

## 佐賀県における光化学オキシダント濃度 (独立行政法人国立環境研究所C型共同研究)

吉牟田 博子

### 要 旨

光化学オキシダントは日本全国で平均的な濃度の上昇や、汚染地域の広域化が進んでいる。光化学オキシダントの挙動には、国外からの移流を含めて日本全体に影響を及ぼす要因と、地形や気象条件など地域独自の要因、並びに発生源条件の変化が複合して影響を及ぼしており、総合的な解析が必要である。そこで独立行政法人国立環境研究所と20自治体が参加し、平成13年度から15年度まで、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等の経年変動について共同研究が実施された。当所では、平成14年度から参加して、光化学オキシダントの経年変動について解析した。その結果、佐賀県においても増加傾向にあることが判明した。平成16年度からは「日本における光化学オキシダント等の動態解明に関する研究」として、この共同研究は発展拡大している。当所も参加して、解析を継続することとしている。

**キーワード：光化学オキシダント、大陸移流、煙霧**

### はじめに

### 調査方法

「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」では、それぞれの参加自治体がモニタリングデータ(大気常時監視調査)の時間値データを提供し、それを基に、国立環境研究所が時間値のデータベースを作成する。研究の前半においては測定属性情報を含めた精度の高いデータベース構築が集中的に実施され、更に共通のデータベースを基に、国立環境研究所が開発した集計プログラムにより、参加自治体は地域の経年変動、季節変動を統一的に解析・評価し、地域間の比較を合理的に行うことが可能となった。

#### 1 解析対象地点

参加自治体は、大気常時監視局を5局選定して作業を行った。佐賀県は、佐賀局、唐津局、大坪局、武雄局及び基山局を選定した。5局のオキシダントのデータ解析機関、周辺状況、測定局移設状況、機器の測定方法等は表1に示すとおりである。

選定理由は、県内にオキシダント測定局は8局あるが、光化学オキシダント注意報の発令は一度もなく、大きな地域差がないので、県全体を捕らえられるように内陸都市2局、臨海都市2局及び交通量の多い基山局を選定した。

表 1 選定5局の属性情報

測定局名	佐賀局	唐津局	大坪局	武雄局	基山局
国環研コード番号	41201030	41202010	41205080	41206010	41341010
測定局設置年月	1984年3月	1973年9月	1979年12月	1990年4月	1985年3月
オキシダントのデータ解析期間	1987年4月 ~ 2002年3月	1992年4月 ~ 2002年3月	1987年4月 ~ 2002年3月	1990年4月 ~ 2002年3月	1987年4月 ~ 2002年3月
周辺状況	県都佐賀市の中心市街地で周辺は住宅が多い。小学校敷地内	玄海灘に面した唐津市の中心。北側50mには海岸道路があり、海岸まで100m	県西部の臨海伊万里市の中心市街地で周辺は住宅。公民館敷地内	県中西部の温泉都市の中心市街地で周辺は住宅。北側には鉄道線路がある	県東部の町国道3号線があり、トラックの通行量が多い。小学校敷地内
測定局移設状況	1996年9月に東に1km移動し、採気口の高さが地上15mから3.5mに変更。	1996年9月に西へ1km移動し、採気口の高さが地上15mから3.5mに変更。	2002年3月に北東へ200m移動し、採気口の高さは変更なし。	なし	1995年12月に地上へ移動し、採気口の高さが地上16mから3.5mに変更
周辺状況の変化	特になし	特になし	特になし	特になし	特になし
オキシダントの測定方法の変化(年月は測定機の設置または更新時期)	1997年11月 OX OXW	1991年3月 OX OXW	1996年11月 OX OXW	1990年3月 OXW設置	1999年3月 OX OXW

## 2 解析対象期間

大気常時監視データ解析対象期間は、1990年度～2001年度であり、以下の月平均値等は12年分の平均値である。但し、年度平均値経年グラフは測定開始年度から2001年度まで解析した。

### 結果と考察

#### 1 経年変化

年度平均値と平年値(1990 - 2001)との偏差をグラフ化し図 1 に示す。また年度平均値の直線回帰の傾きと相関係数を表 1 に示す。図及び表より次のことが判明した。

5局年度平均値は、1995年度までは平年値(1990 - 2001)を下回り、1996年度以降は2000年度を除き平年値を概ね上回る状況が継続している。佐賀局、大坪局、基山局は年度平均値の直線回帰の傾きが正の大きい値となっており、増加傾向を示している。唐津局の月平均値は県内でも最高であるが、年度平均値の傾きが-0.40であり、減少傾向にある。唐津局は臨海都市にあり、大陸からの移流の影響を受けやすいところであるが、減少傾向の原因は不明である。武雄局は年度平均値の傾きは小さな値となり横ばいである。

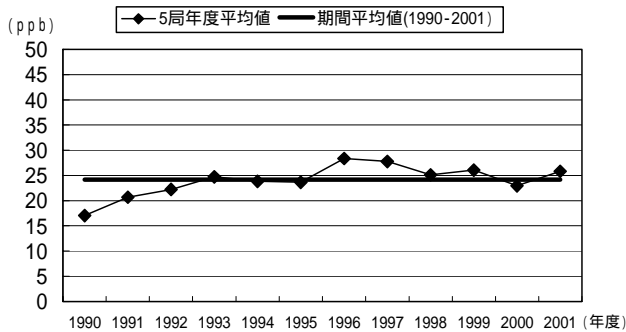
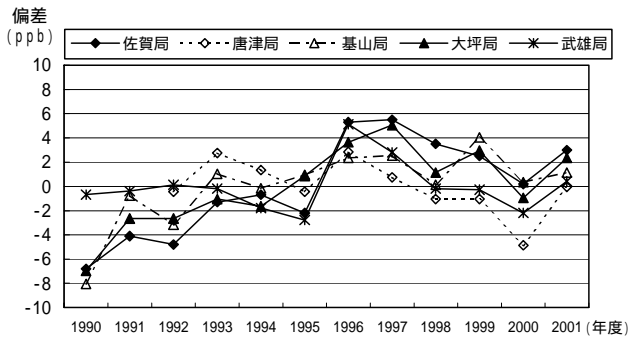


図-1 佐賀県オキシダント濃度年度平均値と平年値(1990-2001)との偏差

シダント濃度の増加傾向が認められない要因を解析する必要がある。唐津局は固有のオキシダント濃度減少理由があると思われる。

オキシダント 80ppb 以上の高濃度時間数の経年変化グラフにより、80ppb 以上の発生時間数は唐津は1993～1996年まで多いがそれ以降減少している。基山局では1997～1999年度において多くなっていた。基山局は福岡都市圏からの影響であるかは更に解析が必要である。1995年度は高濃度域(60-79ppb,80-99ppb)の時間数が落ち込んでいる。最大値の経年変化グラフでも同様である。これは、年間でオキシダント濃度が高くなる5月に降水量が多かったためと思われる。年間降水量は平年並みであり、各県と比較できたこの共同研究により判明した。

共同研究参加自治体の年度別変化には、地域的な気象要因が関係した固有なものが見られる。今後、気象要因との解析が必要と思われた。

表-2 年度平均値の回帰係数等

測定局名	佐賀局	唐津局	基山局	大坪局	武雄局
期間平均値(1990-2001)	20.2	31.6	24.2	23.5	22.8
平均値傾き(1990-2001)	0.87	-0.40	0.58	0.67	0.05
平均値相関係数(1990-2001)	0.77	-0.54	0.67	0.72	0.09

濃度ランク別時間数の経年変化をグラフ化して図 2 に示す。図より次のことが判明した。

佐賀局、大坪局、基山局はオキシダント低濃度域時間数が減少し、高濃度域時間数が増加していた。

唐津局はオキシダント低濃度域時間数が増加し、高濃度域時間数が減少していた。

武雄局はオキシダント濃度はどの濃度ランク別時間数も横ばいであった。

これは の結果を裏付けるものとなっている。低濃度域の時間数減少がオキシダントのバックグラウンド上昇と仮定すれば、武雄局でオキ

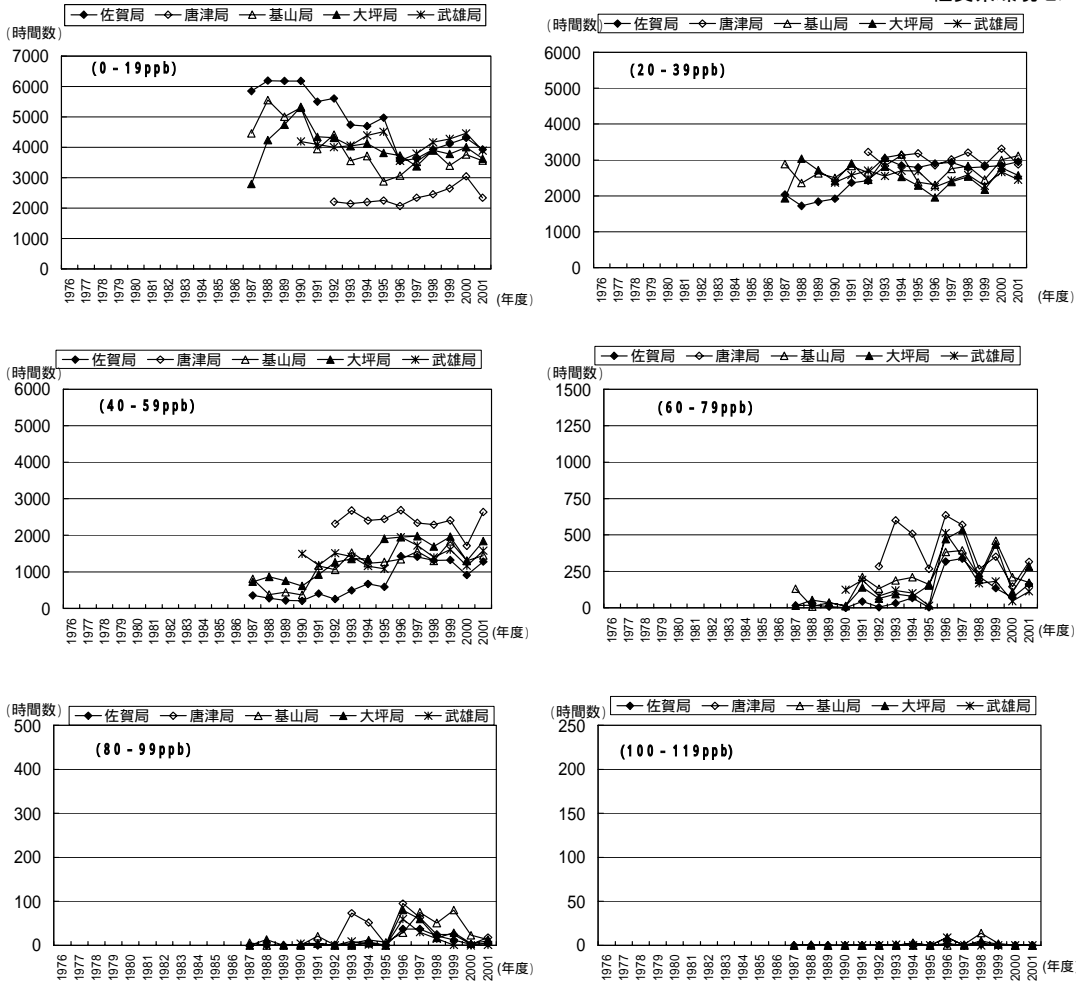


図-2 佐賀県オキシダント濃度ランク別時間数経年変化

佐賀県におけるオキシダント濃度の年度平均値の経年変化を図 3 に示す。図より次のことが判明した。

1990 年度以前のデータは、佐賀県は3年間と少ないが、早くから測定している自治体でも増加の傾向は見られない。しかし、1990 年度以降佐賀局、大坪局、基山局では若干増加の傾向が見られる。武雄局は横ばいであり、唐津局が1997 年度から減少の傾向が見られた。測定局移動に伴う採気口高さの変化は、移動した年度だけでなく、その後も減少傾向であること、同様に移動した佐賀局、基山局には見られないことから、減少傾向の主原因とは考えられない。移動により道路に近くなったことが影響していることも考えられるが不明である。

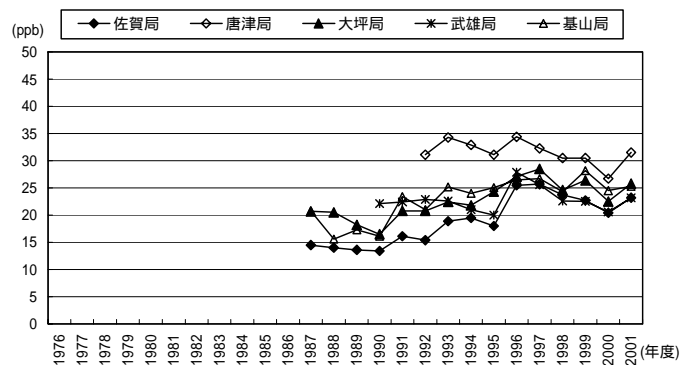


図-3 佐賀県オキシダント年度平均値経年変化グラフ

## 2 季節変化

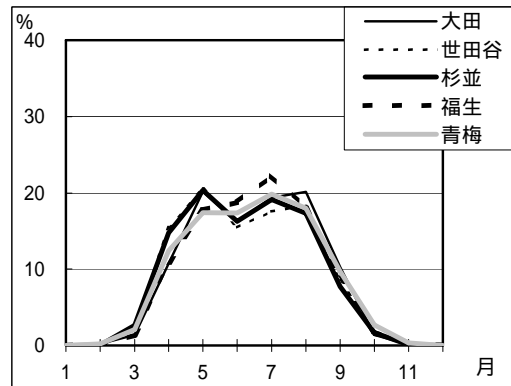
オキシダント月平均値及びオキシダント月別 60ppb 以上時間数を図 4 及び図 5 に示す。図より、次のことが判明した。

オキシダント濃度の季節変化は、5局全て同じであり、1月から上昇し4, 5月に大きなピ

ーク、7, 8月に最低値となり、9, 10月に小さなピークがあり、11, 12月にかけて再び低下する。60ppb以上時間数グラフも同様のパターンである、しかし、季節変化では最低となる夏季にも高濃度発生事例があり、広域の高濃度現象であるのか今後解析が必要である。

共同研究参加自治体の中では、福岡県、山口県も同様の傾向であった。秋季にもピークがある自治体は少なかったが、5月にピークがあるのは全体的傾向であった。その典型として東京都の例を図6、図7に示す。5月の月平均値濃度は、富山県、京都北部、兵庫北部、滋賀県、島根県がより高くなっていた。

図7 Ox60ppb以上の月別出現割合(東京都)



NOx及びSPMの月平均値を図-8及び図-9に示す。図より、次のことが判明した。

NOx濃度の季節変化は、5局全て同じであり、7, 8月に最低、12, 1月に高くなるパターンであった。12月が高濃度となるのは、大気安定度等の気象要因によるが、NOを酸化分解するオキシダント濃度が低濃度であることも影響していると言われている。共同研究参加自治体の多くでも同様の季節変化が見られた。

SPM濃度の季節変化は、5局でそれぞれパターンが少し異なった。佐賀局と武雄局は、4, 5月と12月に高くなる。唐津局と大坪局では、大陸に近いので4月がより高くなり、大陸から遠い基山局では、6月に高くなっている。4, 5月は黄砂の時期であり、佐賀局と武雄局で12月に高いのは、NOxと同じく大気安定度等の気象要因と思われるが、内陸部がより大気安定度が高くなるためと思われる。

共同研究参加自治体の多くの自治体でSPM濃度季節変化は、気温が高く、紫外線も強い7月が最大となっている。光化学反応を中心とした二次生成によるSPM濃度の上昇と言われている。その典型として東京都の例を図10に示す。黄砂時期の4, 5月に高いのは西日本地区であった。

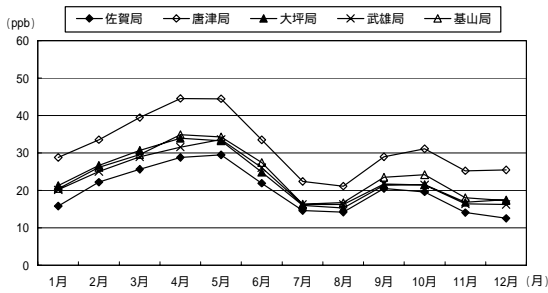


図-4 佐賀県オキシダント月平均値グラフ

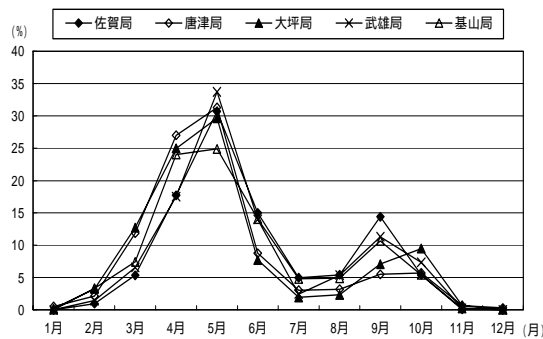
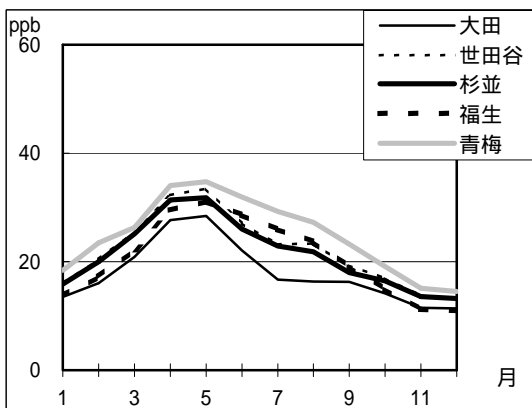


図-5 佐賀県オキシダント月別60ppb以上時間数(分布)

図6 Ox濃度の月別平均値(東京都)



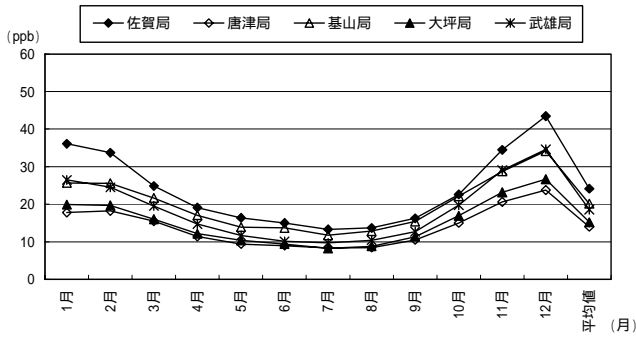


図-8 佐賀県NOx月平均値グラフ

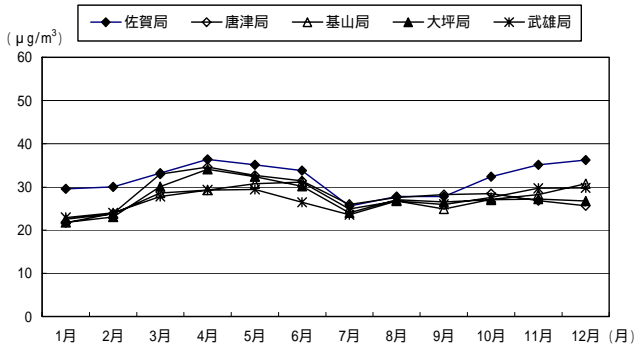


図-9 佐賀県SPM月平均値グラフ

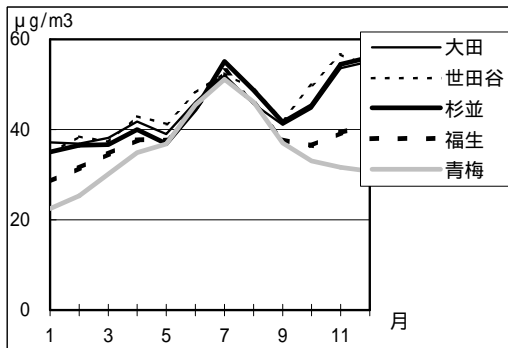


図10 SPM濃度の月別平均値(東京都)

NOのNO<sub>2</sub>への酸化、更なる酸化等により、NO<sub>x</sub>としては低下するためと考えられている。共同研究参加自治体の多くで、負の相関関係が認められた。

SPMとO<sub>x</sub>濃度との間には、相関は認められなかった。(相関係数 0.12) 共同研究参加自治体の中でも明瞭な相関関係が認められる自治体はなかった。

#### 4 測定方法との関係

佐賀県は、すべて湿式法である。選定した5局では向流吸収管自動洗浄装置付きへの更新の前後で年平均値に大きな増減はなかった。しかし、5局以外の鳥栖局は洗浄装置無しで、相対的に低値であり、洗浄装置無しによる影響が見られた。

#### まとめ

国立環境研究所の全面的な協力を得て、大気環境常時監視データが生きた情報となり、貴重な知見を得ることができた。平成16年度以降も環境省の協力が得られる予定となっており、光化学オキシダントだけでなく粒子状物質等々の大気汚染物質の動態解明が期待される。

#### 3 オキシダント濃度と他の項目との関係

NO<sub>x</sub>とO<sub>x</sub>濃度、SPMとO<sub>x</sub>濃度の関係(1990-2001)を図11に示す。図より、次のことが判明した。

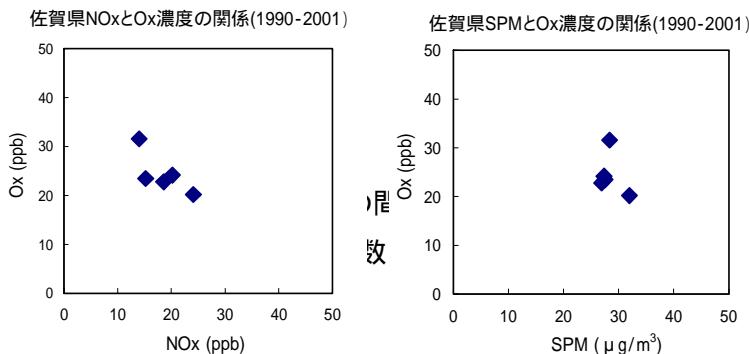


図-11 NO<sub>x</sub>とO<sub>x</sub>, SPMとO<sub>x</sub>との相関