

大分県における光化学オキシダント濃度分布特性についての調査 (第2報)

河野 公亮、安藤 大生^{*1}、森永 由加里

Survey on distribution characteristics of photochemical oxidant concentrations in Oita Prefecture 2nd Report

Kosuke Kawano, Daiki Ando, Yukari Morinaga

Key Words：光化学オキシダント photochemical oxidant,
大気汚染常時監視 Air Pollution Monitoring Composition,

要 旨

大分県における光化学オキシダント(以下「Ox」という。)の濃度分布特性の把握を目的として、大分県内と近隣県の大気常時監視測定データ等を利用して解析を行った。その結果、大分県のOx濃度分布特性は他の九州各県に比べ瀬戸内地域の影響をより受けている可能性が示唆された。具体的には、大陸からの越境汚染の影響が少なくなる夏は、大分県沿岸部の北部や中部は他の九州各県の沿岸部にある測定局より瀬戸内地域の測定局と似たような挙動を示していた。このことが、大分県沿岸部の測定局において、地域ごとのOx濃度の差異に寄与する要因となった可能性が示唆された。

は じ め に

光化学オキシダントは、オゾン、パーオキシアセチルナイトレートその他の光化学反応により生成される酸化性物質(中性ヨウ化カリウム溶液からヨウ素を遊離するものに限り、二酸化窒素を除く)と定義されている¹⁾。

Oxは、光化学スモッグの原因物質であり、高濃度のOxに暴露されると眼や喉が刺激され、眼がチカチカする、喉の痛み等の健康障害を引き起こす。

そのため、1973年にOxの環境基準が「1時間値が0.06ppm以下であること」¹⁾と設定された。その後、排出規制によりOxの前駆物質と考えられている窒素酸化物(以下「NOx」という。)や非メタン炭化水素(以下NMHCという。)の濃度は減少²⁾したが、Ox濃度の低減状況及び環境基準達成率は良好ではなく(R5年度 全国のOx環境基準達成率 一般局0.1%³⁾)、その原因についてOx生成機構、ユーラシア大陸(以下「大陸」という。)からの越境汚染等の面から議論が進められている

また、Oxの主成分であるオゾンは放射強制力を直接あるいは間接的に持ち、大気寿命が短い物質の総称である短寿命気候強制物質(以下「SLCFs」という。)に含まれ、近年では気候変動との関連性に

についても議論が行われている³⁾。

当県でも、大気汚染防止法第22条に基づきOxの常時監視を大分県管理で10局、大分市管理で12局実施しているが県内全監視局で環境基準は未達成となっている。さらに、大気汚染防止法に基づきOx濃度の1時間値が120ppb以上となり、その状態が継続すると認められる場合に都道府県知事が発令するOx注意報が2019年5月25日に10年ぶりに大分県内(由布市)に発令⁴⁾されるなど、高濃度のOx暴露による健康リスクは依然として存在している。

前号の報告⁵⁾では大陸からの越境汚染、瀬戸内地域の影響が大分県のOx濃度に関係している可能性が示唆された。特に大陸からの越境汚染について長崎県対馬局と比較した結果、大気が大陸から来ることが多い春では長崎県対馬局のOx濃度は大分県のOx濃度を推定する判断材料として有効であることが分かった。

本報では、大分県と近隣県のOx状況を比較することで、大陸からの越境汚染以外のOx高濃度要因について検討したので報告する。

方 法

1.九州各県の一酸化窒素タイトレーション効果変動によるOxへの影響

Ox濃度の上昇の要因の一つとして一酸化窒素

※1 大分県産業科学技術センター

(以下、「NO」という。)タイトレーション効果の減少による影響があることが知られている⁶⁾。そこで、既報⁷⁾を基に九州各県のOx濃度の増減とNOタイトレーション効果の関係の検討を下記条件で行った。

期間はⅠ期：2011～2015年度、Ⅱ期：2016～2020年度として、Ⅰ期とⅡ期の変化量を解析した。地点は沖縄を除く九州各県から最低4地点を選出した合計43地点とした。各データは国立環境研究所が公表している大気常時監視測定局データ⁸⁾内の1時間値を使用した。

対象として、3～8月の夜間帯である21～5時のOx、NOx、NO測定値を採用し、各項目の21～5時の有効測定時間が6時間未満の日は除外した。さらに、測定値をⅠ期とⅡ期に分けた後、3～5月を春、6～8月を夏に分類して、季節毎に各期のOx、NOx、NO平均値を算出した。その後、NOタイトレーション効果によるOx変化量(TitrOx)を以下の式により算出した。 α は日本で推定されてきた一般的な値である0.1を採用した。

$$[\text{TitrOx}] = [\text{NO}] \cdot (1 - \alpha) \times [\text{NOx}]$$

季節毎のⅡ期平均値からⅠ期平均値を差し引き、変化量である ΔOx 、 ΔTitrOx を算出した。

2. 九州沿岸部と瀬戸内地域沿岸部のOx状況

瀬戸内地域は閉鎖的な地形と沿岸部に工業地帯が多く存在することから、大気汚染について他の地域とは異なった挙動を示すことが知られている^{9,10)}。そこで、九州沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の監視局のOx状況を調査することで大分県への瀬戸内地域からの移流の影響について検討を行った。

期間は2016～2020年3～8月、地点を九州沿岸部と山口県、広島県、愛媛県沿岸部の全32地点とした。各データは国立環境研究所が公表している大気常時監視測定局データ⁸⁾内の1時間値を使用した。

Ox常時監視データを3～5月を春、6～8月を夏として分類し、2016～2020年度の季節別のOx60ppb超過時間数と日中Ox生成量(以下、「DPOx」)平均値を地点毎に算出した。DPOxの算出は、既報¹¹⁾を参考に以下のとおり算出した。

$$[\text{DPOx}] = [\text{昼間帯Ox平均値 (6～20時のOx平均値)}] - [\text{夜間帯Ox平均値 (21～5時のOx平均値)}]$$

なお、本項目で作成した図は、国土地理院の公開する日本地図¹²⁾を加工して作成した。

3. 九州東沿岸部と瀬戸内地域沿岸部のクラスター解析

大陸からの越境汚染の影響が少ない夏の九州東沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の監視局についてフリーソフトのRを用いて、K-mean法による非階層クラスタリングを実施した。非階層クラスタリングとは、あらかじめ最終的なクラスター数(類似した特徴をもつ対象をまとめた集団の数)を設定し、その数に従って対象を分類する方法である。

期間は2016～2020年度6～8月。地点は九州東沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の全23地点とした。各データは国立環境研究所が公表している大気常時監視測定局データ⁸⁾内の1時間値を使用した。

各地点のOx常時監視データを用いて、地点毎の2016～2020年度6～8月のOx平均値、Ox60ppb超過時間数、DPOx平均値を算出し、クラスター解析用の元データを作成した。DPOxの算出方法は前項と同様の方法で実施した。次にフリーソフトのRに元データを読み込ませ、scale関数によりデータの標準化を行った。そして、最適なクラスター数を決定するために、縦軸にWCSS、横軸にクラスター数をとったエルボー図をRにより作成し、その結果から本項目で行う解析のクラスター数は2～4のいずれかが適していると考え、今回は4に決定した。最後にRを用いて、K-mean法により、クラスター数を4、使用するアルゴリズムにHartigan-Wong法を選択し、非階層クラスタリングを実施した。なお、本項目で作成した図は、前項目と同様に国土地理院の公開する日本地図¹²⁾を加工して作成した。

結果・考察

1. 九州各県のNOタイトレーション効果変動によるOxへの影響

縦軸を ΔOx 、横軸を ΔTitrOx とした関係図を作成し ΔOx と ΔTitrOx の大小関係を比較した。春の九州各県の結果を図1に、夏の九州各県の結果を図2に示す。なお、 $\Delta \text{Ox} / \Delta \text{TitrOx} \leq 2/3$ を $\Delta \text{Ox} < \Delta \text{TitrOx}$ としNOタイトレーション効果以外の地域内汚染改善等の要因がOx減少に寄与する、 $\Delta \text{Ox} / \Delta \text{TitrOx} \geq 3/2$ を $\Delta \text{Ox} > \Delta \text{TitrOx}$ としてNOタイトレーション効果以外の越境汚染の悪化等の要因がOx増加に寄与する、 $2/3 < \Delta \text{Ox} / \Delta \text{TitrOx} < 3/2$ の範囲を $\Delta \text{Ox} \div \Delta \text{TitrOx}$ としてOx変化はNOタイトレーション効果によると判断した。

春の ΔOx と ΔTitrOx の関係は県毎に異なる結果

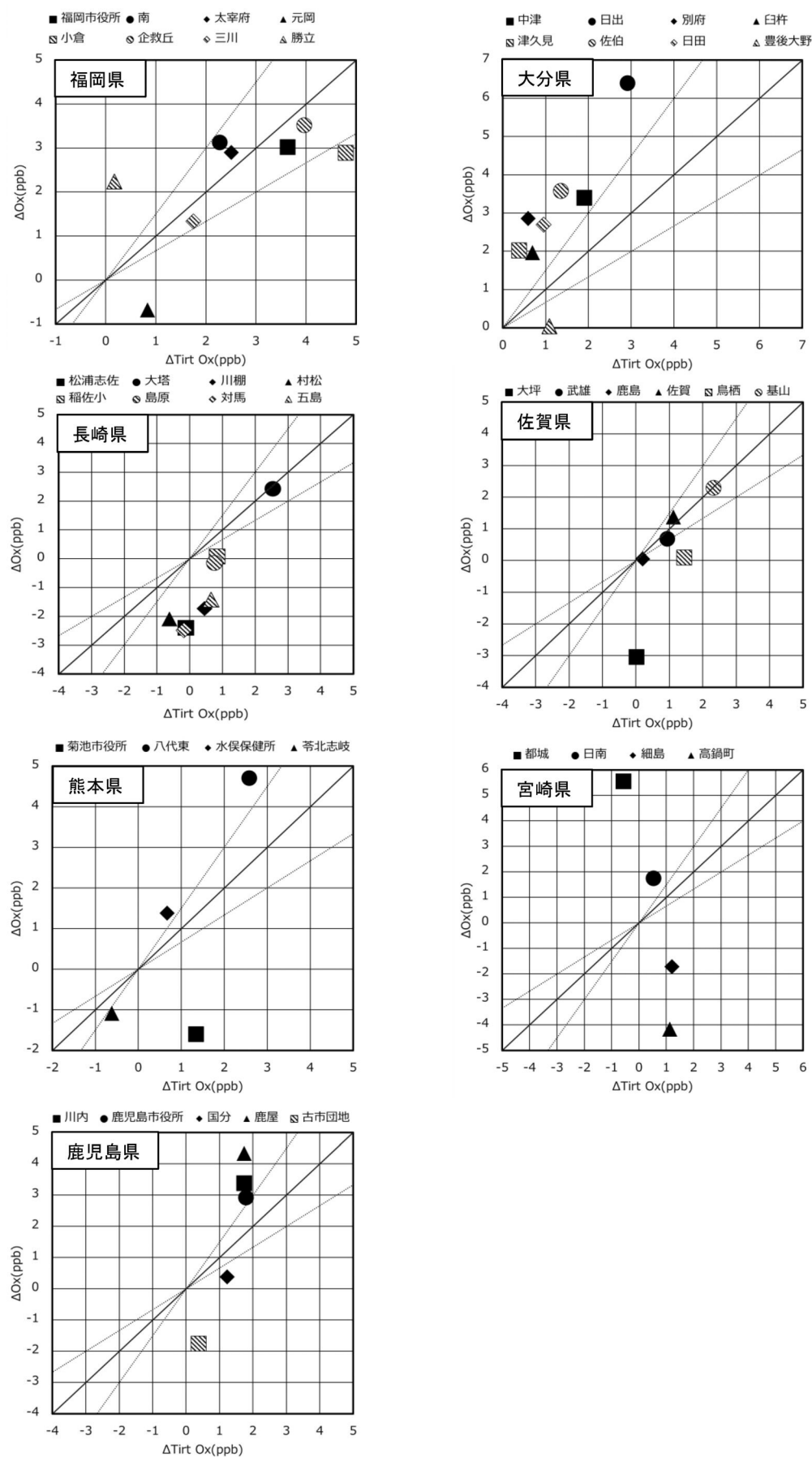


図1 九州各県の ΔOx と ΔTitrOx 関係図 (春)

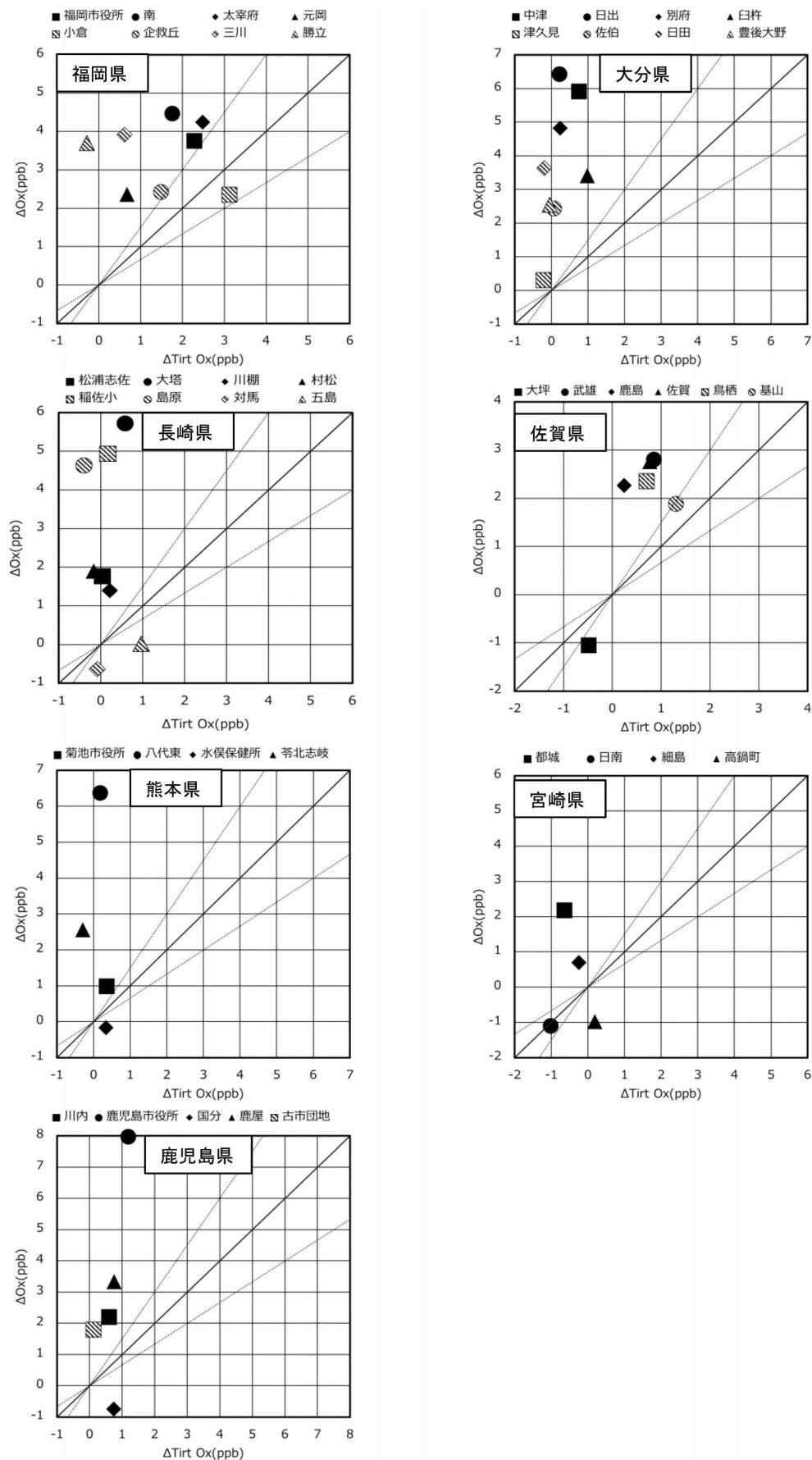


図2 九州各県の ΔOx と ΔTitrOx 関係図 (夏)

を示した。長崎県は ΔO_x が負の値、 $\Delta \text{Titr}O_x$ が正の値となり $\Delta O_x < \Delta \text{Titr}O_x$ となる監視局が多い。したがって、NOタイトレーション効果以外の要因により O_x 濃度が減少したことが示唆される。福岡県と佐賀県は、 ΔO_x 、 $\Delta \text{Titr}O_x$ が正の値となり、 $\Delta O_x \approx \Delta \text{Titr}O_x$ となる監視局が多い。したがって、NOタイトレーション効果の減少により O_x 濃度が増加したことが示唆される。大分県は ΔO_x 、 $\Delta \text{Titr}O_x$ が正の値となり、 $\Delta O_x > \Delta \text{Titr}O_x$ となる監視局が多い。したがって、NOタイトレーション効果以外の要因により O_x 濃度が増加したことが示唆される。その他の県については、県全体としての傾向は見られなかった。

夏の ΔO_x と $\Delta \text{Titr}O_x$ の関係は全県とも同様の結果を示した。全県とも ΔO_x 、 $\Delta \text{Titr}O_x$ が正の値となり、 $\Delta O_x > \Delta \text{Titr}O_x$ となる監視局が多い。したがって、NOタイトレーション効果以外の要因が O_x 濃度増加に寄与したことで O_x が増加していることが考えられる。

春の各県の結果から九州地方の夜間の大気は、NOタイトレーション効果の変動が無ければ O_x 濃度は横ばい又は減少傾向になったと考えられる。ただ、大分県はNOタイトレーション効果だけでは説明がつかない O_x 濃度増加傾向を示している。大分県は瀬戸内地域に面しており、瀬戸内地域は閉鎖的な環境による大気汚染について議論されている^{7,8)}。したがって、瀬戸内地域の影響により大分県が九州各県と異なる傾向を示している可能性が存在すると考える。

夏は大陸からの越境汚染の影響を受けにくいことを考慮すると、九州地方の夜間の大気は地域内汚染により悪化している可能性が示唆された。

2. 九州沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の O_x 状況

春と夏の九州沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の O_x60 ppb超過時間数を図3に示す。春の O_x60 ppb超過時間数は、東シナ海に面した九州北部で多く、太平洋に面した九州南部で少ない傾向にあることが確認できた。一方、瀬戸内地域沿岸部は、九州北部より少ないが、九州南部より多い傾向を示した。

夏の O_x60 ppb超過時間数は、瀬戸内地域沿岸部で多い傾向を示した。特に広島県、愛媛県の沿岸部で多い結果となった。一方、九州沿岸部では瀬戸内地域に面する大分県で多い傾向を示した。そして、九州南部が春と同様に少ない傾向を示した。

春と夏の九州沿岸部と瀬戸内地域沿岸部の DPO_x 平均値を図4に示す。春の DPO_x 平均値は瀬戸内地域沿岸部で高い傾向を示した。九州沿岸部では、九州南部が低い傾向を示した。

夏の DPO_x 平均値は瀬戸内地域沿岸部で高い傾向を示した。特に広島県、愛媛県の沿岸部で高い結果となった。九州沿岸部では、瀬戸内地域に面する大分県で高い傾向を示し、九州北部と南部が同程度の値で低い傾向を示した。

これらの結果から瀬戸内地域沿岸部は九州沿岸部と比較して地域内の O_x 生成が起りやすく、そのために大陸からの越境汚染の影響が少なくなる夏では、九州沿岸部よりも O_x60 ppb超過時間数が多くなっていると考えられる。また、夏は春と比較して大陸からの越境汚染の影響が少なくなるため、沿岸部は日中に海風により吹き込まれる近隣の海域の O_x 状況の影響が相対的に大きくなると考える。九州沿岸部では東シナ海や太平洋に面する地点ではなく、瀬戸内地域中心部に近い大分県の DPO_x 平均値が高く、夏の O_x60 ppb超過時間数が多い傾向を示している。以上のことから、大陸からの越境汚染の影響が少なくなる夏では、瀬戸内地域からの影響により他県と比較して O_x60 ppb超過時間数が多くなっている可能性が示唆された。しかし、瀬戸内地域沿岸部の全地点が同様の傾向を示していないため、単純に大分県内の要因のみで O_x60 ppb超過時間数が多くなっている可能性も存在すると考えられる。

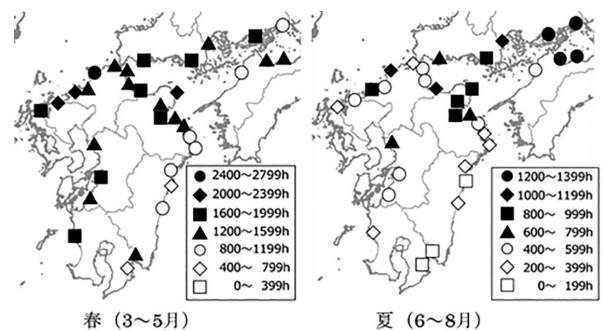


図3 O_x60 ppb超過時間

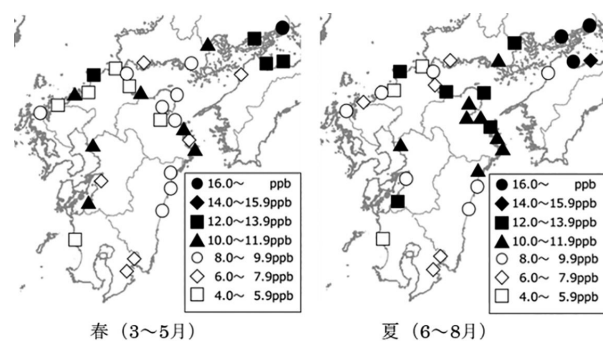


図4 DPO_x 平均値

3. 九州東沿岸部と瀬戸内地域沿岸部のクラスター解析

図5にクラスター解析地点、表1にクラスター解析用の元データ、図6に非階層クラスタリング結果を示す。非階層クラスタリング結果は、地域ごとにまとまる結果となった。また、結果の妥当性を評価する指標である総分散に対するクラスター間分散の比は0.87となり良好な値を示した。

クラスター1には、山口県の広島側の地点と大分県北部から中部の地点が分類された。クラスター2には大分県南部と九州南部、クラスター3には、福岡県と山口県の福岡側の地点と愛媛県の九州側の地点が分類された。クラスター4には、広島県と愛媛県の広島側の地点が分類された。

これらの結果から夏のOxは地域ごとに異なる傾向があると考えられる。クラスター1に分類される地点は、太平洋や日本海、東シナ海等に比べ瀬戸内地域が近いと、他のクラスターに分類される地点よりも瀬戸内地域のOx高濃度海域の影響を受けやすいと考える。クラスター2は太平洋に面している地点が分類されることから、海風により太平洋から清浄な大気が吹き込まれた結果、他と比較してOx濃度が低くなっていると考えられる。クラスター3に分類される地点は、瀬戸内地域に面しているが、東シナ海や日本海に近い。したがって、クラスター1と比較して、空気の滞留や瀬戸内地域のOx高濃度海域からの影響を受けにくく、その分Ox濃度が低い可能性があると考えられる。クラスター4に分類される地点は、面する海域が四国と中国地方に挟まれているため、地形的に大気が滞留しやすいと考えられる。したがって、沿岸部の工業地帯から排出されたOx原因物質が滞留することで他と比較して高濃度になっていると考えられる。

以上の結果から、大分県沿岸部の北部と中部は他の九州沿岸部に比べ瀬戸内地域の影響を受けることから、Ox濃度が大分県南部や九州他県より高濃度になっている可能性があると考えられる。しかし現状は、結果からの考察に過ぎないため瀬戸内地域上の風の流れやOx濃度等の更なる検討が必要である。

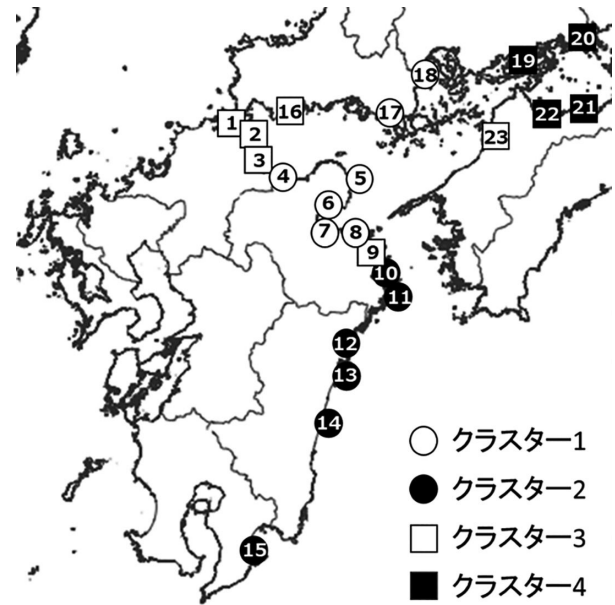


図5 クラスター解析地点

表1 クラスター解析用元データ

NO. 局名	Ox平均値 (ppb)	DPOx平均値 (ppb)	Ox60ppb 超過時間数(h)
1 福岡 小倉	25.1	5.7	303
2 福岡 曾根	26.6	9.1	508
3 福岡 苅田	25.5	7.0	423
4 大分 中津	32.0	13.7	1096
5 大分 国東	30.3	12.3	868
6 大分 日出	29.8	11.8	814
7 大分 別府	31.7	10.0	915
8 大分 三佐	28.9	10.4	724
9 大分 臼杵	25.6	12.1	554
10 大分 津久見	23.2	10.3	351
11 大分 佐伯	23.8	11.1	372
12 宮崎 延岡	21.5	10.5	308
13 宮崎 細島	22.1	8.7	195
14 宮崎 高鍋町	22.9	9.4	231
15 鹿児島 古市団地	20.8	6.4	89
16 山口 宇部	29.9	7.1	651
17 山口 光高校	29.9	11.6	801
18 山口 麻里布	29.7	13.8	1080
19 広島 大崎	33.4	16.8	1399
20 広島 松永	31.0	18.9	1290
21 愛媛 高津	32.5	15.8	1365
22 愛媛 東予	32.2	16.8	1349
23 愛媛 垣生	24.6	9.2	544

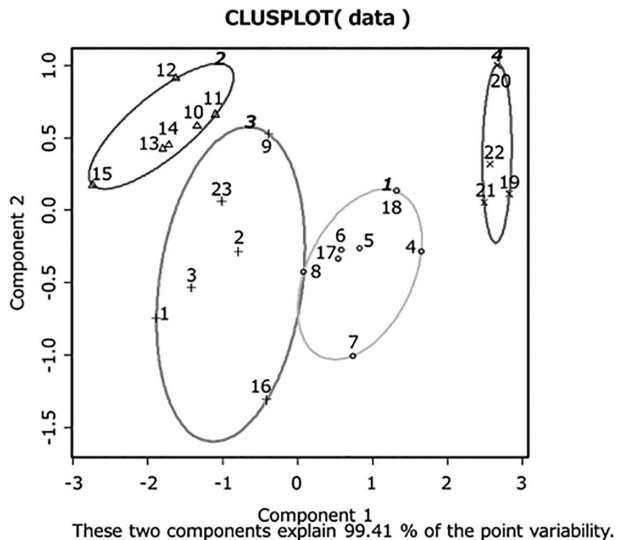


図6 非階層クラスタリング結果

お わ り に

大分県のOx濃度を隣接県と比較して解析を実施した結果、大分県は瀬戸内からの影響により九州他県と比較してOx濃度が高くなっている可能性が示唆された。今後も瀬戸内地域と大分県のOx挙動について検討を進める必要があると考える。

/#5/36.120128/140.097656/&base=blank&ls=blank&disp=1&vs=c1g1j0h0k0l0u0t0z0r0s0m0f1&d=m (2025.8.18アクセス)

参 考 文 献

- 1) 環境省：大気汚染に係る環境基準,
<https://www.env.go.jp/kijun/taiki.html>
(2025.8.15閲覧)
- 2) 環境省：令和5年度 大気汚染物質に係る常時監視測定結果, <https://www.env.go.jp/content/000315455.pdf> (2025.8.15閲覧)
- 3) 永島達也：気候変動影響と適応・緩和 第6講 気候変動が大気質に与える影響,大気環境学会誌,58(5),A113—A125(2023)
- 4) 大分県：光化学オキシダントの注意報等の発令について, <https://www.pref.oita.jp/soshiki/13350/oxidant-hatsurei.html> (2025.8.15閲覧)
- 5) 安藤大生 他：「大分県における光化学オキシダント濃度分布特性についての調査」,大分県衛生環境研究センター年報,51,55-63 (2023)
- 6) 吉門洋：都市圏周辺のオゾン濃度変化とNOxイトレーション(首都圏を中心に),大気環境学会誌,54(5),185—193(2023)
- 7) 高橋克行 他：地域ごとの光化学オキシダントに関する研究のレビューとそのとりまとめに関する調査研究, https://www.erca.go.jp/yobou/taiki/research/pdf/r05_result/r05_honpen_01.pdf
(2025.1.6閲覧)
- 8) 国立環境研究所 環境展望台 大気汚染常時監視データファイル. <https://tenbou.nies.go.jp/download/>, (参照2025-05-15)
- 9) 牧原秀明 他：閉鎖性海域周辺地域における微小粒子状物質 (PM2.5) に関する研究、愛知県環境調査センター年報、48、29～35 (2020)
- 10) 板橋秀一 他：ドローンによる瀬戸内地域における海面上PM2.5鉛直濃度分布の測定と高濃度化要因の考察、大気環境学会誌、57 (6)、129～138 (2022)
- 11) 川崎市：光化学オキシダント環境改善評価指標値について、<https://www.city.kawasaki.jp/300/page/0000144968.html>
- 12) 国土地理院：地理院地図, <https://maps.gsi.go.jp>