

第2回光化学オキシダント調査検討会

(1) 日時 平成25年1月21日(月) 10時30分~12時30分

(2) 場所 日本気象協会 第一・第二会議室

1

資料1-2

資料1-2

データの多角的解析 (中間報告)

—Oxの長期的傾向の要因検討—

平成25年1月21日

## 優先解析地域

解析地域	解析対象自治体
関東地域	茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、東京都、神奈川県、山梨県
東海地域	愛知県、三重県
関西地域	京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、和歌山県
九州地域	福岡県、山口県

NIESが平成2年度以降で時間値を提供する都道府県のうち本調査の解析地域を選定した。

## 解析対象物質

対象物質	選定理由
光化学オキシダント(Ox)	本調査の解析対象
窒素酸化物(NO <sub>x</sub> =NO+NO <sub>2</sub> ) 揮発性有機化合物(VOC成分) 非メタン炭化水素(NMHC)	Ox生成の前駆物質
微小粒子状物質及び 硫酸イオン濃度	越境汚染の指標の検討
ポテンシャルオゾンPO [PO]=[O <sub>3</sub> ]+[NO <sub>2</sub> ]- α × [NO <sub>x</sub> ] α = 0.1(一次排出のNO <sub>2</sub> 比率)	タイトレーション効果を考慮した評価の検討

## 解析期間と季節区分の設定

項目	期間	
期間	平成2～23年度(1990～2011年度)	
季節	年度	4～3月
	春	4～5月
	梅雨	6月
	夏	7～8月
	秋	9～10月

※平成23年報告は2000～2009年度を対象とし、季節区分別を春(4～5月)、夏(7～8月)の2季としていた。

## 解析に用いるデータ

データ	入手先等
大気汚染常時監視測定データ(Ox、NO <sub>x</sub> 、NMHC、PM <sub>2.5</sub> など)	大気環境時間値データファイル(国立環境研究所) H23はそらまめ速報値
硫酸イオン濃度	福岡県提供データ
VOC成分濃度	揮発性有機化合物(VOC)モニタリング調査を利用
排出インベントリ	JATOP排出量データベース等を利用
気象データ	気象官署及び気象庁客観解析値等を利用

項目	目的
Ox平均濃度の上昇の状況 (資料1-1 p8~)	平均濃度の上昇傾向と地域別状況を確認した。
Ox高濃度の改善状況の把握 (資料1-1、p14~)	H23報告で、高濃度の改善傾向が示唆されたことから、その状況を地域別に確認した。
Ox平均濃度の季節差の検討 (資料1-2、p5~)	越境汚染は西の地域で春季に影響が大きいことが考えられる。地域毎に季節別の濃度について整理し、越境汚染の状況の把握をした。
Oxの春季の朝8時間値の濃度傾向 (資料1-2、p9~)	Oxの光化学生成の小さい朝の時間帯(0~8時)の濃度を解析することにより、地域別の越境汚染の程度を把握した。
ポテンシャルオゾンの経年変化 (資料1-2、p15)	タイトレーションの影響が小さいPOの変化を解析することにより、Ox平均濃度の上昇の要因として都市汚染と越境汚染のどちらが影響が大きいのか検討した。
Oxと前駆物質の関係 (資料1-2、p24)	前駆物質濃度の経年変化とOx濃度の関係を整理し、Oxの変化要因を検討した。
Oxが基準値以上になった時間数の経年変化 (資料1-3、p5)	Oxの影響として高濃度が長時間継続した場合の影響を考慮する必要がある。そこで、高濃度Oxの年間時間数の経年変化を把握することにより施策効果との関係を検討した。
Ox積算濃度の経年変化 (資料1-3、p9)	Oxの影響として高濃度が長時間継続した状況を把握する方法としてOxの積算濃度を評価する方法がある。この場合は、高い濃度と継続時間の両方が評価できることから、評価の指標として検討した。
昼の8時間値の年間98パーセンタイル値の経年変化 (資料1-3、p13)	WHOでガイドライン値が設定され、EPAでは8時間値を用いた環境基準値を採用している。そこで8時間値の指標として有効性を検討するために、昼8時間値を用いた検討を行った。

赤枠：資料1-2の内容

## 光化学オキシダント濃度の経年変化の要因検討

光化学オキシダントの最近の傾向として以下状況は整理できた。

1. 平均濃度の上昇
2. 高濃度の改善

この経年変化の要因を検討するために下記の解析を行った。

- 季節別濃度の地域差
- 朝・昼・夜の8時間の季節別平均値の経年変化
- ポテンシャルオゾンの経年変化
- 前駆物質とOxの関係

## 光化学オキシダント平均濃度の季節差の検討

光化学オキシダントの平均濃度は上昇傾向にあることが確認できた。越境汚染は、春～梅雨、秋季の気圧配置の周期変動に伴って引き起こされることが考えられる。そこで、季節別の濃度の変化について検討を行った。

項目	内容
目的	季節別濃度傾向の把握
データ	昼間(5～20時)の平均値
統計期間	春 (4, 5月) 梅雨 (6月) 夏 (7, 8月) 秋 (9, 10月)
空間統計	地域内平均値 地域内パーセンタイル値
図表	経年変化

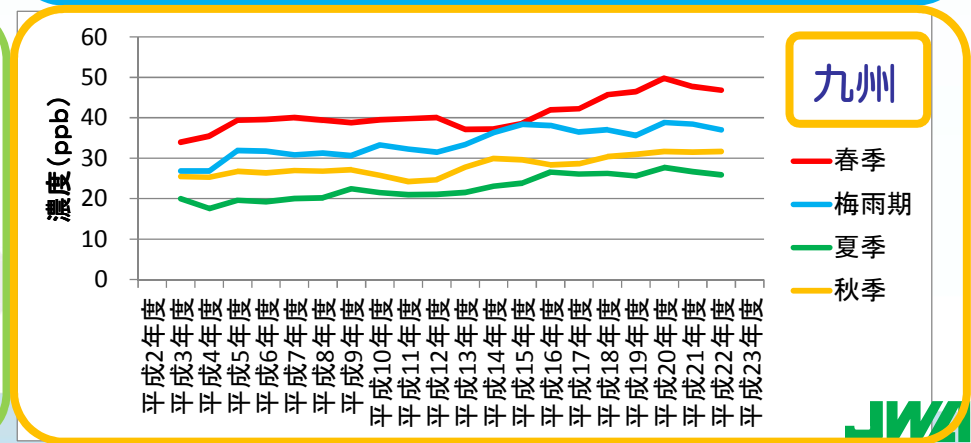
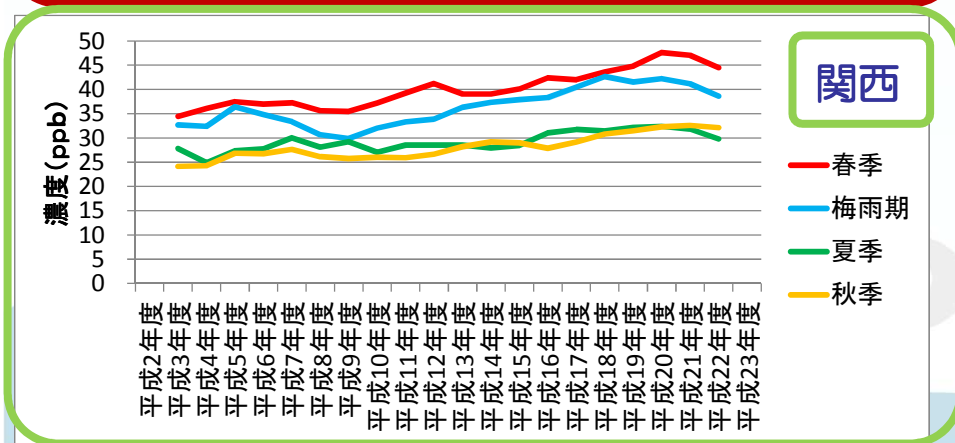
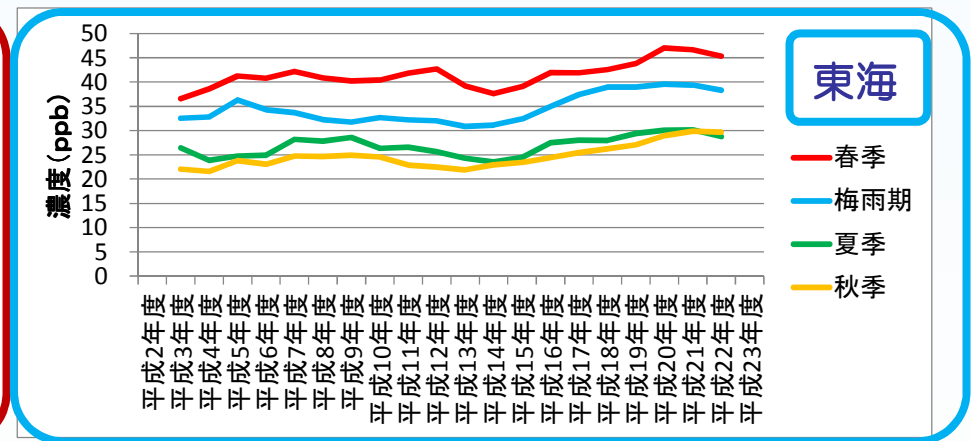
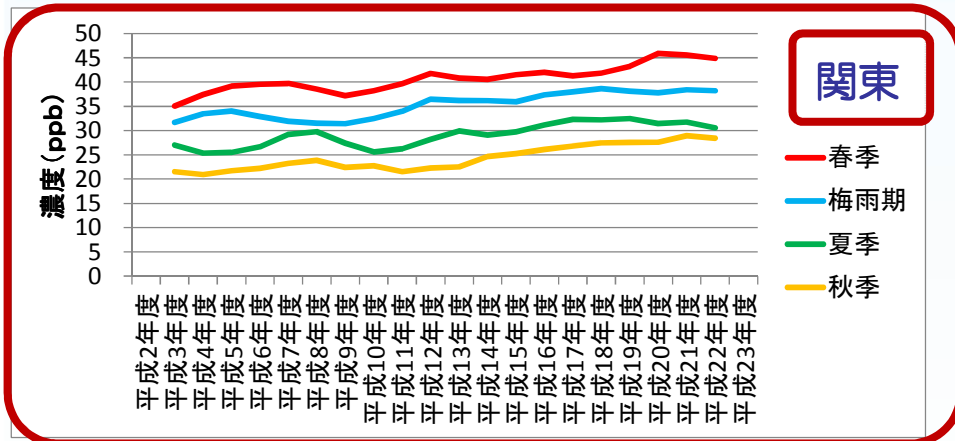
季節毎のOx平均濃度の経年変化を把握するために、季節別平均濃度（3年移動平均）を整理した。

- 昼間の平均濃度の季節平均濃度（3年移動平均）（下図）
- 季節別平均濃度の傾き(ppb/年）（右表）

H15以降の傾向は以下の通り

- ・ どの地域も春季に濃度の上昇が見られる。
- ・ 梅雨・夏は横ばい。
- ・ 秋は、やや上昇

傾き (H15-22)	春	梅雨	夏	秋
関東	0.8	-0.1	-0.4	0.3
東海	1.0	0.8	0.6	1.0
関西	0.9	0.3	0.2	0.7
九州	1.3	0.0	0.2	0.5



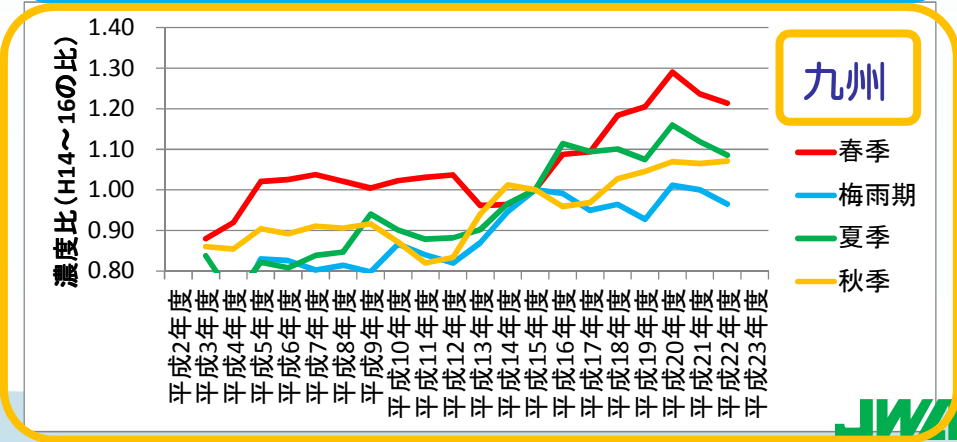
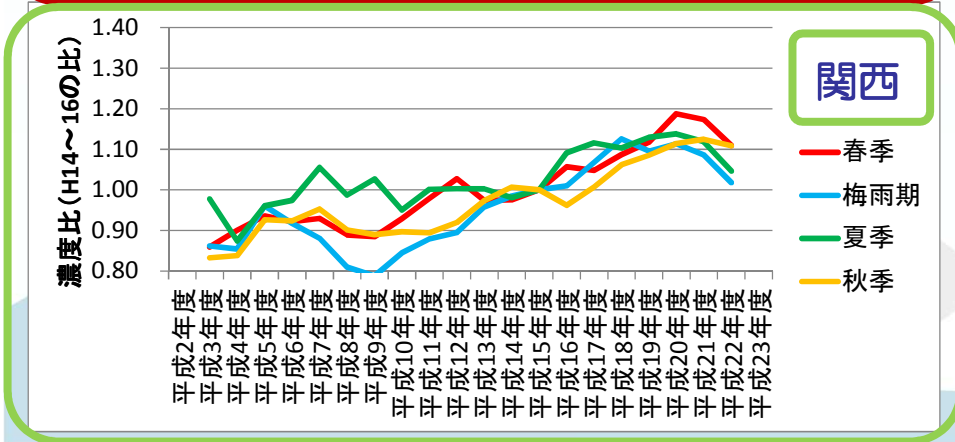
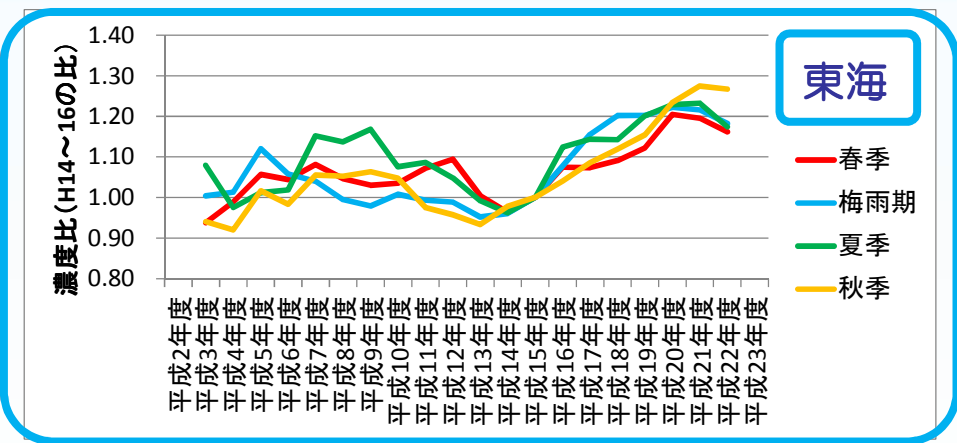
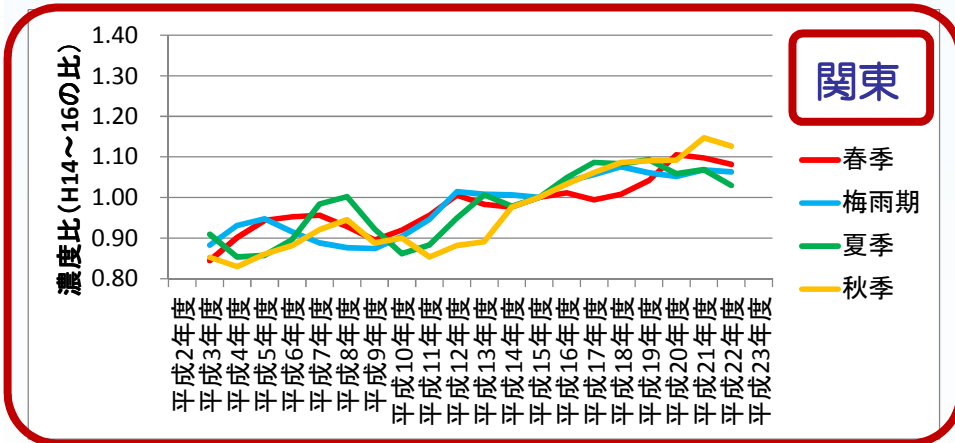
Ox平均濃度の上昇の季節差を把握するために、季節別平均濃度（3年移動平均）の伸び率を整理。

- 昼間の平均濃度の季節平均濃度の伸び率（H15比）（下図）
- 濃度の伸び率（H22/H15）（右表）

H15以降の傾向は以下の通り

- ・ 関東・東海・関西は伸び率の季節差は小さい。
- ・ 九州は、季節差が大きく春と秋が伸びが大きく、梅雨・夏季は概ね横ばい。

伸び H22/H15	春	梅雨	夏	秋
関東	1.08	1.06	1.03	1.13
東海	1.16	1.18	1.17	1.27
関西	1.11	1.02	1.05	1.11
九州	1.21	0.96	1.08	1.07





## 光化学オキシダント平均濃度の季節差の検討のまとめ

- 季節別の平均値の経年の伸び率は、関東・東海・関西で差がみられない九州では季節差が大きく、特に春季の平均値の変化が大きい
- 低濃度の濃度上昇は、春季と秋季に大きい傾向があり、夏は横ばいに近い。



## Oxの朝8時間の濃度傾向

昼間のOx濃度は光化学反応により都市内汚染の影響が強く越境汚染の解析には適さない。一方、朝・夜は光化学反応が弱く、越境汚染の影響が表れやすいと考えられる。

そこで、1日を3時間帯し、朝（0-8時）、昼（8-16時）夜（16-24時）の8時間平均濃度を用いて越境汚染の影響を検討した。

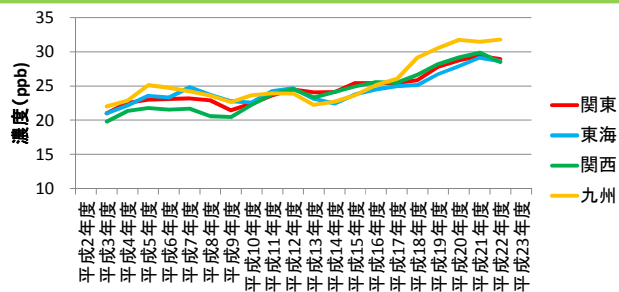
先の検討で、越境汚染は春季の影響が出やすく、夏季に出にくい傾向が見られたことから、春季と夏季について経年変化を整理した。

項目	内容
目的	越境汚染の影響の把握
データ	朝（0～8時）、昼（8～16時）、夜（16～24時）の各8時間平均値
統計期間	季節（春季・夏季）
空間統計	地域内最高値 地域内最低値 地域内平均値 地域内パーセンタイル値
図表	経年変化 濃度ランク別局数

越境汚染の影響を検討するために、春季と夏季の時間帯別平均濃度（3年平均）について経年変化を把握した。（下図）

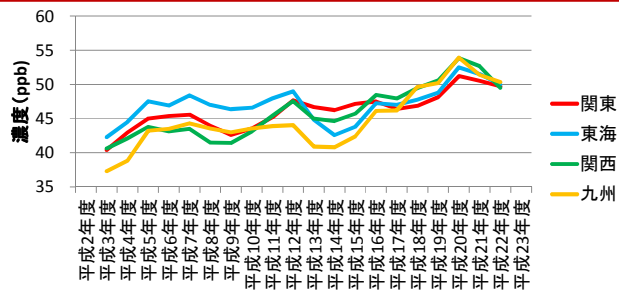
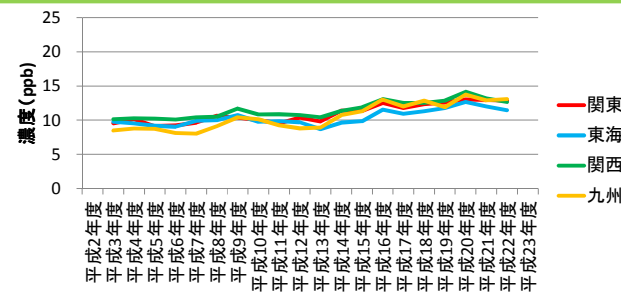
- 春季：九州の朝と夜のOx濃度は、他の地域との差が見られた。
- 夏季：朝・夜はどの地域も同程度の濃度であり、昼は関東・関西で高く、九州で低かった。

春（4～5月）

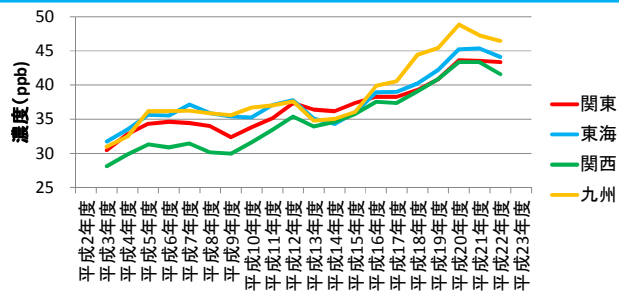
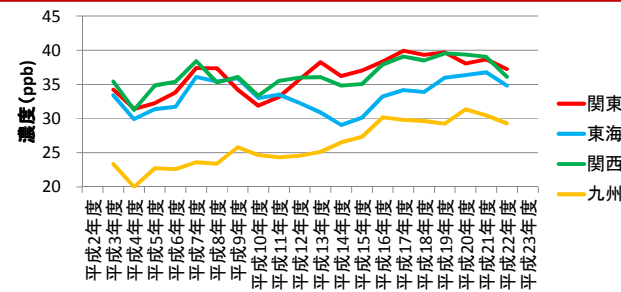


朝

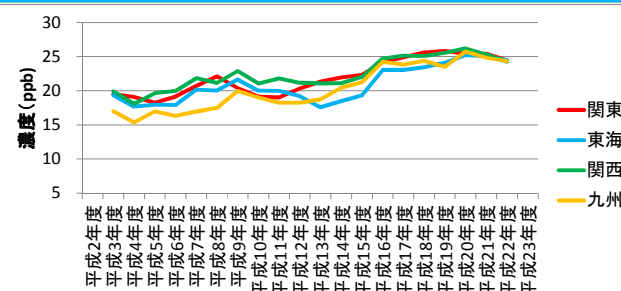
夏（7～8月）



昼



夜



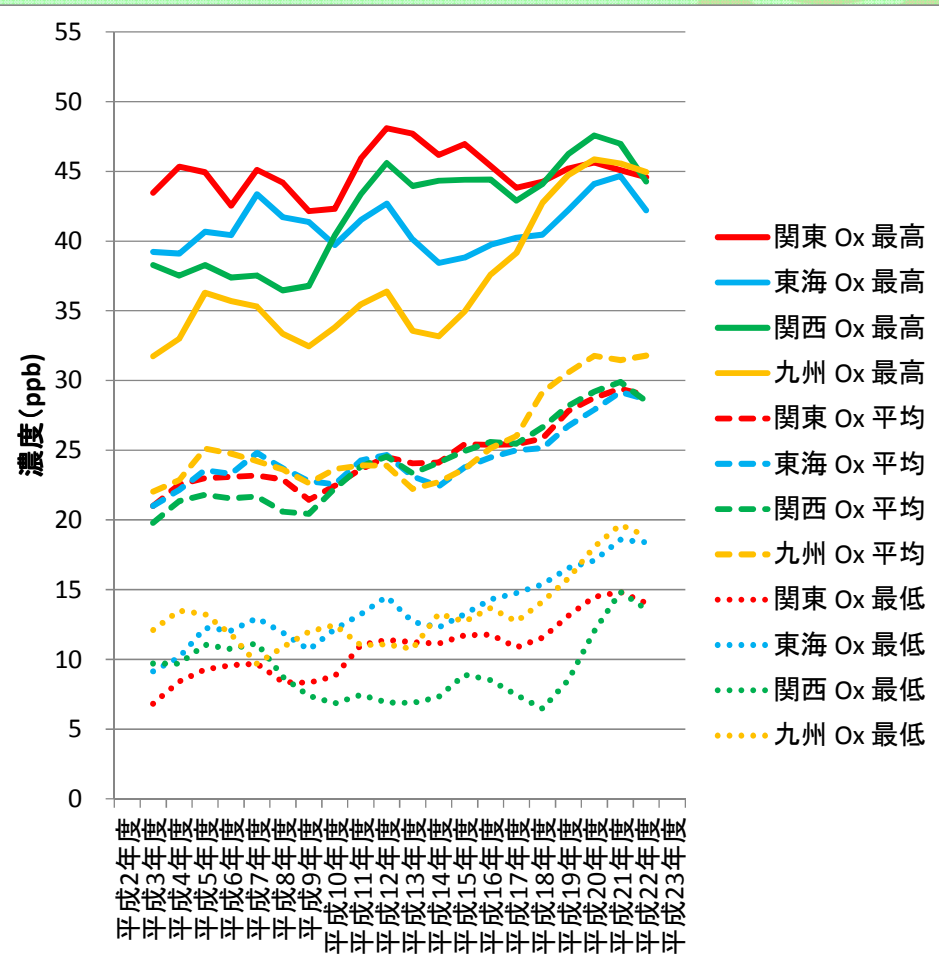
夜（16-24時）については昼の濃度上昇の影響が残っている恐れがある。

そこで、その影響が小さい朝（0-8時）の濃度について詳しく解析した。

●春季・朝8時間平均値（3年移動平均）の域内の最高値・平均値・最低値（右図）

- 平均濃度：九州と他の地域では濃度に差がみられる。
- 最高値：九州は他の地域より濃度上昇が大きい。
- 最低値：九州と関西で大きな上昇がある。
- 関東の平均値の上昇：最低値側の濃度上昇 → タイトレーションの低下
- 九州の平均濃度の上昇：全体的な濃度上昇 → 越境汚染の影響の増大

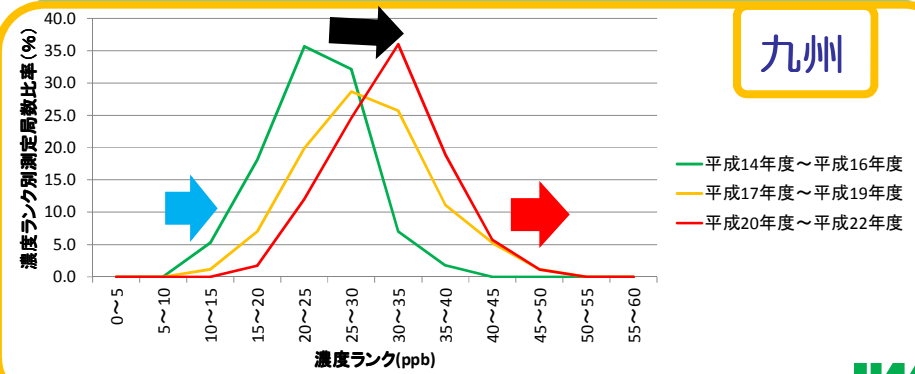
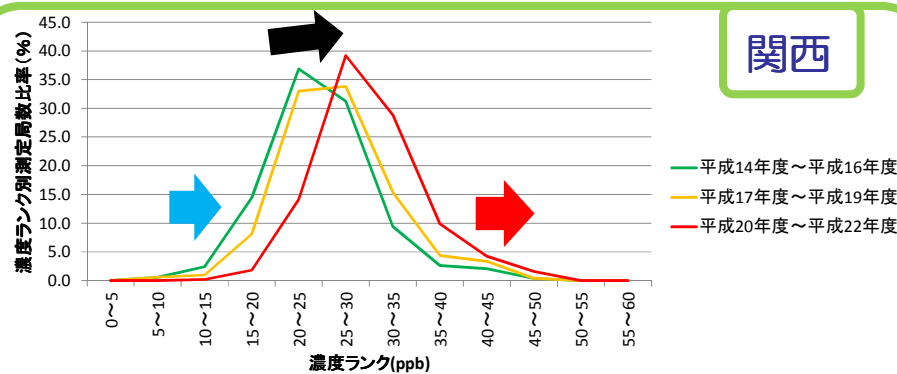
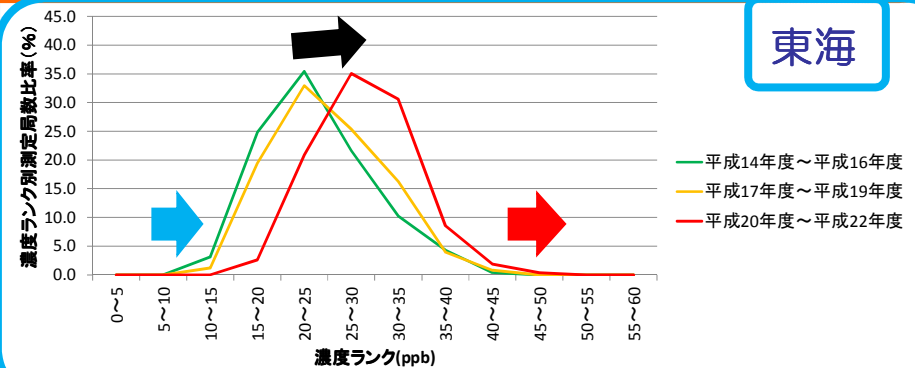
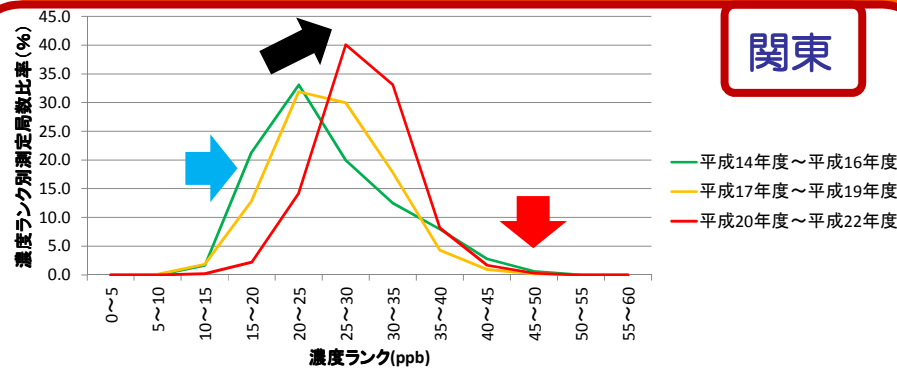
春（4～5月）  
朝（0-8時）



春季・朝8時間値の測定局平均濃度のランク別局数比率について検討した。九州の濃度変化はH15付近から大きくなっていることから、H14-16、H17-H19、H20-22についてランク別局数を示した。

● 3ヶ年度別濃度ランク別測定局数比率の分布 (下図)

- 最多ランクは、いずれの地域も上昇傾向がある。
- 関東は、高濃度側の局の変化は少なく、低濃度側の局数が減少する。
- 九州は、分布の形状は同じだが、分布は高濃度側にシフトした。







## Oxの朝8時間の濃度傾向のまとめ

- 越境汚染の影響が大きい春季と影響が小さい夏季について朝・昼・夜の8時間値の平均値について、経年変化を把握した。
- 九州の朝8時間値は、地域で全体的に濃度の上昇が見られ、越境汚染の影響が見られた。
- 関東と九州の中間に位置する東海・関西は、両方の傾向が見られ、西の地域ほど越境汚染の影響の強さが見られた。

## ポテンシャルオゾンの経年変化

光化学オキシダントの平均濃度は上昇傾向は低濃度局が中濃度にシフトしたことが要因となっている。この要因としてタイトレーションの低下と越境汚染の影響増大が考えられる。

タイトレーションに影響されない指標としてPOを用い、Oxの濃度上昇の要因について検討した。

項目	内容
目的	タイトレーション効果を除外した検討
データ	PO濃度の昼間の平均値 $[PO]=[O_3]+[NO_2]-\alpha \times [NO_x]$ $\alpha=0.1$ (一次排出のNO <sub>2</sub> 比率)
統計期間	年度(平均値) 年度(年間98パーセンタイル値)
空間統計	地域内最高値 地域内最低値 地域内平均値 地域内パーセンタイル値
図表	経年変化 濃度ランク別局数 空間分布

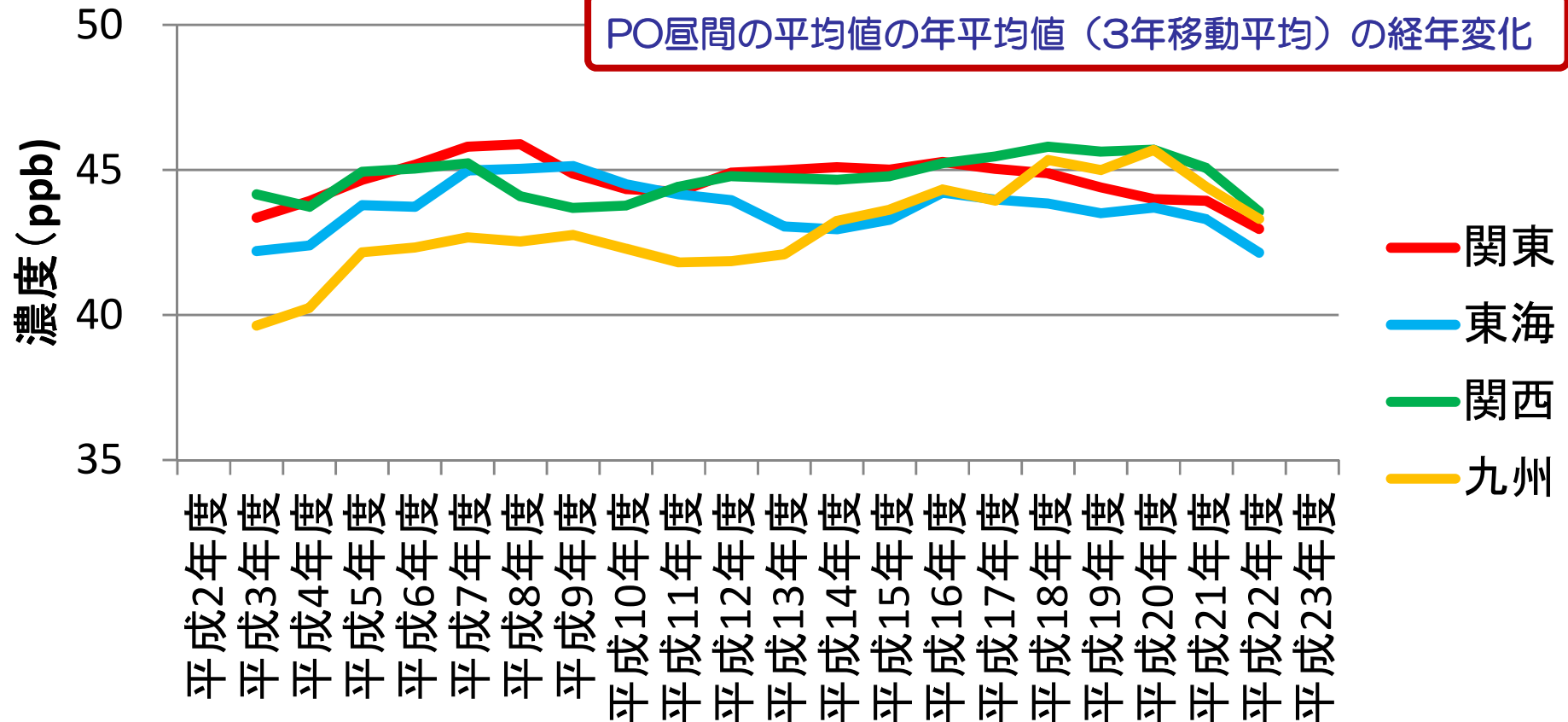


Ox平均濃度は長期的に濃度上昇が見られ、この要因としては越境汚染とタイトレーションの低下が考えられた。タイトレーションに影響されない指標としてPO（ポテンシャルオゾン）について解析した。

●POの昼間（5～20時）の平均値の年平均値（移動平均値）の経年変化(下図)

例 平成12年度＝平成11,12,13年度の平均

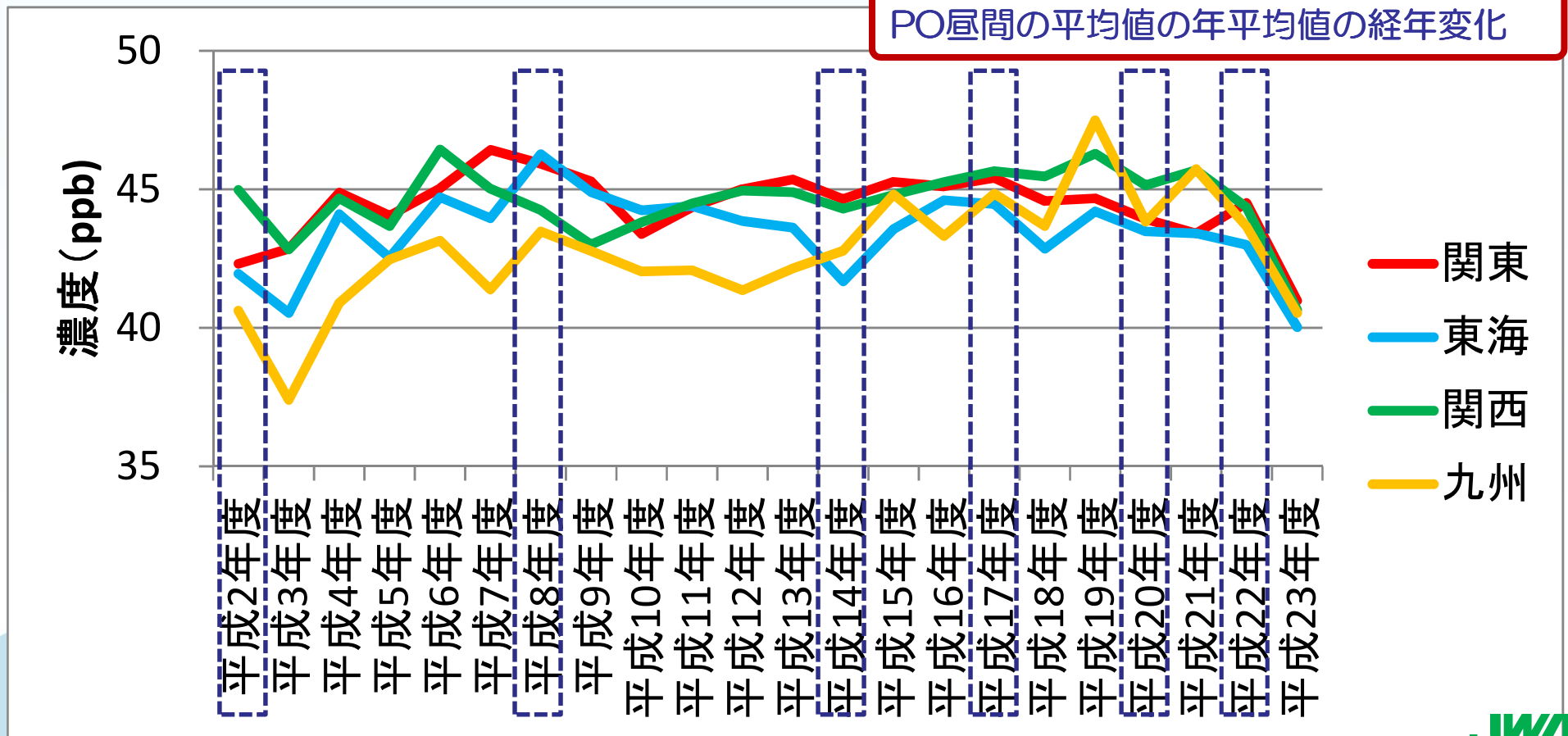
- POの平均値は、H16ごろから関東と東海では低下傾向にある。
- 関西・九州ではH20ごろまでPOの上昇が見られたが、直近の年度ではやや減少が見られる。



PO平均濃度の長期的な傾向を検討するために、POの年平均値の濃度分布の経年変化を整理した。POの昼間の平均値の年平均値の経年変化(下図)のH2、8、14、17、20、22のを整理した。(次ページ)

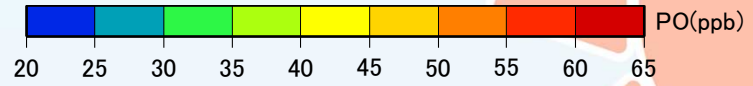
- ・ 関東・東海はH17から徐々に低下する傾向が見られた。
- ・ 関西・九州は、POにおいてもH20頃まで上昇傾向が見られた。

PO昼間の平均値の年平均値の経年変化



# POの経年変化

# POの昼間（5～20時）の平均値の年平均値



H2

H8

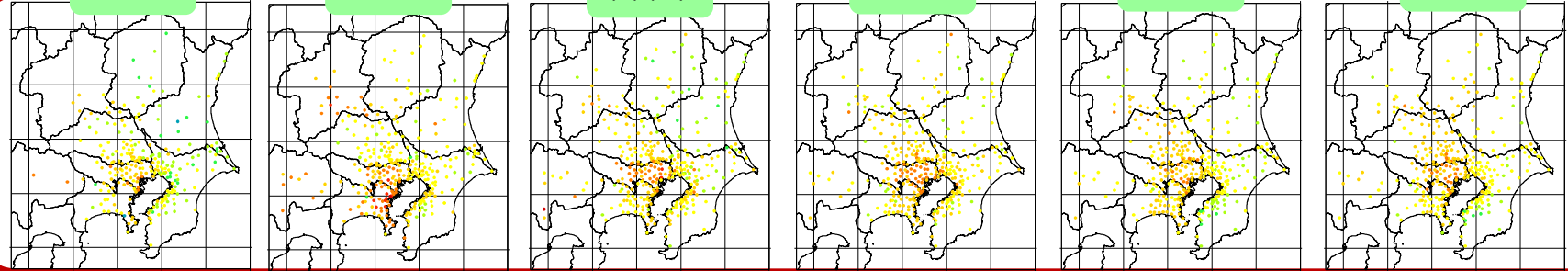
H14

H17

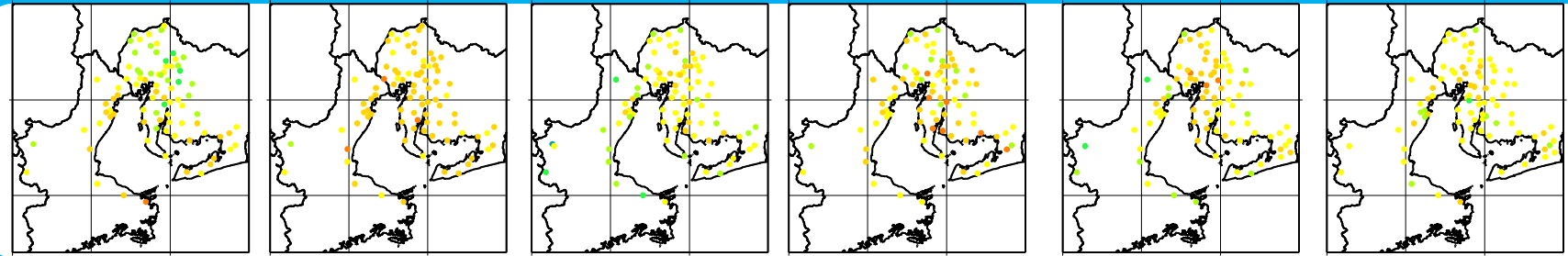
H20

H22

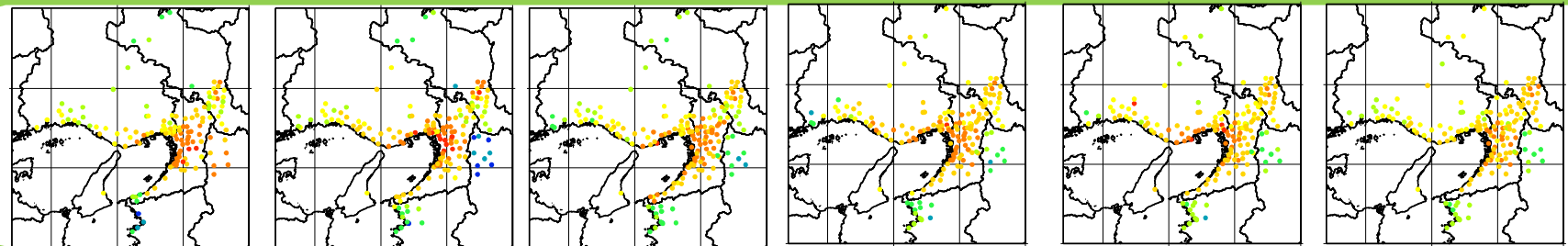
関東



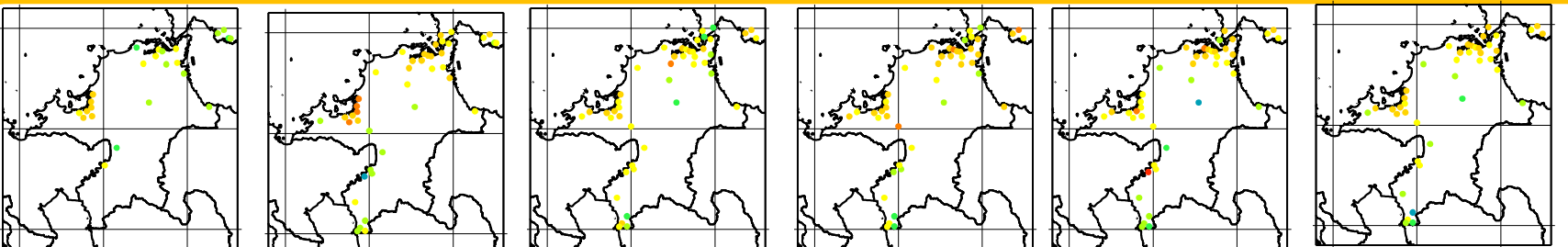
東海



関西



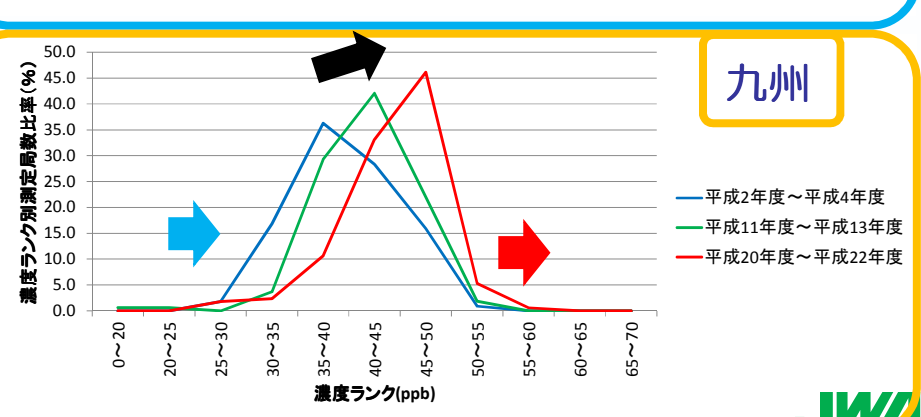
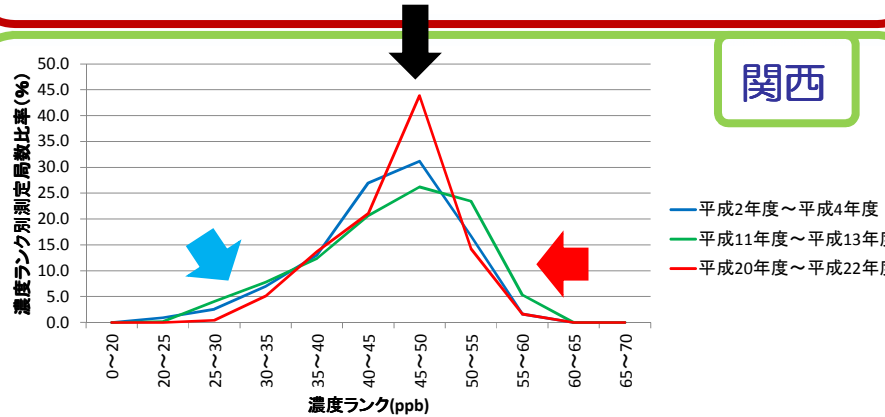
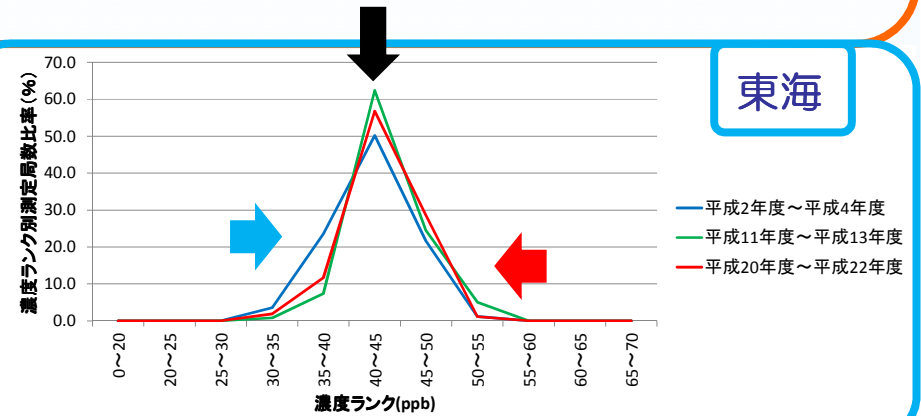
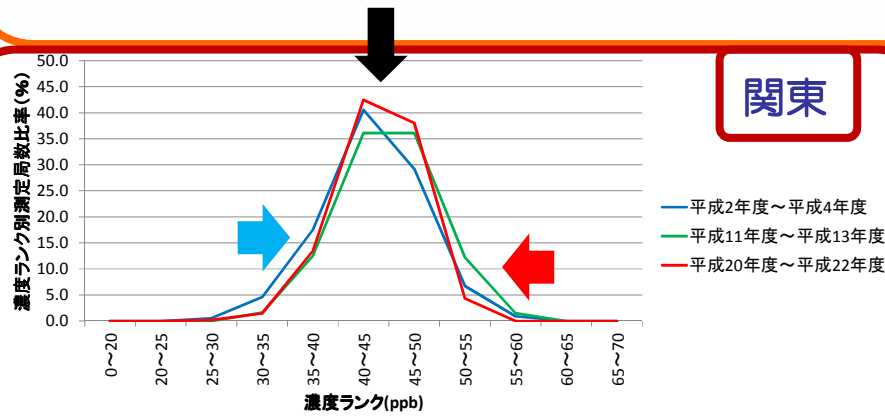
九州



PO濃度ランク別局数の経年傾向を把握するために、局数ランクの分布を整理した。

- 3ヶ年度別濃度ランク別測定局数比率の分布（下図）
- 最多ランク（下限値）とその比率（右表）
  - ・ 関東～関西の最多ランクはあまり変化ない。
  - ・ Oxほど濃度ランクの集中化はない。
  - ・ 九州は他の地域と異なり、最多ランクの濃度上昇がみられる。

最多ランク	H2～4	H11～13	H20～22
関東	40(40.5)	40(36.1)	40(42.5)
東海	40(50.2)	40(62.4)	40(56.8)
関西	45(31.2)	45(26.2)	45(43.9)
九州	35(36.3)	40(42.1)	45(46.2)



PO平均濃度の低濃度と高濃度の経年変化を把握するために、域内PO濃度の上位2、10%の濃度と下位2、10%の濃度、中央値の変化を整理した。

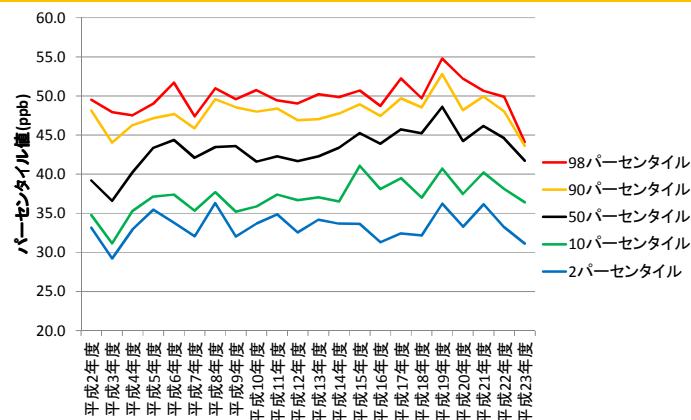
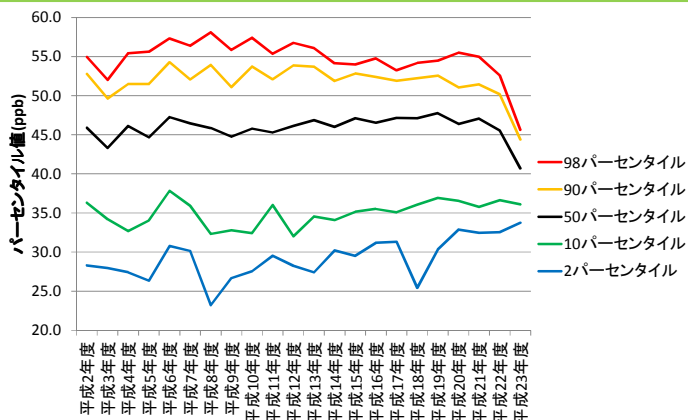
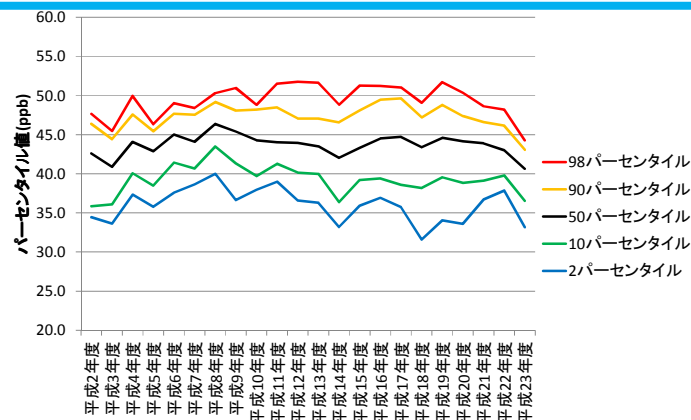
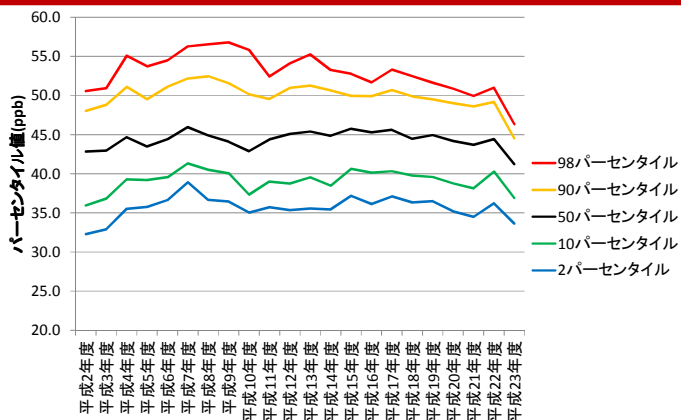
●昼間の平均濃度の域内パーセンタイル値（下図）

●98と2パーセンタイル値の傾き（右表）

H13からの傾向はいかのとおりの。

- ・高濃度側：いずれの地域も横ばい～低下
- ・低濃度側：関東・中部・九州は横ばい、関西は上昇
- ・中央値：関東は低下、東海・関西は横ばい九州は上昇

傾き(H13-22)	98	90	50	10	2
関東	-0.4	-0.2	-0.2	0.0	-0.1
東海	-0.2	-0.1	0.1	0.1	0.1
関西	-0.1	-0.3	0.0	0.3	0.4
九州	0.2	0.2	0.3	0.1	0.1





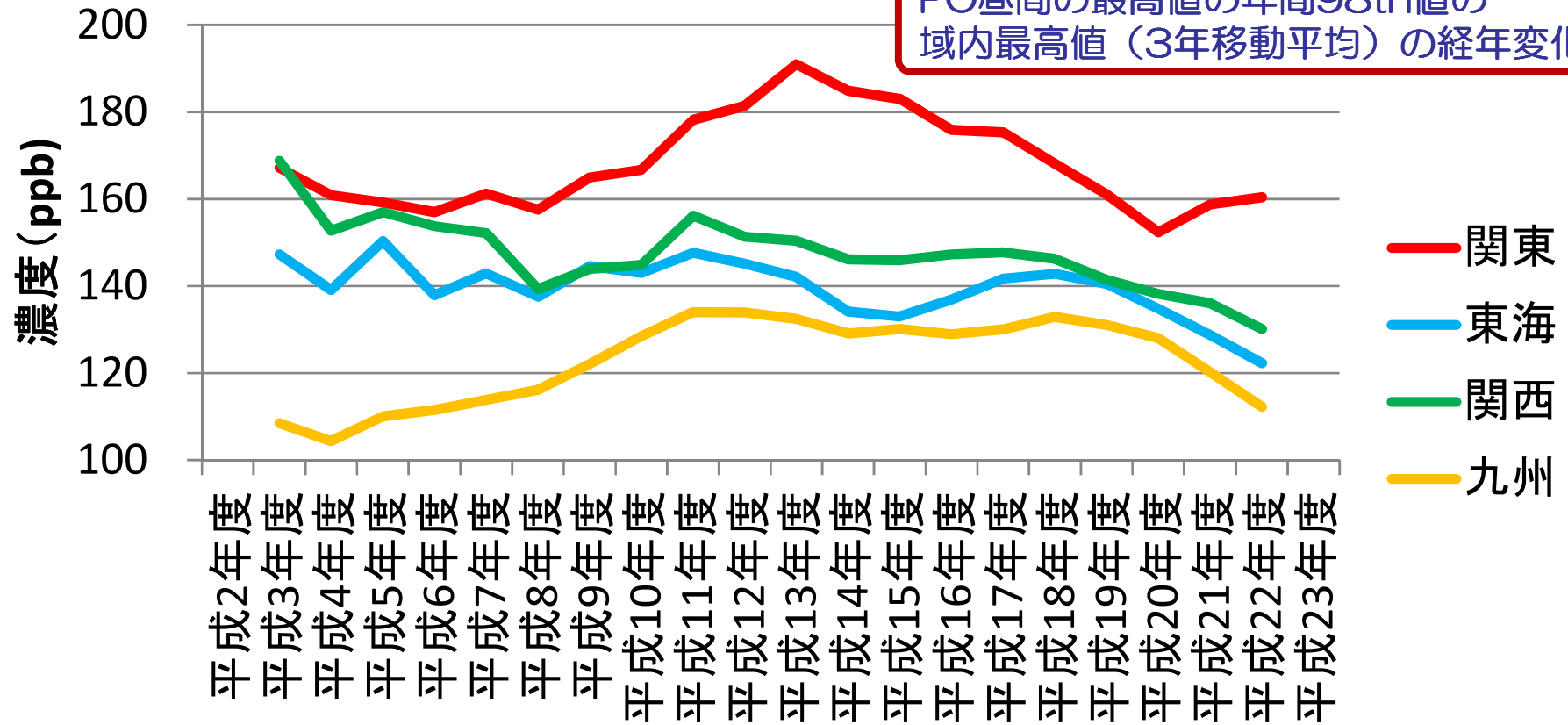
Oxの高濃度については改善傾向が見られ、POについても同様の傾向が見られた。

●POの昼間（5～20時）の最高値の年間98パーセンタイル値の域内最高値（3年移動平均）の経年変化(下図)

例 平成12年度＝平成11,12,13年度の平均

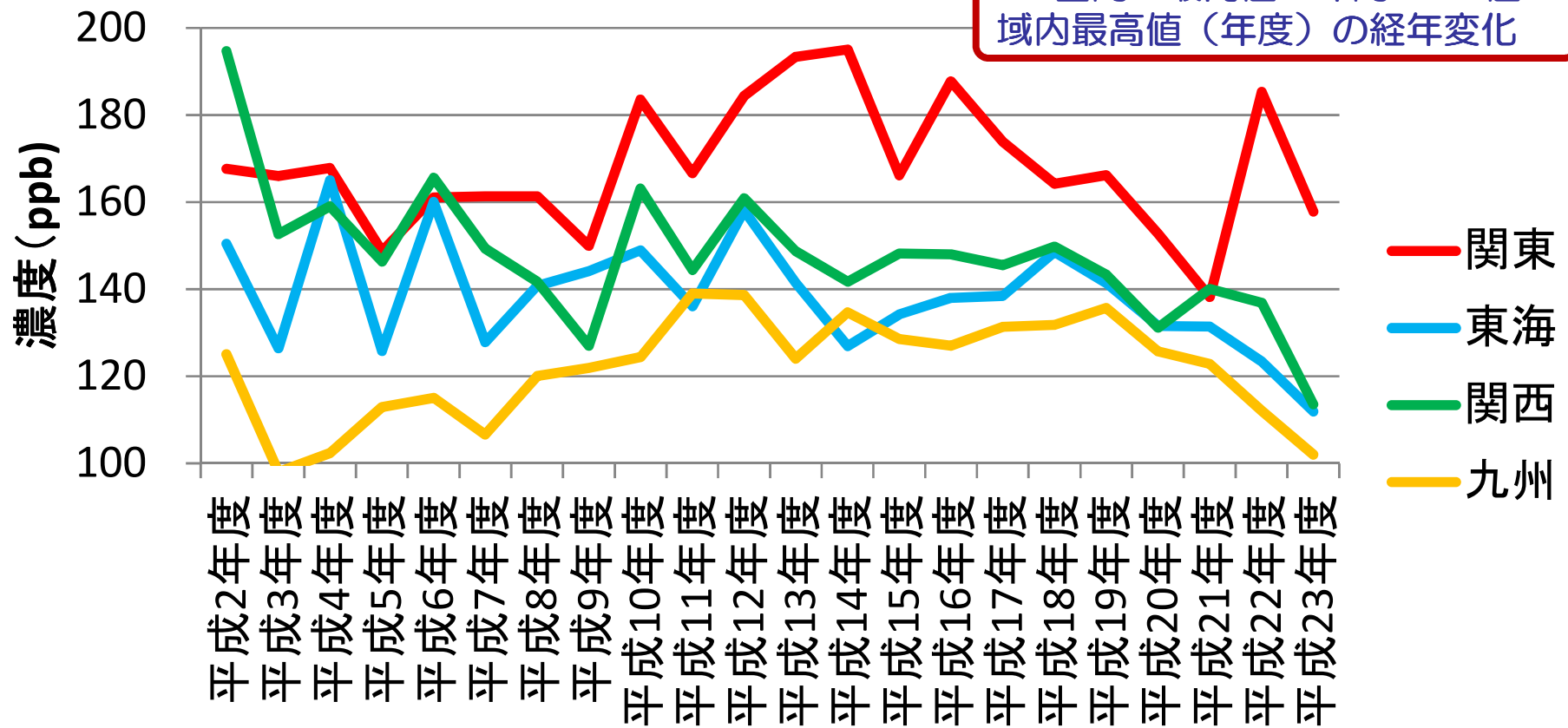
- POの高濃度は、最近の傾向としては、いずれの地域においても低下傾向が見られた。
- 関東については直近で上昇傾向が見られ、これはH22の濃度上昇による。（次ページ）

PO昼間の最高値の年間98th値の域内最高値（3年移動平均）の経年変化



PO昼間（5～20時）の最高値の年間98パーセンタイル値の域内最高値（年度）を見るとOx同様に年度による変動が大きく、高濃度日が多かったH22は98th値が高くなった。  
 ●POの昼間（5～20時）の最高値の年間98パーセンタイル値の域内最高値（年度）の経年変化(下図)

PO昼間の最高値の年間98th値の域内最高値（年度）の経年変化





## ポテンシャルオゾンの経年変化

- タイトレーションに影響を受けにくい指標のポテンシャルオゾンを用いOx平均値の上昇について要因を検討した。
- ポテンシャルオゾンは、東の地域ほど低下傾向がみられ、西の地域ほど濃度上昇が見られた。
- ポテンシャルオゾンの解析により下記の傾向が示唆された。
  - 関東・東海：越境汚染よりもタイトレーションの低下によるOx上昇が大きいことからOxの平均濃度が上昇したと考えられる。
  - 関西：越境汚染とタイトレーションの低下によるOx上昇がともにOxの平均濃度の上昇に影響を与えていると考えられる。
  - 九州：タイトレーションの低下によるOx上昇よりも越境汚染の影響が大きくOxの平均濃度が上昇したと考えられる。
- 高濃度の改善についてはOx同様の傾向であった。

## 光化学オキシダント濃度と前駆物質の関係

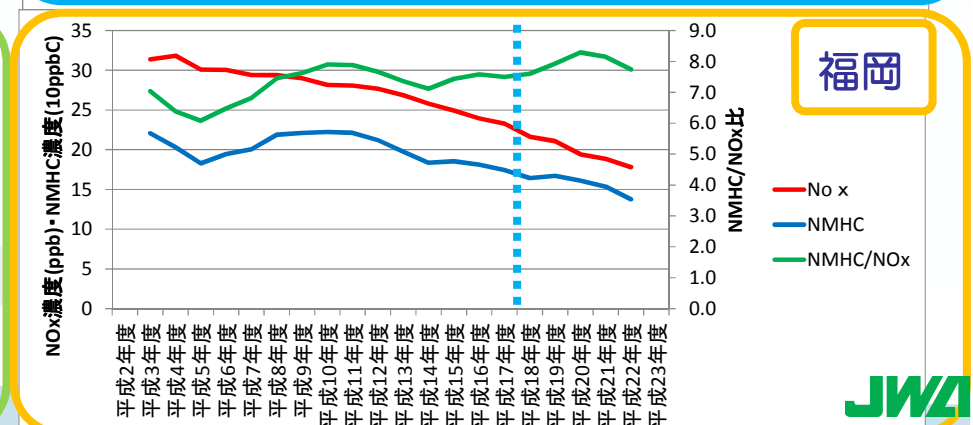
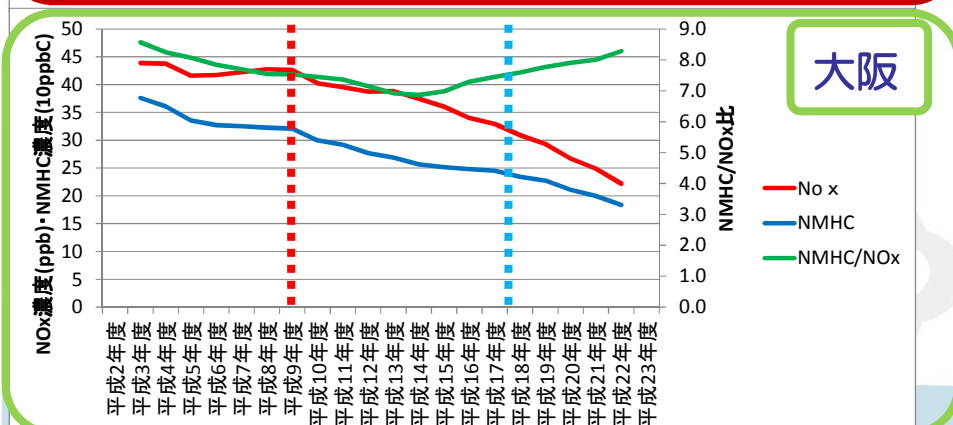
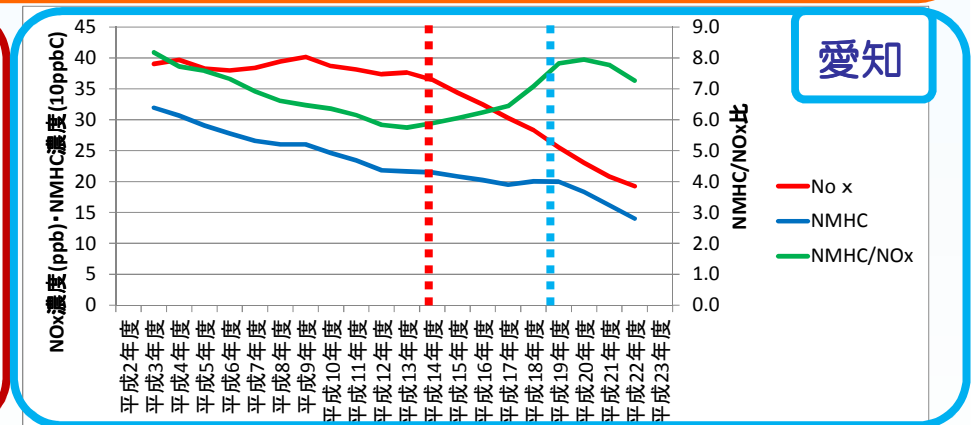
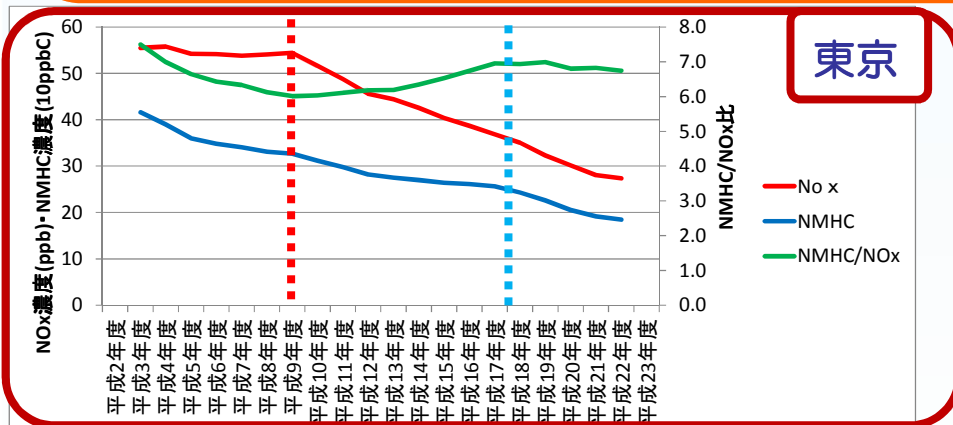
光化学オキシダントは、前駆物質（NO<sub>x</sub>とVOC）の濃度に影響を受ける。NO<sub>x</sub>は自動車排ガス規制により、濃度の改善が見られており、VOCは、VOC排出規制により改善が見られたとされている。本解析では、NO<sub>x</sub>とNMHC濃度の規制前後の傾向の変化とO<sub>x</sub>濃度との関係について整理した。

項目	内容
目的	O <sub>x</sub> と前駆物質の関係の整理
データ	O <sub>x</sub> 、NO <sub>x</sub> 、NMHCの 昼間(5~20時)の平均値
統計期間	年度
空間統計	地域内平均値 地域内パーセンタイル値
図表	経年変化 濃度ランク別局数 空間分布

No<sub>x</sub>・NMHCの昼間の平均値について都府県別年平均値（3年移動平均）の経年変化を整理。

- 【規制】
- 自動車NO<sub>x</sub>法（H4）：埼玉県、千葉県、東京都、大阪府、兵庫県
  - 自動車NO<sub>x</sub>・PM法（H13）：上記に加え、愛知県、三重県
  - 短期規制（H6）、長期規制（H10）、新短期規制（H15）、新長期規制（H17）
  - VOC規制（H17）
- 【濃度】
- 東京・大阪はH9頃、愛知はH13頃を境に濃度が大きく変化。九州は一様に低下
  - NMHCは、東京大阪はH17頃、愛知はH19頃から変化が大きい。
  - NMHC/NO<sub>x</sub>は東京・大阪・愛知はいったん低下後、上昇。

福岡は変化がH9以降変化が少ない。

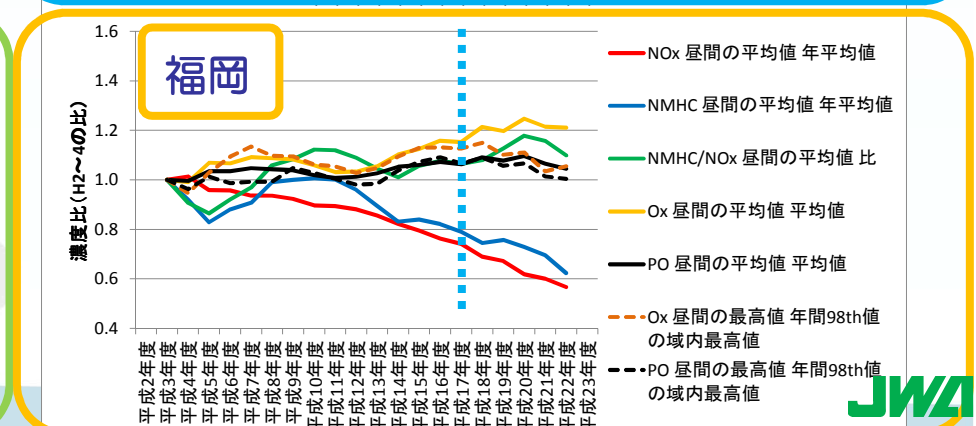
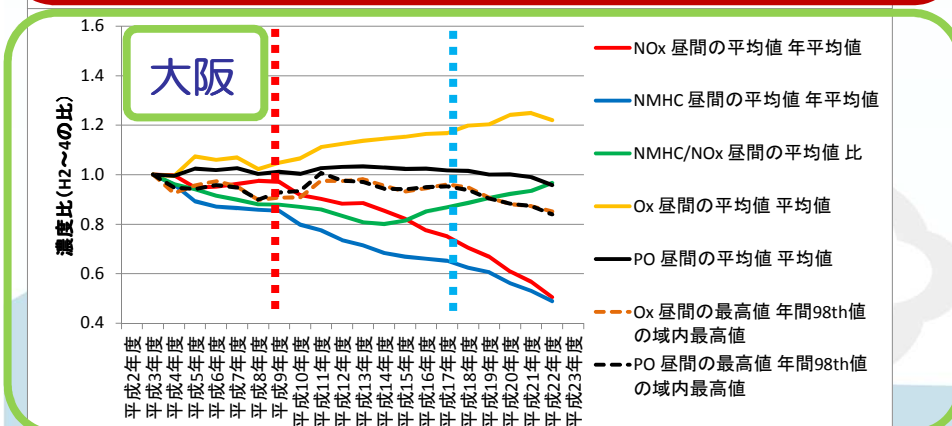
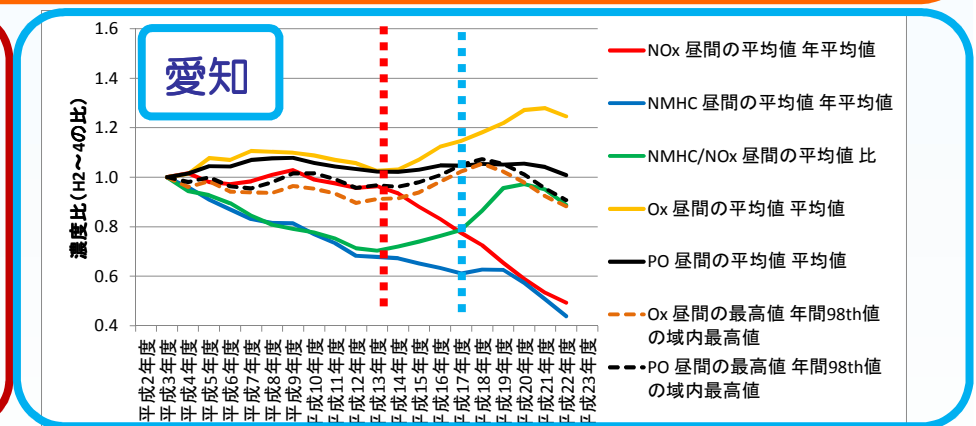
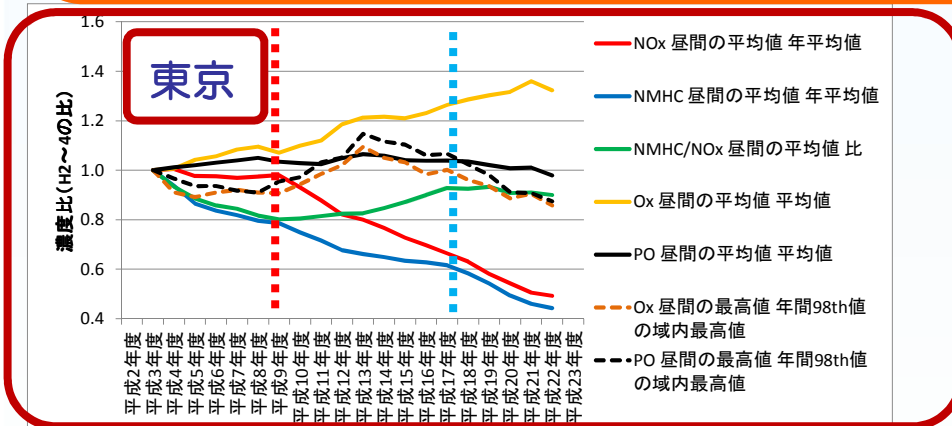


前駆物質濃度の変化と、Ox等の経年変化を重ねた。NOx・NMHCは昼間の平均値の年平均値  
 Oxは昼間の平均値、昼間の最高値の年間98thの最高値、POの昼間の平均値の年平均値  
 ついて、H2~4の平均値からの比を整理した。

- 【Oxの昼間の平均値の年平均値】
- ・東京・大阪：NOx濃度が大きく変化するH9から上昇
  - ・愛知：NOx濃度が大きく変化するH14から上昇
  - ・九州：H13頃から上昇

- 【Oxの年間98パーセンタイル値】
- ・東京：H13をピークに低下傾向。
  - ・愛知・大阪・福岡はH18頃より濃度が低下が見られる。

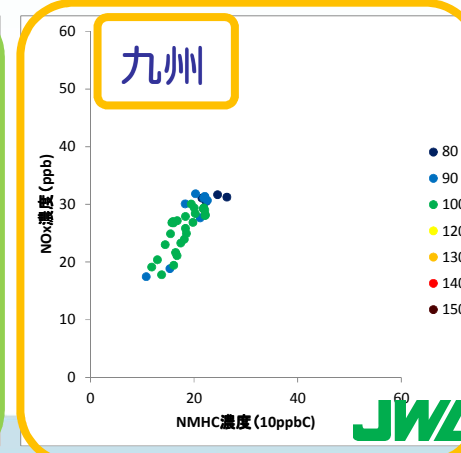
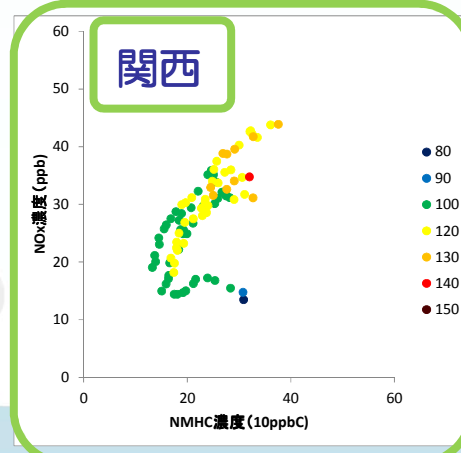
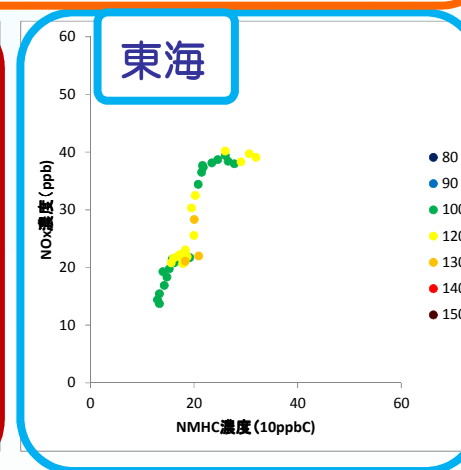
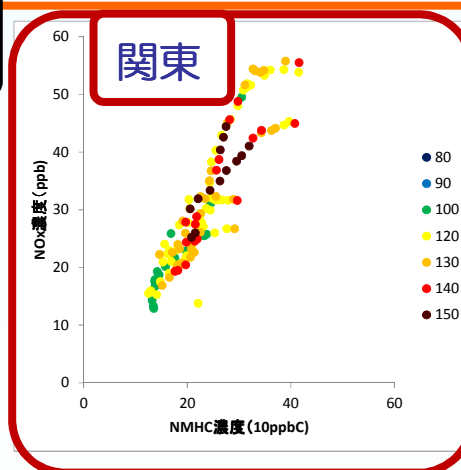
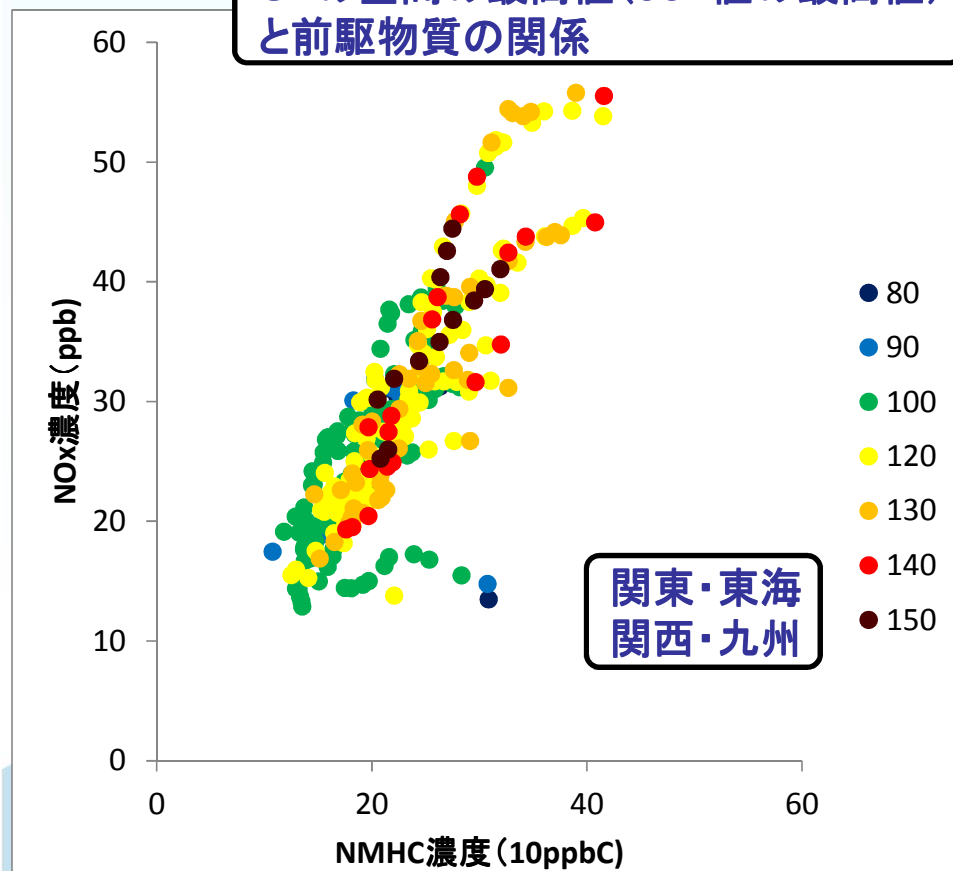
→NOx濃度の低下がOx濃度上昇に関係し、VOC規制による高濃度の改善が示唆。



Oxの昼間の最高値とNox・NMHC依存性を検討するために、横軸にNMHC濃度、縦軸にNOx濃度として、Ox濃度の昼間の最高値の年間98パーセンタイル値の都府県別最高値（3年移動平均）をプロットした。（下図）

- 前駆物質濃度が低い場合はOx濃度は低くなる傾向が見られた。関東では、Nox 30~50ppb程度、NMHC20~40ppbでOx濃度が高かった。

Oxの昼間の最高値（98<sup>th</sup>値の最高値）と前駆物質の関係

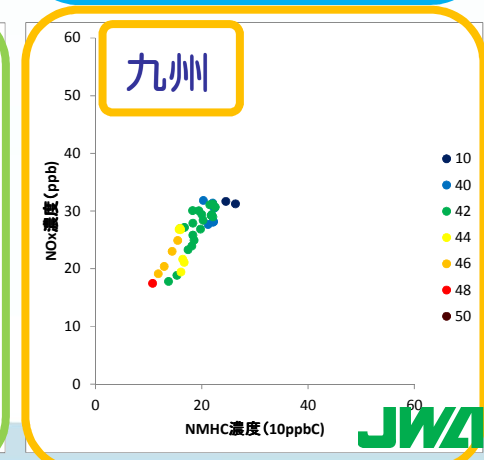
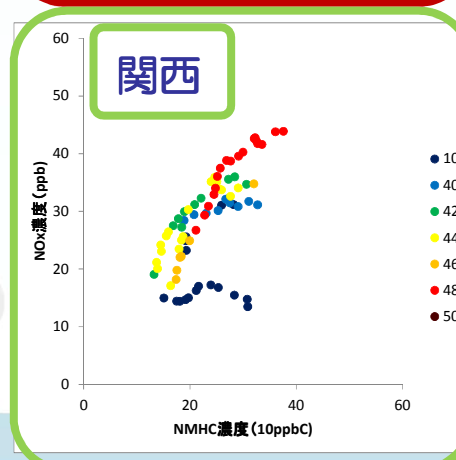
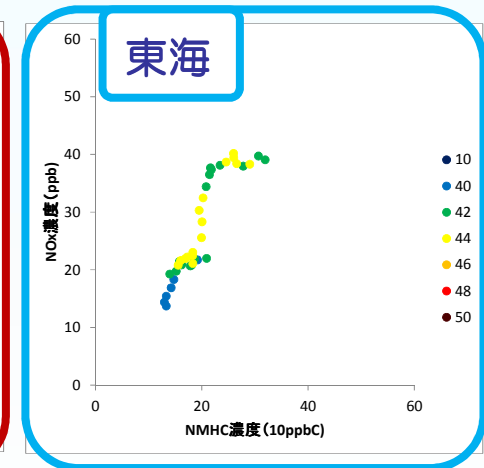
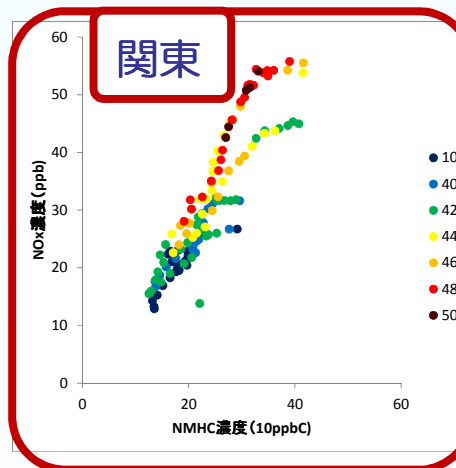
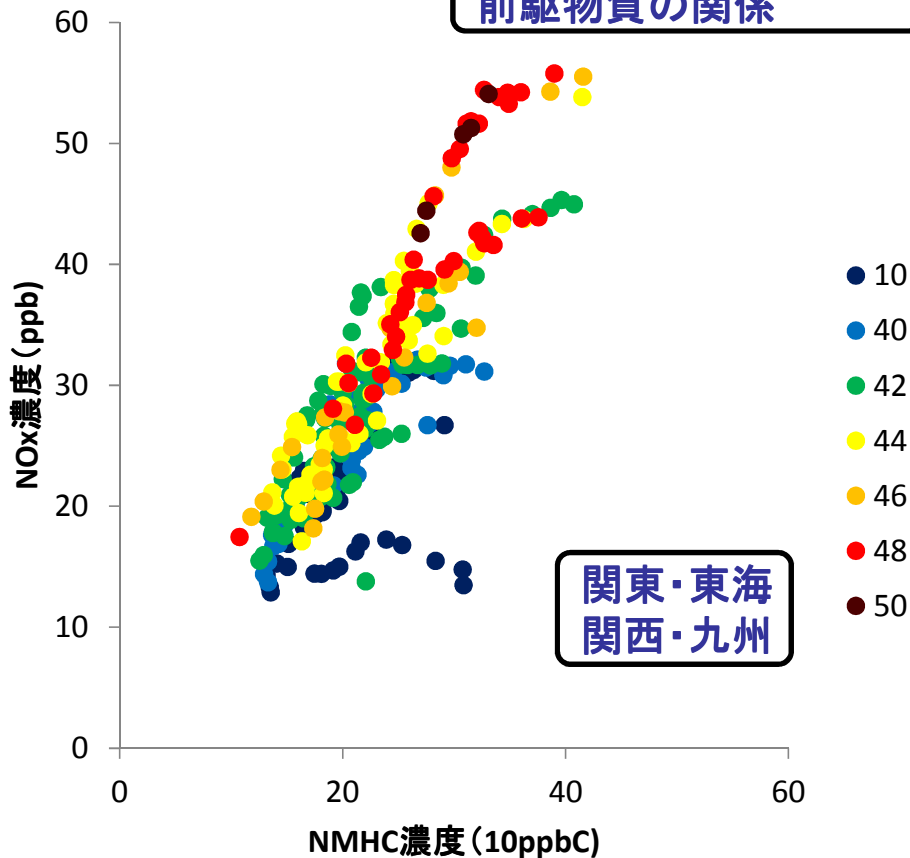




POの昼間の平均値とNo<sub>x</sub>・NMHC依存性を検討するために、横軸にNMHC濃度、縦軸にNO<sub>x</sub>濃度として、PO濃度の昼間の平均値の年平均値の都府県別平均値（3年移動平均）をプロットした。（下図）

- ・ 関東・東海・関西は、前駆物質濃度が低い場合はPO濃度は低くなる傾向が見られた。
- ・ 九州は越境汚染の影響から前駆物質が低濃度でPO濃度が高かった。これは、前駆物質の濃度が低下した時期に越境汚染の影響が強くなったためと考えられる。

POの昼間の平均値と前駆物質の関係



## O<sub>x</sub>と前駆物質との関係

- NO<sub>x</sub>平均濃度の低下に伴って、O<sub>x</sub>平均濃度の上昇が見られ、そのタイミングはおおよそ自動車NO<sub>x</sub>の規制時期と一致する。
- NMHC平均濃度の低下に伴い、高濃度O<sub>x</sub>は低下しており、そのタイミングは、VOC規制時期と概ね一致した。
- NMHC/NO<sub>x</sub>比とO<sub>x</sub>濃度の関係は明瞭な関係は見いだせなかった。



## Oxの長期的傾向の要因検討のまとめ

- Oxの長期傾向（平均値の上昇と高濃度の改善）の要因を検討した。
- 関東・東海のOx平均濃度の上昇は、越境汚染の影響よりもNoxの低下によるタイトレーションの低下が強く影響していると考えられる。
- 九州のOx平均濃度の上昇は、タイトレーションの低下よりも、越境汚染の影響が強いと考えられる。
- 関西については、両行の影響がともに現れていると考えられる。
- 高濃度Oxについては改善の傾向がみられ、NOxが十分に低下した中でVOCの削減が行われたことによるものと考えられる。