

(1) 四川盆地－杭州湾地域間の大気汚染物質の輸送に関する野外観測

2.1 中国における大気汚染物質・エアロゾルの航空機観測

2.1.1 序

大量の石炭の利用と、増大する自動車からの排ガスにより、中国は東アジア地域における最大の大気汚染物質発生源地域となっている。その影響は、リセプター地域となる我が国や太平洋、東シナ海などにおける地上観測、航空機観測がこれまでかなりの回数行われ、多くの情報が蓄積されてきている。これに対して、従来その重要性は指摘されていたものの、ソース地域である中国における大気汚染物質の観測は非常に困難で、十分な情報が得られていなかった。

我々はこれまで、主に環境省の地球環境研究総合推進費により、アジア大陸と日本の間の海洋上空における大気汚染物質の分布・輸送・変質などに関する航空機観測を行ってきた。この過程で、中国環境科学研究院との共同研究に関する合意が得られた。また日中韓3カ国の長距離越境大気汚染 (Long-range Transboundary air Pollutants ; LTP) に関するワーキンググループが作られて、東アジア地域における長距離大気汚染に対する観測並びにモデリングに関する取り組みが進められることとなって、中国における航空機観測に対しても機が熟し、中国国内における大気汚染物質の航空機観測を国際共同研究として初めて実施した。

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。

2.1.2 結果と考察

(1) 2002年春の観測

観測を行った領域は中国遼寧省大連市を中心とする渤海湾上空で(図2.1.1)、2002年3月11日に(1)大連から丹東間での2往復及び(2)大連から青島までの1往復、3月19日に(3)大連から錦州までの1往復と(4)青島までの片道のフライトを行った。飛行高度は(1)では500, 1000, 2000, 3000 mの4高度、(2)では500, 1000 mの2高度、(3)では500, 2000 mの2高度、(4)では約1200 mの1高度であった。

使用した飛行機は広東省通用航空会社のYun-5型飛行機(単発複葉機、図2.1.2)である。平均の飛行速度は約180 km/hである。

搭載した測定器はO₃計(TECO 49CTL), NO_x計(TECO 42CTL), SO₂計(TECO 43CTL), High Volume Sampler, Andersen Sampler, PM_{10,2.5} sampler (APS-3310A), 温湿度計である。

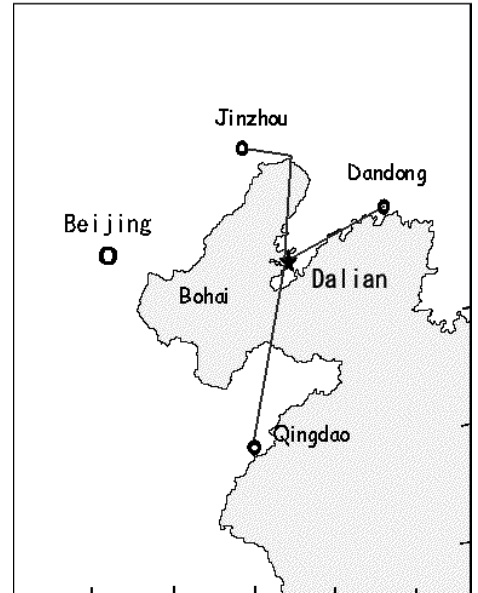


図 2.1.1: 2002年3月観測の飛行ルート



図 2.1.2: 観測に用いた Yun-5 型単発複葉機

上記観測のうち3月19日に大連から青島までの片道のフライトにおいて興味ある現象が観測されたので紹介する。このときの飛行高度は約1200 mの1高度であり青島近傍で高度を下げた。

図 2.1.3 に 3 月 19 日の観測におけるガス状汚染物質の濃度変化を示した。(ここでI~IVと区分されているのは図 2.1.4 に示した観測飛行コースの区分である。) 青島に近づくにつれてSO₂やNO_xの濃度が上昇している。これは、青島付近におけるローカルな発生源の寄与を表しているものと考えられる。

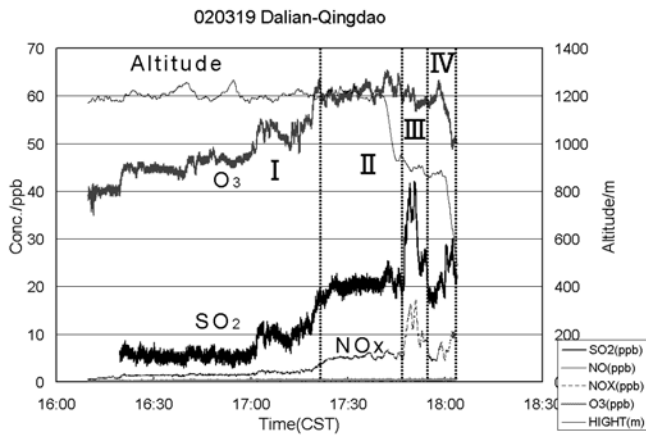


図 2.1.3 : 3 月 19 日の観測で見られたガス状汚染物質の変化。I, II, III, IV については図 2.1.3 参照。

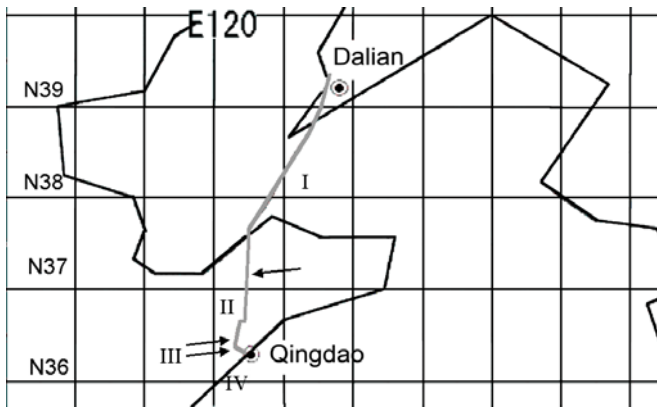


図 2.1.4 : 3 月 19 日のフライトコースと観測領域

そこで、このフライトで得られたNO_xとO₃の相関をとって見たのが図 2.1.5 である。図 2.1.2 からわかるように渤海湾の上空ではオゾン、NO_xとも濃度が低く、かつその間には非常に強い正の相関が見られる(図 2.1.5, I : ◇)。従って、渤海湾上空の空気は、ある程度長距離を輸送されてきた空気であると考えられる。この輸送の間に光化学反応を受けてオゾンが生成してきたものである。これに対して山東半島に上陸後はオゾン、NO_xとも濃度が高くなり、両者間の相関は青島に近づくにつれて悪くなって(図 2.1.5, II : ○、III : ▲)、青島の近傍では明らかに負の相関を示している(図 2.1.5, IV : ×)。

このことは、青島付近で観測された大気が近傍の大規模

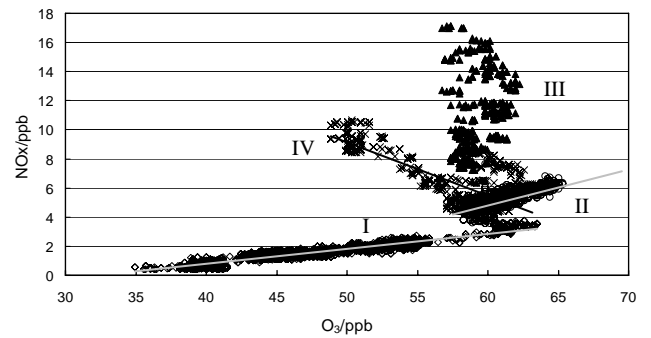
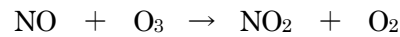


図 2.1.5 : 3 月 19 日のオゾンと NO_x の相関

発生源の影響を強く受けていて、



によるO₃の減少が起こっていることを示している。

バックトラジェクトリーも、渤海湾上空の空気は北京付近から輸送されてきているのに対し、青島付近上空では近傍の空気が来ていることを示しており、これを裏付けている。

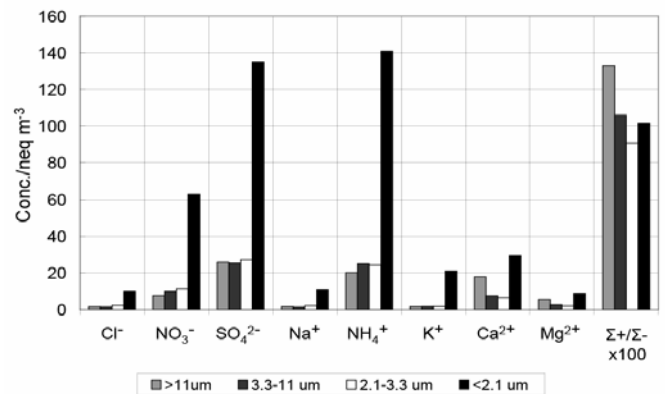


図 2.1.6: 3 月 19 日に大連と青島の間でアンダーセン・サンプラーにより捕集されたエアロゾルのイオン成分濃度

図 2.1.6 は 3 月 19 日のフライトにおける、アンダーセン・サンプラーを用いて捕集した粒子状物質の化学組成である。SO₄²⁻とNH₄⁺の濃度は非常に良く一致しており、大陸で放出された酸性物質は近隣において大部分中和されているものと考えられる。

太平洋上空などで見られる遊離の硫酸は、アンモニアの放出のない海洋上空まで輸送されたSO₂が大気中で酸

化されて生成したものであり、長距離輸送によってエアロゾルの酸性化が進むことが示唆される。

(2) 2002年～2003年冬の観測

H14年度(2002年12月～2003年1月)は観測に用いる飛行機としては、双発のプロペラ機Yun12型機(図2.1.7)を採用した。この飛行機は最大積載量1700kg、(乗客数最大17人)、使用可能キャビン容積12.9m³、高度3000m・時速258km/hで、観測時には飛行速度をほぼ180km/hに設定した。



図 2.1.7 : 観測に用いた Yun12 型飛行機

源近傍の大気汚染物質を捕捉していることが強く示唆される。(図 2.1.9)

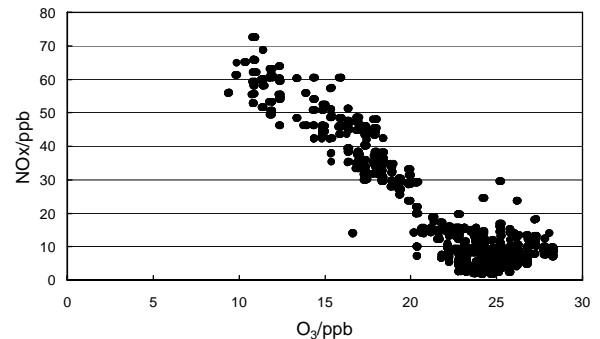


図 2.1.9 : 2003年1月6日観測時のO₃-NO_xの相関

2) NO_xとSO₂の間には強い正の相関がある(図2.1.10)。観測されたSO₂とNO_xの比は発生源の比を表しているのではないかと推測された。

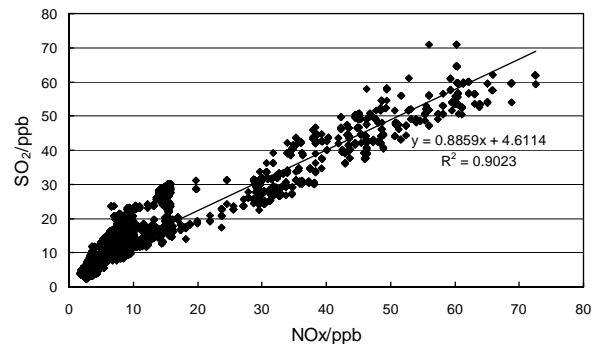


図 2.1.10 : 2003年1月6日観測時のNO_x-SO₂の相関

搭載した測定器はガス測器(オゾン、NO_x、SO₂)、Particle sizer、CNC、PM2.5&PM10 samplers、エアロゾル質量濃度計および電子顕微鏡分析用インパクターである。

H14年度観測の飛行コースは図2.1.8のような、上海を中心とした中国東部の東シナ海沿岸である。

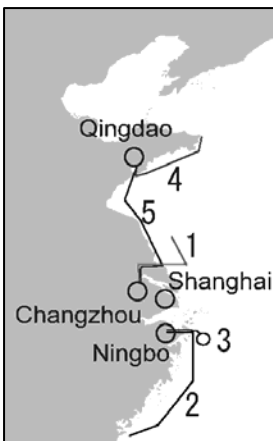


図 2.1.8 : 2002年12月～2003年1月観測の飛行経路

この観測データのうちNO_xとオゾン、NO_xとSO₂の相関をとってみると

1) NO_xとオゾンの間には負の相関が見られ、発生

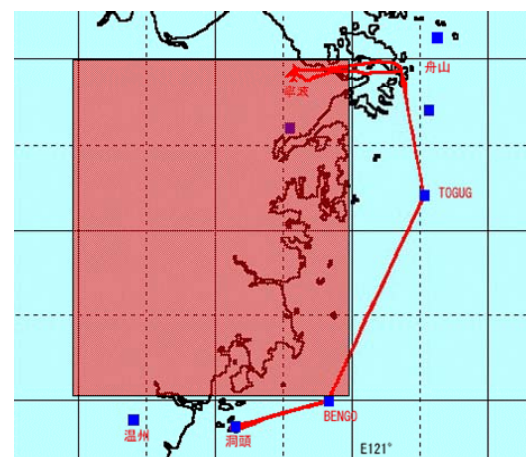


図 2.1.11 : フライトコースとそれに隣接するグリッドの例

そこで、図 2.1.11 のように観測フライトコースに隣接する緯度×経度 1° × 1° のグリッドを選んで、ここからの発生源データと比較した。表 2.1.1 の Em.(95) と Em.(00) はそれぞれ 1995 年および 2000 年ベースのエミッションデータ (村野ら, 2001; Streets et al., 2003) をもとにした SO₂/NO_x 比であり、観測値と比較すると、2000 年のデータでは平均するとほぼ同程

表 2.1.1: SO₂/NO_x 比の観測値と計算値の比較

観測日	Em.(95)	Em.(00)	観測値	観測値	
				Em.(95)	Em.(00)
2002/12/26	1.13	1.24	1.13	1.00	0.91
2002/12/28	1.15	0.76	0.63	0.55	0.83
2002/12/31	2.02	0.87	1.03	0.51	1.18
2003/1/5	2.17	1.29	1.73	0.80	1.34
2003/1/6	1.56	1.25	0.89	0.57	0.71
平均				0.69	1.00

度の値になるのに対して、1995 年のデータとの比較では観測値の方がかなり小さくなっている。このことは 1995 年から 2000 年にかけて SO₂/NO_x 比が低下していることを意味し、SO₂ の減少か NO_x の増加、またはその両方がこの 5 年間に起こっていることを観測データから裏付けることができた。

(3) 2003 年 8 ~ 9 月および 2004 年 5 ~ 6 月の観測
 観測に用いた飛行機は 2003 年が YUN-5、2004 年が YUN-12 型飛行機である。測定に用いた測器類は前項と同様である。



図 2.1.12: 2003 年および 2004 年の観測領域

観測した領域は図 2.1.12 に示したような、中国の内

陸部で、観測コースは上海—武漢—重慶・成都などの大都市を結ぶ径路とその周辺上空である。

2004 年 8 ~ 9 月には、この領域で合計 10 フライトの観測が行われた。図 2.1.12 に 5 月 21 日の重慶近傍、図 2.1.15 には 6 月 9 日の常州近傍での観測におけるガス状汚染物質の変化を示す。

重慶近傍では、低空で非常に高濃度の SO₂ が観測された。この地点は丁度重慶と成都の間くらいのものであるが、流跡線 (図 2.1.12) を見ると重慶の影響が大きかったのではないかと推察される。

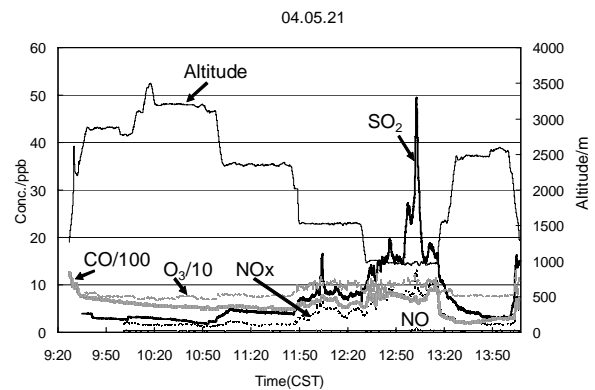


図 2.1.13: 5 月 21 日のガス状物質濃度変化

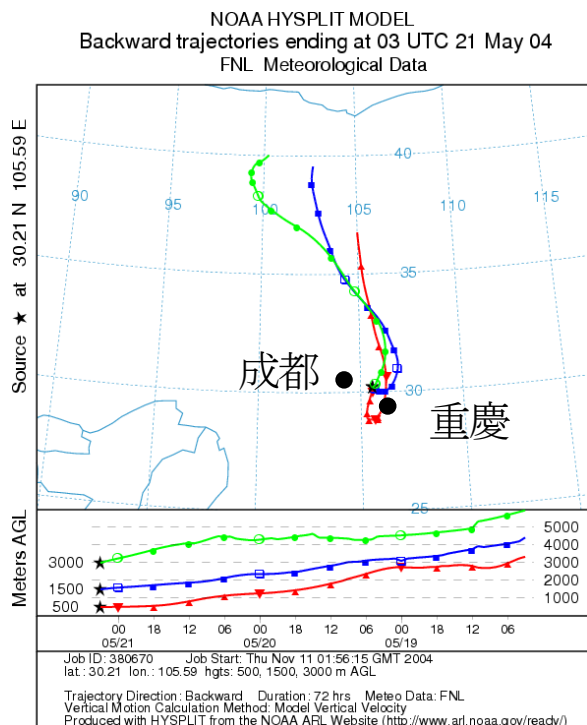


図 2.1.14: 5 月 21 日 11 時からの後方流跡線

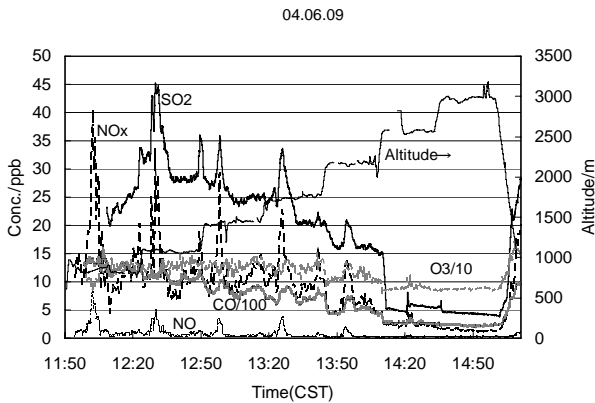


図 2.1.15 : 6月9日のガス状物質濃度変化

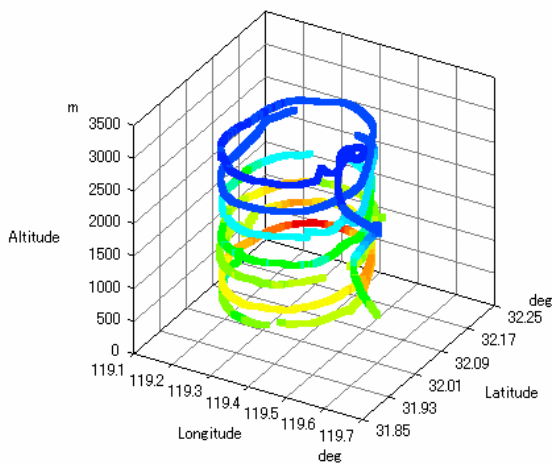


図 2.1.16 : 6月9日の飛行経路に沿ったSO₂濃度

一方、6月9日の観測はスパイラル飛行であったが、図 2.1.15 を見ると周期的にガス状汚染物質の高濃度が現れている。このときSO₂やNO_xだけでなく、NOも高濃度となるので、近傍のローカルな汚染を捉えているものと考えられる。この点は図 2.1.14 において一層明確である。なお、バックトラジェクトリーは低層 (≦1500 m) の気塊が内陸部から、上層 (≧2000 m) の気塊は北部から輸送されていることを示している。

上海～武漢～成都・重慶の領域での観測では、エアロゾルイオン成分濃度 (SO₄²⁻, NO₃⁻など) はPM₁₀, PM_{2.5} いずれも成都・重慶周辺と上海・南京周辺における濃度が高い。(図 2.1.16) (今後SO₄²⁻, NO₃⁻, NH₄⁺, Ca²⁺をそれ

ぞれSO₄, NO₃, NH₄, CAと記述) これらの大工業地域での放出量が多いことを反映しているものと考えられる。

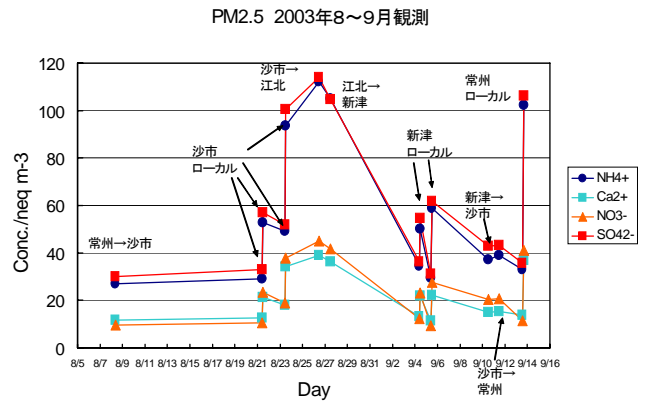


図 2.1.17 : 2003 年の観測で見られた PM_{2.5} のイオン成分濃度の分布

図 2.1.18 にはこれらイオン成分間の相関を示した。SO₄はNH₄と非常に相関が良い。これは中国上空での観測では常に見られることである。しかし、沿岸部での観測ではほぼ1 : 1で存在していたのに対し、内陸部上空ではかなりSO₄が過剰に存在していた。

NO₃とNH₄も相関が良いが、NH₄が過剰である。酸性成分は塩基性成分によってよく中和されている。両酸性成分とCAとの相関も良い。

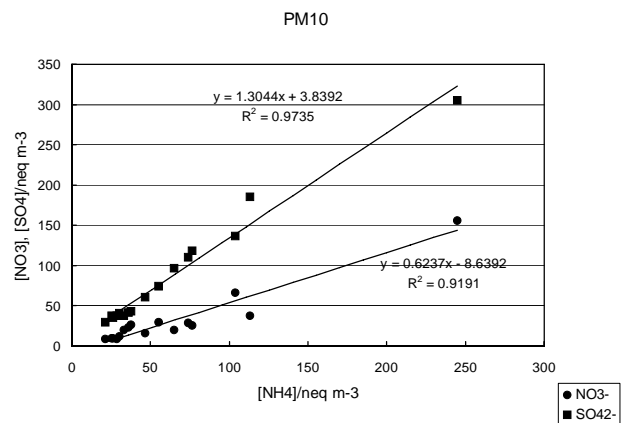


図 2.1.18 : 2003 年の観測で見られた PM₁₀ のイオン成分のうち、SO₄, NO₃とNH₄の相関

酸性成分のうちNO₃とSO₄の合計と塩基性成分のうちNH₄とCAの合計との相関を取ってみると、2002年12月～2003年1月の東シナ海沿岸領域での観測地と今回の内陸部上空での観測地には明らかな違いが見られた。

すなわち、沿岸域では塩基性成分の和が酸性成分の和よりも大きいのにに対して、内陸部では酸性成分の和が塩基性成分の和よりも大きい(図 2.1.19)。これは、重慶・成都が内陸部の大きなSO₂発生源であるのに対し、中国東部はSO₂のみならず、アンモニアの大発生源(Streets et al., 2003)であることが大きく関係しているものと考えられる。

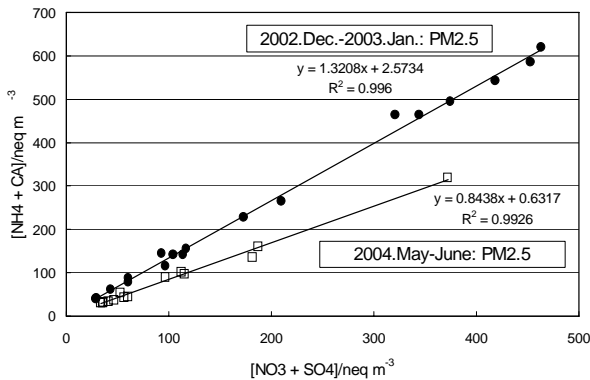


図 2.1.19: [NH₄ + CA]に対する[NO₃ + SO₄]のプロット。●: 東シナ海沿岸、□: 内陸部。

2.1.3 まとめ

本研究により以下のことが明らかとなった。

- 1) 中国の沿岸域の大規模発生源近傍ではNO_xの発生量が多く、そのためNO_x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NO_xの濃度の間には負の相関が見られ、NO_x濃度が高いとむしろオゾン濃度が低下する。

- 2) NO_xとSO₂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_xとSO₂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データとの比較から、1995年~2000年の間にNO_x放出量の増加、SO₂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。

文献

D. G. Streets, T. C. Bond, G. R. Carmichael, S. D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S. M. Nelson, N. Y. Tsai, M. Q. Wang, J.-H. Woo, and K. F. Yarber, An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, **108**, D21, 8809, doi:10.1029/2002JD003093 (2003).

村野健太郎、外岡豊、神成陽容、「東アジア地域の大气汚染物質発生源インベントリーの精緻化に関する研究」、環境省地球環境研究総合推進費終了研究報告「東アジア地域の大气汚染物質発生・沈着マトリックス作成と国際共同観測に関する研究」平成11年度~平成13年度、67-88 (2001).