

報告書の概要

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で、光化学オキシダントの問題点として、環境基準の達成状況が非常に悪く、日最高1時間値の平均値に改善がみられないことと、オキシダントに関する環境改善効果を適切に示す指標がないことが示され、残された課題として発生機構や発生源寄与の解明が不十分であることが指摘された。これらの問題・課題の解決には今後、必要な対策等の検討・評価、環境改善効果を適切に示す指標の検討を目的としたデータの多角的な解析が必要であるとされた。

本検討会では、これらの点に留意しながら、光化学オキシダント等の我が国の20年間の長期モニタリングデータの多角的な解析による光化学オキシダント増加要因の現象解明と、光化学オキシダントの「環境改善効果を適切に示す指標」づくりを目的に解析を行った。この解析により得られた結果は以下のとおりである。

1.1 光化学オキシダントの解析結果

1.1.1 NO タイトレーション効果の低下と越境大気汚染の増加

【NOによるタイトレーション効果の低下と越境汚染の増加の影響】

- ア) 平成2～23年度(1990～2012年度)の20年以上にわたる我が国の大気汚染常時監視データを用いて、光化学オキシダントの昼間平均値の年平均値を関東、東海、阪神、九州地域について解析したところ、いずれの地域についてもこの間に窒素酸化物(NO_x)及び非メタン炭化水素(NMHC)濃度が減少している(図1、図2)にも係わらず、経年的なオキシダント濃度の上昇がみられた(図3)。春季と夏季について解析したところ、濃度の上昇は春季に大きくなる傾向がみられた(図4、図5)。また、春季には関東、東海、阪神、九州の順に濃度の上昇率が大きいことが明らかとなった。
- イ) 光化学オキシダントの平均濃度が上昇した主な要因として、「NO タイトレーション効果の低下」、「越境汚染の増加」の影響について考察し、さらに「前駆体物質濃度の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」について検討した。
- ウ) すべての解析地域において、NO_x濃度が経年的に低下する傾向がみられたので(図1)、NO排出量の低下に伴う「NOによるタイトレーション効果の低下」による光化学オキシダントの濃度上昇の可能性を明らかにするため、光化学オキシダント濃度と共にポテンシャルオゾン濃度の解析を行った。ポテンシャルオゾンの上昇は光化学オキシダントの上昇よりも小さく(図3と図6、図4と図7、図5と図8)、このことから、光化学オキシダントの平均濃度の長期上昇には、「NOによるタイトレーション効果の低下」が影響していることが示唆された。
- エ) 特に夏季の関東、東海、阪神のポテンシャルオゾンには顕著な長期的上昇傾向が認められないこと(図8)から、都市部の光化学オキシダントの平均濃度の長期上昇の要因としては「NOによるタイトレーション効果の低下」が強く関与していることが結論された。一方、九州においては春季、夏季ともにポテンシャルオゾンの濃度上昇が顕著で

あること（図7、図8）から、九州におけるオキシダント濃度の上昇はオゾンの実質的濃度増加に起因するものであることが分かった。さらに、春季におけるオキシダント濃度の上昇が関東、東海、阪神、九州と大陸に近い西へゆくほど大きいことから、光化学オキシダント濃度の上昇に「越境汚染の増加」が影響していることが示唆された。越境汚染の寄与は春季に最大となることが、多くのモデルによる研究結果からも明らかにされており、本検討会により観測データの解析からも裏付けられたものと考えられる。

オ) 光化学オキシダントの前駆体物質であるNO_xとVOC(NMHC)の濃度は近年共に低下しており、このことは次項にみるように、一般には光化学オキシダントの濃度の低減をもたらすことが期待される。一方、特に平成12年(2000年)以降では多くの地域でNO_xの濃度低下がNMHCの濃度低下より大きく、VOC/NO_x比の増加がもたらされている(図9～12)。このことは都市部における局所的オキシダント生成速度を増加させている可能性もあり、観測データからみられる長期的なオキシダント平均値の上昇に、上記の「NOによるタイトレーション効果の低下」「越境汚染の寄与の増加」と共に一部寄与している可能性も否定できない。また、都市部でのNMHC/NO_x比と光化学オキシダント濃度の解析から、オゾン生成速度や濃度におけるNMHC/NO_x比の重要性は明らかであり、今後、NMHC/NO_x比が光化学オキシダント濃度に影響を与えている可能性についてシミュレーション等により解析を進める必要がある。

【優先解析地域の傾向】

- ア) 関東と東海の光化学オキシダントの平均濃度の上昇について詳しく解析したところ、地域内の濃度上位局で濃度が横ばい、下位局で濃度の上昇がみられ(図13、図14)、ポテンシャルオゾンの平均濃度は、横ばいから低下する傾向を示した(図6)。また、光化学オキシダントの濃度上昇や、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量の差が生じ始めた時期は、NO_x濃度の低下が始まった時期と概ね一致した(図9、図10)。これらのことから、関東と東海では、「NOによるタイトレーション効果の低下」が「越境汚染の増大」に比べ相対的に大きくなったことが、光化学オキシダントの平均濃度の上昇の一つの要因となったことが示唆された。一方、関東と東海でも、春季のポテンシャルオゾン濃度はやや上昇する傾向がみられ(図7)、実質的な光化学オキシダントの濃度上昇が認められた。ポテンシャルオゾン濃度の上昇は、夏季に小さく、春季に大きいこと(図7、図8)から、関東、東海においても春季に越境汚染の影響の増大が示唆された。
- イ) 阪神の光化学オキシダントの平均濃度については、地域内の濃度上位局・下位局の濃度は共に上昇する傾向がみられ(図15)、ポテンシャルオゾンの平均濃度もやや上昇する傾向がみられた(図6)。阪神においても光化学オキシダントの濃度上昇や、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量の差が生じ始めた時期は、NO_x濃度の低下が始まった時期と概ね一致した(図11)。これらのことから、阪神では、「タイトレ

ーション効果の低下」と「越境汚染の増加による実質的なオゾン上昇」の両方が、光化学オキシダントの平均濃度の上昇要因となっていることが示唆された。特に春季にはポテンシャルオゾンの増加が明確であること（図7）から、越境汚染による濃度上昇が関東、東海以上に大きく影響していることが示唆された。

- ウ) 九州の光化学オキシダントの濃度の上昇についての解析からは、地域内の濃度上位局・下位局の濃度（図 16）、及びポテンシャルオゾンの平均濃度（図6）は、すべて上昇する傾向がみられた。一方、光化学オキシダントの濃度上昇や、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量の差が生じ始めた時期は、他の地域と異なり NO_x 濃度の低下が始まった時期と異なっていた（図 12）。これらのことから、九州のオキシダント濃度の上昇には、「NO によるタイトレーション効果の低下」による影響は小さく、他の地域に比べ「越境汚染の増加」の影響が強く現れていることが示唆された。

1.1.2 前駆体物質濃度低下による局地的光化学生成量の減少

【前駆体物質濃度低下の影響】

- ア) 高濃度域の光化学オキシダント濃度（昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値）を 3 年移動平均を用いて解析したところ、関東の域内最高値は平成 13～15（2001～2003）年度 から、域内平均値は平成 17～19（2005～2007）年度から顕著な低下がみられた。東海・阪神では平成 18～20（2006～2008）年度から域内最高値にのみ低下がみられている。一方、東海の域内平均値は平成 20～22（2008～2010）年度まで上昇がみられ、九州については、域内最高値、域内平均値などで平成 19～21（2007～2009）年度まで顕著な濃度上昇がみられた。（図 17、図 18）
- イ) 前駆体物質の NO_x と NMHC の濃度は長期的に低下がみられ（図1、図2）、平成 18 年度に始まった VOC 排出抑制対策により NMHC 濃度がさらに低下する傾向を示す地域もみられた。これらの前駆体物質濃度の低下は、自動車対策や VOC 排出抑制対策などの国内の排出抑制対策の効果によるものと考えられる。
- ウ) 関東、阪神における高濃度域の光化学オキシダント濃度の改善が、NO_x、NMHC 濃度低下のいずれにより強く依存しているかは、測定データの解析だけでは推論できないが、従来のモデル計算に基づく研究の成果から、発生地域における NO_x と VOC の濃度低下は、一般に局地的オゾン生成を抑制し、特に高濃度域のオゾンの低下をもたらすことが知られており、今回の測定データによる解析結果はこの結論と矛盾しない。

1.1.3 光化学オキシダントの解析結果(まとめ)

以上の結果から、我が国の光化学オキシダント濃度の長期トレンドは、次の少なくとも3つの要因による効果が組み合わさったものであることが強く示唆された。

- ① 窒素酸化物の排出抑制による局所的 NO 濃度低下によってもたらされた「NO によるタイトレーション効果の低下」による都市部における光化学オキシダント濃度の増加
- ② 「越境汚染の増加」によってもたらされた光化学オキシダント濃度の増加に基づく中位、下位及び平均の光化学オキシダント濃度の増加(これらの傾向は、大陸に近い西日本で特に顕著にみられた。)
- ③ NO_x 及び VOC の排出抑制によってもたらされた高濃度域の光化学オキシダント濃度の低減

これら 3 つの要因の寄与割合は季節及び地域によって異なり、より定量的な議論は今後のモデルシミュレーションを用いた解析に委ねられる。

1.2 光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標の検討と提言

- ア) 前駆体物質削減対策による光化学オキシダント濃度の改善傾向など光化学オキシダントの長期的トレンドを議論するためには、「1 時間平均値の最高値」や「注意報基準を越えた日数」などに比べて、統計的により堅牢な指標を用いる必要があることが平成 23 年度検討会でも提言された。この提言に従って検討を行った結果、本検討会では、光化学オキシダント濃度の 8 時間平均値を用いて 3 年間の移動平均をとることにより、年々変動のばらつきが軽減され、長期的経年変化の把握が容易となることを確認した。
- イ) 光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標としては、各年度の 8 時間平均値の中から特異的な高濃度である上位数パーセントを外れ値として除外することにより、長期的な変化傾向がより安定化することが分かった。除外パーセント値については、特異的な高濃度を外れ値として除外する一方で、高濃度イベントをできるだけ除外しすぎないバランスが重要となるので、検討の結果、年間上位 1%を除外した値が適切と判断された。以上を踏まえると、光化学オキシダント濃度の指標としては、年間 99 パーセンタイル値を用いて評価することが適切であると結論された。
- ウ) 一般にオキシダント濃度が高濃度となる暖候期(4~9 月)を対象とした場合、暖候期 98 パーセンタイル値と年間 99 パーセンタイル値は、ほぼ一致することを確認した。シミュレーションを活用した光化学オキシダントの対策検討を行う場合には、解析対象期間を暖候期をとしても、暖候期の 98 パーセンタイル値を評価することで適切に評価できる。

エ) 空間的な外れ値の検討の結果、いずれの年統計値でも空間的に特異な局は統計的に 1~3%程度存在するが、時間的な外れ値局数比率に比べて小さいことから、空間的な外れ値を考慮する必要はないものと結論された。

オ) 以上の結果から光化学オキシダントの「環境改善効果を適切に示す指標」として以下の指標を提言する。

【光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標】

- ◆ 光化学オキシダント濃度の 8 時間の移動平均値(8 時間値)を基礎とする。
- ◆ 8 時間値から日最高値を算出する。
- ◆ 8 時間値の日最高値の年間上位 1%を除外した値(すなわち年間 99 パーセンタイル値)を年間代表値とする。
- ◆ 年間代表値となる年間上位 1%を除外した値(年間 99 パーセンタイル値)を 3 年移動平均する。
- ◆ なお、年間 99 パーセンタイル値と暖候期 98 パーセンタイル値は、概ね一致していることを確認した。シミュレーションを活用した光化学オキシダントの対策検討を行う場合には、解析対象期間を暖候期としても、暖候期の 98 パーセンタイル値を評価することにより環境改善効果を適切に検討することが可能であると考える。

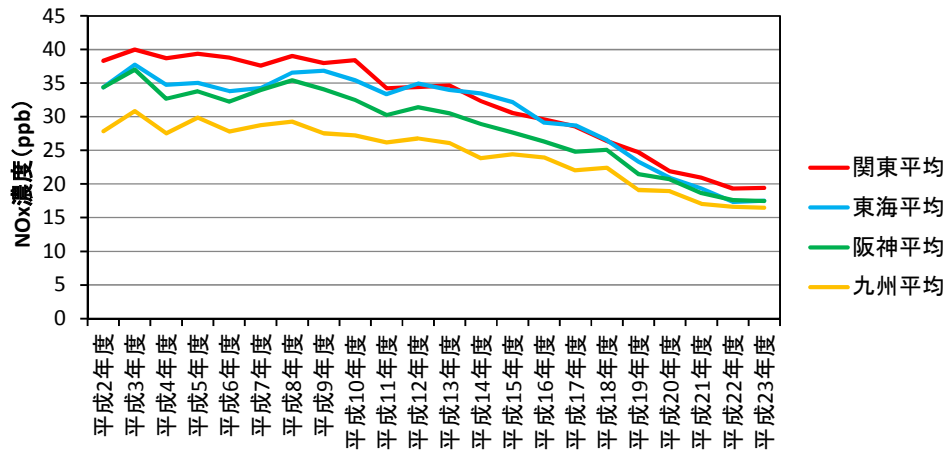


図1 窒素酸化物の年平均値の域内平均値の経年変化(一般局)

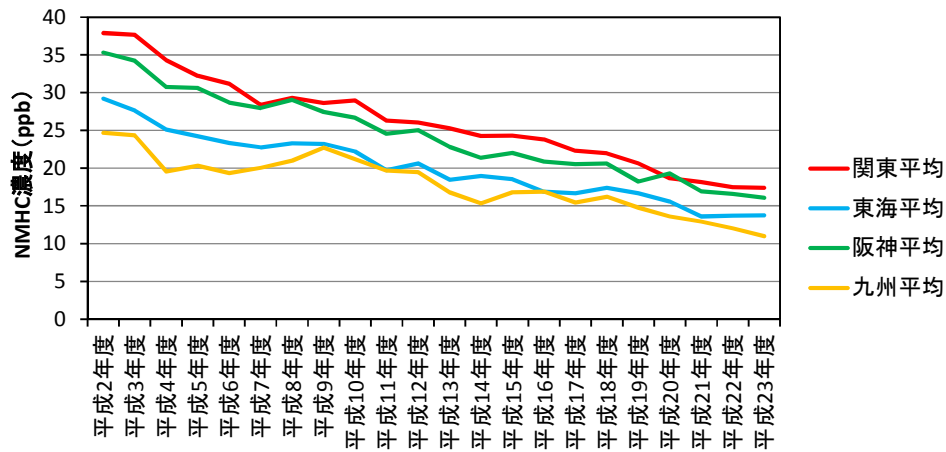


図2 非メタン炭化水素の年平均値の域内平均値の経年変化(一般局)

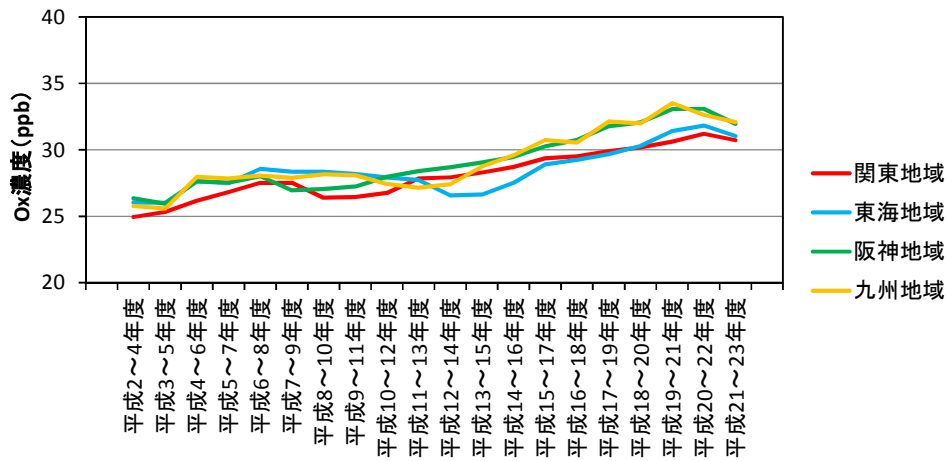


図3 光化学オキシダントの平均濃度(昼間の平均値の年平均値)の経年変化(3年移動平均)

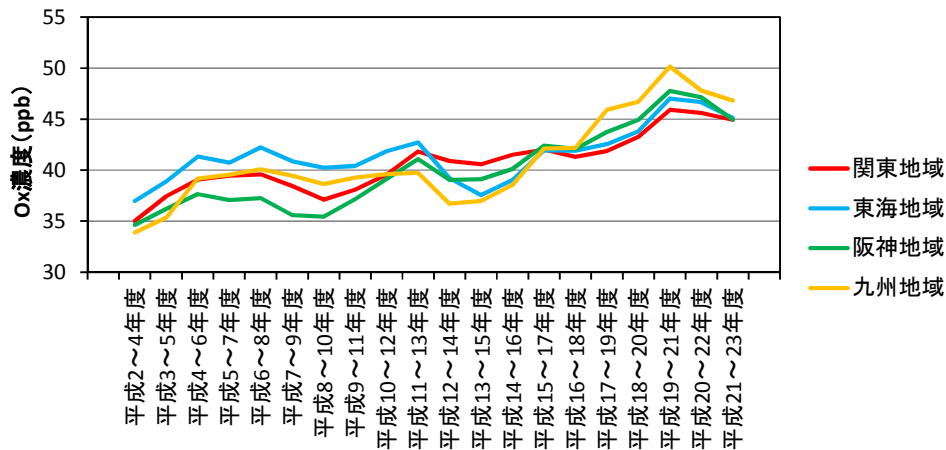


図4 春季の光化学オキシダントの平均濃度の経年変化

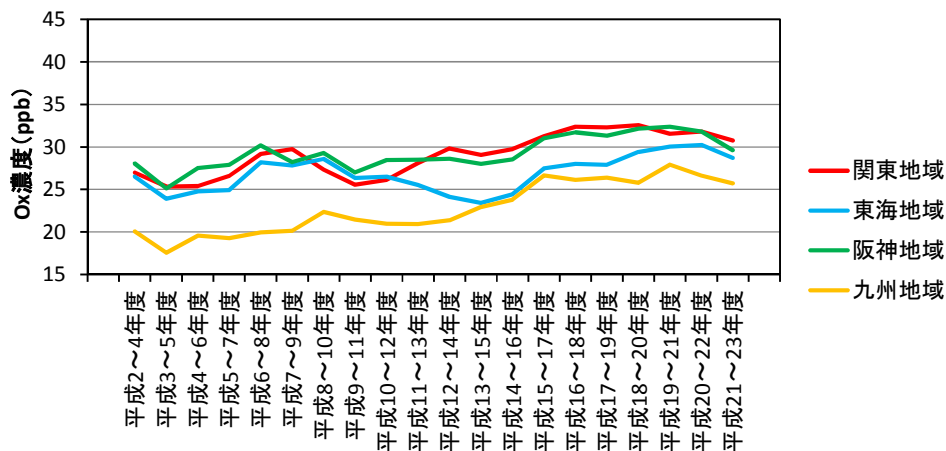


図5 夏季の光化学オキシダントの平均濃度の経年変化

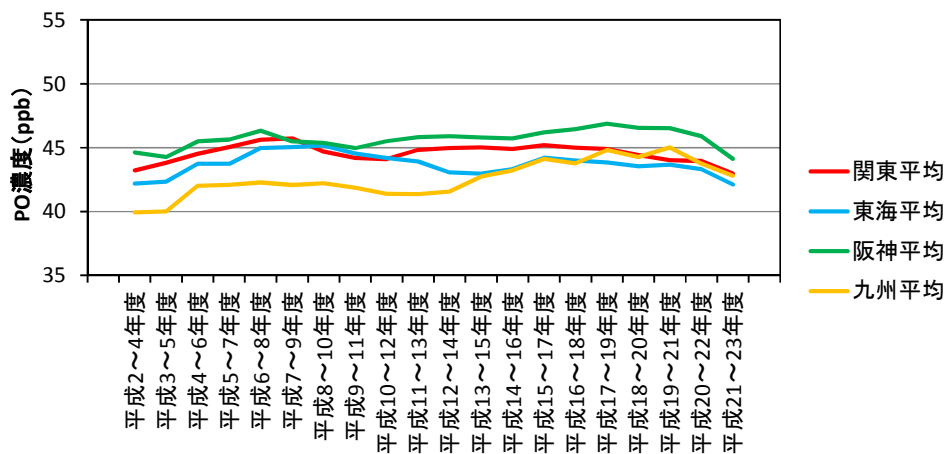


図6 ポテンシャルオゾンの平均濃度(昼間の平均値の年平均値)の経年変化(3年移動平均)

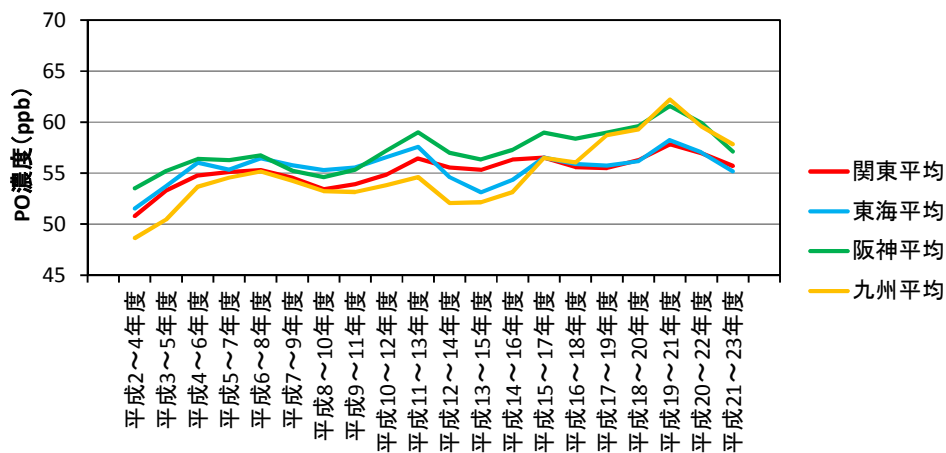


図7 春季のポテンシャルオゾンの平均濃度の経年変化

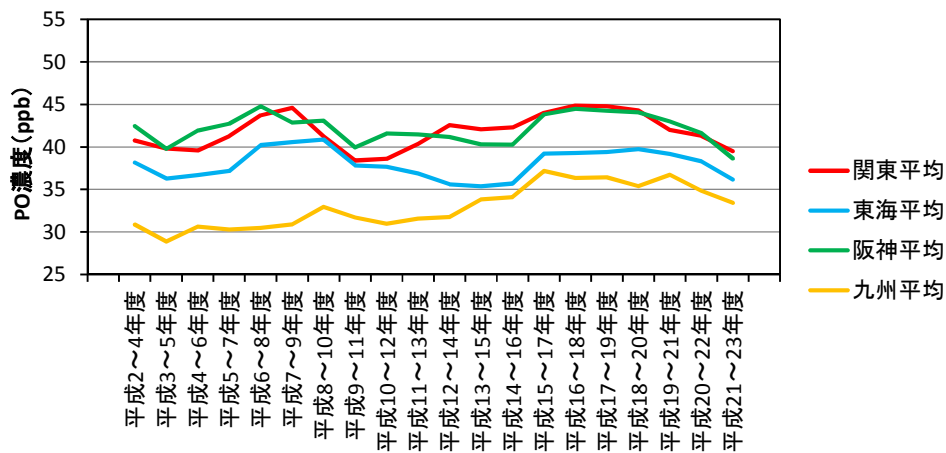


図8 夏季のポテンシャルオゾンの平均濃度の経年変化

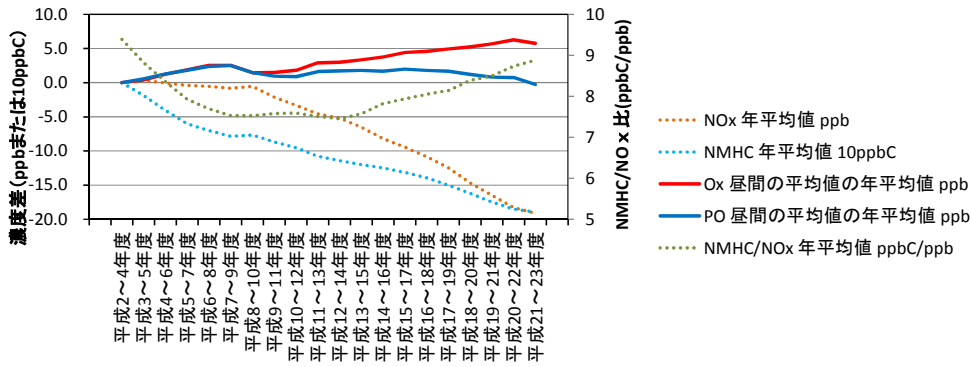


図9 前駆体物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均、関東)

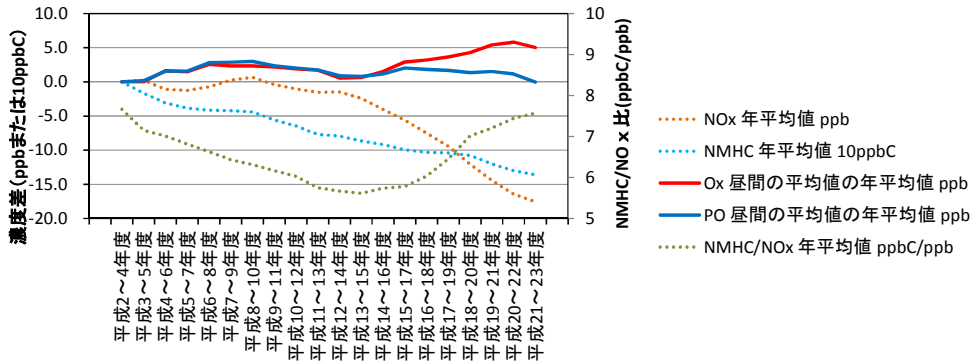


図10 前駆体物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均、東海)

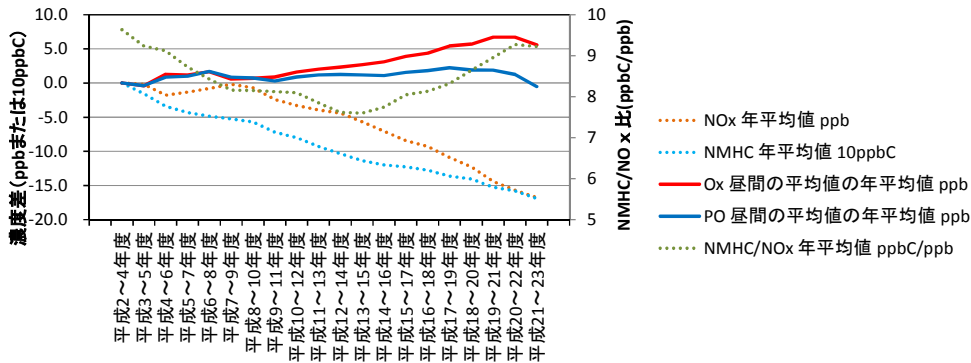


図11 前駆体物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均、阪神)

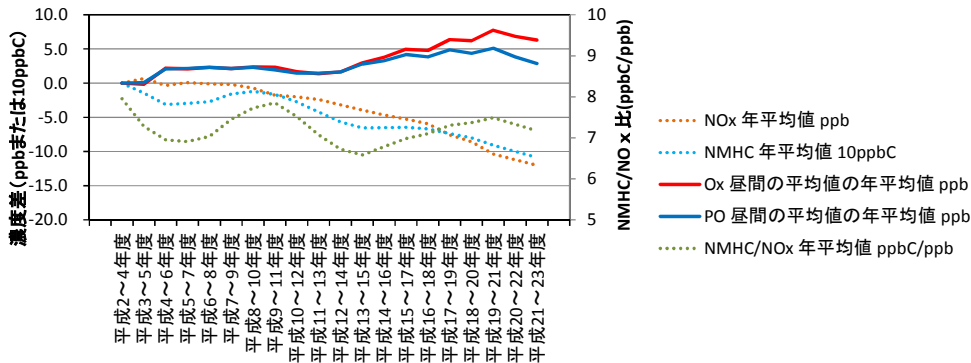


図12 前駆体物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均、九州)

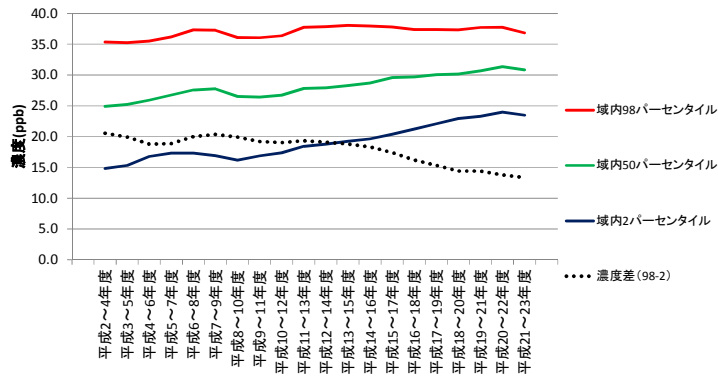


図 13 光化学オキシダントの地域内の上位、中位、下位局の濃度(3年移動平均、関東)

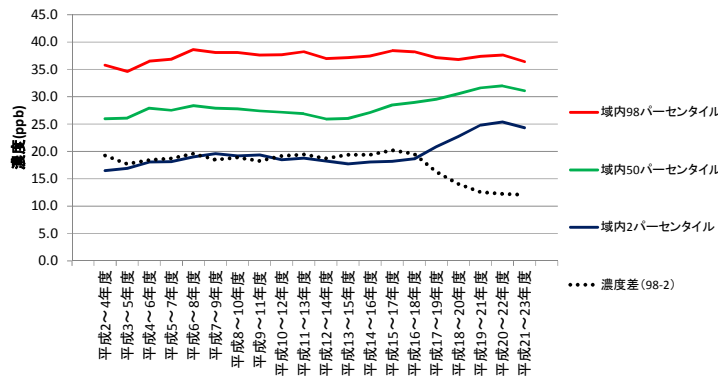


図 14 光化学オキシダントの地域内の上位、中位、下位局の濃度(3年移動平均、東海)

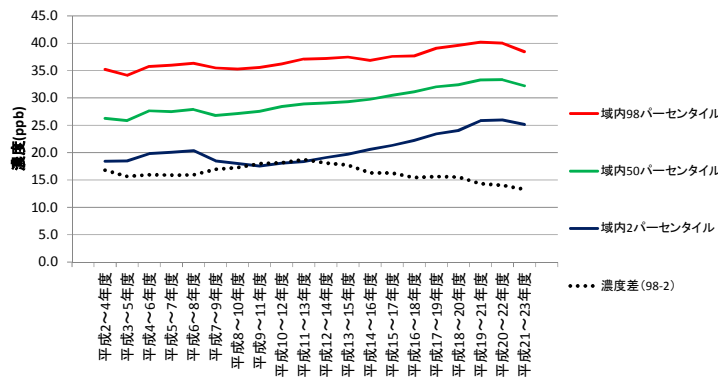


図 15 光化学オキシダントの地域内の上位、中位、下位局の濃度(3年移動平均、阪神)

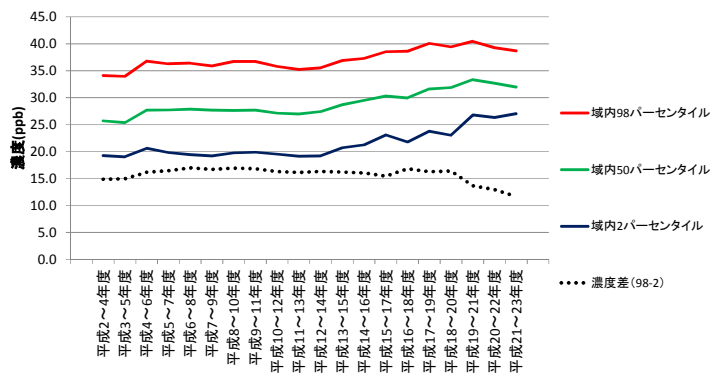


図 16 光化学オキシダントの地域内の上位、中位、下位局の濃度(3年移動平均、九州)

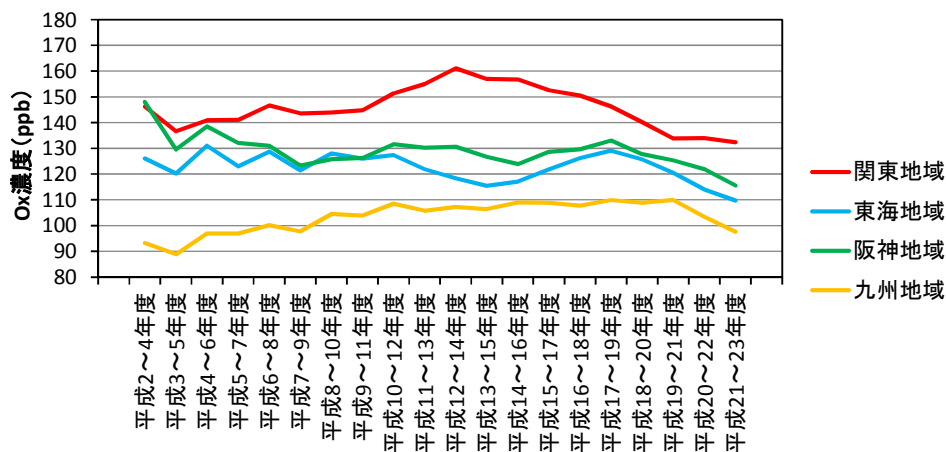


図 17 高濃度域の光化学オキシダント(昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値の域内最高値)の経年変化(3年移動平均)

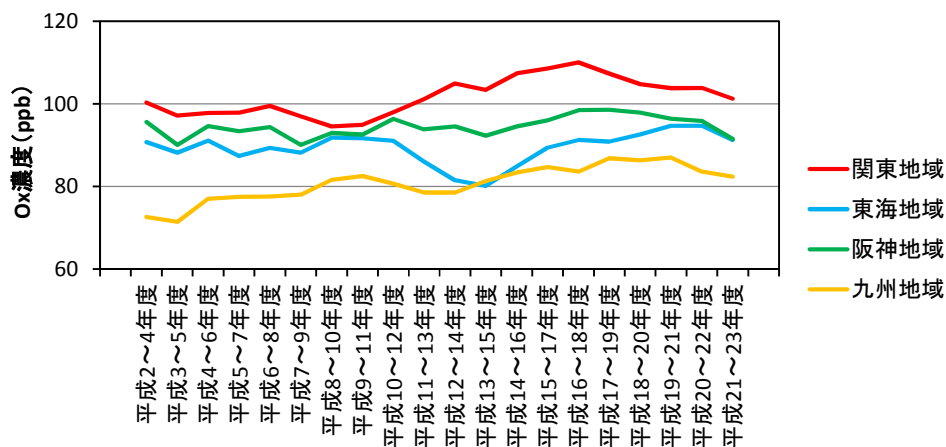


図 18 高濃度域の光化学オキシダント(昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値の域内平均値)の経年変化(3年移動平均)