日本のVOC及び光化学オキシダント・粒子状物質対策について

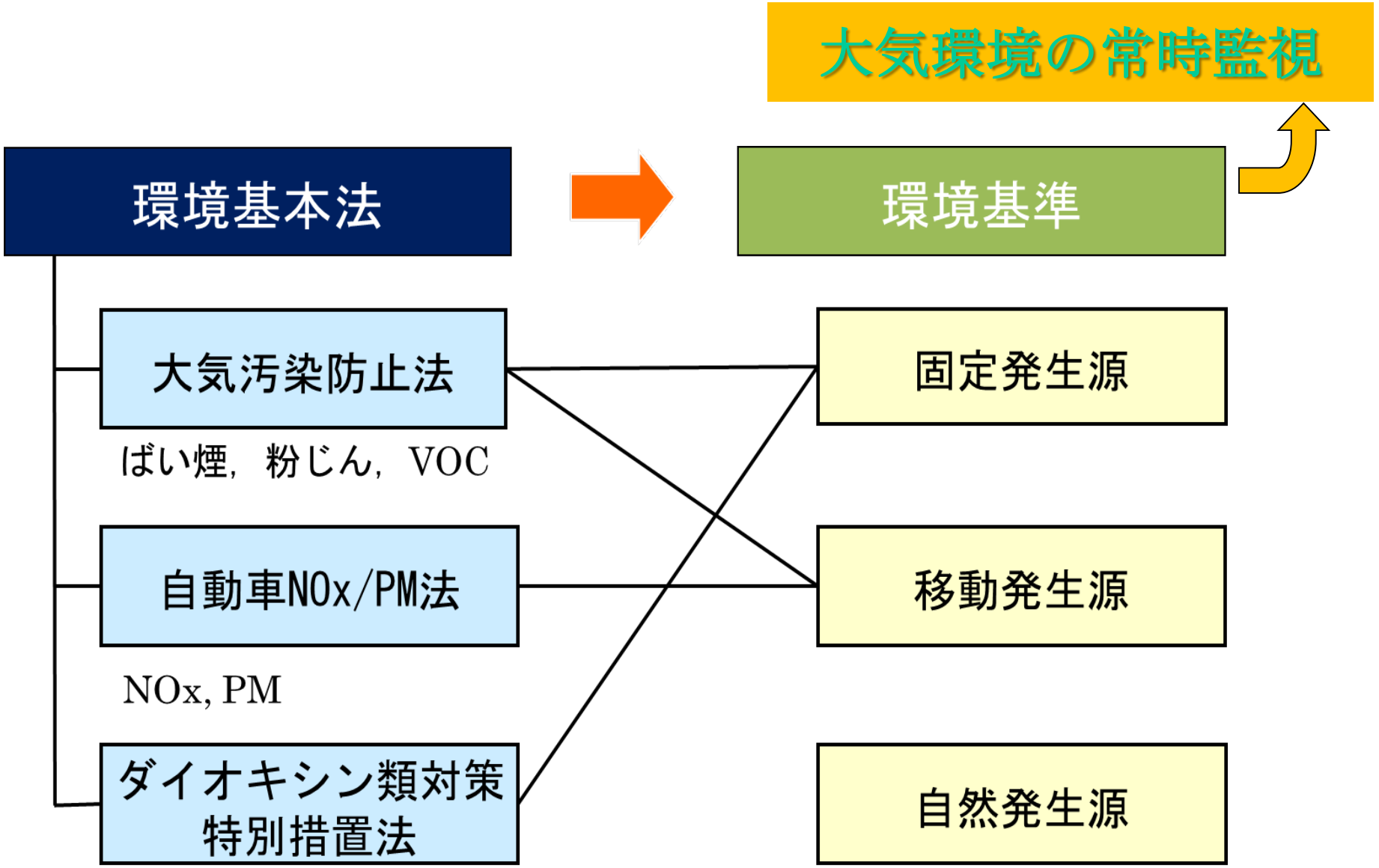
(一財)日本環境衛生センター
アジア大気汚染研究センター
(ACAP)

坂本和彦

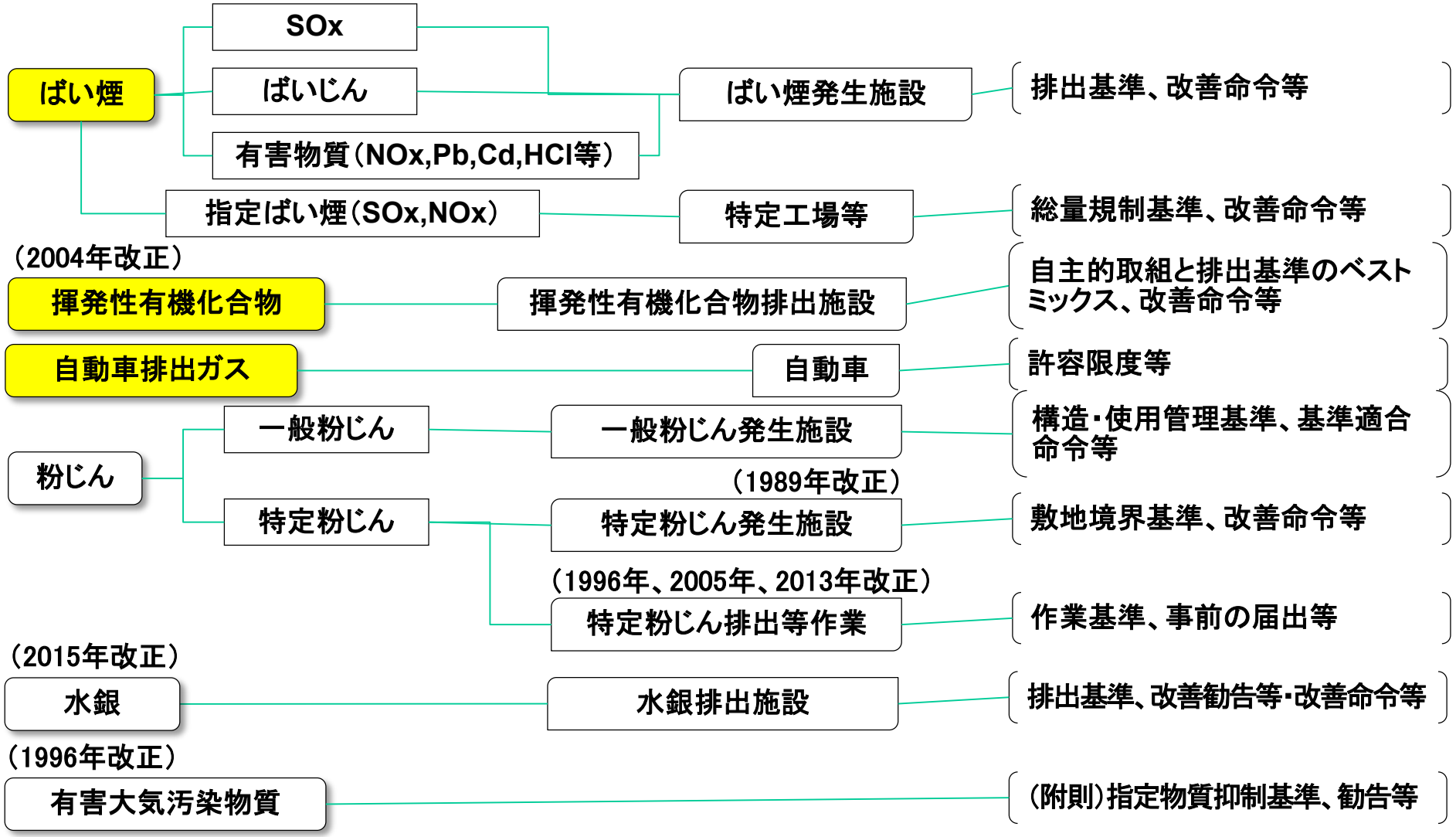
本 日 の 内 容

1. はじめに
2. NO_2、SPM(≒ PM_7):
   自動車排ガス対策
3. SPM(≒ PM_7)、Ox:
   VOC排出抑制対策
4. $PM_{2.5}$:
   一次粒子/前駆体の発生源対策

大気環境の保全に係る法規制



大気汚染防止法(1968年)



大気の汚染の状況の監視

環 境 基 準(環境基本法第16条)

政府は、大気の汚染、水質の汚濁、土壌の汚染及び騒音に係る環境上の条件について、それぞれ、人の健康を保護し、及び生活環境を保全する上で維持することが望ましい基準を定めるものとする。

政府は大気や水質等をどの程度に保つことを行政上の目標としていくかという「**環境基準**」 を定め、 その達成に向けて各種の施策を実施していく。

1. 大気汚染に係る環境基準

① 1969年　硫黄酸化物(1973年二酸化硫黄に改定)(SO2)　1時間値の1日平均値が0.04ppm以下、かつ、1時間値が0.1ppm以下

② 1970年　一酸化炭素(CO)　1時間値の1日平均値が10ppm以下、かつ、1時間値の8時間平均値が20ppm以下

③ 1972年　浮遊粒子状物質(SPM)　1時間値の1日平均値が0.10mg/m^3 以下、かつ、1時間値が0.20mg/m^3 以下

④ 1973年　二酸化窒素(1978年改定)(NO2)　1時間値の1日平均値が0.04ppmから0.06ppmまでのゾーン内かそれ以下

⑤ 1973年　光化学オキシダント(Ox)　1時間値が0.06ppm以下、かつ、非メタン炭化水素濃度の午前6-9時の3時間平均値が0.02ppmCから0.031ppmCの範囲内またはそれ以下

⑥ 2009年 9月　微小粒子状物質(ＰM2.5) 年平均値：15μg/m^3 日平均値：35μg/m^3

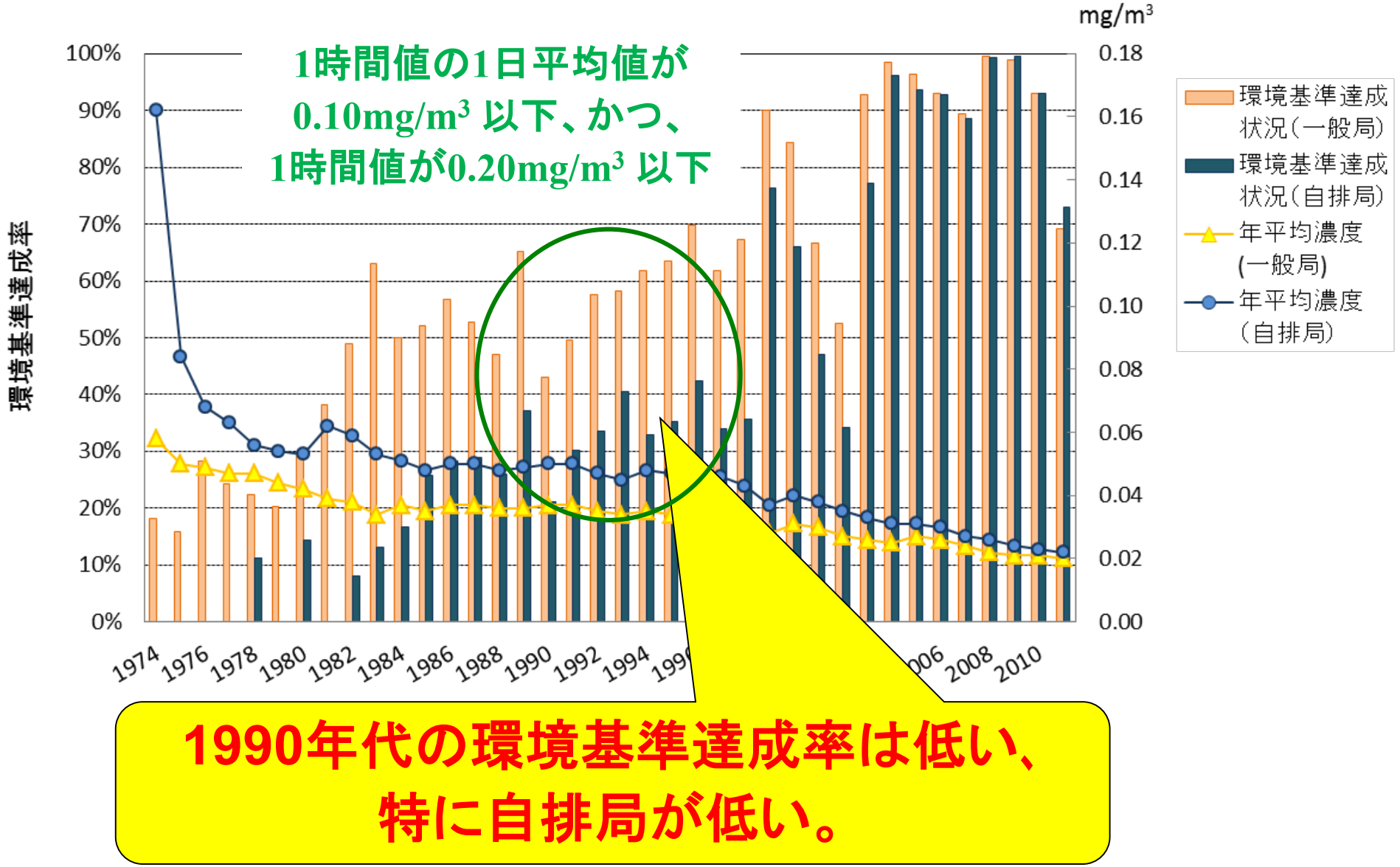
大気汚染物質の寿命と輸送距離

寿命 / 輸送距離 (km)	1秒ー10分	10分ー数日	数日ー1~2週間	2週間ー数年
局地スケール 10m—1km	粉塵 砂粒			
メソスケール 1ー数100km		NO, NO_2, O_3 粗大粒子		
広域~半球 100—1万km			SO_2, NO_2, O_3 微小粒子	
半球~地球 1万ー数10万km				CO_2, CO, COS, CH_4

本 日 の 内 容

1. はじめに
2. NO_2、SPM(≒ PM_7):
   自動車排ガス対策
3. SPM(≒ PM_7)、Ox:
   VOC排出抑制対策
4. $PM_{2.5}$:
   一次粒子/前駆体の発生源対策

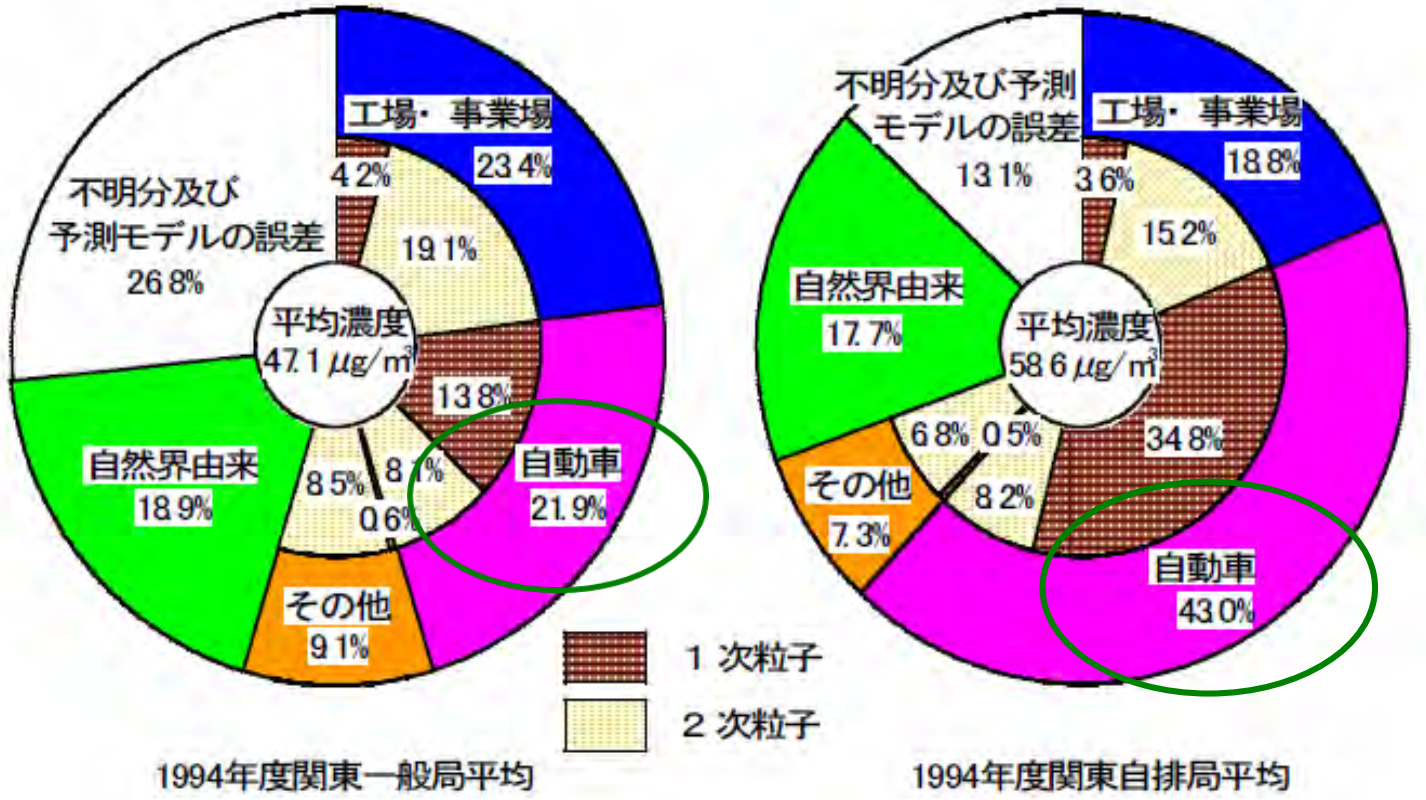
大気中濃度の推移（SPM ≒ PM_7）



1990年代の環境基準達成率は低い、特に自排局が低い。

SPM(≒ PM7)(1994)の発生源別寄与濃度割合

出典：環境省環境管理局「2004年度結果報告書」より



多くがトラック(87%)・バス(6%)(ディーゼル自動車)起源

⇒　ディーゼル自動車の排ガス規制強化の必要性

自動車単体規制

＜新車についての排出ガス単体規制の仕組み＞

環境省

大気汚染防止法　第19条

自動車の排出ガスの許容限度

国土交通省

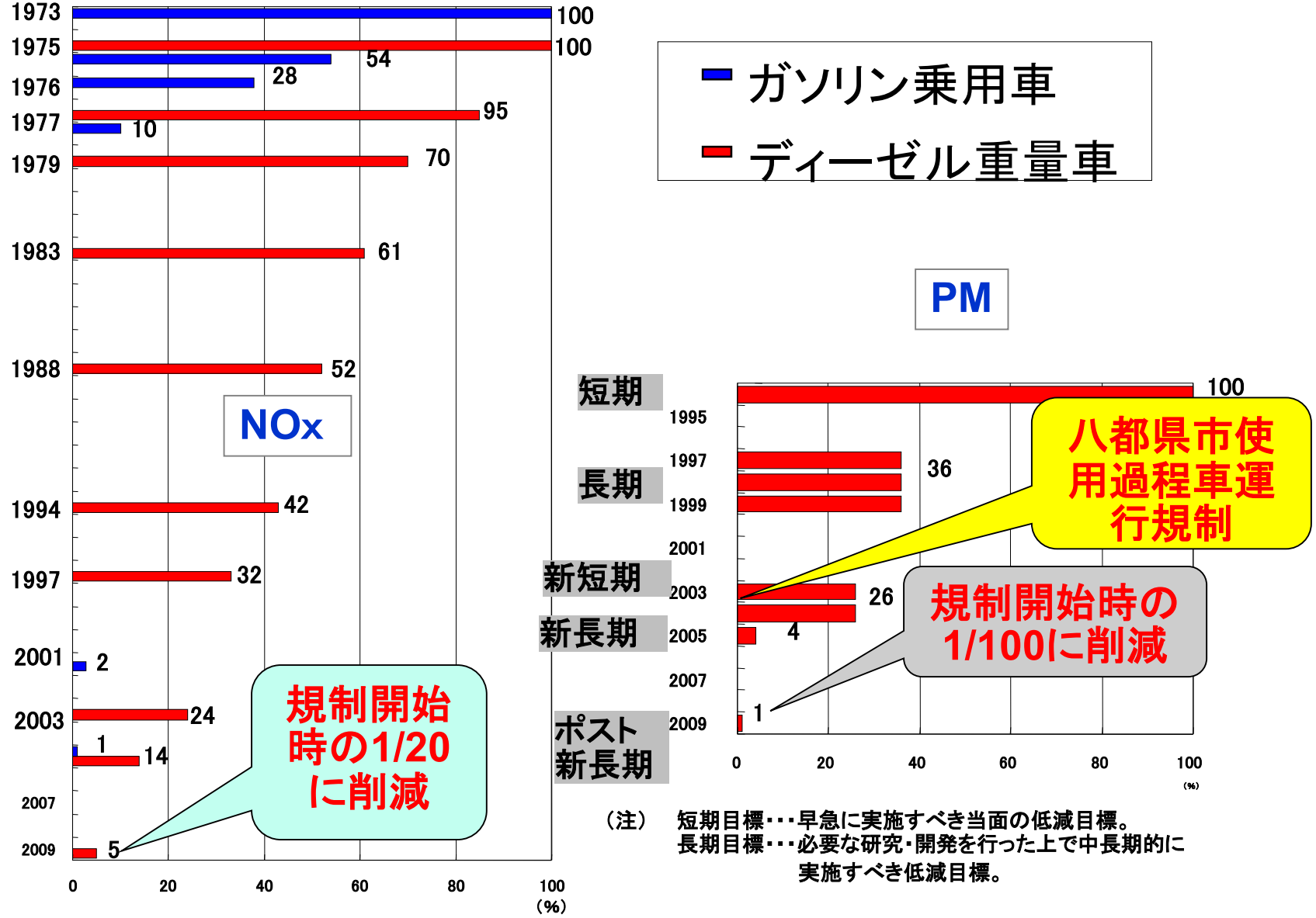
道路運送車両法

保安基準で自動車排出ガスの基準を定める。

基準を満たさないものは新規登録できない。

2010までの新車についての排出ガス単体規制

＜規制値の推移＞



（注）　短期目標・・・早急に実施すべき当面の低減目標。
長期目標・・・必要な研究・開発を行った上で中長期的に実施すべき低減目標。

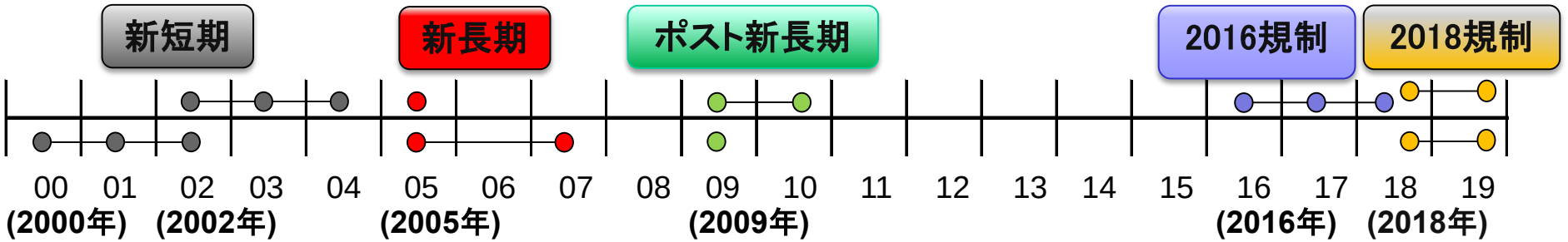
新車についての排出ガス単体規制

燃料別排出ガス規制強化の経緯

●2016年規制（車両総重量3.5t超のトラック・バスに適用）
中央環境審議会第10次答申（2010年７月）において、次のとおり適用する旨の提言がなされた。
2016年：下記以外の車両
2017年：トラクタ
2018年：車両総重量7.5t以下

●2018年規制（乗用車及び車両総重量3.5t以下のトラック・バスに適用）
中央環境審議会第12次答申（2015年２月）において、次のとおり適用する旨の提言がなされた。
2018年：乗用車（軽乗用車含む）及び車両総重量1.7t以下のトラック・バス
2019年：軽トラック及び車両総重量1.7t超3.5t以下のトラック・バス

ディーゼル車



ガソリン車

（注）
短期目標・・・早急に実施すべき当面の低減目標。
長期目標・・・必要な研究・開発を行った上で中長期的に実施すべき低減目標。

自動車NOx・PM法の概要

車種規制　＝　既に使用している自動車に対する排出ガス規制

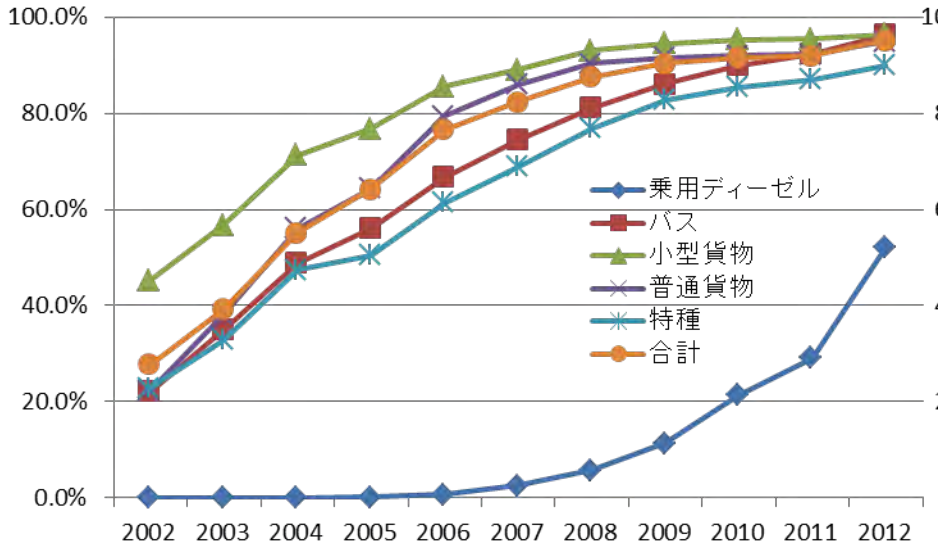
- **対象地域：首都圏、大阪・兵庫圏、愛知・三重圏**

- 主な対策：（国）総量削減基本方針の変更、
  （自治体）総量削減計画の策定、車種規制、事業者に対する措置、
  局地汚染対策※、流入車対策※
  - 対象：トラック、バス、ディーゼル乗用車　等
  - 規制値：ディーゼル乗用車、トラック・バス（3.5トン以下）
    ・・・　ガソリン車並み
    トラック、バス（3.5トン超）
    ・・・　規制施行当時（平成14年）の
    最新のディーゼル車（長期規制適合車）並み
  - 規制値を超える自動車：登録ができない（車検更新ができない）
  - 初度登録からの猶予期間：車種に応じ、猶予期間を設定

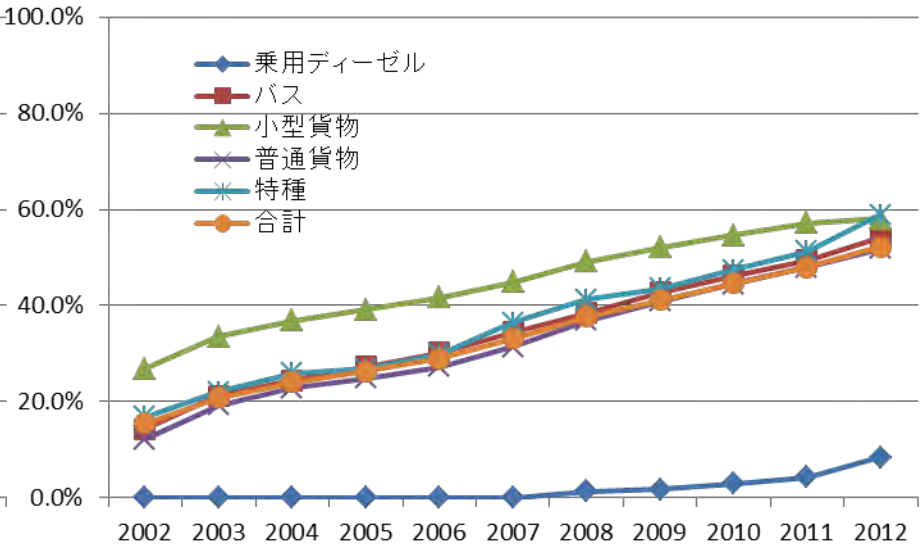
車種規制の効果

- 対策地域内の排出基準適合率の伸びは対策地域外に比べて大きく、対策地域内では排出ガスが少ない車両への代替が早く進んでいる。
- 排出基準適合率は年々増加しているが、対策地域外における割合は、対策地域内の約１／２となっており、対策地域外において排出基準適合車の普及が遅れている。

保有自動車の排出基準適合率

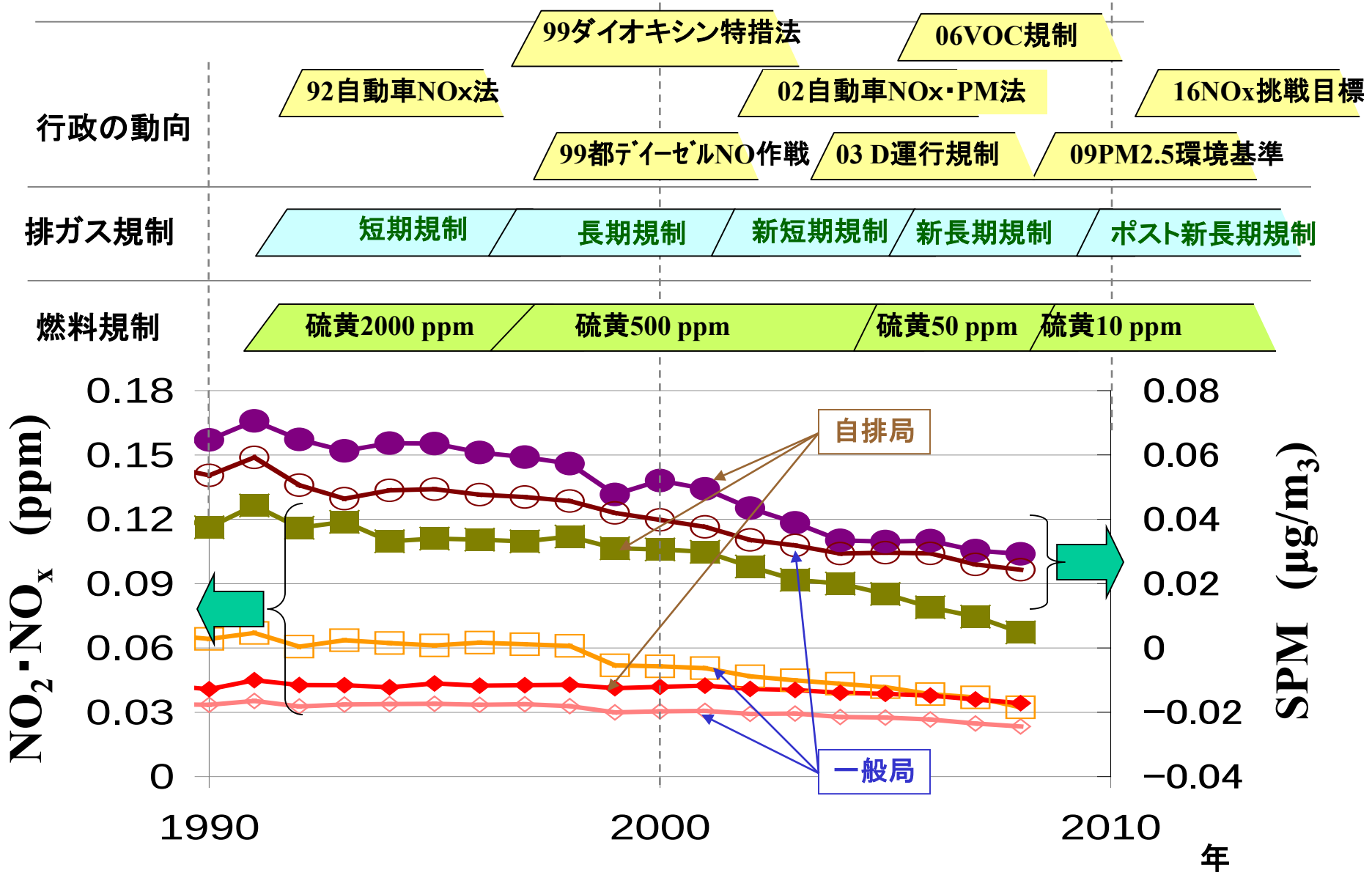


８都府県対策地域内

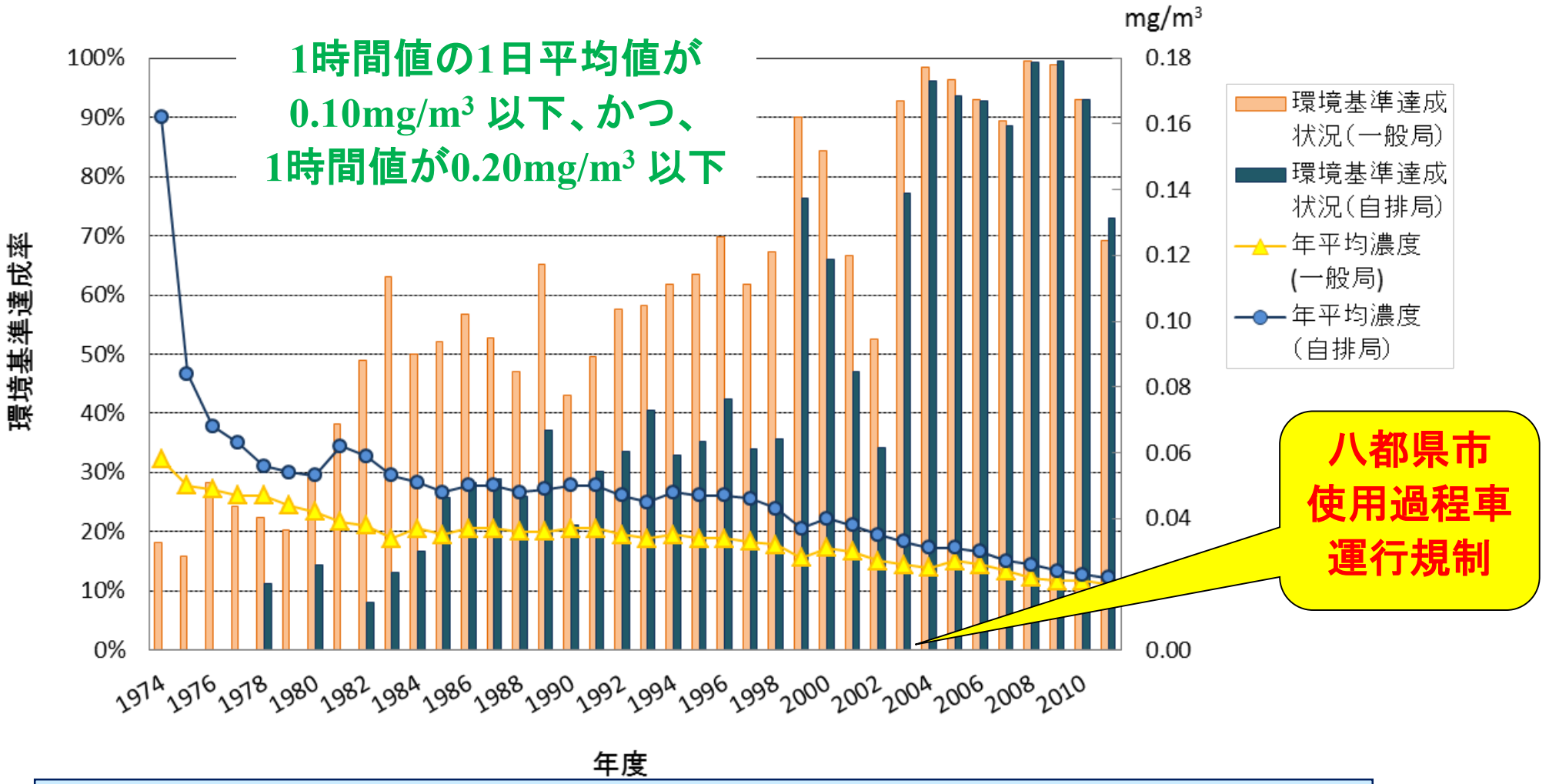


８都府県対策地域外

大気環境濃度の推移と規制の動向

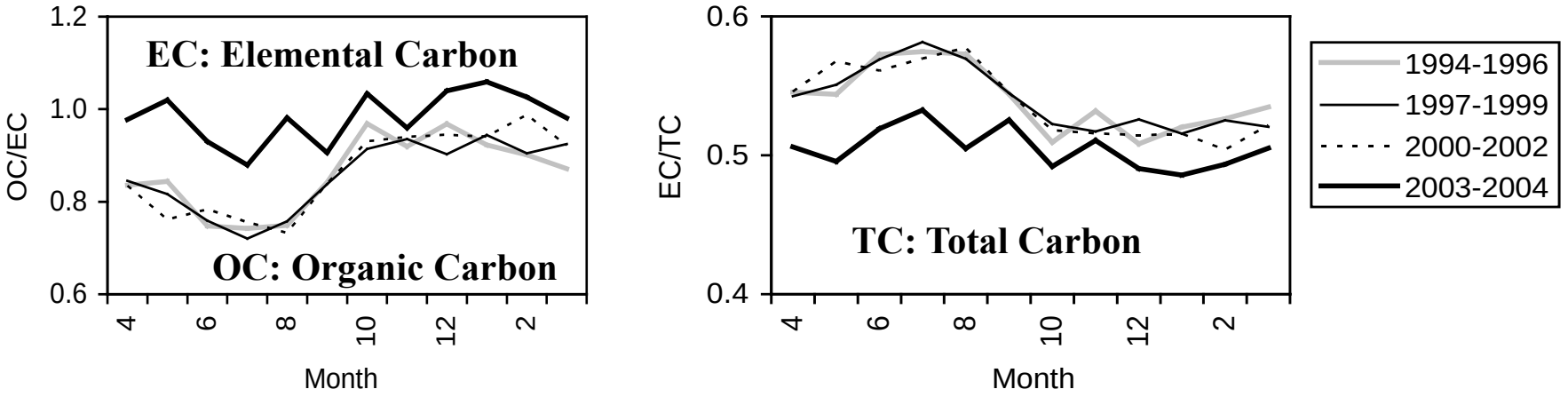


大気中濃度の推移（SPM ≒ PM7）



環境基準達成率は、一般局、自排局ともに高い

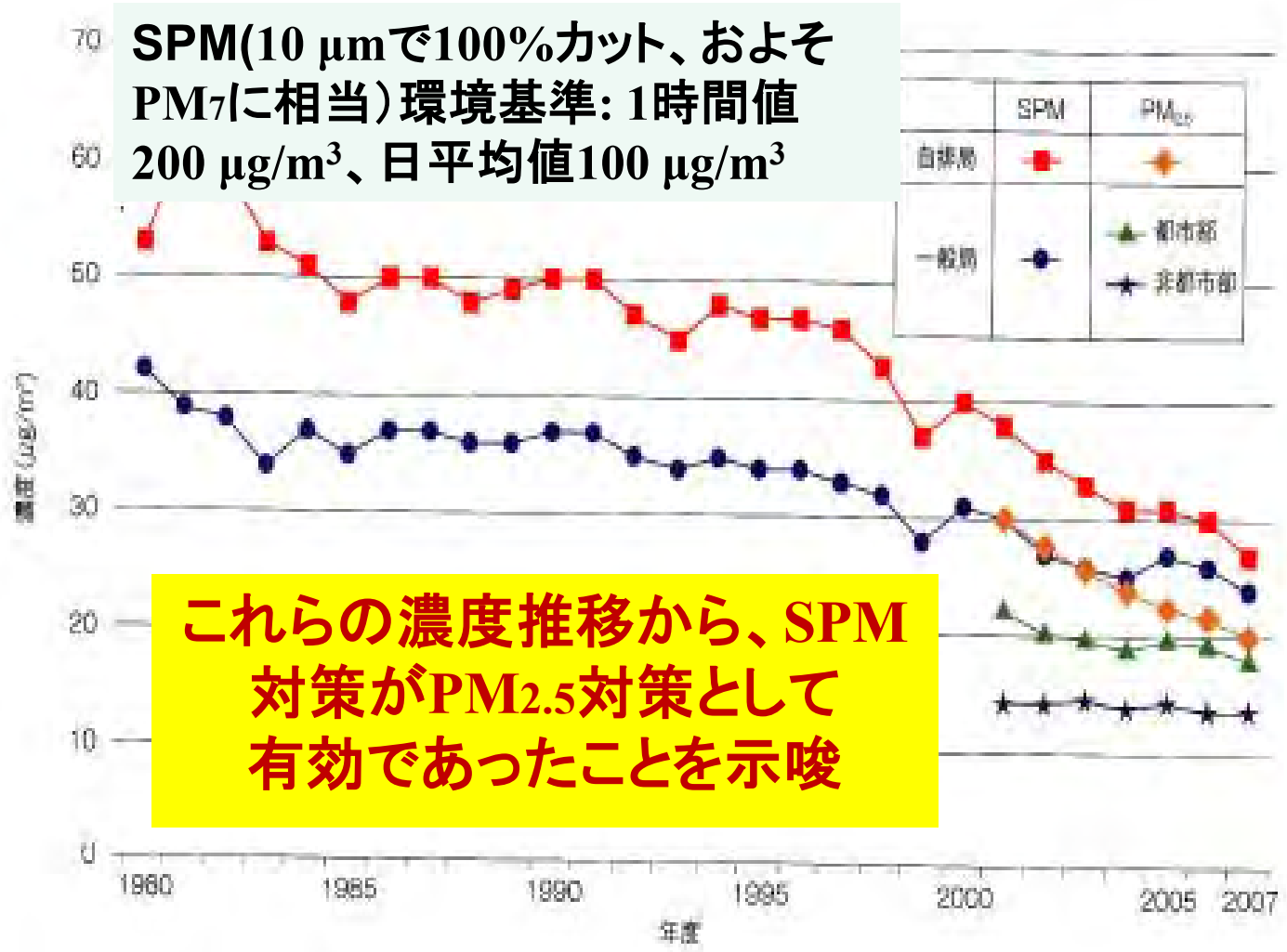
ディーゼル車運行規制(2003)の効果



- 首都圏のディーゼル車運行規制（2003年10月開始）により炭素成分組成が変化した可能性がある
  - スス(EC)排出量が相対的に低下？
- 規制前後のOC/EC比，EC/TC比を比較
  - 2003年以降ECの低下が認められる
  - ディーゼル車からの寄与割合が高いECが効果的に低減(DPF設置の効果等)
- 規制が沿道だけではなく一般環境にも効果

日本におけるSPM(≒ PM_7)と$PM_{2.5}$ 濃度の経年変化

SPM(10 μmで100%カット、およそPM_7に相当）環境基準: 1時間値200 μg/m³、日平均値100 μg/m³



これらの濃度推移から、SPM対策が$PM_{2.5}$対策として有効であったことを示唆

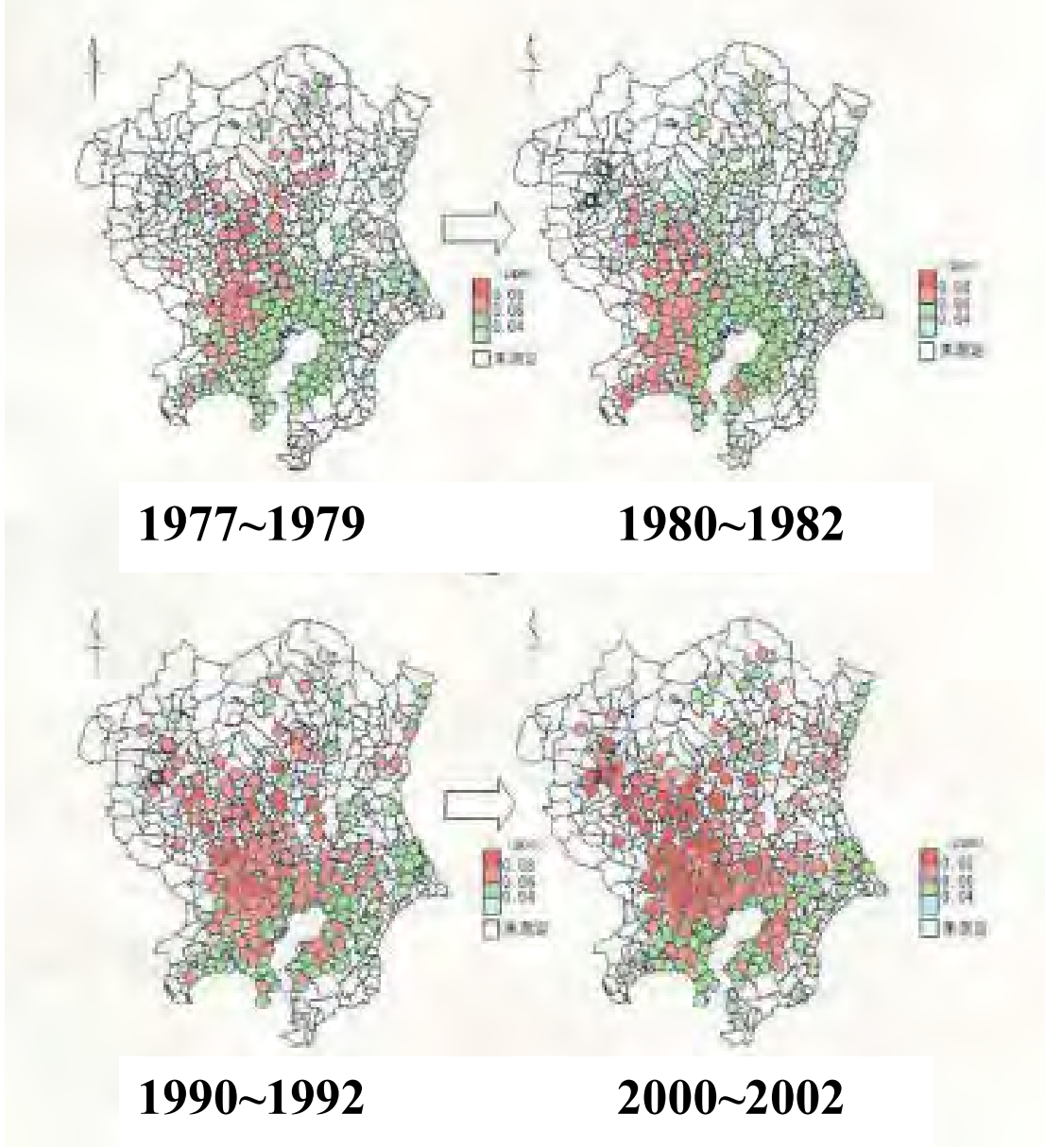
TEOM：50℃に加温

2009年　PM2.5環境基準値　年平均値 15 μg/m³、日平均値 35 μg/m³

本 日 の 内 容

1. はじめに
2. NO_2、SPM(≒ PM_7):
   自動車排ガス対策
3. SPM(≒ PM_7)、Ox:
   VOC排出抑制対策
4. $PM_{2.5}$:
   一次粒子/前駆体の発生源対策

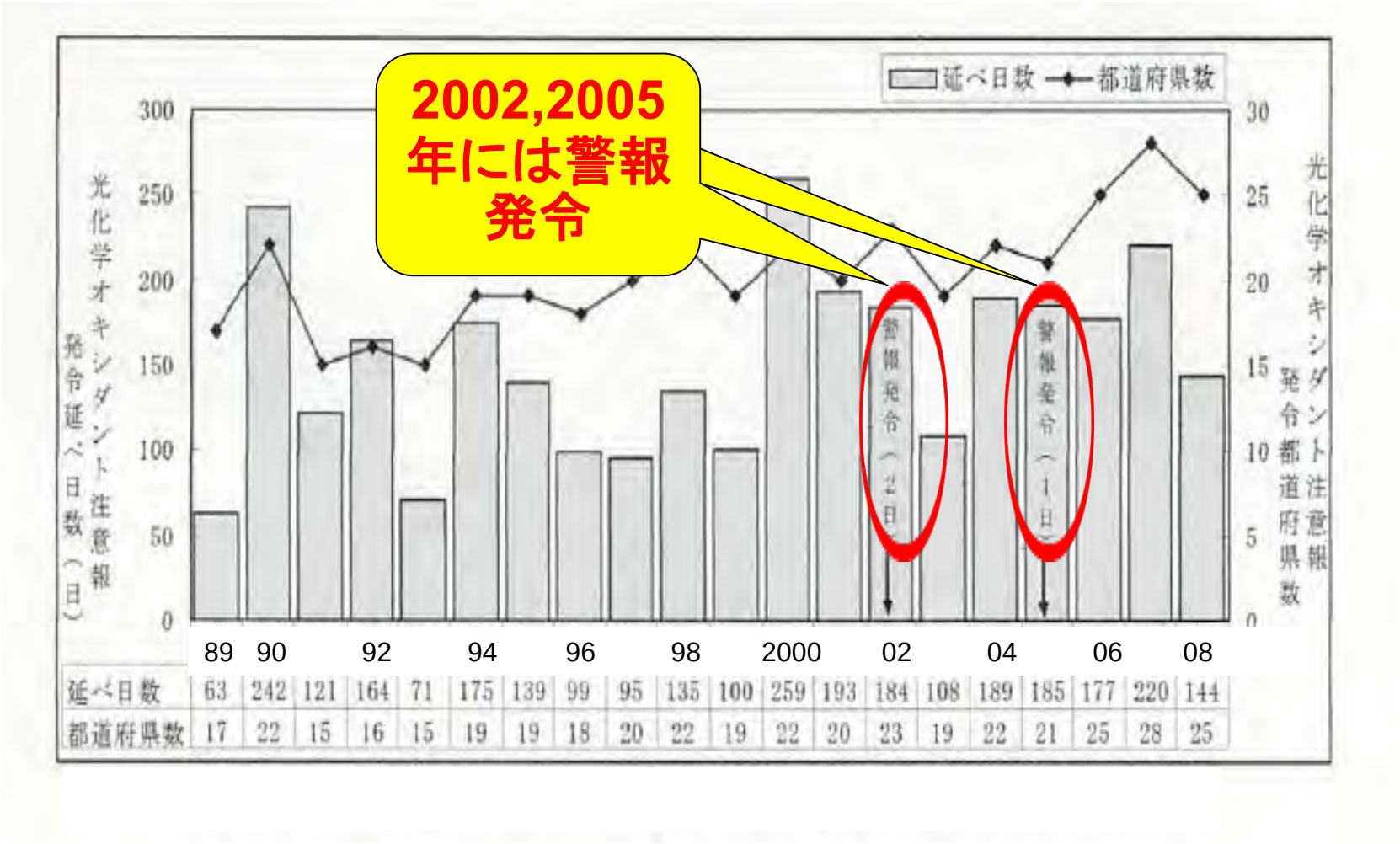
「高濃度日」における13~16時の光化学オキシダント濃度の3カ年平均値



1977~1979　　1980~1982

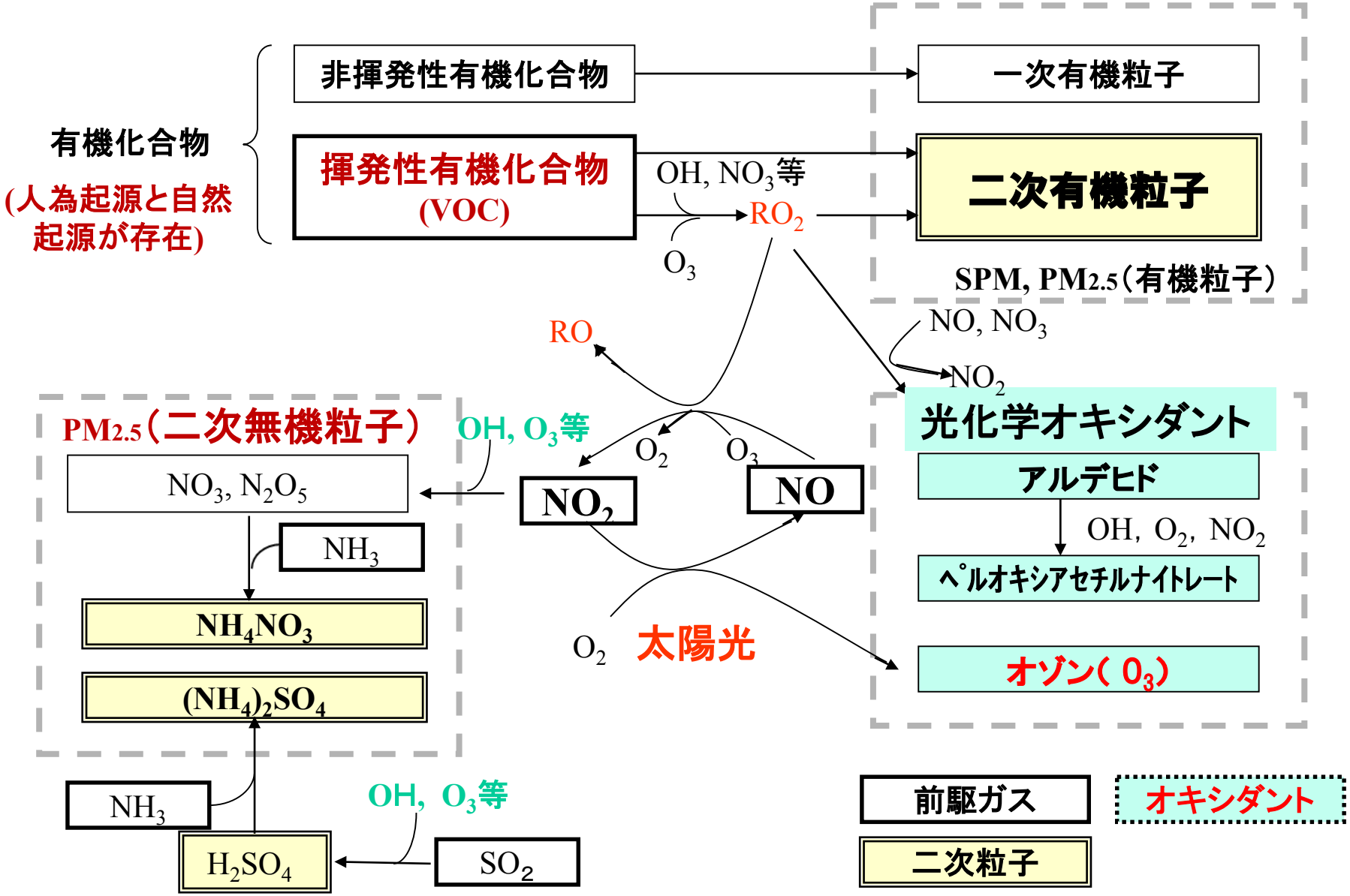
1990~1992　　2000~2002

光化学オキシダント注意予報発令日数及び発令都道府県数の推移



	89	90	91	92	93	94	95	96	97	98	99	2000	01	02	03	04	05	06	07	08
延べ日数	63	242	121	164	71	175	139	99	95	135	100	259	193	184	108	189	185	177	220	144
都道府県数	17	22	15	16	15	19	19	18	20	22	19	22	20	23	19	22	21	25	28	25

光化学反応による二次粒子やオキシダントの生成

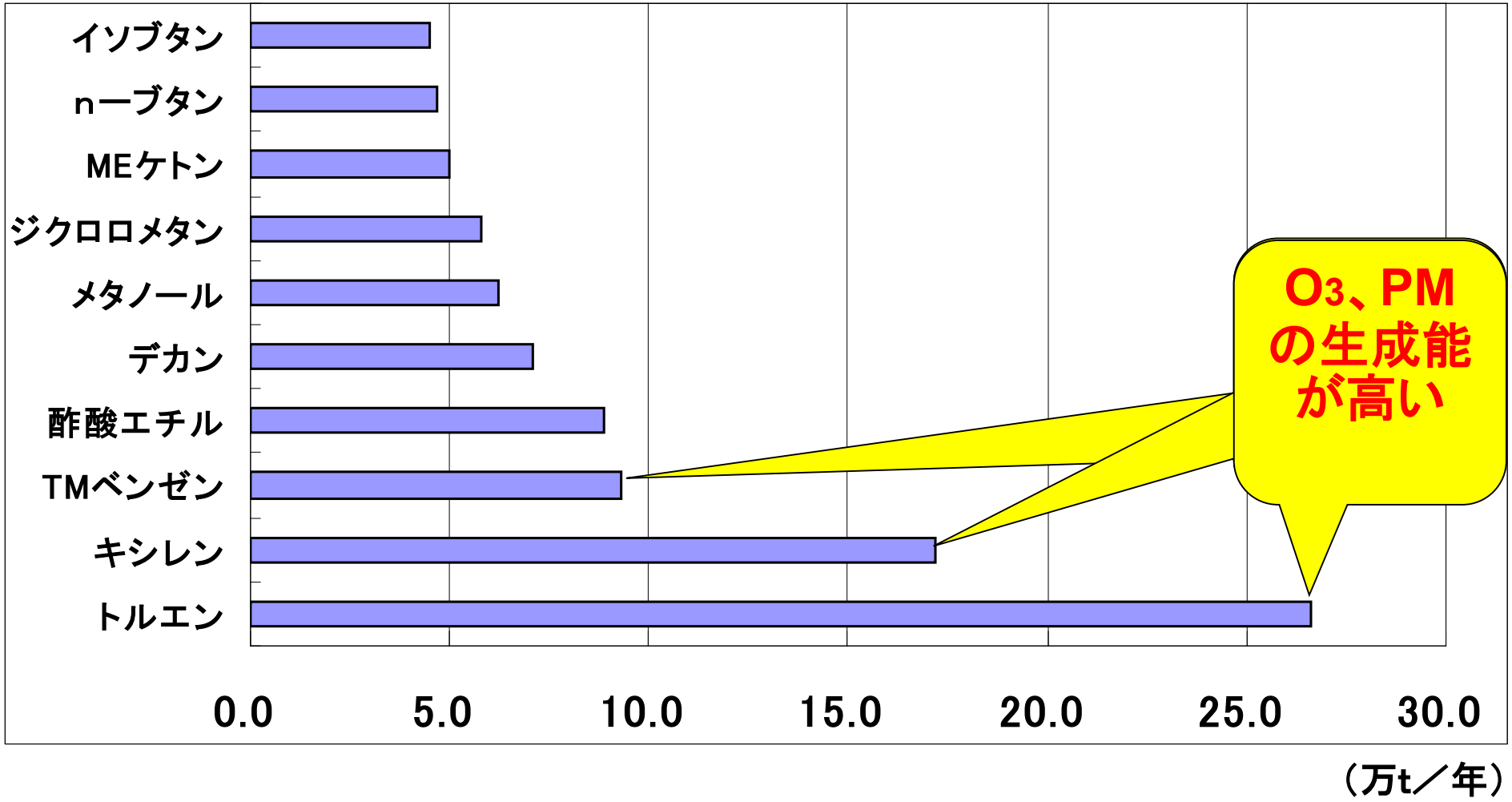


日本におけるVOC排出量の内訳(2000年度)

	排出割合(%)		排出割合(%)
固定発生源 (約140万トン)	90	塗装	43
		印刷用溶剤	13
		石油化学製品	5
		クリーニング	5
		ゴム用溶剤	3
		接着剤	3
		貯蔵施設	2
		出荷施設	2
		給油所	8
		その他	5
移動発生源	10	自動車	8
		特殊自動車	1
		その他	1

日本の代表的VOCの排出量(2000年度)

固定発生源：移動発生源　＝90：10



VOC排出削減によるSPM、Ox濃度の改善効果の推計

○前提条件

対象年度：2001年度の夏季・冬季

反応モデル：CBM-IVを用いた非線形モデル

評価地点：関東10カ所、関西7カ所

(VOCとNOxを削減した場合の改善効果を推計)

○VOCのみ30%削減した場合の改善効果の推計

SPM	平均7.1% (3.5~15%)の推計改善効果から、NOx・PM法対策地域内の環境基準の達成率を約93%に改善
Ox	平均23.8% (7.0~55%)の推計改善効果から、Ox注意報発令レベルを超えない数の測定局割合を約9割まで上昇

(揮発性有機化合物(VOC)排出抑制検討 (2003.12))

対策の枠組み

法規制と事業者の自主的取組とのベスト・ミックス手法により、効率的にVOCの排出抑制を実施

(2000から2010年までに3割削減を目標)

＜直接規制＞1割削減

確実かつ公平に排出削減が可能

→ ばい煙等で実績

＜自主的取組＞2割削減

事業者の創意工夫に基づき柔軟な対応が可能

→ 有害大気汚染物質で実績

＜ベスト・ミックス＞3割削減

自主的取組を評価・促進しつつ、大気環境への影響の大きな施設はシビルミニマムの観点から法規制

国民の努力

○　日常生活に伴うVOCの排出又は飛散の抑制

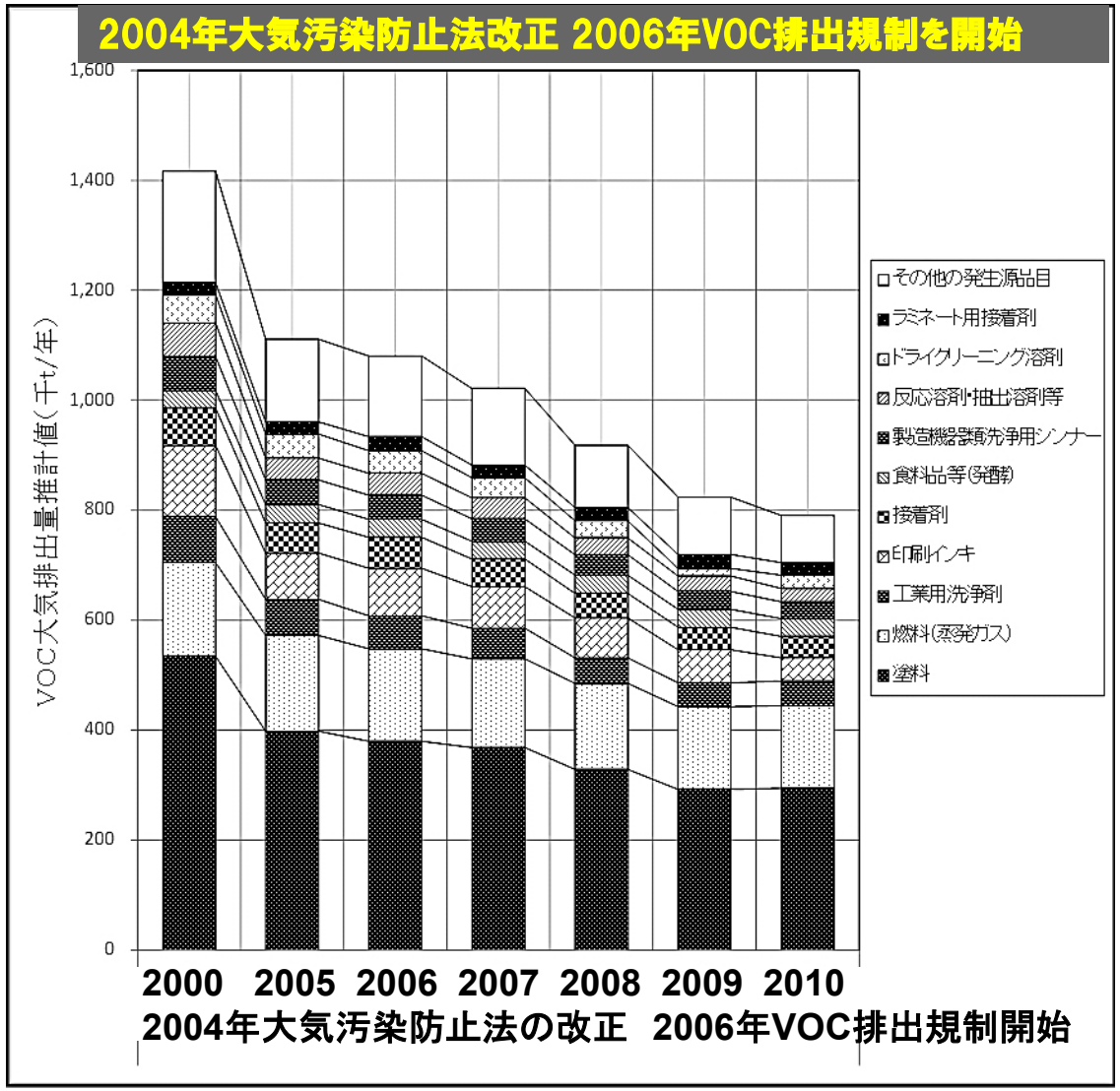
・家庭等で塗料を使う際は、低VOC塗料を使用

・塗料を無駄に使いすぎない

○　製品の購入に当たってはVOC対応製品を選択

国民もVOCの排出抑制を促進するように努めることが求められている。

揮発性有機化合物（VOC）排出量の推移



「VOC排出インベントリ（環境省）」より

固定発生源からの排出量

2000年度　142万トン

↓

2005年度　111万トン

↓

2010年度　79万トン
（2000年度比　44%減）
（2005年度比　29%減）

↓

着実に排出量削減

これまでのVOC排出抑制対策の結果及び効果

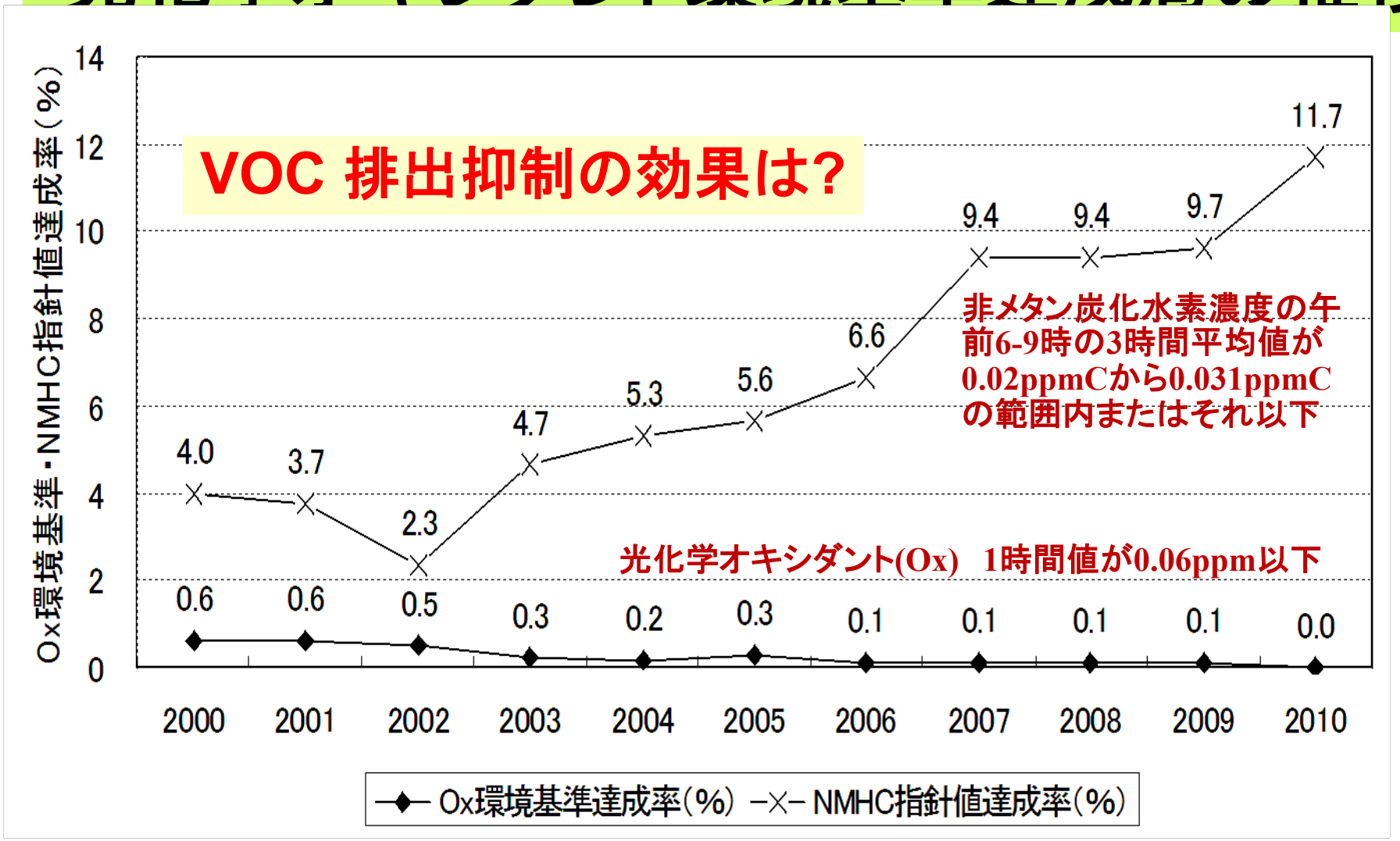
○2010度末におけるVOC排出量は目標を上回る

2000年度比44%削減

○**浮遊粒子状物質 (SPM(≒ PM_7))**は、自動車排出ガス規制の強化等により当初見込んでいた**環境基準達成率約93%を上回る状況**。VOC排出抑制制度等による前駆対物質濃度の減少により、定性的にVOC削減の効果も示唆。

○しかし、**光化学オキシダント(Ox ≒ O_3)の年平均値は増加傾向にある。但し、高濃度割合は減少傾向**にある。

光化学オキシダント環境基準達成局の推移



Ox環境基準達成率（2010年度）: 一般局、自排局ともに0%

光化学オキシダントの環境改善効果を適切に示す指標

- 8時間の移動平均値の日最高値
- 年間代表値: 日最高値の年間99パーセンタイル

(年間99パーセンタイル値 ≒ 暖候期の98パーセンタイル値)

経年変化を見るには3年間移動平均

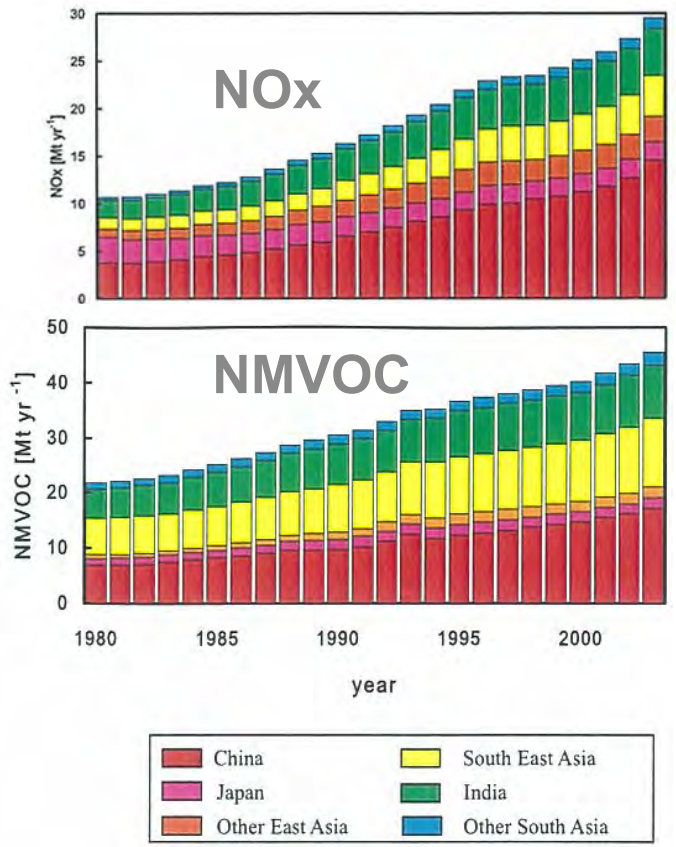
光化学オキシダントの経年変化とその要因

- NOによるO_3滴定効果低下(NOx排出量の減少)

  $O_3 + NO \rightarrow O_2 + NO_2$
- 越境大気汚染の増加
- 前駆体物質濃度の低下による局地的光化学生成量の減少

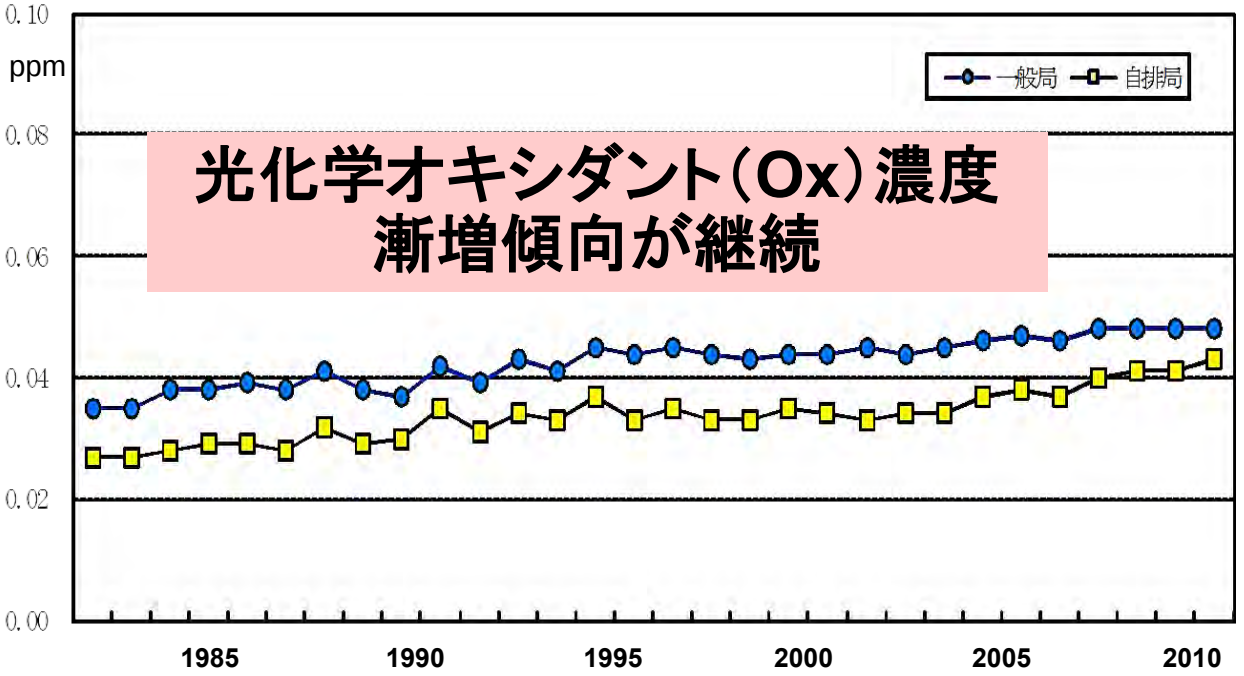
(光化学オキシダント調査検討会報告書, 2014年3月)

アジア全体のNOx, NMVOC 排出量の推計値の推移



アジア全体のNOx, NMVOC 排出量の推計値
(Ohara, et al., 2007)

日本における光化学オキシダントの日中最高1時間値の年平均値推移

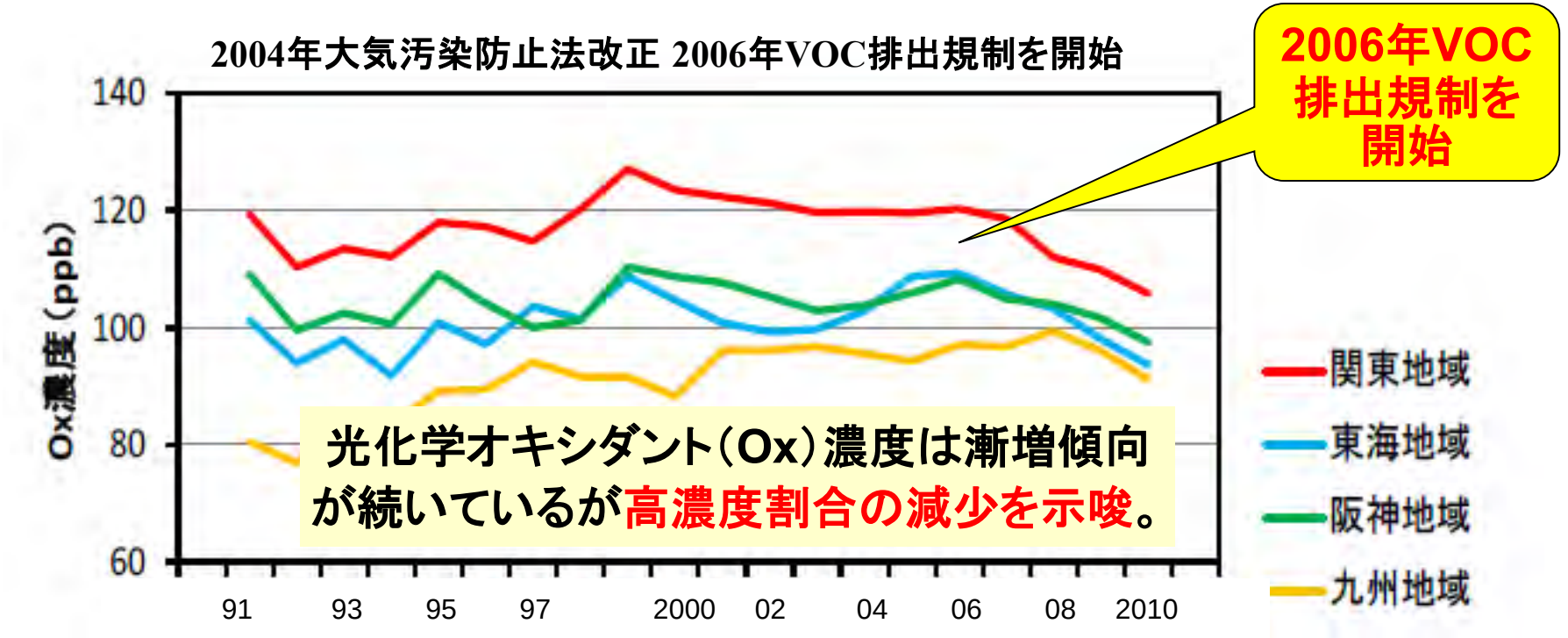


東アジアにおける大気汚染物質排出量の精密な把握や広域汚染の影響に関する科学的・定量的知見が蓄積

- **東アジアの排出量増加がOx濃度増加に影響**
- **排出地域での汚染と越境汚染の同時低減**

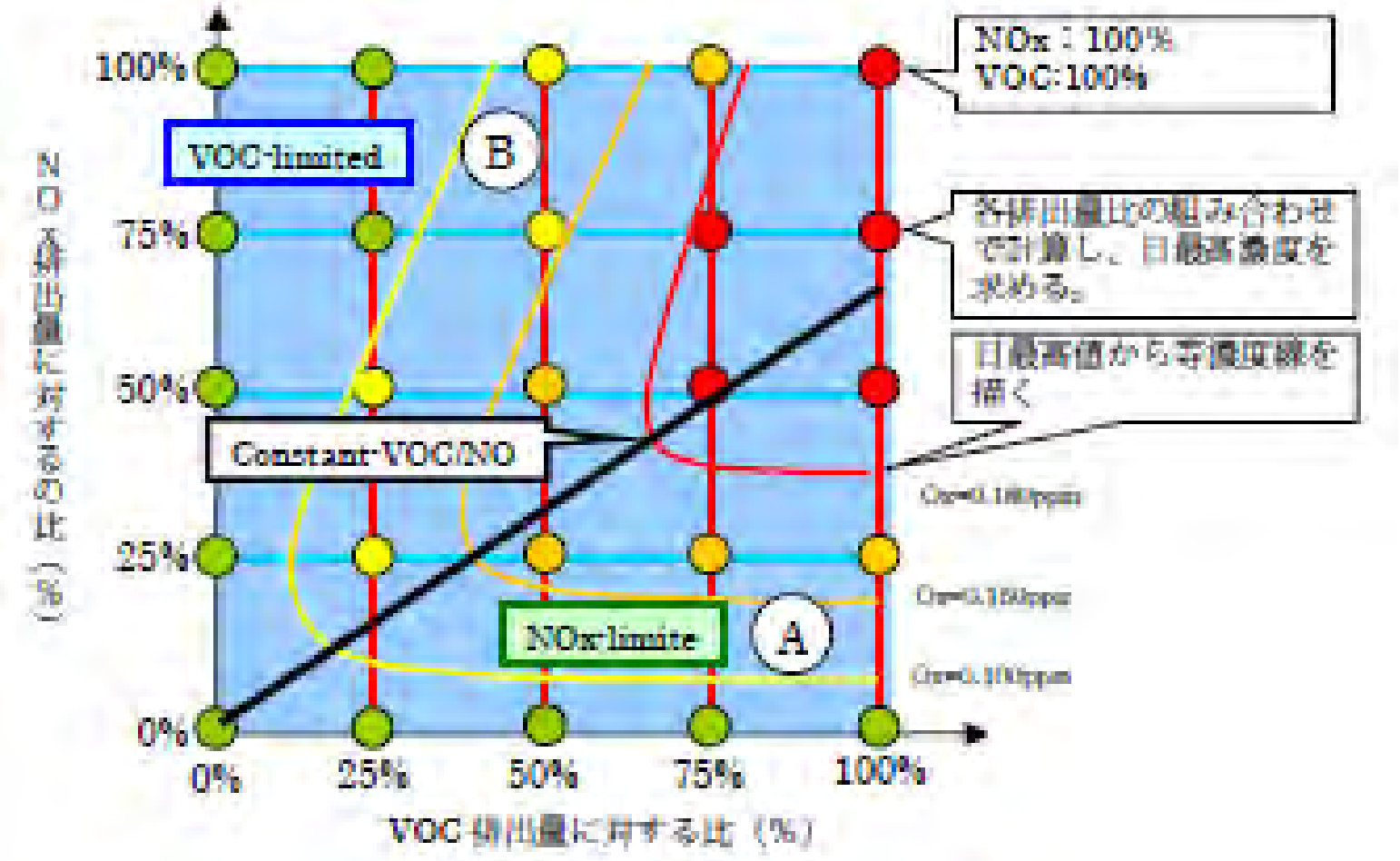
広域大気環境管理

日最高8時間値の年間99パーセントタイル値による域内最高値(3年移動平均)の経年変化



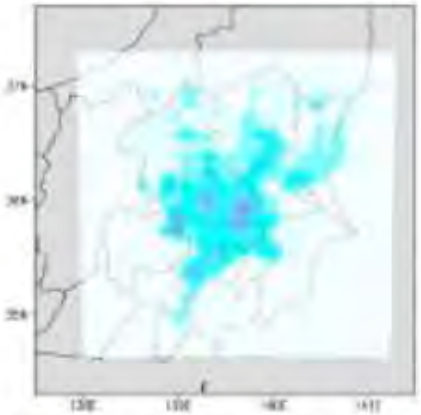
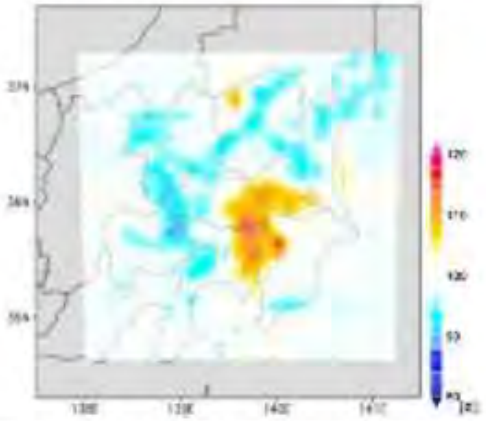
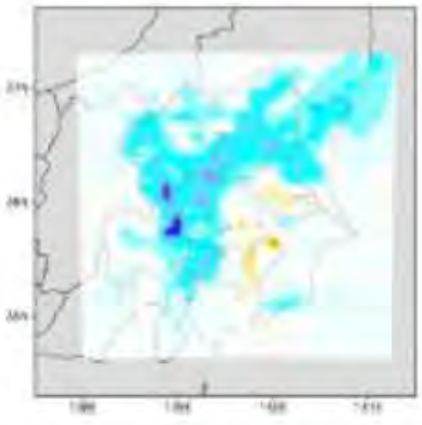
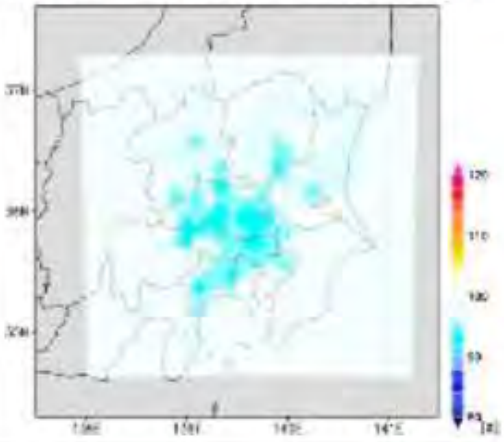
(光化学オキシダント調査検討会報告書, 2014年3月)

オゾン濃度のNOx濃度、VOC濃度に対する依存性 (環境省, 2010)



VOC/NOx比がオゾン濃度(光化学反応の指標)に大きく影響

シミュレーションによる
O_3の日最高8時間値の暖候期98パーセンタイル値

VOC 排出量を 2009 年排出量の 50%に設定（ケース D）	NOx 排出量を 2009 年排出量の 50%に設定（ケース E）
	
VOC・NOx 排出量を 2009 年排出量の 50%に設定（ケース F）	固定蒸発 VOC 排出量を 2009 年排出量の 50%に設定（ケース G）
	

全域で低減	東京湾周辺では増大
一部地域で最も大きく低減するも、一部で増大も	全域で低減

(2015年光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)

今後の自動車排出ガス低減対策のあり方について(第13次報告) (2017.5)

○ストイキ直噴車(ガソリン車)からのPM排出低減対策

ディーゼル乗用車・リーンバーン直噴車と同様の規制値

(排出ガス試験法: WLTC(Worldwide Light vehicles Test Procedure)を含む WLTP(Worldwide harmonized Light vehicles Test Procedure)を適用)

○給油時の燃料蒸発ガス低減対策

燃料小売業における自主的取り組みによるstage 2(ガソリン給油機燃料蒸発ガスの回収機能を付加)の導入の促進

○駐車時の燃料蒸発ガス低減対策

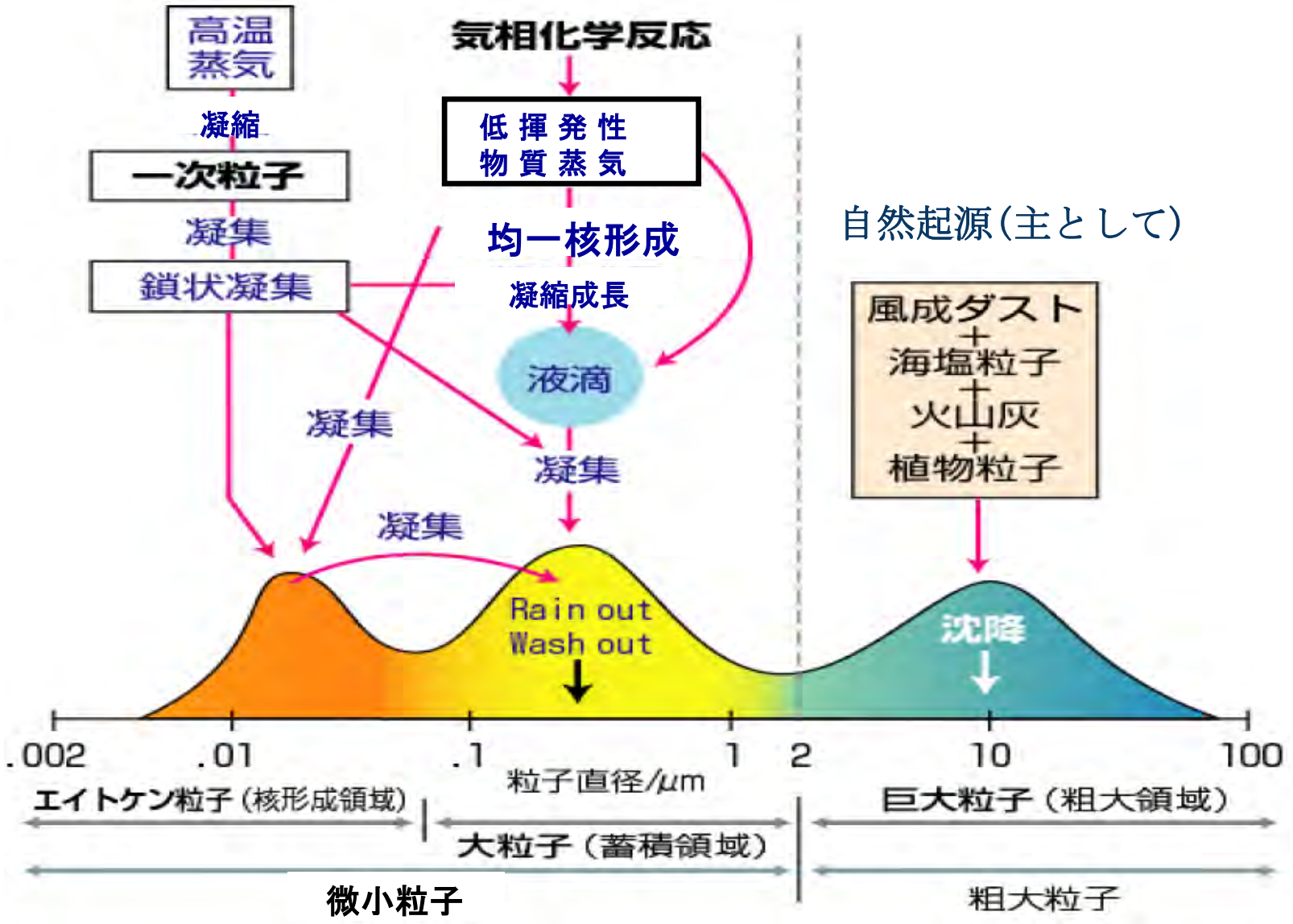
ガソリン車から燃料蒸発ガス低減対策

- パージ走行サイクルの駐車試験日数: 1日から2日へ
- パージ走行サイクル: 旧国内排出ガス試験サイクルから国際的に統一された試験サイクル(WLTC)に変更
- 排出ガス許容限度目標値: THC 2 g/test (ガソリンを透過しにくい燃料配管への変更)

本 日 の 内 容

1. はじめに
2. NO_2、SPM(≒ PM_7):
   自動車排ガス対策
3. SPM(≒ PM_7)、Ox:
   VOC排出抑制対策
4. $PM_{2.5}$:
   一次粒子/前駆体の発生源対策

大気粒子状物質の挙動

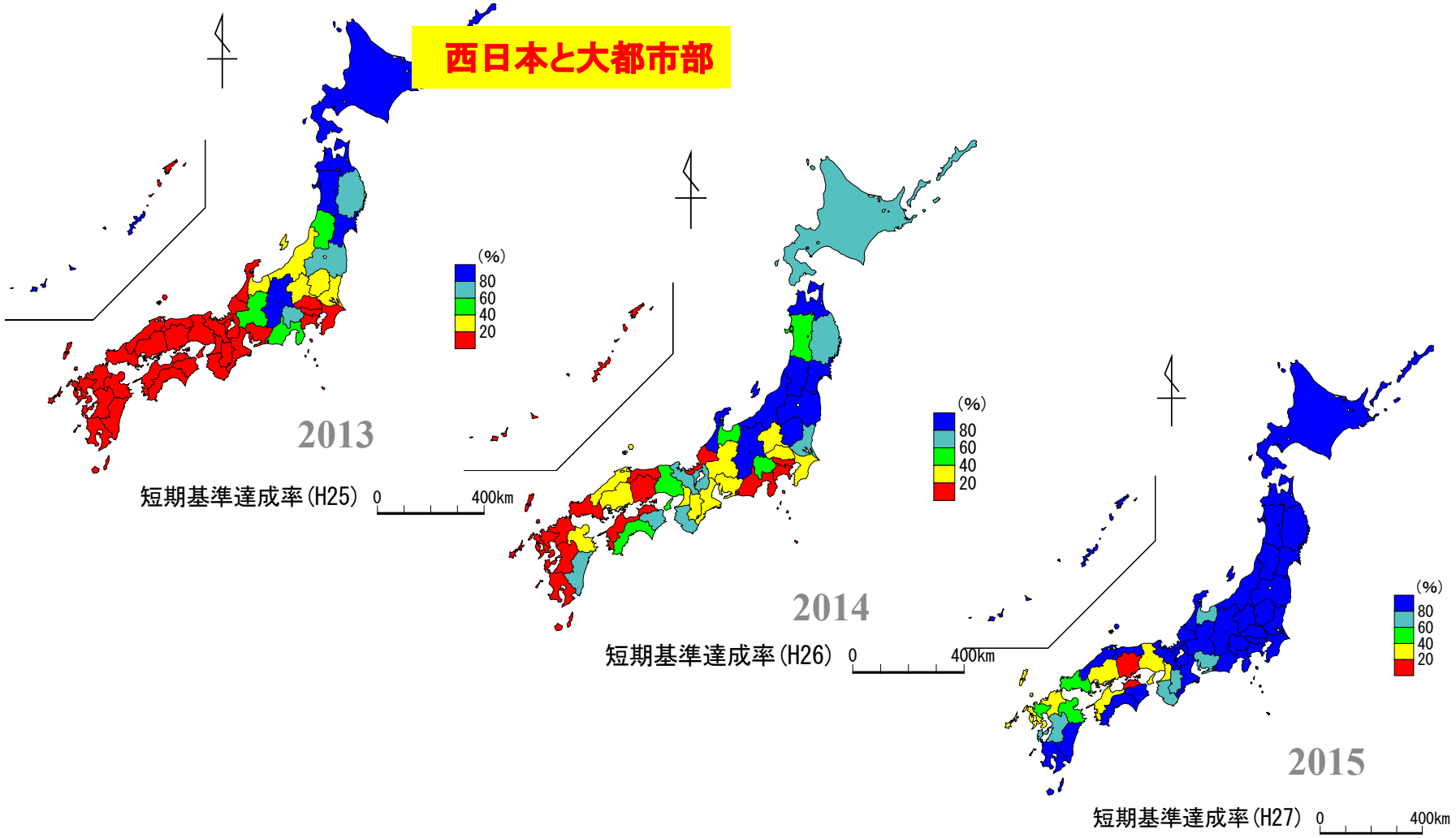

高温蒸気
凝縮
一次粒子
凝集
鎖状凝集
気相化学反応
低揮発性物質蒸気
均一核形成
凝縮成長
液滴
凝集
凝集
凝集
Rain out
Wash out
自然起源(主として)
風成ダスト
+
海塩粒子
+
火山灰
+
植物粒子
沈降
.002
.01
.1
1
2
10
100
粒子直径/μm
エイトケン粒子(核形成領域)
大粒子(蓄積領域)
巨大粒子(粗大領域)
微小粒子
粗大粒子

各国のPM2.5環境基準値(μg/m³)

Dockery et al. (1993): 6都市における調整死亡率比とPM2.5濃度との関係

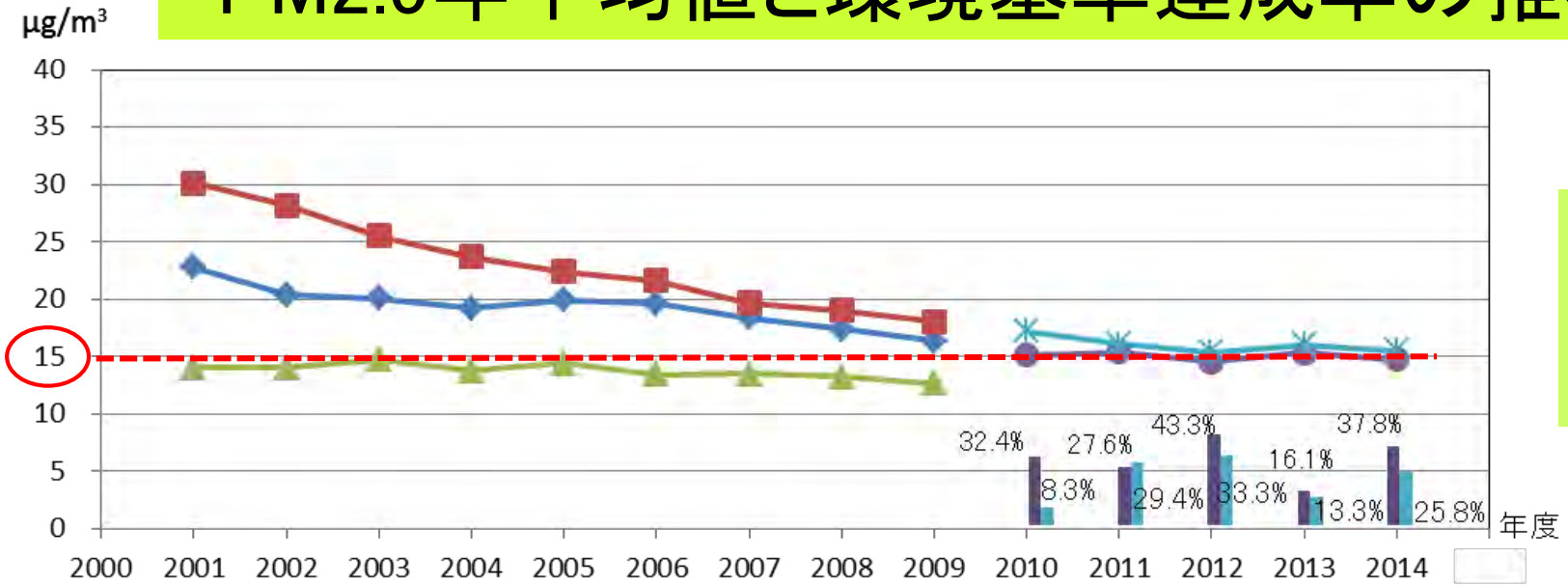
	年平均値	日平均値		
米国	12	35		1997年　15　65 **2006年　35** **2013年　12**
EU	25			2008年
中国	35	75		**2016年1月1日から適用** (一部地域で先行実施)
韓国	25	50		**2015年1月1日から適用**
WHO AQG	10	25		2007年 指針値
WHO TI-1	35	75		一次暫定目標値
WHO TI-2	25	50		二次暫定目標値
WHO TI-3	15	37.5		三次暫定目標値
日本	15	35 (70)*		2009年 注意喚起の暫定指針

都道府県別PM2.5短期基準達成率の推移



(2016年度第2回PM2.5常時監視等データ検討会(2018)　資料3より)

PM2.5年平均値と環境基準達成率の推移

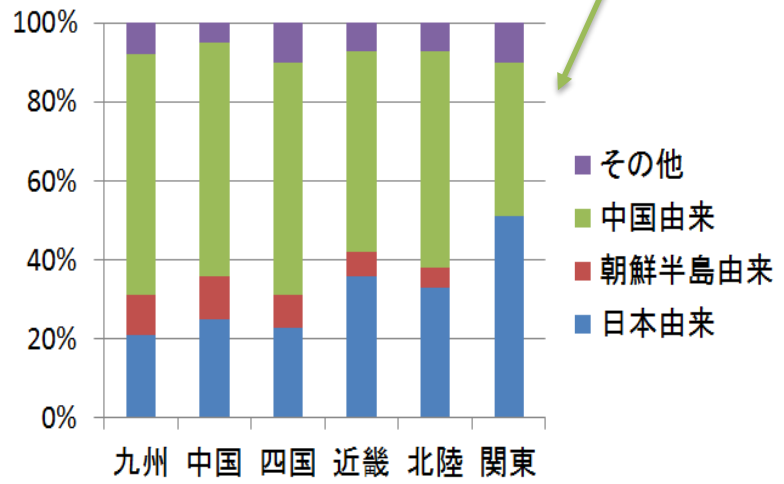


年平均濃度は減少傾向から、近年は横ばいに
2014年度の環境基準達成率は、
一般局37.8% 、自排局25.8%

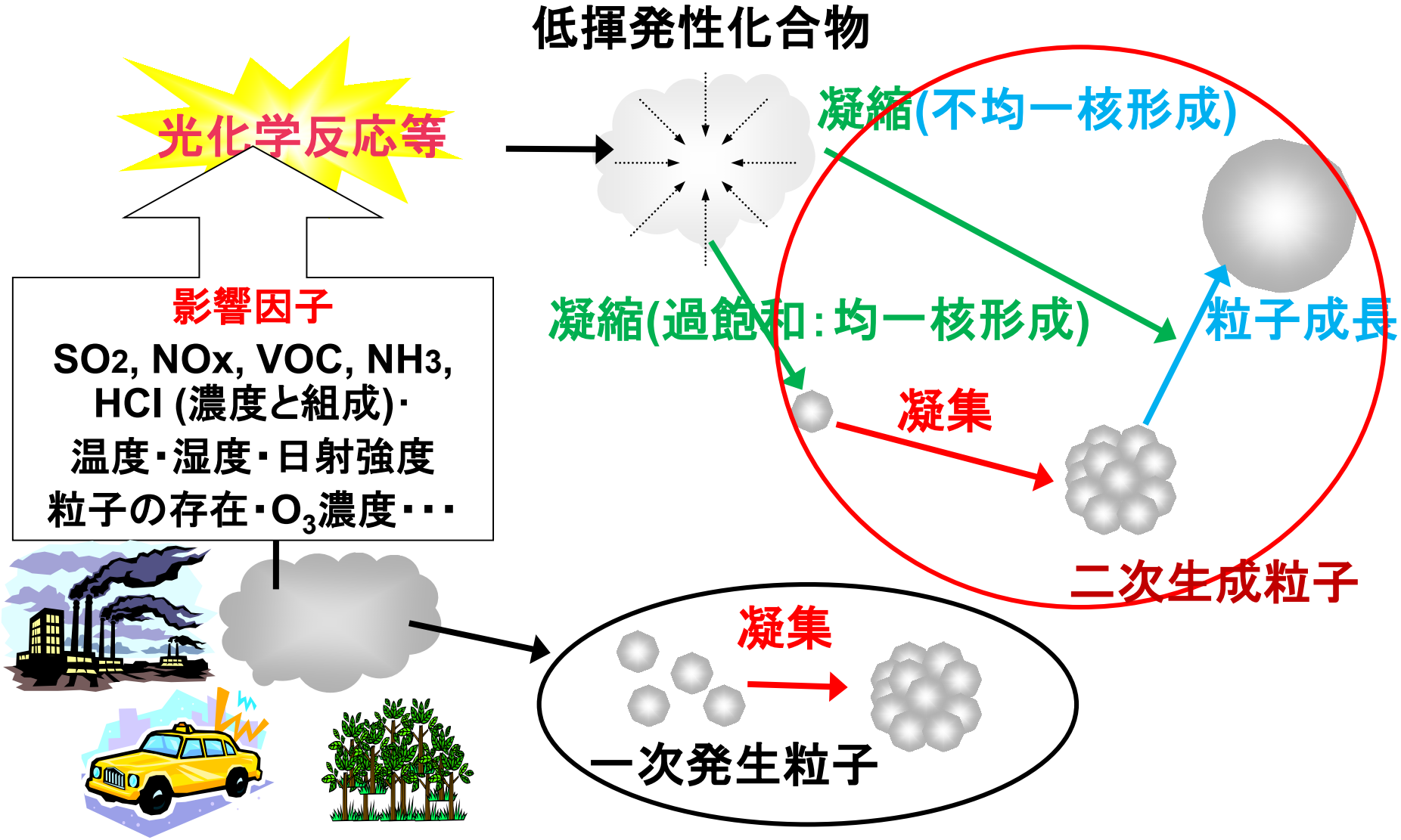
・SPM対策：PM2.5対策としても有効
・PM2.5濃度/環境基準の達成率の地域分布：
国内の都市汚染に越境汚染が加わったもの

(出典:第8回中央環境審議会大気・騒音振動部会(2015)
資料1-2, p.18,22に加筆)

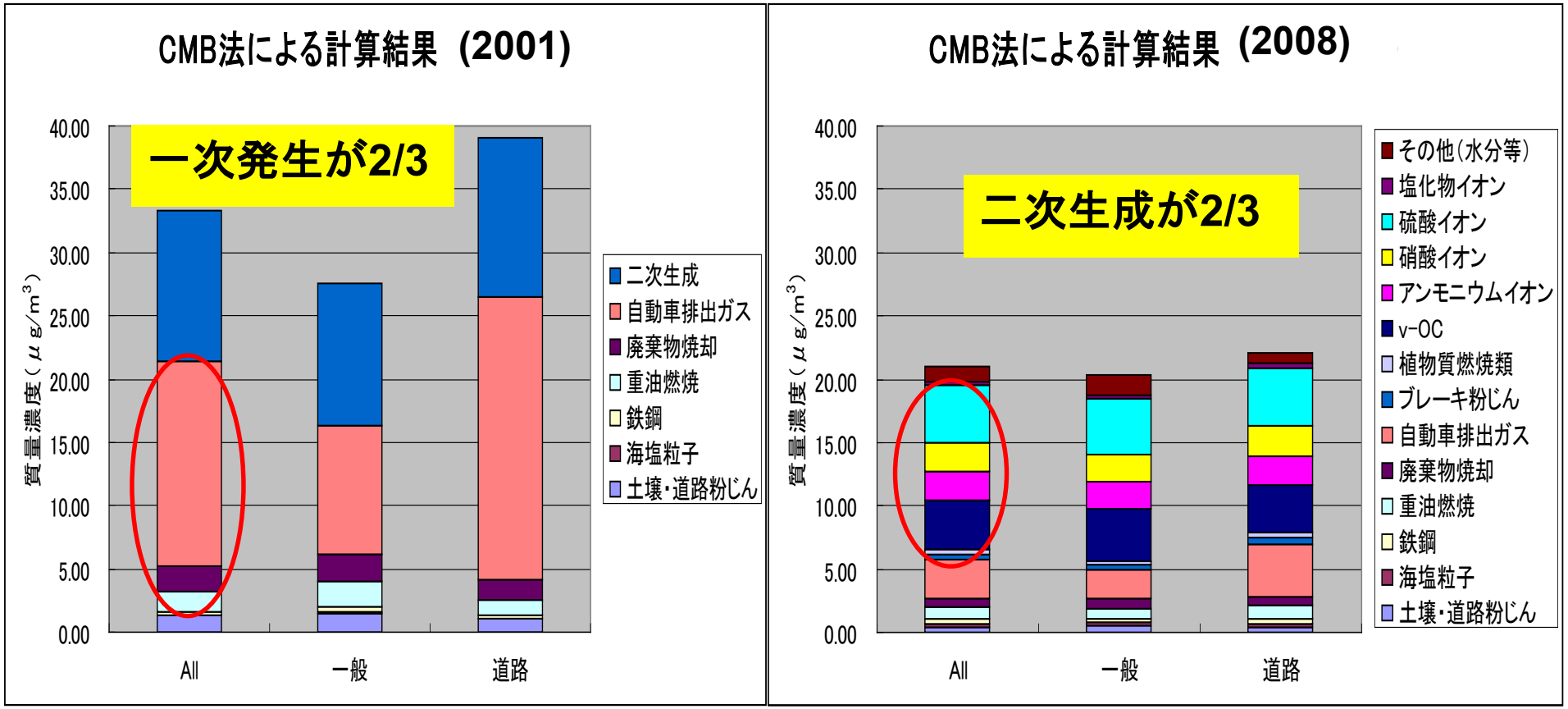
ＰM2.5　(2010年平均)
の国内及び国外の
寄与割合推計例
(金谷有剛(2013)より作成)



一次発生と二次生成

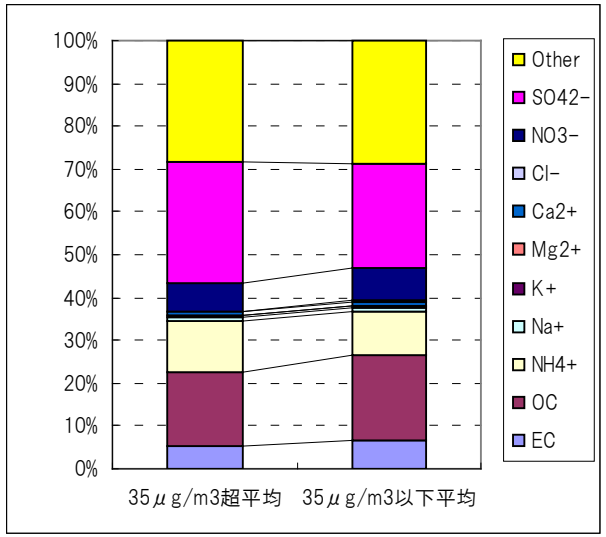

低揮発性化合物
光化学反応等
凝縮(不均一核形成)
凝縮(過飽和：均一核形成)
粒子成長
凝集
二次生成粒子
影響因子
SO2, NOx, VOC, NH3,
HCl (濃度と組成)･
温度･湿度･日射強度
粒子の存在･O3濃度･･･
凝集
一次発生粒子

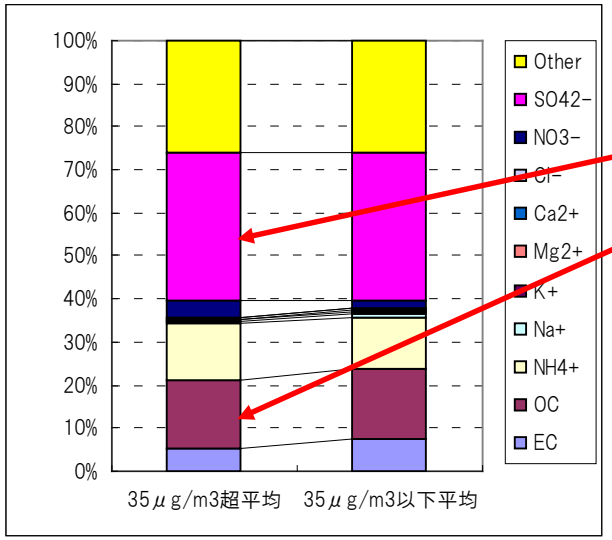
CMB法による発生源寄与濃度の比較
(左: 2008、右: 2001)



東京都微小粒子状物質検討会報告書 (2011.7)

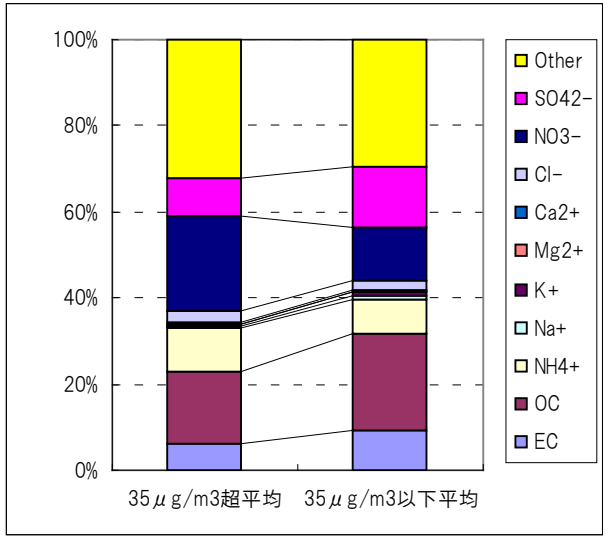
都内(2008年度)における高濃度日のPM2.5組成の季節変化

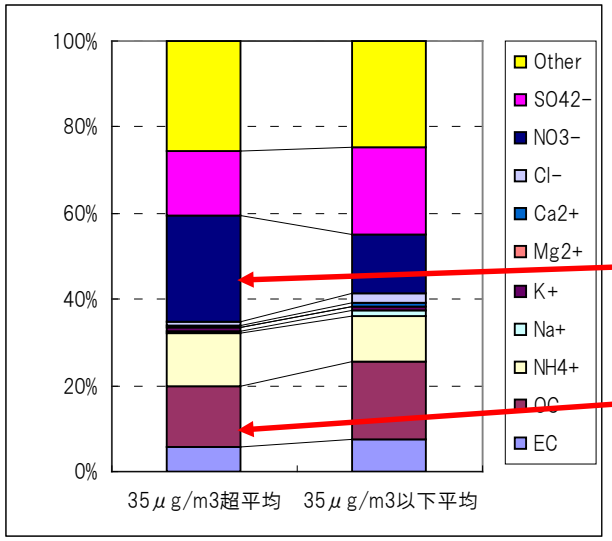




暖候期:
硫酸塩と
有機物

春季	夏季
秋季	冬季



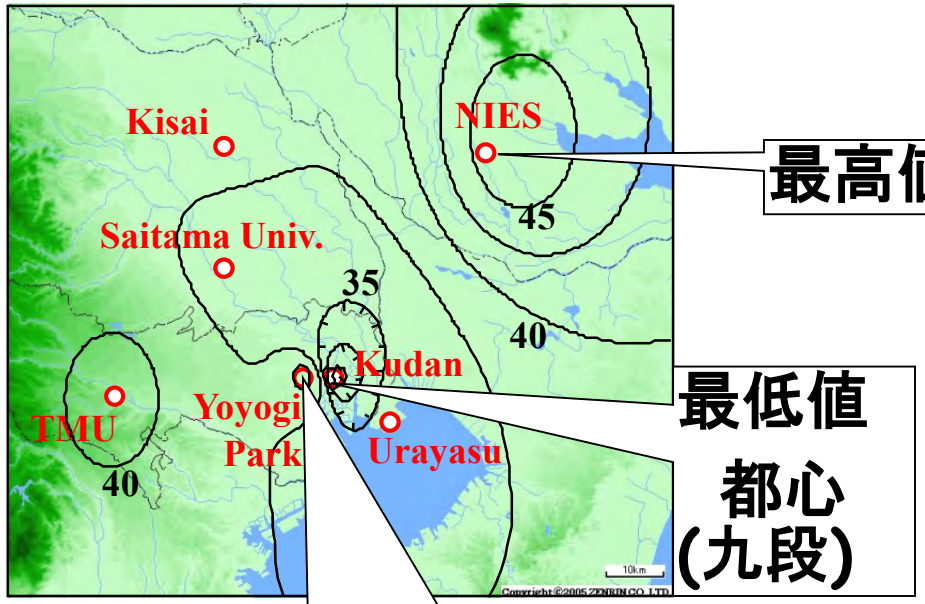


寒候期:
硝酸塩と
有機物

東京都微小粒子状物質検討会報告書(2011.7)

炭素同位体の分析(2008夏季)

pMC (%)の空間分布



最高値

最低値

都心
(九段)

九段より10% 高い

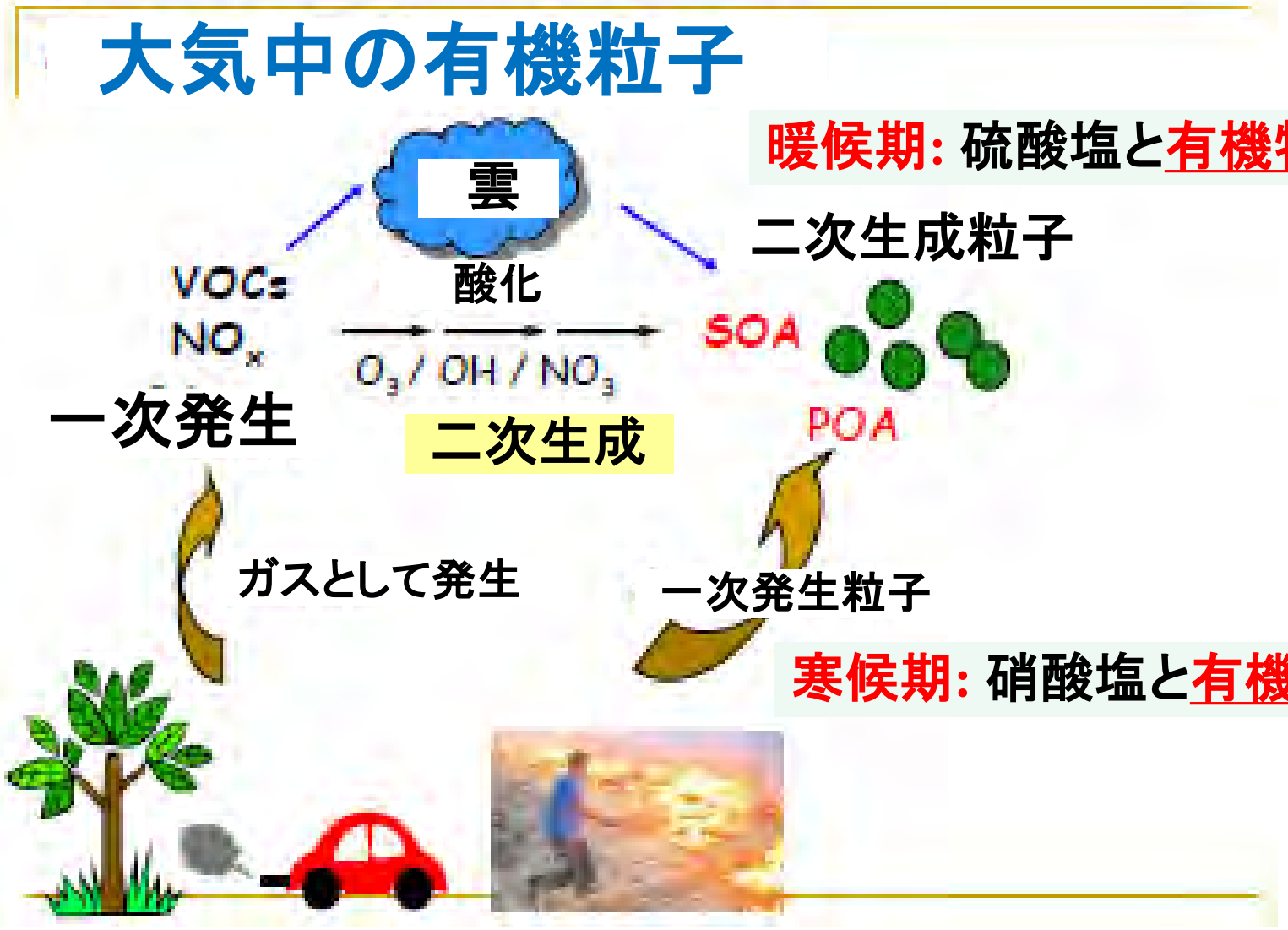
観測地点	pMC (%)
浦安	37.3
九段	29.1
埼玉大学	35.5
騎西	38.8
国立環境研 (つくば)	47.0
首都大 (八王子)	41.0
代々木公園	41.1

- pMC の空間分布は、田園地域に比較して首都圏におけるバイオマス由来の低い寄与を示唆していた。
- しかし、都心部においてすら29%のバイオマス由来の炭素の存在を示唆していた。

Minoura et al.(2010)

二次生成有機粒子(SOA)と一次発生有機粒子(POA)

大気中の有機粒子



暖候期: 硫酸塩と有機物

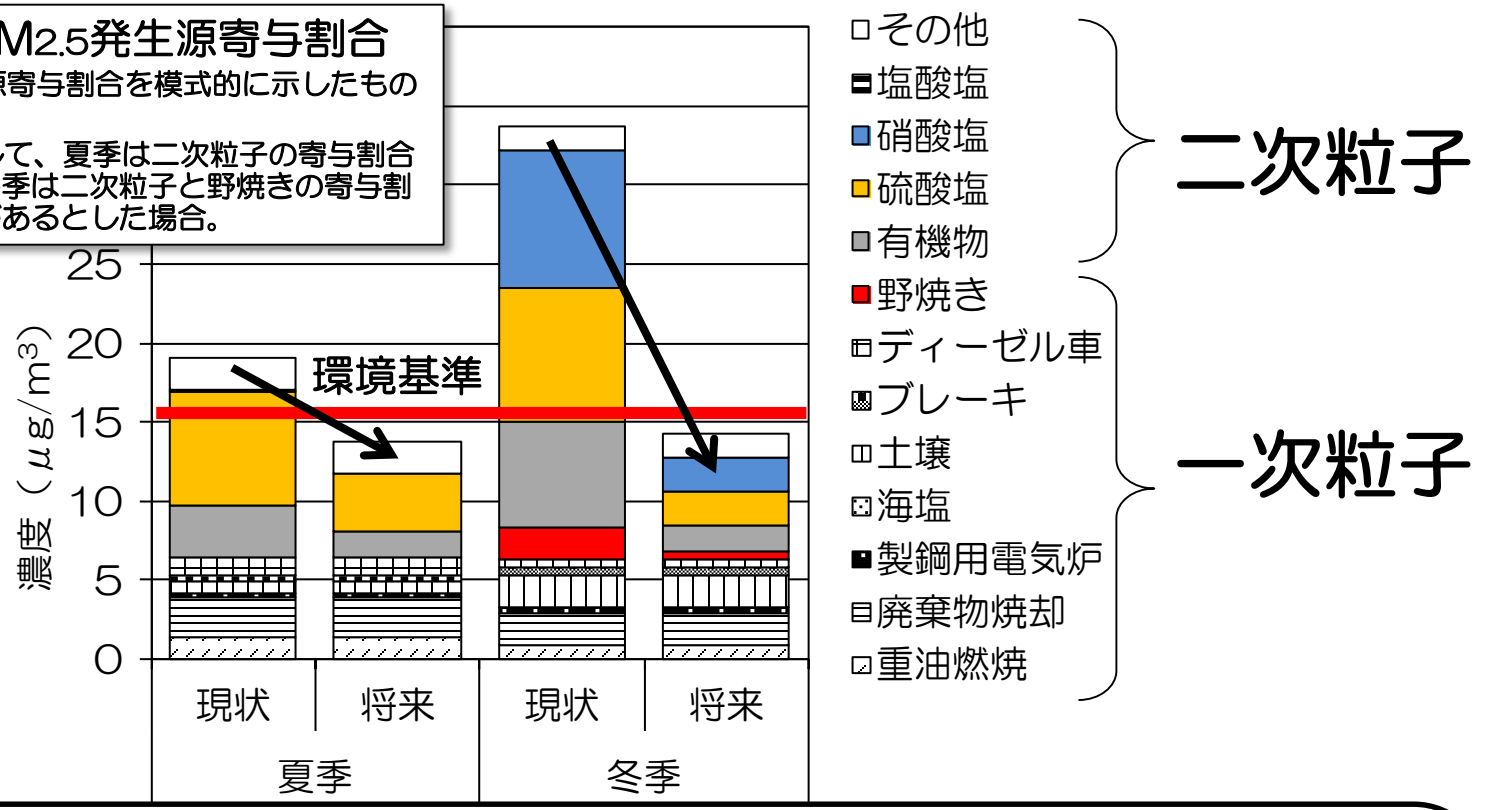
寒候期: 硝酸塩と有機物

二次粒子対策の重要性

夏季と冬季のPM2.5発生源寄与割合

注１）PM2.5の発生源寄与割合を模式的に示したもので実際とは異なる。

注2）PM2.5対策として、夏季は二次粒子の寄与割合を大きく低下させ、冬季は二次粒子と野焼きの寄与割合を低下させる必要があるとした場合。



■PM2.5の二次粒子の寄与割合は50-70%、環境基準達成には二次粒子対策が必要

■夏季の二次粒子は主として硫酸塩と有機物、冬季の二次粒子は硝酸塩が主

■SO2の環境基準達成率は良好。**越境汚染が問題？　・・・SO2排出抑制(船舶からの排出ガス)？**

■NOx規制によりNO2環境基準はほぼ達成・・・PM2.5対策としての**NOx排出抑制？**

■VOC(人為起源/生物起源)　二次生成有機粒子(SOA)の分析・把握により前駆物質の排出規制効果が推定可能。　**VOC排出抑制？**

■そのほか**野焼きなどのバイオマス燃焼も規制を検討**する必要がある。

■**凝縮性粒子の寄与の解明 → → 対策の検討？**

今後の課題

- 各種発生源からのPM2.5(凝縮性粒子を含む)ならびに植物起源炭化水素(BVOC)の排出インベントリーの系統的な整備
- BVOC由来有機粒子(指標化合物:SOA、POA)の分析とその寄与率推定
- 季節別自然起源/人為起源有機粒子の割合の把握
- 二次生成有機粒子の生成機構の解明
- 越境汚染の監視と寄与率推定
- シミュレーションモデルの精緻化(高時間分解データの整備と化学輸送モデル(CTM)の改良)

- 効果的なPM2.5低減対策の予測

ご清聴
ありがとう
ございました。

シミュレーションモデルの構築・改善

・発生源インベントリデータの整理

①東アジア領域
人為起源排出物質：REAS2.1
植物起源排出物質：MEGAN
②日本領域
船舶以外：JEI-DB
船舶：海洋政策研究財団で整理したインベントリ

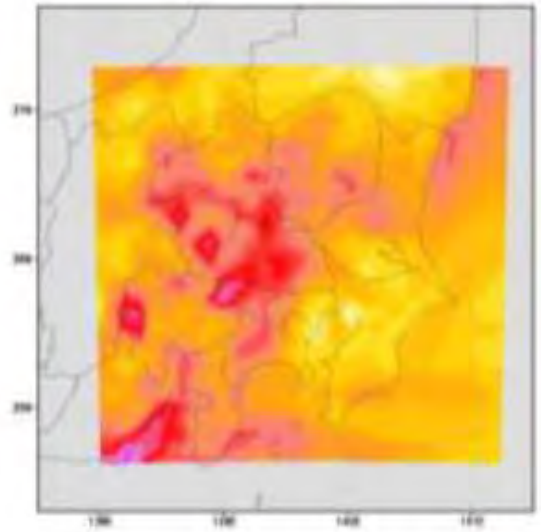
・シミュレーションの設定

①シミュレーションの条件設定
対象年度：2001～2010 年
モデル：WRFv3.5.1,CMAQv4.7.1
領域：地域内生成および他地域からの影響を考慮し、東アジア領域（60km）を親ドメイン、関東・九州領域（10km）を子ドメインとする

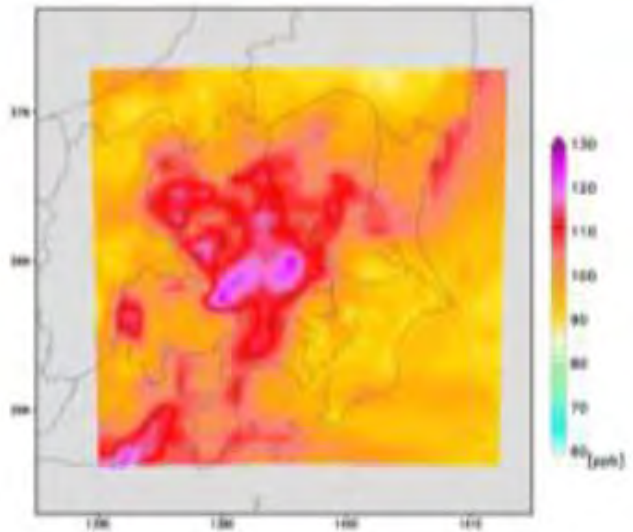
②東アジア領域の境界条件の設定
東アジア領域境界値に全球モデル（MOZART）の出力値を使用

(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料1)

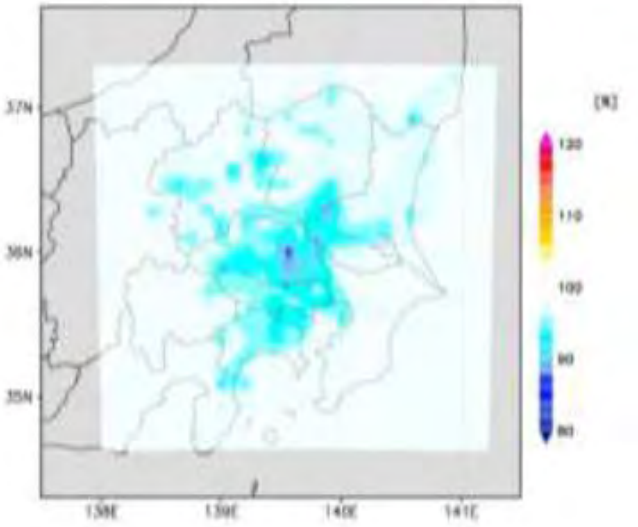
O_3の日最高8時間値の暖候期98パーセンタイル値



ケースA（すべての排出量を2009年）



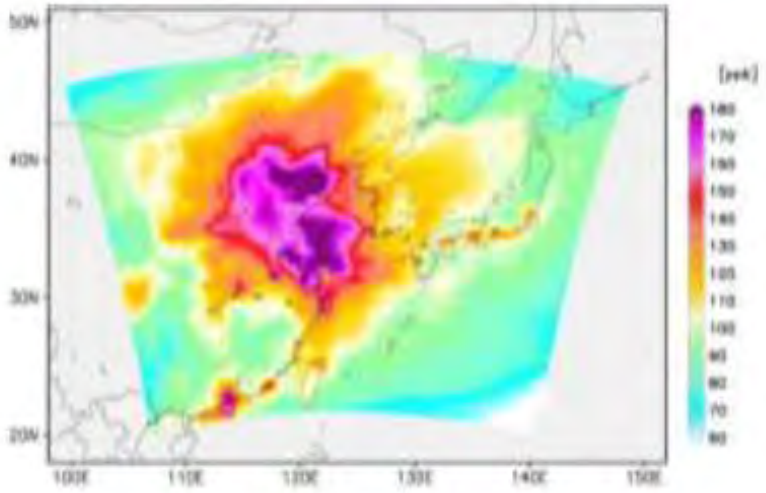
ケースB（関東固定蒸発VOC排出量を2001年）



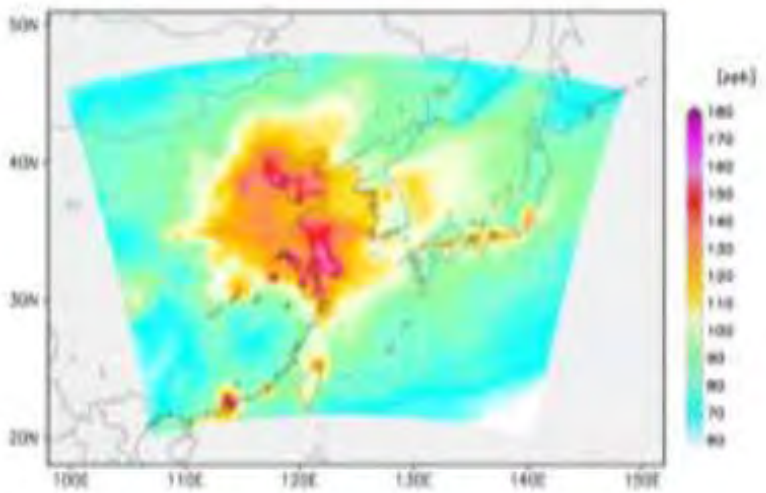
O_3新指標相当値の濃度比
(ケースA／ケースB)
東京都東部から埼玉県東部では0.85－0.90程度とVOC削減効果が顕著

(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)

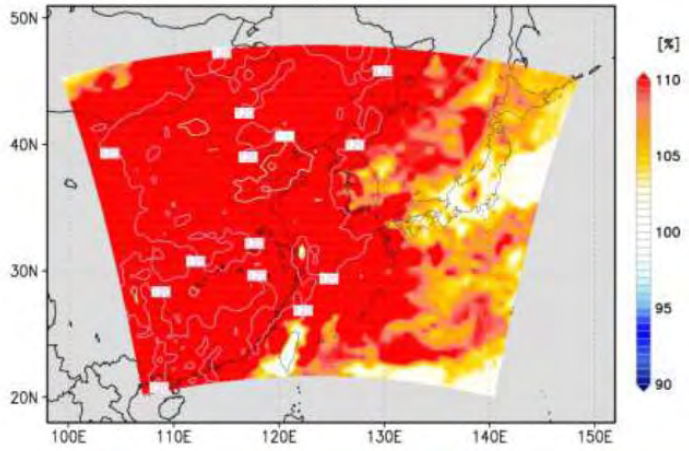
O_3の日最高8時間値の暖候期98パーセンタイル値



（ケース A：すべての排出量を 2009 年に設定）



（ケース C:東アジア大陸からの排出量を 2001 年に設定）



O_3新指標相当値の濃度比
(ケースA／ケースC)
九州地域の1.08から関東地域の1.02であり、越境汚染の増加を示唆

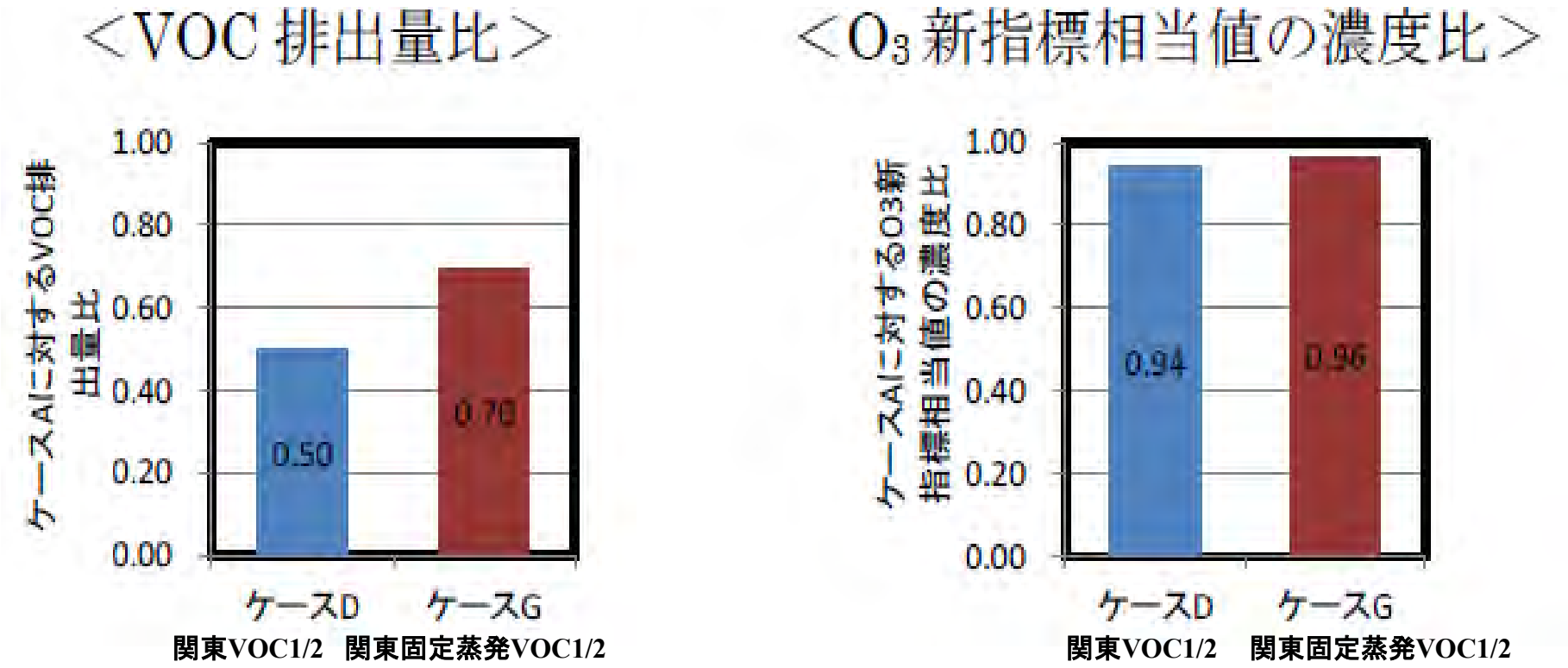
(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)

NOxおよびVOC排出量の削減効果

ケース	大気汚染物質排出量の設定年				気象場の設定年	備考
	東アジア大陸	関東人為起源 VOC	関東 NOx	関東[6] 左記以外		
A	2009 年	2009 年	2009 年	2009 年	2009 年	【基準ケース（2009 年）】
D		2009年×1/2	2009 年			関東における人為起源 VOC 削減の感度の把握
E		2009 年	2009年×1/2			関東における NOx 削減の感度の把握
F		2009年×1/2	2009年×1/2			関東における人為起源 VOC・NOx 同時削減の感度の把握
G		固定蒸発 VOC のみ 2009年×1/2	2009 年			関東における固定蒸発 VOC 削減の効果の把握（ケース D との比較により感度の差異をみる）

(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)

VOC排出量比とO3新指標相当値の濃度比

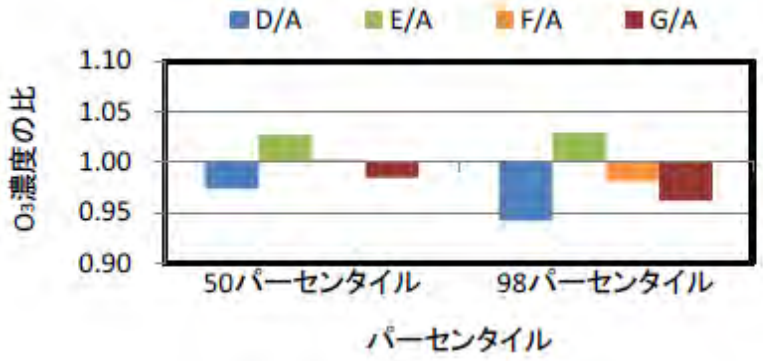


VOC削減量あたりのO3新指標相当値の低減効果
ケースD (0.12) < ケースG (0.13) 固定蒸発VOC排出削減の方が全体のVOC排出削減よりO3新指標相当値の低減効果が大きいことを示唆

(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)

設定ケースと濃度レンジの感度について

ケース	大気汚染物質排出量の設定年		濃度レンジの感度
	関東 人為起源 VOC	関東 NOx	
D	2009 年×1/2	2009 年	中濃度レンジと比較すると高濃度レンジの方が O_3 濃度の感度が高い。
E	2009 年	2009 年×1/2	中濃度レンジと高濃度レンジで O_3 濃度の感度に大きな違いはみられない。
F	2009 年×1/2	2009 年×1/2	中濃度レンジと比較すると高濃度レンジの方が O_3 濃度の感度が高い。
G	固定蒸発 VOC のみ 2009 年×1/2	2009 年	



(2015光化学オキシダント調査検討会第3回資料2)