## 研究目的と実施内容

## [研究目的]

### 研究の必要性、緊急性

東アジア地域は大気環境の面で、今や世界で最も注目を浴びている地域である。NO $\times$ やSO $_2$ の放出量は、ヨーロッパや北米などの先進地域では20世紀後半以降横ばい又は減少傾向なのに対して、アジア地域では大幅な伸びを示している。中でも中国は巨大な人口を抱え、急速に工業化を進めているため、最も重要な大気汚染物質発生源として注目されてきた。

中国の中南部四川盆地から杭州湾にかけての領域は広大な平野とそこを流れる長江を有し、両端には成都、重慶と上海、杭州、中間にも武漢などの大都市を抱えて、人口も多く、排出された大気汚染物質のやりとりにより、自然環境や農作物、文化財・遺跡を含む建造物、さらには人間の健康に対して多大の影響が加えられているものと考えられる。成都・重慶と上海・杭州の間の距離は1500kmにおよび、そのスケールは大陸規模である。中国では現在もエネルギーの 70%近くを石炭に頼っており、硫黄酸化物系の大気汚染が深刻であるが、経済発展とともに窒素酸化物を主因とする光化学大気汚染の深刻化も懸念されており、両者を含む大気汚染現象の解明とその将来予測に基づく大陸規模の広域大気汚染の管理・制御は緊急に着手すべき問題である。

#### 環境研究における位置づけ

一方、近年の中国の工業化にともなう化石燃料、特に石炭利用による大気汚染の進行は中国国内だけでなく、日本を含む周辺の国々やさらには地球規模の環境にまで影響を与えるものと考えられるようになった。しかし実際にこのような大気汚染による影響を最も受けているのは現地に暮らす人々である。このような状況を少しでも緩和し、対策技術を進めることによってその地域の環境が改善されれば、日本に飛来する酸性物質も減ることが期待できる。このような観点から我々は長年にわたって中国の研究者と協力関係を築いてきた。

国境を越えるような大規模な大気環境問題に対する対策を立案するためには、現状の 把握はきわめて重要であり、かつその状況把握は汚染物質を受け取る地域(レセプター 地域)だけでなく、発生源地域(ソース地域)においても行われる必要がある。しかし、 従来中国では、自国から放出される大気汚染物質などはそのほとんどが自国に降下・沈 着するため、周辺諸国に対して大きな影響は与えていないはずであるとの立場から、国 際共同観測による航空機観測などにはきわめて消極的であった。最近になって、日本の 環境省が主導する東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)や韓国環境 省が主導する北東アジアにおける長距離越境大気汚染に関するワーキンググループ(L TP)の活動により、研究者と行政担当者が一体となって大気環境問題に国際的な協力 の下、取り組みを進めてきたこともあって、朱鎔基前中国首相は「砂塵や酸性雨などが 国境を越える問題である」との認識を示し、協力と交流が重要であると述べた。このよ うな状況の進展から、中国における国際共同研究としての航空機観測が初めて可能とな った。

本研究では、現在の中国で問題となっている硫黄酸化物系の大気汚染と、今後益々重要となってくるものと予想される窒素酸化物・光化学大気汚染系の大気汚染が混在する広域の大気汚染を観測、モデルの分野から研究し、中国をフィールドとした共同研究から、今後インドや東南アジアにおいても問題化すると予想される大陸規模の広域大気汚染の現象を解明し、その管理・制御に資することを目的とした。

### [実施内容]

### 研究計画

本特別研究では四川盆地ー杭州湾地域間の大気汚染の実態を把握し、大陸規模の地域モデルを用いて広域大気汚染の実態を解明すること、モデルに組み込まれる発生源インベントリーを詳細に作成して、さらにこれの社会経済モデルによる将来予測を行うこと、地域モデルにより様々な発生源の変化に基づく広域大気汚染の将来像を描き、大陸規模の広域大気汚染に対する管理・制御に資することを目標とした。このため、本研究は当初、以下の3つのサブテーマ、(1)四川盆地ー杭州湾地域間の大気汚染物質の輸送に関する野外観測(2)大陸規模のモデルによる広域大気汚染の解明(3)社会経済モデルを基にした発生源インベントリーとその将来予測、によって構成した。しかし、中国の経済発展とともに増加するものと考えられる窒素酸化物を主因とする光化学大気汚染(特に光化学オゾン)の増加が、地域規模大気汚染としてのみではなく、温室効果ガスとしても非常に重要な役割を果たすことに鑑み、日本に到達する大陸由来のオゾンを把握するため、(4)高山域における自由対流圏オゾンの観測、を行った。これは中国沿岸域におけるNO×の大規模な発生は、中国国内ではオゾンの増加に結びつかず(この点も中国における航空機観測によって極めて明確になった)、長距離輸送によって初めて問題となることが明らかになったからでもある。

## 研究体制ならびに研究方法の概略

(1)四川盆地ー杭州湾地域間の大気汚染物質の輸送に関する野外観測

畠山史郎、酒巻史郎、谷本浩志、高見昭憲、杉本伸夫、松井一郎、清水厚、村野 健太郎、西川雅高

広大な中国の大規模汚染源をカバーする観測と、大陸から東シナ海、さらに日本への輸送の出口となる沿岸地域における観測を行った。ライダーによる連続観測を安徽省合肥において行い、エアロゾル分布の特徴を明らかにした。また、航空機観測は平成14年春(渤海湾周辺)、平成14年~15年冬(上海・杭州湾周辺東シナ海沿岸部)、平成15年夏および平成16年初夏(上海~武漢~重慶・

成都の内陸大都市周辺)の4回行われた。

(2) 大陸規模のモデルによる広域大気汚染の解明 菅田誠治

シミュレーションは気象モデルRAMSと大気質モデルCMAQの両者を用いた。物質の発生量データには、Streetsらの成果を標準として用いたが、SO $_2$ とNO $_x$ に関しては本研究の成果である甲斐沼らの結果を併用して比較した。

(3) 社会経済モデルを基にした発生源インベントリーとその将来予測 甲斐沼美紀子、高橋 潔 アジア地域を対象としたSO₂排出強度マップを作成し、大気モデルへの入力を 行った。また発生源の解析と発生量の将来予測を行い、中国の将来シナリオに基 づいて、SO₂、NO×排出量を2030年まで予測した。

(4) 高山域における自由対流圏オゾンの観測

畠山史郎、高見昭憲、北 和之(客員研究員、茨城大学理学部)

奥日光前白根山頂上直下の鞍部において、7~10月に、オゾン濃度を測定した。前白根山頂上直下の鞍部平坦地に環境省および林野庁の許可を受けて、観測用サイトを設定し(8m×6m、金網で囲う)、その中にオゾン計、自動気象測器、また、山頂には電源がないため、電源ボックス、およびソーラーパネルを設置した。これらの測定器および電源はヘリコプターによって山頂に荷揚げし、設置した。

# *研究予算*

(単位:千円)

|         | H13    | H14    | H15    | H16    | H17    |
|---------|--------|--------|--------|--------|--------|
| サブテーマ 1 | 10,000 | 10,000 | 10,000 | 10,000 | 10,000 |
| サブテーマ 2 | 1,000  | 0      | 1,000  | 0      | 1,000  |
| サブテーマ 3 | 2,000  | 0      | 0      | 0      | 0      |
| サブテーマ 4 | 0      | 3,000  | 2,000  | 3,000  | 2,000  |
| 合計      | 13,000 | 13,000 | 13,000 | 13,000 | 13,000 |

総額

65,000 千円

## 研究成果の概要

### (1)四川盆地ー杭州湾地域間の大気汚染物質の輸送に関する野外観測

航空機観測は平成14年春(渤海湾周辺)、平成14年~15年冬(上海・杭州湾周辺東シナ海沿岸部)、平成15年夏および平成16年初夏(上海~武漢~重慶・成都の内陸大都市周辺)の4回行った。

これらの観測により以下の諸点が明らかになった。

- 1) 中国の沿岸域の大規模発生源近傍ではNOxの発生量が多く、そのため NOx 中に含まれるNOによるオゾンの破壊が起こって、オゾンとNOxの濃度の間には 負の相関が見られ、NOx濃度が高いとむしろオゾン濃度が低下する。
- 2)  $NO \times LSO_2$ の濃度間には高い正の相関が見られるので、1)の現象とも合わせ、航空機観測で測定される  $NO \times LSO_2$ の比は発生源の比をよく反映しているもの と考えられる。報告されている発生源インベントリーデータとの比較から、199 5年~2000年の間に  $NO \times$  放出量の増加、 $SO_2$ 放出量の減少、またはその両方が起こっていることがわかった。
- 3) 中国上空ではエアロゾル中の酸性成分はアンモニアなどによってよく中和されている。ただし、沿岸部ではほぼ1:1に中和されているのに対して内陸部ではやや酸性成分が過剰である。
- 一方、四川盆地(峨眉山)、武漢(武当山)、杭州湾(舟山)の3地点においてオゾン、NOx、 $SO_2$ およびエアロゾルの化学成分を測定した。期間は 2002年6月、2003年8月から9月上旬、2004年5月中旬から6月中旬にかけての主に夏季である。
- 1) ガス成分のオゾン、NOx、 $SO_2$ の平均濃度を見るとオゾン濃度が高く、  $SO_2$ 、NOx は低かった。オゾンに関しては、2004年5月23日に武当山で98ppbvを、舟山では2004年6月8日と2003年8月27日にそれぞれ92ppbv、99ppbvを観測した。明確な日変化を示していることから、光化学反応の影響を受けていることがわかった。NOx、  $SO_2$ の最高値はそれぞれ29ppbv(2003年8月6日)、21ppbv(2003年8月21日)であり、いずれも舟山で観測された。
- 2) エアロゾルの化学成分については、冬季の青島のデータと比較すると、いずれの場所でも $NO_3$  が相対的に低い。夏季は気温が高く $NH_4NO_3$ が気相に放出されるからだと考えられる。 $nss-SO_4^{2-}$ 、 $NH_4$  については、多少の変動が認められるが全般的には  $100\sim200$   $neqm^{-3}$  であり、  $nss-SO_4^{2-}$  と $NH_4$  の当量比はほぼ 1 対 1 となっていた。

さらに、ライダーによる連続観測から、安徽省合肥におけるエアロゾル分布の特徴を明らかにした。まず、エアロゾルは高度2km以下の地上付近に集中しており、エアロゾル層内では夏に消散係数が大きく冬に小さいという年周変動が見られる。この変動は

相対湿度とよく対応しており、吸湿性エアロゾル(硫酸塩等)が支配的な成分であることを示唆している。偏光解消度の観測からも北京に比べて春でも黄砂の影響が小さい(9月には無視できる)ことが示された。また、多湿となる夏場でも南風が強い時期には消散係数が小さく、大規模な風系の変動に伴い地域の大気環境特性が変動する様子が明らかにされた。

### (2) 大陸規模のモデルによる広域大気汚染の解明

中国での飛行機観測に対応した数値シミュレーションを行った。シミュレーションは気象モデルRAMSと大気質モデルCMAQの両者を用いた。物質の発生量データには、Streets の成果を標準として用いたが、 $SO_2$  とNOx に関しては本研究の成果である甲斐沼らの結果を併用して比較した。

四川盆地、北京、九州、台湾北部を含む東西約2900km、南北約2000kmの範囲を、水平間隔が東西・南北ともに30kmの計算格子で覆い、気象と大気汚染の数値モデルにより、2004年5月19日から28日にかけて広域大気汚染の数値シミュレーションを行った。計算結果を課題1による航空機観測データ等と比較し検討を行なった。本課題では、計算結果に大きな影響を与える要因の中から、物質発生量の分布データと、計算に与える側面境界としての物質濃度の二つに注目して、感度解析を行なった。

全部で3ケースのシミュレーションを行なった。ラン1は、既存の物質発生量データを用い、側面境界濃度も標準的な値を与えたもの、ラン2は、物質発生量データとして課題3で得られた2000年推計値データを用いたもの、ラン3は、ラン2で西方の境界条件濃度を二酸化窒素、オゾン、二酸化硫黄の三者について標準よりもかなり高濃度にすることにより、特に西からの長距離輸送の影響を調べるためのものである。

まず、ラン1とラン2を比較することにより、発生量データの違いによる影響を調べた。

計算期間平均で見たオゾンの地上分布を比較すると、黄海上でピークを示す基本的水平分布は一致しているが、そのピーク値に違いがあり、ラン2では 10ppb程度を上限に低くなった。これは課題3で得られた発生量データの NOxが既存のデータに比して少ないためと考えられた。

次にラン2とラン3を比較することにより、西方の境界条件の影響を調べたが、両者の差は地上付近では計算領域西方に限定的であり、黄海や揚子江下流域での両者の差はかなり小さかった。

課題1で得られた飛行機観測データと比較するために、飛行機の位置データから計算結果を内挿することにより、フライトパスに沿った濃度同士を比較した。全般的に、フライトパスに沿った細かな濃度変動の再現性は芳しくなかった。これは、数値モデルの精度、発生量データの誤差、計算の空間解像度不足等の結果と考えられた。5月27日の比較結果では西方境界条件濃度を上げることにより、飛行機観測データとの一致性

が、多少ではあるが向上した。

## (3) 社会経済モデルを基にした発生源インベントリーとその将来予測

東方ロシアを含むアジア地域を対象として、 $SO_2$ とNO×の排出強度分布図を作成した。中国、インド、韓国については、比較的詳細な排出源データをもとに、その他の国については、国別 $SO_2$ 、NO×排出データをもとに、排出強度の算定を行った。行政区界については、いくつかの境界図を併用したために、若干ながら複数の排出強度推定値を持つグリッドが存在する。その場合には、韓国、インド、中国、アジア全域境界図の順に推計値を採用した。

将来の大気汚染物質の排出予測に関しては、中国を対象として、将来の社会・経済状況の推計値をもとに、エネルギー消費量を推計し、化石燃料の燃焼に伴う大気汚染物質の排出量を推計した。分析にあたっては、基準シナリオ、エネルギー高需要シナリオ、政策シナリオの3つのシナリオを想定し、大気汚染排出量への影響を推計した。

また、中国の将来シナリオに基づいて、 $SO_2$ 、NOx排出量を2030年まで予測した。 $SO_2$ 排出量は石炭消費量の増加に伴って2010年ごろまで増加する。基準シナリオでは2010年の排出量は2000年に比べると9.45百万トン多い。2010年以降は脱硫装置などの導入により $SO_2$ 排出量は減少する。これに対して、NOx排出量に関しては、 $SO_2$ ほど有効な手段がないので、今後30年にわたって増加することが予測された。

## (4) 高山域における自由対流圏オゾンの観測

中国におけるNO×の放出による光化学オゾンの増加がどのような影響を及ぼしているかは興味ある問題である。本研究では自由対流圏を通って、日本上空に到達するアジアのバックグラウンドオゾンを把握するため、高山域における自由対流圏オゾンの観測を行った。観測としては奥日光前白根山頂上直下の鞍部において、7~10月に、オゾン濃度の測定を行った。その結果、9月中旬頃までの夏季には東京周辺の首都圏から輸送されるローカルな光化学オゾンが卓越するが、10月になると、自由対流圏の中をアジア大陸から輸送されてくるオゾンが中心的になることが分かった。このとき観測されるオゾンの濃度は隠岐島や八方尾根で秋季に観測されるオゾン濃度と非常に近く、この季節にアジア大陸から輸送されてくるアジアのバックグラウンドオゾン濃度を反映していることが示された。

観測は2002年7月21日~10月17日の88日間および2004年 7月2 1日~10月10日の82日間、栃木県奥日光前白根山山頂付近の稜線上標高2320 mで行われた。

2002年の観測期間の前半は、日最低値の平均は18.86ppbであり、これをバックグラウンドとすると、その値は低く日較差が大きい。さらに、時折60ppb程度の高濃度を観測した。後方流跡線解析を行うと、このような高濃度のオゾンは関東平野から輸送されてきていた。この期間のオゾン濃度の平均値は27.30ppbであっ

た。日射量が強く、光化学反応が起こりやすい夏季にもかかわらず平均値が低いのは、 日本が太平洋高気圧に覆われ、太平洋上の汚染の少ない空気がバックグラウンドとして 輸送されてくるためと考えられる。

それに対して観測期間後半の秋季には、山頂付近ではオゾンの日内変動がほとんど見られず、小山市などの平野部とは大きく異なっている。この期間のオゾン濃度の平均は40.52ppbで、日射量が弱まっているにもかかわらず、オゾンの平均値は前半よりも大きかった。これは、季節の移り変わりに伴い、太平洋高気圧の影響が小さくなり、大陸からのバックグラウンドオゾン量が増加したからだと考えられた。オゾンの前駆体となるNOxの大陸における発生量の増加と、それに伴う対流圏オゾンの変化を今後もモニタリングする必要がある。