

[資料]

兵庫県における光化学オキシダントの新指標による解析

久保 智子¹ 飯野 博夫² 中坪 良平¹ 瀧本 充輝¹ 平木 隆年¹

¹ 兵庫県環境研究センター大気環境科 (〒654-0037 神戸市須磨区行平町 3-1-18)

² 兵庫県農政環境部環境管理局水大気課環境影響評価室 (〒650-8567 兵庫県神戸市中央区下山手通 5-10-1)

Evaluation of Photochemical Oxidants by a new index in Hyogo Prefecture

Tomoko KUBO¹ Hiroo IINO² Ryohei NAKATSUBO¹
Mitsuteru TAKIMOTO¹ and Takatoshi HIRAKI¹

¹ Atmospheric Environmental Division, Hyogo Prefectural Institute of Environmental Sciences,
3-1-18, Yukihiro-cho, Suma-ku, Kobe, Hyogo 654-0037, Japan

² Environmental Assessment Office, Water & Air Quality Control Division, Environmental Management
Bureau, Agricultural & Environmental Affairs Department, Hyogo Prefectural Government,
5-10-1, Shimoyamate-Dori, Chuo-ku, Kobe, Hyogo 650-8567, Japan

環境省から通知のあった光化学オキシダントの新指標「日最高 8 時間値の年間 99 パーセンタイル値の 3 年移動平均値」を平成 10 年度～平成 29 年度の県内 49 測定局の測定データを用いて算出した。従来の指標である 1 時間値と比較することにより、兵庫県における新指標の活用の有効性が確認された。

また、従来の指標ならびに新指標の解析結果より、県内の光化学オキシダント濃度分布が変化し、一定濃度域に収束傾向が見られたことから、光化学オキシダント濃度の支配要因が地域的な汚染から広域的な汚染へとシフトした可能性、光化学オキシダントのベースライン濃度の上昇及び局地的な高濃度光化学オキシダントの発生頻度の減少が示唆された。

I はじめに

光化学オキシダント (Ox) は、工場や自動車から排出される窒素酸化物 (NOx) や揮発性有機化合物 (VOC) を主体とする汚染物質が、太陽の紫外線照射を受けて光化学反応を起こすことにより発生する二次的な汚染物質である。兵庫県では、平成 29 年度までの過去 10 年以上全測定局で環境基準が達成されておらず、依然として光化学スモッグ注意報の発令がみられる。

これまで、Ox 濃度の指標としては、「環境基準の達成状況」、「注意報等の発令状況」、「昼間

の日最高 1 時間値の年平均値」などが用いられてきたが、気象要因による年変動が大きいため、長期的な環境改善効果を適切に示す指標として、環境省より、Ox の環境改善効果を適切に示すための指標 (以下、「新指標」という。) について通知¹⁾があり、さらに新指標に係る測定値の取り扱いについても通知²⁾があった。

今回、県内 (大気環境中) の Ox の長期的な変動について新指標を用いて解析を行い、これまでの指標等と比較し、考察を行った。

Ⅱ 方法

1. 使用データ

解析対象測定値は、兵庫県内の一般環境大気測定局で自動測定されたO_x濃度の1時間値を用いた。その中から調査対象として、平成29年度に測定を行っている52局のうち、平成10年度から継続してデータがある49局を解析対象とした。Fig. 1に解析対象測定局の位置を示した。

2. 地域区分

兵庫県の地方機関である県民局・県民センターが管轄する10地域のうち、阪神南と阪神北を阪神地域として、9つの地域区分とした。Fig. 1に地域区分を示した。

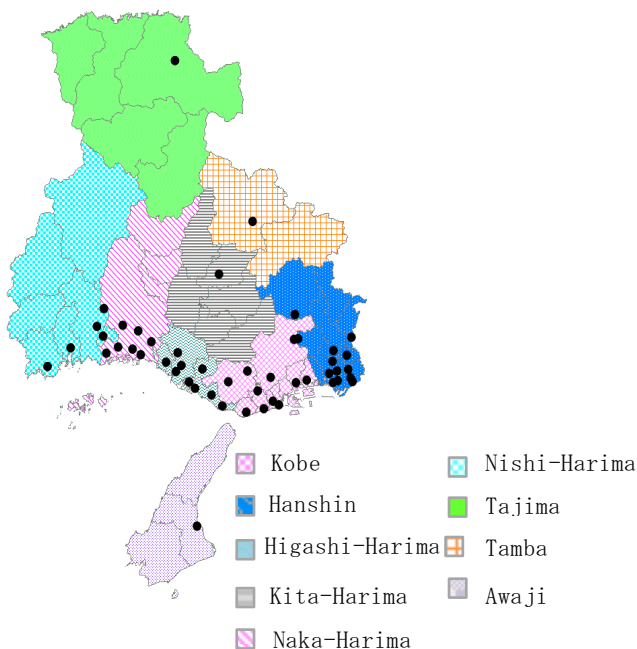


Fig.1 Monitoring stations and regionalization for analysis

3. 解析方法

各測定局から得られた1時間値をもとに、以下の6種類の計算値を算出し、濃度変動の傾向を解析した。Fig. 2に解析値の説明を図示した。

- ①測定局別昼間(5-20時)の日最高1時間値の年平均値(以下、「旧指標」という。)
- ②昼間年平均値
- ③年最高1時間値
- ④測定局別日最高8時間値の年間99パーセントイル値の県内平均値

- ⑤測定局別日最高8時間値の年間99パーセントイル値の県内最高値(以下、「新指標の県最高値」という。)
- ⑥測定局別日最高8時間値の年間99パーセントイル値の3年移動平均値(以下、「新指標」という。)

1-hour concentration

Old index

①Annual average of 1-hour daily maximum concentrations during daytime(5-20h)

Fig10.

Fig.12 purple lines (prefectural average)

②Annual average of 1-hour concentrations during daytime(5-20h)

Fig. 3

③Annual maximum 1-hour concentrations at monitoring stations

Fig. 7

Fig. 9

Fig. 11

8-hour concentration

④Annual 99th percentile of 8-hour daily maximum concentrations at monitoring stations

Fig. 8

Fig. 9

Fig. 11

Fig.12 green lines (prefectural average)

Regional average

Regional maximum, averaged over 3 years

⑤Prefectural average

Fig. 6

New index

⑥Annual 99th percentile of 8-hour daily maximum concentrations, averaged over 3 years

Fig. 4

Fig. 5

Fig.2 Summary of the analysis

Ⅲ 結果及び考察

1. 県内0x濃度分布の変化

(1) 濃度別測定局比率の経年変化

昼間年平均値及び新指標の濃度別測定局数比率の経年変化をFig. 3及びFig. 4に示した。昼間年平均値では、近年20ppb以上30ppb未満の局数が減少し、30ppb以上の局数が増加していることが確認できた。新指標では、平成18-20年度以降90ppb以上の局数が減少し、75ppb以上90ppb未満の局数が増加した。また、60ppb以上75ppb未満の局数も解析年度当初から減少傾向を示した。

低濃度で推移していた測定局における0x濃度が上昇し、高濃度で推移していた測定局における0x濃度が低下した可能性があり、0x濃度の県内分布が変化したことが示唆される。

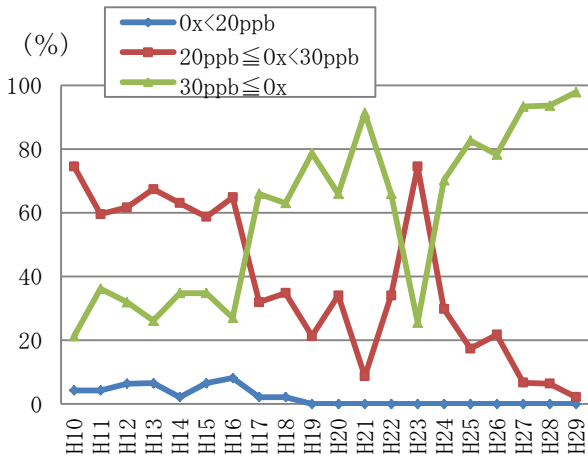


Fig. 3 The rate of monitoring station number by annual average of 1-hour concentrations range during daytime

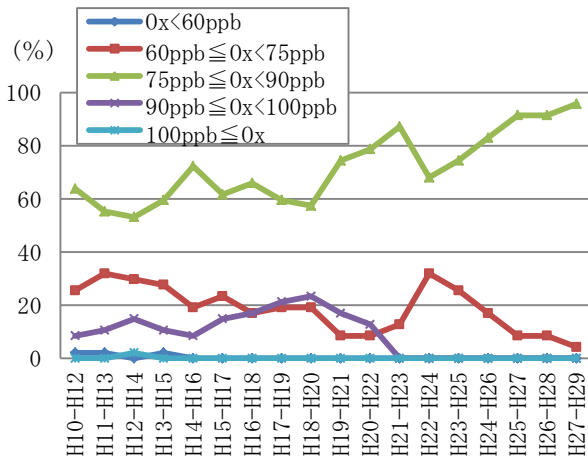


Fig. 4 The rate of monitoring station number by annual 99th percentile of 8-hour daily maximum concentrations range, averaged over 3 years

(2) 新指標における経年変化

地域別及び県の新指標の平均値の推移をFig. 5に示した。県では平成19-21年度に最高値を示し、平成23-25年度に最低値を示した後、再び上昇傾向が見られた。地域別には、但馬地域のみ平成25-27年度以降低下傾向を示し、他地域と異なる結果だった。また、Fig. 6に示した新指標の県内最高値の経年変化から、新指標では県内最高値が低下傾向にあることが分かった。

Fig. 5及び6より、高濃度域の0x濃度が低下傾向にあり、また、解析年度当初は0x濃度に地域的な差が見られたが、近年はその差が小さくなる傾向があり、0x濃度レベルの支配要因が地域的な汚染から広域的な汚染へと変化した可能性がある。

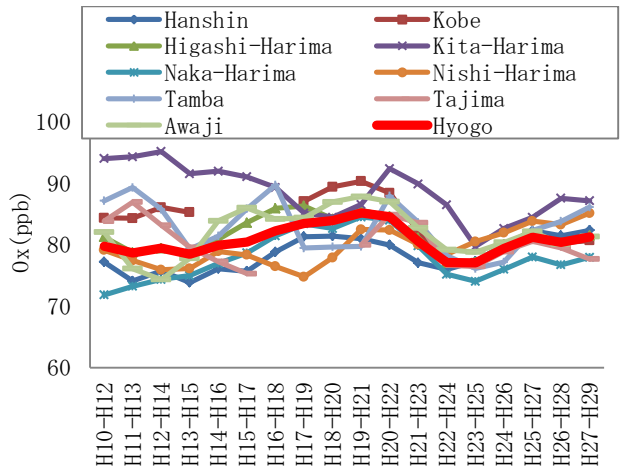


Fig. 5 Annual 99th percentile of 8-hour daily maximum concentration, averaged over 3 years

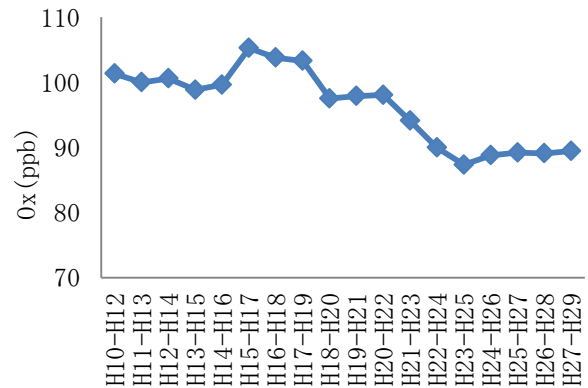


Fig. 6 The trend of maximum new index value in Hyogo prefecture

(3) 年最高1時間値及び日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の経年変化

Fig. 7に年最高1時間値の測定局ごとの出現濃度

範囲の経年変化を、Fig. 8に日最高8時間値の年間99パーセント値の測定局ごとの出現濃度範囲の経年変化をそれぞれ示した。

年最高1時間値及び日最高8時間値の99パーセント値の両者において、一定の濃度範囲に収束傾向が見られた。

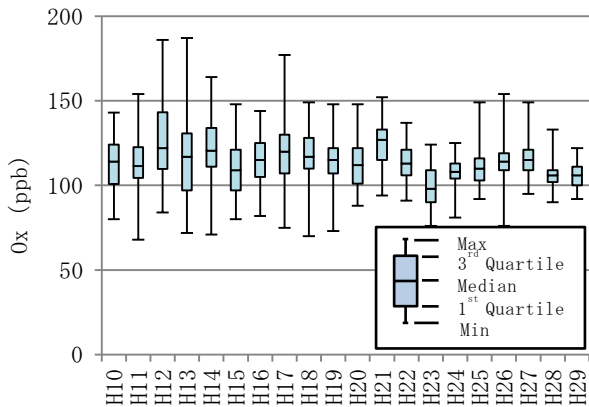


Fig. 7 The trend of annual maximum 1-hour concentration

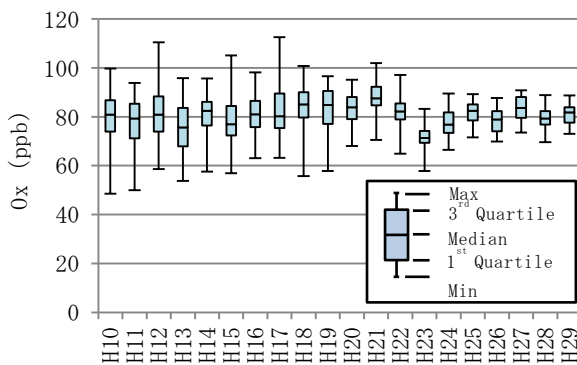


Fig. 8 The trend of annual 99th percentile of 8-hour maximum average

収束傾向を詳細に検討するため、解析した20年間のうち、平成10年度、19年度、29年度の3箇年の年最高1時間値、日最高8時間値の年間99パーセント値の濃度別出現頻度をFig. 9に示した。

3箇年の年最高1時間値は、それぞれ、最大値が143, 148, 122ppb, 最小値が80, 73, 92ppbだった。一方、日最高8時間値の年間99パーセント値は、それぞれ、最大値が100, 97, 89ppb, 最小値が49, 58, 73ppbだった。Fig. 9③及び④から、低濃度域が徐々に高い濃度へシフトし、高濃度域が減少しており、Fig. 9③では100ppb以上120ppb未満、Fig. 9④では80ppb以上100ppb未満に収束する傾向が見られた。

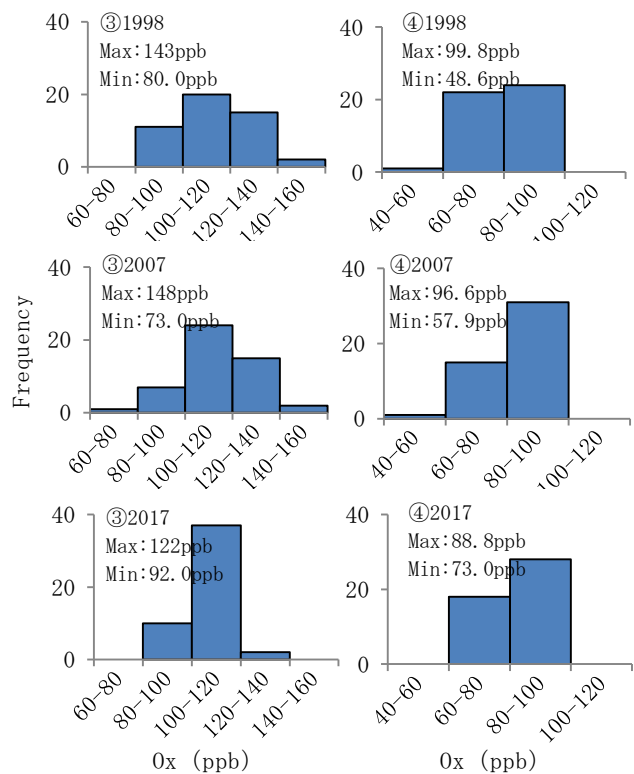


Fig. 9 Frequency distribution of annual ③ maximum 1-hour and ④ 99 percentile 8-hour average Ox concentration in each year year 1998, 2007, 2017

③ and ④ are indicated in Fig. 2.

2. 新指標の評価

(1) 旧指標と新指標の経年変化における比較

地域別及び県の旧指標の推移をFig. 10に示した。旧指標においては県全体でわずかに上昇傾向が見られたが、1. (2)で前述した新指標における傾向とは異なる傾向だった。地域別でも旧指標と新指標では異なる傾向を示し、旧指標においては丹波地域のみ低下傾向を示した。

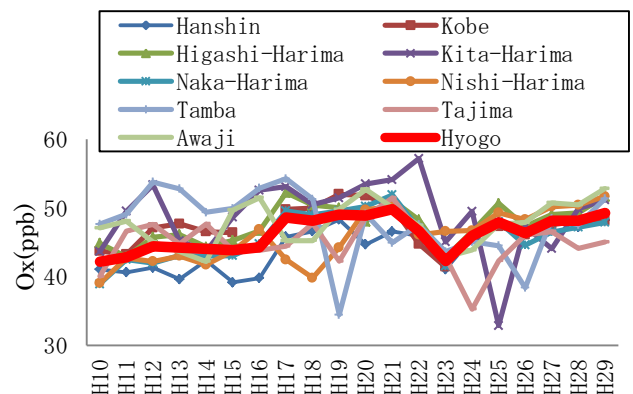


Fig. 10 Annual average of 1-hour daily maximum concentrations during daytime

(2) 1時間値と8時間値の比較

1. (3)で前述したとおり、年最高1時間値及び日最高8時間値の99パーセンタイル値の測定局ごとの出現濃度範囲の経年変化では、どちらも一定の濃度範囲に収束する傾向が見られたが、その傾向は日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の方が顕著だった。

1時間値と8時間値の相関関係を明らかにするため、Fig. 9で示した平成10年度、19年度、29年度の3箇年の年最高1時間値及び日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の相関をFig. 11に示した。

低濃度域では両平均値の差が小さく、濃度上昇につれて年最高1時間値が高濃度側へ乖離していることが分かる。回帰直線の傾きが近年に近づくにつれ小さくなっていることから、両者の乖離幅は増大している。

0xの前駆物質であるNOxやVOCの発生源が少ない地域では、0x生成量が少ないため、1日の0x濃度の変動（日内変動）が小さくなる。日内変動が小さいほど8時間値が小さくなることから、年最高1時間値と日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の差は小さくなると考えられる。一方、NOxやVOCの発生源となる自動車や工場が多い地域では、日内変動が大きく、年最高1時間値と日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の差が大きくなると考えられる。近年、大気汚染防止のための様々な取組強化によって、NOxやVOCの大気中濃度が多くの地点で低下していることから、地域別の0x生成量の差は縮小傾向にあり、日内変動も縮小傾向にあると示唆される。

また、平成10年度及び平成19年度に比べて平成29年度は年最高1時間値の低濃度と高濃度の差は小さく、90ppbから120ppbの範囲に集中している。日最高8時間値の99パーセンタイル値についても同様、平成29年度は平成10年度及び平成19年度に比べて低濃度と高濃度の差は小さく、70ppbから90ppbの範囲に集中している。このことは、オゾンのベースライン濃度の上昇及び局地的な高濃度オゾンの発生頻度の減少を表している可能性がある。

0x濃度は、気象状況の変化の影響を強く受けて大きく変動することから、1時間値への影響は大きい、8時間値は1時間値より平均化時間が長い、短期の気象変化の影響等を受けにくいと予想される。年最高1時間値は気象条件等0x濃度が上昇する条件が揃った日の値が採用されるが、日最高8時間値の年間99パーセンタイル値は、8時間値によ

り気象条件等の日内変動の短期的影響を軽減すると共に、「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(中間とりまとめ)について」¹⁾で示されているとおり、99パーセンタイル値により外れ値を除いた年間の高濃度値が採用されることになり、特異値のない安定的な値として経年変化を検討する際には有効であると考えられる。

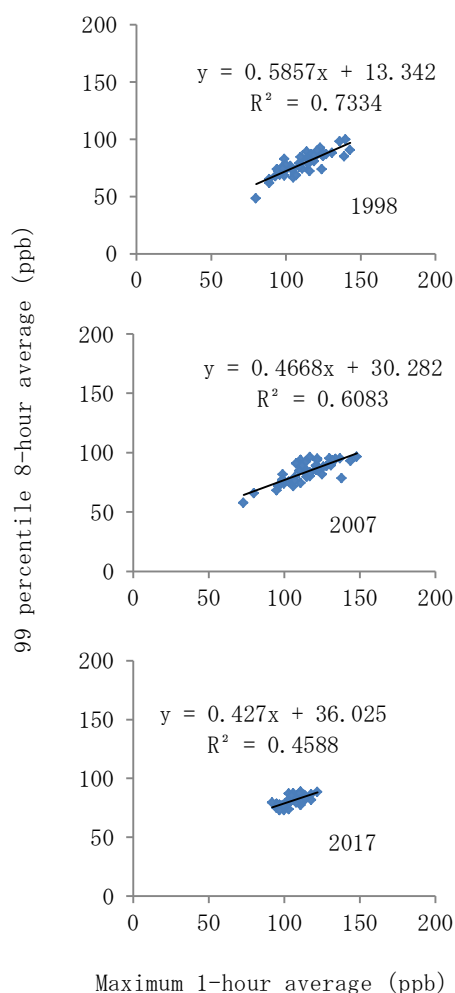


Fig. 11 Relationship between Fig. 9 ③ and Fig. 9 ④ in each year 1998, 2007, 2017

(3) 注意報等発令日数と指標値の評価

光化学スモッグ注意報等発令日数と旧指標及び日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の県平均値の推移をFig. 12に示した。平成22年度以降、注意報等発令日数は2日以下と少ないレベルで推移しているものの、旧指標はわずかに増加傾向が見られた。一方、日最高8時間値の年間99パーセンタイル値は過去20年間横ばいだった。

発令日数が激減した平成22、23年度に、日最高8時間値の年間99パーセンタイル値が大きく変化し

ているが、旧指標も減少していることから、測定法及び校正法の変更の影響が考えられる。日最高8時間値の年間99パーセンタイル値と発令日数について、平成23年度以前と以降で比べると、発令日数が多かった平成23年度以前は増加傾向が見られたが、発令日数が横ばいである平成23年度以降は横ばいとなっていることから、日最高8時間値の年間99パーセンタイル値と発令日数には相関関係は認められない。

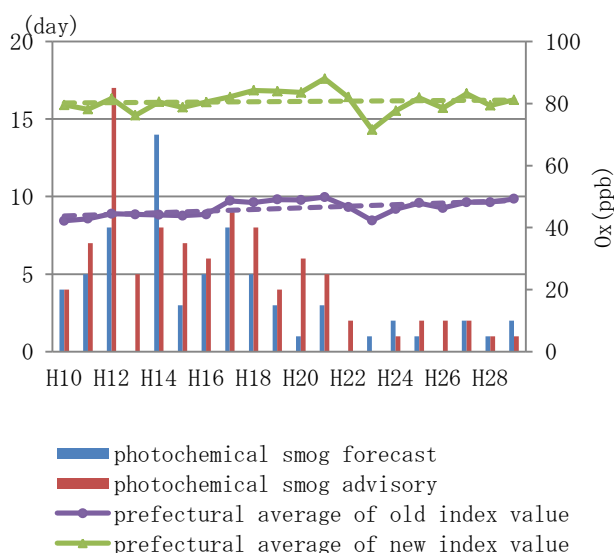


Fig. 12 The relationship between issuance dates of a photochemical smog warning and old/new index value.

IV 結論

平成10年度～平成29年度の県内49測定局の測定データにより、従来の指標と新指標について解析・検討したところ、兵庫県内のOx濃度分布が変化しており、地域差が縮小傾向にあること、また、高濃度域のOx濃度は低下傾向にあり、一定濃度域に収束していることが分かった。

このことから、Ox濃度レベルの支配要因が地域的な汚染から広域的な汚染へとシフトした可能性があること、及びOxのベースライン濃度が上昇し、局地的な高濃度Oxの発生頻度が減少した可能性があることが明らかとなった。

新指標及びそれに用いられる8時間値等と現在の指標に用いられる1時間値等を比較した結果、旧指標では見られなかった変化や明らかな低下傾向等が確認できたこと、日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の方が20年間の傾向を年最高1時間

値より顕著に表すこと、さらに日内変動が大きな地点ほど年最高1時間値と日最高8時間値の年間99パーセンタイル値の差が大きくなることから、新指標は兵庫県において長期的な環境改善効果を示す指標として活用できることが示唆された。

従来の指標のひとつである「注意報等の発令状況」と新指標の99パーセンタイル値を評価したところ、両者に相関関係は認められなかった。そのため、発令日数についてはこれまでと同様、新指標による長期的な傾向分析とは別に検討する必要がある。

V おわりに

Oxの測定方法としては、「環境大気常時監視マニュアル（第6版）」³⁾で、主に吸光光度法と紫外線吸収法が規定されている。

県内のOx測定局においては、従来、全て湿式である吸光光度法（KI法）であったが、平成10年度以降、順次乾式である紫外線吸収法（UV法）に変更され、平成23年度に全ての測定局がUV法での測定に切替わった。

また、Ox濃度の測定については、平成18年にJISが改正され、その校正法がKI法からUV法に変更された。これを受け、環境省では平成22年3月に「環境大気常時監視マニュアル(第6版)」を改正した。

マニュアルの変更に伴い、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年度から順次、地域ブロック毎に二次標準器、自治体毎に三次標準器が設置され、平成23年度以降、新校正法に基づくデータとなっている。

Ox濃度の経年変化を旧指標で示したFig. 3, 新指標で示したFig. 4及びFig5において、平成23年度またはそれを含む3箇年に、Ox濃度の低下が見られた。これは、新校正法に基づくデータになったことが影響として考えられ⁴⁾、長期的なOx濃度の変動を解析・検討する際には留意する必要がある。

文献

- 1) 環境省水・大気環境局大気環境課長通知：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（中間とりまとめ）について、平成26年9月26日、環水大大発第1409262号
- 2) 環境省水・大気環境局大気環境課長通知：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係る測定値の取り扱いについて，平成28年2月17日，環水大大発第1602171号

3) 環境大気常時監視マニュアル（第6版），平成22年3月

4) 橋場久雄，牧野雅英，宮田朋子，野口邦雄：新指標による石川県内で観測された光化学オキシダント濃度の長期的推移の評価，石川保環研報，第52号，83-87（2015）