

京都府南部地域における光化学オキシダント高濃度事象の特性

平澤 幸代 河村 秀一 日置 正 田村 義男

Temporal and Regional Variation in High-Concentration Events of Atmospheric Oxidant in Southern Kyoto Prefecture

Yukiyo HIRASAWA, Shuichi KAWAMURA, Tadashi HIOKI and Yoshio TAMURA

キーワード：大気汚染物質、光化学オキシダント、経年変化、高濃度事象

key words : air pollution, photochemical oxidant, anual variation, high-concentration events

はじめに

光化学オキシダント（以下、Ox）については、大気汚染防止法に基づき都道府県知事等により常時監視が行われているところであり、人の健康及び生活環境に係る被害を未然に防止するため、都道府県知事は、その1時間値が 0.12ppm （ 120ppb ）以上で気象条件からみてその状態が継続すると認められる場合に光化学スモッグ注意報を、また、 0.24ppm （ 240ppb ）以上で警報を発令することとなっている。

Oxは、工場や自動車から排出される窒素酸化物（以下、NOx）や揮発性有機化合物（以下、VOC）を主体とする一次汚染物質が太陽光線の照射を受け光化学反応を起こすことにより生成する二次汚染物質である。近年では、全国的にOx原因物質であるNOxやVOCの一種である非メタン炭化水素（以下、NMHC）の大気環境中の濃度は減少傾向にあるにも関わらず、Oxの環境基準の達成状況は依然として低い水準で推移しており、Ox年平均濃度も漸増傾向にある^{1),2)}。また、国内の光化学スモッグ注意報等の発令状況は、2002年には千葉県で、2005年には埼玉県でほぼ20年ぶりに警報が発令され、さらに2006年には大都市圏ではない長崎県や熊本県で初めて注意報が発令されるなど、近年、過去に例を見ない事象が出現している。本府においても2005年、2006年の注意報発令日数が7日となり、過去10年間で最も多い日数となった。

過去、水本らが京都府内のOxの経年推移等の特性について解析結果を報告している^{3),4)}が、本報では近年の本府南部地域のOx濃度の状況について解析を実施し、また、Oxが高濃度となった2004年及び2005年の高濃度事例について、気象条件と併せて検討し、いくつかの知見が得られたので報告する。

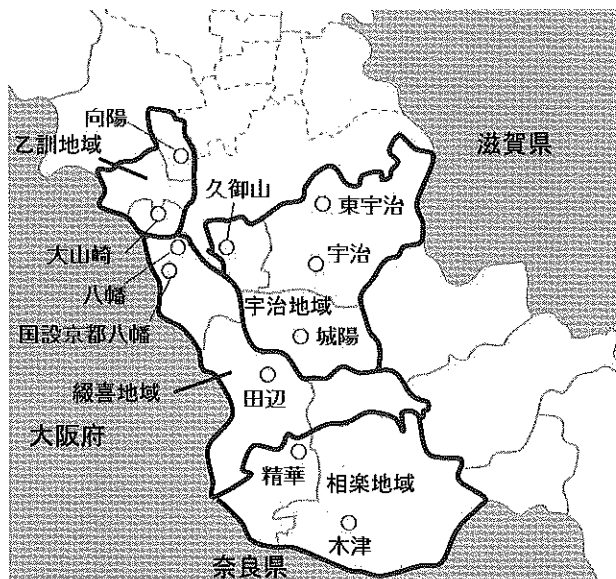


図1 府南部における光化学オキシダントの測定地点

調査方法

1. 測定地点

解析対象としたのは、図1に示す向陽局以南の府南部地域における大気汚染常時監視測定局でOxを測定している11地点である。

2. 解析期間、項目等

解析期間は、1991年度から2005年度の15年間の夏期（5月～9月）とし、解析項目はOx、NOx、NMHC、風向風速とした。データは大気汚染常時監視データとして収録されている1時間値を用いた。なお、Ox濃度、NOx濃度の経年変化等については、国立環境研究所と地方環境研究所の共同研究「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」（以下、C型共同研究⁵⁾）で実施された方法に準じた解析を行った。

表1 京都府の光化学スモッグ注意報発令日数 (1997年～2006年)

年度	1997	1998	1999	2000	2001	2002	2003	2004	2005	2006
発令日数	1	3	1	3	1	5	0	3	7	7

結果及び考察

1. Ox等の経年推移

表1に近年の本府の光化学スモッグ注意報発令日数を示した。はじめに述べたとおり近年発令日数が多くなっている。

図2に夏期の府南部測定局のOx昼間(6-20時)の1時間値の平均値、NOxの7-9時における平均値、及びNMHCの7-9時における4局(2005年度まで測定を継続している向陽、久御山、田辺、木津)の平均値の経年変化を示した。

Ox濃度は1991年度当初は26ppbでその後は緩やかに減少していたが、1997年度以降上昇傾向となり、2001年度の25ppbからさらにその傾向が顕著となり2005年度には35ppbに達した。NOx及びNMHC濃度は、いずれも2000年度を境に減少傾向にあった。

次に、図3に夏期のOxについて、日最高値の月別平均値の推移を示した。直近5年間(2001-2005年度)と過去(1991-1995年度及び1996-2000年度)の月平均値を比較したところ、5月から8月において、直近5年間が過去の

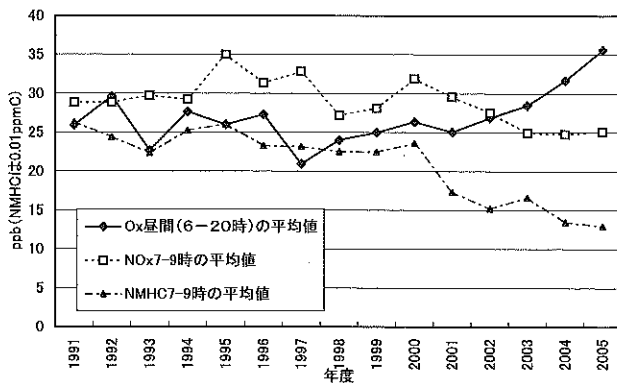


図2 Ox濃度、NOx濃度、NMHC濃度の経年変化 (夏期、南部全局、NMHCは4局)

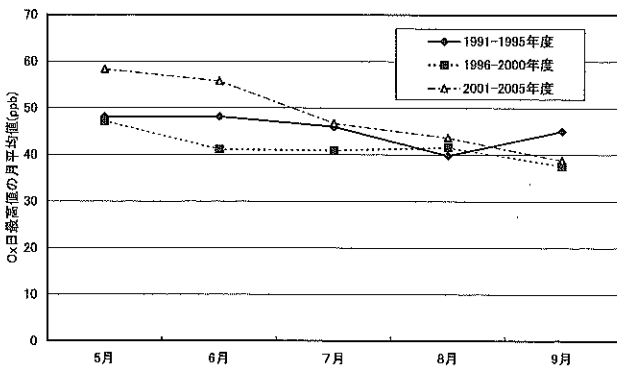


図3 Ox日最高値の月別平均値の推移 (夏期、南部全局)

2期間よりも上昇しており、特に5月及び6月が大きく上昇していた。C型共同研究で西日本で春と秋にOx濃度が極大を示し、アジア大陸からの越境汚染の影響が大きく、その大陸影響が経年的に増加している⁶⁾と指摘されており、京都南部地域も春季には大陸からの影響を受けていると考えられた。

2. Ox時刻別平均濃度の経年変化

Ox濃度の日内変動の推移を見るため、2.と同様に5年間毎の府南部測定局のOx時刻別平均濃度を図4に示した。Ox濃度は、いずれの期間も14時が最大となった。1991-1995年度に比較して、1996-2000年度においては、9時から17時にOx濃度の減少がみられたが、それを除く時間帯には濃度差はなかった。直近5年間は、過去の2期間よりも全時間帯において濃度が上昇しており、その差は1991-1995年度と比較すると5時が最低で約1.5ppb、日中から夕方にかけて差が大きくなり、最高は19時で約4ppbであった。また、1996-2000年度と比較すると、その差は朝が小さく、日中から夕方にかけて大きくなり、最高は14時で約7ppbとなった。

図5にOx濃度が100ppb以上となった日について、日最高値の出現時刻別回数の推移を示した。1991-1995年度は14時が最も多かったが、1996-2000年度及び2001-2005年度においては16時が最も出現回数が増えており、特に直近5年間の出現回数の増加が顕著であった。図6にOx濃度120ppb以上を出現した時刻別時間数の推移を示した。過去2期間は14時が最大であったが、直近5年間は16時の出現割合が増加していた。これらの結果から、Ox高濃度の出現時刻が従来の14時から遅い時間帯に移行する傾向が見られた。この原因については検討を要するが、C型共同研究により大阪平野を中心に解析された結果とも一致するものであり⁶⁾、Ox生成の原因物質であるVOC濃度が経年的に低下する傾向にあることが、Ox生成の遅れの一因であるとも考えられる⁷⁾。

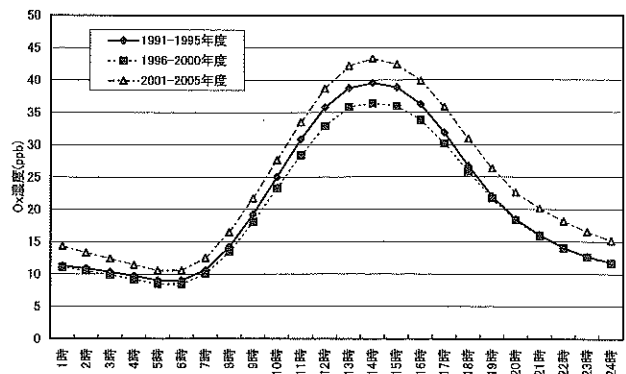


図4 Ox時刻別平均濃度の推移 (夏期、南部全局)

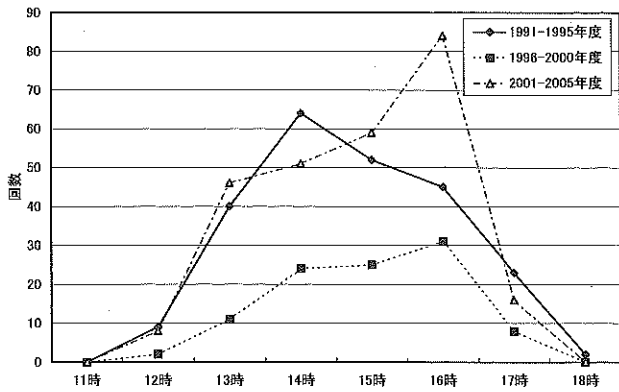


図5 Ox100ppb以上が出現した日の最高値出現時刻別回数の推移 (夏期、南部全局)

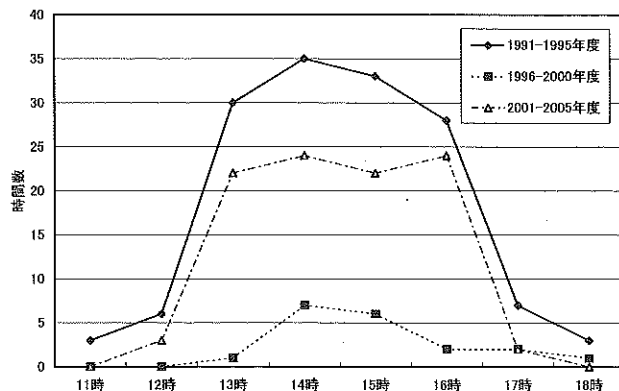


図6 Ox120ppb以上が出現した時刻別時間数の推移 (夏期、南部全局)

3. NOx時刻別平均濃度の経年変化

Oxの前駆物質であるNOxについて、2.と同様に5年間毎の夏期の時刻別平均濃度を図7に示した。過去2期間には明瞭な差が見られなかったが、直近5年間は過去2期間よりも全時間帯で濃度が低下しており、特に早朝及び夜間について濃度の低下が顕著であった。この結果は、Ox濃度が全時間帯で上昇してことと相反する結果であった。C型共同研究の中でも、NOx濃度の高い都市域では夜間にOxが高濃度になりやすく、逆にNOx濃度の低い地域では夜間にOxが高濃度になりやすかったこと、また、NO濃度が低い週末には平日よりもOxの主成分であるオゾン分解量が減少することが指摘されている⁹⁾ことから、今回の解析から判明した直近5年間の全時間帯のOx濃度の上昇は、NO濃度の低下がOxの分解を抑制し、結果としてOxの上昇をもたらした一因になったものと考えられる。

4. 風向風速の経年変化

京都南部地域は、SW成分の場合にOxが高濃度になる場合があるといわれている⁹⁾。風向の経年的な推移を検討するため、時刻別に大阪方向の風向であるS-W系 (ここでは、S、SSW、SW、WSW、Wの5方向) の出現割合の推移を図8に示した。S-W系は、15時にピークを持つ

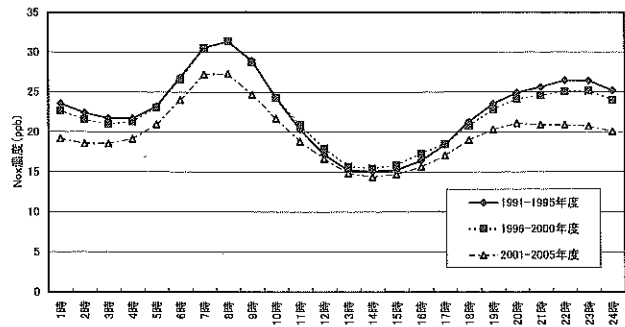


図7 NOx時刻別平均濃度の推移 (夏期、南部全局)

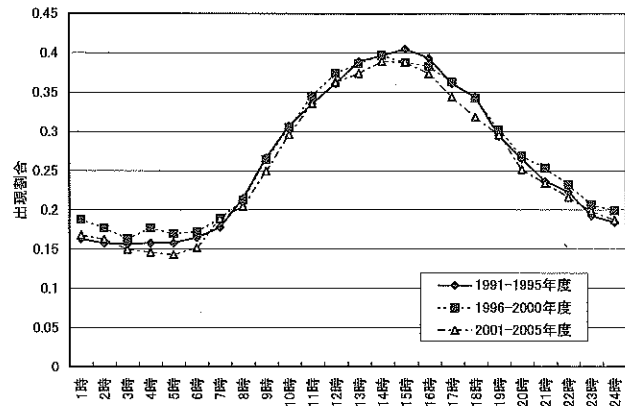


図8 S-W系風向の時刻別出現頻度の推移 (夏期、南部全局)

峰性を示したが、風向については、調査期間の15年間には、顕著な変化は認められなかった。

次に、図9に時刻別平均風速の推移を示した。

1996-2000年度は、1991-1995年度、2001-2005年度と比較して、15時~17時に0.3m/s程度の上昇が見られたほか、全時間帯において風速の上昇が見られた。しかし、2001-2005年度は、1991-1995年度とほぼ同程度であった。

5. Ox高濃度事例について

5.1 地域別高濃度出現状況

表2に、光化学スモッグ注意報等発令地域 (以下、発令地域) 別にOx濃度が120ppb以上となった日数の期間別推移を示した。

京都市地域でOx濃度が120ppb以上となった日数がどの期間とも最多であったが、徐々に減少する傾向にあった。続いて、宇治地域及び相楽地域が多く、乙訓地域は全期間を通して少なかった。1996-2000年度は、乙訓、綴喜、宇治、相楽地域とも1991-1995年度よりも少なく、2001-2005年度は1991-1995年度よりも乙訓地域及び相楽地域は多く、宇治地域は同程度、綴喜地域は少なくなった。

また、表3にOx濃度が120ppb以上となった発令地域のパターン別頻度を示した。最も多かったのが京都市地域単独(A)で、京都市及び相楽地域(AE)が続いた。しかし、

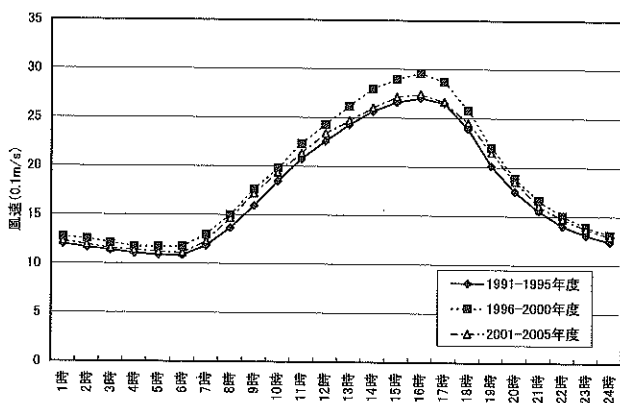


図9 時刻別平均風速の推移(夏期、南部全局)

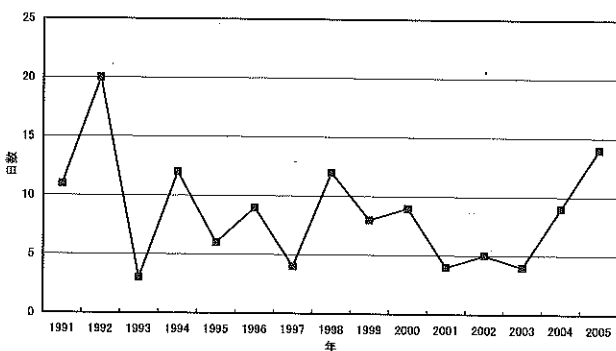


図10 京都府南部の測定局でOx120ppb以上となった日数の経年変化(京都市含む)

直近5年間は、京都市地域は単独の発生が減少し、宇治地域、相楽地域(ACE)との発生の回数が増加しており、京都市地域を除く南部地域の発生回数が増加する傾向が見られた。

表2 光化学スモッグ注意報発令地域別の120ppb以上となった日数

年度	京都市地域	乙訓地域	宇治地域	綴喜地域	相楽地域
1991-1995	47	5	15	13	7
1996-2000	40	0	2	0	6
2001-2005	31	8	16	7	14
計	118	13	33	20	27

表3 Ox120ppb以上となった地域のパターン別頻度

年度	120ppb以上となった地域																	
	A	A B	A B C	A B C D	A B C D E	A B C D E	A C D E	A C D E	A D E	A E	C D E	C D E	D E					
1991-1995	25	1	2	2	0	0	4	1	1	2	7	1	1	2	1	0	0	2
1996-2000	34	0	0	0	0	0	2	0	0	0	0	0	0	4	0	0	0	2
2001-2005	13	1	1	3	2	1	1	1	0	5	0	0	3	1	0	1	1	2
総計	72	2	3	5	2	1	7	2	1	7	1	8	3	1	1	1	6	

注)上記パターンの記号は、発令地域を表す。A:京都市地域、B:乙訓地域、C:宇治地域、D:綴喜地域、E:相楽地域
例えば、上記でABCとは、同日に京都市地域、乙訓地域、宇治地域で120ppb以上となった日を意味する。

5.2 高濃度日の事例解析

図10に京都府南部測定局でOx濃度が120ppb以上となった日数の経年変化を示した。2004年及び2005年に京都市を含む京都府南部の測定局でOx濃度が120ppb以上となった日数は、それぞれ9日、14日の計23日になり、高濃度発生日数が増加する傾向にあった。この両年夏期の気象概況について述べ、代表的な高濃度事例について気象条件と併せて考察する。

(1) 2004年及び2005年夏期の気象概況と

Ox濃度が120ppb以上を記録した日数

(a) 2004年

京都府地方気象台によると⁹⁾、5月は太平洋高気圧の勢力が平年に比べ強く、太平洋高気圧の縁を回って暖かく湿った空気が入り、前線や低気圧の影響を受けたため、気温が高く曇りや雨の日が多かった。6月から8月は、太平洋高気圧に覆われる日が多く高温となった。7月は梅雨前線の活動が全般的に弱く、太平洋高気圧に覆われて晴れて暑い日が続き、1994年に続く猛暑となった。秋は太平洋高気圧の勢力の弱まりが遅く、9月は月平均気温が平年を大きく上回った。

この年、京都府南部の測定局でOx濃度が120ppb以上を記録した日数は、5月が0日、6月が1日、7月が5日、8月が2日、9月が1日であり、気象状況を反映していると推察された。

(b) 2005年

京都府地方気象台によると¹⁰⁾、5月は移動性高気圧に覆われた日が多かったため、少雨多照となった。6月は、太平洋高気圧の北への張り出しが弱く、梅雨前線が日本付近で活動を強めることが少なかったため、高温少雨となった。7月の前半は梅雨前線が活動を強め、近畿地方に停滞したため、局地的な大雨となった。後半から8月上旬は太平洋高気圧に覆われて晴れた日が多く、8月後半は南から暖かく湿った空気が入り、大気の状態が不安定となり大雨となることがあった。9月は太平洋高気圧の日本付近への張り出しが強く残暑が厳しかった。

この年、京都府南部の測定局Ox濃度が120ppb以上を記録した日数は、5月が1日、6月が5日、7月が4日、8月が3日、9月が1日であり、前年同様気象状況を反映していると推察された。

(2) 高濃度事例について

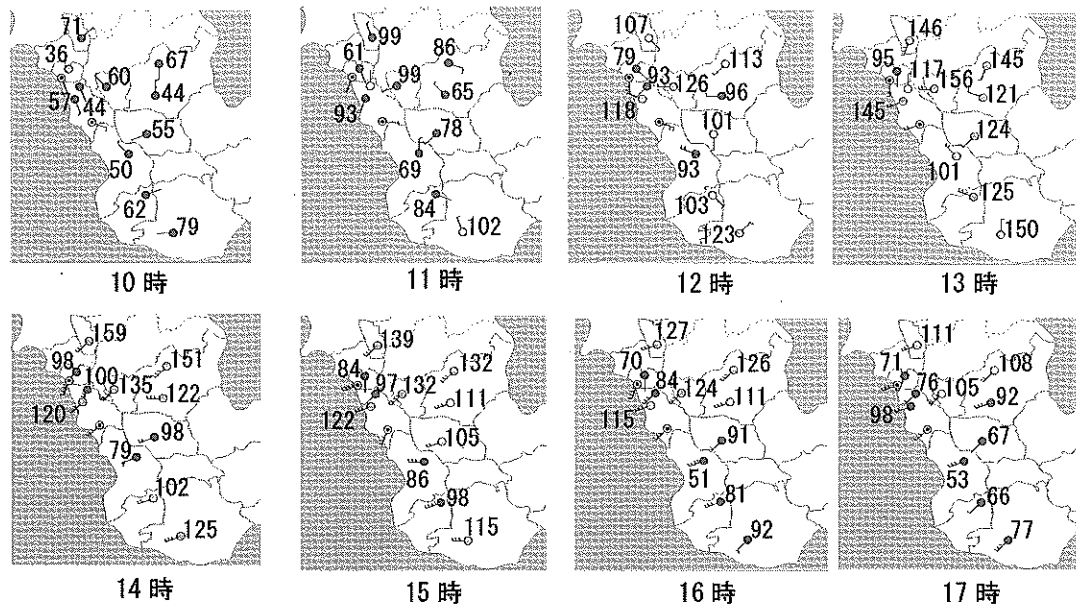
この両年で府測定局において、Ox濃度が120ppb以上を記録した日のうち代表的な事例について、濃度変化や気象状況について解析を行った。なお、ここで用いた京都の気象データは、気象庁HP(気象統計情報)¹¹⁾、他の自治体のOx濃度等は環境省水・大気環境局発行の大気汚染状況報告書¹²⁾による。

図11～図15には、各高濃度日のOx濃度と風向風速を示し、図15には、Ox等の経時変化を示した。

(a) 全発令地域で120ppb以上となった日

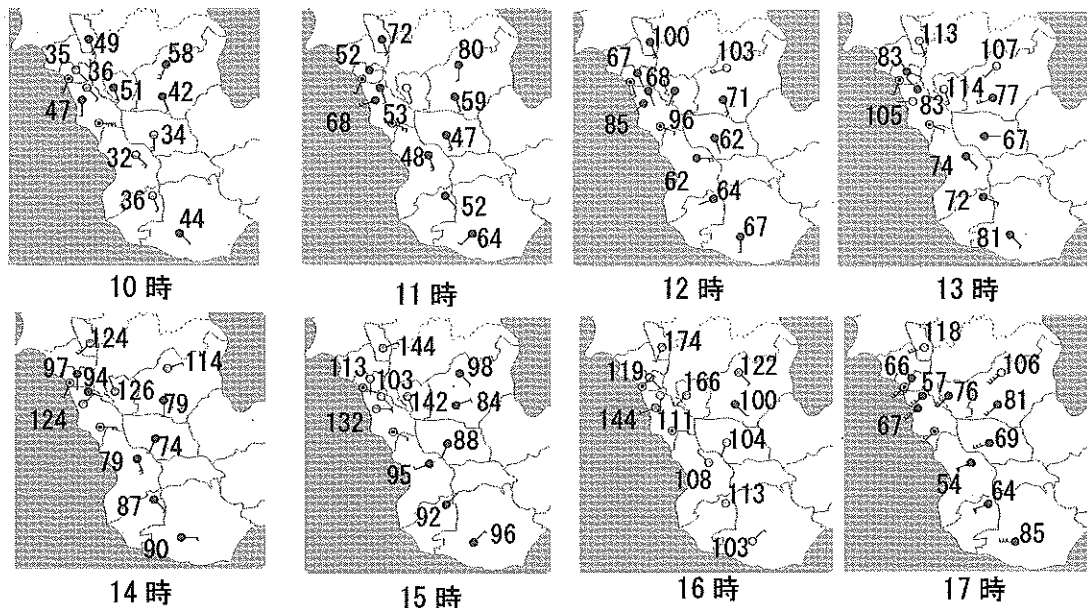
(2005年7月21日)

この日は気圧傾度が緩やかで、京都府地方気象台の昼の



(注) 図中の数字はOx濃度(ppb)を表す。矢羽の向きは風向を表す。
 〳 : 風速1m/s、 〵 : 5m/sを表す。

図11 2005年7月21日のOx濃度と風向風速



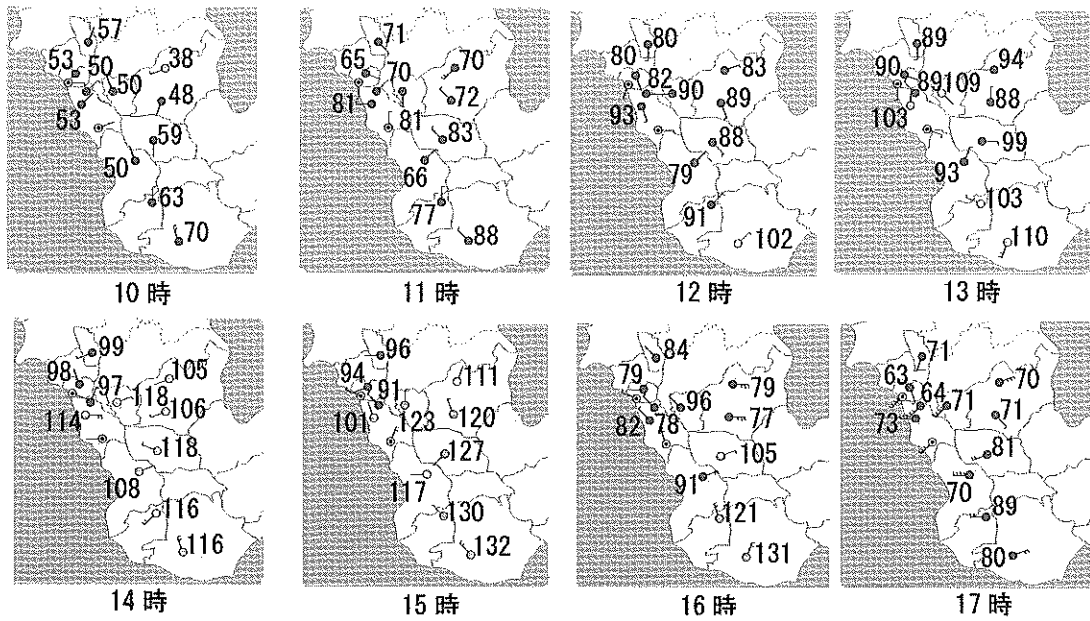
(注) 図中の数字はOx濃度(ppb)を表す。矢羽の向きは風向を表す。
 〳 : 風速1m/s、 〵 : 5m/sを表す。

図12 2004年7月6日のOx濃度と風向風速

天気は晴、最高気温は36.3℃でこの月で最高であった。また、平均風速は1.9m/sと比較的弱く、Oxが高濃度になりやすい気象条件であった。

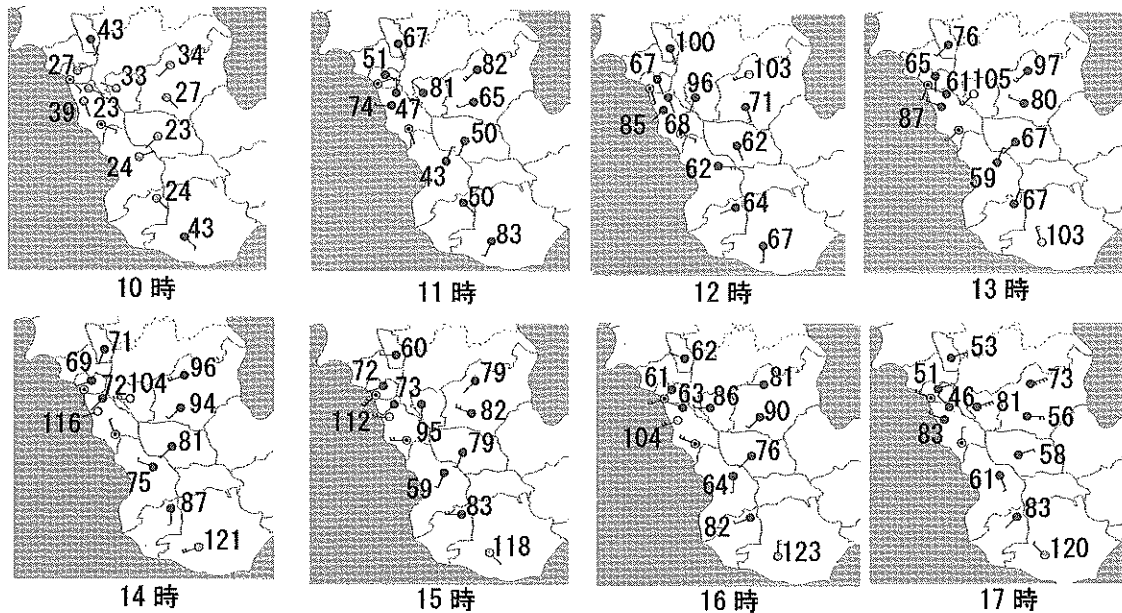
朝方は風速が概ね2m/s以下と弱く、風向もまちまちである。日射が強くなるとともに、9時頃からOx濃度が上昇し始めている。11時から宇治地域、綴喜地域の一部の測定局でS-W系 (WSW、SW、SSW) の風が吹き始めた。12時には久御山局及び木津局で120ppbを超え、その

後全局で徐々にS-W系の風に変わり、風速が2-3m/sに強まり、これに伴いOx濃度も上昇した。府南部測定局では、京都市内の測定局と同じく、13時(久御山局:151ppb)または14時(向陽局:159ppb)に最高濃度を記録した。この日、大阪府では、12時に大阪府東部の交野市役所、東大阪市旭町庁舎、王仁公園(枚方市)で最高濃度に達し、その他の局も12時から14時にかけて最高濃度を記録しており、これらの地域でほぼ同時にOx濃度が上昇した



(注) 図中の数字はO₃濃度(ppb)を表す。矢羽の向きは風向を表す。
 ≡ : 風速1m/s、 ≡ : 5m/sを表す。

図13 2005年6月1日のO₃濃度と風向風速



(注) 図中の数字はO₃濃度(ppb)を表す。矢羽の向きは風向を表す。
 ≡ : 風速1m/s、 ≡ : 5m/sを表す。

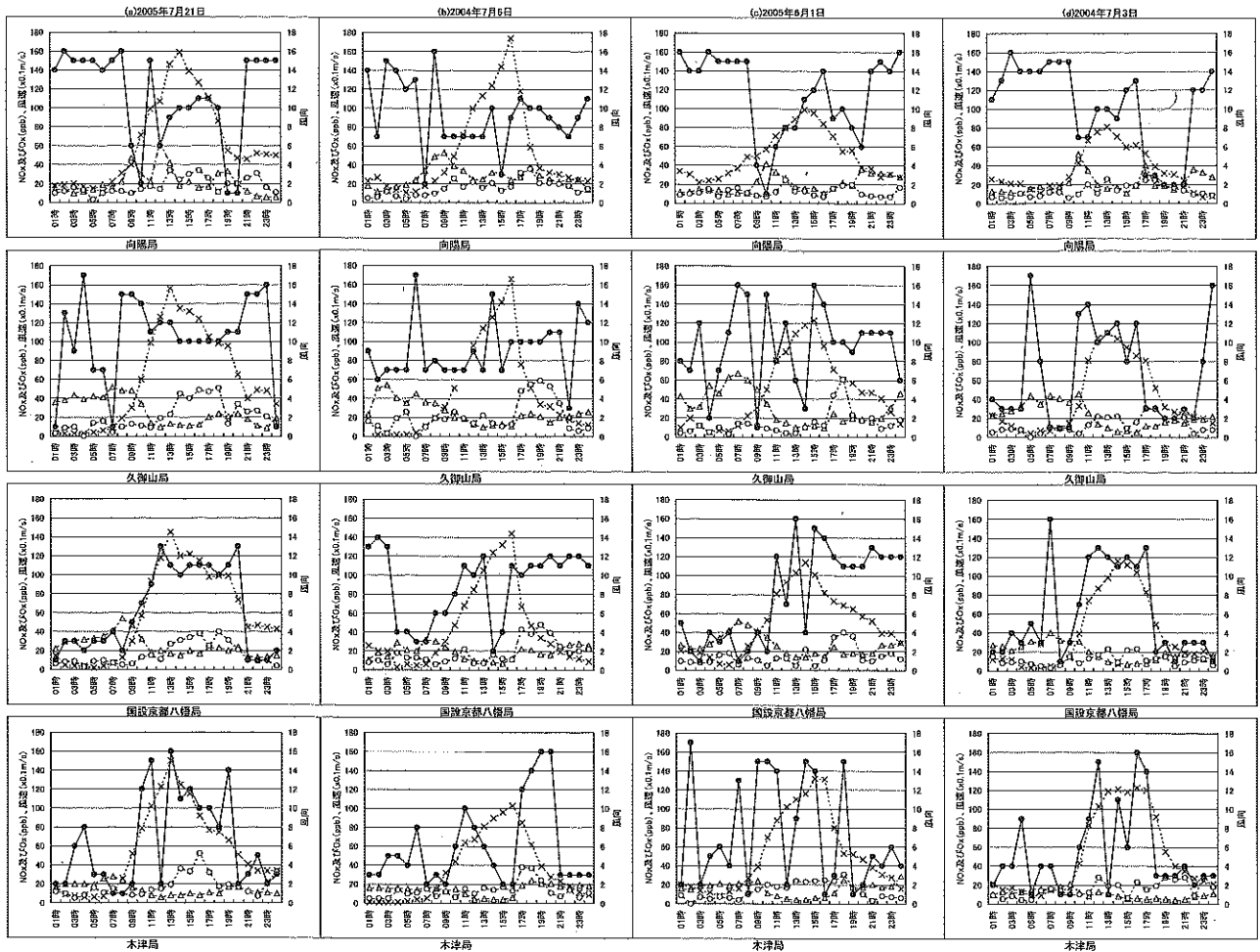
図14 2004年7月3日のO₃濃度と風向風速

といえる。府内の測定局では、15時以降もS-W系の風であったが、風速が3-5m/sに強まるとともにO₃濃度が減少した。(図11、図15)

(b) 2004年及び2005年で最も高濃度となった日 (2004年7月6日)

この日は本州東の高気圧に覆われ、気温が上昇した。京都の昼の天気は晴、最高気温は36.3℃と厳しい暑さであった。また、平均風速は1.7m/sと弱かった。

朝方はSからENE方向の概ね2m/s以下の弱い風で、9時頃にはS系 (SSE、S、SSW) の風、概ね10時はS-E系 (ESE、SE、SSE)、11時から徐々にS-W系に変わっている。14時に向陽局、国設八幡局、久御山局で120ppb以上となったが、全体的にはまだ明瞭なS-W系の風ではない。向陽局から久御山、国設八幡局に至る淀川への三川合流地点に近い地域でO₃高濃度域を形成した16時に、この日の高濃度ピークを示し、向陽局で174ppb、久御山局



x: Ox, Δ: NOx, ●: 風向, ○: 風速

風向 1: NNE, 2: NE, 3: ENE, 4: E, 5: ESE, 6: SE, 7: SSE, 8: S, 9: SSW, 10: SW, 11: WSW, 12: W, 13: WNW, 14: NW, 15: NNW, 16: N, 17: C

図15 Ox高濃度事例日のOx等の経時変化

で166ppbに達した。16時の段階では、これらの地域は風速2m/s以下のS-W系であるが、より東に位置する宇治局及び東宇治局は風速2m/s以下のSEとなっており、この両地域間に風の収束域が形成された可能性がある。17時には全ての局がSWからW方向の風となるとともに風速も3-5m/sと強くなり、Ox濃度は低下している。また、大阪府内のピーク出現時刻は、13時に門真市内、14時に豊中市、吹田市、枚方市の一部、大東市、15時には高槻市及び島本町であり、大阪湾から侵入する海風に伴うOx汚染気塊の移流があったものと推定される。さらに、京都市内の測定局では、一部局では13時、14時と早い時刻にピークがあるが、大半は16時及び17時、市北部にある市役所、壬生、北局は17時にピークがあることから、大阪府北東部→京都府南部→京都市内の経路でOx汚染気塊の移流があったことが示唆された。(図12、図15)

(c) 京都市、宇治、相楽地域が120ppbとなった日 (2005年6月1日)

この日も気圧傾度が緩やかで、最高気温が29.2℃、昼の天気は晴後曇、平均風速は1.5m/sと小さかった。

7-10時までは概ねN系 (NNW, N, NNE) の風、12時以降は風速0-2m/sで乙訓地域及び八幡市は概ねS-E

系の風、宇治、相楽地域は概ねE系 (ENE, E, ESE) の風になり、13時には相楽地域だけが大阪方向からの風が吹いていた。14時には乙訓地域がWSWからNNWの間、八幡、久御山、田辺はEからENEの間、宇治、城陽、精華はSWからWNWの間、木津はNNWと同じ風系ではなく風速も0-3m/sと弱い。このときOx高濃度域は東宇治、久御山以南に形成されていた。15時は全体的に概ねN-W系 (WNW, NW, NNW) の風となり、宇治地域及び相楽地域で120ppb以上となった。16時には宇治から相楽地域にかけてN-E系 (NNE, NE, ENE) の風が2-4m/sに強くなり、Ox濃度も低下し、その他の地域はN-W系となった。17時には宇治、相楽地域以外はS-W系の風が卓越し、Ox濃度が低下した。大阪府内では13時に東大阪市で、14時に交野市と枚方市でOx濃度のピークが生じ、14時15時の城陽、田辺、精華の風向から、大阪からの移流の影響も考えられるが、明らかではなかった。(図13、図15)

(d) 相楽地域だけが120ppb以上を記録した日 (2004年7月3日)

この日は緩やかに高気圧に覆われ、京都の昼の天気は曇後晴、最高気温は34.9℃、平均風速は1.7m/sと比較的

弱かった。

府内では朝方は概ねN系の2m/s以下の風で、10時には一部の測定局でSE系となるが、11時以降宇治地域からS-W系の風向となった。12時には、田辺局以南を除きS系の風向となった。13時には田辺局以南はN系の風となり、久御山及び木津局で100ppbを超過した。14時には全域で概ねS-W系となり、木津局で120ppbを超えたが、15時には木津局のみ風向がSE、16時はNにかわるなど、この日の木津局の風向は一定に定まらず終始1-2m/s台の弱風であった。Ox濃度のピークは16時で123ppbであった。17時には宇治地域はEからENEの風となり、相楽地域を除き風速が強くなり、Ox濃度が低下した。

この日、近隣地域で120ppb以上となったのは、大阪府豊中市(15時)、吹田市(14時、15時)、高槻市(15時)、枚方市(15時)、交野市(16時)の大阪府東部、奈良県生駒市(15時)であった。(図14、図15)

沿岸域では一般風の弱い晴れた日に海風が発生する⁹⁾が、大阪湾からの海風の風下域に位置する京都府南部地域の気象環境は、風上側の発生源の影響を強く受ける。つまり、大阪湾岸からの海風の挙動は、京都府南部地域のOx高濃度事象とも大きく関連する。

京都府内における上記のOx高濃度事例についても、Ox汚染気塊の大阪からの移流が明瞭である日や明瞭でない日があった。京都府南部地域内で高濃度Oxが出現する原因は、大阪湾からの海風前線の侵入だけでなく、より局地的な風の流れ等に依存する場合もあること考えられた。内田らが大阪平野を海中心に海風前線の挙動とOx高濃度発生状況をパターン分類している¹²⁾が、この分類が京都府を含めてより広域的に適用できないか、今後検討していきたい。

まとめ

府南部地域の一般環境大気測定局における1991年から2005年の夏期の測定結果を集計、解析したところ次のことがわかった。

- ① Oxの昼間の1時間値の年平均値は近年上昇傾向にあるが、Oxの原因物質であるNOx、NMHCの朝方の平均濃度は逆に減少傾向にあった。
- ② Oxの日最高値の月別平均値について、直近5年間(2001-2005年度)は過去2期間(1991-1995年度、1996-2000年度)と比較して5-8月で上昇しており、特に、5月及び6月の上昇幅が大きかった。
- ③ Oxの時刻別平均濃度は、直近5年間は過去2期間よりも全時間帯において濃度が上昇していた。
- ④ Ox120ppb以上となった時刻は、過去2期間では14時が最多であったが、直近5年間は16時の出現割合が増加しており、Ox高濃度の出現時刻が遅くなる傾向にあった。
- ⑤ Oxの原因物質であるNOxについて、直近5年間は過去2期間と比較して全時間帯で濃度が減少していた。特に、深夜から朝方の平均濃度の減少が顕著であった。
- ⑥ 大阪方向からの風向(S-W系)の割合は、あまり変化がなかったが、時刻別平均風速は直近5年間は1991-1995年度と同程度で、1996-2000年度よりも弱かった。
- ⑦ Ox高濃度事例について検討した結果、府内では京都市地域で120ppbとなった日数が最も多く、次いで宇治地域、相楽地域が多かったが、京都市を除く南部地域での発生が増加する傾向が見られた。
- ⑧ Ox高濃度日は、いずれも晴天、高温、弱風とOxが高濃度になりやすい気象条件下であったが、大阪からOx汚染気塊の移流が明瞭な日と明瞭でない日があった。

引用文献

- 1) 環境省水・大気環境局：平成17年度大気汚染状況報告書、2006
- 2) 環境省HP：平成19年2月9日報道発表資料「平成18年光化学大気汚染の概要－注意報等発令状況、被害届出状況－」
- 3) 大原利眞、坂田智之：大気環境学会誌38(1),47-54 (2003)
- 4) 水本美佳ら：本誌、47、65 (2002)
- 5) 水本美佳ら：本誌、48、43 (2003)
- 6) 大原利眞編：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、国立環境研究所研究報告第195号、(R-195-2007)
- 7) 坂本和彦：資源環境対策、Vol.42 No.11 (2006)
- 8) 江阪忍ら：本誌、3、105(1974)
- 9) 京都地方気象台HP：京都府の気象、平成16年年報(2004)
- 10) 京都地方気象台HP：京都府の気象、平成17年年報(2005)
- 11) 気象庁HP：気象統計情報
- 12) 内田和隆ら：大阪府公害監視センター所報調査研究編、No.2、73-91(1973)