

(案)

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

はじめに

近年、我が国における光化学オキシダントの濃度レベルは上昇傾向にあり、光化学オキシダント注意報の発令地域も広域化している。

光化学オキシダントの年平均値は、全国平均値でこの20年間に約5ppb上昇するとともに、平成19年には大分県及び新潟県で史上初めて注意報が発令され、同年の注意報発令地域は28都府県で過去最多となった。

また、対流圏オゾン濃度も、北緯20度～60度において半球規模で高くなっている。

光化学オキシダント及び対流圏オゾンの濃度が、近年上昇している要因としては、大陸間や大陸内における輸送、前駆物質の排出量の変化、気象状況の影響等が指摘されているが、それらの寄与は明確にされていない。

こうした状況を踏まえ、当検討会では光化学オキシダント及び対流圏オゾンの濃度レベルの上昇要因を明らかにすることとしたが、本報告書は、現時点で収集整理した既存の最新の知見及び当面取り組むべき課題を取りまとめたものである。

今後、本報告書を踏まえ、光化学オキシダント及び対流圏オゾンの上昇トレンドの要因の解明等に関する調査研究が更に進められるとともに、光化学オキシダント対策が効率的に進むことを期待する。

平成19年12月

光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会

座長 秋元 肇

目次

はじめに

1．光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況	1
1.1 概要	1
1.2 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況	2
1.2.1 我が国における監視測定体制	2
1.2.2 全国的な状況	2
1.2.3 地域的な状況	6
1.2.4 都市域（関東・関西）における状況	7
1.2.5 遠隔地域における状況	10
1.2.6 最近の高濃度の事例	11
1.3 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況	15
1.3.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制	15
1.3.2 東アジアの状況	15
1.3.3 半球規模での状況	17
2．光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因等	21
2.1 概要	21
2.2 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	22
2.2.1 オゾン前駆物質の排出量	22
2.2.2 東アジアからの影響	25
2.2.3 半球規模でのオゾンの輸送	31
2.3 光化学オキシダントの前駆物質（NO _x 及びVOC）との関係	34
2.4 気象状況の変化との関係	37
2.5 成層圏オゾン降下との関係	38
2.6 高濃度日における各要因の解析	39
3．今後の課題	41
3.1 調査研究・モニタリングの一層の推進	41
3.2 国内における削減対策等の更なる推進	41
3.3 国際的な取組の推進	42
参考文献	43
光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会委員名簿	48
検討会の開催状況	49

1. 光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況

1.1 概要

我が国においては、大気汚染防止法に基づき都道府県等による光化学オキシダントの常時監視が行われており、環境省や気象庁においても日本の遠隔地域等でオゾンの測定が実施されている。東アジアでは東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）が、また、半球・世界規模では世界気象機構（WMO）の全球大気監視（GAW）計画や欧州モニタリング評価プログラム（EMEP）などの観測ネットワークが確立されている。これらによる観測の結果から得られたオゾン濃度の状況に関する主な知見は以下のとおりである。

光化学オキシダントの環境基準達成状況は、極めて低い水準で推移している。光化学オキシダント注意報の発令地域は広域化しており、平成 18 年（2006 年）は長崎県・熊本県で、平成 19 年（2007 年）は新潟県・大分県で史上初めて発令され、平成 19 年の発令地域は 28 都府県にのぼり過去最多となった [1.2.2、図 1-1、図 1-3]

光化学オキシダント濃度は増加傾向にあり、全国の年平均値は 1985～2004 年度の 20 年間で約 5 ppb 上昇している [1.2.2、図 1-4]

光化学オキシダントの前駆物質である NO_x 濃度及び NMHC 濃度は各種排出量削減対策の効果により、NO_x は 1996 年度から減少に転じ、NMHC は 1985～2004 年度の 20 年間で概ね減少傾向を示している [1.2.2、図 1-4]。関東地方などの都市域において、1990 年頃は高濃度の測定局が都心部から郊外にかけて広域に分布するようになり、2000 年頃はより高濃度の測定局の分布が広がっている [1.2.4、図 1-9]

我が国のバックグラウンドオゾン濃度（離島等の遠隔地域における測定結果）は、1998～2005 年度の観測結果の範囲では増加している地点が多い [1.2.5、図 1-10]

北半球（中高緯度）の遠隔地域における地表オゾン濃度は、19 世紀末の工業化以前から少なくとも 2 倍以上に増加した [1.3.3、図 1-17]。ヨーロッパ及び北米では、近年ピークオゾン濃度が減少する一方で、バックグラウンドオゾンが増加している [1.3.3、図 1-18～図 1-20]

[備考] 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(O₃)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。光化学オキシダントによる大気汚染の観点からは、地表付近のオゾンが問題になるため、成層圏に存在するオゾン(成層圏オゾン)と区別する意味で「対流圏オゾン」と呼ばれる。

1.2 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況

1.2.1 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 18 年度（2006 年度）末現在、一般環境大気測定局 1,145 局、自動車排出ガス測定局 27 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(環境省,2007d)。

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(環境省, 2007c, 気象庁,2007)。

我が国における光化学オキシダントの測定方法は、「大気汚染に係る環境基準について」(昭和 48 年 5 月 8 日 環告 25)の告示において、「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、紫外線吸収法又はエチレンを用いる化学発光法」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、測定の精度や安定性、国際的なデータとの整合性などを考慮し、中性ヨウ化カリウム法から紫外線吸収法への移行が徐々に進められている。なお、光化学オキシダントの測定に関する精度管理体制については、トレーサビリティシステムの整備の必要性に関する指摘がある(谷本・向井,2006)。

1.2.2 全国的な状況

光化学オキシダントに係る環境基準¹の達成状況は、極めて低い水準で推移している(環境省,2007d)。(図 1-1)

また、全国における 1 年間の光化学オキシダント注意報等²の発令延日数は、近年 200 日程度で推移している(環境省,2007d)。(図 1-2)

近年、光化学オキシダント注意報の発令地域が広域化しており、平成 18 年（2006 年）は長崎県・熊本県で史上初めて発令され、発令地域は 25 都府県におよび過去最多となった(藤ほか,2007, 環境省,2007d)。さらに、平成 19 年（2007 年）は新潟県・大分県で初めて発令され、発令地域は 28 都府県となり前年の記録を更新した(環境省,2007b)。(図 1-3)

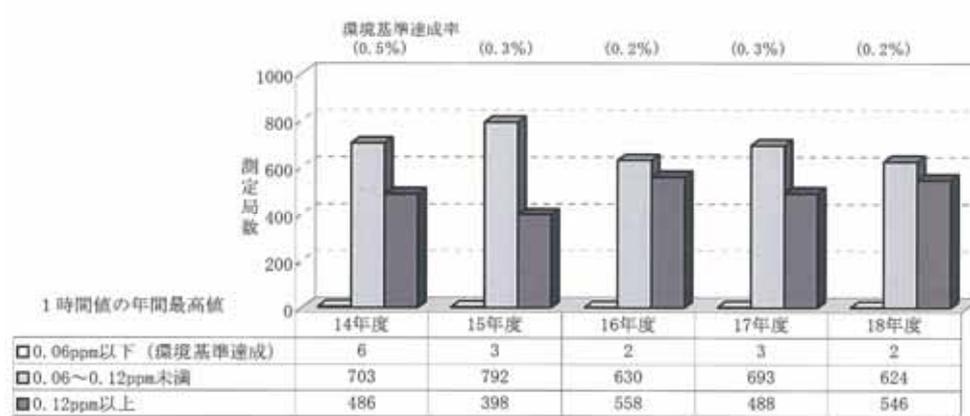


図 1-1 環境基準達成局数の推移(環境省,2007d)

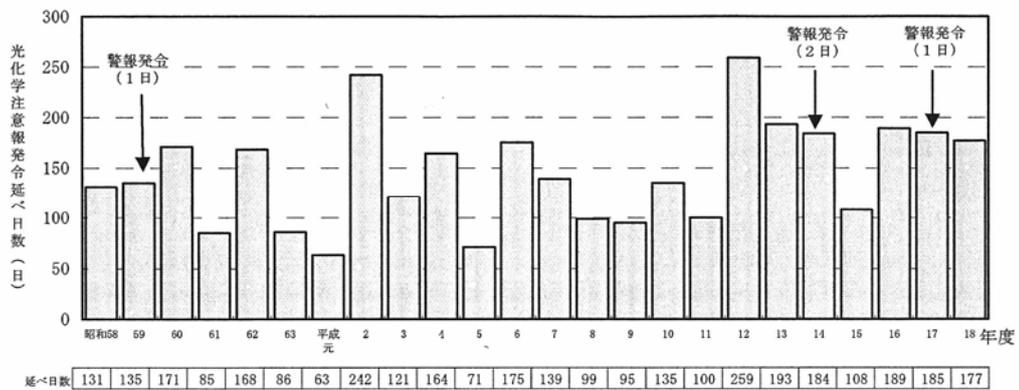


図 1-2 光化学オキシダント注意報等発令日数の推移(環境省,2007d)

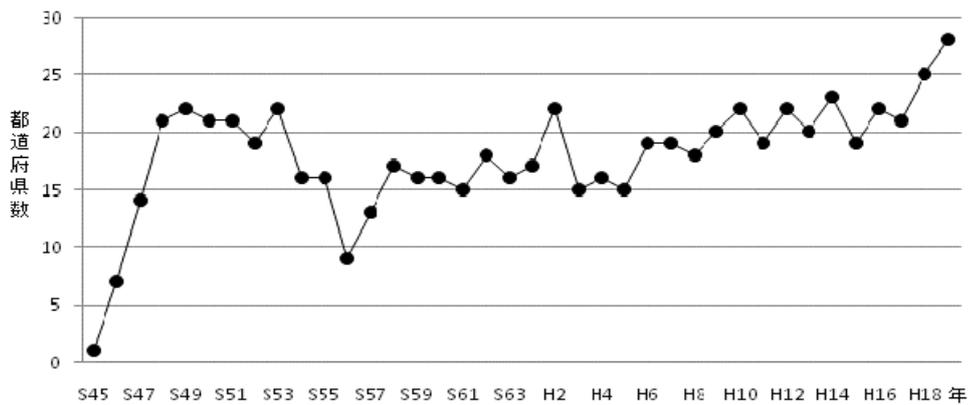


図 1-3 光化学オキシダント注意報等発令都道府県数の推移 (環境省公表資料から作成)

1 光化学オキシダントに係る環境基準

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。

2 光化学オキシダント注意報

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)。ここでは両者を併せて「注意報等」としている。

光化学オキシダントの前駆物質である窒素酸化物(NO_x)及び非メタン炭化水素(NMHC)の全国平均濃度の経年変化をみると、大気汚染防止法や自動車 NO_x ・PM法、自治体における条例・指導などによる大気汚染物質の排出量削減対策の効果により、 NO_x は1996年度から減少傾向に転じており、NMHCは1985年～2004年度の20年間で概ね減少傾向を示しているが、一方、光化学オキシダント濃度は増加傾向にあり、全国の年平均値は1985～2004年度の20年間で約5ppb(0.005ppm)上昇している。また、窒素酸化物中の二酸化窒素の濃度の割合(NO_2/NO_x 比)をみると単調に増加傾向を示しており、特に1998年以降は増加率が高くなっている(大原編,2007)。(図1-4)

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にはアルデヒド類などの含酸素化合物は含まれていない。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、引用している論文に従い、NMHC、VOC、NMVOCを分けて表記をしている。

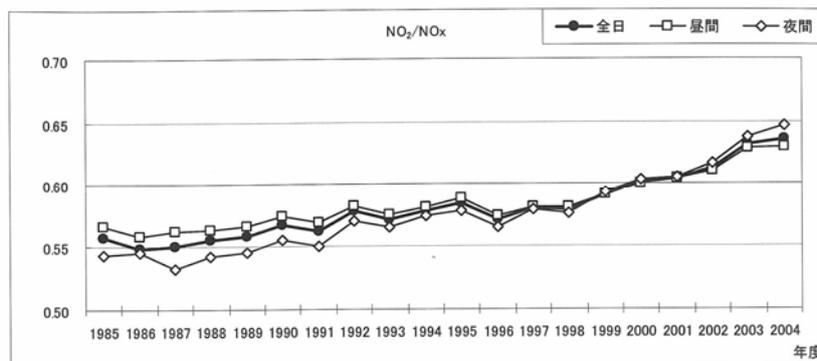
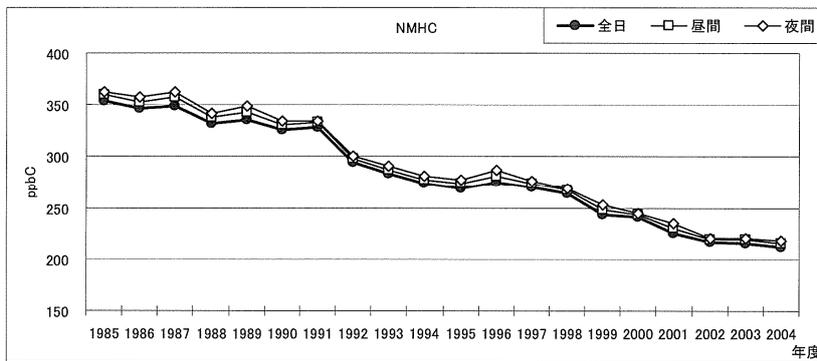
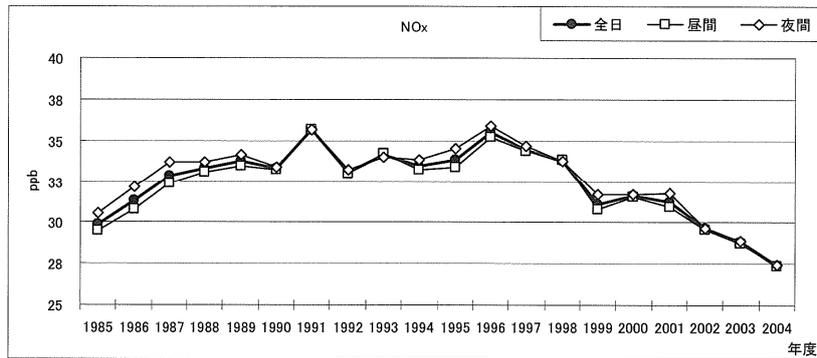
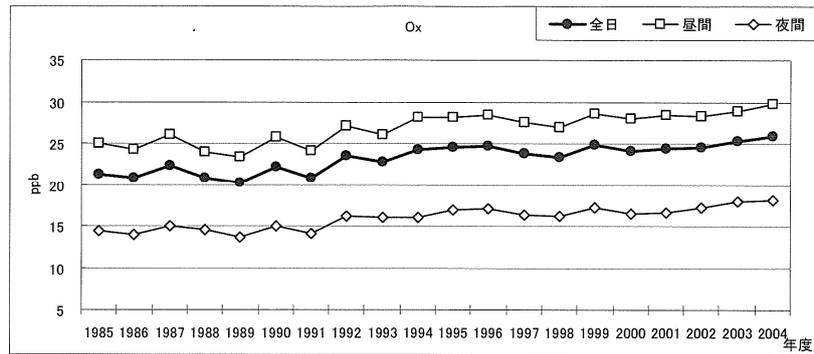


図 1-4 全国の継続測定局における光化学オキシダント、NO_x、NMHC、NO₂/NO_x 比の年平均値の経年変化(全日・昼間(5~20時)・夜間(20~翌5時)別の全国平均値)(大原編,2007)

札幌、つくば及び鹿児島におけるオゾンゾンデによる境界層オゾン(高度0~2km)の観測結果によれば、春、秋及び冬の各季節の月平均値は、1970~80年代の約10年間で約8ppb増加している(Akimoto et al., 1994, 秋元, 2003)。(表1-1)

表1-1 鹿児島、つくば、札幌における22年間(1969~1990年)のオゾンゾンデデータの解析による境界層オゾン濃度の増加(Akimoto et al., 1994, 秋元, 2003)

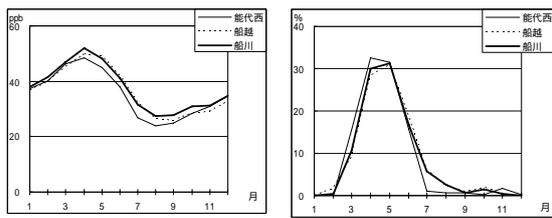
観測地点	季節	境界層オゾン(高度0~2km)の濃度(ppb)		
		1969~1979年(a)	1980~1990年(b)	10年間平均増加量(b-a)
鹿児島	春季	38	48	10
	秋季	30	39	9
	冬季	30	37	7
	平均	33	41	8
つくば	春季	52	59	7
	秋季	39	47	8
	冬季	32	38	6
	平均	41	48	7
札幌	春季	36	45	9
	秋季	24	33	9
	冬季	20	27	7
	平均	27	35	8

夏季のオゾンゾンデデータの取得が少なく、統計解析が困難であったため、夏季の解析を除いている。

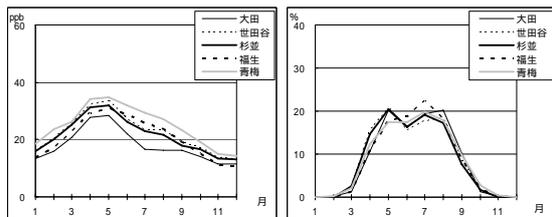
1.2.3 地域的な状況

光化学オキシダント濃度の季節変動パターンは、関東及び中部では「春+夏」型(春に引き続き、夏も高濃度の時間が出現)が多いのに対し、関西では大部分が「春+夏+秋」(春から秋まで高濃度の時間が出現)型とされている。一方、西日本一帯では「春+秋」型(春に高濃度ピーク、秋にそれに次ぐ高濃度ピークが出現)が観測されている。また、東日本では日本海側を中心に春型(春のみに高濃度出現)が観測されている。(図1-5, 図1-6)

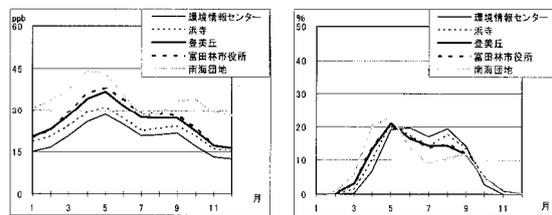
夏季は、全国的に清浄な太平洋由来の高気圧に覆われ、日本に移流する対流圏オゾンは低濃度となる傾向にある。一方、関東、関西において発生する夏季の高濃度は局地的汚染が原因で発生すると考えられている(大原編,2007, 森ほか,2005)。



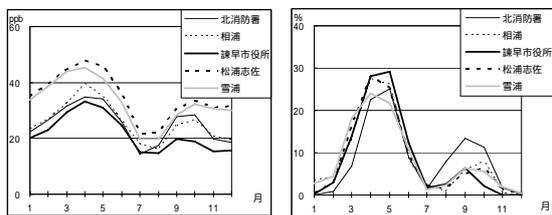
a. 春型の例（秋田県）



b. 春 + 夏型の例（東京都）



c. 春 + 夏 + 秋型の例（大阪府）



d. 春 + 秋型の例（長崎県）

図 1-5 光化学オキシダント月別平均値（左）と環境基準超過時間数の出現割合（右）（1990～2002年度）
（大原編,2007, 森ほか,2005）

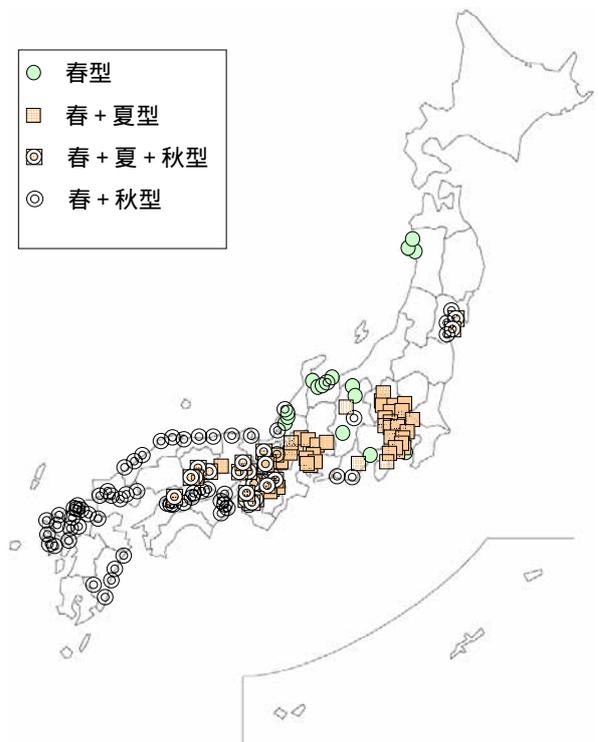


図 1-6 光化学オキシダント月別平均値と、環境基準超過出現割合による地点分類結果（1990～2002年度）（森ほか,2005）

1.2.4 都市域（関東・関西）における状況

都市域においては、光化学オキシダントの前駆物質（ NO_x 、VOC等）を排出する工場や自動車等の人為由来の汚染物質の発生源が多く存在するため、都市域周辺では光化学オキシダント注意報が多く発令される。平成18年度の光化学オキシダント注意報レベル（0.12ppm以上）の濃度が出現した日数の分布をみても、関東及び関西周辺で高濃度が多く出現していることが分かる（環境省,2007d）。（図1-7）

また、光化学オキシダント注意報等の発令は、光化学反応が活発な夏季に多くなっている（環境省,2006a, 環境省,2007a）。

東京都においては、注意報発令レベルの光化学オキシダント濃度が観測された日数が増加する傾向にあり、1970年代後半よりも一般局1局あたりの0.12ppm以上となる日数が多くなっている(東京都,2005,東京都環境局環境改善部,2005)。(図1-8)



図1-7 平成18年度の光化学オキシダント注意報レベル(0.12ppm以上)の濃度が出現した日数の分布(環境省,2007d)



図1-8 東京都における光化学スモッグ注意報発令日数と、一般環境大気測定局1局あたりのオキシダント濃度0.12ppm以上となった日数の経年変化(ただし、2004年度は12月末までの値)(東京都,2005,東京都環境局環境改善部,2005)

上述のように関東地方では高濃度の光化学オキシダントが観測されるが、関東地方において高濃度が出現する場所は風系の変化と対応しており、南関東型、北関東型及び広域型に分類できる(国立公害研究所,1983)。

このうち、北関東型及び広域型は沿岸部に位置する都市の汚染物質が海風により内陸に運ばれ、内陸部で高濃度が観測されるものであるが、このような内陸部で高濃度が出現する状況が年々増加する傾向となっている。関東地方における 13～16 時の光化学オキシダントの 3 ヶ年平均濃度の解析結果をみると、0.06ppm 以上となる高濃度の測定局が、1990～1992 年では、1977～1979 年及び 1980～1982 年に比べ広域に分布するようになり、2000～2002 年では、0.08ppm 以上となるより高濃度の測定局の分布が広がっている(東京都,2005, 東京都環境局環境改善部,2005)。(図 1-9)

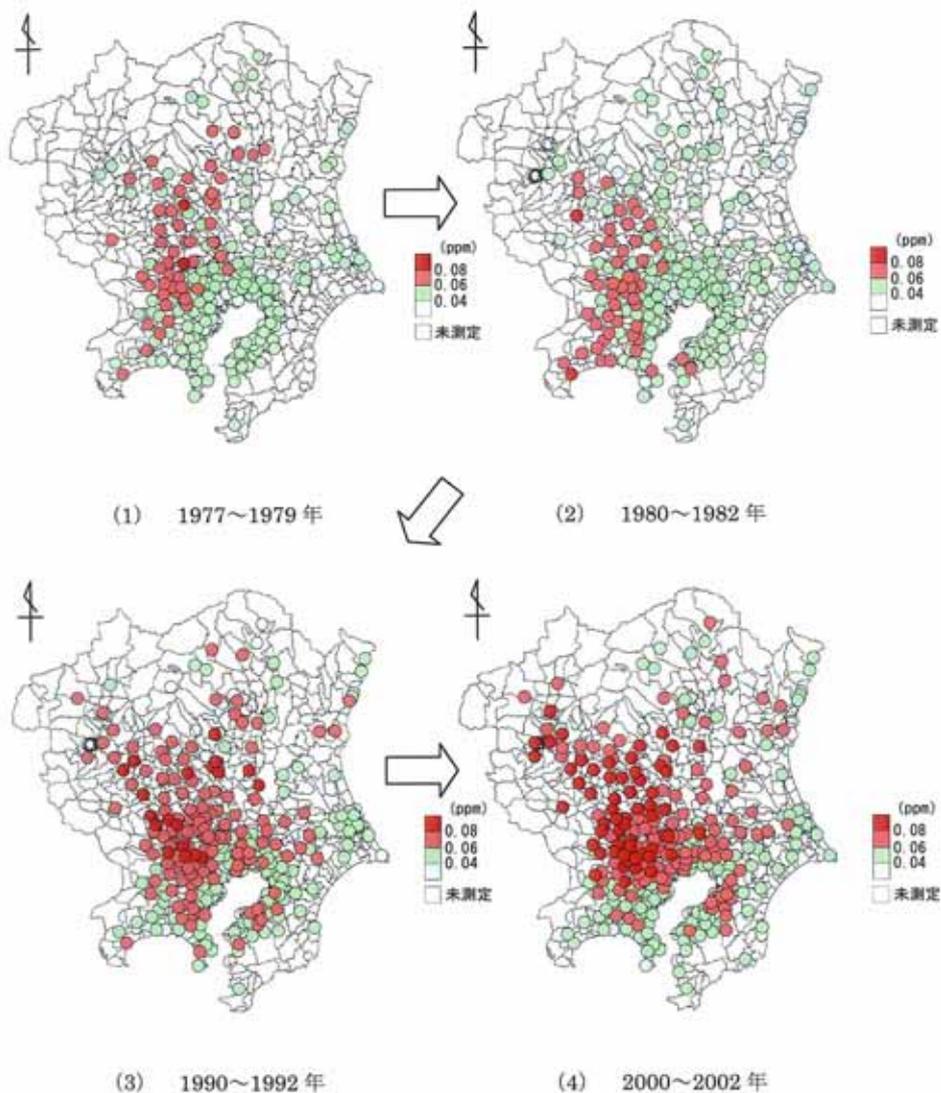


図 1-9 高濃度日 (120ppb 以上のオキシダント濃度観測) における 13～16 時のオキシダント濃度の 3 ヶ年平均値(東京都,2005, 東京都環境局環境改善部,2005)

関東地域では、一般風（地形などの局地的な影響を受けない、広い地域を代表する風）が弱く閉鎖的な大気場が継続する場合には、二日以上にわたって汚染の滞留と循環が発生し、このような場合、上空に残存した前日の光化学反応生成物が再び混合層の中に取り込まれ、当日に発生した汚染物と混合することで前日より高濃度のオゾンが発生することが明らかにされている(Wakamatsu et al.,1990,1999)。

また、気象条件によっては、海風で内陸まで輸送されたオゾンを含む高濃度の大气汚染空気塊が内陸地域で発生した熱低気圧に取り込まれ、上空数 km まで上昇し、これが上層一般風で海上に運ばれ、海上で冷却されて高度を下げ、再度、海上低層の一般風によって陸上に達するメカニズムが存在する(Wakamatsu,1997)。

一方、大阪を中心とする関西地域においては春季に二酸化窒素（NO₂）の濃度が高くなることが多いが、この原因として、関西地域では、平均気温が高い、高気圧の中心部が通過しやすいなど、春季に高濃度のオゾンが発生しやすい気象条件が多く出現することがあげられている。高濃度オゾンの発生の要因は、関西地域で発生した大气汚染物質によるものと、地域外からの流入によるものが複合しているとされている(Itano et al.,2006 , Wakamatsu et al.,1998a,1998b , 大原ほか,2001a,2001b , 国立環境研究所,1998 , 若松ほか,2001)。

1.2.5 遠隔地域における状況

1998～2005年度の八方尾根、隠岐、小笠原等遠隔地域における観測結果によれば、我が国のバックグラウンドオゾン濃度は増加傾向にある（環境省,2004,2007c）。（図 1-10）

また、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いる(環境省,2004,2007c)。（図 1-11）

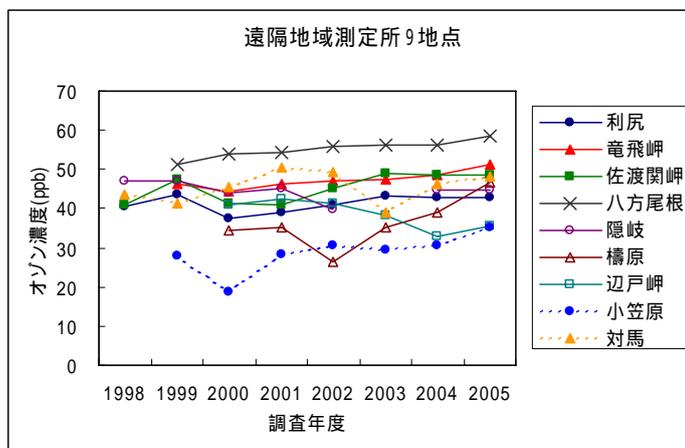


図 1-10 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の年変動(環境省,2004,2007c)

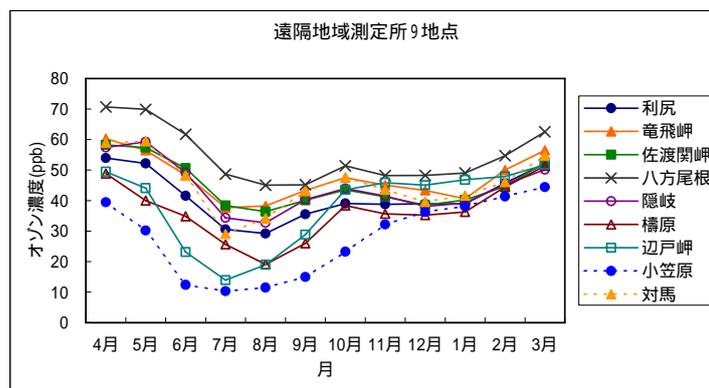


図 1-11 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の月変動 (1998~2005 年度の平均) (環境省,2004,2007c)

日本海側の隠岐及び対馬では、オゾン濃度の日最高値が 80ppb を超過した日が 4~6 月に集中しているなど、春季の高濃度が顕著となっている(岩本,2007)。

また、対馬の観測結果及び後方流跡線の解析結果をみると、東アジアから我が国に気塊が流入した際に 120ppb を超過するオゾン濃度が観測されており、我が国の遠隔地域においても注意報レベルのオゾン濃度がみられる場合がある (岩本,2007)。

1.2.6 最近の高濃度の事例

(1) 広域的に高濃度が観測された事例<平成 19 年 5 月>

平成 19 年 (2007 年) 5 月 8 日から 9 日にかけて九州から東日本の広い範囲で光化学オキシダント注意報が発令された。(図 1-12)

光化学オキシダント濃度が注意報レベルに達した一般局は、5 月 8 日に九州北部から中国地方西部を中心に 30 局、5 月 9 日は瀬戸内海沿岸部から近畿・北陸・東海・関東にかけて 167 局に達した。光化学オキシダント最高濃度を観測した時刻は、西日本や日本海側では東側に向かうにつれて遅れる傾向にあった。関東地方では南部で 5 月 9 日 13~16 時頃、北関東では 5 月 9 日 17~19 時頃に最高濃度を観測した(早崎ほか,2007)。

この光化学オキシダント汚染状況に関する数値シミュレーションの結果によると、東シナ海に位置する高気圧の北側の西風によってアジア大陸東岸から流れ出した汚染気塊が朝鮮半島南部を経て、九州北部から東日本の広い範囲に高濃度のオゾン域を形成したものと考えられた。注意報レベルに相当する汚染気塊のスケールは東西 500km を超えるもので、中国国内の汚染物質のみでなく、韓国や日本国内の汚染物質の影響も受けている可能性がある。5 月 8 日は越境汚染の影響が大きく、5 月 9 日は気温上昇や弱風などの気象条