

光化学オキシダント調査検討会 報告書

今後の対策を見すえた調査研究のあり方について

平成 24 年 3 月

光化学オキシダント調査検討会



## 緒 言

平成18年(2006年)4月から大気汚染防止法改正施行によるVOC排出抑制制度が開始され、VOCの排出量及び大気中濃度が現実には減少したにもかかわらず、対策をたてるにあたって行われたモデル計算による期待に反して、現時点でも光化学オキシダント汚染に顕著な改善が見られていません。本検討会は、こうした状況を受けて、今後真に有効な光化学オキシダント対策を立案するためにはどのような調査研究のあり方が必要かをとりまとめることを目的に設置されました。

光化学オキシダントに代表される二次汚染物質による大気汚染には、大気輸送と化学反応が結合した複雑な過程が含まれ、学問的にも特に大気化学の分野で深く興味を持たれてきており、現在でも盛んに研究が行われています。本検討会での議論を通じて、今後の光化学オキシダント対策を真に有効なものにするためには、こうした最先端の研究の成果を行政施策の立案に生かして行くことの重要性が指摘されました。本報告書はこのような観点に立って、光化学オキシダント汚染の現状と、今後の調査研究のあり方についての提言をまとめたものです。

科学研究と行政施策との連携の必要性に関しては、最近「科学と政策(Science and Policy)」という言葉で国際的にもその重要性が強調されており、本報告書は我が国の大気汚染分野におけるこうした方向に沿った試金石とも言えるのではないかと考えられます。本報告書が、今後の我が国の光化学オキシダント対策に対する有効な一助となることを願ってやみません。

平成 24 年 3 月

光化学オキシダント調査検討会

座長 秋元 肇



## 目次

第1章 検討会の目的	1
1.1 はじめに	1
1.2 「調査研究のあり方」とりまとめ作業の方針	1
第2章 揮発性有機化合物（VOC）排出抑制制度（平成18年度より実施）の検討時に用いられた光化学オキシダント対策効果の検討手法について	2
2.1 全般的経過	2
2.2 シミュレーションについて	2
2.2.1 シミュレーションモデル	2
2.2.2 大気汚染物質などの排出量	3
2.2.3 シミュレーションモデルの再現性評価	7
2.3 VOC削減による光化学オキシダント濃度の改善効果の試算について	9
2.3.1 前提条件、推計方法	9
2.3.2 推計結果	10
第3章 平成19年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会の課題に対する進捗状況	15
第4章 光化学オキシダントの状況	25
4.1 我が国における光化学オキシダント濃度の状況	25
4.1.1 我が国における監視測定体制	25
4.1.2 全国的な状況	31
4.1.3 地域的な状況	50
4.1.4 遠隔地における状況	106
4.2 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況	109
4.2.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制	109
4.2.2 東アジアの状況	110
4.2.3 半球規模での状況	111
第5章 光化学オキシダント濃度に関する新たな知見等	116
5.1 国内における生成・消失メカニズム等	116
5.1.1 光化学オキシダント生成におけるNO <sub>x</sub> ・VOCの影響（週末効果含む）	116
5.1.2 VOCの実態解明（未同定VOCを含む）	121
5.1.3 NOによるタイトレーション効果	131
5.1.4 気象状況による影響	140
5.1.5 成層圏オゾン降下との関係	141
5.2 ヨーロッパ、東アジア等から排出される大気汚染物質との関係	142
5.2.1 オゾン前駆物質の排出量	142
5.2.2 東アジアからの影響	145
5.2.3 半球規模でのオゾンの輸送	150
第6章 今後の課題及び調査研究のあり方	153
6.1 平成18年度以降の新たな知見を踏まえた主要課題の整理	153
6.1.1 調査研究から対策効果の評価への道筋	153
6.1.2 モニタリングに関する主要課題の整理	154
6.1.3 シミュレーションモデルに関する主要課題の整理	156
6.1.4 インベントリに関する主要課題の整理	161
6.1.5 対策効果の評価に関する主要課題の整理	162

6.2	今後の調査研究のあり方	164
6.2.1	優先解析地域（仮称）の設定	164
6.2.2	モニタリングについて	166
6.2.3	シミュレーションについて	170
6.2.4	インベントリについて	171
6.2.5	対策効果の評価について	172
6.3	おわりに - 今後の施策の実施に向けて -	174
	参考文献	175
	光化学オキシダント調査検討会委員名簿	179
	検討会の開催状況	180

## 略語と化学式

### 化学式

Be - beryllium - ベリリウム  
CH<sub>4</sub> - methane - メタン  
Cl<sup>-</sup> - chloride ion - 塩化物イオン  
CO - carbon monoxide - 一酸化炭素  
CO<sub>2</sub> - carbon dioxide - 二酸化炭素  
HCHO - formaldehyde - ホルムアルデヒド  
HCl - hydrogen chloride - 塩化水素  
HNO<sub>3</sub> - nitric acid - 硝酸  
HO<sub>2</sub> - hydroperoxyl radical - ヒドロペルオキシラジカル  
HO<sub>x</sub> - hydrogen oxide radicals  
KI - potassium iodide - ヨウ化カリウム  
NH<sub>3</sub> - ammonia - アンモニア  
NH<sub>4</sub><sup>+</sup> - ammonium ion - アンモニウムイオン  
NO - nitric oxide - 一酸化窒素  
NO<sub>2</sub> - nitrogen dioxide - 二酸化窒素  
NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - nitrate ion - 硝酸イオン  
NO<sub>x</sub> - nitrogen oxide - 窒素酸化物  
O<sub>2</sub> - oxygen - 酸素  
O<sub>3</sub> - ozone - オゾン  
OH - hydroxyl radical - ヒドロキシラジカル  
Ox - Photochemical Oxidant - 光化学オキシダント  
SO<sub>2</sub> - sulfur dioxide - 二酸化硫黄  
SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> - sulfate ion - 硫酸イオン  
SO<sub>x</sub> - sulfur oxide - 硫黄酸化物

### 略語

AOT40 - Accumulated exposure Over a Threshold of 40ppb  
BEIS - Biogenic Emissions Inventory System - 植物起源エミッションインベントリシステム  
BVOC - Biogenic Volatile Organic Compounds - 生物起源揮発性有機化合物  
CBM-IV - Carbon Bond Mechanism-IV  
CMAQ - Community Multiscale Air Quality  
EANET - Acid Deposition Monitoring Network in East Asia - 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク  
EC - Elemental Carbon - 元素状炭素  
EEA - European Economic Area - 欧州経済領域  
EMEP - European Monitoring and Evaluation Programme - 欧州モニタリング評価プログラム  
EPA - Environmental Protection Agency - 環境保護庁  
EPS - Emission Processing System

ESA - European Space Agency - 欧州宇宙機関  
EU - European Union - 欧州連合  
FID - Flame Ionization Detector - 水素炎イオン化検出器  
GAM - Generalized Additive Models - 一般化加法モデル  
GAW - Global Atmosphere Watch - 全球大気監視  
GC - Gas Chromatography - ガスクロマトグラフィー  
GIS - Geographic Information System - 地理情報システム  
GPV - Grid Point Value - 格子点値  
HC - Hydrocarbons - 炭化水素  
IPCC - Intergovernmental Panel on Climate Change - 気候変動に関する政府間パネル  
JATOP - Japan Auto-Oil Program - 大気環境改善を目指した自動車業界と石油業界の共同研究プログラム  
JIS - Japanese Industrial Standards - 日本工業規格  
MIR - Maximum Incremental Reactivity - 単位量の VOC が生成しうる最大のオゾン量 (最大増加反応性)  
MPA - Maximum Prediction Accuracy  
NASA - National Aeronautics and Space Administration - アメリカ航空宇宙局  
NB - Normalized Bias  
NGE - Normalized Gross Error  
NMHC - Non-Methane Hydrocarbons - 非メタン炭化水素  
NMVOC - Non-Methane Volatile Organic Compounds - 非メタン揮発性有機化合物  
OC - Organic Carbon - 有機炭素  
PAN - Peroxyacetyl nitrate - ペルオキシアセチルナイトレート  
PM - Particulate Matter - 粒子状物質  
PO - Potential Ozone - ポテンシャルオゾン  
ppb - parts per billion - 10 億分率  
ppm - parts per million - 100 万分率  
PRTR - Pollutant Release and Transfer Register - 化学物質排出移動量届出制度  
REAS - Regional Emission Inventory in Asia  
SPM - Suspended Particulate Matter - 浮遊粒子状物質  
SRP - Standard Reference Photometer - 標準参照光度計  
TEMM - Tripartite Environment Ministers Meeting Among China, Japan, and Korea - 日中韓三カ国環境大臣会合  
TF HTAP - Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution - 大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース  
THC - Total Hydrocarbons - 全炭化水素  
UV - Ultraviolet - 紫外線  
VENUS - Visual atmospheric ENvironment Utility System - 大気汚染予測システム  
VOC - Volatile Organic Compounds - 揮発性有機化合物  
WMO - World Meteorological Organization - 世界気象機関  
WRF - Weather Research and Forecasting model

【用語の使用について : 光化学オキシダント、オキシダント及びオゾン】

我が国においては、大気汚染に係る環境基準項目の一つとして「光化学オキシダント」が定められている。環境基準の告示において、光化学オキシダントとは、「オゾン、パーオキシアセチルナイトレートその他の光化学反応により生成される酸化性物質（中性ヨウ化カリウム溶液からヨウ素を遊離するものに限り、二酸化窒素を除く。）」とされている。光化学オキシダントの大部分はオゾン（ $O_3$ ）である。光化学オキシダントの測定値に対するオゾン以外の成分の寄与は極めて小さいことから、光化学オキシダントの測定法にはオゾンを測定対象とする紫外線吸収法及び化学発光法も含まれている。

本報告書では「光化学オキシダント（ $O_x$ ）」という用語を基本として使用しているが、オキシダント、オゾンという用語についてもここでは同様の意味として取り扱っている（化学反応に関する説明等でオゾン（ $O_3$ ）を明記している場合を除く）。これらは、引用している論文や資料等の表記に従い、オキシダント、オゾンを分けて表記をしている。

「例；オキシダント自動計測器の動的校正マニュアル」

【用語の使用について : NMHC、VOC 及び NMVOC】

$NO_x$  以外の光化学オキシダントの前駆物質については、NMHC、VOC 及び NMVOC といった捉え方がなされている。

炭化水素のうち光化学的に不活性なメタン（ $CH_4$ ）を除いたものの総称が NMHC（Non-Methane hydrocarbons）である。大気汚染の常時監視測定局では NMHC の 1 時間値の連続測定が行われている。

測定技術上、NMHC はアルデヒド類などの含酸素化合物に対して感度が低い。これら含酸素化合物を含めた揮発性有機化合物全体を VOC（Volatile Organic Compounds）と呼ぶ（若松、篠崎,2001）。（大気汚染防止法に基づく VOC 規制においては、VOC のうち光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質の生成原因とならないメタン等の物質は規制対象外とされている。）また、VOC のうち  $CH_4$  を除外した総称を NMVOC（Non-Methane Volatile Organic Compounds）と呼ぶ（国立環境研究所,2001）。

本報告書では、引用している論文や資料等の表記に従い、NMHC、VOC、NMVOC を分けて表記をしている。



## 第1章 検討会の目的

### 1.1 はじめに

平成18年4月の改正大気汚染防止法施行以降、VOC等の対策が進展したにもかかわらず、光化学オキシダントの状況に顕著な改善が見られない。

このような状況を踏まえ、本検討会においては光化学オキシダントの改善を図るべく、有効な光化学オキシダント対策を立案するために必要な調査研究のあり方を取りまとめることを目的とする。

### 1.2 「調査研究のあり方」とりまとめ作業の方針

#### (1) 射程及び行政施策との関係、審議内容

本検討会では、今後有効な光化学オキシダント対策を立案するために必要な調査研究のあり方を取りまとめることとする。

したがって、今後の光化学オキシダント対策の立案に資する各種知見を整備するため、どのような内容や手法で調査研究を行うべきかという方法論に関し審議した。

#### (2) 「光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書(中間報告):平成19年12月」(以下、「中間報告」という。)の関係

中間報告で示された課題のうち調査研究及びモニタリングに関する事項については、それぞれの現時点における進捗を確認し、今回取りまとめる内容へ反映した。

#### (3) 「調査研究のあり方」の各構成要素について

これまでの大気環境保全施策においては、「モニタリングによる大気汚染状況の正確な把握」に基づき、「排出インベントリの整備による発生源の把握」や「シミュレーションによる対策効果の事前評価や検証」が行われてきたところである。

本検討会においても、今後の調査研究のあり方としてこの3つの要素に着目し、対策検討に資する観点から必要な内容について検討を行った。

また、上記3つに加え対策効果の評価についても課題整理を行い、今後の調査研究のあり方を取りまとめた。ここでは、大気環境管理の様々な分野で活用されているシミュレーションに関し、モデルの改善や精度向上に関する事項に加え、今後の有効な対策を検討する過程でのシミュレーション活用の考え方についても検討し、その結果を踏まえ今後の調査研究のあり方を取りまとめた。

## 第2章 揮発性有機化合物（VOC）排出抑制制度（平成18年度より実施）の検討時に用いられた光化学オキシダント対策効果の検討手法について

### 2.1 全般的経過

環境省では平成14年度に、将来の固定発生源排出削減によるSPM及びオキシダント濃度の低減効果推計などの調査を実施した。この調査の中で、非定常モデルによるオキシダントの将来予測シミュレーションを行った。

平成15年9月17日に開催された中央環境審議会第9回大気環境部会において、「固定発生源VOC排出削減について、有識者の意見を聞きつつ早急に検討を深める」よう指示があり、これを受け「揮発性有機化合物（VOC）排出抑制検討会」を計5回開催し、関係業界へのヒアリングや排出抑制制度の方向性などが検討された。同年12月9日にとりまとめられた検討結果報告書「揮発性有機化合物（VOC）の排出抑制について～検討結果～」(平成15年12月)では『NO<sub>x</sub>の排出を変化させずVOCの排出を30%削減（平成12年度排出量を基準）した場合、17箇所を平均した改善効果の試算結果は光化学オキシダント濃度で約24%の低減』と記載された。

この結果が同年12月16日の第10回大気環境部会に報告され、以降同部会でVOC排出抑制のあり方が審議され、平成16年2月3日の第13回部会でまとめられた意見具申に基づき、排出抑制制度が法制化された。この意見具申では、VOC排出量3割程度削減により光化学オキシダント注意報の非発令率が全国で約9割まで上昇するとの見込みが示された。なお、この非発令率の算定においては上述の濃度低減率（24%減）を平成12年度の大気環境常時監視測定結果の各測定局の1時間値に掛け合わせるによりVOC削減時の各測定局の1時間値が推計された。

### 2.2 シミュレーションについて

#### 2.2.1 シミュレーションモデル

平成14年度当時の検討で用いられたシミュレーションモデルや排出源データの設定等については「平成14年度 浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査報告書（第2編 SPM濃度予測モデル）」(環境省, 2003a)に記載されている。

モデルは、詳細な反応を時間値レベルで取り扱うことができる「非線形・非定常型SPMモデル」を採用した。

ここでは、3次元空間内で気流、気温、拡散係数の分布・時間変化を算出する「局地気象モデル」と、ガス及び粒子の生成に關与する大気中微量成分の移流、拡散、化学反応、乾性及び湿性沈着等による濃度分布及び時間変化を算出する「移流・拡散・反応モデル」を組み合わせたシミュレーションモデルを用いた。シミュレーションモデルの概要は表2.2.1-1に示す通りとした。

表 2.2.1-1 シミュレーションモデルの概要

モデル区分	内容	シミュレーションモデルの概略
局地気象モデル	局地気象モデル (気流、気温、 拡散係数)	運動方程式、連続の式、熱力学方程式、水分保存式 乱流過程(クロージャー・レベル2以上) 放射過程、凝結、降水過程、地表面温度予想
拡散・反応モデル	移流・拡散・反応モデル	[オイラー型] 局地気象モデル計算結果から気流、拡散係数、温度等を設定
	化学反応モデル	・気相 NO <sub>x</sub> -HC 系光化学反応モデル(CBM- 同等以上) ・SPM の2次粒子生成平衡反応モデル(気・固相反応)
	沈着モデル	乾性沈着及び湿性沈着を考慮

計算領域は、局地気象モデルと拡散・反応モデルでそれぞれ設定している。ここでは、関東地方でのシミュレーションで設定した計算領域について例示する(表 2.2.1-2)。

表 2.2.1-2 計算領域(関東地方)

	局地気象モデル	拡散・反応モデル
計算領域	東京都を中心とする南東北、関東、中部地方を包含する領域 (約 600 km × 600km)	東京都を中心とする南関東の SPM 大気汚染を計算する領域 (約 200 km × 200km)
水平格子間隔	東西：5000m、南北：5000m (格子数 120 × 120)	東西：5000m、南北：5000m (格子数 40 × 40)
鉛直格子間隔	10 ~ 5200m (不等間隔格子：格子数 25 層)	10 ~ 5200m (不等間隔格子：格子数 25 層)
地形データ	既存国土数値情報	既存国土数値情報
気流場条件	計算対象日時の GPV データを使用	局地気象計算結果(63 時間分)を使用
積分時間	63 時間(3780 分)	63 時間(3780 分)
タイムステップ	1 分	1 分

注：関西地方についても同様の設定で計算

## 2.2.2 大気汚染物質などの排出量

シミュレーションモデルで対象とする物質

非線形・非定常型 SPM モデルで扱う発生源データは表 2.2.2-1 に示す通りとした。

表 2.2.2-1 発生源データ

線形・定常型 SPM モデルの発生源	非線形・非定常型 SPM モデルの発生源	備考
SO <sub>x</sub>	SO <sub>2</sub>	・ SO <sub>x</sub> は全て SO <sub>2</sub> とみなす
NO <sub>x</sub>	NO、NO <sub>2</sub>	・ 直接排出される NO <sub>2</sub> を考慮
HC (VOC)	HC (VOC) の成分分解	・ CBM - で扱う 8 成分への分解
PM	EC、OC、その他 SPM	・ PM のうち、EC と OC を区分
DUST	その他 SPM	・ EC、OC 以外の PM と DUST を その他 SPM とする
HCl	HCl	
	NH <sub>3</sub>	・ 無機粒子のイオンとして NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> を設定
	CO	・ 直接排出される CO を考慮

このうち PM、DUST 及び HC については上記の他、表 2.2.2-2～4 に示す通りとした。

表 2.2.2-2 PM 対象物質

発生源区分	PM 対象物質
ばい煙発生施設、 群小発生源、小型焼却炉	燃料燃焼に伴うばいじん
自動車	燃料燃焼に伴う粒子状物質 (PM)

表 2.2.2-3 DUST 対象物質

発生源区分	DUST 対象物質
ばい煙発生施設	凝縮性ダスト
自動車	タイヤ粉じん
粉じん発生施設	粉じん

表 2.2.2-4 HC 対象物質

発生源区分	HC 対象物質
ばい煙発生施設、炭化水素類発生施設、 自動車、船舶、航空機、植物	NMVOC
自動車	THC

## 対象地域

関東地域（茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、山梨県、静岡県東部）及び関西地域（京都府、大阪府、兵庫県）を対象に排出量を設定した。

## 排出量の設定

環境省が行った「浮遊粒子状物質総合対策調査」における平成12年度現況排出量を使用した。

発生源区分及び対象物質は表2.2.2-5に示す通りとした。

表 2.2.2-5 発生源区分及び対象物質

発生源区分		SO <sub>x</sub>	NO <sub>x</sub>	EC	OC	その他 SPM	HCl	HC	CO	NH <sub>3</sub>
固定	ばい煙発生施設									
	群小発生源（一般家庭）			-	-		-	-		-
	群小発生源（業務系）						-	-		-
	小型焼却炉							-	-	-
	粉じん発生施設	-	-	-	-		-	-	-	-
	炭化水素類発生施設	-	-	-	-	-	-		-	-
	下水・し尿処理場	-	-	-	-	-	-	-	-	
移動	自動車						-			-
	船舶						-		-	-
	航空機						-		-	-
	特殊自動車						-			-
自然	植物	-	-	-	-	-	-		-	-
	肥料・家畜	-	-	-	-	-	-	-	-	
	人間	-	-	-	-	-	-	-	-	

第2章

大気汚染物質などの排出量の算定の概要は表 2.2.2-6 に示す通りとした。

表 2.2.2-6 排出量の算定の概要

対象 発生源	発生源区分	排出量の算定方法
固定 発生源	ばい煙発生施設	環境省の排出量調査結果に加え、各種施設の立地状況に燃料使用量、排出係数等により算定
	群小発生源（一般家庭、業務系）	
	小型焼却炉	
	粉じん発生施設	
	炭化水素類発生施設	
	下水・し尿処理場	
移動 発生源	自動車	自動車交通量、船舶統計、年間離発着統計等を基に、排出係数や停泊・航行時間等により算定
	船舶	
	航空機	
	特殊自動車	
自然 発生源	植物	HC について、「イソプレン、モノテルペン、その他」に成分区分し、植生区分別面積を基に排出係数（気象条件により補正）を用いて算定（BEIS2 による方法）
	肥料・家畜	NH <sub>3</sub> について、耕地面積や家畜頭数を基に、単位面積当たり肥料使用量や家畜種別排出係数を用いて算定
	人間	NH <sub>3</sub> について、人口を基に 1 人・時間当たり排出係数を用いて算定

## 2.2.3 シミュレーションモデルの再現性評価

光化学オキシダント濃度の時間変動再現（フィールド調査結果を活用）

以下のような季節及び地点において数日間の実測調査を行い、そのうち3日程度をシミュレーションモデル解析対象期間として実測値とシミュレーションモデルによる計算値を比較し再現性の確認を行った（表 2.2.3-1）。

表 2.2.3-1 モデルの再現性評価（光化学オキシダント濃度の時間変動）

		調査地点	実測調査期間 (モデル解析対象期間)	Ox 濃度の時間変動 再現結果
関東	平成 13 年度 夏季調査	浦和、杉並、 船橋、川崎、 横須賀、騎西	8/1 ~ 8/6 (8/1 9時 ~ 8/3 24時)	ピーク濃度について、良好に再現している日と、モデルの方が過大である日があった
	平成 14 年度 夏季調査	浦和、杉並、 船橋、騎西、 八王子	7/22 ~ 7/27 (7/21 9時 ~ 7/23 24時)	濃度の変化傾向は概ね再現しているが、ピーク時の濃度レベルはやや過大評価の傾向がみられた
	平成 12 年度 冬季調査	浦和、杉並、 船橋、川崎、 横須賀	11/28 ~ 12/1 (11/28 9時 ~ 11/30 24時)	濃度の変化傾向は概ね再現しているが、ピーク時の濃度レベルは29日以外はモデルの方がやや過小評価であった
	平成 13 年度 冬季調査	浦和、杉並、 騎西	11/19 ~ 11/24 (11/21 9時 ~ 11/23 24時)	濃度の変化傾向は概ね再現しているが、22日以降のピーク時の濃度レベルは浦和、騎西ではモデルの方がやや過大評価であった
関西	平成 14 年度 夏季調査	大阪、枚方、 神戸、堺	8/5 ~ 8/10 (8/4 9時 ~ 8/6 24時)	濃度の変化傾向は概ね再現しているが、ピーク時の濃度レベルはモデルの方が過大評価であった
	平成 14 年度 冬季調査	大阪、枚方、 神戸、堺	12/2 ~ 12/7 (12/1 9時 ~ 12/3 24時)	濃度の変化傾向は概ね再現しているが、3日ではモデルの方が過大となる傾向がみられた

シミュレーションモデルの再現性評価は下記に示す物質を対象としているが、ここでは Ox のみを記載した。

NO NO<sub>2</sub> NO<sub>x</sub> SO<sub>2</sub> Ox NMHC NH<sub>4</sub><sup>+</sup> SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> NO<sub>3</sub><sup>-</sup> Cl<sup>-</sup> EC OC SPM

シミュレーションモデルの再現性評価

米国 EPA が光化学オキシダントの 1 時間値について定めている大気質モデルの性能評価指標（以下、「EPA 指標」と呼ぶ）を光化学オキシダント濃度の 1 時間値に適用し評価を行った（表 2.2.3-2）。

高濃度日の評価対象日の設定は SPM の環境基準達成状況が良くない平成 13 年度から設定することとし、夏季は SPM 日平均値の地域内平均値が高く、光化学オキシダントの 1 時間値が注意報レベルを超過した局数が多い日を選定。冬季は SPM 日平均値の地域内平均値が高い日を選定した。

評価の結果、関東の平成 14 年 7 月 23 日、平成 13 年 11 月 23 日及び平成 13 年 11 月 25 日が光化学オキシダント日最高濃度の再現性の指標である MPA を満足していた。

表 2.2.3-2 シミュレーションモデルの再現性評価（光化学オキシダント濃度の 1 時間値）

地域	対象項目	季節	年度	対象日	NB	NGE	MPA
関東	フィールド調査日	夏季	平成 13 年度	8/3	0.065	0.570	- 0.336
			平成 14 年度	7/23	- 0.144	0.350	- 0.166
		冬季	平成 12 年度	11/30	-	-	-
			平成 13 年度	11/23	0.060	0.137	0.029
	高濃度日	夏季	平成 13 年度	6/26	- 0.255	0.470	- 0.452
		冬季		11/25	0.092	0.130	0.071
関西	フィールド調査日	夏季	平成 14 年度	8/6	- 0.668	0.668	- 0.680
		冬季	平成 14 年度	12/3	-	-	-
	高濃度日	夏季	平成 13 年度	8/16	0.310	0.323	0.240
		冬季		1/15	-	-	-
EPA 指標					± 0.15	0.35	± 0.20

O<sub>x</sub> については観測値が 60ppb 以上のケースのみ評価対象とした。

“- ”については対象日において 1 時間値 60ppb 以上が出現しなかったため評価していない。  
EPA の最新ガイドライン（Guidance for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM<sub>2.5</sub> and Regional Haze）では指標値は記載されていない

【EPA 指標について】

指標	計算式	O <sub>3</sub> の評価基準の目安
NB (Normalized Bias)	$NB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{C_{calc,i} - C_{obs,i}}{C_{obs,i}}$	NB ± 0.15
NGE (Normalized Gross Error)	$NGE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{ C_{calc,i} - C_{obs,i} }{C_{obs,i}}$	NGE 0.35
MPA (Maximum Prediction Accuracy)	$MPA = \frac{C_{calc,max} - C_{obs,max}}{C_{obs,max}}$	MPA ± 0.20

ここで、C<sub>obs</sub> : 各地点、時刻における濃度の実測値  
C<sub>calc</sub> : 各地点、時刻における濃度の計算値  
N : 評価対象としたデータ数

## 2.3 VOC削減による光化学オキシダント濃度の改善効果の試算について

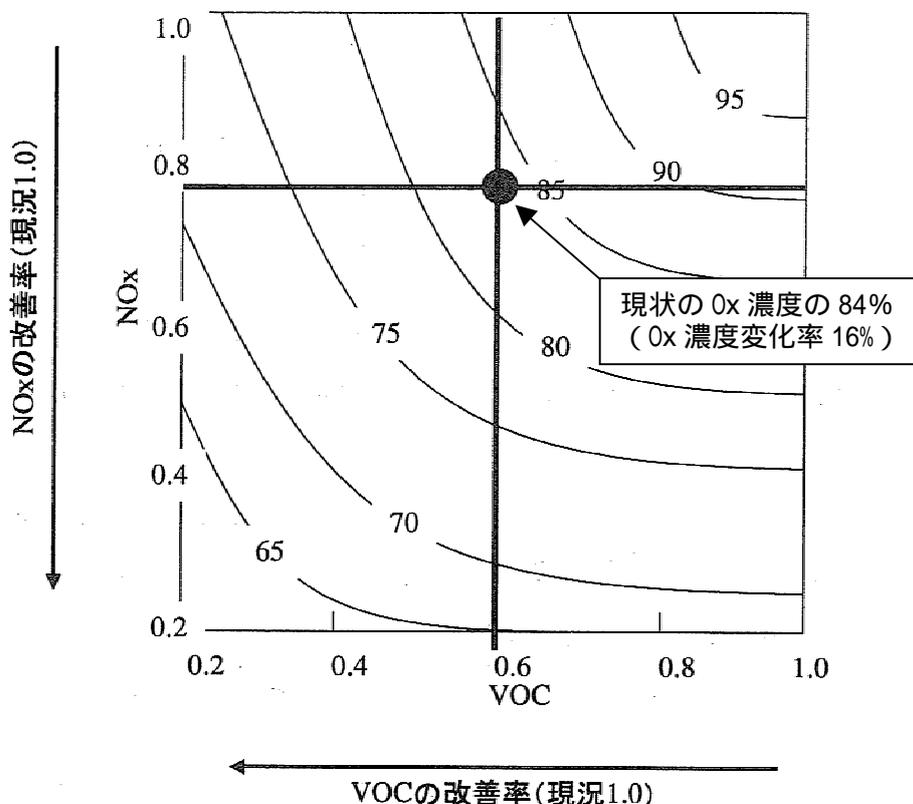
### 2.3.1 前提条件、推計方法

モデル再現性評価で選定した高濃度日（関東：平成13年6月26日、平成13年11月25日、関西：平成13年8月16日、平成14年1月15日の計4日分）について、現況年度及び将来年度（平成22年度）における固定発生源（工場・事業場）からのHC、NO<sub>x</sub>排出削減による光化学オキシダント濃度の低減効果解析（感度解析）を行った。

具体的には、固定発生源（工場・事業場）からのNO<sub>x</sub>及びHCの通常排出量を100%としたとき、この発生源からのNO<sub>x</sub>、HC排出量がそれぞれ20~100%の間で変動する（排出削減率0%から最大80%まで変動する）ことを仮定して感度解析計算を行い、その結果を等濃度線グラフで整理した（双曲線図）。なお、等濃度線は光化学オキシダント濃度変化率（改善率：%）を用いた。

#### 【参考：改善効果グラフの見方】

削減率グラフは、原因物質（VOCまたはNO<sub>x</sub>）の改善率（削減前の排出量に対する削減後の排出量の比率）に応じて、原因物質の削減後の汚染物質（SPM又はオキシダント）の改善効果が分かるようになっている。例えば下図では、VOCを40%削減（改善率0.6）し、NO<sub>x</sub>を20%削減（改善率0.8）した場合、削減後の汚染物質は、現状比16%減となる。



## 第2章

### 2.3.2 推計結果

得られた各解析ケースの等濃度線グラフにおいて、NO<sub>x</sub> 排出量が変わらない状態で VOC 排出量を 30%削減した場合の光化学オキシダント濃度変化率（改善率：%）は表 2.3.2-1 に示す通りとした。

表 2.3.2-1 光化学オキシダント濃度変化率

地域	解析対象日	測定局		光化学オキシダント 濃度変化率（%）
関東	平成 13 年 6 月 26 日 （夏季）	橋本	神奈川県相模原市	11.0
		東青梅	東京都青梅市	10.0
		廿五里	千葉県市川市	7.0
		高階	埼玉県川越市	14.0
		総和町役場	茨城県総和町	10.0
	平成 13 年 11 月 25 日 （冬季）	千葉県聳学校	千葉県千葉市	20.0
		水海道保健所	茨城県水海道市	20.0
		瀬崎	埼玉県草加市	25.0
		宇田川町	東京都渋谷区	28.0
		鷺沼プール	神奈川県川崎市	25.0
関西	平成 13 年 8 月 16 日 （夏季）	浜甲子園	兵庫県西宮市	20.0
		平尾小学校	大阪府大阪市	23.0
		大山崎	京都府大山崎町	11.0
	平成 14 年 1 月 15 日 （冬季）	貝塚市消防署	大阪府貝塚市	53.0
		勝山中学校	大阪府大阪市	48.0
		長田	兵庫県神戸市	55.0
		久我	京都府京都市	24.0
	全局平均			

【参考1：植物からのHC（NMVOC）排出量の推計について】

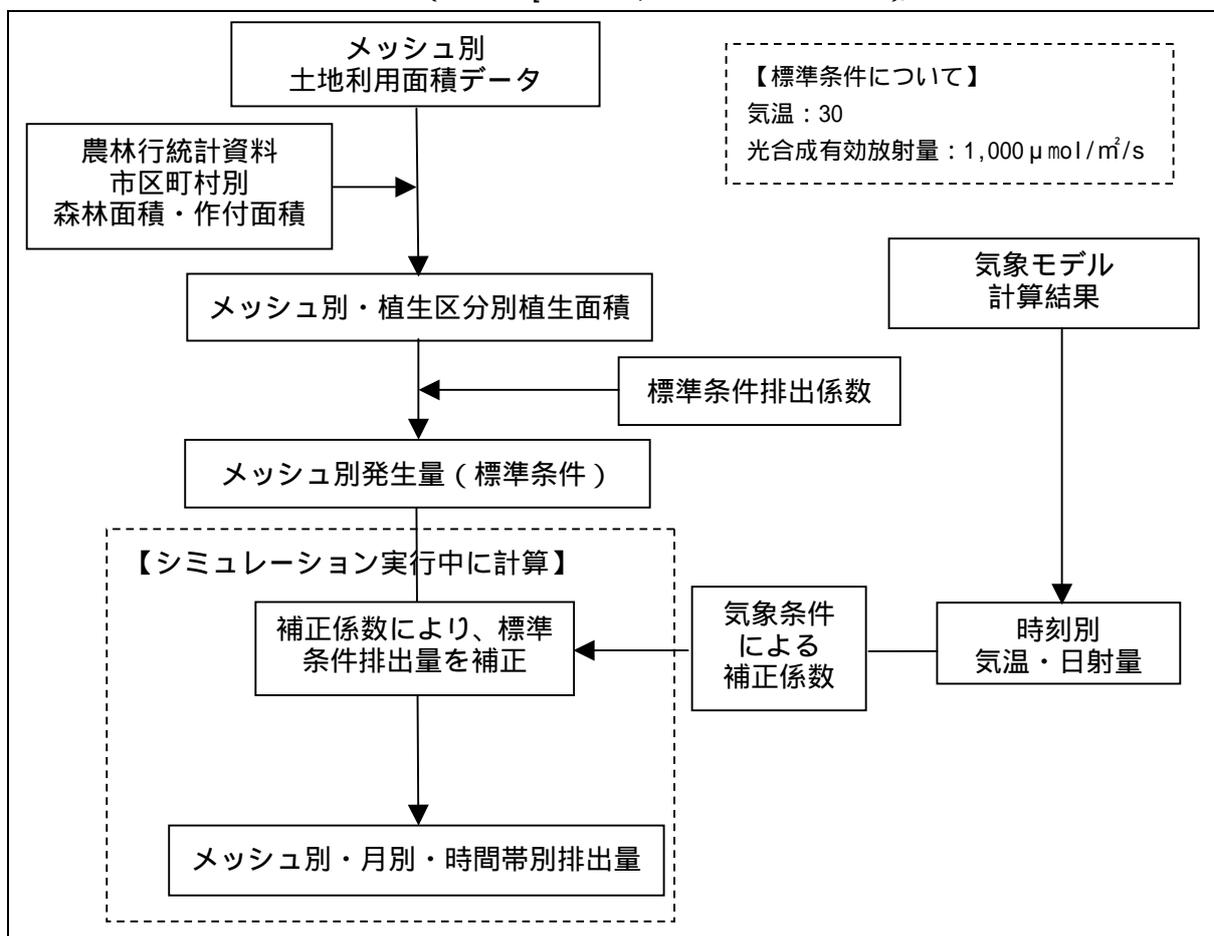
植物からのHC推計については環境省業務報告書の「平成14年度 浮遊粒子状物質総合対策検討に係る調査報告書」（環境省，2003b）に記載されている。

米国EPAによって開発されたBEIS2（米国EPSのBiogenic Emissions Inventory System）を用いて算出した。これは対象地域をメッシュ状に分割し、メッシュ毎に植生区分面積を求め、植生区分毎の単位面積当たりのHC発生量を乗じてHC排出量を求めるものである。

対象植生及び発生源は以下の通りとした。

植生区分		対象発生源
森林	広葉樹	広葉樹
	針葉樹	針葉樹
田畑	稲	田
	麦類	畑で栽培する麦類
	豆類	畑で栽培する豆類
	飼肥料作物	畑で栽培する飼肥料作物
	工芸農作物	畑で栽培する工芸農作物
	その他	畑で栽培する野菜、果樹園、その他の樹木類

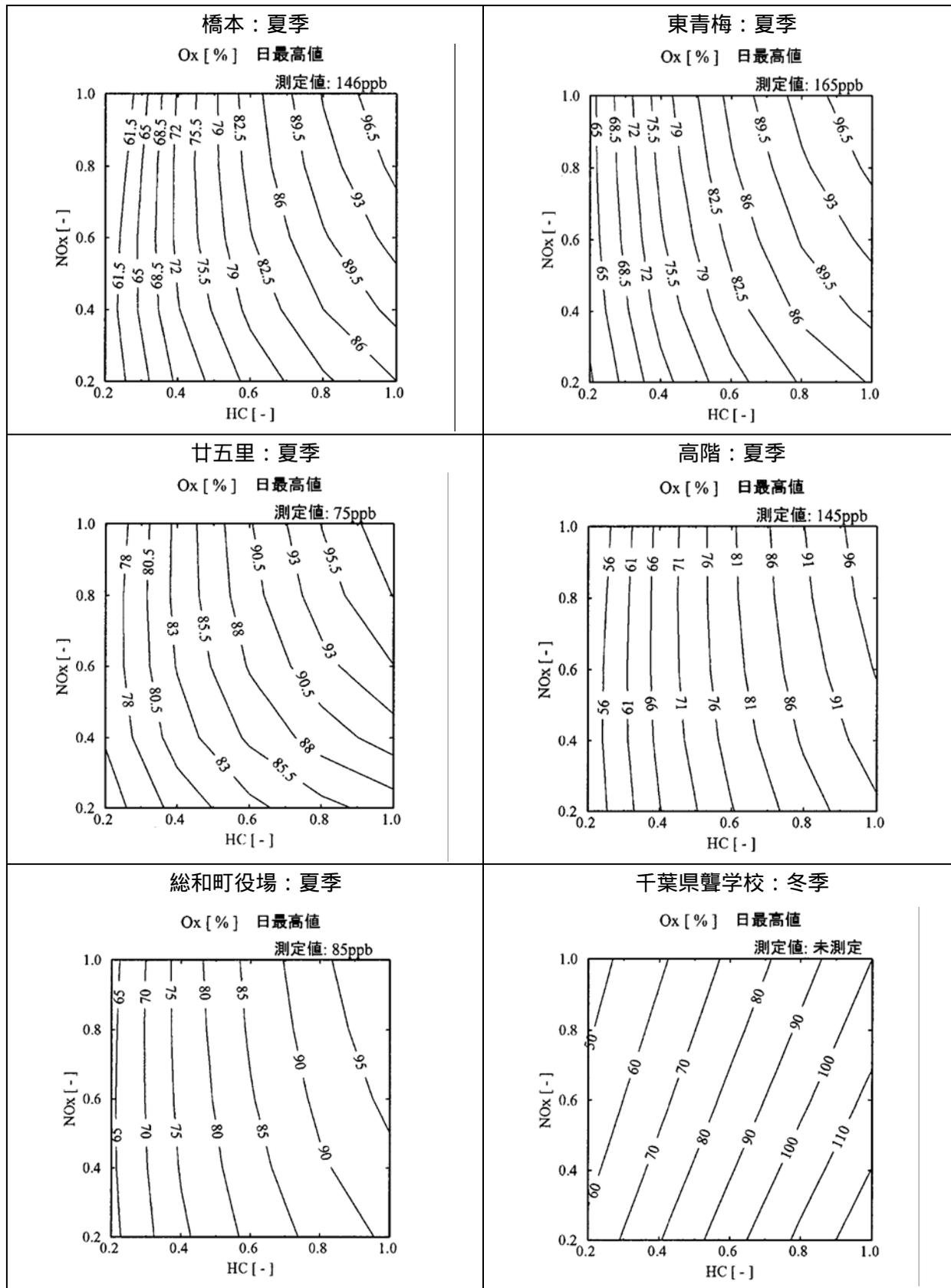
HC（NMVOC）については、イソプレン、モノテルペン、その他の3成分ごとに推計した。推計フローは以下の通りとした（上述の[環境省，2003b]を基に作成）。

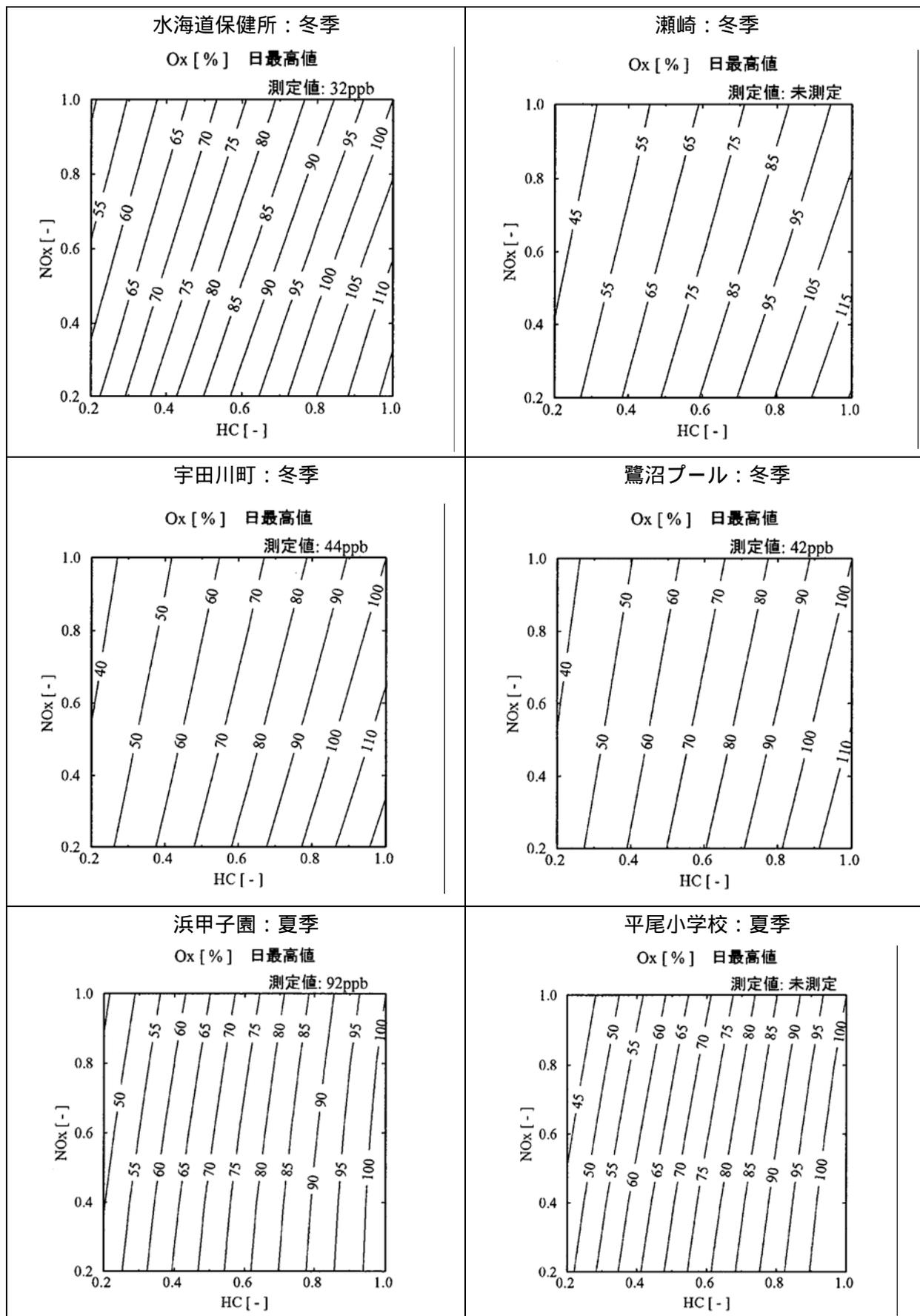


第2章

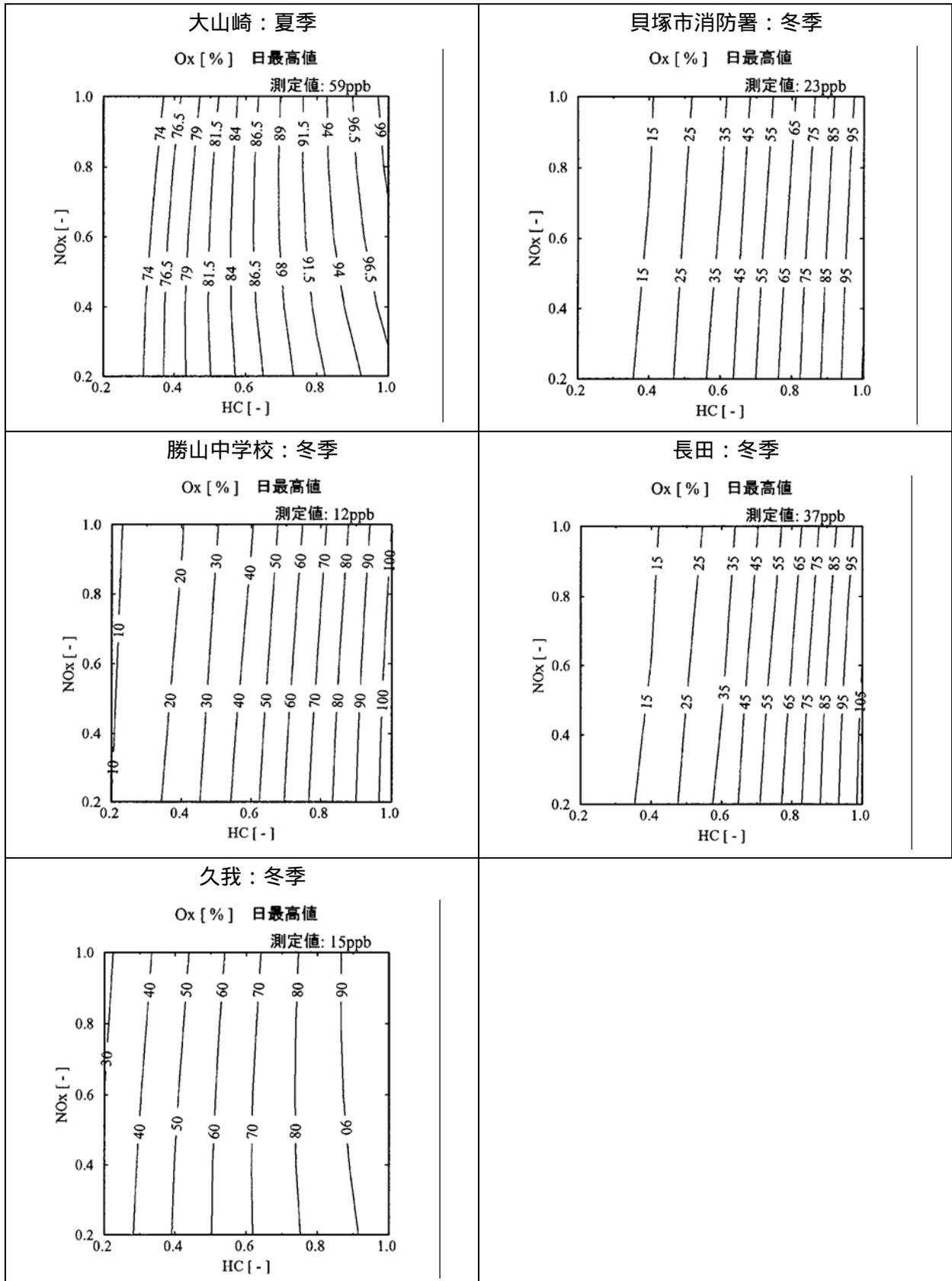
【参考2：感度解析ケースの双曲線図（17地点）】

図中の数値は現状（測定値）の光化学オキシダント濃度の日最高値を100%とした場合の前駆物質削減後の光化学オキシダント濃度（%）





第2章



### 第3章 平成19年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会の課題に対する進捗状況

平成19年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会において示された課題は、調査研究・モニタリングの一層の推進、国内対策等の更なる推進、国際的な取組の推進、の3点に大別される。各課題に対する現時点での進捗状況は表3-1のとおりである。また、それぞれの各課題に対する具体的な実施内容は以下に示すとおりである。

表3-1 課題に対する進捗状況

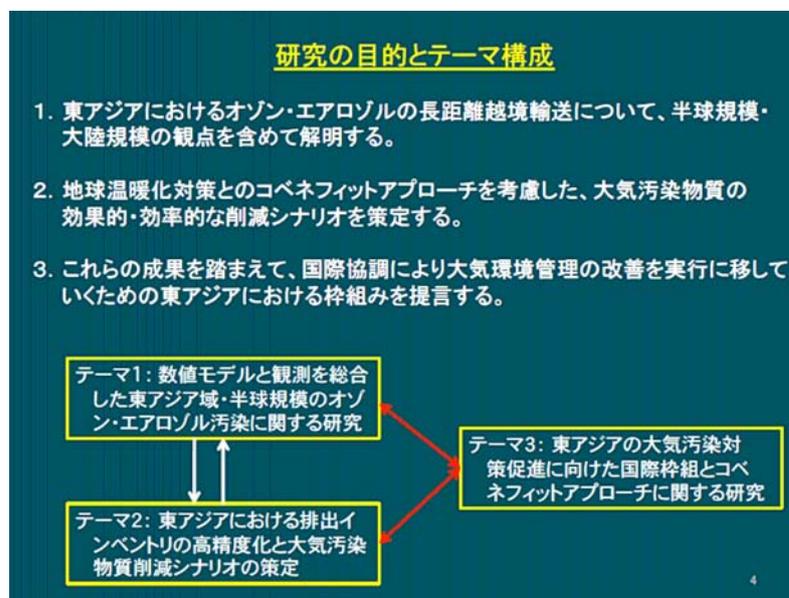
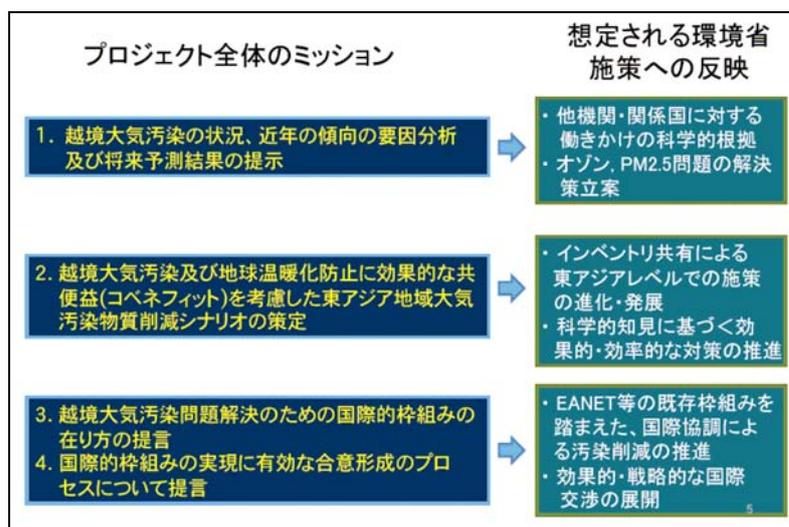
課題		H20	H21	H22	H23	...	
調査研究・モニタリングの一層の推進	調査研究	【 -1】対流圏オゾンの濃度上昇メカニズム解明のため、大陸間輸送などの寄与割合の定量的評価やソース・リセプターの研究解明		→			
		【 -2】濃度上昇及び広域化に係る地域ごとの詳細な要因分析	→				
		【 -3】前駆物質の観測データの充実等	→	→	→	→	→
		【 -4】モデルの精緻化・改良及び都市からグローバルまでの統合モデルシステムの確立	→	→	→	→	→
	モニタリング等	【 -5】Oxを高い精度で測定するための方策	→	→			
		【 -6】適正な大気環境常時監視システムの維持			→	→	→
		【 -7】住民や地方自治体に対し、モデリングデータや濃度予測の情報提供を行うシステムの改良	→	→	→		
国内対策等の更なる推進	削減対策	【 -1】VOC削減対策の着実な実施	→	→	→	→	
		【 -2】地域毎の調査や高精度の化学輸送モデルによる解析を踏まえ、科学的根拠に基づく効果的な対策のあり方を検討			→		
	インベントリ	【 -3】NOx及びVOC排出インベントリの整備・更新(自然起源VOC含む)(特に工事車両、農業、空港施設、港湾施設等の把握)VOC組成別排出インベントリの観測データによる検証	→	→	→	→	
国際的な取組の推進	【 -1】科学的な研究についての国際協力の推進。オキシダント測定に関する能力開発、人材育成など、一層の協力推進		→	→	→	→	
	【 -2】EANETの枠組みにおけるオゾンモニタリングの実施推進		→	→	→	→	
	【 -3】コベネフィット対策を活用した近隣諸国との協力推進			→	→	→	
	【 -4】TF HTAP等の地球規模の国際的な枠組みとの協力量策の検討	→	→	→	→	→	

→ 実施期間

調査研究・モニタリングの一層の推進

【 - 1】環境研究総合推進費戦略的研究開発プロジェクト「東アジアにおける広域大気汚染の解明と温暖化対策との共便益を考慮した大気環境管理の推進に関する総合的研究」(代表者：秋元 肇日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター 所長)において、東アジア域における排出インベントリの高精度化、東アジア・半球規模のシミュレーションモデルによる解析など、数値モデルと観測を総合した研究や排出インベントリの高精度化を実施中である(研究期間：平成 21～25 年度)。

➤ 環境研究総合推進費戦略的研究開発プロジェクト(S-7)の概要



【 - 2】独立行政法人国立環境研究所(以下、「国立環境研究所」という。)と地方環境研究所との共同研究(C型共同研究)として「光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究」(平成 19～21 年度)が実施され、

汚染特性や発生原因に関し、地域と広域、経年変化と高濃度エピソードといった複眼的視点での研究がなされた。

これまでの研究結果から、ポテンシャルオゾン(PO)を用いたオゾンの地域特性や経年変化についての解析の有効性など、新たな知見が得られており、対策効果の検証に役立つことが期待される(5.1.3 参照)。

➤ **国立環境研究所研究報告 第203号 目次(大原編, 2010)**

光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究

国立環境研究所研究報告 第203号 大原 利眞編

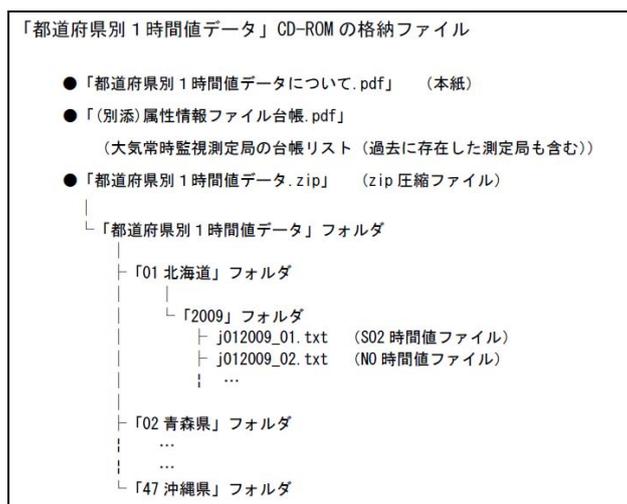
**【目次】**

1. 目的
2. 研究概要
3. 基本解析
4. 高濃度エピソード解析
5. 応用解析
  - 5.1 PO(ポテンシャルオゾン)グループによる解析
  - 5.2 衛星データ活用グループによる解析
  - 5.3 Ox測定法検討グループによる解析
  - 5.4 九州地域における高濃度の解析
  - 5.5 大気汚染予測システム
6. まとめと課題

URL : <http://www.nies.go.jp/pmdep/ctype/index.html#page>

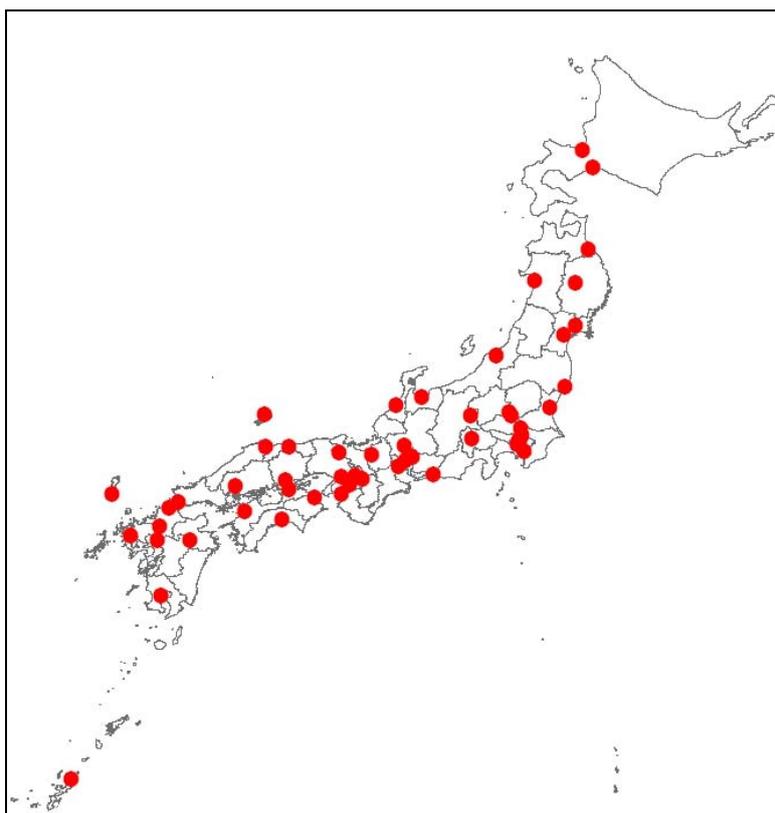
【 - 3】前駆物質の観測データに関し、環境省が運営する大気汚染物質広域監視システム「そらまめ君」において1時間値の速報値を公表していたが、確定値について常時監視の1時間値データも含めた公表を平成21年度分の大気汚染状況報告書から開始している。

➤ **平成21年度大気汚染状況報告書(環境省) CD-ROM 都道府県別1時間値データ**



また、揮発性有機化合物(VOC)測定を、全国(53地点)で1回/月測定し、19成分の成分分析を実施している(4.1.2参照)。

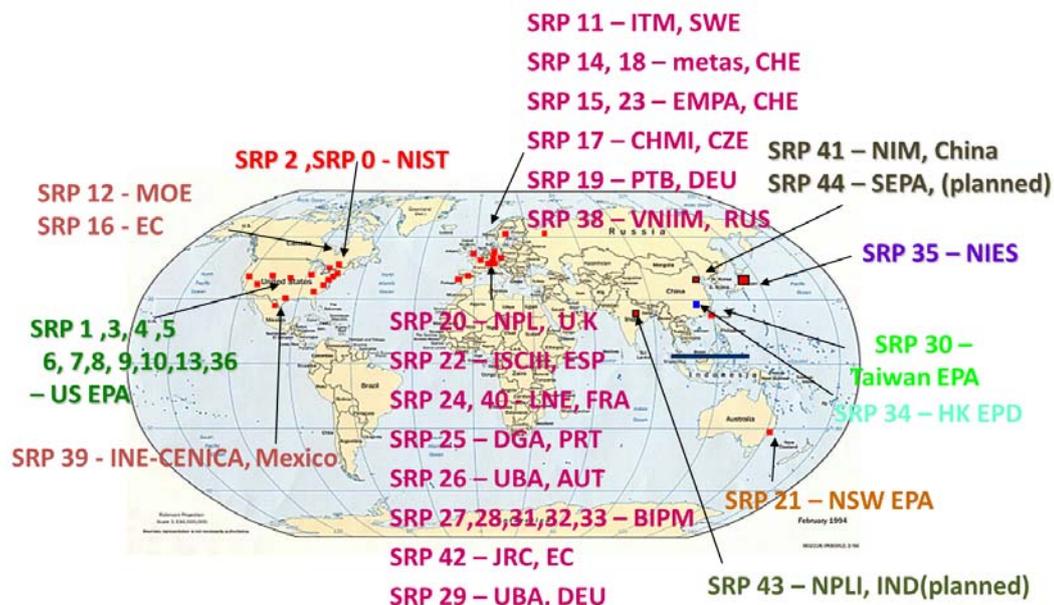
➤ 環境省 揮発性有機化合物(VOC)19物質 測定地点図(全国53地点)



【 - 4】シミュレーションモデルの改善に関し、平成 18 年 3 月 30 日の中央環境審議会大気環境部会「揮発性有機化合物排出抑制専門委員会報告」の中で、「浮遊粒子状物質（SPM）及び光化学オキシダントの生成に係るシミュレーションの改良や広範囲な大気汚染物質の移流の影響等、科学的知見のさらなる充実を図っていく必要がある。」とされたことを受け、環境省において平成 18～22 年度にモデル改良、現況再現、感度解析などを実施した（6.1.3 参照）。

【 - 5】監視測定体制に関し、光化学オキシダント濃度をより高い精度で測定し、国際比較性を確保するため、環境省では光化学オキシダント自動測定機の校正方法を変更するとともに、世界標準とされている標準参照光度計(Standard Reference Photometer、以下「SRP」という。)を一次標準とするトレーサビリティが確保された校正体制を整備した（4.1.1 参照）。

➤ 世界における SRP 導入状況



(向井, 2011)

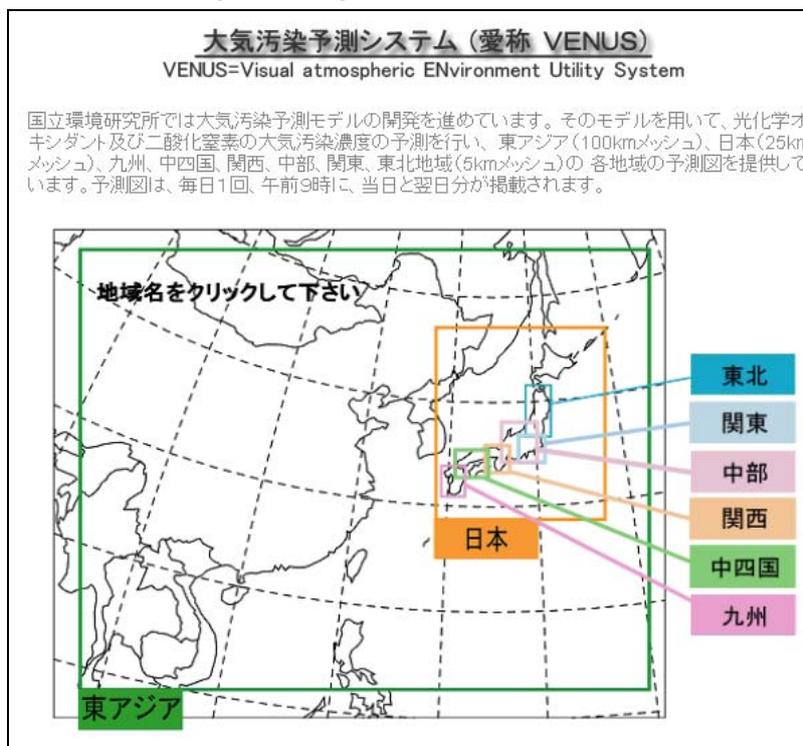
【 - 6】また、環境省では常時監視結果の一層の信頼性向上を図るため、各種測定方法の再検証などとともに、リファレンスシステム・精度管理システムの構築を目指した調査・検討を実施中である。

【 - 7】大気汚染物質の濃度予測情報の提供に関し、住民や地方自治体に対して、光化学オキシダントの濃度予測などの情報をホームページにより提供を行うシステム「大気汚染予測システム（VENUS; Visual atmospheric ENvironment Utility System）」が関東地域を対象に平成20年より国立環境研究所において公開され、その後対象地域を拡大し、全国での対応が可能となっている。

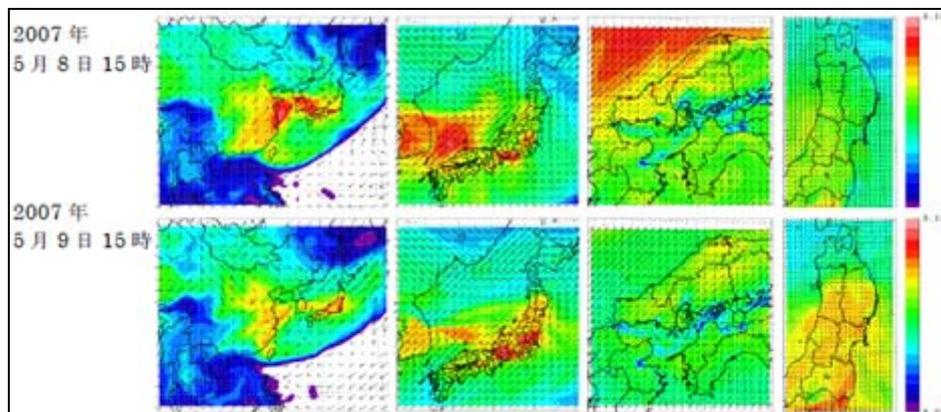
【平成23年3月時点の対象地域】

東アジア地域、日本全域、九州、中四国、関西、中部、関東、東北の各地域  
 ホームページ URL : <http://www-gis5.nies.go.jp/osenyosoku/>

➤ 大気汚染予測システム（VENUS）のホームページ画面



➤ VENUS による光化学オキシダント濃度の予測結果（単位は ppm）

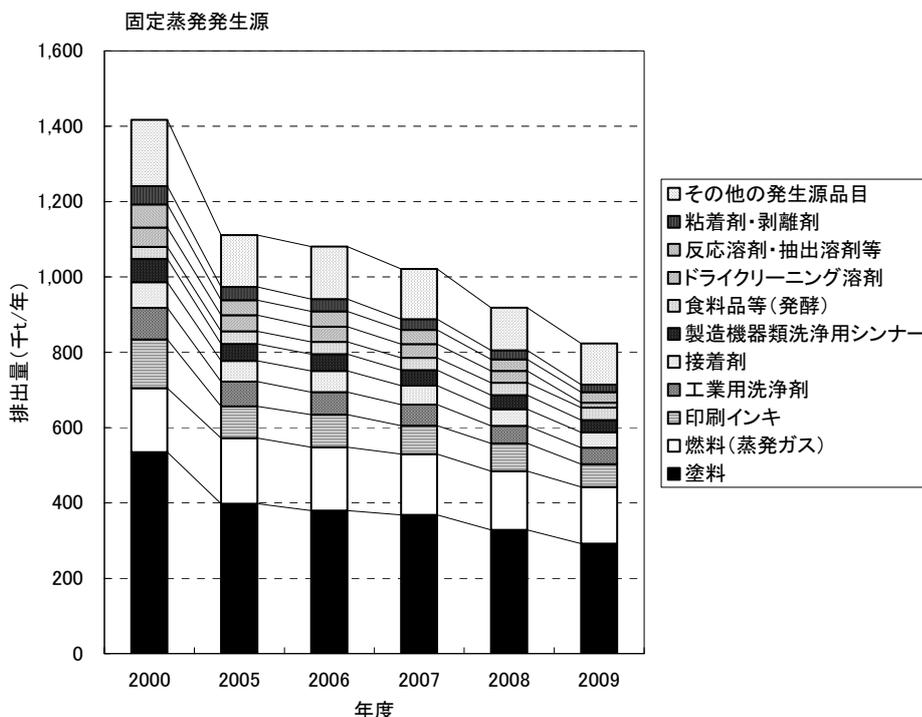


注：国立環境研究所記者発表(2010)「「環境 GIS」ホームページ「大気汚染予測システム」について～全国の光化学オキシダント等の詳細予測を開始～(お知らせ)」より引用

## 国内における削減対策等の更なる推進

【 - 1】VOC 排出抑制目標（平成 22 年度を目途に平成 12 年度比で 3 割程度削減）に対し、平成 21 年度排出インベントリ（固定蒸発発生源）では 3 割を上回る排出量の削減を確認している（4.1.2 参照）。

➤ 平成 21 年度 VOC 排出インベントリ（固定蒸発発生源）の推移（日本全国）



【 - 2】中央環境審議会大気環境部会 VOC 排出抑制専門委員会のもと平成 22 年度に「次期 VOC 対策のあり方の検討ワーキンググループ」が設置され、科学的根拠に基づく効果的な対策のあり方が検討され、以下のように取りまとめられた（環境省，2010b）。

光化学オキシダント注意報の発令回数の現況と当初想定とのかい離が生じた原因については、十分整理されていない。新たに検討の場を設け、これまでの VOC 排出量の削減と光化学オキシダントの削減が当初の想定からかい離した原因を整理しつつ、今後、最新の科学的知見を充実した上で、対策を検討する必要がある。なお、光化学オキシダントの問題については、多くの要因が複雑に関係し、シミュレーション等においても不確実性が介在することから、検討に関しては、透明性の確保に留意することが必要である。

【 - 3】前駆物質排出インベントリの整備・更新のため、環境省ではばい煙発生施設から排出される NO<sub>x</sub> 量の調査を 1 回/3 年、VOC 排出量（固定蒸発発生源）のインベントリの作成を毎年度実施している（4.1.2 参照）。また、農業分野として農薬、殺虫剤の VOC 排出量の調査を実施した。

### 国際的な取組の推進

【 - 1】平成 20 年より「日中韓光化学オキシダント科学研究ワークショップ」を日中韓各国で順次開催し、オゾン汚染メカニズムの解明や光化学オキシダントに関する知見の共有等を実施中である。このワークショップは、平成 19 年に開催された第 9 回日中韓三カ国環境大臣会合 (TEMM9) において、オゾン汚染のメカニズムの解明や共通理解の形成に資するよう、既存の知見の共有など科学的な研究について協力することに合意されたことを受け、行われているものである。平成 23 年 11 月に第 4 回ワークショップが東京にて開催され、第 3 回ワークショップで合意された共同研究の 3 つのテーマ (「共同観測の実施」、「オゾンモニタリング精度保証・精度管理」及び「光化学オキシダントのトレンド分析」) のより具体的な実施計画案について議論され、今後のスケジュールが確認された。

#### ➤ 第 4 回ワークショップの様子



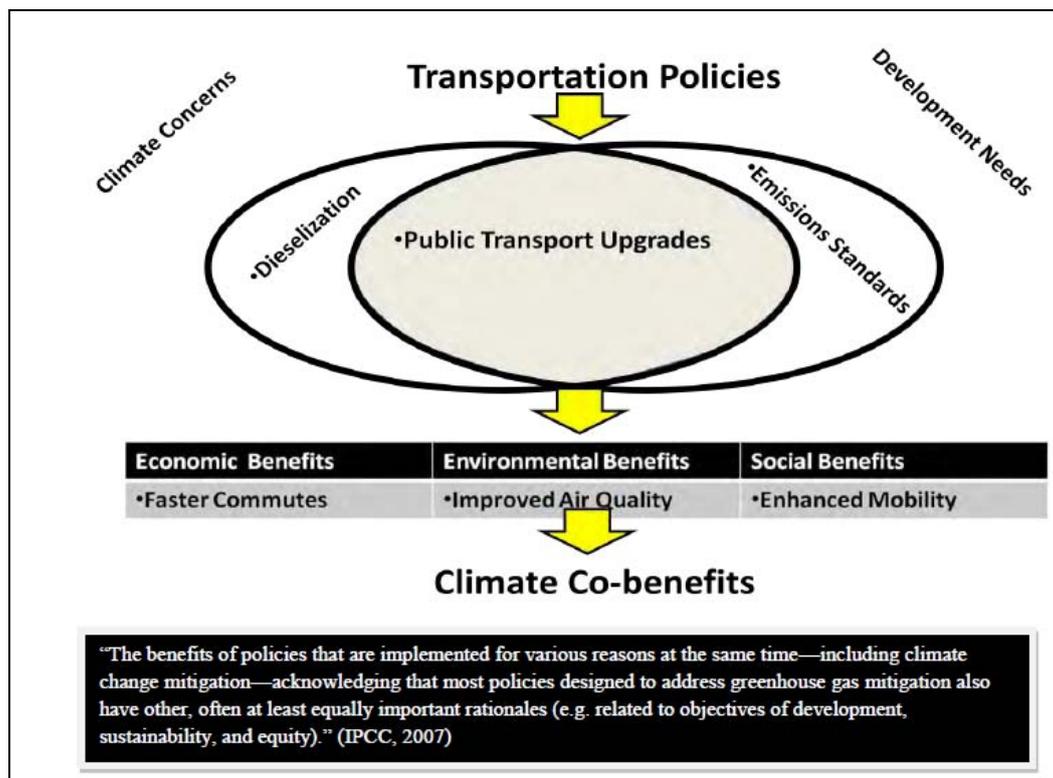
【 - 2】アジアにおいてはオゾンの観測体制が不十分であるため、「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)」の枠組みを活用して、観測体制の整備を支援している。具体的には、EANET 参加国におけるオゾン簡易測定法の導入に向け、気象条件の異なる複数国における自動測定機との比較等の実証調査を行っている。また、EANET 参加国において保有されている自動測定機による測定結果の比較可能性を確保するため、EANET 参加国の自動測定機保有状況及びその精度保証・精度管理方法の調査を行い、国際標準となる基準器とのトレーサビリティの構築に向けた現地調査を実施している。

【 - 3】近隣諸国の協力推進として、平成 22 年 11 月に創設された「アジアコベネフィット・パートナーシップ」において、コベネフィット型事業を普及させるための情報共有や共同研究、ガイドラインの作成などを開始した。

➤ アジアコベネフィット・パートナーシップ

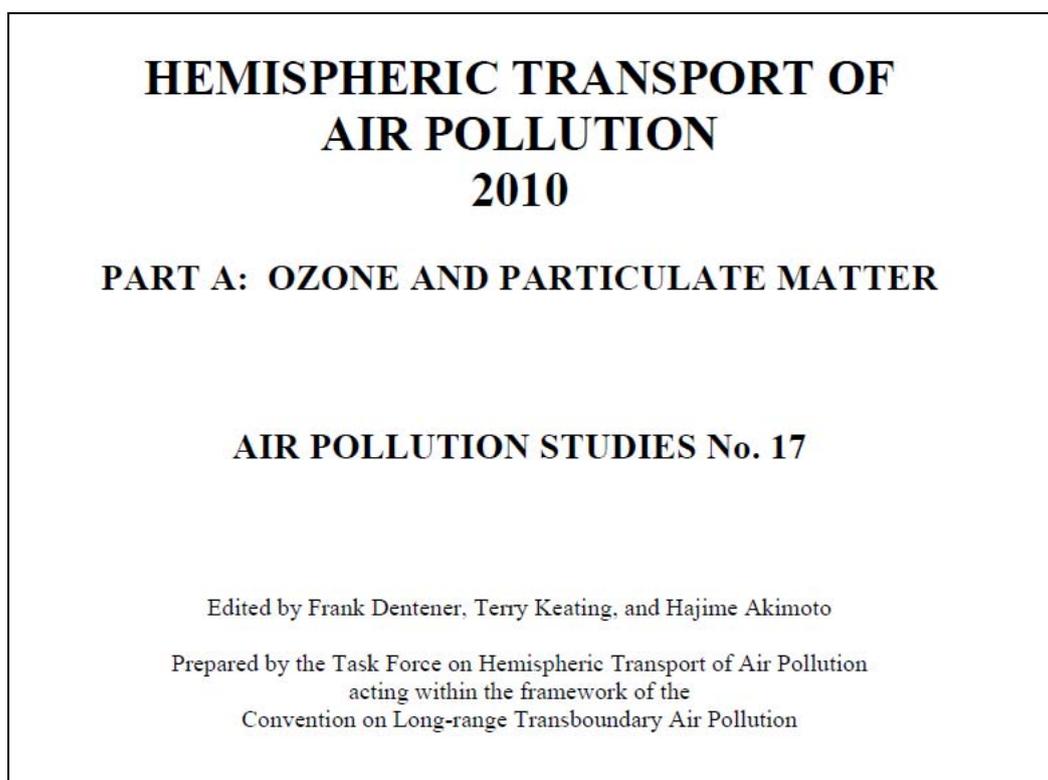


➤ コベネフィットフレームワーク



【 - 4】半球規模での大気汚染物質の大陸間輸送の存在が明らかとなっていることから、全球モデルと東アジア域モデルの有効な連携を検討中である。「大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース (TF HTAP)」では大気汚染物質の大陸間輸送に関する包括的な評価書として[Hemispheric Transport of Air Pollution 2010 (HTAP2010)]を示しており、日本からも編集者の秋元 肇 (日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター 所長)を始め、多くの科学者が作成に貢献している。

- Hemispheric Transport of Air Pollution 2010 (HTAP2010)  
PART A: OZONE AND PARTICULATE MATTER



## 第4章 光化学オキシダントの状況

### 4.1 我が国における光化学オキシダント濃度の状況

#### 4.1.1 我が国における監視測定体制

我が国では、大気汚染防止法に基づく都道府県等による大気汚染状況の常時監視の一環として、平成22年度末現在、一般環境大気測定局1,144局、自動車排出ガス測定局33局において光化学オキシダントの測定が実施されている。

また、これらとは別に、遠隔地におけるオゾン測定が、環境省（国設酸性雨測定所）9地点、気象庁3地点及び国立環境研究所2地点で実施されている。

我が国における光化学オキシダントの測定方法は、「大気の汚染に係る環境基準について」（昭和48年5月8日環告25）で規定されており、「大気汚染に係る環境基準についての一部を改正する環境庁告示」（平成8年10月25日環告73）において、「中性ヨウ化カリウム溶液を用いる吸光光度法若しくは電量法」に加え、「紫外線吸収法又はエチレンを用いる化学発光法」が追加された。当該告示において、『光化学オキシダントに係る紫外線吸収法及び化学発光法の測定対象物質はいずれもオゾンであるが、

光化学オキシダントにおける主成分のオゾン以外のPAN（ペルオキシアセチルナイトラート）の大気中濃度は、1976から85年の平均で0.0008ppmであり、高濃度時でも0.01ppm前後と低いこと。

中性ヨウ化カリウムを用いる吸光光度法はPANに対して感度が低いこと。この事実を踏まえれば、中性ヨウ化カリウムを用いる従来の測定方法による光化学オキシダントの測定値に対するオゾン以外の成分の寄与は極めて小さいと考えられ、1年間のフィールド試験によっても従来の測定法による測定値と紫外線吸収法及び化学発光法による測定値とはよく一致していることから、紫外線吸収法及び化学発光法により得られたオゾンの測定値をもって光化学オキシダントの値として差し支えない。』とされている。

現状では中性ヨウ化カリウム法と紫外線吸収法が混在している状況であるが、維持管理の簡易性や国際的な導入傾向などを考慮し、各自治体では紫外線吸収法での測定が主流となっている。平成21年度における一般局での測定方法の種別を見ると、およそ9割が紫外線吸収法での測定を行っている（図4.1.1-1）。

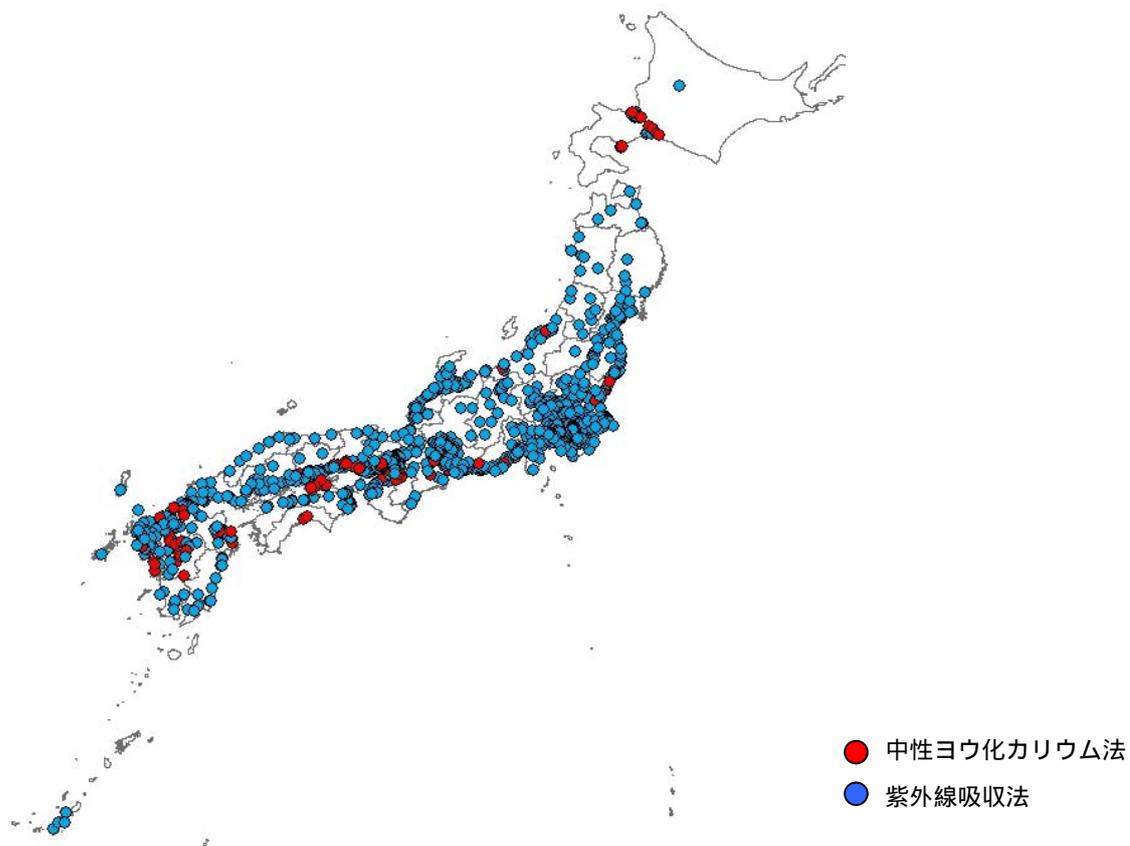


図 4.1.1-1 一般局における測定方法種別  
(平成 21 年度大気汚染状況報告書 (環境省, 2011) より作成)

## (1) 光化学オキシダント自動測定機の精度管理

これまでの我が国におけるオキシダント自動測定機の校正（値付け）方法については、「オキシダント自動測定器の動的校正マニュアル」（昭和52年7月20日：環大企第198号）（以下「動的校正マニュアル」という。）及び「環境大気常時監視マニュアル（第5版）」（環境省，2007a）に基づき、不確かさの大きいとされる中性りん酸塩1%よう化カリウム溶液による手分析方法（以下「KI法」という。）が採用されていた。これは、それぞれの地方自治体が基準となるべき標準器を独自に手分析により校正（値付け）するもので、国内全体及び国際的なデータ比較に対応するために必要となるトレーサビリティは考慮されていなかった。しかし、オゾン/オキシダントは、化学的性質上大変不安定であるため、SO<sub>2</sub>ガスやNOガスのように標準ガスとして供給することができない。そのため、国際的にもオゾン/オキシダントの標準は、紫外線（UV）の吸光度計測による値付け法（以下「UV法」という。）が主流となっている。日本では、平成18年にJISにおいてもKI法からUV法に変更されている。

環境省では、平成18年度オキシダント自動測定機の校正に関する実態調査を踏まえ、平成20年度に有識者等で構成される「オキシダント自動計測器の精度管理検討会」を設置し、光化学オキシダントに係る国際的な取組を推進するために不可欠であるトレーサビリティを確保したオキシダント自動測定機の精度管理手法について検討が行われた。当該検討会からは、

校正方法については、KI法がUV法に比べてばらつきが大きく、高めの値を示し、また、国際的なデータ比較の観点からも、KI法を廃止し、UV法とする必要がある。

標準器及び校正の伝搬については、諸外国との国際比較が定期的に行われる一次標準器を確保し、維持運営を行うとともに、自治体ごとにグループ化を行うなどにより二次、三次標準とした形で伝搬できる体制を構築することが適当である。

ことが提言された。

環境省では、この提言を受け、平成22年3月に環境大気常時監視マニュアルを改訂し、オキシダント自動測定機の校正（値付け）方法を、これまで規定されていたKI法を廃止し、国際的に採用されているUV法へと変更するとともに、標準器及び校正の伝搬については、諸外国との国際比較が定期的に行われる一次標準器を確保し、維持運営を行うとともに、自治体ごとにグループ化を行うなどにより二次、三次標準とした形で伝搬できる体制を構築した。

具体的には、国立環境研究所が所有するSRPを一次標準器とし、全国を6ブロックに分け、それぞれの拠点となる自治体（山形県、千葉県、愛知県、兵庫県、愛媛県、福岡県）に二次標準器を配置することで、当該校正を伝搬するトレーサビリティの確保された精度管理体制が整備された（図4.1.1-2）。なお、平成23年4月には、全国すべての自動測定機が当該精度管理体制の下で校正され、測定が開始された。この精度管理体制の確立により、濃度スケールを統一することが

でき、国内及び国際的にデータの比較可能性を担保することが可能となった。

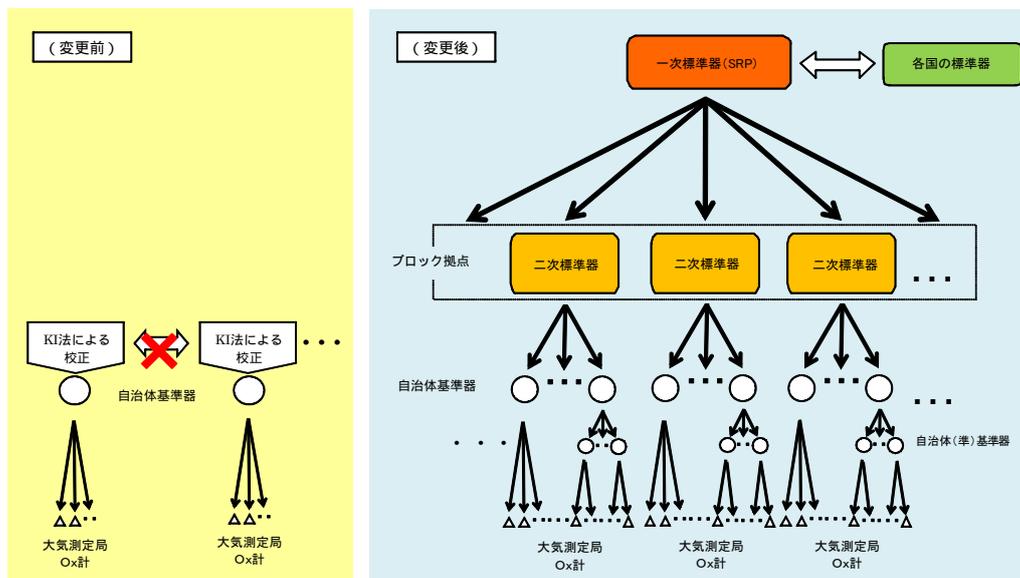


図 4.1.1-2 O<sub>3</sub> 自動測定機の校正の伝搬について (精度管理体制)

なお、平成 22 年度の二次基準器による三次基準器 (自治体基準器) の校正結果 (図 4.1.1-3) において、当該精度管理体制への移行直前における二次標準器に対する三次標準器 (自治体基準器) の感度比は、最大で 17% 程度のばらつきがあった (向井, 2011)。これは、光化学オキシダント濃度が実際には 100ppb である場合に、測定局では最大 117ppb 程度を示していたことになる。今後は、光化学オキシダント濃度の長期トレンドの解析等を行う場合には、過去の基準器の感度差について注意をする必要がある。また、当該精度管理体制への移行後、二次標準器に対する三次標準器 (自治体基準器) の感度比は  $1.00 \pm 0.01$  (1%) 以内に精度管理されている。

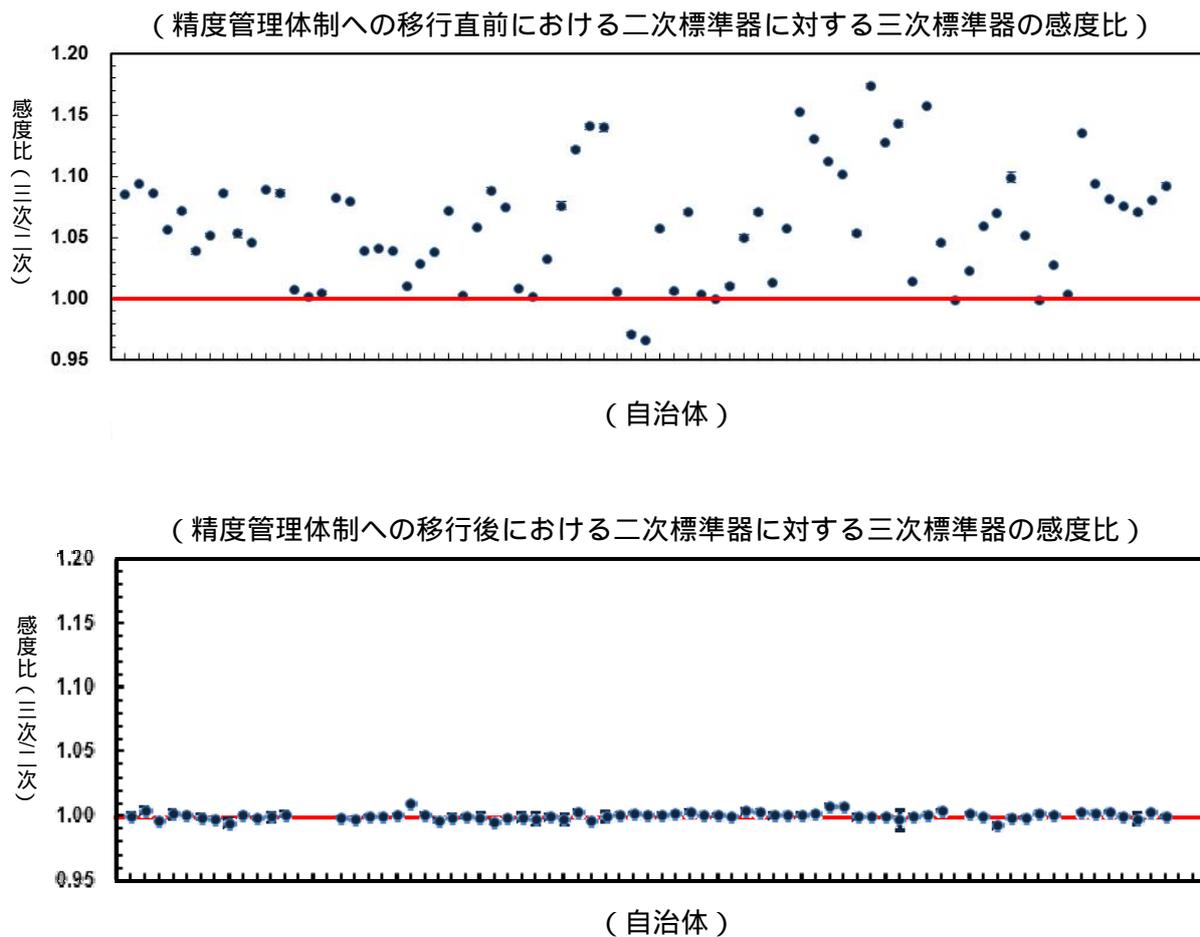


図 4.1.1-3 二次標準器と三次標準器（自治体基準器）の感度比（向井,2011）

(2) 常時監視測定局の配置

測定局の地理的な分布について、関東地方における光化学オキシダント測定をしている一般局の配置と土地利用状況を図 4.1.1-4 に示す。土地利用状況については、国土数値情報ダウンロードサービス（国土交通省ホームページ）の「土地利用細分メッシュデータ（平成 18 年度）」を使用した。

関東では市街地等の密集地域に集中配置され、森林地域などの内陸部の低人口密度地域における測定はほとんど行われていないことが分かる。これは、環境基準が「人の健康の保護及び生活環境の保全のうえで維持されることが望ましい基準」であり、大気汚染状況の常時監視の目的の観点から民家の存在しない森林地域での配置がほとんどなされなかったためである。

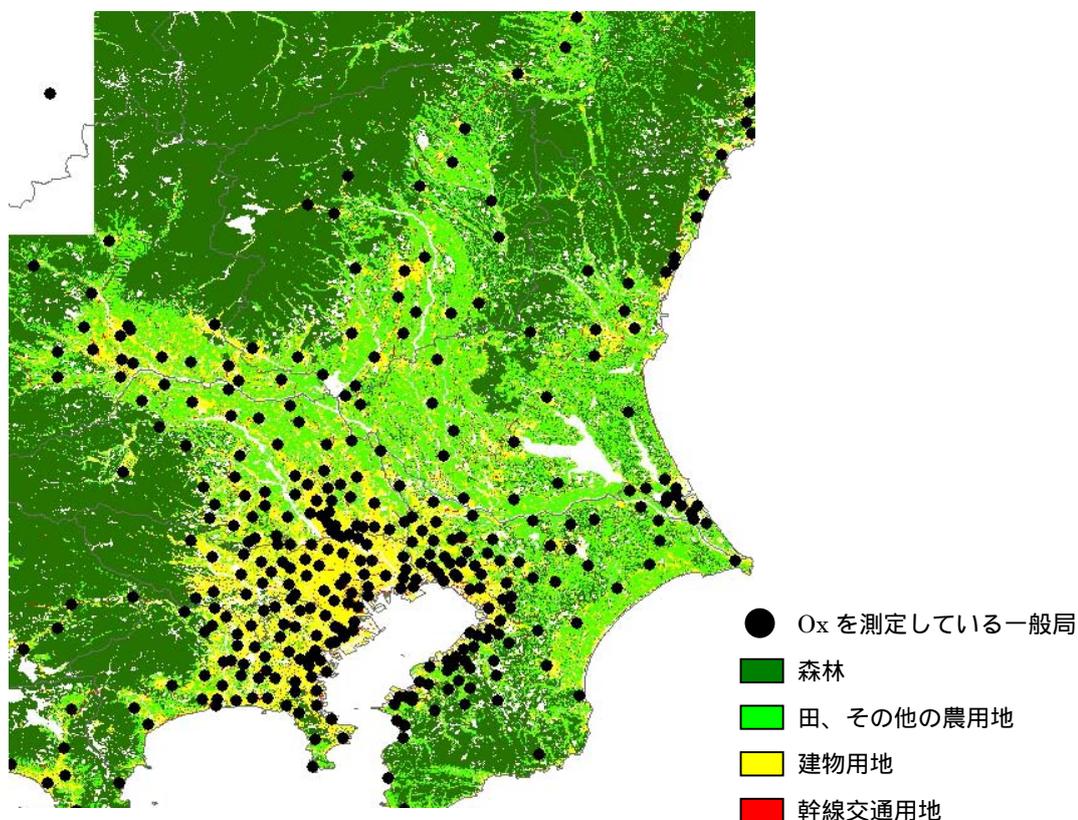


図 4.1.1-4 関東における光化学オキシダントを測定している一般局の配置と土地利用状況

## 4.1.2 全国的な状況

(1) 前駆物質 (NO<sub>x</sub>、VOC) の排出削減実績NO<sub>x</sub>

光化学オキシダントの前駆物質である NO<sub>x</sub> については、大気汚染防止法によりばい煙発生施設からの排出量が規制されている。また、移動発生源からの NO<sub>x</sub> の排出は、自動車には自動車排出ガス規制、建設機械などのオフロード自動車には特定特殊自動車排出ガスの規制等に関する法律により排出が規制されている。また、法律だけでなく自治体の条例や指導要綱によっても個別に規制されているところである。

主要な固定発生源からの NO<sub>x</sub> 排出量は環境省が大気汚染防止法の規制対象工場・事業場から排出される SO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub> 及びばいじんの排出量等の動向を3年ごとに調査している「大気汚染物質排出量総合調査（最新の調査結果は平成20年度実績）」（環境省,2010a）、移動発生源からの NO<sub>x</sub> 排出量は、「平成19年度自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書」（環境省,2007b）、「平成20年度自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書」（環境省,2008b）に取りまとめられている。これらのデータを整理した主要な固定発生源及び移動発生源からの NO<sub>x</sub> 排出量を図4.1.2-1に示す。

固定発生源からの排出量は、平成8年度（1996年度）から平成17年度（2005年度）までは横ばい傾向で84～89万トンであったが、平成20年度（2008年度）は73万トンと減少している。移動発生源からの排出量は平成17年度（2005年度）は81万トンであったものが平成22年度は57万トンとなっており、規制の効果により着実に削減している。

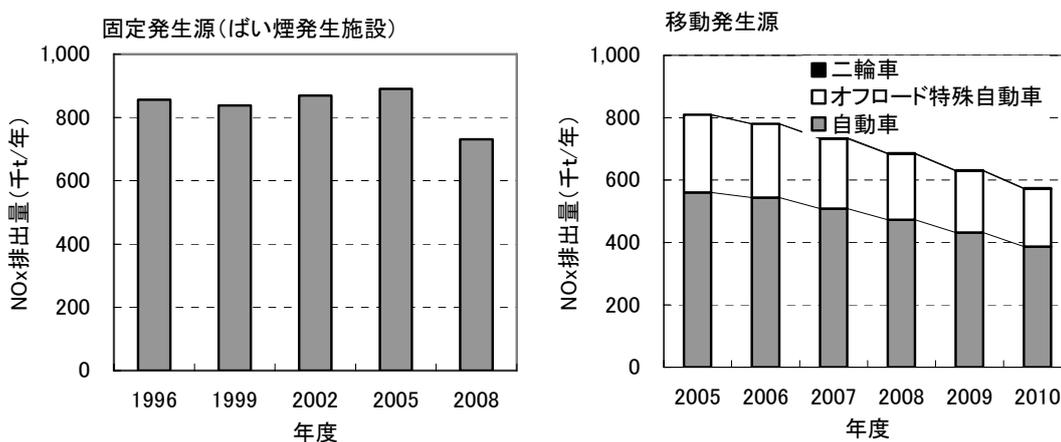


図 4.1.2-1 主要な固定発生源及び移動発生源からの NO<sub>x</sub> 排出量 (日本全国)

注：主な固定発生源は「大気汚染物質排出量総合調査（最新の調査結果は平成20年度実績）」（環境省,2010a）のばい煙発生施設である。

移動発生源は「平成19年度自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書」（環境省,2007b）、「平成20年度自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査報告書」（環境省,2008b）の二輪車、オフロード特殊自動車、自動車である。

二輪車は平成19年度（2007年度）から掲載している。

船舶、鉄道、航空機は現時点で環境省ではとりまとめられていない。

VOC

主要な固定蒸発発生源、燃料の燃焼及び移動発生源からの VOC 排出量は、「揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ」(環境省,2008~2010) にまとめられている。それらのデータから主要な固定蒸発発生源、燃料の燃焼及び移動発生源からの揮発性有機化合物 VOC 排出量を図 4.1.2-2 に示す。なお、移動発生源については上記インベントリ調査での推計対象外であり参考値として取りまとめられたものである。

国内の固定蒸発発生源からの排出量は平成 17 年度 (2005 年度) の 111 万トンが平成 21 年度 (2009 年度) には 82 万トンと減少した。固定蒸発発生源については VOC 排出抑制制度により基準年度(平成 12 年度 ; 2000 年度)から平成 22 年度 (2010 年度) までに 3 割程度の抑制を見込んでおり、平成 12 年度 (2000 年度) の 142 万トンに比べ平成 21 年度 (2009 年度) は約 42% の低減となっている。

また、移動発生源からの排出量は平成 17 年度 (2005 年度) に 49 万トンであったものが平成 21 年度 (2009 年度) には 35 万トンとなっており、規制の効果により、それぞれ着実に削減している。

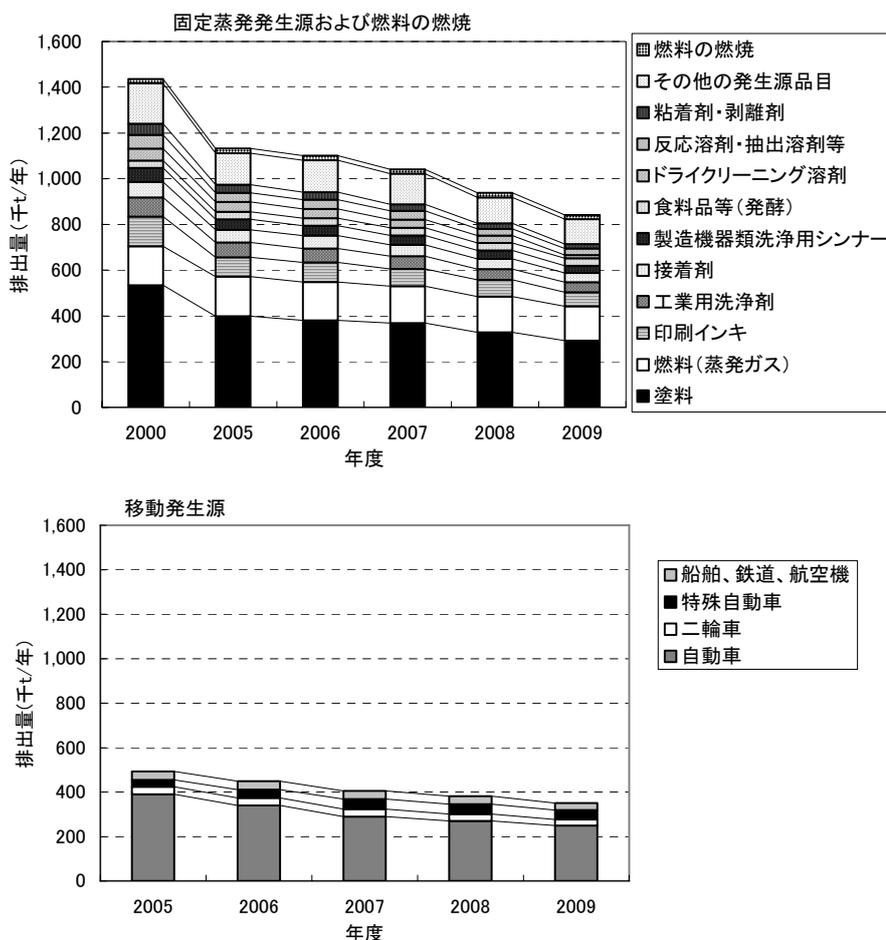


図 4.1.2-2 主要な固定蒸発発生源 (上段) 及び移動発生源 (下段) からの VOC 排出量 (全国)

注: 固定蒸発発生源は、「揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ」(環境省,2008~2010) にとりまとめられたものである。

燃料の燃焼及び移動発生源は「揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ」推計対象外の参考値である。移動発生源については平成 18 年度 (2006 年度) はデータがないため、前後年度値より内挿した値である。

「EAGrid2000-Japan( Kannari et al.,2007 )」では植物起源の VOC 排出量(平成 12 年度(2000 年度)推計結果)を整理している。「EAGrid2000-Japan」では植物起源 VOC について、国別(グリッド別)・昼夜別に年間排出量及び月別排出量が示されている。ここでは、日本を対象としたグリッドの年間排出量を合計し、日本における植物起源 VOC 排出量を 175 万トン/年と算出した。この値は近年の主要な人為起源の VOC 排出量より多くなっている。「EAGrid2000-Japan」の値は平成 12 年度(2000 年度)であり、近年の排出量については不明であるが、横ばいであると仮定して人為起源 VOC を含めた発生源別の VOC 排出量の割合を見ると、人為起源 VOC の排出量が減少しているため VOC 排出量に占める植物起源 VOC 排出量の割合は増加し、近年光化学生成の観点から植物起源 VOC の重要性がより大きくなっているものと考えられる。(図 4.1.2-3)。なお、ここでは植物起源発生源は変動無しで整理しているが、本来は植物起源 VOC は気温や日射量などの気象条件により排出量の変動することに留意する必要がある。

植物起源 VOC 排出量は、文献により値が大きく異なり、[中西ほか,2009]では排出係数の設定の違いなどにより約 330 万トン/年や約 140 万トン/年と推定値(平成 14 年度推計結果)が大きく異なることが示されており、排出量把握の精緻化を図る手法が求められるところである。

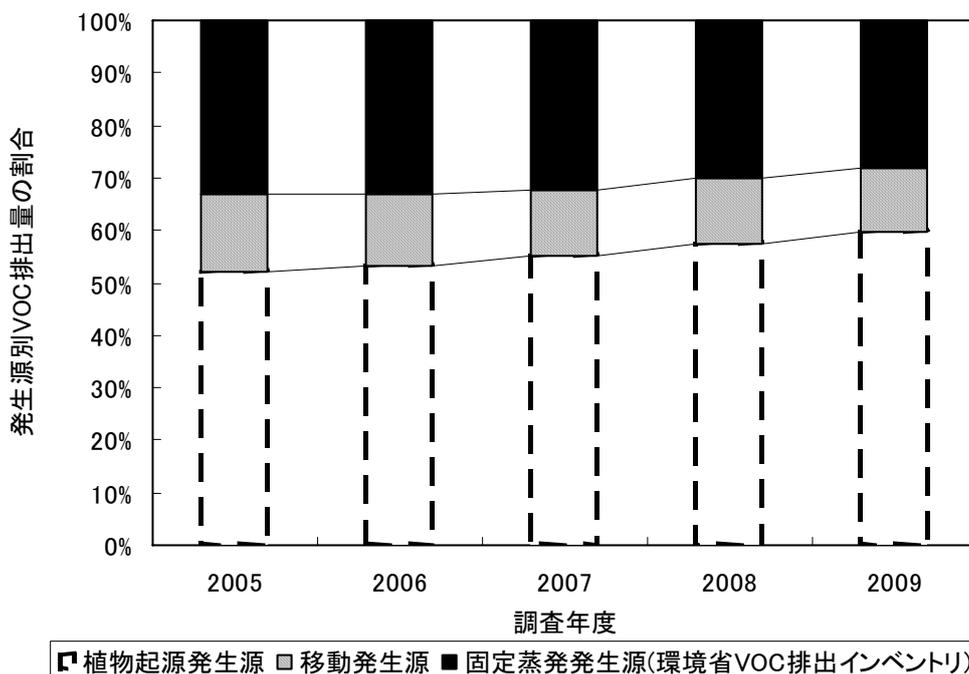


図 4.1.2-3 自然発生源を加えた発生源別 VOC 排出量の割合の推移

注：植物起源発生源は変動無しとし、平成 12 年度(2000 年度)推計結果を参考として使用したため点線での表記とした。植物発生源は気温、日射量により変動するため、本来は気象条件により年々変動が存在する。

VOC は成分によってオゾン生成に与える影響（オゾン生成能）が異なることが知られている。このため、オゾン生成能の指標である MIR(Maximum Incremental Reactivity)を用いて、固定蒸発発生源の VOC 排出インベントリ推計結果から下記に示す算出式によりオゾン生成ポテンシャルを求めた。オゾン生成ポテンシャルは図 4.1.2-4 及び表 4.1.2-1 に示すように、平成 21 年度（2009 年度）には削減率 44%（平成 12 年度比）との結果となった。

なお、MIR を明らかにすることができたのは、VOC 排出インベントリの対象のうち約 90%程度(重量割合)であり、ここでの推計結果は完全なものではない。

【オゾン生成ポテンシャルの算出式】

$$\text{オゾン生成ポテンシャル(t/年)} = \text{MIR[成分別]} \times \text{VOC 排出量[成分別](t/年)}$$

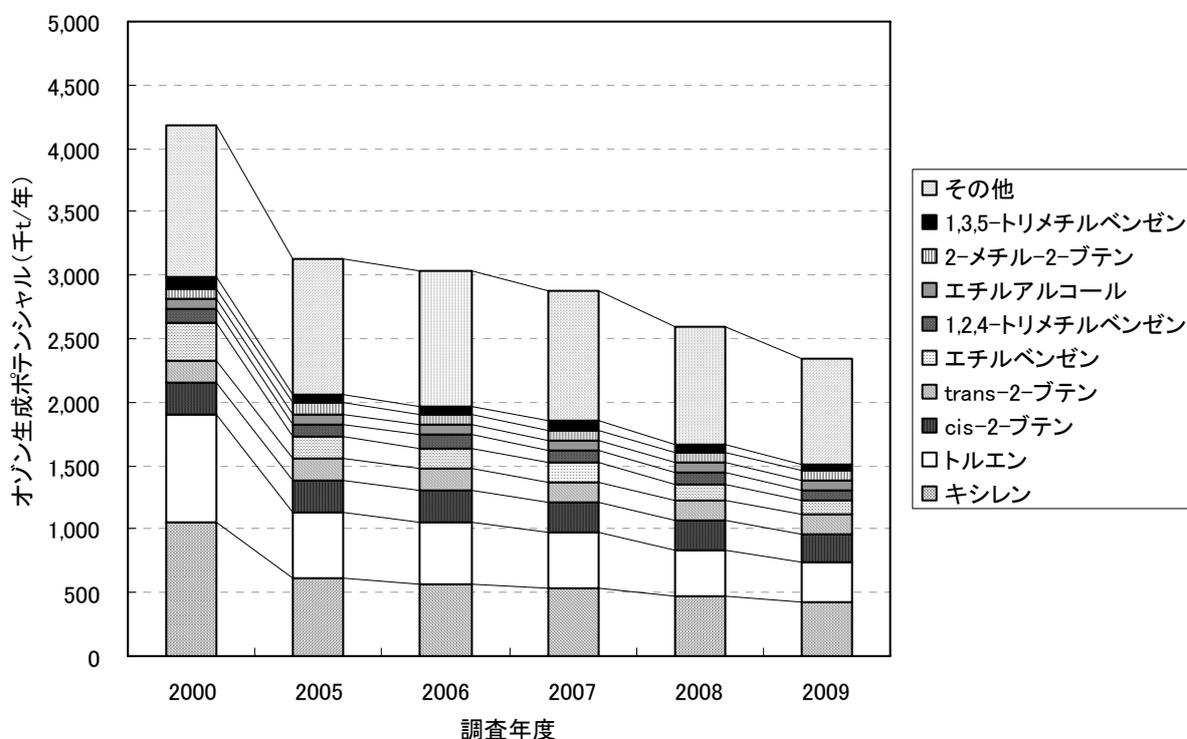


図 4.1.2-4 物質別オゾン生成ポテンシャルの推移（固定蒸発発生源：日本全国）

MIR の出典：カリフォルニア大学ホームページ（University of California）内の  
SAPRC Atmospheric Chemical Mechanisms and VOC Reactivity Scales  
<http://www.engr.ucr.edu/~carter/SAPRC/saprc07.xls>

VOC 排出量の出典：「揮発性有機化合物（VOC）排出インベントリ」（環境省,2010）

注：成分別 MIR は以下のように考えた。

- ・VOC 排出インベントリで推計対象となっている項目と一致する項目が MIR データにある場合はこれを使用する。
- ・VOC 排出インベントリ内で多成分の化学種を指す項目（例：C10 芳香族）については、MIR データでも対応する項目が存在する場合（例：Unspecified C10 Aromatics）、このデータを使用する。対応させた項目については、次ページの表に示す。
- ・VOC 排出インベントリ内の多成分の化学種を指す項目で MIR データに対応する項目が存在しない場合は MIR データなしとして計算した。ただし、多成分の化学種を指す表記であるが単一成分を特定できる場合（例：C2 パラフィン）、その化学種の MIR データを使用する。

- ・VOC インベントリ内、ヘキサンについては、n-ヘキサンとヘキサンの双方が存在する。そのため、n-ヘキサンは「n-hexane」のMIRを使用、ヘキサンは「Unspeciated C6 Alkanes」のMIRを使用し、他のアルカンも同様に扱った。

VOC 排出インベントリ項目（複数の化学種や異性体）と対応させた MIR データの項目

VOC インベントリ項目	対応させた MIR データの項目
C <sub>n</sub> パラフィン *	Unspeciated C <sub>n</sub> alkanes
C <sub>n</sub> シクロアルカン *	C <sub>n</sub> cycloalkanes
C <sub>n</sub> ナフテン *	C <sub>n</sub> cycloalkanes
C <sub>n</sub> オレフィン *	C <sub>n</sub> alkenes
C <sub>n</sub> 芳香族 *	Unspeciated C <sub>n</sub> Aromatics
キシレン	C <sub>8</sub> disubstituted benzenes
プロピルベンゼン類	C <sub>9</sub> monosubstituted benzenes
メチルエチルベンゼン類	C <sub>9</sub> disubstituted benzenes
ジメチルエチルベンゼン類	C <sub>10</sub> trisubstituted benzenes
クレゾール	C <sub>7</sub> alkyl phenols

\*...n は整数

表 4.1.2-1 物質別オゾン生成ポテンシャル計算結果（固定蒸発発生源：日本全国）

成分名	オゾン生成ポテンシャル (t/年)					
	平成 12 年度 (2000 年度)	平成 17 年度 (2005 年度)	平成 18 年度 (2006 年度)	平成 19 年度 (2007 年度)	平成 20 年度 (2008 年度)	平成 21 年度 (2009 年度)
キシレン	1,057,728	611,085	571,350	538,260	468,028	429,715
トルエン	846,651	520,182	488,825	435,465	368,838	310,242
cis-2-ブテン	250,523	254,268	246,307	236,096	228,466	219,606
trans-2-ブテン	172,207	174,779	169,300	162,279	157,042	150,942
エチルベンゼン	291,905	168,787	158,247	149,208	129,887	119,266
1,2,4-トリメチルベンゼン	113,331	98,761	105,348	105,773	95,921	81,345
2-メチル-2-ブテン	77,485	82,302	82,765	77,068	75,718	75,060
エチルアルコール	80,475	81,681	79,131	75,854	73,393	70,558
1,3,5-トリメチルベンゼン	100,253	70,828	71,764	71,770	65,079	55,478
その他	1,184,982	1,069,262	1,062,695	1,032,632	933,210	833,273
合計	4,175,538	3,131,935	3,035,732	2,884,406	2,595,582	2,345,485
削減率	0%	25%	27%	31%	38%	44%
平均 MIR	3.21	3.15	3.14	3.15	3.16	3.19
MIR データが得られた VOC の排出量	1,299,596	994,975	967,247	916,081	821,071	734,875
MIR データが得られない VOC の排出量	109,215	110,701	109,723	107,899	95,374	85,438
MIR データが得られない VOC の割合	8%	10%	10%	11%	10%	10%
全 VOC 排出量	1,408,811	1,105,676	1,076,970	1,023,980	916,445	820,313
削減率	0%	22%	24%	27%	35%	42%

MIR の出典：カリフォルニア大学ホームページ <http://www.engr.ucr.edu/~carter/SAPRC/saprc07.xls>

VOC 排出量の出典：「揮発性有機化合物（VOC）排出インベントリ」（環境省,2010）

注 1：VOC 排出インベントリで推計対象となっているうち、MIR が明らかになった物質のみの数値である。

注 2：成分名は平成 21 年度の上位 9 物質の計算結果である。

【参考：MIR (Maximum Incremental Reactivity) とは】

米国 EPA ではシミュレーションモデル SAPRC-99 を用いて算出されている。

SAPRC-99 は光化学反応モデルを含むボックスモデルであり、チャンバー実験を数値的に行うものである。VOC・NO<sub>x</sub> の初期濃度・排出量、気象条件等を設定し、基本となるケースに対して対象となる物質の排出量をわずかに増加させた際に、生成されるオゾンの変化量を計算し、両者の割合をもってオゾン生成能とするものである。

MIR の評価手順は以下のように NO<sub>x</sub> 濃度について感度解析を行い、基本ケースに追加した VOC に対するオゾンの最大増加割合を見るものとなっている。

- (1) 基本ケースに対して VOC/NO<sub>x</sub> 比が 4~40 となるよう、NO<sub>x</sub> 初期濃度および排出量を変化させ、それぞれのケースでボックス内の最大オゾン存在量を計算する。
- (2) 調査対象となる個別 VOC を、全ての VOC の初期濃度および排出量に対し 5%追加した上で、基本ケースと同様に NO<sub>x</sub> 初期濃度および排出量を変化させ、それぞれのケースでボックス内の最大オゾン存在量を計算する。
- (3) (1)と(2)のオゾン存在量の差を VOC/NO<sub>x</sub> 比ごとに求め、このうちの最大量を(2)の VOC 追加量で除した値が MIR となる。

日本においても SAPRC-99 を用いて日本国内の大気環境条件下での個別 VOC 毎の MIR を計算した結果が「揮発性有機化合物(VOC)の測定方法等について」(平成 17 年 3 月 30 日 中央環境審議会大気環境部会揮発性有機化合物測定方法専門委員会 委員長：岩崎好陽(東京都環境科学研究所参事研究員(当時))の参考資料として示されている。

(2) 環境濃度の現状

O<sub>x</sub>・NO<sub>x</sub>・NMHC

日本全国における光化学オキシダントの昼間(5～20時)の日最高1時間値の年平均値、NO、NO<sub>2</sub>、NO<sub>x</sub>の年平均値及びNMHCの6～9時における年平均値については、「大気汚染状況報告書」及び環境省ホームページ「大気汚染状況について」で毎年公表されている。VOCの排出抑制制度のVOC排出量基準年である平成12年度(2000年)から平成22年度(2010年)における各大気汚染物質の経年変化(一般局)を図4.1.2-5に示す。光化学オキシダントの前駆物質であるNO<sub>x</sub>やNMHCの濃度が低下傾向(年率:NO<sub>x</sub>-1.2ppb\*\*\*、NMHC-7.5ppbC\*\*\*)を示す一方で、光化学オキシダント濃度は上昇傾向(年率:0.5ppb\*\*\*)を示している。

\*\*\*: p<0.001で有意

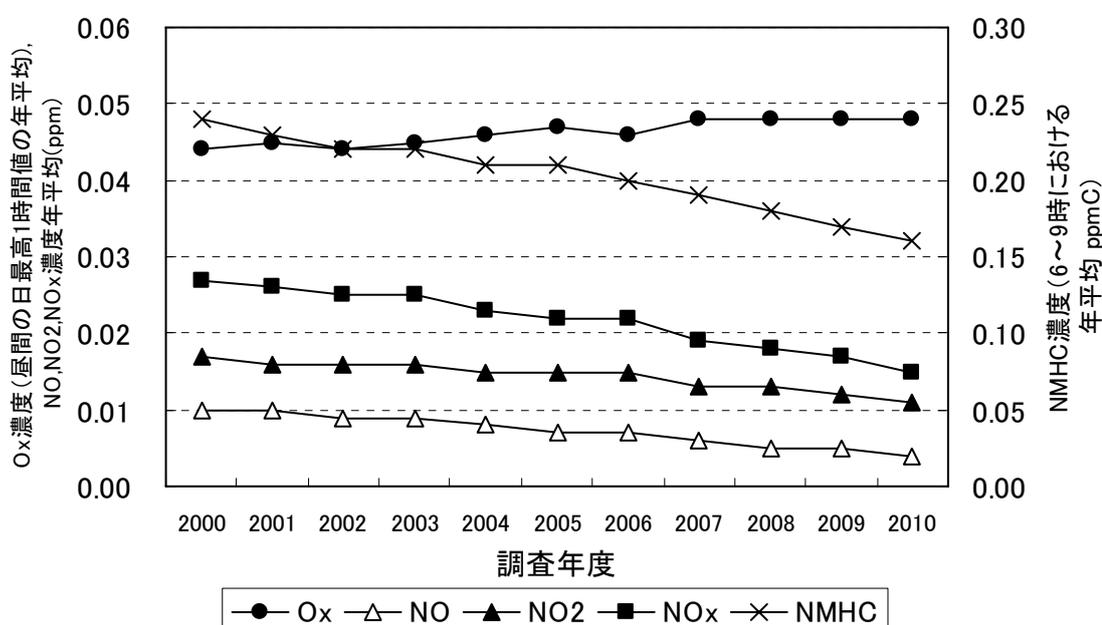


図 4.1.2-5 光化学オキシダント濃度・前駆物質濃度 (NO<sub>x</sub>、NMHC) の経年変化 (全国平均) (一般局:環境省「平成 21 年度大気汚染状況報告書」(環境省,2011)及び環境省報道発表資料「平成 22 年度大気汚染状況について (微小粒子状物質を除く。)」(環境省,2012)より作成) 測定局数: O<sub>x</sub> (1,143~1,168局) NO<sub>x</sub> (1,340~1,483局) NMHC (316~351局) 注:本データは環境省の公表資料を掲載したものであり、11年間の継続局のみを抽出したのではない

【データ解析の期間について】

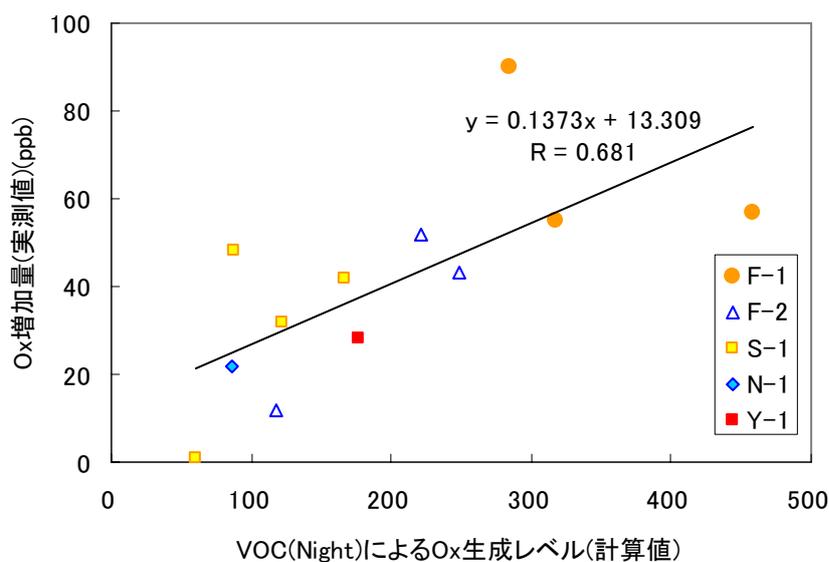
本報告書では、VOC 排出抑制制度による光化学オキシダント対策の効果を検証するため、VOC 排出量の基準年である平成 12 年度 (2000 年度) から最新の確定が公表されている平成 22 年度 (2010 年度) までを解析対象とした。なお、「4.1.3 地域的な状況」のうち、O<sub>x</sub> 季節別月平均値と気象要因の推移及び相関 (P.52~54,P.66~68,P.78~80,P.92~94) 及び「5.1.3 NO によるタイトレーション効果」のうち、PO を用いた地域ごとの解析 (P.136~138) については、平成 12 年度 (2000 年度) から平成 21 年度 (2009 年度) の 10 年間のデータで整理を行った。

また、光化学大気汚染による注意報発令状況や被害届出状況などは平成 23 年 (2011 年) のデータまで公表されているため、平成 23 年までを整理した。

【データ集計の時間区分について】

本報告書では、光化学オキシダントの年平均値の濃度については環境省が常時監視測定結果として整理・公表している「昼間（5～20時）」の時間区分での整理結果を掲載している。また、春季・夏季の2季について整理した結果は夜間にも発生する大陸からの越境汚染の影響を含めるため「全日（24時間）」を対象としている。夏季についてのみ整理した結果は、日中に光化学生成により発生する高濃度光化学オキシダントに注目するため、「昼間（5～20時）」の時間区分で整理を行っている。NMHCについては同様に6～9時の時間区分での整理結果を掲載している。

一方で、「5.1.1 光化学オキシダント生成におけるNO<sub>x</sub>・VOCの影響（週末効果含む）」(P.119～120)で後述するように光化学オキシダント濃度は平均化時間によって前駆物質の削減効果の見え方が異なってくる可能性がある。また、[力ほか,2009]及び[下原,2011]では下図のように前日夜のVOCと翌日の光化学オキシダント濃度の関連性が高いことを示している。これらのことから、今後光化学オキシダント及び前駆物質のモニタリングデータの解析を行う際には、解析の目的に応じた適切な平均化時間の検討を行う必要がある。



VOC によるオゾン生成能と Ox の実測値の関係（下原,2011）

- 最高気温（5～20時）：25 以上
- 日積算日射量：16MJ/m<sup>2</sup> 以上
- 平均風速（5～20時）：3.5m/s 未満

VOC

VOC の環境濃度については、「有害大気汚染物質及び揮発性有機化合物(VOC)モニタリング調査」として常時監視測定局での大気汚染物質濃度測定とは別に、全国 53 地点(平成 17 年度は 6 月から 10 ヶ月、52 地点)で月 1 回モニタリングが行われている。一般環境地点 30 地点での VOC19 物質の年平均値の経年変化を図 4.1.2-6 に示す。各測定局の年平均値は月 1 回 24 時間値(年間 12 回)の平均値とした。

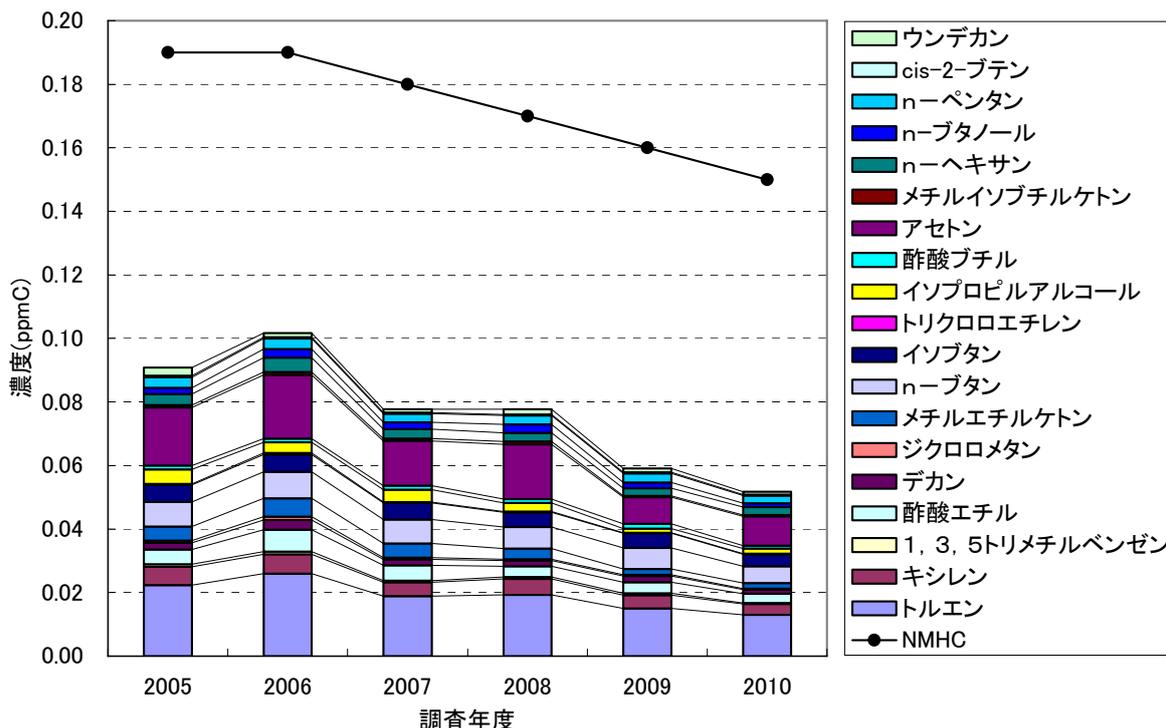


図 4.1.2-6 全国一般環境地点の VOC 各成分濃度等の経年変化 (19 物質)

注 1 : VOC19 物質は平成 17 年度 (2005 年度) 6 月からの測定である。

注 2 : VOC19 物質は一般局 30 局の年平均値を平均したものである。

注 3 : NMHC は常時監視測定局のうち 10 年間継続測定の一般局 254 局(平成 22 年度(2010 年度)は 249 局)の年平均値を平均したものである。

VOC 排出抑制制度は、VOC 排出量基準年の平成 12 年度 (2000 年度) から平成 22 年度 (2010 年度) までに固定発生源からの VOC 排出量を 3 割程度削減するという目標に基づき実施している。この対策の基本的な考え方は、VOC について包括的に排出抑制を図ることであるが、発生源の種類ごとに VOC 対策の効果を把握することが重要であり、その取組状況を評価する指標として、環境大気中における VOC 個別成分の濃度の状況について把握することが求められている(環境省,2008a)。そのため、「環境大気中の揮発性有機化合物(VOC)濃度モニタリングに係る測定・分析方法検討委員会」(平成 17 年度、平成 18 年度開催)により、我が国において固定発生源からの排出量の多い 19 物質について測定・分析方法マニュアルを作成し、平成 17 年 6 月より全国 52 地点、平成 18 年度より全国 53

## 第4章

地点（一般環境 30 地点、道路沿道 9 地点、一般環境バックグラウンド地点 4 地点、発生源周辺 10 地点）でモニタリングが開始された。

一般環境地点ではすべての成分で濃度は低下傾向にあり、合計値で見ると平成 22 年度( 2010 年度 )は 0.052ppmC であり、平成 17 年度( 2005 年度 )の 0.091ppmC の 6 割程度となっている。VOC の固定蒸発発生源の削減比率と比較すると、平成 17～21 年度( 2005～2009 年度 )間で 111 万トン 82 万トンと VOC 排出量は 74%程度の排出量になっており、一般環境の VOC 平均濃度( 19 成分の全国平均 )は 0.091 0.059ppmC と 65%程度の濃度に低下と概ね同程度の低下傾向を示している。このことから、VOC 排出削減効果により VOC の環境濃度は近年減少傾向を示していることが分かる。なお、平成 17～18 年度( 2005～2006 年度 )間で VOC 濃度が上昇しているが、これは東京都の平成 18 年度冬季にジクロロメタンの濃度が上昇したことや、福岡県の平成 18 年度冬季にトルエン、長崎県及び大分県の夏季にアセトンの濃度が急激に上昇したことなど、一部地域の濃度変化の影響を受けたものと思われる。VOC は月に 1 回 24 時間の測定を行っているが、濃度の変動幅が大きく、濃度変化の傾向を見るには注意が必要である。

また、ここでは常時監視測定局( 10 年間継続一般局 254 局 )での非メタン炭化水素の経年変化をあわせて記載した。測定法、測定時間、測定地点に違いがあるものの、近年濃度が低下傾向という状況は類似しており、19 成分の VOC 濃度の合計値は NMHC の 4～5 割程度の値を示している。

常時監視測定 of NMHC と VOC19 成分の濃度は、環境省の「環境大気中の揮発性有機化合物 (VOC) 濃度モニタリングに係る調査検討」(平成 20~21 年度 (2008~2009 年度)) で比較検討がなされている。国設のの岳 (宮城県)、三浜小学校 (三重県)、国設大阪局 (大阪府)、国設川崎 (神奈川県) において VOC19 成分濃度 (ppmC 換算) と NMHC 濃度について日平均値の比較を行っている。VOC19 成分濃度と NMHC 濃度の比を見ると、VOC19 成分濃度は NMHC 濃度の 3 割から 5 割程度となる頻度が多くなっている (図 4.1.2-7)。

この結果は前述の NMHC 年平均値と VOC19 成分の年平均値の比と同程度であり、VOC19 成分で NMHC のおおよそ半分程度を占めていることが分かる。

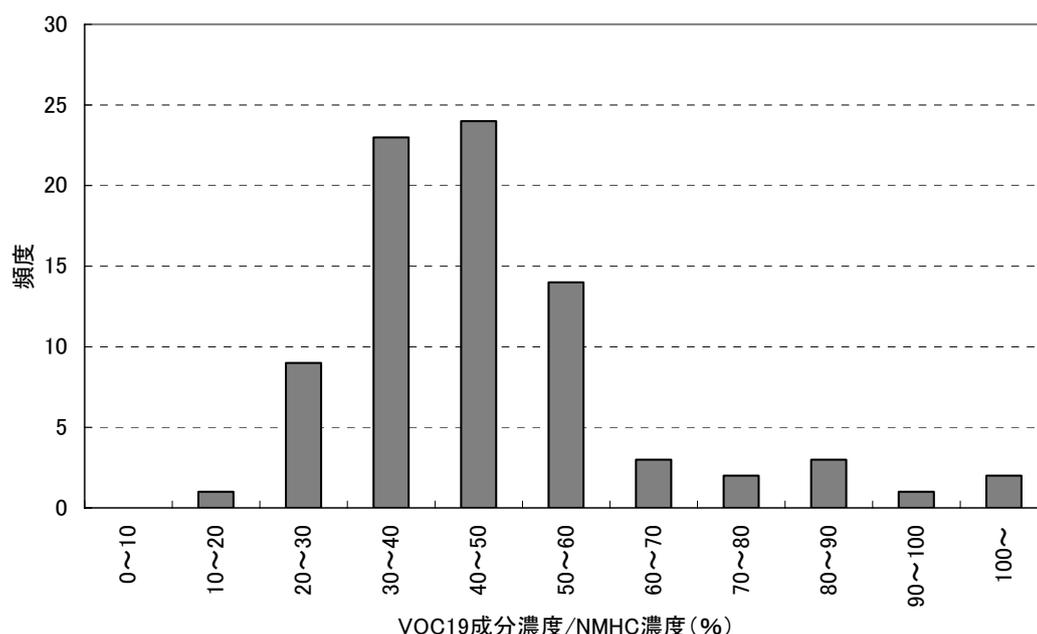


図 4.1.2-7 VOC19 成分濃度と NMHC 濃度の比 (日平均値)

測定日数：全 82 回 (国設のの岳(28)、三浜小学校(16)、国設大阪局(27)、国設川崎 (11))

注：VOC は各成分を ppmC 換算した濃度の合計値を用いた。

環境基準等達成状況

光化学オキシダントについては「大気の汚染に係る環境基準について」(昭和48年5月8日 環告25)により環境基準『1時間値が0.06ppm以下であること』とされている。また、光化学オキシダントの前駆物質であるNMHCについては、「光化学オキシダントの生成防止のための大気中炭化水素濃度の指針について」(昭和51年8月13日 中央公害対策審議会答申)において『光化学オキシダントの日最高1時間値0.06ppmに対応する午前6時から9時までの非メタン炭化水素の3時間平均値は、0.20ppmCから0.31ppmCの範囲にある』とされている。

光化学オキシダントの1年間の年間最高値が0.06ppm以下であった測定局(一般局)を環境基準達成、NMHCの6~9時における3時間平均値の年間最高値が0.031ppmC以下であった測定局(一般局)を指針値達成として整理を行った。集計に用いたデータは環境省の「大気汚染状況報告書」から引用した。

光化学オキシダントの環境基準達成率は1%未満であり、極めて低い水準で推移している。NMHCの指針値達成率については平成22年度が11.7%と低い水準ではあるものの、近年やや改善傾向にあることが認められる(図4.1.2-8)。

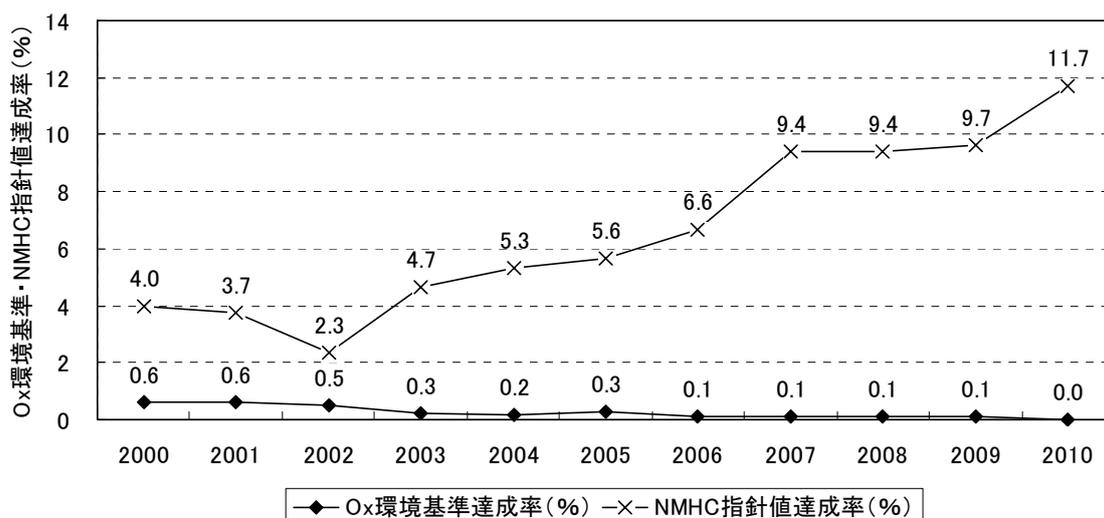


図 4.1.2-8 光化学オキシダント環境基準達成局数(一般局)及びNMHC(6~9時における3時間平均値)指針値達成局数(一般局)の推移(全国集計)

【参考：環境基準とは】

環境基準は、人の健康を保護し、生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準として環境基本法に基づき定められている。光化学オキシダントについては、短時間暴露による人の健康への影響を防止するという観点から『1時間値が0.06ppm以下であること』と定められており、ある測定局において1年間に測定された1時間値のすべてが0.06ppm以下である場合に当該測定局は環境基準達成と評価される。

## 注意報発令状況

次に、光化学オキシダントの注意報発令状況について、地域別の注意報発令延日数の近年の推移を図 4.1.2-9 に示す。注意報発令延日数については平成 23 年（2011 年）のデータまでが公表されているため、平成 12 年（2000 年）～平成 23 年（2011 年）のデータについて整理を行う（環境省，2000～2012）。注意報発令延日数は関東地方が最も多く、次いで近畿地方が多くなっている。近年の推移では関東地方、近畿地方は減少傾向を示しているように見える。

このように、注意報発令延日数については図 4.1.2-5 で示した光化学オキシダント濃度の経年的な傾向と相反した結果を示している。なお、平成 22 年（2010 年）以前の推移については「4.1.1 我が国における監視測定体制」で示したとおり、自動測定機の精度管理体制が変更された中で、各自治体の基準器の間で精度に大きな差があったことが確認されており、精度管理体制の変更が光化学オキシダント濃度や注意報発令に与えた影響について注意をする必要がある。

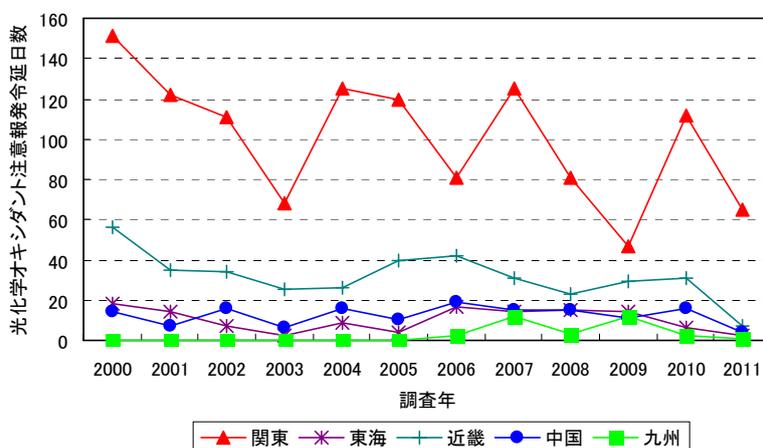


図 4.1.2-9 地域別光化学オキシダントの注意報発令延日数

関東：茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県

東海：岐阜県、静岡県、愛知県、三重県

近畿：滋賀県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、和歌山県

中国：鳥取県、島根県、岡山県、広島県、山口県

九州：福岡県、佐賀県、長崎県、熊本県、大分県、宮崎県、鹿児島県

【参考：光化学オキシダント注意報とは】

光化学オキシダント注意報とは、大気汚染防止法に基づき光化学オキシダント濃度の 1 時間値が 0.12ppm 以上になり、かつ、気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合に都道府県知事等が発令する。光化学オキシダント警報は各都道府県等が独自に要綱等で定めているもので、一般的には光化学オキシダント濃度の 1 時間値が 0.24ppm 以上で、気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合に都道府県知事等が発令する（一部の県では別の数値を設定している）。

【発令延日数とは】

発令延日数とは、都道府県を一つの単位として光化学オキシダント注意報等の発令日数を合計したものであり、同一日に同一都道府県内の複数の発令区域で光化学オキシダント注意報等が発令されても、当該都道府県での発令は 1 日として数える。

前述のように、注意報発令延日数については関東地方や近畿地方など以前から高濃度の光化学オキシダントが観測された地域では近年減少傾向が見られるが、注意報発令都道府県の推移は平成12年（2000年）以降は減少傾向とはなっておらず、やや数が減少した平成22～23年（2010～2011年）においても平成12～13年（2000～2001年）の数と同レベルの水準となっている（図4.1.2-10）。また、平成18年（2006年以降）以降に光化学オキシダント注意報が初めて発令された都道府県が4～6月に九州・四国や日本海側で見られるなど、これまで注意報が発令されなかった地域で高濃度の光化学オキシダントが現れており、近年高濃度の光化学オキシダントの出現地域が変化している傾向が見える（図4.1.2-11）。

この注意報等発令都道府県の広がりについては、「中間報告」や近年の様々な研究から、東アジアからの越境輸送の影響を受けていることが可能性として考えられる。

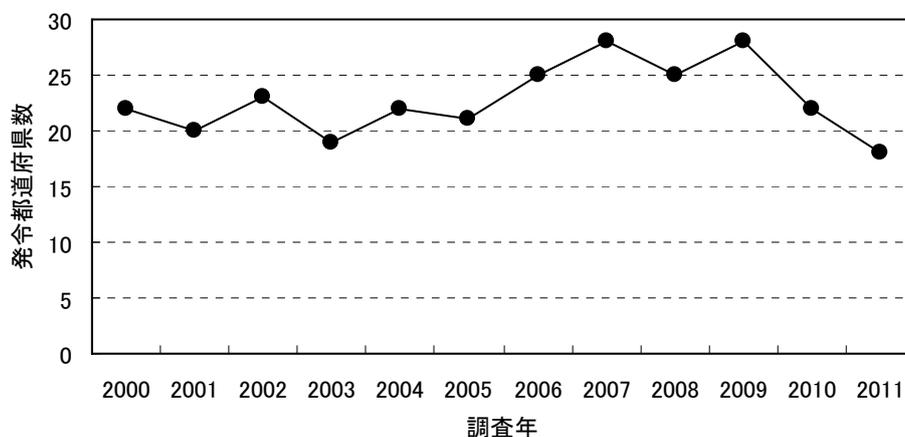


図 4.1.2-10 光化学オキシダント注意報等発令都道府県数の推移



図 4.1.2-11 平成18年（2006年）以降に光化学オキシダント注意報が初めて発令された都道府県

## 光化学大気汚染によると思われる被害届出状況

環境省では、光化学大気汚染によると思われる被害届出状況について全国の都道府県からの報告をもとに取りまとめている。

光化学オキシダントの健康への影響については、「光化学スモッグの発生防止等に関する暫定措置について（環大企 92 号,昭和 47 年 6 月 1 日）の参考の中で、『急性影響としては、眼の刺激(眼のチカチカ感、流涙等)症状や鼻、咽喉および呼吸気道の粘膜刺激(のどの痛み、いがらつぽい感じ、息苦しい等)症状が主体であり、ぜん息患者に対しては発作の誘発がみられることが知られている』としている。ただし、被害届が出された事例が光化学スモッグに起因するものかどうかについては、その事例発生時に当該地点で汚染物質の測定が行われていないことや、被害者についての健康診断、各種臨床検査等によっても診断基準が確立されていないことなどから、現在のところ大部分の事例は光化学スモッグの健康影響と断定することは困難な面があるとされている。

被害届出数の推移を見ると、調査年により大きな変動があり、明確な傾向は見られない（図 4.1.2-12）。

また、被害届の大部分は、小中学校における屋外での活動中に発生しているが、被害症状としては、目やのどに関する症状が多く、休息、洗眼、うがい等により回復しており、入院治療を要するような重症の被害者は近年見られていない。

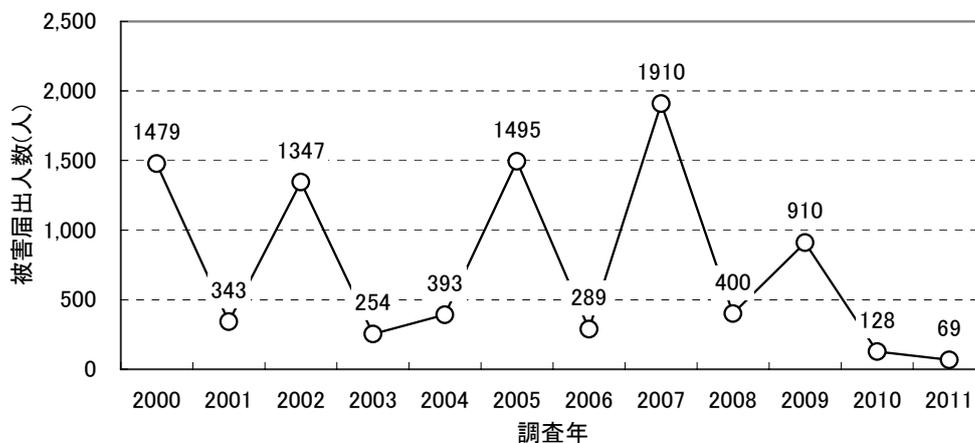


図 4.1.2-12 光化学大気汚染によると思われる被害届出状況の推移（全国）

【参考：光化学オキシダントによる植物（森林、農作物）への影響について】

高濃度のオゾンは植物の内部に侵入してその高い酸化力で組織を傷つけ、葉に白色や黄色の斑点を生じさせる。また、オゾンに長期的に暴露されれば、植物の光合成の速度を低下させ、葉が早く老化する。その結果、成長が阻害され、農作物においては収量が低下する。

オゾンが植物に及ぼす影響については多くの研究がなされており、例えば農作物の減収について、圃場に設置した温室内のオゾン濃度を高めて農作物を栽培した実験では収量の低下が確認されている。また、オゾンが森林衰退や樹木の枯損の原因物質となりうることが指摘されており、実際、樹木の衰退が観察されている奥日光や神奈川県丹沢山地において 100ppb 以上の比較的高濃度のオゾンが観測されている。

植生や生態系への影響を対象としたオゾン基準値については、濃度と時間の積分値で表わされるドース（Dose：濃度×時間）の考えを取り入れた概念が導入されつつある。欧州におけるオゾン基準値には人の健康への影響に注目した 8 時間値に対する基準の他に、植生への影響に注目した積分値（1 時間値が 40ppb を超過した濃度の積分値；AOT40; Accumulated exposure Over a Threshold of 40ppb）に対する基準がすでに定められている。

（「増えつづける対流圏オゾンの脅威」（酸性雨研究センター，2005）より）

## まとめ

このように、光化学オキシダント濃度（昼間の日最高 1 時間値の年平均；図 4.1.2-5 参照）は全国平均では漸増傾向となっているが、地域別に見るとそれぞれ異なった要因により様々な変動傾向を示していることが考えられる。ここでは、注意報発令レベル（120ppb 以上）の高濃度の光化学オキシダント濃度の出現状況について検証する。

第2章で示したとおり、VOC 排出抑制制度が法制化されるにあたり、中央環境審議会の意見具申で『VOC 排出量 3 割程度削減（平成 12 年度（2000 年度）比）により光化学オキシダント注意報の非発令率が日本全国で約 9 割まで上昇するとの見込み』が示された。全国及び各地域における注意報発令レベル(120ppb)以上の光化学オキシダント濃度が出現しなかった測定局数の割合（注意報発令レベル非超過割合）を図 4.1.2-13 に示す。注意報発令レベル非超過割合は下式により整理を行った。集計に用いたデータについては次ページの【データ集計方法について】に示すとおりである。

（例；関東地方（平成 21 年度；2009 年度）の場合）

「最高値が 120ppb 未満の測定局数：84 局」/「全測定局数（継続局）：301 局」

「注意報発令レベル非超過割合：28%」

注意報発令レベル非超過割合の推移を見ると、全国の集計では 50～60%程度の範囲で横ばいとなっている。この結果からは、意見具申における見込みと光化学オキシダント濃度の観測結果に乖離が見られる。

一方で地域別に集計した非超過割合を見るとそれぞれの地域で異なった年変動を示しており、地域ごとに光化学オキシダント濃度の現象解明について検証を行う必要があると言える。

なお、平成 17～21 年度（2005～2009 年度）の 5 年間のデータを集計した注意報発令レベルの光化学オキシダント濃度の出現状況の地理的分布(図 4.1.2-14)を見ると、注意報発令レベル以上となる時間割合が 0.4%を超える測定局は関東地方、特に埼玉県付近に集中していることが分かる。その他の地域では、愛知県周辺や大阪府周辺の一部の測定局において 0.2～0.4%の時間割合が見られるものの、ほとんどの測定局が注意報発令レベル以上となる時間割合は 0.1%以下となっている。関東地方は国内において高濃度光化学オキシダントの出現が最も深刻な地域であることが分かる。

光化学オキシダント濃度は気象条件によって大きく変動することが知られており、複数年で集計したほうが安定したデータが得られると考えられることから、ここでは平成 17～21 年度の 5 年間のデータを使用して整理を行った。

第4章

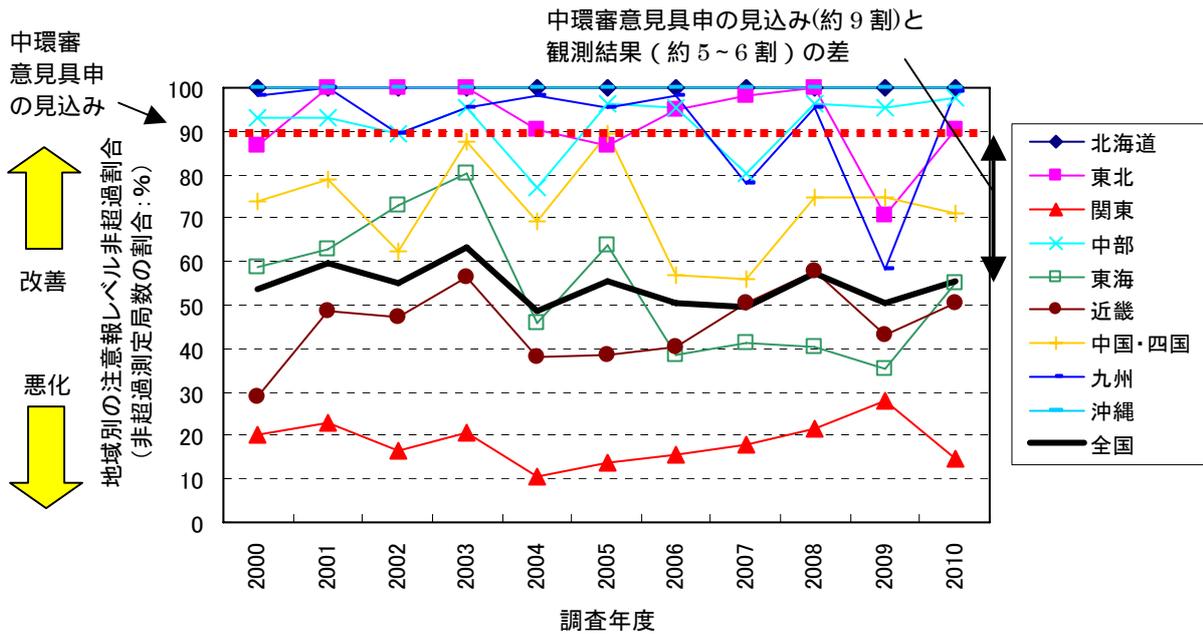


図 4.1.2-13 各地域における注意報発令レベル(120ppb)以上の光化学オキシダント濃度が出現しなかった測定局数の割合(注意報レベル非超過割合):一般局

北海道(測定局数=15):北海道

東北(測定局数=61):青森県、岩手県、宮城県、秋田県、山形県、福島県

関東(測定局数=299):茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県

中部(測定局数=87):新潟県、富山県、石川県、福井県、長野県

東海(測定局数=111):岐阜県、静岡県、愛知県

近畿(測定局数=158):三重県、滋賀県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、和歌山県

中国・四国(測定局数=114):鳥取県、島根県、岡山県、広島県、山口県、徳島県、香川県、愛媛県、高知県

九州(測定局数=105):福岡県、佐賀県、長崎県、熊本県、大分県、宮崎県、鹿児島県

沖縄(測定局数=1):沖縄県

【データ集計方法について】

本報告書のP.48～.105及びP.137～P.139において整理した常時監視測定局の使用データは国立環境研究所の「環境数値データベース」の「月間値・年間値」または「大気環境時間値データ」を使用している。

対象測定局は、平成12年度(2000年度)から平成21年度(2009年度)の10年間に於いて全ての年度で昼間(5～20時)の測定時間が3,750時間以上(Oxの場合、その他の物質では昼夜を通した測定時間が6,000時間以上)である測定局(以下、10年間継続局とする)のみを抽出して整理を行った(図4.1.2-13のみ平成12年度(2000年度)から平成22年度(2010年度)までの11年間に於いて昼間(5～20時)の測定時間が3,750時間以上の測定局のみ抽出)。測定局の種別は、一般局のみを対象とした。

平成22年度(2010年度)のデータについては、上記の10年間継続局のうち一部の測定局で測定局の廃止等により測定局数が減少している。測定局が減少した場合は、図の注釈に平成22年度(2010年度)の測定局数を明記した。

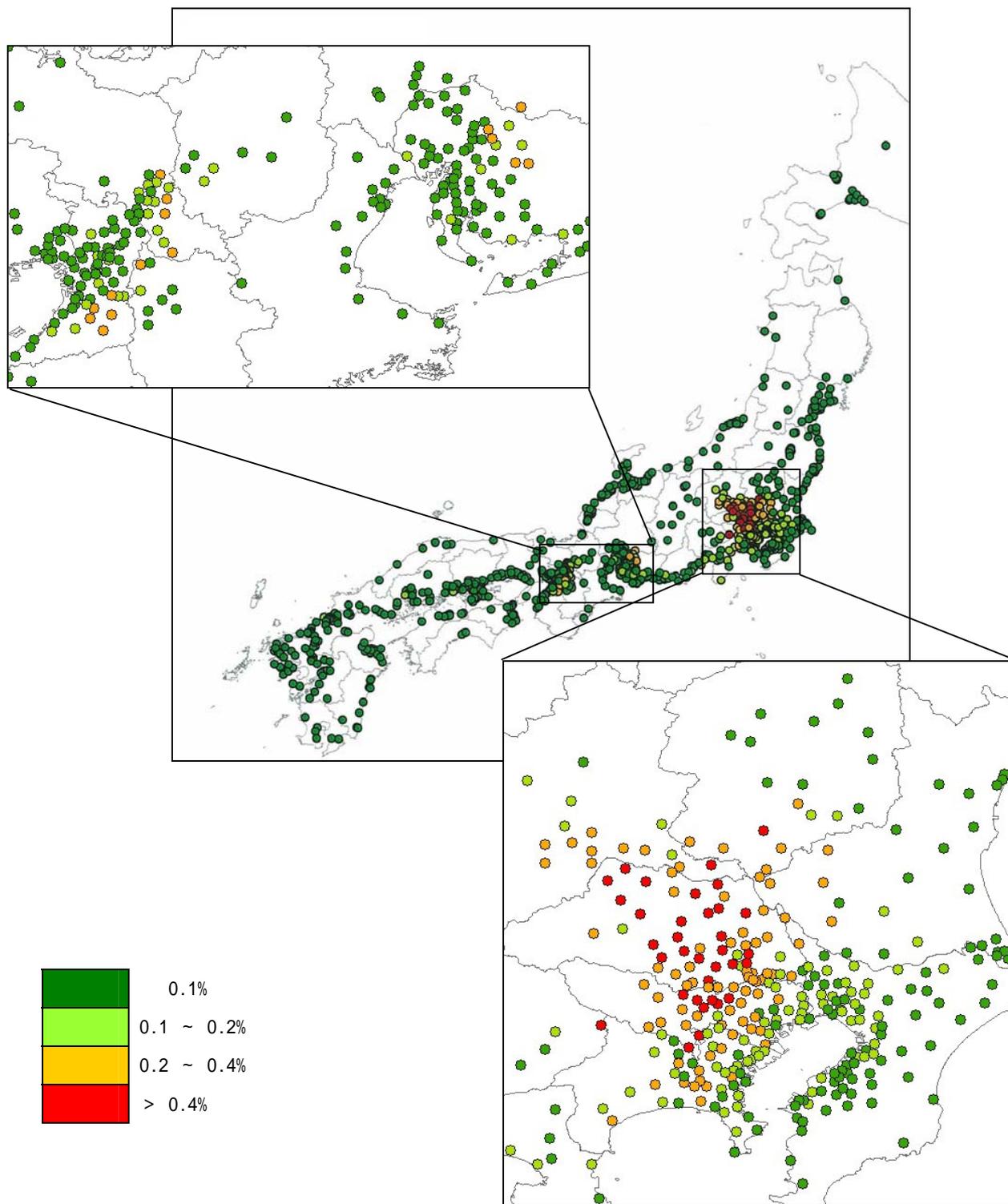


図 4.1.2-14 光化学オキシダントの昼間の1時間値が注意報発令レベル(120ppb)以上となる割合  
(統計期間：平成 17～21 年度 (2005～2009 年度) の5 年間)：一般局

第4章

4.1.3 地域的な状況

地域的な状況として、関東地方、東海地方、近畿地方及び九州地方について近年の傾向を把握するため、基礎的な解析を行う。解析対象地域は表 4.1.3-1 に示す4地域とする。解析を行う際のデータ集計方法はP.48の【データ集計方法について】に示すとおりである。解析対象とする季節は高濃度の光化学オキシダントが観測される4~9月のうち、春季(4~5月)及び夏季(7~8月)とする。解析内容は春季及び夏季の季節別のトレンドを把握するとともに、近年の前駆物質の排出削減が地域における光化学生成に与えた影響を把握することを目的に、表 4.1.3-2 に示すように設定する。

地域生成による影響の推移の把握については、大陸からの越境輸送の発生頻度が夏季は春季に比べ少ないと考えられることから夏季についてのみデータ解析を行った。

地域的な状況の解析については様々な図表を掲載することから、各解析から読み取れる事象について【データから見えること】として整理した。

表 4.1.3-1 解析対象地域

地域	都道府県名	設定根拠
関東地方	東京都、埼玉県、栃木県、群馬県	大発生源地域とその輸送の影響を受ける地域
東海地方	愛知県	近年高濃度光化学オキシダントの出現が増加
近畿地方	大阪府、京都府、奈良県	大発生源地域とその輸送の影響を受ける地域
九州地方	福岡県	大陸からの越境輸送の影響を強く受ける地域

京都府のうち日本海側の測定局は集計対象から除外した。

表 4.1.3-2 解析内容

着目点	解析内容	整理図	春季 (4~5月)	夏季 (7~8月)
季節別 トレンド	季節によって経年的な傾向が異なることが考えられるため、季節別の光化学オキシダント濃度の近年のトレンドを把握及び気象要因の影響の把握	光化学オキシダント季節別月平均値(昼間の日最高1時間値)と気象要因の推移及び相関		
	中濃度域、高濃度域などで経年的な傾向が異なることが考えられるため、環境基準以上、注意報発令レベル以上などの行政上の指標値で区分した濃度ランク別の出現状況の把握	光化学オキシダント濃度ランク別出現頻度の推移		
地域生成 による 影響の 推移	気象条件による年々変動を除外した光化学オキシダント濃度の把握	一定の気象条件下での光化学オキシダント濃度パーセンタイル値の推移		
	前駆物質(NO <sub>x</sub> 、NMHC)の濃度と高濃度光化学オキシダントの出現状況の比較	6~9時における前駆物質の濃度の推移 前駆物質と光化学オキシダント濃度の相関		

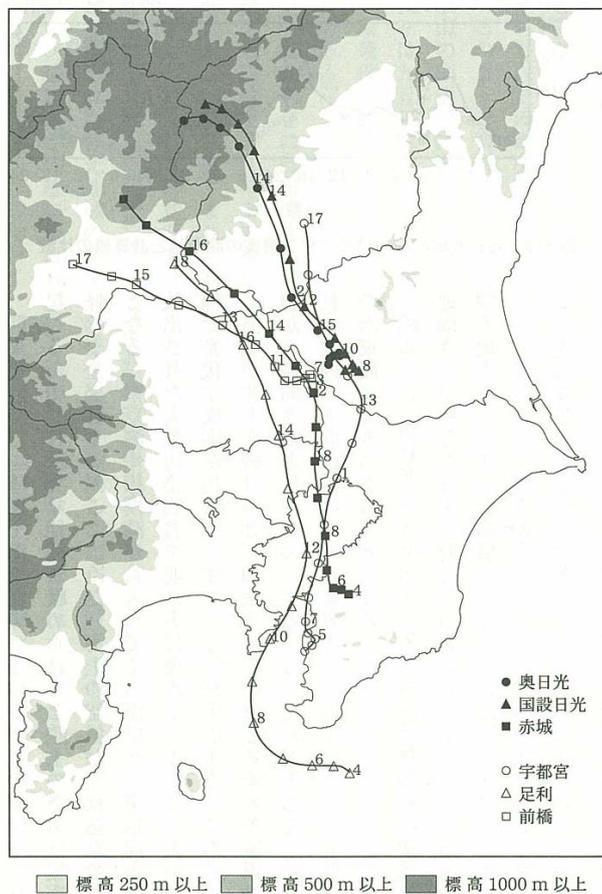
(1) 関東地方

昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関

図4.1.2-14 (P.49) において高濃度の出現割合が多く見られていた東京都、埼玉県と、この2都県から光化学オキシダントの移流の影響を受ける栃木県、群馬県を対象とし、光化学生成が活発に行われる春季(4~5月)及び夏季(7~8月)について整理を行った。

【参考：関東平野における空気の循環について】

関東平野では、「陸風・海風循環」という空気の循環が一日単位で起こる。東京湾から入ってくる海風は、東京周辺で放出された大気汚染物質を北へと運ぶ。この輸送過程で光化学反応が起こり、オゾンなどが生成される。奥日光で高濃度オゾンが観測された日の空気の流れについて後方流跡線解析を行った結果を見ると、東京周辺を発した空気が奥日光の山の南東面に突き当たる状況が見える(畠山,2003)。



奥日光に高濃度オゾンをもたらした気塊の後方流跡線(畠山史郎,2003)

春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と東京管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化（平成12～21年度；2000～2009年度）を図4.1.3-1に示す。また、東京都の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と東京管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の相関を図4.1.3-2に示す。

光化学オキシダントのデータは「環境数値データベース」の「月間値」で整理されている光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値を使用した。気象データは気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の東京管区気象台のデータを使用した。

春季における光化学オキシダント濃度の経年変化を見ると、概ね横ばいの傾向を示しており、平成19年度（2007年度）以降は若干の濃度の上昇が見られる。夏季は年々変動が大きい、概ね横ばいの傾向となっている。季節による傾向を比較すると、春季に比べ夏季のほうが地域間の濃度差が大きい。

東京都における光化学オキシダント濃度と全天日射量及び日平均気温の相関を見ると、春季に比べ夏季のほうが光化学オキシダント濃度と全天日射量及び日平均気温との関係が強くなっている傾向が見られる。

**【データから見えること】**

- 昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関（関東地方）
- ・ 春季の光化学オキシダント濃度は平成19年度（2007年度）以降については平成18年度（2006年度）以前に比べて濃度がやや上昇、夏季は年々変動が大きい概ね横ばい
- ・ 夏季は春季に比べ全天日射量及び日平均気温と光化学オキシダント濃度の相関が強い

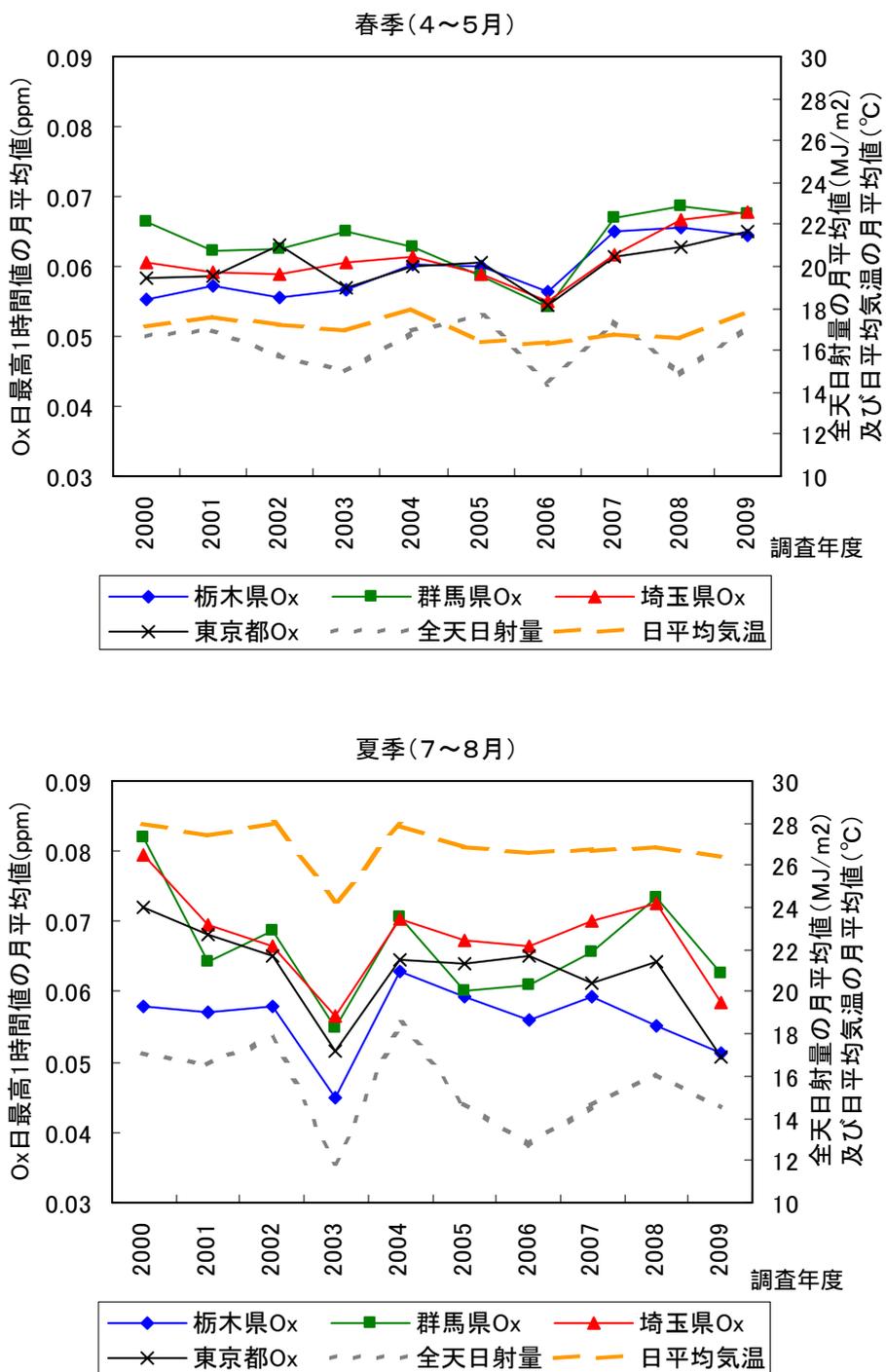
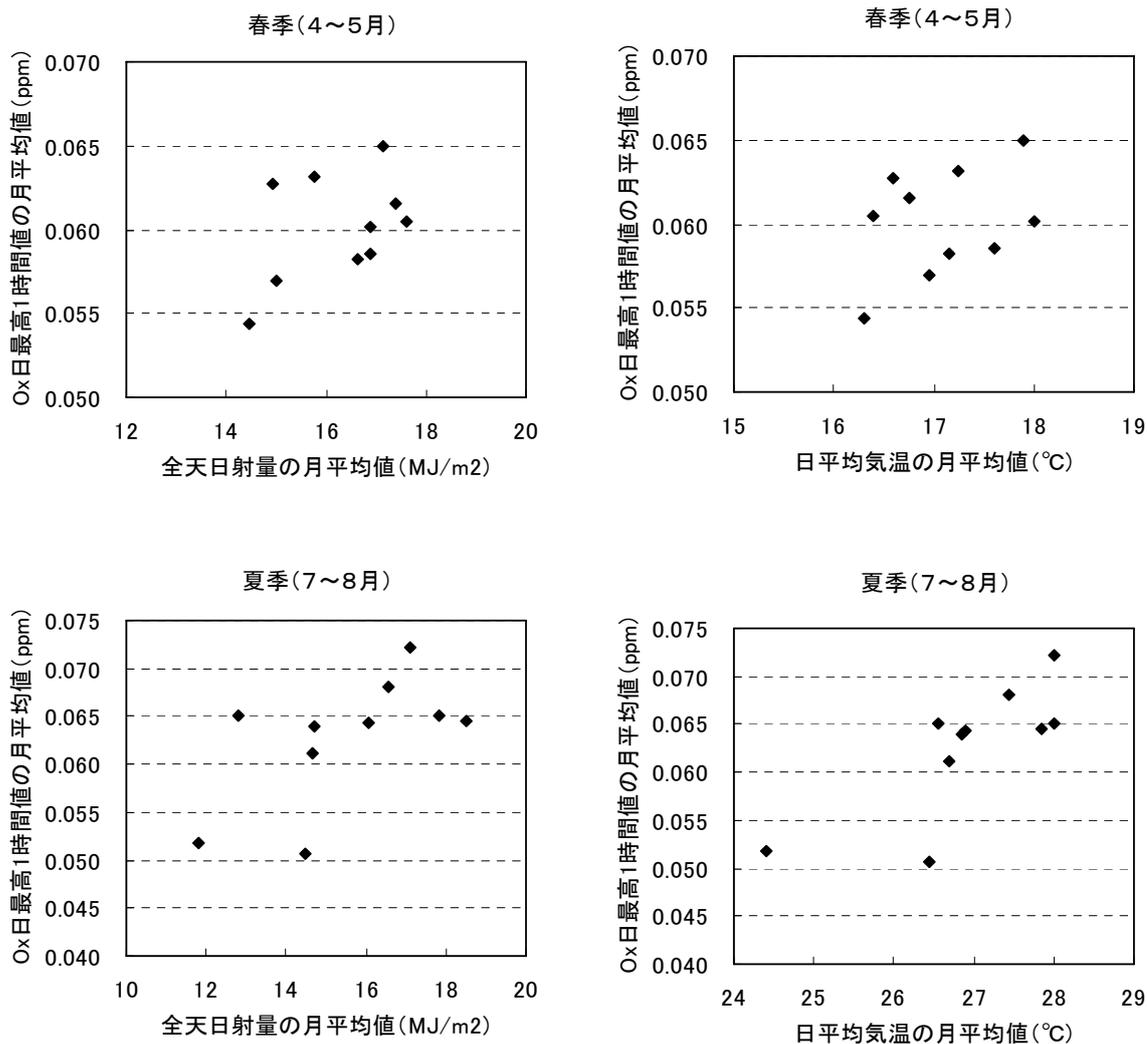


図 4.1.3-1 春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値（一般局）  
と東京管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化

測定局数：東京都（40）、埼玉県（57）、栃木県（19）、群馬県（16）

東京管区気象台：東京都千代田区大手町の気象台のデータを使用



【相関係数】

項目	季節	全天日射量の月平均値	日平均気温の月平均値
東京都の O <sub>3</sub> 日最高 1 時間値の月平均値	春季	0.43	0.38
	夏季	0.61	0.78 **

図 4.1.3-2 春季・夏季における東京都の光化学オキシダント昼間の日最高 1 時間値の月平均値 (一般局) と東京管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の相関

(統計期間：春季(4~5月)、夏季(7~8月);平成12~21年度(2000~2009年度))

測定局数：東京都(40)

東京管区気象台：東京都千代田区大手町の気象台のデータを使用

\*\*\* : p<0.001 で有意、\*\* : p<0.01 で有意、\* : p<0.05 で有意

### 光化学オキシダント濃度ランク別出現頻度の推移

光化学オキシダント濃度の行政上の指標としては、環境基準値(60ppb)と光化学注意報発令レベル(120ppb)がある。ここでは、これらの指標値(環境基準値・注意報発令レベル)以上の濃度の出現状況について濃度ランク別に整理し、近年の変化を把握した。データ整理にあたっては、光化学オキシダント等に関するC型共同研究(現型共同研究)で開発された「大気時間値集計解析プログラム」の「濃度ランク別集計機能」を使用した。解析対象時間は全日(24時間)とした。

春季(4~5月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度は栃木県・群馬県の平成20年度(2008年度)において0.49%と最も高く、経年変動に明確な傾向は見られない。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は平成19年度(2007年度)以降増加傾向が見られる(図4.1.3-3)。

夏季(7~8月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度は年々変動が大きく、明確な傾向は見られない。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は横ばい傾向となっている(図4.1.3-4)。

注意報発令レベル以上の高濃度域の経年変化は年々変動が大きく明確な傾向が見られないが、これは「昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関」で示したとおり日射量や気温などの気象要因の影響を受けたことによる可能性が考えられる。このため、オキシダント濃度のトレンドを把握する場合、気象要因による影響を除外して検討を行う必要がある。

#### 【データから見えること】

- 濃度ランク別出現頻度(関東地方)
  - ・環境基準値以上の出現率は、春季は平成19年度(2007年度)以降については平成18年度(2006年度)以前に比べて増加、夏季は横ばい
  - ・注意報発令レベル以上の出現率は、年々変動が大きく明確な傾向は見られない

第4章

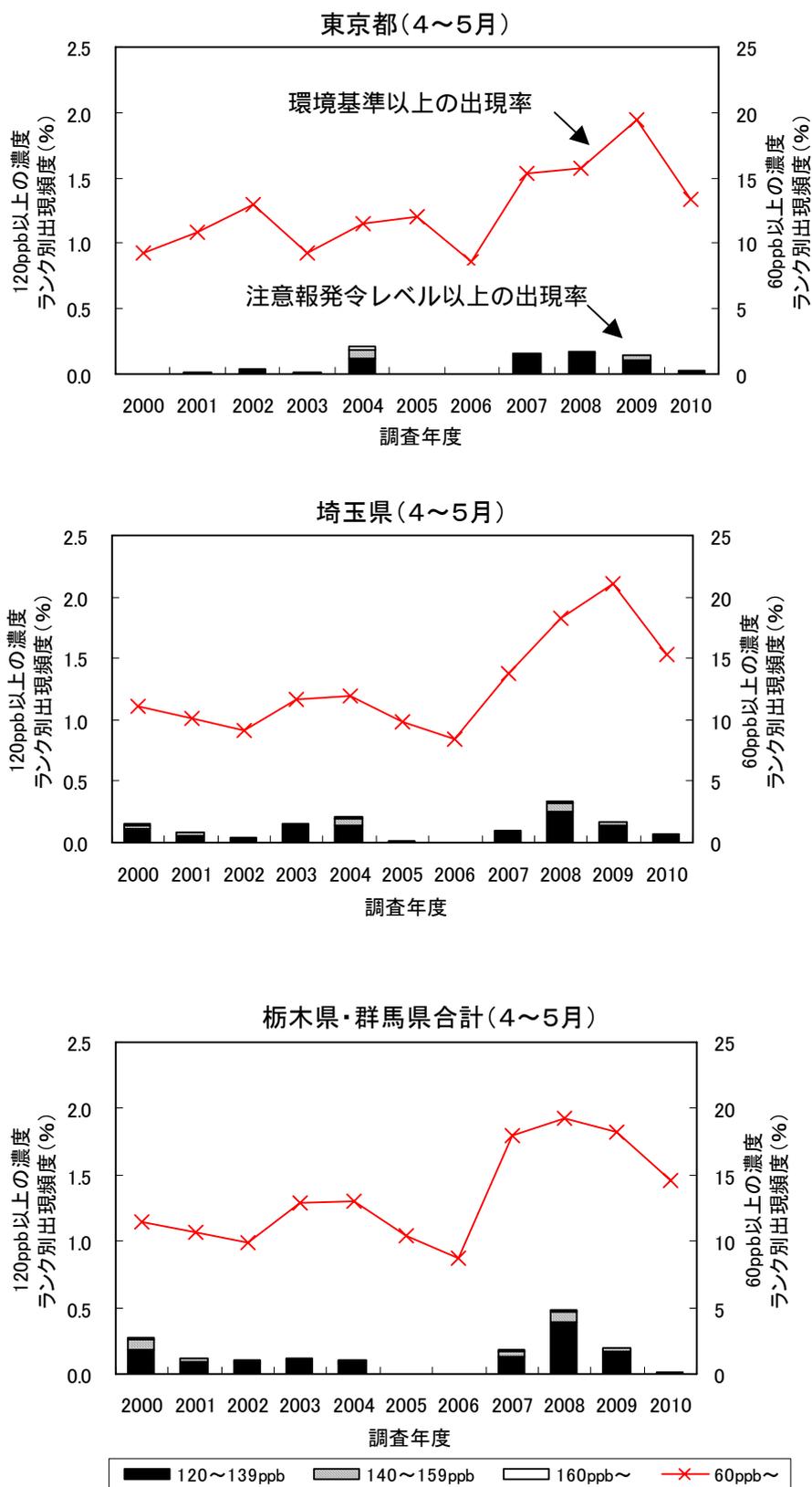


図 4.1.3-3 春季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度 (全日): 一般局  
測定局数: 東京都 (40; 2010 年度のみ 39)、埼玉県 (57)、栃木県 (19)、群馬県 (16)

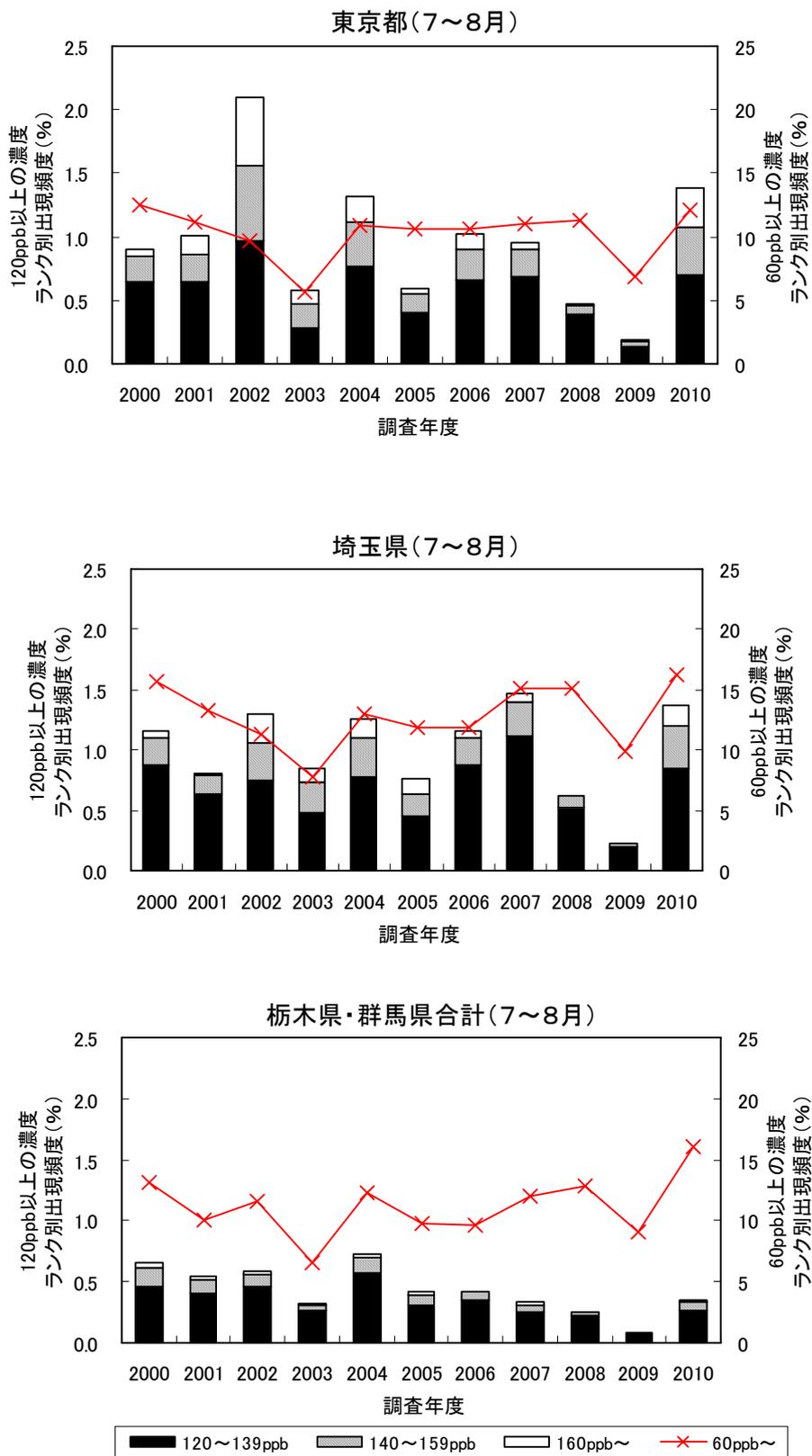


図 4.1.3-4 夏季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度 (全日): 一般局  
測定局数: 東京都 (40; 2010 年度のみ 39)、埼玉県 (57)、栃木県 (19)、群馬県 (16)

一定範囲の気象条件日における濃度の推移

光化学オキシダント濃度は気象条件の影響を受けるため、一定範囲の気象条件下での濃度を整理し近年の推移を検証する。関東地方における比較的光化学オキシダントが高濃度となる一定範囲の気象条件<sup>(注)</sup>の日(7~8月)を対象に、昼間の1時間値から各パーセンタイル値(10<sup>th</sup>,20<sup>th</sup>,50<sup>th</sup>,80<sup>th</sup>,90<sup>th</sup>,95<sup>th</sup>,98<sup>th</sup>)を整理した。パーセンタイル値の算出に当たっては、各測定局の昼間の1時間値を用いて算出した。

【東京都(平成12年度(2000年度))の場合】

測定局数(40局) × 一定範囲の気象条件日(10日) × 昼間の時間数(15時間) = 6,000時間  
6,000時間のデータを用いて各パーセンタイル値を算出した。

一定範囲の気象条件は、「光化学オキシダント対策検討会 報告書(平成17年2月 東京都環境局)」(以下、「東京都オキシダント検討会報告書」という。)に準拠し、下記の通り設定した。東京都オキシダント検討会報告書では日最高気温の上限値が設定されていなかったが、近年地球温暖化等により気温が上昇傾向であることが知られており(気象庁,2011a)一定範囲の気象条件日を抽出するという観点から、ここでは上限値を設定した。一定範囲の気象条件の抽出にあたっては、気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の東京管区気象台のデータを使用した。

(注) 気象一定範囲の出現条件：東京管区気象台<sup>1</sup>

日積算日射量：18以上25MJ/m<sup>2</sup>未満

日最高気温：25以上34未満

昼午前<sup>2</sup>平均風速：1.5以上2.5m/s未満

1：東京都千代田区大手町の気象台データを使用

2：昼午前：5~12時

各年の一定範囲の気象条件の日数は以下に示すとおりである。

2000年(10日),2001年(9日),2002年(7日),2003年(4日),2004年(8日),2005年(8日),  
2006年(8日),2007年(10日),2008年(14日),2009年(6日),2010年(11日)

7~8月における一定範囲の気象条件日の昼午前平均風速、日最高気温及び日積算日射量の各年の平均値及び最大値・最小値を図4.1.3-5に示す。

一定範囲の気象条件日を抽出したことによって、気象要因(日射量、気温、風速)の影響をある程度除外できているものと思われるが、気象条件の平均値や最大・最小の幅は年により変動があり毎年同一の気象条件ではないこと、気象による影響はこれ以外の要素も存在することに留意する必要がある。

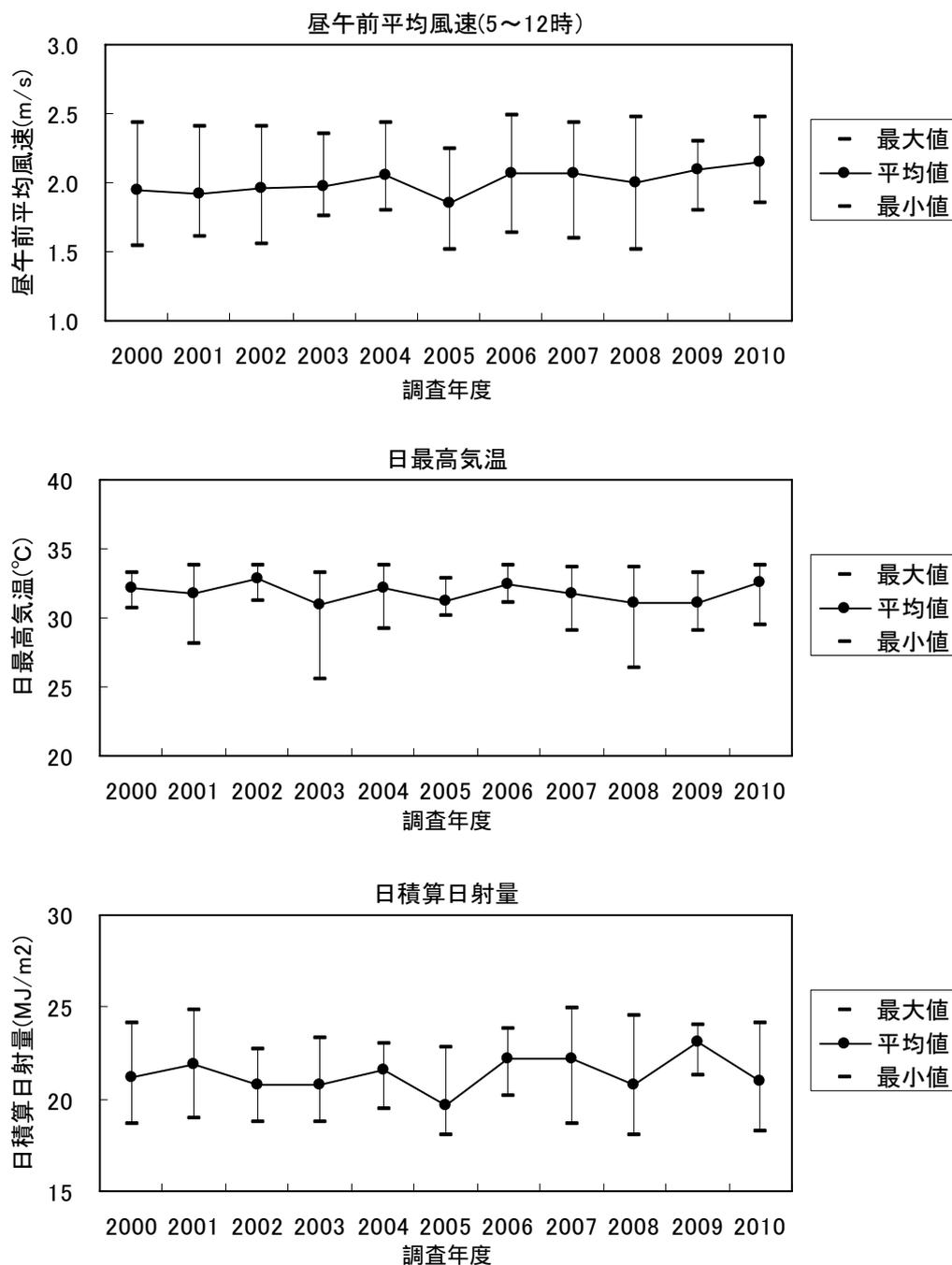


図 4.1.3-5 7~8月の一定範囲の気象条件日の気象要因の年々変動(東京管区気象台)

上段: 昼午前平均風速

中段: 日最高気温

下段: 日積算日射量

図 4.1.3-6 に示す一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度の各パーセンタイル値の経年変化を見ると、各都県とも 50<sup>th</sup> パーセンタイル値は横ばいまたは上昇傾向なのに対し、90<sup>th</sup> パーセンタイル値より高濃度のパーセンタイル値については、平成 17 年度（2005 年度）または平成 18 年度（2006 年度）付近から平成 21 年度（2009 年度）にかけて低下傾向に転じている。また、平成 22 年度（2010 年度）は上昇に転じている。

このように、高濃度域、中濃度域で経年変化の傾向に差が見られる。

**【データから見えること】**

- 一定範囲の気象条件日における濃度の推移（関東地方）
  - ・ 50<sup>th</sup> パーセンタイル値など中濃度域は横ばい～上昇傾向
  - ・ 90<sup>th</sup> 以上の高濃度域のパーセンタイル値は平成 17～18 年度（2005～2006 年度）頃から低下傾向

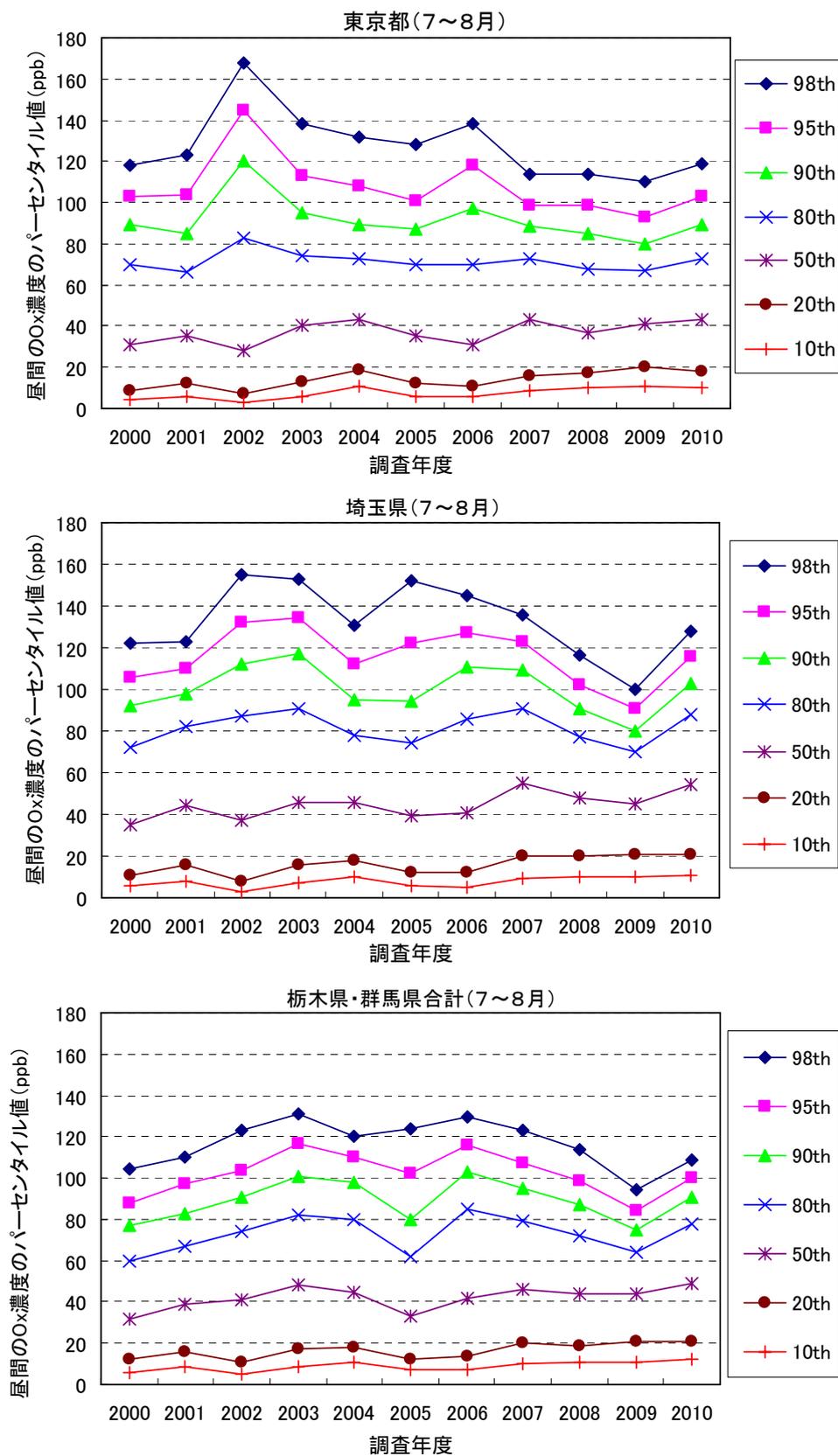


図 4.1.3-6 一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度パーセンタイル値（一般局）  
 測定局数：東京都（40；2010年度のみ39）、埼玉県（57）、栃木県（19）、群馬県（16）

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移

前述の一定範囲の気象条件下の日における前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の推移を見る。P.51の【関東平野における空気の循環について】に示したように、東京湾からの海風によって東京周辺で放出された大気汚染物質は内陸部へと輸送され、その過程で光化学反応によりオゾンが生成されることが報告されている。

平成17～21年度（2005～2009年度）の5年間のNO<sub>x</sub>の7～8月の平均濃度の調査結果を見ると、東京都23区付近に高濃度の測定局が集中していることが分かる（図4.1.3-7）。

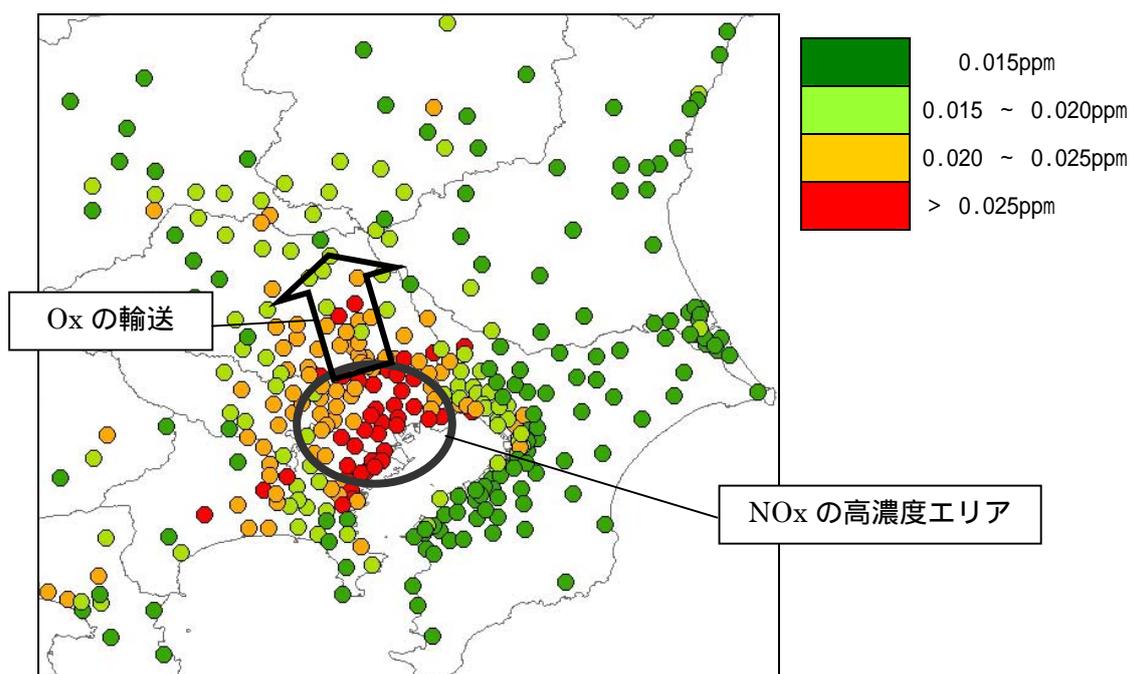


図4.1.3-7 NO<sub>x</sub>の7～8月の平均濃度の地理的分布  
 （統計期間：平成17～21年度（2005～2009年度）の5年間）：一般局

ここでは、東京湾沿岸の高濃度の前駆物質が海風により内陸に輸送される過程で光化学反応が起こり、内陸部において高濃度の光化学オキシダントが現れるものと考え、関東の中でも特に高濃度のNO<sub>x</sub>が観測されている東京都23区一般局（NO<sub>x</sub>：26局、NMHC：14局）を前駆物質の集計対象の測定局として整理を行った。NMHC/NO<sub>x</sub>の算出にあたっては、NO<sub>x</sub>及びNMHCの年平均値（一定範囲の気象条件日のみ）を使用した。前駆物質の集計時間はまだ光化学生成が活発に行われていない朝方の6～9時とした。

図 4.1.3-8 を見ると、NO<sub>x</sub> 及び NMHC とともに同じような変動傾向を示し、平成 15 年度（2003 年度）をピークに平成 21 年度（2009 年度）まで減少傾向を示していることが分かる。この変動傾向は図 4.1.3-6 における高パーセンタイル値の変動傾向に類似しており、関東地方における高濃度オキシダントの出現の減少傾向は前駆物質の削減による効果であることが示唆される。

また、平成 22 年度（2010 年度）はオキシダントの 98<sup>th</sup> 等のパーセンタイル値と同様に平成 21 年度（2009 年度）に比べ前駆物質の濃度は上昇しており、オキシダントの平成 22 年度（2010 年度）の上昇は今回集計した一定範囲の気象条件日において前駆物質の濃度が上昇していたことによる影響を受けていることが考えられる。

なお、「東京都オキシダント検討会報告書」では「最近の NMHC/NO<sub>x</sub> 濃度比の増加は、首都圏における高濃度の光化学オキシダントの出現頻度を高める傾向をもたらしている可能性が高い」としている。本調査結果を見ると、平成 14 年度（2002 年度）を境に NMHC/NO<sub>x</sub> 比は平成 20 年度（2008 年度）まで増加傾向を示している。高濃度の光化学オキシダント濃度の推移と NMHC/NO<sub>x</sub> 比の関係は、「東京都オキシダント検討会報告書」で見られた傾向と反しており、近年の高濃度光化学オキシダント濃度の低下は NMHC/NO<sub>x</sub> 比からは説明できない。

【データから見えること】

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移（関東地方）
- ・前駆物質の濃度低下と高濃度の光化学オキシダント濃度の推移が概ね一致
- ・高濃度オキシダントの出現の減少傾向は前駆物質の削減による効果であることを示唆

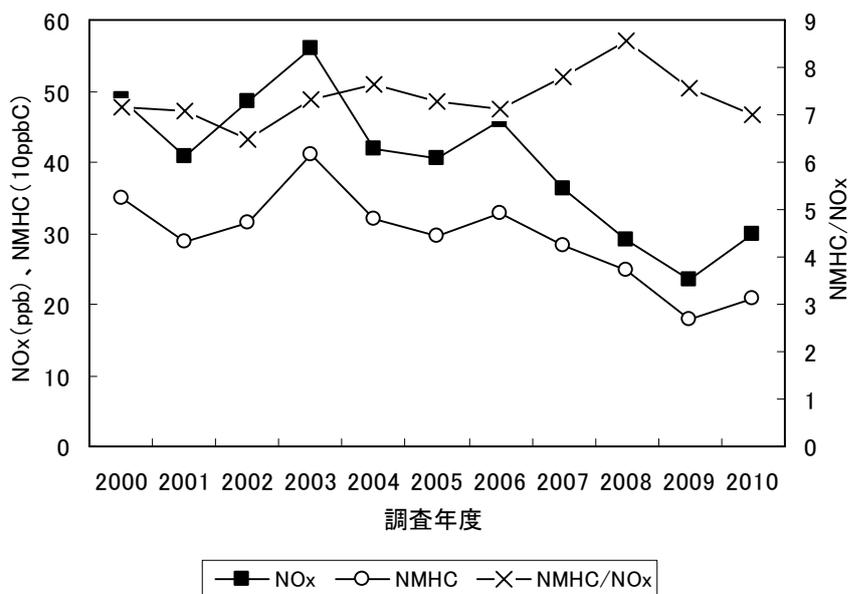


図 4.1.3-8 一定範囲の気象条件での 6～9 時における NO<sub>x</sub>、NMHC、NMHC/NO<sub>x</sub> 比の推移（東京都 23 区の一般局：7～8 月；平成 12～22 年度（2000～2010 年度））

測定局数： NO<sub>x</sub>：26 局（2010 年度のみ 25 局） NMHC：14 局（2010 年度のみ 13 局）

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関

一定範囲の気象条件下の日における6～9時の前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度と光化学オキシダント濃度の昼間の日最高値の相関を見る。前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度は東京都23区の測定局の各日の平均濃度、光化学オキシダントの日最高値は各都県の測定局における最高値（東京都の場合、40局中の最高値）である。

相関の解析結果を表4.1.3-3及び図4.1.3-9に示す。

相関の結果を見ると、NO<sub>x</sub>に比べNMHCの方が光化学オキシダントの日最高値との相関がやや強くなっている。また、東京都23区の前駆物質の濃度と最も相関が強い地域は埼玉県であり、発生源近傍の東京都よりも相関が強くなっている。[竹内・松本,2010]及び[竹内,2011]では埼玉県内のうち南部に位置する東京都近傍の測定地点（戸田）のVOC濃度と埼玉県の中部及び北部（鴻巣、寄居）の光化学オキシダント日最高値の相関が強いことを明らかにしており、本調査結果と類似した傾向を示している。

光化学オキシダントは移流により発生源から離れた地域で高濃度が観測されることから、それぞれの地域においてどのエリアで排出された前駆物質の影響を強く受けているのか明らかにする必要がある。

【データから見えること】

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関（関東地方）
  - ・NO<sub>x</sub>に比べNMHCの方がオキシダント日最高値との相関がやや強い
  - ・発生源近傍の東京都よりも東京湾沿岸からの移流の影響を受ける埼玉県のほうが前駆物質との相関がやや強い

表 4.1.3-3 一定範囲の気象条件での6～9時におけるNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度（東京都23区の平均濃度）と各都県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関  
（一般局：7～8月；平成12～22年度（2000～2010年度））

都県	NO <sub>x</sub>	NMHC
東京都	0.35 ***	0.53 ***
埼玉県	0.41 ***	0.57 ***
栃木県・群馬県	0.37 ***	0.42 ***

O<sub>x</sub>の測定局数：東京都（40；2010年度のみ39）、埼玉県（57）、栃木県（19）、群馬県（16）

NO<sub>x</sub>の測定局数：東京都23区（26；2010年度のみ25）

NMHCの測定局数：東京都23区（14；2010年度のみ13）

データ数（解析対象日）：95日

\*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

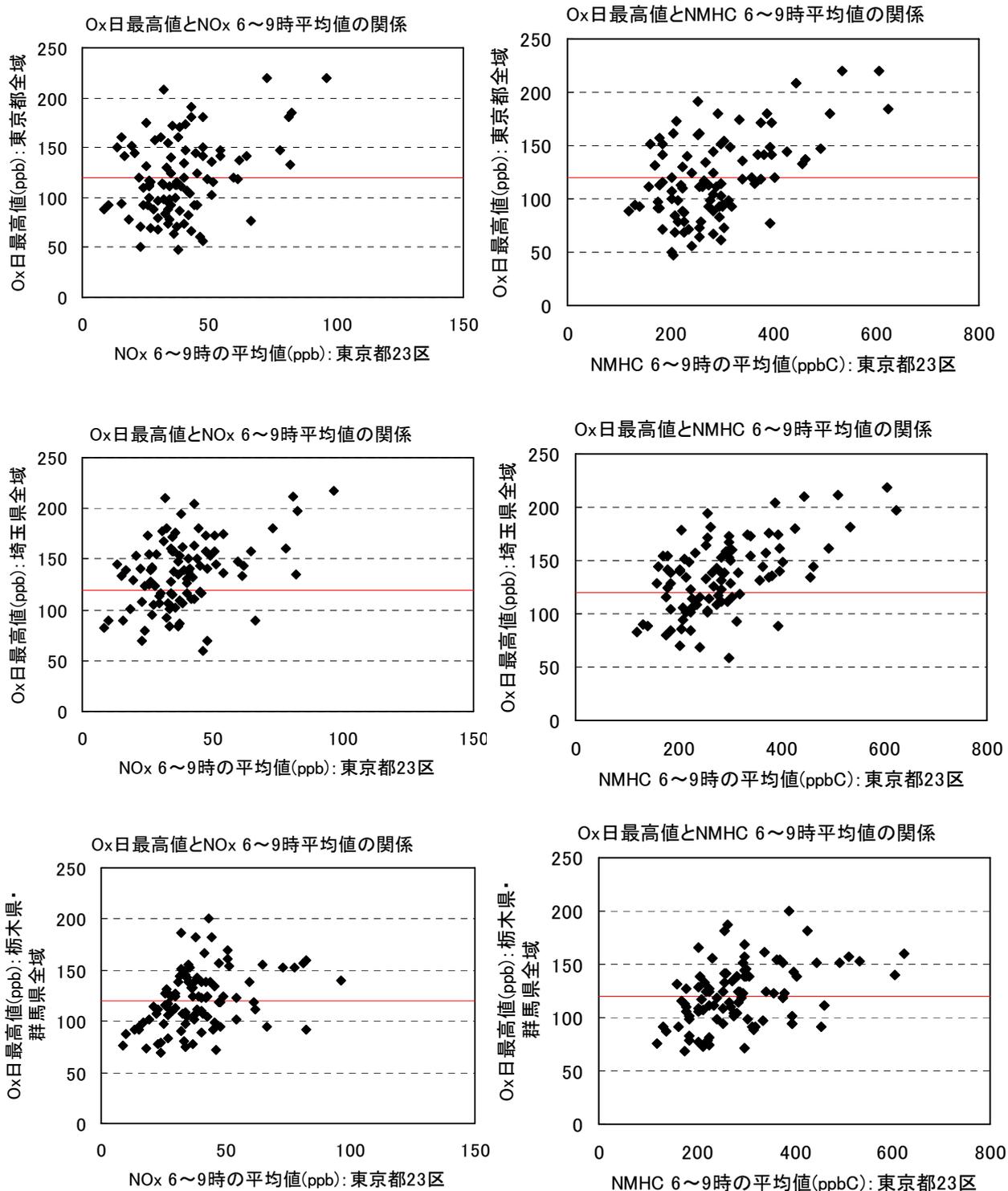


図 4.1.3-9 一定範囲の気象条件での 6~9 時における NO<sub>x</sub> 及び NMHC 平均濃度（東京都 23 区の平均濃度）と各都県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関

（一般局：7~8 月；平成 12~22 年度（2000~2010 年度））

Ox の測定局数：東京都（40；2010 年度のみ 39） 埼玉県（57） 栃木県（19） 群馬県（16）

NO<sub>x</sub> の測定局数：東京都 23 区（26；2010 年度のみ 25）

NMHC の測定局数：東京都 23 区（14；2010 年度のみ 13）

赤線：Ox120ppb のライン

データ数（解析対象日）：95 日

(2) 東海地方

昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関

図4.1.2-14(P.49)において高濃度の出現割合がやや見られていた愛知県を対象とし、光化学生成が活発に行われる春季(4~5月)及び夏季(7~8月)について整理を行った。

春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と名古屋地方気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化(平成12~21年度;2000~2009年度)を図4.1.3-10に示す。また、愛知県の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と名古屋地方気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の相関を図4.1.3-11に示す。

光化学オキシダントのデータは「環境数値データベース」の「月間値」で整理されている光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値を使用した。気象データは気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の名古屋地方気象台のデータを使用した。

光化学オキシダント濃度の変動を見ると、春季、夏季共にやや上昇傾向が見られる(春季;年率1.1ppb、夏季;年率1.0ppb いずれも統計的に有意ではない(有意水準5%))。

光化学オキシダント濃度と全天日射量及び日平均気温の相関を見ると春季は全天日射量の月平均値と光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値の関係が強くなっている。また、夏季は春季に比べこれらの気象要因とオキシダント濃度の相関が低くなっているが、平成17年度(2005年度)以降のデータで見ると相関が非常に強くなっている。

【データから見えること】

- 昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関(東海地方)
- ・ 光化学オキシダント濃度は春季・夏季共に上昇傾向
- ・ 春季は全天日射量と光化学オキシダント濃度の相関が強い
- ・ 夏季は平成17年度(2005年度)以降は全天日射量及び日平均気温と光化学オキシダント濃度の相関が強い

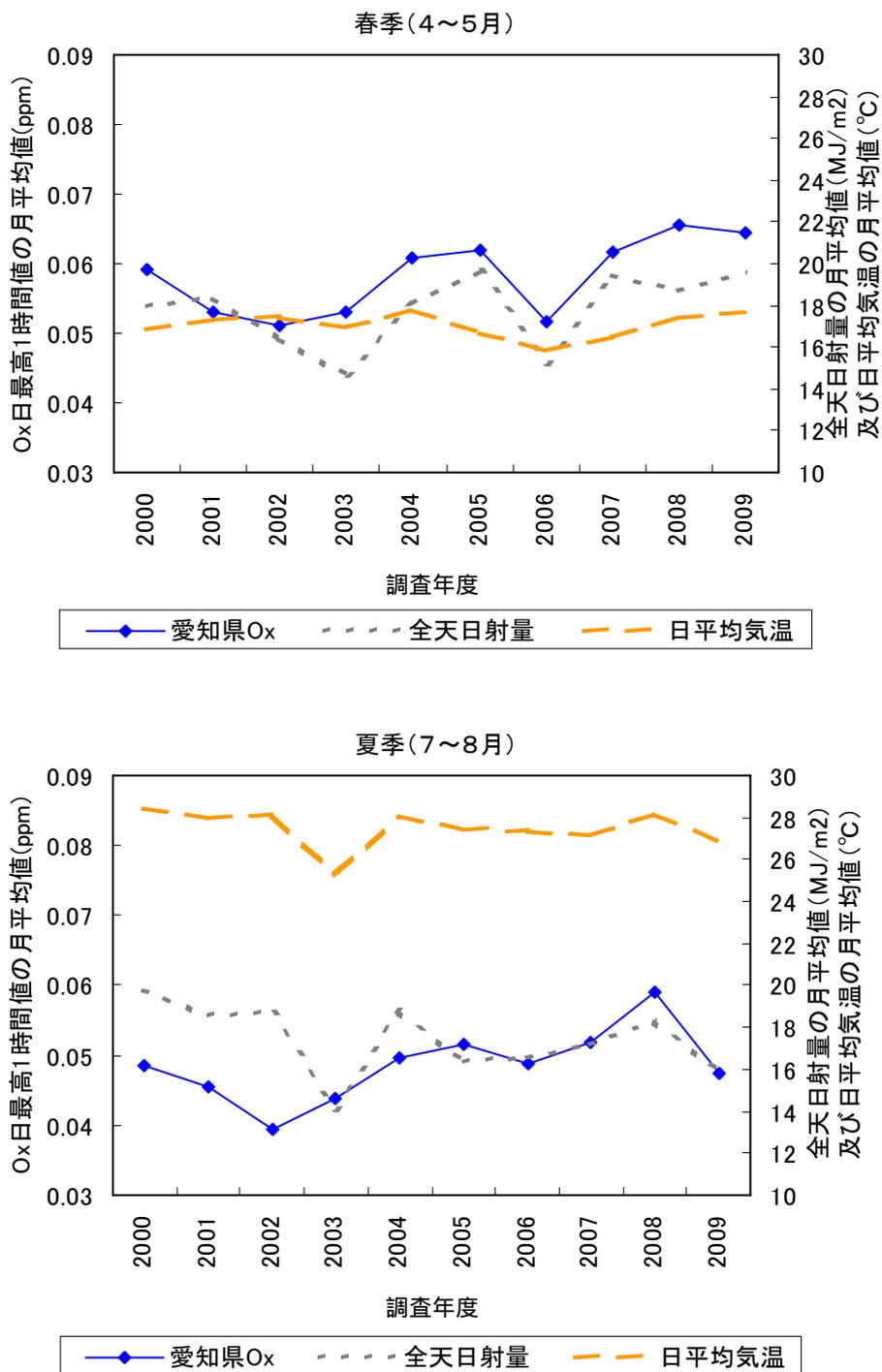
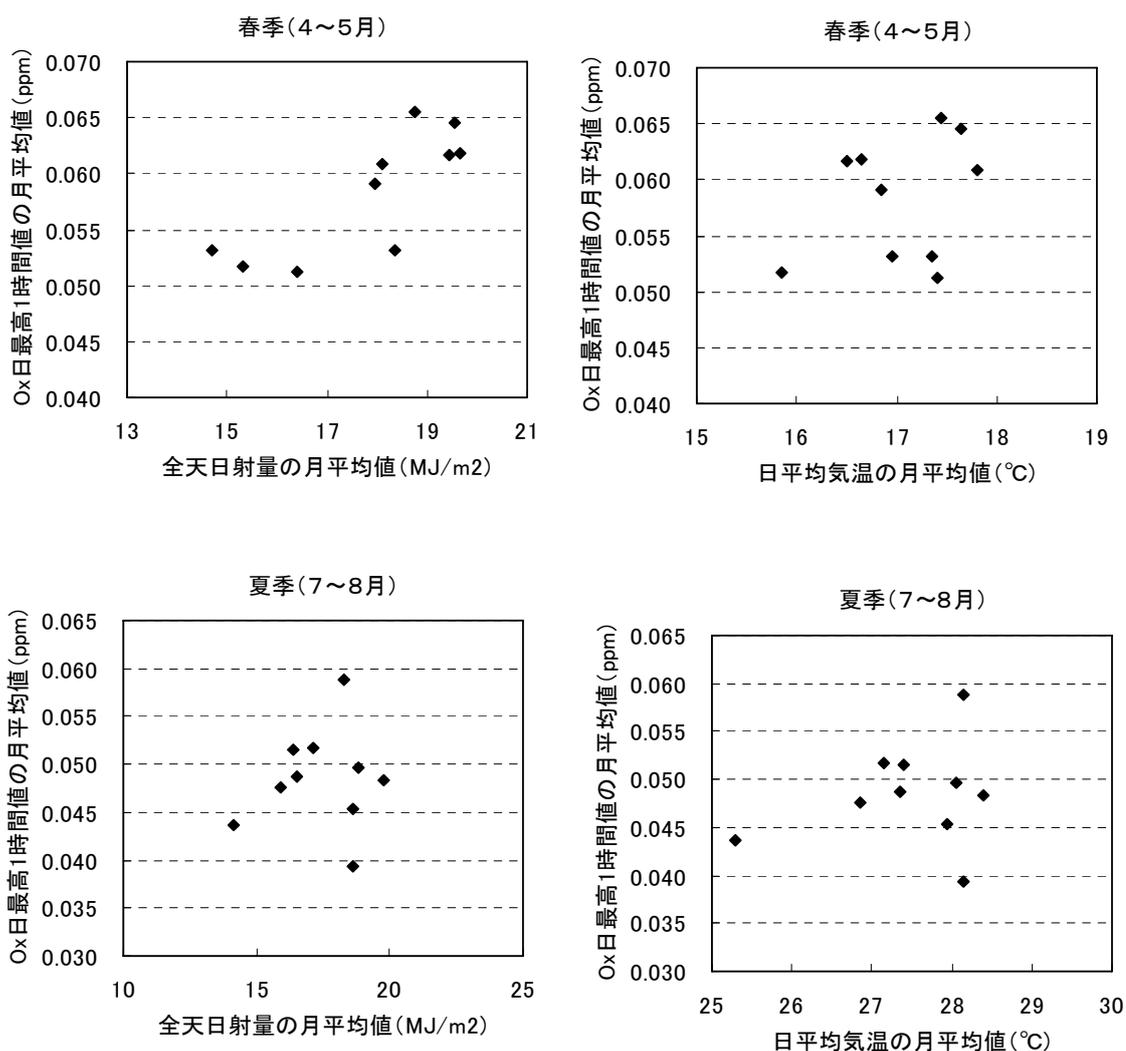


図 4.1.3-10 春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値(一般局)と名古屋地方気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化

測定局数：愛知県(75)

名古屋地方気象台：愛知県名古屋市千種区日和町の気象台のデータを使用



【相関係数】

項目	季節	全天日射量の月平均値	日平均気温の月平均値
愛知県のOx日最高1時間値の月平均値	春季	0.80 **	0.32
	夏季	0.10 (0.95 *)注)	0.23 (0.92 *)注)

図 4.1.3-11 春季・夏季における愛知県の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値（一般局）と名古屋地方気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の相関（統計期間：春季（4～5月） 夏季（7～8月）；平成12～21年度（2000～2009年度））

測定局数：愛知県（75）

名古屋地方気象台：愛知県名古屋市千種区日和町の気象台のデータを使用

注：（ ）内の数値は2005年～2009年度の相関係数

2005～2009年度で相関を見ると、2000～2009年度で相関を見た場合に比べ相関が強い。

どちらの関係性がこの地域における一般的な傾向を示すのかが不明であるため、ここでは2000～2009年度、2005～2009年度のそれぞれで相関係数を示した。

\*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

### 光化学オキシダント濃度ランク別出現頻度の推移

光化学オキシダント濃度の行政上の指標としては、環境基準値(60ppb)と光化学注意報発令レベル(120ppb)がある。ここでは、これらの指標値(環境基準値・注意報発令レベル)以上の濃度の出現状況について濃度ランク別に整理し、近年の変化を把握した。データ整理にあたっては、光化学オキシダント等に関するC型共同研究(現型共同研究)で開発された「大気時間値集計解析プログラム」の「濃度ランク別集計機能」を使用した。解析対象時間は全日(24時間)とした。

濃度ランク別出現頻度を図4.1.3-12に示す。

春季(4~5月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度は平成21年度(2009年度)において0.07%が最も高く出現頻度は少ないものの、春季に注意報発令レベル以上の高濃度の光化学オキシダントの出現が見られる年が存在する。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は近年増加傾向が見られる。

夏季(7~8月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度が平成18年度(2006年度)までは増加していたが、その後は減少に転じている。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は年々変動が大きく明確な傾向は見られないが、近年は平成12~15年度(2000~2003年度)の頃に比べやや高い出現率で推移しており、増加傾向に見える。

注意報発令レベル以上の高濃度域の経年変化は夏季に平成18年度(2006年度)を境に減少傾向に転じている一方で、春季に近年注意報発令レベル以上の高濃度の出現が見られるなど、高濃度の光化学オキシダントの出現する季節に変化が生じている可能性がある。

#### 【データから見えること】

##### ➤ 濃度ランク別出現頻度(東海地方)

- ・ 春季、夏季共に環境基準値以上の出現率は増加傾向
- ・ 注意報発令レベル以上の出現率は、夏季は平成18年度(2006年度)以降減少傾向、春季は平成19年度(2007年度)以降微増

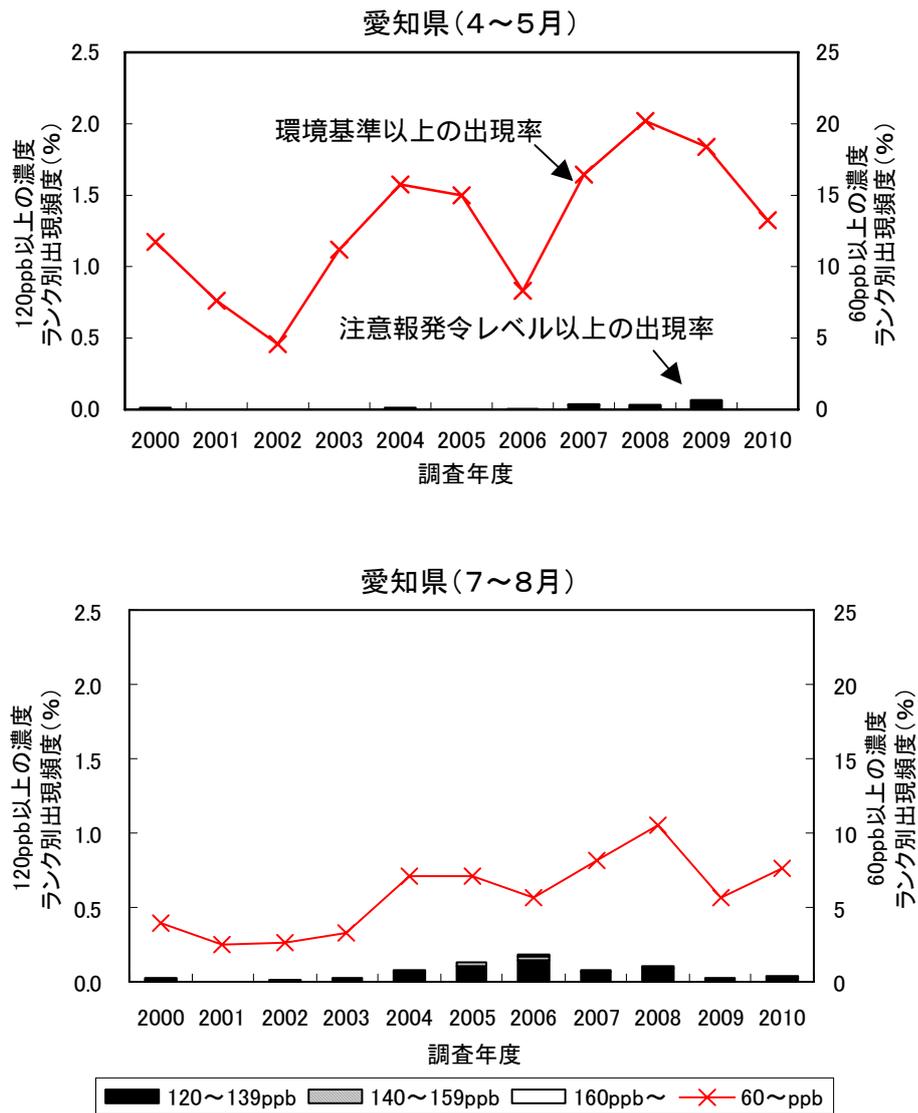


図 4.1.3-12 春季及び夏季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度 (全日): 一般局

測定局数: 愛知県 ( 61(2000~2002年度)、62(2003~2008年度)、69(2009年度)、58(2010年度) )

## 一定範囲の気象条件日における濃度の推移

光化学オキシダント濃度は気象条件の影響を受けるため、一定範囲の気象条件下での濃度を整理し近年の推移を検証する。東海地方における比較的光化学オキシダントが高濃度となる一定範囲の気象条件<sup>(注)</sup>の日(7~8月)を対象に、昼間の1時間値から各パーセンタイル値(10<sup>th</sup>,20<sup>th</sup>,50<sup>th</sup>,80<sup>th</sup>,90<sup>th</sup>,95<sup>th</sup>,98<sup>th</sup>)を整理した。パーセンタイル値の算出に当たっては、各測定局の昼間の1時間値を用いて算出した。

【愛知県(平成12年度(2000年度))の場合】

測定局数(61局)×一定範囲の気象条件日(5日)×昼間の時間数  
(15時間)=4,575時間

4,575時間のデータを用いて各パーセンタイル値を算出した。

一定範囲の気象条件は「東京都オキシダント検討会報告書」に準拠し、下記の通り設定した。一定範囲の気象条件の抽出にあたっては、気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の名古屋地方気象台のデータを使用した。

気象条件の設定にあたり、東京管区気象台と名古屋地方気象台の7~8月の日毎の日射量及び平均気温の平年値(統計期間;1981~2010年)の差の平均を算出した。名古屋地方気象台の日射量の平年値は東京管区気象台の平年値に比べ+1.7MJ/m<sup>2</sup>、平均気温は+0.5 となっていたため、P.58に示した関東地方における気象条件に日射量で2MJ/m<sup>2</sup>、気温で0.5 加算した値を東海地方における気象条件として設定した。なお、平均風速は関東地方と同じ値を採用した。

(注) 気象一定範囲の出現条件: 名古屋地方気象台<sup>1</sup>

日積算日射量: 20以上27MJ/m<sup>2</sup>未満

日最高気温: 25.5 以上34.5 未満

昼午前<sup>2</sup>平均風速: 1.5以上2.5m/s未満

1: 愛知県名古屋市千種区日和町の気象台データを使用

2: 昼午前: 5~12時

各年の一定範囲の気象条件の日数は以下に示すとおりである。

2000年(5日),2001年(7日),2002年(3日),2003年(7日),2004年(7日),2005年(6日),  
2006年(4日),2007年(6日),2008年(10日),2009年(9日),2010年(6日)

7~8月における一定範囲の気象条件日の昼午前平均風速、日最高気温及び日積算日射量の各年の平均値及び最大値・最小値を図4.1.3-13に示す。

一定範囲の気象条件日を抽出したことによって、気象要因(日射量、気温、風速)の影響をある程度除外できているものと思われるが、気象条件の平均値や最大・最小の幅は年により変動があり毎年同一の気象条件ではないこと、気象による影響はこれ以外の要素も存在することに留意する必要がある。

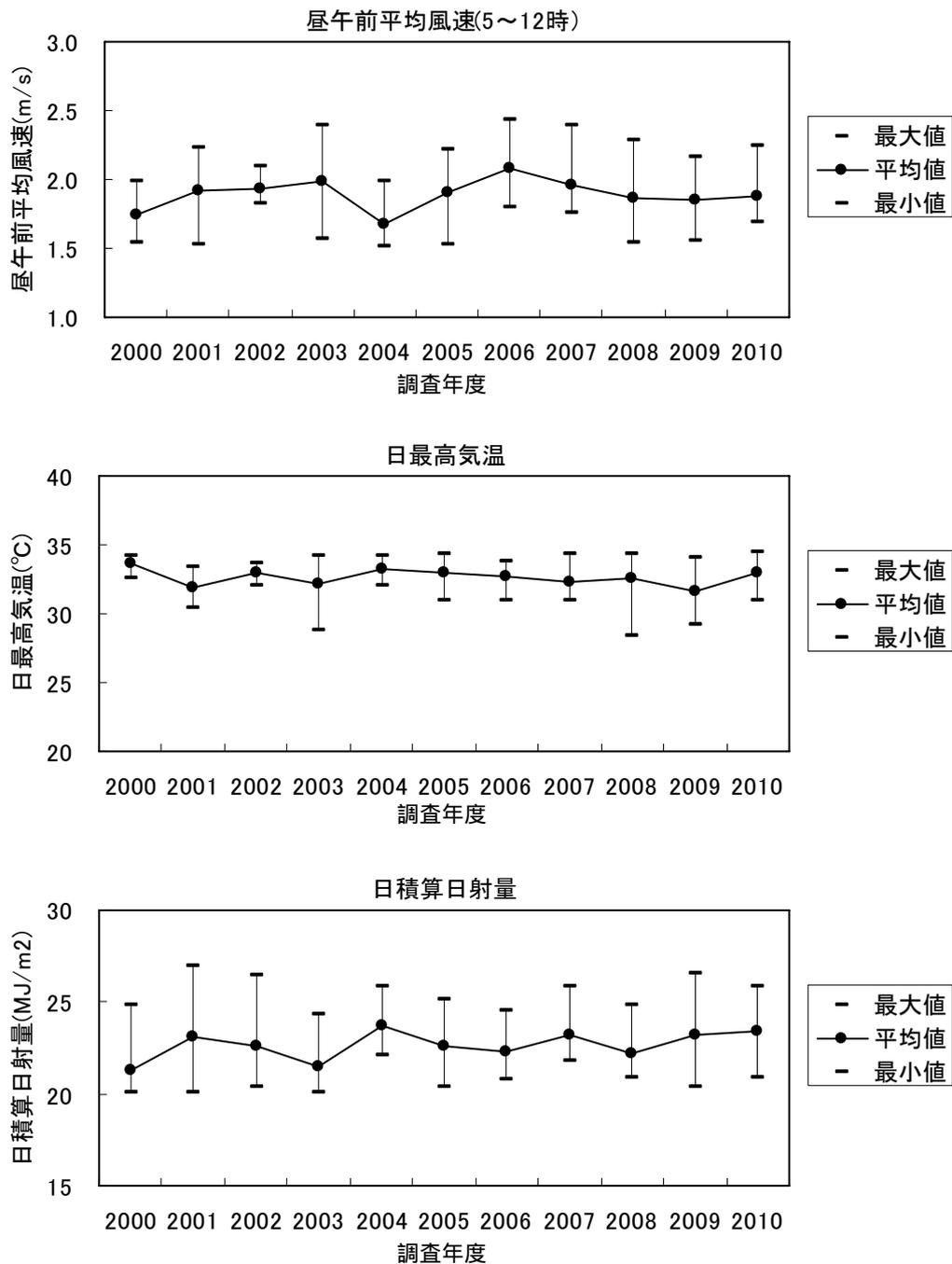


図 4.1.3-13 7~8月の一定範囲の気象条件日の気象要因の年々変動  
 (名古屋地方気象台)

上段: 昼午前平均風速  
 中段: 日最高気温  
 下段: 日積算日射量

図 4.1.3-14 に示す一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度の各パーセンタイル値の経年変化を見ると、50<sup>th</sup> パーセンタイル値はやや上昇傾向なのに対し、90<sup>th</sup> パーセンタイル値より高濃度のパーセンタイル値については、平成 12 年度（2000 年度）から平成 16 年度（2004 年度）までは上昇傾向を示しているが、その後は概ね横ばいの傾向を示している。

図 4.1.2-13（P.48）では東海地方において注意報発令レベルの非超過割合が平成 15 年度（2003 年度）の約 8 割から平成 21 年度（2009 年度）には約 3 割と大きく低下していたが、本解析結果を見ると、夏季には高濃度の光化学オキシダントの悪化傾向は見られない。図 4.1.3-12（P.70）で示したように春季における注意報発令レベル以上の濃度ランク別出現頻度が平成 19 年度（2007 年度）以降増えていることから春季に悪化している可能性がある。春季の高濃度出現が大陸からの移流によるものか、その他の要因によるものかについて、今後高濃度エピソード解析等を通じて詳細に検討を行う必要がある。

**【データから見えること】**

- 一定範囲の気象条件日における濃度の推移（東海地方）
- ・ 50<sup>th</sup> パーセンタイル値など中濃度域は横ばい～上昇傾向
- ・ 90<sup>th</sup> 以上の高濃度域のパーセンタイル値は平成 16 年度（2004 年度）頃から横ばい傾向

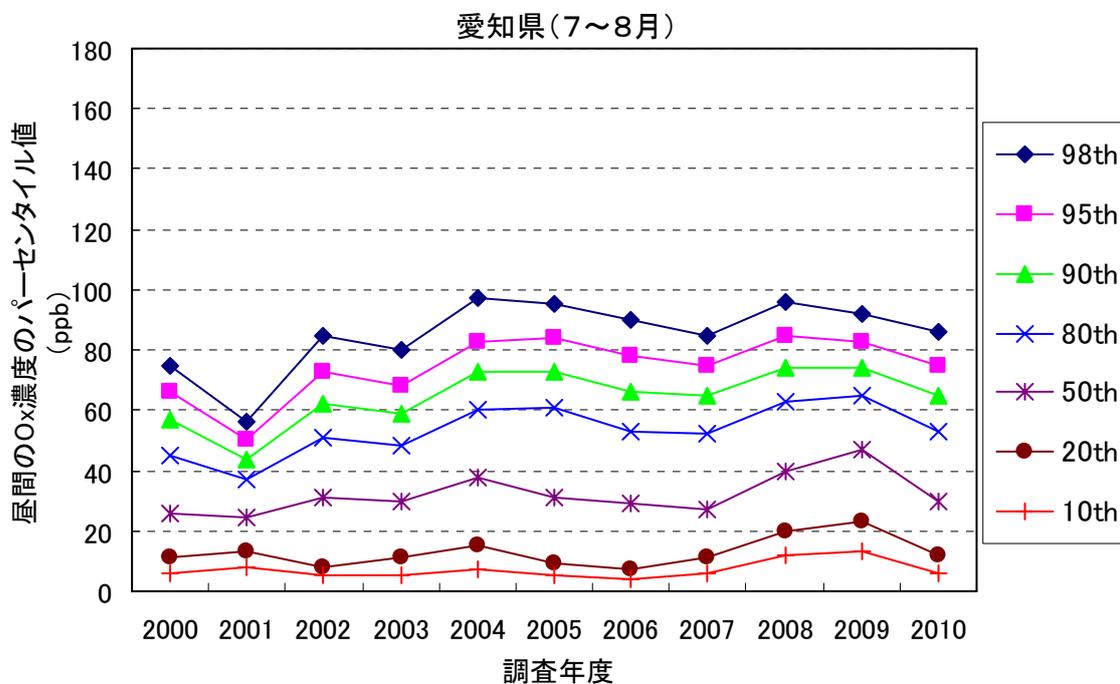


図 4.1.3-14 一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度パーセンタイル値（一般局）  
測定局数：愛知県（61(2000～2002年度)、62(2003～2008年度)、69(2009年度)、58(2010年度)）

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移

前述の一定範囲の気象条件下の日における前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の推移を見る。平成17～21年度（2005～2009年度）の5年間のNO<sub>x</sub>の7～8月の平均濃度の調査結果を見ると、名古屋市付近にやや高濃度の測定局が存在していることが分かる（図4.1.3-15）。

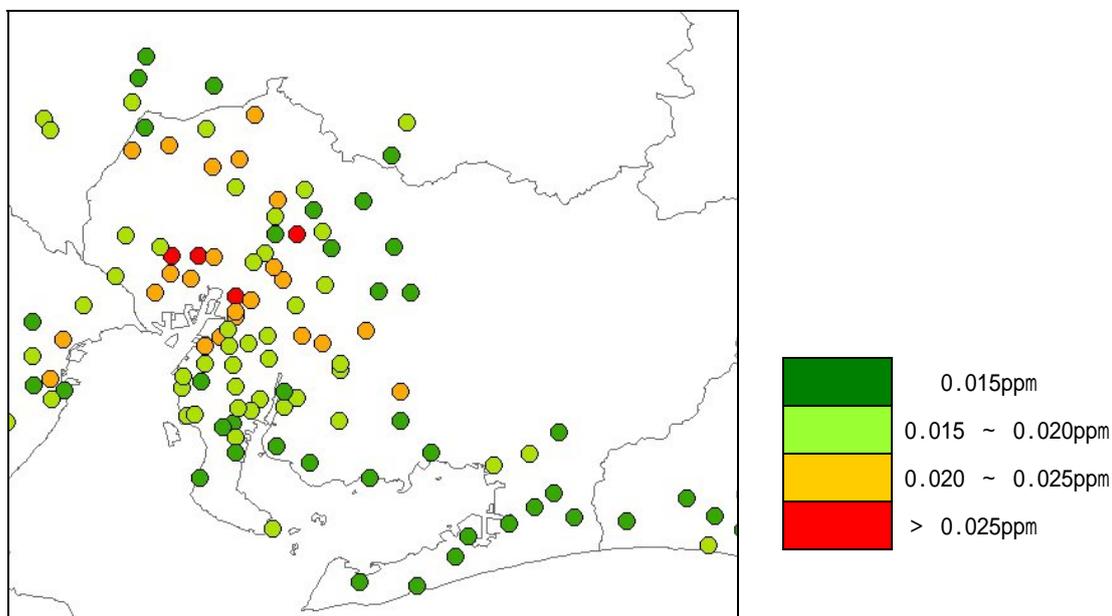


図 4.1.3-15 NO<sub>x</sub> の 7～8 月の平均濃度の地理的分布  
（統計期間：平成 17～21 年度（2005～2009 年度）の 5 年間）：一般局

ここでは、愛知県全域の一般局（NO<sub>x</sub>：89局、NMHC：9局）を前駆物質の集計対象の測定局として整理を行った。NMHC/NO<sub>x</sub>の算出にあたっては、NO<sub>x</sub>及びNMHCの年平均値（一定範囲の気象条件日のみ）を使用した。前駆物質の集計時間はまだ光化学生成が活発に行われていない朝方の6～9時とした。

図 4.1.3-16 を見ると、NO<sub>x</sub> は平成 14 年度（2002 年度）以降は減少傾向を示しており、NMHC は平成 16 年度（2004 年度）以降減少傾向を示していることが分かる。NMHC が平成 16 年度（2004 年度）まで上昇している傾向は図 4.1.3-14 における光化学オキシダントの高パーセンタイル値の変動傾向と一致しているが、その後の前駆物質（濃度低下）と光化学オキシダント濃度（濃度横ばい）の変動傾向は一致していない。東海地方（愛知県）における前駆物質の削減による光化学オキシダント濃度の低減効果は本調査結果からは明確には見られなかった。

NMHC/NO<sub>x</sub> 比は年々変動が大きいものの概ね増加傾向である。この結果は、他の地域と同様に「東京都オキシダント検討会報告書」の NMHC/NO<sub>x</sub> 濃度比と高濃度の光化学オキシダントの出現頻度との関係と一致しない。

【データから見えること】

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移（東海地方）
  - ・前駆物質の濃度が低下する一方、高濃度の光化学オキシダント濃度の推移は概ね横ばい
  - ・前駆物質の削減による光化学オキシダント濃度の低減効果は不明瞭

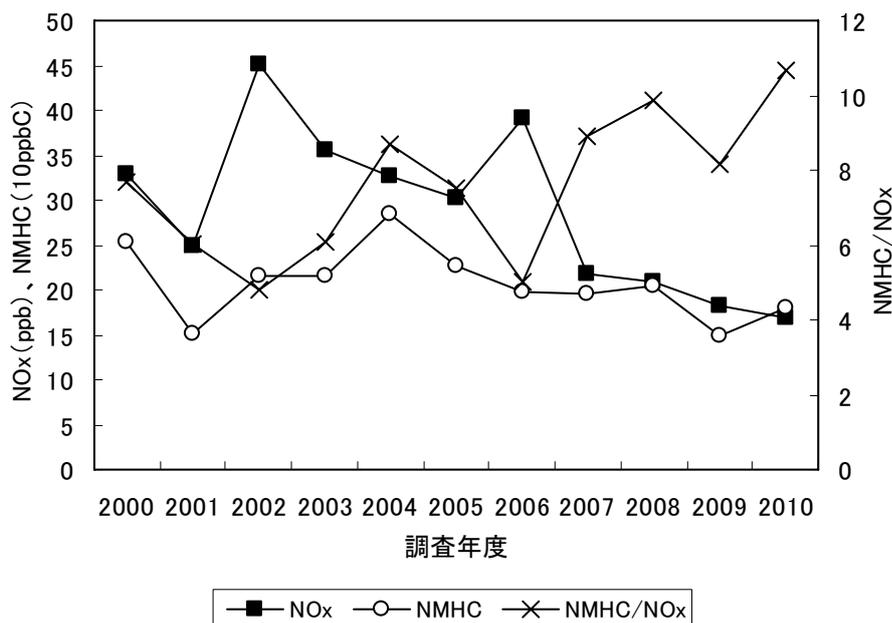


図 4.1.3-16 一定範囲の気象条件での 6～9 時における NO<sub>x</sub>、NMHC、NMHC/NO<sub>x</sub> 比の推移（愛知県の一般局：7～8 月；平成 12～22 年度（2000～2010 年度））

測定局数：NO<sub>x</sub>：64(2000～2002 年度)、67(2003～2008 年度)、81(2009 年度)、62(2010 年度)

NMHC：5(2000～2009 年度)、9(2010 年度)

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関

一定範囲の気象条件下の日における6～9時の前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値の相関を見る。前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度は愛知県の測定局の平均濃度、光化学オキシダントの日最高値は愛知県の測定局における最高値（75局中の最高値）である。相関の解析結果を表4.1.3-4及び図4.1.3-17に示す。

相関の結果を見ると、NO<sub>x</sub>に比べNMHCの方が光化学オキシダントの日最高値との相関がやや強くなっているが、NO<sub>x</sub>の平均値が60ppb以上の日（3日）が異常値として相関を弱めているように見られる。このため、NO<sub>x</sub>の平均値が60ppb以上の日を除外して相関を見ると、NO<sub>x</sub>とNMHCの相関は概ね同程度となっており、両項目とも光化学オキシダント日最高値とは中程度の相関関係がある。

図4.1.3-14及び図4.1.3-16の光化学オキシダント濃度と前駆物質の経年変化からは前駆物質削減による光化学オキシダント濃度の低減効果は明瞭には見られなかったが、図4.1.3-17を見ると、前駆物質の濃度の低い日は光化学オキシダント濃度の日最高値は低くなる傾向が見られる。関東地方のように前駆物質の削減による光化学オキシダント低減効果が明瞭に見えない要因としては、前駆物質の濃度が関東地方より低いことが考えられる。関東地方でも前駆物質の濃度が低い領域では光化学オキシダント濃度と前駆物質濃度の相関はばらつきが大きくなっており（図4.1.3-9（P.65参照））、前駆物質の比較的低い濃度域では光化学オキシダント低減効果は不明瞭である。前駆物質の濃度と光化学オキシダント濃度の関係が弱くなる要因としてはVOCの成分構成の変化やNMHC計では捉えられない成分、気象要因など様々な要因が考えられるが、詳細は不明である。

今後、NO<sub>x</sub>等前駆物質の濃度がより低減されることが予想される中で、前駆物質の低い濃度環境での光化学オキシダント生成に与える影響要因について検討を行う必要がある。

【データから見えること】

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関（東海地方）
  - ・NO<sub>x</sub>とNMHCは光化学オキシダント日最高値と中程度の相関
  - ・前駆物質の濃度がやや低く、前駆物質の削減による光化学オキシダント低減効果が不明瞭

表 4.1.3-4 一定の気象条件での6～9時における愛知県のNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値の相関(平成12～22年度(2000～2010年度)の7～8月)(一般局)

県	NO <sub>x</sub>	NMHC
愛知県	0.31 **	0.46 ***

O<sub>x</sub>の測定局数：61(2000～2002年度)、62(2003～2008年度)、69(2009年度)、58(2010年度)  
 NO<sub>x</sub>の測定局数：64(2000～2002年度)、67(2003～2008年度)、81(2009年度)、62(2010年度)  
 NMHCの測定局数：5(2000～2009年度)、9(2010年度)  
 データ数(解析対象日)：70日  
 \*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

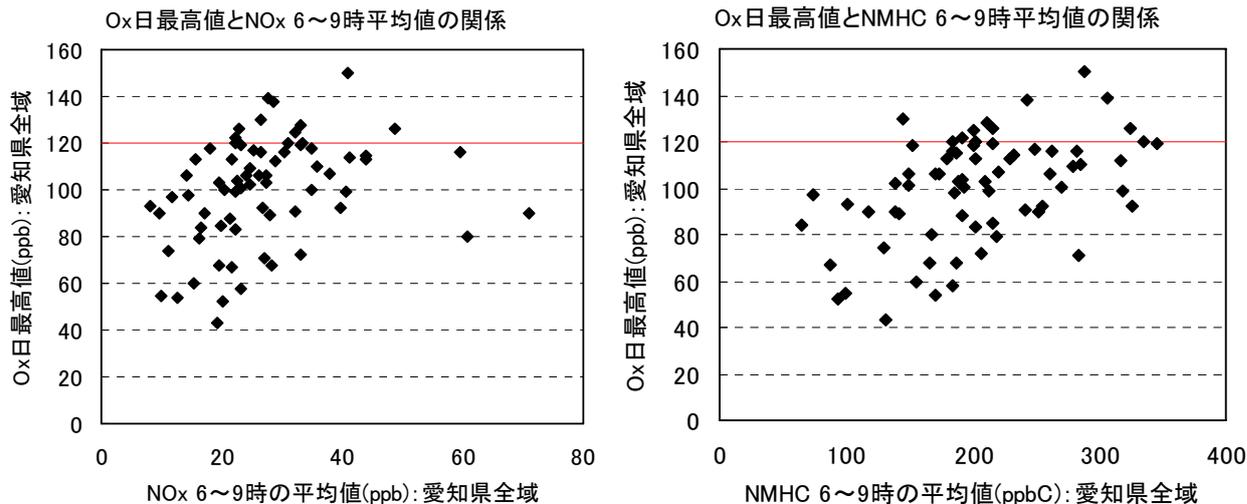


図 4.1.3-17 一定範囲の気象条件での6～9時におけるNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度(愛知県の平均濃度)と各都県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関

(一般局：7～8月；平成12～22年度(2000～2010年度))

O<sub>x</sub>の測定局数：61(2000～2002年度)、62(2003～2008年度)、69(2009年度)、58(2010年度)  
 NO<sub>x</sub>の測定局数：64(2000～2002年度)、67(2003～2008年度)、81(2009年度)、62(2010年度)  
 NMHCの測定局数：5(2000～2009年度)、9(2010年度)  
 赤線：O<sub>x</sub>120ppbのライン  
 データ数(解析対象日)：70日

(3) 近畿地方

昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関

図4.1.2-14 (P.49)において高濃度の出現割合がやや見られていた大阪府及び京都府と、大阪府から光化学オキシダントの移流の影響を受ける奈良県を対象とし、光化学生成が活発に行われる春季(4~5月)及び夏季(7~8月)について整理を行った。なお、大阪湾付近の発生源からの影響を見るため、京都府については日本海側の測定局(福知山、東舞鶴、綾部、宮津、京丹後、南丹)は除外して整理を行った。

春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と大阪管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化(平成12~21年度;2000~2009年度)を図4.1.3-18に示す。また、大阪府の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と大阪管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の散布図及び相関係数を図4.1.3-19に示す。

光化学オキシダントのデータは「環境数値データベース」の「月間値」で整理されている光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値を使用した。気象データは気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の大阪管区気象台のデータを使用した。

春季における光化学オキシダント濃度の変動を見ると、概ね上昇傾向を示しており、京都府における上昇率(年率2.3ppb;  $p < 0.01$ )が高くなっている。夏季は年々変動が大きい、大阪府は横ばい傾向、京都府は上昇傾向(年率1.6ppb;  $p < 0.05$ )、奈良県は平成16年度(2004年度)以降低下傾向(年率-3.3ppb;  $p = 0.05$ )など地域により傾向が異なっている。

大阪府における光化学オキシダント濃度と気象要因(全天日射量及び日平均気温)の相関を見ると春季は全天日射量の月平均値と光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値の関係が強くなっている。また、夏季は春季に比べ気象要因(全天日射量及び日平均気温)と光化学オキシダント濃度の相関が低くなっているが、平成14年度(2002年度)のデータを除外すると非常に強い相関関係が見られる。このことから、平成14年度(2002年度)の夏季は全天日射量や気温以外の要因の影響を強く受けた近年の傾向とは異なる特異な年である可能性が考えられる。

【データから見えること】

- 昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関(近畿地方)
  - ・春季の光化学オキシダント濃度は概ね上昇傾向、夏季は地域により傾向が相違
  - ・春季は全天日射量と光化学オキシダント濃度に相関があり、夏季は全天日射量、気温共に強い相関(ただし、平成14年度(2002年度)を特異な年として集計から除外した場合)

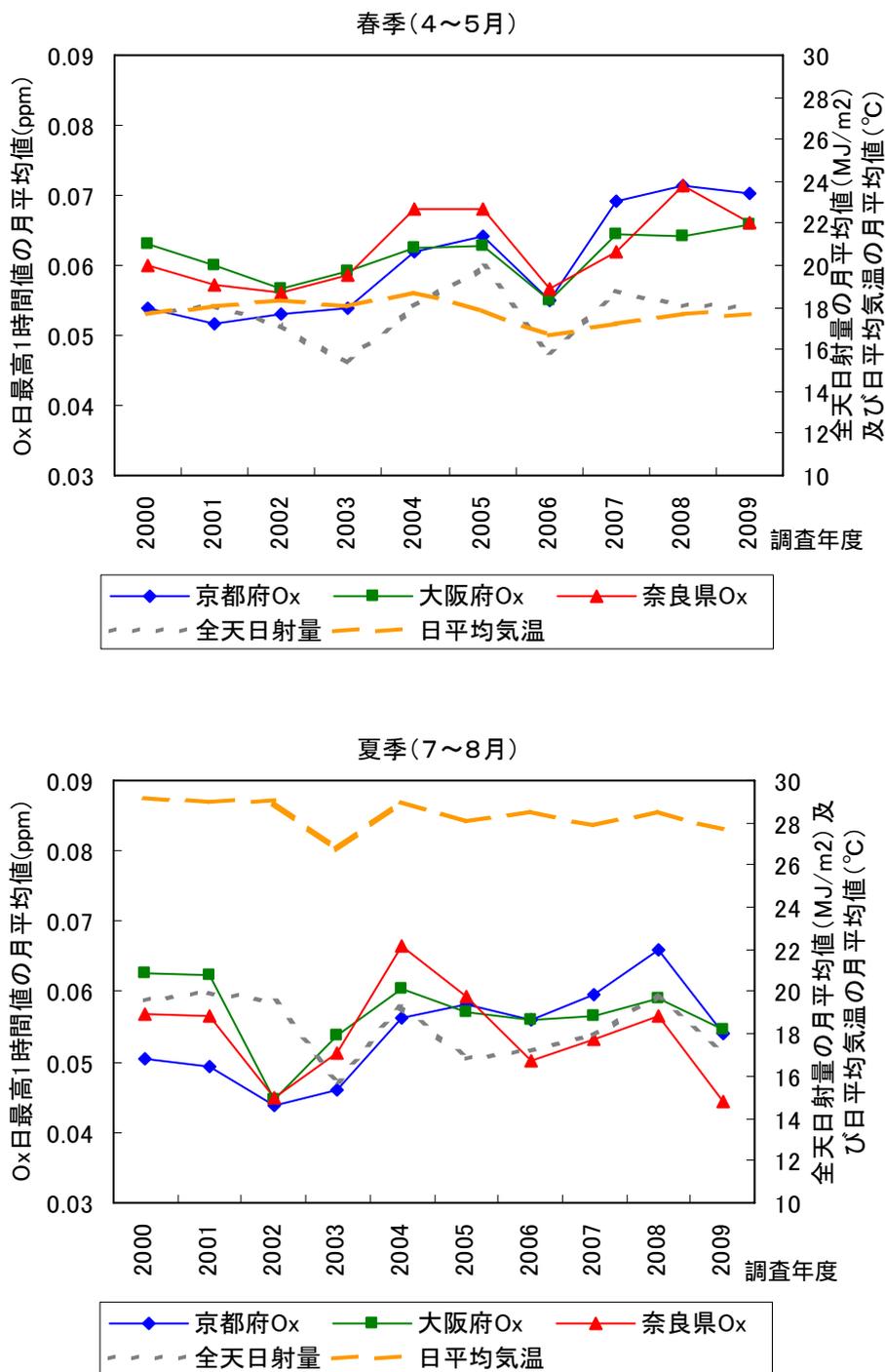
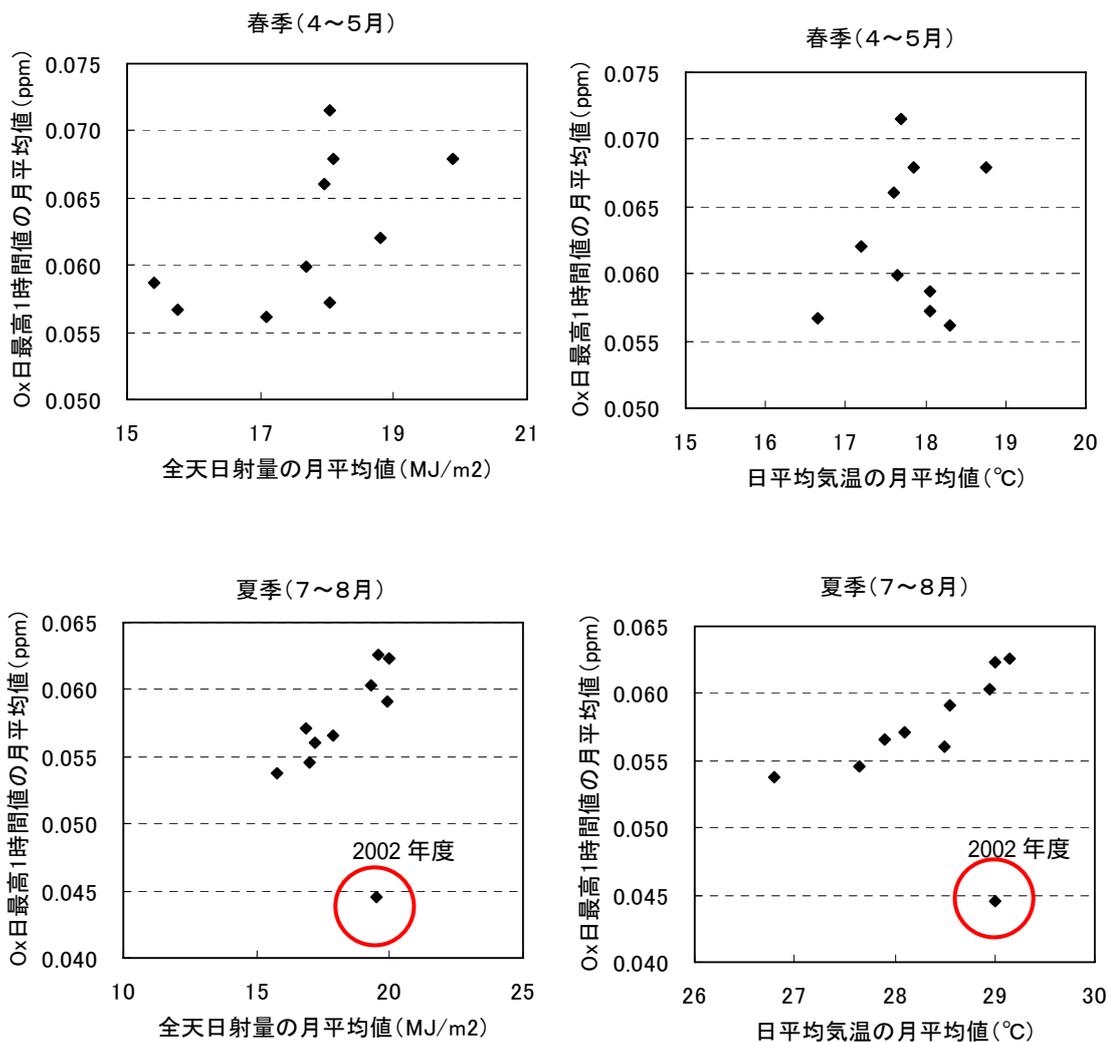


図 4.1.3-18 春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値(一般局)と大阪管区气象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化

測定局数：大阪府(58) 京都府(20) 奈良県(8)

大阪管区气象台：大阪府大阪市中央区大手前の气象台のデータを使用



【相関係数】

項目	季節	全天日射量の月平均値	日平均気温の月平均値
大阪府のOx日最高1時間値の月平均値	春季	0.68*	0.11
	夏季	0.28 (0.91***)	0.25 (0.90***)

注： ( ) 内の数値は2002年度を除いた相関係数

2002年度を除いた相関を見ると、2000～2009年度で相関を見た場合に比べ相関が強い。2002年度は日射量や気温以外の要因により光化学オキシダント濃度が低くなったものと考えられる。ここでは2002年度を特異な年と考え、2002年度を含んだ場合・除いた場合のそれぞれで相関係数を示した。

\*\*\*: p<0.001で有意、\*\*: p<0.01で有意、\*: p<0.05で有意

図 4.1.3-19 春季・夏季における大阪府の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値（一般局）と大阪管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の相関（統計期間：春季（4～5月）夏季（7～8月）；平成12～21年度（2000～2009年度））

測定局数：大阪府（58）

大阪管区気象台：大阪府大阪市中央区大手前の気象台のデータを使用

### 光化学オキシダント濃度ランク別出現頻度の推移

光化学オキシダント濃度の行政上の指標としては、環境基準値(60ppb)と光化学注意報発令レベル(120ppb)がある。ここでは、これらの指標値(環境基準値・注意報発令レベル)以上の濃度の出現状況について濃度ランク別に整理し、近年の変化を把握した。データ整理にあたっては、光化学オキシダント等に関するC型共同研究(現型共同研究)で開発された「大気時間値集計解析プログラム」の「濃度ランク別集計機能」を使用した。解析対象時間は全日(24時間)とした。

春季(4~5月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度は少なく、近畿地方での共通した傾向は見られないが、京都府では平成19年度(2007年度)以降に出現頻度が増加している。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は年々変動が大きいものの全体的には近年増加傾向が見られる(図4.1.3-20)。

夏季(7~8月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度が平成16~19年度(2004~2007年度)にやや増加していたが、それ以降は少なくなっている。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は大阪府及び奈良県は概ね横ばい傾向となっており、京都府はやや増加傾向となっている(図4.1.3-21)。

注意報発令レベル以上の高濃度域における春季の経年変化からは近畿地方での共通した傾向は見られず、京都府における高濃度域の出現増加は大陸からの越境輸送のような広域的なものではなく地域的な要因による可能性が示唆される。

#### 【データから見えること】

- 濃度ランク別出現頻度(近畿地方)
  - ・環境基準値以上の出現率は、春季は増加傾向、夏季は横ばいまたは増加傾向
  - ・注意報発令レベル以上の出現率は京都府で春季に増加しているが、地域的な要因の可能性
  - ・平成16~19年度(2004~2007年度)の夏季に注意報発令レベル以上の出現率が増加していたが、それ以降は減少

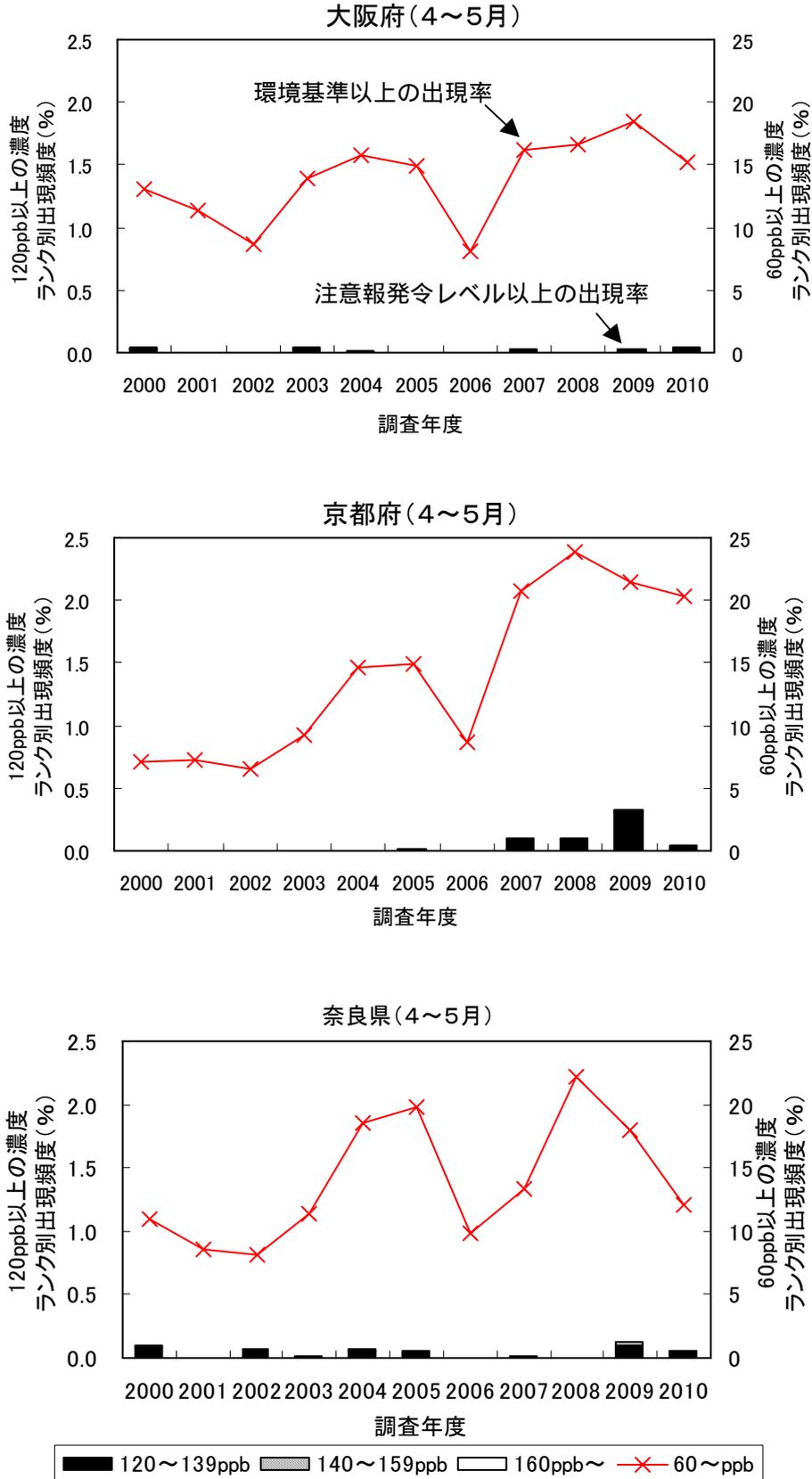


図 4.1.3-20 春季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度(全日): 一般局  
測定局数: 大阪府(58)、京都府(20; 2010年度のみ 19)、奈良県(8)

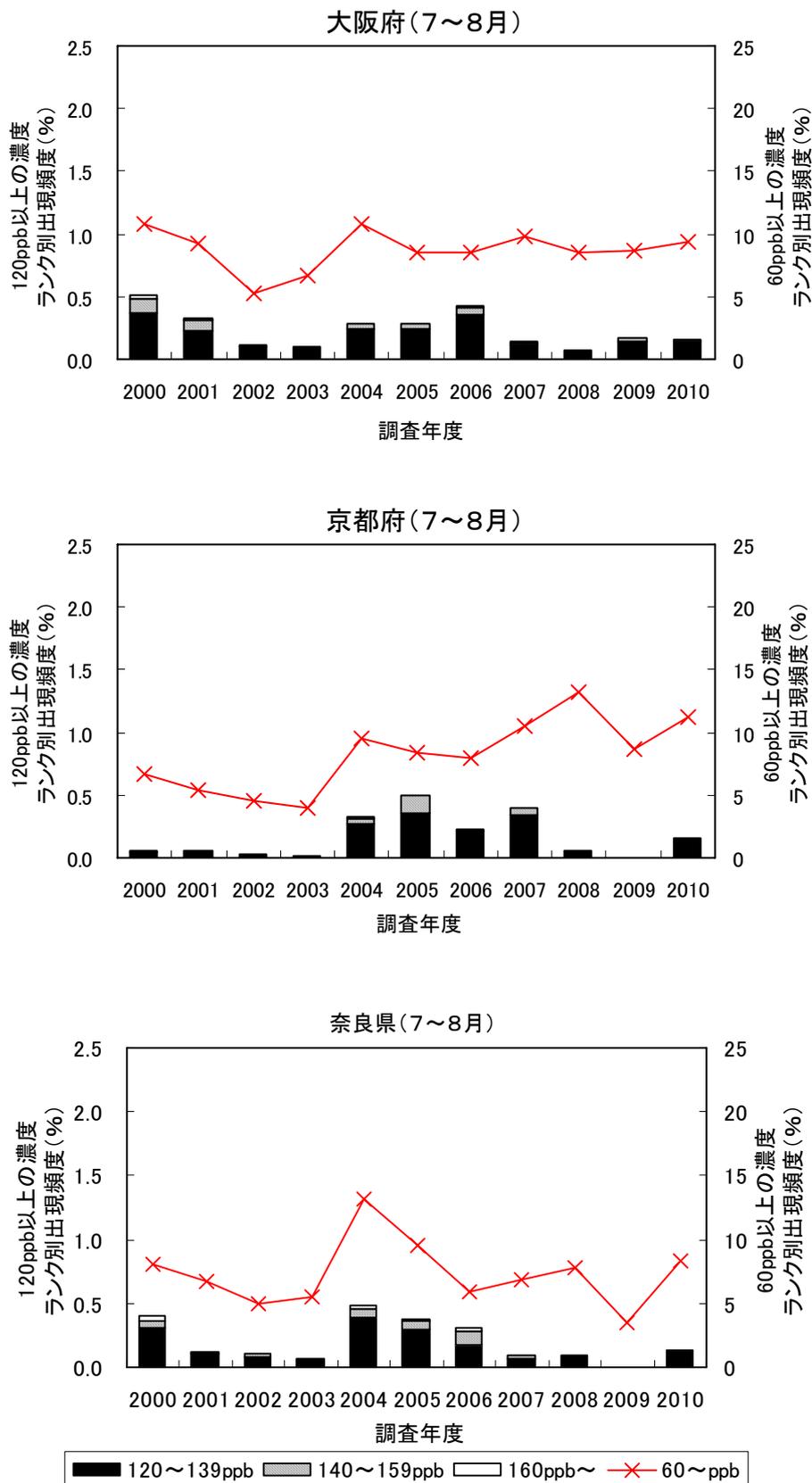


図 4.1.3-21 夏季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度(全日): 一般局  
測定局数: 大阪府(58)、京都府(20; 2010年度のみ 19)、奈良県(8)

一定範囲の気象条件日における濃度の推移

光化学オキシダント濃度は気象条件の影響を受けるため、一定範囲の気象条件下での濃度を整理し近年の推移を検証する。近畿地方における比較的光化学オキシダントが高濃度となる一定範囲の気象条件<sup>(注)</sup>の日(7~8月)を対象に、昼間の1時間値から各パーセンタイル値(10<sup>th</sup>,20<sup>th</sup>,50<sup>th</sup>,80<sup>th</sup>,90<sup>th</sup>,95<sup>th</sup>,98<sup>th</sup>)を整理した。パーセンタイル値の算出に当たっては、各測定局の昼間の1時間値を用いて算出した。

【大阪府(平成12年度(2000年度))の場合】

測定局数(58局)×一定範囲の気象条件日(19日)×昼間の時間数(15時間)=16,530時間  
16,530時間のデータを用いて各パーセンタイル値を算出した。

一定範囲の気象条件は「東京都オキシダント検討会報告書」に準拠し、下記の通り設定した。一定範囲の気象条件の抽出にあたっては、気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の大阪管区気象台のデータを使用した。

気象条件の設定にあたり、東京管区気象台と大阪管区気象台の7~8月の日毎の日射量及び平均気温の平年値(統計期間;1981~2010年)の差の平均を算出した。大阪管区気象台の日射量の平年値は東京管区気象台の平年値に比べ+2.3MJ/m<sup>2</sup>、平均気温は+1.5℃となっていたため、P.58に示した関東地方における気象条件に日射量で2MJ/m<sup>2</sup>、気温で1.5℃加算した値を近畿地方における気象条件として設定した。なお、平均風速は関東地方と同じ値を採用した。

(注) 気象一定範囲の出現条件：大阪管区気象台<sup>1</sup>

日積算日射量：20以上27MJ/m<sup>2</sup>未満

日最高気温：26.5℃以上35.5℃未満

昼午前<sup>2</sup>平均風速：1.5以上2.5m/s未満

1：大阪府大阪市中央区大手前の気象台データを使用

2：昼午前：5~12時

各年の一定範囲の気象条件の日数は以下に示すとおりである。

2000年(19日),2001年(13日),2002年(9日),2003年(10日),2004年(14日),

2005年(16日),2006年(10日),2007年(15日),2008年(13日),2009年(13日),2010年(10日)

7~8月における一定範囲の気象条件日の昼午前平均風速、日最高気温及び日積算日射量の各年の平均値及び最大値・最小値を図4.1.3-22に示す。

一定範囲の気象条件日を抽出したことによって、気象要因(日射量、気温、風速)の影響をある程度除外できているものと思われるが、気象条件の平均値や最大・最小の幅は年により変動があり毎年同一の気象条件ではないこと、気象による影響はこれ以外の要素も存在することに留意する必要がある。

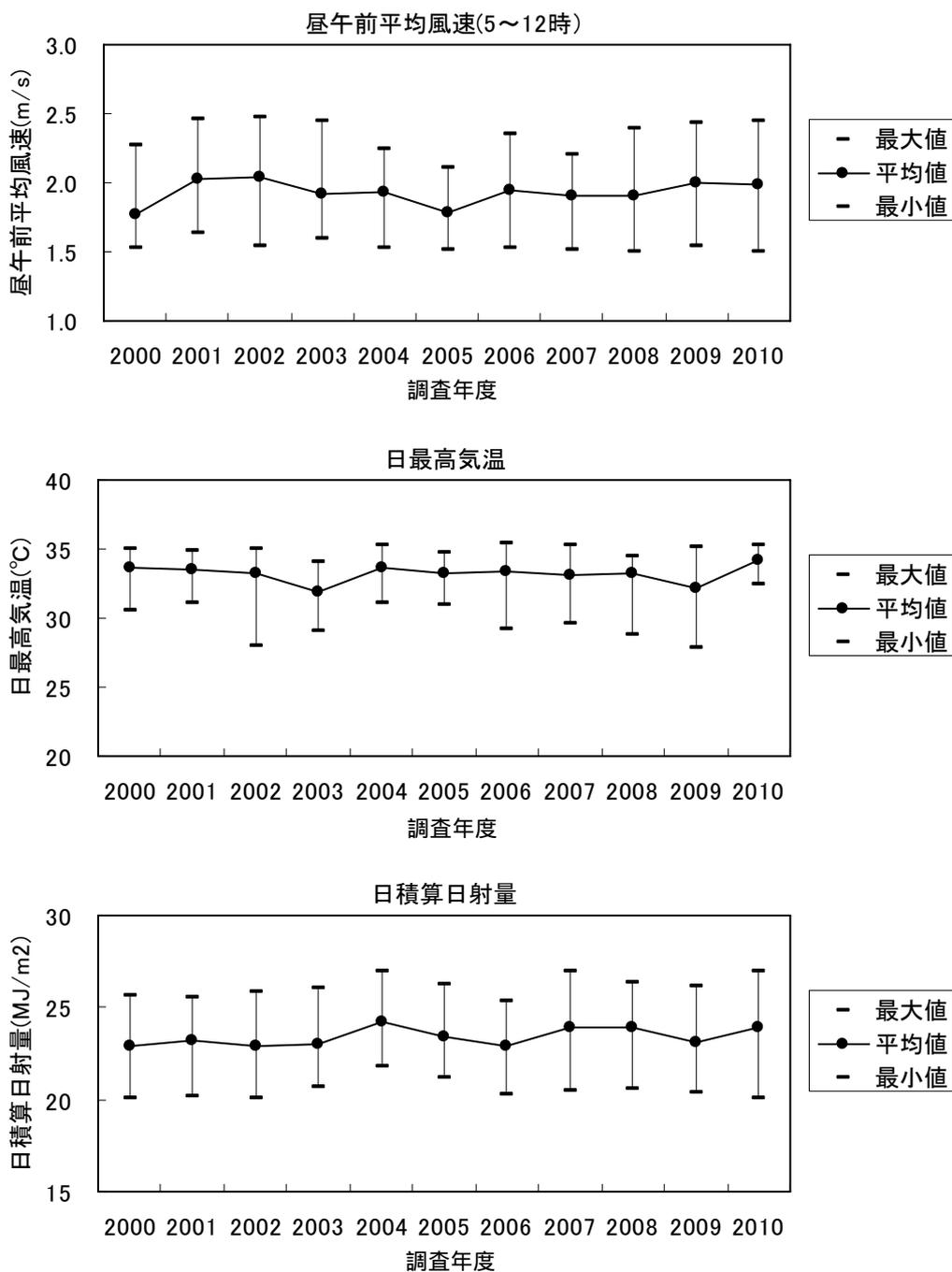


図 4.1.3-22 7~8月の一定範囲の気象条件日の気象要因の年々変動(大阪管区気象台)  
 上段: 昼午前平均風速  
 中段: 日最高気温  
 下段: 日積算日射量

図 4.1.3-23 に示す一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度の各パーセンタイル値の経年変化を見ると、90<sup>th</sup> パーセンタイル値より高濃度のパーセンタイル値については、平成 16～17 年度（2004～2005 年度）以降、大阪府及び京都府では概ね横ばいまたは減少の傾向を示しており、奈良県では減少傾向を示している。中濃度域である 50<sup>th</sup> パーセンタイル値は、大阪府及び奈良県では概ね横ばいであり、京都府ではやや上昇傾向が見られる。中濃度域における光化学オキシダント濃度上昇の要因としては大陸からの越境輸送が一般的に挙げられるが、ここでは隣接した地域で異なる傾向が見られることから地域的な要因の影響を受けている可能性が考えられる。

**【データから見えること】**

- 一定範囲の気象条件日における濃度の推移（近畿地方）
  - ・ 50<sup>th</sup> パーセンタイル値など中濃度域は大阪府・奈良県は横ばい、京都府は上昇傾向など地域により傾向が異なり、地域的な要因の影響を受けている可能性
  - ・ 90<sup>th</sup> 以上の高濃度域のパーセンタイル値は平成 16～17 年度（2004～2005 年度）頃から横ばいまたは低下傾向

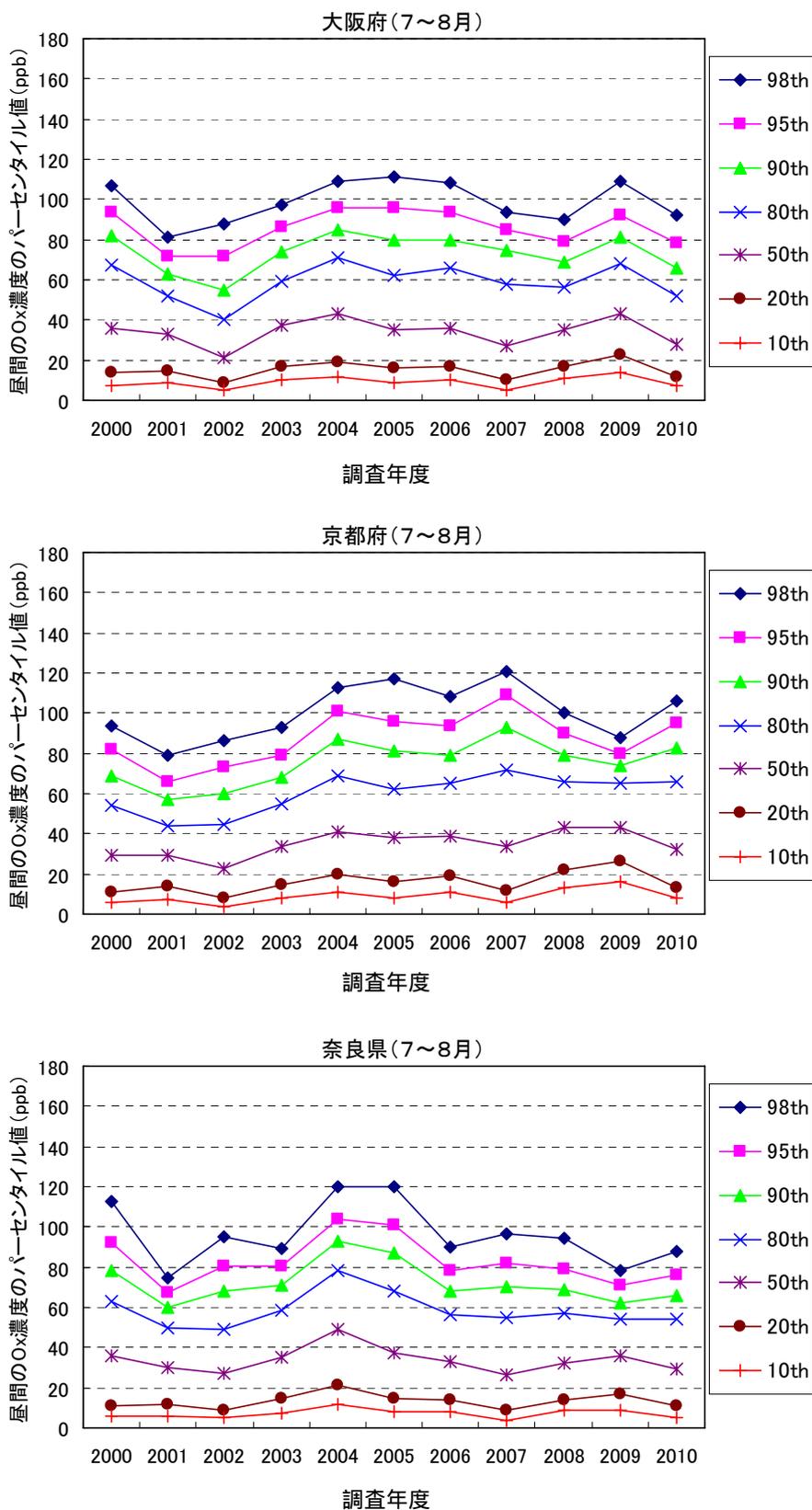


図 4.1.3-23 一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度パーセンタイル値(一般局)  
 測定局数：大阪府(58)、京都府(20; 2010年度のみ19)、奈良県(8)

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移

前述の一定範囲の気象条件下の日における前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の推移を見る。平成17～21年度（2005～2009年度）の5年間のNO<sub>x</sub>の7～8月の平均濃度の調査結果を見ると、大阪市や堺市等の大阪湾付近に高濃度の測定局が集中していることが分かる（図4.1.3-24）。

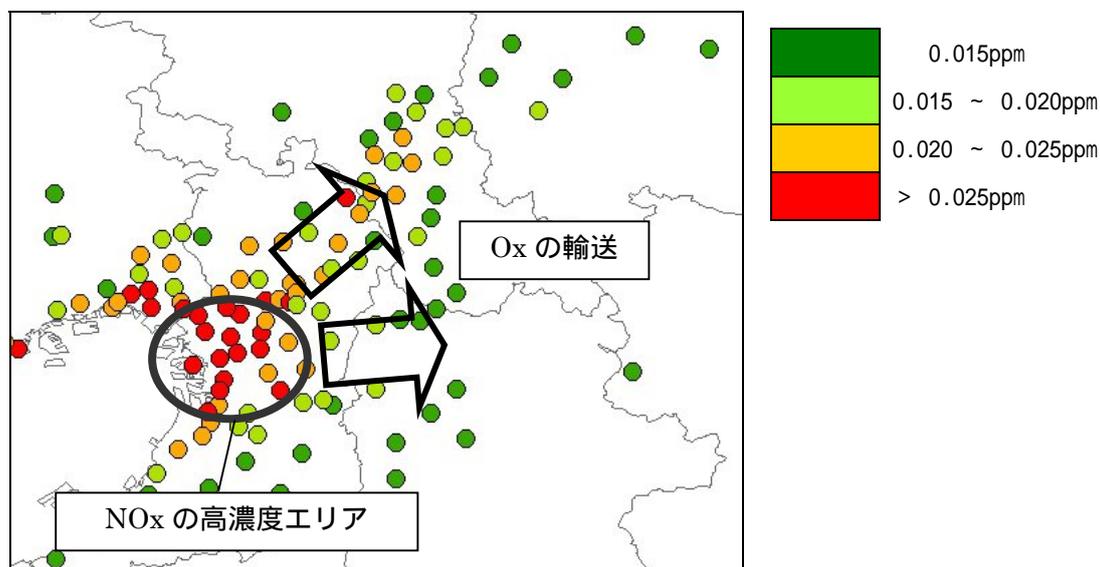


図 4.1.3-24 NO<sub>x</sub> の 7～8 月の平均濃度の地理的分布  
 （統計期間：平成 17～21 年度（2005～2009 年度）の 5 年間）：一般局

ここでは、大阪湾沿岸の高濃度の前駆物質が大阪湾海風により内陸に輸送される過程で光化学反応が起こり、内陸部において高濃度の光化学オキシダントが現れるものと考え、近畿地方の中でも特に高濃度の NO<sub>x</sub> が観測されている大阪市及び堺市臨海部の一般局（NO<sub>x</sub>：20局、NMHC：4局）を前駆物質の集計対象の測定局として整理を行った。NMHC/NO<sub>x</sub> の算出にあたっては、NO<sub>x</sub> 及び NMHC の年平均値（一定の気象条件日のみ）を使用した。前駆物質の集計時間はまだ光化学生成が活発に行われていない朝方の 6～9 時とした。

堺市臨海部 NO<sub>x</sub> 測定局：少林寺、浜寺、石津、金岡、三宝、深井  
 NMHC 測定局：浜寺、金岡

図 4.1.3-25 を見ると、NO<sub>x</sub> は平成 17 年度(2005 年度)までは横ばいであり、以降は減少傾向を示している。NMHC は平成 17 年度(2005 年度)までは上昇傾向を示しており、以降は NO<sub>x</sub> と同様に減少傾向を示していることが分かる。

この前駆物質の変動傾向と図 4.1.3-23 に示した光化学オキシダントの高パーセントイル値の変動傾向を比較すると、平成 21 年度(2009 年度)の大阪府の光化学オキシダント濃度の増加や平成 19 年度(2007 年度)の京都府の光化学オキシダント濃度の増加など、前駆物質の変動と傾向の異なる年が見られるものの、平成 17 年度(2005 年度)付近で濃度の上昇傾向が低下傾向に転じるなど、概ね類似した傾向を示しており、近畿地方における高濃度オキシダントの出現の減少傾向は前駆物質の削減による効果であることが示唆される。

NMHC/NO<sub>x</sub> 比は年々変動が大きいものの概ね増加傾向である。この結果は、他の地域と同様に「東京都オキシダント検討会報告書」の NMHC/NO<sub>x</sub> 濃度比と高濃度の光化学オキシダントの出現頻度との関係と一致しない。

なお、解析対象とした NMHC の測定局数は 4 局と少ないことから、大阪市及び堺市臨海部における NMHC の全体的な傾向を表していない可能性があることに留意する必要がある。

**【データから見えること】**

- 前駆物質 (NO<sub>x</sub>・NMHC) の濃度の推移 (近畿地方)
- ・前駆物質の濃度低下と高濃度の光化学オキシダント濃度の推移が概ね一致
- ・高濃度の光化学オキシダントの出現の減少傾向は前駆物質の削減による効果であることを示唆

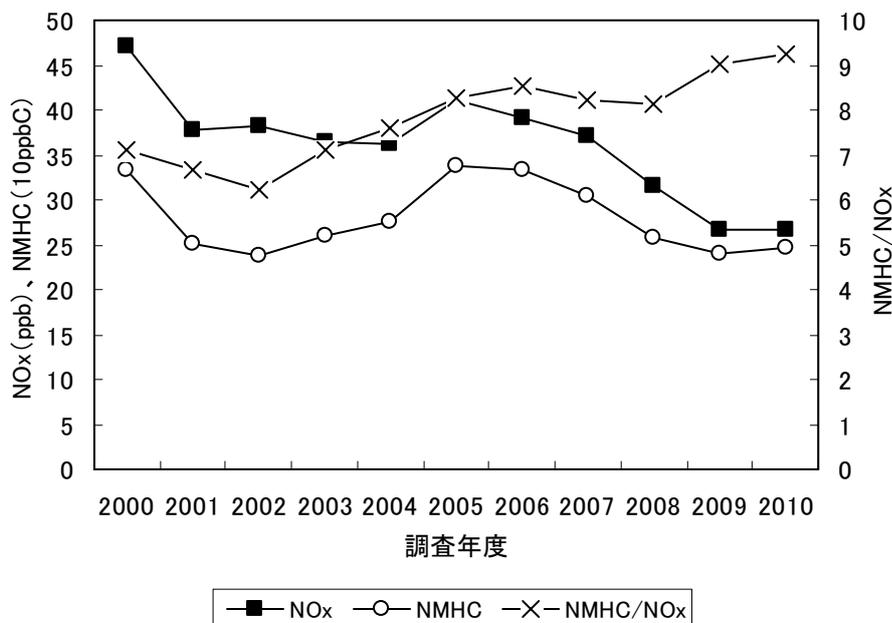


図 4.1.3-25 一定範囲の気象条件での 6～9 時における NO<sub>x</sub>、NMHC、NMHC/NO<sub>x</sub> 比の推移 (大阪市及び堺市臨海部の一般局：7～8 月；平成 12～22 年度(2000～2010 年度))  
測定局数： NO<sub>x</sub>：20 局、NMHC：4 局

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関

一定範囲の気象条件下の日における6～9時の前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値の相関を見る。前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度は大阪市及び堺市臨海部の測定局の平均濃度、光化学オキシダントの日最高値は各府県の測定局における最高値（大阪府の場合、58局中の最高値）である。

相関の解析結果を表4.1.3-5及び図4.1.3-26に示す。

相関の結果を見ると、大阪市及び堺市臨海部における前駆物質の濃度と光化学オキシダント濃度の相関は大阪府では弱く、大阪湾沿岸の発生源からの移流の影響を受けるとされる京都府や奈良県では中程度の相関関係が見られる。

【データから見えること】

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関（近畿地方）
  - ・大阪府では前駆物質と光化学オキシダント濃度の相関は弱く、京都府・奈良県では中程度の相関関係
  - ・発生源近傍の大阪府よりも大阪湾沿岸からの移流の影響を受ける京都府や奈良県のほうが前駆物質との相関が強い

表 4.1.3-5 一定範囲の気象条件での6～9時におけるNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度（大阪市及び堺市臨海部の平均濃度）と各都県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関  
（一般局：7～8月；平成12～22年度（2000～2010年度））

都県	NO <sub>x</sub>	NMHC
大阪府	0.17 *	0.21 *
京都府	0.42 ***	0.49 ***
奈良県	0.39 ***	0.39 ***

NO<sub>x</sub>の測定局数：大阪府（58）、京都府（20；2010年度のみ19）、奈良県（8）

NO<sub>x</sub>の測定局数：大阪市及び堺市臨海部（20）

NMHCの測定局数：大阪市及び堺市臨海部（4）

データ数（解析対象日）：142日

\*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

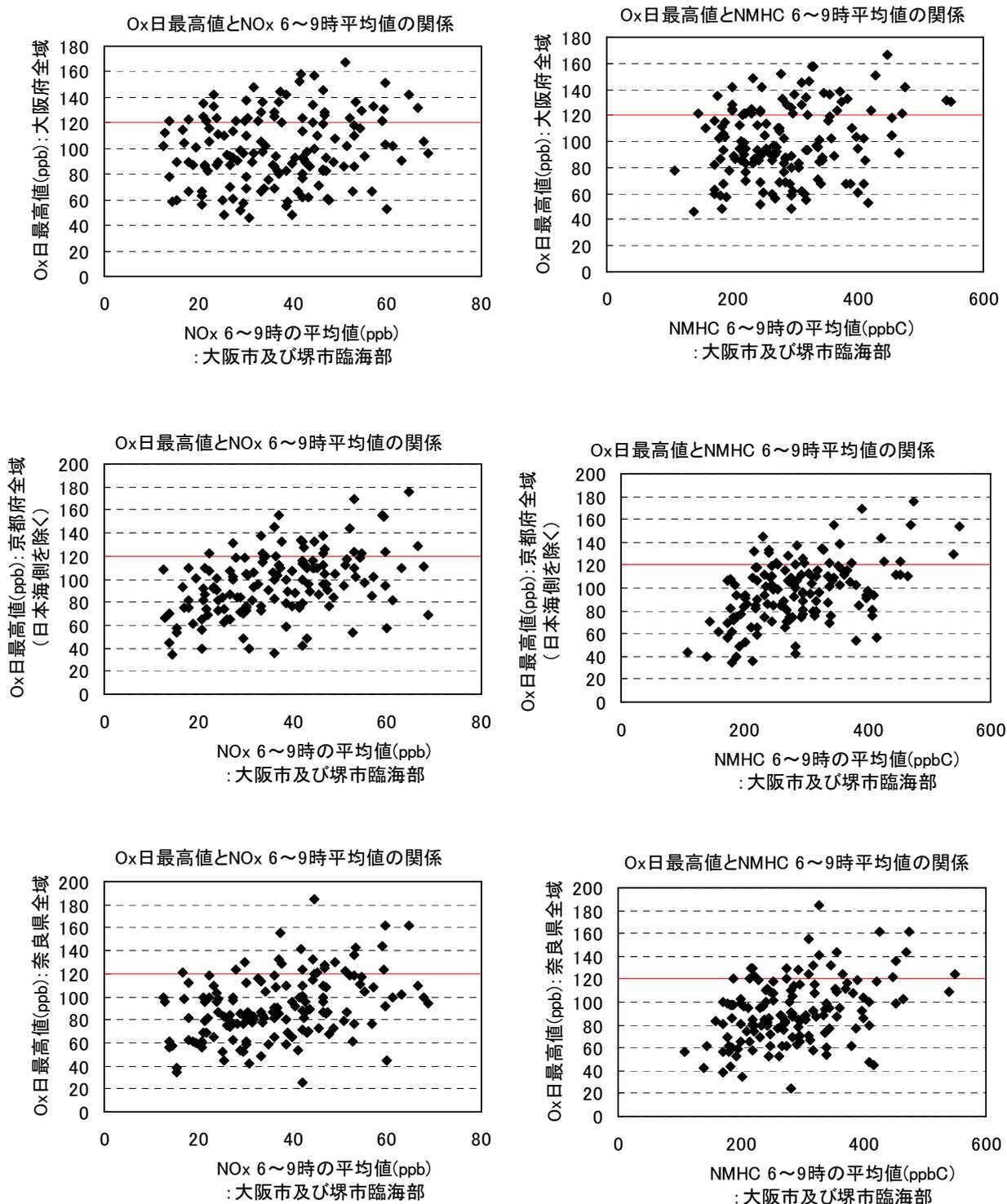


図 4.1.3-26 一定範囲の気象条件での 6～9 時における NO<sub>x</sub> 及び NMHC 平均濃度（大阪市及び堺市臨海部の平均濃度）と各府県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関  
（一般局：7～8月；平成 12～22 年度（2000～2010 年度））

Ox の測定局数：大阪府（58）、京都府（20；2010 年度のみ 19）、奈良県（8）

NO<sub>x</sub> の測定局数：大阪市及び堺市臨海部（20）

NMHC の測定局数：大阪市及び堺市臨海部（4）

赤線：Ox120ppb のライン

データ数（解析対象日）：142 日

(4) 九州地方

昼間の日最高1時間値の月平均値と気象要因の推移及び相関

大陸からの光化学オキシダントの越境汚染の影響を受ける福岡県を対象とし、越境汚染による高濃度事例が見られる春季(4~5月)及び光化学生成が活発に行われる夏季(7~8月)について整理を行った。

春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と福岡管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化(平成12~21年度;2000~2009年度)を図4.1.3-27に示す。また、福岡県の光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値と福岡管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の散布図及び相関係数を図4.1.3-28に示す。

光化学オキシダントのデータは「環境数値データベース」の「月間値」で整理されている光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値を使用した。気象データは気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の福岡管区気象台のデータを使用した。

光化学オキシダント濃度の変動を見ると、春季は上昇傾向が顕著に見られており(年率1.8ppb; $p<0.01$ )、夏季は微増の傾向を示している(年率0.8ppb; $p<0.05$ )。

光化学オキシダント濃度と気象要因(全天日射量及び日平均気温)の相関を見ると春季は全天日射量の月平均値と光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値の関係が強くなっている。また、夏季は気象要因(全天日射量及び日平均気温)と光化学オキシダント濃度の相関が春季と異なり、全天日射量については中程度の逆相関の関係が見られている(ただし、統計的に有意ではない;有意水準5%)。

【データから見えること】

➤ 昼間の日最高1時間値の月平均値(九州地方)

- ・春季は光化学オキシダント濃度は上昇傾向が顕著、夏季は微増
- ・春季は全天日射量と光化学オキシダント濃度の相関が強い
- ・夏季は他地域と異なり、全天日射量と光化学オキシダント濃度に逆相関の関係が見られる

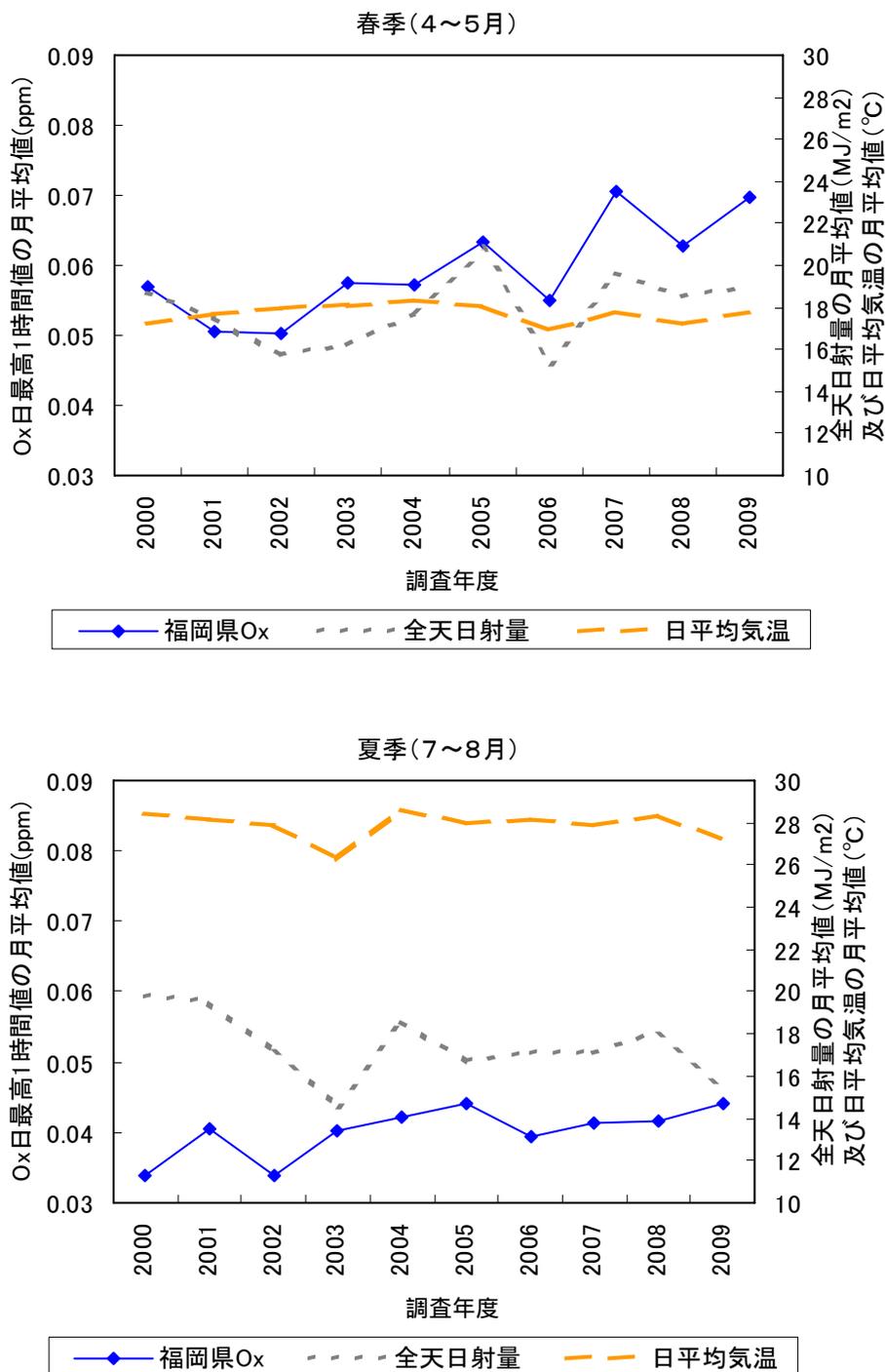
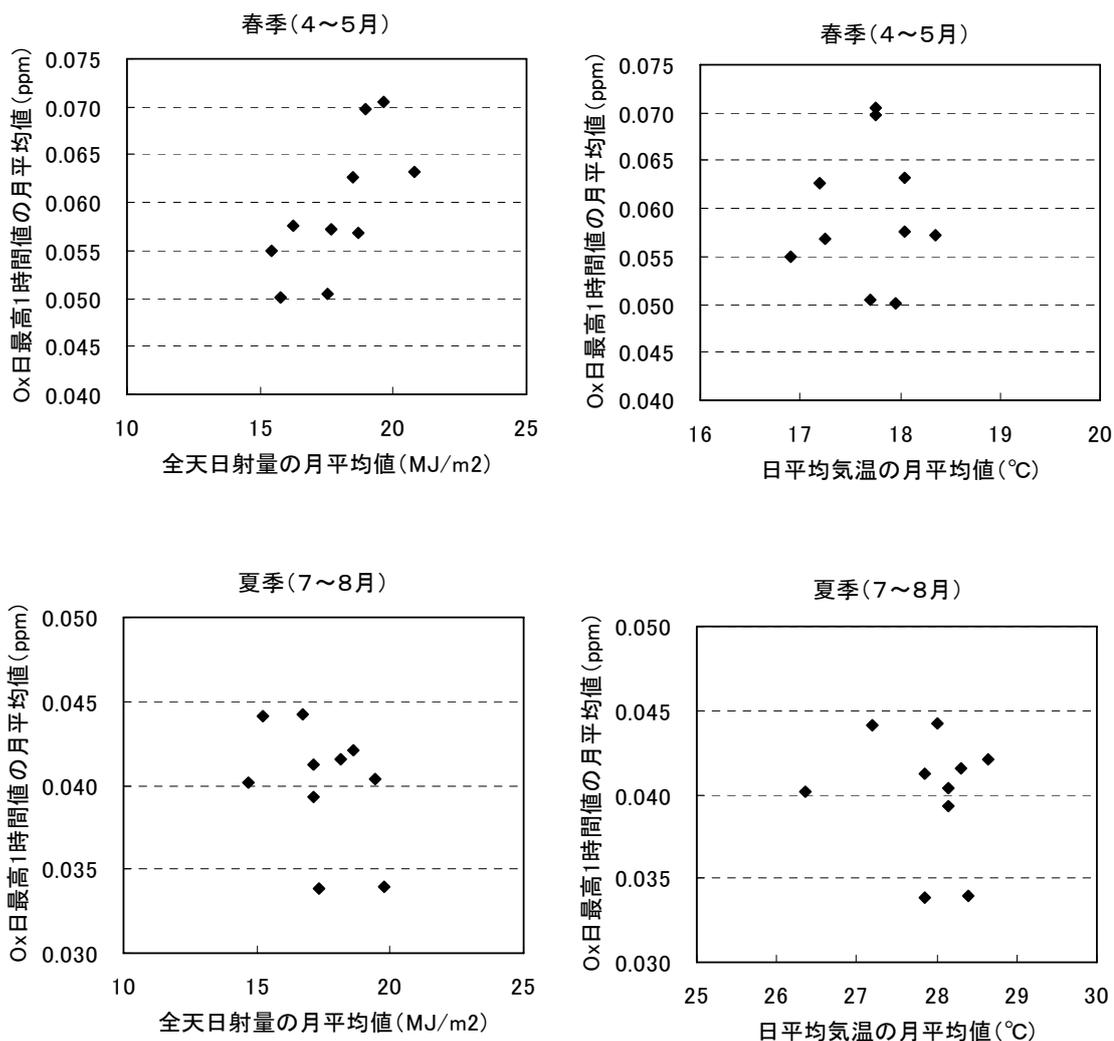


図 4.1.3-27 春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高1時間値の月平均値(一般局)と福岡管区気象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の経年変化

測定局数：福岡県(36)

福岡管区気象台：福岡県福岡市中央区大濠の気象台のデータを使用

第4章



【相関係数】

項目	季節	全天日射量の月平均値	日平均気温の月平均値
福岡県の O <sub>3</sub> 日最高 1 時間値の月平均値	春季	0.71*	0.04
	夏季	- 0.40	- 0.15

\*\*\* : p<0.001 で有意、\*\* : p<0.01 で有意、\* : p<0.05 で有意

測定局数：福岡県（36）

福岡管区气象台：福岡県福岡市中央区大濠の气象台のデータを使用

図 4.1.3-28 春季・夏季における光化学オキシダント昼間の日最高 1 時間値の月平均値（一般局）と福岡管区气象台の全天日射量と日平均気温の月平均値の散布図及び相関係数（統計期間：春季（4～5月） 夏季（7～8月）；平成 12～21 年度（2000～2009 年度））

### 光化学オキシダント濃度ランク別出現頻度の推移

光化学オキシダント濃度の行政上の指標としては、環境基準値(60ppb)と光化学注意報発令レベル(120ppb)がある。ここでは、これらの指標値(環境基準値・注意報発令レベル)以上の濃度の出現状況について濃度ランク別に整理し、近年の変化を把握した。データ整理にあたっては、光化学オキシダント等に関するC型共同研究(現型共同研究)で開発された「大気時間値集計解析プログラム」の「濃度ランク別集計機能」を使用した。解析対象時間は全日(24時間)とした。

濃度ランク別出現頻度を図4.1.3-29に示す。

春季(4~5月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度は平成19,21年度(2007,2009年度)において0.33%及び0.22%と現れているが、その他の年はほとんど出現していない。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は近年増加傾向が見られる。

夏季(7~8月)における濃度ランク別出現頻度を見ると、注意報発令レベル(120ppb)以上の出現頻度はほとんど見られない。環境基準レベル(60ppb)以上の出現頻度は横ばい傾向となっている。

注意報発令レベル以上の高濃度域の出現頻度は平成19,21年度(2007,2009年度)に増加している。これらの年は大陸からの大規模な越境汚染が発生したと考えられている(例えば大原ほか,2008、福田ほか,2009)。

#### 【データから見えること】

- 濃度ランク別出現頻度(九州地方)
- ・ 環境基準値以上の出現率は、春季は増加傾向、夏季は横ばい
- ・ 注意報発令レベル以上の出現頻度の高い年は大陸からの大規模な越境汚染が発生している

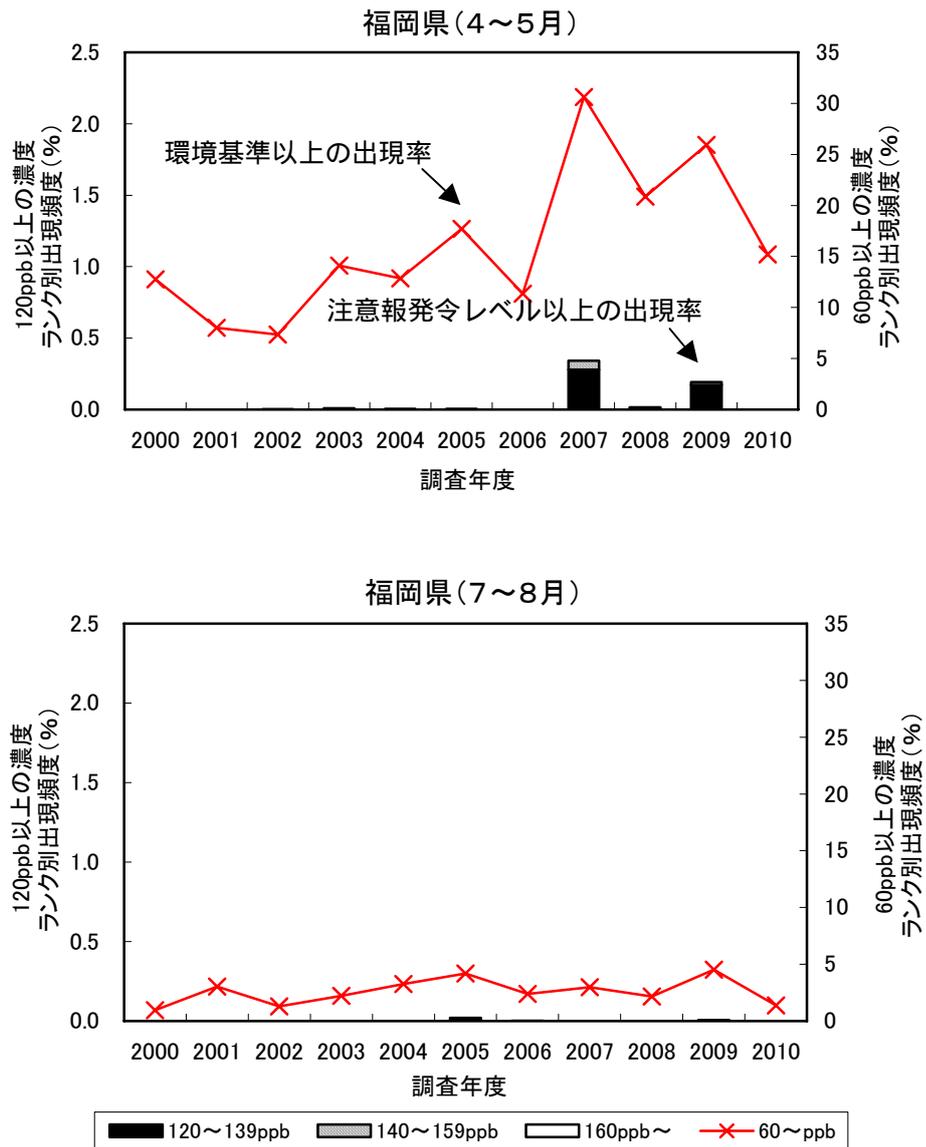


図 4.1.3-29 春季及び夏季における光化学オキシダント 1 時間値の濃度ランク別出現頻度 (全日): 一般局

測定局数: 福岡県 (36)

### 一定範囲の気象条件日における濃度の推移

光化学オキシダント濃度は気象条件の影響を受けるため、一定範囲の気象条件下での濃度を整理し近年の推移を検証する。九州地方における比較的光化学オキシダントが高濃度となる一定の気象条件<sup>(注)</sup>の日(7~8月)を対象に、昼間の1時間値から各パーセンタイル値(10<sup>th</sup>,20<sup>th</sup>,50<sup>th</sup>,80<sup>th</sup>,90<sup>th</sup>,95<sup>th</sup>,98<sup>th</sup>)を整理した。パーセンタイル値の算出に当たっては、各測定局の昼間の1時間値を用いて算出した。

【福岡県(平成12年度(2000年度))の場合】

測定局数(36局)×一定範囲の気象条件日(18日)×昼間の時間数(15時間)=9,720時間

9,720時間のデータを用いて各パーセンタイル値を算出した。

一定範囲の気象条件は「東京都オキシダント検討会報告書」に準拠し、下記の通り設定した。一定範囲の気象条件の抽出にあたっては、気象庁のホームページで公開されている「気象統計情報」の福岡管区気象台のデータを使用した。

気象条件の設定にあたり、東京管区気象台と福岡管区気象台の7~8月の日毎の日射量及び平均気温の平年値(統計期間;1981~2010年)の差の平均を算出した。福岡管区気象台の日射量の平年値は東京管区気象台の平年値に比べ+2.3MJ/m<sup>2</sup>、平均気温は+1.0となっていたため、P.58に示した関東地方における気象条件に日射量で2MJ/m<sup>2</sup>、気温で1加算した値を九州地方における気象条件として設定した。なお、平均風速は関東地方と同じ値を採用した。

(注) 気象一定範囲の出現条件：福岡管区気象台<sup>1</sup>

日積算日射量：20以上27MJ/m<sup>2</sup>未満

日最高気温：26以上35未満

昼午前<sup>2</sup>平均風速：1.5以上2.5m/s未満

1：福岡県福岡市中央区大濠の気象台データを使用

2：昼午前：5~12時

各年の一定範囲の気象条件の日数は以下に示すとおりである。

2000年(18日),2001年(15日),2002年(8日),2003年(13日),2004年(19日),  
2005年(13日),2006年(19日),2007年(14日),2008年(7日),2009年(11日),  
2010年(14日)

7~8月における一定範囲の気象条件日の昼午前平均風速、日最高気温及び日積算日射量の各年の平均値及び最大値・最小値を図4.1.3-30に示す。

一定範囲の気象条件日を抽出したことによって、気象要因(日射量、気温、風速)の影響をある程度除外できているものと思われるが、気象条件の平均値や最大・最小の幅は年により変動があり毎年同一の気象条件ではないこと、気象による影響はこれ以外の要素も存在することに留意する必要がある。

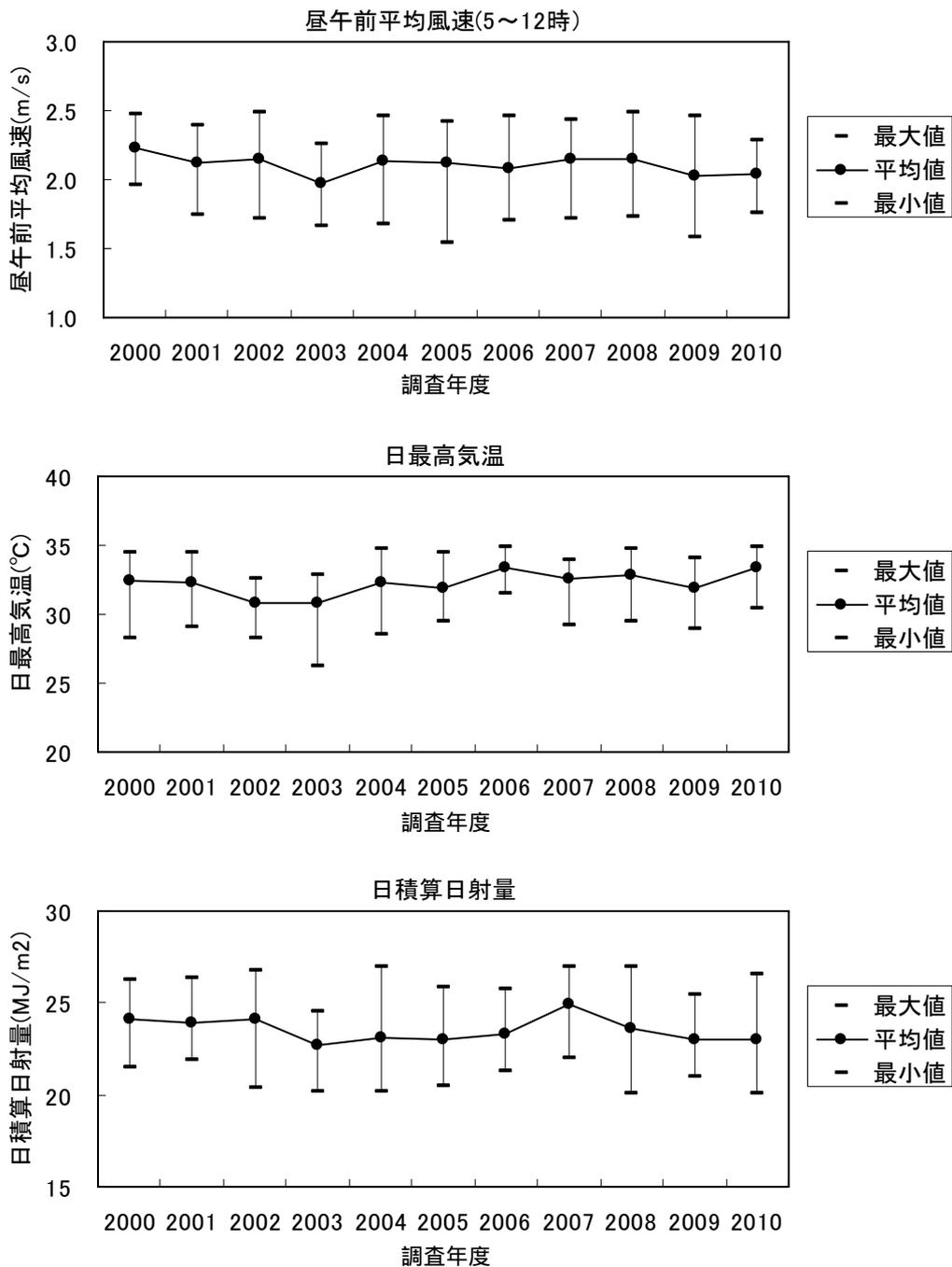


図 4.1.3-30 7~8月の一定範囲の気象条件日の気象要因の年々変動  
 (福岡管区气象台)

上段：昼午前平均風速  
 中段：日最高気温  
 下段：日積算日射量

図 4.1.3-31 に示す一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度の各パーセンタイル値の経年変化を見ると、90<sup>th</sup> パーセンタイル値より高濃度のパーセンタイル値については、平成 17 年度（2005 年度）までは上昇傾向となっているが、それ以降は横ばい～やや低下の傾向となっている。また、50<sup>th</sup> パーセンタイル値はやや上昇傾向を示している。

九州地方では大陸からの越境輸送により光化学オキシダント濃度が上昇していることが知られているが、本解析結果からは、夏季の高濃度域には光化学オキシダントの上昇傾向は見られない。

**【データから見えること】**

- 一定範囲の気象条件日における濃度の推移（九州地方）
- ・ 50<sup>th</sup> パーセンタイル値など中濃度域はやや上昇傾向
- ・ 90<sup>th</sup> 以上の高濃度域のパーセンタイル値は平成 17 年度（2005 年度）頃から横ばい～やや低下傾向

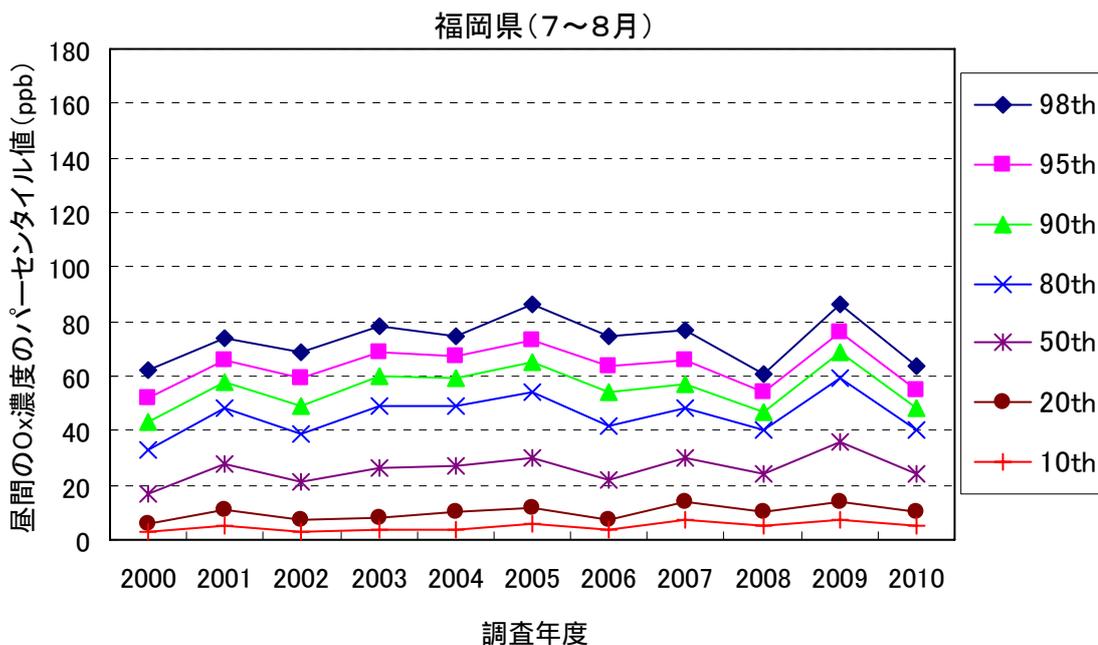


図 4.1.3-31 一定範囲の気象条件での昼間の光化学オキシダント濃度パーセンタイル値（一般局）  
測定局数：福岡県（36）

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移

前述の一定範囲の気象条件下の日における前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の推移を見る。平成 17～21 年度（2005～2009 年度）の 5 年間の NO<sub>x</sub> の 7～8 月の平均濃度の調査結果を見ると、北九州市付近に高濃度の測定局が存在していることが分かる（図 4.1.3-32）。

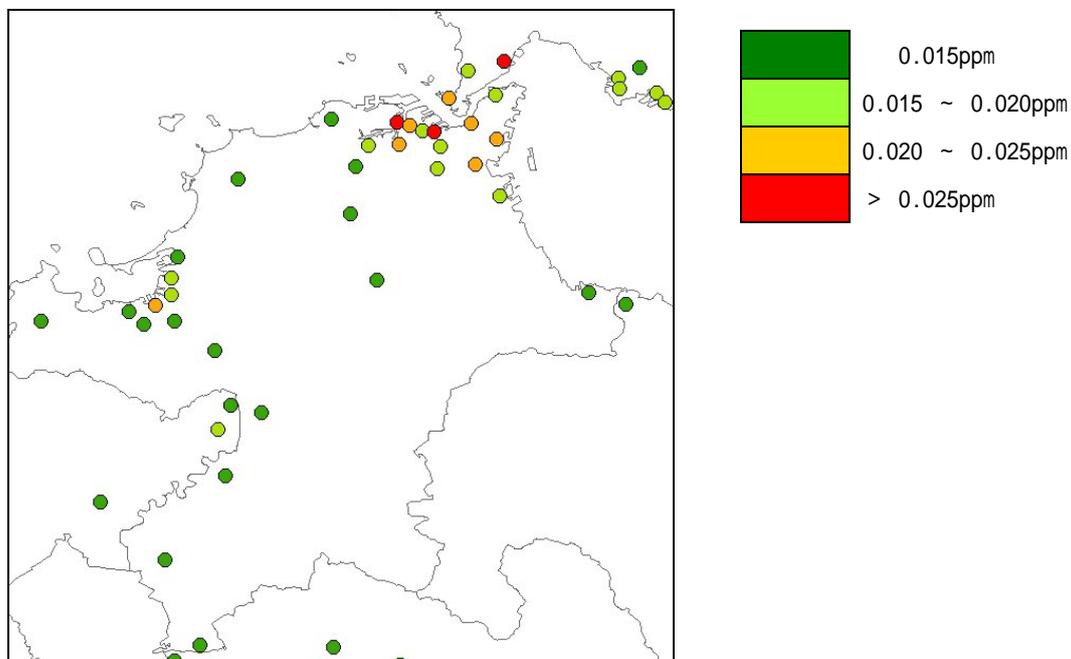


図 4.1.3-32 NO<sub>x</sub> の 7～8 月の平均濃度の地理的分布  
 （統計期間：平成 17～21 年度（2005～2009 年度）の 5 年間）：一般局

ここでは、福岡県全域の一般局（NO<sub>x</sub>：32 局、NMHC：5 局）を前駆物質の集計対象の測定局として整理を行った。NMHC/NO<sub>x</sub> の算出にあたっては、NO<sub>x</sub> 及び NMHC の年平均値（一定範囲の気象条件日のみ）を使用した。前駆物質の集計時間はまだ光化学生成が活発に行われていない朝方の 6～9 時とした。

図 4.1.3-33 を見ると、NO<sub>x</sub> は平成 15 年度（2003 年度）を境に減少傾向を示している。NMHC は緩やかではあるものの減少傾向を示している。図 4.1.3-31 に示す光化学オキシダント濃度は平成 12～17 年度（2000～2005 年度）付近までの期間は上昇傾向を示しており、この間は前駆物質の濃度の推移と光化学オキシダント濃度の推移は一致しない。一方で、平成 17 年度（2005 年度）以降は前駆物質（特に NMHC）と光化学オキシダント濃度の推移の傾向は概ね一致しており、平成 21 年度（2009 年度）の NMHC 濃度の増加と光化学オキシダント濃度の増加の傾向も一致している。

NMHC/NO<sub>x</sub> 比は年々変動があるものの概ね増加傾向である。この結果は、他の地域と同様に「東京都オキシダント検討会報告書」の NMHC/NO<sub>x</sub> 濃度比と高濃度の光化学オキシダントの出現頻度との関係と一致しない。

なお、解析対象とした NMHC の測定局数は 5 局と少ないことから、福岡県における NMHC の全体的な傾向を表していない可能性があることに留意する必要がある。

**【データから見えること】**

- 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）の濃度の推移（九州地方）
- ・平成 17 年度（2005 年度）以降は前駆物質の濃度低下と高濃度の光化学オキシダント濃度の傾向が概ね一致

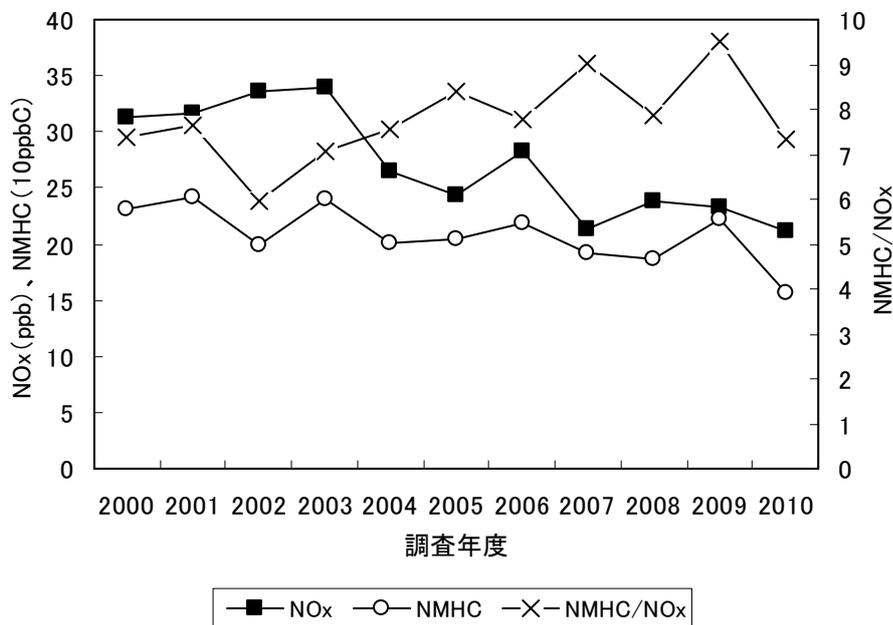


図 4.1.3-33 一定範囲の気象条件での 6～9 時における NO<sub>x</sub>、NMHC、NMHC/NO<sub>x</sub> 比の推移  
 （福岡県の一般局：7～8 月；平成 12～22 年度（2000～2010 年度））  
 測定局数： NO<sub>x</sub>：32 局、NMHC：5 局

前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関

一定範囲の気象条件下の日における6～9時の前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値の相関を見る。前駆物質（NO<sub>x</sub>、NMHC）の濃度は福岡県の測定局の平均濃度、光化学オキシダントの日最高値は福岡県の測定局における最高値（36局中の最高値）である。相関の解析結果を表4.1.3-6及び図4.1.3-34に示す。

相関の結果を見ると、NO<sub>x</sub>に比べNMHCの方が光化学オキシダントの日最高値との相関がやや強くなっているものの、いずれの項目も相関はやや弱い。

前駆物質の削減による光化学オキシダント濃度の低減効果の検証をするに当たっては観測地点が少ないなどの制約があることから、データの代表性等を考慮して検討を進める必要がある。

**【データから見えること】**  
 ➤ 前駆物質（NO<sub>x</sub>・NMHC）と光化学オキシダント濃度の相関（九州地方）  
 ・NO<sub>x</sub>・NMHCともに光化学オキシダント日最高値と弱い相関関係

表 4.1.3-6 一定範囲の気象条件での6～9時における福岡県のNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値の相関

（一般局：7～8月；平成12～22年度（2000～2010年度））

県	NO <sub>x</sub>	NMHC
福岡県	0.26 **	0.33 ***

O<sub>x</sub>の測定局数：36、NO<sub>x</sub>の測定局数：32、NMHCの測定局数：5

データ数（解析対象日）：151日

\*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

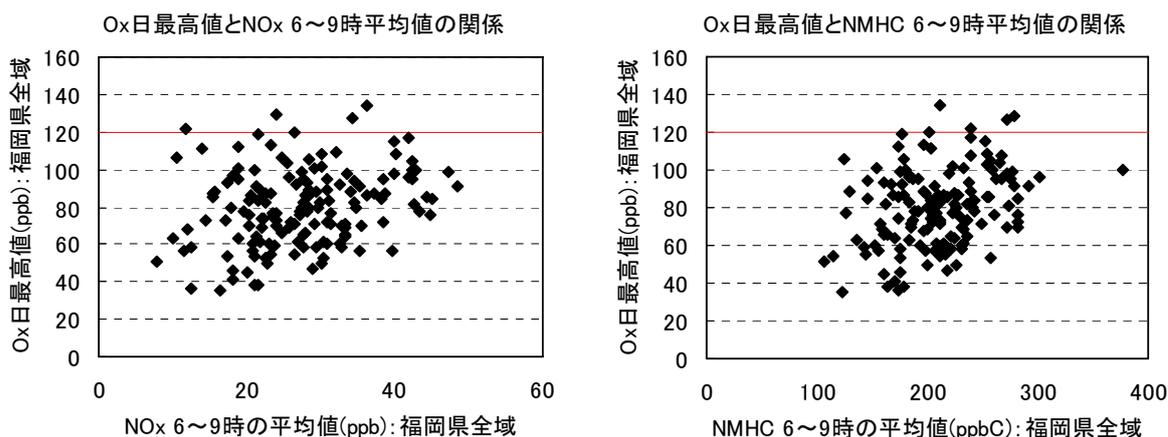


図 4.1.3-34 一定範囲の気象条件での6～9時におけるNO<sub>x</sub>及びNMHC平均濃度（福岡県の平均濃度）と各都県における光化学オキシダント濃度の日最高値の相関

（一般局：7～8月；平成12～22年度（2000～2010年度））

O<sub>x</sub>の測定局数：36、NO<sub>x</sub>の測定局数：32、NMHCの測定局数：5

赤線：O<sub>x</sub>120ppbのライン

## (5) 地域的な状況のまとめ

地域別に整理を行った一定範囲の気象条件日の昼間の光化学オキシダント濃度の 98<sup>th</sup> パーセンタイル値の経年変動を図 4.1.3-35 に、6～9 時における前駆物質 (NO<sub>x</sub>、NMHC) の経年変動を図 4.1.3-36 に、前駆物質と昼間の光化学オキシダント濃度の日最高値の相関を図 4.1.3-37 に示す。

光化学オキシダント濃度 (98<sup>th</sup> パーセンタイル値) は平成 17～18 年度 (2005～2006 年度) 付近を境に濃度の推移に変化が見られ、これまでの上昇または横ばい傾向が低下傾向に転じている地域が多く存在する。この傾向は前駆物質の濃度でも見られ、特に東京都や大阪府における NMHC 濃度はこの年付近を境に低下傾向に転じているのが明瞭であり、その他の地域も概ね低下傾向を示している。また、NO<sub>x</sub> についても近年低下傾向を示している。

VOC 排出抑制制度は平成 18 年度 (2006 年度) より施行されており、光化学オキシダント濃度や NMHC 濃度のトレンドの変化が見られた年と概ね一致する。また、6～9 時における NO<sub>x</sub> 濃度や NMHC 濃度と光化学オキシダント濃度の日最高値は中程度の相関が見られており、前駆物質の濃度と高濃度光化学オキシダントの出現には一定程度の関係が見られる。

このことから、近年見られる高濃度域の光化学オキシダントの出現頻度が低下している状況は、従来より進められてきた大気汚染防止法等による NO<sub>x</sub> 排出規制の対策に加え、VOC 排出抑制制度など前駆物質の削減対策が進められたことにより発現したものであることが示唆される。

なお、VOC 排出抑制制度の基準年である平成 12 年度 (2000 年度) と目標年である平成 22 年度 (2010 年度) を比較すると、今回解析対象としたほとんどの地域において光化学オキシダント濃度の 98<sup>th</sup> パーセンタイル値は同程度かやや濃度が上昇するという結果になっている。これは前駆物質の削減効果が、大陸からの越境汚染の影響等により隠された可能性が定性的には考えられるが、今後シミュレーション等を活用した定量的な検討により現象解明を行う必要がある。

## 【データから見えること】

- 一定範囲の気象条件日における昼間の光化学オキシダント濃度の 98<sup>th</sup> パーセンタイル値
  - ・従来より進められてきた NO<sub>x</sub> 排出規制に加え、VOC 排出抑制制度等の前駆物質の排出削減対策が進められたことにより高濃度域の光化学オキシダントが改善している可能性が示唆される

第4章

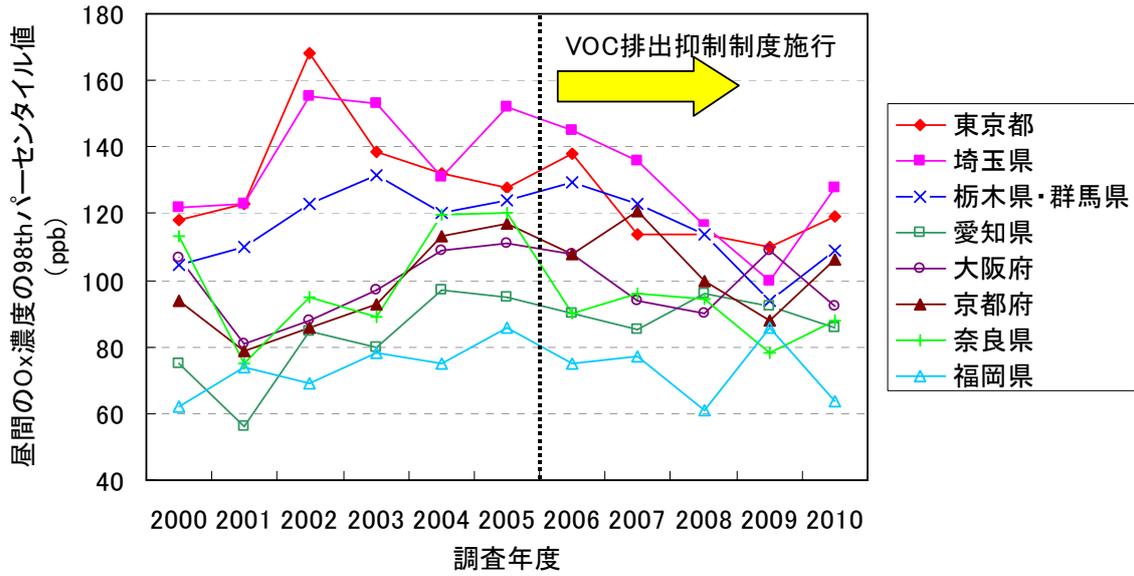


図 4.1.3-35 一定範囲の気象条件日における昼間の光化学オキシダント濃度の 98<sup>th</sup> パーセントイル値の経年変動 (一般局：7～8月；平成 12～22 年度 (2000～2010 年度))

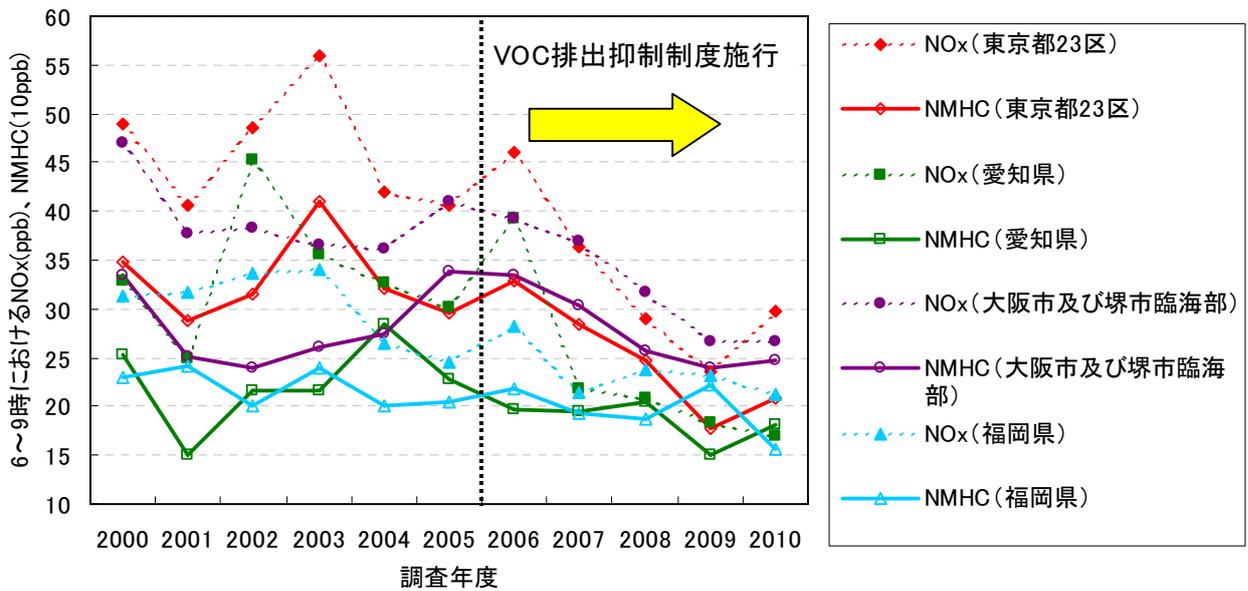


図 4.1.3-36 一定範囲の気象条件日の 6～9 時における NO<sub>x</sub>、NMHC の経年変動 (一般局：7～8月；平成 12～22 年度 (2000～2010 年度))

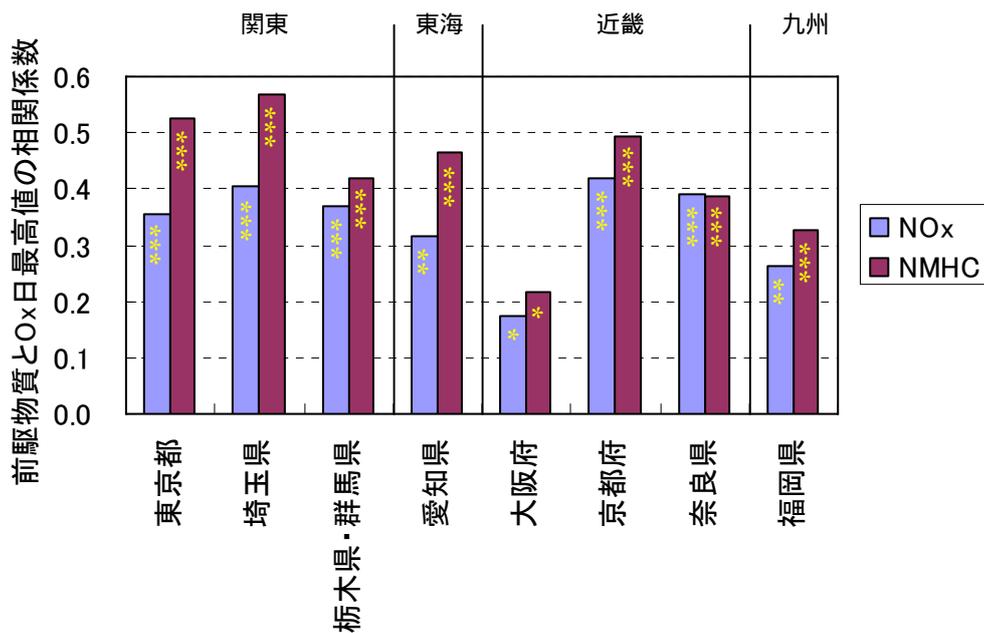


図 4.1.3-37 一定範囲の気象条件日の6～9時における前駆物質 (NO<sub>x</sub> 及び NMHC) 平均濃度と  
 昼間の光化学オキシダント濃度の日最高値の相関係数  
 (一般局：7～8月；平成12～22年度(2000～2010年度))

関東地方の前駆物質集計エリア：東京都23区

東海地方の前駆物質集計エリア：愛知県全域

近畿地方の前駆物質集計エリア：大阪市及び堺市臨海部

九州地方の前駆物質集計エリア：福岡県全域

棒グラフ中の印 \*\*\*：p<0.001で有意、\*\*：p<0.01で有意、\*：p<0.05で有意

4.1.4 遠隔地における状況

国内で行われている酸性雨モニタリング調査地点のうち、オゾンを測定している遠隔地域 測定所 8 地点（利尻・竜飛岬・佐渡関岬・八方尾根・隠岐・橋原・小笠原・辺戸岬）のデータについて整理を行った。（図 4.1.4-1）

遠隔地域のデータについては、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）ホームページの公表資料「東アジア酸性雨データ報告書」の「乾性沈着(大気濃度)モニタリング」から月平均値及び年平均値を入手して整理を行った。

平成 12～21 年（2000～2009 年度）の利尻等遠隔地域における観測結果によれば、地点により年平均値の推移の傾向は異なっている。八方尾根の濃度が最も高く小笠原の濃度が最も低くなっている。（図 4.1.4-2）

月変動については、春季に高濃度、夏季に低濃度となる傾向を示しており、太平洋側の辺戸岬、小笠原の地点では夏季の低濃度が顕著となっている。（図 4.1.4-3）

遠隔地域とは、発生源及び汚染源からの局地的影響が最小限にとどめられる地域として設置している。

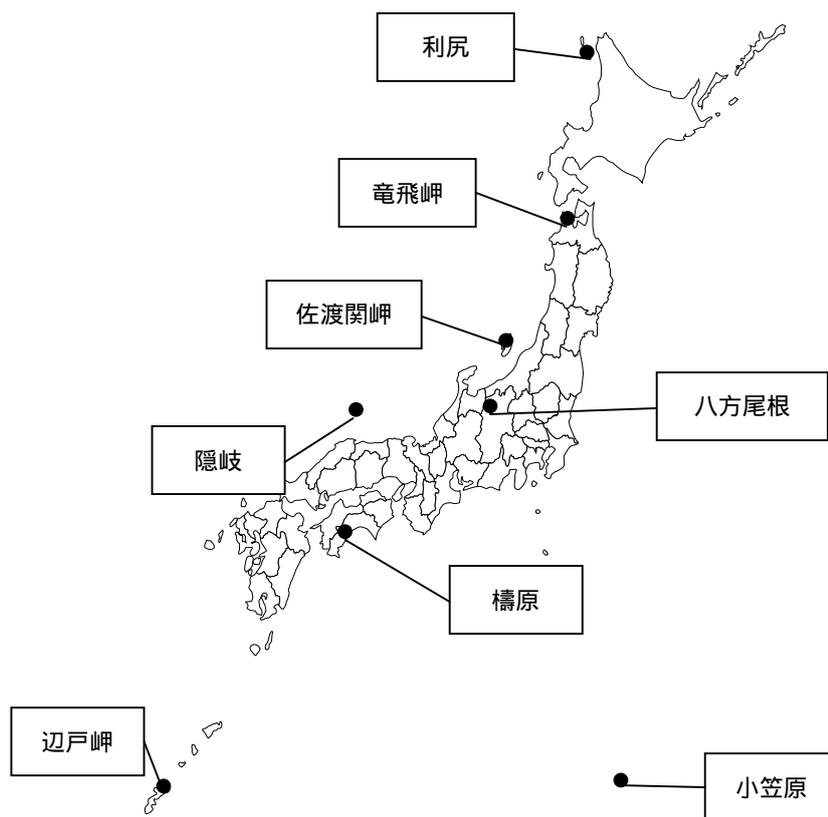


図 4.1.4-1 EANET における我が国の遠隔地(Remote)でのオゾン調査地点

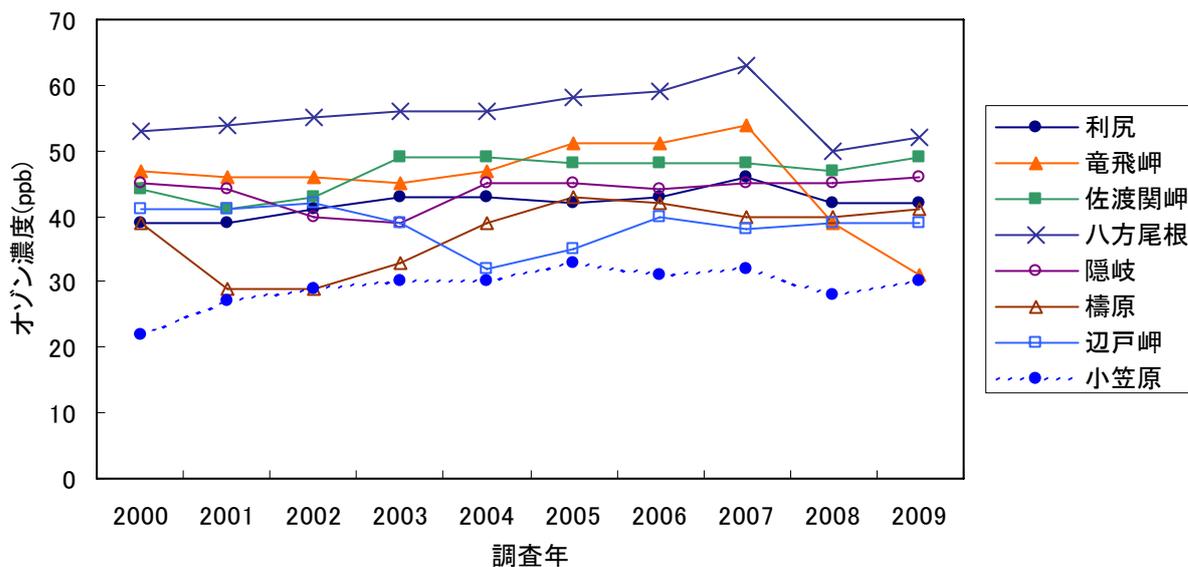


図 4.1.4-2 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経年変化

注1：EANETでは各年の平均値を年度(4月～翌年3月)ではなく、1月～12月での年平均値を整理している。

注2：我が国の遠隔地の調査地点では上記の他に落石があるが、落石は測定開始が平成20年であるため除外した。

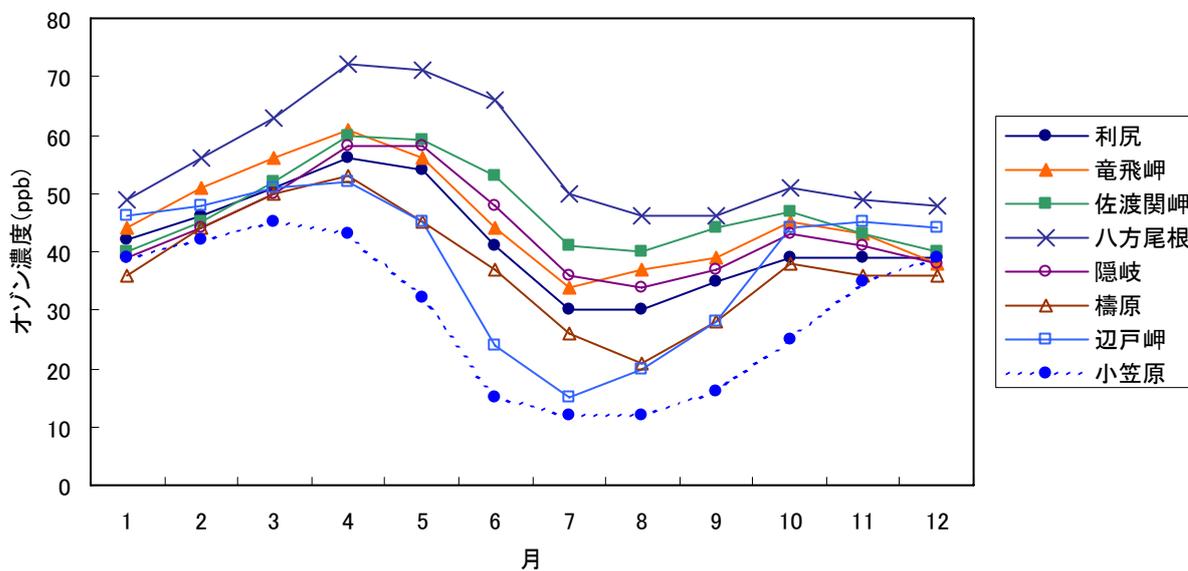


図 4.1.4-3 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の経月変化

(平成13～21年(2001～2009年)の平均)

注：平成12年(2000年)は中央値で整理されていたため、平均値で整理されている平成13年以降のデータを使用した。

[Tanimoto et al.,2009]では遠隔地域における観測データによる平成 11～18 年（1999～2006 年）のトレンド解析を行っており、これによると、オゾン濃度は地表面の観測地点では増加傾向は小さいか統計的に有意ではなかったが、山岳地域（八方尾根；標高 1,850m）では有意に大きな増加傾向であった。

八方尾根における春季のオゾン濃度のトレンドを見ると、高いパーセンタイルレベルで、より大きな増加傾向が見られていた（図 4.1.4-4）。これは、より高濃度のオゾンを含んだ空気塊の流入頻度が増加していることを意味しており、高濃度となった要因についてシミュレーションモデルによる定量的な解析が必要である。一方で、シミュレーションモデルによる計算値と観測値の比較の結果を見ると、オゾン濃度の増加傾向については定性的には一致しているが、平成 15 年（2003 年）以降の増加傾向については計算値は観測値の半分しか再現されておらず、再現性の向上を図る要因解析が今後の課題である（図 4.1.4-5）。

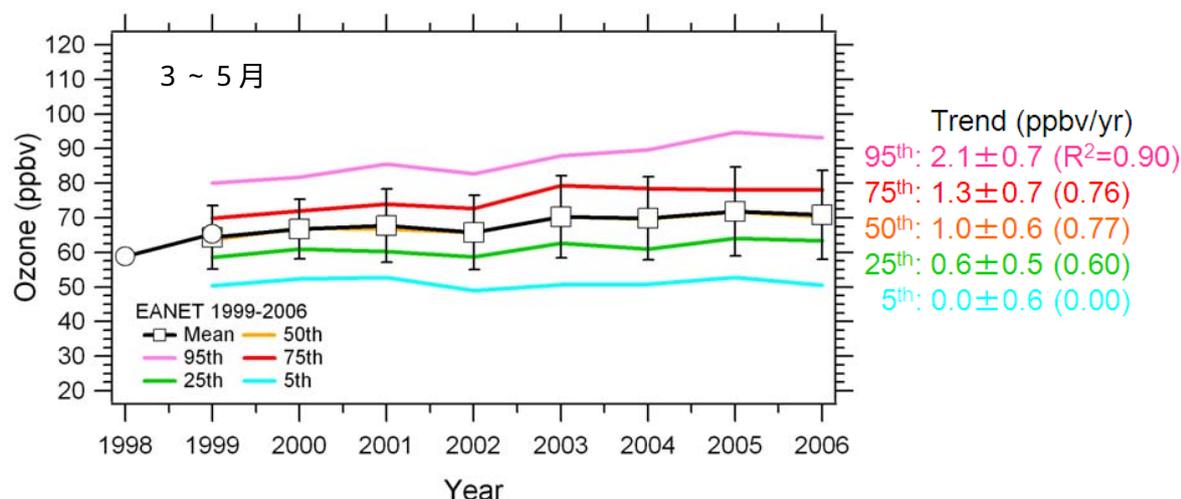


図 4.1.4-4 八方尾根における春季オゾンのトレンド（1999 年～2006 年；平成 11 年～18 年）

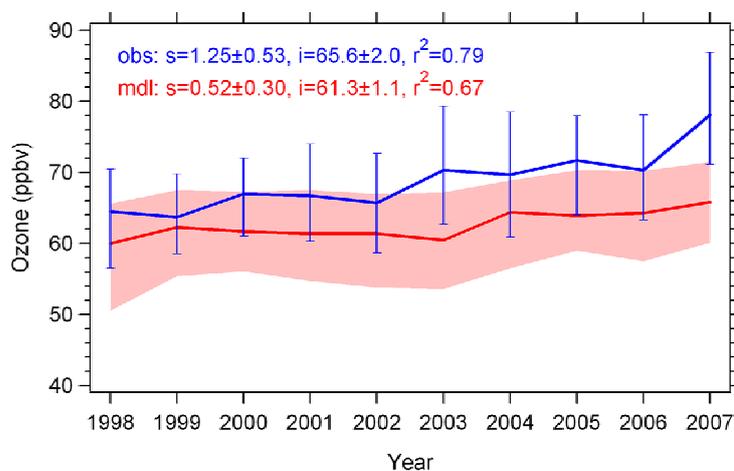


図 4.1.4-5 八方尾根における春季オゾンの観測値と計算値のトレンドの比較  
青線：obs 観測値、赤線：mdl 計算値

## 4.2 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況

### 4.2.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制

東アジアにおいては、「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET)」参加国 13 カ国のうち 6 カ国 (日本：11 箇所、マレーシア：1 箇所、韓国：3 箇所、ロシア：1 箇所、タイ：4 箇所、ベトナム：2 箇所) においてオゾンが観測されている (2009 年時点) (図 4.2.1-1)。



図 4.2.1-1 EANET 参加国

世界規模の観測としては、世界気象機関 (WMO; World Meteorological Organization) が全球大気監視 (GAW; Global Atmosphere Watch) 計画に基づき、オゾン地上固定モニタリング地点として世界中の 101 地点 (内 5 地点は南極大陸、2009 年時点) の観測網を統合している (WMO, 2011)。

ヨーロッパでは国境を越えて長距離を移動する大気汚染物質の量などに関する情報を長距離越境大気汚染条約加盟国で共有するために EMEP が設立され、185 地点のオゾン観測地点 (2011 年 12 月時点) が登録されている (EMEP ホームページ)。

これらの地表オゾンの観測やオゾンゾンデによる観測の他に、地球衛星観測によりデータが取得されている。オゾンを主な観測対象とした代表的な地球衛星の観測装置を表 4.2.1-1 に示した (ESA ホームページ、NASA ホームページ)。

表 4.2.1-1 オゾンを主な観測対象とした地球衛星観測装置

機関	衛星	打ち上げ年	装置
ESA	ERS-2	1995	GOME
	Envisat	2002	SCIAMACHY
	MetOp	2006	GOME-2
NASA	EOS-Aura	2004	OMI

4.2.2 東アジアの状況

EANET によるオゾン観測地点のうち、日本とおよそ同緯度に位置する韓国の Kanghwa、Imsil (ともに田園地域;Rural)、Cheju (遠隔地域;Remote) 及びロシアの Mondy (遠隔地域) における平成 14~21 年 (2002~2009 年) の観測結果を図 4.2.2-1~図 4.2.2-2 に示した。これらの東アジアの田園地域及び遠隔地域のデータについては、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) ホームページの公表資料「東アジア酸性雨データ報告書」の「乾性沈着(大気濃度)モニタリング」から月平均値及び年平均値を入手して整理を行った。

平成 14~21 年 (2002~2009 年) までの長期間ではいずれの地点においても明確な増減傾向は見られない。また、経月変化をみると韓国の 3 地点においては、春季及び秋季にオゾン濃度が高くなり、夏季に低くなる傾向があり、一方ロシアの Mondy においては春季にオゾン濃度が高くなる傾向が見られた。

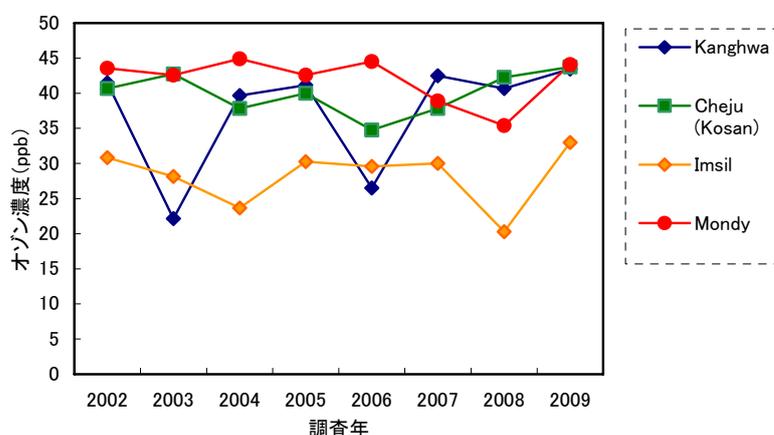


図 4.2.2-1 韓国及びロシアにおけるオゾン濃度の経年変化

注：EANET では各年の平均値を年度(4月~翌年3月)ではなく、1月~12月での年平均値を整理している。

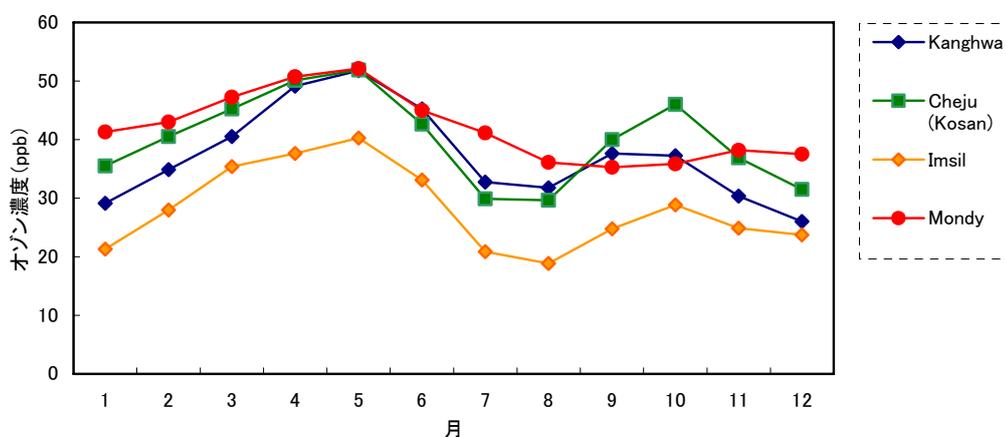


図 4.2.2-2 韓国及びロシアにおけるオゾン濃度の経月変化 (平成 14~21 年 (2002~2009 年) の平均)

## 4.2.3 半球規模での状況

## 北半球でのベースライン濃度の傾向

[Hemispheric Transport of Air Pollution 2010 (HTAP2010)]によると、北半球の複数の遠隔地においてオゾン濃度の増加傾向が観測されている。この濃度変動の多くはオゾンの前駆物質の人為起源排出量の増加によるものと思われる。図4.2.3-1では、ヨーロッパ、北米西部及び日本の春季オゾン濃度を示しており、20世紀中頃から北半球中緯度地域のベースラインオゾン濃度が増加していることを示している。この図では、平成12年(2000年)まではベースラインオゾン濃度が直線的に増加している傾向が見られるが、平成12年(2000年)以降、ヨーロッパの観測地点で増加傾向が緩やかになり、更には減少傾向の可能性まで見られるようになってきている。それに対して米国の観測地点では平成12年(2000年)以降も継続的に増加傾向が見られる。春季に行った北米西部の自由対流圏でのデータを元にした近年の研究でも同様の結果が得られており、南アジア、東アジアの大気境界層からの影響を受けている。

HTAP2010ではベースライン濃度とは実測値について用い、バックグラウンド濃度とはシミュレーションモデル調査で用いるものと定義している。ベースライン濃度は局所的な影響を受けていない地点での観測結果を示し、バックグラウンド濃度とはモデル計算において、自然起源に由来する汚染物質により見積もられた濃度を意味する。

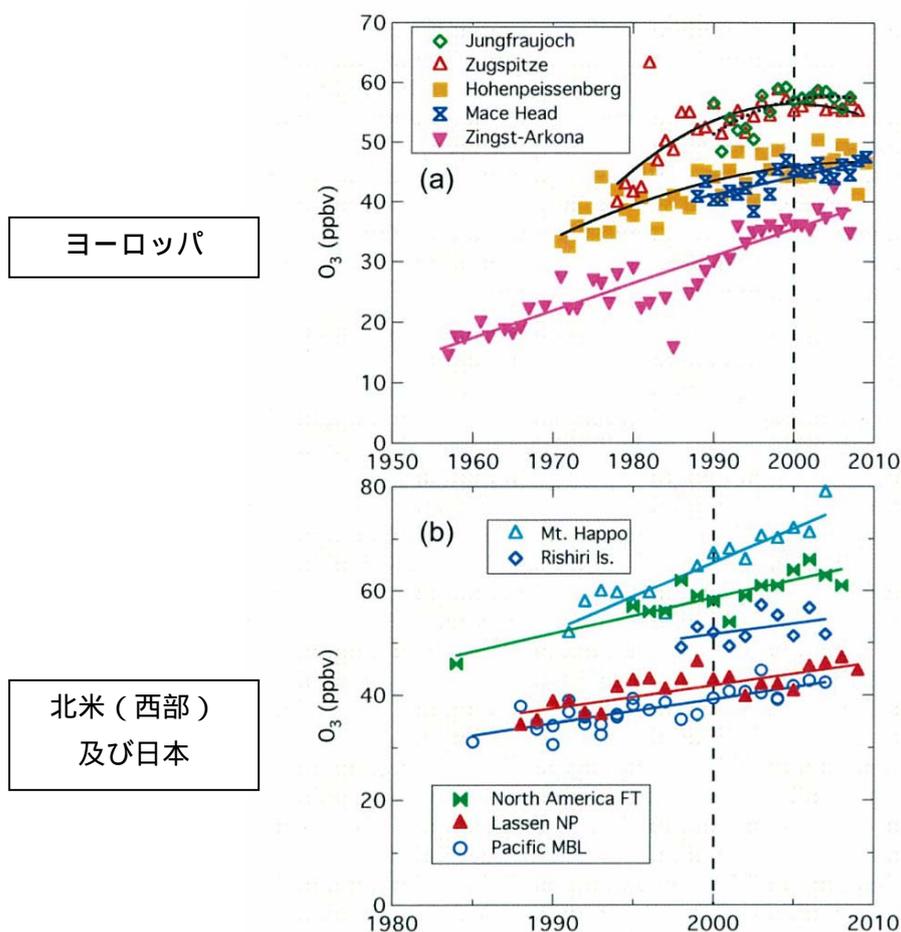
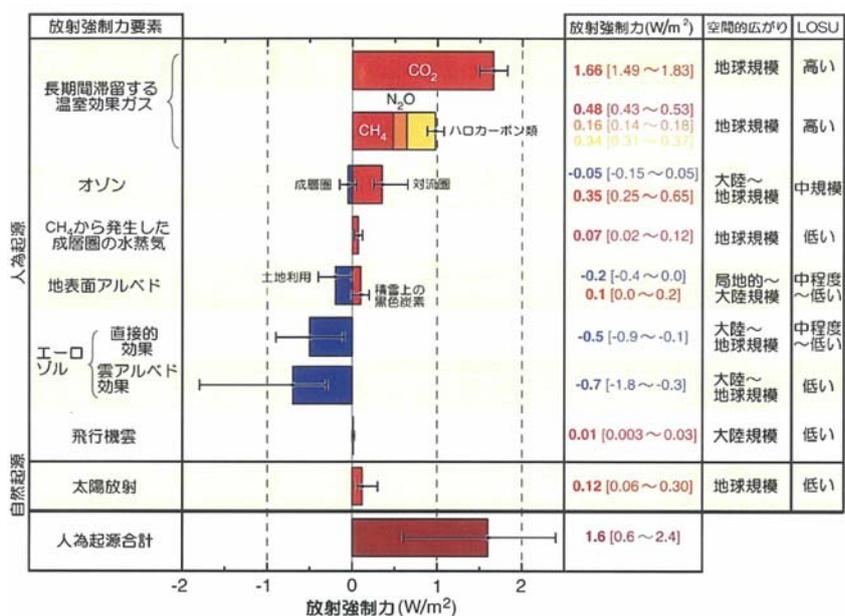


図 4.2.3-1 春季におけるヨーロッパ、北米(西部)及び日本のオゾン濃度のトレンド(HTAP2010)

【参考：オゾンと地球温暖化（コベネフィット）】

対流圏オゾンは温室効果ガスとしても重要な物質であることが知られている(IPCC,2007)。下図に工業化時代の始まり（1750年頃）を基準とした2005年の放射強制力の推定値を示す。正の放射強制力は気候を温暖化させ、負の放射強制力は気候を寒冷化させる。またグラフについている黒線は個々の値の不確実性を示している。対流圏オゾンはCO<sub>2</sub>、メタンなどと比べると反応性が高いことから寿命が短く、空間分布に不確実性を生じるため長寿命の温室効果ガスと比べて放射強制力の不確実性は相対的に大きくなっているが、対流圏オゾンによる放射強制力はCO<sub>2</sub>、メタンに次ぐものであることが図より分かる。

対流圏オゾンは地球温暖化の観点からも濃度の推移に注意をする必要があり、これらの物質を削減することで、大気汚染物質と温室効果ガスを一体的に削減する相乗便益（コベネフィット）が期待される。



各種温室効果ガスの2005年時点で世界平均した放射強制力の推定値(IPCC,2007)

放射強制力

ある因子（温室効果ガス等）が地球大気システムに出入りするエネルギーのバランスを変化させる影響力の尺度であり、気候を変化させる可能性の大きさを示す。放射強制力は、1平方メートル当たりのワット数（W/m<sup>2</sup>）で表される(気象庁,2001)。

### 米国におけるオゾン濃度の傾向

米国におけるオゾン濃度の全国的な傾向を見ると、平成 22 年（2010 年）の全国平均値は 1980 年と比較して 28%減少しており、平成 12 年（2000 年）と比較して 11%減少（946 地点を対象）している（図 4.2.3-2）。

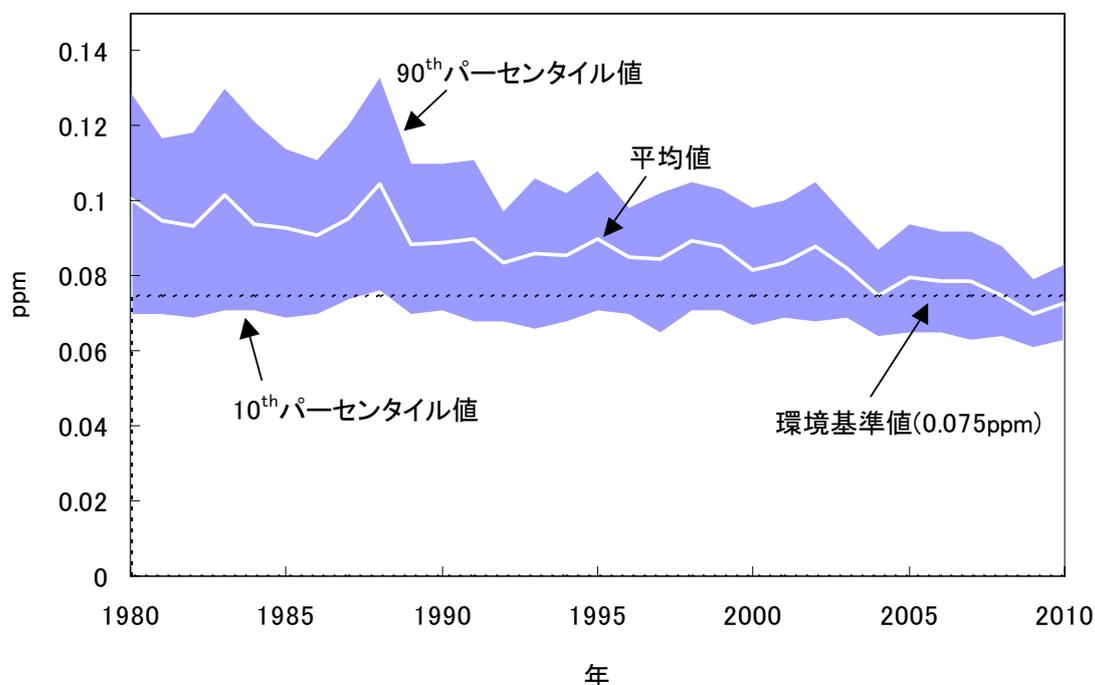


図 4.2.3-2 1980～2010 年の大気中オゾン濃度の全国傾向  
(247 地点の年間で 4 番目に高い 8 時間値の平均値)(EPA ホームページ)

[Our Nation's Air – Status and Trends through 2008](EPA,2008)によると、各測定局における年間 4 番目に高い日最大 8 時間平均値について平成 13～15 年（2001～2003 年）と平成 18～20 年（2006～2008 年）の 2 つの 3 年間を比較すると、97%の地点においてオゾン濃度が減少するか、もしくはほとんど変化が見られないという状況となっていた（図 4.2.3-3）。このように、米国では日本と同様に遠隔地におけるベースライン濃度は増加傾向を示しているが、90<sup>th</sup> パーセンタイル値などの高濃度のオゾンは減少傾向を示している。

米国におけるオゾン削減戦略はベースライン濃度よりもピーク濃度の削減に焦点を当てており、また、他のオゾン前駆物質の削減よりも NO<sub>x</sub> 削減に焦点を当てている。[Our Nation's Air – Status and Trends through 2008]ではこの戦略は大気質基準値の遵守、国民の健康保護のためのオゾン濃度削減に成功をもたらしたとしている。米国でのオゾン削減戦略についての情報収集を今後進めることが有用と考えられる。

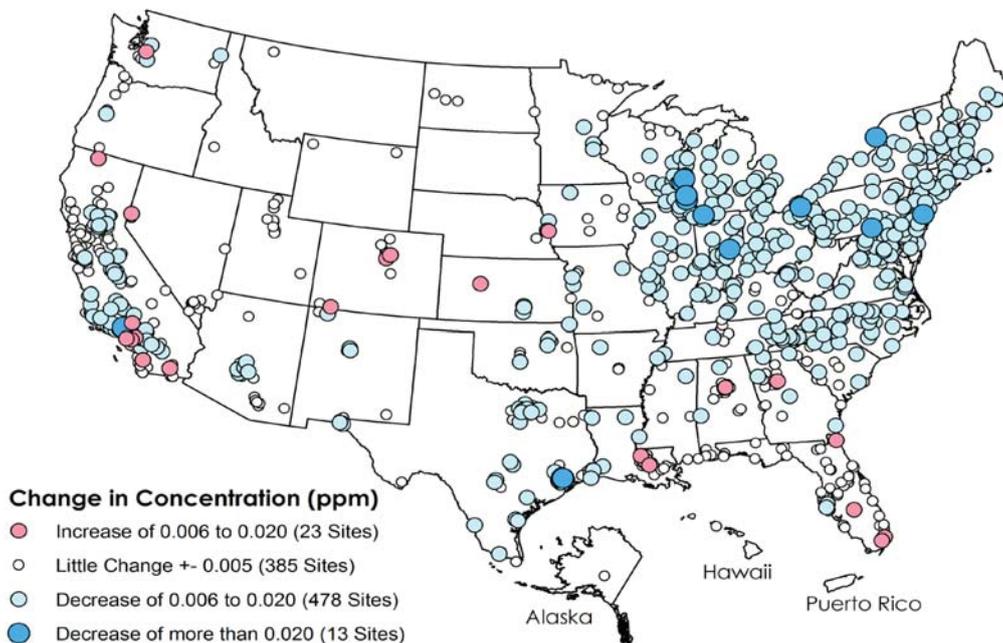
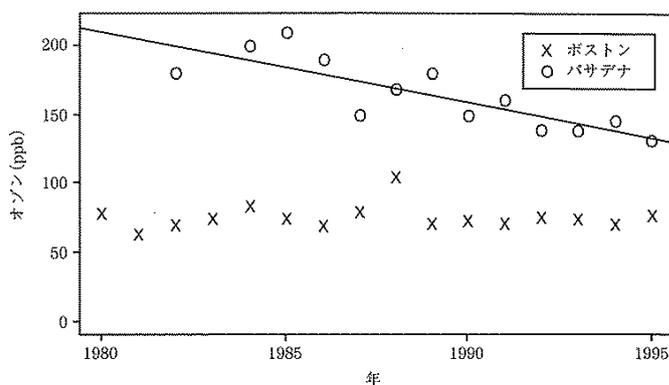


図 4.2.3-3 2001～2003 年から 2006～2008 年のオゾン濃度 (ppm) の変化 (年間 4 番目に高い日最大 8 時間平均値の 3 年平均値) (Our Nation's Air – Status and Trends through 2008)

【参考：米国の排出規制について】

米国では、1970 年の大気浄化法の後に開発された初期のモデルによりオゾン生成は一般に炭化水素が律速となるという結論が得られた。この発見により、自動車や工業活動からの炭化水素類の排出を抑制するために強い規制が行われた。一方で NO<sub>x</sub> の排出も抑制されたが、抑制の努力は炭化水素ほどではなかった。この結果、1980 年から 1995 年の間、アメリカでの炭化水素類の人為起源排出量は 12% 減少し、NO<sub>x</sub> 排出量は一定であった。

この抑制方策について過去 20 年間の米国でのオゾン濃度の長期変動傾向の解析を見ると、ロサンゼルス盆地やニューヨークの都市部では大きく減少したことがわかるが、国内の他の地域では大きな改善は見られなかった。パサデナ（ロサンゼルス盆地）とボストンにおける 90 パーセントイル濃度の傾向を下記に示す。この成否入り混じった結果により、米国は排出抑制の方策を再考することになった（ジェイコブ,2002）。



1980～1995 年の期間のパサデナとボストンでの夏の午後のオゾン濃度の 90 パーセントイル値の長期トレンド (ジェイコブ,2002)