

沖縄県における光化学オキシダント濃度の長期的変化 (2011 年度－2020 年度)

野波秀行・城間朝彰・田崎盛也・前田美奈子・南雲春馬・友寄喜貴

Long-term Changes in Photochemical Oxidant Concentrations in Okinawa from FY2011 to FY2020

Hideyuki NOHA, Tomoaki SHIROMA, Moriya TASAKI, Minako MAEDA, Haruma NAGUMO
and Nobutaka TOMOYOSE

要旨：2011 年度から 2020 年度までの沖縄県内の一般環境大気測定局における測定結果を基に、Ox 濃度の長期的変化を把握することを目的として解析を行った。経年変化では Ox 濃度が微増傾向である一方、NOx 濃度は減少傾向であった。PO と Ox の変化率は名護局を除いて、概ね同程度であった。近年の Ox 濃度の微増傾向は、前駆物質である NOx 濃度減少による NO タイトレーション効果の低下と越境大気汚染の影響によるものと考えられた。また、CWT (Concentration Weighted Trajectory, 濃度重みづけ流跡線) 解析を行った結果、Ox 濃度が春季や秋季において高濃度になる傾向は、中国東部地域由来である越境大気汚染によるものと推測された。夏季は清浄な太平洋高気圧に覆われるため越境大気汚染が少なかったが、冬季は北西の偏西風により中国華北地域の空気が沖縄島へ流入しやすいため越境大気汚染の影響が示唆された。

Key words：光化学オキシダント (Ox), 窒素酸化物 (NOx), ポテンシャルオゾン (PO), CWT (濃度重みづけ流跡線) 解析, 越境大気汚染

I はじめに

光化学オキシダント (以下、「Ox」という.) の 2022 年度の全国における環境基準達成率は、一般環境大気測定局 (以下、「一般局」という.) で 0.1%, 自動車排出ガス測定局 (以下、「自排局」という.) で 0.0% であり極めて低い水準である¹⁾。沖縄県も同様に、全地点で環境基準を達成できていない。

Ox はオゾン (以下、「O₃」という.) を主成分とする酸化性物質の総称で、自動車から排出される窒素酸化物 (以下、「NOx」という.) や揮発性有機化合物 (以下、「VOC」という.) の光化学反応により生成する。NOx 濃度に対しては、環境への負荷の少ない低公害車の導入促進、バスやモノレール等の公共交通の利用推進等の削減対策が講じられている。しかしながら、Ox 濃度は依然として改善傾向がみられない。

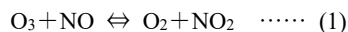
そこで近年における沖縄県内の Ox 濃度やその前駆物質である NOx 濃度の長期的変化を把握することを目的として解析を行った。また、Ox 濃度が高濃度となる際の発生源を推定するため、統計的流跡線解析である CWT (Concentration Weighted Trajectory, 濃度重みづけ流跡線) 解析を行った。

II 方法

1. 解析対象項目

NOx 濃度は、一般局の二酸化窒素 (以下、「NO₂」という.) および一酸化窒素 (以下、「NO」という.) 濃度の測定結果を用いて算出した。また、ポテンシャルオゾン (以下、「PO」という.) を用いて解析を行った。

Ox の主成分は O₃ であり、大気中では O₃≡Ox としてみなせる²⁾。この O₃ は、酸素 (以下、「O₂」という.) 存在下で NO₂ の光分解によって NO とともに生成する。一方で、生成した O₃ は、NO と反応して分解される。これらの反応は、式(1)に示すように可逆反応である。



式(1)から、O₃ を含む大気中に NO が排出されると、O₃ 濃度は減少する。NO によって O₃ が減少する効果は NO タイトレーション効果と呼ばれている²⁾。

Ox 濃度の変動要因について、Ox 濃度の変化のみに注目した場合、Ox の生成能力そのものが変化しているのか、NO タイトレーション効果による Ox 濃度の変動によるものかを判断することができない。そこで、式(1)で O₃ + NO₂ の量が保存されることに着目する。この O₃ + NO₂ は、PO と呼ばれる。PO を評価することで、Ox 濃度の変動から NO タイトレーション効果を切り分けることがで

き、実質的な Ox 濃度の評価をすることが可能となる²⁾。
 PO は式(2) により算出した。

$$[PO] = [Ox] + [NO_2] - \alpha[NOx] \cdots \cdots (2)$$

α 値は発生源における NOx 濃度に対する NO_2 濃度の比率を示しており、ここでは一般的な値^{3,4)}である 0.1 を用いた。

2. 調査地点および対象期間

測定局の配置を図 1 に示す。2011 年度から 2020 年度まで、 Ox および NOx の測定値が揃っている一般局の名護局（名護市）、与那城局（うるま市）、沖縄局（沖縄市）および那覇局（那覇市）を対象とした。

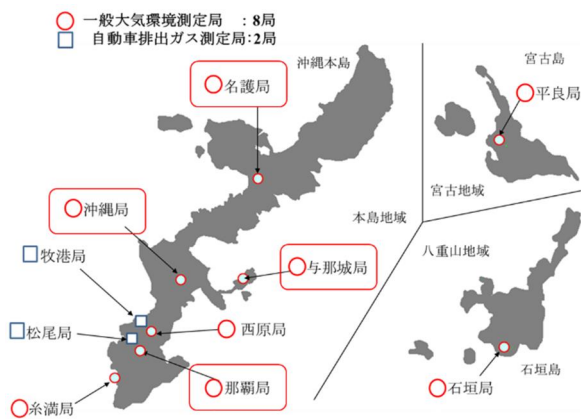


図 1. 大気汚染常時監視測定局の配置。

(※那覇局は、那覇市管轄)

3. 解析データ

Ox 濃度の長期的変化を把握する解析には、一般局の測定結果を基に作成されたⅡ型共同研究基礎解析ファイル

を使用した。指標として Ox , PO , NOx 濃度の 1 時間値データを基に、全日平均値、昼夜別平均値（昼間：5—20 時、夜間：20—5 時）を用いた。変化傾向の算出にあたっては、年間及び月間平均値を年度ごとにプロットし、最小二乗法により得られた回帰直線の傾き（ppb/年）を変化傾向とした。

また、CWT 解析に用いるデータについて、沖縄局の Ox 濃度の 1 時間値、期間は 2011 年度から 2020 年度までの 10 年分を対象とした。

Ⅲ 結果と考察

1. Ox 及び NOx 全日平均値等の経年変化

(1) Ox 全日平均値の経年変化

Ox 全日平均値の経年変化は、全地点において微増傾向であった（図 2）。本県の Ox 濃度の傾向として、春季に高濃度、夏季に低濃度となった後、秋季から冬季にかけて高濃度となる 2 山型の変動パターンがみられた。

(2) Ox 昼間平均値の経年変化

Ox 昼間平均値の経年変化は、全地点において微増傾向であった（図 3）。

(3) Ox 夜間平均値の経年変化

Ox 夜間平均値の経年変化は、全地点において微増傾向であった（図 4）。昼夜の増加率を比較すると、夜間平均値は、昼間平均値より小さかった。

(4) NOx 全日平均値の経年変化

NOx 全日平均値の経年変化は、全地点において減少傾向であった（図 5）。 Ox の前駆物質である NOx が減少傾向であるにもかかわらず、 Ox は微増傾向であることが明らかになった。

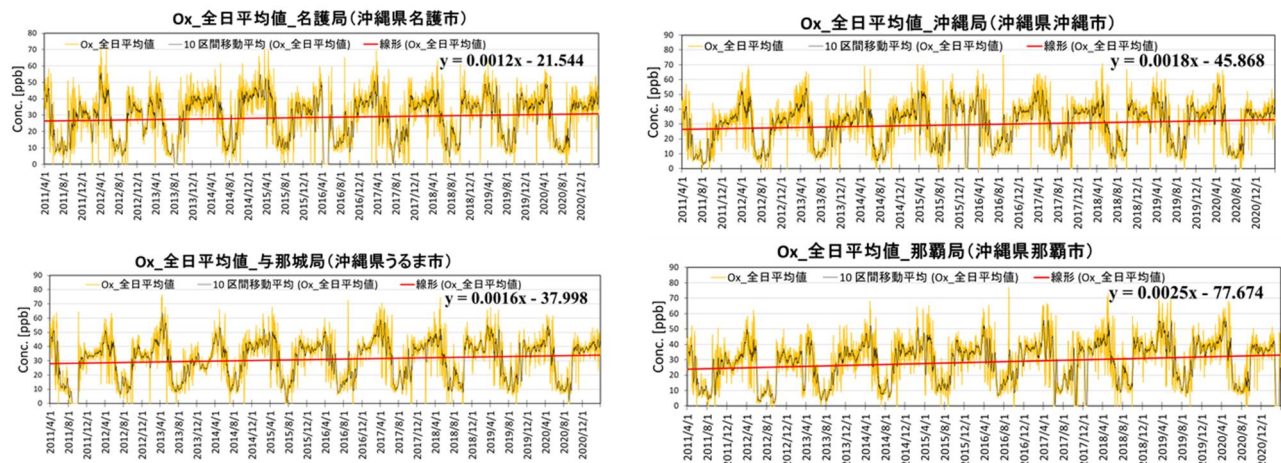


図 2. Ox 全日平均値の経年変化。

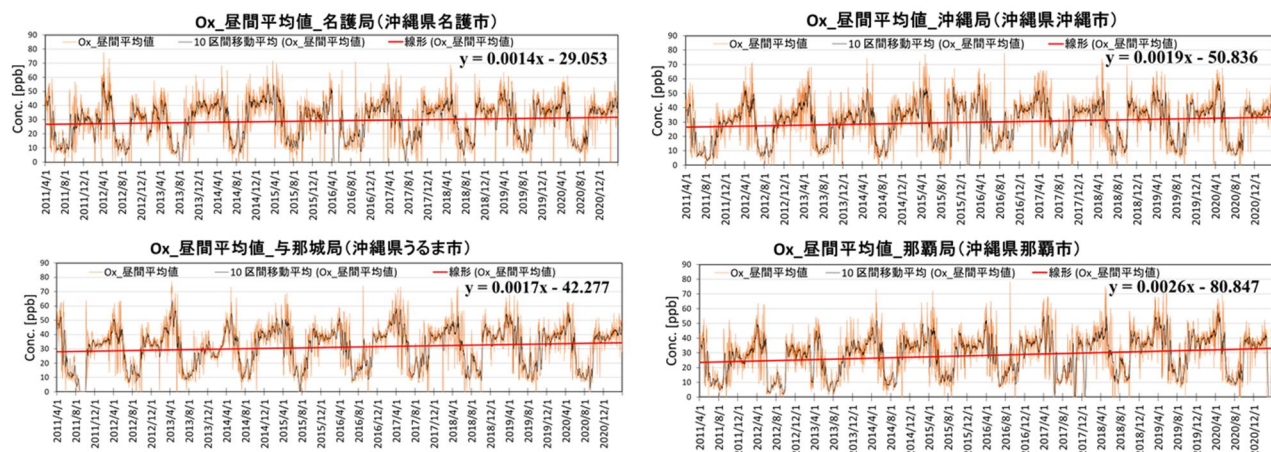


図 3. Ox 昼間平均値の経年変化。

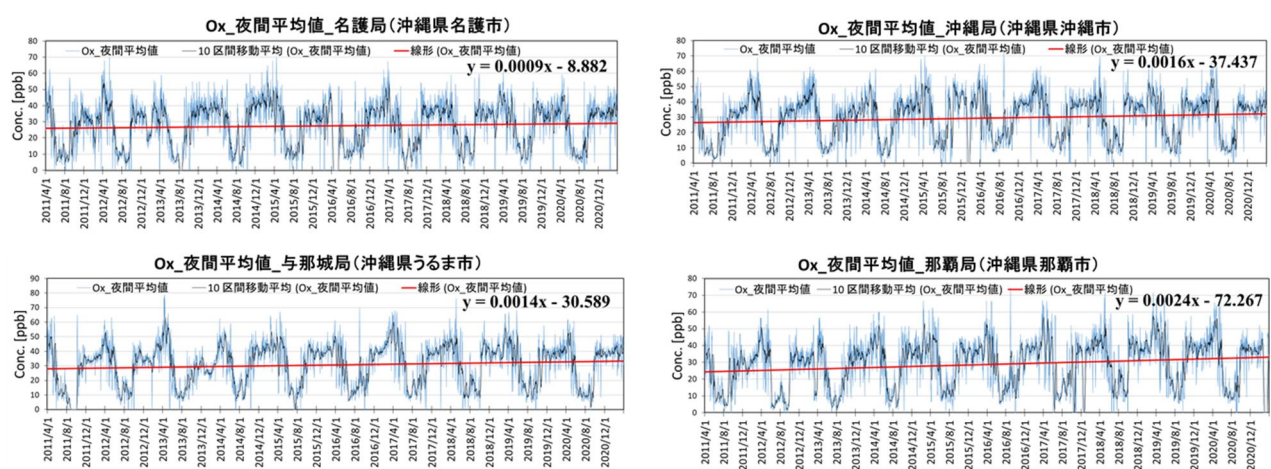


図 4. Ox 夜間平均値の経年変化。

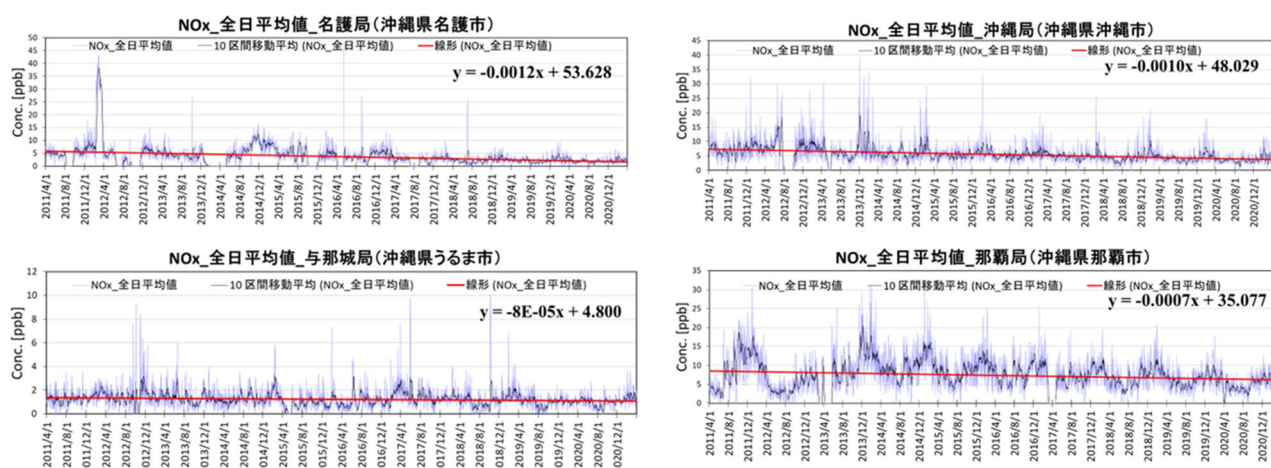


図 5. NOx 全日平均値の経年変化。

2. PO 全日平均値の経年変化

PO 全日平均値の経年変化は、Ox 全日平均値の経年変化と同様に全地点において微増傾向であった（図 6）。PO と Ox の変化率は、名護局を除き、概ね同程度であつ

た。近年の Ox 濃度の微増傾向は、前駆物質である NOx 濃度減少による NO タイトレーション効果の低下と越境大気汚染の影響によるものと考えられた。

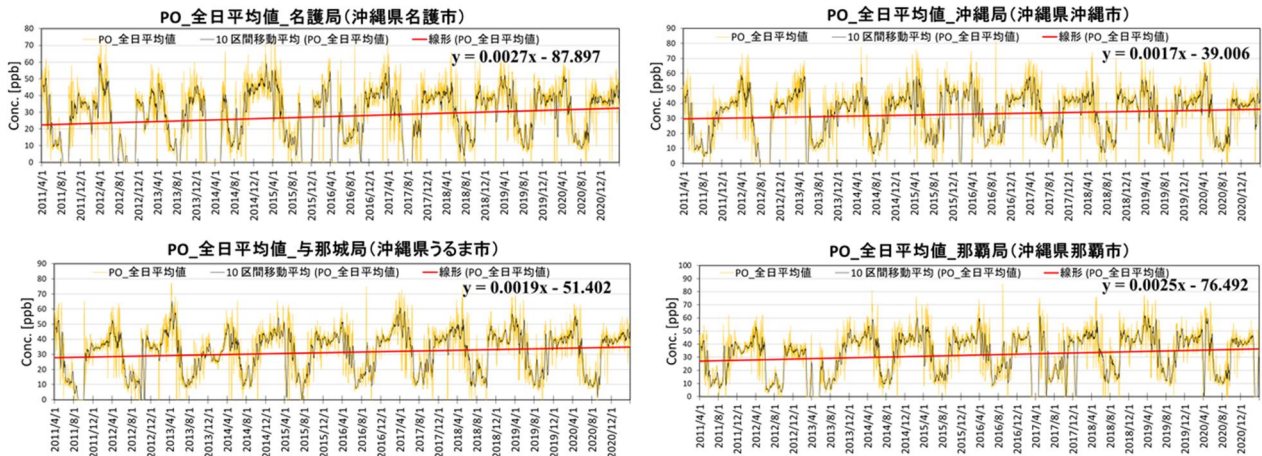


図 6. PO 全日平均値の経年変化.

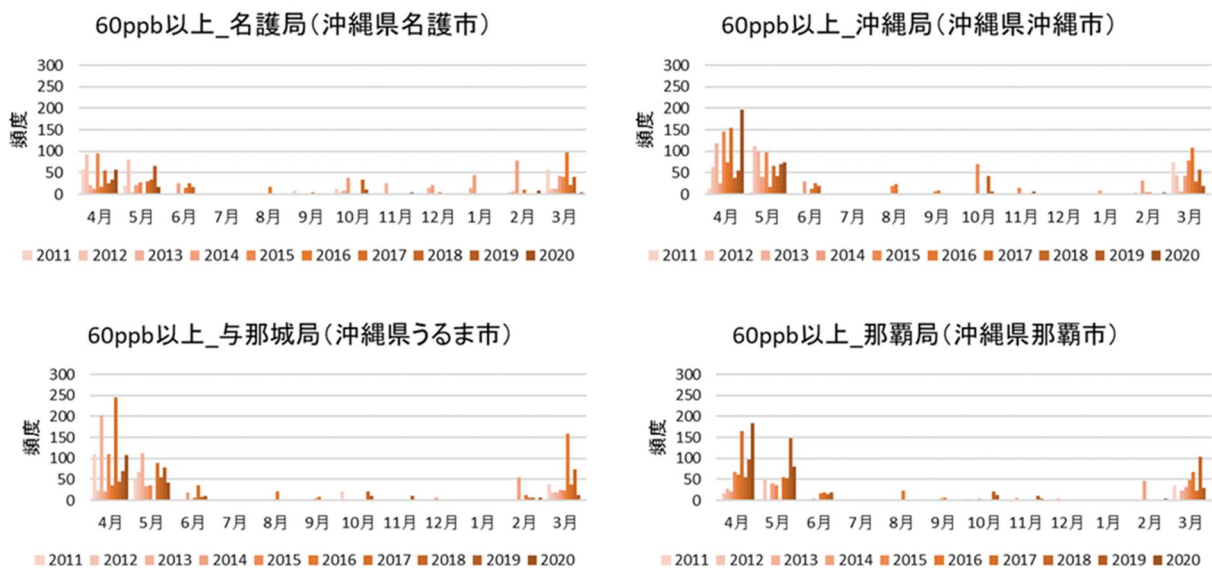


図 7. Ox 濃度 60ppb 以上の月別頻度数.

3. Ox 濃度 60 ppb 以上の月別頻度数及び CWT 解析

Ox 濃度の環境基準超過レベルである 60 ppb 以上の月別頻度数を図 7 に示す. 全地点において, 春季(3-5 月)に頻度が高く, 夏季(7,8 月)に低い傾向にあった.

Ox 濃度が高濃度となる際の発生源を推定するため, 統計的流跡線解析である CWT 解析を行った. CWT 解析は任意の領域を適当な大きさのグリッドセルに分割し, 観測点の汚染物質濃度をエンドポイント(計算した遡行時間ごとの位置)数に応じて加重平均する方法である⁵⁾. 田崎ら^{5,6)}を参考に, 流跡線解析の開始時間は毎時, 流跡線遡行時間は 5 日間(120 時間)とし, 気象データは GDAS (Global Data Assimilation System, 全球データ同化システム)を用い, 出発高度は 500m, 1000m 及び 1500m の 3 つとした. また統計的流跡線設定については, グリッドセルの範囲を 0°-50°N, 90°-160°E とし, 1°×1°のサイズ

で分割した.

CWT 解析の結果を図 8 (左図) に示す. 田崎ら⁵⁾と同様に沖縄島より北の広い範囲に発生源があると考えられた. CWT 解析結果は, グリッドセルのインデックス内にある全流跡線のエンドポイント数の総数が少ない場合は不確実性が大きくなることから, 工藤ら⁷⁾の用いた係数を参考に補正 (Weighted) を行った. 係数補正した WCWT 解析の結果を図 8 (右図) に示す. 主に中国東部地域等からの越境大気汚染による影響があると推測される. 季節ごとの WCWT 解析の結果を図 9 に示す.

春季および秋季は高気圧・低気圧が交互に東進するのに伴い, 大陸の空気が日本へ流入しやすく⁸⁾, 沖縄島において, 越境大気汚染により中国東部地域等の WCWT 値が高い値となっている (図 9 (a)および(c)).

夏季は清浄な太平洋高気圧に覆われるため越境大気汚染が少なく、大陸から通過してくるものはわずかなため、東シナ海の WCWT 値が高くなっている (図 9 (b))。

冬季は北西の偏西風により中国華北地域の空気が沖縄島へ流入しやすく、越境大気汚染の影響が示唆された (図 9 (d))。

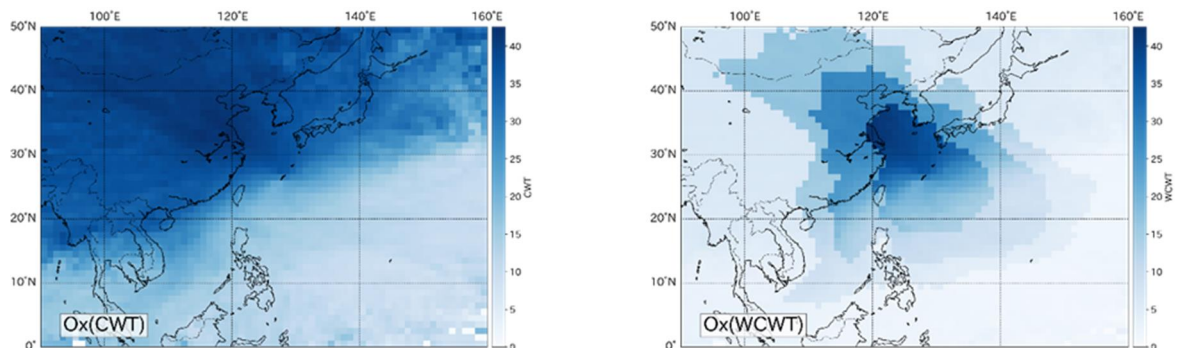


図 8. Ox の統計的流跡線の解析結果 (左図 : CWT 解析, 右図 : WCWT 解析)。

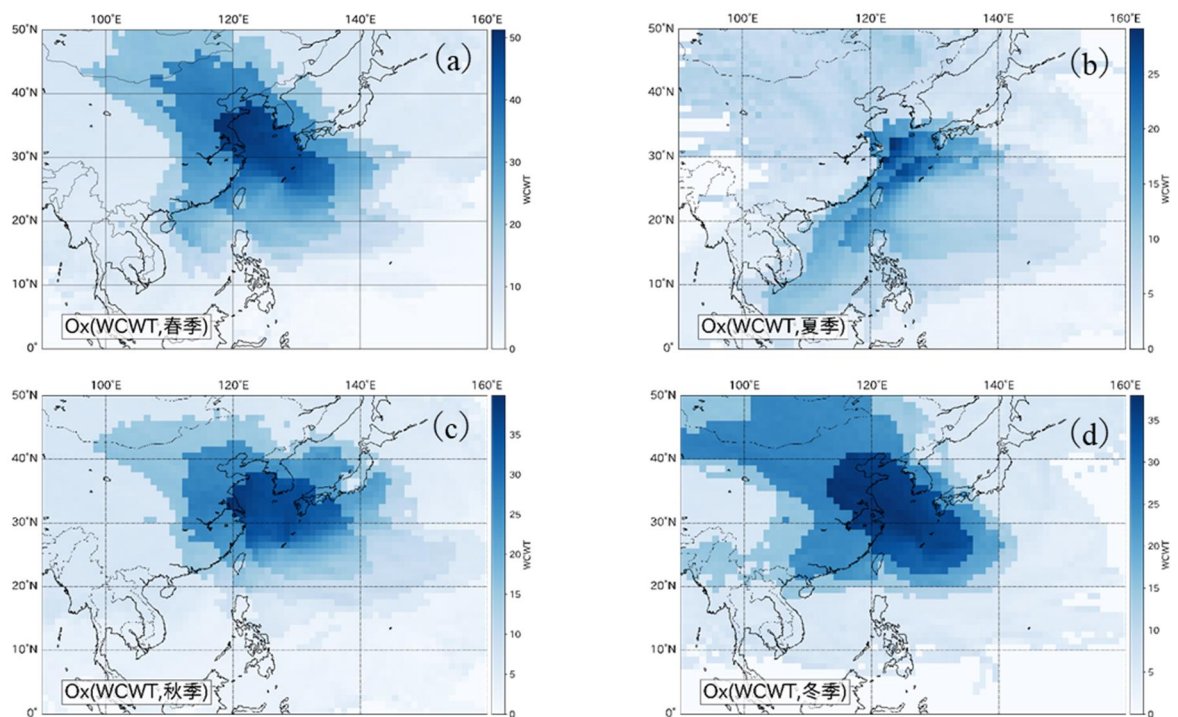


図 9. Ox の季節ごとの WCWT 解析結果 ((a) 春季, (b) 夏季, (c) 秋季, (d) 冬季)。

4. Ox 日最高出現時刻

Ox 日最高出現時刻をプロットした図を示す (図 10)。全地点において朝の時間帯 (6-9 時) は、Ox 濃度は低い傾向であった。通勤や通学等により交通量が増える時間帯であり、自動車からの排出ガスによって、NO タイトレーション効果があったと示唆される。また、一般

的に Ox 濃度の日内変動は、日射により域内で光化学反応が進み、午後の早い時間帯にピークを迎える²⁾。昼の時間帯 (12-15 時) に Ox 日最高濃度が最も多くなる傾向があり、昼間の光化学反応によるものと考えられた。

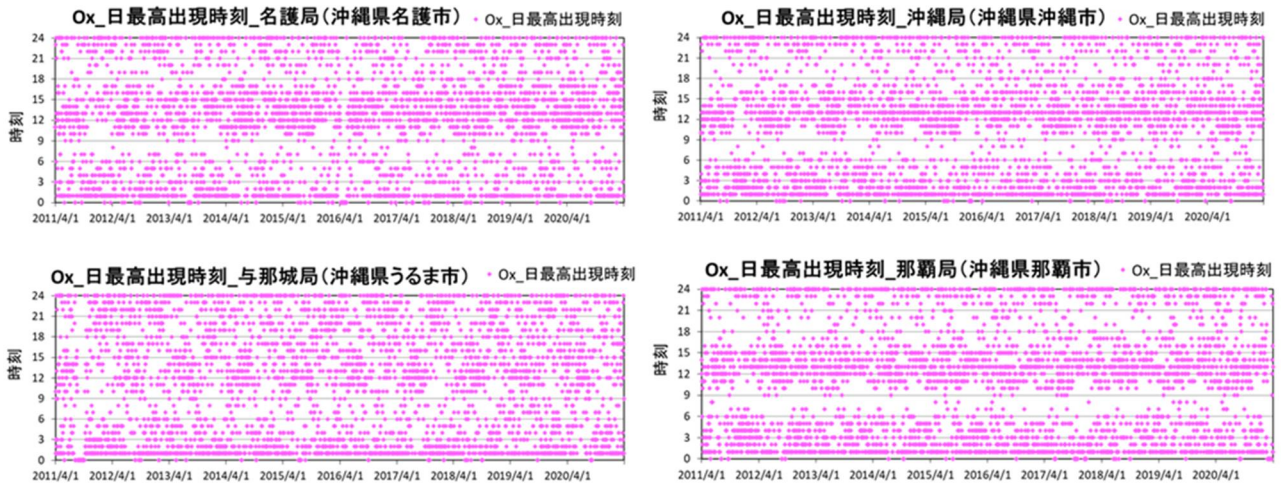


図 10. Ox 日最高出現時刻.

5. Ox, PO および PO-Ox 濃度の月別経時変化

Ox 等の月別経時変化を示す (図 11) . 名護局, 沖縄局および那覇局における Ox 濃度は, 朝の時間帯 (6-9 時) に減少がみられ, 昼の時間帯 (12-15 時) はやや高い傾向があった. PO 濃度は全地点において大きな変化はみられなかった. PO-Ox 濃度は, NO タイトレーション効果の影響を示しており, 差が大きいほど NO タイトレーションによる Ox 濃度減少が大きいことが推定できる. 名護局, 沖縄局および那覇局では, 通勤や通学等により交通量が増える朝の時間帯において, 自動車からの排出ガスによる NO タイトレーション効果の影響が示唆された. 交通量の少ない地点である与那城局では, 朝の時間帯に Ox 濃度の減少はみられなかった. また PO-Ox 濃度変化はほぼ横ばいであり, NO タイトレーション効果の影響が小さいことが示唆された.

また, 全地点において Ox 濃度および PO 濃度は, 夏季 (6-8 月) および 9 月は低い傾向であった. 春季 (3-5 月), 秋季 (10, 11 月) および冬季 (12-2 月) は夏季と比較するとやや高い傾向があった.

IV まとめ

2011 年度から 2020 年度までの沖縄県内の一般環境大気測定局における測定結果を基に, Ox 濃度の長期的変化を把握することを目的として解析を行った.

経年変化では Ox 濃度が全地点で微増傾向である一方, NOx 濃度は全地点で減少傾向であった. PO と Ox の変化率は名護局を除いて, 概ね同程度であった. 近年の Ox 濃度の微増傾向は, 前駆物質である NOx 濃度減少による NO タイトレーション効果の低下と越境大気汚染の影響によるものと考えられた. Ox 濃度の環境基準超過レベル

である 60 ppb 以上の月別頻度数は, 全地点において春季に高く, 夏季は低い傾向がみられた.

また, 統計的流跡線解析である CWT 解析を行った結果, Ox 濃度が春季および秋季において高濃度になる傾向は, 中国東部地域由来である越境大気汚染によるものと推測された. 夏季は清浄な太平洋高気圧に覆われるため越境大気汚染が少なかったが, 冬季は北西の偏西風により中国華北地域の空気が沖縄島へ流入しやすいため越境大気汚染の影響が示唆された.

Ox 濃度の月別経時変化は, 交通量の多い那覇局等において, 朝の時間帯に NO タイトレーション効果の影響が示唆された. PO 濃度は全地点においてほぼ変化がみられなかった. 交通量の少ない与那城局では PO-Ox 濃度変化はほぼ横ばいであり, NO タイトレーション効果の影響が小さいことが示唆された.

<謝辞>

本研究の解析の一部は, 国立環境研究所と地方環境研究所との II 型共同研究「光化学オキシダント等の変動要因解析を通じた地域大気汚染対策提言の試み」(2022-2024 年度)での成果を用いた. また那覇局の測定結果については, 那覇市環境保全課より提供を受けて解析を行った. 感謝いたします.

V 参考文献

- 1) 環境省 (2024) 令和 4 年度大気汚染状況について. (https://www.env.go.jp/press/press_03287.html) .2024 年 6 月アクセス
- 2) 滋賀県環境監視部門大気圏係 (2023) 滋賀県における光化学オキシダント等の濃度変動要因の把握. 滋賀県

琵琶湖環境科学研究センター研究報告書, 19:181-198.

- 3) 環境省 (2014) 光化学オキシダント調査検討会報告書～光化学オキシダントの解析と対策へ向けた指標の提言～, : 26.
- 4) 坂本祥一・熊谷貴美代・田子博 (2020) 群馬県における近年の光化学オキシダント汚染状況の変化. 群馬県衛生環境研究所年報, 52:35-42.
- 5) 田崎盛也・城間朝彰・野波秀行・前田美奈子 (2023) Pythonを用いた統計的流跡線解析. 沖縄県衛生環境研

究所報, 57:35-38.

- 6) 田崎盛也 (2022) Pythonによる流跡線解析. 沖縄県衛生環境研究所報, 56:78-101.
- 7) 工藤慎治・飯島明宏 (2017) クラスタ分析およびCWT解析を用いた東京のPM_{2.5}質量濃度の増加に影響を及ぼす地域の推定. 大気環境学会誌, 52:89-99.
- 8) 竹村俊彦 (2013) 大気エアロゾル予測システムの概略と近年の越境大気汚染. 日本風工学会誌, Vol38, No.4:426-433.

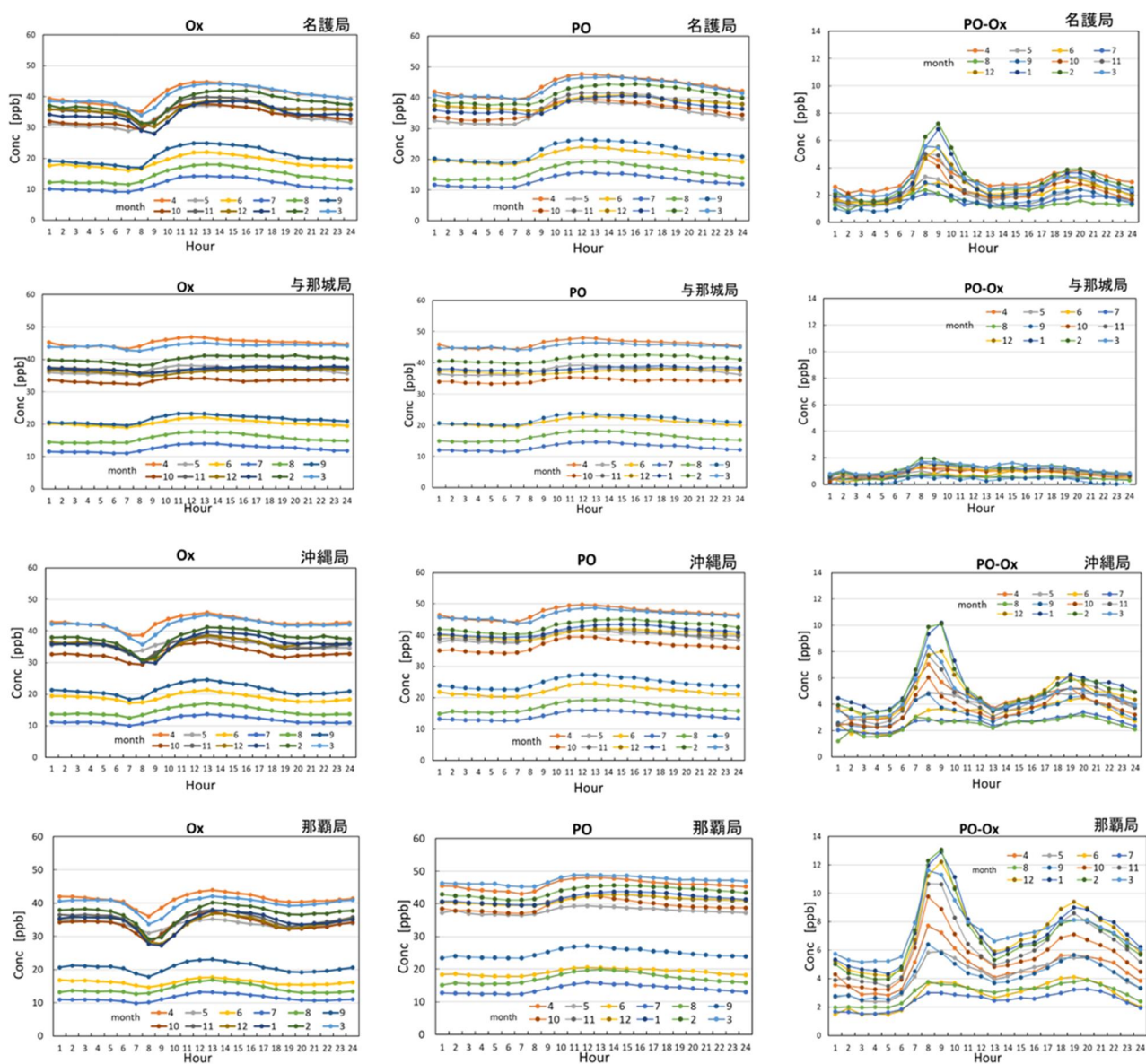


図 11. Ox, PO および PO-Ox 濃度の月別経時変化.