

〈研究発表〉

光化学オキシダント汚染への東アジアからの越境輸送とローカル排出源の影響の解析

倉田 学児¹⁾, 柳 千絵²⁾, 松岡 譲³⁾

京都大学大学院工学研究科 (〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C, E-mail: gkurata@atthehost.env.kyoto-u.ac.jp)¹⁾

京都大学大学院工学研究科 (〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C, E-mail: matsuoka@env.kyoto-u.ac.jp)²⁾

京都大学大学院工学研究科 (〒615-8540 京都市西京区京都大学桂 C, E-mail: chie-yanagi@s4.dion.ne.jp)³⁾

概要

日本国内の都市域での光化学オキシダント汚染は、1980年代前半まで改善傾向が続いていたが、80年代後半以降、わずかながら悪化の傾向が続いている。さらにここ数年は、西日本地域で春から初夏にかけて光化学スモッグ注意報レベルの高濃度事象の発生回数が急増している。この原因のひとつとして、東アジア諸国からの大気汚染物質の排出量の増加の影響が考えられている。本研究では、大気汚染シミュレーションによって、東アジア諸国からの越境輸送と国内のローカルな排出源からの寄与を推計し、オキシダント濃度の制御のための方策を検討した。

キーワード: 光化学オキシダント、大気汚染、シミュレーション、窒素酸化物、VOC

1. はじめに

東アジア地域の急速な経済成長に伴い、大気中に排出される汚染物質の量が飛躍的に増加している。特に東アジア地域の光化学オキシダント濃度の近年の増加は顕著であり、日本の都市部における光化学スモッグ注意報発令回数の増加や農業生産・自然生態系への影響も懸念されている。

しかし、日本の都市部における光化学オキシダント濃度の上昇に関しては、その原因が必ずしも越境輸送だけではなく、都市部での光化学オキシダント生成を促進する他の原因が複合しているとの指摘がなされている¹⁾。その一つとしては、対流圏オゾンの前駆体である窒素酸化物(NO_x)と非メタン炭化水素(NMHC)の濃度比が変化してきている事が挙げられている。自動車等の移動排出源対策によって NO_x の排出削減が進んだのに対してNMHCは移動排出源以外の寄与も大きく、削減が遅れたために NMHC/NO_x 比が大きくなったことで、オゾンの生成が促進されたとの指摘である。また、ヒートアイランド現象によりオキシダントの光化学生成に係わる気温と日射量が増加していることが原因とする説もある。

本研究では、米国 EPA が開発・公開している3次元の大気化学輸送モデル CMAQ²⁾を用いて、東アジア地域の排出源を含む広領域と、日本の都市大気汚染を解像できる詳細領域の二つの領域をネスティング計算することで、中国や韓国などからの長距離輸送の影響が、都市汚染にどのように影響しているのかを調べた。

2段階のネスティングを利用することで、東アジ

アからの長距離輸送と国内の都市起源汚染の両方の影響を捉え、都市汚染の中での長距離輸送の影響を定量的に評価することを可能とした。

2. 方法

計算は、2004年1月～12月の12ヶ月間を対象とした。対象領域は、Fig.1に示した領域で、広領域は、格子長が $54\text{km} \times 54\text{km}$ で 88×88 メッシュで東南アジアの大部分を含む東アジア地域をカバーした。詳細領域は、格子長が $18\text{km} \times 18\text{km}$ で 58×58 メッシュで関東平野、濃尾平野、大阪平野の三大排出源地域を含む日本中央部をカバーした。鉛直方向は23層で地形に沿った σ 座標系で、地表面近くでは格子間隔が $60 \sim 100\text{m}$ と細かく、上空約 15km の上端近くでは、約 2000m となる不均一格子とした。

モデルの構成は、Fig.2の通りである。気象場は、

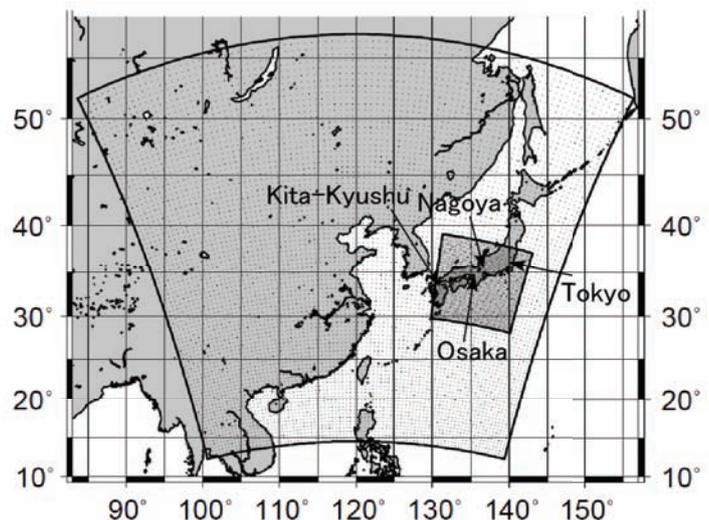


Fig.1: Model Calculation Domain

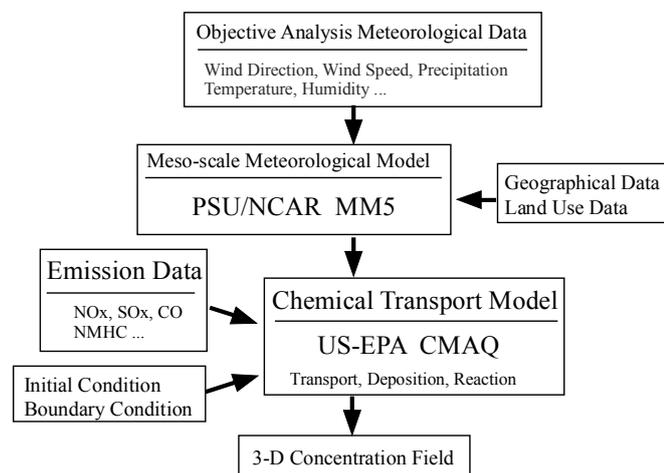


Fig.2: Outline of Simulation System

NCAR のメソスケール気象モデル MM5(version3.7)³⁾を用いて計算した。初期条件および境界条件には、気象庁の全球予報データ (JMA-GPV/GSM)を利用した。

化学輸送モデルには、EPA の CMAQ(ver4.4)を利用した。気相の化学反応系には、SAPRC-99 を用いた。SAPRC-99 は、炭化水素・NO_x・SO_x などの主要な気相の汚染物質 72 種と 214 の化学反応を含んでいる。

汚染物質の排出源データには、D. Streetsらの 2000 年を対象とした 1° × 1° の東アジアのエミッションインベントリー⁴⁾を用いた。広領域については、モデル格子である 54km × 54km に合わせて空間内挿した。日本域については、元データとしては同じ 1° × 1° のデータを利用したが、空間分布をモデルの解像度に合わせるために、工業統計および交通量統計データを用いてモデル解像度である 18km × 18km に再分配した。大部分の化学種については、工業統計により再分配したが、CO の 7 割、NO_x の 5 割については、交通量統計に従って分配した。SO₂ については、三宅島および桜島のメッシュに一致するように調整した上で、三宅島からの排出量は 2004 年時点の推定排出量で調整した。なお、今回の計算では、すべての排出量について年間平均値を利用した。東南アジア域のバイオマス燃焼起源の排出量は、森林火災が活発な 3 月の値を用いたために、他の期間については過大評価になっている事が懸念される。また、森林火災からの排出については 2001 年の推計値を用いたため、2004 年の排出量との相違がある可能性がある。

また、広領域の境界条件には、緯度毎に想定される最小濃度を一定値として与えた。そのため、東アジア域

外部からの長距離輸送は考慮できていない。

計算シナリオとして Table 1 に示したように、2つのケースを計算した。Case-1 は、すべての排出源を考慮したもので、標準ケースとして、観測データ等との比較には、Case-1 の結果を利用した。Case-2 は、日本以外の東アジアのすべての排出源をゼロに設定したものである。日本国内の排出源は、Case-1 と同様に与えている。Case-1 と Case-2 の差が東アジア域からの越境輸送による影響と考える事ができる。ただし、これには大陸付近で生成したオゾンが越境輸送してくる場合と、前駆体としての NO_x, HMHC の越境輸送によって、日本国内でのオゾンの生成量に変化する場合の両方が含まれることに留意が必要である。

3. 結果

Fig.3 に、広領域と詳細領域での 1 月から6月を平均した地表面付近のオゾン濃度に対する日本以外の東アジアの排出源からの寄与を示した。Fig. 3(a) は広領域での寄与である。排出源の近傍では寄与が高くなっているが、北京・上海・ソウル・釜山などの NO の排出量が大きい都市の風下では、オゾン濃度を低減する影響も見られる。Fig. 3(b) の日本近傍の詳細領域に注目すると、日本海側や九州で寄与が高く、南東に向かうにつれて寄与が低下しているが、それでも 3~5ppb 程度の平均的な寄与があることが分かる。また、東京や大阪などの巨大都市付近では、NO の直接的な排出によって、オゾンの分解が進むなど、オゾン自体の寿命が短くなるために、大陸起源の寄与は 1.5~2ppb と周辺に比べて小さくなっている。

次に、Case-1 と Case-2 の違いの時系列的な特徴を調べる。Fig.4 は一年間の日最大オゾン濃度について、東京・大阪・北九州の都市部のそれぞれの計算結果である。差を見やすくするために、グラフの上部に Case1-Case2 の差だけを取り出したグラフを示している。(a)(b)(c)はそれぞれ、東京、大阪、北九州の中心部におけるグラフである。

各都市ともに、3月~7月の間に東アジアの排出源からの寄与が大きく、東京では、5~10ppb 程度の寄与があることが分かる。大阪の場合には、東京よりも寄与が大きくなり、最大で 20ppb 程度の寄与が見られる。さらに北九州の場合には、ピーク時には 30ppb 程度が越境輸送の寄与になっている。また、北九州の場合には、前述の

Table 1: Calculation Case

Case name	Emission (East Asia, except Japan)	Emission (Japan)
Case-1	ON	ON
Case-2	OFF	ON

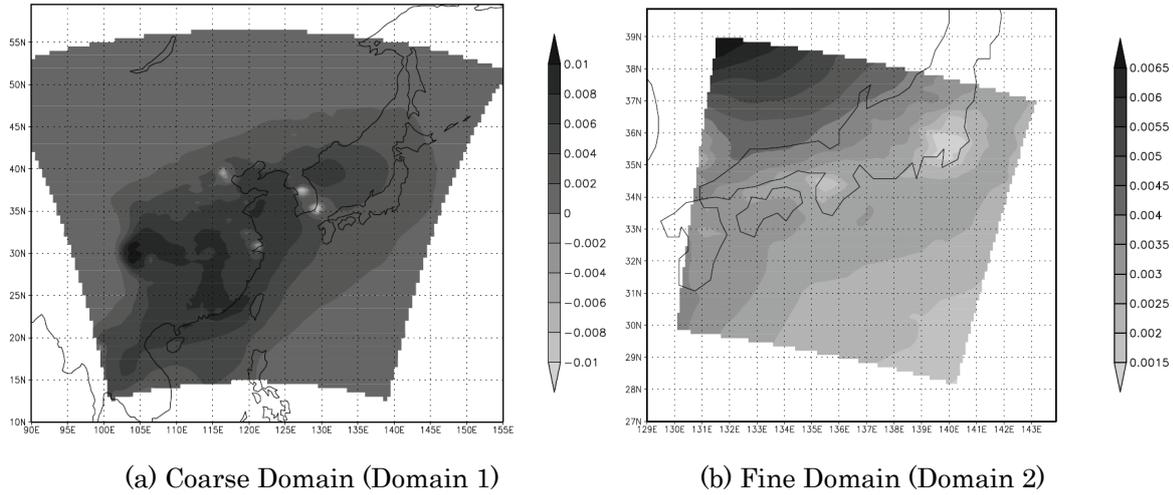


Fig.3: Average of calculated surface ozone concentration (Jan-Jun, 2004) [ppm]

2都市と異なり、9月にも大きな寄与が見られる。これは、北九州が大陸の排出源に近い事が原因と考えられる。光化学オキシダントの環境基準は一時間値が 60ppb であるため、環境基準の 50%程度が越境輸送によってもたらされ、さらにバックグラウンド濃度も春から夏にかけて 40~50ppb と高くなるために、ローカルな排出源からの

寄与を考慮せずとも環境基準を超える濃度となっている。

Fig.5(a)(b)は、それぞれ、日本詳細領域での東アジア諸国からの NO_x と NMHC を代表してアルカン類の濃度に対する寄与の年平均を示している。これらは、光化学オキシダントの前駆体である。NO_x に関しては、韓

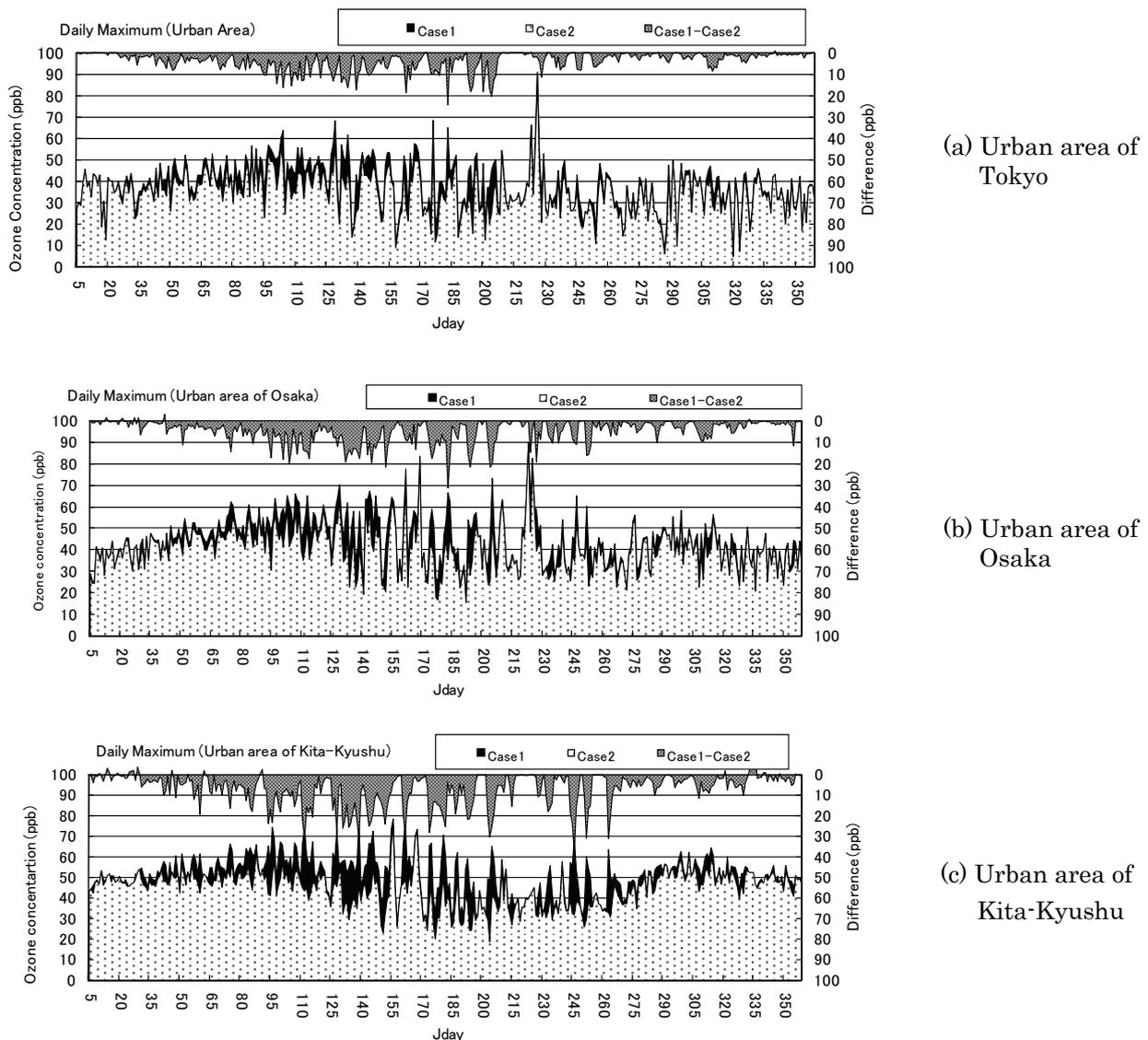


Fig.4: Contribution of long-range transport from East Asia for daily maximum of ozone concentration

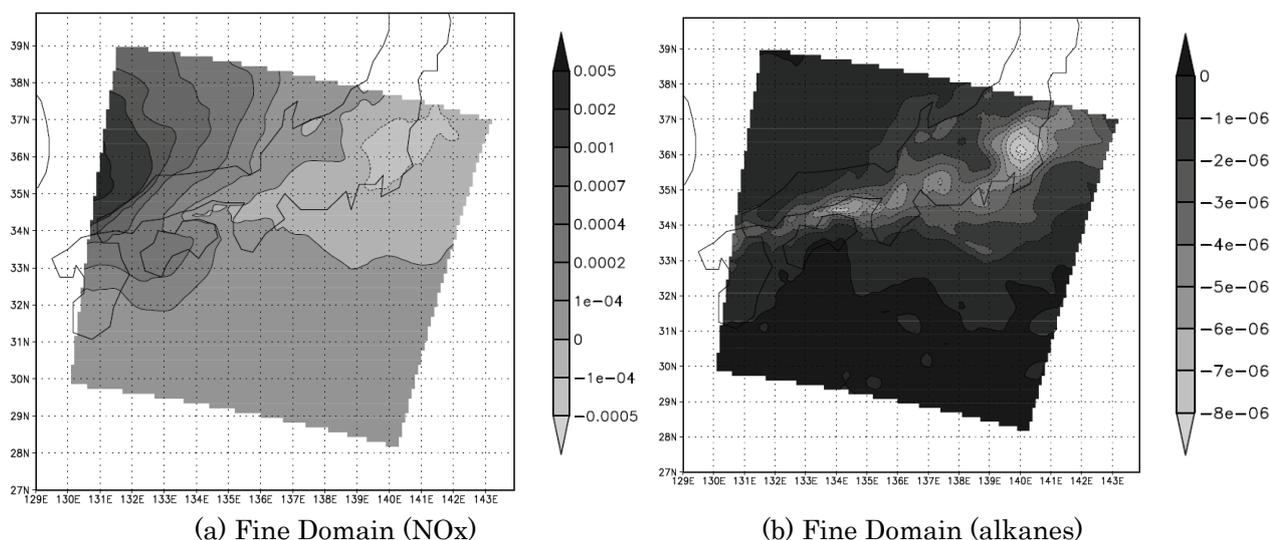


Fig.5: Difference (Case-1 – Case-2) of model concentration of ozone at 100m above the surface (Annual average on Daytime) [ppm]

国からの排出が西日本地域には比較的大きな影響を及ぼしている事がわかる。

Fig.5(b)のアルカン類の場合には、越境輸送の影響は極めて小さい。逆に、越境輸送によってオゾン濃度が上昇したことによって、炭化水素の分解反応が促進されるために、東アジア諸国の排出源を入れた場合の方が、アルカン類の濃度が減少する結果となった。

Fig.5の結果より、少なくとも光化学オキシダントの前駆体物質が長距離輸送によって運ばれてきて、日本の都市域で光化学オキシダントを生成しているという事はなく、東アジア諸国からの寄与の大部分は、大陸の発生源近くで光化学反応により生成したオゾンの越境輸送である事が分かった。

4. まとめ

本研究では、東アジア地域の大部分を含む広領域モデルと都市排出源が解像できる詳細領域モデルをネスティングした化学輸送モデルを用いて、日本以外の東アジアの排出源を入れた場合と入れない場合の両方の計算によって、大陸起源の汚染物質の長距離輸送によって、日本上空のオゾン濃度がどの程度の寄与を受けているのかを、2004年の1年間のモデル計算によって、季節変化を含めて調べた。

その結果、日本の都市域での光化学オキシダント濃度に対する越境輸送の寄与は、西日本ほど大きく、また3月～7月の影響が大きい事が分かった。北九州の都市域では、最大で30ppb程度の寄与が見られ、これは環境基準の50%に達するものであり、影響は非常に大きいと考えられる。

今後さらにNO_xの排出量が倍増するという予測もあり、その場合には、大陸からの寄与もさらに増加する可能性がある。生態系へのオゾンの影響は、環境基準程度の濃度でも長期的な影響があるという研究もあり、将来的に影響の推移を予測することが重要である。

今後は、そのような将来シナリオをベースとして、大陸起源の長距離輸送の影響を定量的に予測・評価する必要がある。

謝辞

この研究の一部は、環境省の地球環境研究推進費(BC-088)の支援により実施された。

参考文献

- 1) 東京都光化学オキシダント対策検討会(2005)、光化学オキシダント対策検討会報告、78page
- 2) U.S. Environmental Protection Agency, (1999), Science Algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) Modeling System, EPA/600/R-99/030
- 3) Georg A. Grell, Jimy Dudhia, David R. Stauffer, (1995), A description of the Fifth-generation Penn State/NCAR Mesoscale Model(MM5), NCAR TECHNICAL NOTE
- 4) D. Streets. et al., (2003), An inventory of gaseous and primary aerosol emission in Asia in the year 2000. Journal of Geophysical Research 108(D21), 8809, doi:10.1029/2002JD003093