

# 光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書

## 中間報告

平成19年12月



## はじめに

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

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

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

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

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

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

平成19年12月

光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会

座長 秋元 肇

## 目次

### はじめに

1．光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況	1
1.1 概要	1
1.2 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況	2
1.2.1 我が国における監視測定体制	2
1.2.2 全国的な状況	2
1.2.3 地域的な状況	7
1.2.4 都市域（関東・関西）における状況	8
1.2.5 遠隔地域における状況	11
1.2.6 最近の高濃度の事例	12
1.3 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況	16
1.3.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制	16
1.3.2 東アジアの状況	16
1.3.3 半球規模での状況	18
2．光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因等	22
2.1 概要	22
2.2 ヨーロッパ、東アジア等から排出される大気汚染物質との関係	23
2.2.1 オゾン前駆物質の排出量	23
2.2.2 東アジアからの影響	26
2.2.3 半球規模でのオゾンの輸送	32
2.3 光化学オキシダントの前駆物質（NO <sub>x</sub> 及びVOC）との関係	35
2.4 気象状況の変化との関係	38
2.5 成層圏オゾン降下との関係	39
2.6 高濃度日における各要因の解析	40
3．今後の課題	42
3.1 調査研究・モニタリングの一層の推進	42
3.2 国内における削減対策等の更なる推進	43
3.3 国際的な取組の推進	43
参考文献	44
光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会委員名簿	49
検討会の開催状況	50

## 1. 光化学オキシダント・対流圏オゾン汚染の状況

### 1.1 概要

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

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

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

光化学オキシダントの前駆物質である NO<sub>x</sub> 濃度及び NMHC 濃度は各種排出量削減対策の効果により、NO<sub>x</sub> は 1996 年度から減少に転じ、NMHC は 1985～2004 年度の 20 年間で概ね減少傾向を示している [1.2.2、図 1-4]。関東地方などの都市域において、1990 年頃は高濃度の測定局が都心部から郊外にかけて広域に分布するようになり、2000 年頃はより高濃度の測定局の分布が広がっている [1.2.4、図 1-9]

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

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

[備考] 我が国においては、大気汚染に係る環境基準項目の一つとして「光化学オキシダント」が定められている。環境基準の告示において、光化学オキシダントとは、「オゾン、パーオキシアセチルナイトレートその他の光化学反応により生成される酸化性物質(中性ヨウ化カリウム溶液からヨウ素を遊離するものに限り、二酸化窒素を除く。)」とされている。光化学オキシダントの大部分はオゾン(O<sub>3</sub>)である。光化学オキシダントの測定値に対するオゾン以外の成分の寄与は極めて小さいことから、光化学オキシダントの測定法にはオゾンを測定対象とする紫外線吸収法及び化学発光法も含まれている。光化学オキシダントによる大気汚染の観点からは、地表付近のオゾンが問題になるため、成層圏に存在するオゾン(成層圏オゾン)と区別する意味で「対流圏オゾン」と呼ばれる。

## 1.2 我が国における光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の状況

### 1.2.1 我が国における監視測定体制

我が国では、大気汚染防止法に基づく都道府県等による大気汚染状況の常時監視の一環として、平成 18 年度（2006 年度）末現在、一般環境大気測定局 1,145 局、自動車排出ガス測定局 27 局において光化学オキシダントの測定が実施されている（環境省,2007d）。

また、これらとは別に、遠隔地におけるオゾン測定が、環境省（国設酸性雨測定所）9 地点、気象庁 3 地点及び国立環境研究所 2 地点で実施されている（環境省, 2007c, 気象庁,2007）。

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

### 1.2.2 全国的な状況

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

また、全国における 1 年間の光化学オキシダント注意報等<sup>2</sup>の発令延日数<sup>3</sup>は、近年 200 日程度で推移している（環境省,2007d）。（図 1-2）

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

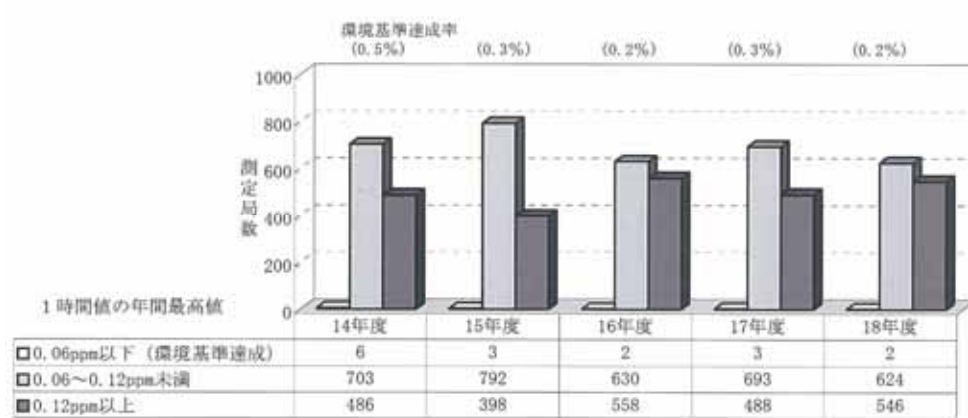


図 1-1 環境基準達成局数の推移(環境省,2007d)

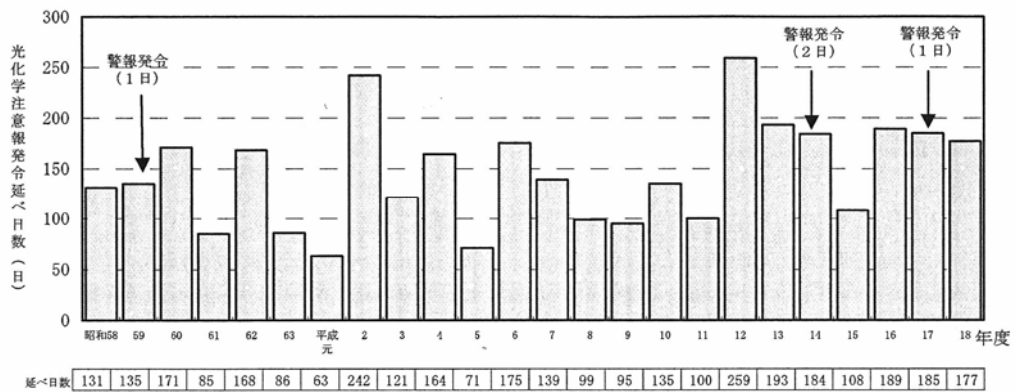


図 1-2 光化学オキシダント注意報等発令日数の推移(環境省,2007d)

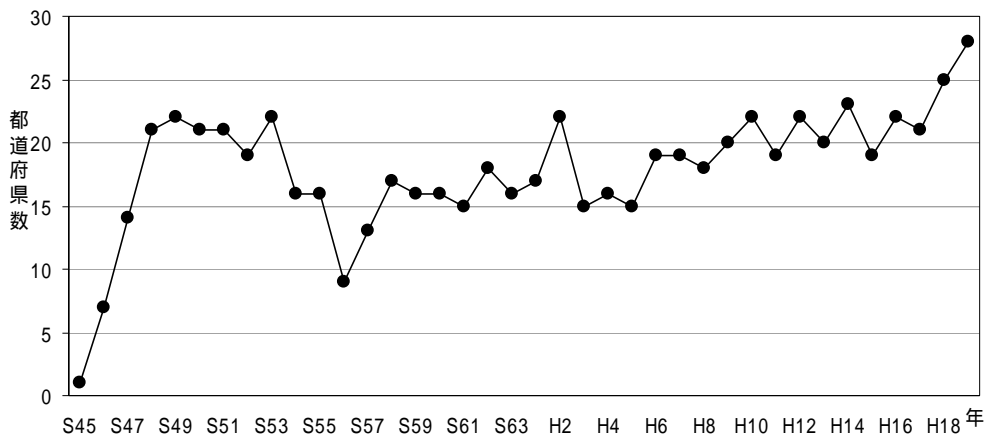


図 1-3 光化学オキシダント注意報等発令都道府県数の推移 (環境省公表資料から作成)

### 1 光化学オキシダントに係る環境基準

環境基準は、人の健康を保護し、生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準として環境基本法に基づき定められている。光化学オキシダントについては、短時間暴露による人の健康への影響を防止するという観点から「1時間値が0.06ppm以下であること。」と定められており、ある測定局において1年間に測定された1時間値のすべてが0.06ppm以下である場合に当該測定局は環境基準達成と評価される。

### 2 光化学オキシダント注意報

光化学オキシダント注意報とは、大気汚染防止法に基づき光化学オキシダント濃度の1時間値が0.12ppm以上になり、かつ、気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合に都道府県知事等が発令する。光化学オキシダント警報は各都道府県等が独自に要綱等で定めているもので、一般的には光化学オキシダント濃度の1時間値が0.24ppm以上で、気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合に都道府県知事等が発令する(一部の県では別の数値を設定している)。ここでは両者を併せて「注意報等」としている。

### 3 発令延日数

発令延日数とは、都道府県を一つの単位として光化学オキシダント注意報等の発令日数を合計したものであり、同一日に同一都道府県内の複数の発令区域で光化学オキシダント注意報等が発令されても、当該都道府県での発令は1日として数える。



光化学オキシダントの前駆物質である窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) 及び非メタン炭化水素 (NMHC) の全国平均濃度の経年変化をみると、大気汚染防止法や自動車  $\text{NO}_x$ ・PM 法、自治体における条例・指導などによる大気汚染物質の排出量削減対策の効果により、 $\text{NO}_x$  は 1996 年度から減少傾向に転じており、NMHC は 1985 年～2004 年度の 20 年間で概ね減少傾向を示しているが、一方、光化学オキシダント濃度は増加傾向にあり、全国の年平均値は 1985～2004 年度の 20 年間で約 5 ppb (0.005ppm) 上昇している。

また、窒素酸化物中の二酸化窒素の濃度の割合 ( $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  比) をみると単調に増加傾向を示しており、特に 1998 年以降は増加率が高くなっている(大原編,2007)。(図 1-4) この原因としては、オゾンの上昇による NO から  $\text{NO}_2$  への変化の増大、自動車排出ガス中の  $\text{NO}_2/\text{NO}_x$  比の増加などの可能性が考えられる。

#### NMHC、VOC 及び NMVOC

$\text{NO}_x$  以外の光化学オキシダントの前駆物質については、NMHC、VOC 及び NMVOC といった捉え方がなされている。

炭化水素のうち光化学的に不活性なメタン ( $\text{CH}_4$ ) を除いたものの総称が NMHC (Non-Methane hydrocarbons) である。大気汚染の常時監視測定局では NMHC の 1 時間値の連続測定が行われている。

測定技術上、NMHC にはアルデヒド類などの含酸素化合物は含まれていない。これら含酸素化合物を含めた揮発性有機化合物全体を VOC (Volatile Organic Compounds) と呼ぶ(若松、篠崎,2001)。(大気汚染防止法に基づく VOC 規制においては、VOC のうち光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質の生成原因とならないメタン等の物質は規制対象外とされている。)

また、VOC のうち  $\text{CH}_4$  を除外した総称を NMVOC (Non-Methane Volatile Organic Compounds) と呼ぶ(国立環境研究所,2001)。

本報告書では、引用している論文に従い、NMHC、VOC、NMVOC を分けて表記をしている。

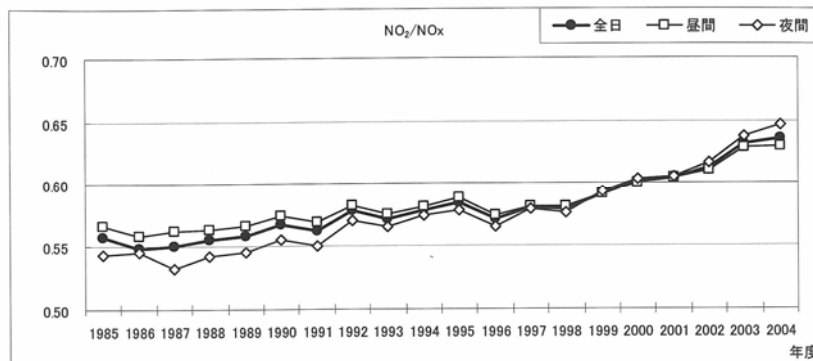
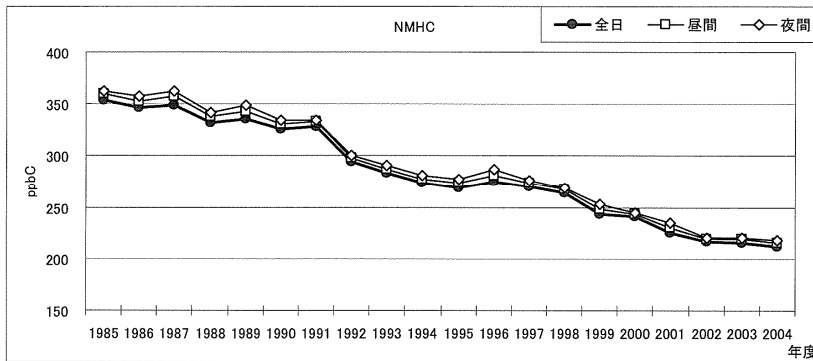
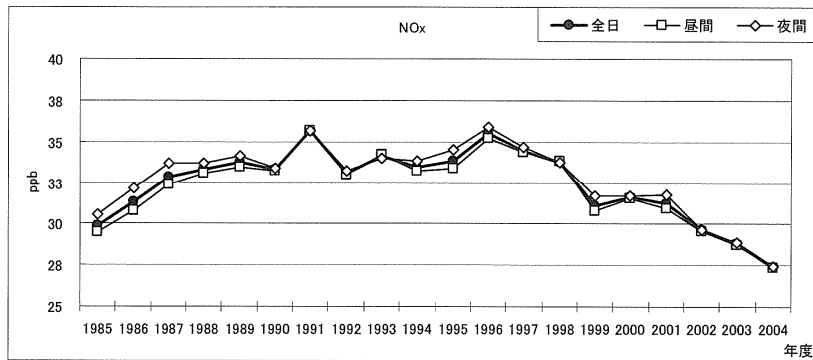
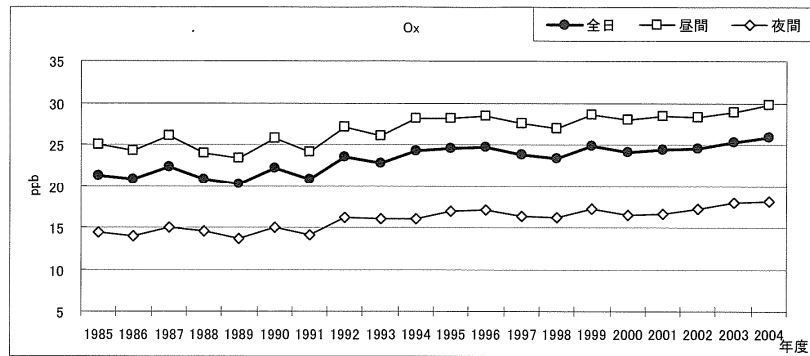


図 1-4 全国の継続測定局における光化学オキシダント、NO<sub>x</sub>、NMHC、NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub> 比の年平均値の経年変化(全日・昼間(5~20時)・夜間(20~翌5時)別の全国平均値)(大原編,2007)

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

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

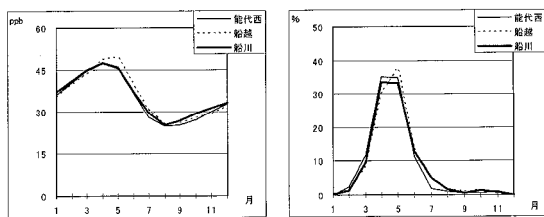
観測地点	季節	境界層オゾン(高度0～2km)の濃度(ppb)		
		1969～1979年(a)	1980～1990年(b)	10年間平均増加量(b-a)
鹿児島	春季	38	48	10
	秋季	30	39	9
	冬季	30	37	7
	平均	33	41	8
つくば	春季	52	59	7
	秋季	39	47	8
	冬季	32	38	6
	平均	41	48	7
札幌	春季	36	45	9
	秋季	24	33	9
	冬季	20	27	7
	平均	27	35	8

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

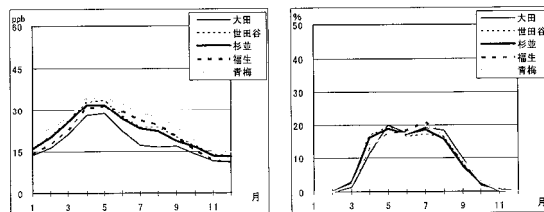
### 1.2.3 地域的な状況

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

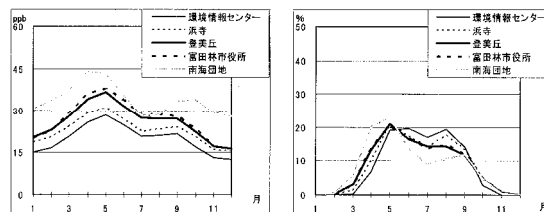
夏季は、全国的に清浄な太平洋由来の高気圧に覆われ、日本に移流する対流圏オゾンは低濃度となる傾向にある。一方、関東、関西において発生する夏季の高濃度は局地的汚染が原因で発生すると考えられている(大原編,2007, 森ほか,2005)。



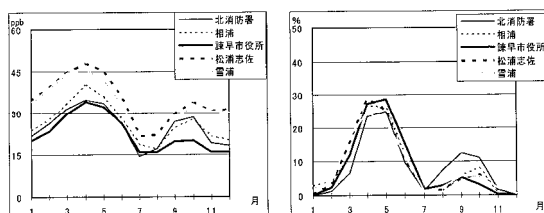
a. 春型の例（秋田県）



b. 春 + 夏型の例（東京都）



c. 春 + 夏 + 秋型の例（大阪府）



d. 春 + 秋型の例（長崎県）

図 1-5 光化学オキシダント月別平均値（左）と環境基準超過時間数の出現割合（右）（1990～2004 年度）（大原編,2007）

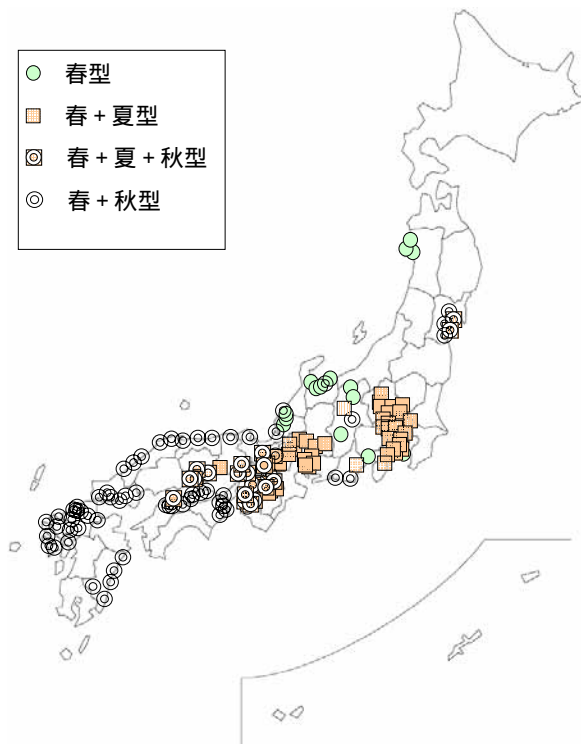


図 1-6 光化学オキシダント月別平均値と環境基準超過出現割合による地点分類結果（1990～2002 年度）（森ほか,2005）

#### 1.2.4 都市域（関東・関西）における状況

都市域においては、光化学オキシダントの前駆物質（ $\text{NO}_x$ 、VOC 等）を排出する工場や自動車等の人為由来の汚染物質の発生源が多く存在するため、都市域周辺では光化学オキシダント注意報が多く発令される。平成 18 年度（2006 年度）の光化学オキシダント注意報レベル（0.12ppm 以上）の濃度が出現した日数の分布をみても、関東及び関西周辺で高濃度が多く出現していることが分かる（環境省,2007d）。（図 1-7）

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

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



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

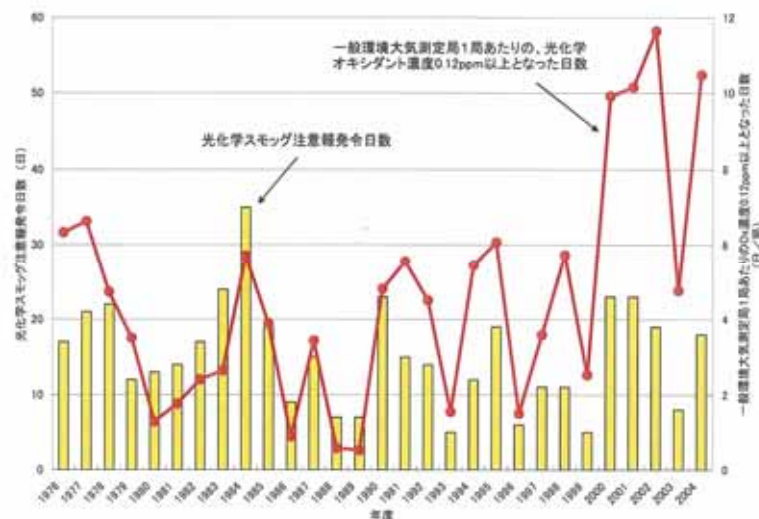


図1-8 東京都における光化学スモッグ注意報発令日数と、一般環境大気測定局1局あたりのオキシダント濃度0.12ppm以上となった日数の経年変化(ただし、2004年度は12月末までの値)(東京都,2005,東京都環境局環境改善部,2005)

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

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

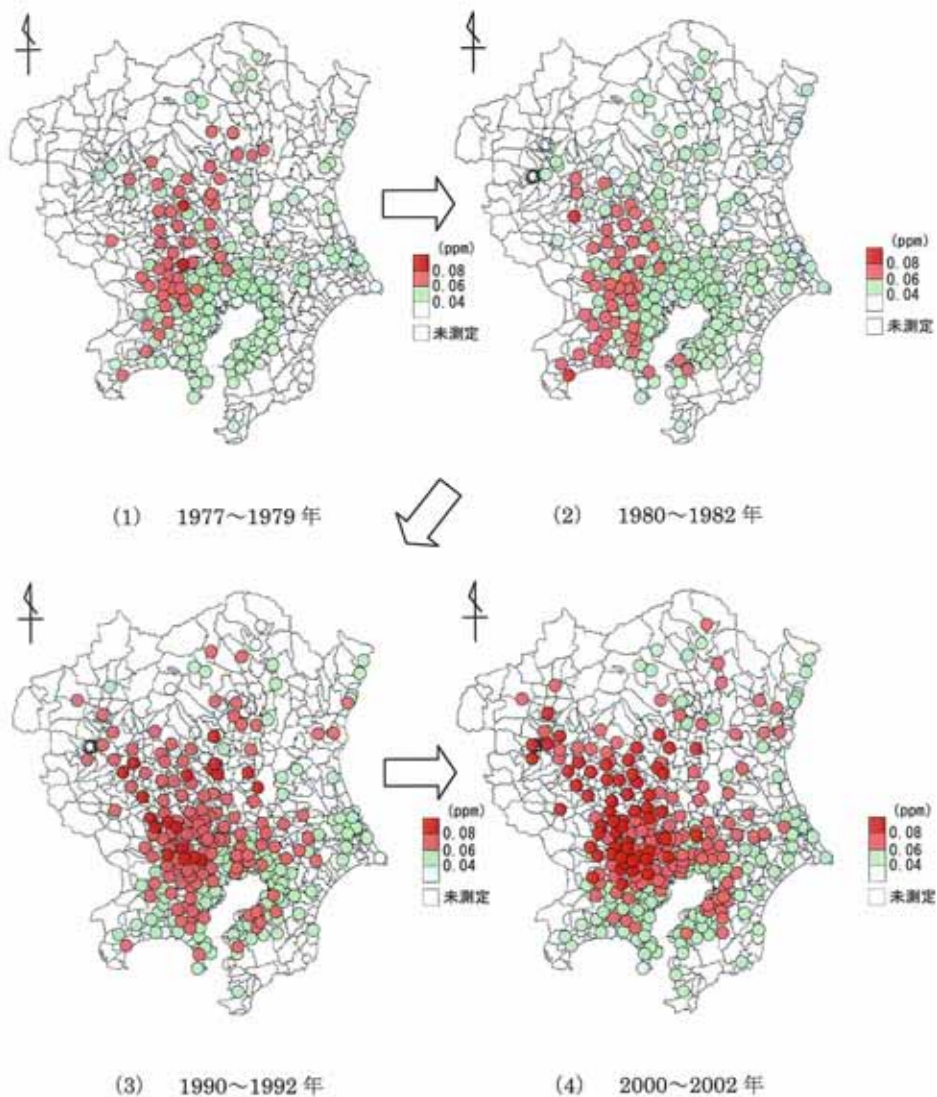


図 1-9 高濃度日 (0.12ppm 以上のオキシダント濃度観測) における 13～16 時のオキシダント濃度の 3 ヶ年平均値(東京都,2005, 東京都環境局環境改善部,2005)

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

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

一方、大阪を中心とする関西地域においては春季に二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）の濃度が高くなることが多いが、この原因として、関西地域では、平均気温が高い、高気圧の中心部が通過しやすいなど、春季に高濃度のオゾンが発生しやすい気象条件が多く出現することがあげられている。高濃度オゾンの発生の要因は、関西地域で発生した大気汚染物質によるものと、地域外からの流入によるものが複合しているとされている(Itano et al.,2006 , Wakamatsu et al.,1998a,1998b , 大原ほか,2001a,2001b , 国立環境研究所,1998 , 若松ほか,2001)。

### 1.2.5 遠隔地域における状況

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

また、月変動については、春季に高濃度、夏季に低濃度となる傾向を示している(環境省,2004,2007c)。（図 1-11）

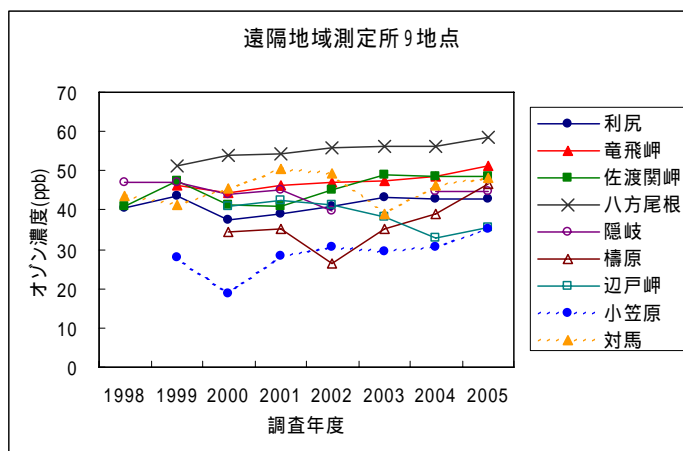


図 1-10 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の年変動(環境省,2004,2007c)



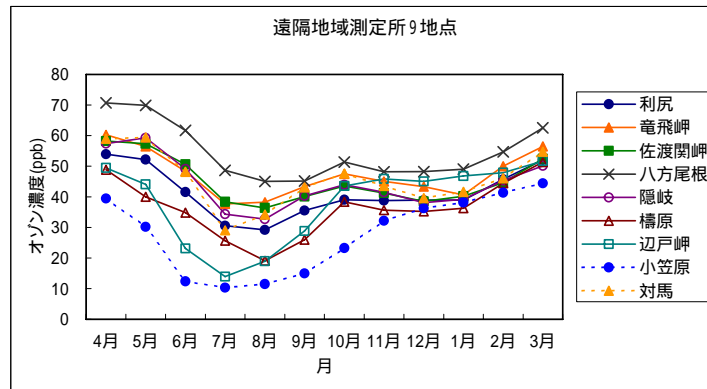


図 1-11 我が国の遠隔地域におけるオゾン濃度の月変動 (1998~2005 年度の平均) (環境省,2004,2007c)

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

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

### 1.2.6 最近の高濃度の事例

#### (1) 広域的に高濃度が観測された事例<平成 19 年 5 月>

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

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

この光化学オキシダント汚染状況に関する東アジアスケールの数値シミュレーションの結果によると、東シナ海に位置する高気圧の北側の西風によってアジア大陸東岸から流れ出した汚染気塊が朝鮮半島南部を経て、九州北部から東日本の広い範囲に高濃度のオゾン域を形成したものと考えられた。このことから、5 月 8、9 日の高濃度オキシダントの発生には、中国や韓国からの越境汚染の影響を受けていた可能性がある。しかし、全国的な濃度分布や



関東地域における高濃度域の時間変化などから判断すると、5月9日に首都圏や関西圏などの大都市域で発生した光化学オキシダントには、都市大気汚染の影響も大きかったと推測されている(国立環境研究所記者発表,2007)。(図1-13)

なお、ここで紹介したシミュレーション結果は研究初期段階のものであり、今後、改訂される予定である。

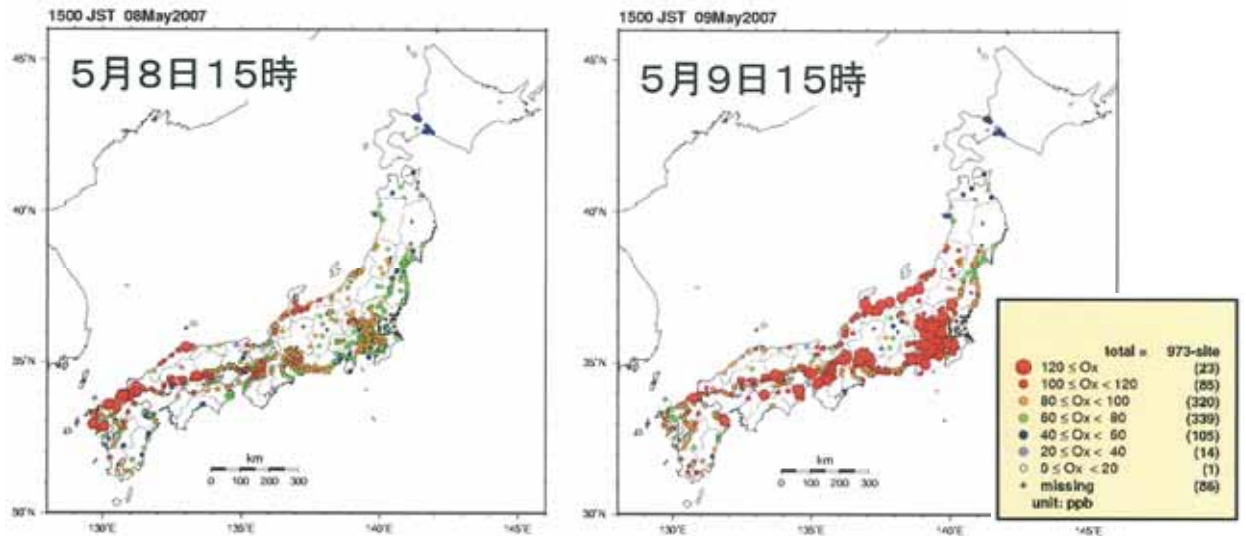


図1-12 平成19年5月8日、9日における全国のオキシダント濃度(速報値)の分布(国立環境研究所記者発表,2007)

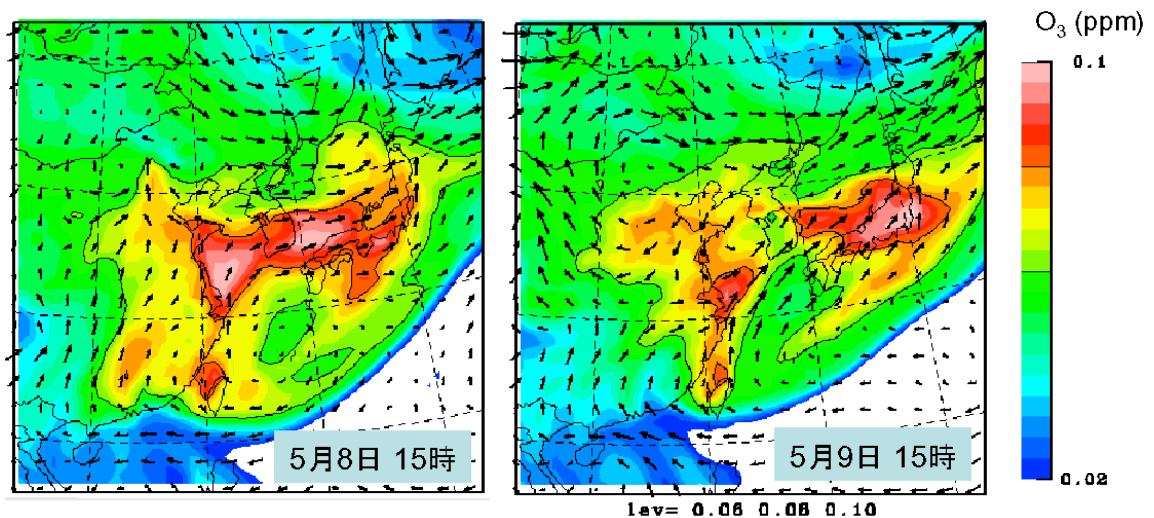


図1-13 化学物質輸送モデルで計算されたオゾンの平均濃度(地上~450m)(国立環境研究所記者発表,2007)

## (2) 夏季の関東における高濃度事例

### 内陸部で高濃度となった事例<平成 17 年 9 月>

平成 17 年(2005 年)9 月 2 日、埼玉県で光化学オキシダント警報が発令されたほか、東京湾沿岸部や栃木県などの内陸部でも光化学オキシダント濃度が高くなり、同年における被害者総数の約 6 割の被害届があった。この日は朝のうちから濃度が高く、下層大気が安定で日照が十分にあるという状況で、東京湾、相模湾からの海風と陸風などによる収束線が、千葉県西部、神奈川県東部及び東京都西部～埼玉県南部にそれぞれ形成され、関東南部では光化学オキシダントの生成が促進されやすい条件が揃っていた。北関東では東京湾や九十九里からの海風が長時間流入しており、午後から夕方にかけて内陸部では高濃度域が発生した。光化学オキシダント最高濃度は、15 時に千葉県野田市桐ヶ作で 0.249ppm を観測した(環境省,2006a)。(図 1-14(左))

### 沿岸部で高濃度となった事例<平成 18 年 7 月>

平成 18 年(2006 年)7 月 14 日、神奈川県を中心に沿岸部で光化学オキシダント濃度が高くなり、同年における被害者総数の約 7 割の被害届があった。この日は下層大気が安定で、朝 9 時に光化学オキシダントの初期濃度としてはやや高い 0.060～0.103ppm を示す地点が東京湾や茨城県の沿岸部で存在し、昼前から濃度が急に上昇した。気象状況は朝から晴れて、最高気温は 35 を超えたところが存在した。朝 9 時には海風と陸風の収束線が東京湾岸と三浦半島から神奈川県中央部にかけて形成され、東京湾海風による収束線は昼頃も引き続き神奈川県中央部に停滞したため、東京湾沿岸部を中心に高濃度の光化学オキシダントが観測された。光化学オキシダント最高濃度は、13 時に東京都品川区豊町で 0.210ppm を観測した(環境省,2007a)。(図 1-14(右))

#### 収束線

日中には陸域が海域よりも気温が高くなり、これによって陸域での気圧が海上よりも低くなる。この気圧差が原因で日中には海からの冷たい風が内陸に進入する。これが海風である。夜間は逆に陸域での気温の低下が海域よりも顕著なので、気圧差は日中と逆になり、陸域の冷たい風が海に向かって風が吹く。これが陸風である。海風、陸風ともに、その先端部分では循環流ができ、この中で大気汚染物質が蓄積され濃度が上昇する。特に、海風が進入する時には陸風との間に明瞭な風の収束域(地上の風系がぶつかり合っている状態を収束といい、収束が現れる場所を収束域という。収束域では、地上風は弱風となり、大気汚染物質の水平移流と鉛直拡散は抑制される。一方、収束域の中心付近では上昇流が発生し、大気汚染物質が循環・滞留する)が出現することが多い。この収束域は異なる海風系(東京湾海風や相模湾海風、鹿島灘海風など)の間にも発生する。収束域は線状に出現し、この線を収束線という。

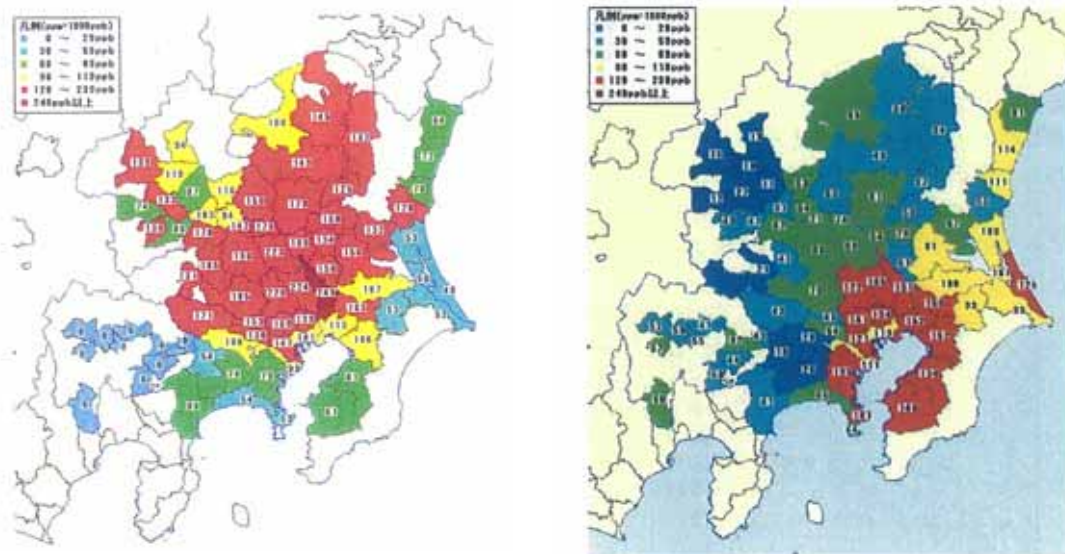


図 1-14 光化学オキシダント予報区分別最高濃度分布 (左：平成 17 年 (2005 年) 9 月 2 日 15 時、右：平成 18 年 (2006 年) 7 月 14 日 15 時) (環境省,2006a , 環境省,2007a)

### 1.3 東アジア及び半球規模のオゾン濃度の状況

#### 1.3.1 東アジア及び半球規模での監視測定体制

東アジアにおいては、EANET 参加国の一部においてオゾンが観測されている(EANET,2007)。

世界規模の観測としては、WMO が GAW 計画に基づき、オゾン地上固定モニタリング地点として世界中の 86 地点(2006 年 11 月時点)の観測網を統合している(WMO,2007)。

ヨーロッパでは国境を越えて長距離を移動する大気汚染物質の量などに関する情報を長距離越境大気汚染条約加盟国で共有するために EMEP が設立され、157 地点のオゾン観測地点(2007 年 9 月時点)が登録されている(EMEP,2007)。

これらの地表オゾンの観測やオゾンゾンデによる観測に加え、近年、衛星観測技術の進歩により、衛星観測データが充実してきている(谷本,2007)。

#### 1.3.2 東アジアの状況

EANET の枠組みにおいて、韓国は 3 地点(遠隔地域 1 地点及び田園地域 2 地点)でオゾン測定しており、2002~2005 年の間では、春季と秋季にオゾン濃度が高く、夏季に低くなる傾向を示している。また、ロシアは 1 地点(遠隔地域)で測定しており、春季に濃度が高くなる傾向を示している。(図 1-15)

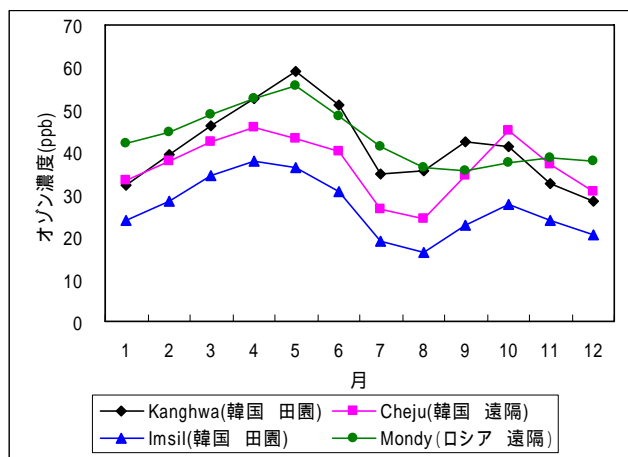


図 1-15 韓国及びロシアの遠隔地域または田園地域におけるオゾン濃度の月別平均値(2002~2005 年の平均)(EANET 公開データより作成)

ソウル(都市域)では、1990~1996 年における日最高 1 時間値の月平均オゾン濃度が 5~6 月に高くなっており、8~10 月にセカンドピークが現れていた(Jo et al.,2000)。

東アジアの中でも亜熱帯に属する台湾の台北（都市域）では、オゾン濃度の日最高1時間値の年平均が10年間（1994～2003年）で3割増加している。また、季節変動は春季に高くなり、夏季に低くなる傾向を示していた(Chou et al., 2006)。

中国では、春季から夏季における華北平原及びその周辺の3地点（泰山、華山、黄山）のオゾン濃度は、5～6月の初夏に月平均値は約80ppb、1時間最高値は120ppbを超えるなど、日本の都市域における光化学オキシダント濃度レベルに匹敵している(Akimoto et al., 2007, Li et al, 2007)。

領域化学輸送モデルによって再現された東アジアの境界層のオゾン濃度（2002年）は、冬季と比較して春季や夏季に上昇している。夏季についてはアジア大陸で濃度が高くなっているが、日本付近では太平洋からの南風が強くオゾン濃度が非常に低い気団の影響を受けることにより、アジア大陸からの影響が小さくなるため、春季に最高濃度となっている(Tanimoto et al., 2005, Yamaji et al., 2006a, 谷本, 2007)。(図1-16)

ただし、このような東アジアなどの領域スケールでみた場合と異なり、都市スケールでは、前述のとおり、日本においても大都市地域で光化学反応が活発な夏季に光化学オキシダント濃度が高濃度となることに注意する必要がある。

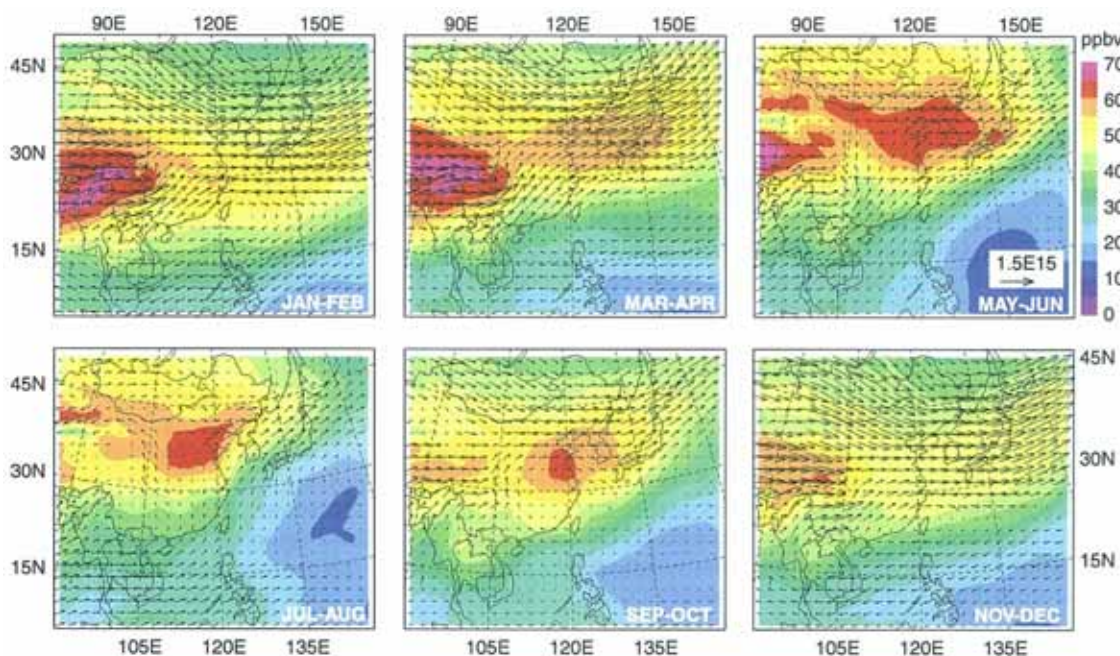


図 1-16 領域化学輸送モデルによる境界層オゾンの2ヶ月平均値(Yamaji et al., 2006a)



### 1.3.3 半球規模での状況

北半球（中高緯度）の遠隔地域における地表オゾン濃度は、19世紀末の工業化以前は10ppb程度であったとされている(Volz and Kley,1988)。この観測値については精度に疑問が呈されているが、仮にこれを20ppbとしても、近年のオゾン濃度は40～50ppbと工業化以前に比べ2倍以上に増加している(Lamarque et al.,2005, Vingarzan,2004, 秋元ほか編,2002)。(図1-17)

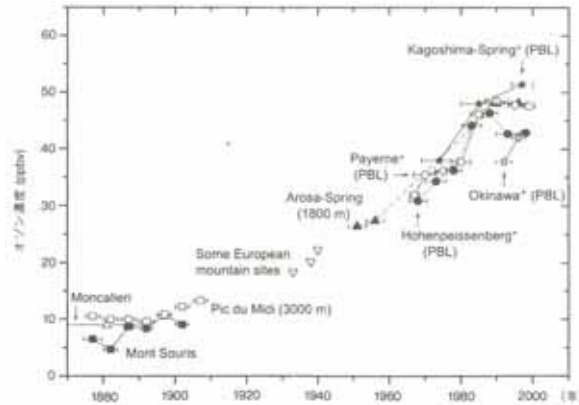


図1-17 北半球中緯度における春季地表付近のオゾン濃度変化(秋元ほか編,2002)

ヨーロッパや北米では、NO<sub>x</sub>やNMHCなどのオゾン前駆物質の排出が減少したことからピークオゾンの濃度は減少しているが(図1-18)、一方で、アイルランドのMace HeadやドイツのZugspitze、北米西海岸などのバックグラウンドにおいては、オゾン濃度は増加傾向を示している(Jaffe et al.,2003, Jonson et al.,2006, Simmonds et al.,2004, TF HTAP,2007)。(図1-19) その増加幅は、Mace HeadやZugspitzeでは、近年は夏季に小さく、冬季に大きくなっている(Oltmans et al.,2006)。(図1-20)

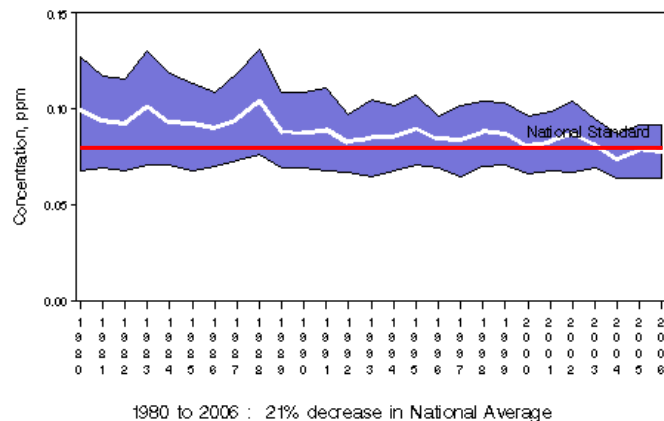


図1-18 米国(275地点)における1980～2006年のオゾン濃度の変動(8時間平均値の年間上位4番目の値、白線は全地点の平均値、赤線は米国の環境基準(8時間平均値:0.08ppm)) (EPA National Trends in Ozone levels より作成)

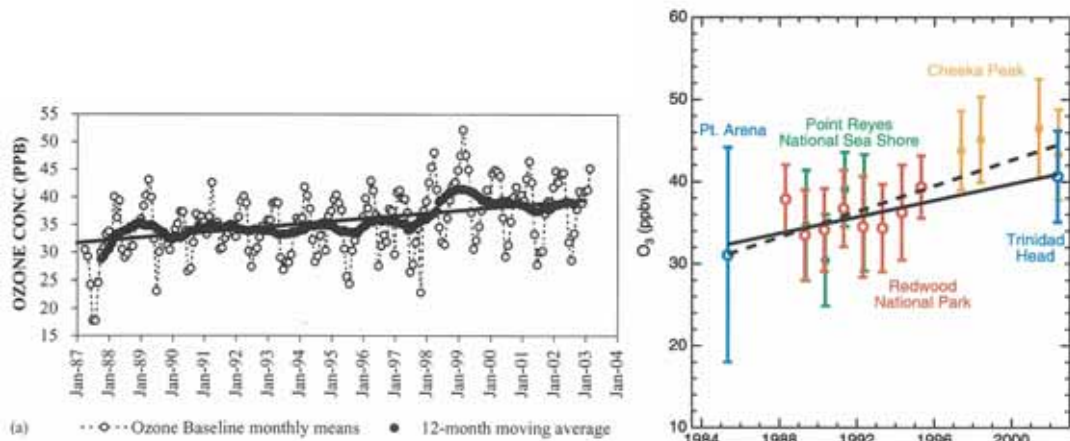


図 1-19 バックグラウンドオゾン濃度の変動 (左: Mace Head (Simmonds et al.,2004) 右: 北米西海岸 (春季平均) (Jaffe et al.,2003))

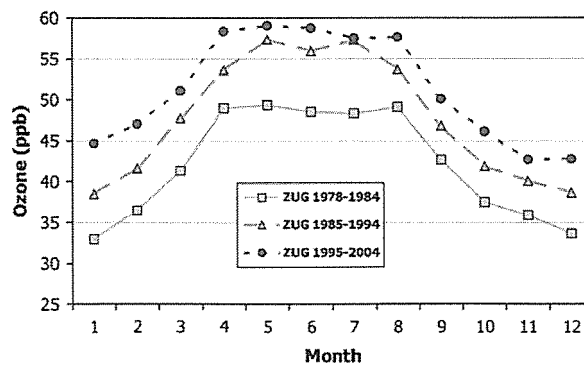


図 1-20 Zugspitze (ドイツ) における月平均の地表オゾン (第一期間: 1978~1984 年の平均、第二期間: 1985~1994 年の平均、第三期間: 1995~2004 年の平均) (Oltmans et al.,2006)

地表オゾンの観測結果によると、北半球の中高緯度の遠隔地域 (アイルランドの Mace Head やハワイの Mauna Loa 等) では、春季に最大、夏季に最小となる傾向が広く観測されている (Lelieveld and Dentener,2000 , Monks,2000)。一方で、スイスの Jungfrauoch やドイツの Zugspitze のようなヨーロッパ大陸内に位置する地点においては、夏季のブロードなピークが観測されている (Lelieveld and Dentener,2000 , Oltmans et al.,2006)。(図 1-21)

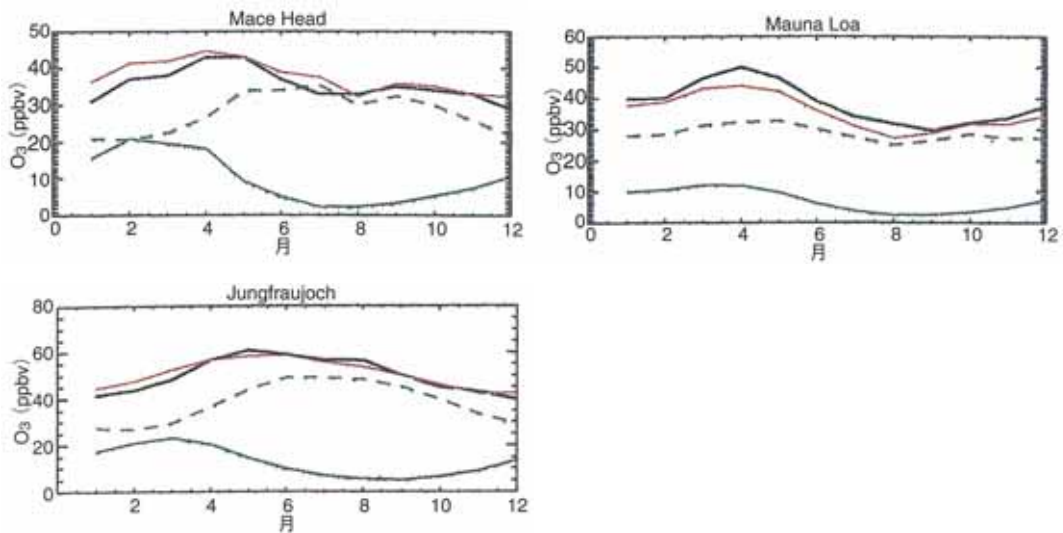


図 1-21 Mace Head (左上)、Mauna Loa (右上)、Jungfraujoch (左下) におけるオゾンの観測値 (黒線) と計算値 (赤線)。下の実線はモデルで得られた成層圏起源オゾン、破線は対流圏内で生成されたオゾン濃度 (Lelieveld and Dentener,2000)

衛星観測による対流圏オゾンのカラム密度の全球分布は、北半球 (中高緯度) の夏季に最大となり、春季及び秋季には北米東部からヨーロッパ及び東アジアなど人間活動が盛んな地域とその東側 (風下側) に、高濃度のオゾンが分布している (Fishman and Brackett,1997, 秋元ほか編,2002)。(図 1-22)

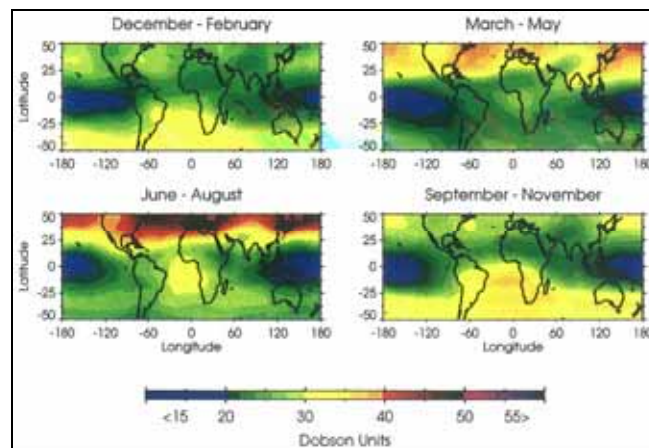


図 1-22 衛星観測による季節別オゾン全球分布 (Fishman and Brackett,1997)

対流圏オゾンのカラム密度

オゾンの量を地表から対流圏界面まで垂直に積分した単位面積あたりの数密度 (molecules/cm<sup>2</sup>)。オゾンの場合、通常、ドブソン単位 (DU) で表されることが多い。1 DU はオゾンのカラム密度を標準状態 (0、1気圧) での厚み (mm) に換算し、その数値を 100 倍した値に相当。1DU = 2.687 × 10<sup>16</sup> molecules /cm<sup>2</sup> (秋元ほか編,2002)



北半球中高緯度の対流圏内で高度別のオゾン濃度の季節変化は、高度 2 km 程度(800hPa)までは地表と同様の傾向にあるが、上層に行くほど季節変化のパターンに地域差がなくなり、濃度のピークが春季へシフトしている (Logan,1999 , 秋元ほか編,2002)。( 図 1-23 )

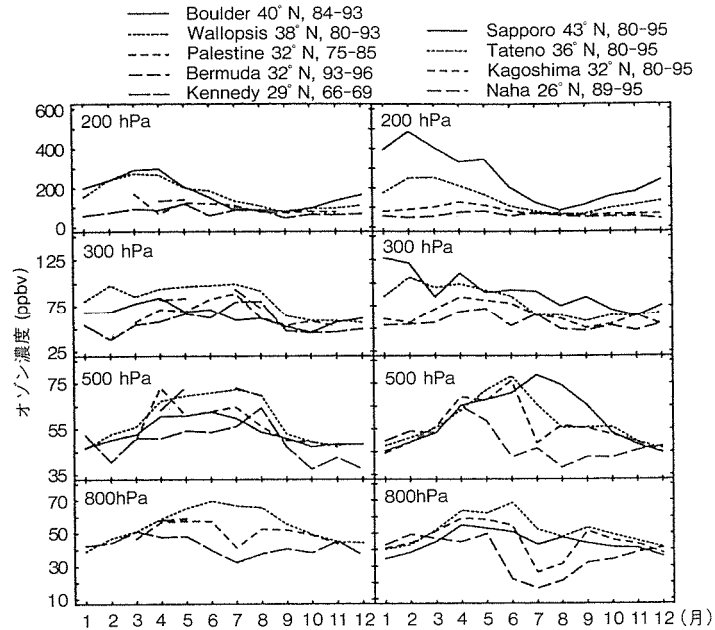


図 1-23 米国、西部大西洋、日本における高度別オゾンの季節変化 ( Boulder : 米国コロラド州 ( 米国西側 ) Wallopsis ( Wallops Island ): 米国バージニア州 ( 米国東側 ) Palestine : 米国テキサス州 ( 米国中央 ) Bermuda : バミューダ ( 西部大西洋 ) Kennedy : 29 ° N、31 ° W、Sapporo : 札幌、Tateno : 館野、Kagoshima : 鹿児島、Naha : 那覇(Logan,1999 , 秋元ほか編,2002)

## 2. 光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因等

### 2.1 概要

我が国の光化学オキシダント・対流圏オゾン濃度の上昇トレンドの要因等に関する知見を整理した。その概要は以下のとおりである。

北半球においては、我が国を含め、対流圏オゾンのバックグラウンド濃度が上昇する傾向にある [ 1.2.5、図 1-10、1.3.3、図 1-19 ]

NO<sub>x</sub> ( オゾンの前駆物質の一つ ) の排出量については、北米、ヨーロッパ及び我が国においては近年減少しつつあるが、アジア地域においては、1980 年以降の 20 年間に 2.8 倍に増加したとの推計結果がある [ 2.2.1、図 2-1、図 2-2 ]

また、我が国のオゾン濃度については、例えば、1980～2003 年のシミュレーションを行った結果、東アジア地域の排出量の増加によって我が国の地上オゾンの年平均濃度が 5ppb 程度上昇することが示されたとの報告があり、アジア地域における越境輸送の影響も近年増大していると考えられる [ 2.2.2、図 2-5 ]

こうしたことから、近年の北半球のバックグラウンドオゾン濃度の上昇及びアジア地域から排出される NO<sub>x</sub> 等の大幅な増加に伴うアジア地域における越境輸送の影響の増大が、我が国の光化学オキシダント濃度の長期的上昇トレンドの要因の一つになっていると推定される。

アジア大陸から我が国への影響については、領域化学輸送モデルによる月平均レベルでの再現シミュレーション、後方流跡線解析等によって、我が国を通過する気塊ルートの違い等により、地域的・季節的に、また日によって大きく変動することが明らかになっている [ 2.2.2、図 2-9、2.2.3、2.6 ]

月平均値レベルでのアジア大陸からの寄与の一例として、領域化学輸送モデルの再現結果によれば、我が国のオゾン濃度に対する東アジアからの影響は、4 月の月平均で 5～10ppb 程度、5 月は 10～20ppb 程度の寄与がみられる [ 2.2.2、図 2-8 ]。この例では、本州付近のオゾン濃度に対する東アジアからの影響は、概ね 10～20 数%程度と考えられる。

光化学オキシダントの前駆物質である NMHC/NO<sub>x</sub> 比について、首都圏ではその上昇が光化学オキシダントの高濃度出現割合を増加させている可能性があるが、全国的な NMHC/NO<sub>x</sub> 比の長期的な減少傾向を踏まえれば、この比の変化が、全国的な光化学オキシダント年平均濃度の長期的上昇をもたらした可能性は少ないと考えられる [ 2.3、図 2-16 ]

その他の要因として、1990 年以降紫外線量が増加しており、これが光化学オキシダント濃度の上昇トレンドの一因になっている可能性は否定できないが、その定量的評価はなされていない [ 2.4 ]

また、成層圏オゾンの降下については、対流圏オゾンの季節変化や地域による濃度差に影響するものの、対流圏オゾン年平均濃度の長期的上昇に及ぼす影響はみられないとされている [ 2.5 ]

## 2.2 ヨーロッパ、東アジア等から排出される大気汚染物質との関係

### 2.2.1 オゾン前駆物質の排出量

ヨーロッパ及び北米大陸における  $\text{NO}_x$  の排出量は、1980 年代以降概ね横ばいとなった。さらに、ヨーロッパ大陸では 90 年代から減少傾向に転じ (Akimoto,2003)、米国では 2000 年頃から減少傾向が顕著にみられるようになった (EPA,2007)。

一方、アジア大陸の  $\text{NO}_x$  排出量は、70 年代には少なかったが、その後の急激な増加により、90 年代半ばにはヨーロッパ及び北米両大陸の排出量を凌ぐレベルに至っており (Akimoto,2003, 山地・秋元,2007)、1980 年～2003 年の期間に、アジア全体の  $\text{NO}_x$  排出量は 2.8 倍 (中国は 3.8 倍) に増加している。また、非メタン揮発性有機化合物 (NMVOC) 排出量も、アジア全体で 2.1 倍 (中国は 2.5 倍) に増加している (Ohara et al.,2007a)。(図 2-1, 図 2-2)

中国における  $\text{NO}_2$  の排出量の増加は、衛星観測 (対流圏大気化学衛星センサー: GOME) の結果からも確認されており、東アジアにおける 1996 年と 2002 年の 1 月の  $\text{NO}_2$  対流圏カラム密度を比較すると、1996 年に比べて 2002 年は高濃度の領域が広がっている。中国における  $\text{NO}_2$  の濃度上昇は中国国内の地表付近のオゾン濃度を増加させてきたばかりでなく、越境大気汚染により我が国のオゾン濃度の増加原因となっていることが推定される (Irie et al.,2005, 海洋研究開発機構プレスリリース,2005)。(図 2-3)

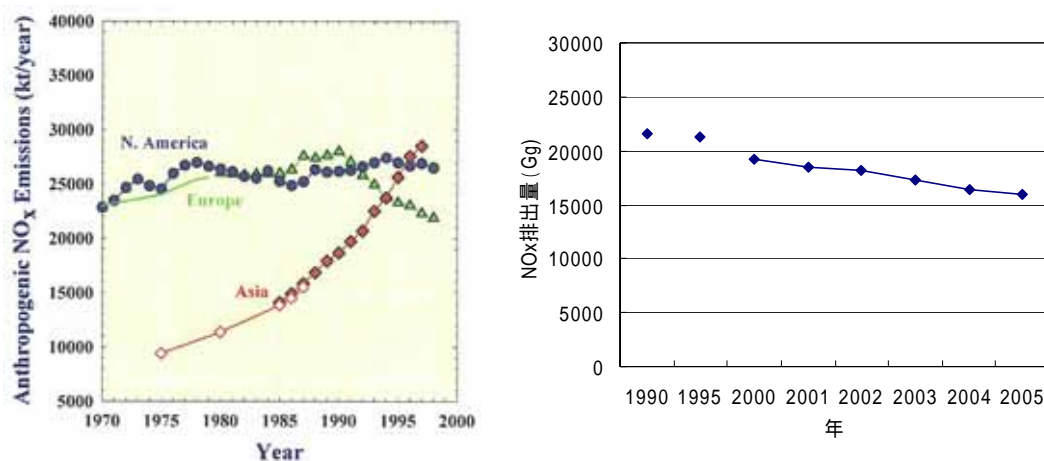


図 2-1 人為起源  $\text{NO}_x$  排出量のトレンド (左側: 1970～2000 年の北米 (米国及びカナダ)、ヨーロッパ (旧ソ連を含む)、アジア (東アジア、東南アジア及び南アジア) (Akimoto,2003)、右側: 近年の米国のトレンド (EPA,2007 より作成))

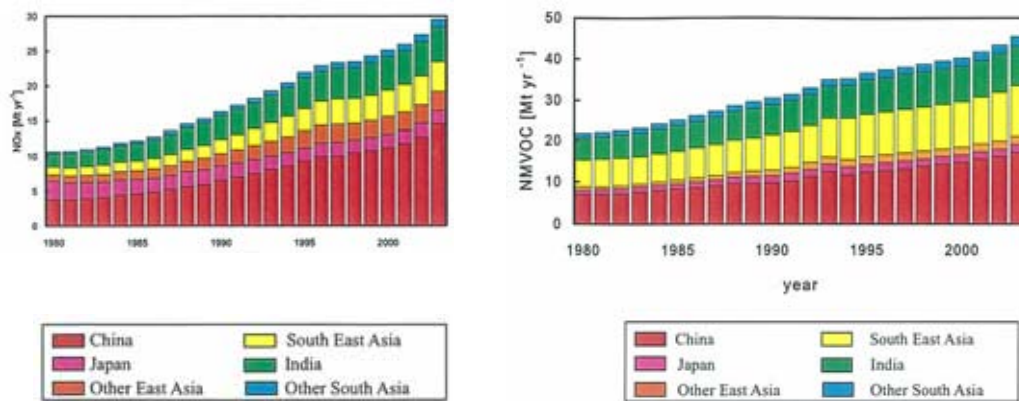


図 2-2 アジア全体の NO<sub>x</sub> 及び NMVOC 排出量推計値(Ohara et al.,2007a)

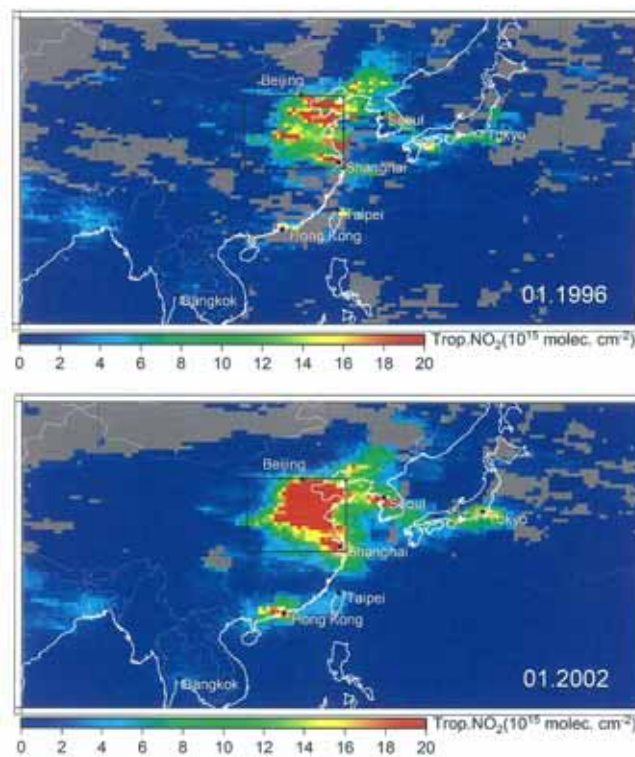


図 2-3 GOME によって測定された東アジアにおける NO<sub>2</sub> の対流圏カラム密度の分布 (上図: 1996 年 1 月、下図: 2002 年 1 月) グレー部分はデータの欠損箇所。(海洋研究開発機構プレスリリース,2005)

[ 参考 ]

ここまで、オゾンの前駆物質として NO<sub>x</sub> 及び NMVOC (または NMHC) に注目して記載してきた。しかしながら、対流圏における光化学反応のメカニズムにおいては、一酸化炭素 (CO) 及びメタン (CH<sub>4</sub>) は、特に清浄な対流圏大気中では OH ラジカルの主要な消失源となっていることから重要な役割を担っているとの指摘がある(秋元ほか編,2002, ジェイコブ,2002)。

汚染のない大気では、CH<sub>4</sub>と反応するOHラジカルの割合は約20%であり、残りの約80%はCOと反応する。このため、大気中におけるCOの濃度の変化がOHラジカルを介してCH<sub>4</sub>濃度に影響を及ぼすことになる(秋元ほか編,2002)。

大気汚染物質の半球規模輸送に関するタスクフォース(TF HTAP)ではオゾンの前駆物質排出量を20%削減した場合のオゾン濃度への影響について報告している(TF HTAP,2007)。この中では、CH<sub>4</sub>の10年程度の寿命を考慮した長期的なタイムスケールで検討すると、世界規模で人為起源CO排出量を削減することはOHラジカルの増加を促し、OHラジカルがCH<sub>4</sub>を減少させるため更なるオゾン濃度の減少につながることを示されている。また、世界規模でCH<sub>4</sub>を削減することはオゾン濃度に対して、長期的なスケールの中では大きな効果を持つ可能性があることが報告されている。

一方で、アジアにおけるCO排出量推計をみると上昇傾向を示しており(Ohara et al.,2007a)、NO<sub>x</sub>やNMVOCだけでなく、長期的視点においてはCOについても排出量削減が重要な課題であるといえる。

また、CH<sub>4</sub>や対流圏オゾンは温室効果ガスとしても重要な物質であることが知られている(IPCC,2007)。地球温暖化の観点からも濃度の推移に注意をする必要があり、これらの物質を削減することで、大気汚染物質と温室効果ガスを一体的に削減する相乗便益(コベネフィット)が期待される。(図2-4)

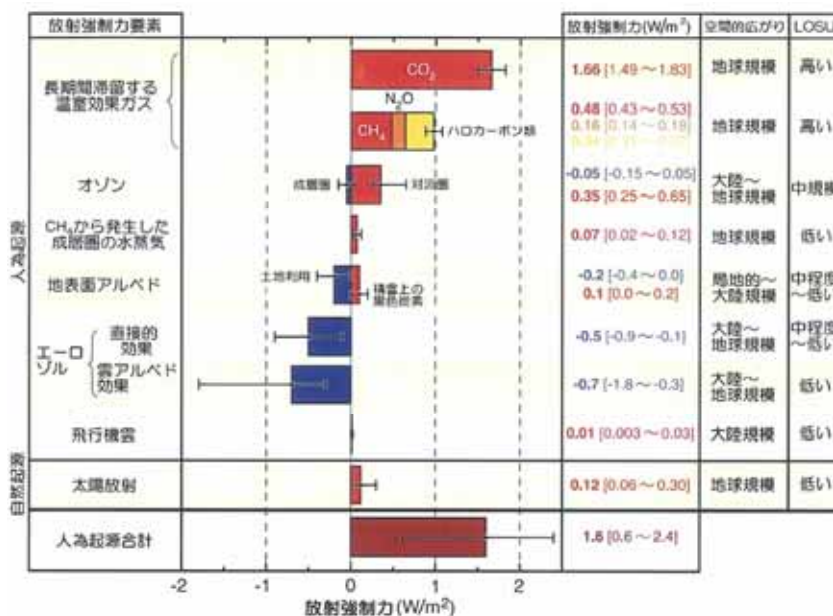


図 2-4 各種温室効果ガスの 2005 年時点で世界平均した放射強制力 の推定値(IPCC,2007)

放射強制力

ある因子(温室効果ガス等)が地球 大気システムに出入りするエネルギーのバランスを変化させる影響力の尺度であり、気候を変化させる可能性の大きさを示す。放射強制力は、1 平方メートル当たりのワット数 (W/m<sup>2</sup>) で表される(気象庁,2001)。

## 2.2.2 東アジアからの影響

西日本一帯では春季に高濃度ピーク、秋季にそれに次ぐ高濃度ピークが観測されている(大原編,2007, 森ほか,2005)。この傾向は、前述のモデル計算結果(Yamaji et al.,2006a)と一致しており(図 1-16 参照) 東アジア規模汚染の季節変動を反映していると考えられる。さらに、四国及び九州における濃度の経年的な増加が大きいことが、東アジアからの影響が経年的に増加していることを示唆している(大原・坂田,2003)。

我が国における近年のオゾン濃度上昇トレンドに対する東アジア大気汚染物質排出量増加の影響を解析した研究報告を下記に示す。

1980~2003 年の日本のオゾン濃度を領域化学輸送モデルにより再現した結果をみると、この期間に約 5ppb 増加しており、観測結果の増加量とほぼ一致している。ここでみられるオゾン濃度と中国の排出量の上昇傾向は非常に類似している。また、気象と排出量の経年変化・年々変動に対するオゾン濃度の応答を解析するために、各年の気象と排出量を与えた計算「CNTL ( $E_{yy}M_{yy}$ )」と 2000 年の気象に固定し、排出量のみ各年のデータを用いた気象固定の計算「 $E_{yy}M_{00}$ 」の結果をみると、オゾン濃度の年々変動は気象変動に起因しているが、経年的なオゾン濃度の上昇はアジアの排出量の増加に支配されていると考えられる(Ohara et al.,2007b)。(図 2-5)

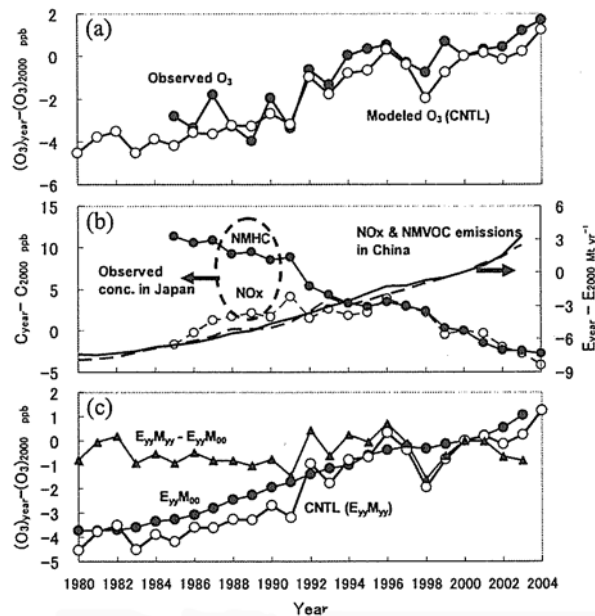


図 2-5 上段 (a) 日本のオゾン濃度の実測値と計算値、  
 中段 (b) 日本の NO<sub>x</sub>、NMHC 実測濃度と中国の NO<sub>x</sub>、NMVOC 排出量、  
 下段 (c) 計算結果  $E_{yy}M_{yy}$  (排出量の経年変化に対する応答)  $E_{yy}M_{00}$  (2000 年の気象に固定し、排出量のみ各年のデータを用いた計算)  $E_{yy}M_{yy} - E_{yy}M_{00}$  (気象の年々変動による応答) による日本のオゾン濃度(Ohara et al.,2007b)

また、アジア大陸からの越境汚染の影響が大きかったと考えられる 2007 年 5 月 7~9 日の気象状況を用い、中国の窒素酸化物排出量を現状の半分（1992 年レベルに相当）に全国一律に設定した感度解析のシミュレーションの結果によると、2007 年 5 月の事例は 1992 年時に比べ 5~10ppb 程度（3 日間平均値）上昇しており、その上昇率は九州から西日本にかけて大きいことが示された(国立環境研究所記者発表,2007)。

東アジアの大気汚染物質の排出量増加が我が国のオゾン濃度を増加させていることを示唆する結果は、オゾンゾンデによる対流圏オゾンの観測結果からも得られている。

1970 年から 2002 年の間の札幌、つくば及び鹿児島におけるオゾンゾンデの観測結果から、上空の対流圏オゾンが広域にわたって増加していることが分かる。(図 2-6)

この対流圏オゾン濃度の増加要因を解明するために、後方流跡線解析を行った結果をみると、1970~1985 年と 1986 年~2002 年における中国・韓国などの汚染地域を通過してきた気塊中のオゾン濃度（つくば及び鹿児島上空 2.1km から 4.3km の平均）の比較では、後者の濃度が一年を通して高くなっている。この期間の東アジアにおける窒素酸化物等の排出量は、我が国ではほぼ横ばいないし減少しているが、中国では増加し続けており、これらのことから、アジア大陸における窒素酸化物等の排出量の増加が、風下側の我が国の対流圏オゾン濃度を増加させていたと推定される(Naja and Akimoto,2004, 海洋研究開発機構,2004)。(図 2-7)



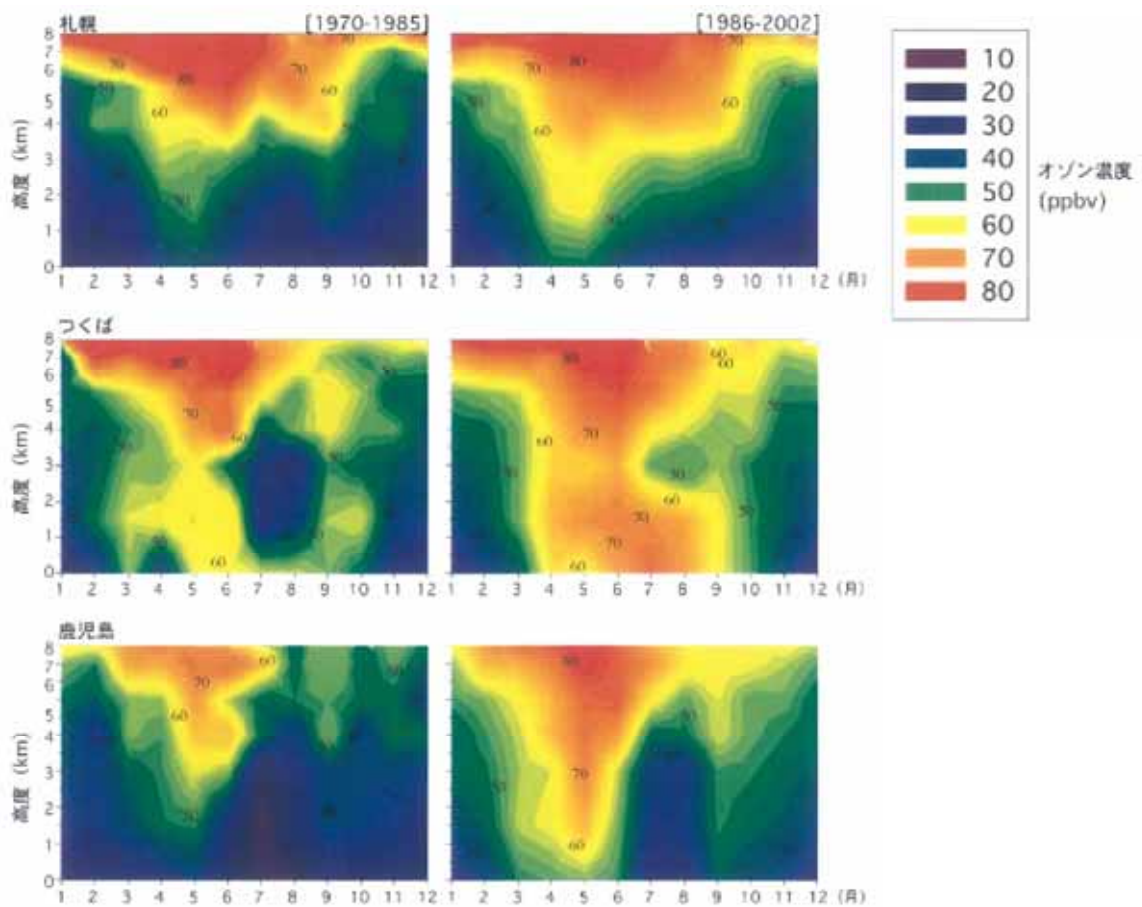


図 2-6 日本上空における 1970～1985 年(左)と 1986～2002 年(右)のオゾン濃度の比較 (Naja and Akimoto,2004 , 海洋研究開発機構プレスリリース,2004)

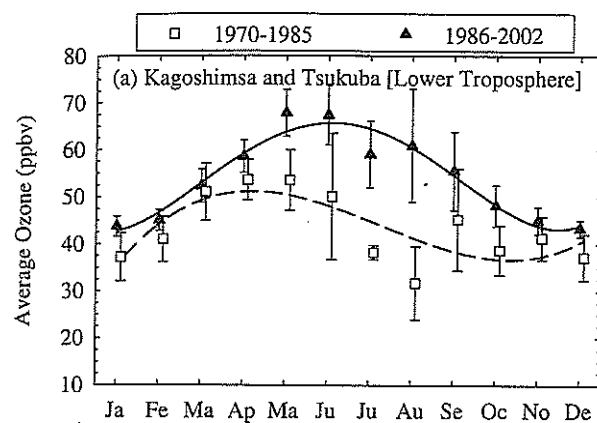


図 2-7 1970-1985 年(破線)と 1986-2002 年(実線)における中国・韓国などの汚染地域を通過してきた気塊中のオゾン濃度の季節変化の比較(つくばと鹿児島上空 2.1km～4.3km の平均) (Naja and Akimoto,2004)



次に、現状における東アジアからのオゾン濃度寄与量について、定量的に研究した報告をみる。領域化学輸送モデルによる再現結果（2002年）によれば、4月は東アジアからの前駆物質起源のオゾンが日本の中高緯度に輸送されており、我が国における地表オゾンに対して月平均で5~10 ppb程度の寄与がみられ、5月は高緯度への輸送が減る一方で中緯度では影響が大きくなり10~20ppb程度の寄与がみられる(Tanimoto et al.,2005, 国立環境研究所記者発表,2005)。(図2-8)

図2-8から、本州付近の4月から5月の月平均オゾン濃度に対して概ね10~20数%程度が東アジア起源であると考えられる。

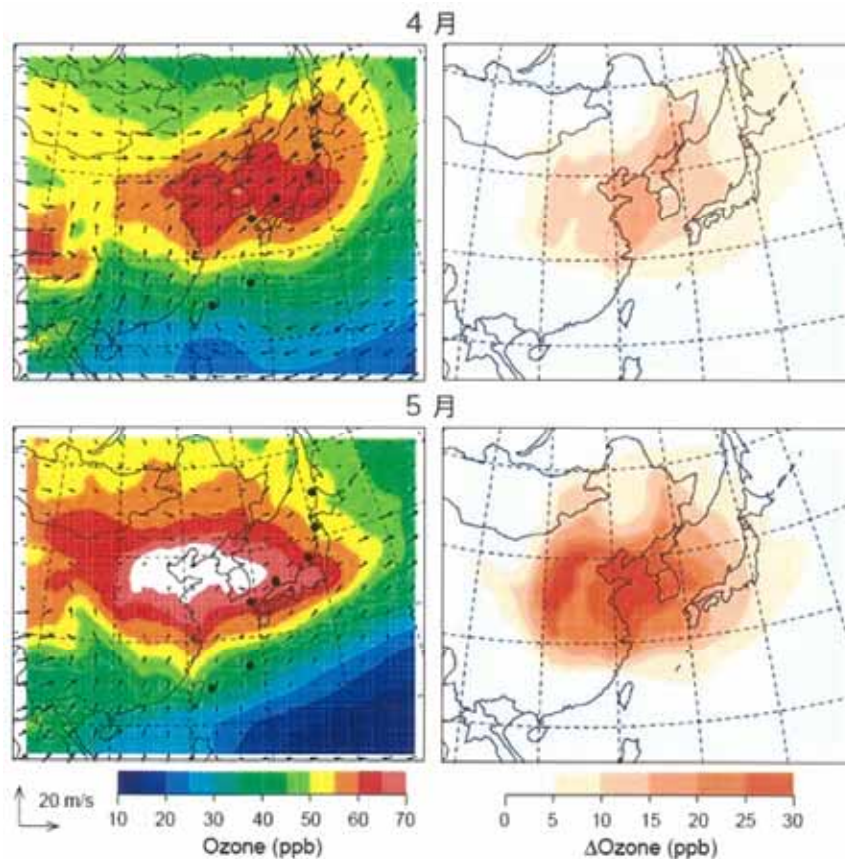


図2-8 領域化学輸送モデルにより求めた2002年の4月(上段)及び5月(下段)の地表オゾンの濃度分布(左列)及び中国・韓国からの前駆物質によるオゾンの生成量(右列)(国立環境研究所記者発表,2005)

このようなアジア大陸からの影響については、常に一定の量がある訳ではなく、日本に到達する気塊のルートにより変動がみられる。隠岐における後方流跡線解析の結果からは、隠岐を通過する気塊は、東アジア大陸性地域汚染気塊(WNW/W)、東アジア大陸性清浄気塊(N/NE)、海洋性気塊(Marine)及び中間気塊(NW)に分けられ、隠岐におけるオゾン濃度の変動は、これらの気塊が日々交代するために発生している(Pochanart et al.,1999, 2002,

秋元,2003)。(図 2-9)

また、沖縄では海洋性気塊の中でも人間活動等の影響を受けていない、隠岐で観測されるものより清浄な気塊が捉えられ、利尻ではほとんど通年にわたって大陸性清浄気塊が捉えられるなど、緯度によって観測される気塊は大きく異なるため、オゾン濃度変動の要因も地域によって相違がみられる(Pochanart et al.,1999 , 2002 , 秋元,2003)。

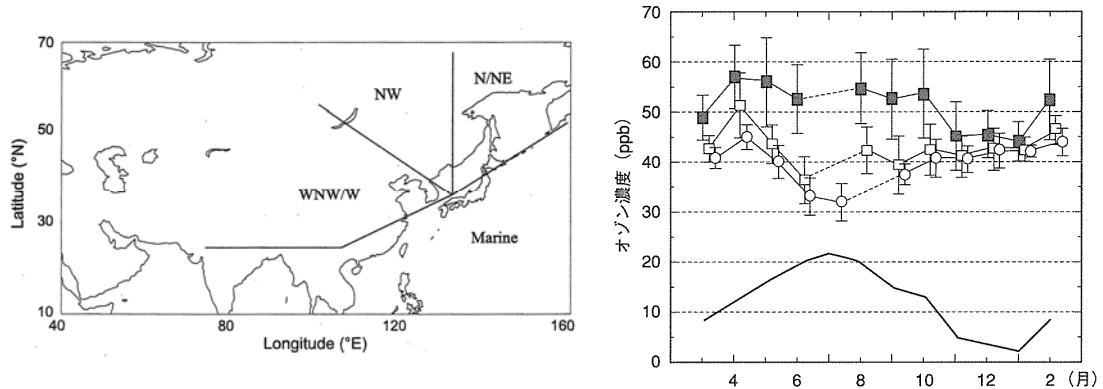


図 2-9 隠岐におけるトラジェクトリーのセクター分類(左)及び大陸性気塊カテゴリー別の月平均オゾン濃度 (右)(1994~1995年)(Pochanart et al.,1999)

：東アジア大陸性地域汚染気塊(WNW/W)、：東アジア大陸性清浄気塊(N/NE)、：地域汚染気塊と清浄気塊の中間気塊 (NW) 下部の実線は地域汚染気塊中と清浄気塊中のオゾン濃度の差

全球モデルによる計算によれば、首都圏グリッド(180kmメッシュ)におけるオゾン(2001年2月~4月)に対する中国からの寄与濃度(12時から16時までの日中の1時間変化値)は2~18 ppbの範囲で大きく変動する(Akimoto et al., 2006)。

オゾン濃度の将来予測に関する研究も近年活発に行われており、その中の研究報告の一例を紹介する。

Ohara et al.(2007a)は、アジア域排出インベントリ『REAS』(Regional Emission Inventory in ASia)を開発し、アジア(東アジア、東南アジア、南アジアを含む)における2010年と2020年の将来排出量を予測している。この中で、中国については、将来のエネルギー消費と環境対策の動向を考慮して、現状推移型(燃料消費や環境対策が現状のまま推移し排出量が最も増加するシナリオ。PFC: Policy Failure Case) 持続可能性追求型(エネルギー対策や環境対策を適度に進めたシナリオ。排出量は3種類のシナリオの中位。REF: Reference Case) 対策強化型(エネルギー対策や環境対策を強力に進めることにより排出量が最も少ないシナリオ。PSC: Policy Success Case)の3種類のシナリオを設定している。その他の国については、国際エネルギー

一機関（IEA）のエネルギー需要予測（基準シナリオ）に基づく排出シナリオを設定している。REFのシナリオの場合、アジアのNO<sub>x</sub>排出量は25.1Mt（2000年）から36.1Mt（2020年）まで増大する。（図2-10）

各シナリオでの2020年におけるオゾン年平均濃度（高度2km以下の境界層オゾン）の予測結果をみると、PSCでは日本は全域で55ppbより低い濃度となっており、REFでは北海道や沖縄を除いた多くの地域で50～57.5ppb程度、PFCではほとんどの地域が年平均で52.5～60ppbの濃度になると予測されている(Uno et al.,2007)。（図2-11）

また、このシナリオのうち中位のREFにおいて領域化学輸送モデルにより再現した2020年のオゾン濃度予測結果（高度2km以下の境界層オゾン）では、5～6月および7～8月の日本域のオゾン濃度は20年の間に2～5ppb増加する。特に5～6月に、東北地域北部を除く本州と四国・九州の北部で、オゾン濃度の2ヶ月平均値が65ppbを超えることが予測されている(Yamaji et al.,2006b, 山地・秋元,2007)。

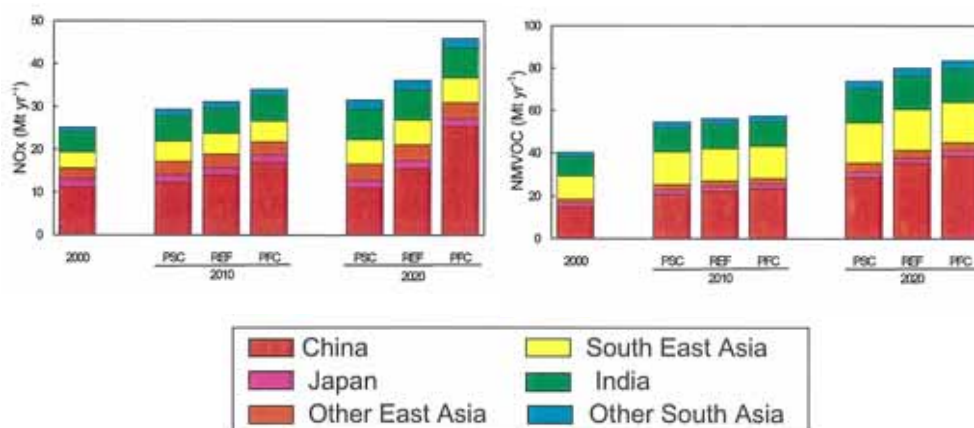


図2-10 2000年、2010年、2020年のアジアにおけるNO<sub>x</sub>（左）及びNMVOC（右）の排出量の将来変化(Ohara et al.,2007a)

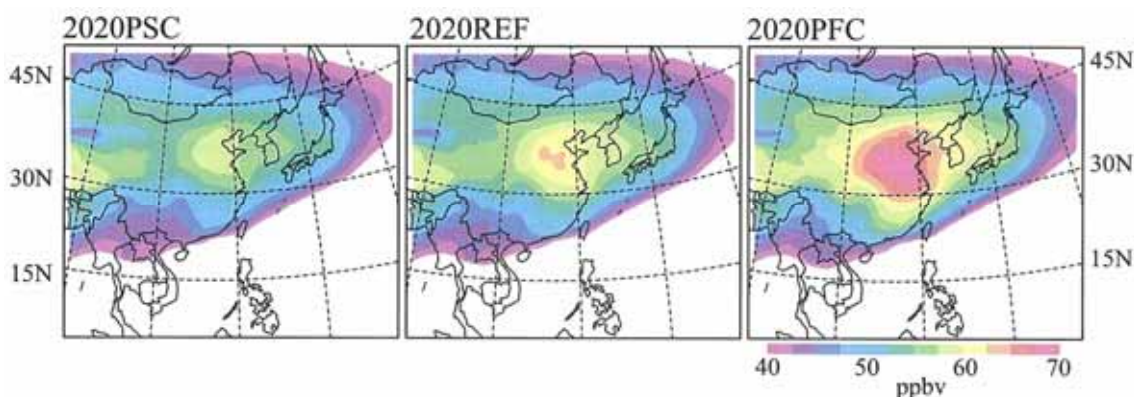


図2-11 3つのシナリオ(PSC:左、REF:中央、PFC:右)による2020年の境界層オゾン(<2km)の年平均濃度の分布(Uno et al.,2007)

### 2.2.3 半球規模でのオゾンの輸送

アジア・北米・ヨーロッパの間のオゾン輸送は、それぞれの大陸間で相違がみられる。アジアからのオゾンの生成・輸送は上部対流圏で活発に起こるため、北半球全域に影響する。これに対し、ヨーロッパからアジアへのオゾン輸送は境界層内部から下部対流圏で起こり、北米からヨーロッパへの輸送は中部対流圏での輸送が主となっている(Wild and Akimoto,2001 , 秋元, 2006)。( 図 2-12 )

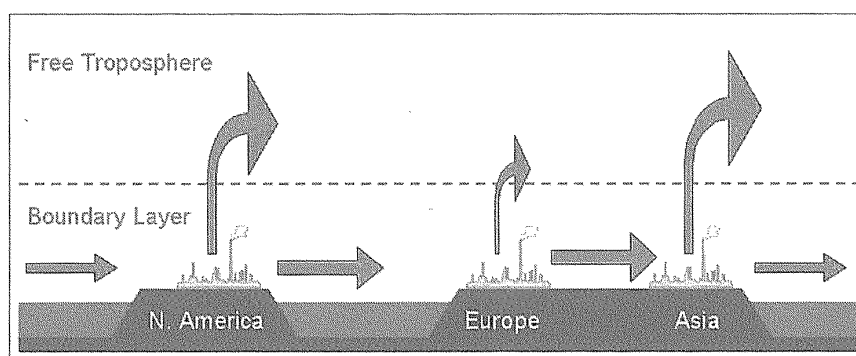


図 2-12 北米からヨーロッパへ、ヨーロッパからアジアへ、アジアから北米へ渡る大気汚染物質の大陸間輸送の概念図(秋元,2006)

第 1 章で示したように、北半球の様々な地域でバックグラウンドオゾン濃度は増加傾向となっているが、TF HTAP(2007)では、この増加の一つの要因としてアジアにおけるオゾンの前駆物質排出量の増加が考えられるとしている。アジアでみられるような急速なオゾン前駆物質排出量の増加は、地域スケールのみならず、半球スケールにも多大な影響を与えるものと思われる。

大陸間輸送に関するソース・リセプター関係（発生源地域とその影響を受ける地域の関係）を研究した論文等は数多く報告されており、そのうち被影響地域が東アジアまたは日本に関するものをみると、ヨーロッパから東アジアに対しては春季に約 3ppb、我が国への寄与も月平均値で 0.2～2.5ppb あるとの研究成果がある(TF HTAP,2007)。( 表 2-1 )

表 2-1 ヨーロッパ及び北米からの東アジアへの地表オゾン寄与量(TF HTAP,2007 より作成)

被影響地域	発生源地域	オゾン寄与量(ppb)	参考文献
東アジア	ヨーロッパ	3 ( 昼間平均：春季 )	Liu et al., 2002
日本	ヨーロッパ	0.2-2.5 ( 月平均 )	Wild et al., 2004
東シベリア ( 1997-99 )	ヨーロッパ	2 ( 年平均 ) 3 ( 春季-夏季 )	Pochanart et al., 2003

全球モデルを用いたタグ付きトレーサー実験の結果、ヨーロッパから鹿児島  
島の境界層オゾンへの影響は4月に2~2.5 ppb程度、北米からの影響は4月  
に1~2 ppb程度となっており、夏季には影響が低くなっている(Sudo and  
Akimoto,2007)。また、八方におけるモデル計算の結果でも、ヨーロッパ及び  
北米の影響は冬季から春季に大きくなり、夏季に低くなっている(Wild et  
al.,2004)。(図 2-13)

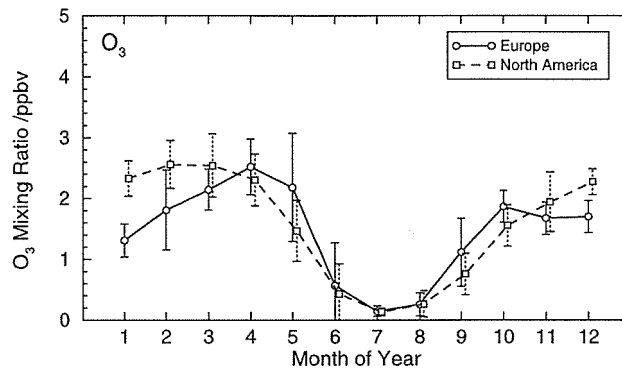


図 2-13 八方におけるヨーロッパ及び北米からのオゾン影響濃度の季節変化(Wild et al.,2004)

東アジア(八方、Mondy)をヨーロッパの遠隔地域(Arosa、Mace Head)と比較すると、秋季・冬季で約5ppb、春季には10 ppb程度オゾンの濃度が高くなっているが、このうち4割程度は中央アジア付近での成層圏オゾン降下によるものであり、残りがユーラシア大陸や自由対流圏からの輸送によるものである(Akimoto et al.,2004 , Wild et al.,2004)。(図 2-14)

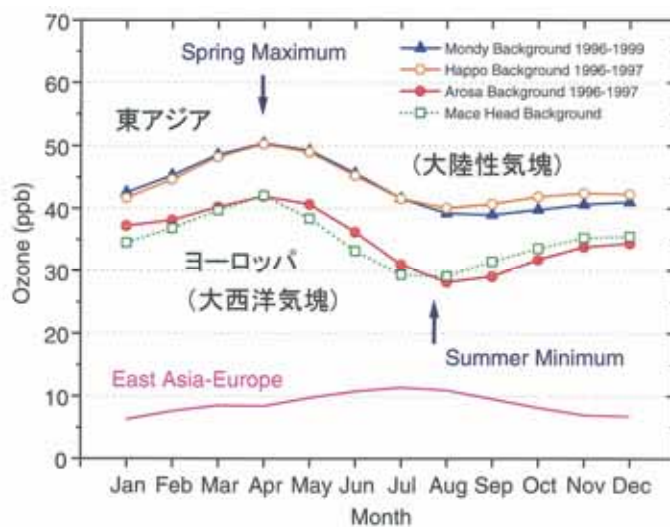


図 2-14 東アジアとヨーロッパのバックグラウンドオゾン濃度の観測値の比較(Akimoto et al.,2004 より作成)

隠岐などの我が国自身の大気汚染物質放出による直接的影響をほとんど受けていないと思われる離島においても、春季のオゾン濃度は月平均で 55～60 ppb に達している。(図 1-11 参照) 春季のオゾンに及ぼす影響については、これまでの様々なモデル計算と観測データ解析によれば、成層圏オゾン降下、東アジアからの越境輸送、ヨーロッパ・北米からの大陸間輸送の寄与がそれぞれおおよそ 15 ppb (図 2-18 及び図 2-20 参照)、15 ppb (図 2-8 及び図 2-9 参照) 及び 5 ppb (図 2-13 及び図 2-20 参照) 程度と推定できるが、これらを合わせても 40ppb 以下にしかならず、観測される濃度を説明できない。このようなことから、これまで考慮されてこなかったヨーロッパ・北米・東アジア以外の地域からの影響も大きい可能性が示唆される(Pochanart et al.,1999 , 2002 , Sudo and Akimoto,2007 , Tanimoto et al.,2005 , Wild et al.,2004 , 秋元,2006)。



### 2.3 光化学オキシダントの前駆物質 (NO<sub>x</sub> 及び VOC) との関係

光化学オキシダントは大気中の NO<sub>x</sub> や VOC が太陽光 (特に紫外線) を受けて、光化学反応によって生成される。光化学オキシダントの前駆物質である NO<sub>x</sub> 等の濃度は第 1 章で示したとおり、排出量削減対策の効果を反映して近年減少傾向を示しているにもかかわらず、光化学オキシダントの濃度は上昇傾向となっている。

光化学オキシダントの生成量は、NO<sub>x</sub> 及び NMHC の濃度に対して複雑な応答を示すことが知られており、首都圏における解析結果によれば、NMHC /NO<sub>x</sub> 比 (ppmC/ppm) が 6 以上の場合に高濃度出現割合が増加していることが報告されている。1996 年以降、首都圏における NMHC /NO<sub>x</sub> 比はやや上昇傾向にあり、このことが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要因の一つと考えられている。このことから、首都圏における高濃度の光化学オキシダント生成を効果的に抑制するためには、NO<sub>x</sub> の排出削減にとどまらず VOC の排出削減をさらに進めることが必要であるとされ、現在対策が進められている(東京都,2005 , 東京都環境局環境改善部,2005)。(図 2-15)

VOC 及び NMHC については、4 ページを参照のこと。

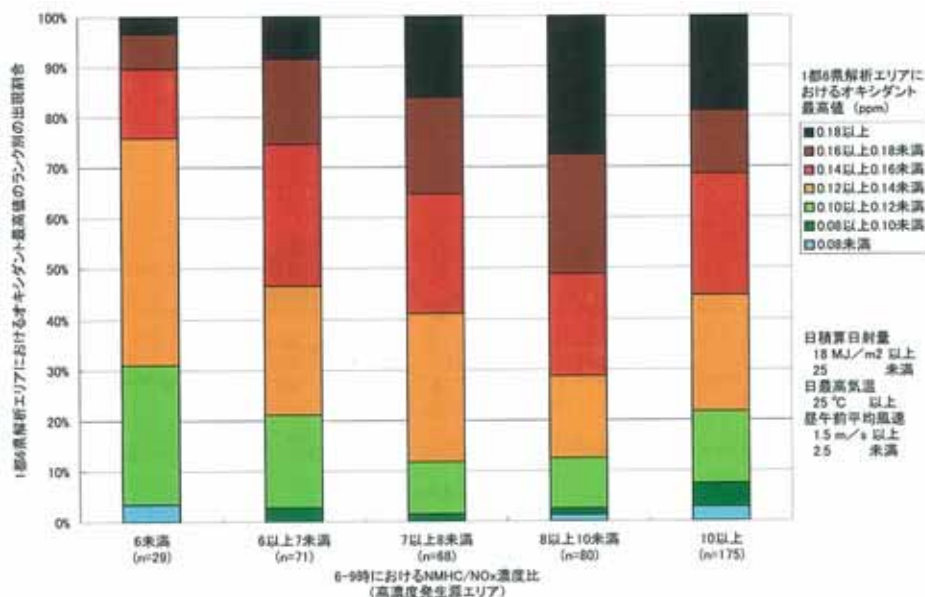


図 2-15 首都圏における NMHC/NO<sub>x</sub> 濃度比とオキシダント最高値の出現割合との関係 (1977~2002年4~9月)(東京都,2005, 東京都環境局環境改善部,2005)

全国の測定局における NMHC/NO<sub>x</sub> 比の状況をみると、長期的に減少傾向を示しており、近年の全国的な光化学オキシダント年平均濃度の長期的な上昇トレンドとは整合しない。(図 2-16)したがって、近年の全国的な光化学オキシダント年平均濃度の長期的上昇が、NMHC/NO<sub>x</sub> 比の変化によってもたらされている可能性は少ないものと考えられる。

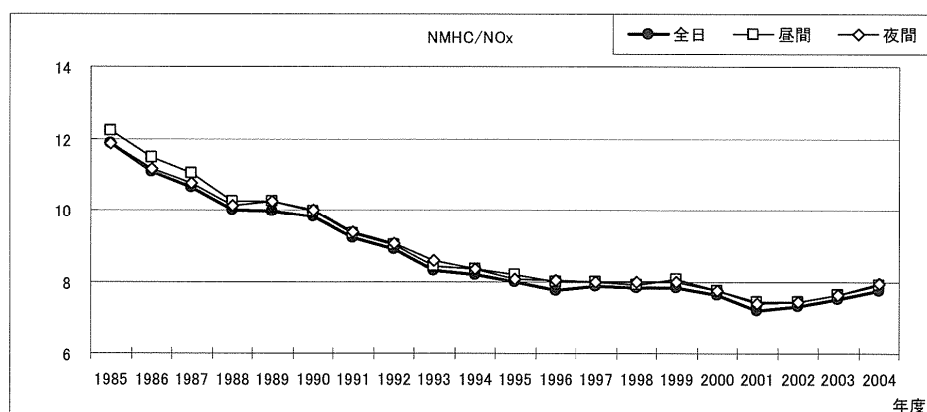


図 2-16 全国の継続測定局における NMHC/NO<sub>x</sub> 比 ( ppmC/ppm ) の経年変化 ( 全日・昼間 ( 5 ~ 20 時 )・夜間 ( 20 ~ 翌 5 時 ) 別の全国平均値 ) (大原編,2007)

東京都 ( 江東区 ) における NMHC 成分の組成についてみると、1992 年度と 2003 年度を比較すると NMHC の濃度は減少しているが、NMHC の 23 成分の組成が変化しているとの調査結果がある。この比較結果では、反応性ポテンシャル は約 40% 減少しており、NMHC の組成変化が近年の光化学オキシダント濃度の上昇に与える影響は少ないものと思われる (東京都,2005 , 東京都環境局環境改善部,2005)。ただし、この調査には光化学オキシダント生成能が大きいアルデヒド類は含まれていないことに留意する必要がある (竹内ほか,2006 , 星ほか,2005)。

#### 反応性ポテンシャル

反応性ポテンシャルとは、炭化水素のオゾン生成に関する指標である。NO<sub>x</sub> は紫外線を受けて炭化水素と反応しオゾンを生じますが、炭化水素の種類や量によりオゾンの生成速度や生成量は異なる。このため、ここではこのように炭化水素の反応性が異なることを考慮し、各炭化水素成分  $i$  と OH ラジカルとの反応速度定数  $k_i$  に着目し、環境大気中各炭化水素成分の濃度  $C_i$  と  $k_i$  との積 (  $C_i \times k_i$  ) の和を反応性ポテンシャルと定義されている。

アルデヒド類については、アルデヒド類濃度と光化学オキシダント濃度の経時変化が類似していることや、夜間上空に残存しているアルデヒド類等の二次生成物により、光化学オキシダント濃度がより早い時刻に上昇することがある (Wakamatsu et al.,1990 , 1999 , 竹内ほか,2006 , 若松,2007)。



大気中 OH ラジカルの反応性の実測結果と約 70 種類の化学種から見積もった反応性の比較では、冬季は比較的よい一致を示したが、それ以外の季節では、反応性の実測結果のうち 2~3 割が未知の反応相手によるものであることが明らかになり、それは大気中で生成する二次的な化学物質である可能性が示唆されている（梶井ほか,2006）。

VOC には人為起源だけではなく植物起源のものも多く含まれているが、植物起源の VOC の中には、イソプレンのように OH ラジカルとの反応性が高いものも含まれるため、オゾン生成に大きな役割を果たしている可能性がある。全国では VOC の総排出量に対して植物起源の排出量は 40%程度と大きな割合を占めているのに対し、東京や大阪などの都市域では 3~4%程度と少ないが、このような都市域においても植物起源の VOC によるオゾン生成への寄与には注意をする必要がある(産業技術総合研究所,2007)。

光化学オキシダントの前駆物質については、PAN、硝酸( $\text{HNO}_3$ )、エアロゾル中の硝酸塩などの高次の窒素酸化物まで含めた全窒素酸化物 ( $\text{NO}_y$ ) の濃度、アルデヒド類や植物起源など自然起源の VOC の影響、OH ラジカルの挙動など未解明の部分も多く、VOC の観測データの蓄積も不足していることから、更なる知見の集積が必要といえる。

## 2.4 気象状況の変化との関係

紫外線量が増加すると光化学反応が進み、光化学オキシダント濃度が上昇する可能性がある。つくばの観測結果によれば、1990年～2000年で紫外域日射量の年平均値は約10%増加しており、光化学オキシダント濃度上昇の一因となっている可能性は否定できないが、その定量的な評価はなされていない(大原,2003)。

また、気温との関係については、暖候期の光化学オキシダント高濃度発生頻度と日最高気温平均値の間に正の相関関係があるという報告があるが(Wakamatsu et al.,1996)、実際の観測結果では、気温と光化学オキシダント濃度の変動傾向は一致していない(大原・坂田,2003)。

天気図を用いた判定では、1989～1991年と比較して2000年、2001年には夏季に高気圧圏内に入る日が増加しており、好天日の増加は平均気温の上昇や期間積算紫外線量の増加につながり、これらの年の光化学オキシダント高濃度増加の一因となった可能性もある(吉門,2004)。(図2-17)

なお、ヒートアイランドによる高温が光化学オキシダント濃度に与える影響についても、吉門(2004)を始めとして多くの研究が進められているが、現在のところ、その影響については不明である。

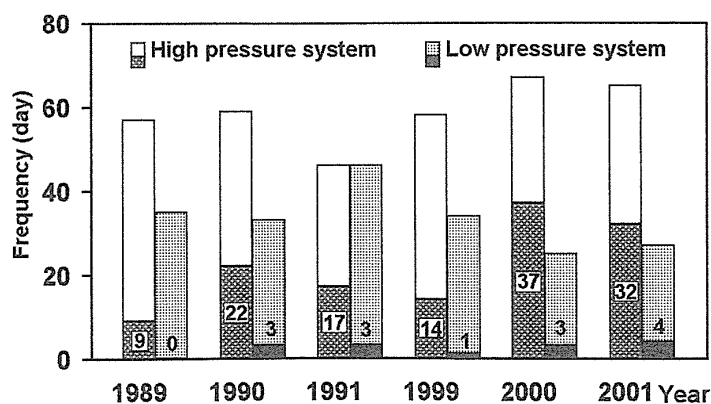


図2-17 9時の天気図により関東地方を高気圧下、低気圧下で分類した結果

(6～8月：下段のパターン及び数値は光化学オキシダント高濃度日 の日数)(吉門,2004)

光化学オキシダント高濃度日とは、ここでは昼間に120ppb以上が2時間以上続いた日と定義している。

## 2.5 成層圏オゾン降下との関係

春季に成層圏から対流圏へのオゾン降下の寄与が大きくなることが知られており(Wakamatsu et al.,1989)、全球化学輸送モデルによる解析結果では、札幌や鹿児島島の境界層のオゾンに対し成層圏から輸送されたオゾン濃度は春季に高く、夏季に低くなる変動を示しており、4月の月平均値で10ppb程度となっている(Sudo and Akimoto,2007)。(図2-18)

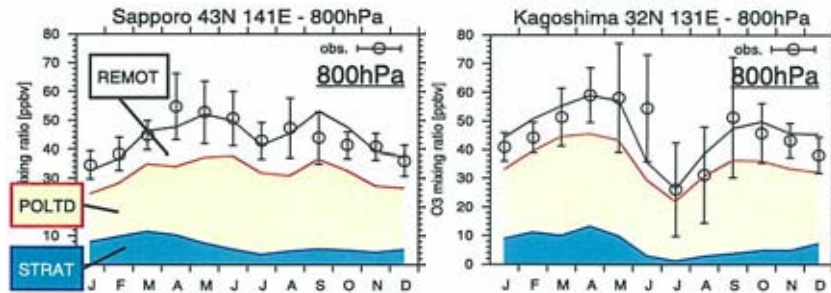


図2-18 観測及び計算によるオゾン濃度の季節変化(左列:札幌、右列:鹿児島)  
STRAT:成層圏由来、POLTD:汚染地域由来、REMOT:清浄地域由来(Sudo and Akimoto,2007)

このように、成層圏オゾンの降下はオゾン濃度の季節変動や地域における濃度差に寄与するが、後方流跡線解析やオゾンゾンデ観測の結果からは、成層圏オゾンによる対流圏オゾン年平均濃度レベルの長期的上昇に及ぼす影響はみられない(気象庁,2007,大原編,2007)。(図2-19)

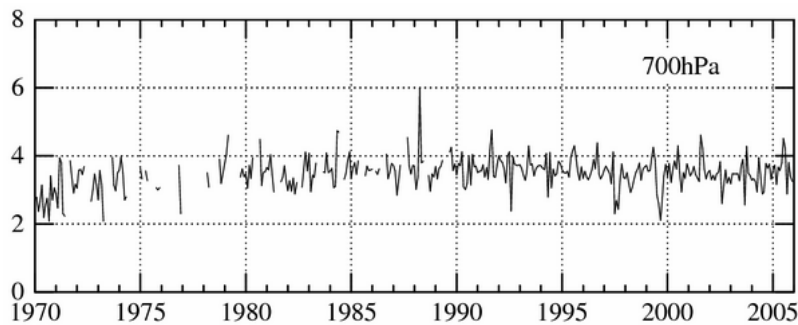


図2-19 つくばのオゾンゾンデ観測による1970年以降の700hPaにおけるオゾン分圧(mPa)の経年変化(気象庁,2007)

## 2.6 高濃度日における各要因の解析

これまでの研究成果から、我が国における光化学オキシダントの濃度は、国内の局地汚染由来の他、アジア大陸からの大気汚染物質の越境輸送や、ヨーロッパ、北米からの大陸間輸送、成層圏由来の影響を受けていることが分かっている。これらの寄与割合が変わることで日々の濃度変化が生じ、様々な要因の光化学オキシダントの高濃度日が現れることが報告されている。このような要因解析の例を下記に紹介する。

1996年4月の八方における観測結果及び化学輸送モデルによる計算の結果、北米及びヨーロッパの影響は1~3ppb程度で変動が小さいが、東アジア(2~20ppb程度)及び日本由来(1~35ppb程度)の影響は変動が大きく、影響要因の寄与割合では成層圏、東アジア及び日本由来の影響が同程度の日や(4月7日)、日本由来の影響が非常に大きい日(4月25日頃)が存在している(Wild et al, 2004)。(図2-20)

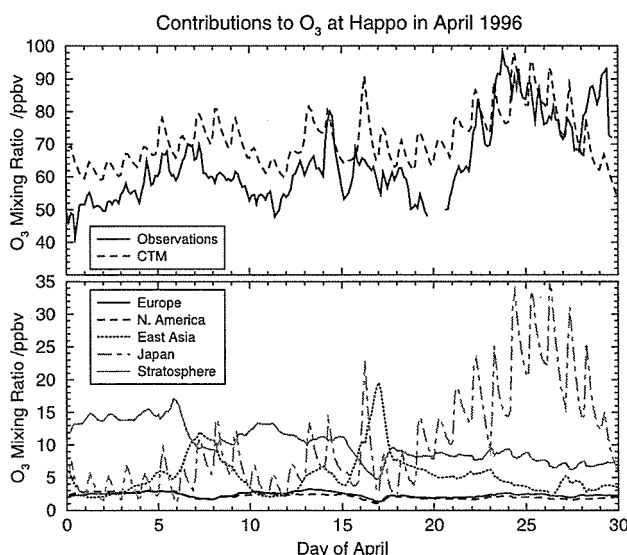


図 2-20 1996年4月の八方におけるオゾン観測値と化学輸送モデルによる計算値(Wild et al, 2004)

後方流跡線による解析結果や気圧配置、離島での光化学オキシダント濃度、硫酸塩濃度の変動などの観測結果を用いた解析によると、2007年春の福岡県で発生した注意報発令の高濃度は越境汚染の影響が大きいと推定され、また、近年の福岡県の4月~8月における高濃度日(5局以上で日最高1時間値が80ppbを超過)を、同様の解析方法から要因別に分類すると、アジア大陸からの移流及び地域汚染による影響が大きいと推定される日数はそれぞれ30%程度となっており、近年では大陸からの移流の影響が大きいと推定される日の割合が増加しているという報告もある(岩本ほか,2007a,2007b)。(図2-21)

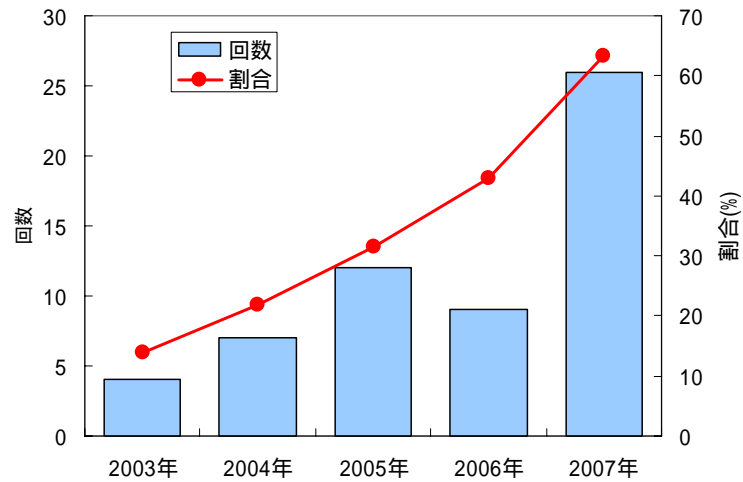


図 2-21 アジア大陸からの移流の影響が大きいと推定される高濃度日の回数及び高濃度日に占める割合の経年推移(4月～8月で集計)(岩本ほか,2007b より作成)

このように、同程度の高濃度日においても国内の発生源による影響が大きいケースや東アジアの越境輸送の影響が大きいケース、それぞれが複合的に影響しているケースなど、様々な状況が考えられることや、地域や季節によりそれらの影響量が大きく異なることから、今後、より効果的な対策を検討する上で、詳細な実態の解明を進める必要がある。

特に、我が国の都市域などで夏季にみられる注意報レベルの光化学オキシダント高濃度時の状況を定量的に示した研究成果はまだみられておらず、日本の局所汚染由来による寄与、国内の他地域からの輸送による寄与、アジア大陸からの越境輸送など各要因別の寄与を都市スケールで定量的に示すことが、今後の研究課題といえる。

なお、大陸間輸送に関する解析についても、TF HTAPなどでモデルの相互比較実験が進められているところである。TF HTAP(2007)の報告によると、それぞれのモデルから得られた地表オゾン濃度の季節サイクルは似た傾向を示しているが、月平均値の数値にはばらつきがみられている。今後研究が進む中で、モデルによる観測値の再現性を向上させることが望まれる。

### 3. 今後の課題

本報告書では、光化学オキシダント及び対流圏オゾン等に関して、今後必要とされる調査研究や的確な対策等を明らかにするために、既存の科学的知見について収集整理を行ってきた。

今後、光化学オキシダント対策を更に効果的・効率的に実施していくためには、下記に示すような取組みが促進される必要がある。

#### 3.1 調査研究・モニタリングの一層の推進

##### (1) 調査研究

対流圏オゾンの濃度レベル上昇のメカニズムを解明するため、世界各地のリモート地点における、成層圏オゾン降下、大陸内越境輸送、大陸間輸送など、それぞれの寄与割合の定量的評価や、ソース・リセプターの研究解明を推進する。

我が国の光化学オキシダント濃度の上昇、光化学オキシダント注意報の発令地域の広域化について、地域ごとのより詳細な要因分析を実施する。大都市圏における夏季の光化学オキシダント濃度の上昇について、詳細な要因分析を実施する。

化学輸送モデルの更なる精度の向上を図るため、光化学オキシダントの前駆物質の観測データの充実、アジア地域における排出インベントリの検証及び改良、オゾンの輸送・拡散・反応・沈着過程のモデリングの精緻化、モデルの相互比較及びフィールド観測データによる検証を通じたモデルの改良を進める。

全球スケール、アジアスケール、都市スケールなどそれぞれのスケールにおいて観測値の再現などの評価を行い、精度を検証した上で、大小スケール間の相互作用を記述できる都市からグローバルまでの統合モデルシステムを確立する。

##### (2) モニタリング等

今後の対策検討・効果検証及び長期的トレンドのより正確な把握のため、光化学オキシダントをより高い精度で測定するための方策を検討する。また、VOCのリアルタイム測定やアルデヒド類等、知見が不足している項目の観測データの収集を進める。

地方自治体において、定員の削減、知識や経験の豊かな技術者の退職などが問題となっていることを踏まえ、適正な大気環境常時監視システムの維持を図る。

住民や地方自治体に対して、光化学オキシダントのモニタリングデータや濃度予測を、分かりやすく情報提供を行うシステムの改良を進める。

### 3.2 国内における削減対策等の更なる推進

#### (1) 削減対策

平成 22 年度までに、固定発生源からの VOC 排出量を平成 12 年度比で 3 割程度抑制することを目標とした対策が現在進められており、この対策を着実に実施する。

地域ごとの調査や高精度の化学輸送モデルによる解析等を踏まえ、科学的根拠に基づくより効果的な対策のあり方を検討する。

#### (2) 排出インベントリ

人為起源と自然起源の双方について、NO<sub>x</sub> 及び VOC に係る排出インベントリを整備・更新する。

その際、VOC の発生源のうち情報が少ない工事車両、農業関係、空港施設、港湾施設等に関する排出量データ等を把握するよう努める。

また、VOC は物質により反応性が異なるため、削減効果をシミュレーションで検証する上で不可欠な VOC 組成の把握に努める。特に VOC の組成別排出インベントリを観測データによって検証する。

### 3.3 国際的な取組の推進

本件の国際的な重要性を東アジア近隣諸国において共有するため、政府間での政策対話が進められており、光化学オキシダント対策に関する日中韓の大臣合意に基づき、オゾン汚染メカニズムの解明や共通理解の形成に資するよう、既存の調査結果の共有など科学的な研究について国際協力を推進する。さらに、光化学オキシダントの測定に関する能力開発、人材育成など、一層の協力を推進する。

特にアジアにおいては、オゾンの観測体制が不十分であることから、アジア諸国との協力の下、EANET の枠組みにおけるオゾンモニタリングの実施を推進する。その際、開発途上国においても導入可能なオゾン簡易測定方法を検討し、普及を図る。

各国国内の大気汚染問題の改善のためにも、大気保全対策に関する近隣諸国との協力を推進する。

特に、発生源対策として大気汚染物質と温室効果ガスを一体的に削減するコベネフィット対策を活用することによる近隣諸国との協力を推進する。

半球規模での大気汚染物質の大陸間輸送の存在が明らかとなっていることから、TF HTAP 等の地球規模の国際的な枠組みとの協力方策を検討する。



## < 参考文献 >

- Akimoto, H.; Nakane, H.; Matsumoto, Y.(1994); The Chemistry of Oxidant Generation: Tropospheric ozone increase in Japan, in *The Chemistry of the Atmosphere: Its Impact on Global Change*, edited by Calvert, J. G., Blackwell Science publication, , p. 261-273
- Akimoto, H.(2003);*Global Air Quality and Pollution*, Science, vol. 302, p. 1716-1719
- Akimoto, H. ;Wild,O. ; Pochanart,P.(2004); Why background ozone in northeast Asia is higher than Europe? , AOGS(Asia Oceania Geoscience Society) 1st Annual Meeting, 6-9 July, 2004, Singapore
- Akimoto, H.; Yoshitomi, M.; Wild O.(2006); Contribution to surface ozone in Japan by different sources, inter- and intra-continental transport, stratospheric intrusion, and in situ formation, Joint CACGP/IGAC/WMO Symposium, Atmospheric Chemistry at the Interfaces 2006, 17-23 September 2006, Cape Town, South Africa
- Akimoto,H.; Li,J.; Wang,Z.-F.; Yamaji,K.; Pochanart,P.(2007); Transport and Chemical Production of Ozone in the East Asian Pacific Rim Region: -Modeling Study Based on Observation-, American Geophysical Union Fall Meeting, 13 December 2007. , San Francisco
- Chou, C. C.-K.; Liu, S. C.; Lin ,C.Y.; Shiu ,C.J.; Chang ,K.H.(2006) ; The trend of surface ozone in Taipei, Taiwan, and its causes: Implications for ozone control strategies, *Atmospheric Environment*, vol. 40, p. 3898-3908
- EANET(2007);<http://www.eanet.cc/jpn/>
- EMEP(2007); <http://www.emep.int/>
- EPA(2007); INVENTORY OF U.S. GREENHOUSE GAS EMISSIONS AND SINKS: 1990-2005, <http://www.epa.gov/climatechange/emissions/usinventoryreport.html>
- EPA;National Trends in Ozone levels, <http://www.epa.gov/airtrends/ozone.html>
- Fishman,J. and Brackett,V.G.(1997);The climatological distribution of tropospheric ozone derived from satellite measurements using version 7 Total Ozone Mapping Spectrometer and Stratospheric Aerosol and Gas Experiment data sets, *Journal of Geophysical Research*, vol. 102, p. 19275–19278
- Irie, H.; Sudo, K.; Akimoto, H.; Richter,A; Burrows,J.P ; Wagner,T ; Wenig,M; Beirle,S; Kondo, Y.; Sinyakov, V.P; Goutail,F.(2005); Evaluation of long-term tropospheric NO<sub>2</sub> data obtained by GOME over East Asia in 1996-2002, *Geophysical Research letters*, vol. 32, L11810 doi:10.1029/2005GL022770
- Itano,Y.; Wakamatsu,S.; Hasegawa,S.; Ohara,T.; Sugata,S.; Hayasaki,M.; Moriya,T.; Kobayashi,S.(2006); Local and regional contributions to springtime ozone in the Osaka metropolitan area, estimated from aircraft observations, *Atmospheric Environment*,vol.40, p.2117-2127
- IPCC(2007); IPCC 第 4 次評価報告書第 1 作業部会報告書 政策決定者向け要約(気象庁翻訳) [http://www.data.kishou.go.jp/climate/cpdinfo/ipcc/ar4/ipcc\\_ar4\\_wg1\\_spm\\_Jpn\\_rev2.pdf](http://www.data.kishou.go.jp/climate/cpdinfo/ipcc/ar4/ipcc_ar4_wg1_spm_Jpn_rev2.pdf)
- Jaffe,D; Price,H; Parrish,D; Goldstein,A; Harris,J(2003); Increasing background ozone during spring on the west coast of North America, *Geophysical Research Letters*,vol.30,no.12,1613,doi:10.1029/2003GL017024
- Jonson J. E.; Simpson, D.; Fagerli, H. ; Solberg, S.(2006);Can we explain the trends in European ozone levels?, *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 6, p. 51-66
- Jo, W. K.; Yoon , I. H.; Nam,C. W.(2000);Analysis of air pollution in two major Korean cities: trends,

- seasonal variations, daily 1 - hour maximum versus other hour-based concentrations, and standard exceedances, *Environmental Pollution*, vol. 110, p. 11-18
- Lamarque, J.-F.; Hess, P.; Emmons, L.; Buja, L.; Washington, W.; Granier, C.(2005); Tropospheric ozone evolution between 1890 and 1990, *Journal of Geophysical Research*, Vol.110, D08304,doi:10.1029/2004JD005537
- Lelieveld, Jos. and Dentener ,F.J.(2000);What controls tropospheric ozone?, *Journal of Geophysical Research*, vol. 105, p. 3531-3551
- Li, J.; Wang,Z.F.; Akimoto,H.; Gao,C. ; Pochanart,P.; Wang,X.(2007); Modeling study of the seasonal cycle of ozone in the boundary layer over East Asia, *Journal of Geophysical Research*, (in press)
- Liu, H.; Jacob, D. J.; Chan, L. Y.; Oltmans, S. J.; Bey, I.; Yantosca, R. M.; Harris, J. M.; Duncan, B. N.; Martin, R. V.(2002); Sources of tropospheric ozone along the Asian Pacific Rim: An analysis of ozonesonde observations, *Journal of Geophysical Research* ,Vol.107,NO.D21,4573, doi:10.1029/2001JD002005
- Logan,J.A.(1999);An analysis of ozonesonde data for the troposphere: Recommendations for testing 3-D models and development of a gridded climatology for tropospheric ozone, *Journal of Geophysical Research*, vol. 104, p. 16115-16149
- Monks,P.S.(2000); A review of the observations and origins of the spring ozone maximum, *Atmospheric Environment*, 34, p. 3545-3561
- Naja,M. and Akimoto,H.(2004);Contribution of regional pollution and long-range transport to the Asia-Pacific region: Analysis of long-term ozonesonde data over Japan, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D21306, doi:10.1029/2004JD004687
- Ohara,T.; Akimoto,H.; Kurokawa,J.; Horii,N.; Yamaji,K.; Yan,X; Hayasaka,T.(2007a); An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020, *Atmospheric Chemistry and Physics*, vol. 7, p. 4419-4444
- Ohara,T.; Yamaji,K.; Uno,I.; Kurokawa,J., Horii,N.; Akimoto,H.(2007b); Long-term simulations of surface ozone in East Asia during 1980-2020 with CMAQ and REAS inventory, *Proceedings of 29<sup>th</sup> ITM on air pollution modelling and its application*, 2.5
- Oltmans, S. J.; Lefohn, A.S. ; Harris, J.M. ; Galbally, I. ; Scheel, H.E. ; Bodeker, G. ; Brunke, E. ; Claude, H. ; Tarasick D.; Johnson, B.J. ; Simmonds, P. ; Shadwick, D. ; Anlauf, K. ; Hayden, K. ; Schmidlin, F. ; Fujimoto, T.; Akagi, K.; Meyer,C ; Nichol, S. ; Davies, J. ; Redondas, A. ; Cueva, E.(2006); Long-term changes in tropospheric ozone, *Atmospheric Environment*, vol. 40, p. 3156-3173
- Pochanart,P.; Hirokawa,J.; Kajii,Y.; Akimoto,H. ; Nakao,M.(1999);Influence of regional-scale anthropogenic activity in Northeast Asia on seasonal variations of surface ozone and carbon monoxide observed at Oki, Japan, *Journal of Geophysical Research*, vol. 104, p. 3621-3631
- Pochanart,P.; Akimoto,H.; Kinjo,Y.; Tanimoto,H.(2002);Surface ozone at four remote island sites and the preliminary assessment of exceedances of its critical level in Japan, *Atmospheric Environment*, vol. 36, p. 4235-4250
- Simmonds, P.G. ; Derwent, R.G. ; Manning, A.L. ; Spain, G.(2004);Significant growth in surface ozone at Mace Head, Ireland, 1987-2003, *Atmospheric Environment*, vol. 38, p. 4769-4778
- Sudo,K. and Akimoto,H.(2007);Global source attribution of tropospheric ozone: Long-range transport

- from various source regions, *Journal of Geophysical Research*, vol. 112, D12302, doi:10.1029/2006JD007992
- Tanimoto,H.; Sawa,Y.; Matsueda,H.; Uno,I.; Ohara,T.; Yamaji,K.; Kurokawa,J.; Yonemura, S.(2005);Significant latitudinal gradient in the surface ozone spring maximum over East Asia, *Geophysical Research letters*, vol. 32, L21805, doi:10.1029/2005GL023514
- TF HTAP(2007); HEMISPHERIC TRANSPORT OF AIR POLLUTION 2007 AIR POLLUTION STUDIES No. 16, Interim report prepared by the Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution acting within the framework of the Convention on Long-range Transboundary Air Pollution,  
[http://www.htap.org/activities/2007\\_interim\\_report/HTAP%202007%20EB%20version.pdf](http://www.htap.org/activities/2007_interim_report/HTAP%202007%20EB%20version.pdf)
- Uno, I.; Ohara,T.; Yamaji, K.; Kurokawa,J.(2007); Recent Trends and Future Projections in Asian Air Pollution, *Journal of Disaster Research*, vol.2,p.163-172
- Vingarzan,R.(2004); A review of surface ozone background levels and trends, *Atmospheric Environment*, vol. 38, p. 3431-3442
- Volz,A. and Kley,D.(1988) ; Evaluation of the Montsouris series of ozone measurements made in the nineteenth century , *Nature*,vol.332, p.240-242
- Wakamatsu,S.;Uno,I.;Ueda,H.;Uehara,K.;Tateishi,H.(1989); Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposphere, *Atmospheric Environment*, vol. 23, p. 1815-1826
- Wakamatsu,S.; Uno,I. ; Suzuki,M.(1990); A field study of photochemical smog formation under stagnant meteorological conditions, *Atmospheric Environment*, vol. 24A, p. 1037-1050
- Wakamatsu,S.; Ohara,T.;Uno,I. (1996);Recent trends in precursor concentrations and oxidant distributions in the Tokyo and Osaka areas, *Atmospheric Environment*,vol.30,p.715-521
- Wakamatsu,S.(1997);High concentrations of photochemical ozone observed over sea and mountainous regions of the Kanto and eastern Chubu districts, *Journal of Japan Society for Atmospheric Environment*, vol. 32, p. 309-314
- Wakamatsu,S.; Uno,I. ; Ohara,T.(1998a);Springtime photochemical air pollution in Osaka : Field observation-, *Journal of Applied Meteorology*, vol. 37, p. 1100-1106
- Wakamatsu,S.;Ohara,T. ; Uno,I.(1998b) ; Springtime photochemical air pollution in Osaka : Model analysis-,*Journal of Applied Meteorology*, vol. 37,1107-1116
- Wakamatsu,S.; Uno,I. ; Ohara,T. ; Schere,K.L.(1999);A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in Tokyo and surrounding area, *Atmospheric Environment*, vol. 33, p. 3097-3108
- Wild, O. and Akimoto, H.(2001);Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM, *Journal of Geophysical Research*, vol. 106,D21, p. 27729-27744
- Wild, O.; Pochanart,P. ; Akimoto, H.(2004);Trans-Eurasian Transport of Ozone and its Precursors, *Journal of Geophysical Research*, vol. 109, D11302, doi:10.1029/2003JD004501
- WMO (2007); WMO WDCGG DATA SUMMARY, GAW DATA Volume IV-Greenhouse Gases and Other Atmospheric Gases, Japan Meteorological Agency in co-operation with World Meteorological Organization, March 2007,  
<http://gaw.kishou.go.jp/wdcgg/products/publication.html#Summary>
- Yamaji,K.; Ohara,T.; Uno,I.; Tanimoto,H.; Kurokawa,J. ; Akimoto,H.(2006a);Analysis of the seasonal

- variation of ozone in the boundary layer in East Asia using the Community Multi-scale Air Quality model: What controls surface ozone levels over Japan?, Atmospheric Environment, vol. 40, p. 1856-1868
- Yamaji,K.; Ohara,T. ; Uno,I. ; Kurokawa,J. ; Akimoto,H.(2006b) ; Spatial-temporal variations of tropospheric ozone over east Asia, Abstract book of Joint CACGP/IGAC and WMO conference, Atmospheric Chemistry at the Interfaces, 548
- 秋元肇(2003);東アジアオゾン汚染の日本への影響,資源環境対策, vol. 39, p. 90-96
- 秋元肇(2006);大気汚染物質の大陸間輸送と半球規模汚染, 大気環境学会誌, vol. 41, A1-A8
- 秋元肇; 河村公隆; 中澤高; 鷺田伸明 編(2002);対流圏大気の化学と地球環境, 学会出版センター,223p
- 岩本真二(2007);離島におけるオキシダント濃度について,第3回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会参考資料
- 岩本真二;大石興弘;田上四郎;力寿雄;山本重一(2007a);大陸からの移流についてのモニタリングに関する最近の話題, 第48回大気環境学会年会講演要旨集, p.202-205
- 岩本真二;大石興弘;田上四郎;力寿雄;山本重一(2007b); 福岡県におけるオキシダントの高濃度現象について, 福岡県保健環境研究所・福岡女子大学合同研究成果発表会講演要旨集,p.13-16
- 大原利真;若松伸司;鶴野伊津志;神成陽容(2001a);関西地域における春季高濃度汚染の数値シミュレーション (1) 数値モデルの構築と立体観測データによる検証,大気環境学会誌,vol.36,p.208-230
- 大原利真;若松伸司;鶴野伊津志(2001b);関西地域における春季高濃度汚染の数値シミュレーション (2) 汚染発生機構の感度解析,大気環境学会誌,vol.36,p.231-243
- 大原利真(2003);最近の光化学オキシダント汚染の実態 - 全国及び関東地域の経年変動 -, 資源環境対策, vol. 39, p. 86-89
- 大原利真;坂田智之(2003);光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析,大気環境学会誌, vol. 38, p. 47-54
- 大原利真編(2007);日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究, 国立環境研究所研究報告 第195号 ( R-195-2007 ),256p
- 海洋研究開発機構(2004);過去約30年間に我が国上空の対流圏オゾンが広域で著しく増加, 海洋研究開発機構プレスリリース, <http://www.jamstec.go.jp/frcgc/jp/press/041206/index.html>
- 海洋研究開発機構(2005); 中国におけるNO<sub>2</sub>濃度の増加を衛星データで実証, 海洋研究開発機構プレスリリース, <http://www.jamstec.go.jp/frcgc/jp/press/050617/index.html>
- 梶井克純;吉野彩子;渡邊敬祐;定永靖宗;松本淳;西田哲;加藤俊吾(2006);都市郊外地域のオキシダント生成能の評価, 大気環境学会誌,vol.41,p.259-267
- 環境省(2004);酸性雨対策調査, 環境省酸性雨対策調査総合とりまとめデータ集, <http://www.env.go.jp/earth/acidrain/monitoring/cdrom/index.html>
- 環境省(2006a);平成17年 光化学大気汚染関係資料
- 環境省(2007a);平成18年 光化学大気汚染関係資料
- 環境省(2007b);光化学オキシダントの状況,第2回光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料
- 環境省(2007c);モニタリングデータ,酸性雨対策調査, <http://www.env.go.jp/earth/acidrain/index.html>
- 環境省(2007d);平成18年度大気汚染状況について,報道発表資料
- 気象庁(2001);IPCC第三次評価報告書～脚注一覧 [http://www.data.kishou.go.jp/climate/cpinfo/ipcc\\_tar/spm/voc.htm](http://www.data.kishou.go.jp/climate/cpinfo/ipcc_tar/spm/voc.htm)
- 気象庁(2007);2.6対流圏オゾン, 大気・海洋環境観測報告第7号, [http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/cdrom/report2005/pdf/report2005\\_02\\_chap02.pdf](http://www.data.kishou.go.jp/obs-env/cdrom/report2005/pdf/report2005_02_chap02.pdf)
- 国立公害研究所(1983);スモッグチャンパーによる炭化水素 - 窒素酸化物系光化学反応の研究 - 環境大気中

- における光化学二次汚染物質生成機構の研究（フィールド研究 2） - , 国立公害研究所研究報告第 44 号（R-44-1983）
- 国立環境研究所(1998);環境負荷の構造変化から見た都市の大気と水質問題の把握とその対応策に関する研究,国立環境研究所特別研究報告第 26 号（S R-26-1998）
- 国立環境研究所(2001); 都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究（特別研究）,国立環境研究所特別研究報告第 42 号（S R-42-2001）
- 国立環境研究所記者発表(2005); 東アジアの大気汚染が日本のオゾンに与える影響を定量的に解明 バックグラウンドオゾンの季節変化と緯度依存性 ,  
<http://www.nies.go.jp/whatsnew/2005/20051108/20051108.html>
- 国立環境研究所記者発表(2007);2007 年 5 月 8、9 日の広域的な光化学オキシダント汚染について—国立環境研究所及び九州大学が数値シミュレーションによる再現に成功—, 平成 19 年 5 月 21 日,  
<http://www.nies.go.jp/whatsnew/2007/20070521/20070521.html>
- 産業技術総合研究所(2007);第 3 章常時監視測定局データを用いた大気中濃度評価,詳細リスク評価書「オキシダント（オゾン）」
- 酸性雨研究センター(2005); 増えつづける対流圏オゾンの脅威, 26p
- ジェイコブ D.J.（著）近藤豊（訳）(2002);大気化学入門, 東京大学出版会,278p
- 大気の汚染に係る環境基準について;昭和 48 年 5 月 8 日環境庁告示 25 号
- 竹内庸夫;唐牛聖文;石鍋恵子;前原良子;竹川暢之;近藤豊;坂本和彦(2006);炭化水素類の地点別時間帯別の挙動と光化学オキシダントとの関係, 第 47 回大気環境学会年会講演要旨集
- 谷本浩志(2007);地球環境問題としてのオゾン汚染, 資源環境対策, vol. 43, p. 21-27
- 谷本浩志 ,向井人史(2006); 日本におけるオゾン標準とトレーサビリティシステムの構築, 大気環境学会誌, 第 41 巻, p. 123-134
- 東京都;光化学オキシダント対策検討会報告(2005), 78p,  
<http://www2.kankyo.metro.tokyo.jp/kaizen/keikaku/oxidant/index.htm>
- 東京都環境局環境改善部(2005);光化学オキシダント対策検討会報告について,大気環境学会誌第 40 巻, A65-A77
- 早崎将光; 大原利真;宮下七重(2007);2007 年 5 月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染（1）観測データ解析, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, p.639
- 藤哲士;森淳子;鶴野伊津志(2007);九州地方における光化学オキシダント高濃度化への対応,資源環境対策,vol.43,p.36-41
- 星純也;天野冴子;大橋毅;佐々木裕子;芳住登紀子(2005); 大気中 VOC モニタリングデータを用いた排出源およびオゾン生成能の評価, 東京都環境科学研究所年報 2005, p. 93-101
- 森淳子;山川和彦;宮下七重;若松伸司(2005);日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究(4) - オキシダント濃度月別出現パターンの広域的分布 - ,第 46 回大気環境学会年会講演要旨集,p.482
- 山地一代;秋元肇(2007);最近のモデル研究による東アジアオゾン汚染の現状と将来予測, 資源環境対策, vol. 43, p. 28-35
- 吉門洋(2004);近年の光化学オキシダント濃度変化の一要因, 大気環境学会誌, vol. 39, p. 188-199
- 若松伸司(2001);都市・広域大気汚染の生成機構解明に関する研究, 大気環境学会誌, vol. 36, p.125-136
- 若松伸司(2007);VOC とオゾン・微小粒子 PM<sub>2.5</sub>, 第 48 回大気環境学会年会講演要旨集, p.64-67
- 若松伸司; 篠崎光夫(2001);広域大気汚染 - そのメカニズムから植物への影響まで -, 裳華房,209p

## 光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会委員名簿

(敬称略)

- 秋元 肇 (独) 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
- 石井康一郎 (財) 東京都環境整備公社東京都環境科学研究所  
調査研究担当科長
- 岩本 真二 福岡県保健環境研究所 大気課長
- 植田 洋匡 (財) 日本環境衛生センター酸性雨研究センター 所長
- 鵜野伊津志 九州大学応用力学研究所 教授
- 大原 利真 (独) 国立環境研究所 広域大気モデリング研究室長
- 坂本 和彦 埼玉大学大学院理工学研究科 教授
- 中根 英昭 (独) 国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ長
- 森 淳子 長崎県環境保健研究センター 専門研究員
- 若松 伸司 愛媛大学農学部 教授

(注) : 座長

(オブザーバー参加)

堤 之智 気象庁 地球環境・海洋部 全球大気監視調整官

## 検討会の開催状況

第1回 平成19年(2007年)7月26日

- ・光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会について
- ・光化学オキシダント及び対流圏オゾンの状況
- ・光化学オキシダント及び対流圏オゾンに係る最近の知見
- ・検討会における検討事項について

第2回 平成19年(2007年)9月26日

- ・光化学オキシダント及び対流圏オゾンに係る最近の調査研究について
- ・光化学オキシダント及び対流圏オゾンに係る最近の取組等について
- ・光化学オキシダント及び対流圏オゾンに係る知見の整理について
- ・今後必要とされる調査研究等の方向性について

第3回 平成19年(2007年)10月29日

- ・平成19年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書素案について

第4回 平成19年(2007年)12月20日

- ・国際的な取組の最近の動向について
- ・平成19年度光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書案について