

—研究論文 (技術調査報告)—

日本海側の遠隔地域測定局5局におけるO₃高濃度事例の解析

弓場 彬江*, 箕浦 宏明

Analysis of High Ozone Concentration Measured in the Five Remote Monitoring Sites Facing to the Sea of Japan

Akie Yuba*, Hiroaki Minoura

Asia Center for Air Pollution Research, 1182 Sowa, Nishi-ku, Niigata, Niigata 950-2144, Japan

* Corresponding author: (E-mail) yuba@acap.asia

Ozone is the one of the important oxidants in the atmospheric chemistry and also has adverse effects on plant and human health. The ozone concentration has an increasing trend in East Asia. There are a few monitoring sites which meets the air quality standard regarding ozone. In order to focus on the relation between high ozone concentration episodes and emission sources, temporal variation in the ozone concentration from 2005 to 2017 in five Japanese remote sites of Rishiri, Sadoseki, Oki, Tsushima, and Goto were analyzed. The high concentration outliers (O₃ outlier) were defined from normal data (O₃ normal) using the two curve fitting methods. The traceback analysis using a backward trajectory (METEX) was conducted to determine the relation between the transport area and the O₃ outlier. The frequency of transport from the Korean Peninsula to Rishiri was increased in O₃ outlier. The air mass was transported from South China or Korea to Oki in O₃ outlier. There is a deep relation between the Korean Peninsula and South China as the transport pathway. The difference in the transport pathway has a significant effect on the high ozone concentration in the remote area.

Key words : ozone monitoring, long-range transport, remote, backward trajectory analysis

1. はじめに

O₃は揮発性有機化合物(VOC)および窒素酸化物(NO_x)存在下の光化学反応によって生成される。O₃は酸化剤であり大気中の酸化反応等に重要な役割を果たすほか、同じく酸化剤であるOHラジカルの前駆物質としても重要である(Rohrer et al., 2014)。O₃が高濃度となった場合、植物の収量を低下させることや(Gu et al., 2018)、呼吸器や粘膜を刺激し人の健康へ悪影響を及ぼすことが示唆されている(Sacks et al., 2014; Kariisa et al., 2015)。日本国内における環境基準として1時間平均値が60 ppbv以下であることが定められているが、2017年度の環境基準達成率は一般大気環境局(一般局)1150局、自動車排気ガス測定局(自排局)29局それぞれで0%であった(環境省, 2019)。平成29年度大気汚染状況報告書内で日本国内における光化学オキシダント濃度の長期的な変動傾向が報告されている。日最高8時間値から年間99パーセンタイル値を求め、年間99パーセンタイル値の3年平均値が光化学オキシダント濃度の長期的な改善傾向を評価する指標として用いられている。この指標が120 ppbvを超える割合は、関東、東海、阪神、福岡、山口で高いが、経年変化は2011年以降ほぼ横ばい傾向が見られている(環境省, 2019)。北半球遠隔地域におけるO₃の長期トレンドは

減少傾向にある(IPCC, 2014; Yan et al., 2018)。一方で、日本を含めアジア地域においては北半球遠隔地域と異なり増加傾向が見られると報告されている(IPCC, 2014; Nagashima et al., 2017; Chang et al., 2017)。

東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(Acid deposition monitoring network in East Asia: EANET (Network Center for EANET, 2018))は日本国内に12測定局あり、都市域に2測定局(東京、蟠竜湖)、田園地域に1測定局(伊自良湖)、遠隔地域に9測定局(利尻、落石岬、竜飛岬、佐渡関岬、八方尾根、隠岐、檜原、辺戸岬、小笠原)が属している。またEANETではないが、国設局の都市域2測定局(札幌、尼崎)、田園地域5測定局(箕岳、赤城、新潟巻、筑後小郡、大分久住)、遠隔地域5測定局(越前岬、対馬、五島、えびの、屋久島)についてもEANET国内ネットワークセンターでデータ収集、精査が行われ、公表されている。日本海側に面している5測定局を対象に、得られた日平均O₃濃度から特に高濃度となる要因について長距離輸送と近傍での生成、消失の影響の二つの面について解析を行った。

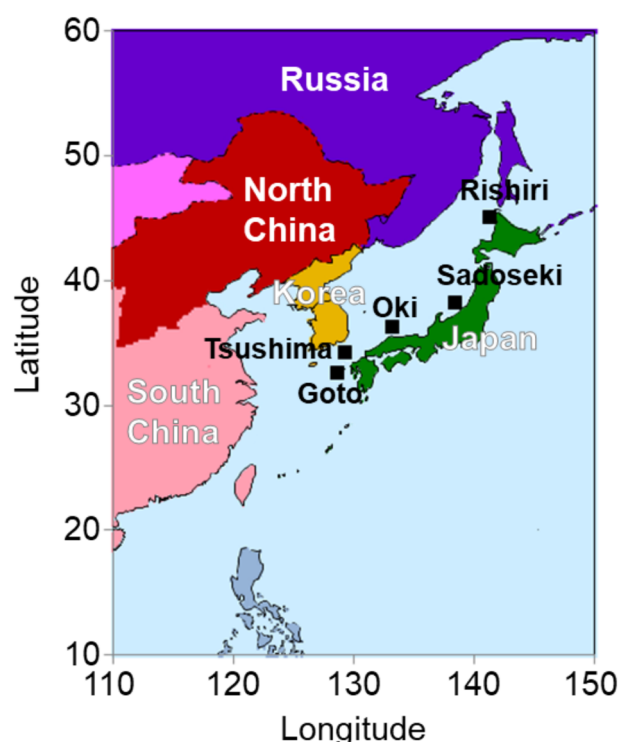


Fig. 1 Location of five monitoring sites and the separation of the area in the backward trajectory analysis.

2. 解 析

2.1 解析対象とする観測地点

EANETおよび国設局のうち、利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島は日本海側に面しており、特に冬季は季節風のため大陸からの影響を受けやすいという共通点がある。日本海側の5測定局はすべて遠隔地域にあり、半径50 km圏内にO₃の前駆物質であるNO_xやVOCの発生源が少ないため、輸送による影響を評価しやすい。そのため5測定局を解析の対象とした。測定局の所在地をFig. 1に示した。日本海側に面した測定局としてはかに竜飛岬があるが、2007年から2009年に長期欠測があるため、解析の対象から外した。

利尻、佐渡関岬、隠岐ではO₃濃度の測定に堀場製作所製APOA-370 (2017年時点)を用いた。対馬および五島はO₃濃度の測定に、東亜ディーケーケー製GUX313 (2017年時点)を用いた。7日ごとに精製空気 (O₃濃度0.1 ppbv以下)をO₃計へ導入し、ゼロ点の確認を実施した。O₃計は年2回、2次基準器または3次基準器を用いて動的校正が行われた (谷本と向井, 2006)。

2.2 カーブフィッティング法による高濃度事例の抽出方法

日平均O₃濃度($X(t)$)は年単位のトレンド($L(t)$) (以下、トレンド成分)と季節周期をもつ成分($S(t)$) (以下、季節周期成分)と残差($D(t)$)の和として表現できる (Eq. 1)。また季節周期成分はEq. 2のように示され、 n は季節周期、 A_k 、 B_k はフーリエ係数を示す。

$$X(t) = L(t) + S(t) + D(t) \quad (1)$$

$$S(t) = \sum_{k=1}^n [A_k \sin(2\pi kt) + B_k \cos(2\pi kt)] \quad (2)$$

遠隔地域の各測定局で得られたO₃濃度の1時間平均値を用いて2005年1月1日から2017年12月31日までの日平均O₃濃度を求め、カーブフィッティング法からベストフィット曲線を作成した (Nakazawa et al., 1997)。

解析期間全体の $D(t)$ の標準偏差(σ)を求め、 $D(t)$ が 3σ を超える日平均O₃濃度を外れ値として除外した。外れ値を除外した日平均O₃濃度を用いてベストフィット曲線を再び作成した。 3σ を超える外れ値がなくなるまで繰り返し、最終的なベストフィット曲線を決定した。トレンド成分の周期を24、36、48、60か月、季節周期を2、3、4、6か月と変動させ、ベストフィット曲線を描いた。トレンド成分の周期を36か月、季節周期を2か月とした場合、外れ値の数が最小となったため、上記の設定を用いて作成したベストフィット曲線を採用した。

O₃濃度が高いために外れ値となった日平均O₃濃度をO₃ outlierとして定義し、O₃濃度が高くなった原因について解析を行った。また、外れ値以外の日平均O₃濃度はO₃ normalと定義し、O₃ outlierに対する比較の対象とした。

2.3 後方流跡線解析

後方流跡線解析はMeteorological Data Explorer (METEX), National Institute for Environmental Studies Centre for Global Environmental Research (NIES-CGER) (Zeng et al., 2010)を用いて、O₃ outlierとO₃ normalにおける輸送パターンの比較を行った。METEXは客観解析データNCEP Climate Forecast Systemを基礎データとして使い、0.5°×0.5°、鉛直37層の解像度にて等温位法を用いた流跡線解析を行うことができる。測定局の対地高度500 mを起点とし、72時間前までの後方流跡線を取得した。利尻、佐渡関岬、隠岐では2005年1月から2017年12月、対馬では2007年4月から2017年12月、五島では2009年4月から2017年12月までのうち欠測日以外において、3時間ごと、1日8本の後方流跡線から輸送パターンの推定を行った。

北緯10度から北緯60度、東経110度から東経150度の範囲を緯度経度0.2度ごとに領域を6種類 (ロシア、中国東北部、中国中南部、朝鮮半島、日本、海洋) に区分した (Fig. 1)。中国国内におけるNO_x濃度は北京特別区および上海特別区において特に高い傾向が報告され (Li et al., 2017)、VOCsは北京から上海までの区域で特に高い傾向がある (Wu et al., 2016)。そのため、中国東北部として区分した地域に北京を含めるほか、中国中南部へ上海を含めた形で中国を二分するように中国東北部と中国中南部として区分した。モンゴルの一部およびフィリピンが上記の範囲内に含まれるが、遡行時間72時間以内にモンゴルおよびフィリピンを通過する事例が非常に少なかったため、輸送パターンの解析に用いなかった。

後方流跡線解析で得られた1時間ごとの気塊の位置から、各区分に気塊が滞在した時間を求め、海洋を除いた5区分のうち滞在時間が最大と2番目に長い区分の組み合わせを各流跡線の輸送パターンとした。例として、ロシア、中国東北部、日本に気塊が存在した時間の割合が海洋を除いて40、35、25%であった場合、ロシア+中国東北部として分類した。海洋を除いた各区分の割合が25%以下の区分については、輸送中に与える影響が少ないと考え、輸送パターンの組み合わせを考える際に考慮しないこととした。海洋を除いた5区分の割合がすべて25%以下の場合、分類不可とした。

3. 結果と考察

3.1 O_3 outlier の件数

日平均 O_3 濃度に対してカーブフィッティング法を用いてベストフィット曲線を描いた結果をFig. 2に示す。各測定局ともに O_3 濃度は5月に最大となり、8月に最小となる傾向が見られる。と O_3 outlier の件数は各局ともに4-6月が最頻となる傾向が見られた。1-3月、4-6月、7-9月、10-12月の各測定局における O_3 outlier の数をTable 1に示す。同日に O_3 outlier を示した測定局が二つ以上あった事例は、全体の50%であった。隠岐・佐渡関岬や対馬・五島等互いに距離の近い測定局で発生するが多かった。

3.2 O_3 normal の輸送パターンごとの長期トレンドの特徴

カーブフィッティング法から得たトレンド成分から、2005年以降の O_3 濃度変動傾向を求めた。後方流跡線解析を用いて日ごとの輸送パターンを求め、解析期間全体で出現頻度が高い順に5種類の輸送パターンについて年平均 O_3 濃度を求め、トレンド成分との比較を行い、各測定局へ影響を与える輸送パターンの特徴を考察した。

輸送パターンごとの年平均 O_3 濃度とトレンド成分の O_3 濃度をFig. 3に示す。 O_3 濃度の年変動率に対してMann-kendall検定を行い(Hirsch et al., 1982)、変動傾向の有意性を確認した結果、以下のような変動傾向を得た。

カーブフィッティング法のトレンド成分の年変動率は利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島それぞれで -0.55 ppbv/yr ($p < 0.05$)、 -0.33 ppbv/yr ($p < 0.1$)、 $+0.20$ ppbv/yr ($p < 0.05$)、 $+0.20$ ppbv/yr ($p < 0.05$)、 -0.08 ppbv/yr ($p > 0.1$)となり、 O_3 濃度の変動傾向として、西方の隠岐、対馬で増加傾向が見られ、一方で北方の利尻では減少傾向が見られた。

利尻(Fig. 3(a))の場合、破線で示すトレンド成分の変動傾向を細かく見ると2012年までは減少、2015年をピークとする増加傾向が見られ、2015年から2017年に再び減少に転じた。輸送パターンごとに変動傾向を見ると、日本を経由する輸送パターンの場合では2005年から一貫して減少傾向にあり、2005年から2017年の期間における減少量は -0.97 ppbv/yr ($p < 0.05$)であった。一方、日本以外の輸送パターンでは2012年までは減少、2012-2015年は増加する

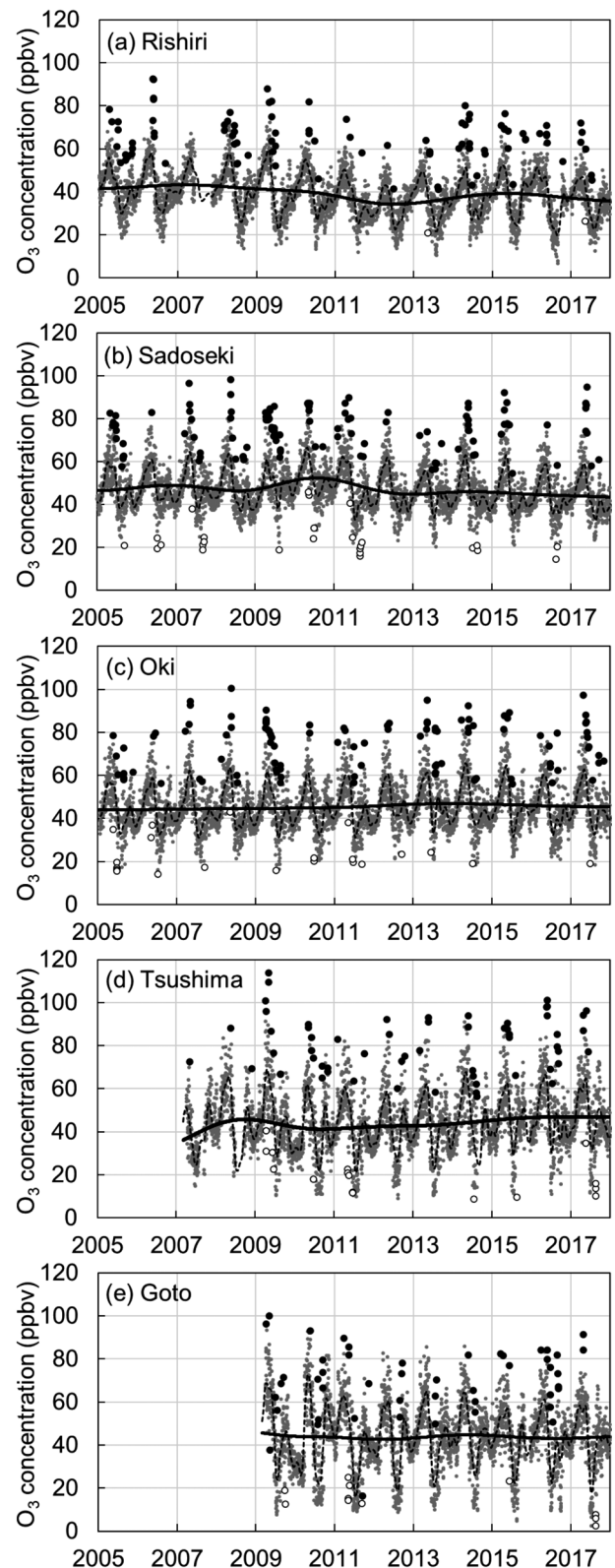


Fig. 2 Daily averaged ozone concentrations measured at (a) Rishiri, (b) Sadoseki, (c) Oki, (d) Tsushima, and (e) Goto. Gray circle shows the daily averaged ozone concentration. Black and open circles show the outlier of the high concentration, and the low concentration each according to the curve fitting method. The dashed and bold lines show the best fit curve and the long-term trend according to the curve fitting method.

Table 1 Number of the high ozone concentration episode in each monitoring site. The number shown in parentheses is the high ozone episode occurred simultaneously in no less than two monitoring sites.

Month	The case of O_3 outlier (number)				
	Rishiri	Sadoseki	Oki	Tsushima	Goto
1-3	7 (0)	5 (1)	6 (2)	2 (2)	3 (1)
4-6	59 (21)	68 (37)	53 (34)	33 (21)	16 (9)
7-9	16 (5)	32 (16)	43 (17)	19 (15)	27 (11)
10-12	9 (0)	2 (1)	3 (1)	4 (0)	1 (0)

傾向が見られる。特に中国東北部を経由する輸送パターンは2012年から2015年の濃度増加が顕著に現れた。トレンド成分と変動傾向が大きく異なっていることから日本を経由する輸送パターンは全体的な年変動率に大きな影響は与えていないことが示された。

佐渡関岬(Fig. 3(b))の場合、トレンド成分の年平均 O_3 濃度についても、各輸送パターンの年平均 O_3 濃度についても明確な変動傾向は見られず、輸送パターンによって変動傾向に違いは見られなかった。

隠岐(Fig. 3(c))の場合、中国東北部を経由した輸送パターンにおいて、 $+0.37$ ppbv/yr ($p < 0.05$)の増加傾向が見られたが、その他の輸送パターンでは明確な変動傾向が見られなかった。中国東北部を経由する輸送パターンとトレンド成分がともに有意な増加を示しているため、特に中国東北部からの輸送の影響を受けている可能性が考えられる。

対馬(Fig. 3(d))の場合、朝鮮半島を経由する輸送パターンで O_3 濃度が高いため、朝鮮半島からの輸送が卓越した場合 O_3 濃度が高くなる可能性が示された。一方、年変動率には明確な増減がなく、 O_3 濃度の年変動に対して強く影響を与える輸送パターンを見いだすことはできなかった。

五島(Fig. 3(e))はトレンド成分の年平均 O_3 濃度についても、各輸送パターンの年平均 O_3 濃度についても明確な変動傾向は見られず、輸送パターンによって変動傾向に違いは見られなかった。

3.3 O_3 normal の輸送パターンごとの季節周期成分の特徴

年平均値と同じく、頻度の高い輸送パターン5種類について各測定局の月平均 O_3 濃度を求め、カーブフィッティング法により抽出した季節周期成分との比較を行った(Fig. 4)。カーブフィッティング法により抽出した季節周期成分は5測定局ともに4、5月に最大、7、8月に最小となった。輸送パターンごとにカーブフィッティング法の季節周期成分を比較し、輸送パターンの特徴を確認したところ、利尻、佐渡関岬、隠岐では輸送パターンごとの季節変動に大きな差はなかった。対馬および五島の暖候期(4-6月、7-9月)では輸送パターンごとの月平均 O_3 濃度に差が大きく、特に7-9月では日本を経由する場合、濃度が低く、中国東北部や朝鮮半島を経由する場合、冬季と同程度の O_3 濃度であった。7-9月は太平洋を経由し日本を通過した気塊が測定局に到達する場合が多く、日本を経由した場合は濃度が低いと考えられる。し

かしながら頻度は少ないものの、大陸側から輸送される場合は O_3 濃度が高なる可能性が示され、7-9月は日ごとの輸送パターンの変化により O_3 濃度が大きく変わる可能性が示された。

3.4 O_3 outlier の輸送パターンの特徴

O_3 outlier に特徴的な輸送パターンを明らかにするために1-3月、4-6月、7-9月、10-12月の3か月ごとに各測定局の O_3 outlier と O_3 normal で輸送パターンの割合の比較を行った。各輸送パターンが占める割合に有意な差があるかZ検定を行った。Fig. 5に利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島における O_3 outlier と O_3 normal の輸送パターンの割合を示す。

O_3 normal の寒冷期(1-3月、10-12月)では、ロシアまたは中国東北部を通過する輸送パターンの割合が多い。北部の利尻はロシアまたはロシアと中国東北部からの輸送が80%以上となった。佐渡関岬、隠岐、対馬、五島では中国東北部を経由する輸送パターンの割合が多くなり、隠岐以南では朝鮮半島を経由する割合が増加する傾向が見られた。また、五島では中国中南部を経由するパターンが20%程度ある等地理的な差が見られた。暖候期は寒冷期と比較して日本を経由する輸送パターンが多くなる。4-6月の日本を経由する輸送パターンの割合は地域差が見られず30%から40%であった。7-9月の日本由来の輸送パターンの割合は、利尻が40%と低いものの、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島で50%以上となっており、主要な輸送パターンとなっていた。

Nagashima et al. (2010)において、CHASER (Sudo et al., 2002)を用いたトレーサー法により中国、朝鮮半島、日本等からの O_3 濃度に対する寄与率が求められている。日本からの寄与は20% (3-5月)、40% (6-8月)と暖候期に高くなる傾向が示され、暖候期の O_3 濃度に対して中国の寄与は12% (3-5月)、10% (6-8月)、朝鮮半島の寄与は5%程度 (3-5月、6-8月)と非常に低い傾向が示された(Nagashima et al., 2010)。トレーサー法による O_3 濃度の寄与率と後方流跡線解析を用いた輸送パターンは暖候期に日本からの影響が増える季節変動を示す点が類似している。

O_3 outlier と O_3 normal における輸送パターンの割合の変化から、 O_3 outlier の輸送パターンの特徴を確認した。3か月間における O_3 outlier の数が極端に少ない場合は、 O_3 outlier の輸送パターンの特徴を把握することが難しい。そのため、3か月間の O_3 outlier が10以下の場合、比較の対象から除外した。

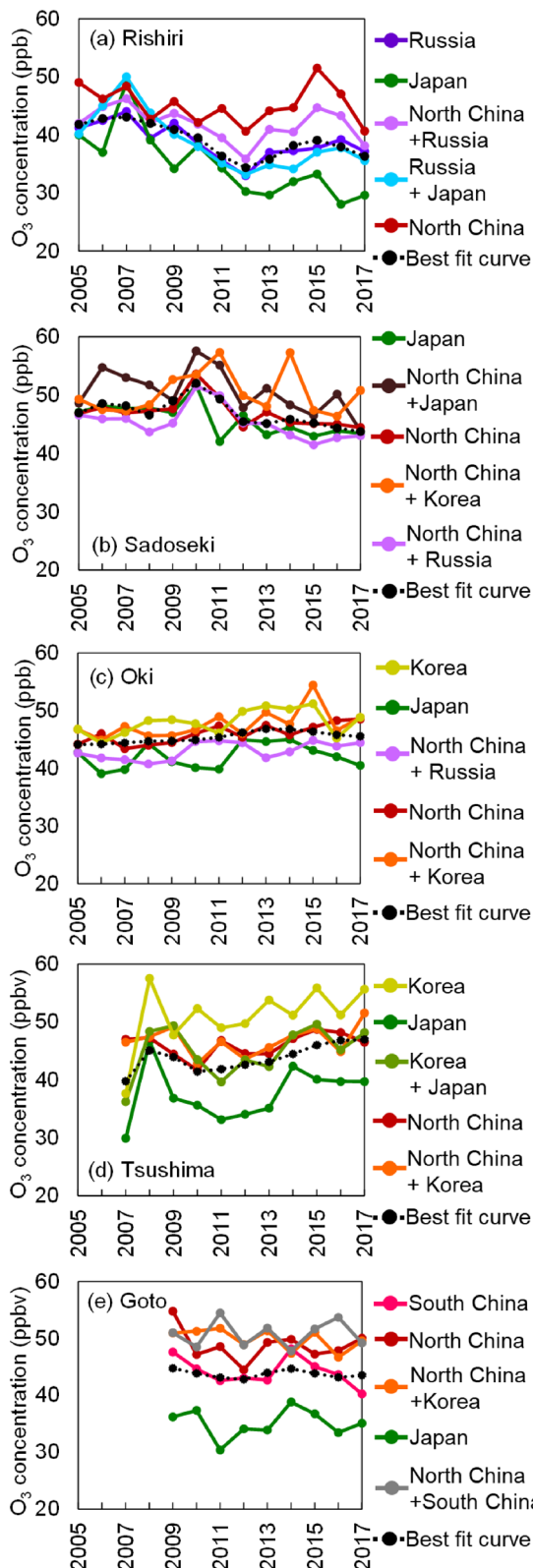


Fig. 3 Annual variations of the ozone concentration of the top 5 transport patterns in frequency in (a) Rishiri, (b) Sadoseki, (c) Oki, (d) Tsushima, and (e) Goto. The annual average is calculated from the daily ozone concentration except for the outlier. The solid lines show the annual concentration in each transport pattern. The annual average calculated from the best fit curve is shown as the dashed line.

利尻の O_3 outlier と O_3 normal との間で有意な差があったものは、4-6月、7-9月の朝鮮半島からの輸送パターンであり、それぞれ O_3 normal と比較して4-6月で+23.4% ($p < 0.01$)、7-9月で+48.0% ($p < 0.01$)の増加が見られた。利尻は日本内の北部にあるため、 O_3 normal において朝鮮半島からの輸送パターンは少ない。 O_3 outlier の特徴として朝鮮半島からの影響が考えられる。

佐渡関岬の O_3 outlier では4-6月の朝鮮半島+日本からの輸送パターンの割合が+13.3% ($p < 0.05$)増加した。 O_3 outlier の特徴として朝鮮半島と日本の影響が考えられる。 O_3 normal の4-6月では日本からの輸送パターンが50%以上あり、 O_3 outlier でも日本および朝鮮半島+日本からの輸送パターンの合計が50%以上となっている。佐渡関岬の O_3 outlier の特徴として日本からの輸送の影響が含まれることがあげられる。

隠岐の O_3 outlier において有意な変動が見られた輸送パターンは、4-6月の朝鮮半島からの輸送パターンが+14.9% ($p < 0.05$)の増加が見られた。7-9月の日本からの輸送パターンが-35.2% ($p < 0.05$)の有意な減少を示し、中国東北部+朝鮮半島からの輸送パターンが+15.0% ($p < 0.05$)の有意な増加が見られた。 O_3 normal の暖候期は日本からの輸送パターンが50%程度あるが、 O_3 outlier では日本からの輸送パターンが減少、朝鮮半島または、中国東北部+朝鮮半島からの輸送パターンへ変化することが明らかになった。暖候期は季節風の関係上、隠岐局へは太平洋側から気塊が輸送されることが多いと考えられる。しかし、大陸側特に西側の朝鮮半島側から気塊が輸送される場合、 O_3 濃度が増加する傾向が見られた。

対馬の O_3 outlier では7-9月の中国東北部+中国中南部からの輸送パターンの割合において+14.7% ($p < 0.05$)の、中国東北部+朝鮮半島からの輸送パターンにおいて+21.3% ($p < 0.05$)の有意な増加が見られた。隠岐と異なり有意な減少を示した輸送パターンはなかった。利尻や隠岐と比較して地理的に西方にある対馬では中国東北部+中国中南部からの輸送パターンに有意な増加が見られ、中国東北部+中国中南部からの気塊の輸送が O_3 outlier の特徴として見いだされた。

五島では O_3 outlier の4-6月、7-9月それぞれにおいて中国東北部+中国中南部からの輸送パターンの割合が+22.1% ($p < 0.05$)、+21.7% ($p < 0.05$)の有意な増加が見られた。また、7-9月では輸送パターンの割合のうち中国中南部が+21.4% ($p < 0.05$)、中国東北部+朝鮮半島が+16.4% ($p < 0.05$)の有意な増加を示した。五島は対馬の南西にあり、対馬、隠岐と比較してさらに中国中南部からの輸送パターンがより増加する傾向が見られた。

過去の研究にて O_3 濃度別の発生源寄与率がソースレセプター解析から求められており、レセプターの O_3 濃度が90 ppbv以上の場合、日本国内からの寄与が50%、中国からの寄与が10%程度、朝鮮半島からの寄与が20%程度あると見積もられていた(Nagashima et al., 2010)。特に朝鮮半島の O_3 濃度に対する寄与率はレセプターの O_3 濃度により大きく変わり、 O_3 濃度が60 ppbv以下の場合無視できる程度であっ

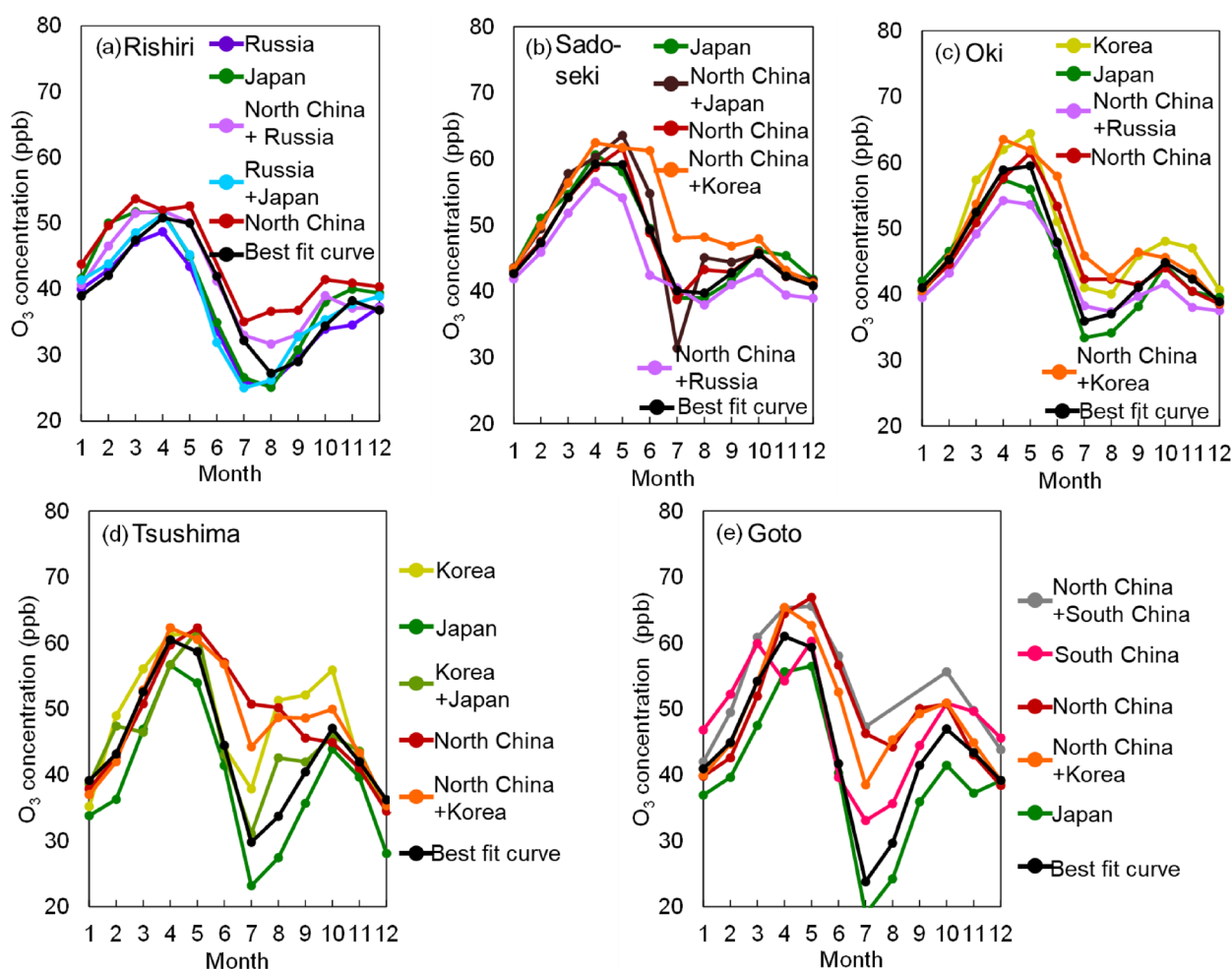


Fig. 4 Seasonal variation of the ozone concentration of the top 5 transport patterns in frequency at (a) Rishiri, (b) Sado-seki, (c) Oki, (d) Tsushima, and (e) Goto. The monthly average is calculated from the daily ozone concentration excluding the outlier. The black line shows the seasonal variation calculated from the best fit curve.

たが、 O_3 濃度が60–90 ppbvの範囲の場合10%超、 O_3 濃度が90 ppbv以上の場合20%程度の影響があると評価された。

後方流跡線から求めた輸送パターンを用いた本解析においても、利尻(4–6月、7–9月)、佐渡関岬(4–6月)、隠岐(4–6月、7–9月)、対馬(7–9月)、五島(7–9月)において朝鮮半島がかかわる輸送パターンの割合が $O_{3\text{ outlier}}$ で有意に増加しており、Nagashima et al. (2010)と同じく、 O_3 濃度が高くなる場合、朝鮮半島からの輸送が重要となる可能性が示された。また、対馬、五島等日本西方の地域に位置する測定局では、中国中南部がかかわる輸送パターンが有意に増加しており、 $O_{3\text{ normal}}$ と比較して中国中南部の影響を強く受ける傾向が示された。

暖候期は太平洋高気圧が日本上空へ張り出しており、南方からの風が卓越しているため、日本からの気塊の輸送が多い。この時期の $O_{3\text{ outlier}}$ は朝鮮半島や中国中南部から気塊が輸送される割合が多く、逆に日本からの輸送パターンの割合は減少している。このことから暖候期においても大陸、特に利尻に対して朝鮮半島からの輸送、対馬や五島に対して中国中南部からの輸送が重要になり、日本国内からの輸送の影響は $O_{3\text{ outlier}}$ において小さいと考えられる。

3.5 測定局近傍での生成から受ける影響

5測定局は近傍に O_3 の前駆物質の発生源が少ない遠隔地域に位置するが、暖候期は日射量が大きく日本本土からの季節風が卓越するため、測定局近傍で O_3 が生成される可能性を考えた。

O_3 濃度の変動が測定局近傍の前駆物質による O_3 の生成、消失過程の影響を受けている場合、日中にピークとなる日内変動を示すと考えられる。日中12時間(7–18時)の最大値 $O_{3\text{ max}}$ と夜間12時間(1–6時および19–24時)の平均値 $O_{3\text{ night}}$ の差 ΔO_3 を $O_{3\text{ outlier}}$ と $O_{3\text{ normal}}$ それぞれで求めた。Fig. 6に利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島における $O_{3\text{ normal}}$ と $O_{3\text{ outlier}}$ の ΔO_3 を示す。

$O_{3\text{ normal}}$ から求めた ΔO_3 は暖候期に大きくなる傾向が見られたが、ばらつきが非常に大きいため、明確な日内変動があると認められなかった。

$O_{3\text{ outlier}}$ の輸送パターンごとに ΔO_3 を求め $O_{3\text{ normal}}$ の ΔO_3 との比較を行った。 $O_{3\text{ outlier}}$ と $O_{3\text{ normal}}$ の ΔO_3 に有意な差が見られたのは、佐渡関岬の4–6月における朝鮮半島+日本からの輸送パターン($p < 0.05$)、五島の7–9月における中国中南部からの輸送パターン($p < 0.05$)であり、 ΔO_3 はそれぞれ2.8–

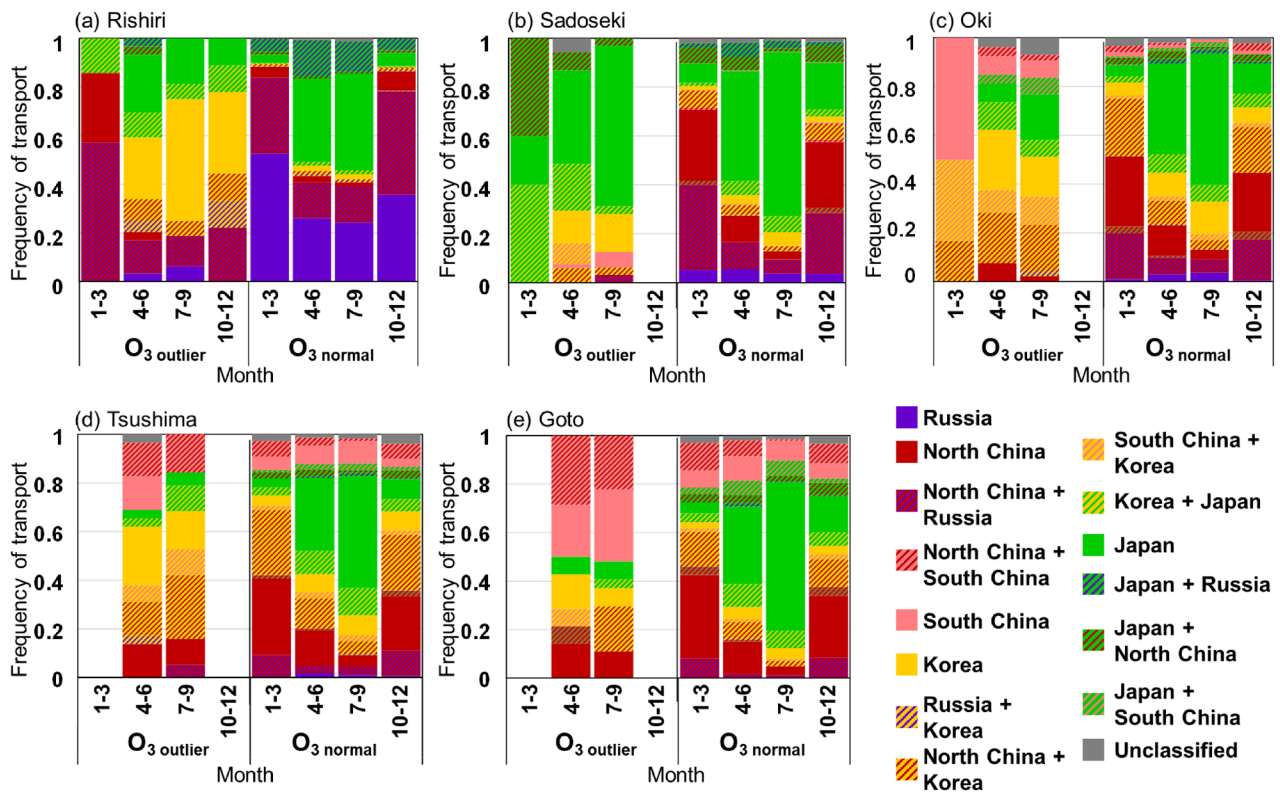


Fig. 5 Frequency of the transport passing from each area to (a) Rishiri, (b) Sadoseki, (c) Oki, (d) Tsushima, and (e) Goto sites. The comparison of the transport pattern calculated using the outlier or all data excluding the outlier.

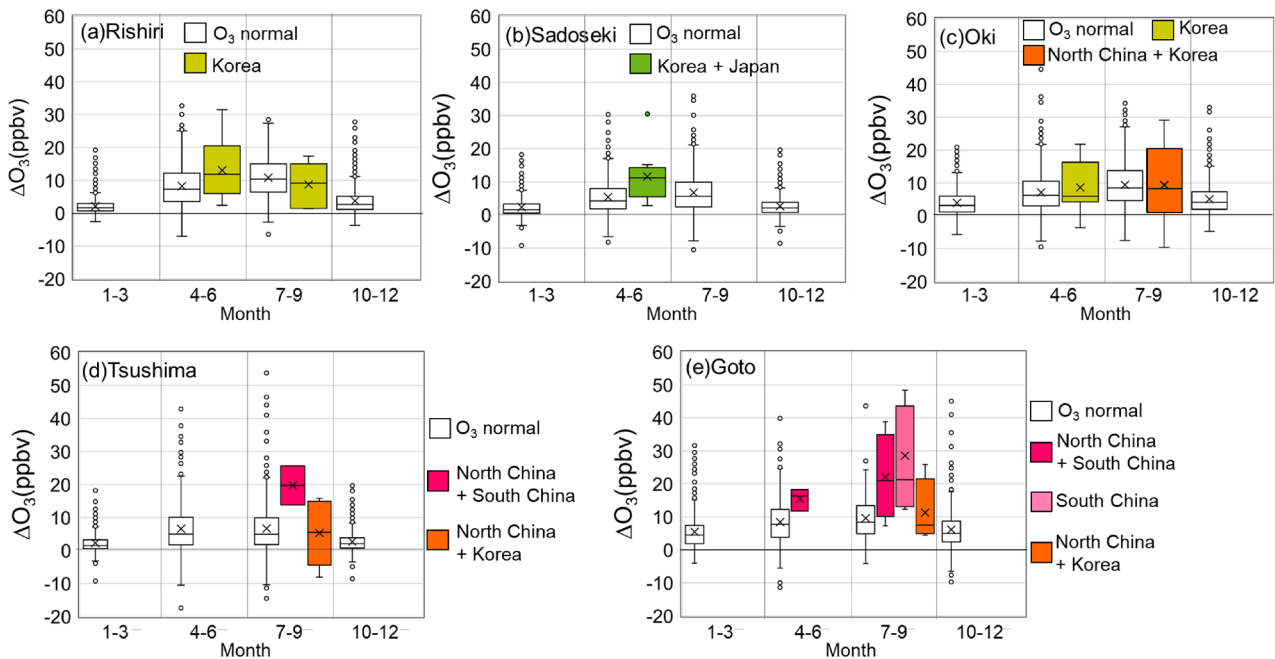


Fig. 6 Comparison of the diurnal increase in ozone concentration between O_3 outlier and O_3 normal at (a) Rishiri, (b) Sadoseki, (c) Oki, (d) Tsushima, and (e) Goto.

30.5 ppbv、12.3–48.4 ppbvの範囲であった。 O_3 濃度の日中最大値に対して ΔO_3 の占める割合は3.1–30.1% (佐渡関岬、朝鮮半島+日本)、16.8–56.4% (五島、中国中南部)の範囲となったため、4–6月の佐渡関岬に対する朝鮮半島+日本、7–9月の五島に対する中国中南部からの影響には近傍での O_3 生成が含まれている可能性が高い。そのためこの2種類につ

いては O_3 outlierの輸送の特徴を考察した上記調査からは除外している。

4. 結 言

EANET測定局および国設局のうち日本海側の利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島の日平均 O_3 濃度に対してカーブ

フィッティングを行い、高濃度の外れ値を O_3 outlierとし、それ以外を O_3 normalとした。 O_3 outlierの原因を排出源と関連した輸送パターン特徴と近傍での生成消失と関連した日内変動の特徴から評価した。

2005年から2017年の間における O_3 normalの年変動率は、利尻で有意な減少傾向が見られ、隠岐、対馬で有意な増加傾向が見られた。後方流跡線解析から得た輸送パターンごとの年変動率では、隠岐における中国東北部を経由した輸送パターンに有意な増加傾向が見られる等、 O_3 normalの変動傾向に対して中国東北部を経由した輸送の影響が大きいことが示された。

O_3 outlierにおける輸送パターンを O_3 normalと比較し、その特徴について明らかにした。 O_3 normalと比較して割合が有意に増加した輸送パターンは、利尻では朝鮮半島(4-6月、7-9月)、隠岐では朝鮮半島(4-6月)、中国東北部+朝鮮半島(7-9月)、対馬では中国東北部+朝鮮半島(7-9月)、五島では中国東北部+朝鮮半島(7-9月)となった。特に利尻の O_3 normalでは朝鮮半島からの輸送パターンはほとんど見られないため、 O_3 outlierの特徴として考えられる。また、対馬では7-9月、五島では4-6月、7-9月の中国東北部+中国中南部を経由する輸送パターンの割合が有意に増加している。利尻、佐渡関岬と比較して西方の地域では O_3 outlierとして抽出された事例で中国中南部の影響が示唆された。

4-6月の佐渡関岬の朝鮮半島+日本を経由した輸送パターンと7-9月の五島の中国中南部を経由した輸送パターンの割合も有意に増加した。しかし測定局近傍での O_3 生成消失過程からの影響の指標として、 O_3 の夜間平均値と日中最高値との差(ΔO_3)を O_3 outlierと O_3 normalで比較したところ、有意な差があったため、 O_3 濃度の増加に対して長距離輸送と近傍での O_3 生成の両方がかわる可能性が示された。

引用文献

- Chang, K., Petropavlovskikh, I., Cooper O. R., Schultz, M. G., Wang, T.: Regional trend analysis of surface ozone observations from monitoring networks in eastern North America, Europe and East Asia, *Elem. Sci. Anth.*, **5**, 5-22 (2017).
- Gu, Y., Wong, T. W., Law, C. K., Dong, G. H., Ho, K. F., Yang, Y., Yim, S. H. L.: Impacts of sectoral emissions in China and the implications: air quality, public health, crop production and economic costs, *Environ. Res. Lett.*, **13**, 084008 (2018).
- Hirsch, R. M., Slack, J. R., Smith, R. A.: Techniques of trend analysis for monthly water quality data, *Water Resources Res.*, **18**, 107-121 (1982).
- IPCC: Climate Change 2013: The Physical Science Basis. In Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change, Cambridge University Press, Cambridge, UK; New York, USA (2014).
- 環境省水・大気環境局, 平成29年度大気汚染状況報告書 (2019).
- Kariisa, M., Foraker, R., Pennell, M., Buckley, T., Diaz, P., Criner, G. J., Wikins, J. R. 3rd: Short- and long-term effect of ambient ozone and fine particulate matter on the respiratory health of chronic obstructive pulmonary disease subjects, *Arch. Environ. Occup. Health*, **70**, 56-62 (2015).
- Li, R., Cui, L., Li, J., Zhao, A., Fu, H., Wu, Y., Zhang, L., Kong, L., Chen, J.: Spatial and temporal variation of particulate matter and gaseous pollutants in China during 2014-2016, *Atmos. Environ.*, **161**, 235-246 (2017).
- Nagashima, T., Ohara, T., Sudo, K., Akimoto, H.: The relative importance of various source regions on East Asian surface ozone, *Atmos. Chem. Phys.*, **10**, 11305-11322 (2010).
- Nagashima, T., Sudo, K., Akimoto, H., Kurokawa, J., Ohara, T.: Long-term change in the source contribution to surface ozone over Japan, *Atmos. Chem. Phys.*, **17**, 8231-8246 (2017).
- Nakazawa, T., Ishizawa, M., Higachi, K., Trivett, N. B.: Two curve fitting methods applied to CO_2 flask data, *Environmetrics*, **8**, 197-218 (1997).
- Network Center for EANET: Acid deposition monitoring network in East Asia (EANET) data report 2017 (2018).
- Rohrer, F., Lu, K., Hofzumahaus, A., Bohn, B., Brauers, T., Chang, C.-C., Fuchs, H., Haseler, R., Holland, F., Hu, M., Kita, K., Kondo, Y., Li, X., Lou, S., Oebel, A., Shao, M., Zeng, L., Zhu, T., Zhang, Y., Wahner, A.: Maximum efficiency in the hydroxyl-radical-based self-cleansing of the troposphere, *Nat. Geosci.*, **7**, 559-563 (2014).
- Sacks, J. D., Rappold, A. G., Davis, J. A., Richardson, D. B., Waller, A. E., Luben, T. J.: Influence of urbanicity and county characteristics on the association between ozone and asthma emergency department visits in North Carolina, *Environ. Health Perspect.*, **122**, 506-512 (2014).
- Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., Akimoto, H.: CHASER: A global chemical model of the troposphere: 1. Model description, *J. Geophys. Chem.*, **107**, 4586 (2002).
- 谷本浩志, 向井人史: 日本におけるオゾン標準とトレーサビリティシステムの構築, *大気環境学会誌*, **41**, 123-134 (2006).
- Wu, R., Bo, Y., Li, J., Li, L., Li, Y., Xie, S.: Method to establish the emission inventory of anthropogenic

- volatile organic compounds in China and its application in the period 2008–2012, *Atmos. Environ.*, **127**, 244–254 (2016).
- Yan, Y., Pozzer, A., Ojha, N., Lin, J., Lelieveld, J.: Analysis of European ozone trends in the period 1995–2014, *Atmos. Chem. Phys.*, **18**, 5589–5605 (2018).
- Zeng, J., Matsunaga, T., Mukai, H.: METEX- A flexible tool for air trajectory calculation, *Environ. Modell. Softw.*, **25**, 607–608, (2010).
- (受稿日2020. 4. 2) (掲載決定日2020. 6. 19)

日本海側の遠隔地域測定局5局におけるO₃高濃度事例の解析

弓場 彬江, 箕浦 宏明

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: 950-2144 新潟県新潟市西区曾和1182

オゾン(O₃)は大気中の酸化剤の一つであるため大気化学反応過程に重要な役割を果たしている。高濃度となった場合、植物や人へ影響が懸念されている。日本およびアジアのO₃濃度は増加傾向にあり、都市域だけでなく遠隔地域においてもO₃の悪影響が考えられるため、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)および国設酸性雨測定所のうち日本海側に面した利尻、佐渡関岬、隠岐、対馬、五島で測定されたO₃濃度(2005–2017年)について、カーブフィッティング法を用いてトレンド成分、季節周期成分、外れ値を抽出した。高濃度の外れ値をO_{3, outlier}、それ以外をO_{3, normal}と定義し、O_{3, outlier}について排出源と関連した輸送パターン特徴と近傍での生成消失と関連した日内変動の特徴について解析を行った。北方の利尻のO_{3, outlier}では朝鮮半島を経由する輸送パターンの割合が増加した。日本の西部に位置する隠岐では、O_{3, normal}において中国東北部を経由する輸送パターンが多いが、O_{3, outlier}では中国中南部および朝鮮半島を経由する輸送パターンの割合が増加した。特に暖候期(4–6月、7–9月)における輸送パターンの変化がO₃濃度に対して影響を与える可能性が示された。