

福岡市における光化学オキシダントの経年変動（第2報） (1980-2003)

山崎 誠

福岡市保健環境研究所環境科学部門

Yearly Variation of Photochemical Oxidants in Fukuoka City () (1980-2003)

Makoto YAMASAKI

Environmental Science Division, Fukuoka City Institute for Hygiene and the Environment

要約

福岡市の一般環境大気測定局の1時間値データを用いてオキシダント計の変更に伴うデータの継続性を検討し問題ないことが判った。次に光化学オキシダントの経年変動について前報に引き続解析を行った。年平均値では1980年代の明瞭な増加傾向から1990年代は変動が激しく傾向が明瞭でなく、2000年以降はつきが減り上昇傾向がやや明瞭になった。年最大値は概ね横這いで近年局間の差が減少傾向であった。高濃度の時間数は局間の差が大きいが最も多かった香椎局では減少傾向、最も少なかった市役所局では増加傾向であった。福岡市西部に新設された元岡局は窒素酸化物濃度が低い清浄な地域であるが、光化学オキシダント濃度は最も高かった。

Key Words: 光化学オキシダント photochemical oxidant, 経年変動 yearly variation, 測定局 monitoring station

はじめに

前報¹⁾では福岡市における光化学オキシダント(以下Ox)の1980年度から2000年度までのデータを解析し、平均値が上昇傾向にあること、年間最大値は変わらないが高濃度の出現頻度が高くなっていること、年間では春期に高濃度になり夏季に低下する二山型であることなどを報告した。その後2003年度までのデータが蓄積されたので改めて解析を行った。また、2002年度から福岡市西区元岡に新たに一般環境大気測定局(以下、測定局)が設置され、これまで不明であった西部の田園地帯におけるOxの状況が明らかになったので、市内他地域と比較した特徴についても検討した。

なお、本報告は国立環境研究所と地方環境研究所のC型共同研究の成果の一部を使用した。

調査方法

1. 測定局データ

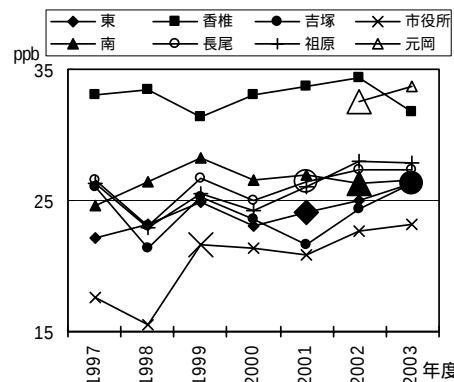
解析期間は1980年度から2003年度までの24年間とした(以下、年は年度)。使用したデータは福岡市の測定局8局の1時間値データである。測定局の位置を図1に、属性情報を表1に示す。香椎、吉塚、市役所、祖原(旧名称:西)、元岡の6局はおおむね博多湾の海岸線と平行に並んでいる。南、長尾の2局はやや内陸部に位置している。

表1 測定局の属性情報

局名	東	香椎	吉塚	市役所	南	長尾	祖原	元岡
用途地域	一種住居 中学校校庭	一種低層住居 小学校校庭	準工業 小学校校庭	商業 市役所屋上	一種住居 小学校校庭	一種住居 小学校屋上	一種住居 病院屋上	調整 中学校校庭
地上高	4m	6m	6m	3.0m	5m	9m	1.0m	5.4m
測定開始	1973/3/25	1983/4/1	1971/9/14	1970/9/12	1973/3/1	1974/3/25	1971/9/14	2002/4/1
測定方法	湿式	湿式	湿式	湿式	湿式	湿式	湿式	湿式
湿式自動洗浄	~1987/3/31	~1990/2	~1989/3/31	~1984/11	~1988/3/31	~1987/3/31	~1990/2	
乾式	2001/4/1~	1990/2~	~2003/3/31	~1999/3/31	2002/2~	2001/3/31	1990/2~	2002/4~



図1 測定局位置図

図2 Ox 濃度年平均値と測定方法
マーカー大は乾式変更年度

Ox の測定方法は、前報の時点では市役所局のみが紫外線吸収法（以下、乾式）でその他の局は吸光光度法（以下、湿式）であったが、順次乾式へ更新され、2003 年末時点では香椎、祖原局のみが湿式である。

2. 解析方法

ほぼ前回の解析方法を継承した。1 時間値データを国立環境研究所から提供されたデータ集計・解析プログラムを用いて処理し、年平均値経年変動、年最大値経年変動、高濃度の年間時間数を求めた。

結果および考察

1. 測定方法による差

測定局の Ox 計の測定方法は湿式の吸光管自動洗浄無しから湿式自動洗浄付き、さらに乾式へと変更されてきた。測定方法の変更によりデータが変わるとすれば更新前後でデータの継続性がないことになり、長期にわたるデータ比較ができないことになる。前報では湿式の自動洗浄無しから湿式自動洗浄付への変更時点でのデータ継続性について検討し継続性有りと判断した。その時点で乾式へ変更されていたのは市役所局のみであった。その後 4 局が変更されたので、乾式変更でのデータ継続性を検討した。理論上は湿式オキシダント計から乾式オゾン計への変更で窒素酸化物の影響がなくなり測定値が下がるはずであり、そのような報告もある²⁾。しかし実際には乾式の測定値が高くなることが多いと言われている。これには高濃度、低濃度での応答速度の差、乾式と湿式のメンテナンス性の差によるものと思われる。乾式への変更時に長期間並行運転しデータを比較した事例はこれまでに無く、現在も議論の的となっている。そこで今回は年平均値の変化から差があるのか検討を試みた。図 2

表2 湿式Ox計から乾式Ox計の更新に伴うデータの継続性の検討

年度	95%信頼限界	東	香椎	吉塚	市役所	南	長尾	祖原
1999	4.4 ~ 0.7	1.7	-2.0	3.9	6.1	1.8	3.7	2.6
2001	2.3 ~ 0.3	1.0	0.6	-2.0	-0.5	0.4	1.4	1.9
2002	1.9 ~ 0.3	0.9	0.6	2.7	1.8	-0.7	1.0	1.9
2003	2.5 ~ 0.4	1.3	-2.6	2.0	0.5	0.2	0.0	-0.1

7局の年平均値の前年度との差の標準偏差から母集団の95%信頼限界を求めた。
色塗りが更新年、外れ値を太字斜体で示した。

に当初から乾式を導入した元岡局を除く7局の1997年以降の年平均値を示す。この中で乾式へ変更した年を大きなマーカーで示す。表1で示したように本市では機器更新は概ね年度末にされるため更新年と前年の比較は年度単位で差し支えないと考えられる。5局のうち更新前後の年平均値で増加したのは市役所局の6.1ppb、吉塚局2.0ppb、長尾局1.4ppb、東局の1.0ppbの4局で、減少したのは南局の-0.7ppbであった。ただ前報で示した全体的な濃度上昇傾向の中での評価が必要である。そこで、市内7局でのOxの年毎の変化は似ているという前提で、表2に示すように機器を更新した1999、2001、2002、2003年について7局の年平均値の前年度との差の標準偏差から母集団の95%信頼限界を求め、更新した局での差を決定した。その結果1999年の市役所局と2002年の南局が信頼限界から外れたが、更新時が全て外れ値というわけではなく、偏差も一定の傾向はなかった。更新時以外でも同様に外れ値が出ており、測定方法の違い以外の要素が大きいことを示している。従ってデータの継続性に問題はないと考える。

2. 経年変動

1) 年平均値

図3にOx濃度年平均値の経年変動グラフ、表3に年平均値の変動を直線回帰させた時の傾き、表4にその傾

きの検定結果を示す。年平均値は全体として増加傾向であるが、1980年代は平均増加率1.2ppb/年で増加傾向が明らかであったのに対して1990年代は増加率が平均0.1ppb/年と小さく変動も大きかったため有意とは言えなかった。2000年以降は平均増加率0.7ppb/年と再び増加傾向が見られた。測定局別では増加傾向が続いているのは東、吉塚、市役所、長尾、祖原、元岡の6局で、香椎局はやや低下、南局はほぼ変わらない。但しいずれの局も変化幅が小さかった。市役所局は依然として最低濃度であった。新設の元岡局はこれまで市内で最も高濃度になりやすかった香椎局と同程度の濃度であった。

元岡局の大気環境を示すため、図4に各測定局の窒素酸化物（以下、NO_x）年平均値の経年変動を示す。元岡局は他の測定局の約半分の13ppbであった。周囲に発生源もなく交通量も多くないため窒素酸化物が低濃度の郊外部の測定局であり、今後もO_x濃度は市内の局のうち最も高いレベルで推移するものと思われる。しかし現在九州大学の元岡・桑原地区への移転が進められており、将来は周辺の都市化が進行する可能性があり、大気環境も変化してゆく事が考えられる。

2)年最大値

図5に年最大値の経年変動を示す。全体的には横這いと言えるが、1999年以降光化学オキシダント注意報発令基準である120ppb以上の高濃度が出現せず比較の変動が小さくなった。しかし2000年以降の傾きは祖原局が横這いの他は1.0～4.3ppb/年の上昇傾向が伺えた。測定局間では平均値同様香椎、元岡局が高かったが、平均値や次に述べる高濃度の時間数ほどの差はなかった。測定局間のばらつきは図6に示すように異常に大きな年もあるが基本的に減少傾向にある。ばらつきが少なくなった事は、本市のO_xに占める地域的な光化学反応によるO_x生成の割合が減少しているとも考えられる。これを確認するためには広域移流のO_xと地域生成のO_xの切り分けとシミュレーションによる確認が必要と考えられる。現在本市も参加している国立環境研究所と地方環境研究所のC型共同研究でも検討中であり、その成果が期待される。

3)高濃度の出現時間数

図7にO_xが環境基準値である60ppb以上になった時間数の経年変動を示す。前報で1980年代後半以降変動が大きくなったと報告したが、その後2003年までのデータの追加で、測定局別では香椎局での近年の減少傾向と市役所局の増加傾向が顕著に認められた。市役所局は図4に示したようにNO_x濃度が経年的に減少傾向にある。NO_xはO_x生成の原因物質であるが分解物質でもあり、平均濃度で見ると負の相関があることが示されており²⁾、このことが市役所局でのO_x高濃度時間の増加に寄与し

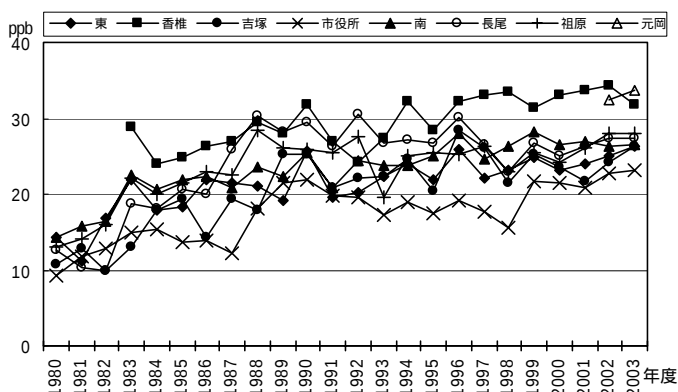


図3 O_x濃度の年平均値経年変動

	東	香椎	吉塚	市役所	南	長尾	祖原	元岡	全体
全期間	0.42	0.41	0.59	0.44	0.46	0.59	0.42		0.47
1980-1990	0.95	0.65	1.40	1.01	0.92	2.12	1.38		1.21
1990-2000	0.17	0.57	0.17	-0.05	0.43	-0.37	-0.07		0.12
2000-2003	1.05	-0.36	1.08	0.72	-0.10	0.82	1.30	1.20	0.71

	東	香椎	吉塚	市役所	南	長尾	祖原	元岡	全体
全期間	0.79	0.77	0.80	0.79	0.86	0.68	0.71		0.77
1980-1990	0.79	0.64	0.89	0.84	0.87	0.95	0.92		0.84
1990-2000	0.28	0.61	0.22	-0.09	0.67	-0.56	-0.11		0.15
2000-2003	1.00	-0.42	0.72	0.86	-0.44	0.93	0.94		0.51

注) 太字斜体は有意水準95%で有意なもの

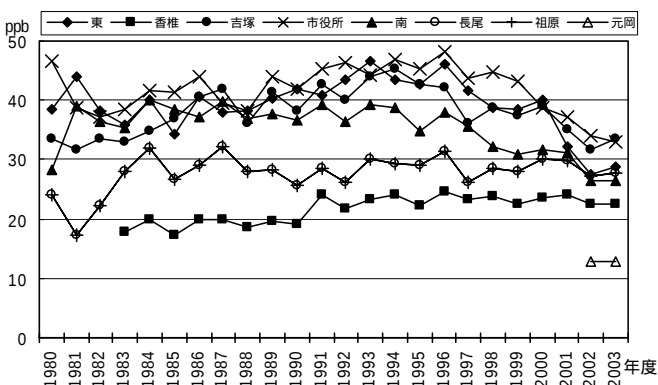


図4 NO_x年平均濃度の経年変動

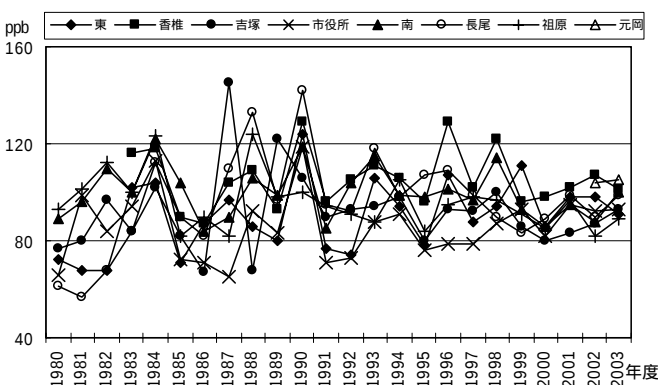


図5 O_xの年最大値の経年変動

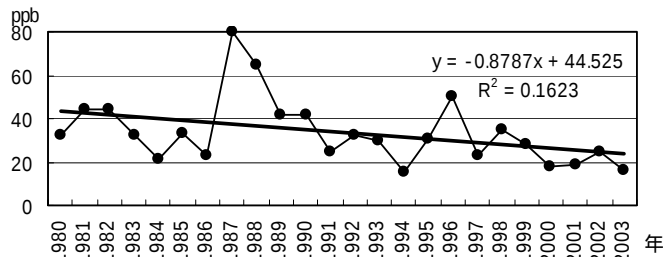


図6 O_x年最大値の局間差

ていると考えられる。香椎局での時間数の減少の原因については NO_x 濃度は変動がなく、O_x 生成原因物質である非メタン炭化水素濃度³⁾は O_x との関連性は全く見出せず今後の検討課題である。元岡局は平均値、最高値、高濃度時間数ともに増加しているが設置後 2 年であり変動傾向を把握するにはもう少し長期データが必要である。

ま と め

福岡市の一般環境大気測定局での光化学オキシダントの 1 時間値データを使用して経年変動を検討した。

まず測定方法の変更の影響を検討し湿式から乾式へ測定方法が変更されてもデータの継続性に問題はなかった。

1980 年以降の O_x 年平均濃度の経年変動は、1980 年代は顕著な増加傾向がみられた。1990 年代に入ると増加傾向が小さく年毎、測定局毎の変動が大きくなった。2000 年以降は変動が小さくなり再度増加傾向が大きくなった。

新設の元岡局は西区の田園地帯に位置し清浄な地域であり NO_x は非常に低濃度であったが、O_x 濃度は香椎局と同じく市内最高レベルであった。

O_x の年最大値は全体的には横這いで、特定の局が突出して高くなる現象は近年見られず、測定局間の濃度差は減少傾向であった。

環境基準値以上の濃度の時間数は 1980 年代後半から局間の差が非常に大きくなり、香椎局、元岡局が多く市役所局が少ないが、香椎局は減少傾向、市役所局は増加

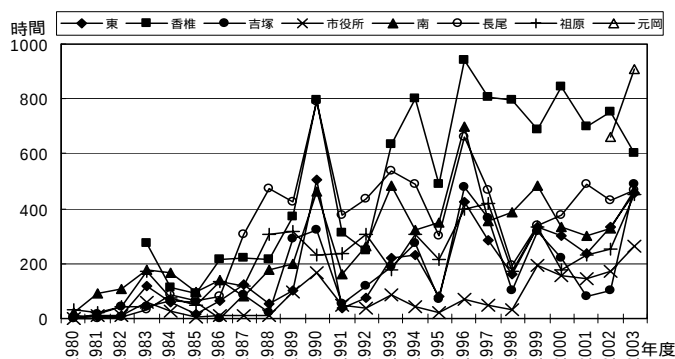


図 7 O₃ 60ppb 以上の時間数の経年変動

傾向であった。市役所局の増加傾向は NO_x の減少との関連性が考えられるが、香椎局での減少傾向は今後の検討課題である。

文 献

- 1) 山崎誠：福岡市における光化学オキシダントの経年変動（第 1 報），福岡市保健環境研究所報第 28 号，93-96，2003
- 2) 若松伸司編：西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究，国立環境研究所研究報告第 184 号，国立環境研究所，108 及び 222, 2004
- 3) 福岡市環境局：平成 16 年度版ふくおかの環境，148, 2004