

沖縄県におけるエアロゾルと光化学オキシダントの経年変化

Temporary Trends of Aerosol and Photochemical Oxidant in Okinawa

与儀和夫, 嘉手納恒, 友寄喜貴, 普天間朝好, 金城聰子

Kazuo YOGI, Hisashi KADENA, Nobutaka TOMOYOSE, Tomoyoshi FUTENMA, Akiko KINJO

要旨 大陸における大気汚染物質排出量の増加が、越境大気汚染として、本県の大気環境にどの程度の影響を与えていているのか、エアロゾルとして浮遊粉じん(SP)または浮遊粒子状物質(SPM)および光化学オキシダント(O_x)について経年変化状況を報告する。本県の大気常時監視は本土復帰まもない1976年に開始したが、当初より測定を継続している与那城局の浮遊粉じん(1990年度以降は浮遊粒子状物質)、沖縄局、石川局の光化学オキシダントおよび2000年度より開始した辺戸岬酸性雨測定期のオゾンについて解析した。

浮遊粉じん、浮遊粒子状物質は特に夏季～秋季は台風等の影響の有無によって大きく変動するため、その傾向は明確ではなかつたが、春季の3月、4月については増加傾向がみられた。また広域の浮遊粉じんおよび浮遊粒子状物質の濃度上昇(最高値が $100 \mu g/m^3$ 以上を超える、複数の測定期で観測)を煙霧または黄砂として集計した結果、春季の3月、4月の発生頻度が高く、また特に2000年度以降増加していた。光化学オキシダントまたはオゾンはポテンシャルオゾンとして、経年変化を求めた。年間の濃度増加率は $0.56 ppb/yr$ 、また大陸影響の大きい春季3月～5月の増加率は約 $0.9 ppb/yr$ であった。

Key word 浮遊粉じん、浮遊粒子状物質、光化学オキシダント、越境大気汚染、沖縄

I はじめに

大陸における大気汚染物質排出量の増加は、酸性雨、高濃度の光化学オキシダントの発生など、越境大気汚染として、周辺地域の環境に与える影響は大きい^{1), 2)}。本県においても、大陸からの汚染大気移流による環境基準を超える光化学オキシダント、硫酸塩その他の汚染物質からなるエアロゾルによる視程低下または煙霧の発生はしばしば観測される。沖縄県では、祖国復帰後間もない1976年に、大気汚染物質の常時監視を開始した。本県の大気環境が、主に大陸を起源とする大気汚染物質の影響をどのように受けてきたのか、浮遊粉じん(または浮遊粒子状物質)および光化学オキシダントの過去における濃度の推移状況について報告する。

II 方法

光散乱法による浮遊粉じん(SP)の測定は1976年に開始された。1983年からは順次 β 線吸収法による浮遊粒子状物質(SPM)の測定に更新し、現在はすべてSPMとなっている。本島内での測定期数は、廃止局を含め、延べ15局であった。そのうち測定開始が最も初期にあたり、測定地点の移動がなかったこと、また周辺環境の変化も比較的少ないと考えられる与那城局(うるま市)の測定結果を用いて、浮遊粉じんまたは浮遊粒子状物質について経年変化をみた。測定法および期間は以下のとおりである。

浮遊粉じん(SP) : 1976～1986

浮遊粒子状物質(SPM) : 1990～

与那城局は宮城島桃原公民館内にあり、石油備蓄基地に隣接する。海中道路(埋立て)によって、本島と陸続きであり、1982年には隣接する伊計島との間に伊計大橋も完成した。伊計島の観光化に伴い特に夏季はローカル影響の増加が考えられるが、与那城局の窒素酸化物濃度の月平均値は年間をとおして $0.001 \sim 0.002 ppm$ 程度で、その影響は小さく、清浄な地点といえる。しかし海岸が近く、気象条件によっては、海塩粒子の影響を受けやすい。

煙霧または黄砂は広域の現象のため、発生時には複数の測定期で、ほぼ同時に、同様の濃度上昇が観測される。煙霧または黄砂の過去30年間の発生件数について集計した。今回は濃度の最高値が1局以上で $100 \mu g/m^3$ を超え、高濃度(およそ $70 \mu g/m^3$ 以上)が一定時間(数時間～1日以上)継続したもの

を集計した。なお広域の濃度上昇は、台風襲来時にも観測されるが、測定期間の濃度差も大きく、これは集計から除外した。台風通過後、大陸からの汚染大気の移流によるものと判断されるものは煙霧³⁾とした。



図1 浮遊粉じん、浮遊粒子状物質と光化学オキシダント、オゾンの測定地点と測定期間。

光化学オキシダントはローカルな汚染物質である窒素酸化物の影響を受けやすい。那覇、沖縄、石川の3局で、常時監視開始当初より、長期の測定がなされているが、窒素酸化物影響の大きい那覇局を除く沖縄、石川局の測定結果について解析した。また2000年度から環境省の辺戸岬酸性雨測定所でオゾンの測定が開始されたので、この測定結果も合わせて用いた。沖縄局はコザ保健所内に設置されていたが、保健所の移転に伴い、2000年度からは中部福祉保健所内に設置された。この際吸光光度法から紫外線吸収法に機器を更新した。石川局は途中欠測年もあるが、1977年から1995年(石川保健所廃止)まで継続した。辺戸岬は本島北端にあり、本島内では最も清浄な地点といえる。

各測定期間の測定法および期間は以下のとおりである。

沖縄局(0_x 1981~2001 0₃ 2001~)

石川局(0_x 1977~1995)

辺戸岬酸性雨測定所(0₃ 2000~)

上記のように、測定法は湿式(吸光光度法)による光化学オキシダント(0_x)の測定から、乾式(紫外線吸収法)によるオゾン(0₃)の測定に変更されているが、ここでは区分せずにデータを使用した。また異なる測定期間および年代で大気環境すなわち窒素酸化物の濃度も異なり、光化学オキシダントに与える影響も異なる。測定期間または年代間の測定結果の比較解析が可能となるよう、ポテンシャルオゾン(PO)を用いた。

$$PO = [O_3] + [NO_2] - 0.1[NO_x]^4$$

これはローカル汚染の影響を受ける以前の移流気塊の(バックグラウンド)オゾン濃度を近似するものといえる。

III エアロゾルの経年変化

与那城局の浮遊粉じん、浮遊粒子状物質濃度の月間平均値の経年変化を図2に示す。濃度の季節変化が大きいと思われるため、毎月に経年変化を示した。春季の3月、4月に粉じん濃度の増加傾向がみられた。5月～夏季～秋季は濃度変動が大きく、増加の有無は明確でないが、これは台風や悪天候時に海塩等による影響で浮遊粉じんまたは浮遊粒子状物質濃度が大きく上昇するためと考えられた。大陸影響による経年変化量を得るには、月間値のみの解析では困難であった。図2において台風の影響によって濃度増加があったと思われるものは区分して示した。増加傾向がみられた4月の浮遊粉じんおよび浮遊粒子状物質の増加率はそれぞれ0.70, 0.37 $\mu g/m^3/yr$ となった(図2)。平均0.55 $\mu g/m^3/yr$ とすると、30年間で約16 $\mu g/m^3$

増加したことになる。

図3に、1977～2006年度まで、煙霧または黄砂の30年間の発生状況を示す。煙霧は春季および秋季に発生することが多く、また台風通過後の大陸からの汚染大気の移流によっても発生する。図3から、最初の10年間(1977～1986)では3回、次の10年間(1987～1996)で17回、最近の10年間(1997～2006)は53回と大幅に増加している。1局以上で最高濃度100 $\mu g/m^3$ 以上の条件付きであるが、特に2000年度以降、春季3月～4月に煙霧(時には黄砂)と思われる現象が頻発するようになった。

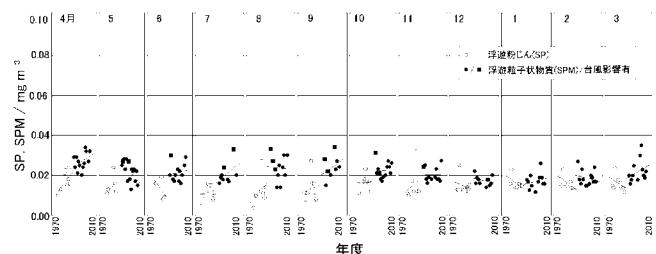


図2 月毎の浮遊粉じん、浮遊粒子状物質濃度(月間平均値)の経年変化。

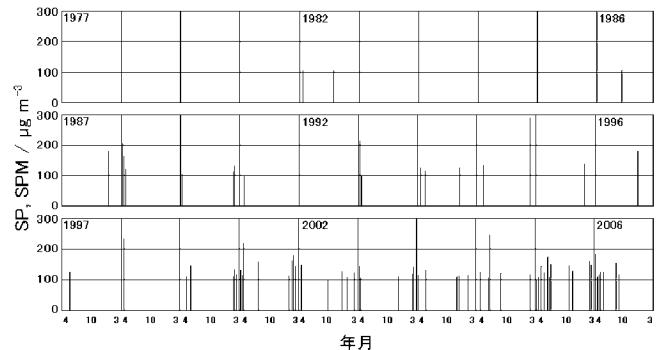


図3 1977～2006年度の煙霧(または黄砂)の発生状況(1測定局以上で最大濃度が100 $\mu g/m^3$ を超えた場合)。

IV 光化学オキシダントの経年変化

光化学オキシダントは大陸性気塊の影響の大きい秋季～冬季～春季に高く、海洋性気塊の卓越する夏季に低くなる季節変化を示す。季節毎の傾向が明確になるよう、毎月の経年変化を図4に示した。また異なる地点、年代での比較が可能となるよう、ポテンシャルオゾンを用いた。沖縄局、石川局はオキシダント濃度として、昼間の1時間値の月平均値を用い、二酸化窒素(NO₂)および窒素酸化物(NO+NO₂)については月平均値を用いて、ポテンシャルオゾン濃度を計算した。辺戸岬酸性雨局はオゾン濃度として1時間値の月平均値を用いた。図4からおよそ年間をとおしてポテンシャルオゾン濃度は増加傾向にあり、特に春季(3月～5月)と秋季の増加率が大きい。また、この数年間は

濃度の低下傾向がみられるが、図4のグラフに示した回帰直線の傾きが、光化学オキシダントの過去25年間の月毎の年間増加率(ppb/yr)を表すものとすると、春季の4, 5, 3月が、それぞれ0.87, 0.89, 0.93 ppb/hrと、約0.9 ppb/hrとなった。また増加率の年平均は0.56 ppb/hrとなった。図4の回帰式から計算した1980年度～2005年度(25年間)の光化学オキシダント濃度の増加量を図5に示す。春季の4月, 5月, 3月の濃度増加は0.022～0.023 ppmとなり、4月, 5月の月平均濃度は0.050 ppmを超えた。年間の平均濃度は0.025 ppmから0.039 ppmと、25年間で0.014 ppmの増加となった。

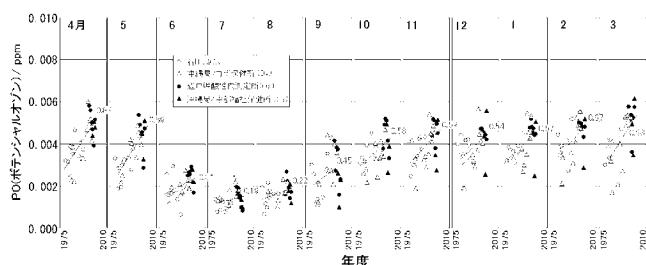


図4 月毎のポテンシャルオゾンの経年変化(石川局 1980～1995年, 辺戸岬酸性雨測定所 2000～2005年, 沖縄局 1981～).

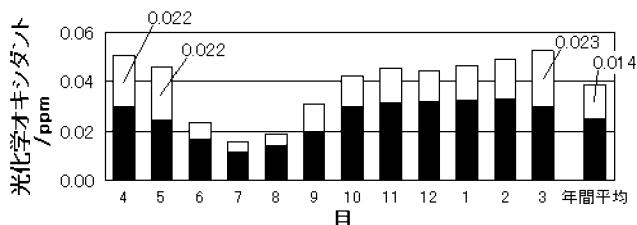


図5 1970～2005年度の月毎の光化学オキシダントの濃度增加量(回帰式からの計算値)。

植生のオゾン暴露指標AOT40(日中の1時間値が40 ppbを超えた濃度の積算値)の全国平均は1990年代半ばで10 ppm・hを超えた⁵⁾と報告されている。石川局のポテンシャルオゾン濃度を用いたAOT40は、1980年代で5 ppm・h以下、辺戸岬酸性雨測定所のオゾン濃度による結果では、2000年以降は9～18 ppm・hであった。

V まとめ

大陸を起源とする越境大気汚染が、本県の大気汚染常時監視項目にどの程度影響しているのか、その経年変化状況をみた。浮遊粉じん、浮遊粒子状物質については大陸影響の大きい春季に増加傾向はみられたが、気象要因によるローカル影響も大きく、年間をとおして傾向を把握することは困難であった。日平均値または1時間値による解析が必要と思われた。煙霧等の発生は特に春季の発生回数が多く、最高濃度が100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えるものは特に2000年度以降増加している。

光化学オキシダントについては、測定局の移設、廃止等もあって、一地点における長期の継続した測定結果は得られないが、複数の測定局の光化学オキシダント測定結果からポテンシャルオゾンを求め、比較解析した。光化学オキシダントの増加率は年平均が0.56 ppb/年となり、この25年間の濃度増加は0.014 ppmとなった。年間をとおして増加傾向にあったが、特に大陸影響の大きい春季の増加率が約0.9 ppb/yrと最も高く、同様にこの25年間の濃度増加は0.022 ppmとなった。

VI 参考文献

- 1)秋本肇(2000) 光化学オキシダントの逆襲, 大気環境学会誌, 35(2), A48-51.
- 2)酸性雨研究センター 増え続ける対流圏オゾンの脅威
- 3)与儀和夫, 岩崎綾, 嘉手納恒, 泉水仁, 當間志乃, 友寄喜貴(2004) 沖縄県大里村におけるエアロゾル中のイオン成分, Be-7とオゾン. 沖縄県衛生環境研究所, 38, 53-59.
- 4)阿相敏明, 武田麻由子, 相原敬次, 牧野宏(2001) 丹沢大山における森林保全のためのオゾン許容量推定手法の開発. 神奈川県環境科学センター研究報告. 25, 73-79
- 5)石井孝・松村秀幸・速水洋・河野吉久(2006) 森林・樹木を対象とした酸性・酸化性物質のクリティカルレベルの構築(2)AOT40の濃度, 分布, トレンドの解析, 大気環境学会大47回年会.