>。

### 3.2 主な知見

#### 【光化学オキシダント濃度と前駆物質の濃度比の関係】

- ・ 首都圏においては光化学オキシダントの原因物質である窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度が低下してきているにもかかわらず、光化学オキシダントの濃度が近年上昇し、注意報発令レベルの0.12ppm以上となる頻度が増加している。
- ・ 東京都の報告では、高濃度の光化学オキシダントの出現日数を効果的に減少させるには、NO<sub>x</sub>濃度の低下に加え、NMHC濃度をNO<sub>x</sub>濃度の低下率以上に低減させていくことが必要としている。
- ・ オゾン/全硝酸塩濃度比の実測を用いた、関東地方における高オゾンポテンシャル日（日射が強く・気温が高い）のオゾン濃度の前駆物質排出量に対する感度の推定を行った報告では、埼玉県の郊外ではNO<sub>x</sub>を削減すべきということが示唆されており、NO<sub>x</sub>及びVOCの削減によるオゾン濃度減少の効果は、地域の状況により差が現れる。

#### 【VOCの観測に関する現状】

- ・ 大気汚染常時監視局ではNMHCが連続モニタリングされているが、NMHCの測定値では反応性の高いVOC成分は十分に捉えられていない。

#### 【VOC組成変化の影響】

- ・ これまでの解析ではNMHC23物質の組成変化によるO<sub>x</sub>濃度上昇への影響は見られないが、これらの調査にはアルデヒド類が含まれていないことから、今後、アルデヒド類を含めた基礎調査結果の集積が必要である。
- ・ 光化学オキシダント発生の翌日には、上空にアルデヒド類等の二次生成大気汚染物質が残存しており、これが、翌日の日中に大気境界層内に取り込まれることで、より早い時刻にオゾン濃度を上昇させることが明らかとなっている。光化学大気汚染の長距離輸送時にもこのような状況は発生している可能性がある。

#### < 3.2の参考文献 >

- (1) 秋元肇・河村公隆・中澤高清・鷲田伸明編；対流圏大気の化学と地球環境，学会出版センター
- (2) 東京都；光化学オキシダント対策検討会報告書，2005

- (3) 井上和也, 吉門洋, 東野晴行; 関東地方におけるオゾン濃度の前駆物質排出量に対する感度の推定, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, 2007
- (4) 竹内庸夫, 唐牛聖文, 石鍋恵子, 前原良子, 竹川暢之, 近藤豊, 坂本和彦; 炭化水素類の地点別時間帯別の挙動と光化学オキシダントとの関係, 第 47 回大気環境学会年会講演要旨集, 2006
- (5) 若松伸司; VOC とオゾン・微小粒子  $PM_{2.5}$ , 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, 2007

### 3.3 気象状況の変化との関係

#### 論点

気温または紫外線量等の気象状況と光化学オキシダント濃度の関係

#### 収集・整理した知見

##### 【気温または紫外線量等の気象状況と光化学オキシダント濃度の関係】

- ・ 地球温暖化や都市気象による気温上昇は光化学オキシダントの増加をもたらす。関東地域における夏季のシミュレーション結果によると、気温が2℃上昇するとオゾン昼間平均濃度が4%程度増加すると言われている。また、暖候期のO<sub>3</sub>高濃度発生頻度と日最高気温平均値の間には正の相関関係があると言われている。しかし、1985～99年において、日本全国の年平均地上気温は5年間移動平均で見ると約1℃上昇しているが、気温と光化学オキシダント濃度の変動傾向は一致しておらず、必ずしも明らかではない<sup>(1)</sup>。
- ・ 紫外線量が増加すると光化学反応が進みO<sub>3</sub>が増加する可能性がある。気象庁観測結果によると、館野（つくば）における紫外域日射量（波長290～325nm）は1990年以降上昇しており、その年平均値は1990～2000年で約10%増えている。このような紫外線量の増加が光化学オキシダント上昇の一因となった可能性は否定できない<sup>(1)</sup>。
- ・ 1976年度から2002年度の4～9月について、東京管区気象台における各種気象要素と、「1都6県解析エリア」における昼間（5～20時）の光化学オキシダント濃度のエリア内平均値（A）、エリア内最高値（B）、エリア内の局ごとの最高値の平均（C）とのそれぞれの相関を調べた結果、（A）・（C）は、気象要素の中で日積算日射量と最も高い相関があり、次いで昼午前平均風速との相関がみられた。（B）は、日積算日射量、日最高気温、昼午前平均風速の順に相関がみられた。また、日積算日射量の大きい日の割合が多い年は（A）～（C）の4～9月平均値が高くなる傾向があるなど、年ごとの気象要素の特徴と光化学オキシダント濃度の高低との間には関係があることがわかった<sup>(2)</sup>。

### 3.3 主な知見

#### 【気温または紫外線量等の気象状況とオキシダント濃度の関係】

- ・ 夏季のシミュレーション結果では、気温が2℃上昇するとオゾン昼間平均濃度が4%程度増加するといわれているが、実際の気温と光化学オキシダント濃度の変動傾向は一致しておらず、今後明らかにしていく必要がある。
- ・ 1990年以降、紫外線量が増加しており、このことが光化学オキシダント上昇の一因となっている可能性があり、また、年ごとの気象要素の特徴と光化学オキシダント濃度の高低間には関係があると考えられる。

#### < 3.3の参考文献 >

- (1) 大原利真；最近の光化学オキシダント汚染の実態 - 全国及び関東地域の経年変動 - ，資源環境対策, 39, 86-89, 2003
- (2) 東京都；光化学オキシダント対策検討会報告書, 2005

### 3.4 ヒートアイランド現象との関係

#### 論点

ヒートアイランド現象と光化学オキシダント濃度の関係

#### 収集・整理した知見

##### 【ヒートアイランド現象と光化学オキシダント濃度の関係】

- ・ ヒートアイランドは、関東地域に南西風が入る日および南東風が入る日に発生し、その発生地域は埼玉県南部から東京都と埼玉県の都県境付近の風のよどみ域である。ヒートアイランド発生日の光化学オキシダント高濃度域は、関東地域に南西風が入る日は関東北部に広域的に出現し、南東風が入る日は風の収束域に出現する<sup>(1)</sup>。
- ・ O<sub>x</sub>高濃度域がヒートアイランドの南側から海風により北上する場合は、ヒートアイランド発生場所の周辺でO<sub>x</sub>が150～180ppb超の高濃度になることや、光化学オキシダント高濃度域がヒートアイランドを迂回して北上するように見えることがある<sup>(1)</sup>。
- ・ ヒートアイランドの発生場所と光化学オキシダント高濃度域の位置関係については一定の傾向が見られたが、ヒートアイランドによる高温が光化学オキシダント濃度に与える影響については未把握である。ヒートアイランドの影響が弱いと考えられる1990年以前についても解析を行う必要がある<sup>(2)</sup>。
- ・ 気象モデルによると、都市高温による郊外に出現する澁み域の発生への影響は、2程度で明瞭となる。また、海岸から都市高温域の幅が10kmを超えると急激に強くなり、30km程度で最大となる。東京圏に関する限りは、温度差やサイズは1980年代までにこれらの変動域に達していたと見られることから、最近10年程度の間さらに都市高温の激化に伴う気流の変化があって、それがO<sub>x</sub>濃度トレンドに影響したとは考えにくい<sup>(3)</sup>。
- ・ 埼玉南部や東京多摩地域の都市化がさらに進行すれば東京圏のサイズの拡張となり、海風の停滞や郊外澁み域がもっと内陸に移る可能性がある<sup>(3)</sup>。
- ・ 規模において東京圏に次ぐ大都市域では同様の現象が今後起きるか、現在進行している可能性がある<sup>(3)</sup>。

### 3.4 主な知見

#### ヒートアイランド現象とオキシダント濃度の関係

- ・ 関東地域ではヒートアイランド発生場所の周辺で光化学オキシダントが150～180ppb 超の高濃度になることや、光化学オキシダント高濃度域がヒートアイランドを迂回して北上するように見えることがある。
- ・ ヒートアイランド発生場所と光化学オキシダント高濃度域の位置関係には一定の傾向が見られたが、ヒートアイランドによる高温が光化学オキシダント濃度に与える影響については不明のため、今後ヒートアイランドの影響が弱いと考えられる1990年以前についても調査が必要である。
- ・ 埼玉南部や東京多摩地域の都市化がさらに進行すれば東京圏のサイズの拡張となり、海風の停滞や郊外澱み域がもっと内陸に移る可能性がある。

#### < 3.4の参考文献 >

- (1) 大原利眞編；日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究, 国立環境研究所研究報告第195号 (R-195-2007)
- (2) 飯村文成, 飯田信行, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利眞；日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究 (5) - 光化学オキシダント高濃度域とヒートアイランドの関係 -, 第47回大気環境学会年会講演要旨集, 2006
- (3) 吉門洋；気象の変化と光化学オキシダントの関係 - ヒートアイランド現象の影響は？, 資源環境対策, 39, 97-100, 2003

### 3.5 成層圏オゾン降下との関係

#### 論点

成層圏オゾンからのオゾン降下量

成層圏オゾン降下と近年のオゾン濃度上昇の関係

成層圏オゾン降下の季節変動

#### 収集・整理した知見

##### 【成層圏オゾンからのオゾン降下量】

- ・ 全球3次元化学輸送モデルによる対流圏オゾンの全球収支を見ると、成層圏から対流圏へのオゾン降下量についてはモデル間で  $400 \sim 850 \text{Tgyr}^{-1}$  と非常に大きな差がある。衛星観測に基づく推定値は  $450 \sim 590 \text{Tgyr}^{-1}$  となっている。全球3次元化学輸送モデルは水平分解能が粗いため、成層圏 - 対流圏交換の物理過程を必ずしも正確に記述していないためモデル値の不確定性は大きいですが、最近では  $500 \text{Tgyr}^{-1}$  前後に収束してきている<sup>(1)</sup>。

##### 【成層圏オゾン降下と近年のオゾン濃度上昇の関係】

- ・ 日本における高濃度オゾン汚染（注意報レベル：120ppb 超）の概念図（2～4月）を見ると、成層圏オゾンの影響は1970年代も2000年以降も変わっておらず、10～20ppb程度と思われる<sup>(3)</sup>。

##### 【成層圏オゾン降下の季節変動】

- ・ 大気中の<sup>7</sup>Be（半減期：53.3日）は成層圏で酸素や窒素と宇宙線との核反応によって生成される。筑波山山頂におけるオゾン濃度の月別平均値の変化と国立環境研究所内で観測したエアロゾル中の<sup>7</sup>Be濃度の月別平均値の変化を見ると、オゾン濃度の変化パターンと<sup>7</sup>Be濃度の変化パターンは互いによく類似し、ともに4月、5月に最大値を示し7～8月にかけて最小値を示し、10月に再び上昇し、その後、秋季から冬季にかけて低下する二山型で両者の変化パターンは互いによく合致している<sup>(2)</sup>。
- ・ 従来からオゾンはスプリングリークにより成層圏から降下してくることで、北半球中緯度地域では春季に地表付近の濃度が高くなり、年平均値の1.5倍ないし2倍になることは知られているが、秋季にも高くなるのがこの観測で認められた。また、この季節変化は春季と秋季にピークを持つ中緯度地域における<sup>7</sup>Be濃度の季節変化とよく一致している。春季や秋季には移動性高気圧が頻繁に通過し、春季だけでなく秋季にも成層圏から対流圏への大気の流れが起こりやすく、このため成層圏起源の<sup>7</sup>Beやオゾンが地上へ導入されやすくなると考えられる<sup>(2)</sup>。

### 3.5 主な知見

#### 【成層圏オゾンからのオゾン降下量】

- ・ 成層圏から対流圏へのオゾン降下量は不確定性が大きいですが、近年の研究では  $500\text{Tgyr}^{-1}$  前後となってきた。

#### 【成層圏オゾン降下と近年のオゾン濃度上昇の関係】

- ・ 成層圏オゾンの影響は季節変動など短いスパンの変化には影響を与えるものの、近年のオゾン年平均濃度レベルの上昇に及ぼす影響は少ないと思われる。

#### 【成層圏オゾン降下の季節変動】

- ・ 成層圏から対流圏へのオゾンの降下は、移動性高気圧が通過する中で成層圏から対流圏への大気の流れが起こりやすく、春季及び秋季に濃度が高くなっている。

#### < 3.5の参考文献 >

- (1) 秋元肇・河村公隆・中澤高清・鷲田伸明編；対流圏大気の化学と地球環境，学会出版センター
- (2) 国立環境研究所ニュース；筑波で観測された大気中のオゾンと  $^{7}\text{Be}$  の濃度変化,1992,  
<http://www.nies.go.jp/kanko/news/11/11-5/11-5-04.html>
- (3) 秋元肇；第1回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料,2007

(注) ここで整理した知見は、本検討会で議論するための資料として、学会誌等の文献やホームページから整理したものであり、必ずしも最新の知見では無いこと、全ての知見を網羅しているものではないことに留意する必要がある。