

平成 19 年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会 文献収集調査結果

1. 光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況

1.1 概要

1.2 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

1.2.1 我が国における監視測定体制

【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⁽¹⁾。
- ・ 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⁽²⁾。

【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用いたトレーサビリティシステムが存在しない^{(3),(4)}。

【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⁽⁵⁾。
- ・ 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⁽⁶⁾。

< 1 . 2 . 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) 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, 第 41 巻, pp. 123-134, 2006
- (4) 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, vol. 43, pp. 42-48, 2007
- (5) 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
- (6) 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

1.2.2 全国の状況

【光化学オキシダントの濃度の状況及び環境基準の達成状況等】

- ・ 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⁽¹⁾。
- ・ 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⁽²⁾。
- ・ 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⁽²⁾。
- ・ 近年、光化学オキシダント注意報の発令が広域化しており、平成18年には長崎県、熊本県で、平成19年には新潟県、大分県で観測以降初めて発令された。また、平成19年の発令都道府県数は28都府県に達し、過去最多となっている⁽²⁾。

【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⁽¹⁾。
- ・ 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⁽³⁾。
- ・ 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⁽⁴⁾。
- ・ 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⁽⁵⁾。
- ・ 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⁽⁵⁾。

【日本上空の境界層オゾン濃度の経年変動】

- ・ 鹿児島、つくば、札幌でのオゾンゾンデによる境界層オゾン（高度 0～2km）の濃度の状況を見ると、1969～1990 年の 22 年間、約 2%/年の割合で濃度が増加しており⁽⁷⁾、1970～1985 年と 1986～2002 年のオゾン濃度を比較すると、境界層では、札幌では春季～夏季に、つくばでは夏季に、鹿児島では春季に濃度が高くなっている⁽⁷⁾。また、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⁽⁶⁾。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⁽⁷⁾。

< 1 . 2 . 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；Ox 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, 第 38 巻, pp. 47-54, 2003
- (6) 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, vol. 39, pp. 90-96, 2003
- (7) Akimoto, H., Nakane, H., and Matsumoto, Y. ; The chemistry of oxidant generation: Tropospheric ozone increase in Japan, in Chemistry of the Atmosphere: The Impact on Global Change, edited by J. G. Calvert, pp. 261-273, Blackwell Science publication, Malden, Mass,2004

1.2.3 地域的な状況

【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⁽²⁾。

【地域別の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^{(1),(3)}。

【光化学オキシダント濃度分布の特徴】

- ・ 光化学オキシダントの昼間（5時～20時）の平均濃度をみると、東京や大阪など人間活動が大きい地域よりもむしろ、九州から本州の日本海側などのルーラルな地域で高くなっているのがわかる。これは、ルーラルな地域では窒素酸化物の排出量が少なく、一酸化窒素による消費量が小さいためと考えられる⁽⁴⁾。
- ・ 光化学オキシダントの昼間の1時間値の注意報発令レベル超過割合をみると、平均濃度の分布でみられたルーラルな地域で高いという傾向は完全に消失しており、日本海側ではほとんどの地域でゼロになっているのに対し、東京都・埼玉県・群馬県などの大都市近郊に高いところが集中している⁽⁴⁾。

【九州地方における春季高濃度オキシダントについて】

- ・ 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⁽⁵⁾。
- ・ 2003年～2006年間に福岡県で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⁽⁵⁾。

【日本海地域における春季高濃度オキシダントについて】

- ・ 近傍に主要な大気汚染発生源が無い国設松江大気汚染常時測定局の測定データを

用いて光化学オキシダント濃度のトレンド解析を行い、オキシダント濃度が経年的に上昇傾向にあることを明らかにした。この傾向は特に春季に顕著であり、大陸方面からの大気汚染物質輸送量の増加がオキシダント濃度上昇の主たる要因である事が流跡線解析等から分かった⁽⁶⁾。

< 1 . 2 . 3 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) 大原利眞，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，第 38 巻，pp. 47-54，2003
- (3) 大原利眞；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
- (4) 産業技術総合研究所；第 4 章常時監視測定局データを用いた大気中濃度評価，詳細リスク評価書「オキシダント（オゾン）」，2007
- (5) 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
- (6) Fujihara, M., Wakamatsu, S., Yamaguchi, K., Nakao, M., Tatano, T. and Sagawa, T.; Annual and Seasonal Variations in Oxidant Concentration in Matsue, Japan, Atmospheric Environment, vol. 37, pp. 2725-2733, 2003

1.2.4 都市域（関東・関西）における汚染の特徴

【関東地方における光化学大気汚染について】

- ・ 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⁽¹⁾。
- ・ 1970年の夏に千葉県と東京都において、日本で初めて光化学大気汚染によると思われる被害が発生して以来、関東地域一都六県の共同研究が進められ、地上における常時監視データや、ヘリコプター観測等が実施された。関東地域におけるオキシダント濃度の分布と気象との関係については、地上での観測データの解析から、高濃度が出現する位置による分類として、南関東型、北関東型、広域型の分類がなされた。これらの高濃度の出現状況は風系の変化と対応しており、風系の変化は周辺の気圧分布や気温分布の変化と対応が見られた^{(4),(5),(6),(7)}。
- ・ 光化学大気汚染の発生と分布には、立体的な気象が深く影響を及ぼしていることから、1978年以降、国立環境研究所を中心とした大規模な気象観測と航空機観測が1983年まで実施され、時間や高度、海からの距離などによってオゾン濃度の分布状況の変化を示した東京首都圏における光化学大気汚染の立体分布や、関東地域から長野県への光化学大気汚染の輸送現象が解明された^{(4),(5),(6),(7)}。
- ・ 夏季における関東周辺の山岳地域や海上での大気汚染の立体分布の把握を目的として1995年に航空機観測が実施された。この中で相模湾沖の太平洋上の広い範囲（高度300m）で100～280ppbの高濃度オゾンが観測され、また、駿河湾上において高度850mに180ppbを超える高濃度のオゾンが観測されるなど、汚染空気が太平洋上に広域に渡り存在していることが明らかとなった⁽⁸⁾。

【海陸風内でのオゾンの輸送と循環について】

- ・ 関東地域では、一般風が弱く、閉鎖的な大気場が継続する場合には、二日以上にわたって汚染の滞留と循環が発生する。このような場合には、上空に前日の光化学反応生成物が残存し、これが、翌日になって再び混合層の中に取り込まれ、当日に発生した汚染物と混合し、前日より高濃度のオゾンが発生させる。アルデヒド等の二次生成物質は、ラジカル源となるので、反応の進行を早める役割を果たす。このためオゾン濃度上昇の立ち上がりを早め前日より早い時間に高濃度となる^{(9),(10)}。

【上層一般風の影響も含めたオゾンの広域循環について】

- ・ 気象条件によっては、海風で内陸まで輸送されたオゾンを含む高濃度の大気汚染空気塊が内陸地域に発生した熱低気圧に取り込まれ、上空数キロメートルまで上昇し、これが上層一般風で海上に運ばれ、海上で冷却されて高度を下げ、再度、海上低層の一般風によって陸上に達するメカニズムがある事が明らかとなった⁽⁸⁾。

【関西地域における春季の高濃度大気汚染について】

- ・ 一般的に冬季は強い接地逆転層が発生し、地表付近に放出された汚染物質の拡散が抑制されるため冬季に濃度が高くなるが、関西地域においては春季に二酸化窒素の濃度が高くなる事が多い。この原因を明らかにする為に、三回にわたる航空機観測（1993年、2001年、2003年）が行われた。気象解析、データ解析及びモデル解析の結果、関西地域では春季に光化学大気汚染が発生しやすい気象条件が関東地域に比べて多く出現する事が分かった。高濃度二酸化窒素大気汚染発生は、主にオゾンが高濃度となる事によるが、オゾン高濃度発生の要因は、関西地域で発生した大気汚染からによるものと、領域外からの流入によるものが、複合している事が明らかとなった。また、春季には、上空を大陸起源の粒子状物質が輸送されている事も観測された^{(11),(12),(13),(14),(15),(16)}。

【関東及び関西における高濃度出現のトレンドについて】

- ・ 埼玉、千葉、東京、神奈川を東京湾地域とし、茨城県、栃木県、群馬県を北関東内陸地域とし、関西地域では大阪府を大阪湾岸地域とし、京都府と奈良県を内陸として集計した結果、1979～1995年の期間では関東・関西地域ともに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った⁽²⁾。また、東京都では関東一都六県の1977年から2002年の期間で高濃度日（120ppb以上のオキシダント濃度観測）の出現状況を調査しており、ここでは高濃度日の分布の広域化が示されていた⁽³⁾。

< 1.2.4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，第36巻，pp. 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) 国立公害研究所；スモッグチャンパーによる炭化水素 - 窒素酸化物系光化学反応の研究 - 環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究（フィールド研究2），国立公害研究所研究報告第44号（R-44-1983）
- (5) 国立公害研究所；炭化水素 - 窒素酸化物 - 硫酸酸化物系光化学反応の研究 - 環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究（フィールド研究1），国立公害研究所研究報告第61号（R-61-1984）
- (6) 国立公害研究所；炭化水素 - 窒素酸化物 - 硫酸酸化物系光化学反応の研究 - 環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究（フィールド研究2），国立公害研究所研究報告第72号（R-72-1985）
- (7) 国立環境研究所；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，国立環境研究所研究報告第26号（SR-26-1998）
- (8) Wakamatsu, S.; High concentrations of photochemical ozone observed over sea and

- mountainous regions of the Kanto and eastern Chubu districts, *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, vol. 32, no. 4, pp. 309-314, 1997
- (9) Wakamatsu, S., Uno, I. and Suzuki, M.; A field study of photochemical smog formation under stagnant meteorological condition, *Atmospheric Environment*, vol. 24A, pp. 1037-1050, 1990
- (10) Wakamatsu, S., Uno, I. and Ohara, T. and Kenneth L. Schere; A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in the Tokyo area, *Atmospheric Environment*, vol. 33, pp. 3097-3108, 1999
- (11) Wakamatsu, S., Uno, I. and Ohara, T.; Spring time photochemical air pollution in Osaka - Field observation-, *Journal of Applied Meteorology*, vol. 37, pp. 1100-1106, 1998
- (12) Wakamatsu, S., Ohara, T., and Uno, I.; Spring time photochemical air pollution in Osaka - Model analysis-, *Journal of Applied Meteorology*, vol. 37, pp. 1107-1116, 1998
- (13) 大原利眞, 若松伸司, 鷓野伊津志, 神成陽容; 関西地域における春季高濃度染の数値シミュレーション (1) 数値モデルの構築と立体観測データによる検証, *大気環境学会誌*, 第36巻4号, pp. 208-230, 2001
- (14) 大原利眞, 若松伸司, 鷓野伊津志; 関西地域における春季高濃度染の数値シミュレーション (2) 汚染発生機構の感度解析, *大気環境学会誌*, 第36巻4号, pp. 231-243, 2001
- (15) Itano, Y., Wakamatsu, S., Hasegawa, S., Ohara, T., Sugata, S., Hayasaki, M., Moriya, T., Kobayashi, S.; Local and regional contributions to springtime ozone in the Osaka metropolitan area, estimated from aircraft observations, *Atmospheric Environment*, vol. 40, pp. 2117-2127, 2005
- (16) Hasegawa, S., Wakamatsu, S., Ohara, T., Itano, Y., Saitoh, K., Hayasaki, M., Kobayashi, S.; Vertical profiles of ultrafine to supermicron particles measured by aircraft over Osaka metropolitan area in Japan, *Atmospheric Environment*, vol. 41, no. 4, pp. 717-729, 2006

1.2.5 遠隔地域における状況

【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⁽¹⁾。
- ・ 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⁽¹⁾。
- ・ 太平洋側の地点である橿原では、近年、顕著な増加傾向にある⁽¹⁾。
- ・ 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⁽¹⁾。
- ・ 気象庁で調査を実施している南鳥島における 1994～2005 年までの調査結果では有意な変化の傾向は見られず、1997 年から調査を実施している与那国島では、2003 年半ばから 2005 年にかけて濃度の減少傾向が見られた⁽³⁾。
- ・ 那覇における境界層（0～2 km）でのオゾンゾンデによる 9 年間（1989～1997 年）の観測結果を見ると、約 $2.5 \pm 0.6\%$ /年の割合で増加している。また、1992～1997 年に辺戸岬で地表オゾン（紫外線吸収法）の調査を行っており、 $2.6 \pm 2.0\%$ /年という似た傾向を示していた⁽⁵⁾。
- ・ 上記の辺戸岬、那覇等の結果から、沖縄においては、1990 年代は約 2%/年の割合でオゾン濃度は増加していたが、2000 年を過ぎてから減少傾向に転じていることが分かる。

【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いる⁽¹⁾。
- ・ E A N E T 及び W M O / G A W における観測データから日本とアジア大陸の間に位置する 7 地点（利尻、竜飛岬、佐渡関岬、隠岐、対馬、辺戸岬、与那国島）を選択し、1998～2003 年までの連続データを統合することで北東アジアにおけるオゾンの時間変動及び空間分布を再現した。これによると春季に見られるピークは緯度によって微妙な違いがあり、3 月は北緯 20～30 度（低緯度）、4 月は北緯 40～50 度（高緯度）、5 月は北緯 30～40 度（中緯度）へと移っている。また、5 月の中緯度では 60ppb を超える高濃度が見られている⁽⁴⁾。
- ・ 上記解析結果で冬季の結果を見ると、中・高緯度に比べ、低緯度において濃度が高くなっている⁽⁴⁾。

【遠隔地域で観測される高濃度】

- ・ 隠岐、対馬における 1998～2005 年（4～8 月）のオゾンの経時変化を見ると、60ppb を超える時が多く見られ、対馬では注意報レベルの 120ppb を超過するときも見られる⁽⁶⁾。また、夜間低くなる日変化がないが、これは、遠隔地域においては N O x

濃度が低いため、日中にほとんど光化学生成がなく、夜間にもNOによりオゾンが壊されたりすることがないことと、離島の海洋境界層内や山岳地域などでは夜間に地表への沈着がほとんど加速されないためである⁽²⁾。

- 1998～2005年の期間において隠岐及び対馬でオゾン濃度が80ppbを超過した日数を見ると、4～6月に集中しており、春の高濃度が顕著となっている。また、4～8月にオゾン日最高値が80ppbを超過した日数の経年変化を見ると、隠岐では10～20日程度であるが、隠岐では2001年から増えており、30～50日程度となっている⁽⁶⁾。

< 1 . 2 . 5 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) 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, vol. 39, pp. 90-96, 2003
- (3) 気象庁; 2.6 対流圏オゾン, 大気・海洋環境観測報告第7号, 2005
- (4) Tanimoto, H., Sawa, Y., Matsueda, H., Uno, I., Ohara, T., Yamaji, K., Kurokawa, J., and Yonemura, S.; Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, *Geophysical Research Letters*, vol. 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514, 2005
- (5) Lee, S., Akimoto, H., Nakane, H., Kurnosenko S. and Kinjo, Y.; Lower tropospheric ozone trend observed in 1989-1997 at Okinawa, Japan, *Geophysical Research Letters*, vol. 25, pp. 1637-1640, 1998
- (6) 岩本真二; 離島におけるオキシダント濃度について, 2007

1.2.6 最近の高濃度の事例

【全国的な高濃度出現時の事例】

<全国的に高濃度となった事例：平成 19 年 5 月 8 日～9 日>

- ・ 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オキシダント注意報が発令された。この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、東シナ海に位置する高気圧の北側の西風によって大陸東岸から流れ出した汚染気塊が朝鮮半島南部を経て、九州北部から東日本の広い範囲に高濃度のオゾン域を形成する様子が計算された。注意報レベルに相当する汚染気塊のスケールは東西 500km を超えるもので、中国国内の汚染物質のみでなく、韓国や日本国内の汚染物質の影響も受けている可能性がある。5 月 8 日は越境汚染の影響が大きく、5 月 9 日は気温上昇や弱風などの気象条件や首都圏等で濃度のピーク時刻が内陸側に行くにつれ遅れが見られたことなどから判断すると、越境汚染に加えて都市大気汚染の影響も大きかったことが推測されている^{(1),(2)}。

【夏季の関東における高濃度出現時の事例】

<内陸部で高濃度となった事例：平成 17 年 9 月 2 日>

- ・ 平成 17 年 9 月 2 日は埼玉県で警報が発令されたほか、東京湾沿岸部や栃木県などの内陸部でもオキシダント濃度が高くなり、平成 17 年の被害者総数の約 6 割（882 人）の被害届があった日である。この日は朝のうちから濃度が高く、下層大気が安定で日照が十分にあるという状況の中で、東京湾や相模湾からの両海風による収束線が東京都、神奈川県、千葉県、埼玉県の南部に形成され、関東南部ではオキシダントの生成が促進されやすい条件が揃っていた。北関東では東京湾や九十九里からの海風が長時間流入しており、午後から夕方にかけて内陸部では高濃度域が発生した⁽³⁾。

<沿岸部で高濃度となった事例：平成 18 年 7 月 14 日>

- ・ 平成 18 年 7 月 14 日は神奈川県を中心に沿岸部でオキシダント濃度が高くなり、平成 18 年の被害者総数の約 7 割（199 人）の被害届があった日である。この日は下層大気が安定で、朝 9 時にオキシダントの初期濃度としてはやや高い 0.060～0.103ppm を示す地点が東京湾や茨城県の沿岸部に存在し、昼前から濃度が急に上昇した。気象状況は朝から晴れて、最高気温は 35 を超えたところがあった。朝 9 時には海風と陸風の収束線が東京湾岸と三浦半島から神奈川県中央部にかけて形成され、東京湾海風による収束線は昼頃も引き続き神奈川県中央部に停滞したため、東京湾沿岸部を中心に高濃度のオキシダントが観測された⁽⁴⁾。

< 1.2.6 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, <http://www.nies.go.jp/whatsnew/2007/20070521/20070521.html>

- (2) 早崎将光, 大原利真, 宮下七重 ; 2007 年 5 月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染 (1) 観測データ解析, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, 2007
- (3) 環境省; 平成 17 年 光化学大気汚染関係資料 緊急時発令状況 被害届状況, 2006
- (4) 環境省; 平成 18 年 光化学大気汚染関係資料 緊急時発令状況 被害届状況, 2007

1.3 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況

1.3.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制

【東アジア及び半球規模での広域的な観測体制】

- ・ 世界気象機関（WMO：World Meteorological Organization）は、世界中の大気観測所のネットワークを調整するシステムとして1989年に「全球大気監視（GAW:Global Atmosphere Watch）計画を開始した。この中で、オゾン地上固定モニタリング地点として世界中に88地点（2007年10月現在）が登録されており、Webサイトからデータが公開されている^{(6),(7),(8),(9)}。また、ヨーロッパでは国境を越えて長距離を移動する大気汚染物質の量などに関する情報を共有するために欧州モニタリング評価プログラム（EMEP）が設立され、157地点のオゾン観測地点（2007年10月現在）が登録されデータが公開されている^{(10),(11)}。
- ・ 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。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^{(1),(2),(3)}。

【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^{(4),(12)}。

【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⁽⁴⁾。
- ・ 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⁽⁵⁾。
- ・ 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⁽⁴⁾。

< 1 . 3 . 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
- (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
- (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, vol. 43, pp. 21-27, 2007
- (5) 海洋研究開発機構プレスリリース; 中国における NO₂ 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>
- (6) 世界気象機関 (WMO); http://www.wmo.ch/pages/index_en.html
- (7) 温室効果ガス世界資料センター (WDCGG); http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/jp/wdcgg_j.html
- (8) 気象庁; WMO 全球大気監視 (GAW) 計画,
<http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/infohp/gaw.html>
- (9) 国際研究計画・機関情報データベース; GAW,
<http://www-cger.nies.go.jp/cger-j/db/info/prg/gaw.htm>
- (10) 欧州モニタリング評価プログラム (EMEP); <http://www.emep.int/>
- (11) 国際研究計画・機関情報データベース; EMEP,
<http://www-cger.nies.go.jp/cger-j/db/info/prg/emep.htm>
- (12) TF HTAP; <http://www.htap.org/index.htm>

1.3.2 東アジアの状況

【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（遠隔地域1地点、田園地域2地点）でオゾンを観測しており、2002～2005年におけるオゾン濃度の経年変動は概ね横ばいであり、季節変動については春と秋に濃度が高く、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⁽⁹⁾。
- ・ 韓国の都市域(ソウル)における1990～1996年のオゾン濃度の経年変動を見ると、日最高1時間値の平均及び8時間値の最高値の平均は緩やかな増加傾向を示しており、それぞれ1.6%/年、2.4%/年の割合で増加している。また、オゾン濃度の季節変動を見ると、5～6月に高くなっており、8～10月にセカンドピークが見られる。7月は濃度が低くなっているが、これは韓国で7月に起きる雨季によるものと思われる⁽⁷⁾。
- ・ 香港の都市域における1984～2000年のオゾン濃度を見ると、年平均、75、95、99パーセンタイルとも同様の傾向を示しており、1984～1989年までは減少、1989～2000年は増加傾向を示しており、1989年に比べ2000年のオゾン濃度は2倍程度になっている⁽³⁾。季節変動について、ルーラル及び都市域の観測地点の結果を見ると、秋季にもっとも高くなっており、夏季に低くなっていた。また、春季にも比較的小さなピークが見られている⁽⁴⁾。
- ・ 台湾の大都市圏である台北における10年間（1994～2003年）のオゾン濃度の傾向を見ると、日最高1時間値の年平均は10年間で26%増加しており、一方で前駆物質であるNO_x及びNMHCは明らかに減少しており、NO_xは同期間で32%の減少、NMHCは1994～2002年の間に20%減少している。季節変動については春季に高くなり、夏季に低くなる傾向を示している⁽⁶⁾。
- ・ 2003～2005年の春季から夏季における中国の3地点（泰山(Taishan)、華山(Huashan)、黄山(Huangshan)）の観測結果を見ると、5～6月の初夏においては80～100ppbに達しており、最高値は120ppbを超えている。中国の華北平原におけるオゾン濃度が、広域的に日本の都市域における光化学オキシダントのレベルに匹敵している⁽⁵⁾。

【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くなっている。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こと分かる^{(1),(2),(8)}。

< 1 . 3 . 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, vol. 43, pp. 21-27, 2007
- (2) 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
- (3) Chan C.Y., L.Y. Chan and J.M. Harris.; Urban and Background Ozone Trend in 1984-1999 at Subtropical Hong Kong, South China, J. Ozone: Science & Engineering, vol. 25, pp. 513-522, 2004
- (4) Chan L.Y., Chan C.Y. and Qin Y.; Surface Ozone Pattern in Hong Kong, Journal of Applied Meteorology, vol. 37, no. 10, pp. 2003-2016, 1998
- (5) 秋元肇; 2-1.対流圏オゾンの濃度変動プロセスの解明と温暖化影響に関する研究,新世紀重点研究創生プラン Research Revolution 2002 人・自然・地球共生プロジェクト,平成 17 年度研究成果の詳細報告,
<http://www-aos.eps.s.u-tokyo.ac.jp/kyosei/member/pdf/17-2-1akimoto.pdf>
- (6) Chou, Charles C.K., Shaw C. Liu, C.Y. Lin, C.J. Shiu, K.H. Chang, ; The trend of surface ozone in Taipei, Taiwan, and its causes: Implications for ozone control strategies, Atmospheric Environment, vol. 40, pp. 3898-3908, 2006
- (7) Jo, W. K., I. H. Yoon, and C. W. Nam, ; Analysis of air pollution in two major Korean cities: trends, seasonal variations, daily 1 - hour maximum versus other hour-based concentrations, and standard exceedances, Environmental Pollution, vol. 110, pp. 11-18, 2000
- (8) Yamaji, K., Ohara, T., Uno, I., H., Tanimoto, Kurokawa, and H. Akimoto; Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, Atmospheric Environment, vol. 40, no. 10, pp. 1856-1868, 2006
- (9) EANET ; <http://www.eanet.cc/jpn/>

1.3.3 半球規模での状況

【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、19 世紀末の中央ヨーロッパにおける対流圏オゾンの濃度は平均で 10ppb 程度であったとされており⁽⁷⁾、最近の遠隔地域でのオゾン濃度は工業化以前の 2 倍以上に増加しており、ヨーロッパにおいては 1960 年～1970 年代にもっとも増加が顕著である⁽¹⁾。
- ・ ヨーロッパにおける近年の傾向を見ると、1990 年代に前駆物質の排出が減少したことから、過去 10～15 年にかけてピークオゾンは減少傾向を示している⁽³⁾。
- ・ また、アメリカにおける近年（1980～2006 年）の濃度変動の傾向を見ると、8 時間平均値の年間上位 4 番目の値では減少傾向を示しており、1980 年から 2006 年で 21%の減少を示している⁽²⁾。
- ・ ピークオゾンが減少する一方で、過去 20 年間、ヨーロッパの西海岸及び北アメリカではバックグラウンドオゾンが増加している⁽⁴⁾。アイルランドの Mace Head では 1987～2003 年の間に全ての季節で増加しており、増加割合は 0.5ppb/年であった。また、これらの増加傾向は冬にもっとも大きく、夏にもっとも小さくなっている⁽⁵⁾。
- ・ ドイツの Zugspitze はヨーロッパで大きな変動を示している観測地点の一つであり、 $12.6 \pm 0.8\%$ /10 年の増加を示しているが、第 1 期間「1978～1984 年」、第 2 期間「1985～1994 年」、第 3 期間「1995～2004 年」ごとに月平均のオゾン濃度の変化を見ると、第 1～2 期間の間には春季及び夏季に濃度が増加したが、次の期間の差では夏の増加が小さくなっており、これらの傾向の違いは前駆物質の変化の影響が示唆される⁽⁶⁾。
- ・ 北半球中緯度の対流圏オゾン量は近年頭打ちになったり、場合によっては低下しているように見えるという報告⁽⁶⁾もあり、オゾン濃度のトレンドは地域や季節、高濃度部分に着目するかベースに着目するかにより大きく異なっている。

【半球規模でのオゾン濃度の季節変動】

- ・ 衛星観測(TOMS 及び SAGE)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⁽⁸⁾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⁽¹⁾。
- ・ 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 Loa 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⁽⁹⁾。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⁽¹⁾。

- ・ スイスの Jungfrau joch やドイツの Zugspitze のような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の地点においては、夏季のブロードなピークが観測されている^{(6),(9)}。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⁽¹⁾。
- ・ 米国、西部大西洋、日本における高度別オゾンの季節変化⁽¹⁰⁾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。これは、この高度は自由対流圏に入っているにしても境界層の上端に近いので、境界層大気との混合の影響が強く見られるためである。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⁽¹⁾。
 - 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⁽¹⁾。

< 1 . 3 . 3 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) EPA; National Trends in Ozone levels, <http://www.epa.gov/airtrends/ozone.html>, 2007
- (3) J. E. Jonson, D. Simpson, H. Fagerli, and S. Solberg; Can we explain the trends in European ozone levels?, Atmospheric Chemistry and Physics, vol. 6, pp. 51-66, 2006
- (4) TF HTAP; Hemispheric Transport of Air Pollutants 2007: An Interim Report of the Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollutants of the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Draft TF HTAP Interim Report, August 2007
- (5) P.G. Simmonds, R.G. Derwent, A.L. Manning, G. Sp; Significant growth in surface ozone at Mace Head, Ireland, 1987-2003, Atmospheric Environment, vol. 38, pp. 4769-4778, 2004
- (6) Oltmans, S. J., A.S. Lefohn, J.M. Harris, I. Galbally, H.E. Scheel, G. Bodeker, E. Brunke, H. Claude, D. arasick, B.J. Johnson, P. Simmonds, D. Shadwick, K. Anlauf, K. Hayden, F. Schmidlin, Fujimoto, T., Akagi, K., C. Meyer, S. Nichol, J. Davies, A. Redondas, E. Cueva; Long-term changes in tropospheric ozone, Atmospheric Environment, vol. 40, pp. 3156-3173, 2006
- (7) Volz, A., D. Kley; Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century, Nature, vol. 332, pp. 240-242, 1988
- (8) Fishman, J., V.G. Brackett; The climatological distribution of tropospheric ozone derived from satellite measurements using version 7 Total Ozone Mapping Spectrometer and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data sets, Journal of Geophysical Research, vol. 102, pp. 19275-19278, 1997
- (9) Lelieveld, J., F.J. Dentener; What controls tropospheric ozone?, Journal of

Geophysical Research, vol. 105, pp. 3531-3551, 2000

- (10) Logan. J. A; An analysis of ozonesonde data for the troposphere: Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, Journal of Geophysical Research, vol. 104, pp. 16445-16149, 1999

2. 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

2.1 概要

2.2 ヨーロッパ、東アジア等から排出される大気汚染物質との関係

2.2.1 オゾン前駆物質の排出量

【NO_x及びNMVOCの排出量の変化】

- 産業革命以降の化石燃料の大量消費に伴い、NO_x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（アメリカ+カナダ）のNO_x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_x排出量が減少傾向に転じた⁽⁴⁾。また、アメリカにおいても2000年頃から大きな減少傾向を示している^{(2),(3)}。一方、70年代のアジア大陸のNO_x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⁽¹⁾。
- 1980~2003年の地域別NO_x排出量の経年変化を見ると、アジア全体のNO_x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。また、NMVOCについてもアジアでは大きく増加しており、アジア全体で2.1倍、中国では2.5倍増加している⁽⁵⁾。
- 対流圏観測衛星GOMEによるNO₂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NO₂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^{(6),(7)}。

【CO及びCH₄の影響】

- CO及びCH₄はOHラジカルの主要な消失源であり⁽⁹⁾、特に清浄な対流圏大気中ではOHラジカルの80%はCOと反応している⁽¹⁰⁾。このため、地球規模でCOを削減することはOHラジカルの増加を促すため、OHラジカルの増加によりオゾンの前駆物質であるCH₄が減少し、オゾン濃度の減少へとつながる。CH₄を全球的に20%削減することにより、約1ppbの地表オゾンの減少へとつながるとされているが⁽⁸⁾、アジアにおけるCO排出量推計を見ると、2000年以降は上昇傾向を示しており⁽⁵⁾、CH₄濃度、オゾン濃度への影響が懸念される。

【アジアの排出量の将来シナリオ】

- 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_x排出量は25.1Tg(2000年)から36.1Tg(2020年)まで増大する⁽⁵⁾。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⁽¹⁾。

< 2 . 2 . 1 の参考文献 >

- (1) 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, vol. 43, pp. 28-35, 2007
- (2) EPA; INVENTORY OF U.S. GREENHOUSE GAS EMISSIONS AND SINKS: 1990-2005, April 2007, <http://www.epa.gov/climatechange/emissions/usinventoryreport.html>
- (3) EPA; Air Emissions Summary Through 2005, http://www.epa.gov/air/airtrends/2006/emissions_summary_2005.html
- (4) Akimoto, H.; Global Air Quality and Pollution, Science, vol. 302, pp. 1716-1719, 2003
- (5) Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., X. Yan, and Hayasaka, T.; An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, Atmospheric Chemistry and Physics, vol. 7, pp. 4419-4444, 2007
- (6) 海洋研究開発機構プレスリリース; 中国における NO₂ 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) Irie, H., Sudo, K., Akimoto, H., A. Richter, J.P. Burrows, T. Wagner, M. Wenig, S. Beirle, Kondo, Y., V.P. Sinyakov, and F. Goutail; Evaluation of long-term tropospheric NO₂ data obtained by GOME over East Asia in 1996-2002, Geophysical Research Letters, vol. 32, L11810 doi:10.1029/2005GL022770, 2005
- (8) TF HTAP; Hemispheric Transport of Air Pollutants 2007: An Interim Report of the Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollutants of the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Draft TF HTAP Interim Report, August 2007
- (9) ジェイコブ D.J. (著), 近藤豊 (訳); 大気化学入門, 東京大学出版会, 2002
- (10) 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

2.2.2 東アジアからの影響

【東アジアから輸送される汚染気塊とオゾン濃度の関係】

- ・ 1970～1985年及び1986年～2002年の後方流跡線による解析結果からは、東アジア大陸からつくば及び鹿児島に輸送される気塊中のオゾンは、前者には春季に濃度が最も高くなっていたが、後者には夏季に濃度が最大となっている。前駆物質の排出量増加によって、紫外線の強い夏季に光化学反応が活発に行われオゾン生成がより多く起こるようになったことが示唆される⁽⁷⁾。
- ・ 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平均24ppb(対馬海峡を通過した気塊)、35ppb(国内等通過のやや汚染された気塊)であり、大陸性気塊に比べるとずっと低いが、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^{(1)・(6)}。
- ・ 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^{(1)・(4)・(6)}。
- ・ 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⁽¹⁾。

【東アジアからのオゾン濃度の寄与量】

- ・ 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^{(5)・(8)}。
- ・ 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⁽²⁾。

- ・ 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、中国の境界層内で生成したオゾンは春季に最も影響が大きく3月には15ppbに達し、夏季には中国の境界層内で生成したオゾンが5～10ppbに減少する一方でアジアの自由対流圏で生成したオゾンの影響が増加し、これらを合わせると15ppbに達することが分かった。また、3月にはタイの境界層内で生成されたオゾンも5ppb程度の流入が見られており、バイオマスバーニングの影響を受けていることが考えられる⁽³⁾。

< 2 . 2 . 2 の参考文献 >

- (1) 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，vol. 39, pp. 90-96, 2003
- (2) Akimoto, H., Yoshitomi, M., O. Wild ; Contribution to surface ozone in Japan by different sources, inter- and intra-continental transport, stratospheric intrusion, and in situ formation, Joint CACGP/IGAC/WMO Symposium, Atmospheric Chemistry at the Interfaces 2006, 17-23 September 2006, Cape Town, South Africa
- (3) Sudo, K., and Akimoto, H.; Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, Journal of Geophysical Research, vol. 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007
- (4) Pochanart, P., Akimoto, H., Kinjo, Y. and Tanimoto, H. ; Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of exceedances of its critical level in Japan, Atmospheric Environment, vol. 36, pp. 4235-4250, 2002
- (5) Tanimoto, H., Sawa, Y., Matsueda, H., Uno, I., Ohara, T., Yamaji, K., Kurokawa, J. and Yonemura, S.; Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, Geophysical Research letters, vol. 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514, 2005
- (6) Pochanart, P., Hirokawa, J., Kajii, Y., Akimoto, H. and Nakao, M.; The influence of regional scale anthropogenic activity in Northeast Asia on seasonal variations of surface ozone and carbon monoxide observed at Oki, Japan, Journal of Geophysical Research, vol. 104, pp. 3621-3631, 1999
- (7) Naja, M., and Akimoto, H.; Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data over Japan, Journal of Geophysical Research, vol. 109, D21306, doi:10.1029/2004JD004687, 2004
- (8) 環境省；東アジアの大気汚染が日本のオゾンに与える影響を定量的に解明 バックグラウンドオゾンの季節変化と緯度依存性 ，地球環境研究総合推進費の研究成果に関する報道発表,2005

2.2.3 半球規模での状況

【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⁽²⁾。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⁽¹⁾。
- ・ これまでに発表された研究でヨーロッパ及び北米から東アジアへの増加寄与を見ると数 ppb の寄与があり、日本の環境基準に比べて無視し得ない量であることがわかる⁽⁸⁾。
- ・ 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、例えば鹿児島県の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⁽³⁾。
- ・ 全球化学輸送モデルによる、八方におけるヨーロッパ及び北米のオゾン輸送量の影響を見ると、ヨーロッパからの影響は4月に最大となり2～3ppb程度、北米からは2～3月頃に最大となり、2～3ppb程度であった⁽⁴⁾。
- ・ 日本の遠隔地域である八方、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、日本のバックグラウンド濃度はヨーロッパに比べて約5～10ppb高い。この差のうち約4割(2～5ppb)は東アジアにおけるシベリア高気圧及び低気圧の周囲で成層圏が下降することによる影響であり、残りはユーラシアの排出源又は自由対流圏からの下降による影響を反映している⁽⁴⁾。
- ・ 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⁽⁵⁾、これに対する成層圏オゾン降下、大陸間輸送(ヨーロッパ、北米)、大陸内輸送(東アジア)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ったヨーロッパ、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、その説明は今後の研究に残されている^{(1),(3),(6),(7)}。

< 2 . 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, 第 41 巻, pp. A1-A8, 2006
- (2) Wild, O., and Akimoto H.; Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM, Journal of Geophysical Research, vol. 106(D21), pp. 27729-27744, 2001
- (3) Sudo, K., and Akimoto, H.; Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, Journal of Geophysical Research, vol. 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007
- (4) Wild, O., P. Pochanart, and Akimoto, H.; Trans-Eurasian Transport of Ozone and its Precursors, Journal of Geophysical Research, vol. 109, D11302, doi:10.1029/2003JD004501, 2004
- (5) Pochanart, P., Akimoto, H., Kinjo, Y., and Tanimoto, H.; Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of exceedances of its critical level in Japan, Atmospheric Environment, vol. 36, pp. 4235-4250, 2002
- (6) Tanimoto, H., Sawa, Y., Matsueda, H., Uno, I., Ohara, T., Yamaji, K., Kurokawa, J. and Yonemura, S.; Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, Geophysical Research letters, vol. 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514, 2005
- (7) Yamaji, K., Ohara, T., Uno, I., Tanimoto, H., Kurokawa, J. and Akimoto, H.; Analysis of the seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan? , Atmospheric Environment, vol. 40, no. 10, pp. 1856-1868, 2006
- (8) TF HTAP; Hemispheric Transport of Air Pollutants 2007: An Interim Report of the Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollutants of the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution, Draft TF HTAP Interim Report, August 2007

2.3 光化学オキシダントの前駆物質（NO_x及びVOC）との関係

【光化学オキシダント濃度と前駆物質の濃度比の関係】

- ・ 光化学オキシダントの生成量は、前駆体であるNO_x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_x濃度に敏感に応答する領域（NO_x律速領域）、HC濃度に敏感に応答する領域（HC律速領域）があり⁽¹⁾、有効なオゾン汚染の対策を立てるためには、オゾンの生成がどのような化学的な律速領域で起きているかを知る必要がある⁽⁶⁾。
- ・ 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、この結果からは都心部ではVOC律速領域、郊外ではNO_x律速領域としている^{(3),(8)}。また、2004年夏季に行われたHO₂ラジカルを用いたオゾン生成速度の解析においても、東京都の日中はVOC律速であることが示唆された⁽¹²⁾。
- ・ 関東地域におけるNO_xとNMHCの発生源強度の変化とオゾン最高濃度との関係及び日最高濃度出現時刻の関係を見ると、NO_x排出量の減少はオゾン生成ポテンシャルを減少させる一方で生成速度を増加させ、比較的短時間で最高濃度に達するために、発生源で近いところに高濃度が出現する。NMHC排出量の減少はオゾン生成速度を減少させるため、最高濃度が出現する時刻が遅くなり、発生源から遠い地域まで移流した後、高濃度が出現するようになる^{(2),(7)}。
- ・ NMHC/NO_x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⁽²⁾。
- ・ 東京都の報告では、NMHC/NO_x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、濃度比が大きいく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_x濃度の低下に加え、NMHC濃度をNO_x濃度の低下率以上に低減させていくことが必要である⁽²⁾。
- ・ 全国におけるオゾン前駆物質（NO_x、VOC）の排出量推定結果を見ると、NO_xでは固定発生源と移動発生源の自動車と同程度で主たる発生源になっており、VOCでは固定発生源と植物起源発生源（BVOC）が同程度で主たる発生源となっている。東京都及び大阪府におけるオゾン前駆物質の単位面積あたりの排出強度を見ると、NO_x排出強度は同程度であるが、VOCの排出強度は大阪府の方が一割程度高い⁽⁸⁾。

【VOCのオゾン生成能について】

- ・ 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⁽²⁾。

- ・ 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
の夏季調査の結果では、アルデヒド類は24時間平均のO₃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⁽⁴⁾。
- ・ これまでの観測やモデル研究によれば、関東地域では、閉鎖的な大気場が継続する
場合には、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^{(5),(10),(11)}。
- ・ 東京都における平成15~16年度平均値のVOC濃度にMIR(オゾン生成能)を
乗ずることにより求めたオゾンの量を見ると、大気濃度が高いトルエンが最も高く、
その他、プロピレン、1-ブテン、m+p-キシレン、1,2,4-トリメチルベンゼン、ホル
ムアルデヒド、アセトアルデヒドなどが高くなっていた⁽¹³⁾。
- ・ 東京都、大阪府ともにBVOCは全国に比べて非常に小さいが、BVOCは一般に
イソブレンなどOHラジカルとの反応性が高いものが多く含まれているため、排出
量としては小さくてもオゾン生成には重要な役割を果たしている可能性がある⁽⁸⁾。
また、OHラジカル濃度の観測とモデル計算の比較からは、モデルの再現性を良く
するには2ppb以上のイソブレンを含めることが必要であることが分かり、BVOC
観測の重要性が示されている⁽⁹⁾。

< 2.3の参考文献 >

- (1) 秋元肇,河村公隆,中澤高,鷺田伸明編;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
- (6) ジェイコブD.J.(著),近藤豊(訳);大気化学入門,東京大学出版会,2002

- (7) 国立環境研究所；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, 国立環境研究所研究報告第 26 号 (S R -26-1998)
- (8) 産業技術総合研究所; 第 4 章常時監視測定局データを用いた大気中濃度評価, 詳細リスク評価書「オキシダント(オゾン)」, 2007
- (9) Eisele, F. L., G. H. Mount, F. C. Fehsenfeld, J. Harder, E. Marovich, D. D. Parrish, J. Roberts, M. Trainer, and D. Tanner ; Intercomparison of tropospheric OH and ancillary trace gas measurements at Fritz Peak Observatory, Colorado, Journal of Geophysical Research, vol. 99(D9), no. 18, pp. 6057-626, 1994
- (10) Wakamatsu, S., Uno, I. and Suzuki, M.; A field study of photochemical smog formation under stagnant meteorological condition, Atmospheric Environment, vol. 24A, pp. 1037-1050, 1990
- (11) Wakamatsu, S., Uno, I. and Ohara, T. and Kenneth L. Schere ; A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in the Tokyo area, Atmospheric Environment, vol. 33, pp. 3097-3108, 1999
- (12) 金谷有剛, 秋元肇, 横内陽子, 谷本浩志, 小池真, 福田真人, 竹川暢之, 駒崎雄一, 近藤豊; 東京におけるオキシダント生成速度・レジーム推定: OH, HO₂ ラジカル濃度実測から, 第 16 回大気化学シンポジウム研究集会講演集, pp. 42-45, 2006
- (13) 星純也, 天野冴子, 大橋毅, 佐々木裕子, 芳住登紀子; 大気中 VOC モニタリングデータを用いた排出源およびオゾン生成能の評価, 東京都環境科学研究所年報 2005, pp. 93-101, 2005

2.4 気象状況の変化との関係

【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_x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⁽¹⁾。
- ・ 紫外線量が増加すると光化学反応が進みO_x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⁽¹⁾。
- ・ 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⁽²⁾。
- ・ 1990年頃（1989～1991年）と2000年頃（1999～2001年）の天気図を用いた判定を行った結果、関東地方では夏季に高気圧圏内に入る日が増加したことが分かっており、好天日の増加は平均気温の上昇や期間積算紫外線量の増加につながる可能性もあり、光化学オキシダント高濃度の増加要因の一つに数え得る^{(3),(4)}。

< 2.4の参考文献 >

- (1) 大原利眞；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，vol. 39，pp. 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) 吉門洋；近年の光化学オキシダント濃度変化の一要因，大気環境学会誌，第39巻，pp. 188-199，2004
- (4) 産業技術総合研究所；第 3章 常時監視測定局データを用いた大気中濃度評価，詳細リスク評価書「オキシダント（オゾン）」，2007

2.5 ヒートアイランド現象との関係

【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⁽¹⁾。
- ・ 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現在のところ明らかではない⁽²⁾。

< 2.5の参考文献 >

- (1) 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)
- (2) 飯村文成, 飯田信行, 山川和彦, 田村義男, 若松伸司, 大原利真；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

2.6 成層圏オゾン降下との関係

【成層圏オゾンの地上濃度への影響について】

- 成層圏からのオゾンの沈降プロセスについての観測研究が行われ、春季におけるメカニズムが明らかにされている。低気圧に伴う寒冷前線に沿って、圏界面から対流圏上層に輸送された成層圏オゾンは、引き続き発生する移動性高気圧の下降流により、地上へと輸送されるが、この時の下降流の強さや、局所的な気温逆転層の強さ、移動性高気圧の東進速度が、地上でのオゾン濃度や高濃度出現の地域を決める。下降流が弱い場合や、地表付近に逆転層が形成されている場合には、地上に達しないこともある。また、地域的には、ジェット気流の動きと密接な関係があり、ジェット気流の中心軸が南下する場合は、日本の南の地域においても、地上で成層圏起源のオゾンが観測される場合がある。成層圏オゾンが地上で観測される濃度は最大で80ppb程度である⁽¹⁾。

【成層圏オゾン降下の季節変動】

- オゾンゾンデによるオゾン鉛直分布（1989～2005年の月ごとの平均）の観測結果から、成層圏上部対流圏のオゾン輸送の季節変動を見るために70～80ppbの濃度が最も低い層に降りている月に注目すると、つくば、鹿児島では5～6月頃に400～500hPa付近に降りてきており、春季から夏季にかけて成層圏から対流圏上層へのオゾン流入が見られた⁽²⁾。また、全球化学輸送モデルによる解析結果では、鹿児島の境界層のオゾンに対し成層圏から輸送されたオゾン濃度は4月頃に最も高く、7月頃に最も低くなる変動を示しており、4月の月平均値で10ppb程度であった⁽⁴⁾。

【成層圏オゾン降下と近年のオゾン濃度上昇の関係】

- 1990～2003年の期間における後方流跡線の解析結果からは、高層（5000m以上）からの気塊の降下頻度は増えておらず、成層圏オゾンの降下が最近のO₃上昇傾向の原因であることを支持する結果は得られなかった⁽³⁾。また、つくばにおける1970年以降のオゾンゾンデの観測結果(700hPa)を見ても、近年は横ばい傾向である⁽²⁾。

< 2.6の参考文献 >

- Wakamatsu, S., Uno, I., Ueda, H., Uehara, K., Tateishi, H.; Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposphere, Atmospheric Environment, vol. 23, pp. 1815-1826, 1989
- 気象庁; 2.6 対流圏オゾン, 大気・海洋環境観測報告第7号, 2005
- 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)
- Sudo, K., and Akimoto, H.; Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, Journal of Geophysical Research, vol. 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992, 2007

2.7 高濃度日における各要因の解析

- ・ 1996年4月の八方における観測結果及び化学輸送モデルの計算結果を見ると、北米及びヨーロッパの影響は変動が小さいが、東アジア及び日本由来の影響は変動が大きく、影響要因の寄与割合では成層圏、東アジア及び日本由来の影響が同程度の日もあれば(4月7日)、日本由来の影響が非常に大きい日(4月25日頃)も存在している。⁽¹⁾

< 2.7の参考文献 >

- (1) Wild, O., P. Pochanart, and Akimoto, H.; Trans-Eurasian Transport of Ozone and its Precursors, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D11302, doi:10.1029/2003JD004501, 2004

(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。