

光化学オキシダント問題は今

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*

山地 一代**・秋元 肇**

はじめに

光化学大気汚染が1950年代以来米国で、次いで70年代日本で大きな社会的問題となつて以来、その政策対応は「オキシダント抑止戦略」という名で呼ばれてきた。光化学大気汚染の主成分である光化学オゾン・オキシダントは、よく知られているように窒素酸化物(NO_x)と揮発性有機化合物(VOC)から生成する2次汚染物質であり、その抑止をもっとも効率的に進めるには NO_x 、VOCそれぞれの排出量をどれだけ抑制すべきかを議論するのが「オキシダント抑止戦略」であり、その基礎になるのが大気化学輸送モデルに基づく数値モデルである。大気化学輸送モデルの精度が十分高いものであるなら、「オキシダント抑止戦略」は数値モデルによる予測計算に基づいて構築するのがもっとも論理的である。しかしオゾン濃度に影響する重要な要素、たとえば光化学反応、輸送拡散過程、自然・人為発生源からの排出量などが十分な精度で取り扱われていない場合には、数値モデルの予測は誤った結論を導くことになり、それに頼った戦略は危うく、コスト・パフォーマンスの悪いものになるおそれがある。

このような観点から見た場合、計算機能力の飛躍的向上と大気化学研究の著しい進展と

相まって、最近の大気化学輸送モデルの進歩は著しい。たとえば大気化学的知見に基づいて、数値モデルによる日本のオゾン汚染の議論にも、アジア大陸やさらにはヨーロッパ・北米からのオゾンの長距離越境汚染などの重要なプロセスが取り込めるようになってきたのは、大きな進歩である。本稿ではこのような観点から将来の「オキシダント抑止戦略」の基礎となり得る、最近の数値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を紹介する。

1. アジアにおける NO_x 排出量の増加と将来予測

大気化学輸送モデルによるオゾンの現状と将来予測の議論には、その入力データとしてオゾン前駆体物質である NO_x とVOCの排出量が必要であり、その将来予測に対しては排出量の予測精度がきわめて重要となる。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および北米大陸の 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

* The Status Quo and Future Prediction of East Asian Ozone Pollution Learned from Recent Model Studies

** Kazuyo YAMAJI 海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター, Hajime AKIMOTO 同

キーワード ①オゾン汚染 ②光化学オキシダント ③東アジア ④長距離越境輸送 ⑤化学輸送モデル

転じた。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⁾。

図1に、筆者らが進めているアジア(東アジア、東南アジア、南アジアを含む)の排出量推計²⁾(Regional Emission Inventory in Asia: REAS)に基づく、NO_xの排出量推計を他のいくつかの推計結果とともに示す。1980年以降、アジアのNO_x排出量は明らかな増加傾向(0.8Tg/yr)を示し、とくに最近(2000～03年)の増加傾向は著しい(1.4Tg/yr)。最近のアジアのこの顕著な増加は、中国におけるNO_x排出量の増加(2000～03年に1.1Tg/yrの増加)を色濃く反映している。図1にはREASと比較して、Aardenneら³⁾によって推定されたアジアのNO_x排出量推計(90年)およびNO_x排出量予測(2000～20年)を示す。REASの過去トレンドと比較すると、彼らのNO_x排出量予測は、幾分過大評価であるが、1990～2000年の増加傾向を比較的良好に捉えている。

将来予測シナリオとしてはAardenneら³⁾の他、IPCCの複数種のシナリオ⁴⁾やIIASA(国際応用システム分析研究所)による2種類の排出量シナリオ“現状政策型シナリオ(Current Legislation Scenario: CLE)と最大限削減政策型シナリオ(Maximum Feasible Reduction:

MFR)に基づく全球での大気汚染物質の排出量予測(2010～30年)⁵⁾がある。IPCCのA2とB2シナリオおよびIIASAのCLEとMFRに基づく1990～2030年のアジアNO_x排出量推移を図1に示す。

IIASAの過去推計(1990～2000年)は、同時期のREASのNO_x排出トレンドと非常によく一致しているが、2000年以降に推計されたNO_x排出量の急激な増大を考えると、IIASA CLEの将来推計は過小評価であるように見える。IIASA MFRは、予測シナリオというよりは、現在の対策技術を途上国に対しても最大限機械的に適用した場合に、ここまで排出量を減らせるという仮想的モデルと考えるべきであろう。

これらの将来シナリオに対して筆者らはREASの将来シナリオを提案している⁶⁾。これは中国に対して3種類の排出量シナリオ①環境志向型(Policy Succeed Case: PSC)、②持続可能性追求型(Reference Case: REF)、③現状推移型(Policy Failure Case: PFC)を仮定し、その他のアジア諸国に対してはReference Caseのみを適用した推計であり、図1にはその結果も同時に示した。PFCシナリオにおけるNO_x増加率はIPCCのA2およびB2の将来予測に近く、REFとPSCシナリオにおけるNO_x増加率はIIASA CLEに近い。上の議論から中国における排出抑制が今後著しく強化されない限り、東アジアにおけるNO_x排出量はPFCの経緯をたどる可能性が高く、この場合後に見るように日本を含むアジアのオゾン汚染はきわめて憂慮すべきレベルに達するものと思われる。

2. 全球モデルによるオゾン汚染の将来予測

東アジアに特化した領域モデルによるオゾン汚染の計算結果を見る前に、全球化学輸送モデルを用いた対流圏オゾン濃度予測実験の結果を見てみよう。

LelieveldとDentener⁷⁾は、一定の気象条件

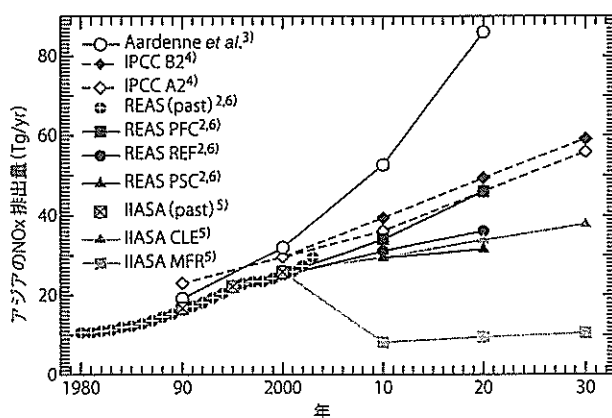


図1 アジア(東アジア、東南アジア、南アジアを含む)におけるNO_x排出量の過去と将来

(1993年の気象場)のもとでのIS92a排出シナリオ(IPCC SRESシナリオのうち中庸なシナリオの一つ。図1には含まれていない)を用いた場合の2025年における全球オゾンの将来予測を行っている。この結果によると、1993～2025年の間に、東アジアのオゾン濃度は夏季に月平均で10ppbv程度増加する。とくに北海道および沖縄を除いた8月の日本域の月平均オゾン濃度は、2025年に50～60ppbvに達しており(93年は40～50 ppbv程度)、環境基準が60ppbv(一時間値)であることを考えると、日本に非常に大きな環境影響がもたらされることを予感させる結果となっている。

一方、WangとMauzerall⁸⁾によるIPCC B2シナリオ(地域共存型社会シナリオ、環境対応型)に基づいた将来排出量予測値(1990～2020年、アジアのNO_x排出量は約2.5倍に増加)を用いた予測実験によると、1990～2020年の間に、夏季のオゾン濃度は、中国域で10～15ppbv増加し、日本域で5 ppbv程度の増加を示している。

最近、IPCC第4次評価報告書作成に向けて、対流圏オゾンをターゲットとした中期将来予測実験が、26種の全球大気化学輸送モデルによって行われた。この一連のモデル実験では、統一した三種類の排出量シナリオ、IIASA CLE, IIASA MFR, IPCC A2(多元化社会型シナリオ、急速な排出増加シナリオの一つ)が用いられた。各排出シナリオに従うと、地表オゾンの全球年間平均は2000～30年の30年間に、それぞれ 1.5 ± 1.2 ppbv(CLE)増

加、 2.3 ± 1.1 ppbv(MFR)減少、 4.3 ± 2.2 ppbv(A2)増加するという予測結果が発表された⁹⁾。このモデル実験の結果からは、これらの世界の全球モデルでは現状オゾンの再現実験でさえもモデル間に大きなばらつきがあり、将来予測結果にはさらに大きな差が生じることが明らかとなっている。したがって、とくに全球モデルによって東アジアのオゾン汚染を議論する際には、この地域でのオゾン観測値によるモデルの検証実験が非常に重要である。

3. 東アジア域におけるオゾン汚染の特徴と領域モデルの検証

モデル計算によるオゾンの将来予測実験においては、過去または現在の観測データによるモデルの検証が非常に重要である。筆者らは東アジアのオゾン汚染の時・空間的な把握をめざして、アジア域の排出量データベースREAS²⁾と領域化学輸送モデルCMAQ¹⁰⁾(Community Multiscale Air Quality)を利用した東アジアオゾン濃度の解析・将来予測をするに当たって、まずモデルの検証を行った¹¹⁾。

図2は、2000年のEANET(東アジア酸性雨モニタリングネットワーク)局である対馬と隠岐における、モデルと観測の日平均オゾン濃度を比較したものである。日本域のオゾン濃度は、気象因子(日射、気温、気流)の影響を受け、①春から初夏にかけて日射と気温の増加とともに上昇、②清浄な海洋性気団の影響が強まる盛夏に減少、③海洋性気団の影響が弱まる秋季に再上昇、④日射・気温が低下

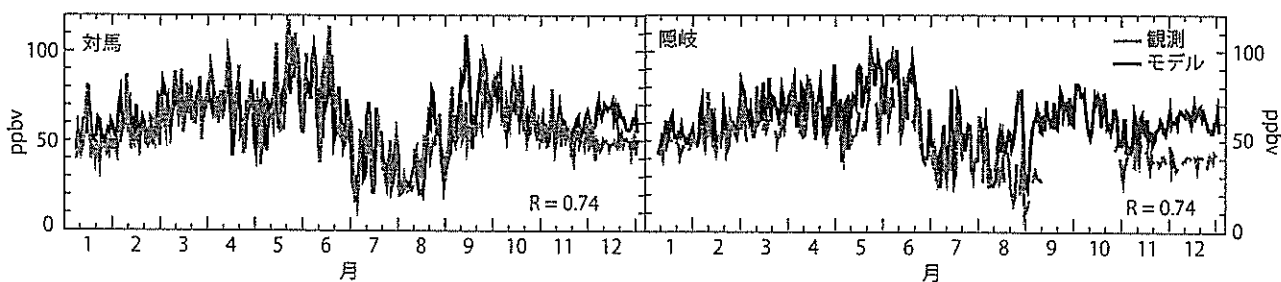


図2 対馬と隠岐におけるオゾン濃度のモデルと観測の比較¹¹⁾(黒色:モデル, 灰色:観測)
図中の数字は相関係数を示す

する冬季に減少する，という特徴的な季節変動を示す。日射と気温はオゾンの光化学生成量を左右し，気流の変化は日本域が清浄気塊（海洋性気団）と汚染気塊（大陸性気団）の何れの影響が強いかを左右する。図2に示されるように，筆者らのモデルはこの特徴的なオゾンの季節変動特性や濃度レベルをよく再現している。また，数日周期で変動する，総観規模の気象によるオゾン濃度の変動を比較的よく捕らえている。

図3は，このモデルによって計算された2000年5～6月および7～8月の平均地表オゾンの濃度（2カ月平均）を示す。5～6月，中国～朝鮮半島～日本（北緯30°～45°付近）にかけてオゾンの高濃度帯が見られ，地表オゾンの2カ月平均濃度は，華北平原で65～70ppbv，中国北東部，朝鮮半島および日本の一部地域で60～65ppbvに達する。7～8月，海洋性気団の影響を受ける中国南部，朝鮮半島や日本では，5～6月に比べ平均オゾン濃度の減少がはっきりと確認できる。一方，中国北東部（とくに華北平原）では，若干の減少が確認できるものの，60ppbv以上のオゾンに覆われることが分かった。

4. 東アジアにおける大陸内オゾン生成—領域モデルによるアプローチ

筆者らは地表オゾンの起源を調べるため

に，排出量をゼロにしたモデル実験（排出量ゼロ実験）を行い，東アジアのオゾン汚染が「モデル領域内（東アジア内）からのオゾン前駆汚染物質の排出」と「モデル領域外（東アジア以外）からの流入」の何れに起因しているか調べた¹¹⁾（ここでのモデル領域とは，図3に図示された範囲である）。このような排出量ゼロ実験は，オゾン生成に関わる前駆物質の起源を見積もるのに有効である。

図4は，2000年5～6月および7～8月における，東アジアから排出された汚染物質によって生成された地表オゾンの平均濃度（2カ月平均）を示す。5～6月，オゾン濃度は中国東部，朝鮮半島，関東以南の日本域で高く，20～35ppbvに達する。7～8月，東アジアの汚染物質は，中国華北平原や朝鮮半島北部の地表面オゾンを30～35ppbv増大させる。すなわち，日本を含む，東アジアからの汚染物質の排出による影響は，日射や気温の増加に伴って光化学活性の高まる春から夏にかけて増大する。しかしながら，東アジアの汚染物質起源のオゾン生成のみでは，図3の地表オゾン濃度に及ばず，東アジア外からの影響が十分に大きいことも判明した。

5. 東アジアにおける大陸間オゾン輸送—全球モデルによるアプローチ

域外からの東アジアに対するオゾンの寄与

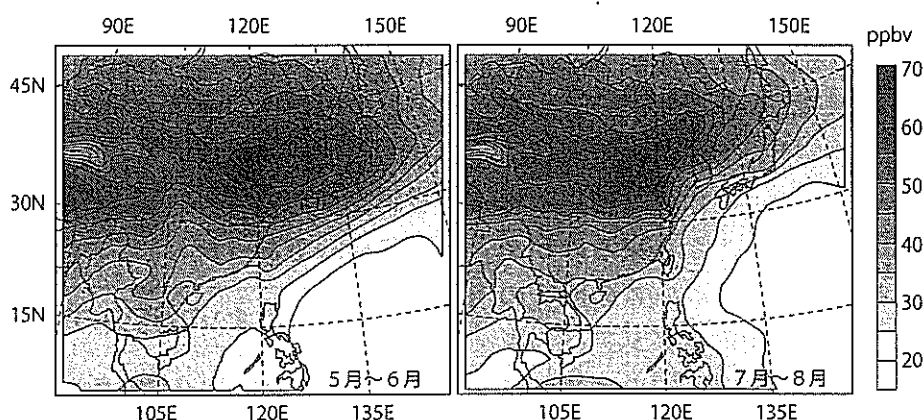


図3 2000年5～6月と7～8月におけるCMAQモデルによって計算された東アジアの地表オゾン濃度¹¹⁾

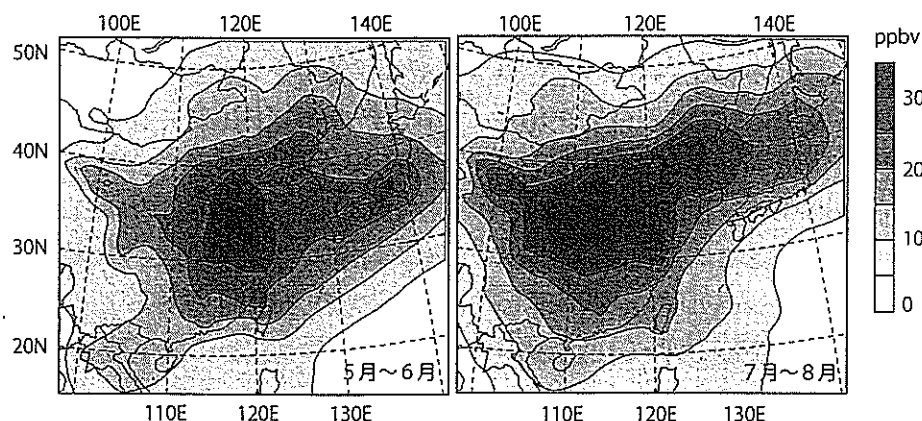


図4 2000年5～6月と7～8月における東アジアの汚染物質起源の光化学生成地表オゾン濃度¹¹⁾

を明らかにするため、Wildら¹²⁾は全球化学輸送モデルを用いて、ヨーロッパ・北米大陸のオゾン前駆汚染物質排出量ゼロ実験を行った。図5は、ユーラシア大陸を横断する大気の大東アジアへの入口に位置する東シベリアのモンディ(51 N, 101 E, 2006 m asl)におけるオゾン濃度が、ヨーロッパから1.1～4.5 ppbv、北米から0.8～3.6ppbv、それぞれ影響を受けていることを示している。また、これらの影響は冬から春にかけて増大してピーク(月平均値でヨーロッパ: 3.6ppbv、北米: 3.2ppbv)を迎えた後に、夏季に減少(月平均値でヨーロッパ: 1.8ppbv、北米: 1.4ppbv)する季節変動を示し、春季(3～4月)におけるヨーロッパと北米からの寄与が、東アジアの清浄地域のオゾン濃度に対して合わせて約15%であることが示された。

さらに、全球さまざまな場所におけるオゾンがどこから来ているかの起源を調べるために、SudoとAkimoto¹³⁾によって全球モデルを用いたタグ付きトレーサー実験が行われた。タグ付きトレーサー実験は、オゾンの生成場所を見積もり、オゾンがどこから来るのかを明らかにすることに有効である。この研究の結果からは、ヨーロッパから東アジアへの影響は、たとえば鹿児島県の境界層内のオゾンに対し、4月に2～2.5ppbv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、

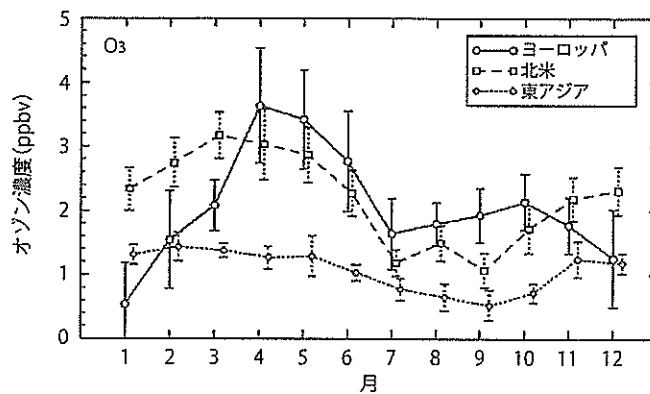


図5 ヨーロッパ、北米および東アジアでの化石燃料燃焼によるモンディ(東シベリア)のオゾン濃度への影響¹²⁾

4月に1～2 ppbv程度で、7月に0.5ppb以下に減少を示した。両大陸からの影響が春季に大きく、夏季に減少するという変動パターンは、Wildら¹²⁾の結果とよく一致した。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桁違いに大きく、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、15ppbvに達することが分かった。また成層圏からの寄与も、冬季から春季に多く10～15ppbvであった。

6. 日本のオゾン汚染の現状と将来

(1) 日本のリモート地点における越境輸送の影響

日本のオゾンに対する越境輸送の影響の定

量化は、現在このように全球モデルおよび領域モデルを用いた研究が進行中であるが、前にも述べたようにこのような研究には観測データによるモデルの検証が重要である。地表オゾン濃度の観測値によるモデルの検証については図2ですで見したが、ここでは越境輸送量の観測データによるモデルの検証について触れておこう。

日本のリモートな地点(隠岐: 36 N, 133 E, 90 m asl, 八方: 36 N, 137 E, 1840 m asl)に到達する異なる気塊(東アジア地域汚染気塊: RPC, 東アジア大陸性清浄気塊: BK)中のオゾン濃度は, Pochanartら¹⁴⁾がトラジェクトリー解析によって調べている。図6¹⁵⁾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および, 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, 春季から夏にかけて増大し, 4~9月の間中, 月平均値が約55ppbvである。また, 八方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, すでに日本の環境基準(60ppbv)に近いことを示している。一方, 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15~20ppbに達し, 冬季に最低(数ppbv)であることが観測データの解析から求められている。

図7は, 隠岐におけるオゾン濃度の季節変化と, 上記の観測・トラジェクトリー解析^{14, 15)}と領域化学輸送モデルによる排出量ゼロ実験¹¹⁾による東アジア汚染起源のオゾン濃度の季節変動を比較したものである。手法および対象年は異なるが, モデルが観測をよく再現していることが分った。各々の設定した東アジアの範囲は異なるが, 地表オゾン濃度に対する東アジアの影響は冬季に小さく(10%程度), 春から夏にかけて増大し, 盛夏(7~8月)には50%以上に及ぶことが示された。

(2) 日本オゾン汚染の将来予測

全球レベルでの地表オゾン濃度の将来予測のためのモデル研究は, 最近活発に行われてきている。しかし, これまで言及したように, 排出量推計予測の不確かさ, モデル自身の観測値再現精度の問題, とくに統一した排出量を使用した場合にもモデル間の計算値に大きな差が生じる等の問題が含まれているのが, 対流圏オゾンの将来予測研究の現状である。

そこで筆者らのグループでは, アジアを対

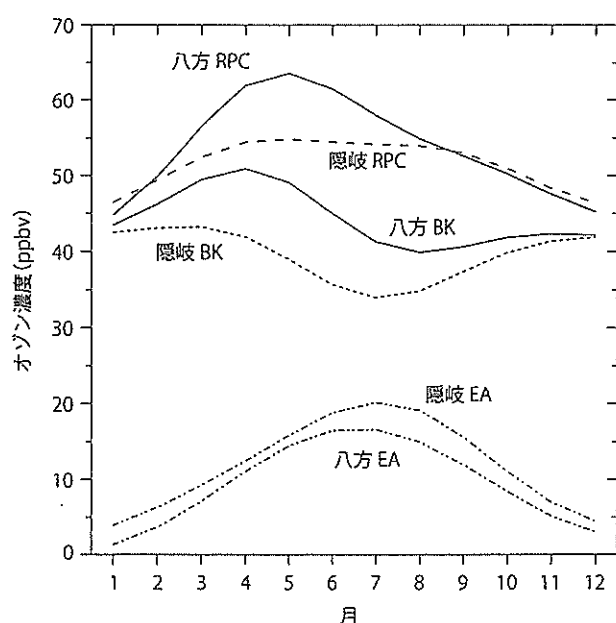


図6 観測から求められた隠岐および八方における東アジア地域汚染気塊(RPC)と東アジア大陸性清浄気塊(BK)のオゾン濃度およびこれらの濃度差から求められた東アジア汚染起源のオゾン濃度(EA)¹⁵⁾

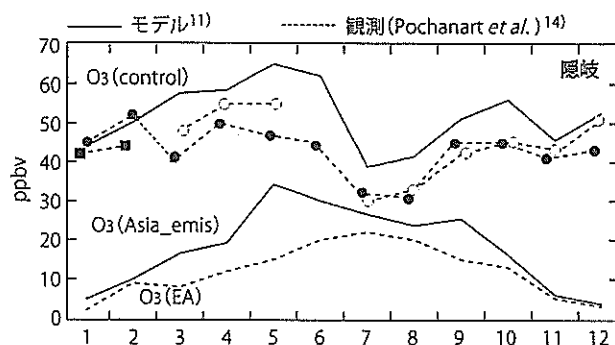


図7 隠岐のオゾン濃度と東アジアの汚染物質起源の光化学生成オゾン濃度のモデルと観測の比較¹¹⁾

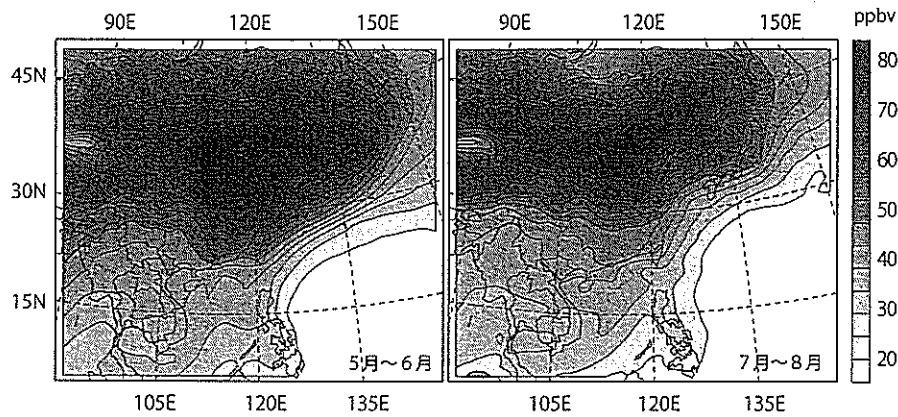


図8 REAS/REF排出量予測を用いたCMAQモデルによる2020年5～6月と7～8月の東アジア地表オゾン濃度の将来予測¹⁷⁾

象とした大気環境予測を目的として、アジアの詳細なエミッション・インベントリ（REAS）を構築し^{2, 6)}、図2に見たようにこの排出量データと領域化学輸送モデルを用いた東アジア域の観測データの再現性を確かめた上で、東アジアのオゾン濃度の将来予測に取り組んでいる¹⁶⁾。

図1に見た中程度の排出シナリオ(REF)に従うと、アジアのNO_x排出量は25.1Tg(2000年)から36.1Tg(20年)まで増大し、そのうち中国の排出量は11.2Tgから15.6Tgまで増大する。図8は、この将来排出量と領域化学輸送モデルを用いて行った20年の地表オゾン濃度の予測結果を示す。5～6月および7～8月の日本域の地表オゾン濃度は、2000～20年の間に2カ月平均値で2～5 ppbv増大する。とくに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カ月平均値が65 ppbvを超えることが予測されている。

ただし、筆者らの将来予測シナリオにも、図1で紹介した、2000年以降の排出量の急激な伸びが十分に考慮されていないことに注意しなければならない。もし、2000年以降の急激な排出量成長が今後も続くならば、20年には筆者らが設定したPFCシナリオが実現し、近い将来日本域のオゾン汚染はきわめて深刻なレベルに達することが想像できる。このような深刻な事態を回避するためには、日本の

みならず東アジア諸国全体でのエネルギー転換・大気汚染物質排出対策が不可欠である。

おわりに

本稿で見たように数値モデルを用いたオゾン汚染の解析と将来予測の推定は、数年前に比べても非常に大きな進歩を遂げている。今後は本稿で述べたような領域規模のオゾン予測モデルにネスティングされた、日本の都市域を対象にしたモデルの結果が期待される。日本におけるこの分野の研究は、最近の光化学オキシダント警報・注意報の増加を機によりやく再び研究費が投入されようとしている段階であり、一方国際的にはオゾンの半球規模汚染問題を機に、これから半球規模でのオゾン抑止戦略が議論されようとしているところである。このような研究段階から見て、本稿で見た全球および領域規模オゾン汚染のモデル研究は、現在なお急速な発展段階にあり、今後モデル相互比較実験などを通じて、定量的精度の向上を図る必要がある。深刻なオゾン汚染から日本の環境を守るため、日本の環境行政においても先端的科学的知見に立脚した「オキシダント抑止戦略」が構築されることが強く望まれる。

－引用文献－

- 1) Akimoto, H.; Global air quality and pollution, Science, 302, 1716-1719, 2003

- 2) REAS, <http://www.jamstec.go.jp/frcgc/research/p3/emission.htm>
- 3) van Aardenne, JA., GR. Carmichael, H. Levy II, D. Streets, and L. Hordijk ; Anthropogenic NO_x emissions in Asia in the period 1990–2020, *Atmospheric Environment*, 33(4), 633–646, 1999
- 4) IPCC, <http://sres.ciesin.columbia.edu/>
- 5) Amann, M. ; Scenarios of world anthropogenic emissions of air pollutants and methane up to 2030, IIASA report(IR-06-023), 2006
- 6) Ohara, T., H. Akimoto, J. Kurokawa, N. Horii, K. Yamaji, X. Yan, and T. Hayasaka ; Asian emission inventory for anthropogenic emission sources during the period 1980–2020, *ACPD*, 2007 (in press)
- 7) Lelieveld, J. and FJ. Dentener ; What controls tropospheric ozone? *Journal of Geophysical Research*, 105(D3), 3531–3552, 10.1029/1999JD901011, 2000
- 8) Wang, X. and DL. Mauzerall ; Characterizing distributions of surface ozone and its impact on grain production in China, Japan and South Korea: 1990 and 2020. *Atmospheric Environment*, 38 (26), 4383–4402, 2004
- 9) Dentener, F., D. Stevenson, K. Ellingsen, et al. ; The Global Atmospheric Environment for the Next Generation, *Environmental Science & Technology*, 40(11), 3586–3594, 2006
- 10) Byun, DW. and JKS. Ching (Eds.) ; Science algorithms of the EPA Models-3 community multi-scale air quality(CMAQ) modeling system, NERL, Research Triangle Park, NC. EPA/600/R-99/030, 1999
- 11) Yamaji, K., T. Ohara, I. Uno, H. Tanimoto, J. Kurokawa, and H. Akimoto ; Analysis of seasonal variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface Ozone level over Japan? *Atmospheric Environment*, 40(10), 1856–1868, 2006
- 12) Wild, O., P. Pochanart, and H. Akimoto ; Trans-Eurasian transport of ozone and its precursors, *Journal of Geophysical Research*, 109, D11302, doi:10.1029/2003JD004501, 2004
- 13) Sudo, K. and H. Akimoto ; Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport from various source regions, *Journal of Geophysical Research*, in press, 2007
- 14) Pochanart, P., S. Kato, T. Katsuno, and H. Akimoto ; Eurasian continental background and regionally polluted levels of ozone and CO observed in northeast Asia, *Atmospheric Environment*, 38(9), 1325–1336, 2004
- 15) Pochanart, P., O. Wild, and H. Akimoto ; Air Pollution import to and export from East Asia, In: Stohl, A., (ed) *The Handbook of Environmental Chemistry*, Vol. 4, Part G, Springer, Germany, p.99–130, 2004
- 16) K. Yamaji, T. Ohara, I. Uno, J. Kurokawa, and H. Akimoto ; Spatial-temporal variations of tropospheric ozone over east Asia, Abstract book of Joint CACGP/IGAC and WMO conference, *Atmospheric Chemistry at the Interfaces*, 548, 2006

*
* *