

(4) 高山域における自由対流圏オゾンの観測

2.6 高山域における自由対流圏オゾンの観測

2.6.1 序

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いる。光化学大気汚染の主役であるオゾン<sup>1</sup>は、また重要な温室効果ガスでもある。しかし、すでに 2.1 でも見たように、大規模発生源近傍では、オゾンが NO との反応によって消滅するため、オゾンの増加は明瞭には見られない。長距離に輸送された後、風下側で濃度が上昇する。中国の大規模発生源の風下は日本であ

り、さらには太平洋～北米と広がる。最近の 20 年程度の間には日本全国においてオゾンの平均濃度が上昇していることが指摘されており、その原因の一つとして東アジアスケールの広域大気汚染の高進が影響しているものと見られている(大原, 坂田, 2003)。

中国における NO<sub>x</sub> 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して、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ことに焦点をあてて、高山域における自由対流圏オゾンの観測を行った。

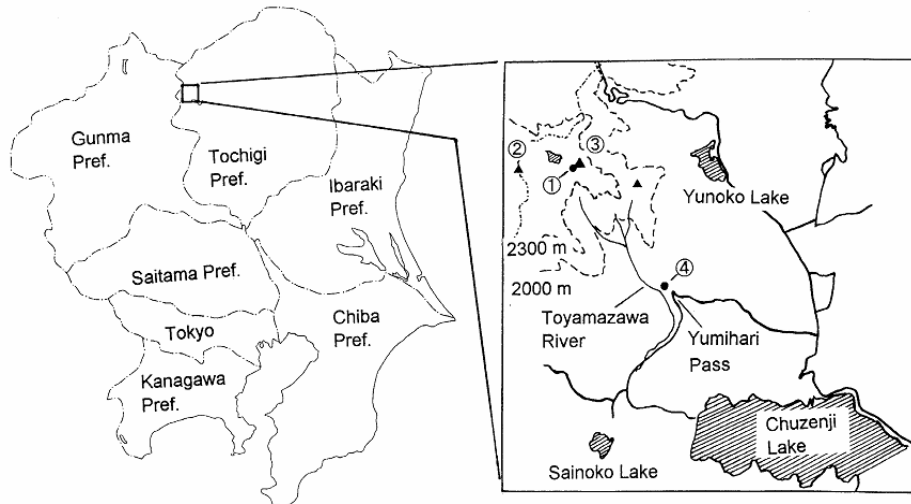


図 2.4.1 : 奥日光における観測サイトの位置

2.6.2 観測

観測は栃木県奥日光前白根山山頂付近の稜線上標高 2320m で行われた(図 2.4.1、以下この測定点を山頂と記す)。この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(8 m×6 m、金網で囲う)、その中にオゾン計(ダイレック MODELL1120 ; バッテリー駆動用に特注)、気象測器(Vaisala 社 MAWS201 自動気象ステーション: 風向・風速・気温・湿度・気圧・日射量)、また、山頂には電源がないため、電源ボックス(大型のニッカド電池: サンヨー N-2000MC x 20 個)、およびソーラーパネル(サンヨー HIP-5517 : 990x455x38mm、20 枚)を設置した。これらの測定器および電源をヘリコプターによって山頂

に荷揚げし、図 2.4.2 のように設置した。

データは小型データロガーに収録し、約 3 週間～1 ヶ月に一回、データの回収を行った。

観測は 2002.7.21～2002.10.17 の 88 日間および 2004.7.21～2004.10.10 の 82 日間行われた。

2.6.3 地上観測データ

比較や解析のために、国立環境研究所日光環境観測所(奥日光前白根山南東の麓、弓張峠付近、標高 1460 m)のオゾン観測データ、および大気汚染物質広域監視システムによる日光市役所、小山市役所、宇都宮市役所のデータ(国立環境研究所大気環境時間値データファイルを使用した)も使用した。



図 2.4.2 : 山上に設置された測定器と電源

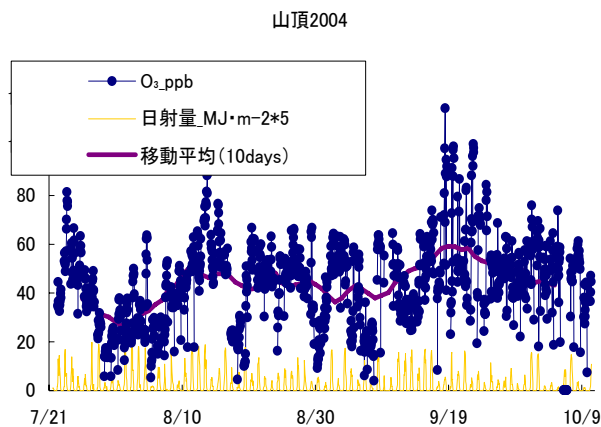


図 2.4.4: 2004 年の観測における山頂でのオゾン  
の 1 時間平均値と日射量。

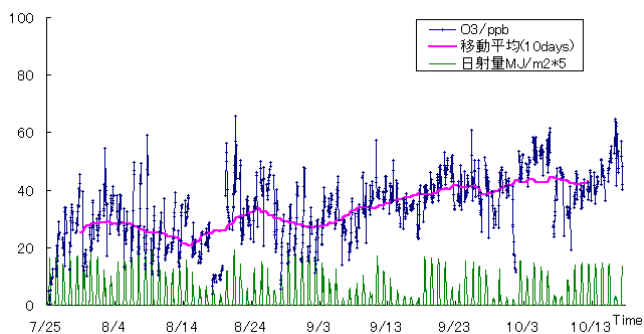


図 2.4.3: 2002 年の観測における山頂でのオゾン  
の 1 時間平均値と日射量。

また、以下では白根山山頂での観測データを「山頂」、国立環境研究所日光環境観測所での観測データを「麓」、日光市役所を「日光市」、小山市役所を「小山市」などとそれぞれ市の名前で呼ぶことにする。

麓でのデータは午前 6 時から午後 6 時まで、大気汚染物質広域監視システムのデータは山頂との比較の為に、同時間帯(午前 8 時から午後 8 時)のデータを使用した。

#### 2.6.4 後方流跡線解析

汚染気塊物質のバックトラジェクトリー解析は株式会社 CRC ソリューションズが開発した CMBA (CRC Meso-scale Back trajectory Analysis software)を使用した。計算は地上から 300hPa までとし、水平計算領域は

ユーザ設定する。計算領域外や計算高度の上限を出た場合、指定終了時間前にも計算中止している。

#### 2.6.5 結果と考察

図 2.4.3 に 2002 年の、図 2.4.4 に 2004 年の観測による山頂でのオゾンの変化を示す。今回の観測では両年とも全期間を通じて、過去に報告されたような(畠山, 村野, 1996) 100ppb を超える高濃度 O<sub>3</sub> は観測されなかった。

2002 年の観測期間の前半は、日最低値の平均は 18.86 ppb 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 60 ppb 程度の高濃度を観測した。この期間の O<sub>3</sub> 濃度の平均値は 27.30 ppb、日積算日射量の平均値は 15.27 MJ m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup> であった。日積算日射量と日平均 O<sub>3</sub> 濃度の関係を見ると、はっきりとした相関は見られなかった。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は、日最低値は 33.26 ppb とバックグラウンドが 30ppb あたりまで高くなったのに対し、日最高濃度は前半とあまり変わらなかった。また、日較差は前半と比べると小さくなった。この期間の O<sub>3</sub> 濃度の平均は 40.52 ppb、日積算日射量は 11.70 MJ m<sup>-2</sup>

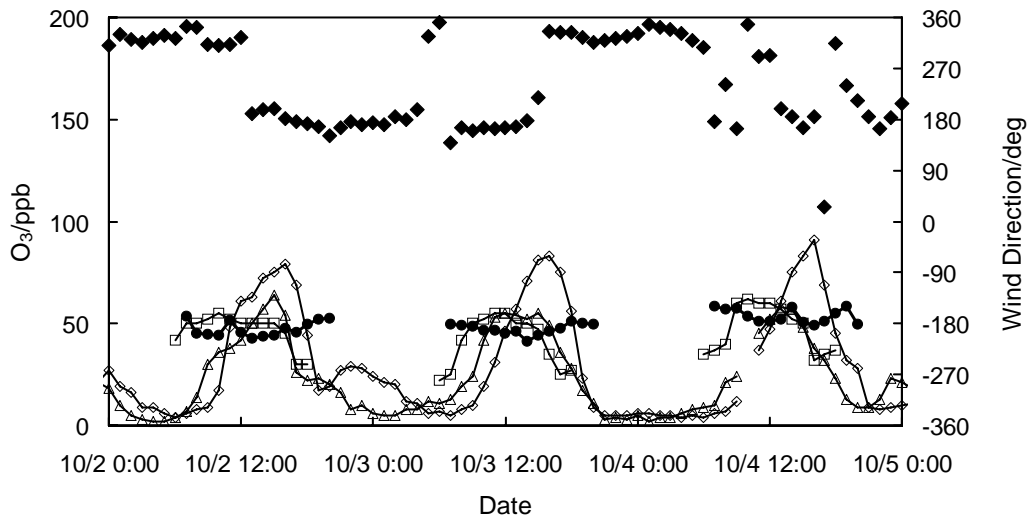


図 2.4.5: 典型的な 10 月期(2002 年 10 月 2-5 日)の晴天時のオゾン濃度と山頂における風向。 ◆: 山頂での風向; ●と太実線: 山頂のO<sub>3</sub>; □と細線: 奥日光観測所(麓)でのO<sub>3</sub>; △と細線: 日光市役所でのO<sub>3</sub>; ◇と細線: 小山市役所でのO<sub>3</sub>.

day<sup>1</sup>と、日射量が弱まっているにもかかわらず、O<sub>3</sub>の平均値は前半よりも大きかった。全体として期間前半に比べ日射量は弱まっているが、O<sub>3</sub>濃度の平均値は増加した。これは、移動平均の推移にも示されているように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、バックグラウンドO<sub>3</sub>量が増加したからだと考えられる。

図 2.4.5 に秋季の典型的なオゾン濃度変化を示した 10 月 2 日～10 月 4 日の各地点でのO<sub>3</sub>の時間変化および山頂での風向を示す。10 月 1 日に台風 21 号が通過した後、9 月中旬並みの気温が続き、関東地方は期間を通して晴天であった。山頂での風向は、北及び南風が交互に出現したが、その時間帯はさまざまで、2 日は午前中北風、午後南風。3 日は午前中南風、午後北風。4 日は 1 日を通して安定していなかった。他の観測地点でも風向は観測地点ごとばらばらで、典型的な海陸風循環が発達したとは考えにくい。

O<sub>3</sub>濃度の時間変化を見ると、麓、日光市、小山市は昼間増加する日変化をしており、明確なO<sub>3</sub>光化学生成があると考えられる。しかし、山頂は日変化がほとんど無い

か、むしろ昼間に最小値を取っており、夜間に濃度が下がっているとも考えにくい。また、その場での光化学生成や海風による汚染物質の輸送による濃度変化があるとも考えにくい。

この季節的な変化は、秋になるに従い、日射の弱まりにより、大気鉛直対流が弱まることで、大気境界層の上端高度が下がり、また海陸風循環も弱まるので、山頂では上空の自由対流圏大気の影響を受けやすくなったためではないかと考えられる。これは以下のような水蒸気量の季節的な変化とも合致している。一般に自由対流圏では気温が低く、水蒸気供給源である地表の影響を直接は受けなため、大気境界層内に比べ、明らかに水蒸気量は小さくなる。観測結果でも 8 月の水蒸気量は日の出前に 6~8 g m<sup>-3</sup>、昼間は 10 g m<sup>-3</sup>を超えていたのに対し、9 月下旬、20 日辺りからは最小値で 3 g m<sup>-3</sup>、平均も 5 g m<sup>-3</sup>まで下がり、かなり乾燥していることが分かる。観測期間最後の週には毎日晴れていたが、水蒸気量は最高値で 6.7 g m<sup>-3</sup>、最小値は 0.4 g m<sup>-3</sup>であり、この傾向がさらに強くなっている。同時に風向が安定しない事は、海陸風

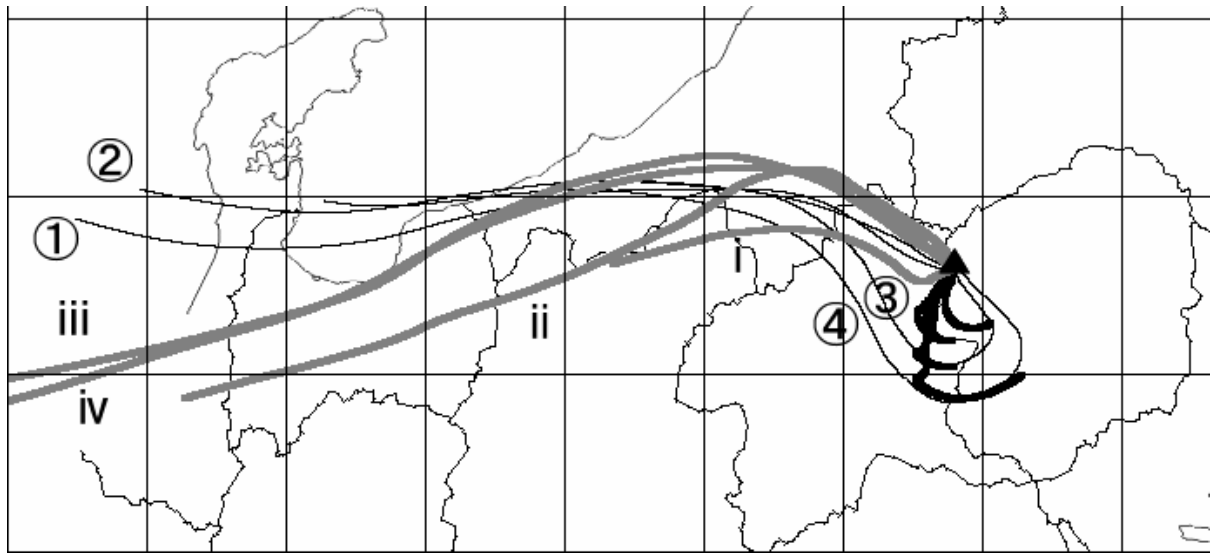


図 2.4.6: 2002 年 10 月 2～4 日に山頂に到達した気塊の後方流跡線。①, ②, ③, ④: 10 月 2 日の 4 時にスタートし、10, 14, 18, 20 時に山頂に到達した気塊。i, ii, iii, iv: 10 月 4 日の 4 時にスタートし、10, 14, 18, 20 時に山頂に到達した気塊。黒の太い線は 10 月 5 日の流跡線である。

循環が発達しない事を示している。しかし、山頂での南～南東風の頻度は高く、大気境界層上端が下がったとはいえ、完全に自由対流圏に属しているわけではないと考えられるので、特に夜間、山風により自由対流圏を取り込んだ空気塊が観測される場合にこのような日変化の小さい挙動を示すと考えられる。

流跡線を見ると夏季と秋季では非常に明確なコントラストが見られる。ここでは夏季の流跡線の図は示さないが、夏季の晴天が持続する日には、東京など首都圏から輸送された気塊が日光付近では斜面に沿って上昇していくことが明らかとなった。夏季の夕方の高濃度オゾン は東京など大都市の影響を強く受けているものと考えられる。

一方、図 2.4.6 に示すように、秋季に山頂に到達する気塊は主に日本海から上空を通過して到達しており、東アジアのバックグラウンド大気の影響を受けているのではないかと考えられる。

Pochanart et al. (1999) は隠岐島におけるオゾン観測データを、流跡線の由来する方角に基づいて分類し、アジア大陸北部の低汚染地域から来る気塊に含まれるアジアのバックグラウンドオゾン濃度が、10 月にはほぼ 40 ppb であることを報告した。本研究で得られた 10 月期の山頂における日中の平均オゾン濃度 (40.52 ppb) はこ

れとよく一致している。

また薩摩林ら (薩摩林ら, 1998) は北アルプス八方尾根 (標高 1850 m) において 1990 年から 1994 年に長期観測をおこなった。10 月のオゾン平均濃度はいずれの年も約 40 ppb であり、本研究によって得られた値と良い一致を示している。

一方、富士山頂では 10 月の平均オゾン濃度が約 48 ppb 程度 (堤, 2001) で、隠岐島、八方尾根、前白根山の値より少し高い。これは富士山頂が 3776 m と高いため、上空の影響を受けているのではないかと考えられる。実際、秋元 (秋元, 2002) は Logan (1999) による世界各地におけるオゾンゾンデを用いたオゾンの高度分布の解析をもとに、気圧 800 hPa (高度～2000 m に対応) ではオゾンの季節変化は、境界層大気との混合の影響が強いため、地表とほとんど違いがないと指摘している。これより上の高度では、圏界面に向けてオゾン濃度は緩やかに上昇する。したがって、ローカルな汚染の影響が低いときに、隠岐、八方尾根、前白根山ではいずれもほとんど同じ約 40 ppb のオゾン濃度が観測されることとなった。この値が東アジアの 10 月の地表付近のバックグラウンドオゾンと考えて良いであろう。

これに対して、2004 年には 10 月初頭においても、図 2.4.4 のように、2002 年の場合のような日変化の小さな

変動パターンが見られず、観測点付近にはまだ大陸からの気塊が届いていなかったものと見られる。

## 2.6.6 まとめ

奥日光前白根山頂上直下の鞍部において、2002年の7~10月に、オゾン濃度を測定した。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自然共生研究グループ大陸から輸送されてくるオゾンが中心的になることがあることが分かった。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。

ほぼ同じ時期に観測を行っても、2004年にははっきりした変化が10月初頭までには見られず、気象条件によって大きく左右されるものと考えられる。

しかし、時期の早い遅いはあるものの、秋季から冬季にかけては西よりの風が卓越して、大陸からの気塊が山頂付近には到達しやすいと考えられ、2,000m以下程度の高度におけるバックグラウンドオゾンの普遍性が見られたことを考えると、アジアのバックグラウンドオゾンがこの時期に日本全体を覆っていると見ることができる。オゾンの前駆体となるNO<sub>x</sub>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と考える。

## 文献

- Logan J.A. (1999), An analysis of ozonesonde data for the troposphere: Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *J. Geophys. Res.* **104**: 16115-16149.
- Pochanart, P., Horikawa, J., Kajii, Y., Akimoto, H., and Nakao, M. (1999), The influence of regional scale anthropogenic activity in northeast Asia on seasonal variation of surface ozone and carbon monoxide observed at Oki, Japan, *J. Geophys. Res.* **104**: 3621-3631.
- 秋元肇 (2002), オゾン, (対流圏大気の化学と地球環境, 秋元肇, 河村公隆, 中澤高清, 鷺田伸明編, 223, 学会出版センター, 東京) 89-99.
- 大原利眞、坂田智之(2003). 光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析. 大気環境学会誌, **38**, 47-54. 薩摩林光、佐々木一敏、鹿角孝男、鹿野正明、太田宗康、栗田秀實、村野健太郎、畠山史郎、鳥谷隆、植田洋匡 (1998), 中部山岳地域における粒子状二次汚染物質の挙動、大気環境学会誌 **33**:284-296.
- 堤之智 (2001), 富士山頂での観測、a. オゾンの観測, (山の大气環境科学, 土器屋由紀子, 岩坂泰信, 長田和雄, 直江寛明編, 185, 養賢堂, 東京) 129-139.
- 畠山史郎, 村野健太郎 (1996), 奥日光前白根山における高濃度オゾンの観測, 大気環境学会誌 **31**:106-110.