

〔特集〕地球環境

降水組成の地理分布と経年変化にみる 東アジア発生源の遷移

*電力中央研究所 名誉研究アドバイザー

藤田 慎一†

Horizontal Distributions and Temporal Variations in the Chemical Composition of Precipitation with Changes in Emissions over East Asia

Shin-ichi FUJITA, Research Advisor Emeritus, Central Research Institute of Electric Power Industry

1 はじめに

最近「越境大気汚染」という用語が、日本のマスメディアを賑わすようになった。他国で排出された汚染物質が、国境を越えて輸送されることで発現する大気汚染を言う。海をわたって中国から微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の到来が伝えられた2013年1月の騒動は、記憶に新しい。

だが越境大気汚染という概念は、昨日今日に生まれたものではない。1970年代から1980年代にかけて、ヨーロッパや北アメリカで大きな国際問題になった「酸性雨」がその原形であり、前史を含めると優に半世紀におよぶ経緯がある。原因（先駆）物質は、二酸化硫黄 (SO₂) と窒素酸化物 (NO_x) の二つであり、「長距離越境大気汚染条約」の締結をめぐって、ヨーロッパを中心にながい国際論争が繰り広げられた¹⁾。

日本の酸性雨は1970年代のなか頃、関東地方で「湿性大気汚染」として出発し、当初は地域規模の大気汚染と考えられた。1980年代のおわりになると、生産活動の進展が著しい東アジア、とくに中国の酸性雨に、国内外の関心が集まるようになる。だが2000年代になると、酸性雨がマスメディアに登場する機会は減ってきた。

では、酸性雨の問題が解決したから、聞かれなくなったのだろうか？

そうではあるまい。研究がある程度まで成熟して、国境を越えた環境問題という認識が定着し、地域社

会がこの問題に対して冷静になった。2001年1月には、国連環境計画 UNEP の傘下に、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク EANET が本格的な稼働を開始する。広域モニタリングのスタートは、こうした意味で問題の終点ではなく、息の長い地道な取り組みの始点だった¹⁾。

そしてSO₂やNO_xにとどまらず、オゾン、エアロゾル、黄砂、農薬、重金属、水銀、火山ガス、火災煙、微生物、放射性物質……と、およそアジアに発生源をもつあらゆる物質が、広域的な輸送現象と複雑に関係していることが明らかになってきた。

2 酸性雨から越境大気汚染へ

EANET の活動が軌道にのり、酸性雨から越境大気汚染へ視野が広がった現在、アジアの大気汚染の研究は、新しい時代に入ろうとしている。

本稿では東アジアの降水組成の地理分布を俯瞰し、原因物質の排出量の変化が、この地域の大気や降水の「質」にどう関与してきたかを語っていく。それに先だって、大気汚染と環境影響との関係を簡単に述べておこう。

図1は原因物質の排出域と酸性物質の受容域との関係を模式的に示したものである²⁾。両者を介する大気圏には、移流・拡散、変質、沈着・除去の三つのプロセスが並行している。

移流・拡散とは、大気中に排出されたガス状・粒子状の汚染物質が上層の風によって運ばれ、濃度の濃淡が均らされていく現象である。

変質とは、ガスや粒子が大気中でその物理的・化

*〒194-0041 東京都町田市玉川学園 4-2-18

† E-mail: fujiz-4989@sweet.odn.ne.jp

学的な様態を変えていく現象である。

沈着・除去とは、ガスや粒子が大気中から除去され、地表面に舞い戻る現象である。このなかで雨や雪や霧や雲などの「雨冠」に取り込まれて沈着するものを「湿性沈着」、雨冠とは直接の関係がなく、ガスや粒子の形で沈着するものを「乾性沈着」とよぶ。

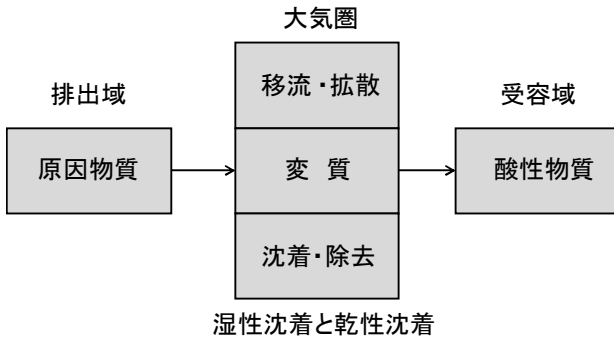


図1 原因物質の排出域と酸性物質の受容域の関係

排出域のごく近傍では、移流・拡散の効果をもっとも重要である。ところが汚染物質の輸送範囲が拡大するにつれて、移流・拡散よりも変質の効果が、そして沈着・除去の効果がより重要になっていく。

以上の各過程をへて、大気圏の最下層における濃度や沈着量の地理分布と時間変化とがきまり、それがそこに存在する環境要素が許容する閾値を越えたとき、土壌や陸水の酸性化、森林の衰退、構造物の劣化や腐食といった被害が顕在化する。粒子状物質の場合は、呼吸器系や循環器系の疾病の発現が懸念される。これが国際問題となり得るのは、排出域と受容域との間には、しばしば数百 km 以上の距離のへだたりがみられるからである。

個々の方法論の違いはあるにせよ、従来の大気環境の研究の進め方は、物理と化学のさまざまな解析結果を積み上げて、現象の全体像の組み立てを目指したものである。これをボトムアップ方式とよんでもよい。

ところが今世紀になると、人工衛星による地球環境の監視や、化学（広域）輸送モデルによる物質輸送の予報が可能になった。いわばトップダウン方式で大枠をおさえておいて、それから細かい配分を議論することも可能になったわけである。ボトムアップ方式とトップダウン方式との共存が可能になったといつてよい。

では降水のモニタリングは、その役割をおえたのだろうか？

そうではあるまい。広域モニタリングの役割は、

汚染物質の広域輸送や環境影響を評価するため、基礎データを提供することにある。観測と計算と評価とは、当然、整合のとれたものであらねばならない。湿性沈着量と乾性沈着量の正確な評価がいかに重要かは、2011年3月の大震災をきっかけに、大きな社会的関心を集めるようになった放射性物質を例にとればよくわかる。

降水のモニタリングは、汚染物質の輸送過程を定量化するうえでも重要な観測データを提供する。さまざまな発生源から大気中へ排出された汚染物質は、沈着・除去の過程をへて、はじめて物質循環が完結するからである。

だがSO₂やNO_xの広域輸送を考えていく限り、「酸性」の雨に拘泥する必然性はなくなった。水・物質循環系という大枠のなかで、さまざまな汚染物質もあわせて、排出から沈着までのプロセスを追跡、あるいは遡上する方が現実的なのである。研究の対象も核形成や雲過程や有機物などに広げていくべきである。現に日本では、この線に沿った研究がすでに始まっている。

3 原因物質の発生源と排出量の推移

石炭、石油、天然ガスなどの化石燃料を燃焼すると、代表的な温室効果ガスである二酸化炭素(CO₂)が生成され、同時にSO₂やNO_xなどの汚染物質が大気中に排出されて、環境問題を引き起こす原因となる。

だが原因物質の発生源は、化石燃料の燃焼に限られるわけではない。地球規模での硫黄化合物の発生源には、化石燃料の燃焼に伴うSO₂と硫酸塩(SO₄²⁻)のほか、バイオマス燃焼、海域と陸域の生物活動、火山活動（日本列島では最も重要）などがある。形態としては硫化ジメチル(CH₃SCH₃; DMS)、二硫化ジメチル(CH₃S₂CH₃; DMDS)、硫化水素(H₂S)、二硫化炭素(CS₂)、硫化カルボニル(COS)などがある。

一方、地球規模での活性窒素種NO_yのおもな発生源には、化石燃料の燃焼に伴うNO_x(=NO+NO₂)のほか、バイオマス燃焼、土壌中の生物活動、ジェット航空機、成層圏からの輸送、アンモニアの酸化、雷放電などがある。形態としては五酸化二窒素(N₂O₅)、硝酸(HNO₃)、硝酸塩(NO₃⁻)、ペルオキシシアシルナイトレート(PANs)などがある。

図2は、オランダ環境アセスメント庁PBLのデータベースEDGAR v4.2³⁾をもとに、1970年から

2008 年の期間の全球規模での人為起源の NO_x と SO_2 の排出量と、それらに占めるアジア（東アジア + 東南アジア + 南アジア）の割合（黒丸印）の推移を示したものである²⁾。

2010 年現在のアジアの人口は、世界の総人口 69 億人の約 57% を占める。2008 年現在の年間の NO_x 排出量は約 122 Tg y^{-1} (T: テラ = 10^{12})、 SO_2 排出量は約 125 Tg y^{-1} と見積もられる。 NO_x 排出量は経年的にやや増加の傾向にあり、1970 年には約 14% に過ぎなかったアジアの占める割合は、1994 年には約 25%、2004 年には約 30% に達した。

これに対して SO_2 排出量は経年的にやや減少の傾向にあり、1970 年には約 15% に過ぎなかったアジアの占める割合は、1993 年には約 30%、2008 年には約 50% に達した。そして東アジアには、ヨーロッパや北アメリカを凌駕する最大の SO_2 発生源が誕生しつつある、というのが一般的な見解だった。

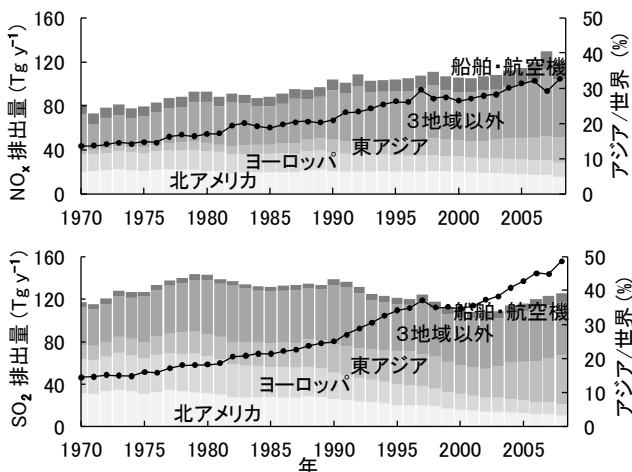


図2 世界規模での NO_x 排出量（上段）、 SO_2 排出量（下段）と、それらに占めるアジアの割合の推移

ところが最近になると、中国の SO_2 排出量はそれほど増加していない。2000 年代のおわりには、脱硫装置の導入などにより、頭打ちないし減少に転じたのではないかとされるようになった^{4,5)}。

大気環境の分野における新しい試みは、衛星観測から地球全体あるいはアジア規模の汚染物質の排出量の地理分布や経年変化が、視覚的にとらえられるようになったことである。Itahashi et al.⁶⁾ は、アメリカ航空宇宙局 NASA の地球観測衛星 Terra に搭載された分光放射計 MODIS のデータをもとに、微小モードのエアロゾルの光学的深さ AOD の経年変化を解析した。

2000 年から 2005 年にかけて AOD は増加してお

り、これは化学輸送モデル RAMS/CMAQ による光学的深さの計算結果や、アジア地域の排出インベントリ REAS による SO_2 排出量の推計結果⁷⁾ ともおおむね一致する。一方で放射観測による AOD は、2005 年から 2010 年にかけて減少しているが、これは REAS の傾向とも整合しており上記の推定を裏付ける。このように中国の SO_2 排出量は、次第に低下していくとみられる。

一方、 NO_x 排出量の経年変化については、同じ NASA の地球観測衛星 Aura に搭載されたオゾンモニタリング機器 OMI のデータを解析した報告がある^{8,9)}。その結果によると、中国の NO_x 排出量は 2011 年ころをピークにやや低下した形跡があるという。この問題は終章で再考する。

4 東アジアの酸性雨

第2章で述べたように、大気汚染物質の沈着・除去のメカニズムは複雑である。だが沈着フラックスの測定に限っていえば、湿性沈着は乾性沈着よりも容易である。雨滴は重力の作用により文字どおり降ってくるわけだから、適当な採取器を用いて試料を集めて成分濃度を求め、これに降水量を乗ずれば評価できる。降下塵の混入を防ぐためには、雨滴を感じて自動開閉するふたを漏斗の上部に取り付けばよい。こうしたタイプの降水採取器は、ウェットオンリーサンプラーとよばれ、酸性雨のモニタリングでは国際的な標準とされている。

一般に降水の化学成分は、海塩起源と非海塩 (-nss) 起源の二つに分けられる。海塩起源のイオン成分のなかで大きな割合を占めるのは、ナトリウム (Na^+) と塩化物 (Cl^-) であり、非海塩起源のイオン成分のなかで大きな割合を占めるのは、カルシウム (nss-Ca^{2+}) とアンモニウム (NH_4^+) と硫酸 (nss-SO_4^{2-}) と硝酸 (NO_3^-) である。海塩起源と非海塩起源の割合は地理的・季節的に変化し、とくに冬季の日本海沿岸では、海塩起源の成分の占める割合は全量の 90% 以上に達する。

降水の酸性化に関与する成分は、非海塩起源のものであり、pH は酸と塩基の濃度のバランスによってきまる。ここでは降水にもともと含まれていた酸の濃度を、 nss-SO_4^{2-} 濃度と NO_3^- 濃度の和 AC に対応するものとする。この降水に塩基性のダストやアンモニアが取り込まれると、酸の中和にあずかるわけだが、その濃度は nss-Ca^{2+} 濃度と NH_4^+ 濃度の和 NC に対応するものとする。

酸と塩基の濃度の差が水素イオン (H^+) 濃度であ

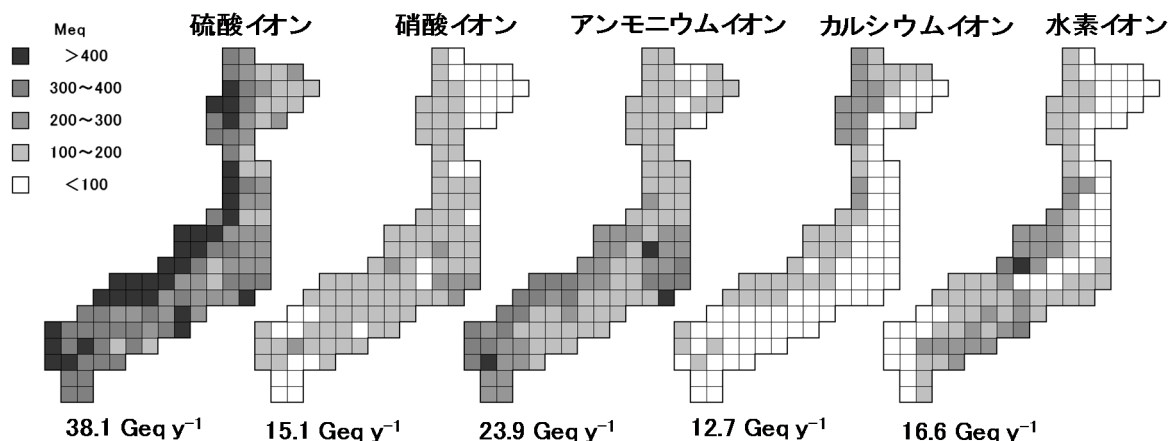


図3 日本列島における非海塩起源のイオン成分の湿性沈着量の分布

り、その常用対数をとって負号を付したものがpHである。nss-SO₄²⁻濃度とNO₃⁻濃度の和の常用対数をとって負号を付した値をpAiと定義すれば、これは中和がまったくなかったときの「潜在的」な酸性度に相当する¹⁰⁾。

図3は広域モニタリングの結果¹¹⁾をふまえて推計したnss-SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺、nss-Ca²⁺、H⁺(=AC-NC)の湿性沈着量の地理分布である²⁾。各成分の湿性沈着量には、つぎのような特徴が見出される。

nss-SO₄²⁻湿性沈着量は、寒候季(10月~3月)の日本海側と、暖候季(4月~9月)の西日本地域で相対的に多い。寒候季にみられる沈着量の増加には、域外からの物質輸送が関係しており、暖候季にみられる沈着量の増加には、桜島など火山の噴煙が影響している。

NO₃⁻湿性沈着量は、寒候季の日本海側と暖候季の関東地方で相対的に多い。寒候季にみられる沈着量の増加は、nss-SO₄²⁻湿性沈着量と同じであり、地理分布のパターンもだいたい一致している。

NH₄⁺湿性沈着量は、寒候季の日本海側と暖候季の西日本地域と関東地方が多い。一般にNH₃排出量は気温との相関が高く、夏季に大気中の濃度は増加する。

nss-Ca²⁺湿性沈着量は、寒候季の日本海側で多く、年間を通して太平洋側で少ない。中央山脈の南側と北側の沈着量の地理分布の違いは明瞭であり、また分布の中心はnss-SO₄²⁻やNO₃⁻よりやや北方に偏っている。

以上の結果としてH⁺湿性沈着量は、北陸を中心とした日本海側(寒候季)と、四国から東海を中心とした太平洋側(暖候季)の双方に分布の中心をも

つようになる。沿岸海域を含む日本全域への年間の湿性沈着量は、ACが約53.2 Geq y⁻¹、NCが約36.6 Geq y⁻¹である。その差をH⁺湿性沈着量に読み替えると約16.6 Geq y⁻¹であり、沿岸海域を含めた日本全域の面積でこれをわると、単位面積あたりの年間の湿性沈着量は約23.1 meq m² y⁻¹となる。この値はヨーロッパや北アメリカで1980年代に報告された湿性沈着量と大きな違いはない。

H⁺湿性沈着量を日本の年平均降水量1587 mm y⁻¹でわって平均濃度を求め、対数をとって負号を外すと約4.83になる。この値は同じ年代に日本で観測された降水のpHの年平均値4.81にほぼ等しい。つまり日本列島の降水の酸性度は、上記四つの成分によってほぼ支配されていることが、列島規模の降水成分の収支解析でも裏付けられた¹¹⁾。

図4は東アジア地域を対象に、ACとNCの年平均値の分布を調べたものである²⁾。実線は両者の差で規定したpHの等値線である。

華北にある北京や済南のnss-SO₄²⁻濃度やNO₃⁻濃度は高い。だがnss-Ca²⁺濃度やNH₄⁺濃度も同じように高い。これは塩基性のダストやアンモニアが、定常的に大気中に供給されており、雲内あるいは雲より下層で降水要素に取り込まれていることを意味する。東アジアで最大のSO₂排出域は、渤海湾から黄海を囲む沿岸地域にある。観測地点はその後背に位置するが、酸を中和する成分が十分にあるため、年間を通して酸性度の強い雨は降ってない。北京の降水の潜在的な酸性度pAiの年平均値は約3.6だが、実際に測定されたpHの年平均値は約6.1である¹²⁾。

太平洋上にある八丈島や奄美大島のnss-SO₄²⁻濃

度や NO_3^- 濃度は低い。だが nss-Ca^{2+} 濃度や NH_4^+ 濃度はさらに低い。観測地点は渤海湾と黄海を囲む海域から 1600 km 以上離れている。だが酸を中和する成分がほとんどないから、年間を通して酸性度の強い雨が降るようになる。八丈島の降水の pAi の年平均値は約 4.5 だが、実際に測定された pH の年平均値は約 4.7 であり、両者の差は相対的に小さい¹²⁾。

AC に対する NC の比は、中国大陸で最も大きく、朝鮮半島、弧状列島、北太平洋と南東に下るにしたがって次第に小さくなる。つまり AC より NC の方が、発生源からの距離に対する減衰率は大きい。これは NC を構成する塩基性の物質と、AC を構成する酸性ガスやそれに由来する粒子との間には沈着・除去の効果、たとえば洗浄係数や沈着速度に違いがあることを意味する。各物質の洗浄係数は気象条件、たとえば暖候季と寒候季の降水雲の違いと関係することもうかがわれる¹²⁾。

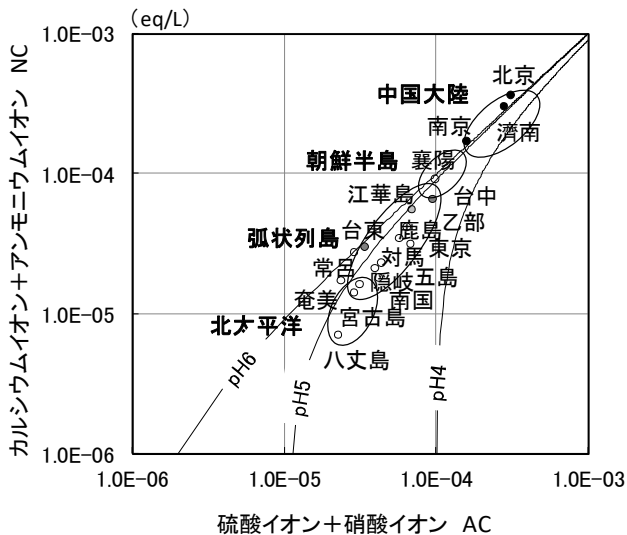


図4 東アジアにおける降水の AC と NC との関係

東アジアの降水量の分布を概略的にみると、ストームトラックの西縁にあたる本州南岸から三陸東沖で最も多く、日本列島の西岸を特異点にして、大陸北西部の乾燥地帯で最も少ない。

一方、西日本の上層 850 hPa に到達した気塊の流跡をみると、北太平洋の亜熱帯高気圧からの南風が優勢な暖候季には、太平洋や東シナ海などさまざまな方面から到達するものがみられる。これに対してシベリア高気圧から北西風が吹き出す寒候季には、大陸から東シナ海をへて到達するものが卓越する。12 月から 2 月の気塊の搬送距離はとくに長い。

こうした降水量と風系の季節変化は、原因物質の発生源の分布と相まって、東アジアの降水の水質の

形成に大きく関係していると推察される¹²⁾。

5 降水成分の濃度の長期的な変化

降水成分の濃度の長期的な変化には、経年変化、季節変化、降水量の影響などに観測誤差を加えたさまざまな要因が重なっている。このなかで経年変化を支配する要因としては、まず原因物質の排出量の変化があげられる。

では日本列島における降水成分、とくに nss-SO_4^{2-} と NO_3^- の濃度や沈着量は、東アジアの生産活動の遷移に対応して、どのような変化をたどってきたのだろうか。沈着量の経年変化については、広域輸送モデルを用いた解析結果がいくつか報告されている¹³⁻¹⁵⁾。このなかで片山ら¹³⁾は、 nss-SO_4^{2-} 湿性沈着量は 1999 年から 2003 年の期間に全国規模で増加したことを示し、越境大気汚染の拡大によるものではないかと推定した。

観測事実としてはどうなのか。降水の nss-SO_4^{2-} 濃度や NO_3^- 濃度の経年変化については、解析結果がいくつか報告されている¹⁶⁻²⁰⁾。このなかで環境省¹⁹⁾は、日本の 31 地点における 1991 年から 2010 年の長期的な傾向を解析し、 nss-SO_4^{2-} 濃度は 1999 年まで減少し、2000 年に増加したのち横ばいで推移した。 NO_3^- 濃度は、変動はあるものの 2004 年までほぼ横ばいで推移し、2005 年以降は増加の傾向を示したと結論している。

このように成分濃度の変化をみただけでは、明瞭な傾向を見出すことはなかなか難しい。濃度と降水量との間には、おおむね反比例の関係が成り立つ。したがって降水量の年々変動の影響は無視できない。濃度に降水量を乗じて湿性沈着量に換算したときには、両者が相殺する方向に働く。したがって変化は緩慢になる可能性がある。

降水の質的な変化を解析する際には、 nss-SO_4^{2-} に対する NO_3^- の当量濃度比がしばしば用いられてきた。降水量の年々変動の影響が無視できること、 SO_2 に対する NO_x の排出量比に対応できることがその利点である。ここでは、岩手県大船渡市（気象庁）、東京都狛江市（電中研）、長崎県五島市（電中研、環境省）における 20 年間以上の観測データを用いて、 $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比の経年変化の実態を調べてみよう²¹⁾。

図 5 は、上記 3 地点における濃度比の経年変化を示す²⁾。2本の鎖線は東アジア地域における NO_x/SO_2 排出量比の推移^{7, 22)}、灰色の実線は後述する西日本地域における濃度比の経年変化である。1980 年代の

なか頃まで 0.25 前後で推移してきた NO_x/SO_2 排出量比は、1980 年代のおわりから年率約 1.0 % の割合で増加を始め、2000 年には約 0.40 に達した。

大船渡における濃度比は 1970 年代には 0.40 以下だった。だが 1980 年代のはじめから、年率 1.8 % の割合で増加を始め、1999 年の濃度比は約 0.65 に達した。三宅島が噴火した 2000 年に濃度比は半減し、変化の傾向は明瞭でなくなった。

五島における $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比も、1980 年代から 1990 年代にかけて年率 1.4 % の割合で増加して 2000 年には約 0.50 に達した。1990 年代の大船渡と五島の濃度比の増加率は、東アジア地域の NO_x/SO_2 排出量比の増加率に近い。三宅島から約 1000 km 離れた五島では、噴火の影響は認められない。2000 年代になると濃度比の増加は頭打ちになり、0.45 から 0.55 の範囲で推移してきた。

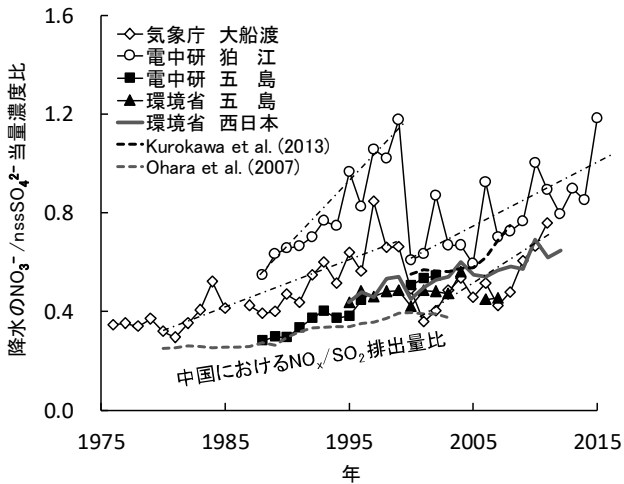


図 5 日本列島における降水の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比と、中国における NO_x/SO_2 排出量比の推移

一方、狛江における $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比は、1980 年代から 1990 年代にかけて年率 5.3% の割合で急激に増加し、1999 年には 1.20 に達した。これは年率 7.0% と見積もられる同じ期間の日本の NO_x/SO_2 排出量比の増加率¹⁶⁾に近い値である。狛江の濃度比は、首都圏の大気中で生成された HNO_3 の影響を受けた可能性が高い。だが 2000 年の三宅島の噴火の影響を受けて濃度比は半減し、変化の傾向は明瞭でなくなった。

狛江と大船渡におけるその後の濃度比は、噴火の影響が緩和された 2000 年代のなか頃から小さな増減を繰り返しつつ増加してきた。これは統計的にも有意である。2015 年の狛江の濃度比 1.18 は、濃度比

が最大だった 1999 年に近い値である。

6 顕在化しつつある降水の質的变化

中国における SO_2 排出量は、2000 年代のおわりには頭打ちから減少に転じた。こうした排出量の変化と関連して興味をもたれるのは、最近の日本列島の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比には、何らかの変化が認められないかどうか。 SO_2 排出量が頭打ちになり、 NO_x 排出量が増加し続けた場合には、濃度比は増加する可能性があるからである。

図 6 は、環境省²³⁾の観測データをもとに、2003 年から 2007 年まで 5 年間の降水の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 平均濃度比の地理分布を調べたものである²⁾。斜線を施した部分は、濃度比が全 31 地点の平均値 0.53 よりも大きな領域である。濃度比は太平洋側と日本海側を含めた中央域で大きく、北東域と南西域で小さいことがわかる。太平洋沿岸の濃度比は全般に大きい。これは国内の NO_x 発生源の影響を受けて NO_3^- 濃度が高くなるためである。九州に濃度比が小さい地点が複数認められるが、これは火山活動の影響を受けて nss-SO_4^{2-} 濃度が高くなるためである。

同様にして環境庁¹⁹⁾の観測データをもとに、2008 年から 2012 年まで 5 年間の平均濃度比を計算して、前 5 年間に対する増加率を調べると、濃度比は日本列島の広い地域で増加しており、増加率が 10% を越える地点は北海道から山陰にいたる日本海の沿岸地域に集中することがわかった。

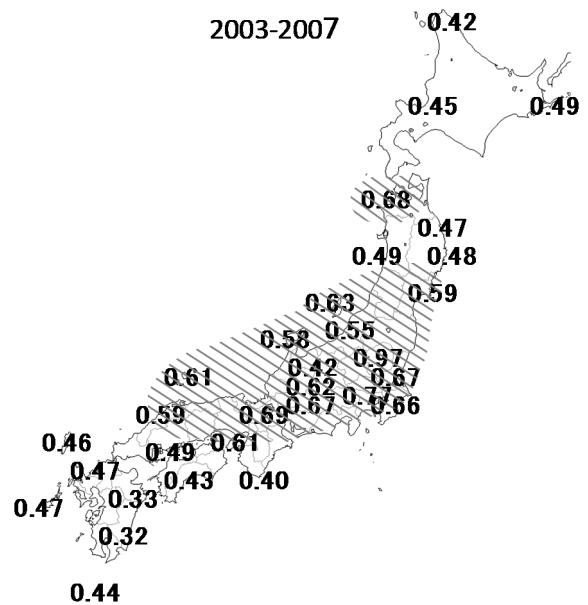


図 6 日本列島における降水の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比の地理分布

五島の観測地点は 2009 年 3 月をもって休止に至ったため、西日本地域の複数の地点における最近の $\text{NO}_3^-/\text{nssSO}_4^{2-}$ 濃度比の変化をもう少し詳しく調べてみた。図 5 には、五島における濃度比の変化（黒角印）に、隠岐、蟠竜湖、筑後小郡、対馬の 4 地点における平均濃度比の変化（灰色の実線）を重ねてある²⁾。

1980 年代から 1990 年代にかけて年率 1.4 % の割合で増加した濃度比は、2000 年代になるとほぼ頭打ちになり、0.5 前後の値で推移してきた。この濃度比は 2005 年頃からやや増加に転じており、その傾向は隠岐と蟠竜湖で顕著である。

このように日本列島における降水の $\text{NO}_3^-/\text{nssSO}_4^{2-}$ 濃度比は、2000 年代のなか頃にやや増加に転じた形跡がある。そしてその傾向は、日本海の沿岸地域で寒候季に顕著である。もしこうした濃度比の変化が、東アジア地域における排出量の変化と関係したものなら、その理由としては NO_x 排出量の増加、あるいは SO_2 排出量の減少、さらにはその両方が関係しているのではないかと考えられる。

観測データの解析のみから、これら三つの仕分けを行うことは難しい。モデル計算の援用は不可欠だが、最近 Itahashi et al.^{24, 25)} は、化学輸送モデル RAMS/CMAQ と排出インベントリ REAS を用いて、日本列島における降水の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比の経年変化を再現した。

その結果、(1) 2005 年あたりから濃度比に増加の傾向が認められること。(2) 日本列島の濃度比と中国の排出量比の変化はよく対応すること。(3) 濃度比の変化には NO_x 排出量の増加と SO_2 排出量の減少の両方が関係しており、両者の寄与はおおむね同程度のこと。(4) 濃度比の増加の傾向は、中国や韓国の EANET モニタリング地点でも認められることを示した。

鶴野ら²⁶⁾によれば、中国の中東(CEC)領域から排出された窒素酸化物は、暖候季には全体の約 60% が域内に乾性・湿性沈着する。これに対して寒候季には、域外に水平輸送されるものが全体の約 2/3 に達する。

既往の発生源寄与率の解析では、日本列島における nss-SO_4^{2-} 沈着量は国外発生源の影響が大きく、 NO_3^- 沈着量は国内発生源の影響が大きいというのが定説だった²³⁾。ここで述べた観測と解析の結果は、窒素酸化物が関与した降水の質的な変化が、北東アジアを覆う広域規模の現象であることを示唆している。

7 おわりに

本稿では、降水組成の地理分布と経年変化にみる東アジア発生源の遷移について述べてきた。最後になるが第 3 章で述べたように、中国における NO_x 排出量が頭打ちあるいは減少に転じたのが事実なら、日本列島の降水の $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比は、今後どのような変化をたどるのだろうか。

たいへん興味ある問題だが、現在のところ明確な結論を得るには至っていない。 NO_x 排出量が頭打ちになった原因として、前記の論文^{8, 9)}では経済成長の鈍化、火力発電電力量の低下、脱硝装置の普及、燃焼技術の改善などの可能性をあげている。つぎのステップとして、 NO_x 排出インベントリの積み上げと、両者の対応をふまえた原因の特定が必要である。

排出インベントリが至近年まで更新されたとき、化学輸送モデルを用いた $\text{NO}_3^-/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 濃度比の再現計算は、この問題に対して有力な情報を提供することになる。

だが観測データの解析をふまえて、統計的に有意な濃度比の経年変化を導くためには、数年程度のデータの蓄積では不十分である。経年変化の実証は、トップダウン方式とボトムアップ方式との整合の確認をへて、はじめて成就される問題である。長期にわたる地道な降水のモニタリングが、越境大気汚染を監視していくうえで重要なゆえんである。

多くの人々が地球環境の保全に共感を覚えるなかで、環境省の五島のモニタリングは 2009 年 3 月をもって、また気象庁の大船渡のモニタリングは 2011 年 12 月をもって休止に至った。将来の展望が読めない残念な施策だったと言わねばなるまい。

引用文献

- 1) 藤田慎一：酸性雨から越境大気汚染へ（成山堂書店, 2012）63-89.
- 2) 藤田慎一、三浦和彦、大河内博、速水 洋、松田和秀、櫻井達也：越境大気汚染の物理と化学（成山堂書店, 2014）1-5, 7-20, 186-203.
- 3) PBL: Emission database for global atmospheric Research(EDGAR).<http://themasites.pbl.nl/tridion/en/themasites/edgar/introduction/index-2.html> (2011)
- 4) Lu, Z., Street, D.G.: Sulphur dioxide and primary carbonaceous aerosol emissions in China and India, 1996-2010, Atmos. Chem. Phys., 11 (2011) 9839-9864.
- 5) EANET: *The Second Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia. Part 1* (2011) 191-2002.

- 6) Itahashi, S., Uno, I., Yumimoto, K., Irie, H., Osada, K., Ogata, K., Fukushima, H., Wang, Z., Ohara, T.: Inter annual variation in the fine-mode MODIS aerosol optical depth and its relationship to the changes in sulfur dioxide emissions in China between 2000 and 2010, *Atmos. Chem. Phys.*, 12 (2012) 2631-2640.
- 7) Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., Hayasaka, T.: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2000, *Atmos. Chem. Phys.*, 7 (2007) 4419-4444.
- 8) Krotkov, N.A., McLinden C.A., Li, C., Lamsal, L.N., Celarier, E.A., Marchenko, S.V., Swartz, W.H., Bucsela, E.J., Joiner, J., Duncan, B.N., Boersma, K.F., Veeffkind, J.P., Levelt, P.F., Fioletov, V.E., Dickerson, R.R., He, H., Lu, Z., Streets, D.G.: Aura OMI observations of regional SO₂ and NO₂ pollution changes from 2005 to 2015, *Atmos. Chem. Phys.*, 16 (2016) 4605-4629.
- 9) Irie, H., Muto, T., Itahashi, S., Kurokawa, J., Uno, I.: Turnaround of tropospheric nitrogen dioxide pollution trends in China, Japan, and South Korea, *SOLA*, 12 (2016) 170-174.
- 10) Hara, H.: Analysis of four-year results of acid precipitation based on a wet-only sampling network in Japan, *J. Agric. Meteor.*, 48 (1993) 735-738.
- 11) Fujita, S., Takahashi, A., Sakurai, T.: The wet deposition of acid and some major ions over the Japanese Archipelago, *Tellus 55B* (2003) 23-34.
- 12) Fujita, S., Takahashi, A., Weng, J.H., Huang, L.D., Kim, H.K., Li, C.K., Huang, T.C., Jeng, F.T.: Precipitation chemistry in East Asia, *Atmos. Environ.*, 32 (2000) 525-537.
- 13) 片山 学, 大原利真, 鶴野伊津志, 原 宏: 日本の SO₄²⁻ 沈着量における経年変動のモデル解析, *大気環境学会誌*, 43 (2008) 136-146.
- 14) Morino, Y., Ohara, T., Kurokawa, J., Kuribayashi, M., Uno, I., Hara, H.: Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan during 1989-2008, *J. Geophys. Res.*, 116 (2011) D06307.
- 15) Kuribayashi, M., Ohara, T., Morino, Y., Uno, I., Kurokawa, J., Hara, H.: Long-term trends of sulfur deposition in East Asia during 1981-2005, *Atmos. Environ.*, 59 (2012) 461-475.
- 16) Takahashi, A., Fujita, S.: Long-term trends in nitrate to non-sea salt sulfate ratio in precipitation collected in western Japan, *Atmos. Environ.*, 34 (2000) 4551-4555.
- 17) Seto, S., Nakamura, A., Noguchi, I., Ohizumi, T., Fukuzaki, N., Toyama, S., Maeda, M., Hayashi, K., Hara, H.: Annual and seasonal trends in chemical composition of precipitation in Japan during 1989-1998, *Atmos. Environ.*, 36 (2002) 3505-3517.
- 18) Noguchi, I., Hayashi, K., Aikawa, M., Ohizumi, T., Minami, Y., Kitamura, M., Takahashi, A., Tanimoto, H., Matsuda, K., Hara, H.: Temporal trends of non-sea salt sulfate and nitrate in wet deposition in Japan, *Water, Air, Soil Pollut., Focus 7* (2007) 67-75.
- 19) 環境省: 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書 (平成 20~24 年度) (2014) 163-173.
- 20) Yamaguchi, T., Noguchi, I.: Long-term trends for nitrate and sulfate ions in snowcover on Hokkaido, northern Japan, *J. Agric. Meteor.*, 71 (2015) 196-201.
- 21) 藤田 慎一: 日本列島における降水の NO₃⁻/nssSO₄²⁻ 濃度比の経年変化, *大気環境学会誌*, 48 (2013) 12-19.
- 22) Kurokawa, J., Ohara T., Morikawa, T., Hanayama, S., Greet, J.-M., Fukui, T., Kawashima K., Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: regional emission inventory in Asia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13 (2013) 11019-11058.
- 23) 環境省: 酸性雨長期モニタリング報告書 (平成 15~19 年度) (2009) 144-155.
- 24) Itahashi, S., Uno, I., Hayami, H., Fujita, S.: Modeling investigation of controlling factors in the increasing ratio of nitrate to non-seasalt sulfate in precipitation over Japan, *Atmos. Environ.*, 92 (2014) 171-177.
- 25) Itahashi, S., Uno, I., Hayami, H., Fujita, S.: Variation of the ratio of nitrate to non-seasalt sulfate in precipitation over East Asia with emissions from China, *Atmos. Environ.*, 118 (2015) 87-97.
- 26) 鶴野伊津志, 板橋秀一, 弓本桂也, 入江仁士, 黒川純一, 大原利真: 東アジア域の NO_x 排出量の経年変化と窒素化合物の挙動のモデル解析, *大気環境学会誌*, 48 (2013) 223-233.