

愛媛県の東予地域における光化学オキシダント濃度の経年変化等について

青木平八郎 藤田慎二郎 泉 喜子 二宮 久

Long-term variation trend of photochemical oxidant concentrations in the Toyo area of Ehime Prefecture

Heihachiro AOKI Shinjiro FUJITA Yoshiko IZUMI Hisashi NINOMIYA

Comparison between annual means of oxidant concentration and those of primary contaminant concentrations over 20 years was studied in eastern district in Ehime Prefecture. The results were as follows : (1) Oxidant concentration levels showed an increasing tendency, whereas primary contaminant concentration levels showed a decreasing tendency or leveling off. (2) Increase of oxidant concentration was big from winter to early spring. These results suggested that the increase of background ozone level might occur from atmospheric transportation of pollutants.

Keywords : Photochemical oxidant, long-term trend, background ozone

はじめに

愛媛県では大気汚染防止法に基づく健康被害防止のため、1969年以降、主に固定発生源の集中立地する東予地域に、測定局や緊急時の連絡体制を整備し、光化学オキシダント生成の一次汚染物質である窒素酸化物(NO_x)や非メタン炭化水素(NMHC)等について地域事業場の協力を得て削減に取り組んできた。東予地域における光化学オキシダントに関する注意報の発令は、1990年から1999年の10年間で11回であったが、2000年以降は発令基準値を超える値は測定されておらず、高濃度汚染による健康被害の届出もなされていない。また、二酸化硫黄(SO_2)、一酸化炭素(CO)、浮遊粒子状物質(SPM)、二酸化窒素(NO_2)については、ほぼ環境基準値以下であり、注意報の発令基準値を超える値は測定されていない。

一方で、地球環境規模での越境汚染について、秋本¹⁾は、東アジアからの大気移流による日本のバックグラウンドオゾンの増加を示唆し、大原²⁾は、最近の光化学オキシダントの上昇を指摘している。若松・青木ら³⁾は、光化学オキシダント汚染の実態解明にあたり、本県東予地域に設置されているオキシダント測定5局の測定結果を濃度ランク別に解析し、濃度域(40~59ppb)の時間数の増加傾向を認め、日本列島に移流する光化学オキシダントの増加傾向を指摘した。これらのことを踏まえ、近

年の東予地域における光化学オキシダント汚染の推移状況や一次汚染物質との関連について、バックグラウンドオゾンの影響及び高濃度オゾンの出現と気象条件について考察を行ったので報告する。

調査内容

1. 調査期間

(1)1985年4月~2005年3月

測定項目：オキシダント、 NO 、 NO_2 、NMHC

測定地点：愛媛県測定局(川之江、伊予三島、高津、金子、中村、西条、東予)

(2)1985年4月~2005年3月

測定項目：日照時間(松山地方気象台新居浜観測地点データ)

(3)1990年4月~2005年3月

測定項目：日射量

測定地点：県測定地点(金子)

2. 調査測定局

愛媛県東予地域は、東西に約70km、南北に約25kmの細長い地形で、北は瀬戸内海の燧灘に面し、南の後背地は標高1,000mを超える四国山地が連なり、平野部は狭い。本地域は昭和39年度に指定された東予新産業都市を構成する中核地域であり、工場や火力発電所が集中立地している。調査対象測定局は東予地域に設置しているオキシダント測定局の川之江局、伊予三島局、高津局、泉川局、金子局、中村局、西条局、東予局の全8局を対象



図1 測定局配置図

とした(図1)。なお、東予地域での状況を把握するため、オキシダント、NO、NO₂、NMHC濃度については、オキシダント測定局8局の平均値を用いた。

結果及び考察

1. 一次汚染物質

光化学オキシダントの生成と消失には、日射とともに大気中に存在する一次汚染物質(NO、NO₂、NMHC)が深く関与している。本多ら⁴⁾は、NOは、オキシダントの生成の初期過程ではOHを触媒としたNO₂の生成に寄与するが、消失過程では、オキシダントと反応してNO₂となり、NO₂は、光分解により酸素を放出してオゾンを生じ、オキシダント濃度の増加に寄与していると報告し

ている。さらに、NMHCは、NOの酸化速度やパーオキシアセチルナイトレート(PAN)等のオキシダントの生成に関与していると報告している。NO、NO₂及びNMHC濃度の年平均値の経年変化をそれぞれ、図2及び図3に示す。NO濃度は、7~11ppbの範囲でほぼ横ばいで推移しており、傾向線(一次)の勾配は負を示したが、有意な減少は示さなかった(P<0.05)。NO₂濃度は、15~19ppbの範囲でほぼ横ばいで推移しており、傾向線の勾配は正を示したが、有意な増加は示さなかった(P<0.05)。NMHC濃度は、1986年に最大値30ppbを示し、以降減少傾向にあり、全体では、傾向線は0.696ppb/年(r = -0.891)の減少を示し、有意な減少が認められた(P<0.01)。

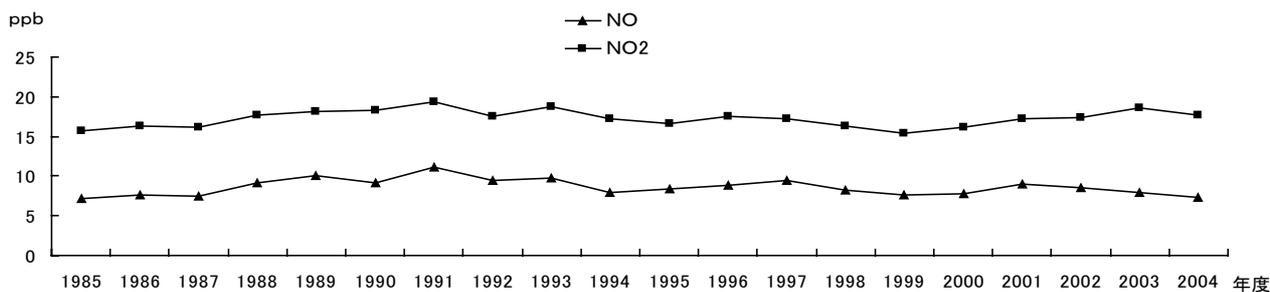


図2 NO・NO₂の経年変化

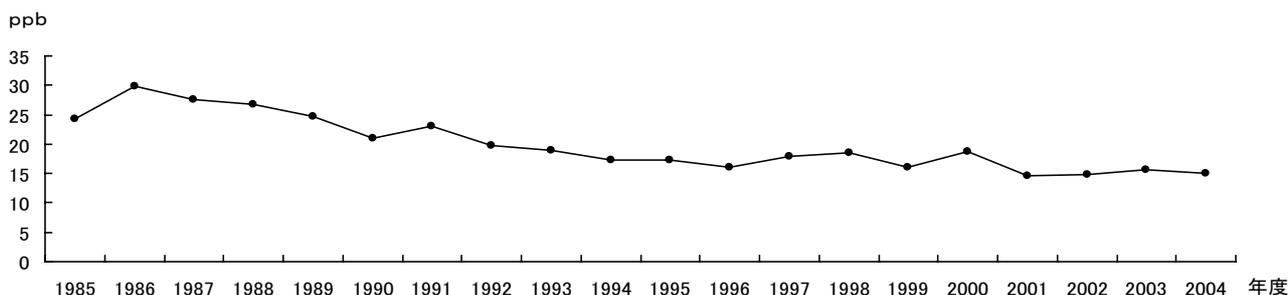


図3 NMHCの経年変化

2. 気象要因とオキシダント

光化学オキシダントの生成の一因である日射について考察した。日照時間の経年変化を図4に示す。日照時間は年によって天候の影響を受けるためばらつきがあり、年間日照時間の範囲は1449～2238時間（平均1783時間）であった。傾向線（一次）の勾配は、13.6時間/年のゆるやかな減少を示したが、有意な減少は認められなかった（ $P>0.05$ ）。また、日射量（15年間）の経年変化を図5に示す。調査期間内では、1990年から1998年までは大きく変動していたが、1999年からは安定していた。年間日射量の範囲は3688～4702MJ/m²（平均4379MJ/m²）であり、その傾向線に、有意な増減傾向は認められなかった（ $P<0.05$ ）。

次に、オキシダント濃度が100ppb以上の高濃度となる気象条件を考察した。高濃度時間が多く発現した1998年の金子局における日射量の日平均値は0.74MJ/m²、最高値は3.61MJ/m²、風速の日平均値は1.4m/s、最高値は7.1m/sであった。オキシダント濃度と日射量及び風速の関係を図6及び図7に示す。その相関係数は、オキシダント濃度と日射量は0.388、オキシダント濃度と風速は0.0231であった。また、同局における高濃度オキシダント（100ppb以上）の発現と日射量及び風速の関係（ $n=19$ ）を図8及び図9に示す。オキシダント濃度が70ppbのとき日射量は1.5MJ/m²以上であり、14事例が日射の強い範囲（日射量2.5～3.5MJ/m²）経由していた。さらに、高濃度を推移したのは、風速3m/s以下の弱い風の時であった。

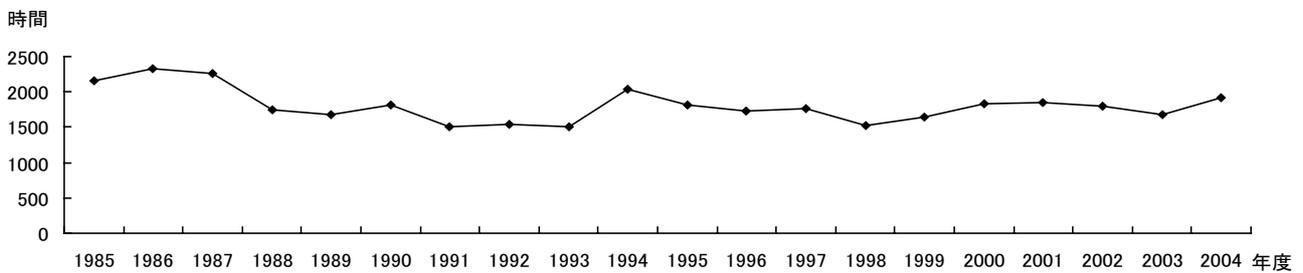


図4 日照時間の経年変化

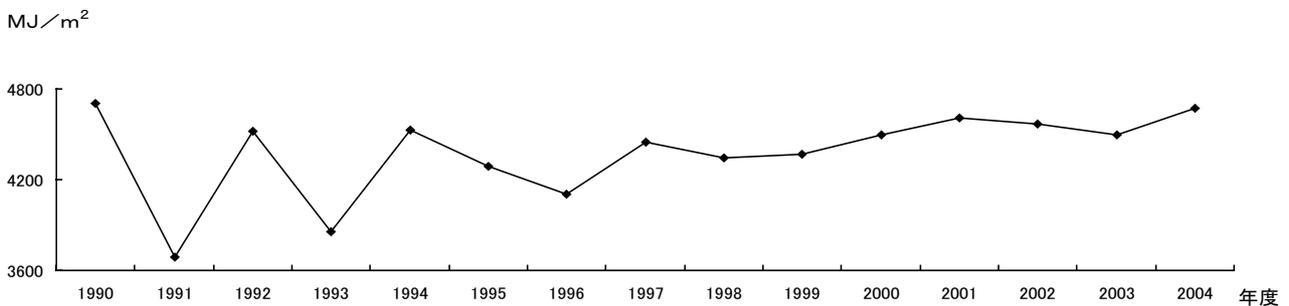


図5 日射量の経年変化

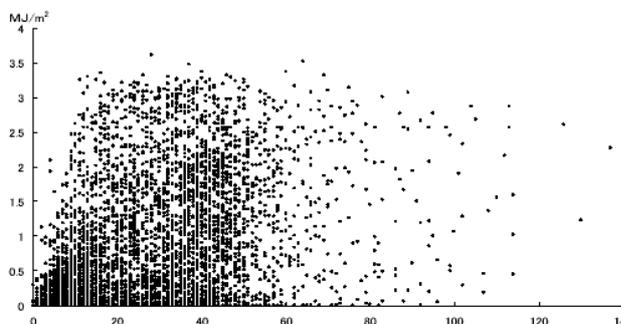


図6 オキシダント濃度と日射量

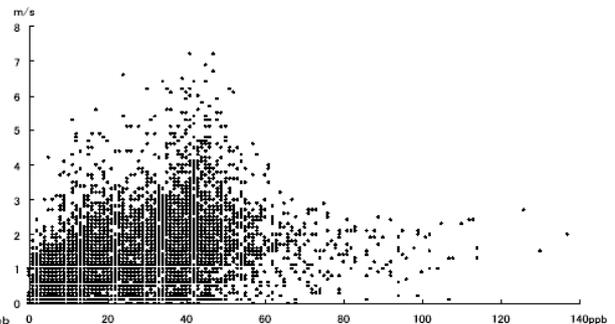


図7 オキシダント濃度と風速

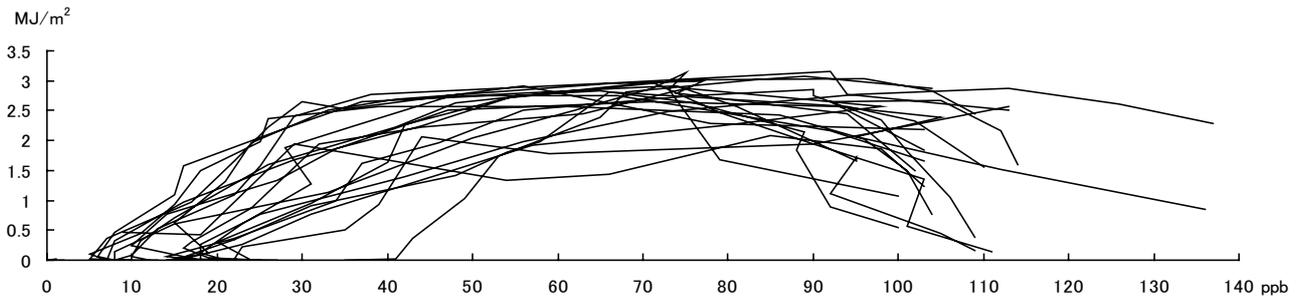


図8 高濃度オキシダントと日射量

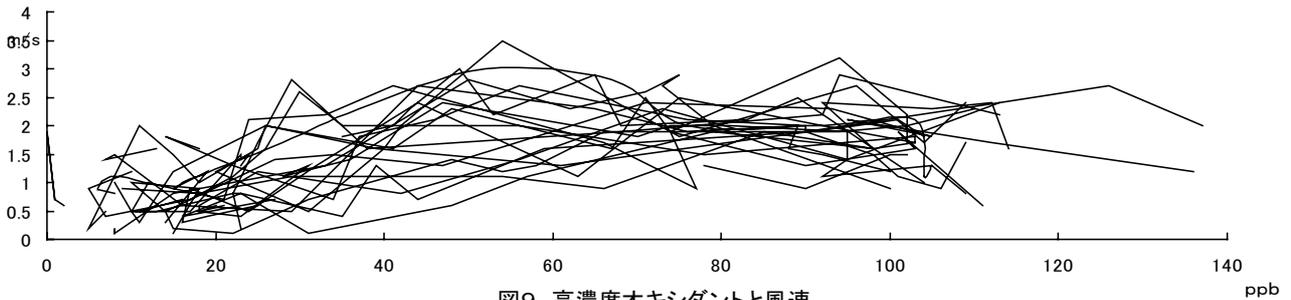


図9 高濃度オキシダントと風速

3. オキシダント

オキシダント濃度の全日、昼間（5-20時）、夜間（21-4時）の年平均値の経年変化を図10に示す。調査20年間の平均濃度は22.6ppbであり、調査初年と最終年を比較すると濃度は23.7%増加していた。全日、昼間、夜間における濃度変動の傾向は、それぞれ0.250 ($\gamma = 0.701$), 0.245 ($\gamma = 0.655$), 0.259 ($\gamma = 0.774$) ppb/年であり、全日、昼間、夜間ともに増加傾向が認められた ($P < 0.01$)。しかし、昼間の増加と夜間の増加に有意な差は認められなかった ($P > 0.05$)。つぎに、月別の季節指数及びオキシダントの月別平均濃度の増加割合（「最終年濃度-初年濃度」/初年濃度）を図11に示す。季節指数は、冬期から春先にかけて高く、夏期から秋期にかけて低い形状を示した。これは、日本の上空に存在するジェット気流の存在位置（ジェット軸）は、季節によって南北に移動し、寒候期は北緯30度付近、暖候期は北緯40度付近に存在⁵⁾している。従って、ジェット軸が南下する寒候期（冬期-春

期）は、中国大陸等で発生した汚染物質の日本付近への大気移流量が増加し、一方、北上する暖候期は、移流量が減少することを示唆している。また、濃度の増加割合も、季節指数と同様に寒候期が大きく暖候期が小さい傾向（最小6月）がみられすべて正の値を示した。これは、中国大陸等では、急速な工業化にともない年々汚染物質発生量が増加していること及び季節的にジェット軸が南北移動することによる大気移流量の変化を反映しているためと推察される。これまでの解析では、一次汚染物質濃度は横ばいか減少し、また、気象要因に大きな変化が認められなかったことを総合すると、オキシダント濃度の増加傾向は、大陸からの移流によるバックグラウンドオゾンの上昇によるためと考えられ、秋本や大原らも同様に指摘している。一方、谷本ら⁶⁾は、冬季から春先にかけてのオキシダント濃度の上昇は、大気の南北移流にともなう対流圏オゾンの増加を指摘しており、今後検討する必要がある。

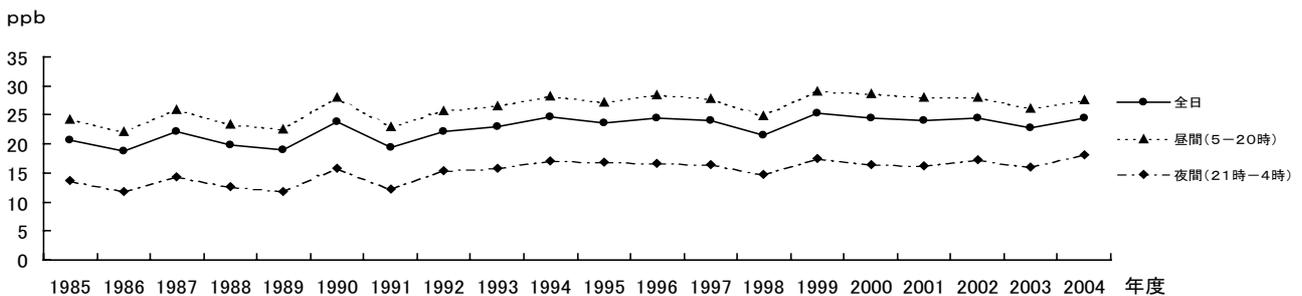


図10 オキシダント濃度の経年変化

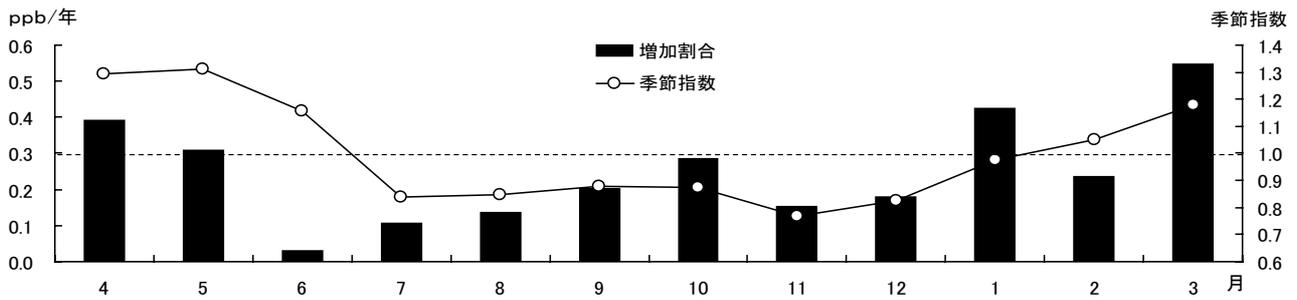


図11 オキシダント濃度の月別の増加割合と季節指数

まとめ

愛媛県東予地域における光化学オキシダント生成原因となる一次汚染物質濃度の増加割合（1985年度～2004年度）は、NOは-6.7%，NO₂は+1.3%，NMHCは-66.5%で、濃度は現状維持又は減少しているにもかかわらず、オキシダント濃度は、+23.7%で増加していた。この原因は、中国大陸等の地域において発生した汚染物質が、日本付近に大気移流され、その結果バックグラウンドオゾンが増加していることが考えられ、大気輸送に関し今後さらに研究が必要である。また、東予地域における光化学オキシダントの注意報発令濃度の出現は近年減少しているが、高濃度のオキシダントは、日射量が高く、また風速が小さい時に出現する。このため、オキシダントの発生要因やバックグラウンドオゾンの影響を把握するため、東予地域における常時監視は今後も必要である。

文 献

- 1) 秋本肇：資源環境対策，39，90-96（2003）
- 2) 大原利眞：資源環境対策，39，86-89（2003）
- 3) 若松伸司ほか：西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究（2004）
- 4) 本多健一ほか：大気の光化学，東京大学出版会，24-50，（1979）
- 5) 大塚龍蔵：「高層天気図の利用法」，日本気象協会，pp.71（1993）
- 6) 谷本浩志ほか：Geophysical Research Letters（2005）