

7) 熊本県における光化学オキシダント濃度の現状と動向（～2009）

豊永 悟史 林 英明 北岡 宏道

要 旨

県内の光化学オキシダント（以下「Ox」）濃度の経年変化、季節変化およびその地域差を明らかにすることを目的として、県内5か所の常時監視局について1988～2009年度のデータ解析を行った。2001年度以降のOx濃度は全地点で増加傾向にあり、これは越境移流などによる広域的な汚染の影響と窒素酸化物濃度の減少によるオゾンの自己消費抑制が主な要因であると推察された。また、菊池市役所局については他測定局と異なる挙動を示していることから、この地域のみが影響を受けるメカニズムの存在が示唆された。

キーワード：光化学オキシダント，ポテンシャルオゾン，経年変化，季節変化

はじめに

2006年6月に熊本県での観測史上初の光化学スモッグ注意報が発令される等、最近、本県においても高濃度の光化学オキシダント（以下「Ox」）が観測されるようになり、社会問題となっている。

九州地域におけるOx濃度の上昇要因として、大陸からの汚染物質の移流が大きく影響していることが、硫酸イオン濃度・後方流跡線による解析及びシミュレーション結果から指摘されており^{1,2)}、対策は困難な状況である。また、2010年度の環境基準達成率は一般環境大気測定局・自動車排ガス測定局ともに0%となっており、今後も同様の状態が続く可能性がある³⁾。

このような状況から、今後も継続したモニタリングを行うとともに、過去のデータを解析して県内におけるOxの大気汚染状況を把握しておくことが重要だと考えられる。

本研究では、Ox濃度の経年変化・季節変化から県内Oxの変動傾向を把握することを目的として、解析を行った。

調査方法

1 調査地点

県内の状況を広範囲に把握でき、継続的に測定されている局として、熊本市を除き県北、県央、県南、県西、県東からそれぞれ1局を選定した。選定5局の位置図を図1に示した。

八代市役所局（県央）・荒尾市役所局（県北）周辺は人口も比較的多く、用途地域指定もそれぞれ商業地域・準商業地域に指定されており、人為活動の盛んな地域だといえる。一方で、水俣保健所局（県南）・菊池市役所局（県東）は住居地域に指定されており、比較的郊外に位置している。苓北志岐局（県西）は、未指定地域となっており、海に面した立地で、他地点に比べて自然に恵まれた場所だといえる。

2 調査期間

調査期間は1988年～2009年度とした。なお、各測定局により測定開始時期が異なっており、全局で測定を実施するようになったのは1998年度以降である（表1）。

各図で示している 1998 年度以前の平均はその時点で測定していた全測定局の平均値であるが、便宜上 5 局平均として表記した。

3 0x 濃度等

解析には、1988 年～2009 年の熊本県内の大気汚染常時監視局による 0x、二酸化窒素（以下「NO₂」）、窒素酸化物（以下「NOx」）濃度等の常時監視データ（確定値）を使用した。なお、データの集計・解析にはⅡ型共同研究メンバーサイトより入手した大気時間値集計・解析プログラムを使用した⁴⁾。

また、NOx による影響を把握するために、ポテンシャルオゾン（以下「PO」）を解析に使用した。

0x の 9 割は O₃ とされているが、O₃ は、NO が存在すると O₃+NO→O₂+NO₂ の反応により自己消費される性質があり、NO により消費された O₃ 量まで含めた保存量が PO である。PO は文献 5) に従い次式により算出した。

$$[PO]=[Ox]+[NO_2]-0.1\times[NOx]$$

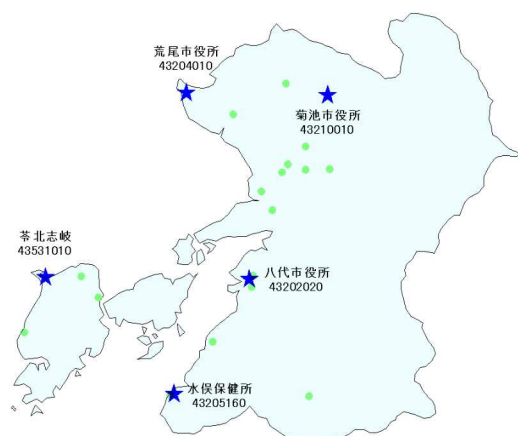


図1 測定局の配置図（★：選定5局 ●：一般局）

※局名の下に数字は国立環境研究所が定めた測定局コード

表1 選定5局の 0x・NOx 測定開始年度

測定局名	0x測定開始年度	NOx測定開始年度
荒尾市役所局	1988～	1988～
菊池市役所局	1998～	1998～
八代市役所局	1994～	1988～
苓北志岐局	1993～	1993～
水俣保健所局	1992～	1988～

結果及び考察

1 0x 経年変化

（1）0x 年平均値の経年変化

図2に 0x 年平均値の経年変化を示した。5 局平均で見ると、2001 年にかけては横ばいあるいは減少する傾向（1988-2001 年度傾き：0.01）が見られたが、その後は緩やかな上昇傾向（2001-2009 年度傾き：1.12）となっていた。測定局別に見た場合でも概ね同様の傾向を見せており、これは県内全域に共通する特徴だといえる。

また、地点間の濃度は、全期間を通じて高い順に、苓北志岐局（全期間平均値：35.6ppb）＞菊池市役所局（28.4ppb）・水俣保健所局（29.1ppb）＞荒尾市役所局（22.6ppb）・八代市役所局（22.3ppb）となっていた（図3）。このことから各測定局の地域的な特性により、濃度差が生じていることが示唆された。

（2）高濃度 0x の発生状況

0x については環境基準（1 時間値が 60ppb 以下）が定められている⁶⁾。各測定局における環境基準を超過する高濃度 0x の出現率（60ppb 以上の 0x 出現時間/総測定時間×100）を図4に示した。

5 局平均で見ただけでは、0x 年平均値の経年変化（図2）と同様に 2001 年度以降に上昇傾向（2001-2009 年度傾き：0.84）が見られ、近年高濃度 0x が発生しやすくなっていることが示唆された。

測定局ごとに見ると、概ね菊池市役所局の出現率が最も高く、年平均値とは異なる傾向を示した。この傾向は、100ppb 以上の出現率で見た場合には、より明確に確認でき、特に 2006 年度以降について顕著であった（図5）。このことから菊池市役所局ではバックグラウンドレベルは低いものの、単発的に高濃度 0x が発生する特徴があるものと推察された。

苓北志岐局は 2003・2004 年度に出現率が急上昇し、その後減少したが、2006～2009 年度にかけて再び出現率が上昇している。このことから苓北志岐局は、多地点に比べて年度ごとの変動が大きい傾向にあると考えられた。

荒尾市役所局・八代市役所局については年平均値同様に他地点に比べて低い出現率で推移した。水俣保健所局については 2005 年以降の出現率は高くなっているものの、概ね 5 局平均と同程度の値で推移していた。

（3）PO を用いた解析

図6に PO 年平均値の経年変化を示した。5 局平均

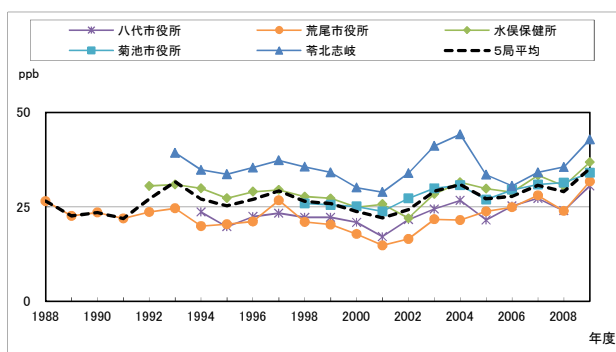


図 2 1988～2009 年度の 0x 濃度（年平均値）の変化

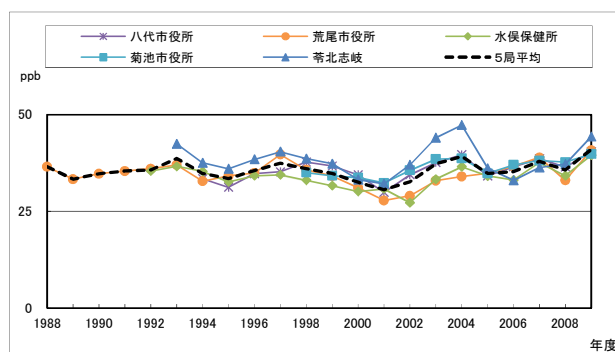


図 6 1988～2009 年度の P0 濃度（年平均値）の変化

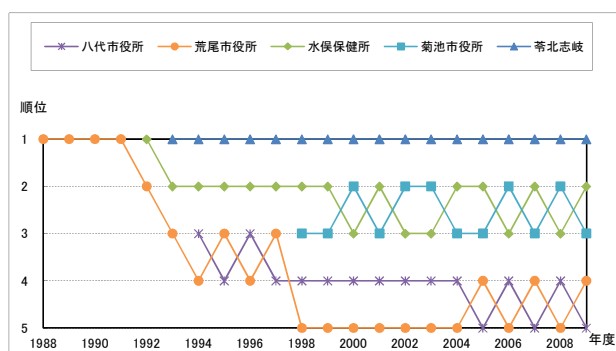


図 3 1988～2009 年度の 0x 濃度順位の推移

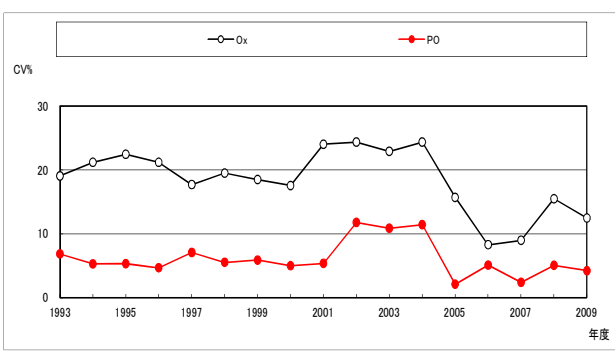


図 7 0x と P0 濃度の地点間の変動係数（CV%）の変化

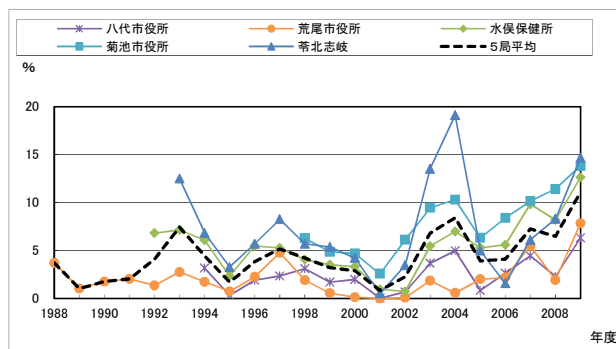


図 4 0x 濃度 60ppb 以上の出現率の推移

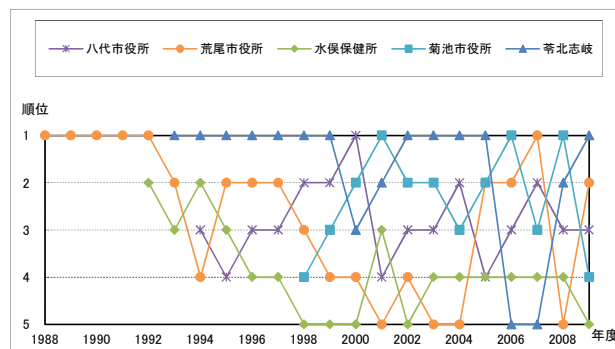


図 8 1988～2009 年度の P0 濃度順位の推移

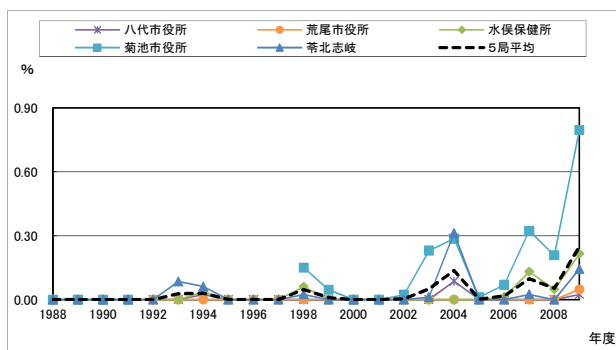


図 5 0x 濃度 100ppb 以上の出現率の推移

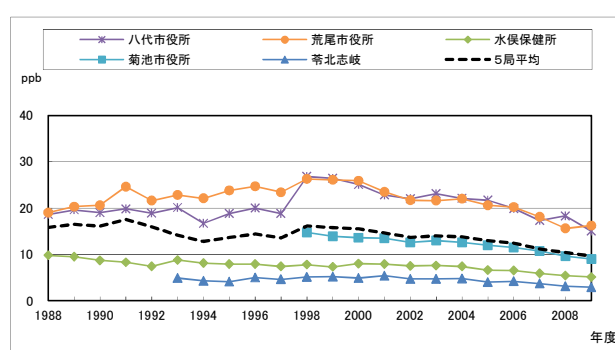


図 9 1988～2009 年度の N0x 濃度（年平均値）の変化

は O_x に比べて高い値で推移しているが、変動パターンは概ね O_x と一致し、2001 年度以降の上昇傾向（2001-2009 年度傾き：0.80）も確認できた。このことから、2001 年度以降に県内で広域的に O_x 負荷量が増加していると考えられた。

3 局以上で測定を開始した 1993 年度以降（表 1）について、年度ごとの測定局間の変動係数（CV%）を図 7 に示した。変動係数は常に $O_x > PO$ で推移しており、経年的には $O_x \cdot PO$ とともに減少傾向であり、特に 2005 年度以降は低い値を示した。また、測定局間の濃度順位を見ると、全体的には O_x 同様に苓北志岐が 1 位となる傾向にあるが、近年特に順位の入れ替わりが激しくなっており、 O_x では生じていた測定局間の差が見られなくなってきたことがわかる（図 8）。これらのことから、 O_x 年平均值で見られた測定局間の差は O_x 負荷量の違いよりも NO_x による O_3 の自己消費量を強く反映した結果だと考えられる。また、この測定局間の差が減少傾向にあるのは、 NO_x 年平均值が減少傾向（図 9）にあることが影響していると解釈できる。この解釈は NO_x 年平均值が、荒尾市役所局・八代市役所局 > 菊池市役所局 > 水俣保健所局 > 苓北志岐局と O_x 年平均值とはほぼ逆の順位を示すことから支持される。

以上のことから、近年の O_x 濃度上昇の主要因は広域的な O_x 負荷量の増加と O_3 自己消費量の減少であると考えられた。また、 O_3 自己消費量の減少は、近年の測定局間の差の減少にも影響していることが示唆された。

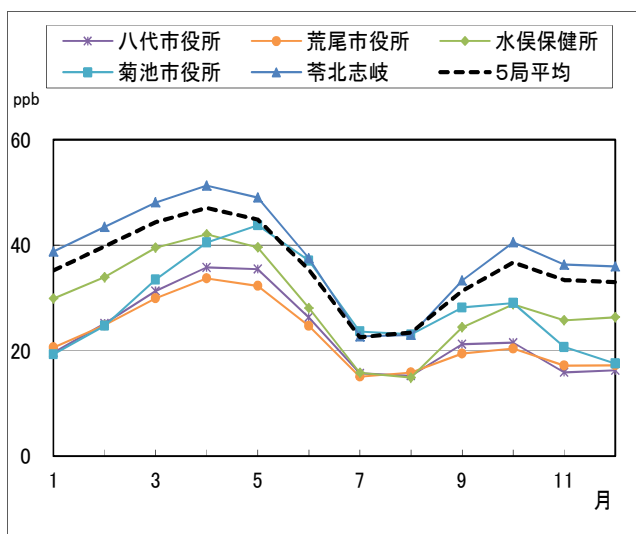


図 10 O_x 濃度（月平均値）の経月変化

2 O_x 濃度の季節変化

（1） O_x 濃度の月平均値の変化

図 10 に 1988～2009 年度の O_x 月平均値経月変動を示した。全地点について、 O_x 月平均値は春と秋に極大を持つ「春+秋」型の季節変動を示した。このような変動パターンは九州地方では一般的に見られるものであり、春季及び秋季の大陸からの越境移流や春季の成層圏オゾン降下などのオキシダント発生源の影響⁷⁾及び 6 月～7 月にかけての梅雨の長期間降雨、夏期の太平洋高気圧などの気象要因の影響を受けたものだと考えられる。また、そのパターンは、極大を示す時期に着目すると地点ごとに次の 3 種類に分類できた。

＜パターン①：水俣保健所・苓北志岐局＞

春季は 4 月に、秋季は 10 月に極大を示した。

＜パターン②：八代市役所・荒尾市役所局＞

春季は 4～5 月に、秋季は 9～10 月に幅広の極大を示した。

＜パターン③：菊池市役所局＞

春季は 5 月に極大を示し、秋季は 9～10 月に幅広の極大を示した。

（2） PO を用いた解析

図 11 は PO 濃度月平均値の経月変化である。これを見ると、測定局間の差は明らかに小さくなっており、 NO_x の影響により差が生じていたことが示唆された。春季は菊池市役所局のみが 5 月に極大を示し、その他の測定局は 4 月に極大を示した。また、秋季は全測定局で 10 月が極大となった。以上のことから菊池市役所局以外の地点ではパターン①が本来の O_x 負荷量から生じるパターンであり、パターン②の傾向と秋季にお

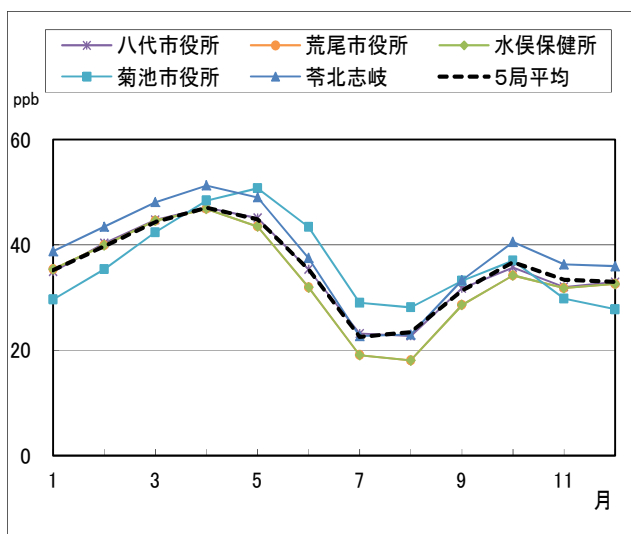


図 11 PO 濃度（月平均値）の経月変化

けるパターン③の傾向は NOx に影響されたものだと考えられた。

また、菊池市役所局は Ox・PO 濃度ともに 5 月に極大を示したことから、この時期に Ox 負荷量が多い特徴があると推察された。

ま と め

県内における Ox の経年変化・季節変化等の変動傾向を明らかにすることを目的として、PO や NOx 濃度を用いた解析を行った。

- 1 Ox 年平均値は 2001 年度以降上昇傾向にあり、これは越境汚染などによる広域的な汚染の拡大と NOx 負荷量の減少による O₃ 自己消費抑制が主要因だと推察された。
- 2 Ox 月平均値は春と秋に極大を示す「春+秋」型の変動パターンを示した。PO も同様のパターンを示したことから、これは Ox 負荷量を反映したものだと考えられた。
- 3 Ox の経年変化及び季節変化における測定局間の差は、全体的には O₃ 自己消費量に大きく影響を受けたものであると考えられた。また、菊池市役所局については、他局と異なる傾向を示しており、特異的な Ox 発生源の存在など、この地域のみが影響を受けるメカニズムの存在が示唆された。

文 献

- 1) 岩本真二, 大石興弘, 田上四郎, 力寿雄, 山本重一 : 大気環境学会誌, **43**, 173 (2008) .
- 2) 大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 早崎将光, 清水厚 : 大気環境学会誌, **43**, 198 (2008) .
- 3) 環境省 : 平成 22 年度大気汚染状況報告書, p.57-67(2012).
- 4) II 型共同研究「PM2.5 と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究」基本解析グループ : 大気時間値集計・解析プログラム (II 型研究メンバーサイト <https://project.nies.go.jp/c-ox/forum/>)
- 5) 大原利眞編 : 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-国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究最終報告 (平成 19~21 年度), 国立環境研究所研究報告第 203 号, p.159-168 (2010).
- 6) 環境省 : 大気の汚染に係る環境基準について (1973)
- 7) 大原利眞編 : 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 -国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究最終報告 (平成 16~18 年

度), 国立環境研究所研究報告第 195 号, p.137-154 (2007).