

愛知県における 2011 年度から 2019 年度までの 光化学オキシダント等の変化傾向

岩田 杉夫 川上 七恵

2011 年度から 2019 年度までの愛知県内の大気汚染常時監視データを用いて、光化学オキシダント (O_x) 濃度、並びにその前駆物質である揮発性有機炭素 (VOC) の指標となる非メタン炭化水素 (NMHC) 濃度及び窒素酸化物 (NO_x) 濃度の状況を把握することを目的に解析を行った。 O_x , NO_x の測定が行われていた測定局 (67 局) の 9 年間にわたる 1 時間値データを基に、 O_x , NO_x の全日平均値、昼夜別平均値を算出し、回帰直線の傾きを月ごとに求め、変化傾向を求めた。その結果、経年変化については、 NO_x は、ほぼ全測定局で緩やかな減少傾向が見られた。暖候期 (4 月～9 月) について、 O_x 濃度の月平均値の経年変化を見ると、5 月、6 月は増加傾向が特に大きかった。また、昼夜の増加傾向を比べると、5 月を除くと夜間平均値の増加傾向の方が、昼間の増加傾向より大きかった。

キーワード 光化学オキシダント, 前駆物質, 変化傾向, NO タイトレーション効果

1 はじめに

光化学オキシダント (O_x) は、オゾン (O_3) を主成分とする酸化性物質の総称で、大気中の窒素酸化物 (NO_x) と揮発性有機化合物 (VOC) が光化学反応を起こすことにより生成する。 O_x は強い酸化性を持つため、高濃度化すると眼や咽頭の粘膜へ刺激症状を引き起こし、その健康被害が懸念される。

O_x の環境基準は 1 時間値が 0.06ppm 以下とされている。全国の状況を見ると、2020 年度の環境基準達成率は一般環境大気測定局 (一般局) で 0.2%、自動車排出ガス測定局 (自排局) で 0% となっている¹⁾。県内においても、環境基準達成率は一般局、自排局ともに 0% となっている²⁾。

一方、 NO_x については、排出規制や排出抑制技術の進展により削減が進んできた。VOC についても、2004 年の大気汚染防止法の改正により 2010 年度までに 2000 年度比 3 割削減を目標に、削減策が進められ、目標を上回る削減がなされた。これにより、 NO_x , VOC の指標となる非メタン炭化水素 (NMHC) の大気中濃度は減少してきた¹⁾。

このように、前駆物質濃度は減少しているものの、 O_x 濃度は改善に至っていない。 O_x 濃度は前駆物質濃度の他に、気象条件、VOC と NO_x 濃度比による感度レジーム、越境汚染を含む移流、成層圏オゾンの影響などが関連していると考えられている³⁾。

これまで、県内の O_x 濃度の長期トレンド解析については、1979 年度から 2006 年度までの O_x 昼間平均濃度を用いて、6 区域 (名古屋区域、東三河区域、尾張区域、内陸区域、衣浦区域、その他の区域) ごと・四季ごとに解析している⁴⁾。その結果、1979 年以降昼間 O_x 濃度は上昇しており、2000 年代 (7 年間) では名古屋区域や東三河区域、内陸区域で増加傾向が顕著だったとしている。しかし、 O_x 濃度の経年変化傾向を検討するに当たり、 O_x 測定法の変更や校正法の変更の影響^{5,6)} があるとの指摘もなされている。

本研究では、 O_x 測定法と O_x 校正法の変更の影響を受けていない 2011 年度から 2019 年度までを対象期間とし、 O_x 、ポテンシャルオゾン (PO)、 NO_x 及び VOC の指標として NMHC について、解析を行った。

2 方 法

2.1 解析期間、解析地点

解析期間は 2011 年度から 2019 年度までとした。県内の大気汚染測定局のうち、解析期間中に O_x 及び NO_x の測定がなされていた 67 局の O_x , NO_x , NMHC 濃度の 1 時間値データを用いた (NMHC 濃度は一部の局のみ測定している)。

なお、使用データは 2011 年度から 2018 年度までは「国立環境研究所 環境展望台 大気汚染常時監視データファイル」(<https://tenbou.nies.go.jp/download/>)

を、2019年度は「環境省大気汚染物質広域監視システム(そらまめくん)」(https://soramame.env.go.jp/)の速報値を用いた。

測定局の地域区分は、光化学オキシダント注意報等の発令で用いている15区域(愛知県光化学スモッグ緊急時対策取扱要領別表1)とした(図1)。発令区域の番号、名称と解析に用いた測定局数は表1のとおりである。区域ごとの集計は、愛知県の15区域で行ったが、区域ごとに測定局数が異なり、局数の多い区域の影響が大きくなる事を考慮し、県内の状況を把握するために、区域ごとに代表局を選定し検討した。代表局の選定に当たっては、一般局でNMHC濃度を測定している測定局を優先して選定した。なお、常滑区域には9年間連続で測定された測定局がなかったため、データの比較は14区域で行った。表1に示す代表局14局で、季



図1 愛知県の光化学オキシダント発令区域と解析に使った測定局の配置
(1~15の数字は区域番号を示す。)

表1 発令区域ごとの対象測定局数と代表局

番号	区域名	一般	自排	局数	代表局
1	名古屋区域	11	2	13	富田支所
2	尾張北西区域	7	2	9	一宮市松降通
3	尾張北東区域	3	1	4	小牧高校
4	尾張東区域	4	0	4	日進市五色園
5	海部区域	3	0	3	弥富市役所
6	衣浦区域	5	0	5	半田市東洋町
7	常滑区域	0	0	0	-
8	知多北区域	4	0	4	知多市新舞子保育園
9	南知多区域	1	0	1	美浜町奥田
10	岡崎区域	1	3	4	岡崎市羽根
11	西三河区域	7	1	8	安城農林高校
12	豊田区域	4	0	4	豊田市中部局
13	豊橋区域	3	0	3	豊橋市二川
14	東三河区域	4	0	4	豊川市役所
15	田原区域	1	0	1	田原市古田町
合計		58	9	67	14局

節変動等の検討を行った。

経年変化傾向については、 O_x 及び NO_x を9年間継続して測定していた67局を対象にした。

2.2 解析指標、解析方法

対象期間において、すべての局で O_x の測定方法は紫外線吸収法である。対象物質は O_x のほか、一酸化窒素(NO)、二酸化窒素(NO_2)、 NO_x 、NMHCである。時間値データを基に、 O_x 等の各日の全日平均値、昼夜別平均値(昼間:5時~20時、夜間:20時~5時)を算出した。年間及び月間平均値を年度ごとにプロットし、最小二乗法により得られた回帰直線の傾き(ppb/年)を変化傾向とした。 O_x の解析に当たり、 NO タイトレーション効果(O_3 と NO_x が共存する環境で、生成した O_3 が NO との反応により見かけ上、 O_3 が減少する効果)の影響を考慮するため、 P_0 についても検討した。

なお、現在の O_x の常時監視では紫外線吸収法により O_3 を測定対象としている。本報では、物質としての O_3 を指すとき以外、統一して O_x と表記する。

2.3 P_0 濃度について

O_x の主成分は O_3 である。 NO_2 とVOCの化学反応によって NO と O_3 が生成する。しかし、生成した O_3 は NO との反応で分解され、 O_2 と NO_2 を生じる。

O_x 濃度の変化のみに着目した場合、その変化が O_x そのものの変化なのか、 NO タイトレーション効果による変化なのか、判断できない。そのため、この効果による減少を補正した式(1)で示される P_0 濃度もあわせて評価することで、 O_x 濃度の変化が何に由来するのか推定することができる⁷⁾。

$$[P_0] = [O_x] + [NO_2] - \alpha [NO_x] \quad (1)$$

ここで、 α は発生源における、 NO_x 濃度に対する NO_2 濃度の比率であり、本研究では一般的に日本で用いられている0.1とした⁸⁻¹²⁾。

3 結果と考察

3.1 O_x 、 NO_x 、NMHC濃度の日内変動

図2に代表14局の O_x 、 NO 、 NO_2 濃度の日内変動の様子を、月別に2011年度から2019年度までの9年間平均で示した。

O_x 濃度は、概ね6時付近を底に上昇し、14時付近をピークに減少していた。月ごとに比較をすると5月が最も高く、次に4月が高くなっている。11月か12月

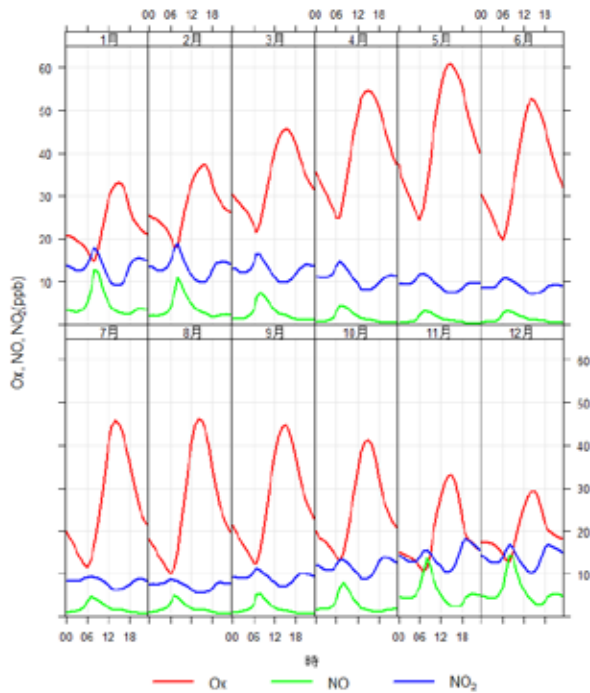


図2 代表14局平均の月別Ox, NO, NO₂濃度の日内変動(9年間平均)

に最も低くなっていた。

NO₂濃度は、7時付近にピークがある。冬には朝方のピークに加え、夜に再び増加する二山型を示していた。

NO濃度は、日付が変わってから増加が始まり、7時頃をピークに減少していた。NMHCは図には示していないが、NO_x(=NO+NO₂)とほぼ同様な日内変動を示していた。

Ox濃度が最も高くなる5月の代表局のOx, NO, NO₂濃度の日内変動を図3に示した。Ox濃度の増加(14時頃の最高1時間値と6時頃の最低1時間値の差)が大きい測定局は、日進市五色園(43.1ppb)、安城農林高校(42.8ppb)、岡崎市羽根(41.6ppb)、小牧高校(41.3ppb)などとなっている。安城農林高校、岡崎市羽根、小牧高校ではNO₂濃度が深夜から早朝にかけて高いままで、朝方からOxの増加とともにNO₂の減少が見られた。日進市五色園ではNO₂濃度は深夜には低いままでこれらの測定局とは異なっていた。

一方、Ox濃度の増加が小さかった測定局は、田原市古田(27.5ppb)、美浜町奥田(31.4ppb)、豊橋市二川(33.1ppb)、豊川市役所(33.6ppb)などとなっていた。これらの測定局は、深夜から早朝にかけてのOx日最低1時間値は高めで、NO_x濃度が低めという共通点が見られた。

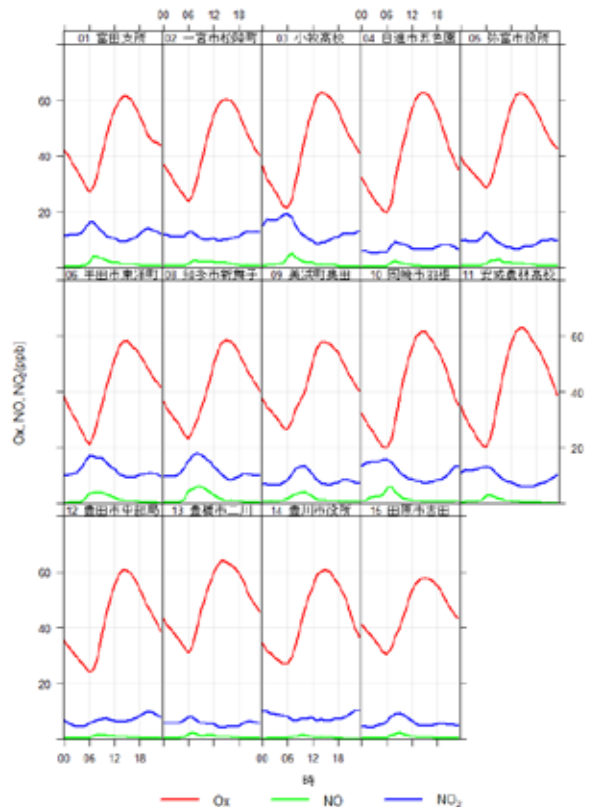


図3 5月の代表局のOx, NO, NO₂濃度の日内変動(9年間平均)

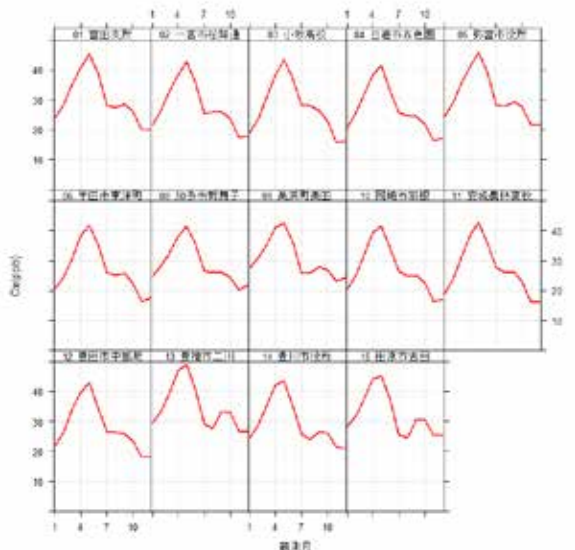


図4 代表局のOx濃度の月別平均値(9年間平均)

3.2 Ox, NO_x, NMHC濃度の季節変動

図4に代表局のOx濃度の月間平均値の推移を示す。Oxの月間平均値の推移をみると、5月に最も高く、11月に最も低い測定局が多かった。11月のOx平均濃度は20ppb以下の地点が多いが、田原市古田で25.5ppbで、豊橋市二川の26.8ppbに次いで高かった。田原市古田

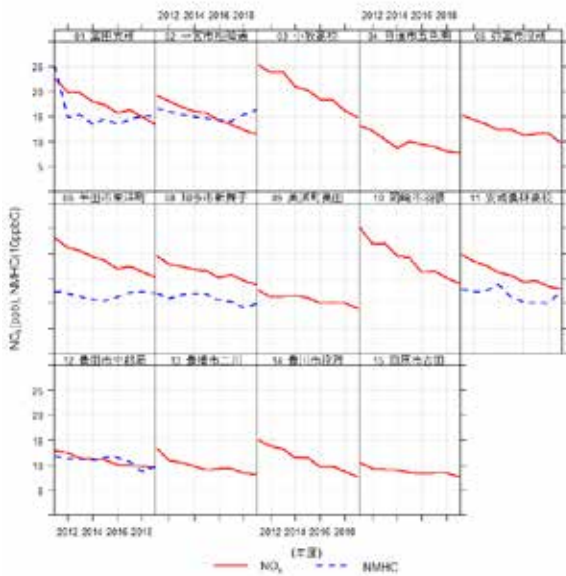


図 5 代表局における NO_x, NMHC 濃度の年平均値の推移 (NMHC 濃度は一部の局のみ測定)

では、11月の方が8月(24.4ppb)より高く、年間を通じて8月が最も低かった。

NO_xの推移は、図2からも分かるとおり、冬季に高濃度となっていた。冬季には強い接地逆転層が発生し、地表付近に放出された汚染物質の拡散が抑制されるためであり、NMHCもNO_xと同様冬季に最大を示していた。

3.3 O_x, P₀, NO_x, NMHC 濃度の経年変化

図5にNO_x及びNMHC濃度の年平均値の推移を示した。NO_x濃度については、緩やかな減少傾向がみられ、削減対策の効果が表れていると考えられる。NO_x濃度の高い地域ほど減少が大きい傾向が見られた。一方、NMHC濃度については、減少傾向が小さかった。

図6に代表14局平均のO_x全日平均濃度及びP₀全日平均濃度の推移を月別に示した。

6月にO_x濃度及びP₀濃度に増加傾向が見られた。

3.4 O_x, P₀ 濃度の変化傾向

O_x, P₀濃度の傾向を詳細に調べるため、県内の67測定局の暖候期(4月～9月)における、変化傾向を見ていく。まず、O_x全日平均値、昼間平均値及び夜間平均値の変化傾向を、図7に箱ひげ図で示した。

暖候期の中では5月を除くと、夜間平均値の増加傾向の方が、昼間平均値の増加傾向より大きかった。5月、6月はO_x濃度の増加傾向が明らかであった。

5月の昼間平均値はほとんどの測定局で増加していた(中央値: +0.62ppb/年)。これは2011年度に最低値

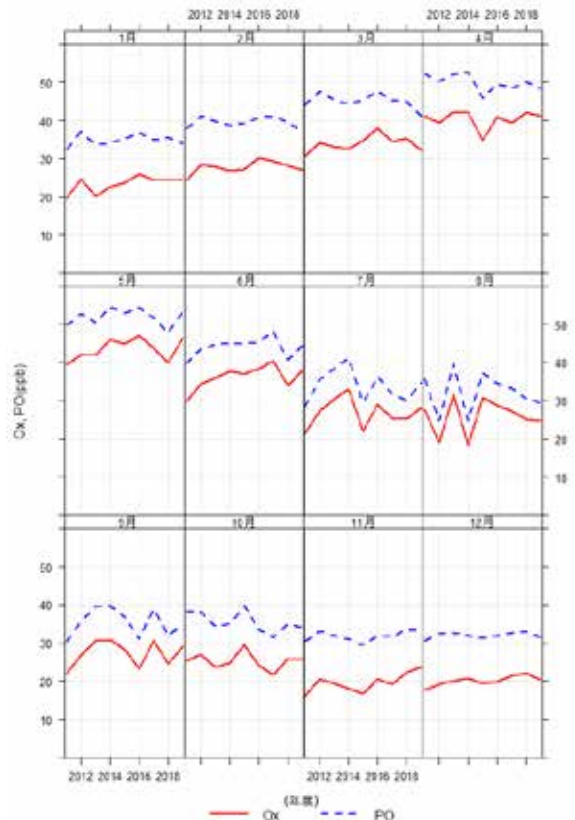


図 6 代表 14 局平均の O_x, P₀ 全日平均濃度の推移

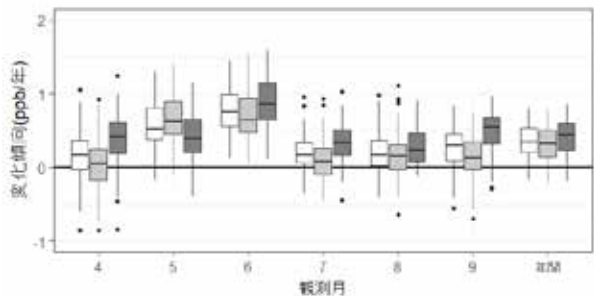


図 7 暖候期における O_x 濃度の変化傾向

を示し、2019年度に最高値を示した局が多かったことが影響しているためと考えられる。2019年度は、2019年5月22日から27日にかけて全国的にO_xが高濃度となり¹³⁾、愛知県でも2019年5月下旬に光化学スモッグ注意報が発令された年である。

6月では全測定局で、O_x昼間平均値(中央値: +0.65ppb/年)、夜間平均値(中央値: +0.86ppb/年)ともに増加していた。全測定局で、6月は2011年度に最低値であり、2017年度が最高値となっていた。O_x夜間平均値の増加率は6月が最も大きかった。

NO_x濃度は減少傾向だったことから、NOタイトレーション効果の減少がO_x濃度の増加に影響したと考えら

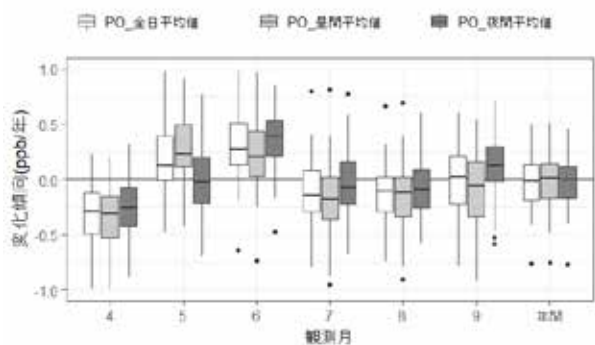


図8 暖候期におけるPOの変化傾向

れる。

図8にPO全日平均値、昼間平均値及び夜間平均値の変化傾向について、箱ひげ図で示した。

PO変化傾向は0xよりも小さかった。5月の昼間平均値は、3/4以上の測定局で増加傾向を示していた。夜間平均値は、増加傾向と減少傾向がほぼ半分ずつとなっていた。6月は昼間平均値も夜間平均値も、3/4以上の測定局で増加傾向であった。8月の昼間平均値は、3/4程の測定局で低下傾向であった。

5月と8月で傾向が異なっているため、この5月と8月の変化に着目し解析する。図9及び図10に、5月及び8月のPO昼間平均値を、年ごとの平均で地図上にプロットした。

5月において、名古屋区域をはじめとしてPO濃度が高かった地点が2014年～2017年に見られた。また、2019年は5月下旬に全国的に高濃度となり越境汚染があったと考えられ¹³⁾、県内でも高濃度であった。2018年は全域で低かった。

一方、8月では局所的な濃度の変動よりも、年度による変動が大きく、2015年以降は徐々に低濃度化している。

図11に暖候期におけるPO昼間平均値の変化傾向を示した。4月にPO濃度が全域的に低下している。5月、6月にはPO濃度が全域的に増加傾向にあると考えられる。一方、7月、8月に低下局がやや多い。9月には、変化傾向の傾きが正と負が半分程度となっていた。

前駆物質の削減効果は4月、7月、8月にPO濃度の低下という形で表れていた可能性があるが、5月、6月では効果が表れにくかったと考えられる。0x高濃度の要因は、域内の光化学生成以外に越境汚染、気象条件の変動もあり、今後も諸要因とともに0x濃度の変化を継続して解析し、対策を考えていく必要がある。

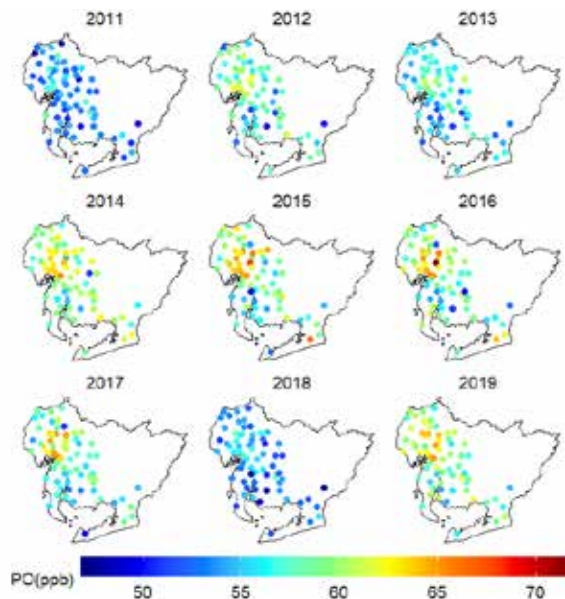


図9 5月におけるPO昼間平均値の空間分布

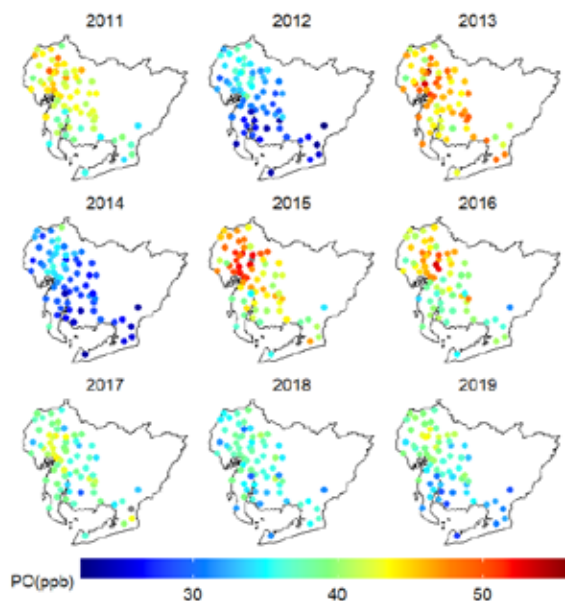


図10 8月におけるPO昼間平均値の空間分布

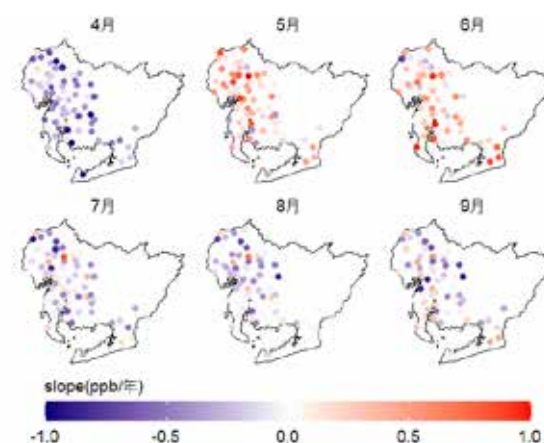


図11 暖候期(4～9月)におけるPO昼間平均値の変化傾向の分布

4 ま と め

0x 測定方法, 0x 校正法の変更の影響を受けない 2011 年度～2019 年度の県内の大気汚染常時監視データを基に, 0x 濃度等の変化傾向を解析した。昼夜別, 月別, 区域別で傾向を解析した結果, 以下のことが明らかになった。

前駆物質である NO_x 濃度の平均値は, ほとんどの測定局で緩やかな減少傾向にあった。NMHC 濃度の平均値は変化傾向が小さかったが, 減少傾向にあった。暖候期の 0x 濃度の平均値は, 多くの測定局で増加傾向が見られ, 特に 5 月, 6 月は明らかに増加傾向が見られた。

0x 濃度の昼夜別変化傾向を見ると, 暖候期では 5 月を除いて夜間の変化傾向が昼間の変化傾向に比べて増加傾向が大きかった。5 月, 6 月の P0 昼間平均値の増加傾向が大きいことから, 0x 濃度は実質的に増加傾向にある地点があることが明らかになった。

前駆物質の削減効果は 4 月, 7 月, 8 月に, P0 濃度の低下という形で表れていた可能性があるが, 5 月, 6 月では効果が表れにくかったと考えられる。

5 謝 辞

本研究は, 国立環境研究所と地方環境研究所との II 型共同研究「光化学オキシダント及び PM_{2.5} 汚染の地域的・気象的要因の解明」の一環として実施しました。

文 献

- 1) 環境省: 令和 2 年度大気汚染状況報告書, <https://www.env.go.jp/air/osen/report/r02report.html> (2023. 2. 10)
- 2) 愛知県環境局: 2020 (令和 2) 年度大気汚染調査報告書 (2022)
- 3) 若松伸司: 都市・広域大気汚染の生成機構解明に関する研究, 大気環境学会誌, **36**, 125-136 (2001)
- 4) 杉谷啓行, 川上七恵, 大越士生, 富田孝子, 林雅樹, 岡本正孝: 愛知県内における光化学オキシダントの経年変化に関する解析, 愛知県環境調査センター所報, **35**, 1-6 (2007)
- 5) 上野広行, 齊藤伸治, 國領和夫: 関東地方の夏季高濃度 0x の長期的濃度変動要因の検討と前駆物質濃度削減効果の予測評価, 大気環境学会誌, **50**, 257-265 (2015)
- 6) 吉井克英, 小枝雅之, 安井 朗: 京都市における光化学オキシダント濃度の経年的な濃度変動傾向及び光化学オキシダント自動測定機の測定法変更に伴う測定データへの影響の検討, 京都市衛生環境研究所年報, **77**, 86-104 (2011)
- 7) 板野泰之: 都市大気における光化学オキシダント問題の新展開, 生活衛生, **50**, 115-122 (2006)
- 8) 濱名 実, 定永靖宗, 竹中規訓, 坂東 博: 大阪府におけるオゾンと前駆体濃度の平日/週末間の違いー現状とその要因についてー, 大気環境学会誌, **41**, 300-308 (2006)
- 9) 武 直子, 板野泰之, 山神真紀子, 大原利眞: ポテンシャルオゾンを用いた 0x の異常値スクリーニング方法の検討, 大気環境学会誌, **45**, 264-270 (2010)
- 10) 遠藤文倫, 早崎将光, 川村隆一: 中部日本の夏季静穏日における光化学オキシダントの日変化と関連する熱的局地循環, 大気環境学会誌, **48**, 234-242 (2013)
- 11) 吉門 洋: 都市圏周辺でのオゾン濃度変化と NO タイトレーション (首都圏を中心に), 大気環境学会誌, **54**, 185-193 (2019)
- 12) 坂本祥一, 熊谷貴美代, 田子 博, 菅田誠治: 関東平野における気象要因を考慮した光化学オキシダント濃度変化の解析, 大気環境学会誌, **57**, 109-118 (2022)
- 13) 久保智子, 飯野博夫, 山本一巳, 中坪良平, 瀧本充輝, 高石 豊: 2019 年 5 月 24-26 日に兵庫県下で発生した広域的な高濃度光化学オキシダント事象の解析, 兵庫県環境研究センター紀要, **10**, 12-18 (2019)