

光化学オキシダント対策検討会中間のまとめ

光化学オキシダント対策検討会

平成16年6月

はじめに

近年、東京都をはじめとする首都圏では、オキシダント濃度が上昇し、光化学スモッグ注意報の発令や被害の届出者数が増加する傾向にある。

こうしたオキシダント濃度上昇の要因としては、日射量などの気象要素の変動、炭化水素組成変化の影響、原因物質の炭化水素・窒素酸化物の濃度変化との関係、東アジアなどからの広域移流などが考えられているが、その原因は明確でない。

そこで、東京都は、この濃度上昇の要因を解明し光化学オキシダント対策を推進するため、平成 15 年 6 月に「光化学オキシダント対策検討会」を設置した。

検討会では、平成 15 年度に、オキシダント濃度上昇の要因を解析するとともに、オキシダント濃度を低減するために、今後の対策を推進する場合の目標の検討などを行った。

本中間のまとめは、こうした解析結果等を取りまとめたものである。

平成 16 年 6 月

光化学オキシダント対策検討会

座長 秋元 肇

光化学オキシダント対策検討会委員名簿

氏名	所属・役職
◎ 秋元 肇	独立行政法人海洋研究開発機構 地球フロンティア研究システム 大気組成変動予測研究領域 領域長
大原 利眞	静岡大学工学部 システム工学科教授 (平成 15 年度) 独立行政法人国立環境研究所 PM2.5・DEP 研究プロジェクト 都市大気保全研究チーム総合研究官 (平成 16 年度)
加藤 征太郎	中央大学理工学部 応用化学科講師
吉門 洋	独立行政法人産業技術総合研究所 化学物質リスク管理研究センター 大気圏環境評価チームリーダー
○ 若松 伸司	独立行政法人国立環境研究所 PM2.5・DEP 研究プロジェクトリーダー 併任 筑波大学教授

◎ 座長

○ 副座長

目 次

I 「光化学オキシダント対策検討会」中間のまとめ【要約】	1
II 都内の大気汚染状況と大気汚染物質の排出状況	3
1 都内の大気汚染状況	
2 大気汚染物質の排出状況等	
III 東京都等におけるオキシダント濃度等変動トレンドの解析	5
1 一都七県の高濃度時出現日数	
2 オキシダントの濃度変動のトレンド	
(1) 東京都	
(2) 関東6県及び山梨県東部	
3 朝6～9時のNO _x 及びNMHCと都内のオキシダント日最高値との関係	
IV 都内におけるオキシダント濃度の上昇要因の解析	11
1 気象の概況との関係	
(1) 高濃度日の朝9時の気圧配置（天気図型）	
(2) 高濃度日の朝の日射の状態	
(3) 高濃度日の海陸風状況	
(4) まとめ	
2 オキシダント上昇要因の解析結果	
(1) 気象要素との関係	
(2) 大気質の変化との関係	
(3) NMHC組成の経年変化	
(4) 広域移流の影響	
(5) オキシダント自動測定機の測定方式切り替えの影響	
V 高濃度オキシダント出現日数低減に向けての今後の取組の方向	25
参考	26

I 「光化学オキシダント対策検討会」中間のまとめ【要約】

1 首都圏におけるオキシダント濃度の推移

平成2年度(1990年)を起点とする平成14年度(2002年)までの12年間にわたる昼間(5～20時)のオキシダント濃度のトレンド解析から、この間に東京都の継続測定局では年平均値で5.6ppb(0.47ppb/年)、4～9月の平均値では7.8ppb(0.65ppb/年)上昇していることが分かった。

同様の上昇傾向は、東京都に隣接する埼玉県でも見られた。

区部における4～9月の6～9時のNMHC濃度が、光化学オキシダントの環境基準(0.06ppm)を達成するためのNMHC指針値のゾーン内(0.20～0.31ppmC)にあっても、都内において高濃度オキシダント(0.12ppm以上)が出現した。しかし、0.20ppmC以下の日には、近年でも0.12ppm以上のオキシダント日最高値が都内で出現することはほとんどなかった。

2 オキシダント濃度の上昇要因の推定

首都圏におけるオキシダント濃度の上昇要因を明らかにするため、気温・風速・日射量などの気象要素の変動、炭化水素組成変化の影響、炭化水素・窒素酸化物の濃度変化との関係、東アジアなどからの広域移流の影響並びにオキシダント測定機の湿式から乾式への測定法切り替えの影響について解析を行った。

(1) 気象要素の影響

平成2～14年度の4～9月の昼間平均オキシダント濃度に対しては、気象要素の中で日射量が最も高い相関があり、ついで風速であった。4～9月の日最高濃度に対しては、日射量、風速の他、気温とも相関が見られた。12年間の東京管区気象台データでは梅雨日数の減少が観測されており、このことが日射量の増加をもたらしている要因の一つとして考えられる。

また、過去12年間に観測された都内の4～9月のオキシダント昼間平均値の上昇率0.65ppb/年のうちの約79%は日射量、風速の変動以外の原因によることが分かった。

(2) オキシダント濃度、窒素酸化物(NO_x)及び非メタン炭化水素(NMHC)との関係

気象要素の変動を除去するため、平成2～14年度の4～9月における一定の日射量、風速、最高気温の範囲の日について6～9時のNO_x濃度とNMHC濃度に対するその日の都内のオキシダント濃度の最高値との関係を見ると、NMHC/NO_x比が6以上の範囲において高濃度オキシダント(0.12ppm以上)が出現する割合が高いことを確認した。

(3) NO_xとNMHC濃度の経年変化とオキシダント濃度の関係

平成2～14年度の4～9月における6～9時の東京都区内の大気中のNO_xとNMHCの年平均濃度の推移をみると、この間にNO_x、NMHCはそれぞれ約19%、32%減少しているが、平成11年度以降のNMHC濃度はほぼ横ばいであった。平成2～8年度の期間ではNMHC濃度の顕著な減少にも関わらず、東京都や埼玉県などでオキシダント濃度が上昇しており、この期間のオキシダント濃度の上昇は原因物質の濃度変動では説明出来ず、気象要素や広域移流の影響によるものと思われる。

平成8年度以降は、6～9時におけるNO_x濃度の減少率よりも、NMHC濃度の減少率の方が小さく、さらに11年度以降はNMHC濃度の減少がほとんどなくほぼ横ばいで推移したことから、NMHC/NO_x比の増加が高濃度オキシダントの出現と関係している可能性が推測された。

(4) 炭化水素組成変化の影響

環境大気中の炭化水素類（23 物質）について、平成 4 年度と 15 年度における調査結果を比較すると、濃度が減少している物質も、また増加している物質もあった。そこで、光化学反応性を加味した炭化水素総体での反応性ポテンシャルを試算したところ、約 40%減少していることから、この間の炭化水素組成の変化は、オキシダント濃度の上昇に影響を及ぼしていないと考えられる。

(5) 広域移流の影響

バックグラウンド地域である長野県八方尾根のオゾン濃度は、観測期間が平成 4 年度からと短いことから長期的なトレンドは必ずしも明確でないが、近年上昇傾向を示している。また、文献ではオゾンゾンデデータ解析から、我が国における地表 0～2 km のオゾン濃度が 2%/年程度上昇してきたことが報告されている。

これらのことから東アジアにおける越境大気汚染が、気象要因以外の我が国のオキシダント濃度の上昇に寄与していることが示唆され、今後更にデータを蓄積し検討していく必要がある。

なお、平成 9 年度からオキシダント測定法が、湿式から乾式への切り替えが行なわれていることからその影響も検討したところ、オキシダント濃度測定値の上昇にある程度の影響を及ぼしているが、オキシダント濃度上昇の主原因ではないと考えられる。

II 都内の大気汚染状況と大気汚染物質の排出状況

1 都内の大気汚染状況

東京の大気環境は、昭和 40 年代後半からの東京都公害防止条例や大気汚染防止法による規制や、自動車排出ガス対策の効果により、着実に改善されてきた。

しかしながら、光化学オキシダントについては、原因物質の窒素酸化物と非メタン炭化水素濃度が低下しているにもかかわらず、ここ数十年濃度は上昇傾向にある。平成 2 年度を基準として平成 14 年度までの 12 年間にわたる首都圏における昼間のオキシダント濃度のトレンド解析から、この間に東京都の継続測定局では、5.6 ppb (約 0.47 ppb/年) 上昇していることがわかった (図-1)。

また、近年、都内における光化学スモッグ注意報の発令日数や、光化学オキシダント濃度が 0.12 ppm を超える延日数 (局数×日数) が増加する傾向にある (図-2)。

こうしたことから、光化学オキシダント濃度上昇の要因を解析して対策を早急に講じ、注意報発令を抑制する必要がある。

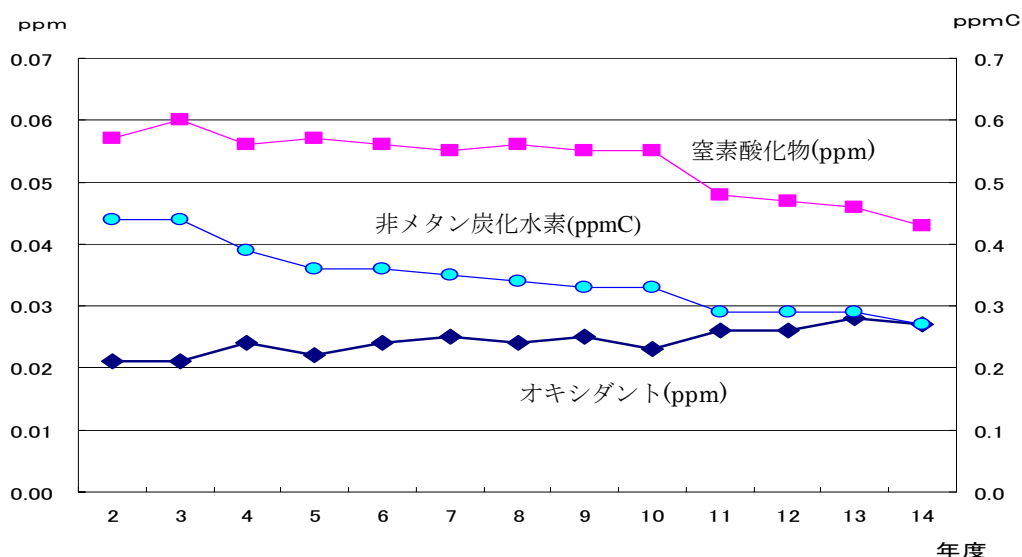


図-1 都内の窒素酸化物、非メタン炭化水素及びオキシダント濃度の推移

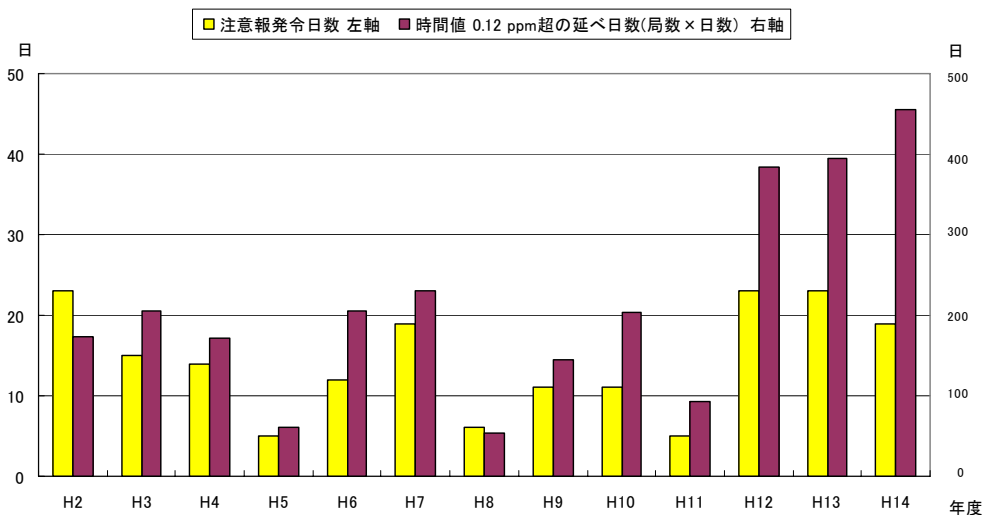


図-2 都内における光化学スモッグ注意報発令日数と時間値 0.12 ppm 超の延べ日数の推移

2 大気汚染物質の排出状況等

窒素酸化物の排出量と炭化水素を含む揮発性有機化合物（以下、「VOC」という。）の排出量について、平成2年度と12年度における状況を見ると、以下のようにになっている（図-3）。

窒素酸化物は、環境確保条例や大気汚染防止法などの規制の効果で着実に低減しており、平成12年度には2年度に比べて約0.9万トン減の約7.4万トン/年となっている。さらに、東京都自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画に基づく対策などが今後進められることから、平成22年度には、12年度に比べて約2.6万トン減の約4.8万トン（12年度比△35%）にまで削減される見込みである。

一方、VOCの平成12年度排出量は約14.3万トンであった。図-3の注2で示したように2年度調査では集計対象外であった2業種からの排出量を12年度値と同じと仮定すると、同図において点線で示したように2年度排出量は総計で15.2万トンとなり、12年度には2年度に比べて約0.9万トンの削減となっている。

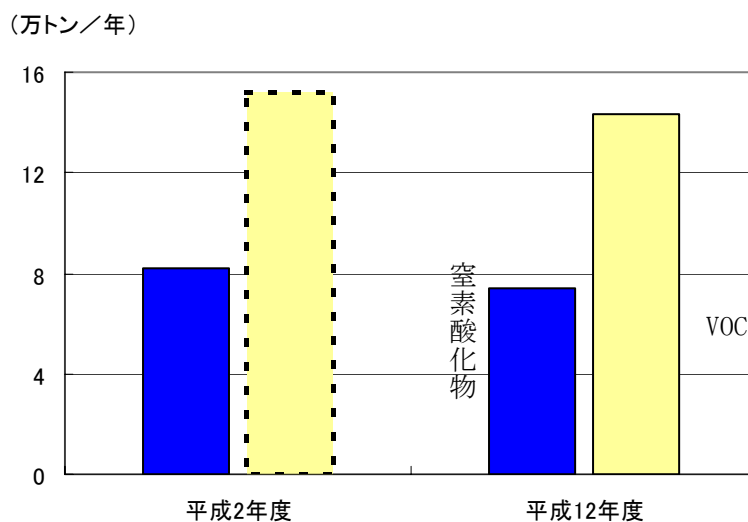


図-3 都内における窒素酸化物とVOCの排出量の推移

(注1) 窒素酸化物は、NO₂換算。

(注2) 平成2年度のVOC排出量には、同年度の調査で調査対象外であった「金属表面処理」と「蒸発系自動車」からの排出量を12年度値（合計約1万トン）と同じと仮定して加えて示した。

Ⅲ 東京都等におけるオキシダント濃度等変動トレンドの解析

濃度変動トレンドの解析は、平成2年度から14年度までにオキシダントを継続して測定している一般環境大気測定局における測定結果を対象に行った。

1 一都七県の高濃度時出現日数

関東地方全体及び各都県内において、オキシダント濃度の時間値が0.12ppm以上の高濃度時が出現した高濃度日の日数（以下、「高濃度日数」とする）を、過去年度（平成2～4年度）と至今年度（平成13、14年度）について集計した（表-1）。

表-1 一都七県の高濃度日数

	関東全体	山梨東部	神奈川県	東京都多摩部	東京都区部	千葉県	埼玉県	茨城県	群馬県	栃木県
平成2年度	66	31	17	26	13	32	40	22	26	16
平成3年度	55	14	18	17	16	33	34	23	3	12
平成4年度	49	21	16	22	12	25	28	25	23	30
平成13年度	58	13	18	25	26	34	40	15	20	25
平成14年度	61	14	13	32	20	34	37	23	34	25

注：「関東全体」は山梨東部（の3局）を含む。

関東地方では平成4年度を除き埼玉県が最も高濃度日数が多く、都内では平成13年度を除き区部より多摩部の方が高濃度日数が多くなっている。

また、関東地方の多数の県にまたがって高濃度時が出現する広域高濃度日は、何日か連続する高濃度日の中に現れる傾向があった。

2 オキシダントの濃度変動のトレンド

(1) 東京都

東京都におけるオキシダント濃度について、環境基準0.06ppm以上の濃度が出現した時間数の推移をみると、近年急激に増加している。特に、注意報発令基準である0.12ppm以上の高濃度の時間数は、平成12年度以降、増加している（図-4）。

また、昼間平均値・最高値とも区部に比べて多摩部が高い傾向にある（図-5）。

それらのトレンドは経年的に上昇傾向にあるが、四季別に見ると、春・夏と秋・冬では大きく異なっている。春（3～5月）は、平成2～10年度はわずかに上昇又は横ばいで近年高くなっている。夏（6～8月）は、平成2～10年度はわずかに上昇か横ばいで、春と同様に近年高くなっている。秋（9～11月）は、わずかに上昇か横ばいの傾向にある。また、冬（12～2月）は横ばいの傾向にある（図-6）。

(2) 関東6県及び山梨県東部

関東6県と山梨県東部のトレンドは、昼間平均値では埼玉県が東京都と同様に近年上昇の傾向にあり、他の県は概ね横ばいである（表-2、図-6）。

季節別では、春は埼玉県、千葉県、茨城県などで、また、夏は埼玉県で上昇傾向にあり、特に近年、東京都と同様に濃度レベルが高くなっている。すなわち、東京都と埼玉県は、光化学活性の高い春と夏において近年上昇傾向にある。

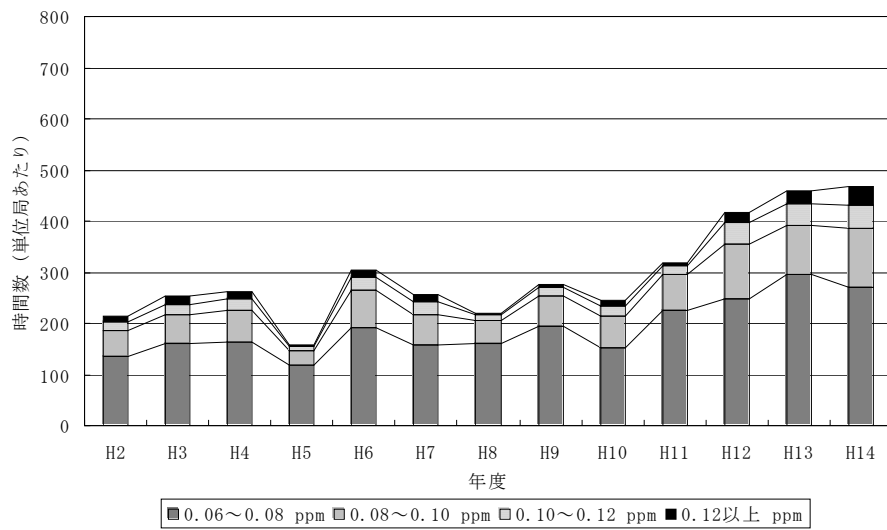


図-4 東京都オキシダント高濃度ランク別時間数

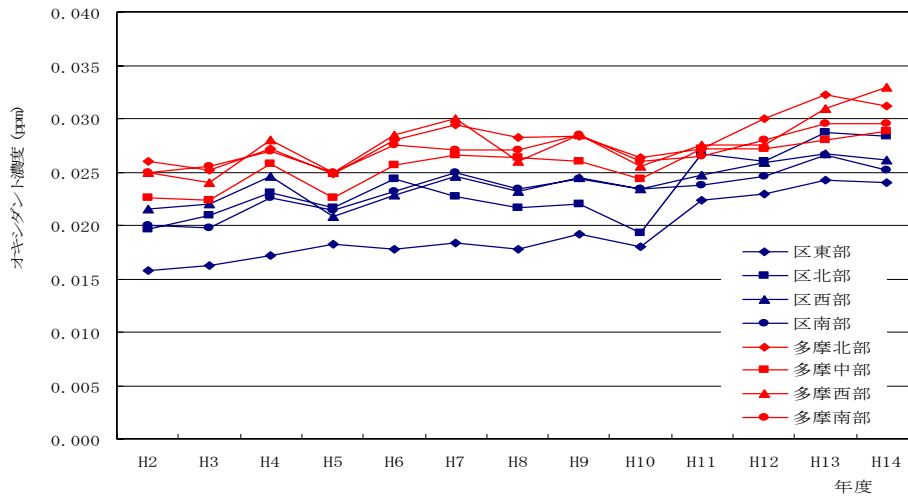


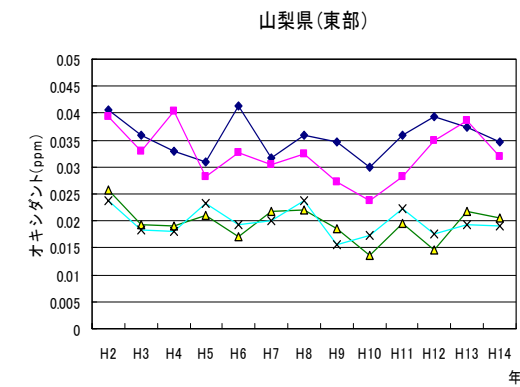
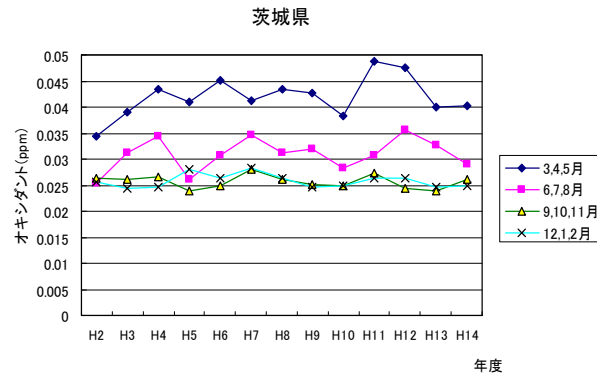
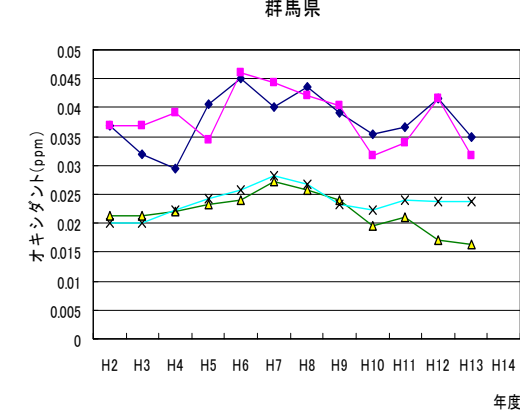
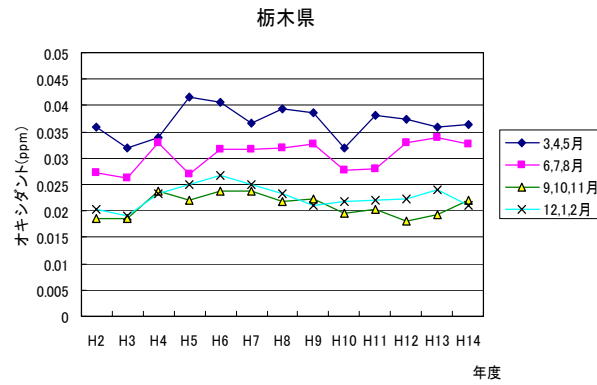
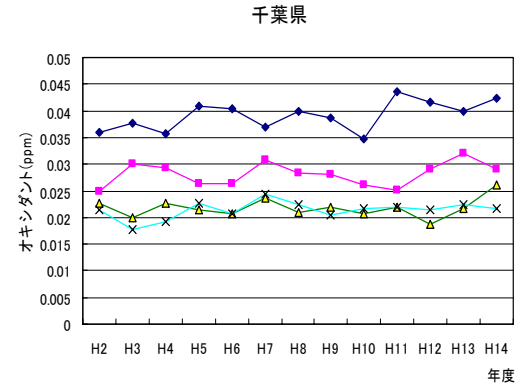
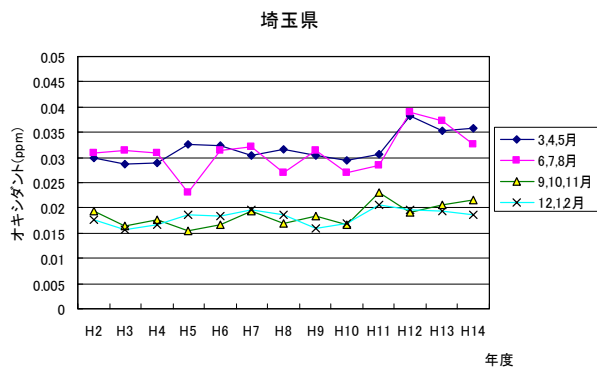
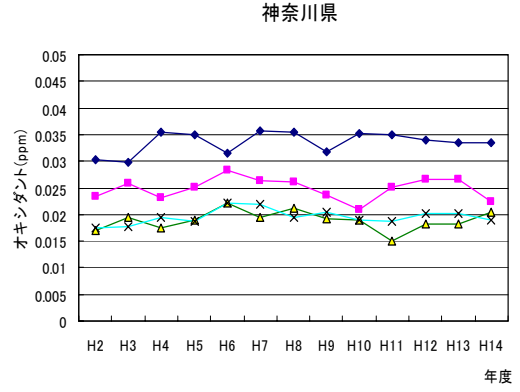
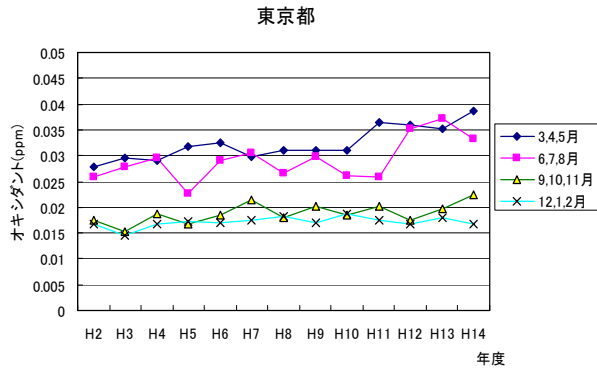
図-5 発令区域別オキシダント平均値の経年変化

表-2 平成2～14年度における四季別のオキシダント濃度平均値の推移
(関東一都六県及び山梨県東部)

都県名	春 (3～5月)	夏 (6～8月)	秋 (9～11月)	冬 (12～2月)
東京都	↗	↗	→～↗	→
神奈川県	→～↗	→	→	→
埼玉県	↗	↗	→～↗	→
千葉県	↗	→	→	→
栃木県	→	↗	→	→
群馬県	→～↗	→～↓	↓	→～↗
茨城県	↗	→～↗	→	→
山梨県東部	→	→～↓	→～↓	→

(凡例) ↗: 上昇、↗: わずかに上昇、→: 横ばい、↓: わずかに低下

※ランク分けについては、回帰直線から求めた。



(3,4,5月：2年度は4、5月のみで、他の年度は前年度の3月と当該年度の4,5月)

図一六 一都七県の四季別のオキシダント屋間平均値 (年平均値) の推移

3 朝6～9時のNO_x及びNMHCと都内のオキシダント日最高値との関係

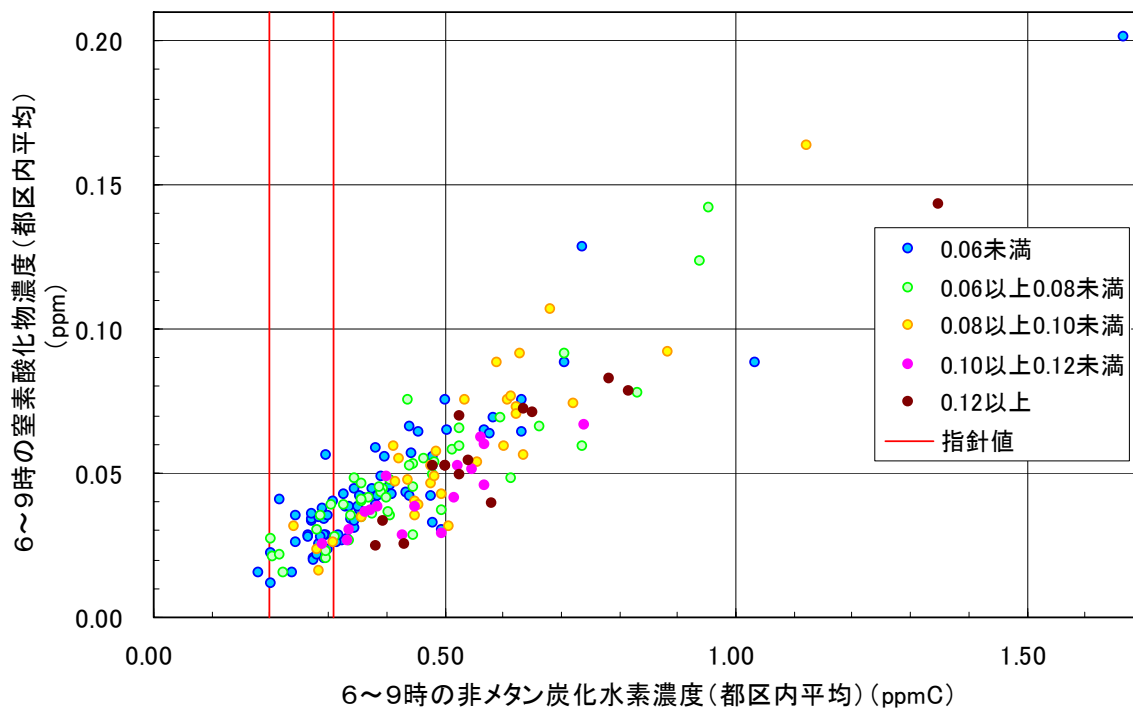
昭和61年度、平成2、8及び14年度の4～9月における、朝6～9時のNO_x及びNMHCとオキシダント日最高値との関係は、過去16年間に大きく変化していた(図-7-(1)、図-7-(2))。

図-7には、光化学オキシダントの環境基準0.06ppmを達成するためのNMHCの指針値(昭和51年設定)である0.20～0.31ppmCのゾーンを赤の縦線で示した。

ゾーン内のオキシダント日最高値は昭和61年には大部分が0.08ppm未満であり、0.10ppmを越えることはほとんどなかったが、平成14年度では、0.10ppmを越える日が多く、0.12ppm以上になる日も数日見られた。

しかし、朝のNMHC濃度が0.20ppmC以下の場合は、近年でも0.12ppm以上のオキシダント濃度が出現することは稀であり、平成14年度には1日だけであった。

昭和61年・4月～9月



平成2年・4月～9月

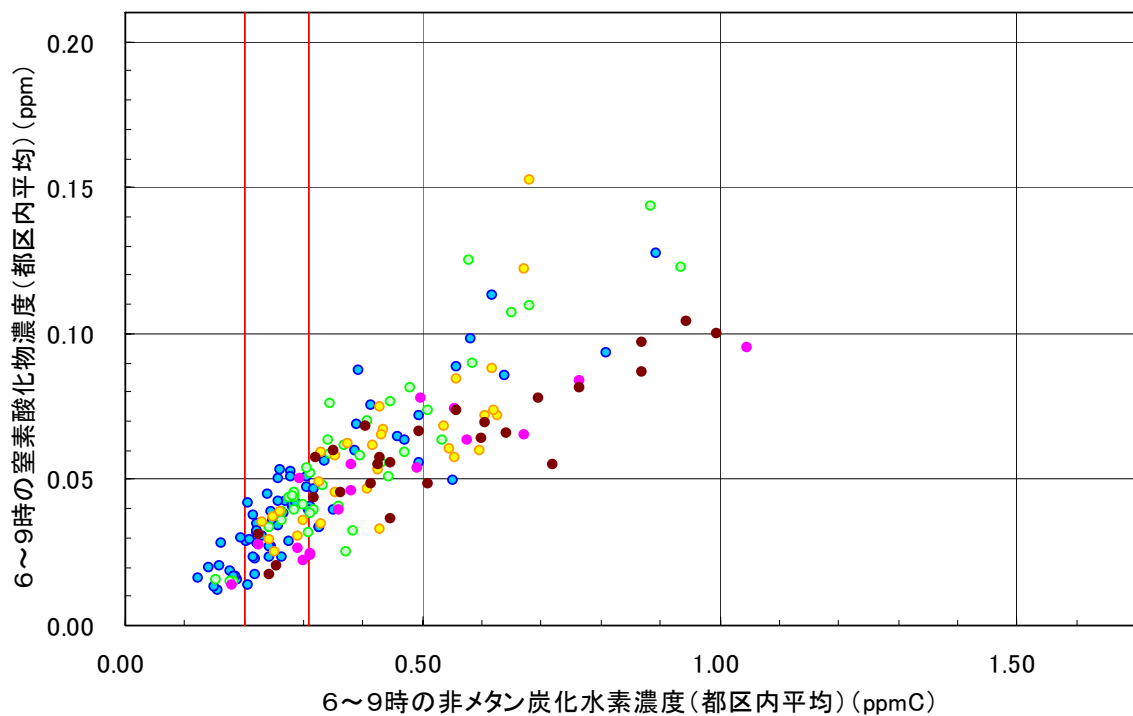


図-7-(1) 都内のオキシダント日最高値、朝6～9時の窒素酸化物及び非メタン炭化水素の関係

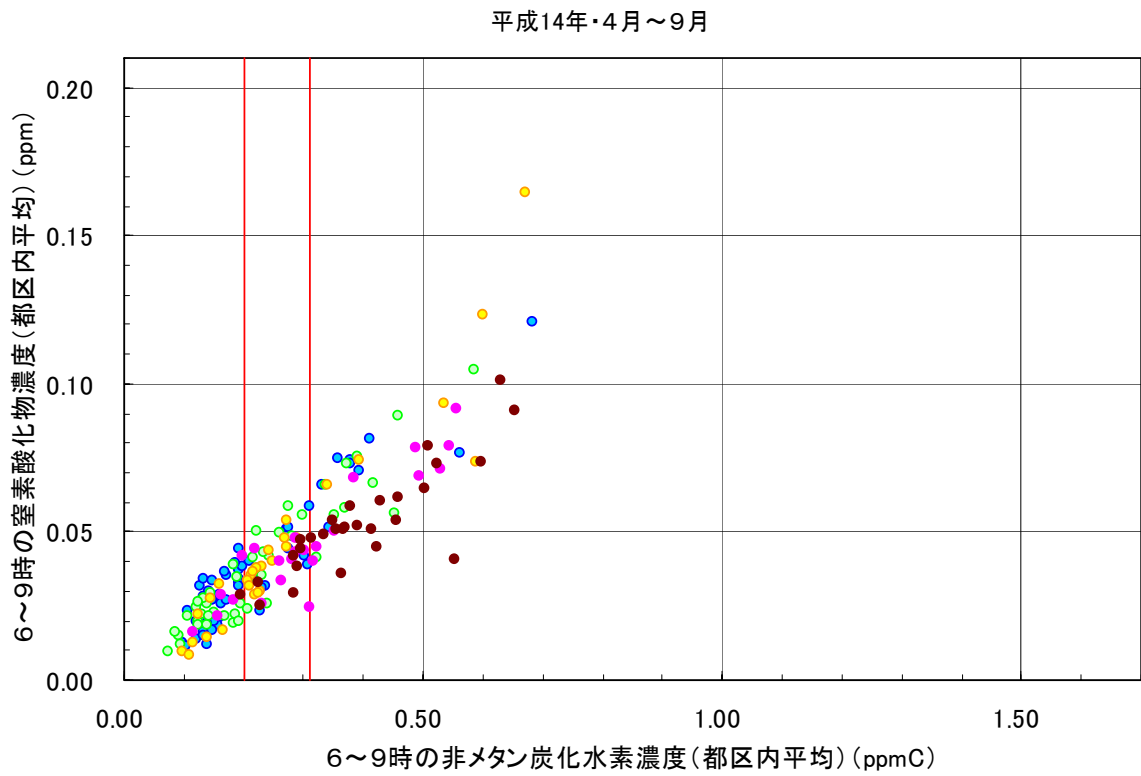
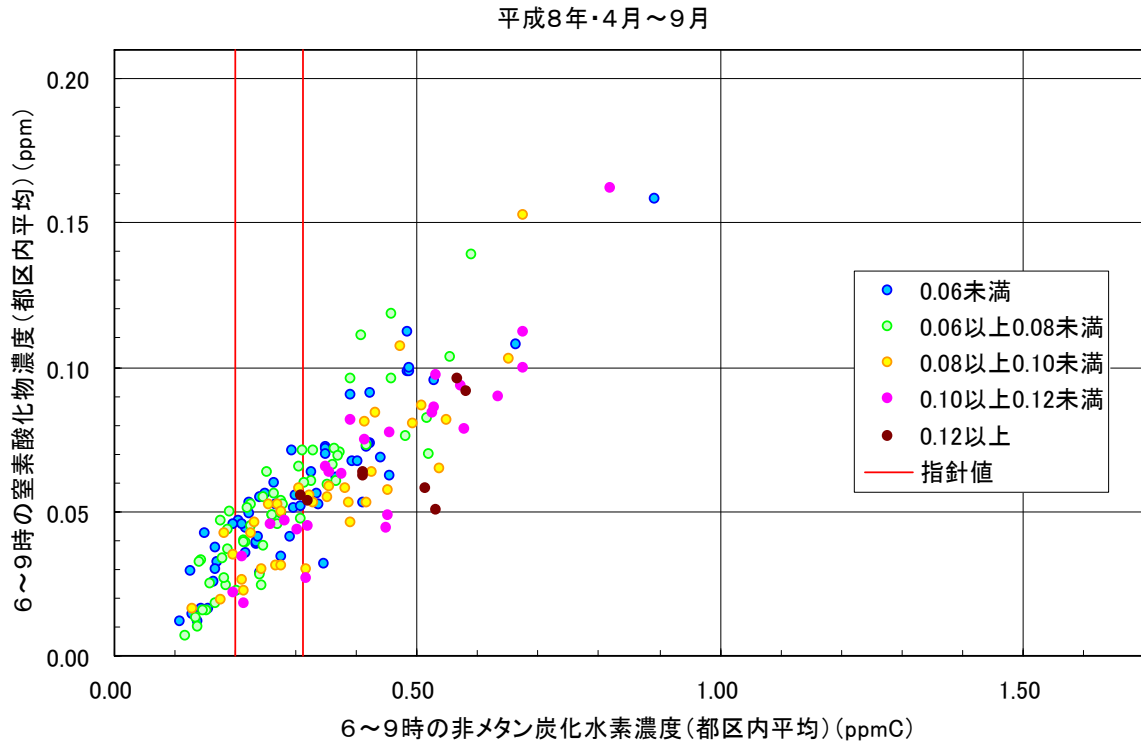


図-7-(2) 都内のオキシダント日最高値、朝6～9時の窒素酸化物及び非メタン炭化水素の関係

IV 都内におけるオキシダント濃度の上昇要因の解析

高濃度オキシダントが発生する気象条件について整理するとともに、平成2年度以降のオキシダント濃度の上昇に影響を与えたと考えられる気象要素の変動などについて解析を行った。

1 気象の概況との関係

(1) 高濃度日の朝9時の気圧配置（天気図型）

高濃度日の朝9時の気圧配置を、目視により分類して集計した（表-3）。

表-3 一都七県の高濃度日の気圧配置型

気圧配置型	10	11	12	13	20	21	22	計
平成2年度	33	14		3	7	7	2	66
平成3年度	15	19	4	5	8	3	1	55
平成4年度	26	8		6	5	4		49
計	74	41	4	14	20	14	3	170
%	43.5	24.1	2.4	8.2	11.8	8.2	1.8	100.0

気圧配置型	10	11	12	13	20	21	22	計
平成13年度	33	13	1	4	5	2		58
平成14年度	35	11	2	3	7	2	1	61
計	68	24	3	7	12	4	1	119
%	57.1	20.2	2.5	5.9	10.1	3.4	0.8	100.0

凡例) 10: 高気圧圏内～気圧傾度弱

11: 高気圧の縁（南高）

12: 高気圧の縁（東高）

13: 高気圧の縁（北高、南西に台風等）

20: 低気圧・前線通過

21: 低気圧後面（西高東低）

22: 前線停滞

23: 台風・熱低圏内（該当無し）

高濃度日の天気図型では、関東地方が高気圧圏内にある型が最も多く、次いで関東地方の南側に高気圧がある型が多いことがわかった。また、過去年度ではこれらの二つ型の合計が高濃度日全体の68%未満であったが、近年では全体の77%に増えていた。

(2) 高濃度日の朝の日射の状態

高濃度日の朝の日射の状態を、アメダスさいたま局の8時～12時の日照時間をもとにして分類した。同時間帯に2時間以上の日照があった日を「好天日」とした（表-4）。

表-4 一都七県の高濃度日の好天日判定

好天日判定	好天	非好天	計	好天日判定	好天	非好天	計
平成2年度	46	20	66	平成13年度	43	15	58
平成3年度	40	15	55	平成14年度	44	17	61
平成4年度	33	16	49	計	87	32	119
計	119	51	170	%	73.1	26.9	100.0
%	70.0	30.0	100.0				

過去年度、至近年度とも高濃度日の70%以上は好天日であった。また、近年では過去年度よりわずかに好天日の割合が増えていた。

(3) 高濃度日の海陸風状況

高濃度日を、アメダス東京局とさいたま局の日中の風向・風速をもとにして、海陸風の発達状況から、海風進入、非海風及び非陸風の3種類に分類した(表-5)。

表-5 一都七県の高濃度日の海陸風状況

海陸風状況	海風 進入	非 海風	非 陸風	計	海陸風状況	海風 進入	非 海風	非 陸風	計
平成2年度	32	18	16	66					
平成3年度	22	20	13	55	平成13年度	35	15	8	58
平成4年度	32	8	9	49	平成14年度	34	14	13	61
計	86	46	38	170	計	69	29	21	119
%	50.6	27.1	22.4	100.0	%	58.0	24.4	17.6	100.0

凡例) 海風進入：早朝は陸風で日中は埼玉まで海風が進入
 非海風：早朝陸風だが海風の発達が不十分
 非陸風：早朝に陸風が吹かない

過去年度では高濃度日の51%、近年では58%が海陸風の交替が起こり、海風が埼玉まで進入した日であった。

(4) まとめ

以上の検討結果から、関東地方で高濃度オキシダントが発生する典型的な気象条件は、以下のものであった。

- ・関東地域が高気圧圏内か南側に高気圧があり、気圧傾度が緩く穏やかな日。
- ・午前中は晴天である。
- ・海陸風の交替が起こり、日中から午後に海風が内陸まで進入する。

こうしたことから、近年においてオキシダント濃度が高濃度となる気象条件は、巻末の参考で示した東京都が30年前にとりまとめた気象条件とほぼ同じであることが確認できた。

2 オキシダント上昇要因の解析結果

平成2年度以降のオキシダント濃度の上昇に影響を与えたと考えられる気温、風速及び日射量などの気象要素の変動、炭化水素組成変化の影響、炭化水素・窒素酸化物の濃度変化との関係、東アジアなどからの広域移流の影響並びにオキシダント測定機の湿式から乾式への測定法切り替えの各要因について解析を行った。

(1) 気象要素との関係

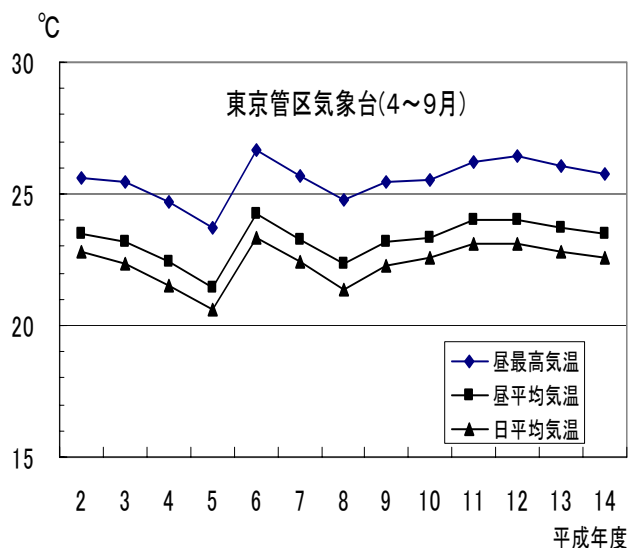
ア 各気象要素のトレンド（気温、風速及び日射量）

気温、風速及び日射量について、光化学スモッグが発生しやすい4～9月を選び、東京都における経年トレンドを調べた。

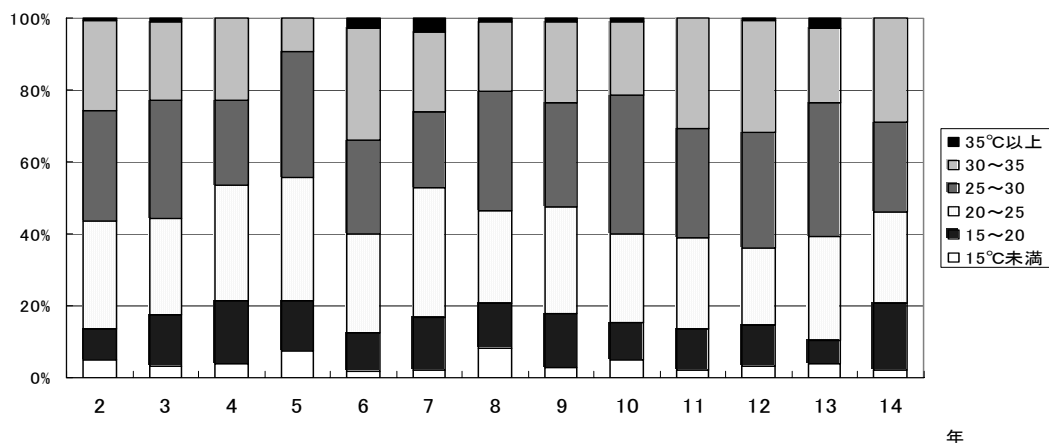
(ア) 気温

平成2年度から14年度における東京管区気象台の昼平均気温、昼最高気温及び日平均気温は、わずかに上昇か横ばいの傾向にあった（図－8）。

昼最高気温別に出現頻度を見ると、11年以降、30℃以上の出現頻度がそれ以前の25%程度から30%以上に上昇するなど比較的高い温度の出現頻度が上昇していた（図－9）。



図－8 東京管区気象台における気温の推移



図－9 東京管区気象台（4～9月）の昼最高気温・ランク別出現頻度の経年変化

(イ) 風速

気温と同期間における東京管区気象台の昼平均風速と日平均風速は、ともに横ばいの傾向にあった（図-10）。

風速別にその出現頻度を見ると、2.5 m/s 未満の弱い風の出現頻度は平成2～11年には25%程度であったが、12～14年に30%以上に増加しており、比較的弱い風の割合が近年増加していた（図-11）。

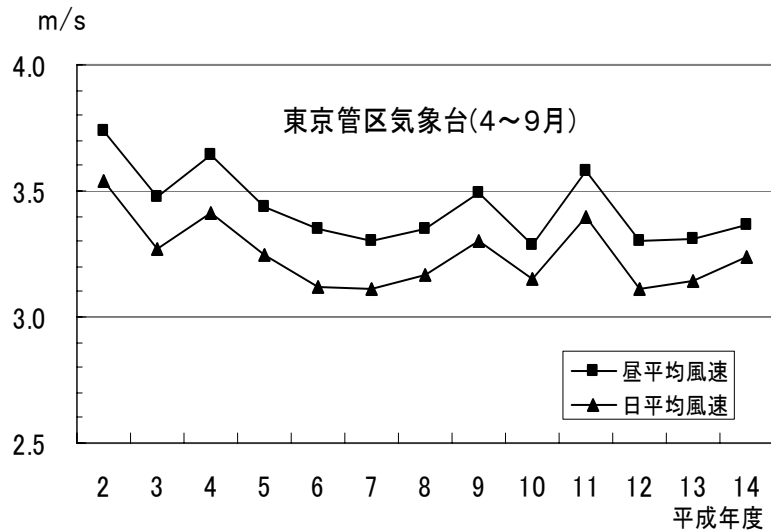


図-10 東京管区気象台における風速の推移

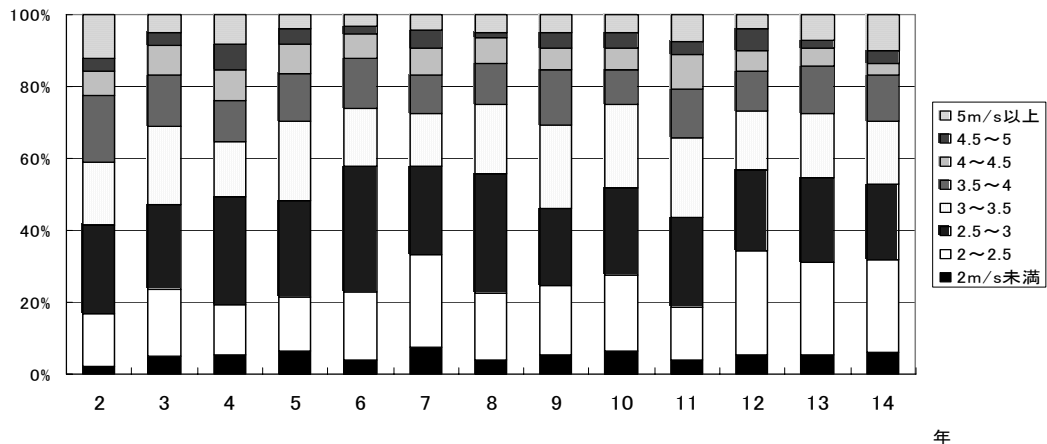


図-11 東京管区気象台（4～9月）の日平均風速・ランク別出現頻度の経年変化

(ウ) 日積算日射量（紫外線）

気温や風速と同期間における東京管区気象台の日積算日射量は、冷夏であった平成5年などに低かったが、経年トレンドはわずかに増加する傾向にあった（図-12）。

また、同図には梅雨日数も示したが、この経年的な日積算日射量増加の要因の一つとして、梅雨日数が経年的に減少傾向にあるためであることが分かった。

日積算日射量別に出現頻度を見ると、年による変動が大きいですが、経年的に 25MJ/m²以上の割合が増加していることがわかった（図-13）。

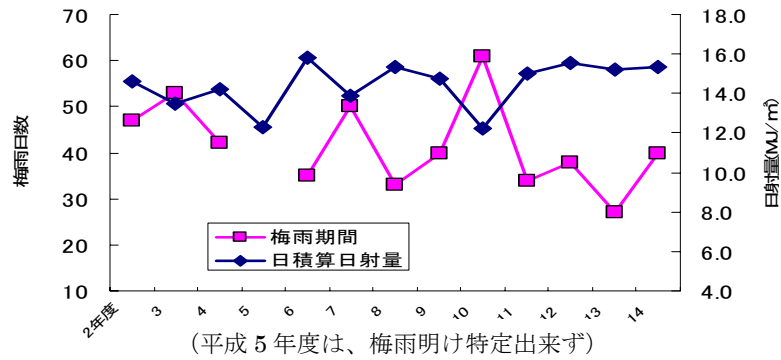


図-12 日射量（4～9月）と梅雨日数の推移

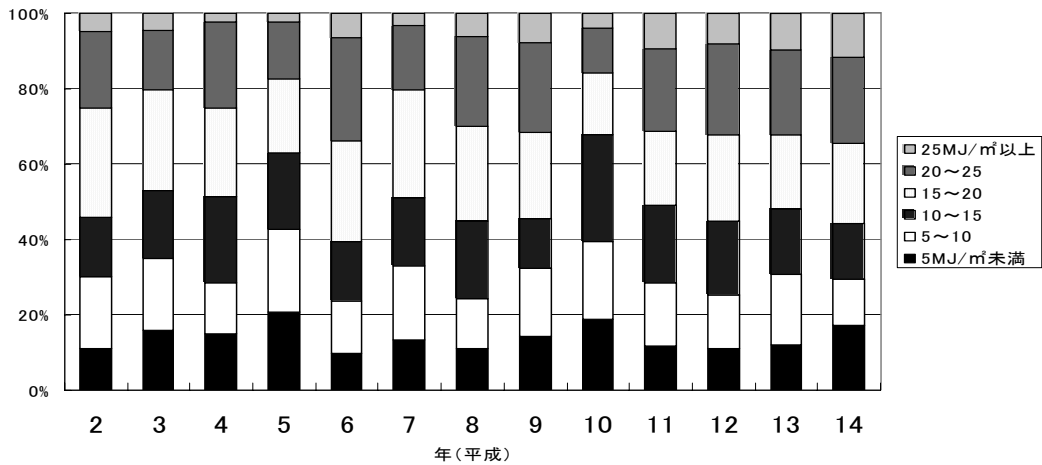


図-13 東京管区気象台（4～9月）の日積算日射量・ランク別出現頻度の経年変化

なお、日射量に関して平成3～13年度におけるつくば（茨城県）の4～9月の紫外線率（紫外線(UV-B)量/日射量）は、日射量と同様に経年的に上昇傾向にある。特に夏（6～8月）の紫外線率は、春（4～5月）に比べて高く、平成3年度には1.2であったが、近年は1.3～1.4近くまでに上昇している傾向が認められた。

こうした日射量や紫外線率の上昇については、都市部におけるSPMの低下との関係も指摘されているが、都市部における紫外線の観測データが現状では少なく十分な解析ができないことから、今後、SPMと紫外線率の関係について、データを蓄積し検討していく必要がある。

イ 気象要素とオキシダント濃度との相関

平成2～14年度の4～9月における東京管区気象台の昼最高気温、日積算日射量及び日平均風速などと、同期間における東京都のオキシダント昼間平均値と昼間最高値との相関を解析した（表-6）。

結果は、オキシダント昼間平均値と最も高い相関を示す気象要素は日積算日射量、次いで日平均風速であり、気温との相関は弱い。

昼間最高値の場合は、昼最高気温も日平均風速と同程度の相関を示す。

表-6 都内（4～9月）のオキシダント濃度と各気象要素の相関係数

		昼間平均値		昼間最高値	
		2～14年平均	2～14年	2～14年平均	2～14年
気温	昼最高気温	0.098	0.108	0.336	0.346
	昼平均気温	0.037	0.048	0.277	0.288
	日平均気温	-0.015	-0.004	0.229	0.242
日積算日射量		0.608	0.601	0.553	0.547
風速	昼平均風速	-0.142	-0.154	-0.310	-0.316
	日平均風速	-0.166	-0.176	-0.343	-0.347
	昼平均風速逆数	0.116	0.133	0.289	0.302
	日平均風速逆数	0.155	0.169	0.342	0.351

(注) 2～14年平均：平成2年から14年まで各年の相関係数の算術平均

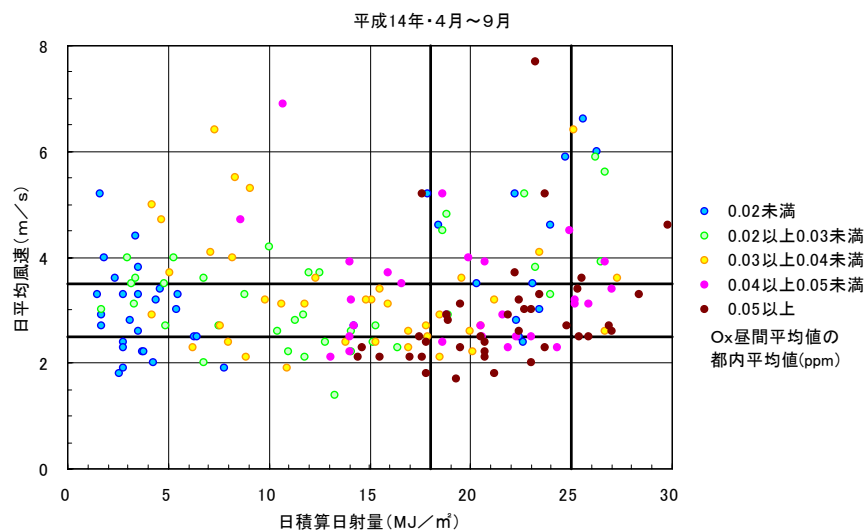
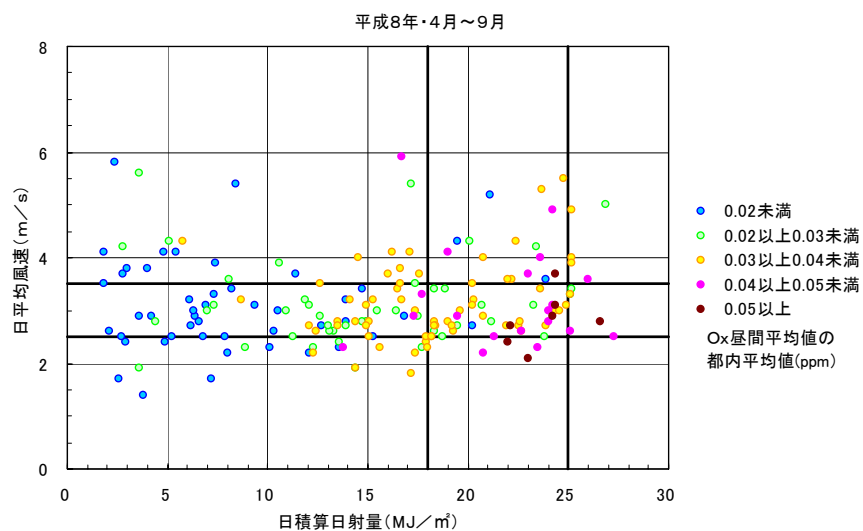
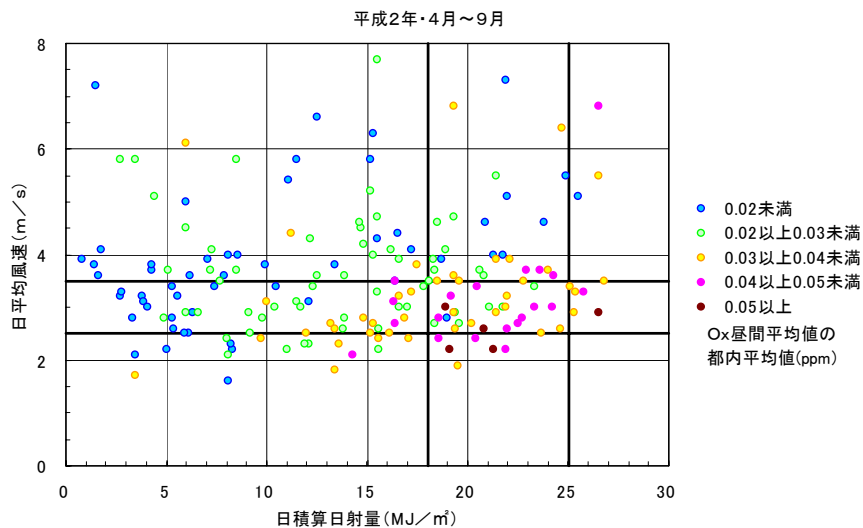
2～14年：平成2年から14年まで全てのデータから算出

ウ 高濃度オキシダントが観測される気象条件の変化

日積算日射量と日平均風速は、オキシダント濃度の昼間平均値と相関が高いことから、平成2、8及び14年度について、4～9月の風速、日射量及びオキシダント濃度との関係を調べた（図-14）。

平成14年度は、平成2、8年度に比べて、日射量25 MJ/m²以上や風速2.5 m/s未満で高濃度オキシダントが観測されるケースが増加していることがわかる。

また、平成2、8年度では、比較的低い日射量領域（10～18 MJ/m²）においてはオキシダント濃度が高濃度となる日は少なかったが、平成14年度では高濃度のオキシダントが観測された日が多く見られた。



図一14 4～9月における日積算日射量、日平均風速及びオキシダント屋間平均値との関係
(日積算日射量、日平均風速は東京管区気象台のデータ)

エ 気象要素の変動を取り除いたオキシダント濃度変動

オキシダント濃度については、4～9月のすべての昼間の1時間値を平均すると、冷夏であった平成5年度などにおいて、値が低くなるなど、年による変動が見られる(図-15)。

そこで、4～9月の日射量及び風速の条件が一定の範囲〔平成2年度に高濃度のオキシダントが観測された気象条件:日射量は18以上25(MJ/m²)未満、風速は2.5以上3.5(m/s)未満〕にある日のデータを取り出すことにより、気象要素の変動を取り除いたオキシダント昼間平均値の推移を調べた(図-16)。

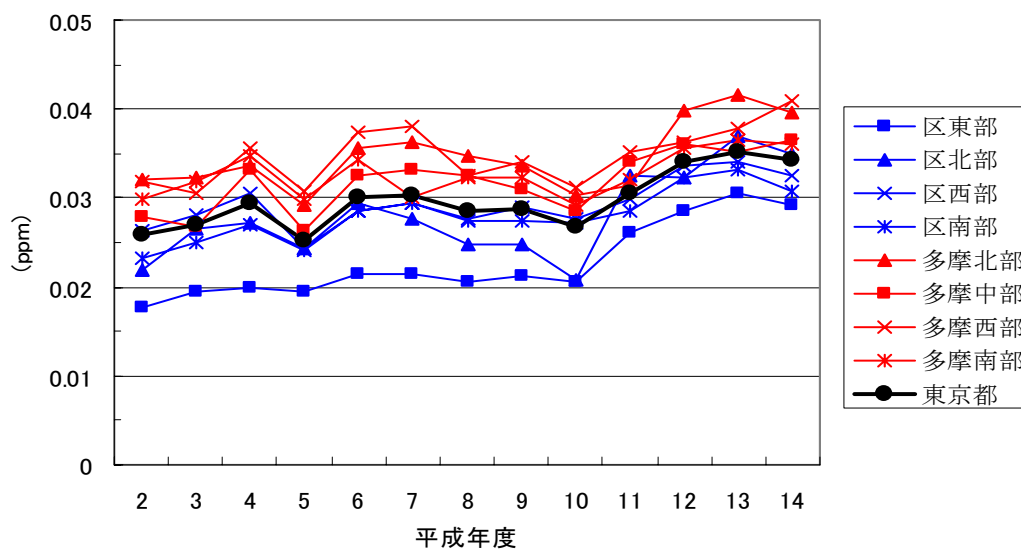


図-15 オキシダント昼間平均値(4～9月)の推移

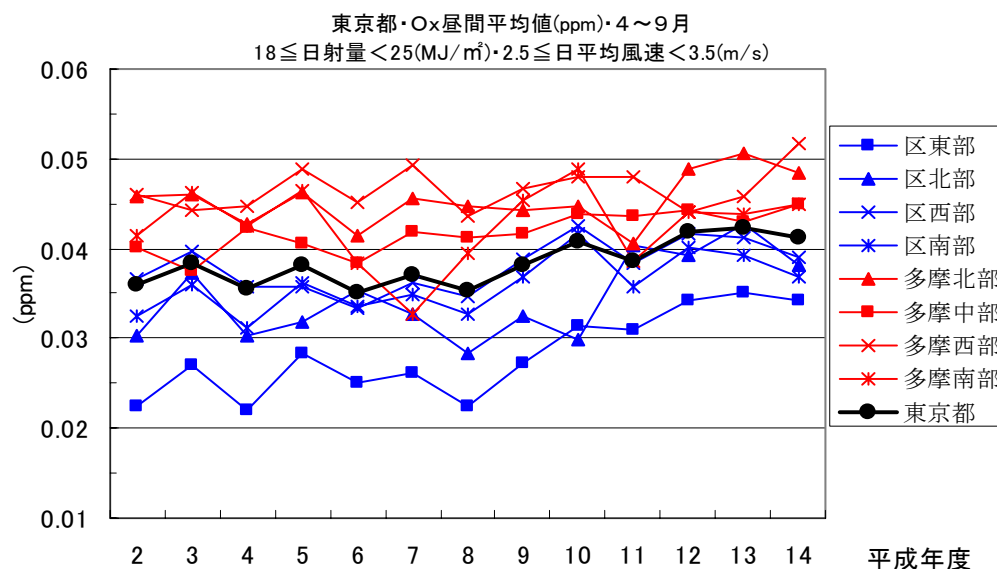


図-16 日射量と風速が一定の領域にある日のオキシダント昼間平均値(4～9月)の推移

日射量及び風速の条件が一定の範囲にある日を取り出したときの都内のオキシダント昼間平均値の上昇率は、0.50 ppb/年、相関係数 0.745 である（図-17）。

また、重回帰分析によって日射量と風速による変動の影響を取り除いたオキシダント昼間平均値の上昇率は、0.53 ppb/年、相関係数 0.705 となり、図-17 の解析結果と良く一致した（図-18）。

これらのことから過去 12 年間に観測された都内の 4～9 月のオキシダント昼間平均値の上昇率 0.65 ppb/年のうちの約 79%、0.50～0.53 ppb/年は日射量、風速の変動以外の原因によることが分かった。

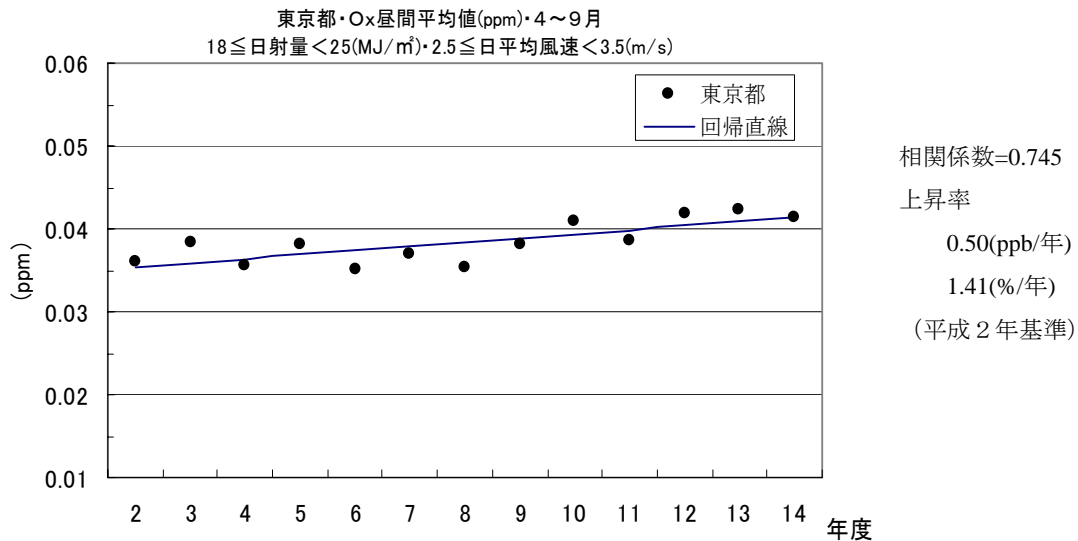


図-17 日射量と風速が一定の領域にある日のオキシダント昼間平均値（4～9月）回帰直線

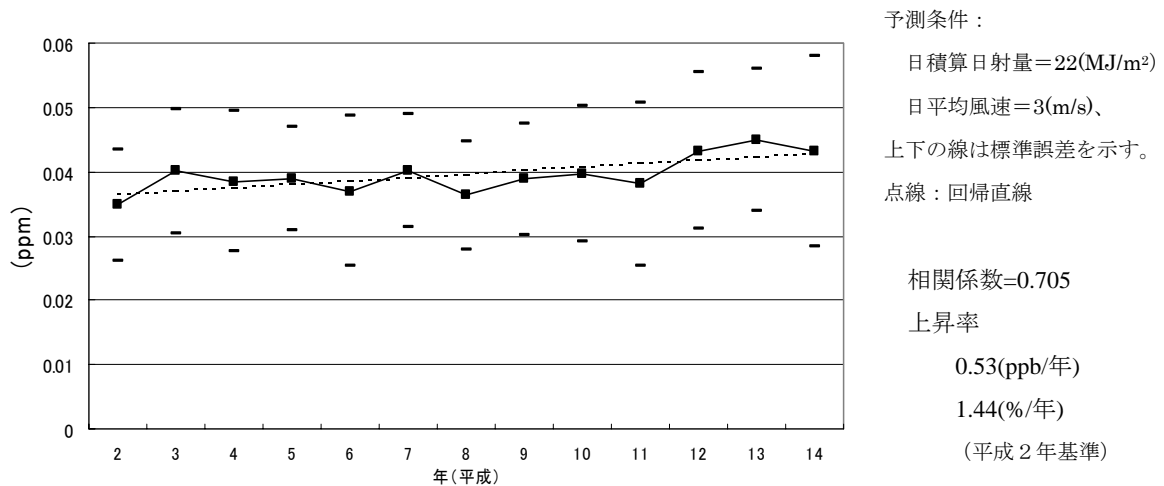


図-18 重回帰式による予測値の経年変化

(2) 大気質の変化との関係

ア オキシダント濃度と NMHC/NOx 濃度比の関係

次に、気象要素の条件を限定させ、原因物質である非メタン炭化水素及び窒素酸化物と、オキシダントの都内最高値との関係を解析した。気象要素の条件を限定させた一定の範囲については、平成2年度の高濃度のオキシダントが観測された気象条件（日積算日射量は18以上25 MJ/m²未満、日平均風速は2.5以上3.5 m/s未満）とともに、最高気温もオキシダントの昼最高値との相関があることから、0.12 ppm以上の高濃度が出現しやすい25℃以上の条件を加えて、さらに限定した。

図-19 に平成2～14年度の13年分について、4～9月における6～9時の3時間のNMHC及びNOxの都区内平均値に対して、その日のオキシダント都内最高値がどのようなレベルであったかを色別のプロットで示した。

オキシダント最高値が0.14 ppm以上0.16 ppm未満、及び0.16 ppm以上のプロットについてみると、プロット群の比較的下方、すなわちNMHC/NOx濃度比が比較的大きい領域に多く存在していることがわかった。

そのため、NMHC/NOx濃度比を3つの範囲に分けて、オキシダント最高値の出現割合を整理すると図-20のようになる。

6～9時の3時間のNMHC/NOx濃度比が6以上の範囲において、注意報発令基準(0.12 ppm以上)の高濃度のオキシダントが出現する割合が高く、このうち8以上では、オキシダント最高値が0.16 ppm以上の割合が更に高まることがわかった。

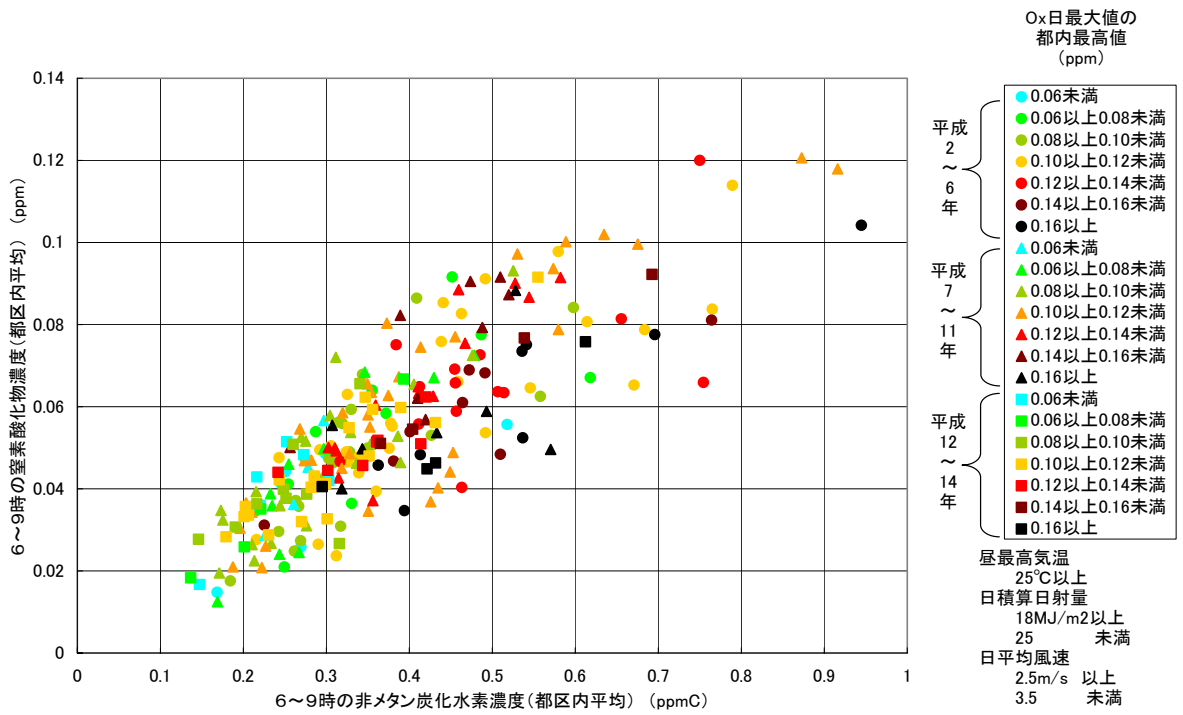


図-19 気象要素を限定した条件におけるNMHC・NO_x・O_xの関係(4～9月)

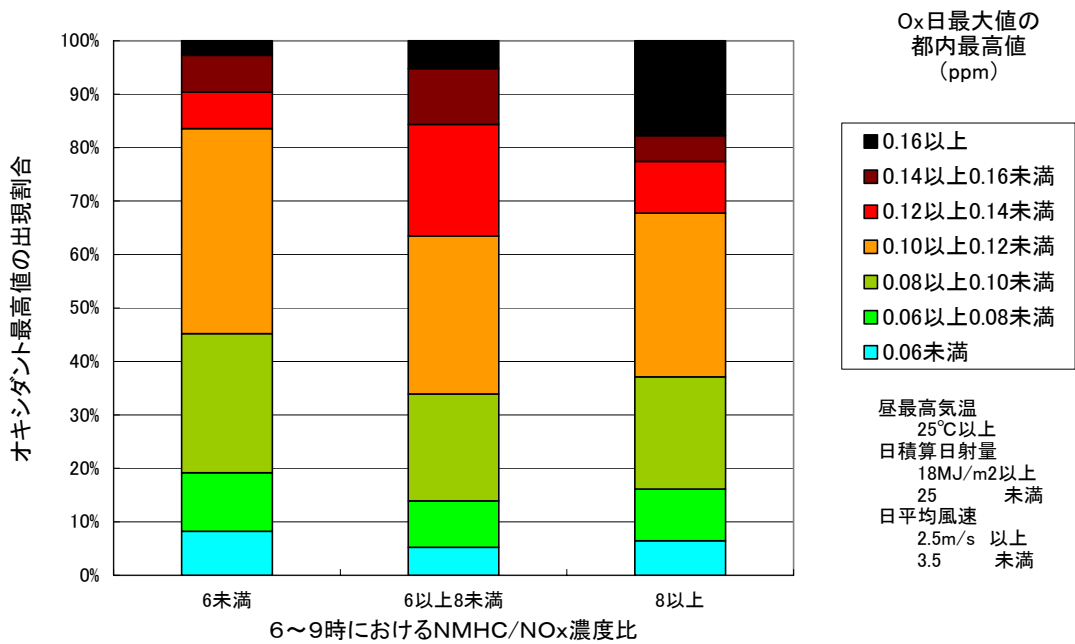


図-20 NMHC/NO_x濃度比とオキシダント最高値の出現割合の関係

イ NOx と NMHC の濃度変化の影響

(ア) NOx 濃度と NMHC 濃度の経年変化

図-21 に示されるように、平成 2 年度から 14 年度の間、4～9 月における 6～9 時の 3 時間の東京都区内の大気中の NOx 濃度は、約 19% 減少した。

一方、同期間の NMHC 濃度の減少率は、32% で NMHC の率の方が大きい。しかしより詳しく見ると平成 2～10 年までの期間では NOx は漸増後、漸減で全体としてほぼ横ばい、NMHC は減少傾向であったが、平成 11 年度以降は NOx は漸減、NMHC はほぼ横ばいで推移している (図-21)。

(イ) NMHC/NOx 濃度比の経年変化

NOx、NMHC のこのようなトレンドをもとに、東京都の NMHC/NOx 濃度比についてみると、平成 2 年度から 8 年度は減少し、平成 8 年度から 14 年度は横ばいないしはわずかに増加している (図-21)。最近の NMHC/NOx 比の増加は、都内の高濃度オキシダントの出現を起りやすくする傾向をもたらすものと考えられる。

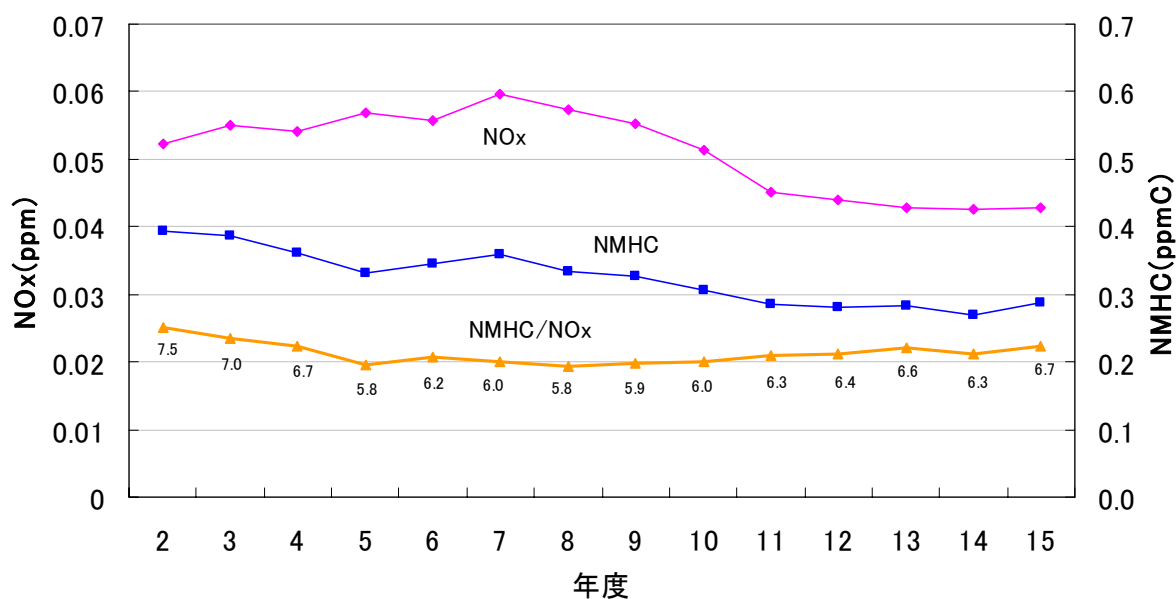


図-21 NOx、NMHC、NMHC/NOx 比 (都区内平均値) の推移
4-9 月 6-9 時の平均値

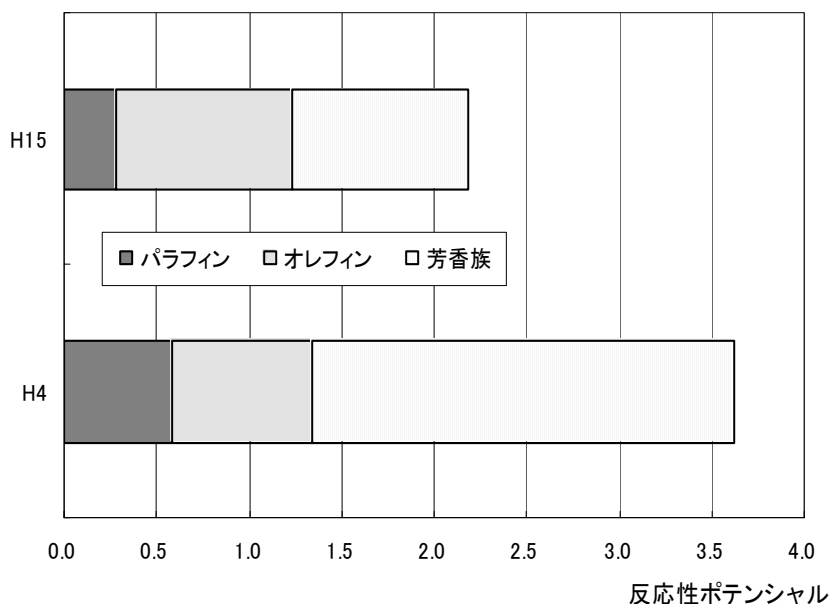
(3) NMHC 組成の経年変化

環境大気中の NMHC (23 物質) の組成の変化を、平成 4 年度と 15 年度の調査結果を用い、炭化水素成分濃度と NMHC 濃度 (江東区大島測定局の連続測定データ) との比率の変化から推定した。その結果、濃度が増加している成分 (プロピレン、*c*-2-ブテンなど) と、濃度が減少している成分 (トルエン、キシレンなど) があることが推定された。

炭化水素と OH ラジカルとの反応の速度定数と、NMHC 成分濃度との積の和から求められる炭化水素総体での反応性ポテンシャルの変化を炭化水素の種類別に見ると、オレフィン類は 21⇒44%に増加しているが、パラフィン類は 16⇒12%に、芳香族は 63⇒44%にそれぞれ減少し、全体ではこの間に約 40%減少していることが分かった。

これらのことから、NMHC の組成変化が、近年のオキシダント濃度の上昇に影響を及ぼしているとは考えられない (図-22)。

なお、今回の調査で、特にプロピレンと *c*-2-ブテンの濃度が増加している結果が得られたが、両物質とも反応性ポテンシャルが高いことから、これらの物質を含めた都内の NMHC の組成について継続的に把握していく必要がある。



【参考】炭化水素の反応性について

- (1) オレフィン系炭化水素、アルキル置換基を多く含む芳香族炭化水素は、光化学反応性が高い。
- (2) 炭素数の小さい飽和炭化水素、ベンゼン、アセチレン等は、光化学反応性が低い。
- (3) 各指標について検討しても、メタンの光化学反応性は無視し得る。

【出典】光化学オキシダント生成防止のための大気中炭化水素濃度の指針に関する報告

参考資料 (昭和 51 年 7 月 30 日 中央公害対策審議会大気部会)

図-22 環境科学研究所(江東区)における炭化水素の反応性ポテンシャルの年度別比較図

(4) 広域移流の影響

ア 長野県八方尾根及び島根県隠岐島のオゾントレンド

日本国内のリモート局と考えられる長野県八方尾根 (東京都心から北西に約 200km) 及び島根県隠岐島 (同じく西北西に約 600km) のそれぞれ過去 11 年間と 7 年間にわたる観測データは、八方尾根では季節に関係なく上昇傾向にあったが、隠岐島では経年的にすべての季節でわずかに減少の傾向にあり、両地点のトレンドは異なっていた。季節別の濃度レ

ベルは両地点ともほぼ同じで、春には他の季節に比べて濃度が30%程度高い傾向にあった。両地点のトレンドを把握するためには、観測期間が短く今後のデータの蓄積が必要であるが、

- ① 関東地方に近い八方尾根のオキシダント濃度が四季を問わず上昇傾向にあること
- ② 八方尾根におけるオゾン高濃度日の流跡線を解析したところ、その多くは大気汚染が著しい大陸由来の流跡線であったこと
- ③ 春のオゾン濃度は他の季節に比べて高濃度であること

などから、広域的な移流が、特に春の関東地方におけるオキシダント濃度の上昇に寄与している可能性があり、さらに、夏の影響についての解析を行う必要がある。

イ 札幌、つくば、鹿児島におけるオゾンゾンデデータの解析

文献調査^{*1,2)}から、我が国では1969年(昭和44年)～1990年(平成2年)にわたり、地表0～2kmのオゾン濃度が、札幌、つくば、鹿児島ではそれぞれ2.1、1.4、2.5%/年で統計的に有意に上昇していることが報告されている。また、那覇における1989年(平成元年)～1997年(平成9年)のオゾンゾンデデータの解析からは、大陸由来の気塊において2.5%/年のオゾン濃度の上昇が報告されている。

これらの結果からは、東アジアの越境大気汚染は我が国のバックグラウンドオゾンに対し、約2%/年程度の上昇率をもたらしていることになり、首都圏のオキシダントの上昇の少なくとも一因となっていることが推定されるが、今後更にデータを蓄積し検討していく必要がある。

(5) オキシダント自動測定機の測定方式切り替えの影響

ア 「自動洗浄なし」から「自動洗浄付き」吸光光度法自動測定機への切り替えの影響

東京都では平成2年度以降はほとんど自動洗浄付き測定機であったため、自動洗浄付きの測定機への切り替えによる影響はほとんど無いものと考えられる。

イ 吸光光度法自動測定機(湿式)から紫外線吸収法自動測定機(乾式)への切り替えの影響

湿式測定機から乾式測定機への切り替えは、9～13年度に順次実施されてきたことから、平成10年度以降の測定結果に影響を及ぼしている可能性がある。

測定機の切り替え前後のデータを解析した結果、切り替え後は切り替え前に比べ1～8%測定値が大きく測定される傾向が見られた。

こうしたことから、測定法切り替えの影響は、無視し得ないものの、首都圏で観測されているオキシダント濃度上昇の主原因ではないと考えられる。

*1) Akimoto, H., H. Nakane, and Y. Matsumoto, The Chemistry of Oxidant Generation: Tropospheric Ozone Increase in Japan, in "Chemistry of the Atmosphere: The Impact on Global Change", Blackwell Scientific Publications. 261-273, 1994.

*2) Lee, S.-H., H. Akimoto, H. Nakane, S. Kurnosenko, and Y. Kinjo, Lower tropospheric ozone trend observed in 1989-1997 at Okinawa, Japan, Geophys. Res. Lett., 25(10), 1637-1640, 1998.

V 光化学オキシダント出現日数低減に向けての今後の取組の方向

光化学オキシダント対策のためには、その原因物質である窒素酸化物と炭化水素の削減が必要であるが、窒素酸化物については、東京都は、「東京都自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」に基づき、平成 22 年度に二酸化窒素の環境基準達成を目標に削減対策を進めるなど一層の排出量の削減を進めている。

炭化水素については、現在、国は、大気汚染防止法の改正案を国会に提出し、固定発生源から排出される蒸発系炭化水素の抑制を進めようとしている。一方、東京都は、平成 13 年 4 月に施行された環境確保条例で、給油所における炭化水素類の蒸発防止対策を進めるなど対策を講じているが、近年、光化学オキシダント濃度が上昇し、注意報の発令回数が再び増加するなどの状況にある。

そこで、今後、以下の事項などについて検討を進めるなどにより、光化学オキシダント対策がより効果的に進むよう留意する必要がある。

- ・ 首都圏における光化学オキシダント濃度上昇の原因については、まだ十分解明されておらず、広域的に解析したり、過去にさかのぼって光化学オキシダント濃度が低減していた時期の解析を行うなど、今後さらなる研究・調査が必要であること。
- ・ 非メタン炭化水素の排出量削減により光化学オキシダント濃度の低減を進めるに当たっては、非メタン炭化水素の排出量と環境大気中の濃度の関係を確認する必要があり、そのためには排出量インベントリーの精度の向上と組成分析を含む非メタン炭化水素の継続的モニタリングが必要であること。
- ・ 効果的な削減を図るため、炭化水素成分毎、排出形態、発生源別、時間別、季節別などの排出量等、排出実態等の把握を進めるとともに、有害ガスの排出規制、炭化水素類の蒸発抑制のための構造基準等が定められている環境確保条例や、有害化学物質について排出量の把握や届出が義務付けられている PRTR 法など、既存制度の一層の活用を検討すること。
- ・ 対策の効果を把握し、さらにより効果的な対策を進めるため、大気環境の特に光化学反応性が高い炭化水素成分のモニタリングを充実すること。
- ・ 低 VOC 製品の開発や回収装置・処理装置の開発等の技術開発や調査研究の推進に努めること。
- ・ 光化学オキシダントは、二次生成物質のためその影響は広範囲に及ぶことなどから、近隣自治体との連携による広域的な対策が重要である。こうしたことから、都は近隣自治体に対して本調査結果に関する情報提供を行なうなど情報交換に努めること。

参 考

参考 1 光化学オキシダントとオゾン

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（中性よう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。）をいう。

なお、現在、東京都などで使用されている乾式のオキシダント自動測定機の測定原理は、紫外線吸収法のため測定対象となるオキシダントは、オゾンのみである。

参考 2 光化学オキシダントと二酸化窒素の環境基準、及び非メタン炭化水素の指針値

- (1) 光化学オキシダント（昭和 48 年 5 月 8 日環境庁告示第 25 号）

1 時間値が 0.06 ppm 以下であること。

- (2) 二酸化窒素（昭和 53 年 7 月 12 日環境庁告示第 38 号）

1 時間値の 1 日平均値が 0.04 ppm から 0.06 ppm までのゾーン内又はそれ以下であること。

- (3) 光化学オキシダントの生成防止のための大気中炭化水素濃度指針（昭和 51 年 8 月 12 日通知）

光化学オキシダントの日最高 1 時間値 0.06 ppm に対応する午前 6 時から 9 時までの非メタン炭化水素の 3 時間平均値は、0.20 ppmC から 0.31 ppmC の範囲にある。

参考 3 光化学スモッグ注意報等の発令基準

予報	注意報	警報	重大緊急報
1 気象条件からオキシダントの高濃度汚染が予想されるとき	濃度が 0.12 ppm 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とき	濃度が 0.24 ppm 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とき	濃度が 0.4 ppm 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とき
2 注意報に近い濃度の汚染があり気象条件からさらに悪化することが予想されるとき			

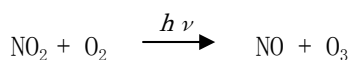
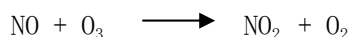
参考 4 光化学オキシダント（オゾン）の生成機構と NMHC 濃度・NOx 濃度との関係

- (1) オゾンの生成機構

環境大気中での生成機構は、完全に解明されてはいないが、チャンバー実験では、以下の様に考えられており、観測データともほぼ一致している。

- ① NOx の光反応による基本的な生成機構

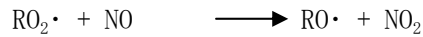
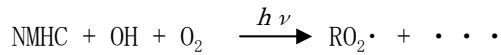
NO₂に紫外線が作用し、O₃を生成し、生成したO₃がNOに消費され消滅する反応が基本的な生成機構である。NMHCは直接関与しない。



- ② NMHC の関与によるオゾン生成の加速度的な増加

NMHCが存在すると、NMHCに紫外線が作用し、反応性の高い過酸化有機化合物ラジカル[RO₂・]が発生し、上記のO₃と同様の役割を果たしNOを酸化しNO₂を生ずる。このNO₂も紫外線によりO₃

を生成する。途中で生じたアルコキシラジカル[RO₂·]がさらに過酸化物を生じO₃を生成する結果、O₃の生成は一層加速される。



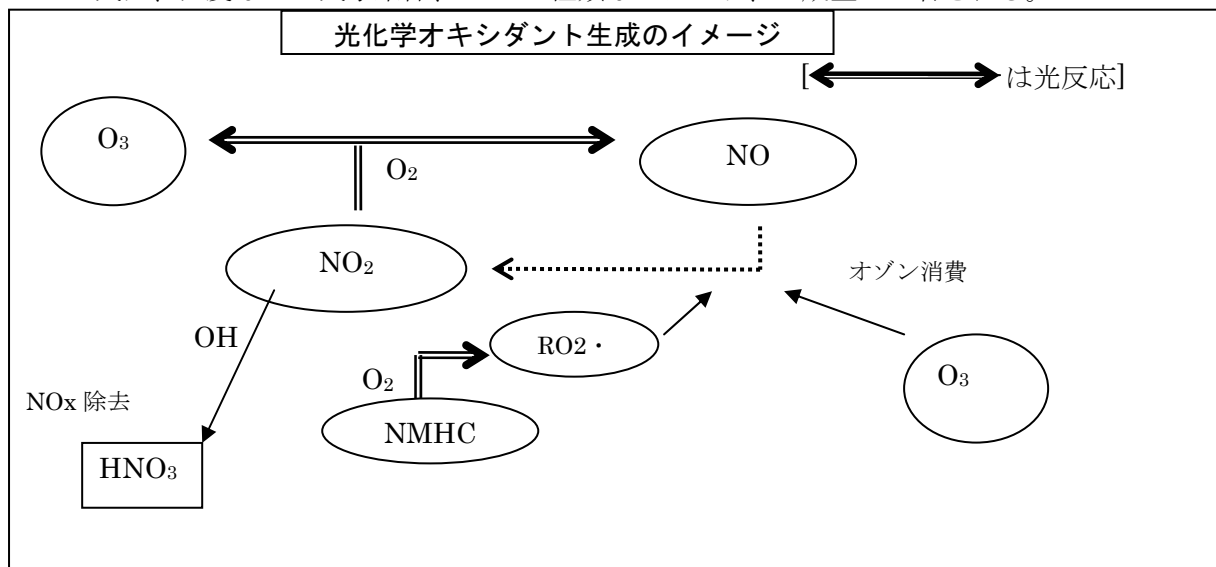
③ オゾン生成の終了

紫外線によるO₃の生成は、NO₂が酸化され硝酸塩（SPMの構成要素）などになり、反応系から除去されるまで続く。



④ その他のオゾン生成要因

気温、湿度などの気象条件、NMHCの種類などにより、生成量が左右される。



(2) オゾン生成と NMHC 濃度・NO_x 濃度との関係

O₃生成に与えるNO_xとNMHC濃度の影響については、チャンバー実験等の結果から、以下のことがわかっている。

- ① NMHC 濃度の低減 (NMHC/NO_x→小) ※ NO_x 濃度一定の場合
O₃生成の速度を抑え、日中最高濃度のレベルを抑える。
反応が遅くなるため、風下側の遠隔地で高濃度が出現しやすくなる。
- ② NO_x 濃度の低減 (NMHC/NO_x→大) ※ NMHC 濃度一定の場合
O₃生成の速度が増加するが、O₃生成量は低下する。
原因物質の発生源に近い都心近くで高濃度が出現しやすくなる。

都の状況は、特に近年はNO_x濃度が低いにもかかわらず、高濃度O_xが観測される傾向にあり、NMHC/NO_xが大きい領域にあるものと推測される。したがって、現在の状況からNO_xのみを削減することはO_x上昇につながり、NMHCをNO_x以上に削減することが重要となる。

参考5 東京都が過去にとりまとめた都内で光化学オキシダント濃度が高濃度となる条件

- ・気温 日最高気温が 25℃以上
- ・日照時間 9～15 時の間に 2.5 時間以上の日照があること
- ・海風 東京湾及び相模湾からの海風の侵入があること
- ・安定度 安定であること。
館野高層気象台 9 時の状態曲線で、0～1000 m の気温差が 7℃以下
- ・上空の風 館野高層気象台 9 時の状態曲線で、1000 m 以下の風が南よりの風でないこと
- ・天気図 夏型の気圧配置であること
移動性高気圧又は低気圧や前線の間で気圧傾度が緩い場合

[出典]

- 1) 東京都公害研究所：東京スモッグ生成機序・植物被害に関する調査部会中間報告（東京スモッグに関する調査研究 第二報），昭和 47 年 3 月
 - 2) 東京都公害研究所：東京スモッグ生成機序・植物被害に関する調査研究報告（東京スモッグに関する調査研究 第三報），昭和 49 年 3 月
- (注) 上記文献とその後発表された文献等を参考にして東京都がとりまとめ。

参考6 紫外線の種類と特徴

種類	UV-A（長波長紫外線）	UV-B（中波長紫外線）	UV-C（短波長紫外線）
波長	320-400 nm	280-320 nm	280 nm 以下
地上への到達度	地表に届く	一部はオゾン層に吸収され、一部が地表に届く	オゾン層に吸収され、地表に届かない
年間変動	UV-B に比べて年間変動は小さく、5月に最大で最小の12月に対する倍率は2倍弱	年間変動が大きく、8月に最大で最小の1月に対する倍率は5～6倍	
皮膚等への作用	皮膚の表皮の下の真皮まで届き、日焼けの原因	皮膚に対する刺激はやや強い	有害作用が強い

《大気汚染常時監視データ等》

- 1 大気汚染常時監視データ
 - (1) 平成 2～13 年度：国立環境研究所「環境データベース」大気環境時間値データファイル及び大気測定局マスターファイル
 - (2) 平成 14 年度：各自治体の大気汚染常時監視データ（横浜市は、平成 2～14 年度）
- 2 長野県八方尾根観測データ
長野県環境保全研究所提供及び「環境省酸性雨対策調査」
- 3 島根県隠岐島観測データ
島根県保健環境科学研究所提供及び「環境省酸性雨対策調査」