

## 4 同位体比分析手法を用いた大気汚染物質の生態系内での挙動・動態解析

### 4.1 要監視地域における重点モニタリングの概要

#### 4.1.1 はじめに

土壌や地質の酸緩衝能が小さく酸性沈着量の多い地域では、酸性化のリスクが高いことから、重点的に監視していく必要がある。越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成20～24年度)では、1980年代から2000年代半ばまでの過去25年間の酸累積負荷量と土壌や地質の分布状況から酸性化リスクが高い要監視地域内のモニタリング地点が抽出され、その中には伊自良湖集水域等、これまでに酸性化・窒素飽和が指摘、報告された地域が複数確認されている。そこで、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」においては、抽出された陸水の酸性化リスクが高いと考えられる要監視地域から、伊自良湖集水域に加え、越境大気汚染の影響が比較的大きいと考えられる地域や、長期モニタリングデータが蓄積されている地域から将来的な集水域モニタリングを見据えた候補地点を設定し、重点的なモニタリングを実施してきた。

#### 4.1.2 モニタリング地点

酸性化リスクが高いとされた地域(要監視地域)は、中部地方、日本海沿岸及び九州西部等に多く分布しており、その中には伊自良湖集水域等、これまでに酸性化・窒素飽和が指摘、報告された地域が複数確認されている。これらの地域を考慮し、既存のモニタリング地点・研究拠点を活用し、2014年度から重点モニタリングを開始した(表4-1-1)。

表 4-1-1 要監視地域における重点モニタリング地点一覧

区分	地点	頻度	項目
森林集水域	伊自良湖集水域(岐阜県山県市)	月毎	降水
	加治川集水域(新潟県新発田市)		河川水 土壌溶液*1
湿性沈着モニタリング地点	佐渡関岬*2	月毎	降水
	八方尾根		
	辺戸岬*2		
陸水モニタリング地点	双子池(雄池・雌池)	年4回*3	湖沼表層水
	大畠池		
	夜叉ヶ池		
	沢の池		
	蟠竜湖		

\*1 斜面上部、中部、下部において、深さ20cm及び60cmから採取。土壌溶液の同位体モニタリングは2016年度終了。\*2 佐渡関岬と辺戸岬の同位体モニタリングは2017年6月で終了。\*3 双子池は年3回。

#### 4.1.3 モニタリング項目

硫黄(S)の同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )は、石炭の産地等、その起源によって異なることから、降水中の硫黄同位体比は越境大気汚染等、発生源の推定のための指標としても、その有用性が指摘されている(Ohizimi et al. 2016, *AE*)。また、降水と河川・湖沼水の硫黄同位体比の比較により、生態系内での循環・蓄積、大気以外の起源の可能性等についての情報を得ることが期待できる。大気沈着由来のSの蓄積とその流出は、すでにS沈着量が十分に低下した欧米においても、集水域の酸性化からの回復を遅らせる要因として、また気候変動による流出促進の可能性が指摘される等、注目されている(Mitchell & Likens, 2011, *EST*)。アジアでは未だSの沈着レベルは高く、今後のS沈着の低下により順調に酸性化からの回復が進むのかどうかは大きな課題である。これらを勘案し、本重点モニタリングにおいては、硫黄同位体比の分析を優先的に実施した。また、硫黄同位体比の分析が完了した余剰試料について、大気沈着の起源推定やその動態評価に有用な金属元素(ストロンチウム(Sr)及び鉛(Pb))、水( $\text{H}_2\text{O}$ )の水素・酸素同位体比、硝酸( $\text{NO}_3^-$ )の窒素・酸素同位体比等も、関係学術機関の協力を得て、順次進めた(表 4-1-2)。また、分析方法の概要は表 4-1-3 のとおり。本節では、比較的データが蓄積されているS、ストロンチウム、及び水の水素・酸素同位体比を中心に論じる。

表 4-1-2 分析が進行中の同位体比

項目	備考
硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )	石炭の産地等、起源によって異なることから、発生源の推定や、大気由来のSの生態系内での滞留・流出時間等の評価に有用。
ストロンチウム同位体比( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ )	黄砂を含む越境大気汚染等、大気沈着の起源の推定や、大気由来の物質の生態系内での挙動の評価に有用。
鉛同位体比( $^{204}\text{Pb}$ , $^{206}\text{Pb}$ , $^{207}\text{Pb}$ , $^{208}\text{Pb}$ )	大気沈着の起源の推定や、大気由来の物質の生態系内での挙動の評価に有用。
$\text{H}_2\text{O}$ の水素・酸素同位体比( $\delta^2\text{H}$ , $\delta^{18}\text{O}$ )	上記の物質動態に影響を与える水の起源や循環過程の推定等に有用。
$\text{NO}_3^-$ の窒素・酸素同位体比( $\delta^{15}\text{N}$ , $\delta^{18}\text{O}$ , $\Delta^{17}\text{O}$ )*1	大気沈着由来の $\text{NO}_3^-$ の集水域内での挙動、窒素飽和等の評価する上で有用。

\*1,  $\Delta^{17}\text{O}$  : 三酸素同位体組成異常

表 4-1-3 分析方法の概要

項目	分析方法の概要
硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )*1	数Lから数10Lの降水、土壌溶液、陸水等を濃縮後、 $\text{SO}_4^{2-}$ を $\text{BaSO}_4$ として沈殿、元素分析計を装備した同位体比質量分析計により測定。
ストロンチウム同位体比( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ )*2	上記濃縮試料の余剰分から、Srを濃縮・分離し、表面電離型質量分析計により測定。
鉛同位体比( $^{204}\text{Pb}$ , $^{206}\text{Pb}$ , $^{207}\text{Pb}$ , $^{208}\text{Pb}$ )*2	上記濃縮試料の余剰分から、Pbを濃縮・分離し、二重収束型マルチコレクタ ICP-MSにより測定。
$\text{H}_2\text{O}$ の水素・酸素同位体比( $\delta^2\text{H}$ , $\delta^{18}\text{O}$ )*2	降水、陸水等の濾過した原液を水同位体分析装置により測定。
$\text{NO}_3^-$ の窒素・酸素同位体比( $\delta^{15}\text{N}$ , $\delta^{18}\text{O}$ , $\Delta^{17}\text{O}$ )*3	降水、陸水等に含まれる $\text{NO}_3^-$ を $\text{N}_2\text{O}$ に変換後、連続フロー型同位体比質量分析計により測定。

\*1, 一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センターで分析。\*2, 大学共同利用機関法人総合地球環境学研究所で分析。\*3, 名古屋大学で分析( $\Delta^{17}\text{O}$  : 三酸素同位体組成異常)。

## 4.2 生態系に流入する物質の起源に関する解析

### 4.2.1 同位体比データに基づく越境大気汚染の評価

我が国においては、特に日本海側に降雪をもたらす冬季北西季節風により、アジア大陸由来の越境大気汚染が移流されてくることが指摘されている(Ohizumi et al. 2016)。日本海に面した斜面に設置された小集水域試験地である加治川集水域でも、冬季に林外雨及び林内雨・樹幹流<sup>1</sup>による  $\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量が急激に上昇することから、越境大気汚染の影響が示唆されてきた(Sase et al. 2008)。一方で、太平洋側内陸に位置する伊自良湖集水域は、従来、中京工業地域で汚染物質が移流される国内発生源の影響が大きいとされてきた。実際、降水による  $\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量は、伊自良湖集水域では夏季(7-9月)に沈着量が多く、加治川集水域では冬季(1月)に沈着量が多い(図 4-2-1)。いずれも降水パターンに依存していた。

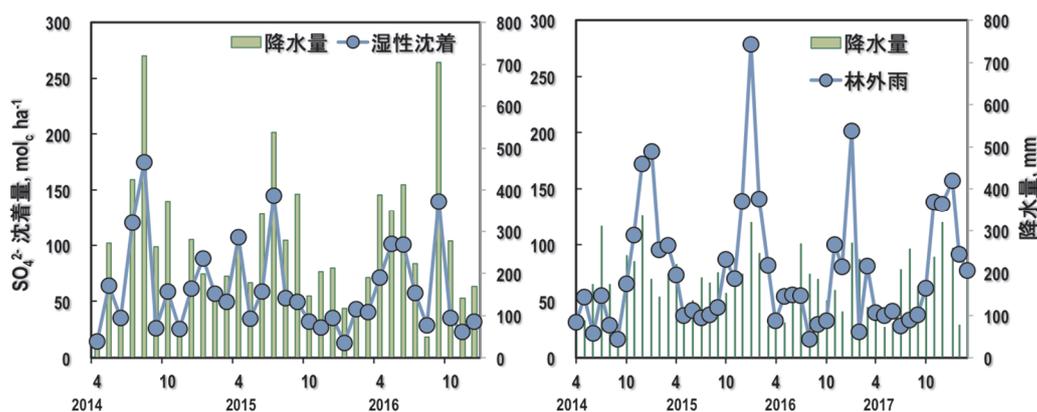


図 4-2-1 伊自良湖集水域(左)と加治川集水域(右)における降水による  $\text{SO}_4^{2-}$ 沈着量の季節変化

それぞれ自動降水捕集装置による湿性沈着及び濾過式降水捕集装置(パルクサンプリング)による林外雨の月沈着量。

一方で、降水の硫黄同位体比では、いずれも冬季に高く、夏季に低いことが明らかとなった(図 4-2-2)。冬季に硫黄同位体比が高くなるのは、北西季節風の影響により、海塩(+20.3‰)の影響が大きくなるのが一因であることが日本海側でよく知られており(Ohizumi et al. 2016)、日本海に面した加治川でその傾向が明瞭であった。また、非海塩性成分でも冬季に高くなることから、夏季とは発生源の異なる S が移流してくることが示される。非海塩成分の冬季の値は、伊自良湖集水域と加治川集水域との間に、海塩成分を含むものほど大きな差はなく、冬季には両集水域に同様の硫黄同位体比を有する硫酸化物が移流さ

<sup>1</sup> 林内雨・樹幹流によって得られた降水試料は乾性沈着の寄与も含んでおり、 $\text{SO}_4^{2-}$ 等の樹冠交換がほとんどない成分においては、総沈着量と考えることが可能である。

れてくることが示唆される。アジア大陸で燃料として利用されている石炭は、我が国の石炭や石油よりも高い硫黄同位体比を有することから(Ohizumi et al. 2016)、その発生源として最も有力である。このように、硫黄同位体比を用いることにより、日本海側の加治川集水域における越境大気汚染の影響を再確認しただけでなく、国内発生源の影響が大きいとされている伊自良湖集水域においても、越境大気汚染の影響を受けていることが確認された。

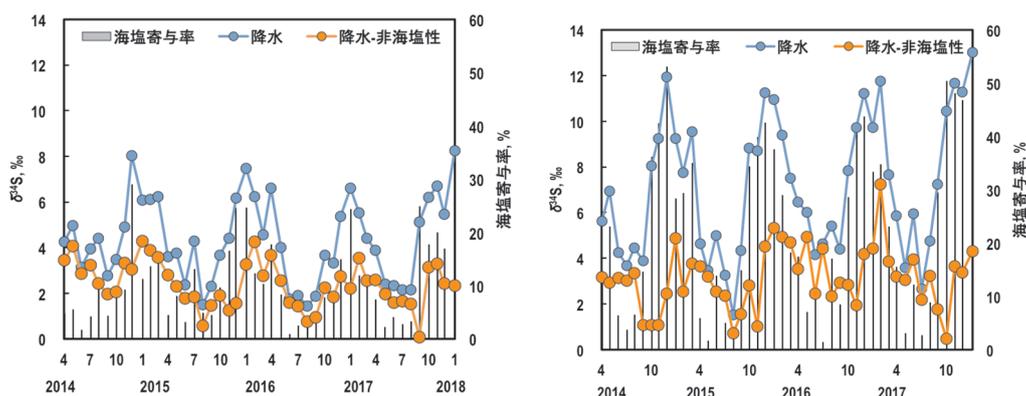


図 4-2-2 伊自良湖集水域(左)と加治川集水域(右)における降水の硫黄同位体比  
濾過式降水捕集装置(バルクサンプリング)による降水試料。

同様に、佐渡関岬、八方尾根、辺戸岬の湿性沈着モニタリング地点においても、降水中の硫黄同位体比は、全般的に冬季に高く、夏季に低い傾向を示した(図 4-2-3)。特に大陸に面した日本海の直近に設置された佐渡関岬で顕著であり、上述したような海塩の強い影響が示唆される。台風等の影響も大きい辺戸岬では夏季であっても時折高い値を示した。一方で、これらに比較して、八方尾根では季節性に乏しかった。

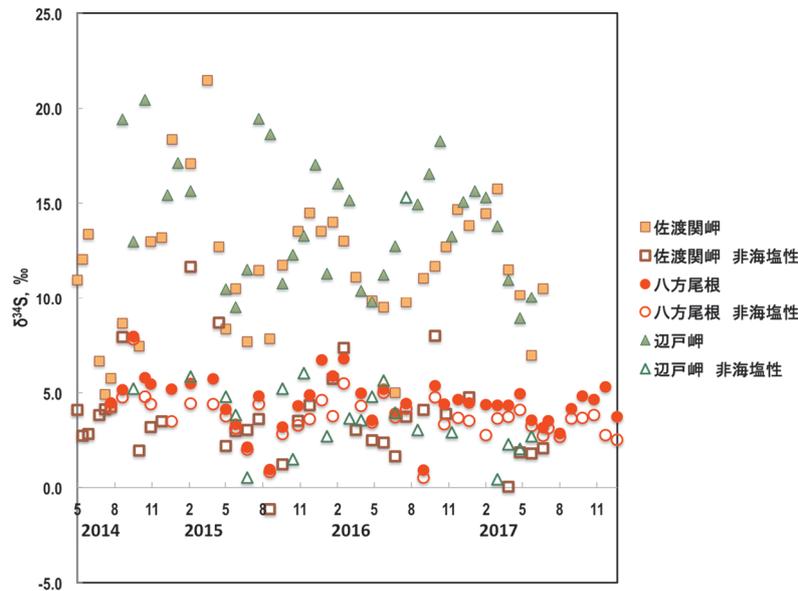


図 4-2-3 湿性沈着モニタリング地点(佐渡関岬、八方尾根、辺戸岬)における  
降水の硫黄同位体比

濾過式降水捕集装置(バルクサンプリング)による林外雨の降水試料。佐渡関岬及び辺戸岬において海塩寄与率が 70%を超えるような場合、海塩寄与率との関係から異常値と判断される場合の非海塩性成分は誤差が大きいためプロットしていない。

海岸に近い佐渡関岬や辺戸岬では、非海塩性成分の硫黄同位体比は海塩成分を含むそれと比べると著しく低かったが、佐渡関岬では伊自良湖集水域や加治川集水域と同様に冬季には高くなる傾向が見られた。辺戸岬では海塩寄与率が 70%を超える試料が 3 割以上あり、非海塩性成分の明確な季節性は見出せなかった。海塩寄与率が年間を通じて 15%未満であった八方尾根では非海塩性成分の硫黄同位体比と海塩成分を含むそれとの大きな差は見られず、季節性も緩慢であった。結果的に、八方尾根の非海塩性成分の硫黄同位体比は、佐渡関岬や辺戸岬よりも高くなることもあった。高度 1850 m に位置し、自由対流圏にあると考えられる八方尾根では、夏季でも西寄りの風により、定常的に越境大気汚染の影響を受けている可能性も考えられた(後方流跡線解析も参照)。

降水の水素・酸素同位体比の d-excess 値は、伊自良湖集水域と加治川集水域では、冬季に高く、夏季に低い、明瞭な季節性を示した(図 4-2-4)。八方尾根では、冬季にやや高くなったが、その傾向は伊自良湖集水域や加治川集水域ほど明瞭ではなかった。日本海側では冬季降水の d-excess 値が高くなるのが指摘されており、それはアジア大陸から吹き出す冷たい乾いた大気に日本海から急激に水蒸気が供給される際、水蒸気の上方移動による動的な同位体分別が生じるためとされている(松葉谷・川原谷 2014)。一方で、夏季には、湿潤な海洋性気団によって太平洋からゆっくり海水を蒸発・形成された d-excess 値の低い水蒸気団が降水をもたらすと考えられている(早稲田・中井 1983)。このように季節によって降水をもたらす水蒸気団が異なることにより、伊自良湖集水域や加治川集水域で見られる

ような明確な d-excess 値の季節変化が生じたと考えられる。このことは、日本海側の加治川集水域だけでなく、太平洋側内陸に位置する伊自良湖集水域も冬季には大陸から日本海を輸送される気団の影響を受けていることを示唆している。これは上記の硫黄同位体比の結果と調和的であり、水の同位体比の結果からも伊自良湖集水域においても冬季には越境大気汚染の影響を一定以上受けていることが支持された。一方で、内陸の高標高に位置する八方尾根では季節性が緩慢であったが、重い同位体比の水蒸気は低標高で降水となって失われることで高標高の降水は軽い同位体比を示すこと(高度効果：早稲田・中井 1983)、あるいは自由対流圏にあることで夏季でも比較的西寄りの風の影響を受けていること、などが理由として考えられた。

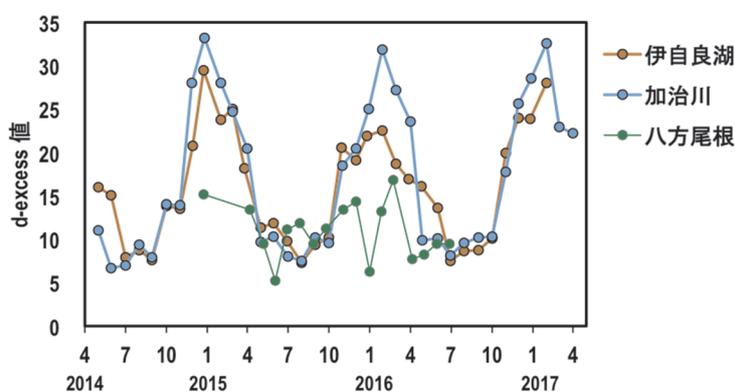


図 4-2-4 伊自良湖集水域、加治川集水域及び八方尾根における降水の水素・酸素同位体比 (d-excess 値： $\delta^2\text{H} - 8 \times \delta^{18}\text{O}$ )

濾過式降水捕集装置(バルクサンプリング)による降水試料。

黄砂由来のダストの飛来について検討するため、伊自良湖集水域と加治川集水域における降水中のストロンチウム同位体比を図 4-2-5 に示した。また、比較のため、硫黄同位体比も併せて示した。いずれも 3~5 月の黄砂時期や冬季にストロンチウム同位体比が高くなった。冬季に高くなるのは、硫黄同位体比の場合と同様に海水(0.7092)の影響も考えられるが、特に 3~5 月のストロンチウム同位体比の上昇にはダストの可溶性成分(0.711)の影響が示唆される。特に伊自良湖集水域では、海水よりも高い値が黄砂時期や冬季に観測された。また、加治川集水域では、非海塩性の硫黄同位体比はストロンチウム同位体比と酷似した季節性を示し、冬季だけでなく、黄砂時期にもダストとともに越境大気汚染由来の S が移流してくることが示唆される。

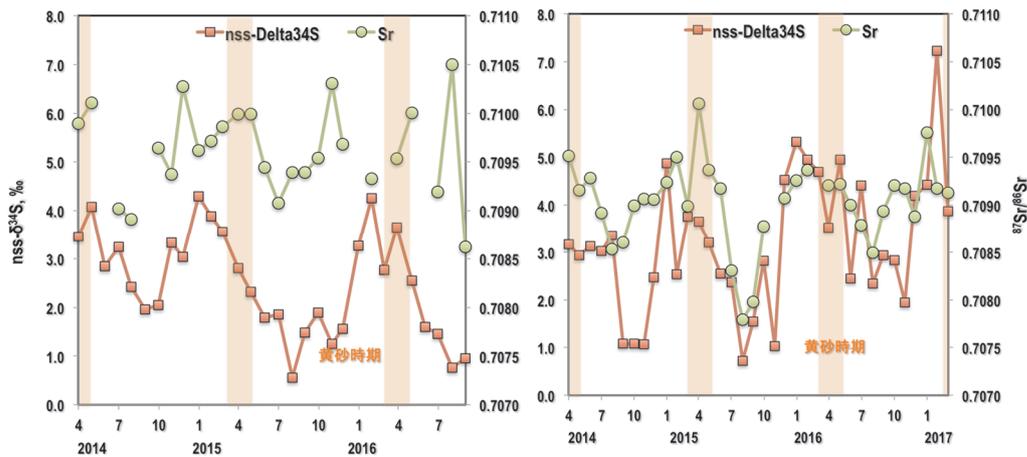


図 4-2-5 伊自良湖集水域(左)と加治川集水域(右)における  
 降水中のストロンチウム同位体比と硫黄同位体比の比較  
 濾過式降水捕集装置(バルクサンプリング)による降水試料。

#### 4.2.2 後方流跡線解析との協働

加治川集水域、伊自良湖集水域、及び八方尾根において、どこから移流する気塊の影響が強いのかを評価するため、夏季(7月または8月)と冬季(1月)における後方流跡線解析を行った(図 4-2-6)。いずれの地点も、夏季は南東～西にかけて広い地域からの気塊の寄与を受けていたが、八方尾根では夏季に東からの気塊による寄与が他の2地点より小さく、より西寄りが強かった。また、冬季は中国北東部や朝鮮半島を経由する気塊の寄与が大きく、11～3月においてこの傾向が強かった。流跡線の分布の季節的傾向は、地点による違いは小さかった。伊自良湖においても越境大気汚染の影響があることが示唆され、その影響は冬季に顕著であった。

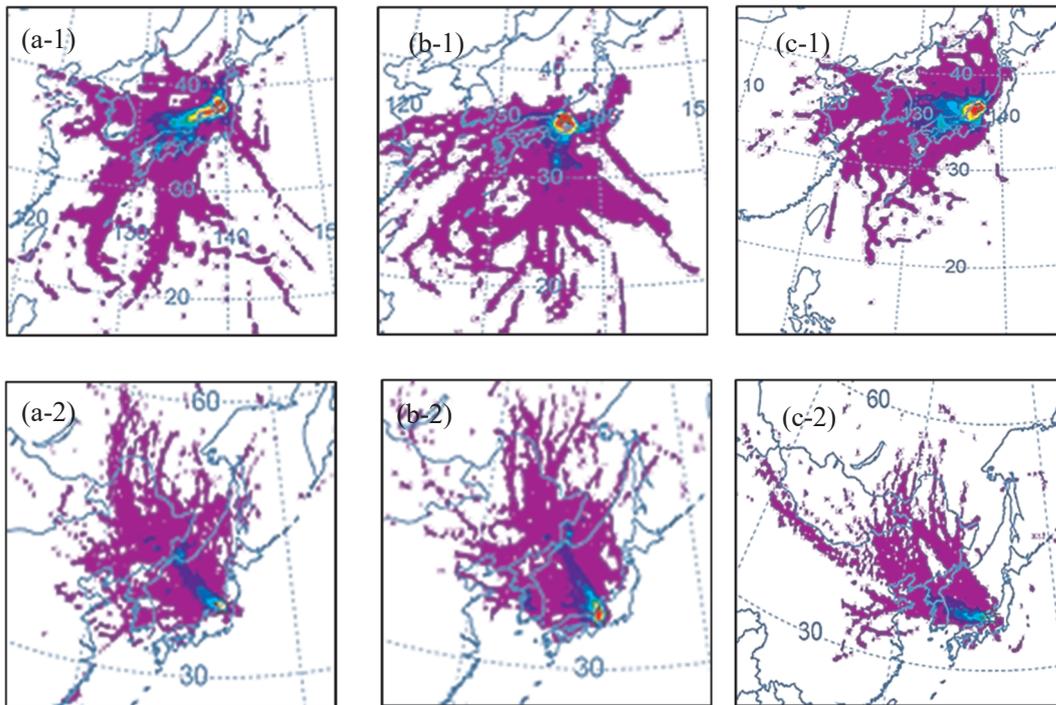


図 4-2-6 夏季(1：上段)及び冬季(2：下段)における加治川集水域(a)、伊自良湖集水域(b)及び八方尾根(c)を起点とした3日間の後方流跡線解析。

図は1か月分を集計したもので、色の濃い地点に多くの流跡線が通っていることを示す。

上記の気塊の移流を反映していると考えられる、降水の水素・酸素同位体比について、 $\delta^2\text{H}$  と  $\delta^{18}\text{O}$  を暖候期(4~10月)と寒候期(11~3月)に分けてプロットした(図 4-2-7)。ここでの暖候期と寒候期は、後方流跡線の方位の分布に基づき、4月と11月で分けた。加治川集水域と伊自良湖集水域では、暖候期はクレイグの天水線( $y = 8x + 10$ )<sup>2</sup>付近に分布していたが、気塊の来る方向が異なる寒候期はその上方に明確に異なる分布を示し、気象モデルに基づく流跡線解析の結果と、水の同位体の実測結果は整合していた。一方で、八方尾根では季節による差が他の2地点ほど明瞭ではなく、夏季でも比較的西寄りの気塊の影響を大きく受けていることも関係していると考えられた。

<sup>2</sup> 切片が d-excess 値で地球規模の平均値は 10 であるが、水蒸気の生成される条件によって変動する。

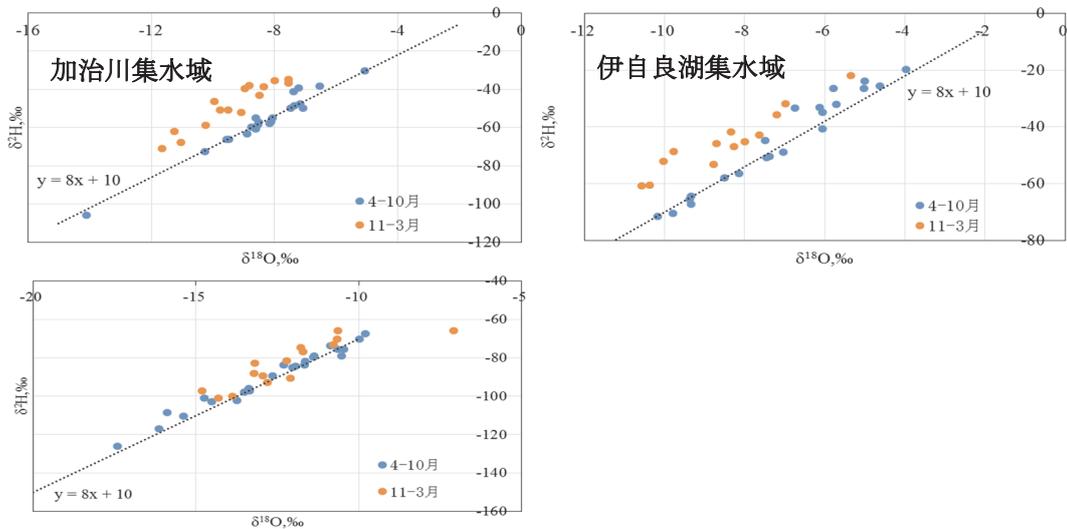


図 4-2-7 降水中の水素・酸素同位体比( $\delta^2\text{H}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ )のプロット  
 流跡線の分布に基づき 11～3 月と 4～10 月に分類した。

#### 4.2.3 同位体比に基づく発生源寄与率の推計

大気中には海水、火山、化石燃料などを供給源とした二酸化硫黄、硫酸及び硫酸塩粒子、DMS、COS、 $\text{H}_2\text{S}$  などの硫黄化合物がそれぞれの供給源情報を抱えて存在している。ここでは、新潟県において降水及び PM2.5 に含まれるこれらの硫黄の起源について、観測に基づき硫黄同位体比を指標として定量的評価を試みた研究を紹介する。

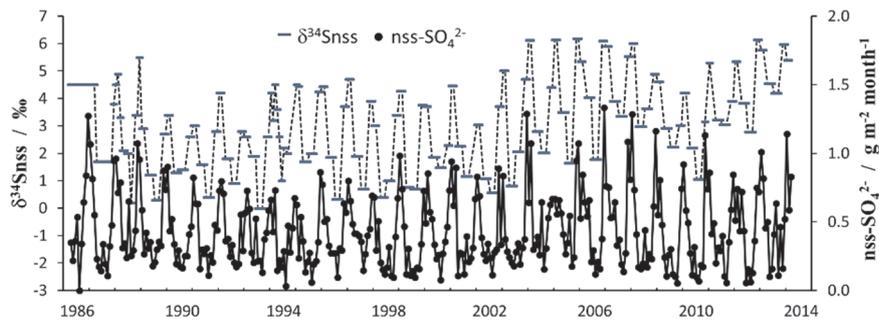


図4-2-8 非海塩硫黄の湿性沈着量と同位体比の長期変動(長岡市)

アジア大陸の風下の日本海沿岸に位置する長岡において、硫黄の湿性沈着量と安定同位体比を 28 年間連続観測し、同地点における硫黄沈着を評価した(Ohizumi et al., 2016)。非海塩硫黄の湿性沈着量は冬季に多く夏季に少ない季節変動を示した。また、非海塩硫黄の同位体比( $\delta^{34}\text{S}_{\text{nss}}$  (‰)) =  $(\delta^{34}\text{S}_{\text{試料}} - \delta^{34}\text{S}_{\text{海水}} \times f) / (1-f)$ , ここで、 $f$  は海塩寄与率、 $\delta^{34}\text{S}_{\text{海水}}$  は 20.3‰ として計算)は 0.0 から +6.2‰ の範囲にあり、冬高夏低の季節変動を示した(図 4-2-8)。

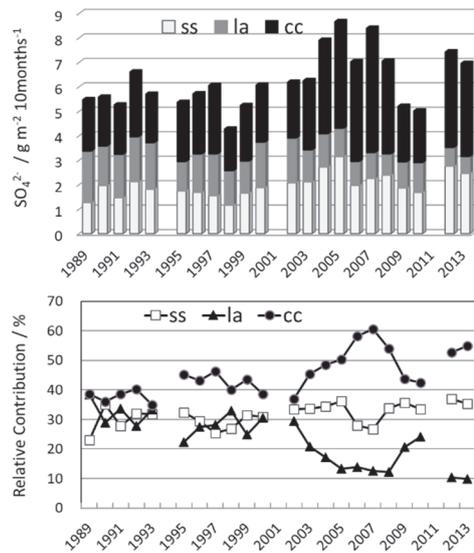


図 4-2-9 硫黄の湿性沈着量に対する発生源寄与

(SS : 海塩、la : 国内発生源、cc : 中国炭燃焼)

地域内から発生する硫黄の同位体比は負の値、中国産石炭中硫黄の同位体比は正の値で特徴付けられることから、湿性沈着硫黄の同位体比の冬高夏低の季節変動は、冬季のアジア大陸からの越境大気汚染を示唆した。調査期間において幾度か非海塩硫黄沈着量が統計的に有意な変動を示した。1980年代中期からの減少傾向は、非海塩硫黄同位体比の低下を伴うことから、地域内からの硫黄排出量の減少が原因と考えられた。1990年代終盤から2000年代後半の沈着量増加は、同期間に同位体比が上昇し冬季には中国炭の平均的な値にまで達していることから、中国における硫黄排出量の増加に起因すると解釈することができた。また、2000年代中期からの沈着量の減少傾向は、非海塩硫黄の同位体比が低下していることから、中国における硫黄排出量の減少に影響されたものと推測された。硫黄同位体比を用いて発生源寄与率の長期変動を推計した結果は、長岡に湿性沈着する硫黄に占める中国における石炭燃焼由来硫黄の割合が、1990年代の40%から2000年代中頃には60%にまで増加したことを示し、その後の中国炭の寄与率低下は、中国における二酸化硫黄排出量の減少と調和的であった(図 4-2-9)。

粒径の異なる粒子(PM<sub>2.5</sub>と粗大粒子)の硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{S}$ )を日本海に面した新潟巻測定局で測定した(Inomata et al., 2016)。PM<sub>2.5</sub>の非海塩硫黄同位体比( $\delta^{34}\text{Snss}$ )は、冬季に相対的に大きな値を示す季節変動を示した(春季:1.0~3.9‰、夏季:2.8~4.5‰、秋季:1.3~4.5‰、冬季:3.7~5.7‰)。空気塊の移動経路を考慮した解析では、アジア大陸を起源とし日本海を渡って観測地点に到達する空気塊は、アジア大陸を離れてから日本列島上を通過して観測地点に至る場合に比べて、粒子の $\delta^{34}\text{Snss}$ が各季節で大きな値を示した。日本国内の発生源に由来する硫酸の硫黄同位体比が中国炭のそれより小さな値であることを考えれば、日本列島を通過する空気塊の低い $\delta^{34}\text{Snss}$ 値は、PM<sub>2.5</sub>中の硫酸が日本国内の硫酸によって

$\delta^{34}\text{S}_{\text{SO}_4}$  値を変化させた結果と考えられる。物質収支計算から、冬季における越境輸送の相対的な寄与は、他の季節に比べて大きいことが分かった(春季：40～75%、夏季：51～63%、秋季：45～73%、冬季：53～81%)。特に、アジア大陸から直接流入する空気塊は、日本列島上を輸送される場合に比べて大きな値を示した(春季：75%、秋季：59%、冬季：78%)(図4-2-10)。

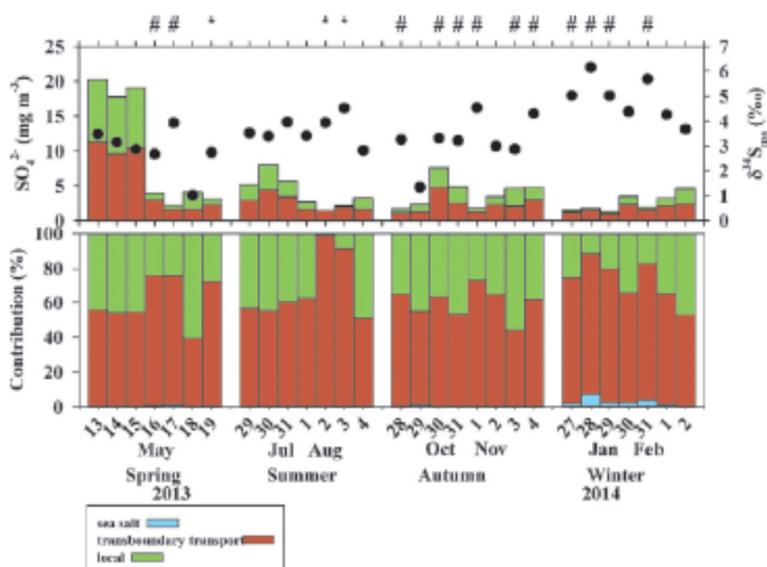


図4-2-10 上段：新潟巻測定局におけるPM<sub>2.5</sub>の発生源別硫酸イオン濃度(海塩、越境汚染、ローカル起源)と非海塩硫黄同位体比の日変動。#は空気塊がアジア大陸から直接流入した場合を示す。下段：各発生源の寄与率

硫黄の湿性沈着量は北東アジア地域においても減少傾向にあるが、欧米に比較すれば依然として高い水準にあり、また、硫黄はPM<sub>2.5</sub>等の粒子状物質の主要成分でもあることから、それらの発生源情報を取得する手段として安定同位体比の活用が期待される。

#### 4.2.4 まとめ

これまで越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングにおいては、イオン分析を中心に実施し、その濃度や量の季節性から越境大気汚染の影響について議論してきた。上述したように、要監視地域における重点モニタリングで既存のモニタリング地点や試料に多元素同位体分析手法を活用することにより、これまで既存のモニタリングデータや後方流跡線解析を含むモデルシミュレーションで示唆されていた我が国の生態系への越境大気汚染由来の物質の流入が、同位体的にも示された。特に、従来、国内発生源の影響が大きいとされていた伊自良湖においても、冬季には越境大気汚染の影響を一定以上受けていることが示唆された。同位体比を用いてそれぞれの発生源の寄与について議論することも可能であり、既存のイオン分析、モデルシミュレーション等との協働を進めることで、今後さらに確度の高い議論が期待できる。

### 4.3 森林集水域における大気由来物質の動態に関する解析

#### 4.3.1 生態系内でのSの動態

伊自良湖集水域内における生態系内でのSの動態については、同位体比データも含めて3.2節で議論したところである。本節では、加治川集水域におけるS同位体分析の結果に基づき、伊自良湖集水域との違いも含めて論じる。加治川集水域では、降水中のS同位体比が明確な季節性を示すのに対し、土壤溶液及び溪流水のS同位体比は年間を通じて安定していた(図4-3-1)。降水と溪流水の流入・流出量による加重平均同位体比は、それぞれ8.7‰、9.1‰であり、伊自良湖集水域のケースとは異なり比較的近い値であった。

先行研究による過去5水年の流入・流出収支の推計では、年間の平均S流入量(林内雨・樹幹流法)が $22 \text{ kg ha}^{-1}$ 、溪流からの流出量は $19 \text{ kg ha}^{-1}$ であり、集水域内に流入したSの80%以上は流出していた。溪流水の硫黄同位体比も降水の変動幅の中にあり加重平均値も近いことから、大気から流入するSが溪流水に流出するものの主要な起源であると考えられた。一方で、大気由来の硫黄同位体比が大きな季節性を示すのに対し、土壤溶液や溪流水の硫黄同位体比は年間を通じて安定していることは、大気由来のSが直接河川に流出するのではなく、一旦生態系内で保持・循環されてから、流出していることを示唆している。前節でも示したように、加治川集水域では越境大気汚染の移流により冬季に著しく沈着量が大きくなる。冬季に集水域内に大量に流入した $\text{SO}_4^{2-}$ の陸水への直接流出は、 $\text{H}^+$ の流出を促進させる可能性があるが、上記のようなSの保持・循環機能は、流入量の季節変化を緩衝し、 $\text{SO}_4^{2-}$ の溪流水への急激な流出・酸性化を抑制しているとも考えられる。

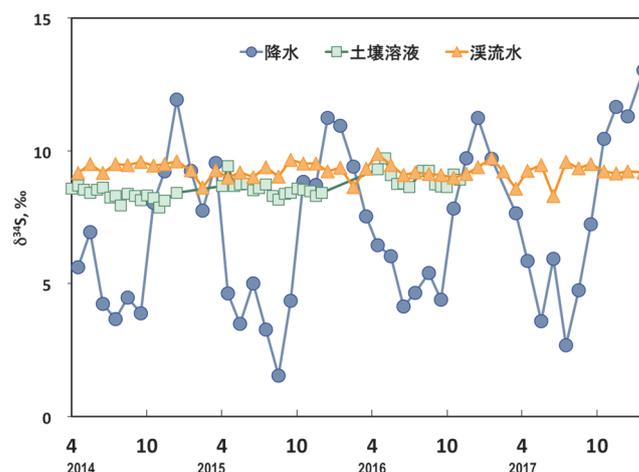


図4-3-1 加治川集水域における降水、土壤溶液、溪流水中の硫黄同位体比  
土壤溶液は全地点の平均。

陸水モニタリング地点における湖沼水の硫黄同位体比も、沢の池を除き、年4回のサンプリング結果はほぼ安定していた(図4-3-2)。これらも加治川集水域と同様に、それぞれの集水域内で均質化されてから流出していると考えられた。沢の池を除く地点の値は、降水モニタリング地点の変動幅の範囲にあり、蟠竜湖や大島池など比較的海に近い湖沼では、双子池や夜叉ヶ池のような山岳地域の湖沼よりも高い硫黄同位体比を示し、佐渡関岬や辺戸岬における降水の硫黄同位体比の範囲にあった。大島池は日本海から10 km程度であり、蟠竜湖は1 km以内の直近であることから、いずれも海風の影響を大きく受けていると考えられる。同様に冬季北西季節風の影響が大きい加治川集水域の渓流水の硫黄同位体比(約9‰)は、蟠竜湖や大島池ほどは高くないが、双子池や夜叉ヶ池よりは、明らかに高かった。加治川集水域も、日本海から10 km程度であった。これらよりも内陸の山岳地域に位置する双子池や夜叉ヶ池は、相対的に海塩の影響も小さく、その硫黄同位体比は内陸地域の降水のその範囲にあったと考えられる。一方で、沢の池は季節によってはマイナスの硫黄同位体比を示しており、現在の降水とは異なる起源のSを含有しているものと考えられる。3.2節で示した伊自良湖集水域同様、地質(岩石)由来のSの影響を強く受けている可能性がある。季節性も見られているため、沢の池については、採水のタイミングによって、岩石由来のSの影響が大きい時期と降水による流入も含む森林生態系由来のSの影響が大きい時期など、起源が異なるSを含む水が流入していると考えられた。

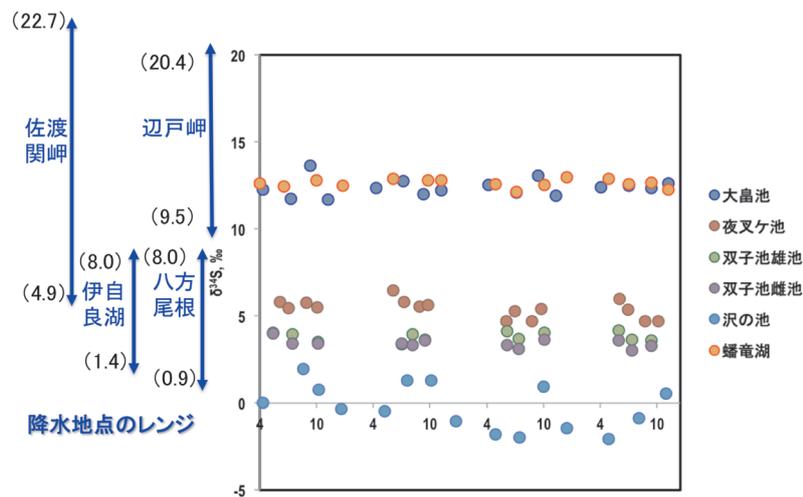


図 4-3-2 湖沼水の硫黄同位体比

年4回(双子池は厳冬期を除く3回)の結果。各地の降水試料の硫黄同位体比の変動幅も同時に示した。

#### 4.3.2 生態系内でのストロンチウムや塩基の動態

酸性沈着による土壌や陸水の酸性化を考える上では、Ca等の塩基による中和過程がどの程度機能しているかを見積もる必要がある。SrはCaと同族で生態系内での動態が類似していることが知られており、ストロンチウム同位体比を参考にすることにより生態

系内での塩基の動態に関して、追加的な情報が得られることが期待される。我が国の森林集水域における Ca 等の物質収支は、大気からの流入量よりも流出量が超過する場合が多く、鉱物風化が酸中和能(Acid Neutralizing Capacity, ANC)として機能していると考えられる。実際、伊自良湖集水域と加治川集水域における  $\text{Ca}^{2+}$  や  $\text{Mg}^{2+}$  等の塩基の流出量は流入量を著しく超過していた(図 4-3-3：伊自良湖の S 収支については 3.2 節で詳述)。

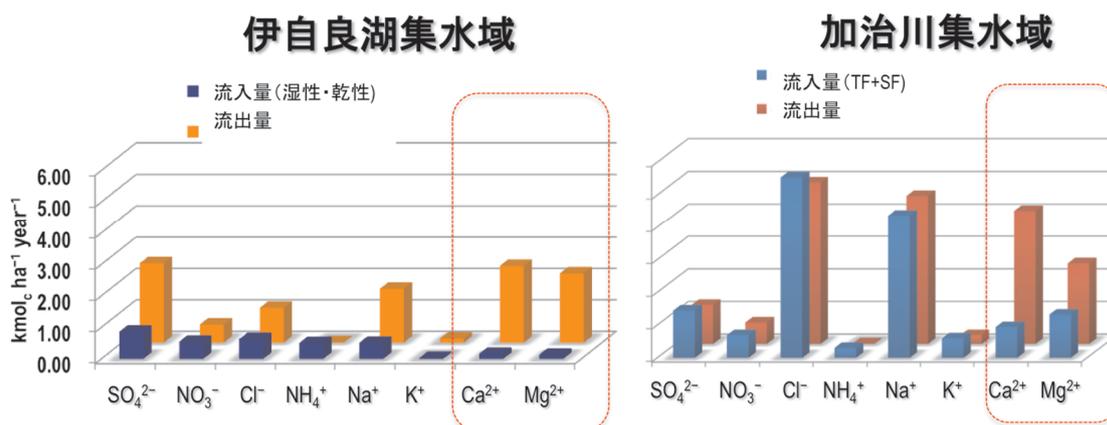


図 4-3-3 伊自良湖集水域(左)及び加治川集水域(右)における過去 5 年間の物質収支  
伊自良湖集水域の流入量は湿性沈着と乾性沈着の和、加治川集水域のそれは林内雨・樹幹流法(TF+SF)によって推計した。

伊自良湖集水域や加治川集水域における溪流・河川のスロンチウム同位体比は、降水のそれとは全く交わらず、伊自良湖集水域の河川が降水よりも高い値を示すのに対し、加治川集水域の渓流水は降水より低い値を示した(図 4-3-4)。いずれの場合も、溪流・河川に流れ出す Sr は、降水とは異なる起源があると考えられ、Ca 等の塩基同様に鉱物風化がその起源として最も有力である。また、伊自良湖集水域と加治川集水域の溪流・河川のスロンチウム同位体比が著しく異なるのは、地質の違いを明確に反映しているものと考えられた。実際、伊自良湖集水域では 3.2 節で述べたように美濃・丹波帯の堆積岩が分布しているが、加治川集水域では深成岩(火成岩)である花崗閃緑岩が分布している。土壤溶液は必ずしも深度を反映していないが、降水と溪流・河川の中間の値を取り、降水と地質の両方の影響を受けていると考えられた。溪流・河川のスロンチウム同位体比は降水のそれとは全く交わらないことから、Ca 等の塩基の流入・流出収支でも示唆されたように、集水域内で鉱物風化の影響を大きく受けて十分に中和された水が溪流・河川に流出していることを示している。

湖沼水についてはまだ季節性のデータは得られていないが、スロンチウム同位体比は各地で異なっており、伊自良湖集水域や加治川集水域と同様に、地質の違いを反映していると考えられた(図 4-3-5)。

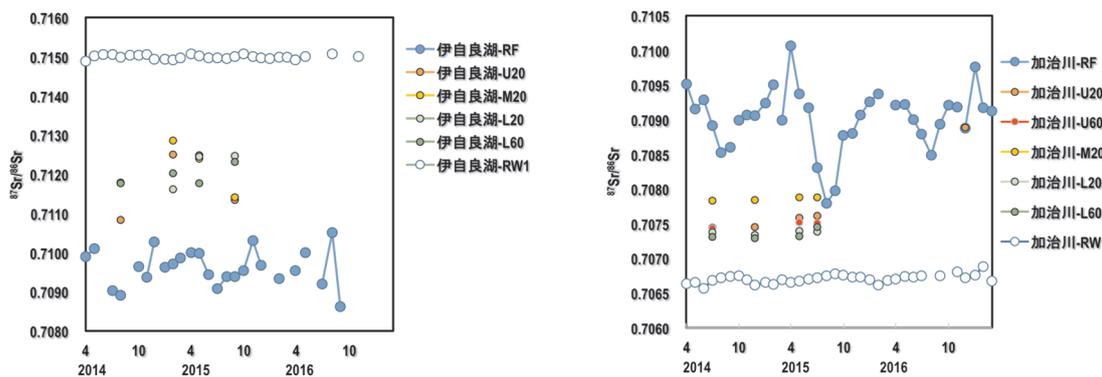


図 4-3-4 伊自良湖集水域(左)及び加治川集水域(右)の降水(RF)、土壌溶液(U, M, L)、及び溪流・河川(RW)のストロンチウム同位体比  
土壌溶液の U、M、L はそれぞれ斜面上部、中部、下部の採取位置を、20 及び 60 は採取深さ(cm)を示す。

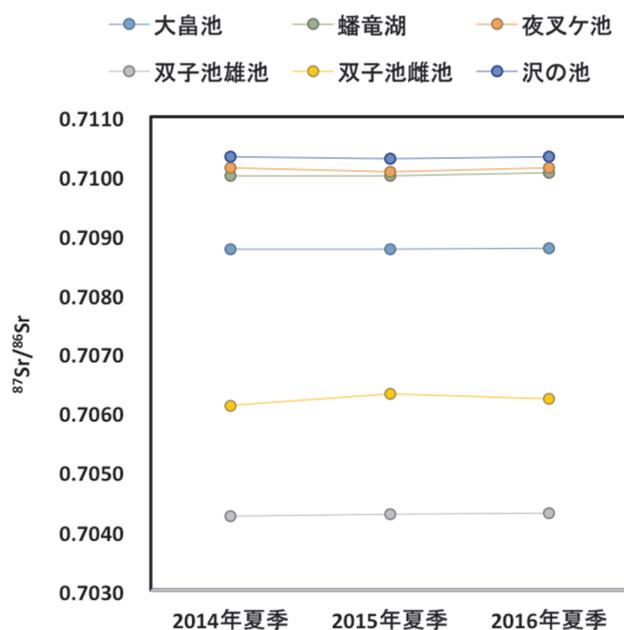


図 4-3-5 湖沼水のストロンチウム同位体比

### 4.3.3 生態系内での水の循環過程

生態系内での物質動態・循環は、水の流れに依存している部分が多いと考えられる。上述したように降水は水蒸気の起源によって、季節的に大きく異なることが示されたが、伊自良湖集水域や加治川集水域の溪流・河川の水の水素・酸素同位体比(d-excess 値)は、年間を通じてほぼ一定であった(図 4-3-6)。森林集水域に流入した降水が、循環・滞留、均質化されてから陸水に流出していることが、水の水素・酸素同位体で示され、上述した S や Sr の流出過程にも影響していると考えられる。

また、降水の d-excess 値にはそれほど大きな差はないが(算術平均で伊自良湖集水域、加治川集水域でそれぞれ 15.9 と 17.1)、溪流・河川水のそれは加治川集水域が伊自良湖集水域よりも明確に高い値を示した。加治川集水域では冬季の降水量が多いため、溪流・河川水にもその影響が大きく残っているものと考えられる。実際、降水量で加重した平均 d-excess 値は、加治川集水域と伊自良湖集水域でそれぞれ 18.3 と 14.4 であり、冬季の降水の影響を示唆していた。加治川集水域では、季節的に日本海を輸送された水蒸気に由来する降水が、より内陸の伊自良湖に比べて、陸水の起源として大きく影響していることが示された。

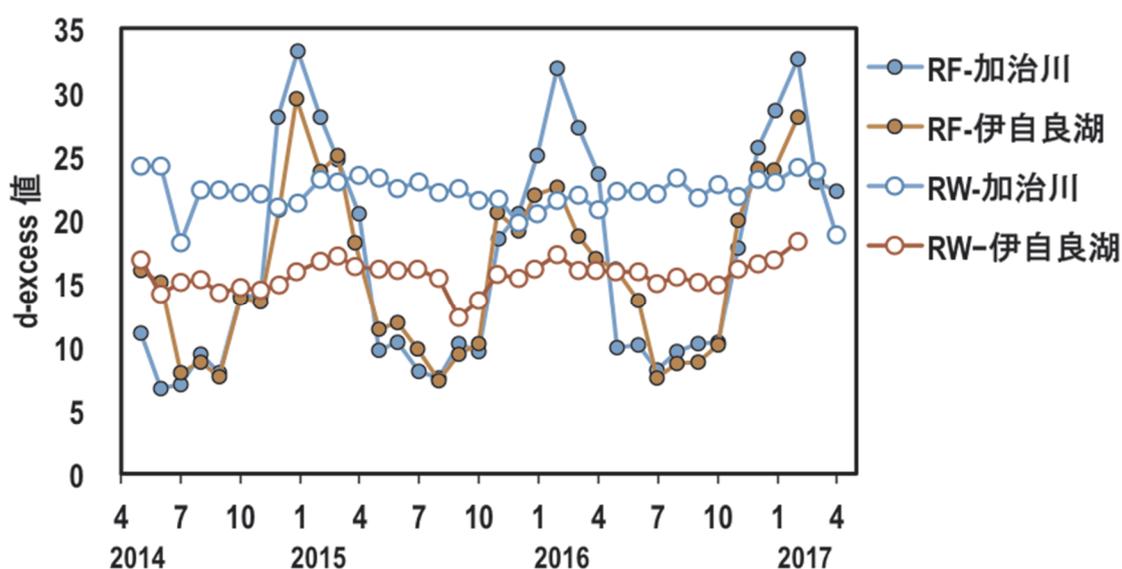


図 4-3-6 伊自良湖集水域と加治川集水域における降水(RF)及び溪流・河川水(RW)の H<sub>2</sub>O 同位体比(d-excess 値 :  $\delta^2\text{H} - 8 \times \delta^{18}\text{O}$ )

#### 4.3.4 まとめ

硫黄同位体比分析により、大気から生態系に入った S は、土壌・植生系での保持・循環過程を経て流出していることが示された。水の水素・酸素同位体比から、水循環による均質化が寄与していることも示されたが、土壌溶液の硫黄同位体比も降水ほど明確な季節性が見られなかったことから、水の均質化だけでなく、土壌・植生系での S の保持・循環過程の寄与も示唆される。3.2 節の伊自良湖集水域のケースのように、土壌に S が多く蓄積し(環境省 2014)、樹木の年輪に大気由来の S が残存していることも示されているため(Ishida et al. 2015)、土壌・植生系における S の保持・循環過程は、今後森林集水域において酸性化あるいは回復を評価する上で考慮すべきである。また、ストロンチウム同位体比から、従来物質収支から示唆されていたように、Ca 等の塩基は地質由来の成分が主として溪流・河川に流出していることが改めて示された。地質

の影響が大きい伊自良湖の S も同様であった。これらの生態系内での保持・循環や地質からの成分流出は、大気からの酸流入による急激な酸性化の緩衝・抑制に貢献していると考えられた(図 4-3-7)。

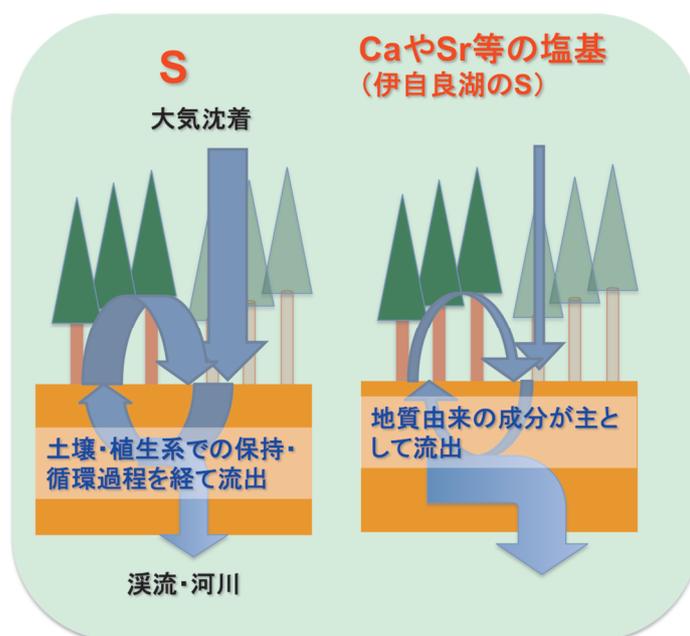


図 4-3-7 同位体分析で示された S 及び塩基の生態系内での動態

#### 4.4 同位体比分析手法の今後のモニタリングへの活用について

従来のイオン濃度の分析に加え、既存のモニタリング地点や試料に多元素同位体比分析を適用することで、各地における越境大気汚染の季節性や大気由来の物質の森林生態系内での動態・影響について、より確度の高い議論を進めることが可能であることが示唆された。まだ十分にデータが蓄積されていないが、鉛同位体比の分析も進んでおり、今後、重金属の大気からの流入や酸性物質と関連した生態系内での動態について、新たな情報が得られることが期待される。

また、同じモニタリング試料を用いた学術機関による研究により、伊自良湖集水域や加治川集水域の窒素飽和の現状についても、新たな情報が得られつつある。加治川集水域、伊自良湖集水域内の釜ヶ谷川(RW1: 3.2 節を参照)と孝洞川(RW3)で適用した  $\text{NO}_3^-$  の酸素同位体比( $\Delta^{17}\text{O}$ )分析によると、大気由来の  $\text{NO}_3^-$  のそれぞれ  $9.4 \pm 2.6\%$ 、 $6.5 \pm 1.8\%$ 、及び  $2.6 \pm 0.6\%$  が、生態系内での循環過程を経ずそのまま溪流・河川に流出していると推計され、それぞれの生態系内での  $\text{NO}_3^-$  の同化率の低下を示しているものと考えられている(Nakagawa et al. 2018)。加治川集水域では以前から溪流水中の  $\text{NO}_3^-$  濃度の上昇傾向が指摘されているが(Kamisako et al. 2008)、伊自良湖では窒素飽和からの回復が示唆されており(3.2 節参照)、現状としては加治川集水域がより大気由来の窒素流入の影響を大きく受けているという評

価となった。3.2 節の陸水モニタリングの結果で示されたように、近年のアジア大陸での SO<sub>2</sub> 排出量の低下や大気由来の S 流入の低下を反映し、陸水中の SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度の低下や酸性化からの回復が期待されるが、加治川集水域では N 流入量の低下速度や生態系での N 利用の状況によっては、窒素飽和やそれに伴う酸性化が進む可能性があり、今後も引き続き監視していく必要がある。

今後、アジアの大気環境が大きく変動していく中で、降水・陸水等の多元素同位体比分析は、越境大気汚染の変化やそれに伴う生態系の応答(回復等)の議論に有用となる。これまでに得られた知見も踏まえ、同位体モニタリングを主要な水試料に適用していくことが期待される。また、現時点では十分に活用されていないガス状・粒子状物質や土壌等のモニタリング試料についても同位体手法の適用を検討すべきあると考えられる。

#### 引用文献

- Ishida, T., Tayasu, I., Takenaka, C. 2015. Quantitative reconstruction of sulfur deposition using a mixing model based on sulfur isotope ratios in tree rings. *Journal of Environmental Quality*, 44, 1800-1808.
- Kamisako, M, Sase, H, Matsui, T, Suzuki, H, Takahashi, A, Oida, T, Nakata, M, Totsuka, T, and Ueda, H. 2008. Seasonal and annual fluxes of inorganic constituents in a small catchment of a Japanese cedar forest near the Sea of Japan. *Water, Air, and Soil Pollution*, 195: 51-61. DOI 10.1007/s11270-008-9726-8.
- Mitchell, MJ., Likens, GE. 2011. Watershed Sulfur Biogeochemistry: Shift from Atmospheric Deposition Dominance to Climatic Regulation. *Environ. Sci. Technol.* 45: 5267–5271.
- Nakagawa, F., Tsunogai, U., Obata, Y., Ando, K., Yamashita, N., Saito, T., Uchiyama, S., Morohashi, M., and Sase, H. 2018. Export flux of unprocessed atmospheric nitrate from temperate forested catchments: A possible new index for nitrogen saturation, *Biogeosciences*, 15: 1-18.
- Sase, H, Takahashi, A, Sato, M, Kobayashi, H, Nakata, M, and Totsuka, T. 2008. Seasonal variation in the atmospheric deposition of inorganic constituents and canopy interactions in a Japanese cedar forest. *Environmental Pollution* 152: 1-10.
- Tsuyoshi Ohizumi, Naoko Take, Yayoi Inomata, Hiroaki Yagoh, Tomomi Endo, Masaaki Takahashi, Kazuki Yanahara, Minoru Kusakabe, Long-term variation of the source of sulfate deposition in a leeward area of Asian continent in view of sulfur isotopic composition, *Atmospheric Environment*, 140, 42-51 (2016).
- Yayoi Inomata, Tsuyoshi Ohizumi, Naoko Take, Keiichi Sato, Masataka Nishikawa, Transboundary Transport of anthropogenic sulfur in PM<sub>2.5</sub> at a coastal site in the Sea of Japan as studied by sulfur isotopic ratio measurement, *Science of the Total Environment*, 553, 617-625 (2016).
- 環境省 2014. 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書(平成 20～24 年度)

- 松葉谷治・川原谷浩 2014. 水素・酸素同位体比から見た地下水、河川水及び降水の関係.  
– 秋田における若干の観測結果についての考察 – 地下水学会誌 56, 309-320.
- 早稲田周・中井信之 1983. 中部日本・東北日本における天然水の同位体組成. 地球化学  
17, 83-91.

## 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(O<sub>3</sub>)及び粒子状物質(PM)についても監視するとともに、PM<sub>2.5</sub> 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 O<sub>3</sub>、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 O<sub>3</sub> 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 O<sub>3</sub> 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 O<sub>3</sub> 濃度が高い傾向であった。これは、図 3-1-24 に示すとおり O<sub>3</sub> 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 O<sub>3</sub> の消失が少ないためであると考えられる。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 年度まで上昇傾向であったが、2008 年度以降減少傾向に転じている。

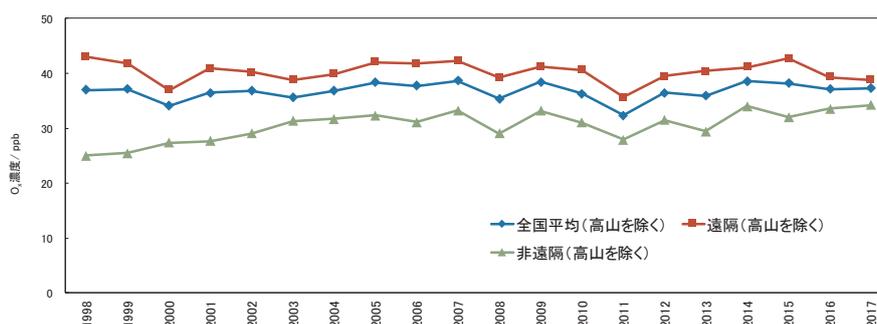


図 5-1-1 遠隔地域及び非遠隔地域における O<sub>3</sub> 年平均濃度の経年変化  
完全度 70%未満の年間値は含めずに計算した。

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(Okamoto et al., J. Geophys Res., 投稿中)。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(Kurokawa et al., Atmos. Chem. Phys., 2013)。気候変動、排出量の長期変動とO<sub>3</sub>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O<sub>3</sub>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<sup>-1</sup>)、竜飛岬(-0.76 ppb y<sup>-1</sup>)、佐渡関岬(-0.32 ppb y<sup>-1</sup>)、八方尾根(-0.89 ppb y<sup>-1</sup>)、蟠竜湖(-0.20 ppb y<sup>-1</sup>)、小笠原(-0.76 ppb y<sup>-1</sup>)、えびの(-0.86 ppb y<sup>-1</sup>)、赤城(-1.11 ppb y<sup>-1</sup>)で有意な減少傾向(p < 0.05)を示し、落石岬(+0.24 ppb y<sup>-1</sup>)、隠岐(+0.21 ppb y<sup>-1</sup>)で有意な増加傾向(p < 0.05)を示した。

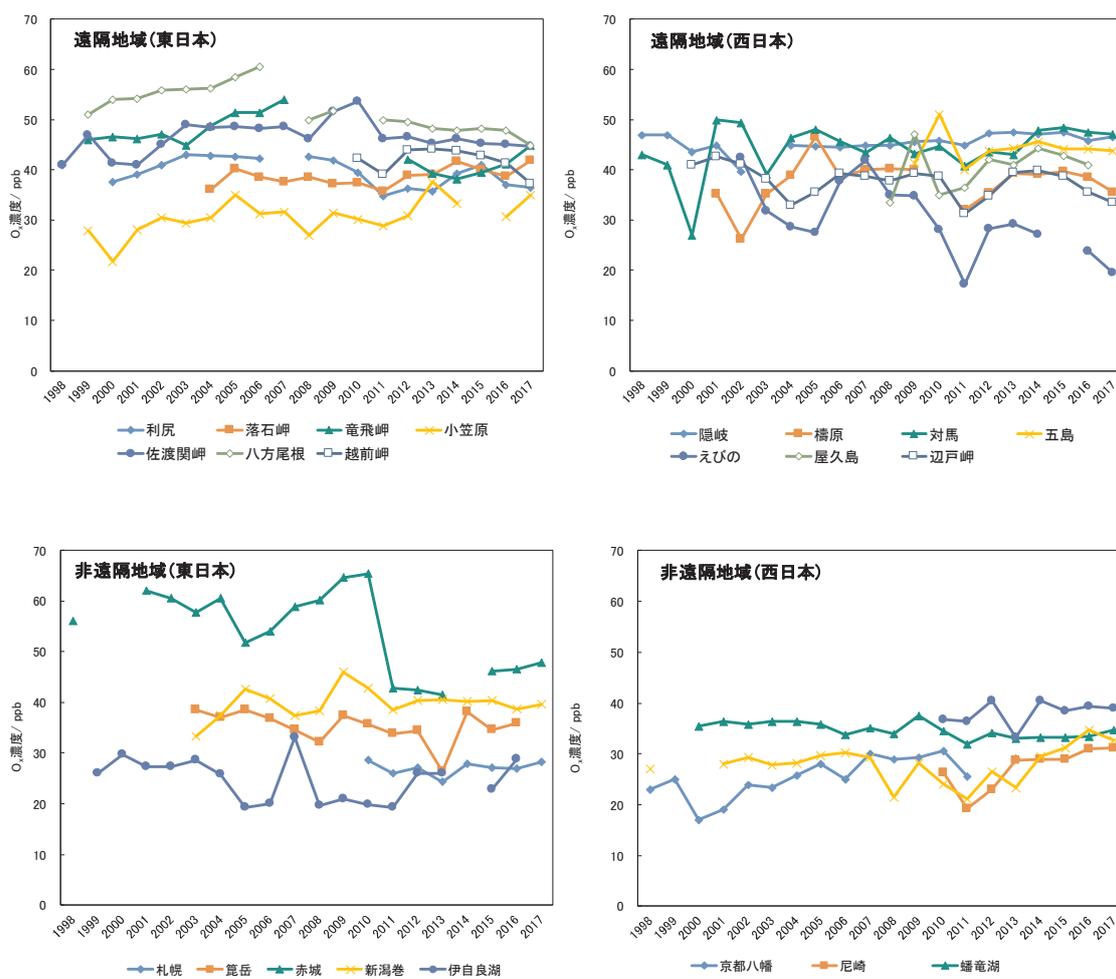


図 5-1-2 各地点の O<sub>3</sub> 濃度の経年変化

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。

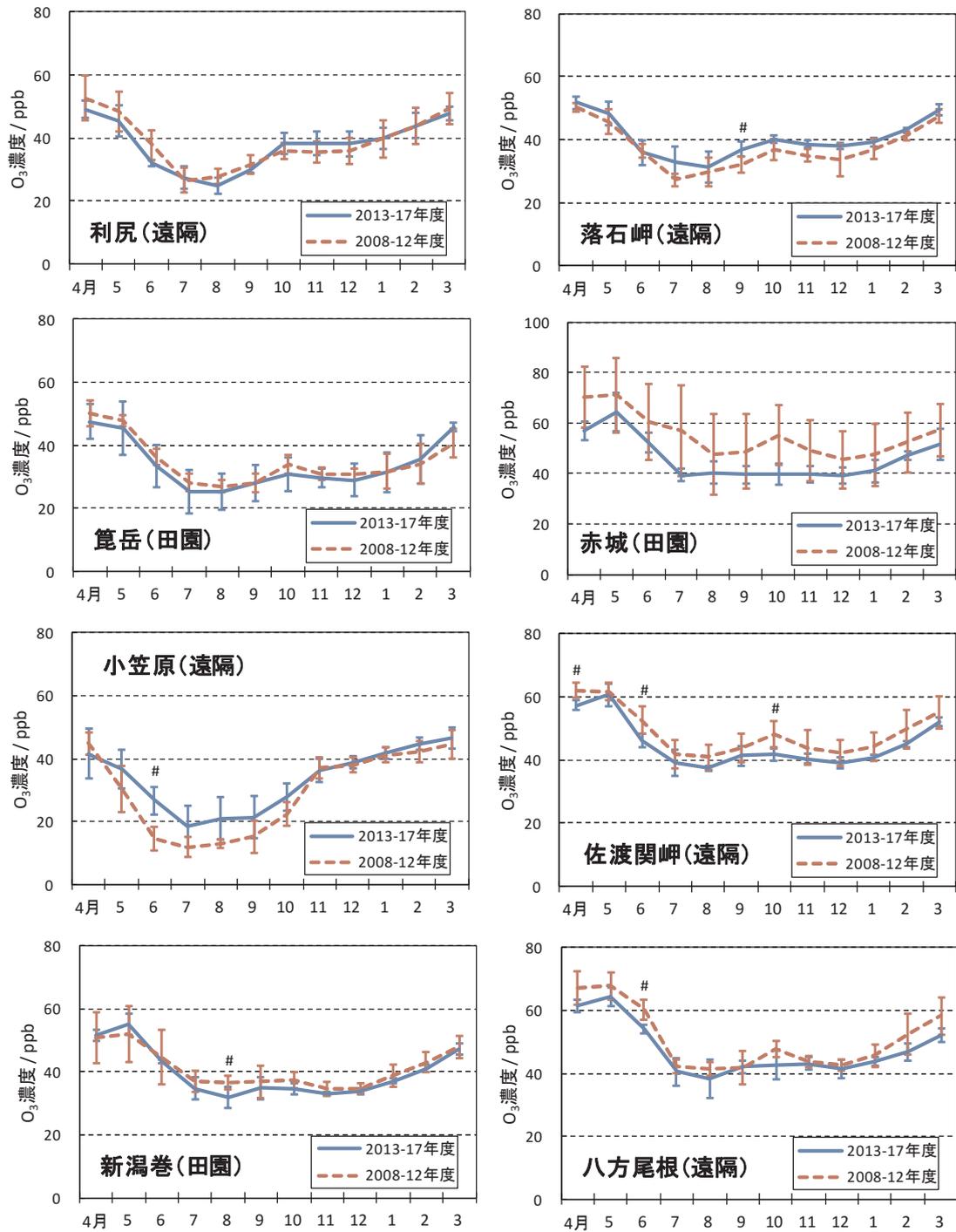


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O<sub>3</sub> 濃度の推移(1/3)

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

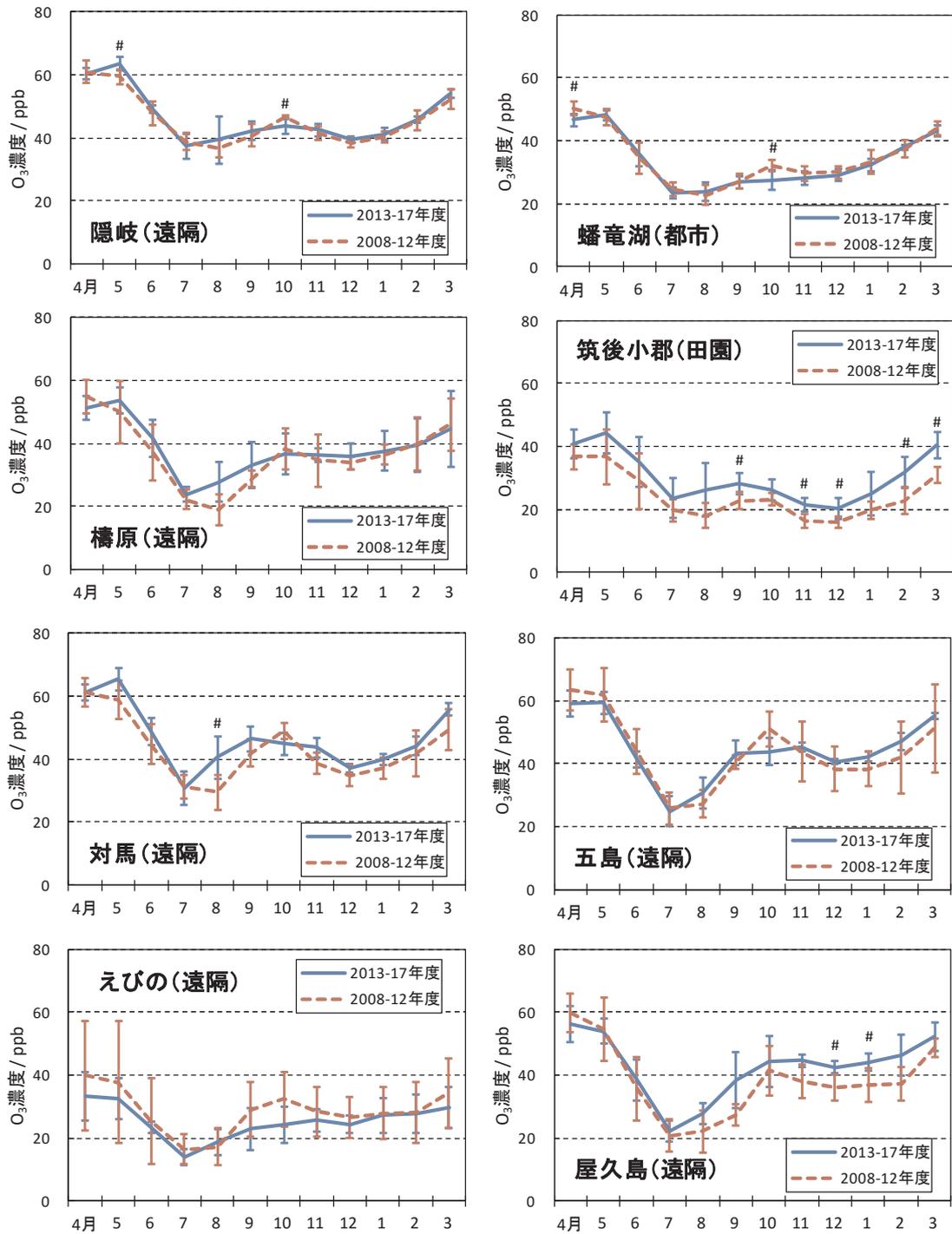


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O<sub>3</sub> 濃度の推移(2/3)

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

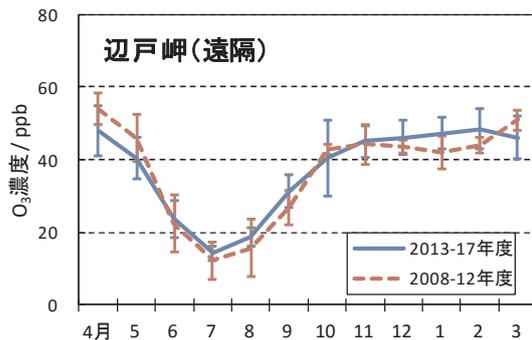


図 5-1-3 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 O<sub>3</sub> 濃度の推移(3/3)

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 O<sub>3</sub> 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、②年間 99 パーセンタイル値、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、2005～2015 年度の経年変化を図 5-1-4 に、各測定所について 2005～2015 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。

日最高 8 時間値から求めた最大値、99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値において経年変化の傾向はほぼ等しく、増減トレンドもおおむね同程度であった。これに対し年平均値では最大値、最小値間の差が少なく、増減トレンドも他の指標と比べて低い値を示す傾向があった。有意差検定の結果からは、ほとんどの地点において有意な増減トレンドが見られなかったが、竜飛岬、八方尾根ではいずれの指標でも共通して有意な減少が見られた。五島は年平均値では変化が見られなかったものの、日最高 8 時間値から求めた値では共通して有意に減少していた。

表 5-1-1 測定所ごとの 2005～2015 年度間の O<sub>3</sub> 増減トレンド

(単位 : ppb/年)

地点	最大値	99%値	98%値	年平均値
利尻	-0.9	-1.4	-0.5	-0.7
落石岬	-1.1	-0.8	+0.3	+0.3
竜飛岬	-2.0	-2.4	-2.2	<u>-1.6</u>
佐渡関岬	-0.5	-0.2	-0.5	-0.4
八方尾根	-3.8	-2.1	<u>-2.1</u>	-1.0
伊自良湖	-2.0	-1.8	-1.5	±0.0
隠岐	+1.1	+0.9	+0.9	+0.5
蟠竜湖	-0.9	-0.2	-0.3	-0.2
禰原	-0.5	-0.4	-0.4	-0.3
辺戸岬	-0.7	-0.5	-0.5	-0.1
小笠原	+1.1	+0.2	+0.3	+0.3
札幌	-2.2	-2.0	-1.6	-0.1
篔岳	-0.4	-0.2	-0.1	-0.4
赤城	-3.7	-2.3	-3.3	-0.6
新潟巻	-1.6	-1.4	-0.9	-0.1
越前岬	+1.8	+0.6	+1.1	+0.5
尼崎	+1.6	-0.1	+0.5	+1.4
筑後小郡	-1.5	-1.6	-1.2	-0.1
大分久住	+0.6	+0.4	+0.4	+0.4
五島	<u>-2.1</u>	<u>-2.1</u>	<u>-2.1</u>	+0.1
対馬	+0.4	+1.2	+1.1	±0.0
えびの	-2.1	-2.0	-2.3	-1.0
屋久島	-2.1	-1.5	-0.9	+0.9

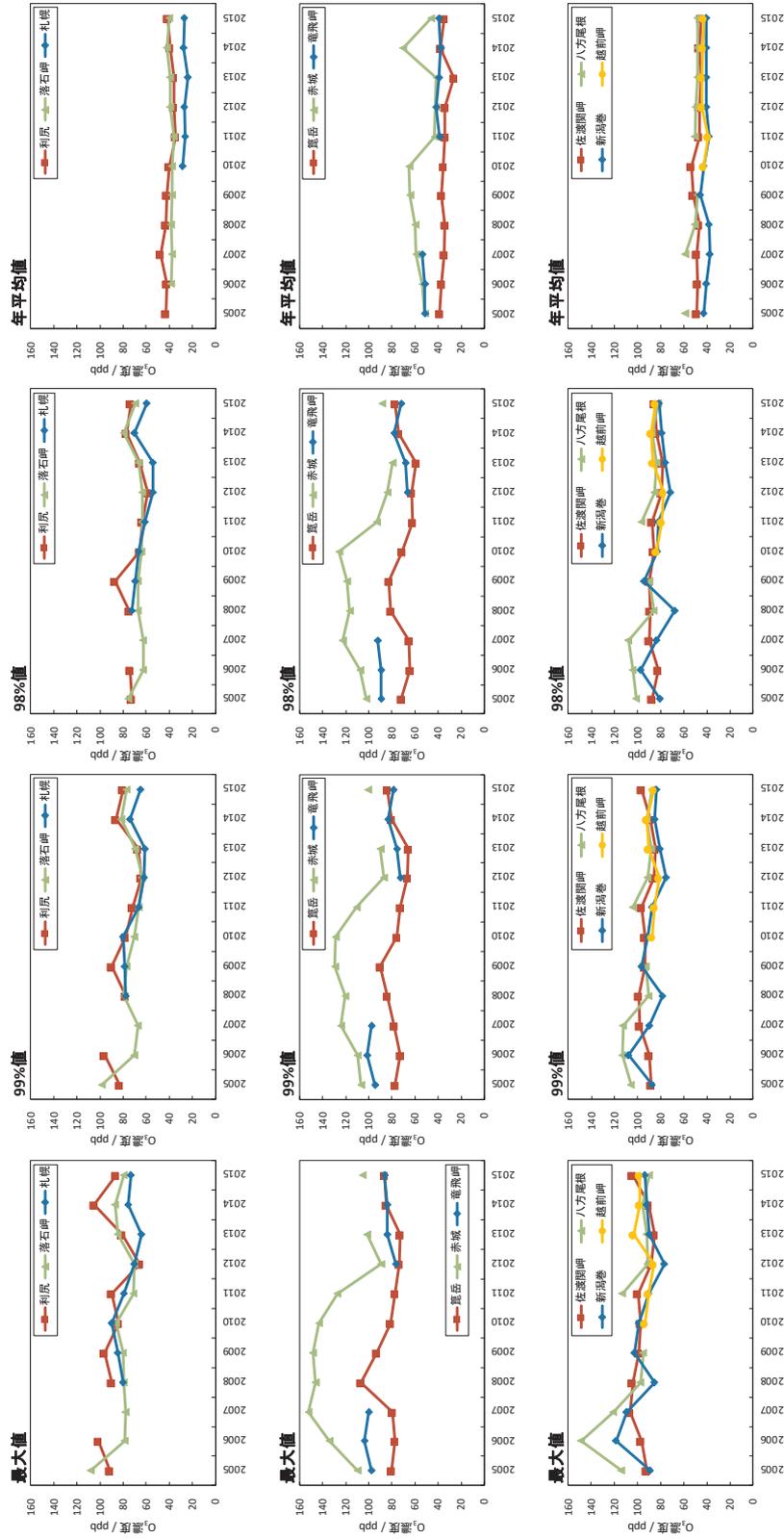


図 5-1-4 O<sub>3</sub>濃度日最高8時間値から求めた最大値、99パーセンタイル値、98パーセンタイル値の経年変化(2005～2015年度)(1/3)

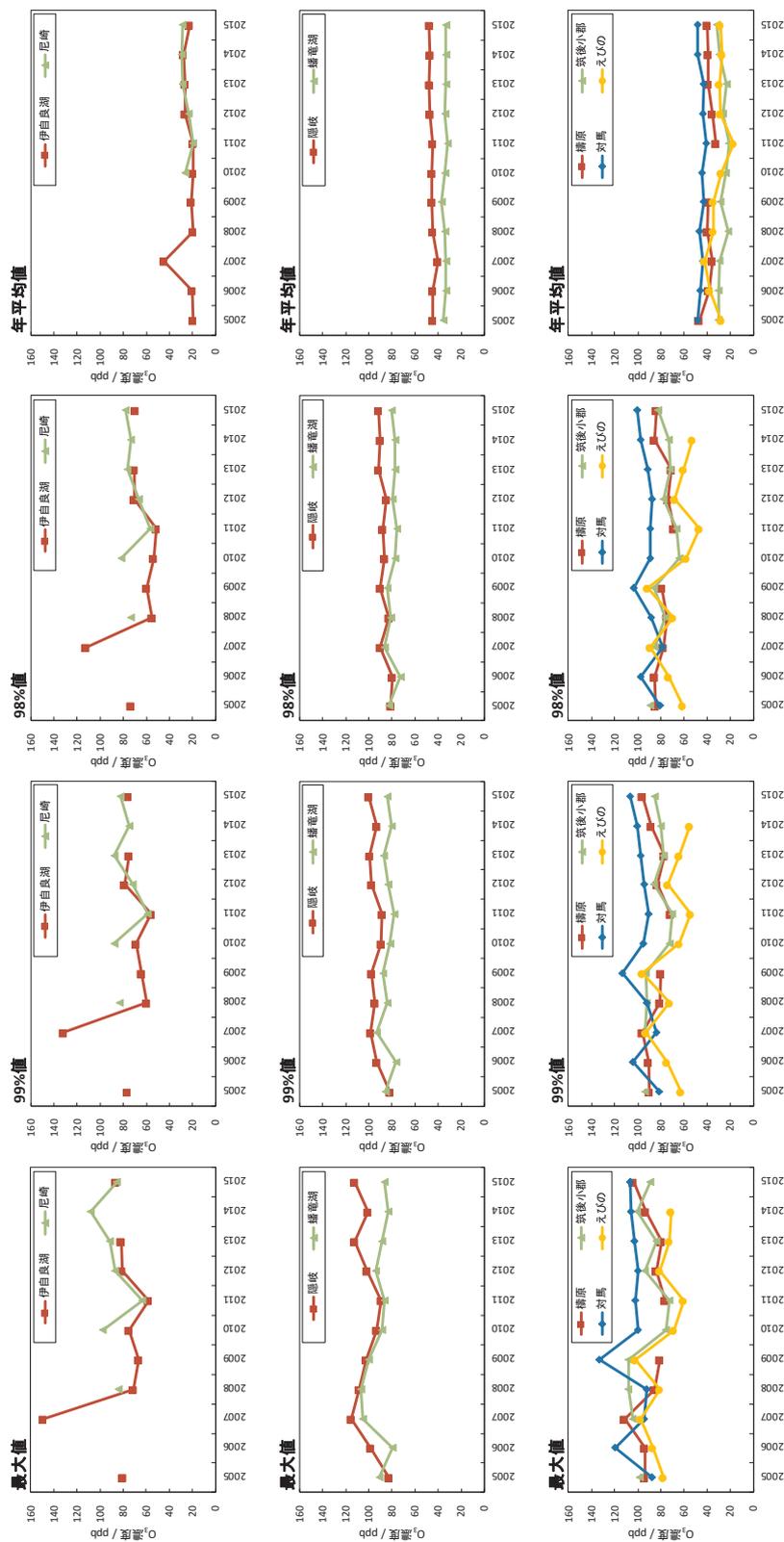


図 5-1-4 O<sub>3</sub>濃度日最高8時間値から求めた最大値、99パーセンタイル値、98パーセンタイル値の経年変化(2005~2015年度)(2/3)

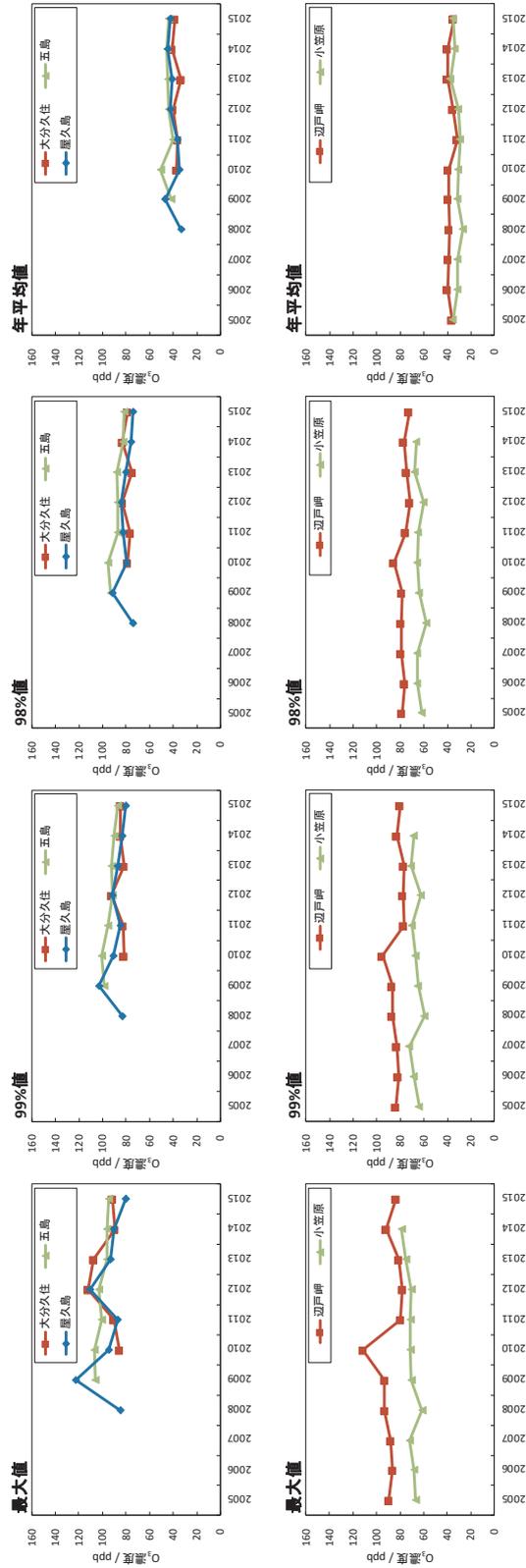


図 5-1-4 O<sub>3</sub> 濃度日最高 8 時間値から求めた最大値、99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値の経年変化(2005～2015 年度)(3/3)

### 5.1.2 PM<sub>10</sub> 及び PM<sub>2.5</sub>

平成 11 年度(1999 年度)から 2017 年度における PM<sub>10</sub> 濃度、PM<sub>2.5</sub> 濃度及び PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> 比の経年変化を図 5-1-5 に示した。

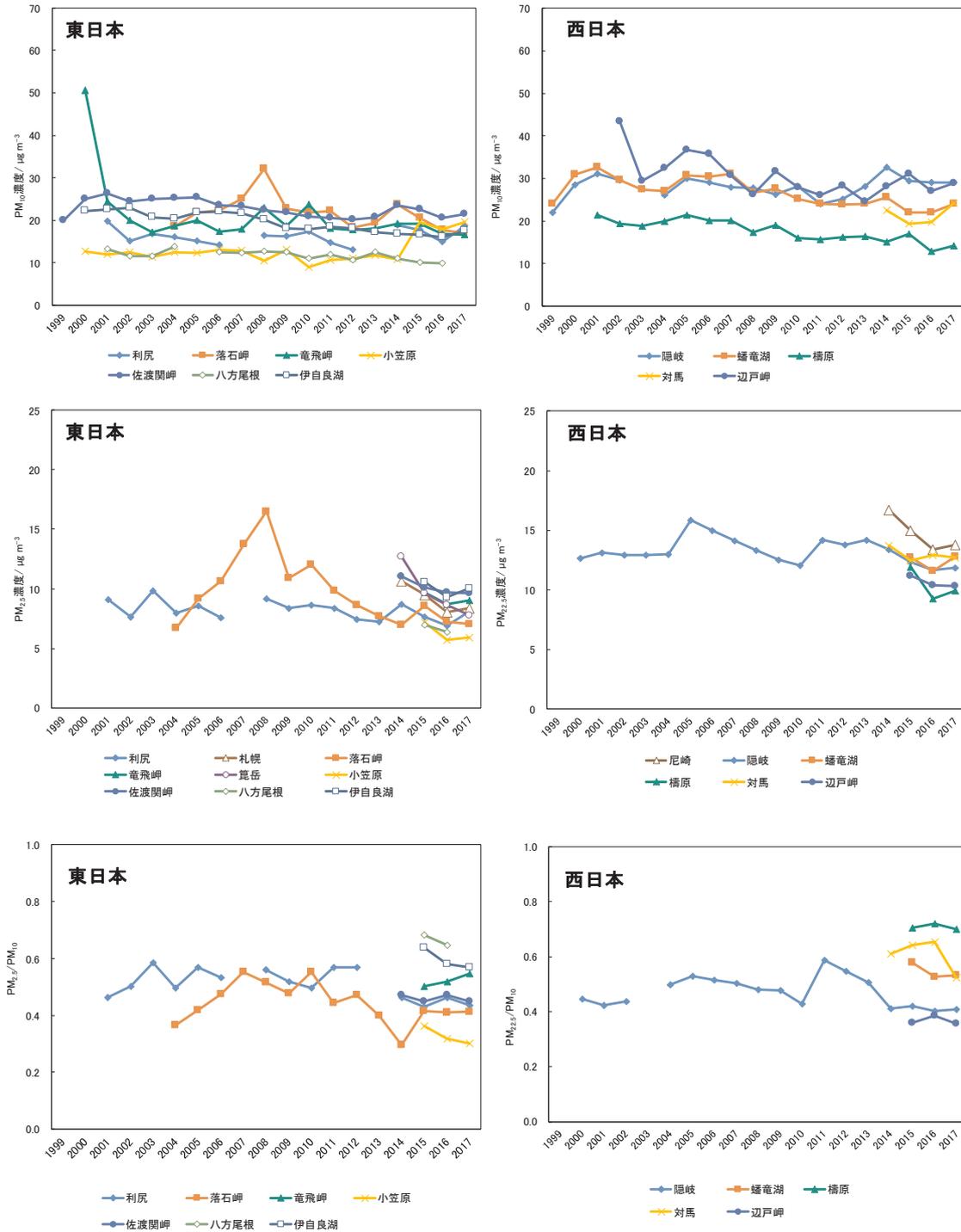


図 5-1-5 PM<sub>10</sub> 濃度、PM<sub>2.5</sub> 濃度及び PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub> 比の経年変化

完全度 70%未満の年間値は表示しない。

調査期間を通して、PM<sub>10</sub>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<sub>2.5</sub>濃度はPM<sub>10</sub>濃度と連動した変動を示し、PM<sub>2.5</sub>/PM<sub>10</sub>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<sub>2.5</sub>(-0.09 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、佐渡関岬PM<sub>10</sub>(-0.29 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、八方尾根PM<sub>10</sub>(-0.20 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、伊自良湖PM<sub>10</sub>(-0.40 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、幡竜湖PM<sub>10</sub>(-0.53 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、橈原PM<sub>10</sub>(-0.48 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)、辺戸岬PM<sub>10</sub>(-0.41 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)で有意な減少傾向(p<0.05)を示し、小笠原(-0.40 µg m<sup>-3</sup> y<sup>-1</sup>)でPM<sub>10</sub>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PM<sub>10</sub>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<sub>2.5</sub>濃度が顕著に低くなる傾向が見られ、4月には8 µg m<sup>-3</sup>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<sup>-3</sup>の特異的な高濃度が観測されたため、前半5年間のPM<sub>10</sub>濃度が高くなった。

<PM<sub>10</sub>濃度>

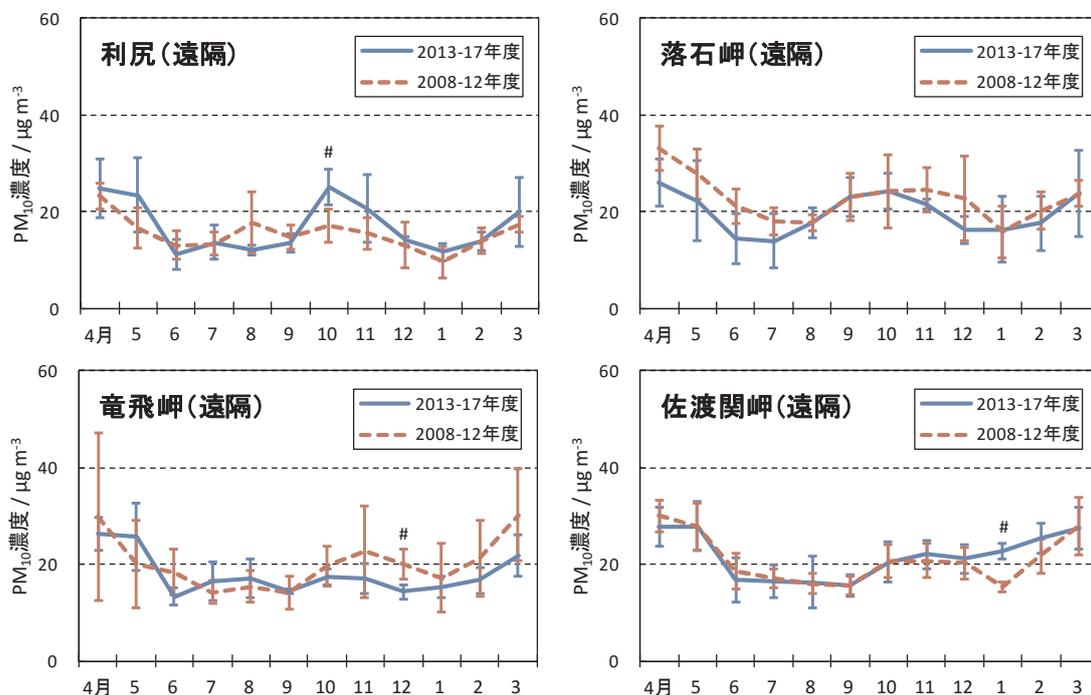


図5-1-6 2008~2012年度及び2013~2017年度の月別PM<sub>10</sub>およびPM<sub>2.5</sub>濃度の推移(1/3)

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

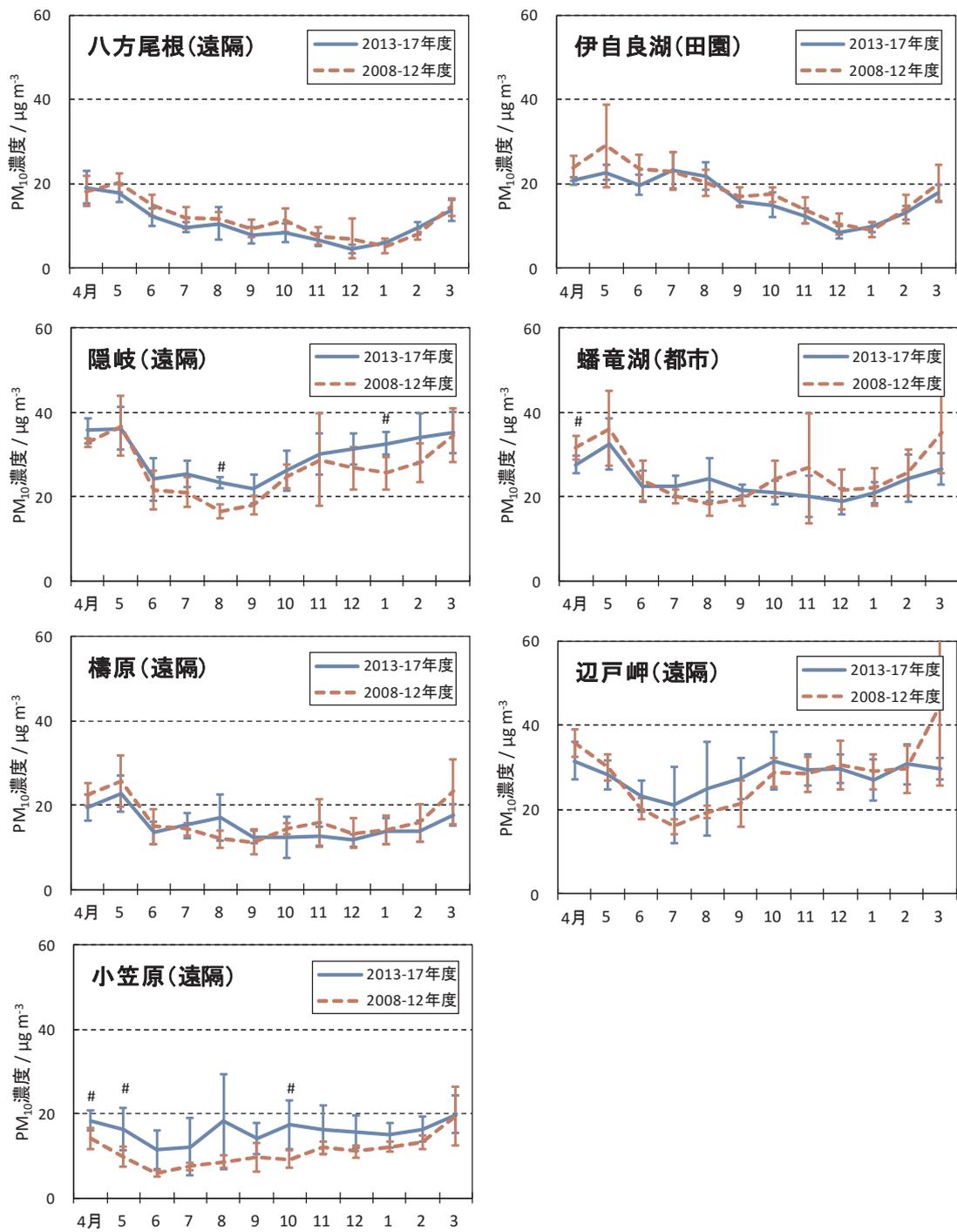


図 5-1-6 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 PM<sub>10</sub> および PM<sub>2.5</sub> 濃度の推移(2/3)

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<sub>2.5</sub> 濃度>

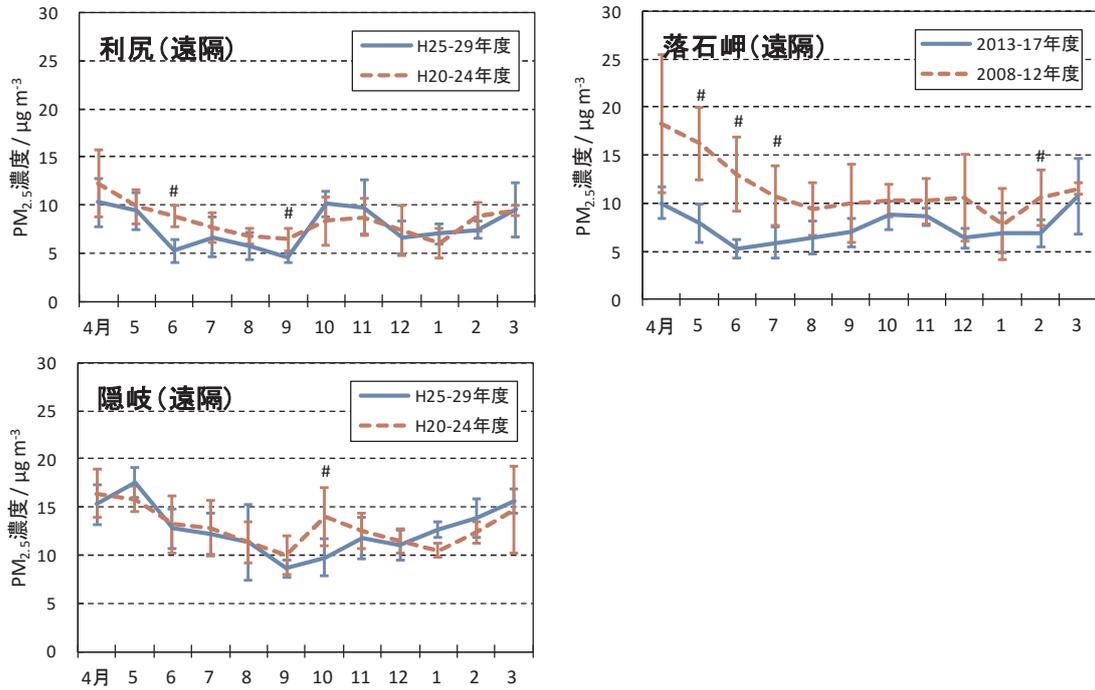


図 5-1-6 2008～2012 年度及び 2013～2017 年度の月別 PM<sub>10</sub> および PM<sub>2.5</sub> 濃度の推移(3/3)

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(O<sub>3</sub>)、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(Atmos. Environ., 2013、文献 1)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。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(J. Geophys. Res., 2014、文献 2)。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(Atmos. Res., 2016、文献 3)、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<sub>2.5</sub>のソース・リセプター解析

PM<sub>2.5</sub>のソース・リ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(Geochem. J., 2015、文献 4)は2010年を対象とした日本全体のPM<sub>2.5</sub>の発生源解析を行ったが、西日本では年平均PM<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>中の硝酸塩、硫酸塩の発生源解析を行った(Atmos. Environ., 2012、文献 5)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(Environ. Sci. Technol, 2013、文献 6)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(Atmos. Chem. Phys, 2011、文献 7)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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>のモデル解析を行った。PM<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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 SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub>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 SO<sub>2</sub>, NO<sub>2</sub>, and PM<sub>2.5</sub> concentrations at the ambient air pollution monitoring stations in JFY2010.

	Japan			Beijing
	SO <sub>2</sub>	NO <sub>2</sub>	PM <sub>2.5</sub>	PM <sub>2.5</sub>
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 SO<sub>2</sub> and NO<sub>2</sub> and μg m<sup>-3</sup> for PM<sub>2.5</sub>.

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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>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<sub>2.5</sub>の排出、生成、消滅過程の精緻化が必要である。

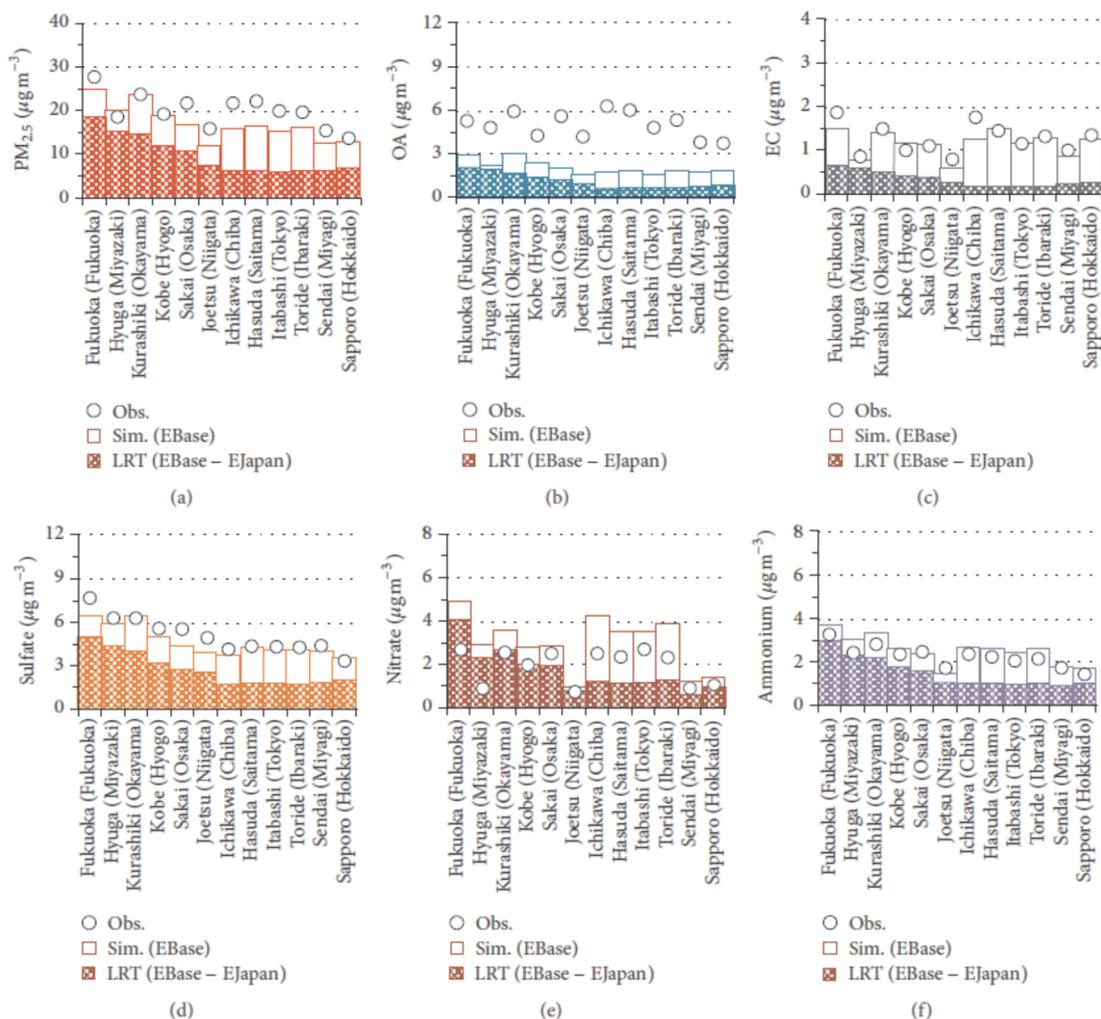


図 5-1-7 日本の各地点における PM<sub>2.5</sub> 濃度と成分濃度の観測値とモデル値の比較、長距離輸送の寄与量

森野らは、2012 年に全国 12 地点で同時観測した PM<sub>2.5</sub> 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。表 5-1-3 に示すように夏季における SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup> は良く再現できていたが、冬季と春季においては、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> はモデルが過小評価しており、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 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。東アジア地域では SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、SO<sub>2</sub> の観測値とモデル値の相関は良かったが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> は 40%、SO<sub>2</sub> 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<sub>2.5</sub> 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 SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、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<sup>a</sup>.

	Season	Simulation	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	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

<sup>a</sup> 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<sup>-3</sup>. Abbreviations: EC, elemental carbon; OA, organic aerosol.

表 5-1-4 日本の各地点における PM<sub>2.5</sub> 濃度のモデルと観測値の比較

Table 3. PM<sub>2.5</sub> 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 <sub>2.5</sub> (μg m <sup>-3</sup> ) and standard deviation (μg m <sup>-3</sup> )							
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 <sub>2.5</sub> (μg m <sup>-3</sup> ) and standard deviation (μg m <sup>-3</sup> )							
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 <sub>2.5</sub> (μg m <sup>-3</sup> ) and standard deviation (μg m <sup>-3</sup> )							
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 <sub>2.5</sub> to nighttime-mean PM <sub>2.5</sub>							
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<sub>2.5</sub>、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。図 5-1-8 に日中韓の各地点における PM<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> 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。

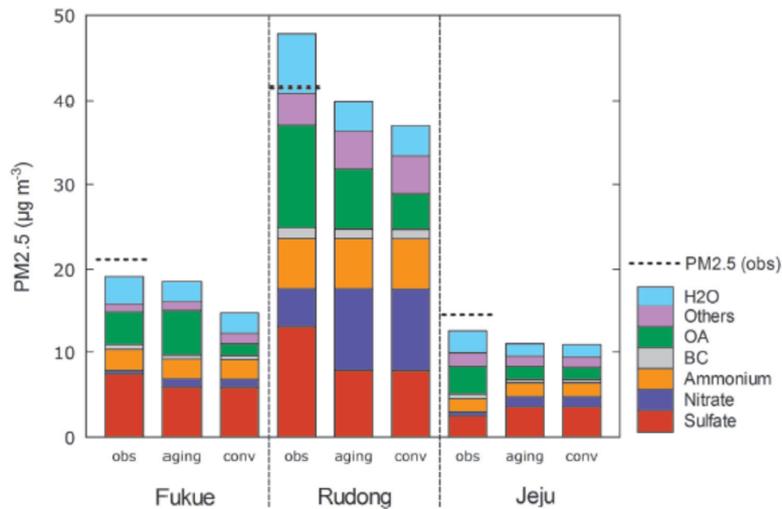


Fig. 2. Stacked bar charts of the observed (obs) and modeled average mass concentrations of major chemical components, others, and water of PM<sub>2.5</sub> for individual field campaigns. Summed mass concentrations are compared with the total PM<sub>2.5</sub> monitoring data using a horizontal dashed 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<sub>2.5</sub> 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、トレーサー法による日本の PM<sub>2.5</sub> の発生源寄与評価に関する研究、PM<sub>2.5</sub> による健康影響のモデル解析に関する研究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。

また、中国、韓国の研究者によっても多くの PM<sub>2.5</sub> 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<sub>2.5</sub> も対象としている。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。

### 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

アジア域における 1950-2010 年の SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 地域別排出量の経年変化を示す。

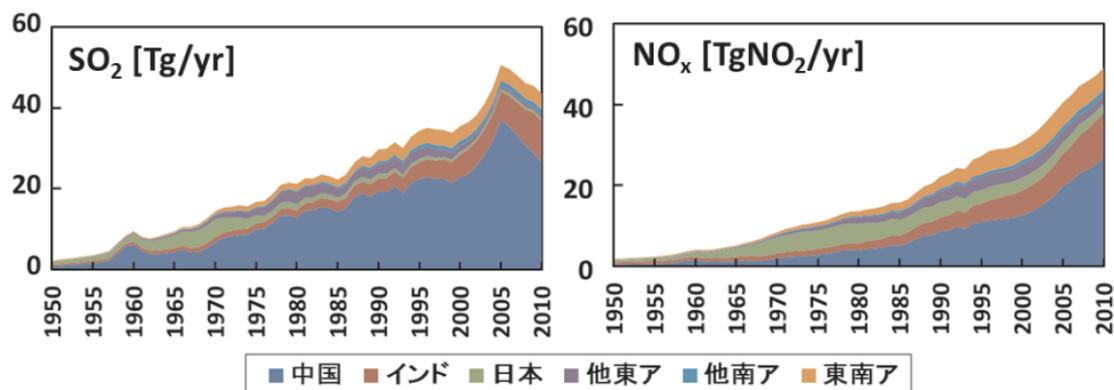


図 5-1-9 アジア域における 1950-2010 年の SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub> 地域別排出量

1950-2010 年の 60 年間の間に、アジアにおける排出量は、SO<sub>2</sub> で約 20 倍、NO<sub>x</sub> 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、SO<sub>2</sub> は 1970 年頃まで、NO<sub>x</sub> 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。SO<sub>2</sub> 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<sub>x</sub> 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<sub>2.5</sub> 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 SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、PM<sub>2.5</sub>、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 SO<sub>2</sub> 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 SO<sub>2</sub> 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<sub>x</sub> 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 SO<sub>2</sub> とほぼ同様であるが、SO<sub>2</sub> の排出量が減少に転じた後も NO<sub>x</sub> 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、SO<sub>2</sub> 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<sub>2.5</sub>及びBCについては、SO<sub>2</sub>及びNO<sub>x</sub>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<sub>2.5</sub>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。

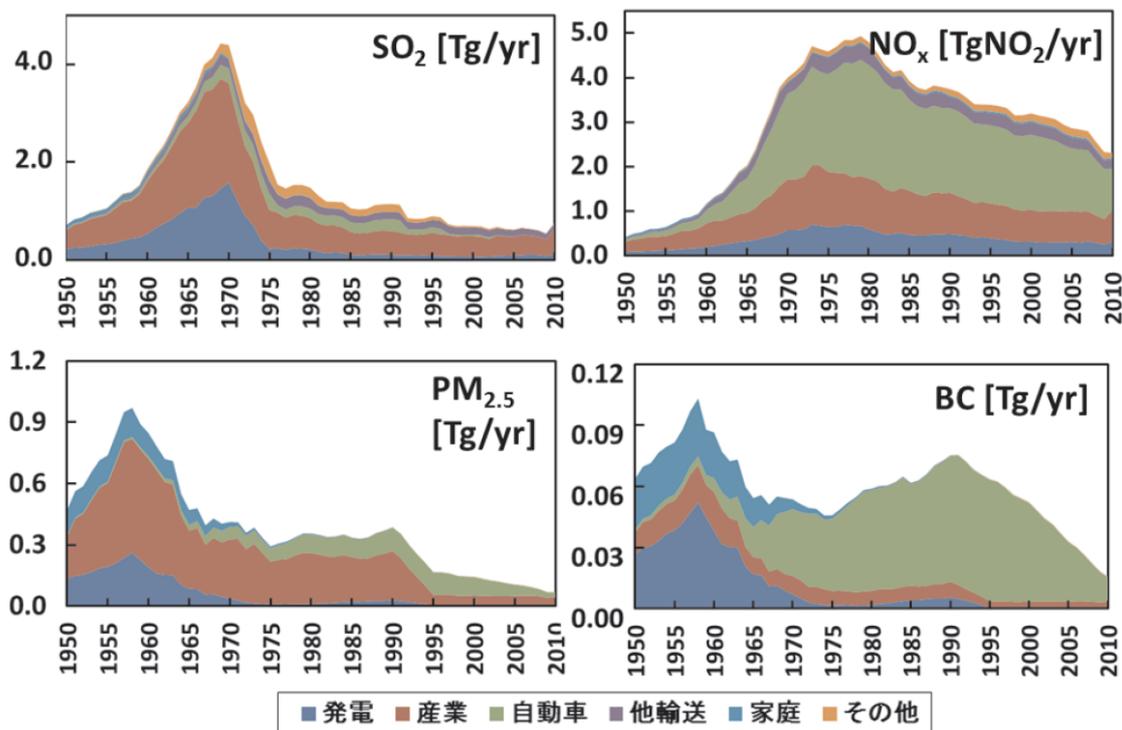


図 5-1-10 日本における 1950-2010 年の SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、PM<sub>2.5</sub>、BC セクター別排出量

## 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<sub>2.5</sub> 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。

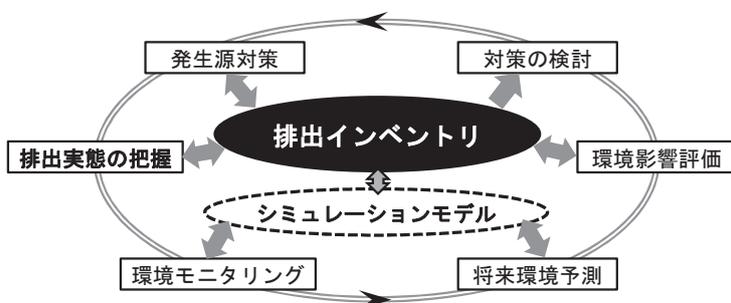


図 5-1-11 NEI の役割

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。

【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。

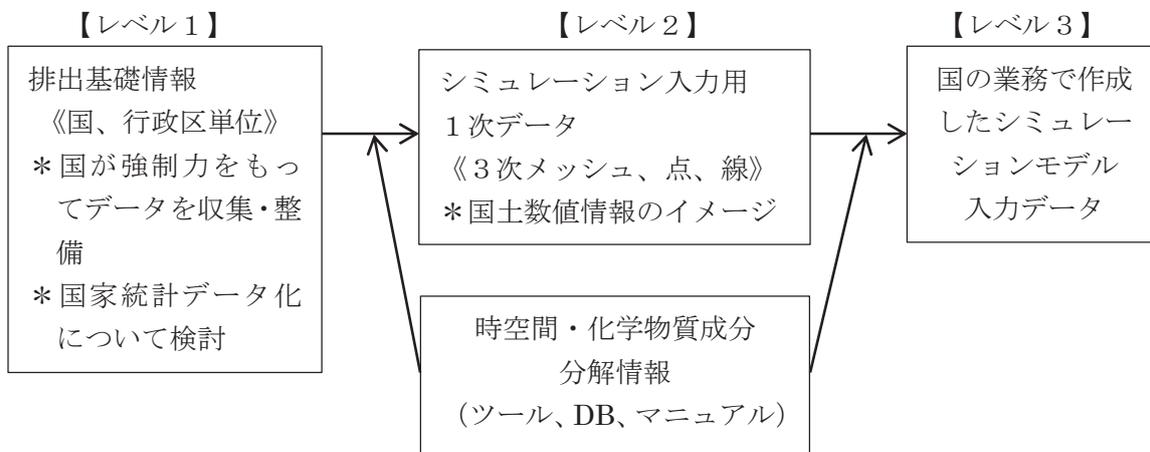


図 5-1-12 目指すべき排出インベントリ (NEI) システムの基本構造

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( $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}$ 、 $\text{NMVOC}$ 、 $\text{SO}_x$ )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。

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  $\text{SO}_2$ 、 $\text{BC}$ 、 $\text{OC}$  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  $\text{SO}_2$  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

- $\text{O}_3$  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  $\text{O}_3$  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 O<sub>3</sub> 濃度が有意に低い月がみられた。

- 日最高 8 時間値による O<sub>3</sub> 濃度経年変化の増減トレンドについては、竜飛岬、八方尾根で有意な減少が見られた。五島は年平均値では変化が見られなかったものの、日最高 8 時間値から求めた値では共通して有意に減少していた。
- 調査期間を通して、PM<sub>10</sub> 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<sub>2.5</sub> 濃度は PM<sub>10</sub> 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 PM<sub>10</sub> 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<sub>2.5</sub> 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 O<sub>3</sub> 濃度寄与が最大になり、西日本では年平均 PM<sub>2.5</sub> 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。
- O<sub>3</sub>、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。

## 6 越境大気汚染・酸性雨研究に関する国内外の主な取組

### 6.1 国内における取組

#### 6.1.1 環境省環境研究総合推進費戦略的研究開発領域 S-7、S-12 による研究活動

環境省では平成 21 年度(2009 年度)から 25 年度(2013 年度)まで、環境研究総合推進費戦略的研究開発領域における研究活動として、「東アジアにおける広域大気汚染の解明と温暖化対策との共便益を考慮した大気環境管理の推進に関する総合的研究(S-7)」(研究代表者：秋元肇 一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター前所長)を行った。本研究プロジェクトでは、我が国におけるオゾン・エアロゾル汚染に関し、東アジア地域の広域汚染及び半球規模汚染からの長距離輸送による寄与の定量化とともに、科学的知見を基に、越境大気汚染及び地球温暖化防止の双方に効果的な共便益(コベネフィット)を考慮した東アジア地域の大气汚染物質削減シナリオを開発し、その実現への国際的な合意形成に向けた道筋について検討を行った。本研究プロジェクトは、テーマ 1「数値モデルと観測を総合した東アジア・半球規模のオゾン・エアロゾル汚染に関する研究(S-7-1)」、テーマ 2「東アジアにおける排出インベントリの高精度化と大気汚染物質削減シナリオの策定(S-7-2)」及びテーマ 3「東アジアの大気汚染対策促進に向けた国際枠組とコベネフィットアプローチに関する研究(S-7-3)」の 3 テーマ体制で研究を実施した。

テーマ 1 においては、数値モデルと観測を総合し、アジア地域での観測を通じてモデルを精緻化すること、化学輸送モデルにより O<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub> の東アジア域における越境汚染量、半球規模での大陸間輸送量、わが国における生成量を明らかにし、東アジア域からの寄与を定量化すること、我が国への越境汚染に直接関与する発生源地域を特定し、それらの地域における排出削減の我が国への感度を評価すること、削減により効率的な大気質改善をもたらす排出部門を把握すること、大気汚染物質削減の気候影響感度評価を行うことを目的とした。また、汚染の現状把握のため、福江島での重点観測や衛星観測をモデルと統合的に用い、O<sub>3</sub>、PM<sub>2.5</sub>、NO<sub>2</sub>、エアロゾル光学的厚さ(AOD)等の近年の変動傾向を取りまとめ、中国・韓国でも観測を実施し、PM<sub>2.5</sub> の化学組成を明らかにして対策立案を推進した。得られた知見は、国内施策に貢献できるよう、また他機関・関係国へ働きかける際の科学的根拠として活用されている。

テーマ 2 では、アジア域における大気汚染物質の排出インベントリ (REASv2) を開発し、詳細発生源毎の排出量と主要発生源毎の排出量グリッドデータがインターネットを通じて一般に公開され、また、国際的なモデル間相互比較研究(MICS-Asia、TF HTAP)の排出インベントリに採用された。これらを通して、世界各国の大気質、気候変動に関する研究に活用されている。また、REASv2 は、衛星観測データを基にした排出量逆推計モデルに関する国際研究プロジェクト(GlobEmission)でも活用され、ボトムアップ、トップダウン両アプローチから、排出インベントリ研究の国際的な推進・発展に貢献した。大気汚染物質

対策技術を導入することによる排出抑制効果とそのために必要な費用を算定するための技術導入モデルを開発した。

更に、アジア太平洋統合評価モデル(AIM)と連携させることで、アジア地域における大気汚染対策と GHG 削減対策のコベネフィットを定量化する評価モデルを構築した。これらのモデルは、アジア地域における排出削減策や将来シナリオに関する研究の進展に貢献することが期待される。

テーマ3では、大気汚染と気候変動とのコベネフィットアプローチの制度設計を含め、越境大気汚染問題の解決のための国際的枠組みのあり方とその実現に向けた有効な合意形成プロセスについて提言を行った。その結果、アジアの国際協力枠組みの機能、組織的構造、主な構成要素を明確化し、また、大気汚染対策分野における国際協力枠組みのための新たな原則の必要性を明らかにした。

また、東アジアのオゾン、エアロゾルのリスク評価について、人の健康影響及び生態系(作物)への影響を詳細かつ定量的に明らかにした。東アジアを広くカバーする領域で行ったこと、最新の詳細なデータを使用したこと、これまで行われてきた研究手法を参考にして手法を改良したことなどにより、不確実性を減らし、より詳細なリスク評価が可能となった。また、モニタリングデータを使用した影響評価との比較により、初めてモデルによるリスク評価の不確実性を定量的に明らかにした。

S-7の研究では、NO<sub>x</sub>、非メタン炭化水素(NMVOC)、CH<sub>4</sub>を同時に削減した時に、北東アジアの地表面 O<sub>3</sub>濃度、全球放射強制力が最も低くなるシミュレーション結果が得られ、東アジアにおける短寿命気候汚染物質(SLCP)削減によるコベネフィットアプローチの必要性を打ち出した。この背景を踏まえ、2014年度から2018年度まで、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)」(研究代表者：中島 映至 国立研究開発法人宇宙航空研究開発機構 地球観測研究センター長)を実施している。同課題では、領域大気化学輸送モデルと逆推計手法を用いた SLCP 排出インベントリの高度化、アジア太平洋統合評価モデル(Asia-Pacific Integrated Model: AIM)における SLCP 過程の高度化、気候・環境モデルによる影響評価を行い、この3つのシステムを組み合わせることで SLCP 削減施策の探査を行うことを目的としている。

2016年度の中間報告の時点では、戦略課題 S-7 で開発したアジア域排出インベントリ REAS 2.1をベースに、アジア太平洋統合評価モデル AIM の排出インベントリとの統合を可能とするインベントリシステムを設計し、発生源種類別の排出量推計システム及び逆推計モデルによる排出量データを用いた排出量解析・更新システムを構築した。全球から国内都市までの多様な(マルチ)空間スケールにおける大気質変化を考慮するため、全球、東アジア、国内都市規模の化学輸送モデルを統合的に用いたマルチスケールモデルシステムを構築し、過去の大気汚染対策による大気質改善効果を評価している。更に、衛星観測データと構築した化学輸送モデルを用いて、大気汚染物質排出量の逆推計システムを構築し、東アジアの 2015 年末までの NO<sub>x</sub> 排出量を推計した。その結果、中国の NO<sub>x</sub> 排出量が

2013 年頃から大幅に減少していることが確認された。

将来排出シナリオに基づく予測については、気候変動に関する政府間パネル(IPCC)の次期評価報告書において中心的に用いられることが予想される SSPs(Shared Socioeconomic Pathways、共通社会経済シナリオ)をもとに、アジア及び世界における温室効果ガス(GHG)、SLCP の排出量にどのような影響をもたらすかを分析した。その結果、低炭素社会の実現に向けたシナリオは技術的に可能であり、特に、大規模な燃料転換や省エネ技術の導入の促進により、大気汚染物質(二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)、PM<sub>2.5</sub> など)や SLCP(メタン(CH<sub>4</sub>)、黒色炭素(BC))も排出量も同時に大幅に削減できることが示された。

### 6.1.2 全国環境研協議会による酸性雨広域大気汚染全国調査

地方自治体の環境研究所を会員とする全国環境研協議会(以下「全環研」)では、1991 年度から日本を網羅する酸性雨全国調査を共同で実施している。調査開始は環境省調査の 8 年後であるが、全国の 150 以上の地点で取得されたデータはシミュレーションモデル開発の基礎資料として活用された。その後も、流跡線解析による越境汚染の評価、世界標準の降水時開放型捕集装置の採用、ガス・粒子濃度測定手法の開発・改良、乾性沈着量の評価等を通じて、日本の酸性雨研究の発展に寄与してきた。特にガス・粒子濃度測定用のフィルターパック法(FP 法)については、本調査で開発・改良された方法が環境省調査及び東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の標準法として採用されている。

環境省の越境大気汚染・酸性雨対策調査では、遠隔地等における酸性雨及びその原因物質の長距離輸送の観測に主眼を置いているのに対し、全環研調査は近隣諸国からの越境汚染に注目しつつも地域の環境保全の見地から都市及び田園地域等における酸性沈着の評価に重点を置いている。酸性雨全国調査は 1991 年度からの第 1 次調査に始まり、2009 年～2015 年度の第 5 次調査を経て、2016 年度からは第 6 次調査を実施している。第 5 次調査では、湿性・乾性沈着の観測・評価に加え、窒素成分のより高精度な沈着量の把握やバックグラウンドオゾン濃度の把握等を主眼に調査が実施されている。2015 年度時点での地点数は、湿性沈着が 66、FP 法によるガス・粒子濃度測定が 31、パッシブ法(PS 法)によるガス濃度測定が 26 である。第 6 次調査では、フィルターパック法による乾性沈着調査において、従来の 4 段ろ紙法から 5 段もしくは 6 段ろ紙法への移行を推奨し、さらに高精度かつ広域的な全国調査を実施している。

これらのデータからは、汚染物質の広域的な移動状況や各地域における沈着量など、様々な解析結果が得られており、全国環境研会誌や大気環境学会等の場を通じて広く情報提供されている。また、国立環境研究所地球環境研究センターの地球環境データベース(<http://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/>)においても順次データが公開されている。

## 6.2 国際的な取組

### 6.2.1 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の活動

#### (1) 東アジアにおける酸性雨の状況に関する第3次定期報告書 (PRSAD3) の作成

EANET では、報告されたモニタリングデータに基づき、東アジアにおける酸性雨問題に関する理解の促進を目的として、「東アジアにおける酸性雨の状況に関する定期報告書」(PRSAD : Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia) を5年毎に作成している。過去には、2000年～2004年、及び2005年～2009年における独自のモニタリングデータに基づき、「東アジアにおける酸性雨の状況に関する科学的評価報告書」をそれぞれ2006年(PRSAD1)、2011年(PRSAD2)に発表した。第3次報告書(PRSAD3)は2010年から2014年までの5年間に蓄積された酸性雨に関するデータを取りまとめ、東アジアにおける酸性雨の状況を解析・評価した。作成に当たっては、EANET 科学諮問委員会において起草委員会を立ち上げ、原稿の作成及び内容検討が行われ、2016年11月に開催された EANET 第18回政府間会合において了承を経た後、2016年12月に公表された。

本報告書は Part I(地域アセスメント版)、Part II(国別アセスメント版)及び Part III(エグゼクティブ・サマリー)の3つのパートから構成されている。Part Iでは、EANET の諸活動を概括し、酸性雨の現状評価を述べている。その内容としては、ネットワーク及び外部文献から得られたデータに基づいた東アジア地域に影響を与える大気汚染問題に関連する情報、将来の方向性、汚染物質による大気環境や土壌植生、陸水系システム等の生態系に対する影響の可能性に関する情報である。また、データの信頼性確保のための精度保証・精度管理(QA/QC)活動や、地域内の酸性沈着のプロセスへの理解を深めるための EANET コミュニティによって共同で実施された研究活動が強調されている。第一部は、地域の酸性雨管理へのより統合的なアプローチを目指した将来の活動の概略で締めくくられている。本報告書のとりまとめに向けて、各参加国のエキスパートから成る編集委員会が編成され、同委員会の主導により、酸性沈着の総合的な評価と EANET ネットワークの更なる発展を目指した EANET 第二中期計画(2010~2015)に基づいて、2010年～2014年のモニタリングデータ及び EANET の成果についての科学的評価が行われた。第二部では、EANET 参加国内において国レベルで実施されたモニタリング活動、大気質評価、管理対策など国別のアセスメントについてまとめている。

PRSAD3 の作成は、EANET の重要な科学的成果である。本報告書の公表は、北東アジアや東南アジア諸国が現在推進している各種の取り組みや、ネットワークによる関連した協力により実現したものである。この報告書が、地域における酸性雨問題への理解を深め、EANET の継続的発展への大きな一歩となることが期待される。

## (2) 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(MICS-Asia)

東アジアは、近年の経済成長に伴う大気汚染物質・オゾン前駆物質排出量の増加により、大気質悪化の影響が世界で最も懸念されている地域となっている。2007年5月に発生した光化学オキシダントによる広域大気汚染は、東アジアにおける越境大気汚染が大きく顕在化した事例として社会問題となった。更に、2013年1月以降に中国全域で発生した、PM<sub>2.5</sub>を起源とする東アジア大気環境の深刻な悪化と健康影響に関する懸念は報道で大きく取り上げられ、現在の国民的関心事項となっている。これらの課題に対処するためには、東アジアの国々が越境大気汚染についての国際的な共通理解を深め、地域協力により取組を推進していくことが必要であるが、必ずしも国際的な合意形成を得るには至っていないのが現状である。

越境大気汚染状況の定性・定量的理解においては、大気化学モデルによるシミュレーションが不可欠である。大気化学輸送モデルによる研究は、かつては大規模な計算設備が必要であり、専門の研究者が独自のモデルを開発して行うものであったが、近年の大幅な計算機能力の向上・低価格化と、無償で使用可能なコミュニティモデルの普及に伴い、大気化学モデルは一般的な研究ツールとなりつつある。しかし、大気化学モデルにはモデル内でのプロセスの取り扱い、地表面や境界における入力データ、空間分解能設定等の違いによる不確実性が存在し、東アジア規模での大気質や酸性雨を対象としたシミュレーション結果にはモデル間で有意な差が生じている。従って、単一のモデルによる結果では参加国において共通理解の共有が進まない可能性が高い。

このような背景のもと、「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(MICS-Asia : Model Inter-Comparison Study in Asia)」がEANETにおける研究活動の一つとして立ち上がり、2010年より第3期の活動を行っている。第3期では、欧米及び東アジア地域のシミュレーション研究の専門家が参加して、その活動内容の検討と成果報告を行う「東アジアにおける大気モデル研究の国際ワークショップ」が、中国において毎年開催されている。

2011年9月に中国・成都で開催された第3回ワークショップにおいて、第3期では次の3つのテーマを主な研究トピックとすることが決定され、各研究トピックに関心を有する研究者によるグループディスカッションが行われた。

トピック 1 マルチスケールにおけるモデル間の相互比較

トピック 2 排出インベントリの相互比較

トピック 3 大気質と気候変動の関係に関するモデル間相互比較

これら MICS-Asia Phase III の研究計画・活動は、欧米の研究者にも注目されており、欧州における大気質と気候モデリングの統合枠組みのホームページでも紹介されている(European Framework for Online Integrated Air Quality and Meteorology Modelling, 2015)。

前項の研究計画の策定後、各トピックについて研究準備に着手した。まず、他のトピックに出来るだけ早くデータ提供する必要性から、トピック2の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が先行して行われた。2014年に行われた第5回ワークショップでは、清華大学の Zhang らによる MIX inventory についての説明が行われた。MIX inventory の関連論文発表後には外部公開することを予定している。

将来予測については、中国・清華大学の Wang らのグループが東アジアにおける 2005 年および 2010 年を基準年とした SO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>、粒子状物質(Particulate Matter, PM)、非メタン揮発性有機炭素(Non-Methane Volatile Organic Carbon, NMVOC) の排出トレンドを推算し、6 つの排出シナリオにより 2020 年および 2030 年の将来予測を行っている(Wang et al., 2014)。この予測結果は今後トピック 1 で行われる将来予測モデリングに利用される予定である。

トピック 1 およびトピック 3 の進捗状況については、トピック 2 より排出インベントリの共通データが提供された後、モデル計算のスケジュール、データ提出方法等が 2015 年 2 月に開催された第 6 回ワークショップにおいて議論された。

排出インベントリは共通データを使うことで合意されたが、境界条件については前述のとおり CHASER と GEOS-Chem の 2 つのオプションが示されたので、異なる側面境界条件のオゾン濃度のシミュレーション結果に対する影響について議論がなされた。側面境界条件の与える影響は確かに大きいですが、MICS-Asia Phase III で用意された双方の側面境界条件を用いたオゾン濃度シミュレーション結果には大きな差は生じなかった。

また、これまでの MICS-Asia の議論では対象が中国を中心とする北東アジアに偏っていたが、EANET のコミュニティに対しては東南アジアについても関心があり、東南アジアの研究を進める必要がある。そこで、第 6 回ワークショップでは、東南アジア域を対象としたモデル間相互比較に関する研究グループを設立することとなり、本会合において初めて本格的な研究計画についての議論がなされた。

トピック 3 についても初期結果が報告されており、CAS/IAP の Han 教授らが Online Coupled Regional Climate Chemistry Aerosol Model (RIEMS-Chem) の概要と 2010 年を対象としたシミュレーションのオゾン、エアロゾル前駆物質、エアロゾル濃度及び AOD の再現性の検証結果が示され、放射強制力の年平均に対する差としての季節変化が議論された。中国北東部の負の放射強制力は春季と夏季に強く、冬季に弱いことが示された。気温のエアロゾルによる変化が同様に調べられ、春の重慶で負の変化が最も大きく、次いで揚子江、黄河域において変化が大きいことが示された。

トピック 1 およびトピック 3 に参加している研究者は 2015 年 3 月までにモデル計算結果を事務局に提出することとなり、配布データの修正やデータの確認等の連絡調整の後、2015 年 9 月までに概ね結果が提出された。2017 年、2018 年に開催された第 8 回、第 9 回のワークショップで比較解析結果の報告を行い、論文執筆のための議論を行った。2018 年 9 月に Atmospheric Chemistry and Physics 誌に特集号 “Regional assessment of air pollution and climate change over East and Southeast Asia: results from MICS-Asia Phase III” の投稿受付を開始し、MICS-Asia Phase III の研究論文が掲載される予定である。

## 6.2.2 欧米における大気モニタリングネットワークの活動

### (1) 欧州における活動

ヨーロッパでは1950年代から北欧の湖沼や河川が酸性化して魚や植物が死滅するなど、生態系に深刻な影響が生じていることが問題となり、1972年に経済協力開発機構(OECD)において発足した大気汚染物質のモニタリング計画に続き、1977年には、国連欧州経済委員会(UNECE)の下で、欧州全域を含む長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム(EMEP: Co-operative Programme for Monitoring and Evaluation of the Long-Range Transmissions of Air Pollutants in Europe)が発足し、ヨーロッパ全域に酸性雨の測定網が広げられた。1979年には、UNECEにおいて長距離越境大気汚染条約(CLRAP: Convention on Long-range Transboundary Air Pollution)が採択され、1983年3月に発効した。CLRAPには、ヨーロッパ諸国を中心に米国、カナダ等49カ国が加盟し、加盟国に対して酸性雨等の越境大気汚染の防止対策を義務付けるとともに、酸性雨等の被害影響の状況の監視・評価、原因物質の排出削減対策、国際協力の実施、モニタリングの実施、情報交換の推進等を定めている。

ヨーロッパにおけるモニタリングネットワークを指揮するEMEPは、当初は酸性化と富栄養化関連物質の越境輸送の評価を主目的としていたが、その後、地表オゾン、最近ではPOPs、重金属、粒子状物質に評価対象を拡張している。EMEPは、i) 発生源データの収集、ii) 大気質と降水組成の測定、iii) 大気汚染物質の輸送と沈着のモデル化、の3要素を組み合わせることによって、大気汚染物質の排出量、濃度及び沈着量、越境フラックス量及び臨界負荷量とその閾値超過に関して、必要とされる評価と定期報告を行っている。EMEP傘下の主な組織とその役割は、① CCC (Chemical Coordinating Centre, Norwegian Institute for Air Research): 大気質と降水の化学組成のモニタリングについての調整と機関間精度管理、② CEIP (Center on Emission Inventories and Projections, Austrian Environment Agency): 酸性化関連大気汚染物質、重金属、エアロゾル、光化学オキシダントの排出量と予測の収集、③ CIAM (Centre for Integrated Assessment Modeling, International Institute for Applied Systems Analysis, Austria): 統合評価モデルセンター、④ MSC-E (Meteorological Synthesizing Centre-East, Russia): 重金属とPOPsのモデル開発、⑤ MSC-W (Meteorological Synthesizing Centre-West, Norwegian Meteorological Institute): 硫黄、窒素、光化学オキシダント、エアロゾルのモデルによる評価、である。2009年に採択された2010-2019年を対象としたモニタリング戦略には、3種類の異なった目的を担う測定局の設置が示されている。レベル1測定局は、酸性化・富栄養化物質、エアロゾル、光化学オキシダント等、従来の測定の長期継続を担い、レベル2の測定局は、大気汚染物質の長距離輸送を含む大気汚染評価のために必要な関連項目の理化学組成情報を提供する測定局と位置付けられ、レベル1の全測定項目のモニタリングに加えて、高時間分解能測定、半揮発性窒素化合物のガス・エアロゾル形態別情報、光化学オキシダントの前駆物質の化学種別測定、エアロゾルの物

理的光学的特性、エアロゾルの光学的厚さ、等の測定が求められている。また、レベル 3 は研究主体の活動を行う測定局とされ、地域の大气汚染とその対策に関連した、オゾンやエアロゾルの鉛直分布、水銀の形態別測定、有機炭素の化学形態別測定、等が期待されている。最新のデータ報告書（2011 年）によれば、EMEP の降水と大气濃度モニタリング地点数はそれぞれ 88 地点と 110 地点で、時間分解能は降水が日毎あるいは週毎、ガス・エアロゾルはオゾンが 1 時間、それ以外は 1 日である。

## (2) 北米における活動

北米では、カナダと米国との間で酸性雨による被害の問題が深刻化し、1980 年 6 月に米国で酸性降水物法が定められ、降水のモニタリング、生態影響調査等を内容とする全国酸性降水物調査計画（NAPAP : National Acid Precipitation Assessment Program）を 10 年計画で実施した。また、同年 8 月には、両国の政府間で越境大气汚染に関する合意覚書を交わした。さらに、両国は、酸性雨被害の拡大を防止するための大气保全の二国間協定を 1991 年 3 月に調印した。北米における酸性雨のモニタリングは、米国が米国国家大气降水物測定プログラム（NADP : National Atmospheric Deposition Program）、カナダがカナダ大气降水モニタリングネットワーク（CAPMoN : Canadian Air and Precipitation Monitoring Network）の下で実施している。

米国の NADP は、① NTN (National Trend Network, 1981~, 250 地点), ② AIRMoN (Atmospheric Integrated Research Monitoring Network, 1992~, 7 地点), ③ MDN (Mercury Deposition Network, 1996~, 100 地点), ④ AMNet (Atmospheric Mercury Network, 2009~, 21 地点), ⑤ AMoN (Ammonia Monitoring Network, 2010~, 50 地点)、を包括するプログラムであり、この中で湿性沈着は最も歴史の古い NTN でモニタリングが継続されている。現在、全国 250 地点において週単位で捕集された試料について、pH、EC、 $\text{SO}_4^{2-}$ 等の 8 イオン成分濃度が測定されている。測定は全て中央実験室で実施されている。また、大气中の酸性ガスや粒子については、AIRMoN において研究的なモニタリングが実施されている。

この他米国では、大气沈着に係るネットワークとして、清浄大气状況・トレンドネットワーク（CASTNET: Clean Air Status and Trends Network）が稼働している。CASTNET は、1991 年の米国大气浄化法の改正に基づく排出量削減計画による酸性物質沈着量の経時変化を評価するために設立された長期環境観測ネットワークであり、米国とカナダに 90 地点を擁し、米国国立公園局、連邦、州及び地方の関係機関の協力のもと、米国環境保護庁によって管理運営されている。硫黄と窒素及びオゾンの一般環境大气濃度モニタリングから、酸性汚染物質沈着量、オゾンの広域水平分布や経時変化が報告されている。CASTNET は長期の酸性物質乾性沈着フラックスを提供する米国で唯一のネットワークであり、200 以上の地点を有する NADP-NTN が提供する湿性沈着データと相補的に、酸性物質の総沈着量及び生態系の健康に関する長期変動を評価するために必要なデータを供給している。

一方、1983 年に活動を開始したカナダの CAPMoN においても、湿性沈着、乾性沈着（イ

ンファレンシャル法)、酸性沈着に関連するガス・粒子の大気濃度のモニタリングが継続して実施されている。2010年時点における地点数は33で、降水組成及びガス・粒子濃度が日単位で測定され、他に、降水中・大気中の水銀、オゾン、PM<sub>2.5</sub>等の測定が実施されている。

### 6.2.3 大気汚染半球輸送タスクフォースの活動

大気汚染半球輸送タスクフォース(TF/HTAP : Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution)は、北半球における大気汚染物質の大陸間輸送に関する十分な理解を発展させることを目的とし、国連欧州経済委員会(UNECE)の長距離越境大気汚染条約(CLR TAP)の執行機関の下で2004年に設立された。TF/HTAPの主な任務としては以下のものが挙げられる。

- i) 条約議定書の内容の再検討のため、半球汚染の十分な理解に必要な技術的作業を企画実行すること
  - ii) 条約議定書の再検討やEMEPの運営団体に技術報告を行うために、特定の物質に対する半球輸送の状況を評価するのに必要な技術的作業を企画実行すること
  - iii) CLR TAPの執行機関の他の職務と連携して年次作業計画の策定に貢献すること
- 会合の結果や評価報告書の作成過程等はウェブサイト上で常時公開されている(<http://www.htap.org/>)。TF/HTAPの参加者は、政府、民間を問わず、半球大気汚染問題に興味を持つ関係者が登録することによって参加でき、国際間の科学者及び政策決定者のコミュニティとしての役割も果たしている。

TF/HTAPは政策と関連のある半球大気汚染の問題提起及びそれに対する科学的裏づけに基づいた回答を行うために、定期的に評価報告書を作成している。2010年12月には、地球規模及び地域規模の大気モデル、排出インベントリ、将来予測、大気観測など様々な分野を専門とする研究者が協力して、オゾン、エアロゾルやその前駆物質、水銀、残留性有機汚染物質(POPs)を対象物質として含む包括的な報告書(HTAP 2010 Assessment Report)を出版した。本報告書では、先述のMICS-Asiaの参加研究者の数人も執筆を担うなど、EANETの活動及び東アジア地域における大気汚染研究に関する研究の知見がTF/HTAPの活動に貢献している。

HTAP 2010 Assessment Reportの出版後、CLR TAPの執行機関はTF/HTAPの使命を以下のように改訂した。

- i) 欧州の域内及び域外における可能な汚染物質抑制対策の評価
- ii) 地域・全球規模の大気汚染、健康、生態系、短期間気候変動への影響評価
- iii) CLR TAP内外の他のグループとの協力

その後、2011年には上記の使命に従って次期の作業計画を検討し、2012年～2016年の計画を策定した。計画は以下の6つのテーマで構成されている。

- i) 排出インベントリと将来予測

- ii) 発生源寄与解析とソース・レセプター解析
- iii) 観測値を用いたモデルの性能評価
- iv) 健康、生態系、気候変動の評価
- v) 気候変動が大気汚染に与える影響
- vi) データネットワークと解析ツールの拡張

これらの6つのテーマを統合して、政策決定のための科学的知見の提供、科学的理解の改善、半球汚染問題に対する共通認識を形成するための普及啓発を最終的な目標としている。

TF/HTAP の会合は年2~3回開催され、2013年3月にスイス・ジュネーブで開催された会合において、観測値を用いたモデルの性能評価、既存のデータを管理するための基盤についての議論が行われた。また、同年12月に米国・サンフランシスコで開催された会合において、2008~2010年を対象期間とする全球排出インベントリ、インベントリの将来シナリオ、モデルの性能評価、データネットワーク基盤についての議論が行われた。全球排出インベントリのアジア地域のデータについては、先述のMICS-Asiaにおける第3期活動で作成したインベントリが用いられている。

#### 6.2.4 世界気象機関全球大気監視計画の活動

国際連合の機関である世界気象機関(WMO: World Meteorological Organization)は、全球大気監視プログラム(GAW: Global Atmosphere Watch)において、全大気沈着(TAD: Total Atmospheric Deposition)や反応性ガス(RG: Reactive Gas)を含む6つの領域(他の4つはエアロゾル、温室効果ガス、全球オゾン、紫外線放射)に焦点を当てたモニタリングを実施し、都市の気象・環境に関するプロジェクトを支援するとともに、海洋環境保護、砂塵嵐等の警報に関わる専門家グループとも連携している。GAWは1960年代末から始まったバックグラウンド大気汚染モニタリングネットワーク(BAPMoN: Background Air Pollution Monitoring Network)と全球オゾン観測システム(GO3OS: Global Ozone Observation System)が1989年に発展的に統合されたものであり、現在、100を超える国の約700の測定局が登録されている。

GAW/TADはWMO加盟国の気象官署による観測のほか、EMEP、NADP、米国全球降水化学計画(GPCP: US Global Precipitation Chemistry Program)、CAPMoN及びEANETの地域規模の観測データ並びに生物地球化学的に重要な微量化学種の沈着に関する研究プログラム(DEBITS: Deposition of Biogeochemically Important Trace Species)等の大気化学研究プロジェクトの観測データの提供を受けている。しかし、測定点は地域的に大きな偏りがあり、全球を均等に覆うネットワーク構築への努力が続けられている。また、単に観測データを収集するだけでなく、データの精度保証及び科学に関連する機能を所掌するセンターやデータを集約・整理するデータセンターがあり、データの活用を推進している。さらに、観測データだけでなくメタデータの集約のための測定点情報システム(GAWSIS: GAW

Station Information System)が構築され、数値データの解釈に重要な科学的情報を提供している。

GAW の 6 つの領域にはそれぞれ専門研究者が参画する科学諮問グループ(SAG: Science Advisory Group)が設置され、マニュアル作成、データの評価・解析、戦略的計画の検討等を通じてネットワーク活動の科学的な価値を担保している。特に TAD/SAG では、我が国の越境大気汚染・酸性雨対策調査において世界でも貴重な日単位捕集でかつ精度の高いデータが取得されていることが高く評価されている。また、最近、全球的・地域的な現状を科学的に評価した報告書がまとめられ、学術論文として広く公表されたが(Vet, R., et. al., Atmospheric Environment, 2014)、その中では、我が国の越境大気汚染・酸性雨対策調査や EANET の観測データが活用され、酸性度、硫酸化合物、窒素化合物のみならず、海塩や土壌に由来する塩基性イオンや有機酸、リン化学種をも対象とした湿性沈着と乾性沈着の評価、観測値とモデルとの比較等が行われている。

2015 年から EANET と WMO の連携についての議論が行われた。2017 年の第 19 回政府間会合(IG19)では、EANET と WMO が効率的に連携していくため、EANET の測定局を WMO に貢献する測定局(Contributing Station)として位置付け、EANET の測定データを WMO の全球大気監視(GAW)計画において活用することなどを記載した、EANET と WMO とのデータ共有に関する合意文書の内容が概ね合意された。その後、修辭的な修正が行われた上で EANET 参加国に回覧され、2018 年 8 月に IG19 の議長及び WMO/GAW の代表者が合意文書に署名した。今後、データ共有方法に関する協議を行い、データ共有作業を進める予定である。

## 7 越境大気汚染・酸性雨対策に関する今後の課題

東アジア地域における経済発展は、酸性雨の原因となる大気汚染物質の排出量の増加を招き、我が国においては自国の大気汚染物質排出量が低下傾向にある時期において、その影響を非常に強く受けてきた。今般、東アジア地域における硫黄や窒素酸化物の排出量は頭打ちとなり、我が国の降水酸性度は欧米に比較して高い傾向にはあるものの、低下の兆候がみられている。一方で、東アジア大陸の大気汚染物質排出量は対策の進んだ我が国に比べれば依然として非常に多く、光化学オキシダントについては注意報発令地域の広域化等の一因として東アジア大陸からの影響が指摘されているほか、PM<sub>2.5</sub>についても国民の関心が高く、酸性雨やオゾンと同様に越境大気汚染の寄与が懸念されている。さらに、オゾンやエアロゾル等の大気汚染物質については、大陸間輸送による半球規模のバックグラウンド汚染も着目されるようになってきている。

このような東アジア地域からの越境汚染が、我が国の大気質並びに人の健康や生態系へどのような影響を与えているかを把握し、それらを防止することを念頭に、酸性物質、オゾン、PM<sub>2.5</sub>（エアロゾル）等を統合的に捉え、越境大気汚染全般について取り組んでいくことが重要である。また、生態影響については、酸性化・窒素飽和のリスクが高い要監視地域において、安定同位体比分析等の新たな手法も活用しながらモニタリングを適切に実施していくこと、また、オゾンによる植物影響については、AOT40等の指標値が高い森林・山岳地域を要監視地域として、植物被害状況の把握等を含むモニタリングを適切に実施していくことが必要である。

一方、東アジア地域では、酸性雨問題に関する地域協力体制の一つとして、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）による取組が15年以上に渡って進められており、参加国共通の手法による質の高いモニタリングデータが蓄積され、この地域における酸性雨に関する共通理解の醸成に貢献している。また、同地域においてはPM<sub>2.5</sub>をはじめとする大気汚染物質による人の健康等への影響に対して関心が非常に高まっており、EANETにおいてもオゾンやPM<sub>2.5</sub>のモニタリングの強化について議論が行われている。東アジア地域では今後も経済発展が予測され、それに伴い大気汚染が深刻化するおそれを各国が共通の課題として抱えており、また、我が国は地理的な位置関係と気象条件から越境大気汚染の影響を受けやすいことから、地域協力により東アジアにおける大気汚染対策が推進されることを支援していく必要がある。

このような状況を踏まえ、今後の越境大気汚染・酸性雨対策を進めるに当たり、以下の取組を推進していくことが特に重要である。

## 7.1 国内における取組の推進

### 7.1.1 長期モニタリングの実施

#### (1) モニタリングの継続的な実施

酸性雨による影響は長期継続的なモニタリング結果によらなければ把握しにくく、また、湖沼や土壌の緩衝能力が低い場合には一定量以上の酸性物質の負荷の蓄積により急激に酸性化による影響が発現する可能性があることから、近年 pH の低い地点については特に注視して、今後も長期モニタリングを着実に実施していく必要がある。

また、PM<sub>2.5</sub>や対流圏オゾン等による健康被害についての国民の関心が高く、モニタリングに比重をおくべき項目も変化していることから、このことにも対応しつつ総合的、長期継続的なモニタリングを実施していく必要がある。このため、例えば、現在では十分に濃度が低く今後も高まる見込みがない物質や影響が発生する可能性が十分に低いと推測される地点については、モニタリングの意義、モニタリングサイトの地理的特性、国際モニタリングネットワークにおける活動との調和等を踏まえ、随時モニタリングの内容について見直しを図っていくことも必要である。

さらに、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリングは地方公共団体の協力を得て実施されているが、地方公共団体の環境・衛生・公害関連試験研究機関では、職員の配置転換などによりモニタリング等に関する経験や技術の蓄積や伝承が困難になっている。質の高いモニタリングを継続していくため、研修等により測定現場の技術水準を維持する努力やモニタリングに携わっている地方公共団体と環境省の一層緊密な連携、協力が重要である。

#### (2) 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画の改訂

東アジア地域で排出された大気汚染物質が我が国へ越境輸送されることにより、国内大気汚染が深刻化することへの国民の関心の高まり等に対応するため、越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング計画（平成 26 年（2014 年）3 月改訂）を次のとおり改訂し、これらを着実に実施していくことが必要である。

##### ①測定所の集約化

今後も引き続き中長期の視点で確実なモニタリングを実施する必要がある。しかしながら、限られた予算において今後も機器更新を含む測定所の維持管理を適切に行いつつ、国民の関心が高い大気汚染物質について、高品質のモニタリングデータを取得していくため、これまでのモニタリング結果も踏まえて測定所を集約化することとし、2018年度末をもって竜飛岬、越前岬、蟠竜湖及び大分久住の大気モニタリング、大島池及び蟠竜湖の陸水モニタリングを終了する。なお、EANET局である竜飛岬と蟠竜湖の2大気モニタリング局の終了に伴い、新潟巻及び対馬を新たなEANET局として指定する。また、蟠竜湖の陸水モニ

タリング地点の終了に伴い、双子池を新たなEANET地点として指定する。

## ②PM<sub>2.5</sub>モニタリングの強化

PM<sub>2.5</sub>については、2014年度に東京を除く EANET 局に環境省が定める標準法と等価性が保証されている機器が整備され、2015年度から越境輸送の影響を受けやすい遠隔地点を含む多地点でのモニタリングデータが取得されている。今後も、機器故障等への迅速な対応に努めるなどして、国民の関心が高いPM<sub>2.5</sub>について、完全度の高いモニタリングデータの提供を図る必要がある。

## ③酸性化の要監視地域における同位体モニタリングの実施

土壌や地質の酸緩衝能が小さく酸性沈着量の多い酸性化のリスクが高い要監視地域では、越境大気汚染等の大気沈着による土壌・陸水への影響を解明するため、2014年度から安定同位体比分析等による重点的なモニタリングが実施されてきた。同位体比分析手法を導入することにより従来のイオン分析だけでは明確には分からなかった越境大気汚染の我が国の森林生態系への流入や、それらの生態系内での挙動・動態に関し、より確度の高い議論が可能となった。2019年度からは、太平洋側と日本海側の2つの森林集水域に着目し、今後変動が予測される越境大気汚染に由来する物質の流入やその生態系内での挙動・動態を監視する。

## 7.1.2 調査研究の推進

### (1) 大気シミュレーションモデルの精緻化及び排出インベントリの高精度化

モニタリングは限られた数の地点で行わざるを得ないため、酸性沈着やオゾン等による越境大気汚染の状況を総合的かつ正確に解析評価するためには、シミュレーションモデルの開発、精緻化が不可欠であり、また、シミュレーションモデルの精緻化には、高品質のモニタリングデータによる検証とともに、対象地域の排出インベントリの高精度化が不可欠である。シミュレーションモデルを活用することにより、時間的、空間的な沈着量分布の把握に加え、大気汚染状況の変動要因の抽出や定量的なソース・レセプター関係の解明を含めた総合的な解析評価、汚染物質の排出から移送、沈着を経て生態影響に至る一連のプロセスに対する理解を深めることが可能になると期待される。さらに、モニタリングデータの解析とシミュレーションモデルを用いた将来予測結果を基に、越境大気汚染対策の立案を行うことも期待される。

東アジア地域では、酸性沈着やPM<sub>2.5</sub>の生成に大きく寄与する硫黄や窒素の酸化物あるいはアンモニアの排出量の近年の変動が、地域の大気環境にどのような影響を与えるかについて調査研究を進める必要がある。また、特に国民の関心の高いPM<sub>2.5</sub>のシミュレーションモデルについては、発生源が多岐に渡り、生成過程が極めて複雑であることもあって、

現時点では、必ずしも十分な精度を有するシミュレーションモデルの開発が行われているとは言えない状況であり、さらに調査研究を進める必要がある。

## (2) 酸性化の要監視地域における生態影響の実態解明

土壌・植生及び地質の酸感受性が高く、かつ、人為由来の酸沈着が多い地域では、陸域生態系の酸性化のリスクが高い可能性があり、そのような地域（要監視地域）を優先して生態影響メカニズムの解明を進めていくことが求められる。要監視地域では安定同位体比分析手法を活用した重点的なモニタリングを実施してきたところであるが、今後も越境大気汚染による影響を含めた総合的な解析を継続していく必要がある。

安定同位体比の分析は、大気沈着と陸水の酸性化・窒素飽和との関連性の解明に資することから、このような手法を活用した調査研究を推進することが望まれる。例えば、硫黄の安定同位体比は、越境大気汚染や火山ガス等の影響に関する情報を含み、また、土壌・植生系の循環等で分別を受けるため、大気由来の硫黄の生態系内での滞留・流出時間等を発生源情報と共に評価することが可能である。また、ストロンチウムの安定同位体比は黄砂の指標であるとともに、酸緩衝能に関わるカルシウム等の塩基成分の生態系内での挙動・動態の解明にも有効である。さらに、硝酸イオン中の窒素や酸素の安定同位体比については、大気由来の窒素酸化物に起因する硝酸イオンと生態系内で生じるものとは大きく異なることから、大気沈着の流域への影響を評価することが可能となる。また、これらの手法は、土壌やPMなどの既存モニタリング試料への活用の可能性もあり、例えば、土壌中に蓄積しやすい鉛などの重金属の安定同位体比は長期的な大気沈着の履歴を記録している可能性もあり、今後の活用が期待される。

## (3) オゾン及び粒子状物質による植物影響評価に係る取組の推進

2011年度より、北海道、新潟県及び福岡県の山岳地域において、オゾンによる植物影響の評価のためのパイロットモニタリング及び代表樹種の葉の展開等に関する情報収集を実施している。特に新潟県八海山や福岡県英彦山<sup>ひこさん</sup>では、欧州においてオゾンによる植物影響の評価に用いられる指標であるAOT40の値が高く、樹木の衰退も報告されている。このため、引き続き調査を継続して山岳地域におけるオゾンの特徴を明らかにするとともに、樹木の葉の可視障害、植物活性や成長に関わる項目を順次検討し、オゾンによる影響評価の手法の確立に努めていくことが必要である。また、森林・山岳地域におけるモニタリングデータは、大気化学輸送モデルの検証等にも重要であることから、観測とモデルの連携により、広域評価に役立てられることも期待できる。

さらに、粒子状物質との関係については、PM<sub>2.5</sub>等の大気汚染物質の越境大気汚染に対する関心は高まっているものの、アジアの森林を構成している樹木に対する粒子状物質の影響等に関する研究は始まったばかりである。特にアジアにおいてはオゾンの影響も受けている可能性が高いことから、粒子状物質とオゾンが森林樹木に及ぼす複合影響を解明する

取組が必要である。

#### (4) 気候変動の緩和を考慮した大気汚染対策のための研究の推進

粒子状物質を構成するブラックカーボンやオゾン等の短期寿命気候汚染物質（SLCPs：Short-Lived Climate Pollutants）は、それ自身が大気汚染物質であるだけでなく、気候を温暖化させる特性を強く備えているために、その排出量の抑制が中期的な気候変動の抑制にも貢献し得ることが国際的に認知されてきており、SLCPsの削減を目的とする国際的なイニシアティブも設立されている。このような大気汚染と気候変動を併せて緩和するアプローチにも着目して、大気汚染対策が国際的に進められることも期待される。このため、SLCPs削減のための有効な対策の提案とその効果の定量的評価、SLCPsの削減に伴う気候変動や大気汚染の抑制効果等を明らかにするための研究を推進する。

#### (5) 二酸化窒素濃度の測定法の適正化に関する検討

二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）は酸性雨の原因物質であると共にPM<sub>2.5</sub>や光化学オキシダントの前駆物質でもあり、都市地点のみならず、局地的オゾン生成と越境大気汚染の状況の把握のため、田園地点や遠隔地点における観測も重要である。しかしながら、現在、一般に使用され酸性雨測定所にも配備されているモリブデン変換器付き化学発光法を用いた窒素酸化物自動測定機は、硝酸、亜硝酸、ペルオキシアセチルナイトレート等の有機窒素化合物にも感度を有するため、NO<sub>2</sub>に対してこれらの物質の濃度が高い田園地点や遠隔地点では、正確な濃度を測定することはできず、得られるNO<sub>2</sub>濃度は過大評価となっている。

窒素の乾性沈着やポテンシャルオゾンの評価には、NO<sub>2</sub>のより正確な測定が必要となる。このような課題に対応できる自動測定器も市販されているが、まだ一般にはほとんど普及していない。このため、国際的な導入状況も確認し、必要に応じて既存の自動測定機との並行試験によるデータ特性を確認するための調査を行いながらその有用性を評価し、将来的には田園地点や遠隔地点においてもNO<sub>2</sub>が精度よく測定できる体制の整備を検討していくことが必要である。

## 7.2 国際的な取組の推進

### ①EANETにおける現行のモニタリング活動の強化

EANETにおけるモニタリング項目としては、窒素酸化物、二酸化硫黄等の他、酸性雨の関連物質という位置付けでオゾンや粒子状物質（PM<sub>10</sub>/PM<sub>2.5</sub>）が含まれている。オゾンや粒子状物質は、広域性、越境性をもって東アジア地域に影響を及ぼし、我が国を含む東アジアの複数の国においても関心が高い。そのため、実態把握の促進、モデリング研究等での活用とその成果のEANETへの還元等の観点から、2017年現在、オゾンは25地点、PM<sub>10</sub>は25地点、PM<sub>2.5</sub>は23地点でモニタリングを行っており、モニタリング地点数が増

えつつある。

新たにモニタリングを開始することは経済面等で大きな負担を伴うが、参加国の中には EANET 以外の枠組みにおける国内活動として既にモニタリングを行っている場合もあり、外部資金によるモニタリング機器を供与する方法も可能である。モニタリングサイトが適切に設置、管理、運営されていることを確認しつつ、このような既存のモニタリングを新たに EANET の活動として位置付けていくことは、参加国における追加的な負担を軽減する一つの方策である。EANET のネットワークセンターが参加国に対してこれまでも必要な支援を行ってきており、東アジア全体の汚染状況を把握するために、今後も EANET 参加国への働きかけによりモニタリングを充実させていく必要がある。

## ②既存イニシアティブとの連携等

アジア地域では大気汚染問題が各国の国民の健康に影響を及ぼしかねない共通の課題となっている。EANET の活動に加え、深刻な大気汚染問題を克服してきた我が国の豊富な経験と先進的な技術を活用して、アジア各国が清浄な大気を共有できるよう、地域協力の強化に取り組むことが必要である。

我が国はこれまで日中韓三ヵ国環境大臣会合(TEMM)に基づく日中韓による取り組み、中国や韓国との二国間連携の強化を通じて、オゾンや粒子状物質対策の国際協力を進めてきた。これらに加え、この分野における活動に顕著な実績のある既存の国際的な組織、ネットワーク、プログラム等との連携により、各種の活動を検討、展開していくことも一つの方策として考えられる。例えば、大気環境に関する政府・研究者主体のネットワークを形成し、科学的基盤の強化及び地域枠組みの運営等に貢献している国連環境計画 (UNEP) や、アジア地域における 200 以上の大気環境に関する国際機関、援助機関、国、都市、企業、研究機関等の多様な主体と幅広い協力関係を形成して、国・都市の大気汚染対策や能力構築等に貢献しているクリーン・エア・アジア (CAA) 等との連携が考えられる。

これらの大気汚染に関する既存の国際的な組織等との連携により、我が国への越境大気汚染の緩和に繋がる国際協力の推進を進めていくことも必要である。

## ③科学を基盤とした広域大気汚染対策の推進

1979 年に締結された長距離越境大気汚染条約 (CLRTAP) に基づく活動は、一定の科学的知見の共有のもとで広域大気汚染問題への取組が進められてきた。また、気候変動の分野では、気候変動に関する政府間パネル (IPCC) により科学的知見が提供され、国際交渉のベースとして活用されている。

アジアにおける広域(越境)大気汚染問題を国際的に解決していくに当たっても、まず、アジアの国々の科学者がこの問題に関する科学的な事実に対する認識を共有し、それに基づく適切な解決策を政策決定者等に提供していくことが、アジア各国における具体的な対策の促進に対して有効に機能することが期待される。

一例を挙げると、酸性雨とその影響に関する科学者会合である第 10 回酸性雨国際会議が、2020 年に新潟市で開催される。従来の狭義の酸性雨の枠に捉われず、PM<sub>2.5</sub> やオゾン等の今日的な大気汚染とその影響を含む会合として開催される予定であることから、最新の科学的知見をアジア諸国とも共有するとともに、我が国が主導した EANET の 20 年間の成果を広くアピールすることが望まれる。また、これにより、今後、EANET の発展の方向性について議論が深まる契機となることも期待される。