

観測データから見た近年の埼玉県における 大気環境の状況と光化学オキシダント濃度推移の要因*

竹 内 庸 夫**

キーワード ①大気環境 ②光化学オキシダント ③環境基準 ④埼玉県

要 旨

大気汚染物質の濃度状況と環境基準達成状況の両方を把握できる指標として、環境基準比を求めた。埼玉県の大気環境について、これで評価してみたところ、光化学オキシダント以外の物質の改善状況を確認できた。

光化学オキシダント濃度の近年の特徴をさまざまな観点から検討した結果、①2000年度前後の濃度上昇の一部に測定方法変更の影響を含んでいる、②最近の地域間濃度差の減少には一酸化窒素濃度低下によるオゾン分解の減少が関与している、③近年の気温や日射量の上昇に伴って濃度上昇している、④2005年度以降の高濃度出現の減少傾向には揮発性有機化合物対策の効果が現われている、などが推定された。

1. はじめに

埼玉県は首都圏の一角を成し、大気汚染物質の固定および移動発生源の影響を強く受ける地域である。さらに、首都圏の北側すなわち夏季の主風向の風下に位置する地理的条件により、光化学大気汚染も著しく、光化学スモッグ注意報の発令は全国でもっとも多い。

大気環境については、国および地方自治体により主要な大気汚染物質の常時監視が行われている。現在、大気環境基準は11物質について定められており、埼玉県ではそのうち二酸化硫黄(SO₂)、二酸化窒素(NO₂)、浮遊粒子状物質(SPM)、一酸化炭素(CO)および光化学オキシダント(Ox)の5物質が連続測定によって、1971年度から順次観測されている。ベンゼン、ジクロロ

メタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンの4物質は1997年度から月1回の、ダイオキシンは2000年度から各季節1回の調査によって観測されている。残る1物質の微小粒子状物質(PM_{2.5})は2009年の環境基準設定を受けて、連続測定による常時監視体制が構築されつつある。

本報では1989年度(平成元年度)以降の環境基準設定物質の状況を概説し、さらに、埼玉県でとくに課題となっているOxを対象として、濃度推移の特徴とその要因について検討した結果を報告する。

2. 解析方法

使用したデータは、1989年度から2011年度までの期間を対象として、WEB上で公開¹⁾されている

*Recent Situation of Atmospheric Environment and Effective Factors on Transition of Photochemical Oxidant Concentration in Saitama Prefecture Inferred from Monitoring Data

**Tsuneo TAKEUCHI (埼玉県環境科学国際センター) Center for Environmental Science in Saitama

る各物質の1時間値および埼玉県発行の調査報告書²⁾の値とした。解析対象としたのは、基本的に1年単位で集計した値である。以下、日平均値、日最高値等と記した用語は、とくに指示のない場合は、それぞれ日平均値の年平均値、日最高値の年平均値等を指す。

3. 埼玉県の大気環境基準達成状況

3.1 環境基準達成率

大気汚染状況の評価指標としては、通常、環境基準達成率が用いられる。これは各物質の有効測定局数に対する環境基準達成測定局数の比率である。埼玉県の大気環境基準達成率の推移を図1に示す。ここで対象とした測定局数は一般環境大気測定局(一般局)と自動車排出ガス測定局(自排局)の合計である。また、環境基準の評価方法に長期的評価と短期的評価がある物質については、長期的評価による達成率とした。

SO₂、COは1989年度以前から、ジクロロメタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンは観測開始当初から、ほぼ100%達成の状況が継続し、逆にOxは達成率0%の状況が継続している。その他の物質は2000年度前後から改善が見られ、NO₂は2005年度から、SPMは2006年度から、ベンゼンは2004年度から、ダイオキシンは2002年度からほぼ100%の達成率となっている。

3.2 環境基準比

環境基準達成率は指標としてはわかりやすいもの

のであるが、0~100%の範囲に限定されるため、100%のときはどれほど改善が進んだのか、0%のときはどれほど状況が悪いのかという情報が得られない。また、多くの測定局の濃度が環境基準と同等な濃度であるときは、わずかの濃度変動によって、環境基準達成率は大きく変動してしまう。その結果、全体的な濃度の増減傾向とは異なる評価を得るおそれがある。これに対して、濃度で表わすことによって、各物質の純粋な動向が把握できる。しかしながら、汚染の程度を知るためには、環境基準と比較する視点が必要である。ただし、環境基準は各物質によって数値だけでなく、単位、評価時間および統計処理が異なる。したがって、物質ごとの環境基準を理解していないと、濃度情報だけでは汚染の程度が直感的にはわかりにくい。そのような観点から中国やメキシコでは環境基準相当の濃度によって規格化されたAPI (Air Pollution Index) や IMECA (Indice Metropolitano de la Calidad del Aire) という指標が用いられている^{3,4)}。これらの国では、この指標を公表することによって、市民にわかりやすく大気汚染状況を周知している。

そこで、環境基準と比較しながら大気汚染の変動を数値化するために、ここでは単純に各物質の濃度を環境基準で除した比(以下、環境基準比)を算出した。使用した濃度は各物質の環境基準評価対象となる濃度であり、たとえばNO₂は日平均値の98%値、Oxは1時間値の年最高値、ベンゼンは年平均値などである。一般局を対象として、県内を平均した数値を図2に示す。この指標を用いることによって、同じ図に複数の物質の汚染状況を表わすことができ、その比較も容易になる。

これを見ると、現在、環境基準を100%達成しているSO₂、CO、ジクロロメタン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ダイオキシンは、環境基準比0.1(環境基準の1/10)以下のレベルであり、安定的に達成していることがわかる。1999年度から2002年度までのSPMは、環境基準と同等なレベルで推移していたので、上述のようにこの間の環境基準達成率には大きな変動が見られている(図1)。SPMはこの時期を境にして1989年度の環境基準比1.5から大きく改善し、2009年度には約0.5となっている。Oxは環境基

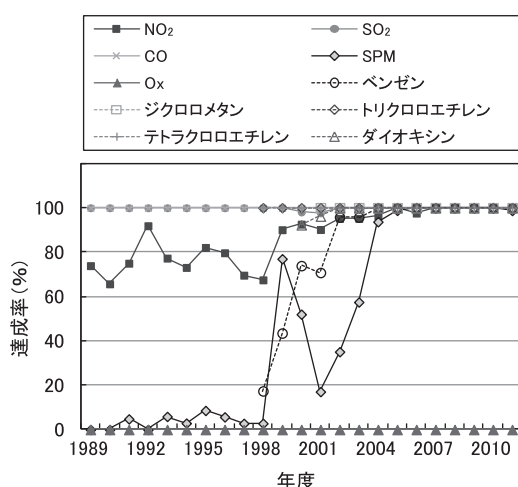


図1 環境基準達成率の推移

準比2～3の間を推移しながら、この期間全体では微増傾向である。最近の5年間では、もっとも低濃度の測定局でも環境基準比2以上となっている。

このように、環境基準と比較すると多くの物質で改善が見られており、現在大きな問題として残されているのはOxであることが明瞭に示される。また、PM_{2.5}については、2010年度に全国で初めて環境基準に対応した有効な測定が行われた⁵⁾。その結果、全国の環境基準達成率は26%であり、埼玉県内では測定器の設置された3局中、有効測定局2局(一般局1局と自排局1局)がともに非達成となっている。このような状況から、Oxだけでなく、PM_{2.5}も今後の課題となるであろうが、PM_{2.5}についての観測データがまだ十分でないため、本報では詳細な検討ができない。したがって、以降はOxについて検討した結果を述べる。前述のとおり、埼玉県は全国でもっとも光化学大気汚染が激しいといえるので、この地域の近年の状況を整理し、その要因を検討することは有意義であると考えられる。

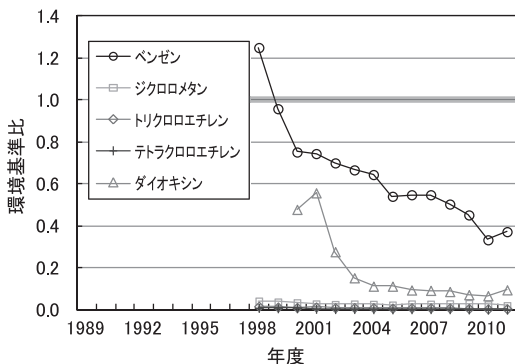
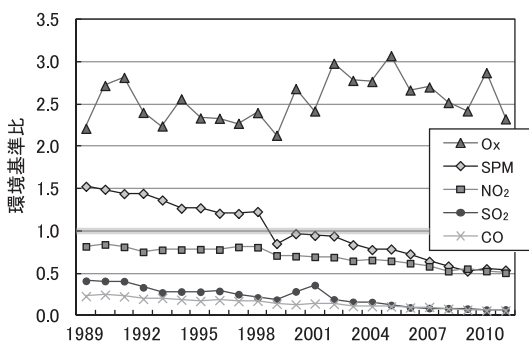


図2 環境基準比の推移

4. 埼玉県における光化学オキシダントの状況

4.1 光化学オキシダント濃度の推移

近年のOx濃度について、一般局の昼間平均値、日最高値および年最高値の推移を図3に示す。また、Ox生成の原因物質である窒素酸化物(NOx)と非メタン炭化水素(NMHC)の濃度の推移を図4に示す。

この期間のOx濃度昼間平均値と日最高値は徐々に上昇し、年最高値もやや上昇傾向である。しかし、NOxとNMHCの濃度はこの期間がともに低下傾向であることから、Ox濃度上昇については、単に原因物質の濃度だけでは説明できない要因が考えられる。

4.2 測定方法変更の影響

自動測定器による測定では、各物質とも1996年の環境庁告示により、それ以前の湿式法から乾式法へと順次更新されており、Oxの場合は、吸光光度法(湿式法)から原理的にはオゾン(O₃)を対象とした紫外線吸収法(乾式法)へ変更になっていた

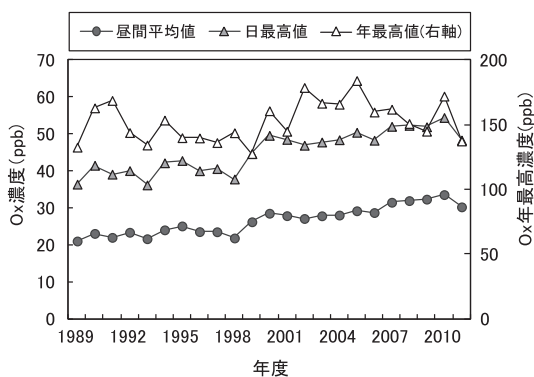


図3 Ox濃度の推移

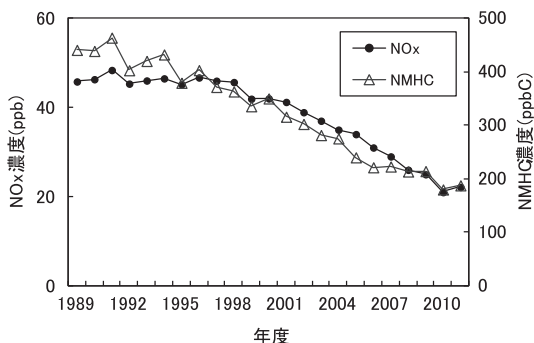
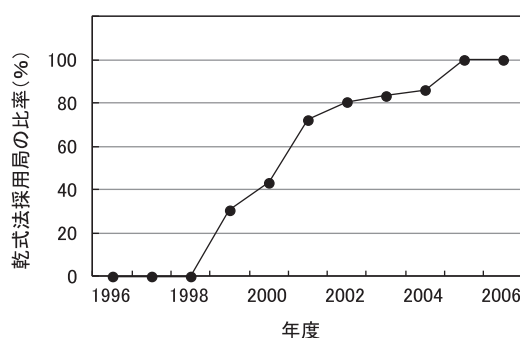


図4 Ox生成原因物質濃度日平均値の推移

図5 O_x 測定方法の乾式法への変更スケジュール

る。埼玉県における測定方法変更に伴う機器更新スケジュールを図5に示す。これは各年度末における湿式法と乾式法の測定局数から求めた比率であり、更新時期は概ねその年度の11～3月である。

図3に示すO_x濃度の昼間平均値や日最高値は徐々に上昇しているが、1999年度と2000年度にはその前後の上昇率に比べて大きく濃度が上昇している。この時期は測定方法が湿式法から乾式法へ変更され始めた時期と重なっている。測定方法変更が観測濃度に与える影響については、増加傾向を示したという報告がある^{6,7)}。その原因について阿相は、湿式法における向流吸収管の汚れや気温上昇によるヨウ素の揮散をあげている⁷⁾。そこで、埼玉県の観測値について、測定方法変更の影響を検討した。

県設置測定局のO_x日最高値を対象に、各年度で測定方法が変更になった測定局と変更がない測定局(未変更局(湿式法継続)+既変更局(乾式法継続))について、翌年度への濃度変化の違いを表1に示す。有意な差が認められたのは1999年度と2000年度だけであるが、いずれの年度も変更局の方が非変更局よりも濃度上昇が大きくなった。測定方法の変更があった期間全体の平均として、変更局は非変更局より2.3 ppb濃度が高くなったと見積もることができた。これに対して、1998年度以前と2000年度以降のそれぞれについてO_x濃度日最高値の推移の一次回帰式を求め、1999年度の時点での差を計算すると、9.4 ppbとなり、上述の見積りはこの約1/4に相当する。

この解析は、単に年度間の濃度変化を検討した

表1 O_x 測定方法変更による濃度変化の違い

年度	日最高値濃度上昇量平均(ppb)		
	変更局	非変更局	差
1999	7.7(10)	3.9(22)	3.8**
2000	-0.3(4)	-1.9(28)	1.6*
2001	-1.5(10)	-2.1(22)	0.6
2002	3.0(3)	0.2(29)	2.8
2003	4.0(1)	-0.2(31)	4.2
2004	(0)	2.1(32)	
2005	0.3(4)	-1.9(28)	2.2
平均(変更局数加重平均)			2.3

(1) 年度は変更年度を示し、変更局と非変更局に分けて、その翌年度への濃度上昇量を算出。

(2) ()内は対象局数

(3) **: 1%危険率で有意 * : 5%危険率で有意

ものであり、測定方法の変更が年度途中にあったことや測定局が設置された地域特性を考えていない。したがって、得られた数値から単純に評価はできないが、2000年度前後に見られる大きめの濃度上昇の一部には、測定方法変更の影響を含んでいる可能性が考えられ、また、測定方法が変更された時期を境にして、その前後の期間にわずかながら濃度の過小または過大評価が考えられる。しかし、上で述べたように不確定要素があるので、定量的な補正を行うことは困難である。また、見積もられた影響は観測値に対しては5%以下であり、大きくなかった。したがって、以降の検討では測定方法変更の影響を考慮せず、観測データをそのまま使用した。

4.3 地域的な特徴

埼玉県内の地域別のO_x濃度の特徴を検討した。埼玉県においては、O_xが高濃度になりやすい春から夏の日中は海風により南～南東から北～北西に向かう風が卓越する。その結果、県南部が風上、県北部が風下という関係になる。そこで、主にこの風向に沿って県を北部、中部、南部に3分割し、さらに中部を東西に分けた地域区分を考えた。各地域区分から、長期間継続観測を行っていること、NMHC等の関連物質観測を行っていること、地理的な偏りがないことなどから代表的と考えられる3または4測定局を抽出し、以下の解析に供した。地域区分と抽出測定局を図6に示す。また、次節で検討する気象要素の測定局も図6に示す。

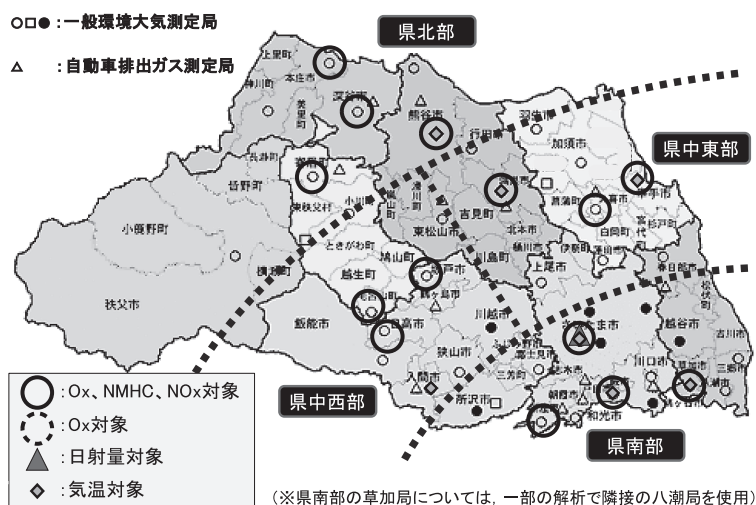


図6 解析対象地域区分と抽出測定局

各地域区分のOx濃度の推移を、日最高値について図7に示す。1990年度ごろは県中西部>県北部>県中東部、県南部の順で濃度差が見られていたが、その後、県北部が県中西部と同等となり、現在では県中東部もほぼ同等となっている。県南部はそれ以外の地域区分に比べて低濃度で推移しているが、上昇率が大いなので、以前よりも濃度差は縮小している。このように、1990年度ごろには埼玉県内で地域による濃度差が見られていたが、濃度上昇に伴い、県内の濃度が広範囲に均質化してきている。

この原因を考えるために、同じ地域区分別に、一酸化窒素(NO)濃度とNMHC/NOx比の推移を図8に示す。NMHC/NOx比はOx生成速度やOx濃度の上昇レベルの目安にも考えられている⁸⁾。2005年度以降この値が増加しており、Ox濃度上昇の一因となっていることが考えられるものの、この期間全体ではむしろNMHC/NOx比は低下傾向となっており、地域ごとの特徴も明瞭ではない。一方、Oxの主成分であるO₃は、NOとの反応によりNO₂に変化することで分解する過程がある。NOx濃度が低下傾向である現在では、以前から高濃度であった県南部で、よりNOx排出削減が進み、図8に示すようにNO濃度がほかの地域よりも低下率が大きかったことによって、O₃の分解過程が減少していることが考えられる。

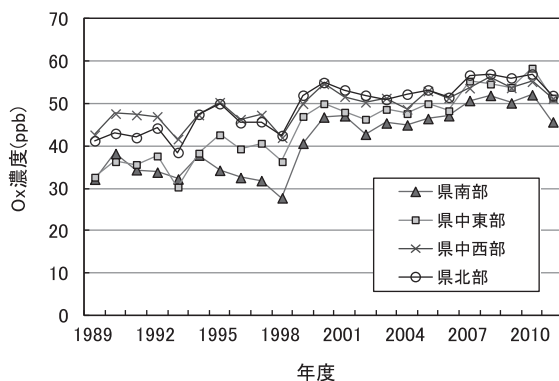


図7 地域区分ごとのOx濃度日最高値の推移

このことを検討するための指標として、ポテンシャルオゾン(PO)を用いた⁹⁾。これは、O₃とNOの反応によって生成したNO₂も潜在的なO₃と考え、したがって、NOの増減による反応では変化しない保存量であり、以下の式により求められる。ここで、 α は発生源における排出段階で存在するNO₂のNOxに対する割合で、一般的に0.1が使用される。

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

図6の測定局を対象にPO濃度を算出し、地域別の推移を図9に示す。この期間では全体を通して地域による濃度差がほとんどなくなっている。大阪市内のOx濃度が異なる地域の測定局を対象にPO濃度を求めたところ、ほぼ同程度になった

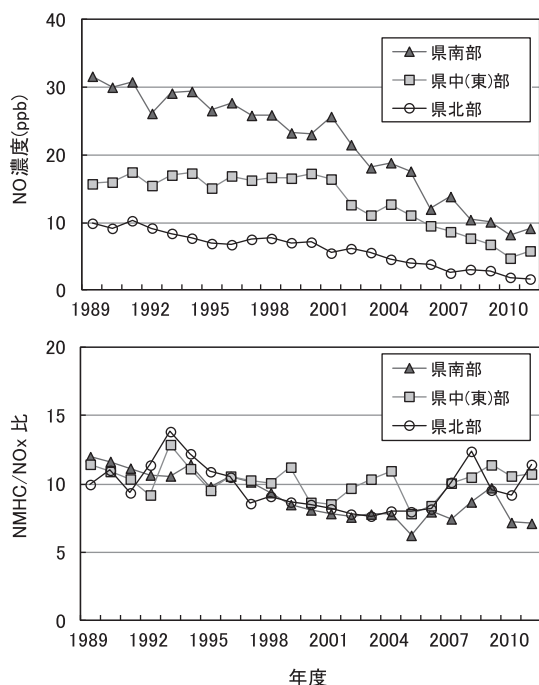


図8 地域区分ごとのNO濃度日平均値とNMHC/NOx比の推移

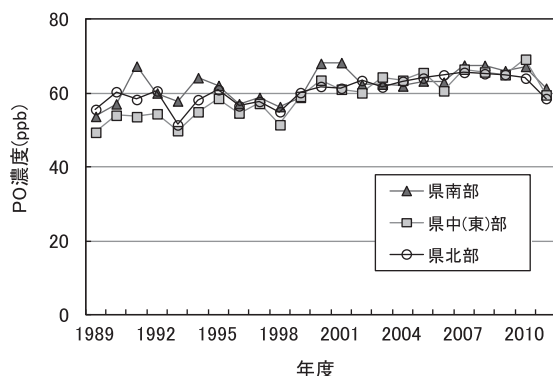


図9 地域区分ごとのPO濃度日最高値の推移

報告¹⁰⁾があり、このことと一致している。したがって、上述のとおり、Oxで観測される地域差はNOとの反応によるO₃分解が反映されており、NOの減少によって県南部のより大きいOx濃度上昇が起きていることがわかる。また、県全体のOx濃度日最高値の上昇率を一次回帰式から求めると0.80 ppb/年(1.72%/年)であったが、PO濃度日最高値の上昇率は0.48 ppb/年(0.79%/年)であり、上昇率は小さくなっていた。このことから、県全体のOx濃度上昇についてもNOに

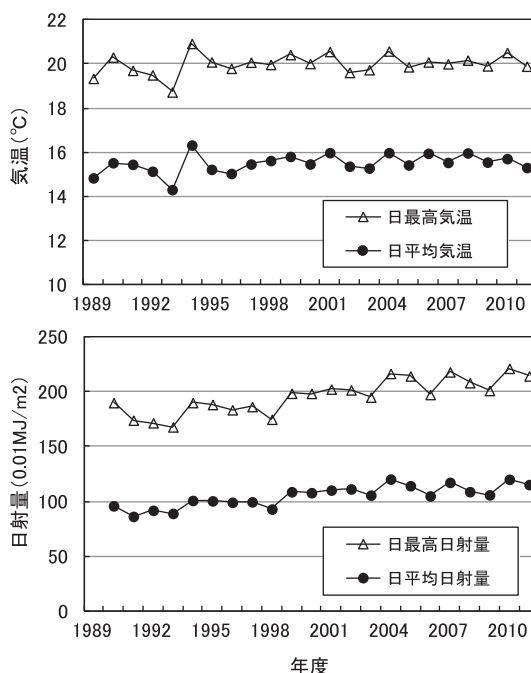


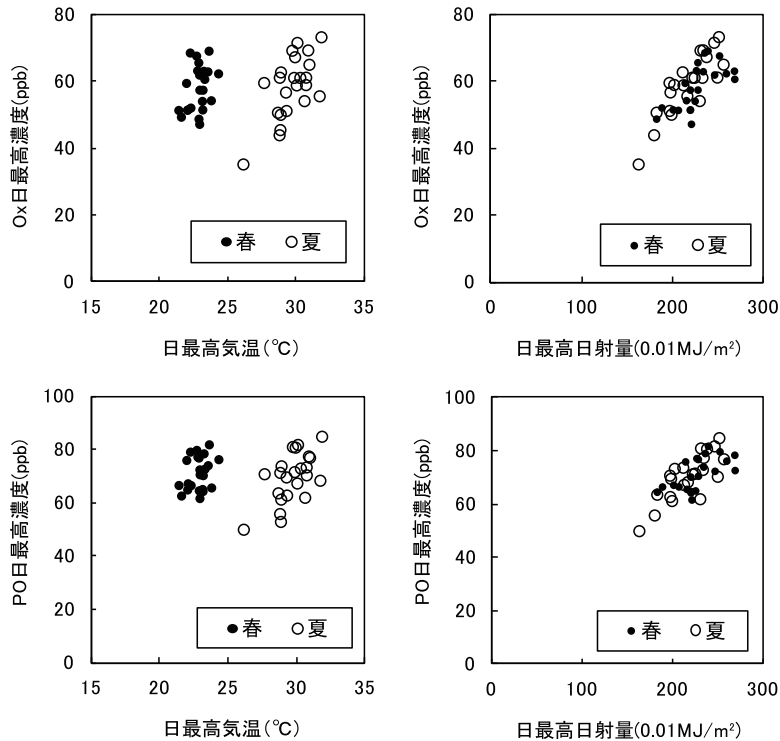
図10 気象要素の推移

よるO₃分解の減少が関与していると考えられるが、それを除外してPOによって評価しても上昇傾向は認められる。

4.4 気象要素との関係

近年、原因物質濃度が減少しているにもかかわらずOx濃度が上昇しているのは埼玉県だけの現象ではない。この要因として、温暖化や紫外線増加などの気象変動、東アジア等からの越境汚染、光化学反応状況の変化などが考えられている^{11,12)}。そこで、気象要素のうちOx生成への影響が強いと考えられる気温および日射量とOx濃度との関係を検討した。これらのデータは、Oxを含めて図6に示す測定局のものを使用した。

気温と日射量の推移を図10に示す。気温、日射量ともに、この期間では上昇傾向が見られる。春(4～6月)と夏(7～9月)に分けて、これらとOxおよびPO濃度日最高値との散布図を図11に、相関係数を表2に示す。気温、日射量ともにOxおよびPOと正の相関が認められるが、日射量の方が強く、とくに夏の日最高日射量とOxおよびPO濃度日最高値との相関係数は0.8以上と非常に大きかった。季節別にみると、気温では春と夏で分布領域が離れており、たとえば春と夏で

図 11 気象要素と O_x 濃度、PO 濃度との関係表 2 O_x 日最高濃度と気象要素との相関係数

気象要素	対 O _x		対 PO	
	春	夏	春	夏
日最高気温 (n=22)	0.29	0.64**	0.20	0.61**
日最高日射量 (n=22)	0.68**	0.85**	0.63**	0.80**

(1) 1989 年度に日射量観測が未実施なので、1990 年度からのデータで集計

(2) **: 1% 危険率で有意 * : 5% 危険率で有意

異なる気温であっても同レベルの O_x 濃度になっている。これに対して、日射量では春と夏の分布領域がまったく重なっており、同等の日射量には同等の O_x 濃度が対応している。このことと相関係数の大きさにより、気温よりも日射量の方が支配的な影響因子と考えられる。

参考として、熊谷地方気象台が公表している日照時間¹³⁾の推移を図 12 に示す。変動が大きいものの、ほぼ横ばいといえる。日照時間当たりの日射量を求めても増加傾向があり、近年は、日照時間によらない日射のエネルギー自体が増大している傾向が認められる。これは大気混濁度の推移が反映しており、原因として、ピナトゥボ火山噴火

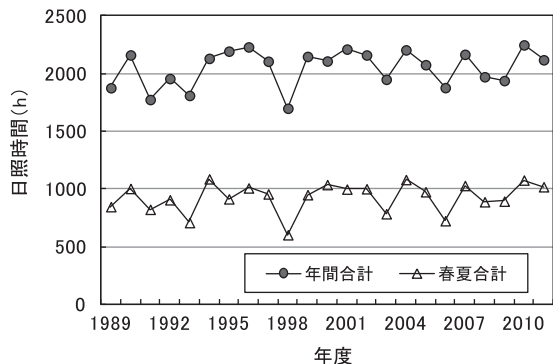


図 12 日照時間の推移

以降の成層圏混濁度の減少と対流圏エアロゾルの減少などが考えられている¹⁴⁾。以上のように、日射量をはじめとする気象要素と O_x の濃度上昇との関連性が示唆される。

2010 年度は日射量がこの期間では最高レベルになっており、気温も高くなっている。この年の夏は観測史上最高の気温となっており、O_x 濃度がとくに高くなっているのは、この影響が大きいと考えられる。

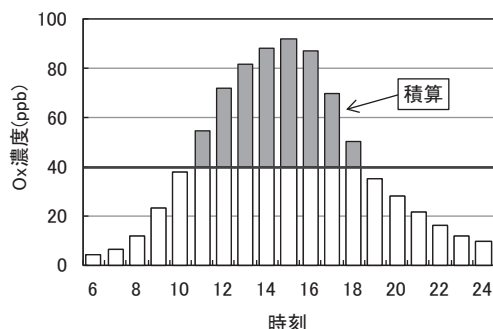


図 13 AOT40 算出の模式図

4.5 高濃度レベル O_x の出現状況

O_x の評価基準としては、環境基準である 60 ppb や注意報発令基準である 120 ppb が用いられ、それを超える高濃度の出現状況の指標としては、超過時間数が公表されている。これは単に基準となる濃度を超過した時間数を積算したもので、どの程度まで濃度が上昇したかという情報を含んでいない。そこで、ここでは上昇濃度まで考慮した高濃度出現状況を数値化するために、ある基準濃度を超過した部分の 1 時間値を積算した指標（以下、超過積算濃度）を算出した。これは、O_x による植物影響を評価する場合に使用される AOT40（40 ppb を超過した部分の積算値；Accumulated exposure Over a Threshold of 40 ppb、図 13 参照）の手法¹⁵⁾を引用したものである。

図 3 を見ると、昼間平均値と日最高値は明らかな濃度上昇となっているが、年最高値は上昇傾向が緩やかであり、2005 年度からは低下傾向にも見える。そこで、高濃度レベルでの出現状況を検討するために、60 ppb、120 ppb、150 ppb の各濃度を基準として、図 6 の測定局を対象に 1 局平均の超過積算濃度を求めたものを図 14 に示す。

60 ppb 超過では、O_x 濃度の昼間平均値や日最高値と同様に、上昇傾向が認められる。しかし、120 ppb 超過と 150 ppb 超過では、2005 年度前後までは上昇しているが、2010 年度はとくに気象要素に起因する濃度上昇が大きいと考えられることを踏まえれば、2005 年度以降はむしろ低下傾向が認められる。平均的な濃度は上昇し、あるいは環境基準を超える程度の濃度の出現頻度は増加しているが、さらにそれを上回る注意報レベルを超える高濃度については、上昇濃度を加味した出現頻

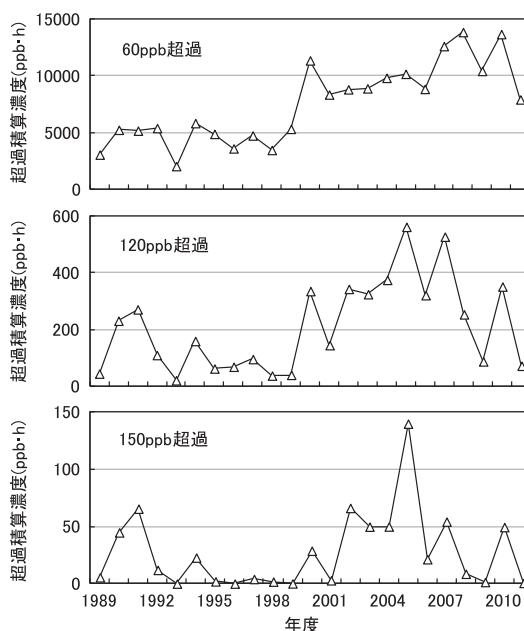


図 14 高濃度レベルの超過積算濃度の推移

度が減少していると考えられることができる。

埼玉県では O_x 濃度の低減のために、1988 年から指導指針で、2002 年からは条例で、炭水素類の排出抑制対策を行ってきた。さらに大気汚染防止法により、全国的に揮発性有機化合物 (VOC) の規制および自主的取組みが開始されたのが 2006 年であり、その後、順調に VOC の排出削減が進行している。環境省の排出インベントリ¹⁶⁾によると、VOC 排出量は、2006 年度、2007 年度はそれぞれ前年度比の 3～5 % 減、2008 年度と 2009 年度は同 10 % 減であった。

環境省光化学オキシダント調査検討会では、関東地方と近畿地方の O_x 濃度について、高濃度順にパーセンタイル値で区分して集計したところ、高濃度側の順位の濃度が 2005～2006 年度を境に低下傾向に転じていることから、原因物質の削減対策の効果に言及している¹⁷⁾。埼玉県のデータから超過積算濃度で検討しても同じ傾向であり、最近の O_x 高濃度出現状況の減少については、VOC 対策の効果が現われている可能性が考えられる。

5. ま と め

埼玉県の大気環境には近年改善が見られる。各物質の濃度状況と環境基準達成状況の両方が把握

できる指標として、環境基準比で評価した。これによっても Ox 以外の物質の改善状況が確認でき、県内平均としてはいずれも環境基準比0.5以下になっていた。Ox の状況は全地点が環境基準の2倍以上であり、依然として環境基準だけではなく、注意報レベルも超過している状況が継続している。

Ox 濃度については、日平均値と日最高値は上昇傾向であるが、年最高値の上昇は緩やかであった。Ox 濃度の近年の特徴をさまざまな観点から検討した結果、以下のことが考えられた。

- ① 2000年度前後の Ox 濃度上昇の一部は、測定方法が湿式法から乾式法に変更になったことの影響を含んでいる可能性があった。
- ② 近年は県北部や県中部よりも県南部の濃度上昇が大きくなったために、最近では地域間の濃度差が小さくなってきており、これは主に NO 濃度低下により O₃ の分解が減少していることが関与していた。
- ③ Ox 濃度はとくに日射量との相関が強いなど、気象要素との関係が認められ、近年の気温や日射量の上昇に伴って上昇している傾向があった。
- ④ 注意報を超えるレベルの Ox 高濃度の出現状況には2005年度以降減少傾向が見られ、VOC 対策の効果が現われている可能性が示唆された。

本報では、近年の埼玉県における環境基準設定物質の状況をまとめ、そのうえで主に Ox 濃度の状況を原因物質や気象要素の観点から考察したが、それらの影響の定量化にまでは至っていない。さらに、Ox 濃度上昇原因の一つとしてあげられる越境汚染については、ここでは考慮していない。また、VOC 対策の効果についても言及したが、ここで対象としているのは人為起源の VOC である。人為起源 VOC が減少傾向の現在では、植物起源 VOC の寄与が相対的に増大していることが考えられる。したがって、Ox の動態

や濃度変化の要因を詳細に解析するためには、植物起源 VOC の発生量と組成を含めて、さらに掘り下げた現状分析を行い、観測データの今後の動向にも注視する必要がある。

—引用文献—

- 1) 埼玉県大気環境課：埼玉県の大気環境，<http://www.tai-ki-kansi.pref.saitama.lg.jp/kankyo/main>, 2012
- 2) 埼玉県大気環境課：大気環境調査事業報告書(各年度版)，1999～2012
- 3) 杉本伸夫：大気汚染指数 API から見た中国の大気環境の変化，大気環境学会誌，**43**，295-300，2008
- 4) メキシコ連邦区：<http://www.sma.df.gob.mx/simat2/>
- 5) 環境省：平成22年度大気汚染状況について～微小粒子状物質(PM2.5)～《一般環境大気測定局，自動車排出ガス測定局の測定結果報告》，2012
- 6) 大原利真編：光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究，国立環境研究所研究報告，**203**，175，2010
- 7) 阿相敏明：湿式法から乾式法への変更で評価の変わる関東地域における光化学オキシダント濃度，全国環境研会誌，**31**，85-91，2006
- 8) 光化学オキシダント対策検討会：光化学オキシダント対策検討会報告，p66，2005
- 9) 大原利真編：光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究，国立環境研究所研究報告，**203**，159，2010
- 10) 板野泰之：大阪市における光化学オキシダント研究と国環研と地環研の C 型(Ⅱ型)共同研究，第3回光化学オキシダント調査検討会資料，2011
- 11) 大原利真，坂田智之：光化学オキシダントの全国的な経年変動に関する解析，大気環境学会誌，**38**，47-54，2003
- 12) 光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会：光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会報告書中間報告，pp22-41，2007
- 13) 熊谷地方気象台：埼玉県の気象・地震概況(各月版)，1989～2011
- 14) 気象庁：大気・海洋環境観測報告，**12**，2012
- 15) 伊豆田猛，松村秀幸，河野吉久，清水英幸：樹木に対するオゾンの影響に関する実験的研究，大気環境学会誌，**36**，60-77，2001
- 16) 環境省：揮発性有機化合物排出インベントリについて，p259，2011
- 17) 光化学オキシダント調査検討会：光化学オキシダント調査検討会報告書—今後の対策を見すえた調査研究のあり方について—，pp50-105，2012