件や関東地方等で濃度のピーク時刻が内陸側に行くにつれ遅れがみられたこ 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(国立環境研究所記者発表,2007)。(図 1-13)



図 1-12 平成 19 年 5 月 8 日、9 日における全国のオキシダント濃度の分布 (速報値)(国立環 境研究所記者発表,2007)



図 1-13 化学物質輸送モデルで計算されたオゾンの平均濃度(地上~450m)(国立環境研究所 記者発表,2007)

(2)夏季の関東における高濃度事例

内陸部で高濃度となった事例 < 平成 17 年 9 月 > 平成 17 年 (2005 年) 9 月 2 日、埼玉県で光化学オキシダント警報が発令 されたほか、東京湾沿岸部や栃木県などの内陸部でも光化学オキシダント濃度が高くなり、同年における被害者総数の約6割の被害届があった。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で、東京湾、相模湾からの海風と陸風などによる収束線が、千葉県西部、神奈川県東部及び東京都西部~埼玉県南部にそれぞれ形成され、関東南部では光化学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。光化学オキシダント最高濃度は、15時に千葉県野田市桐ヶ作で0.249ppmを観測した(環境省,2006a)。(図1-14(左))

沿岸部で高濃度となった事例 < 平成 18 年 7 月 >

平成18年(2006年)7月14日、神奈川県を中心に沿岸部で光化学オキシ ダント濃度が高くなり、同年における被害者総数の約7割の被害届があった。 この日は下層大気が安定で、朝9時に光化学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で存在 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 を超えたところが存在した。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 の光化学オキシダントが観測された。光化学オキシダント最高濃度は、13時 に東京都品川区豊町で0.210ppmを観測した(環境省,2007a)。(図1-14(右))

収束線

海と陸の比熱には差があるので、日中には陸域が海域よりも気温が高くなり、これによって陸 域での気圧が海上よりも低くなる。この気圧差が原因で日中には海からの冷たい風が内陸に進入 する。これが海風である。夜間は逆に陸域での気温の低下が海域よりも顕著なので、気圧差は日 中と逆になり、陸域の冷たい風が海に向かって風が吹く。これが陸風である。海風、陸風ともに、 その先端部分では渦状の循環流ができるので、この中で大気汚染物質が蓄積され外部に拡散しに くくなり濃度が上昇する。特に、海風が進入する時には陸風との間に明瞭な風の収束域(地上の 風系がぶつかり合っている状態を収束といい、収束が現れる場所を収束域という。収束域では、 地上風は弱風となり、大気汚染物質の水平方向への移流と拡散は抑制される。一方、収束域の中 心付近では上昇流が発生し、大気汚染物質が循環・滞留する)が出現することが多い。この収束 域は異なる海風系(東京湾海風や相模湾海風、鹿島灘海風など)の間にも発生する。収束域は線 状に出現し、この線を収束線という。



図 1-14 光化学オキシダント予報区分別最高濃度分布(左:平成 17年(2005年)9月2日15 時、右:平成18年(2006年)7月14日15時)(環境省,2006a,環境省,2007a)

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

東アジアにおいては、EANET 参加国の一部においてオゾンが観測されて いる(EANET,2007)。

世界規模の観測としては、WMO が GAW 計画に基づき、オゾン地上固定 モニタリング地点として世界中の 88 地点(2007 年 10 月現在)の観測網を統 合している(WMO,2007,温室効果ガス世界資料センター,2007)。

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長距離越境大気汚染条約加盟国で共有するために EMEP が設立 され、157 地点のオゾン観測地点(2007 年 10 月現在)が登録されている (EMEP,2007)。

これらの地表オゾンの観測やオゾンゾンデによる観測に加え、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いる(谷本,2007)。

1.3.2 東アジアの状況

EANET の枠組みにおいて、韓国は3地点(遠隔地域1地点及び田園地域2地点)でオゾンを測定しており、2002~2005年の間では、春季と秋季にオゾン濃度が高く、夏季に低くなる傾向を示している。また、ロシアは1地点(遠隔地域)で測定しており、春季に濃度が高くなる傾向を示している。(図1-15)



図 1-15 韓国及びロシアの遠隔地域または田園地域におけるオゾン濃度の月別平均値(2002 ~ 2005 年の平均)(EANET 公開データより作成)

ソウル(都市域)では、1990~1996年における日最高1時間値の月平均オ ゾン濃度が5~6月に高くなっており、8~10月にセカンドピークが現れてい た(Jo et al.,2000)。 東アジアの中でも亜熱帯に属する台湾の台北(都市域)では、オゾン濃度 の日最高1時間値の年平均が10年間(1994~2003年)で3割増加している。 また、季節変動は春季に高くなり、夏季に低くなる傾向を示していた(Chou et al., 2006)。

中国では、春季から夏季における華北平原の3地点(泰山、華山、黄山) のオゾン濃度は、5~6月の初夏に80~100ppb、最高値は120ppbを超える など、日本の都市域における光化学オキシダント濃度レベルに匹敵している (秋元,人・自然・地球共生プロジェクト)。

領域化学輸送モデルによって再現された東アジアの境界層のオゾン濃度 (2002 年)は、冬季と比較して春季や夏季に上昇している(Yamaji et al.,2006a)。夏季についてはアジア大陸で濃度が高くなっているが、日本付近 では太平洋からの南風が強くオゾン濃度が非常に低い気団の影響を受けるこ とにより、アジア大陸からの影響が小さくなるため、春季に最高濃度となっ ている(Tanimoto et al.,2005,谷本,2007)。(図 1-16)

ただし、このような東アジアなどの領域スケールでみた場合と異なり、都市スケールでは、前述のとおり、日本においても大都市地域で光化学反応が 活発な夏季に光化学オキシダント濃度が高濃度となることに注意する必要が ある。



図 1-16 領域化学輸送モデルによる境界層オゾンの2ヶ月平均値(Yamaji et al.,2006a)

1.3.3 半球規模での状況

北半球(中高緯度)の遠隔地域における地表オゾン濃度は、19世紀末の工 業化以前は10ppb程度であったとされている(Volz and Kley,1988)。この観測 値については精度に疑問が呈されているが、仮にこれを20ppbとしても、近 年のオゾン濃度は40~50ppbと工業化以前に比べ2倍以上に増加している (Lamarque et al.,2005, Vingarzan,2004,秋元ほか編,2002)。(図1-17)



図 1-17 北半球中緯度における春季地表付近のオゾン濃度変化(秋元ほか編,2002)

ヨーロッパや北米では、NO_xや NMHC などのオゾン前駆物質の排出が減 少したことからピークオゾンの濃度は減少しているが(図 1-18) 一方で、 アイルランドの MaceHead やドイツの Zugspitze、北米西海岸などのバック グラウンドにおいては、オゾン濃度は増加傾向を示している(Jaffe et al.,2003, Jonson et al.,2006, Simmonds et al.,2004, TF HTAP,2007)。(図 1-19) その増加幅は、MaceHead や Zugspitze では、近年は夏季に小さく、 冬季に大きくなっている(Oltmans et al.,2006)。(図 1-20)



図 1-18 米国における 1980~2006 年のオゾン濃度の変動(8時間平均値の年間上位4番目 の値)(EPA National Trends in Ozone levels より)



図 1-19 バックグラウンドオゾン濃度の変動 (左: Mace Head (Simmonds et al.,2004) 右:北米西海岸 (春季平均) (Jaffe et al.,2003))



図 1-20 Zugspitze (ドイツ)における月平均の地表オゾン(第一期間:1978~1984年の平 均、第二期間:1985~1994年の平均、第三期間:1995~2004年の平均)(Oltmans et al.,2006)

地表オゾンの観測結果によると、北半球の中高緯度の遠隔地域(アイルランドの MaceHead やハワイの Mauna Loa 等)では、春季に最大、夏季に最小となる傾向が広く観測されている(Lelieveld and Dentener,2000, Monks,2000)。一方で、スイスの Jungfraujoch やドイツの Zugspitze のようなヨーロッパ大陸内に位置する地点においては、夏季のブロードなピークが観測されている(Lelieveld and Dentener,2000, Oltmans et al.,2006)。(図1-21)



図 1-21 Mace Head (左上) Mauna Loa (右上) Jungfraujoch (左下)におけるオゾン の観測値(黒線)と計算値(赤線) 下の実線はモデルで得られた成層圏起源オゾン、破線は 対流圏内で生成されたオゾン濃度(Lelieveld and Dentener,2000)

衛星観測による対流圏オゾンのカラム密度の全球分布は、北半球(中高緯度)の夏季に最大となり、春季及び秋季には北米東部や北西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(Fishman and Brackett,1997,秋元ほか編,2002)。(図1-22)



図 1-22 衛星観測による季節別オゾン全球分布(Fishman and Brackett, 1997)



北半球中高緯度の対流圏内で高度別のオゾン濃度の季節変化は、高度2km 程度(800hPa)までは地表と同様の傾向にあるが、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、濃度のピークが春季へシフトしている (Logan,1999,秋元ほか編,2002)。(図1-23)



図 1-23 米国、西部大西洋、日本における高度別オゾンの季節変化(Boulder:米国コロラ ド州(米国西側) Wallopsis(Wallops Island):米国バージニア州(米国東側) Palestine: 米国テキサス州(米国中央) Bermuda:バミューダ(西部大西洋) Kennedy:29°N、31° W、Sapporo:札幌、tateno:館野、kagoshima:鹿児島、naha:那覇(Logan,1999,秋元 ほか編,2002)

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等

2.1 概要

我が国の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等に 関する知見を整理した。その概要は以下のとおりである。

北半球においては、我が国を含め、対流圏オゾンのバックグラウンド濃度が 上昇する傾向にある[1.2.5、図1-10、1.3.3、図1-19]

NOx(オゾンの前駆物質の一つ)の排出量については、北米、ヨーロッパ及 び我が国においては近年減少しつつあるが、アジア地域においては、1980年以 降の20年間に2.8倍に増加したとの推計結果がある[2.2.1、図2-1、図2-2]

また、我が国の光化学オキシダント濃度については、例えば、広域で高濃度 となった 2007 年 5 月 7~9 日の状況について中国の NO_X 排出量が現状の約半分 (1992 年当時のレベル)であったとしてシミュレーションを行った結果、この 15 年間の排出量の増加によって我が国に影響するオゾン濃度が 5~10ppb 程度 (3 日間平均)上昇することが示されたとの報告があり、アジア地域における越 境輸送の影響も近年増大していると考えられる [2.2.2、図 2-6]。

こうしたことから、近年の北半球のバックグラウンドオゾン濃度の上昇及び アジア地域から排出される NO_x等の大幅な増加に伴うアジア地域における大陸 内越境輸送の影響の増大が、我が国の光化学オキシダント濃度の長期的上昇ト レンドの要因の一つになっていると推定される。

アジア大陸から我が国への影響については、領域化学輸送モデルによる月平 均レベルでの再現シミュレーション、後方流跡線解析等によって、我が国を通 過する気塊ルートの違い等により、地域的・季節的に、また日によって大きく 変動することが明らかになっている[2.2.2、図 2-10、2.2.3、2.6]

月平均値レベルでのアジア大陸からの寄与の一例として、領域化学輸送モデ ルの再現結果によれば、我が国のオゾン濃度に対する東アジアから影響は、4月 の月平均で 5~10ppb 程度、5月は 10~20ppb 程度の寄与がみられる [2.2.2、 図 2-9]。この例では、本州付近のオゾン濃度に対する東アジアからの影響は、 概ね 10~20 数%程度と考えられる。

その他の要因として、1990年以降紫外線量が増加しており、これが光化学オ キシダント濃度の上昇トレンドの一因になっている可能性は否定できないが、 その定量的評価はなされていない[2.4]

また、成層圏オゾンの降下については、対流圏オゾンの季節変化や地域による濃度差に影響するものの、対流圏オゾン年平均濃度の長期的上昇に及ぼす影響はみられないとされている[2.5]。

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

ヨーロッパ及び北米大陸における NOx の排出量は、1980 年代以降概ね横 ばいとなった。さらに、ヨーロッパ大陸では 90 年代から減少傾向に転じ (Akimoto,2003)、米国では 2000 年頃から減少傾向が顕著にみられるように なった(EPA,2007)。

一方、アジア大陸の NO_x 排出量は、70 年代には少なかったが、その後の 急激な増加により、90 年代半ばにはヨーロッパ及び北米両大陸の排出量を凌 ぐレベルに至っており(Akimoto,2003,山地・秋元,2007)、1980 年 ~ 2003 年 の期間に、アジア全体の NO_x 排出量は 2.8 倍(中国は 3.8 倍)に増加してい る。また、非メタン揮発性有機化合物(NMVOC)排出量も、アジア全体で 2.1 倍(中国は 2.5 倍)に増加している(Ohara et al.,2007a)。(図 2-1,図 2-2)

中国における NO₂の排出量の増加は、衛星観測(対流圏大気化学衛星セン サー:GOME)の結果からも実証されており、東アジアにおける 1996 年と 2002 年の1月の NO₂対流圏カラム密度を比較すると、1996 年に比べて 2002 年は高濃度の領域が広がっている。中国における NO₂の濃度上昇は中国国内 の地表付近のオゾン濃度を増加させてきたばかりでなく、越境大気汚染によ り我が国のオゾン濃度の増加原因となっていることが推定される(Irie et al.,2005,海洋研究開発機構プレスリリース,2005)。(図 2-3)



図 2-1 人為起源 NOx 排出量のトレンド (左側: 1970~2000 年の北米、ヨーロッパ、アジ ア(Akimoto,2003)、右側:近年の米国のトレンド(EPA,2007))



図 2-2 アジア全体の NOx 及び NMVOC 排出量推計値(Ohara et al., 2007a)



図 2-3 GOME によって測定された東アジアにおける NO₂の対流圏カラム密度の分布(上図: 1996年1月、下図:2002年1月)グレー部分はデータの欠損箇所。(海洋研究開発機構プレス リリース,2005)

[参考]

ここまで、オゾンの前駆物質として NO_x 及び NMVOC(または NMHC) に注目して記載してきた。しかしながら、対流圏における光化学反応のメカ ニズムにおいては、一酸化炭素(CO)及びメタン(CH₄)は、特に清浄な対 流圏大気中では OH ラジカルの主要な消失源となっていることから重要な役 割を担っているとの指摘がある(秋元ほか編,2002,ジェイコブ,2002)。 汚染のない大気では、CH4と反応するOHラジカルの割合は約20%であり、 残りの約80%はCOと反応する。このため、大気中におけるCOの濃度の変 化がOHラジカルを介してCH4濃度に影響を及ぼすことになる(秋元ほか 編,2002)。

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)ではオ ゾンの前駆物質排出量を 20%削減した場合のオゾン濃度への影響について報 告している(TF HTAP,2007)。この中では、CH4の 10 年程度の寿命を考慮し た長期的なタイムスケールで検討すると、世界規模で人為起源 CO 排出量を 削減することは OH ラジカルの増加を促し、OH ラジカルが CH4を減少させ るため更なるオゾン濃度の減少につながることが示されている。また、世界 規模で CH4を削減することはオゾン濃度に対して、長期的なスケールの中で は大きな効果を持つ可能性があると報告されている。

一方で、アジアにおける CO 排出量推計をみると上昇傾向を示しており (Ohara et al.,2007a)、NOx や NMVOC だけでなく、長期的視点においては CO についても排出量削減が重要な課題であるといえる。

また、CH4 や対流圏オゾンは温室効果ガスとしても重要な物質であること が知られている(IPCC,2007)。地球温暖化の観点からも濃度の推移に注意をす る必要があり、これらの物質を削減することで、大気汚染物質と温室効果ガ スを一体的に削減する相乗便益(コベネフィット)が期待される。(図 2-4)



図 2-4 各種温室効果ガスの 2005 年時点で世界平均した放射強制力 の推定値(IPCC,2007)

放射強制力 ある因子(温室効果ガス等)が地球 大気システムに出入りするエネルギーのバランスを変化 させる影響力の尺度であり、気候を変化させる可能性の大きさを示す。放射強制力は、1平方メ ートル当たりのワット数(W/m²)で表される(気象庁,2001)。 2.2.2 東アジアからの影響

西日本一帯では春季に高濃度ピーク、秋季にそれに次ぐ高濃度ピークが観 測されている(大原編,2007,森ほか,2005)。この傾向は、前述のモデル計算結 果(Yamaji et al.,2006a)と一致しており(図1-16参照)東アジア規模汚染の 季節変動を反映していると考えられる。さらに、四国及び九州における濃度 の経年的な増加が大きいことが、東アジアからの影響が経年的に増加してい ることを示唆している(大原・坂田,2003)。

我が国における近年のオゾン濃度上昇トレンドに対する東アジア大気汚染 物質排出量増加の影響を解析した研究報告を下記に示す。

1980~2003 年の日本のオゾン濃度を領域化学輸送モデルにより再現した 結果をみると、この期間に約 5ppb 増加しており、観測結果の増加量とほぼ 一致している。ここでみられるオゾン濃度と中国の排出量の上昇傾向は非常 に類似している。また、気象と排出量の経年変化・年々変動に対するオゾン 濃度の応答を解析するために、各年の気象と排出量を与えた計算「CNTL ($E_{yy}M_{yy}$)」と 2000 年の気象に固定し、排出量のみ各年のデータを用いた気 象固定の計算「 $E_{yy}M_{00}$ 」の結果をみると、オゾン濃度の年々変動は気象変動 に起因しているが、経年的なオゾン濃度の上昇はアジアの排出量の増加に支 配されていると考えられる(Ohara et al.,2007b)。(図 2-5)



図 2-5 上段(a)日本のオゾン濃度の実測値と計算値、中段(b)日本の NO_x、NMHC 実 測濃度と中国の NO_x、NMVOC 排出量、下段(c)計算結果 E_{yy}M_{yy}(排出量の経年変化に対 する応答) E_{yy}M₀₀(2000年の気象に固定し、排出量のみ各年のデータを用いた計算) E_{yy}M_{yy} - E_{yy}M₀₀(気象の年々変動による応答)による日本のオゾン濃度(Ohara et al.,2007b)

また、東アジアからの広域的な越境輸送の状況が観測された 2007 年 5 月 7 ~9日の気象状況を用い、中国の窒素酸化物排出量を 1992 年レベルと想定さ れる 750 万トン(現状の約半分)に設定した感度解析のシミュレーションの 結果をみると、2007 年 5 月の事例は 1992 年時に比べ 5~10ppb 程度上昇し ており、その上昇率は九州から西日本にかけて大きいことが示された(国立環 境研究所記者発表,2007)。(図 2-6)

> 2007/05/07.00-2007/05/10.00 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.02 .0.01 .0.02 .0.02

図 2-6 1992 年から 2007 年の中国の窒素酸化物排出量増加に伴う 5 月 7 日から 9 日のオゾン濃度の増加量(地上~450m)(国立環境研究所記者発表,2007)

東アジアの大気汚染物質の排出量増加が我が国のオゾン濃度を増加させて いることを示唆する結果は、オゾンゾンデによる対流圏オゾンの観測結果か らも得られている。

1970年から2002年の間の札幌、つくば及び鹿児島におけるオゾンゾンデの観測結果から、上空の対流圏オゾンが広域にわたって増加していることが分かる。(図2-7)

この対流圏オゾン濃度の増加要因を解明するために、後方流跡線解析を行った結果をみると、1970~1985年と1986年~2002年における中国・韓国 などの汚染地域を通過してきた気塊中のオゾン濃度(つくば及び鹿児島上空 2.1kmから4.3kmの平均)の比較では、後者の濃度が一年を通して高くなっ ている。この期間の東アジアにおける窒素酸化物等の排出量は、我が国では ほぼ横ばいないし減少しているが、中国では増加し続けており、これらのこ とから、アジア大陸における窒素酸化物等の排出量の増加が、風下側の我が 国の対流圏オゾン濃度を増加させていたと推定される(Naja and Akimoto,2004,海洋研究開発機構,2004)。(図 2-8)