

米国 EPA 基準を適用した我が国における 光化学オキシダントの全国動態

Nationwide Characteristics of Photochemical Oxidant in Japan
by using the US EPA National Air Quality Standard

早崎 将光 *1

Masamitsu HAYASAKI

Abstract

We examined nationwide characteristics of photochemical oxidant (Ox) in Japan by using the US-EPA national air quality standard of ozone (O₃). The attainment rate of Ox air-quality standard was only 3% in the latest period. Peak concentration drastically decreased around the Tokyo metropolitan area, but the frequency of high Ox concentration days increased in earlier seasons in the analysis period (FY2000-2018).

1. はじめに

日本で環境基準が定められている大気汚染物質6種のうち、現在でも環境基準が未達となっているのは、PM_{2.5}と光化学オキシダント(以後、光化学Oxと表記。現在主流のUV測定法では、オゾン(O₃)と同義)である。このうち、PM_{2.5}は2009年に環境基準が新設され、設定後の数年間は環境基準達成率が低く、また時折発生するPM_{2.5}高濃度現象がメディア等で取り上げられるなどしたため、大きな話題となった。ただし、環境基準達成率は次第に改善され、平成29(2017)年度ではほぼ9割の測定局で環境基準が達成されている¹⁾。

その一方で、光化学Oxについては、環境基準の設定(1973年)時から高濃度日が多発しており、近年でも環境基準達成率がほぼ0%で推移している^{1, 2)}。光化学Ox環境基準未達の要因は、大気中のOx濃度が基準の閾値を満たせないほど高いことであるが、判定の基準となる平均化時間と濃度閾値の両方に大きな原因があると考えられる。光化学Ox以外の大気汚染物質は、年間で環境基準の達成・非達成を判定する場合、日平均値が主に用いられる。それに対し、光化学Oxは1時間値をそのまま使い、たとえ1年

間で1度でも閾値濃度(60 ppb)を超過するだけで基準未達となる。設定されている閾値濃度 60 ppb は、世界保健機関のO₃閾値(8時間平均値で100 μg/m³; 50 ppb)³⁾よりは高いものの、平均化時間で大きな隔りがある。また、米国環境保護庁(US-EPA)が用いる閾値(8時間平均値で70 ppb)⁴⁾と比べれば、平均化時間・濃度レベル共に厳しい条件である。国外で利用される環境基準と比べ、平均化時間が短く閾値濃度が世界的に見ても低い水準で設定されている²⁾ことから、日本の光化学Ox環境基準は世界的に見て最も厳しい環境基準であると言える。

このような、現状では著しく達成が困難と思われる光化学Oxの環境基準は、大気環境学会からの指摘²⁾などを受け、環境省でも改善に動き出しており、新たな指標値を用いた光化学Ox動態調査がおこなわれている⁵⁾。新たな評価で用いられる光化学Ox指標値(以後、光化学Ox新指標値)はUS-EPAのO₃環境基準とほぼ同一であり、現行の環境基準による評価とは別に試行適用した解析などもなされている⁵⁾。それら試行適用では、全測定局対象の新指標値での環境基準達成率や環境基準未達局のおおまかな地理的分布などが明らかとなっているものの、その季節性や経年変化などには言及されていない。

*1 一般財団法人日本自動車研究所 エネルギー・環境研究部博士(理学)

本研究では、これら試行適用例だけでは明らかでない項目を検討し、新指標値が新たな環境基準として導入された場合の我が国の光化学 Ox の一般的動態を明らかにすることを目的とする。

2. 使用データと解析手法

本研究では、一般に入手可能な観測データをもとに、既知の指標値を用いて解析をおこなう。

2.1 使用データ

光化学Ox測定値として、日本国内の大気汚染常時監視局（常監局）の光化学Ox濃度の1時間値(2000-2018年度)を用いた。このうち、2016年度以前は確定値、2017および2018年度は速報値である。解析対象期間内での測定局数を統一するために、全ての年度で有効測定局と判定された一般局だけを用いた。解析可能な有効測定局は785局である。なお、現行の光化学Ox環境基準には、他物質では設定されている有効測定時間数の規定がない。本研究では、国立環境研究所が定める大気汚染物質の規定⁶⁾に倣い、年間6000時間以上の有効測定値が得られる場合を各年度の有効測定局とした。

2.2 EPA のオゾン環境基準

US-EPAのO₃環境基準は、下記の手順で作成・判定している：

- (1) 日最高8時間平均値(maximum daily averages 8-hour; MDA8と表記)を日別に作成
- (2) 年間第4位の高濃度日でのMDA8(annual 4th highest daily maximum 8-hour concentration; A4MDA8と表記)を年度別に計算
- (3) A4MDA8の3年平均が閾値C_{th}を超過した場合、O₃環境基準非達成

本研究でのMDA8算出には、各日の時刻ごとに当該時刻を含む前8時間の平均値(1日あたり24個)を用い、8時間平均値の最終時刻(01-24時)が属する日付で日別に選択する。また、3年平均A4MDA8は、解析の便宜上、最新の年度を代表年として表記する(例：2013-2015年度の平均は2015年度の3年平均A4MDA8と表記)。

環境省による光化学Ox新指標では、年間99パーセンタイル値と定めている⁵⁾が、99パーセンタイル

値とA4MDA8はほぼ同じである。また、A4MDA8は、全球的なO₃評価に関する研究においても、利用推奨とされる指標として挙げられている⁷⁾。海外の研究論文との比較をおこなう上でも、解析に使用する指標が完全に同一であれば直接比較出来るため、本研究においても3年平均A4MDA8を用いる。

3. 結果

3.1 光化学 Ox 環境基準達成率

Fig. 1 に、3年平均 A4MDA8 を用いた光化学 Ox の大気環境基準(Air Quality Standard ; 図中で AQS と表記)の達成率の経年変化(2002-2018 年度)を示す。現在の US-EPA 環境基準閾値(C_{th}=70 ppb)を適用した場合、直近の 2018 年度(2016-2018 年度平均)で 3.0%と極めて低い水準である。達成率だけで評価するならば、近年よりも解析期間初期の方が達成率は高いが、それでも達成率は 20%程度である。過去の閾値、すなわち現行よりゆるい基準値(2008, 1997 年設定。閾値はそれぞれ 75 ppb, 84 ppb)を適用した場合でも、環境基準達成率はそれぞれ 10%-35%および 40%-70%程度の範囲である。

なお、過去の閾値で光化学 Ox 環境基準達成率の経年変化を見た場合、2012 年度前後で環境基準達成率の一時的な向上が目立つ。これについては、日本国内の常監局の A4MDA8 が、過去の閾値濃度(75

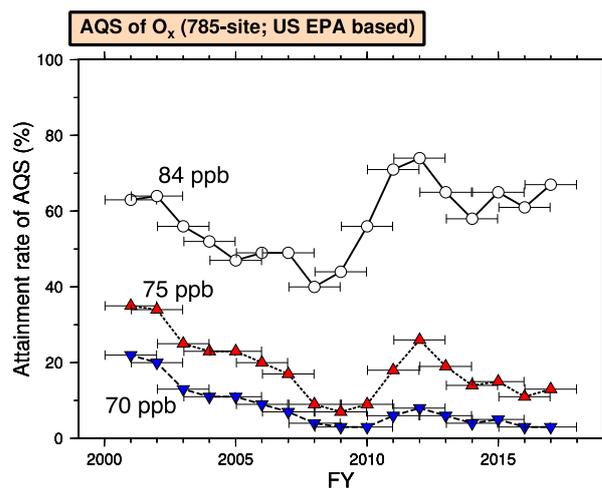


Fig. 1 Attainment rate of air quality standard of photochemical oxidant (Ox) in Japan using the US-EPA regulation. Apply three threshold values (84, 75, and 70 ppbv) for calculation.

ppb および 84 ppb)の範囲内にあることに起因する。各年度の A4MDA8 をみると、2011 および 2012 年度で低い A4MDA8 となっており、2011 年度は春季、2012 年度は夏季で光化学 Ox 高濃度イベントの発生数が前後の年と比べ少なかった(図略)。2010 年度以後は Ox 較正法の変更に伴う影響も考えられる(3.3.3 項参照)が、以後の期間では再び達成率低下が見られることから、較正法変更による影響だけでは説明が付かない。すなわち、2012 年前後数年間の一時的な環境基準達成率向上は、特定年度における気象条件が要因であると考えられる。

3.2 Ox 新指標での環境基準達成率の地域分布

Fig. 2 に、2018 年度の 3 年平均 A4MDA8 空間分布を示す。Fig. 1 で示した低水準の達成率からも明らかのように、日本国内の大部分では、光化学 Ox 新指標の閾値(70 ppb)を超過している。

新指標の閾値を下回るのは、北海道・沖縄(作図範囲外)や宮崎・宮城・福島などの一部測定局のみで、全国でわずか 27 局に過ぎない。同期間での A4MDA8 の全国最高値は 101 ppb (大阪府・富田林市役所)に達する。A4MDA8 の上位 10 局の内訳は、関東地方で 6 局(群馬：4 局、栃木・埼玉：各 1 局)、大阪府で 3 局(前述以外に三日市公民館、緑が丘小学校;いずれも大阪平野南部)である。もう 1 局

の岡山・総社も含め、これら上位 10 局は全て大都市中心部から離れた地域に位置している。

ただし、これら A4MDA8 の上位局が属する都道府県は、解析期間内でも大きく変化している。年々の気象条件によっても異なるものの、大まかに見れば 2010 年代の前半頃までは、東京・埼玉などが上位 10 局のほとんどを占めていた。前述したように、2018 年度の最大濃度は大阪府であり、東京都の測定局は 1 局も含まれていない。

A4MDA8 空間分布の長期的変化をみるため、解析期間の初期と末期の A4MDA8 の濃度差を Fig. 3 に示す。全国的に見ると、2000 年代初期に比べ濃度低下・上昇幅の上位測定局は、ほぼ関東地方に集中している(Fig. 3a)。

濃度低下に着目すると、特に低下が著しいのは東京・埼玉などであり、濃度低下の全国上位 5 局が全て東京・埼玉に位置していた。これら 2 都県で最も濃度変化量が大きい測定局では -30 ppb 以下に達しており、年間上位に位置づけられる極端な高濃度時でも、2000 年代初期に比べ大幅な濃度低下をしたことを示している。濃度低下の上位局ばかりでなく、関東平野全体で見ても全体的に A4MDA8 の濃度低下測定局が広範囲に分布している(Fig. 3b)。

これとは逆に、最も顕著な濃度上昇を示した測定局も同じ関東平野に属する神奈川県で多くみられる(Fig. 3b)。濃度上昇幅の全国上位 5 局のうち 4 局が神奈川県内の測定局であり、上位 4 局が +20 ppb 以上である。この他にも A4MDA8 の濃度上昇はほぼ全国的に見られ、大阪・愛知などの大都市やその近郊だけでなく、瀬戸内海沿岸・九州北部や各地方の都市部にも 15 ppb 以上の濃度上昇がみられる。

大都市だけでなく地方都市でも大きな濃度上昇を示している点を考えると、越境汚染由来の全国的な光化学 Ox 高濃度イベントの影響が考えられる。しかし、A4MDA8 の濃度変化が空間的に一様ではないこと、Ox 測定法や較正法の経年変化もあること(3.3.3 項参照)、VOC や NO_x(NO, NO₂)など光化学 Ox の反応・消失に関わる局所発生源の影響等もあること、などを考慮すれば、この結果だけを持って越境汚染影響を論じる事は難しい。A4MDA8 とその長期変動に対する越境汚染・局所汚染影響などの評価は、今後の課題とする。

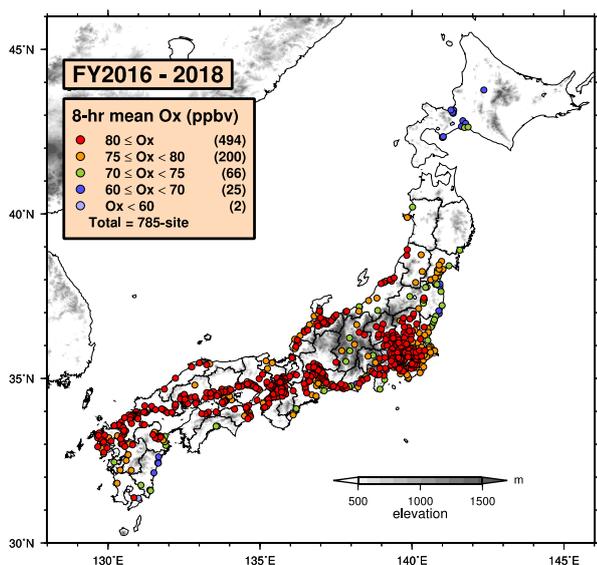
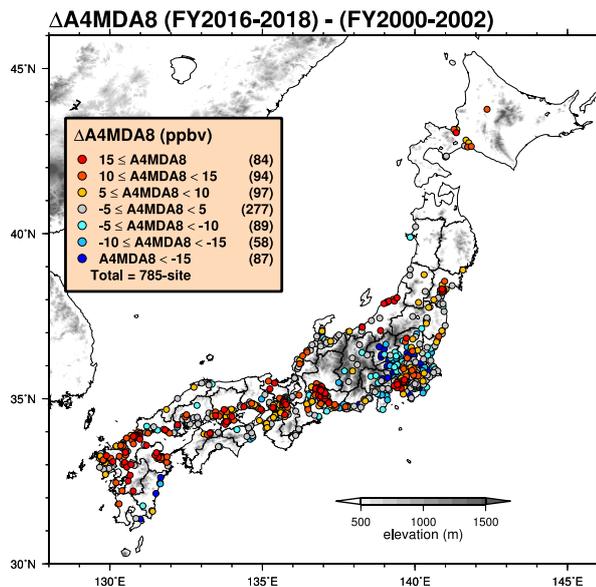


Fig. 2 Spatial distribution of three year average A4MDA8 in FY2018.

(a) mainland Japan



(b) kanto region

ΔA4MDA8 (FY2016-2018)-(FY2000-2002)

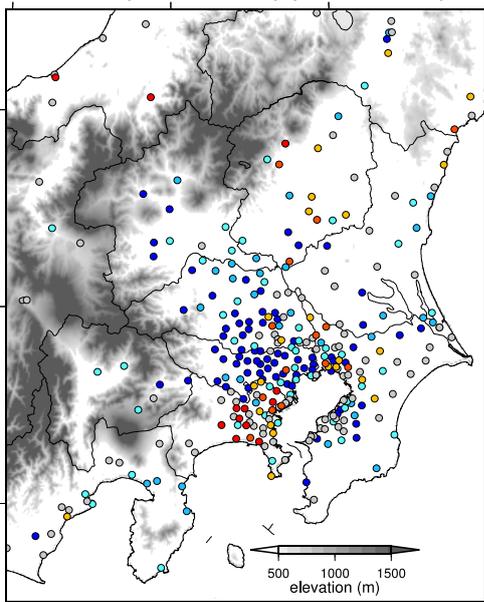


Fig. 3 Differences of three year average A4MDA8s between FY2016-2018 and FY2000-2002. (a) mainland Japan, (b) kanto region.

3.3 高濃度の季節性とその長期変動

光化学 Ox 新指標で非達成判定されるのは、MDA8 ≥ 70 ppb(MDA8 高濃度日と表記)が年間4回以上発生する場合である。そこで、MDA8 高濃度日の発生数の季節性を見るために、MDA8 高濃度日発

生数を月別に集計した(Fig. 4)。

3.3.1 季節性

解析期間全体(2000-2018 年度平均；図中グレー線)をみると、年間で1局あたり19.1日のMDA8高濃度日が検出されている。MDA8高濃度日の発生時期は3月から9月までの期間に集中しており、頻度最大は5月(5.6日)である。6月以後は季節進行に伴い頻度減少するが、8月に頻度減少が鈍化し、局所的な頻度極大が見られる。8月のMDA8高濃度日頻度の局所的極大は、梅雨明け後の盛夏期に大都市近郊域で高濃度イベントが発生する状況を反映していると考えられる。1時間値を判定基準に用いる注意報・警報レベルの高濃度は、梅雨明け後の盛夏期の大都市近郊で多いが、MDA8高濃度日で見ると5月の頻度が7・8月の頻度(それぞれ2.6日、2.5日)の2倍以上となる。

このような季節進行は従来から経験的に知られている事だが、これまでは日平均濃度や日最高濃度などに注目した研究が多かった。春季の高濃度は、2007年5月の全国的な光化学Ox高濃度イベントをひとつのきっかけとして研究が進められている⁸⁾。近年、光化学Ox新指標での評価が環境省からも報告されOx濃度動態の判断指標となっている事、現時点でも4から5月の平均的なMDA8高濃度頻度だけでOx新指標で評価した場合の環境基準非達成となる点なども考えると、盛夏期だけでなく春季で生じている高濃度日に関して、高濃度要因解明や効果的な対策立案などを考える段階にあると思われる。

3.3.2 長期変動

MDA8高濃度日頻度について、解析期間全体での平均的な季節進行は明らかとなったが、この季節進行に長期的な変動傾向があるか否かという興味が生じてくる。近年のいわゆる地球温暖化の進行に伴い、暖冬なり季節進行の早期化などが指摘されていることから、光化学Ox高濃度発生状況にもその影響が現れている可能性がある。

本研究の解析期間は20年にも満たないため、長期変動の有無を判定することは困難だが、長期変動に関する初期的な解析として、解析期間の初期・後

期各 3 年平均の季節進行を調査した。Fig. 4 に示した期間 I(2000-2002 年度;青線)と期間 II(2016-2018 年度;赤線)を比較して、注目すべき差を以下に示す:

a) MDA8 高濃度日頻度の最大頻度月の違い。期間 I は 6 月, 期間 II は 5 月

b) 高濃度発生時期のシフト。期間 II の方が春期(3—5 月)で増加, 夏・秋期(6-10 月)で減少

この 2 期間を比較した限りでは, 近年の光化学 Ox 高濃度日が盛夏期よりも春期に発生しやすくなっている可能性はある。しかし, これら比較期間はそれぞれ 3 年ずつの平均であるため, 特定年の気象条件による年々変動も大きい。

5 月は紫外線量が年間の最大値に近く, かつ日本列島が移動性高気圧に覆われて広範囲で晴天日が継続するなど, 光化学生成に適した気象条件となりやすい。さらに, 大陸由来の人為起源汚染物質などが移動性高気圧と共に輸送されることもあるため, MDA8 高濃度日が広範囲で発生しやすい。一方, 6 月から 7 月にかけては, 日本列島が梅雨期間に入るため, 曇天日も多くなる。さらに, 季節進行に伴い大陸からの北西風ではなく, 梅雨前線に吹き込む南西気流が卓越する気象条件となる。春期から梅雨期前までの期間は, 輸送および光化学生成状況が移動性の気象擾乱(低気圧・前線システム, 移動性高気圧など)によって大きな変動を受ける。このような季節の遷移期での大気質への影響を議論する場合には, 気象条件の評価にも注力する必要があるだろう。

また, 本研究での解析期間は, 中国が著しい経済発展を遂げた期間でもあるため, それら地域からの光化学 Ox 前駆物質の排出量も大きく変動した時期でもある。現時点では光化学 Ox 高濃度が早期化したと主張できるほどの明確な根拠はないが, 近い将来に予想される温暖化影響として, 春の Ox 高濃度問題が顕在化する可能性がある。今後も, MDA8 高濃度日の発生時期の変化(季節進行の早期化)について, 継続して検討する必要がある。

3.3.3 長期変動検討時の注意点

前項で指摘した長期変化については, 気候変動や越境汚染などの影響を反映している可能性もあるが, ほかに注意すべき事がある。最も重要なこと

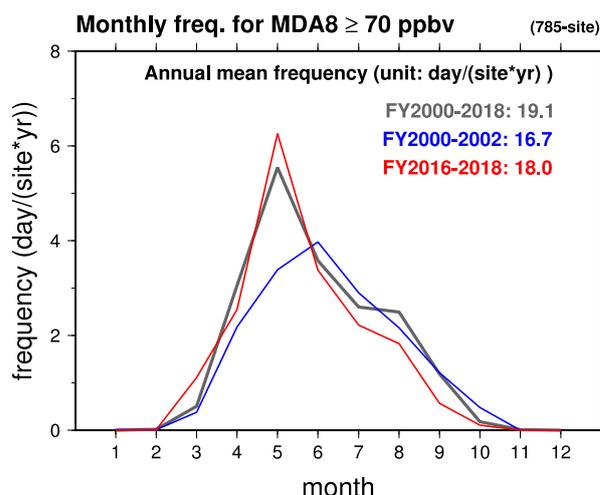


Fig. 4 Monthly frequency of high concentration days of Ox (MDA8 \geq 70 ppbv).

は, (1) Ox 測定法の変化(2000 年代), と (2) Ox 測定器の較正法の統一(2010 年以後)である。

現在の Ox 測定器は, その多くが紫外線吸収法(UV 法)だが, 歴史的には中性ヨウ化カリウムを用いた吸光光度法(KI 法)を用いたものが多かった。2000 年代初期は, 測定器の更新時に KI 法から UV 法への置き換えが進行した時期である。2007 年の調査時点では, UV 法が多数派(73%)で, 残りが KI 法であった²⁾。KI 法で測定した Ox には, O₃ 以外の物質(パーオキシアセチルナイトレート(PAN), アルデヒド等, 中性ヨウ化カリウム水溶液からヨウ素を遊離する酸化性物質)も含まれていたのに対し, UV 法では O₃ のみを測定する。測定器の更新時に従来とは異なる測定法の機材が導入されたため, 長期トレンドを議論することが困難となった。

較正法に関しても, 従来は複数の較正法が用意され, その選択・変更は常監局を管理する自治体の裁量に委ねられてきた。このため, 自治体ごとに較正された Ox 濃度にバラツキがあった。

主に 2000 年代の測定器更新時に UV 法による測定器が導入され, 測定対象物質が O₃ だけに限定されたこと, Ox 較正手段が統一され, かつ較正に用いる基準器のトレーサビリティを確保したこと, などの測定値の品質向上の努力がなされたことで, 日本国内の Ox 濃度は 2010 年度以後には較正に由来する濃度バイアスを考える必要がなくなった。ただ

し、新規の較正法と従来型の較正法を比較した場合、従来型のほうが高濃度となりやすいことが知られている⁹⁾。長期トレンドに関しては、過去の測定法・較正法の個々の測定局ごとの変遷状況を追跡・評価するなど、詳細な検討が必要である。

4. まとめ

US-EPAが使用するO₃環境基準(A4MDA8)を日本国内の光化学Ox測定値に適用し、環境基準達成率の経年変動や空間分布・季節進行とそれらの経年変化などの解析をおこなった。A4MDA8は、近年の日本でも光化学Ox動態評価に用いられている新指標とほぼ同じであり、国際的なO₃動態評価の際に利用推奨されている指標の一つである。解析の結果、下記の特徴が得られた：

- a) A4MDA8を用いても、環境基準達成率は極めて低い(2018年度で達成率3%)
- b) 関東地方(神奈川県は除く)では、2000年代初頭に比べ近年のA4MDA8が大幅に低下、つまり極端な高濃度が出にくくなった。ただし、関東以外の測定局では、A4MDA8上昇を示す方が多数派
- c) 近年は盛夏期よりも春期の高濃度頻度が増加している可能性がある

これらの特徴は、現在の光化学Ox環境基準(光化学Oxの1時間値が一度でも60ppbを超過すれば環境基準非達成)だけを用いた評価では得ることの出来ない情報である。今後も、A4MDA8を含め、国際的なO₃評価のための複数の指標⁷⁾を用い、光化学Ox動態の解明と諸外国との比較検証などを継

続する必要がある。

参考文献

- 1) 環境省：平成29年度大気汚染状況について、https://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h29/29_4.html (2019.5.10)
- 2) 大気環境学会 環境基準研究会：大気環境学会50周年記念事業 大気環境基準のあり方に関する調査・研究，大気環境学会誌，第44巻特別号，p.1-32 (2009)
- 3) WHO：Ambient (outdoor) air quality and health，[https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-\(outdoor\)-air-quality-and-health](https://www.who.int/news-room/fact-sheets/detail/ambient-(outdoor)-air-quality-and-health) (2019.5.10)
- 4) US-EPA, NAAQS Table： <https://www.epa.gov/criteria-air-pollutants/naaqs-table> (2019.5.10)
- 5) 中央環境審議会大気・騒音振動部会：微小粒子状物質等専門委員会，光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示すための指標について(中間とりまとめ)，https://www.env.go.jp/air/osen/pc_oxidant/attach/interim_rep.pdf (2019.5.10)
- 6) 国立環境研究所：大気汚染状況の常時監視結果データの説明(集計項目(表示項目)について)，<https://www.nies.go.jp/igreen/explain/air/syu.html> (2019.6.3)
- 7) Lefohn et al.: Tropospheric ozone assessment report: Global ozone metrics for climate change, human health, and crop/ecosystem research, *Elementa Science of the Anthropocene*, vol.6, doi: 10.1525/elementa.279 (2018)
- 8) 大原利真ほか：2007年5月8、9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染 オーバービュー，大気環境学会誌，第43巻4号，p.198-208 (2008)
- 9) 谷本浩志，向井人史：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3号，p.123-134 (2006)