

のオゾンに対し、4月に2-2.5 ppbv程度で、7月に1 ppbv以下に減少した。また、北米からの影響も、4月に1-2 ppbv程度で、7月に0.5 ppbv以下に減少した。一方、ヨーロッパ・北米の寄与と比較すると、中国の境界層内で生成したオゾンの影響は非常に大きく、春季には15ppbv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、15 ppbvに達することが分かった。また成層圏寄与も、冬季から春季に多く10-15 ppbvであった。

③東アジア起源の汚染気塊の輸送状況及びその寄与

観測データにより、隠岐と八方尾根に到達する異なる気塊（RPC：東アジア地域汚染気塊、BK：東アジア大陸性清浄気塊）中のオゾン濃度をトラジェクトリー解析によって調べた¹⁸⁾。図4-6は、東アジア地域汚染気塊と東アジア大陸性清浄気塊のオゾン濃度、及びこれらの濃度差から求められた東アジア汚染起源のオゾン濃度（EA）の季節変動を示す。隠岐に到達する東アジア地域汚染気塊中のオゾン濃度は、春季から夏季にかけて増大し、4～9月の月平均値が約55 ppbvである。また、八方尾根に到達する東アジア地域汚染気塊中のオゾン濃度は、5月に最大値を示し、月平均値が60ppbvを超える。これらの結果は、光化学活性の活発な時期に大陸から日本へ流入する気塊中の月平均オゾン濃度が、既に日本の環境基準（60 ppbv）に近いことを示している。東アジア汚染起源のオゾン濃度は、何れの地点も、6～7月に最大で15-20 ppbvに達し、冬季に最低（数 ppbv）であることも観測データの解析から示された。

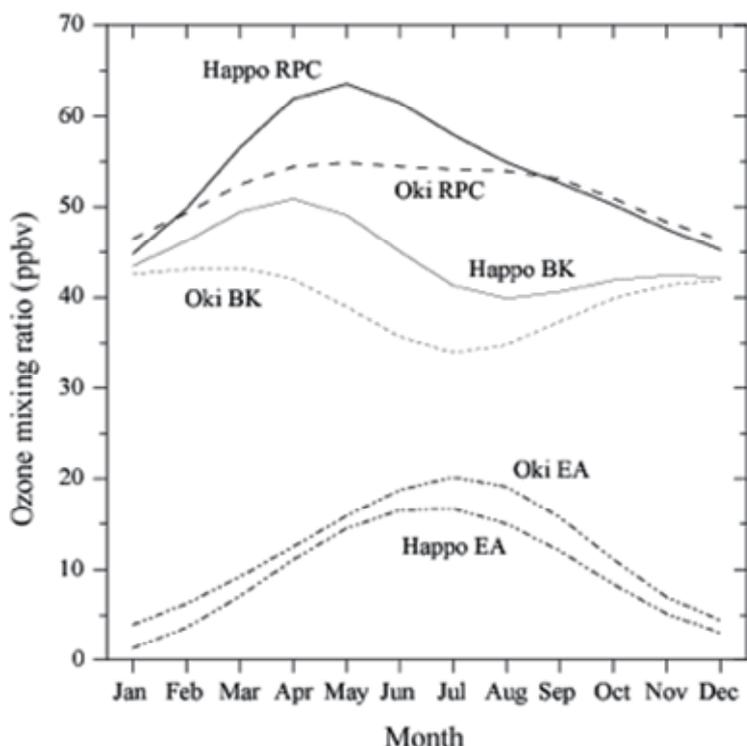
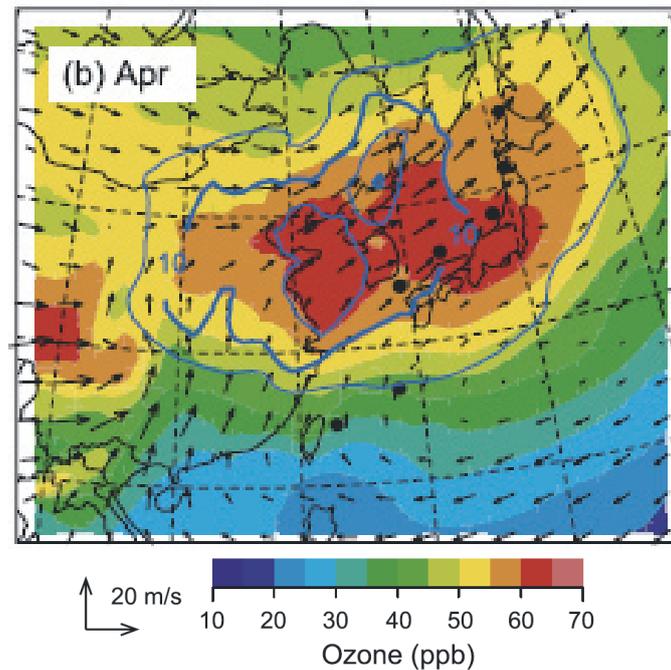


図4-6 隠岐及び八方尾根における東アジア地域汚染気塊（RPC）と東アジア大陸性清浄気塊のオゾン濃度（BK）、及びこれらの濃度差から求められた東アジア汚染起源のオゾン濃度（EA）¹⁸⁾

また、アジア大陸から我が国への越境汚染の影響については、図 4-7 に 2002 年 4 月の地表オゾンの月平均濃度分布と東アジア（中国及び韓国）からのオゾン前駆物質起源の寄与を示した。東アジアからのオゾン前駆物質を起源とするオゾンは月平均 5-10 ppb 程度の寄与があり、本州付近のオゾン濃度が 50～60 ppbv である¹⁹⁾ことから、概ね 10～20 数%程度が東アジア起源であると考えられた。



[青色のコンターが東アジア（中国及び韓国）起源のオゾン濃度]

図 4-7 2002 年 4 月の地表オゾン濃度の平均分布及び東アジア起源のオゾンの寄与¹⁹⁾

④高濃度エピソードの解析

春季の高濃度エピソードの一例として、2007 年 5 月 8～9 日の現象（8～9 日にかけて九州から西日本の広い範囲で高濃度の光化学オキシダントが観測、9 日には 22 都府県で光化学オキシダント注意報が発令された。）について、CMAQ モデルを用いて解析した²⁰⁾。全国の大気汚染常時測定局データによれば、5 月 8 日には九州北部から中国地方西部において 120 ppbv を超える高濃度が観測され、翌 9 日には北海道及び東北北部を除く広い地域で 100 ppbv 以上の高濃度が観測されている。80 ppbv 以上の高濃度時における中国寄与率を計算したところ、青森県以北を除く日本全国で 25%以上であり、九州地域では 40-45%であった（図 4-8）。

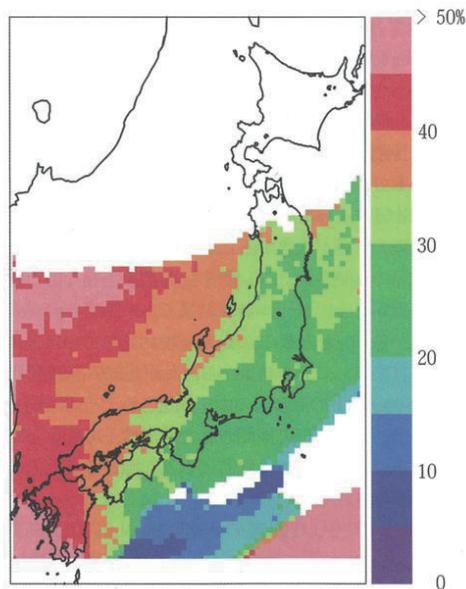


図 4-8 2007 年 5 月 8～9 日における高濃度オゾン観測時の中国寄与率²⁰⁾

(2) エアロゾル

長距離輸送されるエアロゾルに含まれる硫酸、硝酸及びその塩は最終的には降水に溶けて沈着されるものであり、これまで酸性雨の観点から降水の化学成分が検討されてきた。アジアスケールでのエアロゾルの輸送や分布、気候への影響などの研究は、UNEP（国連環境計画）の ABC プロジェクト等で実施されてきたが、最近ではエアロゾルの化学成分を高い時間分解能で分析できる装置により、同時に測定されるガス状成分と遜色のない解析が可能になりつつあるので、今後はエアロゾル化学成分も対象とした長距離越境大気汚染の議論が活発になると考えられる。

①エアロゾルの長距離輸送の観測

リモート地域におけるエアロゾルの長距離輸送として、沖縄辺戸岬での人為起源エアロゾル及び黄砂の観測結果²¹⁾が TF-HTAP（4.4.1 参照）の報告書²²⁾に紹介されている。

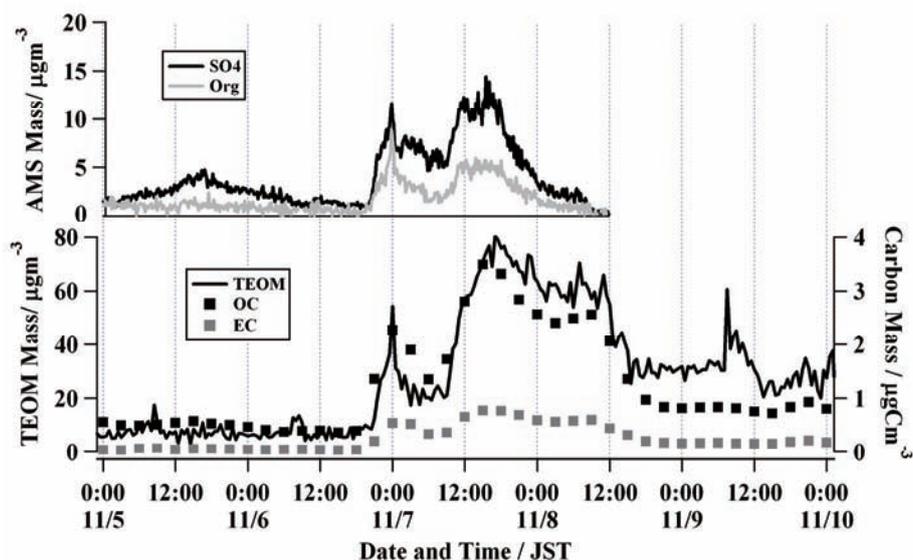


図 4-9 エアロゾル質量分析計、TEOM、EC/OC 計などで分析したエアロゾル化学成分 (Org.: 有機成分、TEOM: PM_{2.5}、OC: 有機炭素、EC: 元素状炭素)

図 4-9 にみられるように、辺戸岬では、11 月 7 日 0:00 頃寒冷前線通過とともに硫酸塩、有機物の増加が観測された。これらは一旦減少したが、7 日 12:00 ごろより再び大きく増加した。後方流跡線から判断すると、前者は台湾起源であり後者は中国中部起源とみられる。その後 8 日 12:00 頃までには硫酸塩や有機物は減少した。ライダー観測では、7 日 12:00 頃より黄砂粒子が観測され始め、8 日 12:00 以降は黄砂が卓越していた。人為起源エアロゾルが観測されている間は EC/OC 比は 0.2 程度で一定であった。この事例では、日本の南岸を通る前線の通過に伴い、まず台湾起源の人為起源エアロゾルが沖縄に輸送され、引き続き大陸から移動してきた高気圧によって、人為起源エアロゾルと黄砂がほぼ同時に大陸から輸送されてきたものと考えられる。その後、別の高気圧が再び大陸から東シナ海に移動して黄砂が輸送され、後半は黄砂が卓越した状態であった。

黄砂の前面で人為起源エアロゾルが観測される現象は、大陸からの大規模な越境汚染を示唆するものであり、これまでもいくつか報告されているが^{23, 24)}、気象場によりその詳細は大きく異なる。

リモート地域における越境汚染の把握については、富士山頂においても 2004 年 1 月から 7 月に SO₂ や CO などの連続観測が行われた²⁵⁾。この観測から、アジア大陸から太平洋に向けての輸送現象が把握され、その季節変化が明らかにされた。SO₂ の高濃度イベントは CO の高濃度と同時に起こり、その季節的な変化は大陸における SO₂ 発生源の季節変化とは一致しない。季節変化に最も大きく寄与しているプロセスは雲過程で、湿度の低い冬には SO₂ の除去が少なく、湿度の高い夏には多くなる。

②モデルによる解析例

また、エアロゾルの長距離輸送に関しては、シミュレーションモデルを利用した解析も行われている。化学輸送モデル RAMS/CFORS²⁶⁾ は、人為起源汚染物質 (CO、SO₂、SO₄²⁻エアロゾル、燃焼による炭素性エアロゾル) と自然起源物質 (ダスト、海塩粒子、火山ガス) 等の大気中の約 20 の化学成分の流れを、アジア域を対象として再現するものである。同モデルを用いた 2001 年 4 月の越境大気汚染の解析例を以下に示す。図 4-10 には、2001 年 4 月 9 日から 12 日の越境輸送の水平分布を示す。図から、非常に大きなダストの気塊が寒冷前線の背後に広く分布し、低気圧と前線の東進に伴い大陸から順に朝鮮半島、日本列島に流れ出す様子が明瞭に把握できる。ダストの気塊の東進は高緯度ほど早く、西日本ではその到来が利尻よりも 1～2 日程度遅い。ダストの高濃度域の前面に SO₄²⁻エアロゾルの高濃度域の存在が再現され、観測とモデルの結果を解析することで、黄砂が SO₄²⁻エアロゾルに数時間の遅れを持って日本に飛来することが鮮明に示され、大陸から自然起源と人為起源の汚染質がほぼ同時に高低気圧の波動に伴って越境輸送されることが示されている。また、同期間の黒色炭素粒子の輸送は SO₄²⁻エアロゾルと極めて類似しており、低気圧と寒冷前線の東進が、大規模な越境大気汚染のきっかけになっていることも確認されている²⁷⁾。

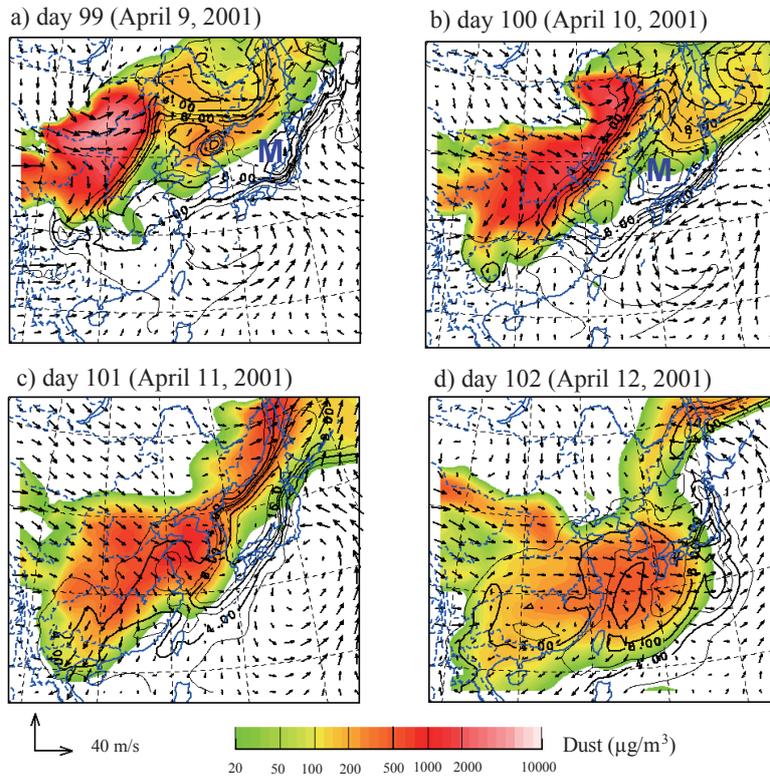


図4-10 2001年4月9日から12日のダストとSO₄²⁻エアロゾルの濃度分布
 トーンは境界層中の平均ダスト濃度、コンター線は平均SO₄²⁻エアロゾル濃度、ベクトルは地上500mの風向・風速、Mは三宅島起源のSO₄²⁻エアロゾルの寄与の大きな領域を示す。

③長距離輸送間のエアロゾルの化学組成の変化

長距離輸送されるエアロゾルの化学組成やその変化に関する研究も行われている。

北東アジアの気塊を受ける東シナ海上空では、酸性成分の指標としてはSO₄²⁻が卓越しており²⁸⁾、通常SO₄²⁻はNH₄⁺とほぼ1:1かやや過剰であるが、黄砂が飛来しているときには大きく過剰となる²⁹⁾(図4-11下)。また、通常、NO₃⁻とNH₄⁺の相関はあまり良くないのに対して、中国大陆から大規模汚染が輸送される(NO₃⁻>100neq m⁻³)ときには、全体として相関が良くなる(図4-11上)。これは、SO₄²⁻、NO₃⁻とNH₄⁺との相関が高い中国沿岸部におけるエアロゾルの化学成分分布³⁰⁾とよく一致している。

中国のNH₃の放出量は、2000年の統計でNH₃が13.6Tg(8.0x10¹¹mol)と、SO₂の20.4Tg(3.2x10¹¹mol)をモルで上回っており³¹⁾、中国上空で生成した酸性物質はNH₃によって

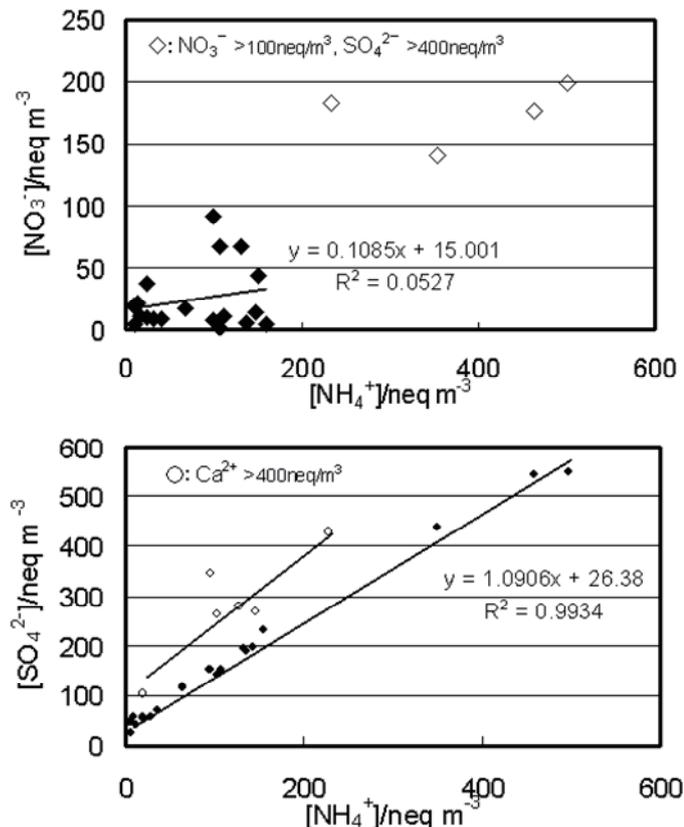


図4-11 東シナ海上空におけるNO₃⁻(上)、SO₄²⁻(下)とNH₄⁺の相関

素早く中和され、海上ではこうした化学形態のエアロゾルが観測されたと考えられる。

一方、日本で採取されるエアロゾルや降水は酸性であることが多い。これは、長距離輸送に伴って、エアロゾルの酸性化が進行していることを示唆する。太平洋上のエアロゾルのS成分が、陸地から離れるに従って硫酸アンモニウム→硫酸水素アンモニウム→硫酸というように酸性に変化することは20年以上前に報告されているが、同様のことが大陸から輸送されるエアロゾルについても起こっているものと考えられる。

図4-12³²⁾は中国大連及び青島で2002年3月に測定されたエアロゾル中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$ 当量比（左側の2点）と、1990年代後半に日本の各地で測られたエアロゾル中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$ 当量比を北京からの距離に対してプロットしたものであるが、距離とともに SO_4^{2-} の割合が NH_4^+ に対して大きくなり、酸性化が進行していることを示している。

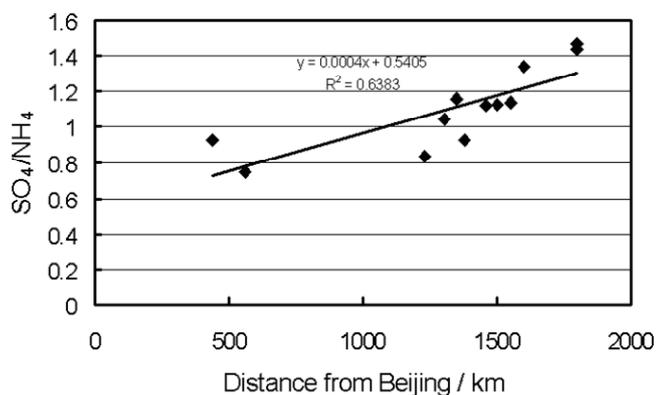


図 4-12 地図上での北京からの距離に対してプロットした $\text{SO}_4^{2-}/\text{NH}_4^+$

(3) 酸性沈着

東アジアスケールのシミュレーションモデルによる硫黄酸化物と窒素酸化物を対象としたソース・リセプター解析¹結果等を整理し、日本国内の酸性沈着に対する越境汚染の影響について検討した。

①シミュレーションモデルによる越境汚染の影響評価

これまでに論文等に発表されているモデル研究結果^{33~42)}による日本の酸性沈着量の発生源別寄与率を表4-3に示す。2000年以降の文献値について比較した場合、越境汚染の影響は、非海塩性 SO_4^{2-} (nss- SO_4^{2-})は32~66%、 NO_3^- は35~61%と推計されている。このように推計結果が異なる原因として、シミュレーションモデルの構造やパラメータによる違い、対象年による気象条件の違い、排出量データの違いなどが考えられる^{43,44)}。特に、2001年は三宅島の噴火の影響により、nss- SO_4^{2-} について、火山の寄与率が大きくなることに留意が必要である。

¹ 大気汚染物質発生源と受動地における沈着量の関係を定量的に解析したものの。

表4-3 日本の沈着量の発生源地域別寄与率の比較

	実施主体	発表年	基準年	モデル種類	寄与率(%)				
					日本	火山	中国	朝鮮半島	その他
nss-SO ₄ ²⁻	酸性雨研究センター ³³⁾	2008	2002	グリッド	54				
	東京大学 ³⁴⁾	2008	2001	グリッド	18	50	15	4	13
	国立環境研究所 ³⁵⁾	2005	1995	グリッド	21	13	49	12	5
	電力中央研究所 ³⁶⁾	2001	1995	トラジェクトリ	26-29	24-32	29-32	12-13	1-2
			1990	トラジェクトリ	27-30	25-31	24-27	17-19	1-2
		世界銀行(RAINS-Asia) ³⁷⁾	1995	1990	トラジェクトリ	38	45	10	7
	電力中央研究所 ³⁸⁾	1998	1988-1989	ハイブリッド	40	18	25	16	1
	大阪府立大学 ³⁹⁾	1997	1988	グリッド	37	28	25	10	0
NO ₃ ⁻	東京大学 ⁴⁰⁾	2008	2001	グリッド	56		21	15	8
	国立環境研究所 ⁴¹⁾	2005	1995	グリッド	39		34	18	9
	コロンビア大学 ⁴²⁾	2002	1990	グリッド	65		18	15	2
	大阪府立大学 ³⁹⁾	1997	1990	グリッド	76		13	11	1

また、図 4-13 は地域別にみた nss-SO₄²⁻沈着量の発生源別割合の推計例³⁵⁾である。北海道や東北では中国からの寄与率が半分以上を占め、SO₂発生源地域を抱える中部・関東や中国・四国・近畿では日本国内の寄与が高い。また、九州や中国・四国・近畿では桜島等の活火山の影響を受けるため火山の寄与が高く、その寄与率は約 20%である。なお、図 4-13 の結果が、他の推計結果に比べて中国寄与率が高い原因は明らかでなく今後の課題であるが、寄与率の推計結果を比較する場合には、評価対象領域の大きさや対象年、計算された沈着量の絶対値の差異などにも注意する必要がある。

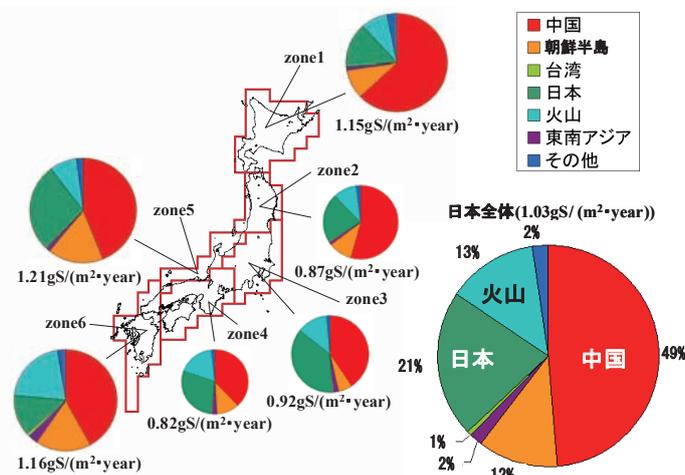


図 4-13 nss-SO₄²⁻年間沈着量 (gSm⁻²yr⁻¹) の発源地地域別割合の推計 (1995 年)³⁵⁾

また、RAQM (Regional Air Quality Model) を用いた 2002 年における我が国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例を表 4-4 に示す³³⁾。年間平均で越境汚染による寄与が約 35% (うち中国が約 30%) と推計されており、季節変動に着目すると、朝鮮半島からの寄与に対しては明確な季節変動はみられなかったが、中国中央部及び中国南部の寄与については、秋季から春季にかけて高く、夏季に低い。これは、硫黄化合物を高濃度に含む石炭の使用量が中国では冬季に最も多くなることや冬季に卓越している北西季節風によって大陸から大気汚染物質が流入することによると考えられる。