

京都市における光化学オキシダント及びポテンシャルオゾン濃度

吉井克英*, 小森光彦*, 木越俊雄*

Level of Photochemical oxidant and Potential ozone in Kyoto city.

Katsuhide YOSHII, Mitsuhiko KOMORI, Toshio KIGOSHI

Abstract

In these years the following condition of air pollution can be seen in Kyoto city. Sulphur dioxide (SO₂) and nitrogen oxide (NO_x) decrease year by year, but photo chemical oxide (O_x) tends to increase. Though measures to decrease NO_x which is causative agent of O_x advance, high level of O_x can be seen. They expect the advection from the Asian continent and changes of climatic conditions are responsible for it, but for further understanding elucidation of pollution characteristics are demanded.

By the way, as ozone which is a main ingredient of O_x is disintegrated easily by reaction with the NO, when they elucidate behavior of O_x in the city area and compare O_x level among the spots where the emission of NO_x are greatly different, they had better examine potential ozone (PO) with O_x at the same time.

Therefore in order to elucidate pollution characteristics and behavior of O_x, we studied changes of O_x and PO level.

Key Words

air pollution 大気汚染, photochemical oxidant (O_x) 光化学オキシダント, advection from Asian continent アジア大陸からの移流, pollution characteristics 汚染特性, potential ozone(PO) ポテンシャルオゾン

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、南ないし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⁽¹⁾。

大気汚染の状況を見ると、二酸化硫黄（以下、「SO₂」という。）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」という。）全局において環境基準を達成している。二酸化窒素（以下、「NO₂」という。）、非メタン炭化水素（以下、「NMHC」という。）、浮遊粒子状物質（以下、「SPM」という。）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にあるが、光化学オキシダント（以下、「O_x」という。）に関しては、増加傾向にある。

平成19年度の環境基準の達成状況については、NO₂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、O_xに関しては、一般大気局全10局で未達成であった⁽¹⁾。

また、全国的にもO_xの環境基準の達成状況は、0.1%と非常に低くなっている。

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

本市においても、近年、O_x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⁽²⁾。

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⁽²⁾。しかし、O_x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。

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独立行政法人国立環境研究所（以下、「国環研」という。）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、地域的な汚染の特徴を明らかにするとともに、O_xやポテンシャルオゾン（以下、「PO」という。）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、2年目である2008年度は、1年目（2007年度）に行ったO_x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

* 京都市衛生公害研究所 環境部門

数の経年変化及びO_x, SPM及びNO_xの月平均値経月変動に加え、POの年平均値の経年変化や月平均値経月変動及びO_xやPOの月平均値の経年変化について、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、以上5測定局を選定し、それらのデータを利用した。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) 国環研が開発した「大気時間値集計・解析プログラム」を利用し、「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2006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」を活用して、中間ファイルを作成した。
- (4) 中間ファイルを元に、「大気時間値集計・解析プログラム」を活用して、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。
- (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、国環研作成の「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) O_x濃度年平均値の経年変化⁽³⁾

ア O_x濃度年平均値の経年変化

解析期間*において、1976年度が年平均値の極大ピークにあった。1976～1978年度頃にかけては、減少傾向にあり、1981年度を底に、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、微増減はあったが、醍醐以外の4局は、明確な増加傾向にあった。しかし、醍醐に関しては、1985～1998年度頃にかけて、横ばいしないしは微減傾向にあり、その後は緩やかな増加傾向ないしは横ばいにあるという他局とは異なる傾向にあった。（図1）

イ 5局平均の変化率（傾き）

解析期間*における平均値の変化率（傾き）に関しては、京都市役所が0.37ppb/年と最も大きく、以下、左京0.26ppb/年、山科0.26ppb/年、西京0.14ppb/年で、最小は醍醐0.12ppb/年であった。各局間で変化率にばらつきはあるが、5局全てで、正の傾き（増加率）を示し、5局平均は、0.23ppb/年であった。

(2) PO濃度年平均値の経年変化

ア POで評価する意義⁽⁴⁾

O_x汚染の解析はオゾン（以下、「O₃」という。）濃度を指

標として進められることが多いが、O₃は、一酸化窒素（以下、「NO」いう。）により容易に分解されるため、その濃度変動が生成によるものか、NOによる分解によるものかを判断することが困難である。そこで、O₃のNOによる分解を補正したPOを指標として用いることでO_x汚染特性の解明を行う。また、特に、都市域でのO_x挙動解明や窒素酸化物（以下、「NO_x」いう。）の排出量が大きく異なる地点間でO_x濃度を比較する際には、POの検討をした方が良いと考えられている。

$$[PO] = [O_x] + [NO_2] - \alpha [NO_x]$$

（ α は、通常0.1と規定することが多い。なお、POの概念上、PO濃度は、O_x濃度より大きい数値をとることになるが、何らかの要因で $[NO_2] < 0.1 [NO_x]$ となると、 $[PO] < [O_x]$ となることがある。この時、O_x濃度が低ければPO濃度がマイナス値を取るようになるので、 α に関しては、今後の検討課題である。）

イ PO濃度年平均値の経年変化⁽³⁾

PO濃度として、一次排出されたNO₂を考慮しない場合（ $\alpha = 0$ ）をP01とし、一次排出されたNO₂を総NO_x排出の1割（ $\alpha = 0.1$ ）と仮定した場合をP02として評価した。年平均値から算出したP01濃度年平均値の経年変化を図2-1に、年平均値から算出したP02濃度年平均値の経年変化を図2-2に示した。

経年変化をみると、P01及びP02ともに同様の傾向にあった。全体の傾向としては、1976年度に極大ピークがあり、その後は、1984年度頃まで減少傾向にあって、1984年度を底に1987年度まで増加傾向にあった。1987～1989年度までは減少傾向にあったが、その後は、1992年度にかけて緩やかな増加傾向にあり、それ以降は、2006年度にかけてほぼ横ばいで推移していた。

また、局間のばらつきをみると、1992年度以降は、非常に小さくなっていった。但し、局毎に傾向をみると、醍醐は他の4局とは異なり、解析期間*において、経年的にはほぼ横ばいで推移しており、2001年度以降は緩やかな減少傾向にあった。（図2-1、2）

ウ PO濃度とO_x濃度年平均値経年変化の比較⁽³⁾

O_x濃度年平均値の経年変化と比較すると、1984年度以降においては、O_x濃度年平均値は明確な増加傾向にあったが、PO濃度年平均値はほぼ横ばいで推移していたことで傾向に違いが認められた。平均値の傾きから評価しても、2000～2006年度におけるO_x濃度年平均値の傾きは0.43ppb/年と正の傾きであったが、P01では-0.22ppb/年、P02では-0.05ppb/年と双方ともに負の傾きとなり、近年のO_x濃度の上昇傾向をいずれも再現しない結果となった。また、1992

年度以降、P0濃度で評価した場合は、局間のばらつきが非常に小さくなっていたが、0x濃度で評価するとそのような傾向はみられなかった。

(3) 0x濃度月平均値の経年変化⁽³⁾

ア 0x濃度月平均値の経年変化

0x濃度月平均値の経年変化をみると、概ね各月とも、0x濃度年平均値の経年変化と同様の傾向がみられた。即ち、1976～1981年度頃にかけて、減少傾向にあり、1981年度頃を底に1984年度頃までは横ばい、それ以降は増加傾向にあった。但し、月毎にみていくと、4～6月においては、1981年度頃を底にそれ以降は顕著な増加傾向にあった。各月とも増加傾向にある1984年度以降の期間において、4～6月、8、9月の増加傾向は、10～3月に比べて大きかった。また、同期間の10～12月においては、ごく緩やかな増加傾向にあるものの、ほぼ横ばいに近い傾向であった。2004年度以降は、6月、8～11月は増加傾向にあり、特に6月の増加傾向が顕著であった。それに対し、12～5月、7月は横ばいないしは減少傾向にあり、特に7月の減少傾向が顕著なものであった。(図3-1～12)

イ 5局平均の変化率(傾き)

0x濃度月平均値の5局平均の変化率(傾き)をみると、1985～2006年度では、5月が最も大きく0.46ppb/年、次いで8、9月の0.34ppb/年であり、最小は11月の0.08ppb/年で、全ての月で増加傾向にあった。1990～2006年度では、5月が最も大きく0.55ppb/年、次いで6月の0.51ppb/年であり、最小は7月の0.03ppb/年で、全ての月で増加傾向にあった。1995～2006年度では、6月が1.13ppb/年と極めて大きく、次いで5月の0.69ppb/年であり、最小は11月の0.05ppb/年で、全ての月で増加傾向にあった。2000～2006年度では、6月が1.56ppb/年と極めて大きく、次いで8月の0.91ppb/年であり、1995年度以降の近年において急激な高濃度化が認められる月もあったが、逆に1月は-0.51ppb/年と大きな減少率となった。1月以外にも7月の-0.30ppb/年、3月の-0.04ppb/年と明確な減少傾向が認められる月がごく近年では出現した。

通年的にみると、4～6月の春～初夏にかけての0x濃度の高濃度化が明確であり、特に5、6月の増加率が最大となる場合が多かった。また、ごく近年では、明確な増加傾向を示す月(主に6、8～10月)と明確な減少傾向を示す月(主に1、7月)に2極化されつつある。

(4) P0濃度月平均値の経年変化⁽³⁾

ア 一次排出されたNO₂を総NO_x排出の1割($\alpha=0.1$)と仮定した場合のP0濃度をP0濃度の月平均値の経年変化として、今回は検討を行った。

イ P0濃度月平均値の経年変化

P0濃度の月平均値の経年変化をみると、概ね各月とも、1976年度に極大ピークがあり、それ以降は1984年度頃まで減少傾向にあった。1984年度頃を底に1986年度頃にかけて増加傾向にあり、その後はほぼ横ばいであった。また、局間のばらつきも小さく、1992年度以降は、特にばらつきが小さくなっていた。ただし、月毎にみていくと、6月は1995年度以降、増加傾向にあり、また、8月も2002年度以降は増加傾向にあった。逆に4、7月は2004年度以降明確な減少傾向にあり、月毎の近年の傾向は、0x濃度月平均値の経年変化の結果を再現していた。(図4-1～12)

ウ 5局平均の変化率(傾き)

P0濃度月平均値の5局平均の変化率(傾き)をみると、1985～2006年度では、2、8月が最も大きく0.31ppb/年であった。1990～2006年度では、6月が最も大きく0.41ppb/年、次いで8月で0.27ppb/年であった。1995～2006年度では、6月が1.06ppb/年と極めて大きく、次いで5月で0.39ppb/年であった。2000～2006年度では、6月が最も大きく0.93ppb/年、次いで8月で0.81ppb/年であった。年間を通してみると、5、6、8、9月にP0濃度の増加傾向が認められ、特に6月の増加傾向が顕著であった。

また、近年では、月別のP0濃度の変化率と月別の0x濃度の変化率との間に同様の傾向が認められた。例えば、2000～2006年度において、P0濃度の変化率は、6月に0.93ppb/年、8月に0.81ppb/年と極めて大きな増加率であったのに対し、7月は-0.53ppb/年と極めて大きな減少率であった。それと同様に0x濃度においても同期間の変化率は、6月に1.56ppb/年、8月に0.91ppb/年と極めて大きな増加率であったのに対し、7月は-0.30ppb/年の減少率であった。

(5) 0x濃度月平均値の経月変動⁽³⁾

ア 1990年度以降*

0x濃度月平均値の経月変動をみると、1990年度以降では、経月変動パターンが、4～6月の春～初夏に大きなピーク、7～9月の夏に小さなピークがある2山型であり、いわゆる「春+夏」型の経月変動パターンと示唆できた。局毎の傾向をみても、春に大きなピーク、そして夏に小さなピークがあり、「春+夏」型の経月変動パターンであったが、醍醐は夏のピークが他局に比べ、崩れかけていた。また、通年的に、左京は他局と比べ、濃度が高く、逆に醍醐は低い傾向にあった。その他の3局においては、局間のばらつきがほとんどなかった。(図5・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0x濃度月平均値の経月変動パターンを比べると、明確な違いが認められた。最近5

年間では、1990年代初頭に比べ、通年的に高濃度となり、特に春のピークが大きくなり、明瞭になった。また、最近5年間では、2山型であるが、4～6月の春～初夏と7～10月の夏～秋にピークがある「春+夏+秋」型の経月変動パターンを示す局（左京、京都市役所）も出現した。（図5・b, c）

(6) PO濃度月平均値の経月変動⁽³⁾

ア 1990年以降**

PO濃度月平均値の経月変動をみると、1990年度以降では、4、5月の春にピークがある1山型であった。7～1月にかけでは、月毎の濃度の差は小さく、ほとんど変動はみられなかった。（図6・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PO濃度月平均値の経月変動では、違いが認められた。1990年代初頭では、4、5月の春にピークがある1山型の経月変動パターンであり、8月が最も低濃度となった。最近5年間では、4～6月の春～初夏にピークがある1山型の経月変動パターンであった。

また、Ox濃度月平均値の経月変動パターンと異なり、どの期間においても、7～9月の夏と11～1月の冬のPO濃度の差が小さかった。これは、冬期にNOxが高濃度になる影響と推察できた。（図6・b, c）

* 解析期間とは、1976～2006年度、醍醐局は1980～2006年度を指す。

** 1990年以降とは、1990～2006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、2002～2006年度の期間を指す。

4 まとめ

- (1) 年平均値の経年変化は、1980年代半ば以降、Ox濃度は明確な増加傾向にあったが、PO濃度は、ほぼ横ばいでの推移にあった。
- (2) 月平均値の経年変化は、Ox濃度、PO濃度共に各々の年平均値の経年変化の傾向を再現していた。月毎にみると、近年では、Ox濃度とPO濃度は同様の傾向にあり、共に6、8月で明確な増加傾向にあり、1、7月で明確な減少傾向にあった。
- (3) 月平均値の経月変動パターンは、Ox濃度は、「春+夏」型の2山型であり、PO濃度は、春にピークがある1山型であった。
- (4) 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PO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19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 2008）：執筆者 吉井克英（京都市衛生公害研究所）
- (4) ポテンシャルオゾン（PO）に関する応用解析：国立環境研究所・C型共同研究グループ（POグループ）

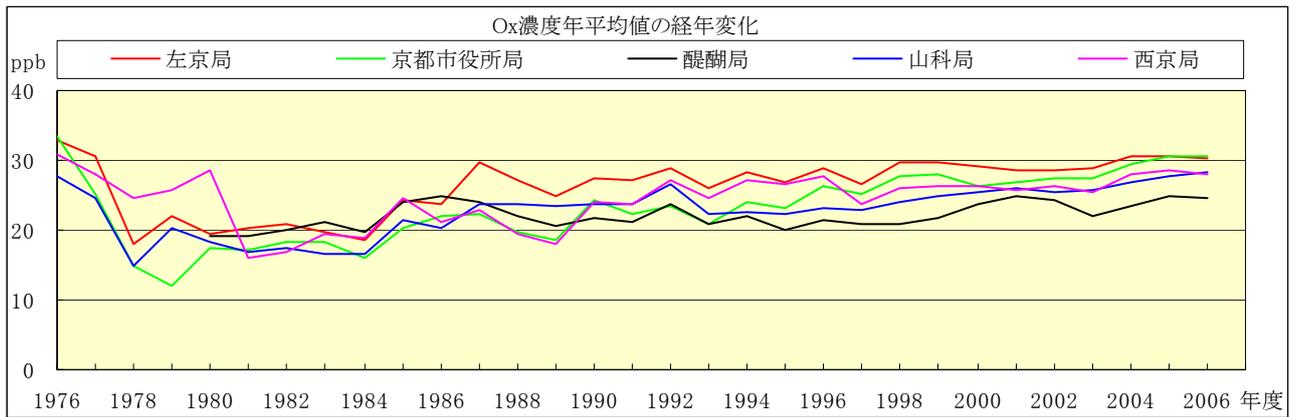


図1 Ox濃度年平均値の経年変化

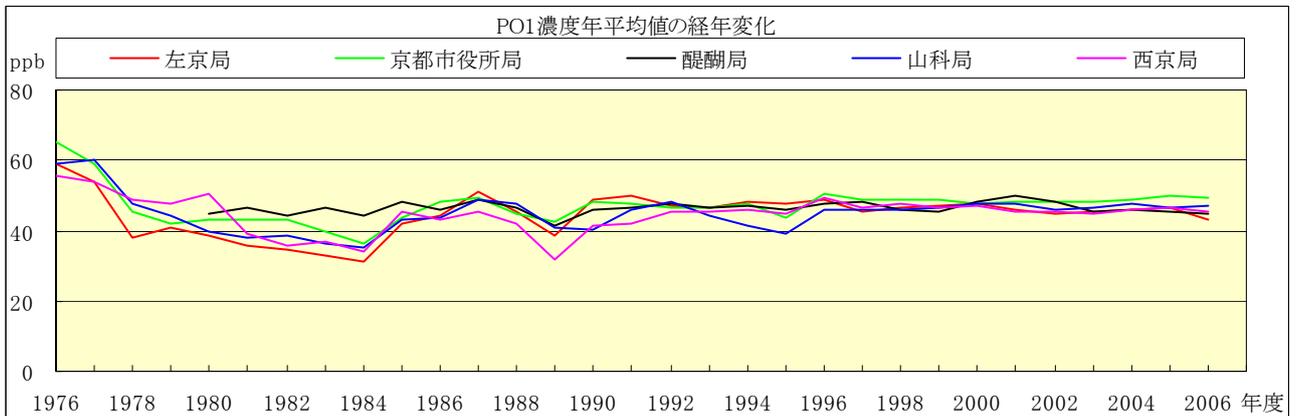


図2-1 PO1濃度年平均値の経年変化 (PO1=Ox+NO₂)

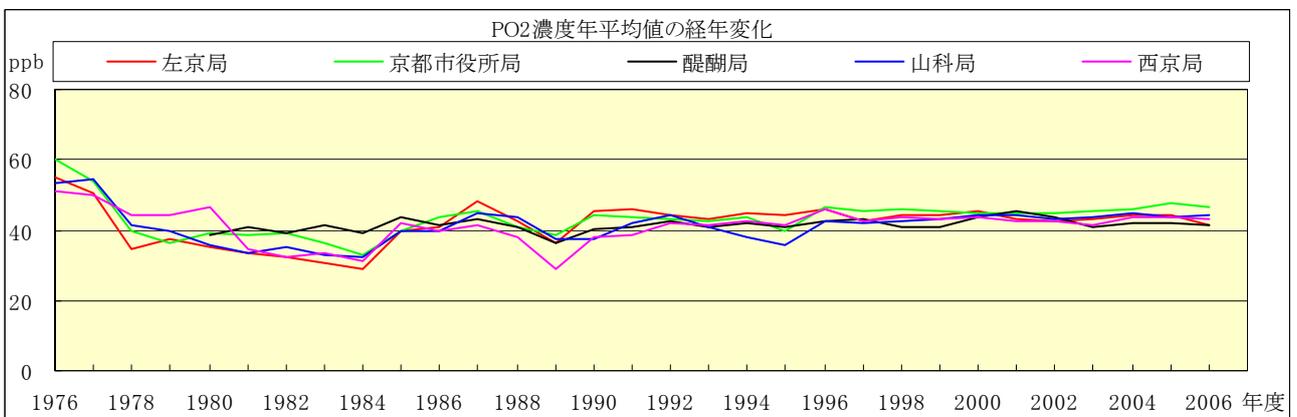


図2-2 PO2濃度年平均値の経年変化 (PO2=Ox+NO₂-0.1×NOx)

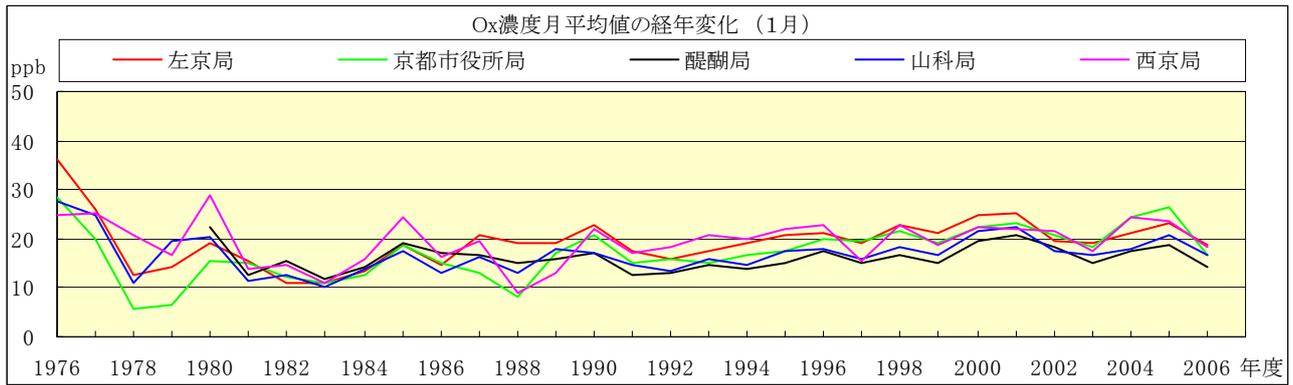


図3-1 Ox濃度月平均値の経年変化(1月)

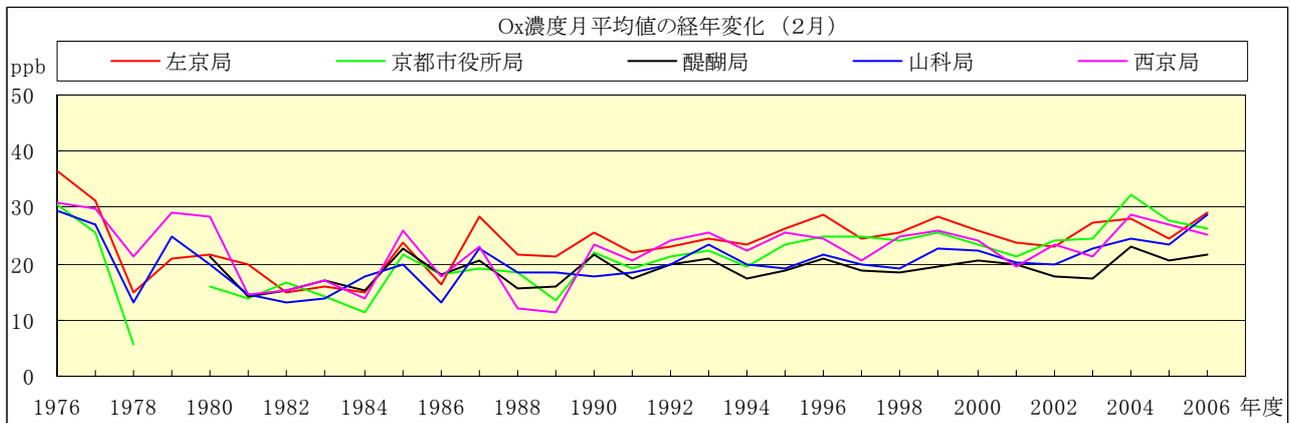


図3-2 Ox濃度月平均値の経年変化(2月)

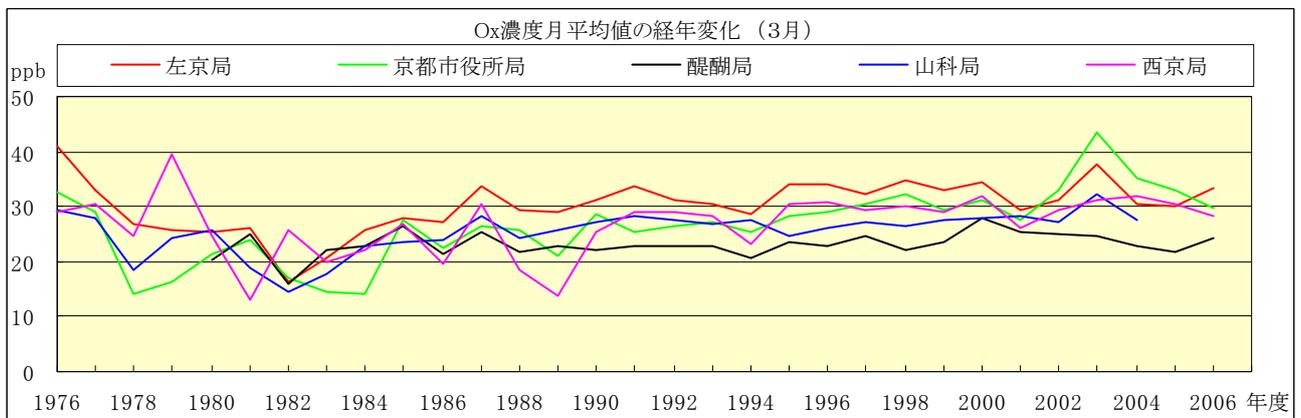


図3-3 Ox濃度月平均値の経年変化(3月)

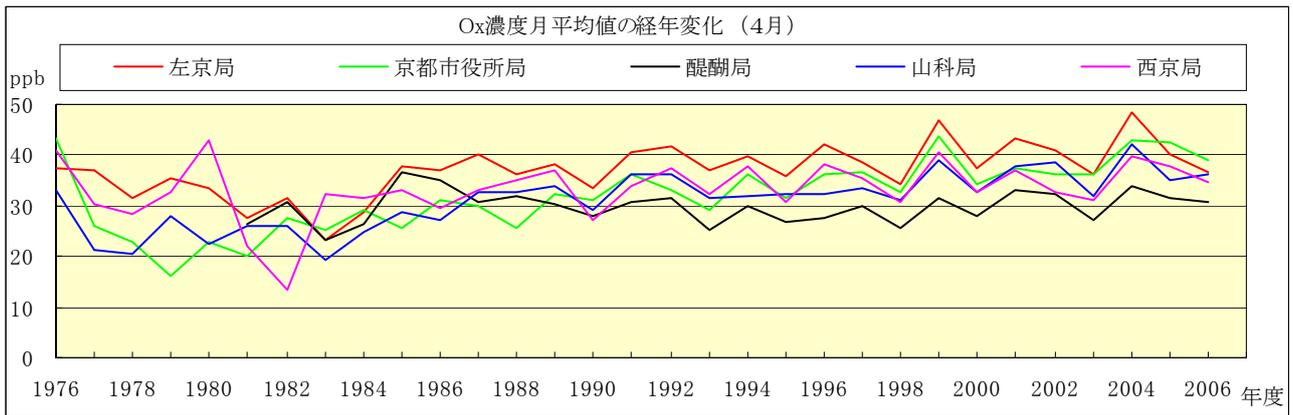


図3-4 Ox濃度月平均値の経年変化（4月）

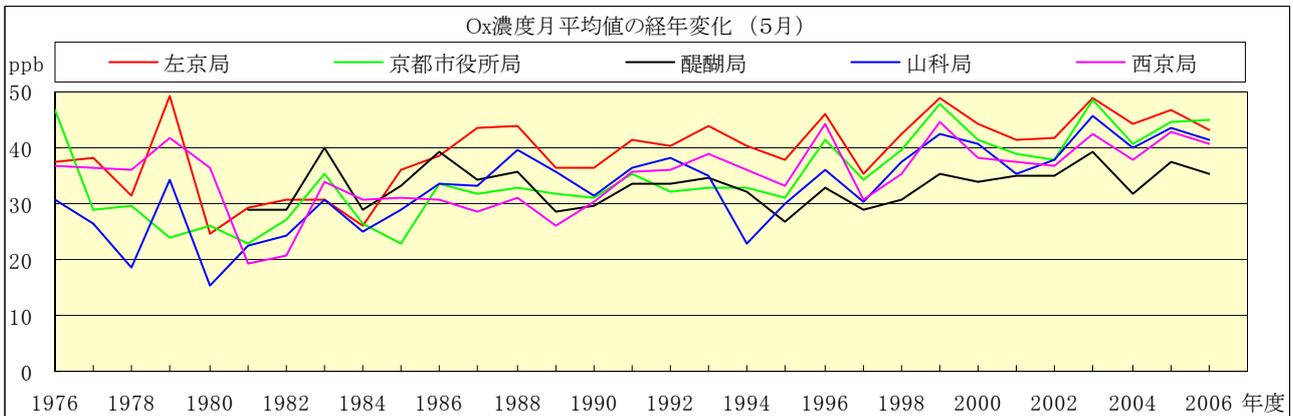


図3-5 Ox濃度月平均値の経年変化（5月）

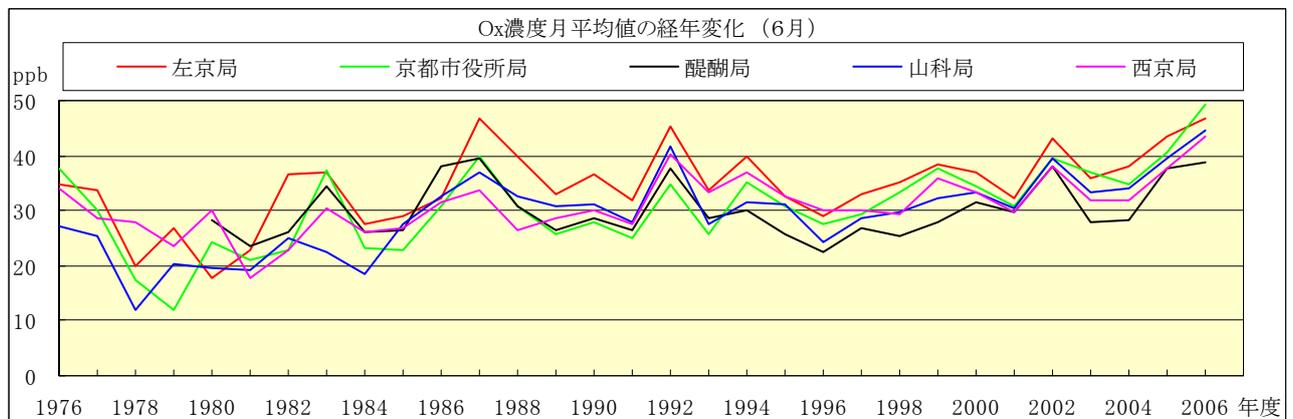


図3-6 Ox濃度月平均値の経年変化（6月）

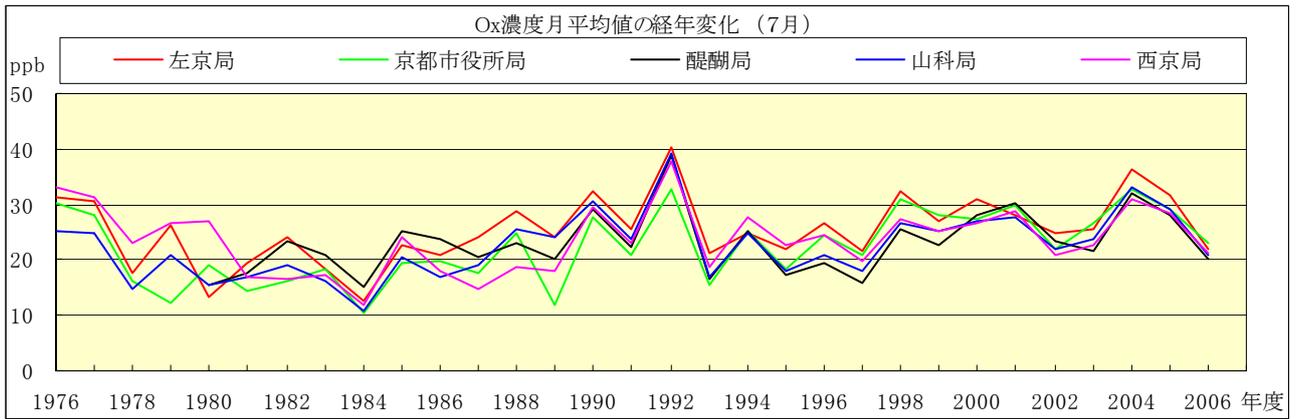


図3-7 Ox濃度月平均値の経年変化（7月）

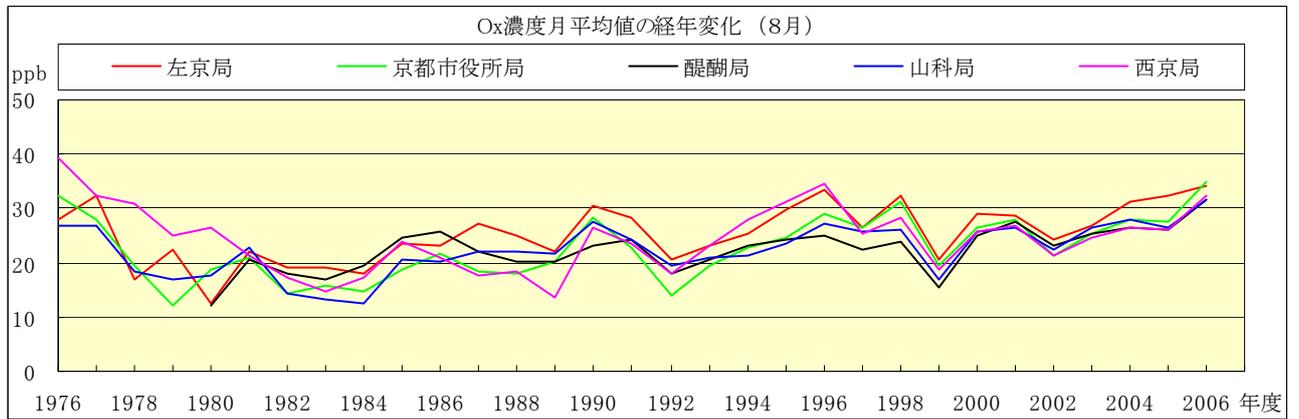


図3-8 Ox濃度月平均値の経年変化（8月）

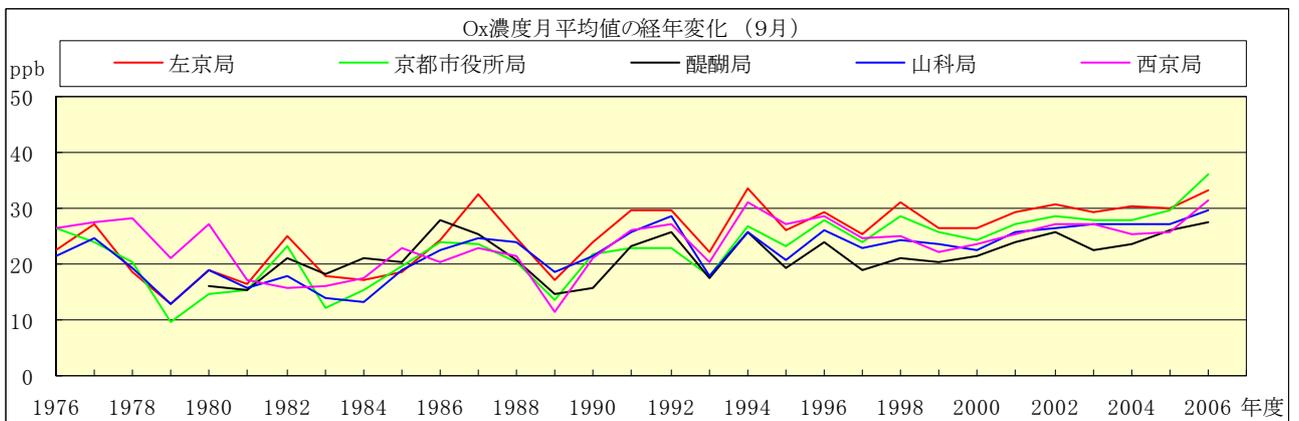


図3-9 Ox濃度月平均値の経年変化（9月）

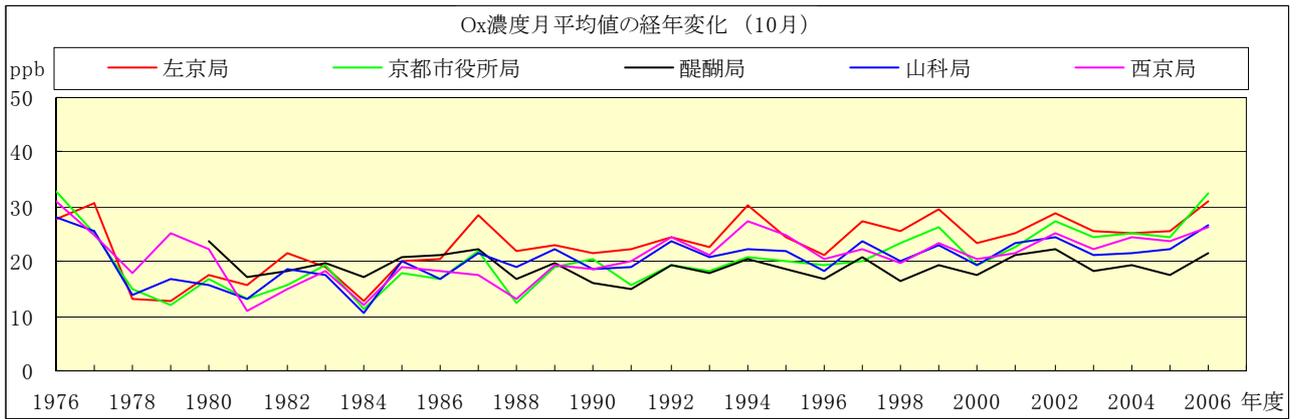


図3-10 Ox濃度月平均値の経年変化（10月）

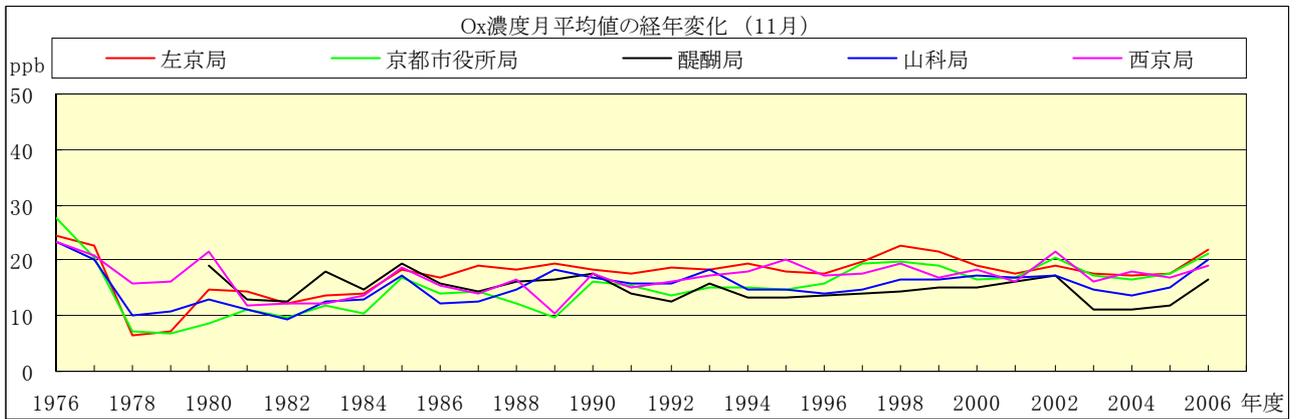


図3-11 Ox濃度月平均値の経年変化（11月）

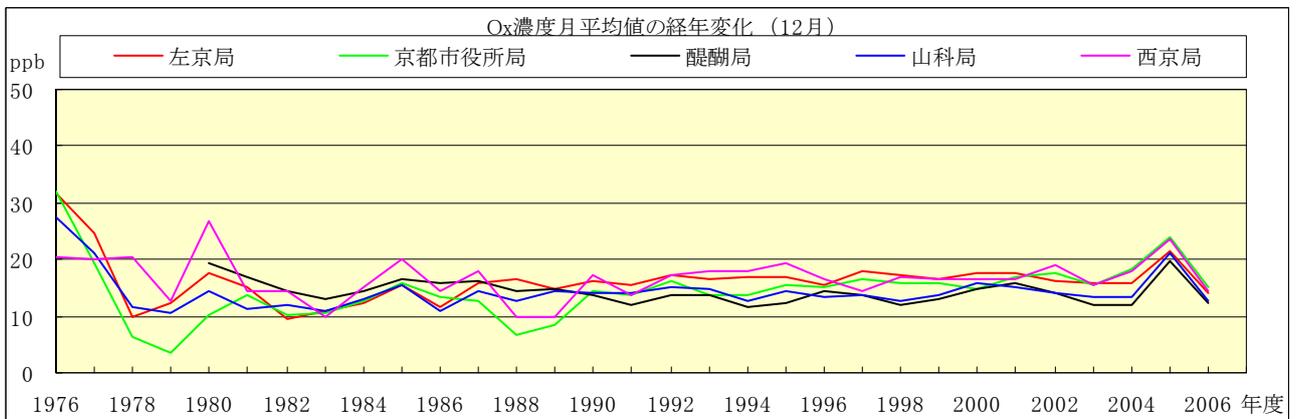


図3-12 Ox濃度月平均値の経年変化（12月）

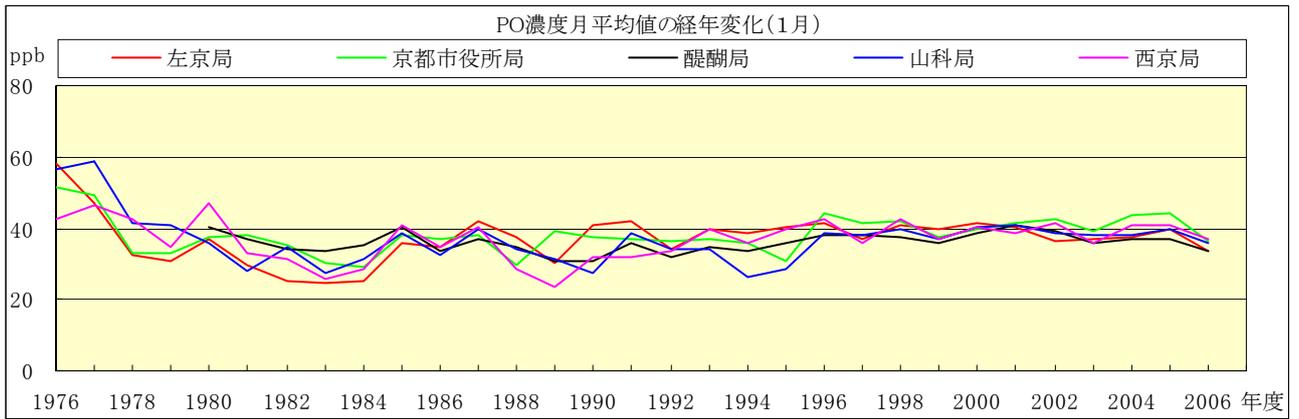


図4-1 PO濃度月平均値の経年変化(1月)

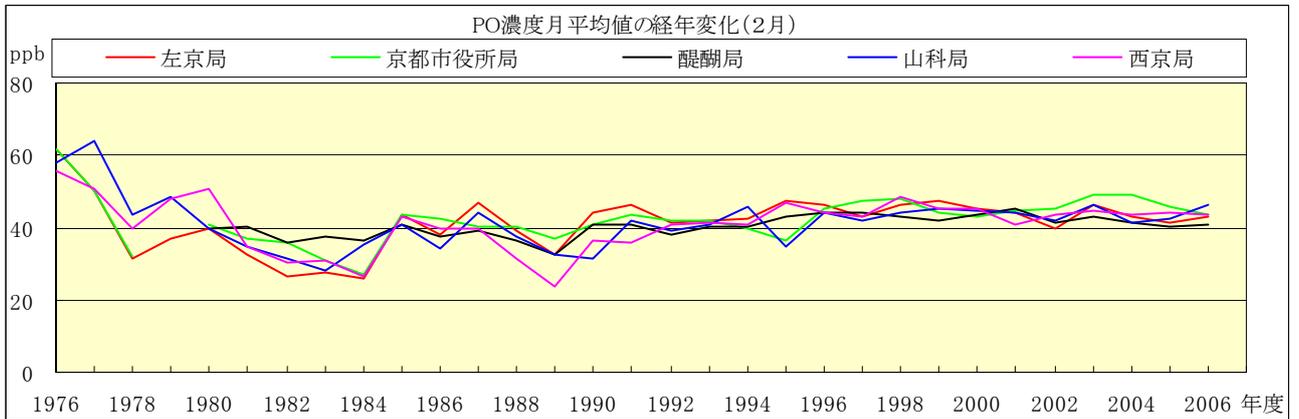


図4-2 PO濃度月平均値の経年変化(2月)

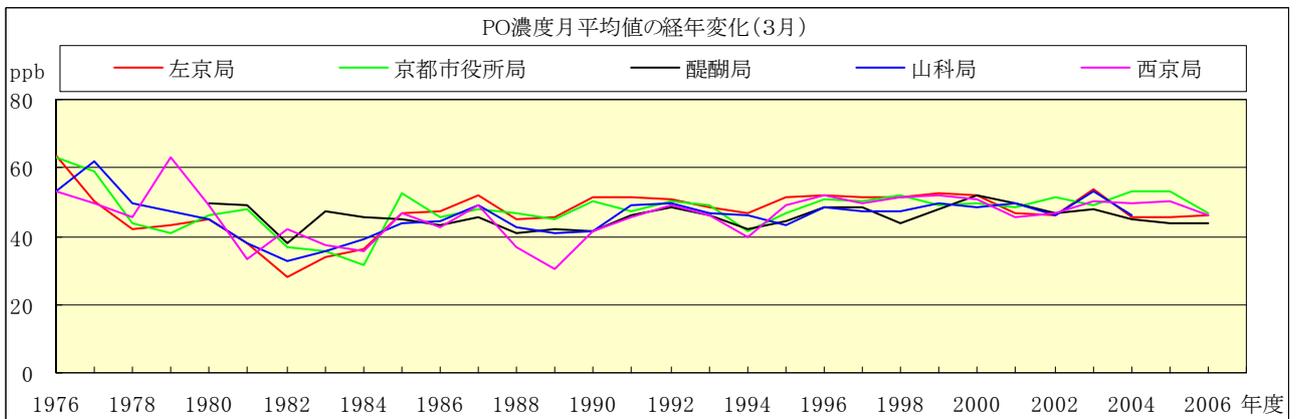


図4-3 PO濃度月平均値の経年変化(3月)

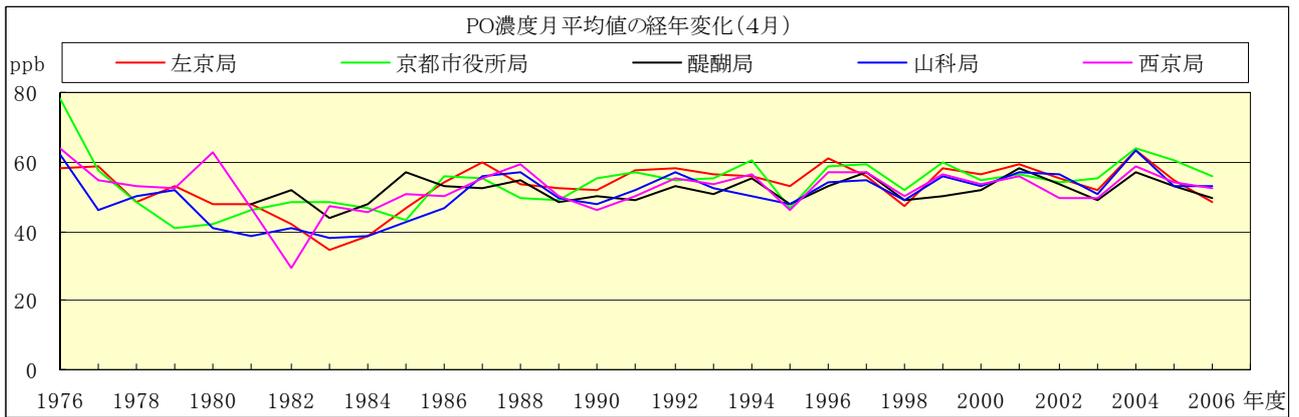


図4-4 PO濃度月平均値の経年変化(4月)

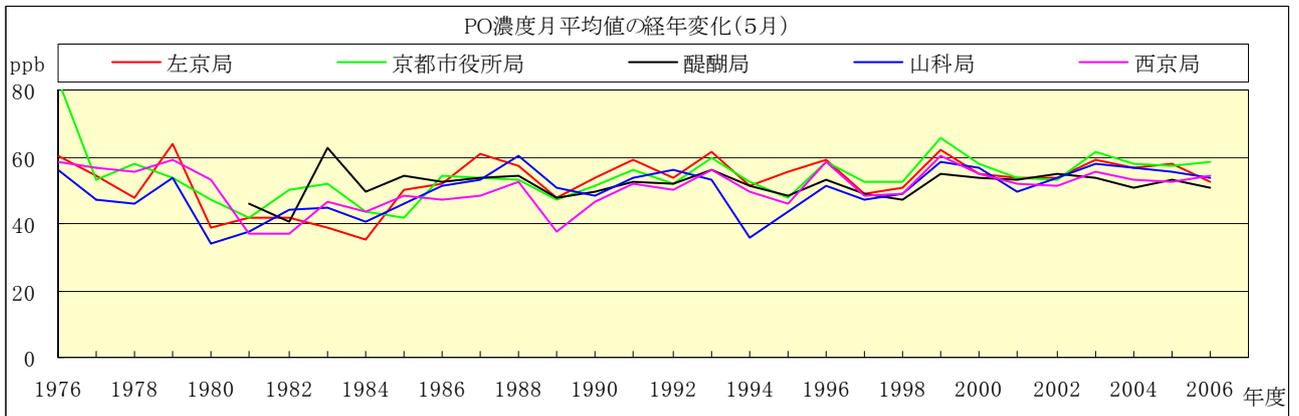


図4-5 PO濃度月平均値の経年変化(5月)

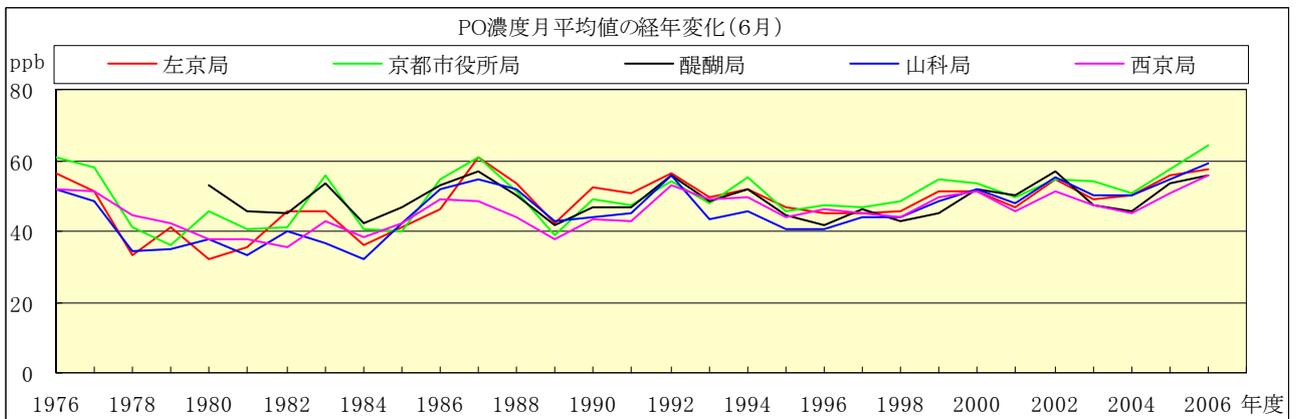


図4-6 PO濃度月平均値の経年変化(6月)

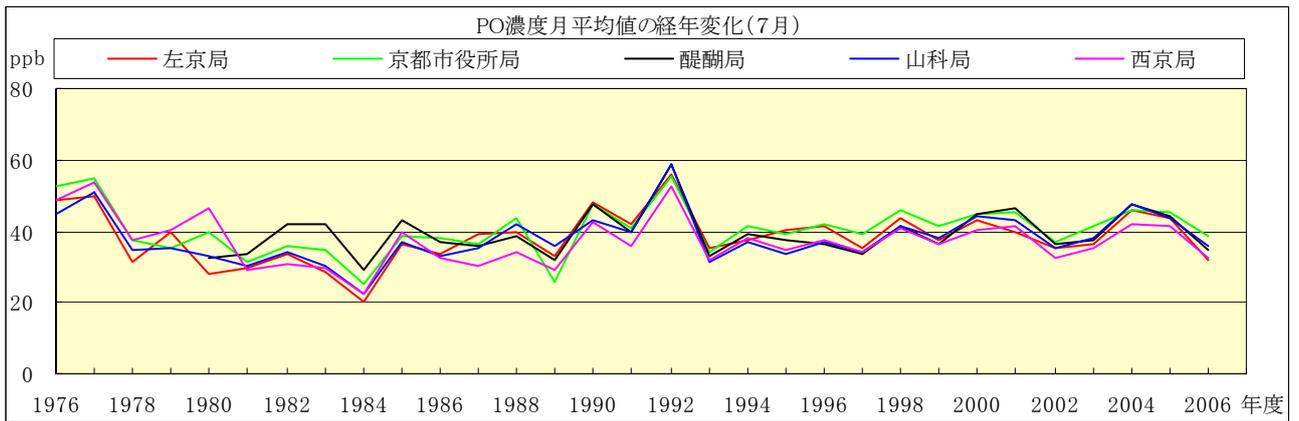


図4-7 PO濃度月平均値の経年変化(7月)

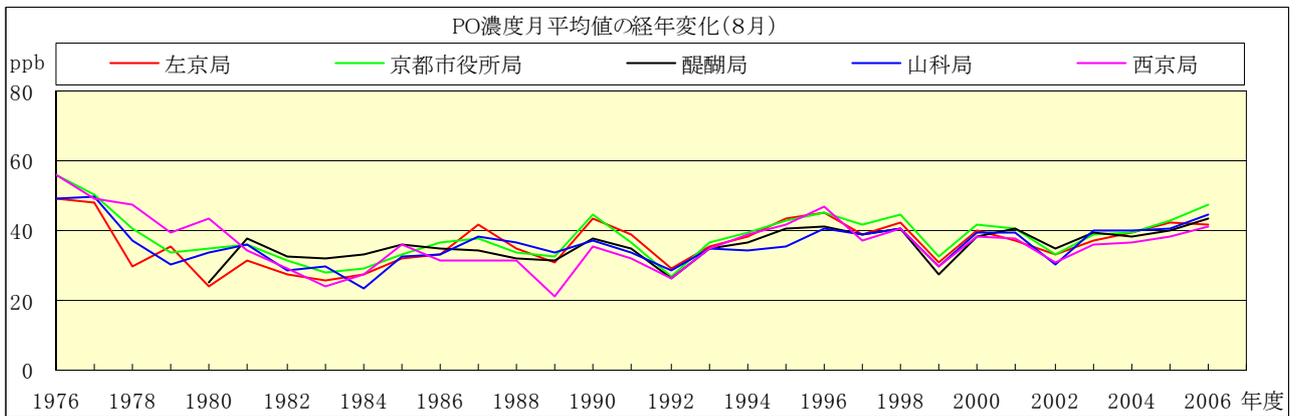


図4-8 PO濃度月平均値の経年変化(8月)

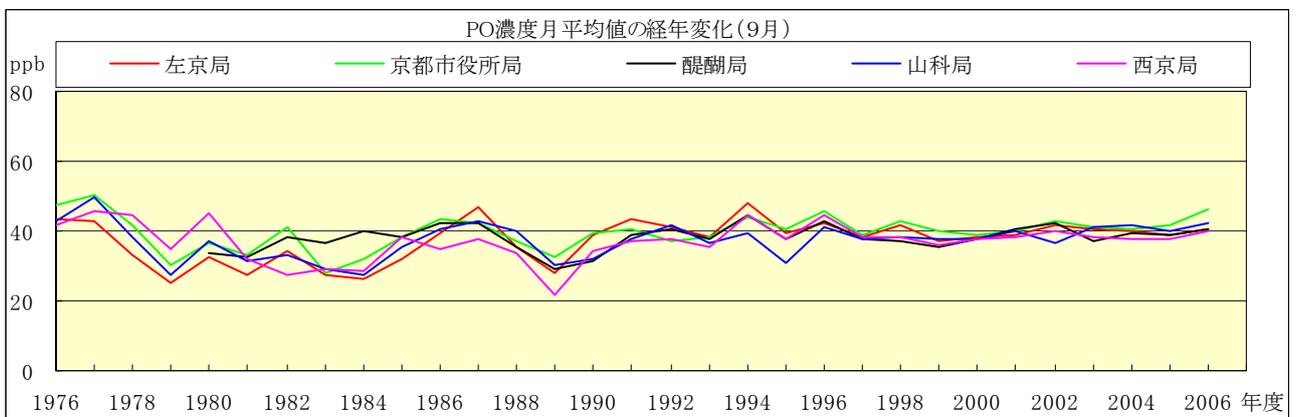


図4-9 PO濃度月平均値の経年変化(9月)

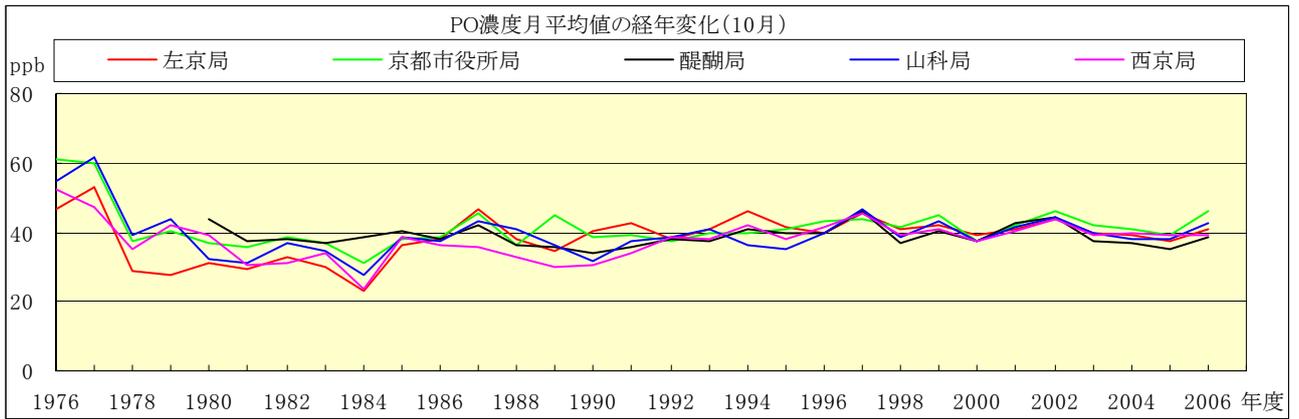


図4-10 PO濃度月平均値の経年変化(10月)

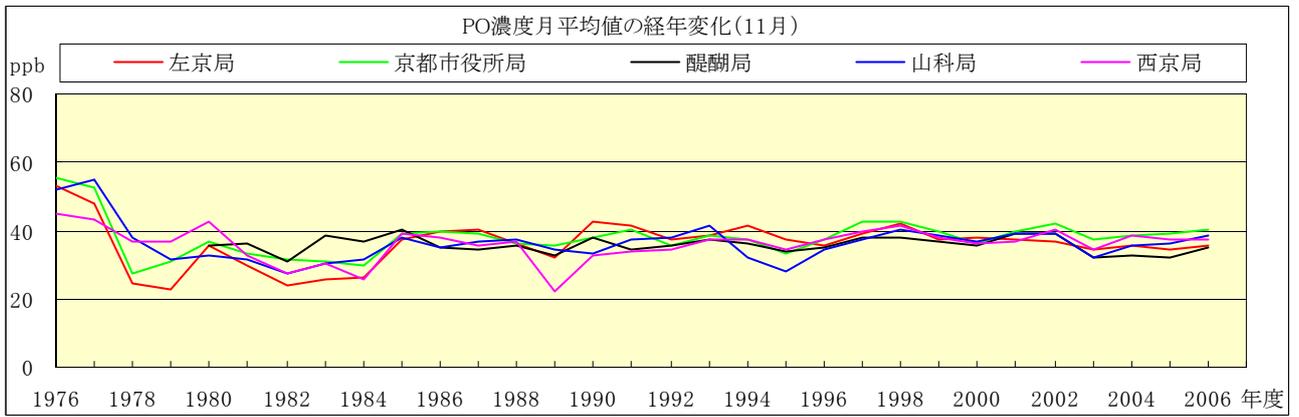


図4-11 PO濃度月平均値の経年変化(11月)

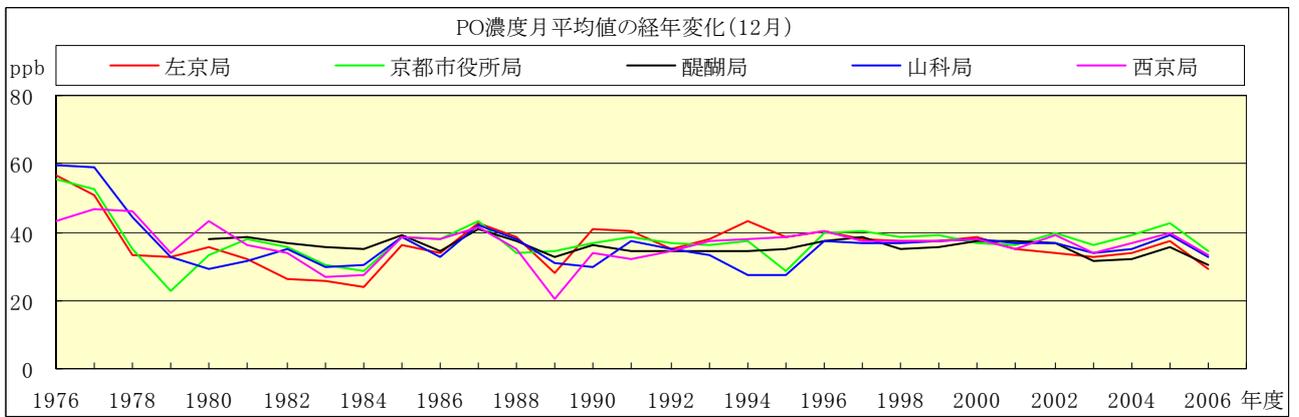


図4-12 PO濃度月平均値の経年変化(12月)

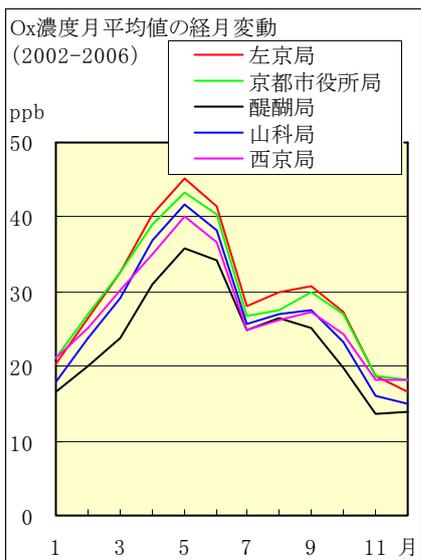
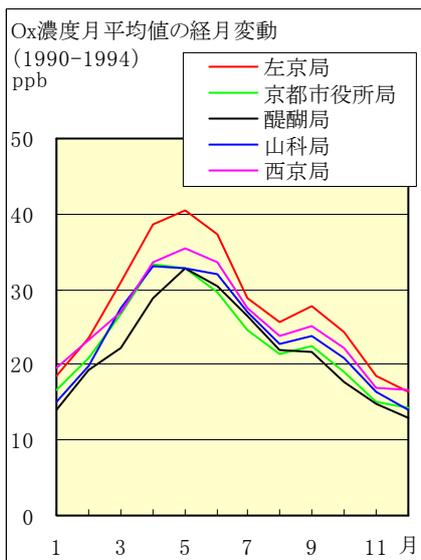
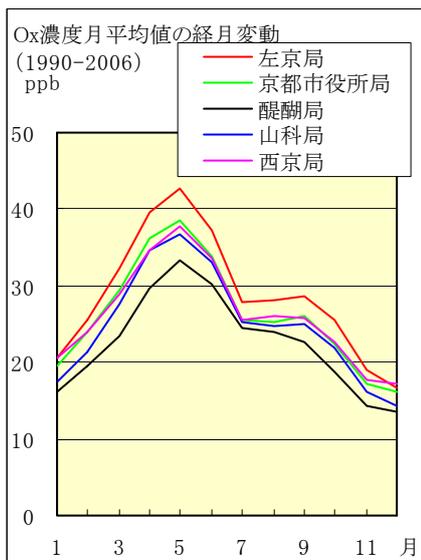


図5 Ox濃度月平均値の経月変化

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

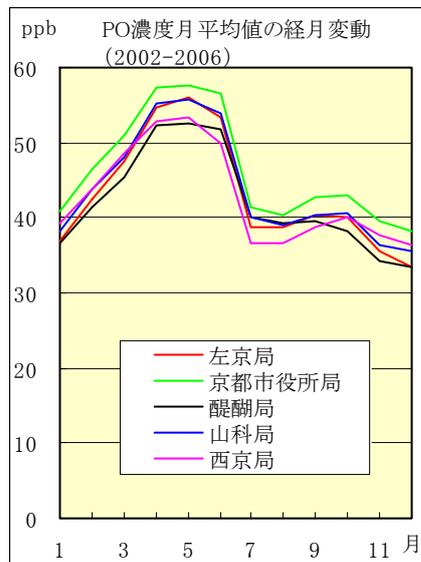
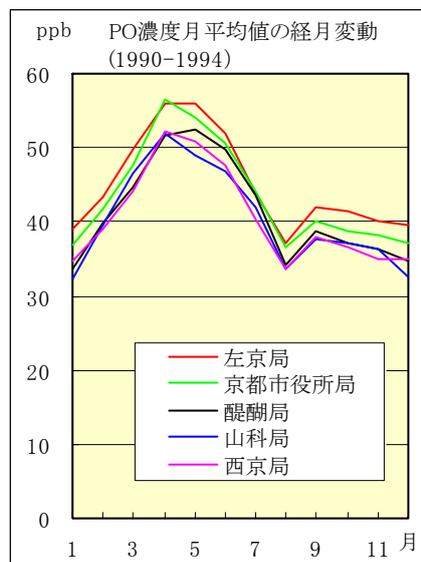
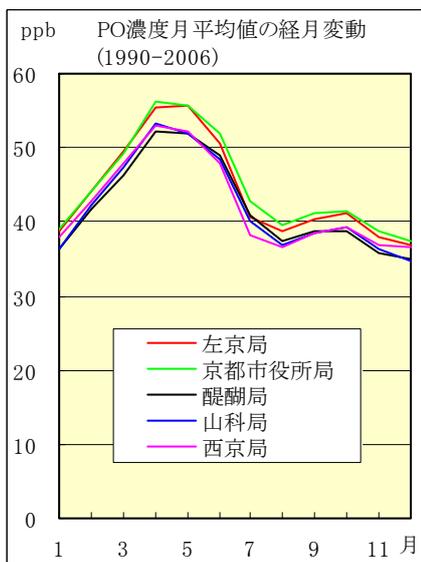


図6 PO濃度月平均値の経月変化

(左から, 図6・a 1990年以降, 図6・b 1990年代初頭, 図6・c 最近5年間)