

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—

大原 利眞 (おおはら としまさ)

(独立行政法人国立環境研究所アジア自然共生研究グループ広域大気モデリング研究室長)

1. はじめに

地表近くのオゾン濃度が上昇している。図1は国内の大気汚染測定局(継続測定的一般局597局)で測定された光化学オキシダント(Ox)の平均濃度の経年変化を示す¹⁾。光化学Oxの大部分はオゾン(O₃)と見なせる。1985～2004年度の20年間における5年毎の光化学Ox平均濃度は、21.1ppb、22.7ppb、24.2ppb、24.9ppbであり、約0.25ppb/年(1%/年)の割合で増加している。

光化学オゾンは、窒素酸化物(NO_x)や揮発性有機化合物(VOC)の光化学反応によって生成する。対流圏において、二酸化窒素(NO₂)は波長の短い近紫外域の光によりNO₂ → NO + Oと光解離し、酸素原子Oを生成し、このOは大気中の酸素分子と反応しオゾンO₃を生成する。この反応は光化学反応であり、環境大気中にVOCがあると、更に多くの光

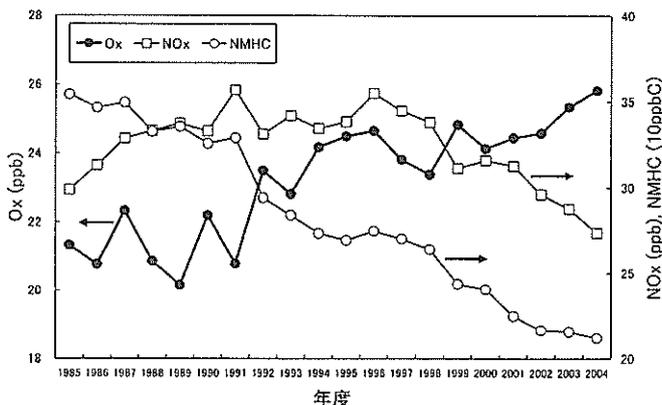


図1 全国の大気汚染測定局(継続測定的一般局)におけるOx, NOx, NMHC年平均濃度の経年変化

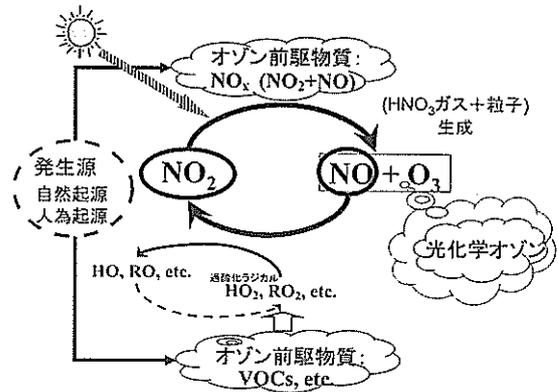


図2 光化学オゾンO₃生成の模式図

化学オゾンが生成される。光化学オゾンの増加は、喘息などの健康影響、農作物や森林などの生育阻害、大気放射への影響などもたらず。同時に、硝酸ガスHNO₃のような酸性ガス、硝酸塩や硫酸塩、有機炭素などの粒子状物質(2次粒子)の生成にも関係する(図2に模式図を示す)。光化学反応によって生成される酸化性物質のうち、NO₂を除いたものが光化学Oxと称され、光化学スモッグの指標とされている。

ところで、光化学オゾンが上昇しているのに対して、その原因物質であるNO_xとVOCは減少している。図1には、全国の大気汚染測定局で測定されたNO_xと非メタン炭化水素(NMHC; VOCの類似物質とみなせる)の平均濃度(対象測定局は各々、689局と126局)の変化も併せて示すが、これらの物質は発生源規制等により経年的に減少し

ている。何故、原因物質が低減しているのに、オゾンが増加しているのでしょうか？この要因としては、越境汚染の影響、気象変化の影響、国内の大気汚染構造の変化などが考えられている³⁾。本稿では、日本におけるオゾンの上昇が、大気汚染排出量が急増しているアジア大陸からの越境汚染による可能性が非常に高いことを示す。

2. 悪化する光化学オゾン

光化学Oxについては、1時間値が0.06ppm以下という環境基準が定められている。光化学Oxを測定している大気汚染測定局は全国に1,184局(平成17年度)あるが、このうち環境基準を達成しているのは、わずかに4局にすぎない³⁾。また、光化学Ox濃度が0.12ppmを継続して超過すると判断される場合、光化学オキシダント注意報(光化学スモッグ注意報)が発令される(0.24ppmを超過すると警報の発令となる)。このような注意報や警報も、発令される頻度が高くなっている地域が多い。2002年には千葉県で18年ぶりに警報が2日発令され、2005年には埼玉県で1日発令された。また、2006年には、注意報を発令した都道府県数が25都府県に達し、観測史上最大の数となった⁴⁾。例えば、大きな発生源地域が無い長崎県や熊本県でも、2006年5月に観測史上初めて注意報が発令された。

さらに、国内の清浄な地点(遠隔地)で測定されたオゾン濃度も上昇傾向を示している。例えば、八方尾根(長野県山岳域)と綾里(岩手県沿岸域)における年平均オゾン濃度は、1992~2002年の10年間で、八方尾根では9.0ppb(1992年基準で2%/年)、綾里でも7.3ppb(同2%/年)も増加している。東アジアモニタリングネットワーク(EANET)の国内の遠隔地で測定されたオゾン濃度も、2000年から2005年の間に数ppb~10ppb程度の上昇が観測されている⁴⁾。

3. アジアにおける窒素酸化物の増加

アジア地域では、火力発電所・工場・自動車等による石炭・石油などの化石燃料の燃焼、家庭での木炭燃焼、農業残残渣物の屋外焼却や焼き畑・森林火災などの多様な発生源から、窒素酸化物NO_xや硫黄酸化物SO_xをはじめとする様々な大気汚染物質が大量に大気中に放出されている⁵⁾。その結果、局所的な都市大気汚染から数1000kmスケールの越境大気汚染まで様々な空間スケールの大気汚染問題が多発している。なかでも中国やインドをはじめとするアジアの発展途上国では、今後も著しい経済成長が予想され、大気汚染問題が一層深刻化し、健康や食糧生産、生態系に影響を及ぼすことが懸念される。また、大気汚染物質は、地球大気の大気放射のバランスにも影響を与え、気候変動の一因にもなる。

NO_xの中でも大気汚染物質の一つとして重要な二酸化窒素NO₂は、1995年に打ち上げられた環境監視衛星ERS-2に搭載されたGOME、ENVISAT衛星のSCIAMACHY、米国NASAが2004年6月に打ち上げたAura/OMI等のセンサーにより全球スケールの観測が可能となった。SCIAMACHYセンサーで測定された2006年10月の全球(図3)とア

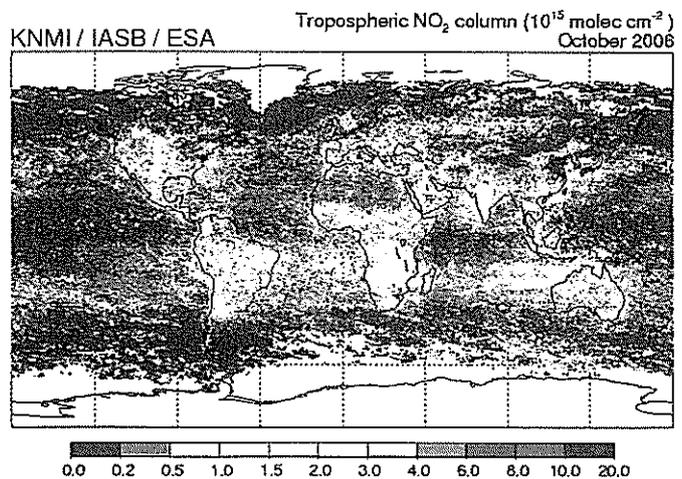


図3 ENVISAT/SCIAMACHYセンサーで測定された2006年10月のNO₂対流圏気柱濃度(<http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2month.php>)

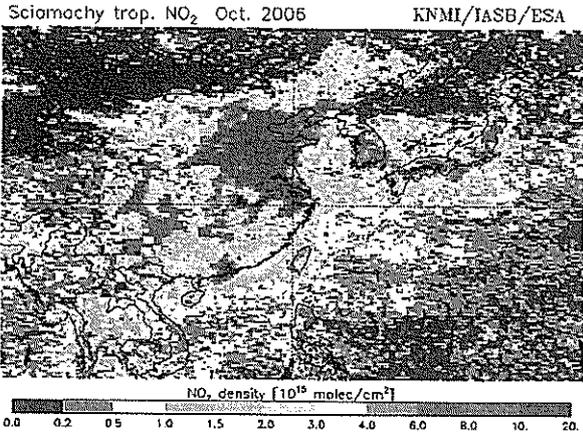


図4 ENVISAT/SCIAMACHYセンサーで測定された2006年10月のアジア域のNO₂対流圏気柱濃度 (<http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2regio.php>)。グレイの部分は欠測を意味する。

アジア域(図4)の対流圏NO₂気柱濃度を示す。この図からNO₂による汚染地域は北米, ヨーロッパ, 東アジア域に位置することが明瞭であるが, 中でも最近の東アジア域の濃度の増加が著しい。

図5には, アジア域排出インベントリ REASにおいて推計された1980年と2000年におけるNO_xの年間排出量推計の地域分布を示す⁵⁾。2000年の排出量推計結果は図4に示した衛星からの測定結果と非常に類似している。2000年におけるアジア全体のNO_x排出量は27.3Mtで, 中国(65%)とインド(17%)の排出量が非常に多く, 最大の排出国である中国では, 石炭火力発電所(34%), 工場等の石炭燃焼(25%), 自動車等の石油燃焼(25%)の割合が大きい。図6は, 1980~2003年の地域別排出量の経年変化を示す。アジア全体のNO_x排出量はこの四半世紀で2.8倍も増加している。中でも, 中国における増加は3.8倍(平均年率6%)と非常に大きく, 特に, 2000年以降は, 国内総生産GDPの年率10%程度の成長に対応するように, 過去最高である(3年間で1.3倍)。その結果, アジア域のNO_x排出量は北米や欧州を追い越し, 将来的にも排出量の増加が見込まれている(5章参照)。

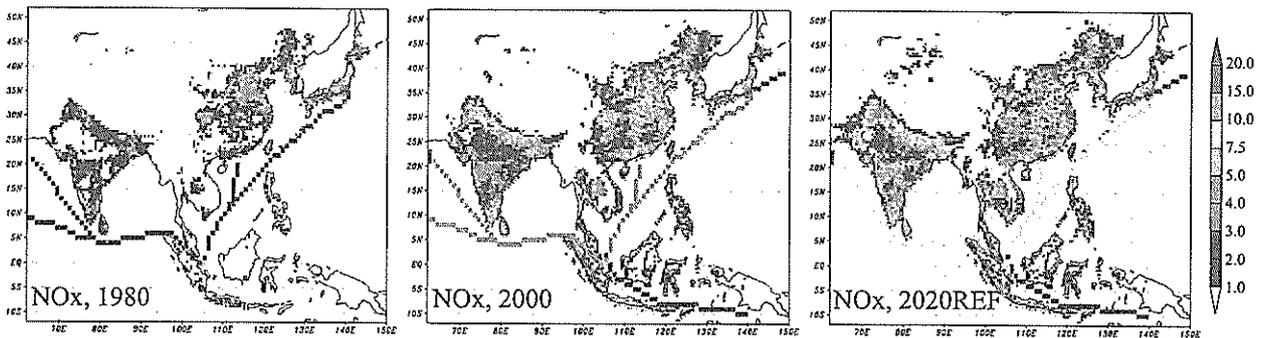


図5 アジア域における1980年, 2000年, 2020年(REFシナリオ)のNO_x排出量地域分布

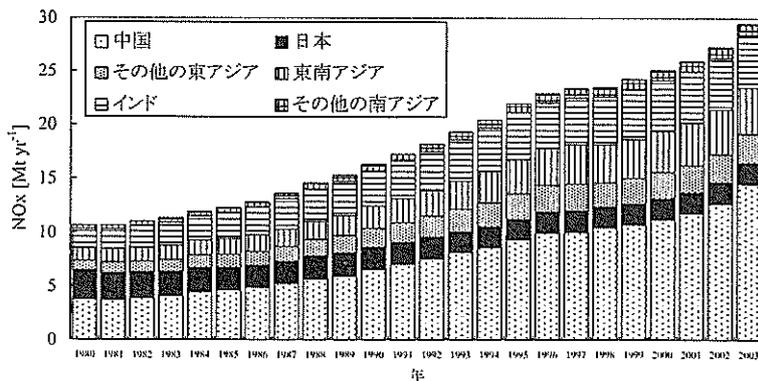


図6 1980~2003年の地域別NO_x排出量の経年変化

なお、このような最近の増加傾向は衛星観測データによって検証されている⁶⁾。

4. 越境汚染による光化学オゾンの上昇

NO_xなどの排出量が増加すると、光化学オゾンが増加する。国立環境研究所、九州大学応用力学研究所、海洋研究開発機構などの共同研究グループでは、アジア域を対象とした対流圏物質輸送モデル(シミュレーションモデル)を用いて、アジア域の光化学オゾンのシミュレーション研究を進めている。大陸で排出されたNO_xやVOCは光化学オゾンを生じ、それが長距離輸送され、アジア大陸の風下に位置する地域(韓国や日本など)に越境汚染を引き起こす。図7には、長崎県で史上

初めて光化学スモッグ注意報が発令された2006年5月30日の地上オゾン濃度分布を示す(モデルによるシミュレーション結果。図中の矢印は風系を示す)。環境基準0.06ppmを上回る0.08ppmを超えるオゾンが、中国東岸、黄海、韓国、九州から西日本の広範囲を覆っている。同時刻には長崎県下で0.12ppmを超過する光化学O_xが観測されており、この高濃度エピソードが数千kmスケールの広域汚染に起因する様子が見て取れる。また、モデル計算結果によると、地上オゾンの2000年4月平均濃度は、本州を含む日本海周辺地域の広い範囲で環境基準0.06ppmを超過しており、そのうちの10-20%程度が中国・韓国起源であることが判明している⁷⁾。これらの結果は、東アジア域での人間活動に伴って排出されたNO_xが大気中の光化学反応を経てオゾンを生じ、我が国の大気環境に大きなインパクトを与えていることを意味している。

図8は、1980~2003年のアジア域排出インベントリREAS(3章参照)を使ってシミュレーション計算された日本の地上オゾン濃度の経年変化を示す⁸⁾。モデルで計算されたオゾン濃度は、1980年から2003年において約0.22ppb/年の割合で上昇しており、図1で示した観測結果とほぼ一致する。また、図8

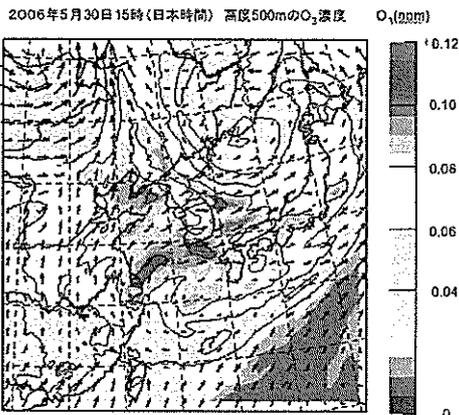


図7 シミュレーションされた2006年5月30日15時の地上オゾン濃度の地域分布

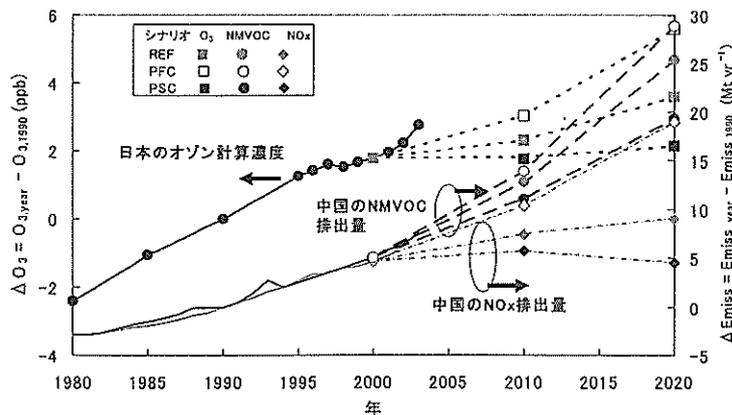


図8 日本の地上オゾン濃度(シミュレーション結果)と中国におけるNO_x、NMVOC排出量の経年変化。ΔO₃は各年と1990年の日本の地上オゾン平均濃度の差、ΔEmissは各年と1990年の中国排出量(NO_xとNMVOC)の差をそれぞれ示す。

には、中国におけるNO_xとVOCの人為起源排出量の経年変化も併せて示す。この図から明らかなように、日本の地上オゾン濃度と中国の排出量の増加傾向は非常に類似している。シミュレーション結果では、中国国内でのNO_xの排出総量が1年間で100万トン増加すると北京・華北平原から上海にかけて地表オゾンの年間平均濃度は0.001ppm増加し、夏季の平均濃度は1996年間から2003年に約0.008ppm増加することが示されている。また、風下に位置する日本では中国の増加率の30-50%程度であるが、確実にオゾン濃度の増加がもたらされている。これらのことから、中国国内での排出量の増加によってアジア大陸で生成されるオゾンが増加し、これが日本に越境輸送された結果、日本の地上オゾンが上昇したことを強く示唆している。なお、シミュレーション結果によれば、光化学オゾン濃度の変化はNO_x排出量に依存し、VOC排出量に対する感度は小さい。即ち、いわゆるNO_x律速(NO_x-limited)にあると考えられる⁹⁾。

5. オゾンの将来を予測する

前述したアジア域排出インベントリREASでは、3種類の将来シナリオを設定し、2010年と2020年の排出量予測も行っている⁵⁾。その結果によると、2020年における中国のNO_x排出量は、持続可能性追求型(REF)と

現状推移型(PFC)のシナリオでは、2000年に較べて、それぞれ、1.4倍、2.3倍に増加する(図8参照。また、図5にはREFシナリオでのNO_x排出量分布を示す)。一方、強力なエネルギー・環境対策を実施するシナリオ(PSC)では、2000年レベルに比べ、わずかではあるが減少する。ここで注目すべきは、2003年のNO_x排出量(実績値)が、既に、2010年REFシナリオのNO_x排出量(予測値)レベルに達していることである。更に、2003年以降の燃料消費量の増加傾向から判断すると、現在のNO_x排出量は2010年PFCシナリオの予測値付近まで達していると考えられる。このようなことから、2020年にはPFCシナリオの予測値を凌駕するようなNO_xが排出される可能性がある。

それでは、2020年には、地上オゾンはどの程度増加するのであろうか? 図9には、2000年と2020年のREFシナリオとPFCシナリオの排出量を用いてシミュレートされた地上オゾンの年平均濃度分布を示す⁹⁾。2020年REFシナリオでのオゾン濃度上昇量は、中国国内(0.010-0.015ppm)、東シナ海~九州から西日本(0.004ppm強)、関東地域(0.003ppm)と予測され、九州から西日本の日本海側では年平均濃度でも環境基準レベルに近いことが判る。また、九州では、オゾン濃度が環境基準0.06ppmを超過する時間割合は2000年の25%から2020年には約32%に増加する。PFCシ

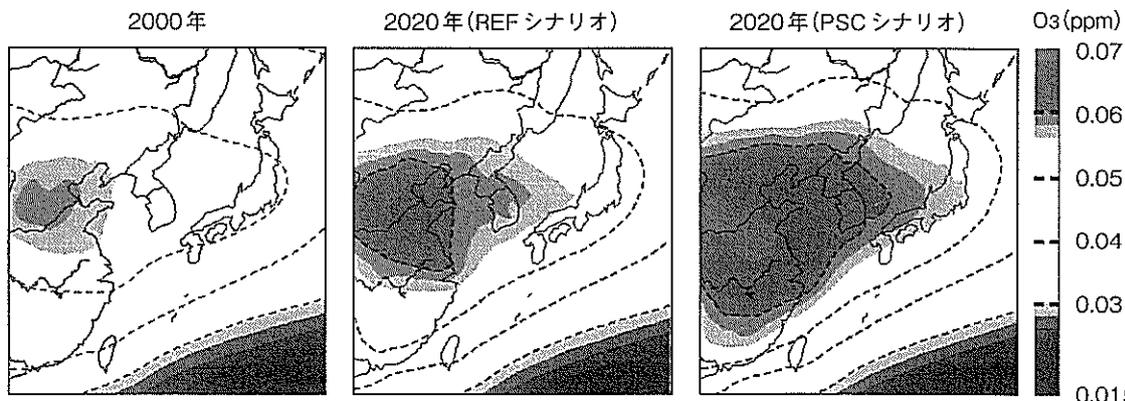


図9 シミュレーションされた2000年と2020年の排出シナリオ(REF, PFC)別の地上オゾン年平均濃度。等値線は、0.03, 0.04, 0.05, 0.06 ppmのオゾン濃度を示す。

ナリオの場合には、更に、東アジアの広い地域でオゾン濃度が急激に上昇する。日本への影響も増大し、西日本一帯で年平均濃度が環境基準レベルに近づき、九州における環境基準超過率は約40%にも達する。このように、近い将来、越境汚染によって日本のオゾン濃度レベルが高くなる危険性が非常に高い。1, 2章で示した光化学オゾンの上昇を示す多数の事実は、このような越境汚染の影響が既に増大しつつあることを示すものである。

6. おわりに

以上のように、日本の地表近くにおける光化学オゾンの上昇は、中国等のアジア大陸からの越境汚染に大きな影響を受けていることが明らかである。一方、夏季に大都市圏周辺で発生する高濃度オゾンについては、国内都市域で排出されたNO_xとVOCによる光化学生成が主要な原因であるが、越境汚染はそのような高濃度オゾンのベースラインを押し上げていると考えられる。したがって、日本の大気環境保全のためには、国内の大気汚染防止対策を着実に推進すると同時に、アジア諸国を含めた国際的な防止対策を早急に講じるという2面的な取り組みが必要である。とりわけ、後者については、国際的な政策担当者と科学者が連携し、欧米の越境大気汚染条約のような国際的な政策・対策の立案・実行に向けて、具体的な一步を踏み出すことが緊急かつ重要な課題である。

謝辞

本稿を作成するにあたり、多大な御協力を頂いた九州大学応用力学研究所の鶴野伊津志教授、海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センターの山地一代研究員に感謝を表す。

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), pp.255, 2007.
- 2) 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研究, 大気環境学会誌, 38, 47-54, 2003.
- 3) 松井佳巳:光化学大気汚染の状況と対策, 生活と環境, 52, 63-68, 2007.
- 4) 酸性雨研究センター:早急な対応が必要「増え続ける対流圏オゾン」, <http://www.adorc.gr.jp/adorcjp/>, 2007(4月1日発表)
- 5) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, *Atmospheric Chemistry and Physics Discussion*, 2007.(投稿中) (<http://www.jamstec.go.jp/frcgc/research/p3/emission.htm>参照)
- 6) Akimoto, H., T. Ohara, J. Kurokawa, and N. Horii: Verification of energy consumption in China during 1996-2003 by satellite observation, *Atmos. Environ.*, 40, 7663-7667, 2006.
- 7) Tanimoto, H., Y. Sawa, H. Matsueda, I. Uno, T. Ohara, K. Yamaji, J. Kurokawa, and S. Yonemura: Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, *Geophys. Res. Lett.*, 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514, 2005.
- 8) Uno, I., T. Ohara, K. Yamaji, and J. Kurokawa: Recent trends and projections in Asian air pollution, *Journal of Disaster Research*, 2007.(印刷中)
- 9) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, and H. Akimoto: Future Prediction of Surface Ozone over East Asia using the Models-3 Community Multi-scale Air Quality Modeling System (CMAQ) and the Regional Emission Inventory in Asia (REAS), *J. Geophys. Res.*, 2007.(投稿中)

日本における光化学オゾンの上昇

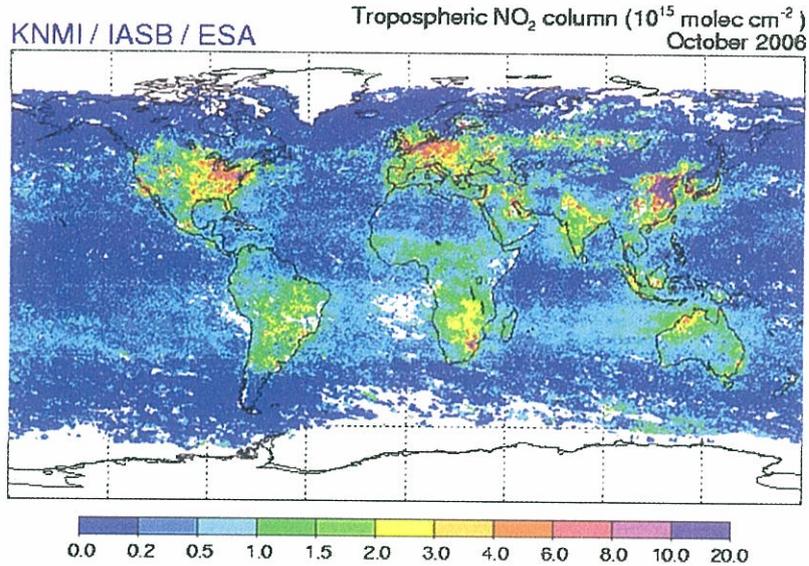


図3 ENVISAT/SCIAMACHY センサーで測定された2006年10月のNO₂対流圏気柱濃度 (<http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2month.php>)

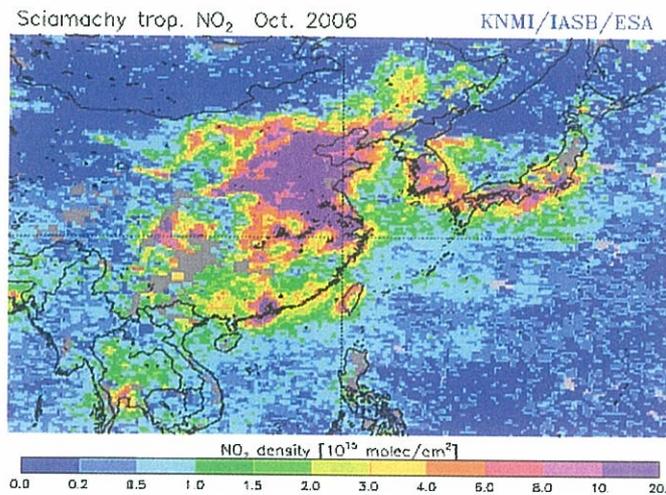


図4 ENVISAT/SCIAMACHY センサーで測定された2006年10月のアジア域のNO₂対流圏気柱濃度 (<http://www.temis.nl/airpollution/no2col/no2regio.php>)。グレイの部分は欠測を意味する。

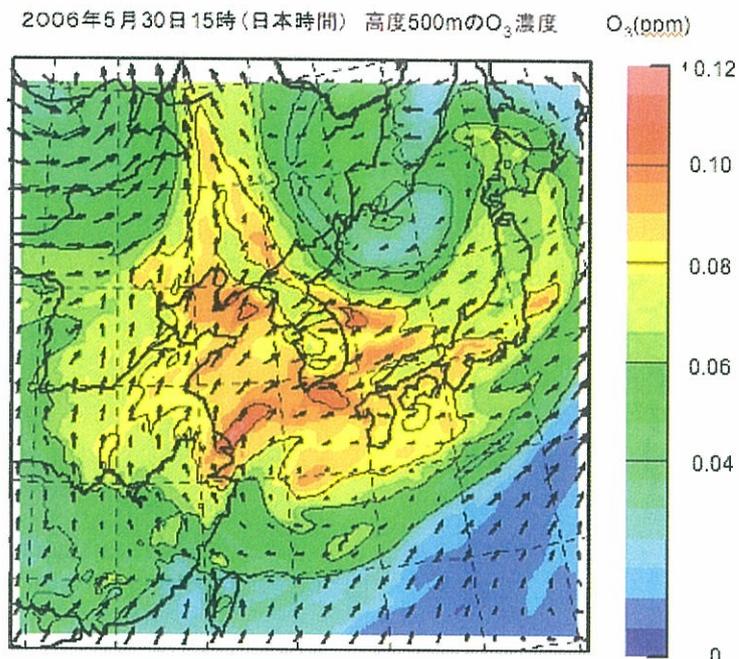


図7 シミュレーションされた2006年5月30日15時の地上オゾン濃度の地域分布

※記事本文は本紙90頁に掲載の「越境大気汚染問題と其の対応 第2回」をご覧ください。

日本における光化学オゾンの上昇

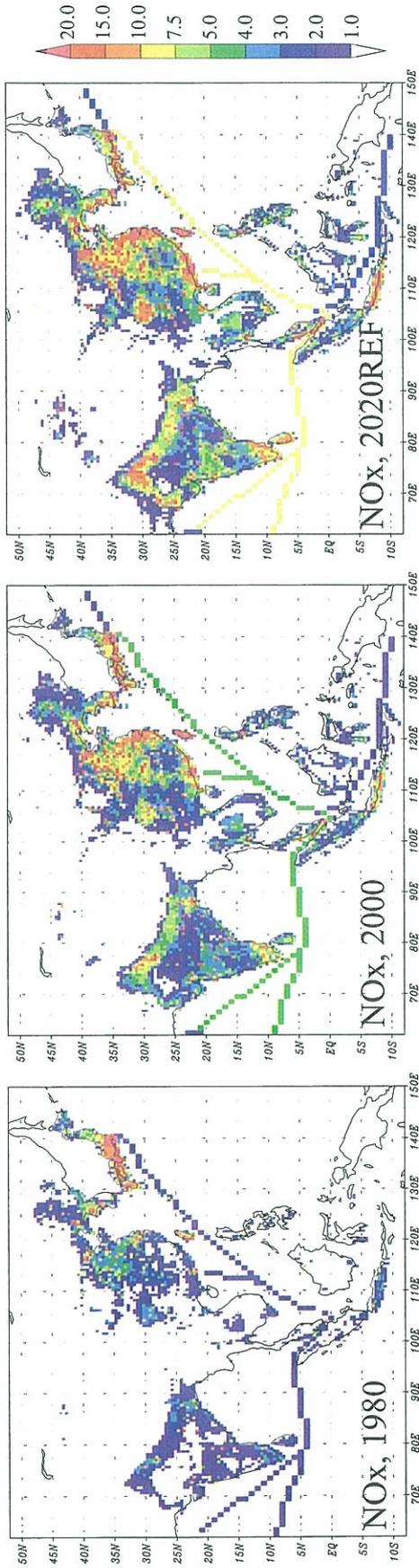


図5 アジア域における1980年、2000年、2020年(REFシナリオ)のNOx排出量地域分布

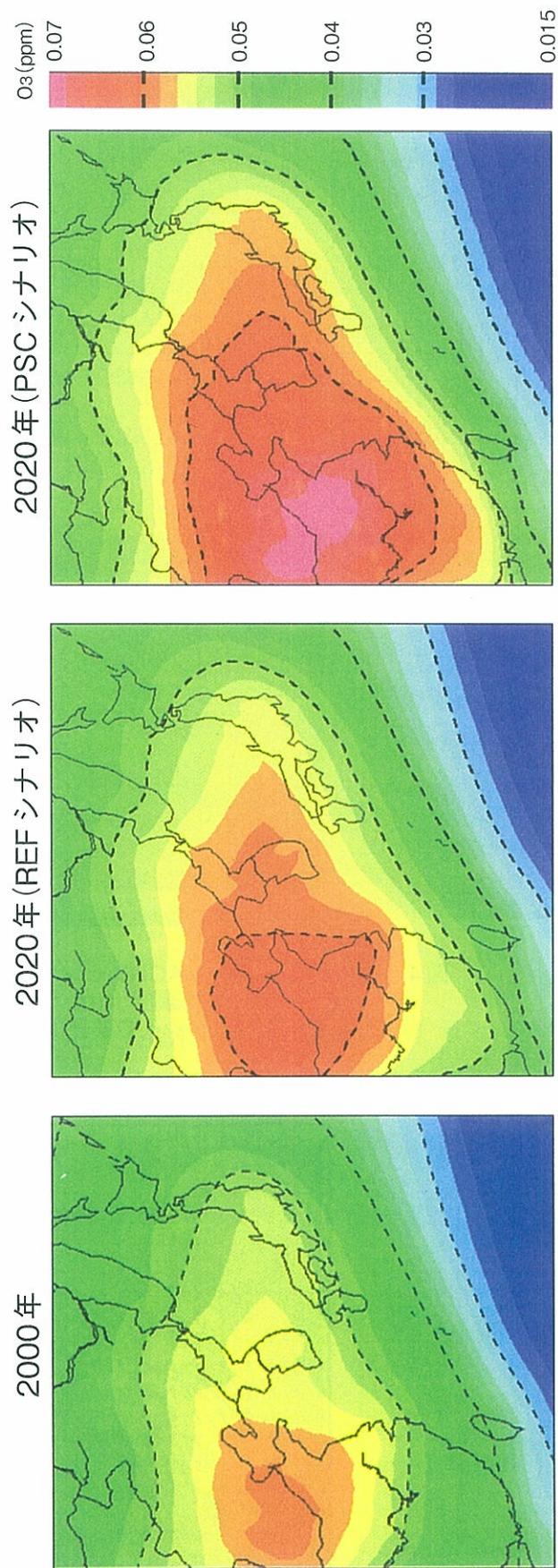


図9 シミュレーションされた2000年と2020年の排出シナリオ(REF, PFC)別の地上オゾン年平均濃度。等値線は、0.03, 0.04, 0.05, 0.06 ppmのオゾン濃度を示す。