

沖縄県における春季のオゾンと非海塩性硫酸イオンの濃度変動

与儀和夫・嘉手納恒・友寄喜貴

Variations of Ozone and non sea-salt Sulphate during Springtime in Okinawa

Kazuo YOGI, Hisashi KADENA and Nobutaka TOMOYOSE

要旨：近年九州各県において光化学オキシダント注意報が発令される状況にあるが、沖縄県においても 2009 年 5 月 8 日、うるま市で 105 ppb の高濃度オゾン(O₃)が観測された。春季 O₃ と移流気塊の汚染度との関連について、2004 年および 2009 年に南城市大里で実施したエアロゾル調査結果から、非海塩性硫酸イオン(nss-SO₄²⁻)を汚染度の指標として用いて解析した。2009 年春季の高濃度 O₃ の発生は移動性高気圧の接近に伴うものであったが、nss-SO₄²⁻がやや低濃度の場合も多く、移流気塊の汚染がその発生要因とはいえなかった。また 2009 年春季の O₃ 濃度は 2004 年に比較して 25 ppb を超える増加となったが、両年で大陸性、海洋性気塊の割合が異なること、大陸性気塊の汚染度に大きな差はみられなかったことから、気象条件の差異が大きく影響したと思われる。この 10 年の辺戸および与那城での O₃ 観測結果から、大陸性気塊の O₃ 濃度は 2000 年から 2004 年まで下降し、2005 年以後は上昇傾向にあった。

Key word：越境大気汚染，光化学オキシダント，オゾン，非海塩性硫酸イオン

I はじめに

2009 年 5 月 8 日午前 2 時から 8 時にかけて 100 ppb を超える高濃度の O₃ が沖縄県うるま市において観測された。近年西日本における高濃度光化学オキシダントの発生が問題になっており、九州各県においては史上初の注意報が発令される事態になっているが、その発生要因として、大陸からの越境大気汚染、また成層圏 O₃ 沈降の可能性についても指摘されている¹⁾。

2009 年 4 月 1 日から 6 月 18 日まで、南城市大里(衛生環境研究所)において、ハイボリュームエアサンプラーによる 1 日毎のエアロゾル採取を実施し、イオン成分の濃度変動について調査した。また 2003 年 5 月から 2005 年 5 月まで同様に実施した調査から、2004 年 4 月、5 月の期間についても春季の連続した 2 ヶ月間のデータが得られた。これらの調査結果から、nss-SO₄²⁻を移流気塊の汚染度の指標として用いて、春季 O₃ との関連について解析し



図 1.エアロゾル採取地点および O₃ 測定地点。

た。図 1 にエアロゾル採取地点の南城市大里および O₃ 測定地点のうるま市与那城宮城(与那城一般環境測定局)、国頭村辺戸(国設辺戸岬酸性雨測定局)を示す。うるま市与那城宮城(宮城島)は石油備蓄基地に隣接し、海中道路によって本島と陸続きであるが、比較的清潔な地点にあたる。与那城局での O₃ 測定は 2005 年に開始した。なお 2000 年には本島最北端の辺戸岬に国設酸性雨測定局が開設しており、O₃ の観測も同時に開始された。2004 年の O₃ は、辺戸岬酸性雨測定局の測定結果を用いた。図 2 に与那城局(2009 年)、辺戸岬酸性雨測定局(2004 年)の 4 月および 5 月の O₃ およびポテンシャルオゾン(PO)を示す。PO([O₃]+[NO₂]-0.1[NO_x])は [O₃]+[NO₂] で近似した。海洋では O₃ 濃度の日変化は小さいといわれているが、沖縄本島の周囲は海域であり、両地点とも O₃ の

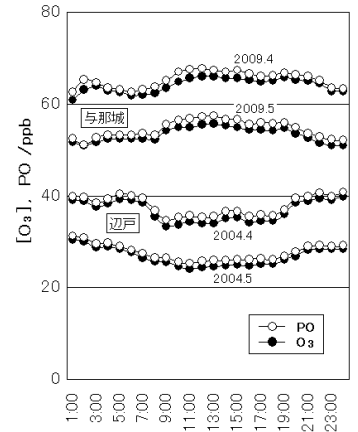


図 2. 与那城局(2009 年)および辺戸岬酸性雨測定局(2004 年)の春季の O₃ および PO の日変化。

図 2 に与那城局(2009 年)、辺戸岬酸性雨測定局(2004 年)の 4 月および 5 月の O₃ およびポテンシャルオゾン(PO)を示す。PO([O₃]+[NO₂]-0.1[NO_x])は [O₃]+[NO₂] で近似した。海洋では O₃ 濃度の日変化は小さいといわれているが、沖縄本島の周囲は海域であり、両地点とも O₃ の

昼間の濃度上昇は小さく、また夜間における大きな濃度低下も観測されない。O₃へのローカル影響は小さく、移流気塊の実体を把握しやすい地点といえる。なお図2に示したとおり、2004年および2009年春季のO₃濃度は大きく異なった。

II 方法

ハイボリュームエアサンプラーによって、原則午前9時から翌日9時までの24時間、約0.7 m³/minの流量でシリカろ紙にエアロゾルを採取した。分取したろ紙を蒸留水で溶出し、イオン成分をイオンクロマトグラフにより分析した。イオン成分のうちnss-SO₄²⁻を移流気塊の汚染度の指標として用いた。O₃濃度はエアロゾル採取時間における1時間値の平均を用いた。

ついで高度500mを起点とした後方流跡線解析(NOAA HYSPLIT MODEL)結果により、図3に示すように大陸性気塊を「北西」、「北」、「東」、「西」の4種と「海洋性」におよそ区分した。「北西」の気塊は冬季に多い。移動性高気圧の通過、接近等によって移流方向が北寄りになることが多く、これを



「北」に区分した。また本土の南または沖縄の東の太平洋上を經由して、東方から沖縄本島に到達した気塊は移流時の汚染度の低下や大陸の汚染影響を比較的受けずに到達した可能性があり、「東」として区分した。この気塊は移動性高気圧通過

図 3. 後方流跡線解析(NOAA HYSPLIT MODEL)により移流気塊を大陸性 4 方向と海洋性に区分した。

後に多くみられた。また大陸性気塊に該当するか不明であるが、大陸南部を經由したものを「西」に区分した。「海洋性」は夏季に多くみられるが、この調査期間では4月より5月が多かった。後方流跡線解析結果は採取時間が1日の場合は9:00, 21:00, 翌日9:00のものを用い、3解析結果が概ね同様の場合を単一気塊の試料とした。3解析結果が異なる場合、または上記分類に該当しないもしくは分類が困難なものはすべて「その他」に区分した。冬季、秋季は比較的移流方向の変化が少ないが、春期は移動性高気圧によって移流方向の変化が大きく、区分が困難な場合が多かった。

III 結果および考察

図4に2004年4月1日～5月31日および2009年4月1日～6月18日のO₃のエアロゾル採取時間における1時間値の平均と最高およびnss-SO₄²⁻を示した。2004年のO₃はやや低濃度で推移し、1時間値が80 ppbを超えたピークは1回あった。2009年のO₃は比較的高濃度で推移し、80 ppbを超えたピークが数回みられた。4月は30日1時、2時の90 ppbが月間最高値、5月は8日2時、3時に105 ppb、7時に104 ppbを記録した。O₃, nss-SO₄²⁻の濃度は、大陸性気塊ではともに高く、海洋性気塊ではともに低いことが多く、気塊の交替に伴って同様な濃度変動を示し、両成分のピークは概ね一致するといえた。しかし2004年4月28日、5月20日、2009年4月28日、5月28日付近のO₃高濃度時にnss-SO₄²⁻はやや低濃度で推移した。また2004年はO₃が40 ppb以下になることも多くみられたが、2009年、特に4月の最低値(日平均)は46 ppbで、高濃度のまま推移した。

2004年および2009年春季(4月1日～5月31日)のO₃とnss-SO₄²⁻濃度の関係を図5に示した。移流気塊は

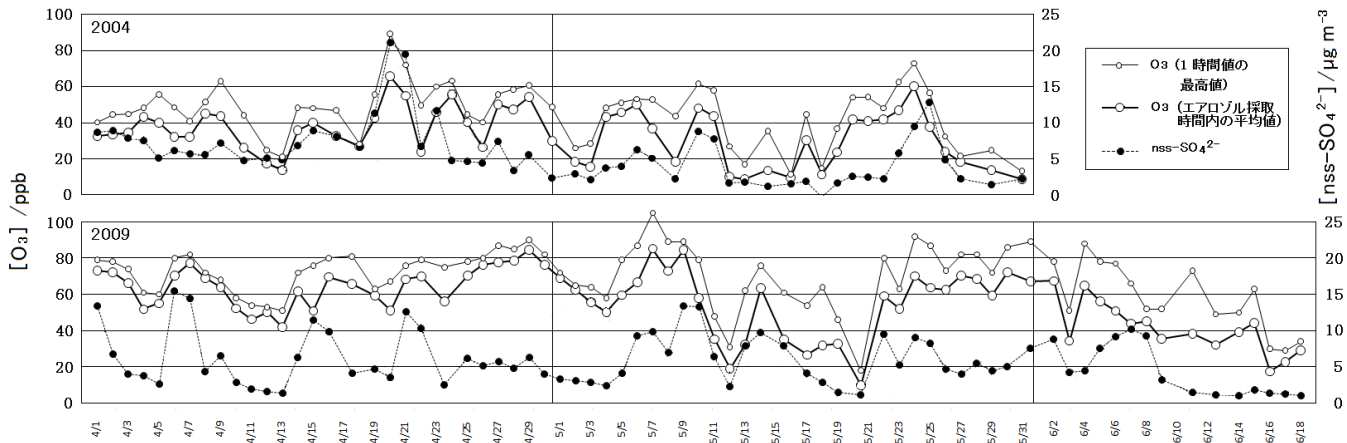


図 4. 春季のO₃とnss-SO₄²⁻の濃度変動(2004年4月1日～5月31日, 2009年4月1日～6月18日)。

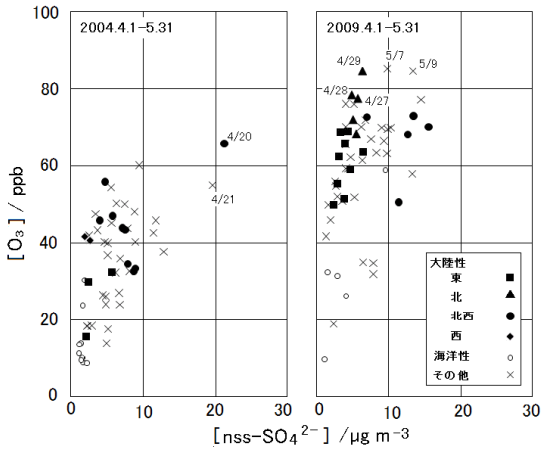


図5. 2004, 2009年春季(4, 5月)の移流気塊別のO₃とnss-SO₄²⁻濃度. O₃が高濃度の場合, 一部日付を示した.

前述のとおり大陸性の「北西」、「北」、「東」、「西」と「海洋性」および「その他」の6気塊に区分した。2004年の移流気塊のnss-SO₄²⁻は概ね10 µg/m³以下で、O₃もほぼ60 ppb以下であった。4月20, 21日はnss-SO₄²⁻は約20 µg/m³で、O₃濃度もやや高く、汚染による影響が考えられた。

2009年はnss-SO₄²⁻が10 µg/m³以下で、O₃が60 ppbを超える高濃度を示す「北」、「東」の移流気塊の割合が増加した。春季以外の大陸性気塊のO₃は、概ね約40 ppb程度のベースとなる濃度(2003～2005年)に汚染影響による増加分を付加したものとなった²⁾が、春季は汚染度が低く、O₃が高濃度の気塊が多く、nss-SO₄²⁻とO₃に比例関係はみられなかった。2009年4月27～29日は移動性高気圧が九州を通過し、気塊は「北」に区分された。O₃は日平均値で80 ppbを超え、1時間値最高は90 ppbであった。O₃が100 ppbを超えた5月7～9日は移流方向の変化が大きく「その他」に区分したが、これも移動性高気圧の沖縄本島への接近に伴うもので、移動性高気圧の接近または通過時にO₃濃度が高くなる現象がみられた。これらの移流気塊のnss-SO₄²⁻は数 µg/m³と比較的低い(4月27～29日)にもかかわらずO₃は高濃度を示しており、移動性高気圧の接近に伴う大気降下の影響ではないかと推測された。5月7日, 9日は大陸由来の汚染影響も同時にあったものと思われ、移流気塊のnss-SO₄²⁻は9.8, 13.4 µg/m³とやや高かった。大陸性「東」に区分した気塊のO₃は60 ppbを超えたものがやや多かったが、nss-SO₄²⁻濃度は数 µg/m³以下であった。

図6に国頭村辺戸でO₃の観測が開始された2000年から2009年(2000, 2002, 2004, 2005, 2009年)まで

のO₃濃度の累積度数分布(横軸が累積度数)を示す。2004年および2009年についてはnss-SO₄²⁻も同時に示した。春季O₃は2004年がこの10年間の最低を示し、2009年は最高となった。2004, 2009年とO₃濃度が両年の中間程度であった2005年については後方流積線解析による気塊の区分をマークで示した。O₃は2004, 2009年はエアゾル採取時間における平均値であり、2005年(辺戸)は後方流跡線解析時刻に合わせて9:00～翌日9:00の平均値, 他は1:00～24:00の日平均値を用いた。分布曲線は両側で傾きが大きく(気塊数が少ないため濃度変化が大きい), また低濃度側の傾きが移行した位置は海洋性と大陸性の気塊区分のおよその目安と思われた。

4月は2004, 2009年とも移流気塊は概ね大陸性が主体でO₃濃度の月平均値はそれぞれ38, 64 ppbで濃度差は27 ppbであった。nss-SO₄²⁻は7.5, 6.3 µg/m³で2004年の方がむしろやや高く、両年のO₃濃度差は気塊の汚染が直接的な要因でないことが推測された。なお2009年は汚染度のやや低い「北」、「東」の気塊が多かったため、nss-SO₄²⁻濃度はやや低くなったと思われた。nss-SO₄²⁻についてはばらつきが大きいものの、2004, 2009年ともO₃濃度の上昇とともに増加の傾向を示した。これは大陸性, 海洋性両気塊の混合によって生じた比例分を含め、移流気塊の汚染によるO₃の濃度上昇を示したものといえる。5月は、両年のO₃濃度の月平均値は29, 55 ppbで差は

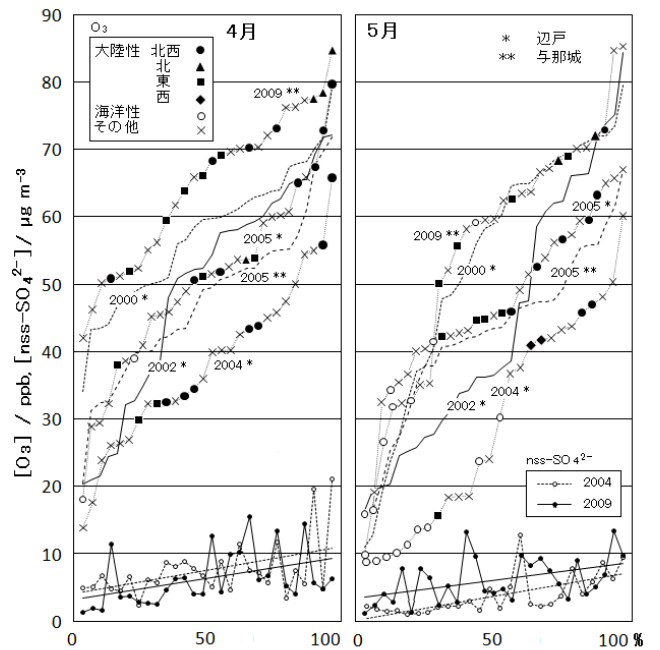


図6. 2000～2009年の4, 5月のO₃濃度の累積度数分布と移流気塊の汚染度(nss-SO₄²⁻濃度). 図中の数値は年, *は辺戸, **は与那城のO₃濃度.

26 ppb であった。nss-SO₄²⁻はそれぞれ 3.8, 6.1 μg/m³ で、2004 年の方が低かったが、これは 2004 年は清浄な海洋性気塊の割合が大きかったためと思われた。図 6 に、2000, 2002 および 2005 年の O₃ 濃度分布を合わせて示したが、O₃ は 2000 年から 2002 年、2004 年と低下した後、2005 年から上昇傾向にあり、2009 年に 100 ppb を超える高濃度 O₃ の発生に至ったものと考えられた。

図 7 に 2004, 2005, 2009 年の 4, 5 月を合わせた 9:00, 21:00 の後方流跡線解析による移流気塊の出現割合を示す。O₃ 濃度の低かった 2004 年は、図 6 から明らかなとおり、海洋性気塊の割合が大きく、また 2005 年から 2009 年と「北」、「東」の大陸性気塊の割合は増加した。これから大陸性気塊の割合が小さい場合 O₃ 濃度は低く、大陸性気塊の割合が大きい場合 O₃ 濃度も高くなる傾向にあったと思われた。O₃ は気象の経年的変化によっても大きく影響を受けている状況が推測された。

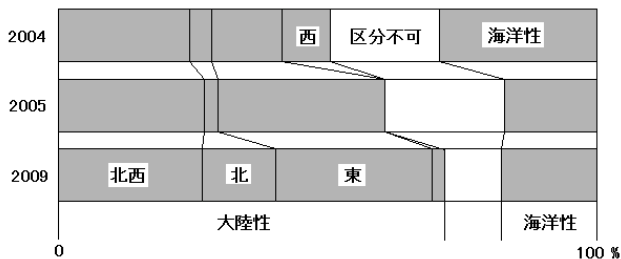


図 7. 2004, 2005, 2009 年春季の後方流積線解析により区分した移流気塊の出現割合の推移(4, 5 月の合計). 12 時間毎(9:00, 21:00)の解析結果による。

IV まとめ

2000 から 2009 年の O₃ 観測結果、2004 年および 2009 年のエアロゾル調査結果から、春季の O₃ の濃度変動について解析した。2009 年春季の高濃度 O₃ の発生については、気塊の汚染度が比較的低く、移動性高気圧に伴う大気降下が要因でないかと推測された。なお 2009 年 5 月 8 日に発生した 105 ppb の高濃度 O₃ は、nss-SO₄²⁻濃度がやや高く、同時に大陸由来の大気汚染影響もあったものと考えられた。

2009 年春季は大陸性気塊の移流割合が大きく、O₃ も高濃度となる傾向にあった。2004 年と 20 数 ppb を超える濃度差があったが、これは直接的な大陸起源の汚染影響によるものではなく、移流気塊の O₃ 濃度自体が両年で大きく異なったためと考えられた。O₃ は大陸由来の汚染影響を受けるとともに、気象に大きく依存し、気象の経年的変化に伴って濃度も推移したものと考えられた。

なお使用した国設辺戸岬酸性雨測定局の O₃ データは、環境省酸性雨対策調査の結果として得られたものです。

V 参考文献

- 1) 国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究「光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究」九州グループ(2008)九州における光化学オキシダント高濃度に関する解析
- 2) 与儀和夫・友寄喜貴・嘉手納恒・普天間朝好(2006)沖縄県におけるオゾンとエアロゾル中の非海塩イオン成分および Be-7 との関係. 沖縄県衛生環境研究所報