

光化学オキシダント対策検討会報告

光化学オキシダント対策検討会

平成 17 年 2 月

はじめに

近年、東京都をはじめとする首都圏では、光化学オキシダント濃度が上昇し、高濃度のオキシダントが出現する頻度が増加する傾向にある。

こうした光化学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、光化学オキシダント濃度上昇の要因を解明し、今後の施策の方向性を明らかにするため、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、平成 15～16 年度の 2 ヶ年にわたり、要因解析や原因物質の低減効果の試算などを行ってきた。本報告書は、2 年間の検討結果をとりまとめたものである。

平成 17 年 2 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 地球環境フロンティア研究センター 大気組成変動予測研究プログラム プログラムディレクター
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

◎ 座長 ○ 副座長

目次

光化学オキシダント対策検討会報告【要約】	5
光化学オキシダント対策検討会報告	9
1. 首都圏における大気汚染状況の推移	10
(1) 都内における大気汚染概況の推移	10
(2) 1都7県における光化学オキシダント濃度の推移	13
(3) オキシダント高濃度日における広域的な汚染分布の推移	15
(4) オキシダント高濃度日における時間変動の特徴	19
2. 光化学オキシダント濃度の上昇要因の解析	24
(1) 解析対象の地域の設定	24
ア. 朝方の原因物質の濃度を扱う地域（高濃度発生源エリア）の設定	24
イ. 光化学オキシダント濃度を扱う地域（1都6県解析エリア）の設定	25
(2) 光化学オキシダント濃度の代表値の選定	27
(3) 気象要素と光化学オキシダント濃度との関係の解析	27
ア. 各種気象要素と光化学オキシダント濃度との相関分析	27
イ. 各種気象要素の経年変化	29
ウ. 光化学オキシダント濃度の経年変化と気象要素との関連	32
(4) オキシダント濃度・高濃度オキシダント出現頻度の上昇傾向の統計解析	33
ア. オキシダント濃度の上昇傾向の統計解析	33
イ. 気象要素の変動を取り除いた場合でのオキシダント濃度の上昇傾向の統計解析	34
ウ. 高濃度オキシダント出現頻度の上昇傾向の統計解析	40
(5) 原因物質と高濃度オキシダントの出現割合との関係の解析	40
ア. 原因物質の濃度及び濃度比と高濃度オキシダントとの関係	40
イ. 原因物質の濃度及び濃度比の経年変化の影響	49
(6) その他の影響の解析	50
ア. 非メタン炭化水素の組成変化の影響	50
イ. 広域移流の影響	51
ウ. オキシダント濃度の測定法切り替えの影響	51
3. 原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の解析	53
(1) 統計解析に基づく原因物質低減効果の試算の考え方	53
(2) 試算方法	54
ア. 現況の把握	54
イ. 原因物質濃度の低下率に対応した高濃度オキシダント出現日数の算出	54
(3) 試算結果	56
4. 今後の都の施策のあり方	60

参 考	63
1. 光化学オキシダントとその生成機構	64
(1) 光化学オキシダントと光化学スモッグ	64
(2) 光化学オキシダントの生成機構	64
(3) オゾン生成とNO _x 濃度・NMHC 濃度との関係	66
(4) 大気環境中の各汚染物質の日変化パターン	67
2. 光化学オキシダントとその原因物質の環境基準等	68
(1) 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	68
(2) 光化学スモッグ注意報等の発令基準	68
(3) 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	68
3. オキシダント濃度測定法切り替えの影響の検討	69
4. 原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の解析	70
(1) 試算方法	71
(2) 試算結果	74
5. モデルシミュレーションによる原因物質の削減効果の検討	75
(1) 予測モデルの概要	75
(2) 現況再現結果の評価と課題	75
(3) 将来予測と対策削減ケース	75
(4) 統計的手法による推算結果との比較	77

光化学オキシダント対策検討会報告 【要約】

1. 検討の目的

首都圏において、1980年代以降、光化学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レベルである0.12ppm以上の高濃度の光化学オキシダントの出現する頻度が再び高まっている。本検討会での検討は、その要因について、関東1都6県における大気常時監視データを用いて解析し、今後の施策の方向性を明らかにするものである。

2. 首都圏における大気汚染状況の推移

関東地方の1都6県における1976年度（昭和51年度）から2002年度（平成14年度）までの昼間（5～20時）の光化学オキシダント濃度の平均値の経年変化をみると、1980年代から、日射量や気温が高くなる春と夏に、光化学オキシダント濃度の上昇傾向がみられる都県が多い。【本文 p.13】

3. 光化学オキシダント濃度の上昇要因の解析

光化学オキシダントは、大気中の窒素酸化物と非メタン炭化水素が太陽光を受け、光化学反応を起こして生成される。この生成は、時間経過とともにこれらの汚染物質が広域的に移動しながらの反応であり、日射量・気温・風速などの気象要素の影響を受けるほか、原因物質である窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度などとも複雑に関係する。

そのため、光化学オキシダント濃度の上昇要因の解析は、次の手順で行なった。

- ① 関東1都6県において光化学オキシダント濃度の上昇要因を統計的に解析するために適した地域を設定した。
- ② 設定した地域内において、各種の気象要素（日射量、気温、風速、高層との気温差）と光化学オキシダント濃度との相関を分析した。
- ③ 近年の光化学オキシダント濃度の上昇要因には、気象要素以外の要因も考えられる。そのため、相関の比較的高い気象要素（日射量、風速など）について一定の条件に限定した上で、限定した気象要素以外の要因による濃度上昇への影響の可能性を統計的な手法を用いて解析した。
- ④ 気象要素以外の要因として大気中の原因物質の濃度に着目し、原因物質の濃度と高濃度オキシダントの出現割合との関係について解析した。
- ⑤ これらのほか、非メタン炭化水素の組成変化による光化学オキシダント濃度上昇への影響、東アジアなどからのオゾンの広域移流の影響について検討した。また、光化学オキシダント濃度の測定法に関し、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も検討した。

(1) 解析対象の地域の設定 【上記①】

まず、解析の対象とする地域を設定するために、光化学オキシダント濃度が高濃度となった日を着目し、その高濃度日において朝方（6～9時）に原因物質が比較的高濃度となった地域を「高濃度発生源エリア」とし、また、高濃度発生源エリアを包含し昼（13～16時）に光化学オキシダントが比較的高濃度となった地域を「1都6県解析エリア」として、これらを統計的に導出した。【本文 p.24】

(2) 気象要素と光化学オキシダント濃度との関係の解析 【上記②】

1976年度（昭和51年度）から2002年度（平成14年度）の4～9月について、東京管区気象台における各種気象要素と、「1都6県解析エリア」における昼間（5～20時）の光化学オキシダント濃度のエリア内平均値（A）、エリア内最高値（B）、エリア内の局ごとの最高値の平均（C）とのそれぞれの相関を調べた。その結果、（A）・（C）は、気象要素の中で日積算日射量と最も高い相関があり、次いで昼午前平均風速との相関がみられた。（B）は、日積算日射量、日最高気温、昼午前平均風速の順に相関がみられた。【本文 p.27】

また、日積算日射量の大きい日の割合が多い年は（A）～（C）の4～9月平均値が高くなる傾向があるなど、年ごとの気象要素の特徴と光化学オキシダント濃度の高低との間には関係があることがわかった。【本文 p.32】

(3) 光化学オキシダント濃度の上昇傾向の統計解析 【上記③】

「1都6県解析エリア」における広域的な光化学オキシダント濃度の経年変化において、エリア内平均値（A）及びエリア内の局ごとの最高値の平均（C）の経年変化が統計的に有意な上昇傾向であるかどうかについて解析した。その結果、比較的高い気象要素で一定条件に限定させて、それらの気象要素の変動の影響を除外した場合においても、光化学オキシダント濃度の長期的な経年変化に有意な上昇傾向がみられた。このことから、限定した気象要素以外にも濃度上昇の要因が存在すると考えられる。【本文 p.34】

なお、日積算日射量、日最高気温及び昼午前平均風速の長期的な経年変化は、（A）及び（C）の1981年以降の上昇傾向に影響を及ぼした主要因とはなっていないことが考えられた。エリア内最高値（B）の経年変化については、気象条件の限定のある場合もない場合も、有意な上昇傾向・下降傾向は見出せなかった。

(4) 原因物質と高濃度オキシダントの出現割合との関係の解析 【上記④】

気象要素以外の要因の一つとして、朝方の原因物質（窒素酸化物と非メタン炭化水素）の濃度に着目し、「高濃度発生源エリア」における6～9時の原因物質濃度の平均値と「1都6県解析エリア」における光化学オキシダントの最高値との関係を解析した。解析にあたっては、エリア内最高値（B）と比較的高い相関の高かった日積算日射量、昼午前平均風速、日最高気温について、一定範囲の気象条件に限定してデータを整理した。その結果、窒素酸化

物 (NO_x) 濃度・非メタン炭化水素 (NMHC) 濃度が低く、濃度比 (NMHC/NO_x) が小さい条件ならば、高濃度の光化学オキシダントの出現する割合が小さいことがわかった。

【本文 p.40】

NMHC/NO_x 濃度比の長期的な経年変化をみた場合、NMHC/NO_x 濃度比は 1980 年当初には 10 を超えていたものが、1993 年には 6 程度まで低下しているにもかかわらず、この間に光化学オキシダント濃度は増加しており (p.32 の図-21)、この間の増加は NMHC/NO_x 濃度比の変化では説明できない。一方、近年においては、自動車公害対策の進展などにより窒素酸化物の排出量は削減されてきたが、非メタン炭化水素の排出削減がこれに追いついていないことから、1996 年以降、上記濃度比がやや上昇傾向にあり、このことが 2000 年以降の急速な高濃度オキシダントの出現頻度の増加をもたらしている可能性がある。

【本文 p.49】

従って、NO_x の排出削減にとどまらず、非メタン炭化水素を含めた揮発性有機化合物 (VOC) の排出削減対策を進めることが必要であると考えられる。

(5) その他の影響の解析 【上記⑤】

ア. 非メタン炭化水素の組成変化の影響

環境大気中の炭化水素類 (23 物質) について、1992 年度と 2003 年度における東京都環境科学研究所 (江東区) での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、1992 年度から 2003 年度の間に約 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、光化学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。【本文 p.50】

イ. 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 1992 年度からと短いことから長期的な経年変化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 0~2km 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、気象要素以外の要因として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、今後さらにデータを蓄積し検討していく必要がある。【本文 p.51】

ウ. オキシダント濃度の測定法切り替えの影響

1997 年度から光化学オキシダント濃度の測定法が湿式から乾式への切り替えが行なわれているが、その影響も検討したところ、測定法の湿式から乾式への切り替えは、計測されるオキシダント濃度の上昇傾向の主原因ではないと考えられる。【本文 p.51】

4. 原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の解析

上記 3 (4) において、朝方の原因物質濃度の平均値と光化学オキシダント濃度の最高値との関係が明らかになったことから、現況（2000～2002 年度）における高濃度オキシダントの出現頻度を基準にして、現況から今後、「高濃度発生源エリア」内の原因物質の環境濃度がそれぞれ一定割合低下した場合における「1 都 6 県解析エリア」内の高濃度オキシダントの出現日数の減少について推計した。

この結果、気象要素について 2000～2002 年の条件が変動しないと仮定すると、例えば、朝方の窒素酸化物濃度が 30%低下し、かつ、非メタン炭化水素濃度が 40%低下すると、2000～2002 年の現況よりも、「1 都 6 県解析エリア」内の高濃度オキシダント（0.12ppm 以上）の出現日数が 62 日から 18 日へと約 70%減少すると推計される。【本文 p.53】

5. 今後の都の VOC 対策のあり方

以上の解析から、今後、高濃度の光化学オキシダントの生成を抑制するために、窒素酸化物の排出削減対策のみならず、非メタン炭化水素を含む揮発性有機化合物（VOC）のさらなる排出削減対策が必要であると考えられる。

都内における VOC の排出は、その約 7 割が蒸発系固定発生源からであるが、この発生源は、塗装、印刷、クリーニング、給油、金属表面処理など、さまざまな業種に関係していること、東京都の実態として、これらの業種は中小規模の事業者が多く、塗装関係では屋外での使用も多くを占めていることなどから、今後の都の VOC 対策については、事業者の実態に応じた取組を促進するため、都がそれらを積極的に支援する施策の展開が望ましいと考えられる。

光化学オキシダントの影響は広範囲に及ぶこと並びに発源地域と高濃度オキシダントの出現地域が異なることなどから、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報告の内容に関する情報提供を行なうなど、情報交換に努めるとともに、広域対策を推進するために近隣自治体と連携し、都がその先導的役割を果たしていくことが重要である。【本文 p.60】

光化学オキシダント対策検討会報告

1. 首都圏における大気汚染状況の推移

(1) 都内における大気汚染概況の推移

光化学オキシダントとは、自動車や工場などから排出される大気中の窒素酸化物や炭化水素が太陽光線（紫外線）を受けて、光化学反応により生成する酸化性物質をいう。それらの物質は、オゾン、パーオキシアセチルナイトレート（PAN）などであるが、ほとんどがオゾンである（参考欄参照）。

大気中の炭化水素のうち、メタンは光化学反応性が極めて低いことが知られており、これ以外の非メタン炭化水素（とくに不飽和炭化水素）が光化学オキシダントの原因となる。

東京の大気環境は、東京都公害防止条例や大気汚染防止法による1970年代からの固定発生源対策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ており、都内における原因物質の窒素酸化物と非メタン炭化水素の濃度は低下してきている。それにもかかわらず、光化学オキシダントは、年平均値がここ十数年間において上昇傾向にある（図-1）。

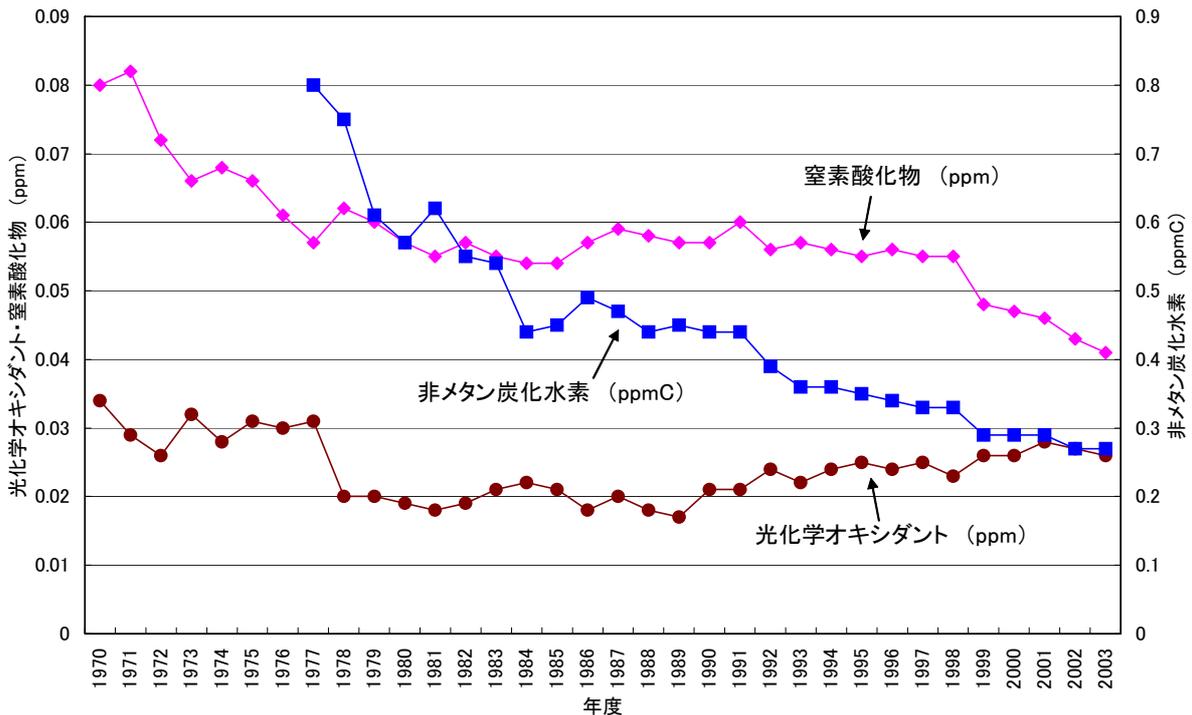


図-1 都内の光化学オキシダント（5～20時）・窒素酸化物・非メタン炭化水素の年平均値の経年変化

また、図-2 に示すように、都内の光化学オキシダント濃度の年平均値は、区部に比べて多摩部が高い傾向にある。

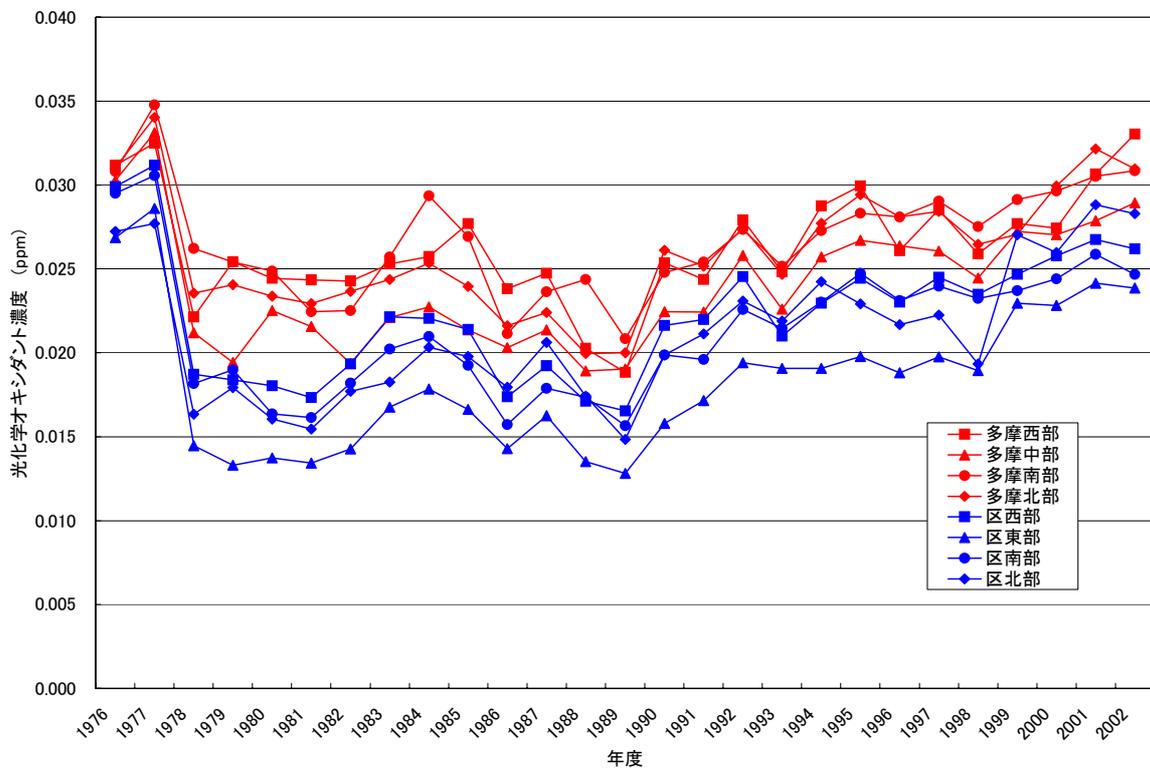


図-2 都内における発令地域別の光化学オキシダント年平均値の経年変化

都内における光化学スモッグ注意報の発令日数は、1980年代に30日を超えることもあったが、1990年以降、10日前後と比較的少なくなったあと、2000年度以降、再び増加している（図-3）。さらに、一般環境大気測定局1局当たりについて光化学オキシダント濃度が年間で1時間値0.12ppm以上（注意報発令レベル）となる日数が、2000年度以降かなり増加する傾向にあり、都内では1970年代後半の値よりも高くなっている（図-3）。

また、都内において、環境基準0.06ppm以上の濃度が出現した時間の経年変化をみると、1990年度以降増加している。とくに、注意報発令レベルである0.12ppm以上の高濃度の時間数は、2000年度以降、急激に増加している（図-4）。また、図-5に示すように、0.12ppm以上となる年間の時間数が長時間化するとともに、広域化している。

こうしたことから、光化学オキシダント濃度の上昇要因を解析して対策を早急に講じ、光化学スモッグの発生を抑制する必要がある。

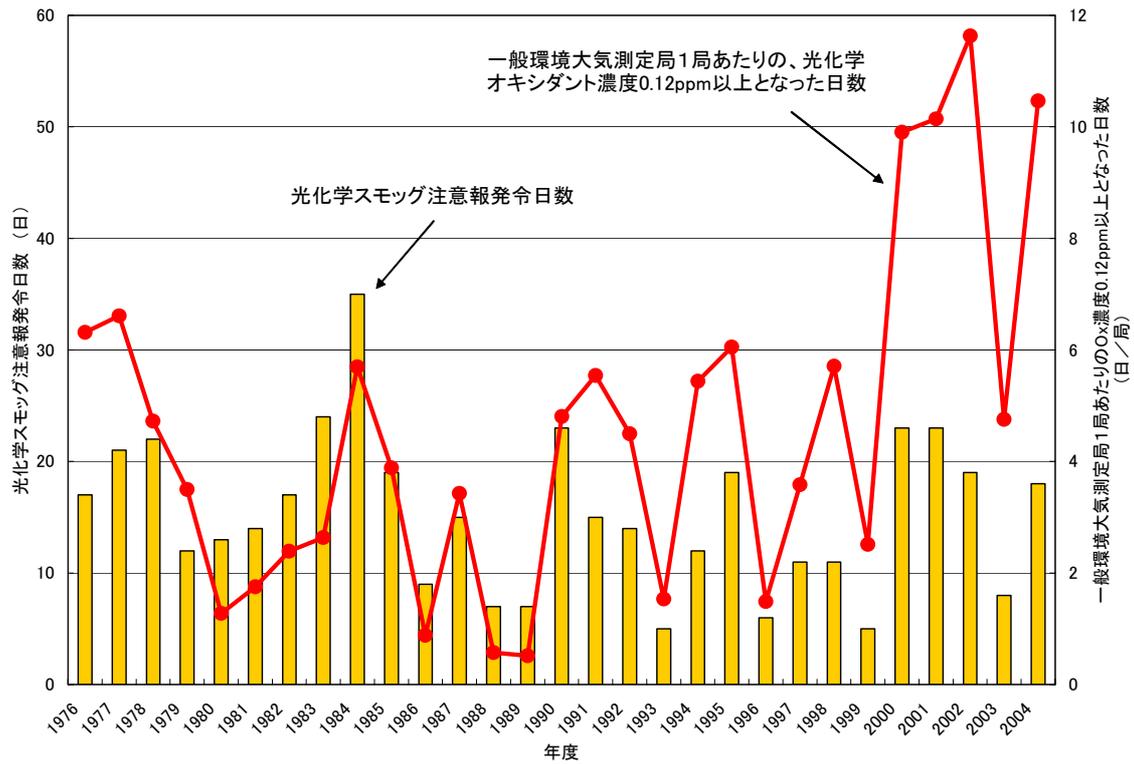


図-3 都内における光化学スモッグ注意報発令日数と、一般環境大気測定局 1 局あたりのオキシダント濃度 0.12ppm 以上となった日数の経年変化

(ただし、2004 年度は 12 月末までの値)

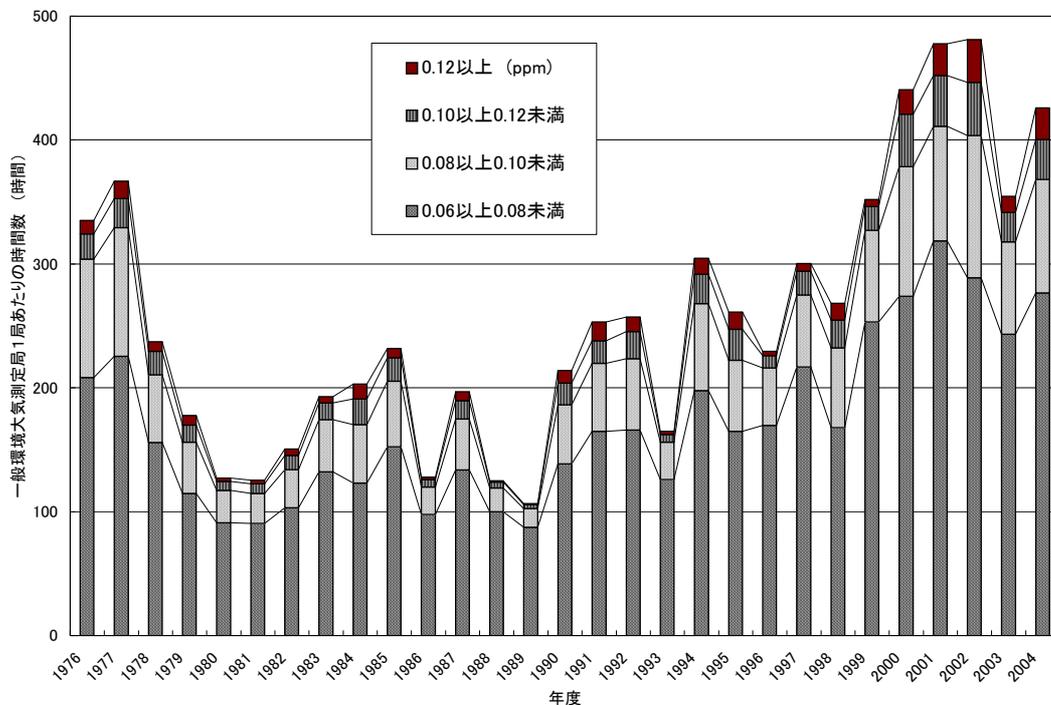


図-4 都内における光化学オキシダントの高濃度ランク別時間数の経年変化

(ただし、2004 年度は 12 月末までの値)

○は、光化学オキシダントを測定している
一般環境大気測定局の位置を示す。

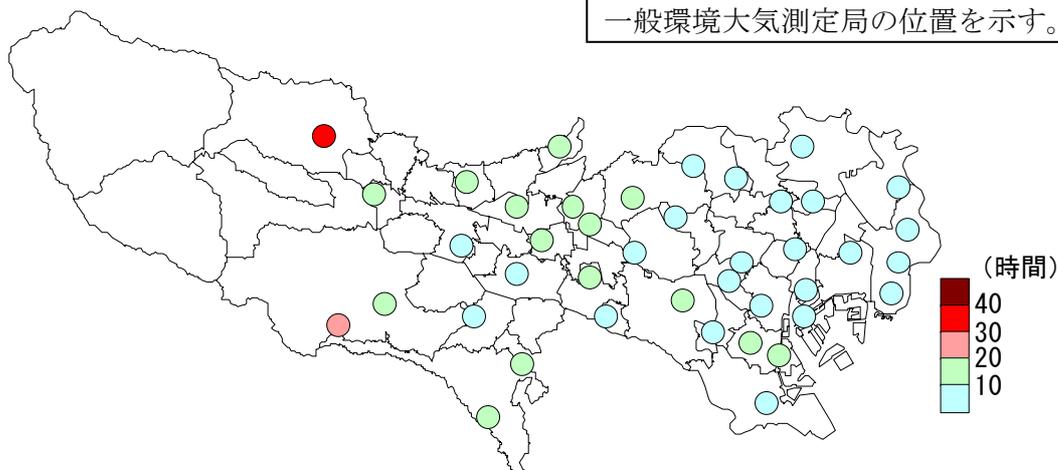


図-5 (1) 光化学オキシダント濃度が 0.12ppm 以上の年間時間数 (1995～1999 年度の平均)

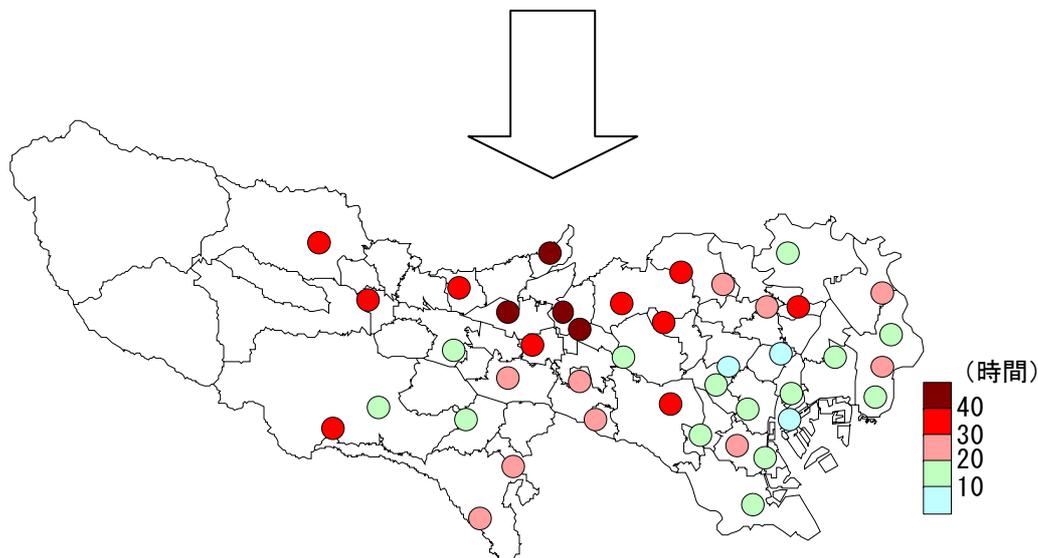


図-5 (2) 光化学オキシダント濃度が 0.12ppm 以上の年間時間数 (2000～2004 年度の平均)

(ただし、2004 年度は 12 月末までの値)

(2) 1 都 7 県における光化学オキシダント濃度の推移

関東地方の 1 都 6 県と山梨県東部における 1976 年度 (昭和 51 年度) から 2002 年度 (平成 14 年度) までの昼間 (5～20 時) の光化学オキシダント濃度の四季別の平均値の経年変化を図-6 に示す。

1980 年代から、日射量や気温が高くなる春と夏に、光化学オキシダント濃度の経年的な上昇傾向がみられる都県が多い。



図-6 1都7県の光化学オキシダントの四季別の昼間平均値の経年変化

(3,4,5月：1976年度は4,5月のみ、他の年度は前年度の3月と当該年度の4,5月)

(3) オキシダント高濃度日における広域的な汚染分布の推移

次に、光化学オキシダント濃度が高くなった「高濃度日」において、過去、オキシダント最高値が比較的高かった時期の1977～1979年、その後、オキシダント最高値が一旦低下した時期の1980～1982年、その10年後の1990～1992年、さらにオキシダント最高値の上昇傾向が顕著になった10年後の2000～2002年の各3ヵ年4期間について、朝方の原因物質（窒素酸化物及び非メタン炭化水素）、及び昼の光化学オキシダント濃度の広域的な汚染分布の推移を整理した。ここで、「高濃度日」は、1都3県（東京都、埼玉県、神奈川県、千葉県）における一般環境大気測定局において、1局1時間でも光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上となった日として定義した。

上記の各3ヵ年4期間について、原因物質については、6～9時の濃度、すなわち、光化学オキシダントの日最高値と関係があるとして定められた「光化学オキシダントの生成防止のための大気中炭化水素濃度の指針」（昭和51年）において対象としている時間帯の濃度に着目した。また、光化学オキシダントについては、日最高値が出現しやすい13～16時の濃度に着目した。それぞれの物質について、関東1都6県における一般環境大気測定局ごとに、3ヵ年の「高濃度日」において着目した時間帯の3時間をまとめた平均値を算出した。図-7～9に、それらの3ヵ年の「高濃度日」の平均値を地図上に濃度ランク別に色分けして示した。

6～9時の窒素酸化物の濃度についてみると、1977～1979年、1980～1982年では、平均値0.06ppm以上の高濃度の測定局が都心や川崎・横浜などに集中していたが、1990～1992年においては、その領域が拡大した。しかし、2000～2002年には、自動車公害対策などの進展によって0.06ppm以上の測定局は少なくなった（図-7）。

6～9時の非メタン炭化水素の濃度についてみると、1977～1979年、1980～1982年では、平均値が0.5ppmC以上の高濃度の測定局が広域に分布していたが、1990～1992年では、東京都、神奈川県東部、埼玉県南部などに領域がやや狭まり、2000～2002年には、それまでと比べて全体的に濃度が低下した（図-8）。

13～16時の光化学オキシダントの濃度についてみると、1980～1982年では、平均値0.06ppm以上の高濃度の測定局が神奈川県、東京都多摩地域、埼玉県などの比較的狭い領域であったものが、1990～1992年では、群馬県、栃木県、茨城県、千葉県にも広域に分布するようになり、2000～2002年には、さらに0.08ppm以上の測定局の分布が広がった（図-9）。

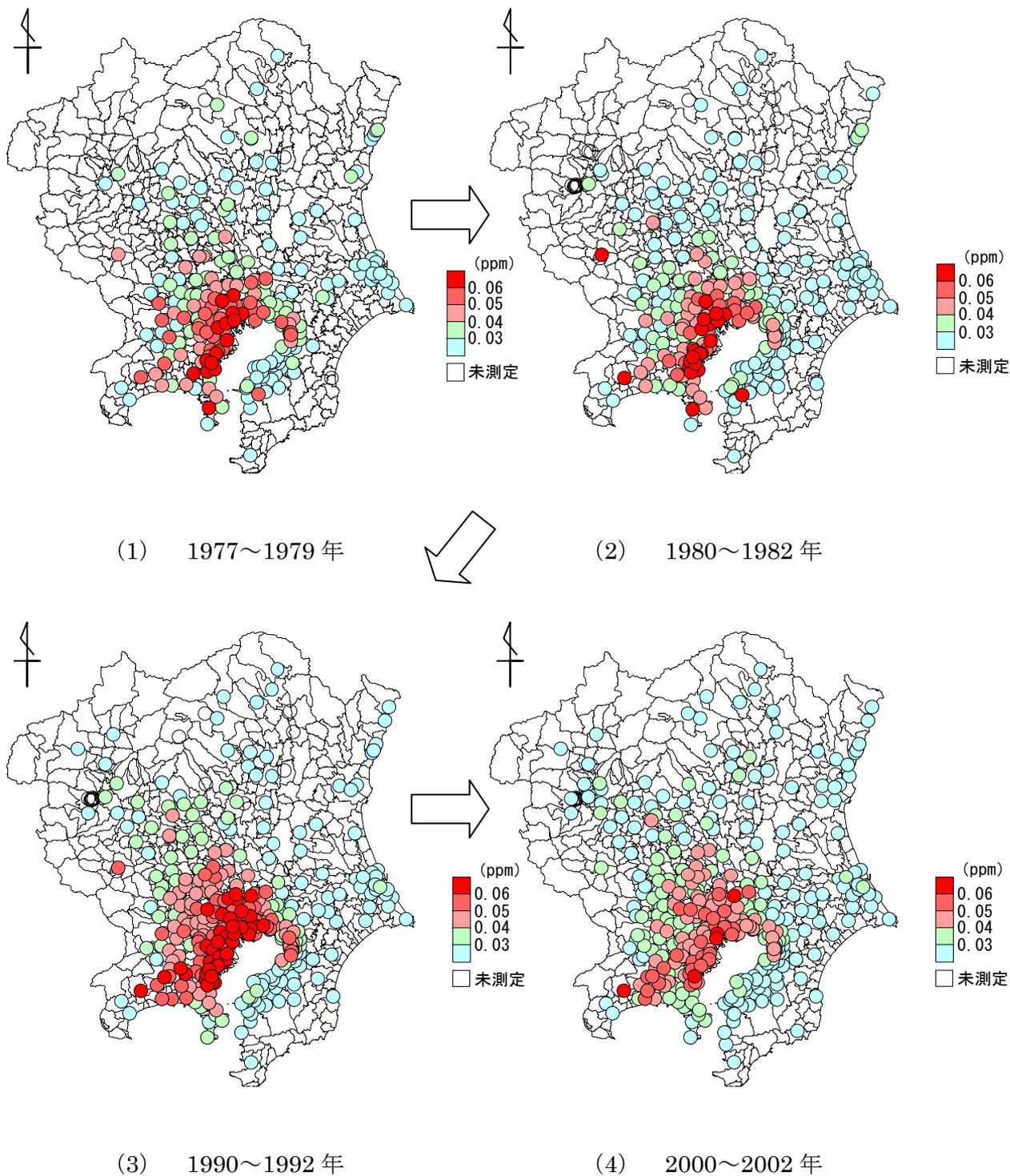


図-7 「高濃度日」における6~9時の窒素酸化物濃度の3ヵ年平均値

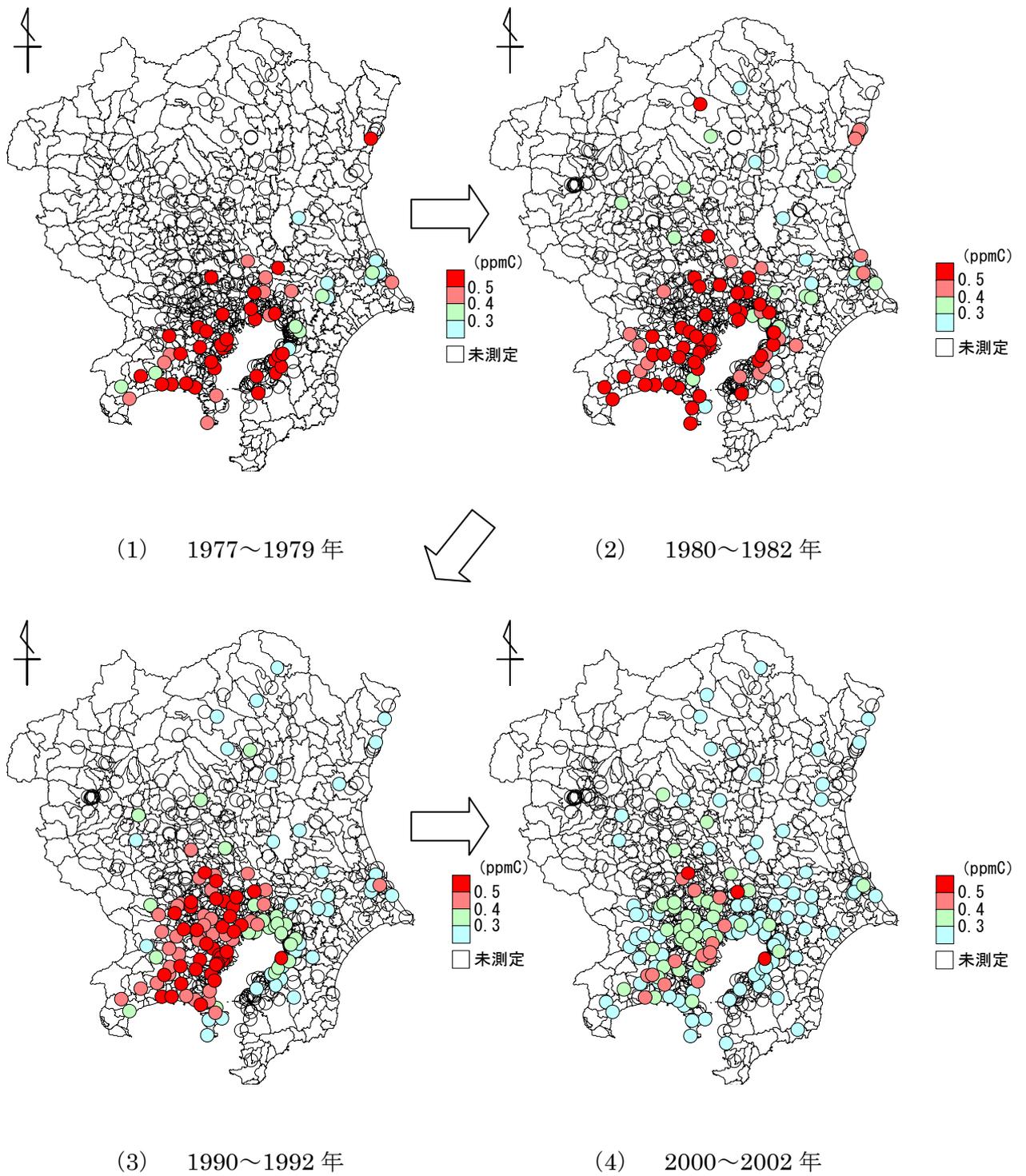


図-8 「高濃度日」における6~9時の非メタン炭化水素濃度の3ヵ年平均値

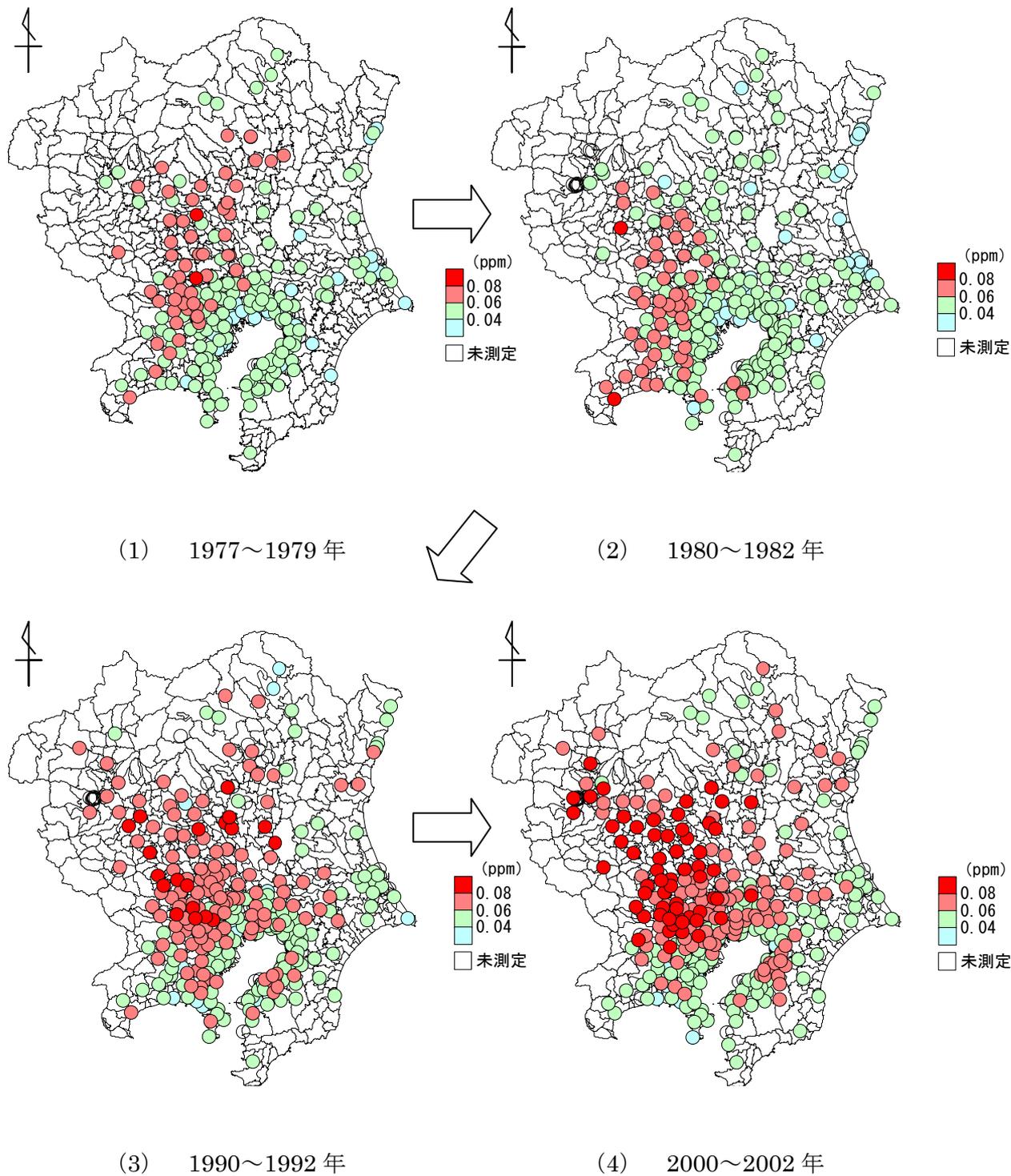


図-9 「高濃度日」における13~16時の光化学オキシダント濃度の3ヵ年平均値

(4) オキシダント高濃度日における時間変動の特徴

光化学オキシダント濃度が高濃度になる日は、朝方の原因物質濃度が比較的高く、昼に向かうに従って光化学オキシダントが生成され、13～16 時頃に光化学オキシダント濃度の日最高値に達する。そこで、光化学オキシダントの「高濃度日」におけるこれら汚染物質の濃度の時間変動について、過去と近年ではどのように異なるかをみた。

図-10 及び図-11 に、関東 1 都 6 県における一般環境大気測定局ごとに、各汚染物質について、1980 年及び 2000 年における「高濃度日」の各時間の 1 時間値をまとめた平均値を算出した結果を地図上に濃度ランク別に色分けして示した。

1980 年と 2000 年を比較すると、広域的に光化学オキシダント濃度が最高となる時間は 14 時頃と変わらないが、1980 年においては 0.06ppm 以上の濃度の測定局が 12 時頃から徐々に増え出し 16 時までにはほぼ消滅していたのに対し、2000 年においては 12 時頃から急激に増え出し 18 時頃もまだ残存していることがわかる。

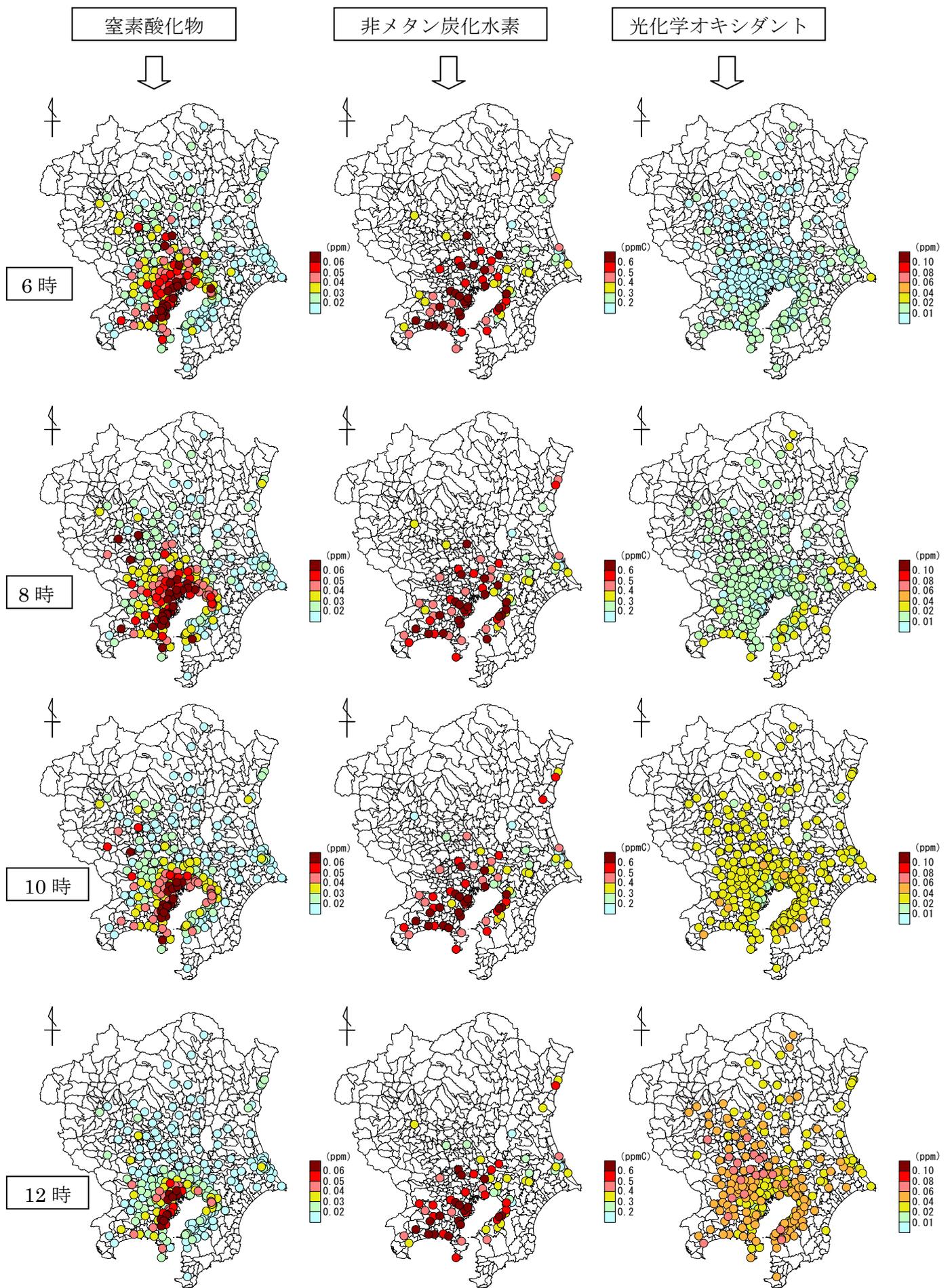


図-10 1980年の「高濃度日」の各時間における各汚染物質濃度の平均値

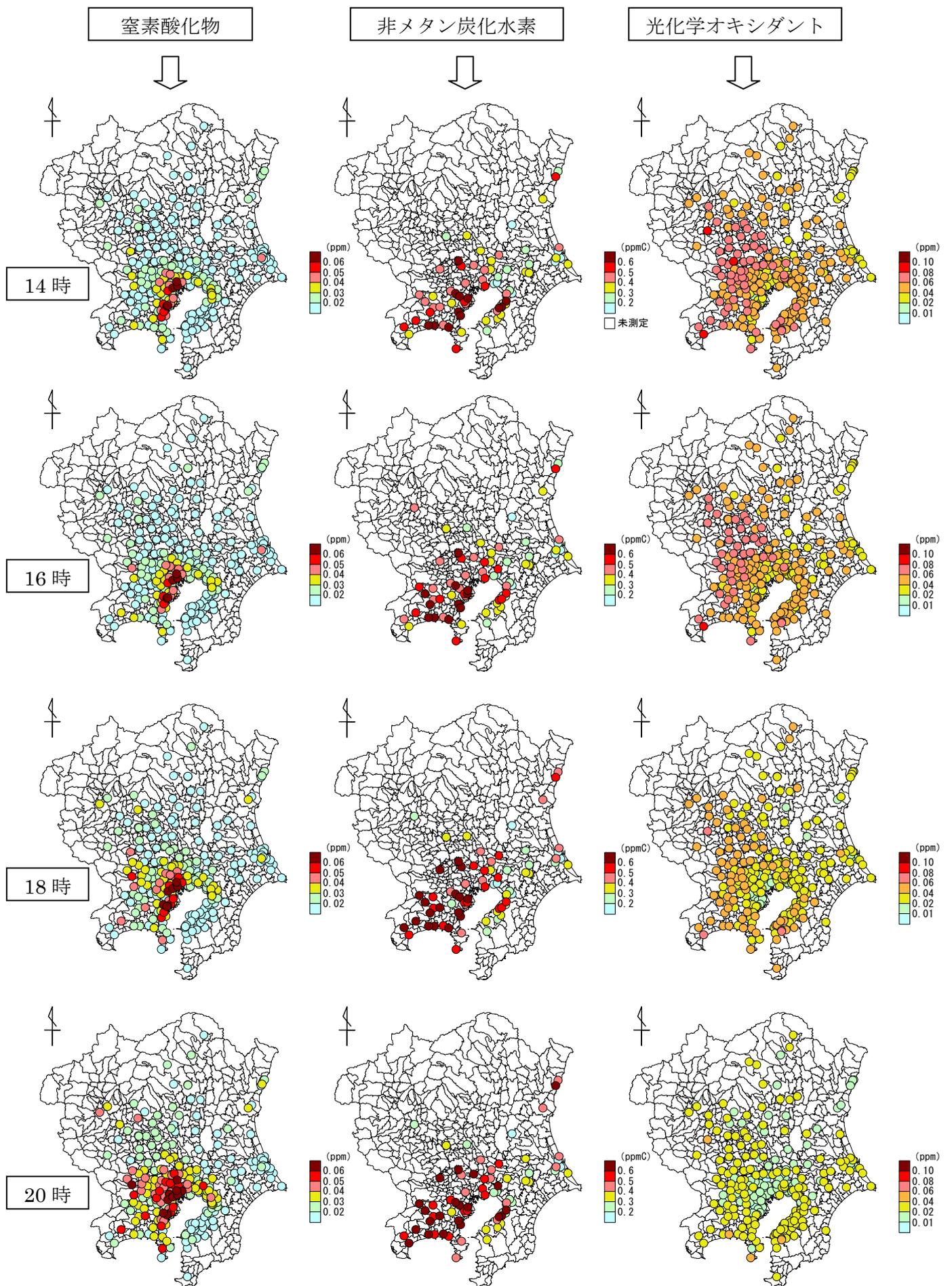


図-10 (続き) 1980年の「高濃度日」の各時間における各汚染物質濃度の平均値

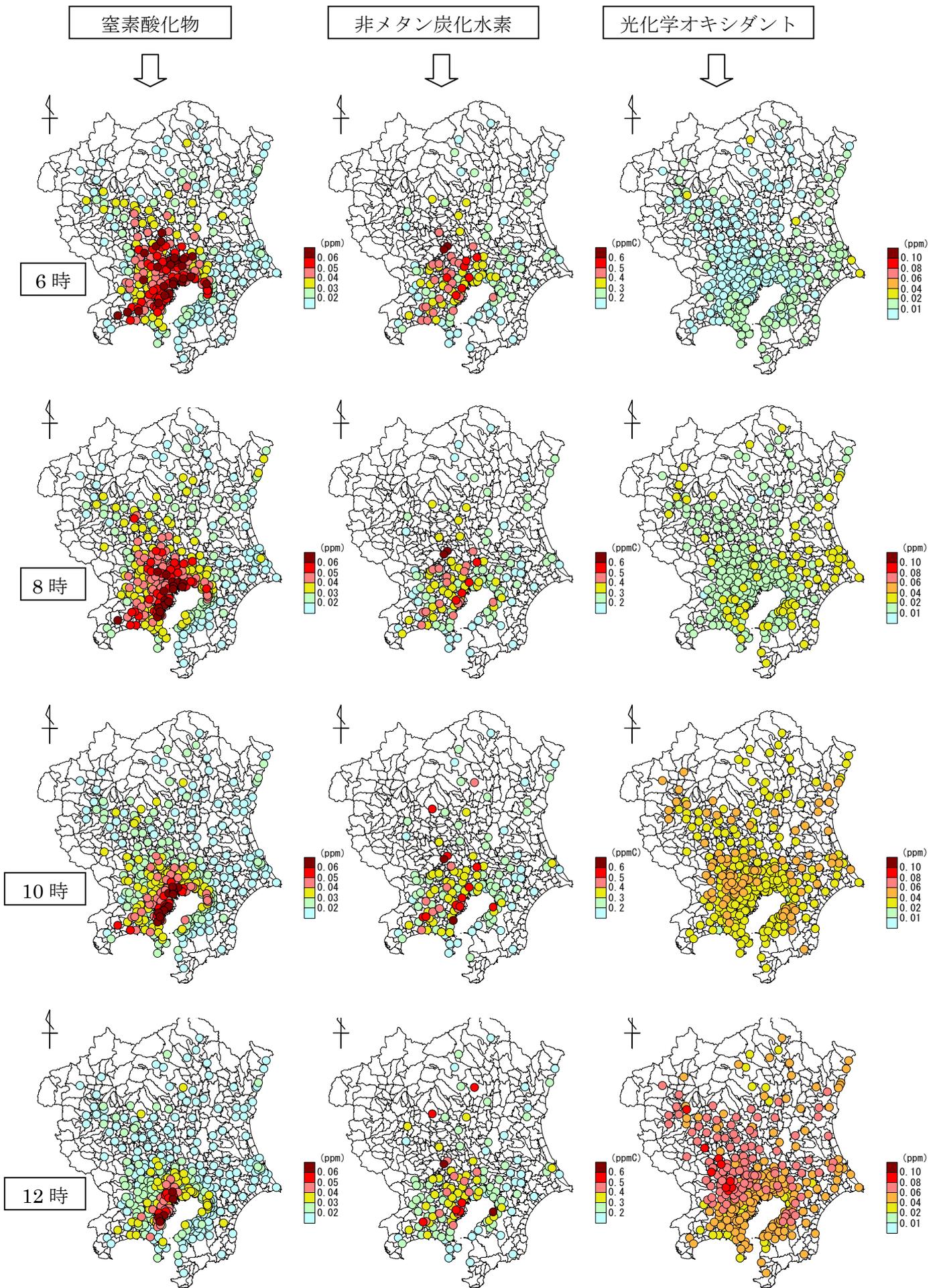


図-11 2000年の「高濃度日」の各時間における各汚染物質濃度の平均値

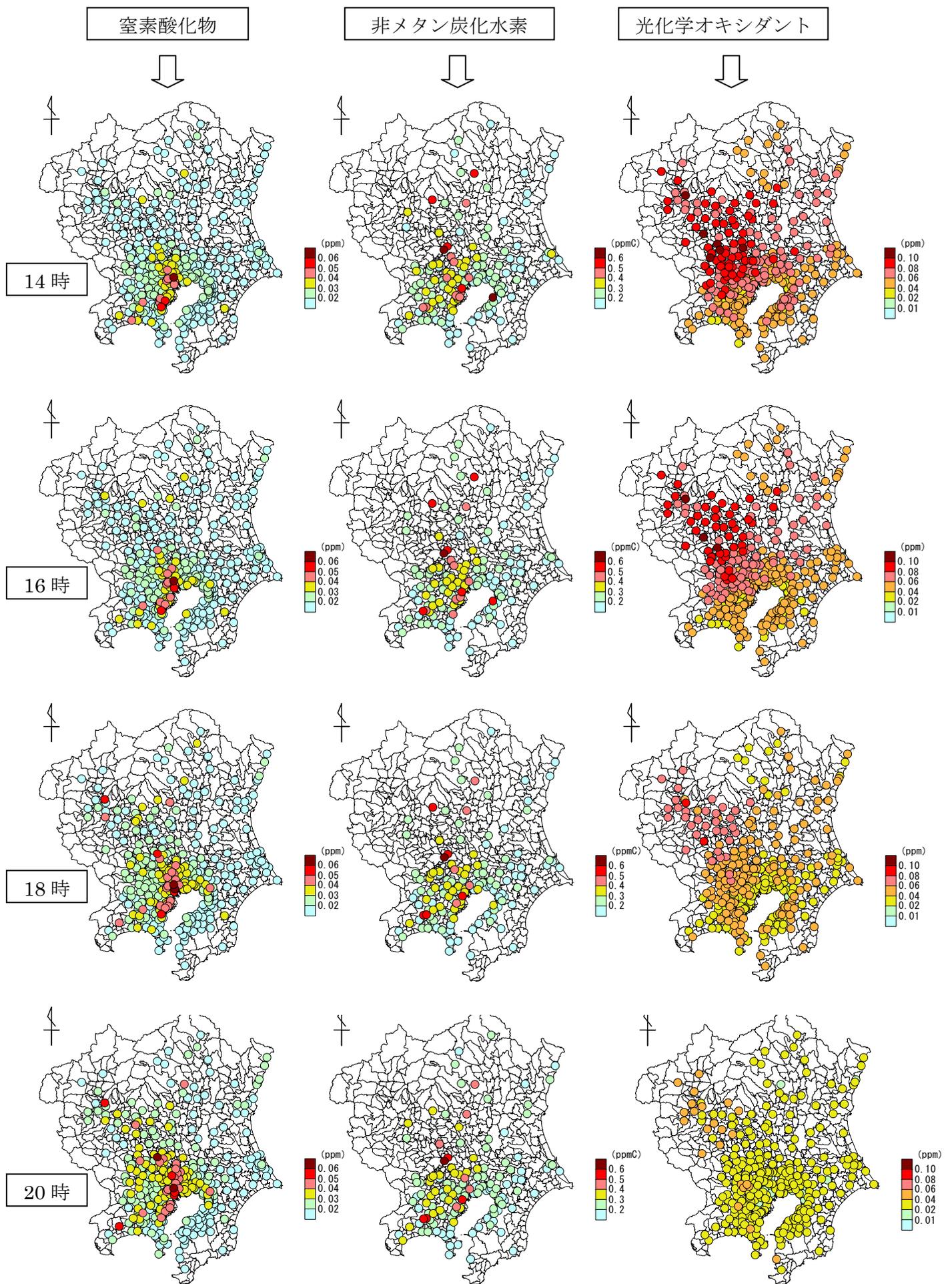


図-11 (続き) 2000年の「高濃度日」の各時間における各汚染物質濃度の平均値

2. 光化学オキシダント濃度の上昇要因の解析

光化学オキシダントは、大気中の窒素酸化物と非メタン炭化水素が太陽光を受け、光化学反応を起こして生成される。この生成は、時間経過とともに汚染物質が広域的に移動しながら生じる反応であり、日射量・気温・風速などの各種の気象要素の影響を受けるとともに、原因物質である窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度などとも複雑に関係する。

そのため、光化学オキシダント濃度の上昇要因の解析は、次の手順で行なった。

- ① 関東 1 都 6 県において光化学オキシダント濃度の上昇要因を統計的に解析するために適した地域を設定した。
- ② 設定した地域内において、各種の気象要素（日射量、気温、風速、高層との気温差）と光化学オキシダント濃度との相関を分析した。
- ③ 近年の光化学オキシダント濃度の上昇要因には、気象要素以外の要因も考えられる。そのため、相関の比較的高い気象要素（日射量、風速など）について一定の条件に限定した上で、統計的な手法を用いて、限定した気象要素以外の要因による濃度上昇への影響の可能性を解析した。
- ④ 気象要素以外の要因として大気中の原因物質の濃度に着目し、原因物質の濃度と高濃度オキシダントの出現割合との関係について解析した。
- ⑤ これらのほか、非メタン炭化水素の組成変化による光化学オキシダント濃度上昇への影響、東アジアなどからのオゾンの広域移流の影響について検討した。また、光化学オキシダント濃度の測定法に関し、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も検討した。

(1) 解析対象の地域の設定

本検討会では、1976 年からの大気常時監視データ（国立環境研究所所有の 1 時間値の電子データ）や気象データ（気象庁所有の電子データ）を用いて、実測値での関係を統計的に解析する方法を採用した。そのため、首都圏において、朝方の原因物質の濃度を扱う地域と光化学オキシダント濃度を扱う地域の設定についても、統計的に導出する手法により行なった。

ア. 朝方の原因物質の濃度を扱う地域（高濃度発生源エリア）の設定

朝方の原因物質の濃度を扱う地域の設定においては、前述の 1 (3) (p.15) で定義した光化学オキシダントの高濃度日において、原因物質が 6～9 時に比較的高濃度となる地域（高濃度発生源エリア）を統計的に導出した。

前述の 1 (3) で、窒素酸化物が全体的に最も高濃度であった 1990～1992 年の高濃度日の 6～9 時平均値の地図（図-7 (3)）を主として用いて地域設定を行なった。非メタン炭

化水素については、測定局が比較的少なく、「高濃度発生源エリア」としての境界を定めにくいことから、窒素酸化物の結果で地域設定をすることとした。

具体的には、1990～1992年の高濃度日の6～9時平均値において、0.06ppm以上の測定局が地理的に連続している地域を「高濃度発生源エリア」として設定した。この「高濃度発生源エリア」における継続局（1990年から2002年まで窒素酸化物と非メタン炭化水素を継続して測定している一般環境大気測定局として今回の解析に使用した測定局；局数55局）を図-12に示す。

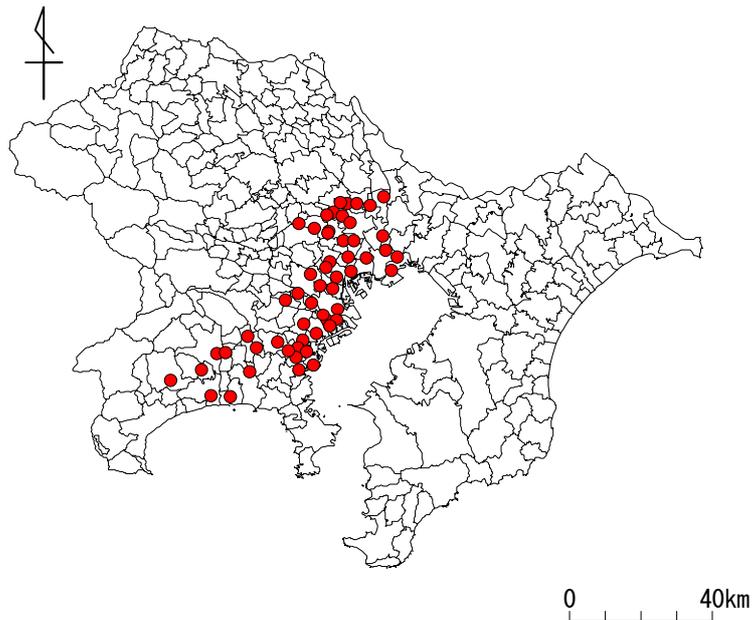


図-12 高濃度発生源エリアにおける継続局

イ. 光化学オキシダント濃度を扱う地域（1都6県解析エリア）の設定

広域的に光化学オキシダント濃度を扱う地域の設定においても、光化学オキシダントの高濃度日において、日最高値が出現しやすい時間帯（13～16時）における光化学オキシダント濃度が比較的高濃度となる地域（1都6県解析エリア）を統計的に導出した。

前述の1(3)(p.15)において、高濃度日の光化学オキシダント濃度の13～16時平均値が環境基準値の0.06ppm以上となった測定局は、1980～1982年では、神奈川県でも比較的多く存在し、その後広域化した変遷があることから、地域設定は1980～1982年、1990～1992年、2000～2002年の全体での最大値を使って行なうこととした（図-13）。

地域設定は、高濃度日の光化学オキシダント濃度の13～16時平均値において、0.06ppm以上となった測定局が連続している地域を「1都6県解析エリア」として設定した。この際、「高濃度発生源エリア」と0.08ppm以上の測定局は必ず含まれるようにし、また、千葉県西部及び神奈川県の0.06ppm以上の測定局は、地理的に不連続であっても「高濃度発生源エリア」と強い関連があると考えられるため、これらの地域も含めて設定した。この「1都6県解析エリア」における一般環境大気測定局（2002年度現在）を図-14(1)に、そのうち継続局（局数225局）を図-14(2)に示す。

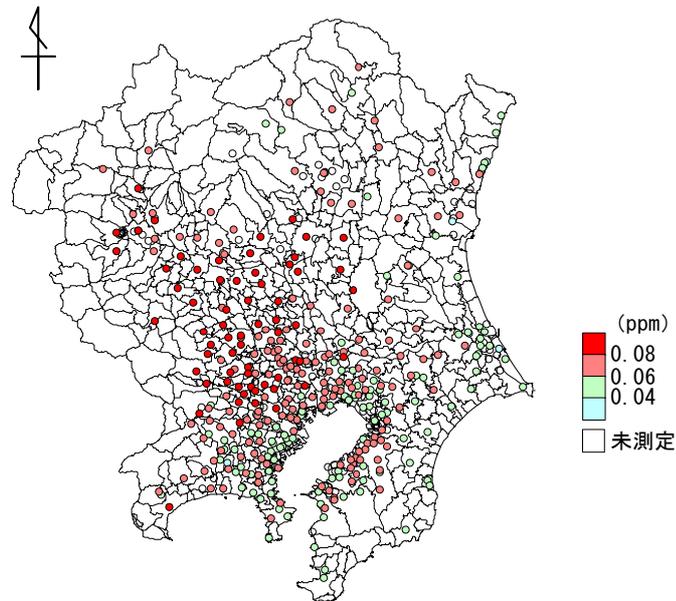


図-13 1980～1982年、1990～1992年、2000～2002年の各期間における「高濃度日」の13～16時の光化学オキシダント濃度の平均値の3期間における最大値
(図9(2)～(4)の最大値)

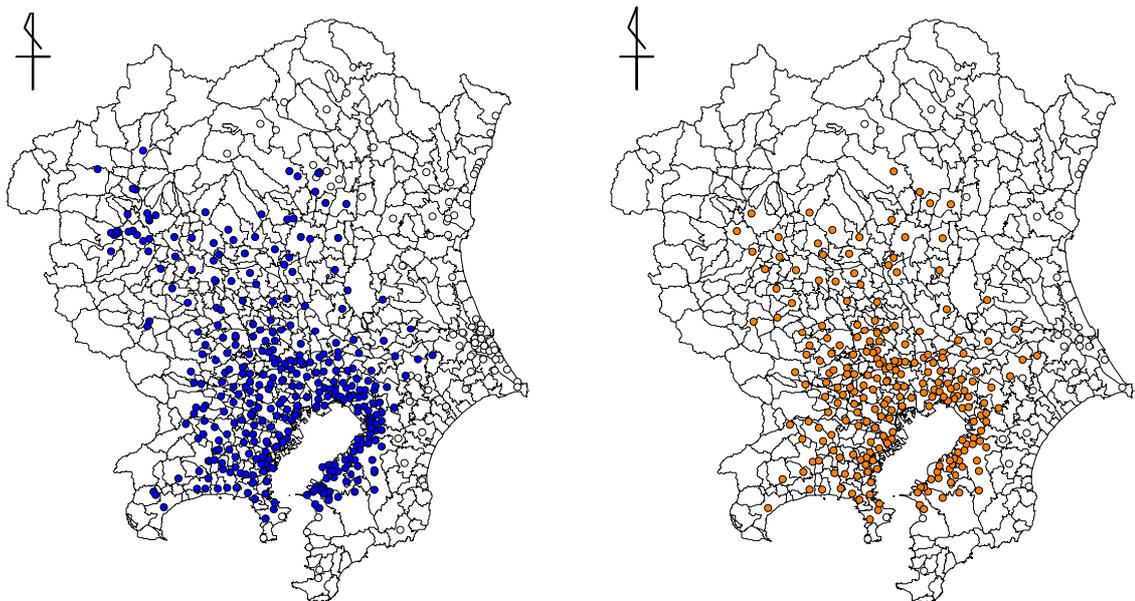


図-14 (1)「1都6県解析エリア」における (2)「1都6県解析エリア」における継続局一般環境大気測定局(2002年度現在)

なお、「1都6県解析エリア」の設定にあたっては、首都圏において汚染物質の流跡線解析を行なった文献^{1,2)}も参考にした。

(参考文献)

- 1) 若松伸司, 島野昌治, 関東地方における局地風系パターン—夏季における気圧頻度が弱い場合の解析—, 大気汚染学会誌, 16(6), 371～378, 1981
- 2) 産業技術総合研究所化学物質リスク管理センター, 2004: リスク評価用 次世代広域大気モデル運用手法開発 平成15年度作業報告書, pp.234 (平成16年3月)

(2) 光化学オキシダント濃度の代表値の選定

上記(1)イ. で設定した「1都6県解析エリア」で取り扱う光化学オキシダント濃度の日ごとの代表値として、以下の3種類の日統計量を選定した。

- (A) エリア内平均値 … 「1都6県解析エリア」内の全部の継続局の昼間(5~20時)の1時間値を日ごとにすべて平均した値
- (B) エリア内最高値 … 「1都6県解析エリア」内の継続局の中で、昼間において最も高い値となった、ある1局の最高の1時間値
- (C) エリア内局ごとの最高値の平均 … 「1都6県解析エリア」内の継続局それぞれの昼間の1時間値の最高値について、エリア内で平均した値

なお、光化学オキシダント濃度の経年変化の解析では、上記(A)~(C)のそれぞれについて4~9月の183日分の平均値を算出して、それらの推移などを調べた(後述の2(3)ウ(p.32)、(4)ア(p.33)、(4)イ(p.34))。

(3) 気象要素と光化学オキシダント濃度との関係の解析

ア. 各種気象要素と光化学オキシダント濃度との相関分析

光化学オキシダントは、日差しが強くて、気温が高く、風の弱い日に発生しやすいことが知られている。そこでまず、1976~2002年の4~9月の毎日における、東京管区气象台で観測された日射量・気温・風速などの各種気象要素と、「1都6県解析エリア」の光化学オキシダント濃度のエリア内平均値(A)、エリア内最高値(B)、及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)のそれぞれとの相関を分析した(表-1(1))。また、あわせて東京都内の継続局だけについても分析した(表-1(2))。

相関分析の結果、光化学オキシダント濃度のエリア内平均値(A)は、気象要素の中で日積算日射量と最も高い相関があり、次いで風速との間に相関がみられ、風速の中では昼午前平均風速との相関がやや高かった。

エリア内最高値(B)は、日積算日射量と最も高い相関があり、次いで気温との相関が高く、気温の中では日最高気温との相関が高かった。次に、昼午前平均風速との相関もやや高かった。

エリア内局ごとの最高値の平均(C)は、日積算日射量と最も高い相関があり、次いで風速との相関がみられ、風速の中では昼午前平均風速との相関が高かった。次に、日最高気温との弱い相関もみられた。

表-1 各種気象要素（東京管区气象台）と光化学オキシダント濃度との相関係数

(1) 1都6県解析エリア（継続局）における相関分析の結果

		A エリア内平均値		B エリア内最高値		C エリア内局ごとの最高値の平均	
		各年平均	全期間	各年平均	全期間	各年平均	全期間
日積算日射量		0.579	0.582	0.597	0.591	0.599	0.588
気温	日最高気温	-0.062	-0.043	0.492	0.491	0.219	0.235
	昼平均気温	-0.141	-0.118	0.431	0.431	0.141	0.160
	日平均気温	-0.188	-0.166	0.393	0.395	0.096	0.114
風速	昼平均風速	-0.102	-0.127	-0.263	-0.263	-0.271	-0.284
	昼午前平均風速	-0.185	-0.199	-0.391	-0.386	-0.373	-0.377
	日平均風速	-0.122	-0.147	-0.304	-0.299	-0.303	-0.314
高層との気温差		0.151	0.177	-0.039	-0.034	0.048	0.073

(注) 各年平均： 1976年から2002年までの各年における相関係数の算術平均
 全期間： 1976年から2002年までのすべてのデータを一括して算出した相関係数
 日： 0時から24時までの24時間
 昼： 5時から20時までの15時間
 昼午前： 5時から12時までの7時間
 高層との気温差： 館野高層气象台（つくば）の9時における地上から1000mの高度と地上との気温差（1984年から2002年まで）

(2) 東京都内（継続局）における相関分析の結果

		a 都内平均値		b 都内最高値		c 都内の局ごとの最高値の平均	
		各年平均	全期間	各年平均	全期間	各年平均	全期間
日積算日射量		0.614	0.589	0.547	0.538	0.563	0.545
気温	日最高気温	0.067	0.091	0.410	0.420	0.297	0.315
	昼平均気温	-0.010	0.019	0.344	0.355	0.224	0.246
	日平均気温	-0.056	-0.028	0.305	0.316	0.182	0.204
風速	昼平均風速	-0.132	-0.162	-0.321	-0.331	-0.299	-0.314
	昼午前平均風速	-0.208	-0.222	-0.406	-0.410	-0.380	-0.384
	日平均風速	-0.155	-0.185	-0.354	-0.362	-0.329	-0.343
高層との気温差		0.158	0.193	-0.010	0.000	0.051	0.082

イ. 各種気象要素の経年変化

日射量、気温、及び風速について、光化学オキシダントが生成しやすい4～9月を選び、東京管区気象台における経年変化を調べた。ここでも、昼は5～20時としている。

(ア) 日射量

1972年以降における日積算日射量の4～9月平均値は、ほぼ横ばいの傾向にあった。ただし、最近の約10年間に限ってみると、日積算日射量の値は、冷夏であった1993年などに低かったが、概ね15MJ/m²前後の年が多くなっている(図-15)。

日積算日射量のランク別出現頻度をみると、年による変動が大きいですが、最近では1999年以降2003年を除いて、25MJ/m²以上の割合が高くなっている(図-16)。

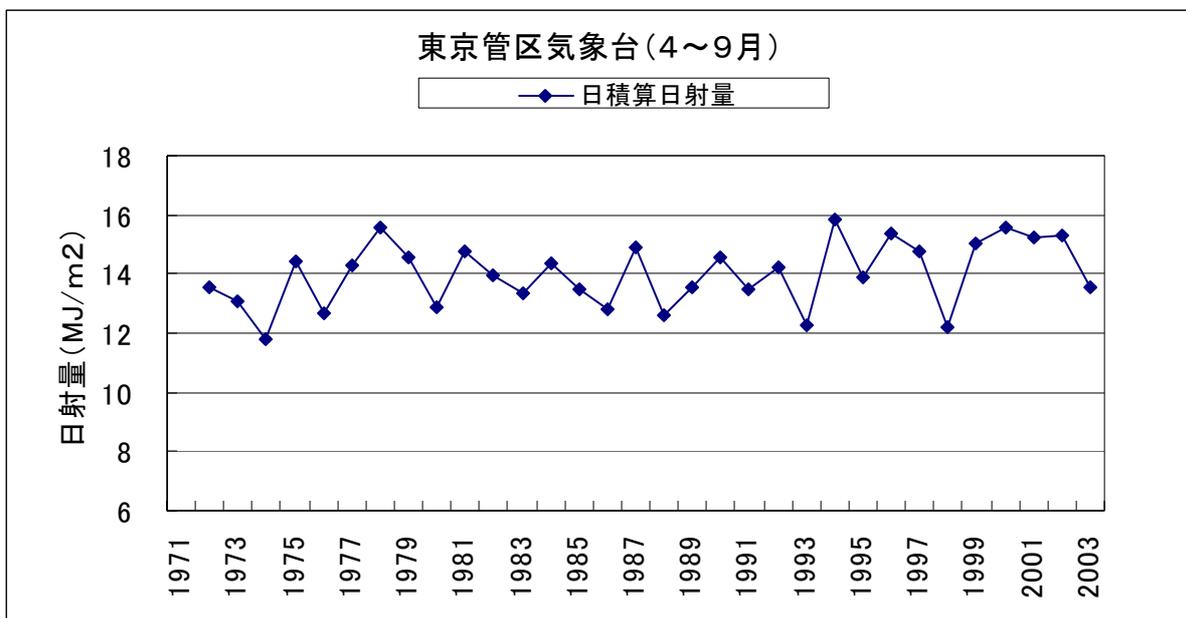


図-15 東京管区気象台における日積算日射量の経年変化

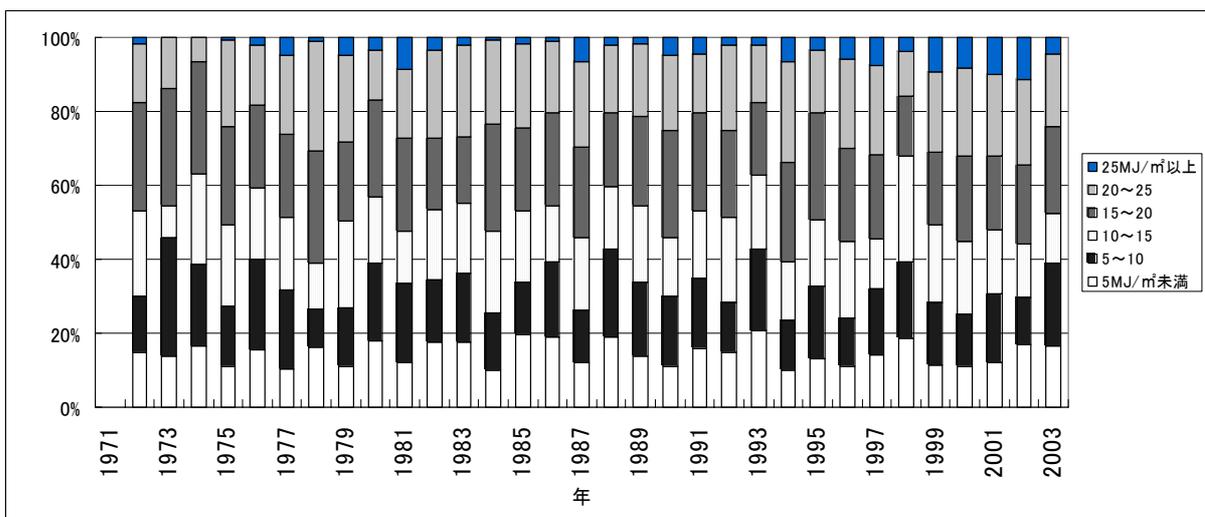


図-16 東京管区気象台(4～9月)の日積算日射量のランク別出現頻度の経年変化

(イ) 気温

1971年以降、日最高気温、昼平均気温、及び日平均気温の4～9月平均値は、長期的にはわずかに上昇の傾向がみられた(図-17)。

日最高気温についてランク別に出現頻度をみると、最近では、1999年以降2003年を除き、30℃以上の出現頻度が30%程度と、比較的高い温度の出現頻度が上昇している傾向がみられた(図-18)。

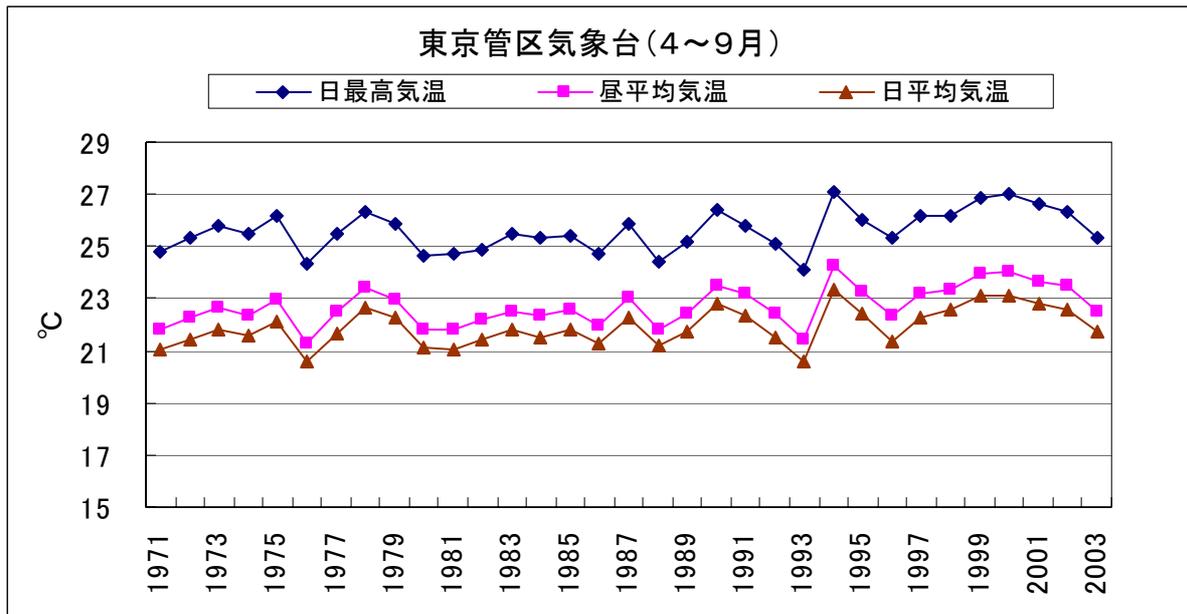


図-17 東京管区気象台における気温の経年変化

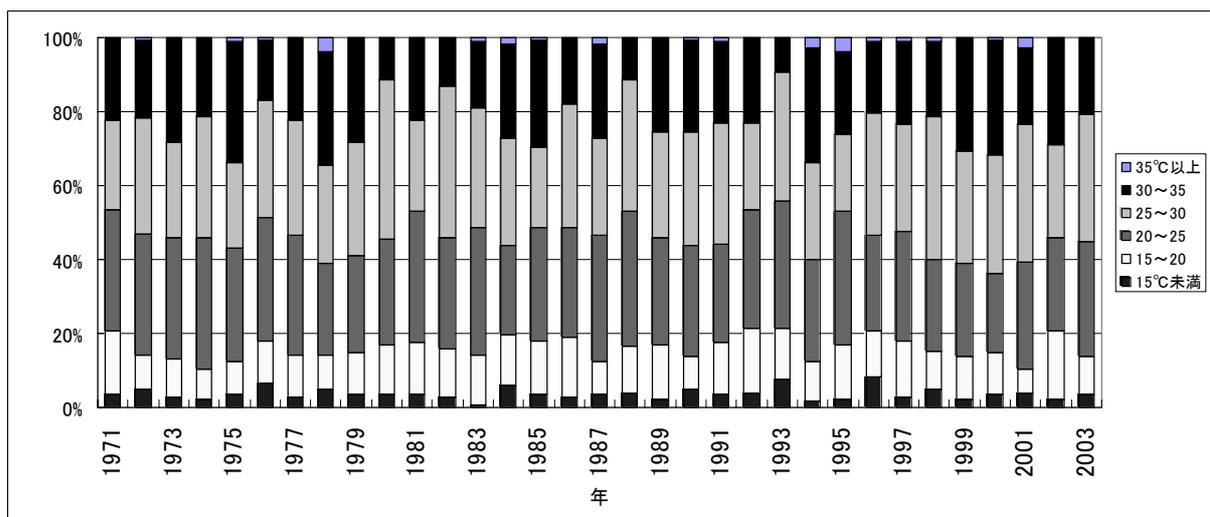


図-18 東京管区気象台(4～9月)の日最高気温のランク別出現頻度の経年変化

(ウ) 風速

昼平均風速、昼午前平均風速、及び日平均風速の4～9月平均値は、変動しながらも、長期的にはほぼ横ばいの傾向にあった(図-19)。なお、昼午前は、5～12時としている。

風速の中でオキシダント濃度との相関が高かった昼午前平均風速について、風速ランク別にその出現頻度をみると、2.5m/s未満の弱い風の出現頻度が、2000年以降50%程度とやや増加している(図-20)。

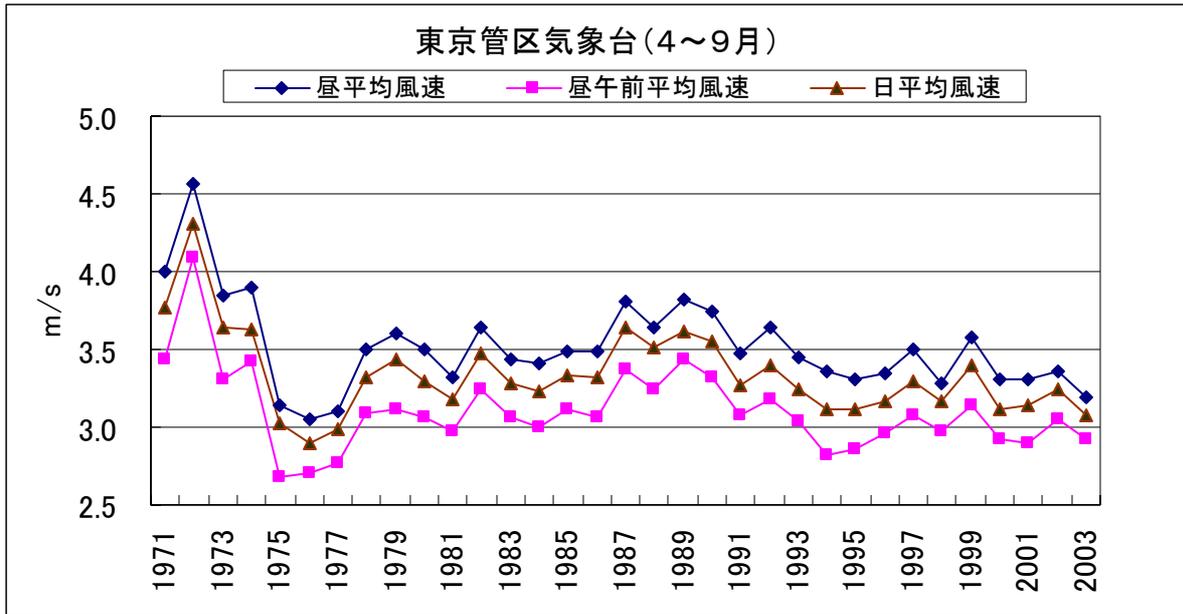


図-19 東京管区気象台における風速の推移

※ 測風器が、1975年より、それまでの3杯型から風車型に変更されている。
測風器の変更により、一般的に月平均風速が9～14%減少するといわれている
(参考文献：日本気象総覧)。

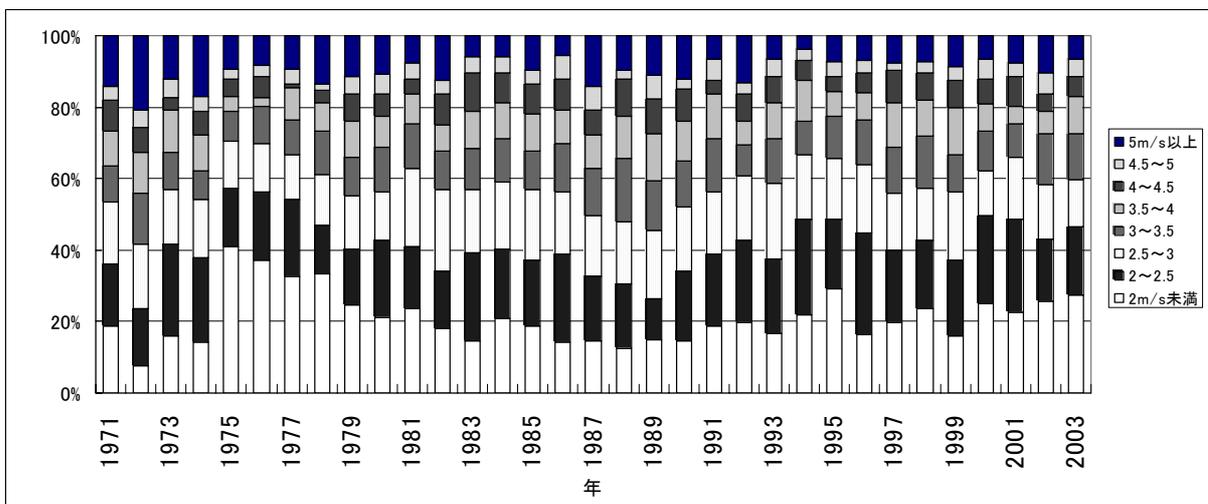


図-20 東京管区気象台(4～9月)の昼午前平均風速のランク別出現頻度の経年変化

ウ. 光化学オキシダント濃度の経年変化と気象要素との関連

「1都6県解析エリア」における光化学オキシダント濃度のエリア内平均値(A)、エリア内最高値(B)、及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)のそれぞれについて、国立環境研究所が1時間値の電子データを保有している1976年から2002年までの4~9月平均値の経年変化を調べた(図-21)。

エリア内平均値(A)の4~9月平均値で比較的高い値を示した年は、1977年、1987年、及び近年の2000~2002年などであり、これらの年については、日積算日射量のランク別出現割合において、20MJ/m²以上の割合が30%前後と、日積算日射量の大きい日の割合が比較的多い年であった(図-16)。

エリア内最高値(B)の4~9月平均値で比較的高い値を示した年は、1978年、1979年、1987年、1994年、2000年などであり、これらの年については、日積算日射量の大きい日の割合が多だけでなく、日最高気温30℃以上の割合が30%前後と、日最高気温についても高温の日の割合が比較的多い年であった(図-18)。とくに、このうち1978年、2000年などは、昼午前平均風速の2m/s未満の割合が30%前後と、東京において午前中に比較的風の弱い年でもあった(図-20)。

エリア内局ごとの最高値の平均(C)の4~9月平均値は、エリア内平均値(A)の4~9月平均値の7割増し程度の値で同様の経年変化を示した(図-21)。

以上のように、光化学オキシダント濃度の4~9月平均値が比較的高い年と気象要素との関係は、ア.(p.28)で相関分析を行なった結果にほぼ対応している。

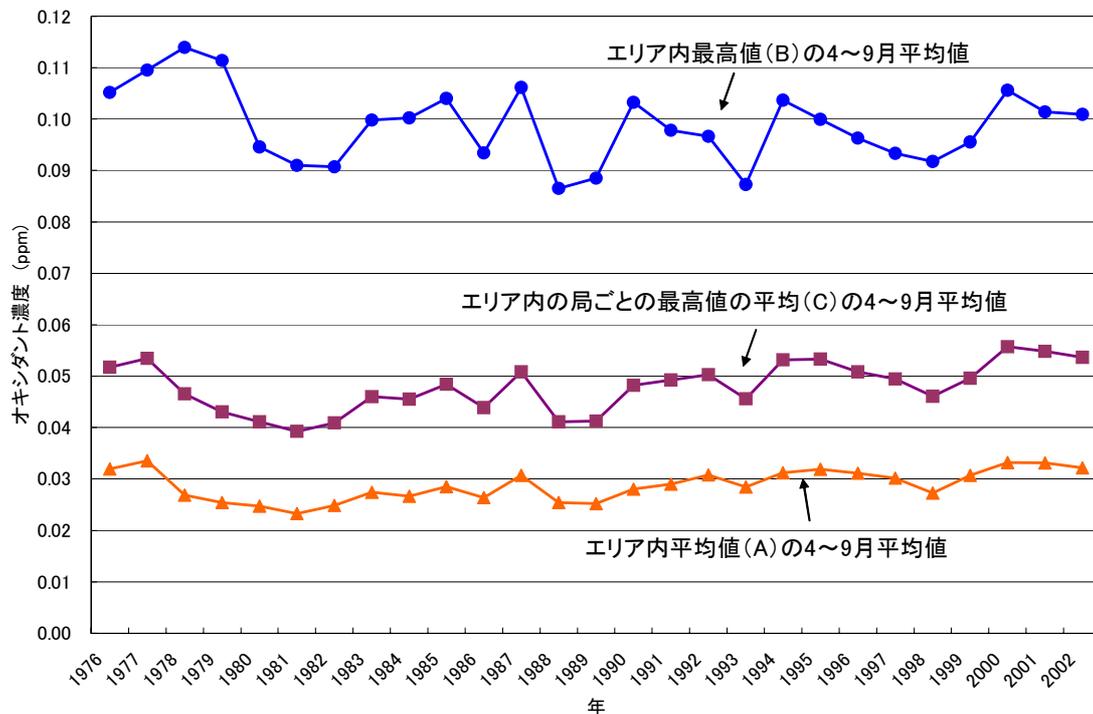


図-21 「1都6県解析エリア」における光化学オキシダント濃度の経年変化

また、各年度内（4～3月）で、「1都6県解析エリア」において光化学オキシダント濃度の1時間値が光化学スモッグ注意報の発令レベルである0.12ppm以上となった日数について、一般環境大気測定局1局当りの日数の経年変化を調べた（図-22）。加えて、光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上となった一般環境大気測定局1局1日当りの時間数の4～9月平均値の経年変化も合わせて示す。

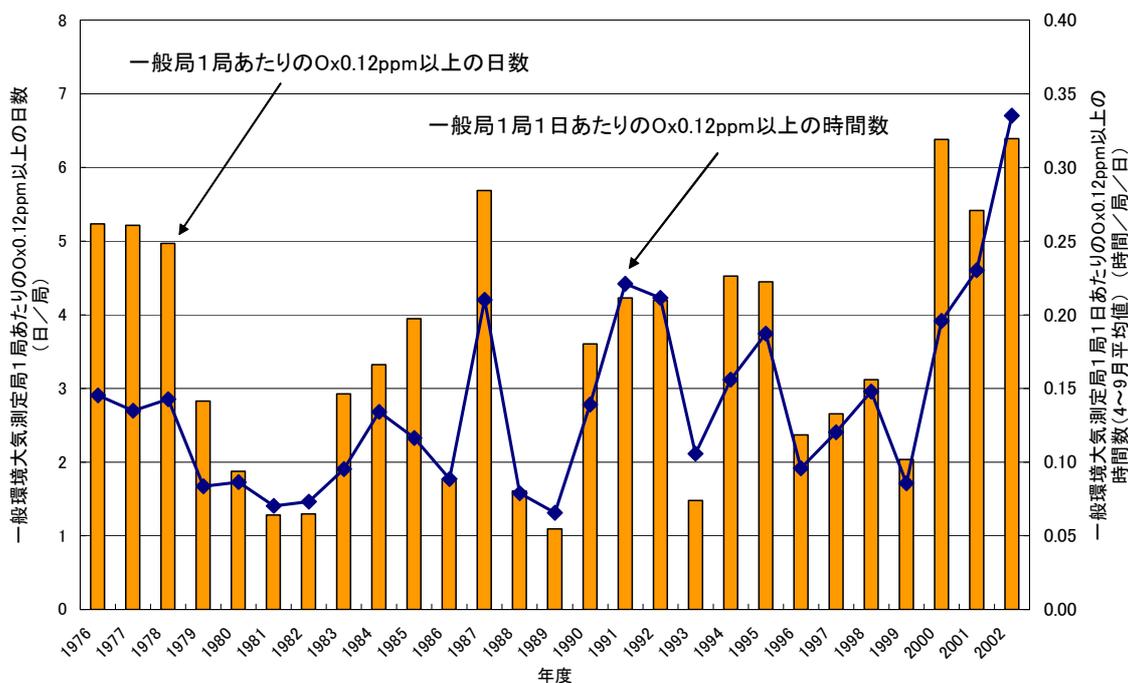


図-22 「1都6県解析エリア」における一般環境大気測定局1局当りのオキシダント濃度0.12ppm以上の日数及び1日当りの時間数の経年変化

(4) オキシダント濃度・高濃度オキシダント出現頻度の上昇傾向の統計解析

ア. オキシダント濃度の上昇傾向の統計解析

図-21と図-22の「1都6県解析エリア」における光化学オキシダント濃度に関する経年変化は、概して、1980年までに減少傾向がみられ、その後上昇傾向があると考えられるので、1981～2002年の経年変化の長期的な上昇傾向が統計的に有意と言えるかどうかを調べた。すなわち、前述の(A)～(C)について、それぞれ4～9月平均値の経年変化を1981～2002年の22年間で直線回帰し（図-23～25のいずれも(1)）、そのときの傾き（回帰係数）の有意性について、t分布による検定を行なった。

その結果、表-2に示すように、エリア内最高値(B)の4～9月平均値については、5%有意水準でも上昇傾向が有意であるとはいえなかったが、エリア内平均値(A)及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)の4～9月平均値は、1%有意水準でも上昇傾向が有意であった。

イ. 気象要素の変動を取り除いた場合でのオキシダント濃度の上昇傾向の統計解析

前述の(3)ウ.(p.32)で示したように、光化学オキシダント濃度の年ごとの値については、気象要素の変動による影響がみられる。そこで、特定の気象要素以外の要因による光化学オキシダント濃度の上昇傾向への影響の可能性を明らかにするため、気象要素の一定条件に対応する(A)～(C)の経年変化を解析し、気象要素の変動を取り除いた光化学オキシダント濃度の長期的な上昇傾向が統計的に有意と言えるかどうかを調べた。

(A)では、比較的相関が高かった日積算日射量及び昼午前平均風速の二つの気象要素を、(B)、(C)ではこれらに日最高気温を加えた三つの気象要素を独立変数として、年ごとに重回帰式を求め、これらの式に一定条件の気象要素の値を代入して得られた光化学オキシダント濃度の予測値について、1981～2002年の22年間で直線回帰し、そのときの傾き(回帰係数)の有意性について、t分布による検定を行なった(表-3)。

図-23～25のそれぞれ(2)は、1981～2002年(4～9月)の22年間における各気象要素の平均値(日積算日射量： $14\text{MJ}/\text{m}^2$ 、昼午前平均風速： $3.1\text{m}/\text{s}$ 、日最高気温： 26°C)を年ごとの重回帰式に代入して得られた予測値の経年変化を示したものである。図-23～25のそれぞれ(3)は、比較的高濃度のオキシダントが出現しやすい代表的な条件として選定した気象条件(日積算日射量： $22\text{MJ}/\text{m}^2$ 、昼午前平均風速： $2.0\text{m}/\text{s}$ 、日最高気温： 30°C)を年ごとの重回帰式に代入して得られた予測値の経年変化を示したものである。

表-3に示すように、t分布による検定の結果、エリア内最高値(B)の予測値については、図-24の(2)・(3)の気象条件のいずれも、5%有意水準の場合でも上昇傾向が有意であるとはいえなかったが、エリア内平均値(A)及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)の4～9月平均値は、1%有意水準でも上昇傾向が有意であった。

以上のように、比較的相関の高い気象要素で一定条件に限定させ、それらの気象要素の経年変化の影響を除外した場合においても、(A)及び(C)については光化学オキシダント濃度の経年変化に有意な上昇傾向がみられた。このことから、限定した気象要素以外にも濃度上昇の要因が存在すると考えられる。

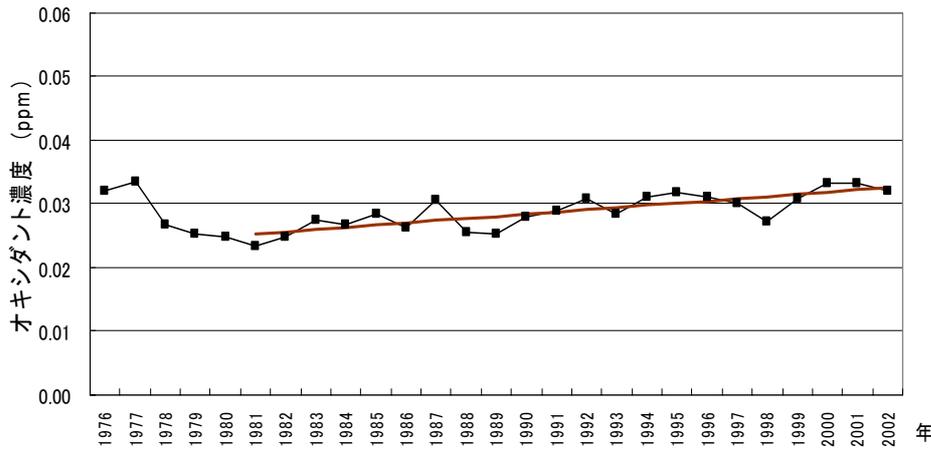


図-23 (1) エリア内平均値 (A) の4~9月平均値の経年変化 (気象条件の限定なし)

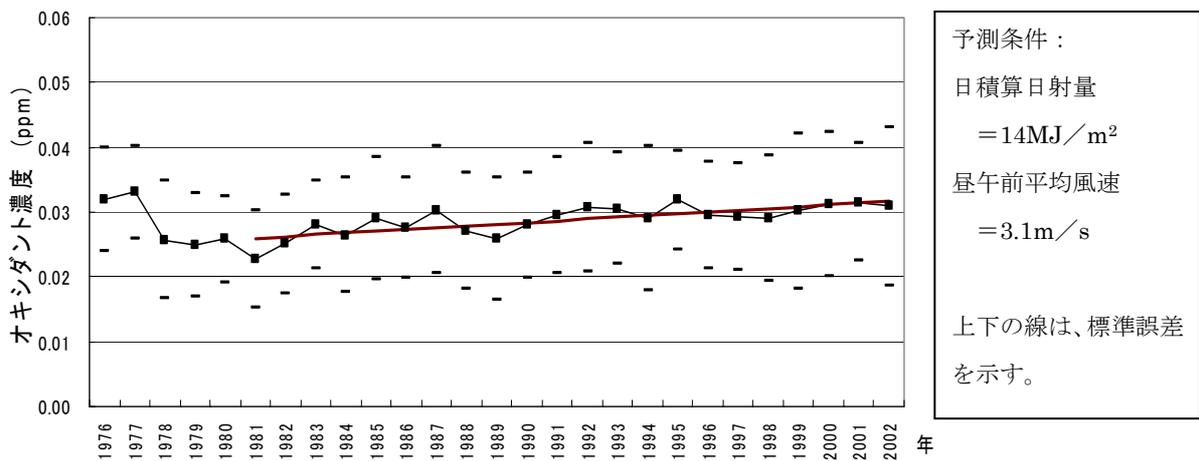


図-23 (2) 重回帰式によるエリア内平均値 (A) の予測値の経年変化

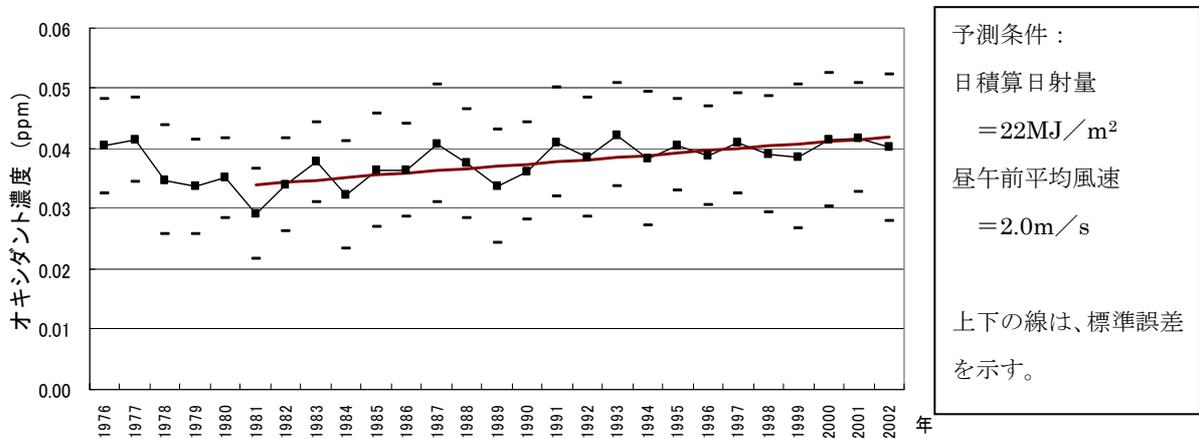


図-23 (3) 重回帰式によるエリア内平均値 (A) の予測値の経年変化

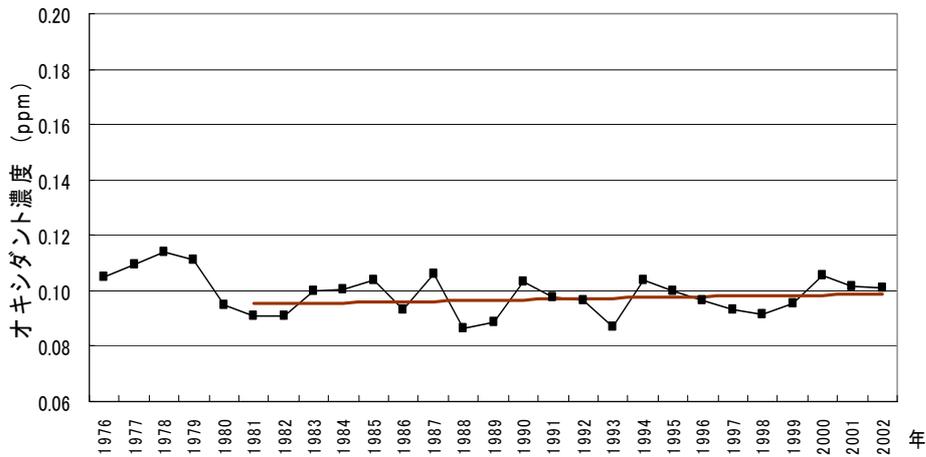
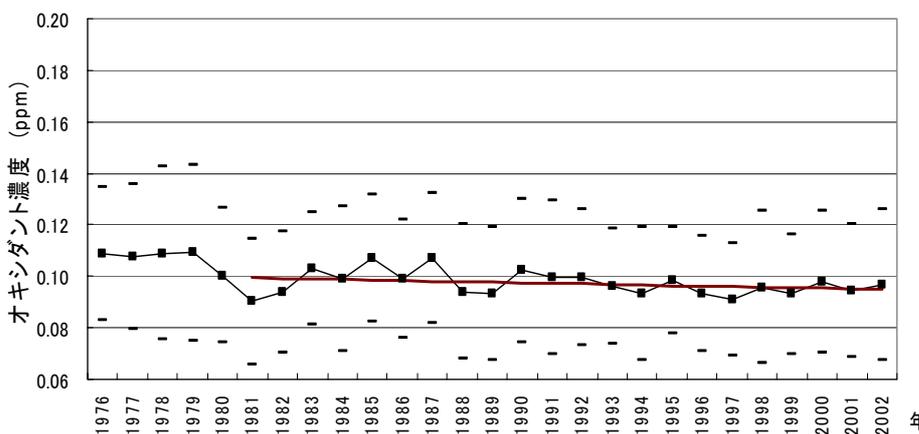
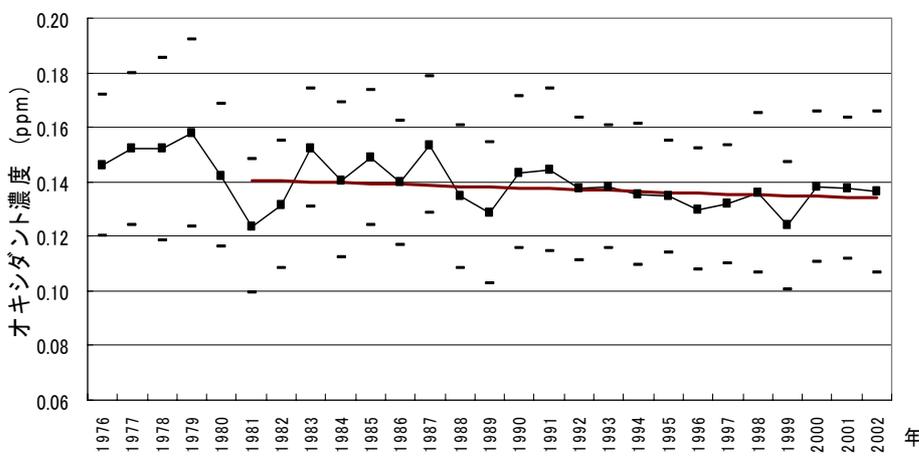


図-24 (1) エリア内最高値 (B) の4~9月平均値の経年変化 (気象条件の限定なし)



予測条件：
 日積算日射量
 = 14MJ/m²
 日最高気温
 = 26℃
 昼午前平均風速
 = 3.1m/s
 上下の線は、標準誤差を示す。

図-24 (2) 重回帰式によるエリア内最高値 (B) の予測値の経年変化



予測条件：
 日積算日射量
 = 22MJ/m²
 日最高気温
 = 30℃
 昼午前平均風速
 = 2.0m/s
 上下の線は、標準誤差を示す。

図-24 (3) 重回帰式によるエリア内最高値 (B) の予測値の経年変化

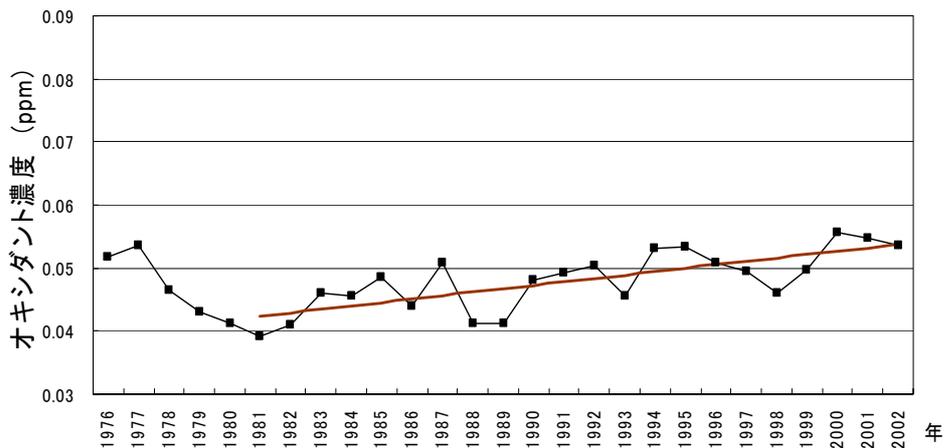
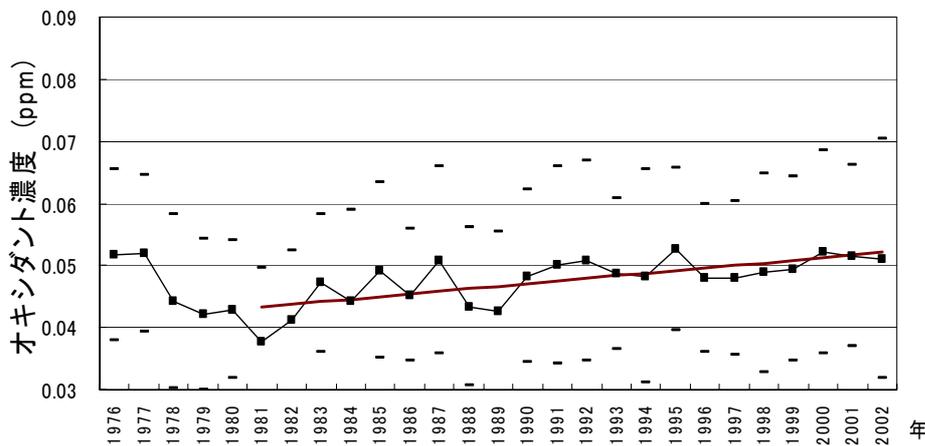
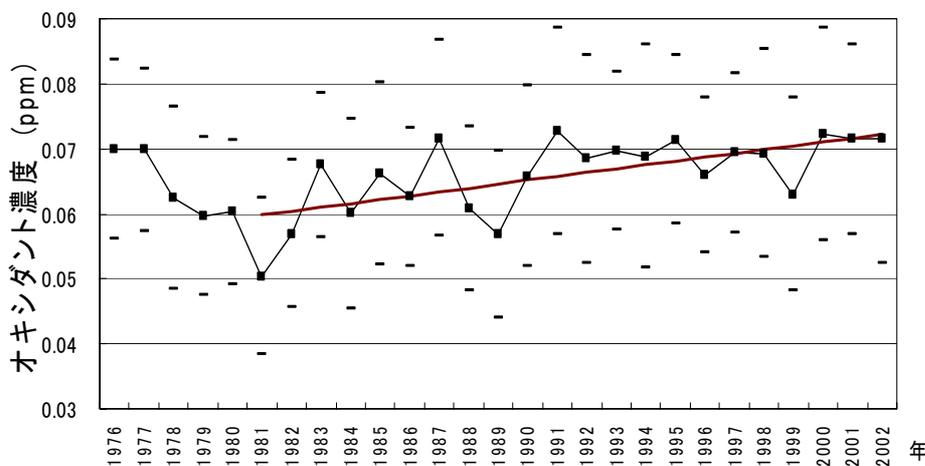


図-25 (1) エリア内局ごとの最高値の平均 (C) の4~9月平均値の経年変化
(気象条件の限定なし)



予測条件：
 日積算日射量
 $=14\text{MJ}/\text{m}^2$
 日最高気温
 $=26^\circ\text{C}$
 昼午前平均風速
 $=3.1\text{m}/\text{s}$
 上下の線は、標準誤差
 を示す。

図-25 (2) 重回帰式によるエリア内局ごとの最高値の平均 (C) の予測値の経年変化



予測条件：
 日積算日射量
 $=22\text{MJ}/\text{m}^2$
 日最高気温
 $=30^\circ\text{C}$
 昼午前平均風速
 $=2.0\text{m}/\text{s}$
 上下の線は、標準誤差
 を示す。

図-25 (3) 重回帰式によるエリア内局ごとの最高値の平均 (C) の予測値の経年変化

表-2 光化学オキシダント濃度の経年変化における回帰直線の傾きの有意性の検定
(気象条件の限定がない場合の1981~2002年における直線回帰)

	エリア内平均値 (A)の4~9月平均値	エリア内最高値 (B)の4~9月平均値	エリア内局ごとの 最高値の平均(C) の4~9月平均値
対応するグラフ	図-23(1)	図-24(1)	図-25(1)
相関係数	0.789	0.190	0.739
傾き(ppb/年)	0.35	0.18	0.54
傾きの標準誤差(ppb/年)	±0.06	±0.20	±0.11
傾きのt値 ※	5.8	0.86	4.9
傾きの95%信頼区間の下限 (ppb/年)	0.22	-0.25	0.31
傾きの95%信頼区間の上限 (ppb/年)	0.47	0.60	0.77

表-3 重回帰式による予測値の経年変化における回帰直線の傾きの有意性の検定
(表中の予測条件に限定した場合の1981~2002年における直線回帰)

		エリア内平均値(A) の予測値		エリア内最高値(B) の予測値		エリア内局ごとの最高 値の平均(C)の予測値	
対応するグラフ		図-23(2)	図-23(3)	図-24(2)	図-24(3)	図-25(2)	図-25(3)
予 測 条 件	日積算日射量 (MJ/m ²)	14	22	14	22	14	22
	日最高気温(°C)	—	—	26	30	26	30
	昼午前平均風速 (m/s)	3.1	2.0	3.1	2.0	3.1	2.0
相関係数		0.760	0.720	0.296	0.262	0.703	0.643
傾き(ppb/年)		0.27	0.37	-0.21	-0.32	0.42	0.59
傾きの標準誤差 (ppb/年)		±0.05	±0.08	±0.15	±0.26	±0.09	±0.16
傾きのt値 ※		5.2	4.6	-1.4	-1.2	4.4	3.8
傾きの95%信頼区 間の下限(ppb/年)		0.16	0.20	-0.53	-0.87	0.22	0.26
傾きの95%信頼区 間の上限(ppb/年)		0.38	0.54	0.11	0.23	0.62	0.92

※ 標本数(年数)22における残差の自由度は20であり、自由度20のときのt分布の有意水準5%及び1%の確率に対応するt値は、それぞれ2.086及び2.845である。上の二つの表における傾きのt値の絶対値がこれらの値よりも大きい場合には、傾きの上昇傾向はそれぞれの有意水準で有意であるといえる。

有意な上昇傾向が確認されたエリア内平均値(A)及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)について、気象条件の限定がない場合(表-2)と気象要素による変動を取り除いた場合(表-3)とで回帰直線の傾きを比較すると、大きな差がみられなかった。このことから、日積算日射量、日最高気温、及び昼午前平均風速の長期的な経年変化は、(A)及び(C)の値の1981年以降の上昇傾向に影響を及ぼす主要因とはなっていないと考えられる。

なお、年ごとの気象要素の特徴とオキシダント濃度の高低との間には、(3)ウ. (p.32)で述べたような関係が認められる。

表-4には、日積算日射量、日最高気温、及び昼午前平均風速のそれぞれ4~9月平均値について、1981~2002年の22年間で直線回帰し、そのときの傾き(回帰係数)の有意性について、t分布による検定を行なった結果を示す。これにより、日最高気温については、22年間において1%有意水準でも上昇傾向が有意であるといえるが、日積算日射量と昼午前平均風速については、5%有意水準でも上昇または下降の傾向が有意であるとはいえなかった。

従って、このように、日積算日射量と昼午前平均風速については、年ごとの変動があっても22年間ではほぼ一定で推移していることが、(A)及び(C)の光化学オキシダント濃度の1981年以降の上昇傾向に対して、これらの気象要素の長期的な経年変化がほとんど影響を及ぼしていない理由であると考えられる。また、日最高気温については有意な上昇傾向が認められるが、日最高気温が(C)の光化学オキシダント濃度の上昇傾向にほとんど影響を及ぼさなかったのは、日最高気温と(C)との相関が低いことによると考えられる。

表-4 各気象要素の経年変化(1981~2002年)における回帰直線の傾きの有意性の検定

	日積算日射量の4~9月 平均値	日最高気温の4~9月 平均値	昼午前平均風速の 4~9月平均値
対応するグラフ	図-15	図-17	図-19
相関係数	0.366	0.386	0.646
傾き	0.061 MJ/m ² /年	0.084 °C/年	-0.0097 m/s/年
傾きの標準誤差	±0.035 MJ/m ² /年	±0.022 °C/年	±0.0052 m/s/年
傾きのt値	1.8	3.8	-1.9
傾きの95%信頼区 間の下限	-0.011 MJ/m ² /年	0.038 °C/年	-0.0204 m/s/年
傾きの95%信頼区 間の上限	0.133 MJ/m ² /年	0.130 °C/年	0.0011 m/s/年

以上のことから、光化学オキシダント濃度のエリア内平均値(A)及びエリア内局ごとの最高値の平均(C)については、「限定した気象要素以外の要因」が長期的な上昇傾向に影響を及ぼしている可能性が示唆された。

ウ. 高濃度オキシダント出現頻度の上昇傾向の統計解析

「1都6県解析エリア」において、光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上となった一般環境大気測定局1局1日当りの時間数の4～9月平均値についても、1981～2002年の経年変化の長期的な上昇傾向が統計的に有意と言えるかどうかを調べた。その結果、1%有意水準で上昇傾向が有意であった（表-5）。

表-5 光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上となった一般局1局1日当りの時間数の経年変化（1981～2002年4～9月平均値）における回帰直線の傾きの有意性の検定

対応するグラフ	図-22
相関係数	0.555
傾き	0.0058 時間/年
傾きの標準誤差	±0.0020 時間/年
傾きの t 値	3.0
傾きの 95%信頼区間の下限	0.0018 時間/年
傾きの 95%信頼区間の上限	0.0099 時間/年

(5) 原因物質と高濃度オキシダントの出現割合との関係の解析

ア. 原因物質の濃度及び濃度比と高濃度オキシダントとの関係

(4)で述べたように、気象要素以外の要因による光化学オキシダントの経年的な濃度上昇への影響の可能性が示唆されたことから、高濃度オキシダントが出現する要因について、気象要素以外の要因として朝方の原因物質（窒素酸化物及び非メタン炭化水素）の濃度に着目し、「高濃度発生源エリア」における原因物質濃度と「1都6県解析エリア」におけるオキシダント最高値（B）との関係を解析した。

解析にあたっては、気象要素の影響をできるだけ排除するため、エリア内最高値（B）と比較的相関の高かった日積算日射量、日最高気温、及び昼午前平均風速について、一定範囲となった日に限定してデータを整理した。気象条件の一定範囲は、それらの気象要素とエリア内最高値（B）との関係を整理したときに毎年比較的高濃度のオキシダントが出現する条件であった以下の範囲に限定することとした。

日積算日射量： 18 以上 25 MJ/m² 未満

日最高気温： 25℃以上

昼午前平均風速： 1.5 以上 2.5 m/s 未満 （いずれも東京管区气象台での条件）

代表例として、図-26に、2000年の4～9月における日積算日射量・日最高気温とエリア内最高値との関係、及び日積算日射量・昼午前平均風速とエリア内最高値との関係を示す。

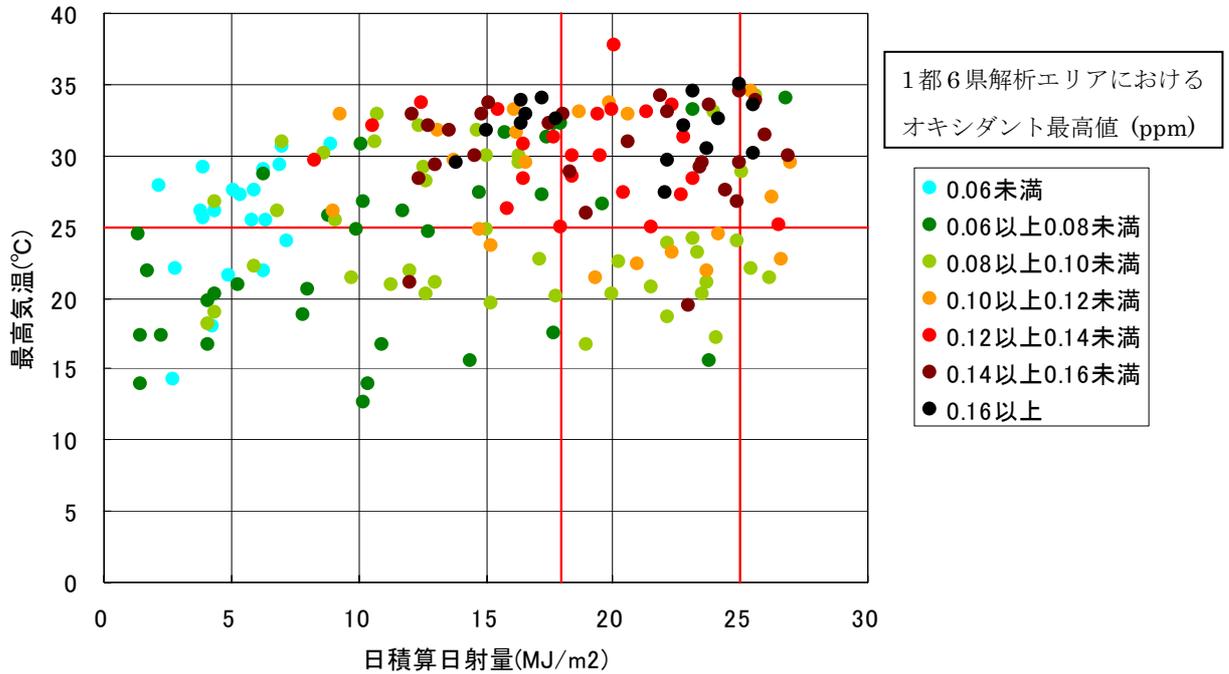


図-26 (1) 日積算日射量・日最高気温（東京管区气象台）とオキシダント最高値（1都6県解析エリア）との関係（2000年4～9月）

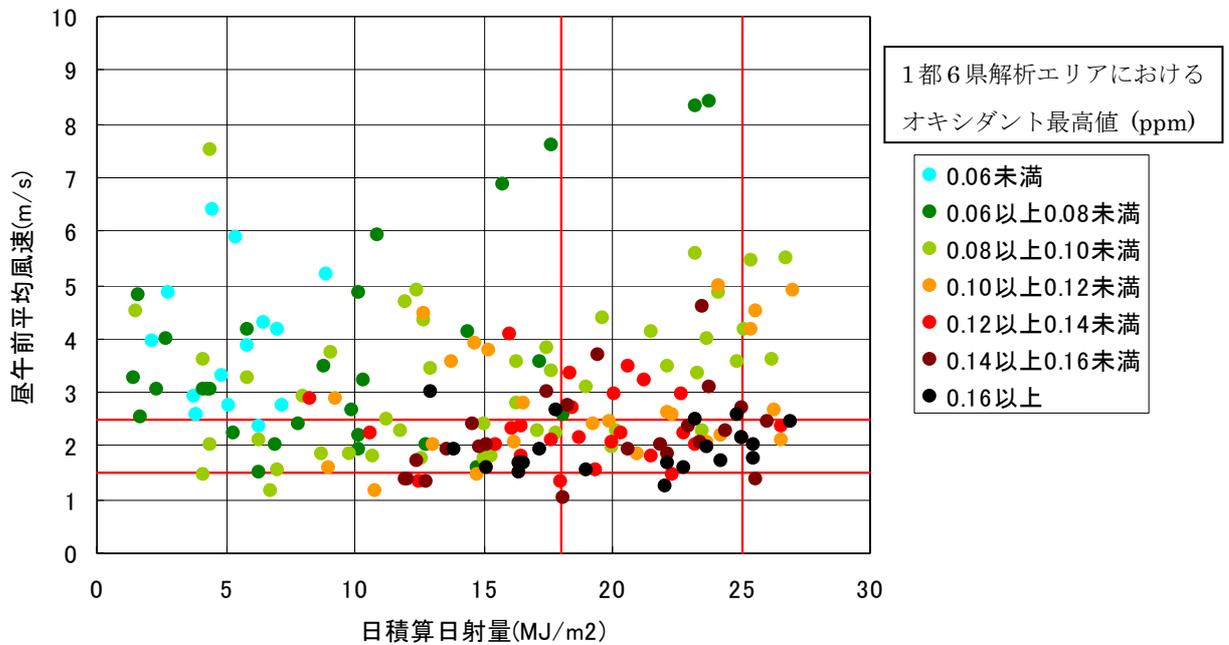


図-26 (2) 日積算日射量・昼午前平均風速（東京管区气象台）とオキシダント最高値（1都6県解析エリア）との関係（2000年4～9月）

図-27 に、解析期間について 1990 年を境に前半と後半に分け、それらの期間の 4～9 月における 6～9 時の 3 時間の非メタン炭化水素及び窒素酸化物の濃度の「高濃度発生源エリア」での平均値に対して、「1 都 6 県解析エリア」におけるその日のオキシダント最高値がどのような値であったかを色別にレベル分けをして示した。

図-27 のプロットは、それぞれの原因物質の濃度が低濃度であるほど、オキシダント最高値が低くなる傾向がうかがわれる。そのため、図-28 に、解析期間の前半と後半について、それぞれ窒素酸化物濃度を 6 つの範囲に分けて、「1 都 6 県解析エリア」におけるオキシダント最高値の出現割合を整理した。窒素酸化物濃度で分けた場合、期間の前半では、全体的に窒素酸化物濃度が高くなるほど高い値のオキシダント最高値の出現割合が大きくなっていたが、後半では、窒素酸化物が低濃度の範囲において高い値のオキシダント最高値の出現割合が大きくなるなど、窒素酸化物濃度とオキシダント最高値の出現割合の関係が明確ではなくなっている。

また、図-29 に、非メタン炭化水素濃度について、同様に「1 都 6 県解析エリア」におけるオキシダント最高値の出現割合を整理したものを示す。これにより、期間の前半・後半いずれも、非メタン炭化水素濃度が高くなるほどオキシダント最高値の出現割合は大きくなるが、後半の方が高い値のオキシダント最高値の出現割合が大きくなる傾向がみられる。

以上のように、濃度ランク別にオキシダント最高値の出現割合をみた場合、窒素酸化物・非メタン炭化水素とも出現割合のパターンが前半と後半では異なった。そこで、次に窒素酸化物濃度に対する非メタン炭化水素濃度の比率、すなわち $NMHC/NO_x$ 濃度比に着目してオキシダント最高値の出現割合を整理した。図-30 に、 $NMHC/NO_x$ 濃度比を 5 つの範囲に分けて、解析期間の前半と後半について、「1 都 6 県解析エリア」におけるオキシダント最高値の出現割合を示す。 $NMHC/NO_x$ 濃度比が 6 未満、6 以上 7 未満、及び 7 以上 8 未満では、前半のプロットの数 (n) が少なく、前半と後半との比較が困難であるが、比較的プロットの数 (n) が多かった 8 以上 10 未満、及び 10 以上の範囲では、オキシダント最高値のそれぞれのランクについて、ほぼ同様の出現割合となった。このことから、 $NMHC/NO_x$ 濃度比に対応するオキシダント最高値の出現割合は、気象条件を限定すれば、解析期間に関わらず同様の傾向となることが推測される。

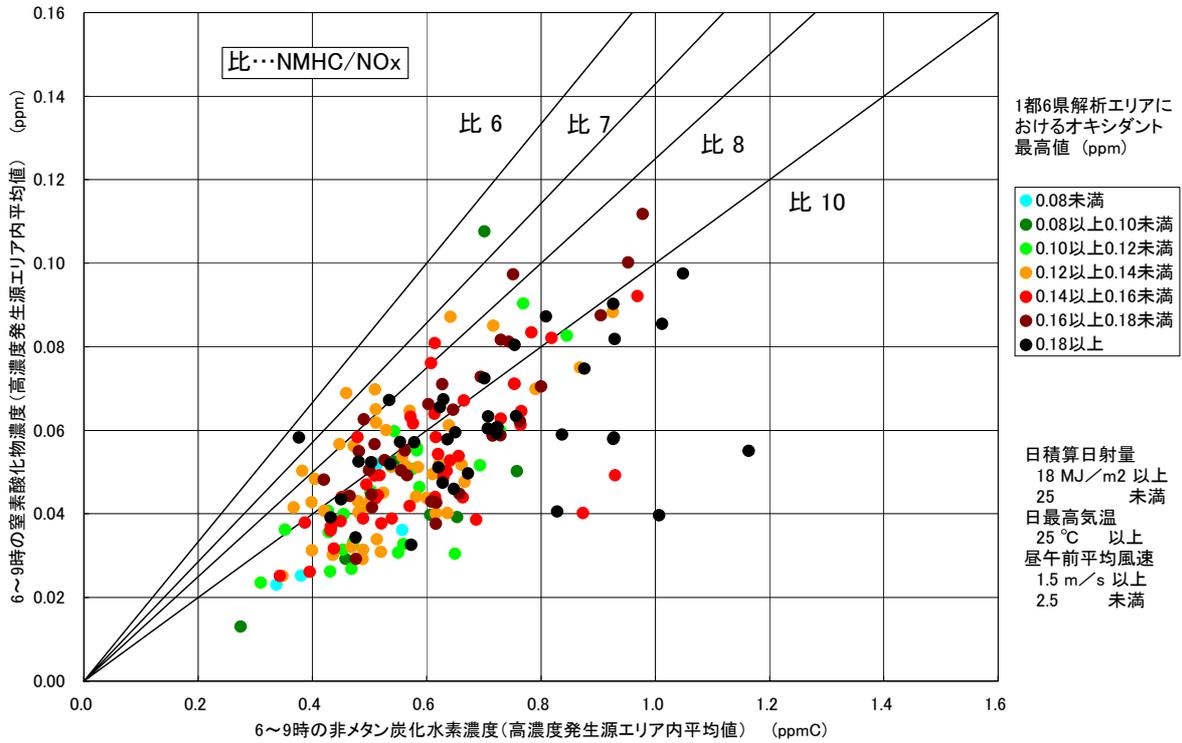


図-27 (1) 一定範囲の気象条件での原因物質とオキシダント最高値との関係
(前半の 1977~1989 年 4~9 月)

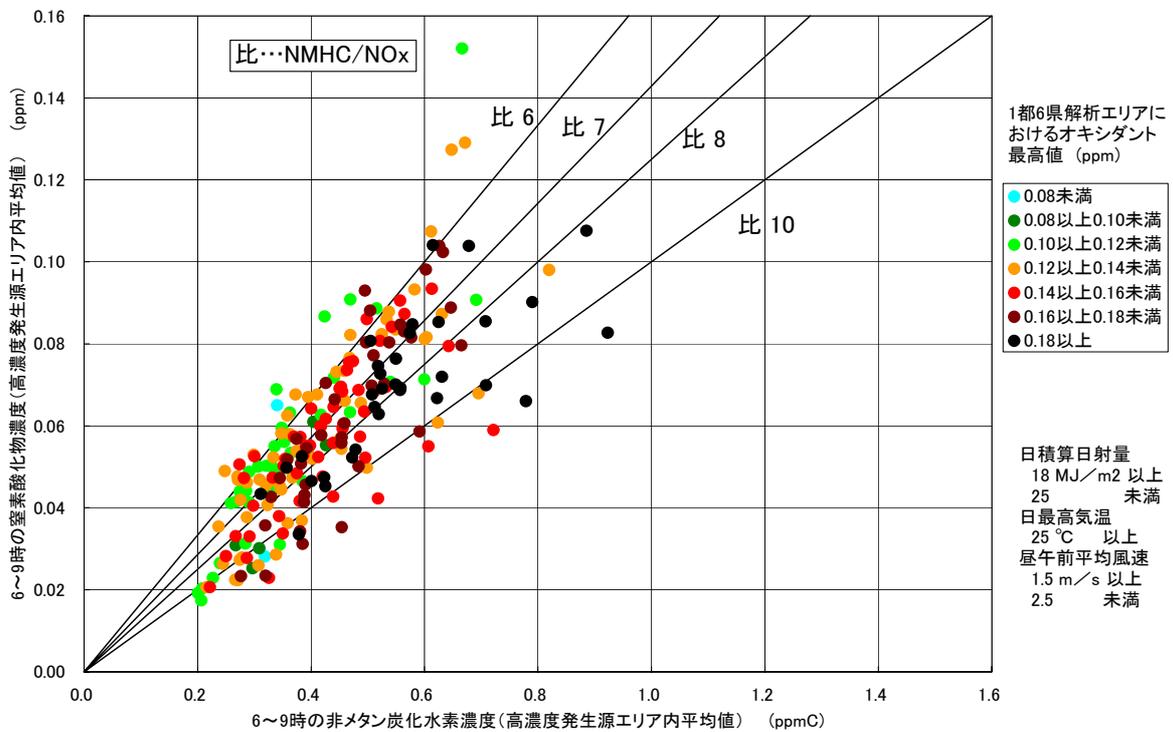


図-27 (2) 一定範囲の気象条件での原因物質とオキシダント最高値との関係
(後半の 1990~2002 年 4~9 月)

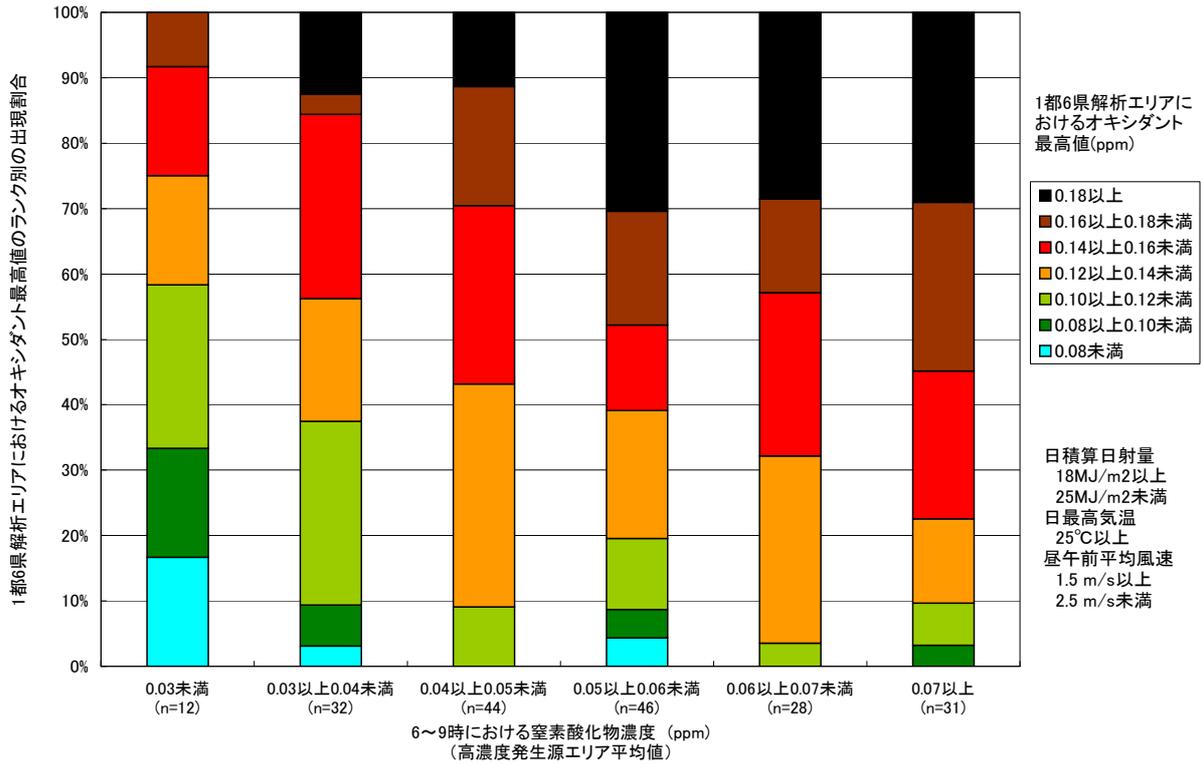


図-28 (1) 窒素酸化物濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(前半の1977~1989年4~9月)

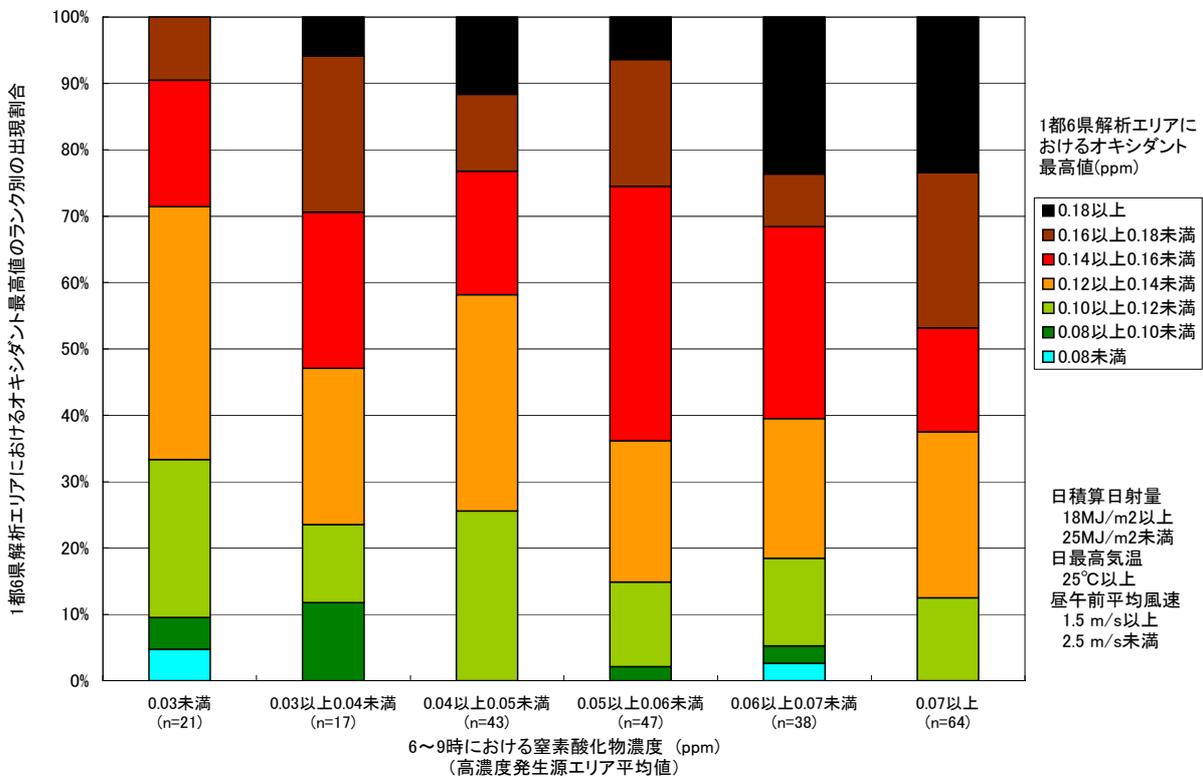


図-28 (2) 窒素酸化物濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(後半の1990~2002年4~9月)

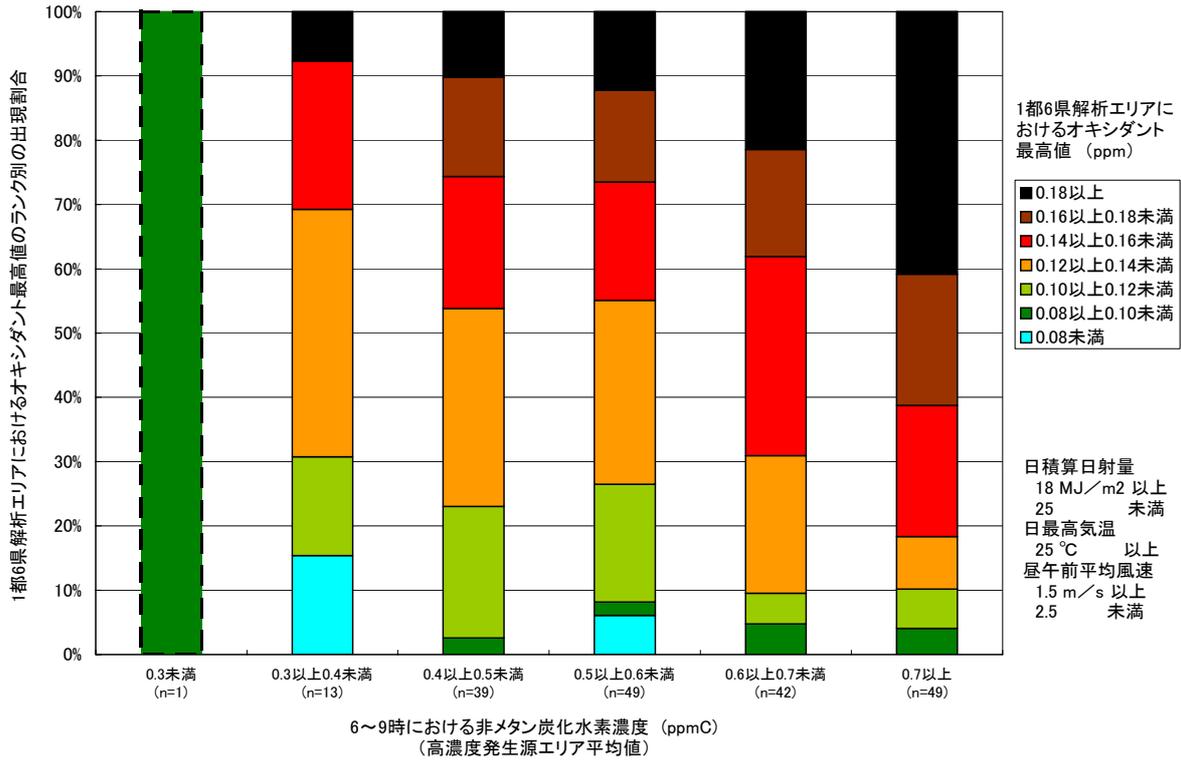


図-29 (1) 非メタン炭化水素濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(前半の1977～1989年4～9月)

※ 破線で囲ったランクは、プロット数 (n) が少ないもの。

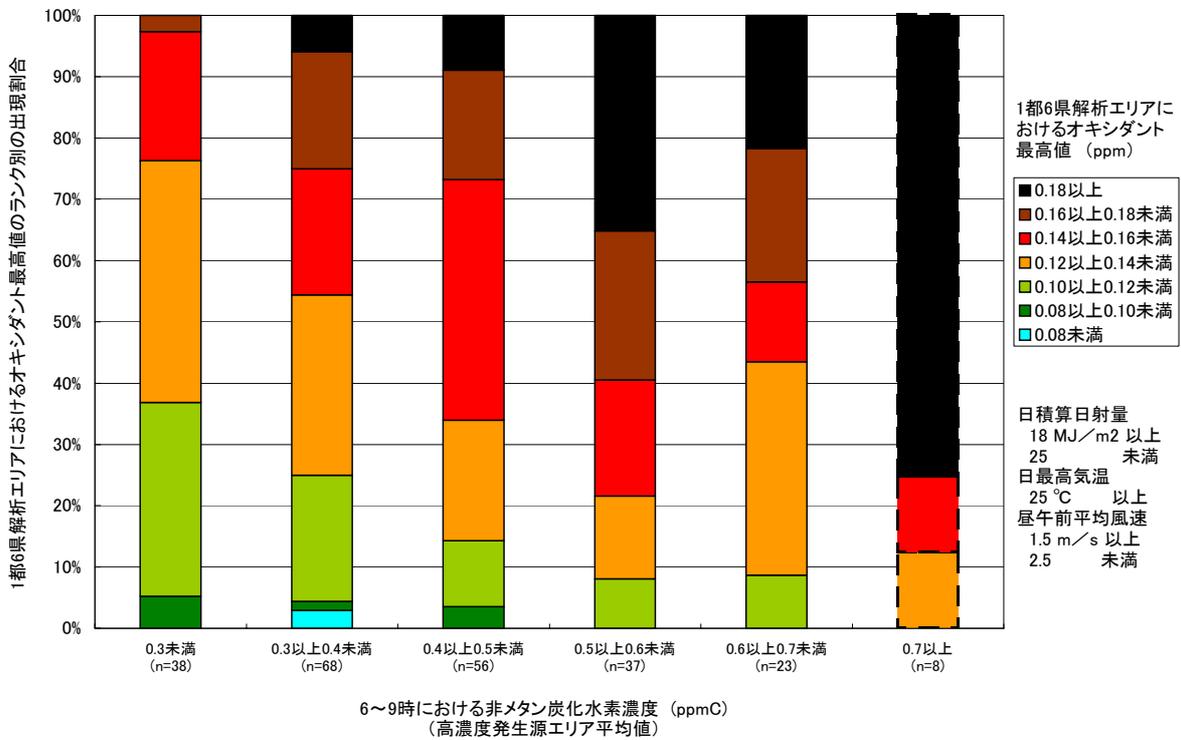


図-29 (2) 非メタン炭化水素濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(後半の1990～2002年4～9月)

※ 破線で囲ったランクは、プロット数 (n) が少ないもの。

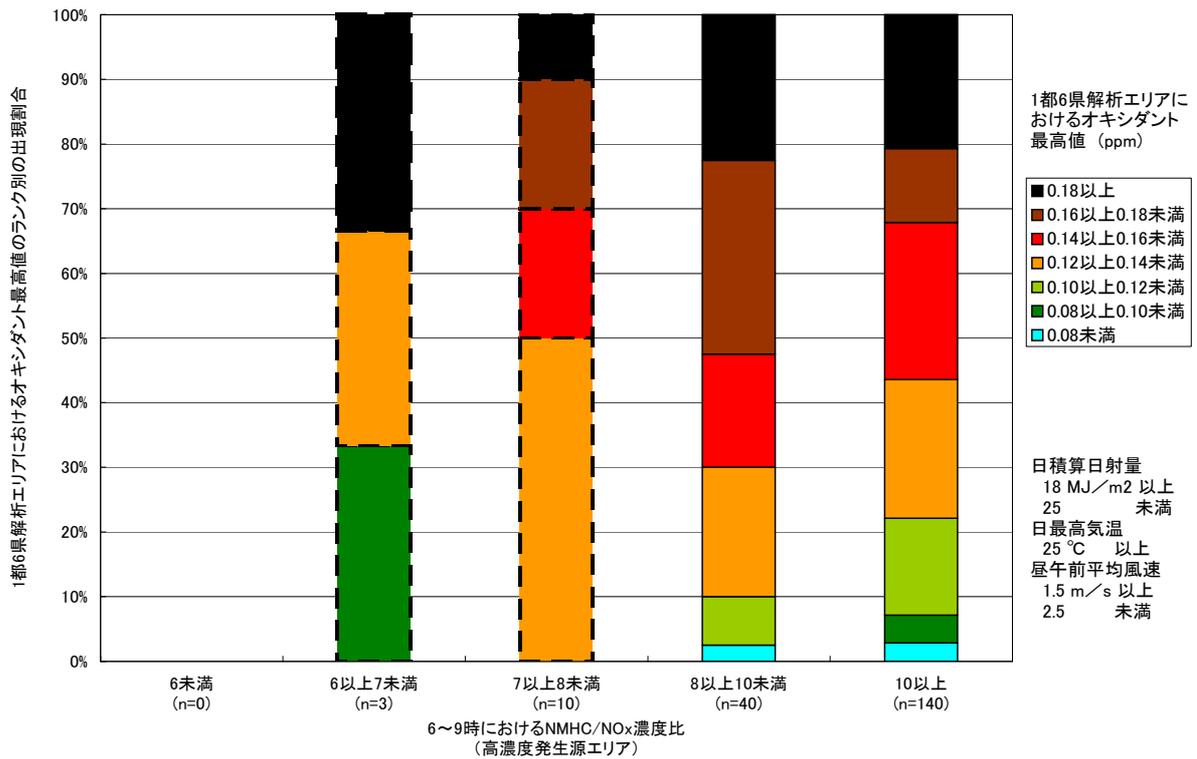


図-30 (1) NMHC/NO_x 濃度比とオキシダント最高値の出現割合との関係 (前半の1977～1989年4～9月)

※ 破線で囲ったランクは、プロット数 (n) が少ないもの。

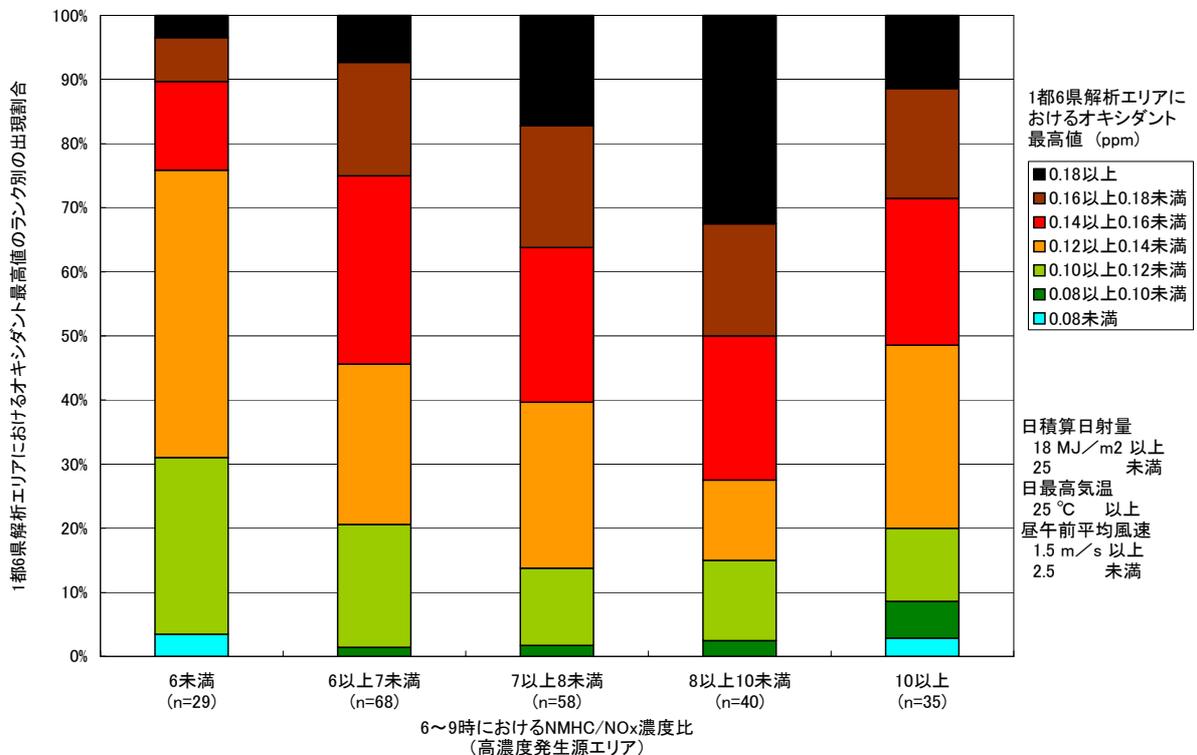


図-30 (2) NMHC/NO_x 濃度比とオキシダント最高値の出現割合との関係 (後半の1990～2002年4～9月)

図-31には、全期間を通じて、4～9月における6～9時の3時間の「高濃度発生源エリア」での窒素酸化物濃度に対する「1都6県解析エリア」におけるオキシダント最高値の出現割合を、図-32には、非メタン炭化水素濃度に対するオキシダント最高値の出現割合を示す。また、図-33には、「高濃度発生源エリア」でのNMHC/NO_x濃度比に対する「1都6県解析エリア」におけるオキシダント最高値の出現割合を示す。

これより、高濃度オキシダントが出現しやすい気象条件の下では、6～9時の3時間の「高濃度発生源エリア」における窒素酸化物濃度が0.04ppm以上の範囲、非メタン炭化水素濃度が0.3ppmC以上の範囲、もしくはNMHC/NO_x濃度比が6以上の範囲においては、「1都6県解析エリア」における光化学オキシダント濃度が、注意報発令レベル（0.12ppm以上）の高濃度となる割合が約8割以上と高くなることがわかった。

窒素酸化物濃度に対して非メタン炭化水素濃度の比率が高まると光化学オキシダント濃度が高濃度になりやすいのは、非メタン炭化水素の作用により光化学オキシダントの生成速度が高まるためと考えられる（参考欄参照）。

以上の結果、朝方の窒素酸化物や非メタン炭化水素の濃度が低く、NMHC/NO_x濃度比が小さい条件ならば、高濃度オキシダントの出現割合が小さいことがわかった。

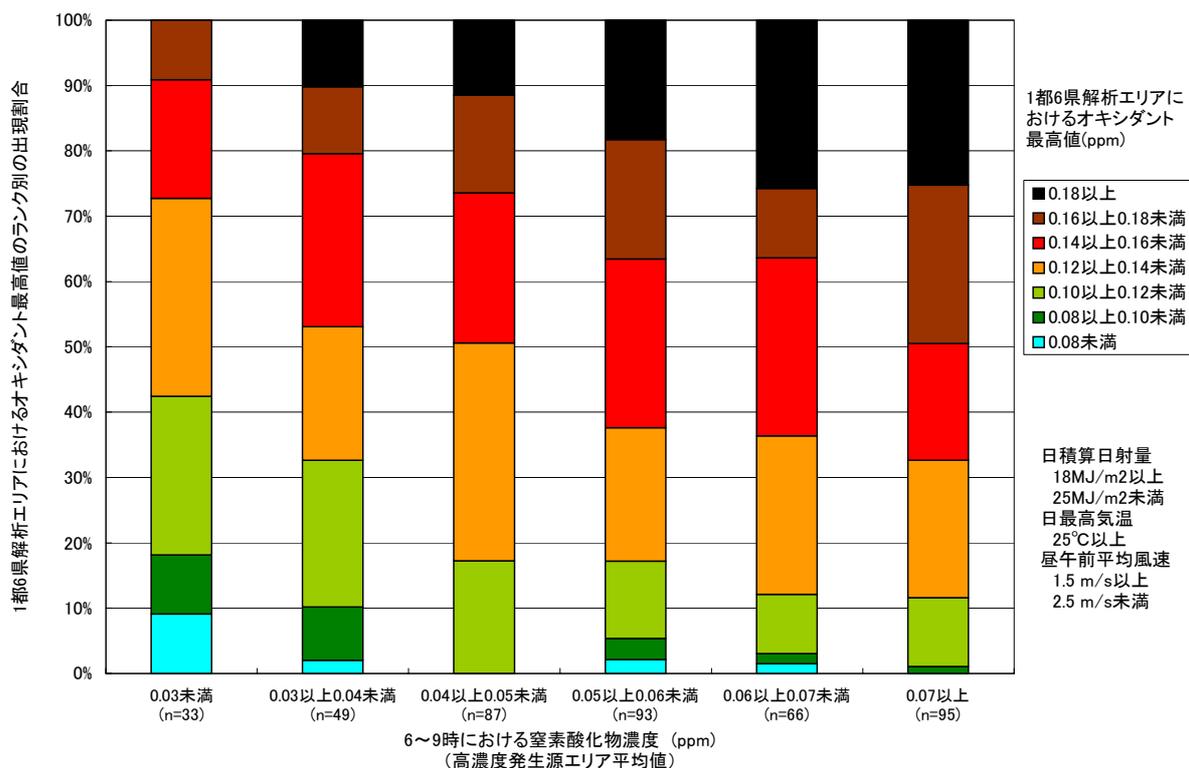


図-31 窒素酸化物濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(全期間の1977～2002年4～9月)

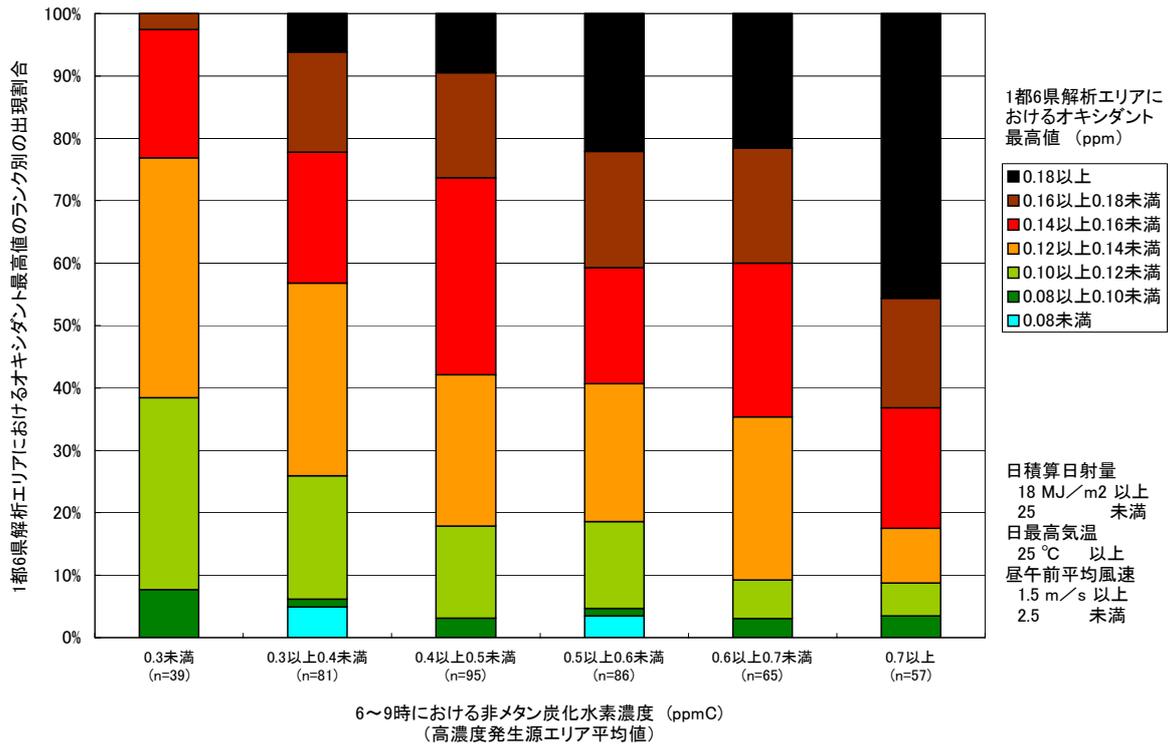


図-32 非メタン炭化水素濃度とオキシダント最高値の出現割合との関係
(全期間の1977～2002年4～9月)

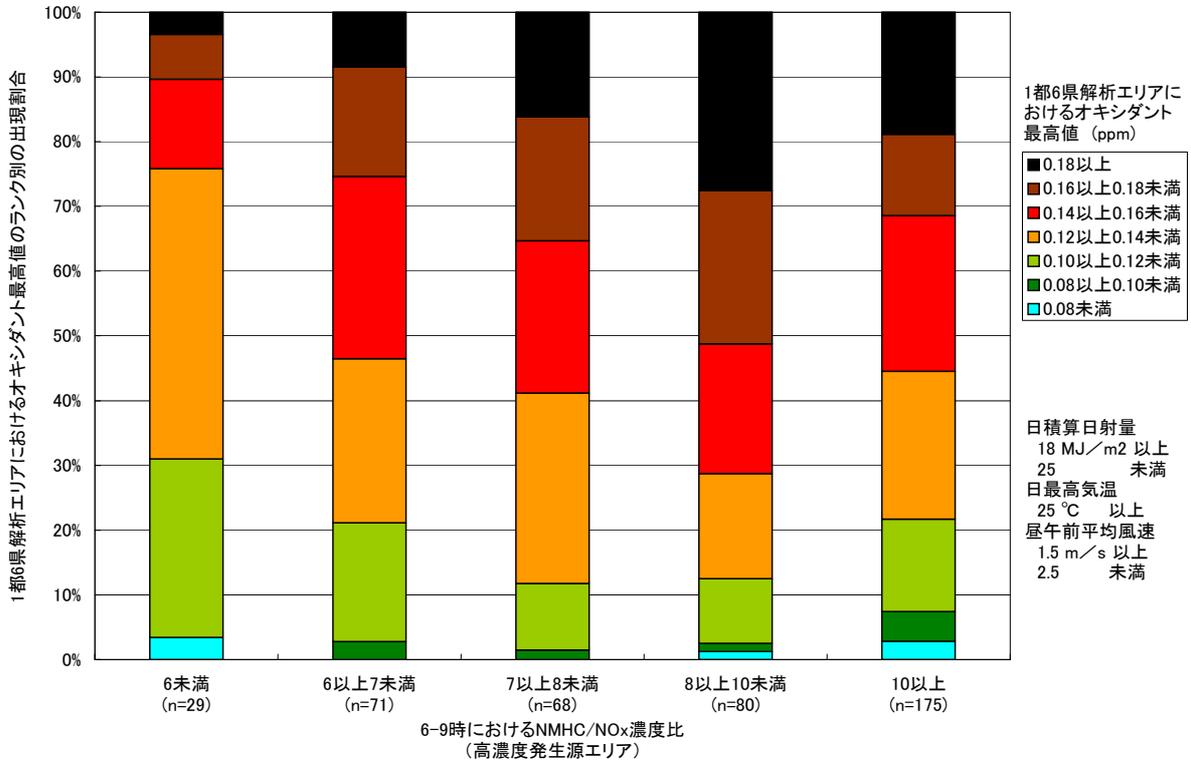


図-33 NHMC/NO_x濃度比とオキシダント最高値の出現割合との関係
(全期間の1977～2002年4～9月)

イ. 原因物質の濃度及び濃度比の経年変化の影響

(ア) 窒素酸化物濃度と非メタン炭化水素濃度の経年変化

図-34 に示すように、「高濃度発生源エリア」における 4～9 月の 6～9 時の 3 時間の大気中の窒素酸化物濃度は、1977 年を基準として 2002 年までに、15%減少した。一方、同エリア、同期間の非メタン炭化水素濃度の減少率は 56%で、非メタン炭化水素の減少率の方が大きい。

しかし、より詳しく見ると、窒素酸化物濃度は 1988 年以降 1996 年までは漸増した後、1997 年以降、急激に減少しているのに対し、非メタン炭化水素は 1999 年までは減少傾向であったが、それ以降は、ほぼ横ばいで推移している。

(イ) NMHC/NO_x 濃度比の経年変化

窒素酸化物及び非メタン炭化水素の濃度のこのような経年変化をもとに、「高濃度発生源エリア」における NMHC/NO_x 濃度比の 4～9 月平均値の長期的な経年変化についてみると、NMHC/NO_x 濃度比は 1980 年当初には 10 を超えていたものが、1993 年には 6 程度まで低下し、1996 年以降は横ばいないしはわずかに増加し、より高濃度の光化学オキシダントが出現しやすい濃度比になりつつある (図-34)。

1980 年以降の 10 数年間の光化学オキシダント濃度の増加は NMHC/NO_x 濃度比の変化では説明できないが、最近の NMHC/NO_x 濃度比の増加は、首都圏における高濃度オキシダントの出現頻度を高める傾向をもたらしている可能性が高い。

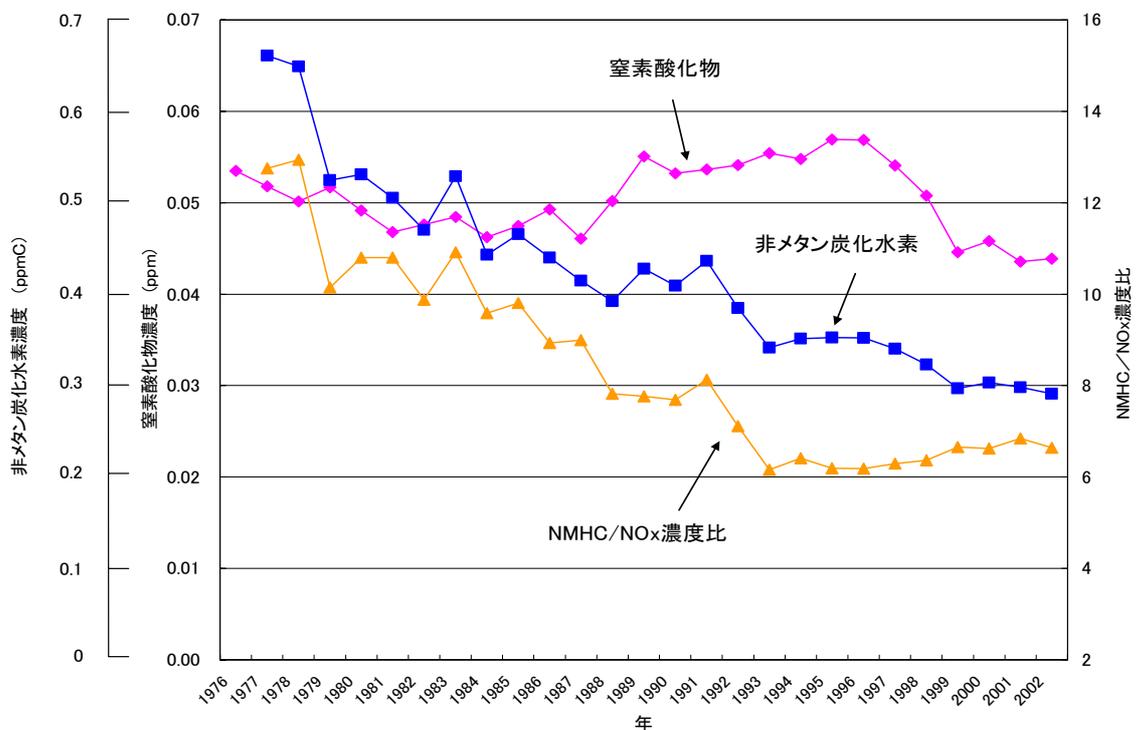


図-34 高濃度発生源エリアにおける NO_x、NMHC、NMHC/NO_x 濃度比の経年変化 (4～9 月 6～9 時)

(6) その他の影響の解析

ア. 非メタン炭化水素の組成変化の影響

環境大気中の非メタン炭化水素（23物質）の組成の変化について、1992年度（平成4年度）と2003年度（平成15年度）の調査結果を用いて両年度の結果を比較したところ、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、非メタン炭化水素の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みると、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わかった（図-35）。

これらのことから、非メタン炭化水素の組成変化が、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。

なお、今回の調査で、とくにプロピレンと*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非メタン炭化水素の組成について継続的に把握していく必要がある。

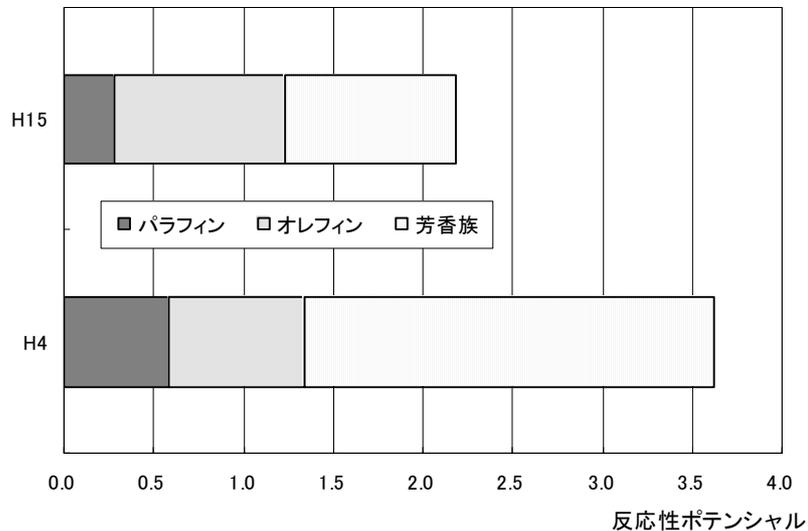


図-35 環境科学研究所（江東区）における炭化水素の反応性ポテンシャルの年度別比較図

【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）

イ. 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の経年変化

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 年間で 7 年間にわたる観測データについてみると、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、両地点の経年変化は異なっていた。季節別の濃度レベルは両地点ともほぼ同じで、春季には他の季節に比べて濃度が 30%程度高い傾向にあった。両地点の経年変化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ゾン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 春季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、とくに春季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、大陸性の気塊の影響を受ける場合の夏季の影響についても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濃度データの解析

文献調査を行なったところ、我が国では 1969 年から 1990 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¹⁾。また、那覇における 1989~1997 年のオゾン濃度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²⁾。さらに、後方流跡線解析を用いた結果、大陸由来の気塊中のオゾンは、1970~2002 年の約 30 年間の前半期には春季に濃度が最大であったものが、後半期には夏季に濃度が最大になったことが報告されている³⁾。このことは、直接の汚染影響が少ない地域に特徴的な春季ピークから、汚染の影響の大きい地域に特徴的な夏季ピークに移行したものと思われ、東アジア域における光化学生成がより活発になったことを意味している。

これらの結果から、東アジアの越境大気汚染による我が国のバックグラウンドオゾンの上昇が、首都圏の光化学オキシダント濃度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。しかしながら、広域移流の影響については、今後更にデータを蓄積し検討していく必要がある。

ウ. オキシダント濃度の測定法切り替えの影響

わが国における光化学オキシダントの常時監視は、①吸光光度法自動測定機（湿式）：10%中性ヨウ化カリウム溶液法〔~1977 年〕、②2%中性ヨウ化カリウム溶液法+動的校正〔1978~1983 年〕、③2%中性ヨウ化カリウム溶液法+動的校正+自動洗浄機能の付加〔1984~1996 年の間に徐々に〕を経て、現在は、④紫外線吸収法自動測定機（乾式）：UV 法〔1996

年～徐々に] へと変遷してきている。

①から②への変更は、光化学オキシダント濃度の計測に及ぼす窒素酸化物の影響を低減させ、静的校正から動的校正へと変更させたものであり、環境庁通知に基づき、①で測定された過去の常時監視データに係数 0.8 を乗じて補正している。

②から③への変更は、向流吸収管の汚れによる感度低下を防ぐために行なわれたものであった。東京都の測定局を例に、オキシダント濃度の長期的な上昇傾向に及ぼす測定機の自動洗浄機能の有無の影響を検討しようとしたところ、1990 年度にはほとんどが自動洗浄機能付きであったことは判明したものの、1970 年代までは仕様を遡ることができず、1990 年以前における自動洗浄機能の影響の程度はわからなかった。しかし、少なくとも 1990 年度以降の光化学オキシダント濃度の上昇に関しては、自動洗浄機能の影響は考えられない。

③から④への変更については、東京都においては測定局ごとに測定法の変更年度が判明していることから、1997～2001 年度に行なわれた湿式法から乾式法への影響について検討を行なった。解析は、切替えをした測定局としなかった測定局の 2 グループに大別し、測定機の切り替え前後の年度における両者のオキシダント濃度の変化率を比較することによって行った。その結果、切り替え後は切り替え前に比べ、測定値が若干大きめに測定される傾向がみられたが、その程度は小さいことから、湿式法から乾式法への測定法切り替えは、首都圏で観測されている近年のオキシダント濃度上昇の主原因ではないものと考えられる(参考欄参照)。

(参考文献)

- 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.
- 3) Naja, M. and H. Akimoto, Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data over Japan, J. Geophys. Res., 109, D21306 doi:10.1029/2004JD004687, 2004

3. 原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の解析

(1) 統計解析に基づく原因物質低減効果の試算の考え方

前述の2(5)で解析したように、「1都6県解析エリア」において高濃度オキシダントの発生する頻度は、「高濃度発生源エリア」における6～9時の原因物質の濃度に依存している。そこで、原因物質の非メタン炭化水素及び窒素酸化物の濃度が、高濃度オキシダントの発生する頻度の高い濃度レベルから、発生頻度の低い濃度レベルに低下すれば、高濃度オキシダントの発生が抑制されることが統計的に推定される。

この考え方に基づいて、「高濃度発生源エリア」における原因物質の環境濃度の低下率と「1都6県解析エリア」における高濃度オキシダントの出現日数との関係を試算した。この試算における高濃度オキシダントの出現率（各原因物質の濃度ランク別の出現日数に占める0.12ppm以上のオキシダント濃度が発生した日数の割合）は、図-36に示す現況（2000～2002年）における高濃度オキシダントの出現の分布を用いている。すなわち、原因物質の環境濃度が低下しても、原因物質の濃度に対応する高濃度オキシダントの出現率は、現況と変わらないという仮定のもとに行なった。

また、この試算において原因物質について取扱っているものは、6～9時における大気中の環境濃度のみであり、原因物質の排出量との関係は一切考慮していない。

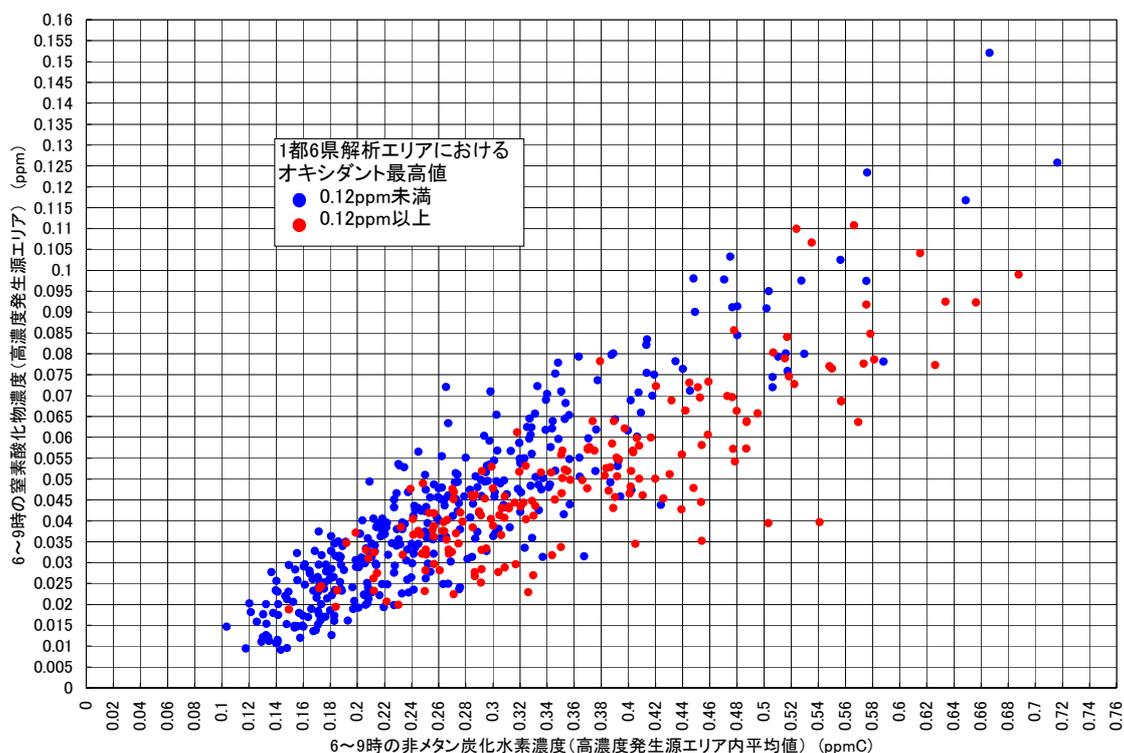


図-36 現況（2000～2002年）における原因物質の濃度とオキシダント最高値との関係

試算に当たっては、原因物質の両方について濃度ランク分けをして二次元で取扱う方法で行なった。参考欄に、一方の原因物質ごとに濃度ランク分けをする方法による試算結果を示す。一方の原因物質ごとに濃度ランク分けをする算出方法では、ランク幅を比較的小さく設定できる反面、それぞれの原因物質の低下率を組み合わせ設定したときの高濃度オキシダントの発生についての改善効果を算出することができない。

そこで、ここでは、両方の原因物質の濃度ランク分けを同時に行なって、それぞれの原因物質の低下率を組み合わせ設定する算出方法で改善効果を試算した結果について示す。

(2) 試算方法

ア. 現況の把握

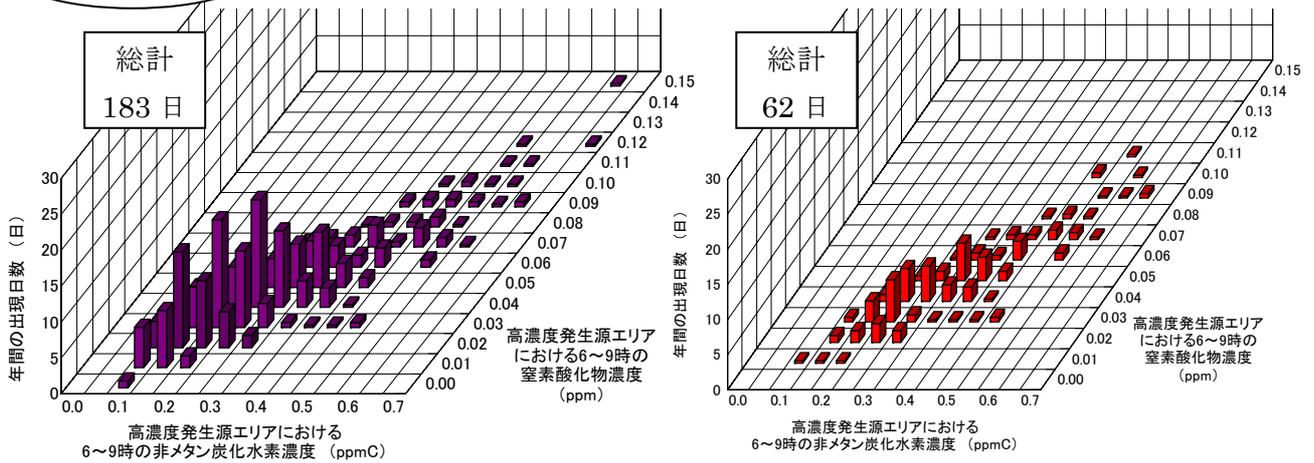
まず、現況（2000～2002年）において、「高濃度発生源エリア」における原因物質の出現する日数と「1都6県解析エリア」における高濃度オキシダント（0.12ppm以上）の出現日数との関係を整理した。整理に当たっては、2000～2002年度の3年間における4～9月の毎日のデータ（549日分）をすべて使用した。

- ① 6～9時の3時間の原因物質濃度の平均値について、両方の原因物質の濃度ランク別（ランク幅は、窒素酸化物で0.01ppm、非メタン炭化水素で0.05ppmC）に、それぞれの濃度ランク枠に入る原因物質濃度の出現日数の頻度（2000～2002年の年間平均値）を求めて、その分布を紫色の立体棒グラフで示した（図-37（1））。
- ② それぞれの濃度ランク枠におけるオキシダント0.12ppm以上の出現日数を求めて、その頻度分布を赤色の立体棒グラフで示した（図-37（2））。
- ③ ①と②から、それぞれの原因物質の濃度ランク別に、原因物質濃度の出現日数に対する光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上の出現日数の割合として、「高濃度オキシダント出現率」を算出し、表-6に示した。

イ. 原因物質濃度の低下率に対応した高濃度オキシダント出現日数の算出

- ① 「高濃度発生源エリア」における現況の大気中の原因物質濃度がそれぞれ一定割合（図-38（1）は、窒素酸化物濃度が30%低下、非メタン炭化水素濃度が40%低下の場合）で低下したとすると、それぞれの濃度ランク枠に入る原因物質濃度の出現日数は、紫色の立体棒グラフで示すような頻度分布となる。

現況



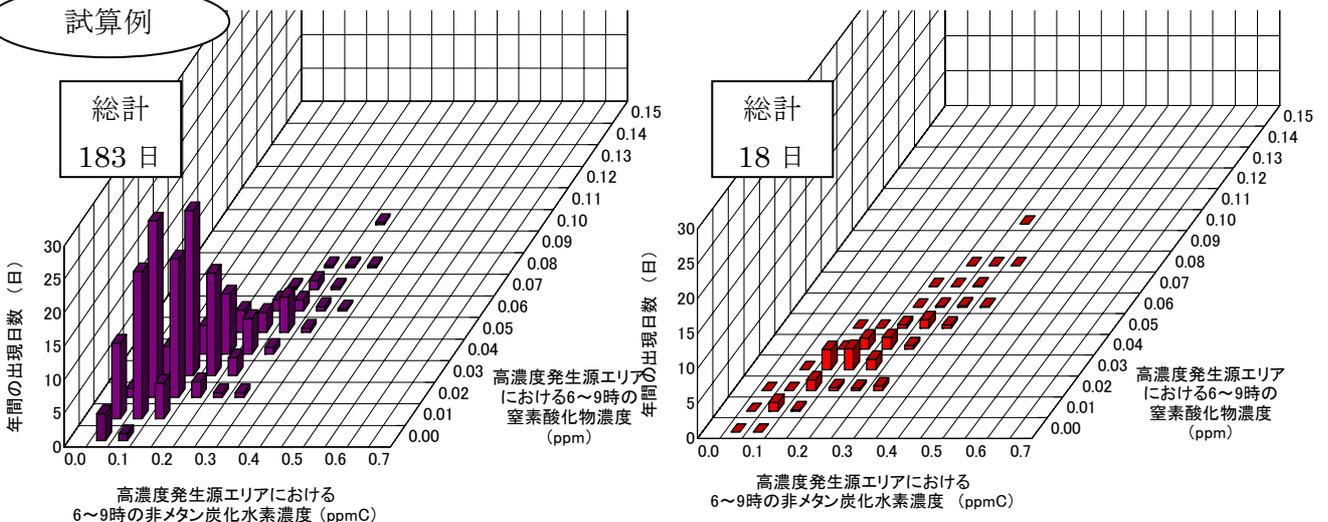
(1) 原因物質濃度の年間出現日数 (2) オキシダント 0.12ppm 以上の年間出現日数

図-37 現況 (2000~2002年の年間平均) における6~9時の原因物質濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度 0.12ppm 以上の年間出現日数

表-6 原因物質の濃度ランク別の高濃度オキシダント (0.12ppm 以上) の出現率

NOx \ NMHC	0以上 0.05未満	0.05以上 0.10未満	0.10以上 0.15未満	0.15以上 0.20未満	0.20以上 0.25未満	0.25以上 0.30未満	0.30以上 0.35未満	0.35以上 0.40未満	0.40以上 0.45未満	0.45以上 0.50未満	0.50以上 0.55未満	0.55以上 0.60未満	0.60以上 0.65未満	0.65以上 0.70未満	0.70以上 0.75未満
0.15以上0.16未満															0.000
0.14以上0.15未満															
0.13以上0.14未満															
0.12以上0.13未満															0.000
0.11以上0.12未満												0.000	0.000		0.000
0.10以上0.11未満								0.000		0.000	1.000	0.000	1.000		
0.09以上0.10未満								0.000	0.000	0.000	0.000	0.500	1.000	1.000	
0.08以上0.09未満								0.000	0.000	0.200	0.222	1.000	0.500	1.000	
0.07以上0.08未満							0.000	0.000	0.091	0.333	0.400	1.000			
0.06以上0.07未満							0.000	0.000	0.167	0.222	0.696	1.000	1.000		
0.05以上0.06未満				0.000	0.000	0.176	0.311	0.469	0.636	0.750	1.000				
0.04以上0.05未満				0.000	0.118	0.200	0.563	0.300	0.500	1.000	1.000				
0.03以上0.04未満			0.000	0.000	0.075	0.179	0.533	1.000							
0.02以上0.03未満		0.000	0.000	0.059	0.042	0.200									
0.01以上0.02未満		0.000	0.000												
0以上0.01未満		0.000	0.000												
(ppm)	0以上 0.05未満	0.05以上 0.10未満	0.10以上 0.15未満	0.15以上 0.20未満	0.20以上 0.25未満	0.25以上 0.30未満	0.30以上 0.35未満	0.35以上 0.40未満	0.40以上 0.45未満	0.45以上 0.50未満	0.50以上 0.55未満	0.55以上 0.60未満	0.60以上 0.65未満	0.65以上 0.70未満	0.70以上 0.75未満

試算例



(1) 原因物質濃度の年間出現日数 (2) オキシダント 0.12ppm 以上の年間出現日数

図-38 現況より NOx30%低下・NMHC40%低下後の6~9時の原因物質濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度 0.12ppm 以上の年間出現日数

- ② ここで、それぞれの原因物質の環境濃度が低下しても、それぞれの濃度ランク枠に対応する「高濃度オキシダント出現率」は表-6 で示した現況と変わらないと仮定する。ただし、イ. の①で原因物質の環境濃度の低下後の日数が、ア. の③では「高濃度オキシダント出現率」の計算されていない濃度ランク枠に存在する場合、窒素酸化物が高濃度側で、非メタン炭化水素が低濃度側（すなわち NMHC/NO_x 濃度比が小さい領域）では「高濃度オキシダント出現率」を 0 とおいた。また、窒素酸化物が低濃度側で、非メタン炭化水素が高濃度側（すなわち NMHC/NO_x 濃度比が大きい領域）では「高濃度オキシダント出現率」を 1 とおいた。例として示した窒素酸化物濃度 30%低下、非メタン炭化水素濃度 40%低下の場合では、表-6 の黄色で示した濃度ランク枠 8 箇所について、「高濃度オキシダント出現率」を 0 とおいている。
- ③ イ. の①で算出した「低下後の原因物質濃度出現日数」の頻度分布とア. の③で求めた「高濃度オキシダント出現率」を用いて、「低下後の原因物質濃度出現日数」×「高濃度オキシダント出現率」により、当該原因物質濃度における高濃度オキシダント出現日数が算出できる。図-38 (2) に、窒素酸化物濃度 30%低下、非メタン炭化水素濃度 40%低下の場合における原因物質の濃度ランク別の高濃度オキシダントの年間出現日数を示す。これらを総計した日数が、高濃度オキシダント出現日数の年間総数となる。

(3) 試算結果

試算方法で例示した、窒素酸化物濃度 30%低下、非メタン炭化水素濃度 40%低下の場合では、現況（2000～2002 年）の高濃度オキシダント年間平均出現日数の 62 日が 18 日に、高濃度オキシダント出現日数が約 70%減少するよう試算された。

表-7 に、「高濃度発生源エリア」における 6～9 時の原因物質の濃度の低下率に対する「1 都 6 県解析エリア」における高濃度オキシダント（0.12ppm 以上）の出現日数との関係の試算結果を示す。

自動車 NO_x・PM 法に基づく総量削減計画に従って、平成 22 年度までに二酸化窒素の環境基準が達成される場合、「高濃度発生源エリア」における窒素酸化物濃度の平均値は 34%低下となると計算される。そこで、試算のケースは、窒素酸化物濃度 30%低下を中心に±10%とし、非メタン炭化水素は 20、30、40%低下に加え、NMHC/NO_x 濃度比が小さくなるケースを計算するため 50%低下の場合についても試算した。

表-7 「高濃度発生源エリア」における6～9時の原因物質濃度の低下率に対する「1都6県解析エリア」における高濃度オキシダント（0.12ppm以上）の年間出現日数との関係

窒素酸化物濃度低下率 非メタン炭化水素 濃度低下率	20%	30%	40%
20%	42日	49日	54日
30%	26日	34日	37日
40%	14日	18日	23日
50%	5日	8日	11日

※ 現況（2000～2002年）の高濃度オキシダント年間平均出現日数 62日

また、同様の試算方法を用いて、東京都23区内における6～9時の原因物質の濃度の低下率に対して東京都全域（島部を除く）における高濃度オキシダント（0.12ppm以上）の出現日数との関係について試算した結果を表-8に示す。

なお、自動車NO_x・PM法に基づく東京都の総量削減計画に従って、平成22年度までに二酸化窒素の環境基準が達成される場合、東京都23区内における窒素酸化物濃度の平均値は36%低下となると計算される。この値に近い試算ケースとして、窒素酸化物濃度30%低下及び40%低下のケースをみた場合、非メタン炭化水素が40%低下では、都内における高濃度オキシダント出現日数は現況の31日からそれぞれ7日、13日と、約60～80%減少するような試算結果となった。

表-8 東京都23区内における6～9時の原因物質濃度の低下率に対する東京都全域（島部を除く）における高濃度オキシダント（0.12ppm以上）の年間出現日数との関係

窒素酸化物濃度低下率 非メタン炭化水素 濃度低下率	20%	30%	40%
20%	23日	30日	41日
30%	12日	17日	23日
40%	5日	7日	13日
50%	2日	3日	5日

※ 現況（2000～2002年）の高濃度オキシダント年間平均出現日数 31日

表-7 と表-8 から導き出される高濃度オキシダントの出現日数の減少率の一例として、解析の地域を「1都6県解析エリア」とした場合と東京都内とした場合のそれぞれについて、原因物質濃度の低下率に対する高濃度オキシダントの出現日数の減少率の関係を図-39 に示す。

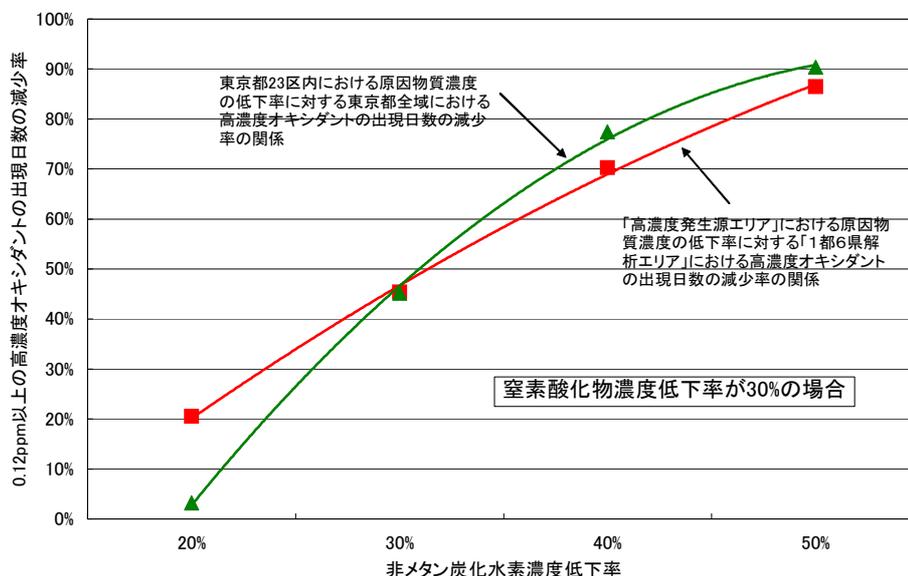


図-39 原因物質濃度の低下率に対する高濃度オキシダントの出現日数の減少率の関係

解析の地域が「1都6県解析エリア」の場合と東京都内の場合とを比較すると、高濃度オキシダントの出現日数の減少率は、非メタン炭化水素濃度 20%低下のケースでは異なる結果となったが、両方の解析地域において大きな差はみられなかった。

以上のように、解析の地域がいずれの場合でも、試算のケースでは、原因物質の濃度が低下すると、現況よりも高濃度オキシダントの年間出現日数は減少するものの、非メタン炭化水素濃度の低下率よりも窒素酸化物濃度の低下率の方が大きい場合、すなわち NMHC/NOx 濃度比を現況よりも大きくなるように原因物質濃度が低下した場合は、濃度比が大きいほど高濃度オキシダントの出現の減少効果が小さくなるよう試算された。

以上のことから、高濃度オキシダントの出現日数を効果的に減少させるには、窒素酸化物濃度の低下に加え、非メタン炭化水素濃度を窒素酸化物の低下率以上に低減させていくことが必要であると考えられる。

これらの試算結果は、気象条件が現況（2000～2002年）と変動がなく、かつ、東アジアからの広域移流も現況をそのまま維持すると仮定したときの試算値である。また、この統計解析手法で算出される低下率とは、環境濃度の低下率であり、排出量との関係を考慮したものではない。環境濃度は、発生源からみた場合、自然界由来も含め炭化水素発生源すべてにかかわるものであり、一般的に、人為発生源における排出量の削減率は、環境濃度の低下率よりも大きくする必要があることに留意する必要がある。

なお、関東地域に広域的に光化学オキシダント高濃度が発生した気象パターンの日 2 ケースを対象として、東京都調査及び環境省並びに関東地域 6 県から提供を受け作成した関東地方全般の排出量を用い、数値シミュレーションモデル(MM5 及び CMAQ)による排出量削減シミュレーションを行い、対策効果を予測した。しかし、気象パターン数が十分でなく、現況再現精度が USEPA (米国環境保護庁) の評価基準を十分に満たすことができなかった等の理由により、この手法による試算を本報告では採用しなかった (参考欄参照)。

4. 今後の都の施策のあり方

本章においては、本検討会での議論に基づき、揮発性有機化合物（VOC）の排出削減対策を中心とする今後の都の施策のあり方についての提言をとりまとめた。

都は、旧公害防止条例においても、一部の非メタン炭化水素については、有害ガスとして、工場・指定作業場に対して排出口における濃度基準を設定して規制を行なってきた。また、2001年4月に施行された環境確保条例では、給油所などに対し、ペーパーリターンの設置などによる炭化水素系物質の排出防止対策を義務付けている。さらに、2001年10月に施行された環境確保条例に基づく制度として、化学物質適正管理制度を運用してきている。

しかしながら、前述したように、近年、自動車公害対策の進展などにより窒素酸化物（NO_x）は削減してきたが非メタン炭化水素（NMHC）の削減がこれに追いついていないことから、1996年度以降、NMHC/NO_x濃度比がやや上昇傾向にあり、このことが近年における高濃度の光化学オキシダントの出現頻度の増加をもたらしている要因の一つと考えられる。従って、高濃度の光化学オキシダントの生成を効果的に抑制するためには、窒素酸化物の排出削減にとどまらず、非メタン炭化水素を含めた揮発性有機化合物（VOC）の排出削減対策をさらに進める必要があると考えられる。

都内におけるVOCの発生源は、蒸発系固定発生源が人為的なVOC総排出量の約7割を占め、それらは、塗装、印刷、クリーニング、給油、金属表面処理など、さまざまな業種に関係している（図-40）。また、東京都の実態として、これらの業種は中小規模の事業者が多く、塗装関係では屋外での使用も多くを占めている。

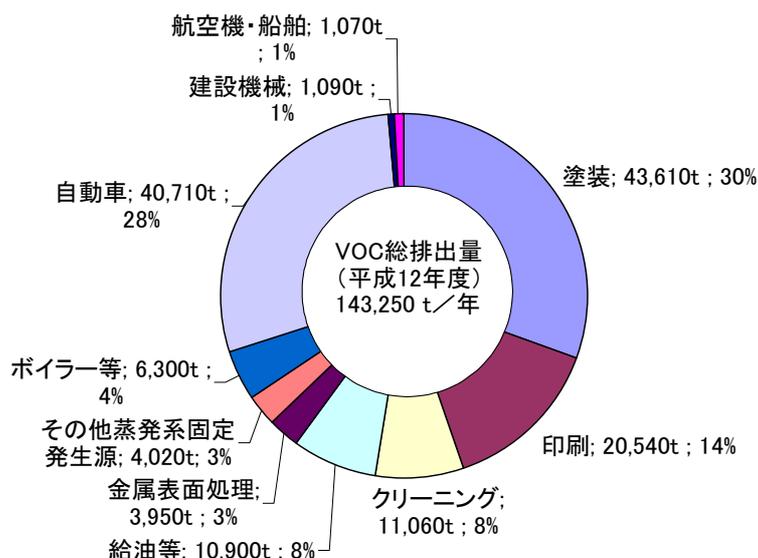


図-40 都内における発生源別の揮発性有機化合物（VOC）の排出量
（自然由来を除く）

こうした VOC 排出削減の必要性や発生源の状況を踏まえれば、既存の有害ガスの濃度規制などに加え、さまざまな業種の事業者のさまざまな実態に応じた取組を促すことが、今後の VOC 排出削減対策として必要であると考えられる。

また、本報告の解析でも明らかなように、光化学オキシダントの影響は広範囲に及ぶこと並びに発源地域と高濃度オキシダントの出現地域が異なることから、近隣自治体との連携による広域的な対策が重要であると考えられる。

そこで、今後の施策の方向について、より具体的に述べると以下のとおりである。

【VOC 排出事業者の排出削減の取組に関して】

- ① 環境問題への取組については、事業者自らが社会的責任の視点に基づいて、環境の時代に適応した対応を図ることがますます重要となっている。そのため、事業者が自ら削減に向けた対策に努めることが期待される。現在の法令では規制を受けていない物質も含め、VOC を排出する多種多様な事業者がそれぞれ実効性ある排出削減対策を講じるよう、都としても独自の方策を検討するなど、事業者への支援・誘導策を幅広く展開することが必要である。事業者の取組の促進に当たっては、事業者の努力を評価していく観点が必要である。
- ② また都は、有害ガスの排出規制、炭化水素系物質の排出防止のための構造基準、化学物質適正管理制度などが定められている現行の環境確保条例や、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行なうべきである。
- ③ さらに、VOC 回収装置・排ガス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べきである。

【低 VOC 製品の普及促進に関して】

- ④ VOC 排出事業者が行う対策としては、排ガス処理対策の充実、対策施設の維持管理の徹底化なども挙げられるが、VOC 排出事業者が使用する塗料や印刷インキなどの製品を低 VOC 製品に転換することも効果的な対策である。そのため、製品製造事業者に対してさらなる製品の低 VOC 化の取組を促すための施策が必要であり、製品使用者に対しては、有効でありかつ適切な情報を提供する施策などが重要であると考えられる。
- ⑤ 都民に対しては、パンフレットやホームページなどにより、低 VOC 製品の使用などの広報啓発活動を行うことも重要である。

【排出実態の把握とモニタリングに関して】

- ⑥ 本報告において試算した、原因物質濃度の低下による高濃度の光化学オキシダントの出現日数の低減効果は、あくまでも原因物質の環境濃度の低下率に対する効果を試算したものであり、各種の発生源からの排出量とは対応させていない。非メタン

炭化水素の排出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立する必要がある。そのためには、炭化水素成分ごと、排出形態別、発生源別、時間別、季節別の排出量など排出実態の把握の精度の向上を図るとともに、対策効果の定量評価が可能なシミュレーションモデルの作成・適用、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今後必要となる。

- ⑦ 対策の中間段階においても効果を把握し、さらにより実効性のある対策を進めるために、大気環境のとくに光化学反応性が高い炭化水素成分や、炭化水素以外で光化学反応性のある VOC 成分のモニタリングを充実することが望ましい。

【近隣自治体との連携に関して】

- ⑧ 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並びに発生源地域と高濃度オキシダントの出現地域が異なることなどから、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報告の内容に関する情報提供を行なうなど、情報交換に努める必要がある。
- ⑨ さらに、情報交換よりも一歩進めて、広域調査や広域対策を推進するために近隣自治体と連携し、都がその先導的役割を果たしていくことが重要である。

【バランスのとれた施策の展開に関して】

- ⑩ 本報告の内容は、VOC 対策の必要性だけでなく、光化学オキシダント低減のためには VOC と NO_x のバランスのとれた着実な削減が必要であることを示している。かつて NO_x 削減対策の推進の一方で交通量の増大による環境濃度低減の遅滞があったように、一つのシナリオに集中し過ぎると目的が達せられない場合がある。また、近年は気候変化の兆候も顕著であり、それが今後の光化学オキシダント汚染の構造に影響する可能性も無視できないことにも注意する必要がある。さらに、将来にわたりアジアにおけるオゾン生成の原因物質の排出量の増大が予測されることから、越境大気汚染によるバックグランドオゾン濃度のさらなる増大が首都圏の光化学オキシダント濃度の低減を遅延させる可能性のあることにも注意する必要がある。

謝 辞

本検討会での検討を進めるにあたり、国立環境研究所 PM_{2.5}・DEP 研究プロジェクトの松本幸雄主任研究官からは、原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の統計的な解析に関して、大変有益なご助言をいただいた。ここに記して謝意を表す。

参 考

1. 光化学オキシダントとその生成機構

(1) 光化学オキシダントと光化学スモッグ

光化学オキシダントは、自動車や工場・事業場などから排出される大気中の窒素酸化物や炭化水素（とくに不飽和炭化水素）が太陽光（紫外線）を受けて、光化学反応により生成される二次的汚染物質である。これらは、オゾン、パーオキシアセチルナイトレートその他の酸化性物質であり、ほとんどがオゾン（ O_3 ）である。光化学反応により生成される酸化性物質のうち、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、二酸化窒素を除いた物質を「光化学オキシダント」とよんでいる。

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は紫外線吸収法であるため、光化学オキシダントのうちオゾンのみを測定している。

光化学オキシダントが物質の総称を意味するのに対し、光化学スモッグは現象を指したことばである。光化学オキシダントの濃度が高くなったときは、気象条件によっては、大気が白くもやのかかった状態となることから、この状態を「光化学スモッグ」とよんでいる。

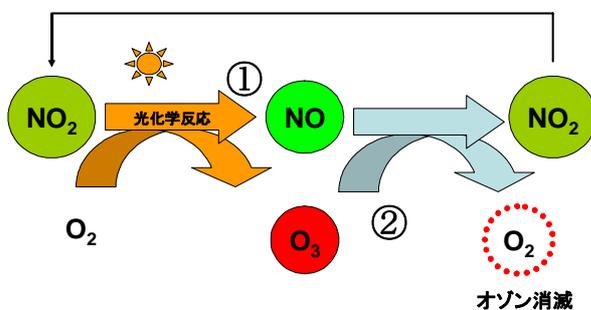
(2) 光化学オキシダントの生成機構

環境大気中での光化学オキシダントの生成機構は、チャンバー実験から、概ね次のように考えられている。

ア. 概要

(ア) 非メタン炭化水素（NMHC）の影響がほとんどない場合
（二酸化窒素の光反応による基本的な生成機構）

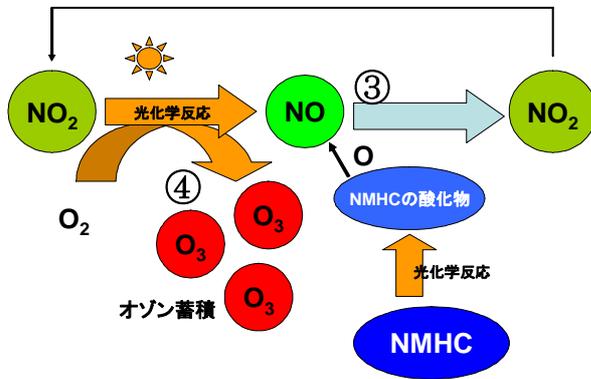
窒素酸化物には、二酸化窒素（ NO_2 ）と一酸化窒素（ NO ）がある。



- ① 二酸化窒素（ NO_2 ）は、太陽光を受けて、空気中の酸素（ O_2 ）から、オゾン（ O_3 ）を作り出し、一酸化窒素（ NO ）となる。
- ② オゾン（ O_3 ）は、一酸化窒素（ NO ）と容易に反応して、酸素（ O_2 ）に戻るため、非メタン炭化水素（NMHC）の影響がほとんどない場合には、オゾンは高い濃度になりにくい。同時に、一酸化窒素（ NO ）は、二酸化窒素（ NO_2 ）に戻る。

(イ) 非メタン炭化水素 (NMHC) の濃度が窒素酸化物 (NO_x) に比べて相対的に高く、オゾンの生成に強く影響する場合

(非メタン炭化水素の関与によるオゾンの急速な増加)



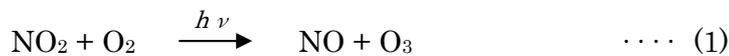
③ 一酸化窒素 (NO) は、オゾンではなく非メタン炭化水素 (NMHC) の酸化によって生じる過酸化ラジカルと反応して二酸化窒素 (NO₂) に戻るため、オゾンが消滅しにくい。

④ また元に戻った二酸化窒素 (NO₂) がオゾンを生じる光化学反応を繰り返すため、オゾン (O₃) が急速に増加する。

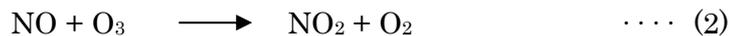
イ. 詳細

(ア) NO₂ の光化学解離による生成

二酸化窒素 (NO₂) に紫外線が当たると(1)式で表される解離を起こし、一酸化窒素 (NO) と O₃ を生成する。



生成した O₃ は NO と反応し再び NO₂ となる。



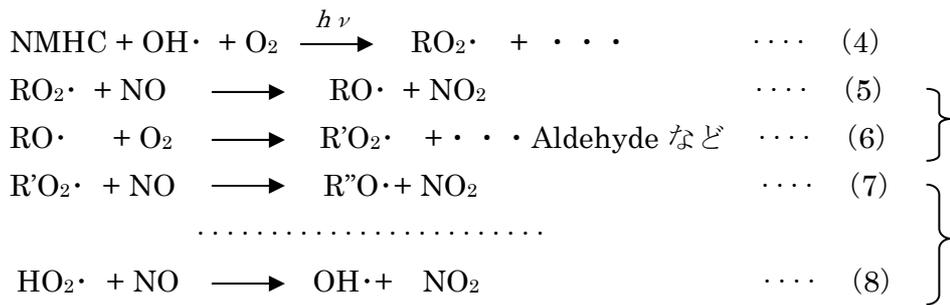
NO₂, NO, O₃ の 3 物質は(3)式で表される速い平衡状態にあり、NO₂ に紫外線があたる状態では、常にこの 3 物質が存在する。K は平衡定数である。



なお、この平衡に非メタン炭化水素 (NMHC) は関与しない。

(イ) 過酸化ラジカル (RO₂·) による NO 酸化

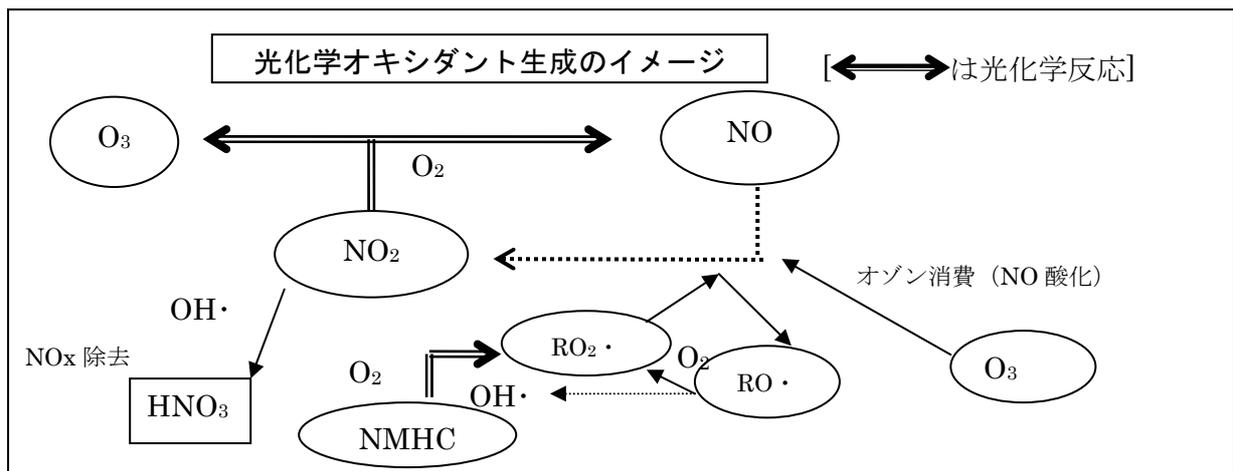
NMHC が存在すると、紫外線により発生した OH ラジカル(OH·)と NMHC が(4)式のように反応し、反応性の高い過酸化ラジカル(RO₂·)を生成する。RO₂·は NO を酸化し NO₂ を生成する一方、自身はアルコキシラジカル(RO·)となる [(5)式]。RO·は O₂ と反応して炭素数の少ない別の過酸化ラジカル R'O₂·となる [(6)式]。このようにして過酸化ラジカルが再生され、OH·も最終的に再生されるので、連鎖的に NO は NO₂ に酸化されていく [(7), (8)式]。生成した NO₂ は、紫外線により NO と O₃ を生成する。このようにして (ア) の光化学平衡をずらしながら [(9)式]、NO が減少し、O₃ 生成が加速されていく。



$$([\text{O}_3][\text{NO}] + [\text{RO}_2\cdot][\text{NO}]) / [\text{NO}_2] = K' \quad \dots (9)$$

(ウ) 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 (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。



(3) オゾン生成と NOx 濃度・NMHC 濃度との関係

O₃ 生成に与える NO_x 濃度と NMHC 濃度の影響は、チャンバー実験などにより次のように考えられている。概ね現在の環境濃度の領域として

- ① NO_x 濃度を変えずに NMHC 濃度を低減させた場合
(NMHC/NO_x 濃度比が低下する)

O₃ の生成速度が抑えられ、日中の最高濃度レベルが低下する。

O₃ 生成反応が遅くなるため、最高濃度に達するまでに時間を要するようになり、発生源から遠い地域まで移流した後、高濃度が出現するようになる。

- ② NMHC 濃度を変えずに NO_x 濃度を低減させた場合
(NMHC/NO_x 濃度比が上昇する)

NO_x 濃度に対して相対的に RO₂・ラジカルの発生量が多くなるため、O₃ の生成速度

は速くなる。また、NO_x 濃度が低くなるため最終的な O₃ 生成量は低下する。比較的短時間で O₃ が最高濃度に達するようになるので、発生源に近い地域で高濃度が出現するようになる。

本報告で解析したように、高濃度オキシダントの出現日数を効果的に縮小するためには、窒素酸化物濃度の低下に加え、非メタン炭化水素濃度を窒素酸化物の低下率以上に低減させることが必要である。

(4) 大気環境中の各汚染物質の日変化パターン

以上のように、光化学オキシダントの生成は窒素酸化物と非メタン炭化水素が原因物質となった二次生成反応であり、1日の間で光化学オキシダントの生成・消滅に伴って、各汚染物質の濃度が変化する。ここでは、各汚染物質の濃度の典型的な日変化パターンを示す。

図-41 は、2000 年の「高濃度日」の各汚染物質濃度（本文の図-11 (p.22~23)）において、東京都内の「高濃度発生源エリア」内から文京区本駒込局、「高濃度発生源エリア」外の「1都6県解析エリア」から清瀬市上清戸局を選び、各汚染物質濃度の日変化パターンを示したものである。

午前 6 時頃から都市活動に伴い NO_x 濃度が上昇し始め 8 時頃に最大となるが、日射の強くなる午前 10 時頃から光化学オキシダント濃度が上昇し始めている。その後、光化学オキシダント濃度は午後 2 時頃まで急激に上昇し、それに対応して NO 濃度の急激な減少が観測される。また、光化学オキシダント濃度が高濃度を示す時間帯には、NO_x 濃度の減少が観測されるが、これは NO₂ の酸化がさらに進み反応系から除去されるためと思われる。午後 3 時過ぎからは日射強度の低下と原因物質濃度の減少によって光化学オキシダント濃度は低下し始め、以後濃度は急速に低下する。

以上のような環境濃度の変化は、(2) で示したような反応によって光化学オキシダントが生成されることを示しているが、実際の環境大気中では、種々の発生源からの排出状況や日々の気象状況は非常に複雑であり、それらを反映して、様々な大気汚染物質（化学物質）が複雑な挙動をしている。

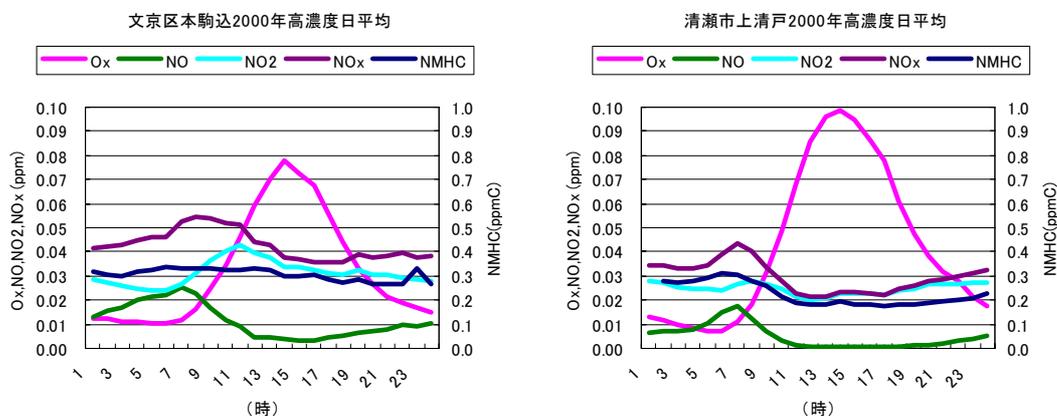


図-41 「高濃度日」の各汚染物質濃度の日変化パターン

2. 光化学オキシダントとその原因物質の環境基準等

(1) 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。

(2) 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 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	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

(3) 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、0～1000m 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、1000m 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。

3. オキシダント濃度測定法切り替えの影響の検討

本報告で概要を記載した 2 (6) ウ. の「オキシダント濃度の測定法切り替えの影響」(p.51)のうち、湿式法（自動洗浄付向流吸収管）から乾式法へ切り替えた際の影響についての検討内容を示す。

測定機の影響を正確に把握するには、同一場所で複数の測定機を併行運転する必要があるが、ここでは以下の方法により推定を試みた。

東京都内の測定局について、切替え年度（1997～2001 年度）の前後の年度における年平均値の変化率を測定局ごとに求め平均をとった。この切り替えた測定局のグループの変化率の平均と、切り替えていない測定局のグループの変化率の平均とを比較することにより、切り替えの影響を把握した（表-9）。

表-9 から、湿式法から乾式法に切り替えた場合、切り替えていない測定局のグループに比べ測定値が大きくなる傾向にあるが、おおむね 1～8%程度であることがわかる（1997→1998 年度の変化率は大きい、1 局のみの数値であるため除外した。）。

表-9 湿式法 (W) と乾式法 (D) の切替え前後の年度における測定値の変化率の比較

	1996→1998		1997→1999		1998→2000		1999→2001		2000→2002	
	n	平均値 ±標準偏差								
W→D	10	1.02±0.11	1	1.40	12	1.15±0.13	5	1.13±0.09	9	1.10±0.10
W→W	16	0.95±0.08	14	1.05±0.09	13	1.14±0.16		—		—
D→D		—		—	10	1.11±0.12	11	1.07±0.07	22	1.02±0.05
(W→D)/(W→W)		1.07		1.34		1.01		—		—
(W→D)/(D→D)		—		—		1.03		1.06		1.08

表-10 に、表-9 の変化率の数値を用いて、切替えの翌年度における年平均値への影響を試算した結果を示す。表-10 から、都内年平均値は、1997 年度から 2002 年度にかけて、0.0247ppm から 0.0276ppm まで上昇しているが、測定機の切替えがなく湿式法のままと仮定した場合には 2002 年度には 0.026ppm 程度であったと推測される。

以上のように、湿式法から乾式法への測定法切り替えの影響は、無視し得ないものの、その

程度は小さいことから、近年の光化学オキシダント濃度上昇の主原因ではないものと考えられる。

表－10 湿式法から乾式法へ切り替えた場合における光化学オキシダント濃度の都内年平均値への影響

影響年度	1990	1997	1998	1999	2000	2001	2002
切替え年度	—	—	1997	1998	1999	2000	2001
切替え局数（全局数：39）	—	—	10	1	13	5	9
切替え局の測定値平均変化率(%)	—	—	7	34	2	6	8
都内年平均値増加率（%）※	—	—	1.8	0.9	0.7	0.8	1.8
都内年平均値実測値（ppm）	0.0215	0.0247	0.0231	0.0254	0.0263	0.0279	0.0276
湿式法のままと仮定した場合の都内年平均値の推定値（ppm）	—	—	0.0227	0.0247	0.0254	0.0268	0.0260

※（切替え局の測定値平均変化率×切替え局数）／全局数

4. 原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係の解析 （一方の原因物質ごとの濃度ランク分けによる試算）

本報告の本文中では、原因物質の両方について濃度ランク分けをして二次元で取扱う方法により、原因物質濃度の低下と高濃度オキシダントの出現との関係について試算した。参考では、一方の原因物質ごとに濃度ランク分けをする方法による試算結果を示す。

一方の原因物質ごとに濃度ランク分けをする算出方法では、ランク幅を比較的小さく設定できる反面、それぞれの原因物質の低下率を独立して設定したときの高濃度オキシダントの発生についての改善効果を算出することができない。一方の原因物質ごとに濃度ランク分けをすることは、非メタン炭化水素で濃度ランク分けをした場合では、p.53の図－36において縦に細かに区切り、区切ったランク幅内の濃度別出現日数とオキシダント濃度0.12ppm以上の出現日数を調べることとなる。窒素酸化物で濃度ランク分けをした場合では、図－36において横に細かに区切ることとなる。図－36の現況では、非メタン炭化水素濃度が低濃度の日においては、窒素酸化物も低濃度側に分布していることから、この試算方法では、例えば、現況より非メタン炭化水素濃度が一定割合低下するとして算出した結果は、同時に窒素酸化物も図－36の分布に応じて低下するような状況としたこととなる。

(1) 試算方法

ア. 現況の把握 (非メタン炭化水素：図-42、窒素酸化物：図-44)

まず、現況(2000～2002年)において、「高濃度発生源エリア」における原因物質の出現する日数と「1都6県解析エリア」における高濃度オキシダント(0.12ppm以上)の出現日数との関係を整理した。整理に当たっては、2000～2002年度の3年間における4～9月の毎日のデータ(549日分)をすべて使用した。

- ① 6～9時の3時間の原因物質濃度の平均値について、原因物質を一方ずつ、濃度ランク別(ランク幅は、非メタン炭化水素濃度でランク分けする場合には0.01ppmC、窒素酸化物濃度でランク分けする場合には0.002ppm)にそれぞれの原因物質濃度の出現日数の頻度分布を求め、紫色(■印)のプロットで示した。
- ② 一方の原因物質の濃度ランク別に、光化学オキシダント濃度0.12ppm以上の出現日数を求め、その累積日数を緑色(▲印)のプロットで示した。
- ③ 一方の原因物質の濃度ランク別に、原因物質濃度の出現日数に対する光化学オキシダント濃度が0.12ppm以上の出現日数の割合として、「高濃度オキシダント出現率」を求めた。図の赤色(◆印)のプロットは、11点の移動平均により平滑化した「高濃度オキシダント出現率」を示す。

イ. 原因物質濃度の低下率に対応した高濃度オキシダント出現日数の算出

(非メタン炭化水素：図-43、窒素酸化物：図-45)

- ① 「高濃度発生源エリア」における現況の大気中の一方の原因物質濃度が一定割合(図-43の場合、非メタン炭化水素濃度が30%低下、図-45の場合、窒素酸化物濃度が30%低下)で低下したとすると、紫色(■印)のプロットで示すような原因物質濃度の出現日数の頻度分布となる。
- ② ここで、それぞれの原因物質の環境濃度が低下しても原因物質濃度に対応する「高濃度オキシダント出現率」は現況と変わらないと仮定する(赤色(◆印)のプロット)。
- ③ イ.の①で算出した「低下後の原因物質濃度出現日数」の頻度分布とア.の③で求めた「高濃度オキシダント出現率」を用いて、「低下後の原因物質濃度出現日数」×「高濃度オキシダント出現率」により、当該原因物質濃度における高濃度オキシダント出現日数が算出できる。原因物質濃度に対する高濃度オキシダント出現日数を累積した値を緑(▲印)のプロットで示す。

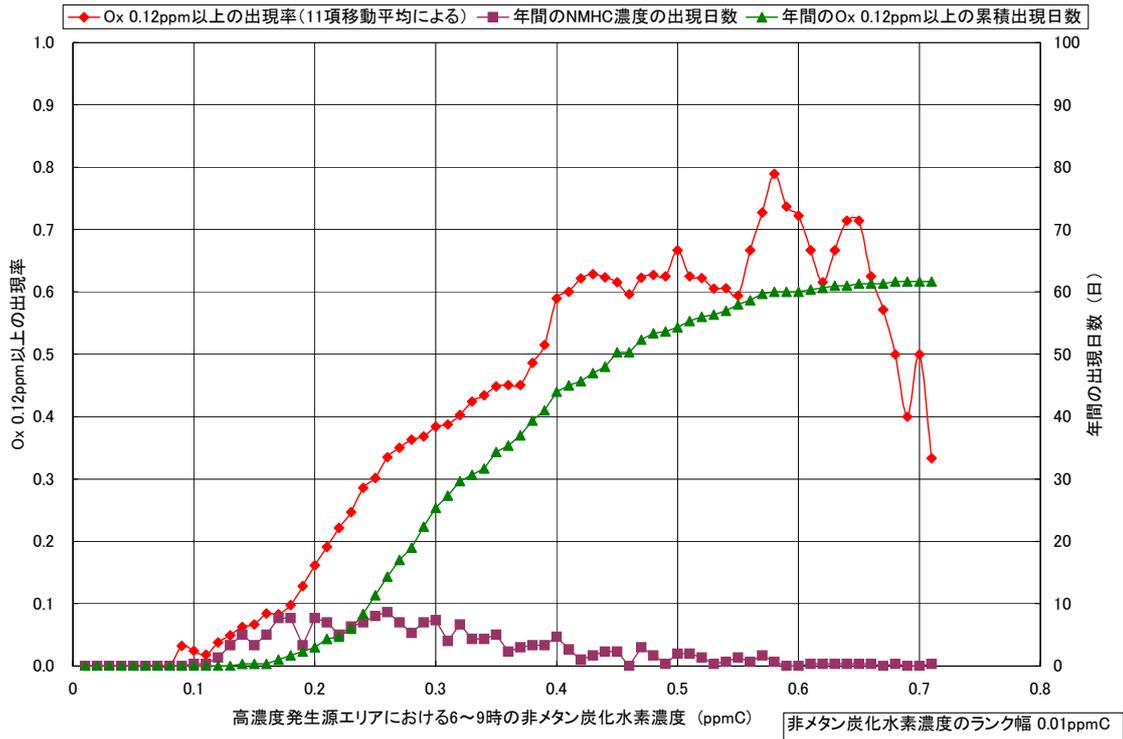


図-42 現況（2000～2002年）における6～9時の非メタン炭化水素濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度0.12ppm以上の出現率との関係

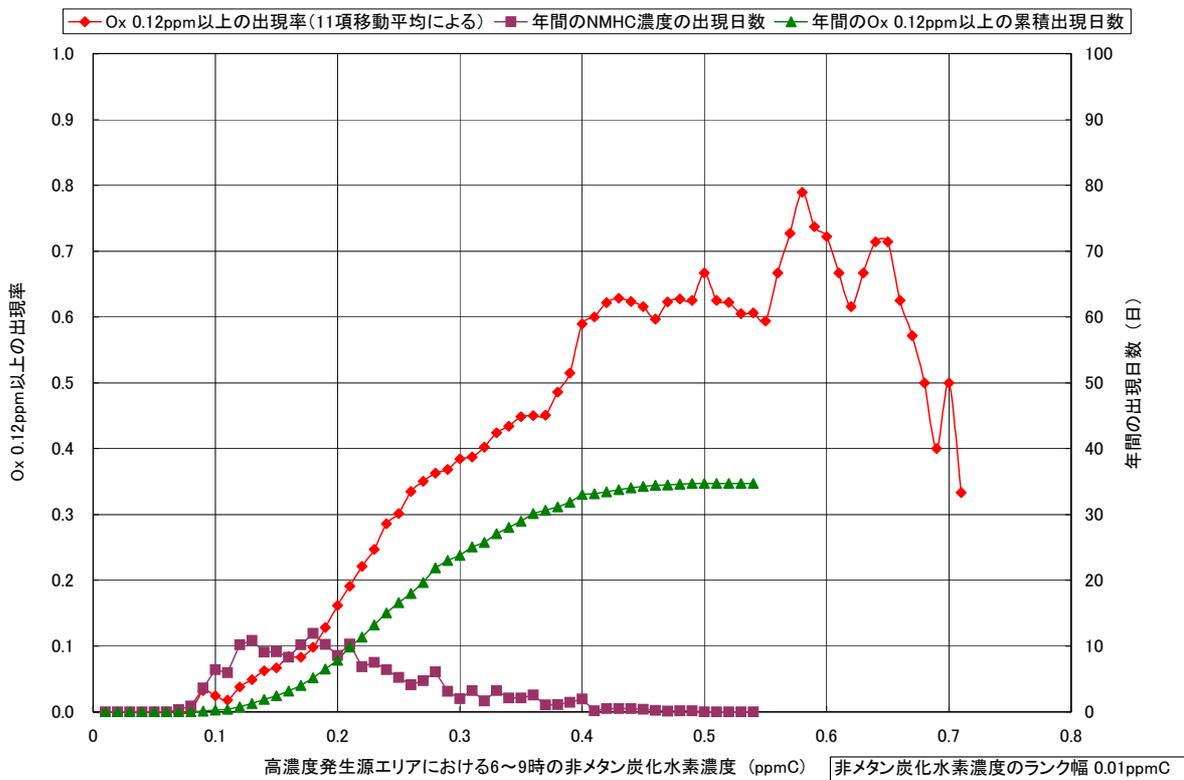


図-43 現況より非メタン炭化水素濃度30%低下後の6～9時の非メタン炭化水素濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度0.12ppm以上の年間出現日数との関係

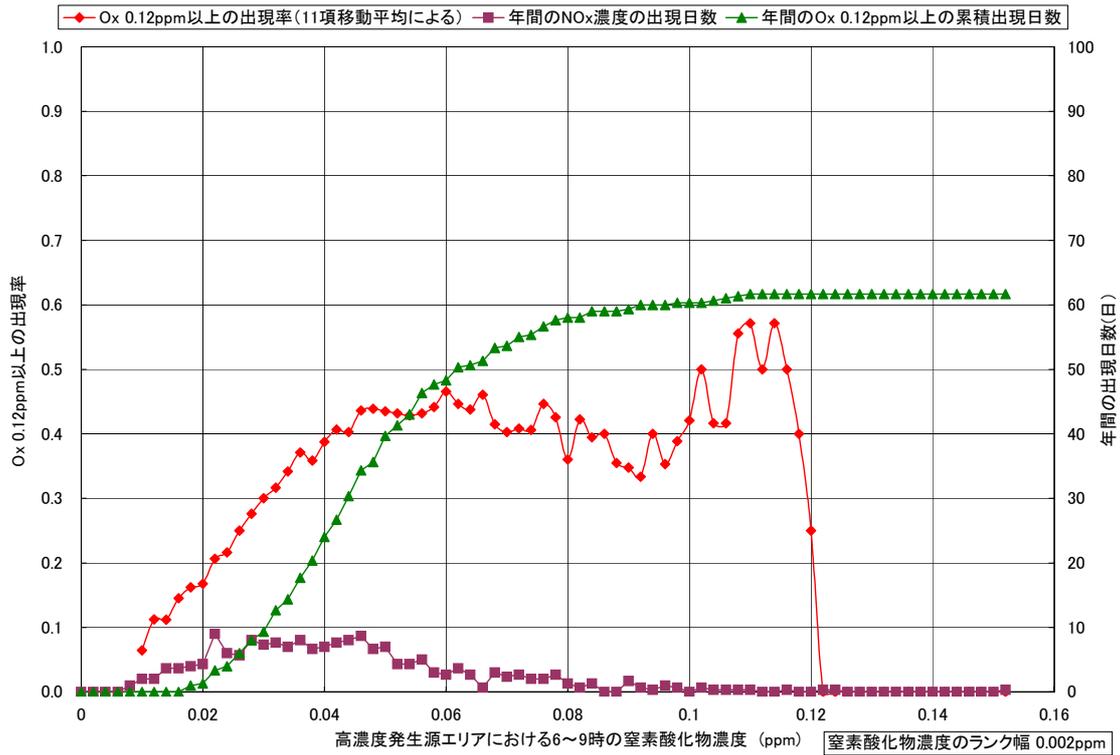


図-44 現況（2000～2002年）における6～9時の窒素酸化物濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度0.12ppm以上の出現率との関係

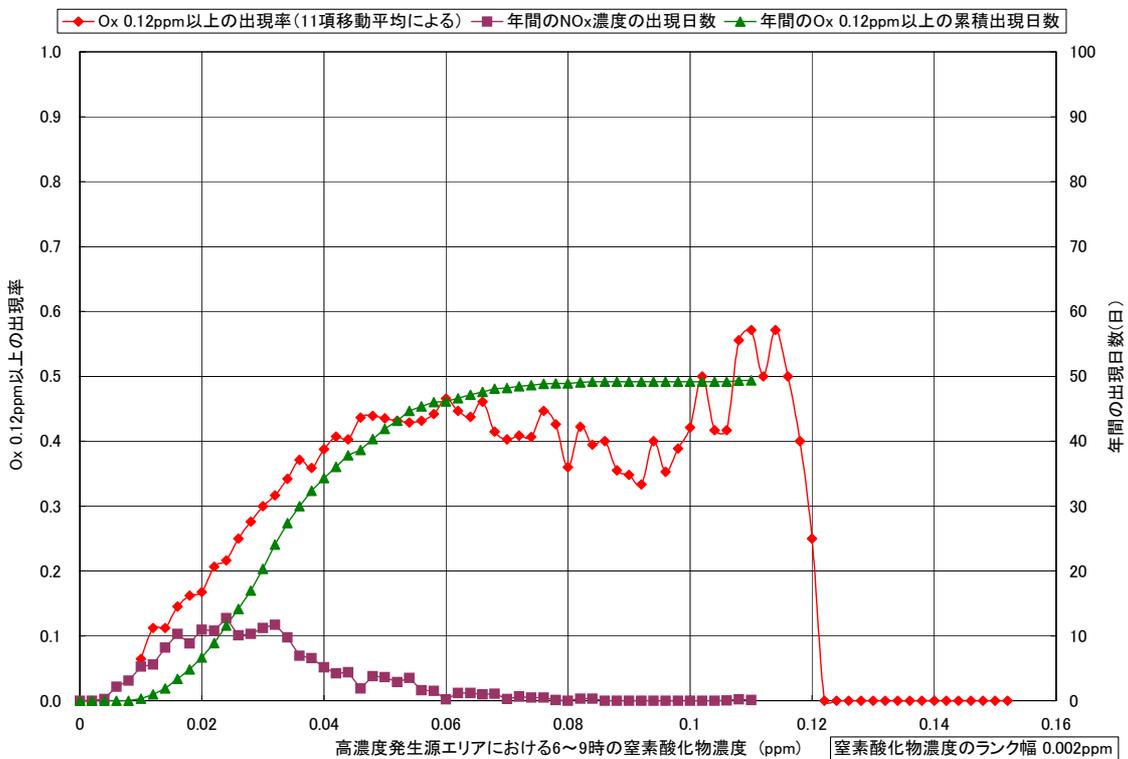


図-45 現況より窒素酸化物濃度30%低下後の6～9時の窒素酸化物濃度の年間出現日数と光化学オキシダント濃度0.12ppm以上の年間出現日数との関係

(2) 試算結果

表-11 に、「高濃度発生源エリア」における 6～9 時の原因物質の濃度の低下率に対する「1 都 6 県解析エリア」における高濃度オキシダント（0.12ppm 以上）の出現日数との関係の試算結果を示す。

これにより、現況では光化学オキシダント濃度が 0.12ppm 以上となる日が年間 62 日（3 年間で 185 日）であるものが、例えば、非メタン炭化水素の場合、6～9 時の環境濃度が 30% 低下すると、0.12ppm 以上となる日は年間 35 日となり、現況よりも高濃度オキシダントの出現日数が約半減することが推計される。

なお、この統計解析手法で算出される低下率とは、環境濃度の低下率であり、排出量との関係を考慮したものではない。環境濃度は、発生源からみた場合、自然界由来も含め炭化水素発生源すべてにかかわるものであり、一般的に、人為発生源における排出量の削減率は、環境濃度の低下率よりも大きくする必要があることに留意する必要がある。

表-11 「高濃度発生源エリア」における 6～9 時の原因物質の濃度の低下率に対する「1 都 6 県解析エリア」における高濃度オキシダント（0.12ppm 以上）の年間出現日数との関係

		光化学オキシダント濃度 0.12ppm 以上の年間出現日数
現況（2000～2002 年の平均）		62 日
非メタン炭化水素 濃度	30%低下	35 日
	40%低下	25 日
	50%低下	17 日
窒素酸化物濃度	30%低下	49 日
	40%低下	43 日
	50%低下	35 日

5. モデルシミュレーションによる原因物質の削減効果の検討

(1) 予測モデルの概要

局地気象モデル(MM5)を用いて気象場を予測し、その気象場と、東京都が調査推計及び環境省並びに関東6県からの提供を受けて作成した発生源データ(HCとNO_x)を入力データとして、大気移流・拡散・反応モデル(CMAQ)により対象日の24時間のオゾン濃度を予測した。

濃度計算対象領域は、関東地方の1都6県を含む600km×600kmの範囲であり、対象日は2002年8月7日と2001年7月23日の2日間である。8月7日は都内が高気圧圏内に位置し、東京、埼玉、千葉等広範囲に亘って高濃度が出現した日であり、7月23日は同様に高気圧圏内であったが、高濃度出現範囲は前者と比較して関東南部の地域に限定されていた。

(2) 現況再現結果の評価と課題

局地気象モデルによって予測した風の場について、地域内の地上気象観測局と風の一致度を確認したところ、8月7日と7月23日共に0.8以上という良好な結果が得られた。

東京都と埼玉県における常時監視局についてオゾン濃度の実測値と計算値を比較評価した結果、両日共に、相関係数や一致度の指標は0.8前後と一定レベルの再現性を示したものの、米国環境保護庁(USEPA)のオゾンモデルの評価基準を満たすには至らなかった。

また、0.14 ppmを超えるような非常に高い濃度が再現されない、実測値と計算値の高濃度出現域がずれるといった問題点が残された。

予測精度の向上のためには、気流分布は良好に再現されているが、一次汚染物質である窒素酸化物についての相関係数や一致度が低いことから、鉛直層の設定や拡散係数等についてさらに検討することが課題である。また、オゾン濃度の評価が低い原因の一つとして、発生源の推定精度が十分でない点もあげられる。①行政が調査保有する排出量のデータは年単位であり、本モデルで使用する日単位の排出量としての精度が確保されていない、②行政における発生源の把握状況から考えると、NMHCは小規模発生源が多いため、NO_xに比べ推定精度は低い、③提供を受けた東京都外の排出量推定精度が不明である、④自然起源量の把握方法が確立されていないことなどの問題点が挙げられ、発生源の把握率を高め、成分別にも排出量の推定精度を上げることがもう一つの重要な課題である。

(3) 将来予測と対策削減ケース

既定対策を見込んだ単純将来を基準にして、様々な削減対策ケースについて予測計算を行った結果、以下のような知見が得られた。

- 単純将来に含まれる既定対策である程度オゾン高濃度の改善が期待できる。

- 既定対策では HC と NO_x の両方の削減が見込まれていることから、HC 単独対策と NO_x 単独対策の各々の効果について解析したところ、8月7日の事例では NO_x 対策が、7月23日の事例では HC 対策が、より効果的であった。
- 東京都及び1都6県の蒸発系 HC について 30%、50%削減を行ったケースの結果から、8月7日の事例では1都6県での対策がより効果的であることが、また、7月23日の事例では東京都のみの対策でも一定の効果があがることが示唆された。
- 自然起源 HC の影響についても8月7日の事例では、7月23日の事例と比べて、その影響が大きかった。
- 予測計算時の境界オゾン濃度を 0.02 ppm に設定して移流影響について検討した結果、8月7日の事例の方がより移流影響が大きかった。

以上のことは、高濃度発生日の気象条件によって高濃度出現地域に影響を及ぼす発生源の位置や排出量が異なることや、HC、NO_x に対する削減対策の効果が異なることが示唆される。

従って、シミュレーションモデルにより原因物質の排出量の必要削減量を求めるためには、現在構築した予測モデルの再現性の向上を図るとともに、より多くの高濃度日を対象とした削減計算を行い、各対象日における削減対策効果を分析する必要がある。

将来、シミュレーションモデルの再現性が評価基準を満足した場合には、図-46 に示すフローにより、原因物質の排出量の必要削減量を求めることとなる。

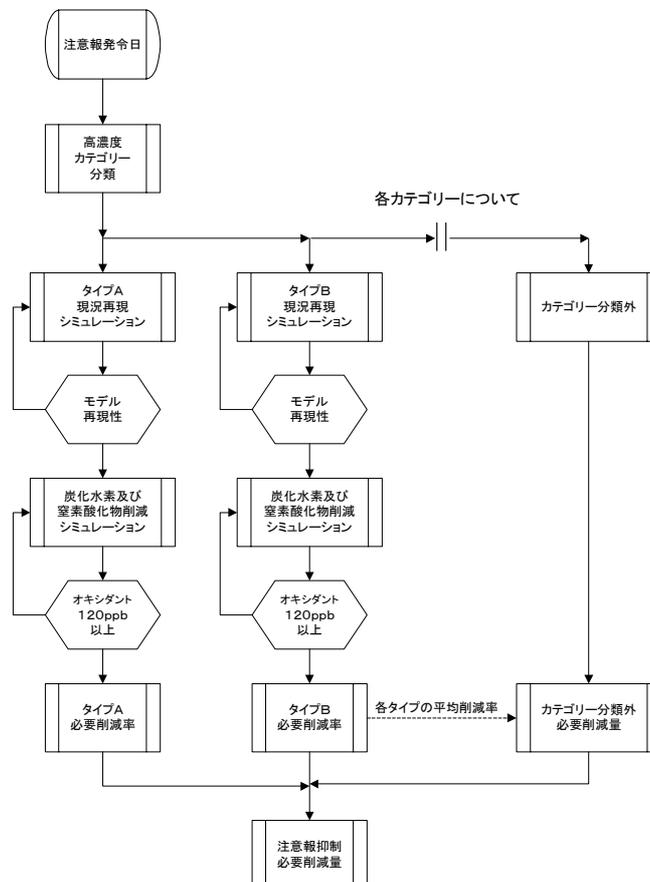
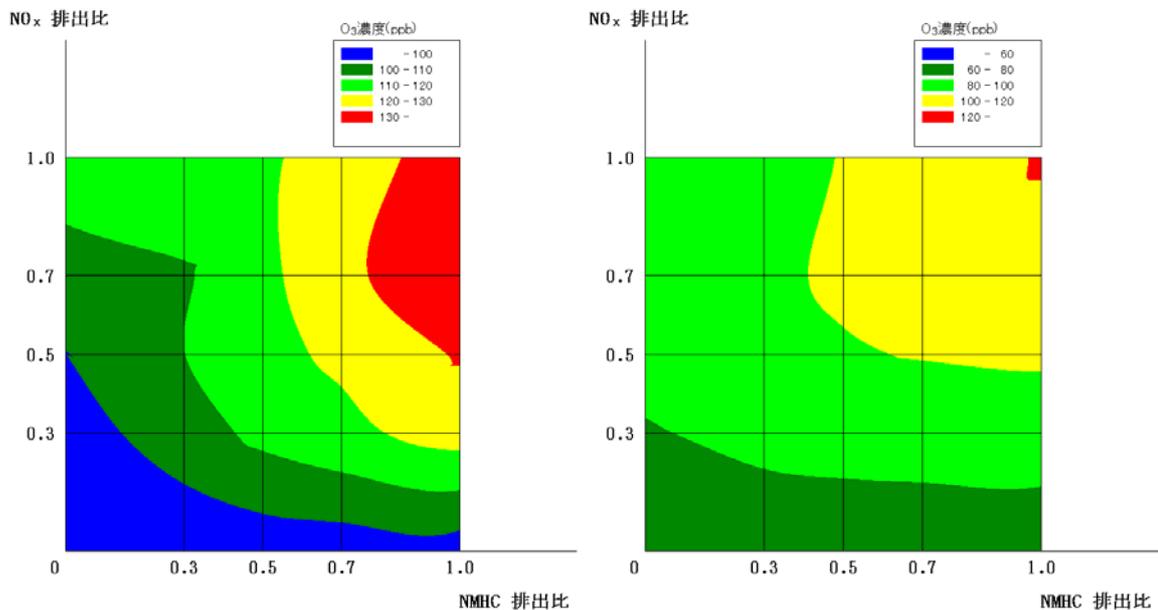


図-46 モデルシミュレーションによる必要削減量算出フロー

(4) 統計的手法による推算結果との比較

シミュレーション結果と本文における統計的手法による推算結果との類似性の有無を検討してみる。ここでは、原因物質の排出量の削減により、ある1日を注目してオゾン濃度の低減が図られれば、日々の集積として高濃度オキシダントの出現日数も低減するとの推測のもとに、類似性の考察をしている。

図-47は、シミュレーション結果を1都6県におけるオゾン濃度の最高値から作成した等濃度線図であり、排出量削減対策の効果を示したものである。



(1) 2002年8月7日の事例

(2) 2001年7月23日の事例

図-47 モデルシミュレーションによる原因物質の排出比（削減前の排出量に対する削減後の排出量の比率）に対応する1都6県におけるオゾン濃度の最高値の等濃度線図

この事例における排出量削減とオゾン濃度低下の効果との関係は、以下のとおりである。

(1) 8月7日の事例

- ① NO_x 排出量を削減せずに（NO_x 排出比が1のままで）、NMHC 排出量を30%削減した場合（NMHC 排出比0.7）、オゾン濃度は低下する。
- ② 逆に、NMHC 排出量を削減せずに（NMHC 排出比が1のままで）、NO_x 排出量を30%削減した場合には（NO_x 排出比0.7）、オゾン濃度は低下せず、対策前と同程度かやや上昇する領域になる。しかし、さらにNO_x 排出量を削減した場合には、オゾン濃度は低下する。
- ③ 両方の原因物質の排出量を30%ずつ削減すると、オゾン濃度はやや低下する。

(2) 7月23日の事例

- ① NO_x 排出量の削減率を一定にして NMHC 排出量の削減率をかえた場合、NMHC 排出量の削減率が大きいほどオゾン濃度の低下がみられる。

- ② NMHC 排出量の削減率を一定にして NOx 排出量の削減率をかえた場合、NOx 排出量の削減率によっては、オゾン濃度が対策前と同程度かやや上昇する領域に入る傾向がある。

以上の排出量削減率とオゾン濃度低下効果との関係について、本文 3 章で推算した表-7 に示す結果 (p.57) と比較すると、以下のようである。

本文における推算結果では、NOx の環境濃度の低下率を一定とした場合では、NMHC の環境濃度の低下率を大きくした方が、高濃度オキシダントの出現日数の低下効果が大きくなる。反面、NMHC の環境濃度の低下率を一定とした場合では、NOx の環境濃度の低下率が大きいほど、高濃度オキシダントの出現日数の減少効果が小さくなる。

これに対し、モデルシミュレーションにより得られた排出量削減率とオゾン濃度の低減効果の関係では、NOx 排出量の削減率を一定とし、NMHC 排出量を削減した場合、NMHC 排出量の削減率を大きくするほど、オゾン濃度が低下する結果となり、2 つのモデルシミュレーションのケースと本文の推算結果の類似性が認められる。しかし、NMHC 排出量の削減率を一定とし、NOx 排出量を削減した場合は、NOx 排出量の削減率を大きくすると必ずオゾン濃度が上昇するという傾向になるわけではなく、NOx 排出量の削減率によってはやや上昇傾向がみられる領域がある。しかし、それ以上の削減率で NOx 排出量を削減する場合にはオゾン濃度は低下するという結果になっており、本文の推算結果の傾向とは異なっている。

[本文の解析で使用了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) 1976～2001 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) 2002 年度：各自治体の大気汚染常時監視データ（横浜市は、1976～2002 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」