

福岡市における光化学オキシダント 高濃度事例の発生要因解析

辻井温子・中島亜矢子・富濱大介・島田友梨

福岡市保健環境研究所環境科学課

Analysis of Factors Contributing to High Photochemical Oxidant Concentration Cases in Fukuoka City

Atsuko TSUJII, Ayako NAKASHIMA, Daisuke TOMIHAMA and Yuri SHIMADA

Environmental Science Section, Fukuoka City Institute of Health and Environment

要約

福岡市の光化学オキシダント (Ox) 濃度はすべての測定局で環境基準を達成していない状況である。そこで Ox 濃度低減のため、本市における Ox 高濃度事例を解析し要因を把握することを目的として、2017 年度から 2021 年度までの過去 5 年間の Ox 高濃度事例の解析を行った。高濃度事例として Ox 濃度が環境基準を超過した事例のうち 1 時間値が 80 ppb を超えたものを抽出し、常時監視局データ (Ox, NO, NOx, NMHC), 気象データ (天気図, 日射量, 風向・風速等), 環境省 PM_{2.5}成分自動測定機データ (PM_{2.5}, 炭素成分), 大気予測・観測データ (後方流跡線, CFORS) を用いて解析した。事例解析の結果、5 年間の Ox 高濃度日の約 4 割で、本市の Ox ピーク濃度が、同一気塊とみられる対馬局及び五島局のピーク濃度を 5 ppb 以上上回っており、越境移流をベースとして地域生成の上乗せがあると考えられた。NO タイトレーション効果の違いにより都市部と郊外部で Ox 高濃度日の出現日数に差がみられた。また、本市の Ox 濃度は海陸風の影響を受け、風向が海風から陸風へ変化する時間帯に Ox 日最高値を示す可能性が示唆された。

Key Words : 光化学オキシダント Photochemical Oxidant, 週末効果 weekend effect, 窒素酸化物 nitrogen oxides, NO タイトレーション NO-titration, 海陸風 land and sea breeze

1 はじめに

光化学オキシダント (以下, 「Ox」とする。) の環境基準の全国達成率は、2022 年度で一般局 0.1%, 自排局 0% と他の大気汚染物質と比較して極めて低く¹⁾, 本市でも同様にすべての測定局で環境基準を達成していない状況である²⁾。Ox は、窒素酸化物 (以下, 「NOx」とする。) と揮発性有機化合物 (以下, 「VOC」とする。) を前駆物質として、光化学反応により生成されるオゾンを主成分とする酸化性物質の総称である。これまでの大気汚染対策により、NOx 濃度及び VOC の指標である非メタン炭化水素 (以下, 「NMHC」とする。) 濃度は減少してきた一方で、Ox には明確な減少傾向が見られていない³⁾。Ox 高濃度化には、地域で発生する前駆物質による生成、大陸からの移流、さらには成層圏オゾン降下など、複数の要因が挙げられる⁴⁾。また、既報³⁾ では、

本市の測定局を対象にクラスター分析を実施したところ、NOx 濃度の違いにより、都市部及び郊外部の 2 つのクラスターに分類されることが示されている。そこで、本研究では、本市における Ox 高濃度発生要因を明らかにすることを目的として、2017 年度から 2021 年度までの 5 年間に於ける Ox 高濃度事例の解析を行った。

2 方法

2.1 解析地点及び使用データ

解析地点は、本市の大気常時監視測定局のうち一般環境大気測定局 8 局を対象として解析を行った。また、海陸風の影響を見るために太宰府局も対象とした。解析地点を図 1 に示す。黒丸は都市部、白丸は郊外部を示す。大気汚染物質の測定データは、選定局の Ox, NOx, 一酸

化窒素（以下、「NO」とする. ）、NMHC 濃度の 1 時間値を使用した（ただし NMHC 濃度は一部の測定局のみが測定している）。また、地域汚染の影響が少ない地点として、長崎県の対馬局及び五島局を選定した。対馬局及び五島局の Ox 濃度は当該常時監視局の 1 時間値を使用した。PM_{2.5} 質量濃度及び炭素成分は福岡大学に設置されている環境省の PM_{2.5} 成分自動測定機（ACSA-14, APC-710）のデータを使用した。気象解析には気象庁の天気図及び福岡管区気象台のデータを、移流経路等の解析には国立環境研究所地球環境研究センター開発の METEX（<https://db.cger.nies.go.jp/ged/metex/ja/index.html>）及び化学天気予報システム CFORS（<https://www-cfors.nies.go.jp/~cfors/index-j.html>）を使用した。

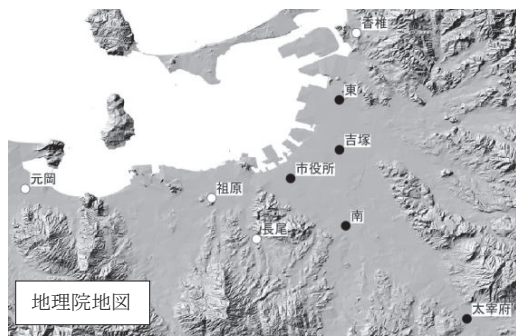


図1 解析地点（黒丸：都市部，白丸：郊外部）

2.2 高濃度事例の抽出

Ox 濃度が環境基準（1 時間値が 60 ppb 以下）を超過した事例のうち、本市測定局で 1 局でも 80 ppb を超過した日を「高濃度日」と定義し事例を抽出した。また、ほぼ同一の要因と考えられる場合は 1 事例とした。なお対象期間は 2017 年度から 2021 年度の 5 年間とした。

2.3 解析手法

抽出した高濃度事例について、その発生要因を総合的に評価するため、以下に示す複数の解析手法を組み合わせ実施した。

天気図及び後方流跡線解析により、広域的な気象場と汚染物質の輸送経路を把握した。後方流跡線は、市役所上空 1500 m を起点とし、対象日の 6 時から遡及時間を

72 時間とし、3 次元法を用いた。特に、対馬局及び五島局は大陸と九州の中間に位置し、大きな発生源が存在しないことから、大陸からの影響を評価する指標地点となる⁵⁾。このため、越境移流が想定される事例においては、経路上にある対馬局又は五島局の Ox 濃度と、本市測定局の Ox 濃度を比較し、地域生成による上乗せの有無を判定した。

また、気象データ、各測定局の常時監視データ及び環境省の PM_{2.5} 成分自動測定機データを用いて、Ox 濃度の地域差の要因を検討した。

さらに、事例に応じて、CFORS による広域の汚染物質分布の把握を行った。

3 結果及び考察

3.1 Ox 高濃度事例解析

5 年間の高濃度事例解析の結果、本市の Ox 高濃度日は 124 日で、そのうち 104 日の後方流跡線は大陸由来であることを示していた。また本市の Ox 濃度が、同一気塊と考えられる対馬局及び五島局の Ox ピーク濃度を 5 ppb 以上上回った日が 48 日あり、全体の約 4 割を占めたことから、越境移流をベースとして地域生成の上乗せがあることが示唆された。越境移流が要因と考えられる高濃度事例は、春季の大陸からの移動性高気圧の東進に伴う場合が多く、光化学オキシダント注意報（1 時間値が 120 ppb 以上）が発令されることもある。越境移流の事例として光化学オキシダント注意報が本市に発令された 2019 年 5 月 21 日から 25 日の事例、地域生成の上乗せがあった事例を地域汚染事例として 2020 年 8 月 19 日から 24 日の解析結果を示す。

3.1.1 越境移流事例（2019 年 5 月 21 日～25 日）

本事例は、大陸由来の越境移流を主要因として、日中の海風の影響により Ox の高濃度域が市内に広がったと考えられた事例である。

1) 概要及び Ox 注意報の発令状況

2019 年 5 月 22 日から 27 日にかけて、全国的に高濃度 Ox が観測され注意報が発令された地域が多数あった⁶⁾。

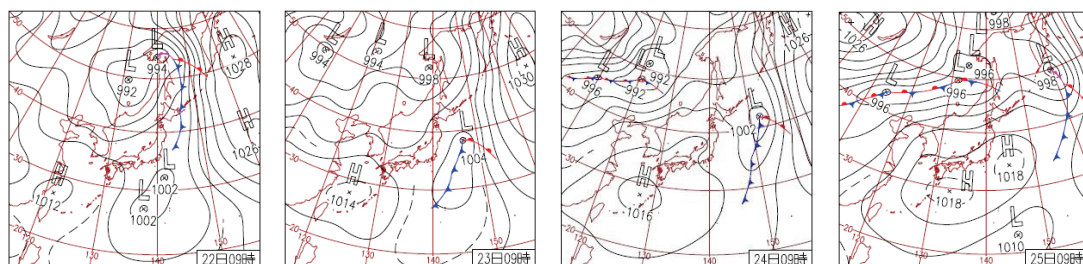


図2 天気図（5/22～5/25）

本市では23日及び24日に注意報が発令された。

2) 総観気象と広域スケールの移流

高濃度Oxが観測された5月22日から25日の天気図を図2に示す。期間中は、大陸からの移動性高気圧が東進し、九州を広く覆っていた。このような広域的な気圧配置は、総観規模の気象場に分類される。22, 23日は高気圧が九州の西海上に停滞していた。後方流跡線を図3に示す。後方流跡線解析の結果から、大陸北西部からの移流が確認された。図4にCFORSデータを示す。気象庁の観測では黄砂は確認されなかったが、大陸からの土壌性ダスト及び硫酸エアロゾルの移流がみられ越境移流の影響が示唆された。気象データを図5に示す。22日より徐々に気温が上昇し、24日及び25日には本市で真夏日を記録した。上空と異なり地上付近では気圧傾度が小さく、海陸風が卓越していた。

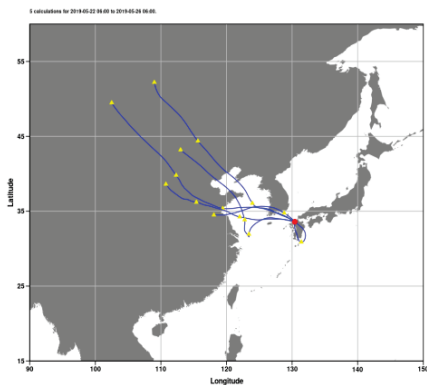


図3 後方流跡線 (5月22日~25日)

3) 観測データ及び海陸風の影響

都市部の代表地点として東局及び市役所局, 郊外部の代表地点として香椎局, 長尾局, 元岡局を選定し, 各地

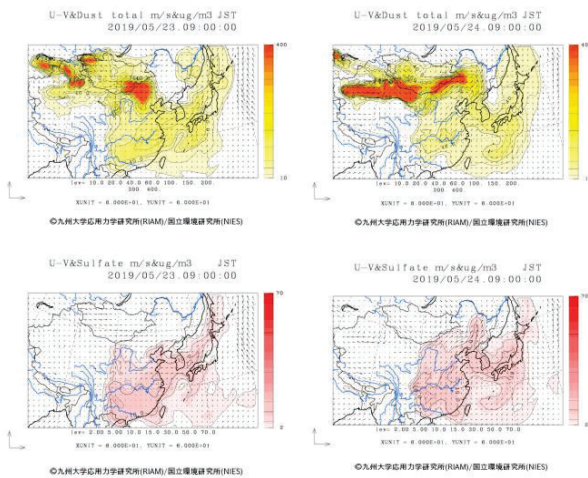


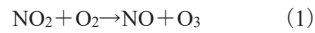
図4 CFORS データ (上: 土壌性ダスト, 下: 硫酸塩エアロゾル)

点のOx濃度(対照として対馬局を含む), NOx, NO, NMHC濃度を図6のa)~d)に示す。また, 本市及び対馬局のPM2.5濃度を図6e), 本市測定局の炭素成分データを図6f)に示す。対馬局のOx濃度は21日12時から継続的に上昇し, 24日5時に144ppbの最大値を示し, その後減少した。図6e)から, PM2.5濃度は, 対馬局と本市測定局両方で, Ox濃度と類似した変動を示した。

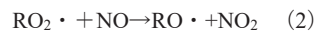
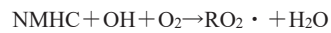
本市測定局におけるOx濃度は, 海陸風の影響を受け, 海風が到達する時間帯に最大値を示す日周変動を示した。日中は海陸風循環の一環として海風が卓越し, 海上の冷たい空気が陸上へと流れ込む。海風は重力流として振る舞い, その先端部が渦状となり閉鎖系の気流場を形成する。このため大気汚染物質がその中に閉じ込められ高濃度が生じる⁷⁾。期間中, 北西系の風により大陸から上空に運ばれたOxが日中の気温が高い時間帯に地上付近で混合層が発達し鉛直混合を繰り返し海風前線とともにOx高濃度域が拡大していた。

4) NOx濃度とOx生成の関係

都市部の東局及び市役所局では, 平日でNOx濃度が高かった。Ox濃度が最も高かった24日の郊外部の香椎局Ox濃度は132ppbで, 市役所局では115ppbであった。これは「NOタイトレーション効果」によるものと考えられ, 17ppbの最高値の差が生じた。O3(OxとO3を同義とする)とNO, NO2の関係は次式で示される。NOx発生源付近でNOが多く存在する場合は式(1)の逆反応でO3の分解が進みO3が減少する。



NMHCが多く存在する場合は



となり, Oxが継続的に生成される。香椎局や長尾局では,

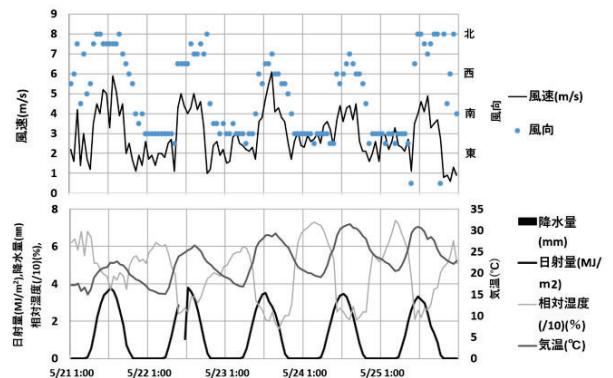


図5 気象データ (上段: 風向・風速, 下段: 気温・降水量・相対湿度・日射量)

午前中の通勤時間帯は自動車排ガスの影響と考えられる NOx 上昇に伴い NO も検出されるが、午後からは NO は検出されなかった。一方、東局や市役所局では午後の Ox が生成される時間帯も NO が検出され NO タイトレーション効果の影響で Ox 濃度に差がみられたと考えられた。NMHC が高濃度に存在する場合、(2) 式のように NMHC 由来の過酸化ラジカルが NO と反応し Ox が生成されるが、都市部では NO タイトレーション効果の影響と考えられる Ox 濃度低下がみられたため、Ox 生成に影響しないと考えられた。図 6 f) から OC (有機炭素) は

高かったが二次生成の指標となる WSOC (水溶性有機炭素)⁸⁾ の割合は低かったため地域内での二次生成の影響は小さいと思われる。

5) 成層圏オゾンの影響

春の Ox 高濃度時は成層圏オゾンの降下の影響も考えられる。成層圏オゾンの下降を示す要因として流跡線の起点高度が高いこと、Ox 高濃度時に比湿の低下があることとされる⁵⁾ が、Ox が最高値を示した 5 月 24 日の後方流跡線解析の結果、起点高度が 3 km 以下であることから影響は小さいものと考えられた。

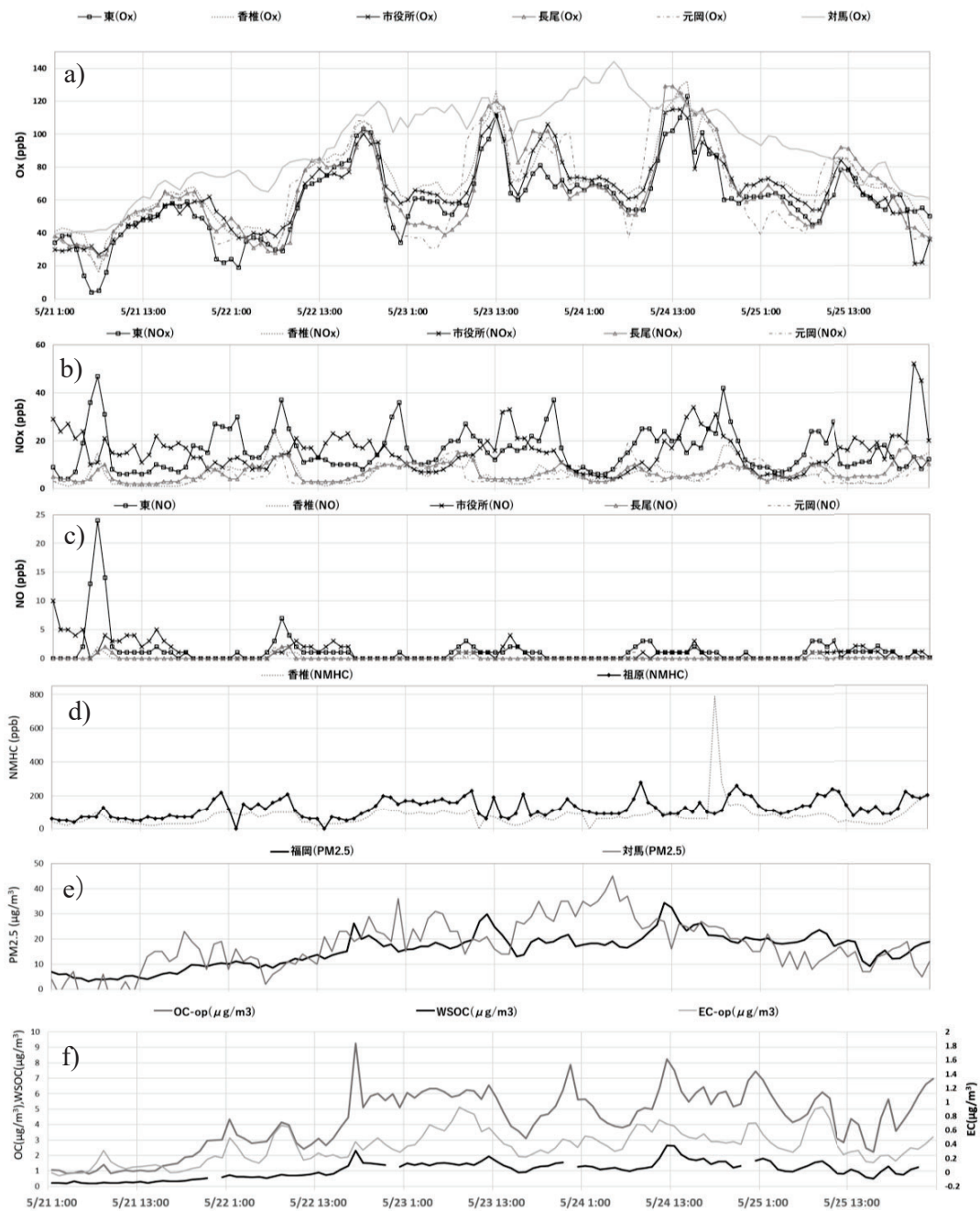


図 6 本市及び対馬局における観測データ (a) : Ox 濃度 b) : NOx 濃度 c) : NO 濃度 d) : NMHC 濃度 e) : PM_{2.5} 濃度 f) : OC (有機炭素), WSOC (水溶性有機炭素), EC (元素状炭素))

3.1.2 地域汚染事例 (2020年8月19日~8月24日)

本事例は越境移流に加え、連日の好天による強い日射や日射に伴う海陸風循環の影響、気温の上昇、前駆物質の濃度上昇等の要因により地域生成が上乘せされた事例である。

1) 概要及び気象状況

2020年8月19日から24日にかけて福岡県の広い範囲で高濃度のOxを観測した。特に19日から21日及び24日に高濃度が顕著であった。当該期間の天気図を図7に、気象データを図8に示す。この期間は連日30℃を超える夏日が続き、19、20日は九州の西海上に高気圧が停滞し、猛暑日を記録した。強い日射と高気温、そして弱風という気象条件が重なり、光化学反応が活発になりやすい状況であった。また、日中の風向の変化から、海陸風循環が示唆された。

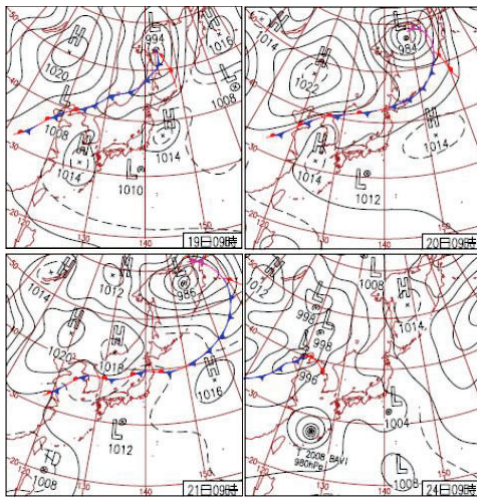


図7 天気図 (8/19~8/21, 8/24)

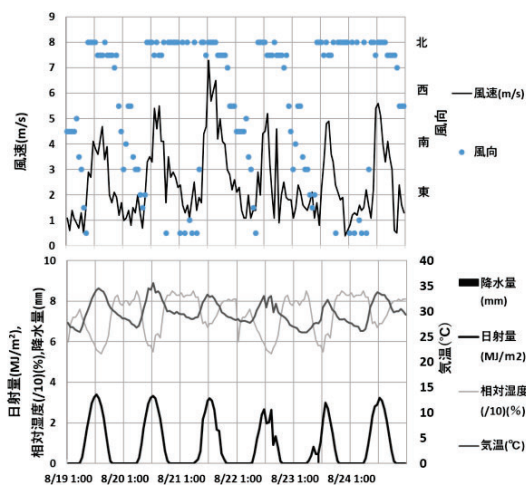


図8 気象データ (上段: 風向・風速, 下段: 気温・降水量・相対湿度・日射量)

2) 広域スケールの移流

後方流跡線を図9に示す。19、20日の気塊は東シナ海から朝鮮半島を經由し本市へ到達しており、越境移流の影響が示唆された。また、福岡では20日13時から21日13時は北寄りの風が継続しており、この間も大陸からの影響が及んでいたと考えられる。

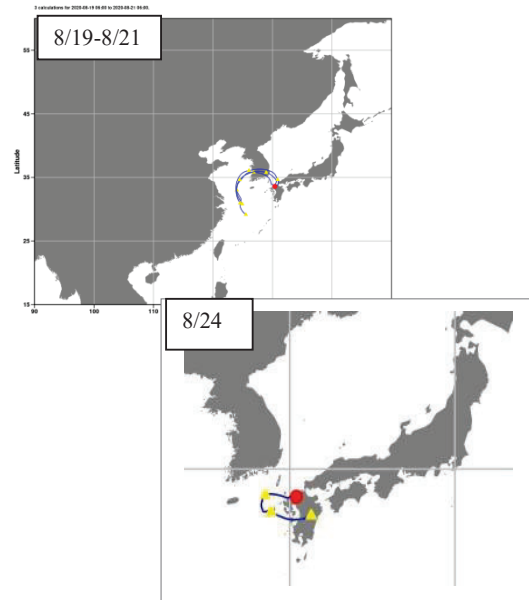


図9 後方流跡線 (8/19~8/24)

3) 観測データ及び地域生成の寄与

5月の事例と同様に常時監視局の都市部の代表地点として東局及び市役所局を、郊外部の代表地点として香椎局、長尾局、元岡局を選定し、Ox濃度(対照として対馬局のOx濃度を示す)、NOx、NO、NMHC濃度を図10のa)からd)に示す。また、福岡及び対馬局のPM_{2.5}濃度を図10のe)、福岡の炭素成分データを図10のf)に示す。19日は本市全域で対馬局のOx濃度を超え、20日も長尾局のOx濃度が97 ppbを記録し、対馬局より高い値を示した。これらのことから、越境移流に加え、地域内でのOxの生成が上乘せされたと考えられた。

図10のf)からWSOCが日射の強い時間帯に高くなる日変動をしており、これは強い日射のもとで二次有機エアロゾルの生成が地域内で活発に生じていることを示唆する。24日は特にOxが高く、OC及びEC(元素状炭素)の高濃度化がみられた。風速が弱く、気塊が滞留しやすい気象条件であったことから、前駆物質の蓄積とともに二次生成が起りやすい気象場が形成されていたと考えられる。また図10のe)からも、PM_{2.5}濃度が、越境移流時及び地域内の二次生成が示唆される時間帯に高くなっており、越境移流及び地域内の二次生成の両方の寄与が考えられた。

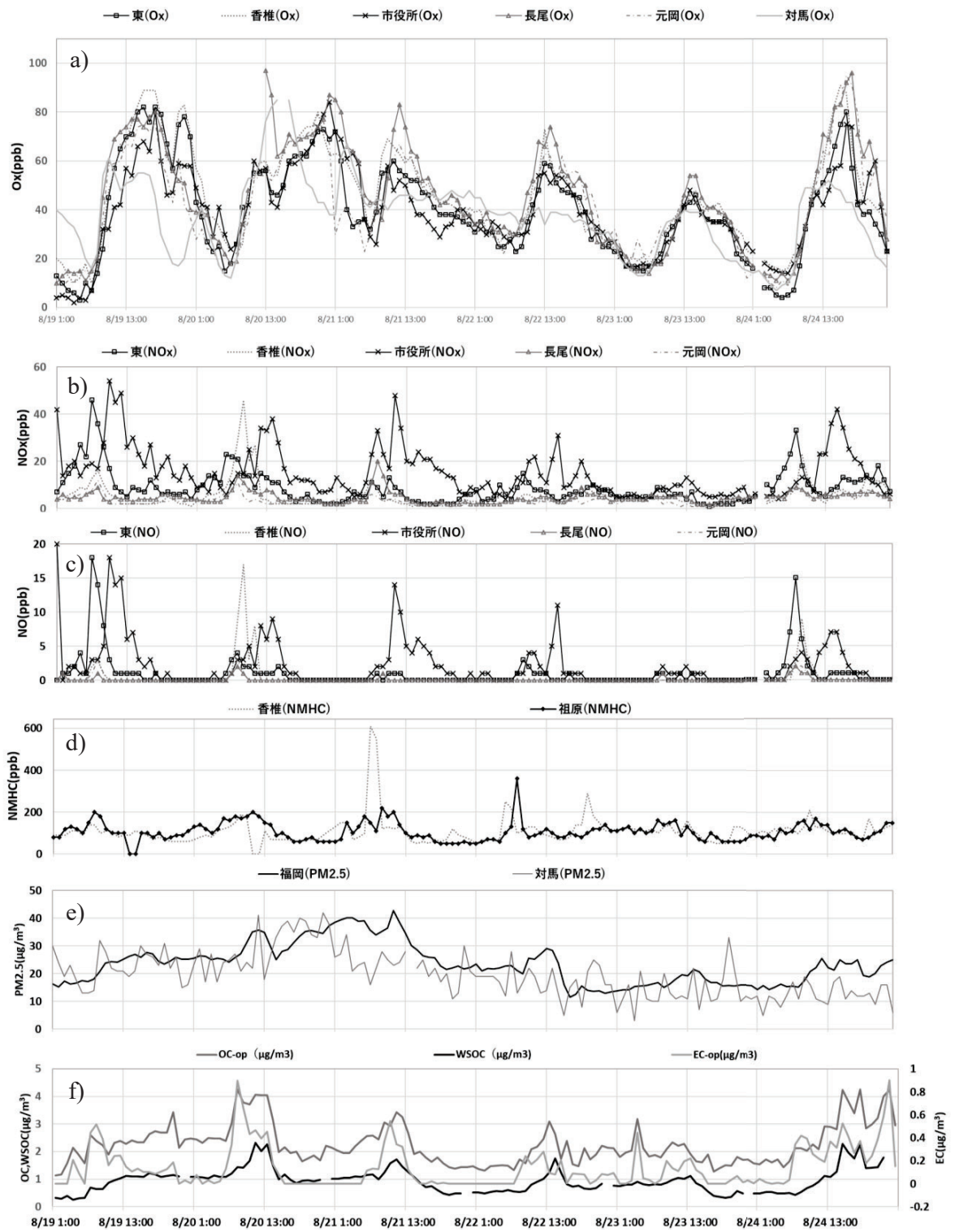


図 10 本市及び対馬局における観測データ (a) : Ox 濃度 (b) : NOx 濃度 (c) : NO 濃度 (d) : NMHC 濃度 (e) : PM_{2.5} 濃度 (f) : OC (有機炭素), WSOC (水溶性有機炭素), EC (元素状炭素)

4) NO タイトレーション効果及び週末効果

19日～21日及び24日は晴れて猛暑日や真夏日であったため、気温の上昇や強い日射があり、Oxが高濃度化しやすい気象条件が揃っていたが、都市部では、3.1.1.4と同様に自動車排ガスが原因と推定されるNOの影響で、NOタイトレーション効果が生じ、東局及び市役所局でOx濃度が低下していた。一方で、23日は日曜日であり、都市部でもNOxが低く、NOタイトレーション効果が小さくなったため、都市部と郊外部のOx濃度に大きな差は見られなかった。NOxとOxの関係について、NOxが低い日曜日にOxが平日より増加する現象が、「週末効果」として関東地方を中心に報告されている^{9, 10)}が、本事例では平日よりもOx濃度が減少しており、週末にNOxが低下したことがOx生成の抑制につながった可能性を示唆している。この結果から、NOタイトレーション効果が弱まる一方で、NOx削減対策が地域で生成されるOx濃度の低減につながる可能性が考えられる。しかし、週末にNOx濃度が低下しOx濃度が平日よりも上昇する事例もあるため、今後の解析で休日にOxが上昇する事例と低下する事例を抽出し要因を調べる必要がある。

3.2 本市のOx高濃度時の特徴

5年間の解析の結果、本市全域において海陸風が生じる際には風向が変化する時間帯にOxが日最高値を示す傾向がみられた。2020年8月21日から24日における本市及び太宰府のOx濃度と気象データを図11に示す。海風が吹く時間帯において、本市と太宰府局のOx日最高値のピークには1時間程度の時間差が認められ、太宰府局のOx濃度が都市部よりOx濃度が高くなる傾向が示された。このことから、都市部で生成されたOxが海陸風の影響で内陸部へ輸送される過程で、前駆物質の存在下において二次生成を伴いながら濃度が上昇している可能性が示唆された。風向とOx濃度の関係を明確にするため、2011年度から2020年度までの本市のOx濃度が環境基準を超えた日の最頻風向の解析結果を図12に示す。図より北寄りの風が平野部を本市から南方向へ向かってい

ることが分かる。福岡県の報告においても、海風が本市の都市部上空で生成されたOxの輸送と生成を促進し、南方向へ向かうことが示されている¹¹⁾。気圧傾度が高く一般風が卓越する時も気圧傾度が低く海陸風が卓越する時もどちらも海から内陸に向かって風が吹くが、地域生成が上乘せされOxが高濃度化するのには日射が強く海陸風循環が生じる時と推察される。

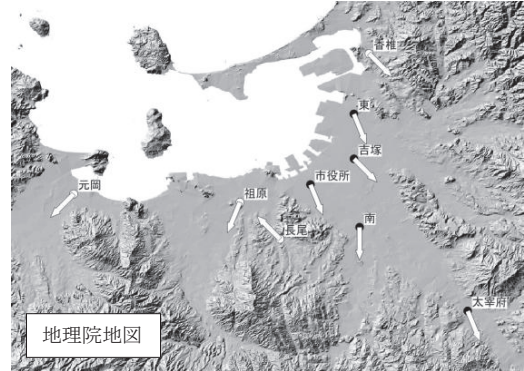


図12 解析地点の最頻風向

Oxが80ppbを超過した日数を図13に示す。5年間の解析の結果、香椎局及び長尾局でOx濃度が80ppbを超える頻度が高かった。この要因として、NOxが高い都市部と比較し、NOタイトレーション効果が低いことが挙げられる。さらに、都市部で生成したOx及び前駆物質が、強い日射に伴う海陸風循環や鉛直混合によってOx生成を伴い輸送されることが考えられる。また山や丘が付近にある等、地形的要因による大気の滞留もOx高濃度の発現に寄与していると推察された。

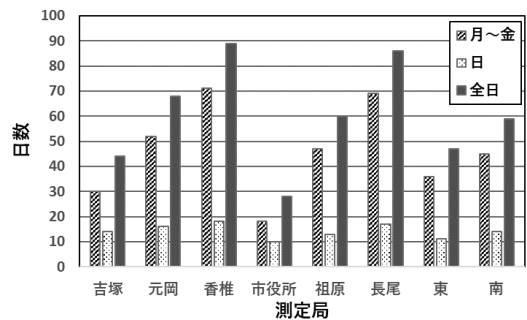


図13 Ox高濃度日(80ppb以上)の日数

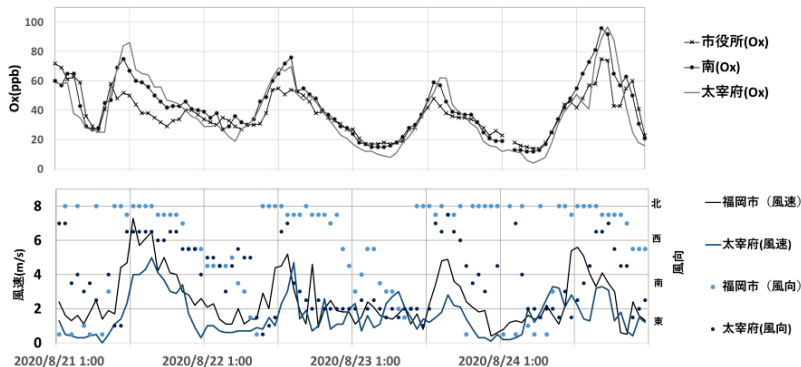


図11 福岡市及び太宰府のOx濃度(上段)と気象データ(下段)

4 まとめ

本市の Ox 高濃度化の要因として、対馬局及び五島局の濃度を上回る日があることから、越境移流に加えて地域内での Ox 生成が上乘せされていることが示唆された。また、本市のような比較的狭い地域においても、NOx 濃度の違いにより NO タイトレーション効果が測定局で異なり、Ox 濃度に差がみられた。

さらに、晴天かつ気圧傾度が低い気象条件下では、越境移流時も地域生成時も海陸風による輸送・混合の影響が Ox 濃度の時間変動に大きく関与していることが示唆された。

今後の課題として、シミュレーション解析等との比較を行うことにより越境移流による汚染とローカル由来の汚染を切り分けて評価することが挙げられる。

謝辞

本研究を行うにあたり、ご助言及びご指導いただいた福岡大学林政彦教授に御礼申し上げます。

文献

- 1) 環境省：環境・循環型社会・生物多様性白書令和 6 年度（2024 年度）版
- 2) 福岡市環境局：福岡市大気測定結果報告書令和 4 年度（2022 年度）版
- 3) 副田大介，他：福岡市における光化学オキシダントの長期的推移と高濃度要因の推定，福岡市保健環境研究所報，49，53～63，2024
- 4) 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（3），125～136，2001
- 5) 岩本真二，他：福岡県における光化学オキシダントの高濃度要因の分類，大気環境学会誌，43（3），173～179，2008
- 6) 久保智子，他：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 号，12～18，2019
- 7) 環境省：大気環境保全技術研修マニュアル第 4 章 気象・大気汚染物質濃度の変化と分析
- 8) 上野博之，他：東京都における夏季の PM2.5 及び水溶性有機炭素とオキシダント濃度との関係，大気環境学会誌，46（2），124～130，2011
- 9) 神成陽容：関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 1 報 二種類の週末効果反転現象の発見，大気環境学会誌，41（4），209～219，2006
- 10) 神成陽容：関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第 2 報 ダイナミックに変化するオゾン生成レジームの検証，大気環境学会誌，41（4），220～233，2006
- 11) 山村由貴，他：福岡県における地域汚染由来の高濃度オゾンに対する NOx, VOC 排出量削減の効果，全国環境研会誌，45（4），51～61，2020