

多角的解析結果について（まとめ）

1 目的	3
2 基本方針	3
2.1 調査の方針と位置づけ	3
2.2 データの多角的解析の概要	8
3 多角的解析の条件設定	9
3.1 優先解析地域の設定	9
3.2 解析期間と季節区分の設定	9
3.3 解析対象物質	10
3.4 使用するデータ	11
3.5 統計指標の算定手順	12
3.5.1 光化学オキシダントの 1 時間値に基づく統計処理	12
3.5.2 光化学オキシダントの 8 時間値に基づく統計処理	12
3.6 解析結果についての留意点	15
4 光化学オキシダント濃度の多角的解析結果	17
4.1 光化学オキシダントの経年変化	17
4.1.1 概要	17
4.1.2 平均的な濃度の経年変化	17
4.1.3 高濃度の経年変化	22
4.2 光化学オキシダント濃度の経年変化の要因検討	27
4.2.1 光化学オキシダント平均濃度の季節差	27
4.2.2 光化学オキシダントの 8 時間帯別濃度の傾向	31
4.2.3 ポテンシャルオゾンの経年変化	39
4.2.4 光化学オキシダントの 8 時間値の経年変化	43
4.2.5 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数	64
4.2.6 光化学オキシダント濃度が基準値以上となる場合の積算濃度	66
4.3 光化学オキシダントと前駆物質濃度の関係	68
4.3.1 前駆物質濃度の経年変化	68
4.3.2 窒素酸化物と非メタン炭化水素と光化学オキシダントの関係	75
4.3.3 前駆物質濃度と光化学オキシダントとの関係整理	83
4.3.4 まとめ	86
4.4 VOC 成分濃度の経年変化	87
4.4.1 概要	87

4.4.2 全国平均濃度(年平均値)の推移.....	87
4.4.3 地点別平均濃度(年平均値)の推移.....	89
4.5 環境濃度データと排出インベントリの比較.....	91
4.5.1 国内排出インベントリ調査の状況.....	91
4.5.2 前駆物質排出量の経年変化の推計.....	93
4.5.3 排出量と前駆物質濃度の関係.....	95
4.6 光化学オキシダントの 8 時間値を用いた外れ値の扱いの検討.....	98
4.6.1 概要.....	98
4.6.2 外れ値の評価方法.....	99
4.6.3 外れ値を検討する上での注意点.....	100
4.6.4 時間的な外れ値の検討.....	104
4.6.5 空間的な外れ値の評価.....	106
4.6.6 まとめ.....	107
4.7 光化学オキシダントの標準器の校正法の変更に伴う影響.....	108
4.7.1 校正方法変更前後での感度差.....	108
4.7.2 校正法変更の影響試算.....	109
4.7.3 まとめ.....	110
5 光化学オキシダントの効果を適切に示す指標の検討.....	111
5.1 本調査で解析した統計値.....	111
5.2 年々変動の軽減方法.....	112
5.3 平均濃度に着目した指標の検討.....	113
5.4 高濃度に着目した指標の検討.....	114
5.1 高濃度の出現頻度に着目した指標の検討.....	115
5.1 光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標の検討.....	116
6 まとめ.....	117

1 目的

光化学オキシダントについては、窒素酸化物(NO_x)や揮発性有機化合物(VOC)の削減対策が実施されたにもかかわらず、近年その濃度は漸増傾向にあり、平成 22 年度の一般環境大気測定局及び自動車排出ガス測定局の環境基準達成率はいずれも0%であった。また、光化学オキシダント注意報発令地域は九州・四国や日本海側などで広域化の傾向にあり、越境大気汚染が懸念されている。

そこで、平成 23 年 8 月に「光化学オキシダント調査検討会」を設置し、VOC対策を含むこれまでの施策の進捗確認及び濃度上昇要因等に関する新たな科学的知見を収集するとともに、今後必要とされる対策を見据えた調査研究のあり方について検討を行い、平成 24 年 3 月に「検討会報告書」(以下、平成 23 年度報告という。)をまとめた。

現在、光化学オキシダントの評価は、環境基準達成率、光化学オキシダント注意報発令日数及び昼間の日最高1時間値の年平均値を指標としている。しかし、これらの指標だけでは光化学オキシダントの濃度上昇等に係る原因究明や対策効果を適切に評価することは困難であった。そこで、新たな評価指標を設定するとともに、地域、前駆物質濃度及び気象条件等に着目した多角的な解析が必要となった。

本調査は、光化学オキシダント対策の検討及び環境改善効果を適切に示す指標づくりに資することを目的として、様々なデータの多角的かつ詳細な検討を行った。

2 基本方針

2.1 調査の方針と位置づけ

中央環境審議会大気環境部会 揮発性有機化合物排出抑制専門委員会(第 16 回) 参考資料3 「光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進」(図 2-1)に示したとおり、今後必要な取り組みには4つの項目を示した(図中、緑枠内)。

本調査では、光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標を検討することを目的として、光化学オキシダント濃度に関する現象解明のためのデータの多角的解析を実施した。なお、植物起源 VOC 排出量などインベントリの精緻化を目的とした調査も併せて実施している。

光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進

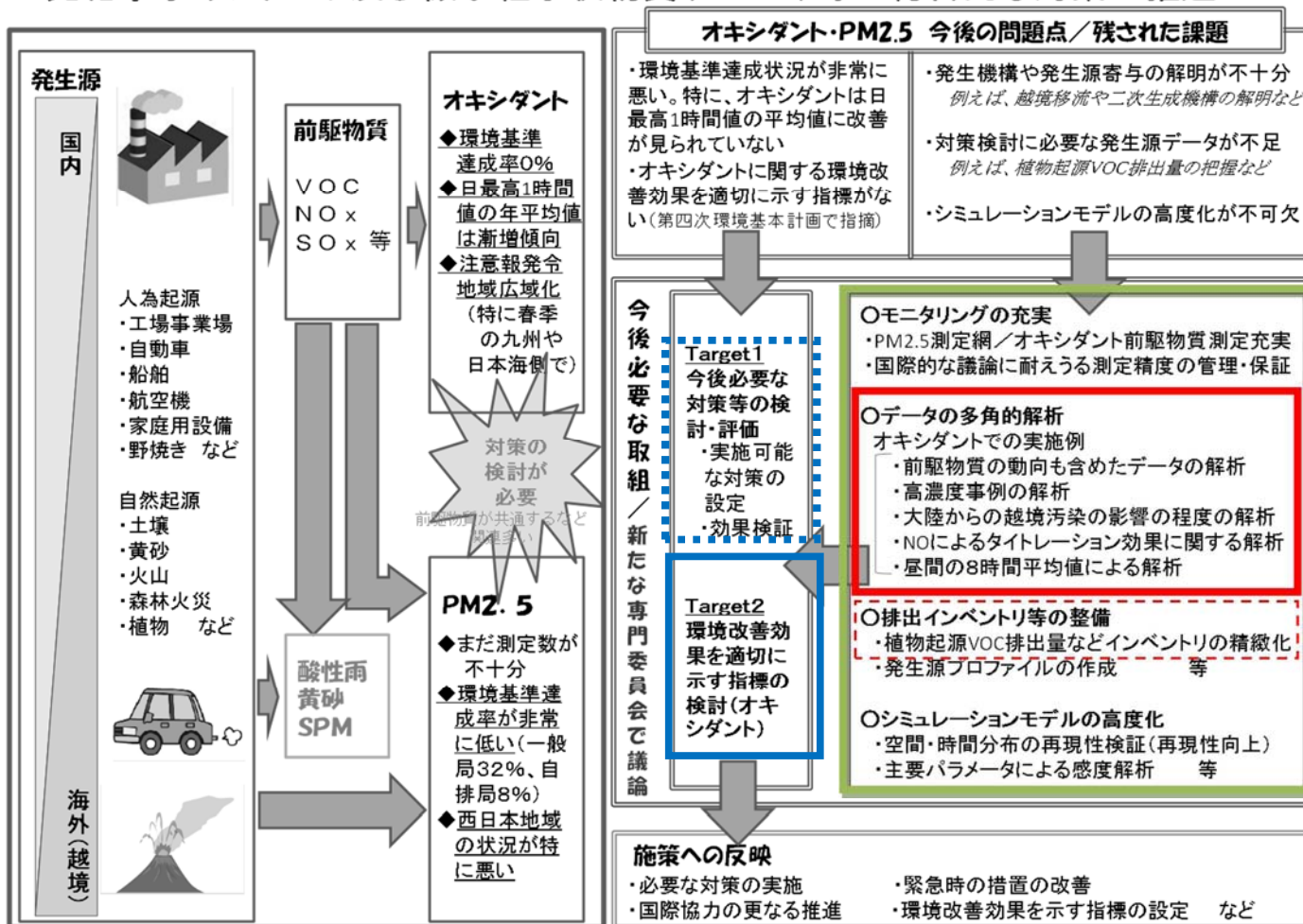


図 2-1 光化学オキシダント及び微小粒子状物質(PM2.5)等の総合的な対策の推進

平成 23 年度報告では、光化学オキシダント対策を見据えた今後の調査研究について、「平成 18 年度以降の新たな知見を踏まえた主要課題」と「今後の調査のあり方」について取りまとめ、これに従って調査を進めていくことが妥当であるとした。

平成 23 年度検討会報告では、「調査研究から対策効果への評価への道筋」を以下のように整理し、主要課題と今後の調査のあり方をとりまとめた。

本検討は今後有効な光化学オキシダント対策の立案に必要な調査研究のありかたをとりまとめるものである。そのため、光化学オキシダント生成や環境濃度に寄与する排出源に関する対策効果の評価手法に関する事項までを射程とし、これにより今後行われる対策の検討や決定への基盤となる情報提供を行うこととする。

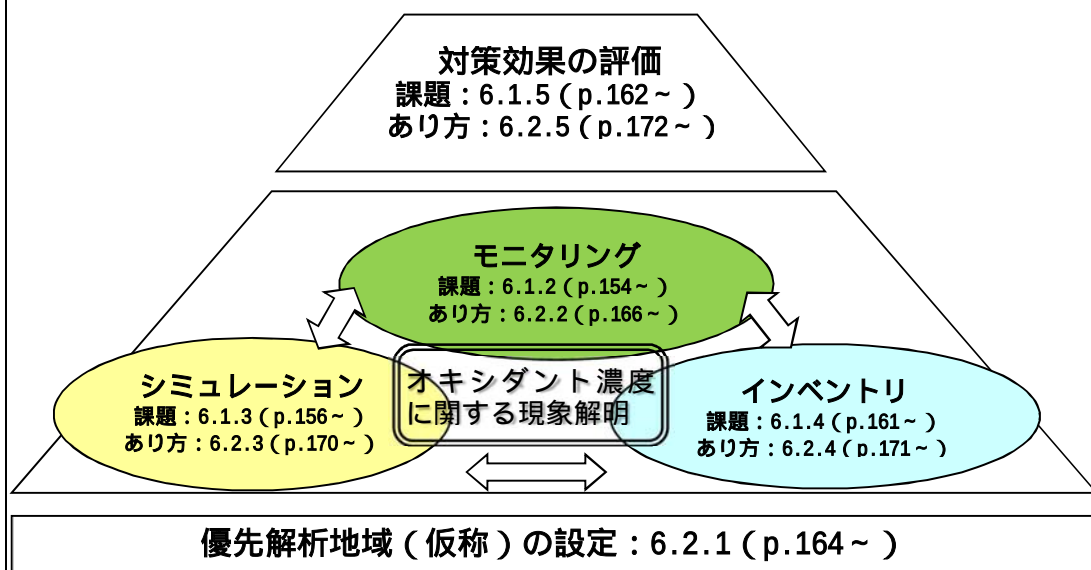
対策効果を評価するためには、光化学オキシダント濃度に関する現象解明をさらに進めることが必須となる。

この現象解明は、モニタリングデータの多角的な解析と、モニタリングデータを様々な活用したシミュレーションにより行う。また、シミュレーションのためには、排出インベントリとシミュレーションモデルを合わせた「モデリングシステム」の高度化が必要で、これによりこれまでの排出インベントリ実績に基づくオキシダント濃度等の再現性の検証や、排出インベントリの不確実性にも対応した対策効果の評価が可能となる。

また、モニタリングデータの解析やシミュレーションを活用した検討を行う際には、現象解明のため有効な知見を得る観点から、地域別にデータ整理や各種解析を行うこととする。

モデリングシステム

シミュレーションモデル及び排出インベントリの組み合わせを一つのシステムとして定義したもの。



注）ページ番号は、平成 23 年度検討会報告書のページである。

「調査研究から対策効果への評価への道筋」（平成 23 年度検討会報告より抜粋）

平成 23 年度検討会報告で示された「今後の光化学オキシダント対策の評価フロー（例）」（平成 23 年報告書、173 ページ）では「モニタリングとの連携」、「排出インベントリの精緻化」や「対策の検討・評価」に関する項目が不足していたことから、評価フローの見直しを行った。（図 2-2）

図 2-2 では、平成 23 年度報告の評価フロー（例）を基に、モニタリングとの連携として「モニタリングの拡充」や「モニタリングデータを活用した解析」について加え、シミュレーションによる解析についても「排出インベントリの精緻化」「シミュレーションによる対策の検討・評価」を加えた。

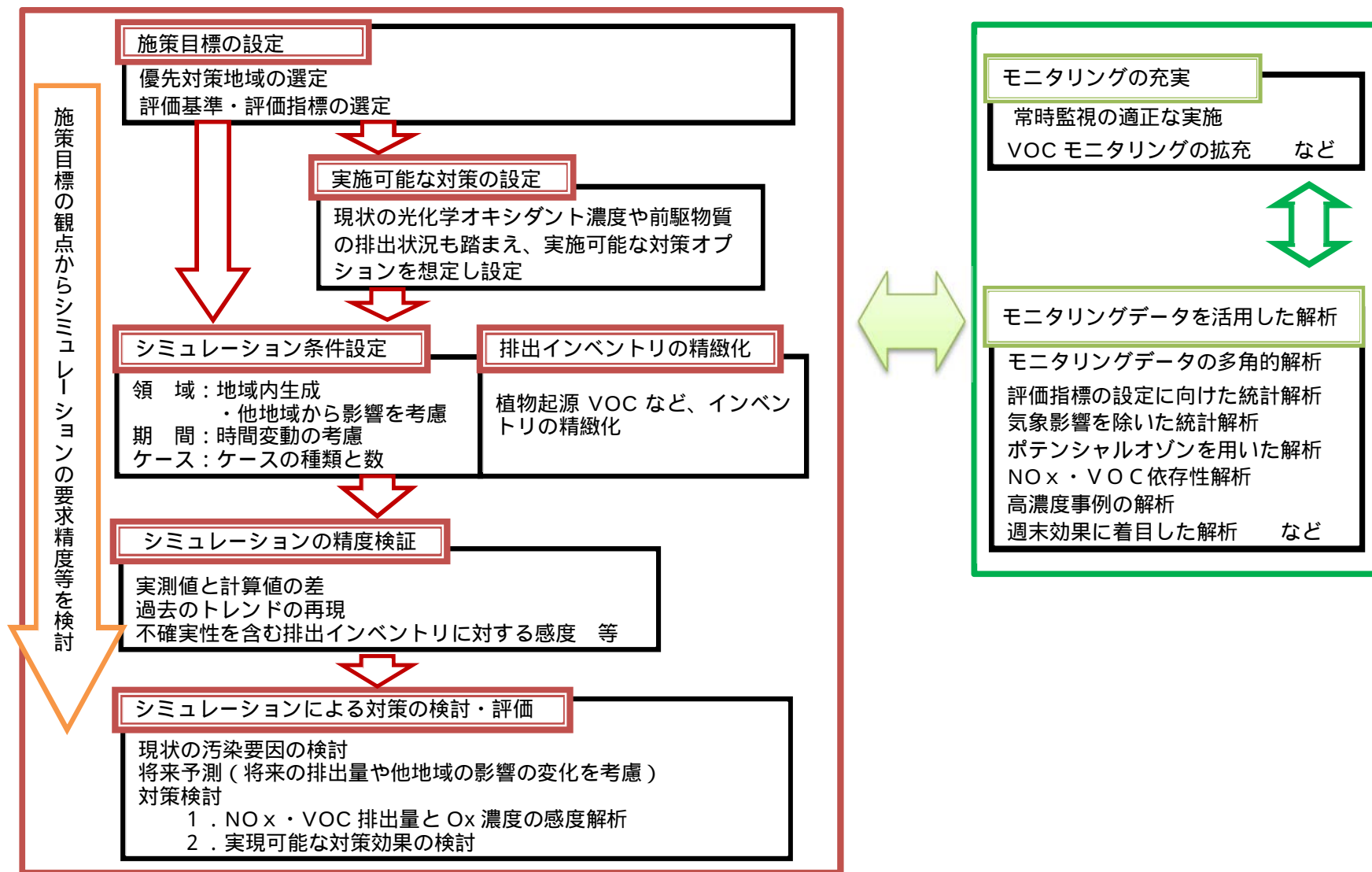


図 2-2 今後のオキシダント対策の評価フロー

2.2 データの多角的解析の概要

光化学オキシダント対策の検討及び環境改善効果を適切に示す指標づくりに資することを目的として、様々なデータを多角的かつ詳細な検討を行った。

多角的解析での解析内容等を表 2-1 に示す。

表 2-1 多角的解析の項目と目的

項目	目的
多角的解析の条件設定	優先解析地域、解析期間、解析データなどの条件の整理。
統計指標の算定手順	本調査で実施した統計指標の算定について、手順の整理。
長期平均濃度(年平均値の経年変化)	Ox 平均濃度の上昇の状況傾向と地域別状況の確認。
短期濃度(高濃度)の経年変化	H23 報告で、Ox 高濃度の改善傾向が示唆された報告について、その状況を地域別に確認。
Ox 平均濃度の季節差	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、越境汚染の状況を把握。
Ox の 8 時間帯別濃度の傾向	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。
ポテンシャルオゾンの経年変化	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影響の程度を検討。
Ox の 8 時間値の経年変化	8 時間値の日最高値及び日平均値について解析を行い、指標としての有効性を検討。
Ox が基準値以上になった時間数の経年変化	Ox の影響として高濃度となった年間時間数の観点から、指標としての有効性を検討。
Ox 積算濃度の経年変化	Ox の影響として高濃度となった年間積算濃度の観点から、指標としての有効性を検討。
Ox と前駆物質濃度の関係	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。
VOC 成分濃度の経年変化	VOC モニタリング調査結果(環境省)から VOC 成分について経年変化を整理。
環境濃度データと排出インベントリの比較	前駆物質排出量の経年変化を整理し、濃度と排出量の関係を整理。
Ox の 8 時間値を用いた外れ値の扱いの検討	気象等を要因として発生する特異的な高濃度を除外するデータ数を見積もるために、外れ値の扱いについて検討。
Ox 測定における校正方法の変更とその影響	Ox 測定における校正方法が変更による濃度の違いが統計値に与える影響の程度を検討

3 多角的解析の条件設定

3.1 優先解析地域の設定

地域毎に現象解明を行うことが有効であるため、重点的に解析する地域を表 3-1 のとおりとし、この地域を優先解析地域と呼ぶ。なお、この地域選択は、平成 23 年度報告に従った。

対象とする都府県は、優先解析地域に含まれ、国立環境研究所が大気環境時間値データ(平成 2～22 年度)として貸出を行っている自治体を対象とした。なお、横浜市については、別途データを入手し、時間値データを整理した。

表 3-1 優先解析地域

名称	対象地域	対象都府県
関東地域	東京都・埼玉県を中心とする関東地域	茨城県 栃木県 群馬県 埼玉県 千葉県 東京都 神奈川県 山梨県
東海地域	愛知県を中心とする東海地域	愛知県 三重県
阪神地域	大阪を中心とする阪神地域	京都府 大阪府 兵庫県 奈良県 和歌山県
九州地域	福岡を中心とする九州地域	福岡県 山口県

3.2 解析期間と季節区分の設定

解析期間は、平成 2～23 年度(1990～2011 年度)とした。平成 2～22 年度については国立環境研究所が貸し出している大気環境時間値データを用い、平成 23 年度については、「大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)ホームページ」の速報値を用いた。

解析期間は、年度を基本とした。必要に応じて、季節区分を春(4～5 月)・梅雨(6 月)・夏(7～8 月)・秋(9～10 月)として解析した。

表 3-2 季節区分

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

3.3 解析対象物質

解析対象とする物質は、光化学オキシダント Ox とその前駆物質である窒素酸化物 NO_x (NO 、 NO_2)、揮発性有機化合物 (VOC) または非メタン炭化水素 NMHC とした。

越境汚染の指標の検討として硫酸イオン濃度を対象とした。硫酸イオン濃度の 1 時間値については福岡県より提供を受けた。

NO_x によるタイトレーションの影響を考慮した検討をするために、ポテンシャルオゾン (PO) についても対象とした。ポテンシャルオゾンについては一次排出の NO_2 濃度の評価に年度や地域による差などの課題はあるものの、本調査では平成 23 年度調査を踏まえて、表中に示す式により算出した。

表 3-3 対象物質

対象物質	理由
光化学オキシダント (Ox)	解析対象物質
窒素酸化物 ($NO_x = NO + NO_2$) 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
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 $[PO] = [O_3] + [NO_2] - \alpha \times [NO_x]$ $\alpha = 0.1$ (一次排出の NO_2 比率)	タイトレーション効果を考慮した評価の検討

3.4 使用するデータ

本解析で用いる主なデータは表 3-4 の通りとした。

表 3-4 解析に用いる基礎データ

データ	入手先
大気汚染常時監視測定データ (Ox、NOx、NMHC、PM _{2.5} など)	大気環境時間値データファイル(国立環境研究所) 平成 2～22 年度まで時間値で提供される都府県は以下のとおりである。 茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、山梨県、愛知県、三重県、京都府、大阪府、兵庫県、奈良県、和歌山県、島根県、岡山県、広島県、山口県、徳島県、福岡県 平成 21 年度以降は、47 都道府県の毎時データが公開されている。 横浜市については別途データを入手し、整理した。 平成 23 年度は、「大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)ホームページ」の速報値を用いた。
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	日本国温室効果ガスインベントリ報告書、JATOP 排出量データベース、REAS、EAGrid2000 等を利用

3.5 統計指標の算定手順

本調査では、優先解析地域毎の特徴を整理するために、図 3-1 及び図 3-2 の手順で統計処理を行った。全体のデータの流れは図 3-3 に示すとおりである。

3.5.1 光化学オキシダントの 1 時間値に基づく統計処理

光化学オキシダントの 1 時間値を基礎データとした解析では、図 3-1 に示す手順で統計処理を行った。

1. 各年度の測定局別 1 時間値を基礎データとした。(-1)
2. 測定局別 1 時間値から測定局別日別値(日最高値、日平均値、昼間の平均値、昼間の最高値など)を算出した。()
3. 測定局別に期間統計値(年平均値、季節平均値など)を算出した(-1)
4. 測定局別期間統計値を地域別統計値(地域平均値、地域内最高値、地域内 98 パーセンタイル値など)を算出した。
5. 地域別統計値の 3 年移動平均値を算出した。

3.5.2 光化学オキシダントの 8 時間値に基づく統計処理

8 時間値に基づく統計では、図 3-2 に示す手順で統計処理を行った。

1. 各年度の測定局別 1 時間値を基礎データとした。(-1)
2. 各年度の測定局別 8 時間値(8 時間の移動平均値)を算出した。(-2)
3. 測定局別 8 時間値から測定局別日別値(日最高値、日平均値など)を算出した。
()
6. 測定局別に期間統計値(年平均値、季節平均値など)を算出した(-1)
7. 測定局別の期間統計値の 3 年移動平均を算出した(-2)
8. 地域別統計値の 3 年移動平均値を算出した。

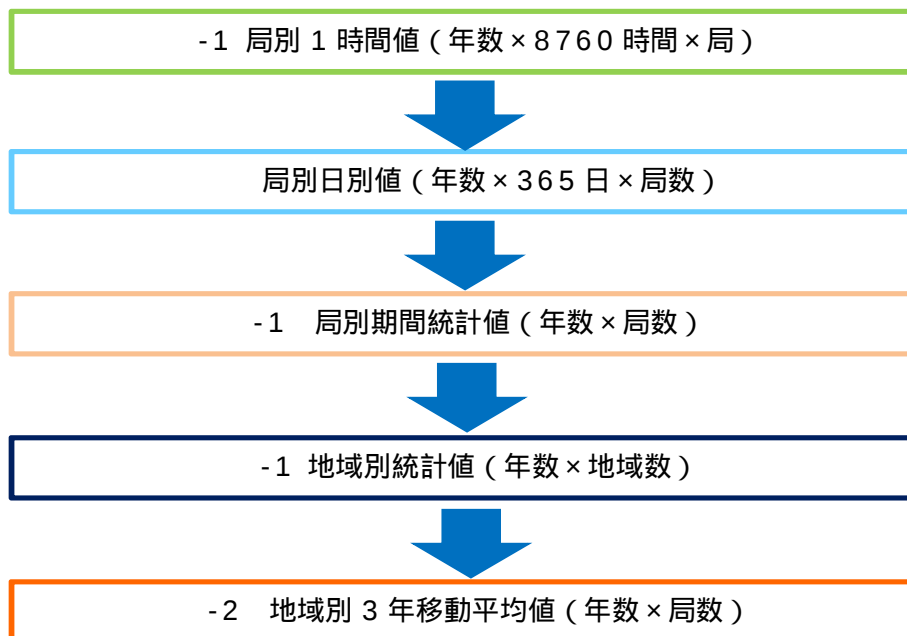


図 3-1 統計処理の手順(1 時間値の統計)

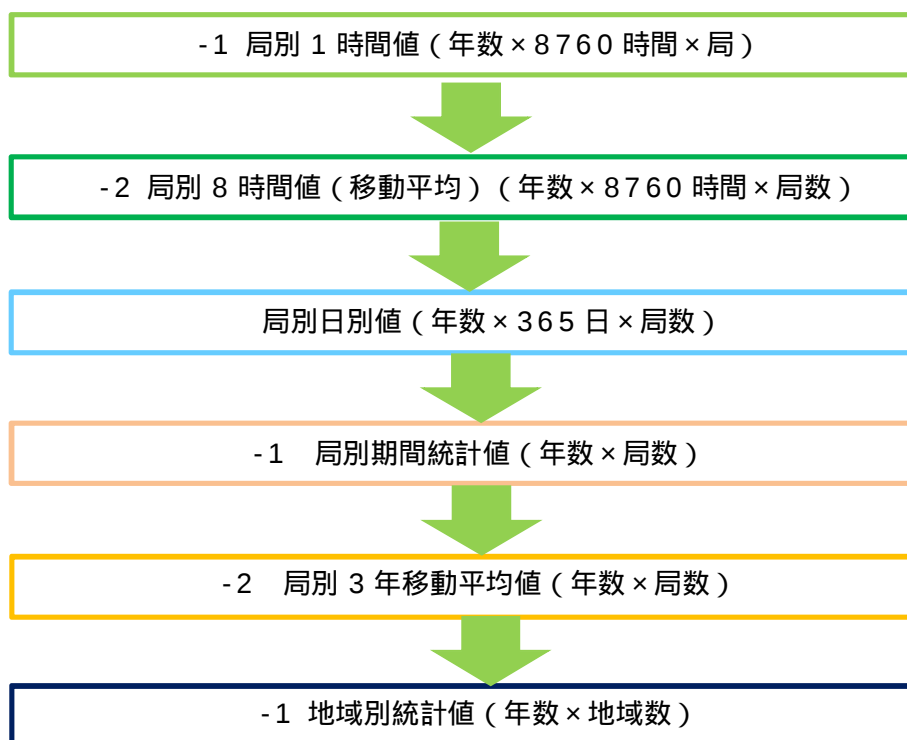


図 3-2 統計処理の手順(8 時間値の日最高値)

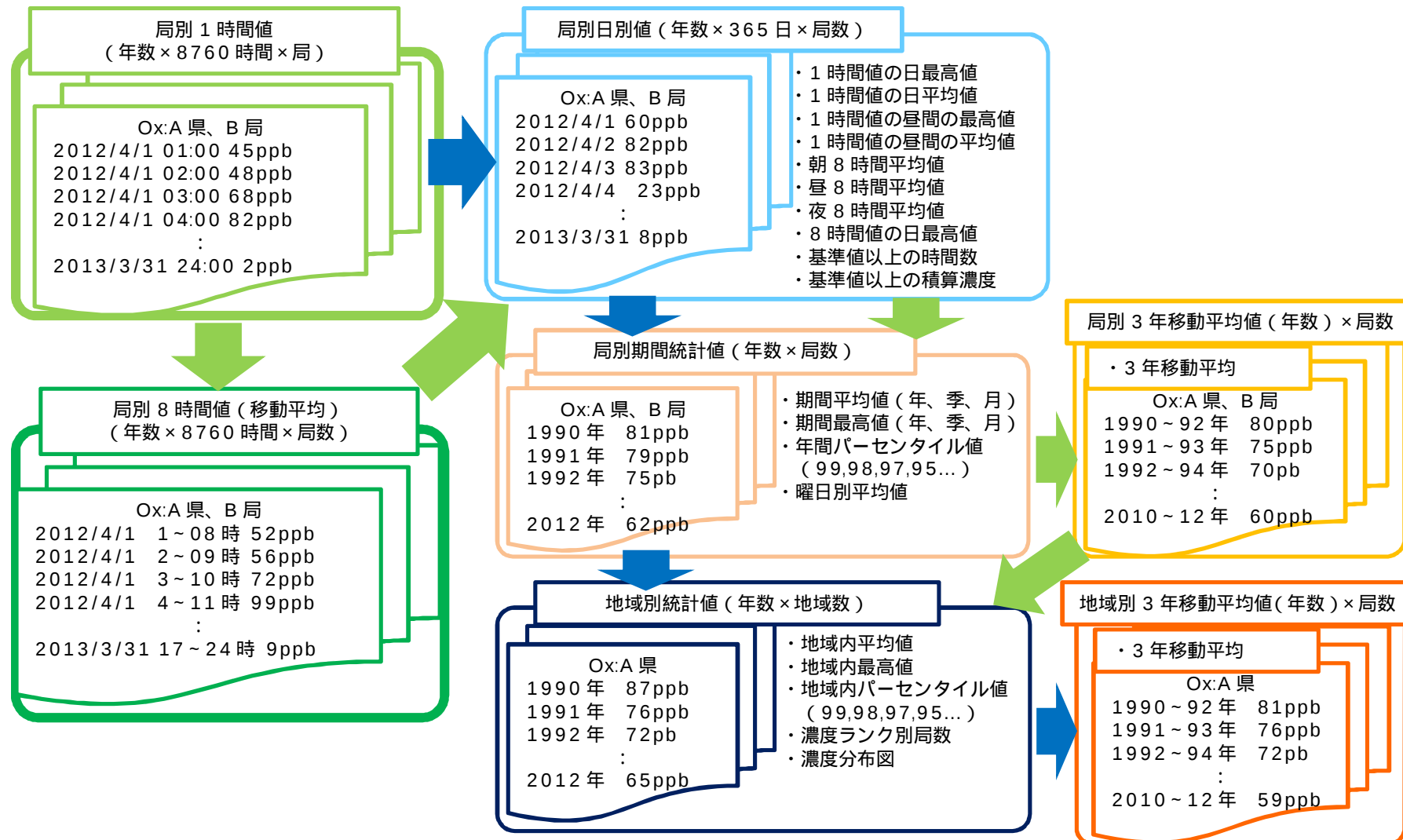


図 3-3 光化学オキシダントの統計処理手順

3.6 解析結果についての留意点

平成 23 年度報告で指摘があるように、光化学オキシダント濃度測定について、平成 18 年に JIS が改正され、校正法が KI 法から UV 法(紫外線吸収法)に変更された。これを受け、環境省では平成 21 年度に大気汚染常時監視マニュアルを改正した。

マニュアルの変更に伴って、全国的にトレーサビリティを考慮した統一的な精度管理体制が整備され、平成 22 年度から地域ブロックごとに二次標準器、自治体ごとに三次標準器が設置され、UV 法による校正が定期的に行われるようになった。新しい体制での標準器の校正は平成 22 年度から順次導入され、平成 22 年度は旧校正法による測定値と新校正法による測定値の両方が存在する状況になっており、平成 23 年度データは概ね新校正法によるデータになった。

「平成 22 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」、「平成 23 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」から優先解析地域内の自治体の新校正法への対応時期を整理した。この結果を表 3-5 に示す。校正法前後での感度差の平均は 1.0458 となっていた。これは、新しい校正法適用以前の濃度が平均で 4.6%濃度が高く確定されていることとなる。

一方、自治体標準器の校正開始時期は表 3-5 のとおりであるが、この結果が測定局濃度に反映されるまでは時間差があると考えられる。本調査で収集した資料では、測定局への反映時期までは把握できなかった。

以上のことから、平成 22 年度以前の測定値は、新校正法適用後の濃度よりも高い濃度となっていることが考えられるものの、測定値への反映の正確な時期や、平成 23 年度測定値が速報値を用いていること、把握した感度差が過去の測定データに継続的に適用かのうかどうか不明であることなどの課題があることから、本調査の解析では、これらの校正前後の影響を考慮した補正を施さずに解析を行っている。なお、参考に、あとの章で、平成 22、23 年度測定値について旧校正法での値に補正した場合の経年変化を把握した。

表 3-5 校正時期と校正結果(精度管理報告書より整理)

自治体	校正開始時期
埼玉県	平成 22 年 4 月
東京	平成 22 年 8 月
神奈川	平成 22 年 4 月
横浜市	平成 22 年 4 月
川崎市	平成 22 年 4 月
千葉県	平成 22 年 4 月
群馬県	平成 22 年 10 月
栃木県	平成 23 年 2 月
山梨県	平成 23 年 1 月
茨城県	平成 23 年 1 月
愛知県	平成 22 年 3 月
三重県	平成 23 年 3 月
名古屋市	平成 23 年 2 月
岡崎市	平成 22 年 12 月
兵庫県	平成 22 年 4 月
姫路市当	平成 22 年 4 月
奈良県・奈良市	平成 22 年 4 月
尼崎	平成 22 年 4 月
神戸	平成 22 年 5 月
大阪府	平成 22 年 10 月
京都市	平成 22 年 11 月
滋賀県	平成 23 年 1 月
堺市等	平成 23 年 1 月
明石市等	平成 23 年 2 月
京都府	平成 23 年 2 月
東大阪市等	平成 23 年 2 月
大阪市	平成 23 年 3 月
山口	平成 22 年 11 月
福岡県	平成 22 年 3 月
北九州市	平成 22 年 11 月
福岡市	平成 22 年 9 月
大牟田市	平成 23 年 1 月

(注)「平成 22 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」、「平成 23 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」より整理

4 光化学オキシダント濃度の多角的解析結果

4.1 光化学オキシダントの経年変化

4.1.1 概要

平成 23 年度報告によると、光化学オキシダント濃度の経年傾向として表 4-1 の点が報告されている。本調査では光化学オキシダントの長期的な傾向を整理するために、平均的な濃度の傾向把握に昼間の平均濃度の年平均値を用い、高濃度の傾向把握に昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値を用いて、経年変化を整理した。

ここで、昼間は 5～20 時としている。この時間帯は、国や自治体が光化学オキシダントの濃度の整理に用いている時間帯である。

表 4-1 光化学オキシダント濃度の長期的な傾向

	傾向	解析方法
平均的な濃度の傾向把握	平均濃度の経年的な上昇	昼間(5～20 時)の平均値の年平均値の経年変化
高濃度の傾向把握	高濃度の出現は経年的に横ばいから低下傾向	昼間(5～20 時)の最高値の年間 98 パーセンタイル値の経年変化

4.1.2 平均的な濃度の経年変化

(1) 平均的な濃度の経年変化

光化学オキシダント濃度の平均な濃度の経年的な上昇が報告されている。本解析では、平均的な濃度として、測定局別の 1 時間値から光化学オキシダント濃度の昼間(5～20 時)の平均値(日別値)の年平均値を用いて傾向を把握した。

地域毎の傾向を把握するために、測定局別年平均値を優先解析地域毎に統計した。この結果を図 4-1 に示す。この図は、地域平均濃度を 3 年の移動平均をとることにより、年度ごとの変化を平滑化し、長期傾向を把握しやすくしている。参考に、年度毎の統計値の経年変化を図 4-2 に示す。年度頃には年々変動が見られるが、3 年度間の移動平均により変動打ち消され、長期傾向が把握しやすくなった。

光化学オキシダントの年平均値(3 年移動平均)は、長期的に濃度の上昇傾向が見られた。関東は平成 8～10 年度から平成 10～12 年度、東海は平成 12～14 年度から平成 14～16 年度、阪神は平成 7～9 年度から平成 9～11 年度、九州は平成 10～11 年度から平成 12～14 年度など、濃度上昇傾向の中でも一旦濃度が低下する時期が見られた。また、平成 21～23 年度でやや濃度が低下するように見られるが、校正法の違いによる可能性もあるので注意が必要である。

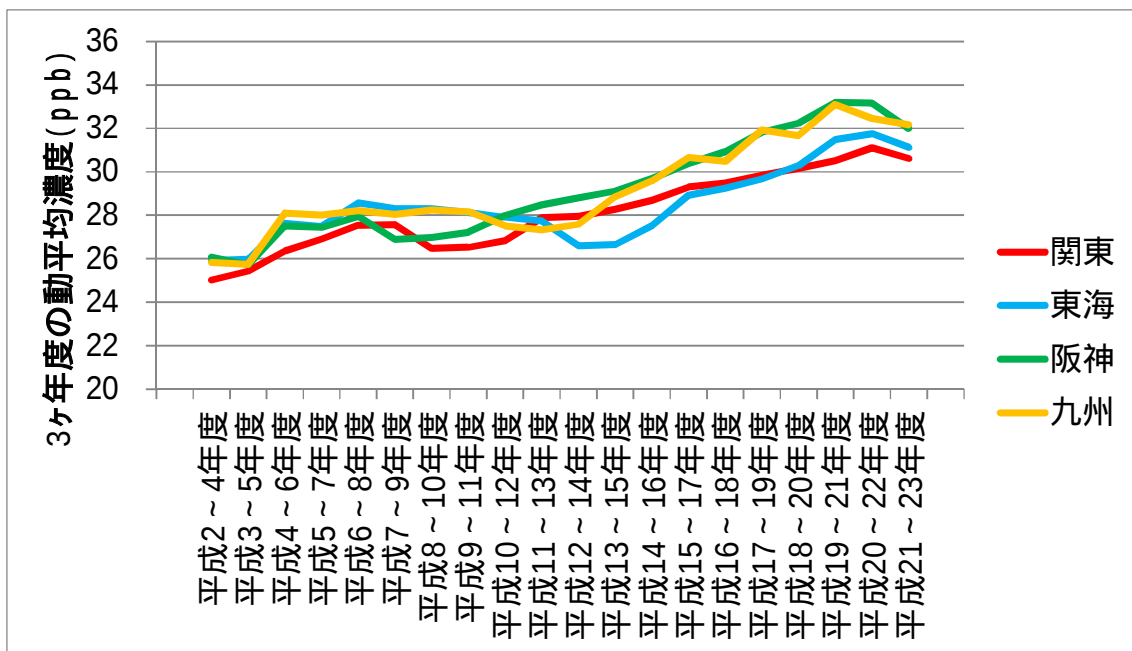


図 4-1 昼間の平均値の年平均値の域内平均値(3年移動平均)の経年変化

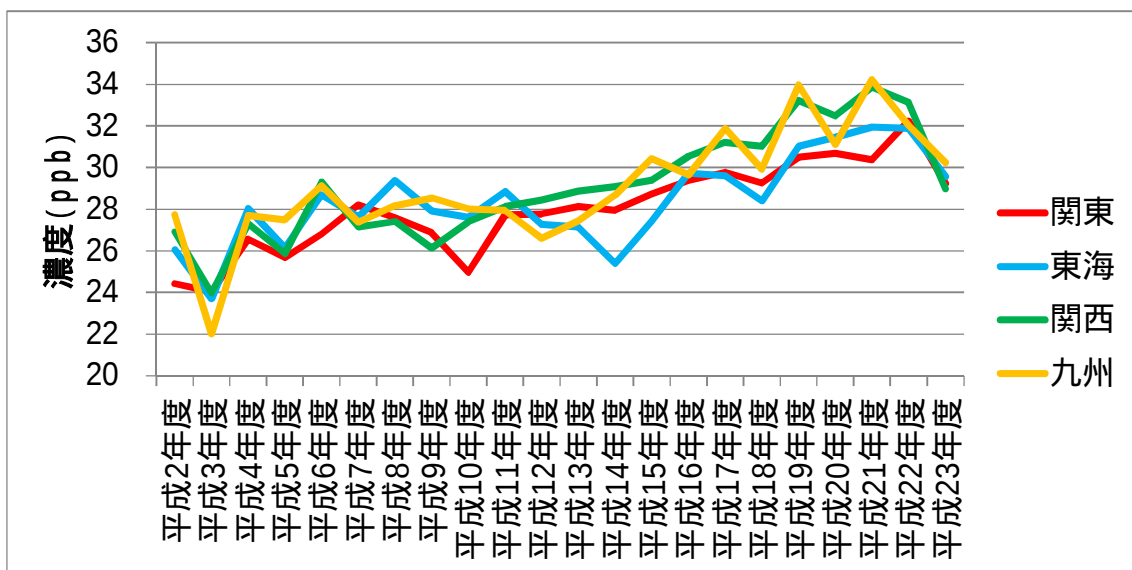


図 4-2 昼間の平均値の年平均値の域内平均値の経年変化

(2) 濃度ランク別測定局数の推移

平均的濃度の上昇要因を検討するために、濃度ランク別測定局数の経年変化を把握した。各地域の濃度ランク別測定局数比率を図 4-3 に示す。長期的な傾向を把握するために平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の述べ局数をもとに局数比率を算出した。

この結果から、低濃度ランクの測定局数は、いずれの地域も減少したが、高濃度ランクの局数は、関東と東海では横ばい、関西と九州では増加する傾向が見られた。この結果、測定局数が最も多い濃度ランクの局が増加し、いずれの地域においても濃度ランクが高濃度側に変化し、測定局数比率も増加したと考えられる。

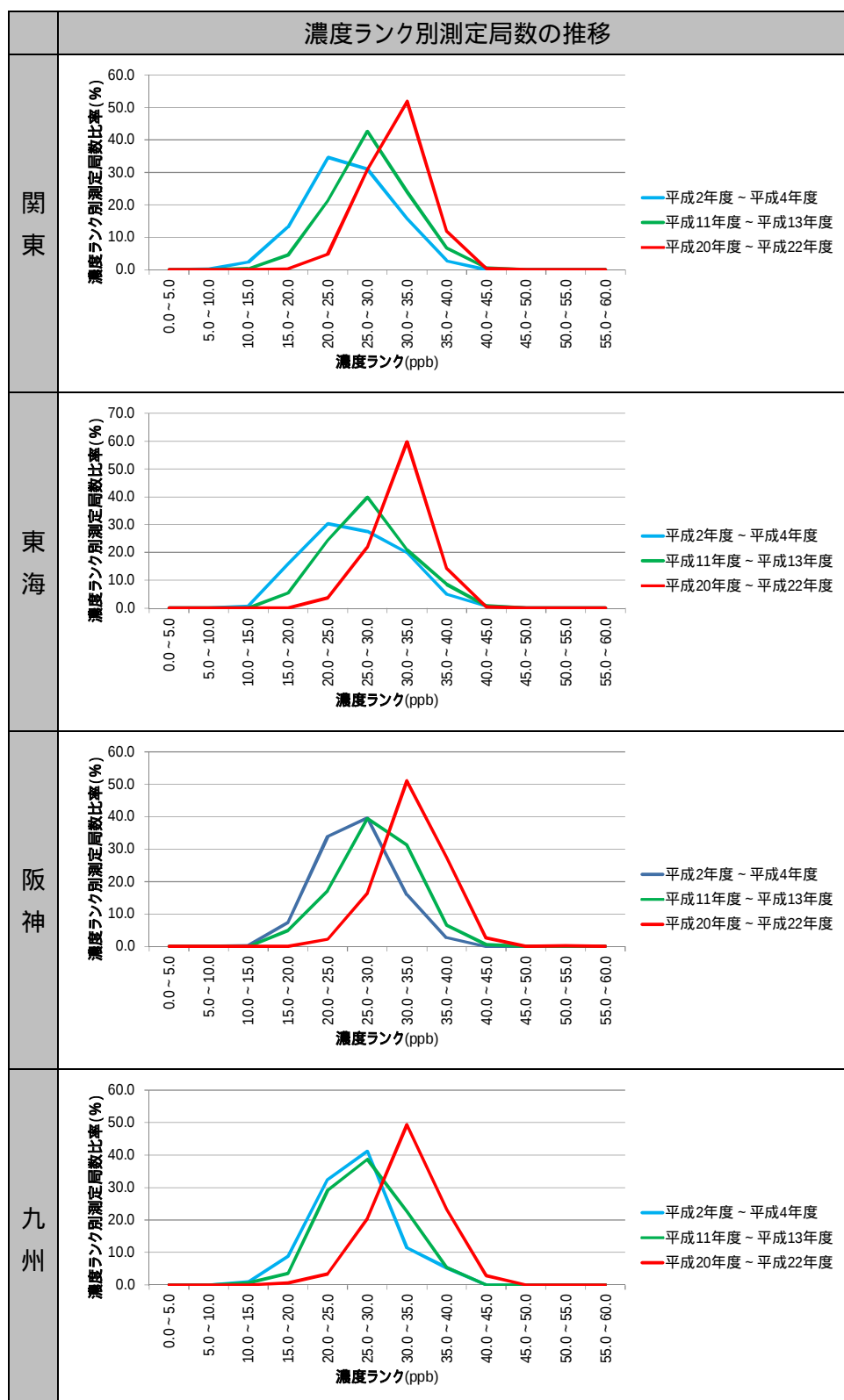


図 4-3 年平均濃度ランク別測定局数比率の経年変化

(3) まとめ

光化学オキシダントの平均な濃度の経年変化の状況は以下のとおりであった。

- 各地域とも光化学オキシダントの平均な濃度(年平均値)は上昇傾向にある。
- 関東と東海では、年平均値が高い局の出現数はあまり変化がみられず、低い局は中程度の濃度にシフトした。この結果、地域全体で濃度が上昇したものと考えられる。
- 阪神と九州は、平均濃度が高い局の出現数はやや増加する傾向が見られ、濃度が低い局は中程度の濃度にシフトした。この結果、地域全体で濃度が上昇したものと考えられる。

4.1.3 高濃度の経年変化

(1) 高濃度の経年変化

平均的な濃度は、経年的な上昇傾向が見られた。一方で、平成 23 年度報告によれば、高濃度は改善傾向が報告されている。ここでは、高濃度の経年変化の状況を把握するために、日別値に光化学オキシダントの昼間(5～20 時)の最高値を用い、測定局別に日別値の年間 98 パーセンタイル値を算出し、年間 98 パーセンタイル値の地域内最高値を年度毎に求めた。この結果を図 4-4 に示す。この図では、地域最高濃度を 3 年移動平均することにより、年々変動を平滑化し、長期傾向を把握しやすくしている。参考に、年度毎の経年変化を図 4-5 に示す。年度毎には年々変動が大きいですが、3 年度間の移動平均により長期傾向が把握しやすくなった。

光化学オキシダントの年間 98 パーセンタイル値の域内最高値(3 年移動平均)は、経年的に低下する傾向が見られた。関東は平成 12～14 年度をピークにして、これ以降は徐々に濃度が低下する様子が見られた。東海と阪神は、平成 17～19 年度をピークにして後で、濃度の低下が見られた。九州は、平成 19～21 年度まで濃度の上昇が見られたが、その後やや改善の傾向が見られた。

なお、平成 21～23 年度の値は、校正法の変更の影響の可能性もあることから、今後の濃度推移に注意が必要である。

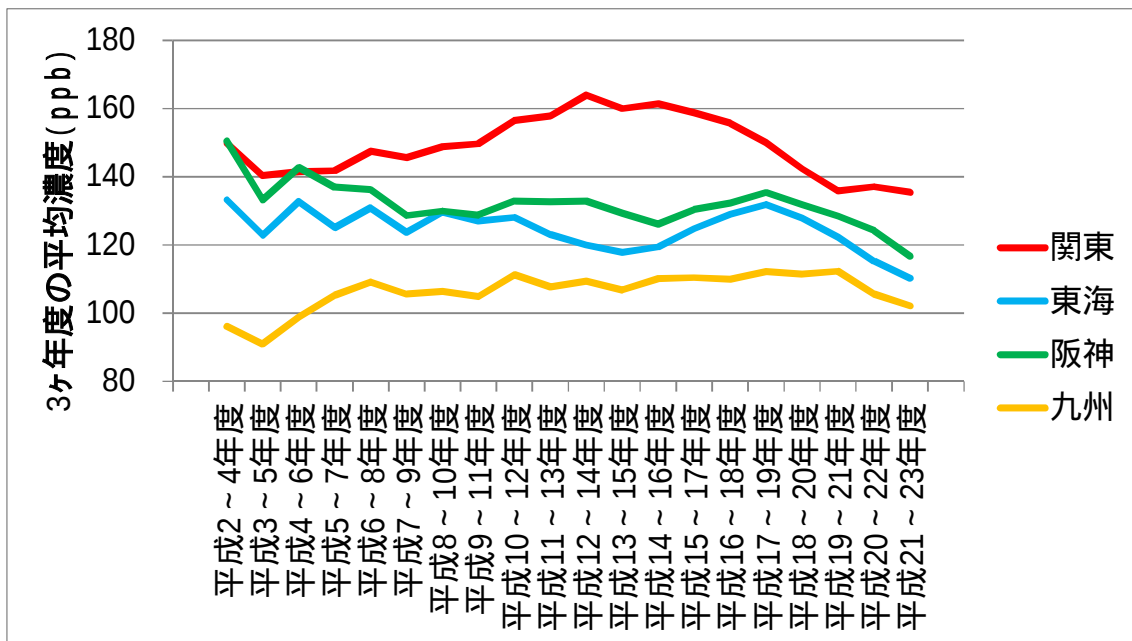


図 4-4 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値(3 年移動平均)の経年変化

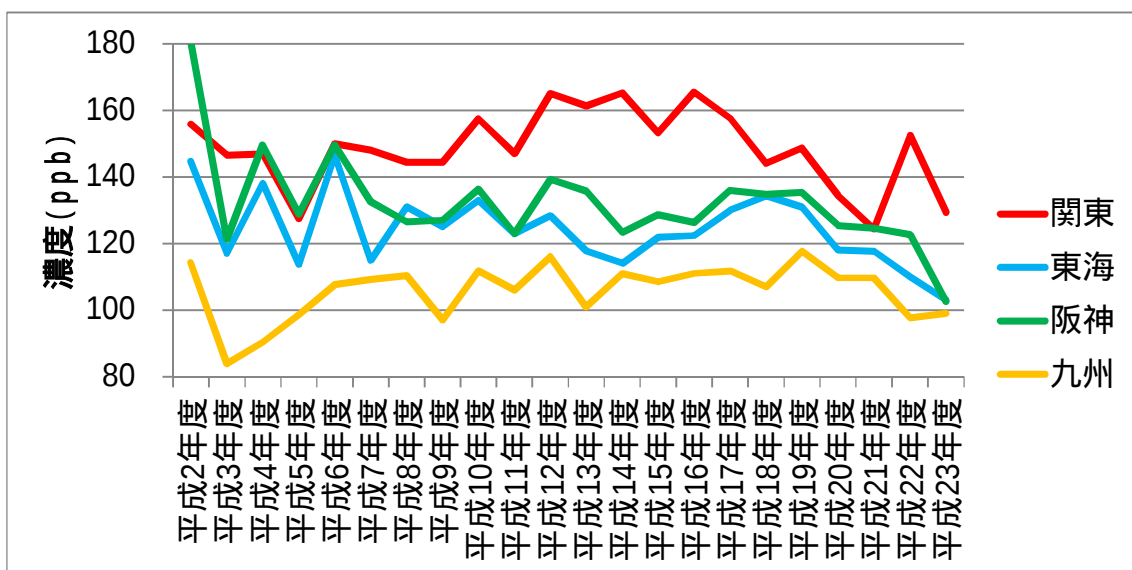


図 4-5 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化

(2) 濃度ランク別測定局数の推移

高濃度の濃度改善傾向の要因を検討するために、濃度ランク別測定局数の経年変化を把握した。各地域の濃度ランク別測定局数比率を図 4-6 に示す。

年平均値が比較的単調に濃度上昇していたことと比べると、昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値は、経年的に濃度上昇後が見られた後で、濃度の低下が見られた。この傾向を把握区しやすくするために、平成 2～4 年度、平成 8～10 年度、平成 14～16 年度、平成 20～22 年度の 4 期間について濃度ランク別の述べ局数を求め、局数比率を算出した。

関東の平成 14～16 年度と平成 20～22 年度の濃度ランク別局数比率を比較すると、局数が最多となる濃度ランクの濃度は低下し、高濃度側の局数比率の減少も見られた。

東海の平成 14～16 年度と平成 20～22 年度の濃度ランク別局数比率を比較すると、平成 20～22 年度は高濃度の局数は減少が見られるが、局数が最多となる濃度ランクの濃度は上昇し、その局数比率も増加していた。

関西の平成 14～16 年度と平成 20～22 年度の濃度ランク別局数比率を比較すると、平成 20～22 年度は低濃度の局数が減少し、高濃度側の局数もやや減少が見られた。

九州の平成 14～16 年度と平成 20～22 年度の濃度ランク別局数比率を比較すると、平成 20～22 年度は低濃度の局数が減少し、高濃度側の局数も増加する傾向が見られ、他の地域と傾向が異なっていた。

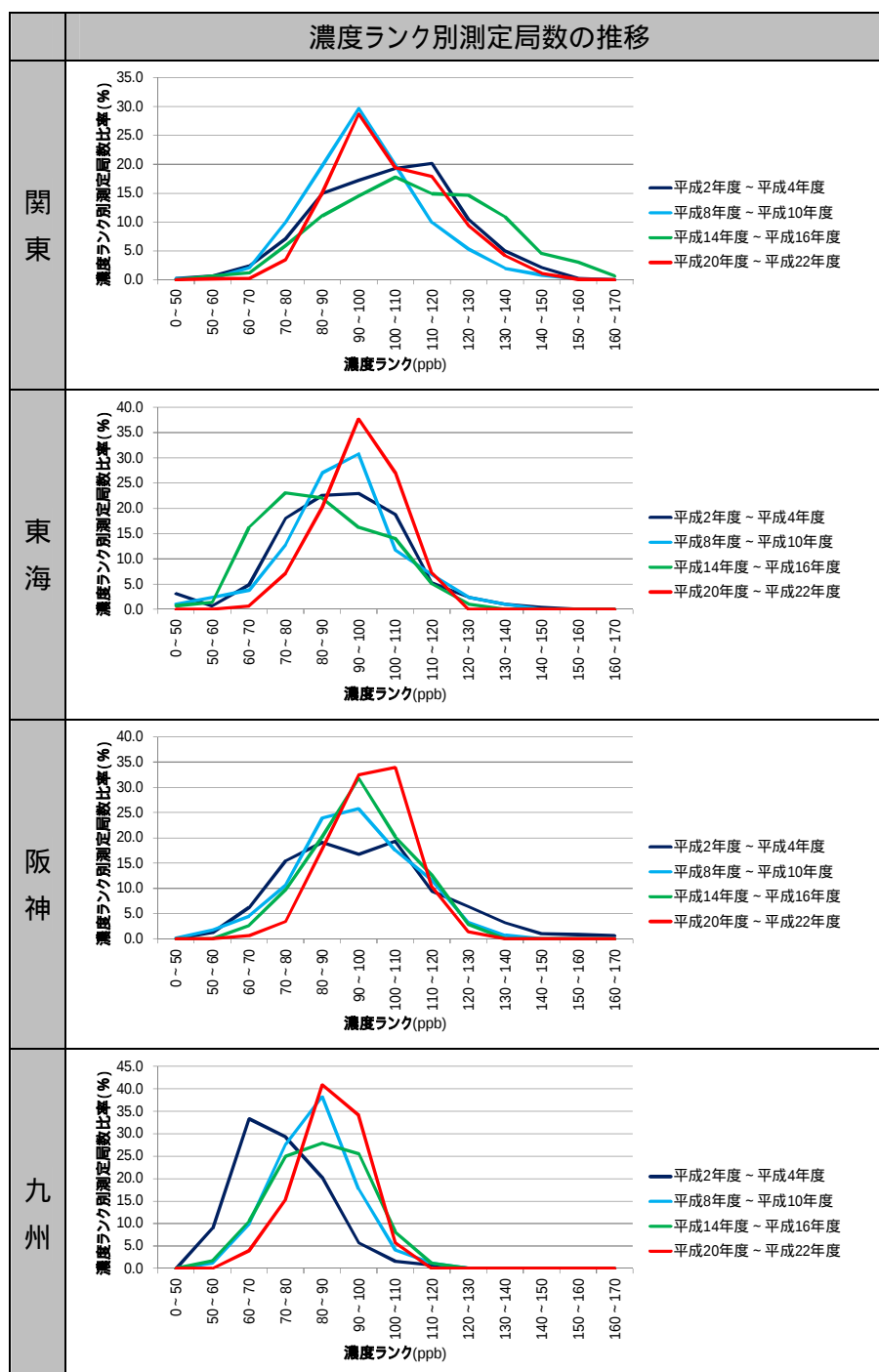


図 4-6 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値ランク別測定局数比率の経年変化

(3) まとめ

光化学オキシダントの高濃度の経年変化の状況は以下のとおりであった。

- 光化学オキシダントの昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値は、濃度の低下傾向が見られる。
- 関東と阪神では、高濃度の低下が見られる局数が多く、東海と九州では高濃度局の濃度低下は見られたが、地域全体では濃度が上昇しており、地域による差が大きく見られた。
- 関東や阪神の平成 22 年度のように急激に濃度が上昇する年度もあり、気象要因などによる変動が考えられる。

4.2 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経年変化の傾向として、年平均値などの平均な濃度はいずれの地域でも上昇傾向があり、高濃度は低下する傾向が見られた。この要因を検討するために、次の解析を行った。

- 光化学オキシダント平均濃度の季節差
- 光化学オキシダントの 8 時間帯別平均濃度の傾向
- ポテンシャルオゾンの経年変化
- 光化学オキシダントの 8 時間値の経年変化
- 光化学オキシダントが基準値以上となった時間数の経年変化
- 光化学オキシダントが基準値以上となった積算濃度の経年変化

4.2.1 光化学オキシダント平均濃度の季節差

(1) 概要

光化学オキシダント濃度の平均的な濃度は経年的に上昇する傾向が確認できた。平均的な濃度の上昇要因としては、「越境汚染の影響の増大」や「タイトレーション効果の低下」などが考えられる

平均的な濃度の上昇の要因の一つである越境汚染の影響の変化に着目した検討を行った。越境汚染は、春から梅雨期や秋季の気圧配置の周期変動に伴い引き起こされ、夏季は太平洋高気圧に覆われて影響は少ないなど、季節性があると考えられる。

そこで、越境汚染の影響の把握をするために、季節別の平均濃度を整理した。

表 4-2 解析の概要

項目	内容
目的	越境汚染の影響の程度の検討
データ	昼間(5～20時)の平均値
統計期間	春(4～5月) 夏(7～8月)

(2) 季節別平均濃度の経年変化

光化学オキシダントの昼間(5～20時)の平均値の季節別域内平均濃度の経年変化を把握した。経年的な傾向を把握するために、年度別域内平均濃度を3年移動平均した。この結果を図 4-7 に示す。

季節別濃度の濃度変化傾向を明らかにするために、平成 14～16 年度を基準年度として濃度比の経年変化を整理した。この結果を図 4-8 に示す。

いずれの地域も、季節別には春季の平均濃度が高い傾向で、次いで梅雨期が高かった。夏季と秋季の平均濃度は、関東では夏季が高く、東海と阪神では同程度、九州

では秋季が高い傾向があった。

春季と秋季の平均濃度は、いずれの地域も経年的に濃度上昇が見られた。梅雨と夏季は平成 14～16 年度以降概ね横ばい傾向であった。

平成 14～16 年度の濃度の濃度比をみると、関東、東海、阪神地域では概ねどの季節も同じ伸びであった。九州は他の地域と異なり春季に濃度の上昇が大きくなっていった。

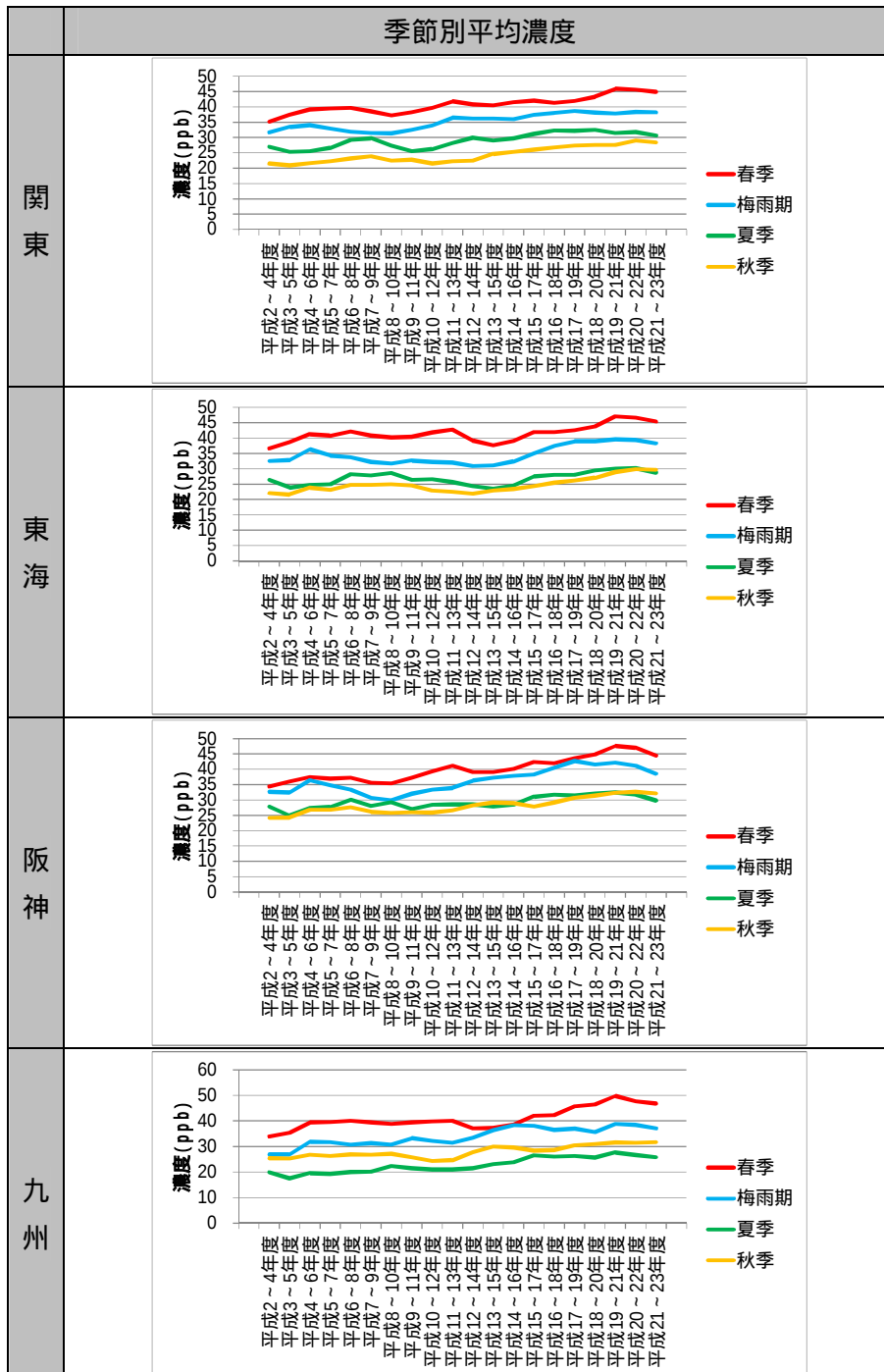


図 4-7 昼間の平均値の季節別平均濃度の経年変化

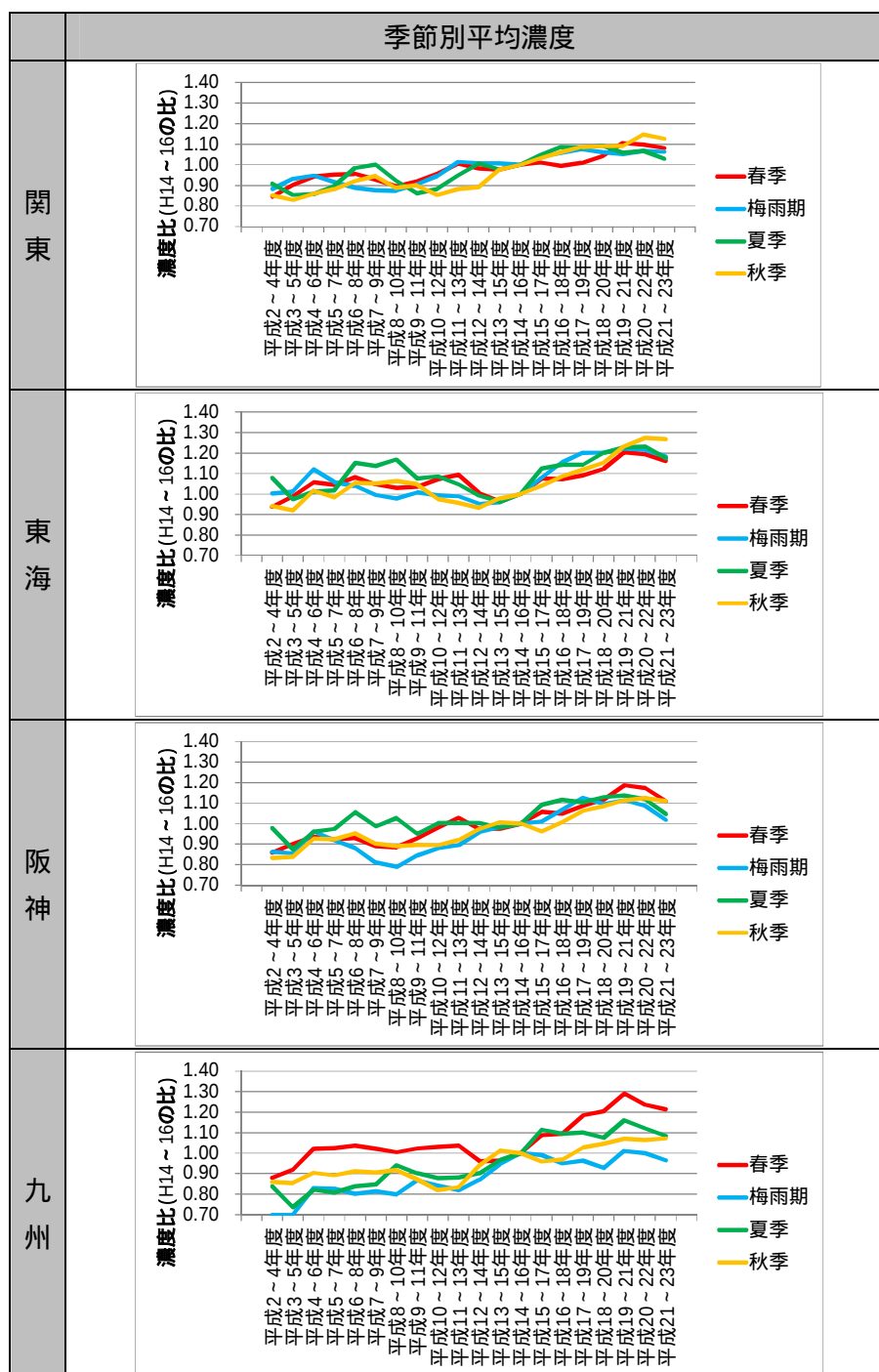


図 4-8 昼間の平均値の季節別平均濃度の経年変化(平成 14 ~ 16 年度比)

(3) まとめ

光化学オキシダントの昼間の平均値の季節平均濃度の経年変化を整理した結果、以下のとおりであった。

- 光化学オキシダントの昼間の平均値の季節平均濃度は、春季と秋季に濃度が上昇する傾向が、いずれの地域でも見られ、夏は横ばいに近かった。
- 光化学オキシダントの昼間の平均値の季節平均濃度は、平成 14～16 年度の濃度を基準としたとき、関東、東海、阪神では季節による濃度の比に差が見られなかった。九州は、季節の差が大きく、他の季節と比べて春季の濃度比が大きくなっていた。

4.2.2 光化学オキシダントの 8 時間帯別濃度の傾向

(1) 概要

光化学オキシダントの昼間(5～20 時)の平均値の季節別平均濃度について濃度の経年変化を把握したところ、季節差や地域差が確認できた。昼間の光化学オキシダント濃度は、光化学反応によって地域内から発生した前駆物質により生成された濃度が多くなり、越境汚染などの平均的な濃度の変化を解析するには適さないと考えられる。

ここでは、光化学反応の影響が小さい時間帯の平均濃度を用いて、平均的な濃度での越境汚染の影響について検討した。1 日のうち 0～8 時の時間帯について平均値を求め、春季の経年変化を整理した。

表 4-3 解析の概要

項目	内容
目的	越境汚染の影響の把握
データ	0～8 時の平均値(光化学オキシダント、ポテンシャルオゾン)
時間統計	春季(4～5 月)

(2) 春季の 0～8 時の平均濃度の検討

地域内で生成する光化学反応の影響が少ない 0～8 時の平均濃度について詳しく検討した。春季の 0～8 時の平均値の域内最高値、域内平均値、域内最低値について経年変化を整理した。この結果を図 4-9 に示す。

九州の域内平均濃度(粗い点線)は、平成 12～14 年度より後から濃度の上昇が見られ、平成 16～18 年度に他の地域の平均濃度を上回った。

域内最高値は、地域に差が見られ、関東では平成 11～13 年度より後で低下傾向となり、最近横ばいとなっていた。東海は平成 13～15 年度より後で、阪神は平成 16～18 年度より後で濃度が上昇していた。九州は、平成 13～15 年度より後で濃度上昇が始まるが、他の地域より濃度上昇率が高かった。

域内最低値は、阪神が最も低かったが、平成 20～22 年度に関東と同程度となった。東海と九州は同程度の濃度で経年的に上昇傾向となっていた。

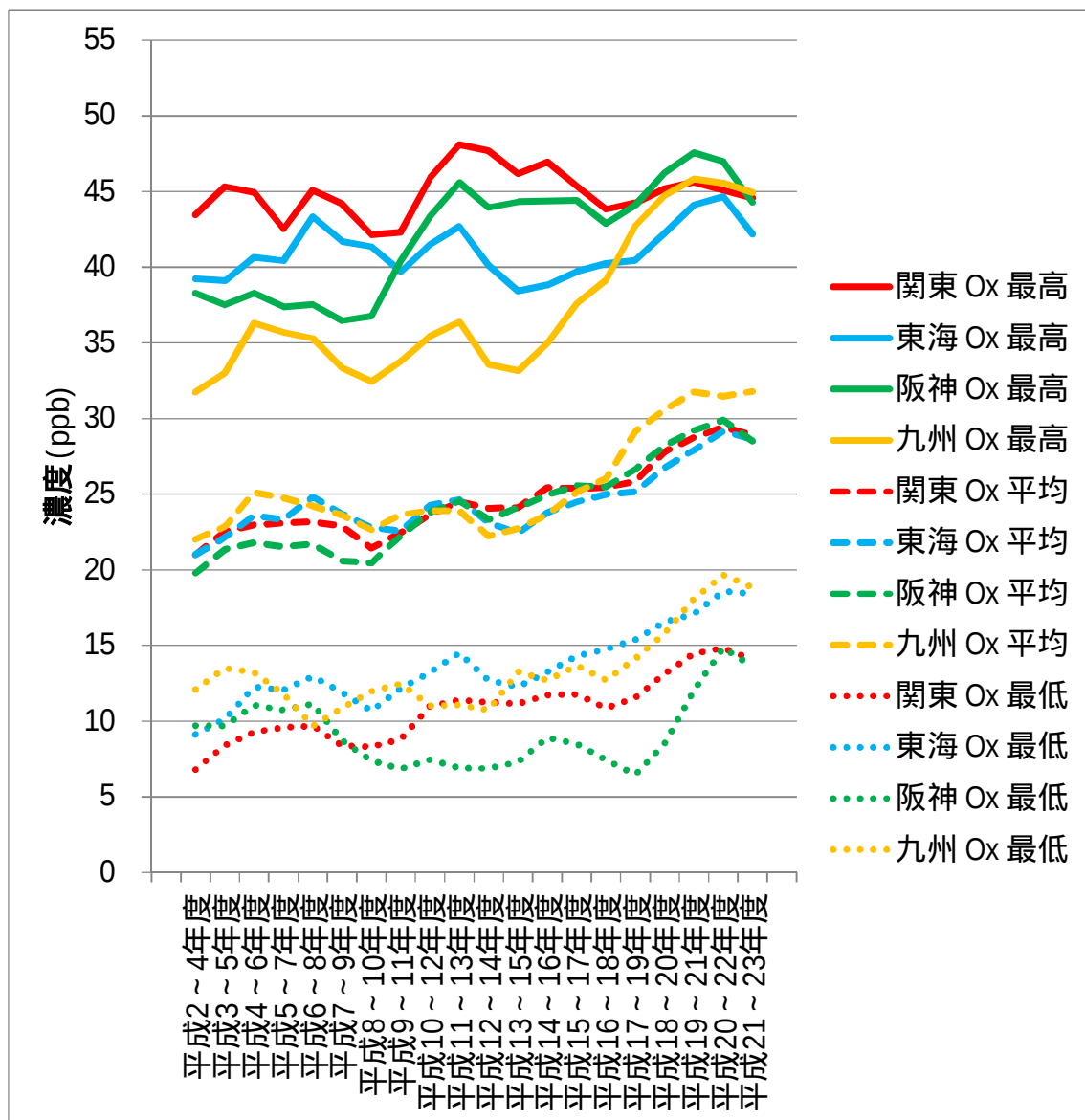


図 4-9 春季の0～8時間帯の平均値の経年変化

(3) 春季の0～8時の平均値の濃度ランク別測定局数比率

春季の0～8時の平均値の経年変化は、九州と他の地域で傾向が異なることが明らかになった。そこで、要因を検討するために、春季の0～8時の平均値の濃度ランク別測定局数比率について整理した。この結果を図 4-10 に示す。九州の濃度変化は、平成 12～14 年度ごろから変化が見られることから、経年変化を把握するために平成 14～16 年度、平成 17～19 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別述べ測定局数を求め、局数比率を算定した。

関東は、高濃度側の濃度ランクの局数の変化はほとんど見られず、低濃度側の局数は減少し、測定局数が最多となる濃度ランクにシフトしたため、測定局の最多となる

濃度ランクで局数が増加した。

関東以外の地域では、高濃度側と低濃度側で濃度ランクの濃度は上昇し、測定局数が最多となるランクでの濃度の上昇が見られた。特に九州ではその傾向が顕著で、平成14～16年度に比べると2ランク(10ppb程度)濃度が高い側にシフトした。

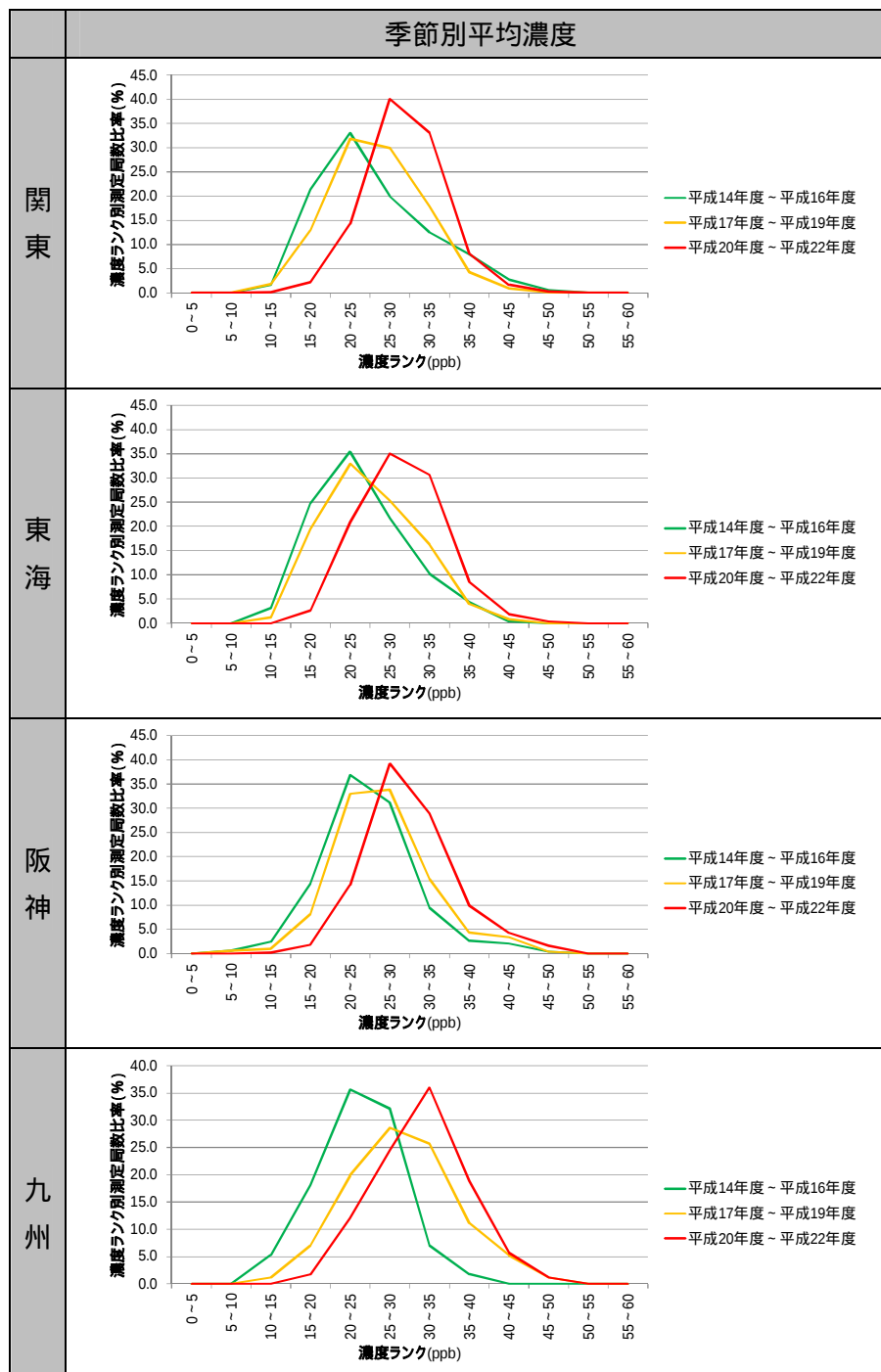


図 4-10 春季の0～8時の平均値の濃度ランク別測定局数比率の変化

(4) ポテンシャルオゾンの春季の0～8時の平均濃度の比較

i) 概要

ここまでの解析は、光化学オキシダント濃度を用いて解析していた。オキシダントの生成反応が解析に極力影響しないように0～8時の平均濃度について解析して、西日本の地域(特に九州)で越境汚染の影響が表れていることが示唆された。しかしながら、オキシダントにはタイトレーション効果があり、オキシダントの解析ではその影響は排除できていない。越境汚染の影響をより明確に把握するためには、タイトレーションの影響を極力小さくした解析が必要となる。そこで、タイトレーションの影響を極力小さくするために、ポテンシャルオゾンを用いた解析を行った。

ポテンシャルオゾンの域内平均濃度の経年変化と濃度ランク別測定局数について整理した。ポテンシャルオゾンは、次式により局別・時刻別に1時間値を求め、オキシダントと同様に統計処理した。平成23年度報告で指摘があるように、 α は地域差や年度差などに課題もあるが、ここでは平成23年度報告の α を0.1としてポテンシャルオゾン(PO)を算出した。

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - \alpha \times [NO_x]$$

α : 発生源における NO_x 濃度に対する NO_2 濃度の比率(ここでは0.1)

[PO]: ポテンシャルオゾン(ppb)

[O_3]: オゾン濃度(ppb)

[NO_2]: 二酸化窒素濃度(ppb)

[NO_x]: 窒素酸化物濃度(ppb)

ii) ポテンシャルオゾンの春季の0～8時の平均濃度の経年変化

ポテンシャルオゾンの春季の0～8時の平均値の域内平均濃度を算出した。この結果を図 4-11 に示す。参考に、光化学オキシダントの統計結果も示している。

ポテンシャルオゾンの春季の0～8時の平均値の域内平均値は、関東と東海では最近の傾向は横ばいから低下が見られ、関西でやや上昇していたものが平成17～19年度頃より横ばいになっていた。これらの地域とは異なり九州は、平成12～14年度から濃度の上昇する傾向が続いていた。

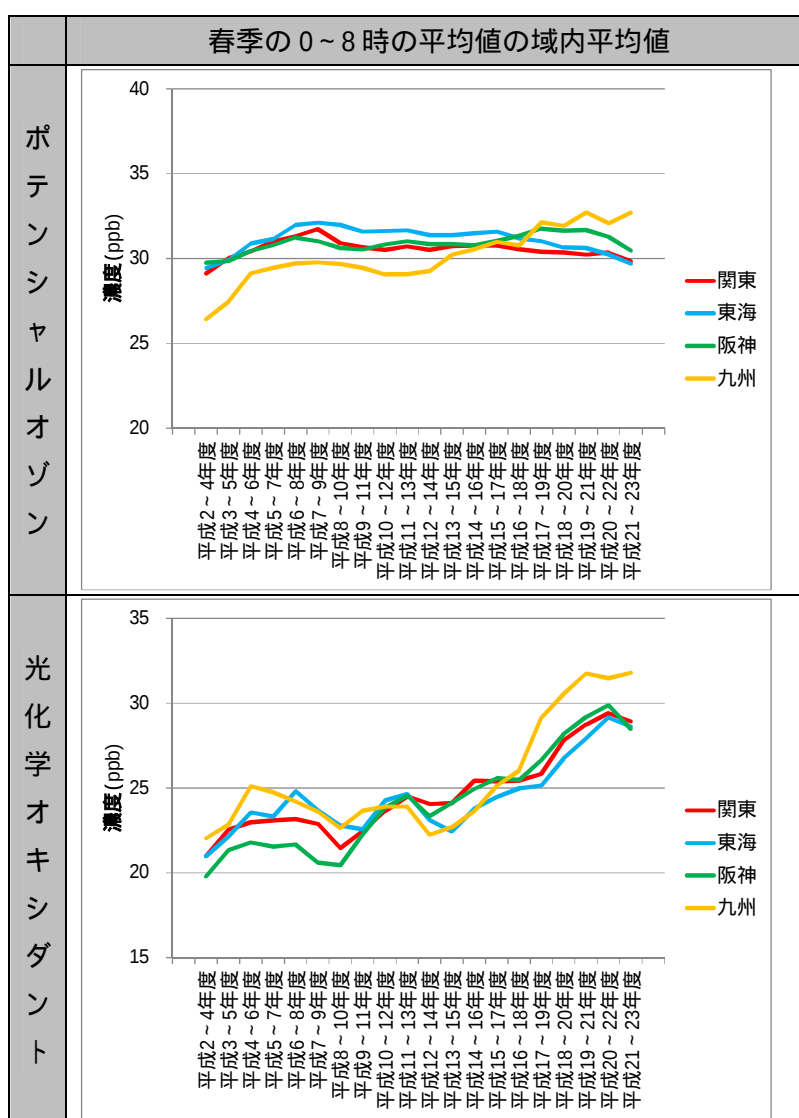


図 4-11 ポテンシャルオゾンの域内平均値の経年変化

iii) ポテンシャルオゾンの濃度ランク別測定局数

春季の0～8時のポテンシャルオゾンの平均濃度について、濃度ランク別測定局数比率を整理した。光化学オキシダントの解析と同様に、平成 14～16 年度、平成 17～19 年度、平成 20～22 年度の濃度ランク別述べ測定局数を求め、ランク別局数比率を算定した。この結果を図 4-12 に示す。

関東は、局数分布の変化はほとんどなく、東海では高濃度側と低濃度側の両方のランクで濃度が低くなる傾向が見られた。

関西では、低濃度ランクの測定局が高い濃度ランクにシフトする一方で、高濃度側の測地局は低い濃度ランクへシフトした。

九州は、他の地域とは異なり、測定局数分布が全体に高い側のランクへシフトしていた。

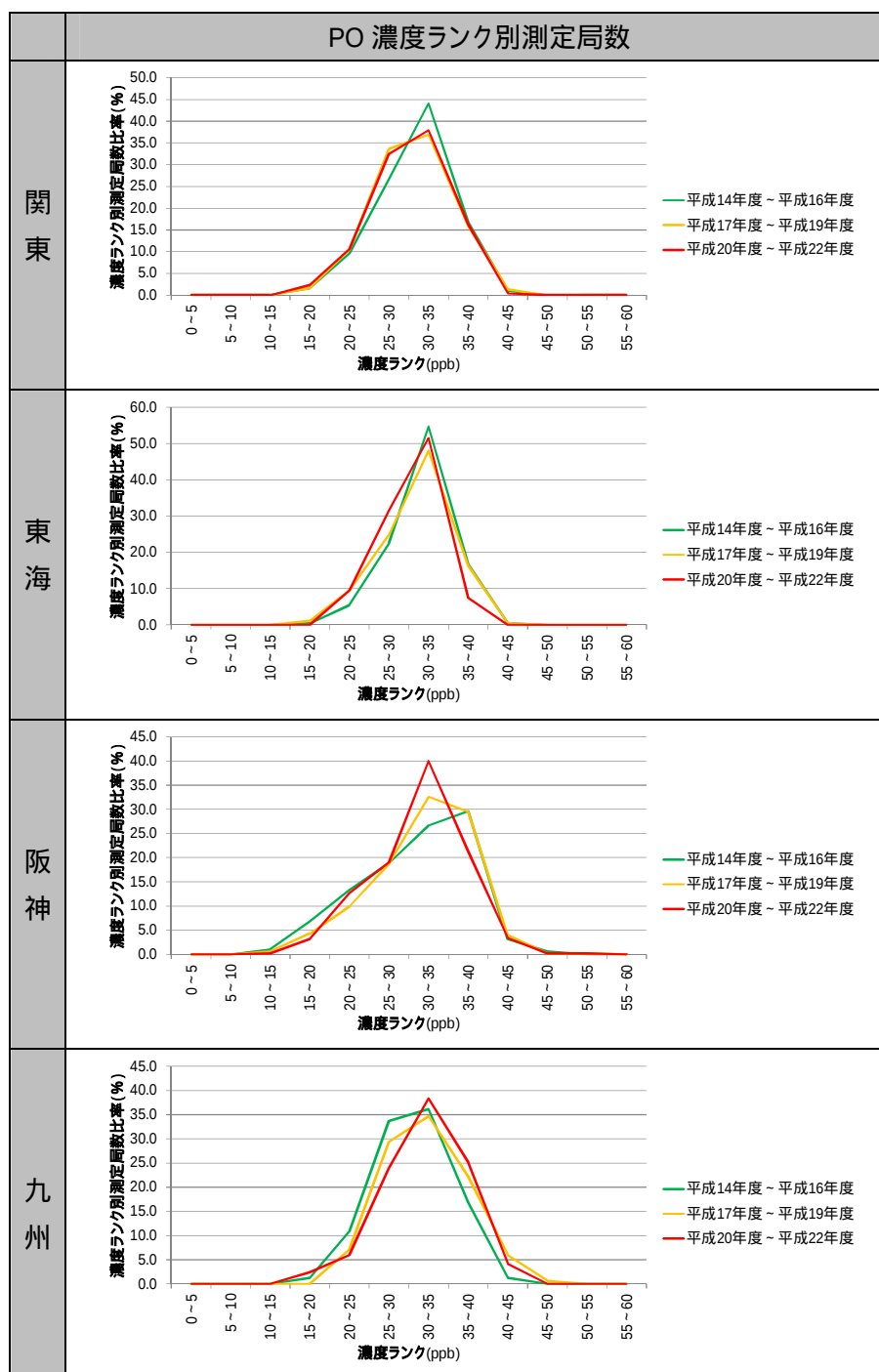


図 4-12 PO の春季の0～8時の平均値の濃度ランク別測定局数比率の変化

(5) まとめ

越境汚染の影響を検討するために、光化学オキシダントとポテンシャルオゾンの季節別、時間帯別の平均濃度について経年変化を検討した結果、以下の通りであった。

- 春季の0～8時の平均濃度は、関東・東海・阪神の最近の濃度レベルは同程度であったが、九州は他の地域よりも濃度が高かった。
- 春季の0～8時の平均濃度の域内最高値、域内平均値の経年的な濃度上昇率は他の地域よりも高い。
- 濃度ランク別測定局数の経年変化から、西の地域ほど濃度ランクが高濃度側にシフトしていた。
- ポテンシャルオゾンの解析から、POの春季の0～8時の平均濃度は、九州で濃度の上昇が著しく、阪神ではやや上昇した後横ばい、関東・東海では横ばいから低下傾向がみられた。
- 以上の結果から、九州は他の地域と異なり、平均濃度の上昇の大きな要因の一つとして越境汚染による影響が大きく、その影響が増加していることが示唆された。

4.2.3 ポテンシャルオゾンの経年変化

(1) 概要

光化学オキシダントの平均濃度の要因として、越境汚染の影響の増大と、タイトレーション効果の低下が考えられる。ここでは、タイトレーション効果の低下による濃度上昇を検討するために、ポテンシャルオゾンの経年変化を検討した。

ポテンシャルオゾンは、次式により局別・時刻別に 1 時間値を求め、年間統計値を求めた。平成 23 年度報告で指摘されているように、 α は地域による違いや経年変化など可能性など課題もあるが、ここでは、平成 23 年度報告で示された $\alpha=0.1$ を用い、ポテンシャルオゾン(PO)を算出した。

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - \alpha \times [NO_x]$$

α : 発生源における NO_x 濃度に対する NO_2 濃度の比率(ここでは 0.1)

[PO]: ポテンシャルオゾン(ppb)

[O_3]: オゾン濃度(ppb)

[NO_2]: 二酸化窒素濃度(ppb)

[NO_x]: 窒素酸化物濃度(ppb)

表 4-4 解析の概要

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 $[PO]=[O_3]+[NO_2]-\alpha \times [NO_x] \quad \alpha=0.1$ (一次排出の NO_2 比率)
時間統計	年度(平均値)

(2) PO 平均値の経年変化

平均濃度の上昇要因を検討するために、ポテンシャルオゾンの解析を行った。ポテンシャルオゾンの昼間(5～20 時)の平均値の年平均値の域内平均値について算定した(図 4-13)。この図では、光化学オキシダントの解析と同様に年度別域内平均濃度を 3 年移動平均することにより、変化傾向を滑らかにした。参考に年度の経年変化を図 4-14 に示す。

関東は平成 15～17 年度より後で濃度の低下が見られた。東海は平成 15～17 年度から低下傾向が見られた。

阪神・九州は平成 19～21 年度ごろまで濃度の上昇が見られた。特に九州の濃度上昇が顕著であった。

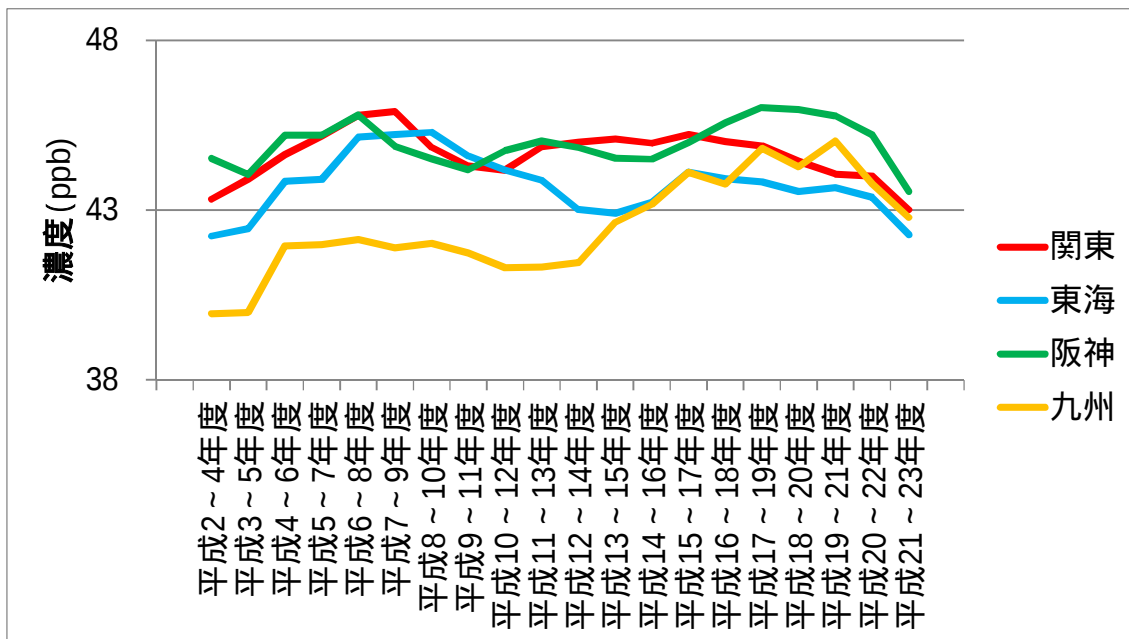


図 4-13 ポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値の域内平均値(3年移動平均)の経年変化

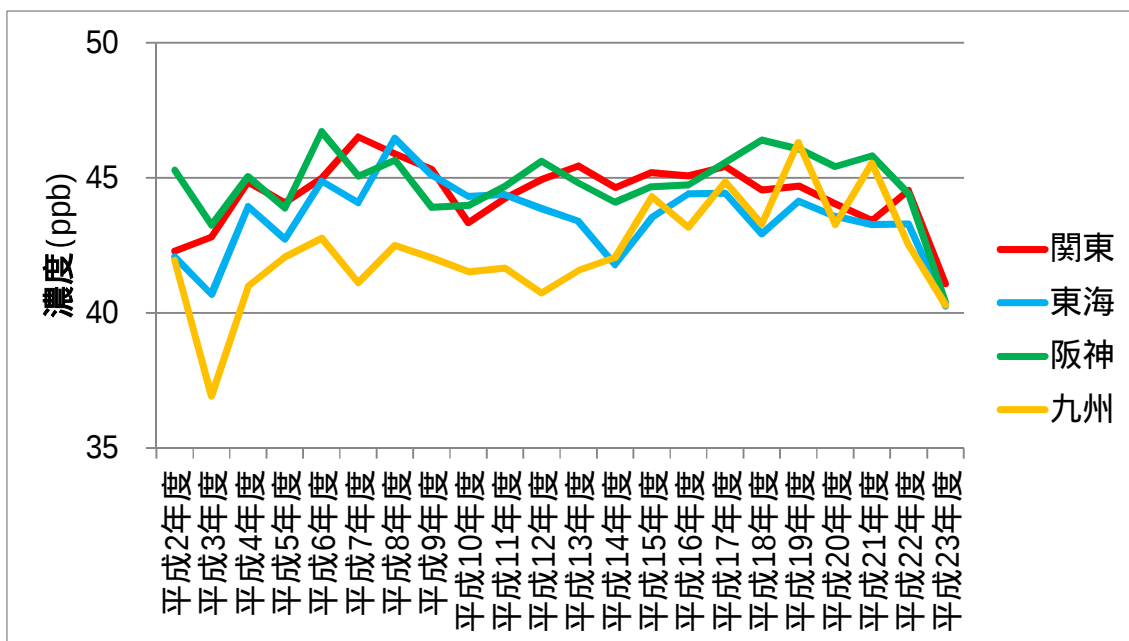


図 4-14 ポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値の域内平均値の経年変化

(3) ポテンシャルオゾンの濃度ランク別測定局数の推移

ポテンシャルオゾンの濃度変化の要因を検討するために、濃度ランク別測定局数の経年変化を整理した。各地域の濃度ランク別測定局数比率を図 4-15 に示す。長期的な傾向を把握するために平成 2～4 年度、平成 11～13 年度、平成 20～22 年度の述べ

局数をもとに局数比率を算出した。

関東と東海は、低濃度側と高濃度側の測定局数が減り、中央値付近の濃度に集まった。関西は、関東や東海と分布形状は異なるが同様の傾向が見られた。

九州は、他の地域と異なり、低濃度側も高濃度側の測定局も濃度ランクが高い方にシフトし、分布も局が最多となるランクが高い側にシフトしていた。

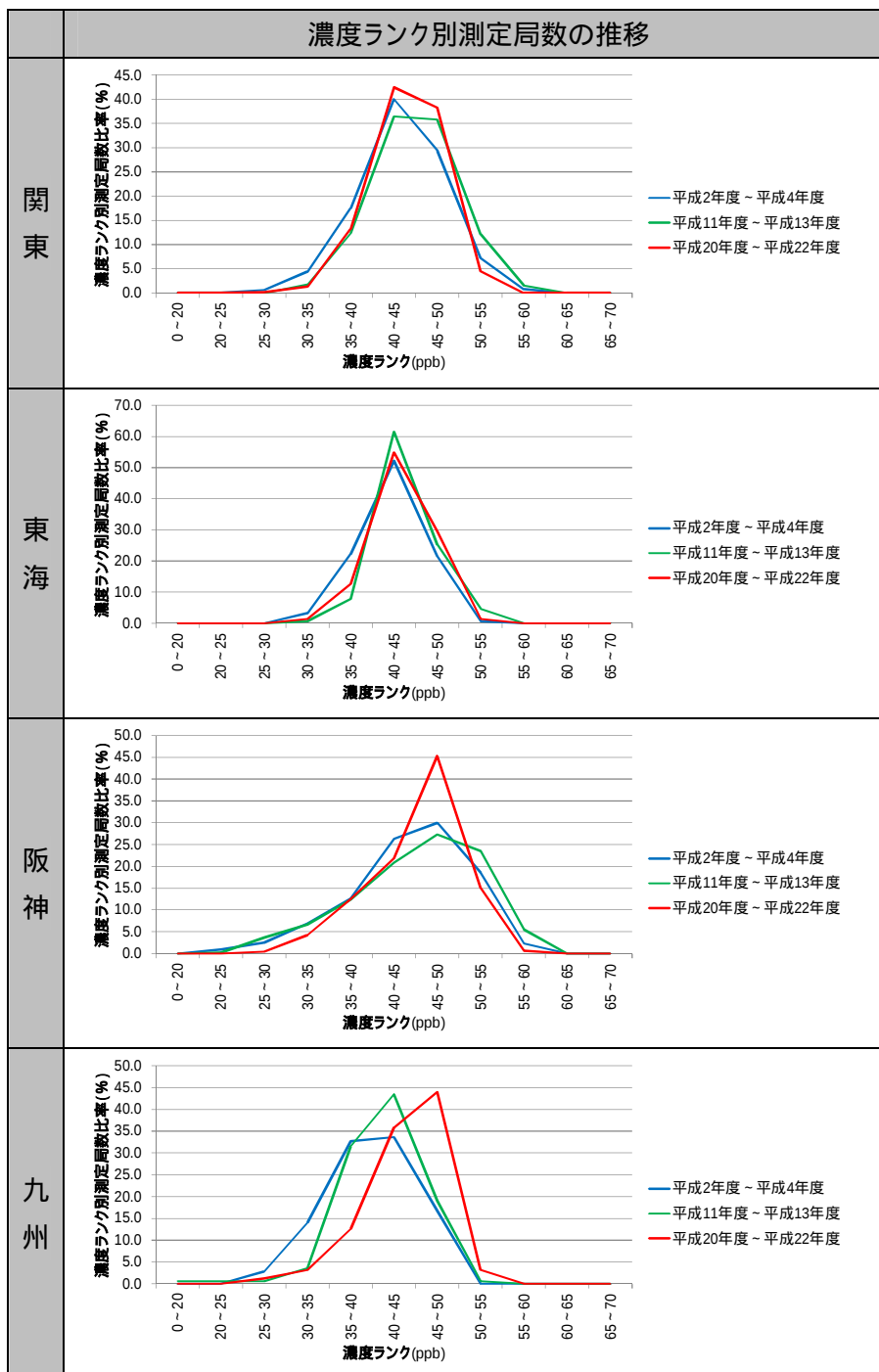


図 4-15 ポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均濃度ランク別測定局数比率の経年変化

(4) まとめ

ポテンシャルオゾンを用いて、光化学オキシダントの長期的な平均濃度の上昇傾向の要因を検討した。この結果は以下の通りであった。

- ポテンシャルオゾン濃度は、関東など東日本で低下する傾向が見られ、西日本、特に九州で濃度の上昇が見られた。
- 関東・東海では、光化学オキシダント濃度が上昇しているにもかかわらず、ポテンシャルオゾン濃度の平均値は低下傾向が見られた。これは、域内発生源の変化によりタイトレーション効果が低下し、結果的に光化学オキシダント濃度の平均値が上昇したと考えられる。
- 関西は、越境汚染の影響の増加と、タイトレーション効果の低下による両方の影響により光化学オキシダント濃度の平均値が上昇したと考えられる。
- 九州は、タイトレーション効果の低下による濃度上昇があるものの、越境汚染の影響の増大が大きく影響し、光化学オキシダントの平均濃度の上昇したものと考えられる。
- 越境汚染の影響はいずれの地域でも見られるが、西の地域で影響大きかった。

4.2.4 光化学オキシダントの 8 時間値の経年変化

(1) 概要

光化学オキシダントの汚染の程度を把握し評価する指標を設定する上で、濃度の平均化時間の設定が重要となる。WHO は 8 時間平均値をガイドライン値として設定した。また、米国 EPA でも 8 時間値を採用し、評価には 8 時間値の年間第 4 位値の 3 年平均により評価している。前節までの検討で、濃度のトレンドを把握するためには 3 年の移動平均が有効であることが確認できた。本節では、国際的な指標の一つである 8 時間値についてデータを整理し、その傾向についてまとめた。

測定局毎の 1 時間値から 8 時間の移動平均値を求め、8 時間値の年間データを作成した。この 8 時間値年間データを用いて、8 時間値の日最高値を求めた。8 時間値の日最高値から年間統計(年平均値、年間パーセンタイル値等)を求め、測定局毎に 3 年間の移動平均値を求めた。この結果から地域統計(域内平均値、最高値、パーセンタイル値)を求め傾向を整理した。

表 4-5 解析の概要

項目	内容
目的	国際的な指標のひとつである光化学オキシダントの 8 時間平均値について国内での適用を検討した。
データ	光化学オキシダントの 8 時間平均値の日最高値
時間統計	年度(平均値) 年度(年間パーセンタイル値)

(2) 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の年最高値の年間統計の経年変化

光化学オキシダントの 1 時間値の解析と同様に、8 時間値についても表 4-6 に示す統計を行った。

表 4-6 8 時間値の統計指標

日別値	年間統計	地域統計
8 時間値の日最高値	年最高値	地域内最高値
8 時間値の日最高値	年間 99 パーセンタイル値	地域内最高値
8 時間値の日最高値	年間 98 パーセンタイル値	地域内最高値
8 時間値の日最高値	年間 97 パーセンタイル値	地域内最高値
8 時間値の日最高値	年間 96 パーセンタイル値	地域内最高値
8 時間値の日最高値	年平均值	域内最高値
8 時間値の日最高値	年最高値	域内 98 パーセンタイル値
8 時間値の日最高値	年最高値	域内 97 パーセンタイル値
8 時間値の日最高値	年最高値	域内平均值
8 時間値の日最高値	年間 99 パーセンタイル値	域内平均值
8 時間値の日最高値	年間 98 パーセンタイル値	域内平均值
8 時間値の日最高値	年間 97 パーセンタイル値	域内平均值
8 時間値の日最高値	年間 96 パーセンタイル値	域内平均值
8 時間値の日最高値	年平均值	域内平均值

(3) 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の年最高値の域内最高値の経年変化

光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値(日最高 8 時間値)の年最高値を局別に 3 年移動平均し、その結果から優先解析地域毎の最高値を求めた。この結果を図 4-16 に示す。参考に光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値(日最高 8 時間値)の年最高値を図 4-17 に示す。

関東は、昼間の最高値の経年変化(図 4-4)と同様の経年変化を示した。

九州は昼間の平均値の経年変化(図 4-1)に近い変化を示した。

東海と阪神は、概ね昼間の最高値の経年変化(図 4-4)と同様の変化を示した。

参考に、年度毎の経年変化を図 4-17 を示したが、8 時間平均値を用いた場合でも、他の解析と同様に年々変動が大きいことを確認した。

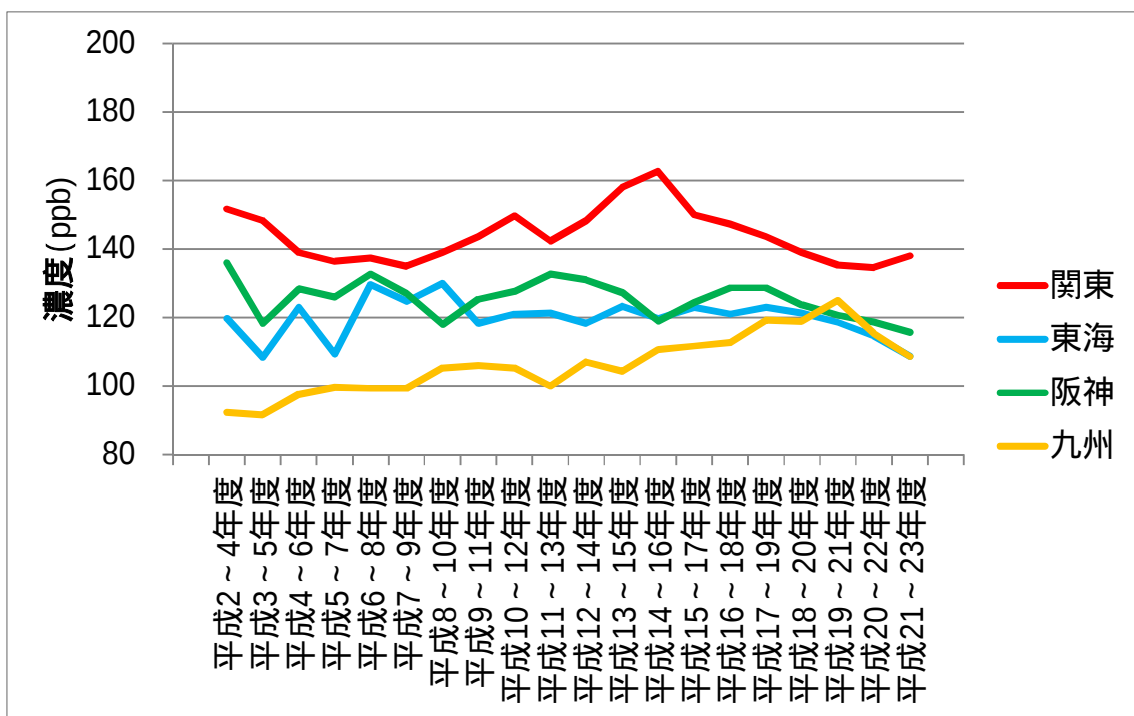


図 4-16 Ox の日最高 8 時間値の年最高値(局別 3 年平均)の域内最高値の経年変化

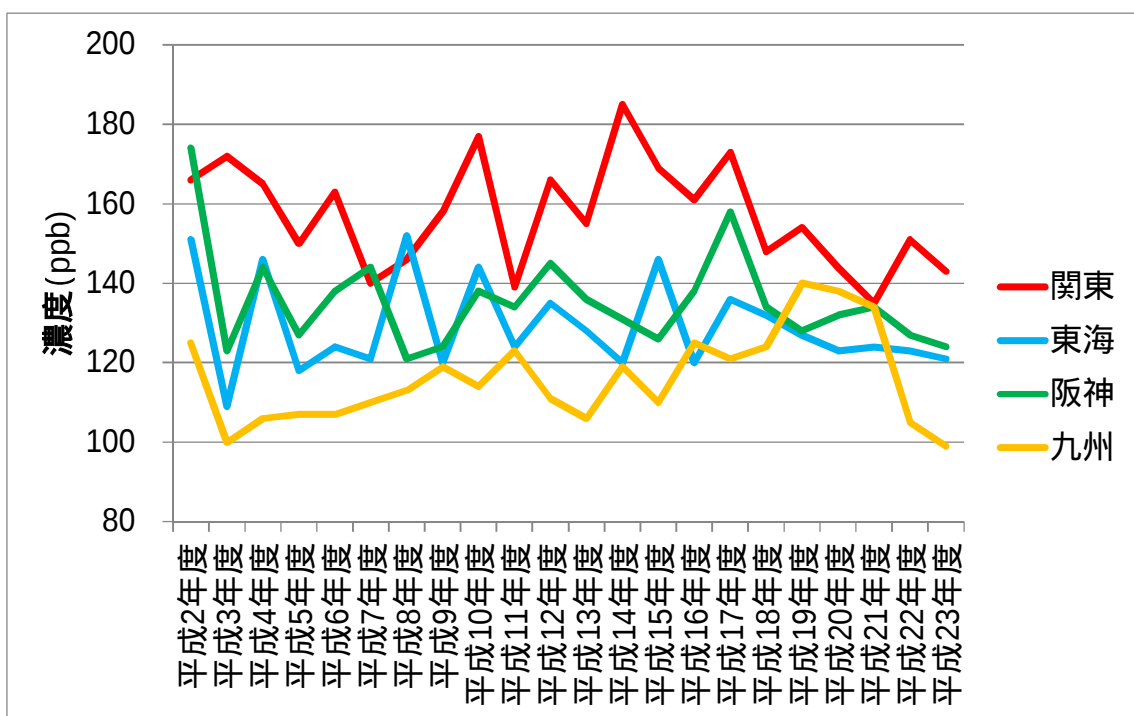


図 4-17 Ox の日最高 8 時間値の年最高値の域内最高値の経年変化

(4) 年間統計値の域内最高値等

測定局毎に年最高値、年間96～99パーセンタイル値、年平均値を求め、3年間平均を求めたのち、域内最高値や域内98、97パーセンタイル値を算出した。この結果を図4-18に示す。

関東の年最高値の域内最高値と年最高値の域内パーセンタイル値の経年変化は、濃度レベルは異なるが概ね同じ傾向を示していた。この2つの指標が同じ傾向を示すことは、他の地域も同様であった。

関東の年最高値の域内最高値と年間99パーセンタイル値の域内最高値の経年変化は傾向が異なり、年最高値が平成14～16年度をピークとして濃度の低下を示し、年間99パーセンタイル値は平成13～15年度から平成17～19年度にかけて横ばいを示し、その後低下する傾向であった。

高濃度日の上位1%(4日程度分の高濃度日)を除外した濃度では、平成17～19年度までは横ばいで濃度変化が見られなかったものが、VOC規制が始まる平成18年度頃から濃度の改善がみられた。他のパーセンタイル値でも同様の傾向が見られる。ただし、除外する高濃度日が多くなると、濃度低下が始まる年度が、後の年度に移る傾向が見られた。

東海と阪神は、最高値と年間パーセンタイル値との差は小さかった。年間パーセンタイル値の経年変化の傾向は、関東と同様に、VOC規制の頃から低下する傾向が見られた。

九州は、年最高値の域内最高値と域内パーセンタイル値はほぼ同じ濃度で変化傾向も同じであった。年間99パーセンタイル値の域内最高値は平成12～14年度頃から横ばいが続き、年間96,97,98パーセンタイル値でやや濃度上昇がみられた。

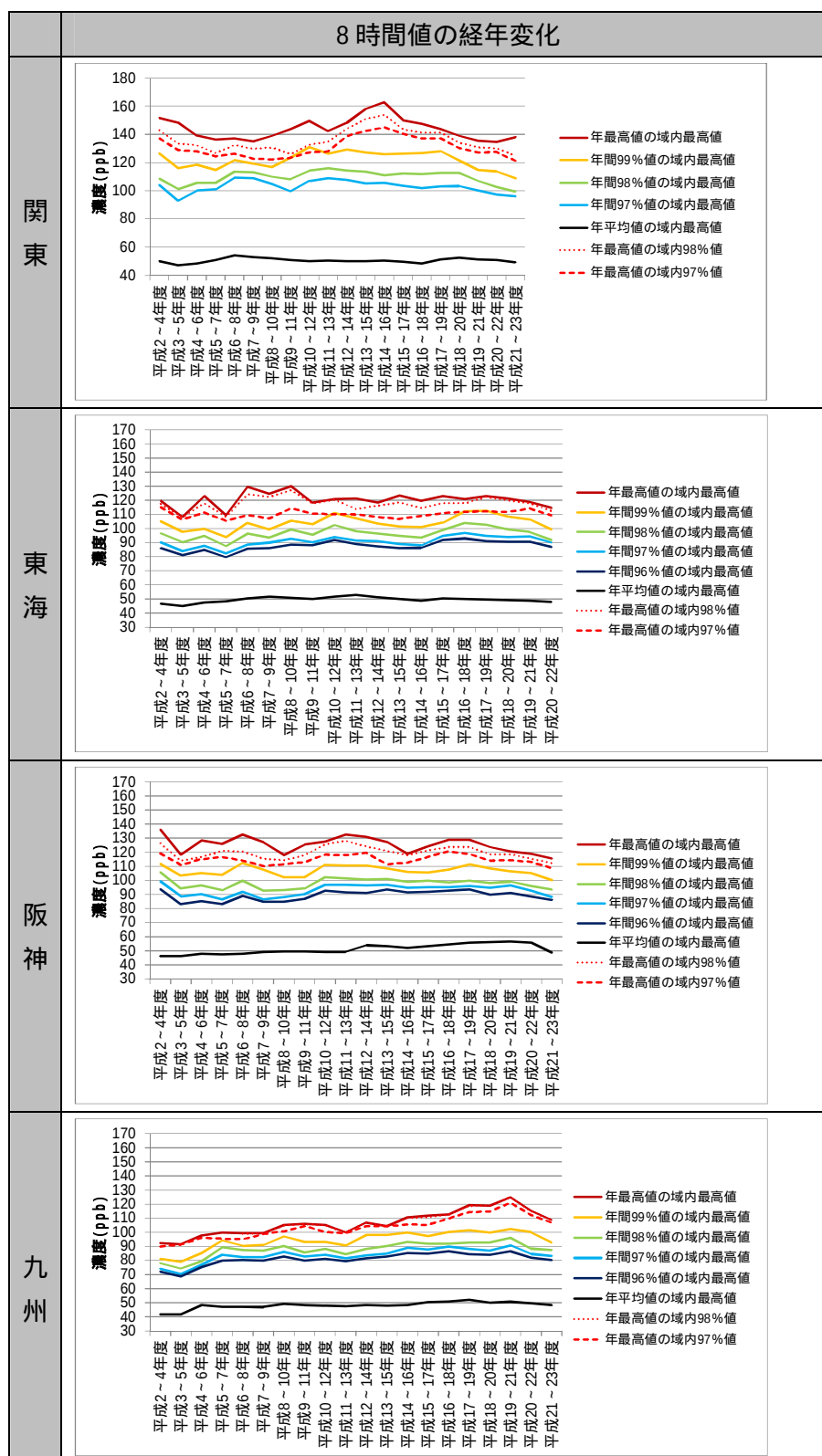


図 4-18 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の年統計の経年変化経年変化

(5) 年間統計値の域内平均値

測定局毎に年統計値(年最高値、年間 96～99 パーセンタイル値、年平均値)を求め、3 年間平均を求めたのち、地域毎に平均値を求めた。この結果を図 4-19 に示す。

関東は、年最高値の域内平均値は平成 16～18 年度より後で濃度が低下する傾向みられた。98、99 パーセンタイル値についても同様であったが、96、97 パーセンタイル値程度からは平成 15～17 年度以降は概ね横ばいとなった。

東海は、関東とは異なりいずれも平成 13～15 年度より後で濃度が上昇する傾向であった。

阪神は、年最高値の域内最高値の年間 99 パーセンタイル値は平成 16～18 年度頃から横ばい傾向で、98、97、96 パーセンタイル値は平成 13～15 年度より後で濃度の上昇が見られた。

九州は、平成 12～14 年度より後でいずれの指標の上昇傾向が見られ、平成 19～21 年度をピークにやや改善が見られた。

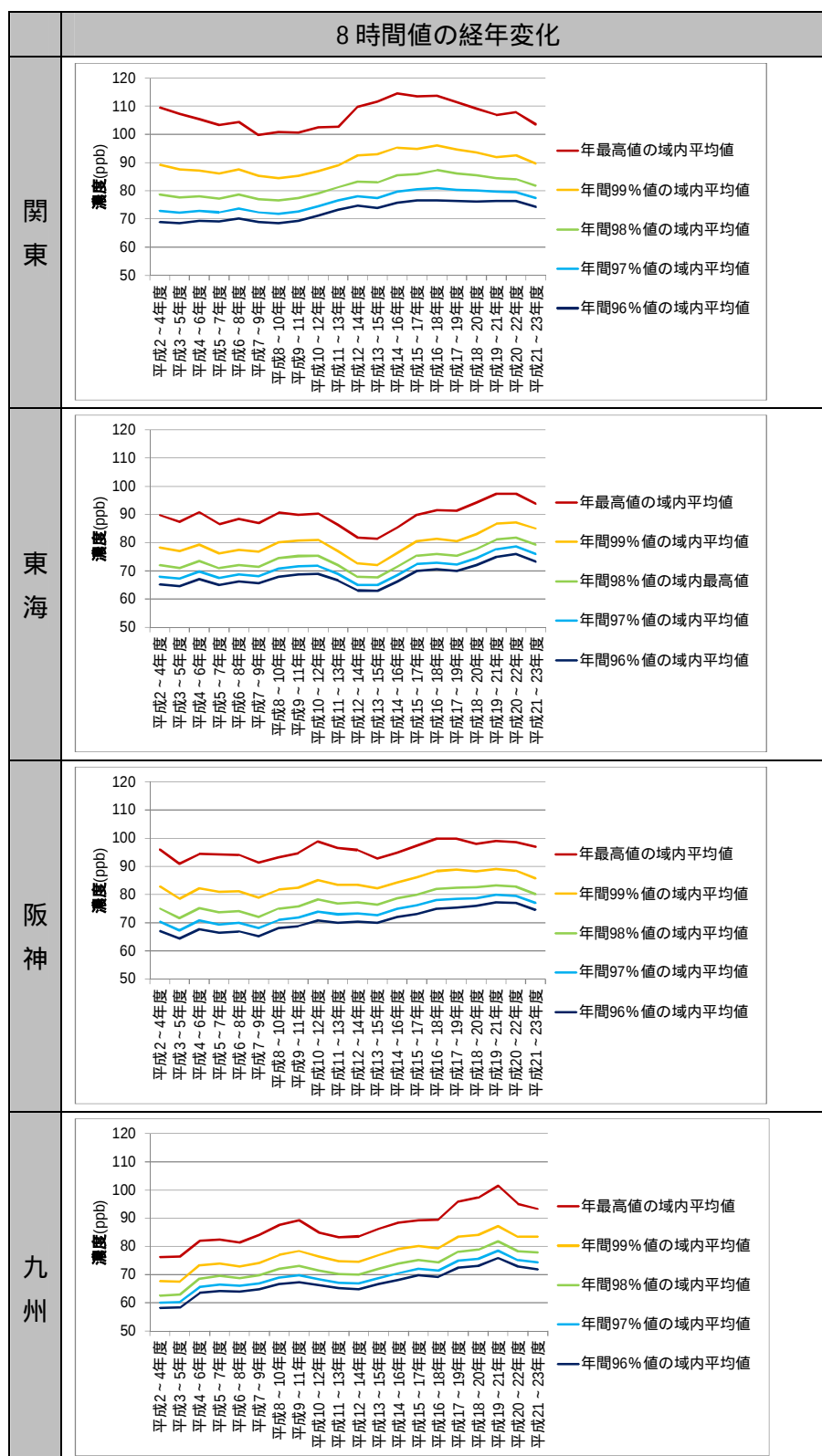


図 4-19 光化学オキシダントの日最高8時間値の年統計の域内平均値の経年変化

(6) 8 時間値の日最高値の基準値以上となる局数

8 時間値の日最高値の年間統計値が 60、75、90、100、110、120、130ppb 以上となる局数比率の変化について把握した。

8 時間値の日最高値の年最高値、年間 99、98、97 パーセンタイル値が 60、75、90、100、110、120、130ppb 以上となった局数を整理した。光化学オキシダントの測定局数は年度により異なるため、局数比率で経年変化を整理した。

関東の 8 時間値の日最高値の年最高値が 100、110、120、130ppb 以上となる局数は平成 14～16 年度から減少する傾向が見られた。

東海の 8 時間値の日最高値の年最高値が 120、130ppb 以上となる局数は減少する傾向が見られた。100ppb 以上の局数は横ばいからやや減少する傾向が見られた。

阪神の 8 時間値の日最高値の年最高値が 110、120、130ppb 以上となる局数は減少傾向が見られ、100ppb 以上となる局数は横ばいから減少する傾向が見られた。

九州の 8 時間値の日最高値の年最高値は、平成 19～21 年度まではいずれの基準値についても局数が増加した。これより後では、100、110、120、130ppb 以上の局数は減少し、90ppb 以上ではいったん減少したあと増加傾向となった。75ppb 以上となる局数は増加傾向が維持していた。

年間 99、98、97 パーセンタイル値についても、変化を示す基準値は低くなるが同様の傾向が見られた。

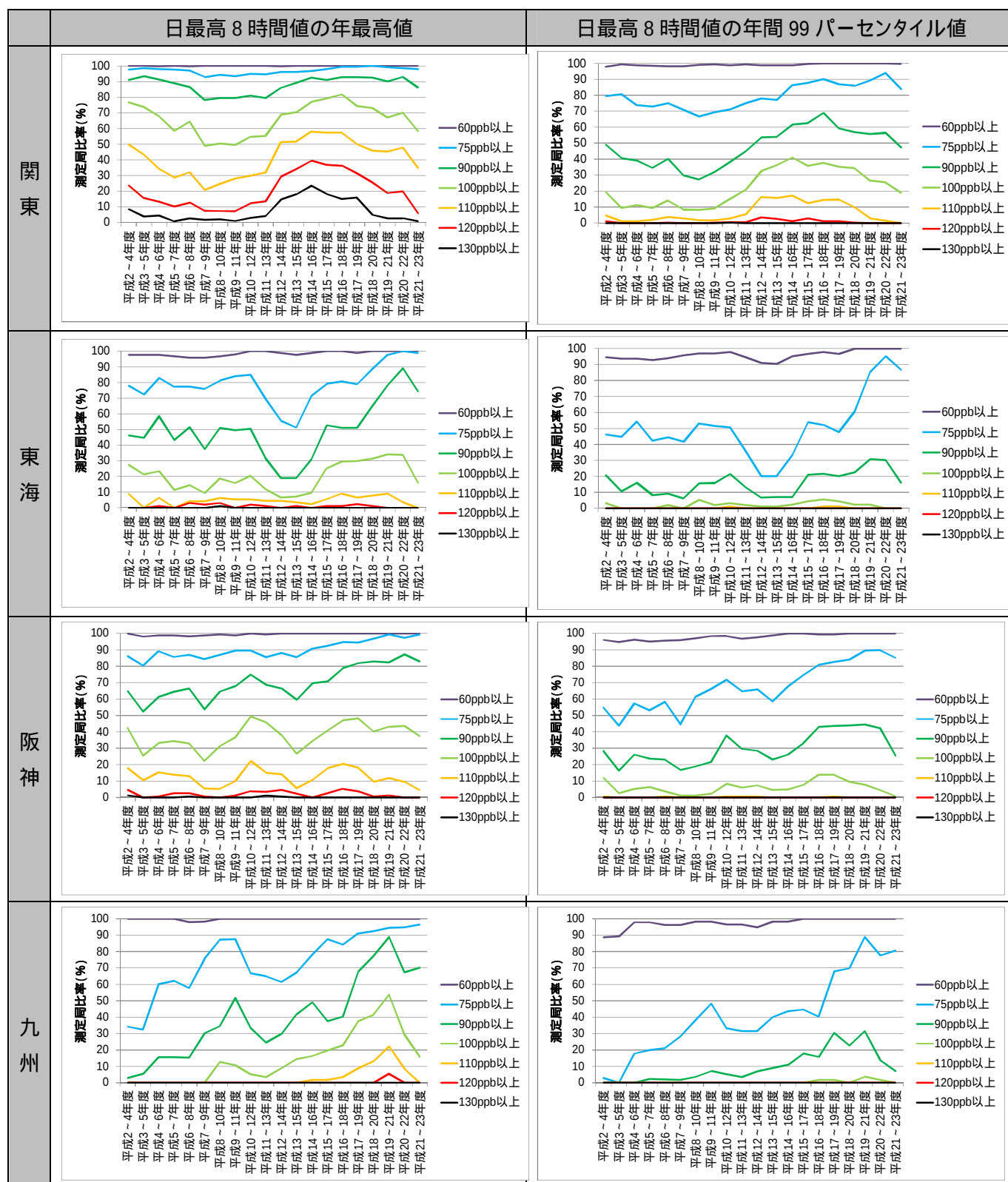


図 4-20 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の基準値以上の局数の経年変化

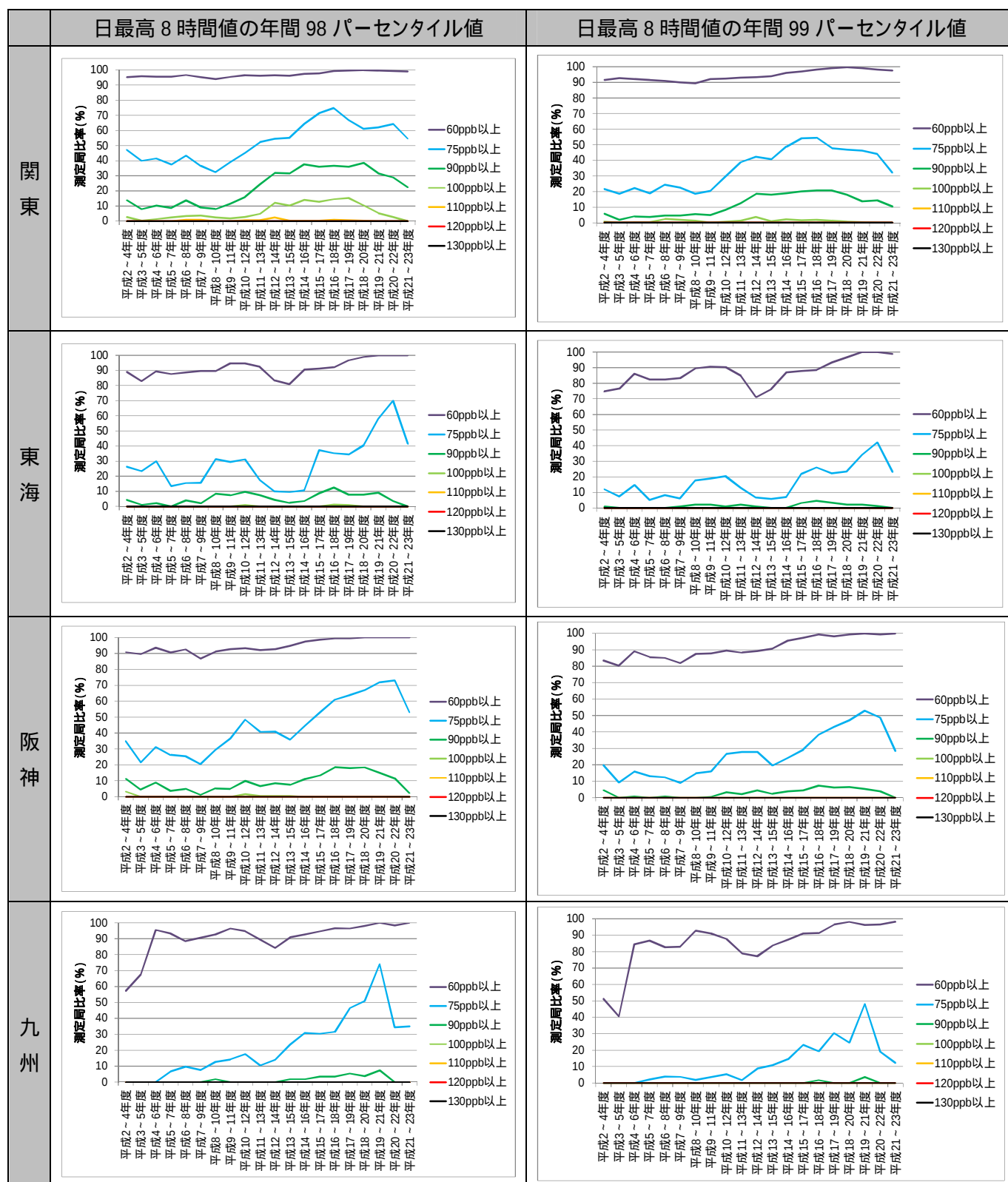


図 4-21 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の基準値以上の局数の経年変化

(7) 8 時間値の日最高値の年統計値の濃度ランク別測定局数

8 時間値の日最高値の年最高値、年間 99、98、97 パーセンタイル値について、濃度ランク別測定局数の状況を整理した。この結果を図 4-22 及び図 4-23 に示す。

関東の年最高値の濃度ランク別測定局数は、平成 20～22 年度では2つ山型の分布となっており、平成 17～19 年度、平成 14～16 年度で高濃度となった局が分布していた。各パーセンタイル値は、高濃度の上位値が除外された結果は、平成 20～22 年度の 2 つ山の高い方のランクの出現が減り一つの山に集約した。低濃度側の濃度ランクの局は、濃度が高いランクにしていた。

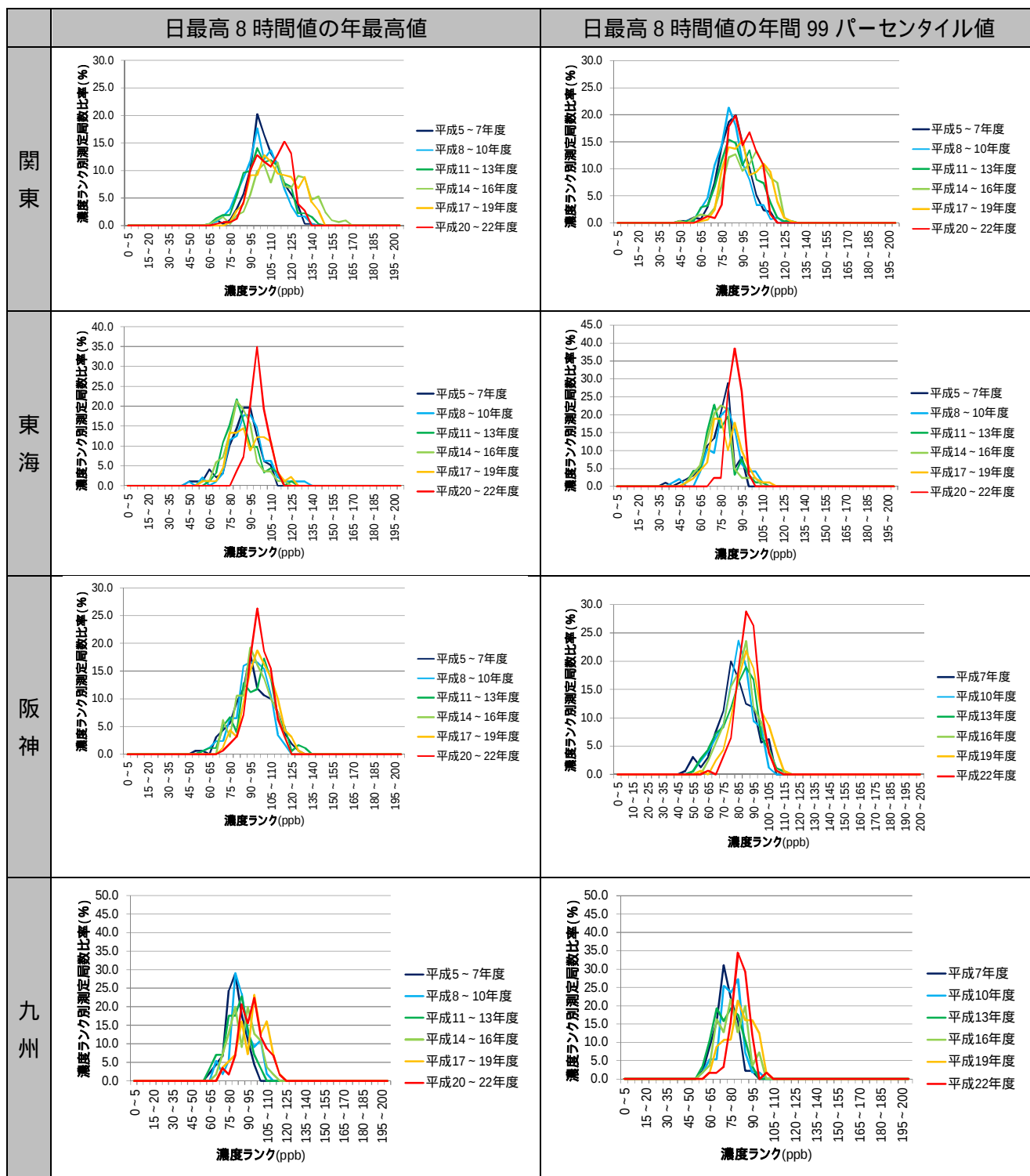


図 4-22 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の濃度ランク別局数比率の経年変化

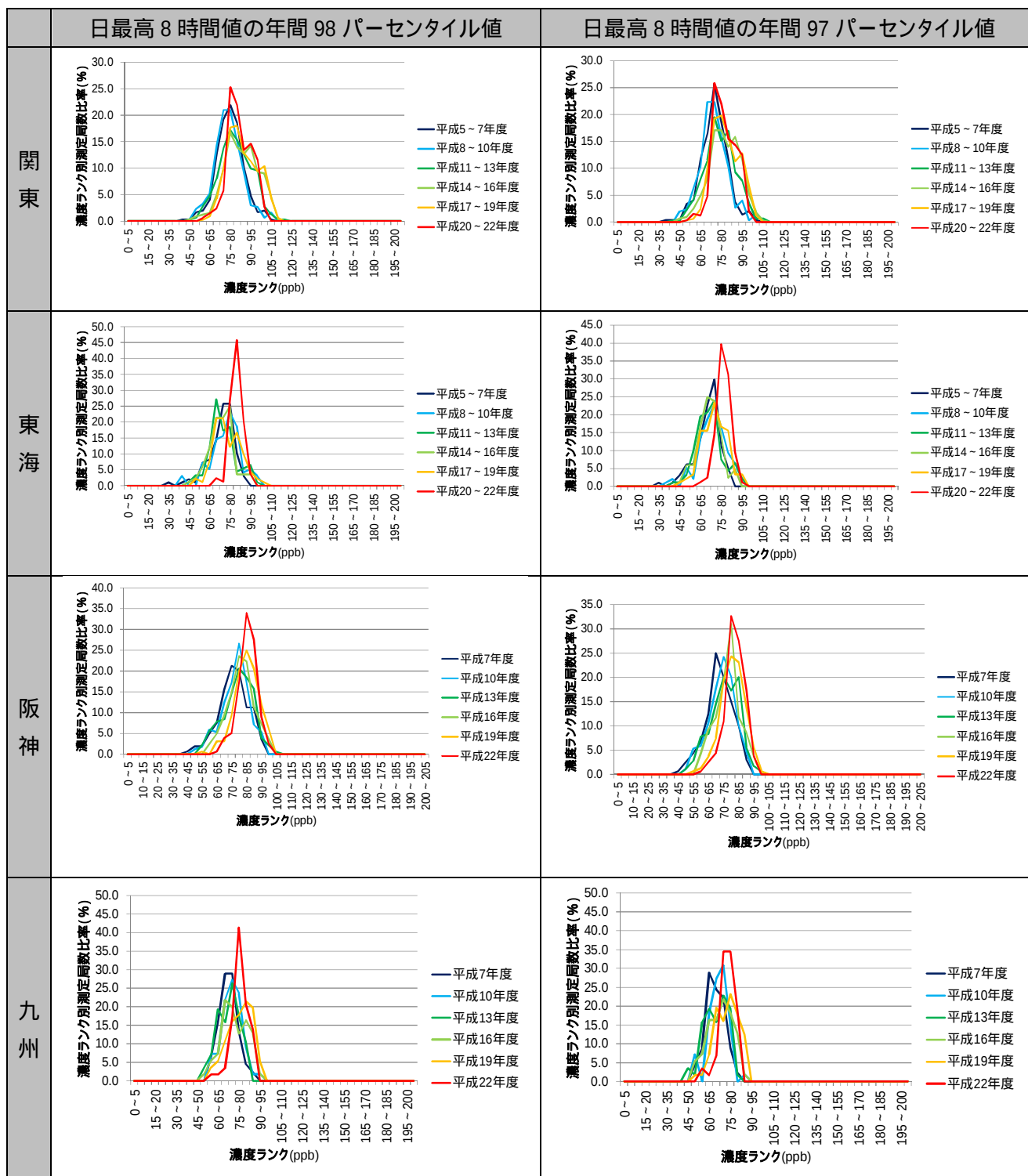


図 4-23 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の濃度ランク別局数比率の経年変化

(8) 8 時間値の濃度分布の経年変化

光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値の年統計値の濃度分布が経年的に変化する状況を整理した。この結果を図 4-24～図 4-27 に示す。

各地域とも、光化学オキシダントの年平均値は、都市部で平成 2 年度頃に 10～20ppb 程度の濃度の低かった局は、平成 22 年度には 30ppb 程度に濃度が上昇し、平均濃度が低かった測定局数が減少している。一方、郊外でも濃度が上昇する傾向が見られた。

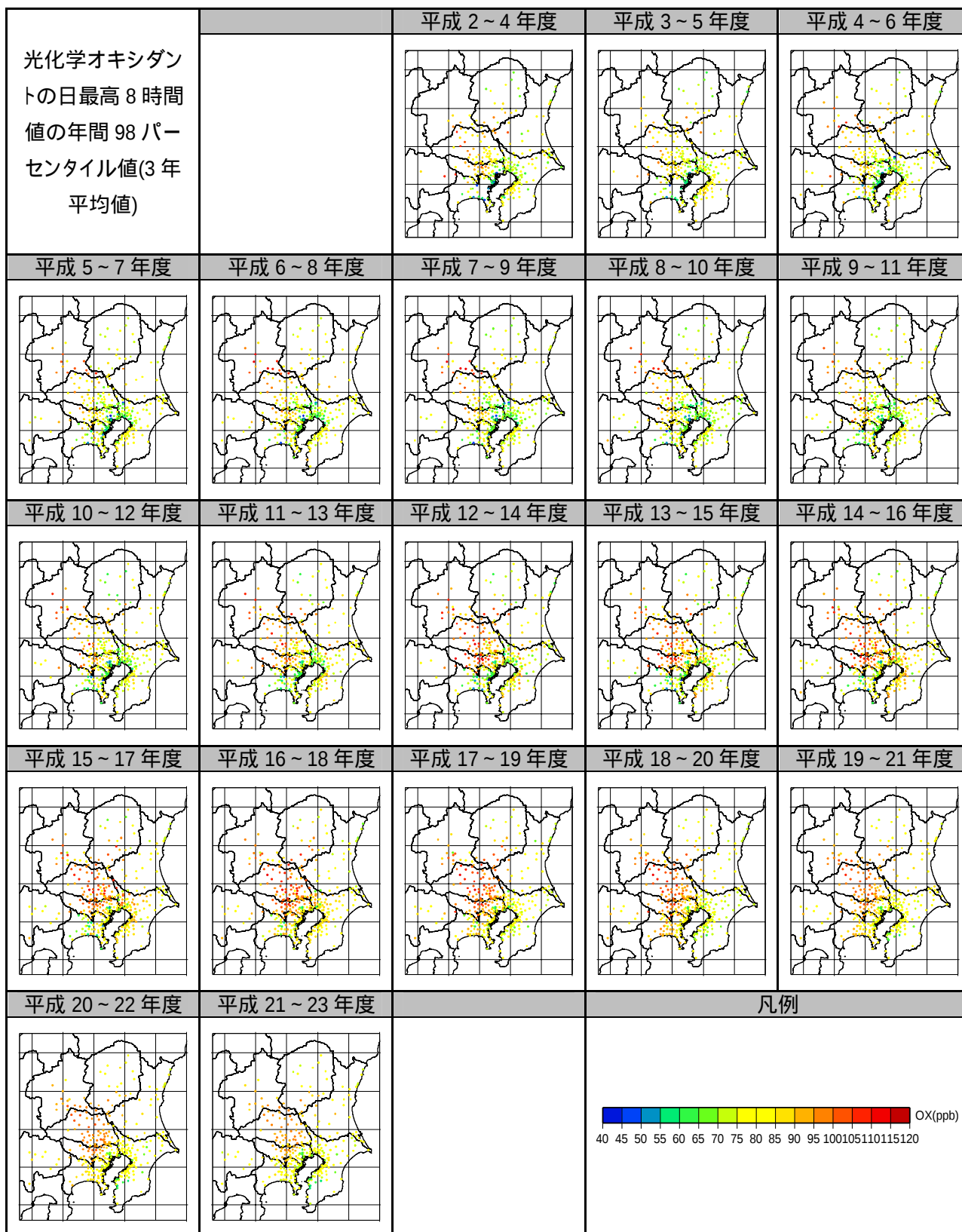


図 4-24 光化学オキシダントの日最高8時間値の年間98パーセンタイル値の分布(関東)



図 4-25 光化学オキシダントの日最高8時間値の年間98パーセンタイル値の分布(関東)

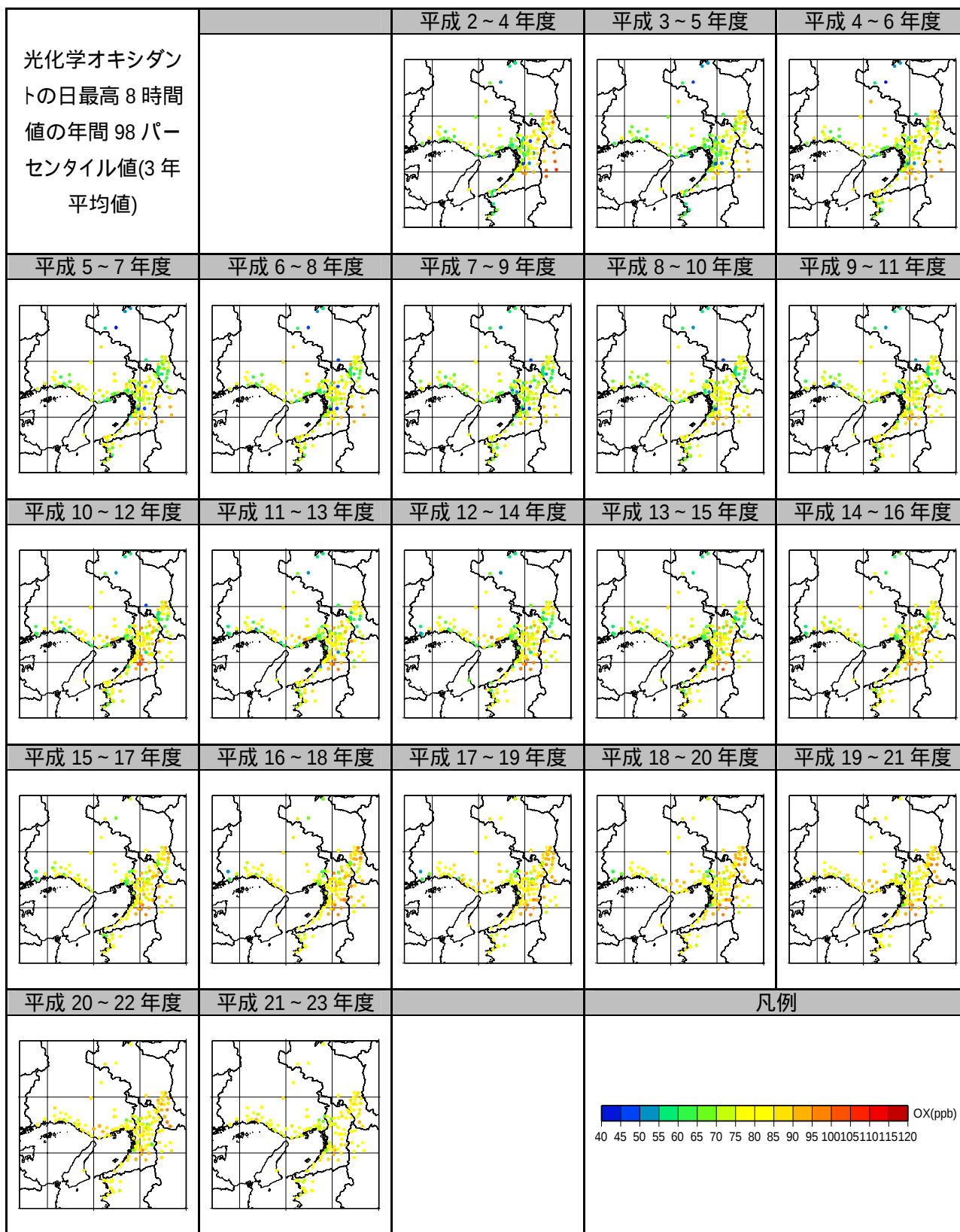


図 4-26 光化学オキシダントの日最高8時間値の年間98パーセンタイル値の分布(阪神)

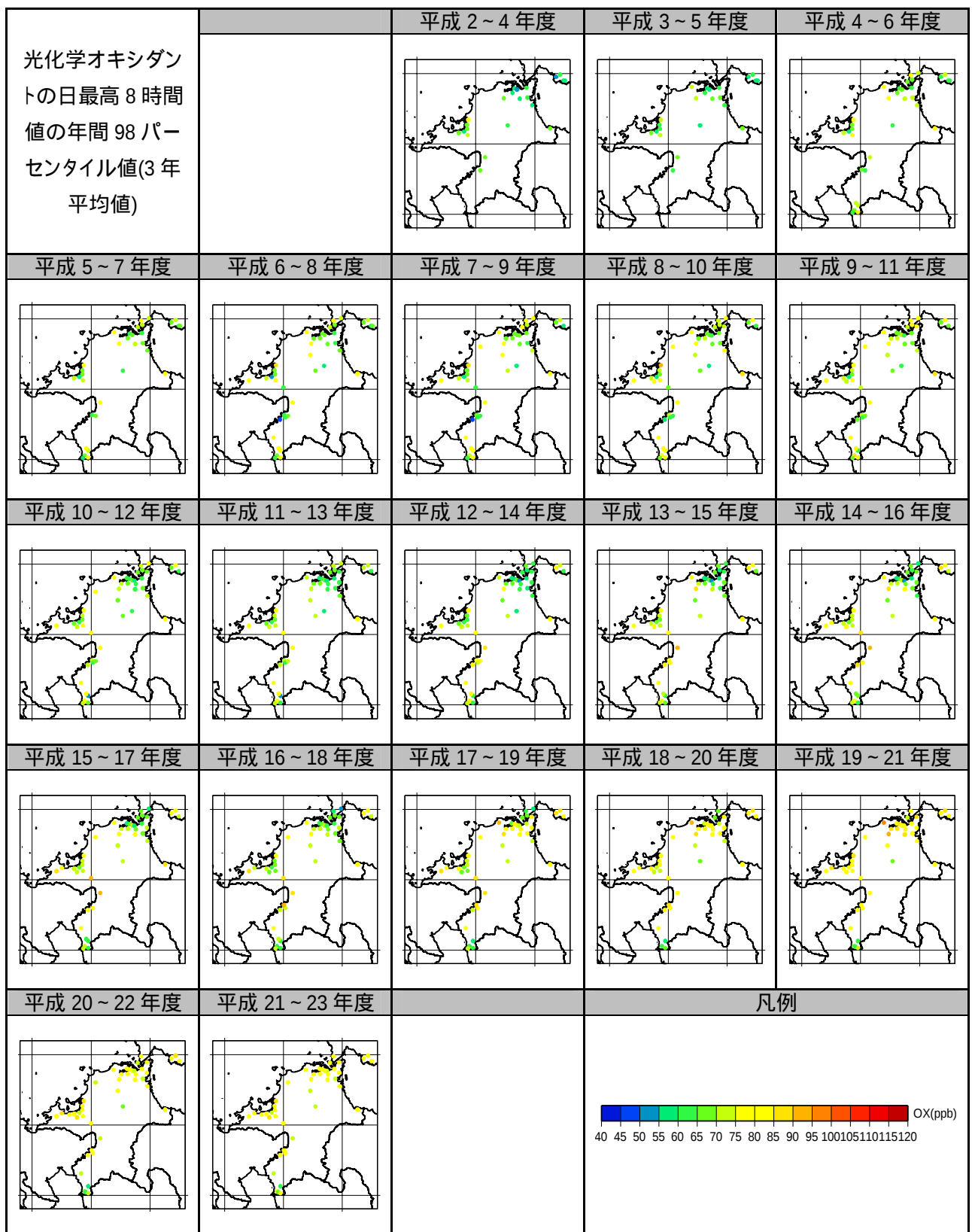


図 4-27 光化学オキシダントの日最高 8 時間値の年間 98 パーセンタイル値の分布(九州)

(9) 高濃度出現地域の経年変化

系統的に濃度が高い測定局の有無の確認と、高濃度の出やすい地域の変化を把握することを目的に 8 時間値の日最高値の年間統計値(年最高値、年間 99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値)について、域内の最高値の出現地点の変化を把握した。この結果を図 4-28 に示す。図は青色が平成 2～4 年度の最高値の測定局位置を示し、赤色が平成 21～23 年度の最高値の地点である。この間、実線で経年変化を追っている。

関東は、はじめ年最高値は群馬県で出現していたが、その後、東京都から埼玉県で高濃度が出現する傾向が見られた。98、99 パーセンタイル値の最高濃度出現地点は、東京 - 埼玉 - 群馬県の線上に分布する。

東海は、解析期間前半では三重県での最高濃度の出現が見られたが、後半は概ね愛知県豊田市付近で出現が見られた。

阪神は、大阪都市部での高濃度は見られず、大阪府南部、奈良県、京都府南部で高濃度が出現した。

九州は比較的北側の臨海部で高濃度が見られた。

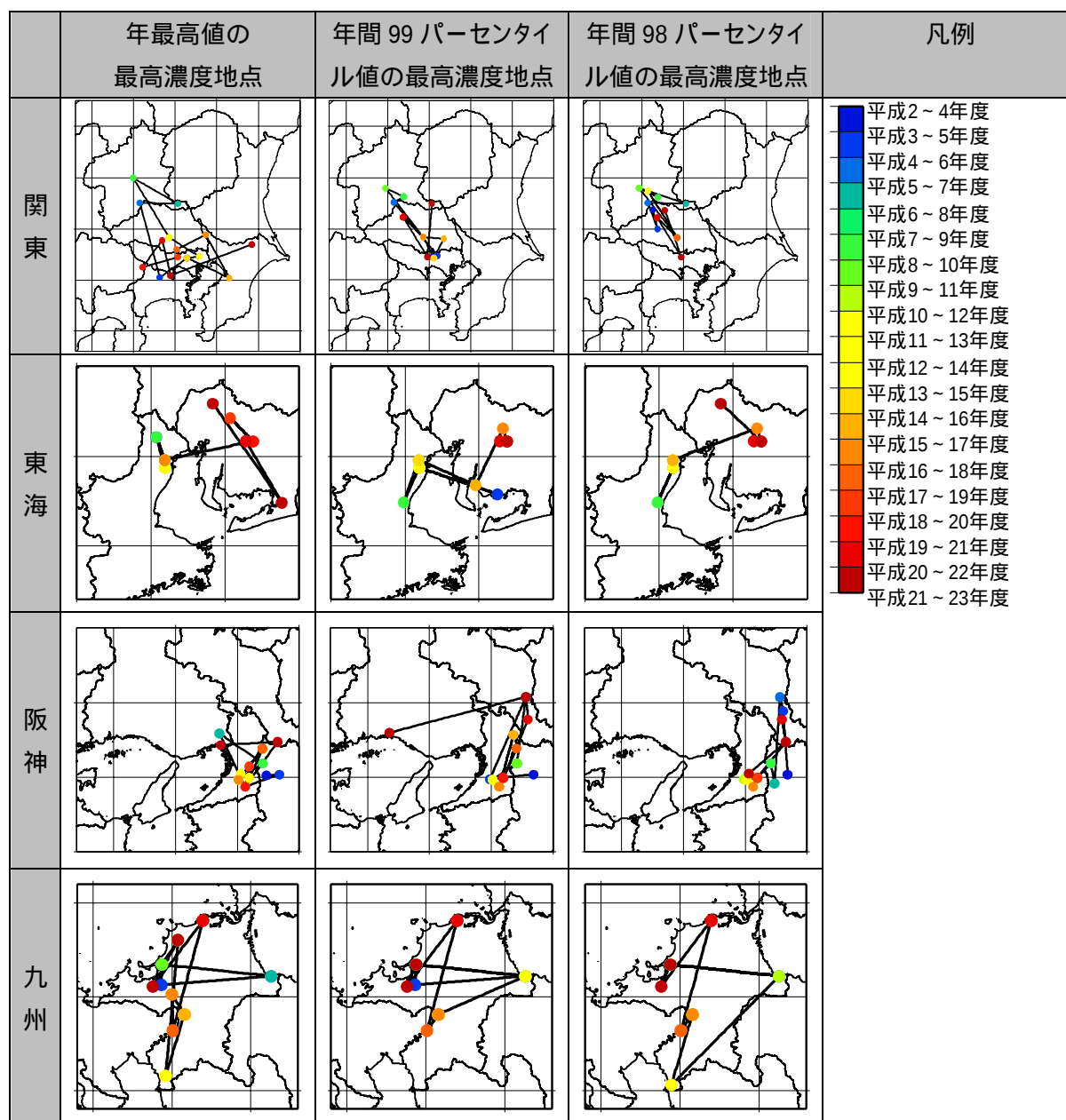


図 4-28 光化学オキシダントの日最高8時間値の年統計値の域内最高値地点の経年変化

(10) まとめ

光化学オキシダントの濃度指標として 8 時間値を用いた年統計値について傾向を整理した。この結果、以下の通りであった。

- 8 時間値の日最高値の年最高値と年間パーセンタイル値の経年変化には、経年変化に差が見られた。
- 関東は、年最高値は平成 14～16 年度より後で濃度の低下が見られた。
- 関東の年間パーセンタイル値は、平成 17～19 年度頃まで横ばい傾向で、その後低下となった。
- 東海と阪神は、平成 17～19 年度以前は濃度の上昇が見られ、その後は低下となった。
- 九州は、平成 19～21 年度まで年最高値は濃度上昇が見られ、パーセンタイル値は緩やかな濃度上昇傾向となっていた。
- 8 時間値の年間統計値が基準値以上となる測定局数の経年変化から、指標ごとに濃度改善傾向が把握できた。
- 8 時間値においては、高濃度日の上位の数%程度を除外し、3 年間の移動平均することにより、安定的な指標を得ることができ、長期的な濃度の変化傾向や対策効果の状況が把握できた。

4.2.5 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数

(1) 概要

光化学オキシダントが高濃度となり長時間継続した場合、その影響は考慮する必要がある。高濃度の継続を評価する方法として、基準となる濃度を設定し、それ以上の濃度となる時間の時間数を評価する方法がある。

表 4-7 解析の概要

項目	内容
目的	光化学オキシダントの影響時間の経年変化
データ	Ox 濃度が基準値以上となった時間数 (基準値:40ppb、60ppb、80ppb、100ppb、120ppb)
時間統計	年度(時間数)

(2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化

測定局毎に基準とする値(40、60、80、100、120ppb)以上となる時間数を求めた。各局で年間測定時間数が異なることから、1日当たりの時間数に換算後、年間日数365日をかけて、年間時間数を求め、地域毎の平均値を求めた。この結果を3年毎に和を取り、経年変化を把握した。この結果を図4-29に示す。

平成12～14年度以降の傾向は、いずれの地域も40、60ppb以上となる時間数は増加する傾向が見られた。高濃度を示す基準値では、減少傾向が見られた。ただし、減少傾向が見られる基準値は地域毎に異なっていた。関東は80、100、120ppb以上となる時間数は減少傾向が見られた。東海は120ppb以上で減少傾向が見られ、阪神は100、120ppb以上となる時間数で減少傾向が見られた。九州は、増加傾向がみられ、平成20～22年度以降やや減少している。

(3) まとめ

光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化を把握した。この結果、以下の通りであった。

- 120ppb以上の濃度となる時間数の変化は減少する傾向が見られた。
- 関東は120ppb以上となる時間数が多いものの、他の地域は関東の半分程度の時間数であり、地域毎に時間数の差が大きかった。

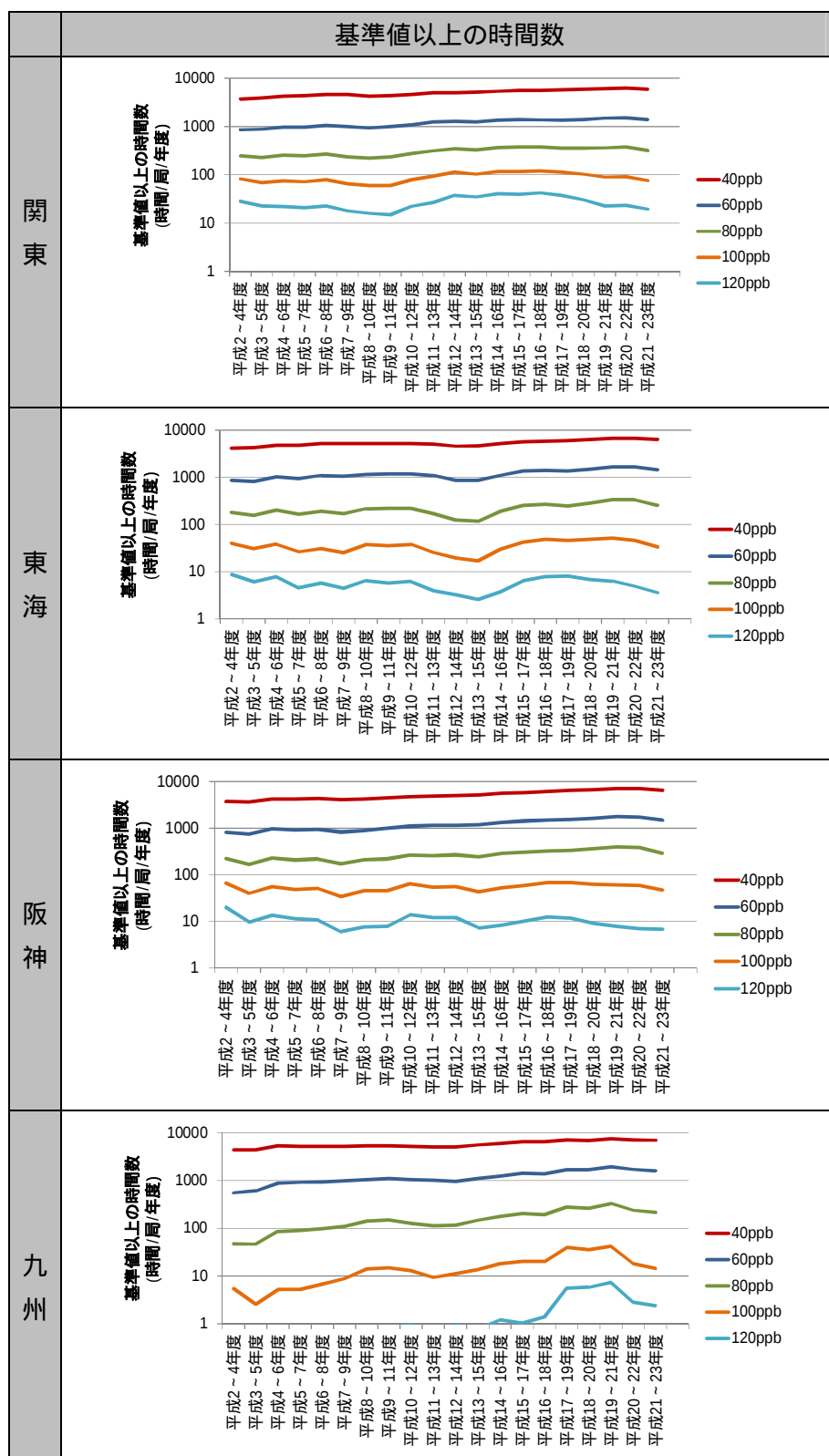


図 4-29 光化学オキシダントの基準値以上となった時間数(3年積算)の経年変化

4.2.6 光化学オキシダント濃度が基準値以上となる場合の積算濃度

(1) 概要

高濃度の出現時間数だけでは、濃度の高低の影響を評価することが難しい。そこで、基準となる濃度を超えた濃度を積算し、濃度と時間数の両方を評価する方法も考えられる。

表 4-8 解析の概要

項目	内容
目的	光化学オキシダントの影響時間の経年変化
データ	Ox 濃度が基準値以上となった濃度の年間積算値 (基準値:40ppb、60ppb、80ppb、100ppb、120ppb)
時間統計	年度(積算濃度)
空間統計	地域内平均値

(2) 光化学オキシダント濃度が基準値以上となる場合の積算濃度の経年変化

測定局毎に基準とする値(40、60、80、100、120ppb)以上となる濃度の積算値を求めた。各局で年間測定時間数が異なることから、1 日当たりの積算値に換算後、年間日数 365 日をかけて、年間積算濃度を求め、地域毎の平均値を求めた。この結果を 3 年毎に平均を取り、経年変化を把握した。この結果を図 4-30 に示す。

平成 12～14 年度以降の傾向は、いずれの地域も 40、60ppb 以上となる積算濃度は増加する傾向が見られた。関東は 100、120ppb 以上となる積算濃度は減少傾向が見られた。東海は 120ppb 以上で減少傾向が見られ、阪神は 100、120ppb 以上となる積算濃度で減少傾向が見られた。九州は、増加傾向がみられ、平成 20～22 年度以降やや減少していた。

(3) まとめ

光化学オキシダント濃度が基準値以上となった時間数の経年変化を把握した。この結果、以下の通りであった。

- 光化学オキシダント濃度が 120ppb 以上となる場合の積算濃度は変化、経年的に減少する傾向が見られた。
- 基準値以上となる時間数の経年変化と同様に、関東は 120ppb 以上となる積算濃度が高く、他の地域は関東の 1/10 程度の時間数であり、地域差が大きかった。

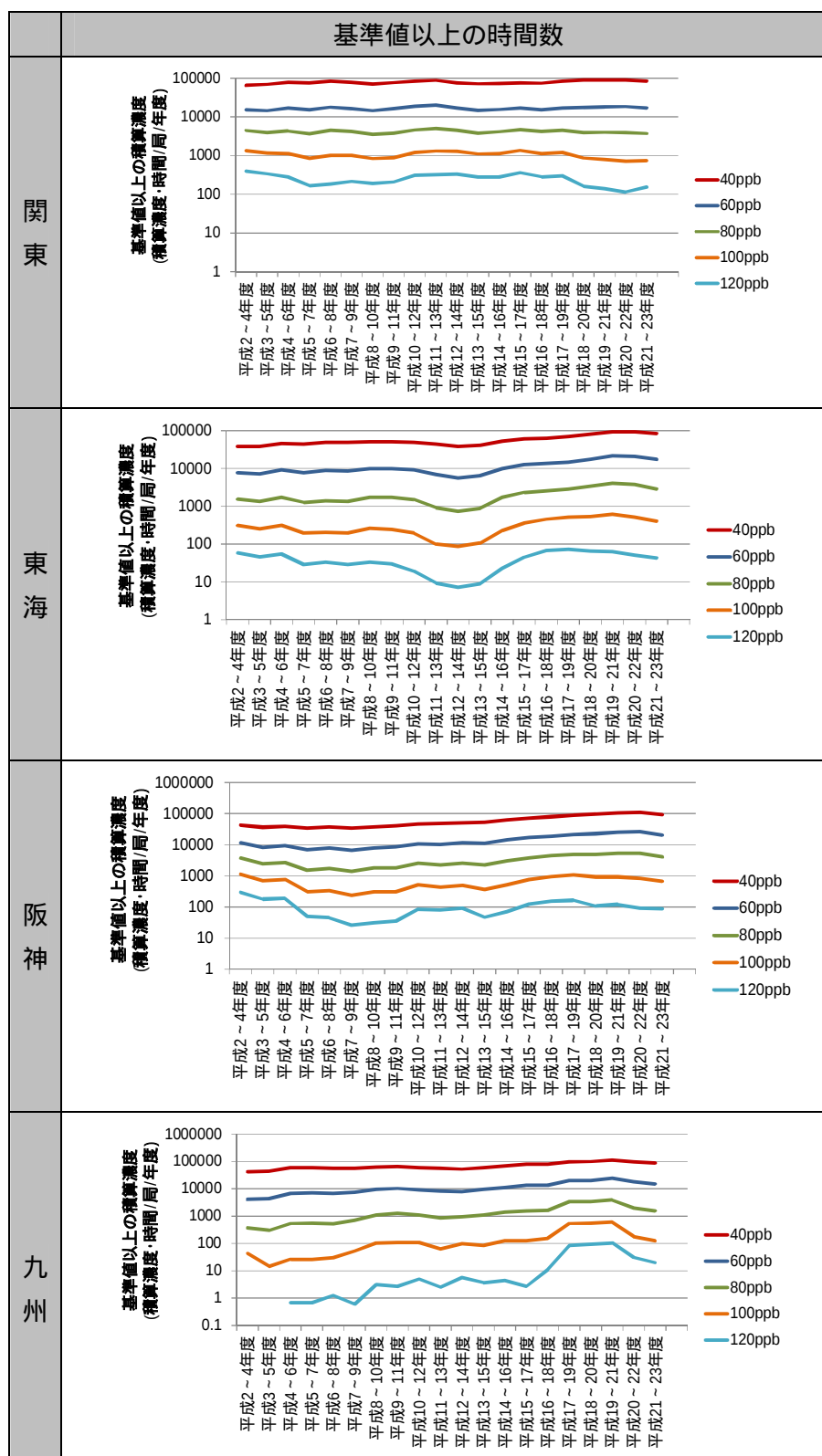


図 4-30 光化学オキシダントの積算濃度の経年変化(3年平均)

4.3 光化学オキシダントと前駆物質濃度の関係

ポテンシャルオゾン濃度の解析からタイトレーション効果の低下による光化学オキシダントの平均な濃度の上昇が示唆された。また、光化学オキシダントの高濃度の解析から VOC 規制のころから濃度の改善傾向が見られた。これらの要因を前駆物質濃度の経年変化と光化学オキシダント濃度の関係を把握することにより、前駆物質対策と光化学オキシダント濃度の改善効果の関係について検討した。

前駆物質濃度と光化学オキシダント濃度の変化の関係を明らかにするために、窒素酸化物と非メタン炭化水素の昼間(5～20 時)の平均値の年平均値と光化学オキシダント濃度の関係を整理した。

表 4-9 解析の概要

項目	内容
目的	光化学オキシダントと前駆物質の関係の把握
データ	窒素酸化物の昼間(5～20 時)の平均値 非メタン炭化水素の昼間(5～20 時)の平均値 光化学オキシダントの統計値
時間統計	年度(平均値)

4.3.1 前駆物質濃度の経年変化

(1) 概要

前駆物質での窒素酸化物は、自動車排ガス対策により濃度の改善が報告されている。また非メタン炭化水素は、自動車排ガス対策の他、VOC 規制により環境濃度の改善が予測される。本調査では、一般環境局の窒素酸化物濃度と非メタン炭化水素の測定値について解析した。

ここでは、窒素酸化物と非メタン炭化水素の一般環境局の年平均値が、これらの排出量の経年変化と比例していると考え、光化学オキシダント濃度と比較した。

(2) 前駆物質濃度の法規制等の状況

前駆物質の窒素酸化物と揮発性有機化合物は、国や地方自治体の法・条例等によりさまざまな対策が実施され、環境濃度に影響を及ぼしていると考えらえる。

ばい煙発生施設の主な対策は、本調査の調査対象期間以前より実施されており、大気汚染防止法その他、自治体が条例や要綱で定める対策がある。

自動車対策の主要な施策としては、単体規制、車種規制、自動車 NO_x・PM 法による削減計画、オフロード車規制などがあり、この他に、自治体による条例や要綱などがある。単体規制は、全国を対象とした規制であり、長期規制、短期規制、新長期規制、新短期規制などがある。自動車 NO_x・PM 法の対策地域では車種規制が実施されている。

車種規制は、自動車 NO_x・PM 法に基づく対策の一つであり、現在では埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、愛知県、三重県、大阪府、兵庫県の自治体の対策地域が定められている。これらの地域では、車種規制の他、自治体ごとに総量削減計画が策定され、他の地域よりも進んだ自動車対策が進められている。

VOC 対策では、自治体によっては以前から炭化水素系物質に係る排出規制が条例などにより行われていた。平成 18 年 4 月より大気汚染防止法が改正され、VOC の排出規制が全国的に開始された。大気汚染防止法では、指定施設は排出濃度の基準が定められ、指定施設以外自主的取り組みによる排出削減を求めている。この他、VOC 規制とは異なるが、平成 13 年 4 月より PRTR 制度により化学物質の排出量等の把握が開始された。

表 4-10 前駆物質の濃度に影響する主な対策の開始年度

規制等		H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8	H9	H10	H11	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21	H22	H23
自動車	車種規制(6自治体)																						
	車種規制(8自治体)																						
	短期規制																						
	長期規制																						
	新短期規制																						
	新長期規制																						
	09 年規制																						
	ディーゼル特殊車規制																						
VOC 規制(大防法)																							
PRTR 届出制度																							

(3) 窒素酸化物の経年変化

ア. 窒素酸化物の地域平均濃度

光化学オキシダントの前駆物質である窒素酸化物について、経年変化を整理した。窒素酸化物の平均濃度の経年変化を把握するために、窒素酸化物の昼間(5～20 時)の平均値の年平均値の域内平均値を算定した。この結果を図 4-31 に示す。この図では、光化学オキシダント等の解析と同様に年度別域内平均濃度を 3 年移動平均することにより、変化傾向を滑らかにした。参考に、年度毎平均値の経年変化を図 4-32 に示す。

窒素酸化物濃度の昼間の平均値の域内平均値の経年変化は、関東は平成 3～5 年から徐々に低下する傾向があり、平成 8～11 年度から低下率が大きくなった。阪神地域も関東と同じような傾向にあった。東海は、平成 13～15 年度ごろまで横ばいであった。その後、低下傾向となり、濃度レベルは阪神と同程度になっている。九州は、平

成 2～4 年頃においては、他の地域より濃度は低かった。他の地域と同様に平成 9～11 年度ごろから濃度が低下し、平成 21～23 年度では東海・阪神地域と同程度の濃度となった。

関東(千葉県、埼玉県、東京都、神奈川県)・阪神(大阪府、兵庫県)地域は、旧自動車 NO_x・PM 法の規制地域であり、先行して対策が進められたことから、他の地域よりも早く NO_xの改善が見られた。東海(愛知県・三重県)は、自動車 NO_x・PM 法改正により対象地域となったため、関東・阪神地域よりも遅れて NO_x濃度の改善が見られるようになった。

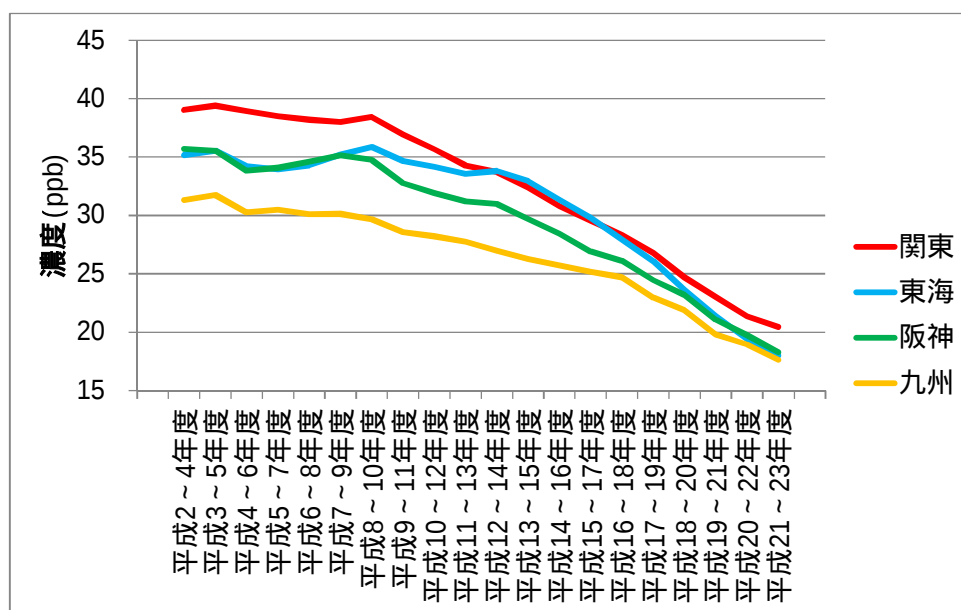


図 4-31 窒素酸化物の昼間の平均値の年平均値の域内平均値(3年移動平均)の経年変化

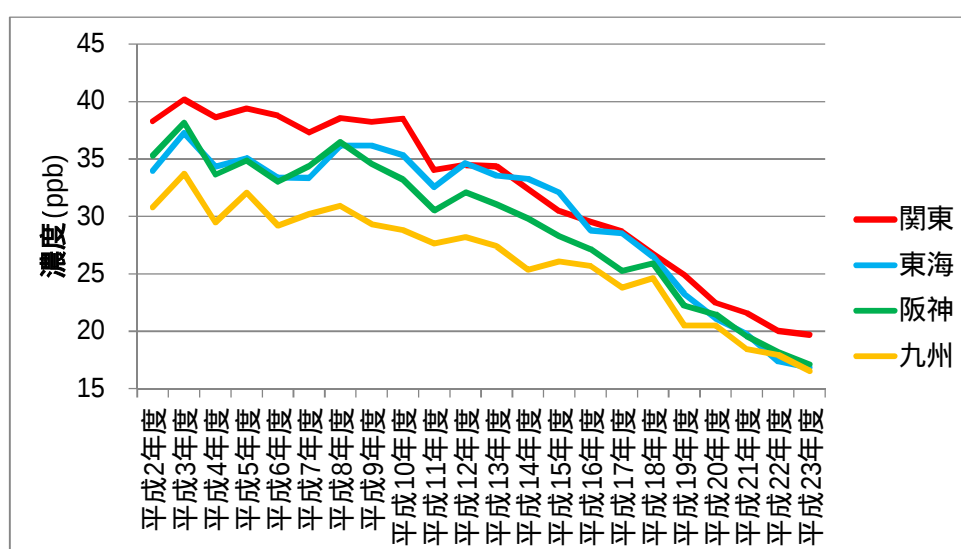


図 4-32 窒素酸化物の昼間の平均値の年平均値の域内平均値の経年変化

(4) 非メタン炭化水素の経年変化

ア. 地域平均濃度

光化学オキシダントの前駆物質である VOC の経年変化を把握するために、非メタン炭化水素の平均濃度の経年変化を整理した。非メタン炭化水素の昼間(5～20時)の平均値の年平均値の域内平均値を算定した。この結果を図 4-34 に示す。この図は、年度別域内平均濃度を 3 年移動平均している。参考に、年度毎平均値の変化を図 4-33 に示す。

非メタン炭化水素の昼間の平均値の域内平均値の経年変化は、いずれの地域においても経年的に濃度が低下する傾向が見られた。VOC 規制が始まる平成 18 年度頃からやや低下率が変化していた。

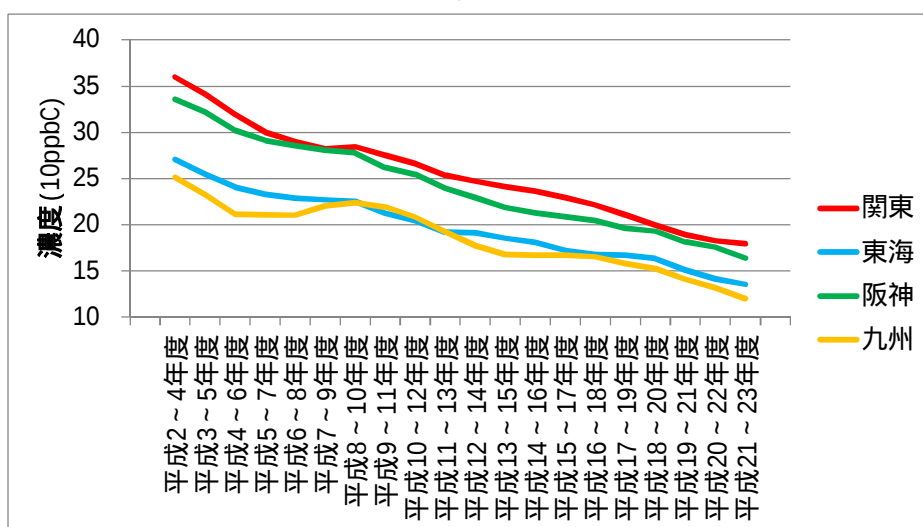


図 4-33 非メタン炭化水素の昼間の平均値の年平均値の域内平均値(3年移動平均)の経年変化

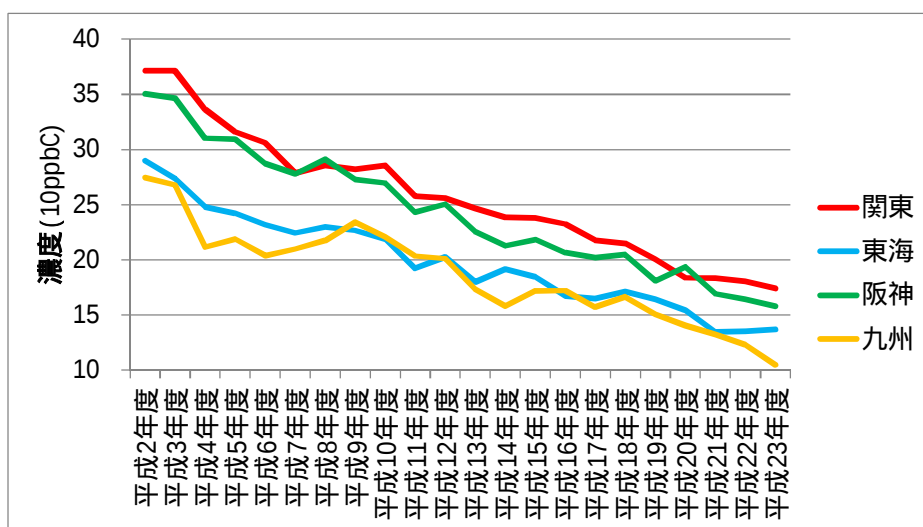


図 4-34 非メタン炭化水素の昼間の平均値の年平均値の域内平均値の経年変化

(5) 窒素酸化物と非メタン炭化水素濃度の関係

前駆物質の窒素酸化物と非メタン炭化水素は経年的に低下傾向していたが、規制の開始時期に応じて濃度の低下傾向に変化が見られた。この傾向と、光化学オキシダント濃度の変化について比較し、前駆物質との関係を整理した。

はじめに窒素酸化物濃度と非メタン炭化水素濃度及びその濃度比について整理した。この結果を図 4-35 に示す。この図も 3 年移動平均した結果である。参考に、関東は地域内で規制の状況が大きく異なることから、郊外部と都心部別の経年変化も整理した。この結果を図 4-36 に示す。なお、郊外は茨城県、栃木県、群馬県、山梨県の平均値、都心部は千葉県、埼玉県、東京都、神奈川県の平均値を示している。

窒素酸化物と非メタン炭化水素の濃度比は、関東・東海・阪神では、はじめ低下する傾向が見られた後、上昇する傾向が見られた。その変化点は、地域により異なっていた。九州は、はじめ低下傾向であったものが上昇し平成 9～11 年度頃ピークとなった。その後低下傾向が見られた後、平成 13～15 年度からやや上昇した。

関東の都心部は、測定局が多いため全域の傾向と同じとなった。郊外部では、平成 8～10 年度までで、濃度比は一旦低下から上昇し、その後は横ばいとなった。平成 20～22 年度頃からやや上昇する傾向が見られた。

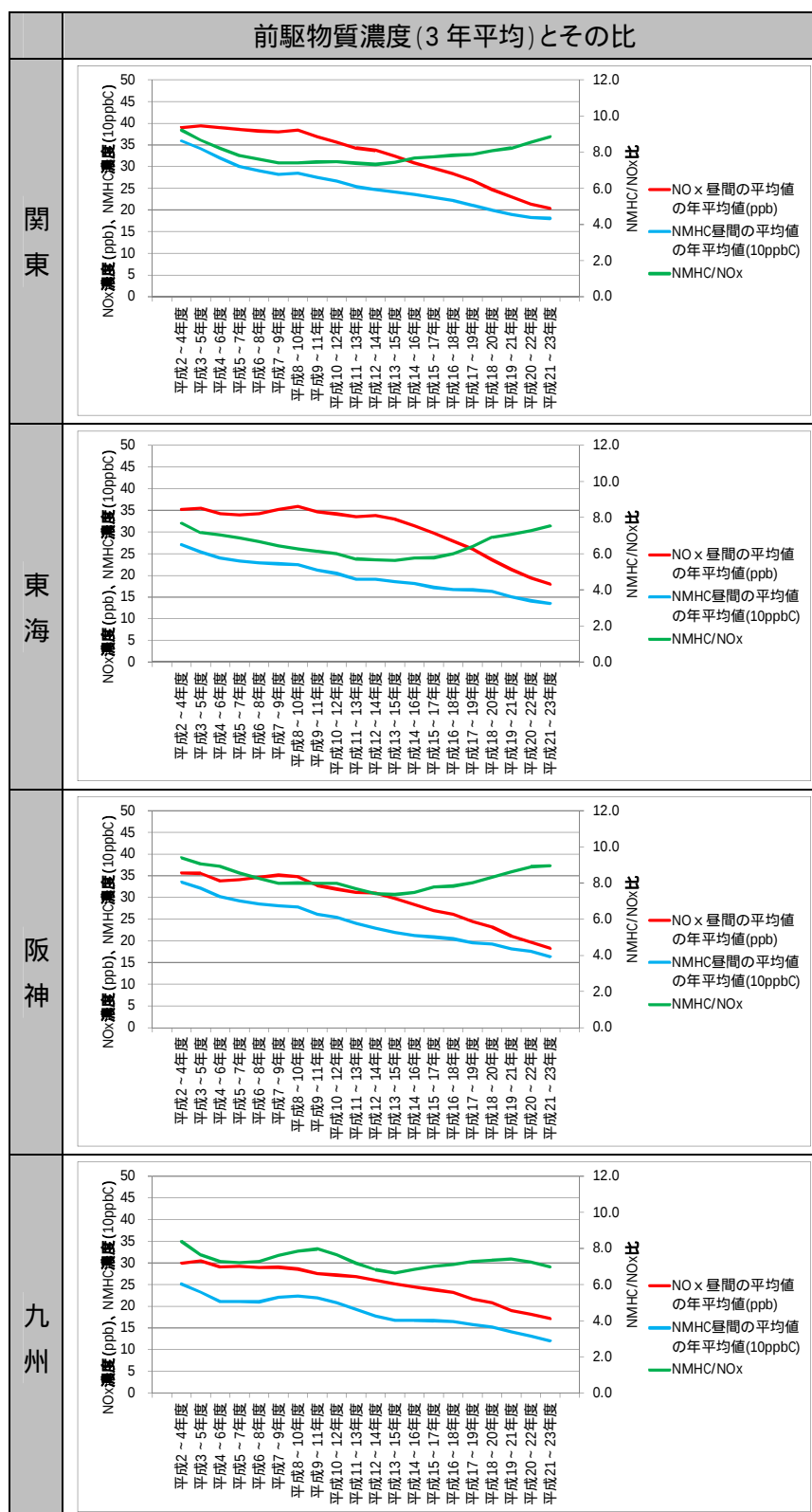


図 4-35 前駆物質の昼間の平均値の年平均値の域内平均濃度の経年変化(3年平均)

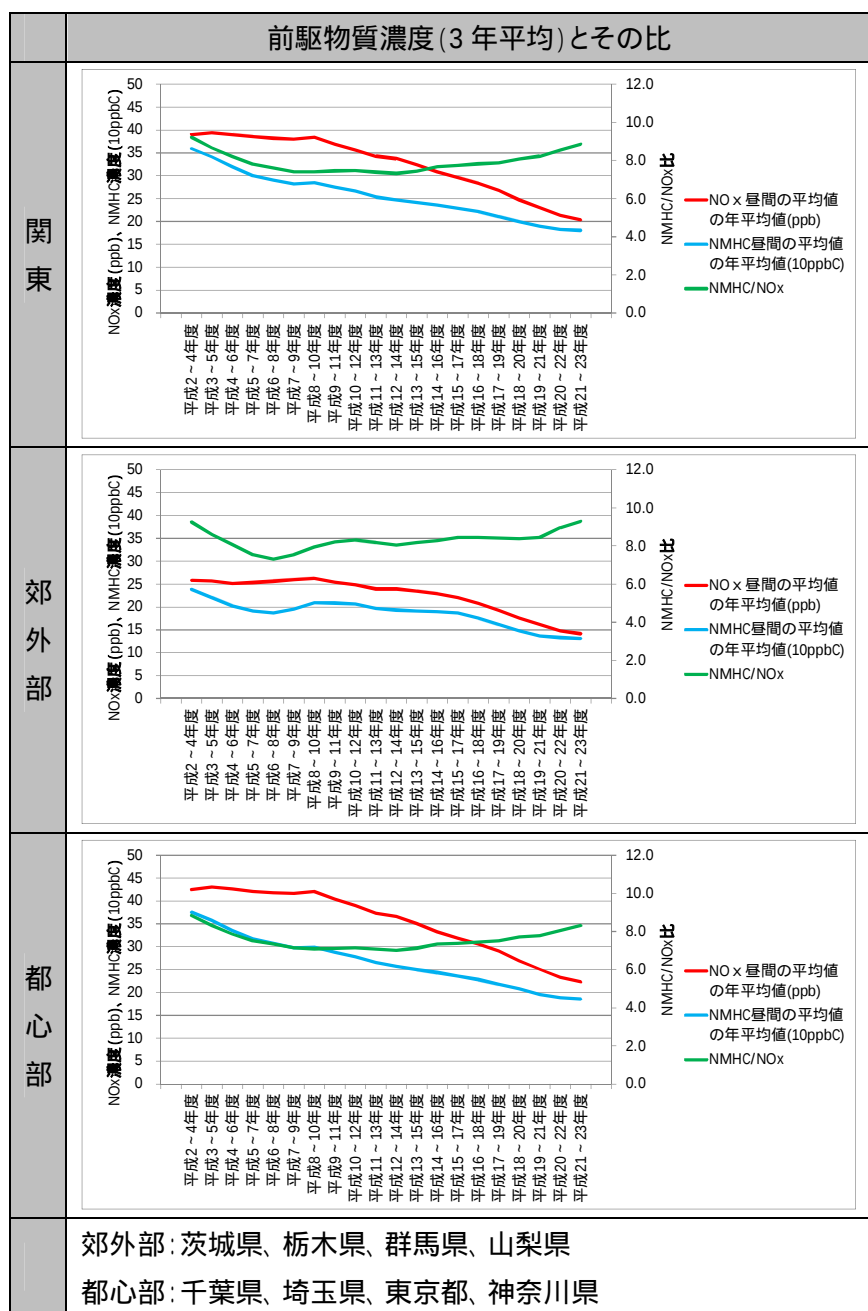


図 4-36 前駆物質の昼間の平均値の年平均値の域内平均濃度の経年変化(3年平均)

4.3.2 窒素酸化物と非メタン炭化水素と光化学オキシダントの関係

(1) 光化学オキシダントの昼間の平均値と前駆物質の関係

窒素酸化物と非メタン炭化水素の経年変化に光化学オキシダント濃度の経年変化を重ね、これらの関係について検討した。

前駆物質と光化学オキシダントの昼間の平均値の関係を図 4-37 に示す。いずれも平成 11～13 年度に対する比を示している。

関東の光化学オキシダントの昼間の平均値の年平均値と年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は、窒素酸化物濃度が変化を始める平成 8～10 年度頃から濃度が上昇していた。昼間の平均値の年平均値の域内 98 パーセンタイル値は、平成 11～13 年度までは域内平均値と同じ変化をしていたが、平成 11～13 年度以降は差が見られ、概ね横ばいであった。

東海の傾向も、変化する年度は異なるが関東と同様の傾向を示し、窒素酸化物の濃度が大きく変化する平成 12～14 年度から濃度上昇していた。

関西は、年平均値の 98 パーセンタイル値の域内平均値は他の地域と同様の傾向を示した。年平均値の域内 98 パーセンタイル値は関東・東海とは異なり濃度上昇の傾向を示した。

九州は、オキシダントの統計値は平成 12～14 年度まで概ね横ばい傾向を示していた、その後、いずれも上昇傾向を示した。他の地域が、前駆物質との関係が示唆される中で、九州は前駆物質とオキシダントの関係性が低かった。

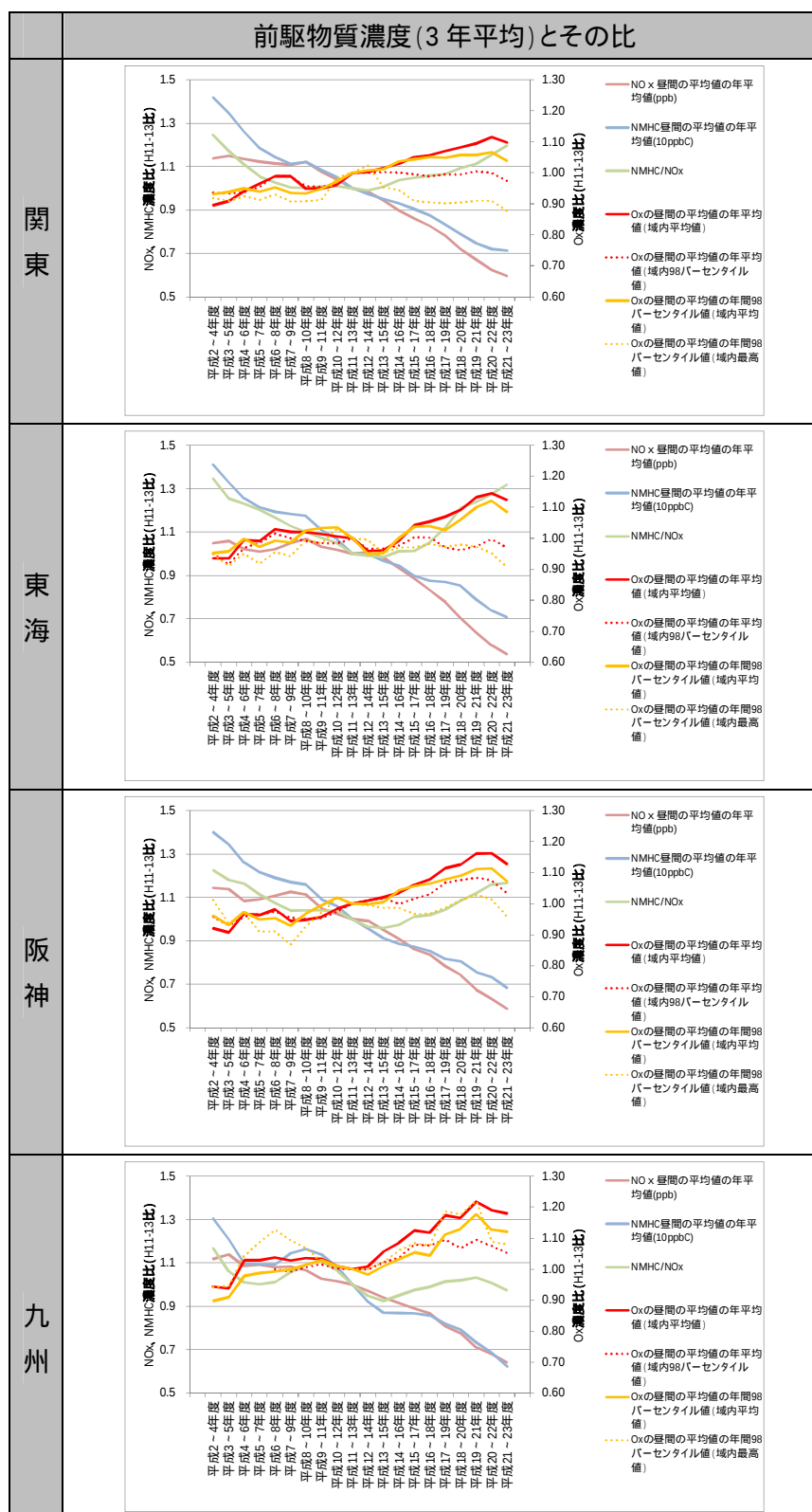


図 4-37 前駆物質と光化学オキシダント(昼間の平均値)の関係(3年平均)

(2) ポテンシャルオゾンの昼間の平均値と前駆物質の関係

光化学オキシダント濃度の昼間の平均値の経年変化が上昇傾向にあり、それが窒素酸化物濃度の変化傾向との関係性が示唆された。そこで、越境汚染の影響の増大の可能性について検討するために、タイトレーション効果を除外して検討できるポテンシャルオゾンと前駆物質の関係を整理した。この結果を図 4-38 に示す。

関東では、ポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値と年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は、平成 8～10 年度頃からやや上昇するものの平成 12～14 年度頃からは横ばいで、平成 17～19 年度ごろからはやや減少する傾向が見られた。年平均値の域内 98 パーセンタイル値及び年間 98 パーセンタイル値の域内最高値は低下する傾向を示した。東海についても同様に横ばいかやや低下する傾向が見られた。

阪神は同様の傾向を示したが、関東と東海と比べると域内平均値はやや上昇する傾向も見られた。

九州は、他の地域とはことなり、ポテンシャルオゾンにおいても平成 12～14 年度頃から濃度の上昇が見られた。

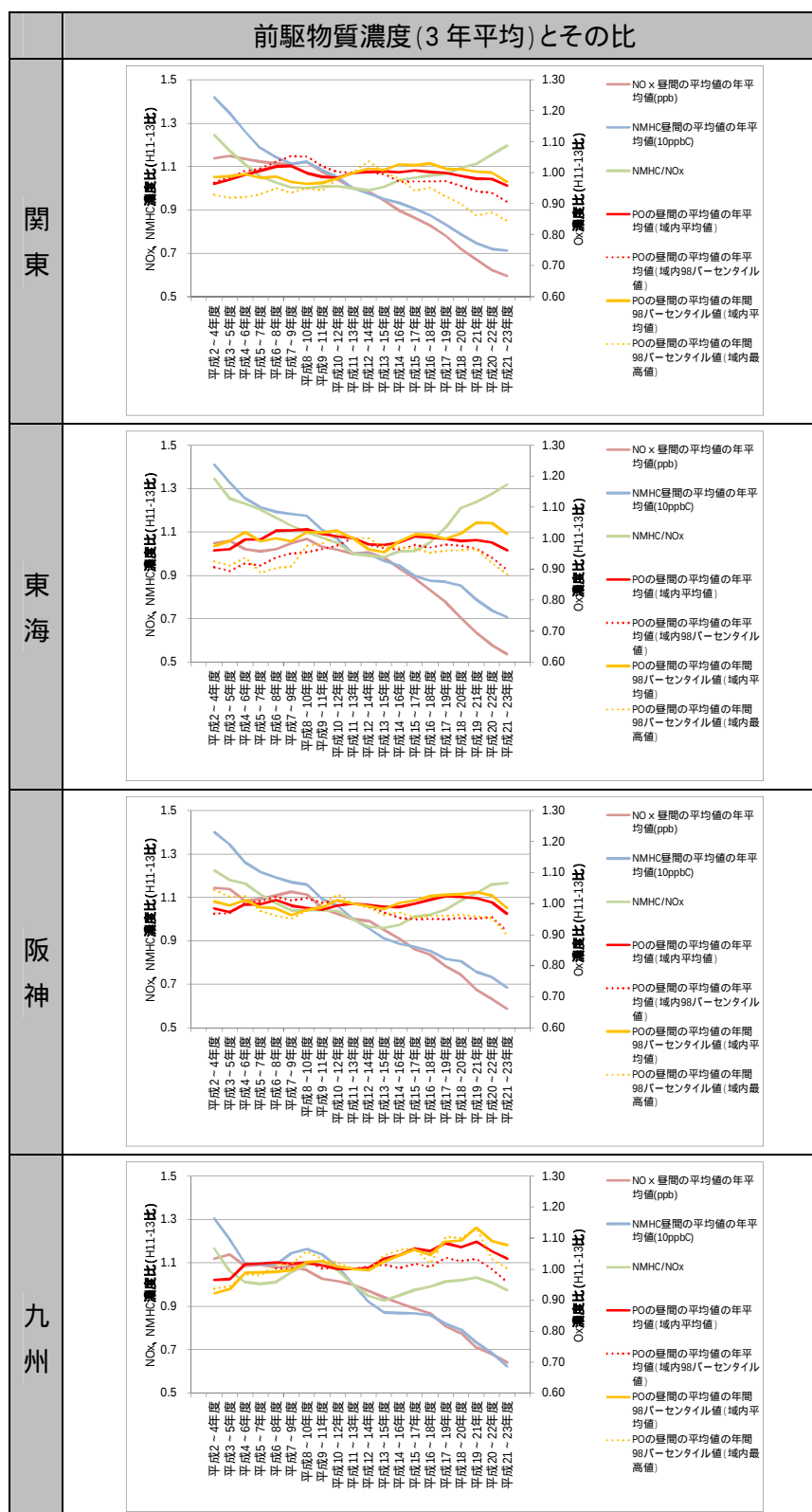


図 4-38 前駆物質とポテンシャルオゾン(昼間の平均値)の関係(3年平均)

(3) 光化学オキシダントの昼間の最高値と前駆物質との関係

光化学オキシダント濃度の昼間の最高値は経年的には改善傾向が見られた。光化学オキシダントの高濃度の経年変化と前駆物質の関係について整理した。この結果を図 4-39 に示す。

昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値は平成 16～18 年度にピークを示した後、濃度は低下傾向を示していた。これは VOC 規制の開始時期と同時期であった。東海・阪神については同様の時期に濃度の低下が見られた。九州については、この傾向とやや異なっていた。前駆物質の改善よりも、越境汚染の程度の変化に大きく左右された濃度変化を示していた。

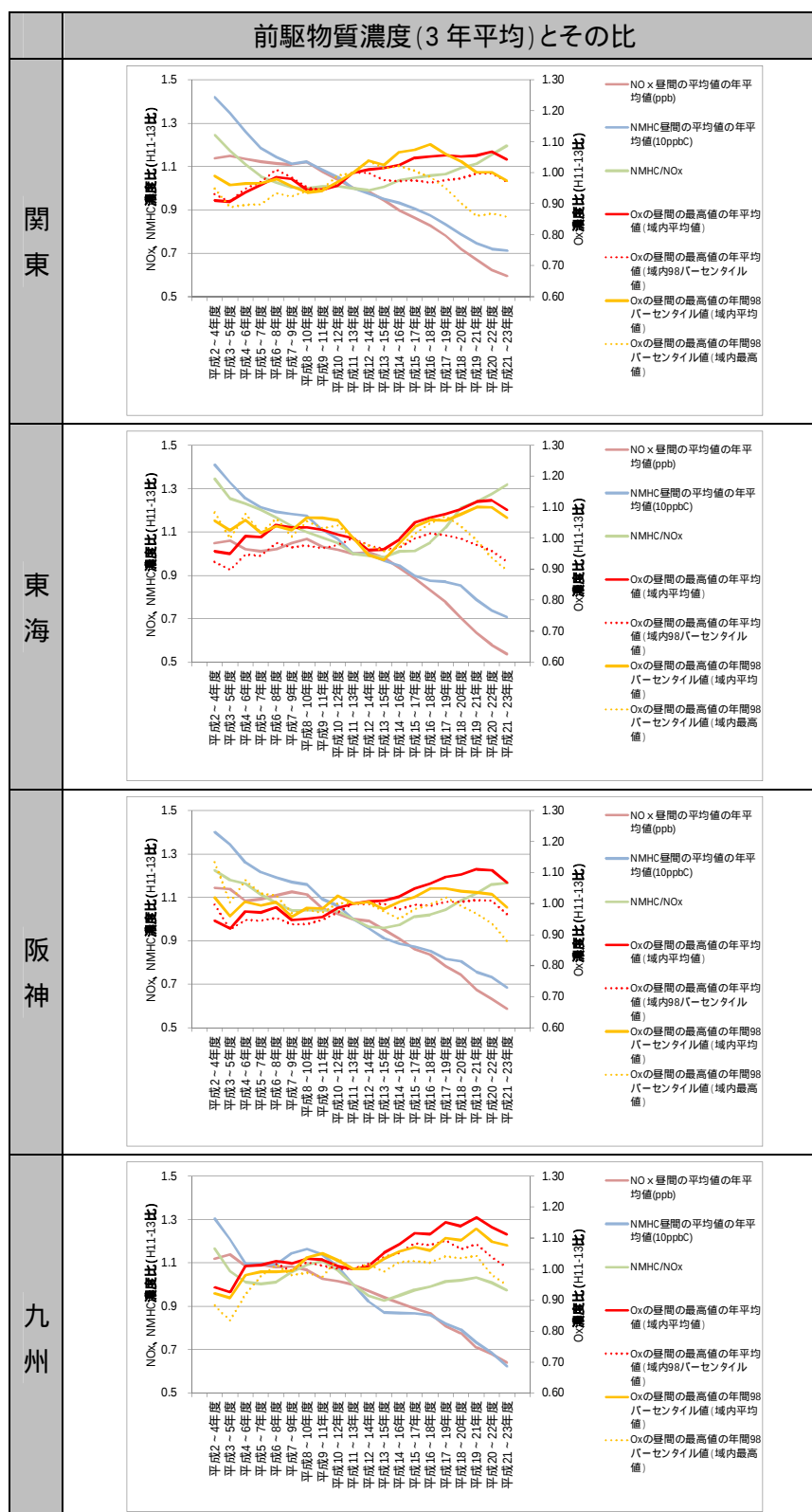


図 4-39 前駆物質と光化学オキシダント(昼間の最高値)の関係(3年平均)

(4) 光化学オキシダントの日最高 8 時間値と前駆物質との関係

光化学オキシダント濃度の 8 時間値の日最高値の年間統計値と前駆物質との関係を整理した。この結果を図 4-40 に示す。

関東は、年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は平成 16～18 年度をピークにして、それより後は濃度の低下傾向が見られた。年間 98 パーセンタイル値の域内 98 パーセンタイル値はやや時期はずれるものの平成 17～19 年度までは横ばいで、それより後で濃度の低下があった。

東海は、年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は濃度が上昇したものの、年間 98 パーセンタイル値の域内 98 パーセンタイル値や域内最高値は濃度の改善が見られた。

阪神は、東海と同様に年間 98 パーセンタイル値の域内平均値は濃度上昇があったものの、年間 98 パーセンタイル値の域内 98 パーセンタイル値や域内最高値はやや改善する傾向が見られた。

九州においては、平成 20～22 年度以降はやや改善がみられるものの概ね濃度は上昇していた。

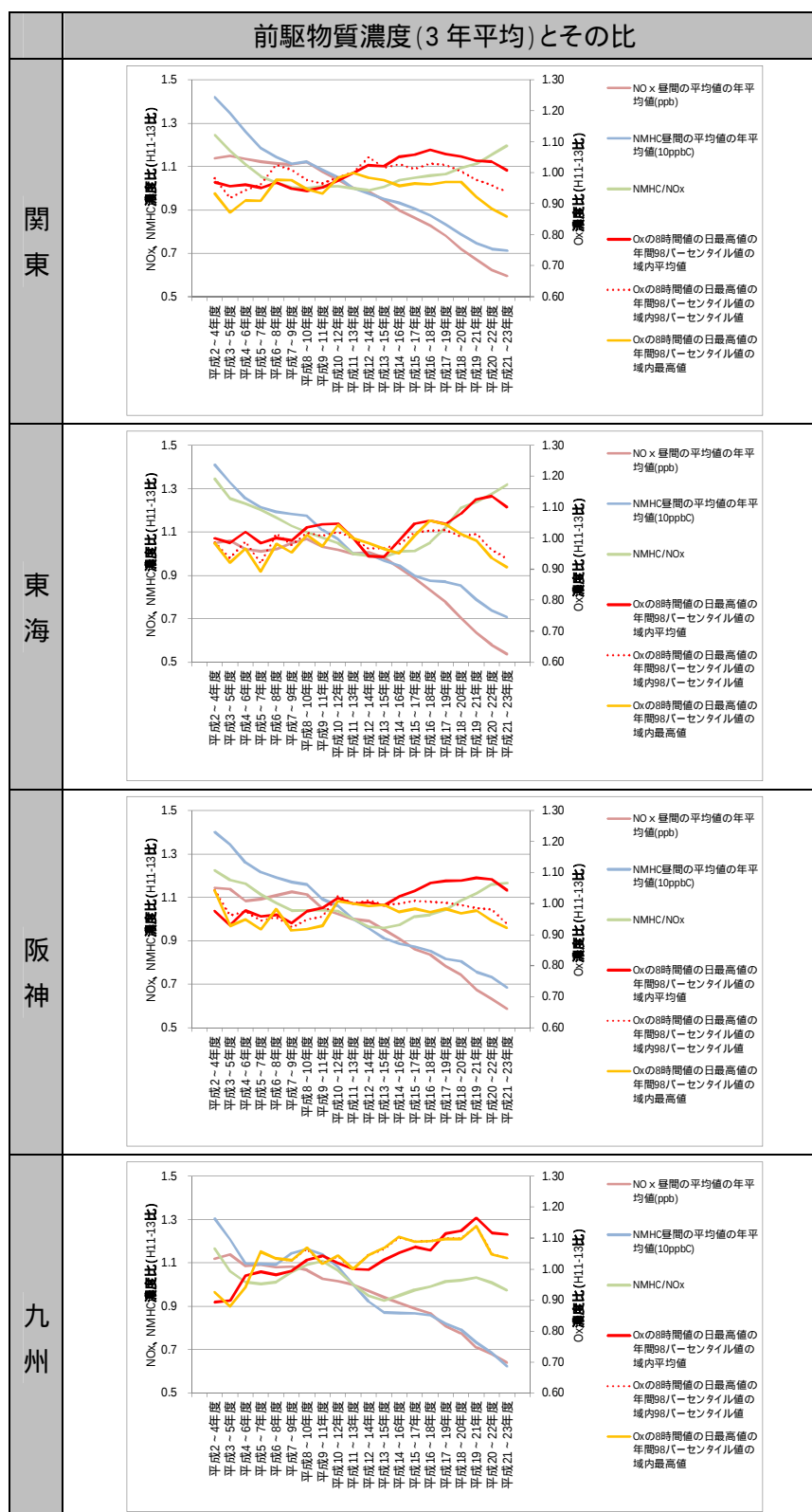


図 4-40 前駆物質と光化学オキシダント(8時間値の日最高値)の関係(3年平均)

4.3.3 前駆物質濃度と光化学オキシダントとの関係整理

光化学オキシダントと前駆物質濃度の関係を把握する方法として、横軸に非メタン炭化水素濃度、縦軸に窒素酸化物濃度とし、その時のオキシダント濃度をプロットする方法が考えられる。ここでは、前駆物質と光化学オキシダントの年統計値の都府県別平均濃度を求め、関係図にプロットした。

(1) 前駆物質濃度と光化学オキシダントの昼間の最高値の関係

都府県毎に光化学オキシダントの昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値を求めた上で、3 年間の移動平均を求め、オキシダント濃度ランク別に色づけした点をプロットした。各地域の都府県の結果を重ね合わせた結果を図 4-41 に示す。この結果、関東では、前駆物質の濃度の低下に伴い、一旦濃度の上昇が見られその後、濃度が低下していた。東海、九州は関東と同様の傾向が見られた。関西は前駆物質の濃度の低下に伴いオキシダント濃度は低下した。関東では、窒素酸化物が 30～50ppb 程度、非メタン炭化水素濃度が 20～40ppb のゾーンで光化学オキシダント濃度が高かった。

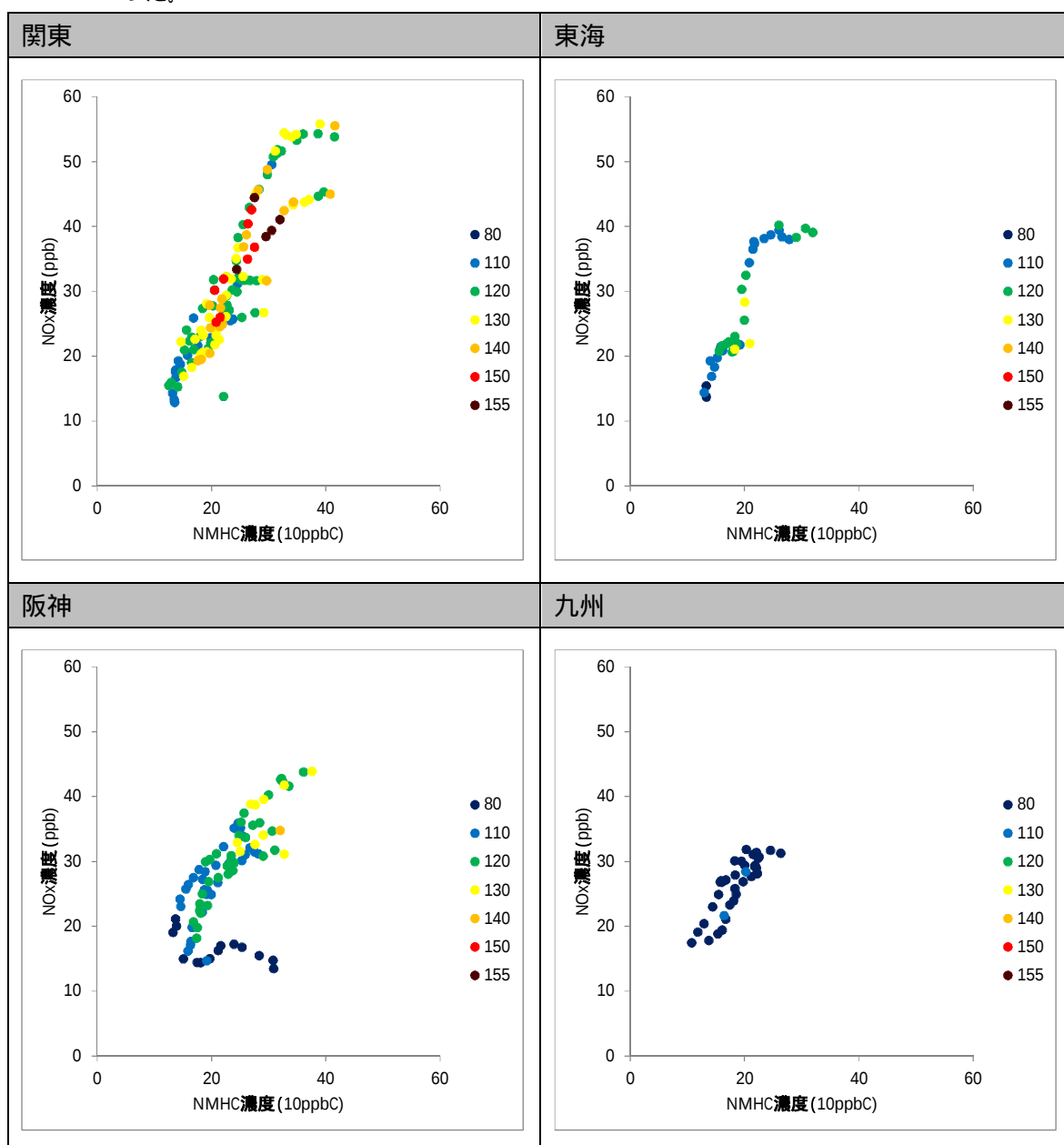


図 4-41 前駆物質と光化学オキシダントの昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の関係(地域)

(2) 前駆物質濃度とポテンシャルオゾンとの関係整理

光化学オキシダント濃度の長期平均値の傾向と前駆物質の関係を整理するために、ポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値と前駆物質濃度の関係を整理した。

前節と同様に、前駆物質を縦軸・横軸とし、都府県毎にポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値の都府県別平均値の3年間の移動平均を求めプロットした。各地域の都府県の結果を重ね合わせた結果を図 4-42 に示す。

関東・東海・阪神は、前駆物質濃度が低い場合 PO 濃度が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くなった時期に PO が高くなったため、その傾向が分布図に表れた。

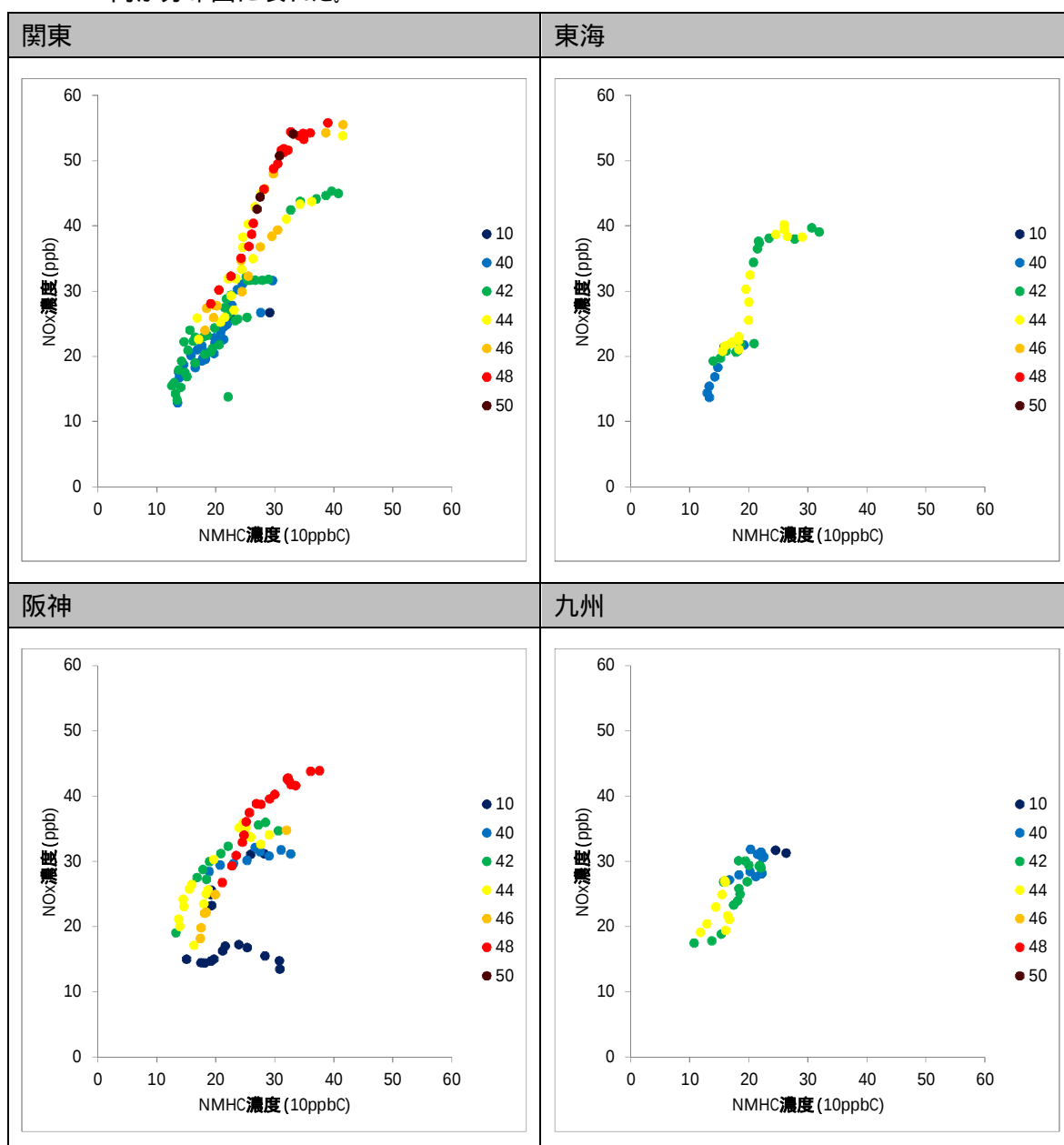


図 4-42 前駆物質とポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値の関係(地域)

4.3.4 まとめ

前駆物質である窒素酸化物と非メタン炭化水素の一般環境濃度の経年変化と光化学オキシダント及びポテンシャルオゾンの濃度の関係を整理した。

- 自動車対策の効果により窒素酸化物濃度の低下が見られ、それに伴って光化学オキシダント濃度の年平均濃度は上昇が見られた。
- タイトレーション効果を除外して検討できるポテンシャルオゾンで年平均濃度を検討したところ、関東・東海・関西では濃度の上昇が見られず、九州は濃度の上昇が見られた。
- 平均値の濃度上昇は、地域の窒素酸化物排出量が多い関東・東海・関西では、窒素酸化物濃度の低下によりタイトレーションが弱まったことが大きな要因となり、結果として平均濃度が上昇したと考えられる。
- 九州についてもタイトレーション効果の低下は見られたが、越境汚染の影響の増大したことが大きな要因となり、平均濃度が上昇したと考えられる。
- いずれの地域においても、平均的な濃度の上昇には「越境汚染の影響の増大」と「タイトレーション効果の低下」の2つの要因が関係しており、地域によりその影響の程度は異なるものと考えられる。
- 非メタン炭化水素濃度の低下や VOC 規制の時期と、光化学オキシダントの高濃度指標の低下が見られる時期は概ね同時期であった。高濃度の改善に VOC 規制の効果が見られたものと考えられる。
- 光化学オキシダントの現象解明を進めるために、前駆物質とオキシダント濃度の関係についてより詳細な解析が必要である。

4.4 VOC 成分濃度の経年変化

4.4.1 概要

「揮発性有機化合物(VOC)モニタリング調査」(環境省)の結果について、優先解析地域別・季節別に成分濃度平均値の経年変化を把握した。「揮発性有機化合物(VOC)モニタリング調査」(環境省)は、平成17年度より測定が開始され、毎月1回の試料採取が継続的に実施されている。試料採取にはキャニスターを用い、24時間の連続採取が実施され、GC-MSによりメタンを含め20成分を定量化しているデータである。

4.4.2 全国平均濃度(年平均値)の推移

各地点での月別濃度には大きな変動があることから、全国平均により経年変化の傾向を把握した。すべての調査地点の測定値を用いて平均濃度を算出し経年変化を把握した。この結果を図4-43に示す。また、成分別の傾向を把握するために、分類別の濃度の経年変化を整理した。この結果を図4-44に示す。

この結果、全国平均濃度では、トルエンが最も多く、次いでアセトンが多かった。

VOC成分測定値の積算濃度は経年的には低下傾向が見られた。

分類別にも、低下が見られ、芳香族、脂肪族、ケトン類での低下が多かった。アルコール類、エステル類、その他は概ね横ばいであった。

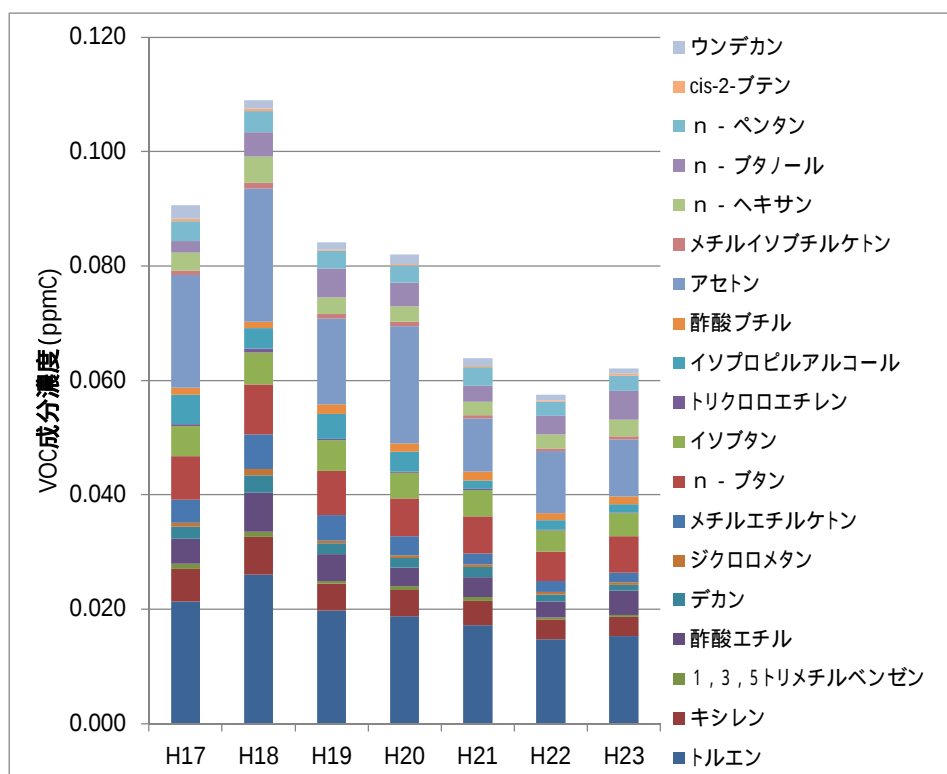


図 4-43 VOC モニタリング調査の VOC 成分濃度の結果(全国、年平均値、成分別濃度)

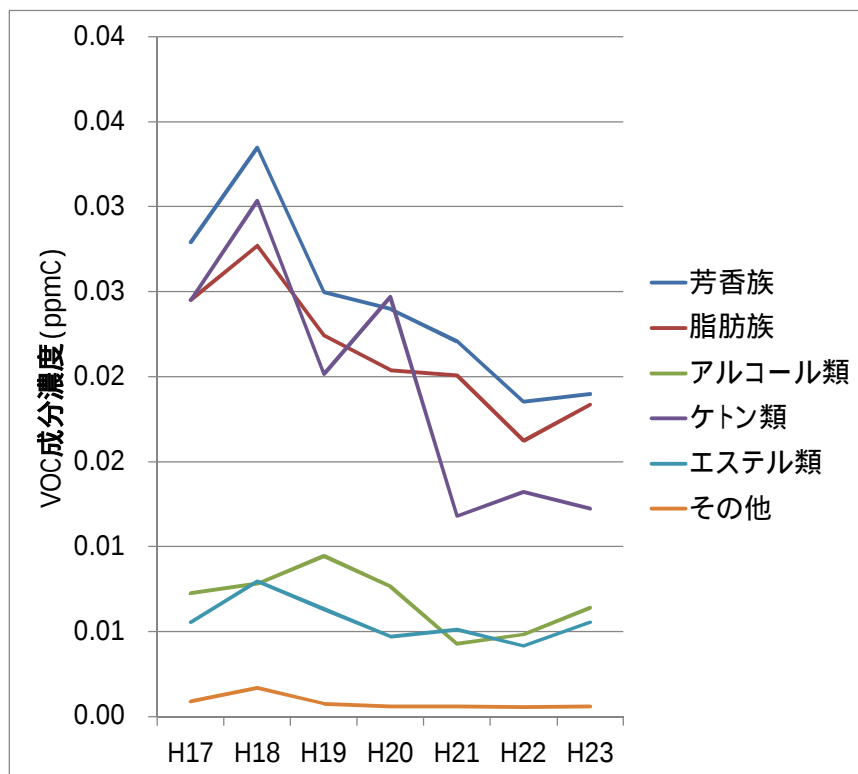


図 4-44 VOC モニタリング調査の VOC 成分濃度の結果(全国、年平均値、分類別濃度)

4.4.3 地点別平均濃度(年平均値)の推移

優先解析地域内の一般環境地点での VOC 成分濃度の経年変化を整理した。この結果を、図 4-45 に示す。各地点とも経年的に濃度の低下する傾向が見られた。成分別には地域差が見られ、関西はアルコール類が多く、九州はケトン類の比率が高かった。

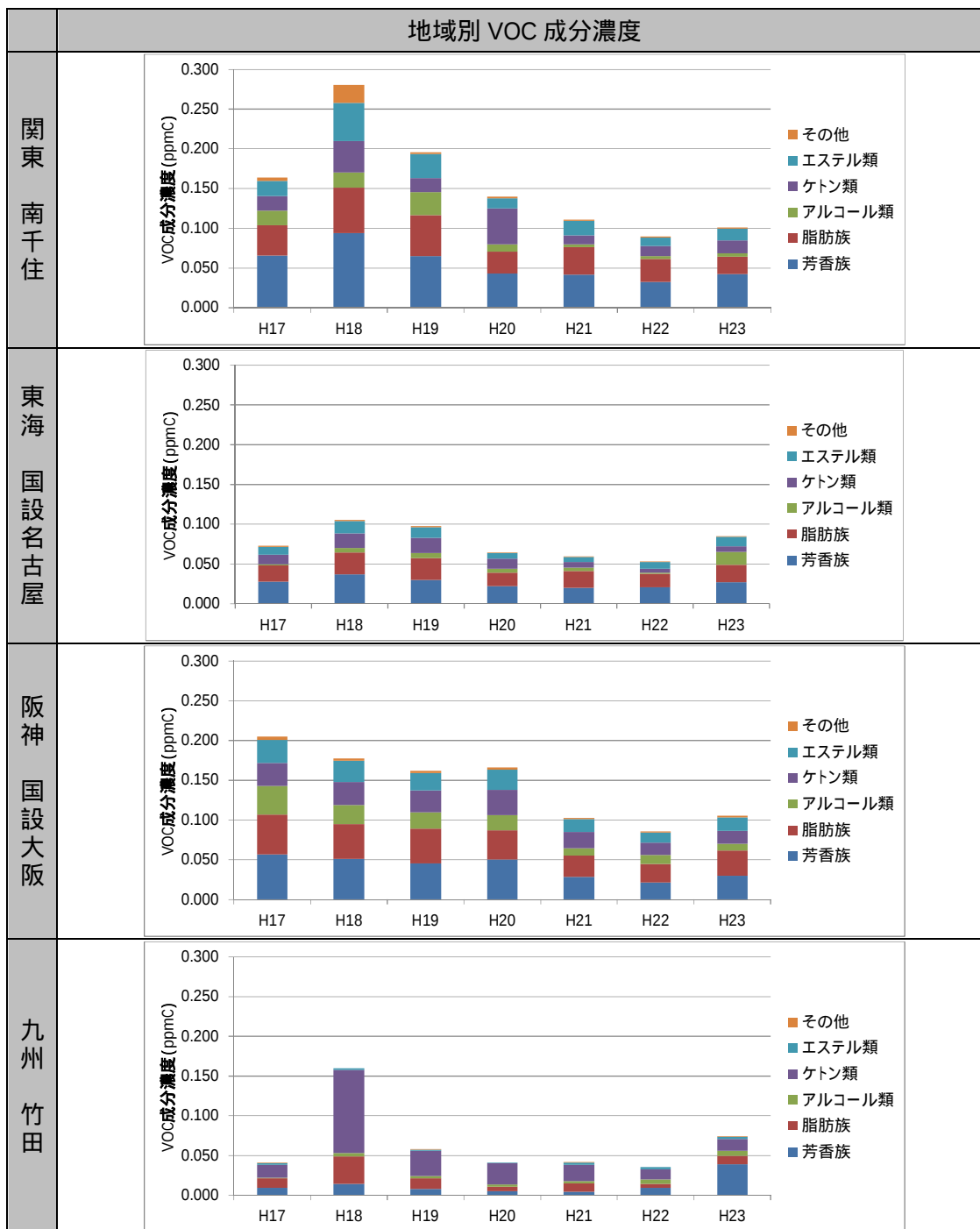


図 4-45 VOC モニタリング調査の VOC 成分濃度の結果(地点別、年平均値、分類別濃度)

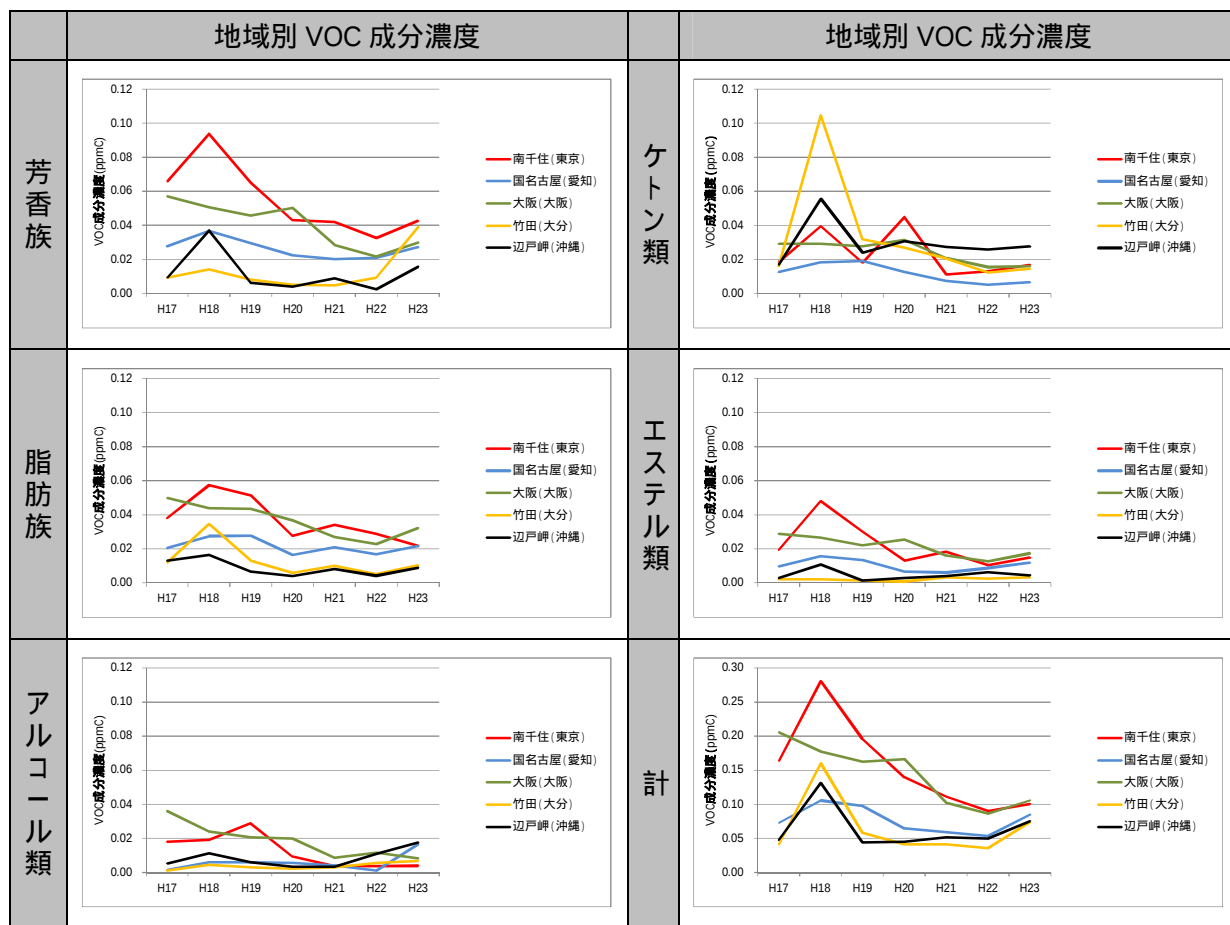


図 4-46 VOC モニタリング調査の VOC 成分濃度の結果(地点別、年平均値、分類別濃度)

4.5 環境濃度データと排出インベントリの比較

環境濃度データと排出インベントリの経年変化の関係を地域別に検討した。初めに国内の排出インベントリについて収集可能なデータについて整理した。

4.5.1 国内排出インベントリ調査の状況

前駆物質排出量を経年的な把握が継続的に行われている調査について整理した。この結果を表 4-11 に示す。

国内の大気汚染物質発生源を網羅的に把握している調査は、「日本温室効果ガスインベントリ報告書(国利環境研究所)」、「JATOP 排出量インベントリデータベース(JATOP)」、「EAGrid2000(神成ら)」、「REAS(国立環境研究所、海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター、九州大学経済学部、総合地球環境学研究所)」があった。これ以外にも、自治体に対策検討時などで排出量を算定している例はあるが、継続的なものではない。

個別の発生源毎には、規制や実態把握を目的に調査が行われており、工場事業場(ばい煙発生施設)は、「大気汚染物質排出量総合調査(環境省)」、自動車では「自動車排出ガス原単位及び総量算定調査(環境省)」等、VOC は「揮発性有機化合物(VOC)排出インベントリ調査(環境省)」で全国排出量が推計されている。また、PRTR 制度では、VOC の一部の成分となるが成分別に排出量を把握している。

表 4-11 国内排出インベントリ調査の事例

発生源	資料名	作成者	対象年	対象地域	備考
全発生源	日本国温室効果ガスインベントリ報告書	国立環境研究所	H2～22	全国	算定方法等見直し中
全発生源	JATOP 排出量インベントリデータベース	JATOP	H12,17,22(自動車) H7,12,17(その他)	全国(メッシュ)	
全発生源	REAS	国立環境研究所、海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター、九州大学経済学部、総合地球環境学研究所	S55～H15(実績) H16～21(推計) H22、32(予測)	東アジア 国別集計、 メッシュ排出量	REAS2 作成中 (国内は JATOP インベントリ)
全発生源	EA-Grid2000-Japan	神成ら	H12	全国(メッシュ)	
ばい煙発生施設	大気汚染物質排出量総合調査	環境省	S53～ 8,11,14,17,20	全国 都道府県	事業所アンケート調査に基づく算定
自動車	自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査等	環境省	H22～42	全国	自動車原単位を見直し毎に将来排出量推計
自動車	総量削減計画進行管理調査	環境省	H14～22	NO _x ・PM 法規制対象地域(8都府県)	進行管理調査は毎年実施
自動車	自動車交通環境影響調査	環境省	H14～23	NO _x ・PM 法規制対象地域(8都府県)	毎年実施 NP 調査、交通量調査に基づく排出量推計
VOC	揮発性有機化合物(VOC)排出インベントリ調査	環境省	H12、17～23	全国 都道府県	毎年調査
VOC	PRTR 集計結果	環境省・経済産業省	H13～H23	全国 都道府県	毎年調査 PRTR 対象事業者は届出、対象外は推計 対象物質に VOC の一部が含まれる。

4.5.2 前駆物質排出量の経年変化の推計

平成 2～22 年度まで経年的に排出量を把握しているインベントリデータは「温室効果ガスインベントリ報告書」のみであることから、排出量の経年変化の把握データは、このデータを基礎とした。ただし、このデータは排出量推計方法について課題が指摘されている。主な課題は、以下のとおりであった。

- ・ 窒素酸化物と NMVOC の自動車排出量について、始動時排出量が推計されておらず、温度・湿度・使用過程車などの補正が行われていないため、過小評価されている恐れがある。
- ・ 窒素酸化物のばい煙発生施設排出量の平成 20 年度の変化が反映できていない。
- ・ NMVOC 排出量については、VOC 規制の効果が見積もられていない。

これ以外にも課題はあるものの本調査では排出量の算定が目的ではないため、これらの点については他の調査により補正を加えることで経年変化を把握することとした。補正は、エネルギー産業、製造業及び建設業、工業プロセス、廃棄物、自動車、燃料からの漏出、工業プロセス、溶剤その他の製品の利用について補正した。

窒素酸化物排出量のうち、エネルギー産業、製造業及び建設業、工業プロセス、廃棄物は大気汚染物質排出量総合調査を用いて補正した。平成 20 年度までは大気汚染物質排出量総合調査を採用値とし、調査がない年度は線形内挿した。平成 21 年度以降は大気汚染物質排出量総合調査がないため、平成 20 年度排出量を GIO の推計値の変化率で補正した。

窒素酸化物排出量のうち、自動車については、平成 12、17、22 年度は JATOP 排出インベントリデータベースとした。JATOP の推計がない年度については、JATOP 排出量のある前後の年度から JATOP と GIO の排出量比を求めて補正した。

VOC 排出量のうち、燃料からの漏出、工業プロセス、溶剤その他の製品の利用について、平成 12、17～22 年度は「VOC 排出インベントリ調査(環境省)」の推計値を採用した。平成 13～16 年度は、PRTR 届出データの大気排出量の経年変化を用いて補正した。平成 7 年度は JATOP 排出インベントリデータベースの排出量を用いた。平成 6～11 年度は、平成 7、12 年度排出量から線形内挿した。平成 6 年度以前は、平成 7 年度排出量に GIO の排出量の変化率(例 平成 2 年度/平成 7 年度)を乗じて排出量を推計した。

VOC 排出量のうち、自動車からの排出量について平成 12、17、22 年度については JATOP 排出量を用いた。平成 13～16、18～21 年度については、線形内挿により求めた。平成 11 年度以前は、平成 12 年度の GIO の排出量と JATOP 排出量の比を各年度の GIO 排出量に乗じて推定した。

各調査の結果を用いて補正を行い、排出量の経年変化を推計した。この結果を図 4-47 及び図 4-48 に示す。VOC には植物起源 VOC があるが、ここでは人為起源のみが推計されている。植物起源 VOC の推計は、JATOP 排出インベントリデータベースでも

推計され、基準放出量データが整理されている。この結果を気象等により補正すると排出量データとなるものの、このデータベースでは整理されていない。この植物起源 VOC を整理しているデータには EA-Grid2000JAPAN があり、150 万トン/年と推計されている。そこで、参考として図 4-48 に植物起源 VOC を加えた。この結果を図 4-49 に示す。

なお、最近の研究では、植物 VOC 排出量は不確実性が大きいことが指摘されており、EAGrid2000 の植物起源 VOC 排出量の 2.5 倍程度の量が排出されているとする研究結果もある。

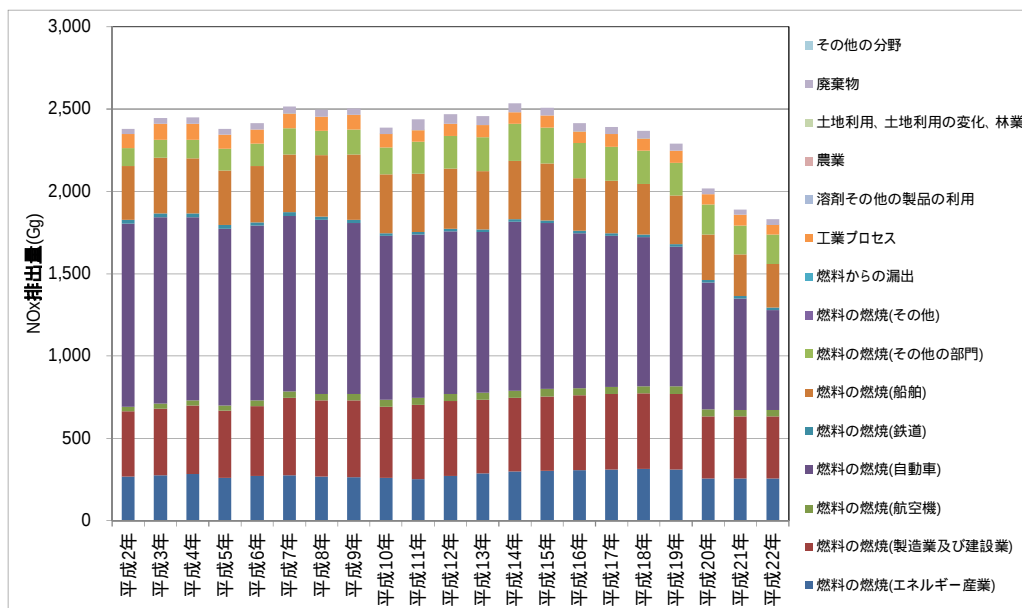


図 4-47 窒素酸化物排出量の経年変化(補正後)

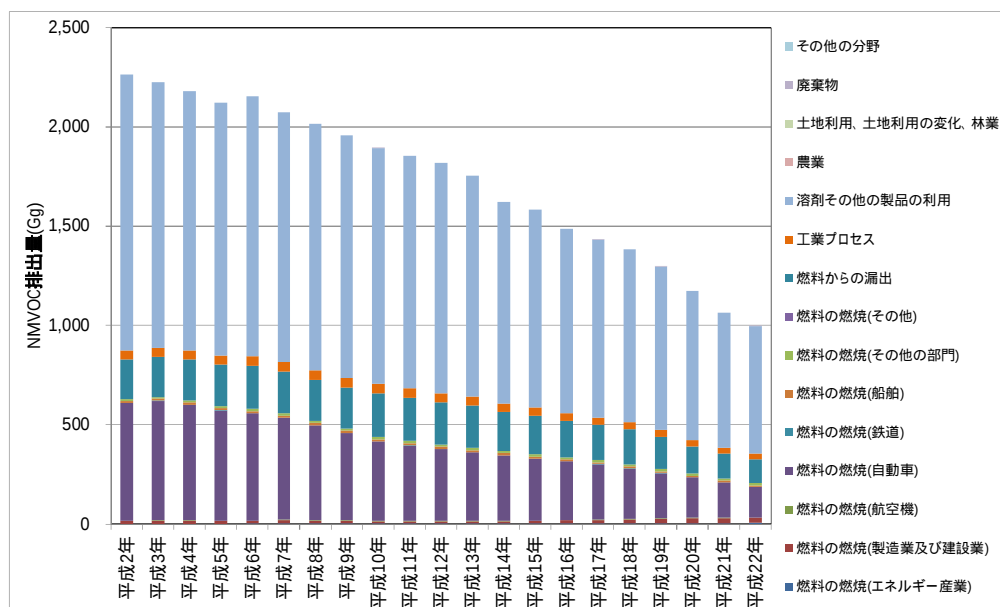


図 4-48 VOC 排出量の経年変化(補正後)

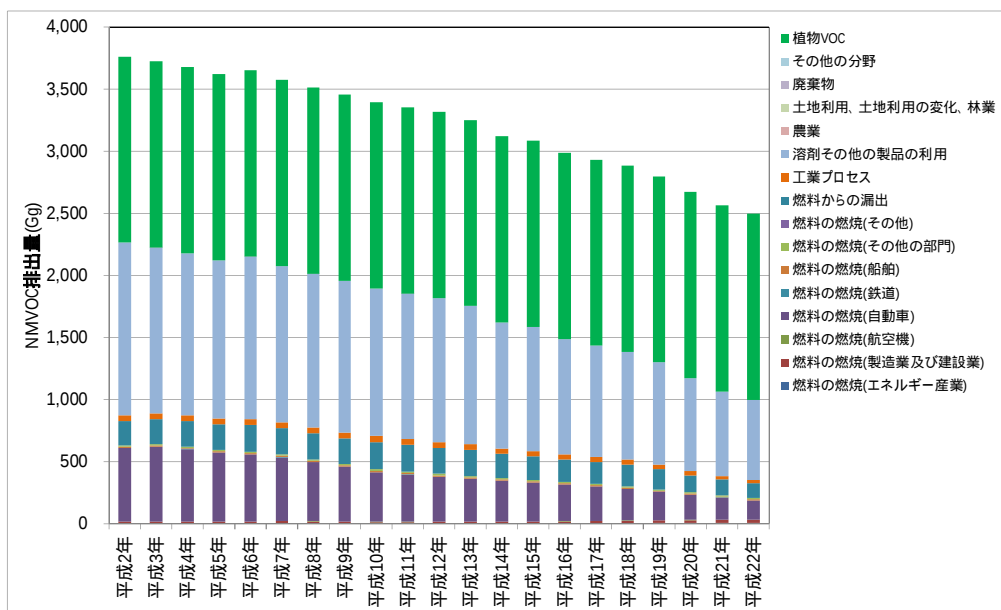


図 4-49 VOC 排出量の経年変化(補正後、植物 VOC 追加)

4.5.3 排出量と前駆物質濃度の関係

排出量データのうち、都道府県別に排出量が算定されている自動車窒素酸化物 (JATOP 排出インベントリデータベース) と自動車 VOC (JATOP 排出インベントリデータベース) 及び固定蒸発 VOC (VOC 排出インベントリ調査 (環境省)) を用いて、排出量の経年変化と濃度との関係を比較した。

この結果を図 4-50 及び図 4-51 に示す。図 4-50 は優先解析地域の経年変化である。関東は、千葉県、埼玉県、東京都、神奈川県が自動車 NO_x・PM 法の規制地域となることからこの地域だけを抜き出して経年変化を把握した。この結果を図 4-51 に示す。

窒素酸化物の経年変化は、平成 17 年度の排出量の変化率は濃度より少ない傾向が見られ、平成 22 年度は概ね一致していた。窒素酸化物濃度は自動車 NO_x が最も寄与率が高いと考えられるため、概ね一致したと考えられる。

VOC については、排出量の低下の方が濃度より大きい傾向があった。VOC については、発生源は多様で自動車と VOC の固定蒸発発生源だけでは環境濃度を代表できないだけでなく、反応により VOC 濃度は変化するため、排出量と濃度の経年変化に差が生じたと考えられる。

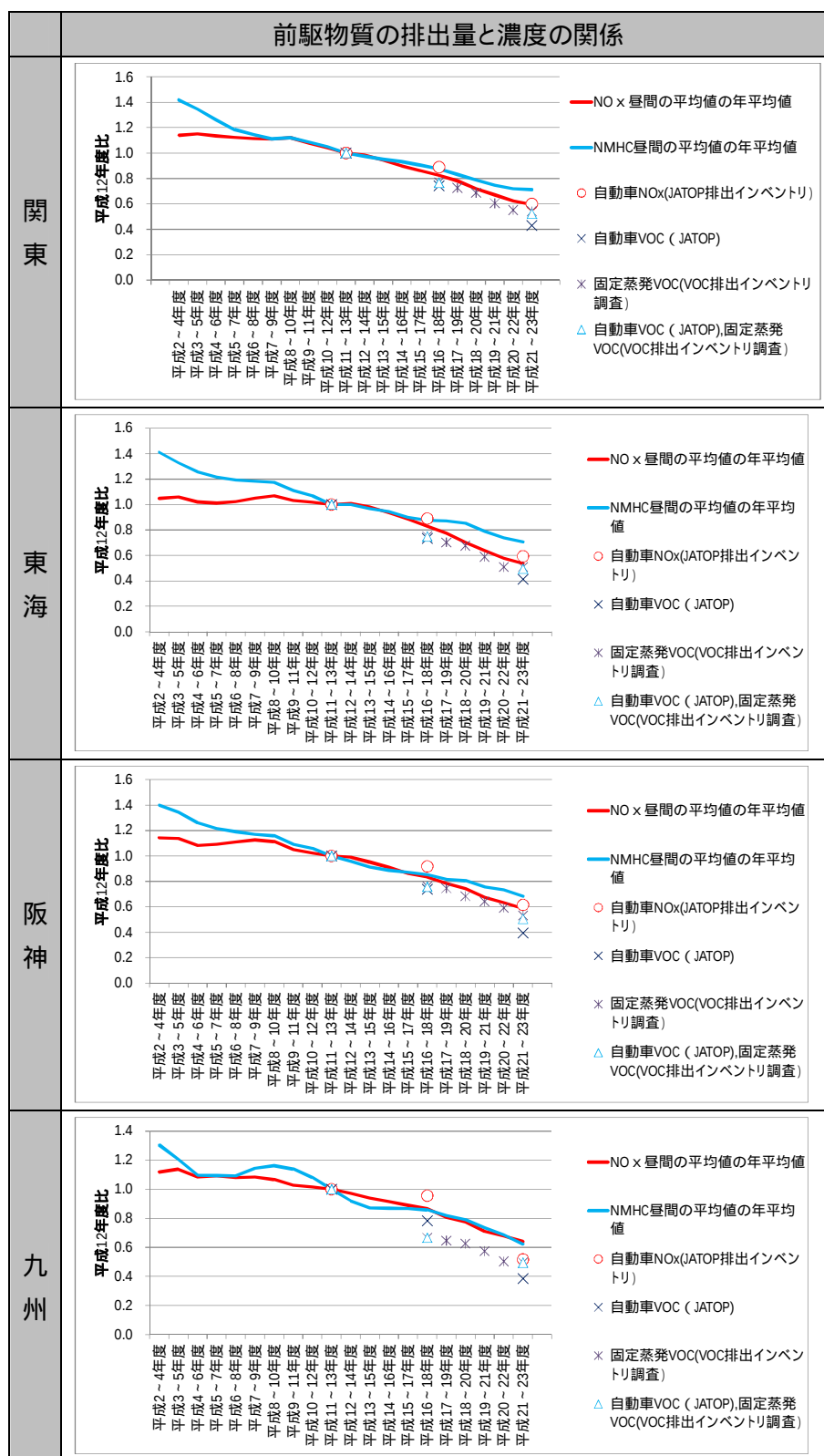


図 4-50 前駆物質排出量と濃度(3年平均)の経年変化(平成12年度比)

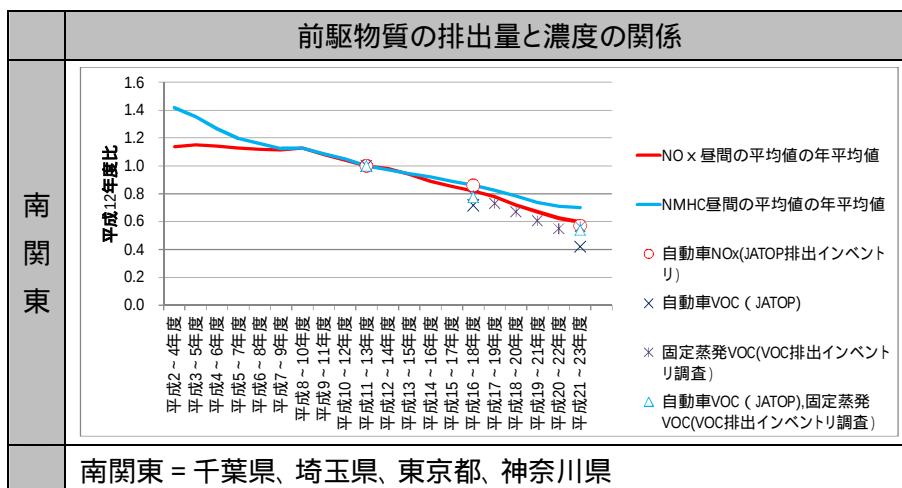


図 4-51 前駆物質排出量と濃度(3年平均)の経年変化(平成12年度比)

4.6 光化学オキシダントの 8 時間値を用いた外れ値の扱いの検討

4.6.1 概要

光化学オキシダントの改善効果を示す評価指標を検討する上で、外れ値の扱いは重要である。光化学オキシダントの評価する指標としては、WHO は 8 時間平均値をガイドライン値と設定しており、米国 EPA でも 8 時間値を採用し、8 時間値の年間第四位値の 3 年平均値を評価の基準に用いている。本調査でも、8 時間平均値の傾向を検討した。

一方、光化学オキシダントの改善効果を示す評価指標としては、外れ値を除外した安定的な指標を採用する必要がある。EPA の場合、年間第 4 位値を採用することで、高濃度上位の約 1 % を除外し、さらに 3 年平均することにより安定性を増している。

国内では、二酸化窒素や浮遊粒子状物質では、年間 98 % 値や 2 % 除外値を採用し、高濃度を 2 % 除外した評価を行っている。光化学オキシダントでも安定的な指標を採用するためには同様の処理が必要となるが、除外を大きく設定すると、重要な高濃度イベントを排除しすぎ、除外が小さすぎると特異な高濃度が年間を代表値となる恐れがある。

本調査では、除外するデータ数の設定を検討するために、統計手法のひとつで一般的に使われる外れ値の評価により、特異的な高濃度イベントの除外数を検討した。

一般に、外れ値とは、一般には統計において他の値から大きく外れた値であり、異常値や特異な現象による大きな値などが含まれるとなる。光化学オキシダントでは、機器故障などの異常値や、特異的な高濃度が外れ値に該当する。しかしながら、本調査で解析に用いた測定値は、地方自治体や国がすでにスクリーニングがされ、機器異常等の異常値は除外されたデータである。したがって、本調査でいう外れ値は、「何らかの要因で引き起こされた特異的な高濃度」であるとした。この要因の例としては、気象要因があり、異常な猛暑による高濃度などが該当する。

表 4-12 外れ値の定義

名称	定義
一般的な外れ値	統計において他の値から大きく外れた値であり、異常値や特異的な現象による高濃度などが含まれる。
異常値	測定機器の故障や通信以上による異常な値
外れ値(本調査)	何らかの要因で引き起こされる特異的な高濃度

4.6.2 外れ値の評価方法

外れ値の評価方法としては一般的な方法を用いた。すなわち、サンプルデータから 25 パーセンタイル値 (Q1) と 75 パーセンタイル値 (Q3) を求め、この差の 1.5 倍を Q3 に加えた値を閾値とし、この値を超えるデータを外れ値とした。模式図を図 4-52 に示す。

$$\text{外れ値} > Q3 + (Q3 - Q1) \times 1.5$$

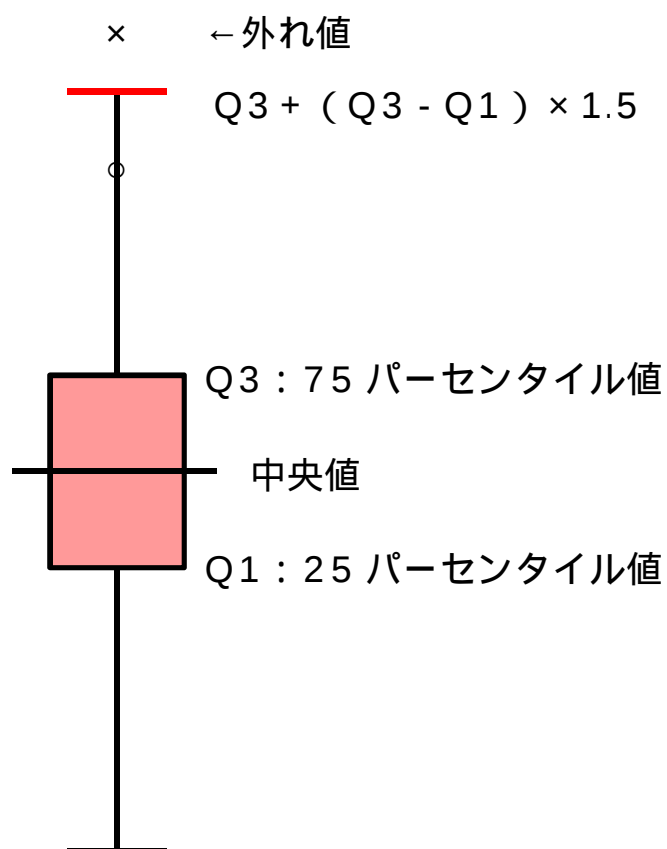


図 4-52 外れ値の評価方法(模式図)

4.6.3 外れ値を検討する上での注意点

(1) 外れ値の除外と高濃度イベントの関係

濃度上位の高濃度イベントを除外することにより安定的な指標とすることすることができ一方、除外するデータ数を多く設定すると重要な高濃度イベントさえも除外してしまう恐れがある。

除外のデータ数(率)と高濃度イベントの関係を整理するために、高濃度イベントを1～10%除外した場合に、対象となるイベントの程度を把握した。

関東と九州の8時間値の日最高値の域内最高値を用いて除外される高濃度イベントを把握した。関東の検討結果を図 4-53 に示す。関東の場合、年間のうち高濃度イベントを1%除外した場合、4～9月のデータのうち3日分の高濃度イベントが除外された。10%除外するとほとんどの高濃度日が除外されることとなった。

平成19年度の九州の光化学オキシダント濃度を例に検討した。この年は5月に大規模な越境汚染が指摘された年度である。九州では除外する高濃度イベントを2%程度した場合、4～5月の高濃度のほとんどを除外してしまう結果となった。

また、この例では、1年間のデータにより外れ値を評価した。1年間のデータで外れ値となった高濃度日も、ほかの年度においては必ずしも外れ値ではないこともある。特に冷夏の年では、高濃度イベントが少なくなる傾向があるため、平均的な年では外れ値とならないような高濃度も、冷夏の年では外れ値として評価される恐れがある。

このように、除外のデータ数の設定は重要な高濃度イベントを除外しすぎる可能性もあるため、注意が必要で、可能な限り高濃度イベントを残しながら、安定的な指標を得る工夫が必要となる。

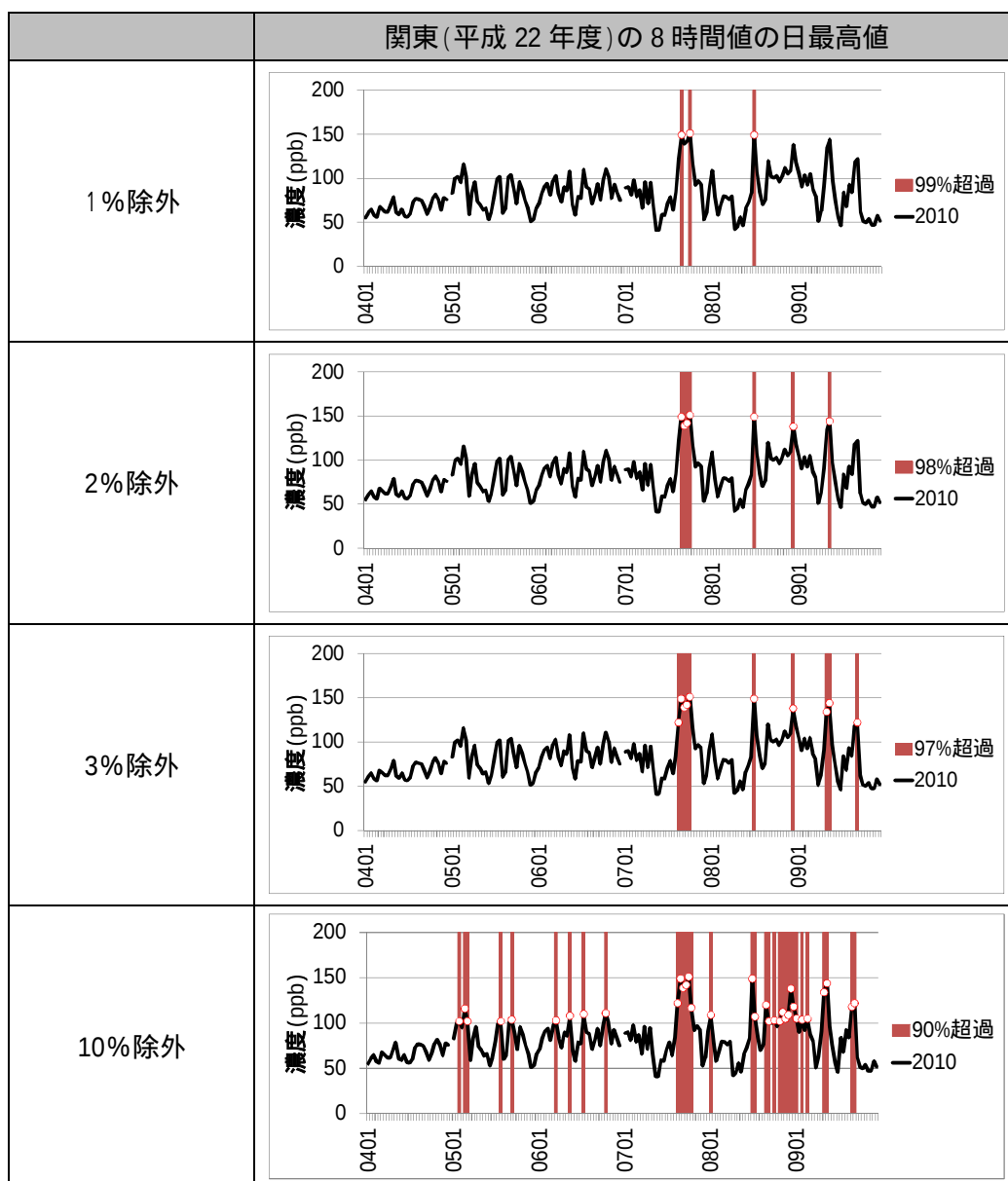


図 4-53 除外率と除外される高濃度イベントの関係(関東、平成 22 年度)

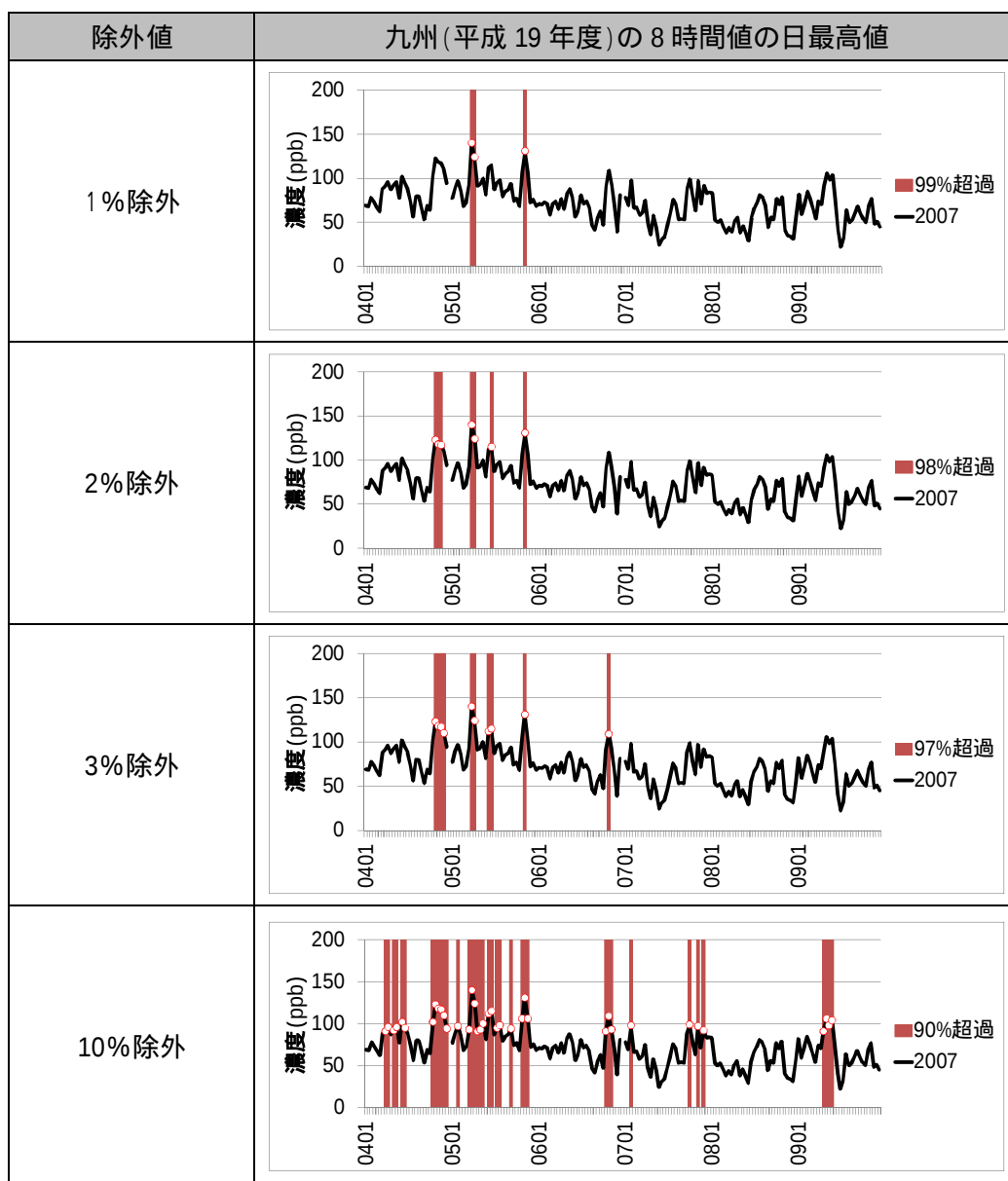


図 4-54 除外率と除外される高濃度イベントの関係(九州、平成19年度)

(2) 外れ値を判定する濃度の算出期間

外れ値の検討する上で、75 パーセンタイル値と 25%パーセンタイル値を算出する期間の設定も、外れ値の評価に影響を与える。

光化学オキシダントの場合、高濃度が出現しやすい期間は概ね4～9月頃で、冬季は光化学生成が低下し高濃度を引き起こすことはほとんどないと考えられる。このため、年間データで 25、75 パーセンタイル値を求めた場合と、4～9月頃の暖候期で Q1,Q3 を求めた場合では、外れ値を判定する閾値は後者の方が濃度は高くなる。

具体例を示すと図 4-55 となる。青の帯の範囲の下限が年間データを用いた際の 25 パーセンタイル値、上限が 75 パーセンタイル値を示し、青線がこれらを基に求めた外れ値の判定する閾値となる。この線を超える青色の×印は年間データを用いた場合の外れ値となる。一方、4～9月のデータで外れ値を評価する場合、Q1,Q3 は赤色の帯の下限と上限となり、赤線が閾値となる。この場合、外れ値は赤色の×印のみとなる。

このように、外れ値の閾値を決める期間によっても外れ値の評価結果は大きく異なる。光化学オキシダントの場合、高濃度が出現しやすい時期は 4～9月で、光化学生成の条件は 10～3月と大きく異なる。

光化学オキシダントの場合、高濃度となる条件が一定となる期間の 4～9月のデータを用いて評価することが妥当である。

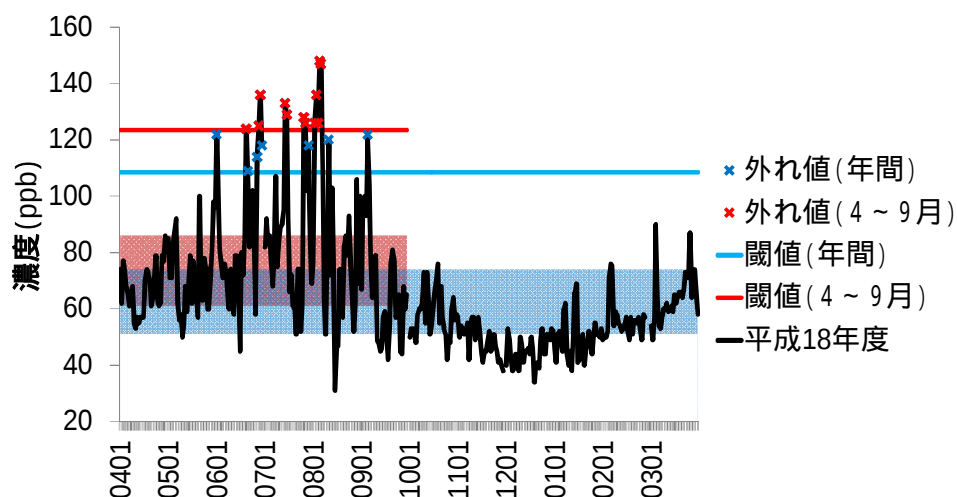


図 4-55 外れ値の評価例

4.6.4 時間的な外れ値の検討

本調査では、3年間の4～9月のデータから25パーセンタイル値及び75パーセンタイル値を求め、外れ値の判定する濃度を求めた。この閾値と各局・各年度の年間統計値（年最高値、年間99、98、97パーセンタイル値）を比較し、年間統計値が外れ値かどうかを判別した。例えば、平成22年度の年統計値を評価する外れ値判定の閾値は、平成20～22年度の4～9月のデータを求めた。外れ値の評価は優先解析地域で対象とした自治体をすべての測定局を対象とした。

年統計値の外れ値の評価した例を図4-56に示す。上段は外れ値の判定値と各指標値を示し、下段は各指標値と外れ値の判定値の差を示している。上段の図で、紫色の棒グラフの上端が外れ値を判定する閾値を示し、年統計値がこの値を超えた場合に外れ値として評価した。図の下段では、各指標値と外れ値の判定値と差を示した。図では、この値が正值となった場合、外れ値と評価されることとなる。見やすくするために、上段は外れ値を判定する閾値の小さい順、下段は外れ値判定値と98パーセンタイル値の差の小さい順に並び替えている。

年間98パーセンタイル値が外れ値と判定される局は、平成4年度では約14%の局が外れ値と判定され、平成22年度では2%の局が外れ値と判定された。

各指標が外れ値となる局数が経年変化する可能性があることから、各指標が外れ値と判定される局数について経年変化を整理した。この結果を図4-57に示す。この結果、年統計値が外れ値となる局数は経年変化が見られた。年間99パーセンタイル値では、外れ値となる局は2～39%の範囲で変化した。年間98パーセンタイル値では0.3～14%であった。年間98パーセンタイル値で最も大きな比率は平成4年度であり、それより後では10%を超えることはなかった。平成4～23年度の外れ値となる局数の比率は、平均3.5%程度となった。

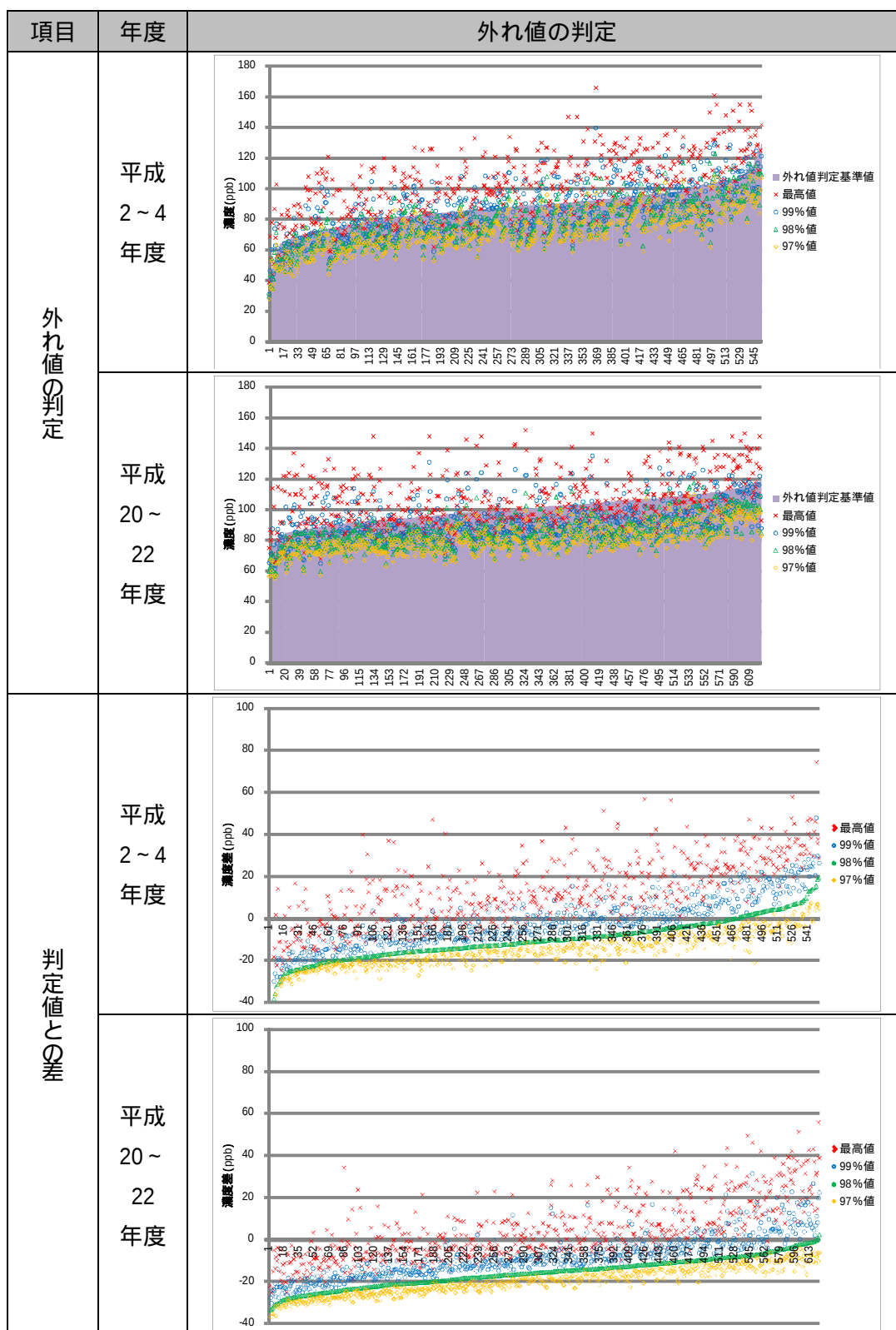


図 4-56 外れ値の評価(平成 2～4 年度、平成 20～22 年度)

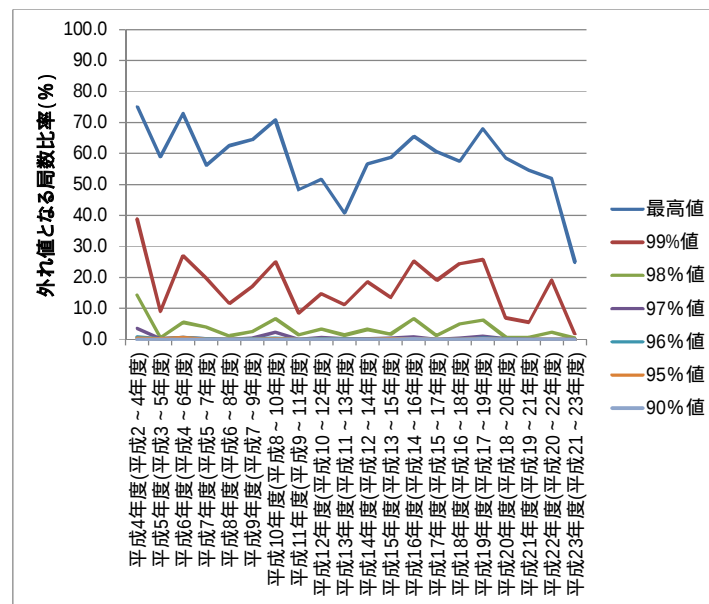


図 4-57 外れ値の評価

4.6.5 空間的な外れ値の評価

ある測定局が周りの局に比べ特異的に高濃度であれば、その局は空間的に特異な局として除外して評価することが必要となる。そこで、局別の光化学オキシダントの8時間値の日最高値の年統計値(年最高値、年間99、98、97パーセンタイル値)の3年移動平均値に、特異的な高濃度を示す局が存在するかどうかを調べた。優先解析地域の対象自治体のすべての測定局を対象とした。この結果を図 4-58 に示す。

この結果、いずれの年統計値でも平均で 2.3～2.8%の外れ値となる局があった。なお、平成 21～23 が他の年度より外れ値が多いが、これは平成 23 年度のデータに速報値を用いているためである。

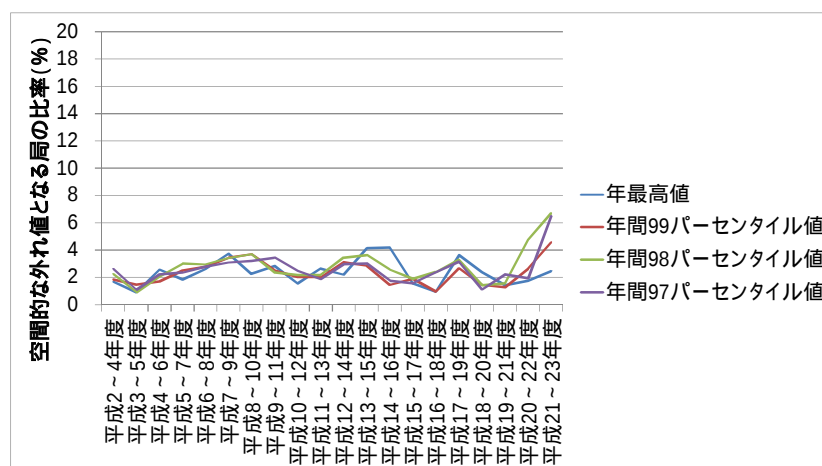


図 4-58 空間的な外れ値の検討

4.6.6 まとめ

安定的な指標の検討のために、外れ値の扱いについて検討した。外れ値は時間的な外れ値と空間的な外れ値の両方について検討した。この結果は以下の通りであった。

- 光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標では、特異的な高濃度である外れ値を除外する一方で、高濃度イベントをできるだけ除外しすぎないバランスが重要となる。
- 外れ値の閾値を評価する期間は、光化学オキシダントの出現傾向を考慮して4～9月とする必要がある。
- 光化学オキシダントの年々変動の大きさを考慮して、3年間程度の長期的な出現状況加味して外れ値の評価を行う必要がある。
- 時間的な外れ値の検討の結果、各測定局の日別値から高濃度の上位2%程度を除外することにより、比較的安定的な指標を得ることができる。
- 空間的な外れ値の検討の結果、いずれの年統計値でも空間的に特異な局となる局は統計的に2%程度存在する。時間的な外れ値と比べると、大きな比率ではなく、指標間の差も小さいことから指標を得る際には大きな問題にはならないと考える。

4.7 光化学オキシダントの標準器の校正法の変更に伴う影響

4.7.1 校正方法変更前後での感度差

平成 23 年度報告で指摘があるように、光化学オキシダント濃度測定について、平成 18 年に JIS が改正され、校正法が KI 法から UV 法(紫外線吸収法)に変更された。これを受け、環境省では平成 21 年度に大気汚染常時監視マニュアルを改正した。

マニュアルの変更に伴って、全国的にトレーサビリティを考慮した統一的な精度管理体制が整備され、平成 22 年度から地域ブロックごとに二次標準器、自治体ごとに三次標準器が設置され、UV 法による校正が定期的に行われるようになった。新しい体制での標準器の校正は平成 22 年度から順次導入され、平成 22 年度は旧校正法による測定値と新校正法による測定値の両方が存在する状況になっており、平成 23 年度データは概ね新校正法によるデータになった。

「平成 22 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」、「平成 23 年度光化学オキシダント自動測定器精度管理業務報告書(環境省)」から優先解析地域内の自治体の新校正法への対応時期を整理した。この結果を図 4-59 に示す。校正法前後での感度差の平均は 1.0458 となっていた。これは、新しい校正法適用以前の濃度が平均で 4.6%濃度が高く確定されていることとなる。

一方、自治体標準器の校正開始時期は表 3-5 のとおりであるが、この結果が測定局濃度に反映されるまでは時間差があると考えられる。本調査で収集した資料では、測定局への反映時期までは把握できなかった。

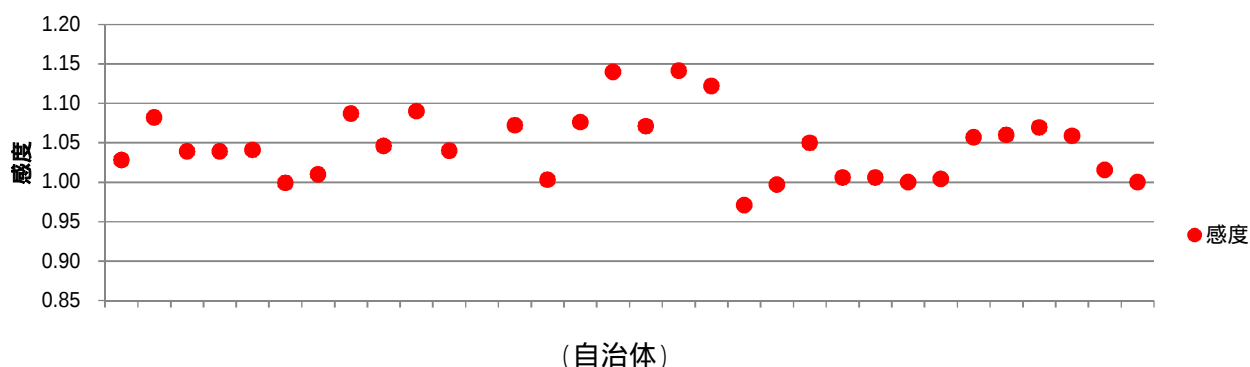


図 4-59 校正法による感度の違い

4.7.2 校正法変更の影響試算

本調査では、校正前後の影響を考慮した補正を施さずに解析した。ここでは、校正法変更の影響を試算するために、地域毎に平均的な感度を算出し、平成 22 年度、23 年度の統計値を補正し、影響を試算した。昼間の平均値の年平均値(3 年平均)と昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値(3 年平均)について旧校正法での濃度として試算した。この結果を図 4-60 及び図 4-61 に示す。

この結果、年平均値は、補正前は経年的な濃度上昇に鈍りが見えていたが、補正後は上昇傾向となり、平成 21～23 年度でやや低下する傾向も見られた。

昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値は、変更前後で低下傾向は概ね変わらなかった。

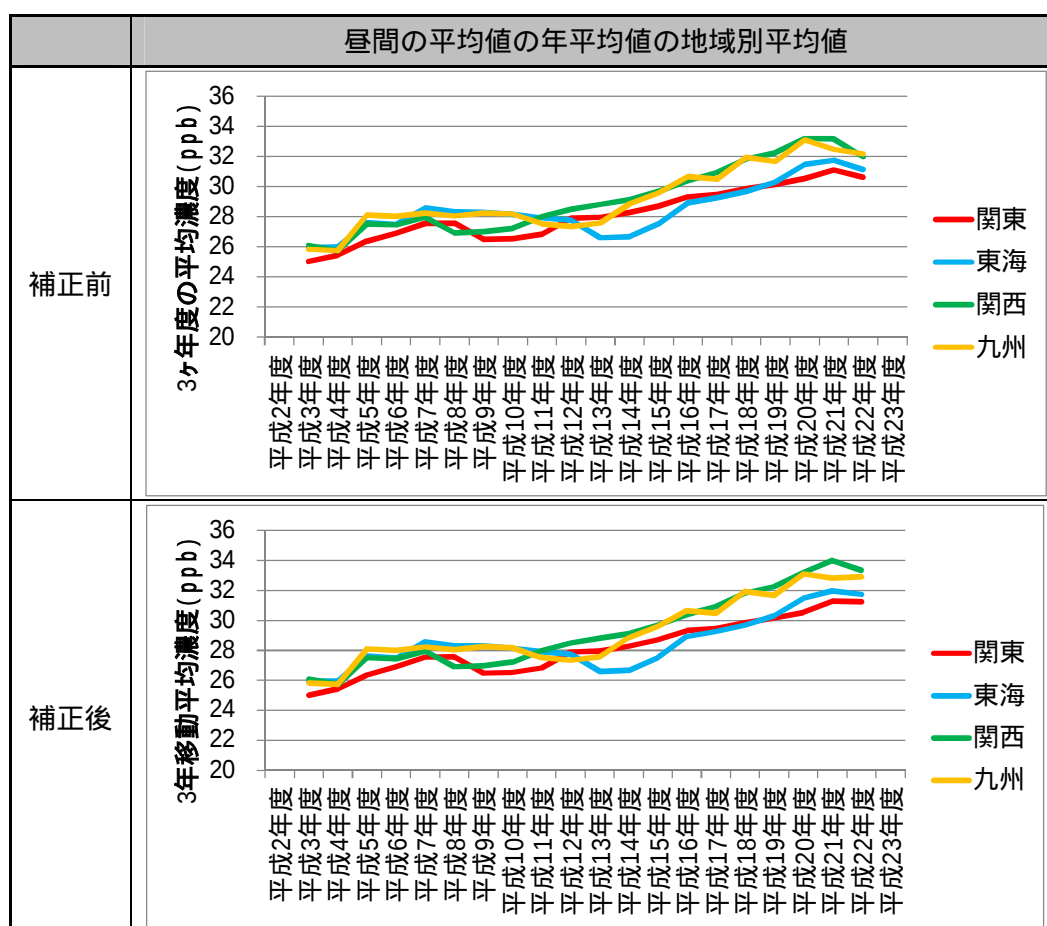


図 4-60 校正法変更に伴う補正の影響(試算) (平均濃度)

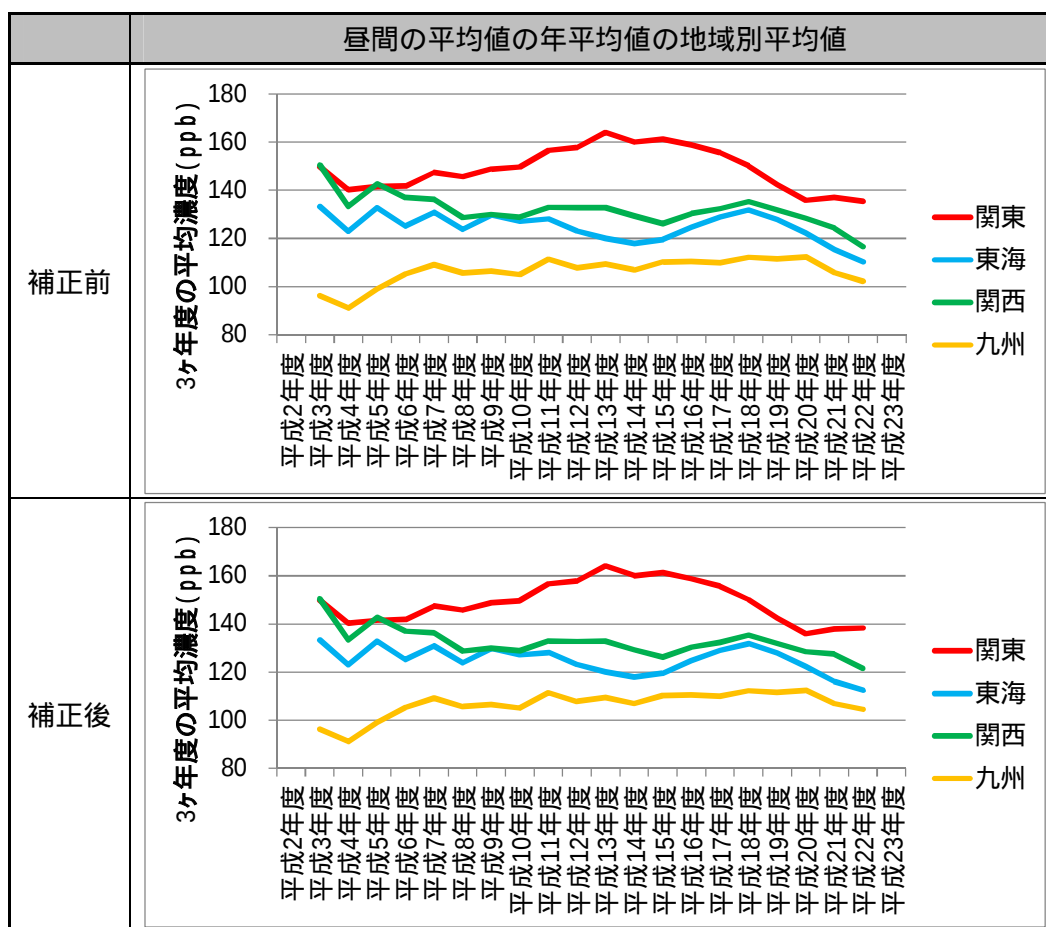


図 4-61 校正法変更に伴う補正の影響(試算) (最高濃度)

4.7.3 まとめ

光化学オキシダント測定 of 校正法変更に伴う濃度への影響について検討した。この結果、以下のとおりであった。

- 平均値については、補正前は濃度上昇の鈍る傾向が見られたが、濃度上昇が維持する傾向となった。高濃度については、濃度の改善傾向は変わらなかった。
- 測定機関によっては感度が 1 割以上変化することが見られたことから、経年変化や、過去の濃度の評価については注意して扱う必要がある。

5 光化学オキシダントの効果適切に示す指標の検討

5.1 本調査で解析した統計値

光化学オキシダントの状況・現象理解のために多角的解析を行った。多角的解析で実施した様々な統計値の中には光化学オキシダント対策の効果が示す指標となる解析結果も見られた。本調査で検討した主な統計指標を表 5-1 に整理した。また、各指標の経年変化を図 5-3～図 5-5 に整理した。

表 5-1 主な統計指標

日統計	期間統計	空間統計
光化学オキシダントの昼間の平均値	年平均値	域内平均値
光化学オキシダントの昼間の最高値	年間 98 パーセント タイル値	域内最高値
光化学オキシダントの昼間の平均値	季節平均	域内平均値
光化学オキシダントの 8 時間帯別濃度値	春季・夏季	域内平均値
ポテンシャルオゾンの 0-8 時の平均値	春季	域内平均値
ポテンシャルオゾンの昼間の平均値	年平均値	域内平均値
光化学オキシダントの 8 時間平均値の日 最高値	年最高値	域内最高値 域内平均値
光化学オキシダントの 8 時間平均値の日 最高値	年間パーセン タイル値	域内最高値 域内平均値
光化学オキシダントの 8 時間平均値の日 最高値	年平均値	域内最高値 域内平均値
光化学オキシダントの 1 時間値が基準値 以上となった時間数	年間時間数	域内平均値
光化学オキシダントの 1 時間値が基準値 以上となった積算濃度	年間積算濃度	域内平均値

5.2 年々変動の軽減方法

二酸化窒素や浮遊粒子状物質、微小粒子状物質などの大気汚染物質の場合、年平均値や年間 98% 値、日平均値の 2% 除外値など 1 年度毎の統計値により評価をする。

光化学オキシダント場合、年統計値は図 5-1 のように年々変動が大きく、気象等による変動と対策効果が重なり、効果を捉えにくくする。

年統計値の 3 年移動平均により解析したところ、年々変動を軽減され、濃度の低減の状況が把握しやすくなることが確認できた。光化学オキシダントの評価においては年統計値の 3 年移動平均に有効であった。

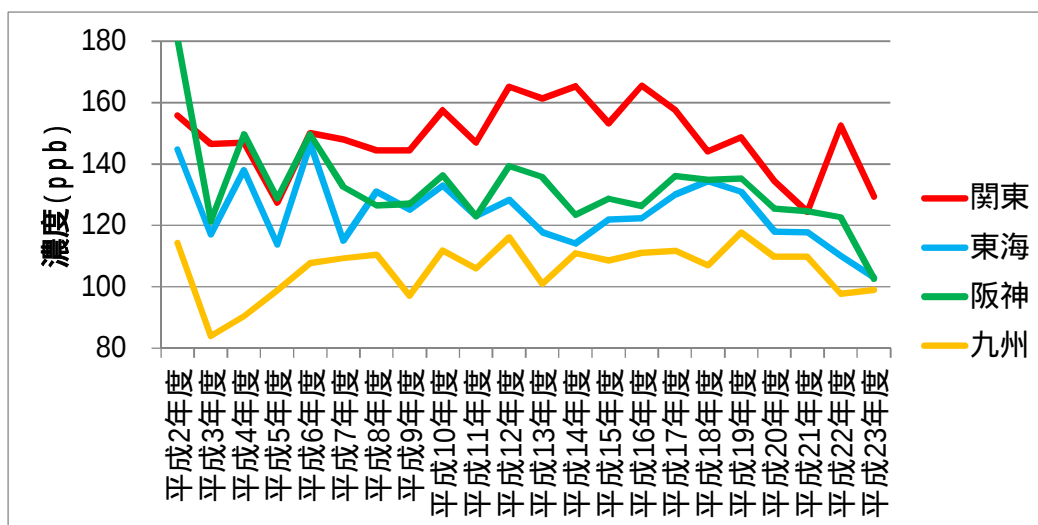


図 5-1 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値の経年変化

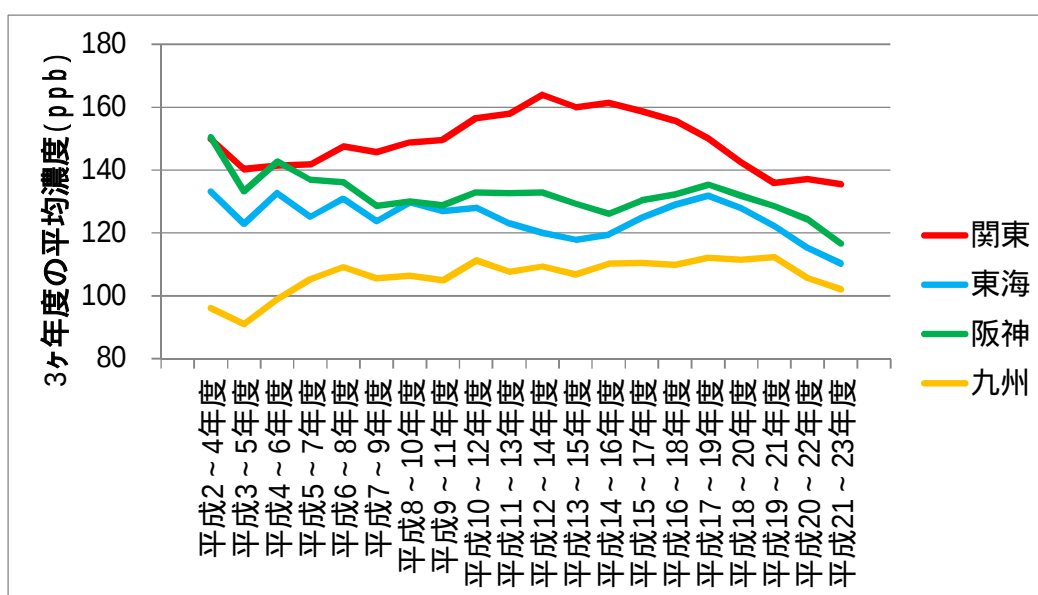


図 5-2 昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値の域内最高値(3 年移動平均)の経年変化

5.3 平均濃度に着目した指標の検討

平均濃度に着目した指標として、光化学オキシダントやポテンシャルオゾンの昼間の平均値の年平均値や季節平均値の域内平均値がある。

これらの濃度は、いずれの優先解析地域でも経年的に濃度の上昇が見られた。春季の0～8時平均値の解析やポテンシャルオゾンの解析などによって、「越境汚染の影響の増大」と「タイトレーション効果の低下」の2つの要因であることが確認できた。

平均濃度に着目した指標は、越境汚染の影響の変化やタイトレーション効果の変化を示す指標として有効であると考えられる。

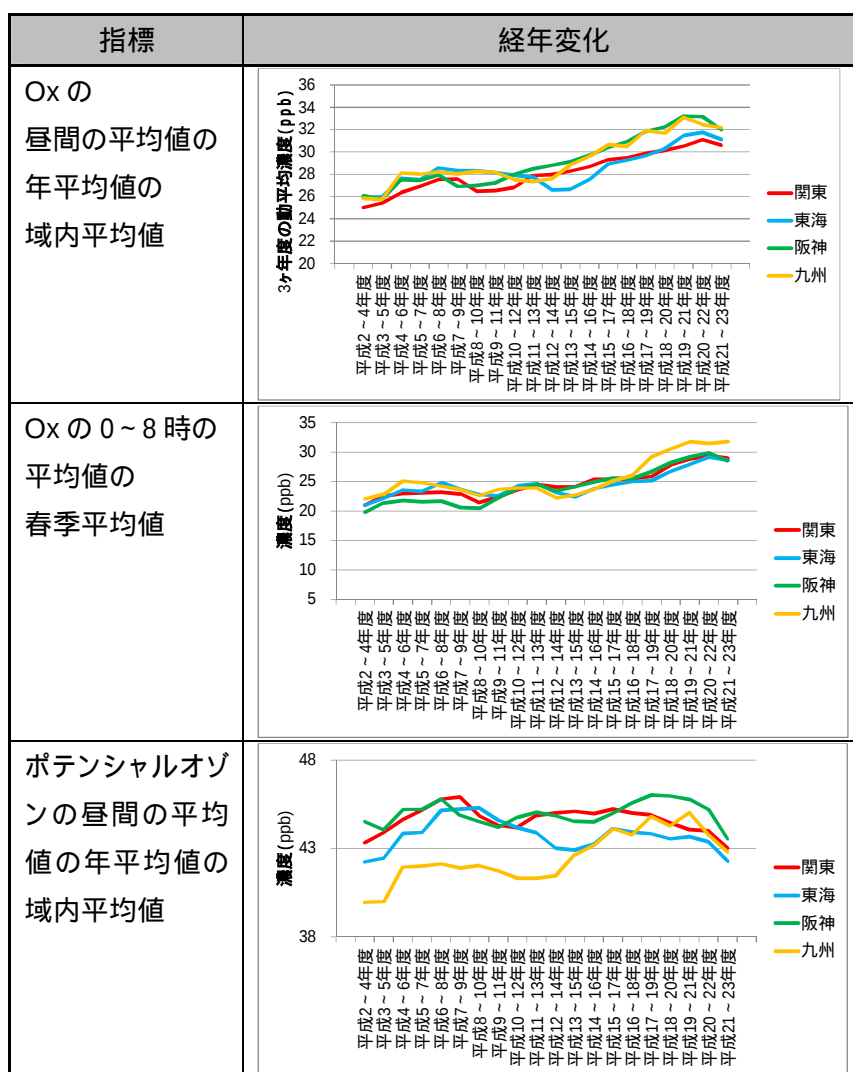


図 5-3 平均濃度に着目した指標

5.4 高濃度に着目した指標の検討

地域内の高濃度に着目した指標として、昼間の最高 1 時間値及び 8 時間値の日最高値の年間 98 パーセンタイル値などの域内最高値がある。

光化学オキシダントの 1 時間値の昼間の最高値の年間 98 パーセンタイル値を 3 年平均することにより比較的安定的な濃度変化を把握することができた。光化学オキシダントの 8 時間値の日最高値の年間統計値についても同様で、8 時間値においても高濃度の 1～2%の除外により、VOC 排出規制における効果が指標に表れていた。

高濃度の上位 1～2%を除外した値(99 パーセンタイル値、98 パーセンタイル値)は、光化学オキシダントの高濃度の低下が確認でき、濃度が低下する時期は VOC 規制時期と同時期であった。

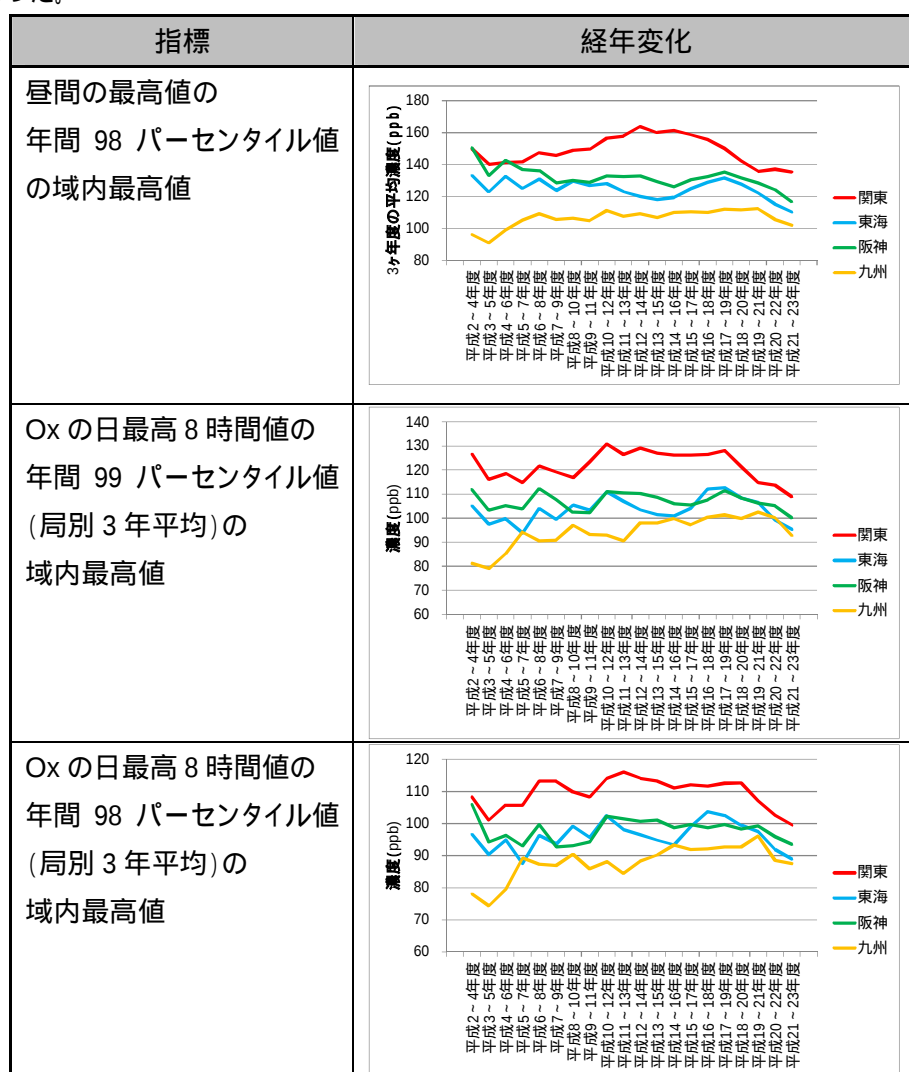


図 5-4 高濃度に着目した指標

5.1 高濃度の出現頻度に着目した指標の検討

光化学オキシダント対策の効果を示す指標として、高濃度の影響時間や積算濃度が考えられる。

本調査では、基準となる濃度以上となる時間数や積算濃度について検討を行ったところ、光化学オキシダント濃度の 120ppb 以上時間数や積算濃度において、高濃度の改善を傾向が確認できた。しかしながら、指標となる時間数や積算濃度は地域で差が大きすぎる点は、地域間の比較や、目標設定においては課題となる。

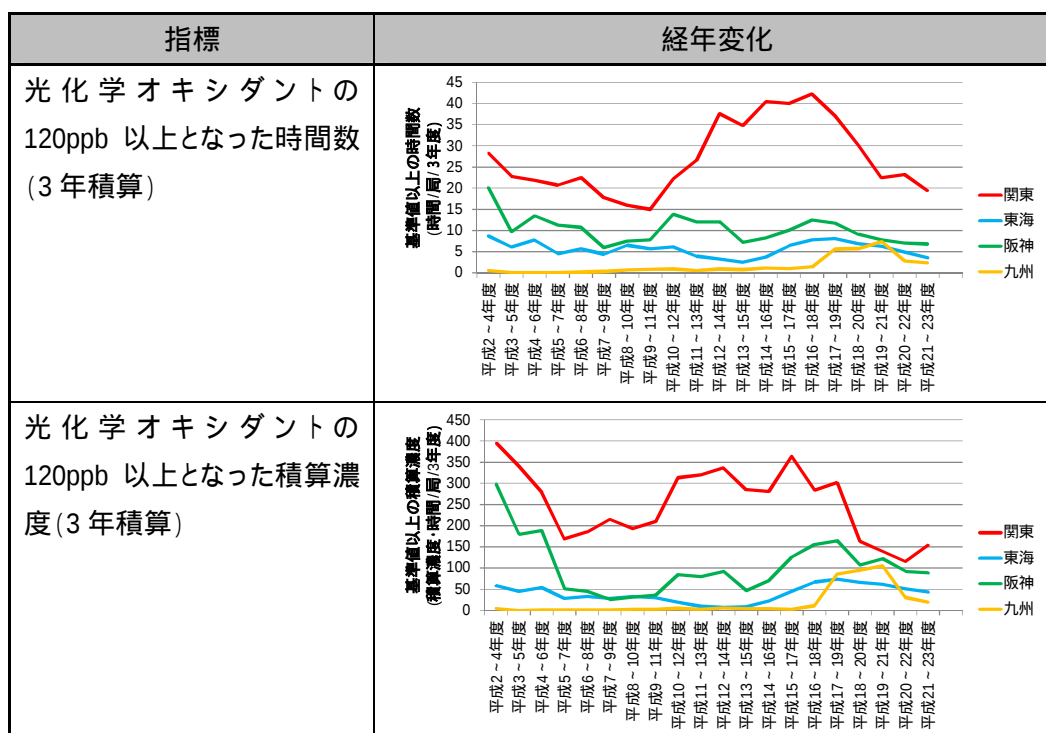


図 5-5 高濃度の出現頻度に着目した指標

5.1 光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標の検討

光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標として、高濃度に着目した指標や高濃度の出現頻度に着目した指標が有効であることが確認できた。

高濃度の出現頻度に着目した指標は、地域内での改善を示す指標としては有効性が確認できるものの、地域間での値に差が大きい点が課題となる。すなわち、積算濃度を見た場合、平成 15～17 年度では関東は 350ppb・時間であり、九州では数時間と地域間差が非常に大きく、全国で統一した目標値などの設定が困難となる。この指標は、地域毎に改善を評価する指標の指標として活用することが望ましいと考える。

高濃度に着目した評価指標としては、1 時間値または 8 時間値に着目した評価指標が有効であった。8 時間値については、WHO や米国 EPA で評価基準として採用されるように、光化学オキシダントの国際的な評価指標として利用されている。統計的にも、8 時間値の日最高値について、高濃度の上位数%を除外し、3 年平均することにより、安定的な傾向を示す指標となることが確認できた。米国 EPA では、年間第 4 位値(99 パーセンタイル値相当)の 3 年平均により評価がなされている。

一方、日本国内においては、二酸化窒素や微小粒子状物質は年間 98% 値を採用し、浮遊粒子状物質は 2% 除外値を採用しており、高濃度の上位 2% を除外した濃度により環境基準の評価を行っている。また、外れ値の扱いの検討から、年間 98 パーセンタイル値を用いることにより、対象としたほとんどの地点で、特異的な高濃度を除外のした指標が得られることが確認できた。

以上を踏まえると、光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標としては、下記の方法により評価される 3 年平均値により改善効果を評価することが望ましいと考える。

- ・ 光化学オキシダント濃度の 8 時間移動平均値を基礎とする。
- ・ 8 時間平均値から日最高値を算出する。
- ・ 8 時間値の日最高値の年間上位 2% 程度を除外した値を年間代表値とする。
- ・ 年間代表値となる年間 98 パーセンタイル値を 3 年平均する。

今後は、8 時間値を基礎とした詳細な解析を進め、8 時間値の特性を理解すること、光化学オキシダント対策を進める上で重要となる。また、光化学オキシダントの 1 時間値を基本とした評価値との関係についても検討を進める必要がある。

6 まとめ

本調査では、光化学オキシダントの多角的な解析の結果を以下に整理した。

【平均的な濃度の上昇】

- 光化学オキシダントの平均的な濃度は、経年的に濃度上昇が見られた。
- 春季の0～8時の平均濃度の解析やポテンシャルオゾンの解析、前駆物質濃度との関係の検討などにより、その主な要因は越境汚染の影響の増大と、タイトレーション効果の低下によるものであると考えられた。
- いずれの地域でも越境汚染の影響の増大とタイトレーション効果の低下の両方の要因が見られるが、日本の西の地域ほど越境汚染の影響が強く見られる傾向があった。

【高濃度の改善】

- 光化学オキシダントの高濃度は、年間 98 パーセンタイル値や 1 時間値が 120ppb を超えた時間数・積算濃度などの解析により、平成 18 年度頃より濃度の改善が見られた。
- NO_x対策による NO_x濃度低下する中で、平成 18 年度より VOC 規制による VOC 濃度の低下が加わり、光化学オキシダント濃度の高濃度の改善につながったものと考えられる。
- 九州でも対策効果があったものと考えられるが、越境汚染による高濃度の出現により改善効果は十分把握できなかった。

【光化学オキシダント対策の効果を適切に示す指標】

- 高濃度の改善を示す指標はいくつか見られ、いずれも VOC 規制に応じて濃度の低下が見られた。
- 国際的に光化学オキシダントの評価に 8 時間値が採用されている点なども考慮すると、8 時間値を基本とする指標が適切である。
- 安定的な指標を得るためには、年間統計値を 3 年移動平均する必要がある。
- 特異的な高濃度を除外するためには、高濃度の上位 2 % 程度を除外し評価することが望ましいと考える。
- 8 時間値の解析は十分とは言えないことから、8 時間値の特性を理解し光化学オキシダント対策に資する情報をえるために、より詳細な解析を進めていく必要がある。