

# 光化学オキシダント調査検討会 報告書

～光化学オキシダントの解析と対策へ向けた指標の提言～

（素案）

（平成26年1月22日検討会資料）

平成26年3月（予定）

光化学オキシダント調査検討会

DRAFT

## 緒言

平成 26 年 3 月  
光化学オキシダント調査検討会  
座長 秋元 肇

DRAFT

# 目次

<b>1 検討会の目的</b> .....	<b>1</b>
1.1 はじめに .....	1
1.2 「平成 23 年度検討会報告」での位置づけ .....	4
1.3 「平成 23 年度検討会報告」での成果 .....	7
1.3.1 「平成 23 年度検討会報告」の解析結果の概要.....	7
1.3.2 長期的な濃度変動の傾向.....	8
(1) 光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化.....	8
(2) 光化学オキシダントの高濃度の経年変化.....	9
1.3.3 光化学オキシダントの経年変化とその要因.....	10
(1) 光化学オキシダントの平均的な濃度を上昇.....	10
(2) 光化学オキシダントの高濃度が改善.....	10
1.3.4 前駆物質の状況.....	11
(1) 前駆物質濃度の規制等の状況.....	11
(2) 前駆物質排出量の経年変化.....	12
(3) 前駆物質濃度の経年変化.....	13
1.4 解析の方針と概要.....	15
1.4.1 解析の方針.....	15
(1) 光化学オキシダントの現象解明に係る解析.....	15
(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づくり.....	16
1.4.1 解析の概要.....	17
<b>2 解析の条件設定</b> .....	<b>19</b>
2.1 優先解析地域の設定.....	19
2.2 解析期間と季節区分の設定.....	21
2.3 解析対象物質.....	22
2.4 使用するデータ.....	23
2.5 統計指標の算定手順.....	24
2.5.1 光化学オキシダントの 1 時間値に基づく統計処理.....	24
2.5.2 光化学オキシダントの 8 時間値に基づく統計処理.....	24
2.6 解析結果についての留意点.....	27
2.6.1 光化学オキシダントの校正法の変更.....	27
2.6.2 ポテンシャルオゾン及び窒素酸化物の解析おける留意点.....	30
(1) 一次排出 NO <sub>2</sub> の扱い.....	30
(2) 窒素酸化物の測定値のトレーサビリティ.....	30
(3) 二酸化窒素の測定法と測定値について.....	31

2.6.3	「8時間平均値」の算出時の留意点	32
2.6.4	「8時間値」と「1時間値」の関係	32
<b>3</b>	<b>光化学オキシダントの解析結果</b>	<b>34</b>
3.1	光化学オキシダントの解析の概要	34
3.2	光化学オキシダントの経年変化	36
3.2.1	概要	36
3.2.2	長期的な濃度変動の傾向の確認	37
(1)	光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化	37
(2)	高濃度の経年変化	39
(3)	まとめ	43
3.2.3	平均的な濃度の上昇要因の検討	44
(1)	オキシダントの平均的な濃度を上昇させる要因	44
(2)	平均的な濃度を上昇させる要因の検討	45
(3)	光化学オキシダントの平均的な濃度のランク別測定局数の経年変化	46
(4)	ポテンシャルオゾンを用いた評価	52
(5)	光化学オキシダント等の平均的な濃度と前駆物質の関係	64
(6)	季節別濃度の経年変化	68
(7)	平均的な濃度上昇の要因(まとめ)	73
3.2.4	光化学オキシダントの高濃度が改善した要因の検討	74
(1)	光化学オキシダントの高濃度が改善した要因として考えられる要因	74
(2)	光化学オキシダントの高濃度の濃度ランク別測定局数の経年変化	76
(3)	ポテンシャルオゾンを用いた解析	83
(4)	光化学オキシダント等の高濃度と前駆物質の関係	93
(5)	光化学オキシダントの高濃度の改善の要因(まとめ)	97
3.3	光化学オキシダントの8時間値による解析	98
3.3.1	海外の光化学オキシダント評価	98
3.3.2	光化学オキシダントの日最高8時間値の経年変化	100
(1)	年統計値の域内最高値の経年変化	100
(2)	日最高8時間値の年間統計値の経年変化	102
(3)	日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数	106
3.3.3	ポテンシャルオゾンを用いた解析	112
(1)	ポテンシャルオゾンの高濃度の経年変化	112
(2)	日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数	116
3.3.4	まとめ	122
3.4	光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数と積算濃度	123
3.4.1	光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数	123

(1) 概要 .....	123
(2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化 .....	123
(3) まとめ .....	123
3.4.2 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった場合の積算濃度 .....	125
(1) 概要 .....	125
(2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となる場合の積算濃度の経年変化 .....	125
(3) まとめ .....	125
3.5 まとめ .....	127
<b>4 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 .....</b>	<b>128</b>
4.1 解析の統計値と評価指標の検討 .....	128
4.1.1 解析の統計値 .....	128
4.1.2 年々変動の軽減方法 .....	129
4.1.3 平均的な濃度に着目した指標の検討 .....	130
4.1.4 高濃度に着目した指標の検討 .....	132
4.1.5 日最高 8 時間値に着目した指標の検討 .....	134
4.1.6 出現頻度や積算濃度に着目した指標の検討 .....	137
4.1.7 まとめ .....	138
4.2 光化学オキシダントの日最高 8 時間値を用いた外れ値の扱いの検討 .....	139
4.2.1 概要 .....	139
4.2.2 外れ値の評価方法 .....	140
4.2.3 外れ値を検討する上での注意点 .....	141
(1) 外れ値の除外と高濃度イベントの関係 .....	141
(2) 外れ値を判定する濃度の算出期間 .....	144
4.2.4 時間的な外れ値の検討 .....	145
(1) 外れ値を検討する指標と判定基準の算定期間と判定手順 .....	145
(2) 外れ値の検討結果 .....	147
(3) 年間統計値と暖候期統計値の関係 .....	150
4.2.5 空間的な外れ値の評価 .....	151
4.2.6 まとめ .....	152
4.3 日最高 8 時間と既存指標の関係 .....	153
4.3.1 埼玉県を例とした 8 時間値と 1 時間値の関係 .....	153
4.3.2 各地域の 8 時間値と 1 時間値の関係 .....	155
4.3.3 日最高 8 時間値と昼の最高 1 時間値の関係 (月平均濃度) .....	159
4.4 日最高 8 時間値が閾値以上となる局数 .....	162
<b>5 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提言 .....</b>	<b>164</b>

6	まとめ.....	165
7	参考文献.....	167
8	光化学オキシダント調査検討会名簿.....	168
9	検討会の開催状況.....	169
9.1	平成 24 年度光化学オキシダント調査検討会.....	169
9.2	平成 25 年度光化学オキシダント調査検討会.....	170

DRAFT

## 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  
HOx - hydrogeNOxide 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> - nitrate ion - 硝酸イオン  
NOx - nitrogeNOxide - 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  
SOx - 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- - Carbon Bond Mechanism-  
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  
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

DRAFT

【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<sub>3</sub>)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(Ox)」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<sub>3</sub>)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】

NOX 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<sub>4</sub>)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<sub>4</sub> 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。

## まとめ (Executive Summary)

DRAFT

DRAFT

# 1 検討会の目的

## 1.1 はじめに

光化学オキシダントについては、窒素酸化物(NOx)や揮発性有機化合物(VOC)の削減対策が実施されたにもかかわらず、近年、その濃度は漸増傾向にあり、平成23年度の環境基準達成局数(達成率)は一般環境大気測定局で6局(0.5%)、自動車排出ガス測定局で0局(0%)とはいずれもきわめて低い水準となっている。また、光化学オキシダント注意報発令地域は九州・四国や日本海側などで広域化の傾向にあり、越境大気汚染が懸念されている。

平成23年8月に「光化学オキシダント調査検討会」を設置し、VOC対策を含むこれまでの施策の進捗の確認及び光化学オキシダント濃度の上昇要因等に関する新たな科学的知見を収集するとともに、今後、必要とされる対策を見据えた調査研究のあり方について検討を行い、平成24年3月に「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」(以下、「平成23年度検討会報告」という。)をとりまとめた。

この検討会報告で、光化学オキシダントの評価の指標として用いている「環境基準達成率」、「光化学オキシダント注意報発令日数」及び「昼間の日最高1時間値の年平均値」などだけでは、光化学オキシダントの濃度上昇等に係る原因究明や対策効果を適切に評価することは困難であり、光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す新たな評価指標を設定するとともに、地域、前駆物質濃度及び気象条件等に着目した多角的な解析が必要であることを確認した。

一方、環境省は、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等で「光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進」(図1-1)を整理した。

この資料では、光化学オキシダントの問題点として以下が示され、残された課題として、発生源機構や発生源寄与の解明が不十分であるとしている。

- ・ 環境基準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見られない
- ・ 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

これらの問題・課題の解決には、データの多角的な解析が必要であり、今後、必要な取り組みとして2つのTargetが示された。

Target1 : 今後必要な対策等の検討・評価

Target2 : 環境改善効果を適切に示す指標の検討(オキシダント)

「平成 23 年度検討会報告」の解析によって、光化学オキシダントは、地域内生成の変化、越境移流の影響など多様な要因により経年的な濃度の上昇が起きているものの、高濃度の光化学オキシダントが改善する傾向が示唆されるなどの成果を得た。また、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、気象の年々変動に大きく左右されず、高濃度発生状況も反映できる頑健性のある評価指標を採用する必要がある。指標は、今後、行政が施策評価、検討のために用いることもあることから、行政的な目標や指標、統計量としての安定性、わかりやすさなどを考慮して、適切な指標を選択する必要がある。

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モニタリングデータを多角的に解析による現象の解明と、「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。

本報告書は、平成 24～25 年度 の光化学オキシダント調査検討会で実施した解析及び指標づくりの検討結果をとりまとめたものである。

# 光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進

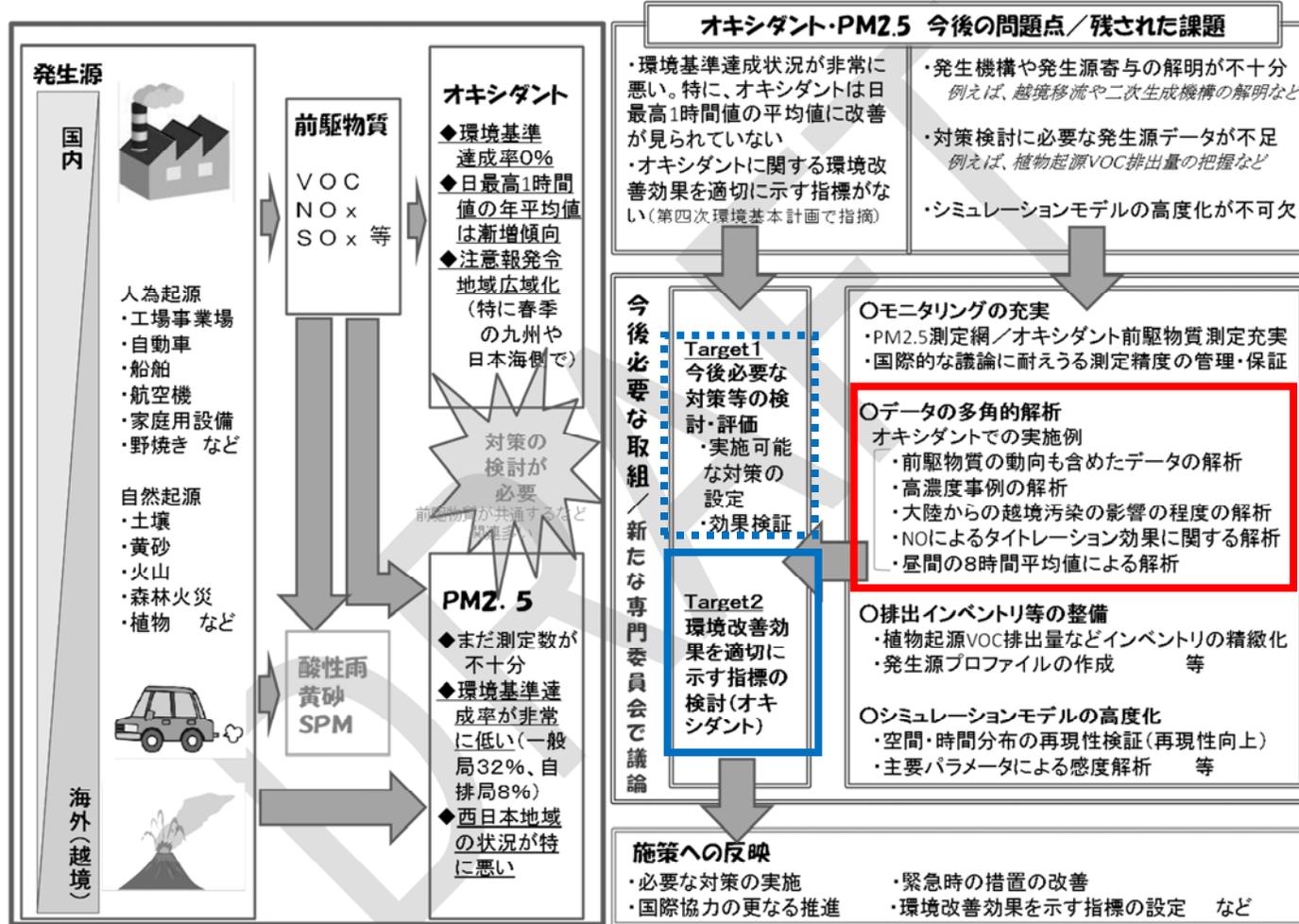


図 1-1 光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進

## 1.2 「平成 23 年度検討会報告」での位置づけ

「平成 23 年度検討会報告」では、光化学オキシダント対策を見据えた今後の調査研究について、「平成 18 年度以降の新たな知見を踏まえた主要課題」と「今後の調査のあり方」について取りまとめ、これに従って調査を進めていくことが妥当であるとした。

この報告書、「調査研究から対策効果への評価への道筋」を以下のように整理し、主要課題と今後の調査のあり方をとりまとめた。

本検討は今後有効な光化学オキシダント対策の立案に必要な調査研究のありかたをとりまとめるものである。そのため、光化学オキシダント生成や環境濃度に寄与する排出源に関する対策効果の評価手法に関する事項までを射程とし、これにより今後行われる対策の検討や決定への基盤となる情報提供を行うこととする。

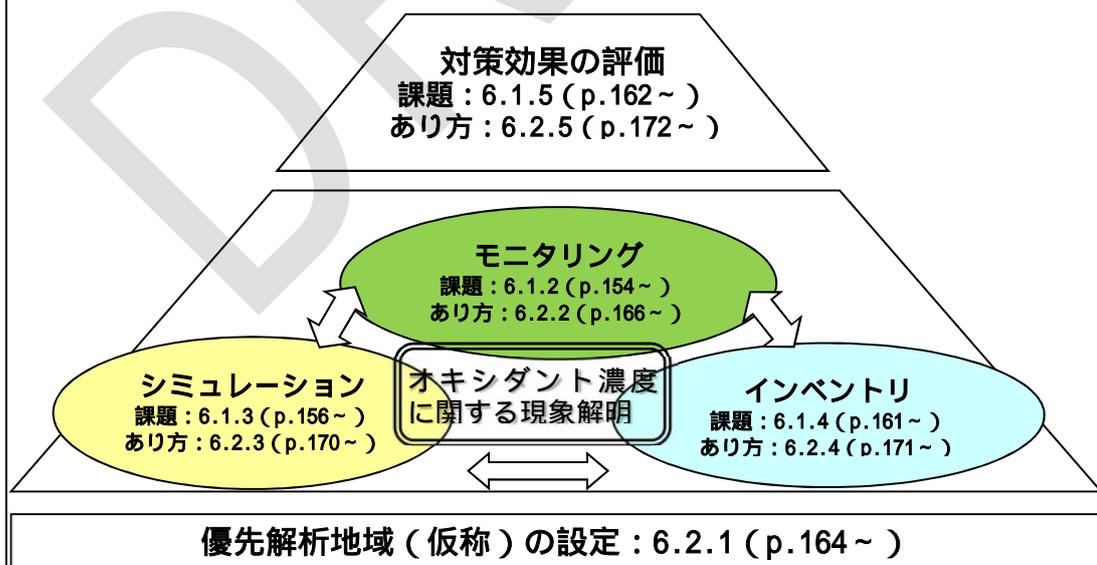
対策効果を評価するためには、光化学オキシダント濃度に関する現象解明をさらに進めることが必須となる。

この現象解明は、モニタリングデータの多角的な解析と、モニタリングデータを様々な活用したシミュレーションにより行う。また、シミュレーションのためには、排出インベントリとシミュレーションモデルを合わせた「モデリングシステム」の高度化が必要で、これによりこれまでの排出インベントリ実績に基づくオキシダント濃度等の再現性の検証や、排出インベントリの不確実性にも対応した対策効果の評価が可能となる。

また、モニタリングデータの解析やシミュレーションを活用した検討を行う際には、現象解明のため有効な知見を得る観点から、地域別にデータ整理や各種解析を行うこととする。

モデリングシステム

シミュレーションモデル及び排出インベントリの組み合わせを一つのシステムとして定義したもの。



注) ページ番号は、平成 23 年度検討会報告書のページである。

図 1-2 「調査研究から対策効果への評価への道筋」(「平成 23 年度検討会報告」より抜粋)

「平成 23 年度検討会報告」で示した「今後の光化学オキシダント対策の評価フロー(例)」(平成 23 年検討会報告書、173 ページ)では「モニタリングとの連携」、「排出インベントリの精緻化」や「対策の検討・評価」に関する項目が不足していたことから、評価フローを図 1-3 のように見直した。

図 1-3 では、「平成 23 年度検討会報告」の評価フロー(例)を基に、モニタリングとの連携として「モニタリングの拡充」や「モニタリングデータを活用した解析」について加え、シミュレーションによる解析についても「排出インベントリの精緻化」「シミュレーションによる対策の検討・評価」を加えた。

今後の光化学オキシダント対策の評価では、シミュレーションを用いて施策目標の達成への評価を行う。その際には、モニタリングの充実を図る一方で、モニタリングデータを活用した解析を行い、シミュレーションの精度検証や、シミュレーションによる施策検討を補いながら評価を進める。

本検討会報告は、シミュレーションを活用した対策検討と連携した「モニタリングデータを活用した解析」の一環として、多角的な解析を行ったものである。また、対策効果を検討するうえで必要となる評価指標を提言した。

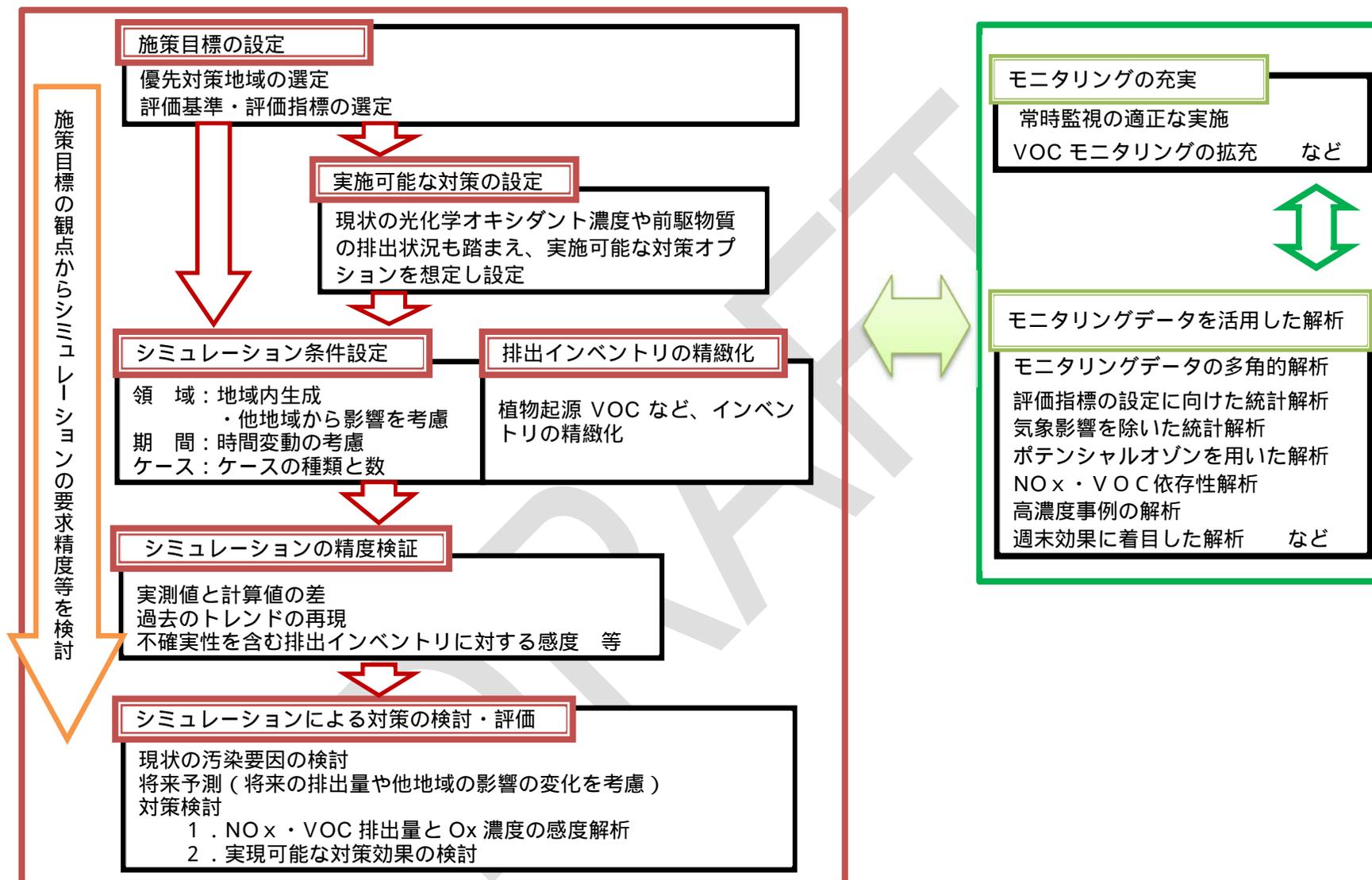


図 1-3 今後のオキシダント対策の評価フロー

### 1.3 「平成 23 年度検討会報告」での成果

#### 1.3.1 「平成 23 年度検討会報告」の解析結果の概要

「平成 23 年度検討会報告」では表 1-1 に示した整理を行った。この結果、以下の傾向が明らかとなった。

一方で、これらの統計値は年々変動が大きいため明瞭な傾向が見られない事例がみられるなど、環境改善傾向を示す指標としては適当な統計値でないことも明らかとなった。

- 春季の月平均値、60ppb 以上の出現状況、一定範囲の気象条件日の中濃度域の傾向など、経年的に平均的な濃度は上昇する傾向がみられた。
- 120ppb 以上の出現状況や、一定範囲の気象条件日の高濃度域の傾向など、高濃度の光化学オキシダントは、地域により傾向が見られ、前駆物質の濃度低下との関係が示唆された。

表 1-1 平成 23 年度検討会報告で整理された光化学オキシダント濃度の傾向

整理された項目		関東	東海	阪神	九州	
昼間の日最高 1 時間 値の月平均 平成 19 年度以降の 傾向	春季	やや上昇傾向	上昇傾向	上昇傾向	上昇傾向が顕著	
	夏季	横ばい 年々変動が大	上昇傾向	地域により相違	微増傾向	
濃度ランク 別出現頻度 (平成 19 年度以降 の傾向)	60ppb 以上の 出現	春季	増加	増加	増加	
		夏季	横ばい	増加	横ばい または増加	横ばい
	120ppb 以上の 出現	春季	年々変動が 大きく明瞭な傾 向なし	平成 19 年度 から微増	京都で増加	頻度が高い年 は大陸からの大 規模な越境汚 染が発生
		夏季	年々変動が 大きく明瞭な傾 向なし	平成 18 年度 から減少	平成 16 ~ 19 に増加、それ 以降は減少	-
一定範囲の気象条件 日の濃度推移	中濃度域	横ばい ~ 上昇 傾向	横ばい ~ 上昇 傾向	大阪府・奈良 県は横ばい 京都府は上昇	やや上昇傾向	
	高濃度域	平成 17 ~ 18 頃から低下傾 向	平成 16 年度 から横ばい	平成 16 ~ 17 年度から横ば いまたは低下 傾向	平成 17 年度頃 から横ばい ~ や や低下傾向	
	98 パーセント イル値	NOx 排出規制に加え、VOC 排出抑制精度等の前駆物質削減対策が進められたことにより高濃度域の Ox が改善していることが示唆				
前駆物質との関係	前駆物質の濃 度低下との類 似性	高濃度 Ox の 推移が概ね一 致	高濃度 Ox の 推移が概ね横 ばい	高濃度 Ox の 推移が概ね一 致	高濃度 Ox の推 移が概ね一致	
	効果等前駆物 質の削減による Ox 濃度低減効 果	Ox 低減効果 を示唆	Ox 低減効果 は不明瞭	Ox 低減効果 を示唆	-	

(注) 「平成 23 年度光化学オキシダント調査検討会報告書より整理。

### 1.3.2 長期的な濃度変動の傾向

「平成 23 年度検討会報告」で平成 12～22 年度のデータにより「平均的な濃度の上昇」と「高濃度の改善」が確認された。

本解析では、平成 2～23 年度のデータを用いて傾向を再度確認した。

#### (1) 光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化

「平成 23 年度検討会報告」では、平成 12～22 年度の解析から、光化学オキシダント濃度の平均的な濃度の経年的変化として、春季の上昇傾向、夏季は年々変動が大きいが横ばいから上昇であること、一定範囲の気象条件日の濃度推移から中濃度域での横ばいから上昇傾向であることを報告した。

これらの傾向を踏まえ、年間の平均的な濃度の状況を確認するために、平成 2～23 年度の各地域の年平均値の傾向を整理した。

各地域の年平均値は次のように算出した。測定局毎に日別の昼間(5～20 時)の平均値を求めた後、測定局別の年平均値を算出した。この結果を地域毎に平均することで、地域内の平均的な濃度の状況を把握した。この結果を図 1-4 に示す。平均的な濃度は、長期的にも各地域ともに濃度の経年的な上昇を確認できた。年々変動が見られ、数年～10 年程度の短期的な傾向は把握しにくい点も見られた。

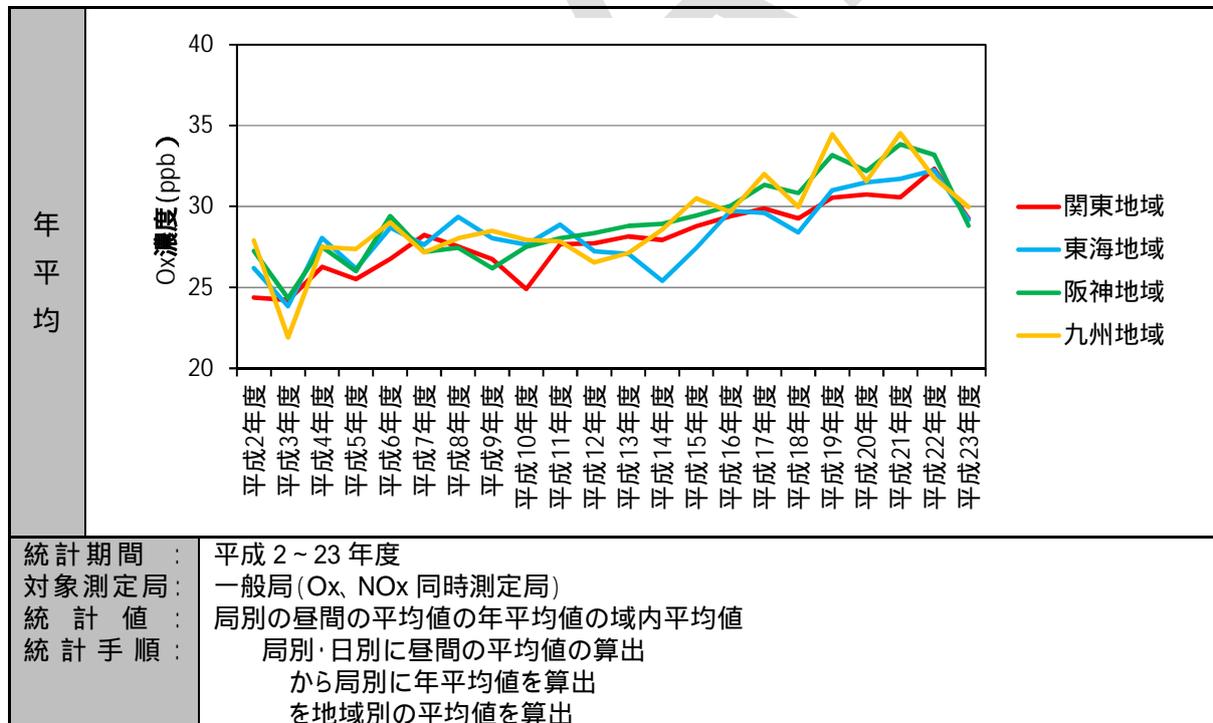


図 1-4 平均的な濃度の経年変化(年度別)

## (2) 光化学オキシダントの高濃度の経年変化

「平成 23 年度検討会報告」では、平成 12～22 年度の解析から、光化学オキシダント濃度の高濃度の夏季の経年的変化として、「濃度ランク別出現頻度では 120ppb 以上の出現は、関東では年変動が大きく明瞭な傾向がないものの、東海・阪神では減少が見られた。」「一定範囲の気象条件日の濃度推移から高濃度域では横ばいから低下傾向が見られ、98 パーセンタイル値の解析により前駆物質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ことが示唆された。」とした。

これらの傾向を踏まえ、光化学オキシダントの高濃度の改善を確認するために、平成 2～23 年度の各地域の昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値について経年変化の傾向を整理した。

各地域の高濃度の状況は次のように整理した。測定局毎に日別の昼間(5～20 時)の最高 1 時間値を求めた後、測定局別の年間 98 パーセンタイル値を算出した。この結果から地域毎に最高値を求めることで、地域内の高濃度の状況を把握した。この結果を図 1-5 に示す。高濃度の状況は、年々変動は大きいものの、関東で平成 15 年度以降、東海で平成 19 年度以降、阪神で平成 20 年度以降で濃度の低下傾向が見られ、九州は平成 22 年度に濃度の低下はあるもののそれ以前は上昇から横ばいの傾向が見られた。

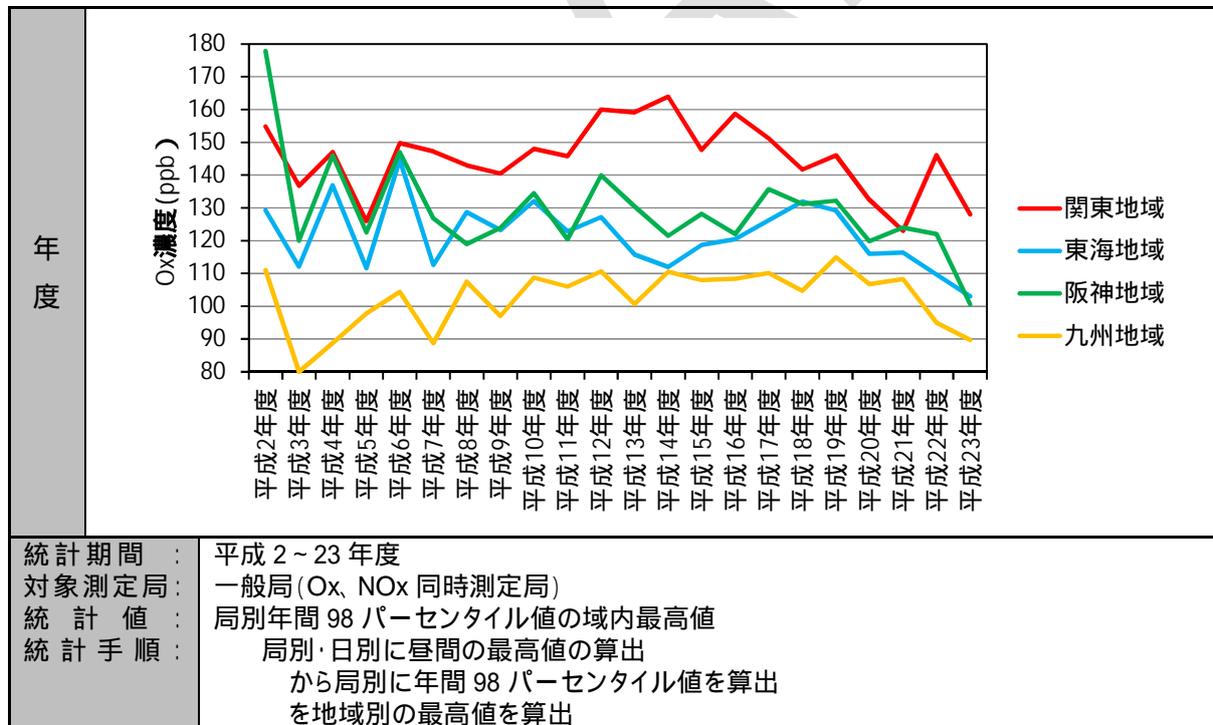


図 1-5 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(年度別)

### 1.3.3 光化学オキシダントの経年変化とその要因

#### (1) 光化学オキシダントの平均的な濃度を上昇

光化学オキシダントの平均的な濃度は上昇傾向であることを確認し、主な要因は以下を報告した。

- 前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化  
排出量削減対策等によって大気中の濃度が経年変化し、大気中の VOC 成分組成が変化した。光化学オキシダントの生成は複雑な反応によるものであり、この影響により平均的な濃度を上昇させた可能性がある。
- タイトレーション効果の低下  
一酸化窒素はオゾンと反応して、二酸化窒素になりオゾンを現象させる(タイトレーション効果)。窒素酸化物濃度は経年的な濃度低下が見られていることから、この効果の低下によって、オゾン消失量が減少し、結果としてオゾン濃度を上昇させた可能性がある。
- 越境汚染の影響の増大  
オゾン濃度の経年的な上昇は東アジアの排出量増加に大きく影響をうける。中国を中心とする東アジアの前駆物質排出量は急激な増加をしていることから、大陸で発生したオキシダントが我が国に移流し、国内濃度を上昇させた可能性がある。

#### (2) 光化学オキシダントの高濃度が改善

「平成 23 年度検討報告」においても「気象条件を統一した統計により光化学オキシダントの高濃度は改善が見られた」と報告した。この要因として以下が考えられた。

- 高濃度域の光化学オキシダントが改善している可能性  
従来から進められてきた NOx 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てき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。

### 1.3.4 前駆物質の状況

長期的な濃度の変化が起きた要因のひとつに前駆物質濃度の経年変化がある。光化学オキシダントの主な前駆物質には、窒素酸化物(NOx)と揮発性有機化合物(VOC)があり、これらの濃度は、国内のNOx排出規制やVOC排出抑制などに大きく影響される。そこで、国内の規制の動向と、前駆物質の大気中濃度の経年変化について整理した。

#### (1) 前駆物質濃度の規制等の状況

前駆物質の窒素酸化物と揮発性有機化合物は、国や地方自治体の法・条例等によりさまざまな対策が実施され、環境濃度に影響を及ぼしている。ばい煙発生施設の主な対策は、本調査の調査対象期間以前より実施されており、大気汚染防止法その他、自治体が条例や要綱で定める対策がある。

自動車対策の主要な施策としては、単体規制、車種規制、自動車NOx・PM法による削減計画、オフロード車規制などがあり、この他に、自治体による条例や要綱などがある。単体規制は、全国を対象とした規制であり、長期規制、短期規制、新長期規制、新短期規制などがある。自動車NOx・PM法の対策地域では車種規制が実施されている。車種規制は、自動車NOx・PM法に基づく対策の一つであり、現在では埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、愛知県、三重県、大阪府、兵庫県の自治体で対策地域が定められている。これらの地域では、車種規制の他、自治体ごとに総量削減計画が策定され、他の地域よりも進んだ自動車対策が進められている。

VOC対策では、自治体によっては以前から炭化水素系物質に係る排出規制が条例などにより行われていた。平成18年4月より大気汚染防止法が改正され、VOCの排出規制が全国的に開始された。大気汚染防止法では、指定施設は排出濃度の基準が定められ、指定施設以外も自主的取り組みによる排出削減を求めている。この他、VOC規制とは異なるが、平成13年4月よりPRTR制度により化学物質の排出量等の把握が開始された。

表 1-2 前駆物質の濃度に影響する主な対策の開始年度

規制等		H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8	H9	H10	H11	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23	
自動車	車種規制(6自治体)																							
	車種規制(8自治体)																							
	短期規制																							
	長期規制																							
	新短期規制																							
	新長期規制																							
	09年規制																							
	ディーゼル特殊車規制																							
VOC規制(大防法)																								
PRTR届出制度																								

## (2) 前駆物質排出量の経年変化

前駆物質排出量の経年変化を把握するために、国内排出量の動向を整理した。この結果を図 1-6 及び図 1-7 に示す。この結果は、REAS2.1 (Regional Emission inventory in Asia version 2.1)<sup>1</sup>で公開される日本の排出量のうち NOx と NMVOC を集計した結果である。この排出量は、JEI-DB (JATOP Emission Inventory DataBase)、海洋政策研究財団のデータベース、環境省 VOC インベントリデータ)を用いて作成された排出量である。

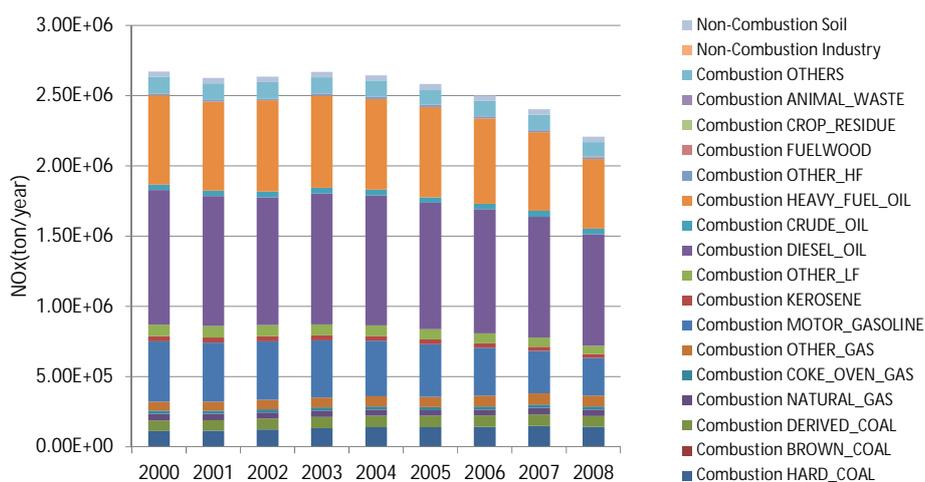


図 1-6 窒素酸化物排出量の経年変化 (REAS2.1 の日本の排出量を集計)

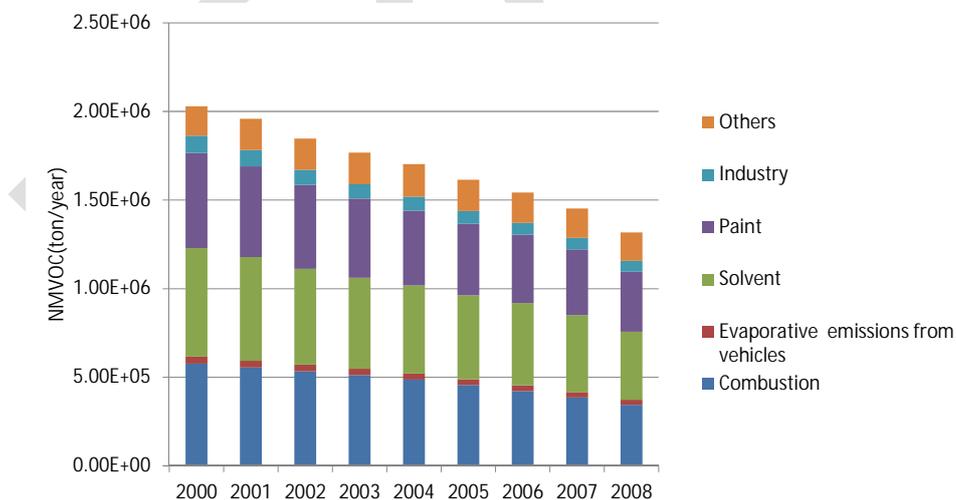


図 1-7 NMVOC 排出量の経年変化 (REAS 2.1 の日本の排出量を集計)

<sup>1</sup> Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Greet, J.-M., Fukui, T., Kawashima, K. and Akimoto, H.: Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, Atmos. Chem. Phys., 13, 11019-11058.

### (3) 前駆物質濃度の経年変化

#### ア. 窒素酸化物濃度

光化学オキシダントの前駆物質である窒素酸化物について、経年変化を整理した。窒素酸化物の平均濃度の経年変化を把握するために、一般局の窒素酸化物の年平均値の域内平均値を算定した。この結果を図 1-8 に示す。

窒素酸化物濃度の年平均値は、関東で平成 10 年頃までは横ばいであったが、その低下した。阪神地域も関東と同じような傾向にあった。東海は、平成 14 年度ごろまで横ばいで、その後に低下傾向が見られた。九州は、平成 2 年ごろは、他の地域より濃度は低かったが、濃度が低下し、平成 22 年度では他のとの濃度差は小さくなった。

#### イ. 非メタン炭化水素の濃度

光化学オキシダントの前駆物質である VOC の経年変化を把握するために、一般局の非メタン炭化水素の平均濃度の経年変化を整理した。非メタン炭化水素の年平均値の域内平均値を算定した。この結果を図 1-9 に示す。

非メタン炭化水素の昼間の平均値の域内平均値の経年変化は、いずれの地域においても経年的に濃度が低下する傾向が見られた。平成 18 年度ごろからやや低下率が変化する地域も見られた。

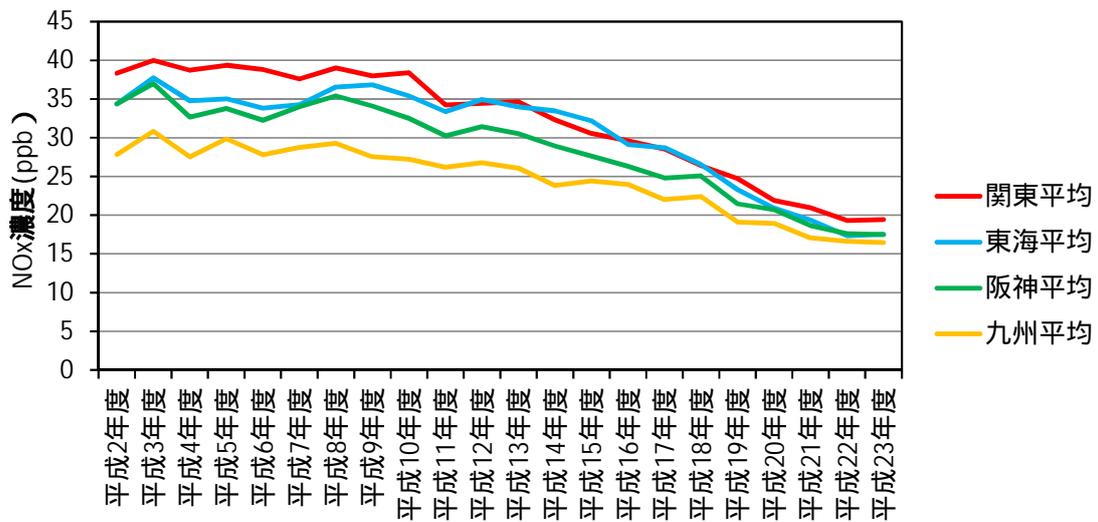


図 1-8 窒素酸化物の年平均値の域内平均値の経年変化

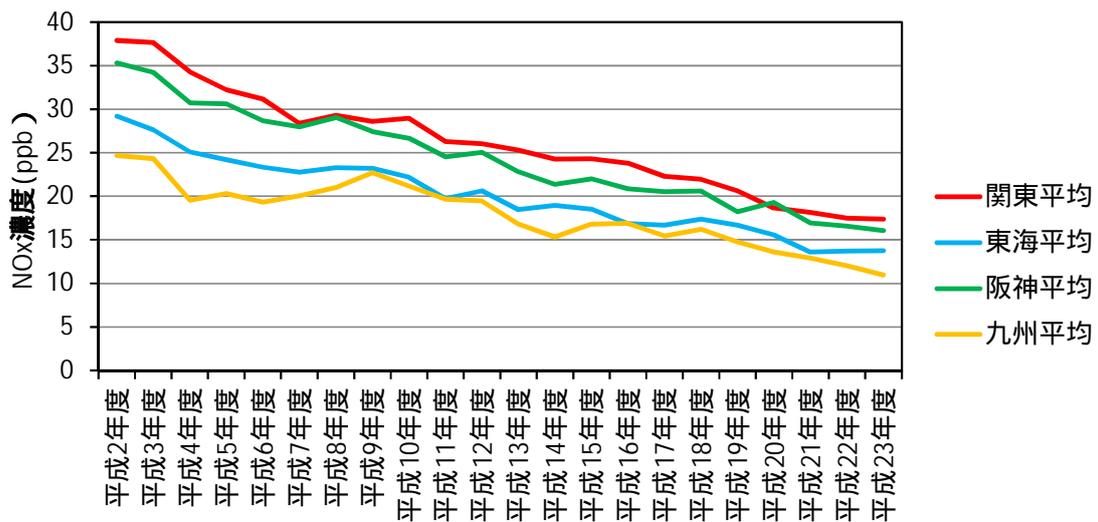


図 1-9 非メタン炭化水素の年平均値の域内平均値の経年変化

## 1.4 解析の方針と概要

### 1.4.1 解析の方針

本解析は、光化学オキシダントの現象解明と、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が目的である。

#### (1) 光化学オキシダントの現象解明に係る解析

光化学オキシダントは、地域内生成の変化、越境移流の影響などの多様な要因により濃度上昇等が起きていると考えられており、高濃度の光化学オキシダントが改善する傾向が示唆されている。本解析は、これらのオキシダントが示す現象を理解することを目的に、多角的な解析を行った。

#### ア. 光化学オキシダントの平均的な濃度の濃度上昇の要因検討

解析では、光化学オキシダントの平均的な濃度の濃度上昇は以下の要因が考えられた。

- 前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化
- タイトレーション効果の低下
- 越境汚染の影響の増大

これらの要因のいずれが大きく影響しているかを検討するために、地域別濃度、濃度ランク別測定局数、ポテンシャルオゾンによる解析、季節別濃度、前駆物質との関係について統計・解析を実施した。

#### イ. 高濃度域の光化学オキシダントが改善の検討

また、光化学オキシダントの高濃度の改善が、前駆物質排出削減対策の効果であることが示唆された。

- 前駆物質の排出削減対策による高濃度域の光化学オキシダントが改善

そこで、高濃度の状況について、地域別濃度、濃度ランク別測定局数、ポテンシャルオゾンによる解析、季節別濃度、前駆物質との関係などを統計・解析を実施することにより要因の検討を行った。

#### ウ. 日最高8時間値の解析

国際的な指標のひとつである8時間値を用いて、国内のオキシダントの状況が把握できるかなどを検討した。

## エ. 光化学オキシダント濃度の積算濃度等の状況

光化学オキシダントが高濃度となり長時間継続した場合、その影響は考慮する必要がある。高濃度の継続を評価する方法として、基準となる濃度を設定し、それ以上の濃度となる時間数を評価する方法がある。光化学オキシダント濃度の1時間値が基準値以上となった時間数について検討を行った。

### (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づくり

光化学オキシダントの環境基準は表 1-3 に示す通り「1時間値 0.06ppm 以下であること。」と定められていることから、1時間の平均値(1時間値)により評価がされる。しかし、オキシダントの生成はその時の気象の影響を受け、1時間値は短時間の気象変化に大きく左右される。参考となる指標に「光化学オキシダント注意報等発令」があるが、その発令基準は表 1-4 のとおりで、濃度だけでなく気象条件も加味される。一方、これまでの解析により、1時間値の年間統計値は年々変動が大きいことが明らかとなっている。以上のことから、光化学オキシダントの1時間値やその年統計値、注意報等の発令日数などは、改善効果の把握が難しいとされ、「環境改善効果を適切に示す指標」として適していない。

光化学オキシダントの「環境改善効果を適切に示す指標」は、気象の年々変動に大きく左右されず、高濃度発生状況も反映できる頑健性のある評価指標を採用する必要がある。また、この指標は、今後、行政が施策評価、検討のために用いることもあることから、行政的な目標や指標、統計量としての安定性、わかりやすさなどを考慮して、適切に選択しなければならない。本解析では、これらの点に留意しながら、光化学オキシダントの「環境改善効果を適切に示す指標」づくりのために光化学オキシダント等のモニタリングデータを多角的に解析した。

表 1-3 光化学オキシダントに係る環境基準

物質	環境上の条件	設定年月日
光化学オキシダント(Ox)	1時間値が 0.06ppm 以下であること。	昭和 48 年 5 月 8 日告示

表 1-4 光化学オキシダントに係る注意報等の発令基準

物質	環境上の条件
光化学スモッグ注意報	光化学オキシダント濃度の1時間値が 0.12ppm 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、大気汚染防止法第 23 条第 1 項の規定により都道府県知事等が発令。
光化学スモッグ警報	警報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。

(注)環境省大気汚染物質広域監視システム (<http://soramame.taiki.go.jp/index/setsumei/tyuihou.html>) より整理

### 1.4.1 解析の概要

解析で実施した項目を表 1-6 に整理した。「平成 23 年度検討会報告」の解析では「平均的な濃度の経年的な濃度上昇」と「高濃度の改善が示唆」が明らかになったことから、この要因を検討するために詳細な解析を行った。

解析地域は、「平成 23 年度検討会報告」を参考に優先解析地域として関東、東海、阪神、九州を設定した。

解析対象物質は、光化学オキシダント(Ox)、ポテンシャルオゾン(PO)、窒素酸化物(NOx)、非メタン炭化水素(NMHC)とした。ポテンシャルオゾンは、タイトレーションの影響を受けないことから解析対象とした。また、光化学オキシダントは、前駆物質の窒素酸化物(NOx)と揮発性有機化合物(VOC)の光化学反応により生成される物質であるから、この前駆物質の環境濃度を把握し光化学オキシダントとの関係を整理することは、現象解明にとって重要となる。そこで、常時監視により測定されている窒素酸化物と非メタン炭化水素を解析対象とした。

光化学オキシダントの平均的な濃度の経年的な上昇要因を検討するため、優先解析地域毎に「昼間(5~20時)の1時間値の平均値」の年間統計を行い、地域毎の特徴を整理した。

光化学オキシダントの高濃度の改善の要因を検討するため、優先解析地域毎に「昼間(5~20時)の1時間値の最高値」の年間統計を行い、地域毎の特徴を整理した。

国際的な指標として用いられる8時間平均値(8時間値という)について解析し、国内での特徴を整理した。

これ他、光化学オキシダントが基準とする濃度以上となった時間数・積算濃度等について統計・解析を行った。

また、光化学オキシダントと前駆物質の関係を明らかにするために、窒素酸化物と非メタン炭化水素の年間統計を行った。

表 1-5 優先解析地域の設定

名称	対象地域
関東地域	東京都・埼玉県を中心とする関東地域
東海地域	愛知県を中心とする東海地域
阪神地域	大阪を中心とする阪神地域
九州地域	福岡を中心とする九州地域

表 1-6 解析の項目と目的

目的	日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO	NO <sub>x</sub>	NMHC	概要	
基礎データの整理 既存知見の検証	昼間の 平均値	年平均	域内平均			-	-	・Ox の平均濃度の 上昇 ・前駆物質と Ox の 関係 ・長距離輸送とタイ トレーションの影響 ・Ox 濃度の季節差	
			域内 98%			-	-		
			域内 50%			-	-		
			域内 2%			-	-		
		4~5月	域内平均			-	-		
		6月	域内平均			-	-		
		7~8月	域内平均			-	-		
		9月	域内平均			-	-		
	昼間の最高1 時間値	年 98%	域内最高			-	-	・Ox の高濃度の改 善	
			域内平均			-	-		
			域内 98%			-	-		
			域内 50%			-	-		
			域内 2%			-	-		
日平均値	年平均値	域内平均	-	-			・前駆物質の状況 ・Ox との関係		
光化学オキシ ダントの環境改 善効果を適切 に示す指標に ついて 検討	日最高 8 時間値	年最高	域内最高			-	-	・8 時間値の特性 ・指標の検討	
		年 99%	域内最高						
		年 99%	域内最高			-	-		
		年 98%	域内平均			-	-		
		年 97%				-	-		
	年 96%								
	年 90%								
	日最高 8 時間値	月	域内最高			-	-		-
			域内平均			-	-		-
日最高 8 時間値の年間 99% 値が基準値以上 のとなる局数		域内合計			-	-	-		
1 時間値が基準値以上 の時間数		域内平均			-	-	-		
1 時間値が基準値以上 の積算濃度		域内平均			-	-	-		

## 2 解析の条件設定

### 2.1 優先解析地域の設定

「平成 23 年度検討会報告」では、地域毎に光化学オキシダントの現象解明を行うことが有効であるとして、国内各地域のうち重点的に解析する地域を選択して現象解明などを行うとした。本解析では、この検討結果に基づき、重点的に解析する地域(優先解析地域という。)を設定した。表 2-1 に設定した地域、特徴と選定理由、解析対象とした自治体などを示した。

解析では、光化学オキシダント等の大気汚染常時監視局(一般局)の測定値(1 時間値)を基礎データとした。このデータは国立環境研究所が統一した形式でデータ整備しており、国立環境研究所「環境数値データベース」大気環境時間値データファイル(1 時間値)として公開しており、平成 2~20 年度までは全国 21 都府県、平成 21 年度からは全国 47 都道府県のデータが整理されている。本解析では、このデータファイルのうち、平成 2~23 年度の 22 年間のすべての期間でデータがそろった自治体データを対象とした。

なお、横浜市については、別途データを入手し、時間値データを整理した。

表 2-1 優先解析地域

名称	対象地域	特徴、設定理由	対象都府県
関東地域	東京都・埼玉県を中心とする関東地域	注意報発令レベル非超過割合(測定局数の割合)が最も低く、対策が最も求められる地域である。また、ここ5年間、平均濃度(中濃度域)は上昇する一方で高濃度域は減少傾向も見られ、解析により現象解明に資する知見が期待できる。	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
東海地域	愛知県を中心とする東海地域	岐阜県、静岡県及び愛知県では注意報発令レベル非超過割合(測定局数の割合)が、平成15年度に約8割であったが平成21年度は約3割と大きく低下しており原因解明が必要である。	愛知県 三重県
阪神地域	大阪を中心とする阪神地域	最近10年間を通した注意報発令レベル非超過割合(測定局数の割合)が関東地域に次いで低い。 大阪市内を中心に平坦地がひろがる地域の中に多くの測定局があり、データが豊富である。また、瀬戸内気候の影響を受け季節や時間帯により風の傾向が明確で、モニタリングデータの解析に適している。	京都府 大阪府 兵庫県 奈良県 和歌山県
九州地域	福岡を中心とする九州地域	東アジア大陸に近く、越境汚染の影響を検証するのに適している。	福岡県 山口県

## 2.2 解析期間と季節区分の設定

「平成 23 年度検討会報告」では、平成 12～21 年度(入手できる場合は、22 年度まで)のデータを用いた解析を行った。自動車 NOx 対策(自動車 NOx 法、単体規制、条例等)は平成 12 年度以前より実施されており、自動車排出ガスに起因する窒素酸化物の濃度は、平成 12 年度以前に大きく変化していると考えられる。前駆物質と光化学オキシダントの関係を捉えるには、「平成 23 年度検討会報告」で設定した期間では十分といえないため、解析期間を平成 2～23 年度(1990～2011 年度)として、長期的な変化を把握できるようにした。

期間統計は年度統計を基本とした。ただし、越境汚染等は、季節により影響が大きく変化することが考えられることから、春(4～5月)・梅雨(6月)・夏(7～8月)・秋(9月)とした季節別も統計期間を設定した。

表 2-2 季節区分

項目		期間
期間		平成 2～23 年度(1990～2011 年度)
季節	春	4～5月
	梅雨	6月
	夏	7～8月
	秋	9月

## 2.3 解析対象物質

解析対象とする物質は、光化学オキシダント(Ox)とした。光化学オキシダントは窒素酸化物と揮発性有機化合物を前駆物質とした生成物であることから、窒素酸化物 NO<sub>x</sub>(NO + NO<sub>2</sub>)、非メタン炭化水素 NMHC を解析対象とした。

光化学オキシダントは、窒素酸化物によるタイトレーションが生じることが知られており、光化学オキシダントのみの解析ではその特性を十分理解することはできない。タイトレーションの影響を除外して、光化学オキシダントの対策効果の有無を検討するためには、保存量となるポテンシャルオゾン(PO)を解析する必要がある。そこで、本解析では、窒素酸化物と光化学オキシダント濃度から算出されるポテンシャルオゾンを解析対象とした。なお、ポテンシャルオゾンは、一次排出の NO<sub>2</sub> 濃度の評価方法に課題があるとされ、年度や地域による差などを考慮すべきとされている。しかし、本検討会で一時排出分の NO<sub>2</sub> 比率を扱うことは困難である。そこで、「平成 23 年度検討報告」と同様に、表中に示す式により算出した。

表 2-3 対象物質

対象物質	理由
光化学オキシダント(Ox)	解析対象物質
ポテンシャルオゾン PO $[PO] = [O_3] + [NO_2] - \quad \times [NO_x]$ $= 0.1 \text{ (一次排出の NO}_2 \text{ 比率)}$	タイトレーション効果を考慮した評価の検討
窒素酸化物(NO <sub>x</sub> = NO + NO <sub>2</sub> ) 非メタン炭化水素(NMHC)	Ox 生成の前駆物質

## 2.4 使用するデータ

本解析で用いたデータを表 2-4 に示す。解析は、国立環境研究所の環境情報データベース(大気環境測定データファイル)の1時間値を用いた。

1 時間値には、測定管理者等がスクリーニングを行った確定値とスクリーニング前に速報値がある。大気環境測定データファイルは、機器の異常などによる異常値を除外した測定データ(確定値)である。解析は、国立環境研究所が収集・整理した平成2～23年度の確定値を用いた。

解析では、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンと比較するために、窒素酸化物と光化学オキシダントを同時に測定する一般局を用いて解析した。

表 2-4 解析に用いる基礎データ

データ	入手先
大気汚染常時監視測定データ (Ox、NOx、NMHC など)	大気環境時間値データファイル(国立環境研究所) 平成 2～20 年度まで時間値で提供される都府県は以下のとおりである。 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、愛知県、三重県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、和歌山県、島根県、岡山県、広島県、山口県、徳島県、福岡県 平成 21 年度以降は、47 都道府県の毎時データが公開されている。

## 2.5 統計指標の算定手順

本解析では、優先解析地域毎の特徴を整理するために、図 2-1 及び図 2-2 の手順で統計処理を行った。全体のデータの流れは図 2-3 に示すとおりである。

「光化学オキシダントの 1 時間値に基づく統計処理」では、年々変動の大きさを含め検討するため、一旦、年度別に統計を行った。解析をする中で、3 年の移動平均が有効であることが分かってきた。このため、この解析では、年度統計値算出後に、3 年の移動平均を行った。

一方、「光化学オキシダントの 8 時間値に基づく統計処理」では、1 時間値に基づく統計処理により 3 年移動平均の有効性がわかったことから、今後、行政等による解析・検討の際の利便性や測定局別の評価への利用を考慮して、測定局別の年度統計値を 3 年移動平均し、地域統計を行った。

### 2.5.1 光化学オキシダントの 1 時間値に基づく統計処理

光化学オキシダントの 1 時間値を基礎データとした解析では、図 2-1 に示す手順で統計処理を行った。

1. 各年度の測定局別 1 時間値を基礎データとした。( -1)
2. 測定局別 1 時間値から測定局別日別値(日最高値、日平均値、昼間の平均値、昼間の最高値など)を算出した。( )
3. 測定局別に期間統計値(年平均値、季節平均値など)を算出した。( -1)
4. 測定局別期間統計値を地域別統計値(地域平均値、地域内最高値、地域内 98 パーセンタイル値など)を算出した。
5. 地域別統計値の 3 年移動平均値を算出した。

### 2.5.2 光化学オキシダントの 8 時間値に基づく統計処理

光化学オキシダントの 8 時間値を基礎データとした解析では、図 2-2 に示す手順で統計処理を行った。

1. 各年度の測定局別 1 時間値を基礎データとした。( -1)
2. 各年度の測定局別 8 時間値(8 時間の移動平均値)を算出した。( -2)
3. 測定局別 8 時間値から測定局別日別値(日最高値、日平均値など)を算出した。( )
6. 測定局別に期間統計値(年平均値、季節平均値など)を算出した。( -1)
7. 測定局別の期間統計値の 3 年移動平均を算出した。( -2)
8. 地域別統計値の 3 年移動平均値を算出した。

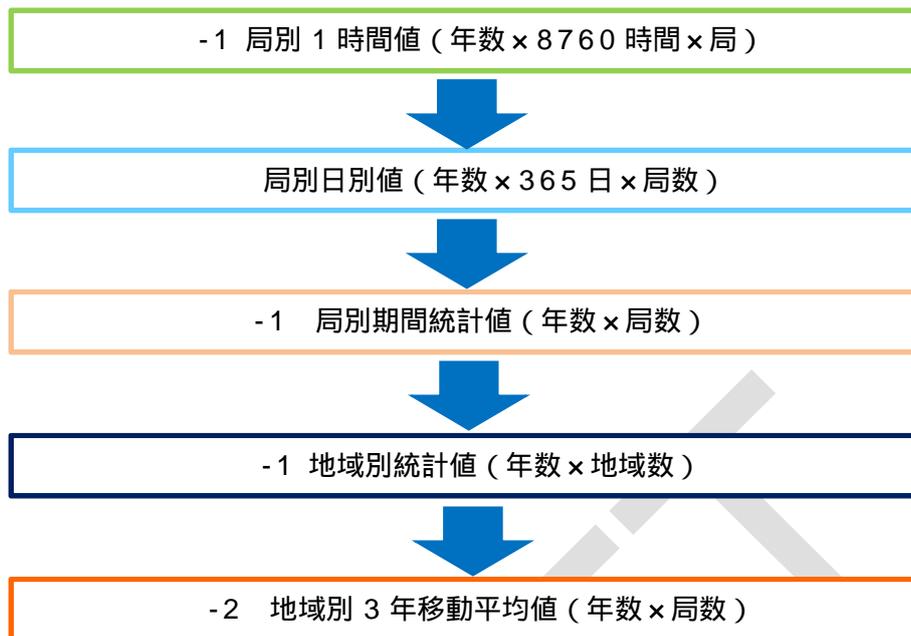


図 2-1 統計処理の手順(1時間値の統計)

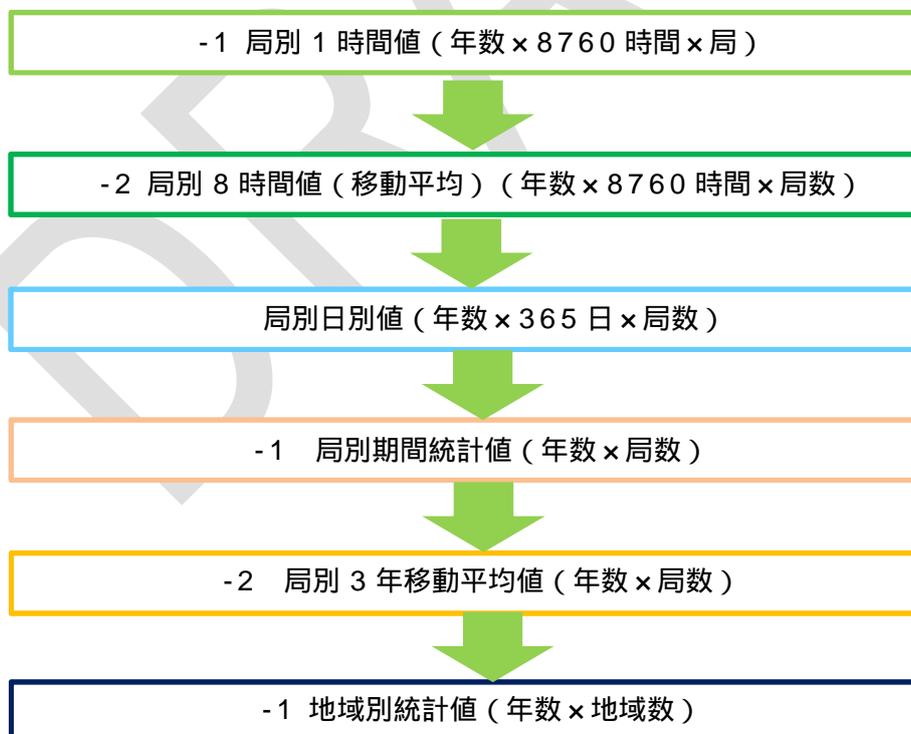


図 2-2 統計処理の手順(8時間値の日最高値)

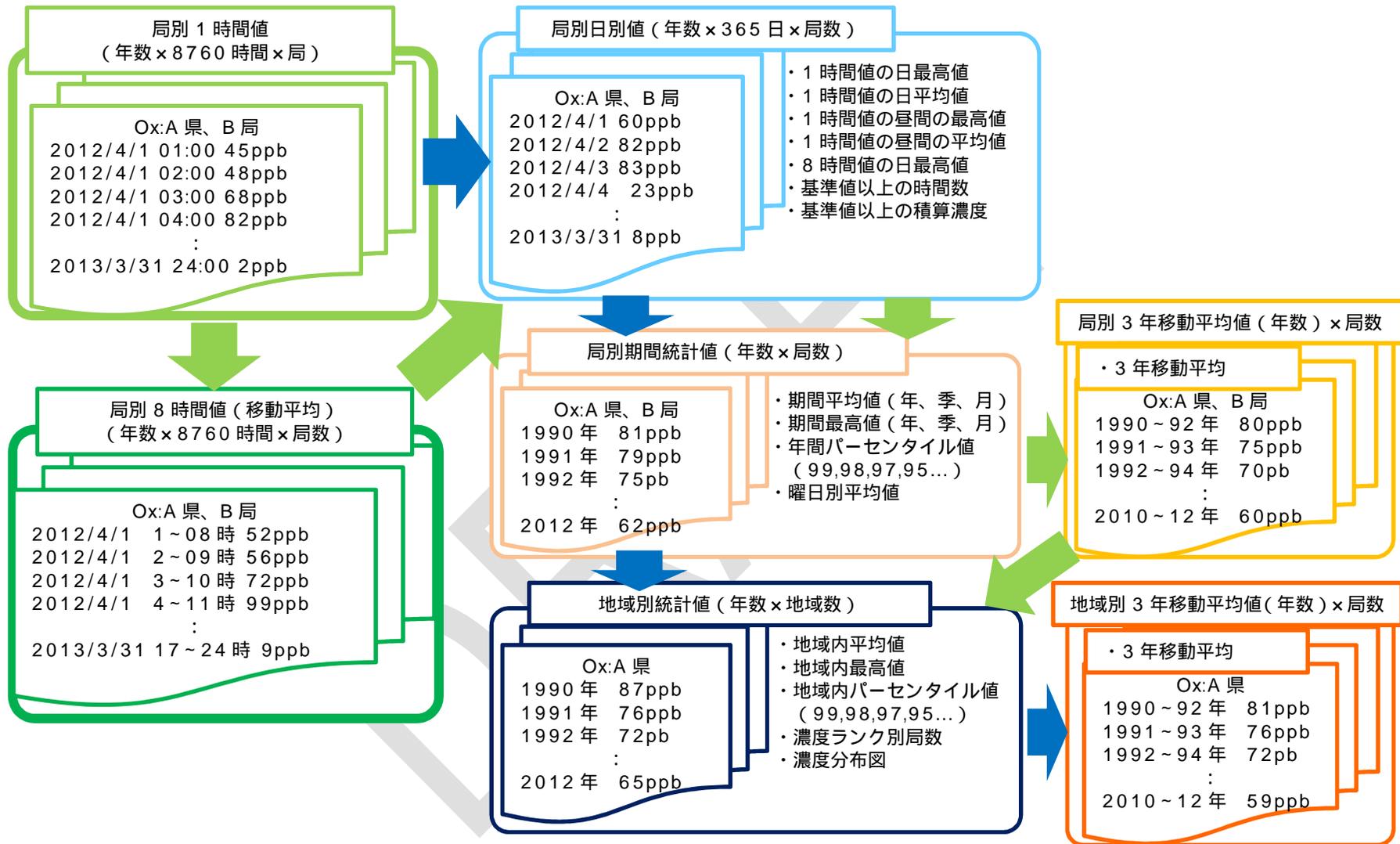


図 2-3 光化学オキシダントの統計処理手順

## 2.6 解析結果についての留意点

### 2.6.1 光化学オキシダントの校正法の変更

「平成 23 年度検討会報告」で指摘したように、光化学オキシダント濃度測定は平成 18 年に JIS が改正され、校正法は KI 法から UV 法(紫外線吸収法)に変更された。これを受け、環境省では平成 21 年度に「大気環境常時監視マニュアル(第 6 版) 平成 22 年 3 月環境省」を改正した。

マニュアルの変更に伴って、全国的にトレーサビリティを考慮した統一的な精度管理体制が整備された。平成 22 年度から順次、地域ブロックごとに二次標準器、自治体ごとに三次標準器が設置され、UV 法による校正が定期的に行われるようになってきている。平成 22 年度は旧校正法による測定値と新校正法による測定値の両方が存在する状況になっていた。また、平成 23 年度データは概ね新校正法によるデータとなった。

「平成 22 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書」(環境省)、「平成 23 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書」(環境省)から優先解析地域内の自治体の新校正法への対応時期を整理した。この結果を表 2-5 に示す。校正法前後での感度差の平均は 1.0458 となっていた。これは、新しい校正法適用以前の濃度が平均で 4.6%濃度が高く確定されていることとなる。

一方、自治体標準器の校正開始時期は表 2-5 のとおりであるが、この結果が測定局濃度に反映されるまでは時間差があると考えられる。本調査で収集した資料では、測定局への反映時期までは把握できなかった。

以上のことから、平成 22 年度以前の測定値は、新校正法適用後の濃度よりも高い濃度となっていることが考えられるものの、測定値への反映の正確な時期の把握や、把握した感度差が過去の測定データに継続的に適用可能かどうかなどの課題がある。

校正法の切り替えに伴って、濃度の経年的な変化傾向を大きく変えるものではないと思われるが、その影響は無視できない。校正前後で測定値の連続性を維持するために、なんらかの補正が必要となるが、現在、補正方法について検討が進められている状況である。

表 2-5 優先解析地域内の主な自治体校正時期(精度管理報告書より整理)

自治体	校正開始時期
埼玉県	平成 22 年 4 月
東京都	平成 22 年 8 月
神奈川県	平成 22 年 4 月
横浜市	平成 22 年 4 月
川崎市	平成 22 年 4 月
千葉県	平成 22 年 4 月
群馬県	平成 22 年 10 月
栃木県	平成 23 年 2 月
山梨県	平成 23 年 1 月
茨城県	平成 23 年 1 月
愛知県	平成 22 年 3 月
三重県	平成 23 年 3 月
名古屋市	平成 23 年 2 月
岡崎市	平成 22 年 12 月
兵庫県	平成 22 年 4 月
姫路市等	平成 22 年 4 月
奈良県・奈良市	平成 22 年 4 月
尼崎市	平成 22 年 4 月
神戸市	平成 22 年 5 月
大阪府	平成 22 年 10 月
京都市	平成 22 年 11 月
滋賀県	平成 23 年 1 月
堺市等	平成 23 年 1 月
明石市等	平成 23 年 2 月
京都府	平成 23 年 2 月
東大阪市等	平成 23 年 2 月
大阪市	平成 23 年 3 月
山口県	平成 22 年 11 月
福岡県	平成 22 年 3 月
北九州市	平成 22 年 11 月
福岡市	平成 22 年 9 月
大牟田市	平成 23 年 1 月

(注)「平成 22 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」、「平成 23 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」より整理

平成 23 年度のデータは校正法の変更に伴う濃度値の扱いが未確定であることや、平成 23 年 3 月以降の東日本大震災に伴って大気環境を取り巻くエネルギー需要が大きく変化していることを考慮すると、経年的な変化傾向を把握する上では、平成 23 年度のデータは参考値として扱うことが妥当であると考えます。

本解析では、統計データを以下の通り扱った。

光化学オキシダントの校正法の切り替えに伴う濃度の補正は行わない。

平成 23 年度及び平成 21～23 年度の 3 年移動平均等の統計値は参考値として表示する。

経年変化の評価は、平成 2～平成 22 年度を対象とする。

なお、高濃度解析等については平成 23 年度も解析対象とする。

## 2.6.2 ポテンシャルオゾン及び窒素酸化物の解析おける留意点

### (1) 一次排出 NO<sub>2</sub> の扱い

ポテンシャルオゾン濃度[PO]の算出方法は、オキシダント濃度[O<sub>3</sub>]、二酸化窒素濃度 [NO<sub>2</sub>]、窒素酸化物濃度[NO<sub>x</sub>]を用いて次式で表される。

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - \quad \times [NO_x] \quad = 0.1 \text{ (一次排出の NO}_2 \text{ 比率)}$$

は、平成 23 年度検討会報告に従った。すなわち、PO の算出に当っては、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」で用いられた 値とし、日本で推定されてきた一般的な値である「0.1」を使用した。

は、一次排出の NO<sub>2</sub> 比率を表すものであり、地域差や年度による差があると考えられている。新短期規制以降のディーゼル車への酸化触媒の装着により自動車排ガス中の二酸化窒素濃度比率が増加していること<sup>2</sup>が指摘されている。自動車の代替により新短期規制以降のディーゼル車が徐々に増えるため、 は年度により変化することが考えられる。また、自動車 NO<sub>x</sub>・PM 法の対象地域とそれ以外では、車種規制等の有無により自動車代替のスピードが異なる。このため、最新規制車の導入に地域差が生じ、 にも地域差が生じる可能性もある。このように は不確実な要素があり、ポテンシャルオゾンを求める際には の正確な値が重要であるが、本調査において を求めることは困難であり、今後の課題とする。

### (2) 窒素酸化物の測定値のトレーサビリティ

ポテンシャルオゾン濃度は、オキシダント濃度と窒素酸化物濃度により算出する。オキシダント濃度の測定は、全国的にトレーサビリティを考慮した統一的な精度管理体制が整備された。一方、窒素酸化物は、トレーサビリティを考慮した統一的な精度管理体制は構築されていない。窒素酸化物測定方法は、化学発光法と吸光光度法があり、その測定法及び校正法は「環境大気常時監視マニュアル(第6版)」(平成 22 年 3 月、環境省)に示されている。吸光光度法の校正は、亜硝酸ナトリウム溶剤を用いた目盛校正用等価液による方法と校正ガスによる目盛校正方法がある。一方、化学発光法の校正は、一酸化窒素標準ガスによる動的校正による目盛校正と、二酸化窒素標準ガスによるコンバータ効率の確認が行われる。千葉県調査によると窒素酸化物の校正についても問題点があることがわかってきており、現在調査が進められているところである。(千葉県環境研究センター 平成 23 年度期間評価結果報告)

二酸化窒素及び窒素酸化物濃度は、ポテンシャルオゾン濃度を求める重要な要素

<sup>2</sup> 森川ら、JATOP の将来自動車排出量推計と大気環境への影響について、JARI Research Journal 20121204 など

であり、これらの値が地域や年度により違いを生じると、効果を適切に示す指標としての評価が難しくなる。ポテンシャルオゾン及び窒素酸化物は、この2点の課題を考慮して、解析を進める必要がある。

### (3) 二酸化窒素の測定法と測定値について

窒素酸化物の自動測定器の測定法は、吸光光度法と化学発光法がある。吸光光度法は、従来から標準方法として定められている測定法で、大気中の試料を吸収液に通じさせ、その発光液の吸光度を測定することにより二酸化窒素を測定する。

現在、窒素酸化物を測定する9割弱(平成 23 年度現在)で採用されている測定法は化学発光法となる。この方法は、化学発光により一酸化窒素と窒素酸化物を測定し、この差を二酸化窒素とする方法である。窒素酸化物には、硝酸、亜硝酸等が含まれており、化学発光法による二酸化窒素は、原理的に吸光光度法よりも値が高くなる恐れがある。

表 2-6 窒素酸化物(一酸化窒素・二酸化窒素)の測定法

測定法	内容
吸光光度法	試料大気を吸収液(N-1-ナフチルエチレンジアミン・二塩酸塩、スファニル酸及び酢酸の混合液)に通じると、大気中の二酸化窒素はジアゾ化スルファニル酸塩として吸収され、N-1-ナフチルエチレンジアミンとのカップリング反応により桃色に発色する。この発色液の 545nm における吸光度を測定することにより試料大気中の二酸化窒素濃度を測定する方法である。なお、一酸化窒素はこれらの試薬(ザルツマン試薬)を直接反応しないが、二酸化窒素を吸収した後の試料大気を硫酸酸性にした過マンガン酸カリウムの酸化液を通じて二酸化窒素に酸化した後、同様の測定を行うことにより、試料大気中の窒素酸化物を測定することができる。
化学発光法	試料大気にオゾンを反応させると、一酸化窒素から励起状態の二酸化窒素が生じ、これが基底状態に戻るときに光を発する(化学発光)。この化学発光の強度を測定することにより、試料大気中の一酸化窒素の濃度を測定することができる。一方、試料大気をコンバータと呼ばれる変換器に通じて二酸化窒素を一酸化窒素に変換したうえで化学発光の強度を測定すると、試料大気中の窒素酸化物(一酸化窒素+二酸化窒素)の濃度が測定できる。これらの測定値の差をとることによって、試料大気中の二酸化窒素の濃度を測定する方法である。

### 2.6.3 「8 時間平均値」の算出時の留意点

国内の多くの測定値は、前 1 時間の平均濃度を当該時刻の濃度としている。例えば、15 時の濃度は 14 時 00 分～15 時 00 分の平均濃度としている。これに従い、本調査の 8 時間値については、前 8 時間の 1 時間値の平均値を当該時刻の 8 時間値として扱った。例えば、15 時の 8 時間値は、8、9、10、11、12、13、14、15 時の 1 時間値の平均値とした。(測定時間としては 7 時 00 分～15 時 00 分となる。)

一方、米国 EPA では、1 時間値は、後 1 時間の平均値を当該時刻の濃度としており、15 時の濃度は 15 時 00 分～16 時 00 分の平均濃度となる。8 時間値も後 8 時間の 1 時間値の平均値であり、15 時の 8 時間値は、15、16、17、18、19、20、21、22 時の 1 時間値の平均値(測定時間は 15 時 00 分～23 時 00 分)としている<sup>3・4</sup>。

本解析は、8 時間値等の特性を把握し、「環境改善効果を適切に示す指標」づくりをすることが目的であるため、光化学オキシダントの 8 時間平均値の統計処理の方法の検討は行わず、今後の課題とする。

本解析では、前述のとおり前 8 時間値を当該時刻の濃度として扱うこととした、

### 2.6.4 「8 時間値」と「1 時間値」の関係

8 時間値は、1 時間値の平均値であることから、8 時間値を求める際に用いた 1 時間値を 8 時間値が上回るとは数学的にありえない。

しかしながら、この 8 時間値を用いた日最高値と 1 時間値の昼間の最高値を比較する場合、日界と 1 時間値の評価時間帯の関係から日最高 8 時間値が昼間の 1 時間値の最高値を上回ることが発生する。

光化学オキシダントは、光化学生成が卓越する昼間に濃度が高くなる。この場合は、日最高値は、時刻ずれはするものの昼間の時間帯に出現するため、日最高 8 時間値は昼間の 1 時間値の最高値を下回る。一方、光化学オキシダントが移流などにより夜間に濃度が高くなる例もみられる。この場合、昼間の 1 時間値の最高値は、評価時間帯ではなく、8 時間値も日界を超えて前日の測定値を含む 1 時間値の平均値となるため、日最高 8 時間値が昼間の 1 時間値の最高値を超える事例が発生する。

8 時間値の算出方法としては、前 8 時間、後 8 時間、前後 4 時間などの平均値が考えられるが、ここでは 8 時間値の指標としての有効性や特徴を考えるための解析であるため、算出方法についての議論は行わなかった。

<sup>3</sup> 8-hr Ozone National Ambient Air Quality Standard (NAAQS) Implementation, EPA, July, 2002

<sup>4</sup> Calculating 8-Hour Ozone Design Values, L. O. McCluney, AQS Conference, June 19, 2007

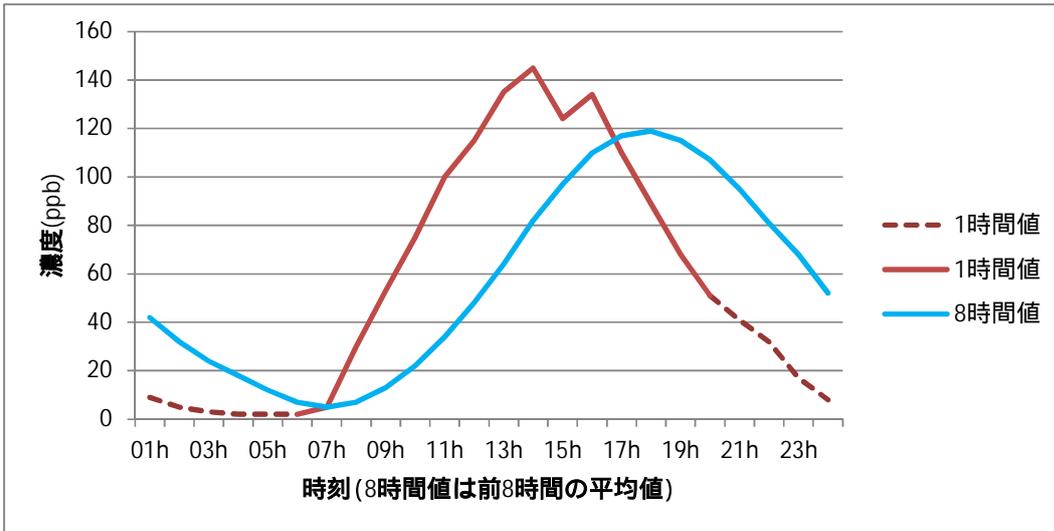


図 2-4 8 時間値と 1 時間値の日変化(昼間に濃度最高値が出現する事例)

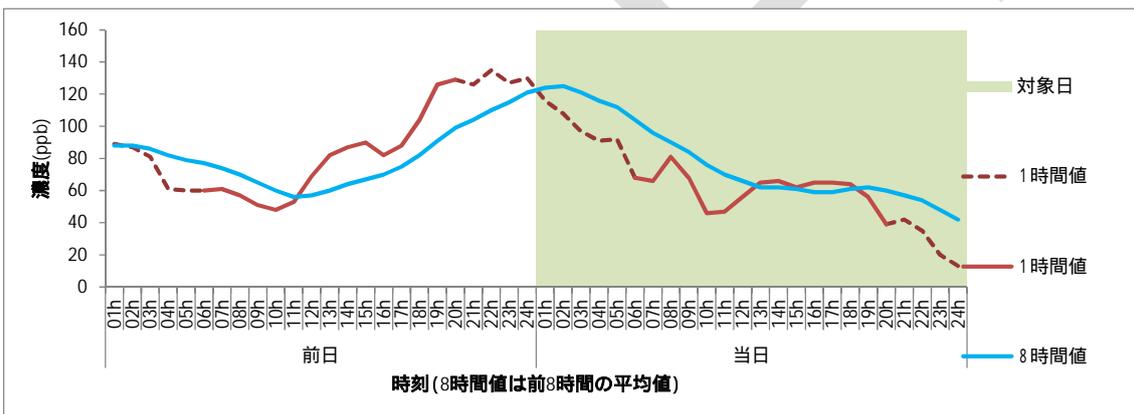


図 2-5 8 時間値と 1 時間値の日変化(夜間に濃度最高値が出現する事例)

### 3 光化学オキシダントの解析結果

#### 3.1 光化学オキシダントの解析の概要

「平成 23 年度検討会報告」の成果を踏まえ、平均的な濃度の上昇の現象解明と、高濃度 Ox の改善を確認し、統計的な安定で頑健な指標を検討するために表 3-1 に示す解析を行った。

光化学オキシダントの環境基準は昼間(5～20 時)の 1 時間値が 0.06ppm 以下であることとなり、行政機関の統計ではこの時間帯での統計されている。本解析では、データの利便性やこれまでのデータとの比較を容易にするために、1 時間値の解析については、昼間(5～20 時)の時間帯の測定値を用いて解析を行った。

DRAFT

表 3-1 解析の概要

目的	日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO	NO <sub>x</sub>	NMHC	概要		
基礎データの整理 既存知見の検証	昼間の 平均値	年平均	域内平均			-	-	・Ox の平均濃度の 上昇 ・前駆物質と Ox の 関係 ・長距離輸送とタイ トレーションの影響 ・Ox 濃度の季節差		
			域内最高			-	-			
			域内 98%			-	-			
			域内 50%			-	-			
			域内 2%			-	-			
		4~5月	域内平均			-	-			
		6月	域内平均			-	-			
		7~8月	域内平均			-	-			
	9月	域内平均			-	-				
	昼間の最高1 時間値	年 98% 1	域内最高			-	-	・Ox の高濃度の改 善		
			域内平均			-	-			
			域内 98%			-	-			
			域内 50%			-	-			
域内 2%					-	-				
日平均値	年平均値	域内平均	-	-			・前駆物質の状況 ・Ox との関係			
光化学オキシ ダントの環境改 善効果を適切 に示す指標に ついて 検討	日最高 8 時間値	年最高	域内最高			-	-	・8 時間値の特性 ・指標の検討		
		年 99%	域内最高							
		年 99% 年 98% 年 97% 年 96% 年 90%	域内最高			-	-			
			域内平均			-	-			
	日最高 8 時間値	月	域内最高			-	-		-	
			域内平均			-	-		-	
	日最高 8 時間値の年間 99% 値が基準値以上 のとなる局数			域内合計			-		-	-
	1 時間値が基準値以上 の時間数			域内平均			-		-	-
1 時間値が基準値以上 の積算濃度			域内平均			-	-	-		

## 3.2 光化学オキシダントの経年変化

### 3.2.1 概要

「平成 23 年度検討報告」では、優先解析地域内の都府県毎に平成 12～21 年度(一部、平成 22 年度)の光化学オキシダント濃度の経年傾向を整理し、表 3-2 の点を報告した。この結果、光化学オキシダント濃度の長期的な傾向として、平均的な濃度については上昇傾向が見られ、高濃度については改善の傾向が見られた。

本解析では、「平成 23 年度検討報告」の結果を確認するために、平成 2～23 年度の解析により優先解析地域における光化学オキシダントの長期的な傾向を把握した。

光化学オキシダントの平均的な濃度の傾向を把握するために、昼間(5～20 時)の 1 時間値の平均値(昼間の平均値)の年平均値の経年傾向を整理した。

光化学オキシダントの高濃度の傾向を把握するために、昼間(5～20 時)の 1 時間値の最高値(昼間の最高値)の年間 98 パーセンタイル値の経年変化を整理した。

ここでの昼間の時間帯は 5～20 時とした。この時間帯は、国や自治体が光化学オキシダントの濃度の整理に用いているものと同じである。

表 3-2 光化学オキシダント濃度の長期的な傾向

	傾向	解析方法
平均的な濃度の傾向把握	平均濃度の経年的な上昇	昼間(5～20 時)の平均値の年平均値の経年変化
高濃度の傾向把握	高濃度の出現は経年的に横ばいから低下傾向	昼間(5～20 時)の最高値の年間 98 パーセンタイル値の経年変化

### 3.2.2 長期的な濃度変動の傾向の確認

「平成 23 年度検討会報告」で平成 12～22 年度のデータにより「平均的な濃度の上昇」と「高濃度の改善」が確認された。

本解析では、平成 2～23 年度のデータを用いて傾向を再度確認した。

#### (1) 光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化

「平成 23 年度検討会報告」では、平成 12～22 年度の解析から、光化学オキシダント濃度の平均的な濃度の経年的変化として、春季の上昇傾向、夏季は年々変動が大きい横ばいから上昇であること、一定範囲の気象条件日の濃度推移から中濃度域での横ばいから上昇傾向であることを報告した。

これらの傾向を踏まえ、年間の平均的な濃度の状況を確認するために、平成 2～23 年度の各地域の年平均値の傾向を整理した。

各地域の年平均値は次のように算出した。測定局毎に日別の昼間(5～20 時)の平均値を求めた後、測定局別の年平均値を算出した。この結果を地域毎に平均することで、地域内の平均的な濃度の状況を把握した。この結果を図 3-1 に示す。平均的な濃度は、長期的にも各地域ともに濃度の経年的な上昇を確認できた。年々変動が見られ、数年～10 年程度の短期的な傾向は把握しにくい点も見られた。

年々変動の軽減を目的として、この結果の 3 年移動平均を行った。この結果を図 3-2 に示す。3 年移動平均により年々変動の傾向が軽減され、各地域とも長期的に平均濃度の上昇が確認でき、「平成 23 年度検討会報告」で見た平成 12 年度以降の濃度上昇の傾向は、関東、阪神ではそれ以前から、東海は平成 13～15 年度頃から、九州は平成 12～14 年度頃から上昇があったことが分かる。

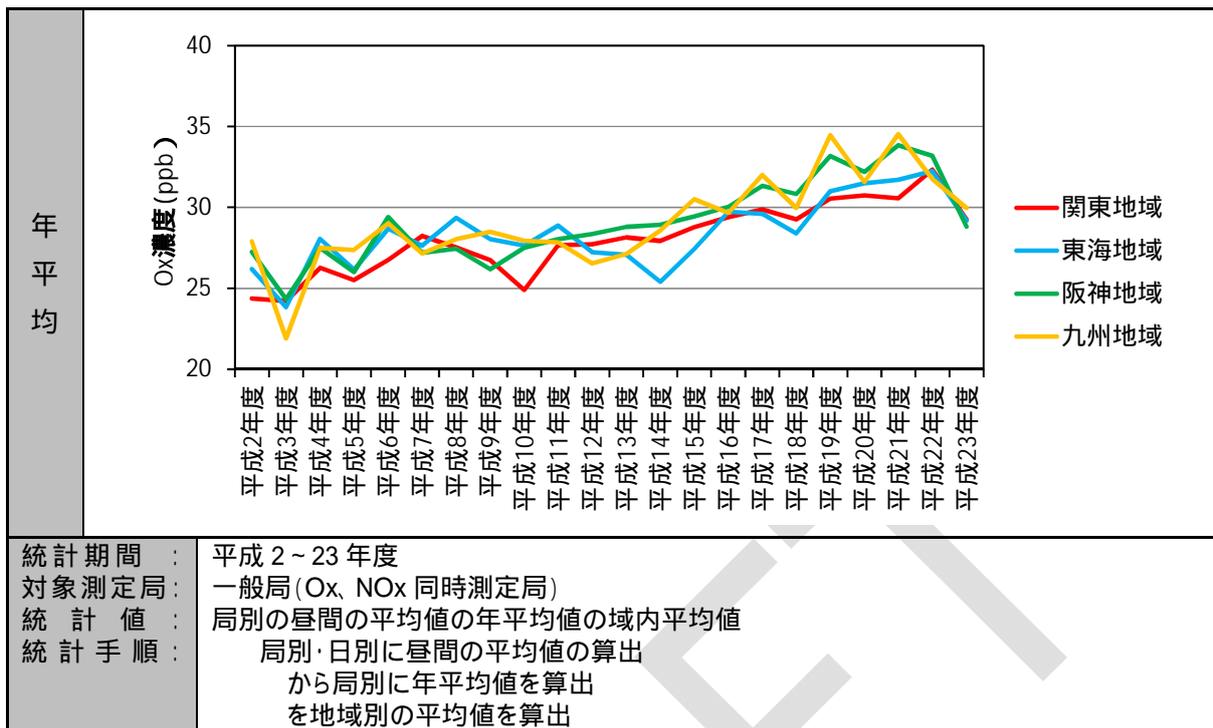


図 3-1 平均的な濃度の経年変化(年度別)

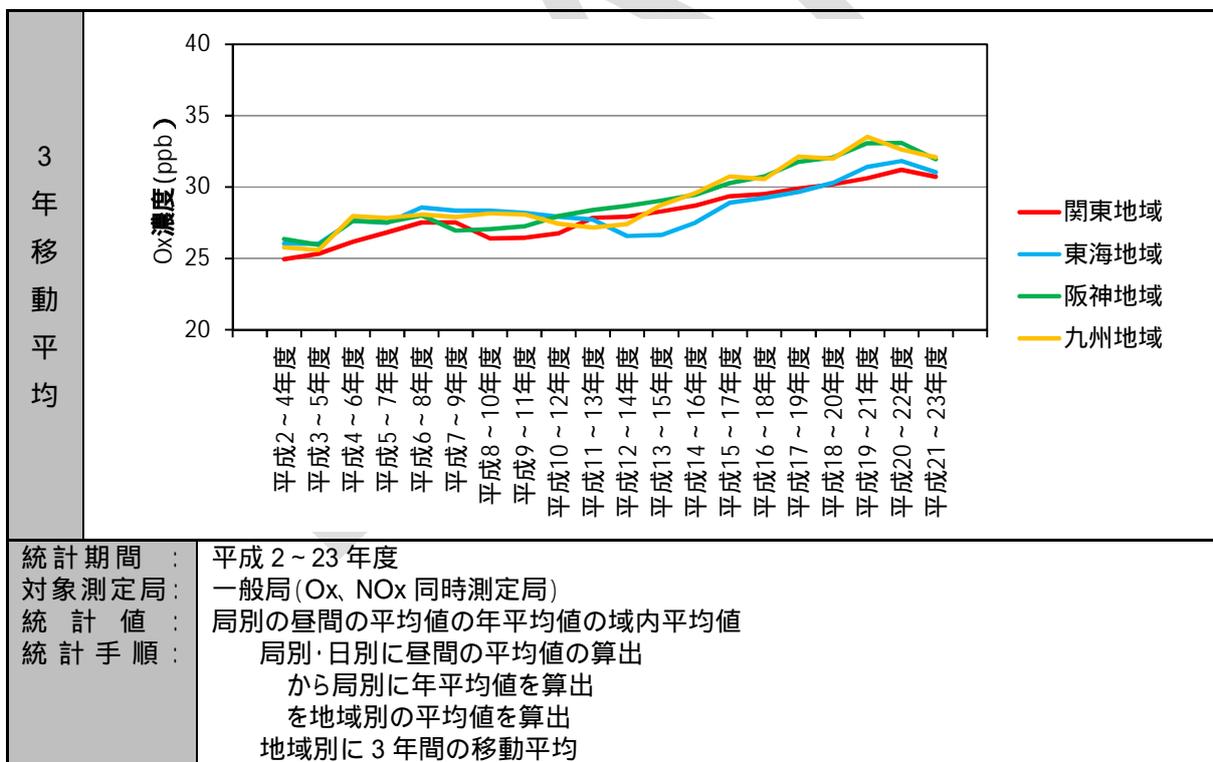


図 3-2 平均的な濃度の経年変化(3年移動平均)

## (2) 高濃度の経年変化

「平成 23 年度検討会報告」では、平成 12～22 年度の解析から、光化学オキシダント濃度の高濃度の夏季の経年的変化として、以下のようにまとめた。

- ・ 濃度ランク別出現頻度では 120ppb 以上の出現は、関東では年変動が大きく明瞭な傾向がないものの、東海・阪神では減少が見られた。
- ・ 一定範囲の気象条件日の濃度推移から高濃度域では横ばいから低下傾向が見られ、98 パーセンタイル値の解析により前駆物質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ことが示唆された。

これらの傾向を踏まえ、光化学オキシダントの高濃度の改善を確認するために、平成 2～23 年度の各地域の昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値について経年変化の傾向を整理した。なお、高濃度の傾向を検討する上で、年間 98 パーセンタイル値を選定した理由は、他の物質の高濃度の評価に 98 パーセンタイル値が採用されており、「平成 23 年度検討会報告」では 98 パーセンタイル値により高濃度の変化を検討したためである。

### ア. 測定局別年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化

地域内で生じる光化学オキシダントの最高濃度の経年的変化の有無を確認するために、測定局別の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化を整理した。

各地域の高濃度の状況は次のように整理した。測定局毎に日別の昼間(5～20 時)の最高 1 時間値を求めた後、測定局別の年間 98 パーセンタイル値を算出した。この結果から地域毎に最高値を求めることで、地域内の高濃度の状況を把握した。この結果を図 3-3 に示す。高濃度の状況は、年々変動は大きいものの、関東で平成 15 年度以降、東海で平成 19 年度以降、阪神で平成 20 年度以降で濃度の低下傾向が見られ、九州は平成 22 年度に濃度の低下はあるもののそれ以前は上昇から横ばいの傾向が見られた。

しかしながら、年度統計の経年変化では年々年変動が大きく、その傾向を理解することは難しい。そこで、年々変動の軽減を目的に、この結果に 3 年移動平均を施した。この結果を図 3-4 に示す。この結果、関東では平成 12～14 年度をピークに低下する傾向が見られ、東海・阪神では平成 17～19 年度をピークにそれ以降は低下、九州は平成 19～21 年度まで上昇する傾向が明らかとなった。

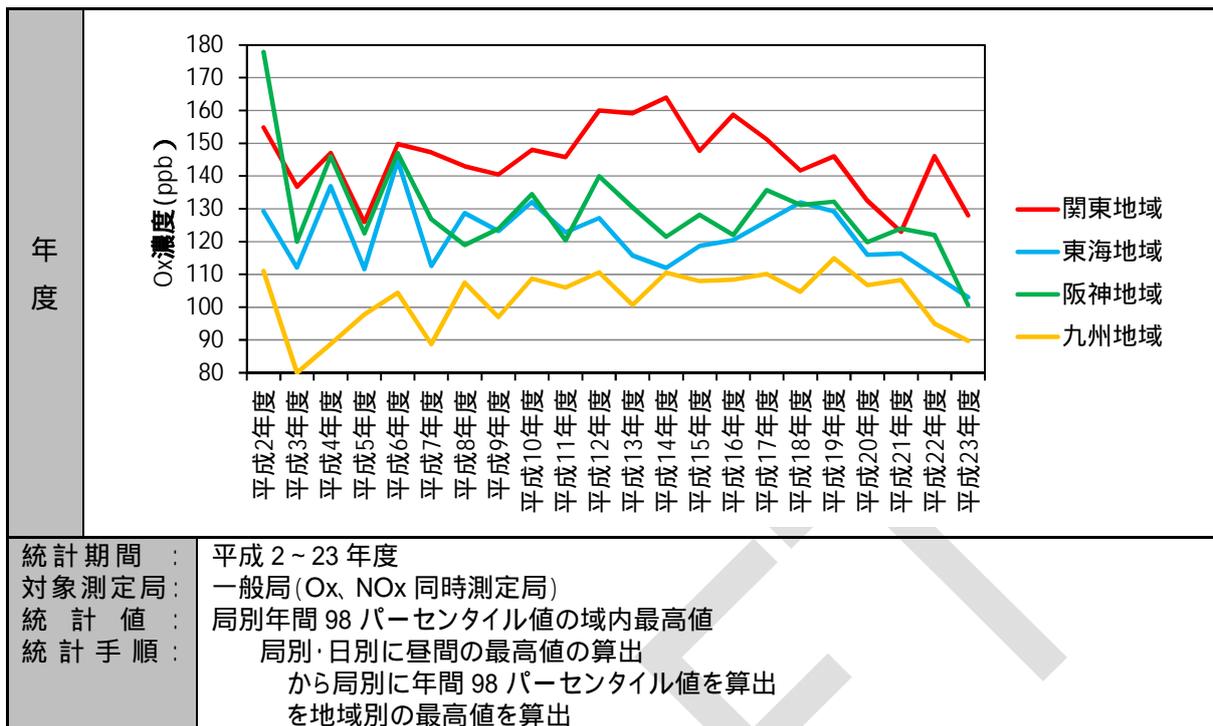


図 3-3 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(年度別)

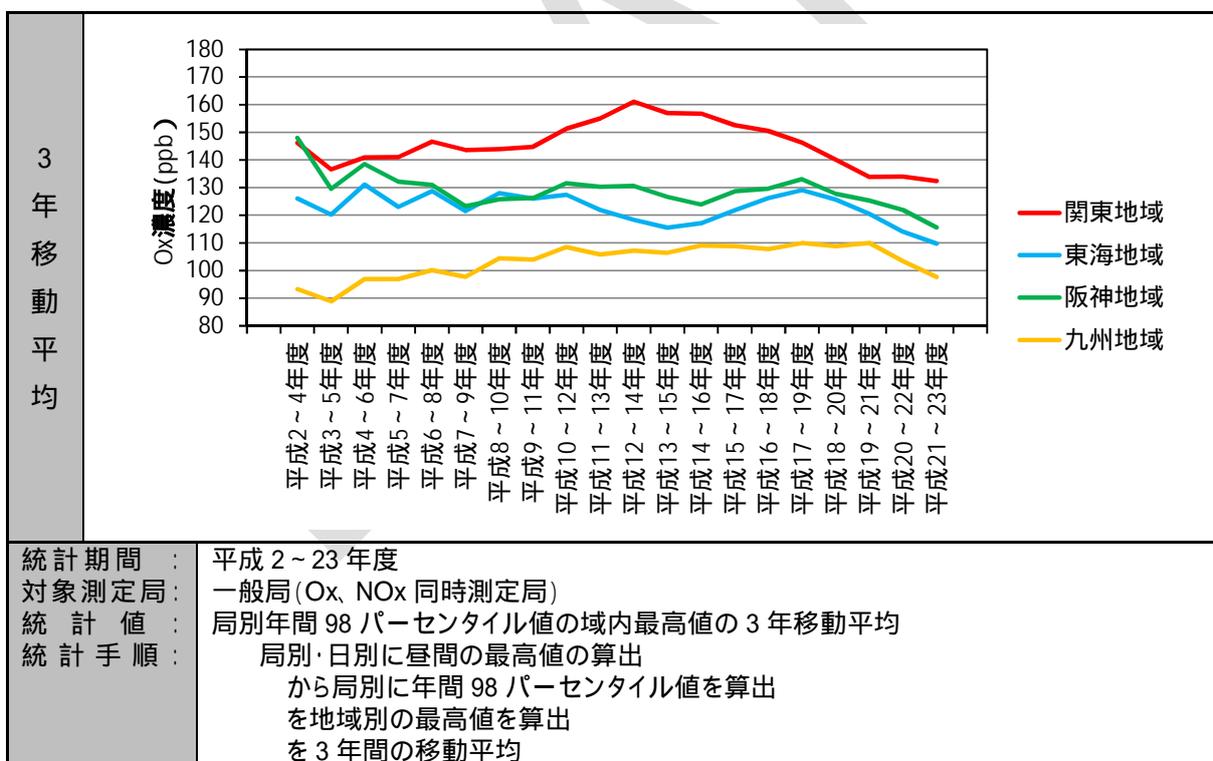


図 3-4 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3 年移動平均)

#### イ. 測定局別年間 98 パーセンタイル値の域内平均値の経年変化

地域内で生じる光化学オキシダントの高濃度の地域内の平均値に、経年的な変化があるかを確認するために、測定局別の年間 98 パーセンタイル値の域内平均値の経年変化を整理した。

各地域の高濃度の状況は次のように整理した。測定局毎に日別の昼間(5~20 時)の最高 1 時間値を求めた後、測定局別の年間 98 パーセンタイル値を算出した。この結果から地域内の平均値を求めることで、地域内の高濃度の状況を把握した。この結果を図 3-5 に示す。高濃度の状況は、年々変動は大きいものの、関東で平成 17 年度以降、阪神で平成 19 年度以降で濃度の低下傾向が見られ、東海では平成 21 年度まで上昇傾向、九州は平成 19 年度に大きな上昇が見られるが、それ以降は横ばいの傾向が見られた。

この統計でも年々変動が大きく、その傾向を把握することは難しい。そこで、年々変動の軽減を目的に、この結果に 3 年移動平均を施した。この結果を図 3-6 に示す。この結果、関東では平成 16~18 年度をピークにその後は低下する傾向が見られ、阪神では平成 18~20 年度ごろから濃度の低下がみられ、東海は平成 20~22 年度まで上昇、九州は平成 19~21 年度まで上昇する傾向が明らかとなった。

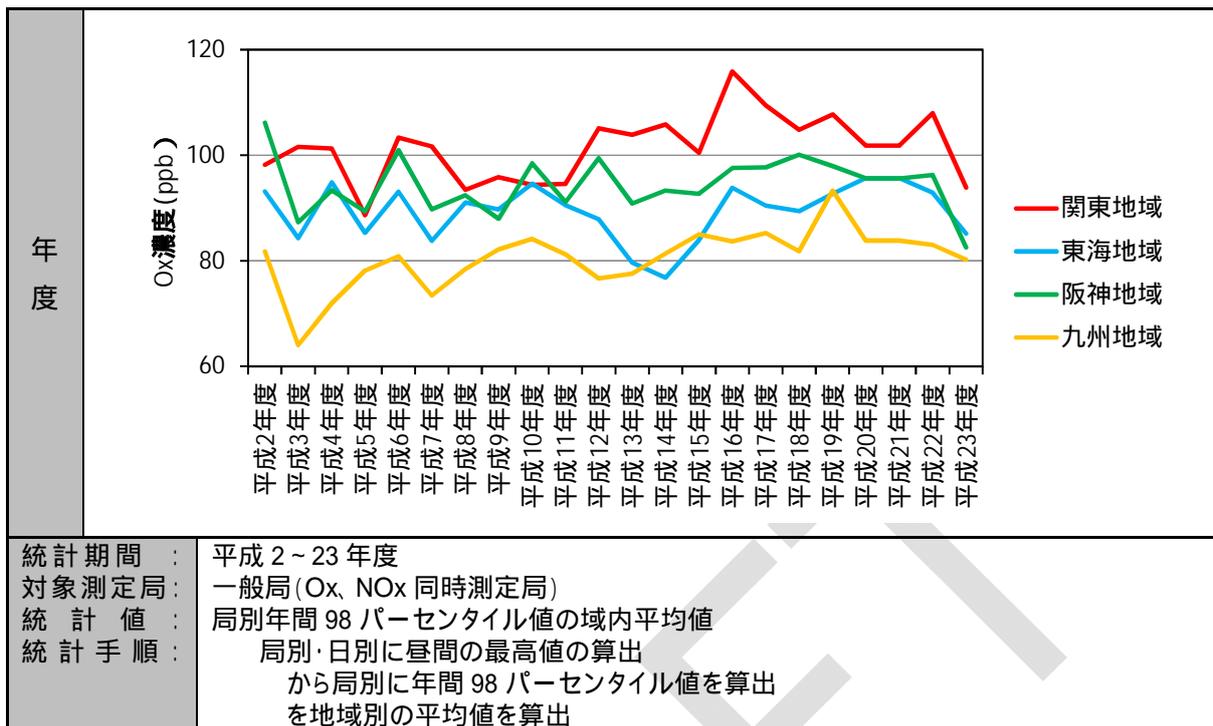


図 3-5 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(年度別)

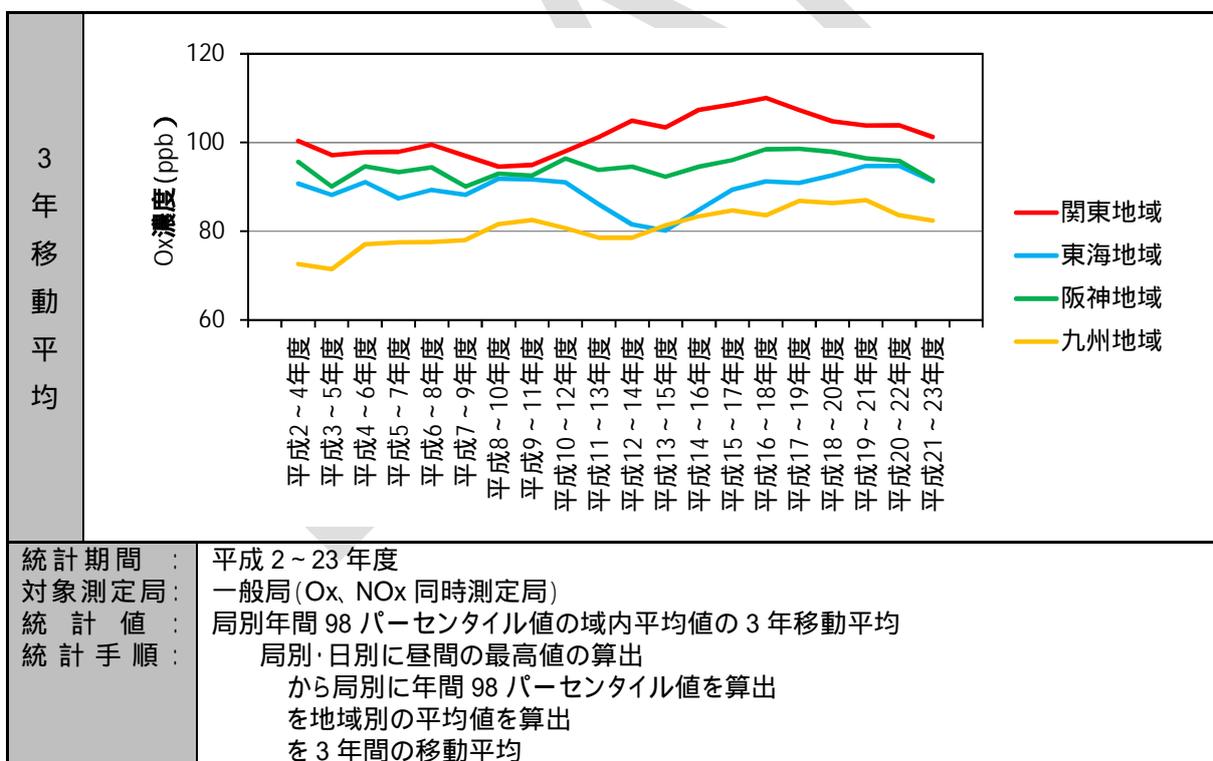


図 3-6 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3 年移動平均)

### (3) まとめ

平成 2～23 年度の解析により、平均的な濃度の傾向と高濃度の傾向は以下のとおりであった。

#### ア. 光化学オキシダントの平均的な濃度の傾向

- 光化学オキシダントの平均的な濃度の傾向を把握するために、昼間の平均値の年平均値の経年変化を解析したところ、経年的に濃度が上昇する傾向がみられた。
- 光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化を検討する上で、年々変動を軽減し経年変化を把握しやすくする方法として、3 年移動平均が有効であることを確認した。

#### イ. 光化学オキシダントの高濃度の傾向

- 光化学オキシダントの高濃度の傾向を把握するために、昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の経年変化を解析したところ、地域によって改善の傾向が見られた。
- 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値は、関東は平成 13～15 以降、東海と阪神で平成 18～20 以降で濃度の低下が見られた。
- 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は、関東は平成 17～19 年度から低下、阪神で平成 18～20 年度から低下する傾向が見られた。東海と九州は経年的な上昇が見られた。
- 高濃度の経年変化を検討する上で、年々変動を軽減し経年変化を把握しやすくする方法として 3 年移動平均が有効であることを確認した。

### 3.2.3 平均的な濃度の上昇要因の検討

#### (1) オキシダントの平均的な濃度を上昇させる要因

「1.3.2(1)光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化」の解析の結果、光化学オキシダントの地域の平均的な濃度は上昇傾向であることを確認できた。この平均的な濃度の上昇の主な要因は、以下が考えられる。

- 前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化
- タイトレーション効果の低下
- 越境汚染の影響の増大

本解析は、測定データに基づく解析であり、複雑な組成や反応を考慮して検討が必要な「前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」は検討することは困難であり、シミュレーションで推定する必要がある。本解析では、測定データから解析が可能と考えられる「タイトレーション効果の低下」及び「越境汚染の影響の増大」について着目して、影響の有無やその程度について検討を行った。

表 3-3 オキシダントの平均的な濃度の主な上昇要因

要因	内容
前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化	NO <sub>x</sub> 排出規制や VOC 排出抑制対策等により、大気中の前駆物質の濃度は経年的に変化しており、また、大気環境中の VOC 成分組成についても変化していることが考えられる。オキシダント生成は複雑な反応機構により生成されるため、前駆物質排出量の減少に影響により、平均濃度を上昇している恐れがある。
タイトレーション効果の低下	一酸化窒素(NO)は、オゾン(O <sub>3</sub> )と反応し二酸化窒素(NO <sub>2</sub> )となりオゾンを減少させる効果がある(タイトレーション効果)。窒素酸化物の環境中の濃度は NO <sub>x</sub> 排出規制等により経年的に低下していることから、タイトレーション効果が弱まりにより、オゾンの消失が失われ、結果としてオゾンの平均的な濃度を上昇させる可能性がある。
越境汚染の影響の増大	東アジアは越境汚染を引き起こす大気汚染物質の大きな発生源と考えられており、我が国の光化学オキシダント濃度に与える東アジアからの影響は様々な研究がおこなわれている。これによれば、オゾン濃度の経年的な上昇はアジアの排出量増加に支配されているとされている。中国を中心とする東アジアの前駆物質排出量は急激な増加をしていることから、これらによる越境汚染が国内のオキシダント濃度を上昇させる。

## (2) 平均的な濃度を上昇させる要因の検討

「1.3.2(1)光化学オキシダントの平均的な濃度の経年変化」に示した通り、各地域の光化学オキシダントの平均的な濃度は経年的に上昇する傾向が見られた。この要因を検討するために、光化学オキシダント濃度とポテンシャルオゾン濃度の経年変化を解析した。また、年々変動の軽減を目的として、3年間の移動平均を行った。

光化学オキシダントの平均的な濃度を上昇させるためには、様々な条件が考えられる。例えば、以下のようなパターンがあり、これらが組み合わさったパターンも考えられる。

- ・ 地域全体の濃度が上昇する。
- ・ 平均的な濃度が高い地域の濃度が上昇する。
- ・ 平均的な濃度が低い地域の濃度が上昇する。

「平成 23 年度検討会報告」では、「濃度ランク別出現頻度の推移」から春季に 60ppb 以上のランクの頻度が増加しており、「一定範囲の気象条件部における濃度の推移」から中間濃度域では、濃度が横ばい～上昇傾向があると確認した。

本解析では、平均的な濃度の各年度の濃度ランク別測定局数(度数分布)や度数分布から得られる各パーセンタイル値などにより、各濃度域の経年変化の特徴を整理して、平均的な濃度の上昇要因について検討した。

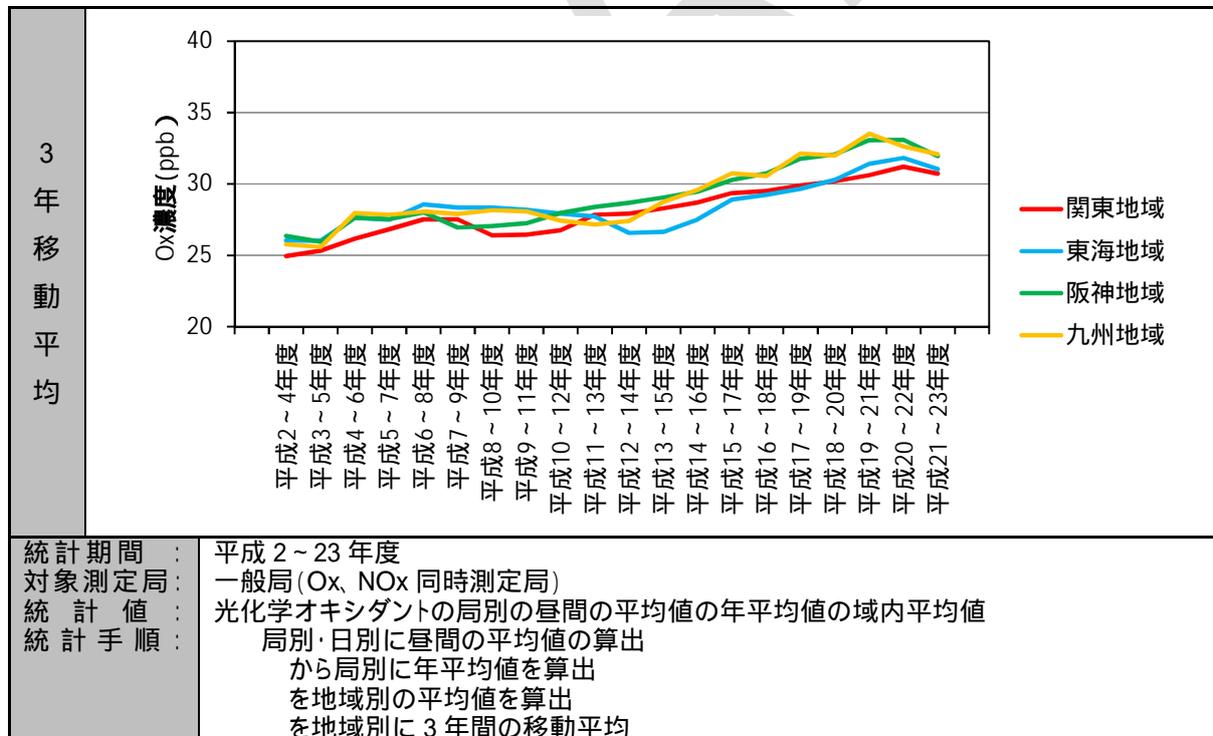


図 3-7 平均的な濃度の経年変化(3年移動平均、光化学オキシダント)

### (3) 光化学オキシダントの平均的な濃度のランク別測定局数の経年変化

#### ア. 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

光化学オキシダントの平均的な濃度(昼間の平均値の年平均値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ図 3-8 となった。図では、ランク別測定局数を詳細に解析するために 5ppb 毎に濃度ランクを設定した。

関東では、平成 8～10 年度ごろから 25ppb 未満のランクの局数比率は減少し、30ppb 以上の局数比率が増加する傾向が見られた。東海は平成 12～14 年度頃から、阪神は平成 7～9 年度頃から、九州は平成 11～13 年度頃から同様の傾向が見られた。

濃度が 35ppb 以上の出現局数比率は、関東では平成 11～14 年度頃から横ばいとなり、東海も平成 15～17 年度頃から横ばいとなる傾向が見られた。一方、阪神と九州では、35ppb 以上の測定局数は増加する傾向が見られた。

#### イ. 濃度別測定局数の度数分布の経年変化

「濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図 3-9 に示す。年度毎に測定局の総数が変化することから、各断面の総測定局数に対する比率を用いて整理した。

関東の濃度が低いランクの測定局数の傾向は、平成 2～4 年度に 5～10ppb のランクに出現した測定局は、平成 20～22 年度になると出現がなくなり、出現する最低ランクは 15～20ppb へシフトした。一方、濃度が高いランクの測定局数の傾向は、平成 2～4 年度から平成 20～22 年度まで 40～45ppb で変化がなく、30～40ppb の測定局数が経年的に増加した。

東海も概ね関東と同様の傾向が見られた。阪神と九州は、濃度が低いランクの測定局数の傾向は関東と同様であったが、濃度が高いランクの測定局数の出現傾向は異なり、濃度が高いランクへのシフトが見られた。

#### ウ. 地域内の濃度上位局と下位局の濃度変化

地域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化の傾向が地域毎に異なっていることが明らかとなった。

そこで、頻度分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度の変化を把握したところ、図 3-10 となった。濃度上位局の濃度として、域内上位 2%目にあたる濃度(域内 98 パーセンタイル値、中位濃度として中央値(域内 50 パーセンタイル値)、下位濃度として域内下位 2%目にあたる濃度(域内 2%パーセンタイル値)の経年変化を整理した。また、濃度差として 98 パーセンタイル値と 2 パーセンタイル値の差も示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は経年的に横ばいで、濃度下位局の濃度が上

昇し、域内の測定局間の濃度差は小さくなる傾向が見られた。東海は、上位局の濃度は横ばいで、下位局の濃度は、平成 17～19 年度から上昇がみられた。阪神は上位局と下位局の両方で濃度の上昇が見られ、下位局の濃度上昇率が上位局を上回った。九州も阪神と同様に上位局と下位局で濃度の上昇がみられたものの、平成 18～20 年までは同程度の上昇率となったため濃度差の経年変化は小さかった。平成 19～21 年からは上位局の濃度が横ばいに近くなったが、下位局は上昇したため濃度差が小さくなってきている。

## エ. 光化学オキシダント濃度の空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から濃度の低い局が少なくなり、中程度の濃度ランクの局が増加していることが分かった。この傾向は地域内での濃度分布の変化を及ぼしているのかを確認した。濃度ランク別測定局数を確認した平成 2～4、11～13、20～22 年度の 3 年移動平均濃度について濃度分布図を作成した。この結果を図 3-11 に示す。

濃度ランク別測定局数の変化が大きい平成 11～13 年度と平成 20～22 年度の分布を比較すると、関東では、発生源が多いと考えられる東京湾周辺の比較的濃度の低かった地域での濃度上昇が顕著であり、比較的高い濃度の局数は増加するものの高い濃度ランクの局がより高い濃度ランクになる様子は見られない。東海は名古屋周辺の濃度が比較的lowだった地域の濃度上昇が顕著であり、濃度が比較的高い地域の地域に変化が見られた。阪神については、濃度が比較的低かい 20～25ppb 程度の局は、平成 20～22 年度にはほとんどなくなり、地域全体の濃度も上昇する傾向が見られた。九州も平成 11～13 年度で 20～25ppb の比較的濃度が低かった局は、平成 20～22 年度にはほとんどなくなり、地域全体の濃度も上昇する傾向が見られた。

## オ. まとめ

各地域とも平均的な濃度の上昇が見られたが、その背景は地域により異なっていた。

- 関東と東海は、平均的濃度の高位局は横ばいで、低局の濃度が上昇することにより、平均濃度が上昇する結果となった。
- 阪神と九州は、濃度地域全体で濃度の上昇が見られ、平均濃度が上昇する結果となった。ただし、阪神は、高位局濃度よりも低位局の濃度の濃度上昇が大きく、関東・東海と九州の中間的な傾向を持っていた。

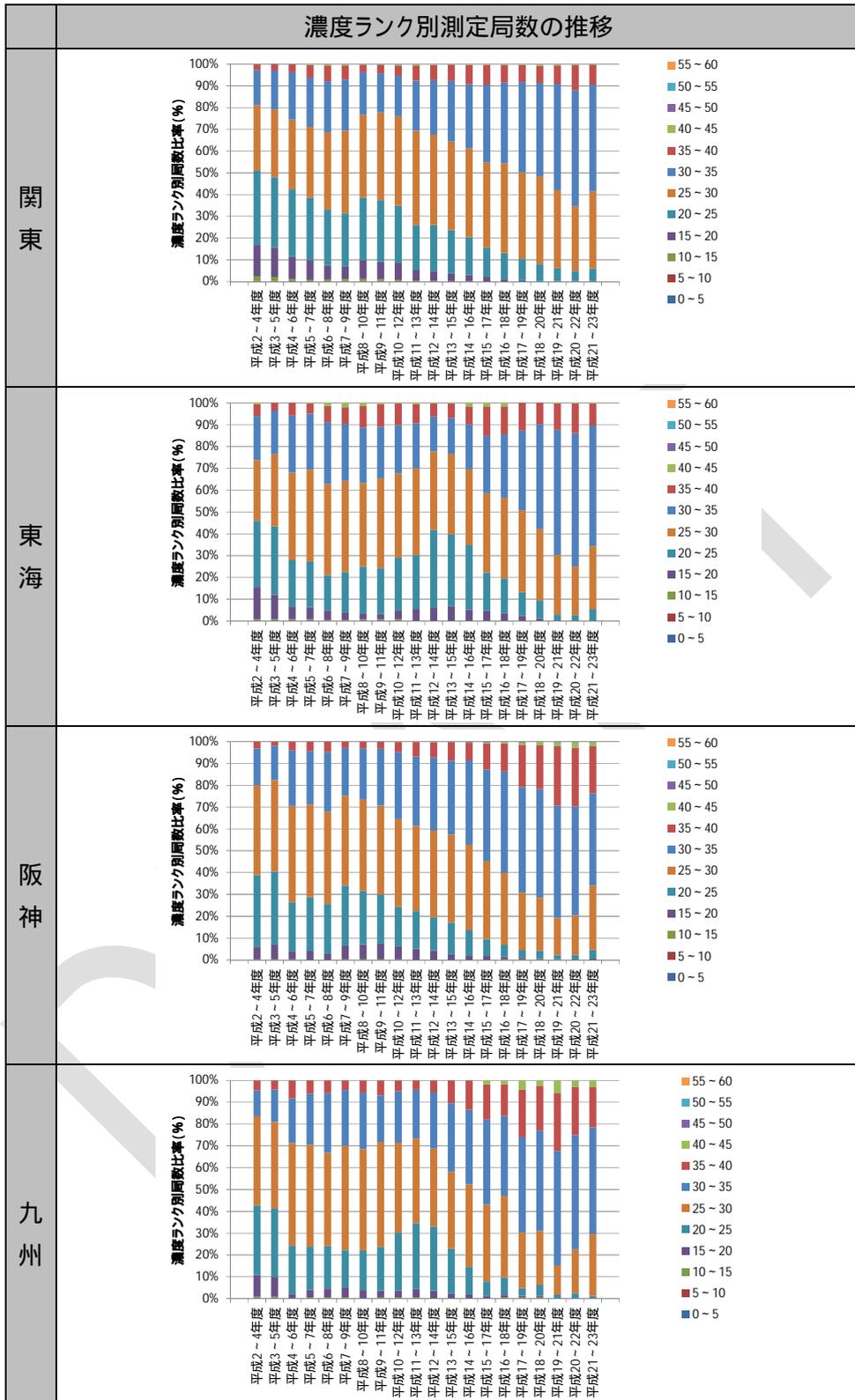


図 3-8 年平均濃度ランク別測定局数比率の経年変化

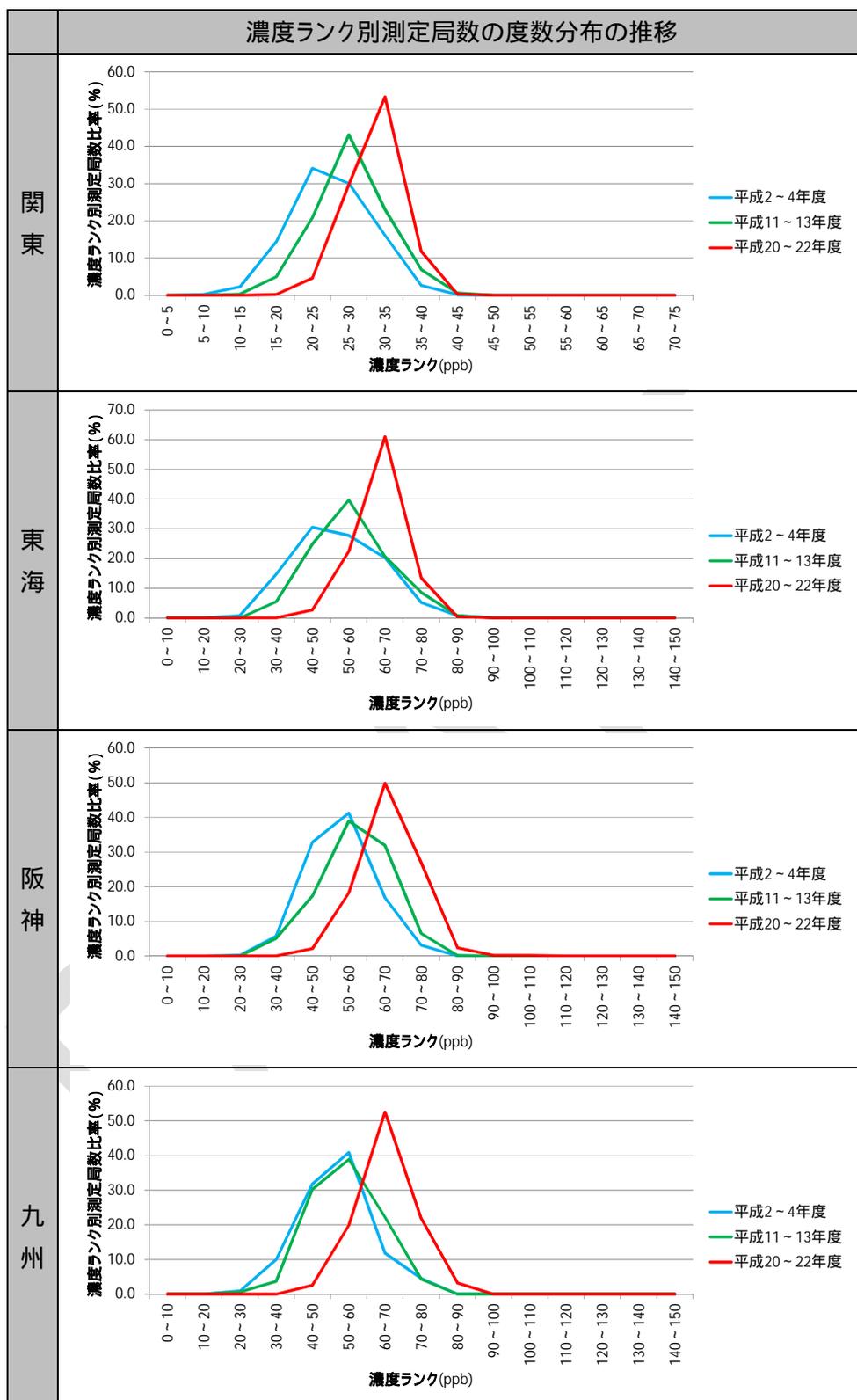


図 3-9 年平均濃度ランク別測定局数比率の経年変化

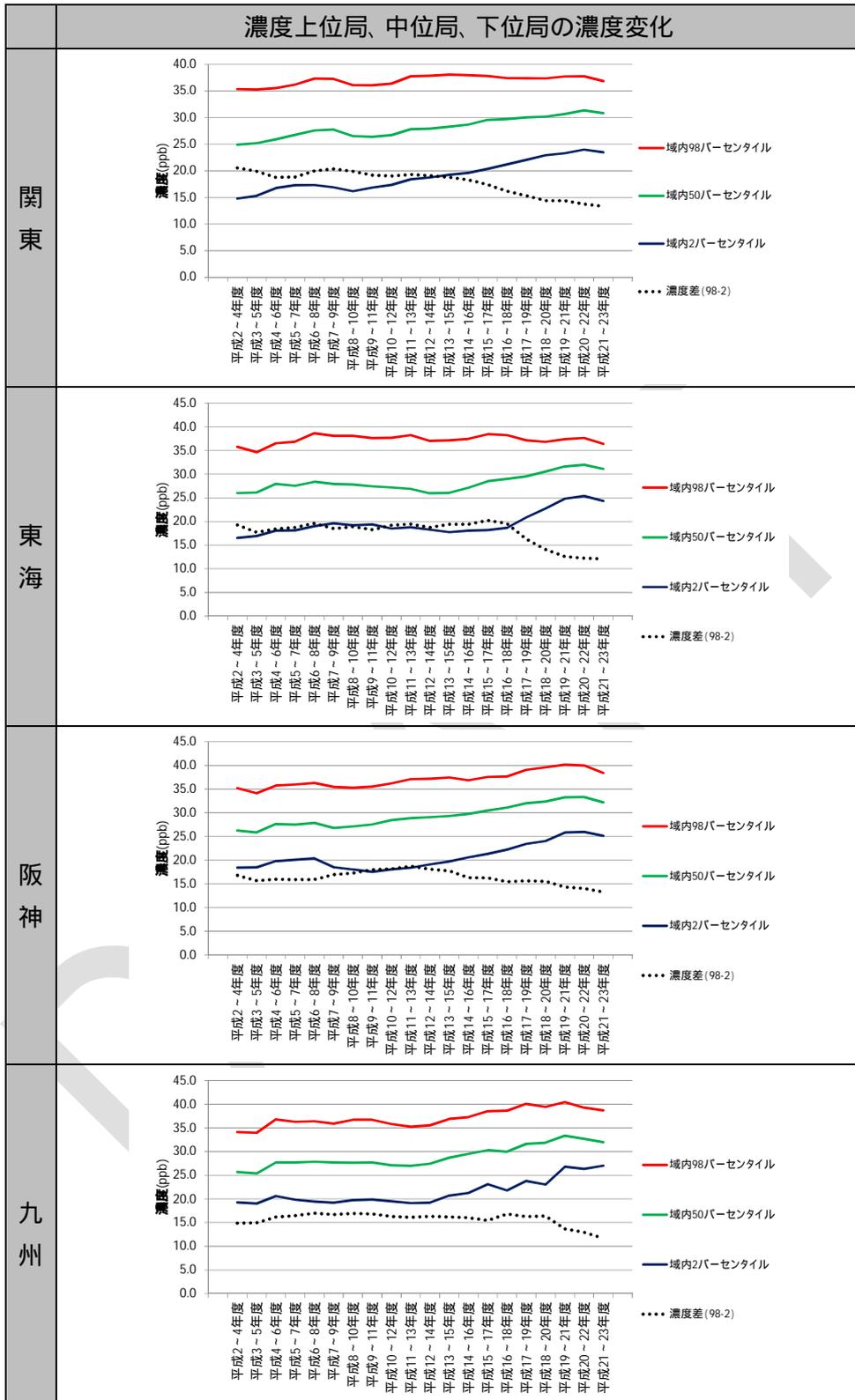


図 3-10 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化

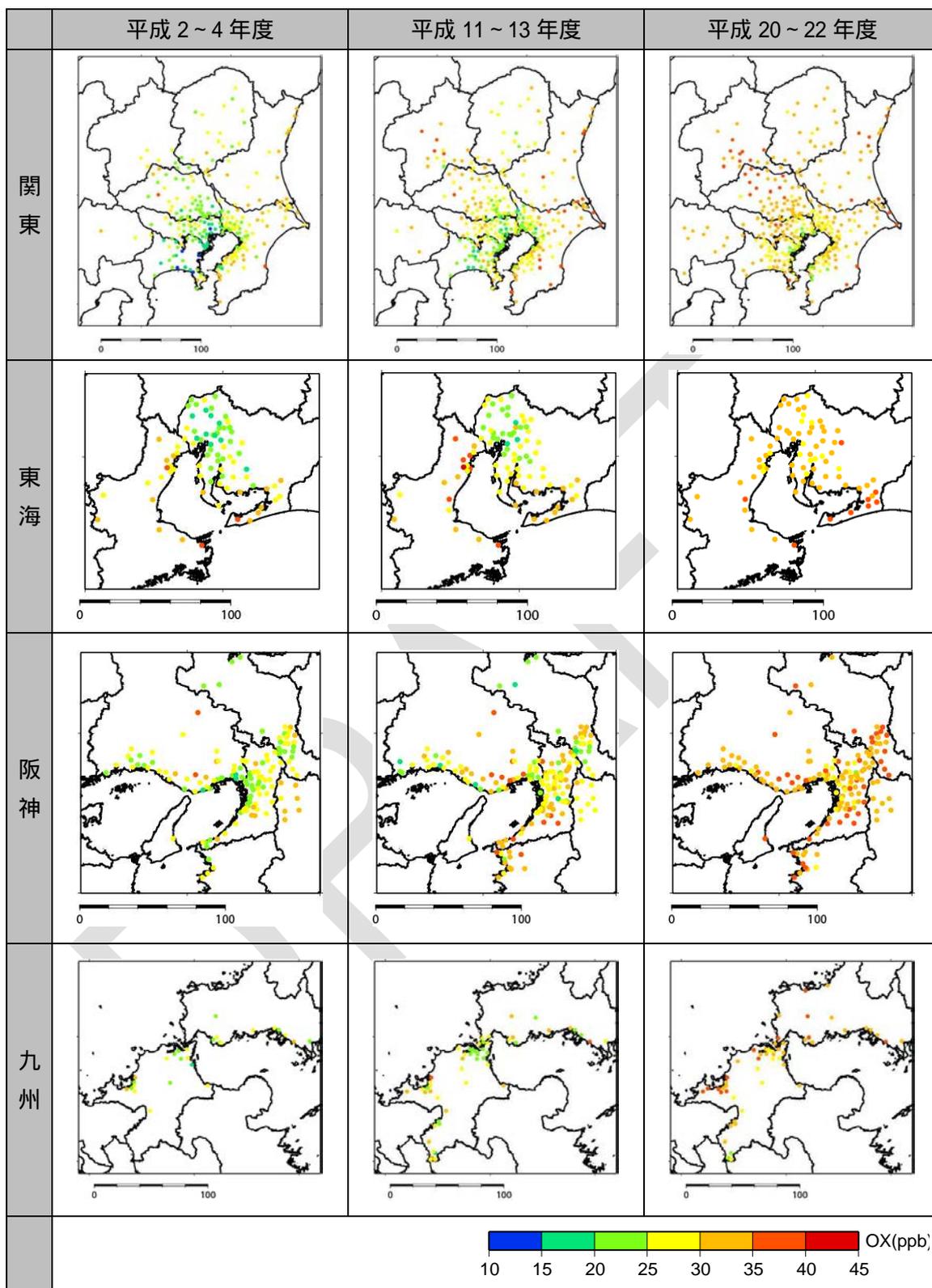


図 3-11 光化学オキシダントの平均的な濃度分布

#### (4) ポテンシャルオゾンを用いた評価

光化学オキシダントの解析により、地域により濃度を上昇させる背景は異なっていた。地域全体の濃度の上昇は、越境汚染などの他の地域からの移流の影響が大きいことが考えられ、濃度低位局の濃度上昇には、光化学オキシダント生成の変化やタイトレーション効果の低下などの地域内の光化学反応の変化が考えられる。

モニタリングデータの解析のみでは、複雑な反応過程を持つ光化学オキシダント生成の変化の影響を検討することは困難であることから、ここでは「タイトレーション効果の低下」と「越境汚染の影響の増大」の影響をポテンシャルオゾンの解析により、定性的な検討を行った。

NO はオゾン(O<sub>3</sub>)と反応しNO<sub>2</sub>とO<sub>2</sub>になるためオゾンを減少させる。この「NO + O<sub>3</sub> → NO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub>」の反応によってオゾン濃度が減少する効果を、ここでは「NO タイトレーション (titration) 効果」と呼ぶこととする。オゾン濃度の変動要因についてオゾン濃度だけに注目した場合、オゾン生成そのものによるものが、タイトレーションによるオゾン減少によるのかを判断することが困難である。

ポテンシャルオゾン(PO)はNOによるタイトレーションでは変化せず、過酸化ラジカルとNOの反応やオゾンの他地域からの移流の影響などがあつた場合は増加する。このことから、光化学オキシダント濃度の変化量(Ox)とPO濃度の変化量(PO)より以下のことが推定できる。

Ox に比べ PO が小	NO によるタイトレーション効果の影響が大きい
Ox と PO の差が小	地域内生成または他地域からの移流により実質的に Ox 増加

PO濃度の算出は、「平成23年度検討会報告」と同様に次式により算出した。値は日本で推定されてきた一般的な値である「0.1」を使用した。

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - \alpha \times [NO_x] \cdots \cdots (1)$$

α: 発生源におけるNO<sub>x</sub>濃度に対するNO<sub>2</sub>濃度の比率 (= 0.1)

光化学オキシダントの濃度上昇要因の検討のためにポテンシャルオゾンを用いて解析を行った。

## ア. ポテンシャルオゾンの平均的な濃度の経年変化

### i) ポテンシャルオゾンの経年変化

優先解析地域毎のポテンシャルオゾンの経年変化について、昼間の平均値の年平均値の経年変化を整理した。この結果を図 3-12 に示す。参考に、前節で示した光化学オキシダントの経年変化も示している。

関東は、平成 16～18 年度ごろまで横ばい傾向がみられ、その後、やや低下する傾向がみられた。東海は、平成 15～17 年度以降に横ばいからやや低下する傾向が見られた。阪神は平成 17～19 年度頃まで濃度の上昇傾向が見られたがその後は横ばいから低下する傾向が見られた。九州は、平成 12～14 年度以降で濃度の上昇が見られた。

### ii) 光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量

この図から、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量( Ox、 PO)を算出した。この結果を図 3-13 に示す。大陸に近い地域ほど Ox と PO は値が大きく、西日本で越境汚染の影響が大きくなっていることが示唆される。また、いずれの地域でも

Ox は PO を上回っており、タイトレーション効果の低下による濃度上昇が考えられるものの、九州はややその差が小さく、タイトレーション効果の影響の低下は他の地域よりも小さいと考えられる。

Ox = 平成 19～21 年度と平成 11～13 年度とのオキシダント濃度の差

PO = 平成 19～21 年度と平成 11～13 年度とのポテンシャルオゾン濃度の差

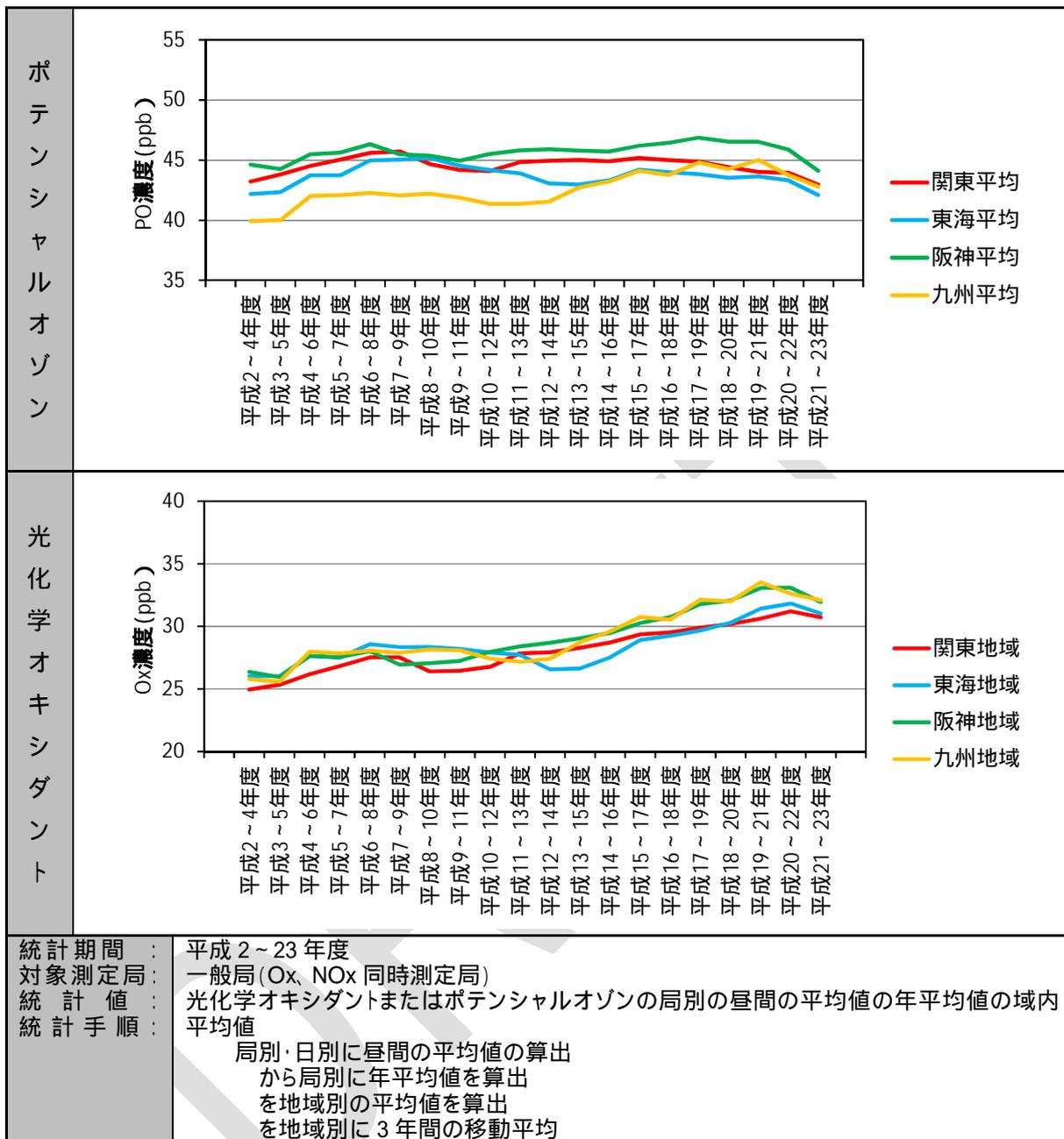
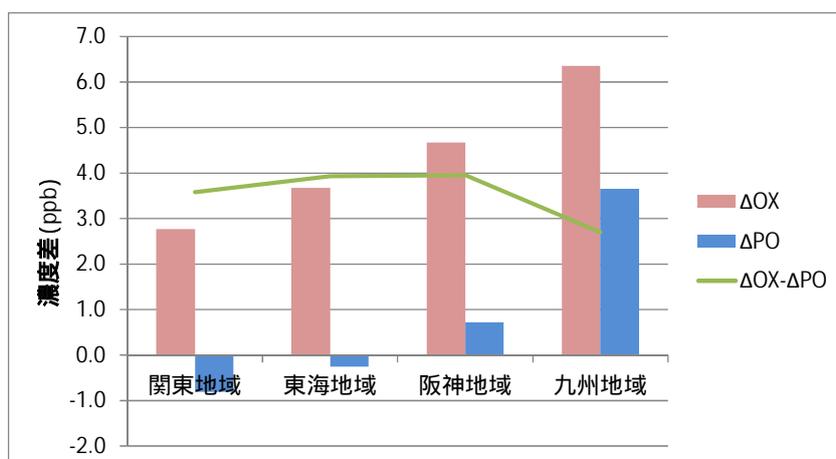


図 3-12 平均的な濃度の経年変化(3年移動平均、OxとPO)



Ox = 平成 19～21 年度と平成 11～13 年度とのオキシダント濃度の差

PO = 平成 19～21 年度と平成 11～13 年度とのポテンシャルオゾン濃度の差

図 3-13 地域別光化学オキシダント濃度及びポテンシャルオゾンの変化量(平成 19～21 年度と平成 11～13 年度との差)

#### イ. Ox と PO の変化量 ( Ox、 PO)の経年変化

光化学オキシダントの平均的な濃度の上昇の要因を検討するために、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量について検討を行った。変化量は、5 個の 3 年移動平均の濃度から回帰分析により傾きを求めた。例えば、平成 2～4 年度から平成 6～8 年度の Ox の場合は、平成 2～4 年度、平成 3～5 年度、平成 4～6 年度、平成 5～7 年度、平成 6～8 年度の Ox 濃度から一次回帰分析により傾きを求めた。年度をずらしながら傾きの経年変化を求めた。PO も同様である。

この結果を図 3-14 に示す。図には Ox と PO の経年変化と、Ox と PO の差も示している。

関東と阪神は、平成 5～7 年度から平成 9～11 年度頃まで Ox と PO に差が見られなかったが、その後は差が大きくなった。東海と九州は平成 10～12 年度から平成 14～16 年度まで Ox と PO に差が見られなかったが、その後は差が大きくなった。ただし、平成 16～18 年度から平成 20～22 年度までの Ox と PO の差は、九州よりも東海のほうが値は大きかった。

Ox と PO に差が生じ始める時期は、自動車 NOx 対策が先行した関東と阪神で早くみられるようになった。また、Ox と PO に差は九州で小さく、越境汚染により実質的に Ox 濃度が上昇したことが考えられる。

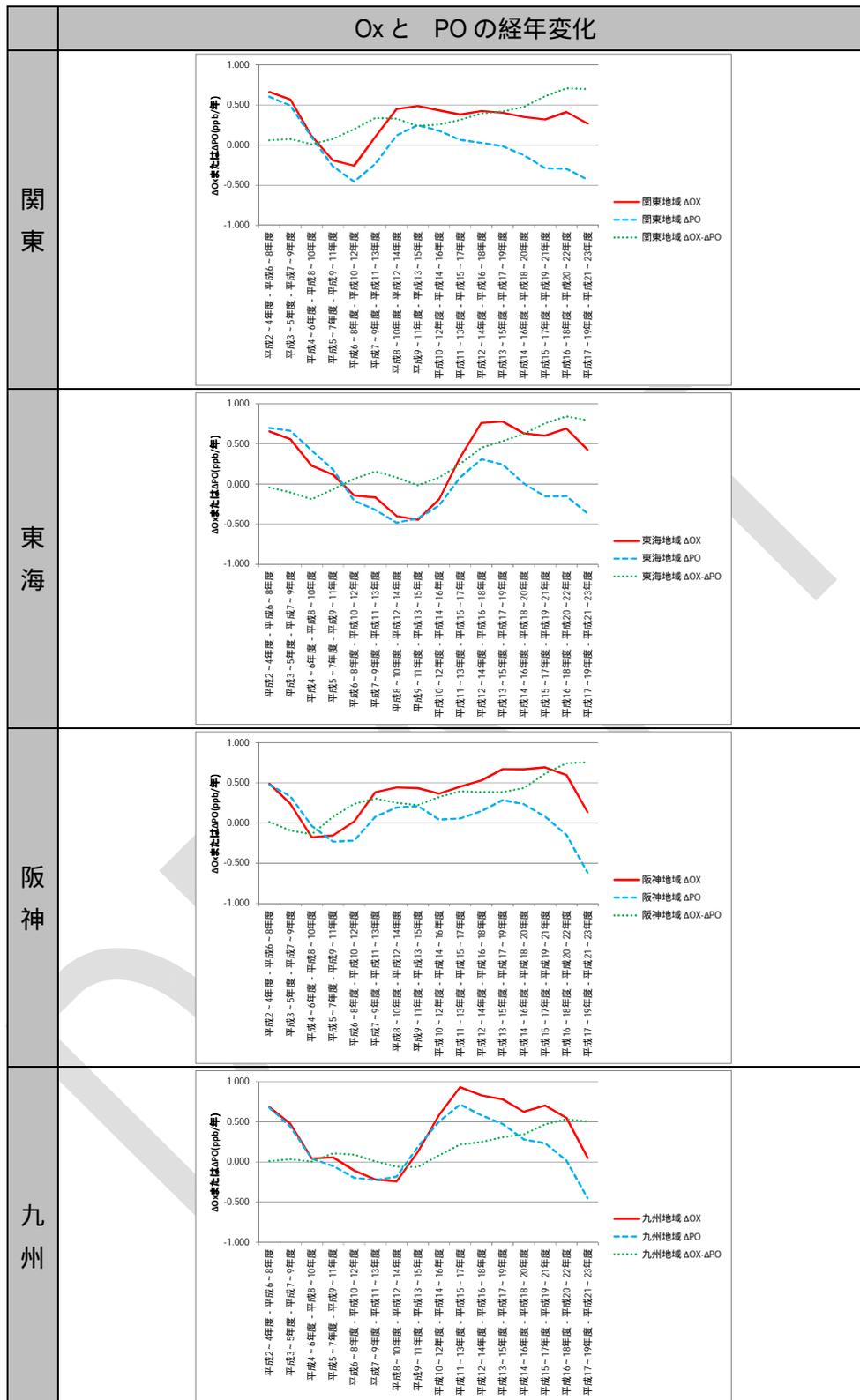


図 3-14 Ox と PO の経年変化

## ウ. ポテンシャルオゾンの平均的な濃度のランク別測定局数の経年変化

### i) PO 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

タイトレーションの影響を受けないポテンシャルオゾンを用いて、平均的な濃度(昼間の平均値の年平均値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ図 3-15 となった。図では、ランク別測定局数を詳細に解析するために 5ppb 毎に濃度ランクを設定した。

関東では、濃度が 50ppb 以上のランクの局数比率は平成 7~9 年度頃から減少する傾向が見られ、40ppb 未満のランクは平成 15~17 年度ごろから比率がやや増加した。

東海は、濃度が 50ppb 以上のランクの局数比率は平成 15~17 年度頃から減少する傾向が見られ、40ppb 未満のランクは平成 12~14 年度ごろから比率は横ばいとなっていた。

阪神は、濃度が 50ppb 以上のランクの局数比率は平成 17~19 年度頃まで横ばいであったが、その後減少傾向が見られ、40ppb 未満のランクは平成 13~15 年度ごろから比率は減少する傾向がみられた。

九州は、濃度が 50ppb 以上のランクの局数比率は平成 19~21 年度頃まで増加がみられ、45 以上のランクは平成 13~15 年度から局数比率が増加する傾向がみられた。40ppb 未満のランクは平成 13~15 年度ごろから比率は減少する傾向がみられ、平成 15~17 年度頃からは横ばいとなっていた。

### ii) PO 濃度別測定局数の度数分布の経年変化

「PO 濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成 2~4 年度、平成 11~13 年度、平成 20~22 年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図 3-16 に示す。年度毎に測定局の総数が変化することから、各断面の総測定局数に対する比率を用いて整理した。

関東と東海の PO は、濃度が高いランクの局数は減少したが、Ox に比べると度数分布の変化は小さい。

阪神は、平成 11~13 年度までは度数に変化が少なかったが、平成 20~22 年度で、濃度ランクが低い局と高い局で局数が減少し、中濃度ランクの局数が増加した。

九州は、低い濃度ランクの局が中濃度にシフトし、平成 20~22 年度には濃度が高いランクの局数が増加した。

### iii) 地域内の濃度上位局と下位局の濃度変化

地域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化の傾向が地域毎に異なっていることが明らかとなった。

そこで、頻度分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度の変化を把握したところ、図 3-17 となった。濃度上位局の濃度として、域内上位 2%目にあたる濃度(域内 98 パーセンタイル値、中位濃度として中央値(域内 50 パーセンタイル値)、下位濃度とし

て域内下位 2%目にあたる濃度(域内 2%パーセンタイル値)の経年変化を整理した。また、濃度差として 98 パーセンタイル値と 2 パーセンタイル値の差も示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は平成 8～10 年度ごろより経年的に低下し、濃度下位局の濃度が横ばいから平成 18～20 年度頃から低下する傾向がみられ、中央値については平成 16～18 年度頃から低下する傾向が見られた。

東海は、濃度上位局の濃度は平成 10～12 年度頃から横ばいで平成 20～22 年度にやや低下した。濃度下位局は低下の傾向が見られたが、平成 19～21 年度ごろからやや上昇し、中位濃度は平成 16～17 年度から横ばいとなっていた。

阪神は、濃度上位局で平成 14～16 年度から横ばい傾向で、同じころから濃度下位局は上昇傾向が見られた。中位濃度は、やや上昇する傾向がみられた。

九州は、平成 12～14 年度から平成 19～21 年度に濃度上位局で濃度の上昇がみられ、下位局で経年的に濃度の上昇がみられた。中位濃度も平成 12～14 年度から上昇する傾向がみられた。

#### iv) ポテンシャルオゾンの空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から関東・東海で測定局数の度数分布に変化が少なく、九州は濃度が高い側にシフトする傾向がみられた。ポテンシャルオゾンの空間分布に変化があるかどうかを確認するために、平成 2～4、11～13、20～22 年度の 3 年移動平均濃度について濃度の空間分布図を作成した。この結果を図 3-18 に示す。

平成 11～13 年度と平成 20～22 年度の分布を比較すると、関東では、平均的な濃度が高かった東京都や神奈川県で濃度の低下、埼玉県と栃木県などで濃度の上昇、千葉県では濃度が低下するなど地域差が見られた。東海は臨海部の濃度は低下したものの、名古屋では濃度が上昇し、愛知県と岐阜県境では濃度の低下が見られた。

阪神については、大阪府で濃度は低下したが、京都府で濃度の上昇が見られた。

九州は北九州市付近で濃度の上昇がみられた。



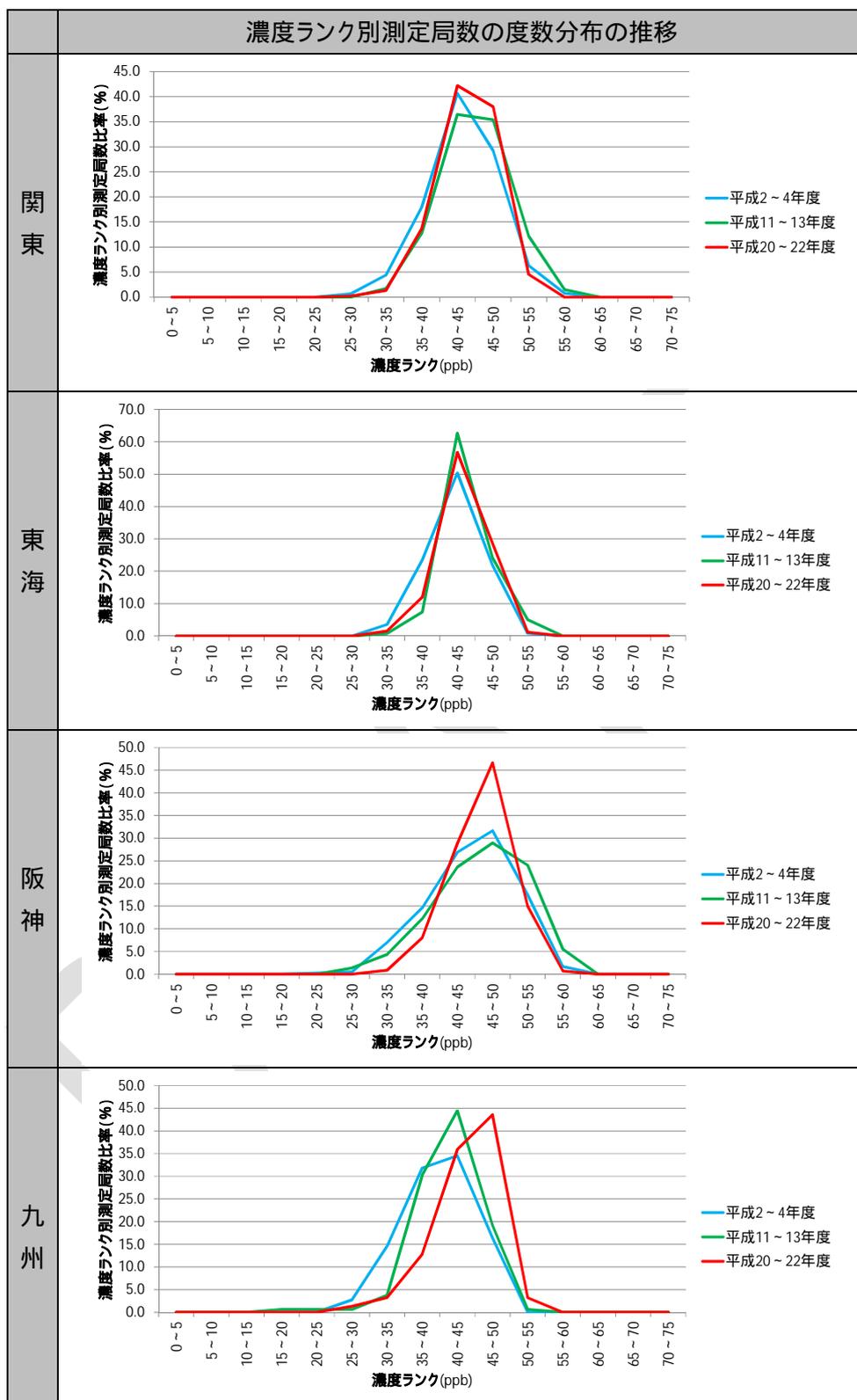


図 3-16 年平均濃度ランク別測定局数比率の経年変化(ポテンシャルオゾン)

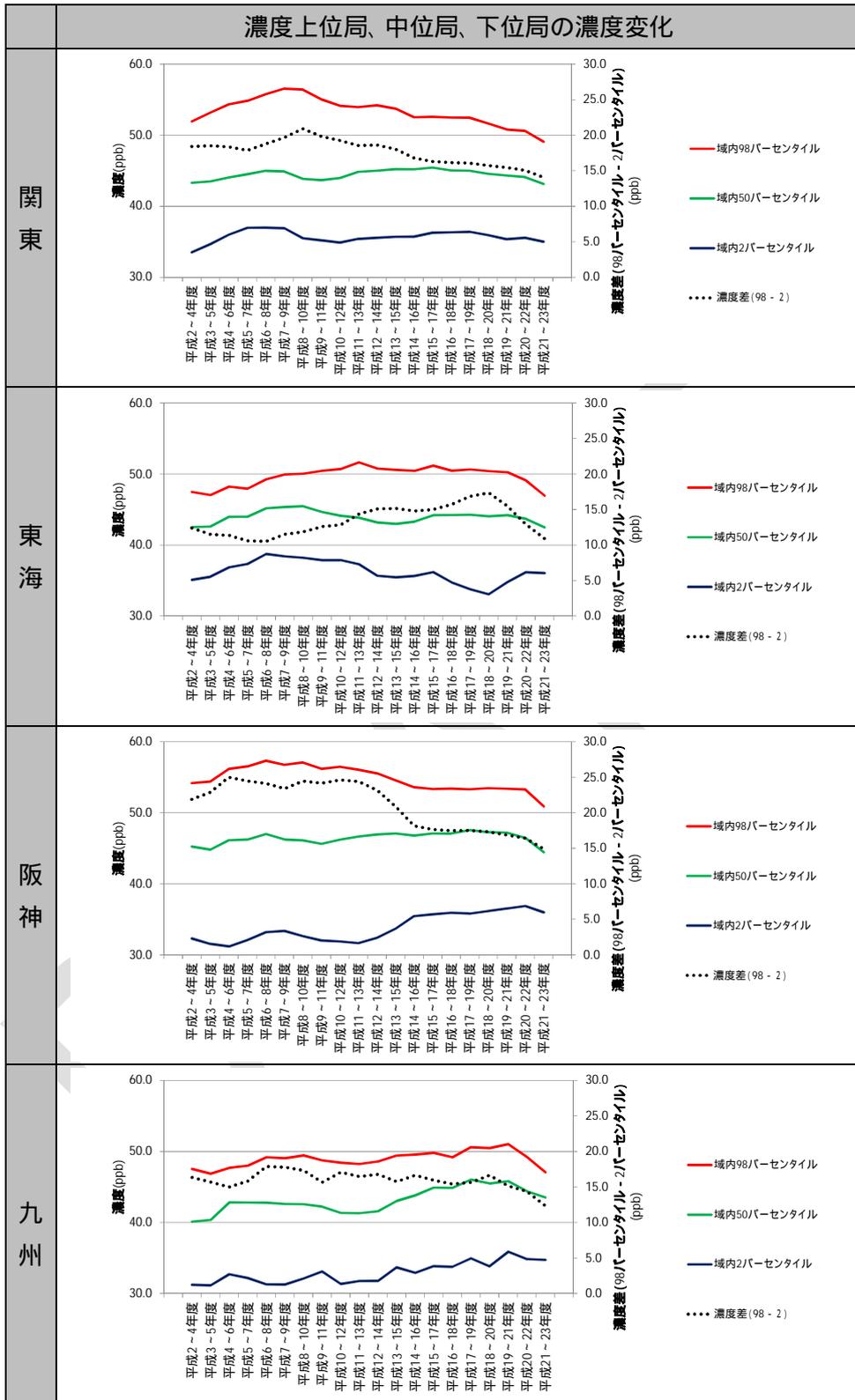


図 3-17 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化(ポテンシャルオゾン)

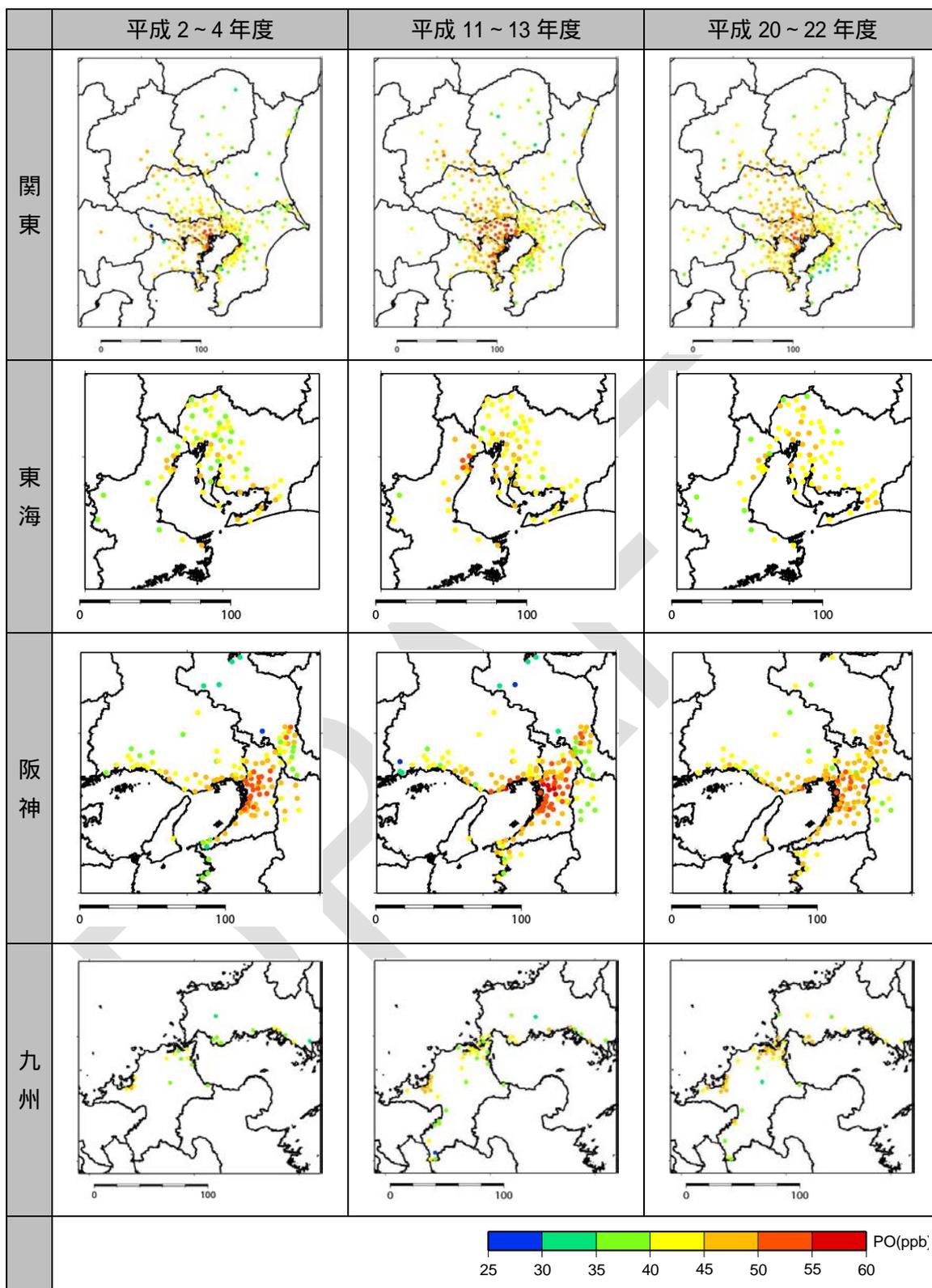


図 3-18 ポテンシャルオゾンの平均的な濃度分布

## エ. まとめ

光化学オキシダントの平均的な濃度を上昇させる3つの要因のうち、「タイトレーション効果の低下」と「越境汚染の影響の増大」についてポテンシャルオゾンを用いた解析により検討を行った。

- ポテンシャルオゾンの平均濃度は、東日本では低下傾向がみられるようになり、大陸に近い日本の西側の地域ほど濃度の上昇が大きくなる傾向が見られた。
- 関東の地域内の測定局濃度の上位局は濃度の低下がみられ、下位局は濃度が低下した。九州は、上位局も下位局ともに濃度の上昇が見られた。
- 濃度変化量の経年変化( Ox と PO)の解析から、オキシダントとポテンシャルオゾンの濃度変化量のかい離は、窒素酸化物濃度の低下時期と概ね一致しており、「タイトレーション効果の低下」が一つの要因として考えられる。
- 九州のオキシダント濃度の上昇が見られはじめた平成 11～13 年度と平成 20～22 年度との濃度差( Ox と PO)を解析したところ、Ox と PO は大陸に近い地域ほど値が大きく、かつ Ox と PO の差が小さくなる傾向があり、九州は実質的な Ox 濃度の上昇があったと考えられる。

#### (5) 光化学オキシダント等の平均的な濃度と前駆物質の関係

窒素酸化物と非メタン炭化水素の経年変化に光化学オキシダント濃度の経年変化を重ね、これらの関係について検討した。ここでは、窒素酸化物と非メタン炭化水素の一般環境局の年平均値が、これらの排出量の経年変化と比例していると考え、光化学オキシダント濃度と比較した。前駆物質と光化学オキシダントの昼間の平均値の関係を図 3-19 に示す。光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの濃度変化量は、要因検討のために重要な指標であることから、平成 2～4 年度に対する濃度差を求め、経年変化を検討した。また、各地域の主な都府県別の経年変化を図 3-20 と図 3-21 に示す。

関東と阪神の光化学オキシダントの濃度は、平成 8～10 年ごろから上昇が見られ、ポテンシャルオゾンとの濃度に差が生じる時期も同時期であり、これ以降、オキシダントとポテンシャルオゾンの濃度差が広がった。窒素酸化物が平成 8～10 年ごろまでは横ばいとなっていたが、その後、低下していた。窒素酸化物の濃度変化とオキシダント等の変化時期は一致していた。

関東の都県別状況を見ると、窒素酸化物の変化時期は東京都、埼玉県、茨城県で概ね一致したが、濃度の低下量は東京都が最も大きく、埼玉県、栃木県の句であった。窒素酸化物の低下量が大きな東京都ではポテンシャルオゾンの傾向は、低下する傾向を示し、光化学オキシダントとの濃度差も大きくなった。また、栃木県はオキシダントとポテンシャルオゾンとの濃度差が平成 17～19 年度ごろから見られるようになり、関東の地域内でも傾向が異なっていた。

阪神の府別状況を見ると、大阪府と京都府で窒素酸化物の濃度低下が始まる時期に差が見られ、自動車 NOx 法対象地域を含む大阪府は平成 8～10 年度頃まで横ばいでその後低下、自動車 NOx 法対象地域でない京都府では平成 10～12 年度頃まで横ばいが続いた。光化学オキシダントとポテンシャルオゾンとの濃度差が生じる時期も差が見られた。

東海の光化学オキシダントの濃度上昇時期は平成 13～15 年度頃で、この時期からポテンシャルオゾンとの濃度差が見られるようになった。窒素酸化物は平成 13～15 年度まで横ばいでその後低下傾向を示しているが、関東と同様に窒素酸化物の低下が始まる時期と光化学オキシダント等の変化の時期は一致している。

九州の光化学オキシダントは、平成 12～14 年度頃から濃度の上昇が見られ、他の地域と同様にその時期からポテンシャルオゾンとの濃度差が生じ始めた。窒素酸化物はそれ以前の平成 8～9 年度頃から低下が見られ、他の地域とは傾向が異なっていた。

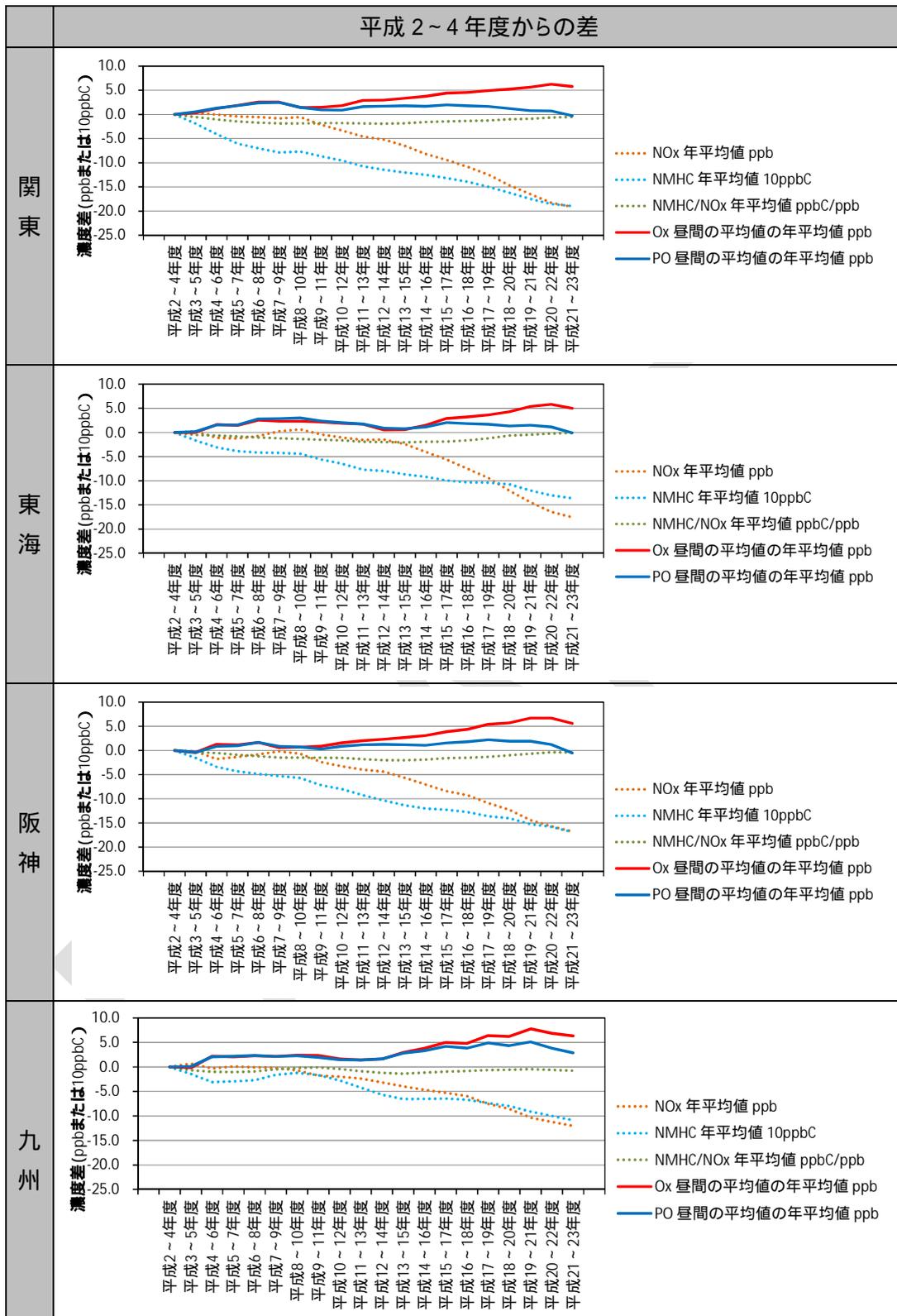


図 3-19 前駆物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

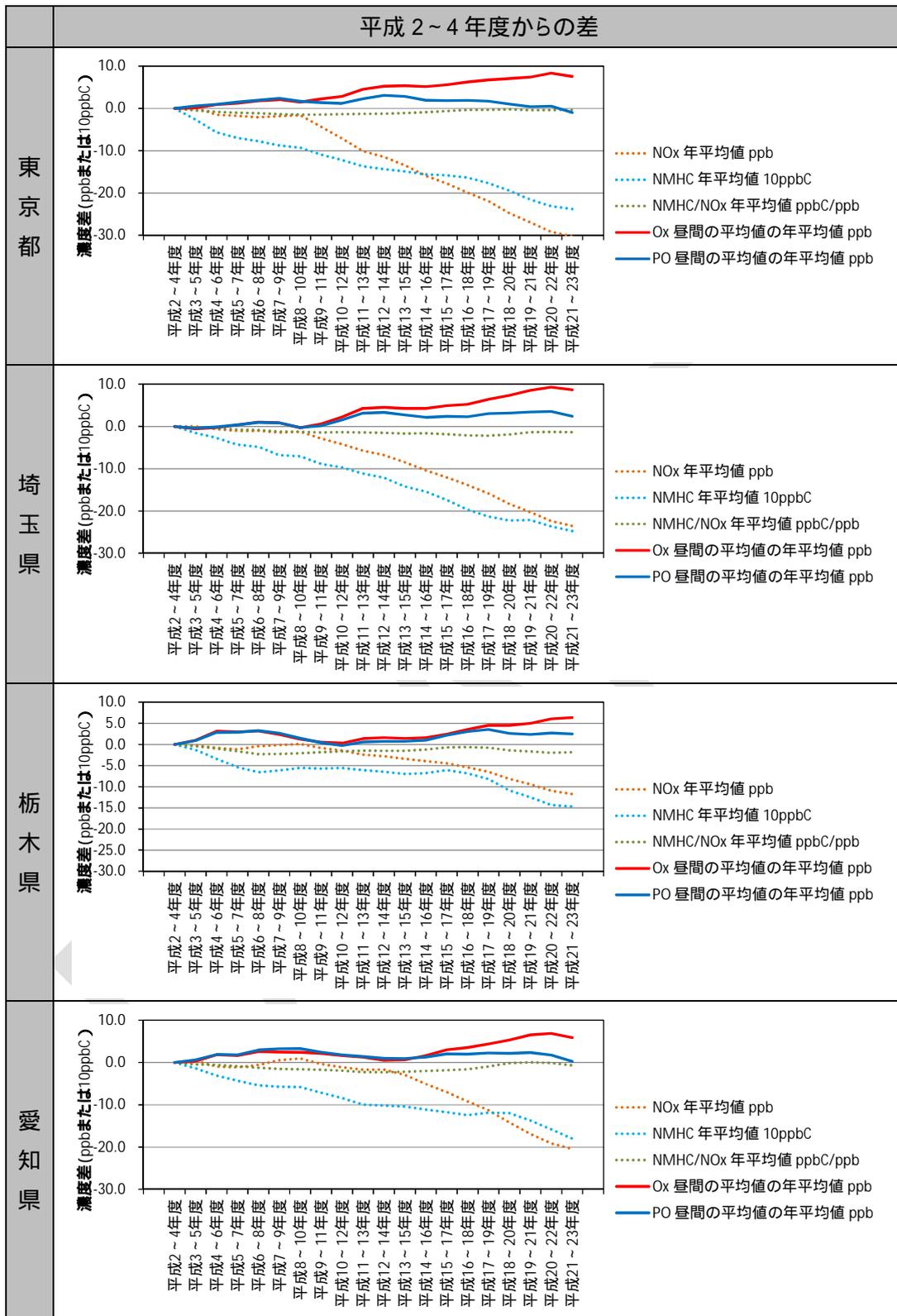


図 3-20 前駆物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

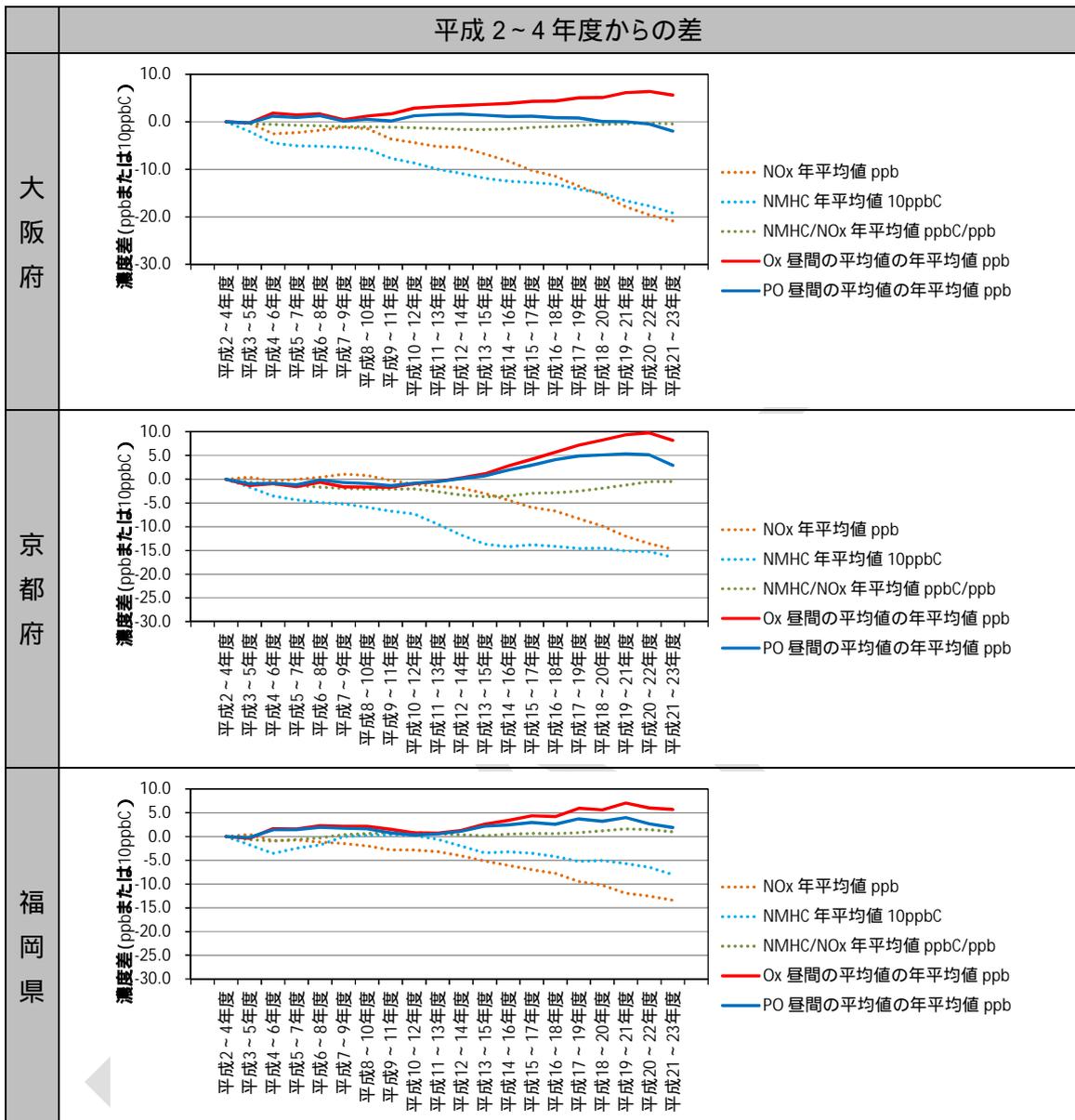


図 3-21 前駆物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

## (6) 季節別濃度の経年変化

平均的な濃度の上昇の要因のうち、越境汚染は春季に卓越し、地域内の光化学オキシダント生成は夏季に卓越すると考えられる。春季は、移動性高気圧や低気圧の移動に伴って、汚染物質を含む空気塊が移流し、大陸で発生した光化学オキシダントが日本に到達することによって、国内で高濃度を発生されることがある。夏季は、日本を太平洋高気圧が覆うことで、越境汚染は発生しにくくなる一方で、国内の汚染物質による光化学反応が卓越することにより、高濃度が出現しやすくなる特徴がある。

これらの特徴が顕著となる春と夏の光化学オキシダントの状況を整理した。ここで、春は4～5月、夏は7～8月を統計期間として設定した。

### ア. 季節別 Ox と PO の平均的な濃度の経年変化

4～5月(春)、7～8月(夏)として、各季節の平均的な濃度の経年変化を整理した。この結果を図 3-22 及び図 3-23 に示す。また、平成 19～21 年度と平成 11～13 年度の差(Ox と PO)を季節別・地域別に比較した。この結果を図 3-24 に示す。

4～5月(春)の Ox は、各地域共に濃度が上昇する傾向がみられ、特に九州地域での濃度上昇が大きくなっている。PO で見るとその傾向は顕著であった。この傾向はオキシダントとポテンシャルオゾンの平成 19～21 年度と平成 11～13 年度の差(Ox と PO)にも表れており、大陸に近い西日本で Ox と PO が共に大きく、また Ox と PO の濃度差も小さくなっていた。

一方、7～8月(夏)は、Ox と Po の両方で濃度の上昇が見られた。関東と阪神の Ox は横ばいからであり、PO については濃度の低下が見られた。東海の Ox は濃度が上昇したが、PO は平成 15～17 以降横這いとなっていた。

### イ. 季節別濃度ランク別測定局数比率の度数分布

図 3-25 に季節別光化学オキシダント濃度のランク別測定局数比率を示す。同様に、図 3-26 にポテンシャルオゾンのランク別測定局数比率を示す。

関東は、春の光化学オキシダントは比較的幅広い濃度範囲に測定局が分布したが、平成 20～22 年度には 45～50ppb のランクに局が集中した。ポテンシャルオゾンは平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけては最多頻度の濃度ランクは変化が見られず、一層集中が進んだ。夏季のオキシダントは最多局数ランク以上の濃度ランクの局数が増加した。ポテンシャルオゾンで見ると高い濃度ランクの測定局数は減少が見られた。

九州は春に光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの両方で度数分布は高い側へシフトが見られた。夏は、高い側の濃度ランクは変化が少なく、春とは傾向が異なっていた。

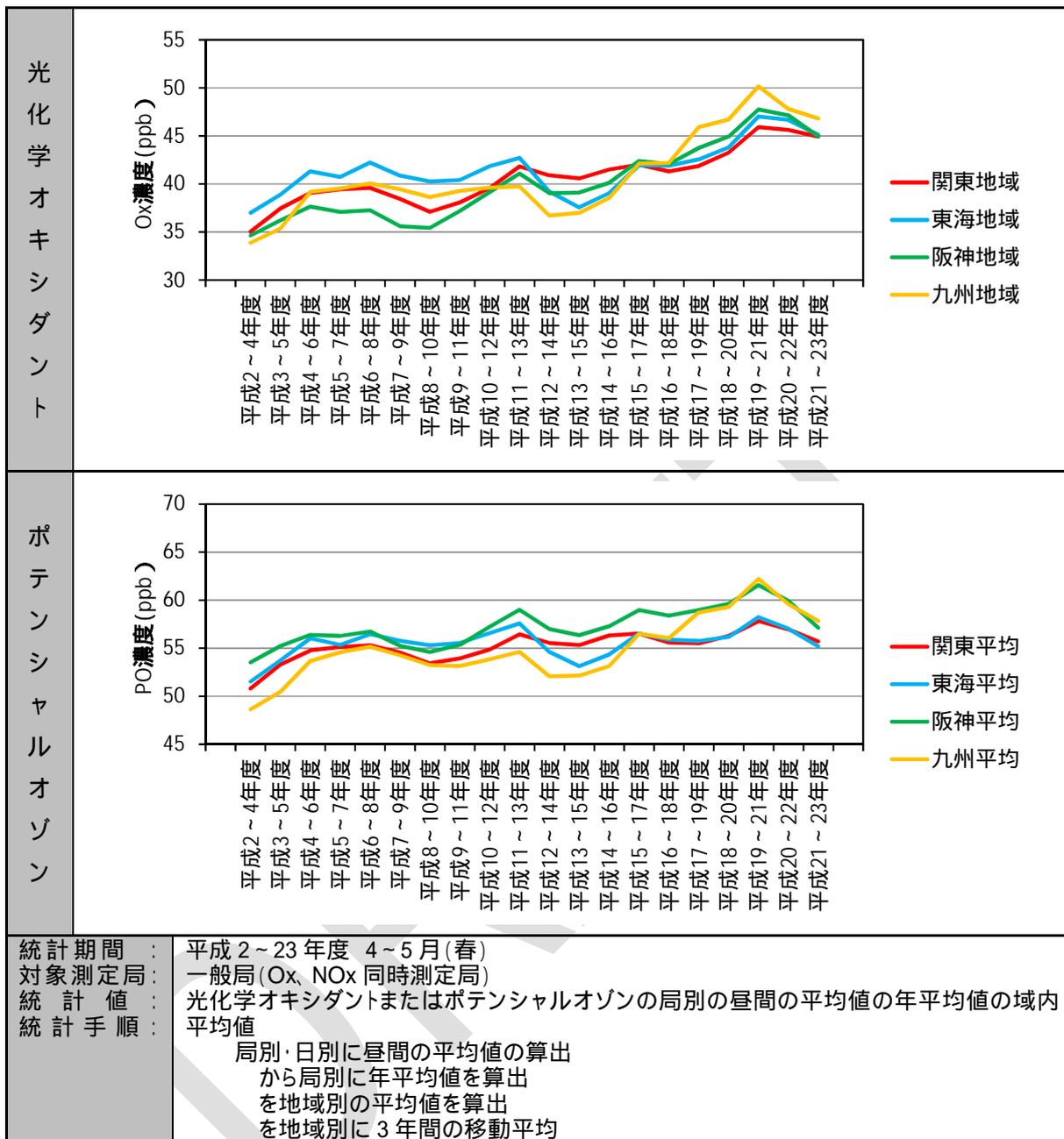


図 3-22 春季の光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの経年変化

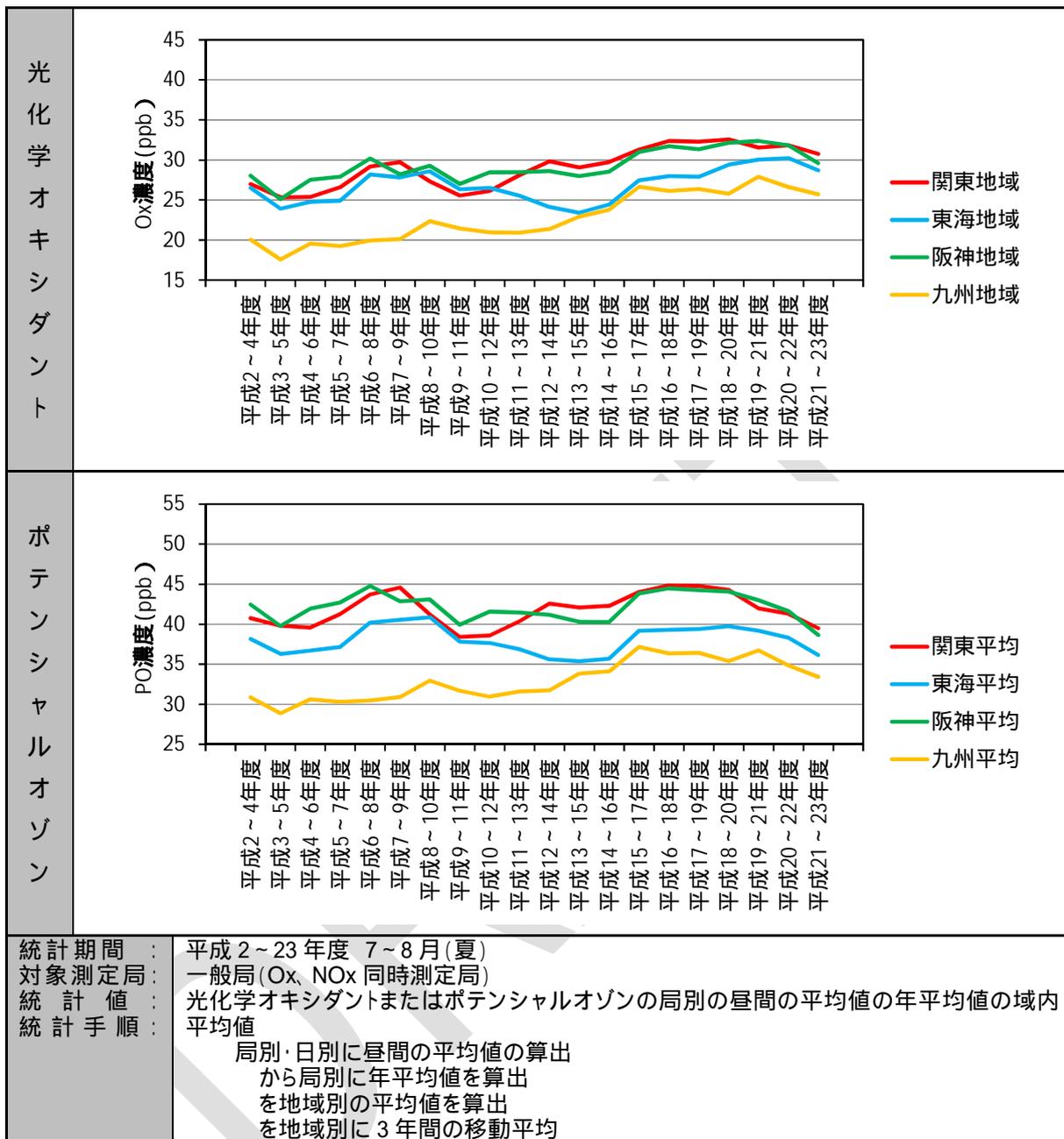


図 3-23 夏季の光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの経年変化

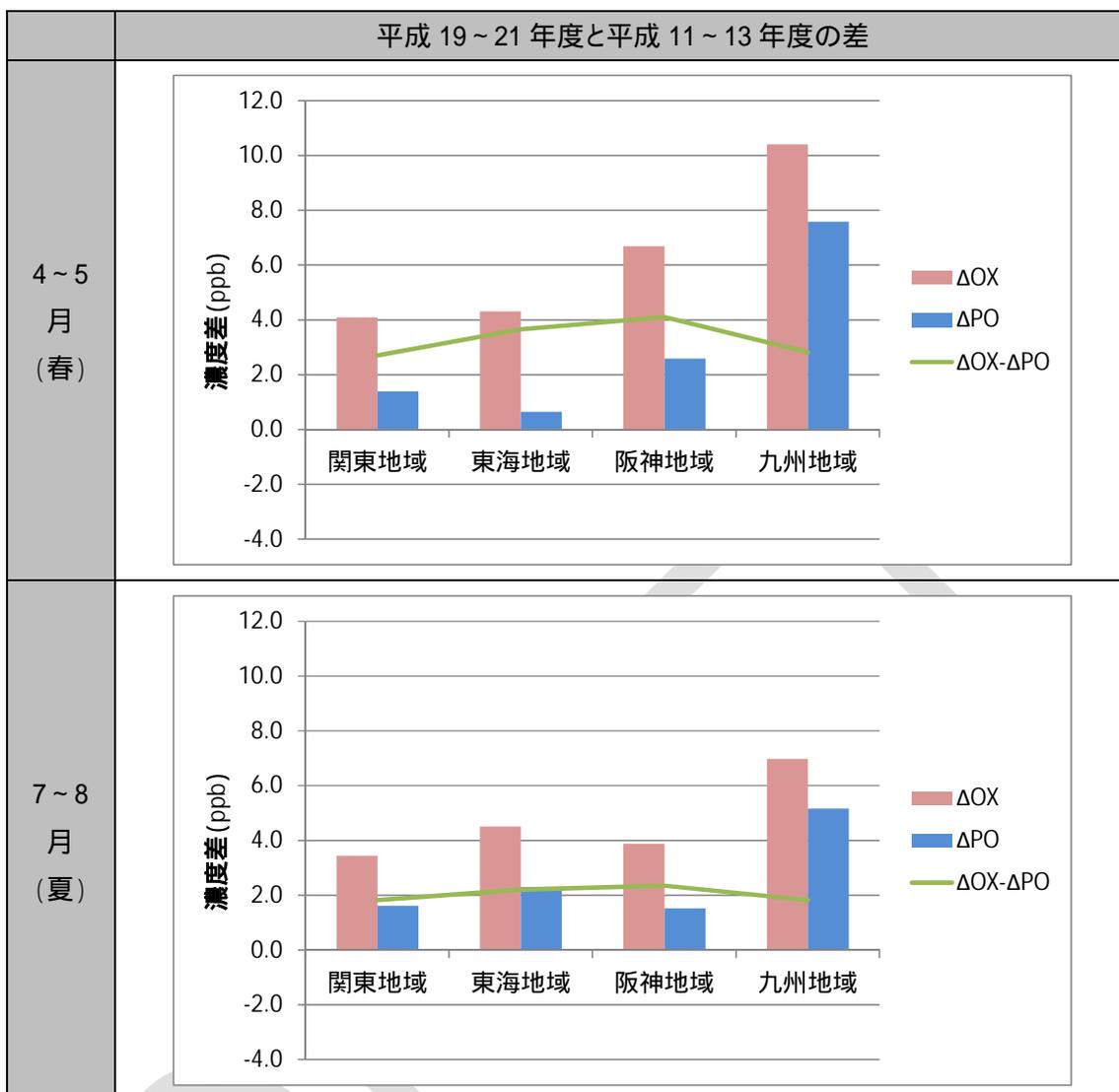


図 3-24 季節別の Ox と PO の比較 (平成 19～21 年度と平成 11～13 年度の差)

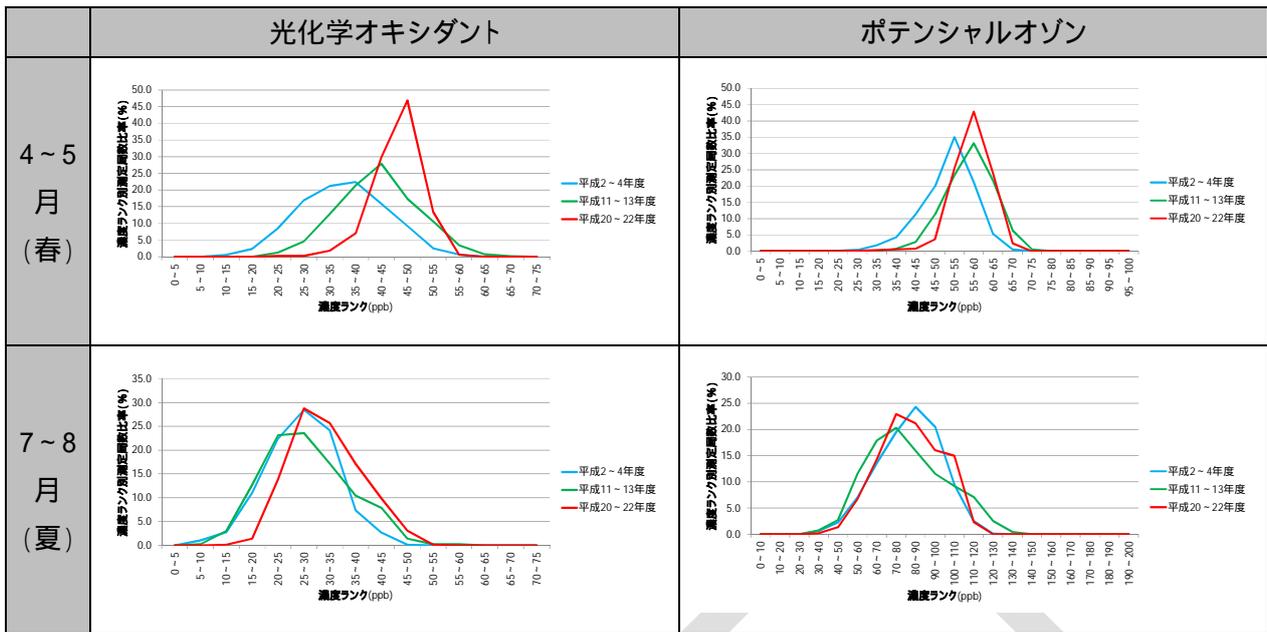


図 3-25 季節別の平均的な濃度の経年変化(関東)

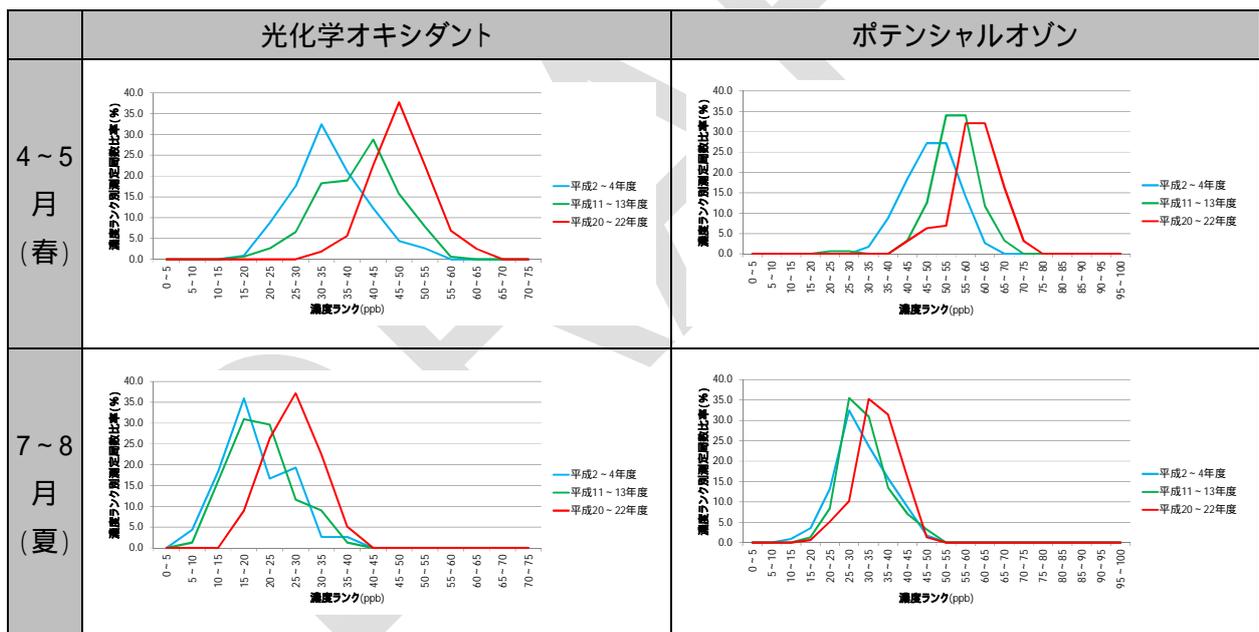


図 3-26 季節別の平均的な濃度の経年変化(九州)

#### (7) 平均的な濃度上昇の要因(まとめ)

昼間の平均値の年平均値は長期的に濃度の上昇が見られた。この要因を検討するために、濃度ランク別測定局数比率やポテンシャルオゾンなどを用いて解析を行った。この結果、以下のとおりであった。

- 光化学オキシダントの平均的な濃度(昼間の平均値の年平均値)は、各地域とも長期的に濃度の上昇が確認できた。
- ポテンシャルオゾンの平均的な濃度(昼間の平均値の年平均値)は、東日本の関東で濃度が低下する傾向が見られ、西日本では濃度の上昇が見られた。
- 窒素酸化物の濃度の低下が始まる時期は、地域により異なり、自動車対策が先行した関東・阪神は平成8～10年度頃を境に濃度の低下が始まり、東海は平成13～15年度頃から始まった。
- 光化学オキシダントの平均的な濃度を経年的に上昇させた大きな要因として「前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」、「タイトレーション効果の低下」、「越境汚染の影響の増大」が考えられた。この要因を検証するために、濃度ランク別測定局数の状況、地域内の濃度上位局・下位局等の経年変化、ポテンシャルオゾンの解析、前駆物質との関係について解析した。
- 東日本を中心に、Ox濃度は、平均的な濃度が低かった局を中心の濃度の上昇が見られ、高い局の濃度は変化がなかった。窒素酸化物の濃度が低下を始めた時期に、Ox濃度の上昇が見られるようになったものの、ポテンシャルオゾンは横ばいから低下する傾向が見られた。また、季節別の解析により、春季のOxとPOは濃度の上昇が見られ、夏季のOxとPO濃度は横ばいか低下する傾向が見られた。
- 九州は、地域全体のOx濃度の実質的な上昇が見られ、春季にその傾向が大きかった。OxとPOの変化量の解析から、他の地域よりも変化は小さいものもタイトレーション効果の低下も見られた。
- 本解析の結果、いずれの地域においても濃度の上昇の要因として、「タイトレーション効果の低下」と「越境汚染の影響の増大」が見られた。
- 東日本では、このうち、「タイトレーション効果の低下」の影響が相対的に大きくなったことが地域の平均的な濃度を上昇させたと考えられる。
- 西日本では、「越境汚染の影響の増大」が相対的に大きくなったことが、地域の平均的な濃度を上昇させたと考えられる。
- なお、モニタリングデータに基づく解析だけでは、「前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」はこの他の要因と分離して検討することは困難であり、シミュレーション等に基づく解析が必要となる。

### 3.2.4 光化学オキシダントの高濃度が改善した要因の検討

#### (1) 光化学オキシダントの高濃度が改善した要因として考えられる要因

「1.3.2(2) 光化学オキシダントの高濃度の経年変化」の解析の結果、光化学オキシダントの高濃度は地域により改善する傾向が見られた。

また、「平成 23 年度検討報告」においても「気象条件を統一した統計により光化学オキシダントの高濃度は改善が見られた」と報告した。この報告では、「従来より進められてきた NOx 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てき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」とした。

本解析では、優先解析地域での高濃度の改善傾向の状況とその要因を検討する解析を行った。高濃度の抽出としては、日別に算出した昼間(5～20 時)の 1 時間値の最高値から年間の 98 パーセンタイル値を求め、地域毎に統計した。

表 3-4 光化学オキシダントの高濃度の改善要因

要因	内容
NOx・VOC 排出削減対策による効果	<p>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 パーセンタイル値は、平成 17～18 年度付近を境に濃度の推移に変化がみられ、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濃度でも見られ、特に東京や大阪における非メタン炭化水素濃度はこの年度付近を境に低下に転じているのが明瞭であり、その他の知己も概ね低下傾向を示している。また、窒素酸化物も近年は低下傾向を示している。</p> <p>VOC 排出抑制制度は平成 18 年度より施行されており、光化学オキシダントや非メタン炭化水素濃度のトレンド変化が見られた年度と概ね一致する。</p> <p>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 NOx 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。</p>

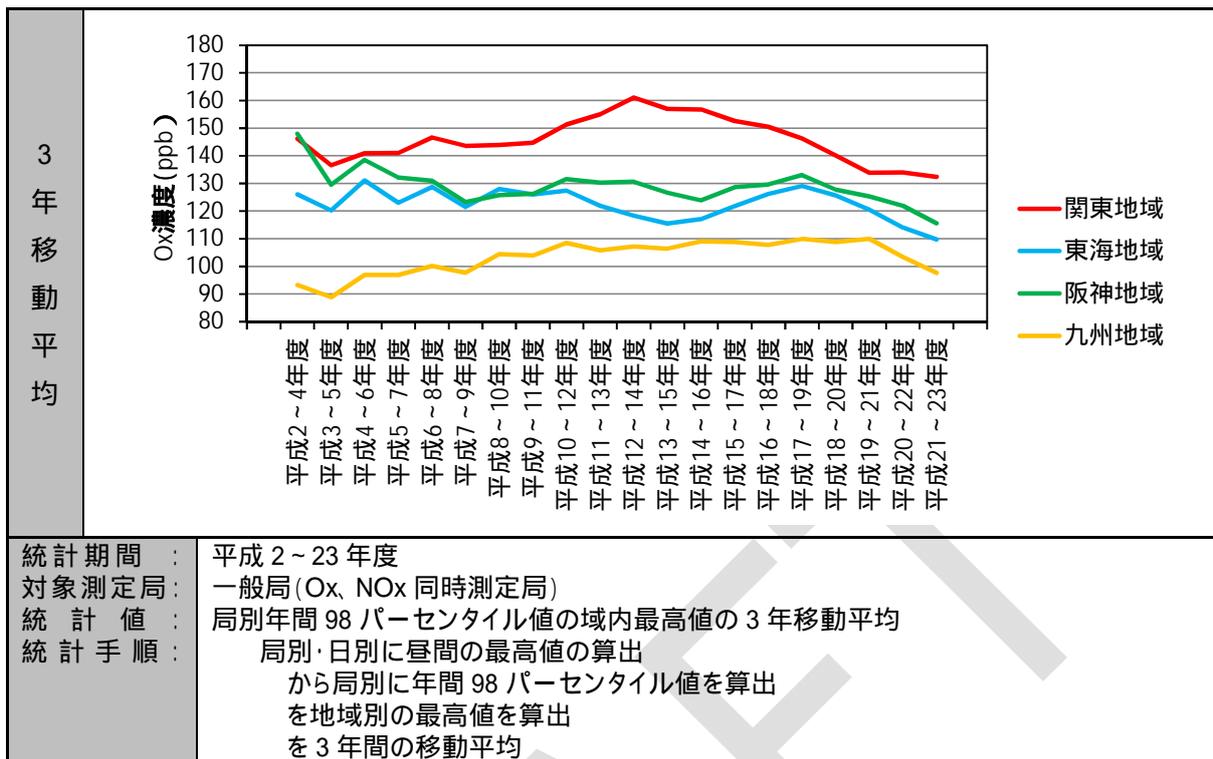


図 3-27 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3 年移動平均、域内最高値)

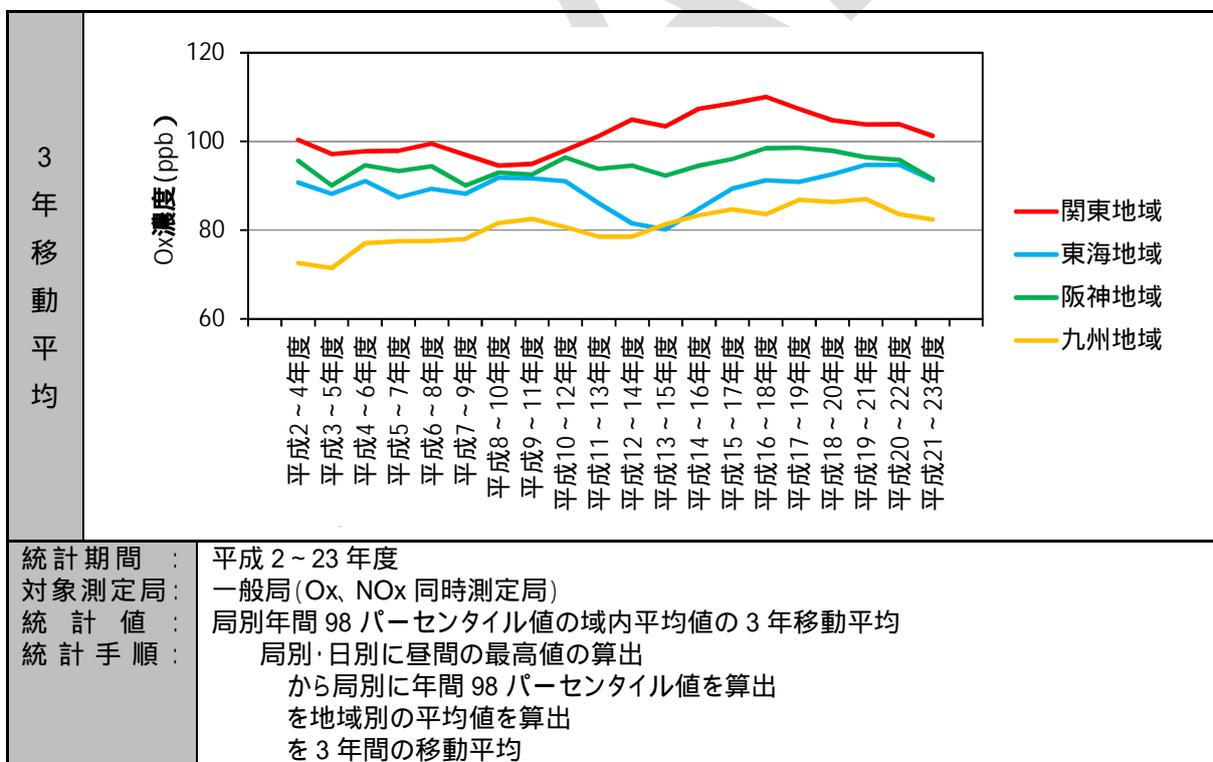


図 3-28 光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3 年移動平均、域内平均値)

## (2) 光化学オキシダントの高濃度の濃度ランク別測定局数の経年変化

### ア. 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

光化学オキシダントの高濃度(昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ図 3-29 の結果となった。

関東は、120ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少する傾向が見られ、80～100ppb の局数が増加した。

東海は、120ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少する傾向がみられ、90～110ppb の局数が増加、平成 14～16 年度以降で90ppb 以下の局数が減少する傾向がみられた。

阪神は、120ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少する傾向が見られ、90～100ppb の局が増加した。90ppb 以上の局数は減少する傾向がみられた。

九州は、120ppb を超える局はなかったが、90ppb を超える局は平成 19～21 年度まで増加する傾向が見られ、70ppb 以下の局は平成 13～15 年度ごろから減少する傾向がみられた。

### イ. 濃度ランク別測定局数の度数分布の経年変化

「濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図 3-30 に示す。年度毎に地域内の測定局の総数が変化することから、各断面の総測定局数に対する比率を用いて整理した。

関東は、平成 20～22 年度には濃度の高位局と低位の局数が減少し、90～100ppb のランク付近に出現局が集中するようになった。

東海は、平成 20～22 年度に 130ppb 以上の高濃度局の出現が無くなったものの、低位局が中位ランクにシフトし、100～110ppb 付近に出現局が集中するようになった。

阪神は、平成 20～22 年度に高位局と低位局の出現が減少し、中位ランクに出現が集中するようになった。

九州は他の地域と異なり、濃度が高位の測定局数で増加の傾向が見られ、最多頻度ランクの濃度上昇が見られた。

### ウ. 地域内の濃度上位局と下位局の濃度変化

地域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化が地域により異なることが明らかとなった。

そこで、度数分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度変化を把握したところ、図 3-31 となった。濃度上位局の濃度として域内上位 2% 目に当たる濃度(域内測定局濃度の 98 パーセンタイル値)、中位濃度として中央値(域内の測定局濃度の 50 パーセンタイル値)、下位の濃度として域内濃度の下位 2% に当たる濃度(域内 2 パーセンタ

イル値)の経年変化を整理した。また、上位局と下位局の濃度差として98パーセンタイル値と2パーセンタイル値の差も示した。参考に域内最高値についても示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は、平成12～14年度から平成16～18年度まで横ばいで、それ以降低下する傾向が見られた。下位局の濃度は、平成16～18年度以降は横ばいとなっていた。また、中位局の濃度は平成16～18年度まで濃度の上昇が見られたその後は低下した。

東海は、域内の濃度上位局の濃度は、平成16～18年度をピークにしてそれ以降は低下傾向が見られたものの、下位局は同時期より濃度の上昇が見られ、中位局も上昇した。

阪神は、域内の濃度上位局の濃度は、平成16～18年度ごろまで横ばいの傾向が見られ、その後は低下傾向が見られた。下位局は経年的に上昇傾向が見られ、中位濃度は、平成16～18年度ごろから横ばいであった。

九州は、域内の濃度上位局の濃度は、経年的な上昇傾向が見られたが平成17～19年度ごろから横ばいからやや低下する傾向となった。中位局は平成13～15年度から平成19～21年度にかけて上昇する傾向が見られ、低位局は平成13～15年度から上昇傾向が続いている。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向がみられた。

## エ. 光化学オキシダント濃度の空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から、関東・東海・阪神で濃度高位局の濃度が低下、低位局の濃度は横ばいまたは上昇する傾向が見られ、九州は、高位局の濃度は上昇から横ばい、低位局の濃度は上昇する傾向が見られた。

この傾向と、地域内の濃度分布の変化の関係を検討するために、平成2～4年度、平成11～13年度、平成20～22年度の濃度分布を整理した。濃度分布は、測定局毎に昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値を3年移動平均した結果を用いた。

関東は、平成11～13年度から平成20～22年度にかけて、東京都、埼玉県、群馬県に見られた高濃度は改善が見られ、千葉県も濃度の低下が見られた。平成11～13年度に濃度が低かった神奈川県、栃木県、茨城県は濃度の上昇が見られた。

東海は、平成11～13年度から平成20～22年度にかけて、濃度が比較的低い傾向のあった愛知県で濃度の上昇が見られ、三重県は北勢地域での濃度の低下が見られた。地域全体の濃度レベルが一定となる傾向がみられた。

阪神は、平成11～13年度から平成20～22年度にかけて、濃度が高かった大阪府南部で濃度の低下が見られ、大阪府北部から京都府にかけては濃度の上昇が見られた。

九州は、平成11～13年度から平成20～22年度にかけて、地域全体で濃度の上昇

が見られ、80～100ppbの局が多くなった。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向は濃度分布にも見られ、高濃度局は濃度が低下、低濃度局は濃度が上昇する傾向が各地域でも見られ、地域内の濃度が一様に近づく傾向があった。

DRAFT

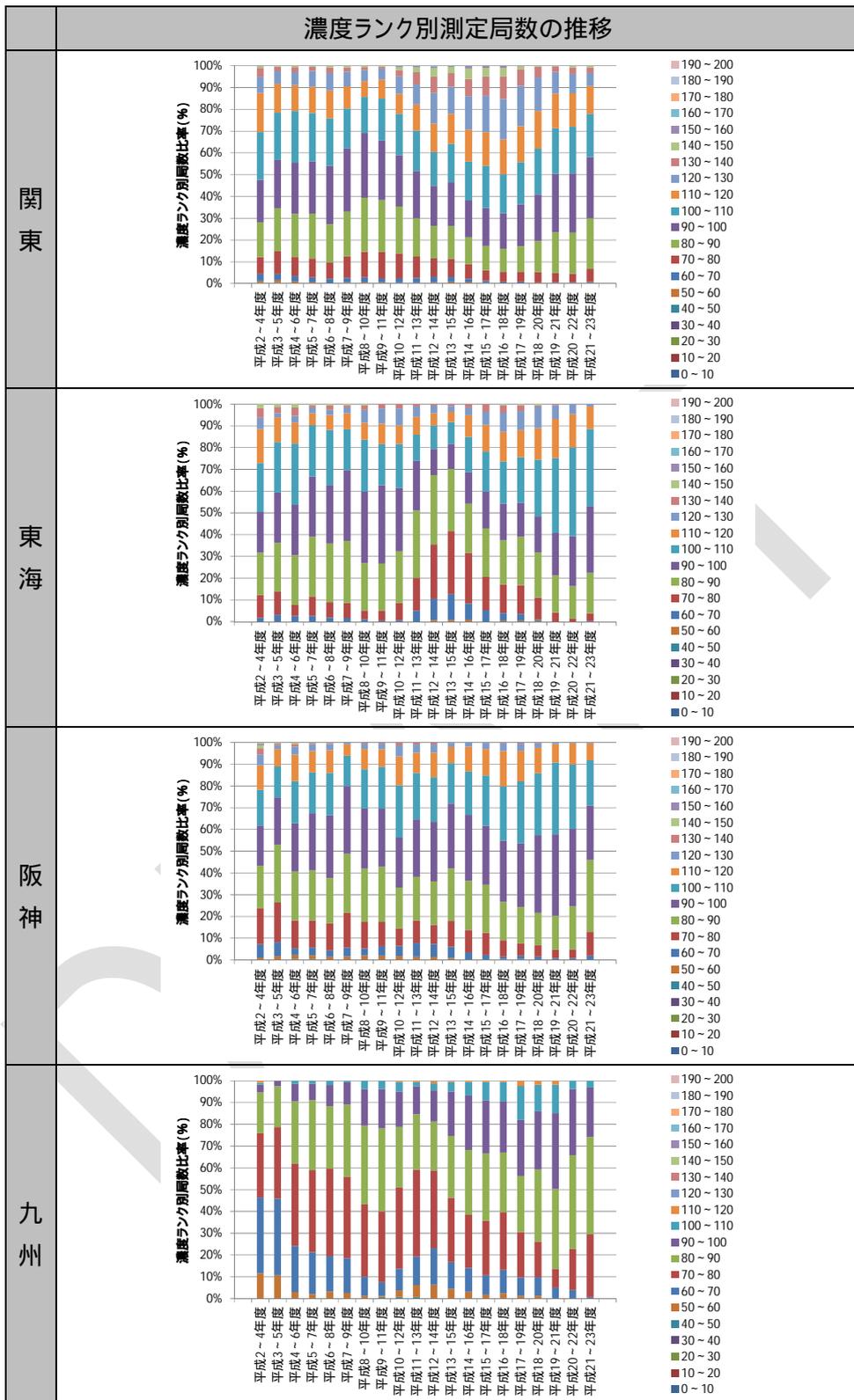


図 3-29 昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数比率の経年変化

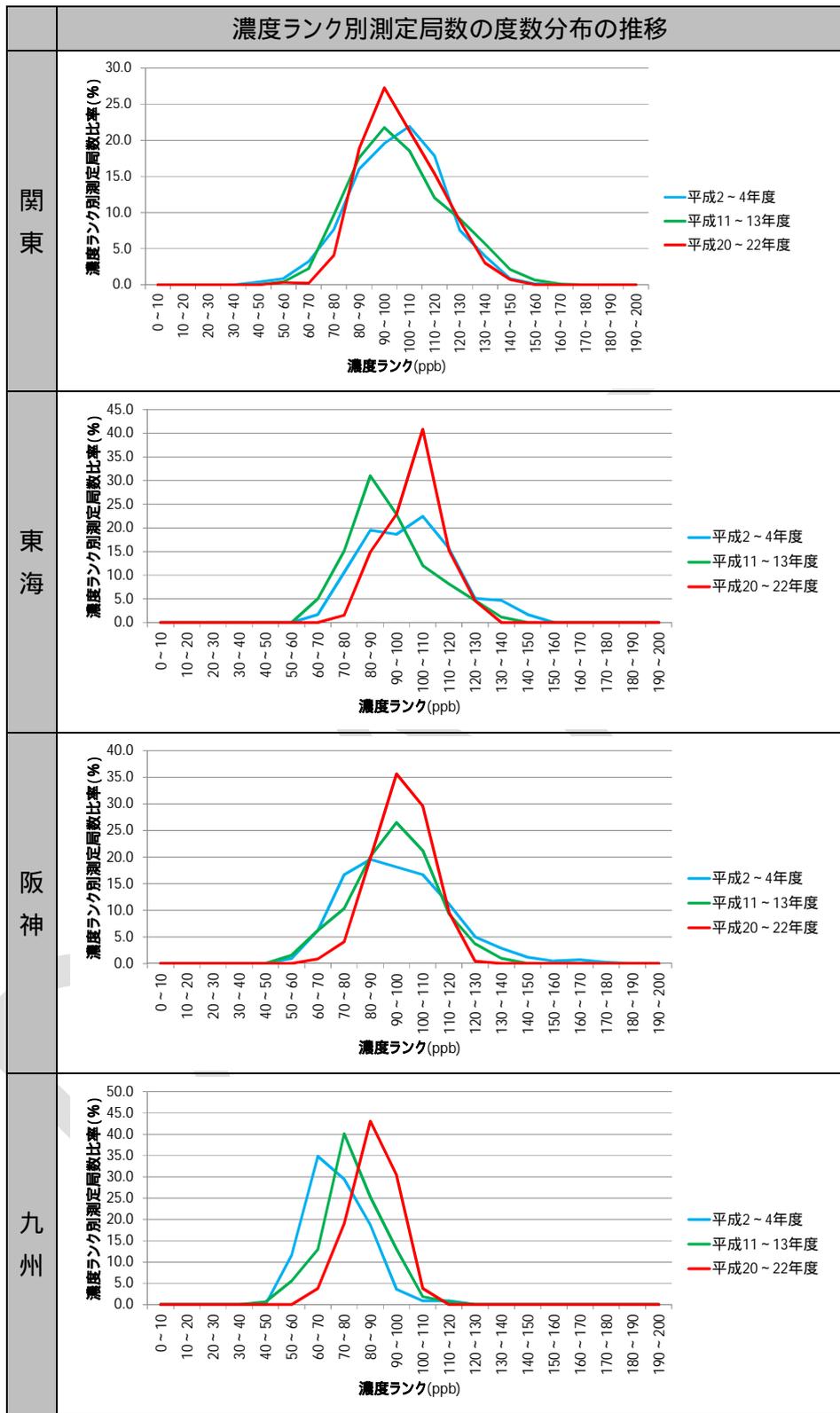


図 3-30 昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値ランク別測定局数比率の経年変化

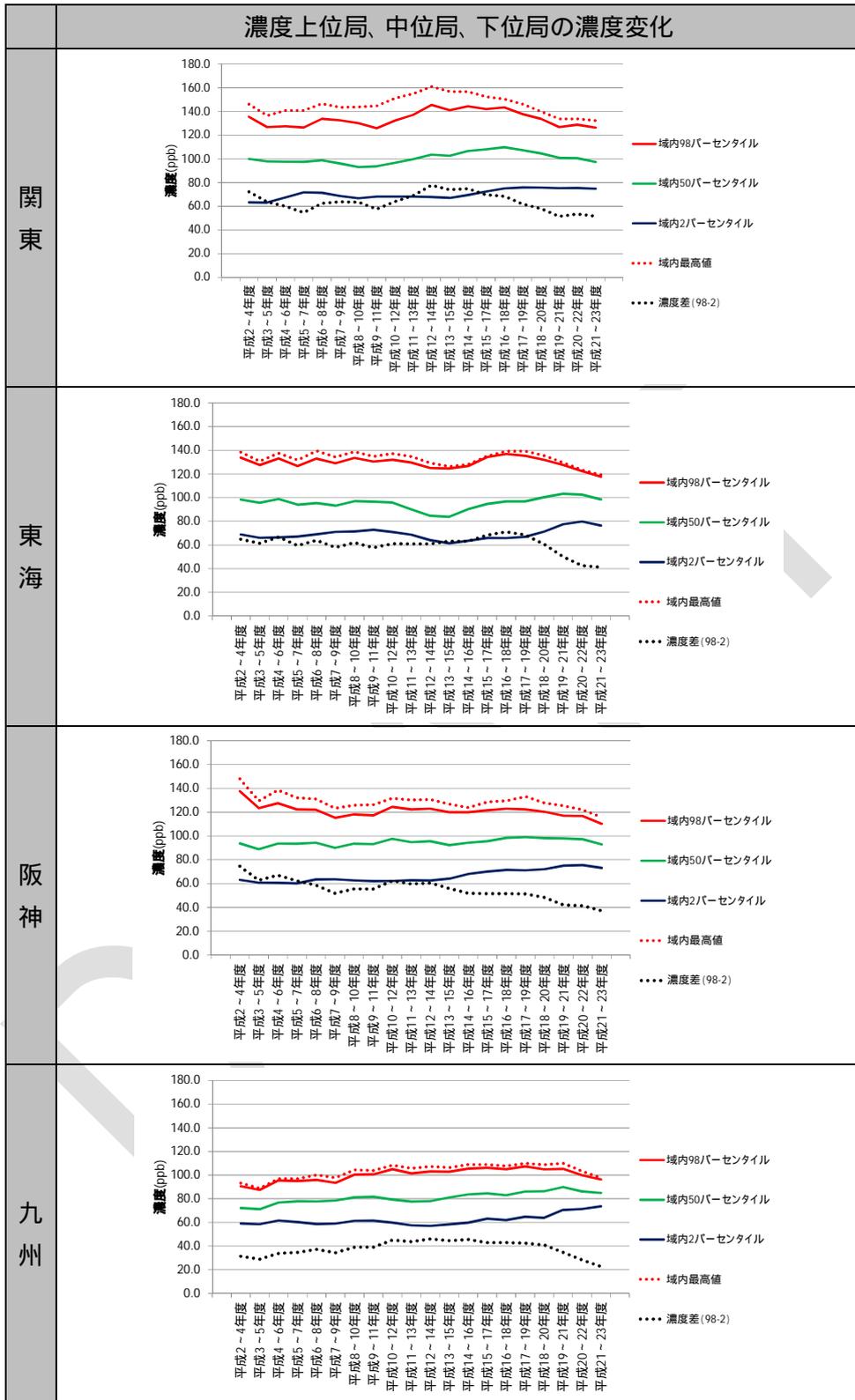


図 3-31 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化

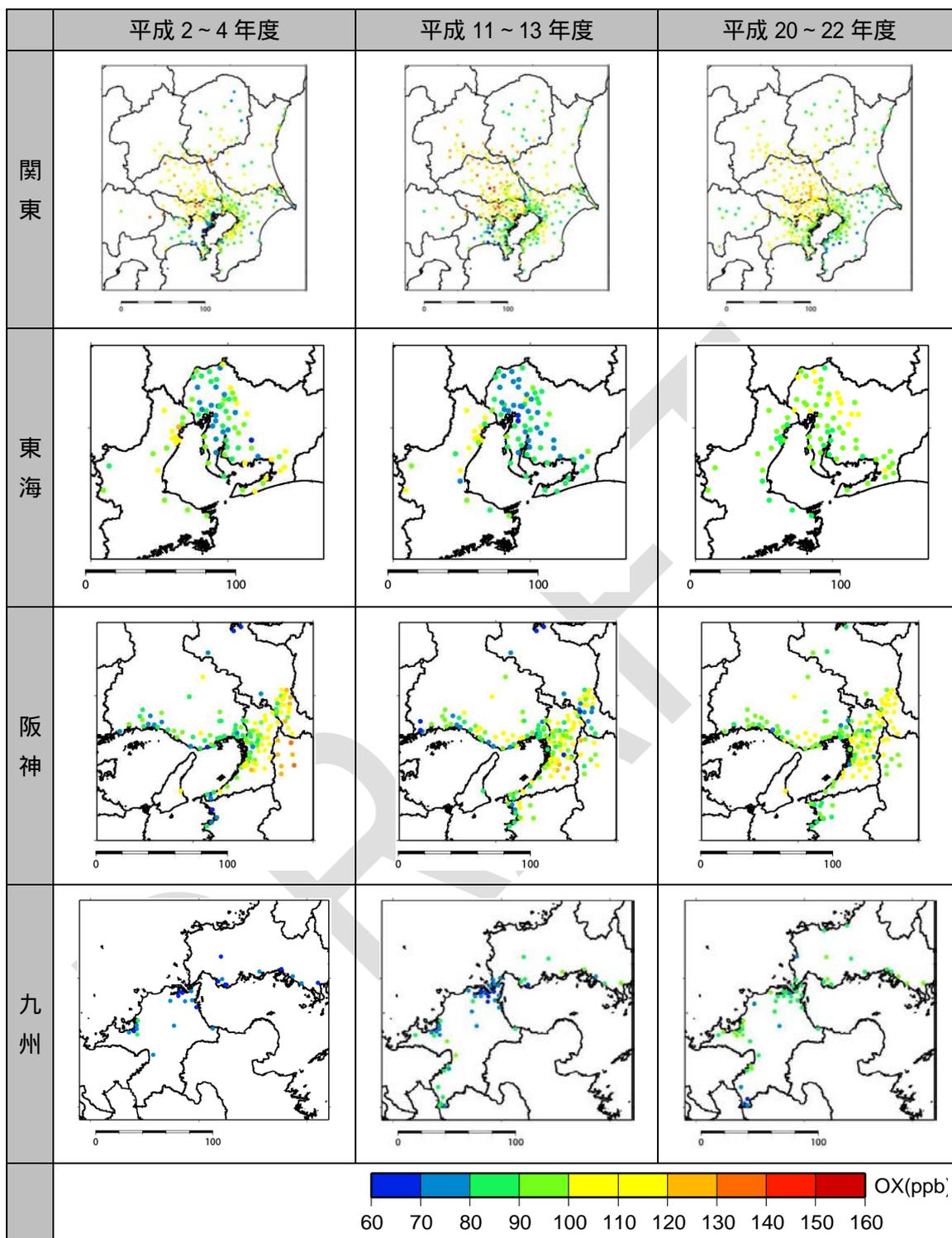


図 3-32 光化学オキシダントの高濃度(昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値)の濃度分布

### (3) ポテンシャルオゾンを用いた解析

光化学オキシダントが高濃度となる状況で、生成・消失反応や移流の影響を検討するために、ポテンシャルオゾンを用いた検討を行った。ポテンシャルオゾンの算出は、「3.2.3(4)ポテンシャルオゾンを用いた評価」と同じとした。

#### ア. ポテンシャルオゾンの高濃度の経年変化

優先解析地域毎のポテンシャルオゾンの経年変化について、昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値を整理した。この結果を図 3-33 と図 3-34 に示す。図 3-33 は、各測定局の年間 98 パーセンタイル値の地域内の最高値の経年変化を示し、図 3-34 は各測定局の年間 98 パーセンタイル値の地域内の平均値の経年変化を示す。

ポテンシャルオゾンの年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の傾向は、関東では平成 12～14 年度をピークにそれ以降は低下傾向が見られた。東海と阪神は、平成 17～19 年度以降で低下の傾向が見られた。九州は経年的に上昇する傾向が見られ、平成 19～21 年度にやや低下が見られた。これらの傾向は光化学オキシダントの傾向と概ね一致していた。

ポテンシャルオゾンの年間 98 パーセンタイル値の域内平均値の傾向は、関東と阪神で平成 17～19 年度で低下する傾向が見られ、東海は平成 14～16 年度以降で上昇傾向、九州は平成 19～21 年度まで上昇傾向が見られた。

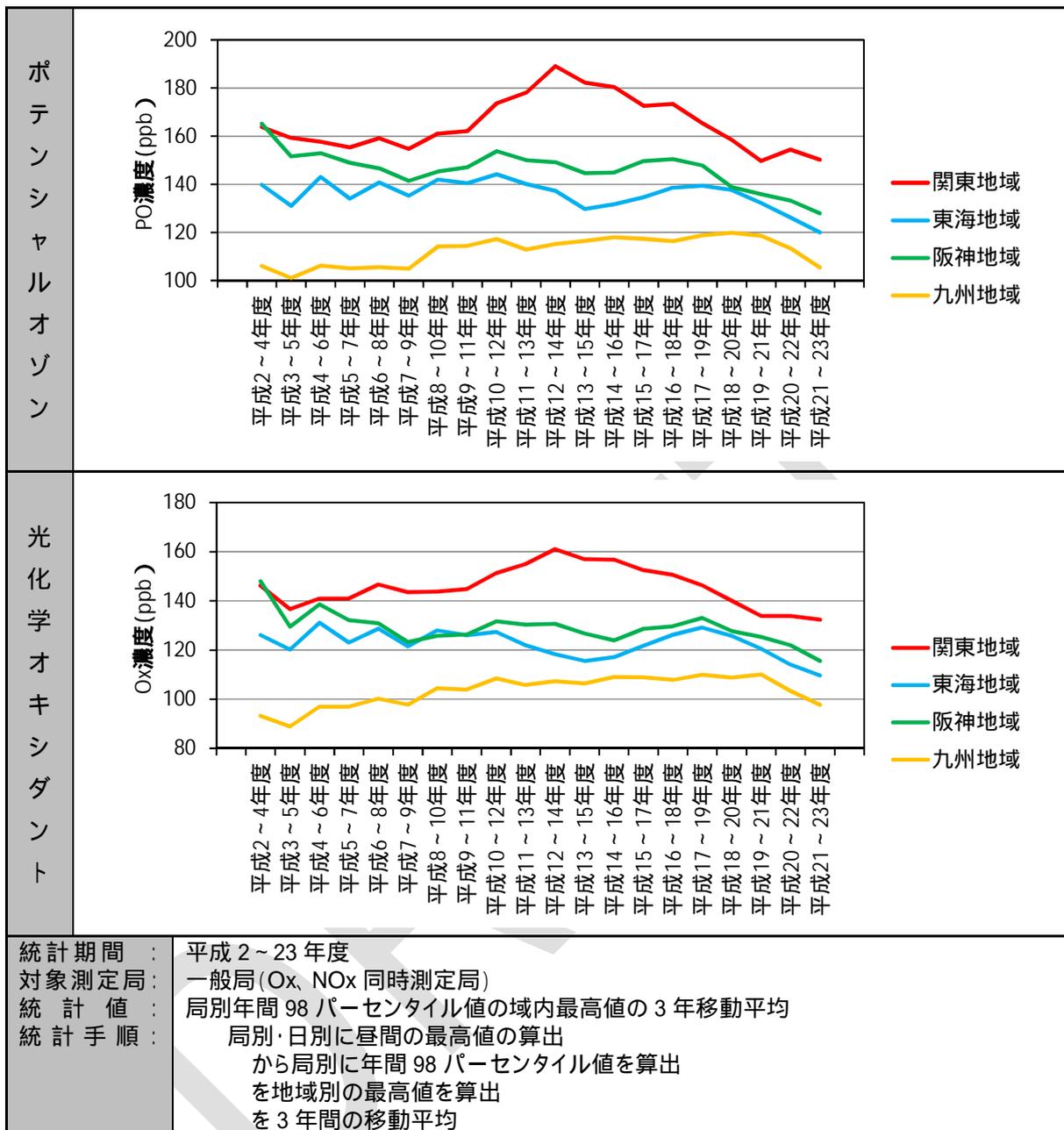


図 3-33 ポテンシャルオゾンと光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3年移動平均、域内最高値)

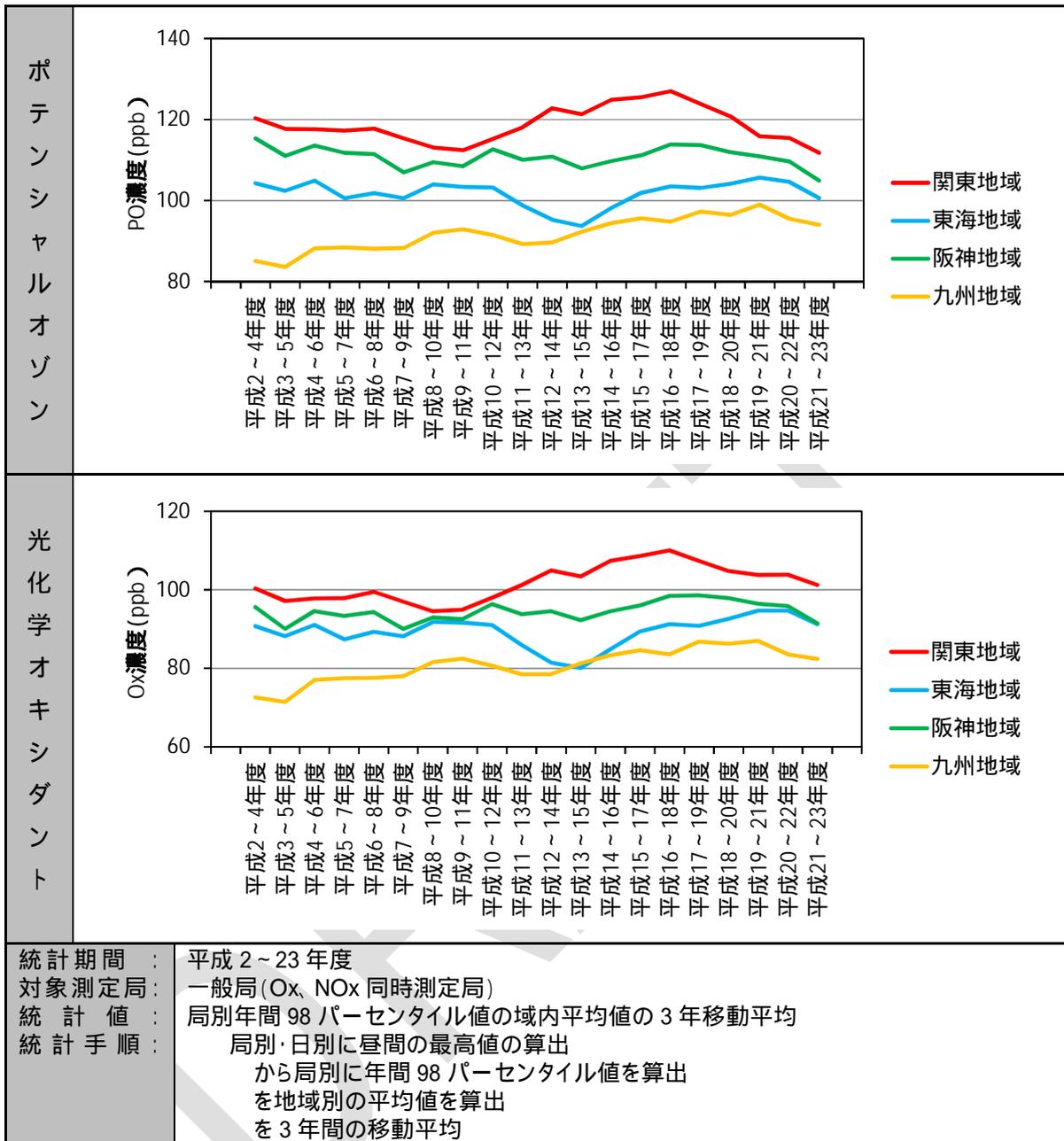


図 3-34 ポテンシャルオゾンと光化学オキシダントの高濃度の経年変化(3年移動平均、域内平均値)

## イ. ポテンシャルオゾンの高濃度のランク別測定局数の経年変化

### i) PO 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

タイトレーションの影響を受けないポテンシャルオゾンを用いて、高濃度(昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ、図3-35の結果となった。図ではランク別測定局数の状況を詳細に解析するために10ppb毎にランクを設定した。

関東は、140ppbを超える局数は平成17～19年度から減少する傾向が見られ、90～120ppbの局数が増加した。

東海は、120ppbを超える局数は平成19～21年度から減少する傾向がみられ、100～120ppbの局数が増加し、平成14～16年度以降で90ppb以下の局数が減少する傾向がみられた。

阪神は、120ppbを超える局数は平成18～20年度から減少する傾向が見られ、90ppb以下の局数は減少する傾向がみられた。

九州は、100ppbを超える局は平成19～21年度まで増加する傾向が見られ、90ppb以下の局は平成12～14年度ごろから減少する傾向がみられた。

### ii) PO 濃度ランク別測定局数の度数分布の経年変化

「PO 濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成2～4年度、平成11～13年度、平成20～22年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図3-36に示す。年度毎に測定局の総数が異なるため、各断面の総測定局数に対する比率とした。

関東は、平成20～22年度に濃度の高いランクの局数は減少が見られ、平成2～4と同程度となった。中位のランクは、平成20～22年度で平成2～4年度より濃度は低下した。

東海は、平成20～22年度に濃度の高いランクの局数は減少が見られた。全体的な度数分布は、平成2～4年度と平成20～22年度は同じ分布形状となった。

阪神は、平成20～22年度に濃度の高いランクと低いランクの局数は減少し、中位のランクの局数が増加した。

九州は、平成20～22年度にかけて、低い濃度ランクから高いランクへのシフトが見られた。

### iii) 地域内の濃度上位局と下位局の経年変化

域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、年間98パーセンタイル値の低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化が見られた。

そこで、度数分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度の経年変化を把握したところ図3-37となった。濃度上位局の濃度として域内上位2%目に当たる濃度(域内測

定局濃度の 98 パーセンタイル値)、中位濃度として中央値(域内の測定局濃度の 50 パーセンタイル値)、下位の濃度として域内濃度の下位 2%に当たる濃度(域内 2 パーセンタイル値)の経年変化を整理した。また、上位局と下位局の濃度差として 98 パーセンタイル値と 2 パーセンタイル値の差も示した。参考に域内最高値についても示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 12～14 年度から平成 16～18 年度まで横ばいから低下する傾向が見られ、それ以降は低下する傾向が見られた。下位局の濃度は、概ね横ばいとなっていた。また、中位局の濃度は平成 16～18 年度まで濃度の上昇が見られたその後は低下した。

東海は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 17～19 年度をピークにしてそれ以降は低下する傾向が見られたものの、下位局は同時期より濃度の上昇が見られ、中位局も上昇した。

阪神は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 16～18 年度ごろまで横ばいの傾向が見られ、その後は低下する傾向が見られた。下位局は経年的に上昇傾向が見られ、中位濃度は、平成 16～18 年度ごろから横ばいであった。

九州は、域内の濃度上位局の濃度は、経年的な上昇傾向が見られたが平成 17～19 年度ごろから横ばいからやや低下する傾向となった。中位局は平成 11～13 年度から平成 19～21 年度にかけて上昇する傾向が見られ、低位局は横ばい傾向であったが平成 19～21 年度から上昇傾向となった。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向がみられた。

#### iv) ポテンシャルオゾンの空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から、関東・東海・阪神で濃度高位局の濃度が低下、低位局の濃度は横ばいまたは上昇する傾向が見られ、九州は、高位局の濃度は上昇から横ばい、低位局の濃度は横ばいから上昇する傾向が見られた。

この傾向と、地域内の濃度分布の変化の関係を検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度分布を整理した。濃度分布は、測定局毎にポテンシャルオゾンの昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値を 3 年移動平均した結果を用いた。

関東は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、東京都、埼玉県、群馬県に見られた高濃度は改善が見られ、千葉県も濃度の低下が見られた。神奈川県、栃木県、茨城県は濃度の上昇が見られた。

東海は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、濃度が比較的低い傾向のあった愛知県で濃度の上昇が見られ、三重県は北勢地域での濃度の低下が見られた。

阪神は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、濃度が高かった大阪府

南部で濃度の低下が見られ、大阪府北部から京都府にかけては濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、地域全体で濃度の上昇が見られた。

DRAFT

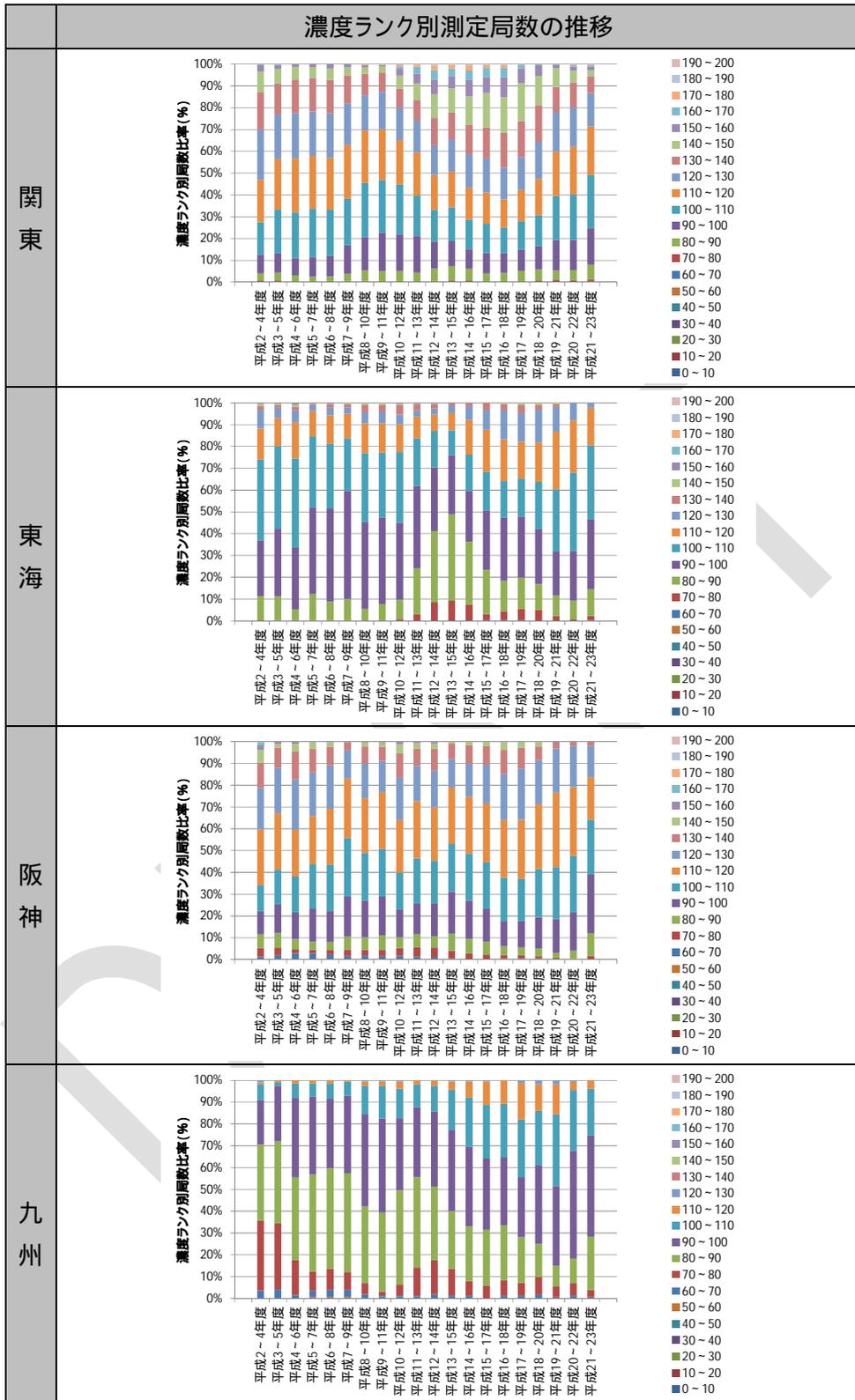


図 3-35 POの昼間の最高1時間値の年間98パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数比率の経年変化

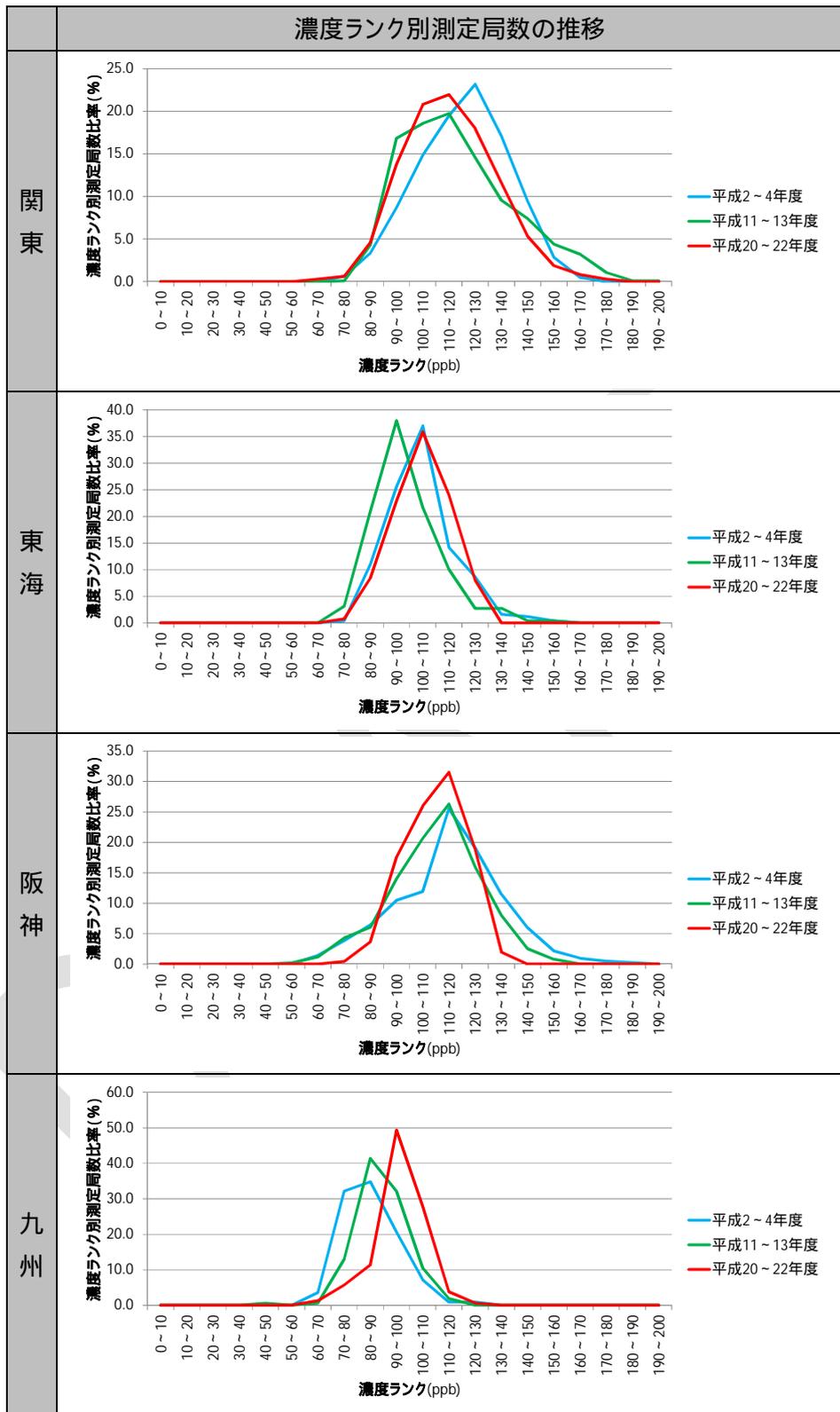


図 3-36 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値ランク別測定局数比率の経年変化

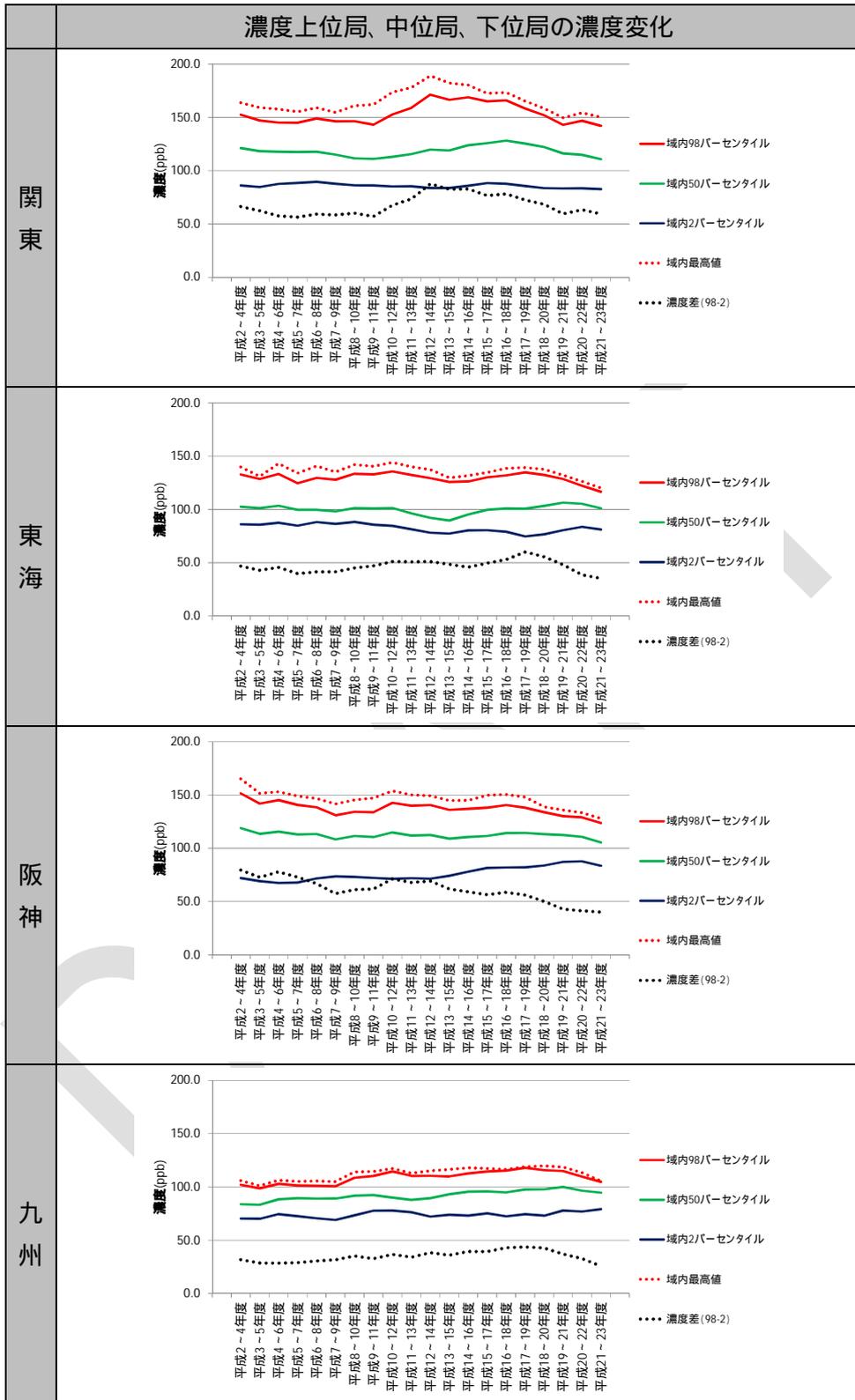


図 3-37 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化

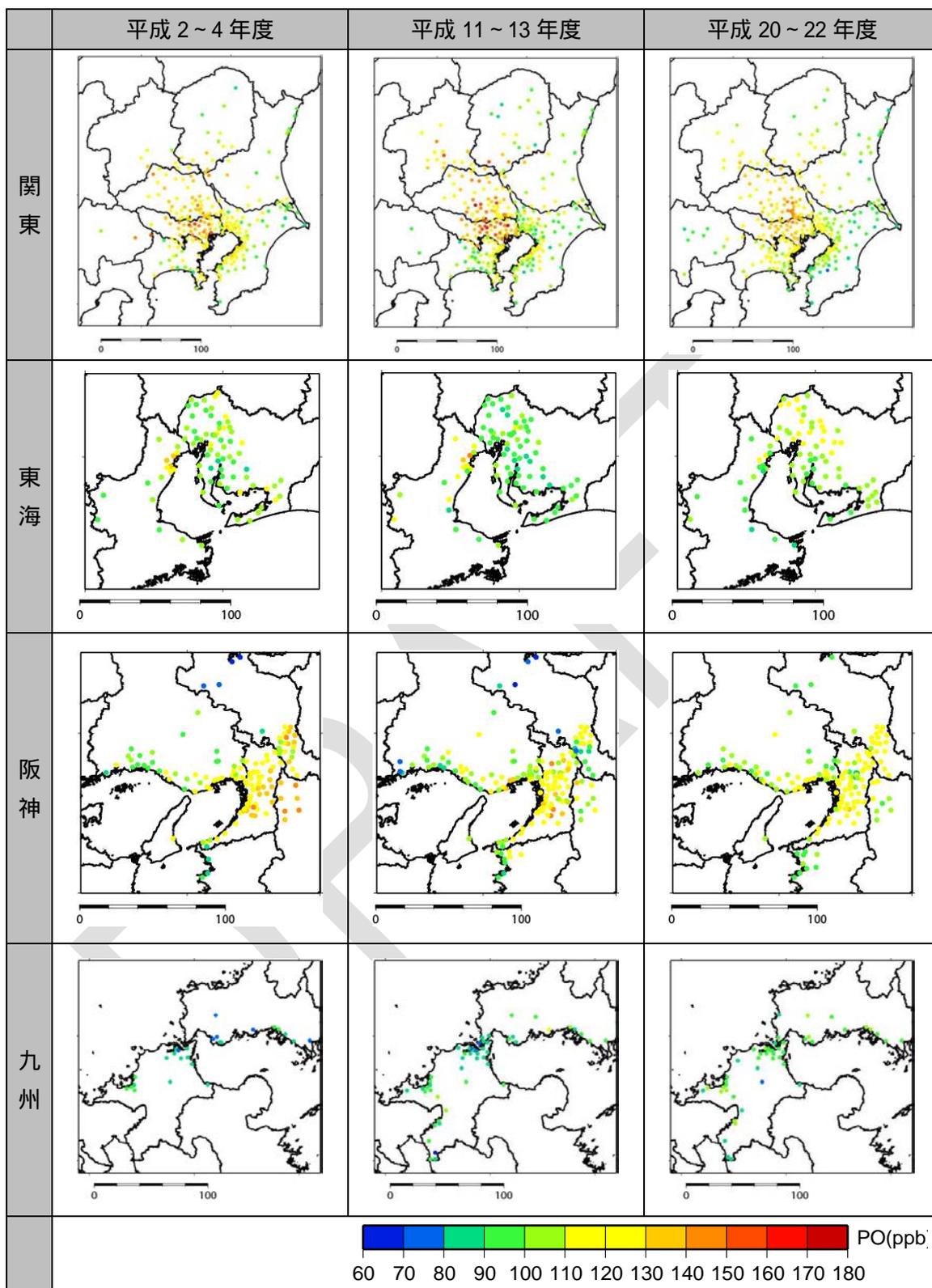


図 3-38 ポテンシャルオゾンの高濃度(昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値)の濃度分布

#### (4) 光化学オキシダント等の高濃度と前駆物質の関係

光化学オキシダント等の高濃度(昼間の最高値の年間98パーセンタイル値の域内平均値)と前駆物質の関係を整理した結果を図 3-39 に示す。都府県別の状況を図 3-40 及び図 3-41 に示す。

関東と阪神の光化学オキシダントの濃度は、平成 8～10 年頃まで低下し、その後は濃度の上昇が見られた。濃度の上昇は平成 16～18 年度まで続き、その後は低下した。光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの差は、平成 6～8 から始まるが、その差は平成 16～18 年度頃まで変化が同程度となっていた。平成 16～18 年度頃から差が大きくなった。前駆物質は、窒素酸化物は平成 8～9 年度頃から低下しこの時期は光化学オキシダント等の濃度上昇時期と概ね一致する。非メタン炭化水素は平成 16～18 年度頃から傾きに変化が見られ、高濃度の改善時期とも一致した。都府県別にみると、東京都はオキシダントの濃度上昇は窒素酸化物の濃度上昇時期と概ね一致した。また光化学オキシダントとポテンシャルオゾンが低下し、濃度差が見られる時期は平成 16～18 年度頃であり、非メタン炭化水素の濃度低下時期と一致した。栃木県は光化学オキシダントとポテンシャルオゾンに差がほとんど見られなかった。埼玉県は、東京都との類似性が見られた。

東海の光化学オキシダントは、平成 10～12 年度頃まで概ね横ばいで、その後一旦低下が見られた。平成 13～15 年度から濃度の上昇が見られ、この時期は窒素酸化物の濃度変化の時期と一致した。

阪神は、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンは、平成 13～15 年度から濃度が上昇したものの平成 16～18 年度頃に頭打ちとなり、その後低下が見られた。府別には、大阪府は平成 16～18 年度からオキシダントとポテンシャルオゾンで濃度の低下が見られた。京都府は平成 16～18 年度まで濃度の上昇が見られたが、その後横ばいからやや低下する傾向となった。

九州は、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンは平成 19～21 年度まで濃度の上昇が見られ、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンは見られず、前駆物質との関係は小さかった。



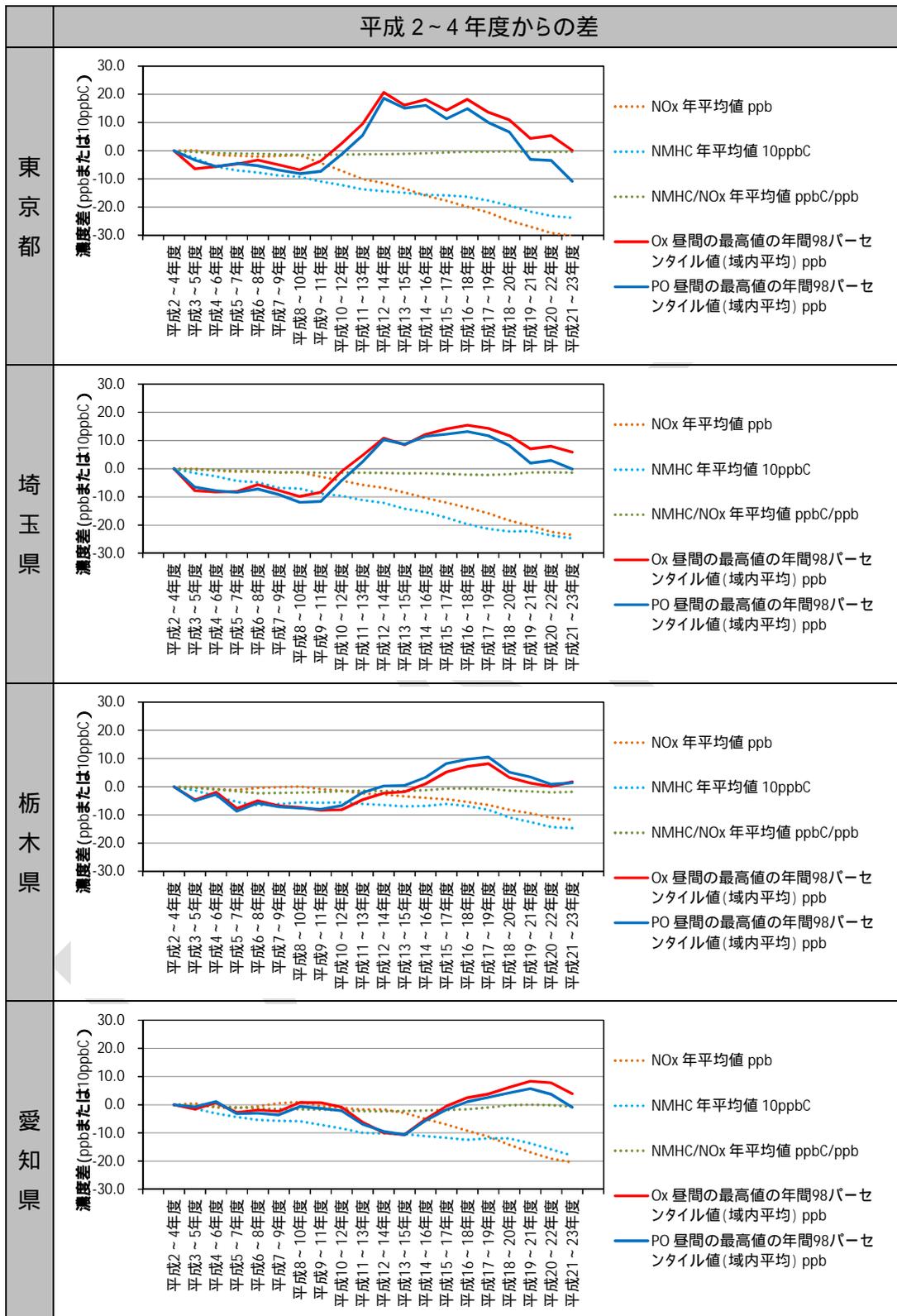


図 3-40 前駆物質(年平均値)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

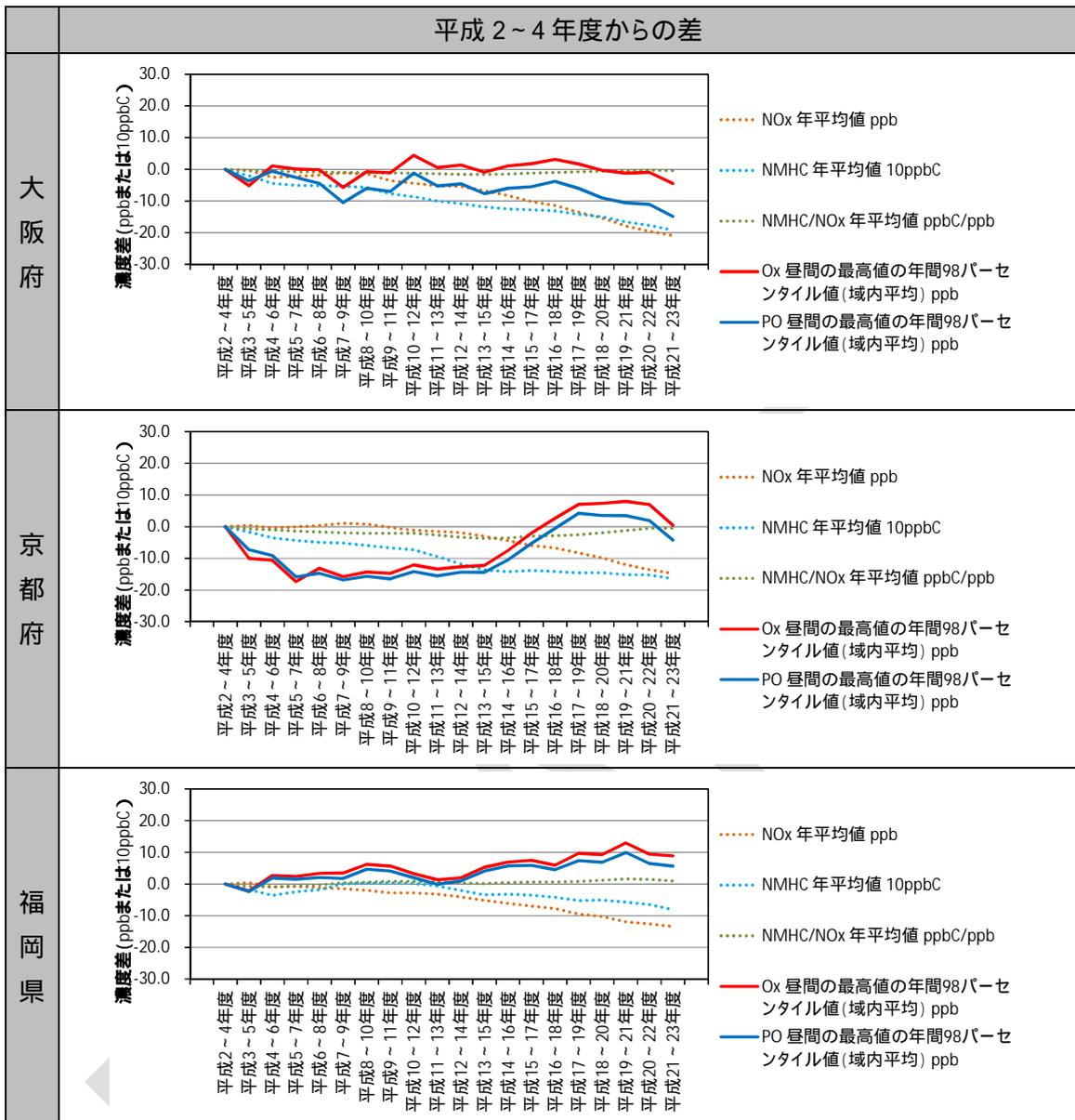


図 3-41 前駆物質(年平均值)と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

#### (5) 光化学オキシダントの高濃度の改善の要因(まとめ)

光化学オキシダントの高濃度は、近年は地域によって改善の傾向がみられるようになった。この要因を検討するために、濃度ランク別測定局数比率やポテンシャルオゾンなどを用いて解析を行った。この結果、以下のとおりであった。

- 光化学オキシダントの高濃度(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)は、関東、東海、阪神で濃度の改善傾向を確認した。九州は、濃度の上昇が見られ、平成14～16年度以降は横ばいとなっていた。
- 光化学オキシダントの高濃度(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)は、関東、阪神で濃度の改善傾向がみられたが、東海と九州は濃度上昇が見られた。
- 関東、東海、阪神の光化学オキシダントの年間98パーセンタイル値が120ppbを超える局数は平成17～19年度頃から減少していた。九州は、120ppbを超える局はなかったが、90ppbを超える局数は増加する傾向が見られた。
- 地域内の年間98パーセンタイル値の上位局濃度は、関東、東海、阪神で低下する傾向が見られた。関東は中位局濃度の低下が見られたが、東海・阪神は中位・低位局の濃度の上昇が見られた。九州は、上位局濃度は上昇傾向から横ばいとなったが低・中位局の濃度が上昇した。
- 濃度分布図を確認したところ、東海は濃度が低かった地域が中位局濃度となり、年間98パーセンタイル値の平均値を上昇させたと考えられる。
- 前駆物質の濃度は、窒素酸化物は高濃度のオキシダントの濃度が改善する以前より低下が見られ、非メタン炭化水素濃度はVOC排出抑制対策が始まった平成17～19年度頃から見られた。濃度が低下する傾向となった。
- 光化学オキシダントの高濃度の出現状況を確認したところ、VOC排出抑制対策が始まった平成18年度頃より関東・東海・阪神で年間98パーセンタイル値の域内上位局の濃度の改善が見られるようになった。
- 九州の光化学オキシダントの高濃度の出現は、長期的に濃度が上昇から横ばいとなっていた。「越境汚染の影響の増大」が「国内排出対策による改善傾向」を相殺され、この傾向が見られたと考えられた。

### 3.3 光化学オキシダントの 8 時間値による解析

#### 3.3.1 海外の光化学オキシダント評価

光化学オキシダントの汚染の程度を把握し評価する指標を設定する上で、濃度の平均化時間の設定が重要となる。光化学オキシダントの国際的な評価指標として 8 時間平均値がある。WHO(世界保健機構)は、2005年に光化学オキシダントの評価指標として 8 時間平均値を採用し、ガイドライン値を設定した<sup>5</sup>。また、米国 EPA(環境保護庁)で 2008 年に設定された米国の環境基準は、代表値算定の最小単位としては 8 時間値を採用した<sup>6</sup>。米国 EPA は 8 時間値による評価の利点として、最新のオゾンの健康影響に関する研究成果を検証し、「低濃度暴露においては、8 時間値の方がそれより短い時間の平均値と比較して健康影響との関係が明確である」、「8 時間値を用いた基準を達成できれば、より短時間の暴露に由来する健康リスクも低下させることができる」ことを示した<sup>7</sup>。

大泉ら(2013)は、日本のオゾン濃度の評価に適切な代表値を検討する一環として、8 時間値による方法を検討し、WHO 及び米国 EPA の基準による評価を報告した。WHO 及び米国 EPA の基準に則したオキシダント汚染の評価として以下の通りとしている。この結果、光化学オキシダントの現状把握及び対策の効果を評価するためには、高濃度発生状況を反映しつつ、短期的な気象変化の影響を軽減した、頑健性の高い代表値の獲得が重要であり、その意味では、上位数%を除外した 8 時間値の年最高値あるいは日最高 8 時間値の年最高値の導入が検討されるべきとしている。

表 3-5 代表的なオゾン汚染の評価

機関等	評価値	評価基準値
WHO 基準の場合	日最高 8 時間値の年間最高値	50ppb
EPA 基準の場合	日最高 8 時間値の年間第 4 位値の 3 年平均	75ppb

本解析では、国際的な指標の一つである 8 時間値についてデータを整理し、その傾向についてまとめた。なお、前節までの検討で、濃度の経年的な傾向を把握するためには 3 年の移動平均が有効であることが確認できたことから日最高 8 時間値の年間統計値に対して 3 年移動平均を行い評価した。

なお、8 時間平均値では、はじめに、測定局毎の 1 時間値から 8 時間の移動平均値(ここでは前 8 時間値の平均値とした)を求め、8 時間値の年間データを作成した。この 8 時

<sup>5</sup> World Health Organization(WHO) Regional Office for Europe:Air Quality Guideline Global Update 2005, pp.324-326, WHO Regional Office for Europe, Copenhagen(2006)

<sup>6</sup> United States Environmental Protection Agency: Technical Transfer Network, National Ambient Air Quality Standards (NAAQS), Ozone (O<sub>3</sub>) standards

<sup>7</sup> Ambient Air Quality Standards for Ozone; Final Rule(2008)

間値年間データを用いて、8時間値の日最高値を求めた。8時間値の日最高値から年間統計(年平均値、年間パーセンタイル値等)を求め、測定局毎に3年間の移動平均値を求めた。この結果から地域統計(域内平均値、最高値、パーセンタイル値)を求め傾向を整理した。

DRAFT

### 3.3.2 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の経年変化

#### (1) 年統計値の域内最高値の経年変化

光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値(日最高 8 時間値)の年最高値、年間 99 パーセンタイル値の年最高値を局別に 3 年移動平均し、その結果から優先解析地域毎の最高値、平均値を求めた。この結果を図 3-42 に示す。

関東は、年最高値は平成 14～16 年度をピークに低下する傾向がみられた。年間 99 パーセンタイル値の域内最高値は、平成 17～19 年度頃まで横ばいで、その後低下傾向となった。年間 99 パーセンタイル値の域内平均値は平成 16～18 年度まで上昇傾向で、その後低下傾向が見られた。

東海は、年最高値は平成 18～20 年度ごろまで横ばいで、その後は低下傾向となった。年間 99 パーセンタイル値の域内最高値は、平成 17～19 年度頃まで上昇がみられ、その後は低下傾向となった。年間 99 パーセンタイル値の域内平均値は平成 14～16 年度から上昇傾向となっている。

阪神は、年最高値は平成 18～20 年度ごろから低下傾向がみられた。年間 99 パーセンタイル値の域内最高値は、平成 17～19 年度頃まで上昇がみられ、その後は低下傾向となった。年間 99 パーセンタイル値の域内平均値は平成 14～16 年度から上昇傾向となっている。

九州は、年最高値は平成 19～21 年度ごろまで上昇傾向であった。年間 99 パーセンタイル値の域内最高値は、平成 19～21 年度ごろまで上昇傾向がみられた。年間 99 パーセンタイル値の域内平均値は平成 19～21 年度ごろまで上昇傾向となっていた。

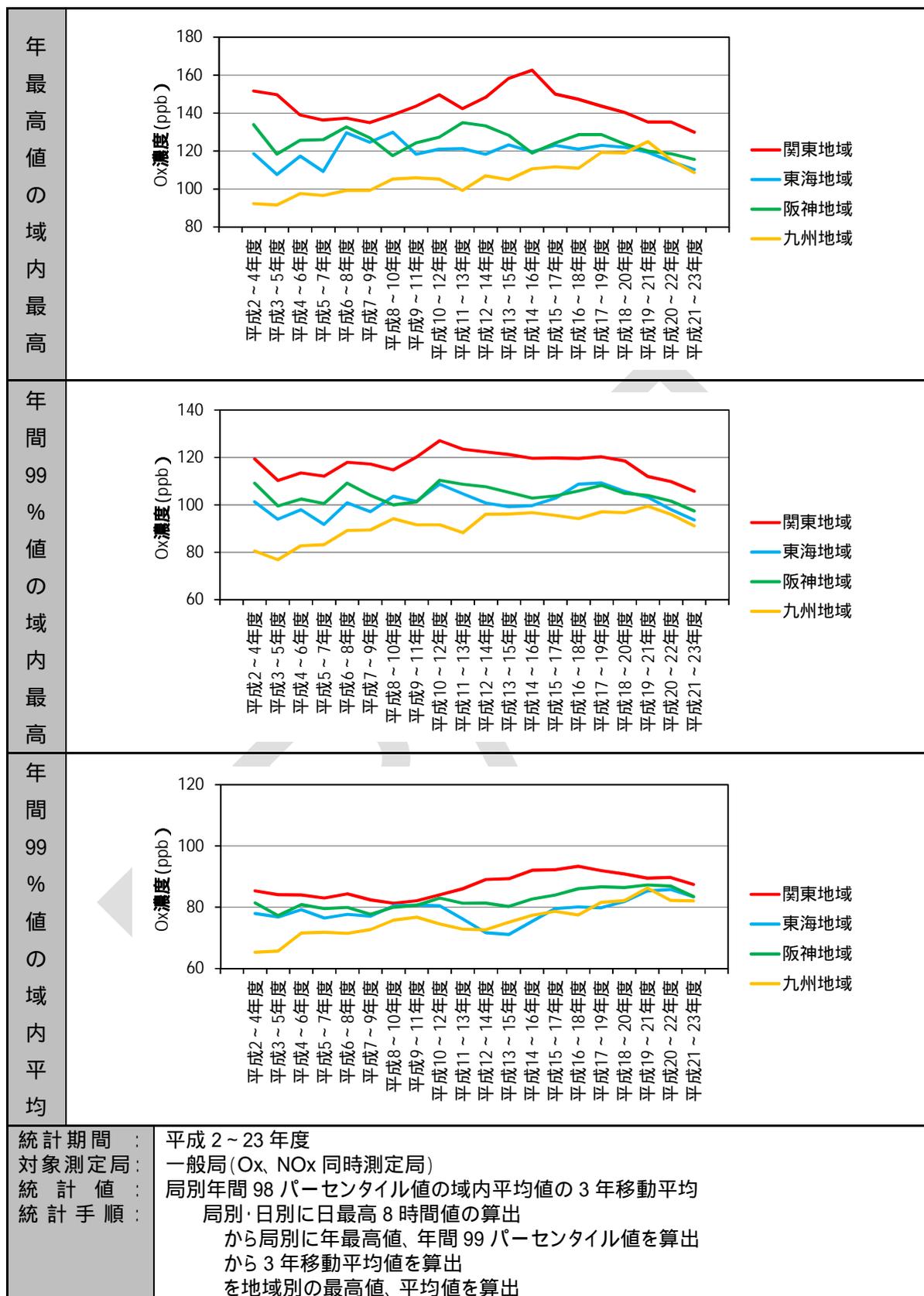


図 3-42 Ox の日最高 8 時間値の統計値の経年変化

## (2) 日最高 8 時間値の年間統計値の経年変化

### ア. 日最高 8 時間値の年間統計値の域内最高値の解析

測定局毎に年最高値、年間 96～99 パーセンタイル値、年平均値を求め、3 年間平均を求めたのち、域内最高値や域内 98、97 パーセンタイル値を算出した。この結果を図 3-43 に示す。

関東の年最高値の域内最高値と年間 99 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化は傾向が異なり、年最高値が平成 14～16 年度をピークとして濃度の低下を示し、年間 99 パーセンタイル値は平成 13～15 年度から平成 17～19 年度にかけて横ばいを示し、その後低下する傾向であった。高濃度日の上位 1% (4 日程度分の高濃度日) を除外した濃度では、平成 17～19 年度までは横ばいで濃度変化が見られなかったものが、平成 18 年度ごろから濃度の改善がみられた。他のパーセンタイル値でも同様の傾向が見られる。ただし、除外する高濃度日が多くなると、濃度低下が始まる年度が、後の年度に移る傾向が見られた。

東海と阪神は、最高値と年間パーセンタイル値との差は小さかった。年間パーセンタイル値の経年変化の傾向は、関東と同様に、平成 18 年度のごろから低下する傾向が見られた。

九州は、年最高値の域内最高値と域内パーセンタイル値はほぼ同じ濃度で変化傾向も同じであった。年間 99 パーセンタイル値の域内最高値は平成 12～14 年度ごろから横ばいが続き、年間 97、98 パーセンタイル値でやや濃度上昇がみられた。

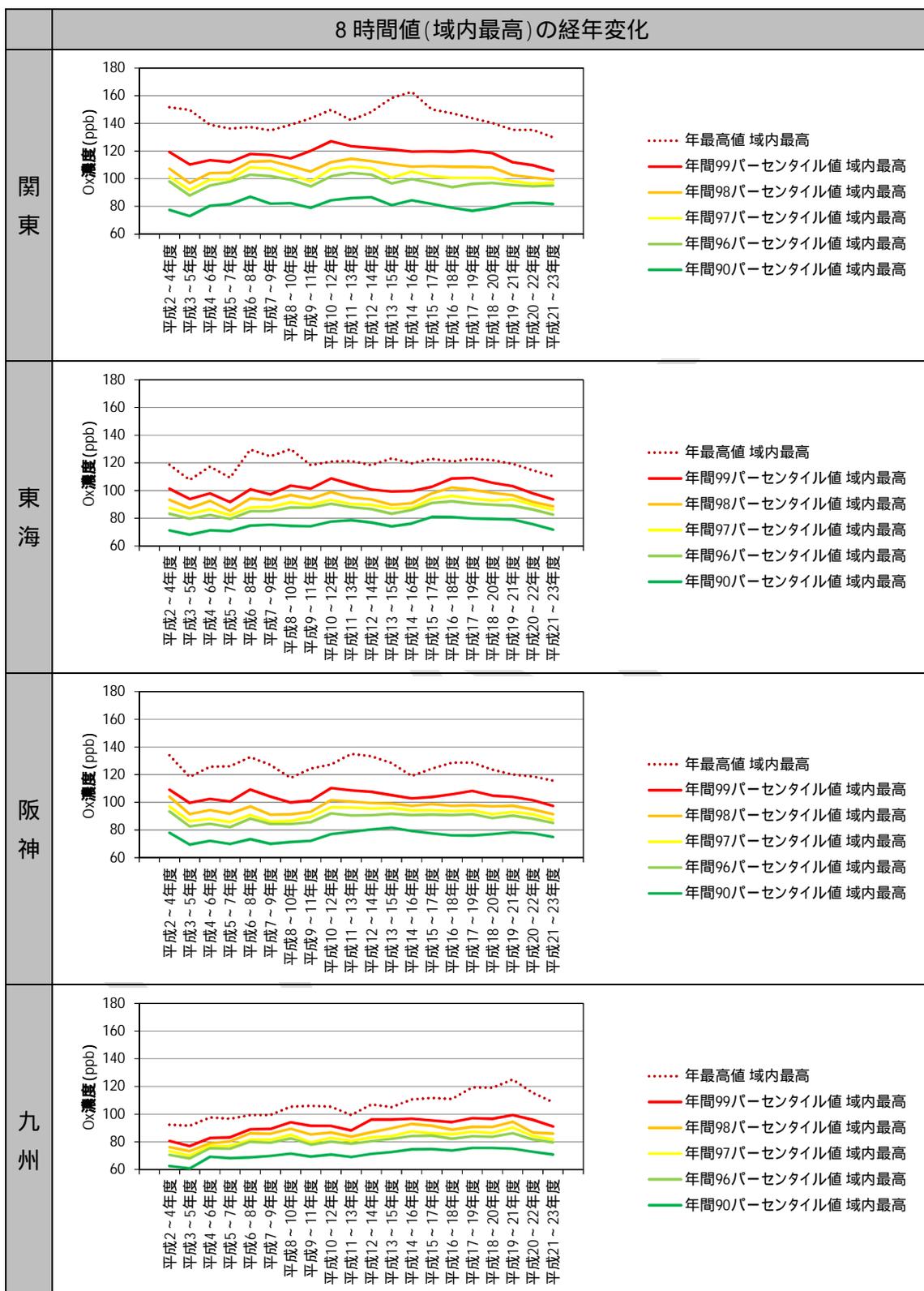


図 3-43 光化学オキシダントの日最高8時間値の年統計の経年変化

#### イ. 日最高 8 時間値の年間統計値の域内平均値の解析

測定局毎に年統計値(年最高値、年間 96～99 パーセンタイル値、年平均値)を算出した後、3 年間の平均を求め、地域毎に平均値を計算した。この結果を図 3-44 に示す。

関東は、年最高値の域内平均値は平成 16～18 年度より後で濃度が低下する傾向みられた。98、99 パーセンタイル値についても同様であったが、96、97 パーセンタイル値程度からは平成 15～17 年度以降は概ね横ばいとなった。

東海は、関東とは異なりいずれも平成 13～15 年度より後で濃度が上昇する傾向であった。

阪神は、年最高値の域内最高値の年間 99 パーセンタイル値は平成 16～18 年度ごろから横ばい傾向で、98、97、96 パーセンタイル値は平成 13～15 年度より後で濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 12～14 年度より後でいずれの指標の上昇傾向が見られ、平成 19～21 年度をピークにやや改善が見られた。

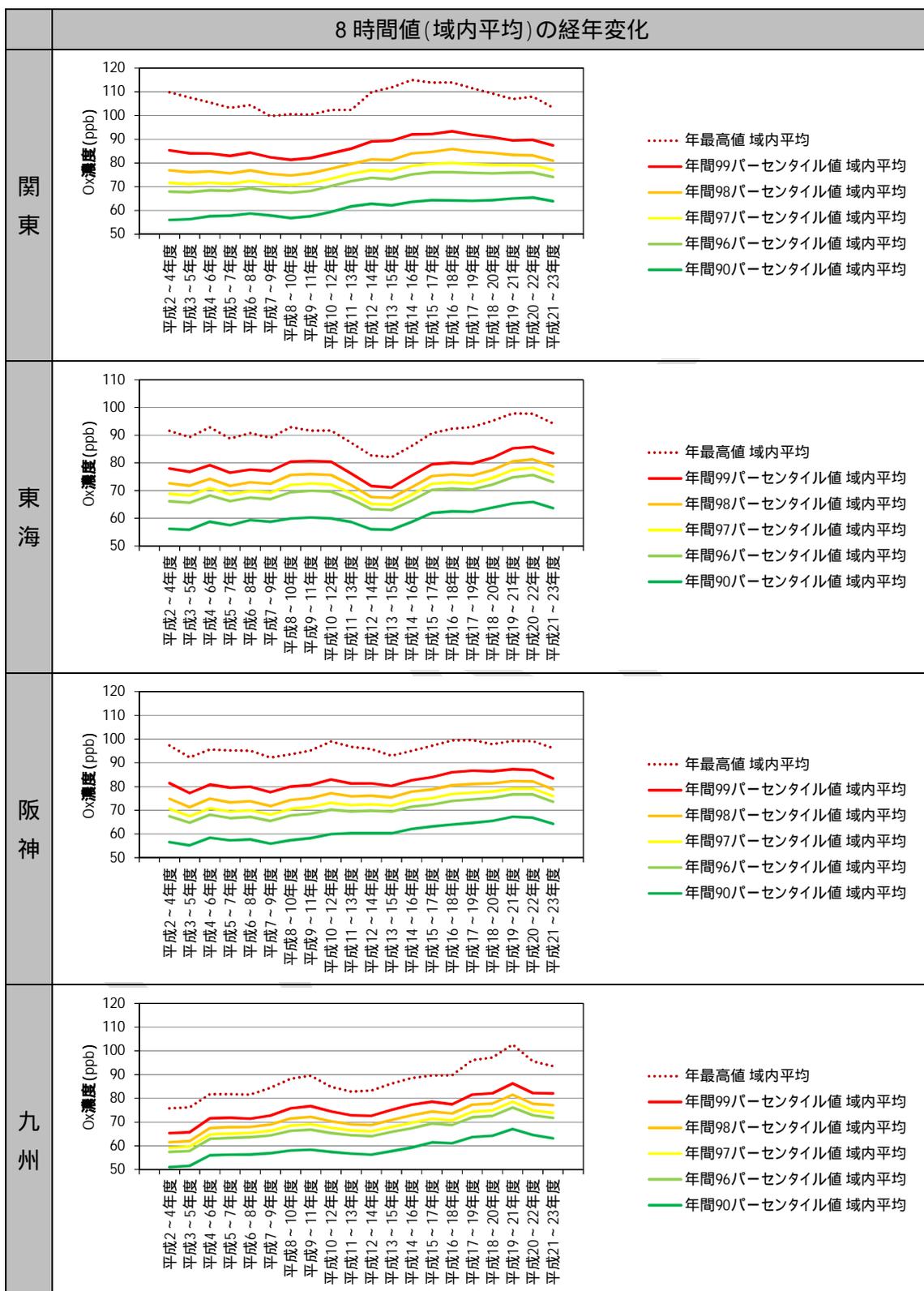


図 3-44 光化学オキシダントの日最高8時間値の年統計の域内平均値の経年変化

### (3) 日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数

#### ア. 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

光化学オキシダントの高濃度(日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ図 3-45 の結果となった。

関東は、100ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少する傾向が見られ、80～90ppb の局数が増加した。

東海は、90ppb を超える局数は平成 17～19 年度から横ばいで、80～90ppb の局は平成 17～19 年度頃から増加した。

阪神は、100ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少し 80～90ppb の局が増加した。

九州は、80ppb を超える局は平成 19～21 年度まで上昇傾向がみられた。

#### イ. 濃度ランク別測定局数の度数分布の経年変化

「濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図 3-46 に示す。年度毎に地域内の測定局の総数が変化することから、各断面の総測定局数に対する比率を用いて整理した。

関東は、平成 20～22 年度には最多局数のランク以下では局数の減少が見られ、これ以上のランクでは局数が増加した。最高が高いランクの局数は減少した。

東海は、平成 20～22 年度に 100ppb 以上の高濃度局の出現が無くなったものの、低位局が中位ランクにシフトし、80～90ppb 付近に出現局が集中するようになった。

阪神は、平成 20～22 年度に高位局と低位局の出現が減少し、中位ランクに出現が集中するようになった。

九州は他の地域とことなり、濃度が高いランクの局数が増加傾向し、最多頻度ランクの濃度上昇が見られた。

#### ウ. 地域内の濃度上位局と下位局の濃度変化

地域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化が地域により異なっていた。

そこで、度数分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度変化を把握したところ、図 3-47 となった。濃度上位局の濃度として域内上位 2% 目に当たる濃度(域内測定局濃度の 98 パーセンタイル値)、中位濃度として中央値(域内の測定局濃度の 50 パーセンタイル値)、下位の濃度として域内濃度の下位 2% に当たる濃度(域内 2 パーセンタイル値)の経年変化を整理した。また、上位局と下位局の濃度差として 98 パーセンタイル値と 2 パーセンタイル値の差も示した。参考に域内最高値についても示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 12～14 年度から平成 16～18 年度まで

緩やかな低下が見られ、それ以降は低下する傾向が見られた。下位局の濃度は、上昇傾向が見られ、中位局の濃度は平成 16～18 年度から濃度が低下した。

東海は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 19～21 年度まで横ばいで、それ以降は低下傾向が見られたものの、下位局は同時期より濃度の上昇が見られ、中位局も上昇した。

阪神は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 17～19 年度ごろから低下傾向が見られた。下位局と注意居局濃度は経年的に上昇傾向が見られた。

九州は、域内の濃度上位局の濃度は、経年的な上昇傾向が見られた。中位局と下位局の濃度は上昇する傾向が続いている。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向がみられた。

## エ. 光化学オキシダント濃度の空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から、関東・阪神で濃度高位局の濃度が低下し、低位局の濃度は横ばいまたは上昇する傾向が見られた。東海は高位局が横ばい、低位局は上昇した。九州は、高位局と低位局で共に濃度は上昇がみられた。

この傾向と、地域内の濃度分布の変化の関係を検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度分布を整理した。濃度分布は、測定局毎に昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値を 3 年移動平均した結果を用いた。

関東は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、東京都、埼玉県、群馬県に見られた高濃度は改善が見られ、千葉県も濃度の低下が見られた。平成 11～13 年度に濃度が低かった神奈川県、栃木県、茨城県は濃度の上昇が見られた。

東海は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、三重県は濃度の低下し、愛知県で濃度の上昇が見られた。

阪神は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、濃度が高かった大阪府南部で濃度の低下が見られ、大阪府北部から京都府にかけては濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、地域全体で濃度の上昇が見られ、80～100ppb の局が多くなった。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向は濃度分布にも見られ、高濃度局は濃度が低下、低濃度局は濃度が上昇する傾向が各地域でも見られ、地域内の濃度が一様に近づく傾向があった。

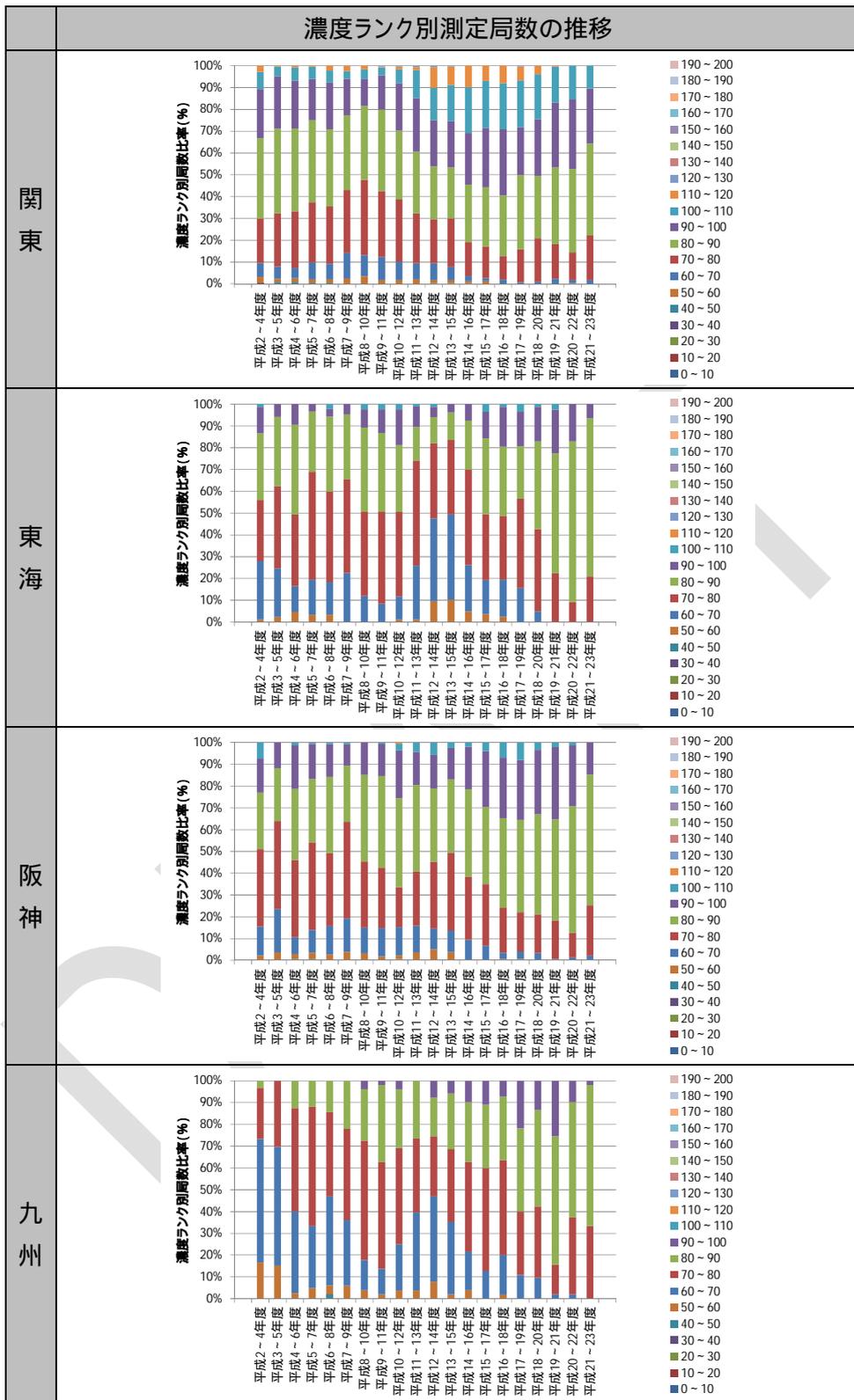


図 3-45 日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数比率の経年変化

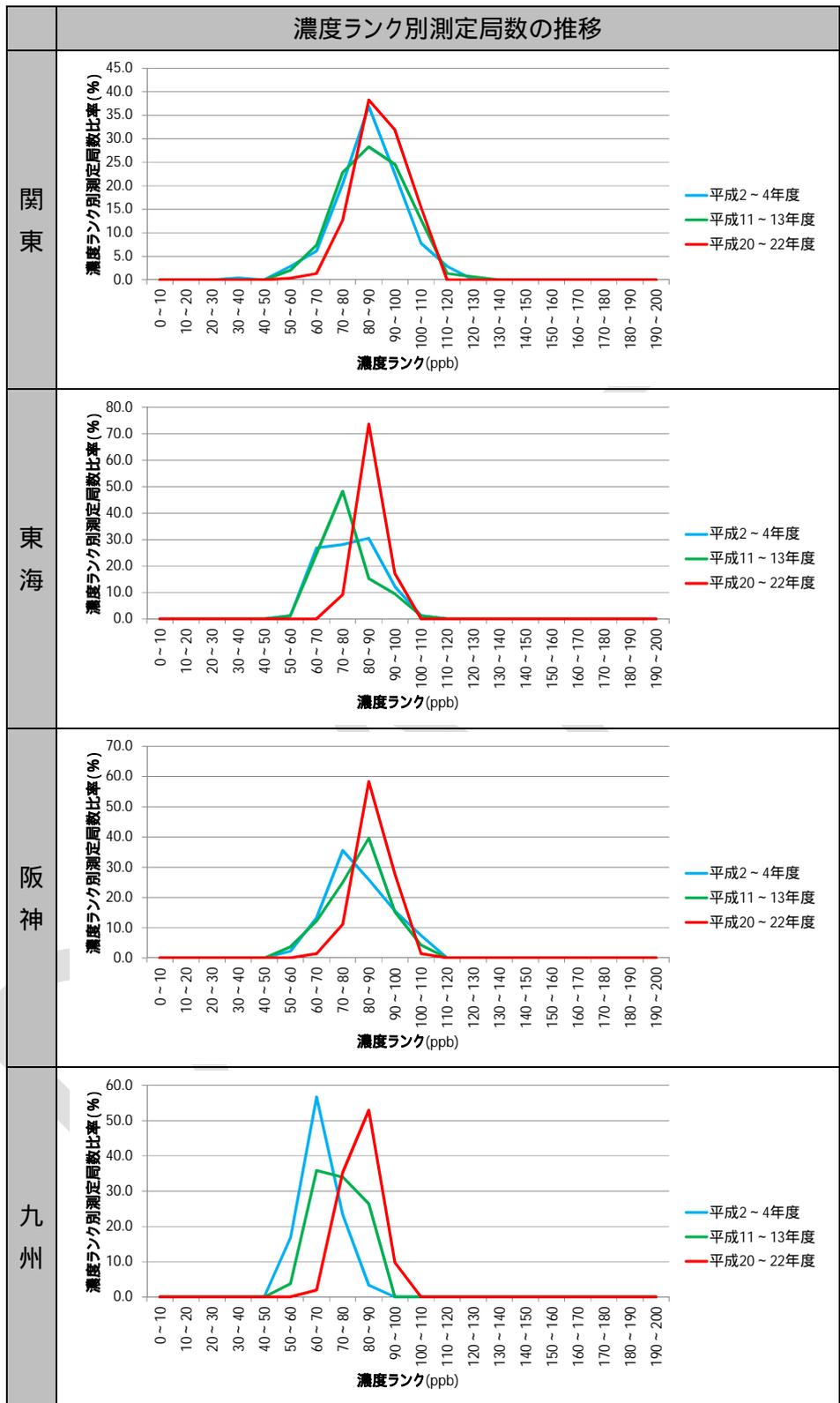


図 3-46 日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値ランク別測定局数比率の経年変化

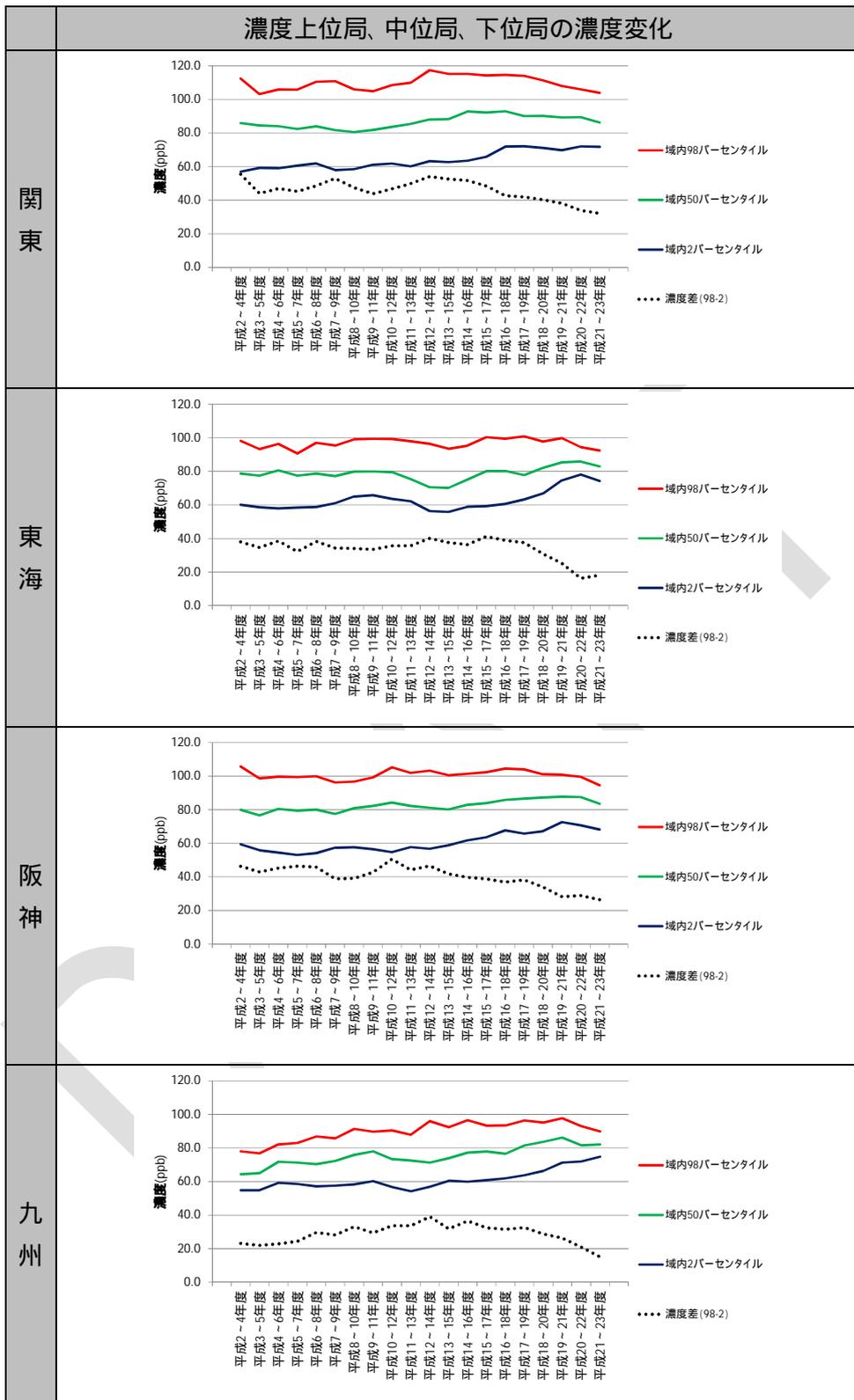


図 3-47 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化

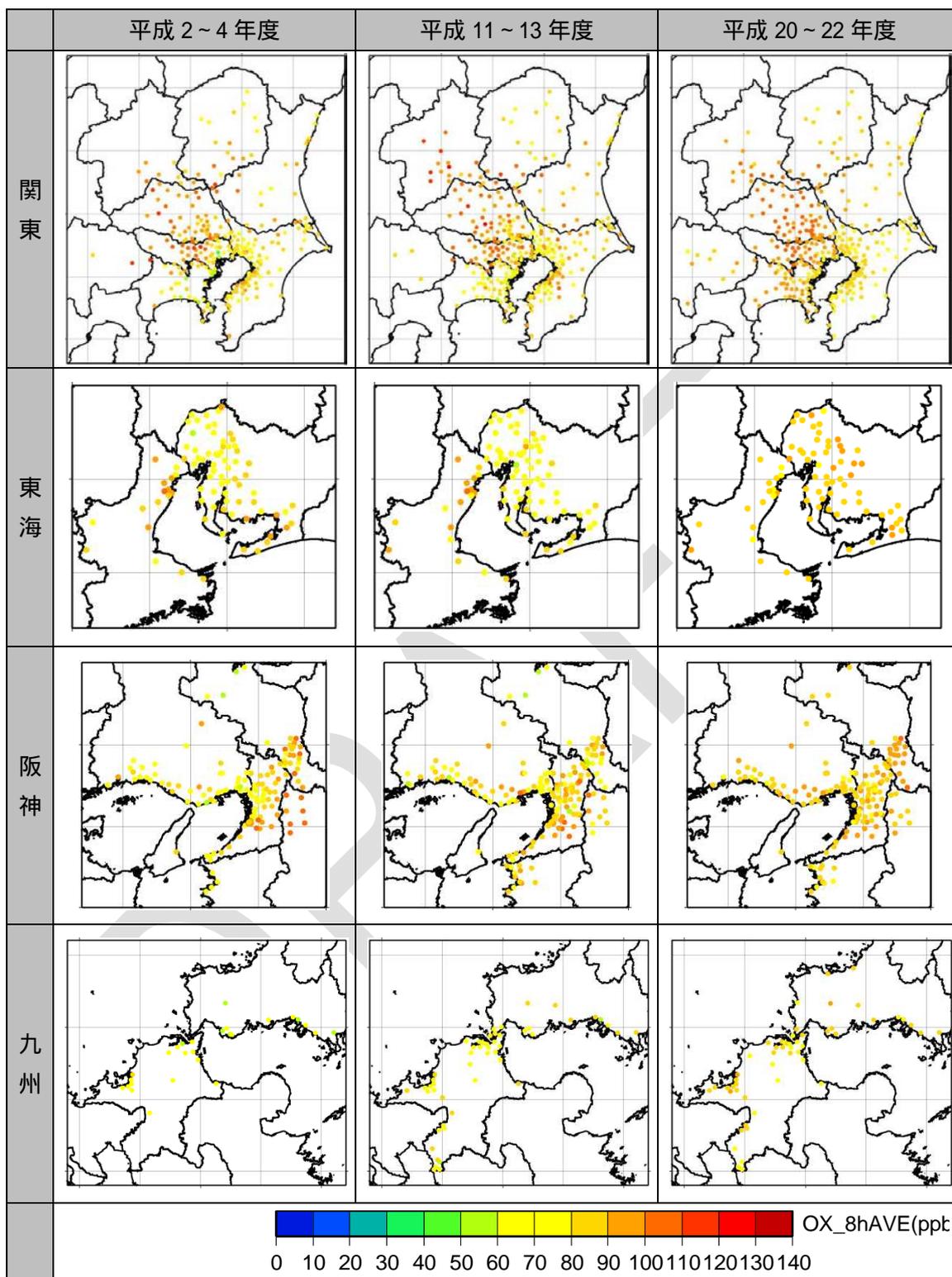


図 3-48 光化学オキシダントの高濃度(日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値)の濃度分布

### 3.3.3 ポテンシャルオゾンを用いた解析

光化学オキシダントが高濃度となる状況で、生成・消失反応や移流の影響を検討するために、ポテンシャルオゾンを用いた検討を行った。ポテンシャルオゾンの算出は、「3.2.3(4)ポテンシャルオゾンを用いた評価」と同じとした。

#### (1) ポテンシャルオゾンの高濃度の経年変化

##### ア. ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年間統計値の域内最高値の解析

優先解析地域毎のポテンシャルオゾンの経年変化について、日最高 8 時間値の年間統計値の域内最高値を整理した。この結果を図 3-49 に示す。

関東のポテンシャルオゾンの年最高値の域内最高値と年間 99 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化は傾向が異なり、年最高値が平成 14～16 年度をピークとして濃度の低下を示し、年間 99 パーセンタイル値は平成 10～12 年度から低下する傾向であった。この傾向は 90～98 パーセンタイル値にも見られた。

東海のポテンシャルオゾンの変化傾向は、年最高値と年間 99 パーセンタイル値は、統計値は平成 17～19 年度頃から低下の傾向が見られ、年間 98 パーセンタイル値では平成 16～18 年度頃から低下傾向が見られた。

阪神のポテンシャルオゾンの変化傾向は、最高値は平成 17～19 年度から低下し、平成 20～22 年度に一旦上昇する傾向があった。年間 99 パーセンタイル値は、平成 17～19 年度まで横ばいで、その後低下した。

九州のポテンシャルオゾンの変化傾向は、最高値は平成 19～21 年度まで経年的に上昇傾向が見られた。年間 99 パーセンタイル値も同様に上昇傾向があるが平成 18～20 年度付近で横ばいであった。

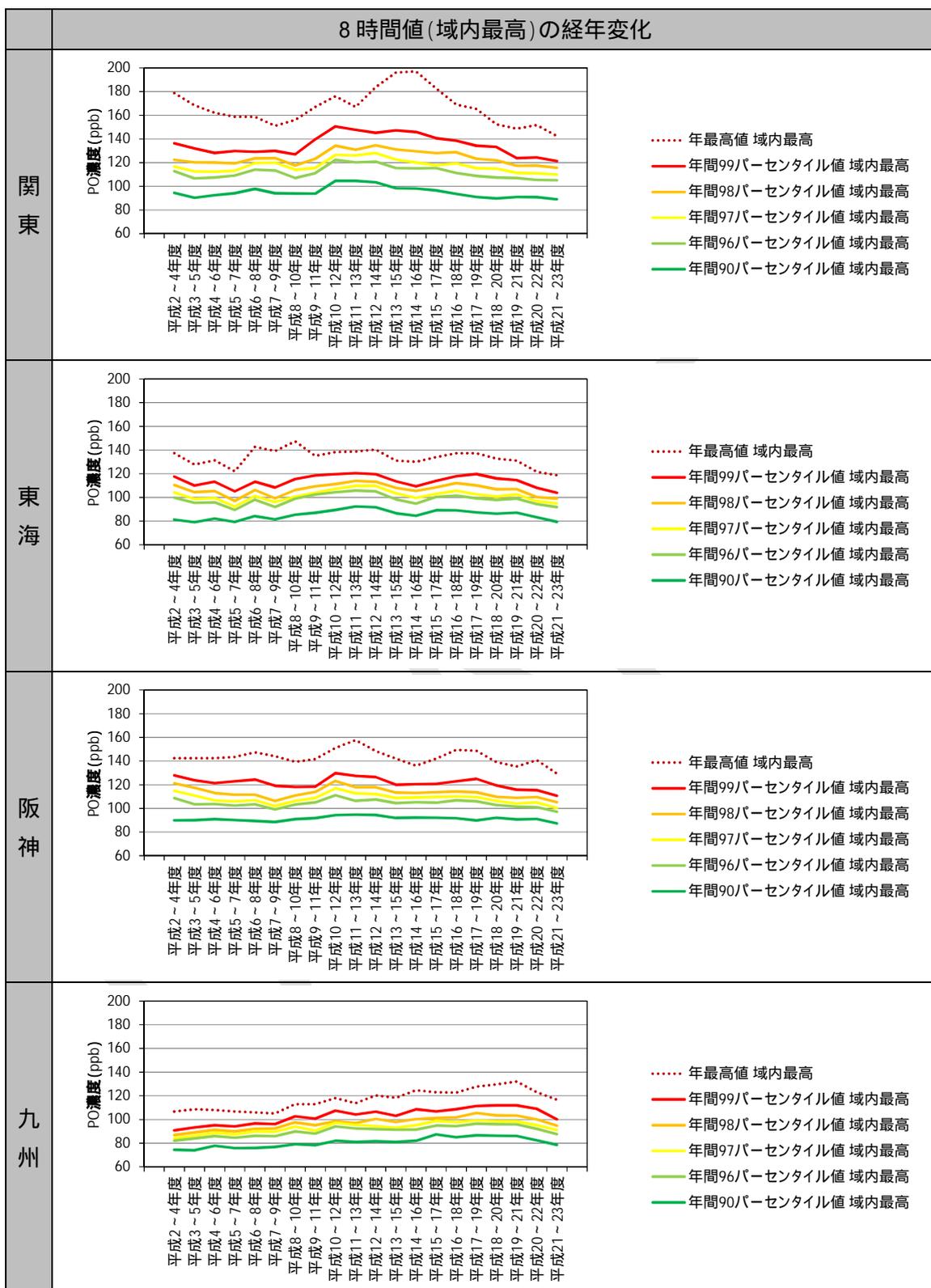


図 3-49 ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年統計の経年変化

#### イ. ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年間統計値の域内平均値の解析

測定局毎に年統計値(年最高値、年間 96～99 パーセンタイル値、年平均値)を算出した後、3 年間の平均を求め、地域毎に平均値を計算した。この結果を図 3-44 に示す。

関東は、年最高値の域内平均値は平成 16～18 年度より後で濃度が低下する傾向みられた。98、99 パーセンタイル値についても同様であったが、96、97 パーセンタイル値程度からは平成 15～17 年度以降は概ね横ばいとなった。

東海は、関東とは異なりいずれも平成 13～15 年度より後で濃度が上昇する傾向であった。

阪神は、年最高値の域内最高値の年間 99 パーセンタイル値は平成 16～18 年度ごろから横ばい傾向で、98、97、96 パーセンタイル値は平成 13～15 年度より後で濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 12～14 年度から平成 19～21 年度でいずれの指標の上昇傾向が見られた。

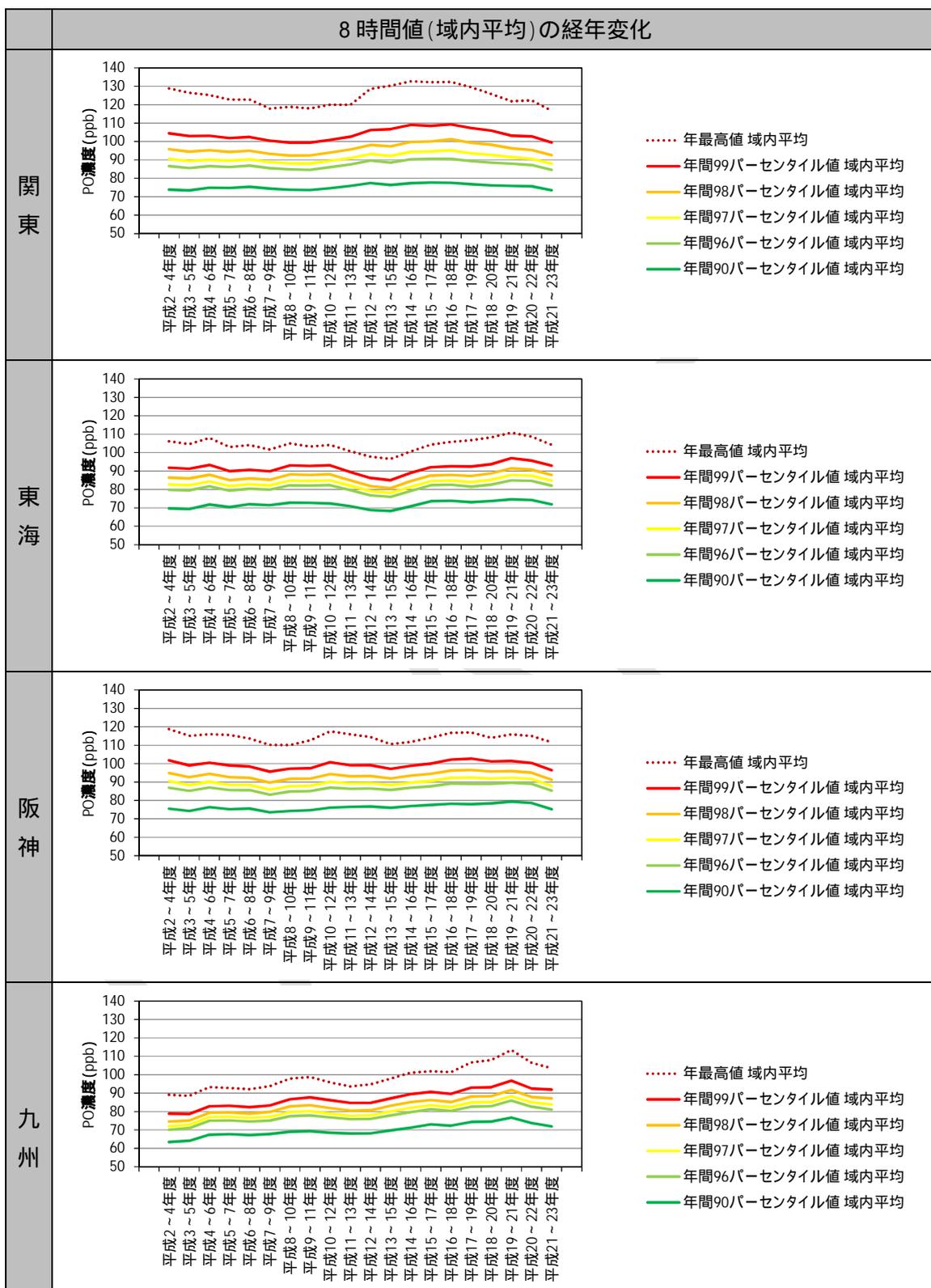


図 3-50 ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年統計の域内平均値の経年変化

## (2) 日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数

### ア. 濃度ランク別測定局数比率の経年変化

ポテンシャルオゾンの高濃度(日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値)の濃度ランク別測定局数を整理したところ図 3-51 の結果となった。

関東は、120ppb を超える局数は平成 17～19 年度から減少する傾向が見られ、90～100ppb の局数が増加した。

東海は、100ppb を超える局数は平成 19～21 年度からまで増加し、80～90ppb の局数は平成 18～20 年度頃から減少がみられた。

阪神は、110ppb を超える局数は平成 17～19 年度をピークにして、これ以降で減少した。90ppb 以下の局数は平成 16～18 年度から横ばいとなった。

九州は、90ppb を超える局は平成 19～21 年度まで増加傾向がみられた。

### イ. 濃度ランク別測定局数の度数分布の経年変化

「濃度ランク別測定局数比率の経年変化」を詳しく検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別測定局数の度数分布を作成した。この結果を図 3-52 に示す。年度毎に地域内の測定局の総数が変化することから、各断面の総測定局数に対する比率を用いて整理した。

関東は、平成 20～22 年度には最多局数のランク以下では局数の減少が見られ、これ以上のランクでは局数が増加した。最高が高いランクの局数は減少した。

東海は、平成 20～22 年度に 120ppb 以上の高濃度局の出現が無くなり、中位濃度ランクの濃度上昇がみられた。

阪神は、平成 20～22 年度に高位局と低位局の出現が減少し、中位ランクに出現が集中するようになった。

九州は他の地域と異なり、濃度が高いランクの局数が増加傾向し、最多頻度ランクの濃度上昇が見られた。

### ウ. 地域内の濃度上位局と下位局の濃度変化

地域内の濃度ランク別測定局数の解析結果から、低濃度域と高濃度域での測定局数の経年変化が地域により異なっていた。

そこで、度数分布の濃度上位、中位、下位となる局の濃度変化を把握したところ、図 3-53 となった。濃度上位局の濃度として域内上位 2% 目に当たる濃度(域内測定局濃度の 98 パーセンタイル値)、中位濃度として中央値(域内の測定局濃度の 50 パーセンタイル値)、下位の濃度として域内濃度の下位 2% に当たる濃度(域内 2 パーセンタイル値)の経年変化を整理した。また、上位局と下位局の濃度差として 98 パーセンタイル値と 2 パーセンタイル値の差も示した。参考に域内最高値についても示している。

関東は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 12～14 年度から平成 16～18 年度まで

緩やかな低下が見られ、それ以降は低下する傾向が見られた。下位局の濃度は、上昇傾向が見られ、中位局の濃度は平成 16～18 年度から濃度が低下した。

東海は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 19～21 年度まで横ばいで、それ以降は低下傾向が見られたものの、下位局は同時期より濃度の上昇が見られ、中位局も上昇した。

阪神は、域内の濃度上位局の濃度は、平成 17～19 年度ごろから低下傾向が見られた。中位局は平成 17～19 年度ごろから横ばいとなった。下位局と中位局濃度は経年的に上昇傾向が見られた。

九州は、域内の濃度上位局の濃度は、経年的な上昇傾向が見られた。中位局と下位局の濃度は上昇する傾向が続いている。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向がみられた。

## エ. ポテンシャルオゾンの空間分布の経年変化

濃度ランク別の測定局数の推移から、関東・阪神で濃度高位局の濃度が低下し、低位局の濃度は横ばいまたは上昇する傾向が見られた。東海は高位局が横ばい、低位局は上昇した。九州は、高位局と低位局で共に濃度は上昇がみられた。

この傾向と、地域内の濃度分布の変化の関係を検討するために、平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の濃度分布を整理した。この結果を図 3-54 に示す。濃度分布は、測定局毎に昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値を 3 年移動平均した結果を用いた。

関東は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、東京都、埼玉県、群馬県に見られた高濃度は改善が見られ、千葉県も濃度の低下が見られた。平成 11～13 年度に濃度が低かった神奈川県、栃木県、茨城県は濃度の上昇が見られた。

東海は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、三重県は濃度の低下し、愛知県で濃度の上昇が見られた。

阪神は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、濃度が高かった大阪府南部で濃度の低下が見られ、大阪府北部から京都府にかけては濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 11～13 年度から平成 20～22 年度にかけて、地域全体で濃度の上昇が見られ、80～100ppb の局が多くなった。

上位と下位局の濃度差は、各地域とも差が小さくなる傾向は濃度分布にも見られ、高濃度局は濃度が低下、低濃度局は濃度が上昇する傾向が各地域でも見られ、地域内の濃度が一様に近づく傾向があった。

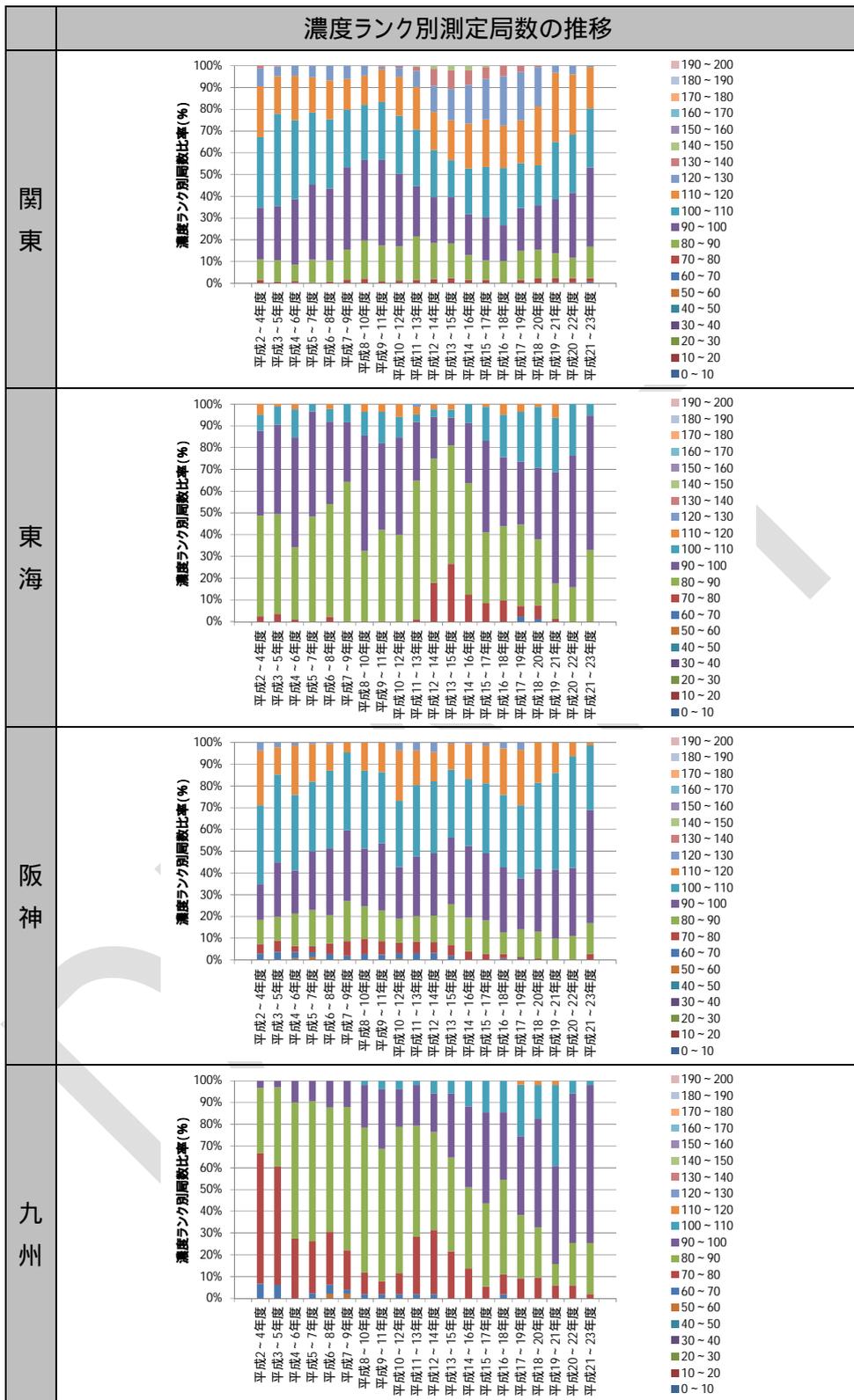


図 3-51 ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の濃度ランク別測定局数比率の経年変化

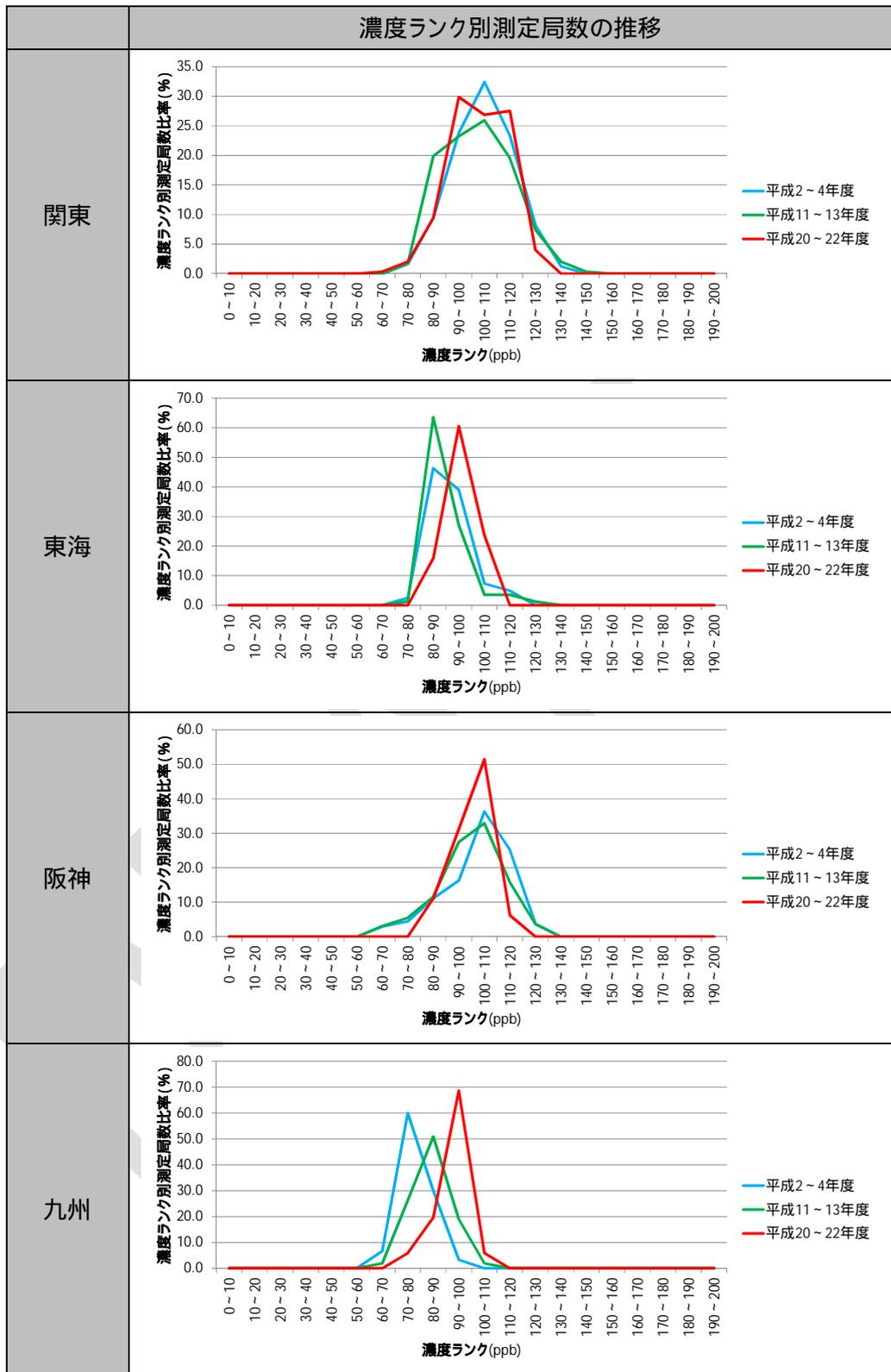


図 3-52 ポテンシャルオゾンの日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値ランク別測定局数比率の経年変化

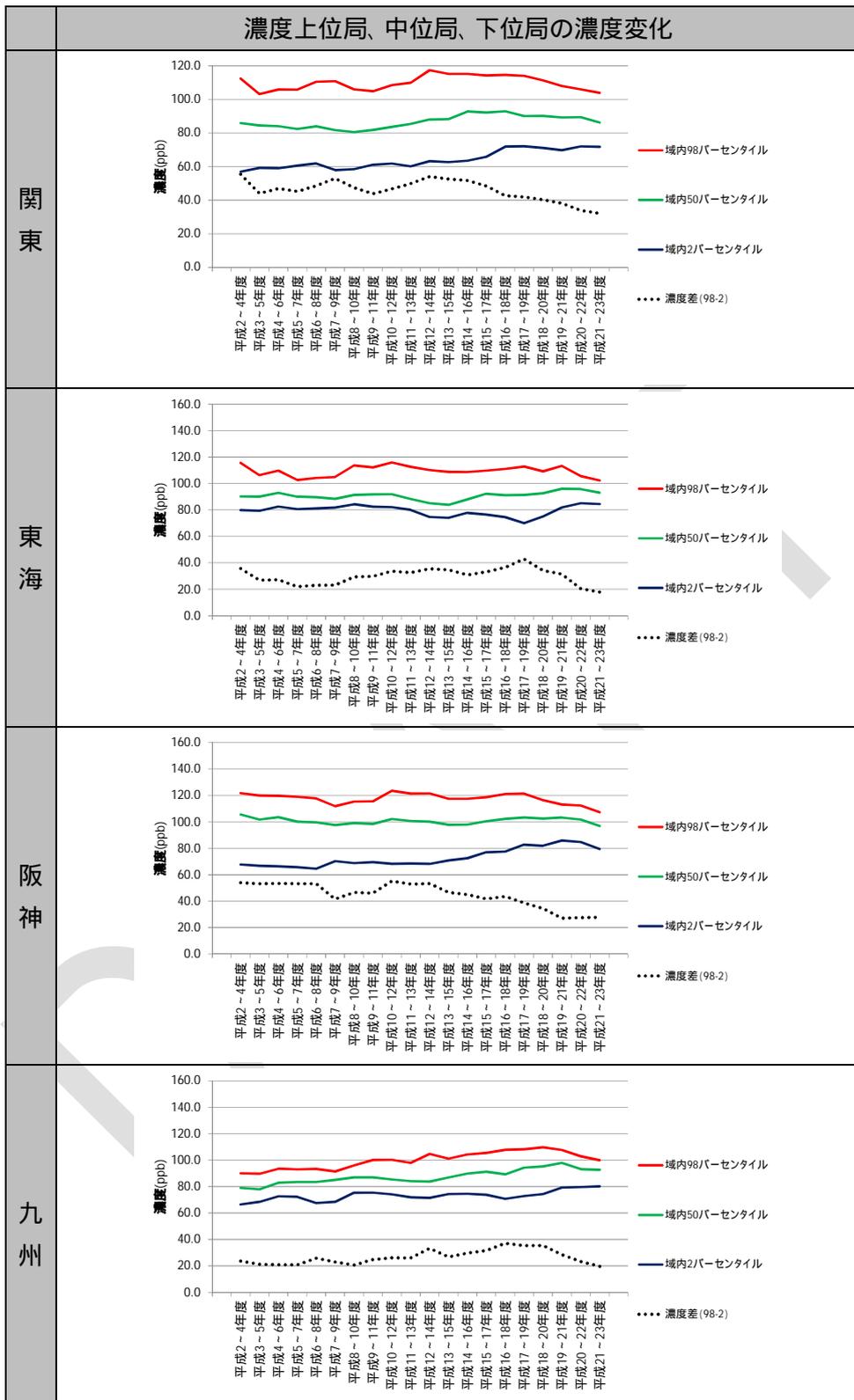


図 3-53 地域内の濃度上位、中位、下位局の濃度の経年変化

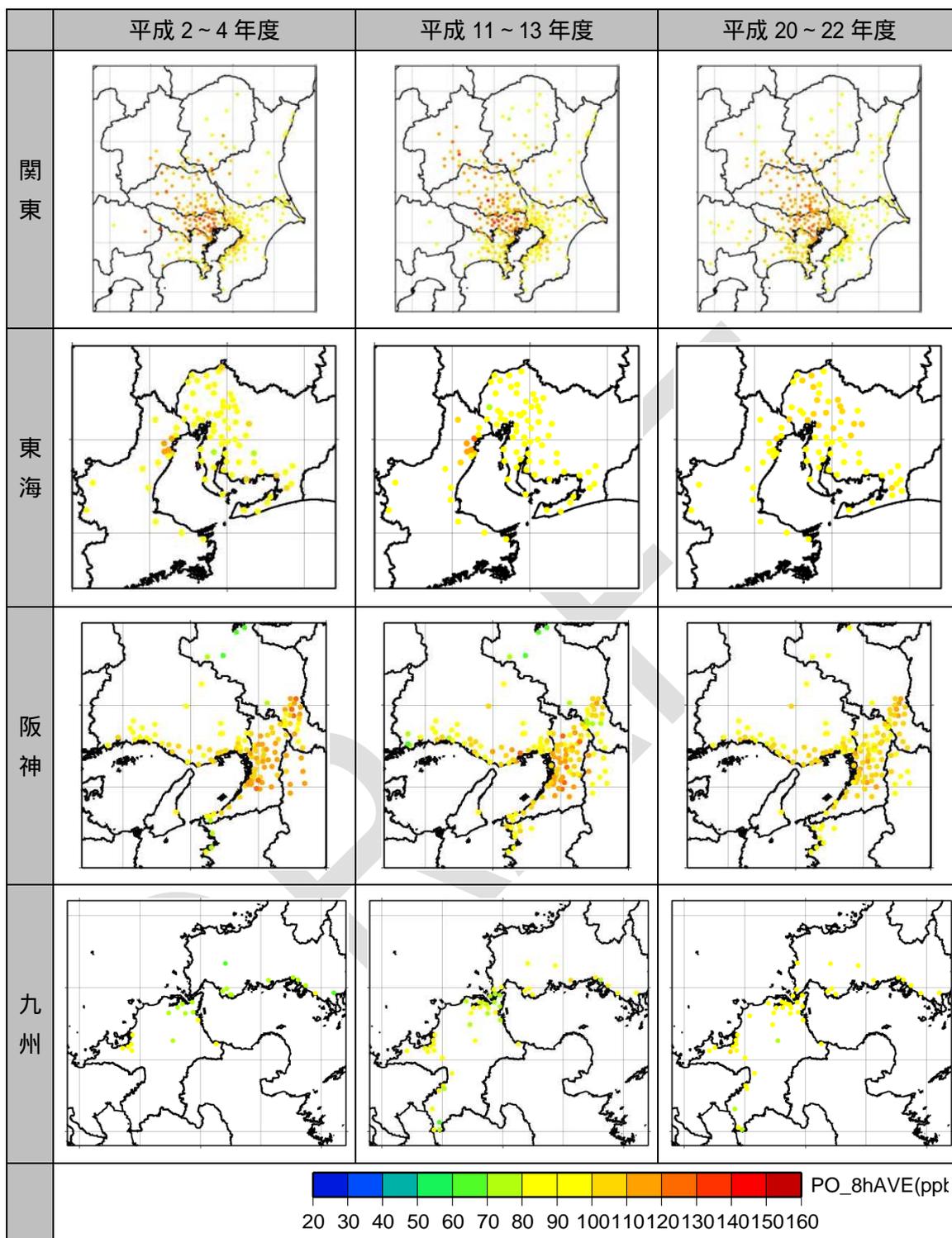


図 3-54 ポテンシャルオゾン(日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値)の濃度分布

### 3.3.4 まとめ

国際的な光化学オキシダントの評価基準値の 8 時間値について、年度統計を行いその傾向を整理した。この結果以下のとおりであった。

- 8 時間値の日最高値の年最高値の経年変化は、年々変動が大きいが、3 年の移動平均により長期的な経年変化が捉えやすくなった。
- 関東は、8 時間値の日最高値の年最高値の経年変化は、平成 14～16 年度をピークにして濃度の低下が見られた。一方、8 時間値の日最高値のうち年間の高濃度の上位数パーセントを除外した場合、平成 10～12 年ごろから横ばいで、99 パーセンタイル値は平成 18～20 年以降、98 パーセンタイル値、97 パーセンタイル値は平成 19～21 年度以降で低下する傾向が見られた。また、8 時間値の日最高値の年最高値の域内平均値は、平成 14～16 年度をピークにして低下傾向が見られた。各パーセンタイル値は平成 16～18 年度をピークに低下傾向となっていた。
- 東海は、8 時間値の日最高値の年最高値の経年変化は、平成 9～11 年度以降概ね横ばいで、平成 17～19 年度ごろからやや低下に転じた。各パーセンタイル値も同様の傾向があった。また、8 時間値の日最高値の年最高値の域内平均値は、平成 13～15 年度以降上昇傾向が見られ、各パーセンタイル値も同様の傾向であった。
- 阪神は、8 時間値の日最高値の年最高値の経年変化は、東海よりは経年変動が見られたが、関東ほどの変化はなかった。東海と同様に年最高値、各パーセンタイル値と同様に平成 17～19 年度ごろから濃度の低下傾向が見られた。また、8 時間値の日最高値の年最高値の域内平均値は、平成 16～18 年度以降は横ばいからやや低下傾向が見られ、各パーセンタイル値は、濃度がやや上昇する傾向となった。
- 九州は、8 時間値の日最高値の年最高値の経年変化は、他の地域と異なり、平成 19～21 年度まで濃度上昇が見られ、その後低下した。年間 99 パーセンタイル値は緩やかな濃度上昇から横ばいの傾向が見られ、98、97 パーセンタイル値はやや濃度が低下する傾向が見られた。また、8 時間値の日最高値の年最高値の域内平均値及び各パーセンタイル値は、平成 19～21 年度をピークに上昇傾向であった。
- 8 時間値の 3 年移動平均の統計的な傾向を見ると、年最高値の域内最高値は、地域毎に傾向が異なり、関東では平成 21～23 年度に濃度の上昇が見られるなど年々変動の影響が見られた。各年度の高濃度のうち上位の数パーセントを除くことにより特異的な高濃度が除外することができ、関東・東海・阪神で濃度の改善が確認できた。

### 3.4 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数と積算濃度

#### 3.4.1 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数

##### (1) 概要

光化学オキシダントが高濃度となり長時間継続した場合、その影響は考慮する必要がある。高濃度の継続を評価する方法として、基準となる濃度を設定し、それ以上の濃度となる時間数を評価する方法がある。光化学オキシダント濃度の 1 時間値が基準値以上となった時間数について検討を行った。

表 3-6 解析の概要

項目	内容
目的	光化学オキシダントの影響時間の経年変化
データ	Ox 濃度が基準値以上となった時間数 (基準値:40ppb、60ppb、80ppb、100ppb、120ppb)
時間統計	年度(時間数)

##### (2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化

測定局毎に基準とする値(40、60、80、100、120ppb)以上となる時間数を求めた。各局で年間測定時間数が異なることから、1日当たりの時間数に換算後、年間日数365日をかけて、年間時間数を求め、地域毎の平均値を求めた。この結果を3年毎に和を取り、経年変化を把握した。この結果を図3-55に示す。

平成12～14年度以降の傾向は、いずれの地域も40、60ppb以上となる時間数は増加する傾向が見られた。高濃度を示す基準値では、減少傾向が見られた。ただし、減少傾向が見られる基準値は地域毎に異なっていた。関東は80、100、120ppb以上となる時間数は減少傾向が見られた。東海は120ppb以上で減少傾向が見られ、阪神は100、120ppb以上となる時間数で減少傾向が見られた。九州は、増加傾向がみられ、平成20～22年度以降やや減少している。

##### (3) まとめ

光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化を把握した。この結果、以下の通りであった。

- 120ppb以上の濃度となる時間数の変化は減少する傾向が見られた。
- 関東は120ppb以上となる時間数が多いものの、他の地域は関東の半分程度の時間数であり、地域毎に時間数の差が大きかった。

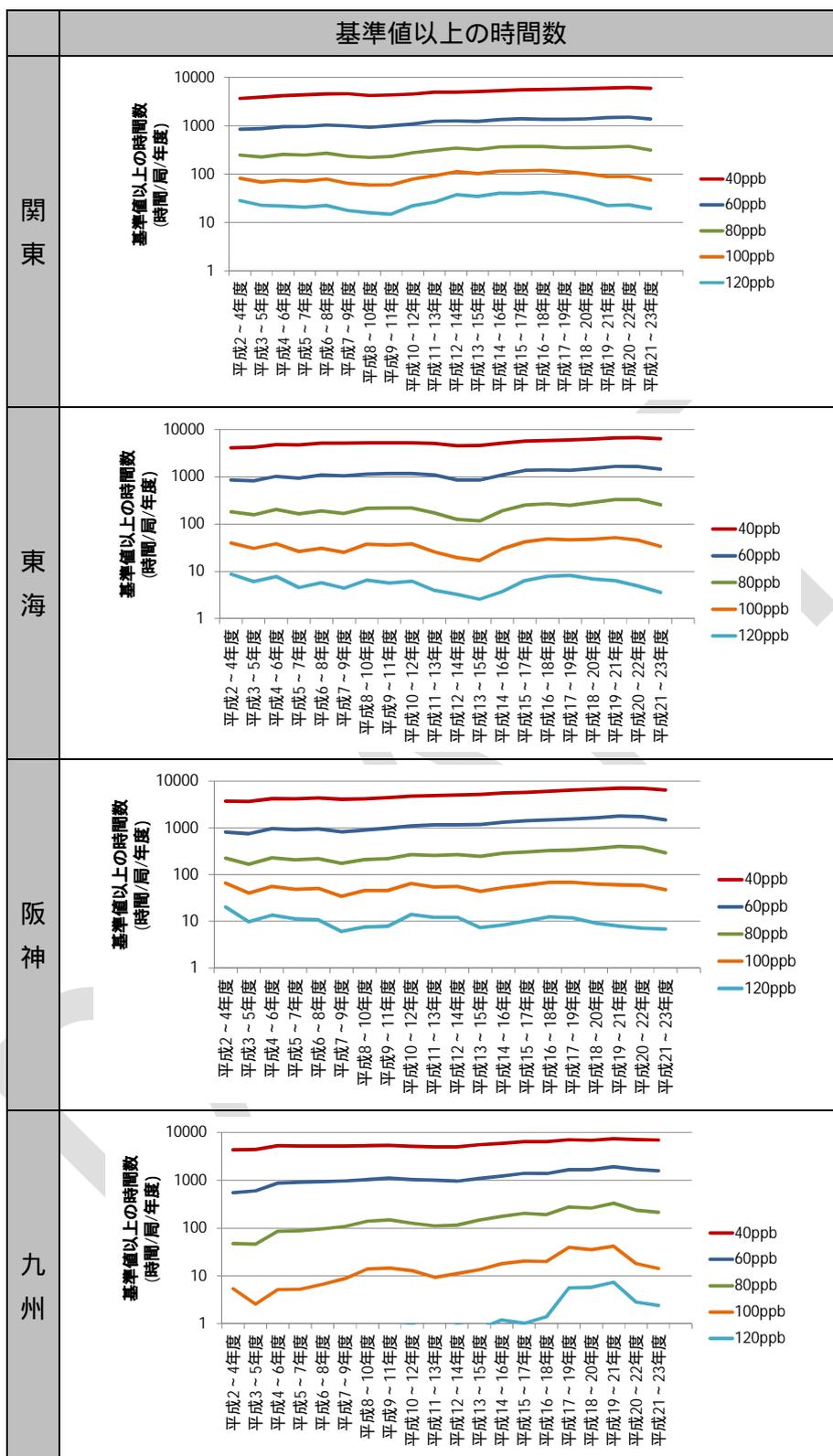


図 3-55 光化学オキシダントの基準値以上となった時間数(3年積算)の経年変化

### 3.4.2 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった場合の積算濃度

#### (1) 概要

光化学オキシダントの高濃度の出現時間数だけでは、濃度の高低の影響を評価することが難しい。そこで、基準となる濃度を超えた濃度を積算し、濃度と時間数の両方を評価する方法を検討した。

表 3-7 解析の概要

項目	内容
目的	光化学オキシダントの影響時間の経年変化
データ	Ox 濃度が基準値以上となった濃度の年間積算値 (基準値:40ppb、60ppb、80ppb、100ppb、120ppb)
時間統計	年度(積算濃度)
空間統計	地域内平均値

#### (2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となる場合の積算濃度の経年変化

測定局毎に基準とする値(40、60、80、100、120ppb)以上となる濃度の積算値を求めた。各局で年間測定時間数が異なることから、1日当たりの積算値に換算後、年間日数365日をかけて、年間積算濃度を求め、地域毎の平均値を求めた。この結果を3年毎に平均を取り、経年変化を把握した。この結果を図 3-56 に示す。

平成 12～14 年度以降の傾向は、いずれの地域も 40、60ppb 以上となる積算濃度は増加する傾向が見られた。関東は 100、120ppb 以上となる積算濃度は減少傾向が見られた。東海は 120ppb 以上で減少傾向が見られ、阪神は 100、120ppb 以上となる積算濃度で減少傾向が見られた。九州は、増加傾向がみられ、平成 20～22 年度以降やや減少していた。

#### (3) まとめ

光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化を把握した。この結果、以下の通りであった。

- 光化学オキシダント濃度が 120ppb 以上となる場合の積算濃度は経年的に減少する傾向が見られた。
- 基準値以上となる時間数の経年変化と同様に、関東は 120ppb 以上となる積算濃度が高く、他の地域は関東の 1/10 程度の時間数であり、地域差が大きかった。

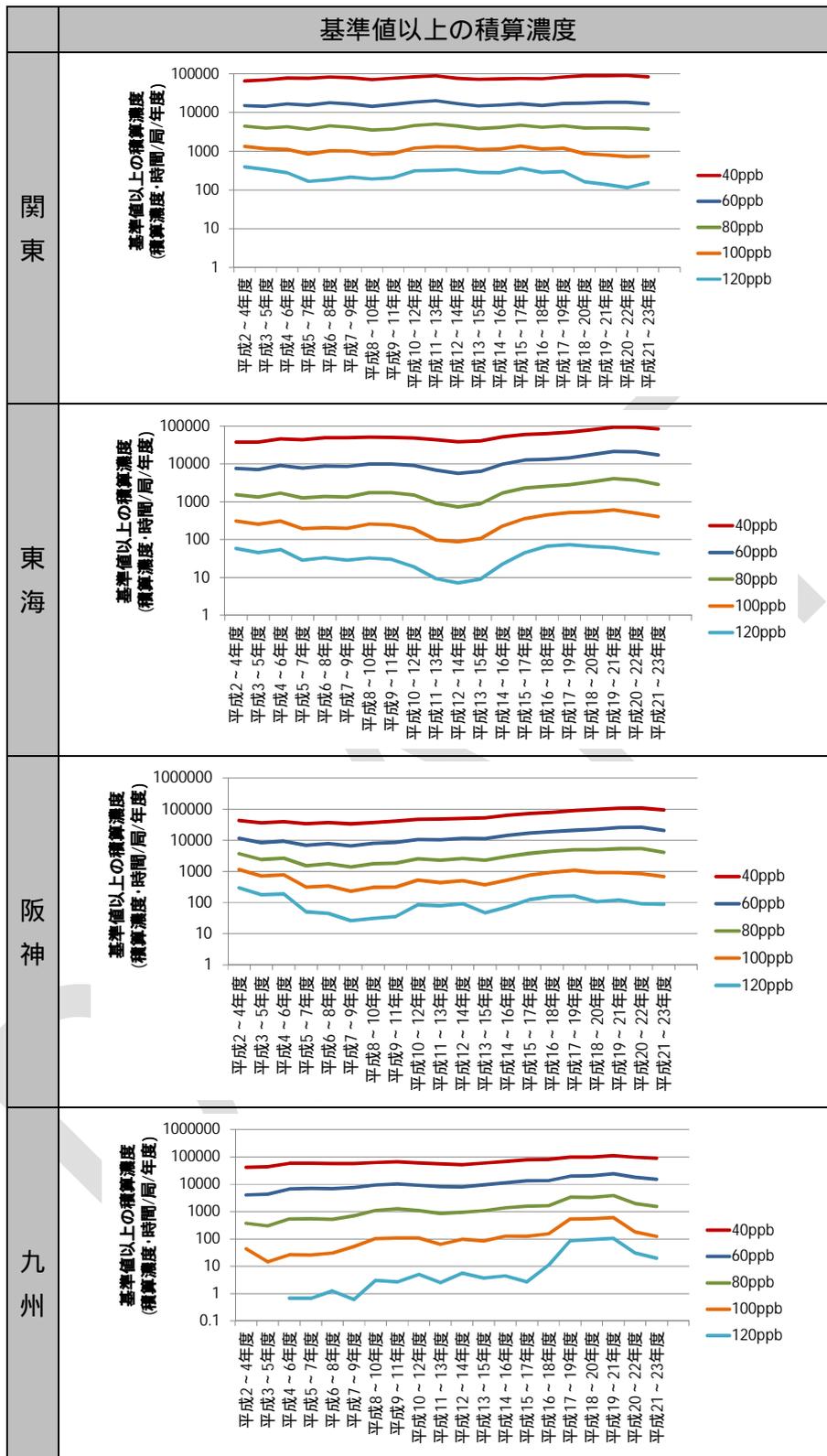


図 3-56 光化学オキシダントの積算濃度の経年変化(3年平均)

### 3.5 まとめ

光化学オキシダントの現象解明のために多角的な解析を行った。この結果を以下にまとめる。

#### 【平均的な濃度の上昇】

- 光化学オキシダントの平均的な濃度は、経年的に濃度上昇が見られた。平均的な濃度の上昇は、春季にその傾向が強い傾向が見られた。
- 光化学オキシダントの平均的な濃度の上昇の主な要因として、「前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」、「タイトレーション効果の低下」、「越境汚染の影響の増大」が考えられ、本解析では、後者2つ要因を検討した。
- 東日本では、地域内の濃度上位局は濃度が横ばいであり、下位局で濃度の上昇が見られた。また、タイトレーション効果を除外したポテンシャルオゾンの解析では、平均濃度は横ばいから低下傾向を示した。このことから、東日本では、タイトレーション効果の低下が相対的に大きくなったことが、年間の平均的な濃度の濃度上昇の要因であったと考えられる。ただし、東日本でも、春季のポテンシャルオゾン濃度はやや上昇する傾向が見られ、季節によって越境汚染による濃度上昇が見られた。
- 西日本でも、タイトレーション効果の低下と越境汚染の影響の増大と両方の要因が見られた。九州は、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの変化量に差が小さく、実質的なオキシダント濃度の上昇が見られたことから、日本国内では西の地域になるほど、越境汚染の影響が大きくなることが推察された。越境汚染の程度の季節差は見られ、春季にその影響は顕著であった。

#### 【高濃度の改善】

- 光化学オキシダントの高濃度は、関東・東海・阪神で濃度に改善が見られた。九州は、他の地域と異なり濃度の改善は見られなかった。
- 関東・東海・阪神で、昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値や 1 時間値が 120ppb を超えた時間数・積算濃度などの様々な指標により、VOC 排出抑制制度が実施された平成 18 年度ごろより濃度の改善が見られた。
- 前駆物質の濃度は、窒素酸化物は高濃度のオキシダントの濃度が改善する以前より低下が見られ、非メタン炭化水素濃度は VOC 排出抑制対策が始まった平成 17～19 年度頃から見られより濃度が低下する傾向となった。
- 光化学オキシダントの高濃度の出現状況を確認したところ、VOC 排出抑制対策が始まった平成 18 年度頃より関東・東海・阪神で年間 98 パーセンタイル値の域内上位局の濃度の改善が見られるようになった。
- 九州の光化学オキシダントの高濃度の出現は、長期的に濃度が上昇から横ばいとなっていた。「国内排出対策による改善傾向」と「東アジアなどの広域汚染の増大」の両方の影響により、この傾向が見られたと考えられる。

## 4 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

### 4.1 解析の統計値と評価指標の検討

#### 4.1.1 解析の統計値

光化学オキシダントの現象理解と「環境改善効果を適切に示す指標」づくりのために解析を行った。解析で実施した様々な統計値の中には光化学オキシダント対策の効果を示す指標となる解析結果も見られた。

本解析で検討した主な統計指標を表 4-1 に整理した。

表 4-1 主な統計指標

目的	日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO	概要
基礎データの整理 既存知見の検証	昼間の 平均値	年平均	域内平均			・Ox の平均濃度の 上昇 ・前駆物質と Ox の 関係 ・長距離輸送とタイ トレーションの影響 ・Ox 濃度の季節差
			域内最高			
			域内 98%			
			域内 50%			
			域内 2%			
		4～5月	域内平均			
		6月	域内平均			
	7～8月	域内平均				
			9月	域内平均		
		昼間の最高1 時間値	年 98%	域内最高		
域内平均						
域内 98%						
域内 50%						
域内 2%						
光化学オキシ ダントの環境改 善効果を適切 に示す指標に ついて 検討	日最高 8 時間値	年最高	域内最高			・8 時間値の特性 ・指標の検討
		年 99%	域内最高			
		年 99%	域内最高			
		年 98%				
		年 97%				
	年 96%	域内平均				
	年 90%					
	日最高 8 時間値の年間 99% 値が基準値以上のとなる局数	域内合計		-		
	1 時間値が基準値以上の時間数	域内平均		-		
	1 時間値が基準値以上の積算濃度	域内平均		-		

#### 4.1.2 年々変動の軽減方法

二酸化窒素や浮遊粒子状物質、微小粒子状物質などの大気汚染物質の場合、年平均値や年間 98% 値、日平均値の 2% 除外値など 1 年度毎の統計値により評価をする。光化学オキシダントの場合、年統計値は図 4-1 のように年々変動が大きく、気象等による変動と対策効果が重なり、効果を捉えにくい。

年統計値の 3 年移動平均を解析したところ、年々変動が軽減され、濃度変化の経年変化の把握が容易になることが確認できた。光化学オキシダントの評価は、年統計値の 3 年移動平均が有効であった。

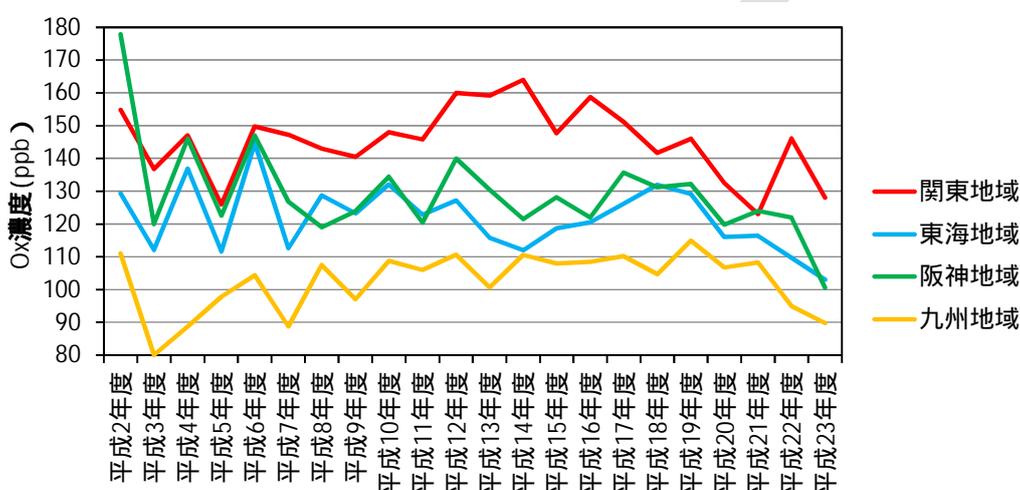


図 4-1 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化

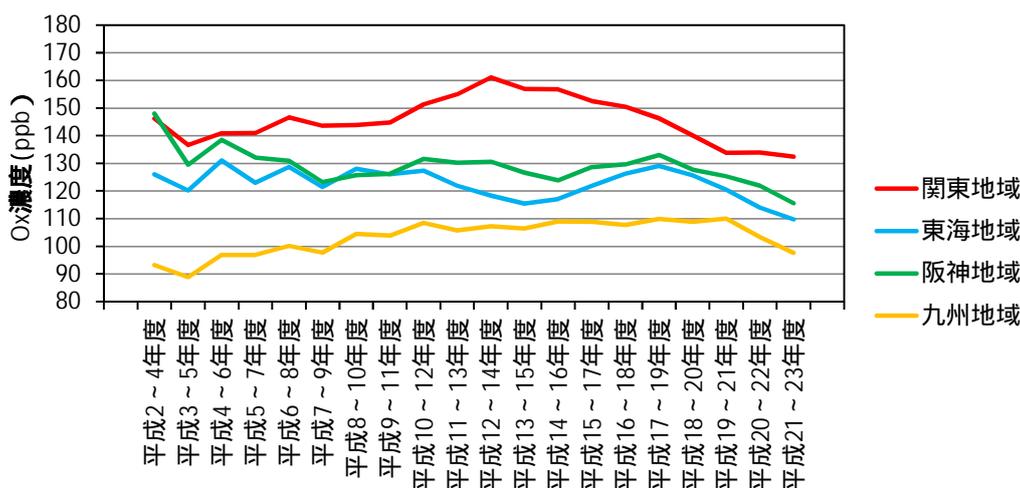


図 4-2 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値(3 年移動平均)の経年変化

#### 4.1.3 平均的な濃度に着目した指標の検討

平均濃度に着目した指標として、図 4-3 に示すように光化学オキシダントやポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値や季節平均値の域内平均値がある。

光化学オキシダント濃度は、いずれの優先解析地域でも経年的に濃度上昇が見られた。春季の解析やポテンシャルオゾンの解析などによって「越境汚染の影響の増大」が見られ、ポテンシャルオゾンの解析により東日本で「タイトレーション効果の低下」が相対的に大きな要因となっていることが確認できた。

光化学オキシダントの平均値に着目した指標は、越境汚染の影響の変化やタイトレーション効果の変化を概観する指標として有効であると考えられる。

DRAFT

日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO	
昼間の 平均値	年平均	域内平均			
		局数			
		域内 98% 50% 2%	関東		
		Ox PO 関東			
		域内平均			
		域内平均			

図 4-3 平均的な濃度に着目した指標 (年間統計)

#### 4.1.4 高濃度に着目した指標の検討

地域内の高濃度に着目した指標として、図 4-4 に示すとおり昼間の最高 1 時間値の年間 98 パーセンタイル値がある。

光化学オキシダントの 1 時間値の昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値を 3 年平均することにより比較的安定的な濃度変化を把握することができた。光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値の年間統計値についても同様であった。

高濃度の上位数%を除外した値(99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値)は、光化学オキシダントの高濃度の低下が確認でき、濃度が低下する時期は平成 18 年度ごろとなっていた。

DRAFT

日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO
昼間の最高1時間値	年 98% 1	域内最高		
		域内平均		
		局数		
		域内最高 98% 50% 2%		

図 4-4 高濃度に着目した指標

#### 4.1.5 日最高 8 時間値に着目した指標の検討

日最高 8 時間値に着目した指標として、図 4-4 に示すとおり日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値などがある。

日最高 8 時間値の解析では、高濃度の上位数%を除外した値(99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値)は、1 時間値で見られた光化学オキシダントの高濃度の低下が確認でき、濃度が低下する時期は平成 18 年度ごろとなっていた。

DRAFT

日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO
日最高8時間値	年最高	域内最高		
		域内99%		
	域内平均			
	局数			

図 4-5 日最高8時間値に着目した指標

日統計	期間統計	地域統計	Ox	PO
日最高8時間値	年99% 年98% 年97% 年96% 年90%	域内最高		
		域内平均		
	年99%	域内98% 50% 2%		

図 4-6 日最高8時間値に着目した指標

#### 4.1.6 出現頻度や積算濃度に着目した指標の検討

光化学オキシダント対策の効果を示す指標として、高濃度の影響時間や積算濃度が考えられる。

本調査では、基準となる濃度以上となる時間数や積算濃度について検討を行ったところ、光化学オキシダント濃度の 120ppb 以上時間数や積算濃度において、高濃度の改善を傾向が確認できた。しかしながら、指標となる時間数や積算濃度は地域で差が大きすぎる点は、地域間の比較や、目標設定においては課題となる。

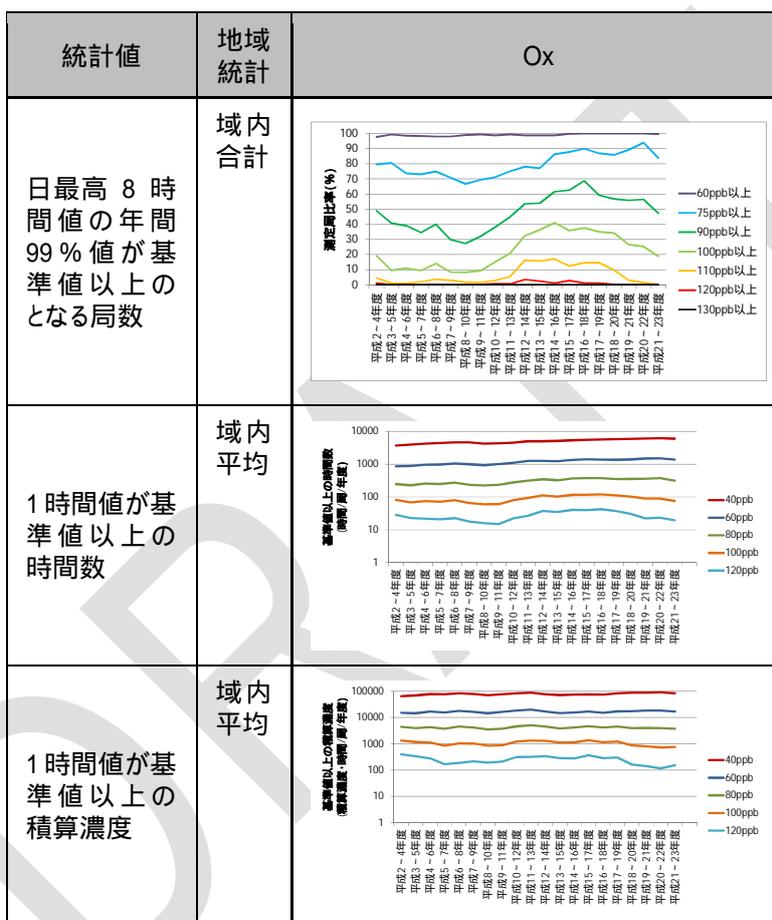


図 4-7 高濃度の出現頻度に着目した指標

#### 4.1.7 まとめ

光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標として、高濃度に着目した指標や高濃度の出現頻度に着目した指標が有効であることが確認できた。

高濃度の出現頻度に着目した指標は、地域内での改善を示す指標としては有効性が確認できるものの、地域間での値に差が大きい点が課題となる。すなわち、積算濃度を見た場合、平成 15～17 年度では関東は 350ppb・時間であり、九州では数時間と地域間差が非常に大きく、全国で統一した目標値などの設定が困難となる。従って、この指標は、地域毎に改善を評価する指標としては活用も可能であると考ええる。

高濃度に着目した評価指標としては、1 時間値または 8 時間値に着目した評価指標が有効であった。8 時間値については、WHO や米国 EPA で評価基準として採用されるように、光化学オキシダントの国際的な評価指標として利用され、米国 EPA は、年間第 4 位値 (99 パーセンタイル値相当) の 3 年平均により評価を採用している。統計的には、8 時間値の日最高値について、年間の高濃度の上位数%を除外し、3 年平均することにより、安定的な傾向を示す指標となることが確認できた。

以上のことから、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は以下の方法を採用することが妥当であると考ええる。

- ・光化学オキシダントの 8 時間値を基礎とする。
- ・日最高 8 時間値のうち年間の高濃度上位数%を除外した濃度を用いる。
- ・統計的な安定な指標とするために 3 年の移動平均を行う。

## 4.2 光化学オキシダントの日最高 8 時間値を用いた外れ値の扱いの検討

### 4.2.1 概要

光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標を検討したところ、日最高 8 時間値の年間上位数%を除外し、3 年間の移動平均をとることにより安定的な指標となることを確認した。除外するデータが多いと、高濃度を特徴づける重要なイベントを除外するおそれもあり、適切な除外するデータ数を設定する必要がある。本解析では、外れ値の検討を行うことにより、除外するデータ数の設定を検討した。

光化学オキシダントを評価する指標としては、WHO は 8 時間平均値をガイドライン値と設定しており、米国 EPA でも 8 時間値を採用し、8 時間値の年間第四位値の 3 年平均値を評価の基準に用いている。本調査でも、8 時間平均値の傾向を検討した。

一方、光化学オキシダントの改善効果を示す評価指標としては、外れ値を除外した安定的な指標を採用する必要がある。EPA の場合、年間第 4 位値を採用することで、高濃度上位の約 1% を除外し、さらに 3 年平均することにより安定性を増している。

国内では、二酸化窒素や浮遊粒子状物質では、年間 98% 値や 2% 除外値を採用し、高濃度を 2% 除外した評価を行っている。光化学オキシダントでも安定的な指標を採用するためには同様の処理が必要となるが、除外を大きく設定すると、重要な高濃度イベントを排除しすぎ、除外が小さすぎると特異な高濃度が年間を代表値となる恐れがある。

本調査では、除外するデータ数の設定を検討するために、統計手法のひとつで一般的に使われる外れ値の評価により、特異的な高濃度イベントの除外数を検討した。

一般に、外れ値とは、統計において他の値から大きく外れた値であり、異常値や特異な現象による大きな値などが含まれることとなる。光化学オキシダントでは、機器故障などの異常値や、特異的な高濃度が外れ値に該当する。しかしながら、本調査で解析に用いた測定値は、地方自治体や国ですでにスクリーニングがなされ、機器異常等の異常値は除外されたデータである。したがって、本調査でいう外れ値は、「何らかの要因で引き起こされた特異的な高濃度」であるとした。この要因の例としては、気象要因があり、異常な猛暑による高濃度などが該当する。

表 4-2 外れ値の定義

名称	定義
一般的な外れ値	統計において他の値から大きく外れた値であり、異常値や特異的な現象による高濃度などが含まれる。
異常値	測定機器の故障や不具合による異常な値
外れ値(本調査)	何らかの要因で引き起こされる特異的な高濃度

#### 4.2.2 外れ値の評価方法

外れ値の評価方法としては一般的な方法を用いた。すなわち、サンプルデータから 25 パーセンタイル値(Q1)と 75 パーセンタイル値(Q3)を求め、この差の 1.5 倍を Q3 に加えた値を閾値とし、この値を超えるデータを外れ値とした。模式図を図 4-8 に示す。

$$\text{外れ値} > Q3 + (Q3 - Q1) \times 1.5$$

一般的には外れ値は、統計的に他の値のから大きく外れた値であり、異常値や特異的な現象によるデータを示す。異常値は測定機器の故障や通信異常による異常な値である。本解析で用いた測定データは、国及び地方自治体がスクリーニングしており、異常値が除外されたデータである。このことから、本解析での外れ値には異常値は含まれず、特異的な現象により引き起こされた高濃度を示すこととなる。

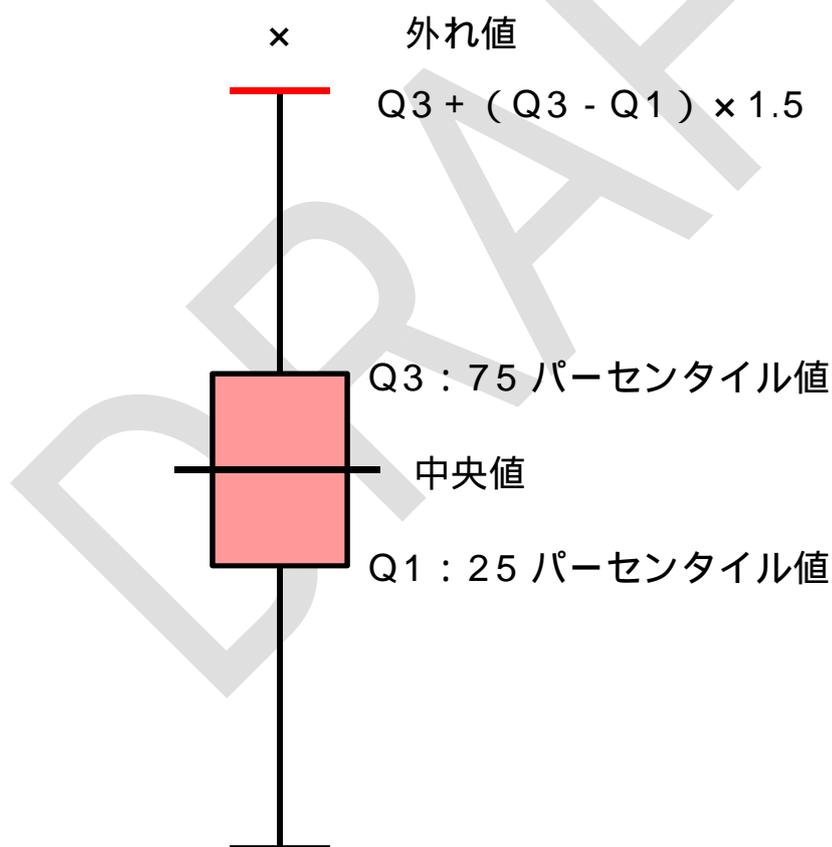


図 4-8 外れ値の評価方法(模式図)

#### 4.2.3 外れ値を検討する上での注意点

##### (1) 外れ値の除外と高濃度イベントの関係

濃度上位の高濃度イベントを除外することにより安定的な指標とすることすることができ一方、除外するデータ数を多く設定すると重要な高濃度イベントさえも除外してしまう恐れがある。

除外のデータ数(率)と高濃度イベントの関係を整理するために、高濃度イベントを1~10%除外した場合に、対象となるイベントの程度を把握した。

関東と九州の8時間値の日最高値の域内最高値を用いて除外される高濃度イベントを把握した。関東の検討結果を図4-9に示す。関東の場合、年間のうち高濃度イベントを1%除外した場合、4~9月のデータのうち3日分の高濃度イベントが除外された。10%除外するとほとんどの高濃度日が除外されることとなった。

平成19年度の九州の光化学オキシダント濃度を例に検討した。この年は5月に大規模な越境汚染が指摘された年度である。九州では除外する高濃度イベントを2%程度とした場合、4~5月の高濃度日をかなり除外する結果となった。

また、この例では、1年間のデータにより外れ値を評価した。ここで外れ値となった高濃度日は、他の年度では必ずしも外れ値ではないことがある。特に冷夏の年では、高濃度イベントが少なくなる傾向があるため、平均的な年では外れ値とならないような高濃度も、冷夏の年では外れ値として評価される恐れがある。これは、単年度で評価した特異的な高濃度が、数年スケールで見た場合、特異的な高濃度ではなく除外が不要な現象であることもある。このため、外れ値の評価期間について注意して解析する必要がある。

このように、除外のデータ数の設定は高濃度イベントどれだけ除外するかに効いてくるため、可能な限り高濃度イベントを残す必要がある。一方で、指標を検討する際には、安定的な指標を得る工夫も必要となる。

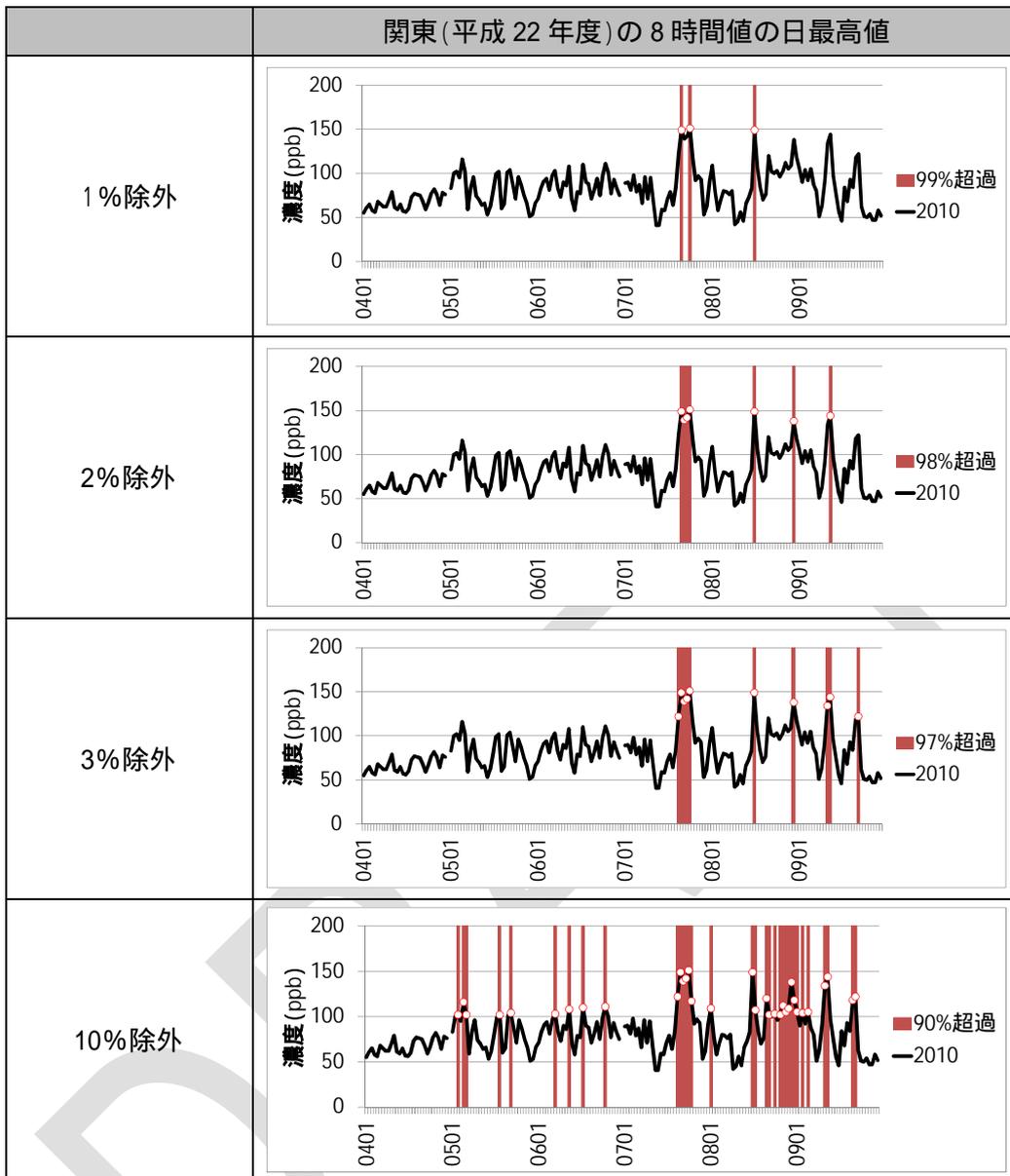


図 4-9 除外率と除外される高濃度イベントの関係(関東、平成22年度)

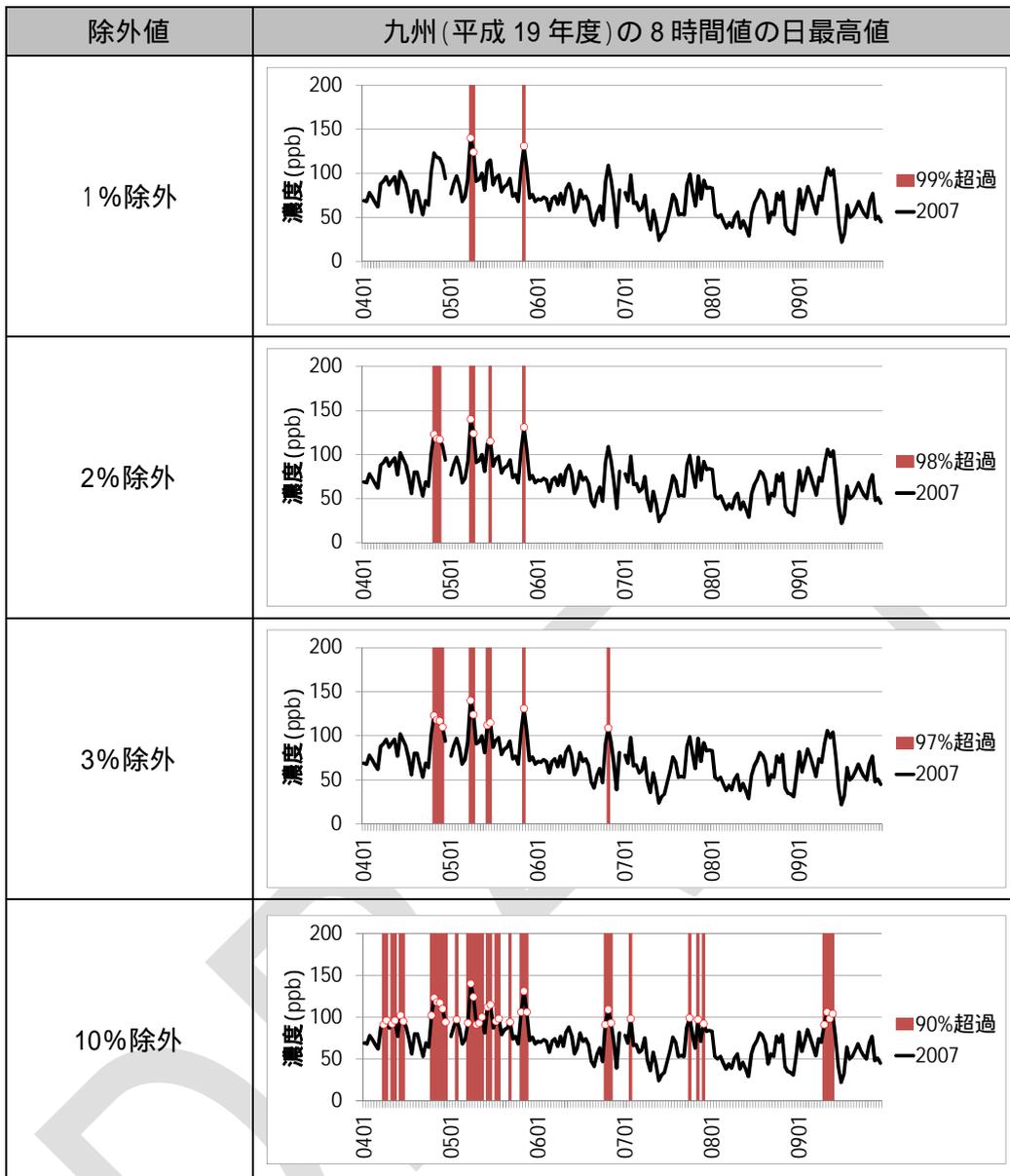


図 4-10 除外率と除外される高濃度イベントの関係(九州、平成19年度)

## (2) 外れ値を判定する濃度の算出期間

外れ値の検討する上で、75パーセンタイル値と25パーセンタイル値を算出する期間の設定も、外れ値の評価に影響を与える。

光化学オキシダントの場合、高濃度が出現しやすい期間は概ね4～9月ごろで、冬季は光化学生成が低下し高濃度を引き起こすことはほとんどないと考えられる。このため、年間データで25、75パーセンタイル値を求めた場合と、4～9月ごろの暖候期でQ1、Q3を求めた場合では、外れ値を判定する閾値は後者の方が濃度は高くなる。

具体例を示すと図4-11となる。青の帯の範囲の下限が年間データを用いた際の25パーセンタイル値、上限が75パーセンタイル値を示し、青線がこれらを基に求めた外れ値の判定する閾値となる。この線を超える青色と赤色の×印は年間データを用いた場合の外れ値となる。一方、4～9月のデータで外れ値を評価する場合、Q1、Q3は赤色の帯の下限と上限となり、赤線が閾値となる。この場合、外れ値は赤色の×印のみとなる。

このように、外れ値の閾値を決める期間によっても外れ値の評価結果は大きく異なる。光化学オキシダントの場合、高濃度が出現しやすい時期は4～9月で、光化学生成の条件は10～3月と大きく異なる。

光化学オキシダントの場合、高濃度となる条件が一定となる期間の4～9月のデータを用いて評価することも一つの手法であると考えられる。

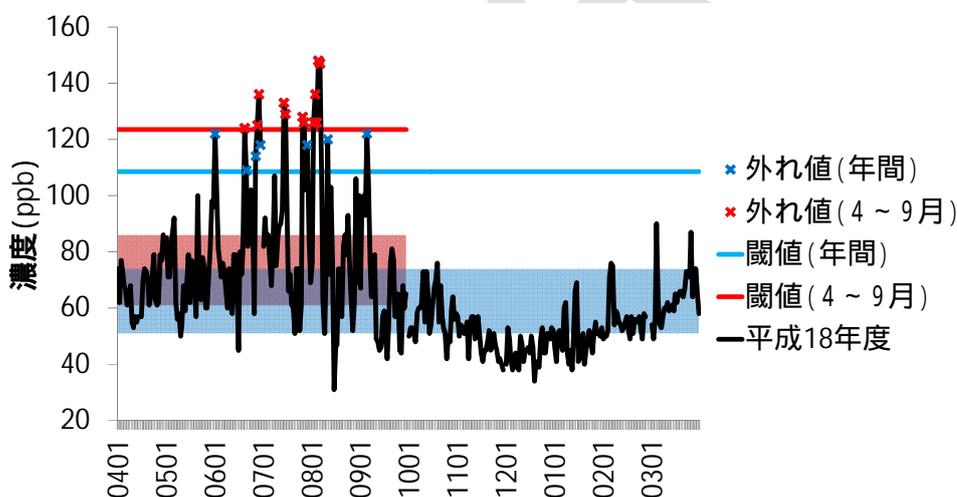


図 4-11 外れ値の評価例

#### 4.2.4 時間的な外れ値の検討

##### (1) 外れ値を検討する指標と判定基準の算定期間と判定手順

外れ値を判定するためのデータの期間は暖候期が適当と考えられる。一方、光化学オキシダントは年々変動が大きいため、高濃度が出現しなかった年では外れ値が低く見積もられる恐れがある。そこで、外れ値の評価においても3年間の暖候期のデータを用いて、外れ値の判定を行った。

外れ値を評価した指標は、日最高8時間値の暖候期(4~9月)の統計値の3年移動平均値とした。

表 4-3 外れ値の判定方法

項目	内容
外れ値かを評価した指標	日最高8時間値の暖候期(4~9月)の統計値(最高値、99、98、97パーセンタイル値)
外れ値を判定したデータ	過去3年間の暖候期(4~9月)に日最高8時間値より閾値を算出

外れ値の判定は、測定局毎に以下の手順で行った。

過去3年間の暖候期の日最高8時間値からQ1、Q3を計算

例)2009年4~9月、2010年4~9月、2011年4~9月でQ1,Q3を計算

のQ1とQ3より外れ値の閾値を計算

例) から外れ値の閾値(図中の-)を計算

過去3年間の暖候期の日最高8時間値から各年度の暖候期最高値、99パーセン  
タイル値、97パーセンタイル値などを計算

例)2009年、2010年、2011年で統計値から3年平均値を算出(図中の×、○、◇、  
)

が の閾値を超えるかどうかを判定

例)図中の年最高値×と暖候期99パーセンタイル値 は外れ値と判定。98、97パ  
ーセンタイル値(○、◇)は外れ値ではないと判定

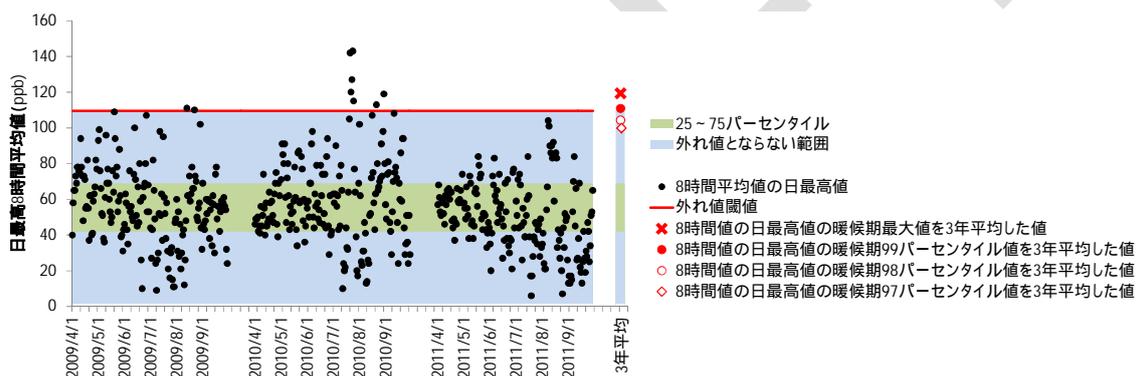


図 4-12 外れ値の検討例

## (2) 外れ値の検討結果

### ア. 外れ値の検討の例

本解析では、3年間の4～9月のデータから25パーセンタイル値及び75パーセンタイル値を求め、外れ値の判定する濃度を求めた。この閾値と各局の暖候期統計値(暖候期の最高値、暖候期99、98、97パーセンタイル値)の3年平均値を比較し、統計値が外れ値かどうかを判別した。例えば、平成20～22年度の統計値を評価する外れ値判定の閾値は、平成20～22年度の4～9月のデータを求めた。外れ値の評価は優先解析地域を対象とした自治体をすべての測定局を対象とした。

統計値の外れ値の評価例を図4-13に示す。上段は外れ値の判定値と各指標値を示し、下段は各指標値と外れ値の判定値の差を示している。上段の図で、紫色の棒グラフの上端が外れ値を判定する閾値を示し、統計値がこの値を超えた場合に外れ値として評価した。

この例では、暖候期の最大値が外れ値と判定された局は全局のうち59.3%であった。同様に暖候期99パーセンタイル値が外れ値と判定される局は15.3%、暖候期98パーセンタイル値では0.3%が外れ値となった。

### イ. 外れ値の局数の経年変化

各指標が外れ値となる局数が経年変化する可能性があることから、各指標が外れ値と判定される局数について経年変化を整理した。この結果を図4-14に示す。外れ値となった局数の比率を表4-4に示す。

この結果、暖候期の統計値が外れ値となる局数は経年変化が見られた。暖候期最高値は平均65%が外れ値となり、暖候期99パーセンタイル値では21%が外れ値、暖候期98パーセンタイル値では5%、暖候期97パーセンタイル値は1%程度が外れ値となった。

また、地域別の外れ値の局数を整理した。この結果を図4-15及び表4-5に示す。関東では、外れ値となる局数の比率が高い傾向が見られた。各地域とも暖候期98パーセンタイル値では0.0～8.1%程度が外れ値となった。

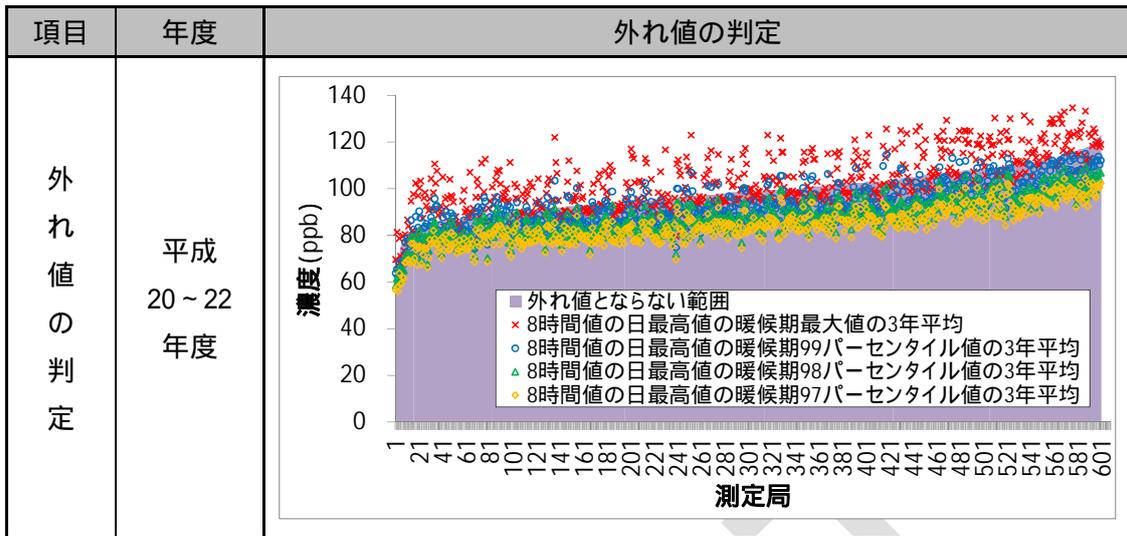


図 4-13 外れ値の評価(平成20～22年度)

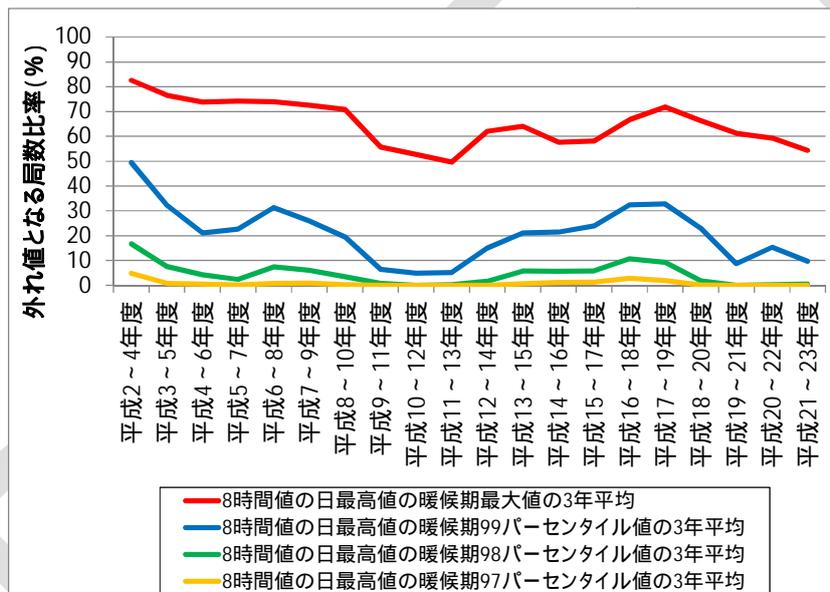


図 4-14 外れ値の評価結果

表 4-4 外れ値となった局数比率

	H2～4 から H21～23	H12～14 から H21～23
暖候期最大値	65.2 %	62.2 %
暖候期 99 パーセンタイル値	21.1 %	20.3 %
暖候期 98 パーセンタイル値	4.5 %	4.1 %
暖候期 97 パーセンタイル値	0.8 %	0.8 %

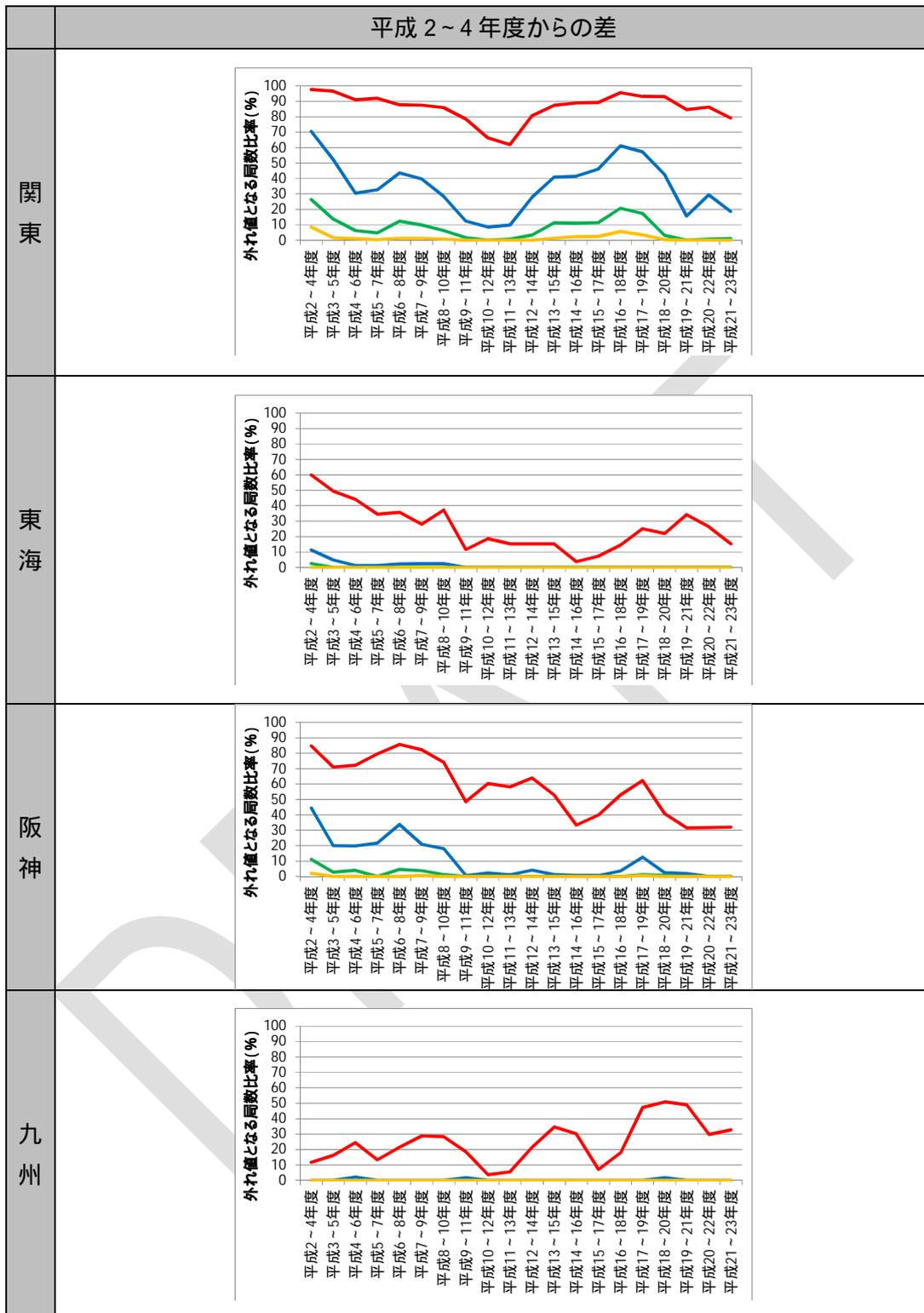


図 4-15 地域別の外れ値の局数の経年変化

表 4-5 地域別外れ値となった局数比率

外れ値の局数比率(%)	全地域	関東	東海	阪神	九州
暖候期最大値	65.2%	86.2%	25.6%	57.9%	24.7%
暖候期 99 パーセンタイル値	21.1%	35.5%	1.3%	10.5%	0.3%
暖候期 98 パーセンタイル値	4.5%	8.1%	0.1%	1.5%	0.0%
暖候期 97 パーセンタイル値	0.8%	1.5%	0.0%	0.2%	0.0%

(3) 年間統計値と暖候期統計値の関係

指標としての行政上の利用のしやすさを考えると年間統計値が扱いやすいと考えられる。光化学オキシダントの高濃度が出現する期間は暖候期(4～9月)が大半であるので、年間 99 パーセンタイル値も暖候期に出現すると考えられる。

年間 99 パーセンタイル値は、年間第4位値であるとする

$$\text{年間(365日)の第4位} = 4/365 \times 100 = 1.1\%$$

$$\text{暖候期(4～9月)の第4位} = 2 / (30+31+30+31+31+30) \times 100 = 2.2\%$$

となり、暖候期 98 パーセンタイル値は、年間 99 パーセンタイル値に相当すると考えられる。

この関係を確認するために、平成 2～23 年のデータを用いて年間 99 パーセンタイル値の3年平均と暖候期 98 パーセンタイル値の3年平均を比較した。この結果を図 4-16 に示す。この結果、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が見られた。

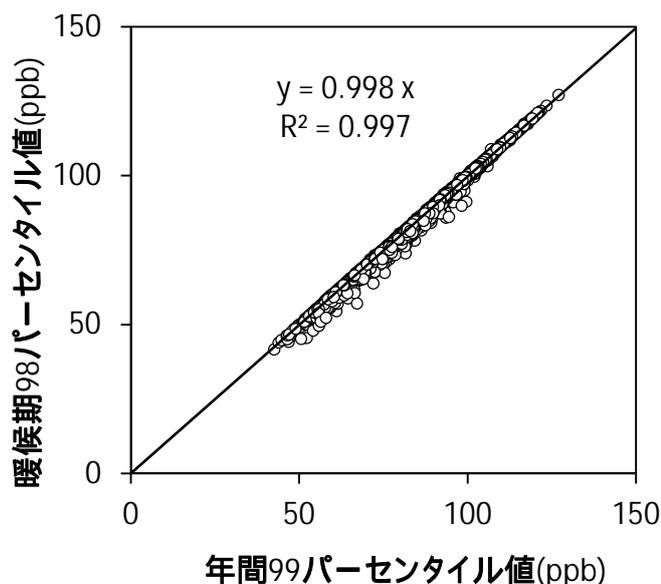


図 4-16 年間統計値と暖候期統計値との関係

#### 4.2.5 空間的な外れ値の評価

特定の測定局が周りの局に比べ特異的に高濃度であれば、その局は空間的に特異的な局として除外して評価することが必要となる。

そこで、局別の光化学オキシダントの8時間値の日最高値の年統計値(年最高値、年間99、98、97、96パーセンタイル値)の3年移動平均値に、空間的に特異的な高濃度を示す局が存在するかどうかを調べた。優先解析地域の対象自治体のすべての測定局を対象とした。この結果を図4-17に示す。

この結果、いずれの年統計値でも平均で1.0~3.0%の外れ値となる局がみられた。時間的な外れ値の評価に比べ、外れ値となる局数は少ないことから、空間的な特異局の除外は考慮する必要性は小さいと考えられる。

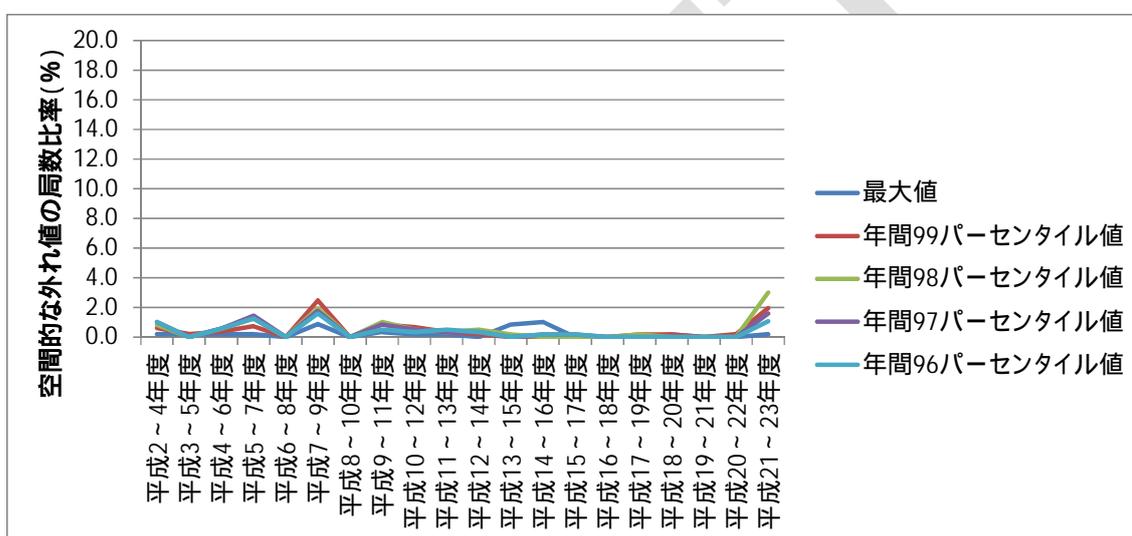


図 4-17 空間的な外れ値の検討

#### 4.2.6 まとめ

安定的な指標の検討のために、外れ値の扱いについて検討した。外れ値は時間的な外れ値と空間的な外れ値の両方について検討した。この結果は以下の通りであった。

- 光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標では、特異的な高濃度である外れ値を除外する一方で、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。
- 外れ値の閾値を評価する期間は、光化学オキシダントの出現傾向を考慮して4～9月ことが適当と考えられる。
- 光化学オキシダントの年々変動の大きさを考慮して、3年間程度の長期的な出現状況を加味して外れ値の評価を行った。この結果、各測定局の高濃度の上位1程度を除外することにより、比較的安定的な指標を得ることができることを確認した。
- 暖候期 98 パーセンタイル値は、年間 99 パーセンタイル値に相当することを確認した。
- 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となる局は統計的に 1～3%程度存在する。時間的な外れ値局数比率に比べ、比率は小さいことから空間的な外れ値を考慮する必要はない。

#### 【環境改善効果を適切に示す指標】

- 8時間平均濃度を基礎とする。
- 日別に8時間値の日最高値(日最高8時間値)を求める
- 年間の日最高8時間値のうち上位1%を除外した濃度(年間99パーセンタイル値)を求める。
- 年間99パーセンタイル値を3年間平均した濃度を指標とする。

### 4.3 日最高 8 時間と既存指標の関係

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 8 時間値を基本とした指標を採用した場合、従来から用いられている 1 時間値を基礎とした指標との関係を整理する必要がある。

#### 4.3.1 埼玉県を例とした 8 時間値と 1 時間値の関係

埼玉県の測定値を用いて、日最高 8 時間値と昼間の最高 1 時間値の散布図を作成し、関係を検討した。年度毎に経年変化する可能性もあることから、年度毎に散布図を作成し、一次回帰式を求めた。図 4-18 に年度別散布図を示す。また年度別の一次回帰式の傾きと切片を図 4-19 に示す。

この結果、年度別の回帰式の傾きと切片は概ね横ばいであり、散布図は概ね同じばらつきとなっていることから、平成 19～23 年度の 5 年間のデータを用いて解析を行うこととした。

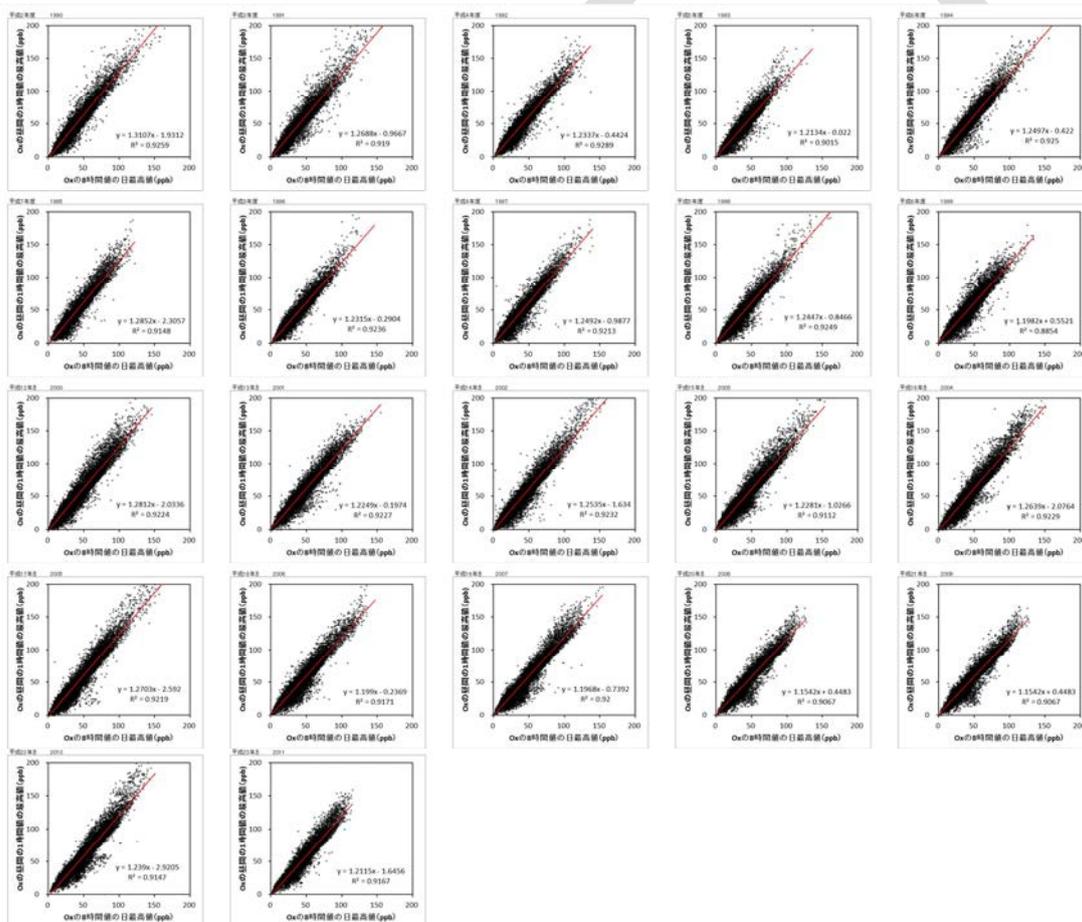


図 4-18 8 時間値と 1 時間値の関係 (各年度)

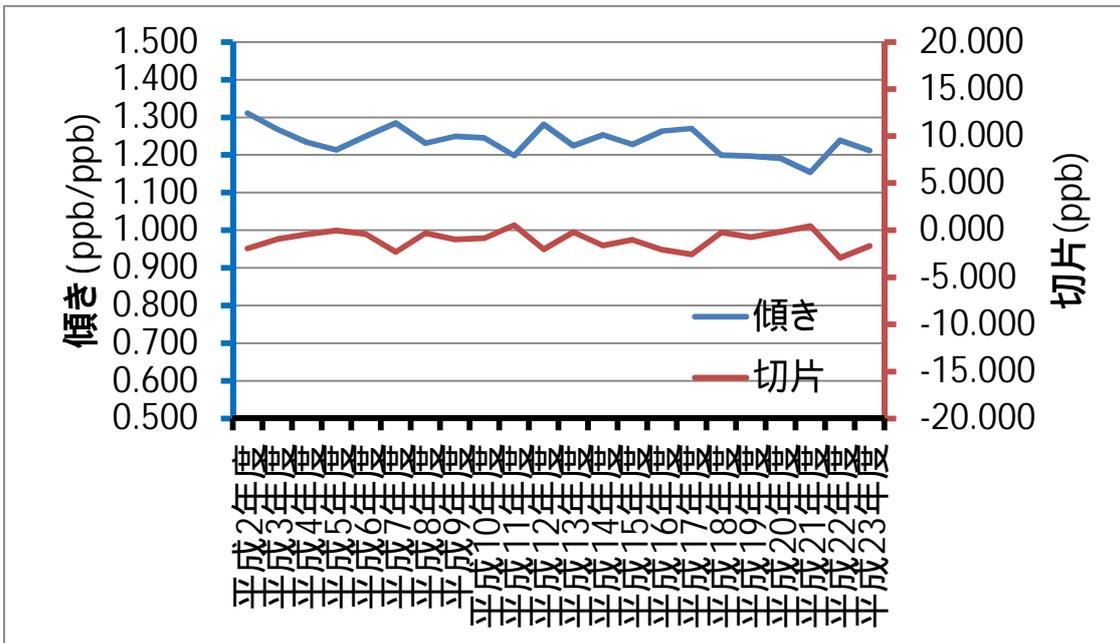


図 4-19 8 時間値と 1 時間値の関係 (一次回帰式の傾きと切片、埼玉県)

DRAFT

#### 4.3.2 各地域の8時間値と1時間値の関係

平成 19～23 年度の 8 時間値と 1 時間値の関係を地域毎に整理した。地域内で差が考えられることから、発生源が集中する地域と風下地域を選定し、都府県別の散布図を作成した。都府県別散布図を図 4-20 に示す。一次回帰式と 1 時間値の各濃度に相当する 8 時間値を表 4-6 に示す。

関東の場合、1 時間値の各濃度に相当する 8 時間値は、発生源が集中する東京で濃度が低く、風下で内陸になる栃木県で濃度が高くなる傾向がみられた。優先解析地域別には他の地域に比べ九州で濃度が高くなる傾向があった。

DRAFT

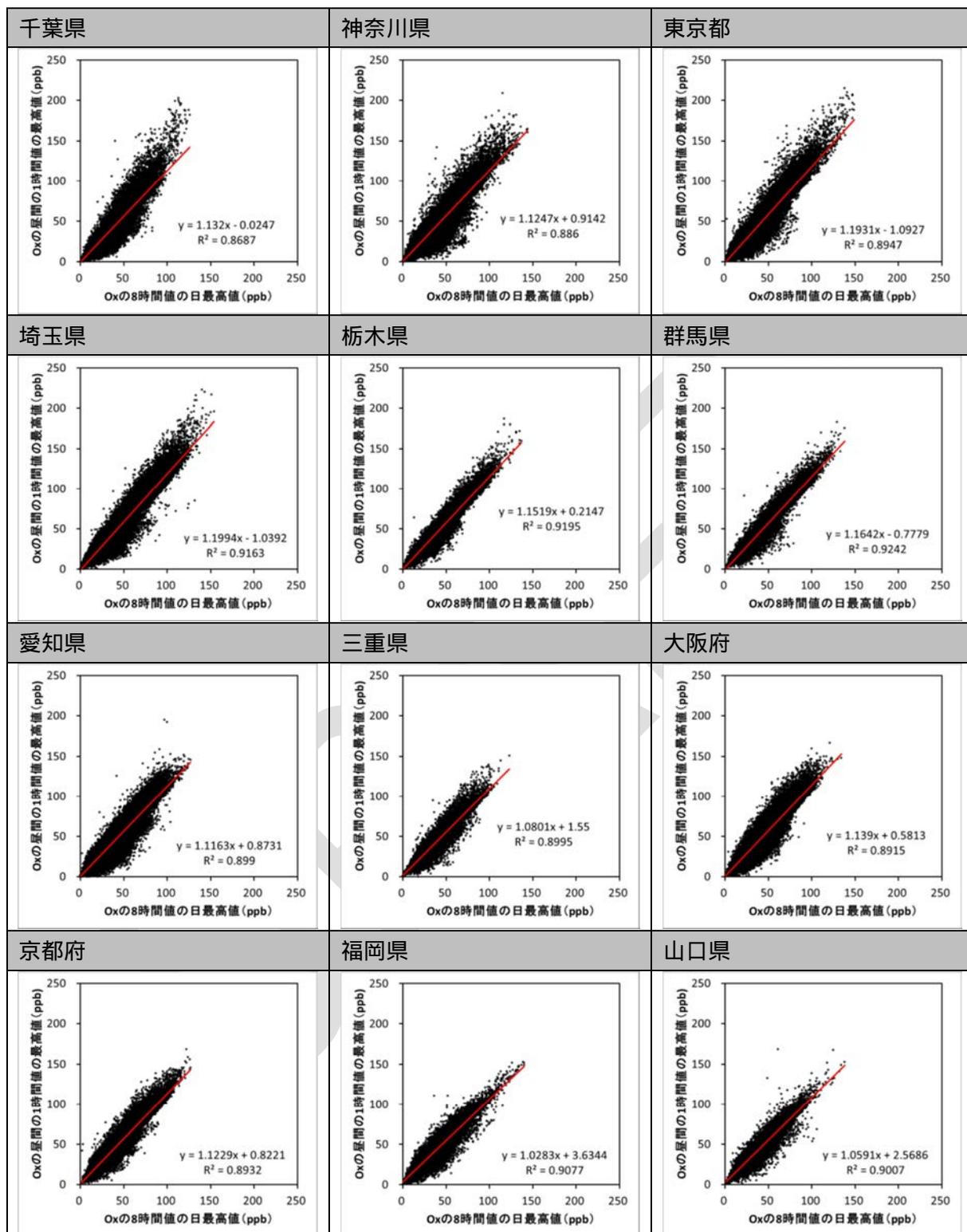


図 4-20 1時間値と8時間値の関係(都府県別)

表 4-6 1時間値と8時間値の関係(都府県別)

		一次回帰式	1時間値 =	1時間値 =	1時間値 =	1時間値 =
			60ppb に	100ppb	120ppb	150ppb
8時間値 (ppb)	千葉県	$Y=1.132X-0.0247$	53.0	88.4	106.0	132.5
	神奈川県	$Y=1.1247X+0.9142$	52.5	88.1	105.9	132.6
	東京都	$Y=1.1931X-1.0927$	51.2	84.7	101.5	126.6
	埼玉県	$Y=1.1994X-1.0392$	50.9	84.2	100.9	125.9
	栃木県	$Y=1.1519+0.2147$	51.9	86.6	104.0	130.0
	群馬県	$Y=1.1642X+0.7779$	50.9	85.2	102.4	128.2
	愛知県	$Y=1.1163X+0.8731$	53.0	88.8	106.7	133.6
	三重県	$Y=1.0801X+1.550$	54.1	91.1	109.7	137.4
	大阪府	$Y=1.139X+0.5813$	52.2	87.3	104.8	131.2
	京都府	$Y=1.1229X+0.8221$	52.7	88.3	106.1	132.9
	福岡県	$Y=1.0283X+3.6344$	54.8	93.7	113.2	142.3
	山口県	$Y=1.0591X+2.5686$	54.2	92.0	110.9	139.2

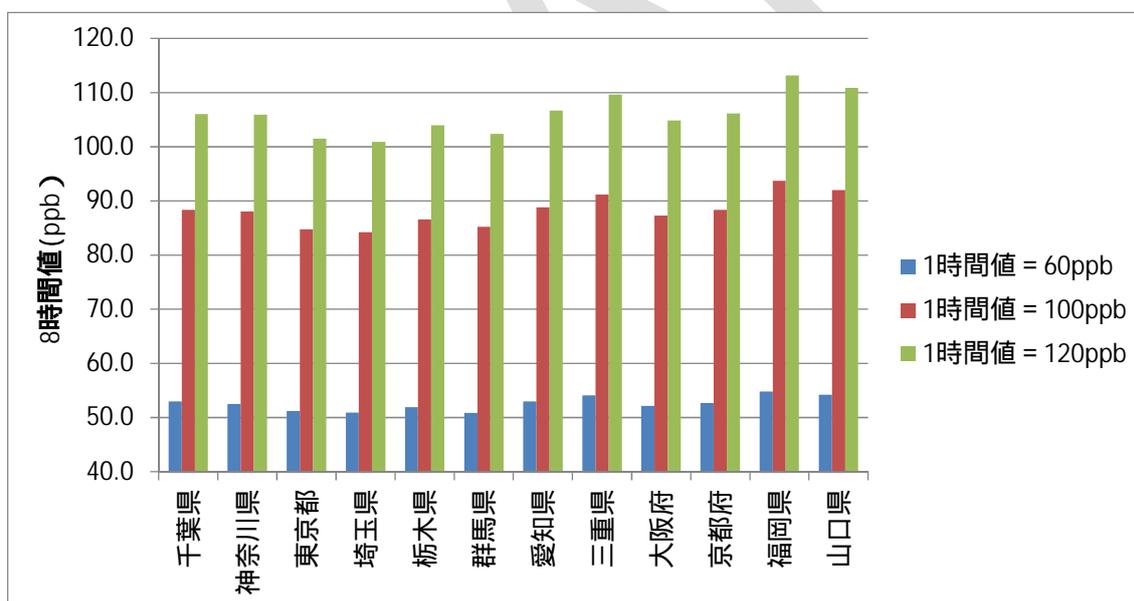


図 4-21 各1時間値に相当する8時間値

表 4-7 1時間値と8時間値の関係(都府県別)

	都府県	一次回帰式	8時間値 = 60ppb	8時間値 = 75ppb	8時間値 = 100ppb	8時間値 = 120ppb
1時間値 (ppb)	千葉県	$Y=1.132X-0.0247$	67.9	84.9	113.2	135.8
	神奈川県	$Y=1.1247X+0.9142$	68.4	85.3	113.4	135.9
	東京都	$Y=1.1931X-1.0927$	70.5	88.4	118.2	142.1
	埼玉県	$Y=1.1994X-1.0392$	70.9	88.9	118.9	142.9
	栃木県	$Y=1.1519+0.2147$	69.3	86.6	115.4	138.4
	群馬県	$Y=1.1642X+0.7779$	70.6	88.1	117.2	140.5
	愛知県	$Y=1.1163X+0.8731$	67.9	84.6	112.5	134.8
	三重県	$Y=1.0801X+1.550$	66.4	82.6	109.6	131.2
	大阪府	$Y=1.139X+0.5813$	68.9	86.0	114.5	137.3
	京都府	$Y=1.1229X+0.8221$	68.2	85.0	113.1	135.6
	福岡県	$Y=1.0283X+3.6344$	65.3	80.8	106.5	127.0
	山口県	$Y=1.0591X+2.5686$	66.1	82.0	108.5	129.7

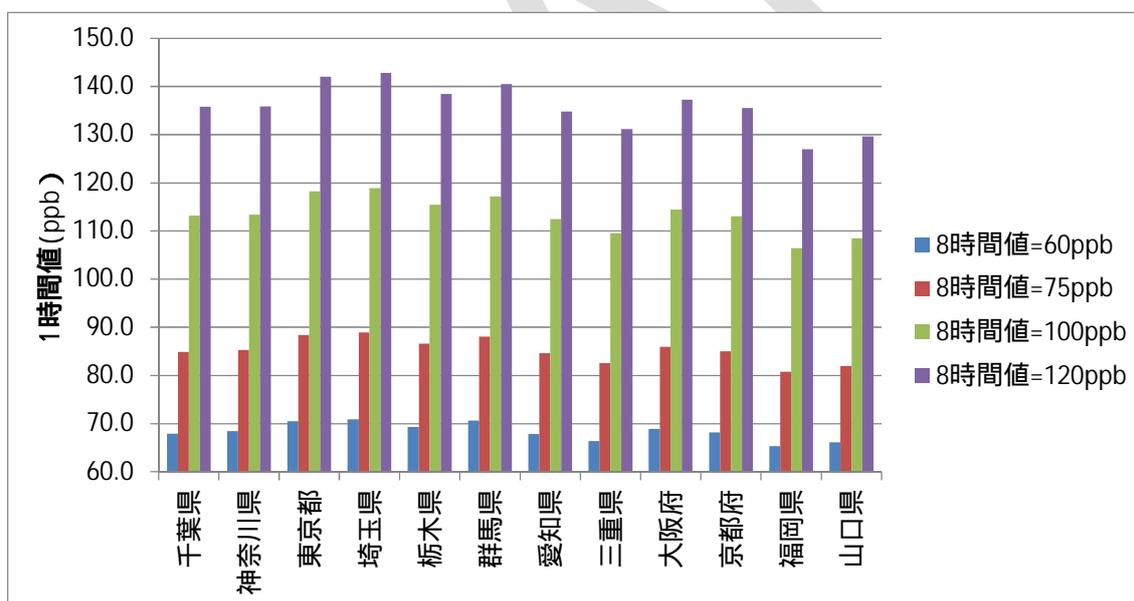


図 4-22 各8時間に相当する1時間値

#### 4.3.3 日最高 8 時間値と昼の最高 1 時間値の関係(月平均濃度)

8 時間値と 1 時間値の季節変動を確認するために、月平均濃度を比較した。日最高 8 時間値または昼間の最高 1 時間値の月平均濃度の域内最高値を整理した結果を図 4-23 に示す。月平均濃度の域内平均値を図 4-24 に示す。

月平均値の域内最高値では、関東では 1 時間値は 7~8 月に濃度が高くなる傾向があるが、8 時間値では 4~8 月まで濃度は横ばいとなった。東海と阪神は、1 時間値が横ばいで、8 時間値は 4~5 月に濃度が高くなる傾向となった。九州は 1 時間値と 8 時間値の季節変化は概ね同じとなっていた。

8 時間値の月平均値の域内平均値は、関東、東海、阪神で 4~5 月に濃度が高く、7~8 月で 1 時間値と 8 時間値に差が大きくなる傾向がみられた。九州は、4~5 月に濃度が高いものの 7~8 月は濃度が低下する。

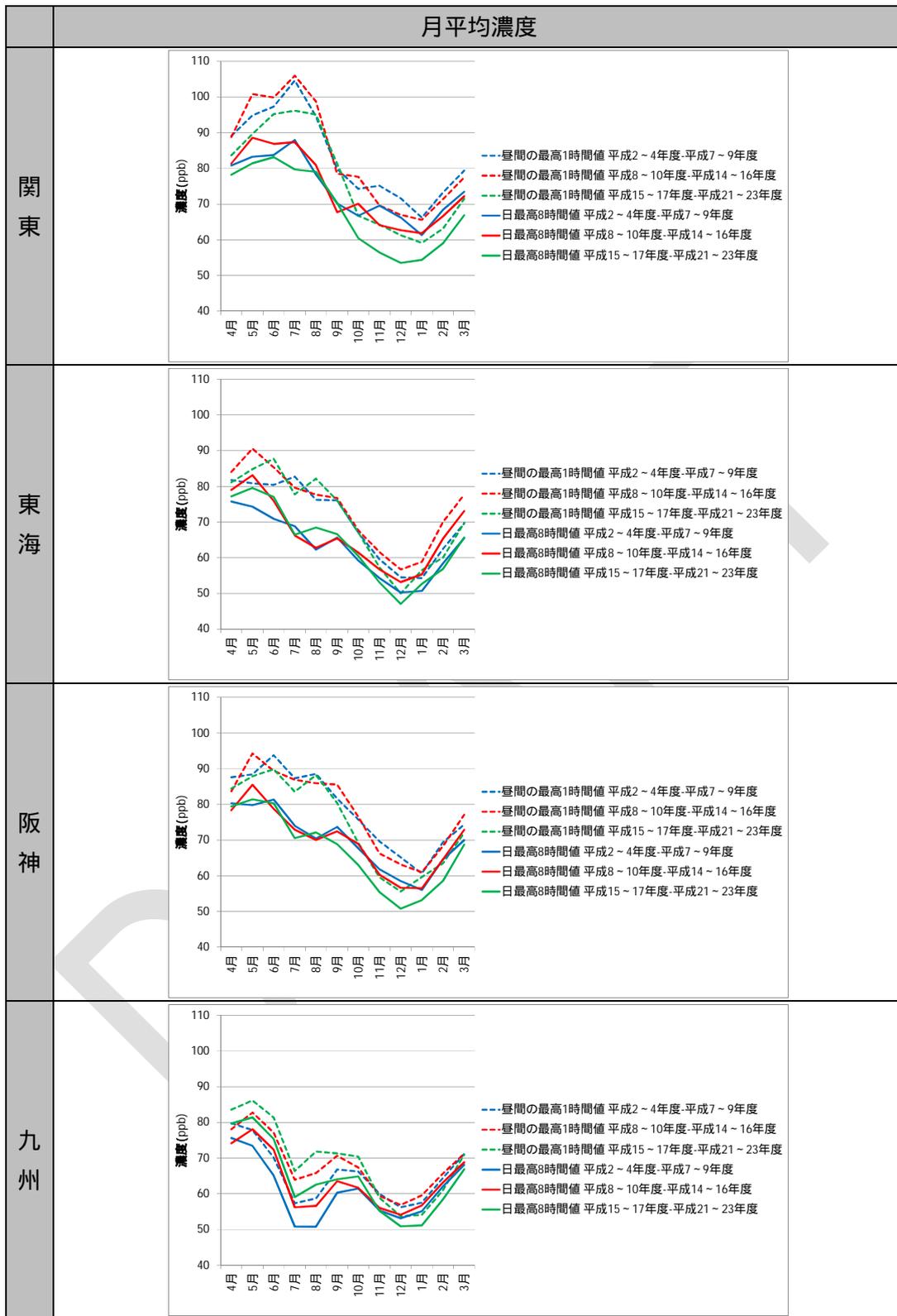


図 4-23 地域別の月平均濃度の域内最高値

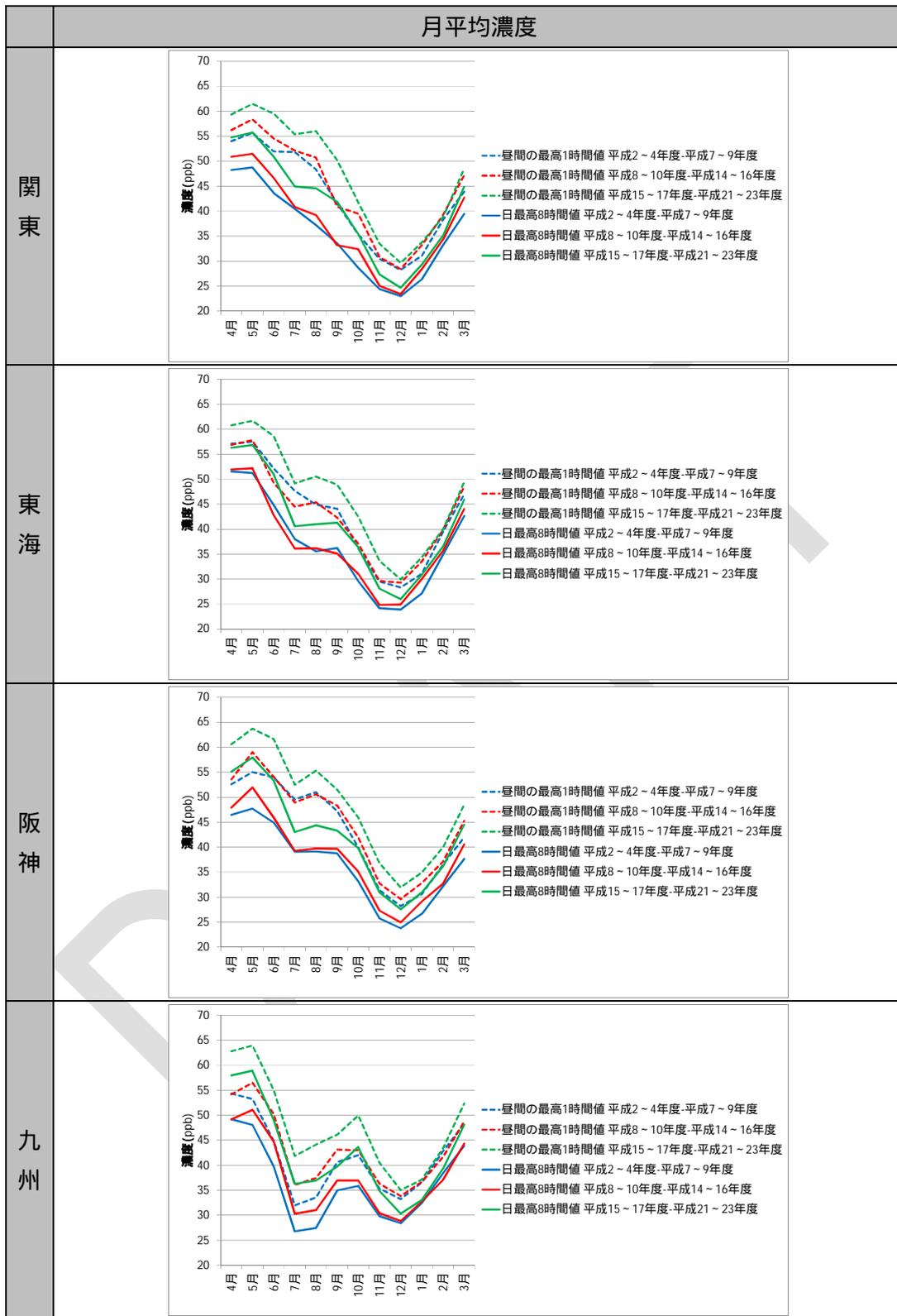


図 4-24 地域別の月平均濃度の域内平均値

#### 4.4 日最高 8 時間値が閾値以上となる局数

8 時間値の日最高値の年間統計値が 60、75、90、100、110、120、130ppb 以上となる局数比率の変化について把握した。

8 時間値の日最高値の年最高値、年間 99 パーセンタイル値が 60、75、90、100、110、120、130ppb 以上となった局数を整理した。光化学オキシダントの測定局数は年度により異なるため、局数比率で経年変化を整理した。

関東の 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値は、100、110、120、130ppb 以上となる局数は平成 14～16 年度から減少する傾向が見られた。

東海の 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値は、100ppb 以上となる局数は減少する傾向が見られた。

阪神の 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値は、100ppb 以上となる局数は減少傾向が見られた。

九州の 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値は、平成 19～21 年度まではいずれの基準値についても局数が増加した。

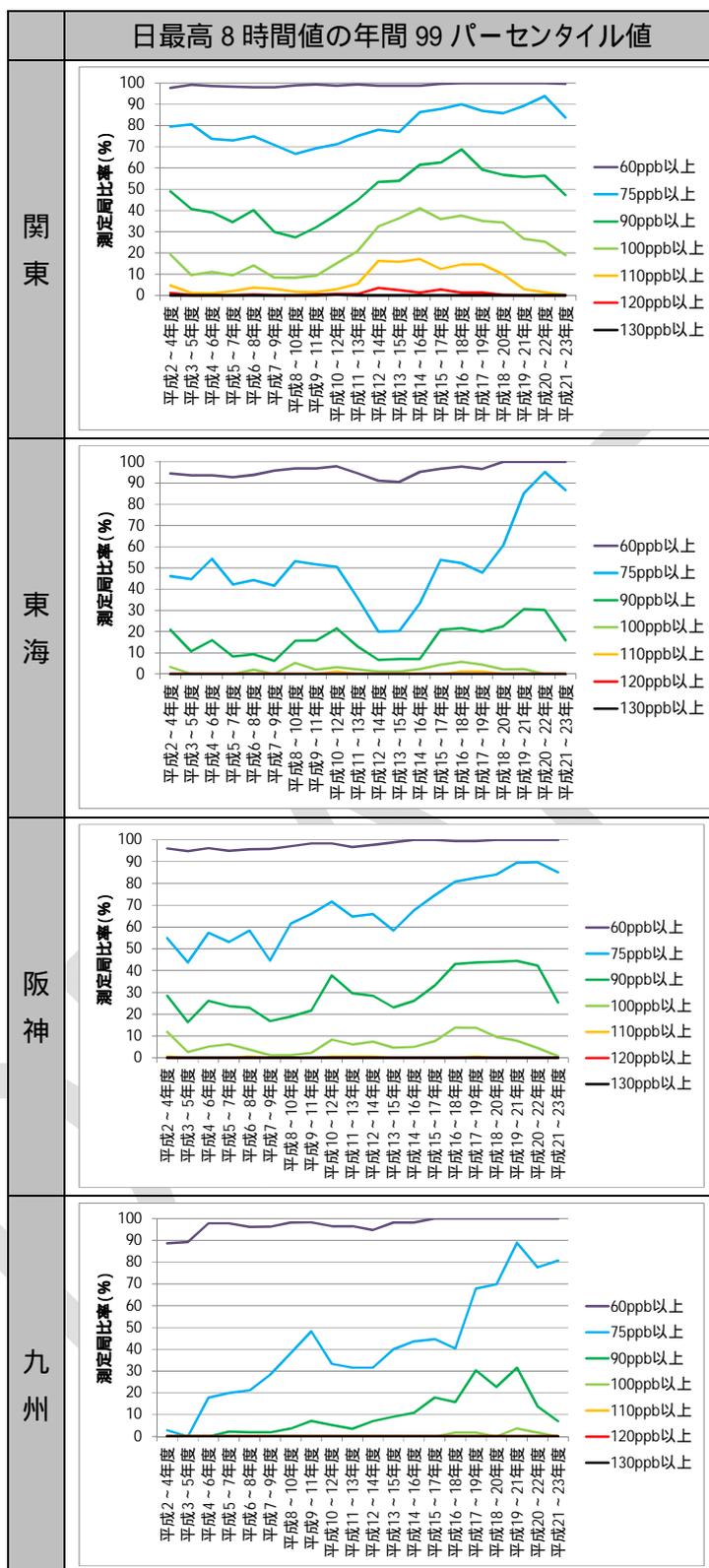


図 4-25 光化学オキシダントの日最高8時間値の基準値以上の局数の経年変化

## 5 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提言

光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標として、高濃度に着目した指標や高濃度の出現頻度に着目した指標が有効であることが確認できた。

高濃度の出現頻度に着目した指標は、地域内での改善を示す指標としては有効性が確認できるものの、地域間での値に差が大きい点が課題となる。すなわち、積算濃度を見た場合、平成 15～17 年度では関東は 350ppb・時間であり、九州では数時間と地域間差が非常に大きく、全国で統一した目標値などの設定が困難となる。従って、この指標は、地域毎に改善を評価する指標としては活用も可能であると考える。

高濃度に着目した評価指標としては、1 時間値または 8 時間値に着目した評価指標が有効であった。8 時間値については、WHO や米国 EPA で評価基準として採用されるように、光化学オキシダントの国際的な評価指標として利用され、米国 EPA は、年間第 4 位値(99 パーセンタイル値相当)の 3 年平均により評価を採用している。統計的には、8 時間値の日最高値について、年間の高濃度の上位の数%を除外し、3 年平均することにより、安定的な傾向を示す指標となることが確認できた。

国内の他の汚染物質(二酸化窒素、浮遊粒子状物質、微小粒子状物質)の評価では、二酸化窒素で年間 98% 値、浮遊粒子状物質で 2% 除外値、微小粒子状物質で年間 98 パーセンタイル値をそれぞれ採用し、高濃度の上位 2% を除外した濃度により環境基準の評価を行っている。

一方、外れ値の扱いの検討から、年間の高濃度の上位 1% を除外したパーセンタイル値を用いることにより、対象としたほとんどの地点で、特異的な高濃度を除外した安定した指標が得られることが確認できた。

以上を踏まえると、光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標としては、下記の方法により評価される 3 年平均値により改善効果を評価することが望ましいと考える。

- ・ 光化学オキシダント濃度の 8 時間移動平均値を基礎とする。
- ・ 8 時間平均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% (年間 99 パーセンタイル値)を除外した値を 3 年平均する。
- ・ 今後、シミュレーション等の検討では、暖候期の 98 パーセンタイル値による評価を用いても概ね同等であることを確認した。

今後は、8 時間値を基礎とした詳細な解析を進め、8 時間値の特性を理解することが、光化学オキシダント対策を進める上で重要となる。また、光化学オキシダントの 1 時間値を基本とした評価値との関係についても検討を進める必要がある。

## 6 まとめ

本調査では、光化学オキシダントの多角的な解析の結果を以下に整理した。

### 【平均的な濃度の上昇】

- 光化学オキシダントの平均的な濃度は、経年的に濃度上昇が見られた。
- 春季の平均濃度の解析やポテンシャルオゾンの解析、前駆物質濃度との関係の検討などにより、その主な要因は越境汚染の影響の増大と、タイトレーション効果の低下によるものであると推察された。
- いずれの地域でも越境汚染の影響の増大とタイトレーション効果の低下の両方の要因が見られるが、日本国内では西の地域になるほど、越境汚染の影響が大きくなることが推察された。
- 東日本では、このうち、「タイトレーション効果の低下」の影響が相対的に大きくなったことが地域の平均的な濃度を上昇させたと考えられる。
- 西日本では、「越境汚染の影響の増大」が相対的に大きくなったことが、地域の平均的な濃度を上昇させたと考えられる。
- なお、モニタリングデータに基づく解析だけでは、「前駆物質排出量の減少に伴う光化学オキシダント生成の変化」はこの他の要因と分離して検討することは困難であり、シミュレーション等に基づく解析が必要となる。

### 【高濃度の改善】

- 光化学オキシダントの高濃度は、昼間の1時間値の最高値の年間98パーセンタイル値や1時間値が120ppbを超えた時間数・積算濃度などの解析により、平成18年度ごろより濃度の改善が見られた。
- 光化学オキシダントの高濃度の出現状況を確認したところ、VOC排出抑制対策が始まった平成18年度頃より関東・東海・阪神で年間98パーセンタイル値の域内上位局の濃度の改善が見られるようになった。
- 九州の光化学オキシダントの高濃度の出現は、長期的に濃度が上昇から横ばいとなっていた。「越境汚染の影響の増大」が「国内排出対策による改善傾向」を相殺され、この傾向が見られたと考えられた。

### 【光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標】

- 光化学オキシダントの対策効果は、高濃度の改善に表れていたと考えられる。
- 高濃度の改善を示す傾向はいくつかの指標で見られ、いずれも濃度の低下が見られた。
- 国際的に光化学オキシダントの評価に8時間値が採用されている点なども考慮すると、8

時間値を基本とする指標が適切である。

- 安定的な指標を得るためには、年間統計値を3年移動平均する必要がある。
- 特異的な高濃度を除外するためには、高濃度の上位数1%を除外し評価することが望ましいと考える。
- 8時間値の解析は十分とは言えないことから、8時間値の特性を理解し光化学オキシダント対策に資する情報をえるために、より詳細な解析を進めていく必要がある。

【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時間移動平均値を基礎とする。
- ・ 8時間平均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%(年間99パーセンタイル値)を除外した値を3年平均する。
- ・ 今後、シミュレーション等の検討では、暖候期の98パーセンタイル値による評価を用いても概ね同等であることを確認した。

【留意点】

- 光化学オキシダントの校正法の変更は、経年変化の傾向を大きく変えるものではないが、影響が無視できるものではない。補正方法については現在検討が進められており、今後、シミュレーション等を行う場合には、補正した測定値を用いて評価を行う必要がある。
- 窒素酸化物濃度は、トレーサビリティや測定値の算出法などに課題がある。また、ポテンシャルオゾンを求める際に必要な一次排出の二酸化窒素比率については地域、季節などにより変化する恐れもあり検討の余地が残されている。ポテンシャルオゾンについては、これらの影響がある可能性も踏まえて結果を解釈する必要がある。
- 8時間値の算出方法は、前8時間、後8時間、前後4時間などの方法がある。通常、8時間値が1時間値を上回ることは考えにくい、日界や対象時間帯などの違いにより、違いが生じることがある。

## 7 参考文献

DRAFT

## 8 光化学オキシダント調査検討会名簿

表 8-1 平成 25 年度 光化学オキシダント調査検討会委員

氏名	所属	職名	年度
秋元 肇	一般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	所長	平成 24 年度 平成 25 年度
板野 泰之	大阪市立環境科学研究所 調査研究課	研究主任	平成 24 年度 平成 25 年度
井上 和也	独立行政法人 産業技術総合研究所 安全科学研究 部門 環境暴露モデリンググループ	主幹	平成 24 年度 平成 25 年度
指宿 堯嗣	一般社団法人 産業環境管理協会	技術顧問	平成 24 年度 平成 25 年度
岩崎 好陽	公益社団法人 におい・かおり環境協会	会長	平成 24 年度 平成 25 年度
浦野 紘平	横浜国立大学 大学院環境情報研究院	名誉教授	平成 24 年度 平成 25 年度
大原 利真	独立行政法人 国立環境研究所 地域環境研究セン ター	センター長	平成 24 年度 平成 25 年度
金谷 有剛	独立行政法人 海洋研究開発機構 地球環境変動領 域 物質循環研究プログラム 大気組成研究チーム	チームリーダー	平成 24 年度 平成 25 年度
坂本 和彦	埼玉県環境科学国際センター	総長	平成 24 年度 平成 25 年度
紫竹 益吉	一般社団法人 日本化学工業協会 環境安全部	部長	平成 24 年度 平成 25 年度
下原 孝章	福岡県保健環境研究所	大気課長	平成 24 年度 平成 25 年度
竹内 庸夫	埼玉県環境科学国際センター研究推進室	副室長	平成 24 年度 平成 25 年度
橋本 光正	一般社団法人 日本塗料工業会	専務理事	平成 24 年度 平成 25 年度
土屋 徳之	JX 日鉱日石エネルギー株式会社 社会環境安全部	チーフスタッフ	平成 24 年度
八田 拓士	JX 日鉱日石エネルギー株式会社 社会環境安全部	担当マネージャー	平成 25 年度
石井 康一郎	公益財団法人 東京都環境公社 東京都環境科学研 究所	主任研究員	平成 24 年度
星 純也	公益財団法人 東京都環境公社 東京都環境科学研 究所 分析研究科	主任研究員	平成 25 年度
向井 人史	独立行政法人 国立環境研究所 地球環境研究セン ター	センター長	平成 24 年度 平成 25 年度
若松 伸司	愛媛大学 農学部	教授	平成 24 年度 平成 25 年度

(五十音順 敬称略)

## 9 検討会の開催状況

### 9.1 平成 24 年度光化学オキシダント調査検討会

#### 第 1 回 (平成 24 年 11 月 30 日)

- (1) 平成 24 年度光化学オキシダント調査検討会の開催について
- (2) 今年度の検討内容と予定について
- (3) その他

#### 第 2 回 (平成 25 年 1 月 21 日)

- (1) データの多角的解析(中間報告)
- (2) 平成 25 年度 VOC 環境濃度調査について
- (3) その他

#### 第 3 回 (平成 25 年 2 月 25 日)

- (1) データの多角的解析結果について
- (2) その他

#### 第 4 回 (平成 25 年 3 月 22 日)

- (1) データの多角的解析結果について
- (2) その他

## 9.2 平成 25 年度光化学オキシダント調査検討会

### 第 1 回 (平成 25 年 9 月 30 日)

- (1) 平成 25 年度光化学オキシダント調査検討会について
- (2) データの多角的解析について
- (3) シミュレーションモデルを用いた検討について
- (4) VOC モニタリングデータの整理・検証について
- (5) その他

### 第 2 回 (平成 25 年 12 月 6 日)

- (1) データの多角的解析について
- (2) シミュレーションモデルを活用した検討について
- (3) VOC モニタリングデータの整理について
- (4) その他

### 第 3 回 (平成 26 年 1 月 22 日)

- (1) 光化学オキシダント調査検討会報告書(素案)について
- (2) シミュレーションモデルを活用した検討について
- (3) その他

### 第 4 回 (平成 26 年 2 月 日)

- (1) データの多角的解析について
- (2) シミュレーションモデルを活用した検討について
- (3) VOC モニタリングデータの整理・検証について
- (4) その他

### 第 5 回 (平成 26 年 3 月 日)

- (1) データの多角的解析について
- (2) シミュレーションモデルを活用した検討について
- (3) VOC モニタリングデータの整理・検証について
- (4) その他

DRAFT

リサイクル適性の表示:紙へリサイクル可

この印刷物は、グリーン購入法に基づく基本方針における「印刷」に係る判断の基準にしたがい、印刷用の紙へのリサイクルに適した材料[Aランク]のみを用いて作製しています。