

5 オゾン及び粒子状物質に係る解析

平成 26 年(2014 年)3 月に改訂された越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画では、越境大気汚染問題への関心の高まりを受け、酸性沈着のみならずオゾン(O₃)及び粒子状物質(PM)についても監視するとともに、PM_{2.5} モニタリングの拡充等を行うことを明確にしている。本章では、特に O₃、粒子状物質等の大気汚染物質に着目して、これまで蓄積されたデータを用いたトレンド解析、数値モデルを用いた越境大気汚染現象の解析について、現時点で得られた知見を示す。

5.1 オゾン及び粒子状物質の長期的傾向及びトレンド解析

5.1.1 オゾン

平成 12 年度(2000 年度)から平成 29(2017 年度)における O₃ 年平均濃度の経年変化を図 5-1-1 に示す。評価にあたっては全国平均値のほか、測定地点を遠隔地域及びそれ以外の非遠隔地域に分けてそれぞれ平均値を求めた。また、高山地点(八方尾根、赤城)は過去の報告でも他の地点と比較して高い値で推移しているため個別に評価し、前述の平均値の算出には含めなかった。なお、2010～2011 年度に順次 O₃ 計校正方法が切り替えられたが、このこと自体は長期的傾向の評価に大きな影響を及ぼすものではないと考えている。

期間を通じて、非遠隔地域よりも遠隔地域で O₃ 濃度が高い傾向であった。これは、図 3-1-24 に示すとおり O₃ と反応する窒素酸化物の濃度が遠隔地域で低く、窒素酸化物との反応による O₃ の消失が少ないためであると考えられる。また、遠隔地域の年平均濃度の長期的傾向は、2007 年度まで上昇傾向であったが、2008 年度以降は有意な増減傾向は見られていない。

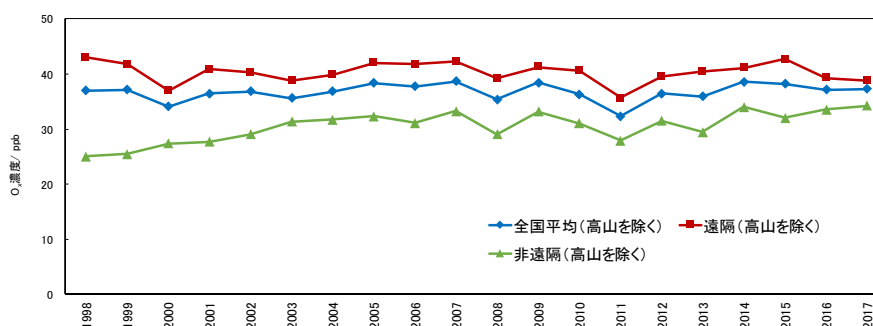


図 5-1-1 遠隔地域及び非遠隔地域における O₃ 年平均濃度の経年変化
完全度 70%未満の年間値は含めずに計算した。

この変動傾向の変化については、八方尾根における解析で気候変化が長距離輸送パターンに影響を及ぼすことが示されている[1]。また、2008 年に「リーマン・ショック」で経済活動が落ち込み、温室効果ガスの年間排出量が減っている報告もある[2]。気候変

動、排出量の長期変動と O₃ 濃度に及ぼす影響について、今後の推移を注視する必要がある。

地点ごとの O₃ 濃度の経年変化を図 5-1-2 に示す。遠隔地域と非遠隔地域を、さらに地点別に示した。2003 年度から 2017 年度の 15 年間の長期的傾向については、利尻(-0.49 ppb y⁻¹)、竜飛岬(-0.76 ppb y⁻¹)、佐渡関岬(-0.32 ppb y⁻¹)、八方尾根(-0.89 ppb y⁻¹)、)、蟠竜湖(-0.20 ppb y⁻¹)、小笠原(-0.76 ppb y⁻¹)、えびの(-0.86 ppb y⁻¹)、赤城(-1.11 ppb y⁻¹)で有意な減少傾向(p < 0.05)を示し、落石岬(+0.24 ppb y⁻¹)、隠岐(+0.21 ppb y⁻¹)で有意な増加傾向(p < 0.05)を示した。

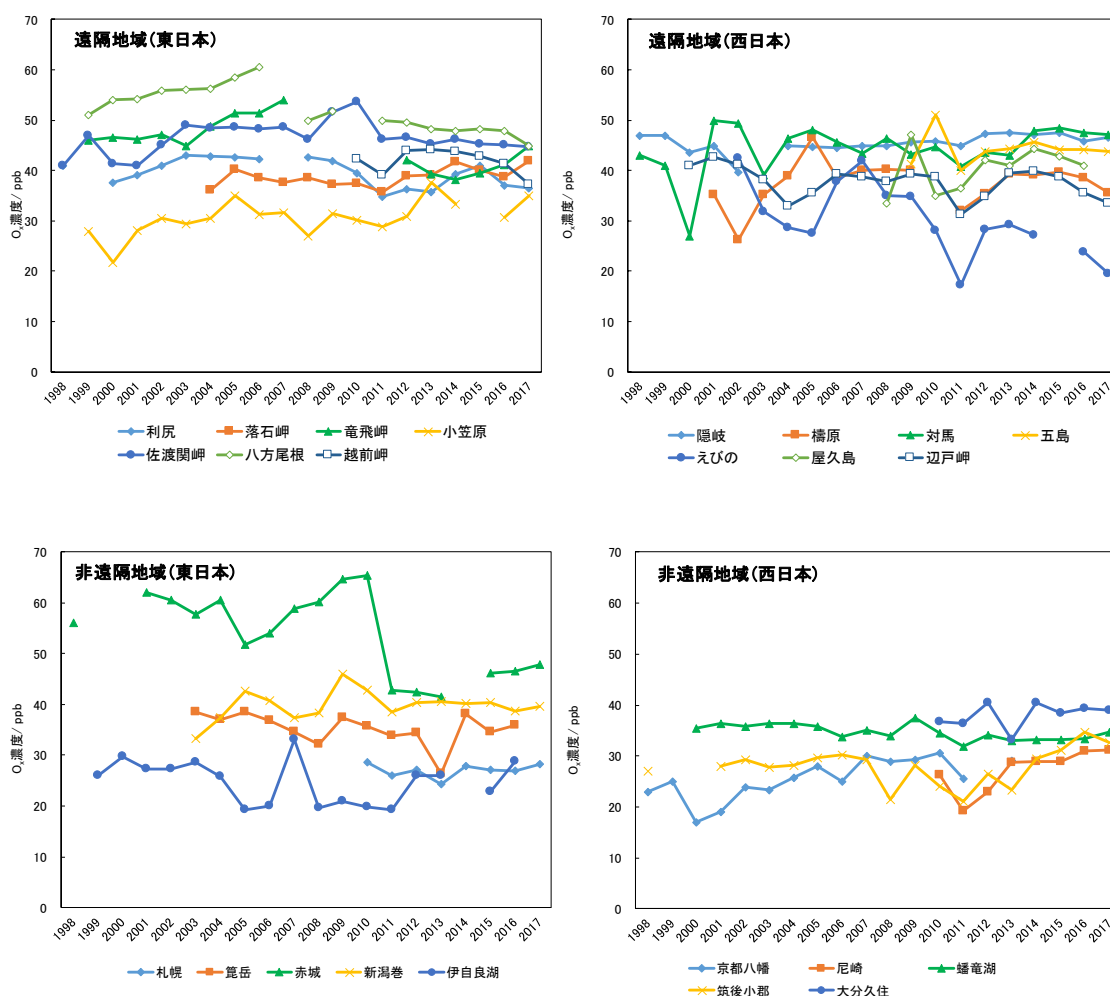


図 5-1-2 各地点の O₃ 濃度の経年変化

完全度 70%未満の年間値は表示しない。

2008 年度から 2017 年度の 10 年間を 5 年ごとに前後半に分割し、各月のデータを比較したグラフを図 5-1-3 に示す。なお、評価にあたっては、双方の期間で年間データの完全度が 75%以上の年が 4 年以上であった 14 地点を対象とした。

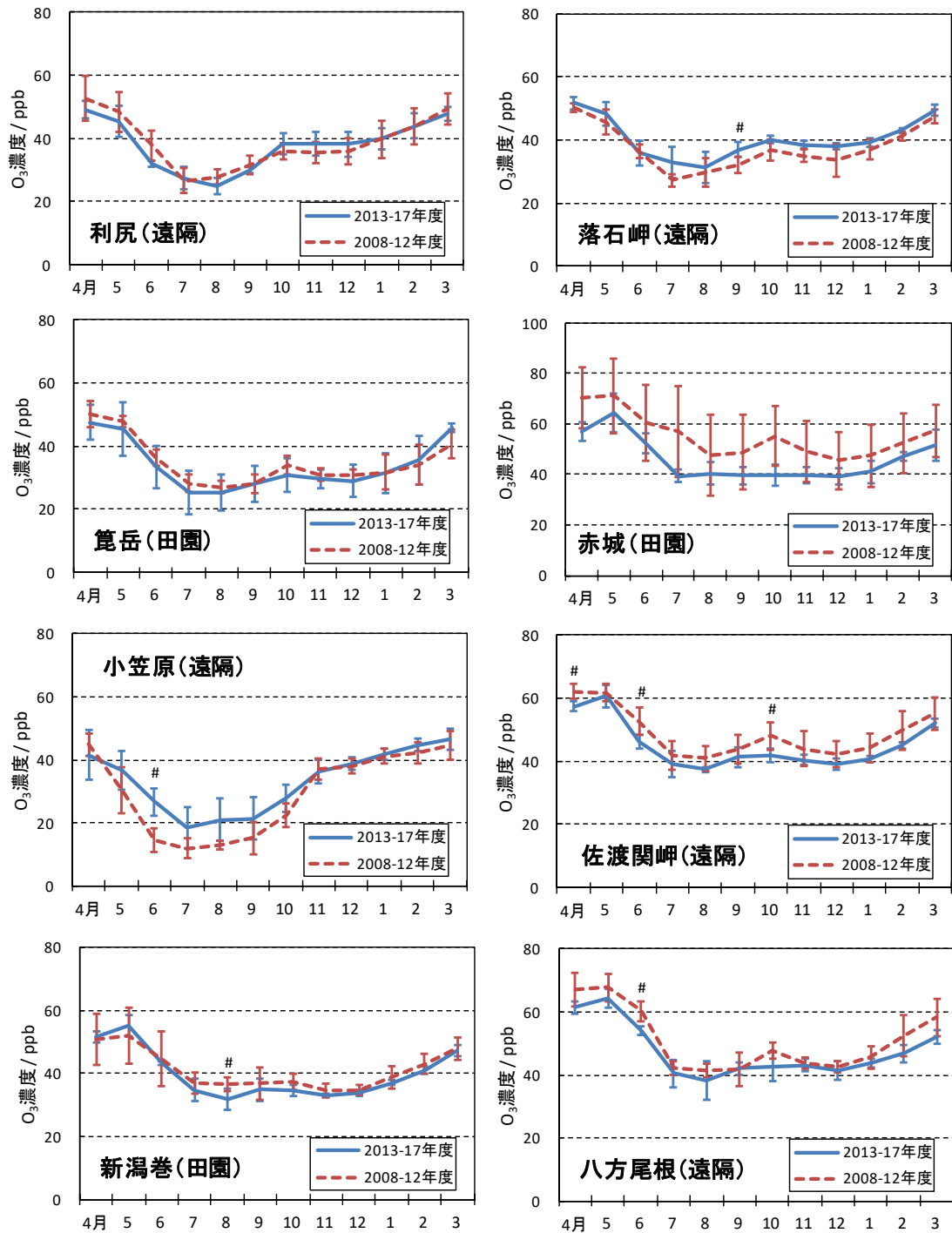


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O₃ 濃度の推移(1/3)

完全度 70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

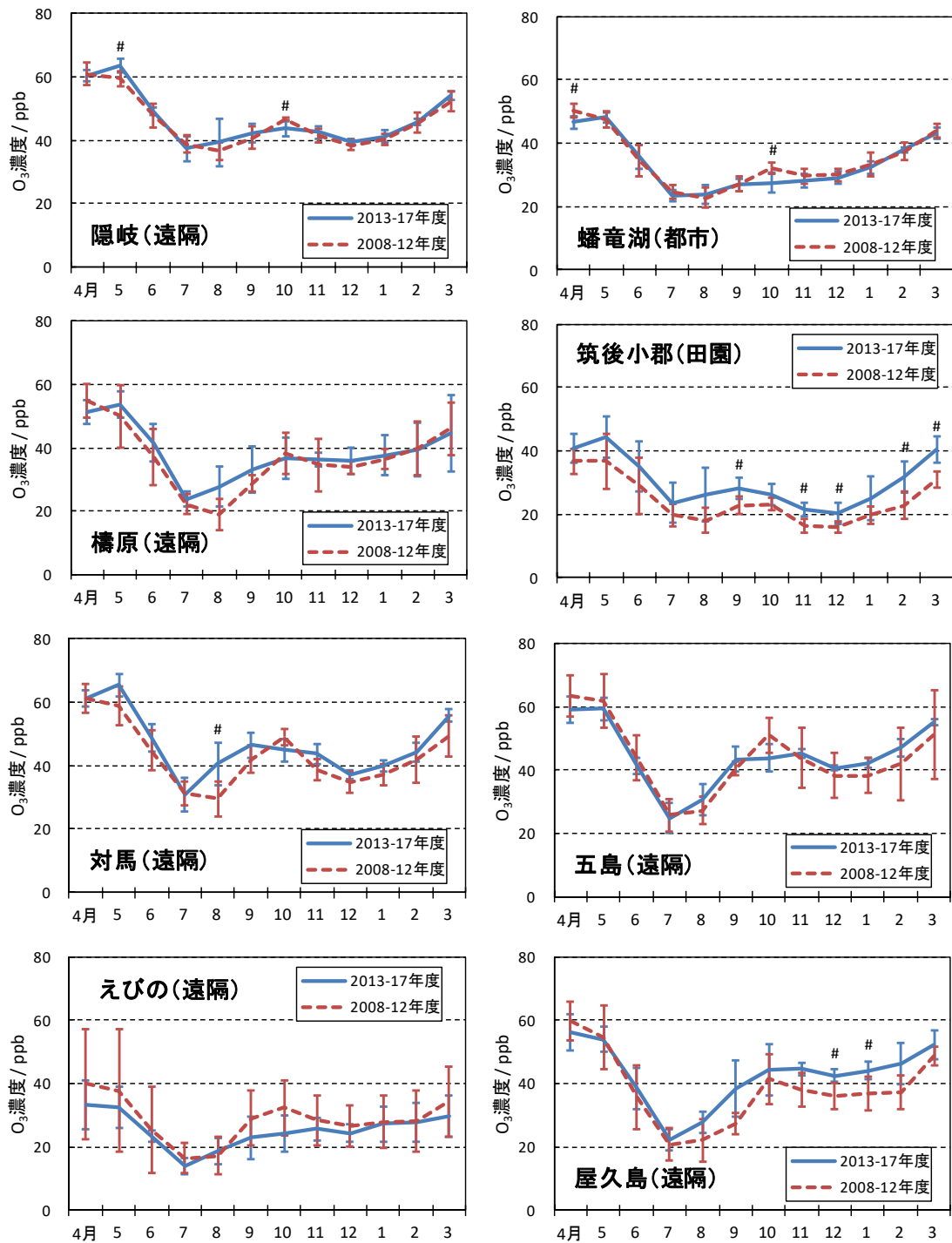


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O₃ 濃度の推移(2/3)

完全度 70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

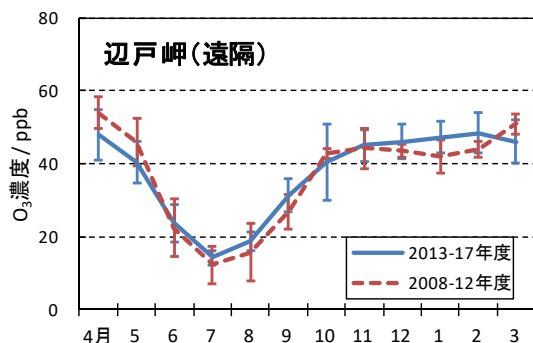


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O₃ 濃度の推移(3/3)

完全度 70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

東日本地域の落石岬、西日本地域の筑後小郡、隠岐、辺戸岬では秋(11月)から冬季(2月)の月間値が後半の方が有意に高く、差の範囲は 5 ppb～10 ppb であった。一方、利尻、佐渡関岬、八方尾根、蟠竜湖において、前半と比較して後半の O₃ 濃度が有意に低い月がみられ、主に春季～秋季に多く、その差は 6～13 ppb であった。

環境省から各都道府県および政令市に発出された文書では、年間 99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値を光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示すための指標として推奨している。本解析では、過去 11 年間の国設酸性雨局のオゾン測定結果から日最高 8 時間値を算出し、日最高 8 時間値の①年間最大値、③年間 99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値、③年間 98 パーセンタイル値を算出した。これらの値とこれまで解析に用いてきた年平均値との比較考察を行った。

日最高 8 時間値から算出した各パーセンタイル値及び年平均値について、2005～2017 年度の経年変化を図 5-1-4 に、各測定所について 2005～2017 年度の年間値の推移から回帰直線を作成し、求められた増減トレンドを表 5-1-1 に示す。表中の網掛けは 95%信頼区間で有意であった結果を、下線は 99%信頼区間で有意であった結果をそれぞれ表す。

表 5-1-1 に示すように、日最高 8 時間値から求めた最大値、99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値、98 パーセンタイル値において増減トレンドがほぼ等しかった。これに対し年平均値では最大値、最小値間の差が少なく、他の指標と比べて異なる増減トレンドを示す地点もあった。日最高 8 時間平均値の年間 99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値について有意差検定を行ったところ、利尻(-1.3 ppb y⁻¹)、竜飛岬(-2.4 ppb y⁻¹)、佐渡関岬(-0.8 ppb y⁻¹)、八方尾根(-2.1 ppb y⁻¹)、辺戸岬(-0.8 ppb y⁻¹)、赤城(-3.1 ppb y⁻¹)、新潟巻(-1.3 ppb y⁻¹)、えびの(-3.3 ppb y⁻¹)、屋久島(-1.1 ppb y⁻¹)の以上 9 地点で有意な減少傾向(p < 0.05)がみられた。一方、対馬(+1.1 ppb y⁻¹)では有意な増加傾向(p < 0.05)がみられた。その他 13 地点では、有意な増減傾向はみられなかった。

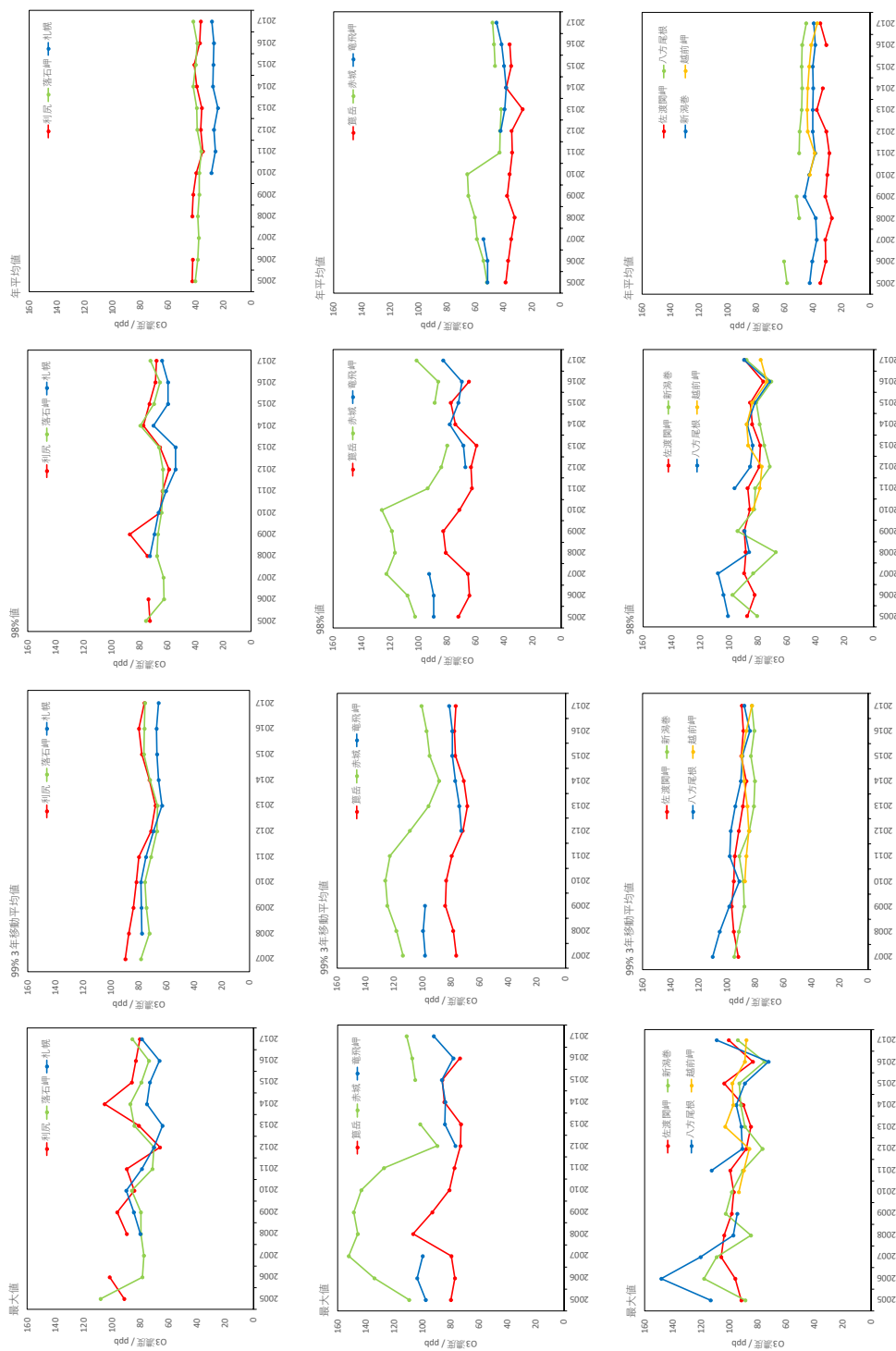


図 5-1-4 O₃濃度日最高 8 時間値から求めた最大値、99%値の 3 年移動平均値、98 パーセント値の経年変化(2005～2017 年度)(1/3)

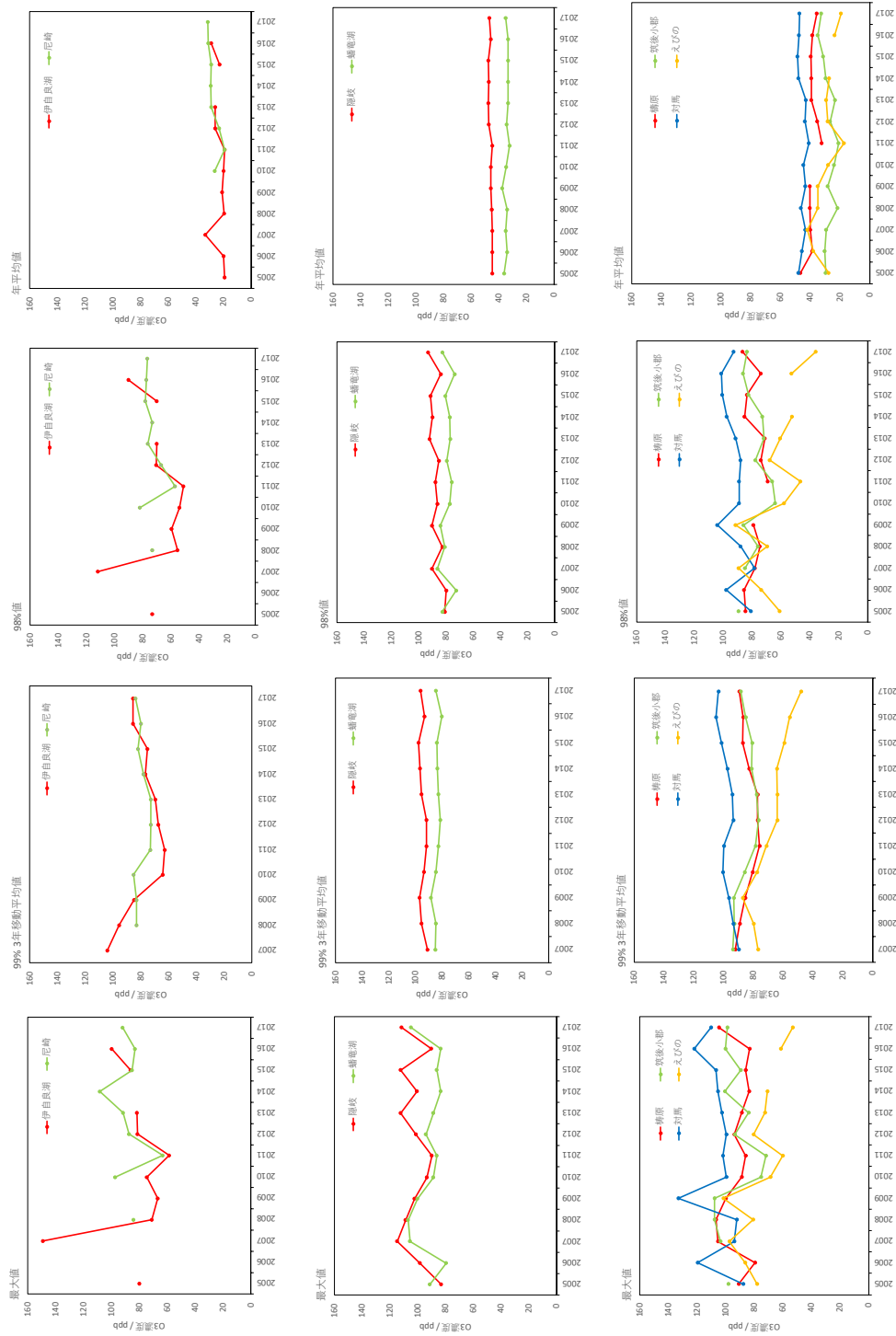


図 5-1-4 O₃濃度日最高 8 時間値から求めた最大値、99%値の 3 年移動平均値、98 パーセンタイル値の経年変化(2005～2017 年度)(3/2)

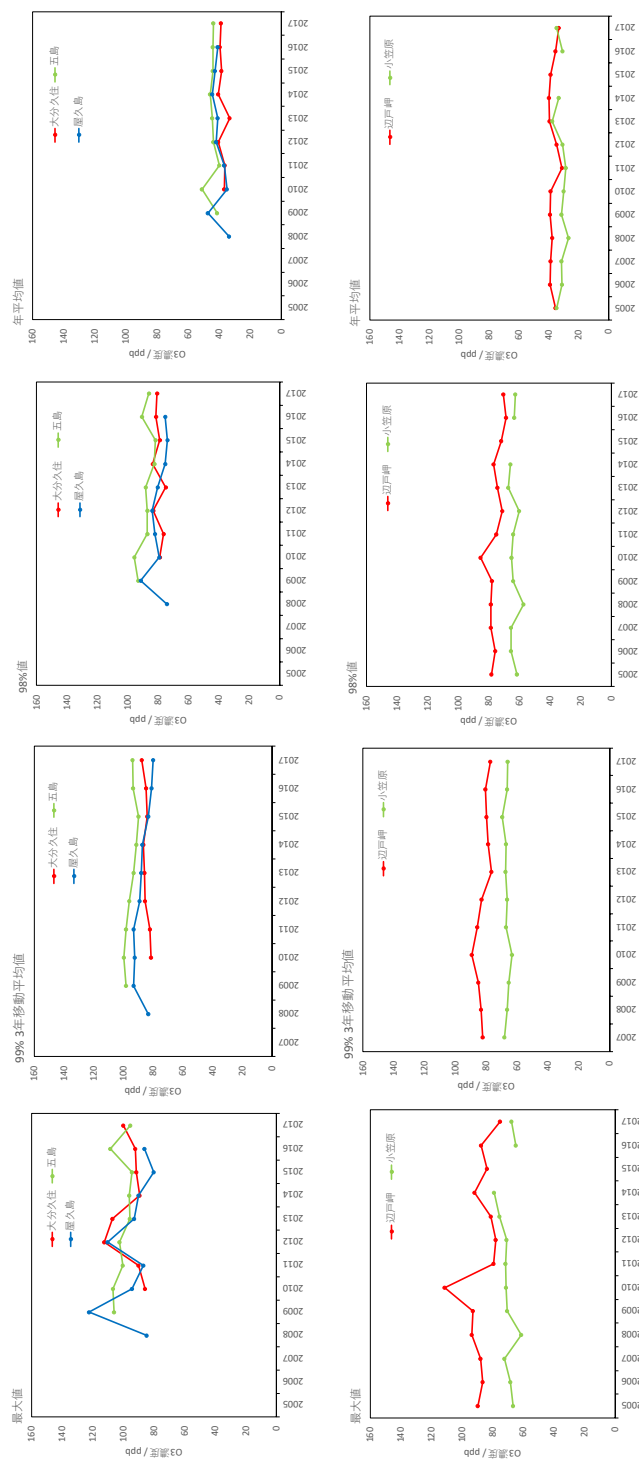


図 5-1-4 O₃濃度日最高 8 時間値から求めた最大値、99%値の 3 年移動平均値、98 パーセント値の経年変化(2005～2017 年度)(3/3)

表 5-1-1 測定所ごとの 2005～2017 年度間の O₃ 日最高 8 時間値の増減トレンド
(単位：ppb/年)

地点	最大値	99%値の の 3 年移動 平均値	98%値	年平均値
利尻	-1.0	-1.3	-0.5	-0.5
落石岬	-0.7	-0.1	+0.3	+0.2
竜飛岬	-1.6	-2.4	-1.5	<u>-1.1</u>
佐渡関岬	-0.5	<u>-0.8</u>	-0.4	+0.2
八方尾根	-3.1	<u>-2.1</u>	<u>-1.9</u>	<u>-0.4</u>
伊自良湖	-0.6	-1.2	+0.0	+0.4
隠岐	+0.7	+0.3	+0.7	<u>+0.2</u>
蟠竜湖	-0.3	-0.3	-0.2	-0.2
禰原	-0.3	-0.1	-0.1	-0.4
辺戸岬	-0.9	-0.8	-0.7	-0.2
小笠原	+0.3	+0.1	+0.1	+0.2
札幌	-1.5	-1.7	-0.9	+0.1
籠岳	-0.7	-0.5	-0.3	-0.2
赤城	-3.1	<u>-3.1</u>	-2.4	-1.2
新潟巻	-1.5	<u>-1.3</u>	-0.6	-0.1
越前岬	+0.1	-0.2	-0.5	-0.3
尼崎	+0.8	-0.1	+0.7	+1.3
筑後小郡	-0.5	-0.9	-0.2	+0.4
大分久住	+0.4	+0.6	+0.4	+0.4
五島	-0.9	-0.9	-1.0	+0.0
対馬	+1.0	<u>+1.1</u>	+1.0	+0.2
えびの	-2.7	<u>-3.3</u>	-2.8	-1.2
屋久島	-2.0	-1.1	-1.5	+0.7

注：網掛けは 95%信頼区間で有意、下線は 99%信頼区間で有意を示す。

5.1.2 PM₁₀ 及び PM_{2.5}

平成 11 年度(1999 年度)から 2017 年度における PM₁₀ 濃度、PM_{2.5} 濃度及び PM_{2.5}/PM₁₀ 比の経年変化を図 5-1-5 に示した。



図 5-1-5 PM₁₀ 濃度、PM_{2.5} 濃度及び PM_{2.5}/PM₁₀ 比の経年変化

完全度 70%未満の年間値は表示しない。

調査期間を通して、PM₁₀濃度は小笠原及び八方尾根において低く、辺戸岬、隠岐及び幡竜湖で高かった。また、PM_{2.5}濃度はPM₁₀濃度と連動した変動を示し、PM_{2.5}/PM₁₀比は期間を通じてほぼ一定で、概ね0.4~0.6の間で推移した。

2003年度から2017年度の15年間の長期的傾向については、利尻PM_{2.5}(-0.09 µg m⁻³ y⁻¹)、佐渡関岬PM₁₀(-0.29 µg m⁻³ y⁻¹)、八方尾根PM₁₀(-0.20 µg m⁻³ y⁻¹)、伊自良湖PM₁₀(-0.40 µg m⁻³ y⁻¹)、幡竜湖PM₁₀(-0.53 µg m⁻³ y⁻¹)、構原PM₁₀(-0.48 µg m⁻³ y⁻¹)、辺戸岬PM₁₀(-0.41 µg m⁻³ y⁻¹)で有意な減少傾向(p < 0.05)を示し、小笠原(-0.40 µg m⁻³ y⁻¹)でPM₁₀の有意な増加傾向(p < 0.05)を示した。

2008年度から2017年度の10年間で5年ごとに前後半に分割し、各月のデータを比較したグラフを図5-1-6に示す。なお、評価にあたっては、双方の期間で4以上の年間データが完全度75%を満たした10地点、延べ13項目を対象とした。

隠岐、小笠原では、前半と比較して後半にPM₁₀濃度の月間値が有意に低い月がみられた。また、落石岬では春季に後半の方でPM_{2.5}濃度が顕著に低くなる傾向が見られ、4月には8 µg m⁻³の有意な差がみられた。辺戸岬については、2009年3月に78 µg m⁻³の特異的な高濃度が観測されたため、前半5年間のPM₁₀濃度が高くなった。

<PM₁₀濃度>

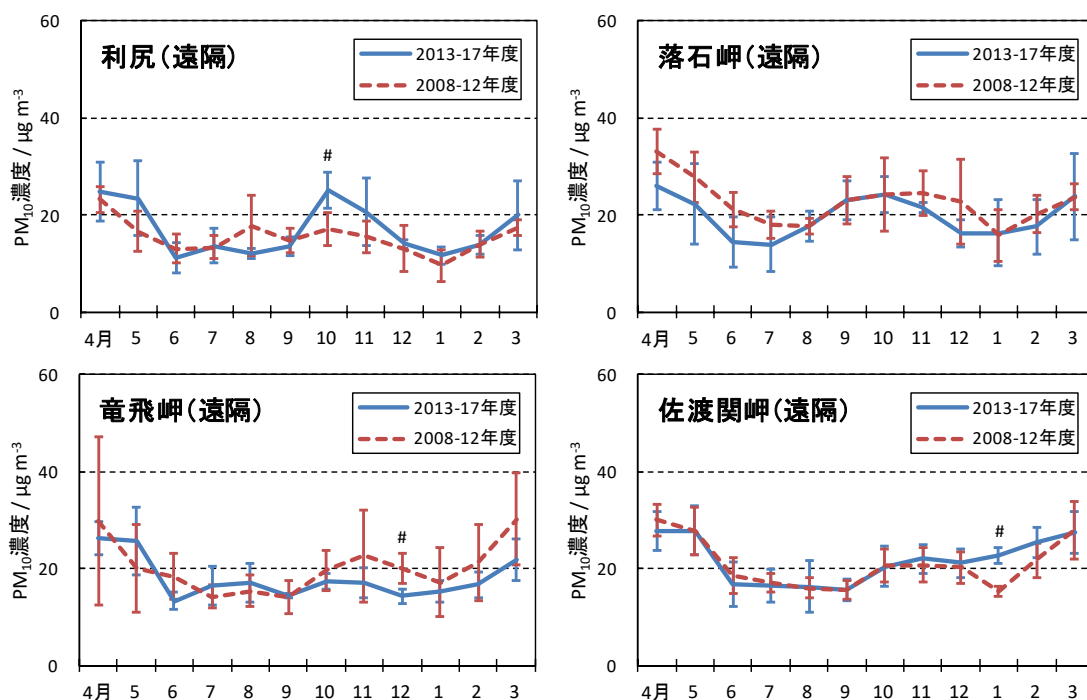


図5-1-6 2008~2012年度及び2013~2017年度の月別PM₁₀およびPM_{2.5}濃度の推移(1/3)

完全度70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p < 0.05)があった月

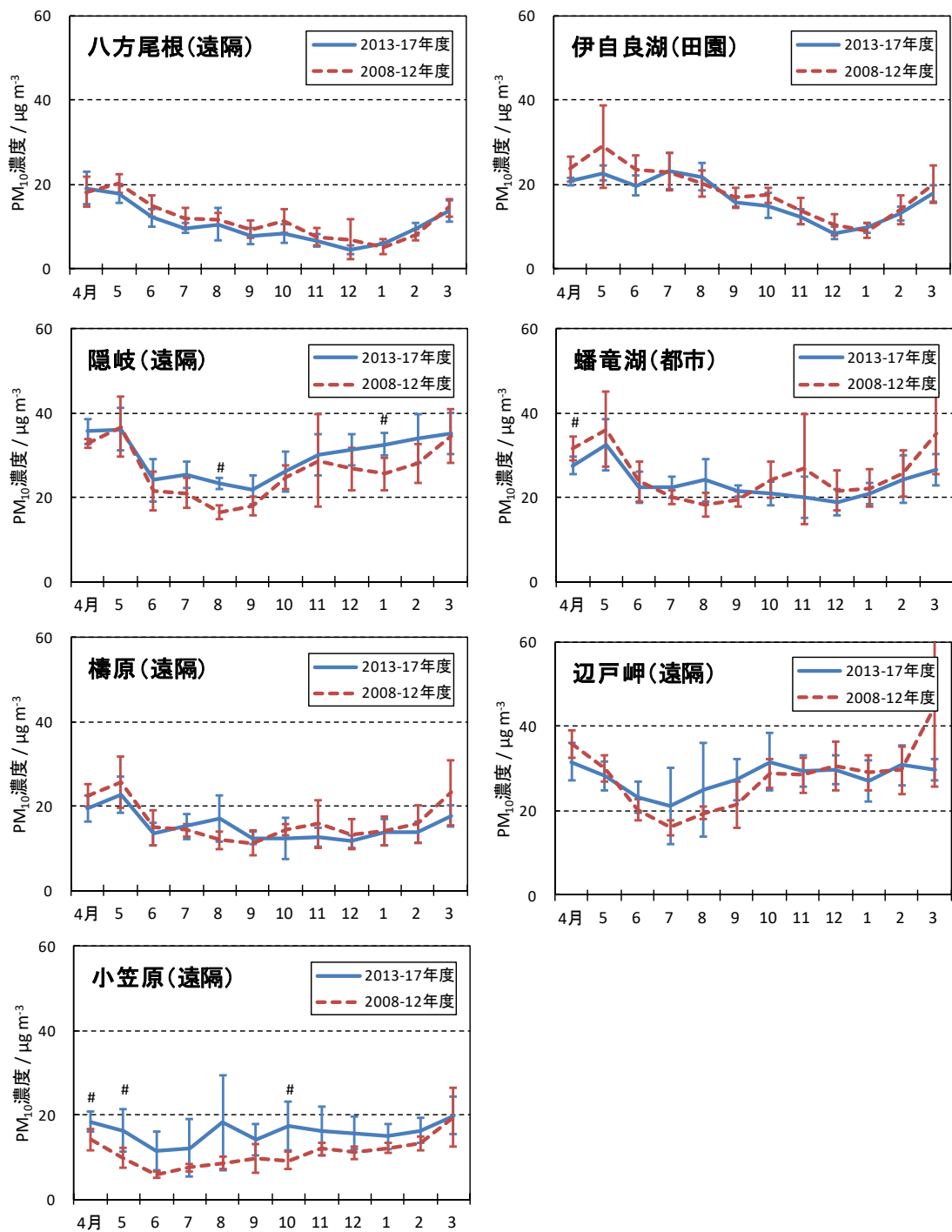


図 5-1-6 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 PM₁₀ および PM_{2.5} 濃度の推移(2/3)

完全度 70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差($p < 0.05$)があった月

<PM_{2.5} 濃度>

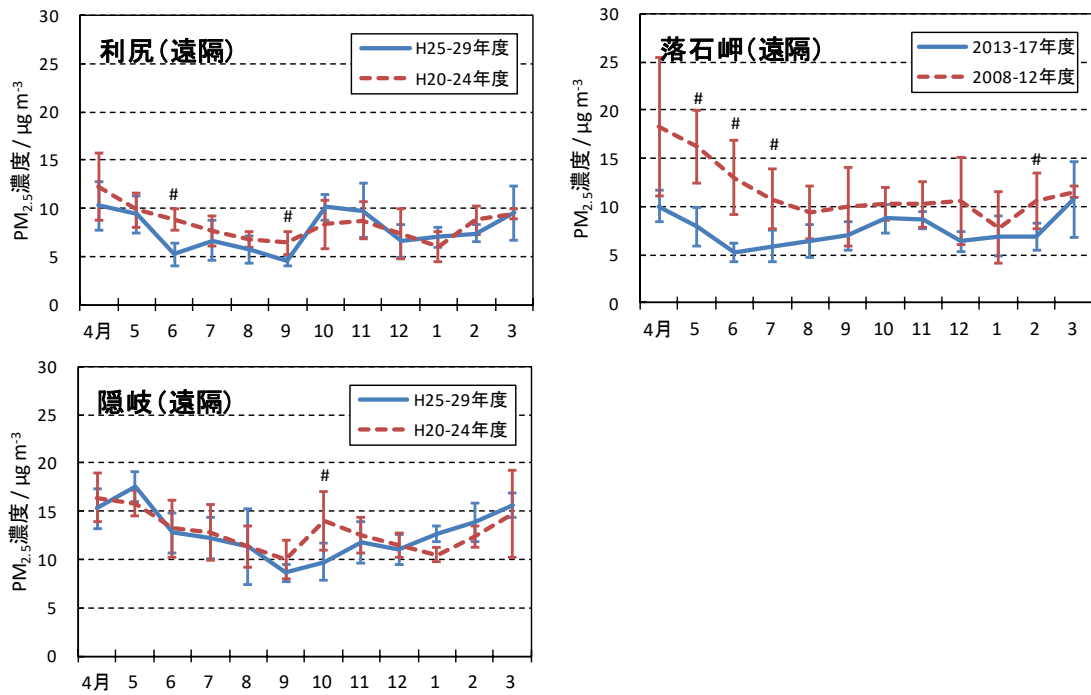


図 5-1-6 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 PM₁₀ および PM_{2.5} 濃度の推移(3/3)

完全度 70%未満の月間値は含めずに計算した。

エラーバー：月間値(有効データのみ)の平均値±標準偏差の範囲

#：統計的に有意な差(p<0.05)があった月

5.2 大気モデルを用いた我が国への越境大気汚染現象の解析

国設酸性雨局による長期モニタリングは、測定局周辺の大気汚染による影響の長期的傾向を把握する上で有用である。一方、日本及び周辺域の大気汚染物質の濃度、沈着量分布、及び長距離輸送量を明らかにするためには、モニタリングの結果と組み合わせたモデル解析が必要となる。本項では、オゾン(O₃)、粒子状物質(PM)の発生源寄与解析、酸性物質の大気モデル解析を行った、最近の研究事例を示す。なお、ここで示した研究事例はいずれも、大気シミュレーションモデルの再現性の評価等に越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングデータが活用され論文となったものである。

5.2.1 オゾンのソース・レセプター解析

オゾンの発生源寄与を同定することは、近年大気汚染物質の排出が著しい東アジアにとって重要である。板橋らは CMAQ と Higher-order Decoupled Direct Method (HDDM)を用いて東アジアにおけるオゾン発生源寄与の季節変動を解析し、春季には中国からの寄与が最大になることがわかった[3]。また、板橋らは HDDM による感度解析と Ozone Source Apportionment Technology (OSAT)によるマスバランス解析によって、発生源寄与を計算した

[4]。それによると、中国からの排出源を 50%削減したときに、3 ppbv のオゾン濃度の変動があり、100%削減したときに、4 ppbv のオゾン濃度の変動があった。Li らはタグ付きトレーサー法を用いてオゾンのソース・リセプター解析を行い[5]、日本と朝鮮半島の遠隔地域では、50～80%が長距離輸送に由来することを示している。低くなったと考えられる。

5.2.2 PM_{2.5}のソース・レセプター解析

PM_{2.5}のソース・レセプター解析の研究事例は、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書（2008～2012年度）で紹介されたが、その後更に研究事例が報告されている。池田ら[6]は2010年を対象とした日本全体のPM_{2.5}の発生源解析を行ったが、西日本では年平均PM_{2.5}濃度に対する中国からの寄与は50～60%であり、関東では40%と算出された。

また、中国の研究グループによる解析結果も報告されている。Zhang らは Source-oriented chemical transport model を用いて中国におけるPM_{2.5}中の硝酸塩、硫酸塩の発生源解析を行った[7]が発電所が最も大きな発生源であり、次いで移動発生源、工業起源が重要な発生源であると示された。

5.2.3 酸性物質の大気モデル解析

硫黄化合物の大気濃度はモデル再現性が良いため、ソース・リセプター解析の研究事例がいくつか見られる。板橋ら[8]はDDMを用いて硫酸塩のソース・リセプター解析を行っており、梶野ら[9]は、北東アジアにおける硫黄化合物の大気沈着量のソース・リセプター解析を行った。

5.2.4 PM_{2.5}のシミュレーションモデルの再現性及び精緻化に関する研究

日本におけるPM_{2.5}の地域汚染および長距離輸送の大気モデルによる評価の研究が多く成されている。嶋寺らは2010～2011年を対象にしてCMAQ v5.0.2によるPM_{2.5}のモデル解析を行った[10]。PM_{2.5}の時空間変動パターンをよく再現できていたが、表 5-1-2 のように日本の平均でPM_{2.5}の約15%過小評価、北京で約8%過大評価していた。

表 5-1-2 日本および北京における SO₂、NO₂、PM_{2.5} 濃度のモデルと観測値の統計比較

TABLE 1: Statistical comparisons between observed and simulated (EBase) daily mean SO₂, NO₂, and PM_{2.5} concentrations at the ambient air pollution monitoring stations in JFY2010.

	Japan			Beijing
	SO ₂	NO ₂	PM _{2.5}	PM _{2.5}
Sample number	15053	16133	15315	323
Mean obs.	2.6 (2.1)	13.3 (8.1)	15.0 (10.2)	102.2 (85.3)
Mean sim.	2.2 (2.0)	9.7 (8.4)	12.7 (9.3)	110.4 (65.7)
<i>r</i>	0.40	0.71	0.75	0.83
MBE	-0.4	-3.7	-2.2	8.3
RMSE	2.3	7.3	7.3	48.8
NMB	-14%	-27%	-15%	8%
NRMSE	88%	55%	49%	48%
PF2	55%	63%	81%	83%
IA	0.62	0.80	0.85	0.89

Note: parenthetical values show standard deviations. Units of mean, MBE, and RMSE values are ppbv for SO₂ and NO₂ and μg m⁻³ for PM_{2.5}.

長距離輸送の寄与は、ベースのモデルシミュレーションとアジア大陸の排出量をゼロにしたときの差分で評価した。図 5-1-7 に日本の各地点における PM_{2.5} 濃度と成分濃度の観測値とモデル値の比較、長距離輸送の寄与量を示す。PM_{2.5} の長距離輸送は平均で 50% と評価され、西日本の地点で寄与量が高い傾向が示された。地域汚染が起こっている期間において PM_{2.5} 濃度は 26% 過小評価しており、長距離輸送が起こっている期間(10%)よりも過小評価の程度が大きかった。従って、日本国内の PM_{2.5} の排出、生成、消滅過程の精緻化が必要である。

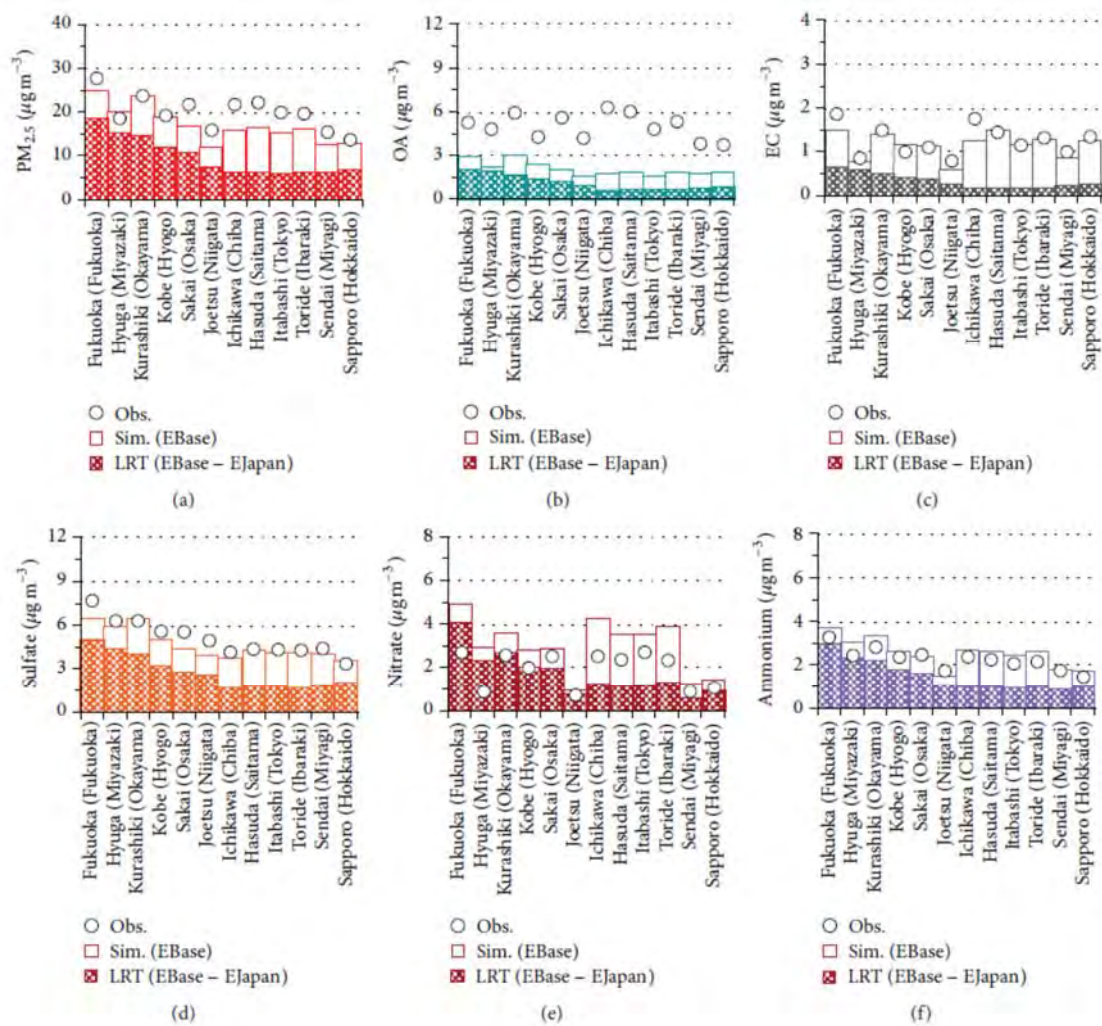


図 5-1-7 日本の各地点における $PM_{2.5}$ 濃度と成分濃度の観測値とモデル値の比較、長距離輸送の寄与量

森野らは、2012 年に全国 12 地点で同時観測した $PM_{2.5}$ 成分と secondary organic aerosol (SOA) yield model と volatility basis set (VBS) model による感度計算値との比較解析を行った [11]。表 5-1-3 に示すように夏季における SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ は良く再現できていたが、冬季と春季においては、 SO_4^{2-} はモデルが過小評価しており、 NO_3^- は過大評価していた。観測では元素状炭素 (EC) と有機エアロゾル (OA) は都市域の方が遠隔地点よりも濃度が高かったが、モデルでは空間分解能が高くないために両者の違いが再現できなかった。

後藤らは、global nonhydrostatic model を日本のエアロゾルシミュレーションに適応した研究を行った [12]。東アジア地域では SO_4^{2-} 、 SO_2 の観測値とモデル値の相関は良かったが、 SO_4^{2-} は 40%、 SO_2 は 50% 過小評価していた。表 5-1-4 に示すように日本の各地点において $PM_{2.5}$ 濃度はモデル値が過小評価しており、中国における大気濃度の過小評価と降水量の不確かさの影響が大きいと考察している。

表 5-1-3 SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、EC、OA 濃度のモデルと観測値の比較結果

Table 4. Performance of the three simulations averaged over the measurement sites in three seasons^a

	Season	Simulation	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	EC	OA
Model/Obs	winter	AERO6	0.22	15.01	1.07	0.58	0.28
		AERO6VBS-std	0.19	12.35	0.90	0.50	0.27
		AERO6VBS-rev	0.19	3.65	0.40	0.51	0.28
	spring	AERO6	0.97	6.79	1.07	0.63	1.32
		AERO6VBS-std	0.77	5.55	0.86	0.48	1.49
		AERO6VBS-rev	0.75	0.79	0.62	0.49	1.98
	summer	AERO6	0.72	3.49	0.82	0.33	0.37
		AERO6VBS-std	0.61	3.23	0.70	0.30	0.52
		AERO6VBS-rev	0.56	0.90	0.56	0.29	1.16
FA2 (%)	winter	AERO6	12.9	44.3	64.6	34.8	13.4
		AERO6VBS-std	8.8	47.6	62.7	26.1	12.3
		AERO6VBS-rev	9.1	44.3	14.4	26.8	13.1
	spring	AERO6	68.7	47.2	74.3	41.7	57.6
		AERO6VBS-std	60.6	48.4	75.5	25.9	70.5
		AERO6VBS-rev	61.4	22.3	59.2	33.8	65.8
	summer	AERO6	60.5	35.4	67.8	16.5	26.8
		AERO6VBS-std	47.6	35.4	55.4	16.0	39.6
		AERO6VBS-rev	45.4	6.3	45.7	14.6	61.1
FA10 (%)	winter	AERO6	91.4	98.1	100.0	98.4	85.9
		AERO6VBS-std	89.2	98.1	100.0	96.4	76.4
		AERO6VBS-rev	88.5	97.7	91.7	98.4	78.0
	spring	AERO6	100.0	95.4	100.0	100.0	100.0
		AERO6VBS-std	100.0	91.8	100.0	100.0	100.0
		AERO6VBS-rev	100.0	52.0	100.0	100.0	100.0
	summer	AERO6	100.0	56.3	99.2	87.5	88.0
		AERO6VBS-std	100.0	68.8	99.2	84.7	93.2
		AERO6VBS-rev	100.0	35.4	98.3	80.6	98.9

^a Model/Obs indicates ratios of simulated to observed concentrations. FA2 and FA10 indicate the proportions (%) of simulated data that reproduced the observed data within factors of 2 and 10, respectively. The minimum cutoff of observed concentration was 0.5 μg m⁻³. Abbreviations: EC, elemental carbon; OA, organic aerosol.

表 5-1-4 日本の各地点における PM_{2.5} 濃度のモデルと観測値の比較

Table 3. PM_{2.5} concentrations in daily, daytime (from 9 a.m. to 4 p.m.), and nighttime (from 9 p.m. to 4 a.m.) averages and mean ratios of daytime to nighttime using the simulations (NICAM-g6str and NICAM-g6) and the observation at seven selected sites in August.

	Maebashi	Kawasaki	Toride	Hasuda	Sapporo	Nagoya	Fukuoka
Daily mean PM _{2.5} (μg m ⁻³) and standard deviation (μg m ⁻³)							
Observation	24.9 ± 12.8	23.2 ± 12.9	17.6 ± 9.7	20.6 ± 11.5	12.7 ± 6.3	17.3 ± 10.1	14.3 ± 7.5
NICAM-g6str	6.4 ± 3.9	10.0 ± 7.3	9.0 ± 6.3	8.4 ± 5.0	4.9 ± 3.5	7.5 ± 5.7	3.4 ± 2.6
NICAM-g6	6.7 ± 3.0	6.7 ± 3.3	6.7 ± 3.4	6.7 ± 3.0	4.7 ± 4.1	5.4 ± 3.0	3.5 ± 2.3
Daytime (9 a.m.–4 p.m.) mean PM _{2.5} (μg m ⁻³) and standard deviation (μg m ⁻³)							
Observation	28.6 ± 14.1	19.4 ± 12.1	15.8 ± 9.0	21.0 ± 10.0	15.0 ± 5.2	11.3 ± 5.4	9.7 ± 5.7
NICAM-g6str	5.9 ± 3.8	7.1 ± 4.3	6.8 ± 4.4	7.2 ± 4.5	5.3 ± 2.8	3.5 ± 2.3	1.6 ± 0.8
NICAM-g6	5.0 ± 1.7	4.0 ± 2.1	4.0 ± 2.4	4.4 ± 1.9	7.4 ± 4.5	2.4 ± 0.9	1.4 ± 0.5
Nighttime (9 p.m.–4 a.m.) mean PM _{2.5} (μg m ⁻³) and standard deviation (μg m ⁻³)							
Observation	24.4 ± 11.9	24.5 ± 11.8	16.9 ± 9.6	18.5 ± 10.3	10.7 ± 6.6	19.1 ± 8.2	15.4 ± 6.7
NICAM-g6str	7.5 ± 3.6	14.2 ± 9.2	12.1 ± 7.6	10.8 ± 5.5	4.1 ± 3.9	12.0 ± 4.6	5.1 ± 3.1
NICAM-g6	7.5 ± 2.3	9.1 ± 1.5	8.8 ± 2.1	8.4 ± 3.0	2.6 ± 3.1	7.8 ± 1.3	4.4 ± 2.2
Ratio of daytime-mean PM _{2.5} to nighttime-mean PM _{2.5}							
Observation	1.8 ± 0.8	1.7 ± 0.5	1.3 ± 0.4	1.2 ± 0.4	1.0 ± 0.4	1.3 ± 0.4	1.1 ± 0.3
NICAM-g6str	1.1 ± 0.6	1.3 ± 0.7	1.1 ± 0.6	1.1 ± 0.5	0.9 ± 0.3	1.2 ± 0.9	1.0 ± 0.6
NICAM-g6	0.9 ± 0.2	0.8 ± 0.1	0.8 ± 0.1	0.8 ± 0.1	0.8 ± 0.2	0.9 ± 0.2	0.8 ± 0.2

金谷らは、東シナ海の日中韓 3 カ国の観測地点における PM_{2.5}、有機エアロゾル濃度の観測値とモデル値の比較を行った[13]。図 5-1-8 に日中韓の各地点における PM_{2.5} 成分濃度の観測値とモデル値の平均濃度を示す。粒子成長過程を改良した場合には、観測値との比が 0.30-0.35 から 0.34-1.28 と過小評価の程度が低減された。PM_{2.5} 濃度も観測値との比が 0.67-0.91 から 0.68-0.95 と改善された。

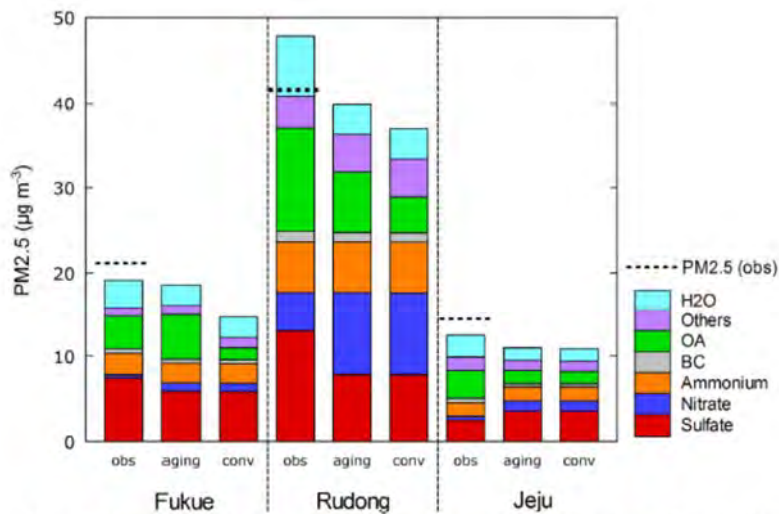


Fig. 2. Stacked bar charts of the observed (obs) and modeled average mass concentrations of major chemical components, others, and water of $PM_{2.5}$ for individual field campaigns. Summed mass concentrations are compared with the total $PM_{2.5}$ monitoring data using a horizontal dashed black line overlain on the observational bars. Modeled results are for conventional (conv) and aging runs.

図 5-1-8 日本(福江)、中国(如東県)、韓国(済州島)の各地点における $PM_{2.5}$ 成分濃度の観測値、従来のモデル値、粒子成長過程を改良したモデル値の比較、

その他、化学輸送モデルとレセプターモデルを組み合わせた、排出量データのバイアス因子の抽出に関する研究[14]、トレーサー法による日本の $PM_{2.5}$ の発生源寄与評価に関する研究[15]、 $PM_{2.5}$ による健康影響のモデル解析に関する研究[16], [17]が日本人研究者によって行われている。また、国立環境研究所の茶谷らが中心となって、日本における大気質モデル間相互比較研究(J-STREAM)が進められている[18]。

また、中国、韓国の研究者によっても多くの $PM_{2.5}$ のモデル研究が成されており、中国の Zhang らは東アジアにおける WRF/Chem の精緻化と感度計算の研究を行っており、 $PM_{2.5}$ も対象としている[19], [20]。また、韓国の Lee らは、モデルの解像度とパラメータ化が雲生成、降水のシミュレーションとエアロゾルとの相互作用に与える影響に関する研究を行っている[21]。

5.2.5 アジア域排出インベントリシステムの開発、排出量変化分析

環境省環境研究総合推進費「SLCP の環境影響評価と削減パスの探索による気候変動対策の推進」(S-12)のテーマ 1「大気質変化事例の構造解析と評価システムの構築」では、マルチスケール大気質変化評価システムの構築を目指して、アジア域排出インベントリシステムの開発を行っている。

2016 年に作成された中間研究等成果報告書では、アジア域排出インベントリ REAS 2.1(Regional Emission inventory in ASia version 2.1)における課題点を改善した、排出インベントリ REAS 2.2 によるアジアにおける汚染物質排出量変化分析の結果を示している。な

お、REAS 2.2 では、各国・領域の特性に応じた排出量推計を行っている。図 5-1-9 にアジア域における 1950-2010 年の SO₂、NO_x 地域別排出量の経年変化を示す。

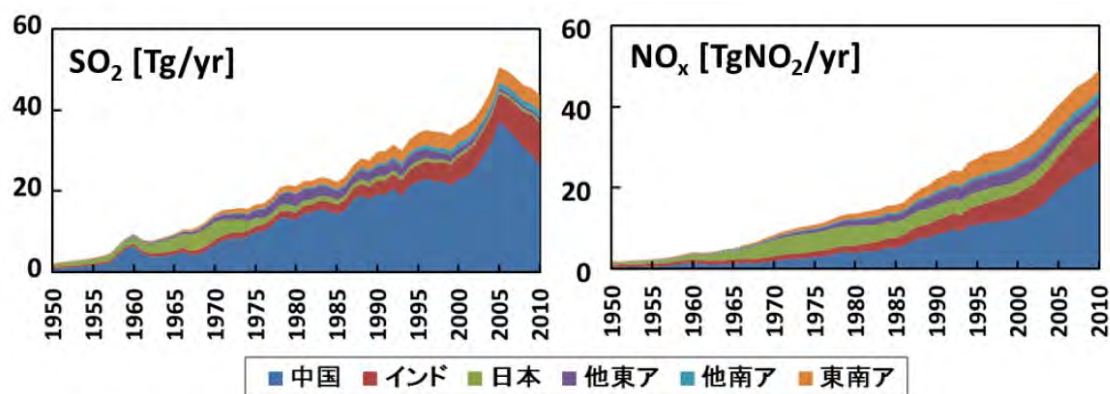


図 5-1-9 アジア域における 1950-2010 年の SO₂、NO_x 地域別排出量

1950-2010 年の 60 年間の間に、アジアにおける排出量は、SO₂ で約 20 倍、NO_x では約 27 倍の増加を示しており、他の大気汚染物質についても同様に大幅な増加を見せている。アジア域における近年の最大排出国は中国、次いでインドであるが、過去においては状況が異なっており、1960 年頃から、SO₂ は 1970 年頃まで、NO_x は 1980 年頃までにおいて、最大の排出国は日本であった。東南アジア、南アジア諸国の大気汚染物質排出量は、経済発展に合わせて、近年増加率が上昇している。その他東アジア諸国の大気汚染物質排出量は減少傾向にあるが、これは主要排出国である韓国や台湾で行われている排出規制の効果が反映されているためである。

同報告書では、セクター及び燃料種類別に排出量長期トレンドの特徴についての考察も行っている。SO₂ については、全ての期間において産業部門からの排出がコンスタントに大きな割合を占めており、燃料種類は大部分が石炭を起源としている。発電部門からの寄与については、1980 年半ば頃から増加し始め、2000 年代前半から急増した後、2006 年頃から減少に転じている。これらの特徴は全体的には主要排出国の中国のトレンドを反映している。NO_x については、発電及び産業部門に加え、自動車からの寄与が大きく、過去から現在にかけてアジア全域ではコンスタントに上昇を続けている。PM_{2.5} については産業部門、家庭部門の寄与が大きく、近年は産業プロセスや自動車の寄与も増加している。

図 5-1-10 は、日本における 1950-2010 年の SO₂、NO_x、PM_{2.5}、BC のセクター別排出量の経年変化を示したものである。1960 年頃から発電及び産業部門の SO₂ 排出量が急増しているが、1970 年頃から発電所及び工場への脱硫装置の設置による減少に転じ、現在では、人為発生源からの SO₂ に起因する大気汚染は局所的なものを除いてほぼ解消された状況となっている。NO_x については、1960 年頃から 1970 年頃にかけての排出量の増加状況は SO₂ とほぼ同様であるが、SO₂ の排出量が減少に転じた後も NO_x は緩やかに上昇を続け、1980 年

頃以降は減少傾向に転じた。この傾向の推移は、SO₂ の場合に比べて対策がやや遅れて開始されたこと、大幅かつ即効性のある対策の導入が容易でないことが要因である。PM_{2.5} 及び BC については、SO₂ 及び NO_x よりも早い 1950 年代後半から排出量の増加が始まっている。PM_{2.5} の排出量については、1990 年代以降工場に設置された高度な脱塵設備の効果により大幅に小さくなっているが、BC は 1970 年代以降自動車起源排出量が大部分を占め、1990 年頃まで増加した後、排ガス対策により減少に転じている。

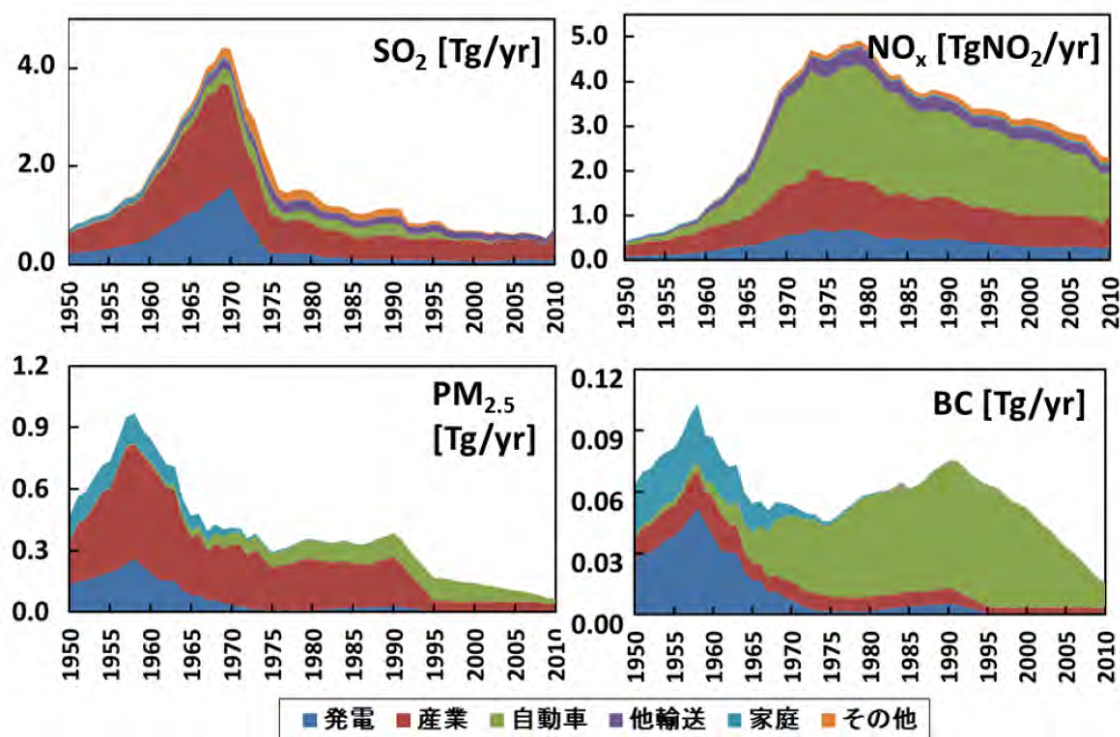


図 5-1-10 日本における 1950-2010 年の SO₂、NO_x、PM_{2.5}、BC セクター別排出量

5.2.6 日本の大気汚染物質排出インベントリ (NEI)、MICS-Asia Phase III 排出インベントリの整備

環境省では、2013 年度から「PM_{2.5} 排出インベントリ及び発生源プロファイル策定検討会」において、JEI-DB(JATOP Emission Inventory Data Base)をベースとした大気汚染物質排出インベントリの整備を進めているところであり、今後、継続的に大気汚染物質排出インベントリを整備、更新するために、インベントリ整備の方向性や対象範囲を定める必要がある。

大気環境学会は、2015 年度に排出インベントリ研究会を立ち上げ、国として整備すべき大気汚染物質排出インベントリ(National Emission Inventory : NEI)のフレームワークについて検討を行っている。本項では、研究会で取りまとめられたフレームワークの概要について

て説明する。

図 5-1-11 に NEI の役割を示す。NEI を利用して大気汚染シミュレーションや、それに基づく影響評価を行うこと、更にそれらの結果に基づいて対策を実施することなど、全体の流れのなかで NEI のフレームワークを考える必要がある。

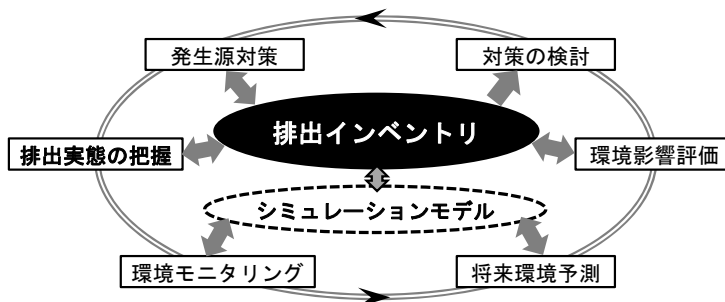


図 5-1-11 NEI の役割

この役割を果たすために、国内の主要発生源を網羅した排出インベントリ (NEI) を国が責任をもって作成する必要がある。整備すべき NEI として、排出インベントリ研究会は図 5-1-12 に示すシステムの基本構造を提案している。

【レベル 1】

排出量に関する国・行政区単位の情報。国の責任のもと、強制力をもってデータを収集・整備し、継続的に整備する。可能であれば、国家統計として位置づける。

【レベル 2】

レベル 1 のデータをもとに、シミュレーションによる政策評価等に使用できるように空間分解・編集した排出量データを整備する。

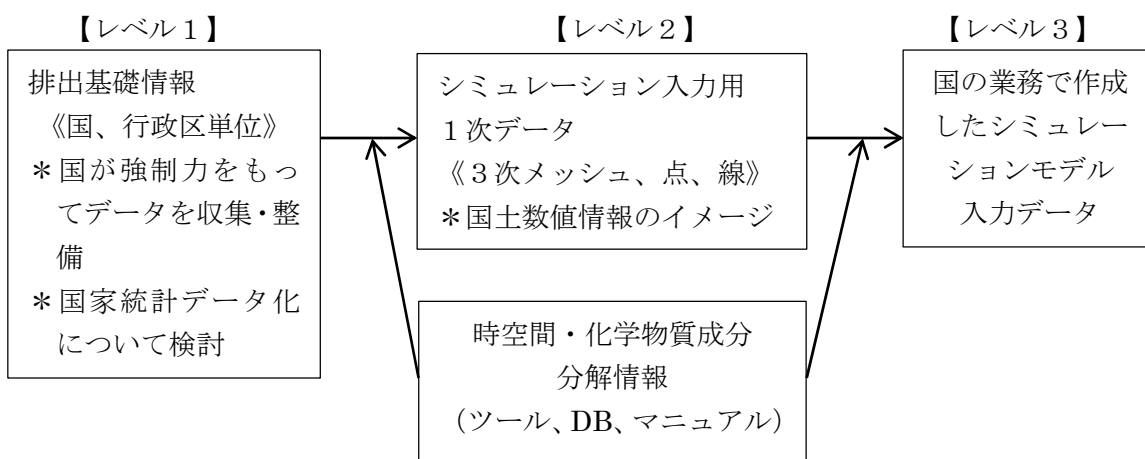


図 5-1-12 目指すべき排出インベントリ (NEI) システムの基本構造

【レベル 3】

国の事業で整備したモデルへの入力データを保存・公開することにより、国の事業の継続性を担保するとともに、自治体等での対策検討における活用、研究者による検証等が可能な状態にしておく。

国内には、国が整備している複数の排出インベントリがある。中でも、国立環境研究所温室効果ガスインベントリオフィス(GIO)が整備している温室効果ガスインベントリは、大気汚染物質の排出インベントリと構造が類似しており、温室効果ガスだけではなく、前駆物質等(NO_x 、 CO 、 NMVOC 、 SO_x)の排出量についても報告されている。したがって、NEIを国際的に公式な大気汚染物質の排出インベントリとするならば、両インベントリに共通する物質については、排出量の推計値を整合させることが必須になる。

今後想定される NEI 整備ロードマップとして、①短期的目標(1~2年程度)：NEI システム設計、整備・運用方法の検討と体制整備、②中期的目標(3~5年程度)：NEI システムの整備と運用、運用結果に基づく改良、③長期的目標(5~10年程度)：関連する排出インベントリの統合化が挙げられる。

アジア大気汚染研究センターと中国大気物理研究所(CAS/IAP)の共同研究プロジェクトである、長距離輸送モデルの国際比較第3期プロジェクト(MICS-Asia Phase III)において、モデル相互比較に使う排出インベントリの共通データの作成(Mosaic Asian Anthropogenic Emission Inventory for the MICS-Asia, MIX inventory)を行った[22]。

日本は JEI-DB および Ocean Policy Research Foundation (OPRF) のデータ、中国は清華大学(アンモニアのみ北京大学)のデータ、韓国は国立環境研究院(National Institute of Environmental Research, NIER)の Clean Air Policy Support System (CAPSS) データ、インドの SO_2 、BC、OC は米国アルゴンヌ国立研究所 David Streets らのグループのデータ、他のアジア諸国は Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2 によるデータをそれぞれ組み合わせて作成されている。自然起源排出量は、植物起源は Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) によるデータ、バイオマス燃焼は Global Fire Emissions Database (GFED) version 3.1、火山起源 SO_2 は、Aerosol Comparisons between Observations and Models (AEROCOM) および日本の主要火山については気象庁によるデータが使用されている。

現在、MIX inventory は MICS-Asia Phase III におけるモデル比較研究の参画者のみに配布しているが、関連論文の発表後には外部公開することを予定している。

5.3 オゾン、粒子状物質の長期的傾向、トレンド解析のまとめ

- O_3 濃度の日最高8時間平均値の年間99パーセンタイル値の3年移動平均値を用いて解析したところ、利尻(-1.3 ppb y^{-1})、竜飛岬(-2.4 ppb y^{-1})、佐渡関岬(-0.8 ppb y^{-1})、八方尾根(-2.1 ppb y^{-1})、辺戸岬(-0.8 ppb y^{-1})、赤城(-3.1 ppb y^{-1})、新潟巻(-1.3 ppb y^{-1})、えびの(-3.3 ppb y^{-1})、屋久島(-1.1 ppb y^{-1})の以上9地点で有意な減少傾向($p < 0.05$)がみられた。一

方、対馬(+1.1 ppb y⁻¹)では有意な増加傾向(p<0.05)がみられた。その他 13 地点では、有意な増減傾向はみられなかった。

- O₃ 濃度については期間を通じて、非遠隔地域よりも遠隔地域で濃度が高い傾向であった。また、長期的傾向については遠隔地域、非遠隔地域ともに、2007 年度まで増加傾向であったが、2008 年度以降減少傾向に転じている。この変動傾向の変化については、測定年数が短く、原因が明らかでないため、今後の推移を注視する必要がある。
- 東日本地域の落石岬、西日本地域の筑後小郡、隠岐、辺戸岬では秋季(11 月)から冬季(2 月)の O₃ 濃度月間値が 2008～2012 年度より 2013～2017 年度の方が有意に高かった、一方、利尻、佐渡関岬、八方尾根、幡竜湖において、2013～2017 年度 O₃ 濃度が有意に低い月がみられた。
- 調査期間を通して、PM₁₀ 濃度は小笠原及び八方尾根において低く、辺戸岬、隠岐及び幡竜湖で高かった。また、PM_{2.5} 濃度は PM₁₀ 濃度と連動した変動を示した。隠岐、小笠原では、2008～2012 年度より 2013～2017 年度に PM₁₀ 濃度の月間値が有意に低い月がみられた。また、落石岬では春季に 2013～2017 年度の方で PM_{2.5} 濃度が顕著に低くなる傾向が見られた。
- ソース・レセプター解析から、春季には中国からの日本への O₃ 濃度寄与が最大になり、西日本では年平均 PM_{2.5} 濃度に対する中国からの寄与は 50～60%であり、関東では 40%と算出された。
- O₃、PM 濃度の増減トレンドについては、一貫した傾向が見られないものの、アジア大陸からの日本への長距離輸送の影響が観測およびモデル解析の結果から見られており、今後の推移を注視する必要がある。

【引用文献】

- [1] Okamoto S., Tanimoto, H., Hirota, N., Ikeda, K., Akimoto, H., Decadal Shifts in Wind Patterns Reduced Continental Outflow and Suppressed Ozone Trend in the 2010s in the Lower Troposphere Over Japan, *J. Geophys. Res. - Atmos.*, doi: 10.1029/2018JD029266, 2018.
- [2] Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Greet, J.-M., Fukui, T., Kawashima, K. and Akimoto, H., Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019-11058, 2013.
- [3] Itahashi, S., Uno, I., Kim, S., Seasonal source contributions of tropospheric ozone over East Asia based on CMAQ-HDDM, *Atmos. Environ.*, 70, 204-217, 2013.
- [4] Itahashi, S., Hayami, H., Uno, I., Comprehensive study of emission source contributions for tropospheric ozone formation over East Asia, *J. Geophys. Res. - Atmos.*, doi: 10.1002/2014JD022117, 2014.
- [5] Li, J., Yang, W., Wang, Z., Chen, H., Modeling study of surface ozone source-receptor relationships in East Asia, *Atmos. Res.*, 167, 77-88, 2014.
- [6] Ikeda, K., Yamaji, K., Kanaya, Y., Taketani, F., Pan, X., Komazaki, Y., Kurokawa, J., Ohara, T., Source region attribution of PM_{2.5} mass concentrations over Japan, *Atmos. Res.*, 167, 77-88, 2014.
- [7] Zhang, H., Li, J., Yang, Q., Jian, Z. Y., Source apportionment of PM_{2.5} nitrate and sulfate in China using a source-oriented chemical transport model, *Atmos. Environ.*, 62, 228-242, 2012.
- [8] Itahashi, S., Uno, I., Kim, S., Source Contributions of Sulfate Aerosol over East Asia Estimated by CMAQ-DDM, *Environ. Sci. Technol.*, 46, 6733-6741, 2012.
- [9] Kajino, M., Ueda, H., Sato, K., Sakurai, T., Spatial distribution of the source-receptor relationship of sulfur in Northeast Asia, *Atmos. Chem. Phys.*, 11, 6475-6491, 2011.
- [10] Shimadera, H., Kojima, T., Kondo, A., Evaluation of Air Quality Model Performance for Simulating Long-Range Transport and Local Pollution of PM_{2.5} in Japan, *Advances in Meteorology*, Volume 2016, Article ID 5694251, 2016.
- [11] Morino, Y., Nagashima, T., Sugata, S., Sato, K., Tanabe, K., Noguchi, T., Takami, A., Tanimoto, H., Ohara, T., Verification of Chemical Transport Models for PM_{2.5} Chemical Composition Using Simultaneous Measurement Data over Japan, *Aerosol Air Qual. Res.*, 15, 2009-2023, 2016.
- [12] Goto, D., Dai, T., Satoh, M., Tomita, H., Uchida, J., Misawa, S., Inoue, T., Tsuruta, H., Ueda, K., Ng, C. F. S., Application of a global nonhydrostatic model with a stretched-grid system to regional aerosol simulations around Japan, *Geosci. Model Dev.*, 8, 235-259, 2015.
- [13] Kanaya, Y., Matsui, H., Taketani, F., Pan, X., Komazaki, Y., Wang, Z., Chang, L., Kang, D., Choi, M., Kim, S. Y., Kang, C. H., Takami, A., Tanimoto, H., Ikeda, K., Yamaji, K., Observed and Modeled Mass Concentrations of Organic Aerosols and PM_{2.5} at Three Remote Sites around the East

- China Sea: Roles of Chemical Aging, *Aerosol Air Qual. Res.*, 17, 3091-3105, 2016.
- [14] Uranishi, K., Ikemori, F., Nakatsubo, R., Shimadera, H., Kondo, A., Kikutani, Y., Asano, K., Sugata, S., Identification of biased sectors in emission data using a combination of chemical transport model and receptor model, *Atmos. Environ.*, 166, 166-181, 2017.
- [15] 板橋 秀一, 速水 洋 2010 年度を対象としたトレーサー法によるわが国の微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の発生源寄与評価, *大気環境学会誌*, 51, 197-217, 2016.
- [16] Goto, D., Ueda, K., Sheng Ng, K. F., Takami, A., Ariga, T., Matsuhashi, K., Nakajima, T. Estimation of excess mortality due to long-term exposure to PM_{2.5} in Japan using a high-resolution model for present and future scenarios, *Atmos. Environ.*, 140, 320-332, 2016.
- [17] Morino, Y., Ueda, K., Takami, A., Nagashima, T., Tanabe, K., Sato, K., Noguchi, T., Ariga, T., Matsuhashi, K., Ohara, T., Sensitivities of Simulated Source Contributions and Health Impacts of PM_{2.5} to Aerosol Models, *Environ. Sci. Technol.*, 51, 14273-14282, 2017.
- [18] Chatani, S., Yamaji, K., Sakurai, T., Itahashi, S., Shimadera, H., Kitayama, K., Hayami, H., Overview of Model Inter-Comparison in Japan's Study for Reference Air Quality Modeling (J-STREAM), *Atmosphere*, 9, 19, 2018.
- [19] Zhang, Y., Zhang, X., Wang, L., Zhang, Q., Duan, F., He, K., Application of WRF/Chem over East Asia: Part I. Model evaluation and intercomparison with MM5/CMAQ, *Atmos. Environ.*, 124 Part B, 285-300, 2016.
- [20] Zhang, Y., Zhang, X., Wang, K., Zhang, Q., Duan, F., He, K., Application of WRF/Chem over East Asia: Part II. Model improvement and sensitivity simulations, *Atmos. Environ.*, 124 Part B, 301-320, 2016.
- [21] Lee, S., Li, Z., Zhang, Y., Yoo, H., Kim, S., Kim, B. G., Choi, Y. S., Mok, J., Um, J., Choi, K. O., Dong, D., Effects of model resolution and parameterizations on the simulations of clouds, precipitation, and their interactions with aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, 18, 13-29, 2018.
- [22] 佐藤 啓市, 黒川 純一, 猪股 弥生, 箕浦 宏明, 日中共同による東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究プロジェクト, *大気環境学会誌*, 51, 17-24, 2016.

