

# 京都市における光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質濃度

吉井克英\*, 安井朗\*, 小森光彦\*, 木越俊雄\*

Density of Photochemical oxidant and Suspended Particulate Matter  
in Kyoto city.

Katsuhide YOSHII\*, Akira YASUI\*, Mitsuhiko KOMORI\*, Toshio KIGOSHI\*

## Abstract

The conditions of the air pollution in Kyoto city tend to improve year by year on sulphur dioxides (SO<sub>2</sub>) and Nitrogen Oxide (NO<sub>x</sub>), but photochemical oxidant (Ox) tends to increase. Though countermeasures against pollution sources such as NO<sub>x</sub> have progressed, high levels of Ox can be observed. The advection from the continent and climatic changes can be supposed to be main causes of high levels of Ox, but detailed mechanism should be elucidated. Local Ox and suspended particulate matter (SPM) are related closely, but they are also under the influences of wide area pollution. It is important to study in detail to elucidate pollution characteristics. We study pollution characteristics, regional, seasonal and yearly changes of Ox and SPM under the C-type collaboration with the local governmental research institutes and the National research institute for Environmental science.

**Key Words** : 大気汚染 air pollution, 光化学オキシダント photochemical oxidant (Ox), 大陸からの移流 advection from the continent, 汚染特性 pollution characteristics, 浮遊粒子状物質 suspended particulate matter (SPM)

## 1 はじめに

京都市の大気汚染の特徴は、三方が山に囲まれた内陸盆地に位置するため、風が弱く、気温の逆転層が出現しやすいことから、大気中の汚染物質が拡散されにくく、発生量に比べて高濃度汚染が出現しやすい傾向にある。

また、京都府南部から阪神工業地帯に連なっていることで、南から南西の風の時に市内の汚染濃度が高くなりやすい傾向もみられる<sup>(1)</sup>。

大気汚染の状況を見ると、二酸化硫黄（以下、「SO<sub>2</sub>」と言う。）に関しては、年々改善され、昭和55年度以降、一般環境大気測定局（以下、「一般大気局」と言う。）全局において環境基準を達成している。二酸化窒素（以下、「NO<sub>2</sub>」と言う。）、非メタン炭化水素（以下、「NMHC」と言う。）、浮遊粒子状物質（以下、「SPM」と言う。）に関しても、年々改善されてきており、ほぼ横ばいか微減傾向がみられるが、光化学オキシダント（以下、「Ox」と言う。）に関しては、増加傾向がみられる。

平成18年度の環境基準の達成状況については、NO<sub>2</sub>及びSPMに関しては、一般大気局、自動車排出ガス測定局全局で達成したが、Oxに関しては、一般大気局全10局で不達成であった<sup>(1)</sup>。

また、全国的にもOxの環境基準の達成状況は、0.2%

と非常に低くなっている。

Oxの原因物質である窒素酸化物や炭化水素類の濃度は、横ばいなし減少傾向にあるにもかかわらず、Ox濃度の低下はみられない。

本市においても、近年、Ox濃度の上昇に伴い、光化学スモッグ注意報の発令回数が増加傾向にあり、全国的にも、2002年に埼玉県、2004年に千葉県で10数年ぶりに光化学スモッグ警報が発令され、さらに2006年には長崎県、熊本県の両県で初めて光化学スモッグ注意報が発令された<sup>(2)</sup>。

この要因としては、地域的な排出構造の変化、アジア大陸における大気汚染排出量の増加及び気象条件等が指摘されているが、その詳細は明らかにされていない<sup>(2)</sup>。しかし、Oxによる大気汚染を防止することは緊急の課題であり、早急に高濃度発生原因や汚染特性を解明し、有効な対策を講じる必要がある。

また、SPMは、光化学スモッグの二次発生物質としてOxと共に高い地域依存性をもつと同時に、広域的な汚染の影響も受けるため、共通の評価指標で全国的な比較検討を行うことが汚染特性解明にとって重要である。

本市では、これらの原因を解明するため、複数の地方自治体研究所と国立環境研究所等で行っているC型共同研究に参画し、各自治体の大気環境時間値データを用いて、相互比較検討を行うことなどにより、地域的な汚染

\* 京都市衛生公害研究所 環境部門

の特徴を明らかにするとともに、Ox や SPM 等の汚染特性や発生原因の解明などを行っている。

同 C 型共同研究は、2007 年度からの 3 年計画であり、1 年目は、Ox や SPM の年平均値の経年変化、年最大値の経年変化、濃度ランク別時間数の経年変化、Ox、SPM 及び NOx の月平均値経月変動及び各物質間の相関関係に関して解析及び検討を行ったので、その結果を報告する。

## 2 方法

(1) 基本解析を行うにあたり、左京局、京都市役所局、醍醐局、山科局及び西京局の 5 局を選択した。選定理由としては、地勢や位置を考慮し、かつ出来るだけ広く市域に分散するように選択した。

(2) 国立環境研究所が開発した「大気時間値集計・解析プログラム」をインストールし、そこに「測定局情報ファイル」の最新情報を追加した。「時間値データファイル」を C 型共同研究のサイトからダウンロードし、1976 年度から 2005 年度までのデータファイルを入力した。

(3) データファイルを元に、「大気時間値集計・解析プログラム」を用いて、中間ファイルを作成した。中間ファイルには、1976 年度から 2005 年度までの京都市内の全測定局の全項目 (SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, NOx, CO, Ox, NMHC, CH<sub>4</sub>, THC, SPM, WD, WS, TEMP 及び HUM) の 1 時間ごとのデータがテキストファイル形式で保存されている。

(4) 中間ファイルを元に、「大気時間値集計・解析プログラム」を用いて、単純集計 (年度別・月別) 及び濃度ランク別集計 (年度別・月別) を行った。

単純集計 (年度別・月別) には、SO<sub>2</sub>, NO, NO<sub>2</sub>, NOx, CO, Ox, NMHC 及び SPM の有効測定値総和 (年総計・月総計・時間別)、有効測定時間総和 (年総計・月総計・時間別)、平均値 (年総計・月総計・時間別)、最大値 (年総計・月総計・時間別)、最小値 (年総計・月総計・時間別)、標準偏差 (年総計・月総計・時間別)、中間値 (年総計・月総計・時間別) がテキストファイル形式で保存されている。

濃度ランク別集計 (年度別・月別) には、Ox 及び SPM の濃度ランク別の有効測定値総和及び有効測定時間総和がテキストファイル形式で保存されている。

(5) 単純集計 (年度別・月別) 及び濃度ランク別集計 (年度別・月別) を元に、国立環境研究所が作成した「基本解析ファイル」にデータを入力し、図表の作成を行った。

(6) (5) で作成した図表を元に検討を行った。

## 3 結果及び考察

### (1) Ox 濃度の年平均値の経年変化<sup>(3)</sup>

解析期間において、1976～1979 年度のデータが無い醍醐を除く 4 局で、1976 年度が年平均値の極大ピークを示した。1976～1978 年度にかけて、データの無い醍醐を除く 4 局で減少傾向がみられ、1980 年度前後を底に、1984 年度までは、ほぼ横ばいであった。1984 年度以降は、各年度によって、微増減はあるものの、5 局とも増加傾向を示した。また、2004 年度には、左京が 1977 年度以来、2005 年度には、京都市役所が 1976 年度以来となる年平均値が 30ppb を超えた。(図 1)

### (2) Ox 濃度の年最大値の経年変化<sup>(3)</sup>

#### ア 全体傾向

Ox 濃度年平均値が 1984 年度以降一貫して増加傾向を示したのに対し、Ox 濃度年最大値は 1995 年度前後まで増加傾向を示さなかった。しかし、年最大値においても、西京を除く 4 局は、1995 年度以降増加傾向を示した。

#### イ 各局の特徴

1976～1979 年度にかけて、データの無い醍醐を除く 4 局で、年最大値の顕著な減少がみられた。1980～1990 年度前後にかけては、5 局とも各年度により大幅な増減の繰り返しがあり、増加傾向か減少傾向かは明確でない。1992～1995 年度前後にかけては、京都市役所を除く 4 局で微減傾向がみられ、1995 年度以降は増減を繰り返しながらも、西京以外は増加傾向がみられる。京都市役所に関しては、1993 年度以降、増加傾向がみられた。(図 2)

### (3) Ox 濃度 60ppb 以上の時間数の経年変化<sup>(3)</sup>

#### ア 全体傾向

60 ppb 以上の時間数の経年変化においては、1980 年度前後を底に、それ以降は増加傾向がみられた。

#### イ 各局の特徴

1980 年度前後を底に、1992 年度前後までは、5 局とも増減の繰り返しがみられた。山科を除く 4 局で、特に増減の繰り返しが大きかった。1993 年度は、5 局とも 60 ppb 以上の時間数が、前年度から大きく減少した。1993 年度以降は、西京を除く 4 局で増減の繰り返しはあるものの、明らかな増加傾向がみられた。西京は、増減を繰り返しながらも微増傾向であった。(図 3)

### (4) Ox 濃度ランク別 (20ppb 毎) の時間数の経年変化<sup>(3)</sup>

#### ア Ox 濃度ランク (0～19 ppb)

1976～1978 年度にかけて、データの無い醍醐を除き、出現時間数の顕著な増加傾向がみられた。1984

～1987年度, 1990～2005年度の両期間にかけては, 5局とも減少傾向を示し, 特に京都市役所における減少傾向は顕著であった。醍醐は, 横ばいに近い微減傾向であった。(図4・a)

イ 0x濃度ランク (20～39 ppb)

1977～1978年度にかけて, データの無い醍醐を除き, 顕著な減少傾向がみられた。1989年度を除き, 1980年度以降は微増傾向を示した。(図4・b)

ウ 0x濃度ランク (40～59 ppb)

1976～1980年度前後にかけて, 変動の大きい西京及びデータの無い醍醐を除き, 減少傾向がみられた。1980年度前後を底に, それ以降は5局とも増加傾向に転じた。(図4・c)

エ 0x濃度ランク (60～79 ppb)

1976～1981年にかけて, データの無い醍醐を除き, 減少傾向を示した。1981年度前後を底に, 醍醐を除き増加傾向に転じた。醍醐は, 1980～1986年度は増加傾向, 1986～1990年度は減少傾向, 1990～2005年度は増加傾向を示した。(図4・d)

オ 0x濃度ランク (80～99 ppb)

1976～1981年にかけて, データの無い醍醐を除き減少傾向を示した。1981年度前後を底に5局とも増加傾向に転じた。2000年度以降は, 左京・山科で顕著な増加傾向がみられた(図4・e)

カ 0x濃度ランク (100～119 ppb)

1976～1984年度前後にかけて, 醍醐を除き, 減少傾向を示した。醍醐は1980～1986年度にかけて, 増加傾向がみられた。1986～1992年度にかけては, 5局とも隔年ごとに増減の繰り返しを示した。1993年度を底に, それ以降は, 5局とも増加傾向に転じた。(図4・f)

キ 0x濃度ランク (120ppb以上)

1976～1979年度にかけて, データの無い醍醐を除き顕著な減少を示した。変動の大きい醍醐を除き, 1979～1984年度にかけて, ほぼ横ばいを示した。1984～1991年度にかけて, 5局とも増減の繰り返しを示した。1992年度に5局とも極大ピークがみられた。5局共, 1993年度前後を底に2003年度までは, ほぼ横ばいで, 2003年度以降は増加傾向を示した。(図4・g)

(5) SPM濃度の年平均値の経年変化<sup>3)</sup>

5局の年平均値の推移をみると, 1978～1991年度までは, 横ばいで, 1991年～2005年度にかけては, 減少傾向を示した。

1978～1991年度にかけては西京の増減が大きい。また, 醍醐は, 5局の中で一番濃度が高い傾向にある。(図5)

(6) SPM濃度2%除外値の経年変化<sup>3)</sup>

SPM2%除外値の経年変化の状況は, SPM濃度年平均値の経年変化の状況と似ていた。このことは, SPM2%除外値とSPM濃度年平均値とが, 極めて相関性が高いことを示唆している。

また, SPM濃度年平均値とSPM2%除外値の各局間のばらつきをみると, 1992年度前後を境に変化がみられ, 1992年度以前は, ばらつきが大きかったが, それ以降は小さくなっていた。(図6)

(7) SPM濃度100 $\mu$ g/m<sup>3</sup>以上の時間数の経年変化<sup>3)</sup>

1978～1983年度にかけて, 醍醐を除く4局で減少傾向がみられた。5局とも1984～1992年度前後までは, 増減の繰り返しがみられた。1993年度以降は, 5局とも減少傾向を示し, また, 各局間のばらつきも極めて小さかった。経年的に5局の中で醍醐の濃度が一番高いが, 近年その傾向も減ってきている。(図7)

(8) 0x濃度の季節的な特徴<sup>3)</sup>

0x濃度60ppb以上の出現率の経月変動

ア 1990年以降\*

1990～2005年度の0x濃度60ppb以上の出現率の経月変動をみると, 5局全てにおいて, 4～8月は10%以上の出現率であった。このことから, 5局とも「春+夏」型の経月変動パターンであることが示唆される。(図8・a)

イ 1990年代初頭\*\*と最近5年間\*\*\*との比較

最近5年間の経月変動は, 1990年代初頭の経月変動から変化していた。どちらの期間も「春+夏」型の経月変動パターンを示すものの, 最近5年間の経月変動は, 0x濃度60ppb以上の出現率が, 春に増加し, 夏に減少しており, 相対的に「夏」型のピークが小さくなっていた。このことから, 大陸からの移流が, 近年増加傾向にあることが推察される。(図8・b, 図8・c)

(9) SPM濃度の季節的な特徴<sup>3)</sup>

SPM濃度100 $\mu$ g/m<sup>3</sup>以上の出現率の経月変動

ア 1990年以降\*

7月の夏季と11, 12月の冬季に大きなピークがみられた。しかし, 局ごとにSPM濃度が最大となる月が異なり, 左京・京都市役所は夏季に, その他の3局は冬季に最大となった。7月の夏季に高濃度となるのは, 紫外線が強く, 気温が高くなる等の要

因から、光化学反応が促進され、 $O_3$ が高くなることによる2次生成が原因であり、11、12月の冬季に高濃度となるのは、ボイラー等による発生源の影響が原因と推察される。(図9・a)

#### イ 1990年代初頭\*\*と最近5年間\*\*\*との比較

1990年代初頭と最近5年間の経月変動では、大きな違いがみられた。1990年代初頭は、1990～2005年度の経月変動と似ており、7月の夏季と11、12月の冬季に大きなピークがみられた。また、局ごとにSPM濃度が最大となる月が異なり、左京・京都府役所は夏季に、その他の3局は冬季に最大となった。一方、最近5年間は、4月の春季に巨大なピークが出現した。7、8月の夏季にもピークは出現したが、醍醐以外の4局においては、夏季のピークは、春季に比べて半分くらい大きさであった。10、11月にも左京・山科以外の3局でピークがみられたが、夏季よりも小さかった。左京では12月の冬季に、山科では10月の秋季に小さいピークがみられた。4月の春季に巨大なピークが出現したのは、黄砂が原因ではないかと推察される。(図9・b、図9・c)

#### (10) $NO_x$ 濃度の季節的な特徴<sup>(3)</sup>

$NO_x$ 濃度の月平均値の経月変動

##### ア 1990年以降\*

12月を中心とした冬季に高濃度となり、5～9月の晩春～初秋にかけては低濃度となった。冬季に高濃度となるのは、ボイラー等による発生源の影響が原因と推察される。晩春～初秋にかけて低濃度となるのは、この時期に高濃度となる $O_3$ により、 $NO$ が酸化され、 $NO_2$ からさらに酸化やイオン化反応が起こり、 $NO_x$ として消費が進むこと等が影響していると推察される。(図10・a)

##### イ 1990年代初頭\*\*と最近5年間\*\*\*との比較

1990年代初頭と最近5年間を比較すると、12月を中心とした冬季に高濃度となり、5～9月の晩春～初秋にかけては低濃度となる経月変動を示し、両期間のパターンは似ていた。しかし、5局とも最近5年間の冬季のピークは、1990年代初頭と比較すると顕著に小さくなった。これは、継続的な $NO_x$ 発生源対策の効果であると推察される。(図10・b、図10・c)

#### (11) $O_x$ 濃度年平均値と60ppb以上の出現率との関係<sup>(3)</sup>

##### ア 1990年以降\*

両者の間においては、良好な相関は得られなかった。(図11・a)

##### イ 1990年代初頭\*\*と最近5年間\*\*\*との比較

$O_x$ 濃度年平均値と60ppb以上出現率の相関を見ると、1990年代初頭においては良好な相関は得られず、さらに最近5年においては、全く相関が得られなかった。また、1990年代初頭は、年平均値に対する60ppb以上出現率において、各局間で差がみられ局ごとに特徴があらわれていたが、最近5年間では、その差が減少していた。1990年代初頭と最近5年間の散布図を比較すると、 $O_x$ 濃度年平均値も60ppb以上出現率も最近5年間は増加しているが、 $O_x$ 濃度年平均値より、60ppb以上出現率の方が増加率が大きいことが分かる。このことから、最近5年間は60ppb以上の高濃度な $O_x$ の出現頻度が増加していることが示唆される。(図11・b、図11・c)

#### (12) SPM濃度年平均値と2%除外値との関係<sup>(3)</sup>

##### ア 1990年以降\*

両者の間には、非常に良好な正の相関が得られた。(図12・a)

##### イ 1990年代初頭\*\*と最近5年間\*\*\* (2001～2005年度)との比較

1990年代初頭と最近5年間においても、SPM2%除外値とSPM濃度年平均値の間には、非常に良好な正の相関がみられた。両者の散布図を比較すると、最近5年間のSPM2%除外値の低下が、SPM濃度年平均値の低下より大きいことが分かる。このことから、最近5年間は、SPMの高濃度の出現頻度が減少していることが示唆される。(図12・b、図12・c)

#### (13) 複数の物質間の相関関係<sup>(3)</sup>

##### ア SPM濃度年平均値と $O_x$ 濃度年平均値との関係

SPMと $O_x$ については、逆比例関係がみられた。このことから、光化学反応によるSPMの2次生成が推察される。(図13・a)

##### イ $NO_x$ 濃度年平均値と $O_x$ 濃度年平均値との関係

$NO_x$ と $O_x$ については、逆比例関係がみられた。 $O_3$ により $NO$ が酸化され、 $NO_2$ からさらに酸化やイオン化反応が起こり、 $NO_x$ として消費が進むこと等が影響していると推察される。(図13・b)

##### ウ SPM濃度年平均値と $NO_x$ 濃度年平均値の関係

SPMと $NO_x$ については、正比例関係がみられた。このことから、共通の発生源が関与していると考えられる。(図13・c)

\* 1990年以降とは、1990～2005年度の期間を指す。

\*\* 1990年代初頭とは、1990～1994年度の期間を指す。

\*\*\* 最近5年間とは、2001～2005年度の期間を指す。

#### 4 まとめ

今後は、京都市と他都道府県市との状況とで比較・検討を行いたい。特に、Ox濃度及びSPM濃度の季節的な特徴に関して、同様のパターンを示す自治体との位置、地勢、気候及び大気汚染状況等における共通点や相違点の検証を行いたい。

#### 5 参考文献

- (1) 京都市の環境－平成18年度－：京都市環境局地球環境政策部地球温暖化対策課
- (2) 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関

する研究－国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究最終報告（平成16～18年度）－：独立行政法人 国立環境研究所 国立環境研究所研究報告第195号（R-195-2007）

- (3) 京都市における光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質（C型共同研究 2007）：執筆者 吉井克英（京都市衛生公害研究所）

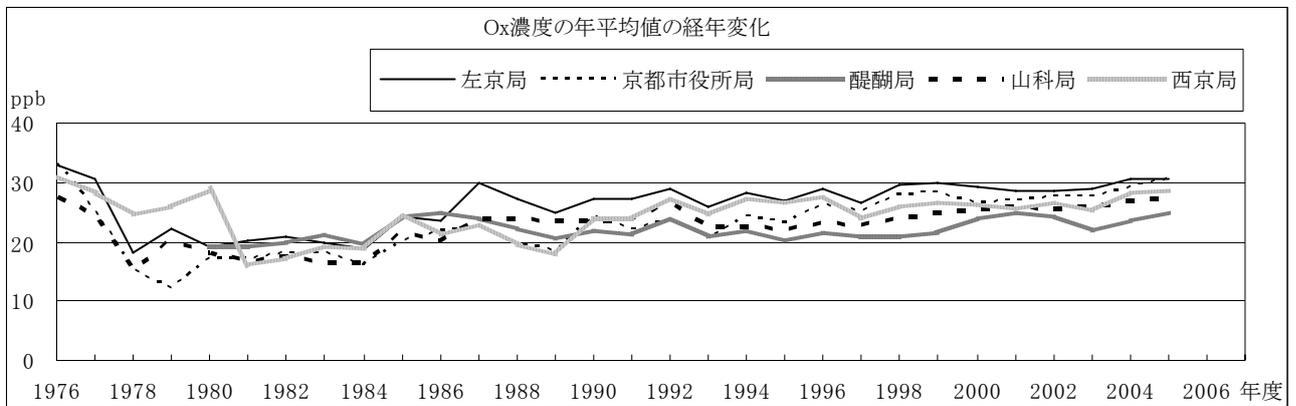


図1 Ox濃度の年平均値の経年変化

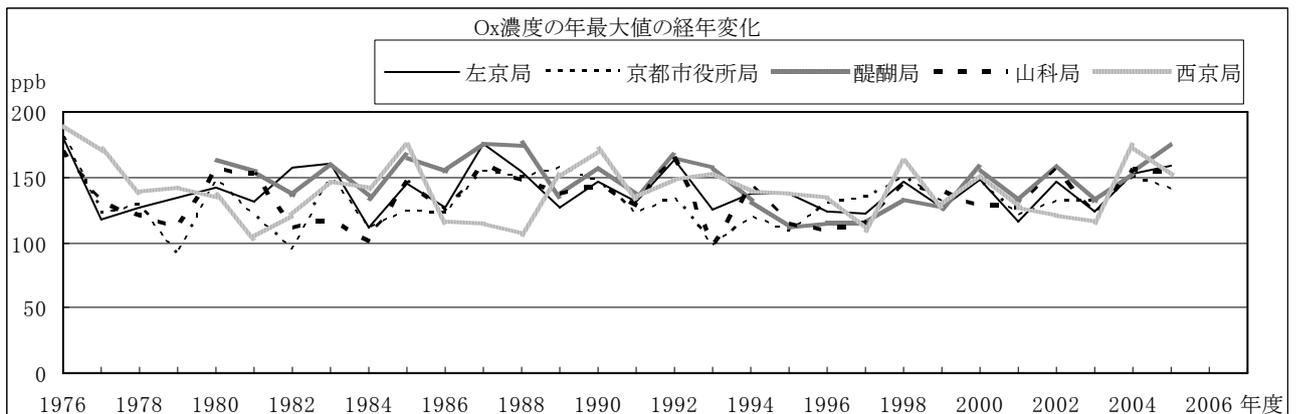


図2 Ox濃度の年最大値の経年変化

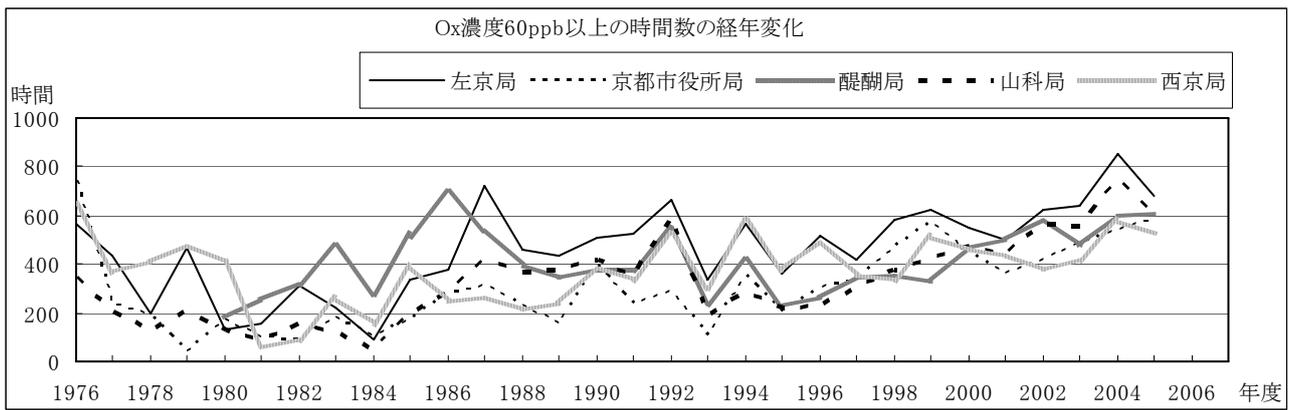


図3 Ox濃度60ppb以上の時間数の経年変化

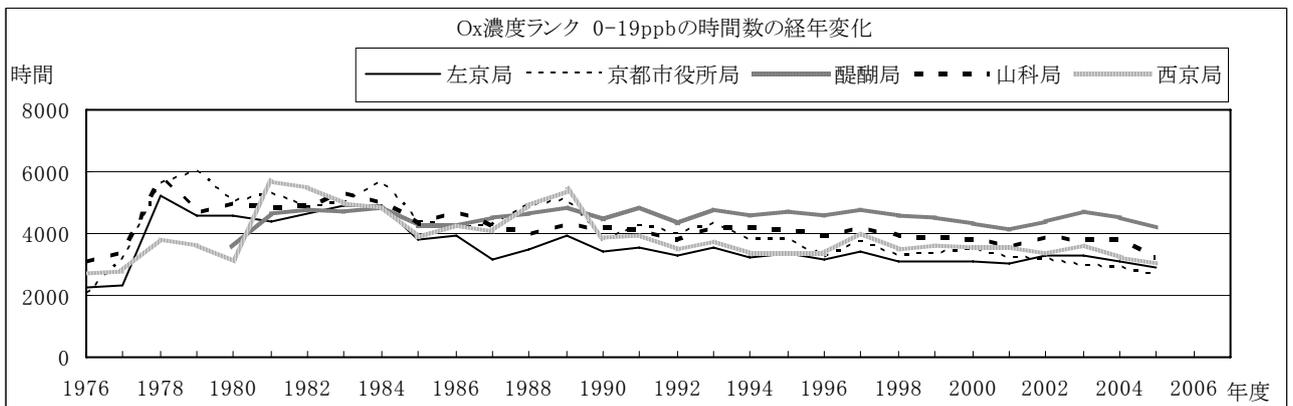


図4・a Ox濃度ランク0-19ppbの時間数の経年変化

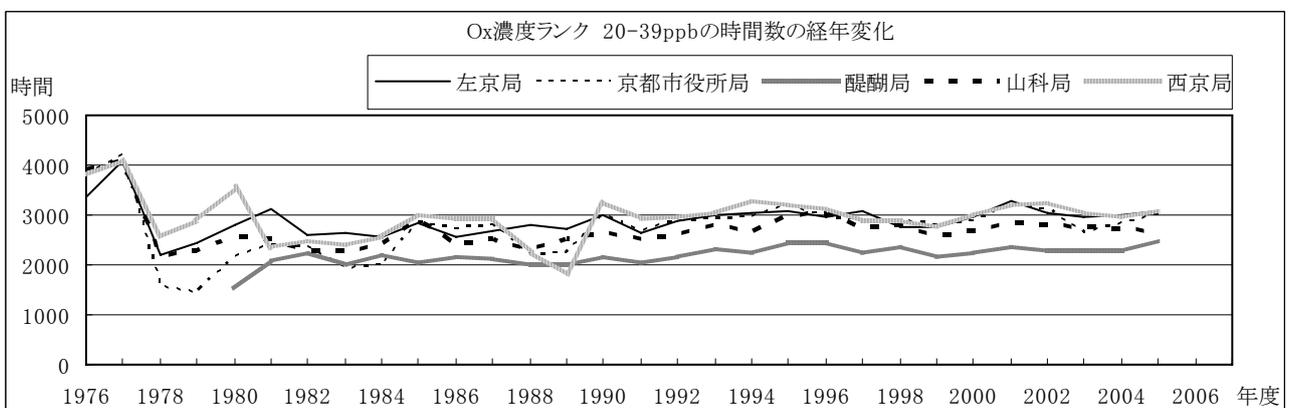


図4・b Ox濃度ランク20-39ppbの時間数の経年変化

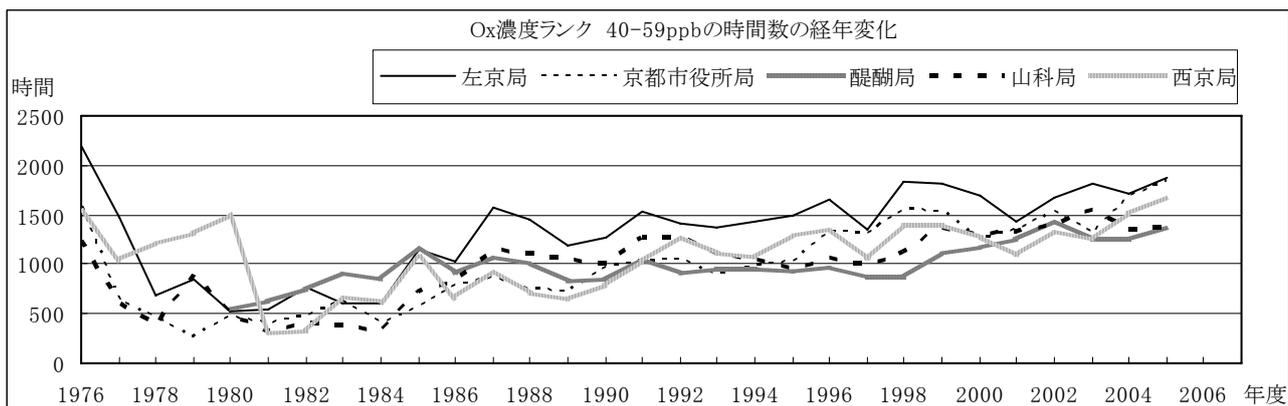


図4・c Ox濃度ランク40-59ppbの時間数の経年変化

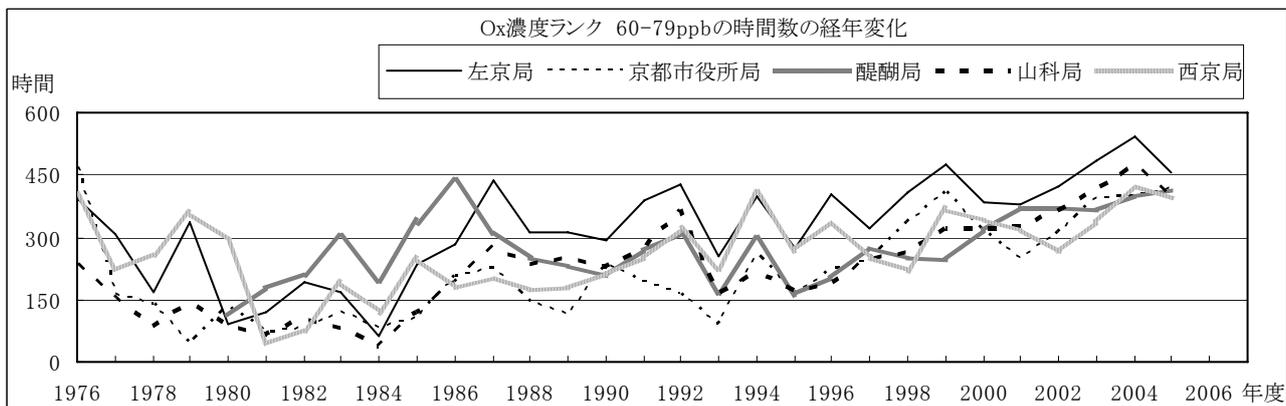


図4・d Ox濃度ランク60-79ppbの時間数の経年変化

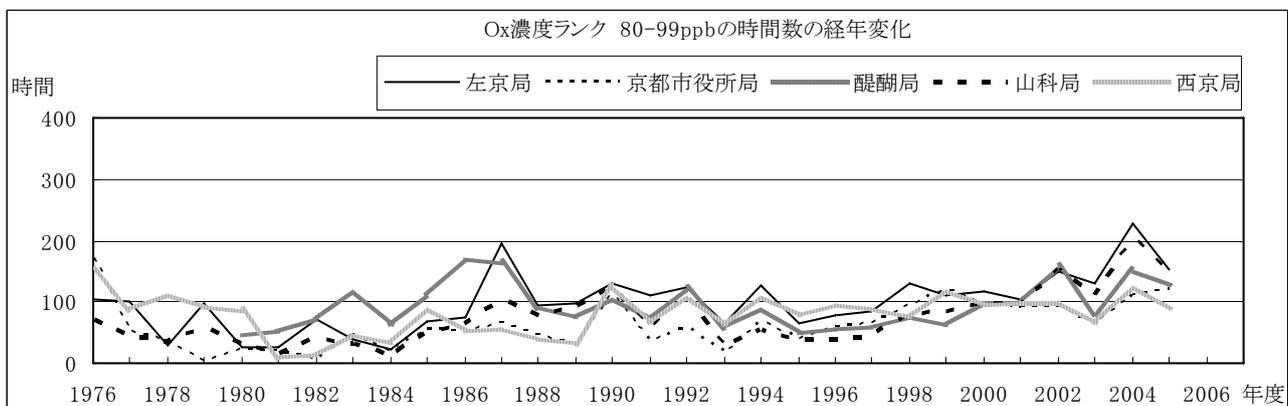


図4・e Ox濃度ランク80-99ppbの時間数の経年変化

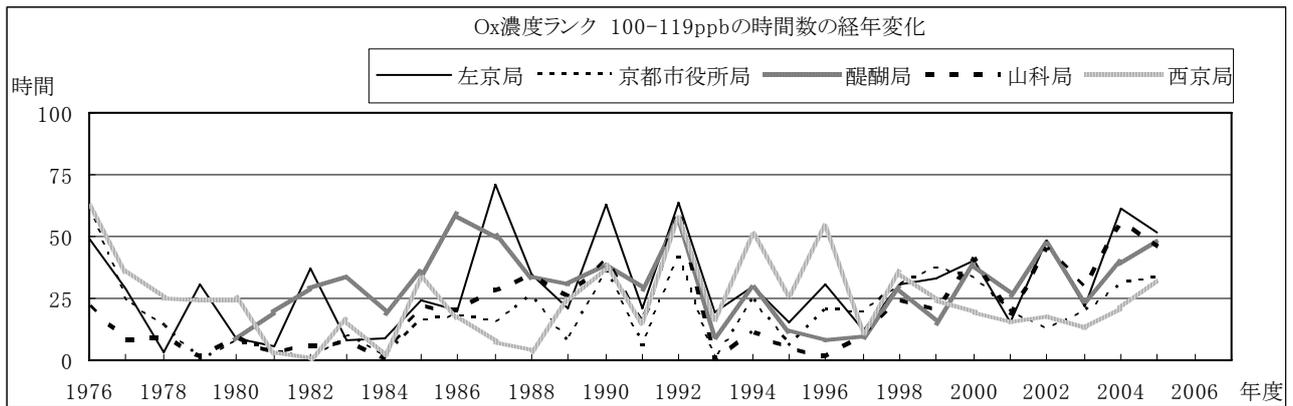


図4・f Ox濃度ランク 100-119ppb の時間数の経年変化

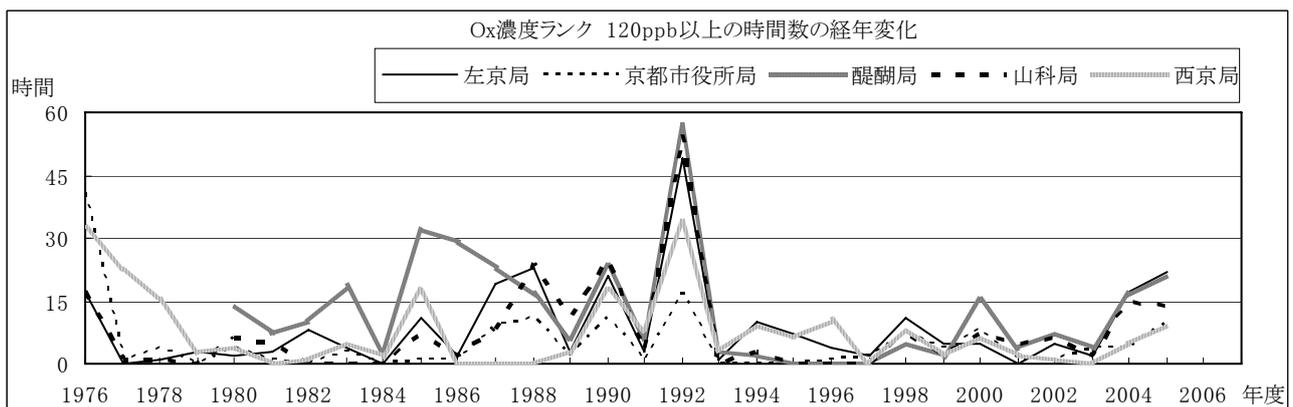


図4・g Ox濃度ランク 120ppb 以上の時間数の経年変化

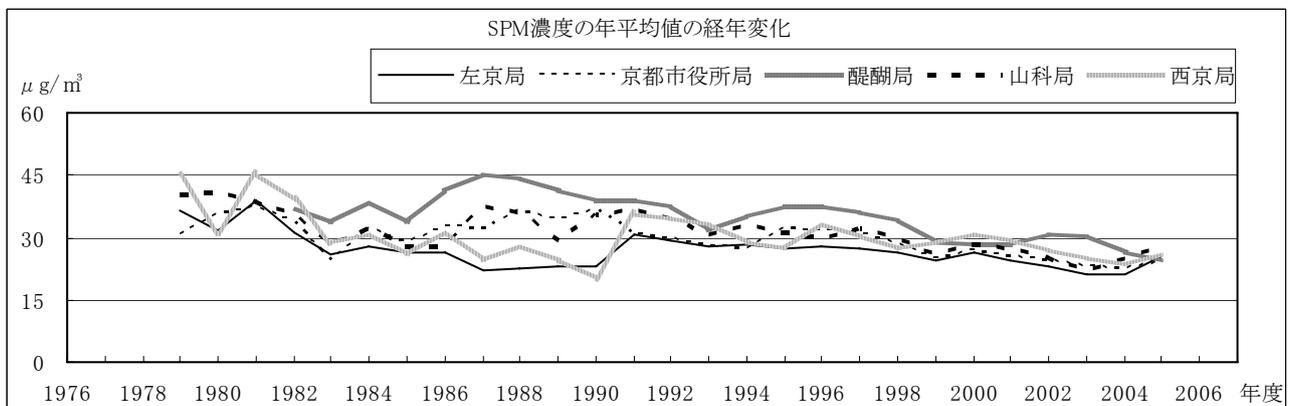


図5 SPM濃度の年平均値の経年変化

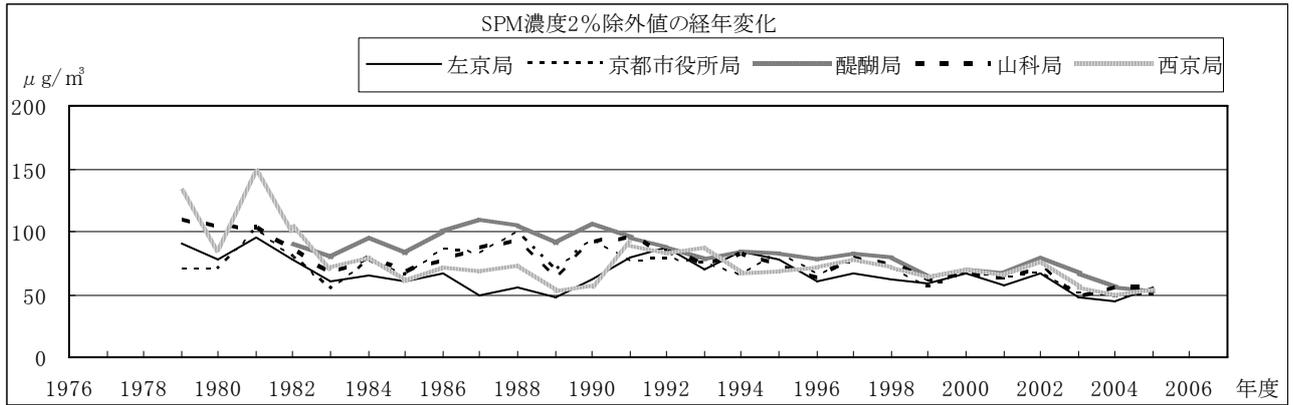


図6 SPM 濃度 2%除外値の経年変化

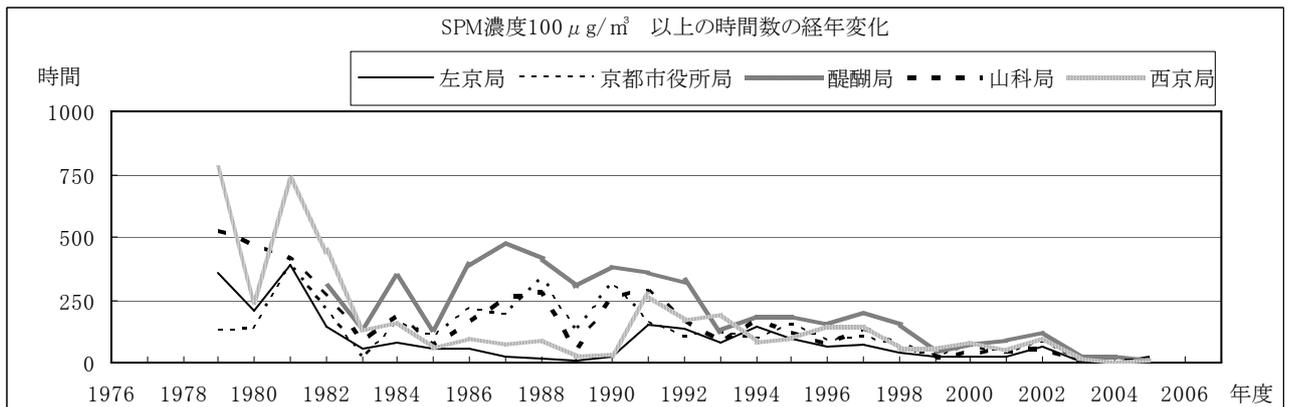


図7 SPM 濃度 100 μg/m³ 以上の時間数の経年変化

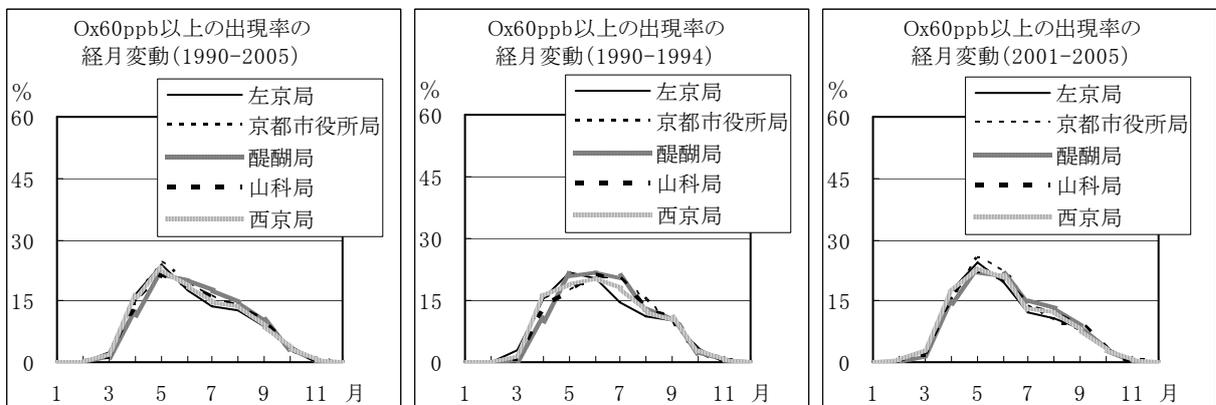


図8 Ox 濃度 60ppb 以上の出現率の経月変動

(左から, 図8・a 1990年以降, 図8・b 1990年代初頭, 図8・c 最近5年間)

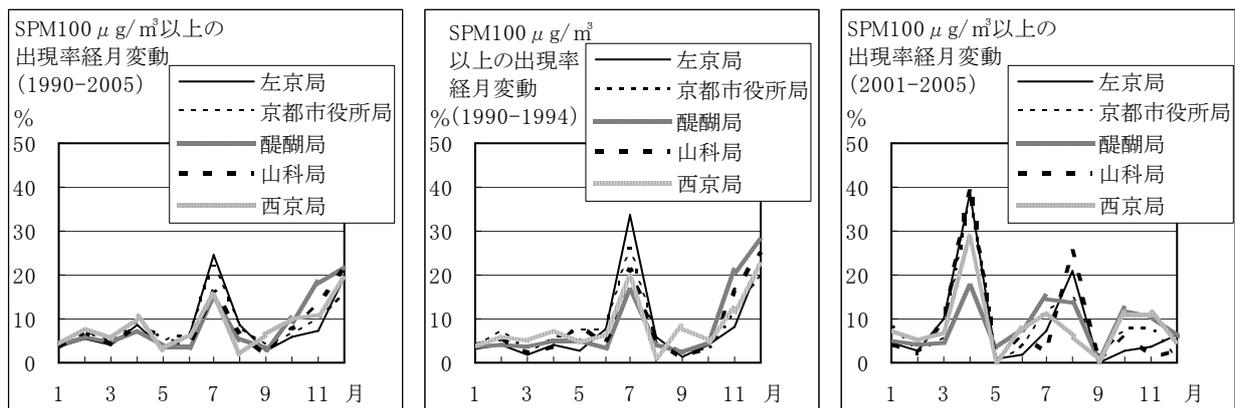


図9 SPM濃度  $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$  以上の出現率の経月変動  
 (左から, 図9・a 1990年以降, 図9・b 1990年代初頭, 図9・c 最近5年間)

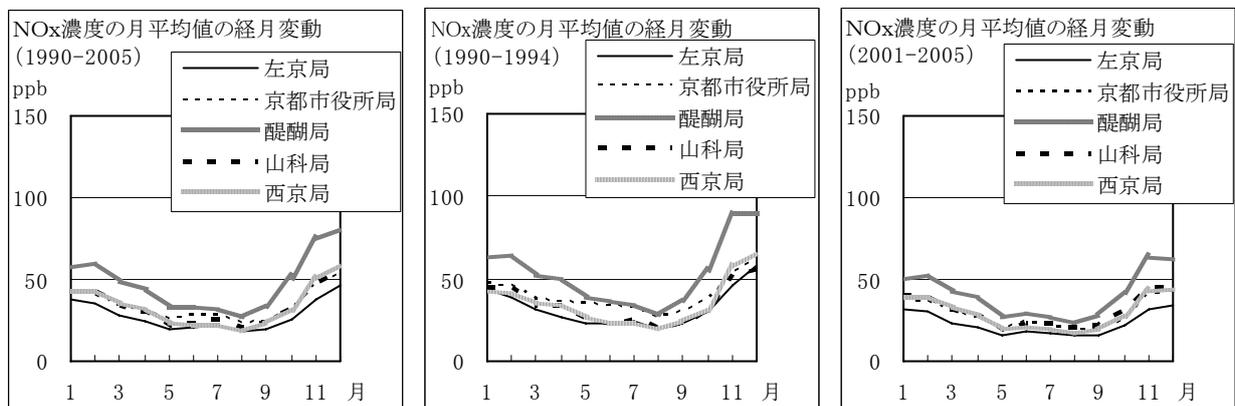


図10 NOx濃度の月平均値の経月変動  
 (左から, 図10・a 1990年以降, 図10・b 1990年代初頭, 図10・c 最近5年間)

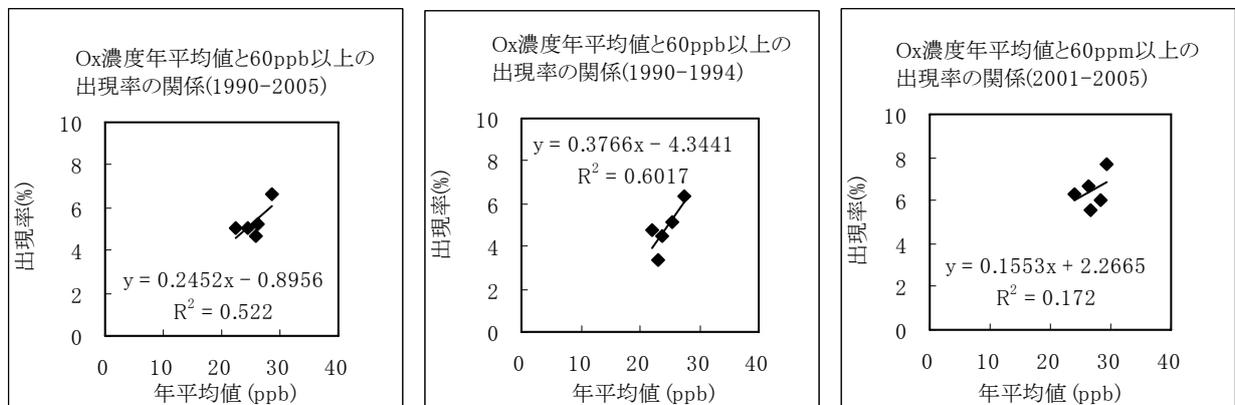


図11 NOx濃度年平均値と60ppb以上の出現率との関係  
 (左から, 図11・a 1990年以降, 図11・b 1990年代初頭, 図11・c 最近5年間)

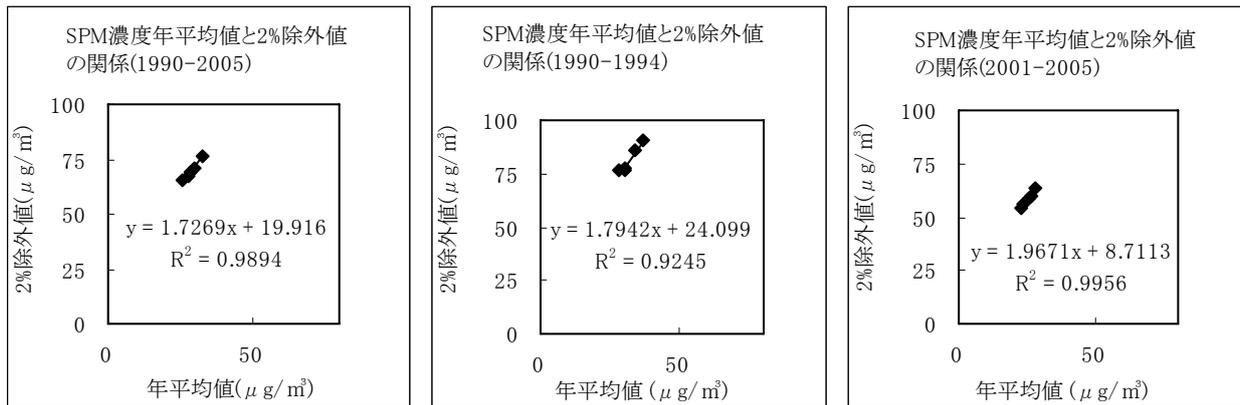


図 1 2 SPM 濃度年平均値と 2%除外値との関係

(左から, 図 1 2 ・ a 1990 年以降 , 図 1 2 ・ b 1990 年代初頭 , 図 1 2 ・ c 最近 5 年間)

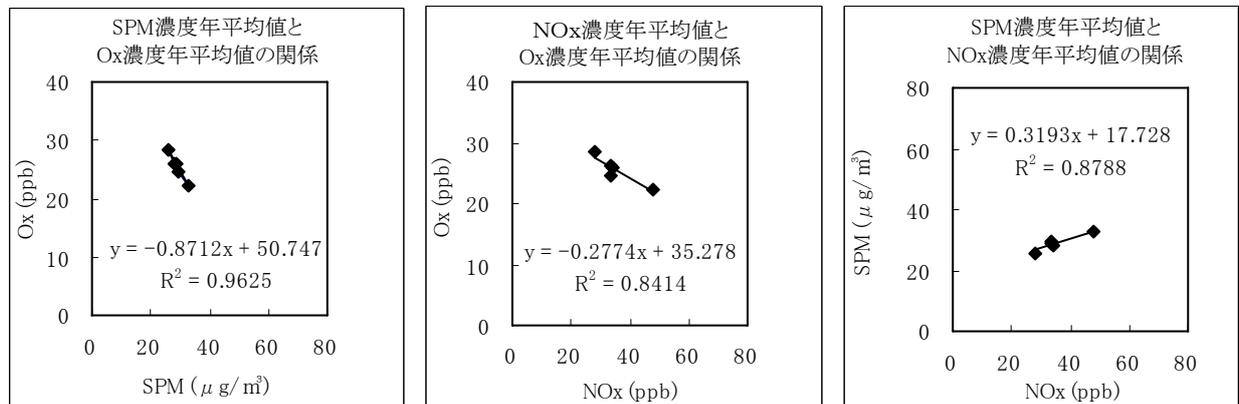


図 1 3 複数の物質間の相関関係

(左から, 図 1 3 ・ a SPM と Ox , 図 1 3 ・ b NOx と Ox , 図 1 3 ・ c SPM と NOx)