

12. 鳥取市におけるオキシダントの高濃度現象について

【大気騒音科】

田中卓実・中村仁志*・田中長義

1 はじめに

全国の一般大気測定局で測定されているオキシダント(Ox)は、大気の大汚染地域でも春季を中心に環境基準(1時間値60ppb)を超えていることが報告されており、鳥取県も例外ではない。特に平成6年度の鳥取県衛生研究所におけるオキシダントの基準超過率(昼間の測定時間数に対する超過時間数の割合)は約15%であり、過去にない高さとなった。これまでの当所での測定結果を見るとオキシダントの高濃度現象は毎年4～5月を中心に発生しているが、特に大きな一次汚染物質の発生源も無いことから、近年報告のある「成

層圏オゾンの沈降」が主な原因として考えられる。

このため、過去6年間の常時測定結果を整理し、高濃度、高超過率の要因について考察したところ、いくつかの知見が得られたので報告する。

2 解析に用いた当所のデータ

当所(図1)の測定局における測定結果のうち、解析の対象とした項目はO_x(中性ヨウ化カリウム法)、NO_x(ザルツマン法)、非メタン炭化水素(ガスクロマトグラフ法)、風向風速、日射量である。それ以外の項目ではオゾン(紫外線吸光光度法)と大気浮遊塵、降下物中のベリリウム-7(γ線スペクトロメトリー法)を対象とし、当所

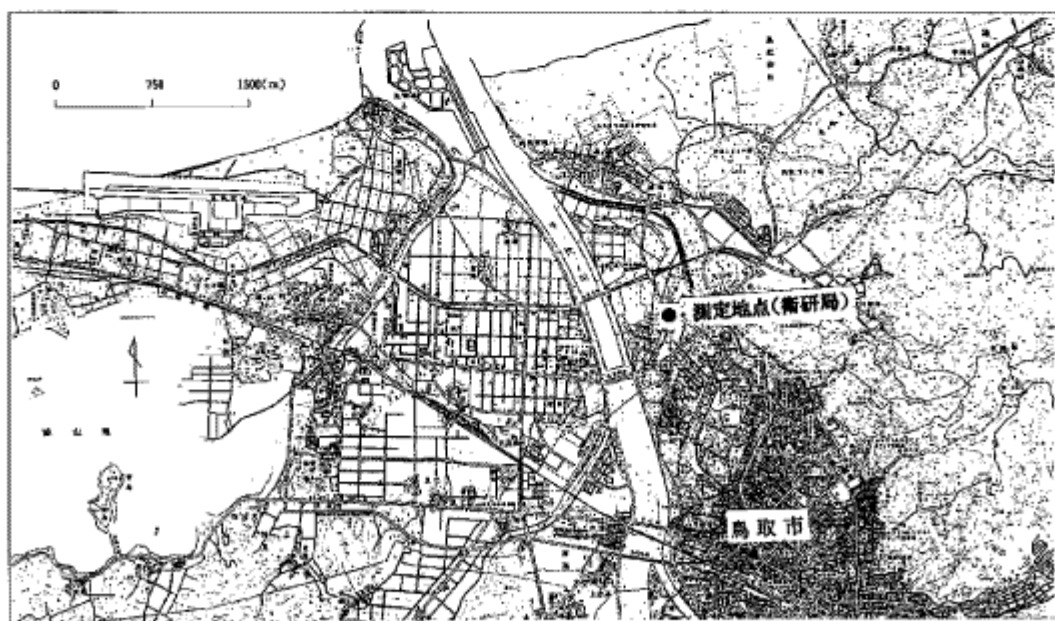


図1 測定地点

*現在、鳥取県環境政策課

の屋上で採取したものを測定し、その結果を解析データとした。

3 解析に用いたその他のデータ

気温、気圧、降水量は（財）日本気象協会鳥取支部発行の「鳥取県気象月報」、天気図は（財）日本気象協会発行の「気象」を利用した。

4 解析方法

各月（または半月）ごとに5時におけるOxの1時間値（4～5時の平均値）の平均値を求め、それをその月（半月）の自然由来の平均バックグラウンドOx（以後b-Ox）濃度と見なした。

この4～5時という時刻の設定は交通量が最も少なくNOxの影響を受けにくいこと、残留Oxが少ないこと、年間を通して日の出前の時刻であることを考慮して決めた。

また、月（半月）平均Ox濃度からb-Ox濃度を除いた濃度を光化学反応によって生成される見かけ上の光化学Ox（以後s-Ox）濃度とした。

これらの経月変動と濃度に影響を及ぼすと考えられる上記の大気測定データ、気象データを比較し、これらの因果関係を解析した。

5 Oxの測定結果

(1) 月平均Ox濃度、基準超過率

昼間（5時～20時）の月平均Ox濃度、基準超過率の平成2年度～7年度の経月変動を図2に示す。

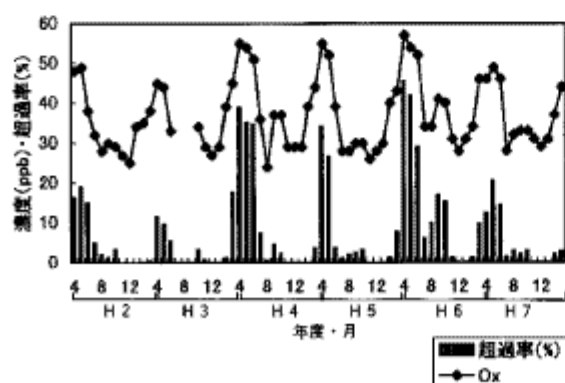


図2 経月変動

これによるとピーク月、高濃度の継続期間に多少の違いはあるが、毎年春季にOx濃度の大きなピーク、秋季に小さなピークが現れており、環境基準超過は大半が春季に集中している。

(2) b-Ox、s-Ox濃度の経月変動

次にb-Ox、s-Ox濃度の経月変動を図3に示す。

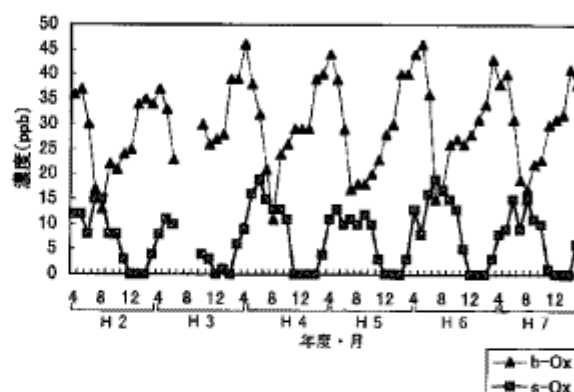


図3 経月変動

b-Oxは晩冬から春先頃、s-Oxは春から夏にかけて高濃度となっており、その結果、両方のピークが重なっている春先にOx全体としての濃度が高くなっていることがわかる。また、Ox濃度にしめるb-Oxの割合が非常に大きいこと、冬季においては、s-Oxがほとんど生成されていないことが確認できる。

(3) Ox濃度に占めるオゾン濃度の割合

Oxはオゾンをはじめ、多くの酸化性物質の総称であるが大気の大気汚染地域では、そのほとんどがオゾンであると言われている。当所でも平成7年4月10日から15日の6日間にわたりOx濃度と

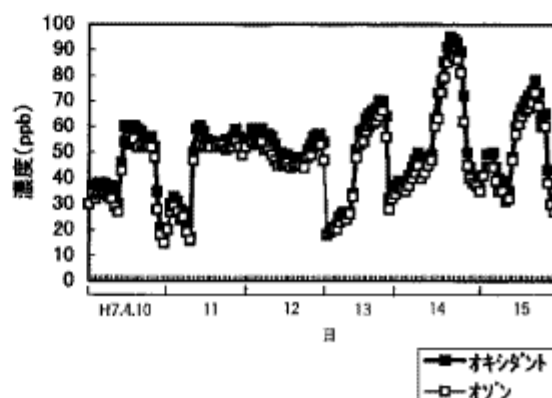


図4 経時変動

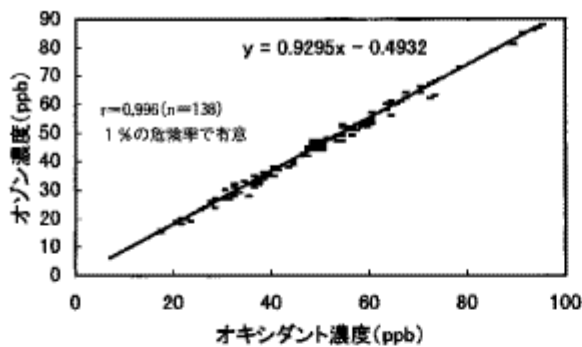


図5 O_xとオゾンの関係

並行してオゾン濃度を測定したところ、O_xの9割以上がオゾンという結果であった。(前ページ図4に経時変動、図5に散布図を示す。)

6 考 察

b-O_x、s-O_xのそれぞれの濃度とそれに影響を及ぼすと考えられる要因との関係について考察した。

(1) b-O_xの起源について

上記のように当所で観測される高濃度O_xは自然由来のO_x (成層圏から沈降してくるオゾン) が主な原因と推測される。そこで大半が成層圏で生成され、その沈降により、地表付近の浮遊粉塵中に含まれているベリリウム-7の濃度との関係について調べた。

このベリリウム-7は大気上層で宇宙線によって大気中の窒素、酸素の原子核が破壊されてできる核種の一つであり、生じた核種は拡散、移流、対流などにより地表付近まで運ばれ、その一部は

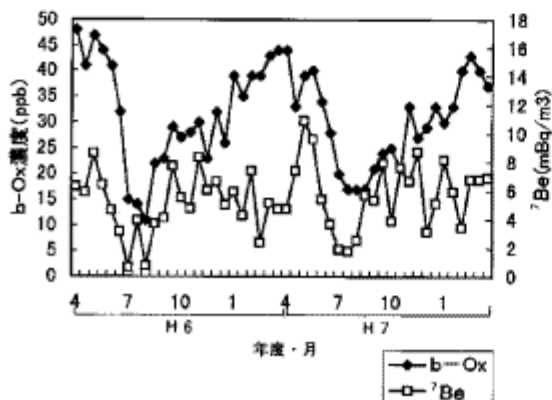


図6 b-O_x濃度と⁷Be濃度の経月変動

大気中の粒子に付着して地表や水面等へ沈着し、また雲粒や雨滴等に捕捉され降水として落下する。この核種の生成に関与する宇宙線の成分は強度変動が少なく、生成速度もほぼ一定となり、その崩壊による消滅と生成が釣り合っ、成層圏中の存在量(放射能)は、ほぼ一定となっている。

図6は平成6年度から7年度の2年間のb-O_x濃度と大気中に含まれるベリリウム-7濃度の変動を半月単位で示したものである。

ベリリウム-7が春季、秋季にピークを持つ二山型の濃度変動を示すのに対し、b-O_x濃度は秋季までは、ほぼ同様の変動を示すが冬季に下がらないで晩冬から春先にピークを持つ一山型を示した。

単相関係数は図7の散布図に示すとおり $r = 0.44$ ($n = 48$) で1%の危険率で有意であり、強い正の相関が認められる結果となった。

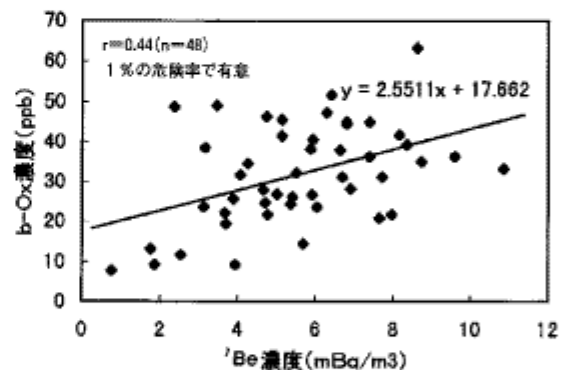


図7 b-O_x濃度と⁷Be濃度の関係

この両者の冬季における濃度変動の相違の原因としては、オゾンが水に難溶性の気体で降雨の影響を受けにくいのに対し、ベリリウム-7を含む浮遊粉塵は雲粒、降雨により捕捉され、サンプラーに捕集されないことが考えられる。

次ページの図8は大気降水物中に含まれるベリリウム-7量と降水量の関係を表したものであるが、ベリリウム-7量の変動は夏季を除くとかなり降水量に連動しており、降水量の多い冬季の降水量が他の季節に比べかなり多い結果となっており冬季においても降雨、降雪の影響が少なければb-O_x濃度と大気中のベリリウム-7濃度は、ほぼ同様の濃度変動を示すものと予想され、b-O_xの

大半は成層圏で生成されているオゾンに由来するものであると考えられる。

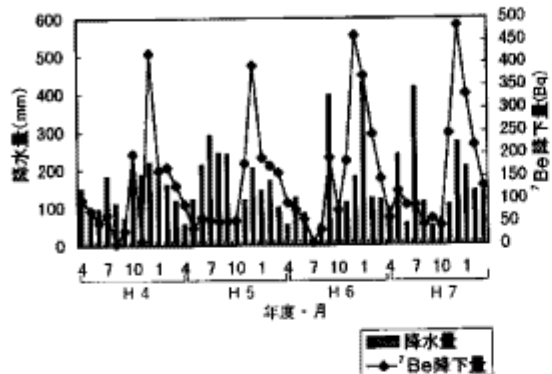


図8 ⁷Be降下量と降水量の経月変動

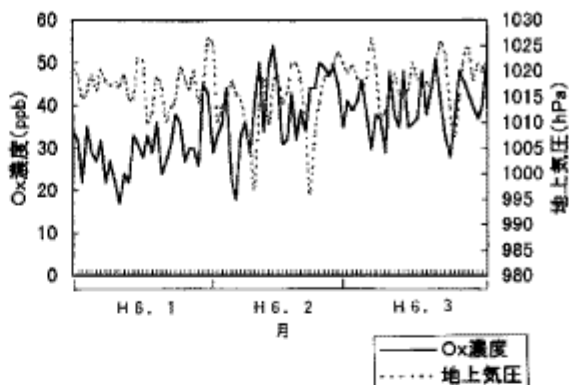


図9 b-O₃濃度と気圧の経日変動

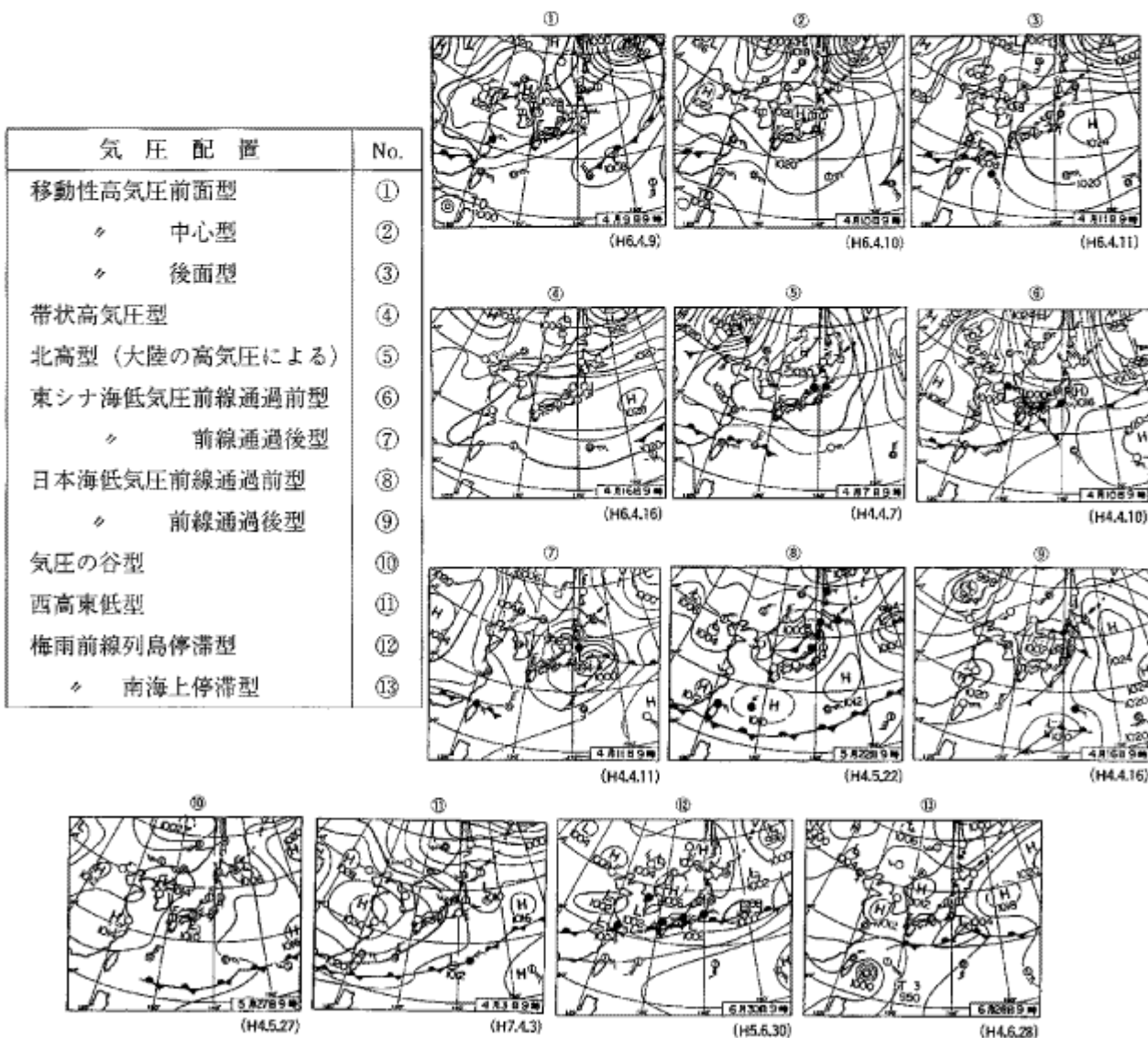


図10 春季に見られる気圧配置型とその例

(2) b-Ox濃度と気圧、気圧配置の関係について

この成層圏由来のb-Ox濃度との関係が予想される気象要因として気圧、気圧配置がある。このうち、気圧との関係については平成6年1月～3月（5年度）における日平均気圧と日平均Ox濃度の経日変動を比較したところ、単相関係数は $r=0.028$ で相関が認められない結果となった。（図9）

一方、Ox濃度と地上の気圧配置との関係については、春季の高濃度Oxに関する研究の中で特に寒冷前線と移動性高気圧の影響について報告されている。そこで当所においても、観測されるOx濃度に及ぼす気圧配置の影響について考察するため、平成4年度～7年度の春季（4～6月）において前ページ図10に示す気圧配置が典型的に現れた時のOx濃度をその気圧配置型別に図11のようにまとめた。（実際は午前9時の天気図を利用したため、Ox濃度は10時の1時間値を使用）

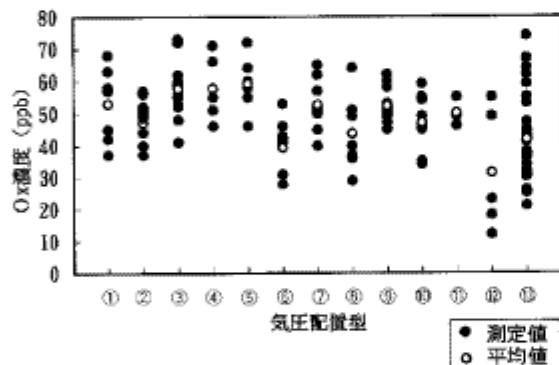


図11 気圧配置型とOx濃度の関係（春季）

Ox濃度は移動性高気圧後面型、大陸の高気圧による北高型、带状高気圧型で高く、逆に低気圧前線通過前型、梅雨前線列島停滞型で低くなる傾向が認められる。高気圧の影響下にある気象条件では概して光化学反応によるOxの生成も起きていると見てよいが、時間的にその影響はまだ少ないものと仮定すれば、この傾向はそのままb-Oxの傾向と言える。

春季について見れば、月平均b-Ox濃度はその月に現れる各気圧配置の頻度、継続時間等により大きく変わってくるものと推測される。そこで、梅雨入り後に気圧配置型が容易に識別できる6月の気圧配置を平成4年度～7年度について調べ、

実際のb-Ox濃度と比較対照した。4年度、6年度、7年度の梅雨入り時期は平年並みで、梅雨前線が南海上に停滞するNo. ⑬型の気圧配置が優勢だった。5年度は平年より早い梅雨入りで梅雨前線が日本列島付近に停滞するNo. ⑫型の気圧配置をとることが多く、月の大半が梅雨前線の影響下にあった。

この梅雨前線の位置による影響はb-Ox濃度に反映されており、梅雨前線が活発だった5年度が最も低く、反対に空梅雨気味であった6年度が最も高い結果であった。

b-Ox濃度と気圧配置の関係を年間を通して見ると、北の気団の影響を受ける気圧配置の方が南の気団の影響を受ける気圧配置に比べOx濃度が高くなる傾向が認められた。

なお、2年度、3年度の春季のb-Ox濃度がかなり低かった原因については今回不明であった。

(3) s-Ox濃度と光化学反応関連因子の関係について

光化学反応関連因子として窒素酸化物（NOx）濃度、非メタン炭化水素（NMHC）濃度、また紫外線量の代わりに日射量を取りあげ、これらの月平均濃度（値）とs-Ox濃度との関係を解析した。

s-Ox濃度と日射量、NOx濃度とNMHC濃度の平成2～7年度の経月変動を図12、13、それらを単相関分析した結果（単相関係数）を表1に示す。

s-Ox濃度は日射量との間に強い正の相関（1%の危険率で有意）、NOx濃度との間には強い負の相関、NMHC濃度との間には弱い負の相関（5

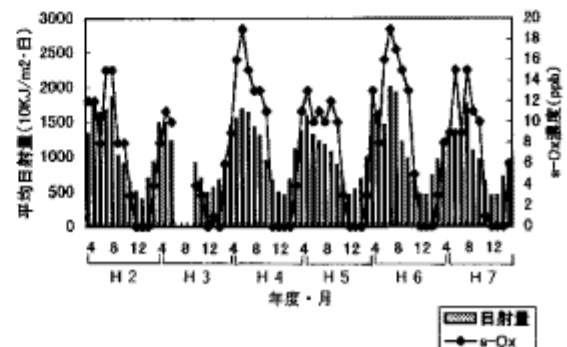


図12 s-Ox濃度と日射量の経月変動

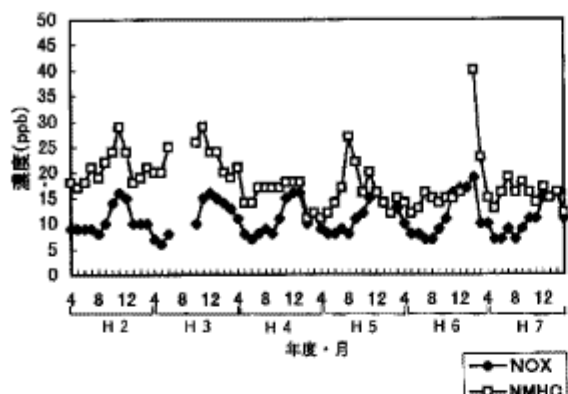


図13 NO_x濃度とNMHC濃度の経月変動

表1 単相関分析結果

単相関	s-O _x	日射量	NO _x	NMHC
s-O _x				
日射量	** 0.8855			
NO _x	** -0.7852	** -0.8311		
NMHC	* -0.2794	* -0.2841	** 0.4012	

** 1%の危険率で有意
* 5%の危険率で有意

%の危険率で有意) が認められる。これらの散布図を図14~16に示す。

しかしながら他の項目間にも相関が認められるので見かけ上の相関関係の可能性もあり、改めて

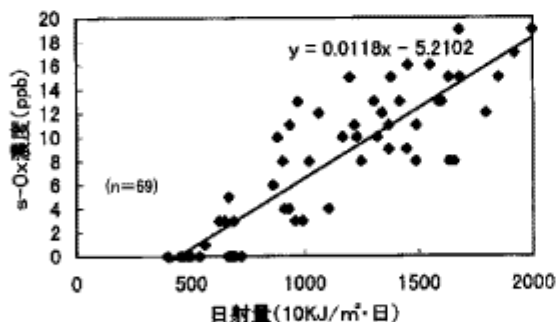


図14 s-O_x濃度と日射量の関係

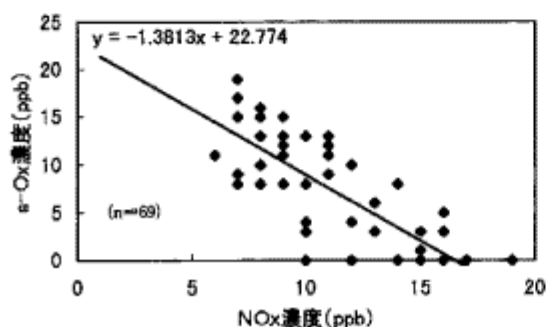


図15 s-O_x濃度とNO_x濃度の関係

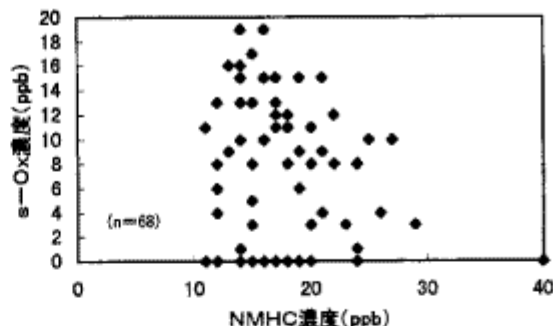


図16 s-O_x濃度とNMHC濃度の関係

偏相関分析を行ったところ日射量とのみ強い正の相関が認められる結果となった(表2)。

したがってs-O_x濃度の経月変動は主に日射量

表2 偏相関分析結果

単相関	s-O _x	日射量	NO _x	NMHC
s-O _x				
日射量	** 0.6747			
NO _x	-0.1805	** -0.4709		
NMHC	-0.0035	0.0739	* 0.3039	

** 1%の危険率で有意
* 5%の危険率で有意

(紫外線量)の変動によるものと考えられる。図15、16の関係は日射量の季節変動に伴う、s-O_x濃度の変動とNO_x、NMHC濃度の変動の間に見られる見かけ上の相関であると思われる。

異常気象で猛暑に見舞われた6年度の夏季は、例年に比べ日射量が多く、s-O_xが例年に比べ高濃度になったため、夏季としては珍しく約10%の基準超過があった。

(4) Ox濃度に及ぼす風向・風速の影響について
当所に設置している風向風速計の平成4年度~7年度のデータ(毎正時前の10分間平均n=34888)を用い解析した。

この4年間の風向風配図(図17)を見ると南南東の風が全体の30%近くを占め卓越していた。図18は風向の風速階級別の出現頻度図であるがS系(SE~SW)の風は5.0m/s未満の風速階級に集中しており、一方、北東の風を代表とするN系(NE~NW)の風は5.0m/s未満に出現頻度のピークはあるものの強風域までなだらかな頻度分布を見せた。

れる。S系の風向の場合に低濃度、N系の風向の場合に高濃度になる傾向が認められ、その傾向は弱風域でより明白であった。また、風速の影響を見ると、風速が強くなるにつれ濃度が高くなり、強風域まで出現頻度のある風向では、ある風速階級付近からほぼ一定となる傾向が見られる。

O_xの風速階級別風向別の濃度図は、前ページの図20に示すNO_xの場合の濃度図とは全く反対の頻度分布を示しており、このことは自動車排ガス等の影響でO_xが低濃度化されている当所の周辺地域に風の作用で高濃度O_xを含む外部大気が流入、混合してO_x濃度が高くなっていることを暗示している。

したがって、風速の濃度への影響は、風速が強くなるほど流入、混合がより激しくなるためであり、風向の濃度への影響、すなわちN系の風の場合とS系の風の場合の濃度の相違は1) N系の風が主に光化学O_xが高くなる日中の時間帯に吹き、一方、S系の風は主に光化学反応の影響の少ない(無い)時間帯に吹くことによる相違2) N系の風の場合、O_xを消費するNO_x等の発生源の少ない地域を吹いてくるのに対し、S系の場合にはNO_x等が高濃度に存在する市街中心部を吹いてくることによる相違、が原因として考えられる。

風向の風速階級別の出現頻度が年度により大きく違えばその期間の平均濃度に影響があるはずである。4年度～7年度の風向の風速階級別の出現頻度を季節別(四半期別)に次ページ図21に示す。

陸風と思われるS系の弱風が年度、季節を問わず卓越しており、年間の相違も多少認められるが、平均濃度に大きく影響を及ぼすほどの相違はあまり無いと思われる。

しかし、同じ鳥取市内でも場所により、局地風の影響、市街中心部との位置関係等の地理的条件に相違があるため、場所によっては当所付近よりもO_x濃度の高い地点があるものと推測される。

(5) s-O_x/O_x比と環境基準超過率の関係について

年間の環境基準超過率が特に高かった平成6年度の特徴として

1) 春季の4～6月にわたり平均O_x濃度が50ppb以上の高濃度であり、超過率が顕著に高いこと。

2) 夏季、秋季も例年に比べてかなり高濃度で、超過率もかなり高いこと。

があげられる。

これらは基本的には上記のように気圧配置、日射量等の気象要因によるものと考えられる。

しかし、2)については、6年度の夏季、秋季が、平均O_x濃度のほぼ同じ他年度の時季に比べて異常に高い超過率を示しており、この原因について考察した。

月平均濃度がほぼ同じ(約40ppb)である秋季(平成6年度10月)、冬季(5年度2月)のO_x濃度(1時間値)の濃度階級別頻度分布を調べたところ、図22のとおり分布の広がりには違いが見られた。秋季は冬季に比べ分布の幅が広く、高濃度側で20ppb程度の差があった。

冬季のO_xは、ほとんどがバックグラウンドO_xであるため、頻度分布の標準偏差は小さくなり、光化学O_xの割合が増えると標準偏差も大きくなるものと思われる。

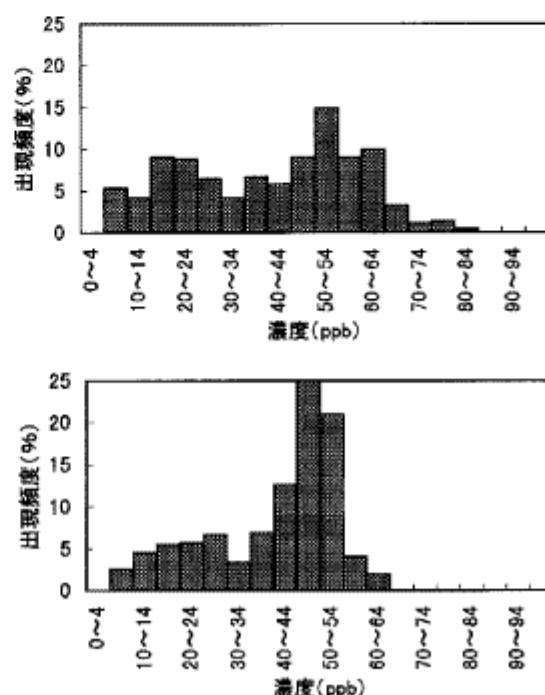


図22 O_x濃度(1時間値)の濃度階級別出現頻度
秋季(上図) 冬季(下図)

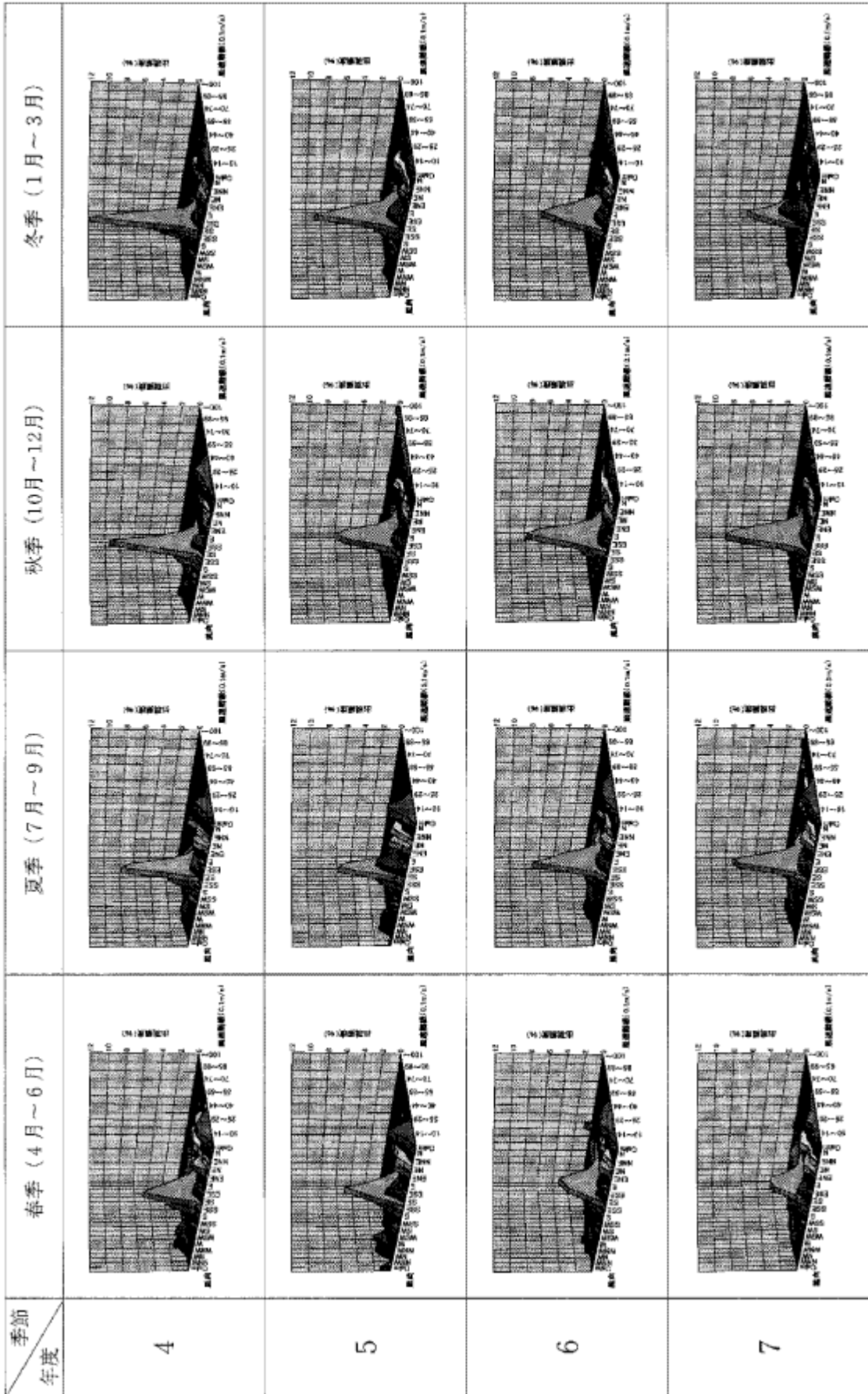


図21 風向の風速階級別出現頻度 (季節別)

平成6年度の各月のs-Ox/Ox比とOx濃度の標準偏差の関係を調べると図23のようになり、1%の危険率で正の相関（単相関係数 $r=0.82$ ）が認められた。

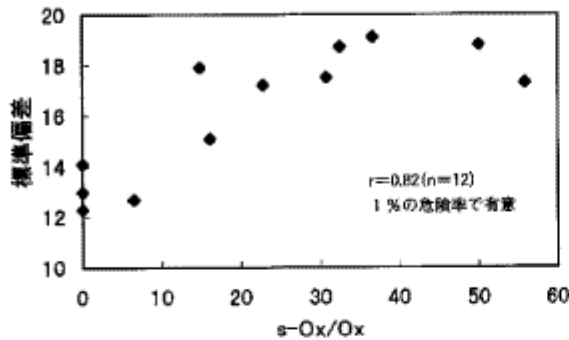


図23 出現頻度分布の標準偏差とs-Ox/Ox比の関係

頻度分布の標準偏差と基準超過率の関係を調べるため、6年度の日平均Ox濃度（5～20時）とその日の基準超過率の関係を季節別（四半期別）に図24のようにプロットした。

季節によって基準超過が始まる日平均濃度に相違が見られ、6年度においては夏季、秋季が約35ppb、春季、冬季が約40ppbであった。環境基準と基準超過が始まる日平均濃度の濃度差は概ね標準偏差に比例するはずであり、夏季、秋季と春季、冬季の標準偏差の相違を反映しているものと思われる。

同じ日平均濃度では、標準偏差の大きい夏季、春季の超過率が標準偏差の小さい冬季の超過率よりも高くなる傾向が50ppb付近まで明らかに認められる。

これらから、日平均濃度を月平均濃度に置き換えると、月平均濃度が基準超過の始まる濃度（35～40ppb）から50ppb付近の範囲にあり、かつ同程度であれば、s-Ox/Ox比（標準偏差）が大きい月ほど超過率も高くなる傾向があると考えられることができる。

過去6年間のうちで平成6年度9月、10月と平均Ox濃度がほぼ同じ（39～42ppb）であった期間（半月単位で11期間）について、s-Ox/Ox比と基準超過率の関係を調べたところ、図25のとおり1%の危険率で正の相関が認められ、この傾向を裏

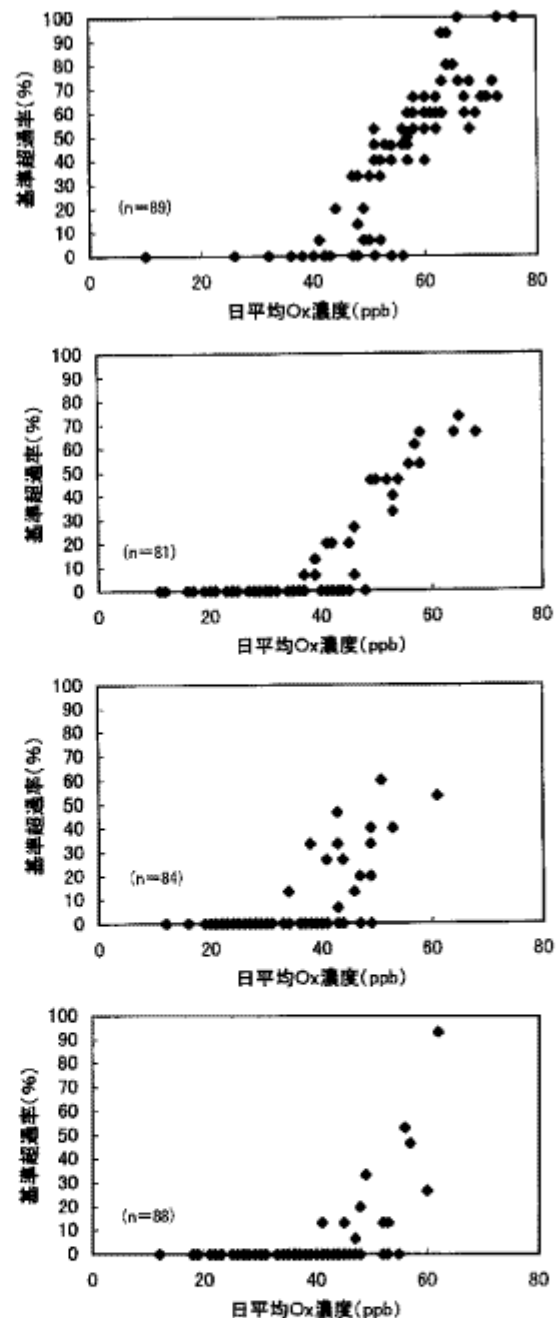


図24 日平均Ox濃度と基準超過率の関係（平成6年度）（上から春季、夏季、秋季、冬季）

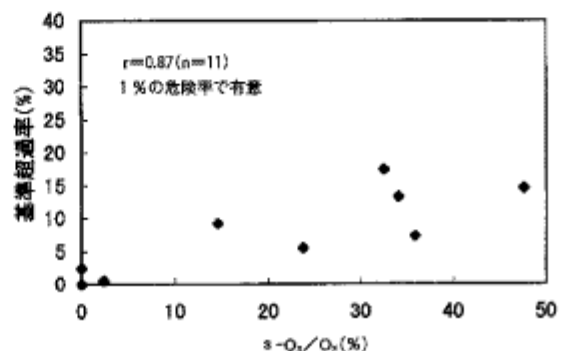


図25 s-Ox/Ox比と基準超過率の関係

付ける結果となった。

7 ま と め

鳥取市の一般環境大気中で観測されるOxの特徴をまとめると以下のとおりである。

- (1) Oxの高濃度現象は、バックグランドOx濃度と光化学Ox濃度が共に高くなる春季に集中しており、特にバックグランドOxの寄与が大きい。
- (2) Oxとオゾンの同時測定を行ったところOxの9割以上がオゾンという結果であった。
- (3) バックグランドOx濃度と大気中のペリリウム-7濃度が類似した経月変動を示すことから、バックグランドOxは主に成層圏からの沈降オゾンと推測される。
- (4) バックグランドOx濃度は気圧配置の影響が認められ、春季においては特に移動性高気圧の後面型、北高型、帯状高気圧型の気圧配置型で高くなる傾向が認められる。
- (5) 光化学Ox濃度と関連因子の相関を調べたところ、日射量(紫外線量)とのみ強い正の相関が認められる。
- (6) Ox濃度に及ぼす、風向、風速の影響を調べたところ、風向、風速の相違によるOxの濃度差が認められる。
- (7) 当所がある鳥取市の北部地域では、陸風と思われるS系の弱風が卓越しており、年度による頻度分布の相違が比較的小さいため、Ox濃度の経年変動に及ぼす影響も小さいものと思われる。
- (8) 鳥取市内でも場所により局地風の影響等の地理的条件が違うため、Ox濃度も場所によりか

なり違うものと推測される。

- (9) Oxは月平均濃度が40ppb前後で環境基準を超過するようになるが、月平均濃度が同程度であれば光化学Oxの占める割合が大きい月(夏季、秋季)ほど超過率も高くなる傾向がある。

文 献

- 1) 堀 素夫ほか：大気環境のサーベイランス測定・設計・解析、東京大学出版会、1984
- 2) 宇都宮彬、土井妙子、溝口次夫：非汚染地域山間部におけるオゾンの濃度変化、大気汚染学会誌、29(6)、332～339、(1994)
- 3) 立石ヒロ子、西川昌昭：長崎県におけるバックグランドオゾンとその地表オキシダントへの影響、大気汚染学会誌、22(5)、323～333、(1987)
- 4) 福岡紀夫：新潟地域における春季高濃度オキシダントの原因、大気汚染学会誌、21(4)、296～304、(1986)
- 5) 北村守次：光化学オキシダントと気圧配置型の分類について、石川県衛生公害研究所年報、19、363～367、(1982)
- 6) 佐藤通彦：茨城県一般環境大気における自動車排出ガスの影響度とオキシダント濃度決定に関する諸因子、茨城県公害技術センター、4、1～10、(1992)
- 7) 鳥取地方気象台監修、(財)日本気象協会鳥取支部発行：鳥取県気象月報、平成2年4月～平成8年3月
- 8) 気象庁監修、(財)日本気象協会発行：気象、No. 420～467