

I 報 文

長崎県における大気環境の特徴 — 平成14、15年度光化学オキシダント高濃度現象の解析—

森 淳子・山口 顕徳・香月 幸一郎・白井 玄爾

Features of the Air Environment in Nagasaki Prefecture Analysis of the Photochemical-oxidants High Concentration Phenomenon in the 2002 and the 2003 Fiscal Year

Atsuko MORI, Akinori YAMAGUCHI, Koichiro KATSUKI and Genji SHIRAI

In Nagasaki Prefecture, the cases which the level of oxidants concentration exceeds 100 ppb were 5 days for 6 stations in 2000 fiscal year, 15 days for 53 stations in 2002 fiscal year and 15 days for 62 stations in 2003 fiscal year. Compared with the 2000 fiscal year, these days increased about 3 times and the number of the stations increased about 10 times. The measured value exceeding 120 ppb for the first time was recorded in 2002 fiscal year.

The days that oxidants were observed beyond 100 ppb are concentrating in May and June in 2002 and 2003 fiscal year. And there is a high tendency in specific stations, such as the Kurosaki junior high school, Yukinoura and Yunoki.

With the advent of a high concentration oxidant, it became clear that relation with a migratory anticyclone is deep as a result of the analysis. Also it became clear that relation with the nitrogen oxide generated with the advent of a high concentration oxidant regionally is deep.

In addition to these, it was considered to be the factor of the level-of-oxidants appearance exceeding 120 ppb in May-June that the oxidant of the ozone layer origin was added.

Key words: photochemical-oxidants high concentration phenomenon

キーワード: 光化学オキシダント高濃度現象

はじめに

長崎県における大気環境調査は、大気汚染防止法に基づき1971年度に開始されている。前報¹⁾では観測開始以来の長期変動について解析を行った。その結果、固定発生源関連の汚染物質については長期的に減少傾向が認められたが、移動発生源に関連して、都市部の二酸化窒素や非メタン炭化水素濃度が増加傾向にあった。また、黄砂飛来時に浮遊粒子状物質の環境基準超過が認められたほか、光化学オキシダント濃度が特に1990年代以降増加傾向にあり、2002年度に初めて注意報発令基準以上の値が3局、4時間観測された。2003年度においても、6局、6時間注意報発令基準以上の濃度が観測された。若松ら²⁾は全国33自治体の581局を対象に、1985年度から2001年度までの光化学オキシダントの経年変動を解析した。その結果、全体の84.5%の局で経年的に上昇傾向を示した。Akimoto *et al.*³⁾は、わが国の高度2km以下の対流圏下層

におけるオゾン濃度は1969~1990年の間に約2%/年の割合で増加しており、この原因として東アジア地域における窒素酸化物の人為起源排出量の増加を指摘している。オキシダントは、呼吸器や粘膜のほか、森林、農作物にも影響を及ぼすと言われている。高木ら⁴⁾は、関東地域におけるオゾンによる農作物減収を試算し、被害総額は年間210億円に上るとしている。そこで、長崎県における光化学オキシダント高濃度出現機構の解明にせまり、今後の対策の一助とする目的で、平成14、15年度の高濃度現象の解析を行った。

結果と考察

1 過去4年間の高濃度オキシダント出現状況

表1~4には平成12年度以降においてオキシダント濃度が100ppb以上を示した事例を示した。平成15年度は、環境基準対象時間内(昼間5時~20時)以外のみならず、100ppb以上を示したケースを5事例含んでいる(4月1

表 1 平成12年度光化学オキシダント濃度100ppb以上値抽出結果

Table with 24 columns representing hours (1時 to 24時) and rows for monitoring stations in 2000 and 2001. Includes a summary row '計 5日 のべ6局 11時間' and unit 'ppb'. ** indicates missing data.

表 2 平成13年度光化学オキシダント濃度100ppb以上値抽出結果

Table with 24 columns representing hours (1時 to 24時) and rows for monitoring stations in 2001 and 2002. Includes a summary row '計 8日 のべ12局 27時間' and unit 'ppb'. ** indicates missing data.

表 3 平成14年度光化学オキシダント濃度100ppb以上値抽出結果

Table with 24 columns representing hours (1時 to 24時) and rows for numerous monitoring stations in 2002. Includes a summary row '計 15日 のべ53局 165時間' and unit 'ppb'. ** indicates missing data.

が高い局が存在し、その月変化は7~8月に最小値となり、それ以外は横ばい、または寒候期にやや高くなる傾向を示した。交通量の少ない局では、二酸化窒素濃度も低く、おおむね、暖候期に濃度が低く、寒候期にやや高くなる傾向を示した。なんらかの原因で7~8月に二酸化窒素濃度が減少すること、オキシダント濃度が7~8月に最低値を示すこととの関連が示唆されるが、オキシダント濃度は、12月に谷を示すのに対し、二酸化窒素は、むしろ他の月とくらべ高い傾向にある。

そこで、平成14年度を対象に、毎日の気圧配置図を分類し、月ごとに出現日数を算出して図4に示した。オキシダントの高濃度と関係の深い晴天をもたらす気圧配置としては、移動性高気圧と、夏にあらわれる南高北低型の気圧配置があげられる。

ここで、移動性高気圧の出現日数に着目すると、平成14年7、8月は、0~2日であった。一方南高北低型の

気圧配置や、台風など、太平洋の清浄な気塊がもたらされる気象条件の割合が高くなっていった。

これらから、7、8月は十分な日照量にかかわらず、二酸化窒素濃度が低いことと、太平洋の清浄な気塊がもたらされることのいずれか、またはどちらとも原因でオキシダント濃度が年間最小となること、逆に春、秋は移動性高気圧によって、大陸起源の気塊がもたらされることによって、オキシダントが比較的高濃度となること、さらに5、6月は、十分な日射量による光化学オキシダントと、オゾン層起源のオキシダントが加わり、特に高濃度となることが推定される。

対流圏でのオゾンの生成、増加要因は、成層圏オゾンの降下と対流圏内での光化学的生成であり、消失、減少要因としては、地表面への沈着と光化学的消失である。

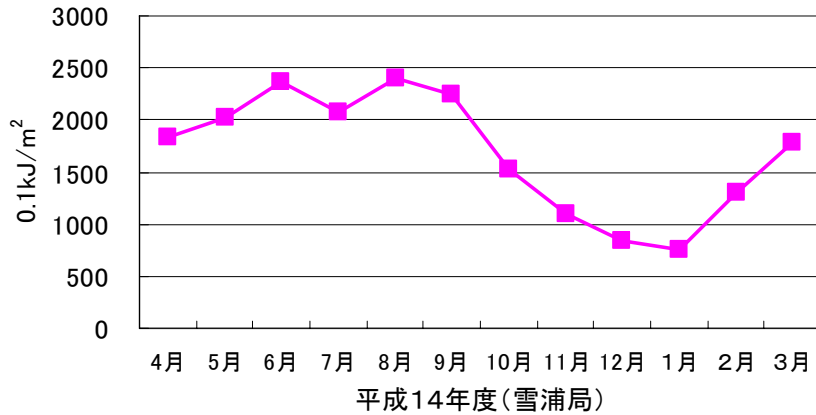


図 1 日射量月合計値の変化

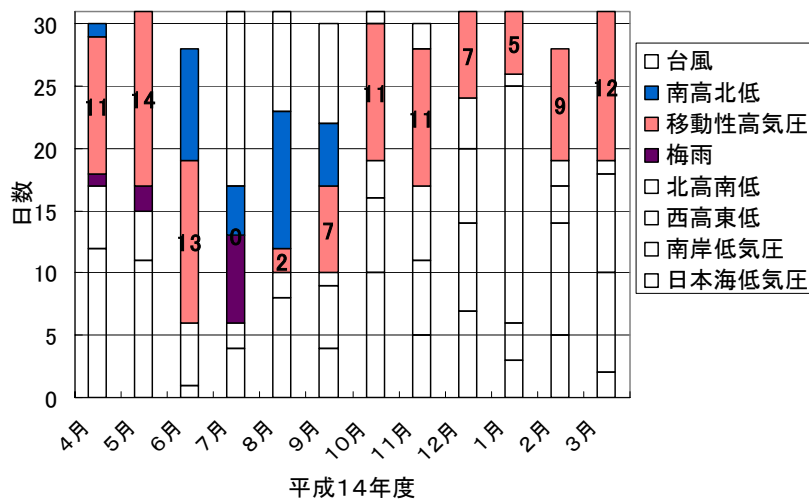


図 4 気圧配置類型別出現状況

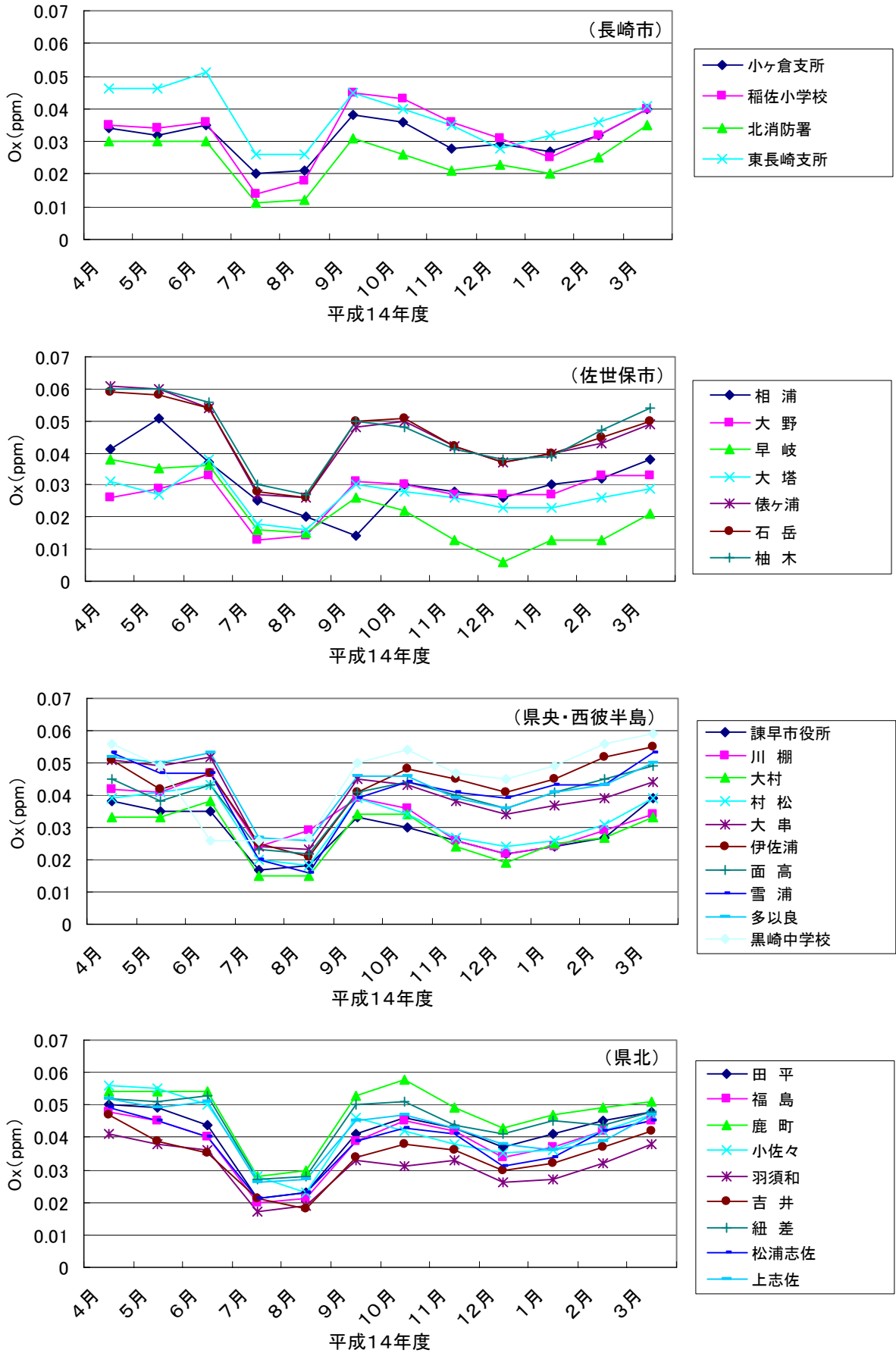


図 2 光化学オキシダント濃度昼間1時間値月平均値の変化

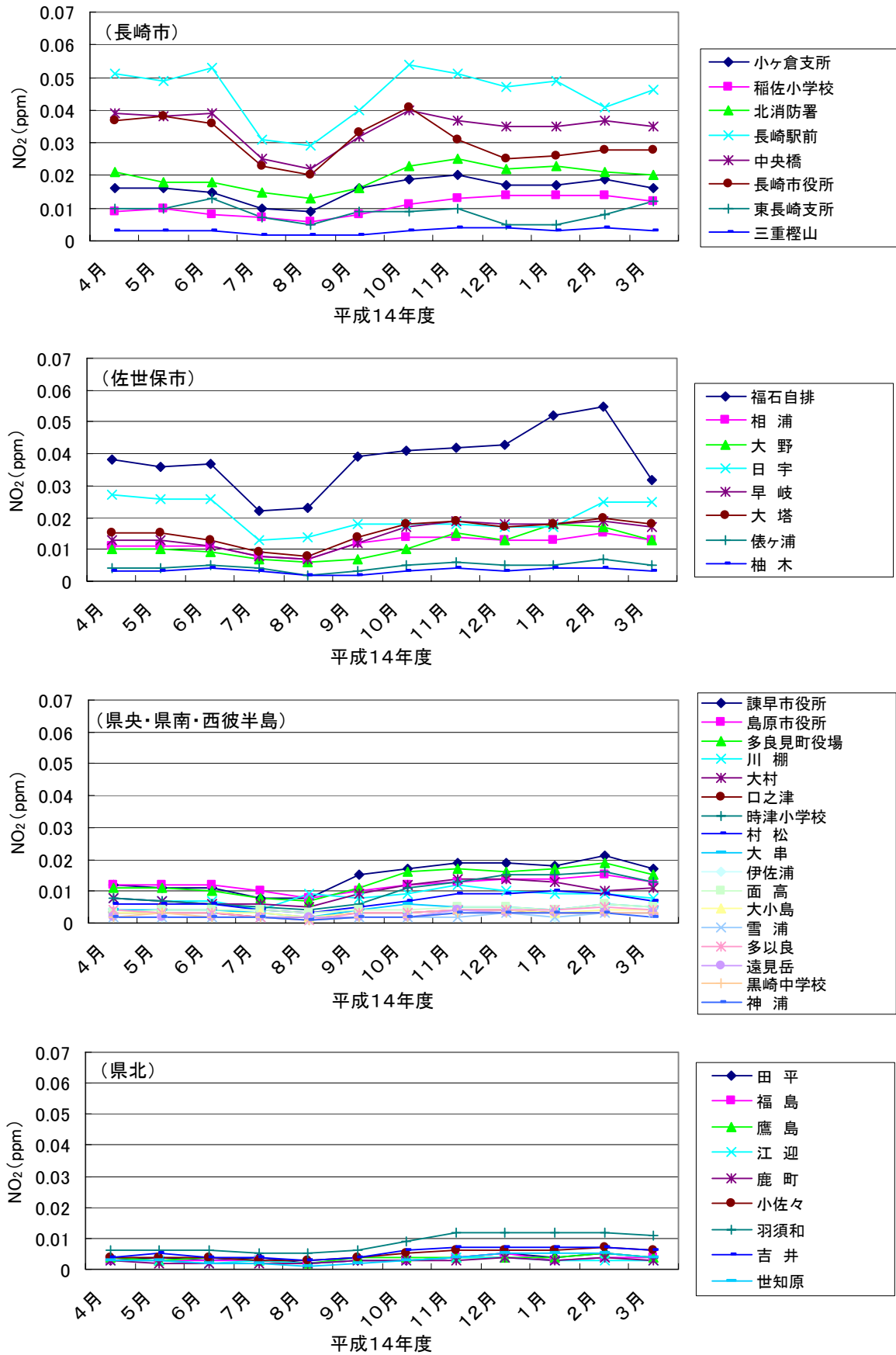


図 3 二酸化窒素濃度月平均値の変化

全球3次元化学輸送モデル⁵⁻¹¹⁾によれば、現在の対流圏ではオゾンの成層圏からの降下と地表面での沈着量は約500~700 Tg/yearと推定されており、ほぼ収支がつりあっている。一方人為的な光化学生成は、約3300Tg/yearに対し光化学消失量は約3200Tg/yearと推定されており、約100Tg/yearあまりの正味の生成があるとされている。また、北半球の清浄な地点で観測される春季ピークについては未だ定量的な結論は出されていないものの¹²⁾、定性的には、主要なオゾン生成地域からの長距離輸送がその主因である^{6,11)}とされ、成層圏オゾンの春季の最大濃度を単純に反映したものの考えは否定されている。

3 特定の局での高濃度についての考察

平成14年度、15年度に、100ppb以上を示した日が集中した局のうち、黒崎中学校局、柚木局はいずれも150m程度の比較的標高の高い地点に立地している。また、図2、3の月変化図でも窒素酸化物濃度が高い地点では、オキシダント濃度が低い傾向がある。

そこで、まず、測定局の標高とオキシダント濃度の関係を平成14年度年平均値によって求め、図5に示した。その結果、標高とオキシダント濃度が正の相関関係を示すグループとして、早岐、大野、伊佐浦、石岳、鹿町、柚木、黒崎中学校が確認されたが、一方で、低い標高にかかわらずオキシダントが濃度差を示すグループも確認された。

次に、一酸化窒素濃度とオキシダント濃度の関係を求め、図6に示した。両者は明瞭な負の相関関係を示し、一酸化窒素によるオキシダントの消費反応が少ない地点ではオキシダントが高い濃度で観測されることが示された。

更に、地理的条件との関連を検討するために、柚木局において15時と16時に120ppb以上の濃度のオキシダントを観測した2002年6月5日における窒素酸化物濃度とオキシダント濃度の変化を等濃度線図上で解析した結果を図7に示した。

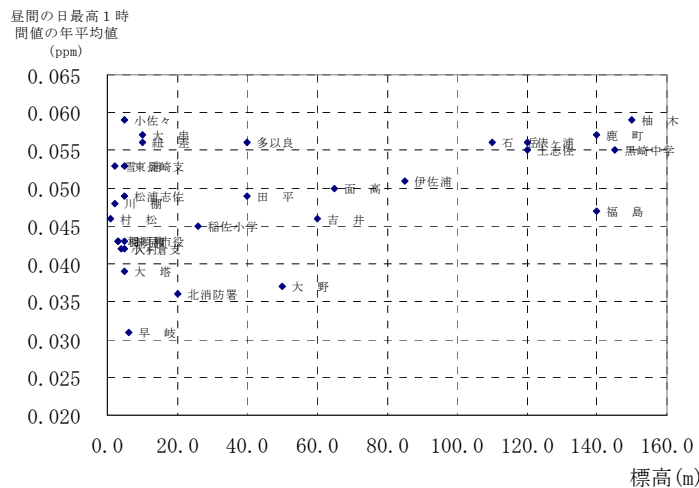


図 5 測定局の標高と昼間の日最高1時間値の年平均値の関係(平成14年度)

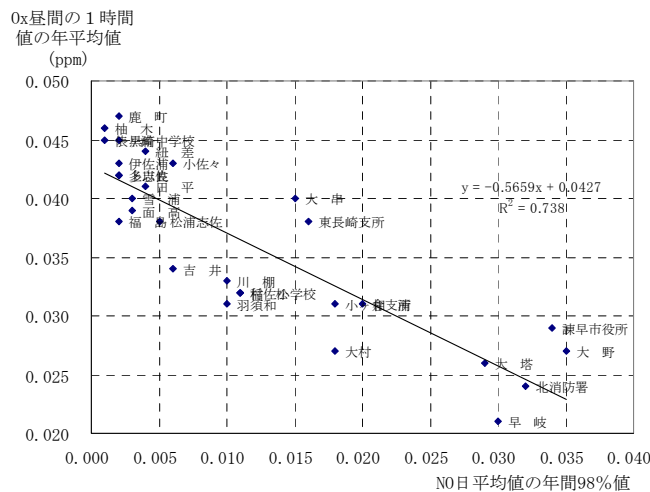


図 6 一酸化窒素濃度とオキシダント濃度の関係(平成14年度)

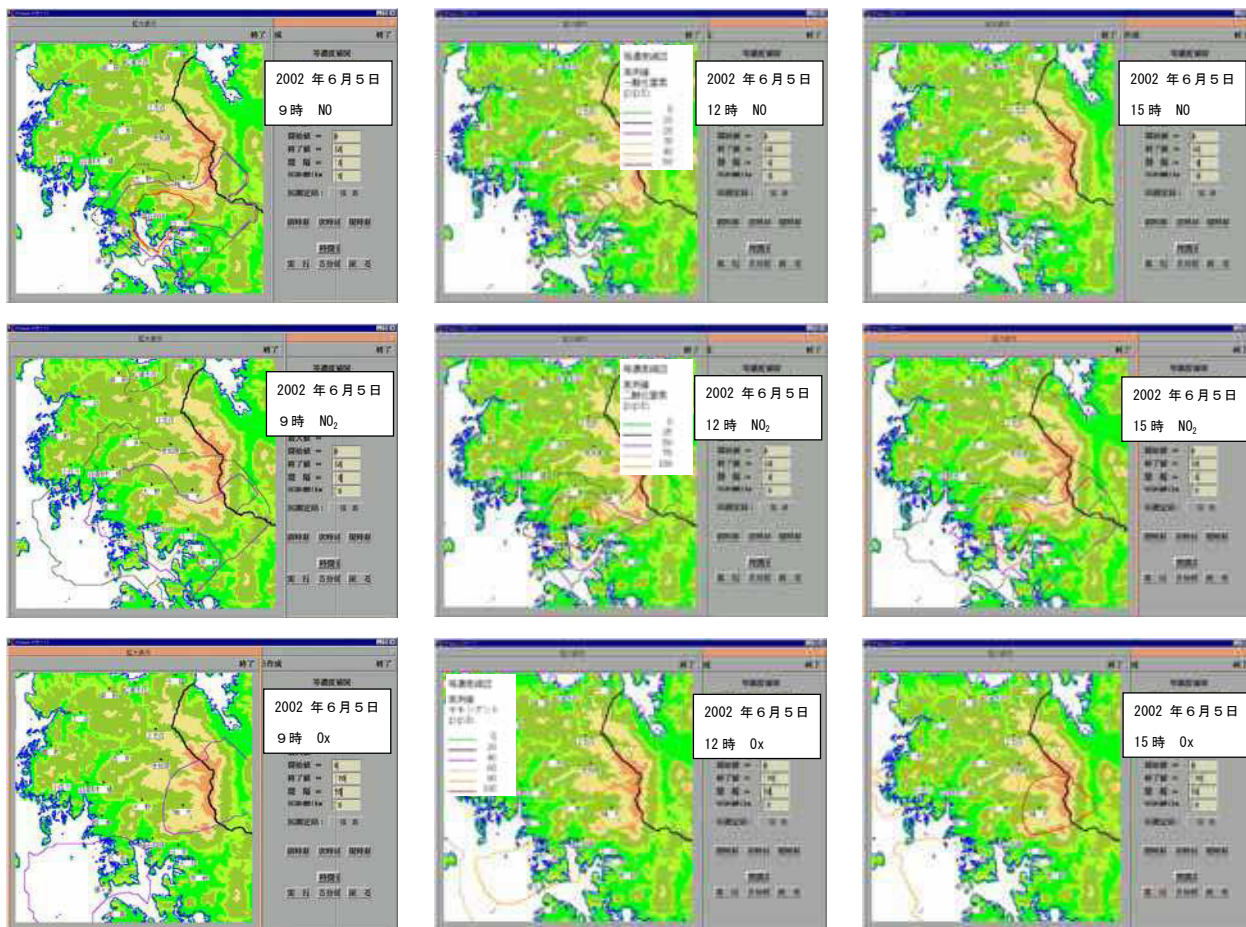


図 7 2002年6月5日における佐世保市周辺の窒素酸化物、オキシダントの等濃度線図

朝9時の時点で、佐世保市の中心部から広がるNOとNO₂が確認できる。また、オキシダントは、窒素酸化物で消費されるため、それらの濃度が低い佐世保市郊外で徐々に濃度が上昇する現象が確認できる。一方同日15時の現象を長崎県全体図でとらえた結果を図8に示した。交通量の差から、長崎市周辺において、むしろ窒素酸化物濃度は大きな等濃度コンターを描いているが、長崎市の場合、海に挟まれた地形のために、柚木に相当するような郊外局が立地していないことから、窒素酸化物濃度の広がりくらべ、オキシダント濃度は、広がり規模が大きく、佐世保市と長崎市周辺で発生したオキシダントの気塊が結合しているかのように解釈できる。

4 120ppb以上のオキシダントの出現について
18時から20時にかけて北松浦半島を南下するように120ppbを超える濃度のオキシダントが観測された2003年6

月4日について、窒素酸化物とオキシダントの等濃度線図を1~2時間ごとに描き図9-1, 2に示した。窒素酸化物は長崎市、佐世保市において、9~10時にやや大きなコンターを描いたことが確認されるが、1日を通じて大きな変化はない。

一方、オキシダントは、9時の時点で長崎市、佐世保市の周辺において、やや高い濃度の気塊が発生している。時間を追う毎にそれらが、高濃度化し、またコンター同士が繋がって17時には、北松浦半島から長崎市にいたる規模で80ppbを超える塊が発生していることが確認された。18時に平戸周辺に出現した100ppbを超えるオキシダントの気塊は、北東風によって、順次南下し、20時には西彼杵半島に達している。図10の天気図によると、4日から5日にかけて、大陸東部から高気圧が東進しており、九州はこの前面にあたり、北東の下降流に覆われたことがわかる。

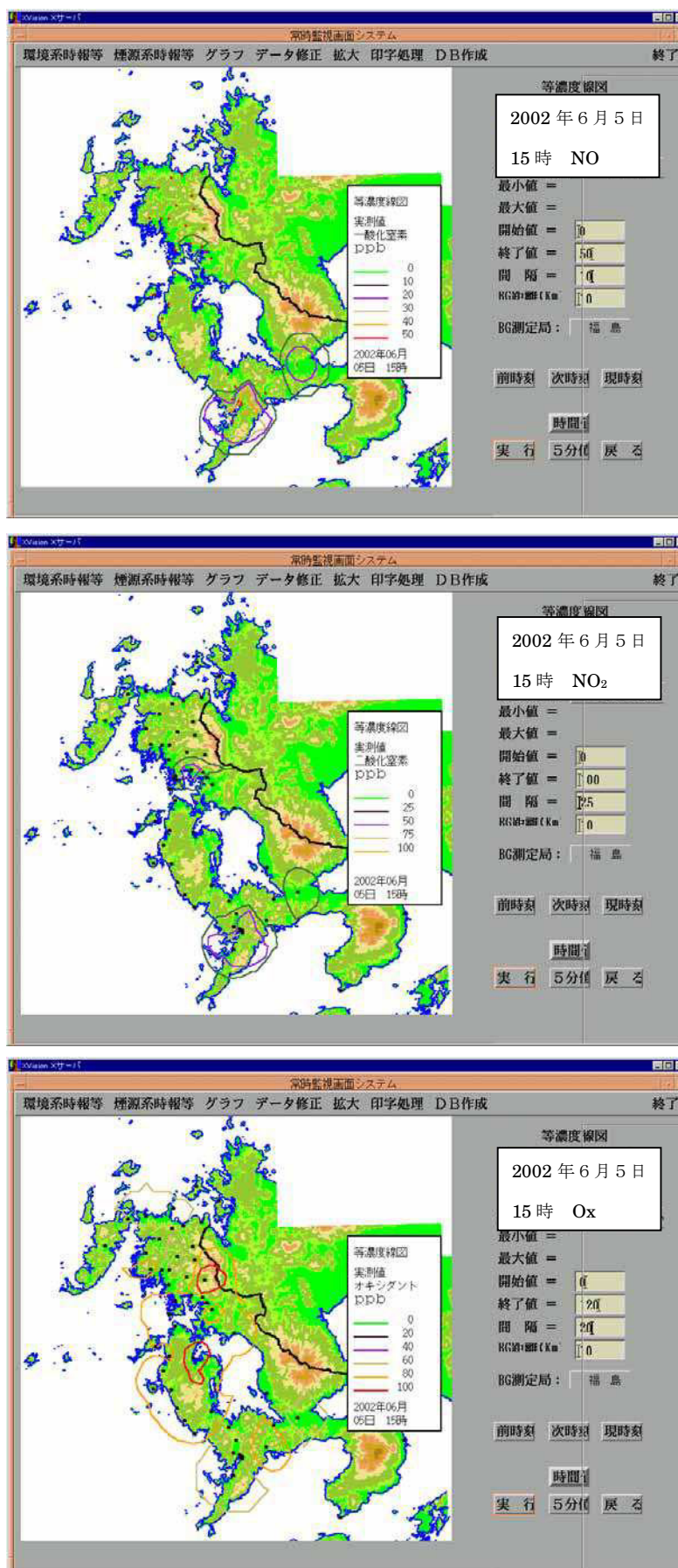


図 8 2002年6月5日15時における長崎県本土の窒素酸化物とオキシダントの等濃度線図

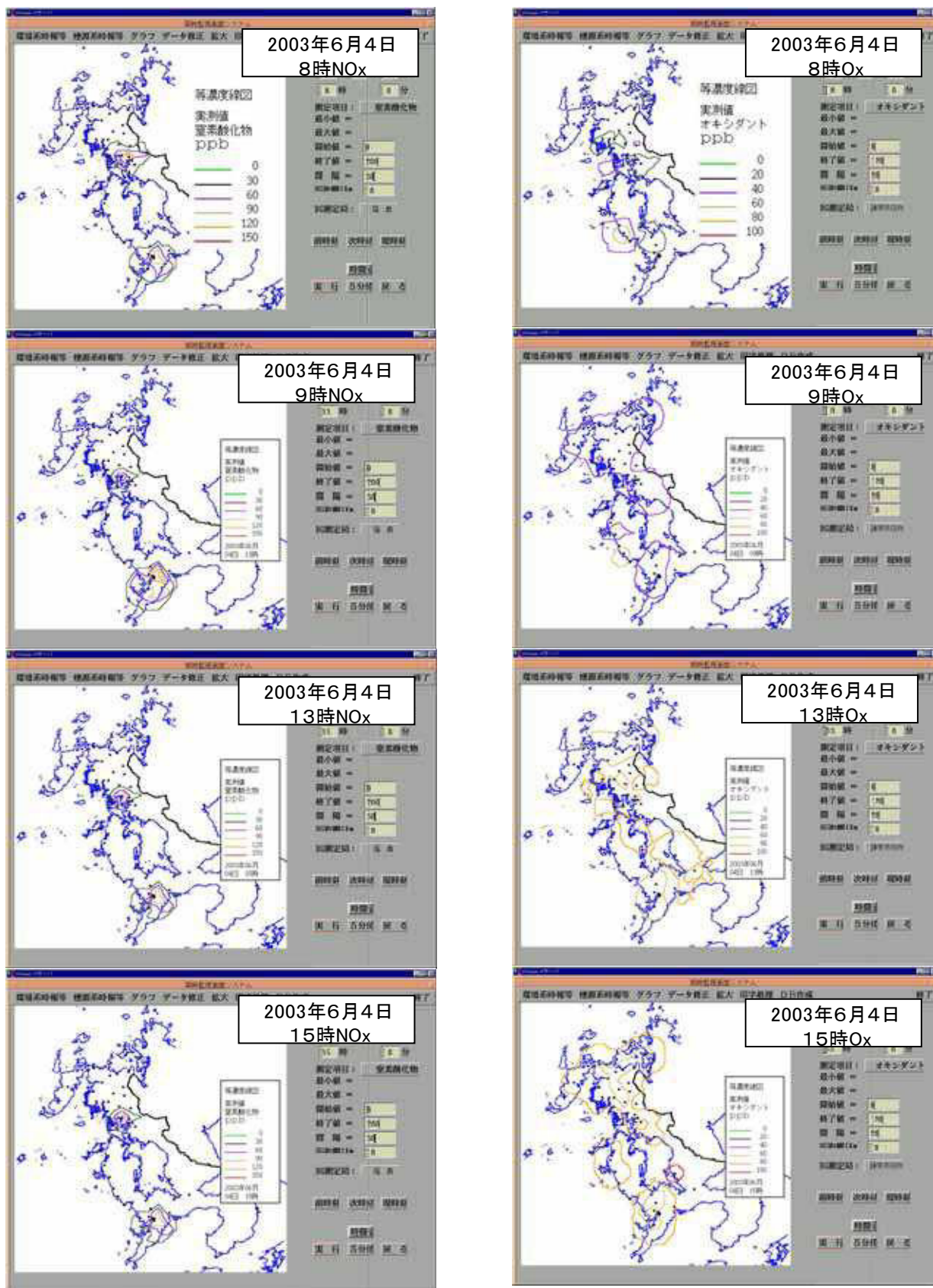


図 9-1 2003年6月4日の窒素酸化物とオキシダントの等濃度線図(9~ 15時)

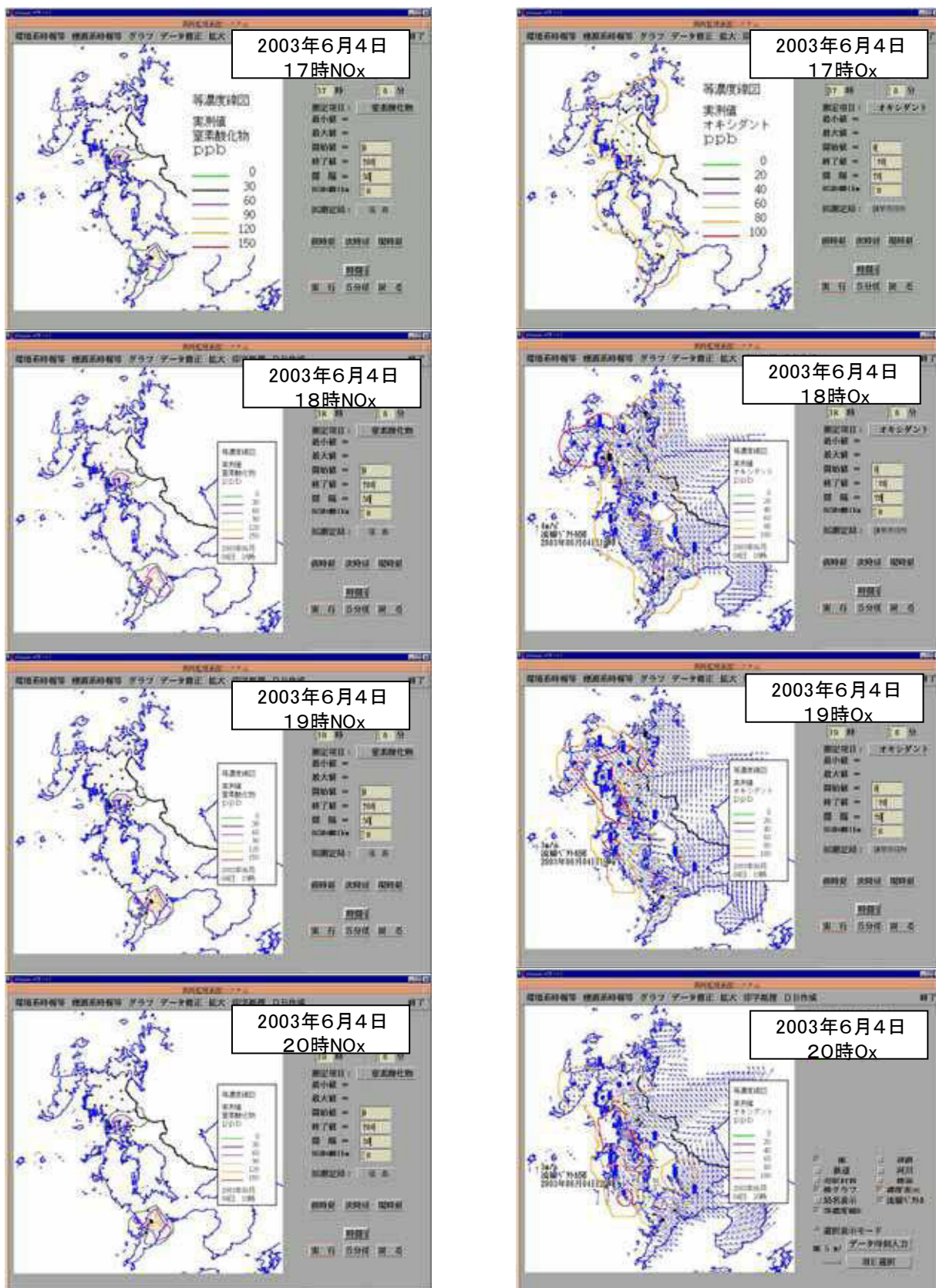


図 9-2 2003年6月4日の窒素酸化物とオキシダントの等濃度線図(17~ 20時)



図 10 2003年6月4~ 5日の天気図

「気象人」(<http://www.weathermap.co.jp/kishojin/>)から引用

まとめ

長崎県では、かつてオキシダント注意報が発令されたことがなかったが、長期的にオキシダント濃度が上昇する傾向にあり、2002年5月に初めて注意報発令基準に達するオキシダント濃度が観測された。

また、平成14年度、15年度は1時間値が100ppb以上を示した時間と局数が5月と6月に集中して急増した。これらの現象に対して、今後の適切な対策につなげるために、原因究明を目的とした解析を行った。

オキシダント濃度の月変化は、年間最高レベルの紫外線量、日射量にかかわらず7~ 8月に最低値を示している。そこで、平成14年度を対象に、毎日の気圧配置図を分類し、月ごとに出現日数を算出した。その結果において移動性高気圧の出現日数に着目すると、平成14年7、8月は、0~ 2日であった。一方南高北低型の気圧配置や台風など、太平洋の清浄な気塊をもたらす気象条件であったことがわかった。逆に春、秋は移動性高気圧が大陸起源の気塊をもたらすことによって、オキシダントが比較的高濃度となること、さらに5、6月は十分な日射量による光化学オキシダントとオゾン層起源のオキシダントが加わり特に高濃度となることが推定された。

高濃度のオキシダントが出現する測定局は、一見標高の高い地点に立地しているが、解析により、窒素酸化物濃度との関係が深いことが判明した。

120ppbを超える濃度のオキシダントが、18時から20時にかけて北松浦半島を南下するように観測された2003年6月4日について、窒素酸化物とオキシダントの出現状況を、時刻を追って解析した。その結果、地域で発生する窒素酸化物との関連が深いことが明らかになった。

今後更に知見を積み上げ、広域的現象と、地域的現象の寄与見積を図る必要があると考えられた。

参考文献

- 1) 森 淳子、竹野大志、香月幸一郎、白井玄爾：長崎県における大気環境の特徴—平成14年度大気汚染常時監視結果の解析と長期変動解析—，長崎県衛生公害研究所報，**48**，1-17(2002)
- 2) 若松 伸司編，国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究グループ：西日本及び日本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，国立環境研究所研究報告 第184号，国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究報告 平成13~ 15年度(2004)
- 3) Akimoto,H., Nakane,H. and Matsumoto,S. : The chemistry of oxidant generation: Tropospheric ozone increase in Japan. In: The Chemistry of the Atmosphere: Its Impact on Global Change, ed. J.G. Calver, IUPAC, Blackwell Scientific Publication, pp.261-273(1994)
- 4) 高木 健作，大原利眞：関東地域におけるオゾンによる植物影響評価-ダメージ関数を用いたインパクト推計-，大気環境学会誌，**38**(4) 205~ 216 (2003)
- 5) Muller, J.-F. and G.Brasseur : IMAGES:A three-dimensional chemical transport model of the global troposphere, *J.Geophys. Res.*, **100**, 16445-16490(1995)
- 6) Roelofs, P., J.Lelieveld and R van Dorland : A three-dimensional chemistry/general circulation model simulation of anthropogenically derived ozone in the troposphere and its radioactive forcing, *J.Geophys. Res.*, **102**, 23389-23401(1997)
- 7) Levy,H., H, P.S. Kasibhatla, W.J. Moxim, A.A. Klonecki, A.I. Hirsch, S.J. Oltmans and W.L. Chameides : The global impact of human activity

- on tropospheric ozone, *Geophys. Res. Lett.*, **24**,791-794(1997)
- 8) Berntsen,T.K. and I.S.A.Isaksen : A global three-dimensional chemical transport model for the troposphere. 1.Model description and CO and ozone results. *J.Geophys. Res.*, **102**, 21239-21280(1997)
- 9) Wang, Y., J.A. Logan and D.J. Jacob : Global simulation of tropospheric O₃-NO_x-hydrocarbon chemistry. 3.Origin of tropospheric ozone and effects of non-methane hydrocarbons, *J.Geophys. Res.*, **103**, 10757-10768(1998)
- 10) Lelieveld,J. and F.J.Dentener : What controls tropospheric ozone?, *J.Geophys. Res.*, **105**, 3531-3551(2000)
- 11) Wild, O. and H.Akimoto : Intercontinental transport of ozone and its precursors in a three-dimensional global CTM, *J.Geophys. Res.*, **106**, 27729-27744(2001)
- 12) Monks,P.S. : A review of the observations and origins of the spring ozone maximum, *Atmos. Environ.*, **34**,3545-3561(2000)