

Ⅲ 光化学オキシダントの高濃度要因の分類

ー2003年から2006年のモニタリングデータからー

1. はじめに

光化学オキシダントは、1970年代に光化学スモッグとして、関東地方を中心に大きな問題となった。その後、平均濃度は横ばいの状態が長く続いていたが、近年、全国的なオキシダントの上昇傾向がいわれている。福岡県においても2005年度から120ppbを超える事例がたびたび観察されるようになった。このような広範囲の高濃度は、かつてなかった事態であり、2007年の福岡県での注意報発令は10年ぶりの出来事である。

オキシダント濃度の上昇には、従来より、地域汚染質による生成、大陸からの移流、成層圏オゾンの下降などが関係しているといわれている¹⁾。地域汚染質による生成は、その地域で排出された窒素酸化物、揮発性有機化合物が、強い紫外線の存在下で光化学反応を起こしオキシダントを生成させるもので、気象条件や地域での汚染質の量が高濃度と関係する。成層圏オゾンの下降は、春先のある気象条件下で成層圏に存在するオゾンが地上へ降りてくると言われている。大陸からの移流は、近年の中国大陆での急激な工業の発展に伴う汚染質の増加によりオキシダントが上昇し、それが、大陸から長距離輸送されて日本へもたらされていると考えられている。

大陸からの移流については、黄砂が春の風物詩として知られており、近年の飛来の増加から、関係国との調査体制が生まれその実態解明も進んできている²⁾。黄砂の調査の中で、黄砂と同様に視程の低下と浮遊粒子状物質(SPM)濃度の上昇をもたらす煙霧の存在とその影響についても次第に分かってきた。煙霧は硫酸イオンを多く含む粒子によるものであり、大陸からの移流も一因と考えられる。このような粒子の大陸からの飛来は、西日本でのオキシダント濃度の上昇に関係しているのではないかと疑われている。オキシダント、硫酸イオンなどの大気汚染質の大陸からの移流については、CMAQなどの化学反応を加えた広域シミュレーションソフトで再現され、その様子が証明されてきている³⁾。一方、オキシダントの発生要因がモニタリングデータによって、どのように観察されているか考察することも重要である。

そこで、福岡県での高濃度現象を解明するために、2003年から2006年の常時監視データを整理し、オキシダントを上昇させる要因が高濃度日にどのように関連しているかを検討した。

2. 使用したデータ

オキシダントの高濃度については、2003年度から2006年度(4～8月)の常時監視局で80ppbを超える局が県内で39測定局中で5局以上存在する日を高濃度日として抽出した。また、2003年から2005年大陸と九州の中間に位置する対馬国設測定局(以下対馬)でのオキシダント測

定データ(酸性雨研究センター提供)を使用した。

さらに、2003年の2月から8月のほぼ毎日(156件)、太宰府市で硫酸イオン濃度を測定した。硫酸イオンはローボリュームサンプラー(20l/mで吸引)で24時間(土日は72時間)捕集し、イオンクロマトグラフィーで分析した。

流跡線は国立環境研究所地球環境センターCGER-METEXを用いて作成した。

図1に対馬および福岡県を含む周辺地図を示す。



図1 福岡県周辺の地図

3. オキシダント濃度の経年変化

図2に1995～2006年度の福岡県内のオキシダント全測定局の昼間と夜間の1時間値平均の経年変化を示している。昼間、夜間ともに上昇している様子がみられているが、夜間での上昇率は昼間に比べ若干高い。また、平均濃度の上昇とともに、2005年度には、80ppbを超える日数が増え、2006年度は100ppbを超える事例が増加しているのが特徴である。

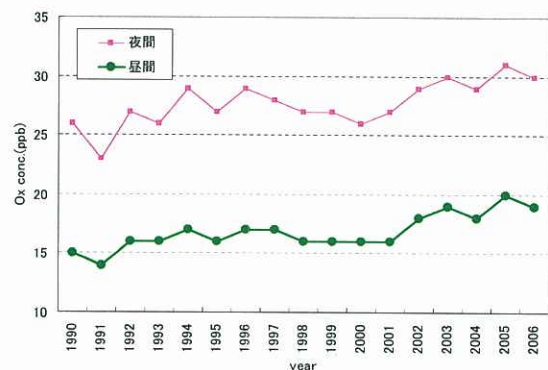


図2 オキシダントの昼間、夜間の年平均の経年推移

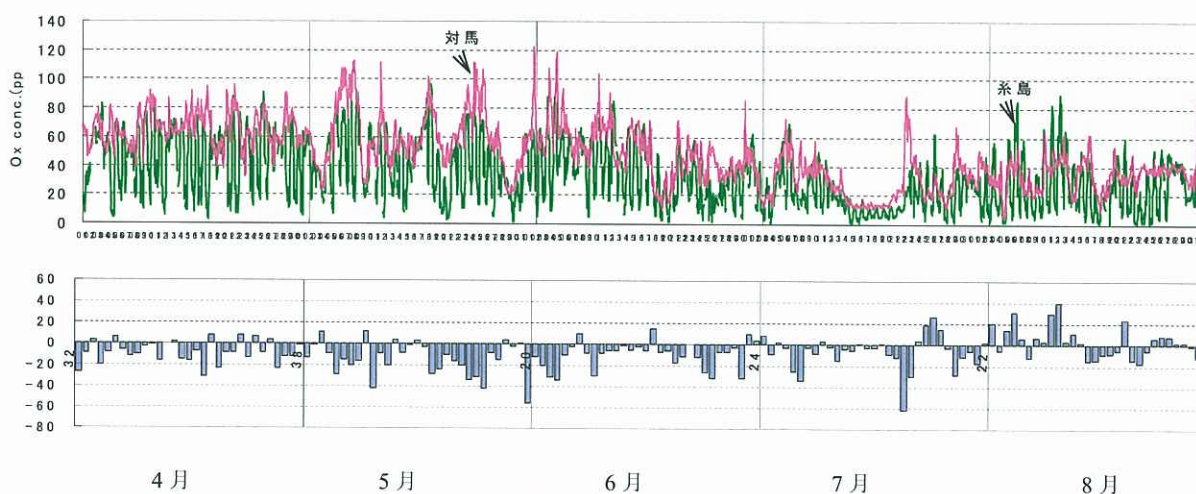


図3 対馬と糸島でのオキシダントの経時変化と日最高値の差の経日変化(2004年4～8月)

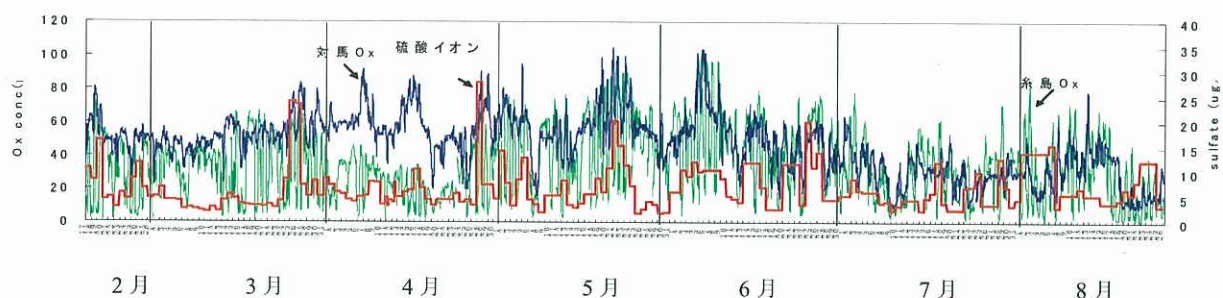


図4 対馬と糸島でのオキシダントの経時変化と太宰府での硫酸イオン経日変化(2003年2～8月)

4. 対馬でのオキシダント濃度

図3に2004年4～8月の対馬と、福岡県の北端に位置し付近に発生源の少ない一般測定局糸島局(以下糸島)でのオキシダントの経時変化と対馬と糸島の最高値の差を日毎に示している。オキシダントについては、4、5月は糸島で対馬の値を超えることはほとんどなく時間変化も概ね対応しているが、7月からは糸島が対馬を超える日が出てくる。これは下図の日最高値の差でみると、4、5月対馬で高く、7月以降糸島で高くなる様子がよりはっきりと観察できる。このような両測定局の変化は、4、5月には対馬から福岡への大陸からの影響を含む広域的な汚染を、7月以降は福岡での地域的な汚染を示していると考えることができる。

図4に硫酸イオンのデータが得られている2003年2月から8月の、対馬、糸島でのオキシダント経時変化と太宰府での硫酸イオン濃度の経日変化を同時に示している。硫酸イオンは、総平均で $6.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であるが、 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の高濃度が13日、そのうち $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上が5日観察され煙霧現象が観測されている。また、 $20 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超す日はいずれも流跡線は大陸方向を示している。これら高濃度の硫酸イオンが測定された日、オキシダント濃度も高いレベルで推移していることが図4からみてとれる。煙霧を生じさせるような高濃度の硫酸イオンが大陸からの飛来を示しているならば、オキシダントも同時に移流していることを示唆している。

5. 発生要因とその事例

高濃度の事例は、2003年度から2006年度までの4年間で、4～8月までの間に、80ppbを超す局が5局以上あった日を選定したが、その日数は2003年29日、2004年32日、2005年38日、2006年21日の4年間で計120日であった。これらの日について、図5に示すような項目についてその影響を検討した。この中で、示した因子をそれぞれ検証することにより、各要因が典型的にみられる事例を抽出し、分類を試みた。

大陸からの移流をみる場合、気圧配置とそれから導き出される流跡線が最も重要な要素と考えられる。特に、移動性高気圧が九州の南方を通過する場合、高気圧の上方を大陸から九州への流れが形成され大陸からの影響を受けられると思われる。また、対馬でのオキシダント濃度は、大陸と九州の中間に位置していること、対馬には大きな発生源がないことから大陸影響の指標となり得る。

成層圏オゾンの下降は、春先でのオキシダント濃度の上昇に関与していると従来から言われているが、その影響は明確ではない。成層圏オゾン下降を示唆する要素として、 Be^7 濃度の増加、比湿の低下、流跡線の起点高度などが考えられる⁴⁾。図6に対馬のオキシダント日平均値と比湿の散布図を示しているが、両者には良好な相関がみられている。しかし、このような時の気象条件は高気圧の前面であることが多く、移流、地域での発生の影響も同時に受

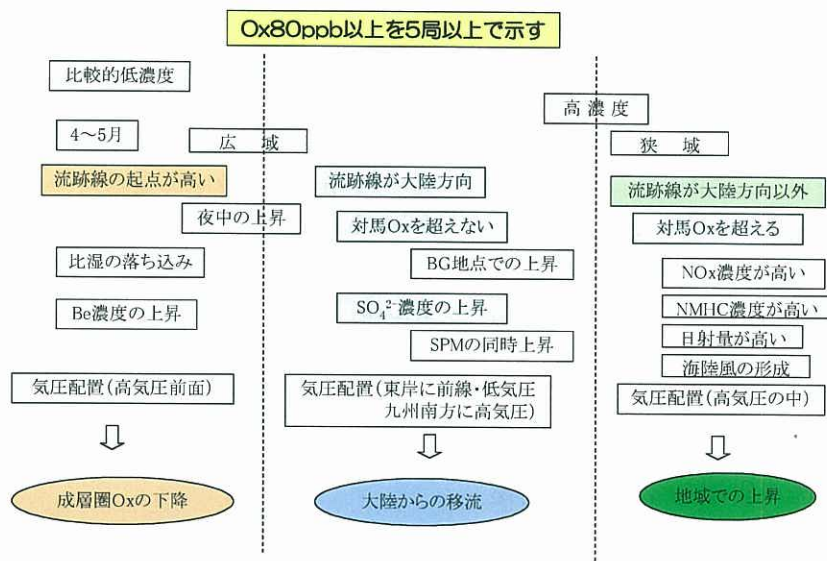


図5 オキシダントが高濃度を示す時の要因とその因子

ける可能性はあるため、成層圏のオゾンの影響を特定できるわけではない。流跡線の高い起点高度は高層大気の下降を示しており、比湿の低下との関係も見られているが、対馬でのオキシダント濃度との相関は比湿ほど良くない。このようなことから、成層圏オゾンの影響があるとの判定を、起点高度が高い(3kmと設定)場合と考えた。この基準により、移流による影響を流跡線でみる場合、少なくとも成層圏オゾンの影響は排除できると思われる。

地域の生成については、流跡線が大陸方向を向いていないこと、地域でのオキシダント濃度が対馬での濃度より大きいことなどを条件とした。地域での発生には、その地域で排出される窒素酸化物や揮発性炭化水素類が関与していると考えられるが、その濃度に大きな差はみられなかった。

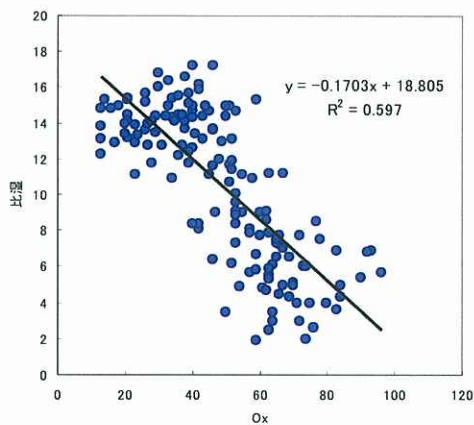


図6 対馬オキシダント日平均値と比湿との関係

3-1) 大陸からの移流

対馬で 100ppb を超えるような高濃度になった日は、概ね流跡線は大陸方向を示しており、大陸からの移流の影響が強いと考えられる。その典型的な事例の一つを、図7



2004050714~2004050414

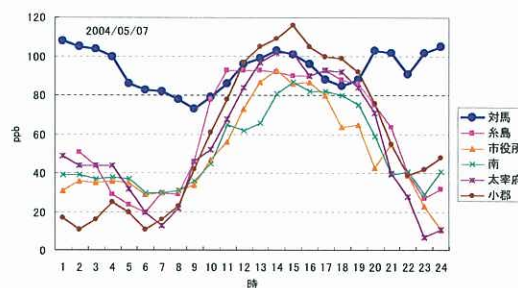
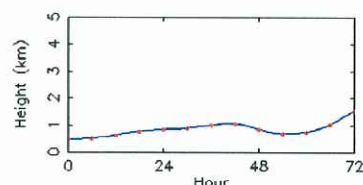


図7 2004年5月7日の天気図、流跡線、オキシダント経時変化

に示す。この日、天気図では九州の南方に移動性高気圧が通過しており、それに併せて流跡線は大陸方向を示している。県内でも全域で 80ppb を超す高い濃度分布になっており、いずれの県内の地点のオキシダントも対馬の濃度を大きく超えていない。

3-2) 成層圏オゾンの下降

成層圏からのオゾンの下降による地上オキシダントの上昇は、春に多く観察されると言われている。また、主に高気圧前面での気流の流れ込みによって起きるため、流跡線での起点が高い位置になっていると考えられる。図8に2004年4月25日の場合の、流跡線、天気図、経時変化を示している。この場合、流跡線の起点高度が 5km と高く、福岡県全域で 80ppb を超えているが、対馬の濃度をほとんど超えていない。このような条件の時には 100ppb を超えるような濃度までの上昇はみられていない。

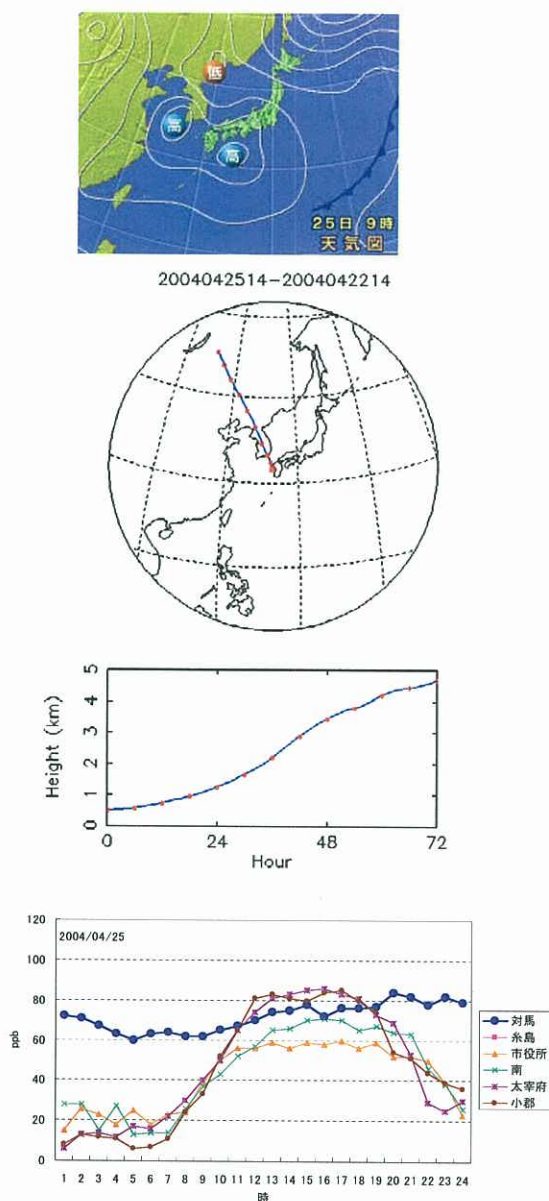


図8 2004年4月25日の天気図、流跡線とオキシダント経時変化

3-3) 地域による生成

6月の下旬から8月にかけては、対馬のオキシダント濃度は減少し低く推移する。気圧配置が太平洋高気圧の影響を受け、大陸からの流れが春ほど頻繁でなくなるためである。この時期に、100ppb を超える高濃度がみられるケースは主に国内の汚染質を要因としたオキシダント生成と考えられる。図9にその典型例である2004年8月12日の福岡市周辺の経時変化を示している。この日、太平洋高気圧が優勢で流跡線も太平洋方向になっており、大陸からの影響はみられない。濃度の上昇も地域的に福岡市周辺に限定されており、対馬の濃度を大きく上回っている。

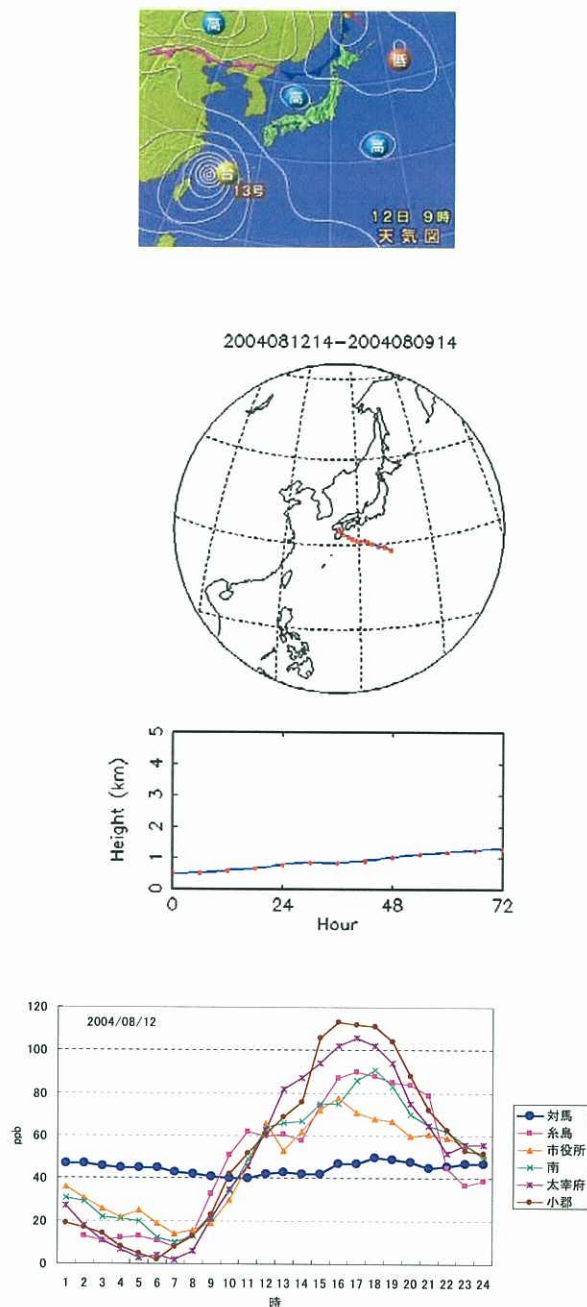


図9 2004年8月12日の天気図、流跡線とオキシダント経時変化

6. 発生要因の分類

前項で示したような典型事例をベースにして、各高濃度日の分類を試みた。大陸からの移流は、流跡線が大陸方向であること、対馬での最高値が県内での最高値を上回っていることとした。2003年の硫酸イオンデータをみると大陸からの移流と判断された日は概ね $10 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えており、硫酸イオンも移流の指標として有効と思われる。成層圏からの降下については、流跡線の起点高度が 3km 以上ある日とした。地域の生成は、県内測定局でのオキシダント最高値が対馬の最高値を上回っていること、流跡線が大陸方向でないこととした。各年での高濃度日を要因別に分類したものを図10に示している。

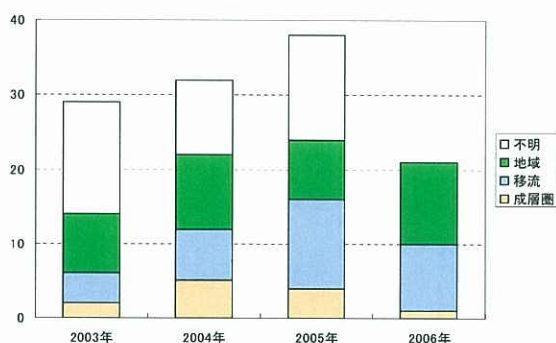


図 10 高濃度日の発生要因別推移

このように分類したものも、単独の要因で説明できるケースは存在しないと考えられる。また、分類できなかったものは、複数の要因が重なっているため、影響の強さを特定できていない。しかし、上記のように、それぞれの要因が強く影響している典型的な事例については、ある程度、その要因を特定できると思われる。

7. まとめ

2003年から2006年の間にオキシダントが高濃度になった日を抽出し、その主要な要因が何であるかを検討した。それぞれの要因は複合して影響していると考えられるが、九州と大陸の間に位置するバックグラウンド測定局である対馬のデータや、流跡線、硫酸イオン濃度などを総合すれば、高濃度日のいくつかのケースでは主要な要因を特定できることが分かった。しかし、要因が複合して区分しにくい場合は、モニタリングだけでその割合を決めるのは難しく、シミュレーションに頼らざるを得ない。今後、精度の高いシミュレーションシステムの進展が望まれる。

【参考文献】

- 1) 秋元肇：光化学スモッグをとりまく国内外状況－我が国におけるオキシダントの増加と東アジアオゾンの汚染－：環境技術、32 (7) 510-516 (2003)
- 2) 黄砂問題検討委員会：黄砂実態解明調査中間報告書、pp1-89 (2007)
- 3) 鶴野伊津志、大原利真、菅田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫、RAMS/CMAQの連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築：大気環境学会誌、40 (4) 148-164 (2005)
- 4) 大原利真他：日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究、国立環境研究所研究報告、195、pp1-256 (2007)