

国立環境研究所研究報告 第 203 号

ISSN 1341-3643

Research Report from the National Institute for Environmental Studies, Japan, No.203, 2010

R-203-2010

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

Study on characteristics of
photochemical oxidants and particulate matter

国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究
平成19～21年度
最終報告

Final report from type C joint research of NIES
and environmental research institutes of local government
FY 2007 - 2009

光化学オキシダント等に関する共同研究グループ
Joint research group for study on characteristics
of photochemical oxidants and particulate matter

大原 利真 編
Edited by Toshimasa OHARA

NIES

独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

「光化学オキシダント等に関するC型共同研究」ページ

<http://www.nies.go.jp/pmdep/ctype/>

序

本研究報告書は、国立環境研究所と地方環境研究所との第 3 期 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」（平成 19～21 年度）の研究成果を最終報告としてとりまとめたものである。

C 型共同研究^{*})は、国立環境研究所が全国環境研協議会を窓口として、複数の地方環境研究所と共同研究を行う制度であるが、光化学オキシダントや粒子状物質の動態解明は、広域性と地域性を同時に考慮しなければならない為、C 型共同研究として相応しい研究課題である。

第 1 期の C 型共同研究「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」（平成 13～15 年度）は、C 型共同研究制度の初めての実施ケースであり、20 の地方環境研究機関と国立環境研究所が共同研究を実施した。本研究では、時間値データベースと集計・解析プログラムを開発し、複数の機関が統一的な手法で解析し、その結果を相互比較した。この研究成果は本シリーズ第 184 号として刊行されている。

第 2 期は、第 1 期の研究を引き継ぎ、「日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究」（平成 16～18 年度）として実施し、全国の 41 研究機関の参加により共同研究を進めた。この研究では、参加機関が共通の解析方法で基礎解析を実施し、相互に比較するとともに、具体的なテーマに関する応用解析を進め、それらの成果は本シリーズ第 193 号及び第 195 号にとりまとめられている。

第 3 期は、地方環境研究機関 延べ 50 機関（代表：名古屋市環境科学研究所）の参加により「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」として、平成 19～21 年度の 3 ヶ年で実施している。この研究では、第 2 期の経験と成果を踏まえ、全国の大気環境時間値データベースの整備を継続し、このデータ解析を中心にモデル解析結果なども使用して、光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性や発生原因を、地域と広域、経年変化と高濃度エピソードといった複眼的視点から解明する研究を実施している。本報告書は、本研究で実施した解析結果を中心に、第 3 期の最終報告としてとりまとめたものである。

今回の最終報告の解析結果、並びに解析方法が、光化学オキシダントと粒子状物質の発生原因を理解し、大気汚染対策を進める上でお役にたてば幸いである。

2010 年 1 月

国立環境研究所 アジア自然共生研究グループ 広域大気モデリング研究室室長
大原 利眞

*)C 型共同研究について

国立環境研究所では、地方環境研究所との研究交流を促進し、環境研究の発展を図るために、共同研究を推進している。この共同研究は、研究の進め方によって、A 型、B 型、C 型の 3 種類に分類されている。

<http://www.nies.go.jp/kenkyu/chikanken/bosyu/bessi1.html>

要旨

本研究報告書は、国立環境研究所と地方環境研究所との第3期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」（平成19～21年度）の研究成果を最終報告としてとりまとめたものである。C型共同研究は、国立環境研究所が全国環境研協議会を窓口として、複数の地方環境研究所と共同研究を行う制度であるが、全国的に問題となっている大気汚染物質である光化学オキシダント（Ox）と浮遊粒子状物質（SPM）は、共に広域性と地域性を併せ持つため、C型共同研究として相応しい研究課題であると言える。

C型共同研究では、これまでに、「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」（平成13～15年度、参加機関20機関）、「日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究」（平成16～18年度、参加機関40機関）において、各自治体の大気環境時間値データを全国的に整備し、その解析を進めることにより、Oxの全国的な発生状況と地域特性等を把握した。本研究では、これらの研究を継続・発展させ、OxとSPMを対象にして、各自治体の時間値データやシミュレーションモデル結果を統合的に解析することにより、地域汚染の特性や広域輸送（国内の地域間輸送や海外からの越境輸送）の影響を把握することを目的として研究を進めた。

本研究では、時間値データの整備、基本解析、高濃度エピソード解析、応用解析、大気汚染予測の試験公開と改良などにおいて、以下のような成果が得られた。

(1) 時間値データの整備

参加機関等から提供された大気常時監視測定局の大気環境時間値データ及び測定局情報データを収集し、2008年度までの全国のデータベースを作成した。

(2) 基本解析

(1)のデータベースにおける2007年度までの時間値データと共通の解析手法を使用し、全機関が参加して、光化学OxとSPMの経年変化や季節変動などに関する基本解析を進めた。この結果を、各地域グループにおいて地域内で比較するとともに、周辺地域との類似性・相違性を把握することにより、地域特性の解明を進めた。さらに、各地域グループの解析結果をもとにして全国の汚染状況を整理した。

- 全国のOx濃度年平均値は、1985～2007年度において増加傾向にある。全国平均で2000年度以降の増加率が1995年度以降の増加率のほぼ倍となり、2000年度以降から現在にかけて、Ox濃度が急上昇している。また、2000年度以降のOx濃度増加率の上昇は、九州や東海・近畿の西日本で高く、概ね大陸から離れるに従って増加率が小さくなっていることから、大陸からの越境汚染の影響が増大していることが示唆される。
- SPM濃度年平均値は、1990～2007年度において減少傾向にある。地域別には、関東・甲信静地域の減少率が最大で、九州地域の減少率が最小である。関東・甲信静地域の減少率が最大である原因は、ディーゼル車規制の効果と考えられ、一方、九州地域の減少率が最小となった原因としては、越境汚染（特にサルフェイト等の二次生成粒子）による影響の増大が考えられる。

(3) 高濃度エピソード解析

2007年春～夏に発生したOxとSPMの4期間（4月26～30日、6月26～30日、7月24～29日、8月上旬）の高濃度エピソードを対象に、大気汚染時間値データ、気象データ、トラジェクトリモデルや化学輸送モデルなどを使用して、その特徴や発生原因について解析した。特に、国内の地域間輸送や海外からの越境輸送などの広域輸送の影響に着目して解析した。

①2007年4月26～30日

西日本を中心に高濃度のOxが発生し、北九州市、長崎県、熊本県で光化学オキシダント注意報が発令された。北九州市は11年ぶり、長崎県、熊本県は2006年に続き2年連続の発令であった。早朝にも100ppbを超えるOx濃度が広域で観測されたこと、離島や郊外でも120ppbを超過したこと、後方流跡線やシミュレーション結果からも大陸からの気塊が西日本に到達していること、などから、大陸からの越境汚染の影響が大きかったと考えられる。また、福岡県における粒子中の硫酸イオン濃度が26～27日は $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、さらに、SO₂も10ppbを超えたことから、SO₂と硫酸(塩)粒子も、オゾンと同時に流入したものと考えられる。

②2007年6月26～30日

近畿・東海・関東を中心にOxが高濃度となり、18都府県で光化学オキシダント注意報が発令された。SPMも九州から関東の広範囲にわたり高濃度となった。この期間、大陸から九州南部にかけて梅雨前線が停滞し、西系の風が卓越していた。高濃度観測時の後方流跡線が中国東岸や朝鮮半島を通過して西日本に到達していたこと、シミュレーション結果も中国東岸から移流する様子を示したこと、離島の五島において夜間からOx濃度が上昇し翌日早朝には100ppbを超える高濃度が観測されたこと、Oxと同期してSO₂とSPMも濃度上昇が見られたことなどから、この期間の高濃度発生には、大陸からの越境汚染の影響が大きかったと考えられる。ただし、近畿・東海地域で発生したSPM高濃度については都市汚染の影響も考えられる。

③2007年7月24～29日

関東、東海、近畿から九州に至る瀬戸内海沿岸、九州北部において、100ppbを超える高濃度Oxが広域的に発生した。SPMも、期間後半の28～29日に北陸から九州北部の広範囲で高濃度が観測された。気象的には、期間を通して東シナ海上の高気圧に覆われ、日最高気温が連日30℃を超え、日射量も多く、海陸風が多く見られた。また、後方流跡線は、24～25日にはばらついていて、26日以降は中国東岸から朝鮮半島を経由して日本に到達した。ライダー観測やシミュレーションモデルによると、期間後半の28～29日には、高濃度の硫酸塩を含む気塊が中国北東部から西日本に移流したことを示す。また、西日本の日本海上の離島では、26日までは高濃度Oxは観測されなかったが、27日以降は80ppbを超える高濃度Oxが観測され、PMやSO₂の濃度上昇も認められた。これらのことから、期間中の高濃度Oxは地域汚染による影響が大きく、一方、期間後半の高濃度SPMには越境汚染による影響が大きかったと考えられ、物質と期間によって高濃度発生原因が異なることが示唆される。

④2007年8月上旬

関東地方で発生した高濃度Oxが、長野県、福島県及び新潟県へ輸送される現象が認められた。8月9～12日の夕方から夜間に、長野県東部及び北部地域において、関東地方からの汚染気塊の移流によるOx濃度の上昇が認められた。また、8月1日に発生した福島県内の高濃度Ox現象は、関東北部で生成されたOxが南南西～南西の風により、栃木南部→栃木北部→福島のルートで輸送されたものと考えられる。さらに、新潟県と群馬県境付近に位置する八海山(標高1150m地点)において、8月10日と11日の夜間に、風向が北から南へ切り替わった後、Ox濃度が上昇する現象がみられ、地上風・上層風の観測データ、常時監視測定局のOx濃度、シミュレーションモデルによる風とOx濃度などを総合的に解析した結果、海風によって関東地方内陸部へ輸送された高濃度オゾンが、局地風と上層の南風によって関東北部山岳域を越えて新潟県へ移流したものと考えられる。これまで、関東から長野県や山梨県への高濃度Oxの輸送については、多数の研究結果が報告されているが、これに加えて、福島県及び新潟県への輸送が本研究によって確認された。

(4) 応用解析

応用解析として、「ポテンシャルオゾン PO を用いたオゾンの地域特性と経年変動の解析」、「衛星データの活用」、「Ox 測定法の検討」の3つのテーマについて研究を進めた。

①ポテンシャルオゾン PO を用いたオゾンの地域特性と経年変動の解析

常時監視測定局における Ox 濃度データを使用して、オゾンの地域特性や経年変化を解析する場合には、NO によるタイトレーションの影響が除かれる PO を使用することの有効性が示された。

PO のトレンドは、Ox の場合と同様、全国的に上昇傾向を示すことから、NO の経年的減少の影響を除いても、オゾンが経年的に上昇していることが確認された。

春季における PO の経年上昇量は西日本で多く、東日本で少ない傾向を示し、大陸から越境輸送されたオゾンの影響が示唆された。

全国の沿岸地域の常時監視測定局における PO 濃度の月別中央値は、春季に最大値、夏季に最小値、秋季に極大値をもつ季節変動を示す。この季節変動は、日本周辺のリモート地点におけるオゾンの変動パターンと一致する。

東京都心などの光化学生成能が大きいと考えられる地域における PO の 98%値は夏季に最大となり、地域内での光化学生成が大きいことを示す。更に、これらの地域における夏季の 98%値は、経年的に増加していることから、地域内におけるオゾン生成量の増加が示唆された。

②衛星データの活用

常時監視測定局で観測された NO₂ 地上濃度と衛星センサー OMI によるカラム NO₂ 濃度の時間変動（週内変動及び季節変動）を比較したところ、両者の変動パターンはほぼ整合した。このことから、都市大気汚染の広がりや測定局の空白地域における濃度を把握する場合に、衛星データが有効であると考えられる。

③Ox 測定法の検討

全国の常時監視測定局における光化学 Ox 測定法の推移を調査し、測定法の違いによる経年変化の違い、継続性のある測定局における経年変化の特徴、測定法の変更に伴う影響などについて検討した。

1999～2007 年度において紫外線吸収法を継続した測定局 116 局と吸光光度法を継続した 208 局を対象に、それぞれの経年変化の違いを地域別・月別・濃度ランク別に比較した結果、測定法による変化傾向の違いは比較的小さいことが確認された。

継続性のある測定局で経年変化を調べた結果、経年的な Ox 濃度の増加が確認され、特に、西日本でその傾向が大きいことが明らかとなった。このことから、上述した Ox や PO の経年上昇傾向は、測定法の変化に係らずに実際に起こっている現象と考えられる。

測定法による影響は、一部の測定局では示唆されたが、その変化は微少であることがわかった。

(5) 大気汚染予測の試験公開と改良

東アジア、日本、関東を対象とした大気汚染予測システムの試験公開を、国立環境研究所の環境 GIS において 2008 年 5 月から開始した。また、関西における詳細予測の準備を進めるとともに、中部と九州の詳細予測化についても環境省と協力して進め、2009 年 6 月から、これらの予測結果の試験公開を開始した。更に、環境省と協力して、東北と中四国の詳細予測化に着手した。

(6) その他

全国の自治体を対象に「夜間の Ox 注意報の発令・解除体制の状況調査」を実施して実態をまと

めた。

以上のように、平成 19～21 年度の 3 年間で、Ox と SPM の経年変化や地域特性に関する多くの知見が得られるとともに、データベースと解析ツールが整備された。また、これらの研究成果をまとめて、研究論文 14 編、大気環境学会年会などでの口頭発表 48 件を発表した。今後の主要な課題としては、以下の点があげられる。

- ① 大気環境時間値データを活用した研究を更に進めるとともに、独自の測定とそのデータ解析、EANET 測定データや衛星データの解析、モデル解析を組み合わせた統合的アプローチによって、新たな研究展開を図ること。
- ② 平成 21 年 9 月に環境基準が告示された微小粒子状物質 PM_{2.5} に関する実態と発生機構の解明、発生源寄与率の評価などの研究を進めること。
- ③ 第 1～3 期の C 型共同研究で整備・蓄積された協働型研究スタイル、研究ネットワーク、大気環境時間値データベース、解析ツールなどを活かし、また、これらを発展させて、我が国の大気環境の改善に資する研究を今後も推進すること。

以上に示した研究成果と今後の課題を踏まえて、平成 22 年度から、第 4 期の C 型共同研究「PM_{2.5} と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究」（研究代表者：大阪市立環境科学研究所・板野泰之）を開始すべく、第 3 期の研究メンバーを中心として準備を進めているところである。この第 4 期研究では、微小粒子状物質 PM_{2.5} と光化学オキシダントを対象として、その実態や地域特性を把握し、発生機構を解明するとともに、発生源寄与率を定量的に評価する研究を進める予定である。

目 次

1. 目的	1
2. 研究概要	2
2.1 C型共同研究について	2
2.2 研究の経緯	2
2.3 研究の体制	2
2.4 研究概要	3
2.5 研究成果	4
3. 基本解析	5
3.1 地域のまとめ	7
3.1.1 北海道東北北陸地域のまとめ	7
3.1.2 関東甲信静地域のまとめ	19
3.1.3 東海近畿地域のまとめ	27
3.1.4 中国四国地域のまとめ	39
3.1.5 九州地域のまとめ	55
3.2 全国解析	63
3.2.1 経年変化の基本的特徴	63
3.2.2 まとめと今後の課題	65
4. 高濃度エピソード解析	73
4.1 2007年4月26日～30日の高濃度エピソード解析	73
4.1.1 気象・汚染概況	73
4.1.2 中国四国及び九州地域の解析	77
4.2 2007年6月26日～30日の高濃度エピソード解析	89
4.2.1 気象・汚染概況	89
4.2.2 九州中国四国地域の解析	93
4.2.3 東海近畿地域の解析	105
4.3 2007年7月24日～29日における高濃度エピソード解析	109
4.3.1 気象・汚染概況	109
4.3.2 中国四国地域の解析	109
4.4 2007年8月上旬の高濃度エピソード解析	127
4.4.1 気象・汚染概況	127
4.4.2 長野ルート	134
4.4.3 福島ルート	135
4.4.4 新潟ルート	136
4.4.5 まとめ	137
4.5 高濃度エピソード解析のまとめ	145

4.5.1	研究目的:なぜいま高濃度エピソード研究が必要なのか?	145
4.5.2	2007年の全国的な大気汚染概況と関連する気象概況	145
4.5.3	高濃度エピソード時における広域大気場・汚染状況	146
4.5.4	まとめと議論	149
5.	応用解析	159
5.1	PO(ポテンシャルオゾン)グループによる解析	159
5.1.1	はじめに	159
5.1.2	PO濃度マイナス値の出現とその対処法の検討	159
5.1.3	POを用いた汚染解析例	161
5.1.4	POを用いた日本におけるO _x 濃度季節変化とその経年変化の解析	162
5.1.5	まとめ・今後の課題	163
5.2	衛星データ活用グループによる解析	169
5.2.1	大気環境観測衛星の概要	169
5.2.2	OMIの解析	169
5.2.3	MODISの解析	170
5.2.4	今後の解析	170
5.3	O _x 測定法検討グループによる解析	173
5.3.1	O _x 測定法の概要	173
5.3.2	O _x 校正法の概要	173
5.3.3	解析方法	173
5.3.4	測定法の違いによるO _x 濃度年平均値の解析	174
5.3.5	考察	175
5.4	九州地域における高濃度の解析	179
5.4.1	はじめに	179
5.4.2	調査方法	179
5.4.3	結果と考察	179
5.4.4	まとめ	182
5.5	大気汚染予測システム	192
5.5.1	システム開発の経緯	192
5.5.2	システムの対象領域	192
5.5.3	予測システムの概略	193
5.5.4	予測計算のスケジュールリング	194
5.5.5	予測計算の原理	195
5.5.6	予測事例の紹介および使用上の留意点	195
5.5.7	大気汚染予測システムとCFORSの比較	196
5.5.8	予測システムの今後の課題	196
6.	まとめと課題	201

資料 1 共同研究プロジェクトの構成	205
資料 2 研究会議の実施状況	211
資料 3 成果発表一覧（論文発表・口頭発表・大気環境学会年会発表）	214
本報告書付属資料の Web 公開について	219

執筆者一覧

- 【第 1 章】 国立環境研究所（大原 利眞）
 - 【第 2 章】 国立環境研究所（大原 利眞）
 - 【第 3 章】 [3.1.1] 北海道東北北陸グループ（秋山 雅行）
 - [3.1.2] 関東甲信静グループ（石井 康一郎, 石井 真理奈, 井上 智博, 篠原 英二郎, 清水 源治, 竹内 浄, 武藤 洋介, 森田 陽一）
 - [3.1.3] 東海近畿グループ（山本 勝彦）
 - [3.1.4] 中国四国グループ（佐川 竜也）
 - [3.1.5] 九州グループ（山崎 誠）
 - [3.2] 名古屋市環境科学研究所（大野 隆史）
 - 【第 4 章】 [4.1.1] 九州グループ（山本 重一, 古賀 康裕）
 - [4.1.2] 九州グループ（山本 重一, 松本 依子, 福田 照美, 祝園 秀樹）
 - [4.2.1] 中国四国グループ（佐川 竜也）
 - [4.2.2] 中国四国グループ（佐川 竜也, 長田 健太郎, 小川 登, 尾崎 宏実, 片岡 敏夫, 白石 猛, 砂田 和博, 永峰 正章, 西 孝仁, 福田 拓, 藤井 裕士）
 - [4.2.3] 東海近畿グループ（山本 勝彦）
 - [4.3.1] 東海近畿グループ（山本 勝彦）
 - [4.3.2] 中国四国グループ（佐川 竜也）
 - [4.3.3] 東海近畿グループ（山本 勝彦）
 - [4.4.1] 北海道東北北陸グループ（秋山 雅行、武 直子）, 関東甲信静グループ（武藤 洋介, 井上 智博）
 - [4.4.2] 関東甲信静グループ（中込 和徳, 町田 哲）
 - [4.4.3] (4.4.3.1) 北海道東北北陸グループ（秋山 雅行）
 - (4.4.3.2) 関東甲信静グループ（森田 陽一, 井上 智博）
 - [4.4.4] 北海道東北北陸グループ（武 直子）
 - [4.5] 千葉大学（早崎 将光）
 - 【第 5 章】 [5.1] ポテンシャルオゾン解析グループ（山神 真紀子, 板野 泰之, 和田 俊輔）
 - [5.2] 衛星データ活用グループ（山本 勝彦）
 - [5.3] オキシダント測定法検討グループ（長田 健太郎, 山川 和彦）
 - [5.4] 九州グループ（岩本 真二, 山本 重一）
 - [5.5] 国立環境研究所（菅田 誠治）
 - 【第 6 章】 国立環境研究所（大原 利眞）
-

略語集

AOD	エアロゾル光学的深さ
BC	黒色炭素（粒子）
BO	バックグラウンド・オゾン
NO _x	窒素酸化物
O _x	光化学オキシダント
PO	ポテンシャルオゾン
PM	粒子状物質
PM _{2.5}	微小粒子状物質
SPM	浮遊粒子状物質

図表一覧

表

第3章 基本解析

3.1 地域のまとめ

3.1.1 北海道東北北陸地域のまとめ

- 表 3.1.1.1 Ox 濃度月別平均値の増加率
- 表 3.1.1.2 PO 月別平均値の増加率
- 表 3.1.1.3 月平均気温増加率の経年変化
- 表 3.1.1.4 遠隔地における O₃ 濃度の平均値及び増加率
- 表 3.1.1.5 SPM 濃度月別平均値の増加率

3.1.2 関東甲信静地域のまとめ

- 表 3.1.2.1 地域別にみた Ox 年平均値の経年変化
- 表 3.1.2.2 地域別にみた SPM 年平均値の経年変化

3.1.3 東海近畿地域のまとめ

- 表 3.1.3.1 Ox 年平均濃度の高い局

3.1.4 中国四国地域のまとめ

- 表 3.1.4.1 PO 濃度年平均値の経年変化の傾きと平均値
- 表 3.1.4.2 Ox 季節別濃度の経年変化の傾き (単位: ppb/年)
- 表 3.1.4.3 PO 季節別濃度の経年変化の傾き (単位: ppb/年)
- 表 3.1.4.4 Ox 濃度最大値の経年変化の傾きと平均値
- 表 3.1.4.5 Ox60ppb 以上季節別出現率の経年変化の傾き (単位: %/年)
- 表 3.1.4.6 SPM 季節別濃度の経年変化の傾き
- 表 3.1.4.7 SPM2%除外値の経年変化の傾きと平均値
- 表 3.1.4.8 SPM 濃度 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上季節別出現率の経年変化の傾き
- 表 3.1.4.9 NO_x 濃度年平均値の経年変化の傾きと平均値

3.2 全国解析

- 表 3.2.1 Ox 年平均値の経年変化
- 表 3.2.2 Ox 濃度 60ppb 以上時間率の経年変化
- 表 3.2.3 SPM 年平均値の経年変化
- 表 3.2.4 SPM 濃度 100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率の経年変化

第4章 高濃度エピソード解析

4.2 2007年6月26日～30日の高濃度エピソード解析

- 表 4.2.1 2007年6月24～29日および2006年度のPM2.5分析結果 (測定場所:名古屋市環境科学研究所)
- 表 4.2.2 2007年6月28日および2006年度のフィルターパック分析結果 (測定場所:名古屋市環境科学研究所)

4.3 2007年7月24日～29日の高濃度エピソード解析

- 表 4.3.1 移流経路と解析対象局

4.5 高濃度エピソード解析のまとめ

表 4.5.1 気象庁 GPV の GSM および MSM データの概要

第5章 応用解析

5.1 PO（ポテンシャルオゾン）グループによる解析

表 5.1.1 1990～1994 年度と 2001～2005 年度における地域別 O_x 濃度および PO 濃度

5.4 九州地域における高濃度の解析

表 5.4.1 2006 年、2007 年で注意報を発令した日及び濃度

表 5.4.2 高濃度日の O_x と SPM の時間値相関係数および局毎の両者の相関係数が 0.7 を超えた局数

表 5.4.3 高濃度日の O_x と SO_2 の 1 時間値相関係数および局毎の両者の相関係数が 0.7 を超えた局数

表 5.4.4 各調査地点における硫酸イオン濃度と O_x 日最高値との関係

5.5 大気汚染予測システム

表 5.5.1 大気汚染の数値計算に使用される気象データ（大気質モデル CMAQ の場合）

図

第3章 基本解析

3.1.1 北海道東北北陸地域のまとめ

図 3.1.1.1 O_x 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.1.2 PO 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.1.3 SPM 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.1.4 O_x 濃度月平均値の経月変動

図 3.1.1.5 PO 濃度月平均値の経月変動

図 3.1.1.6 O_x 60ppb 以上出現率の経年変化

図 3.1.1.7 O_x 濃度 60ppb 以上出現率の経月変動

図 3.1.1.8 遠隔地における O_3 濃度年平均値の経年変動

図 3.1.1.9 SPM 濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上出現率の経年変化

図 3.1.1.10 SPM 濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上出現率の経月変動

図 3.1.1.11 NO_x 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.1.12 NO_x 濃度の経月変化

図 3.1.1.13 O_x — NO_2 濃度散布図（1993～2007 年度）

図 3.1.1.14 季節別 O_x — NO_2 濃度散布図（1993～2007 年度）

図 3.1.1.15 選定 8 地点における季節別 O_x — NO_2 濃度散布図（2006 年度）

図 3.1.1.16 季節別推定 BO 濃度の経年変動

3.1.2 関東甲信静地域のまとめ

図 3.1.2.1 O_x 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.2.2 PO 濃度年平均値の経年変化

図 3.1.2.3 SPM 濃度年平均値の経年変化

-
- 図 3.1.2.4 Ox 濃度月平均値の経月変動
 - 図 3.1.2.5 PO 濃度月平均値の経月変動
 - 図 3.1.2.6 エリア別の超過日数
 - 図 3.1.2.7 エリア別の1局当りの超過回数
 - 図 3.1.2.8 エリア別の超過日1日当りの超過局数
 - 図 3.1.2.9 エリア別の最高濃度到達時刻
 - 図 3.1.2.10 分類した移流パターン
 - 図 3.1.2.11 移流パターン毎の年間高濃度観測測定局数

3.1.3 東海近畿地域のまとめ

- 図 3.1.3.1 Ox 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.3.2 PO 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.3.3 SPM 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.3.4 Ox 濃度月平均値の経月変動
- 図 3.1.3.5 PO 濃度月平均値の経月変動
- 図 3.1.3.6 Ox 濃度年平均値の経年変化（京都府）
- 図 3.1.3.7 Ox 濃度年平均値の経年変化（滋賀県）
- 図 3.1.3.8 PO 濃度年平均値の経年変化（大阪市）
- 図 3.1.3.9 PO 濃度月平均値の経年変化（大阪市 12月）
- 図 3.1.3.10 Ox 濃度 40～59ppb の時間数の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.11 Ox 濃度 60～79ppb の時間数の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.12 Ox 濃度 80～99ppb の時間数の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.13 Ox 濃度 100～119ppb の時間数の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.14 Ox 濃度 120ppb 以上の時間数の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.15 Ox 濃度 60ppb 以上の時間数の経年変化（愛知県）
- 図 3.1.3.16 Ox 濃度年平均値と 60ppb 以上出現率との関係
- 図 3.1.3.17 Ox 濃度年平均値の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.18 PO 濃度年平均値の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.19 PO 濃度年平均値の経年変化（京都府）
- 図 3.1.3.20 NOx 濃度年平均値の経年変化（大阪府）
- 図 3.1.3.21 NOx 濃度年平均値の経年変化（京都府）
- 図 3.1.3.22 NOx 濃度月平均値の経月変動（大阪府）
- 図 3.1.3.23 Ox 月平均濃度上昇率（兵庫県）

3.1.4 中国四国地域のまとめ

- 図 3.1.4.1 Ox 濃度年平均値の経年変化
 - 図 3.1.4.2 PO 濃度年平均値の経年変化
 - 図 3.1.4.3 SPM 濃度年平均値の経年変化
 - 図 3.1.4.4 Ox 濃度月平均値の経月変動
 - 図 3.1.4.5 PO 濃度月平均値の経月変動
 - 図 3.1.4.6 Ox 季節別濃度の経年変化
 - 図 3.1.4.7 PO 季節別濃度の経年変化
 - 図 3.1.4.8 Ox 濃度最大値の経年変化
 - 図 3.1.4.9 Ox60ppb 以上出現率の経年変化
-

-
- 図 3.1.4.10 Ox60ppb 以上出現率月平均値の経月変動
 - 図 3.1.4.11 Ox60ppb 以上季節別出現率の経年変化
 - 図 3.1.4.12 SPM 季節別濃度の経年変化
 - 図 3.1.4.13 SPM2%除外値の経年変化
 - 図 3.1.4.14 SPM 濃度 $100 \mu \text{g}/\text{m}^3$ 以上出現率の経年変化
 - 図 3.1.4.15 SPM 濃度 $100 \mu \text{g}/\text{m}^3$ 以上月別出現率の経月変動
 - 図 3.1.4.16 SPM 濃度 $100 \mu \text{g}/\text{m}^3$ 以上季節別出現率の経年変化
 - 図 3.1.4.17 NO_x 濃度年平均値の経年変化
 - 図 3.1.4.18 NO_x 濃度月平均値の経月変動

3.1.5 九州地域のまとめ

- 図 3.1.5.1 Ox 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.5.2 PO 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.5.3 SPM 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.5.4 Ox 濃度月平均値の経月変動
- 図 3.1.5.5 PO 濃度月平均値の経月変動
- 図 3.1.5.6 NO_x 濃度年平均値の経年変化
- 図 3.1.5.7 NO_x 濃度月平均値の経月変動

3.2 全国解析

- 図 3.2.1 Ox 年平均値の経年変化（傾きから算出した計算値）
- 図 3.2.2 Ox 濃度 60ppb 以上時間率の経年変化（傾きから算出した計算値）
- 図 3.2.3 SPM 年平均値の経年変化（傾きから算出した計算値）
- 図 3.2.4 SPM 濃度 $100 \mu \text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率の経年変化（傾きから算出した計算値）

第4章 高濃度エピソード解析

4.1 2007年4月26日～30日の高濃度エピソード解析

- 図 4.1.1 天気図
- 図 4.1.2 高濃度日における中国、四国及び九州のアメダス局による風向風速ベクトル図
- 図 4.1.3 Ox 濃度分布図
- 図 4.1.4 高濃度日における Ox 濃度分布
- 図 4.1.5 Ox 濃度の経時変化図
- 図 4.1.6 高濃度日における中国、四国及び九州各県の後方流跡線
- 図 4.1.7 高濃度日の Ox 最高濃度観測局における SPM 濃度経時変化
- 図 4.1.8 高濃度日の Ox 最高濃度観測局における SO₂ 濃度経時変化
- 図 4.1.9 Ox-SO₂ の相関係数
- 図 4.1.10 シミュレーションによる O₃ の予測濃度
- 図 4.1.11 シミュレーションによる硫酸塩の予測濃度
- 図 4.1.12 化学天気予報（CFORS）による予測結果

4.2 2007年6月26日～30日の高濃度エピソード解析

- 図 4.2.1 天気図
- 図 4.2.2 Ox 濃度分布図
- 図 4.2.3 SPM 濃度分布図

-
- 図 4.2.4 九州中国四国地域における O_x 濃度の経時変化
 - 図 4.2.5 九州中国四国地域における各日の高濃度 O_x ($O_x \geq 80ppb$) 観測局の最高濃度 (1時間値) および最高濃度観測時刻の分布
 - 図 4.2.6 九州中国四国地域における SPM 濃度の経時変化
 - 図 4.2.7 九州中国四国地域における SPM 濃度の期間中最高濃度 (日平均値) および最高濃度観測日の分布
 - 図 4.2.8 九州中国四国地域における各日の SPM 濃度 (日平均値) の分布
 - 図 4.2.9 九州中国四国地域における後方流跡線解析の結果
 - 図 4.2.10 五島 (長崎県)、防府市役所 (山口県) における O_x 、SPM、 SO_2 濃度の経時変化
 - 図 4.2.11 九州中国四国地域における O_x 高濃度観測局 ($O_x \geq 80ppb$) の O_x と SO_2 の相関
 - 図 4.2.12 O_3 の東アジアスケールにおけるモデル計算の結果 (地上約 680m)
 - 図 4.2.13 硫酸エアロゾルの東アジアスケールにおけるモデル計算の結果 (地上約 680m)
 - 図 4.2.14 東海近畿地域 SPM 濃度分布 (2007年6月28日7時)
 - 図 4.2.15 SPM 濃度推移 (愛知県選定5局のみ)
 - 図 4.2.16 O_x 濃度推移 (愛知県選定5局のみ)
 - 図 4.2.17 ライダー観測データ (松江 2007年6月24~30日)
 - 図 4.2.18 東海近畿地域の風況 (2007年6月27日13時)
 - 図 4.2.19 SPM 濃度分布図 (2007年6月27日13時)
- 4.3 2007年7月24日~29日の高濃度エピソード解析
- 図 4.3.1 2007年7月25日9時の天気図
 - 図 4.3.2 2007年7月25日14時の O_x 濃度分布
 - 図 4.3.3 中国四国地域の O_x 最高濃度観測局における O_x 濃度の経時変化
 - 図 4.3.4 九州中国四国地域における O_x 高濃度観測局 ($O_x \geq 80ppb$) の期間最高濃度 (1時間値) および最高濃度観測日の分布
 - 図 4.3.5 九州中国四国地域における各日の O_x 高濃度観測局 ($O_x \geq 80ppb$) の最高濃度および最高濃度観測時刻の分布
 - 図 4.3.6 中国四国地域における SPM 濃度の経時変化
 - 図 4.3.7 九州中国四国地域における各日の SPM 濃度 (日平均値) の分布
 - 図 4.3.8 九州中国四国地域における SPM の期間最高濃度 (日平均値) と最高濃度観測日の分布
 - 図 4.3.9 九州中国四国地域における 29日の SPM 高濃度観測局 ($SPM \geq 80 \mu g/m^3$) の最高濃度 (1時間値) および最高濃度観測時刻の分布
 - 図 4.3.10 SPM 濃度 (1時間値) の全国分布
 - 図 4.3.11 隠岐[島根県]、五島[長崎県]における大気汚染物質濃度の経時変化
 - 図 4.3.12 中国四国地域における後方流跡線解析の結果
 - 図 4.3.13 由岐[徳島県]における O_x 、SPM、 SO_2 濃度の経時変化
 - 図 4.3.14 O_x 高濃度観測局 ($O_x \geq 80ppb$) における O_x と SO_2 の相関 (7月29日)
 - 図 4.3.15 松江 (左) および長崎 (右) におけるライダー観測結果 (2007年7月)
 - 図 4.3.16 CFORS による硫酸エアロゾルのシミュレーション結果
 - 図 4.3.17 2007年7月24~28日の O_x 濃度経時変化 (大阪府選定5局)
 - 図 4.3.18 2007年7月24~28日の O_x 濃度経時変化 (愛知県選定5局)
-

-
- 図 4.3.19 CFORS 硫酸エアロゾル広域予測結果
 - 図 4.3.20 大阪湾から近畿内陸への移流経路と解析対象局
 - 図 4.3.21 2007 年 7 月 28 日淀川筋 PO 濃度経時変化
 - 図 4.3.22 2007 年 7 月 24 日大和川筋 PO 濃度経時変化
 - 図 4.3.23 2007 年 7 月 25 日加古川筋 PO 濃度経時変化
 - 図 4.3.24 2007 年 7 月 24 日生駒越え PO 濃度経時変化
 - 図 4.3.25 2007 年 7 月 28 日 13 時 PO 濃度分布
 - 図 4.3.26 2007 年 7 月 28 日 13 時風況
 - 図 4.3.27 2008 年 9 月 12 日近畿内陸 PO 濃度経時変化
- 4.4 2007 年 8 月上旬の高濃度エピソード解析
- 図 4.4.1 地上天気図（9 時）
 - 図 4.4.2 O_x 濃度分布図
 - 図 4.4.3 O_x 濃度の経時変化図（北海道・東北・北陸地域）
 - 図 4.4.4 気象解析地点配置図
 - 図 4.4.5 鉛直気温分布（2007 年 8 月 12 日）
 - 図 4.4.6 高度別風向分布（熊谷）
 - 図 4.4.7 O_x 及び SPM 濃度の時間値の推移
 - 図 4.4.8 O_x 及び SPM 濃度の日平均値の推移
 - 図 4.4.9 東京都及び新潟県における大気測定局（一般局）の O_x 濃度と O_x 前駆物質濃度の 50 パーセントイル値の推移
 - 図 4.4.10 O_x 日最高濃度とその出現時刻
 - 図 4.4.11 解析対象測定地点配置図（長野ルート）
 - 図 4.4.12 O_x 濃度の経時変化図
 - 図 4.4.13 2007 年 8 月 9 日～12 日 各 15 時の海面更正気圧分布図
 - 図 4.4.14 関東甲信地域の地上風系図（風の流れの様子を赤矢印で示す）
 - 図 4.4.15 関東周辺における 8 月 1 日の O_x 濃度分布の時系列変化（12 時～18 時）
 - 図 4.4.16 解析対象測定局配置図（栃木経由福島ルート）
 - 図 4.4.17 栃木県、福島県における 8 月 1 日の O_x 濃度と風向風速の時系列変化
 - 図 4.4.18 O_x 濃度分布図（8 月 9 日 15 時および 8 月 10 日 15 時）
 - 図 4.4.19 解析対象測定局配置図（茨城経由福島ルート）
 - 図 4.4.20 O_x 濃度の経時変化（茨城～福島）
 - 図 4.4.21 PO 濃度の経時変化（茨城～福島）
 - 図 4.4.22 15 時の局地天気図（8 月 9 日および 8 月 10 日）
 - 図 4.4.23 茨城県における地上風の時系列変化（8 月 9 日～10 日）
 - 図 4.4.24 新潟ルート解析地点配置
 - 図 4.4.25 八海山、六日町及び佐渡関岬における O_x 濃度と風向の推移（N : NW～NE、S : SE～SW）
 - 図 4.4.26 日本中央域における O_x 濃度と風向風速分布（2007 年 8 月 12 日 16 時）
- 4.5 高濃度エピソード解析のまとめ
- 図 4.5.1 2007 年 3～5 月における濃度ランク別測定局比率（O_x、SPM、SO₂）
 - 図 4.5.2 2007 年 6～8 月における濃度ランク別測定局比率（O_x、SPM、SO₂）
 - 図 4.5.3 SO₂ 高濃度局、850hPa 相当温位・水平風分布（2007 年 4 月 25 日 21 時、26 日）
-

9時)

- 図 4.5.4 Aqua/MODIS 東アジア域 AOD 分布 (2007年4月26日)
- 図 4.5.5 Ox 高濃度局、850hPa 相当温位・水平風分布 (2007年4月27日12時)
- 図 4.5.6 Ox・SPM 高濃度局、850hPa 相当温位・水平風分布 (2007年6月26日15時)
- 図 4.5.7 中部地方 Ox 高濃度局、地上風分布 (2007年6月27日)
- 図 4.5.8 中部地方 SPM 高濃度局、地上風分布 (2007年6月27日)
- 図 4.5.9 近畿地方 Ox 高濃度局、地上風分布 (2007年7月25日15時)
- 図 4.5.10 Aqua/MODIS 東アジア域 AOD 分布 (2007年7月28日)
- 図 4.5.11 Ox 高濃度局、850hPa 相当温位・水平風分布 (2007年8月1日15時)
- 図 4.5.12 関東甲信越地方 Ox 高濃度局、地上風分布 (2007年8月1日15時)
- 図 4.5.13 関東甲信越地方 Ox 高濃度局、地上風分布 (2007年8月11日)

第5章 応用解析

5.1 PO (ポテンシャルオゾン) グループによる解析

- 図 5.1.1 PO マイナス値の出現頻度分布
- 図 5.1.2 PO 正值平均値と全平均値の比較
- 図 5.1.3 大阪市の測定局を用いた α 値の推定例
- 図 5.1.4 1993年8月31日の堺市とその風下地域における PO 濃度の経時変化
- 図 5.1.5 2006年5月31日～6月1日の関西地域における PO 濃度の経時変化
- 図 5.1.6 国立環境研究所と九州大学のシミュレーションによる 2006年5月31日と6月1日のオゾン濃度水平分布
- 図 5.1.7 2001～2005年度における Ox 平均値と PO 平均値の分布
- 図 5.1.8 1990～1994年度と 2001～2005年度の PO 濃度差 ($\Delta PO : PO_{2001-05} - PO_{1990-94}$)
- 図 5.1.9 PO 濃度の中央値, 98%値, および Ox 濃度中央値の季節変動パターン (2001～2005年度のデータ)
- 図 5.1.10 九州沿岸と東京都心における PO 濃度 98%値の季節変化の経年変化

5.2 衛星データ活用グループによる解析

- 図 5.2.1 OMI 対流圏 NO₂2007年週日変化グラフ (京阪神地域)
- 図 5.2.2 2007年地上測定局 NO₂濃度週日変化グラフ
- 図 5.2.3 OMI 対流圏 NO₂2007年月平均値の変化 (京阪神地域)
- 図 5.2.4 2007年6月27日 Aqua/MODIS による AOD 分布図
- 図 5.2.5 2009年10月19日 Terra MODIS による AOD 分布図

5.3 Ox 測定法検討グループによる解析

- 図 5.3.1 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化と測定局数の推移
- 図 5.3.2 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (北海道東北北陸地域)
- 図 5.3.3 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (関東甲信越静岡地域)
- 図 5.3.4 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (東海近畿地域)
- 図 5.3.5 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (中国四国地域)
- 図 5.3.6 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (九州地域)
- 図 5.3.7 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (全国)
- 図 5.3.8 測定法別 Ox 濃度月平均値の経年変化 (2月)

-
- 図 5.3.9 測定法別 O_x 濃度月平均値の経年変化 (5 月)
 - 図 5.3.10 測定法別 O_x 濃度月平均値の経年変化 (8 月)
 - 図 5.3.11 測定法別 O_x 濃度月平均値の経年変化 (11 月)
 - 図 5.3.12 測定法別 O_x 濃度年平均値の経年変化 (上位濃度局グループ)
 - 図 5.3.13 測定法別 O_x 濃度年平均値の経年変化 (中位濃度局グループ)
 - 図 5.3.14 測定法別 O_x 濃度年平均値の経年変化 (下位濃度局グループ)

5.4 九州地域における高濃度の解析

- 図 5.4.1 2007 年 5 月 8 日の流跡線図・天気図・ O_x 濃度経時変化グラフ・ O_x 濃度分布
- 図 5.4.2 2007 年 5 月 6~8 日の O_x 経時変化グラフ・流跡線図とシミュレーション結果
- 図 5.4.3 2006 年 5 月 30 日の O_x と SPM 経時変化例 (福岡県筑後小郡局)
- 図 5.4.4 2007 年 5 月 8 日の O_x と SO_2 の経時変化例 (福岡県糸島局)
- 図 5.4.5 壱岐と糸島の O_x 経時変化 (2007 年 4 月~8 月)
- 図 5.4.6 壱岐での O_x 濃度と太宰府での硫酸イオン濃度の経時変化 (2007 年 4 月~8 月)
- 図 5.4.7 九州各測定地点における平均硫酸イオン濃度 (2008 年 4 月~6 月)
- 図 5.4.8 九州各測定地点における硫酸イオン濃度の経日変化 (2008 年 4 月~6 月)
- 図 5.4.9 福岡県における硫酸イオン濃度と O_x 日最高濃度との関係
- 図 5.4.10 後方流跡線の方位割合 (4 月~8 月)
- 図 5.4.11 O_x の方位別平均濃度と最大・最小の差
- 図 5.4.12 硫酸イオン濃度の方位別平均濃度と最大・最小の差
- 図 5.4.13 O_x 濃度を上昇させる要因
- 図 5.4.14 要因分類のための判断基準
- 図 5.4.15 高濃度日の主要な要因別による分類

5.5 大気汚染予測システム

- 図 5.5.1 大気汚染予測システムのトップページ
- 図 5.5.2 大気汚染予測システムの構造およびデータの流れ
- 図 5.5.3 大気汚染予測システムによる光化学オキシダント濃度の予測結果 (単位は ppm)
(環境省平成 21 年 5 月 29 日報道発表資料より)
- 図 5.5.4 図 5.5.3.に対応する日時における実測の光化学オキシダント濃度分布 (単位は ppb) と光化学オキシダント注意報発令状況 (環境省平成 21 年 5 月 29 日報道発表資料より)

1. 目的

光化学オキシダントおよび粒子状物質による大気汚染は全国的な問題となっている。

光化学オキシダントは、全国の一般局における環境基準達成率が0.1%(平成19年度)と非常に低く、しかも、その濃度は増加傾向にある。平成19年の春から夏には、多くの自治体において、これまで観測されることがないような高濃度エピソードが報告された。これらの高濃度発生要因として、地域的な排出構造の変化、アジア大陸における大気汚染排出量の増加、気象変化等が考えられるが、詳細は未解明である。従って、早急に高濃度発生原因を解明し、有効な対策を講じる必要がある。

一方、浮遊粒子状物質については、自動車排ガス規制等の発生源対策により、全国的に改善傾向にある。しかし、都市域において二次粒子の占める割合が増加し、その汚染が広域化していること、平成21年9月に微小粒子状物質PM_{2.5}の環境基準が告示されたこと、微小粒子による健康影響への懸念などから、浮遊粒子状物質も引き続き重要な大気汚染物質と考えられる。実際に、平成19年の春から夏にかけて、光化学オキシダントとともに、浮遊粒子状物質の高濃度エピソードが全国で報告された。

光化学オキシダントと浮遊粒子状物質は、共に高い地域依存性を持つと同時に、広域的な汚染の影響も受けるため、共通の評価指標で全国的な比較検討を行うことが汚染機構解明にとって重要である。C型共同研究では、「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」(平成13～15年度、参加機関20機関)、「日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究」(平成16～18年度、参加機関40機関)において、各自治体の大気環境時間値データを全国的に整備し、その解析を進めることにより、光化学オキシダントの全国的な発生状況と地域特性等を把握した。

そこで本研究では、各自治体の大気環境時間値データの整備を継続し、このデータ解析を中心にモデル解析なども実施して、光化学オキシダントと浮遊粒子状物質の、地域汚染の特性(経年変化や季節変化など)や高濃度エピソード時の広域輸送(国内の地域間輸送や海外からの越境輸送)を把握することを目的とする。

2. 研究概要

2. 研究概要

2.1. C型共同研究について

C型共同研究は、国立環境研究所が、全国環境研協議会（66機関）、ブロック会議等からの提言を受け、国立環境研究所と複数の地方環境研究所等の研究者が参加して共同研究を実施する制度である。全国環境研協議会では、加盟機関に対して、C型共同研究の研究提案課題を募集し、応募された提案課題の中から採択して国立環境研究所に提案する。国立環境研究所では、この提言を受け、研究予算を配分して研究を実施する。

2.2. 研究の経緯

本研究は、光化学オキシダントや粒子状物質などの大気汚染の実態解明を目的として、平成13年度から開始した研究の第3期と位置付けられる。

第1期（平成13～15年度）のC型共同研究「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」（代表：島根県保健環境科学研究所）は、C型共同研究制度の初めての実施ケースであり、20の地方環境研究機関と国立環境研究所が共同研究を実施した。本研究では、時間値データベースと集計・解析プログラムを開発し、複数の機関が統一的な手法で解析し、その結果を相互比較した。この研究成果は本シリーズ第184号として刊行されている。

第2期（平成16～18年度）は、第1期の研究を引き継ぎ、「日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究」（代表：京都府保健環境研究所）として実施し、全国の41研究機関の参加により共同研究を進めた。この研究では、参加機関が共通の解析方法で基礎解析を実施し、相互に比較するとともに、具体的なテーマに関する応用解析を進め、それらの成果は本シリーズ第193号及び第195号にとりまとめられている。

第3期では、地方環境研究機関延べ50機関（代表：名古屋市環境科学研究所）の参加により「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」として、平成19～21年度の3ヶ年で実施した。この研究では、第2期の経験と成果を踏まえ、全国の大気環境時間値データベースの整備を継続し、このデータ解析を中心にモデル解析なども実施して、光化学オキシダントと浮遊粒子状物質等の汚染特性や発生原因を、地域と広域、経年変化と高濃度エピソードといった複眼的視点から解明する研究を実施した。

2.3. 研究の体制

本研究の参加自治体は以下の50機関である。

北海道、宮城県、秋田県、山形県、福島県、新潟県、富山県、石川県、福井県、茨城県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、横浜市、川崎市、山梨県、長野県、静岡県、岐阜県、愛知県、名古屋市、滋賀県、京都府、京都市、大阪府、大阪市、兵庫県、神戸市、和歌山県、鳥取県、島根県、岡山県、広島県、山口県、徳島県、香川県、愛媛県、高知県、福岡県、福岡市、北九州市、佐賀県、長崎県、熊本県、熊本市、大分県、宮崎県、鹿児島県、沖縄県

参加自治体は、地域性を考慮して5つの地域ブロック（北海道東北北陸、関東甲信静、東海近畿、中国四国、九州）単位のグループに分け、各地域グループにリーダー、副リーダー各1名を置いた。この地域グループには当該地域内の全自治体が参加し、各自自治体が行った基本解析をもとに地域内比較・地域間比較を行い、地域特性の検討を行った。さらに、ポテンシャルオゾン解析、オキシダ

ント測定法、衛星データ活用の応用解析グループにおいて、具体的な研究テーマに基づく研究を実施した。

研究を推進するために、研究代表者、各地域グループの正副リーダー、国環研メンバーで構成するグループリーダー会議を組織し、研究を推進した。さらに、大学等との連携を強化するために、外部機関の研究者 8 名との共同研究も一体的に進めた。

なお、第 1 期～第 3 期の共同研究に参加した機関及び構成員の詳細を資料 1 にまとめた。

2.4. 研究概要

各地域グループは年 2 回程度の研究会を開催し、研究の進め方や研究結果について検討した。また、平成 19 年 5 月、平成 20 年 2 月、平成 20 年 10 月、平成 21 年 3 月、平成 22 年 3 月（予定）に全体研究会を開催し、メンバー全体で研究結果の報告や情報交換をするとともに、研究の進め方について議論した。更に、グループリーダー会議を年 2 回程度の頻度で開催し、研究を推進した。

2.4.1. 時間値データの整備

参加機関等から提供された大気環境時間値データ及び測定局情報データを収集し、平成 20 年度までの全国のデータベースを作成した。

2.4.2. 基本解析

(1)のデータベースの平成 19(2007)年度までの時間値データを使用して、全参加機関による基本解析を進めた。基本解析は、第 1 期及び第 2 期の共同研究で対象とした光化学オキシダント (O_x) に加え、浮遊粒子状物質 (SPM) も対象にし、これまでの共同研究で作成してきた集計解析プログラムを使用して実施した。各機関で実施した基本解析結果を、各地域グループにおいて地域内で比較するとともに、周辺地域との類似性・相違性を把握することにより、地域特性の解明を進めた。さらに、各地域グループの解析結果をもとにした全国解析を実施した。

2.4.3. 高濃度エピソード解析

平成 19 年春～夏に発生した O_x と SPM の高濃度汚染について、平成 19 年 7 月に参加自治体を対象に、「今年 6 月の高濃度汚染状況に関する緊急アンケート調査」を行った。その結果と全体集会における議論などを踏まえて 4 対象期間を決め、地域グループで分担して解析を進めた。更に、九州グループでは、九州で発生した高濃度エピソードを対象に、独自の観測データも加味して解析し、報告書としてまとめた（「2.5.1 成果発表」参照）。

2.2.4. 応用解析

応用解析は、目標が明確な全国的・広域的な課題、緊急に解決すべき課題等を募集し、グループ研究するのに十分な賛同者が得られた研究テーマについて実施した。その結果、「PO を用いたオゾンの地域特性と経年変動の解析」、「衛星データ活用」、「 O_x 測定法」の 3 つのテーマについて研究を進めた。

2.4.5. 大気汚染予測の試験公開と改良

東アジア、日本、関東を対象とした大気汚染予測システムの試験公開を、国立環境研究所の「環

2. 研究概要

境 GIS」ホームページにおいて平成 20 年 5 月から開始した。また、関西における詳細予測の準備を進めるとともに、中部と九州の詳細予測についても環境省に支援・協力する形で進めた。平成 21 年 6 月から、これらの地域の詳細予測の試験公開を開始した。更に、環境省と協力して、東北と中国四国の詳細予測化に着手した。

2.4.6. その他

中国四国グループは、全国の自治体を対象に「夜間の Ox 注意報の発令・解除体制の状況調査」を実施して実態をまとめ、その結果を環境省に提供した。

2.5. 研究成果

2.5.1. 成果発表

2.5.1.1. 研究論文

大気環境学会誌などに 14 件の研究論文を発表した（資料 3「1. 論文発表」参照）。

2.5.1.2. 口頭発表

大気環境学会年会などにおいて 48 件の口頭発表を行った（資料 3「2. 口頭発表、3. 大気環境学会年会発表」参照）。

大気環境学会年会では、第 48 回大気環境学会年会（平成 19 年 9 月、岡山市）で 6 題、第 49 回大気環境学会年会（平成 20 年 9 月、金沢市）で 8 題、第 50 回大気環境学会年会（平成 21 年 9 月、横浜市）で 12 題の研究発表を行った。これらの研究発表要旨は、第 48～50 回大気環境学会年会講演要旨集に掲載されているので参照されたい。

2.5.1.3. 九州における光化学オキシダント高濃度に関する報告書

九州グループは独自の観測データも加味して時間値データを解析し、「九州における光化学オキシダント高濃度に関する解析」報告書（平成 20 年 7 月）をまとめ、関係する自治体や研究機関に配布した。報告書要旨は、「5.4. 九州地域における高濃度の解析」に掲載しているので参照されたい。

2.5.2. その他の成果

2.5.2.1. 全国の大気環境時間値データベースの整備

平成 20 年度までの全国の大気環境時間値と測定局情報のデータベースを作成した。

2.5.2.2. 大気汚染予測の試験公開の開始

大気汚染予測システムの開発・改良を、環境省と連携・協力して進め、国立環境研究所の「環境 GIS」ホームページから、当日・前日予測結果の試験公開を開始した。

2.5.2.3. 大気環境行政に対する支援・協力

環境省や各自治体に対し、研究成果等の情報提供を含め、各種の支援・協力を行った。特に、平成 19 年 5 月に発生した光化学スモッグが大きな社会問題となって以降、様々な形で、本研究の研究ネットワークと研究成果が活用された。

3. 基本解析

第1期の基本解析では、共同研究参加機関が属する地域（20都府県）における光化学オキシダント（Ox）の基本的特徴を把握するため、地域別にデータ解析を行った。最初に、地域的に代表性があり、長期間継続して測定している測定局を原則5局選定した。測定局数が5局に満たない自治体については、できる限り多くの測定局を選定した。選定した測定局の時間値データの解析を行い、Ox濃度の経年変化、月変化、他の汚染物質との関係について調べ、各地域の特徴を把握した。

第2期の基本解析では、第1期の解析方法を踏襲し、第1期に選定した測定局（原則5局）について、第1期以降新たに整備された時間値データ（2001～2004年度）を含めたデータ解析を行い、引き続き、Ox濃度の経年変化、月変化、他の汚染物質との関係について調べ、第1期に把握した各地域の特徴を確認した。第2期の基本解析では、38の地域（都道府県市）について、データ解析を行った。解析期間は、原則として時間値データ整備が完了した全ての年度、即ち各自治体の測定開始年度から2004年度までである。

第3期の基本解析では、第2期までの解析方法を踏襲し、第2期までに選定した測定局（原則5局）について、第2期以降新たに整備された時間値データ（2005～2007年度）を含めたデータ解析を行った。第3期の基本解析は、第1期及び第2期の共同研究で対象としたOxに加え、浮遊粒子状物質（SPM）も対象にし、これまでの共同研究で作成してきた集計解析プログラムを使用して実施した。各機関で実施した基本解析結果を、各地域グループにおいて地域内で比較するとともに、周辺地域との類似性・相違性を把握することにより、地域特性の解明を進めた。さらに、各地域グループの解析結果をもとにした全国解析を実施した。第3期の基本解析では、50の地域（都道府県市）について、データ解析を行った。解析期間は、原則として時間値データ整備が完了した全ての年度、即ち各自治体の測定開始年度から2007年度までである。

基本解析の解析項目は次のとおりである。

<経年変化の把握>

1. Ox濃度の年平均値・月別平均値の経年変化
2. Ox濃度の年最大値の経年変化
3. Ox濃度60ppb以上の時間数及び時間率の経年変化
4. Ox濃度60ppb以上の時間数及び時間率の経年変化（月別）
5. Ox濃度の年度別平均値と平年値（1990～2007年度）との偏差
6. Ox濃度ランク別（20ppb毎）の時間数の経年変化
7. SPM濃度の年平均値・月別平均値の経年変化
8. SPM濃度の日平均値の2%除外値の経年変化
9. SPM濃度100 μ g/m³以上の時間数及び時間率の経年変化
10. SPM濃度100 μ g/m³以上の時間数及び時間率の経年変化（月別）
11. PO濃度の年平均値・月別平均値の経年変化
12. NOx濃度の年平均値の経年変化
13. NMHC濃度の年平均値の経年変化

<経月変動・季節変動>

1. Ox濃度の経月変動（1990～2007年度）（1990～1994年度）（2003～2007年度）
2. Ox濃度の60ppb以上の月別出現率の経月変動（同上の解析期間）
3. SPM濃度の経月変動（同上の解析期間）
4. SPM濃度100 μ g/m³以上の月別出現率の経月変動（同上の解析期間）

3.基本解析

5. PO 濃度の経月変動（同上の解析期間）
6. NO_x 濃度の経月変動（同上の解析期間）

＜統計値との関係・複数の物質との関係＞

1. O_x 濃度の年平均値と 60ppb 以上出現時間率との関係
2. SPM 濃度の年平均値と 2%除外値との関係
3. O_x 濃度年平均値と SPM 濃度年平均値との関係
4. O_x 濃度年平均値と NO_x 濃度年平均値との関係
5. SPM 濃度年平均値と NO_x 濃度年平均値との関係

経年変化の把握に関する解析項目については、長期変動の傾向を把握するため、解析年度を時間値データの整備開始年度に遡り、全年度の解析を行った。但し、ほぼ全ての自治体の時間値データが出揃ったのは概ね 1990 年度以降であり、地域間の比較・検討を行う場合には、1990 年度以降のデータが中心となる。経年変化を把握する解析期間としては、近年の傾向も把握するため、全年度通算、1985～2007 年度、1990～2007 年度、1995～2007 年度、2000～2007 年度の 5 年おきとし、それぞれの解析期間の増減率等を算出し、その相関係数についての有意性検定も行った。また、経年変化グラフには、5 年間移動平均のグラフも添付した。

経月変動・季節変動については、地域間の比較・検討を行うため、解析年度を 1990～2007 年度に統一して解析を行い、併せて 1990 年代初頭（1990～1994 年度）、最近 5 年間（2003～2007 年度）との比較・検討を行った。

本報告書では、O_x・PO・SPM 濃度年平均値の経年変化、O_x・PO 濃度月平均値の経月変動について、各グループ共通で考察し、その後に各グループ独自の考察を記載した。

なお、第 3 期に基本解析を行った 50 の地域（都道府県市）の解析結果は、紙面の都合で、本報告書に全文掲載できないため、報告書の付属資料とし、公開 Web サイト「光化学オキシダント等に関する C 型共同研究」ページに掲載した。各自治体の行った基本解析結果には、選定 5 局の地理的配置図や、測定機器の変遷等の属性情報も含まれている。付属資料の収録内容については、本報告書の巻末に掲載した、「本報告書付属資料の Web 公開について」を参照されたい。

3.1. 地域のまとめ

3.1.1. 北海道東北北陸地域のまとめ

3.1.1.1. 経年変化の基本的特徴(概況)

(1) O_x 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.1.1、3.2 項全国集計表参照)

1990～2007 年度に各道県で得られた傾きは-0.09～0.36ppb/年(但し、解析対象全局のデータが揃った年度の結果のみを使用したため、以下の自治体は解析対象開始年度が異なる。北海道、福島は 1992～2007 年度、富山は 1993～2007 年度)で、太平洋側に位置する宮城、福島を除く各道県で増加傾向を示し、その中でも有意な傾向を示したのは山形 0.31ppb/年 ($p<0.05$)、新潟 0.36ppb/年 ($p<0.001$)、福井 0.16ppb/年 ($p<0.05$) の 3 県で、北陸を中心とした日本海側で増加傾向が明確であった。2000 年度以降では有意な増加傾向を示した新潟 0.78ppb/年 ($p<0.01$) をはじめ、有意性は見られなかったものの北陸、東北南部では 0.14～0.25 ppb/年の増加率を示しており、東北南部以南で近年 O_x 濃度の増加を示す結果となった。それに対し、山形、宮城以北では、明確な増減傾向は見られず、特に山形では、1990 年代の増加傾向から、2000 年代には減少傾向に転じているのが特徴である。各地域ともに年度毎の濃度の増減が見られるが、これは、春における大陸からの寄与の割合や夏に受ける気団の影響、光化学反応の発生状況などの年度毎の違いが左右していると考えられる。

年平均値の各自治体間比較では、最高と最低でおよそ 10ppb の差が見られた。秋田で最高濃度を示す年度が多かったが、秋田県内 2 地点いずれも NO_x 濃度が低く、消費される O_x 濃度が低いことに起因していると考えられる。一方、北海道、福井では平均濃度が低く、北海道では冬期の暖房使用等の影響により NO_x 濃度が高くなり、O_x の消失に影響していると考えられる他、福井では、谷間に位置する地形の影響により濃度が低くなったと考えられる。

(2) PO 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.1.2)

1990～2007 年度では新潟県で有意な増加傾向 0.33ppb/年 ($p<0.001$) を示している以外は、増減の傾向は明確ではなかった。また、2000 年以降の傾向としては、新潟 0.74ppb/年 ($p<0.01$) を初めとして北陸地域で正の増加率を示していたのに対し、東北・北海道では山形-0.63ppb/年 ($p<0.01$) で有意な減少傾向を示すなど、宮城以外で負の増加率を示し、北陸と東北・北海道では異なる変動傾向を示していることがわかる。

年平均値の各自治体間比較では最大と最小で 5ppb の差が見られ、O_x 濃度年平均値と比較して小さくなった。このことから、各地域のバックグラウンドとして存在する O_x に大差のない状況が確認された。自治体毎の濃度を比較すると、福井を除く日本海側で 40ppb 程度の濃度を示し、その中でも富山、石川で高い濃度を示していたのが特徴である。また、2003～2007 年度の傾向として、日本海側での濃度が高いのに対し太平洋側の宮城、福島では 36～38ppb 程度の低い濃度を示し、地域的な濃度の出現傾向の違いが見られた。福井に関しては、日本海側ではあるが濃度が低い特異的な傾向を示しており、地形的な要因が影響していることが推察された。

(3) SPM 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.1.3)

1990～2007 年度に各道県で得られた傾きは-0.64～-0.01ppb/年(但し、解析対象全局のデータが揃った年度の結果のみを使用したため、以下の自治体は解析対象開始年度が異なる。北海道、宮城、福島は 1992～2007 年度、富山は 1993～2007 年度)で、いずれも負の増加率を示し、秋田以外では有意な傾向を示していることから、グループ内全体で明確な減少傾向を示していると言える。2000 年度以降では全自治体で有意な減少傾向を示しており、その傾きも 1990～2007 年度と

3.基本解析

比較して大きくなっている。SPM 濃度減少の要因としてはディーゼル車の PM 規制やダイオキシン対策のための野焼きの禁止などが考えられる。また、2000 年度付近に黄砂の影響と考えられるピークが見られており、長距離輸送による大陸からの影響も SPM 濃度の変動に影響している状況が窺えた。自治体間の比較では、近年になるほど自治体間の差が小さくなっており、地域的な発生源から二次粒子などの移流による影響が主体になってきている状況が窺えた。全自治体の中では秋田、北海道といった北部での濃度が低いのが特徴である。

(4) Ox 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.1.4)

いずれの自治体も 4、5 月に濃度が上昇する春型のパターン（一山型）を示していた。1990 年代初頭と最近 5 年間とで特徴的な違いとしては、6 月の濃度が上昇したことによりピークの形がやや右寄りになったことである。最近 5 年間の 6 月においては 1990 年代と比較して気温の上昇が他の月よりも大きい値を示している地域もあり、気流の変化などが濃度の変動に影響を与えていることが予想される。（詳細は 3.1.1.2(2)項参照）また、夏から冬にかけては 1990 年代初頭と最近 5 年間ではやや違う傾向が見られ、1990 年代初頭には秋田、北海道など北部地域で夏から冬にかけて増加傾向が見られ、その他の地域は概ね一定した値を示していたのに対し、最近 5 年間では夏から冬にかけて濃度が上昇している地域が見られなくなり、北陸を中心に夏から冬にかけてなだらかに減少傾向を示す地域が見られるようになった。1990 年代に見られた夏の濃度の落ち込みは見られなくなり、全体的に夏の濃度が上昇している状況が読みとれる。また、宮城では秋に小さいピークが見られるのも特徴の一つである。

(5) PO 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.1.5)

Ox と同様、春型のパターン（一山型）を示していた。1990 年代初頭には富山、石川で夏と冬で濃度差が小さかった他は、8 月に極小となり、冬にかけて濃度が上昇する傾向は一致していた。また、冬には各自治体差が小さいのに対し、春から夏にかけては地域差が見られていた。しかし、最近 5 年間では、春から夏にかけての地点間差も小さくなり、また、8 月の落ち込みも見られなくなるなど、変動傾向に違いが見られている。1990 年代初頭の 8 月と 12 月の濃度差を比較すると、富山、石川以外では 5ppb 以上の濃度差が見られたが、最近 5 年間では宮城、秋田、新潟、福井では 8 月と 12 月の濃度差が 3ppb 以内とかなり小さくなり、夏から冬にかけて同様の濃度レベルで推移する地域が増加したことを示している。北海道で最近 5 年間でも 8 月と 12 月とで 7ppb 以上の差を示しているのを初め、山形、福島で 4～5ppb 程度の差が見られるが、これらの地域でも 1990 年代初頭と比較して大幅に減少していることが特徴である。

3.1.1.2. 地域の解析のまとめ

(1) Ox 高濃度(60ppb 以上)出現率の経年変化と季節変動(図 3.1.1.6、図 3.1.1.7)

1990～2007 年度の Ox 高濃度(60ppb 以上)出現率の変化を見ると、新潟、山形で有意な増加傾向(0.19%/年 ($p<0.001$)、0.17%/年 ($p<0.05$))を示したが、全体的には年度毎の変動が大きいのが特徴である。変動の仕方は、1998 年度のように比較的多くの自治体で減少傾向を示す年度がある一方、共通性があまり見られない年度もあり、グループ内の出現傾向が必ずしも一致していない状況が窺えた。

図 3.1.1.7 に示すように、高濃度の出現は春が主体であることがわかる。1990 年代初頭と最近 5 年間を比較すると、5、6 月の出現割合が最近 5 年間で大幅に増加している点と、8 月に小さいながらもピークが見られることが特徴としてあげられる。これは、それぞれの期間における気候の出現状況や支配される気団の違いなどが影響しているものと推察される。

(2) Ox、PO 濃度月別平均値の経年変化と気温の関係(表 3.1.1.1、表 3.1.1.2、表 3.1.1.3)

1990～2007 年度の Ox 月別平均値の増加率を見ると、3 月～10 月は概ね正の増加率を示し、特に、6 月、8 月は全自治体で正の増加率を示していた。中でも 6 月は北陸を中心に高い増加率を示し、いずれも有意な増加傾向を示す結果となった。2000～2007 年度の増加率においてもこの傾向は見られ、北陸地域では、更に高い増加率を示しており、6 月に関しては長期的な傾向であるといえる。これらの傾向は PO に関しても同様に見られた。一方、11～2 月にかけては Ox、PO ともに負の増加率を示す地域が多く、冬期における Ox 濃度の低下を示す結果となった。1990～2007 年度と 2000～2007 年度の違いとしては、2000～2007 年度では 4 月に減少傾向を示す自治体が増加したことと、9、10 月の増加率が大きくなった点である。これらの結果は、気象的な要因が関係していることが予想されるため、月平均気温の変動との比較検討を行った。各自治体から気象官署 1 カ所を選定し、各月の平均気温の変動について 1990～2007 年度と 2000～2007 年度の増加率を算出した。算出に際しては、Ox データと整合性を図るため、年ではなく年度による整理をしている。1990～2007 年度では、1、11、12 月の冬期と 7 月に減少傾向を示す一方で、6、8、9 月に増加傾向が見られる。これらの結果は、月別の Ox 濃度の経年変動傾向と類似しており、影響する気団の違い、地域的な Ox の生成量の差、長・中距離の移流などが長期的に変化していることを示す一つの指標と考えられる。2000～2007 年度には 6、8～10 月の増加率が増し、4、5、7 月の減少率が大きくなっているが、これらの傾向についても 5 月の結果を除けば Ox 濃度の変動に類似性が見られる結果となり、気象要素が関連している状況が窺えた。

(3) 遠隔地における Ox 年平均濃度の変動と地域的傾向(図 3.1.1.8、表 3.1.1.4)

北海道・東北・北陸地域のバックグラウンドとして存在する Ox 濃度の状況を把握するため、遠隔地測定局の結果について検討を行った。対象地点は東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)に位置づけられている利尻、落石岬(北海道)、竜飛岬(青森)、佐渡関岬(新潟)の 4 地点である。2000 年度より測定を行っている利尻、竜飛岬、佐渡関岬では 2000～2007 年度(利尻は 2000～2006 年度)の平均値がそれぞれ 41.2、49.1、46.3ppb で、それぞれに近い自治体で求められている PO 濃度を超える高い濃度が得られた。また、増加率はいずれも 1ppb/年付近の高い値を示しており、濃度の上昇に関して同様の結果が得られた。地域的な差を見ると、日本海側に位置する利尻、竜飛岬、佐渡関岬の中で最も北に位置する利尻がこの 3 地点の中では最も年平均濃度が低く、影響を受ける気団の差が、濃度差に反映していると推察される。また、唯一太平洋側に位置する落石岬では利尻よりも低い濃度で、測定を行っている 2005～2007 年度の平均値が 38.9ppb であった。前述した PO 年平均濃度の最近 5 年間の傾向の中で、太平洋側に位置する宮城、福島が他の地域よりも低い濃度であることを示したが、同じ北海道に位置する利尻と落石岬の比較からこうした傾向が見られることから、日本海側と太平洋側とで地域的な差が生じているものと推察される。

(4) SPM 高濃度(100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上)出現率の経年変化と季節変化(図 3.1.1.9、図 3.1.1.10)

SPM 高濃度(100 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上)出現率は、1990～1999 年度にかけて多くの自治体で明瞭な減少傾向を示していた。2000～2002 年度には再び出現率が上昇した後 2004 年度以降は再び減少し、全自治体で出現率が 0.5%を下回った状況が続いている。1990 年代は自治体ごとの出現率に差が見られたが、2000 年度以降は差が小さくなり、出現率の変動傾向も類似性が見られた。これは、1990 年代には地域的な発生源の影響が出現率にも影響を及ぼしていたが次第に減少し、2000～2002 年度に黄砂の発生が頻発した影響から出現率が増加したように、高濃度の出現は長距離輸送による影響が支配的になってきているものと推察される。

季節的な変動状況を見ると、1990 年代初頭は 4、7 月及び 11 月を中心とした晩秋期にピークを示していたが、最近 5 年間は晩秋期のピークは見られなくなり、4 月のピークが明瞭となったのを

3.基本解析

はじめ、春から夏にかけて比較的高い出現率を示していた。大陸からの影響と二次粒子の寄与が大きくなっていることが考えられるが、これらのことから、近年は SPM 高濃度の発生は局地的な影響よりも中・長距離輸送によるものが大きいと予想される。

(5) SPM 濃度月別平均値の経年変化(表 3.1.1.5)

1990 年度～2007 年度の月別増加率を見ると、4～6、8 月の一部の自治体を除き、減少傾向を示していることがわかる。特に、11～1 月にかけての減少率がグループ内全体で大きく、高濃度出現率が同時期に減少している点とも一致している。また、7 月に減少率が大きいのが特徴であり、この傾向は 2000～2007 年度にかけても明確となっている。冬季の SPM 濃度の減少は先にも述べたようにディーゼル車の PM 規制やダイオキシン対策のための野焼きの禁止などが原因として考えられるが、7 月についてはこれらの要因とは考えにくく、梅雨期における降水量、降水時間など別の要因が影響しているものと推察される。

(6) NO_x 濃度年平均値の経年変化と季節的特徴(図 3.1.1.11、図 3.1.1.12)

1990 年度から 2000 年度頃にかけては横ばいで推移する自治体が多かったが、2000 年度以降は減少傾向を示している。自治体間の濃度差が大きいことが特徴であり、特に北海道で高い濃度を示している。季節変化としてはいずれの地域も冬に高く夏に低い変動傾向を示しているが、大気安定度などの気象要因や酸化反応による消失、燃料消費量の差等が濃度の高低に影響しているものと考えられる。1990 年代と近年を比較して若干減少傾向は見られるが、季節的な出現傾向に大きな差は認められない。

(7) 北日本地域に流入するオゾン濃度の推定(図 3.1.1.13、図 3.1.1.14、図 3.1.1.15、図 3.1.1.16)

当グループの特徴としては、局地的な汚染が比較的小さい測定局が多いことから、大陸からの影響を含め、日本の北部地域に流入する O₃ の状況について検討する際に好都合な配置をしている点である。また、NO₂ と O_x の散布図を図 3.1.1.13 に示すが、比較的良好な相関が得られており、地理的条件と気象的条件を考慮した散布図を描くことにより、その y 切片から日本に流入する O₃ (バックグラウンドオゾン (BO)) の状況について知る手がかりとなると推測された。

季節により影響を受ける気団の種類が違ふと思われるため、O_x—NO₂ の関係について季節的に違いがあるかどうかの検討を行った。季節の区分については、年度を春(3 月(前年度データ)～5 月)、夏(6 月～8 月)、秋(9～11 月)、冬(12～2 月)の 4 季に分け、それぞれについて O_x—NO₂ 散布図の作成を行った。このとき、日本海側(海岸線からおおよそ 50km 以内)と内陸・太平洋側に区分し、分布状況の違いについての検討も行った。季節別の O_x—NO₂ の散布図を図 3.1.1.14 に示す。季節によりばらつきの傾向に違いがあり、春、秋、冬は相関性が認められたが、夏はばらつきが大きく有意な相関関係は認められなかった。また、春には日本海側と内陸・太平洋側とで分布の違いが出現すると予想されたが、明瞭な違いは見られなかったのに対し、夏に太平洋側と比較して日本海側で NO₂ 濃度に対する O_x 濃度が高めに出現する傾向が見られた。この原因については明確ではないが、春、秋、冬については比較的広範囲な気塊の動きが北日本地域の O_x 濃度の変動に影響を与えているのに対し、夏は、国内での移流や地域毎の O_x 生成能の差などにより、濃度の出現状況に差が生じたものと推察される。

各季節の切片の値を比較すると 32.7～49.2ppb で春に最も高く、春には平均値として 50ppb 程度の BO がすでに存在すると推定できる。このことから気象状況などにより容易に環境基準 60ppb を超える状況であることが窺える。この切片の変動から各季節の長期的な BO 濃度の変動傾向を推定することは可能であるが、できるだけ O_x—NO₂ の分布のばらつきが少なくなるような地点選定が必要とされる。そこで、北日本地域での BO 濃度の状況をより精度良く把握するために、比較的上空の濃度を反映しやすい標高の高い地点(標高 100m 以上) 8 地点(旭川中央、国設籠岳、山形十日町、天童老野森、会津若松、朝日、白河、滑川大崎野)を選択し、O_x—NO₂ 散布図の作成を

行った(図 3.1.1.15 (2006 年度の結果のみ))。ただし、Ox-NO₂ 散布図で特異的な分布を示した六日町(新潟県)を除いた。各年度で分布状況を確認した結果、概ね良い相関関係が得られており、この散布図を用いて BO 濃度の長期変動について解析を行った。BO 濃度の季節別長期変動を図 3.1.1.16 に示す。春、夏、秋、冬のそれぞれの増加率は-0.21、0.19、-0.18、-0.46ppb/年で、いずれも有意性は認められなかったが、夏に正の増加率を示すなど北海道・東北・北陸地域の Ox 濃度月平均値の長期変動と同様の傾向が見られていることから、この結果は、北日本地域の BO の状況を反映しているものと考えられる。

3.1.1.3. まとめと今後の課題

今回の解析から、以下の知見が得られた。

- Ox 濃度の長期変動では、新潟を中心とした北陸地域で増加傾向を示し、東北北部・北海道については明瞭な傾向は見られなかった。この傾向は、PO についても同様である。
- SPM 濃度の長期変動では、地域内全体で減少傾向を示していた。2000 年度付近には黄砂による濃度の上昇も確認されており、SPM 濃度の変動には長距離輸送による影響が大きくなってきている状況が認められた。
- Ox 濃度の月平均値は 4、5 月に高い春型(一山型)を示していた。1990 年代と最近との比較では、6、8 月の上昇が特徴的で、月平均濃度の変動においてもその傾向は見られている。気温の変化との比較で、Ox 濃度の変化との関連性が認められた。
- SPM 濃度の季節的特徴では、1990 年代には 11、12 月のピークが見られていたが、最近ではそのピークは見られなくなり、4 月のピークが明瞭となった。
- 遠隔地測定局の解析から北海道及び太平洋側で Ox 濃度が低い地域的特徴が確認された。
- 北日本地域に流入する BO 濃度の推定から、春にはすでに 50ppb 程度の O₃ が存在すると推定された他、長期的傾向から、夏の濃度が上昇している傾向も認められた。

以上の結果から、Ox 濃度の長期的傾向などに地域特性があり、変化が一様でないことが確認されたが、今後は地域的特性について更に解析を進め、その出現原因や更に詳細な地域的特徴についての検討を行っていくことが必要である。また、他項目の気象要素との関連性について検討し、Ox 濃度変動要因について検討していくことも必要と考えられる。

参考文献

- 1) 気象庁ホームページ: 気象統計情報(1990~2007),
<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>

3.基本解析

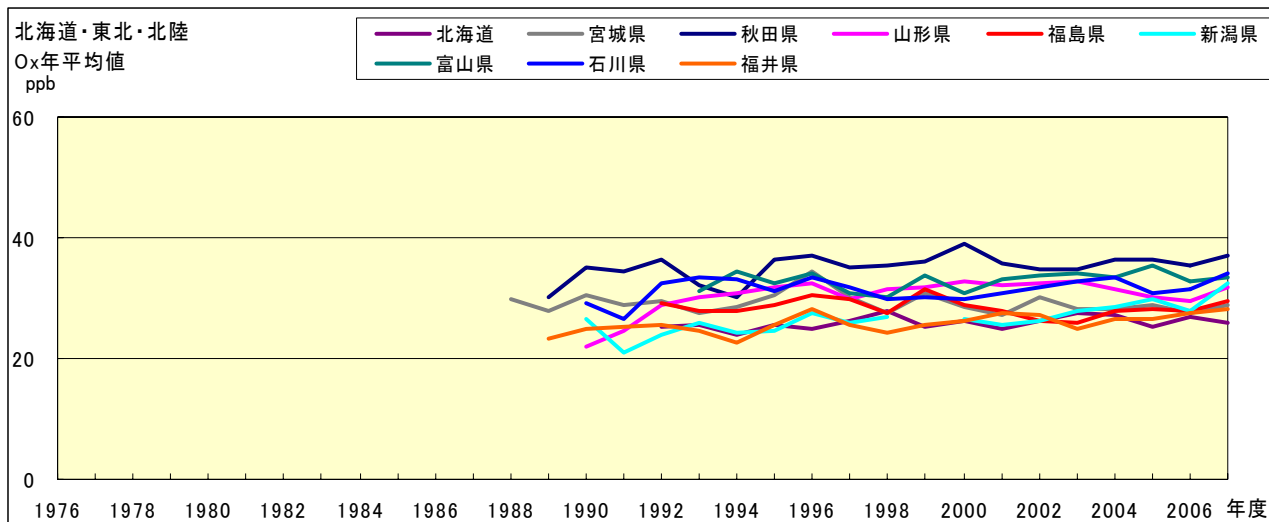


図 3.1.1.1. Ox 濃度年平均値の経年変化

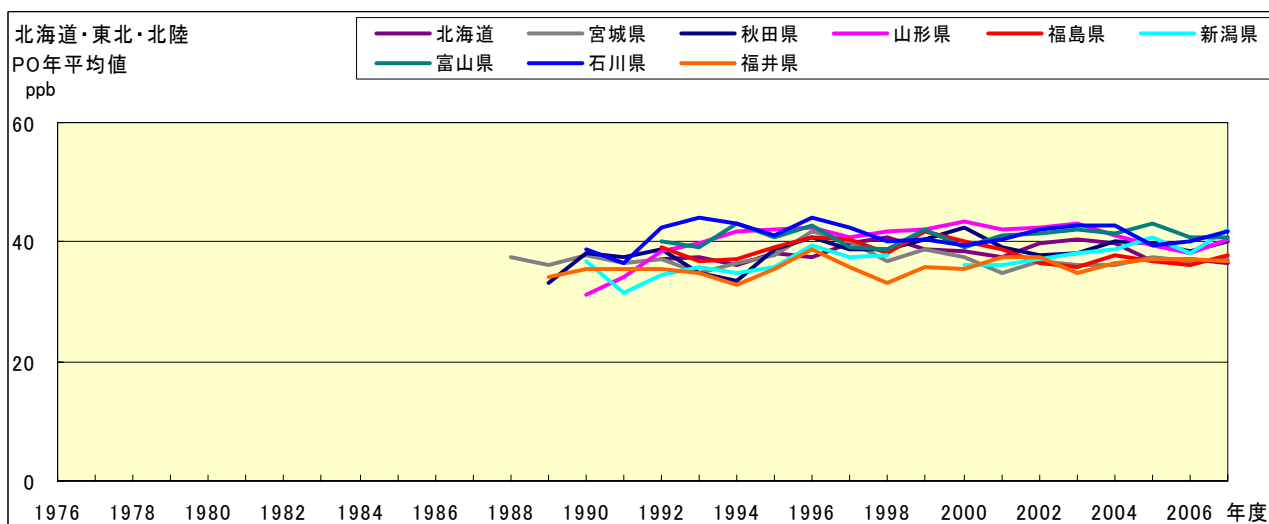


図 3.1.1.2. PO 濃度年平均値の経年変化

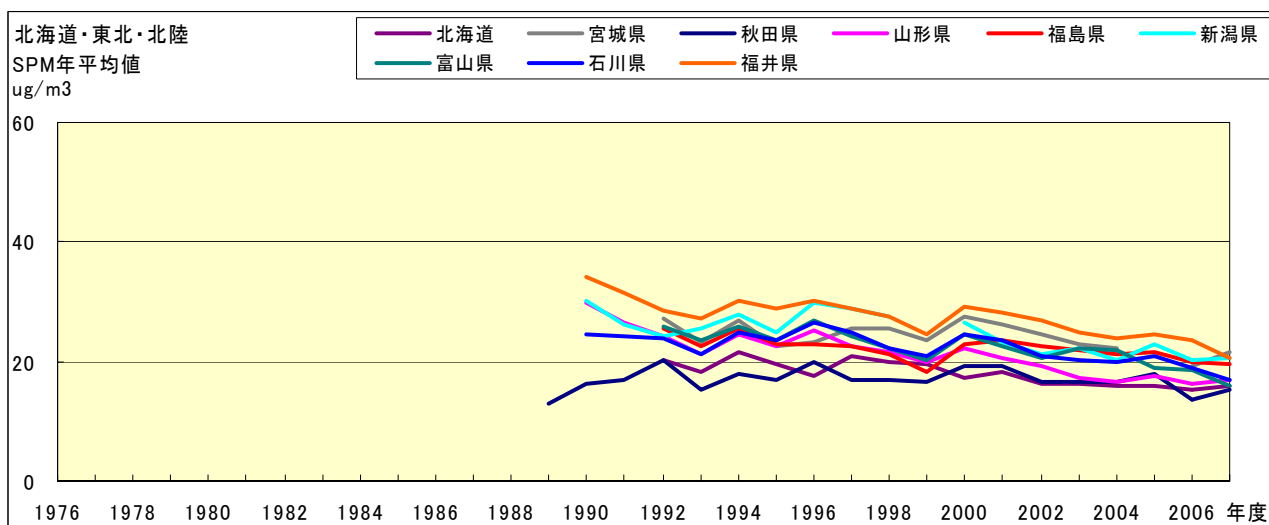


図 3.1.1.3. SPM 濃度年平均値の経年変化

Ox 濃度月平均値経月変動

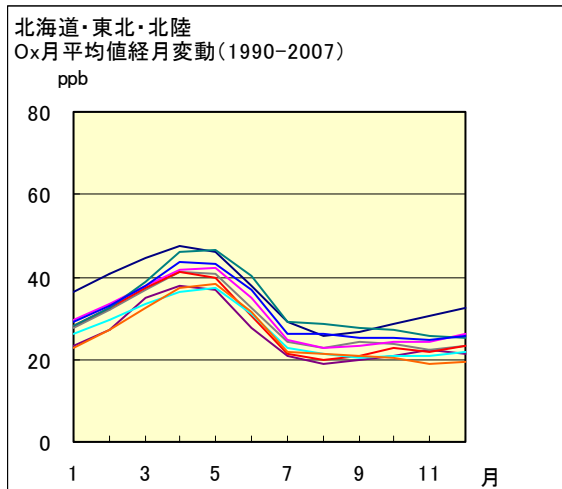


図 3.1.1.4.a 1990 年度～2007 年度

PO 濃度月平均値経月変動

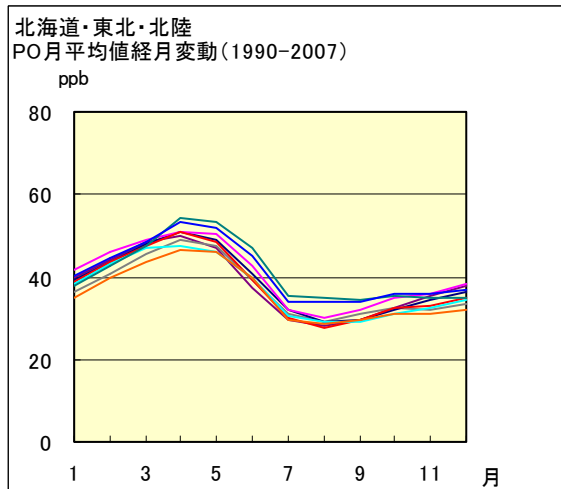


図 3.1.1.5.a 1990 年度～2007 年度

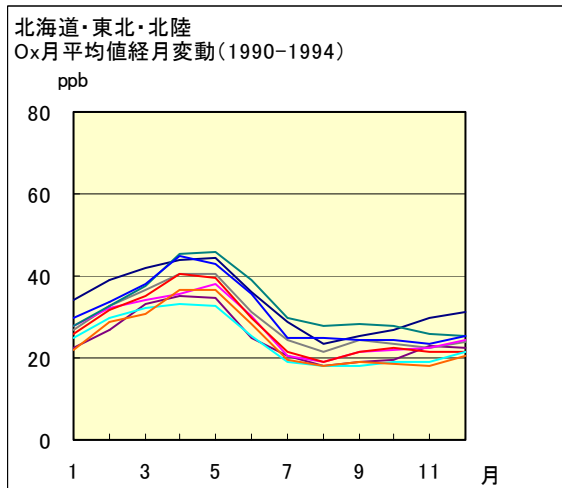


図 3.1.1.4.b 1990 年度～1994 年度

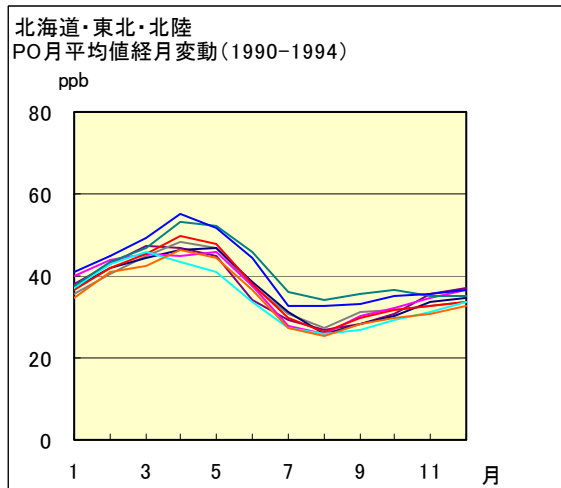


図 3.1.1.5.b 1990 年度～1994 年度

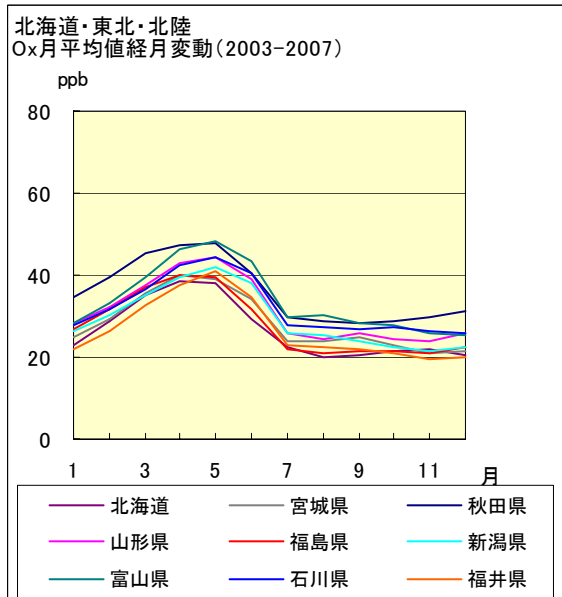


図 3.1.1.4.c 2003 年度～2007 年度

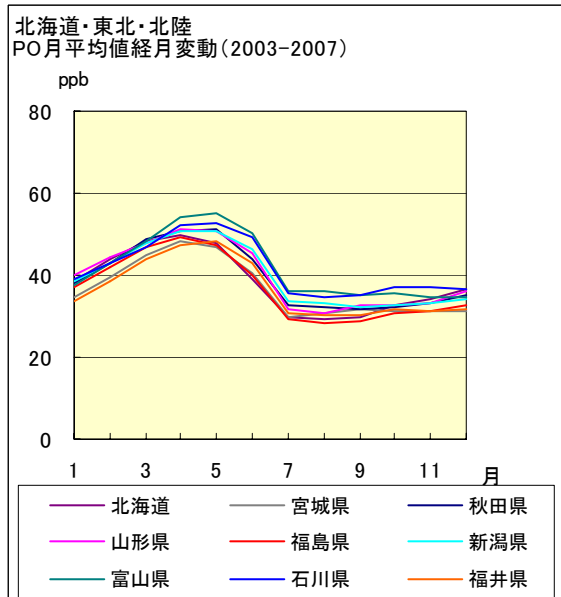


図 3.1.1.5.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.1.4. Ox 濃度月平均値の経月変動(左) および図 3.1.1.5. PO 濃度月平均値の経月変動(右)

3.基本解析

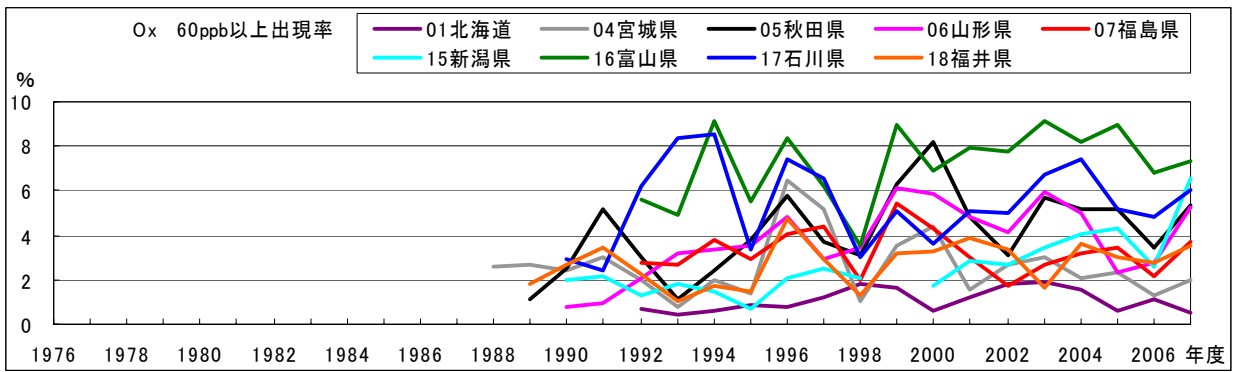


図 3.1.1.6. Ox60ppb 以上出現率の経年変化

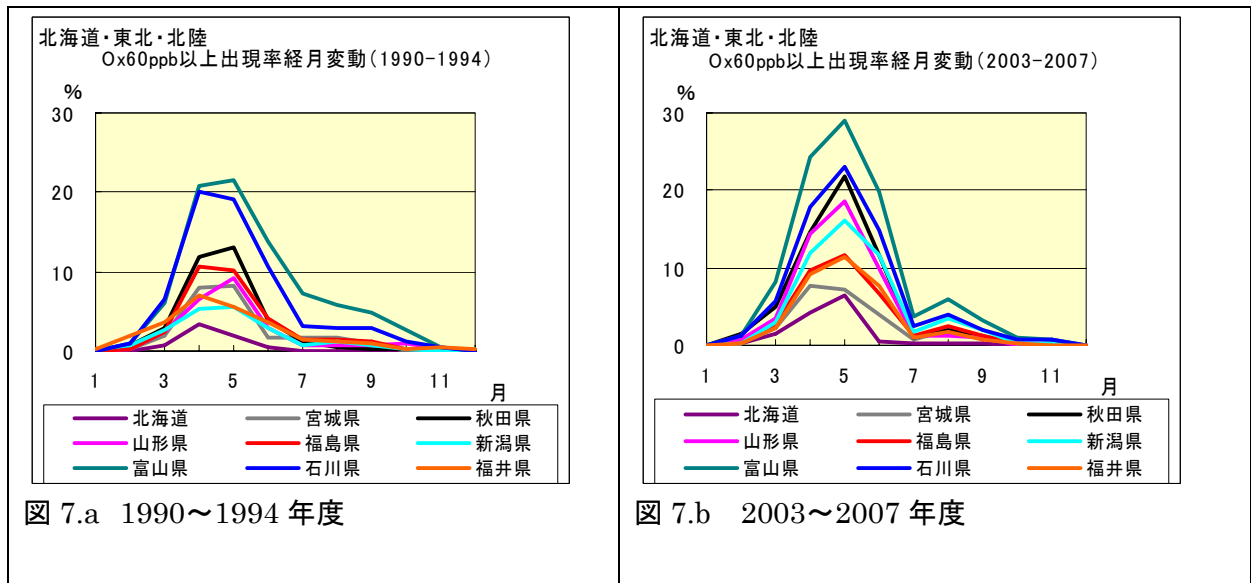


図 7.a 1990～1994 年度

図 7.b 2003～2007 年度

図 3.1.1.7. Ox 濃度 60ppb 以上出現率の経月変動(1990～1994 年度(左)、2003～2007 年度(右))

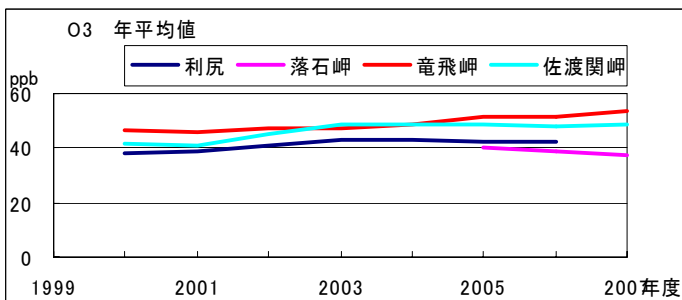


図 3.1.1.8. 遠隔地における O₃ 濃度年平均値の経年変動

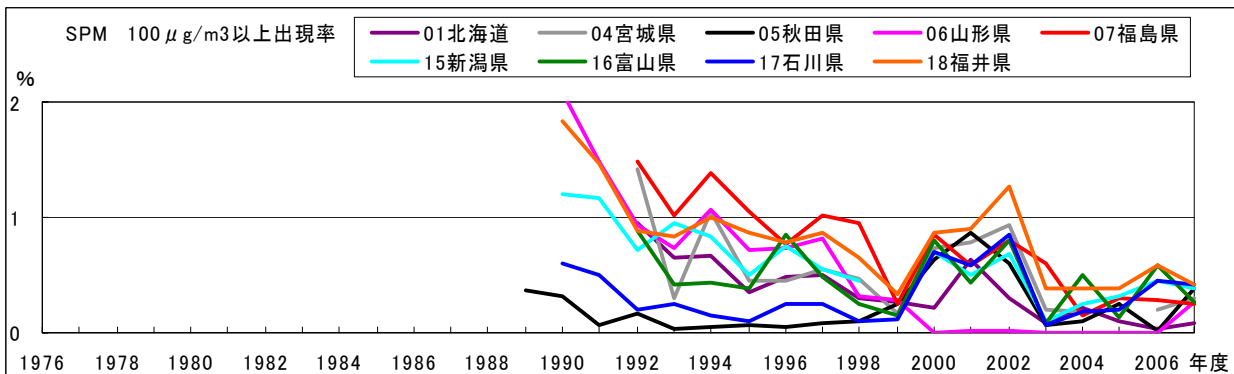


図 3.1.1.9. SPM 濃度 100µg/m³ 以上出現率の経年変化

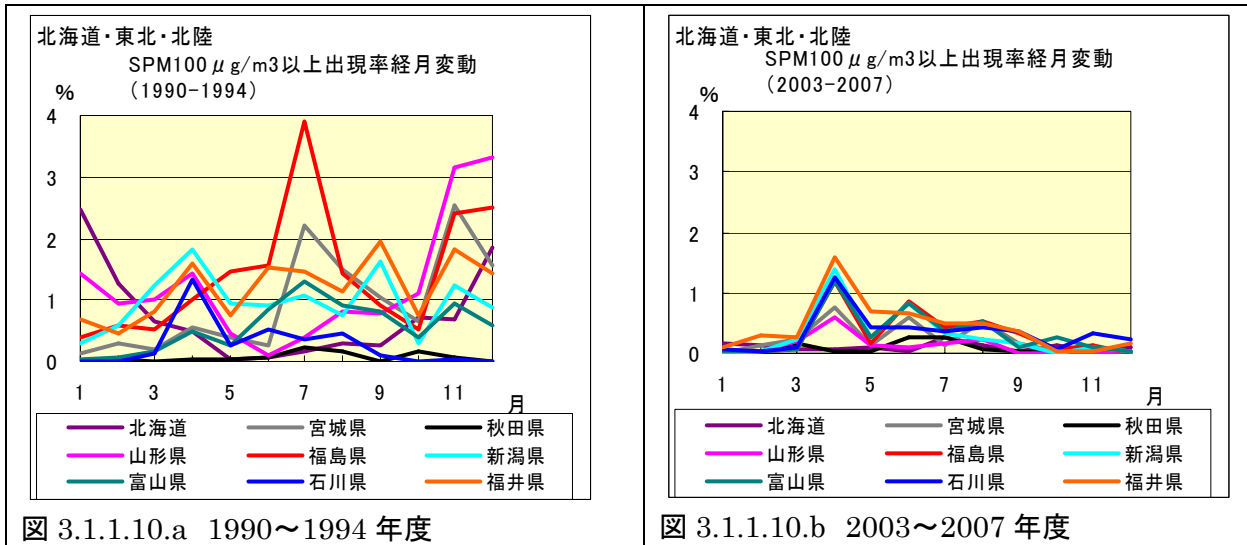


図 3.1.1.10. SPM 濃度 100μg/m³ 以上出現率の経月変動(1990～1994 年度(左)、2003～2007 年度(右))

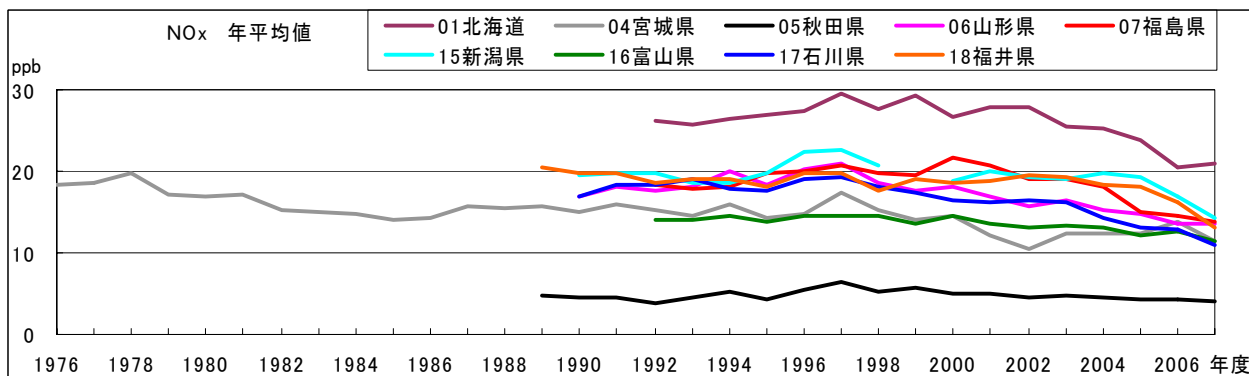


図 3.1.1.11. NOx 濃度年平均値の経年変化

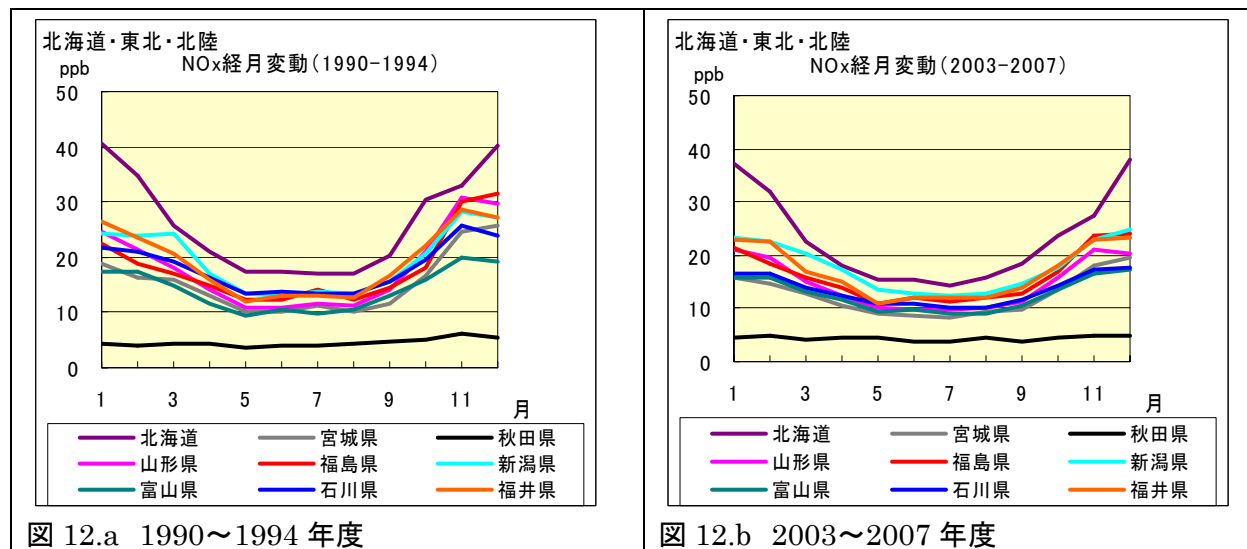


図 3.1.1.12. NOx 濃度の経月変化(1990～1994 年度(左)、2003～2007 年度(右))

3.基本解析

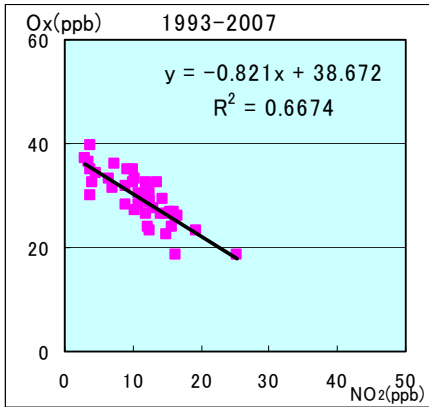


図 3.1.1.13. Ox-NO₂ 濃度散布図(1993~2007 年度)

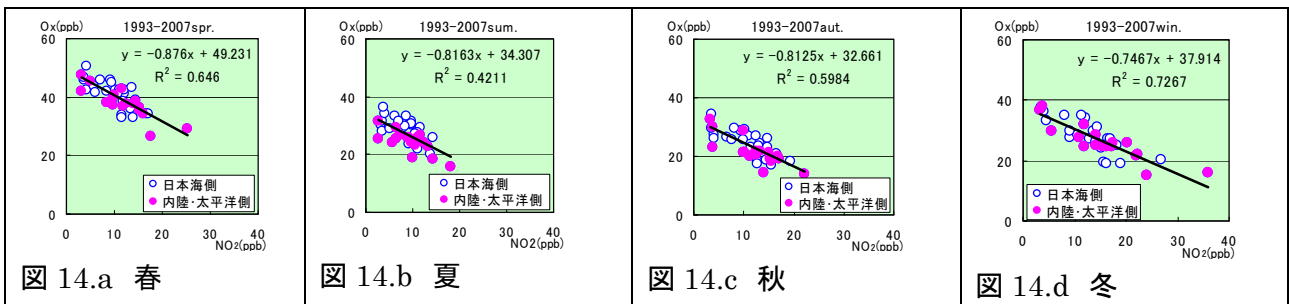


図 3.1.1.14. 季節別 Ox-NO₂ 濃度散布図(1993~2007 年度)

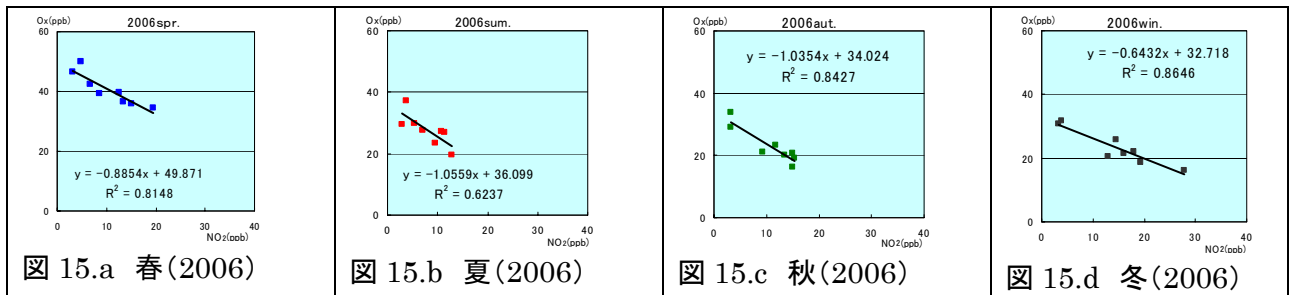


図 3.1.1.15. 選定 8 地点における季節別 Ox-NO₂ 濃度散布図(2006 年度)

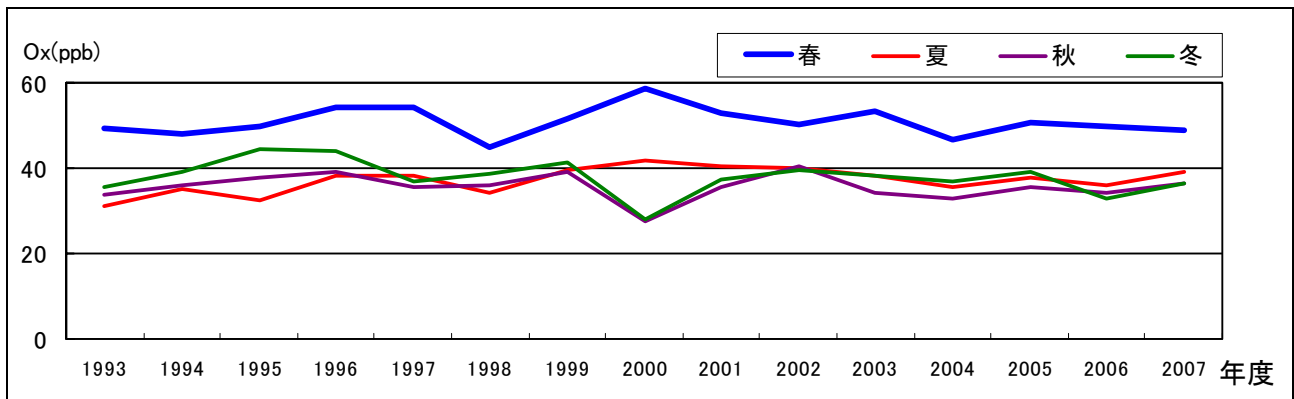


図 3.1.1.16. 季節別推定 BO 濃度の経年変動

表 3.1.1.1. O_x 濃度月別平均値の増加率

a. 1990～2007 年度

	北海道	宮城	秋田	山形	福島	新潟	富山	石川	福井
	増加率(ppb/年)								
1月	-0.03	-0.17	-0.02	0.12	-0.06	0.08	-0.01	-0.20	-0.06
2月	0.13	-0.34	-0.07	0.18	-0.20	-0.11	-0.04	-0.22	-0.10
3月	0.07	-0.10	0.20	0.12	0.03	0.30 *	0.12	-0.07	0.16
4月	0.18	-0.17	0.21	0.50 **	-0.21	0.47 **	0.09	-0.13	0.10
5月	0.26 *	-0.15	0.20	0.61	-0.14	0.64 **	0.20	0.24	0.33 *
6月	0.32	0.21	0.33	0.25	0.14	0.94 ***	0.51 *	0.48 *	0.45 ***
7月	0.14	-0.04	0.06	0.29	0.05	0.49 **	0.14	0.30	0.27 *
8月	0.15	0.14	0.38 **	0.28	0.09	0.56 **	0.17	0.25	0.25
9月	0.07	-0.01	0.26 *	0.29	-0.08	0.49 ***	0.10	0.27 *	0.21
10月	0.17	0.07	0.15	0.15	-0.13	0.32 **	0.10	0.25	0.18
11月	-0.03	-0.13	-0.02	0.22	-0.13	0.16	0.18	0.21	0.10
12月	-0.12	-0.23	-0.01	0.12	-0.09	0.06	0.05	0.07	0.05
年間	0.09	-0.09	0.14	0.31 *	-0.08	0.36 ***	0.13	0.12	0.16 *

***:p<0.001, **:p<0.01, *:p<0.05

注 1) 解析対象全局のデータが揃った年度のみを対象としているため、3.2 項の算出方法とは異なる。

注 2) 解析対象期間 北海道、福島：1992～2007 年度、富山：1993～2007 年度

b. 2000～2007 年度

	北海道	宮城	秋田	山形	福島	新潟	富山	石川	福井
	増加率(ppb/年)								
1月	-0.40	-0.42	-0.75	-0.23	-0.70	0.36	0.05	-0.53	-0.60 *
2月	-0.28	0.27	-0.41	-0.55	0.32	1.11 *	0.27	0.02	0.38
3月	-0.04	-0.02	-0.57	-0.01	0.33	0.67 *	-0.14	0.09	0.02
4月	-0.11	-0.12	-0.72	0.15	-0.42	0.75	-0.27	-0.35	-0.01
5月	0.25	-0.21	0.45	0.06	0.10	1.90	0.28	0.82	0.56
6月	0.33	-0.19	0.54	0.39	0.26	1.54 ***	0.66	1.30 **	0.95 *
7月	0.28	-0.49	-0.08	-0.25	0.16	0.31	-0.11	0.38	-0.12
8月	0.13	0.28	0.69	-0.34	0.49	0.95 *	0.36	0.51	0.05
9月	0.27	0.90 **	0.55	0.07	0.82 **	0.98 **	0.33	0.68 *	0.28
10月	0.12	-0.20	-0.01	0.01	0.10	0.65	0.71	0.69	0.45
11月	0.02	0.39	-0.14	-0.06	0.20	0.67	0.50	0.48	0.49
12月	-0.41	-0.28	-0.79 *	0.27	-0.28	0.43	0.15	0.05	-0.02
年間	0.05	0.02	-0.11	-0.33	0.14	0.78 **	0.25	0.35	0.17

***:p<0.001, **:p<0.01, *:p<0.05

注) 解析対象全局のデータが揃った年度のみを対象としているため、3.2 項の算出方法とは異なる。

表 3.1.1.2. PO 月別平均値の増加率

a. 1990～2007 年度

	北海道	宮城	秋田	山形	福島	新潟	富山	石川	福井
	増加率(ppb/年)								
1月	-0.05	-0.16	0.01	0.06	-0.12	0.01	-0.03	-0.23 *	-0.08
2月	0.00	-0.23	0.05	0.13	-0.25	-0.12	-0.10	-0.24	-0.12
3月	-0.06	-0.02	0.25	0.29	-0.13	0.18	0.04	-0.20	0.08
4月	0.07	-0.08	0.27	0.56 *	-0.21	0.46 *	0.00	-0.22	0.05
5月	0.08	-0.01	0.27	0.43	-0.16	0.71 **	0.18	0.18	0.29
6月	0.28	0.27	0.37	0.71 **	0.09	0.96 ***	0.50 *	0.43 *	0.64 ***
7月	-0.05	-0.10	0.10	0.41 *	-0.13	0.49 **	0.08	0.22	0.25
8月	0.14	0.16	0.41 **	0.43 *	0.04	0.37 *	0.11	0.17	0.26
9月	0.05	0.00	0.26 *	0.28	-0.21	0.45 **	-0.04	0.14	0.17
10月	0.09	0.05	0.17	0.15	-0.19	0.28 **	-0.02	0.11	0.12
11月	-0.10	-0.13	-0.02	0.02	-0.22	0.19	0.09	0.05	0.05
12月	-0.08	-0.20	0.01	0.02	-0.27	0.01	-0.03	-0.03	-0.01
年間	0.04	-0.05	0.17	0.28	-0.15	0.33 ***	0.07	0.03	0.12

***:p<0.001, **:p<0.01, *:p<0.05

3.基本解析

b. 2000～2007 年度

	北海道	宮城	秋田	山形	福島	新潟	富山	石川	福井
	増加率(ppb/年)								
1月	-0.77 *	-0.24 -	-0.76 -	-1.31 *	-0.97 *	0.39 -	-0.27 -	-0.66 -	-0.67 -
2月	-0.38 -	0.27 -	-0.44 -	-1.54 *	-0.44 -	0.65 -	-0.07 -	-0.29 -	0.06 -
3月	-0.29 -	0.61 -	-0.53 -	-1.17 *	-0.31 -	0.50 -	-0.12 -	-0.15 -	0.03 -
4月	-0.85 -	1.04 -	-0.75 -	-0.80 -	-0.75 -	0.86 -	-0.36 -	-0.71 -	0.02 -
5月	-0.33 -	0.01 -	0.37 -	-0.60 -	-0.19 -	1.80 -	0.26 -	0.49 -	0.56 -
6月	0.02 -	-1.23 -	0.54 -	0.03 -	-0.19 -	1.49 **	0.58 -	1.00 *	0.91 *
7月	-0.30 -	-1.09 -	-0.15 -	-0.66 -	-0.39 -	0.41 -	-0.07 -	0.18 -	0.03 -
8月	0.01 -	0.23 -	0.73 -	-0.16 -	0.20 -	1.01 *	0.46 *	0.35 -	0.03 -
9月	-0.05 -	0.92 **	0.50 -	-0.56 *	0.38 -	0.89 **	0.24 -	0.41 -	0.15 -
10月	-0.15 -	0.23 -	-0.04 -	-0.71 -	-0.43 -	0.49 -	0.34 -	0.32 -	0.31 -
11月	-0.36 -	0.35 -	-0.22 -	-0.51 -	-0.26 -	0.58 -	0.15 -	0.18 -	0.54 -
12月	-0.66 **	0.00 -	-0.76 **	-1.13 *	-0.64 *	0.31 -	-0.08 -	-0.13 -	-0.05 -
年間	-0.28 -	0.10 -	-0.13 -	-0.63 **	-0.31 -	0.74 **	0.20 -	0.09 -	0.13 -

***:p<0.001、**:p<0.01、*:p<0.05

表 3.1.1.3. 月平均気温増加率の経年変化 1)

	1990～2007年度月別増加率										2000～2007年度月別増加率									
	北海道 (札幌)	宮城 (仙台)	秋田 (秋田)	山形 (山形)	福島 (郡山)	新潟 (新潟)	富山 (富山)	石川 (金沢)	福井 (福井)		北海道 (札幌)	宮城 (仙台)	秋田 (秋田)	山形 (山形)	福島 (郡山)	新潟 (新潟)	富山 (富山)	石川 (金沢)	福井 (福井)	
	1990～2007年度気温増加率(℃/年)										2000～2007年度気温増加率(℃/年)									
1月	-0.05	-0.02	-0.01	-0.04	-0.02	0.00	0.00	-0.02	-0.04	1月	0.13	0.11	0.15	0.12	0.15	0.18	0.18	0.11	0.10	
2月	-0.02	-0.01	0.00	-0.02	0.00	0.02	0.05	0.02	0.02	2月	0.12	0.02	0.09	0.01	-0.01	0.01	-0.08	-0.11	-0.05	
3月	0.07	0.05	0.04	0.02	0.04	0.04	0.06	0.05	0.01	3月	0.18	0.00	0.06	-0.01	0.01	0.02	-0.01	-0.01	-0.02	
4月	-0.04	0.00	-0.01	-0.02	0.00	-0.01	0.04	0.02	0.01	4月	-0.31	-0.23	-0.28	-0.25	-0.21	-0.23	-0.13	-0.15	-0.14	
5月	-0.01	-0.01	0.06	0.03	0.01	0.05	0.08	0.05	0.06	5月	-0.25	-0.09	-0.19	-0.09	-0.07	-0.17	-0.14	-0.18	-0.18	
6月	0.05	0.04	0.06	0.06	0.07	0.05	0.06	0.05	0.05	6月	0.22	0.06	0.22	0.15	0.17	0.10	0.08	0.05	0.13	
7月	-0.04	-0.02	0.00	-0.02	-0.03	-0.03	-0.02	-0.04	-0.03	7月	-0.19	-0.48	-0.27	-0.46	-0.53	-0.45	-0.49	-0.48	-0.47	
8月	0.07	0.03	0.07	0.04	0.04	0.06	0.09	0.09	0.05	8月	0.29	0.22	0.06	0.08	0.25	0.00	0.09	0.06	0.07	
9月	0.03	0.03	0.06	0.06	0.03	0.07	0.10	0.09	0.10	9月	0.18	0.09	0.11	0.09	0.14	0.15	0.18	0.16	0.19	
10月	-0.02	0.00	0.00	-0.01	0.00	0.01	0.05	0.05	0.05	10月	0.04	0.08	0.08	0.07	0.11	0.08	0.13	0.10	0.14	
11月	-0.03	-0.02	-0.01	-0.02	-0.02	-0.02	0.01	0.00	-0.01	11月	0.18	0.16	0.21	0.16	0.17	0.12	0.13	0.10	0.12	
12月	-0.11	-0.09	-0.06	-0.06	-0.06	-0.04	-0.04	-0.05	-0.06	12月	0.34	0.18	0.18	0.16	0.15	0.13	0.07	0.04	0.06	
年間	-0.01	0.00	0.02	0.00	0.01	0.02	0.04	0.02	0.02	年間	0.08	0.01	0.03	0.00	0.03	-0.01	0.00	-0.03	-0.01	

表 3.1.1.4. 遠隔地における O₃ 濃度の平均値及び増加率(2000～2007 年度)

	平均値 ppb	増加率 ppb/年	備考
利尻	41.2	0.84 *	2007年度欠測 測定2005-2007年度
落石岬	38.9		
竜飛岬	49.1	1.10 ***	
佐渡関岬	46.3	1.16 **	

***:p<0.001、**:p<0.01、*:p<0.05

表 3.1.1.5. SPM 濃度月別平均値の増加率(1990～2007 年度)

	北海道	宮城	秋田	山形	福島	新潟	富山	石川	福井
	増加率(ug/m ³ /年)								
1月	-0.59 ***	-0.56 ***	-0.19 *	-0.63 ***	-0.37 **	-0.41 ***	-0.27 ***	-0.25 ***	-0.57 ***
2月	-0.36 *	-0.30 -	-0.11 -	-0.36 *	-0.24 -	-0.41 *	-0.25 -	-0.16 -	-0.46 **
3月	-0.29 -	-0.07 -	-0.04 -	-0.57 *	-0.11 -	-0.28 -	-0.37 *	-0.21 -	-0.43 *
4月	-0.49 -	-0.10 -	-0.03 -	-0.60 *	-0.05 -	-0.44 -	-0.54 -	-0.27 -	-0.29 -
5月	-0.23 -	0.13 -	0.01 -	-0.43 -	0.10 -	-0.33 -	-0.47 -	-0.25 -	0.04 -
6月	-0.16 -	0.29 -	0.10 -	-0.38 -	0.21 -	-0.15 -	-0.30 -	-0.26 -	-0.19 -
7月	-0.70 ***	-0.50 -	-0.20 -	-0.84 **	-0.87 *	-0.68 *	-1.04 **	-0.65 *	-0.75 **
8月	-0.16 -	0.16 -	0.26 -	-0.45 *	0.06 -	-0.16 -	-0.48 -	-0.27 -	-0.46 -
9月	-0.37 *	-0.01 -	-0.22 -	-0.74 ***	-0.12 -	-0.77 ***	-0.83 ***	-0.58 ***	-0.72 ***
10月	-0.32 -	-0.53 *	-0.21 -	-0.63 ***	-0.20 -	-0.47 *	-0.62 **	-0.36 *	-0.59 ***
11月	-0.32 **	-0.83 ***	-0.14 -	-0.87 ***	-0.55 **	-0.49 **	-0.43 *	-0.42 ***	-0.73 ***
12月	-0.49 **	-0.72 **	-0.30 ***	-0.97 ***	-0.86 ***	-0.87 ***	-0.63 ***	-0.52 ***	-0.92 ***
年間	-0.35 ***	-0.28 *	-0.09 -	-0.64 ***	-0.26 **	-0.46 ***	-0.52 ***	-0.35 ***	-0.52 ***

***:p<0.001、**:p<0.01、*:p<0.05

注 1) 解析対象全局のデータが揃った年度のみを対象としているため、3.2 項の算出方法とは異なる。

注 2) 解析対象期間 北海道、宮城、福島：1992～2007 年度、富山：1993～2007 年度

3.1.2. 関東甲信静地域のまとめ

3.1.2.1. 経年変化の変動特性

(1) O_x 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.2.1)

O_x 濃度の年平均値の経年変化は、関東地方と静岡県では 1990 年頃以降、程度の差はあるが概ね増加傾向にあった。山梨県では 2000 年以降増加傾向、長野県ではほぼ横ばいで推移していた。

(2) PO 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.2.2)

O_x 年平均値と同様の経年変化の傾向を示すが、測定局間のバラツキが O_x 年平均値に比べ小さくなっていることが特徴である。

(3) SPM 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.2.3)

SPM 濃度の年平均値の経年変化は、測定開始から 1990 年度頃にかけて増減はあるものの各都県市ほぼ横ばいで推移したが、1990 年度頃以降は一様に低下傾向にあり、2003～2007 年度の平均濃度は最も低くなっていた。

自動車 NO_x・PM 法などによる自動車排出ガス・粒子状物質規制や、首都圏のディーゼル車走行規制導入(2003 年)の効果によると考えられる。

(4) O_x 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.2.4)

いずれの地域も 4, 5 月にピークがある春型のパターン(一山型)を示し、夏から秋にかけては同程度の濃度で推移している。このパターンに地域差はないが、近年は夏期の濃度にやや上昇傾向が認められる。濃度レベルも大きな地域差はないが、近年は「埼玉、千葉、東京」エリアで 1990 年代と比べやや上昇している。

(5) PO 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.2.5)

PO 濃度は、春に大きな、秋に小さなピーク、夏期に底を示すパターンと春のみにピークを示すパターンがみられている。この傾向に明確な地域差は認められず、近年も同じように推移している。また、濃度レベルは 1990 年代に見られた地域差が近年では少なくなっている。春のピークはオキシダント、秋のピークは NO_x の寄与が大きいと考えられる。

3.1.2.2. 地域の解析のまとめ

(1) 地域別にみた O_x と SPM の経年変化

関東甲信静地域は地形や気流等の特性を考慮し、北関東(茨城県、群馬県、栃木県)、南関東(東京都、埼玉県、千葉県) 神奈川甲静(神奈川県・静岡県・山梨県)及び長野県に区分して地域的特徴を考察することとしたい。

(1-1) O_x 濃度の経年変化(表 3.1.2.1)

全期間の変化率(ppb/年)は、0.00(埼玉県)～0.41(静岡県)とほぼ増加傾向にあったが、近年(2000～2007年)では、千葉県(0.73)、川崎市(0.77)を初めとして大きい増加率を示す都県市が多くなっている。長野県は増加率がマイナスであった。

地域別にみると、全期間では南関東が 0.12 とやや低いが、その他 3 地域はほぼ 0.2 と同程度であった。しかし、近年では長野県がマイナスであったが、北関東は 0.26、南関東と神奈川甲静はそれぞれ 0.48、0.42 と高く地域的な違いが明らかであった。

(1-2) SPM 濃度の経年変化(表 3.1.2.2)

全期間の経年変化の傾きは全ての都県市でマイナスであり、平均して1年に $1\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度の濃度低下に相当する。最近では2000年度～2007年度にかけての低下が最も大きく、地域平均で $-1.39\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ であった。

地域別にみると、長野県は1990～2007年の低下が最大であるが、その他の地域は1995～2007年と近年(2000～2007年)の低下率が最大となっていた。

(2) Ox 高濃度汚染状況の経年変化について(図 3.1.2.6～図 3.1.2.9)

1990～2007年度の年度別、都県別の時間値データファイルからOx濃度が120ppbを超過したデータを抽出し、各超過日における最高濃度とその時刻及び超過局数をそれぞれ集計した。さらに、関東甲信静地域を4つのエリアに分割し、それぞれのエリアで再集計して解析を行った。その結果、関東甲信静地域における超過日数は減少しているが、1局当りの超過回数は増加していることが分かった。また、汚染範囲や最高濃度到達時刻に経年的な変化が見られた。

(3) 移流パターン分類によるOx高濃度時の地域特性(図 3.1.2.10、図 3.1.2.11)

1990年から2007年までの関東甲信静地域(10都県)の測定局において、120ppb以上のOx濃度を観測した日(高濃度日)について、10都県毎に高濃度観測測定局数及び観測時刻を抽出し、都県間におけるOx最大濃度の観測時刻の違いから、広域的な移流パターンの分類を行った(図 3.1.2.10)。その結果、関東甲信静地域では、南関東での移流パターンにおいて高濃度観測測定局数の増加傾向がみられ、首都圏域を中心に高濃度地域が面的に拡大していると考えられた(図 3.1.2.11)。

(4) Ox 高濃度が連続する日の特徴

①高濃度日の抽出

1990～2006年度に関東甲信静のいずれかの都県でOxが120ppb以上になった日が5日間以上継続した期間を抽出した。31事例確認され、最多連続日数は19日間で、最高値が200ppbを超えた事例も11例あった。これら31例には常に東京都および埼玉県が含まれており、単独都県のみで120ppb以上が5日間続いた例はなく、東京都、埼玉県以外に他3県を含んだ最低計5都県でOx高濃度日が5日間以上連続して起きていた。

②天気図からみた高濃度日

Oxの高濃度日が連続するためには、比較的長い期間同じ気象場が続いていることが条件である。そこで、各事例を当日9時の地上天気図で分類した。その結果、①梅雨明け後に太平洋高気圧に広く覆われた場合、②梅雨前線が東北地方に停滞するが関東地方は高気圧の勢力下にある場合、③春や秋に移動性高気圧がゆっくり進んだ場合、④本州付近に梅雨前線が停滞する場合、の4パターンに分類することができた。①～③のパターンの場合、晴天が続き大規模な海陸風循環が形成され、光化学反応とともに広範囲にOx高濃度が出現していたものと推定される。また④の場合においては、気象場から考えると日射が少ないものの、関東甲信静地域の気圧傾度が小さくよどみ域ができていた可能性があり、このことが、Ox高濃度が続いた何らかの要因になっていたものと考えられる。

3.1.2.3. 今後の課題

(1) オキシダント測定方法の変更

湿式から乾式への測定方法を変更した測定局の増加により、Ox 濃度の経年傾向が影響を受けている可能性が指摘されている。湿式と乾式では測定感度や応答性に違いがあるため、特に Ox 高濃度時の濃度変化への追従に差が生じることが原因の一つに挙げられる。これについては、本 C 型共同研究の他の研究グループにおいて自治体アンケートなどから検討を行っているが、次年度においては、その結果を踏まえて測定方法の違いによる特性を考慮した高濃度解析を行うことが望まれる。

(2) 基本解析における選定局

本 C 型共同研究では、各地環研において 5 局を選定し、統計的な解析を行っている。しかしながら、選定基準として長期間の測定データを有する必要があるため、必ずしも地域を代表する測定局とはなっていない。また、5 局を平均した値やその経年的な傾向（回帰直線の傾き）などを比較することの意義を捉えることが難しい。従って、データの傾向を把握した上で、面的な濃度をみる場合や経年的な傾向をみる場合など目的に応じた選定局のデータを用いることを検討する必要がある。特に、広域の多数の測定局を扱う都道府県では、都道府県の枠に捉われずに、隣り合う地域との関係を考慮した選定が望まれる。

3.基本解析

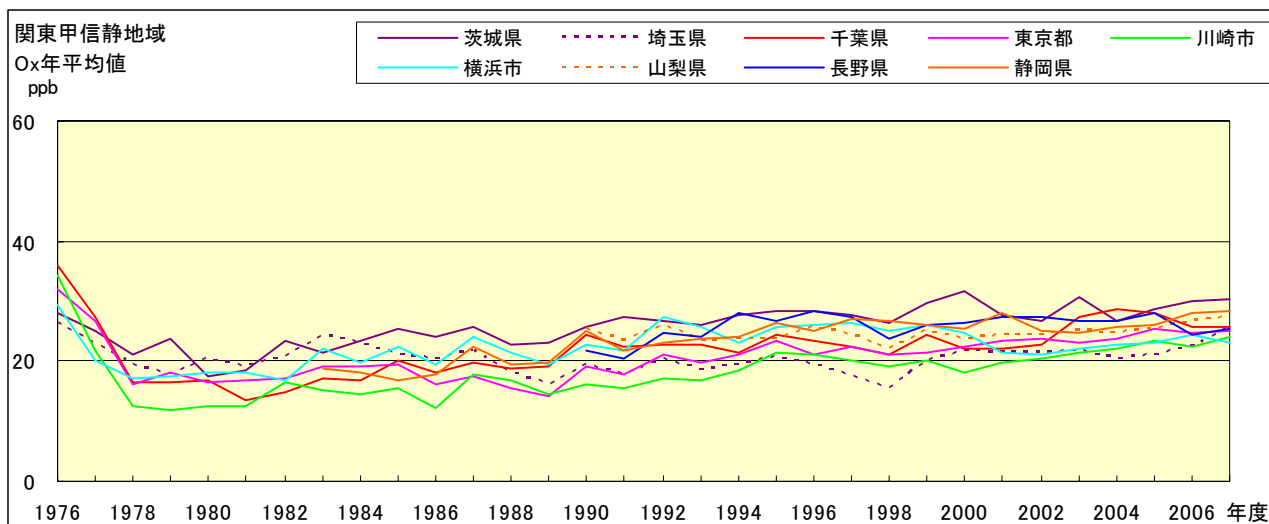


図 3.1.2.1. Ox 濃度年平均値の経年変化

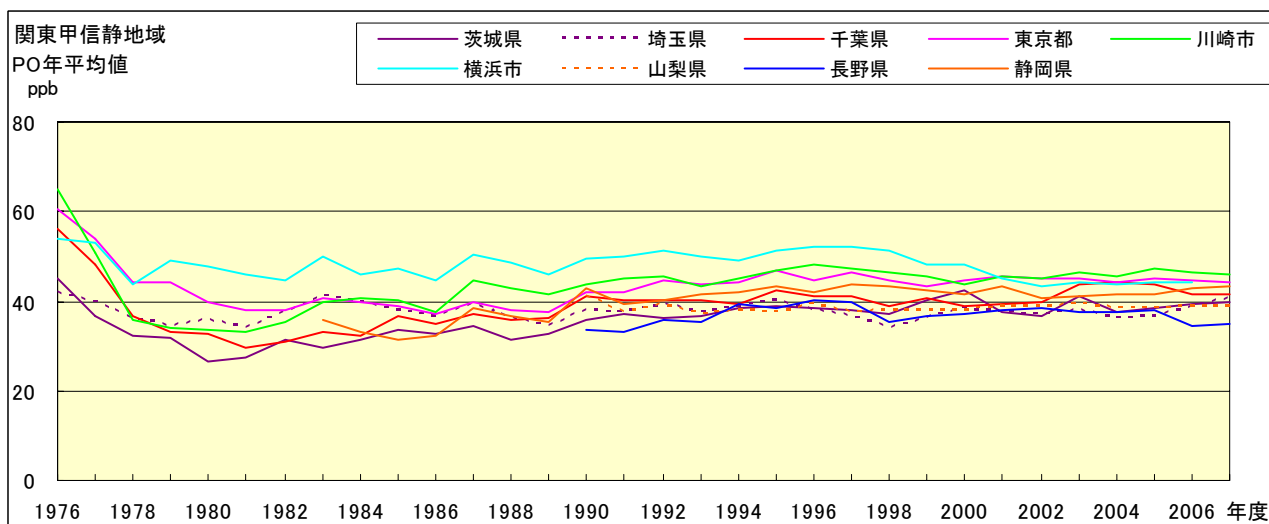


図 3.1.2.2. PO 濃度年平均値の経年変化

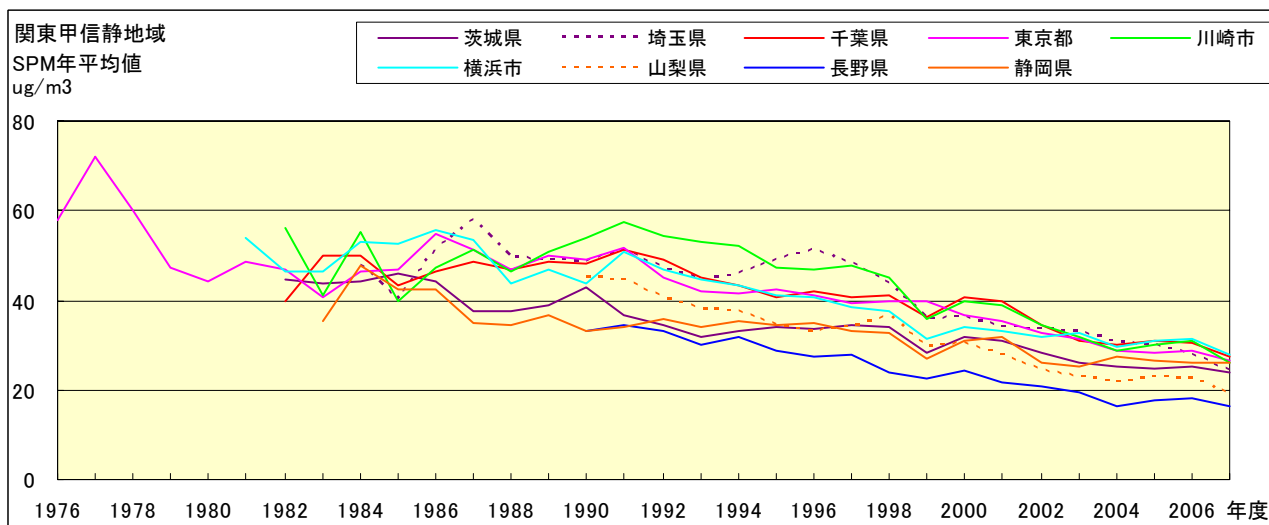


図 3.1.2.3. SPM 濃度年平均値の経年変化

Ox 濃度月平均値経月変動

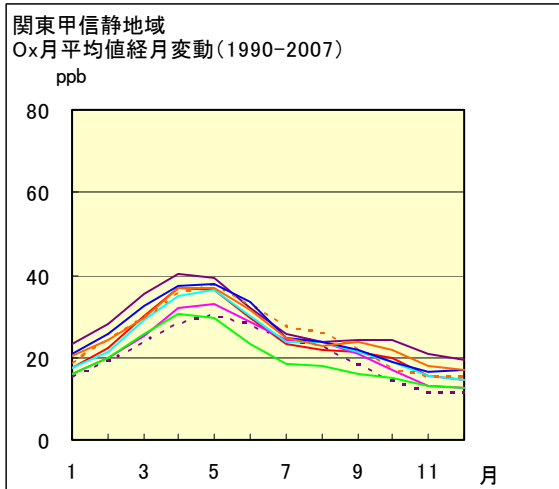


図 3.1.2.4.a 1990 年度～2007 年度

PO 濃度月平均値経月変動

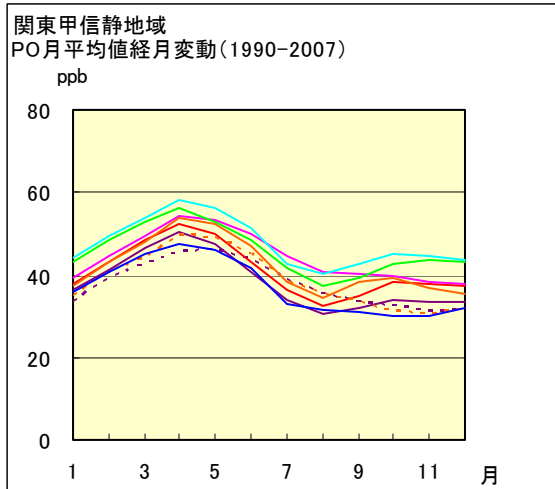


図 3.1.2.5.a 1990 年度～2007 年度

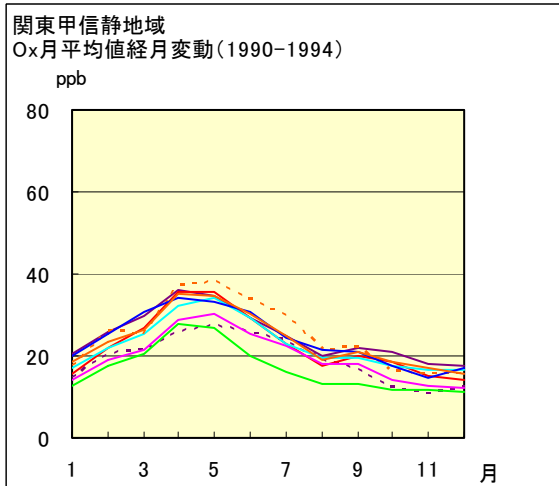


図 3.1.2.4.b 1990 年度～1994 年度

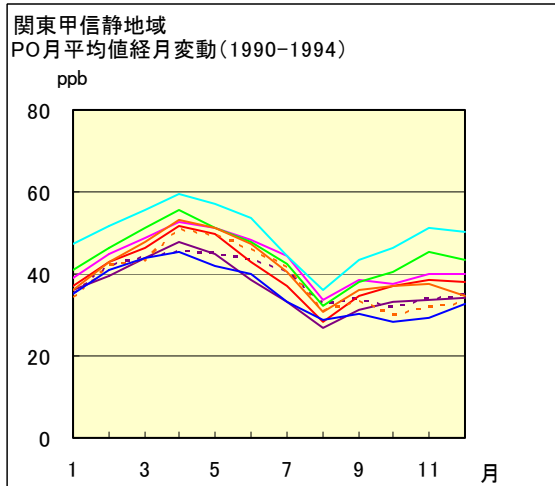


図 3.1.2.5.b 1990 年度～1994 年度

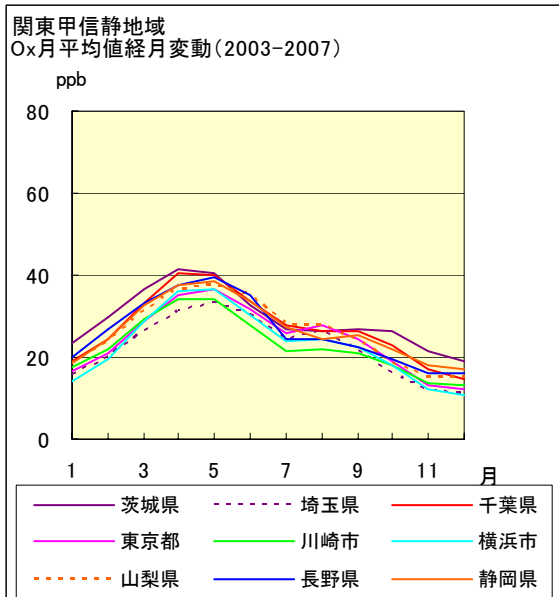


図 3.1.2.4.c 2003 年度～2007 年度

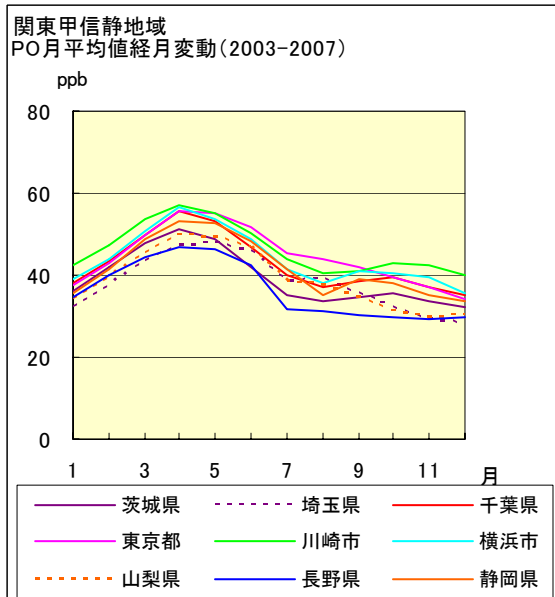


図 3.1.2.5.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.2.4. Ox 濃度月平均値の経月変動(左) および図 3.1.2.5 PO 濃度月平均値の経月変動(右)

3.基本解析

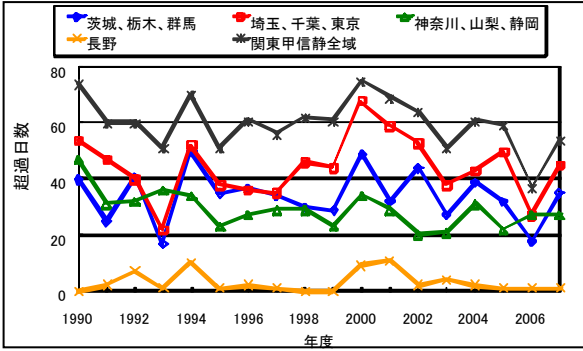


図 3.1.2.6. エリア別の超過日数

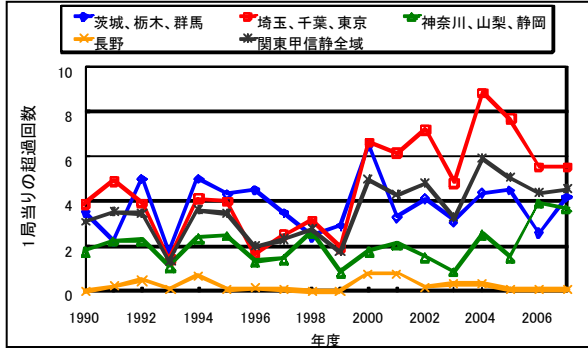


図 3.1.2.7. エリア別の1局当りの超過回数

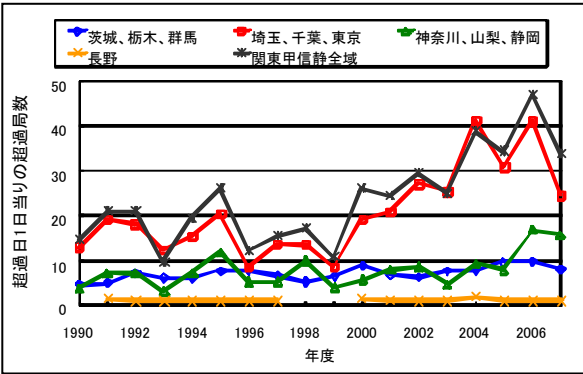


図 3.1.2.8. エリア別の超過日1日当りの超過局数

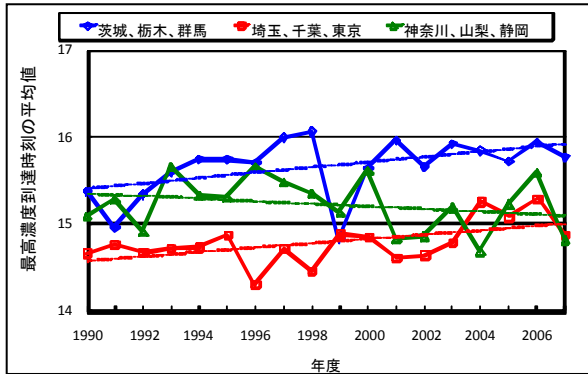


図 3.1.2.9. エリア別の最高濃度到達時刻

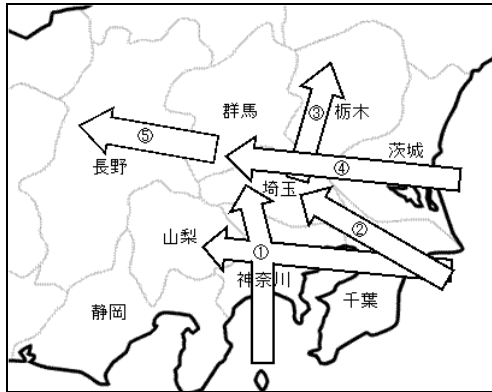


図 3.1.2.10. 分類した移流パターン

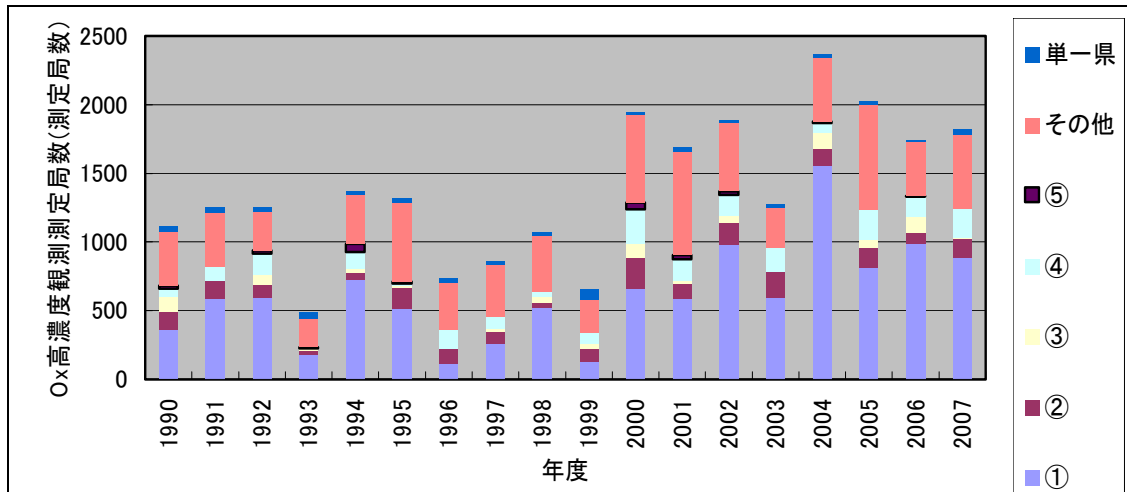


図 3.1.2.11. 移流パターン毎の年間高濃度観測測定局数

表 3.1.2.1. 地域別にみた O_x 年平均値の経年変化

	地域	傾き(ppb/年)					平均値(ppb)			備考
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994	2003-2007	
関東 甲信静	北関東	0.22	0.28	0.23	0.08	0.26	26.3	24.4	27.5	茨城,栃木,群馬
	南関東	0.12	0.29	0.29	0.37	0.48	22.2	20.6	24.6	埼玉,千葉,東京
	神奈川甲静	0.19	0.26	0.15	0.07	0.42	23.4	22.1	24.4	神奈川,山梨,静岡
	長野	0.19		0.19	-0.08	-0.22	25.8	23.8	26.3	長野
	平均	0.18	0.28	0.21	0.11	0.23	24.4	22.7	25.7	

表 3.1.2.2. 地域別にみた SPM 年平均値の経年変化

地域 グループ	地域	傾き(ppb/年)					平均値(ppb)			備考
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994	2003-2007	
関東 甲信静	北関東	-1.09	-1.08	-1.08	-1.28	-1.60	33.7	40.0	27.1	茨城,栃木,群馬
	南関東	-0.93	-1.10	-1.38	-1.59	-1.59	38.8	46.9	30.8	埼玉,千葉,東京
	神奈川甲静	-0.98	-0.97	-1.29	-1.32	-1.21	35.7	44.1	28.2	神奈川,山梨,静岡
	長野	-1.13		-1.13	-1.07	-1.02	24.8	32.5	18.4	長野
	平均	-1.03	-0.79	-1.22	-1.31	-1.35	33.3	40.9	26.1	

3.1.3. 東海近畿地域のまとめ

3.1.3.1. 経年変化の基本的特徴(概況)

(1) O_x 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.3.1)

全体として緩やかな濃度上昇(傾き 0.2 程度)。1984 年から 2000 年までは横ばい(京都府、滋賀県、愛知県)。2001 年以降、濃度上昇が見られるところが多い。傾き 1.0 を超えるところもある。

(2) PO 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.3.2)

1980 年以降、緩やかな濃度上昇。都市域で近年横ばいしないし下降傾向が見られる。

(3) SPM 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.3.3)

緩やかな濃度下降。都市域で近年の下降が大きい(傾き - 1.0 程度)。最近少し上昇を示す局がある。

(4) O_x 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.3.4)

春、秋の 2 山のピーク。近年、全月上昇しているところが多いが、特に春の上昇が大きい。7 月は上昇が小さい。概してピークが明瞭になっている。

(5) PO 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.3.5)

春にピーク。8 月に最小値を示し、秋にも小ピークを見せるが、近年 8 月が上がり、秋のピークが不明瞭になっている。全体に若干の濃度上昇が見られるところがある。

3.1.3.2. 地域の解析のまとめ

(1) O_x 年平均濃度の近年の増について(図 3.1.3.1、図 3.1.3.4b,c、図 3.1.3.5b,c、図 3.1.3.6~図 3.1.3.16)

先に述べたように、 O_x 年平均濃度は、全体としては緩やかな濃度上昇を示しているが(図 3.1.3.1)、2001 年以降大きな上昇を見せる局がある。京都府、滋賀県にその傾向が強い(図 3.1.3.6, 図 3.1.3.7)。 PO では、都市部では横ばいか若干の下降を示す(大阪市の例: 図 3.1.3.8)。ここから、近年の O_x の増は、 NO_x の減により、 O_3 - NO の反応による O_3 の分解が減したことによると考えることができる。一方、京都府、滋賀県、岐阜県では、 PO も濃度上昇を示す。

月別にみると、 O_x 年平均濃度の上昇は、図 3.1.3.4b,c に見られる近年の春季の濃度上昇によると考えられる。特に、5,6 月の上昇が大きい。 PO は、 O_x に比べて若干濃度上昇が小さくなるものの、春季の上昇は共通している(図 3.1.3.5.b,c)。都市部では、冬季の PO に濃度下降が見られ、 PO の年平均濃度が横ばいしないし若干の下降を示すのは、このためと考えられる(大阪市の例: 図 3.1.3.9)。

濃度レベルでは、40~119ppb の間で出現時間の増がみられる(大阪府の例: 図 3.1.3.10~13)。注意報レベル(120ppb 以上)の出現時間増は見られない(大阪府の例: 図 3.1.3.14)が、60ppb 以上の出現時間が近年多くなり、愛知県、京都府、滋賀県、和歌山県では、近年急激な増を見せている(愛知県の例: 図 3.1.3.15)。図 3.1.3.16 に見られるように、年平均濃度の上昇に比べて、60ppb 以上の出現率の上昇が大きく、近年の傾きが大きくなっている。

全体として、 O_x 年平均濃度の上昇は、季節では春季、濃度レベルでは、40~119ppb の出現の増によるものと考えられる。 PO では、都市部で年平均濃度が横ばいしないし下降を示すのは、冬季の濃度下降により、春季の上昇が相殺されるためである。

(2) O_x 年平均濃度の高い局について(図 3.1.3.6、図 3.1.3.17～図 3.1.3.21、表 3.1.3.1)

O_x 年平均濃度を府県市ごとのグラフで見ると、極端に高い局がある(大阪府と京都府の例:図 3.1.3.6,図 3.1.3.17)。大阪府南海団地、大阪府富田林市役所、京都府宮津の他に、愛知県幡豆町公民館、国設名古屋が上げられる。いずれの局についても、 PO では高くなく、府県ごとにみると、局間のばらつきが小さくなっている(大阪府と京都府の例:図 3.1.3.18,19)。このことから、これらの局については、 NO_x が低い局であり、 O_3-NO 反応による O_x の減が小さい局であることがわかる(図 3.1.3.20,21)。

これらの局の O_x 濃度ランク別の時間数経年変化を見ると、比較的低いランク(20～79ppb)の出現が多い局(南海団地、宮津)と、比較的高いランク(60ppb 以上)の出現が多い局がある(富田林市役所、国設名古屋)(表 3.1.3.1)。前者は海に近い局、後者は比較的内陸にある局と分類することができる。このことから、 O_x の生成が、海風で内陸へ移動しながら、進行していることが推察される。すなわち、海浜部からの O_x 前駆物質を含んだ空気塊が、 NO_x による分解を受けずに O_x の生成を進行させながら内陸へ移流するため、海浜部と内陸部で、濃度ランクの違いが起これると考えられる。

(3) O_x 季節変動(図 3.1.3.4、図 3.1.3.5、図 3.1.3.22.a,b)

3.1.3.1(4),(5)で述べたように、 O_x , PO ともに春・秋の2つのピークを持つ。 O_x , PO ともに近年の濃度上昇がみられるが、 O_x の上昇が大きい。 O_x では7月、 PO では8月が「谷」となっている。 O_x では、近年全体に濃度が上がっているが、7月の上昇が小さいため、春・秋のピークが明瞭になっている。 PO では、8月の濃度が上がっているため、秋のピークが不明瞭になっている(図 3.1.3.4、図 3.1.3.5)。春・秋のピークの間谷が、 O_x と PO で異なっているのは、 NO_x 濃度の最小月が、8月であることによると考える。8月の PO 濃度が上昇していることについては、 NO_x の濃度下降が他の季節に比して小さいことによると考えられる(大阪府の例:図 3.1.3.22.a,b)。

(4) 月別 O_x 濃度上昇率の経年変化について(東海・近畿地域グループ独自解析)(図 3.1.3.23)

この解析は、近畿・東海地域グループの独自の解析として行ったものである。このねらいは、近年、一年の中で、早い時期での O_x 濃度上昇が各府県で見られることから、月ごとの O_x 濃度上昇率を、1985～2005 年までの時期について比較を行ったものである。全体に、近年になるほど上昇率が高くなる傾向にあるが、特に春から初夏にかけての上昇が大きくなっていることが、この解析からわかった(兵庫県例:図 3.1.3.23)。

3.1.3.3. まとめと今後の課題

今回の解析から、以下の知見が得られた。

- ・ 近年(2001 年ごろ以降)、 O_x 年平均濃度に上昇がみられる。最大値、注意報レベル(120ppb 以上)の出現率は横ばいであるが、濃度レベルでは、40～119ppb レベル出現時間の増、季節では、春季の濃度上昇がみられる。
- ・ PO の年平均濃度経年変化では、都市部では横ばいしないし下降、他の地域では、 O_x と同様の近年の上昇を示す。春季は全体に上昇が見られ、冬季には、都市部で下降がみられる。
- ・ O_x 年平均濃度で大きな値を示す局は、いずれも NO_x 濃度の低い局である。そのうち、臨海部にある局では、20～79ppb の濃度レベルの出現が多く、内陸の局では、60ppb 以上の出現が多い。これは、海風による移流の中で、 O_x の生成が進むためと考えられる。
- ・ 月別 O_x 濃度上昇率では、近年になるほど、春から初夏にかけて、高い値がみられる。
- ・ SPM では、大きな濃度低下がみられる。特に冬季の減が大きい。

以上のことから、東海近畿地域においては、Ox の汚染構造が、春型となりつつあることがわかる。現在のところは、注意報レベルに達していないものの、近年の月別濃度上昇率をみると、春季の増が大きく、早い季節での注意報レベル濃度の出現が予想される。

3.基本解析

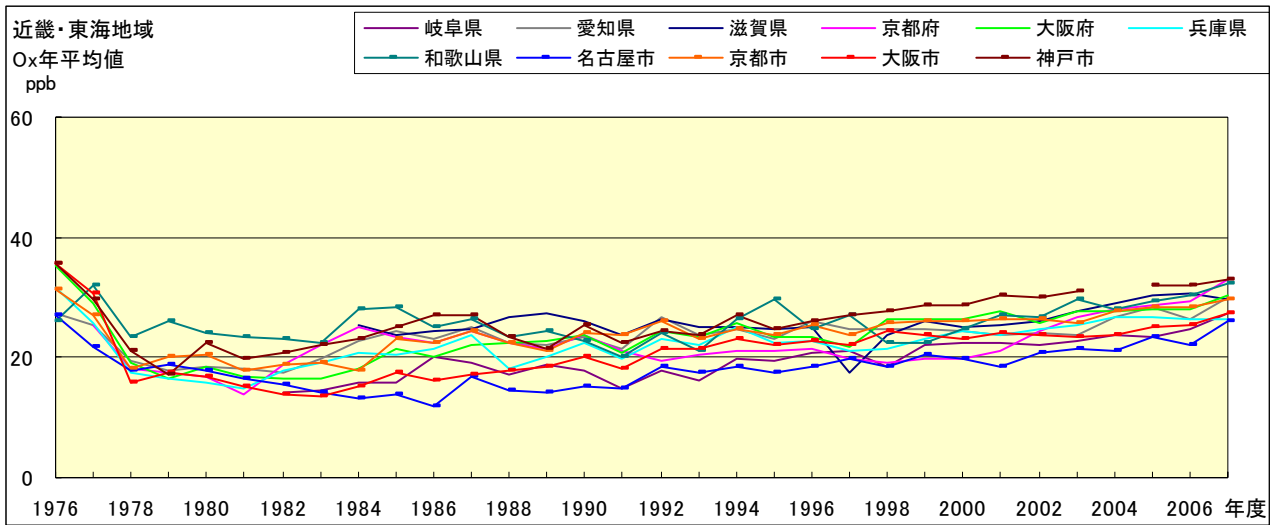


図 3.1.3.1. Ox 濃度年平均値の経年変化

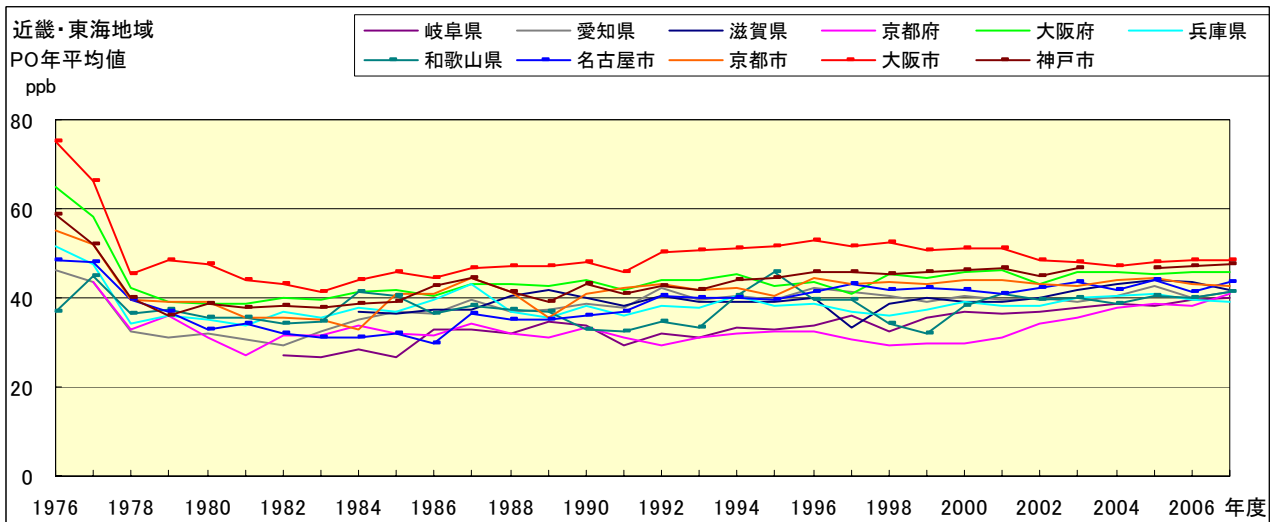


図 3.1.3.2. PO 濃度年平均値の経年変化

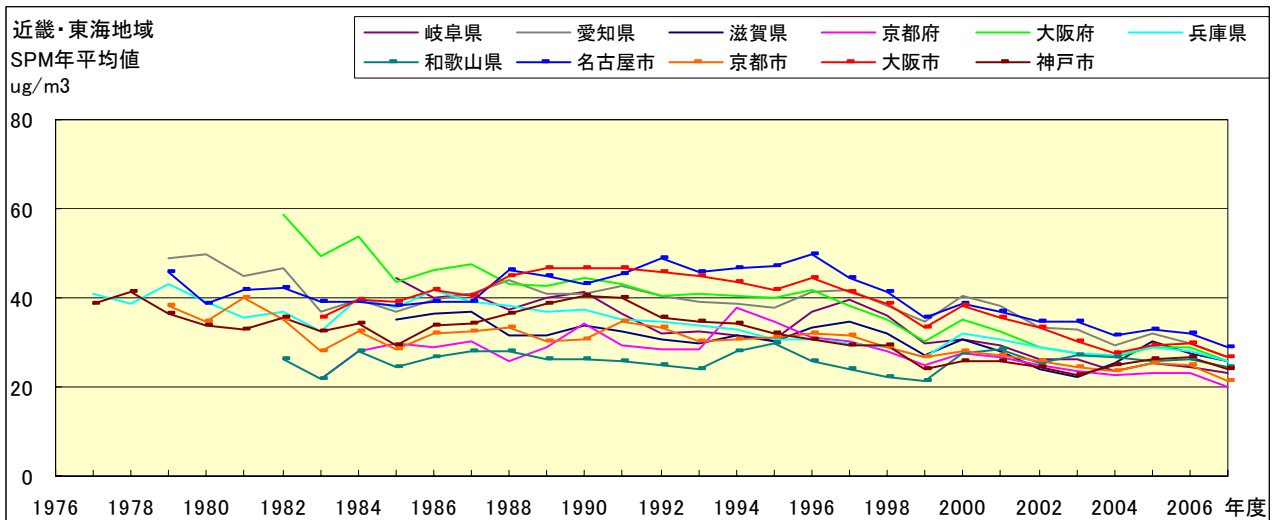


図 3.1.3.3. SPM 濃度年平均値の経年変化

Ox 濃度月平均値経月変動

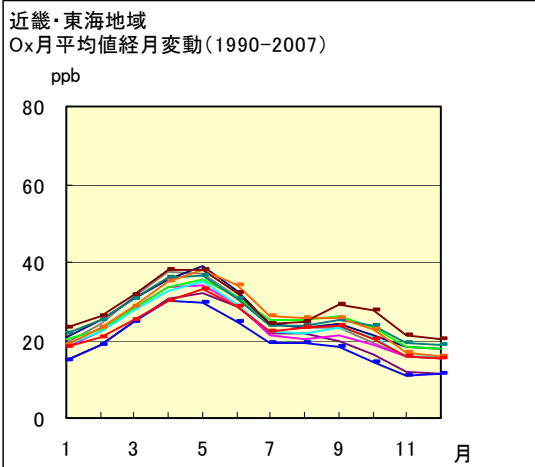


図 3.1.3.4.a 1990 年度～2007 年度

PO 濃度月平均値経月変動

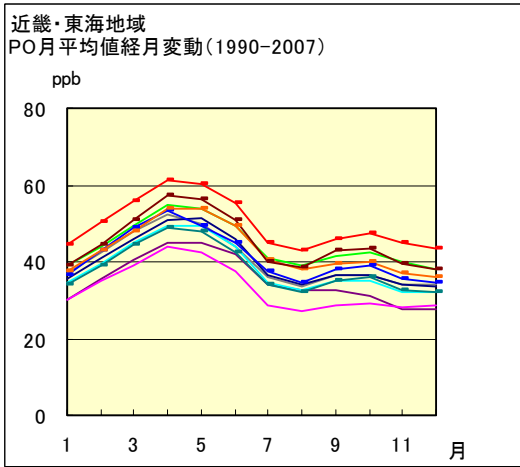


図 3.1.3.5.a 1990 年度～2007 年度

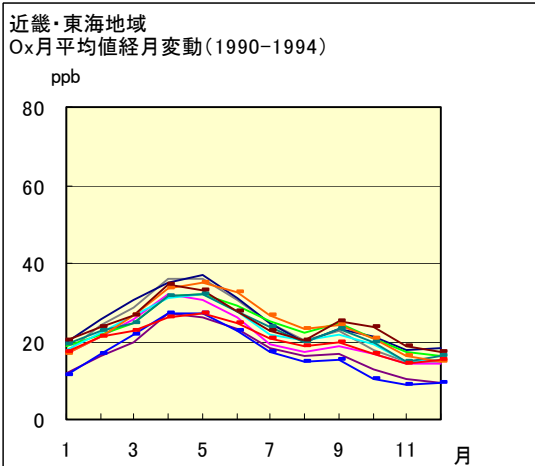


図 3.1.3.4.b 1990 年度～1994 年度

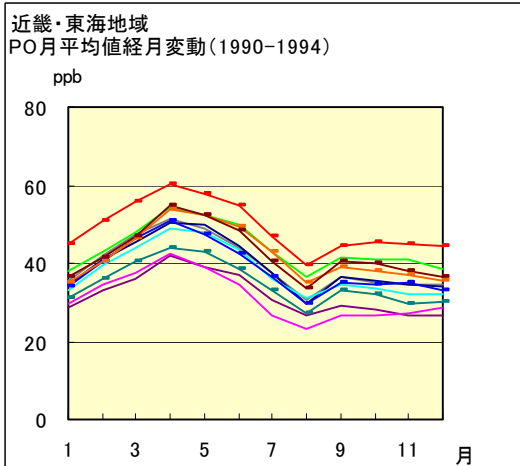


図 3.1.3.5.b 1990 年度～1994 年度

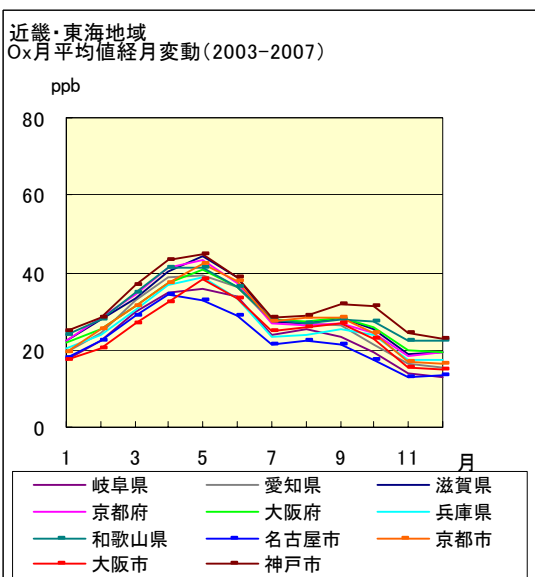


図 3.1.3.4.c 2003 年度～2007 年度

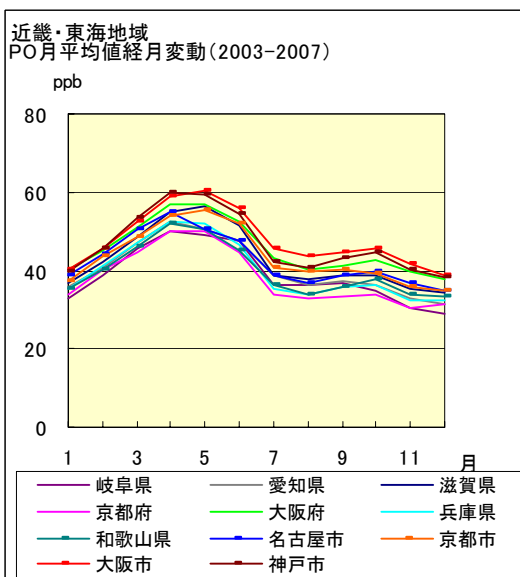


図 3.1.3.5.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.3.4. Ox 濃度月平均値の経月変動(左) および図 3.1.3.5. PO 濃度月平均値の経月変動(右)

3.基本解析

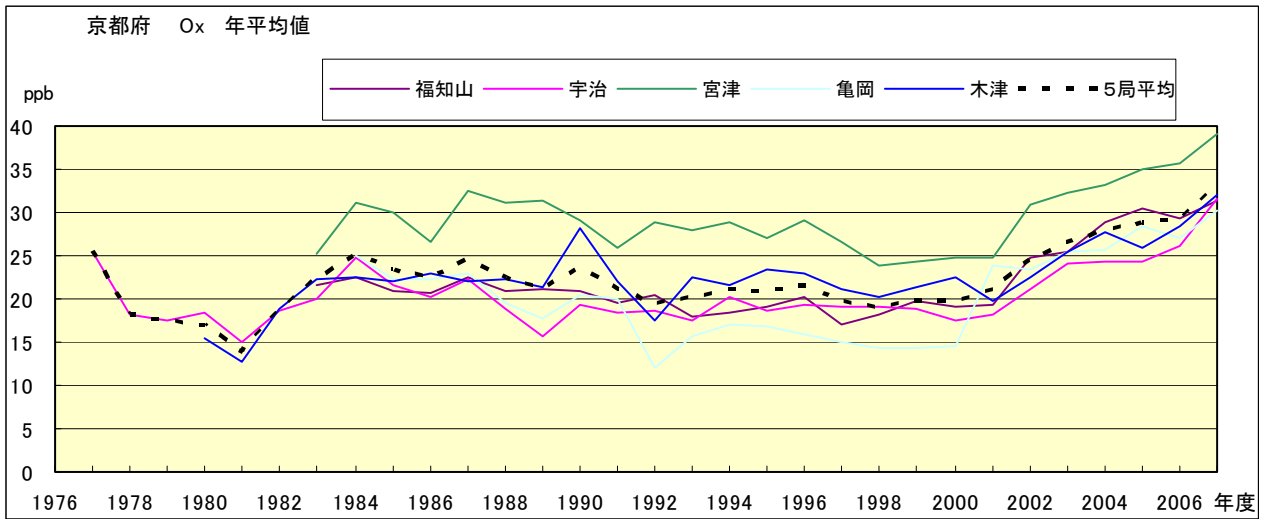


図 3.1.3.6. Ox 濃度年平均値の経年変化(京都府)

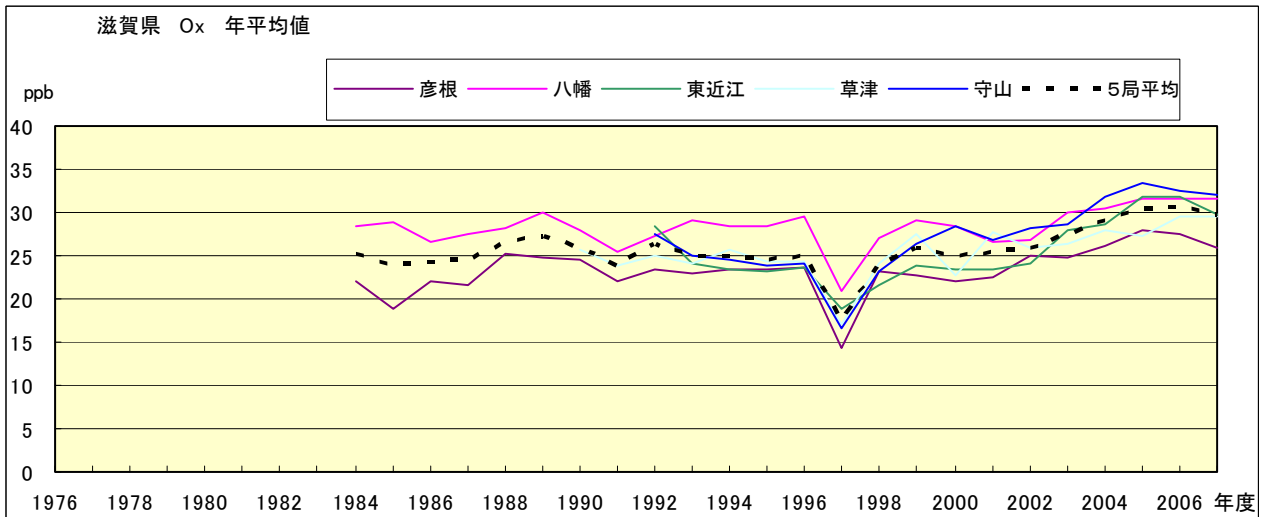


図 3.1.3.7. Ox 濃度年平均値の経年変化(滋賀県)

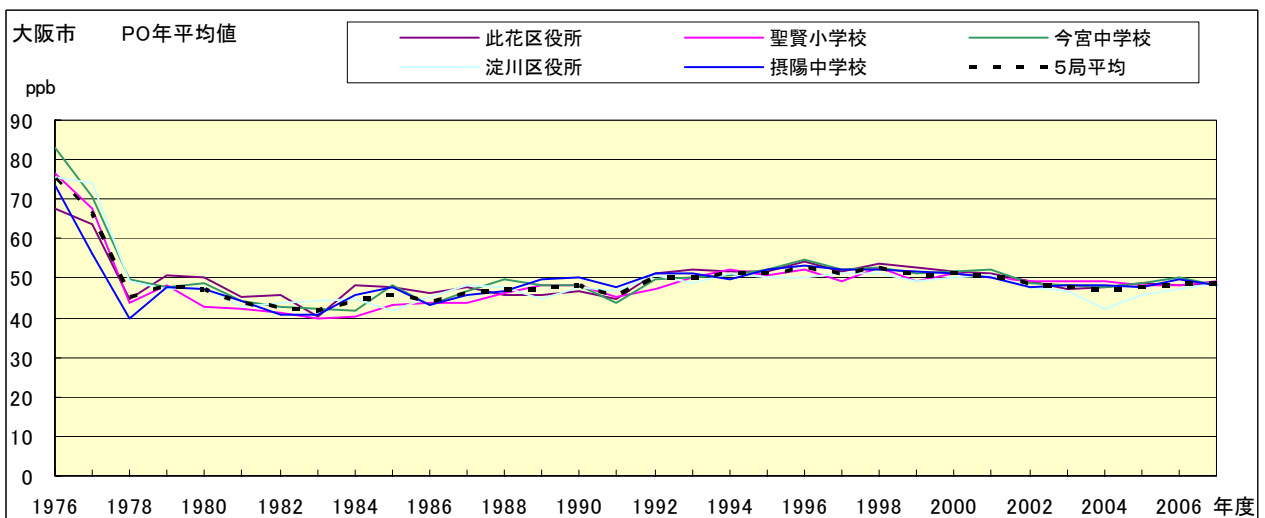


図 3.1.3.8. PO 濃度年平均値の経年変化(大阪市)

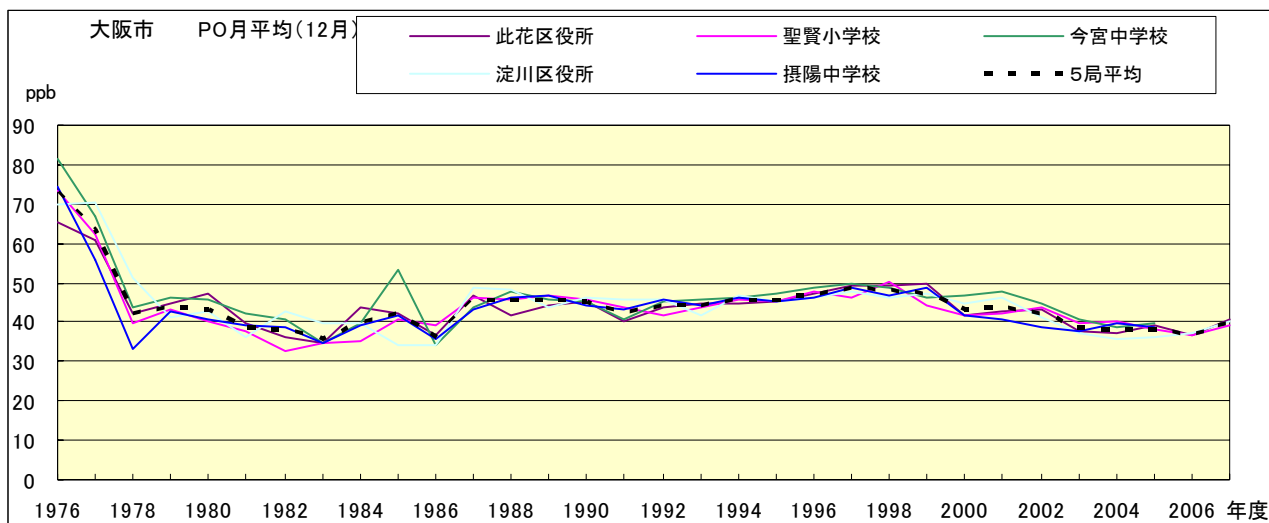


図 3.1.3.9. PO 濃度月平均値の経年変化(大阪市 12 月)

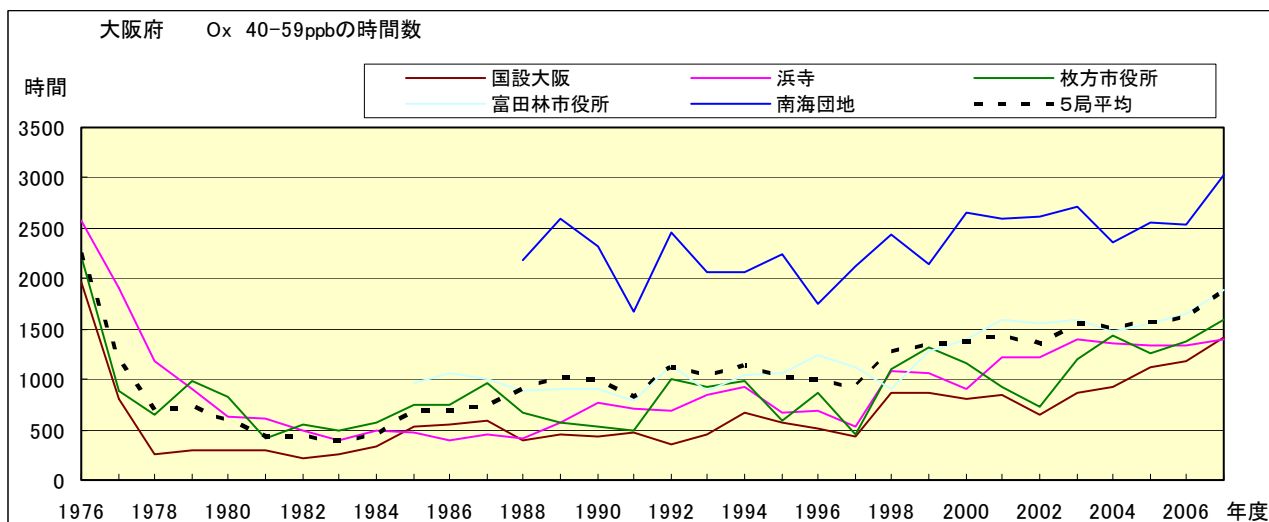


図 3.1.3.10. Ox 濃度 40~59ppb の時間数の経年変化(大阪府)

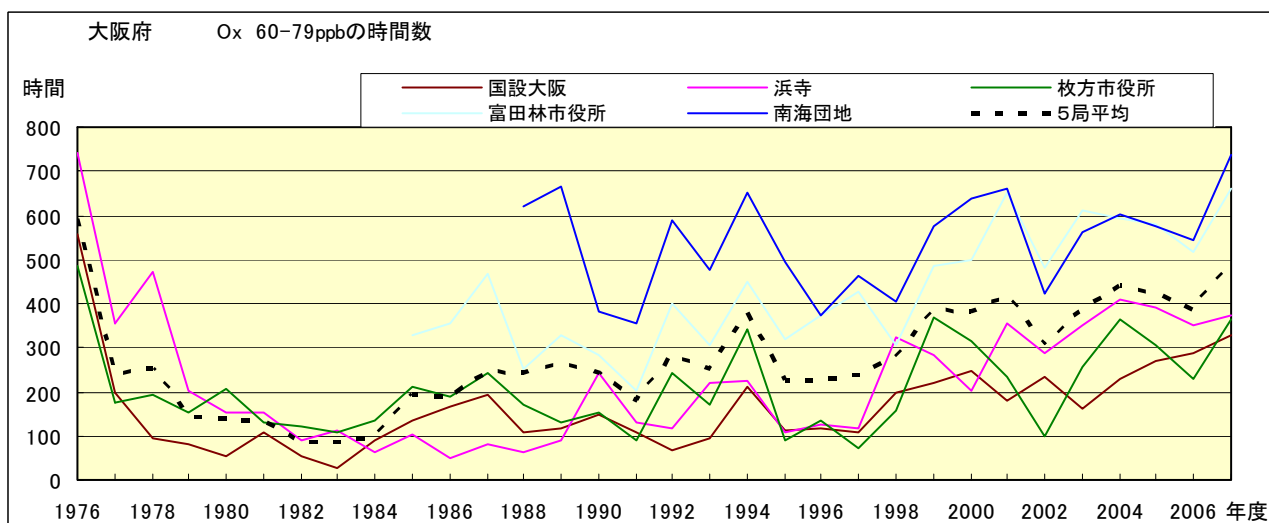


図 3.1.3.11. Ox 濃度 60~79ppb の時間数の経年変化(大阪府)

3.基本解析

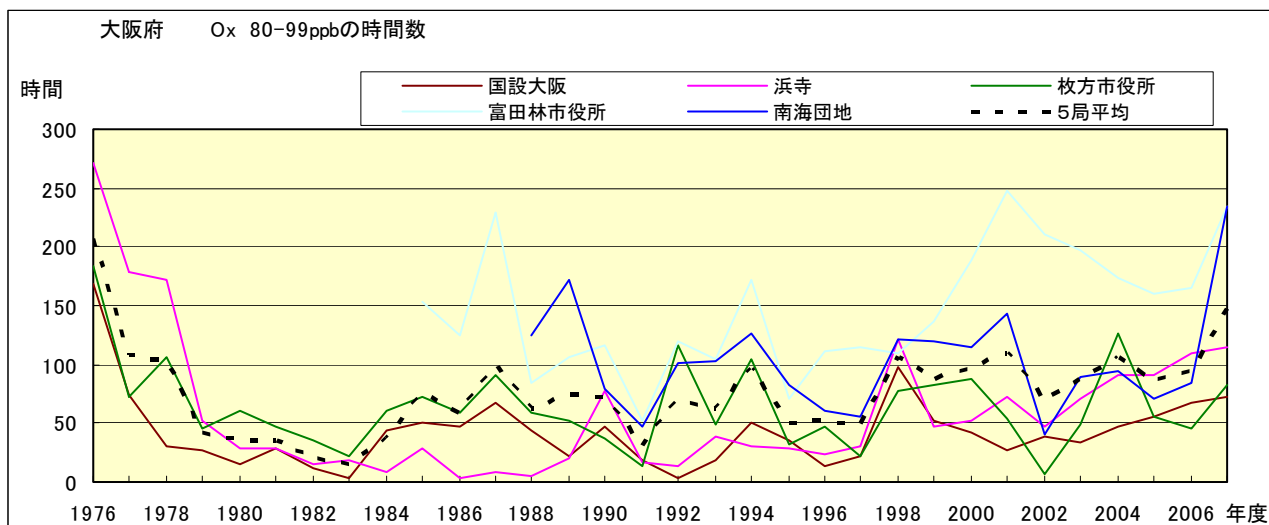


図 3.1.3.12. Ox 濃度 80~99ppb の時間数の経年変化(大阪府)

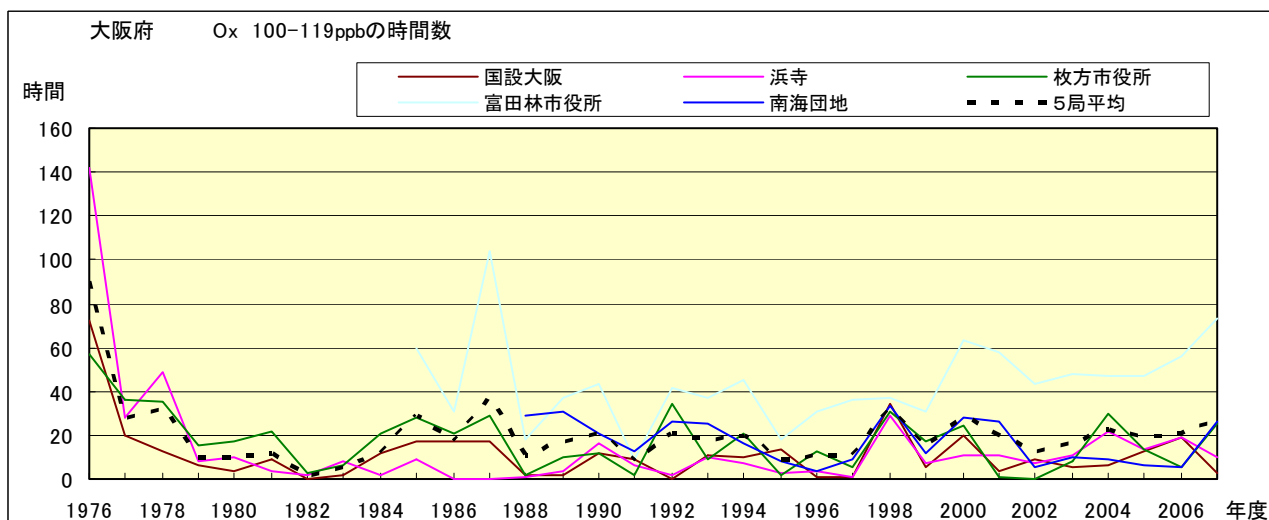


図 3.1.3.13. Ox 濃度 100~119ppb の時間数の経年変化(大阪府)

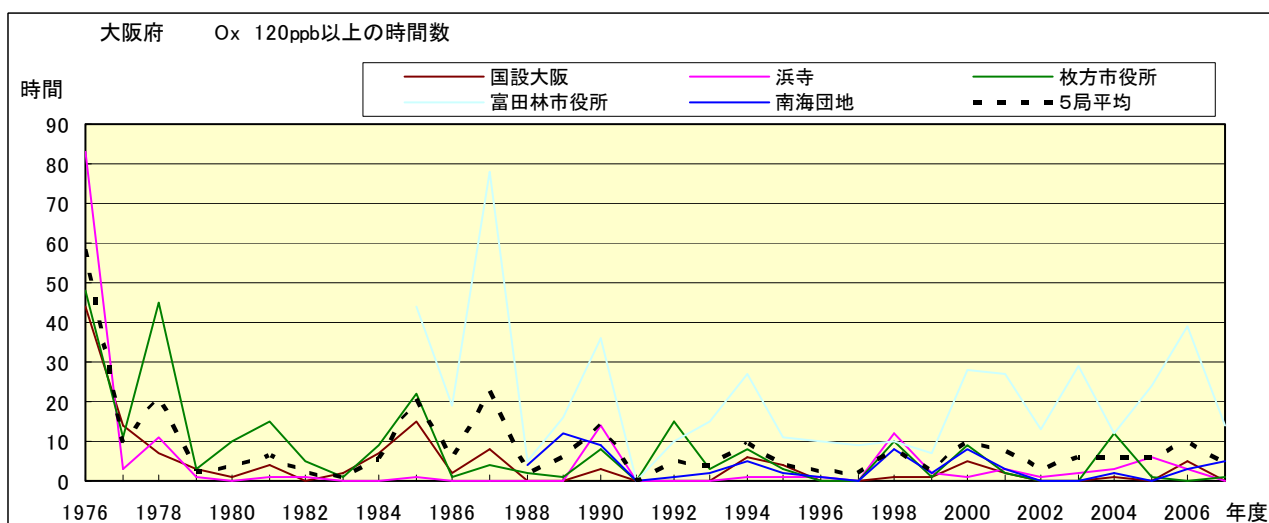


図 3.1.3.14. Ox 濃度 120ppb 以上の時間数の経年変化(大阪府)

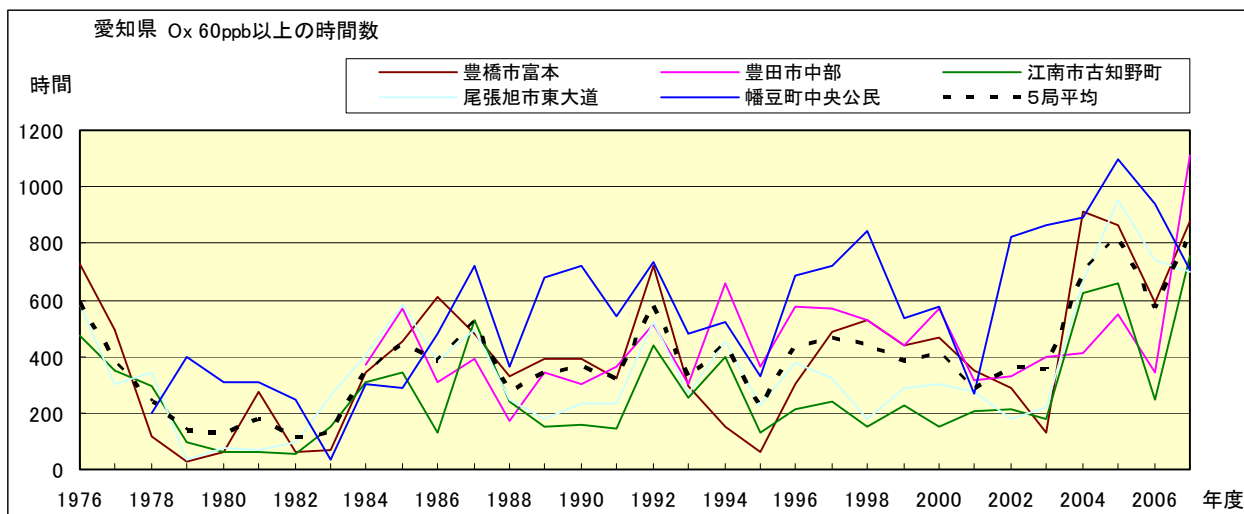


図 3.1.3.15. O₃ 濃度 60ppb 以上の時間数の経年変化(愛知県)

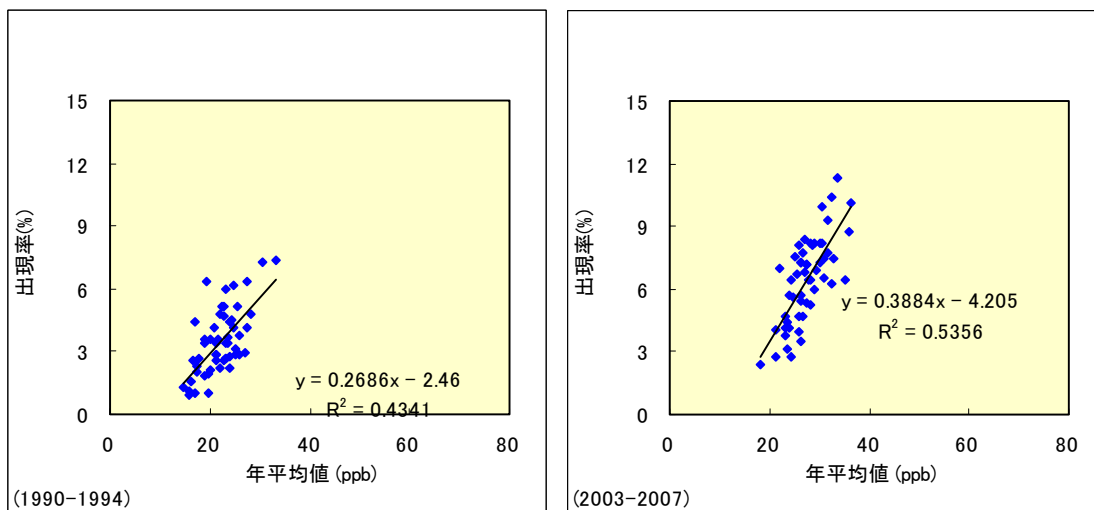


図 3.1.3.16. O₃ 濃度年平均值と 60ppb 以上出現率との関係(1990-1994)(左)および O₃ 濃度年平均值と 60ppb 以上出現率との関係(2003-2007)(右)

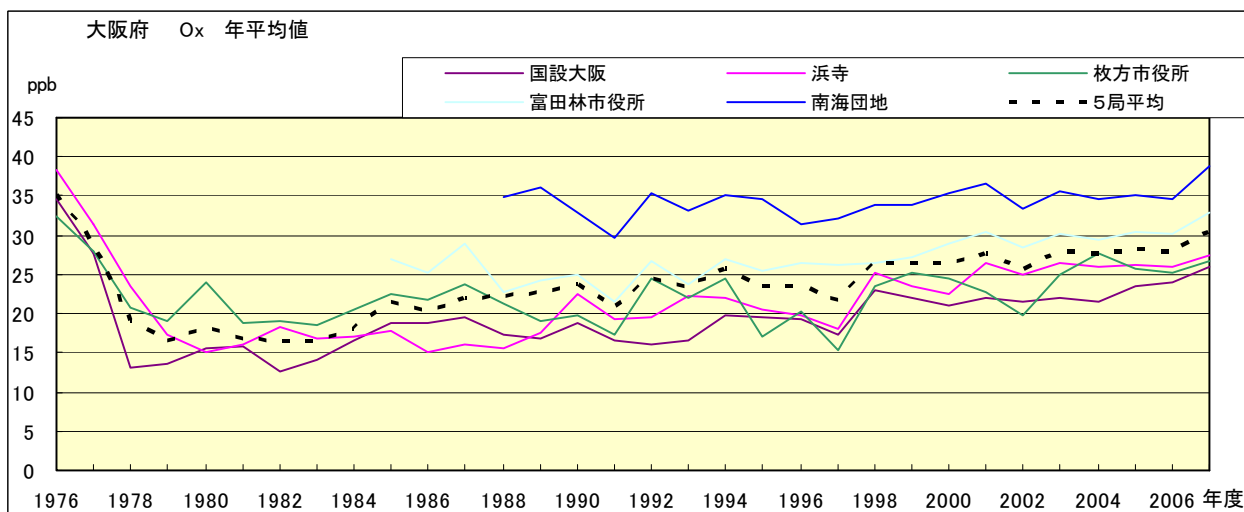


図 3.1.3.17. O₃ 濃度年平均值の経年変化(大阪府)

3.基本解析

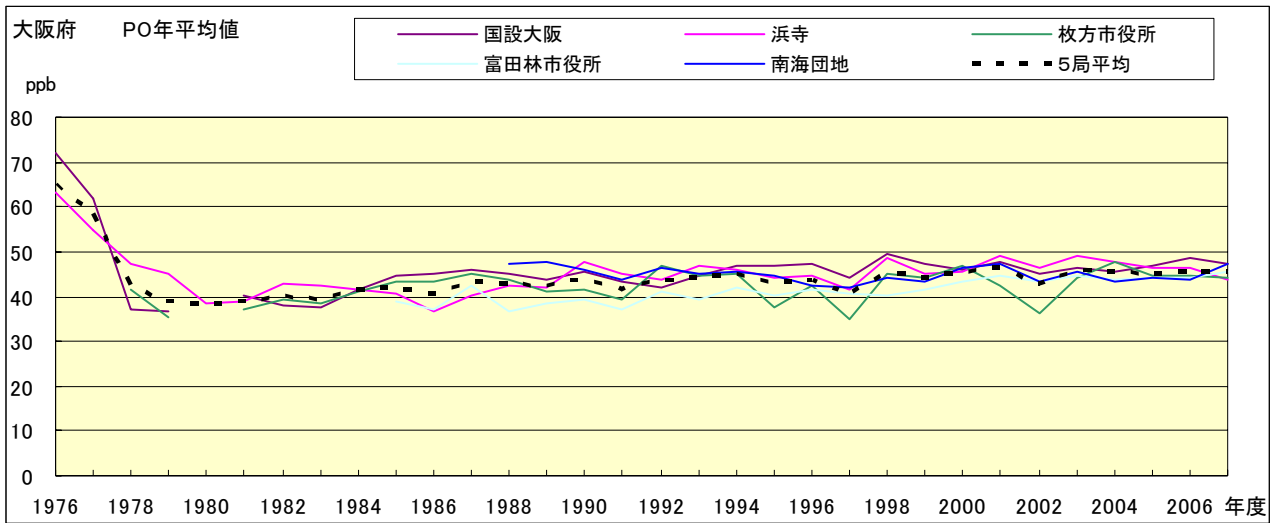


図 3.1.3.18. PO 濃度年平均値の経年変化(大阪府)

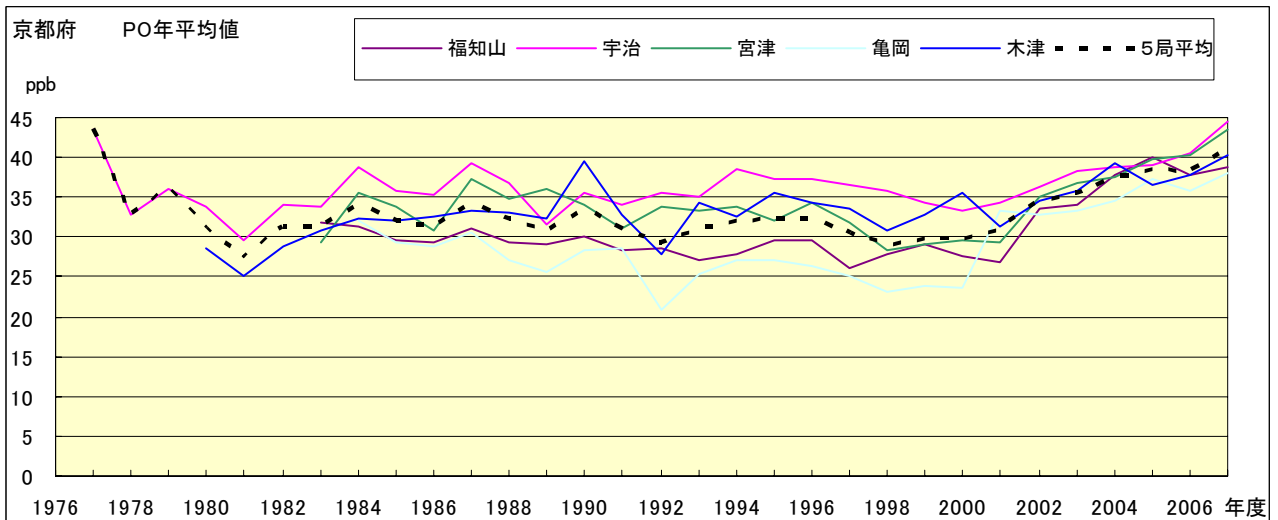


図 3.1.3.19. PO 濃度年平均値の経年変化(京都府)

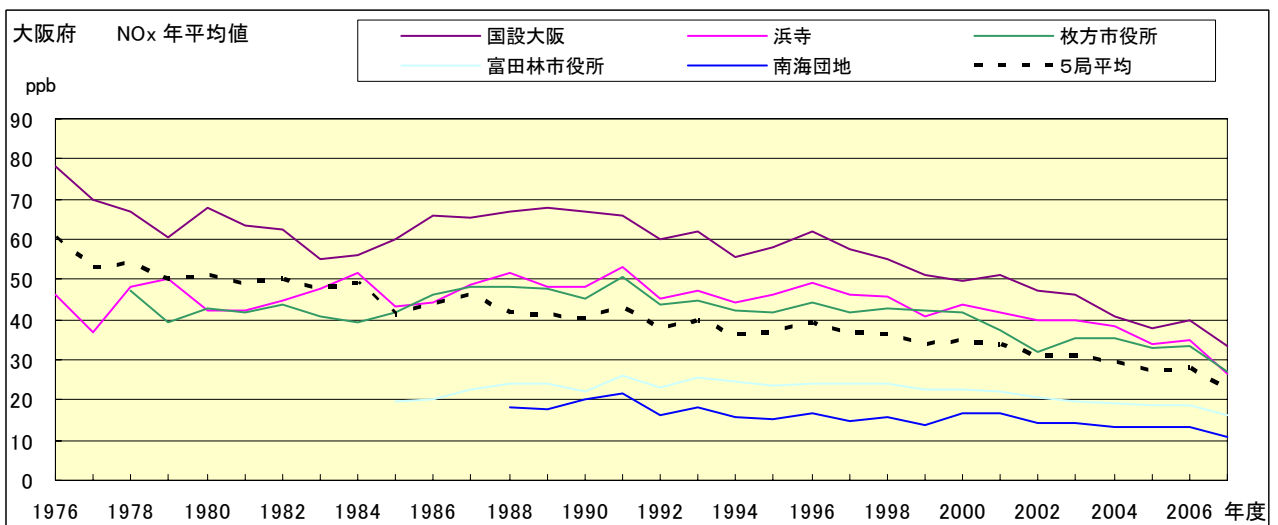


図 3.1.3.20. NOx 濃度年平均値の経年変化(大阪府)

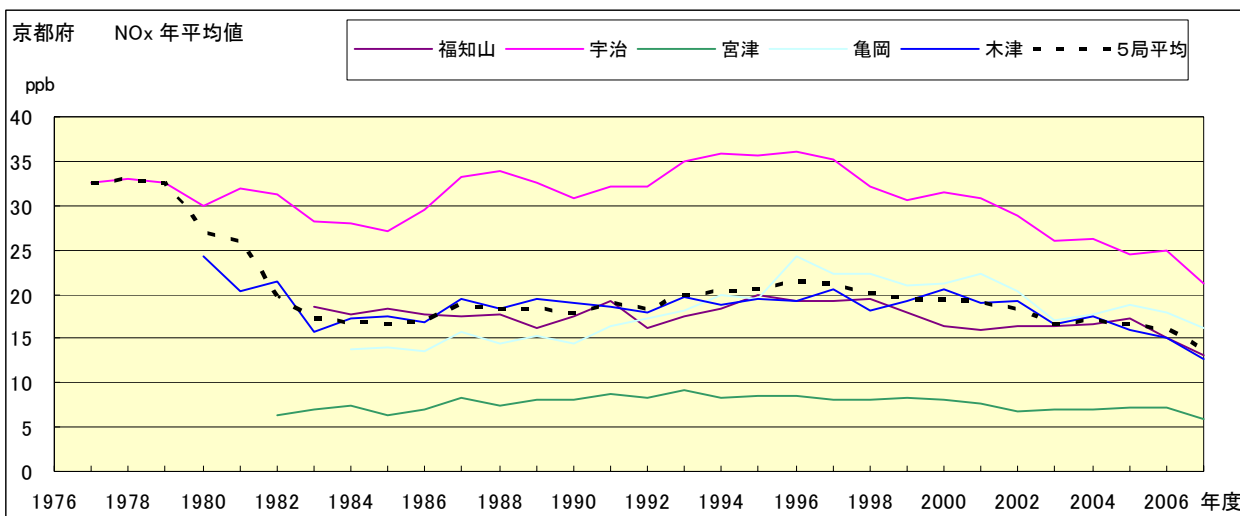


図 3.1.3.21. NOx 濃度年平均値の経年変化(京都府)

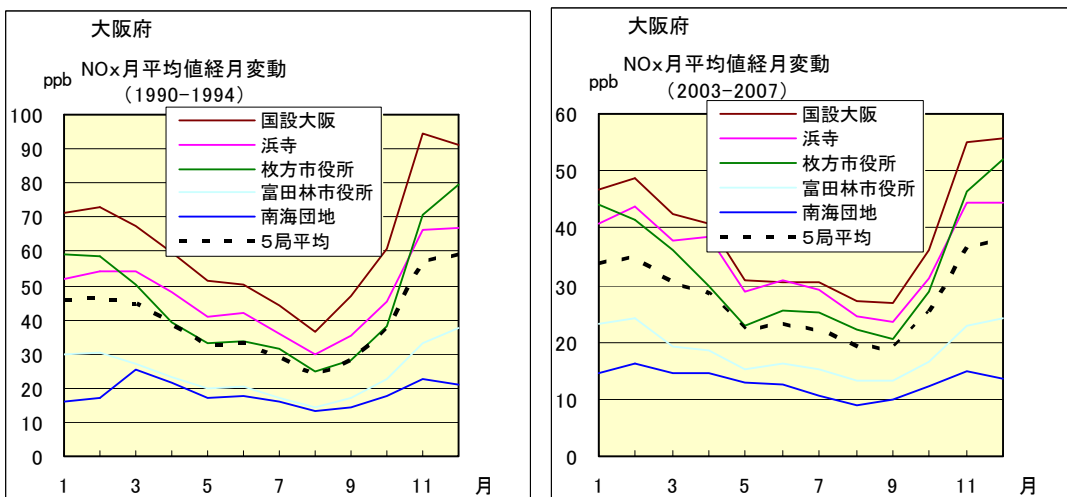


図 3.1.3.22.a. NOx 濃度月平均値の経月変動(大阪府 1990-1994) (左)および図 3.1.3.22.b. NOx 濃度月平均値の経月変動(大阪府 2003-2007)(右)

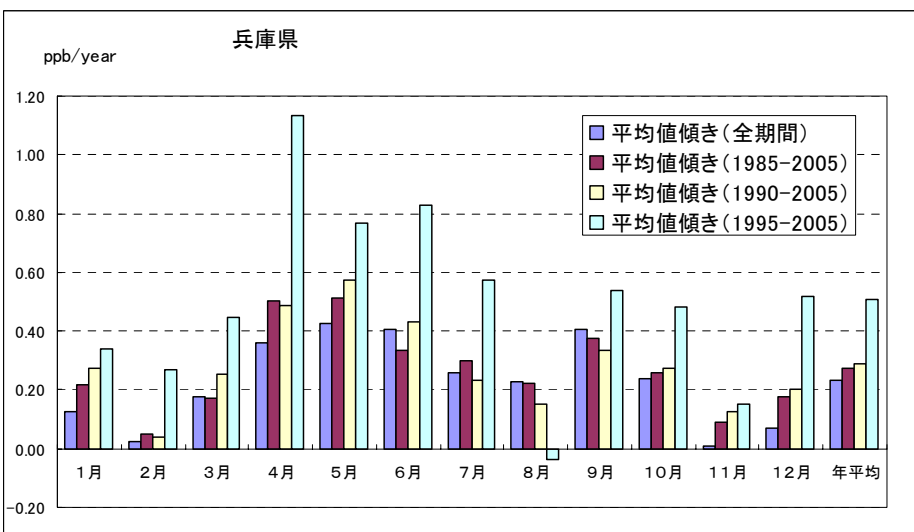


図 3.1.3.23. Ox 月平均濃度上昇率(兵庫県)

3.基本解析

表 3.1.3.1. O_x 年平均濃度の高い局

局名	南海団地	富田林市役所	幡豆町中央公民館	国設名古屋	宮津
府県市	大阪府	大阪府	愛知県	名古屋市	京都府
O _x 年平均濃度	高い	高い	高い	高い	高い
O _x 濃度ランク別時間数	20-79ppb多い	60-119ppb多い	20-79ppb多い	60-119ppb多い	20-69ppb多い
O _x 月平均値経月変化	全体に高い	4.8月に高い	全体に高い	4-9月高い	全体に高い
PO	低くなり、ばらつき消える	低くなり、ばらつき消える	低くなり、ばらつき消える	低くなり、ばらつき消える	低くなり、ばらつき消える
SPM	低い	平均程度	平均程度	低い	低かったが2000年頃から平均程度になる
NO _x	低い	低い	低い	低い	低い

3.1.4. 中国四国地域のまとめ

3.1.4.1. 経年変化の基本的特徴(概況)

(1) O_x 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.4.1、「3.2 全国解析」の表 3.2.1)

O_x 濃度年平均値の経年変化は、1990 年度以降長期的には概ね横ばい、又は増加傾向が窺える。1990～2007 年度における各自治体で得られた傾きは-0.12～0.43 で島根県を除く 8 自治体で正の傾きとなり、広島県(傾き:0.30ppb/年 (p<0.01))、山口県(傾き:0.42ppb/年 (p<0.01))、徳島県(傾き:0.43ppb/年 (p<0.01))、香川県(傾き:0.32ppb/年 (p<0.01)) で有意な増加傾向を示すなど瀬戸内海側で増加傾向が明確であった。また、太平洋側の高知県(傾き:0.32ppb/年 (p<0.05)) でも有意な増加傾向を示した。島根県は変動パターンが他自治体とやや異なり、1990 年代中頃まで増加傾向が見られたが、それ以降減少し 2000 年度以降は概ね横ばいで推移していた。また、各地域とも年度毎に濃度の増減が見られるが、これは、アジア大陸など域外からの移流、地域汚染、気象条件の変化などの年度毎の違いが影響しているものと考えられる。

年代別に見ると、平均値では島根県を除く全ての自治体で 1990 年代初頭(1990～1994 年度)に比べ最近の 5 年間(2003～2007 年度)の方が大きかった。傾きでは、2000 年度以降において、特に山口県(傾き:1.28ppb/年 (p<0.01))、香川県(傾き:0.72ppb/年 (p<0.01)) など瀬戸内海側で大きな正の傾きを示しており、近年の顕著な O_x 増加傾向が窺える。

(2) PO 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.4.2、表 3.1.4.1)

PO 濃度年平均値の経年変化は概ね O_x 濃度年平均値と類似した挙動を示しているが、地域間の濃度差は O_x に比べ小さくなり、近年は概ね 40ppb 前後で推移していた。1990～2007 年度における各自治体で得られた傾きは-0.09～0.45 で、瀬戸内海側では広島県(傾き:0.21ppb/年 (p<0.01))、山口県(傾き:0.33ppb/年 (p<0.01))、徳島県(傾き:0.45ppb/年 (p<0.01))、香川県(傾き:0.30ppb/年 (p<0.01)) で有意な増加傾向を示すなど、O_x と同様に増加傾向が明確であった。日本海側では有意性はないが、いずれも負の傾きを示した。

年代別に見ると、平均値において、日本海側では 1990 年代初頭に比べ最近の 5 年間の方が小さく、瀬戸内海側と太平洋側では逆に大きい値を示した。また、2000 年度以降の傾きにおいて、瀬戸内海側では O_x と同様に概ね正の傾きを示したが、日本海側と太平洋側は O_x とはやや異なり有意性はないが負の傾きを示した。

(3) SPM 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.4.3、「3.2 全国解析」の表 3.2.3)

SPM 濃度年平均値の経年変化は、長期的には概ね横ばい、又は減少傾向を示しているが、近年は一部の自治体(鳥取県、島根県、愛媛県)で増加傾向が窺える。1990～2007 年度における各自治体で得られた傾きは-1.18～0.05 で、島根県を除く 8 自治体において有意に減少傾向が認められた。特に、瀬戸内海側で顕著な減少が見られ、近年になるほど自治体間の差が小さくなっていった。

年代別に見ると、平均値では島根県を除く 8 自治体で 1990 年代初頭に比べ最近の 5 年間の方が小さい値を示した。また、2000 年度以降の傾きにおいて、瀬戸内海側では愛媛県を除き減少率がより大きく、その要因としてディーゼル車への PM 規制や廃棄物焼却炉へのダイオキシン類規制の強化などが推察される。一方、鳥取県、島根県、愛媛県では正の傾きを示しており、島根県においては有意な増加傾向(傾き:0.62ppb/年 (p<0.05))が認められた。

(4) Ox 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.4.4)

1990～2007 年度における Ox 濃度月平均値の経月変動は、日本海側と太平洋側では 4～5 月に最大ピーク、7～8 月に最低となり、10 月に小さいピークを示す 2 山型の変動パターンを示した。瀬戸内海側は、7、8 月の濃度低下の挙動は各自治体で異なるものの、4～5 月に最大ピーク、9～10 月に小さいピークをもつ 2 山型の変動パターンを示した。

1990 年代初頭と最近 5 年間を比較すると、日本海側では季節変動パターンに大きな違いは見られないが、最近 5 年間において夏期の濃度レベルの上昇と冬期の濃度低下による秋期ピークの明瞭化が特徴として挙げられる。瀬戸内海側および太平洋側においても季節変動パターンに大きな違いは見られないが、最近 5 年間において全般的に濃度レベルが上がっており、特に 3～6 月の春期に顕著な上昇が認められた。

(5) PO 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.4.5)

1990～2007 年度における PO 濃度月平均値の経月変動は、地域間の濃度差は小さいが概ね Ox と同様の傾向を示し、日本海側では 4、5 月に最高、7、8 月に最低となり秋期に微増する変動パターン、瀬戸内海側および太平洋側では 4、5 月に最大ピーク、9、10 月に小さいピークをもつ 2 山型の変動パターンを示した。

1990 年代初頭と最近 5 年間の比較においても Ox 濃度とほぼ同様の挙動を示し、全般的に季節変動パターンに大きな違いは見られないが、日本海側では秋期ピークの明瞭化、瀬戸内海側および太平洋側では春期の顕著な上昇と秋期ピークの明瞭化が特徴として認められた。

3.1.4.2. 地域の解析のまとめ

3.1.4.2.1. Ox、PO 季節別濃度の経年変化

中国四国地域における Ox および PO 濃度の経年変化の挙動を詳細に把握するため、季節別濃度の経年変化について解析を行った。季節区分は、春期：3～5 月、夏期 6～8 月、秋期：9～11 月、冬期：12～2 月とした。

(1) Ox 季節別濃度の経年変化(図 3.1.4.6、表 3.1.4.2)

1990～2007 年度における Ox 季節別濃度の経年変化は、いずれの季節も年変動は大きいが長期的には瀬戸内海側を中心に多くの自治体で増加傾向を示し、特に 2000 年度以降に複数の自治体において顕著な増加傾向が窺える。当該期間における各自治体で得られた傾きを見ると、いずれの季節も正の傾きを示す自治体が多く見られた。特に、春期と秋期は島根県を除く 8 自治体で正の傾きを示し、春期は瀬戸内海側と太平洋側の 6 自治体、秋期は瀬戸内海側の 4 自治体で有意な増加傾向が認められた。島根県では、夏期を除きいずれも負の傾きを示し、冬期（傾き： $-0.32\text{ppb}/\text{年}$ ($p<0.05$)) は有意な減少傾向が認められた。

2000 年度以降では、秋期において山口県（傾き： $1.19\text{ppb}/\text{年}$ ($p<0.01$)) で有意性を示すなどほぼ全域でより高い増加率を示していた。日本海側では、有意性は見られないものの春期にもより高い増加率を示しており、近年大陸からの影響を強く受けていることが示唆される。また、瀬戸内海側では、春期と夏期においても、山口県、香川県で有意性を示すなどより高い増加率を示す自治体が多く見られ、越境汚染とともに地域汚染による影響も大きいことが示唆された。

(2) PO 季節別濃度の経年変化(図 3.1.4.7、表 3.1.4.3)

1990～2007 年度の PO 季節別濃度の経年変化を見ると、いずれの季節も概ね Ox と同じ挙動を示し、地域間の濃度差は Ox に比べ小さいが長期的には瀬戸内海側を中心に多くの自治体で増加傾

向が窺える。当該期間における各自治体で得られた傾きを見ると、冬期以外は各季節とも正の傾きを示す自治体が多く、特に春期は島根県を除く 8 自治体で正の傾きを示し、瀬戸内海側と太平洋側の 6 自治体で有意な増加傾向が認められた。2000 年度以降においては、日本海側と太平洋側では O_x とやや異なる挙動を示し、有意性は見られないものの、ほとんどの季節で負の傾きを示した。一因として、近年の NO_x 濃度の減少（3.1.4.2.5 を参照）が関与していると思われる。瀬戸内海側では O_x 濃度と類似した挙動を示し、冬期以外は正の傾きを示す自治体が多く、特に夏期と秋期は山口県で有意性を示すなど、より高い増加率を示した。

3.1.4.2.2. 高濃度 O_x (60ppb 以上)の経年変化と季節変動

(1) O_x 濃度年最大値の経年変化(図 3.1.4.8、表 3.1.4.4)

1990～2007 年度における O_x 濃度年最大値の経年変化は、各自治体で得られた当該期間の傾き（ $-0.96\sim 2.15$ ）が示すように、増加と減少を示す自治体両方が存在しており、明確な増減の傾向は見られなかった。2000 年度以降については、有意な増加傾向を示した山口県（傾き： 5.02ppb/年 ($p<0.01$))、香川県（傾き： 1.07ppb/年 ($p<0.05$)) など正の傾きを示す自治体が多く見られた。

(2) O_x 濃度 60ppb 以上の出現率の経年変化(図 3.1.4.9、「3.2 全国解析」の表 3.2.2)

1990～2007 年度の O_x 濃度 60ppb 以上の出現率の経年変化を見ると、各自治体で得られた傾きは $-0.18\sim 0.37$ で島根県を除く全ての自治体で正の傾きとなり、広島県（傾き： $0.36\%/年$ ($p<0.01$))、山口県（傾き： $0.35\%/年$ ($p<0.01$))、徳島県（傾き： $0.37\%/年$ ($p<0.01$))、香川県（傾き： $0.14\%/年$ ($p<0.01$)) で有意な増加傾向を示すなど瀬戸内海側での増加傾向が明確であった。年代別にみると、2000 年度以降において、平均値、傾きともに特に瀬戸内海側でより大きな値を示した。

(3) O_x 濃度 60ppb 以上の出現率の経月変動(図 3.1.4.10)

1990～2007 年度における O_x 濃度 60ppb 以上の出現率の経月変動は、日本海側では O_x 濃度月平均値とほぼ同様に 5 月に大きいピークと 9～10 月に小さいピークを示す 2 山型の変動パターンを示したが、秋期のピークはあまり明瞭ではなかった。瀬戸内海側はいずれも 2 山型の変動パターンを示したが、5 月に最大ピーク、9 月に小さいピークを示す自治体（山口県、徳島県）と 5 月に最大ピーク、8 月に小さいピークを示す自治体（岡山県、広島県、香川県、愛媛県）が存在した。太平洋側の高知県は 4 月に最大ピーク、9 月に小さいピークを示す 2 山型の変動パターンを示した。1990 年代初頭と最近 5 年間を比較すると、全域的に季節変動パターンに大きな違いは見られないが、春期の出現割合に増加傾向が見られた。

(4) O_x 濃度 60ppb 以上の出現率季節平均値の経年変化(図 3.1.4.11、表 3.1.4.5)

1990～2007 年度の O_x 濃度 60ppb 以上の出現率の季節別経年変化を見ると、いずれの季節も年変動は大きい、春期は島根県を除く全自治体で最大の正の傾きを示し、特に広島県（傾き： $0.84\%/年$ ($p<0.01$))、山口県（傾き： $0.74\%/年$ ($p<0.01$))、徳島県（傾き： $0.77\%/年$ ($p<0.05$))、香川県（傾き： $0.38\%/年$ ($p<0.01$)) で有意性を示すなど瀬戸内海側で明確な増加傾向が認められた。夏期においても正の傾きを示す自治体が多く、広島県、山口県、徳島県で有意性を示すなど春期と同様に瀬戸内海側で増加傾向が明確であった。秋期は広島県、山口県、徳島県では有意な増加傾向を示したが、全般的には負の傾きを示す自治体が多く見られた。2000 年度以降では、夏期において山口県、徳島県で有意な増加傾向を示すなど瀬戸内海側で概ね正の傾きを示したが、それ以外の季節は増加と減少を示す両方の自治体が存在しており明確な増減の傾向は見られなかった。

3.1.4.2.3. SPM 季節別濃度の経年変化(図 3.1.4.12、表 3.1.4.6)

中国四国地域における SPM 濃度の経年変化の挙動を詳細に把握するため、季節別濃度の経年変化について解析を行った。季節区分は、Ox と同様である。1990 年度～2007 年度における SPM 季節別濃度の経年変化は、いずれの季節も概ね横ばい、又は減少傾向にあり、近年は地域間差が小さくなっている様子が窺える。当該期間における各自治体で得られた傾きを見ると、島根県を除く 8 自治体では概ねいずれの季節も有意な減少傾向が認められ、春期よりも他の季節で大きい減少率を示していた。島根県では、有意性は見られないが春期と夏期において正の傾きを示した。

2000 年度以降では、日本海側で島根県の秋期（傾き： $0.56 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ ($p < 0.01$)) において有意な増加傾向が認められるなど概ね正の傾きを示したのが特徴的であった。瀬戸内海側の愛媛県でも同様な傾向が見られた。また、愛媛県を除く瀬戸内海側と太平洋側においては、概ね各季節とも減少傾向にあるが、春期は全ての自治体でより大きな減少率を示し、夏期と冬期は減少率が小さくなっている自治体が多く見られた。

3.1.4.2.4. 高濃度 SPM の経年変化と季節変動

(1) SPM 濃度 2%除外値の経年変化(図 3.1.4.13、表 3.1.4.7)

1990～2007 年度における SPM 濃度 2%除外値の経年変化は SPM 濃度年平均値とほぼ同じ挙動を示し、長期的には概ね横ばい、又は減少傾向を示しているが、近年は一部の自治体で増加傾向が窺える。当該期間における各自治体で得られた傾きは $-2.31 \sim 0.20$ で、島根県を除く 8 自治体において負の傾きを示し、瀬戸内海側では有意な減少傾向が認められた。年代別に見ると、平均値では全自治体で 1990 年代初頭に比べ最近の 5 年間の方が小さい値を示した。また、2000 年度以降の傾きにおいて、有意性は見られないが鳥取県、島根県、愛媛県、山口県では正の傾きを示した。

(2) SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の出現率の経年変化(図 3.1.4.14、「3.2 全国解析」の表 3.2.4)

1990～2007 年度の SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の出現率の経年変化を見ると、当該期間における各自治体で得られた傾きは $-0.28 \sim -0.005$ で全ての自治体において負の傾きとなり、瀬戸内海側では有意な減少傾向が認められた。また、2000 年度以降においては全域的に概ね 2%以下で推移していた。

年代別に見ると、平均値は全域で 1990 年代初頭に比べ最近の 5 年間の方が小さい値を示した。傾きでは、2000 年度以降で、多くの自治体でより大きい値をとっており、鳥取県、島根県、山口県では有意性は見られないものの正の傾きを示した。

(3) SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の出現率の経月変動(図 3.1.4.15)

1990～2007 年度における SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の出現率の経月変動は、最大ピークの月は各自治体で異なるが、島根県を除く 8 自治体において 4 月、6～8 月、11～12 月にピークを示す 3 山型の変動パターンを示した。島根県では 11～12 月のピークが見られず 2 山型の変動パターンを示した。

1990 年代初頭と最近 5 年間を比較すると、全般的に出現率は減少しており、またピーク出現パターンも 11～12 月のピークの顕著な減少により 4 月と 6～8 月にピークを示す 2 山型の変動パターンに変化した。このことは、近年の高濃度出現において、黄砂等大陸からの影響と二次生成粒子の寄与が大きくなっていることを示唆している。

(4) SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の季節別出現率の経年変化(図 3.1.4.16、表 3.1.4.8)

1990～2007 年度の SPM 濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の季節別出現率の経年変化を見ると、日本海側では春期は正の傾き、他の季節は冬期に有意な減少傾向を示すなど負の傾きを示したが、期間を通して出現率は概ね 2%以下で推移していた。瀬戸内海側では、全般的に有意な減少傾向を示し、特に夏期において減少傾向が顕著に見られた。太平洋側では、日本海側とほぼ同じ挙動を示したが、いずれの季節も有意性は認められなかった。また、2000 年度以降の傾きにおいては、全般的に 1990 年度以降の傾きより大きい値を示す傾向がみられた。日本海側では有意性はないが春期と夏期により大きい増加率を示した。瀬戸内海側は概ね負の傾きを示しており 1990 年度以降の傾向と大きな差はみられないが、山口県、愛媛県では夏期に正の傾きを示した。太平洋側は夏期と冬期に有意性はないが、正の傾きを示した。

3.1.4.2.5. NO_x 濃度年平均値の経年変化と季節変動(図 3.1.4.17、図 3.1.4.18、表 3.1.4.9)

1990～2007 年度における NO_x 濃度年平均値の経年変化は、1990 年代後半にピークを示す自治体と 2000 年度頃までは概ね横ばいで推移する自治体の両方が存在するが、2000 年度以降は全般的に減少傾向が窺える。当該期間における各自治体で得られた傾きは $-0.61\sim-0.04$ で、鳥取県、広島県、山口県、徳島県で有意な減少傾向が認められるなど全域で負の傾きを示した。また、自治体間の濃度差が大きいことが特徴であり、日本海側で低く瀬戸内海側で高い傾向が見られた。年代別に見ると、平均値ではほとんどの自治体で 1990 年代初頭に比べ最近の 5 年間の方が小さい値を示した。また、2000 年度以降において、ほとんどの自治体で有意な減少傾向を示し、減少率もより大きい値となった。

1990～2007 年度における NO_x 濃度月平均値の季節変動は、いずれの地域も夏期に低く冬期に高い傾向を示していた。1990 年代初頭と最近 5 年間を比較すると、季節変動パターンに大きな違いは見られないが、全般的に濃度の減少が認められ、特に冬期の減少が顕著に見られた。

3.1.4.3. まとめと今後の課題

今回の解析から、中国四国地域の O_x・SPM 濃度の地域特性について以下の知見が得られた。

1) O_x 濃度の経年変動は、長期的には島根県を除く全域で正の傾きを示し、特に瀬戸内海側と太平洋側では有意な増加傾向が認められた。季節的には、春期と秋期に島根県を除く全域で正の傾きを示し、瀬戸内海側では夏期においても増加傾向が明確であった。この傾向は高濃度 O_x の出現率にも概ね反映されていた。

また、2000 年度以降においては全域で正の傾きを示しており、日本海側では春期と秋期により大きい正の傾きを示し、原因物質である NO_x 濃度の経年的減少傾向等を踏まえると、近年大陸からの影響を強く受けていることが示唆された。瀬戸内海側では春期と秋期に加え夏期にもより顕著な増加傾向を示しており、越境汚染とともに地域汚染による影響も大きいことが示唆された。PO についても、O_x と概ね同様の傾向が認められた。

2) SPM 濃度の経年変動は、長期的には島根県を除く全域で有意な減少傾向を示していた。特に瀬戸内海側において顕著な減少傾向が見られ、これに伴い近年になるほど地域差が小さくなる傾向が見られた。季節的には全ての季節で有意な減少傾向を示し、春期よりも他の季節で大きい減少率を示していた。2%除外値や高濃度 SPM の出現率においても概ね同様の傾向が見られた。

また、2000 年度以降においては、愛媛県を除く瀬戸内海側と太平洋側では種々の規制対策により更に顕著な減少傾向が認められたのに対し、日本海側と愛媛県では正の傾きを示すという地域特

3.基本解析

性が認められた。この傾向は2%除外値においても認められた。

3) 1990～2007年度におけるOx濃度月平均値の季節変動は、4～5月に最大ピーク、9～10月に小さいピークをもつ2山型の変動パターンを示した。1990年代初頭と最近5年間の比較では季節変動パターンに大きな違いは見られないが、日本海側では秋期のピークの明瞭化、瀬戸内海側と太平洋側では春期に顕著な濃度増加が認められた。POについても、Oxと概ね同様の傾向が認められた。

4) 高濃度SPMの出現率の季節変動パターンが、近年は、春期+夏期+冬期の3山型から春期+夏期の2山型の変動パターンに変化しており、近年の高濃度出現において黄砂等大陸からの影響と二次生成粒子の寄与が大きくなっていることが示唆された。

中国四国地域は、地域汚染だけでなく、大陸など域外からの移流の影響も受けやすい地理的・地形的条件にあることから、今後は他地域の汚染状況や気象状況も考慮しながら、Ox・SPM濃度の越境汚染や地域特性について更に詳細に解析を進める必要があると思われる。

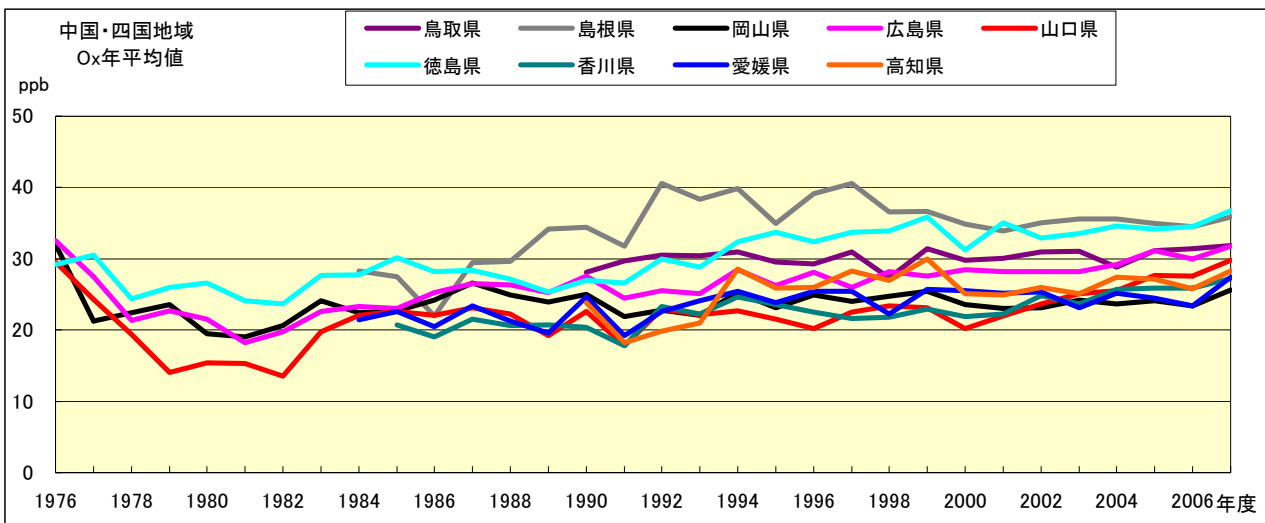


図 3.1.4.1. Ox 濃度年平均値の経年変化

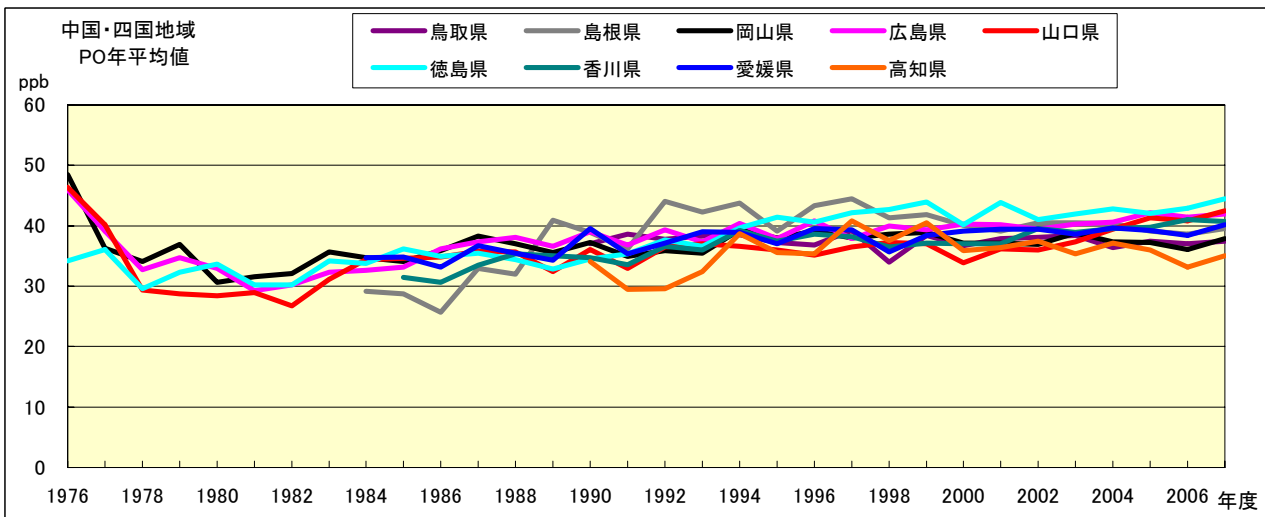


図 3.1.4.2. PO 濃度年平均値の経年変化

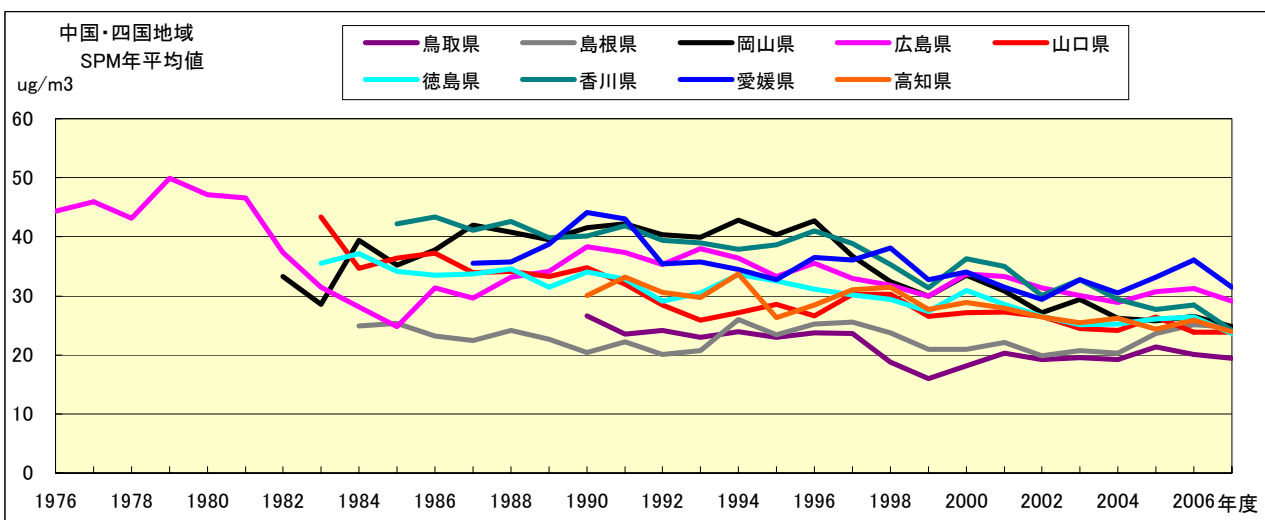


図 3.1.4.3. SPM 濃度年平均値の経年変化

3.基本解析

Ox 濃度月平均値経月変動

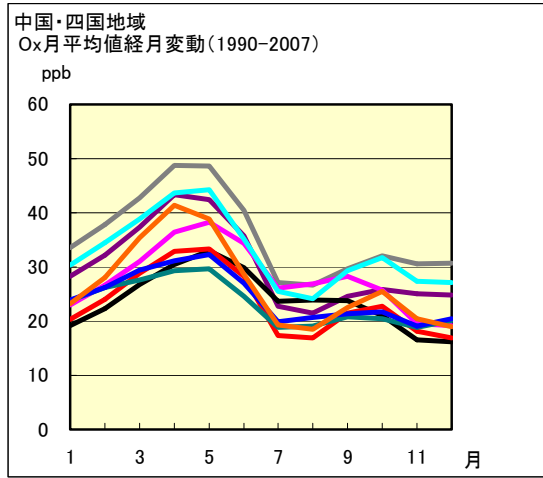


図 3.1.4.4.a 1990 年度～2007 年度

PO 濃度月平均値経月変動

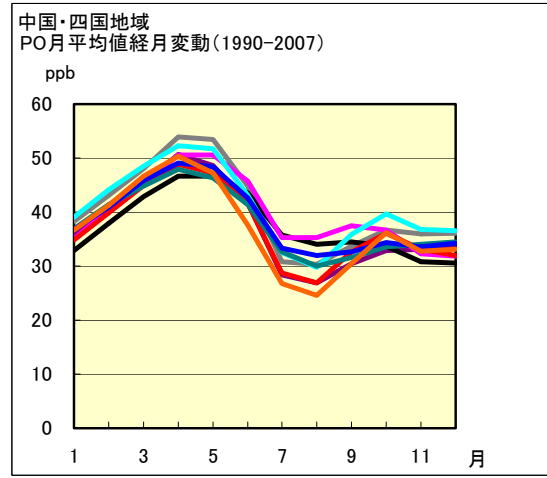


図 3.1.4.5.a 1990 年度～2007 年度

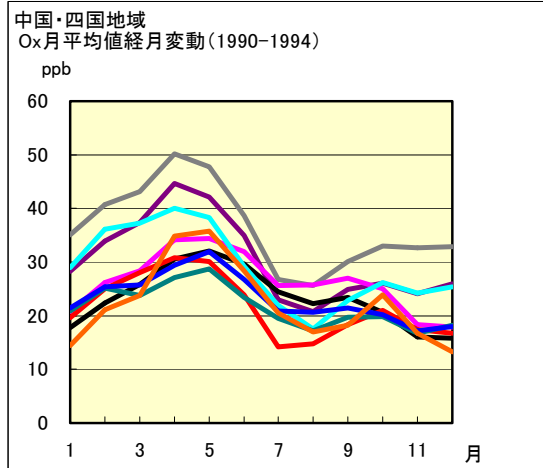


図 3.1.4.4.b 1990 年度～1994 年度

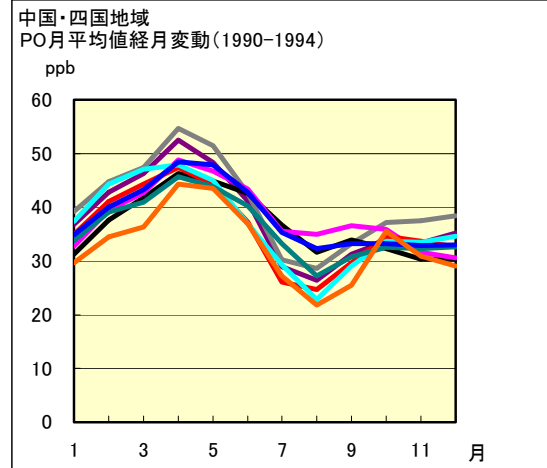


図 3.1.4.5.b 1990 年度～1994 年度

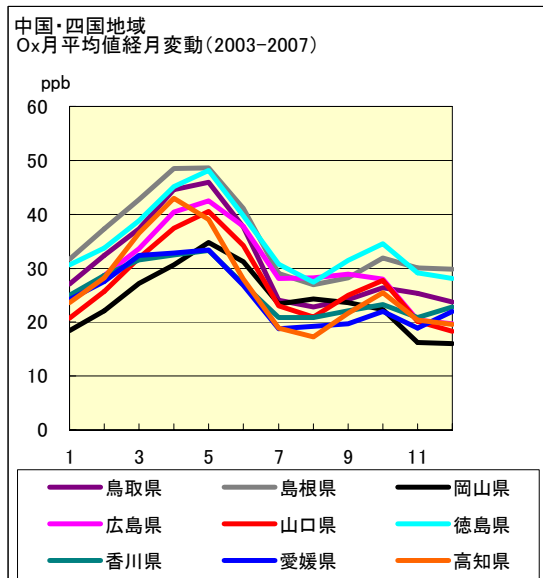


図 3.1.4.4.c 2003 年度～2007 年度

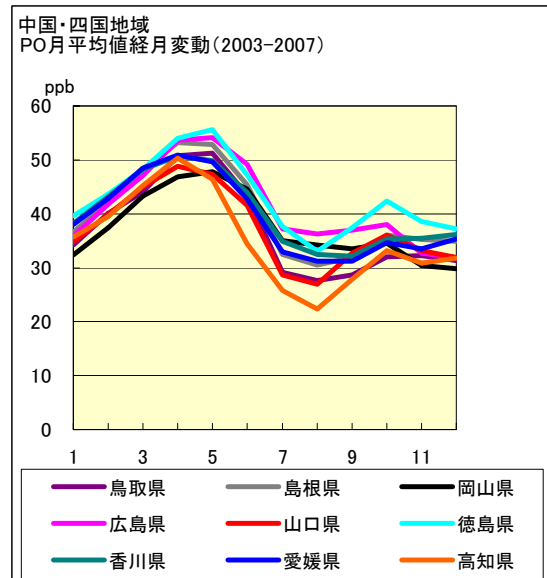


図 3.1.4.5.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.4.4. Ox 濃度月平均値の経月変動(左) および図 3.1.4.5. PO 濃度月平均値の経月変動(右)

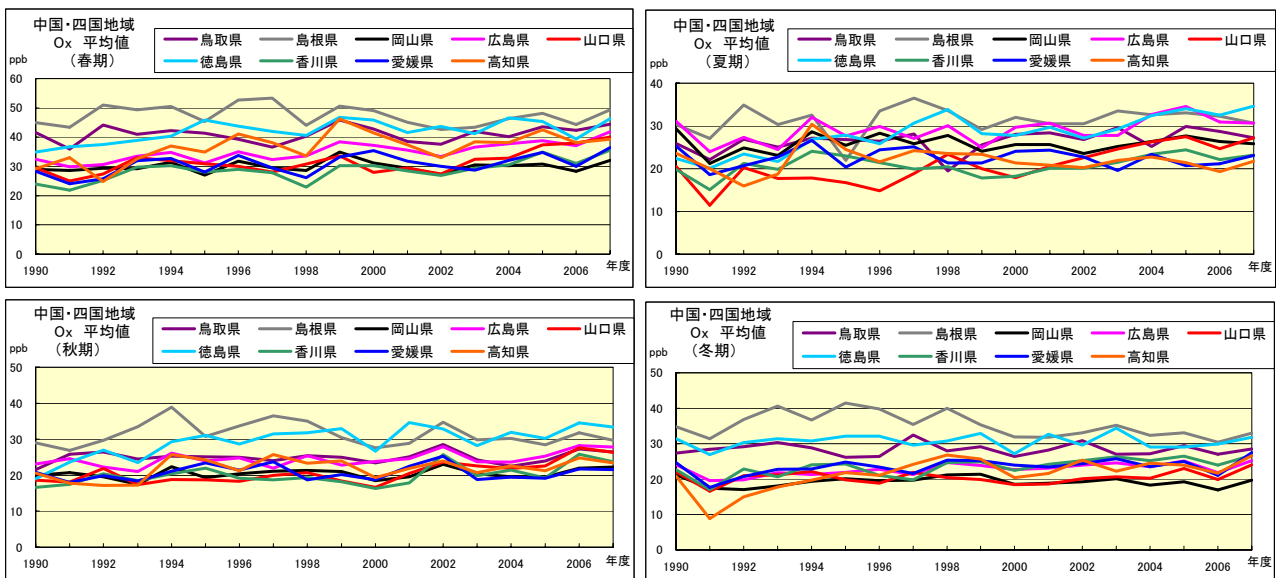


図 3.1.4.6. Ox 季節別濃度の経年変化

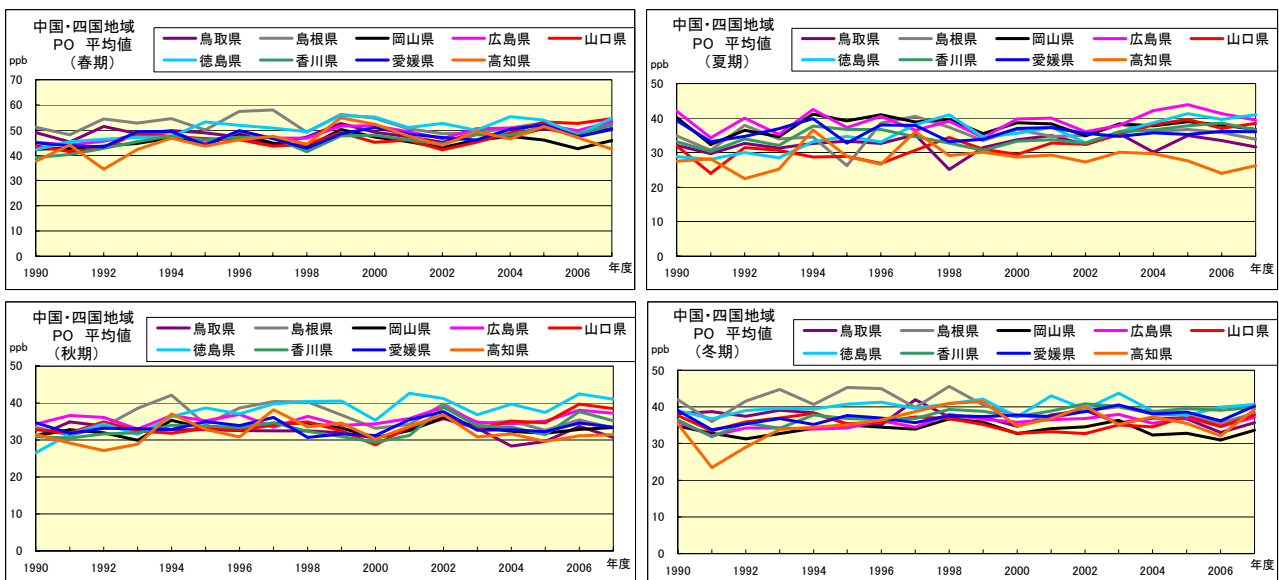


図 3.1.4.7. PO 季節別濃度の経年変化

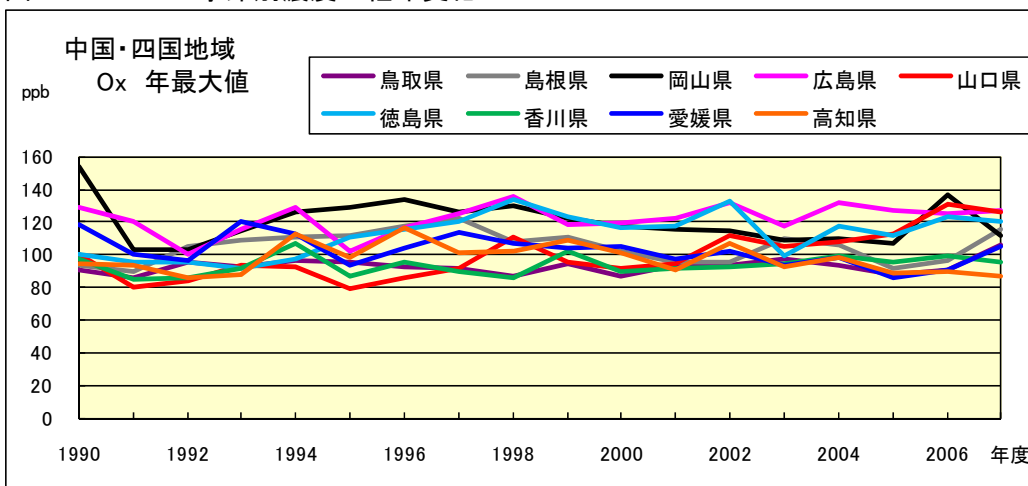


図 3.1.4.8. Ox 濃度最大値の経年変化

3.基本解析

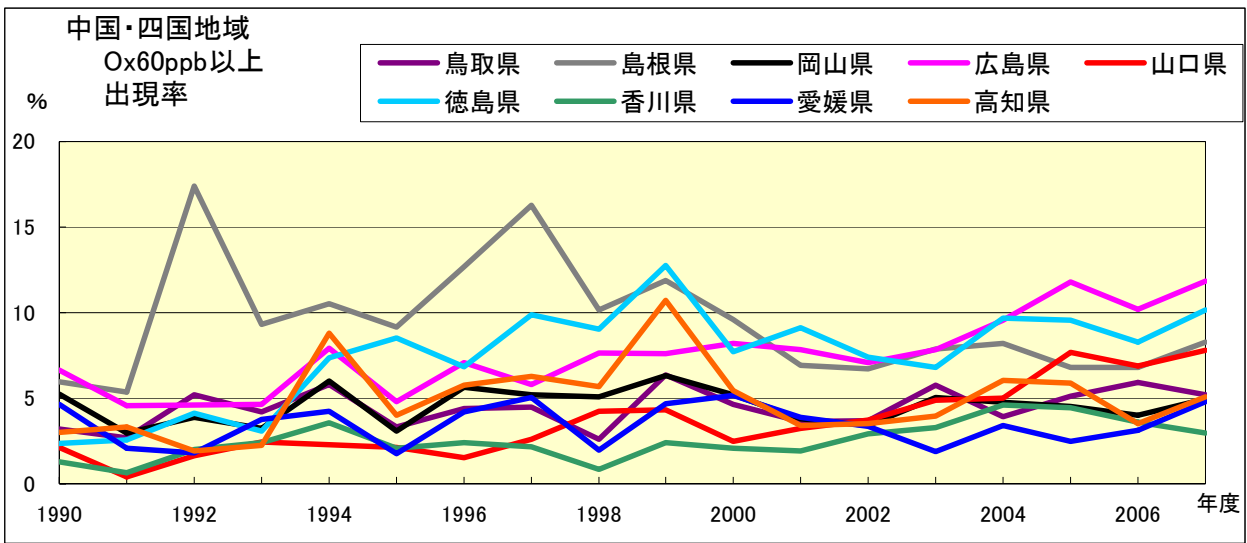


図 3.1.4.9. Ox60ppb 以上出現率の経年変化

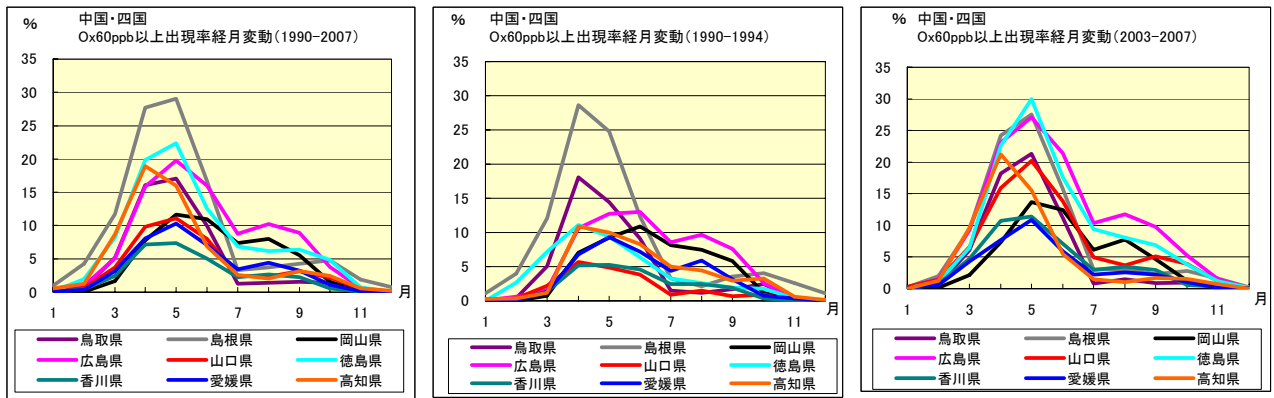


図 3.1.4.10. Ox60ppb 以上出現率月平均値の経月変動

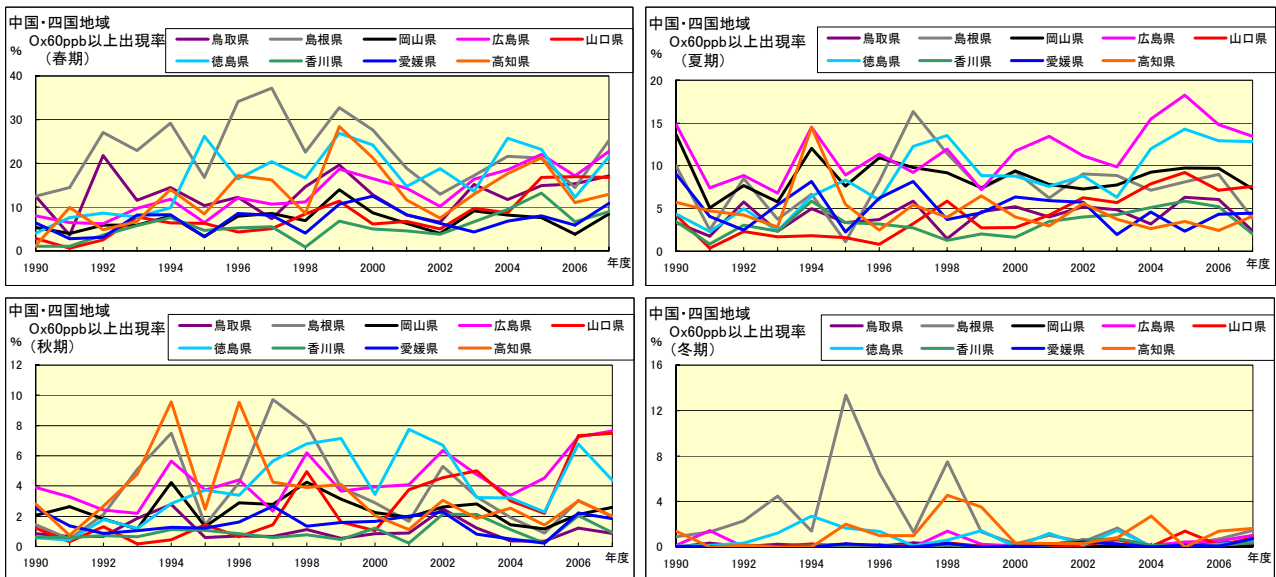


図 3.1.4.11. Ox60ppb 以上季節別出現率の経年変化

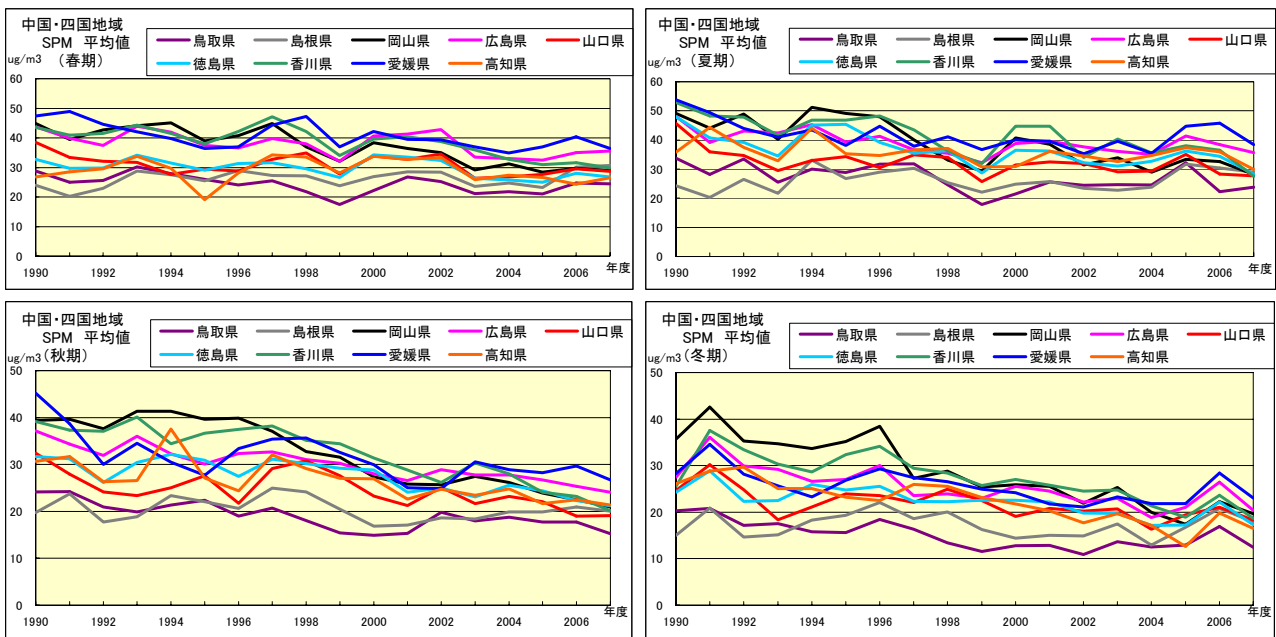


図 3.1.4.12. SPM 季節別濃度の経年変化

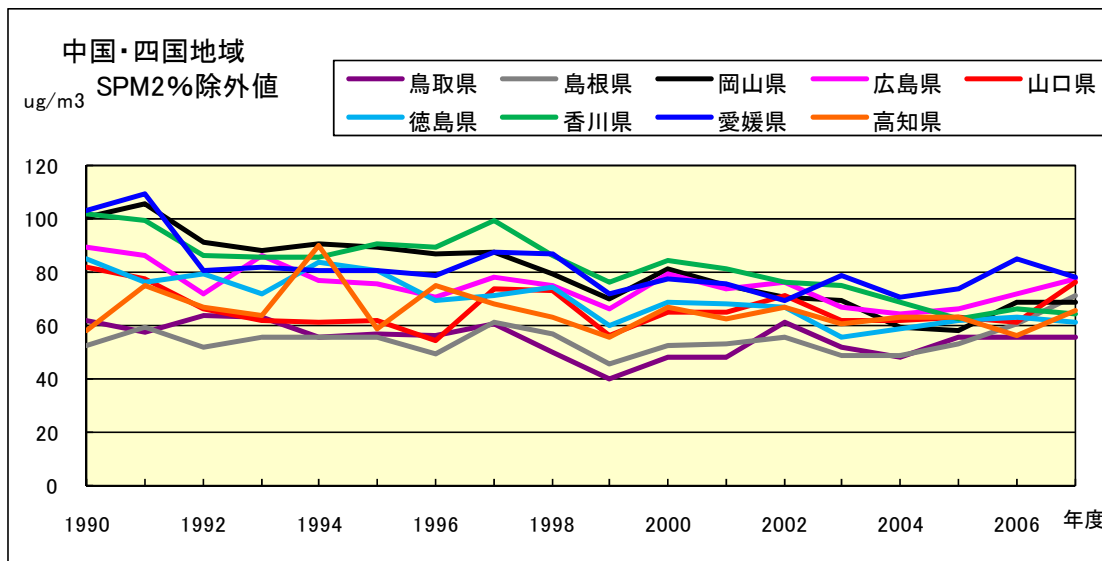


図 3.1.4.13. SPM2%除外値の経年変化

3.基本解析

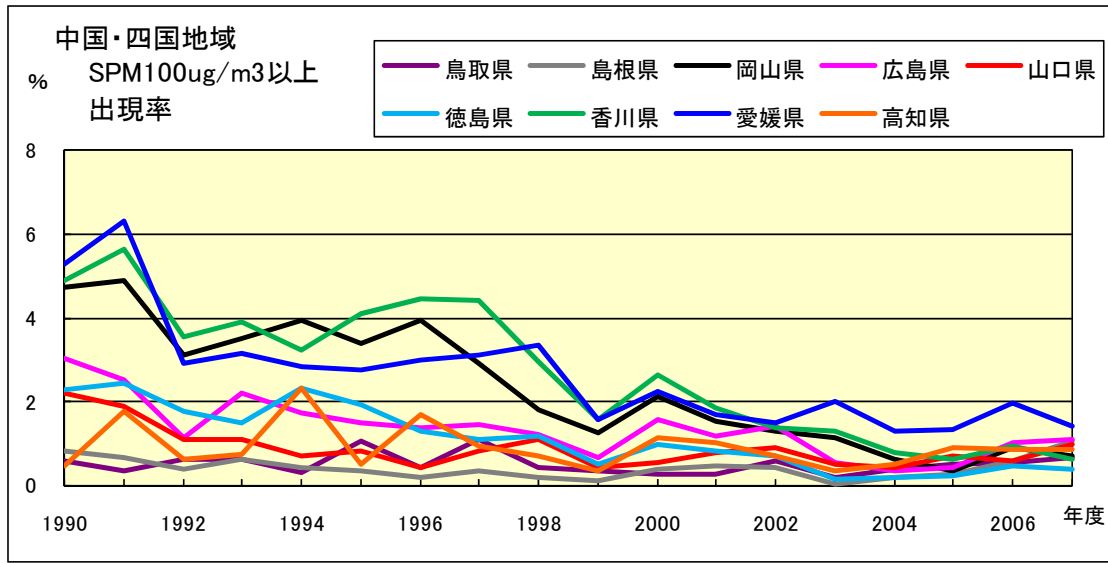


図 3.1.4.14. SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上出現率の経年変化

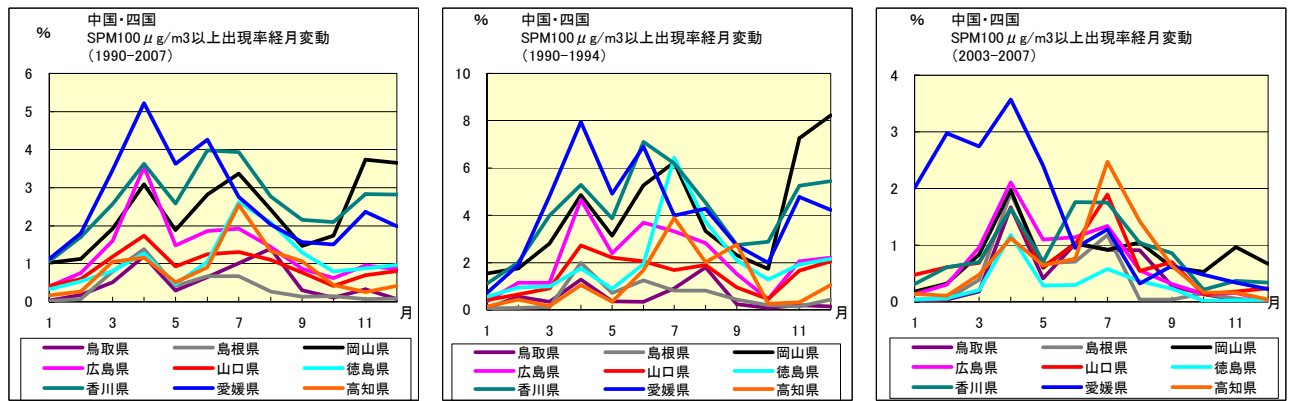


図 3.1.4.15. SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上月別出現率の経月変動

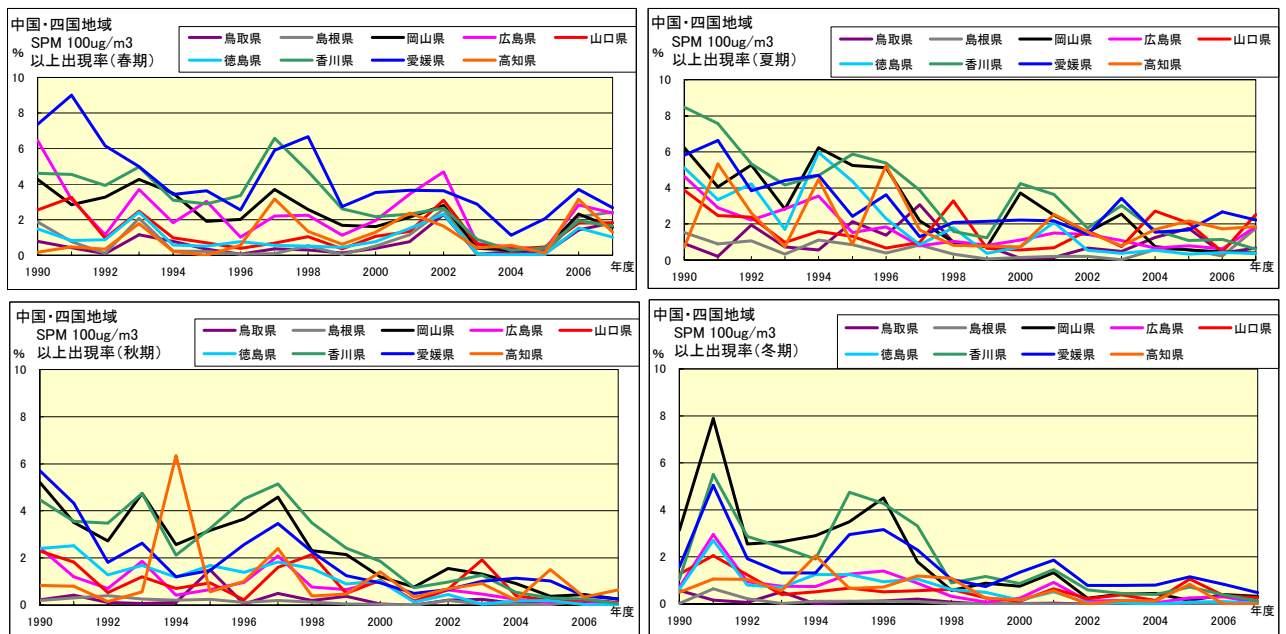


図 3.1.4.16. SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上季節別出現率の経年変化

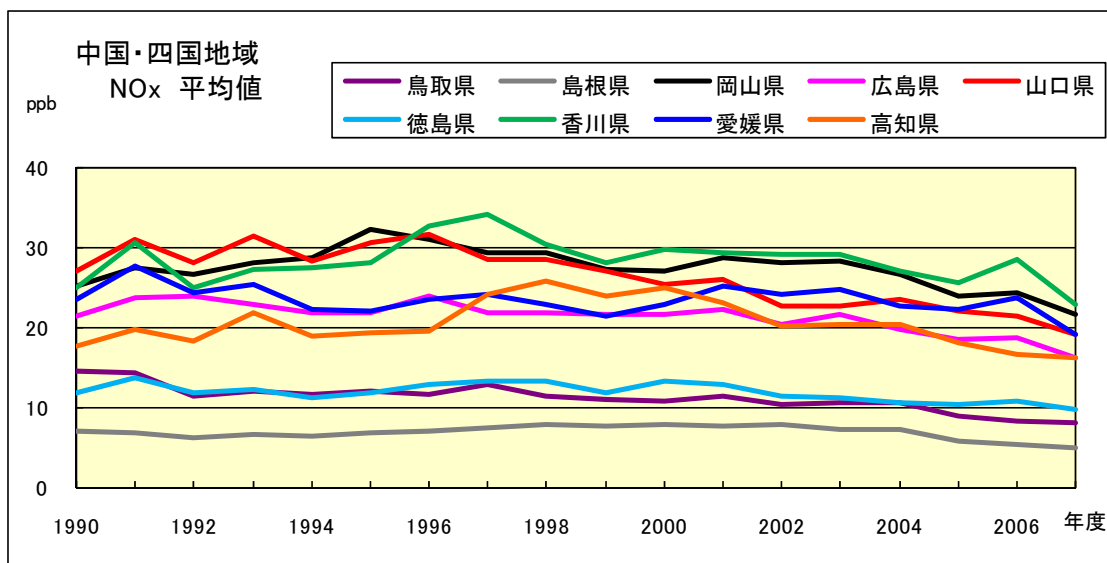


図 3.1.4.17. NOx 濃度年平均値の経年変化

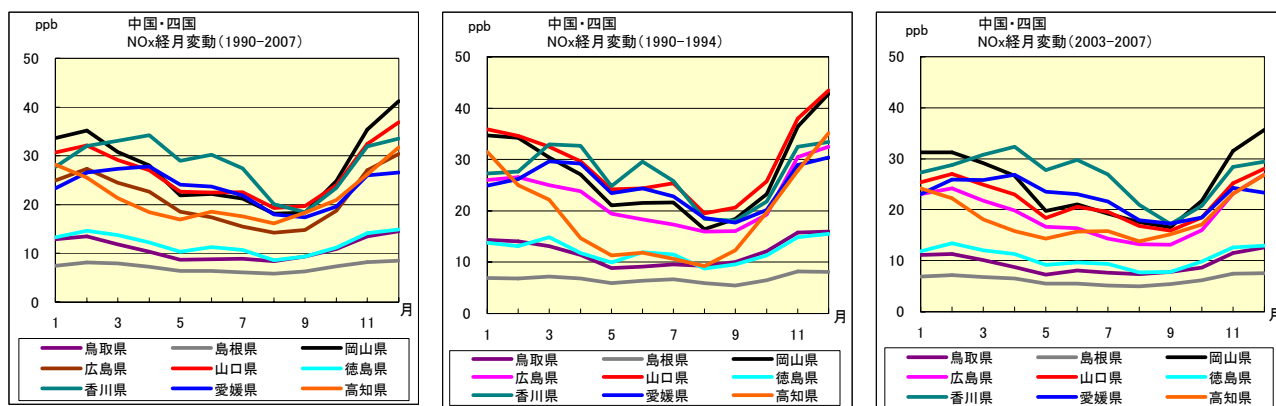


図 3.1.4.18. NOx 濃度月平均値の経月変動

表 3.1.4.1. PO 濃度年平均値の経年変化の傾きと平均値

地域グループ	都道府県市	傾き (ppb/年)					平均値 (ppb)							
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994	2003-2007					
中国・四国	鳥取県	-0.03	-	-0.03	-	-0.03	-	0.02	-	-0.04	-	37.5	38.0	37.5
	島根県	0.42	**	0.37	*	-0.09	-	-0.26	*	-0.12	-	40.7	41.0	39.8
	岡山県	0.06	-	0.08	-	0.04	-	-0.13	-	-0.01	-	37.4	36.6	37.3
	広島県	0.24	**	0.26	**	0.21	**	0.26	**	0.31	*	39.7	38.6	40.8
	山口県	0.22	**	0.26	**	0.33	**	0.53	**	1.20	**	37.1	35.8	39.0
	徳島県	0.43	**	0.48	**	0.45	**	0.15	-	0.35	-	40.8	36.8	42.1
	香川県	0.37	**	0.37	**	0.30	**	0.29	**	0.55	**	37.9	36.0	39.8
	愛媛県	0.22	**	0.22	**	0.11	-	0.14	-	0.03	-	38.6	38.0	39.1
	高知県	0.19	-	0.19	-	0.19	-	-0.24	-	-0.30	-	35.6	32.9	35.8
	平均	0.24		0.24		0.17		0.08		0.22		38.4	37.1	39.0

** : p<0.01、* : p<0.05

3.基本解析

表 3.1.4.2. O_x 季節別濃度の経年変化の傾き(単位:ppb/年)

	1990-2007年度				2000-2007年度											
	春期	夏期	秋期	冬期	春期	夏期	秋期	冬期								
鳥取県	0.12	—	0.21	—	0.07	—	-0.02	—	0.56	—	0.02	—	0.20	—	0.06	—
島根県	-0.11	—	0.13	—	-0.08	—	-0.32	*	0.20	—	0.08	—	0.13	—	-0.03	—
岡山県	0.07	—	0.03	—	0.08	—	-0.01	—	0.13	—	0.22	—	0.32	—	-0.04	—
広島県	0.49	**	0.26	*	0.22	*	0.20	**	0.69	—	0.40	—	0.46	—	0.16	—
山口県	0.50	**	0.64	**	0.41	**	0.08	—	1.87	**	1.21	**	1.19	**	0.65	*
徳島県	0.43	**	0.69	**	0.58	**	0.02	—	0.04	—	1.02	**	0.50	—	0.14	—
香川県	0.48	**	0.19	—	0.28	*	0.33	**	0.88	*	0.71	**	0.89	—	0.37	—
愛媛県	0.35	*	-0.04	—	0.06	—	0.20	*	0.18	—	-0.30	—	-0.02	—	0.15	—
高知県	0.56	**	-0.05	—	0.21	—	0.54	**	0.20	—	0.00	—	0.44	—	0.50	—

** : p<0.01、* : p<0.05

表 3.1.4.3. PO 季節別濃度の経年変化の傾き(単位:ppb/年)

	1990-2007年度				2000-2007年度											
	春期	夏期	秋期	冬期	春期	夏期	秋期	冬期								
鳥取県	0.03	—	0.10	—	-0.11	—	-0.17	—	0.34	—	-0.22	—	-0.20	—	-0.26	—
島根県	-0.10	—	0.13	—	-0.07	—	-0.31	*	-0.05	—	-0.13	—	-0.16	—	-0.10	—
岡山県	0.11	—	0.02	—	0.05	—	-0.02	—	-0.15	—	-0.04	—	0.08	—	-0.21	—
広島県	0.40	**	0.14	—	0.08	—	0.17	*	0.37	—	0.38	—	0.23	—	-0.02	—
山口県	0.46	**	0.62	**	0.27	*	-0.06	—	1.62	**	1.29	**	1.13	*	0.66	*
徳島県	0.49	**	0.68	**	0.59	**	0.08	—	-0.10	—	0.91	*	0.36	—	-0.02	—
香川県	0.49	**	0.22	*	0.21	—	0.34	**	0.71	—	0.74	**	0.60	—	0.15	—
愛媛県	0.28	*	-0.05	—	0.02	—	0.18	*	0.11	—	-0.14	—	-0.07	—	0.11	—
高知県	0.46	*	-0.05	—	0.06	—	0.36	—	-0.64	—	-0.51	—	-0.30	—	-0.04	—

** : p<0.01、* : p<0.05

表 3.1.4.4. O_x 濃度最大値の経年変化の傾きと平均値

都道府 県市	傾き(ppb/年)			平均値(ppb)					
	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990- 2007	1990- 1994	2003- 2007			
鳥取県	0.25	—	0.39	—	1.18	—	93	92	93
島根県	-0.01	—	-1.20	—	1.07	—	105	102	100
岡山県	-0.62	—	-1.40	—	0.52	—	120	120	115
広島県	0.68	—	1.06	—	0.75	—	122	119	127
山口県	2.15	**	3.39	**	5.02	**	100	90	114
徳島県	1.45	**	-0.11	—	0.08	—	112	96	117
香川県	0.33	—	0.68	—	1.07	*	94	93	96
愛媛県	-0.96	*	-0.88	—	-0.93	—	103	110	94
高知県	-0.29	—	-1.59	**	-1.87	—	98	95	96
平均	0.33		0.04		0.77		105	102	106

** : p<0.01、* : p<0.05

表 3.1.4.5. O_x60ppb 以上季節別出現率の経年変化の傾き(単位:%/年)

	1990-2007年度				2000-2007年度											
	春期	夏期	秋期	冬期	春期	夏期	秋期	冬期								
鳥取県	0.15	—	0.08	—	-0.01	—	0.01	—	1.04	—	-0.10	—	-0.06	—	0.02	—
島根県	-0.11	—	0.07	—	-0.05	—	-0.21	—	-0.11	—	-0.35	—	-0.17	—	0.05	—
岡山県	0.12	—	-0.03	—	-0.02	—	0.00	—	-0.06	—	0.04	—	-0.03	—	0.00	—
広島県	0.84	**	0.30	*	0.18	**	0.02	—	1.14	—	0.54	—	0.41	—	0.09	—
山口県	0.74	**	0.41	**	0.34	**	0.03	*	1.91	**	0.70	*	0.64	—	0.11	—
徳島県	0.77	*	0.54	**	0.24	*	-0.03	—	-0.07	—	0.92	*	-0.14	—	-0.04	—
香川県	0.38	**	0.10	—	0.04	—	0.02	*	0.83	—	0.21	—	0.00	—	0.00	—
愛媛県	0.18	—	-0.13	—	-0.01	—	0.02	*	-0.19	—	-0.34	—	-0.05	—	0.04	—
高知県	0.56	—	-0.17	—	-0.14	—	0.01	—	-0.19	—	-0.11	—	0.06	—	0.24	—

** : p<0.01、* : p<0.05

表 3.1.4.6. SPM 季節別濃度の経年変化の傾き

	1990-2007年度				2000-2007年度			
	春期	夏期	秋期	冬期	春期	夏期	秋期	冬期
鳥取県	-0.31 *	-0.45 *	-0.40 **	-0.41 **	-0.06 -	0.28 -	0.11 -	0.28 -
島根県	0.21 -	0.17 -	-0.12 -	-0.04 -	0.23 -	0.93 -	0.56 **	0.65 -
岡山県	-0.99 **	-1.22 **	-1.28 **	-1.25 **	-1.39 **	-1.39 *	-0.81 **	-0.94 *
広島県	-0.43 *	-0.44 **	-0.63 **	-0.60 **	-1.17 -	-0.20 -	-0.47 *	-0.40 -
山口県	-0.31 *	-0.49 **	-0.47 **	-0.41 **	-0.87 -	-0.45 -	-0.57 -	-0.14 -
徳島県	-0.30 *	-0.75 **	-0.55 **	-0.46 **	-1.22 *	-0.62 -	-0.73 *	-0.57 -
香川県	-0.75 **	-1.00 **	-1.05 **	-0.78 **	-1.67 **	-1.84 *	-1.38 **	-1.07 **
愛媛県	-0.52 **	-0.46 *	-0.63 **	-0.41 **	-0.54 -	0.52 -	0.12 -	0.31 -
高知県	-0.10 -	-0.34 *	-0.56 **	-0.74 **	-1.33 **	0.03 -	-0.57 *	-0.68 -

**: p<0.01、*: p<0.05

表 3.1.4.7. SPM2%除外値の経年変化の傾きと平均値

都道府 県市	傾き(ug/m3/年)			平均値(ug/m3)		
	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990- 2007	1990- 1994	2003- 2007
鳥取県	-0.50 -	0.02 -	0.84 -	55	60	55
島根県	0.20 -	0.56 -	1.94 -	55	55	53
岡山県	-2.31 **	-2.20 **	-2.00 -	80	95	65
広島県	-0.84 **	-0.36 -	-0.69 -	75	82	69
山口県	-0.31 -	0.33 -	0.41 -	66	70	64
徳島県	-1.40 **	-1.35 **	-1.06 -	70	79	61
香川県	-2.00 **	-2.67 **	-3.11 **	82	92	70
愛媛県	-1.19 **	-0.43 -	0.67 -	82	91	76
高知県	-0.50 -	-0.35 -	-0.58 -	66	71	62
平均	-0.98	-0.72	-0.40	70	77	64

**: p<0.01、*: p<0.05

表 3.1.4.8. SPM 濃度 100 μg/m³ 以上季節別出現率の経年変化の傾き

	1990-2007年度				2000-2007年度			
	春期	夏期	秋期	冬期	春期	夏期	秋期	冬期
鳥取県	0.03 -	-0.03 -	-0.02 -	-0.02 **	0.08 -	0.11 -	0.01 -	0.00 -
島根県	0.03 -	-0.03 -	-0.01 **	-0.01 *	0.13 -	0.16 -	0.01 -	0.01 -
岡山県	-0.17 **	-0.32 **	-0.26 **	-0.29 **	-0.08 -	-0.46 **	-0.15 *	-0.09 -
広島県	-0.11 -	-0.15 **	-0.09 **	-0.09 **	-0.16 -	-0.02 -	-0.10 *	-0.05 -
山口県	-0.05 -	-0.05 -	-0.07 *	-0.05 **	-0.01 -	0.19 -	-0.11 -	0.02 -
徳島県	-0.02 -	-0.28 **	-0.14 **	-0.09 **	-0.06 -	-0.14 -	-0.10 -	-0.04 -
香川県	-0.24 **	-0.38 **	-0.27 **	-0.21 **	-0.15 -	-0.49 **	-0.21 **	-0.12 *
愛媛県	-0.27 **	-0.21 **	-0.21 **	-0.13 **	-0.14 -	0.02 -	-0.05 -	-0.12 -
高知県	0.05 -	-0.08 -	-0.05 -	-0.05 -	-0.01 -	0.08 -	-0.04 -	0.05 -

**: p<0.01、*: p<0.05

表 3.1.4.9. NO_x 濃度年平均値の経年変化の傾きと平均値

都道府 県市	傾き(ppb/年)			平均値(ppb)		
	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990- 2007	1990- 1994	2003- 2007
鳥取県	-0.28 **	-0.33 **	-0.48 **	11.3	12.9	9.9
島根県	-0.04 -	-0.16 *	-0.45 **	7.0	6.7	6.8
岡山県	-0.21 -	-0.67 **	-0.88 **	27.5	27.3	26.4
広島県	-0.30 **	-0.45 **	-0.77 **	21.4	22.8	19.9
山口県	-0.61 **	-0.94 **	-0.81 **	26.5	29.3	22.6
徳島県	-0.12 *	-0.26 **	-0.47 **	12.0	12.2	11.0
香川県	-0.07 -	-0.52 **	-0.78 *	28.4	27.1	27.9
愛媛県	-0.16 -	-0.10 -	-0.50 -	23.5	24.7	23.6
高知県	-0.05 -	-0.47 *	-1.19 **	20.6	19.4	19.2
平均	-0.21	-0.43	-0.70	19.8	20.3	18.6

**: p<0.01、*: p<0.05

3.1.5. 九州地域のまとめ

3.1.5.1. 経年変化の基本的特徴(概況)

(1) O_x 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.5.1)

九州における O_x は、工業地帯を抱える福岡県、北九州市で 1970 年代中頃から測定が開始され、続いて 1970 年代終わりに福岡市や長崎県で測定が開始され、以後順次増加して 1990 年度には沖縄県を除く全自治体で測定されるようになった。そして、沖縄県では 1998 年度から測定が開始された。

図 3.1.5.1 に九州各自治体の選定 5 局の O_x 濃度年平均値を示す。1970 年代の測定開始当初の福岡県、北九州市では 30ppb を超える高濃度であったが、各種規制の成果により低下し、1980 年前後には 20ppb を下回っていた。その後測定自治体が増加し九州全体で 1980 年代は 15~28ppb の範囲でほぼ横ばいであったが、1990 年代に入ると緩やかな上昇に転じ、1995 年頃 25~30ppb のピークになった後やや減少したが、2000 年度以降再び上昇に転じた。特に 2006 年度以降の上昇は顕著で、全平均で 2006 年度は 28ppb、2007 年度は 30ppb と、1970 年代のレベルに達した。

光化学オキシダント注意報も県単位で 2006 年度は長崎県(観測史上初)、熊本県(観測史上初)で延べ 2 日、2007 年度は福岡県、長崎県、熊本県、大分県(観測史上初)で延べ 12 日発令され、その後も毎年発令が続いている。九州における光化学オキシダントの注意報レベルの高濃度の出現頻度が増加していることは明らかであり、高濃度事例の詳細な解析が必要であるが、事例解析は第 4 章で行うので、ここでは平均値の長期的なトレンドを中心にまとめた。

近年の九州における高濃度 O_x の特徴は大都市や工業地帯だけでなく離島である五島(長崎県)や天草(熊本県)など周辺に汚染源が少ない場所や菊池市(熊本県)など内陸の中小都市でも注意報レベルに達することである。第 2 期までの C 型共同研究では、九州はアジア大陸からの移流の影響を強く受けていることが明らかにされており、アジア大陸の経済成長を考えると今後もこの傾向が続くことが予想される。

2000 年度以降の自治体別平均値は長崎県(31ppb)が最大値を示し、次いで鹿児島県(29ppb)、福岡県 3 自治体(27~28ppb)、佐賀・熊本・宮崎県(27ppb)、沖縄県(26ppb)、大分県(24ppb)の順で、最も低いのは熊本市(21ppb)であった。熊本市では 1998 年度以降、2001 年度の 18ppb を底に 20ppb 以下で推移していたが、2005 年度以降に顕著に増加し、2006 年 6 月 7 日には熊本県下で観測史上初の光化学オキシダント注意報が発令されるに至った。

年平均値の増加率(傾き)はほとんどの自治体で正の値(増加)を示し、全自治体平均で全期間は +0.26ppb/年、1990~2007 年度は +0.24ppb/年、1995~2007 年度は +0.25ppb/年、2000~2007 年度は +0.66ppb/年と、2000 年度以降の増加率が大きかった。その中で大分県と沖縄県は負の値を示した。大分県は 1990 年代の約 28ppb から 2000 年度前後に 21ppb まで減少し、その後再度増加し 2007 年度には 27ppb に達した。沖縄県は特異的に低濃度であった 2004 年度の 20ppb を除くと約 27ppb でほぼ横ばいである。

(2) PO 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.5.2、図 3.1.5.6)

図 3.1.5.2 に示すポテンシャルオゾン(PO)は、NO_xでの消費分を補正した正味の O_x濃度が推定できると考えられる。九州の PO は O_xと比較して福岡市、北九州市、熊本市の都市部では 14~17ppb 高く、他の北~中九州の県と沖縄県で 8~10ppb、南九州で 5~6ppb 高く、NO_x濃度(図 3.1.5.6)の差を反映している。2000 年度以降の年平均値を自治体別にみると、他自治体より NO_x濃度が高い福岡市、北九州市が、O_xで高かった長崎県を抜いて 40ppb を超えるレベルであった。低いのは南九州の宮崎県、鹿児島県、沖縄県であった。

3.基本解析

NO_x 濃度は自動車排ガス対策等の進展により経年的に減少傾向にあるが、PO 濃度は 1980 年代以降横ばいないし増加傾向であった。特に 2000 年度以降この傾向は明瞭で、NO_x 濃度の傾きは福岡県の -1.9ppb/年～沖縄県の -0.20ppb/年、全自治体平均 -0.87ppb/年と明らかな減少傾向なのに対し、PO の傾きは福岡県の +0.95ppb/年～沖縄県の -1.0ppb/年、全自治体平均 +0.30ppb/年で増加傾向であった。この原因として揮発性有機化合物(VOC)など O_x 生成原因物質の増加あるいは移流による O_x の増加が考えられる。移流による O_x の増加は、過去の本研究でも明らかにしてきたが、VOC については観測データが少なく、今後の検討課題である。

自治体内の選定 5 局では、O_x 濃度にばらつきがあっても PO ではばらつきが縮小することが多かったが、九州全域で比較すると、濃度のばらつきは O_x よりも大きかった。自治体内での選定 5 局では地域差が少なく O_x 濃度の違いの主原因が NO_x 濃度の違いによるものと判断できることが多いが、自治体間では地理的な位置による大陸影響の差や NO_x、VOC などの O_x 生成原因物質の濃度差が大きく、これらが関与しているためと推察される。

傾きは O_x と同様に増加傾向であったが、O_x よりも小さい自治体が多かった。自治体別に特徴のある所をあげると、同じ都市部でも 2000 年度以降、北九州市は増加傾向であるのに対し福岡市は減少傾向であった。北九州市、熊本県、熊本市は 2000 年頃濃度が低下した時期があったが、その後増加し、0.8～0.9ppb/年の増加率となった。宮崎県は 1984 年の測定開始から 10 年間でおよそ 20ppb から 30ppb へ増加した後はほぼ横ばいであった。沖縄県は測定期間が短い、減少傾向である。

(3) SPM 濃度年平均値の経年変化(図 3.1.5.3)

SPM は 1982 年度から 1990 年度までに各自治体で測定が開始された。九州内で平均濃度が高かったのは熊本市(34 μg/m³)、福岡市(32 μg/m³)、北九州市(31 μg/m³)であり、低かったのは沖縄県(25 μg/m³)、大分県(26 μg/m³)であった。経年的な増減傾向は顕著ではないが 1980 年代は各自治体間のばらつきが大きく 20～40 μg/m³ の範囲で推移し、平均値は約 30 μg/m³ であった。その後 2003 年度までは傾き -0.2 μg/m³ 程度の減少傾向で 2003 年度には平均値 26 μg/m³ になったが 2004 年度から増加に転じ、自治体間のばらつきも小さくなった。最近 3 年間は平均値で 29 μg/m³ である。

黄砂の影響については、1990～2007 年度の福岡管区気象台黄砂観測日と各年度の平均 SPM 濃度の相関係数は -0.13、福岡市の SPM との相関係数も -0.20 で、相関はなかった。大規模な黄砂で日平均 300 μg/m³ の SPM が観測されれば、年平均を約 1 μg/m³ 押し上げることになるが、過去の事例からは多くて 1～2 μg/m³ の影響に止まるものと推察される。

3.1.5.2. 経月変動・季節変動の特性

(1) O_x 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.5.4)

1990～2007 年度の O_x 濃度月平均値の経月変動は、九州地方各自治体とも春に大きな高濃度ピークがあり、夏に低濃度になった後、秋に小さなピークがある 2 山型のパターンである。ただし沖縄県の特徴として、秋のピークの後、冬の落ち込みがほとんどなく翌春の上昇につながっていることと、春のピーク時の O_x 濃度は九州本土と同程度(39ppb)であるが時期は 3、4 月で約 1 か月早いこと、最低濃度も本土より 1 か月早い 7 月で、濃度も 11ppb でかなり低いことが挙げられる。夏の低濃度の要因としては梅雨明けが早く、清浄な海洋性気団に長期間覆われることがその理由と推察される。

九州本土の月ごとの濃度差は、高濃度の 4 月は長崎県(42ppb)～熊本市(30ppb)の 12ppb で、低濃度の 8 月は福岡県(21ppb)～宮崎県(15ppb)の 7ppb であり、春季の方が濃度差が大きかった。春

季のピーク濃度が最も高いのは長崎県(42ppb : 4月)で、鹿児島県(41ppb : 5月)、福岡県(39ppb : 5月)が続く。最も低いのは熊本市(32ppb : 5月)であった。

Ox 濃度の月平均値を 1990 年代初頭 5 年間(1990~1995)と最近 5 年間(2003~2007)で比較すると、最近 5 年間は春のピーク濃度が上昇するとともにピークの期間が長期化する傾向がみられた。ピーク濃度は全自治体平均で 5ppb 上昇したが、なかでも宮崎県は+12ppb と大幅な上昇がみられ、福岡県内、佐賀県、長崎県では+6~+9ppb、熊本市(+3.6ppb)、鹿児島県(+2.7ppb)と続き、熊本県(-1.2ppb)ではピーク濃度は低下したが、ピークの期間は長期化していた。ただし大分県(-2.5ppb)ではピーク濃度はやや下がり、経月変動パターンもあまり変化がなかった。沖縄県は測定期間が短いため比較できなかった。

九州の Ox 濃度の春のピークが高濃度化、長期化したことは、第 2 期の本研究で明らかにした、春季の Ox 高濃度現象が大陸の影響を強く受けていること、成層圏オゾンが Ox トレンドに及ぼす影響はあまりないということから、九州地方への大陸の影響が増加したことを示唆していると思われる。

(2) PO 濃度月平均値の経月変動(図 3.1.5.5、図 3.1.5.7)

1990~2007 年度の PO 濃度月平均値の経月変動は、Ox 濃度同様に 3~5 月に大きな高濃度ピークがあり、秋に小さなピークがある 2 山型のパターンであるが、冬の低下は Ox ほど目立たない。これは、図 3.1.5.7 に示すように、冬は大気安定度が増加することにより地上付近の NOx 濃度が上昇するためと考えられる。

春のピーク濃度が高いのは都市部の福岡市(55ppb : 4月)、北九州市(53ppb : 4, 5月)で、長崎県(51ppb : 4月)、福岡県(49ppb : 4月)が続く。最低は宮崎県(42ppb : 4月)で、九州本土では 1 年を通して他の自治体より低かった。他の県市は 44~47ppb で濃度差は Ox の春季ピークと大差なかった。Ox では九州本土で最も低濃度を示した熊本市は、NOx 濃度が高いためほぼ中間の値であった。

Ox と比較すると、夏の落ち込み時に都市部とそれ以外の自治体の差が大きく、福岡市(33ppb)と宮崎県(19ppb)の差は 14ppb あった。これは NOx の影響が大きいものと思われる。

PO 濃度の月平均値を 1990 年代初頭の 5 年間と最近の 5 年間で比較すると、春のピークが高くなったのは Ox と同様だがピークの期間はあまり変わらず、また冬季の濃度差が減少している。図 3.1.5.7.b、c に示すように NOx 濃度は都市部および冬の減少が目立っており、これも NOx の影響が大きいものと思われる。

3.1.5.3. まとめと今後の課題

今回の解析から、以下の知見が得られた。

- 九州における Ox 濃度は経年的に上昇しているが、特に 2000 年度以降は顕著で、2006 年度からは大都市だけでなく離島や内陸の中小都市でも注意報が発令されている。第 2 期の本共同研究において九州では大陸の大気汚染の影響を強く受けていることが明らかになったが、今後もこの傾向が続くことが予想される。
- 九州内で 2000 年度以降 Ox の年平均濃度が最も高いのは長崎県、続いて鹿児島県、福岡県 3 自治体であった。低かったのは熊本市、次いで大分県であった。ただし熊本市では近年急激な上昇傾向にある。
- 大分県は Ox の年々増加率も Ox の経月変動パターンの経年的変化も九州の他自治体と異なり、大きな変化がなかった。しかし、2007 年 5 月 9 日には津久見市で観測史上初の光化学スモッグ注意報を発令するなど、地域により高濃度事例も見られる。
- PO 濃度も若干の上昇傾向がみられるが、Ox 程ではなかった。PO は大都市の福岡市、北九州市で高かった。

3.基本解析

- SPM 濃度は九州内の比較では都市部で高く、経年的にやや減少傾向であった。
- O_x の経月変動は春に大きなピーク、秋に小さなピークがある 2 山型のパターンを示す。春のピークは近年濃度が上昇するとともに長期化していた。
- PO の経月変動は、 O_x 同様の 2 山型であったが、自治体ごとの濃度差は O_x より大きく、 NO_x の影響を受けていると考えられた。春季のピークは近年濃度が上昇したが、長期化しておらず、 O_x の増加と NO_x の減少が打ち消されたものと思われた。

これまでの共同研究で、九州地方における高濃度 O_x については大陸からの移流の影響が大きいことを明らかにしてきたが、一方では地域での生成が関わるとされる高濃度事例も起こっており、地域生成の実態も明らかにする必要がある。そのためにはこれまでのマクロ的な解析だけでなく原因物質の測定などミクロな解析も必要と思われる。

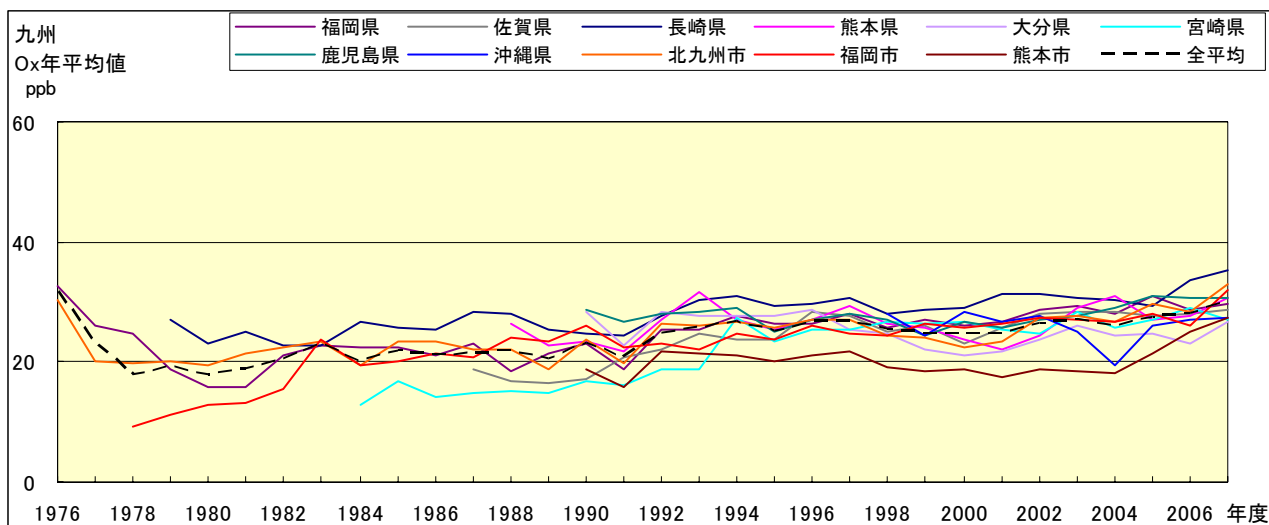


図 3.1.5.1. Ox 濃度年平均値の経年変化

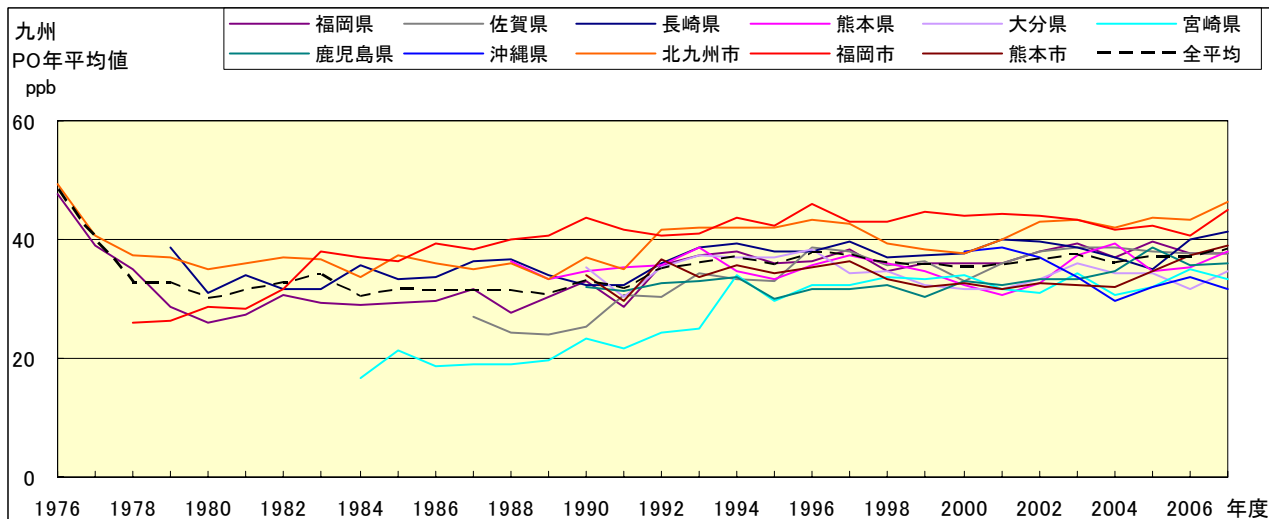


図 3.1.5.2. PO 濃度年平均値の経年変化

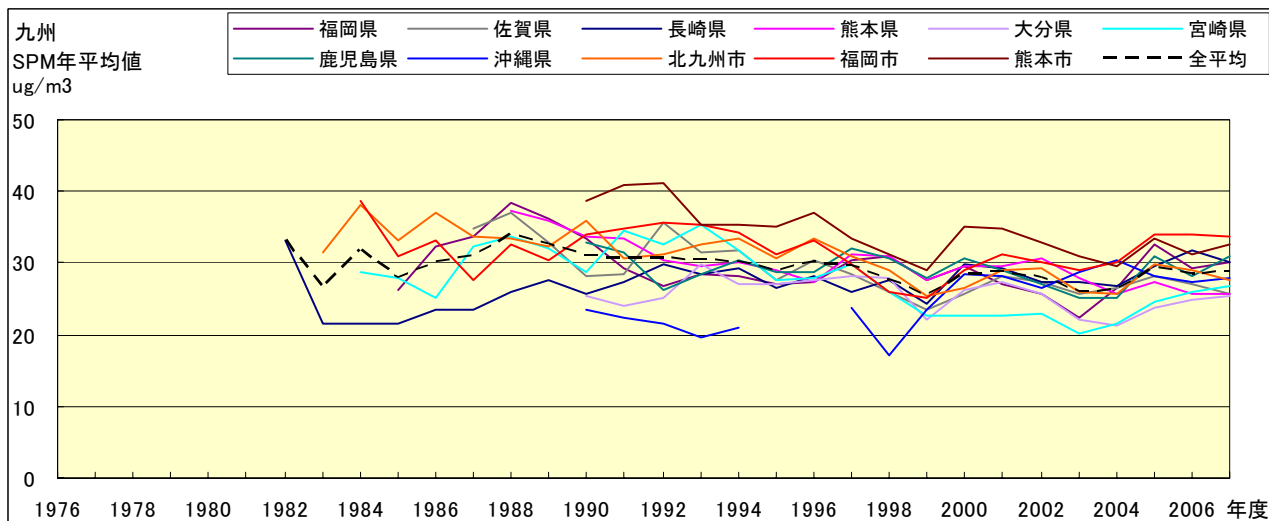


図 3.1.5.3. SPM 濃度年平均値の経年変化

3.基本解析

Ox 濃度月平均値経月変動

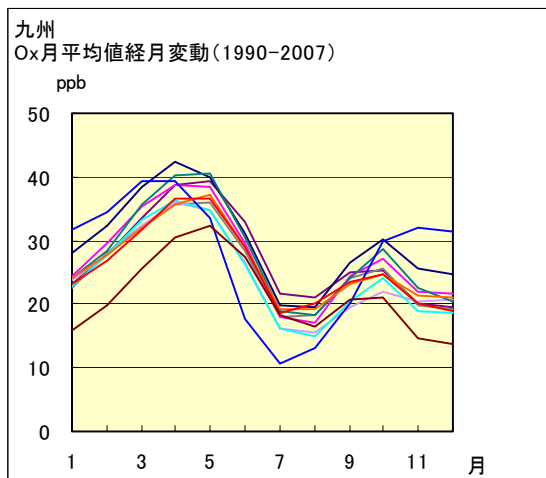


図 3.1.5.4.a 1990 年度～2007 年度

PO 濃度月平均値経月変動

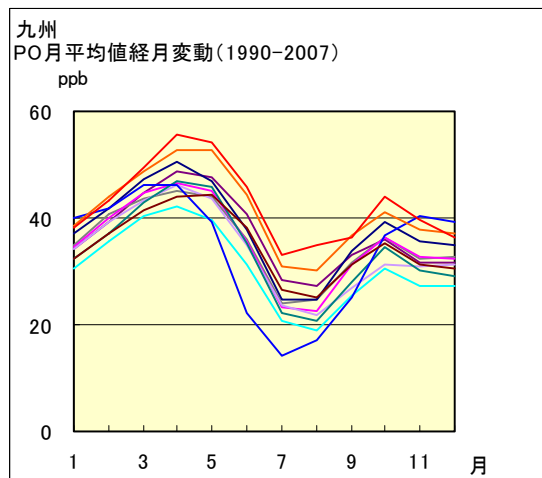


図 3.1.5.5.a 1990 年度～2007 年度

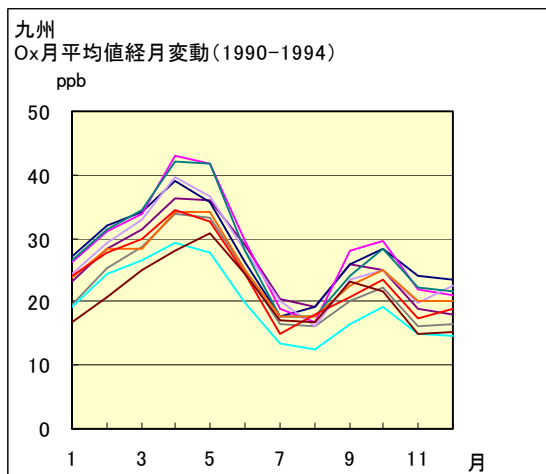


図 3.1.5.4.b 1990 年度～1994 年度

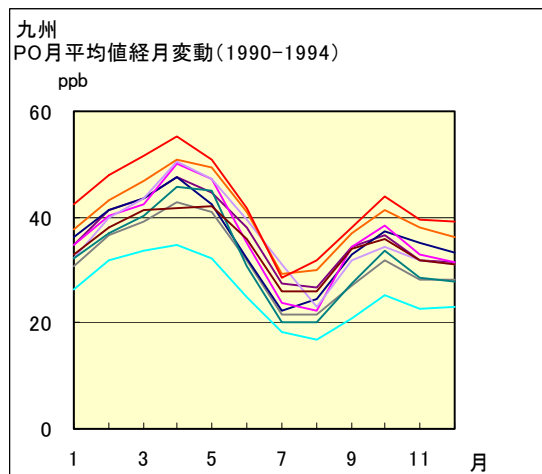


図 3.1.5.5.b 1990 年度～1994 年度

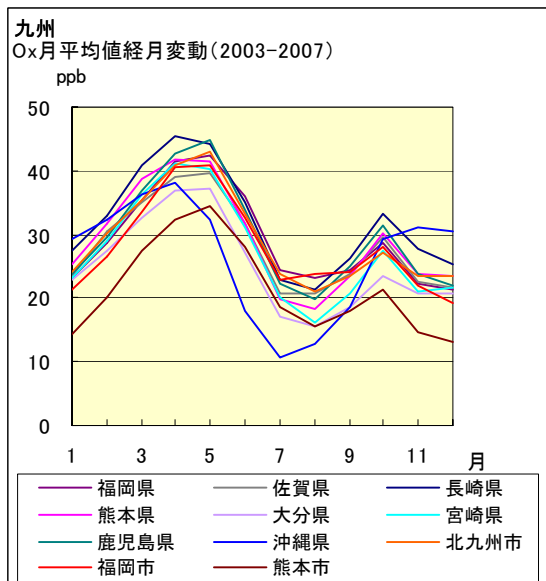


図 3.1.5.4.c 2003 年度～2007 年度

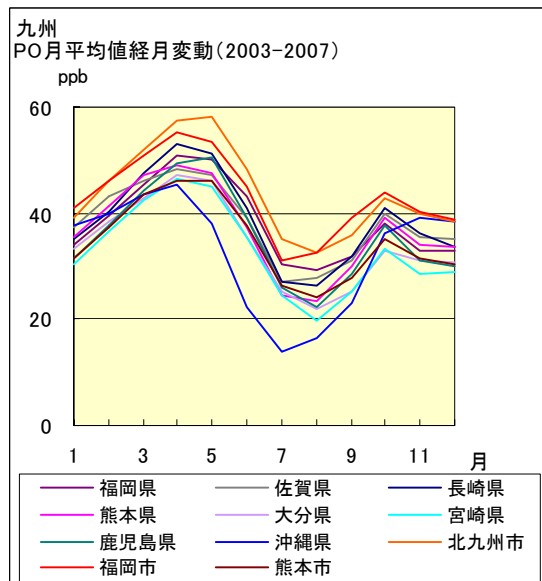


図 3.1.5.5.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.5.4. Ox 濃度月平均値の経月変動(左) および図 3.1.5.5. PO 濃度月平均値の経月変動(右)

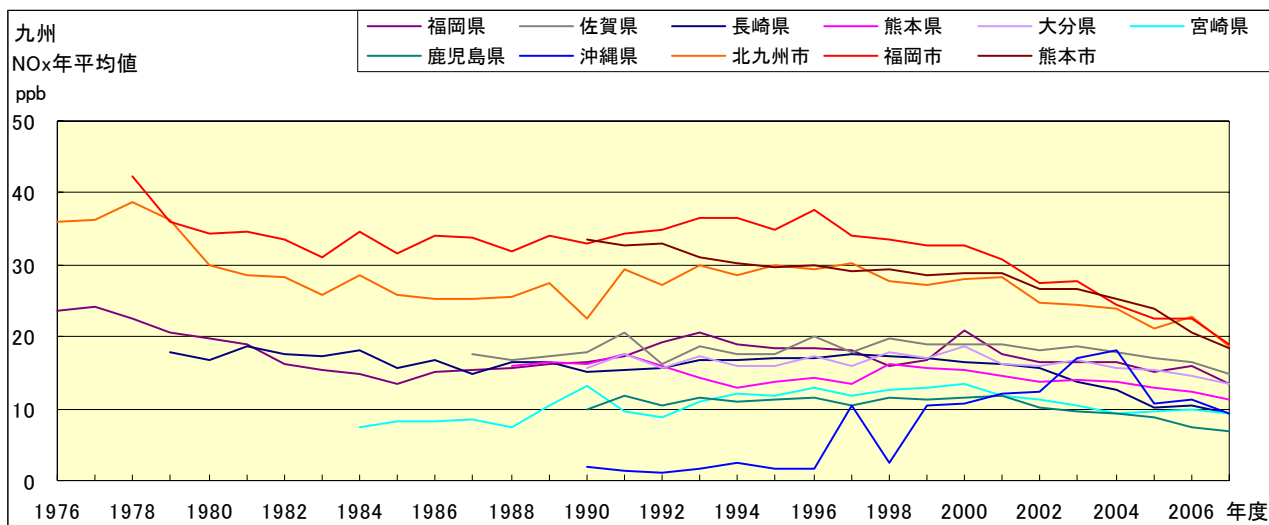


図 3.1.5.6. NO_x 濃度年平均値の経年変化

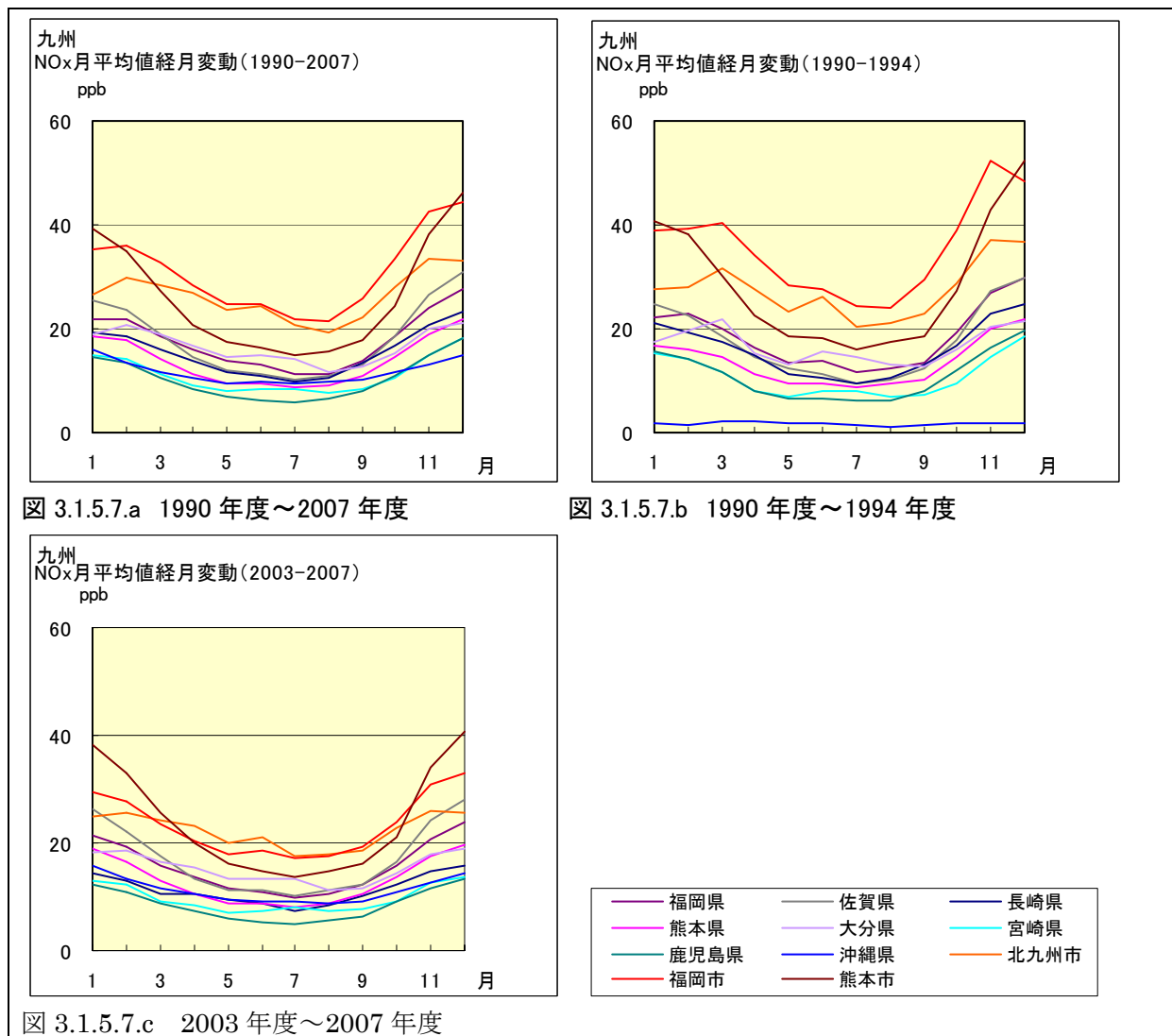


図 3.1.5.7.a 1990 年度～2007 年度

図 3.1.5.7.b 1990 年度～1994 年度

図 3.1.5.7.c 2003 年度～2007 年度

図 3.1.5.7. NO_x 濃度月平均値の経月変動

3.2. 全国解析

3.2.1. 経年変化の基本的特徴

3.2.1.1. O_x 濃度年平均値の経年変化（表 3.2.1、図 3.2.1）

表 3.2.1 に各自治体の選定 5 局の、全期間、1985～2007 年度、1990～2007 年度、1995～2007 年度、2000～2007 年度についての O_x 濃度年平均値の増加率（傾き）、及び全国的に測定局の出揃った 1990 年以降の、1990 年代初頭の 5 年間（1990～1994 年度）、最近 5 年間（2003～2007 年度）、及び 2007 年度まで通年（1990～2007 年度）の、各々の期間の O_x 濃度年平均値を示す。図 3.2.1 には、1990～2007 年度の平均値を元に、得られた傾きを用いて算出した、地域ブロックごとの計算値の経年変化を示す。

O_x 濃度年平均値の増加率（傾き）はほとんどの自治体で正の値を示し、概ね 1985 年度以降一貫して増加傾向にある。全自治体平均で 1985～2007 年度は +0.29 ppb/年、1990～2007 年度は +0.26 ppb/年、1995～2007 年度は +0.24 ppb/年、2000～2007 年度は +0.48 ppb/年の増加率となり、2000 年度以降の増加率が 1995 年度以降の増加率のほぼ倍となった。1985 年以降比較的急峻に濃度上昇し、1990～2000 年にかけては増加傾向がやや鈍化したものの、2000 年以降現在にかけて、O_x 濃度が急上昇していることが明らかとなった。

1990 年代初頭の 5 年間（1990～1994 年度）、最近 5 年間（2003～2007 年度）、及び 2007 年度まで通年（1990～2007 年度）の、各々の期間の O_x 濃度平均値を比べてみると、1990～1994 年度が 24.4 ppb、1990～2007 年度が 26.0 ppb、2003～2007 年度が 27.8 ppb と、着実に濃度上昇してきた。

1990～2000 年にかけての増加傾向の鈍化については、東海・近畿地域以外で認められ、1990～2007 年度及び 1995～2007 年度の増加率が 1985～2007 年度の増加率より小さくなったが、東海・近畿地域ではそのような鈍化傾向は認められず、増加率が一貫して増加し続けている。大陸からの移流の寄与に加えて、九州・瀬戸内海沿岸等の国内発生源からの、国内での地域間移流の寄与の可能性も示唆されるが、詳細は明らかでない。

近年の 2000 年以降の O_x 濃度増加率の上昇については、京都府が +1.76 ppb/年で最大となり、次いで山口県で +1.28 ppb/年、北九州市と熊本市で +1.25 ppb/年と極めて大きくなった。地域ブロック別では、東海・近畿地域が +0.74 ppb/年で最大となり、九州地域で +0.66 ppb/年と大きくなったが、関東・甲信静地域では +0.34 ppb/年と、それらの地域の半分以下の増加率となり、北海道・東北・北陸地域では +0.15 ppb/年と極めて小さくなった。概ね大陸から離れるに従って増加率が小さくなっており、特に近年において大陸からの移流の寄与が増大していることが示唆された。

3.2.1.2. O_x 高濃度出現状況の経年変化（表 3.2.2、図 3.2.2）

表 3.2.2 に各自治体の選定 5 局の、全期間、1985～2007 年度、1990～2007 年度、1995～2007 年度、2000～2007 年度についての O_x 濃度 60 ppb 以上時間率の増加率（傾き）、及び全国的に測定局の出揃った 1990 年以降の、1990 年代初頭の 5 年間（1990～1994 年度）、最近 5 年間（2003～2007 年度）、及び 2007 年度まで通年（1990～2007 年度）の、各々の期間の O_x 濃度 60 ppb 以上時間率を示す。図 3.2.2 には、1990～2007 年度の平均時間率を元に、得られた傾きを用いて算出した、地域ブロックごとの計算値の経年変化を示す。

O_x 濃度 60 ppb 以上時間率の増加率（傾き）はほとんどの自治体で正の値を示し、概ね 1985 年度以降一貫して増加傾向にある。全自治体平均で 1985～2007 年度は +0.17%/年、1990～2007 年度は +0.16%/年、1995～2007 年度は +0.17%/年、2000～2007 年度は +0.24%/年の増加率となった。1985 年以降ほぼ一定の割合で O_x 高濃度出現頻度が上昇し、2000 年以降現在にかけては、O_x

3.基本解析

高濃度出現頻度がさらに上昇しており、O_x濃度年平均値の経年変化とほぼ同様の傾向であった。

1990年代初頭の5年間(1990~1994年度)、最近5年間(2003~2007年度)、及び2007年度まで通年(1990~2007年度)の、各々の期間のO_x濃度60ppb以上時間率を比べてみると、1990~1994年度が3.57%、1990~2007年度が4.49%、2003~2007年度が5.60%と、着実に高濃度出現頻度が増加してきた。

1990~2000年にかけての増加傾向の鈍化についても、O_x年平均値の場合と同様、東海・近畿地域以外で認められた。

近年の2000年以降のO_x濃度60ppb以上時間率の上昇については、O_x年平均値の場合と同様、京都府が+1.17%/年で最大となり、次いで北九州市で+1.06%/年と極めて大きくなった。地域ブロック別では、東海・近畿地域が+0.44%/年で最大となり、九州地域で+0.41%/年と大きくなったが、関東・甲信静地域では+0.13%/年と、それらの地域の1/3ほどの増加率となり、北海道・東北・北陸地域では逆に-0.02%/年と減少傾向であった。概ね大陸から離れるに従って増加率が小さくなっており、特に近年において大陸からの移流の寄与が増大していることが示唆された。

3.2.1.3. SPM濃度年平均値の経年変化(表3.2.3、図3.2.3)

表3.2.3に各自治体の選定5局の、全期間、1985~2007年度、1990~2007年度、1995~2007年度、2000~2007年度についてのSPM濃度年平均値の増加率(傾き)、及び全国的に測定局の出揃った1990年以降の、1990年代初頭の5年間(1990~1994年度)、最近5年間(2003~2007年度)、及び2007年度まで通年(1990~2007年度)の、各々の期間のSPM濃度平均値を示す。図3.2.3には、1990~2007年度の平均値を元に、得られた傾きを用いて算出した、地域ブロックごとの計算値の経年変化を示す。

SPM濃度年平均値の増加率(傾き)はほとんどの自治体で負の値を示し、概ね1990年度以降一貫して減少傾向にある。全自治体平均で1985~2007年度は $-0.60 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、1990~2007年度は $-0.66 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、1995~2007年度は $-0.68 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、2000~2007年度は $-0.67 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ の減少率となり、1990年以降の減少率はほぼ一定であった。1995~2007年度にかけての減少率が最大になる場合が多く、1995年頃に開始されたディーゼル車に対する「長期規制」をはじめとする自動車排ガス・粒子対策がようやく実効性を見せ始め、産業活動停滞によるディーゼル車の交通量減少と相まって、1995年度以降や2000年度以降の減少率が大きくなったものと考えられる。

1990年代初頭の5年間(1990~1994年度)、最近5年間(2003~2007年度)、及び2007年度まで通年(1990~2007年度)の、各々の期間のSPM濃度平均値を比べてみると、1990~1994年度が $34.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、1990~2007年度が $29.9 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、2003~2007年度が $25.6 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と、着実に濃度減少してきた。

最大となった1995~2007年度にかけての減少率でみると、埼玉県が $-2.13 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ で最大となり、次いで川崎市が $-1.87 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、群馬県が $-1.71 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ と、関東地方で大きな減少率となった。地域ブロック別では、関東・甲信静地域の減少率が最大となり $-1.36 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、次いで東海・近畿地域の $-0.87 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、中国・四国地域の $-0.55 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ 、北海道・東北・北陸地域の $-0.46 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ という順で、九州地域は $-0.03 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ と極めて小さい減少率となった。

関東・甲信静地域の減少率が最大となったのは、上述のディーゼル車排ガス・粒子規制と交通量減少の効果に加え、関東地域で行われたディーゼル車に対する乗入規制も、効果があったものと考えられる。

一方、九州地域の減少率は最小となり、1990~2007年度にかけての減少率は $-0.19 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ であったものが、1995~2007年度には $-0.03 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ とさらに小さくなり、2000~2007年度には $+0.07 \mu\text{g}/\text{m}^3/\text{年}$ と増加に転じた。近年の2000年以降に増加に転じていることから、黄砂も含めた大陸からの移流の影響、特に硫酸イオン等の二次生成粒子についての移流の影響が示唆される。

結果として、1990年代初頭の5年間（1990～1994年度）のSPM濃度平均値は、関東・甲信静地域が最高濃度で $42.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ であったものが、最近5年間（2003～2007年度）のSPM濃度平均値は、九州地域が $27.8\mu\text{g}/\text{m}^3$ で最高濃度となった。

3.2.1.4. SPM高濃度出現状況の経年変化（表3.2.4、図3.2.4）

表3.2.4に各自治体の選定5局の、全期間、1985～2007年度、1990～2007年度、1995～2007年度、2000～2007年度についてのSPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率の増加率（傾き）、及び全国的に測定局の出揃った1990年以降の、1990年代初頭の5年間（1990～1994年度）、最近5年間（2003～2007年度）、及び2007年度まで通年（1990～2007年度）の、各々の期間のSPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率を示す。図3.2.4には、1990～2007年度の平均時間率を元に、得られた傾きを用いて算出した、地域ブロックごとの計算値の経年変化を示す。

SPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率の増加率（傾き）はほとんどの自治体で負の値を示し、概ね1990年度以降一貫して減少傾向にある。全自治体平均で1985～2007年度は $-0.21\%/年$ 、1990～2007年度は $-0.20\%/年$ 、1995～2007年度は $-0.18\%/年$ 、2000～2007年度は $-0.11\%/年$ の減少率となり、特に2000年以降の近年の減少率が小さくなってきていることがわかる。

1990年代初頭の5年間（1990～1994年度）、最近5年間（2003～2007年度）、及び2007年度まで通年（1990～2007年度）の、各々の期間のSPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率を比べてみると、1990～1994年度が3.22%、1990～2007年度が1.88%、2003～2007年度が0.66%と、着実にSPM高濃度出現頻度は減少してきた。

測定局の出揃った1990年以降の、1990～2007年度にかけての減少率でみると、川崎市が $-0.79\%/年$ で最大となり、次いで埼玉県が $-0.67\%/年$ 、横浜市が $-0.65\%/年$ と、関東地方で大きな減少率となった。地域ブロック別では、関東・甲信静地域の減少率が最大となり $-0.46\%/年$ 、次いで東海・近畿地域の $-0.24\%/年$ 、中国・四国地域の $-0.12\%/年$ で、北海道・東北・北陸地域は $-0.04\%/年$ 、九州地域は $-0.06\%/年$ と小さい減少率となった。

関東・甲信静地域の減少率が最大となったのは、SPM年平均値の場合と同様、上述のディーゼル車排ガス・粒子規制と交通量減少の効果に加え、関東地域で行われたディーゼル車に対する乗入規制も、効果があったものと考えられる。

一方、九州地域の減少率は小さくなり、1990～2007年度にかけての減少率は $-0.06\%/年$ であったものが、1995～2007年度には $-0.02\%/年$ とさらに小さくなり、2000～2007年度には $+0.02\%/年$ と増加に転じた。近年の2000年以降に増加に転じていることから、黄砂も含めた大陸からの移流の影響、特に硫酸イオン等の二次生成粒子についての移流の影響が示唆される。

1990年代初頭の5年間（1990～1994年度）のSPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率は、関東・甲信静地域が最高の6.89%で飛び抜けて高率であったものが、最近5年間（2003～2007年度）のSPM濃度 $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率は、九州地域が0.77%、関東・甲信静地域が0.98%と、その差が小さくなった。

3.2.2. まとめと今後の課題

今回の解析から、以下の知見が得られた。

- Ox 濃度年平均値の増加率はほとんどの自治体で正の値を示し、概ね1985年度以降一貫して増加傾向にある。全国平均で2000年度以降の増加率が1995年度以降の増加率のほぼ倍となり、2000年度以降現在にかけて、 Ox 濃度が急上昇している。近年の2000年以降の Ox 濃度増加率の上昇は、九州地域や東海・近畿地域の西日本が中心で、概ね大陸から離れるに従って増加率が小さくなっており、特に近年において大陸からの移流の寄与が増大していることが示唆された。

3.基本解析

- **Ox** 高濃度出現頻度の経年変化は **Ox** 濃度年平均値の経年変化とほぼ同様に増加傾向にあり、西日本を中心に、特に近年の 2000 年度以降、高濃度出現頻度が増加しており、同様に大陸からの移流の寄与が増大していることが示唆された。
- **SPM** 濃度年平均値の増加率はほとんどの自治体で負の値を示し、概ね 1990 年度以降一貫して減少傾向にある。自動車排ガス・粒子対策がようやく実効性を見せ始め、交通量減少と相まって減少傾向にあるものと考えられる。地域ブロック別では、関東・甲信静地域の減少率が最大となり、九州地域の減少率が最小となった。関東・甲信静地域の減少率が最大となったのは、乗入規制の効果もあったものと考えられる。九州地域の減少率が最小となったのは、黄砂も含めた大陸からの移流の影響、特に硫酸イオン等の二次生成粒子についての移流の寄与の増大が示唆された。
- **SPM** 高濃度出現頻度の経年変化は **SPM** 濃度年平均値の経年変化とほぼ同様に減少傾向にあり、関東・甲信静地域の減少率が最大となり、九州地域の減少率が最小となった。九州地域では、近年の 2000 年以降に増加に転じていることから、黄砂も含めた大陸からの移流の影響、特に硫酸イオン等の二次生成粒子についての移流の寄与の増大が示唆された。

今後の課題としては、以下のようなものがあると認識している。

- ① **PO** についての全国的な視点からのまとめ
- ② **Ox**・**PO**・**SPM** の月別経年変化についての全国的な視点からのまとめ
- ③ **NOx**・**NMHC** の経年変化についての全国的な視点からのまとめ
- ④ **Ox**・**PO**・**SPM** の経月変動についての全国的な視点からのまとめ

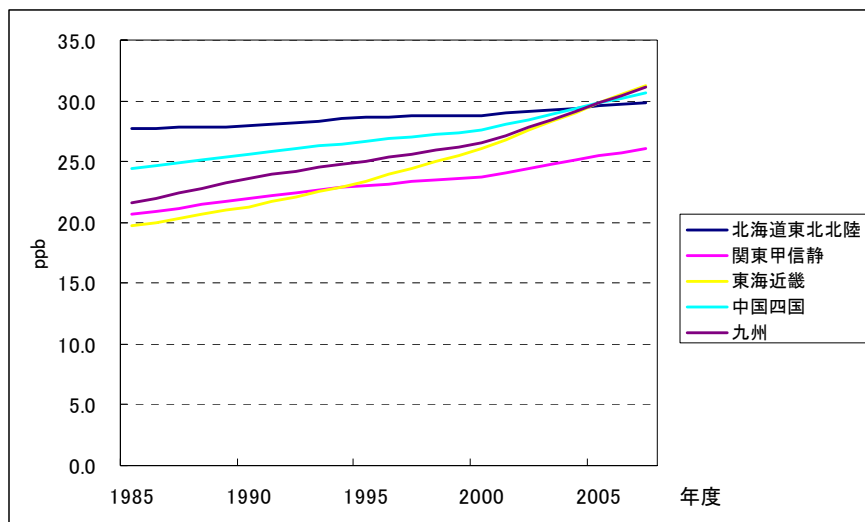


図 3.2.1. Ox 年平均値の経年変化(傾きから算出した計算値)

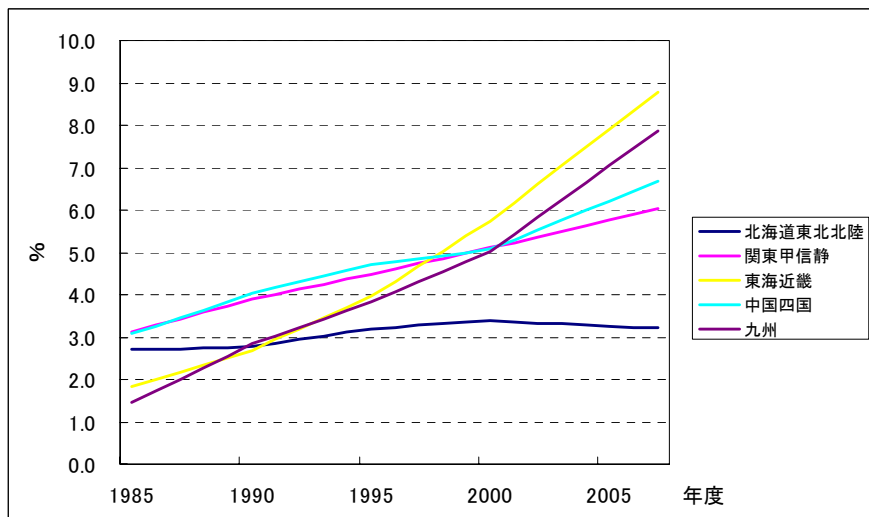


図 3.2.2. Ox 濃度 60ppb 以上時間率の経年変化(傾きから算出した計算値)

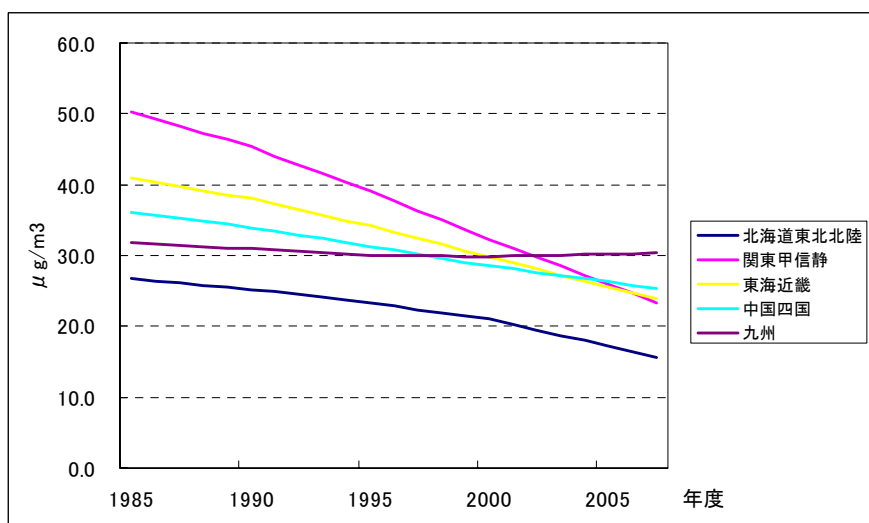


図 3.2.3. SPM 年平均値の経年変化(傾きから算出した計算値)

3.基本解析

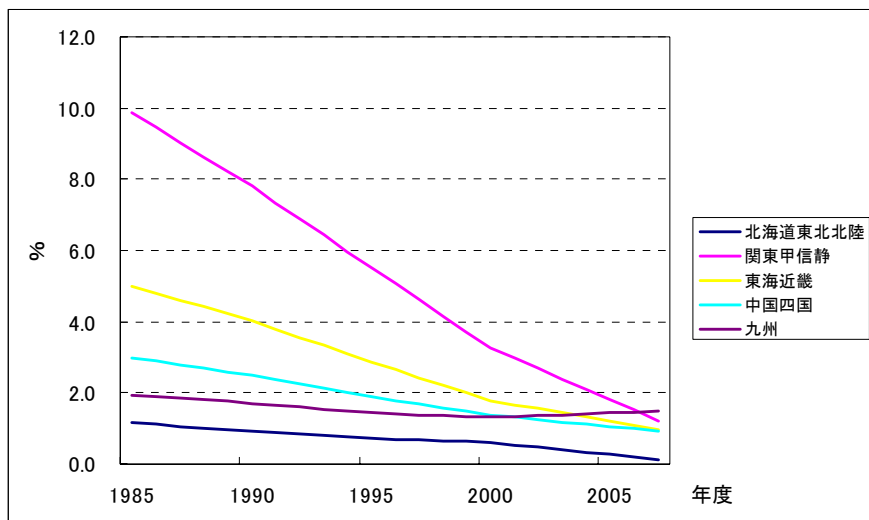


図 3.2.4. SPM 濃度 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上時間率の経年変化(傾きから算出した計算値)

表 3.2.1. O_x 年平均値の経年変化

地域グループ	都道府県市	傾き(ppb/年)				平均値(ppb)			備考						
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994		2003-2007					
北海道 東北陸	01北海道	0.09	-		0.06	-	0.05	-	25.9	25.0	26.5	5局:1992-			
	04宮城県	-0.03	-	-0.04	-	-0.09	-	-0.28	*	0.02	-	29.2	29.0	28.4	1局:1984-,2局:1986-,5局:1988-
	05秋田県	0.20	*			0.14	-	-0.02	-	-0.11	-	35.5	33.6	36.1	2局:1989-
	06山形県	0.31	*			0.31	*	-0.06	-	-0.33	-	30.4	27.3	31.2	5局:1990-
	07福島県	0.16	**	0.12	-	0.04	-	-0.16	-	0.14	-	28.2	27.2	27.9	4局:1982-,5局:1992-
	15新潟県	0.36	***			0.36	***	0.37	**	0.78	**	26.7	24.4	29.4	5局:1990-
	16富山県	0.17	-					0.17	-	0.25	-	32.8	31.9	33.9	3局:1992-,5局:1993-
	17石川県	0.12	-			0.12	-	0.11	-	0.35	-	31.5	30.9	32.5	5局:1990-
	18福井県	0.18	**			0.16	*	0.12	-	0.17	-	25.9	24.6	26.7	5局:1989-
平均	0.17		0.04		0.15		0.04		0.15		29.6	28.2	30.3		
関東甲信 静	08茨城県	0.27	***	0.25	***	0.18	*	0.12	-	0.06	-	28.1	26.7	29.2	2局:1976-,3局:1977-,5局:1982-
	09栃木県	0.07	-	0.12	-	0.28	**	0.21	-	0.45	*	23.8	21.8	25.5	5局:1976-
	10群馬県	0.32	***	0.47	***	0.24	-	-0.09	-	0.26	-	26.9	24.6	27.9	3局:1976-,5局:1991-
	11埼玉県	0.00	-	0.15	*	0.27	**	0.42	*	0.36	-	20.3	19.1	22.3	1局:1976-,4局:1978-,5局:1980-
	12千葉県	0.21	*	0.33	***	0.25	**	0.39	*	0.73	-	24.0	22.8	27.1	4局:1976-,5局:1989-
	13東京都	0.15	*	0.40	***	0.35	***	0.28	**	0.35	**	22.2	19.7	24.3	5局:1976-
	14神奈川県	0.11	-	0.20	***	0.12	*	0.07	-	0.45	**	22.7	21.7	23.6	4局:1976-,5局:1978-
	141川崎市	0.19	*	0.40	***	0.40	***	0.28	*	0.77	***	19.9	16.9	22.7	4局:1976-,5局:1979-
	142横浜市	0.14	*	0.06	-	-0.12	-	-0.32	*	0.10	-	24.1	24.2	23.1	1局:1976-,3局:1977-,3局:1983-,5局:1995-
	19山梨県	0.11	-			0.11	-	0.22	*	0.49	***	24.7	24.3	25.9	3局:1990-,4局:1991-,5局:1995-
	20長野県	0.19	-			0.19	-	-0.08	-	-0.22	-	25.8	23.8	26.3	5局:1990-
	22静岡県	0.41	***	0.40	***	0.23	**	0.10	-	0.30	-	25.6	23.6	26.6	5局:1983-
	平均	0.18		0.28		0.21		0.13		0.34		24.0	22.4	25.4	
東海近畿	21岐阜県	0.40	***	0.39	***	0.55	***	0.51	***	0.61	**	20.9	17.2	24.4	3局:1982-,4局:1985-,5局:1991-
	23愛知県	0.20	***	0.18	**	0.24	**	0.34	*	0.81	**	25.0	24.0	27.1	3局:1976-,4局:1978-,5局:1984-
	231名古屋市	0.16	*	0.46	***	0.47	***	0.53	***	0.84	**	19.6	16.8	22.8	1局:1976-,3局:1977-,4局:1980-,5局:1981-
	25滋賀県	0.18	*	0.19	*	0.33	*	0.71	**	0.89	***	25.9	25.2	29.5	2局:1984-,3局:1990-,5局:1992-
	26京都府	0.25	**	0.29	**	0.58	***	1.06	***	1.76	***	23.2	21.2	29.1	1局:1977-,2局:1980-,4局:1983-,5局:1984-
	261京都市	0.23	***	0.28	***	0.30	***	0.40	***	0.50	**	25.9	24.3	28.0	4局:1976-,5局:1980-
	27大阪府	0.25	**	0.37	***	0.40	***	0.53	***	0.43	*	25.7	23.7	28.4	3局:1976-,4局:1985-,5局:1988-
	271大阪市	0.20	*	0.42	***	0.34	***	0.31	***	0.51	**	23.1	20.9	25.0	5局:1976-
	28兵庫県	0.19	**	0.27	***	0.30	***	0.46	***	0.41	**	23.7	22.5	26.3	3局:1976-,4局:1988-,5局:1989-
	281神戸市	0.27	***	0.41	***	0.58	***	0.64	***	0.53	***	27.9	24.6	32.0	4局:1976-,5局:1985-
	30和歌山県	0.10	-	0.25	**	0.49	***	0.47	*	0.90	***	26.1	22.9	29.9	3局:1976-,4局:1996-
	平均	0.22		0.32		0.42		0.54		0.74		24.3	22.1	27.5	
	中国 四国	31鳥取県	0.10	-			0.10	-	0.17	-	0.23	-	30.2	30.0	30.9
32島根県		0.33	**	0.31	*	-0.12	-	-0.25	-	0.11	-	36.3	37.0	35.3	2局:1984-,4局:1996-,5局:1999-
33岡山県		0.03	-	0.00	-	0.05	-	0.01	-	0.22	-	23.9	23.4	24.2	5局:1976-
34広島県		0.23	***	0.27	***	0.30	***	0.37	***	0.50	**	27.9	26.2	30.1	2局:1976-,3局:1977-,4局:1982-,5局:1983-
35山口県		0.22	**	0.26	***	0.42	***	0.66	***	1.28	***	23.4	21.6	27.1	3局:1976-,4局:1978-,5局:1980-
36徳島県		0.33	***	0.41	***	0.43	***	0.16	-	0.48	*	32.6	29.0	34.7	5局:1976-
37香川県		0.28	***	0.28	***	0.32	***	0.40	***	0.72	***	23.2	21.7	25.7	5局:1985-
38愛媛県		0.19	***	0.19	**	0.14	-	0.06	-	0.04	-	24.4	23.2	24.7	5局:1984-
39高知県		0.32	*			0.32	*	0.01	-	0.39	*	25.5	22.3	26.7	1局:1990-,2局:1995-,3局:1997-
平均	0.23		0.24		0.22		0.18		0.44		27.5	26.0	28.8		
九州	40福岡県	0.26	***	0.43	***	0.40	***	0.31	**	0.51	*	26.8	24.1	29.3	1局:1976-,2局:1977-,3局:1983-,4局:1985-,5局:1994-
	401福岡市	0.53	***	0.33	***	0.33	***	0.41	**	0.54	-	25.7	23.7	28.0	4局:1978-,5局:1983-
	402北九州市	0.24	***	0.33	***	0.33	**	0.44	*	1.25	**	26.1	24.6	29.1	3局:1976-,4局:1977-,5局:1991-
	41佐賀県	0.58	***			0.48	***	0.26	-	0.60	*	25.4	21.7	28.2	3局:1987-,4局:1990-,5局:1992-
	42長崎県	0.31	***	0.31	***	0.36	***	0.34	*	0.57	-	29.7	27.7	31.8	4局:1979-,5局:1987-
	43熊本県	0.19	-			0.18	-	0.27	-	1.04	*	26.7	26.2	29.1	1局:1988-,2局:1992-,3局:1993-,4局:1994-,5局:1998-
	431熊本市	0.19	-			0.19	-	0.32	-	1.25	**	20.3	19.7	22.1	3局:1990-,4局:1993-,5局:2004-
	44大分県	-0.20	-			-0.20	-	-0.14	-	0.60	*	25.2	27.0	25.0	1局:1990-,3局:1993-,4局:1994-,5局:2001-
	45宮崎県	0.70	***	0.69	***	0.59	***	0.24	*	0.26	-	24.4	19.5	27.4	2局:1984-,4局:1990-,5局:1991-
46鹿児島県	0.14	-			0.14	-	0.42	**	0.78	***	27.8	28.1	29.8	2局:1990-,3局:1998-,4局:2001-,5局:2005-	
47沖縄県	-0.13	-							-0.18	-	26.0		25.0	1局:1998-,2局:2002-,3局:2005-	
平均	0.25		0.42		0.28		0.29		0.66		25.8	24.2	27.7		
全国平均	0.21		0.29		0.26		0.24		0.48		26.0	24.4	27.8		

*** : p < 0.001 で有意
 ** : p < 0.01 で有意
 * : p < 0.05 で有意

3.基本解析

表 3.2.2. Ox 濃度 60ppb 以上時間率の経年変化

地域グループ	都道府県市	傾き(%/年)					時間率(%)			備考
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994	2003-2007	
北海道 東北 北陸	01北海道	0.03 -			-0.01 -	-0.06 -	1.08	0.58	1.13	5局:1992-
	04宮城県	0.00 -	0.00 -	-0.02 -	-0.19 -	-0.25 -	2.61	2.02	2.12	1局:1984-2局:1986-5局:1988-
	05秋田県	0.16 *		0.13 -	0.02 -	-0.25 -	4.33	2.86	4.96	2局:1989-
	06山形県	0.17 *		0.17 *	0.00 -	-0.25 -	3.75	2.09	4.26	5局:1990-
	07福島県	0.05 -	0.03 -	0.03 -	-0.08 -	-0.04 -	3.11	2.61	3.02	4局:1982-5局:1992-
	15新潟県	0.19 ***		0.19 ***	0.30 **	0.46 *	2.60	1.74	4.20	5局:1990-
	16富山県	0.13 -			0.16 -	0.00 -	7.23	6.69	8.09	3局:1992-5局:1993-
	17石川県	0.04 -		0.04 -	0.09 -	0.21 -	5.43	5.69	6.03	5局:1990-
	18福井県	0.06 -		0.06 -	0.04 -	-0.03 -	2.77	2.23	2.91	5局:1989-
	平均	0.09	0.02	0.09	0.04	-0.02	3.66	2.94	4.08	
関東 甲信 静	08茨城県	0.16 ***	0.17 **	0.11 -	-0.02 -	-0.29 -	5.21	4.06	5.40	2局:1976-3局:1977-5局:1982-
	09栃木県	0.07 -	0.12 **	0.23 ***	0.26 ***	0.27 *	4.37	2.97	5.89	5局:1976-
	10群馬県	0.09 -	0.22 **	0.13 -	0.03 -	0.10 -	6.76	5.83	7.53	3局:1976-5局:1991-
	11埼玉県	0.02 -	0.07 -	0.18 **	0.26 **	0.03 -	4.03	3.17	5.27	1局:1976-4局:1978-5局:1980-
	12千葉県	0.04 -	0.15 **	0.12 -	0.26 -	0.35 -	3.78	3.47	5.60	4局:1976-5局:1989-
	13東京都	0.05 -	0.18 ***	0.17 ***	0.16 **	-0.01 -	4.73	3.57	5.62	5局:1976-
	14神奈川県	0.10 **	0.16 ***	0.15 ***	0.13 *	0.25 -	6.06	5.02	7.05	4局:1976-5局:1978-
	141川崎市	0.02 -	0.11 ***	0.13 ***	0.14 *	0.38 ***	2.36	1.52	3.47	4局:1976-5局:1979-
	142横浜市	0.10 **	0.08 *	0.03 -	0.08 -	0.30 *	4.49	4.61	5.02	1局:1976-2局:1977-3局:1983-5局:1995-
	19山梨県	-0.02 -		-0.02 -	0.16 *	0.26 *	6.27	6.95	6.79	3局:1990-4局:1991-5局:1995-
	20長野県	0.08 -		0.08 -	-0.05 -	-0.19 -	4.36	3.47	4.65	5局:1990-
	22静岡県	0.25 ***	0.23 ***	0.12 *	0.05 -	0.11 -	5.99	4.87	6.39	5局:1983-
	平均	0.08	0.15	0.12	0.12	0.13	4.87	4.12	5.72	
東海 近畿	21岐阜県	0.21 ***	0.23 ***	0.27 ***	0.17 *	0.20 -	4.25	2.14	5.59	3局:1982-4局:1985-5局:1991-
	23愛知県	0.13 ***	0.13 *	0.21 *	0.40 **	0.81 *	5.52	4.90	7.71	3局:1976-4局:1978-5局:1984-
	231名古屋市	0.06 *	0.14 ***	0.17 ***	0.19 **	0.36 *	2.95	1.90	4.21	1局:1976-3局:1977-4局:1980-5局:1981-
	25滋賀県	0.20 ***	0.20 **	0.33 ***	0.62 ***	0.77 **	4.76	3.65	8.05	2局:1984-3局:1990-5局:1992-
	26京都府	0.09 *	0.19 **	0.36 ***	0.68 ***	1.17 ***	3.39	2.20	7.04	1局:1977-2局:1980-4局:1983-5局:1984-
	261京都市	0.12 ***	0.14 ***	0.18 ***	0.31 ***	0.28 *	5.55	4.82	7.09	4局:1976-5局:1980-
	27大阪府	0.07 -	0.14 ***	0.20 ***	0.29 ***	0.16 -	5.25	4.40	6.59	3局:1976-4局:1985-5局:1988-
	271大阪市	0.10 *	0.23 ***	0.25 ***	0.29 ***	0.15 -	4.23	2.82	5.78	5局:1976-
	28兵庫県	0.05 -	0.13 ***	0.14 **	0.17 **	-0.01 -	3.98	3.34	4.92	3局:1976-4局:1988-5局:1989-
	281神戸市	0.13 **	0.27 ***	0.40 ***	0.51 ***	0.35 *	4.88	2.79	7.87	4局:1976-5局:1985-
	30和歌山県	-0.23 *	0.07 -	0.29 ***	0.28 *	0.56 **	4.04	2.21	6.30	3局:1976-4局:1996-
	平均	0.08	0.17	0.25	0.36	0.44	4.44	3.20	6.47	
	中国 四国	31鳥取県	0.08 -		0.08 -	0.13 -	0.21 -	4.45	4.22	5.19
32島根県		0.29 *	0.26 -	-0.18 -	-0.49 *	-0.11 -	9.44	9.71	7.59	2局:1984-4局:1996-5局:1999-
33岡山県		0.01 -	0.01 -	0.02 -	-0.03 -	0.03 -	4.57	4.26	4.66	5局:1976-
34広島県		0.21 ***	0.27 ***	0.36 ***	0.48 ***	0.63 **	7.53	5.67	10.25	2局:1976-3局:1977-4局:1982-5局:1983-
35山口県		0.16 ***	0.25 ***	0.35 ***	0.47 ***	0.80 ***	3.63	1.77	6.44	3局:1976-4局:1978-5局:1980-
36徳島県		0.29 ***	0.37 ***	0.37 **	0.03 -	0.27 -	7.51	3.90	8.90	5局:1976-
37香川県		0.11 ***	0.11 ***	0.14 **	0.19 **	0.24 -	2.53	1.97	3.77	5局:1985-
38愛媛県		0.07 -	0.07 -	0.02 -	0.00 -	-0.09 -	3.46	3.29	3.14	5局:1984-
39高知県		0.08 -		0.08 -	-0.11 -	0.08 -	4.92	3.85	4.89	1局:1990-2局:1995-3局:1997-
平均		0.14	0.19	0.14	0.07	0.23	5.34	4.29	6.09	
九州	40福岡県	0.16 ***	0.33 ***	0.32 ***	0.24 *	0.14 -	5.74	3.54	7.63	1局:1976-2局:1977-3局:1983-4局:1985-5局:1994-
	401福岡市	0.18 ***	0.17 ***	0.10 -	0.08 -	0.21 -	4.24	3.45	4.87	4局:1978-5局:1983-
	402北九州市	0.19 ***	0.30 ***	0.33 **	0.47 **	1.06 **	4.44	3.00	7.18	3局:1976-4局:1977-5局:1991-
	41佐賀県	0.21 ***		0.18 *	0.06 -	0.40 *	3.37	1.80	4.53	3局:1987-4局:1990-5局:1992-
	42長崎県	0.21 ***	0.28 ***	0.29 ***	0.31 *	0.46 -	4.90	3.21	6.55	4局:1979-5局:1987-
	43熊本県	0.15 -		0.14 -	0.27 -	0.64 -	4.13	3.96	6.09	1局:1988-2局:1992-3局:1993-4局:1994-5局:1998-
	431熊本市	0.11 -		0.11 -	0.22 -	0.72 *	2.95	2.74	4.05	3局:1990-4局:1993-5局:2004-
	44大分県	-0.07 -		-0.07 -	0.00 -	0.51 **	3.93	4.65	4.23	1局:1990-3局:1993-4局:1994-5局:2001-
	45宮崎県	0.29 ***	0.29 ***	0.31 ***	0.26 *	0.13 -	3.77	1.71	5.55	2局:1984-4局:1990-5局:1991-
	46鹿児島県	0.25 **		0.25 **	0.48 ***	0.60 *	4.97	4.23	7.37	2局:1990-3局:1998-4局:2001-5局:2005-
47沖縄県	-0.37 -				-0.37 -	2.79		1.84	1局:1998-2局:2002-3局:2005-	
平均	0.12	0.28	0.20	0.24	0.41	4.11	3.23	5.44		
全国 平均	0.10	0.17	0.16	0.17	0.24	4.49	3.57	5.60		

*** : p < 0.001 で有意
 ** : p < 0.01 で有意
 * : p < 0.05 で有意

表 3.2.3. SPM 年平均値の経年変化

地域グループ	都道府県市	傾き (μg/m3/年)					平均値 (μg/m3)			備考
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994	2003-2007	
北海道 東北 北陸	01北海道	-0.35 ***			-0.40 ***	-0.30 *	18.0	20.0	15.8	5局:1992-
	04宮城県	-0.29 ***	-0.29 ***	-0.31 **	-0.24 -	-0.93 **	24.6	26.7	22.1	1局:1985-2局:1986-4局:1988-5局:1992-
	05秋田県	-0.01 -		-0.09 -	-0.23 -	-0.61 *	17.2	17.3	16.0	2局:1989-
	06山形県	-0.63 ***		-0.63 ***	-0.65 ***	-0.82 **	21.5	25.3	17.1	5局:1990-
	07福島県	-0.40 ***		-0.30 ***	-0.18 -	-0.52 ***	22.5	24.9	20.8	1局:1987-2局:1988-3局:1989-4局:1991-5局:1992-
	15新潟県	-0.46 ***		-0.46 ***	-0.71 ***	-0.63 *	24.7	26.8	21.2	5局:1990-
	16富山県	-0.52 ***			-0.61 ***	-1.02 **	22.3	25.1	19.5	5局:1992-
	17石川県	-0.35 ***		-0.35 ***	-0.57 ***	-0.91 **	22.4	23.8	19.4	5局:1990-
	18福井県	-0.52 ***		-0.52 ***	-0.61 ***	-1.07 ***	27.4	30.3	23.5	3局:1989-5局:1990-
	平均	-0.39	-0.29	-0.38	-0.46	-0.76	22.3	24.5	19.5	
関東 甲信 静	08茨城県	-0.86 ***	-0.87 ***	-0.86 ***	-0.97 ***	-1.15 ***	31.1	35.9	25.0	1局:1982-2局:1984-4局:1987-5局:1988-
	09栃木県	-1.02 ***	-0.98 ***	-1.00 ***	-1.16 ***	-0.45 -	30.8	36.8	24.8	2局:1983-3局:1985-4局:1986-5局:1987-
	10群馬県	-1.39 ***		-1.39 ***	-1.71 ***	-1.83 ***	39.2	47.4	29.4	1局:1989-2局:1990-5局:1991-
	11埼玉県	-1.08 ***	-1.16 ***	-1.55 ***	-2.13 ***	-1.58 ***	39.7	47.5	29.1	2局:1984-4局:1986-5局:1989-
	12千葉県	-0.79 ***	-0.95 ***	-1.28 ***	-1.25 ***	-1.79 **	39.0	47.3	30.0	1局:1982-2局:1983-3局:1984-4局:1985-5局:1989-
	13東京都	-0.92 ***	-1.18 ***	-1.33 ***	-1.40 ***	-1.40 ***	37.8	45.9	28.8	5局:1976-
	14神奈川県	-0.78 ***	-0.97 ***	-1.31 ***	-1.52 ***	-1.53 ***	36.9	44.7	27.6	1局:1981-2局:1983-3局:1985-5局:1990-
	141川崎市	-0.94 ***	-1.10 ***	-1.85 ***	-1.87 ***	-1.82 **	41.9	54.2	29.5	1局:1982-5局:1985-
	142横浜市	-1.01 ***	-1.19 ***	-1.19 ***	-1.00 ***	-0.69 **	37.2	45.8	30.4	2局:1981-3局:1983-5局:1995-
	19山梨県	-1.48 ***		-1.48 ***	-1.40 ***	-1.32 **	31.5	41.3	21.9	2局:1990-3局:2002-4局:2003-5局:2004-
	20長野県	-1.13 ***		-1.13 ***	-1.07 ***	-1.02 **	24.8	32.5	17.5	5局:1990-
	22静岡県	-0.65 ***	-0.64 ***	-0.62 ***	-0.79 ***	-0.69 *	30.9	34.5	26.3	2局:1983-4局:1987-5局:1988-
	平均	-1.01	-1.00	-1.25	-1.36	-1.27	35.1	42.8	26.7	
東海 近畿	21岐阜県	-0.85 ***	-0.85 ***	-0.85 ***	-1.17 ***	-1.02 **	30.8	34.7	24.5	1局:1985-3局:1986-4局:1989-5局:1995-
	23愛知県	-0.53 ***	-0.54 ***	-0.79 ***	-1.11 ***	-1.77 ***	36.6	40.4	30.1	4局:1979-5局:1984-
	231名古屋市	-0.33 **	-0.59 ***	-1.13 ***	-1.54 ***	-1.22 ***	39.9	46.0	32.0	4局:1979-5局:1981-
	25滋賀県	-0.45 ***	-0.45 ***	-0.45 **	-0.59 *	-0.15 -	29.4	31.7	26.2	1局:1985-3局:1991-5局:1992-
	26京都府	-0.24 *	-0.39 **	-0.71 ***	-0.96 ***	-0.89 ***	27.7	31.6	22.5	1局:1983-3局:1984-4局:1986-5局:1988-
	261京都市	-0.43 ***	-0.43 ***	-0.63 ***	-0.78 ***	-0.73 **	28.3	31.8	23.9	4局:1979-5局:1982-
	27大阪府	-1.07 ***	-0.97 ***	-1.12 ***	-1.22 ***	-1.03 *	35.0	41.9	27.6	1局:1982-2局:1987-3局:1988-5局:1990-
	271大阪市	-0.61 ***	-0.81 ***	-1.28 ***	-1.43 ***	-1.48 **	37.6	45.5	28.6	2局:1983-3局:1988-5局:1989-
	28兵庫県	-0.49 ***	-0.62 ***	-0.53 ***	-0.29 *	-0.64 *	30.5	34.8	27.5	2局:1977-3局:1979-4局:1988-5局:1989-
	281神戸市	-0.47 ***	-0.65 ***	-0.93 ***	-0.53 **	-0.01 -	29.5	37.0	24.9	4局:1977-5局:1985-
	30和歌山県	-0.01 -	-0.04 -	-0.01 -	0.00 -	-0.43 *	25.8	25.8	26.0	3局:1982-4局:1988-
平均	-0.50	-0.58	-0.77	-0.87	-0.85	31.9	36.5	26.7		
中国 四国	31鳥取県	-0.37 ***		-0.37 ***	-0.22 -	0.17 -	21.3	24.3	19.9	2局:1990-3局:1992-
	32島根県	-0.04 -	-0.02 -	0.05 -	-0.07 -	0.62 **	22.5	21.9	22.9	2局:1984-4局:1996-5局:1999-
	33岡山県	-0.50 ***	-0.78 ***	-1.18 ***	-1.34 ***	-1.07 **	34.1	41.3	26.5	1局:1982-2局:1983-3局:1986-4局:1988-5局:2004-
	34広島県	-0.43 ***	-0.11 -	-0.51 ***	-0.37 **	-0.55 *	33.2	37.1	30.0	2局:1976-3局:1980-5局:1984-
	35山口県	-0.60 ***	-0.54 ***	-0.42 ***	-0.45 **	-0.49 *	27.5	29.6	24.5	2局:1983-3局:1985-4局:1988-5局:1991-
	36徳島県	-0.46 ***	-0.45 ***	-0.52 ***	-0.63 ***	-0.75 **	29.1	32.0	25.3	1局:1983-3局:1986-5局:1987-
	37香川県	-0.75 ***	-0.75 ***	-0.91 ***	-1.18 ***	-1.52 ***	34.8	39.7	28.5	2局:1985-3局:1986-4局:1987-5局:1991-
	38愛媛県	-0.37 **		-0.50 **	-0.27 -	0.16 -	34.9	38.5	32.8	5局:1987-
	39高知県	-0.43 ***		-0.43 ***	-0.42 **	-0.60 **	28.4	31.5	25.1	1局:1990-2局:1997-
	平均	-0.44	-0.44	-0.53	-0.55	-0.45	29.5	32.9	26.2	
九州	40福岡県	-0.23 *	-0.23 *	-0.07 -	0.05 -	0.48 -	28.5	29.2	28.2	1局:1985-3局:1986-4局:1992-5局:1994-
	401福岡市	-0.11 -	-0.04 -	-0.16 -	0.32 -	0.71 *	31.7	34.8	32.2	2局:1984-3局:1986-4局:1987-5局:1988-
	402北九州市	-0.36 ***	-0.37 ***	-0.38 **	-0.28 -	0.10 -	29.8	32.7	27.7	3局:1983-4局:1986-5局:1995-
	41佐賀県	-0.43 ***		-0.31 *	-0.12 -	-0.03 -	28.1	31.1	26.6	3局:1987-4局:1990-5局:1992-
	42長崎県	0.20 **	0.24 ***	0.13 -	0.30 *	0.25 -	28.1	28.1	29.1	1局:1982-2局:1983-3局:1987-4局:1989-5局:1994-
	43熊本県	-0.45 ***		-0.35 ***	-0.31 *	-0.70 **	29.2	31.5	26.5	3局:1988-4局:1993-5局:1998-
	431熊本市	-0.49 ***		-0.49 ***	-0.25 -	-0.41 -	34.3	38.3	31.6	1局:1990-3局:1991-4局:1994-5局:2004-
	44大分県	-0.17 -		-0.17 -	-0.34 -	-0.29 -	25.6	26.3	23.5	2局:1990-3局:1992-4局:1994-5局:2001-
	45宮崎県	-0.39 **	-0.43 ***	-0.62 ***	-0.29 -	0.62 -	26.9	32.6	23.8	2局:1984-3局:1990-4局:1992-5局:1995-
	46鹿児島県	-0.13 -		-0.13 -	-0.11 -	0.11 -	29.1	29.9	28.0	4局:1990-5局:1991-
47沖縄県	0.51 **		0.51 **	0.73 *	-0.02 -	24.9	21.6	28.5	1局:1990-2局:1997-3局:2002-	
平均	-0.19	-0.17	-0.19	-0.03	0.07	28.7	30.6	27.8		
全国 平均	-0.52	-0.60	-0.66	-0.68	-0.67	29.9	34.0	25.6		

*** : p < 0.001 で有意
 ** : p < 0.01 で有意
 * : p < 0.05 で有意

3.基本解析

表 3.2.4. SPM 濃度 100 μg/m³ 以上時間率の経年変化

地域グループ	都道府県市	傾き(%/年)				時間率(%)			備考	
		全期間	1985-2007	1990-2007	1995-2007	2000-2007	1990-2007	1990-1994		2003-2007
北海道東北北陸	01北海道	-0.05 ***			-0.03 **	-0.05 -	0.37	0.75	0.10	5局:1992-
	04宮城県	-0.04 ***	-0.04 ***	-0.04 **	-0.02 -	-0.09 *	0.58	0.94	0.24	1局:1985-2局:1986-4局:1988-5局:1992-
	05秋田県	0.01 -		0.01 -	0.01 -	-0.08 -	0.23	0.12	0.16	2局:1989-
	06山形県	-0.08 ***		-0.08 ***	-0.05 **	-0.04 -	0.62	1.25	0.13	5局:1990-
	07福島県	-0.10 ***		-0.09 ***	-0.07 **	-0.09 **	0.85	1.49	0.32	1局:1987-2局:1988-3局:1989-4局:1991-5局:1992-
	15新潟県	-0.05 ***		-0.05 ***	-0.02 -	-0.04 -	0.59	0.98	0.30	5局:1990-
	16富山県	-0.02 -			-0.02 -	-0.05 -	0.46	0.58	0.31	5局:1992-
	17石川県	0.00 -		0.00 -	0.01 -	-0.07 -	0.32	0.34	0.23	5局:1990-
	18福井県	-0.05 **		-0.05 **	-0.03 -	-0.09 -	0.82	1.20	0.43	3局:1989-5局:1990-
	平均	-0.04	-0.04	-0.04	-0.02	-0.07	0.54	0.85	0.25	
関東甲信静	08茨城県	-0.31 ***	-0.34 ***	-0.37 ***	-0.35 ***	-0.40 ***	3.41	5.73	1.03	1局:1982-2局:1984-4局:1987-5局:1988-
	09栃木県	-0.35 ***	-0.31 ***	-0.27 ***	-0.26 ***	-0.16 **	2.27	4.05	0.67	2局:1983-3局:1985-4局:1986-5局:1987-
	10群馬県	-0.57 ***		-0.58 ***	-0.69 ***	-0.51 **	6.14	9.59	2.23	1局:1989-2局:1990-5局:1991-
	11埼玉県	-0.40 ***	-0.47 ***	-0.67 ***	-0.86 ***	-0.34 **	6.17	9.85	1.88	2局:1984-4局:1986-5局:1989-
	12千葉県	-0.36 ***	-0.43 ***	-0.53 ***	-0.46 ***	-0.39 **	4.62	8.28	1.30	1局:1982-2局:1983-3局:1984-4局:1985-5局:1989-
	13東京都	-0.44 ***	-0.52 ***	-0.61 ***	-0.56 ***	-0.31 ***	4.40	8.56	0.73	5局:1978-
	14神奈川県	-0.36 ***	-0.39 ***	-0.51 ***	-0.49 ***	-0.31 ***	3.91	7.28	0.69	1局:1981-2局:1983-3局:1985-5局:1990-
	141川崎市	-0.47 ***	-0.50 ***	-0.79 ***	-0.68 ***	-0.58 **	6.14	11.71	1.25	1局:1982-5局:1985-
	142横浜市	-0.52 ***	-0.61 ***	-0.65 ***	-0.50 ***	-0.25 **	4.72	9.70	1.02	2局:1981-3局:1983-5局:1995-
	19山梨県	-0.34 ***		-0.34 ***	-0.32 ***	-0.07 -	2.21	4.43	0.25	2局:1990-3局:2002-4局:2003-5局:2004-
	20長野県	-0.13 ***		-0.13 ***	-0.09 ***	-0.03 -	0.78	1.77	0.09	5局:1990-
	22静岡県	-0.11 ***	-0.11 ***	-0.08 ***	-0.11 ***	-0.15 *	1.28	1.70	0.61	2局:1983-4局:1987-5局:1988-
	平均	-0.36	-0.41	-0.46	-0.45	-0.29	3.84	6.89	0.98	
東海近畿	21岐阜県	-0.23 ***	-0.23 ***	-0.21 ***	-0.21 **	-0.06 -	1.76	3.02	0.46	1局:1985-3局:1986-4局:1989-5局:1995-
	23愛知県	-0.24 ***	-0.24 ***	-0.33 ***	-0.35 ***	-0.29 *	3.20	5.26	0.96	4局:1979-5局:1984-
	231名古屋市	-0.20 ***	-0.32 ***	-0.50 ***	-0.57 ***	-0.28 **	4.14	7.08	0.93	4局:1979-5局:1981-
	25滋賀県	-0.07 ***	-0.07 ***	-0.11 ***	-0.10 *	0.00 -	1.11	1.85	0.42	1局:1985-3局:1991-5局:1992-
	26京都府	-0.08 **	-0.13 ***	-0.16 ***	-0.12 *	-0.06 -	1.19	2.35	0.31	1局:1983-3局:1984-4局:1986-5局:1988-
	261京都市	-0.13 ***	-0.10 ***	-0.14 ***	-0.10 **	-0.06 -	1.05	2.04	0.23	1局:1979-5局:1982-
	27大阪府	-0.42 ***	-0.31 ***	-0.35 ***	-0.33 ***	-0.18 *	2.71	4.97	0.57	1局:1982-2局:1987-3局:1988-5局:1990-
	271大阪市	-0.25 ***	-0.32 ***	-0.46 ***	-0.41 ***	-0.27 *	3.59	6.73	0.66	2局:1983-3局:1988-5局:1989-
	28兵庫県	-0.20 ***	-0.18 ***	-0.16 ***	-0.07 *	-0.04 -	1.26	2.55	0.42	2局:1977-3局:1979-4局:1988-5局:1989-
	281神戸市	-0.16 ***	-0.15 ***	-0.21 ***	-0.09 **	-0.01 -	1.29	3.04	0.26	4局:1977-5局:1985-
	30和歌山県	-0.01 *	-0.01 -	0.01 -	0.01 -	0.00 -	0.32	0.29	0.32	3局:1982-4局:1988-
	平均	-0.18	-0.19	-0.24	-0.21	-0.11	1.97	3.56	0.50	
中国四国	31鳥取県	-0.01 -		-0.01 -	-0.02 -	0.05 -	0.52	0.50	0.47	2局:1990-3局:1992-
	32島根県	-0.01 -	-0.01 -	0.00 -	0.03 -	0.06 -	0.42	0.58	0.43	2局:1984-4局:1996-5局:1999-
	33岡山県	-0.14 ***	-0.15 ***	-0.26 ***	-0.25 ***	-0.20 **	2.35	4.04	0.75	1局:1982-2局:1983-3局:1986-4局:1988-5局:2004-
	34広島県	-0.23 ***	-0.06 **	-0.10 ***	-0.06 *	-0.09 -	1.36	2.14	0.69	2局:1976-3局:1980-5局:1984-
	35山口県	-0.06 ***	-0.05 ***	-0.06 **	0.00 -	0.02 -	0.89	1.40	0.64	2局:1983-3局:1985-4局:1988-5局:1991-
	36徳島県	-0.10 ***	-0.09 ***	-0.13 ***	-0.12 ***	-0.09 -	1.13	2.07	0.28	1局:1983-3局:1986-5局:1987-
	37香川県	-0.25 ***	-0.25 ***	-0.28 ***	-0.34 ***	-0.25 **	2.71	4.24	0.86	2局:1985-3局:1986-4局:1987-5局:1991-
	38愛媛県	-0.14 ***		-0.21 ***	-0.14 **	-0.06 -	2.65	4.10	1.61	5局:1987-
	39高知県	-0.03 -		-0.03 -	-0.02 -	-0.02 -	0.91	1.19	0.69	1局:1990-2局:1997-
平均	-0.11	-0.10	-0.12	-0.10	-0.07	1.44	2.25	0.71		
九州	40福岡県	-0.05 *	-0.05 *	-0.05 -	-0.04 -	0.02 -	1.41	1.73	0.99	1局:1985-3局:1986-4局:1992-5局:1994-
	401福岡市	0.00 -	0.00 -	0.00 -	0.09 -	0.16 -	1.12	1.41	1.27	2局:1984-3局:1986-4局:1987-5局:1988-
	402北九州市	-0.09 ***	-0.07 **	-0.05 -	0.01 -	0.08 -	1.32	1.79	1.03	3局:1983-4局:1986-5局:1995-
	41佐賀県	-0.10 ***		-0.06 ***	-0.06 *	-0.04 -	1.07	1.52	0.56	3局:1987-4局:1990-5局:1992-
	42長崎県	0.03 *	0.03 -	0.01 -	0.04 -	0.07 -	1.07	1.17	1.03	1局:1982-2局:1983-3局:1987-4局:1989-5局:1994-
	43熊本県	-0.09 ***		-0.07 *	-0.05 -	-0.04 -	1.36	1.85	0.78	3局:1988-4局:1993-5局:1998-
	431熊本市	-0.21 ***		-0.21 ***	-0.14 *	0.02 -	2.24	3.80	1.07	1局:1990-3局:1991-4局:1994-5局:2004-
	44大分県	-0.02 -		-0.02 -	-0.01 -	-0.02 -	0.59	0.80	0.35	2局:1990-3局:1992-4局:1994-5局:2001-
	45宮崎県	-0.14 ***	-0.14 ***	-0.15 ***	-0.09 **	0.02 -	1.11	2.29	0.37	2局:1984-3局:1990-4局:1992-5局:1995-
46鹿児島県	-0.02 -		-0.02 -	0.00 -	-0.01 -	0.83	0.97	0.63	4局:1990-5局:1991-	
47沖縄県	0.01 -		0.01 -	0.00 -	0.00 -	0.36	0.24	0.38	1局:1990-2局:1997-3局:2002-	
平均	-0.06	-0.05	-0.06	-0.02	0.02	1.14	1.60	0.77		
全国平均	-0.16	-0.21	-0.20	-0.18	-0.11	1.88	3.22	0.66		

*** : p < 0.001 で有意
 ** : p < 0.01 で有意
 * : p < 0.05 で有意

4. 高濃度エピソード解析

4.1. 2007年4月26日～30日の高濃度エピソード解析

2007年4月26日～30日の期間において、西日本を中心に光化学オキシダント（以下、Ox）濃度が高くなる状況が発生した。中でも4月26日は北九州市で、27日には長崎県、熊本県で120ppbを超過するOx濃度を観測し、光化学オキシダント注意報が発令された。北九州市は11年ぶり、長崎県、熊本県は2006年に続き2年連続であり、これらは新聞、テレビ等のメディアで大きく報道され、社会的に大きなインパクトを与えた事例であった。

4.1.1. 気象・汚染概況

4.1.1.1. 気象概況

4月26日～30日の9時の地上天気図を図4.1.1に、中国・四国及び九州地方のアメダス局における地上風向風速ベクトル図を図4.1.2に示す。地上天気図より、26日は東シナ海から西日本にかけて移動性高気圧に覆われ晴れ、北日本及び東日本では寒冷前線が通過し所々で雷雨が降った。27日は本州に中心を持つ移動性高気圧に覆われおおむね晴れ。28日は上空に寒気を伴う低気圧が東日本を通過し、東北南部から近畿地方にかけて雷雨。29日は黄海に中心を持つ移動性高気圧に覆われほぼ全域で晴れ、一部では夏日となった。30日は太平洋に中心を持つ高気圧に覆われ概ね晴れたが、九州は大陸から接近した気圧の谷の影響で曇りから次第に雨となった。最高気温は九州を除く西日本から東北で5月下旬から7月上旬並みと高かった。

地上風向風速ベクトル図より、26日は中国・四国及び九州地方の広い範囲で朝方から昼にかけて西から北西寄りの風が吹いている地域が多かったが、夕方になると中国地方の日本海沿岸で風向が北東寄りに変化した。27日は朝方から昼まで中国・四国地方の瀬戸内海沿岸部で東寄りの風が吹いていたが、午後には弱まり、九州地方は午前中風が弱く、午後から九州北部では南西寄りの風へと変わった。28日になると風向きは北西～西寄りへ変わり、日没までこの傾向が継続した。29日の日中は沿岸部で海風が吹いており、内陸部の風速は弱かった。30日は全体的に南寄りの風が卓越で、九州西部や山口県の日本海側では風速が大きく、夜間までその傾向が続いた。なお、沖縄県を含む九州南海上の離島では4月26日～28日にかけては北東寄りの風がやや強く、29日は東寄り、30日は南東寄りの風がやや強く吹いていた。

気象概況の特徴としては、26日～27日にかけて移動性高気圧が東シナ海から日本列島を通過しており、高気圧の縁辺流によって大陸からの気塊が流入する典型的なパターンであった。また、29日～30日にかけて黄海に中心を持つ高気圧が九州南部から太平洋へゆっくりと移動し、本州から九州までの広い範囲を覆ったため全国的に晴れ、気圧傾度が小さいため風が弱く、気温が上昇したことで地域において日中Ox濃度が上昇する条件が揃っていた。

4.1.1.2. 汚染概況

4月26日～30日で特徴的なOx濃度を観測した日時の全国分布を図4.1.3に示す。26日は1時に北九州市、長崎県の離島で100ppbを超え、13時には北九州市で120ppbを超過したため注意報が発令された。この日、100ppbを超えた地域は九州西部沿岸に集中していた。27日も九州北部及び西部の沿岸で濃度が上昇し、ピークは14時～18時で、この間、長崎県（五島市、佐世保市、西海市）、熊本県（天草市河浦町、天草郡苓北町）で120ppbを超過し、注意報が発令された。120ppbを超えた地域は九州北西部の沿岸部に集中しており、日没後も120ppbを超過した状態が継続していた。一方、28日は広島県、北九州市で100ppbを超えたが120ppbを超えることはなかった。29日、西日本では12時～20時にかけて100ppbを超える局が見られ、17時には長崎県の離島で120ppbを超えた。30日は東北地方、北陸地方から関東地方や東海・近畿地方を中心に全国的に

4.高濃度エピソード解析

100ppb を超える局が多く見られた。

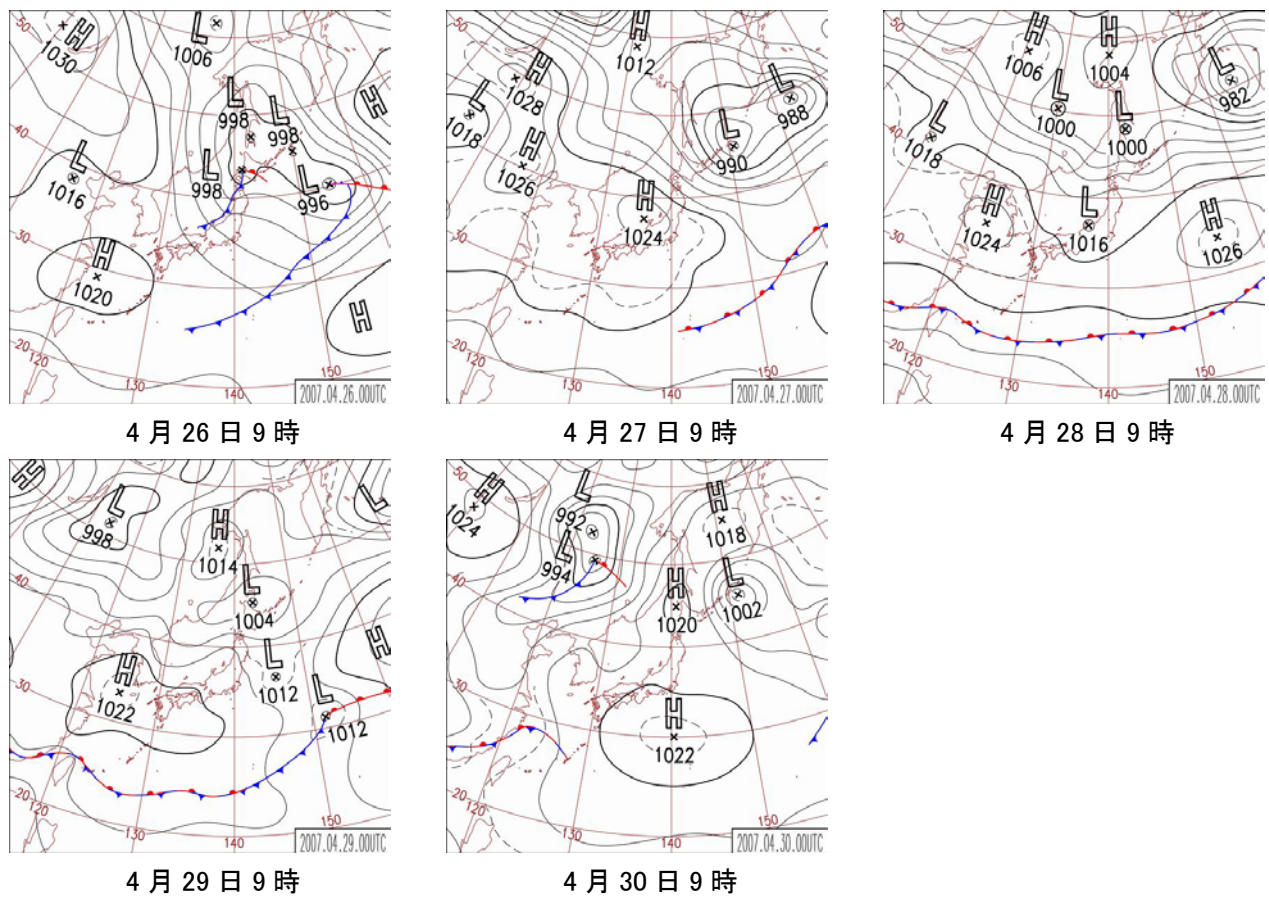


図 4.1.1. 天気図

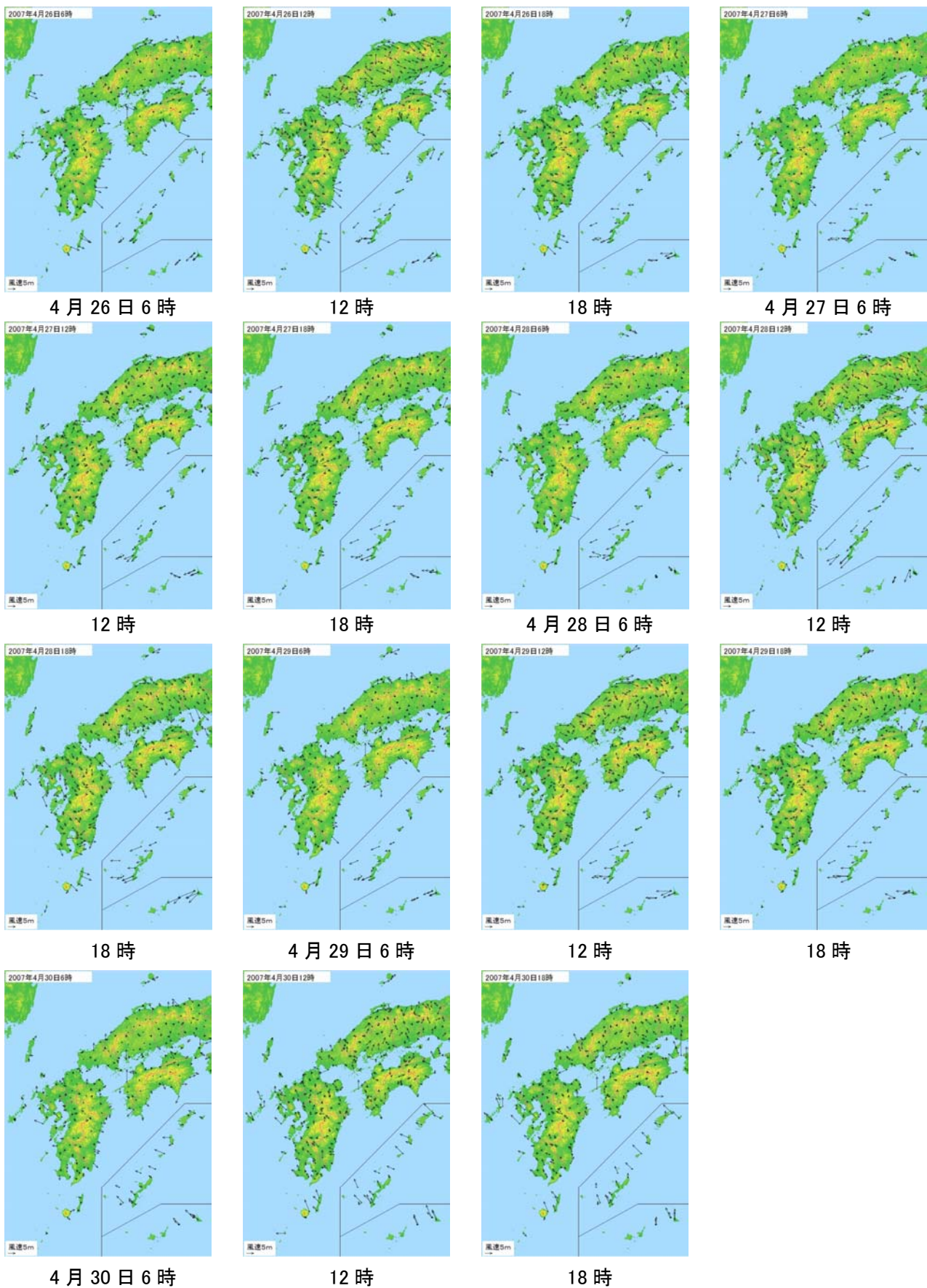
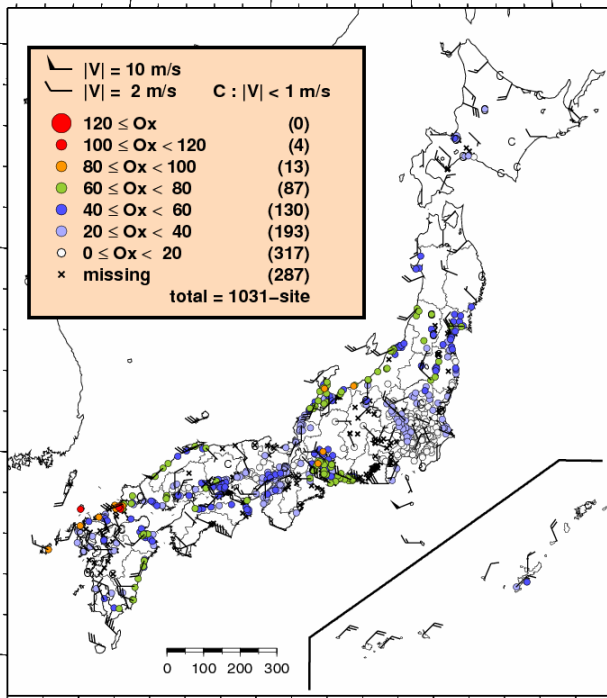
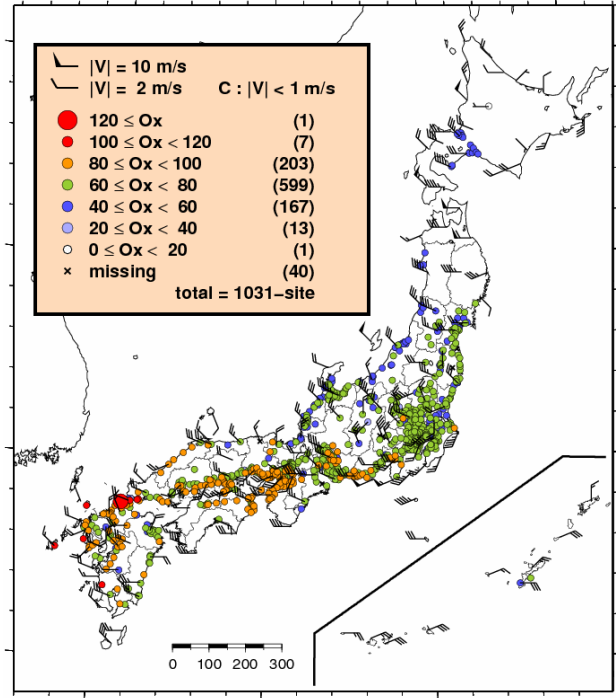


図 4.1.2. 高濃度日における中国、四国及び九州のアメダス局による風向風速ベクトル図

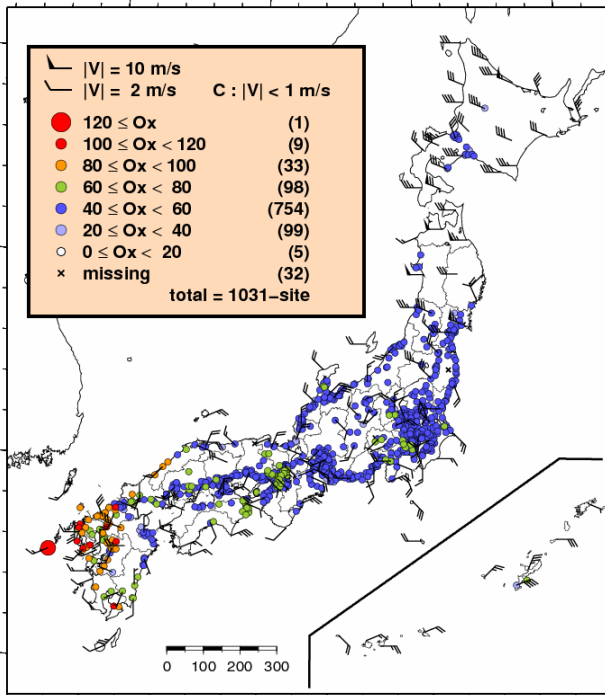
4.高濃度エピソード解析



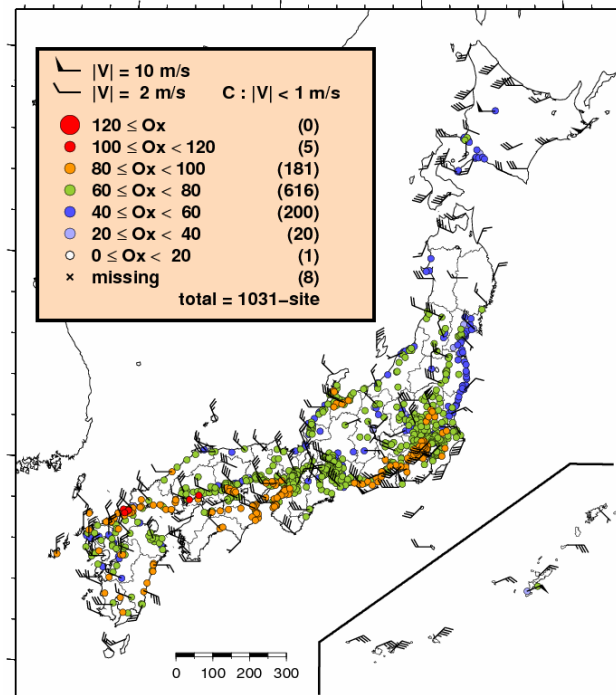
4月26日 1時



4月26日 13時



4月27日 14時



4月28日 15時

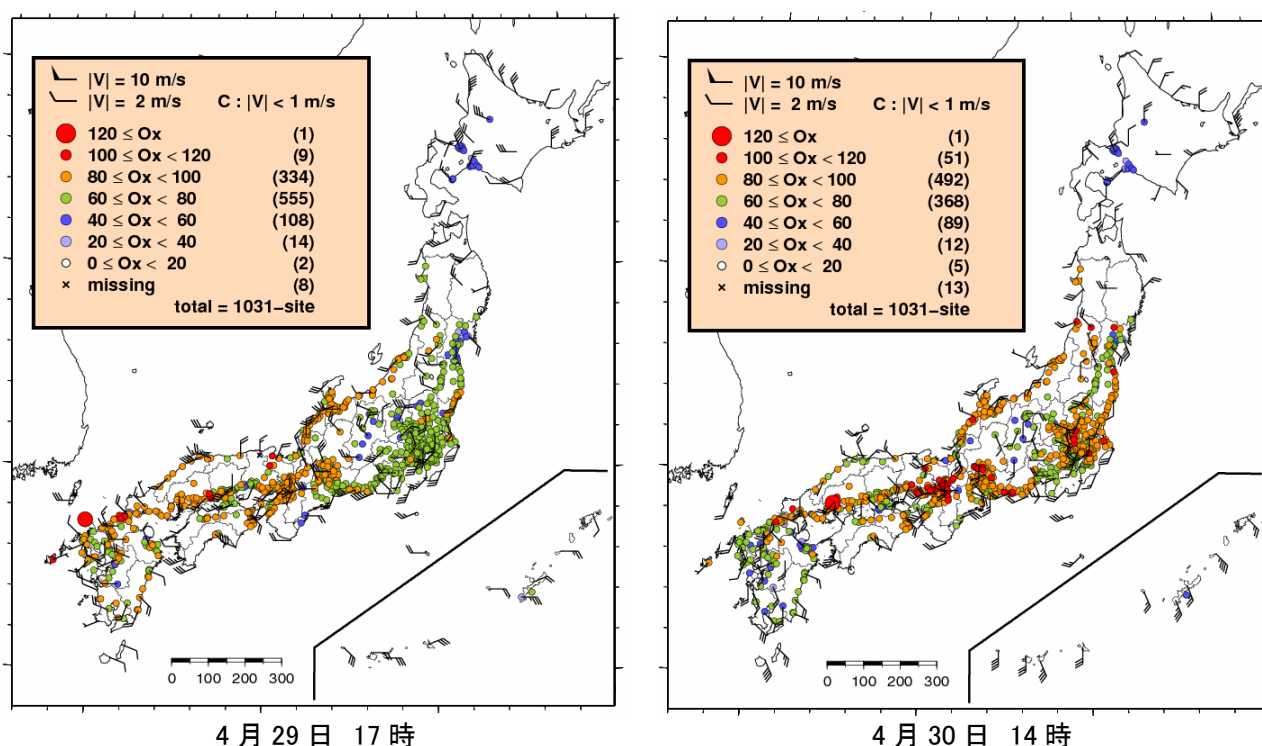


図 4.1.3. Ox 濃度分布図

4.1.2. 中国・四国及び九州地域の解析

中国・四国及び九州地域において、この解析対象期間における高濃度オキシダントの要因について解析を行った。解析の項目としては、(1)大気汚染常時監視データによる Ox 濃度の状況、(2)国立環境研究所地球環境研究センター開発の CGER-METEX による後方流跡線、(3)大気汚染常時監視データによる浮遊粒子状物質（以下、SPM）及び二酸化硫黄（以下、SO₂）との関係、(4)シミュレーションによる汚染物質濃度変化の予測である。

4.1.2.1. Ox 濃度の状況

中国、四国及び九州地方の Ox 濃度分布図を図 4.1.4 に、Ox 濃度経時変化を図 4.1.5 に示す。

Ox 濃度は、4月26日～27日、28日～29日および30日でやや異なる挙動を示した。Ox 濃度は一般的に日照とともに濃度が上昇し、昼過ぎにピークとなり、その後日没とともに濃度が減少する日周変動を示す。

26日～27日にかけて、九州地方の北部沿岸（北九州市、福岡市、福岡県）、長崎県の離島、中国地方の島根県や山口県で夜間早朝に濃度が低下せず、80ppb を超える高濃度で推移していた。120ppb を超過する Ox 濃度は26日に北九州市で、27日は長崎県（五島市、佐世保市、西海市）、熊本県（天草市河浦町、天草郡苓北町）で観測され、注意報が発令された。周囲に大規模な事業場のない離島、郊外で120ppb を超過しており、地域外からの輸送により高濃度となったことが示唆される。

28日～29日は、中国地方の島根県、岡山県、広島県、愛媛県、九州地方の北九州市、長崎県の離島（五島局・壱岐局）、宮崎県、鹿児島県で100ppb を超過したが、全域で Ox 濃度の上昇は小さく、120ppb を超える観測局はなかった。

30日は、九州地方では100ppb を超えなかったが、中国・四国地方では100ppb を超え、井口小学校局〔広島県〕では121ppb を観測した。

なお、九州地方で与那城局〔沖縄県〕では日周変動を示さず、期間を通じて緩やかな濃度変化で

4.高濃度エピソード解析

あった。

大規模な事業場のない離島や郊外では夜間も O_x が高濃度となる場合がある。26日～27日は夜間早朝で、島根県から長崎県の五島に至る約500km離れた広域で O_x 濃度が低下しない類似した濃度変動を示した。特に離島である五島および郊外にある江川局において夜間120ppbを超える高濃度を観測した。このように広域で比較的高い O_x 濃度が生成の少ない夜間早朝で類似した推移を示し、また、離島、郊外で120ppbを超える O_x 濃度を観測していることから、広域的な移流の影響を大きく受けて O_x 濃度が上昇したと推察される。28日～30日は全域で夜間60ppb前後の濃度で推移した。

26日～27日は広域的な移流の影響が大きいのに対し、30日は中国・四国地方でのみ O_x 濃度が上昇していることから地域生成による寄与が大きかったと考えられる。

4.1.2.2. 後方流跡線解析

中国・四国及び九州地方の各自治体 O_x 最高濃度観測局における後方流跡線を図4.1.6に示す。計算は高度500mにおける三次元法で遡及時間を72時間とした。中国・四国地方は4月26日、中国北西部から渤海、朝鮮半島を横断し、日本海経由で到達しており、27日は島根県、広島県で同じ状況であったが、山口県は山東半島から黄海、朝鮮半島南岸を経由していた。その他の県は、29日まで中国北西部から遼東半島、朝鮮半島を横断し日本海を経由していた。30日は遼東半島から山東半島の間から渤海、黄海、朝鮮半島を経て、釜山で収束しそれぞれ到達していた。

九州地方では沖縄県を除いた各県で4月26日北京付近から山東半島の南部、黄海を経由し朝鮮半島南岸をかすめて到達していた。27日は山東半島と上海の間から黄海を通り、朝鮮半島南部を経由し到達していた。28日、29日はそれぞれ中国・四国地方とほぼ同じで、29日まで中国北西部から遼東半島、朝鮮半島を横断し日本海を経由していた。30日は朝鮮半島を縦断して到達していた。沖縄県は、4月26日～27日、山東半島から東シナ海を経由するルートで、その後28日は釜山付近から関門海峡、周防灘を経て太平洋を経由した後到達している。

後方流跡線と O_x 濃度との関係で、九州地方では O_x 濃度の状況と同じく前半（26日～28日午前）と後半（28日午後～30日）で流跡線の方向が異なっていた。前半は北京や山東半島付近からの西北西方向から到達し、120ppbを超過する濃度を観測したのに対し、後半の九州地方は中国北西部や遼東半島付近の北西方向から到達し100ppb程度までの上昇にとどまっていた。また、中国・四国地方では期間を通して中国北西部や遼東半島付近の北西方向から到達し、最高濃度も100ppb程度であった。このことから、西北西方向からの気流になっていた時の九州地方では、北西であった中国・四国地方よりも顕著な O_x 濃度の上昇があり、気塊の経路が O_x 濃度の上昇と関連していることを示唆している。

4.1.2.3. SPM 及び SO_2 との関係

O_x の各自治体最高濃度観測局における SPM の経時変化を図4.1.7に、 SO_2 の経時変化を図4.1.8に、 O_x と SO_2 との相関を図4.1.9に示す。なお、 SO_2 の経時変化については近傍にある発生源の影響を受ける測定局は除外した。また、相関は日平均値が5ppb以上で日有効測定時間を20時間である局を対象とした。SPM 濃度の経時変化を見ると、中国・四国地方では $100\mu g/m^3$ を超える観測局はなかったが、九州地方は26日～27日にかけてほとんどの自治体で $100\mu g/m^3$ まで上昇した。図4.1.5と図4.1.7を比較すると、 O_x 濃度上昇時に SPM 濃度もほぼ同時に上昇しており、この両日とも多くの气象台で煙霧が観測されていた。福岡県で測定した粒子状物質中の硫酸イオン濃度は、26日は $23.8\mu g/m^3$ 、27日は $36.1\mu g/m^3$ で、年平均値の $8\mu g/m^3$ と比較すると顕著に高かった。一方、28日～30日は $6.4\mu g/m^3$ 、 $7.9\mu g/m^3$ 、 $8.9\mu g/m^3$ とほぼ平均値と同じ値であり、26日～27日と28日～30日で濃度に大きな差が現れていた。後方流跡線解析から、26日～27日は硫酸塩エアロゾルが O_x と同時に大陸の西北西方向から移流し、SPM 濃度上昇および煙霧の発生を引き起こしたと推察される。

SO₂の経時変化を見ると、この期間中多くの観測局で10ppbを超過していた。2007年度一般環境測定局による年平均SO₂濃度は3ppbであり、周辺にSO₂発生源のない郊外や離島でも日平均値が5ppb以上の測定局が多く見られた。特に九州地方の福岡県北西部沿岸で26日未明や27日深夜に10ppbを超える高濃度を観測し、長崎県の離島（五島）でも26日の日没後や27日の午後に濃度が上昇していた。さらに、図4.1.5と図4.1.8を比較すると、SO₂濃度の挙動はO_x濃度変動と類似している観測局が特に九州地方で多く見られ、図4.1.9のように中国・四国地方および九州地方において周辺にSO₂発生源がない地域でもSO₂とO_xの相関が高いことから、O_xと同時に大陸からの移流によってSO₂も輸送されたと推察される。

これらをまとめると、26日～27日は中国・四国地方および九州地方において、周辺に大規模な事業場がない離島や郊外、さらに夜間にも高濃度のO_x、SPM、硫酸イオンそしてSO₂が観測されており、後方流跡線解析からも大陸からの移流の影響を大きく受けていることが示唆された。

4.1.2.4. シミュレーションによる汚染物質濃度変化の予測

国立環境研究所開発の大気汚染予測システムによる上空75mにおける東アジア域（広域：100kmメッシュ）及び中国・四国地方及び九州地方（狭域：25kmメッシュ）O₃の予測結果を図4.1.10に、硫酸塩の予測結果を図4.1.11に、また、化学天気予報（CFORS）による各種汚染物質の予測結果を図4.1.12に示す。

O₃について、O_x濃度のピーク時間における予測を見ると、26日の18時に100ppb前後の汚染気塊が九州北西部の沿岸に到達している。同時刻に実測で100ppbを超過した観測局は九州北西部に集中しており、高濃度となった範囲は一致していた。また、島根県の日本海沿岸で特異的に高濃度となった27日12時のシミュレーション結果を見ると、100ppb前後の汚染気塊が山口県から島根県にかけての日本海沿岸に接近しており、若干の位置的な差はあるものの予測と実測で同様の結果が見られた。しかし、五島局〔長崎県〕で特異的な高濃度（150ppb）となった27日15時では予測と実測が異なる結果であった。これは、シミュレーションでは格子単位で濃度の予測を行うため、範囲の狭い高濃度は予測困難な場合があることに依るものと思われる。全般的に、中国・四国地方及び九州地方の予測と図4.1.4のO_x濃度空間分布と比較すると、濃度レベルに差があったが、高濃度出現地域、経時変化は実測による観測結果と類似していた。

硫酸塩について、シミュレーションでは26日～27日は九州北部～北西部で約20～30μg/m³と予測されている。実測の濃度としては福岡県で実施した粒子状物質中硫酸イオン濃度が26日は23.8μg/m³、27日は36.1μg/m³であり、ほぼ同等の結果であった。

また、今回SO₂が高濃度となったが、これも濃度レベルに差があるものの、高濃度出現地域はCFORSによる予測と合致した結果となっている。

4.1.2.5. まとめ

2007年4月26日～30日の期間において、西日本を中心に高濃度の光化学オキシダントを観測し、北九州市、長崎県、熊本県で光化学オキシダント注意報が発令された。北九州市は11年ぶり、長崎県、熊本県は2006年に続き2年連続の発令であり、高濃度オキシダントの発生要因について解析を行った。

26日～27日にかけては、移動性高気圧が東シナ海から日本列島を通過し、高気圧の縁辺流によって大陸からの気塊が流入した地域でO_x濃度が上昇する典型的なパターンであった。100ppbを超える高濃度観測局は山口県から鹿児島県までの広い範囲で観測され、その中で、26日に北九州市、27日には長崎県の離島である五島、熊本県の天草など九州北部や西部でO_x濃度が120ppbを超過し、光化学オキシダント注意報が発令された。特に夜間早朝で100ppbを超えるO_x濃度を広域で観測し、離島や郊外では、日射量が少なく、周辺に大規模な事業場のない状況で120ppbを超過したことから地域外からの長距離移流による影響が大きいと考えられた。また、福岡県における硫酸イオン濃度が26日～27日は20μg/m³を超える高濃度であり、さらに、SO₂についても10ppb

4.高濃度エピソード解析

を超える高濃度を観測しており、これらが同時に移流して来たものと考えられる。28日は低気圧の通過により全域的にOx濃度は上昇しなかった。29日は黄海に中心を持つ高気圧が九州南部から太平洋へゆっくりと移動し、高気圧の縁辺流によって大陸からの気塊が流入した地域でOx濃度が上昇したが120ppbを超える観測局はなかった。30日は高気圧が本州から九州までの広い範囲を覆ったため全国的に晴れ、気圧傾度が小さいため風が弱く、気温が上昇したことで日中、周辺地域でOx濃度が上昇する条件が揃い、東北地方から九州地方までの広い範囲でOx濃度が100ppbを超過した観測局が見られ、広島県では120ppbを超えるOx濃度を観測した。

後方流跡線やシミュレーションによる予測結果からも大陸からの気塊が九州地方や中国・四国地方に到達している様子が窺え、大陸からの影響を大きく受けたと考えられる事例であった。後方流跡線の方向を見ると、九州地方では26日～27日にかけてより西寄り（山東半島、青島方向）の時にOxとともにSPM（硫酸塩を含む）、SO₂が同時に上昇しており、その濃度も高く、この方向での移流による影響の強さを示していた。

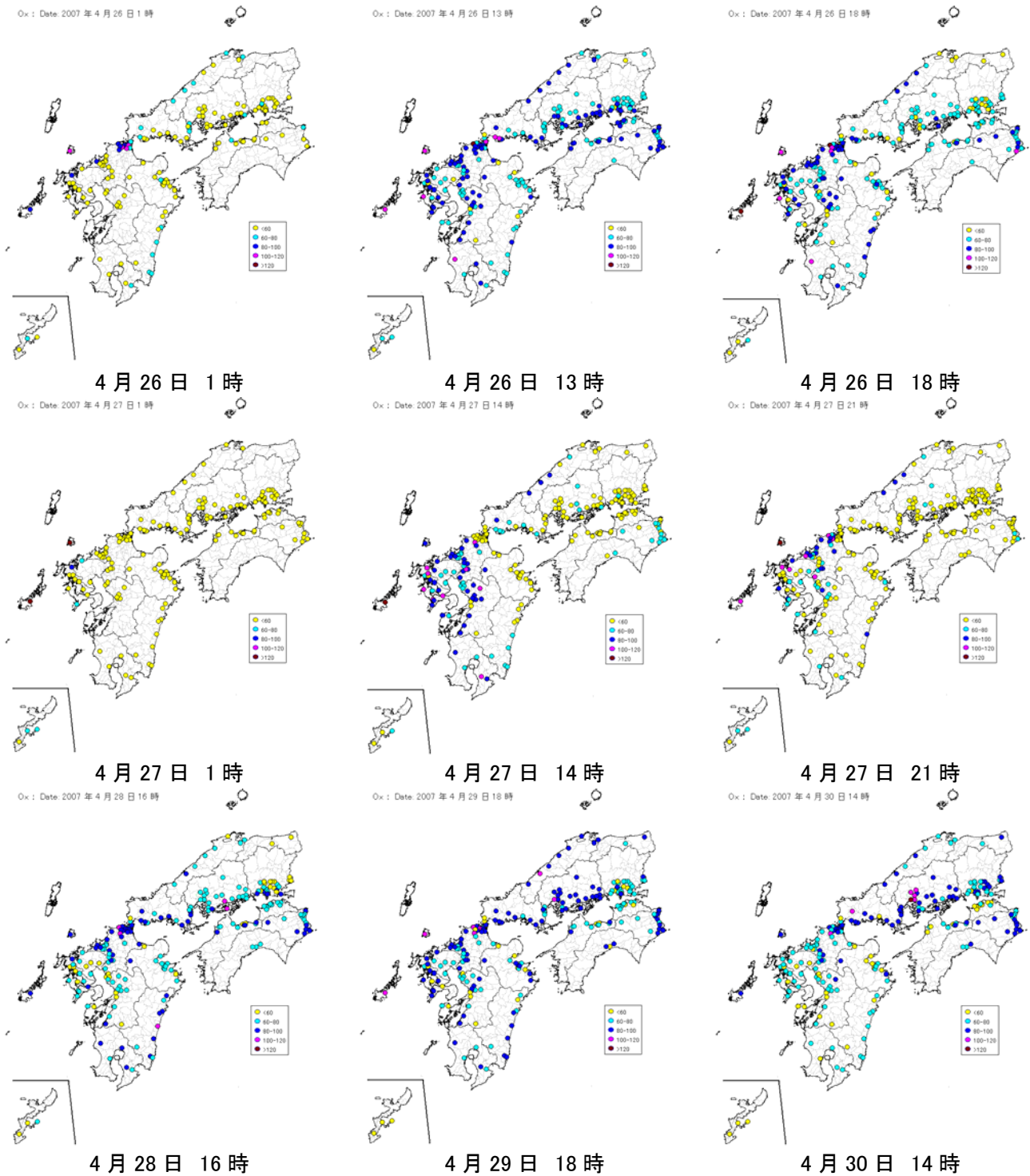


図 4.1.4. 高濃度日における Ox 濃度分布

4.高濃度エピソード解析

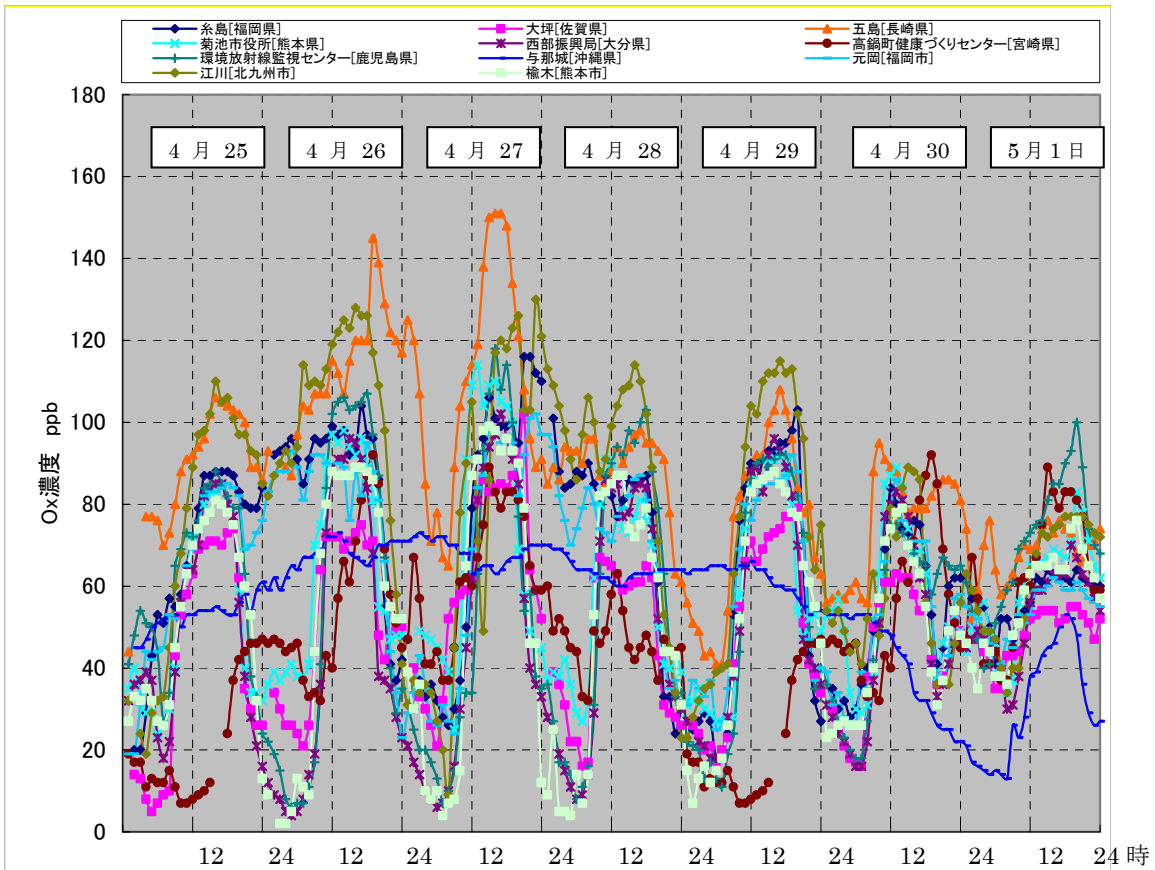
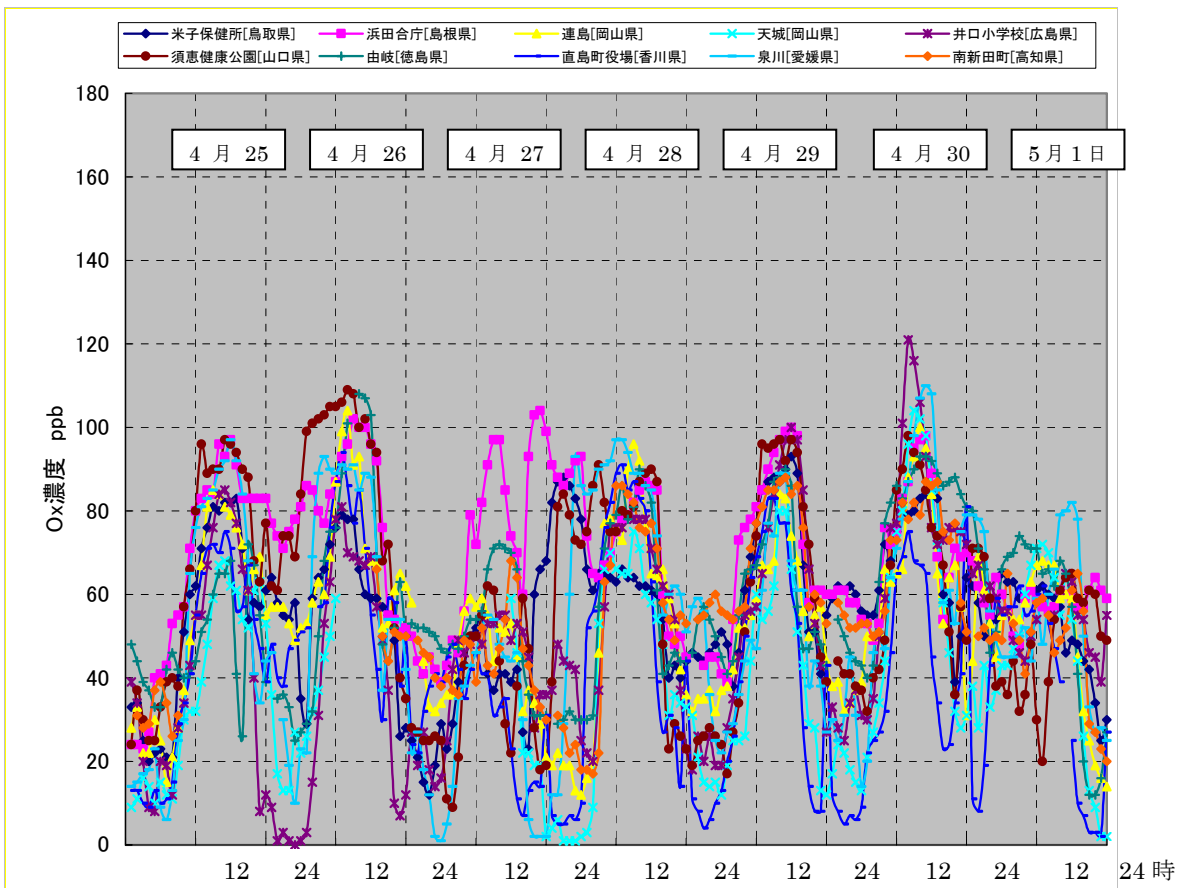


図 4.1.5. Ox 濃度の経時変化図(上:中国・四国、下:九州)

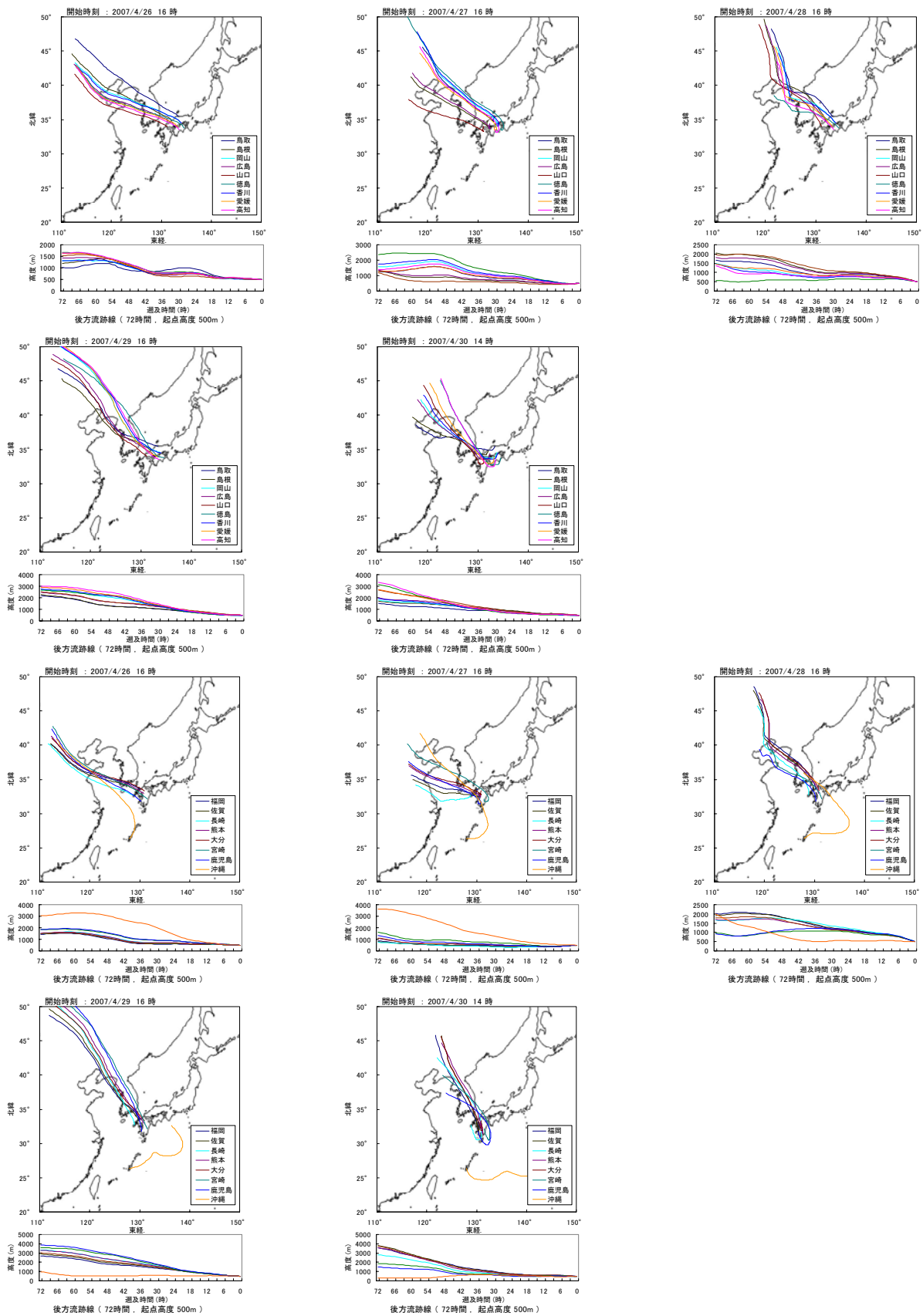


図 4.1.6. 高濃度日における中国、四国及び九州各県の後方流跡線

4.高濃度エピソード解析

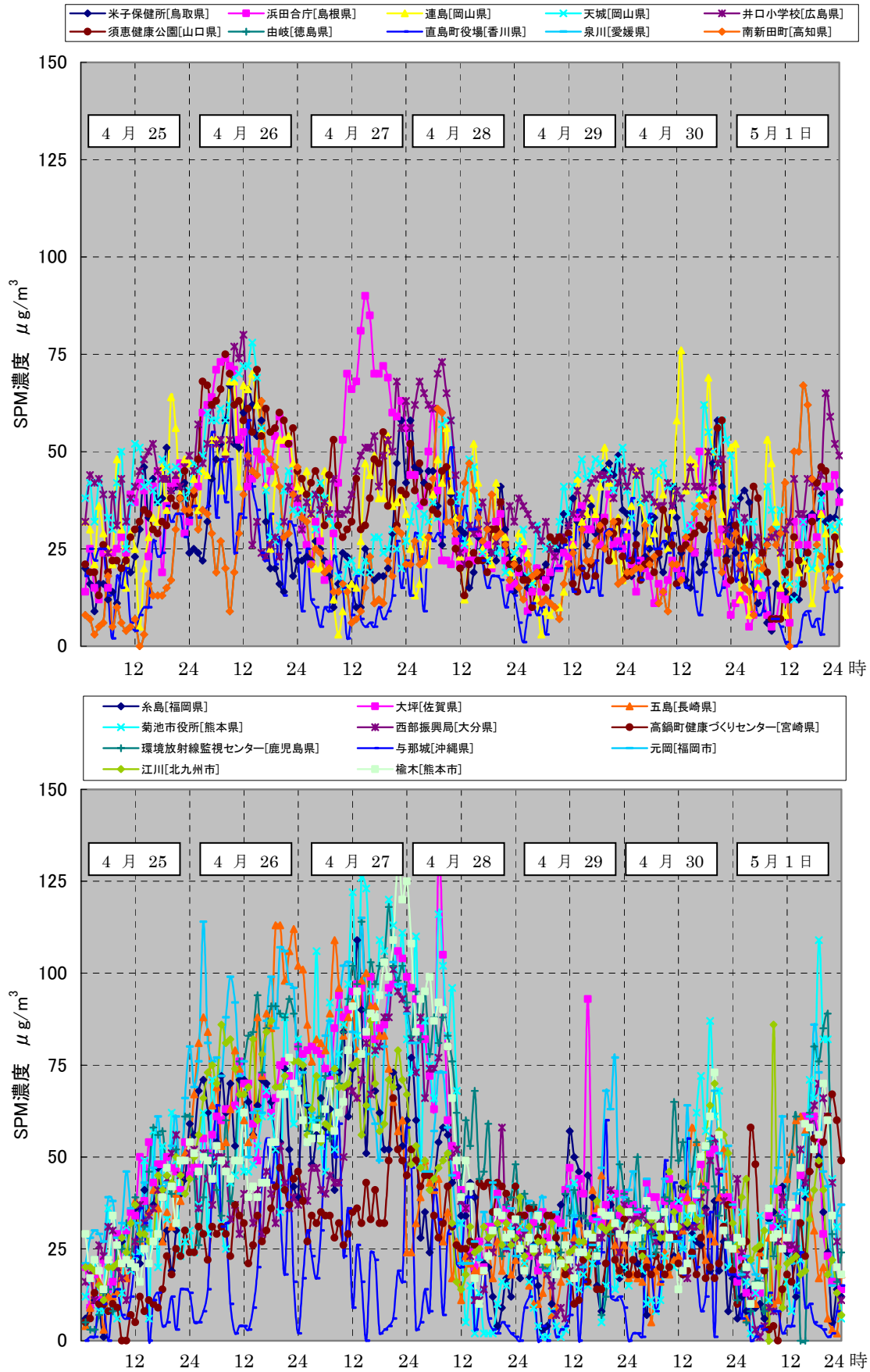


図 4.1.7. 高濃度日の Ox 最高濃度観測局における SPM 濃度経時変化(上: 中国・四国、下: 九州)

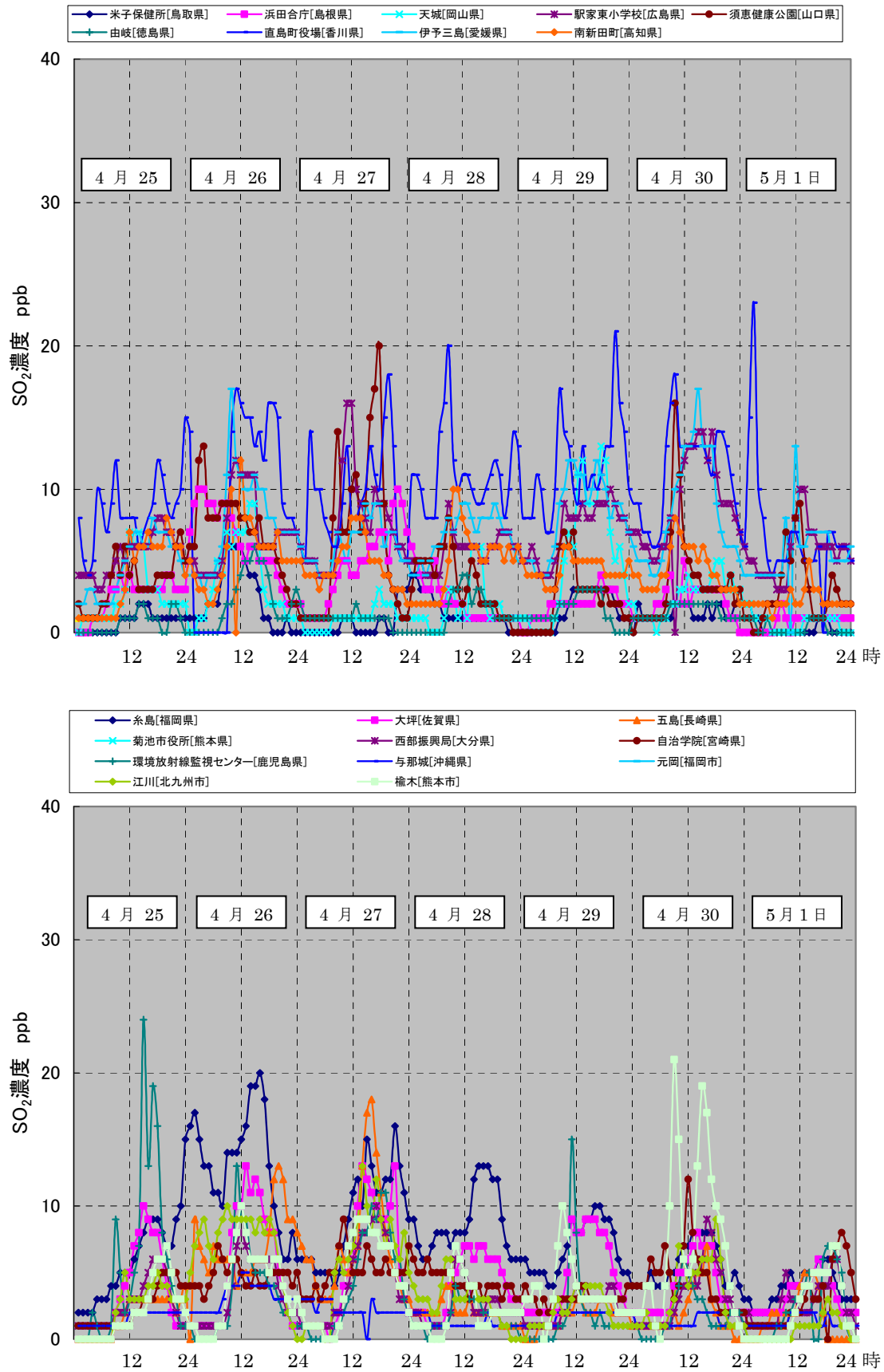


図 4.1.8. 高濃度日の Ox 最高濃度観測局における SO₂ 濃度経時変化(上:中国・四国、下:九州)

4.高濃度エピソード解析

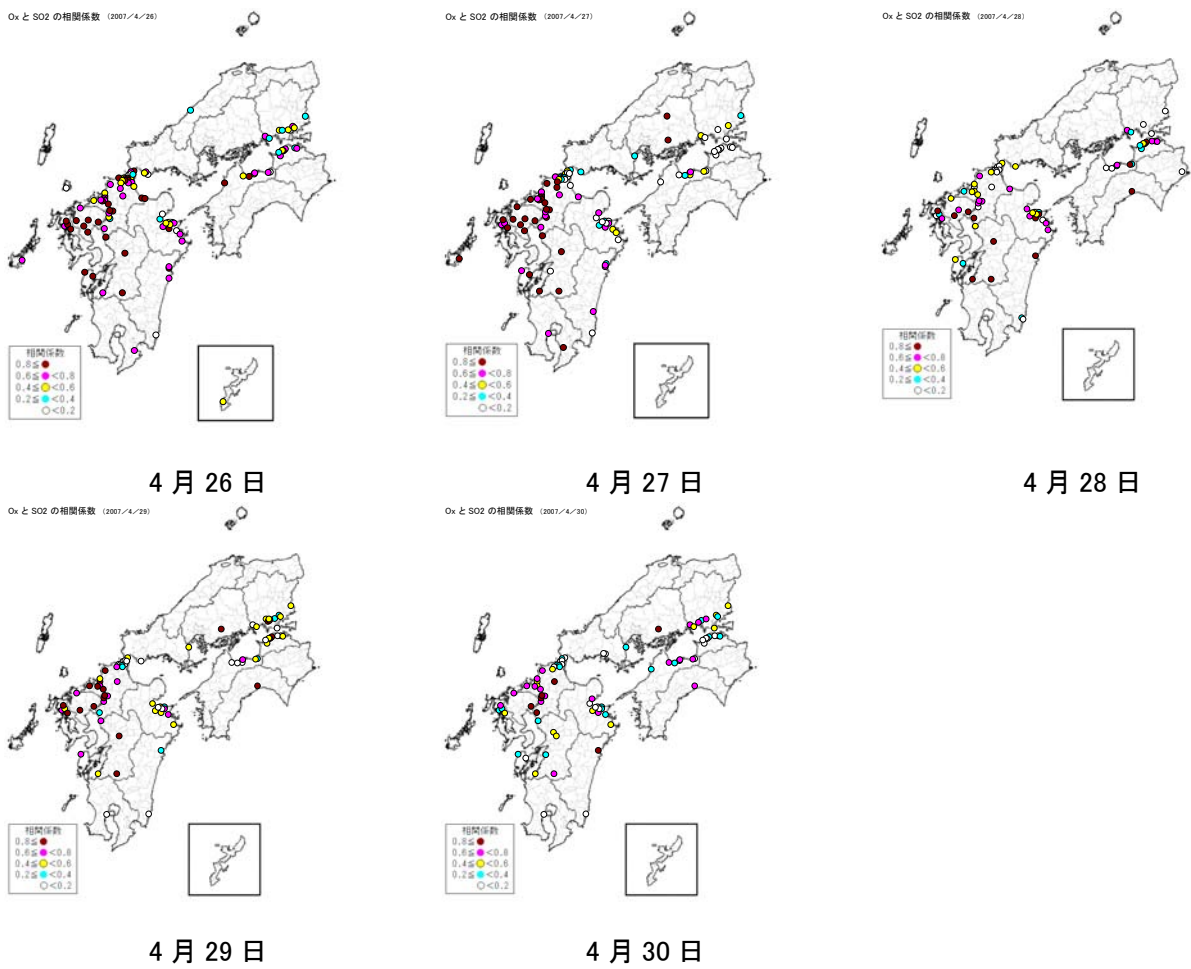


図 4.1.9. Ox-SO₂ の相関係数

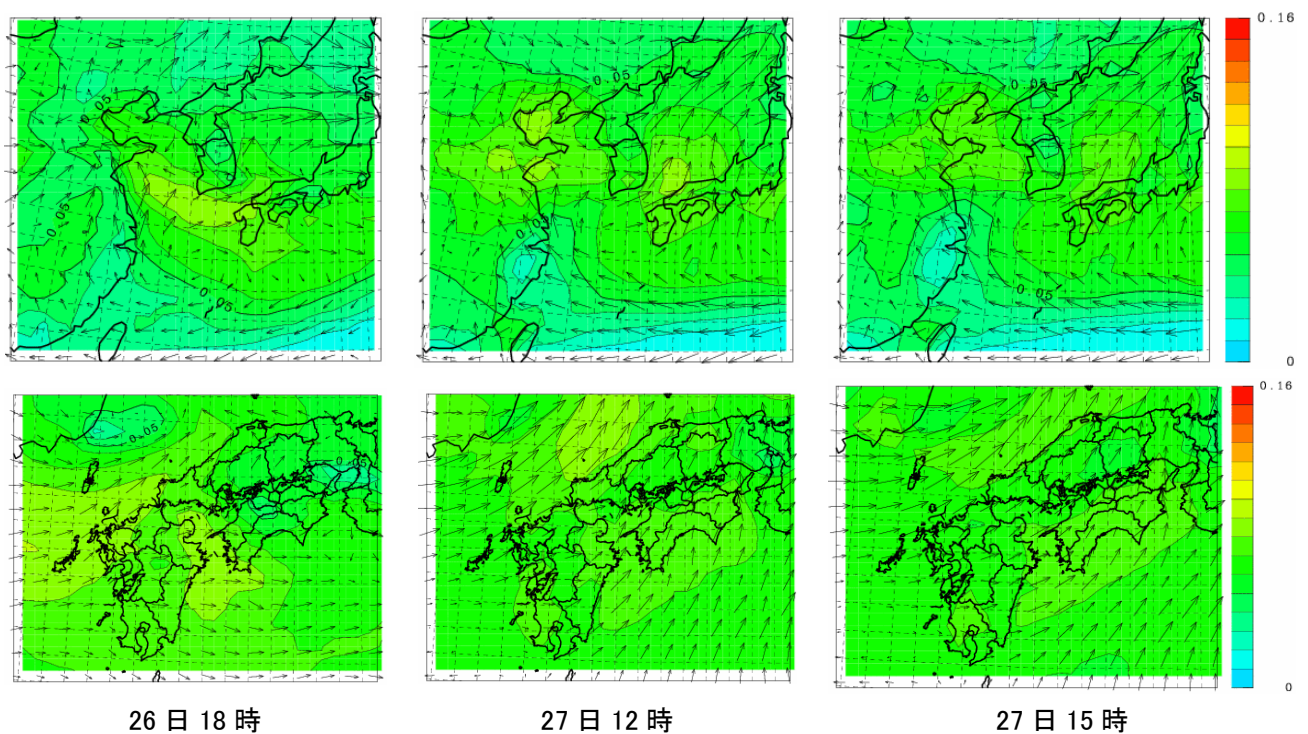
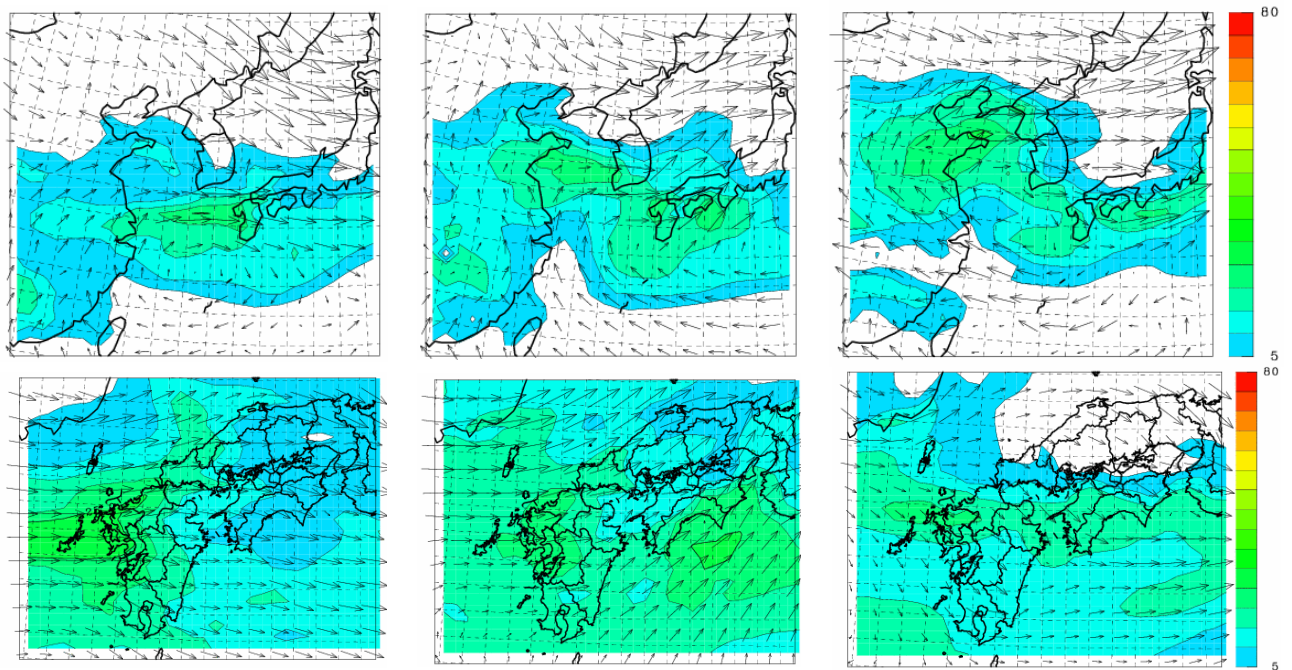


図 4.1.10. シミュレーションによる O₃ の予測濃度(上:東アジア、下:中国・四国及び九州地方)

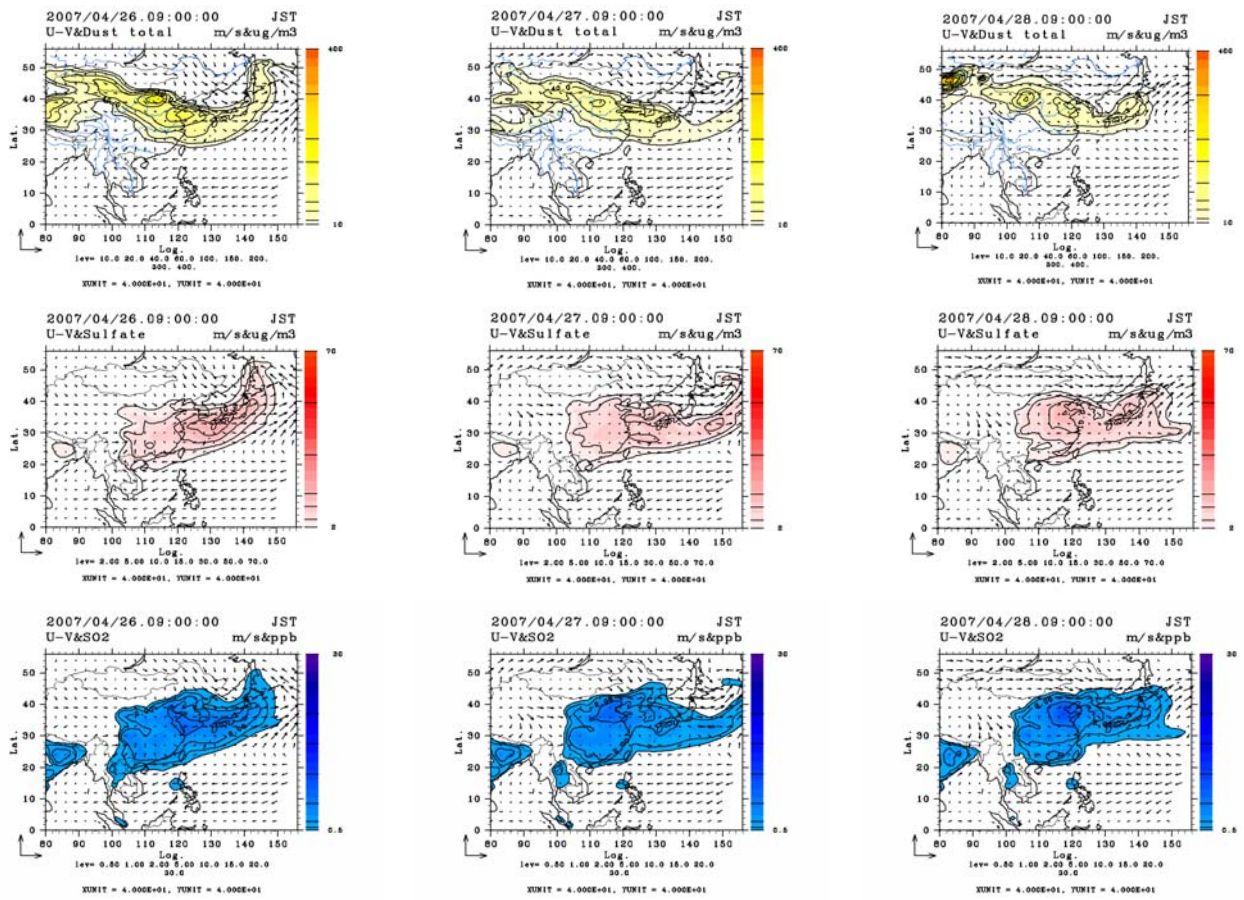


26日15時

27日6時

27日18時

図 4.1.11. シミュレーションによる硫酸塩の予測濃度(上: 東アジア、下: 中国・四国及び九州地方)



4月26日9時

4月27日9時

4月28日9時

図 4.1.12. 化学天気予報(CFORs)による予測結果(上: 土壌ダスト、中: 硫酸塩エアロゾル、下: SO₂)

4.高濃度エピソード解析

4.2. 2007年6月26日～30日の高濃度エピソード解析

2007年6月26～30日にかけて、九州地域から関東地域の広範囲にわたりSPMが高濃度となる状況が発生した。Oxも近畿・東海・関東地域を中心に高濃度となり、26～30日にかけて18都府県でOx注意報が発令された。愛知県では27日に単独県としてはこの年最多の771名の光化学スモッグの被害届出があった。

4.2.1. 気象・汚染概況

4.2.1.1. 気象概況

6月25～30日の地上天気図を図4.2.1に示す。25日は中国地域付近にあった前線が九州南部付近まで南下し、日本海西部の低気圧は能登沖に進んだ。九州南部、山陰、近畿、東海、北陸と関東の一部、東北南部の一部では雨が降ったが、山陽、四国および九州北部は概ね晴れか曇りとなった。前線はその後27日まで九州南部付近に停滞し、九州南部は雨が続いた。また、26～27日にかけて、朝鮮半島に発生した高気圧が日本海中部へ進み、山陰、近畿の日本海側、北陸、東北南部の一部では雨が降ったが、その他の地域は概ね晴れか曇りとなった。28日は、低気圧が渤海を北東に進み、日本海西部には別の低気圧も発生した。九州、四国、中国と北陸の一部、東北南部の一部で雨が降った。29～30日にかけて、前線を伴う低気圧が日本海から三陸沖に進み前線が本州付近まで南下したため、東海、甲信、北陸、東北では大雨となったところがあり、近畿や北陸を中心に雷を伴った。

気温は、各自治体の一般大気環境測定局やアメダス局において、近畿、山陽、四国、九州北部では期間を通して、東海、関東でも6月27～29日にかけて、多くの地点で連日最高気温が30℃を超えた。

4.2.1.2. 汚染概況

期間中のOx濃度分布およびSPM濃度分布を図4.2.2、図4.2.3に示す。Ox濃度の全国分布をみると、25日は中国四国地域の瀬戸内海沿岸部で100ppbを超える高濃度観測局が複数見られ、15時には新南陽公民館[山口県]で121ppbを観測した。26日は、五島[長崎県]で5時に108ppbを観測するなど午前中は九州地域北部で濃度上昇がみられた。午後になると、中国地域の瀬戸内海沿岸部、近畿地域の大阪湾周辺、東海地域の三河湾周辺で100ppbを超える高濃度観測局が多くみられ、17時には北浜小学校[静岡県]で153ppbを観測した。東海地域の三河湾周辺では23時まで80ppbを超える高濃度が継続した。27日は高濃度域が東に広がり関東地域でも100ppbを超える高濃度観測局が多くみられ、16時には明治市民センター[神奈川県]で171ppbを観測した。東海地域の三河湾周辺では26日と同様に深夜(24時)まで80ppbを超える高濃度が継続した。28日になると、高濃度域は東に移り、近畿地域、東海地域、関東地域で100ppbを超える高濃度観測局が多くみられた。関東地域では高濃度域が27日は西側が中心であったが、28日は北側が中心であった。また、北陸地域や東北地域南部でも濃度上昇が見られた。29日以降は100ppbを超える高濃度観測局は全国的にほとんど見られなかった。

SPM濃度の全国分布をみると、25日は昼頃から九州地域北部と中国四国地域で濃度が上昇し、中国四国地域の瀬戸内海沿岸部では $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られた。26日は、九州地域北部と中国四国地域では引き続き高濃度となり、特に九州地域北部から中国地域西部にかけて $200\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局も複数見られた。また、高濃度域は東に広がり、近畿地域の瀬戸内海沿岸部、東海地域の三河湾周辺でも朝方から濃度が上昇し $100\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多

4.高濃度エピソード解析

く見られた。特に東海地域の三河湾周辺では夕方以降 $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局が複数見られるようになった。27日も、引き続き九州北部から東海地域の広い範囲で高濃度が継続した。28日になると高濃度域は東に移動し、中国四国地域から関東地域で $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られ、特に東海地域と関東地域で高濃度となった。29日は中国四国地域東部から関東地域において引き続き高濃度であったが、時間の経過とともに高濃度域は東に移り、夕方以降は関東地域と東北地域南部太平洋側で $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られるようになった。30日は朝方まで関東地域北部で高濃度となったが、それ以降 $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局はほとんど見られなかった。なお、気象庁の発表によると、この期間中、九州地域北部から関東地域の広い範囲において多くの気象台で煙霧が観測されていた。

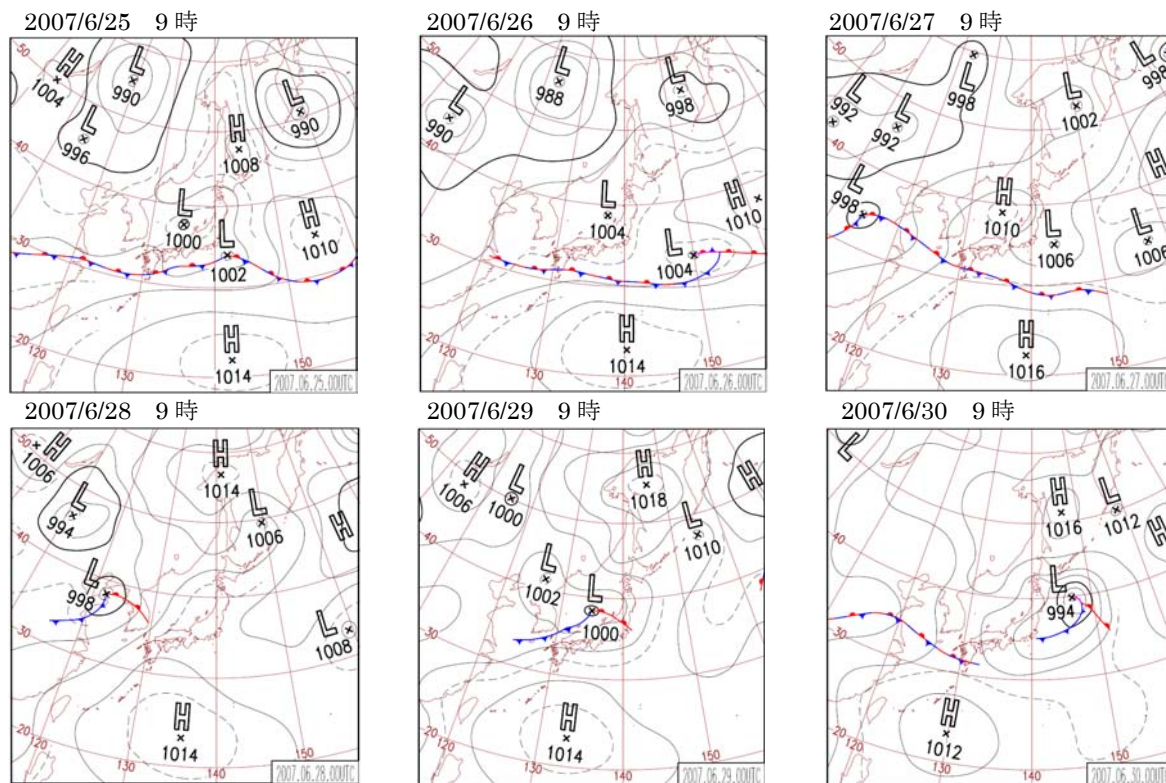


図 4.2.1. 天気図

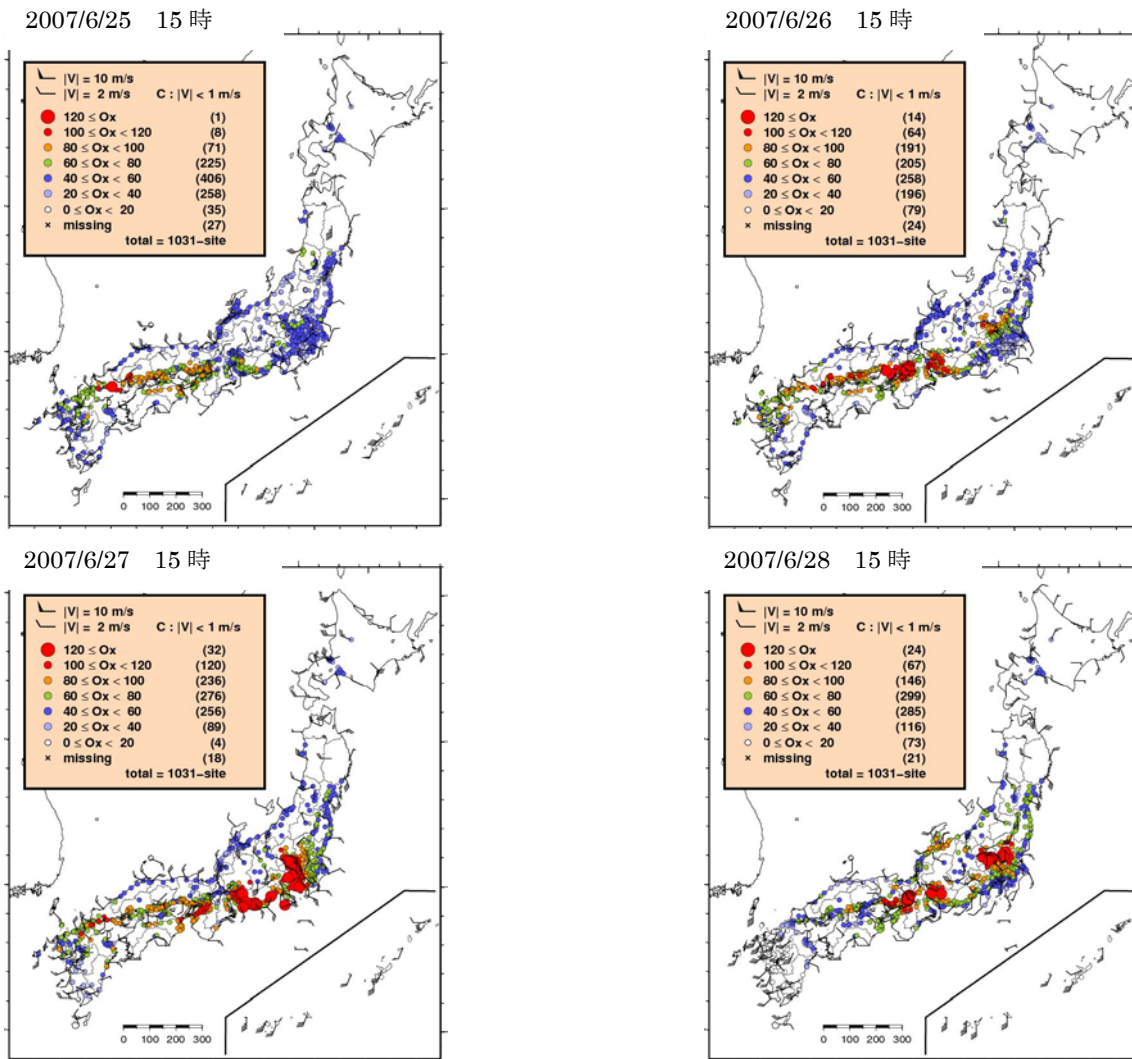


図 4.2.2. Ox 濃度分布図

4.高濃度エピソード解析

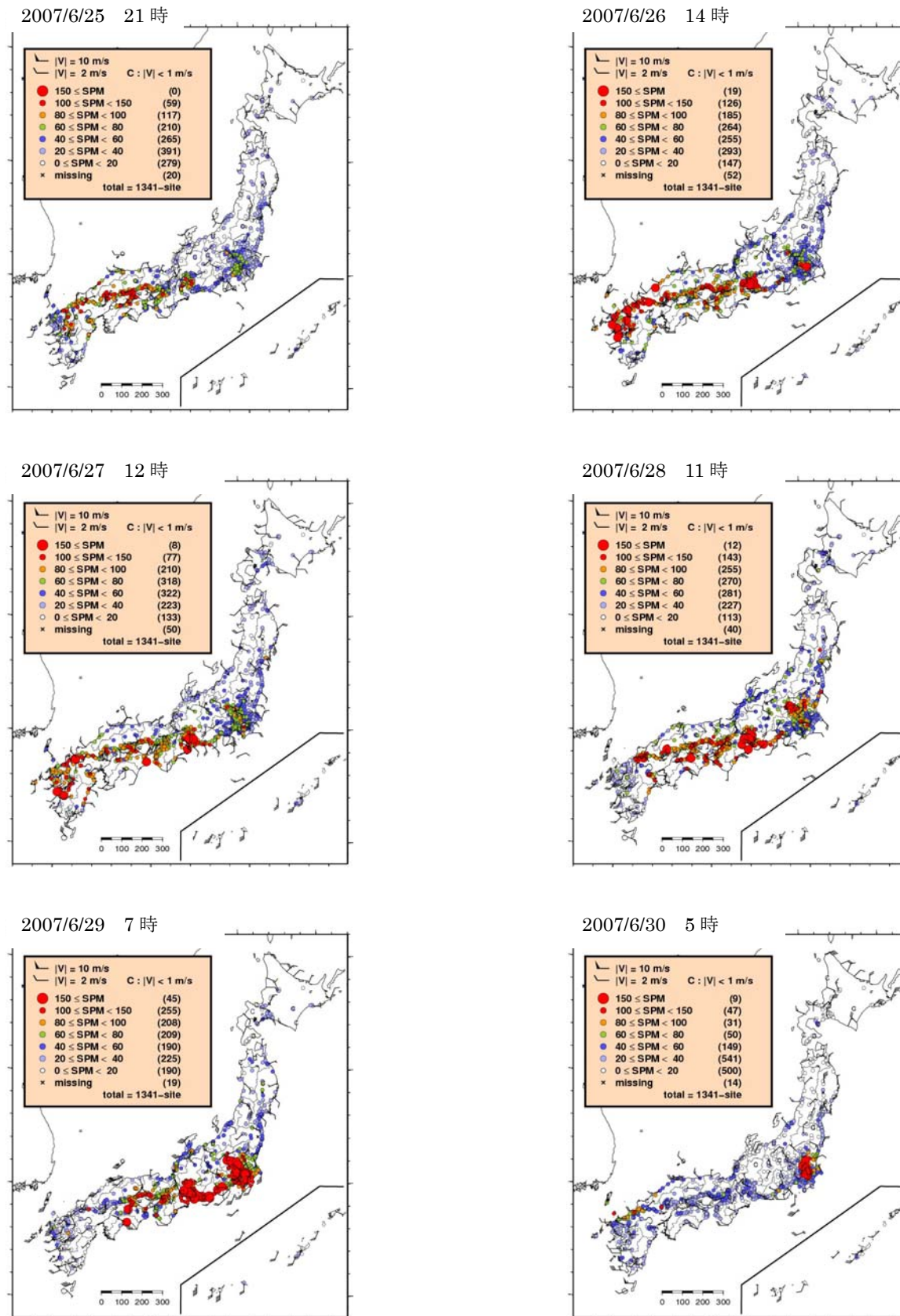


図 4.2.3. SPM 濃度分布図

4.2.2. 九州中国四国地域の解析

九州中国四国地域における高濃度 O_x ・SPM の要因を検討するため、(1)気象庁アメダス観測局における地上風向風速の状況、(2) O_x 濃度の時空間変化、(3)SPM 濃度の時空間変化、(4)後方流跡線解析、(5)大気汚染物質間の関係、(6) O_3 ・硫酸エアロゾル濃度（モデル）の時空間変化について解析を行った。気象の解析には、気象庁の天気図や地上気象官署およびアメダスの観測データを使用した。 O_x 、SPM 等大気汚染物質については、C 型研究で整備された 49 自治体の大気汚染常時監視測定データ（1 時間値）を用いた。後方流跡線については、国立環境研究所地球環境研究センターから提供されている「CGER METEX」を用いて、各自治体の O_x 最高濃度観測局における上空 1000m を初期値として三次元法による解析（3 日間遡及）を実施した。 O_3 ・硫酸エアロゾル濃度の数値シミュレーションについては、東アジアスケール化学輸送モデルを用いた。

4.2.2.1. 風向風速の状況

6 月 25～30 日のアメダス観測局における地上風向風速の状況は、25 日は日本海上の低気圧と四国から九州にある前線の影響でほぼ全般的に日中は西系の風が卓越していた。夜になると、中国四国地域および九州地域北東部では次第に収まり沿岸部では全般的に陸風となった。九州地域西部から南部にかけては継続して西系の風が吹いていた。26 日は、日中は九州地域、山陰西部の日本海側および中国四国地域瀬戸内海側では全般的に西系の風が卓越し、山陰東部と四国地域太平洋側では概ね海風が見られた。夜になると全般的には風は収まり陸風に変化した。九州地域北部から中国四国地域西側の瀬戸内海沿岸では引き続き西系の風が吹いていた。27 日は、九州地域南部を除き概ね全般的に海陸風が見られた。九州地域南部は停滞する前線の影響で西系の風が卓越していた。28 日は、渤海から東進してくる低気圧の影響で九州地域北部と山陰では次第に南系の風に変化した。中国地域の瀬戸内海側と四国地域では概ね全般的に海陸風が見られた。29～30 日にかけては低気圧通過によりほぼ全域的に西系の風が卓越していたが、30 日昼以降は中国地域と九州地域北部ではやや北よりの風が変わった。また、気象庁の観測による高層（925、900、850-hPa 面）の風向風速は、福岡、米子ともに概ね期間を通して西系の風が卓越していた。

高濃度 O_x ・SPM が観測された地域の 25～28 日の風向風速は、地上、高層ともに全般的に西系の風が卓越しており、越境汚染の可能性が示唆された。

4.2.2.2. O_x 濃度の時空間変化

(1) O_x 濃度の経時変化

各自治体で最高濃度を観測した測定局における O_x 濃度の経時変化を図 4.2.4 に示す。九州地域では、26 日未明から五島[長崎県]で O_x 濃度が上昇し、4 時に 104ppb、5 時に 108ppb と高濃度 O_x を観測したのち、12 時まで 100ppb 前後で推移した。多久[佐賀県]や香椎[福岡市]でも同様に 5～9 時にかけて O_x 上昇が見られた。九州地域北部の他の局も多くが 10～13 時にかけて O_x 濃度が上昇し、80ppb 前後となった。その後、26 日の日没から翌 27 日未明にかけては、 O_x 濃度の減少が遅く 50～70ppb の比較的高濃度で推移した局が多かった。大王谷小学校[宮崎県]では、26 日 23 時から翌朝にかけて O_x 濃度上昇が確認された。27 日も 9 時頃から多くの局で上昇に転じ、曾根[北九州市]で 111ppb（15 時）、太宰府[福岡県]で 106ppb（14 時）と高濃度 O_x を観測した。28～29 日にかけては O_x 濃度の顕著な上昇は見られなかったが、29 日夜から 30 日未明にかけて曾根[北九州市]、香椎[福岡市]、五島[長崎県]、多久[佐賀県]など、九州地域北部で濃度上昇が見られた。30 日には大王谷小学校[宮崎県]で 80ppb を超えたほかは、高いところでも最高濃度が 50～70ppb 程度であった。

中国四国地域では、25 日から濃度が上昇し、26 日は中国地域瀬戸内海側の 3 局で 100ppb を超え、18 時に麻里布小学校[山口県]で期間内最高濃度 126ppb を観測したほか、大竹油見公園[広島県]でも 119ppb と高濃度 O_x を観測した。日没後は各局とも下降傾向になったが、26 日 23 時から翌

4.高濃度エピソード解析

27日3時頃にかけて麻里布小学校[山口県]で54ppb→66ppb、大竹油見公園[広島県]で58ppb→71ppb、伊予三島[愛媛県]で45ppb→74ppbなど多くの地点でOx濃度の上昇が確認された。27日には高濃度域は東へ広がり、藍住[徳島県]で103ppb、伊予三島[愛媛県]で101ppbと100ppbを超過するなど、瀬戸内海側の6局で80ppbを超える高濃度Oxを観測した。28～30日にかけては、80ppbを超過した局が散見されるものの顕著なOx上昇は見られなかったが、29日夜から30日未明にかけて益田合庁[島根県]や米子保健所[鳥取県]など山陰地方で濃度上昇が見られた。

(2) Ox濃度の空間分布

九州中国四国地域における各日の高濃度Ox ($Ox \geq 80ppb$) 観測局の最高濃度(1時間値)および最高濃度観測時刻の分布を図4.2.5に示す。期間中に80ppb以上観測した局は九州北部から瀬戸内海地域に集中しており、特に山口県～広島県西部にかけて100ppbを超える高濃度観測局が多く見られた。最高濃度観測日は九州地域が26～27日、瀬戸内海地域が25～27日に多く見られた。

高濃度観測局の空間分布を日ごとにみると、25日は、大部分が北九州市と中国四国地域の瀬戸内海沿岸部に分布しており、観測時刻は北九州市と山口県では12～15時、山口県以東の地域では16～19時で東側の方がやや遅い時間帯にピークを示した。26日は、九州地域北部から瀬戸内海地域の広い範囲で高濃度となり、観測時刻も東側の測定局ほど遅くなる傾向がみられた。27日は、26日に比べ高濃度観測局数は少なくなったが、九州地域北部から瀬戸内海地域の広い範囲で高濃度となった。観測時刻は多くの測定局が日中の12～15時であった。28日以降はほとんどが瀬戸内海地域であったが、測定局数は25～27日に比べ少なかった。

4.2.2.3. SPM濃度の時空間変化

(1) SPM濃度の経時変化

各自治体で最高濃度を観測した測定局におけるSPM濃度の経時変化を図4.2.6に示す。九州地域では、25日昼頃から濃度が上昇し、楡木[熊本市]をはじめ九州地域北西部では26～28日にかけて $100 \mu g/m^3$ (1時間値)以上を観測する測定局が多く見られた。26日は7～9時にかけて各局でSPM濃度が上昇し、楡木[熊本市]や東長崎支所[長崎県]、天草高浜[熊本県]など九州地域北西部の複数局で $200 \mu g/m^3$ を超えるSPMを観測した。特に、東長崎支所[長崎県]、天草高浜[熊本県]、東[福岡市]、城野[北九州市]及び楡木[熊本市]の5地点では27日夕方頃までほぼ継続的に $100 \mu g/m^3$ を超え、SPM日平均がいずれも $100 \mu g/m^3$ を超えた。27日夜間から28日朝方にかけてほとんどの局で濃度の低下が見られ、それ以降は城野[北九州市]で一時的に $100 \mu g/m^3$ を超えたほかは概ね $50 \mu g/m^3$ 以下で推移した。30日になると、城野[北九州市]、東[福岡市]で日中に $100 \mu g/m^3$ を超え、敷戸小学校[大分県]、日向市立図書館[宮崎県]では夕方から夜間にかけて濃度の上昇が見られた。

中国四国地域では、25日昼頃から濃度上昇がみられ、26～29日にかけてほとんどの局で $100 \mu g/m^3$ を超える高濃度が観測された。26日は竜王中学校[山口県]及び益田合庁[島根県]でほぼ継続的に高濃度SPMを観測し、竜王中学校[山口県]では26日12時に $176 \mu g/m^3$ 、益田合庁[島根県]では26日13時に $237 \mu g/m^3$ を観測した。特に竜王中学校[山口県]ではその後28日まで高濃度が続き、26～28日まで3日間連続でSPM日平均が $100 \mu g/m^3$ を超えた。27日は、竜王中学校[山口県]、益田合庁[島根県]に加え、伊予三島[愛媛県]、白岳小学校[広島県]、鶴海[岡山県]で $100 \mu g/m^3$ を超える高濃度SPMが観測され、白岳小学校[広島県]と鶴海[岡山県]では $200 \mu g/m^3$ を超えた。28日には観音寺市役所[香川県]、多家良[徳島県]、南新田町[高知県]でも $100 \mu g/m^3$ を超える高濃度が観測されるなど、高濃度域が次第に東側へと拡大した。29日になると昼頃までにはほとんどの局で濃度が低下し、それ以降は30日に竜王中学校[山口県]や白岳小学校[広島県]で一時 $100 \mu g/m^3$ を超える高濃度が観測されたが、他の局は概ね $50 \mu g/m^3$ 以下で推移した。

(2) SPM濃度の空間分布

九州中国四国地域におけるSPM濃度の期間中最高濃度(日平均値)および最高濃度観測日の分

布を図 4.2.7 に、各日の SPM 濃度（日平均値）の分布を図 4.2.8 に示す。南部を除き九州地域は概ね 26～27 日、中国四国地域は概ね 26～28 日にかけて $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の高濃度が広域的に観測されており、特に九州地域北部から中国地域西部にかけて $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られた。

SPM 濃度（日平均値）の空間分布を日ごとにみると、25 日は広島県を中心に瀬戸内海地域に高濃度域が分布していたが、26 日は離島を含め九州地域北部、山陰地方西部、瀬戸内海地域の広い範囲で高濃度となり、特に中国地域西部以西では $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局が多く見られた。27 日も $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局数は少なくなったが、九州地域北部から瀬戸内海地域の広い範囲で引き続き高濃度となった。28 日は高濃度域が東へ移動し中国四国地域東部で高濃度となったが、26～27 日に比べ高濃度観測局数は少なかった。29 日以降は概ね全域的に $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度域は観測されなかったが、30 日に九州地域北部から中国地域西部瀬戸内海側で濃度上昇が見られた。

4.2.2.4. 後方流跡線解析

九州中国四国地域における Ox 最高濃度観測局の後方流跡線の結果を図 4.2.9 に示す。25 日は、九州地域北部と中国四国地域では高度約 500～1000m で中国東岸の江蘇省・上海～朝鮮半島の南側海上を通過して気塊が到達していた。宮崎県と鹿児島県は更に南側の中国浙江省～東シナ海上を通過して気塊が到達していた。沖縄県では期間を通して太平洋側から気塊が到達していた。26 日は、鹿児島、沖縄以外の地域では高度約 500～1000m で中国東岸の山東省・江蘇省～朝鮮半島南部を通過して気塊が到達していた。27 日は、中国四国地域では黄海～朝鮮半島中央付近を通過して気塊が到達していたが、当該地域通過時の高度は約 850～1800m と幅があった。九州地域は水平方向、鉛直方向ともやや散らばっており、北部（福岡、佐賀、大分、熊本）では中国東部の山東半島周辺～黄海、他は中国南部東岸より東シナ海上を通過して気塊が到達していた。28～29 日は全般的に中国南部東岸・台湾～東シナ海上を高度約 500～1000m で気塊が到達していた。30 日は、九州地域では中国南部東岸の浙江省・福建省～東シナ海上を通過して気塊が到達していた。中国四国地域では水平方向にやや散らばっており中国東岸の山東半島～東シナ海海上を起点に朝鮮半島を経由して気塊が到達しているが、朝鮮半島を通過するまでの高度はいずれも 500m 以下であった。

高濃度 Ox ・SPM が観測された九州地域北部と中国四国地域瀬戸内海側では、25～27 日にかけて概ね中国大陸や朝鮮半島を経由して気塊が到達していた。

4.2.2.5. 大気汚染物質間の関係

6 月 25～27 日における五島[長崎県]と防府市役所[山口県]の Ox 、SPM、 SO_2 濃度の経時変化を図 4.2.10 に示す。五島においては、25 日夜間から 26 日朝方にかけて Ox 濃度が上昇したが、ほぼ Ox と同期して SPM、 SO_2 の濃度上昇が認められた。また、 Ox と SPM はそれ以降も類似した経時変化を示しており、 Ox と SPM の同時移流が示唆される。防府市役所では SPM 濃度が上昇し始める時は Ox ・SPM・ SO_2 でほぼ同期した濃度変動が見られたが、それ以降は Ox と SO_2 が類似した日変動を示すのに対し SPM では異なる変動パターンを示した。他の測定局も多くは防府市役所と同様な挙動を示した。

6 月 25～27 日における高濃度 Ox ($\text{Ox} \geq 80\text{ppb}$) 観測局の Ox と SO_2 の相関係数の分布を図 4.2.11 に示す。なお、近傍の発生源の影響を強く受けていると考えられる測定局については除外してプロットした。 Ox と SO_2 の相関は、25 日はほとんどの高濃度観測局で高い相関を示した。26、27 日は全般的に正の相関を示す局が多く見られたが、山口県および北九州市では相関があまり見られない局も複数あった。 SO_2 については、九州地域の高濃度 Ox 観測局において全般的に濃度上昇が認められたが、上昇幅はそれほど大きくなく 10ppb を超える測定局は少なかった。

4.2.2.6. O₃・硫酸エアロゾル濃度(モデル)の時空間変化

上空約 680mにおける O₃ と硫酸エアロゾルの東アジアスケールにおけるシミュレーション(大気汚染予測システム)の結果を図 4.2.12、4.2.13 に示す。O₃ は、中国東岸の山東省から浙江省付近にあった 80ppb を超える高濃度気塊が西系の風によって東進し 25 日以降九州中国四国地域に輸送され、九州地域北部では概ね 27 日夕方頃まで、中国四国地域は概ね 28 日朝頃まで移流による影響が認められた。O_x 観測値と比べると、濃度レベルに差はみられるものの概ね時空間分布を再現していた。

硫酸エアロゾルは、24 日 12 時に中国東岸の山東半島付近にあった 30 μg/m³ を超える高濃度気塊が西系の風によって東進し、24~25 日夜間にかけて九州地域南部、沖縄を除く九州中国四国地域全域に輸送され、九州地域北部では概ね 27 日夕方頃まで、中国四国地域は概ね 28 日午前まで移流による影響が認められた。SPM 観測値と比べると、時間的にはやや早く濃度低下が見られるが空間分布は概ね再現していた。

4.2.2.7. まとめ

2007 年 6 月 26~30 日の高濃度 O_x・SPM エピソードの特徴について、気象状況、濃度の時空間分布等から解析した結果を以下に示す。

(1) 高濃度 O_x・SPM 観測時の気圧配置は大陸から九州地域南部にかけて梅雨前線が停滞しており、高濃度観測地域の地上および高層の風向は概ね西系の風が卓越していた。

(2) O_x 濃度は九州地域北部から中国四国地域瀬戸内海側を中心に 25~27 日にかけて高濃度となり、岡山・広島・山口・愛媛・徳島・福岡・長崎の 7 県で 100ppb を超え、山口県では O_x 注意報レベルである 120ppb を超える測定局も見られた。また、80ppb を超える O_x 濃度を観測した測定局において、最高濃度観測時刻が東側の測定局ほど遅くなる傾向が見られた。一方、中国四国地域の日本海側と太平洋側では 80ppb を超える高濃度は観測されなかった。

(3) SPM 濃度は九州地域南部を除くほとんどの地域で 26~28 日にかけて継続的に高濃度となり、日平均値で 80 μg/m³ を超えた。特に、九州地域北部から中国地域西部にかけては 100 μg/m³ を超える測定局が多く見られた。また、SPM 濃度(日平均値)の高濃度域の分布が時間の経過とともに東側へ移動していた。

(4) 高濃度観測時(25~27 日)の後方流跡線解析結果は、いずれも中国東岸の山東省・江蘇省や朝鮮半島を通過して九州・中国四国地域に気塊が到達していた。

(5) 離島である五島においては、25 日夜間から O_x 濃度が上昇し 26 日早朝には 100ppb を超える高濃度が観測され、これと同期して SO₂・SPM も濃度上昇が見られた。

(6) O₃ および硫酸エアロゾルの東アジアスケールのシミュレーション結果においても、濃度レベル・時間変化は観測値とやや差が見られるが中国東岸山東半島付近から移流する様子を概ね再現していた。

九州中国四国地域で同様に高濃度 O_x が観測された事例 1(2007 年 4 月 26~30 日)と比較すると、両事例とも離島である五島局での O_x 上昇と後方流跡線が大陸方向という特徴が見られる。また、本事例では 1) 気圧配置において、大陸から九州地域南部付近にかけて梅雨前線が停滞していたこと、2) O_x は高濃度観測局が九州地域北部と中国四国地域瀬戸内海側に集中し、中国四国地域の方が九州地域よりも濃度レベルが高く高濃度域の広がりも大きかったこと、3) SPM は濃度レベルが高く高濃度の継続時間が数日間と長かったことが事例 1 とは異なっており、本事例の特徴とも言える。

本事例における高濃度 O_x・SPM の発生要因については、1)~6) の解析結果から、大陸から

の越境汚染による影響が大きいと考えられた。福岡県ではローボリュームエアサンプラー（24時間採取）による粒子状物質調査を実施しているが、この期間の硫酸イオン濃度（単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$ ）は25日：24.8、26日：46.3、27日：30.3、28日：2.3、29日：9.4、30日：17.4で25～27日にかけて $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測された。この観測結果は、SPMの観測結果、硫酸エアロゾルシミュレーション結果の傾向と概ね一致しており、越境汚染による影響が大きいことを支持している。ただし、高濃度Oxが観測された九州地域北部や中国四国地域瀬戸内海側では気温も高く日照も十分あった地域が多かったこと、高濃度SPMが観測された山陰地域や四国地域太平洋側において高濃度Oxが観測されなかったこと、モデル計算結果では100ppbを超えるような高濃度Ox気塊の移流がほとんど認められなかったこと等を踏まえると、地域汚染による影響も加わった可能性があると考えられた。

4.高濃度エピソード解析

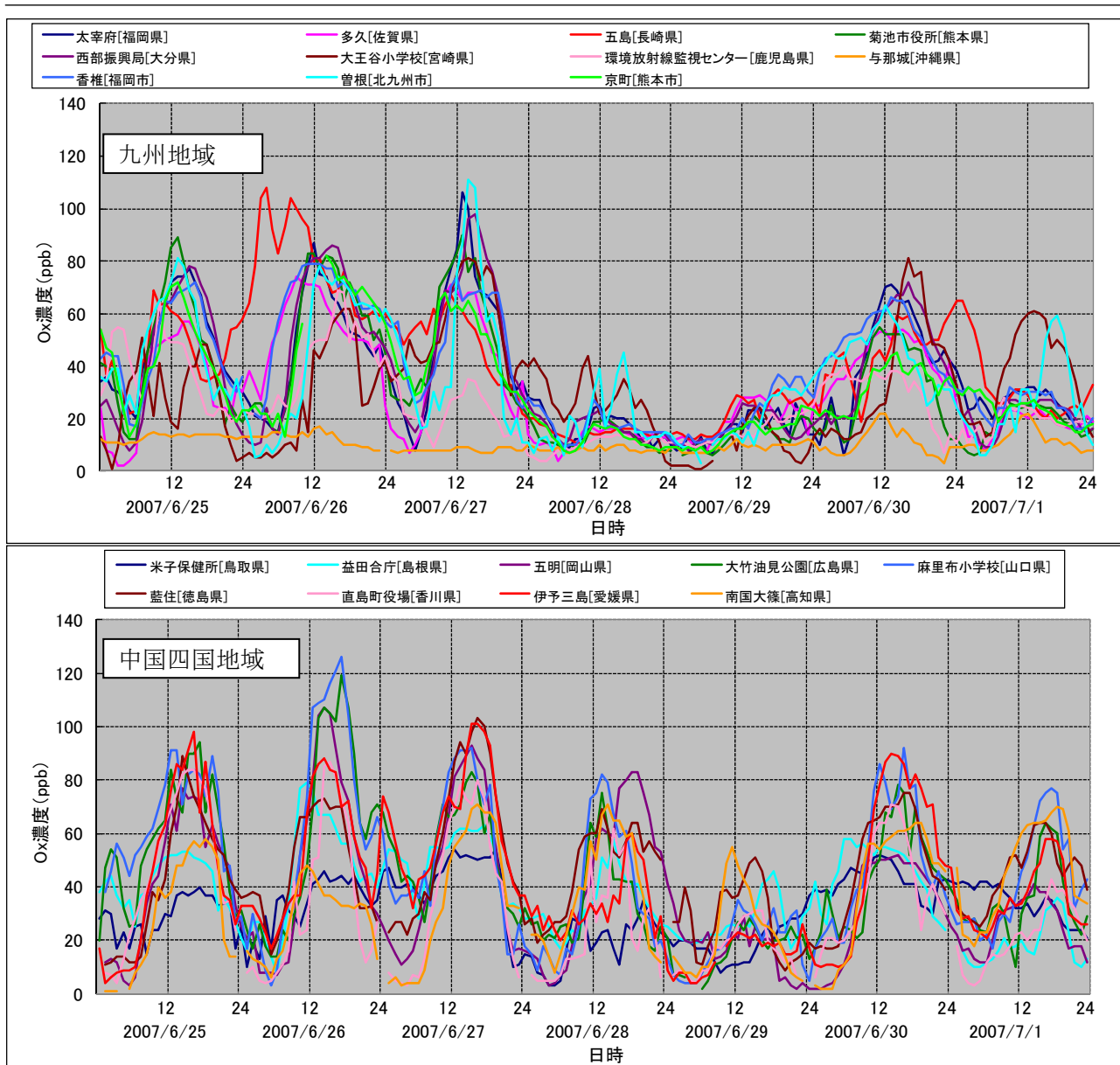


図 4.2.4 九州中国四国地域における Ox 濃度の経時変化

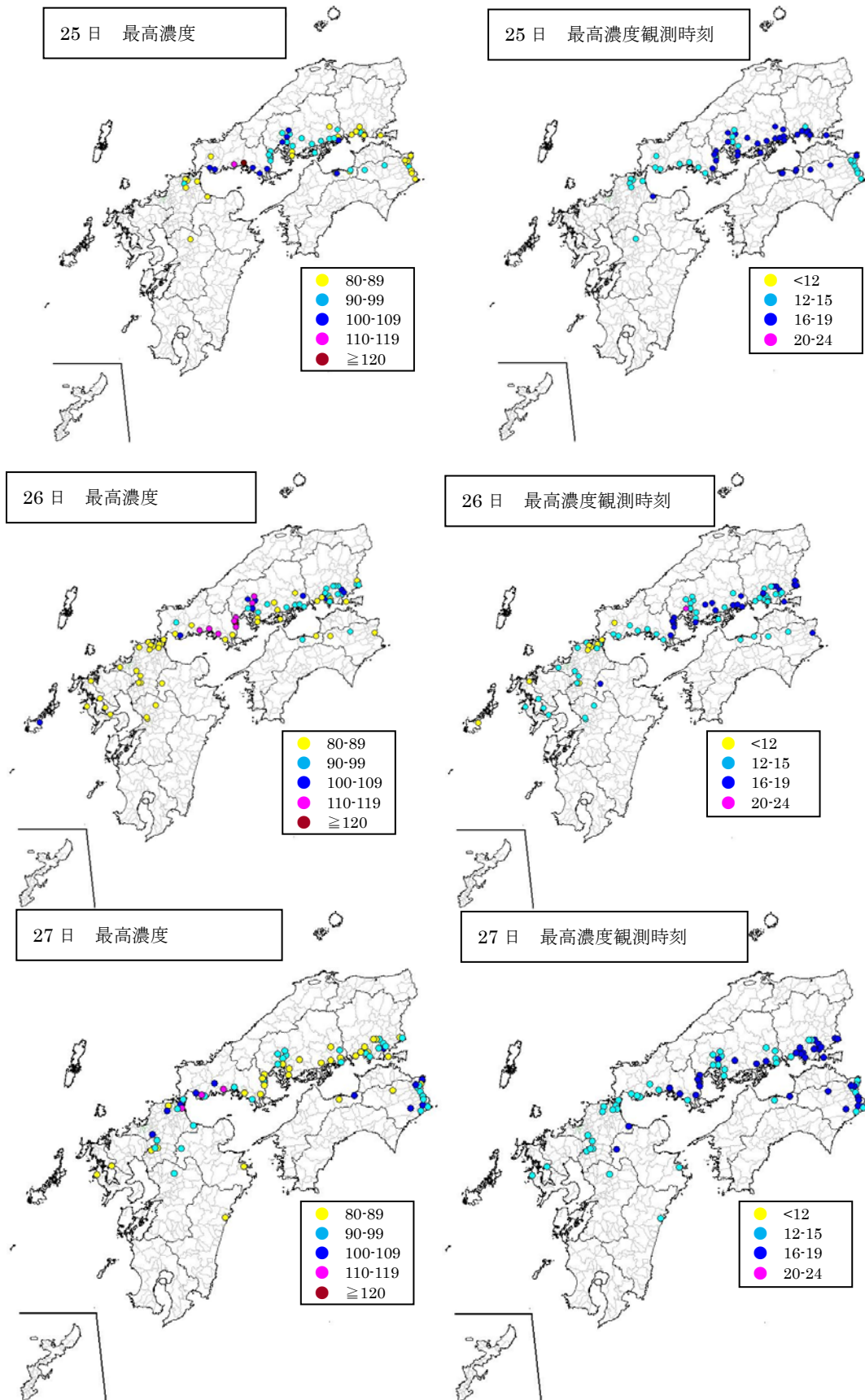


図 4.2.5 九州中国四国地域における各日の高濃度 O₃(O₃≥80ppb)観測局の最高濃度(1時間値)および最高濃度観測時刻の分布

4.高濃度エピソード解析

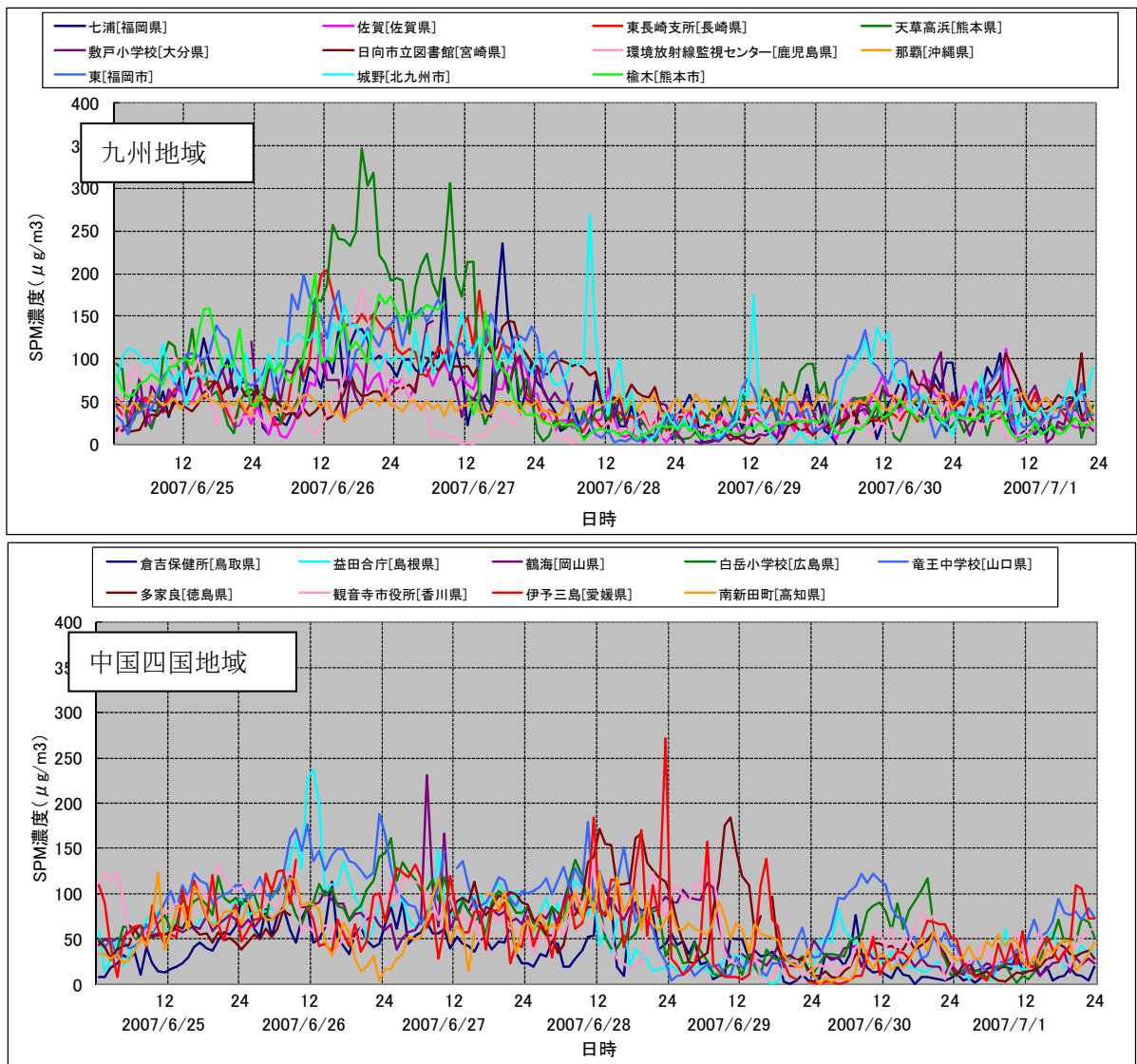


図 4.2.6. 九州中国四国地域における SPM 濃度の経時変化

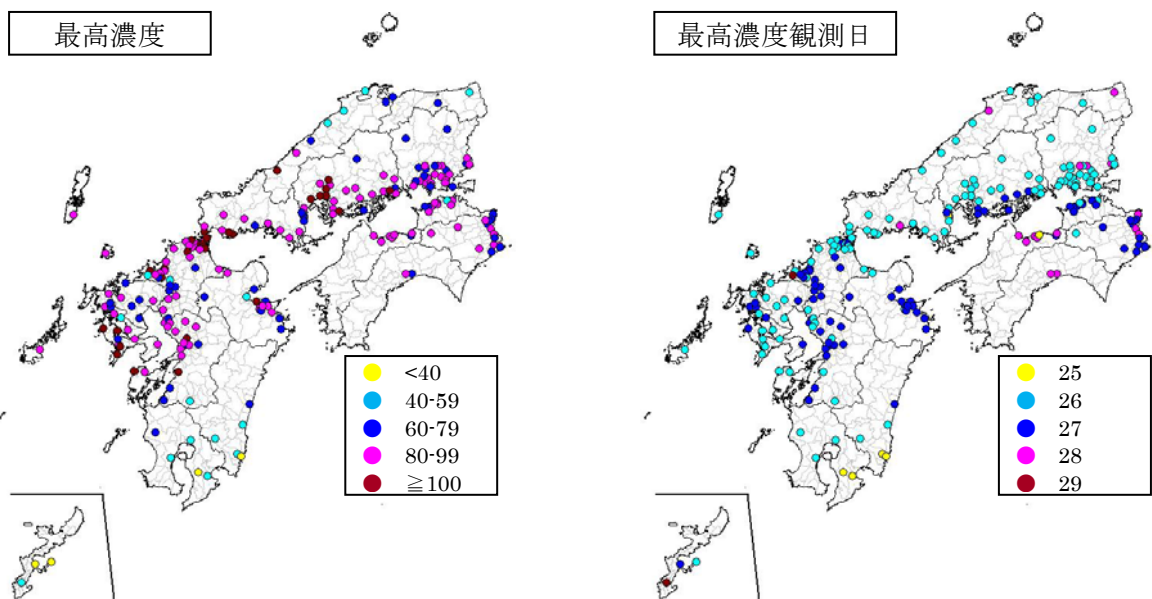


図 4.2.7 九州中国四国地域における SPM 濃度の期間中最高濃度(日平均値)および最高濃度観測日の分布

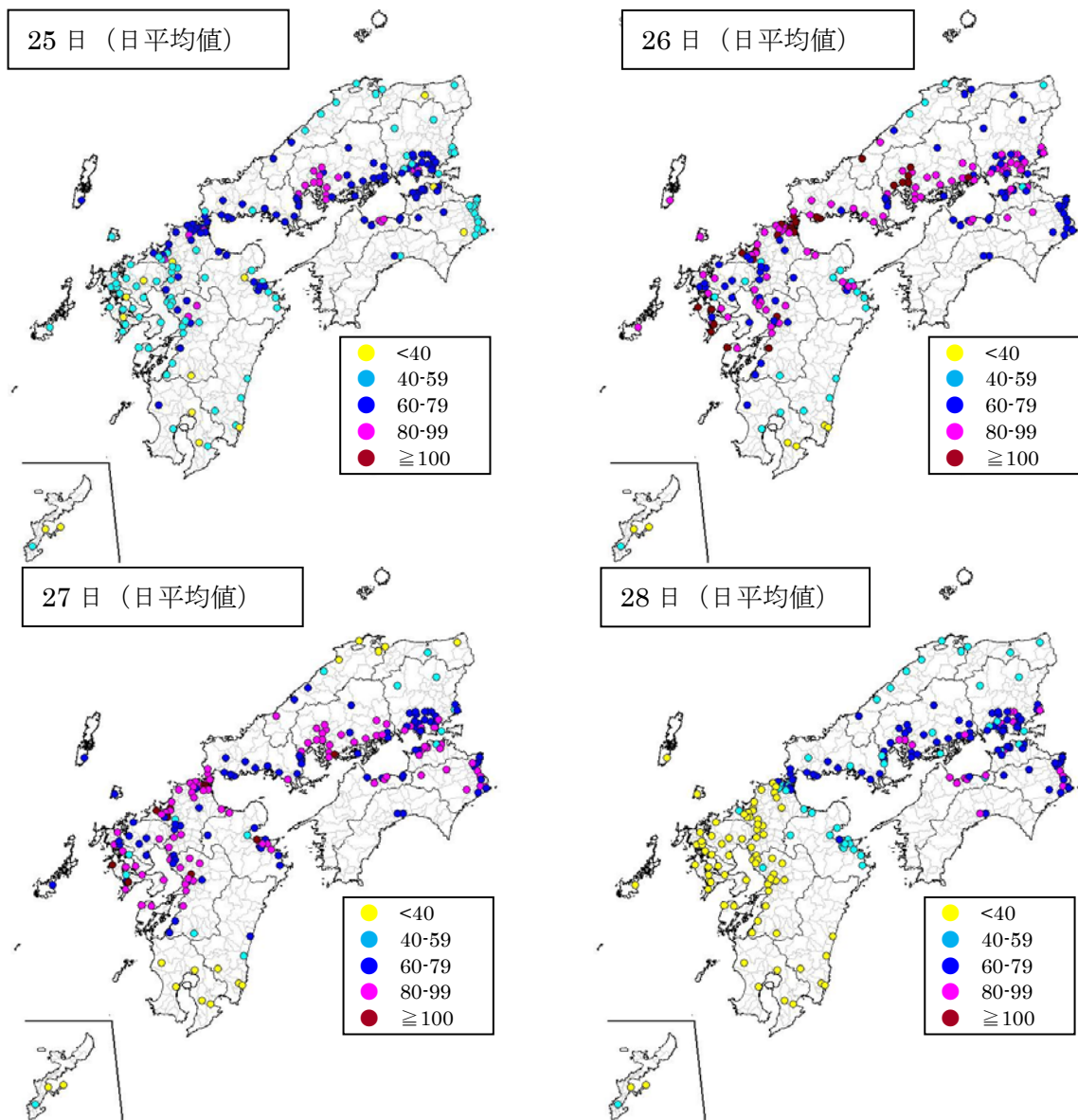


図 4.2.8.九州中国四国地域における各日の SPM 濃度(日平均値)の分布

4.高濃度エピソード解析

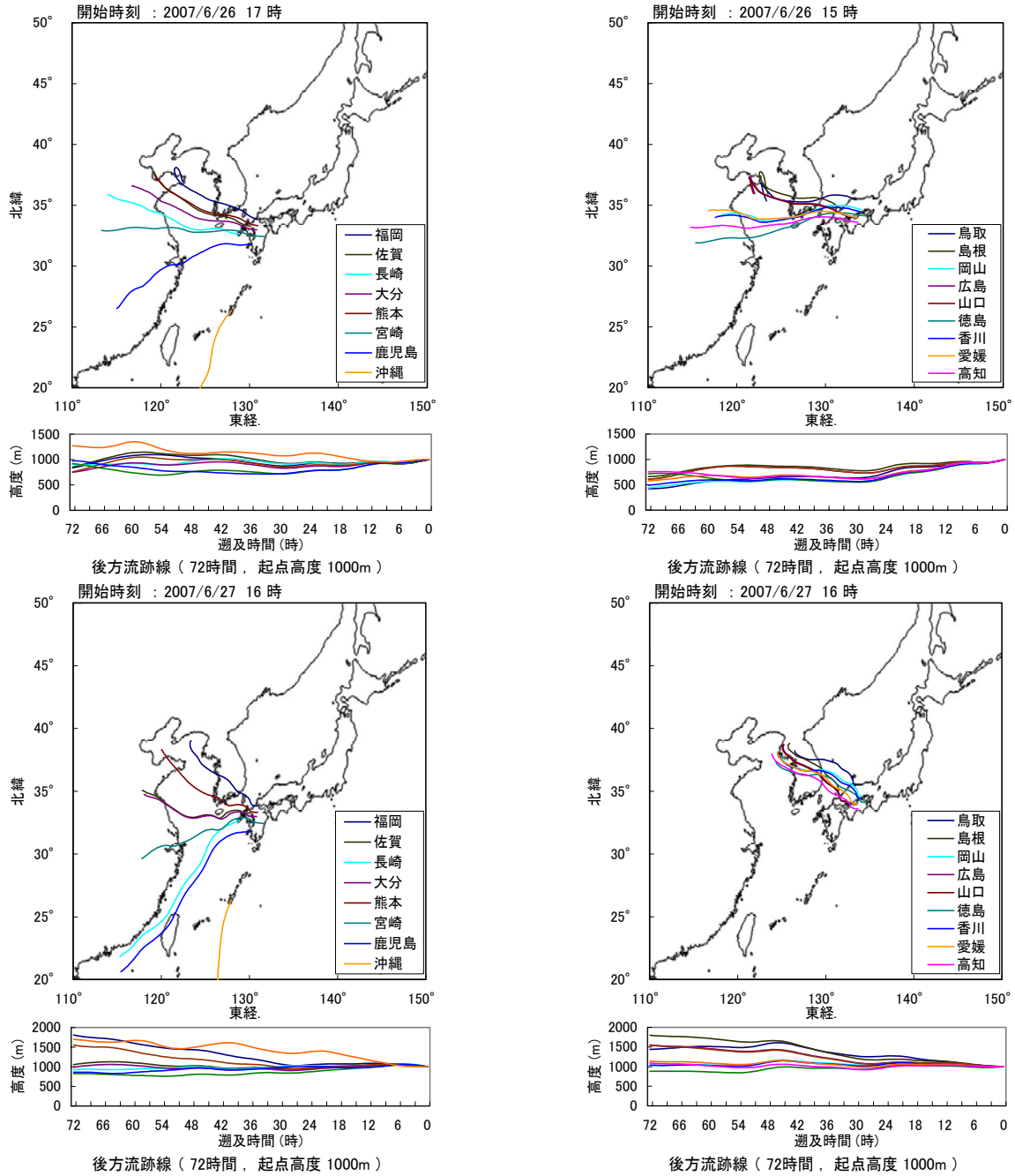


図 4.2.9. 九州中国四国地域における後方流跡線解析の結果(上:26日、下:27日)

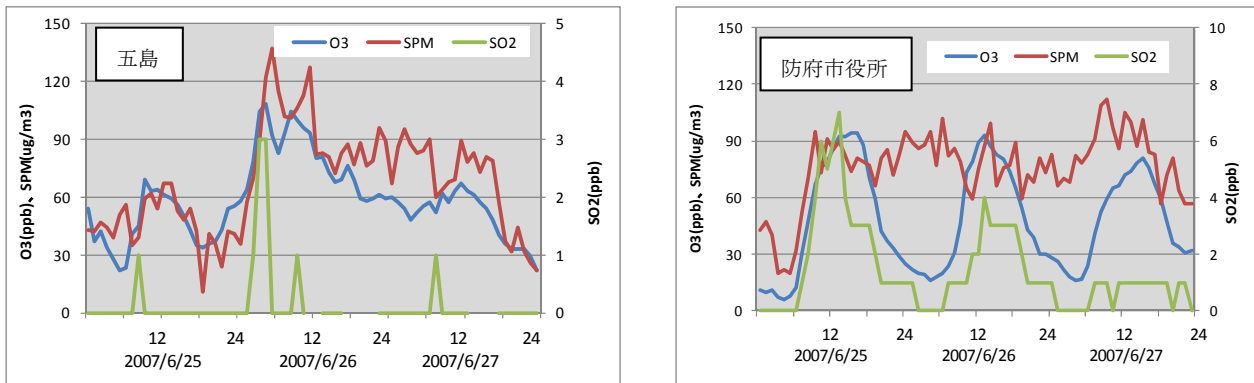
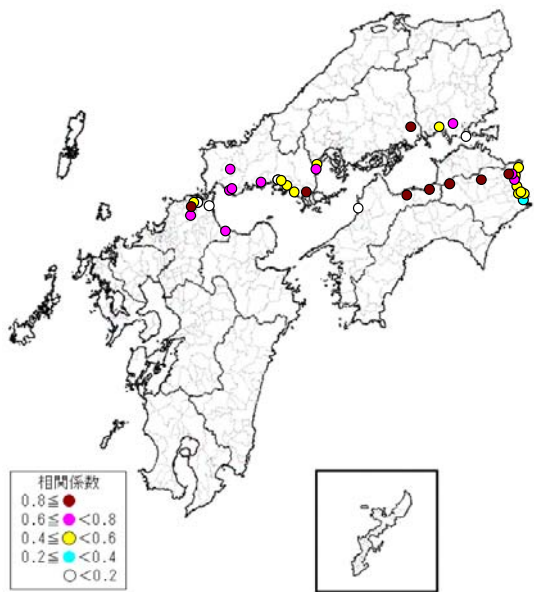
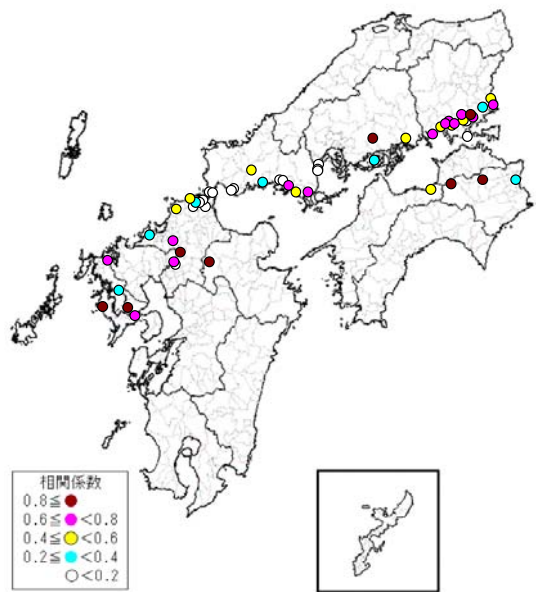


図 4.2.10. 五島(長崎県)、防府市役所(山口県)におけるO_x、SPM、SO₂濃度の経時変化

Ox と SO₂ の相関係数 (≥20h/day)
(2007年6月25日)



OxとSO₂の相関係数 (≥20h/day)
(2007年6月26日)



OxとSO₂の相関係数 (≥20h/day)
(2007年6月27日)

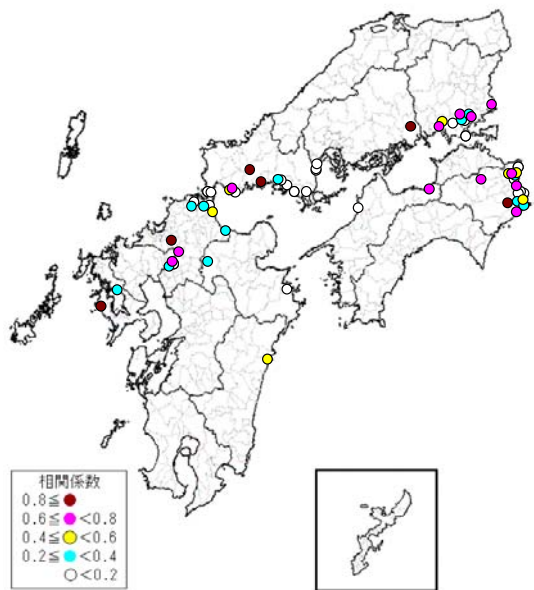


図 4.2.11. 九州中国四国地域における Ox 高濃度観測局(Ox≥80ppb)の Ox と SO₂ の相関

4.高濃度エピソード解析

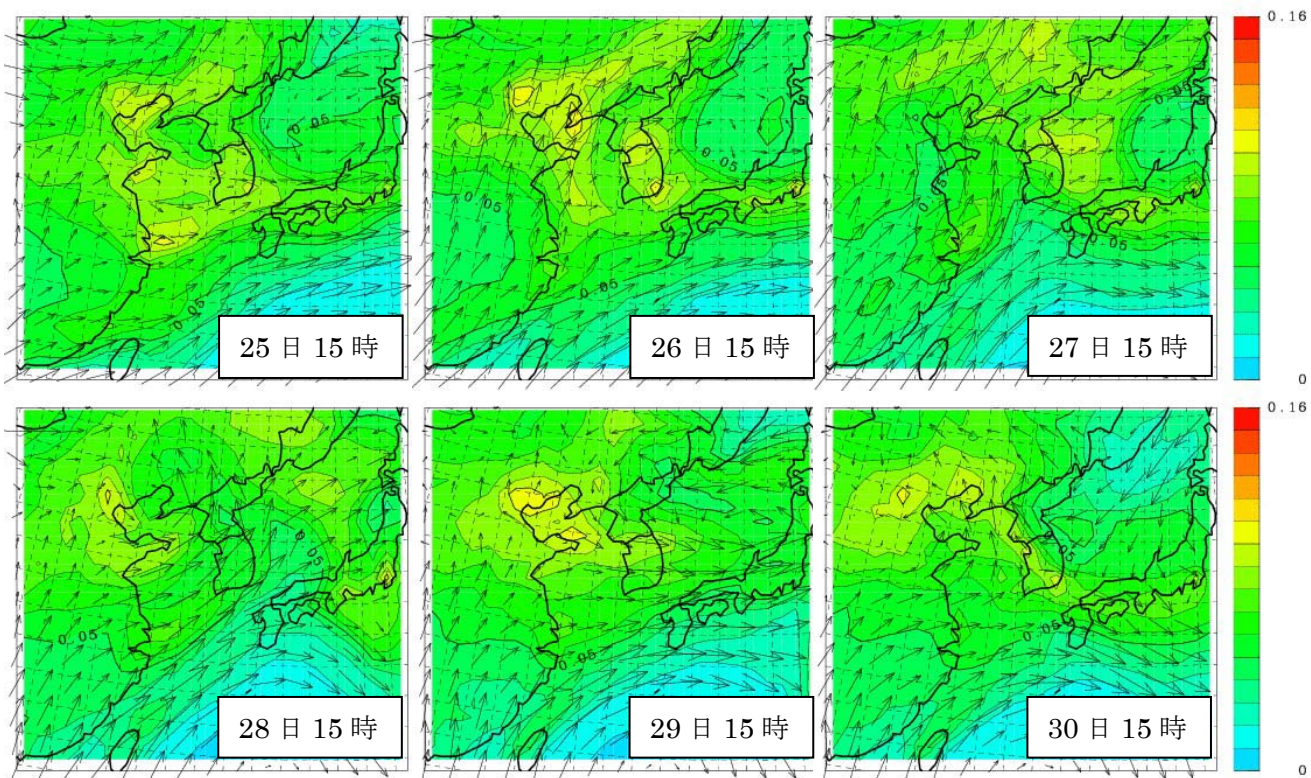


図 4.2.12. O₃ の東アジアスケールにおけるモデル計算の結果(地上約 680m)

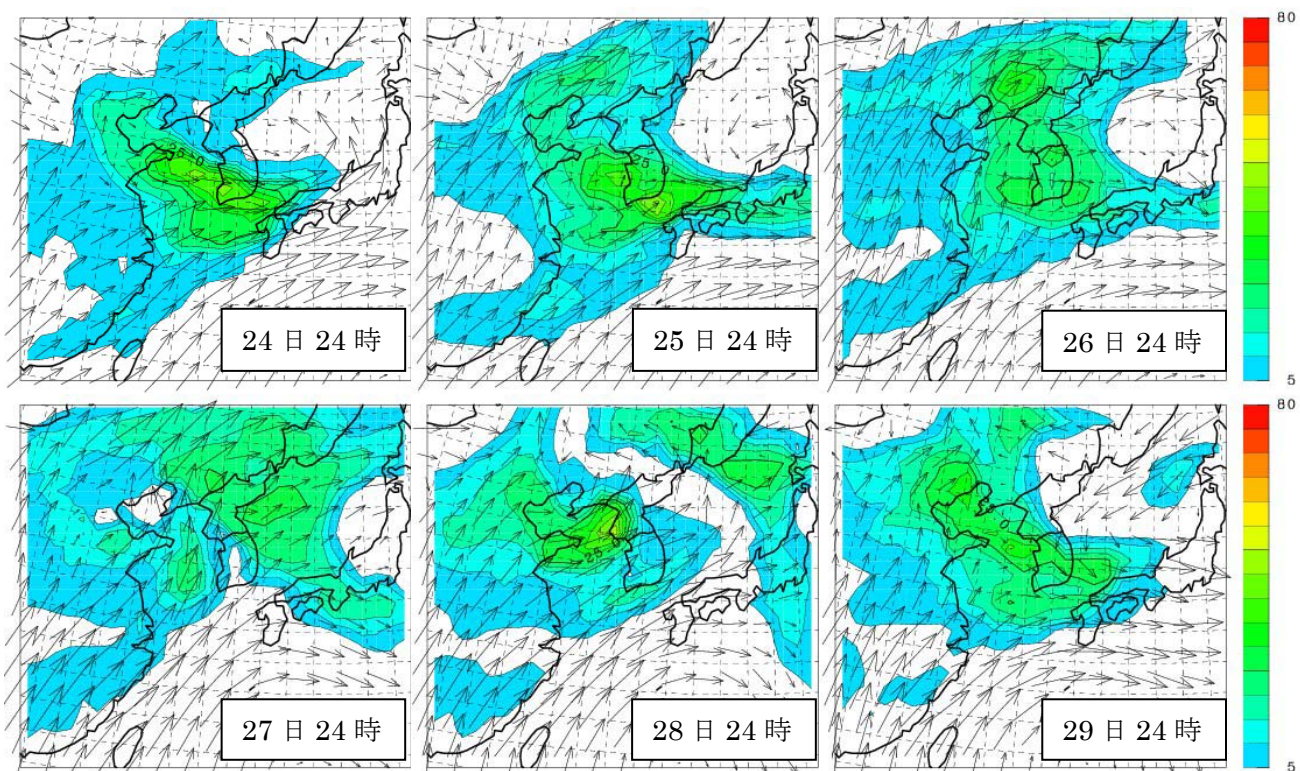


図 4.2.13. 硫酸エアロゾルの東アジアスケールにおけるモデル計算の結果(地上約 680m)

4.2.3. 東海近畿地域の解析

4.2.3.1. SPM 高濃度の特徴

6月26日から29日にかけて、東海近畿地域でもSPM高濃度が発生した(図4.2.14)。特に、濃尾平野の濃度が高くなっている。濃度の経時変化をみると、SPMについては、26～29日の間、高濃度が持続し、プラトーを形成している(図4.2.15)。Oxは、同時期に高い濃度を示したが、経時変化は、通常の日変化を示した(図4.2.16)。6月27日には、愛知県豊橋市と田原市で、咳や胸の苦しさを訴えた人が700人を超えた。

4.2.3.2. 東アジア規模の広域移流の影響

九州大学と国立環境研究所による化学天気予報システムの広域移流予測結果では、28日朝まで硫酸エアロゾルの移流が予測され、松江のライダー観測データでは、27～28日にエアロゾルの飛来がみられる(図4.2.17)。これらのことから、この時期のSPM濃度には、広域移流の寄与があったと考えられる。

4.2.3.3. 地域の風況とSPM濃度

東海近畿地域では、6月26日午後から、気圧傾度風と考えられる風(近畿では北風、濃尾平野では北西風)が吹いている(図4.2.18)。この風が日中の海風とぶつかるところで収束し、SPM高濃度が発生している。特に愛知県の三河湾周辺、兵庫県神戸市～西播磨の南に海があるところで、SPM濃度が高くなった(図4.2.19)。

三河湾周辺では、夜間も海風方向の風が吹き、北西風との収束帯が消滅しなかったため、高濃度が持続された。

29日には、近畿地方では10時頃、濃尾平野では16時頃北西風が強くなり、SPM濃度は低下している。これは、前線が通過したためと考えられ、若干の降水が見られた。この西よりの風は、太平洋高気圧によると考えられる。

前線通過の直前に、SPM濃度のピークが出現している。北風が弱くなり、海風による内陸への移流と、前線性逆転層の発生が原因と考える。

4.2.3.4. 項目間比較

この時期に、名古屋市が行った測定では、微小粒子で硫酸イオンが約50%を占め、通常より割合が高かった。また、ガス状物質では、硝酸が2006年平均値の約6倍の値を示した(表4.2.1,表4.2.2)¹⁾。このことは、地域での2次生成が活発であったことを示しており、東アジア規模の広域移流の寄与と、地元での生成の2つの要因があることを示している。

4.2.3.5. まとめ

2007年6月26～29日にかけて東海近畿地域で発生したSPM高濃度について、以下のことが考察される。

- ①26日午後より、気圧傾度風と考えられる北よりの風が吹き、東アジア規模の広域移流によるエアロゾルが到達した。
- ②北よりの風と海風との間に収束帯が形成され、広域移流の寄与に加えて、収束帯での2次生成が進み、濃度が上昇した。特に愛知県の三河湾周辺や、兵庫県の神戸市～西播磨の南に海があるところで、高濃度が発生した。
- ③29日午前には、北風が弱くなり、海風によるエアロゾルの内陸への移送があったことと、前線の接近による逆転層の形成で、濃度のピークが出現した。
- ④前線通過後、降雨と、太平洋高気圧による西風が強くなり、濃度が低下した。

4.高濃度エピソード解析

参考文献

- 1) 山神ら:2007年6月26-29日に名古屋市で観測された粒子状物質等の高濃度事例解析, 名古屋市環境科学研究所報,38, 23-29 (2008)

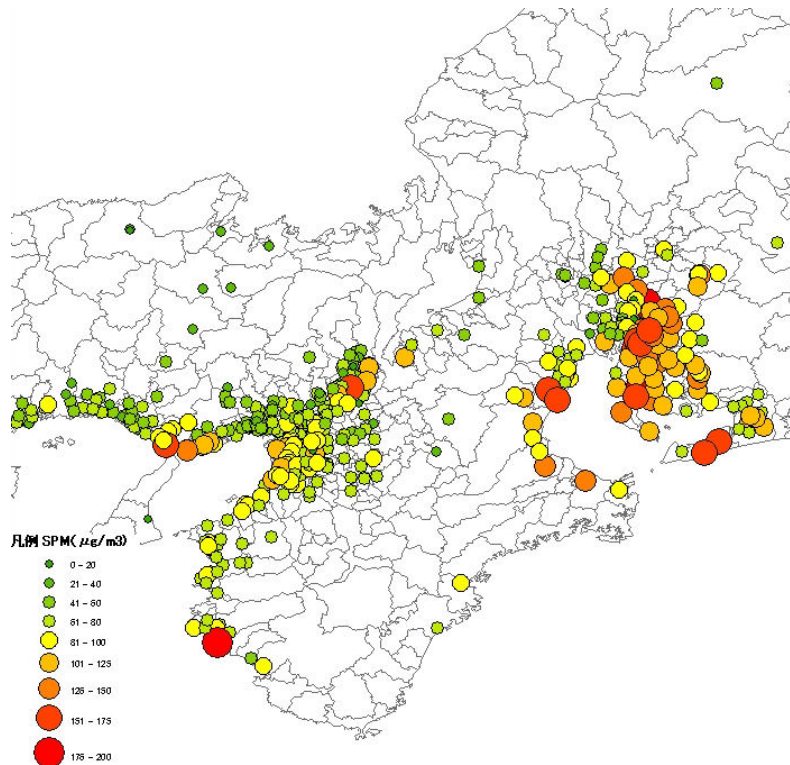


図 4.2.14. 東海近畿地域 SPM 濃度分布(2007年6月28日7時)

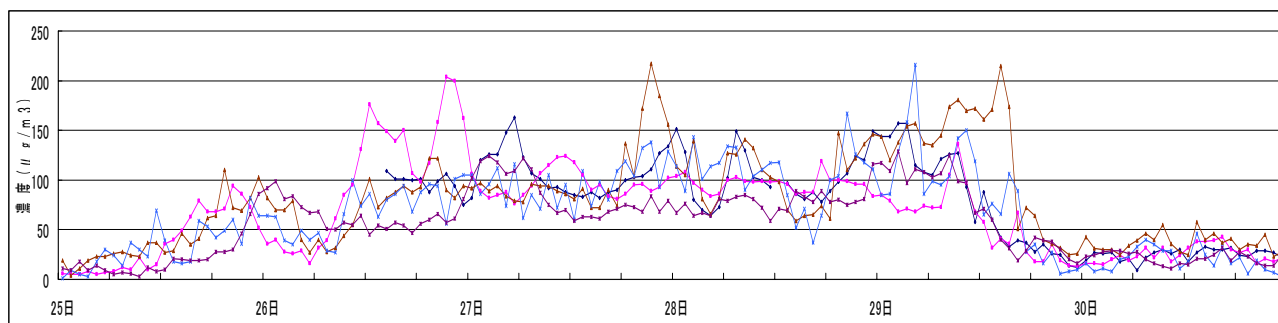


図 4.2.15. SPM 濃度推移(愛知県選定5局のみ)

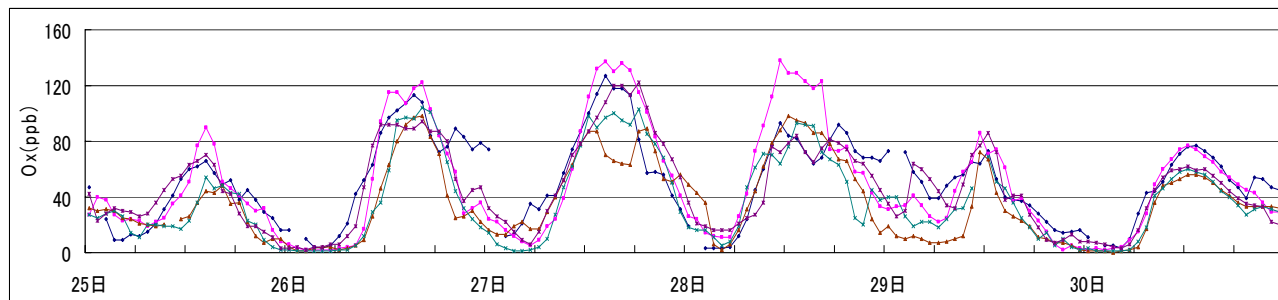


図 4.2.16. Ox 濃度推移(愛知県選定5局のみ)

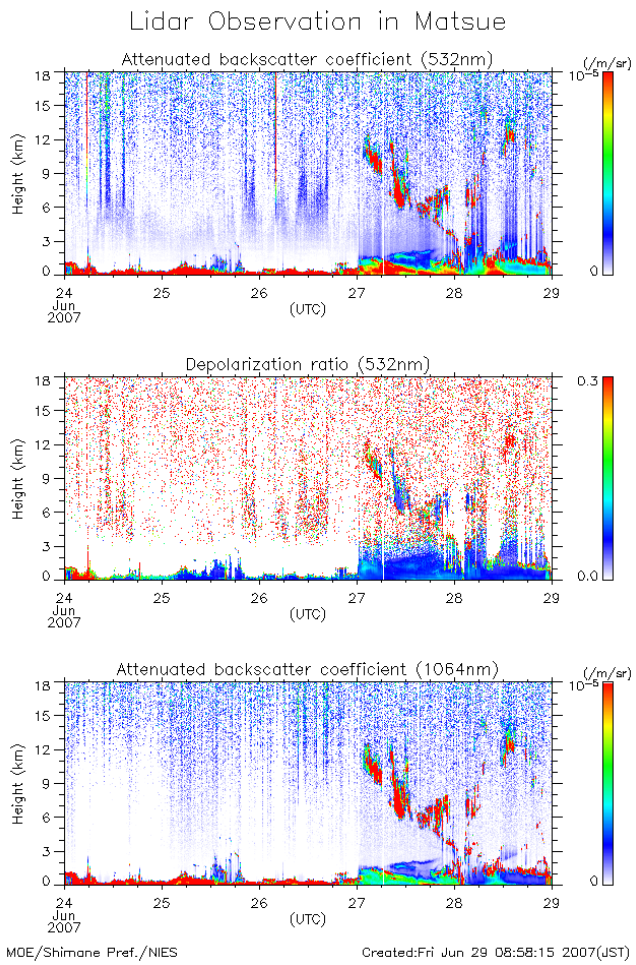


図 4.2.17. ライダー観測データ(松江 2007 年 6 月 24-30 日)

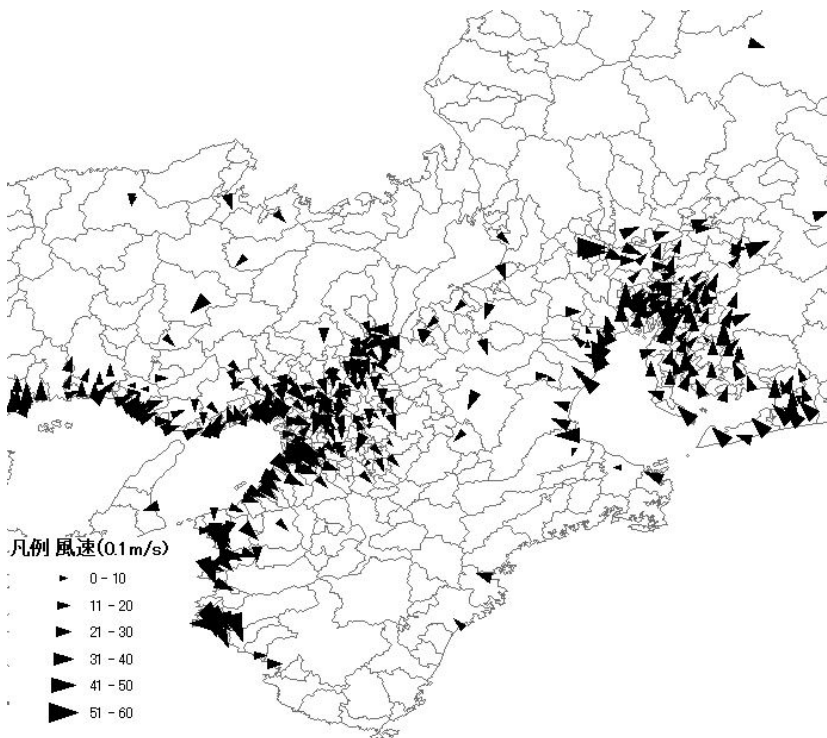


図 4.2.18. 東海近畿地域の風況(2007 年 6 月 27 日 13 時)

4.高濃度エピソード解析

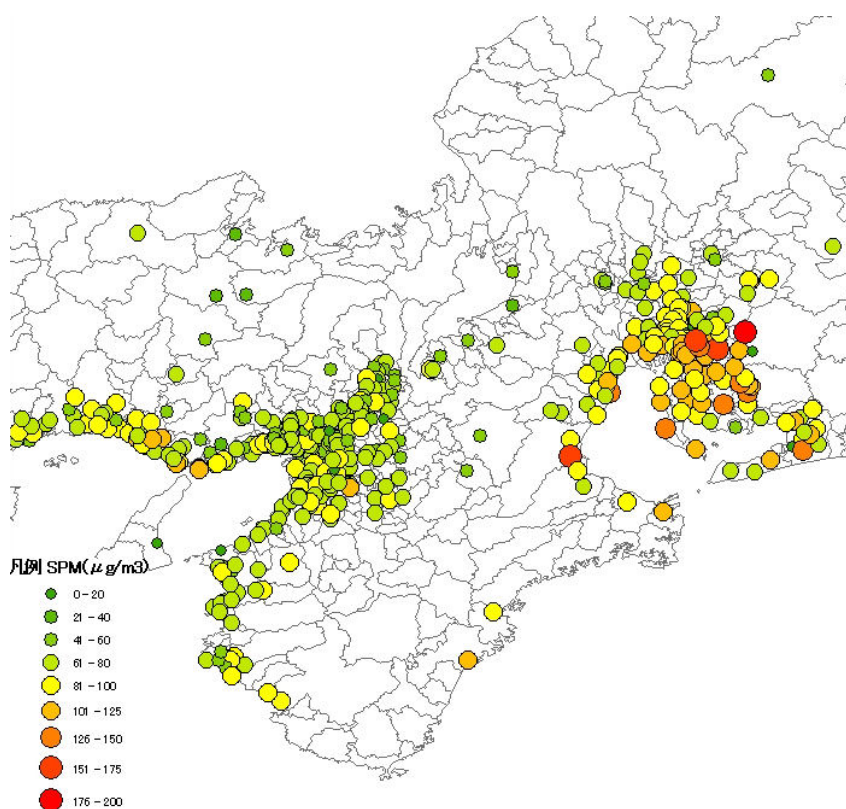


図 4.2.19. SPM 濃度分布図(2007 年 6 月 27 日 13 時)

表 4.2.1. 2007 年 6 月 24-29 日および 2006 年度の PM2.5 分析結果(測定場所:名古屋市環境科学研究所)¹⁾

	PM _{2.5}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	シュウ酸	NH ₄ ⁺	K ⁺	Na ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	OC	EC
濃度 (μg/m ³)												
2007/6/24(日)	11.9	1.8	0.9	0.04	0.10	0.9	0.01	N.D.	N.D.	0.004	1.9	1.6
2007/6/26(火)	60.6	30.0	0.2	0.05	0.45	6.4	0.26	0.03	N.D.	0.02	7.2	4.9
2007/6/27(水)	59.8	35.2	0.8	0.05	0.51	7.5	0.25	N.D.	N.D.	0.02	5.7	4.7
2007/6/28(木)	66.4	35.1	1.1	0.06	0.54	7.5	0.21	N.D.	N.D.	0.02	7.8	5.1
2007/6/29(金)	20.2	9.0	0.2	0.09	0.18	2.6	0.12	N.D.	N.D.	0.02	3.4	3.1
2006年度平均	23.3	5.7	1.5	0.3	—	2.3	0.18	0.21	0.06	0.02	4.5	2.9

N.D.: 検出限界以下

表 4.2.2. 2007 年 6 月 28 日および 2006 年度のフィルターパック分析結果(測定場所:名古屋市環境科学研究所)¹⁾

	粒子 (μg/m ³)				ガス(ppb)			
	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	SO ₂	HCl	HNO ₃	NH ₃
2007年6月28日	18.5	3.7	ND	8.2	4.9	1.4	4.3	10.1
参考(鳴海)								
2006年度平均	3.1	1.8	0.3	0.8	1.2	0.7	0.7	4.3
2006年6月	3.8	1.2	0.1	1.4	1.0	0.8	0.9	5.0

4.3. 2007年7月24日～29日における高濃度エピソード解析

4.3.1. 気象・汚染概況

4.3.1.1. 気象概況

この時期は、梅雨明け(九州北部、中国、四国:23日、近畿:24日)直後で、西日本から関東で猛暑日がみられた。西日本での等圧線の幅は広く、気圧傾度が小さかった(図4.3.1)。

4.3.1.2. 汚染概況

全国的なOx分布では、関東、東海、近畿から九州に至る瀬戸内海沿岸、九州北部で100ppbを超える高濃度が発生した(図4.3.2)。24日は、関東、西日本に高濃度がみられ、25日には関東、東海、近畿、中国、四国で、27,28日には、関東、東海、近畿で高濃度がみられた。

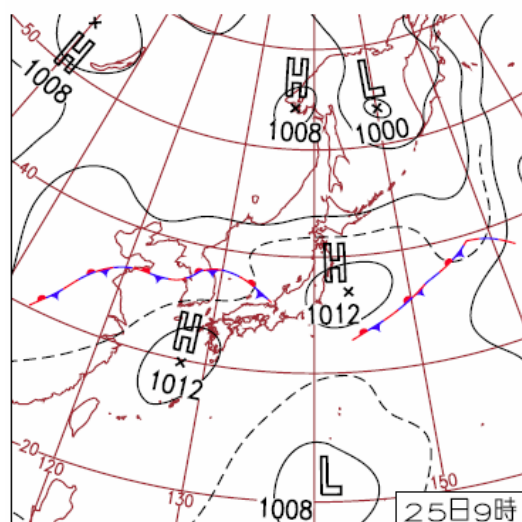


図4.3.1. 2007年7月25日9時の天気図

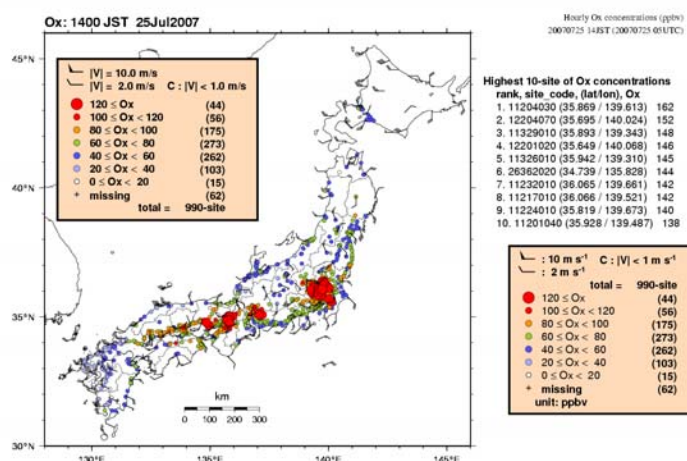


図4.3.2. 2007年7月25日14時のO₃濃度分布

4.3.2. 中国四国地域の解析

中国四国地域における高濃度の要因を検討するため、(1)気象状況、(2)O₃濃度の時空間変化、

4.高濃度エピソード解析

(3)SPM 濃度の時空間変化、(4)離島測定局における大気汚染物質濃度の経時変化、(5)後方流跡線解析、(6)大気汚染物質間の関係について解析を行った。気象の解析には、気象庁の天気図や地上気象官署およびアメダスの観測データを使用した。Ox、SPM 等大気汚染物質については、C型研究で整備された49自治体の大気汚染常時監視測定データ(1時間値)およびEANET測定局の測定データを用いた。後方流跡線については、国立環境研究所地球環境研究センターから提供されている「CGER METEX」を用いて、各自治体のOx最高濃度観測局における上空1000mを初期値として三次元法による解析(3日間遡及)を実施した。

4.3.2.1. 気象状況

アメダス観測局における地上風向風速の状況は、24日は日本海上の高気圧圏内にあり、中国四国地域沿岸部では全般的に概ね海陸風が見られた。25日は日本海を通過する前線の影響で日本海側では日中は西系の風が卓越していた。瀬戸内海側で昼頃まで陸海風が見られたが、それ以降は西系の風に変化した。太平洋側は全般的に海陸風が見られた。26日は、全般的に日中は西系の風が卓越していたが夜になると風は収まり、27日は全般的に海陸風となった。28日は東シナ海上の高気圧と北日本にある低気圧の影響で日中は全般的に西系の風が卓越したが、夜間は風速も弱まり全般的に沿岸部では陸風が見られた。29日は、日本海側東部では朝方は全般的に西系の風が卓越していたが、昼頃から次第に北東よりの風に変化した。日本海側西部では、九州地域北部を含めた広い範囲にわたって西～北西の風が卓越していた。瀬戸内海側および太平洋側は全般的に海陸風が見られた。また、高濃度Ox観測時の高松および福岡(海拔高度約1.5km以下)における高層の風向風速は、24～28日昼頃までは全般的に西～北西の風が卓越していたが、28日夜～30日にかけては、やや北よりに風向が変わり北西～北の風が卓越した。

気温は、期間を通して平年値より高めのところが多く、特に瀬戸内海側は日最高気温が連日30℃を超える地域が多く見られた。日射量も気温と同様に多くの地域で概ね期間を通して平年値より大きい値を示した。

26日を除き期間を通して高濃度Oxが観測された瀬戸内海側では、全般的に海陸風となることが多く、また日最高気温が連日30℃を超え日射量も平年値より大きい値を示す日が多いなど高濃度Oxになりやすい気象条件であったことが窺える。

4.3.2.2. Ox濃度の時空間変化

(1) Ox濃度の経時変化

各自治体で最高濃度を観測した測定局におけるOx濃度の経時変化を図4.3.3に示す。概ね期間を通して日中の14～17時にピークを示す日変動パターンを示した。日ごとにみると、24日は、瀬戸内海側の測定局はいずれも80ppbを超える高濃度が観測され、倉敷美和[岡山県]、向丘中学校[広島県]、麻里布小学校[山口県]、泉川[愛媛県]の4局では14～17時にかけて100ppbを超えた。特に、倉敷美和[岡山県]と麻里布小学校[山口県]ではOx注意報レベルの120ppbを超える高濃度が観測され、期間中最高濃度(140ppb:15時)を観測した岡山県ではOx注意報が発令された。25日も麻里布小学校[山口県]、泉川[愛媛県]で15～16時にかけて100ppbを超えるなど、瀬戸内海側の測定局はいずれも80ppbを超える高濃度を観測した。26日は全般的に一旦濃度が低下するが、27～29日にかけては麻里布小学校[山口県]と由岐[徳島県]で14～18時に100ppbを超えるなど概ね瀬戸内海側では80ppbを超える高濃度が観測された。また、28日夜から29日朝方にかけて、向丘中学校[広島県]、麻里布小学校[山口県]では濃度上昇が認められた。一方、日本海側と太平洋側では、28日を除き瀬戸内海側のような高濃度はほとんど観測されず、概ね70ppb以下で推移していた。28日は日本海側の浜田合庁[島根県]において夕方以降濃度が上昇し20時に80ppbを観測している

が、島根県の他の測定局においても同様に夕方以降の濃度上昇が確認された。

(2) O_x 濃度の空間分布

九州中国四国地域における高濃度 O_x ($O_x \geq 80\text{ppb}$) 観測局の期間中最高濃度（1時間値）および最高濃度観測日の分布を図 4.3.4 に、各日の最高濃度および最高濃度観測時刻の分布を図 4.3.5 に示す。高濃度観測局は瀬戸内海沿岸地域と九州地域北部に集中しており、岡山県と広島県では 120ppb を超える測定局が複数見られた。最高濃度観測日は瀬戸内海沿岸地域の大半は 24-25 日で、九州地域北部はほとんどが 29 日であった。高濃度観測局の空間分布を日ごとにみると、24~28 日は測定局数の増減は見られるものの期間を通して空間分布に大きな違いは見られず、いずれの日も瀬戸内海沿岸地域に集中しており、最高濃度観測時間も大半が日中の 14-16 時であった。29 日は、瀬戸内海沿岸地域だけでなく九州地域北部にかけての広い範囲で 80ppb を超える高濃度が観測された。最高観測時刻は山口県東部以東では日中の 14~16 時が多いが、山口県西部~九州地域北部においてはほとんどの測定局が 17~21 時の時間帯で、南側の測定局ほど時刻が遅くなる傾向がみられた。

4.3.2.3. SPM 濃度の時空間変化

(1) SPM 濃度の経時変化

各自治体で日平均最高濃度を観測した測定局における SPM 濃度の経時変化を図 4.3.6 に示す。SPM 濃度は 24 日昼頃から概ね全域的に濃度が上昇し、25 日には中国地域の 5 局で $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、特に益田合庁[島根県]、呉西消防署[広島県]、竜王中学校[山口県]では継続的に $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測された。26 日も全般的に濃度上昇傾向が認められ、中国地域の 5 局に加え藍住[徳島県]、稲生[高知県]でも $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。27 日は全般的に濃度がやや低下したが、28 日には再び濃度が上昇し、鳥取保健所[鳥取県]は昼頃から、益田合庁[島根県]と竜王中学校[山口県]は夕方から継続的に $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超えた。29 日は、いずれの測定局も $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、益田合庁[島根県]と呉西消防署[広島県]では $200 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度を観測した。ピークの観測時間は日本海側で 12~15 時、瀬戸内海側および太平洋側では 17 時以降で、南側ほど遅い傾向が見られた。

(2) SPM 濃度の空間分布

九州中国四国地域における各日の SPM 濃度（日平均値）の分布を図 4.3.7 に、SPM の期間中最高濃度（日平均値）および最高濃度観測日の分布を図 4.3.8 に示す。SPM 濃度の空間分布を日ごとにみると、24 日はほぼ全域的に $40 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であったが、25~26 日にかけて全域的に濃度が漸増し、日本海側西部と瀬戸内海側では $60 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局が多く見られた。27 日には全域的に一旦濃度は低下するが 28~29 日にかけて再び濃度が上昇し、29 日はほとんどの測定局で期間最高濃度となり、特に瀬戸内海側では $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られた。また、29 日は九州地域においても北部を中心に $80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局が複数見られた。

中国四国地域全域的に高濃度となった 28~29 日における SPM 濃度（1時間値）の分布をみると（図 4.3.10）、28 日夜から北陸地域、近畿地域、東海地域および中国四国地域の広い範囲で濃度が上昇し始め、29 日朝方には北陸地域と東海地域を中心に $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える測定局が複数見られた。その後、高濃度域は西側へ移動し、昼以降は近畿地域~中国四国地域~九州地域北部にかけて $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度観測局が多く見られた。29 日の九州中国四国地域における高濃度 SPM 観測局（SPM（1時間値） $\geq 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$ ）の最高濃度（1時間値）および最高濃度観測時刻の分布を見ると（図 4.3.9）、中国地域西部と九州地域北部の広い範囲で $150 \mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測されており、最高濃度の観測時刻は O_x と同様に、南側の測定局ほど時刻が遅くなる傾向がみられた。

4.3.2.4. 離島測定局における大気汚染物質濃度の経時変化

離島測定局である隠岐[島根県]、五島[長崎県]の大気汚染物質濃度の経時変化を図4.3.11に示す。隠岐[島根県]においては、24～26日にかけてOxの大幅な上昇は認められず概ね60ppb以下で推移していたが、27日昼頃から夜遅くにかけてOx濃度が87ppbまで上昇し、Oxとほぼ同期してPM10、PM2.5、SO₂の濃度上昇が認められた。その後いずれも一旦濃度は低下するが、28日昼頃から29日朝方にかけて再びOx、PM10、PM2.5、SO₂の4物質の濃度がほぼ同期して上昇した。この時、PM10は80 μ g/m³を超えたが、Oxは最大で65ppb程度であった。五島[長崎県]では、28日まではOxの大幅な上昇は認められず概ね60ppb以下で推移していたが、29日は夕方から夜間にかけて濃度が上昇し、17～18時にかけて117ppbを観測した。この時、Oxとほぼ同期してSPM濃度も約200 μ g/m³まで上昇した。

壱岐[長崎県]においても、Oxは五島[長崎県]とほぼ同様の挙動を示し、28日までは概ね60ppb以下で推移していたが、29日は昼過ぎから夕方にかけて濃度の上昇が認められ17～18時に89ppbを記録し、これと同期してSPM、SO₂の濃度も上昇していた。対馬[長崎県]では、期間を通してOxは50ppb以下で推移しており大幅な上昇は認められなかったが、SPMは他の3局と同様に28～29日にかけて100 μ g/m³を超える高濃度が観測された。この時の各測定局の高濃度PM(SPM、PM10、PM2.5)のピーク出現時間は南側の測定局ほど遅くなる傾向が見られた。

各測定局において、27日以降、Ox濃度上昇時にほぼ同期してPM(SPM、PM10、PM2.5)の濃度上昇が認められており、OxとPMの同時移流が示唆された。

4.3.2.5. 後方流跡線解析

中国四国地域におけるOx最高濃度観測局の後方流跡線の結果を図4.3.12に示す。24日は、水平方向にやや散らばっており日本海上や黄海上を通過して気塊が到達していた。25日は、一般的に東シナ海～九州地域北部沿岸を通過して気塊が到達していた。26日は、高度約1000～1500mで中国東岸の江蘇省～朝鮮半島を通過して気塊が到達していた。27～29日にかけては一般的に移流経路がやや北側にシフトし、渤海湾沿岸周辺～朝鮮半島を経由して気塊が移流していた。

高濃度Oxが観測された期間前半の24-25日にかけては日本海や東シナ海等種々の方向から気塊は流入しているが、26日以降は中国東岸の江蘇省・山東省～朝鮮半島を経由して気塊が移流していた。また、高濃度Ox観測時における離島測定局の後方流跡線の結果も、同様に中国東岸～朝鮮半島を経由して気塊が移流していた。

4.3.2.6. 大気汚染物質間の関係

Ox最高濃度観測局である由岐[徳島県]のOx、SPMおよびSO₂濃度の経時変化を図4.3.13に示す。期間を通してOxとSO₂は日中に濃度が上昇する類似した日変動を示すのに対し、SPMは明確な日変動は見られずOxとは異なる変動パターンを示した。他の測定局も多くは概ね同様な挙動を示した。

Ox高濃度観測局(Ox \geq 80ppb)のOxとSO₂の相関係数の分布を図4.3.14に示す。OxとSO₂の相関は、26、28日を除き概ね期間を通して正の相関を示す測定局が多く見られた。特に、29日は瀬戸内海側から九州地域北部の広い範囲にかけて高い正の相関を示す局が多く見られた。ただし、SO₂濃度については、期間中の他の高濃度Ox観測日と比べ、中国四国地域では一般的に明確な濃度差は認められず、九州地域でも複数の測定局で濃度上昇が認められたが、上昇幅はそれほど小さくなく10ppbを超える高濃度観測局は少なかった。

4.3.2.7. まとめ

2007年7月24～29日の高濃度エピソードの特徴について、気象状況、濃度の時空間分布等から解析した結果を以下に示す。

(1) 気象状況は、期間を通して東シナ海上の高気圧に覆われ気圧傾度が小さく、高濃度 O_x が観測された瀬戸内海側では期間を通して全般的に陸海風が多く見られた。また、瀬戸内海側では日最高気温が連日 $30^{\circ}C$ を超え日射量も平年値より大きい値を示す日が多いなど、高濃度 O_x になりやすい気象条件であった。

(2) O_x 濃度は、26日を除き期間を通して瀬戸内海側を中心に高濃度となり、岡山・広島・山口・愛媛・徳島の5県で $100ppb$ を超える高濃度が日中の14～17時にかけて観測された（最高濃度： $140ppb$ （24日15時 岡山県））。一方、日本海側と太平洋側では高濃度はほとんど観測されず、28日を除き概ね $70ppb$ 以下で推移していた。29日は瀬戸内海側から九州地域北部にかけて $80ppb$ を超える高濃度が観測されており、高濃度の観測時刻は南側の測定局ほど遅くなる傾向がみられた。

(3) SPM 濃度は O_x と時間変動パターンが異なり概ね25～26日と29日に2つのピークを示し、特に29日は $100\mu g/m^3$ （1時間値）を超える高濃度がほとんどの測定局で観測された。28～29日にかけては中国四国地域だけでなく北陸地域から九州地域北部まで広範囲で高濃度が観測されており、高濃度域は時間の経過とともに南西側へ移動していた。

(4) 離島測定局では、 O_x は26日までは各局とも高濃度は観測されなかったが、27日以降は隠岐（27日）、五島、壱岐（29日）で $80ppb$ を超える高濃度が観測され、 O_x 濃度上昇とほぼ同期してPM（SPM、PM₁₀、PM_{2.5}）、 SO_2 の濃度上昇が認められた。また、28～29日にかけては、4測定局とも高濃度PMが観測されたが、ピーク出現時間は南側の測定局ほど遅くなる傾向が見られた。

(5) 後方流跡線は、24～25日にかけては日本海や東シナ海等種々の方向から気塊が移流していたが、26日以降は中国東岸の渤海湾周辺地域～朝鮮半島を経由して気塊が到達しており、その経路は徐々に北側にシフトしていた。高濃度 O_x 観測時の離島測定局の後方流跡線の結果も、ほぼ同様の結果を示した。

(6) O_x 、SPM、 SO_2 濃度の経時変化は、全般的に期間を通して O_x と SO_2 は類似した日変動を示すのに対しSPMは O_x と異なる変動パターンを示した。また、 O_x 高濃度観測局の O_x と SO_2 の相関は、概ね期間を通して正の相関を示す測定局が多く見られ、特に、29日は瀬戸内海側から九州地域北部の広い範囲にかけて高い正の相関を示す局が多く見られた。ただし、 SO_2 濃度レベルについては、期間中の他の高濃度 O_x 観測日と比べ、明確な濃度上昇を示す測定局は少なかった。

本事例の特徴としては、26日を除き期間を通して瀬戸内海側を中心に観測された高濃度 O_x と、期間後半の28～29日に中国四国地域全域で観測された高濃度 SPM が挙げられる。

瀬戸内海側における高濃度 O_x の主要因としては、(1)、(2)、(4)、(6)の解析結果を踏まえると、地域汚染による影響が大きいことが考えられた。一方、高濃度 SPM の要因については、(3)～(5)の観測結果から越境汚染による影響が大きいことが考えられる。国立環境研究所による松江、長崎でのライダー観測によれば、松江で28日夜から29日夜、長崎で29日に球形粒子の強いシグナルが確認されている（図4.3.15）。また、鶴野らのCFORSによる硫酸エアロゾルのシミュレーション結果では、28～29日にかけて中国渤海湾周辺にある高濃度硫酸エアロゾルを含む気塊が朝鮮半島を経由して北側より西日本域に移流していた（図4.3.16）。ライダー観測およびシミュレーションの結果はSPMの観測結果と概ね一致しており、越境汚染による影響が大きいことを支持している。 O_x についてもSPMとの同時移流による影響が考えられるが、日本海側や離島測定局における観測結果（ O_x 濃度レベルや高濃度観測時刻）、後方流跡線解析の結果等を考慮すると、瀬戸内海側の高濃度 O_x に及ぼす影響はそれほど大きくないと推察される。

4.高濃度エピソード解析

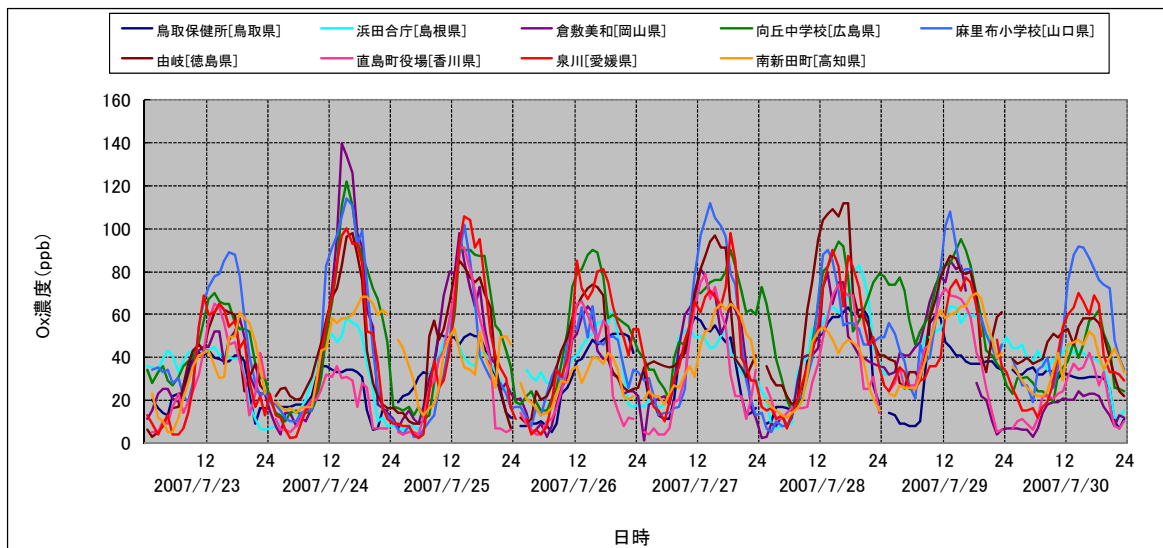


図 4.3.3. 中国四国地域の O_x 最高濃度観測局における O_x 濃度の経時変化

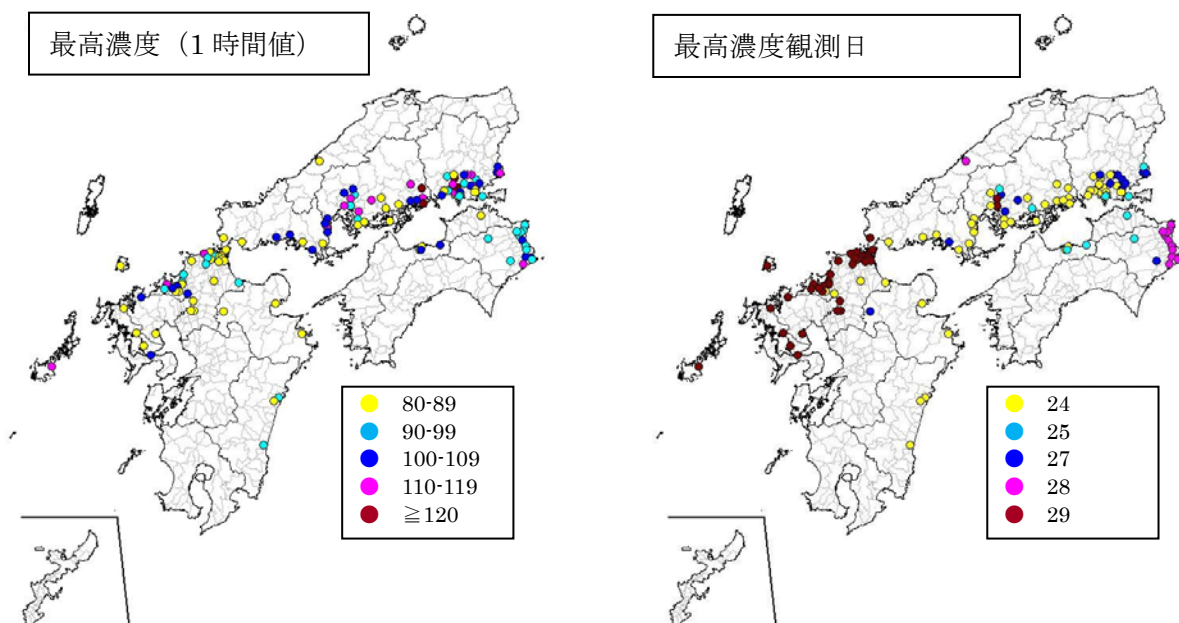


図 4.3.4. 九州中国四国地域における O_x 高濃度観測局 (O_x ≥ 80ppb) の期間最高濃度 (1 時間値) および最高濃度観測日の分布

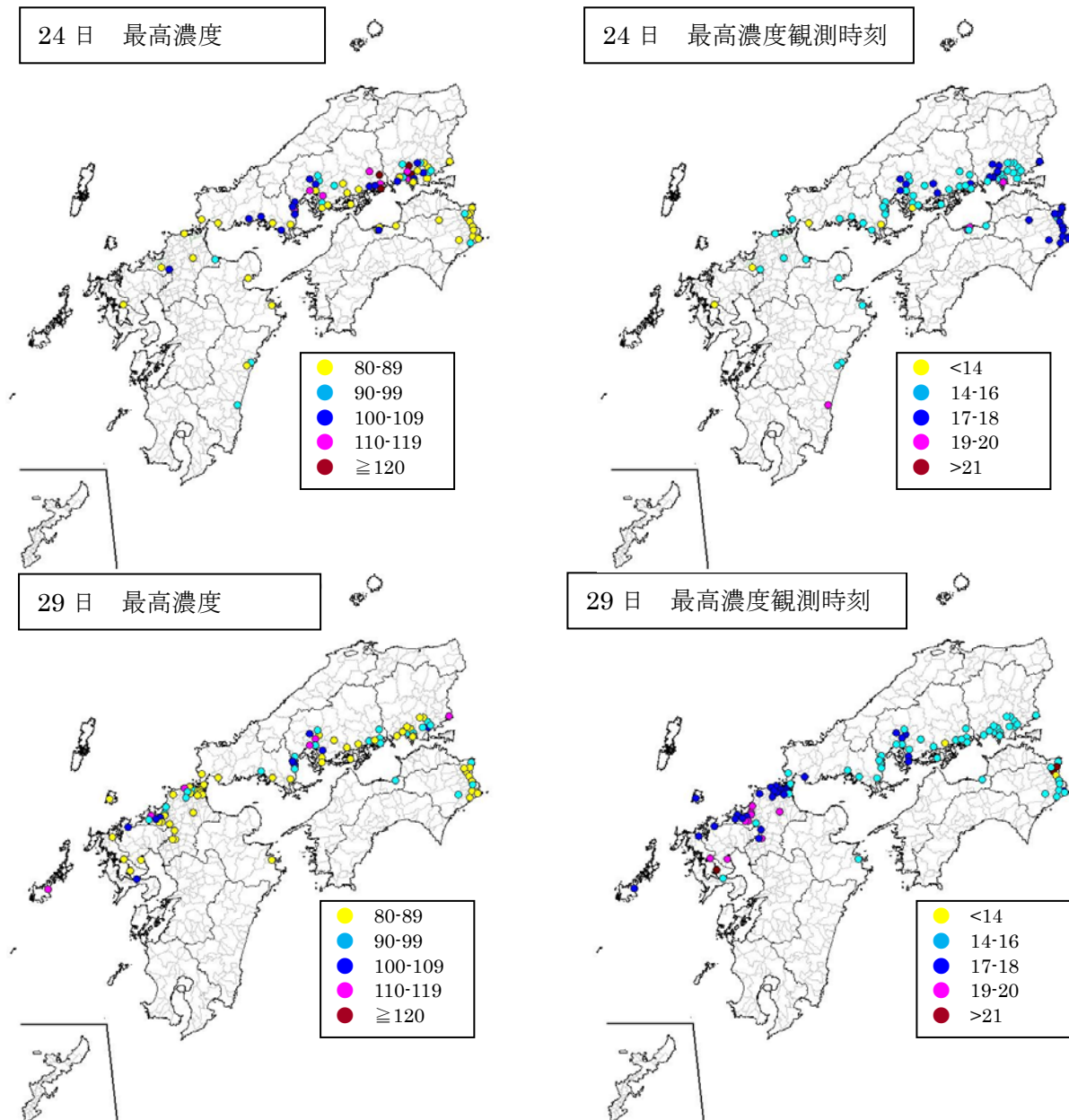


図 4.3.5. 九州中国四国地域における各日の O_x 高濃度観測局(O_x≥80ppb)の最高濃度および最高濃度観測時刻の分布

4.高濃度エピソード解析

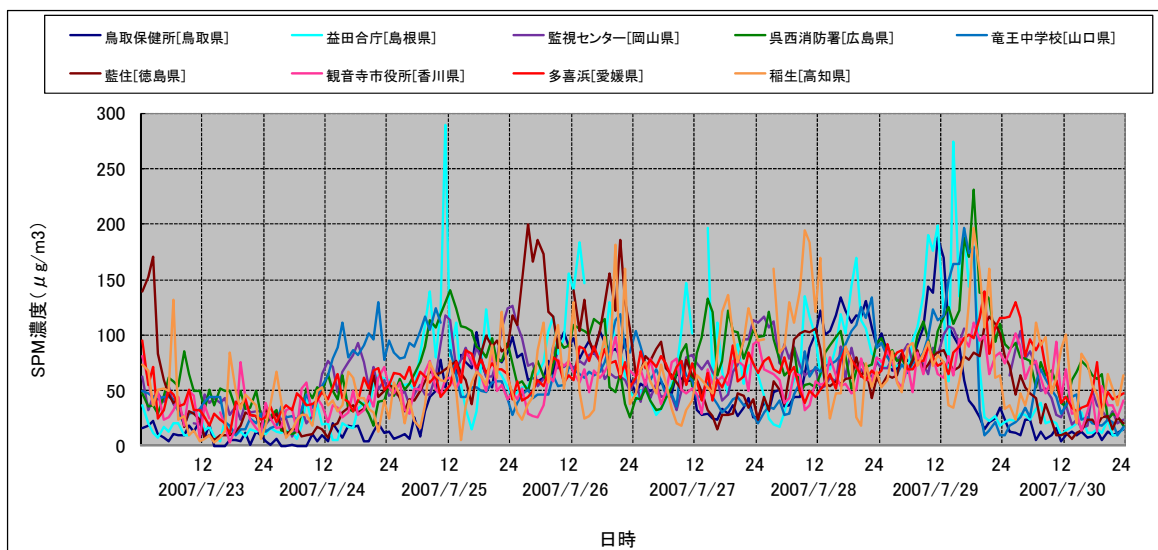


図 4.3.6. 中国四国地域における SPM 濃度の経時変化

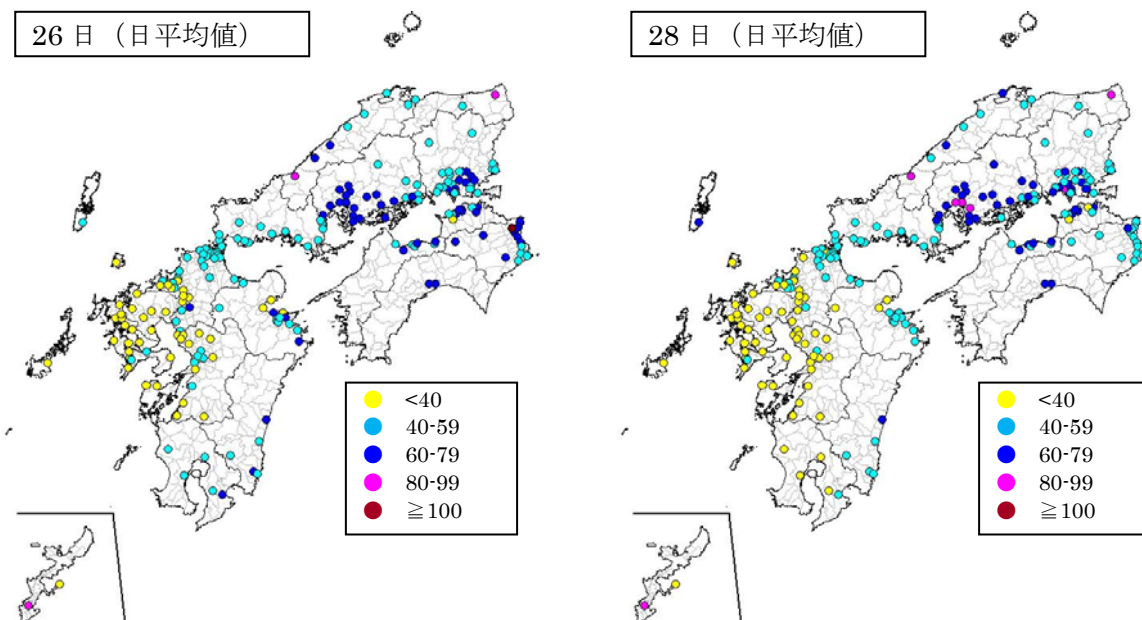


図 4.3.7. 九州中国四国地域における各日の SPM 濃度(日平均値)の分布

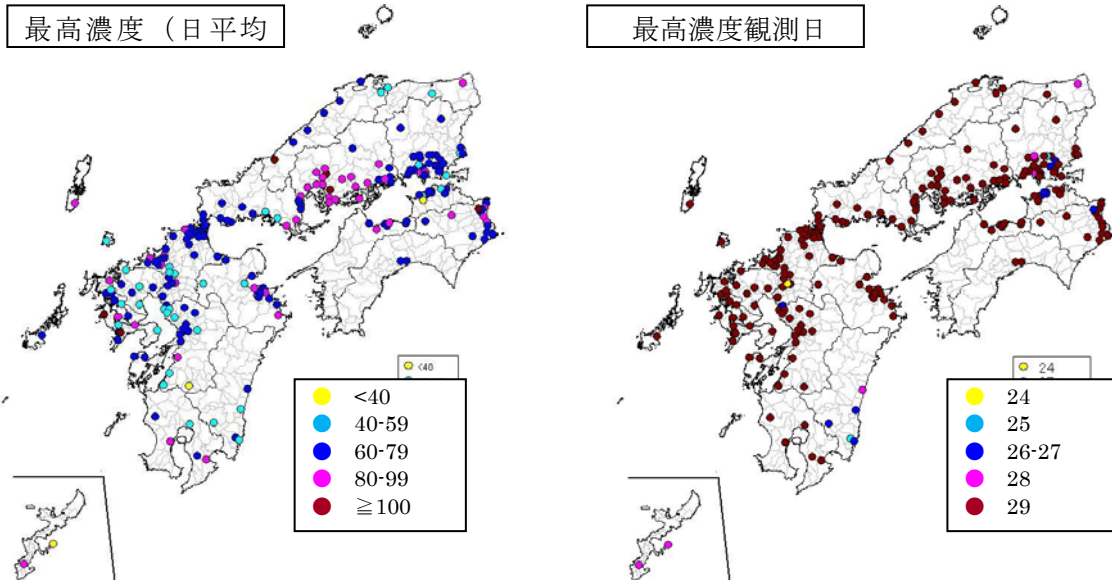


図 4.3.8. 九州中国四国地域における SPM の期間最高濃度(日平均値)と最高濃度観測日時の分布

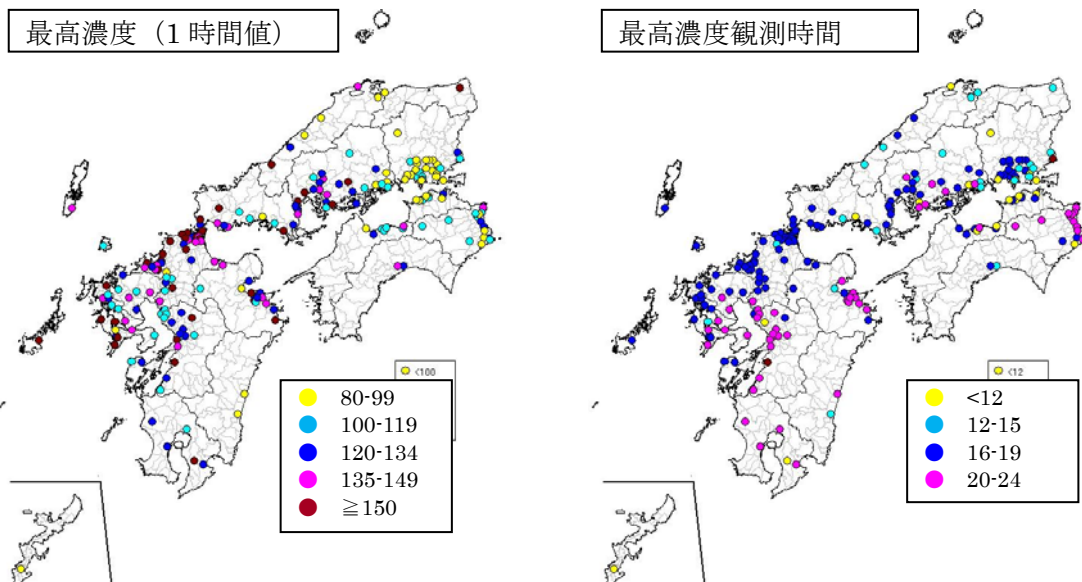


図 4.3.9. 九州中国四国地域における 29 日の SPM 高濃度観測局 (SPM $\geq 80 \mu\text{g}/\text{m}^3$) の最高濃度 (1 時間値) および最高濃度観測時刻の分布

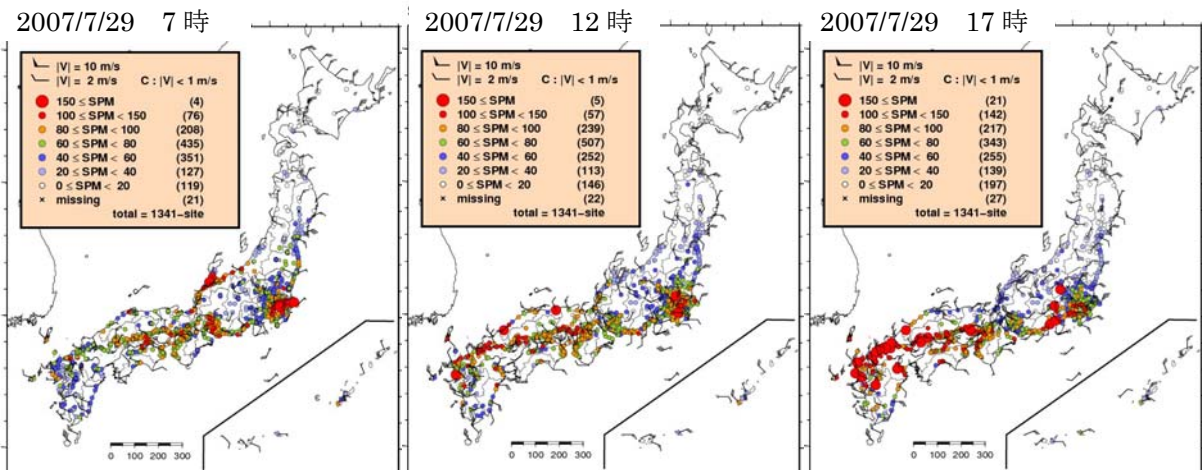


図 4.3.10. SPM 濃度(1 時間値)の全国分布

4.高濃度エピソード解析

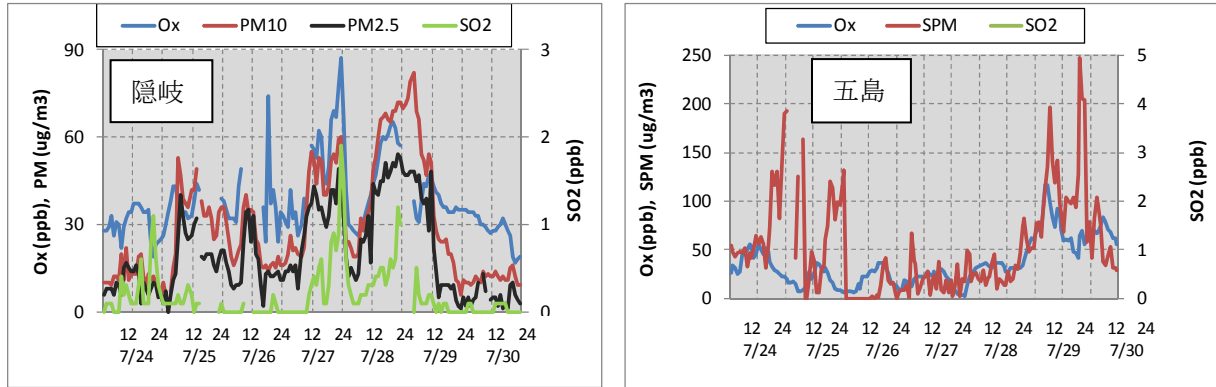


図 4.3.11. 隠岐[島根県]、五島[長崎県]における大気汚染物質濃度の経時変化

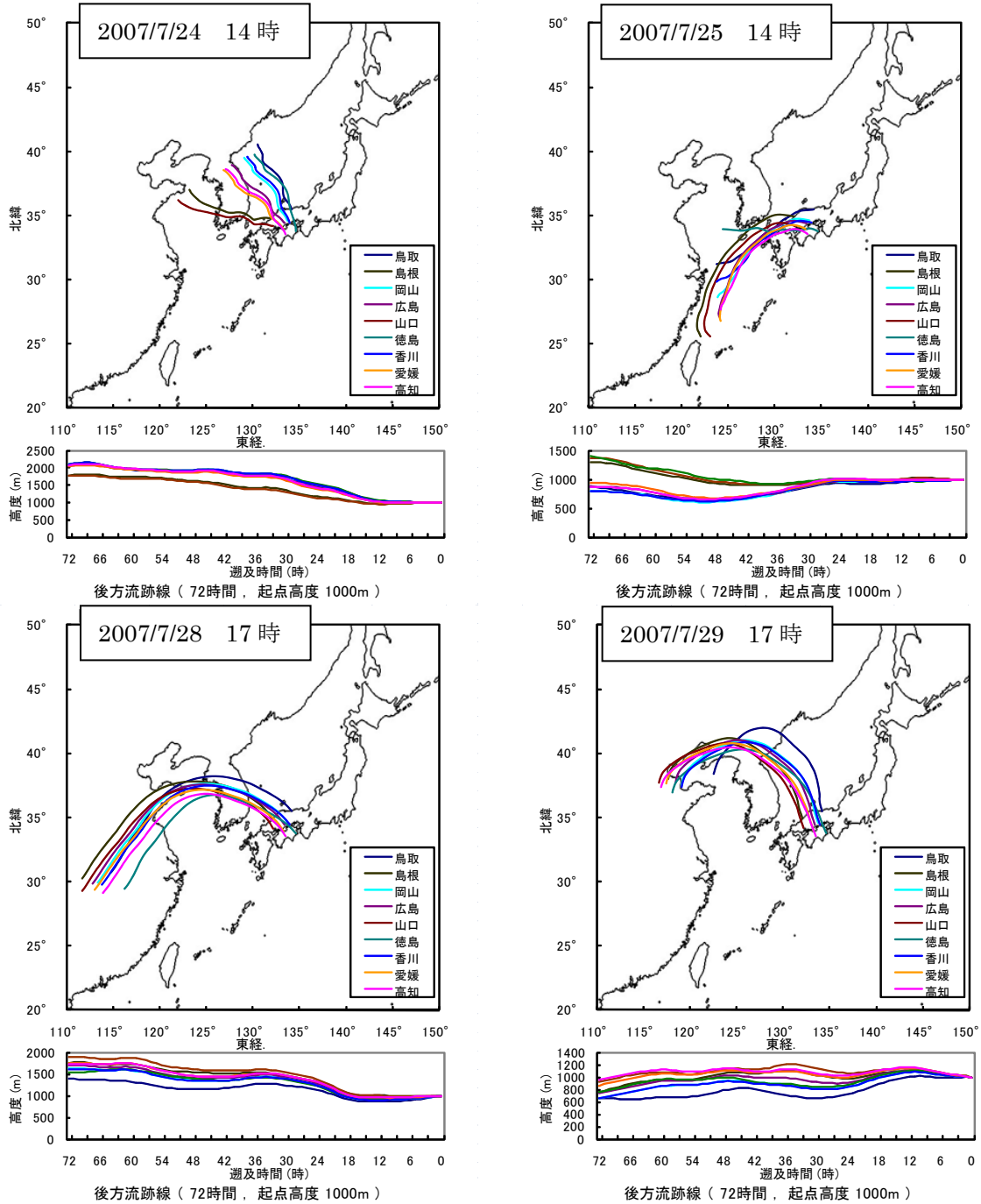


図 4.3.12. 中国四国地域における後方流跡線解析の結果

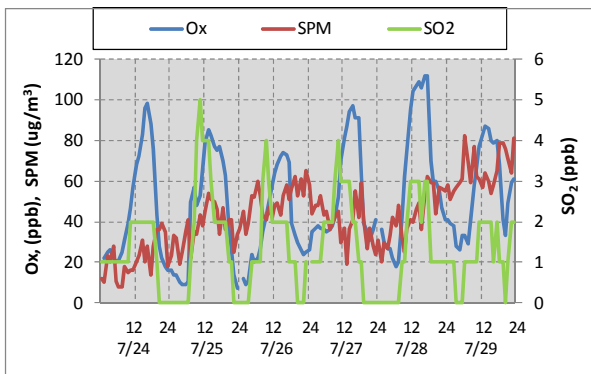


図 4.3.13. 由岐[徳島県]における Ox、SPM、SO₂ 濃度の経時変化

Ox と SO₂ の相関係数 (2007/7/29)

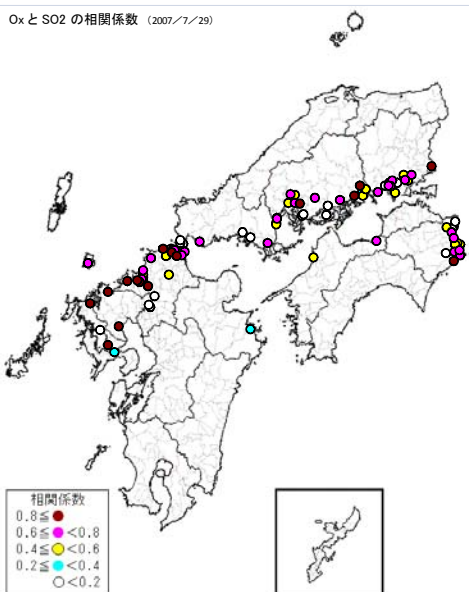


図 4.3.14. Ox 高濃度観測局 (Ox \geq 80ppb)における Ox と SO₂ の相関(7月 29 日)

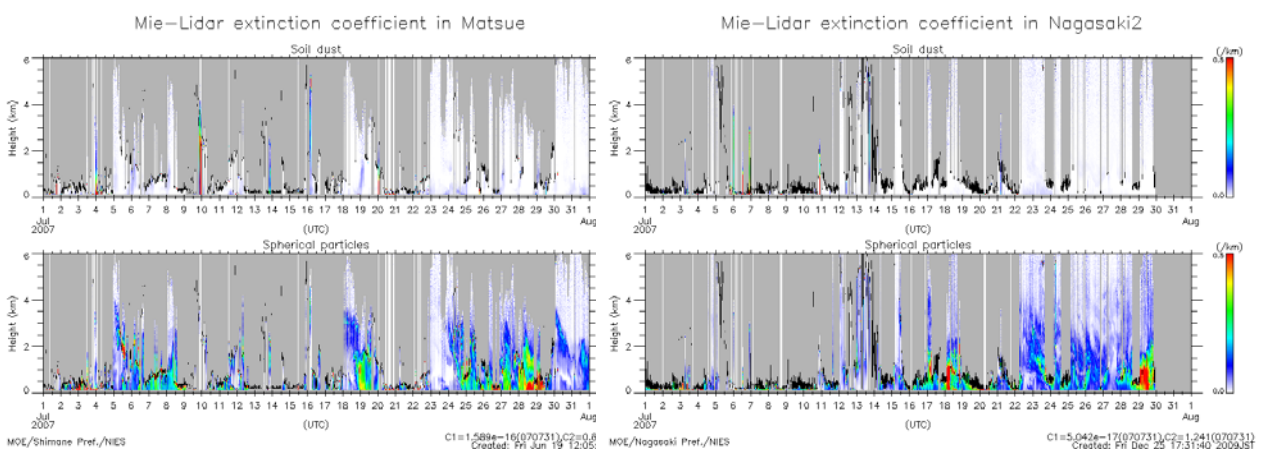


図 4.3.15. 松江(左)および長崎(右)におけるライダー観測結果(2007 年 7 月)

4.高濃度エピソード解析

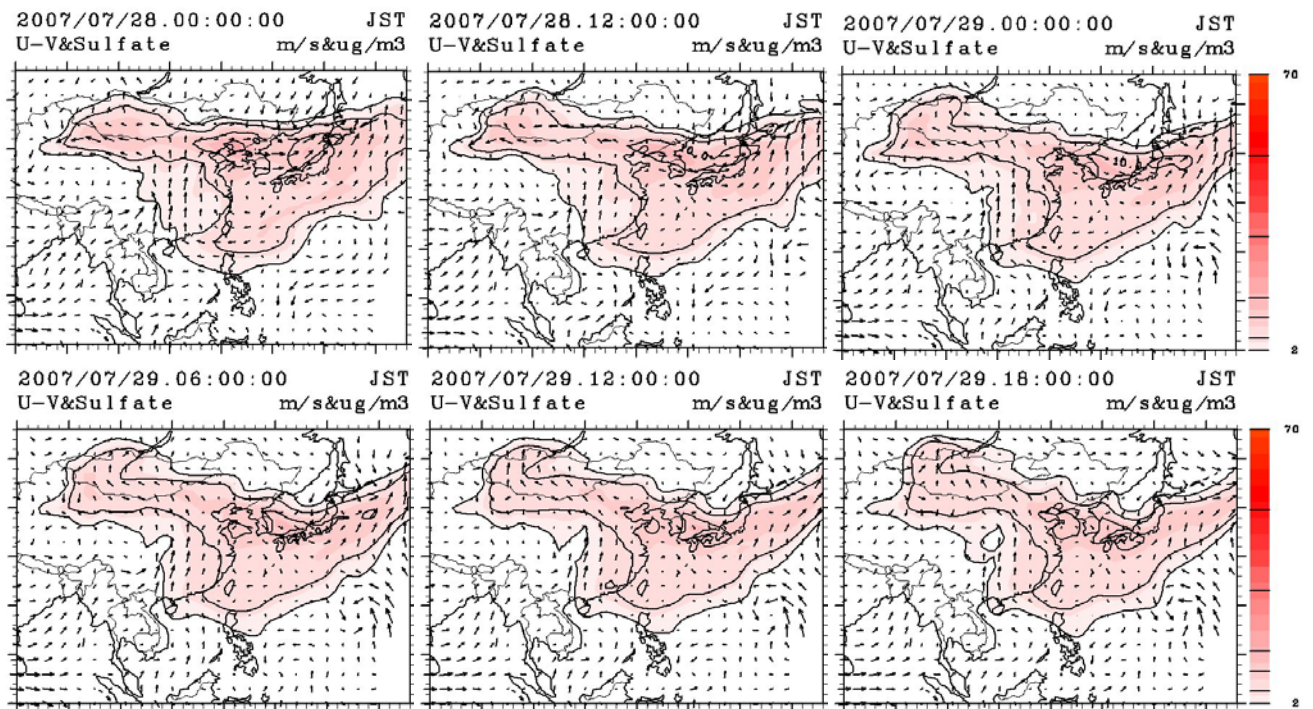


図 4.3.16. CFORS による硫酸エアロゾルのシミュレーション結果

4.3.3. 東海近畿地域の解析

4.3.3.1. 高濃度パターンと要因について

この時期の O_x 濃度変動パターンは、通常の日変動のパターンを示している(図 4.3.17, 図 4.3.18)。化学天気予報システムの硫酸エアロゾル分布をみると、東アジア規模の広域移流の影響はあったと見られる(図 4.3.19)。しかし、ライダー観測データでは、エアロゾルの飛来は見られず、地上観測データについても、先に述べたように、通常の日変化を示すことから、広域移流が高濃度の主要な要因とは考えられない。4.3.1 で述べたように、東海近畿地域は、気圧傾度が小さい気象条件であり、地元の発生、生成による O_x が、地域循環風により移流したことが考えられる。

4.3.3.2. 大阪湾海風による移流

大阪湾海風による内陸への移流を、表 4.3.1 及び図 4.3.20 に示す経路について、PO を指標に解析を行った。淀川筋の移流は、明確に見られない(図 4.3.21)。大和川移流は、川下から、奈良盆地に至る移流が、ピークのずれとしてみるができる(図 4.3.22)。加古川筋についても、移流はみられるが、西脇市役所には到達しているものの、柏原には至っていない(図 4.3.23)。生駒越えについても移流がみられるが、生駒には至っているが、木津には到達していない(図 4.3.24)。淀川筋で高濃度の発生があるものの、移流が明確には見えないことは、大阪平野のかなり広い範囲からの移流が淀川筋に集中し、単純なピークのずれが見えにくくなっているためと考える。

4.3.3.3. 濃尾平野での高濃度発生について

東海地方では、この時期に濃尾平野から西三河にかけて、高濃度が発生している。気圧傾度風と考えられる北西風と三河湾からの海風がぶつかる中で、高濃度が発生したと考えることができる(図 4.3.25, 図 4.3.3.26)。

4.3.3.4. 附論:大阪湾海風による近畿内陸への O_x 移流について

ここでの解析対象時期では、大阪湾海風による内陸への移流は、木津などの京都府南部には至っていない。しかし、京都府南部では、大阪湾岸からの移流と考えられる O_x 高濃度がよく発生する。その状況を解析するため、附論として 2008 年 9 月 12 日の生駒越えの移流を見た(図 4.3.27)。東大阪市旭町庁舎→生駒→木津へのピークのずれが明瞭にみられる。木津とあわせて、精華、田辺、宇治のいずれも京都府南部にある淀川流域の小盆地で、移流による高濃度が発生していることが見て取れる。

4.3.3.5. まとめ

2007 年 7 月 25 日前後に近畿地方で発生した O_x 高濃度は、地元での生成による O_x が、大阪湾海風により、内陸にもたらされたものと考えられる。

同時期に濃尾平野で発生した高濃度は、北西からの気圧傾度風が海風とぶつかることにより発生したと考えることができる。

この時期の大阪湾からの内陸輸送については、京都府南部には至っていないが、別の時期の例では、大阪湾岸から京都府南部への移流を見ることができ、この地域での高濃度発生には、大阪湾岸からの移流が要因の一つであると考えられる。

4.高濃度エピソード解析

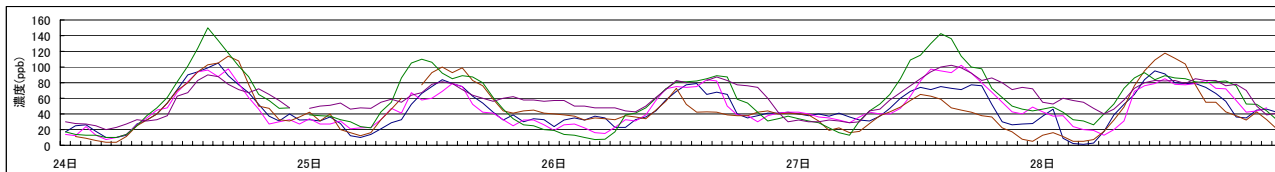


図 4.3.17. 2007 年 7 月 24~28 日の Ox 濃度経時変化(大阪府選定 5 局)

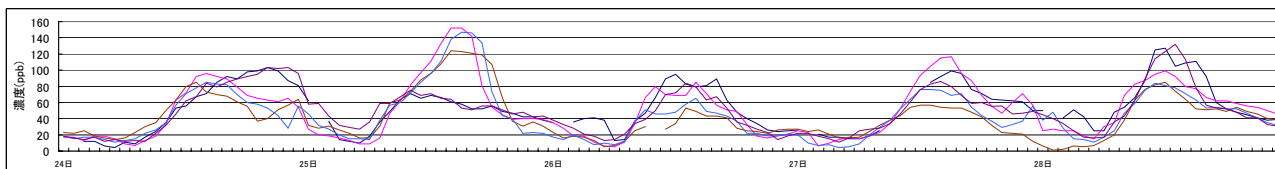


図 4.3.18. 2007 年 7 月 24~28 日の Ox 濃度経時変化(愛知県選定 5 局)

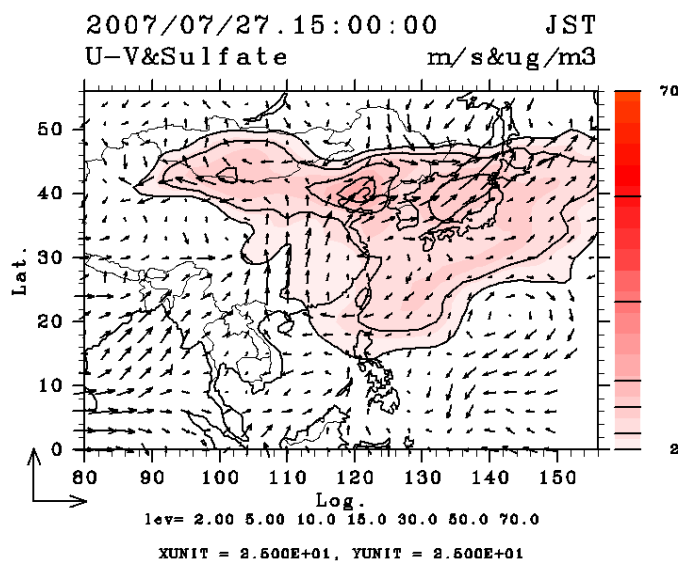


図 4.3.19. CFORS 硫酸エアロゾル広域予測結果

表 4.3.1. 移流経路と解析対象局

地域番号	移流経路	解析局1	解析局2	解析局3	解析局追加
1	淀川筋	大宮中学校 27117010	枚方市役所 27210010	国設京都八幡 26210010	久御山 26322020
2	大和川筋	三宝 27201080	修徳学院 27221010	王寺 29425010	金岡 27201060
3	加古川筋	尾上、高砂市役所、東神吉	西脇	柏原	
4	生駒ごえ	国設大阪 27115010	東大阪旭町庁舎 27227020	木津 26362020	生駒 29209010

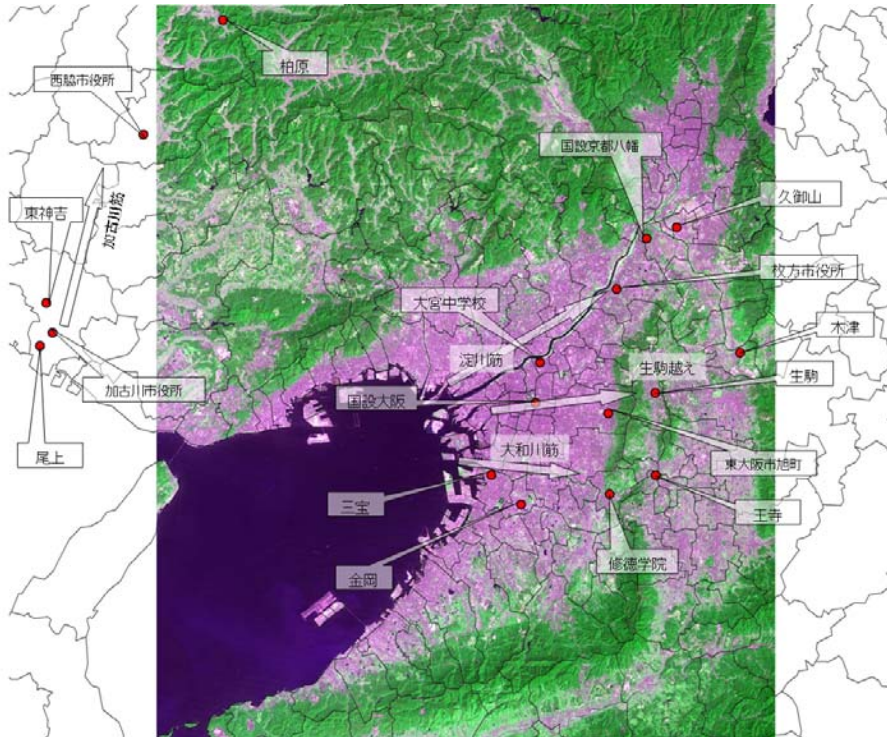


図 4.3.20.大阪湾から近畿内陸への移流経路と解析対象局

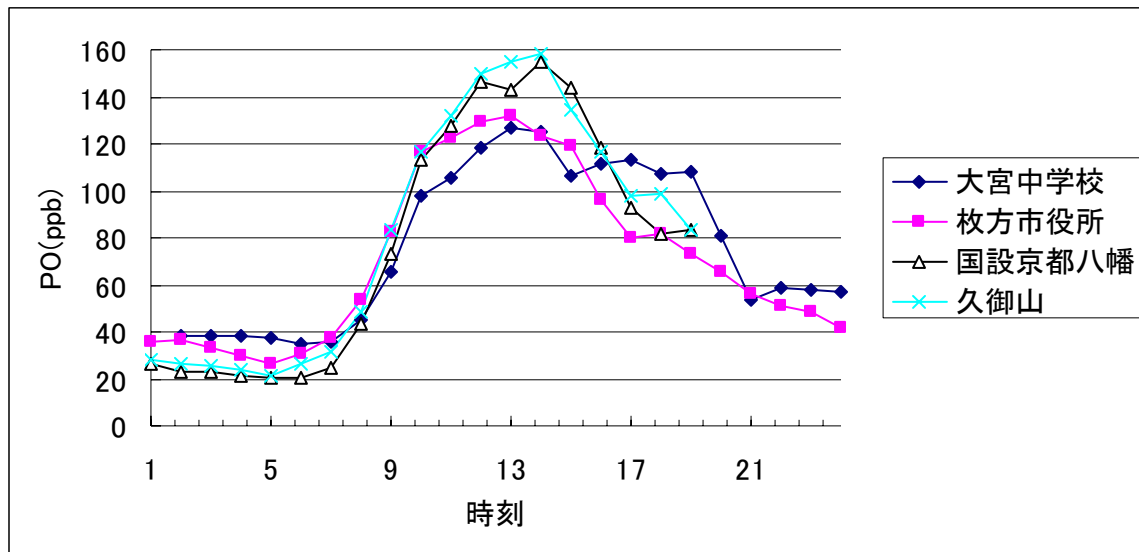


図 4.3.21. 2007 年 7 月 28 日淀川筋 PO 濃度経時変化

4.高濃度エピソード解析

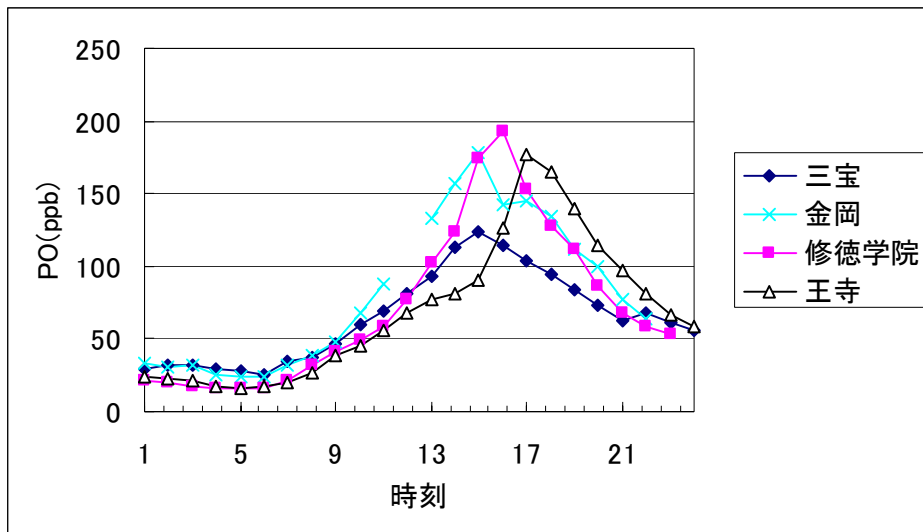


図 4.3.22. 2007 年 7 月 24 日大和川筋 PO 濃度経時変化

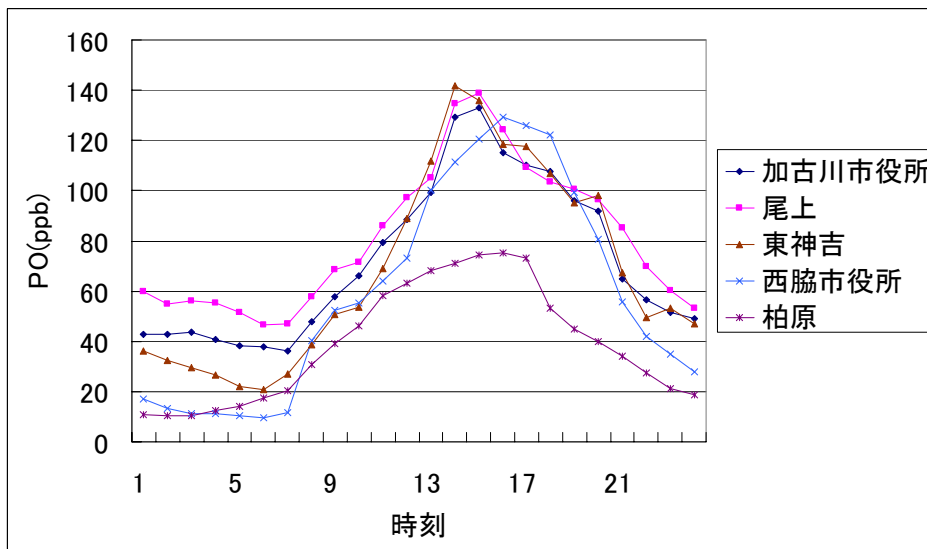


図 4.3.23. 2007 年 7 月 25 日加古川筋 PO 濃度経時変化

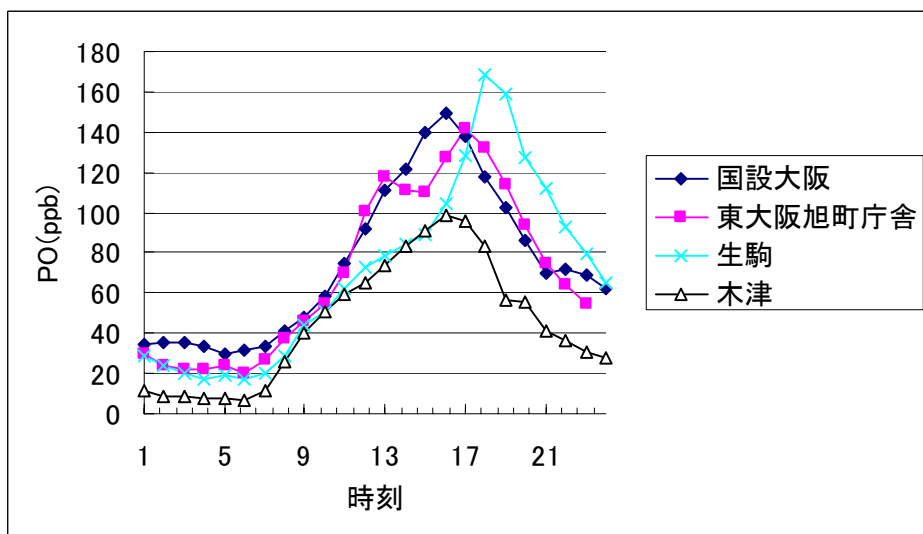


図 4.3.24. 2007 年 7 月 24 日生駒越え PO 濃度経時変化

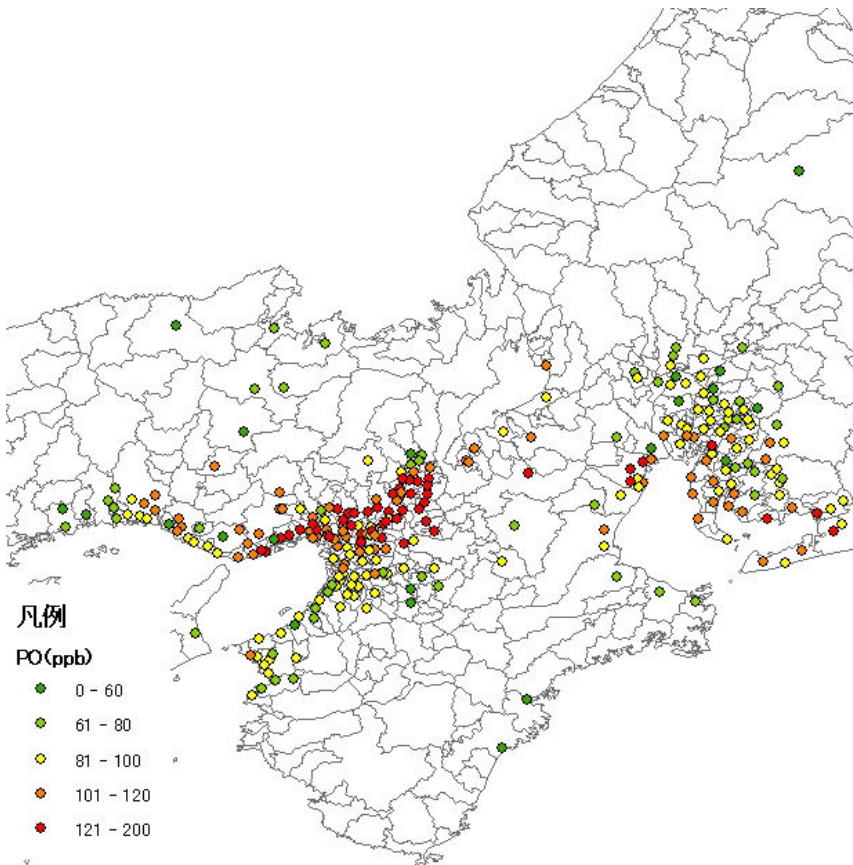


図 4.3.25. 2007 年 7 月 28 日 13 時 PO 濃度分布

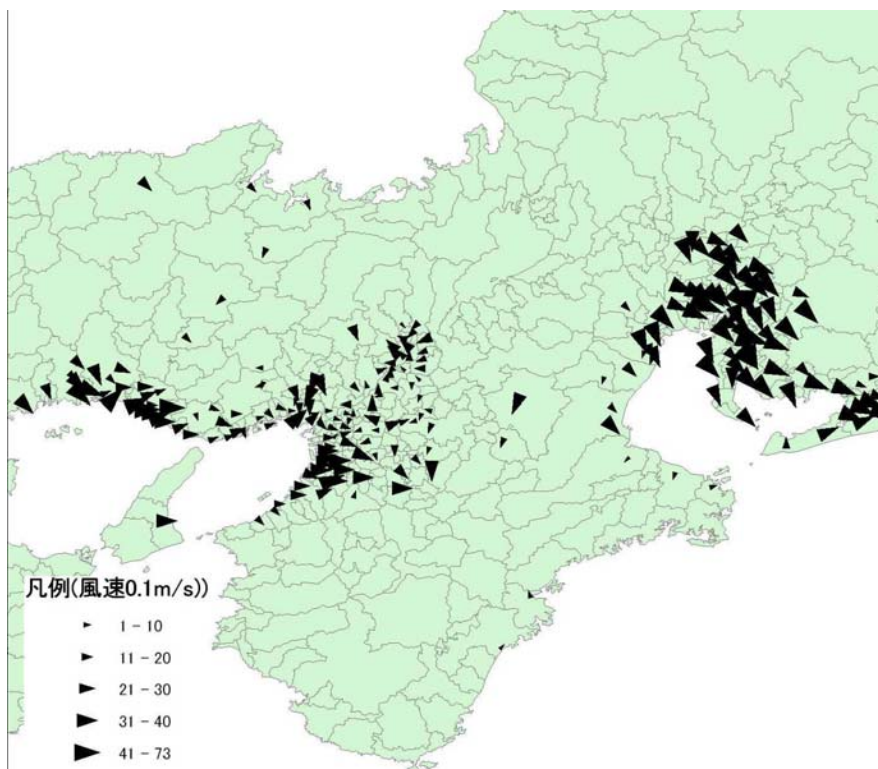


図 4.3.26. 2007 年 7 月 28 日 13 時風況

4.高濃度エピソード解析

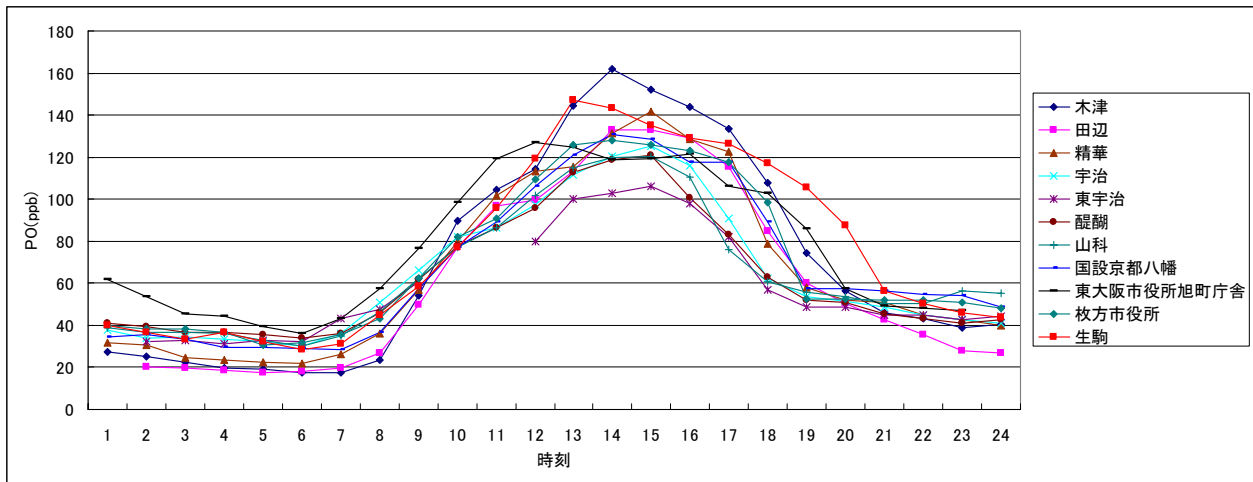


図 4.3.27. 2008 年 9 月 12 日近畿内陸 PO 濃度経時変化

4.4. 2007年8月上旬の高濃度エピソード解析

4.4.1. 気象・汚染概況

解析対象期間（7月31日～8月2日、8月9日～13日）午前9時の地上天気図を図4.4.1に、一部期間のOx濃度分布図を図4.4.2に示す。

4.4.1.1. 7月31日～8月2日

(1) 気象概況

7月31日には梅雨前線が東北地方に位置していたが、日本の東海上に位置する太平洋高気圧の勢力が強まり、8月2日には宗谷海峡付近まで前線が北上し、8月1日～2日にかけて東日本全域で太平洋高気圧の勢力下にあった。また、日本の南海上には台風5号が北上し、南から温かい風が吹き込みやすい状況となり（図4.4.1）、8月1日～2日は東日本全域で30℃を越す真夏日を観測している。

(2) Ox汚染状況

図4.4.3に北海道・東北・北陸地域におけるOx濃度の経時変化を示す。北海道・東北・北陸地域では、7月31日に最高濃度が40ppb程度と低い値であったのに対し、8月1日には北海道を除く各地で濃度が上昇し、福島では100ppbを超える濃度を記録したのをはじめ、各地で80ppb越えの濃度となった。8月1日の濃度出現状況を見ると、日中、14時～16時頃をピークに埼玉、群馬、栃木などの北関東で120ppb以上の高濃度域が出現し、その後減少している。また、関西、中部地域でも14時頃をピークに100ppb以上の高濃度が出現し、その後減少している状況が見て取れる。それに対し、100ppb以上を記録した福島では、日中よりも夕方にピークを示し、さらに高濃度の地域は内陸部に集中していた。また、北陸地域においても日中よりも夕方に最高濃度を示す地点が多かった。

4.4.1.2. 8月9日～13日

(1) 気象概況

8月3日以降南下していた梅雨前線が太平洋高気圧の勢力拡大から8月10日頃より次第に北上し、8月10日には北海道南部に、8月11日以降は北海道の北まで移動した。このため8月10日には関東で猛暑日を記録したのをはじめ、8月11日以降は北海道を含む東日本全域で高い気温が記録されている。この期間、等圧線の間隔は広く、弱風の地域が多かった。

図4.4.4に東北、北陸及び関東地方に位置する気象庁の高層気象観測所とウインドプロファイラ観測地点を示す。高層気象観測所のうち、仙台、秋田、輪島及び館野の観測結果(気象庁, 2008)から、本高濃度期間前後を含む期間における高層の気温分布を求めた。例として図4.4.5に8月12日9時及び21時の気温分布を示す。12日の9時に仙台、秋田、輪島及び館野の上空で逆転層の形成が認められた。21時には、逆転層の高度が低く、逆転する気温差も大きくなった。同様の現象が、本高濃度期間の他日においても見られた。

このことにより、本高濃度期間における日本中央域では、好天により生成が促進されたOxが日中安定した下層大気中で滞留する条件下であったと考えられた。また、夜間にも逆転層によりOx前駆物質が地表近くで滞留し、翌日のOx濃度の生成へ寄与することも十分考えられる気象条件であった。

また、埼玉県熊谷では8月10日夜間には両地点の地表から上空約2.5kmまで南風が観測され、その後一次別風向を示す高度が見られるものの14日夕方まで概ね地表から上空約3kmまで南風が

4.高濃度エピソード解析

卓越した。一方、新潟県高田では熊谷より 8 月 10 日夜間に南風を示す高度が少なかったものの 11 日日中からは熊谷と同様に南風が卓越した。例として熊谷の高度別風向分布を図 4.4.6 に示す。

(2) Ox 汚染状況

Ox 濃度の高濃度出現状況を見ると、8 月 10 日は関東の広範囲で高濃度が出現したが、北海道・東北・北陸地域ではほとんど高濃度の出現は見られなかった。8 月 11 日も同様に関東の広範囲で 120ppb を超える高濃度が出現し、北陸地域では前日と異なり 80ppb を超える高濃度を示す地点が多かった。8 月 12 日になると、関東地域の最高濃度も 100~120ppb 程度で、その範囲も北関東地域のみとなっている。北陸では、前日の高濃度からやや減少しているものの新潟では 80ppb 超の高濃度を示す地点が見られたほか、宮城以北の地域では前日より濃度が上昇し、ほぼ全域で 60ppb を超える濃度が出現していた。8 月 13 日には、北海道、秋田、山形などで 60ppb を超える濃度が観測されるなど、北部地域でも高濃度が観測される状況であった。

(3) 関東地方における Ox 濃度と SPM 濃度の関係

本高濃度期間前後を含む期間における関東甲信静地域の Ox 濃度と SPM 濃度の経時変化 (図 4.4.7) は、日周期変化を示す Ox に対して SPM は明確な日周期変化はみられない。しかし日平均値の変動 (図 4.4.8) では両者はよく一致する。例えば 8 月 12 日には、Ox と SPM の日平均濃度の水平分布はおおむね傾向が一致し、Ox と SPM 間における関連が示唆された。

(4) Ox 濃度と前駆物質濃度の変動

埼玉県では 8 月 4 日から 11 日までの連続 8 日間、光化学スモッグ注意報が発令される(埼玉県, 2008 年)など、本高濃度期間前半の 10 日及び 11 日には関東地方で高濃度発生が相次いだ。12 日から 14 日までは比較的低濃度で同地域において注意報発令はなかった。本高濃度期間中一貫して上記のような Ox の生成と滞留が起こりやすい気象条件であったにも関わらず後半に高濃度とならなかったのは、13 日及び 14 日がお盆期間であり、前駆物質の排出量が減少したことによると示唆されている(埼玉県, 2008 年)。埼玉県の他、多地域で 8 月 10 日及び 11 日と比較して 13 日及び 14 日に前駆物質濃度が減少する傾向が認められたが、新潟県、山形県、秋田県及び北海道の東北地方日本海側から北海道では前駆物質の変動にはっきりした傾向が認められなかった。例として東京都及び新潟県における Ox 及び前駆物質の時系列変化図を図 4.4.9 に示す。また、12 日は休日であることから、やはり 10 日及び 11 日と比較して前駆物質濃度が低く、前駆物質の排出量が少なかったことにより Ox の生成量が少なかったものと考えられる。

(5) Ox 最高濃度出現時間の空間分布

関東地方と周辺県の Ox 最高濃度の出現時間帯は、図 4.4.10 に示すとおり、関東中心部と比較して周辺県では遅い時間帯に Ox 最高濃度が出現している様子がみられた。そこで、以下に関東地方から長野県、福島県及び新潟県への高濃度 Ox の移流状況を詳細に解析した結果を示す。

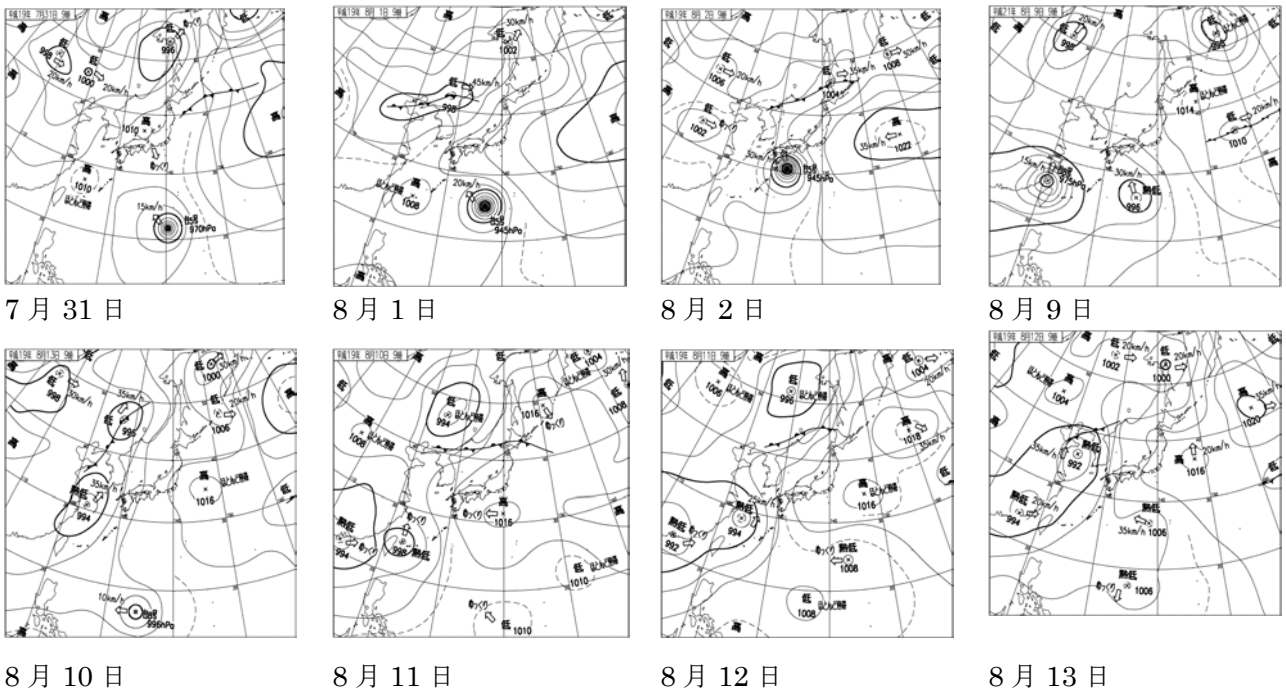
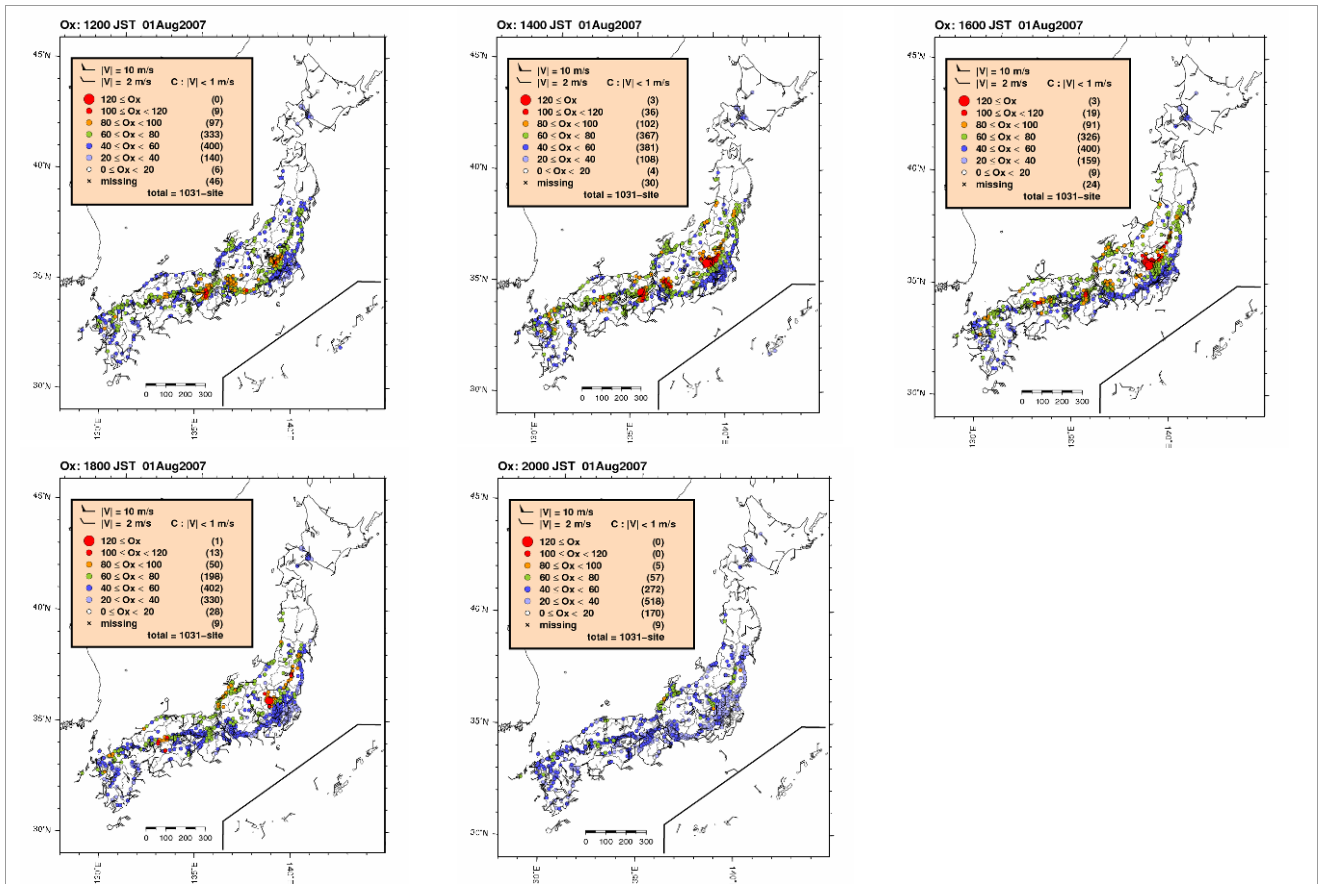
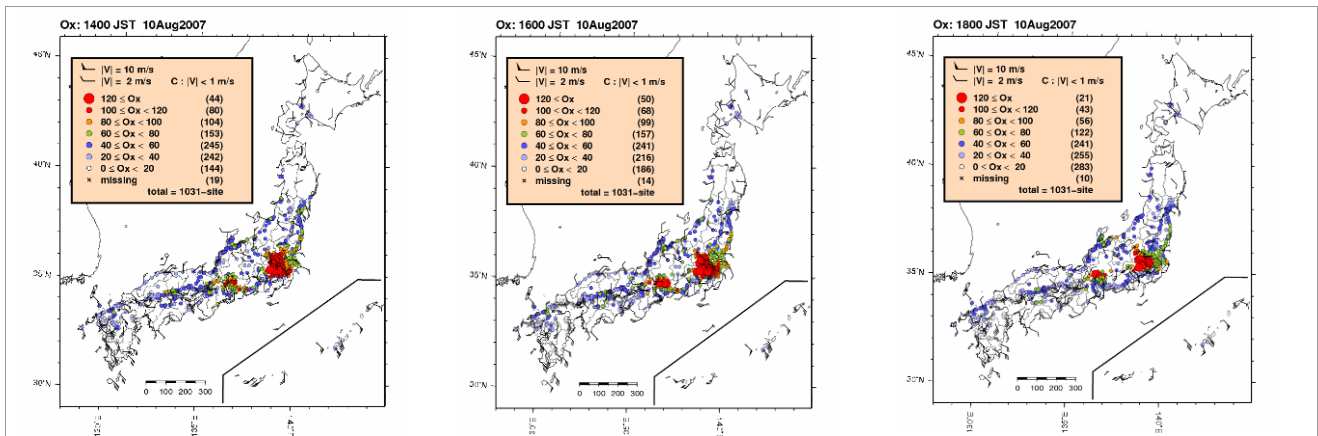


図 4.4.1. 地上天気図(9時)

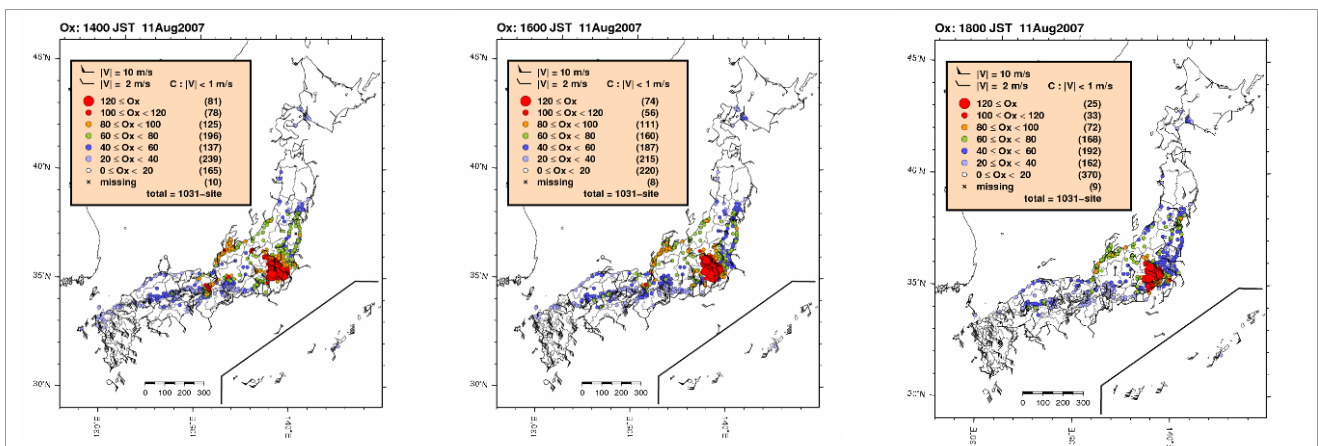


a. 8月1日(12時、14時、16時、18時、20時)

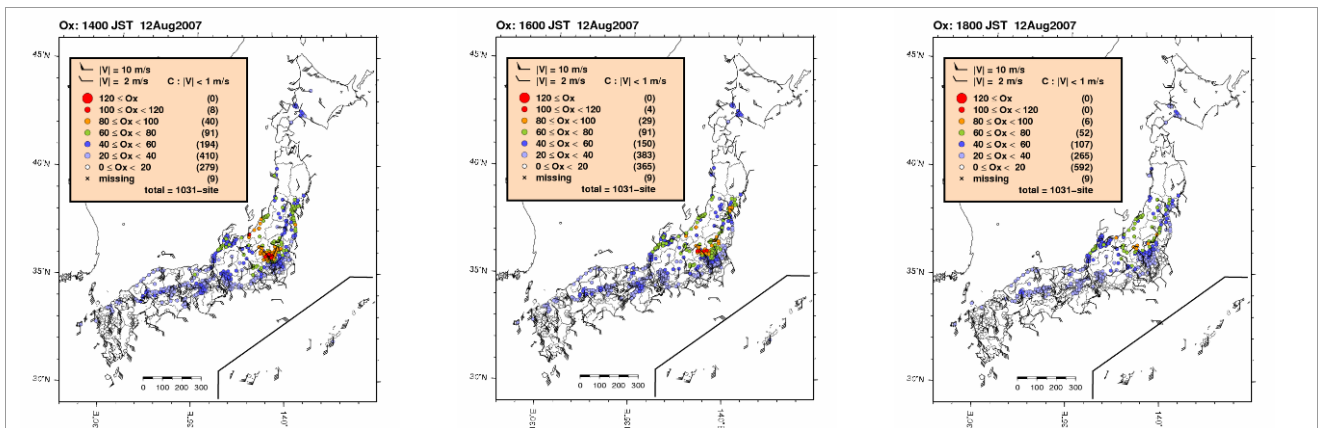
4.高濃度エピソード解析



b. 8月10日(14時、16時、18時)

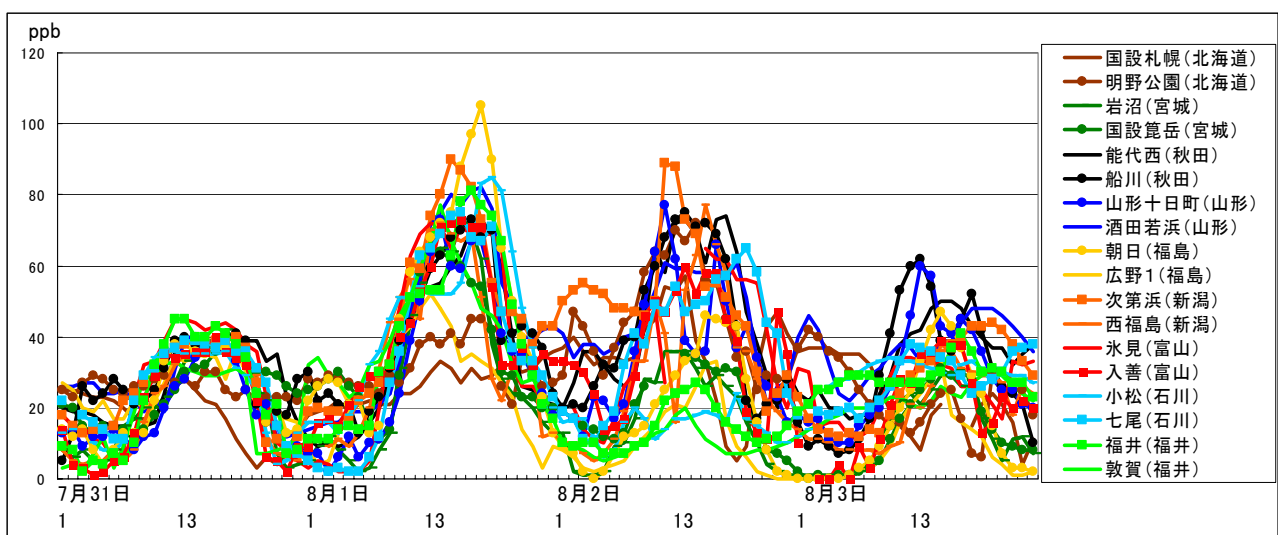


c. 8月11日(14時、16時、18時)

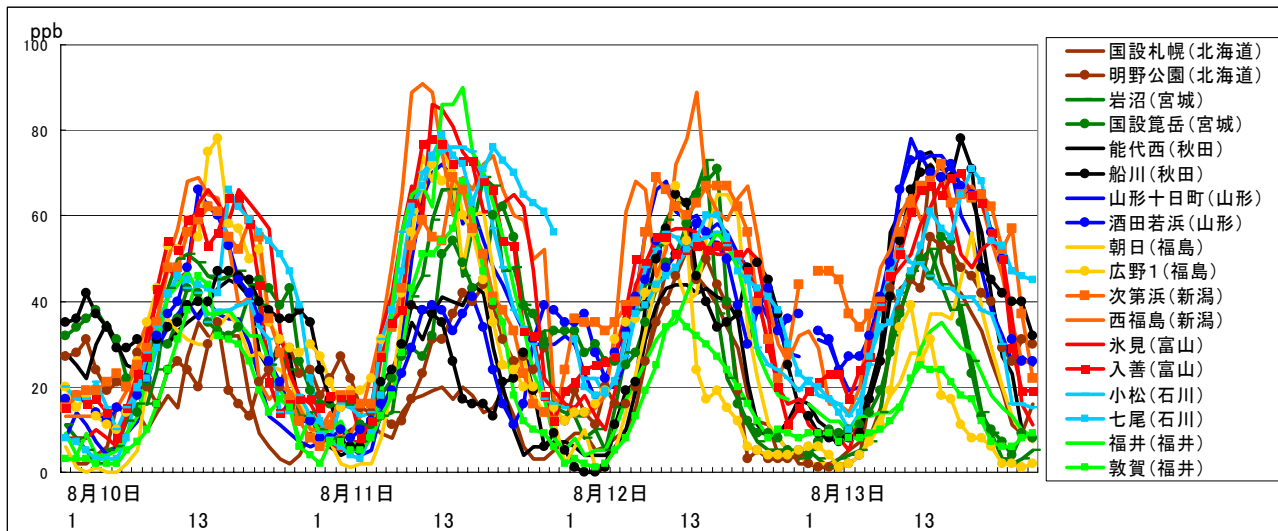


d. 8月12日(14時、16時、18時)

図 4.4.2. Ox 濃度分布図



a. 7月31日～8月3日



b. 8月10日～13日

図 4.4.3. Ox 濃度の経時変化図(北海道・東北・北陸地域)

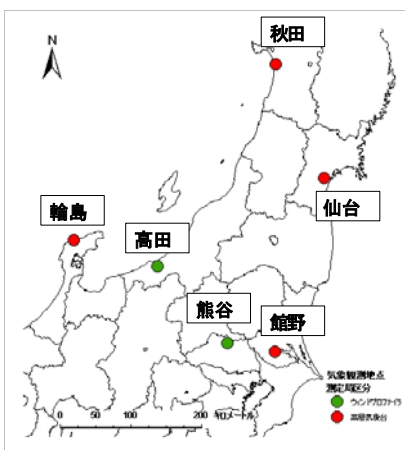


図 4.4.4. 気象解析地点配置図

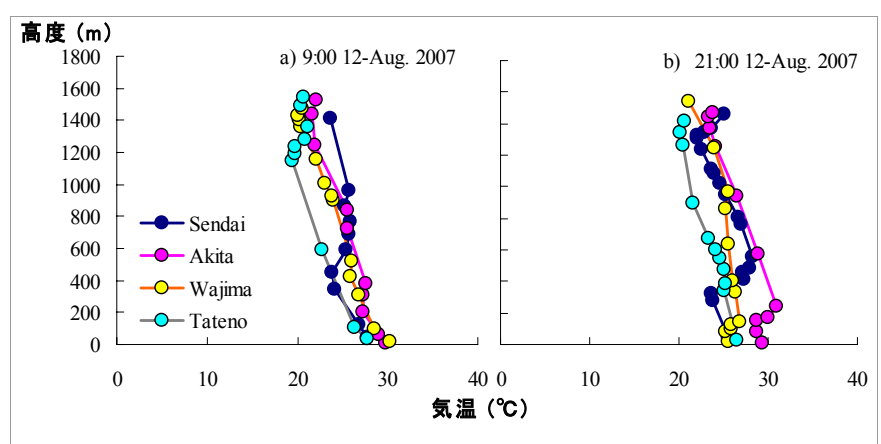


図 4.4.5. 鉛直気温分布(2007年8月12日)

4.高濃度エピソード解析

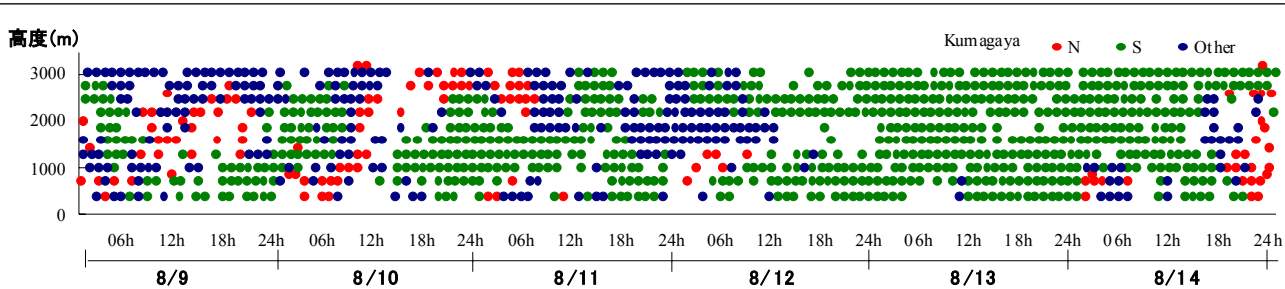


図 4.4.6. 高度別風向分布(熊谷)
(毎正時のデータのみ、N: NW~NE、S: SE~SW、Other: ENE~ESE、WSW~WNW)

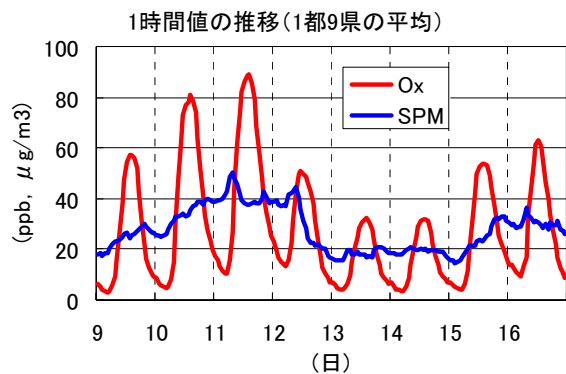


図 4.4.7. Ox 及び SPM 濃度の時間値の推移
(関東甲信静)

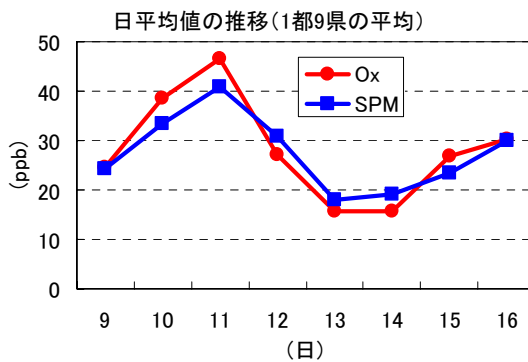


図 4.4.8. Ox 及び SPM 濃度の日平均値の推移
(関東甲信静)

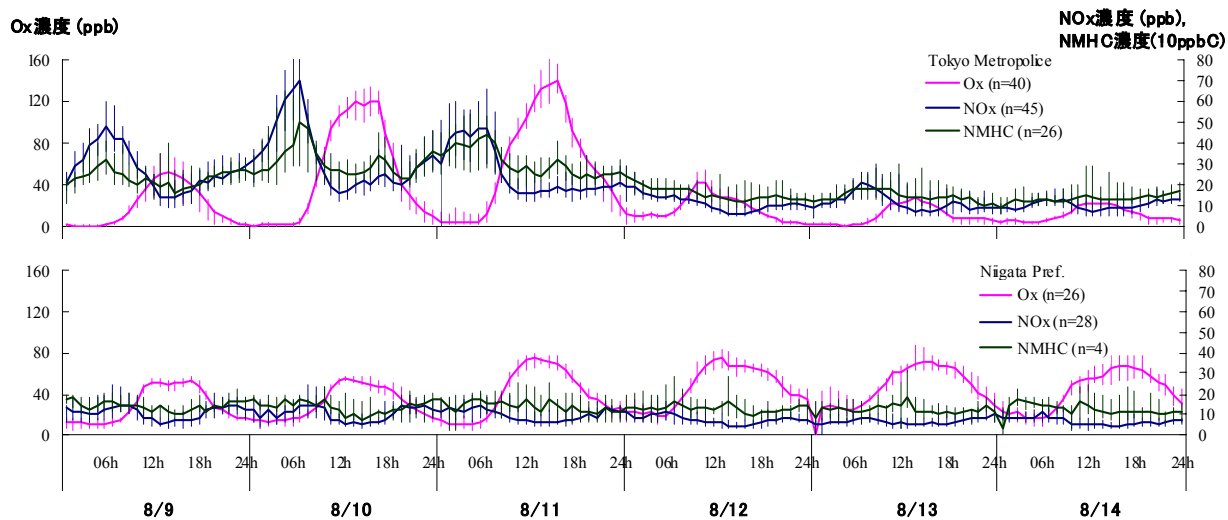


図 4.4.9. 東京都及び新潟県における大気測定局(一般局)の Ox 濃度と Ox 前駆物質濃度の 50 パーセントイル値の推移
(バーのトップは 75 パーセントイル値、ボトムは 25 パーセントイル値、n は測定局数)

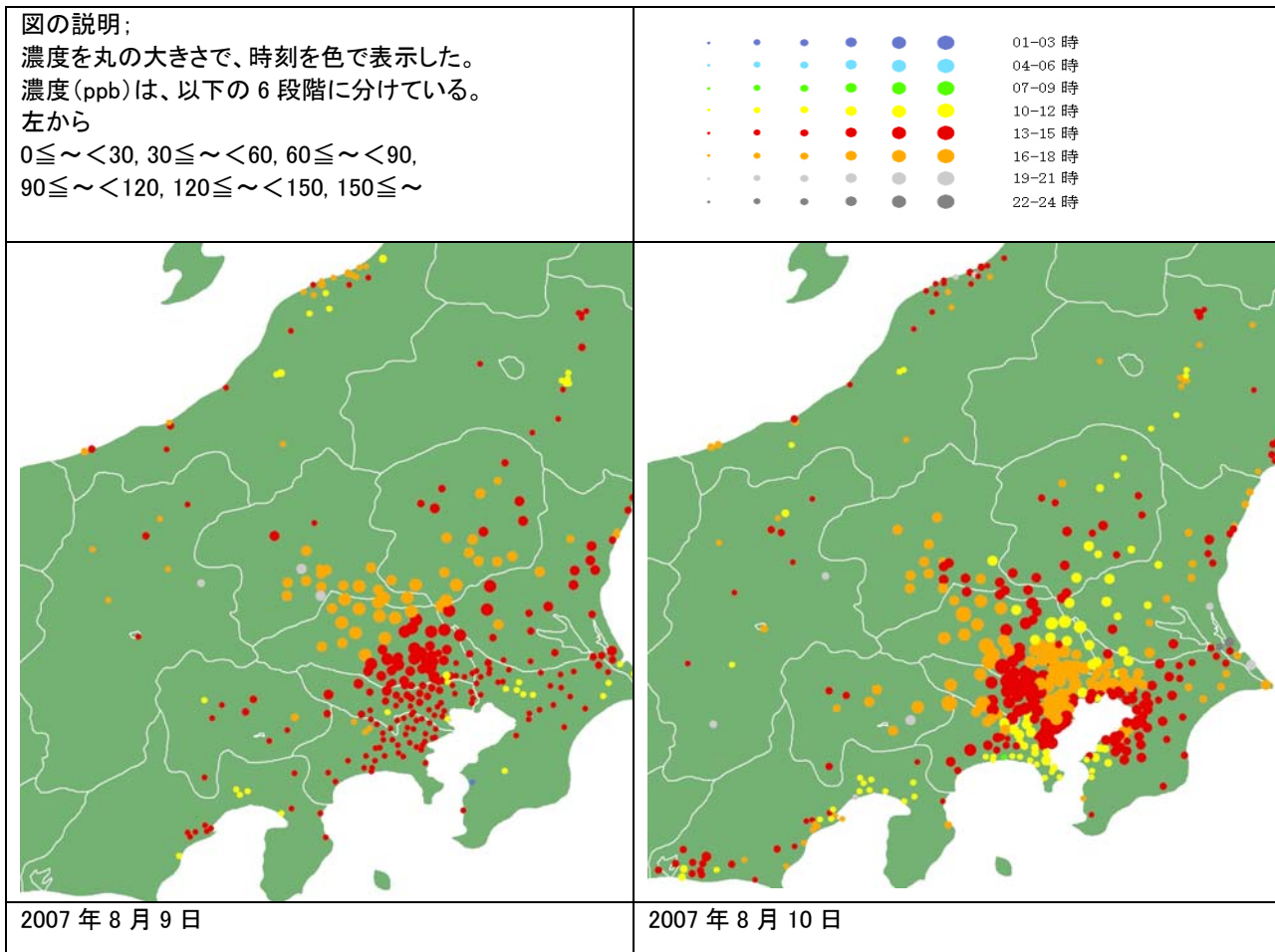


図 4.4.10. Ox 日最高濃度とその出現時刻

4.4.2 長野ルート

関東地方を中心に O_x 濃度が高濃度となった 2007 年 8 月 9～12 日の期間には、関東地方から長野県東部及び北部地域への汚染気塊の移流と思われる夕方から夜間にかけての O_x 濃度の上昇がみられた。この期間の O_x 濃度の経時変化に加えて地上風、気圧配置等の気象要素の状況について解析し、関東地方から長野県内への O_x 高濃度気塊の移流状況について詳細に検討した。解析に使用した大気常時監視局及び地上気象観測所、アメダスの配置図を図 4.4.11 に示す。

O_x 濃度の経時変化を期間前半（9, 10 日）と後半（11, 12 日）に分けて図 4.4.12 に示す。前半については、日中、関東地方（熊谷、安中）で 100ppb 超の高濃度 O_x が観測され、濃度上昇のピークは熊谷、安中、小諸の順に時間を追って発生し、小諸が日最大値となったのは日没後の 19 時頃であった。一方、小諸よりも北に位置する上田、篠ノ井、中野については日中の濃度上昇のみで、移流の影響とみられる夕方から夜間にかけての濃度上昇はなく、関東地方からの汚染気塊の移流は小諸までであったと考えられた。これに対して、期間後半は、長野県内各局の日中の O_x 濃度は前半に比べて高濃度となった。経時変化をみると熊谷、安中、小諸に続き、上田、篠ノ井、中野の順に移流の影響と思われる濃度上昇がみられた。このことから後半は前半に比べて、長野県東北部でより北の範囲まで汚染気塊の移流があったと思われた。特に篠ノ井、中野及び上田においては、日中に上昇した O_x 濃度が日没とともに一旦減少した後、再び濃度上昇する様子が明瞭であった。また、中野では 11 日の夜から 12 日未明にかけて O_x 濃度が 60ppb を下回らなかった。

期間中は何れの日も本州付近は太平洋高気圧に覆われていた（図 4.4.1）。各日の 15 時における海面更正気圧の分布（図 4.4.13.a～d）をみると、中部山岳地域で熱的低気圧が発生している。この熱的低気圧は 11～19 時頃まで存在し、その低気圧に引き込まれる形で関東地方の汚染気塊が長野県内へと運ばれたと考えられた。太平洋側と日本海側の気圧差は、期間前半（図 4.4.13a,b）はほとんどないが、後半（図 4.4.13.c,d）は日本海側より太平洋側の気圧が 1～3hPa 程度高く、これに対応して、低気圧中心の位置は前半には諏訪湖付近に位置していたが、後半にはやや北寄りに移動していた。そのため後半は前半と比べてより北の地域にまで汚染気塊が流入したものと考えられた。

関東地方から長野県東北部への汚染気塊の移流経路については旧信越線沿いの谷に沿った碓氷峠を越える経路が一般的だが、その他の峠等を越える経路も考えられる。今回の事例において、どのような経路で汚染気塊の移流したのかを見るため、各日の地上風系図（図 4.4.14.a～e）をみた。いずれの日も 15 時には太平洋から関東平野へ海風が吹きこみ、関東東北部で西へと進路を変え、長野県東部地域へと流れ込んでいるように見えるが、前半（図 4.4.14.a,b）は長野県北部で 19 時頃まで千曲川をさかのぼる北寄りの谷風に支配され、関東地方からの風と小諸付近で収束していた。一方、後半のうち 11 日は（図 4.4.14.c）は日中 13～17 時頃まで、長野県北部は北寄りの風が卓越していたが、18 時頃から風向が逆転し、長野市から中野方面へ向かう南西風に変わり、関東地方から小諸、上田、長野を経て北へ向かう一連の風が吹いていた（図 4.4.14.d）。12 日（図 4.4.14e）は、日中からすでに関東地方から小諸、上田、長野を経て中野方面へ向かう風が吹き、長野県と新潟県の県境付近で日本海からの北風と収束していた。このことから、今回の事例では、旧信越線沿いの谷に沿って碓氷峠を越えて長野県内へ流入した汚染気塊が、千曲川の谷沿いに北へ移流したものと推測された。

長野県では、関東地方からの汚染気塊の移流により、東部地域において春から夏にかけて日没後に O_x 濃度が上昇する現象が以前からみられているが、近年では、120ppb を超過するような事例も発生し、その現象解明の必要性が高まっている。今後はより多くの高濃度エピソードについて、汚染気塊の移流経路や、発生時の気象条件等との関係について明らかにし、関東地方で発生した高濃度 O_x が長野県内へ移流する際の、気象条件と県内へ汚染気塊が移流する量の関係等について解明していきたいと考える。

4.4.3. 福島ルート

4.4.3.1. 8月1日の高濃度エピソード(栃木経由)

関東周辺のOx濃度分布図(12~18時)を図4.4.15.に、解析対象測定局配置図を図4.4.16に、Ox濃度、風向風速の時系列変化を図4.4.17に示す。前述したように8月1日には福島県で100ppbを超えるOx濃度が観測されている。高濃度域は福島県全体ではなく内陸部のみで、海岸部に位置する測定局では80ppbを超える濃度は観測されていない。最も高い濃度が観測されているのは栃木県境に近い白河局で、113ppbを記録しているが、観測された時刻が17時と遅い時刻であることが特徴である。福島県央部を縦貫する谷あい位置する測定局のOx濃度の変動を見ると、北に進むにつれて日最高濃度出現時刻が遅くなっている状況が確認できる。このときの福島内陸部での風向は日中から夕方にかけて南南西~南西の風向であり、谷沿いにOx高濃度域が北上したものと予想される。ただし、福島県北部においては古川局などの谷沿いの測定局よりも、比較的標高の高い飯舘局(標高430m)で高い濃度が観測されている。このことから、Oxの高濃度域は比較的高い高度まで存在し、上空の南西風に乗り移動したことにより標高の高い飯舘局においても高い濃度が観測されたものと推測される。

白河局での高濃度がどこから流れ込んできたかを考察するため、風上側に当たる栃木県内測定局のOx濃度時系列変化について検討した。図4.4.15に示す関東周辺のOx濃度の時系列変化からもわかるように、12時頃から埼玉付近で120ppbを超える高濃度が出現し始め、14時には群馬、栃木の南部を含め高濃度域となっている。その後、群馬、栃木ともに高濃度域が北部に移動し、栃木県側では高濃度域が福島県内まで及んでいる状況が確認できる。図4.4.17に示す栃木県内のOx濃度の出現状況を見ると県南部の佐野市役所局では14時に最高濃度を記録し、その後鹿沼市役所では15時、矢板市役所では16時、那須塩原では17時と高濃度出現地域が時間とともに北上している状況が確認できる。福島県内測定局での最高濃度出現の時間的な流れも合致しており、8月1日に発生した福島県内の高濃度現象は、関東北部で生成されたOxが南南西~南西の風により栃木南部、栃木北部、福島といったルートをたどり運ばれたことにより生じたと考えられる。

4.4.3.2. 8月9日~10日の高濃度エピソード(茨城経由)

8月9日は図4.4.18に示すとおり埼玉県などを中心にOxが高濃度となり、茨城県西部の古河市役所で134ppb(15時)を記録したほか、茨城県中央部から北東部にかけてと福島県南東部の一部においても100ppb以上の高濃度がみられた。Ox最高濃度の出現時間帯は、図4.4.10に示すとおり茨城県では主に13~15時であったのに対し、福島県海岸部(以下、福島県浜通り)では16~18時と、茨城県より福島県浜通りの方が遅い時間帯にOx最高濃度が出現している様子がみられた。翌10日は茨城県中央部から北東部にかけてと福島県南東部では、100ppb以上のOx濃度は観測されず、Ox最高濃度出現時間帯にも差がみられなかった。

茨城県北東部から福島県南東部にかけての海岸沿いの5局(図4.4.19)についてOx濃度の経時変化をみると(図4.4.20)、茨城県内の水戸石川、日立多賀、北茨城中郷では14時にピークを迎えている。Ox濃度は水戸石川では夜間にかけて下がっていったが、日立多賀と北茨城中郷では16時まで下がったOxが再び上昇し17時に第2の小さなピークを迎えている。一方、福島県南東部の上中田と西郷では15時~16時にOx濃度のピークを迎えている。ピーク時刻は茨城県内に比べてやや遅れているが、Ox濃度は夜間にかけて次第に下がり第2のピークは見られない。翌10日は日立多賀の夜間を除き5局とも似たような傾向を示していた。また、PO濃度(図4.4.21)も増減の傾向はOxとほぼ同様であり、Oxの変動傾向に対するNOxの影響は少なかったと考えられる。

概況天気図(図4.4.1)及び局地天気図(図4.4.22)によると、8月9日は太平洋高気圧が関東の南の海上にあり、10日になると日本付近が広く覆われた。また、長野県付近に日中発生する熱

4.高濃度エピソード解析

的低気圧は9日は1011hPaで、8月10日の1009hPaと比較して少し弱かった。関東平野東部の茨城県付近では、8月10日以降の東～南東風とは異なり、8月9日は南からの風向が卓越していた。また、地表付近の風況をアメダスデータ(図4.4.23)でみると、8月9日は全ての地点で日中は南方向からの風が卓越しており、日暮れとともに風は収まるか、もしくは北～西風に変わっていた。10日は水戸や日立で日中東風、夜間北風となっておりOxが北へ運ばれる風向では無かった。

茨城県北東部におけるOx濃度、PO濃度及び風況を総合すると、8月9日は水戸周辺から南方向からの風によって海岸沿いに運ばれてきた高濃度Oxの影響が、日立多賀～北茨城中郷の第2のピークとして現れたと考えられるが、上中田では60ppb以下と高濃度を示しておらず第2のピークも見られないため、陸上経由のルートでは福島県内への移流は起こりにくい状況であったものと考えられる。しかし、福島県南東部では茨城県北東部(水戸石川105ppb)を越えるOx濃度を西郷(116ppb)などで示しており、Ox最大濃度が15時～16時と茨城県内(14時)より遅れて出現していること、西郷付近に海上方向から風が吹き込んでいることから、光化学反応の進行による高濃度化を伴い、海上を経由して移流した可能性はある。

南方向からの風が夜間まで続く状況であれば、海岸沿いの低地のルートで十分に福島県内までOxの移流が起こっている可能性はある。また、海上を経由するルートや茨城県北東部から福島県浜通りかけては山地も400m以下の低山であることから山地越えのルートの可能性もあるため、さらに多くのエピソード解析を重ね、解析することが必要である。

4.4.4. 新潟ルート

図4.4.24に本解析に使用した地点の配置図を示す。

4.4.4.1. 新潟県と群馬県境付近の山岳におけるOx濃度上昇と山麓への影響

図4.4.25に、新潟県と群馬県境付近に位置する八海山の標高1150m地点(国環研と新潟県の共同調査測定局)、山麓の市街地に位置する六日町局及び日本海の離島に位置する国設佐渡関岬酸性雨測定所(以下、佐渡関岬局)のOx濃度と風向を示す。8月10日及び11日の夜間に八海山においてOx濃度が上昇する現象がみられた。この現象は、同地点は山岳であり、かつ夜間に起こったことから移流によって起こったものであると考えられる。また、この現象は長野県小諸局で濃度ピークが出現した時刻(図4.4.12参照)とほぼ同時刻に起こり、かつ、八海山での風向が北から南へ切り替わった後に起こった。

同地点の南に位置する関東地方では両日の日中、南よりの風によりOx濃度の高濃度域が海岸部から内陸部へ移動していること、また日最高濃度出現時間が海岸部と比較して内陸部で遅れていることが分かっている(図4.4.10の8月10日の図を参照)。

これらのことから、海風の進入により関東地方内陸部へ輸送された高濃度オゾン気塊が、群馬県境を越え、新潟県へ移流したと考えられた。

一方、八海山麓における六日町局の日中のOx濃度は、八海山におけるOx濃度とほぼ同じ濃度を示した。また、12日までは八海山とほぼ同様の風の切り替わりを示した。この地域ではこれまでの観測でも夏季の日中における大気鉛直方向の混合が確認されている(武, 2008)ことから、11日及び12日においても、夜間に八海山に移流した高濃度オゾン気塊が日中の六日町の濃度上昇に寄与したと考えられた。また、12日において夜間に六日町局で濃度が下がらず八海山の濃度と同じ挙動を示したのは、10日及び11日と異なり一日中南風が卓越したことにより、関東地方からの移流の影響を受け続けたことによると考えられる。

4.4.4.2. 新潟県内陸部と海岸部における Ox 濃度の変動

新潟県では、六日町局や長岡工業高校局などの内陸部では 8 月 12 日に期間中の最高濃度を記録したが、県内で Ox 前駆物質の発生量が多い海岸部では主に 8 月 13 日、さらに県北海岸部では 14 日に最高濃度を記録する地点が多かった。一方、Ox 前駆物質の発生量が少ないと考えられる佐渡関岬局では 10 日から 13 日にかけて夜間も含め徐々に濃度が上昇し、また、八海山及び六日町とは異なる風の切り替わりを示した。これらのことから、佐渡関岬局では六日町局のように関東地方のスパイク的な高濃度オゾン気塊の影響ではなく、バックグラウンドオゾンのような大きな気塊の影響を受けているものと考えられた。また、県内の風向風速の状況(図 4.4.26.)から、8 月 12 日の日中は海岸部では海風、内陸部では陸風(南風)が卓越し、内陸部で収束域が出来ていたことがわかる。このことから、12 日は内陸部まで関東地方からの移流を受けた可能性があると考えられた。海岸部において 13 日及び 14 日に最高濃度を記録したのは、佐渡関岬局で観測されたような大きな気塊の影響に、海陸風の発達により地域内生成の影響が上乘せされたためと推測されるが、観測データによる裏付けは不十分であり、更なる検討が必要である。

4.4.5. まとめ

本高濃度エピソードの解析により、関東地方で発生した高濃度 Ox が長野県、福島県及び新潟県へ移流し、各地の Ox 濃度を上昇させた可能性があることがわかった。

参考文献

- 1) 気象庁: 高層気象観測年報 2007 年 (CD-ROM 版) (2008)
- 2) 武直子, 大泉毅, 村山等, 高橋雅昭, 大原利眞: 新潟県山間地におけるオゾン濃度の時間変動, 第 49 回大気環境学会年会講演要旨集, 391 (2008)
- 3) 埼玉県環境部: 埼玉県における光化学スモッグの発生状況 平成 19 年 (2008)

4.高濃度エピソード解析

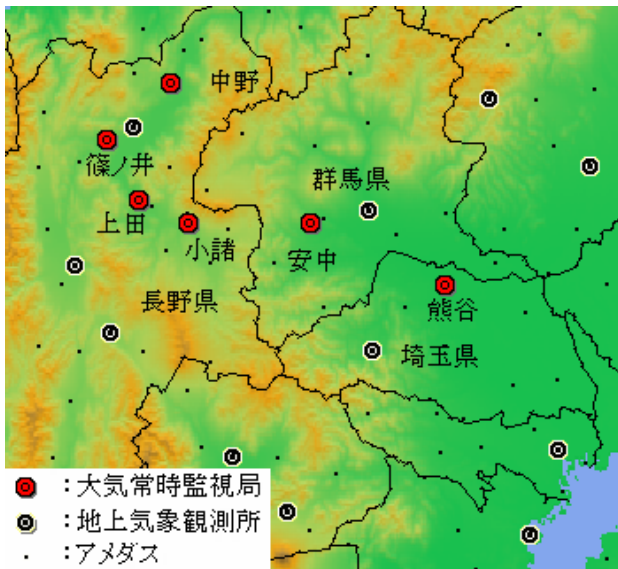


図 4.4.11. 解析対象測定地点配置図(長野ルート)

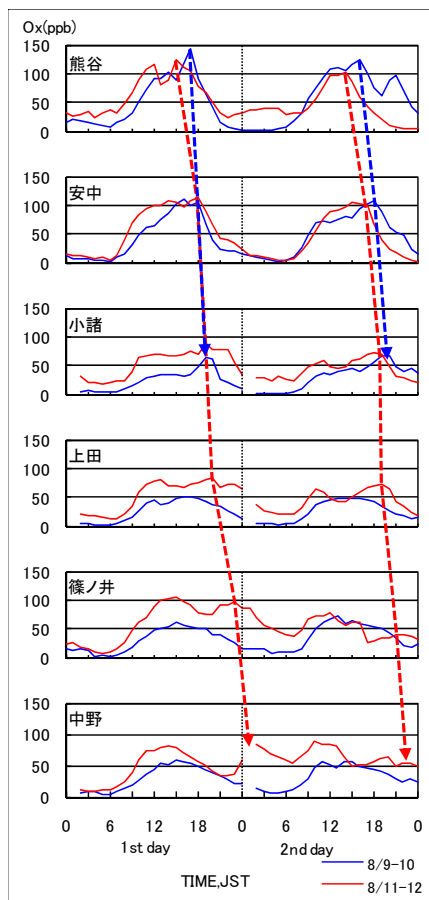


図 4.4.12. O₃ 濃度の経時変化図

(各局における移流の影響と思われる濃度上昇のピークを矢印で結んだ。9～10日は青矢印、11～12日は赤矢印で示す。)

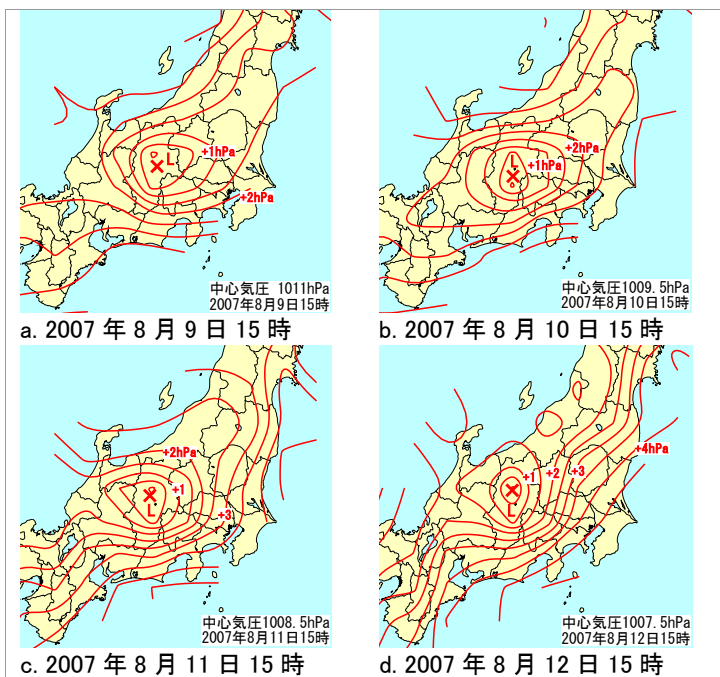


図 4.4.13. 2007年8月9日～12日 各15時の海面更正気圧分布図

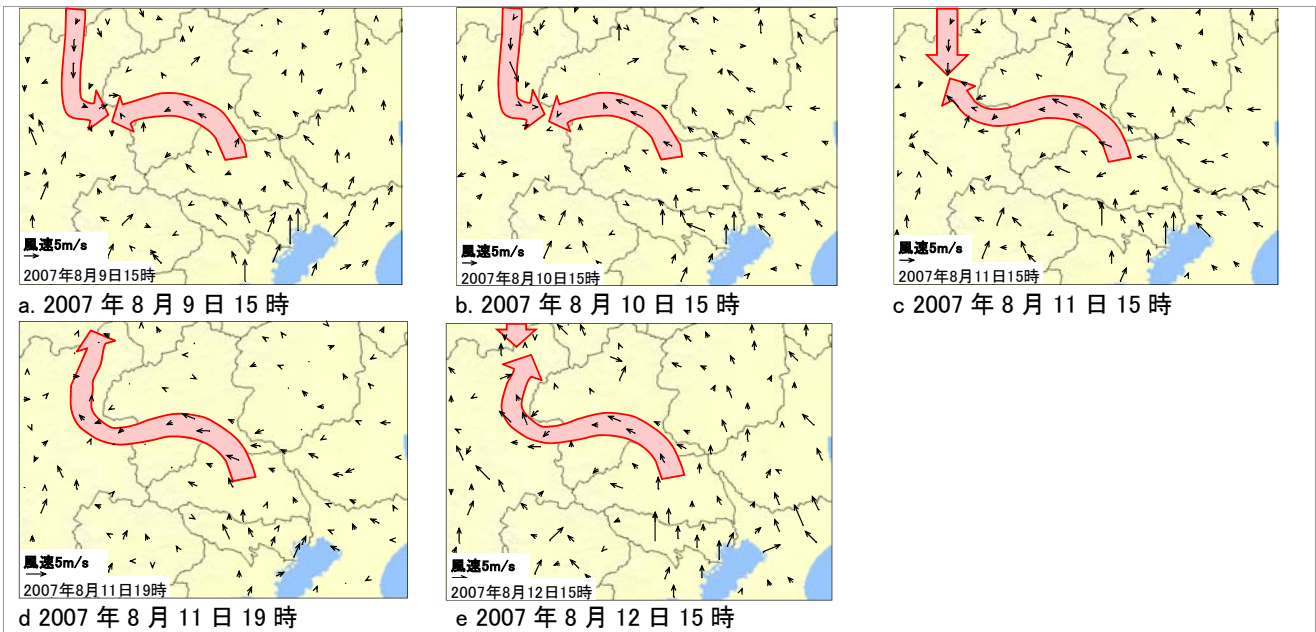


図 4.4.14. 関東甲信地域の地上風系図(風の流れの様子を赤矢印で示す)

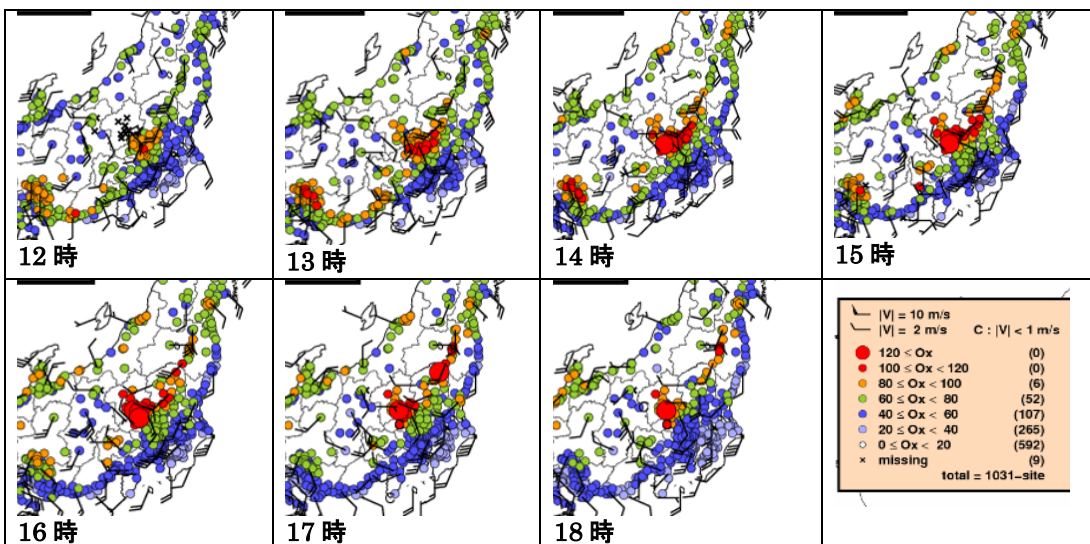


図 4.4.15. 関東周辺における8月1日のOx濃度分布の時系列変化(12時~18時)

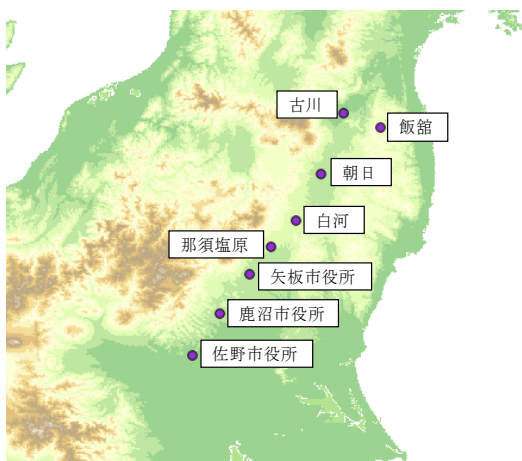
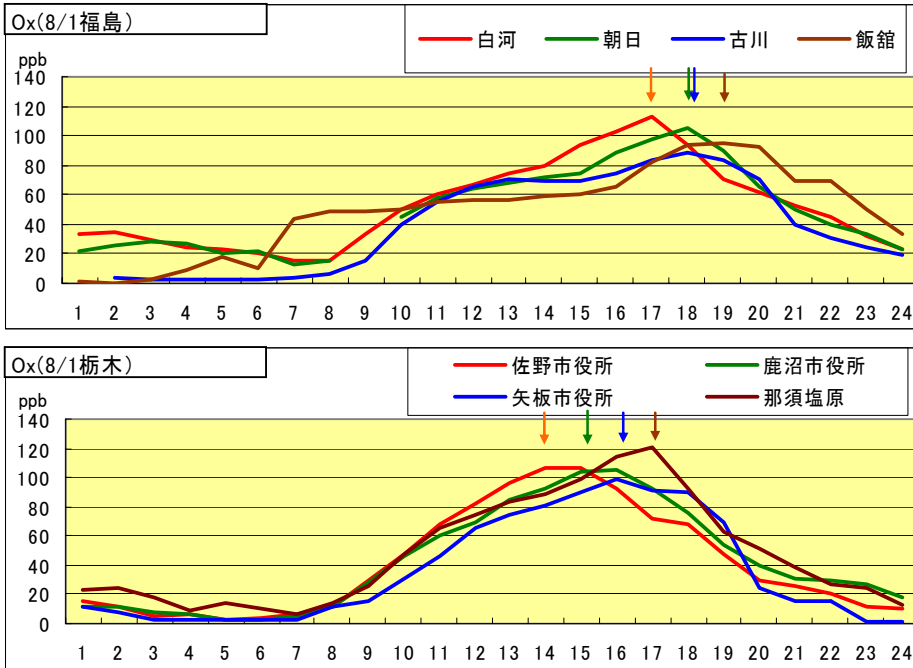


図 4.4.16. 解析対象測定局配置図(栃木経由福島ルート)

4.高濃度エピソード解析



注: 矢印は最高濃度出現時刻

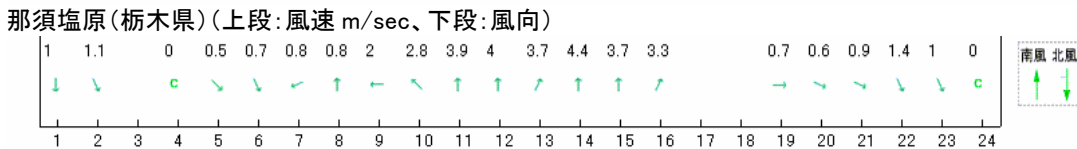
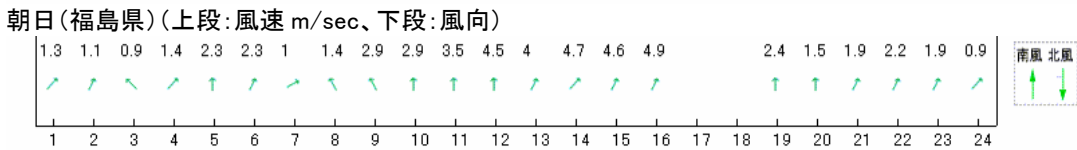
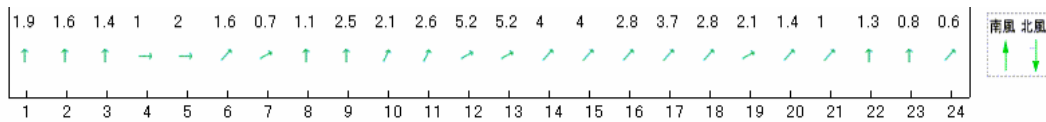


図 4.4.17. 栃木県、福島県における 8 月 1 日の Ox 濃度と風向風速の時系列変化

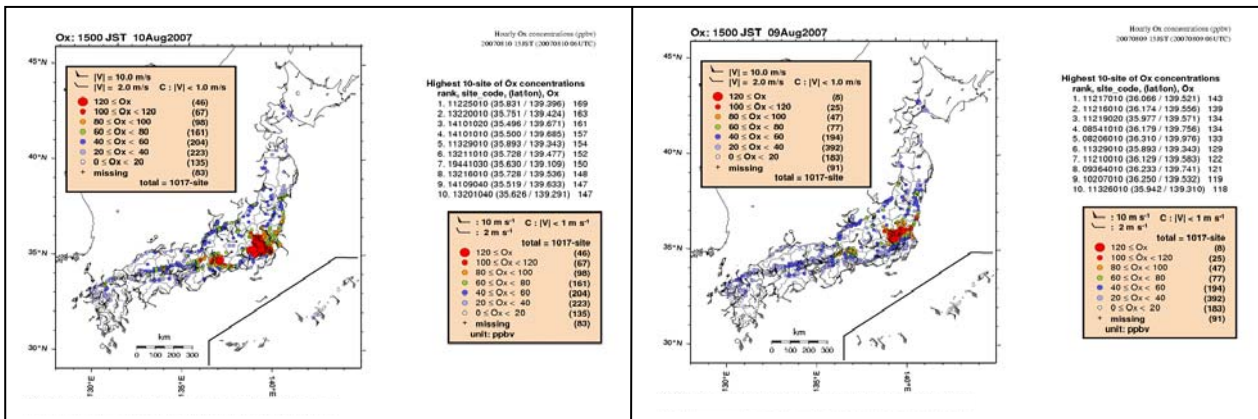


図 4.4.18. Ox 濃度分布図(15 時、左 8 月 9 日、右 8 月 10 日)

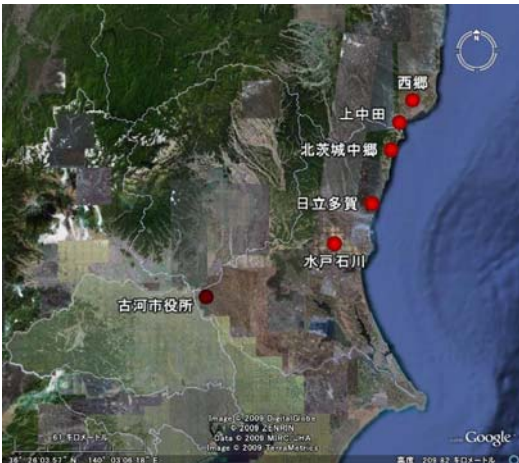


図 4.4.19. 解析対象測定局配置図(茨城経由福島ルート)

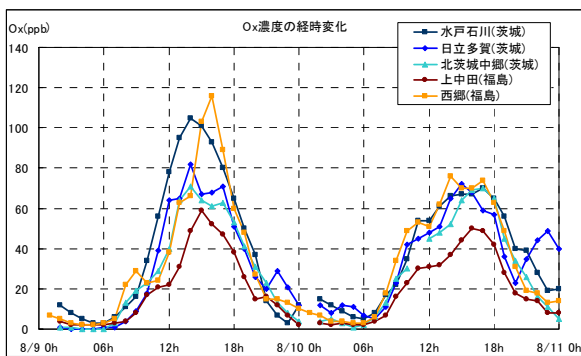


図 4.4.20. Ox濃度の経時変化(茨城～福島)

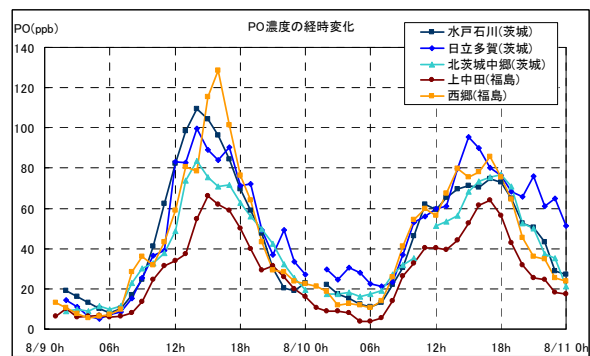


図 4.4.21. PO濃度の経時変化(茨城～福島)

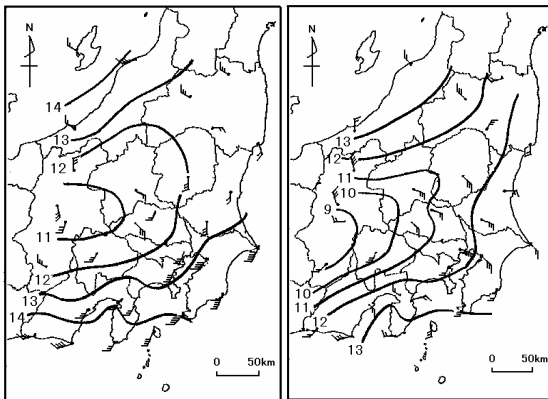


図 4.4.22. 15時の局地天気図(図中数字は気圧で+1000hPa、左:8月9日、右:8月10日)

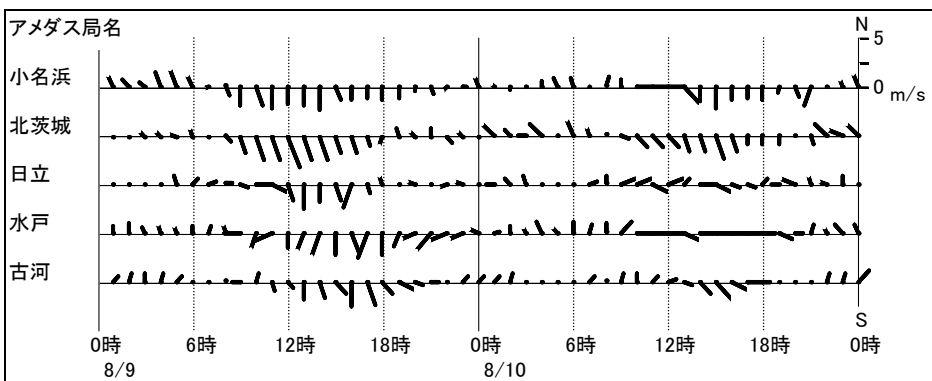


図 4.4.23. 茨城県における地上風の時系列変化(8月9日～10日)

4.高濃度エピソード解析

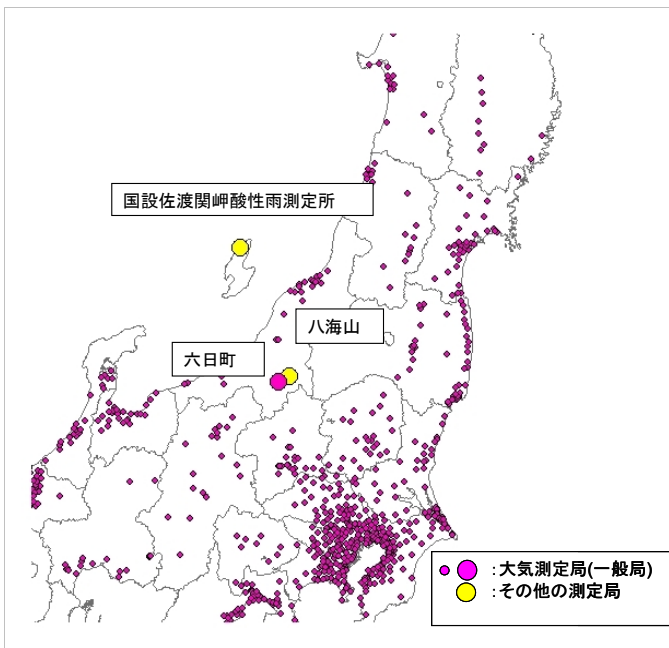


図 4.4.24. 新潟ルート解析地点配置

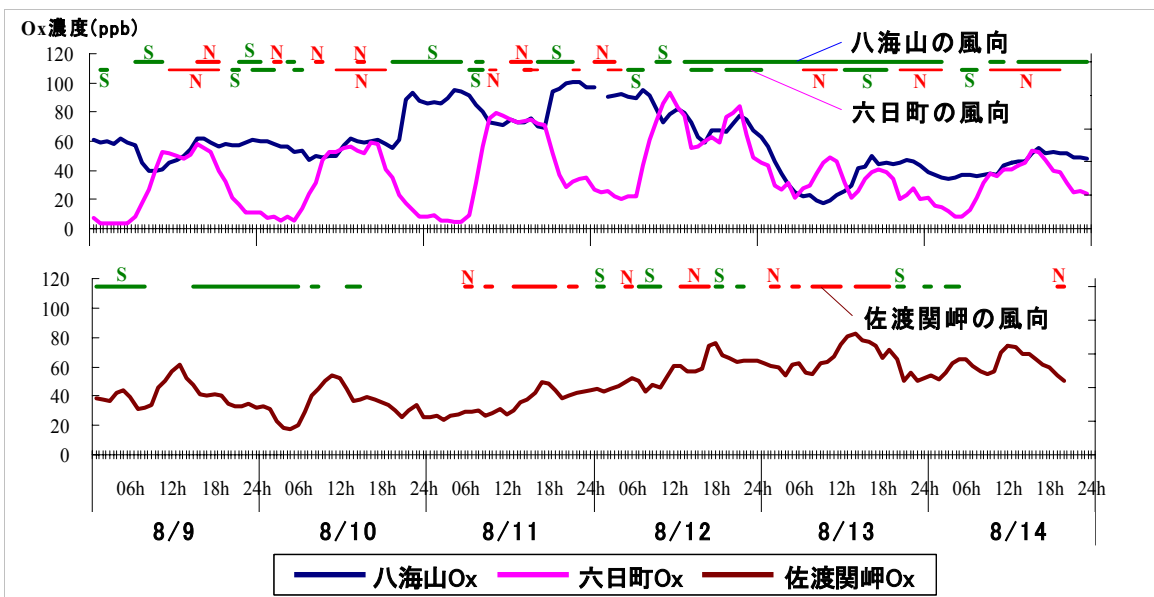


図 4.4.25. 八海山、六日町及び佐渡関岬における Ox 濃度と風向の推移(N: NW~NE, S: SE~SW)

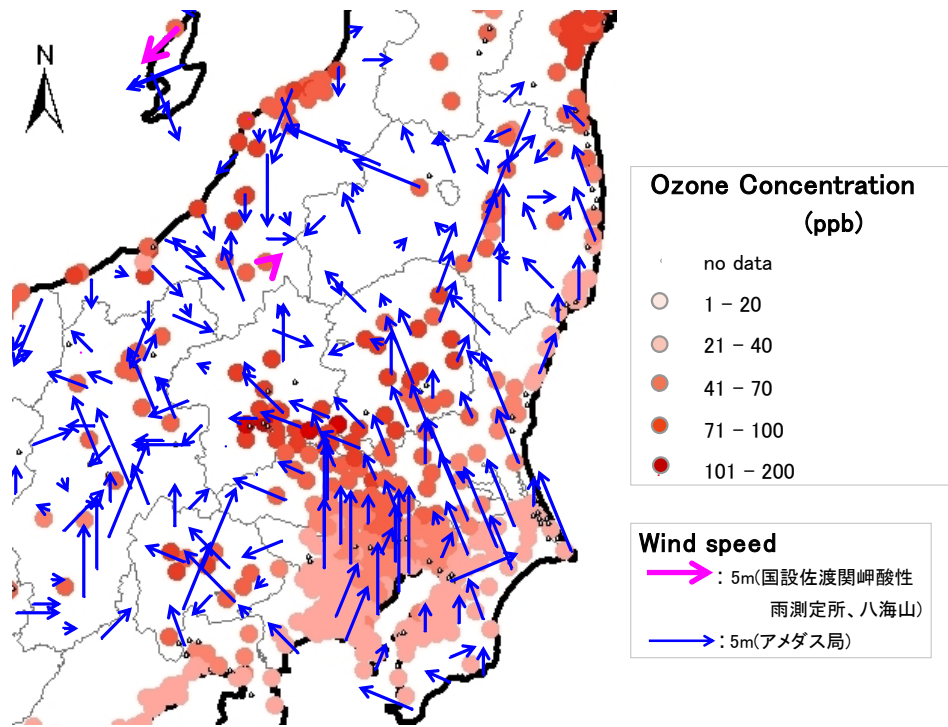


図 4.4.26. 日本中央域における Ox 濃度と風向風速分布(2007 年 8 月 12 日 16 時)

4.5. 高濃度エピソード解析のまとめ

4.5.1. 研究目的：なぜいま高濃度エピソード研究が必要なのか？

前節までの高濃度エピソード解析で示したように、2007年は多くの広域高濃度エピソードを様々な季節・地域で観測した。これらの高濃度エピソード以外にも、例えば大原ほか（2008）など一連の研究で解析した2007年5月8-9日の高濃度エピソードでは、大都市以外の地域（日本海側など）や離島域などでも注意報レベルに達するOx高濃度を広範囲で観測した。同期間における観測データや化学反応輸送モデルなどの結果から、国外起源の汚染物質が日本列島規模で輸送されてきた可能性などが指摘されている。

光化学オキシダント注意報・警報が発令される高濃度時には、健康被害を訴える人が増加するなど、人体への健康影響が生じる。このため、注意報・警報発令時にはOx原因物質の排出量の大きな製造業などが生産調整（生産ラインの活動抑制・停止）したり、屋外活動の自粛（イベントの中止）など、社会的・経済的な影響は大きい。

将来的には、中国を含むアジア諸国の経済発展に伴い大気汚染の原因物質の排出量増加が見込まれている（Ohara et al., 2007）。また、いわゆる地球温暖化などに伴う気候変動により、地域的な気象条件の変化が生じる可能性もある。冒頭に紹介した高濃度エピソードも含め、近年になって史上初の光化学オキシダント（光化学スモッグ）注意報を発令する自治体がでてきている点も考慮すると、これら様々な環境要因の変化が高濃度エピソードの出現時期・地域・規模などの変化をもたらしている可能性が考えられる。しかし、高濃度エピソードをもたらす可能性のある要因（例えば越境汚染影響）があるからといって、それが実際に観測された全ての高濃度エピソードの主要因であるとは限らない。問題解決のためには、正確な知識・情報に基づく状況分析が必要不可欠である。このような理由から、実際に観測された高濃度エピソードに関して詳細な個別解析をおこない、本節ではそれら高濃度エピソード解析の総括をおこなう。

4.5.2. 2007年の全国的な大気汚染概況と関連する気象概況

4.1-4.4節で解析した高濃度エピソードを含め、2007年は社会的にインパクトの大きな広域高濃度エピソードを複数観測したが、2007年に観測された高濃度エピソードはこれらだけではない。本節では、2007年に観測された全国的な高濃度エピソードの発生状況を概観する。

図4.5.1、4.5.2に、濃度ランク別測定局比率の春季・夏季の時系列を示す。2007年春季（3-5月）のOxについてみると、日周期変動をしながらも季節進行に伴い日中のOx濃度が上昇していく様子が明瞭である。3月下旬以降からOx濃度1時間値の環境基準を超過するOx > 60 ppbの測定局が観測され始める（Ox環境基準超過局比率の増加）。4月中旬にはほぼ連日全国的な濃度上昇がみられ、Ox環境基準超過局比率は、最大で全測定局の約80%に達した。4月下旬以降には100 ppbを上回る測定局も現れ、5月8-9日、26-27日などでは、Ox注意報発令レベルの120 ppbを超過した測定局もみられた。SO₂濃度についても、Oxほど顕著ではないものの、日中に高濃度局数が増加する日周期変動が見られる。特に高濃度局数が多いのは5月8-9日で、この期間はOxとSO₂、さらにSPMもほぼ同期して濃度上昇した、複合広域大気汚染現象として知られている（大原ほか、2008；早崎ほか、2008；黒川ほか、2008）。

一方、SPMではOxで顕著に見られた日周期変動はほとんどなく、2-3日程度持続する高濃度期間を観測する事が多い。春季に見られるSPM高濃度期間のうち、4月2-3日や5月26-27日は大規模な黄砂飛来期間に対応している（気象庁黄砂情報Web；環境省、2009）。

夏季（6-8月）になると、Ox環境基準超過局比率の極大値は春季に比べて小さくなるが、高濃度ランクの比率が相対的に高くなる（図4.5.2）。7月前半で環境基準超過率が大きく低下しているのは、梅雨前線の停滞（7月2日以降）と台風4号の接近・通過（7月12-15日）などにより、

4.高濃度エピソード解析

光化学生成しにくい気象条件であったことを反映している。4.2、4.3、4.4 節の高濃度エピソードは、梅雨前線の活動が本格化する以前および以後で生じた高濃度ケースである。これら夏季の Ox 高濃度期間では、SPM 濃度も全国的に高く、春季で観測された大規模黄砂エピソードに匹敵する濃度レベル・持続期間である。SO₂ については、春季と同様の日周期変動がみられるものの、濃度上昇を観測した測定局数は春季より明らかに少ない。

2007 年 7 月下旬には、九州南部（18 日）、九州北部・四国・中国（22 日）、近畿（24 日）、東海（27 日）など、西日本と太平洋側の一部で順次梅雨明けした。梅雨明け後、これら地域では連日の猛暑となり、Ox・SPM が広範囲で高濃度となった（4.3 節）。8 月 1 日に関東甲信・北陸・東北南部が梅雨明けしたが、西日本では台風 5 号の接近・上陸により荒天となり（8 月 1-3 日）、東日本でも台風に伴う南よりの強風を観測した。

台風 5 号の通過後、太平洋高気圧の縁を回るような南よりの風が卓越した。この暖かく湿った気塊の移流と上空の寒気存在により、九州から本州の山沿い地域など各地で雷雨となった（5-9 日）。関東平野では 5 日以後ほぼ連日 Ox 高濃度を観測したが、8 月 10-12 日頃には近隣県（福島・新潟・長野など）の一部地域で関東平野からの移流と思われる Ox 高濃度がみられた（4.4 節）。図 4.5.2 上段の濃度ランク別測定局比率で 8 月 10 日頃に見られる Ox 高濃度期間がこれにあたるが、同期間では 6 月下旬や 7 月下旬の高濃度時のような SPM 濃度の上昇はほとんど観測されていない（図 4.5.2 中段）。

4.5.3. 高濃度エピソード時における広域大気場・汚染状況

4.1 - 4.4 節では、2007 年に観測された 4 つの顕著な高濃度エピソードを対象として、常時監視局データや天気図、地上気象観測値、後方流跡線解析、数値モデル計算値（CFORS および NIES 大気汚染予測システム）や個別に詳細な解析結果を報告した。本節では、格子点気象データや衛星観測データなどを使用して、これら個別高濃度エピソード解析の結果を補足し、これら高濃度エピソードに見られる共通点・相違点などについて言及する。

使用した格子点気象データは、気象庁による数値予報格子点値（Grid Point Value; GPV）の全球数値予報モデル（GSM）およびメソ数値予報モデル（MSM）である（表 4.5.1）。また、衛星観測データとして、地球観測衛星 Aqua 搭載の中分解能撮像分光放射計 MODIS（Moderate Resolution Imaging Spectrometer）の Level-2 プロダクトから、エアロゾル（プロダクト分類名：MYD04）および雲（MYD06）プロダクトを使用した。

4.5.3.1. 高濃度エピソード 1: 4 月 26-30 日

4.1 節で述べたように、エピソード 1 の初期（26-27 日）は長崎県の離島や九州北部・西部を中心として高濃度の Ox、SPM、SO₂ を観測した。この 2 日間では、粒子状物質中の硫酸エアロゾル濃度が 20 μg/m³ を超過していたこと、後方流跡線解析から北京周辺・山東半島付近などの中国北西部を起源とする気塊が到達していたことなどから、大陸起源の汚染気塊による越境汚染が主要因と考えられる。

25 から 26 日にかけて日本列島の南北を挟むように寒冷前線を伴う低気圧が通過した。一般に、前線は温度・湿度に関して性質の異なる空気塊（気団）の境界領域であり、寒冷前線の背面（寒気側）では、大陸起源の寒冷かつ乾燥した気塊が存在している。エピソード 1 の場合でも、例えば沖縄県では寒冷前線（相当温位の等値線が混み合った領域）の通過後に SO₂ 濃度が急上昇した（図 4.5.3）。

春季でもシベリアでは寒冷かつ乾燥した気塊が存在し、モンゴルや中国西部・北部などを經由して東進・南東進することで寒気の吹き出し（コールドサージ）となる。寒気の吹き出しの移動方向前面には寒冷前線が形成され、高緯度大陸起源の気塊との境界となる。寒気は華北平原などの大気

汚染物質排出地域を通過するため、寒冷前線は温度・湿度の境界だけでなく、大気質に関する気団境界ともなる。実際に、Aqua/MODIS から得られたエアロゾル光学的深さ (Aerosol Optical Depth, 詳細は 5.2 節参照) を見ても、寒冷前線背面の東シナ海では大きな AOD がみられる (図 4.5.4)。

4.1.2 でも指摘したように、Ox 高濃度を観測した測定局では、一部期間において上空に雲があり、Ox の光化学生成には必ずしも適した気象条件でなかった (図 4.5.5) が、曇天にもかかわらず、長崎県の離島や九州北部・西部では、午前中から Ox > 100 ppb を観測した。したがって、エピソード 1 の広域高濃度は、総観規模の低気圧・前線システムの移動や高気圧に伴う流れ場による「大陸汚染気団」の移流によりもたらされたと考えるのが妥当であろう。

4.5.3.2. 高濃度エピソード 2: 6 月 25–30 日

エピソード 2 は、梅雨期で観測された高濃度エピソードであり、Ox および SPM 高濃度域の空間分布が特徴的であった。25 日は中四国地域の瀬戸内海沿岸部、26 日では、さらに九州北部や大阪湾周辺、東海地方とほぼ東西方向に高濃度域が観測された。一方で、九州南部や四国の太平洋沿岸などでは、Ox・SPM 共に顕著な濃度上昇が見られなかった。このような高濃度域の東西帯状の分布は、同期間の雲分布と関係すると思われる。

図 4.5.6 に、高濃度の 6 月 26 日 15 時の雲分布 (ひまわり 6 号の赤外 1 チャンネル輝度温度) と Ox・SPM の高濃度局を示す。瀬戸内海を中心とする高濃度域では雲が無く、その南北ではほぼ東西方向に走る雲域が存在する。梅雨前線本体に伴う雲域の北端は、九州南部～四国の南海上～房総半島の南海上まで、日本列島南岸海上に位置している。これ以外にも、太平洋岸や中国山地から山陰地方にかけて雲域があり、その一部は弱い降水をもたらした。瀬戸内海沿岸はこれら南北 2 つの雲域の切れ間にあり、25–26 日の特に日中では、雲に覆われることが少なく、降水もほとんど見られなかった。

さらに、この高濃度エピソードでは一般風の収束に起因すると思われる局所的な高濃度域がみられた。一例として、6 月 27 日の中部地方における地上風とその収束場の空間分布を図 4.5.7、4.5.8 に示す。15 時では、東海地方の Ox、SPM の高濃度局は海岸沿いと名古屋市の東側で多くみられる。伊勢湾、遠州灘沖など、東海地方の南海上では東よりの風なのに対し、日本海側では北よりの風が卓越しており、関ヶ原周辺の谷間から濃尾平野側にぬける風が吹いている。これに伴い、伊吹山地の西側山麓 (伊勢平野) 付近で強い収束帯がみられる。18 時には、伊勢湾方面からの南東風と関ヶ原をぬけた北西～西風が収束し、この収束域で Ox、SPM の高濃度局が集中している。21 時になると、18 時に比べて伊勢湾側からの南風が濃尾平野の北部にまで侵入し、収束域の中心は岐阜県側に移っている。SPM の高濃度局が 18 時に比べて北寄りの地点で増えているのは、この伊勢湾側からの南風による移流の影響と考えられる。Ox は夜間になって濃度が低下するため、SPM ほど高濃度局の北進はみられない。しかし、三河湾沿岸や静岡県西部などは 21 時には 60ppb 以下に低下しているのに対し、岐阜県・愛知県境付近では 80 ppb 前後の濃度であり、他の地域に比べて濃度低下のペースが遅い。

なお、伊勢湾から南側では、東風が卓越していた。したがって、伊勢湾側から濃尾平野に向かう南風は、海陸の熱的コントラストにより生じた海風というよりも、海上の一般風の一部が陸域に向かった事で生じた流れと思われる。

4.5.3.3. 高濃度エピソード 3: 7 月 24–29 日

エピソード 3 は、梅雨明けした西日本を中心として高濃度 Ox、SPM を観測したケースである。4.3.2 節で指摘しているように、本高濃度エピソードは梅雨明け直後の好天により、大都市近郊・工業地帯などで排出された Ox 前駆物質から光化学反応により生成されたことが Ox 濃度上昇の主

4.高濃度エピソード解析

要因と思われる。この期間では一般風は弱く、海陸風循環が形成されている。

図 4.5.9 に、7月 25 日 15 時における Ox 高濃度局分布、地上風とその収束・発散域を示す。大阪湾・鳴門海峡・紀伊水道・若狭湾・琵琶湖などで相対的に強い発散場（暖色系）となっている。大阪湾方面からの南西風は琵琶湖南部にまで到達している。したがって、京都で観測されている Ox 高濃度は、大阪湾岸からの前駆物質が、海風により内陸部に輸送されつつ光化学生成されて生じたと考えられる。

また、エピソード 3 の後半（28 日から 29 日）で観測された、北陸や近畿、中四国、九州北部などの SPM 高濃度は、地域内汚染というよりも越境汚染が主要因である可能性がある。28 日の Aqua/MODIS による AOD 分布図をみると、山陰地方から石川県の能登半島付近までの日本海海上で、0.4 以上の高い AOD 領域が存在していた（図 4.5.10）。このような AOD の極大域は、29、30 日にも西日本で見られ、28 日より西側の九州付近に位置していた。AOD 極大域の空間分布は 4.3.2 節でも指摘した地上 SPM 濃度の高濃度域とほぼ対応する。また、AOD 極大域と背景場の水平風を見る限りでは、28、29 日に観測された SPM 高濃度は、大陸を起源としている可能性が高いと考えられる。

4.5.3.4. 高濃度エピソード 4：8 月上旬(前期：7 月 31 日－8 月 2 日、後期：8 月 9－13 日)

エピソード 4 は、大きく分けて 2 つの高濃度期間がある。期間中の前期は、8 月 1 日に関東・中部・関西などの大都市近郊と、北関東から東北地方にかけて観測された。後期（8 月 9－12 日）では、それらに加えて長野・新潟などでも高濃度となった。

このうち、前期のエピソードには、一般場の流れの寄与が大きいと思われる。図 4.5.11 に、8 月 1 日 15 時の雲分布（ひまわり 6 号赤外 1 チャンネル輝度温度 280K 以下）、850 hPa 面における水平風（ベクトル）・相当温位（等値線）を示す。日本の南海上には台風 5 号に伴う強い低気圧性渦があり、それに伴う強い南よりの風が台風の東～北東側にある。また、40N 以北には、梅雨前線に伴う雲域が南西－北東方向に伸び、その南側の日本海では南西風が卓越している。このような気圧配置により、東日本・北日本では台風～太平洋高気圧の間の南よりの風と梅雨前線南側の南よりの風とが、南北方向にほぼ連続的につながっていた。すなわち、関東平野を起源とする汚染気塊は、これら一般場の強い南寄りの風で北向きに輸送されやすい状況下にあった。MSM による地上風（図 4.5.12）をみても、関東平野の東部では南よりの風が卓越していた。この風向は、高濃度を観測した福島県の中通りの谷筋にほぼ沿う向きである。したがって、8 月 1 日に東北地方で観測された Ox 濃度上昇は、強い一般風により関東起源の汚染気塊が谷沿いに福島県中通り地方まで輸送された、国内起源の広域大気汚染と考えられる。

一方、後期のエピソード期間では、東日本では太平洋高気圧に覆われて晴天となり、水平気圧傾度が小さく、海陸風・山谷風など局地風循環の形成に適した気象条件であった。新潟県・八海山や長野県で高濃度 Ox を観測した、8 月 11 日の地上風・Ox 濃度分布を図 4.5.13 に示す。

11 日 6 時では、Ox > 60 ppb の測定局は解析領域内で 1 局もなく、地上風は山間部で山風・海岸付近で陸風である。9 時には、埼玉県・東京都・神奈川県など関東平野西部は弱い北よりの風であり、60 < Ox < 80 ppb の測定局が見られる。関東平野北部の山岳域では、谷や山麓から山岳に向かう谷風があり、ほぼ山岳の稜線沿いに収束域が見られる。それら以外では地上風速が 1m/s 未満（図では非表示）のほぼ静穏状態である。12 時には、相模湾・東京湾・鹿島灘などの沿岸部で海風が侵入している。この日は、茨城県（鹿島灘）方面からの東よりの風が卓越しており、Ox 高濃度域も関東平野の西側に多い。また、駿河湾や新潟県側でも海風の侵入があり、それぞれ富士川・千曲川の谷沿いの内陸部（甲府盆地、長野盆地）で Ox > 80 ppb に達している。

15 時には、12 時と同様に関東平野南部・西部で高濃度局が多いが、 $O_x > 100$ ppb となる測定局が群馬県北部や長野盆地でもみられる。18 時には、関東平野は相模湾方面からの南よりの海風と鹿島灘方面からの東よりの海風でほぼ平野全体が覆われ、それら 2 経路からの海風は関東平野西部で収束している。21 時になると、関東平野では全体的に O_x 濃度が低下したが、長野盆地では 18 時よりも O_x 濃度が高かった（最高濃度は中野市吉田で 11 日 24 時に 117 ppb）。地上風は、山岳域を中心として発散場（図中の暖色系部分）となり、群馬県や栃木県の南半分では弱い北寄りの風であった。

4.5.4. まとめと議論

2007 年の春季～夏季に観測された O_x 高濃度エピソード（4 期間）について、4.1 – 4.4 で個別の詳細解析をおこなった。これに 4.5 節でおこなった補足解析結果を加えて、解析対象 4 エピソードの特徴を以下にまとめる：

- エピソード 1：2007 年 4 月 26–30 日
 - ・ 大陸起源汚染気塊の移流に伴う広域高濃度
 - ・ 曇天時でも O_x 高濃度を観測
- エピソード 2：2007 年 6 月 25–30 日
 - ・ 九州北部などは大陸起源汚染気塊の移流影響が大
 - ・ O_x および SPM 高濃度域は、雲・降水域分布（梅雨前線帯や山岳域での対流性降水など）により地域的な制約を受けた可能性あり
- エピソード 3：2007 年 7 月 24–29 日
 - ・ 都市近郊では地域内起源汚染物質の影響が大
 - ・ 海陸風循環による汚染気塊の内陸への輸送（例：大阪湾から京都盆地、滋賀県まで）
 - ・ 海風収束域での汚染物質の集積
 - ・ 期間後半（28、29 日）には、越境汚染に起因すると思われる SPM 濃度上昇あり
- エピソード 4：2007 年 8 月上旬（前期：7 月 31–8 月 2 日、後期：8 月 9–13 日）
 - ・ 前期：台風と太平洋高気圧に伴う流れがもたらした、汚染物質の長距離輸送（ただし、関東から東北地方という、国内起源物質の地域間輸送）
 - ・ 後期：晴天・静穏な気象条件下での局地循環（山谷風・海陸風）が卓越
 - ・ 後期：関東平野起源の汚染物質の一部は、夕方～夜間に峠を越えて近隣県に流入

従来の大気汚染研究での典型的な O_x 高濃度エピソードには、以下にあげる特徴がよく知られている：

- ・ 盛夏期の大都市とその近郊で高濃度エピソードが発生しやすい
- ・ 発生に適した気象条件は、太平洋高気圧に覆われて一般風が弱く、十分な日射量がある晴天日
- ・ 特に高濃度が発生しやすい関東平野を例にすると、日中から夕方にかけて大規模海風が内陸側に進行するのに伴い、高濃度の中心域も北上、関東平野北部に移動
- ・ 一部の汚染気塊は、川筋や峠を経由して内陸の盆地にまで到達（関東平野の場合：長野県東部や福島県中通りなどへの移流。大阪平野：京都盆地・奈良盆地や琵琶湖周辺、など）

同様に、SPM に関する「教科書的な」典型高濃度エピソードは、以下のようなプロセスが知られている：

- ・ 放射冷却が卓越する気象条件（晩秋から初冬期、静穏かつ雲のない夜間など）の場合、日没後から地表面付近の気温が低下、接地逆転層が形成
- ・ 地上付近で排出された粒子状物質は、接地逆転層により鉛直拡散が抑制され、地表付近に蓄積

4.高濃度エピソード解析

- ・ 接地逆転層が弱まる・崩壊する前（日の出前）に SPM 濃度が極大値をとる

2007 年の高濃度エピソードを見る限り、上記のような「典型的な地域内高濃度エピソード発生過程」に類似した濃度変動も一部に見られるものの、それだけでは説明がつけにくい、いわゆる越境汚染の影響を受けた汚染物質動態も観測された。

4.5.1 節でも述べたように、将来的な東アジア諸国の経済発展を考慮すれば、Ox 高濃度エピソードは今後も春季・夏季を中心として発生することが予想される。2007 年の高濃度エピソード解析結果は、それら将来の高濃度エピソードの発生プロセス解明の際に、重要な指針となると思われる。

ここまでの解析結果をふまえて、高濃度エピソードの要因解明にあたっての将来課題を以下に挙げる。第一に、データ解析に際して、リモートセンシングデータ利用を拡大することが重要である。人工衛星や地上ライダーなどは、地上観測だけでは得られない雲・エアロゾルなどの空間分布・時間変動を捉えることが出来る。広域の同時観測（衛星）や高時間分解能の鉛直分布観測（ライダー）は、広域高濃度エピソードの発生プロセスを理解する上で非常に有効である。さらに、近年では雲・エアロゾルの平面的な分布だけでなく、それらの鉛直分布（例：Cloudsat や CALIPSO）や大気中の微量成分気体が測定可能な地球観測衛星・センサーが存在する。これらの複合利用により、広域高濃度エピソードの空間規模の把握が容易になり、また従来観測データが乏しかった海上などでの汚染物質動態の理解も進むことが期待される。

第二に、時空間分解能の高い気象データの活用があげられる。近年、気象庁の数値予報モデルは様々な点で高度化（物理過程の精緻化、新規の衛星データ活用、データ同化手法の改良など）されてきた。これらのモデル改良に合わせて、水平格子間隔は GSM で 20 km（2007 年 11 月以後）、MSM では 5 km（2006 年 3 月以後）と高解像度化された。さらに、MSM の場合、予報値を併用すれば 1 時間間隔の格子点気象データ（地上のみ）が利用可能である。MSM の時間間隔（1 時間間隔）・水平格子間隔（5 km 間隔）は、数百キロメートル規模の広域大気汚染現象の解析には十分実用であろう。また、配信データファイル形式も、従来の気象庁独自形式から世界各国で広く利用されている国際気象通報式 FM92 GRIB 第 2 版（略称：GRIB2）となり、気象庁関係者以外のユーザにとって利用への障壁が低くなった。大気汚染研究分野でも、MSM のような時空間分解能の高い気象データを利用することで、汚染物質の 3 次元分布やその輸送過程に関する理解が進むと期待される。

第三に、化学反応輸送モデルの利用促進がある。4.1 - 4.4 節の解析で示したように、化学反応輸送モデルによる計算結果は、越境汚染など空間規模の大きな高濃度現象については、現状でも比較的高い再現性を持っていると思われる。今後、数日規模の大気汚染予測だけでなく、黒川ほか（2008）などがおこなった Ox 高濃度の主な要因の解明など、発生プロセス解明にも大きな役割を果たせるであろう。

参考文献

- 1) Ohara, T. and H. Akimoto and J. Kurokawa and N. Horii and K. Yamaji and X. Yan and T. Hayasaka: An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980 - 2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419 - 4444 (2007)
- 2) 環境省: 黄砂実態解明調査報告書, 環境省地球環境局, 169pp (2009)
- 3) 早崎将光, 大原利眞, 黒川純一, 鶴野伊津志, 清水厚: 2007 年 5 月 8-9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染: 観測データ解析, *大気環境学会誌*, 43, 225-237 (2008)
- 4) 黒川純一, 大原利眞, 早崎将光, 鶴野伊津志: ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析, *大気環境学会誌*, 43, 209-224 (2008)
- 5) 大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 早崎将光, 清水厚: 2007 年 5 月 8, 9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染— オーバービュー —, *大気環境学会誌*, 43, 198-208 (2008)

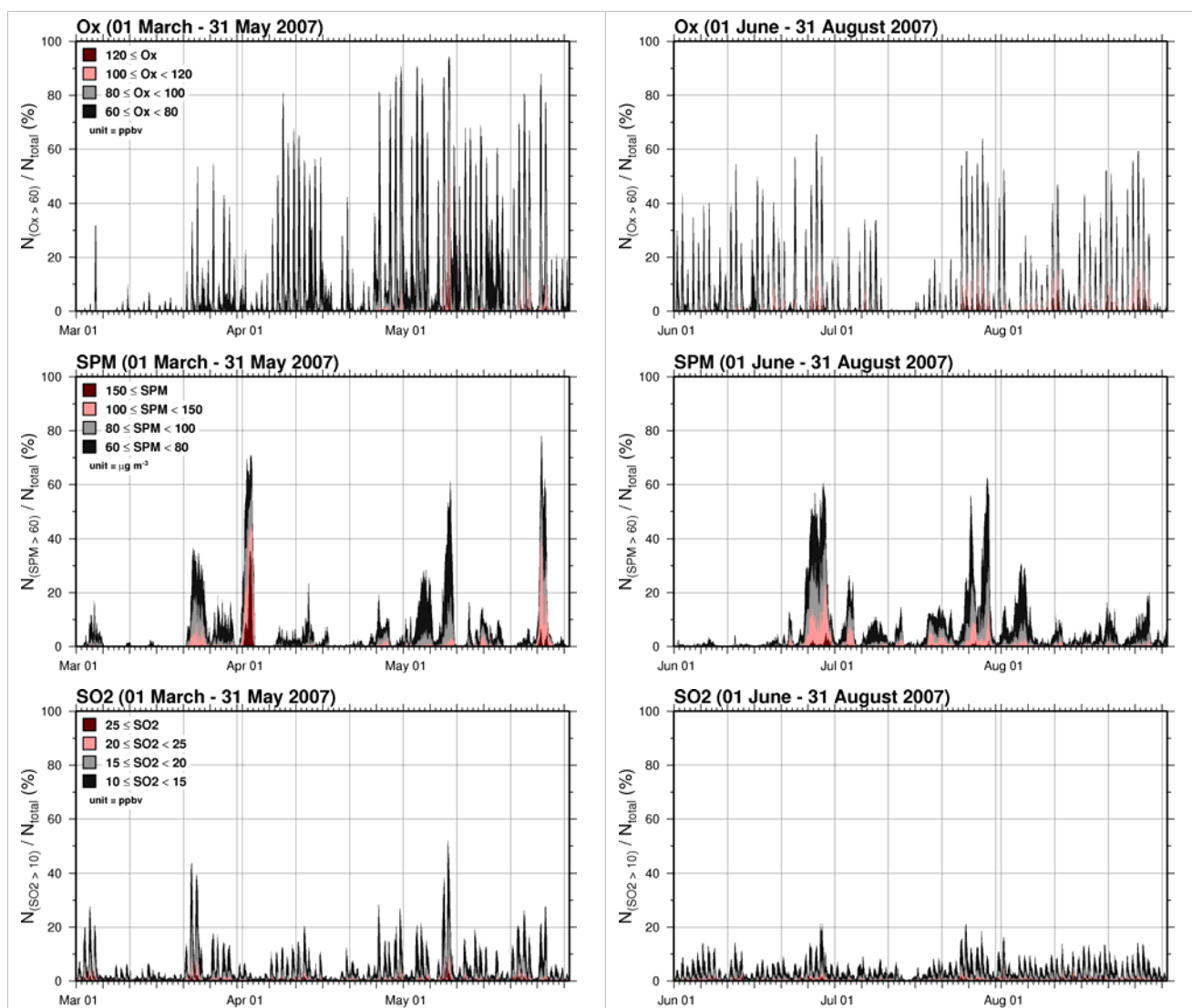


図 4.5.1. 2007 年 3—5 月における濃度ランク別測定局比率(上段:Ox、中段:SPM、下段:SO₂)

図 4.5.2. 2007 年 6—8 月における濃度ランク別測定局比率(上段:Ox、中段:SPM、下段:SO₂)

4.高濃度エピソード解析

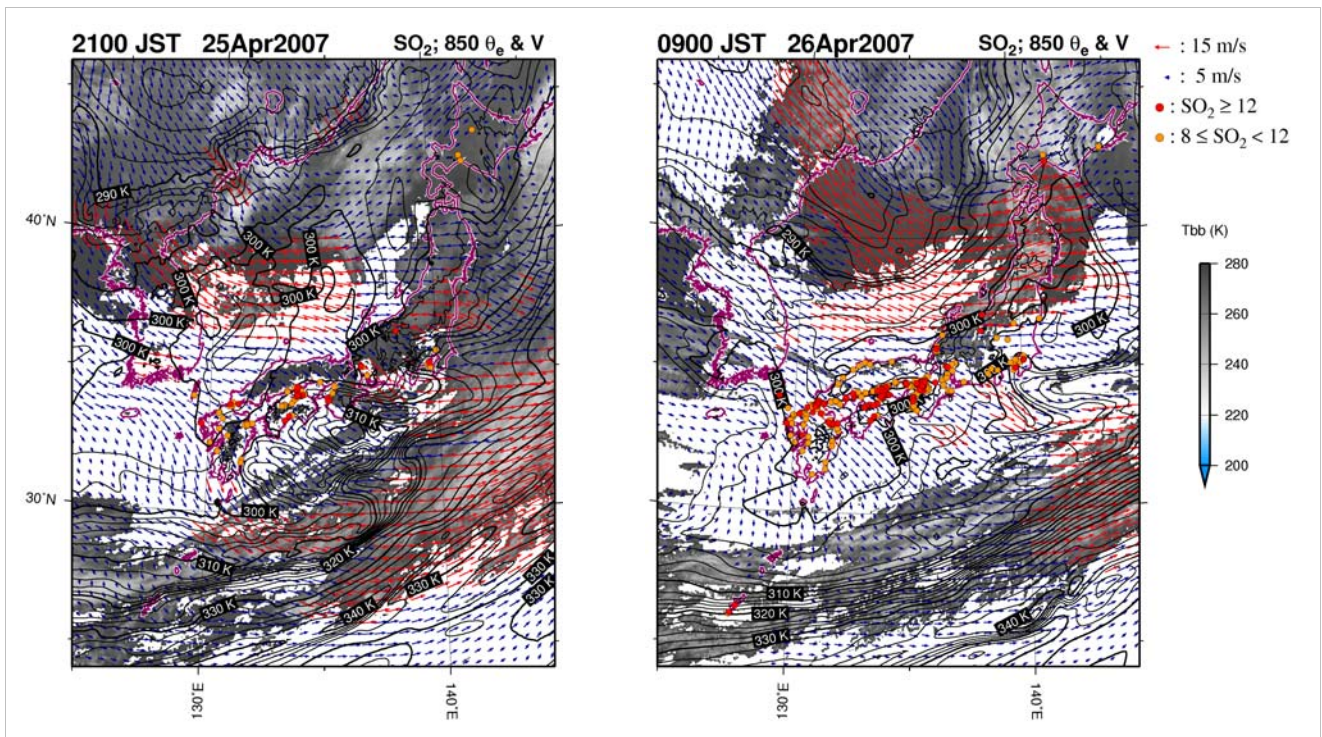


図 4.5.3. 気象庁メソ数値モデル(以後 MSM と表記)の 850hPa 面における相当温位(等値線、2K 間隔)、水平風(ベクトル)と SO₂ 濃度分布(丸印; 8 ppb 以上; 赤、橙)。左: 2007 年 4 月 25 日 21 時、右: 2007 年 4 月 26 日 9 時(いずれも日本時間)。陰影部はひまわり 6 号赤外 1 チャンネル輝度温度(280 K 以下のみ)。

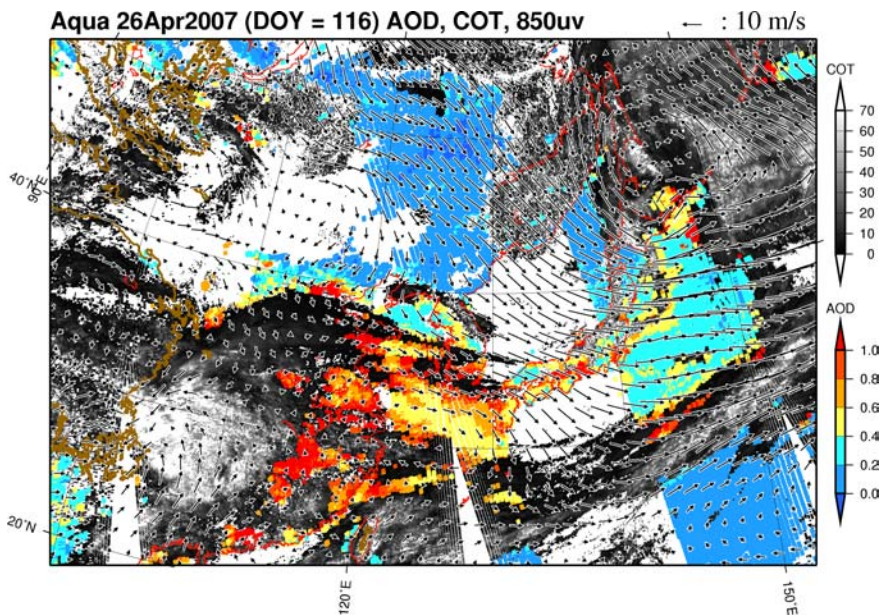


図 4.5.4. 2007 年 4 月 26 日の 850hPa 面における水平風(ベクトル; 使用時刻は 06 UTC)と、Aqua/MODIS による AOD(カラー)、雲の光学的厚さ(陰影部、Cloud Optical Thickness)。AOD 算出アルゴリズムの制約により、雲に覆われた地域、陸上の沙漠域、太陽反射光の影響の大きな衛星軌道直下に近い海上などは欠測ないし非表示。

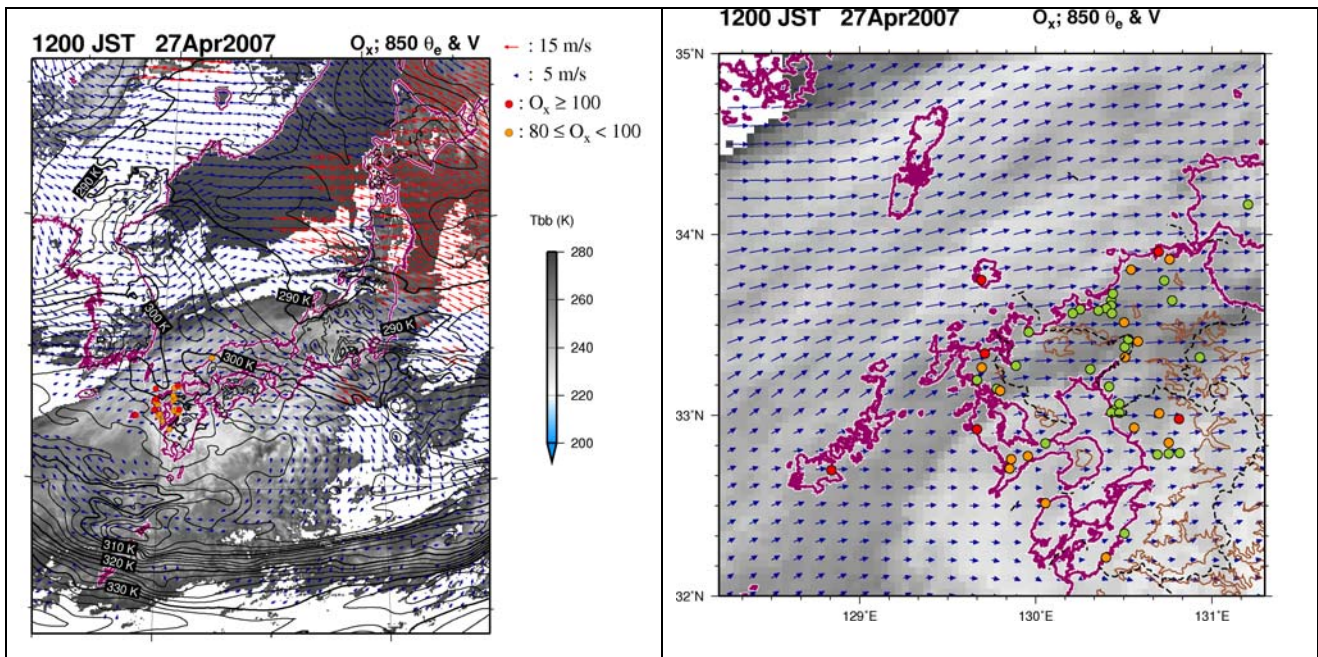


図 4.5.5. 2007 年 4 月 27 日 12 時の MSM の 850hPa 面における相当温位(等値線、2K 間隔)、水平風(ベクトル)と O_x 高濃度局の分布(丸印; 80 ppb 以上; 赤、橙)。陰影部はひまわり 6 号赤外 1 チャンネル輝度温度 (280 K 以下のみ)。右は九州北西部の拡大(緑丸 $60 < O_x < 80$ ppb を追加)。

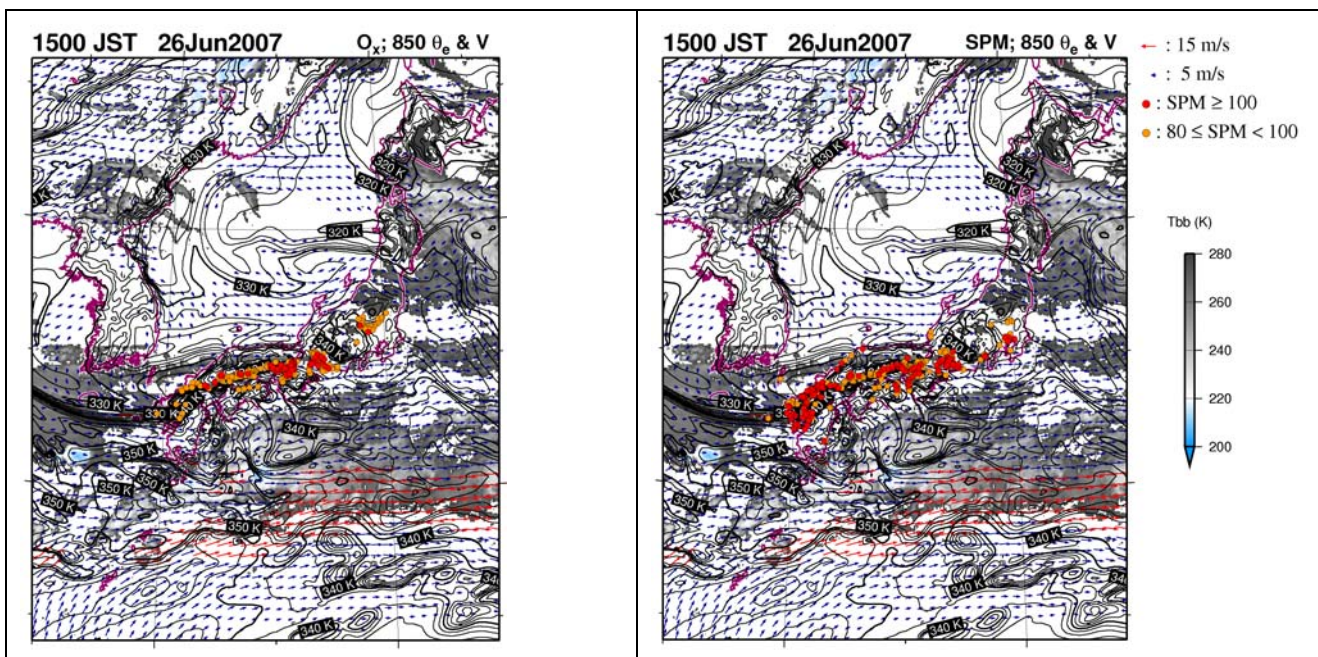


図 4.5.6. 2007 年 6 月 26 日 15 時の MSM の 850hPa 面における相当温位(等値線、2K 間隔)、水平風(ベクトル)と O_x ・SPM 高濃度局の分布。左: O_x (丸印; 80 ppb 以上; 赤、橙)、右: SPM (丸印; 80 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上; 赤、橙)。陰影部はひまわり 6 号赤外 1 チャンネル輝度温度 (280 K 以下のみ)。

4.高濃度エピソード解析

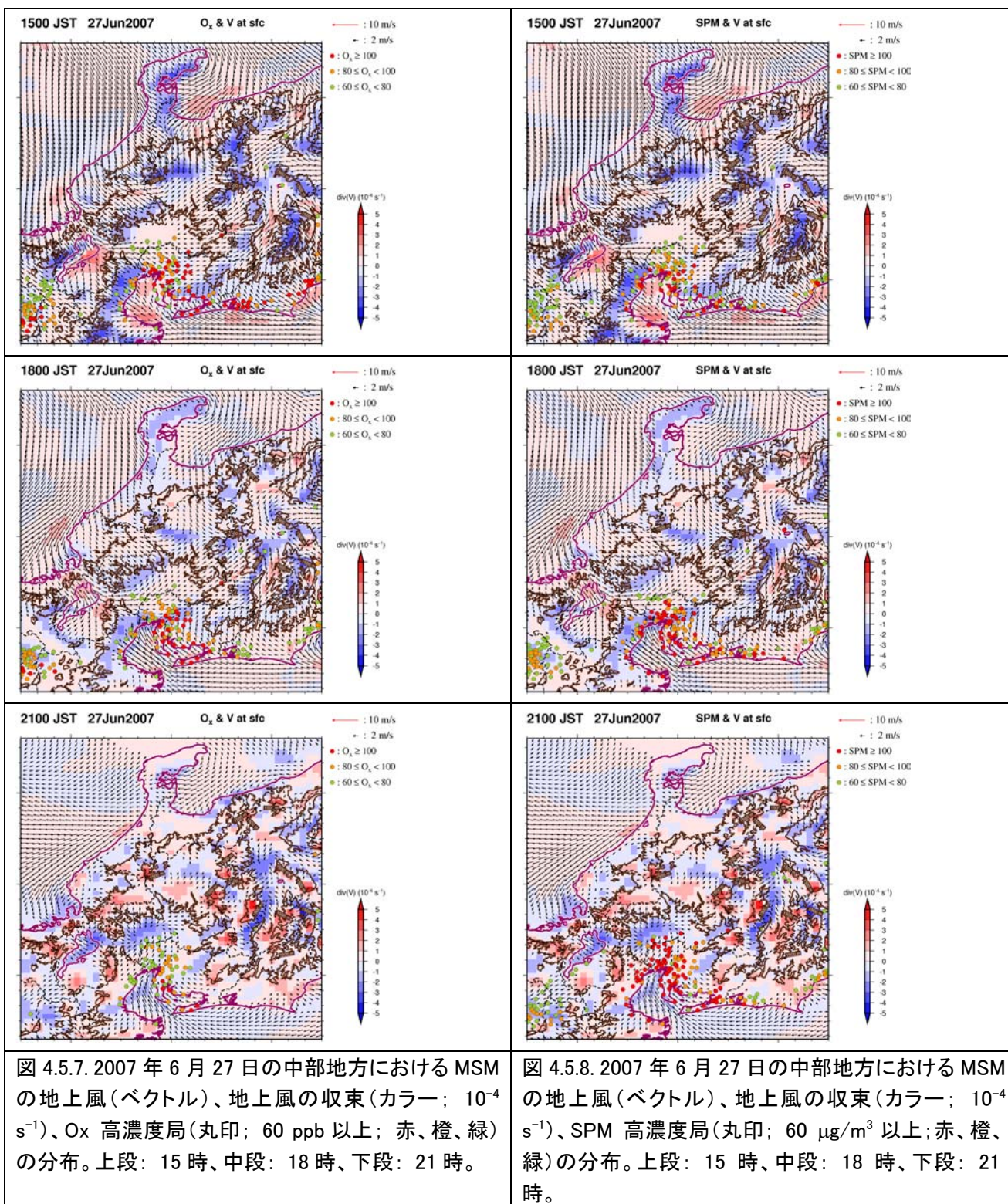


図 4.5.7. 2007 年 6 月 27 日の中部地方における MSM の地上風(ベクトル)、地上風の収束(カラー; $10^{-4} s^{-1}$)、 O_3 高濃度局(丸印; 60 ppb 以上; 赤、橙、緑)の分布。上段: 15 時、中段: 18 時、下段: 21 時。

図 4.5.8. 2007 年 6 月 27 日の中部地方における MSM の地上風(ベクトル)、地上風の収束(カラー; $10^{-4} s^{-1}$)、SPM 高濃度局(丸印; $60 \mu g/m^3$ 以上; 赤、橙、緑)の分布。上段: 15 時、中段: 18 時、下段: 21 時。

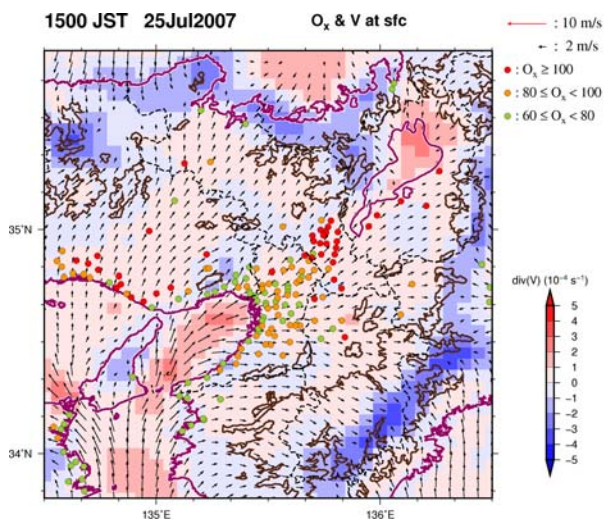


図 4.5.9. 2007 年 7 月 25 日 15 時の近畿地方における MSM の地上風(ベクトル)、地上風の収束(カラー; 10^{-4} s^{-1})、 O_3 高濃度局(丸印; 60ppb 以上; 赤、橙、緑)の分布。

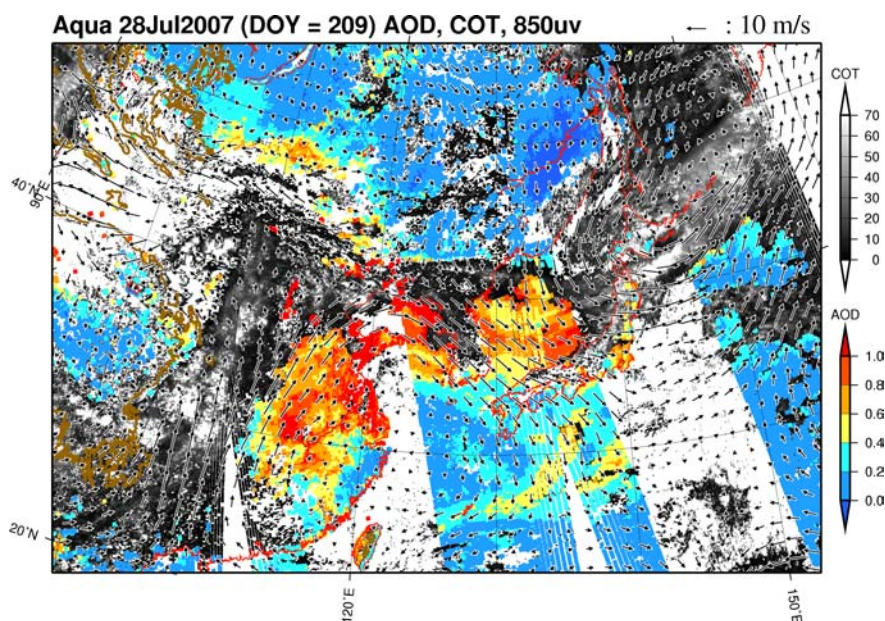


図 4.5.10. 2007 年 7 月 28 日の 850hPa 面における水平風(ベクトル; 使用時刻は 06 UTC)と、Aqua/MODIS による AOD(カラー)、雲の光学的厚さ(陰影部、Cloud Optical Thickness)。AOD 算出アルゴリズムの制約により、雲に覆われた地域、陸上の沙漠域、太陽反射光の影響の大きな衛星軌道直下に近い海上などは欠測ないし非表示。

4.高濃度エピソード解析

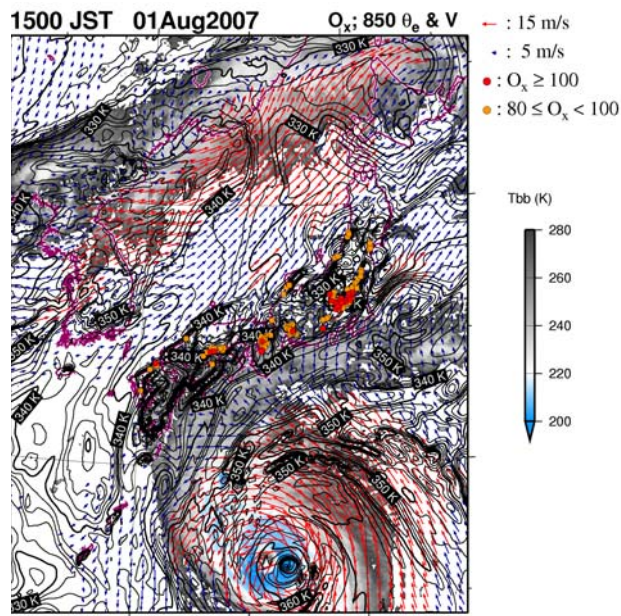


図 4.5.11 2007 年 8 月 1 日 15 時における MSM の 850hPa 面における相当温位(等値線、2K 間隔)、水平風(ベクトル)と Ox 高濃度局(丸印; 80ppb 以上; 赤、橙)の分布。陰影部は、ひまわり 6 号赤外 1 チャンネル輝度温度(280 K 以下のみ)。

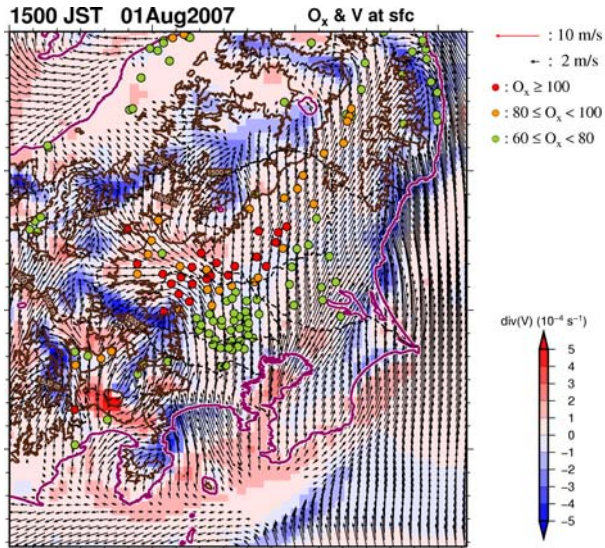


図 4.5.12. 2007 年 8 月 1 日 15 時の関東甲信越および福島県における MSM の地上風(ベクトル)、地上風の収束(カラー; 10^{-4} s^{-1})、Ox 高濃度局(丸印; 60ppb 以上; 赤、橙、緑)の分布。

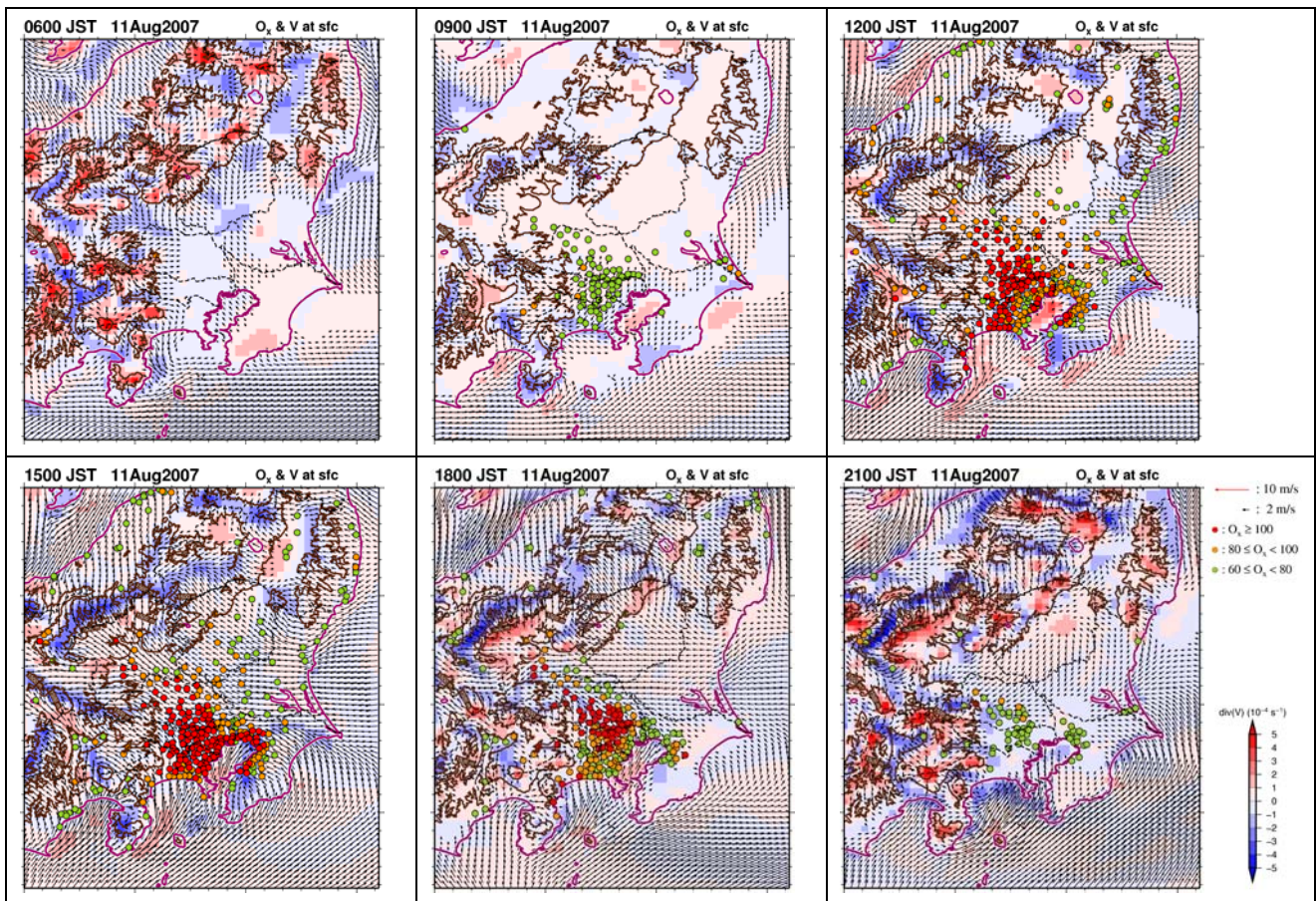


図 4.5.13. 2007 年 8 月 11 日の関東甲信越および福島県における MSM の地上風(ベクトル)、地上風の収束(カラー; 10^{-4} s^{-1})、 O_3 高濃度局(丸印; 60 ppb 以上; 赤、橙、緑)の分布((上段)左: 6 時、中: 9 時、右: 12 時; (下段)左: 15 時、中: 18 時、右: 21 時)。

表 4.5.1. 気象庁 GPV の GSM および MSM データの概要。

	GSM	MSM
領域	全球	日本周辺 (22.4 - 47.6N, 120 - 150E)
水平格子系	地上-100hPa: $0.5 \times 0.5^\circ$ (720 x 361点) 70-10hPa: $1.0 \times 1.0^\circ$ (360 x 181点)	地上: $0.05 \times 0.0625^\circ$ (505 x 481点) 気圧面: $0.1 \times 0.125^\circ$ (253 x 241点)
鉛直層	地上, 気圧面17層(1000-10hPa)	地上, 気圧面16層(1000-100hPa)
初期値	00, 06, 12, 18UTC	00, 03, 06, 09, 12, 15, 18, 21UTC
予報時間	84時間(00, 06, 18UTC), 192時間(12UTCのみ)	15時間(00, 06, 12, 18UTC), 33時間(03, 09, 15, 21UTC)
記録要素	気圧面データ: 水平風, 鉛直流, 気温, 相対湿度, 等圧面高度など 地上・2次元平面データ: 地表気圧, 海面更正気圧, 時間降水量(予報値), 雲被覆など	

5. 応用解析

5.1. PO（ポテンシャルオゾン）グループによる解析

5.1.1. はじめに

O₃はNOとの反応で容易に分解される。従って、NOの排出量が大きく変動する地域におけるO₃の挙動や、NOの排出強度が大きく異なる地域間でO₃の変動や濃度レベルの違いの要因を考察する際、その要因がO₃濃度そのものにあるのか、あるいはNOによる分解の程度にあるのかを判断することが困難である。

White¹⁾は、短い時間スケールではNOによるO₃の分解反応で化学量論的にNO₂が生成すること、および、NO₂の光分解からはO₃が再生されることから、O₃とNO₂の和を一つの保存量(Oxidant)と考えた。木村ら^{2), 3)}もO₃とNO₂の和を保存量（ポテンシャルオゾン）として扱うことを提案したが、NOが排出される際に同時に排出されるNO₂（直接排出NO₂, [NO₂]_d）を差し引いた値である“バックグラウンドポテンシャルオゾン”という概念も導入し、拡散計算に適用した。

バックグラウンドポテンシャルオゾン濃度は、NOによるO₃の分解と、NO₂の光分解によるO₃の再生成のみが関与するような短い時間スケールにおいては保存されるが、VOCの光化学反応が関与する過酸化ラジカルとNOの反応や、移流の影響が顕著になる時間スケールでは変化する。そこで、バックグラウンドポテンシャルオゾンと同じ式で定義される変化量（PO）を考えると、光化学反応や移流によるO₃濃度の変動や地域による違いをO₃-NO反応の影響を受けることなく調べることができると考えられる。

$$\begin{aligned} [\text{PO}] &\equiv [\text{O}_3] + [\text{NO}_2] - [\text{NO}_2]_d \\ &= [\text{O}_3] + [\text{NO}_2] - \alpha \times [\text{NO}_x] \end{aligned} \quad (1)$$

ここで α は発生源におけるNO_x濃度に対するNO₂濃度の比率であり、 α として日本で推定されてきた一般的な値である0.1^{4), 5)}を用いた。昨期までに、PO濃度を用いた解析により、O₃の週末効果の要因としてNO-O₃反応の週末/平日差が大きく関与していることなどが明らかにされている⁶⁾。POグループでは、NOによるO₃の分解反応に影響されないPO濃度を用い、日本のO_x濃度の季節変化パターンの地域的な違いやその年代による変化を解明することを目的とした解析を行った。またそれに先立ち、POを用いて解析を行う際の基礎的な検討や、汚染事例の解析もあわせて行った。

5.1.2. PO濃度マイナス値の出現とその対処法の検討

5.1.2.1. PO濃度マイナス値の出現状況

5.1.1.節で述べたように、本共同研究においてPO濃度は(1)式に $\alpha = 0.1$ を代入して算出した。またO₃濃度には常時監視されているO_x濃度をそのまま用いている。(1)式によれば、PO濃度はO₃濃度と直接排出NO₂以外のNO₂の和であるため、理想的には[PO] > [O_x]であり、且つPO濃度は正値となる。しかしながら、実際のデータを用いて算出したPO濃度1時間値を調べると、マイナス値や[PO] < [O_x]となるデータが見られることがわかった。そこで、POグループで作成したPO濃度時間値データベースを用いてマイナス値の出現状況を解析し、その要因を検討した。解析に用いたのは1980～1984年度、1990～1994年度、および2001～2005年度のデータであり、O_xとNO_x両方を測定している全国の測定局のうち任意に選択した延べ1110年度×局のケースである。

解析に供した1110ケースのうち、1時間以上のマイナス値が観察された測定局は113ケースであった。最も大きいマイナス値は-26.5 ppbであり、1981年度に都道府県番号29の測定局で観察された。また、マイナス値出現時間が最も長かったのは都道府県番号36番にある測定局で、1984

年度には延べ 197 時間にわたってマイナス値が観察された。マイナス値の出現状況を時刻別に調べた結果、NO_x が高濃度かつ O_x が低濃度となる時間帯（3 時～8 時）に多く観察される事がわかった。PO 濃度マイナス値の出現頻度分布を調べたところ、-5.0 ppb までのデータが全体の 85%程度を占めており、それよりも大きいマイナス値の観察は各 1 回ずつであった（図 5.1.1）。

5.2.1.2. PO 濃度マイナス値の出現要因

PO 濃度マイナス値は、[NO₂]_d推定値が NO₂ 濃度よりも大きく、かつ O_x 濃度が低い時に観察される。従って、PO 濃度が正值であっても、真の PO 濃度から外れている可能性があり、PO 濃度マイナス値はその典型的な例であることに注意しなければならない。[NO₂]_d推定値が NO₂ 濃度よりも大きくなる要因として、①数字の丸め方によるもの、②NO_x データの測定異常値と考えられるもの、③ α 値の設定によると考えられるもの、が考えられた。①は、例えば[NO₂]=0 ppb, [NO_x]=1 ppb など NO_x がごく低濃度の時に問題になるものであり、PO 濃度の数値を丸めることにより解消されると考えられる。②については、例えば最大の PO 濃度マイナス値 (-26.5 ppb) が観測された測定局の該当時間帯における NO₂ 濃度は 8 ppb→6 ppb→5 ppb とほぼ一定濃度で推移していた一方、NO_x 濃度は 8 ppb→575 ppb→5 ppb と変化した。NO₂ 濃度の上昇を伴わない NO_x の急激な濃度上昇は現実的でないため、NO_x の測定異常と考えられた。これについては、測定異常による NO_x 濃度の急減や NO₂ 濃度の急増などのデータがあれば、PO 濃度の過大評価の原因にもなりうると思われた。③は、NO₂、NO_x、および O_x 濃度が全て正しく測定されている時に、PO 濃度の算出に影響を及ぼす唯一の要因と考えられた。③は、 α 値が正しくない場合と、 α 値の値は平均値としては正しいが発生源の状態による α 値の時間的なゆらぎによる場合にわけられる。従って、PO 濃度を用いたより正確な解析のためには、 α 値をより正確に、かつ解析の時間スケールに応じて設定することが重要と考えられた。

5.1.2.3. PO 濃度マイナス値の年平均値への影響と対処法

マイナス値となったデータを除いて求めた年平均値（正值平均値）とマイナス値も含めて算出した年平均値（全平均値）の間には最大で 0.7 ppb 程度の差が認められ、マイナス値の出現回数が多いほどその差が大きくなる傾向が見られた（図 5.1.2）。また、マイナス値が最も多く観測された測定局のデータを用い、正值平均値と全平均値で PO 濃度の増加率を比較したところ、0.01 ppb/yr の差が見られた。一方、上述のようにマイナス値は PO 濃度の誤推定のごく限られたケースでしかないこと、[PO] > [O_x]となっていなくても過小評価や過大評価されている PO データも存在することから、PO 濃度マイナス値のみに特別な処理（マイナス値を削除する等）を行うことは適当でないと思判断した。基本解析にて $\alpha = 0.1$ とした場合と $\alpha = 0.0$ とした場合で PO 濃度年平均値の経年変化を比較したところ、その変動パターンに顕著な違いが認められた報告例はなかった。これらの結果から、PO 濃度の基本解析では $\alpha = 0.1$ を用いることとし、独自の解析を進める際には適切な α 値を適用することが適当と思判断した。

5.2.1.4. 常時監視データを用いた α 値の推定法の検討

発生源における NO₂ と NO_x の排出比率は、発生源の種類や状態によって変化すると考えられる。NO_x 濃度に影響を及ぼす発生源の構成は地域や時間帯などによって異なるため、解析する地域および時間スケールに応じて適切な α 値を設定することが重要である。若松ら⁷⁾は航空機を用いた大気汚染の平面分布観測結果を用い、NO_x 濃度の増加に対する O₃ と NO₂ 濃度の和の増加率から α 値を推定している。常時監視データを用いた推定法としては、発生源近傍の測定局での NO_x 濃度に対する O₃ 濃度と NO₂ 濃度の和の傾きから α 値を推定する手法が報告されている^{8)・9)}。この手法は解析対象となる測定局のデータから直接 α 値を推定できるが、バックグラウンド大気質の変化がその推定に影響することが指摘されている¹⁰⁾。そこで、対象となる測定局のバックグラウンドと考えることができる測定局を選定し、O₃ 濃度と NO₂ 濃度の和のバックグラウンド局における測定値

からの増加分を NO_x 濃度のそれに対してプロットし、その傾きから α 値を推定する手法が考えられている¹⁰⁾。ここでは、適切なバックグラウンド測定局のデータを必要としない α 値の推定手法を提案した。

本手法は、互いに近傍にある 2 つの測定局における PO 濃度は等しいと考えられることから、対象となる地域内で近接する 2 つの常時監視局におけるデータを用いて計算される PO 濃度が最も良く一致するよう α 値を決定するものである。実際の適用例として、大阪市を対象に α 値の推定を試みた。ここでは約 3 km 離れた 2 つの測定局のデータを用い、 $\alpha = 0.00 \sim 0.25$ まで変化させながらそれぞれの測定局における PO 濃度 1 時間値を算出し、各 α 値における PO 濃度の散布図を月毎に作図した。各散布図に対し最小二乗近似法により原点を通る回帰直線を求め、対応する決定係数 (R^2 値) を求めた。この様にして得られた α 値と R^2 値の関係から、最大の R^2 値を与える α 値を真の α 値とした。図 5.1.3 には解析例として大阪市の此花区役所局と淀中学校局の 2007 年 1 月のデータを用いた際の α 値と R^2 値の関係を示した。このケースでは $\alpha = 0.09$ の時に R^2 値が最大となり、真の α 値として 0.09 と推定された。図 5.1.3 には $\alpha = 0.00$ および $\alpha = 0.09$ の時の PO 濃度の散布図もあわせて示しているが、真の α 値を用いて算出した PO 濃度の散布図は一对一の直線に沿った分布が得られていることがわかる。

この方法の適用に当たっては、両測定局において NO_2 、 NO_x 、および O_x が測定されていることに加え、2 局間で NO_x の濃度または変動が異なることが必要である。実際に、 NO_x の相関が高く濃度レベルも同等の 2 局を用いた場合には α - R^2 曲線が極大を持たず α 値を決定できなかった。また、湿式の測定器による O_x 濃度データは NO_x による干渉など精度に問題があると考えられることから、本手法に適用すべきでないと考えられた。一方、前述の条件が満たされていれば、本手法によってより短い時間スケールで α 値を推定することも可能であると考えられた。

5.1.3. PO を用いた汚染解析例

5.1.3.1. 解析手法概要

O_x の発生源については、各地域での光化学生成や国内外からの移流など複雑であり、各々の要因の影響を解析する必要がある。 O_x 汚染の解析は O_3 濃度を指標として進められていることが多いが、 O_3 は NO により容易に分解されるため、その濃度変動が生成や移流によるものか NO による分解によるものかを判断することが困難であった。そこで、 NO による分解の影響を受けない PO を指標として、関西地域の O_x 高濃度エピソードを解析し、その汚染特性の解明を行なった。解析対象として、1993 年 8 月 31 日に見られた大阪市および周辺地域における O_x 高濃度エピソードと、2006 年 5 月 31 日～6 月 1 日に観測された広域的な O_x 高濃度エピソードを選択した。

5.1.3.2. 1993 年 8 月 31 日の汚染事例

1993 年 8 月 31 日には富田林局で 165 ppb の O_x 濃度が記録されるなど大阪府下で高濃度汚染となった。これまでの解析において、特に大和川に沿った海風の進入とともに O_x 高濃度域の移流があり、風下地域における O_x 汚染を引き起こしていた可能性が報告されている⁶⁾。そこで図 5.1.4 において、大和川に沿う 5 局における PO の濃度推移を確認した。その結果、三宝局では 12 時に PO 濃度のピークが見られ、風下側の測定局ほど濃度がピークとなる時刻が遅く、最も風下に位置する王子局や高田局では 16 時に最高濃度が観測されていた。このことから、 O_x の生成が海風により移流しながら進行していることが推測される。

5.1.3.3. 2006 年 5 月 31 日～6 月 1 日の汚染事例

図 5.1.5 に関西地域における PO 濃度の経時変化を示す。解析対象として、京都・大阪・兵庫・奈良・和歌山の各府県から地理的に分散するように任意に抽出した 13 局を用いた。何れの測定局においても夜間に低濃度、日中に高濃度となる日内変動パターンが認められた。一方、測定局間の

PO 濃度の測定局間差に注目すると、6月1日にはその差がより大きくなっていった。実際に、日中（10時～17時）における PO 濃度の地点間差（最大 - 最小）が5月31日は最大で47.8 ppbであったのに対し、6月1日には最大で70.4 ppbであった。PO 濃度が増加する要因として、地域内の光化学生成と広域移流の影響があると考えられる。光化学生成は、前駆物質濃度や組成など局地的な影響が強いと考えられる一方、広域移流は広域的な汚染現象を引き起こすと考えられる。従って、その場の光化学生成の影響が強い場合には PO 濃度の測定局間差がより大きくなると考えられる。図 5.1.5 では6月1日における PO 濃度の局間差がより大きかったことから、その場の光化学生成の影響がより大きいと考えられる。国立環境研究所と九州大学応用力学研究所によるシミュレーション結果（図 5.1.6）によれば、この期間には中国からの汚染気塊が日本に大きく影響していた様子が再現されている。また、6月1日には特に関西および中部地域の都心部において局地的に O₃ が高濃度となっており、その場の光化学生成の影響が示唆され、PO 濃度を用いた解析結果と定性的に一致した。

5.1.4. PO を用いた日本における Ox 濃度季節変化とその経年変化の解析

日本における Ox 濃度は、近年上昇傾向にあることが「日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究」で明らかにされた⁶⁾。しかしながら、O₃ は NO との反応で容易に分解されることから、観察された Ox 濃度の上昇が、単に NO 排出量の減少によるのか、あるいは実質的な増加によるのかを判断することは困難であった。そこで、PO（ $[PO] = [O_3] + [NO_2] - 0.1 \times [NO_x]$ ）を用いることで NO による分解の影響を補正して Ox の経年変化と地域特性について調べた。

5.1.4.1. 地域別 PO 平均値の傾向

国立環境研究所・C型共同研究で作成した大気汚染時間値データベースの Ox、NO₂ および NO_x 濃度を用いて PO 濃度の時間値を算出した。調査期間は1990～1994年度および2001～2005年度とした。両調査期間に測定データがある常時監視測定局の一般環境局701局（41都府県）を解析対象とした。

図 5.1.7 に2001～2005年度における Ox 平均値と PO 平均値の分布を示す。Ox 濃度は都市部よりも周辺部で高濃度となる分布をしているが、PO 濃度は都市部で高濃度となった。表 5.1.1 に示すように、1990～1994年度と2001～2005年度における Ox 濃度の全国平均値を比較すると、23.0ppb から25.5ppb に上昇し、Ox の濃度差（ $\Delta Ox: [Ox_{2001-05}] - [Ox_{1990-94}]$ ）は全国平均で2.4ppbであった。地域別では、東北北陸を除く4地域での ΔOx は同程度であった。一方、PO 濃度は38.6ppb から40.3ppb に上昇し、PO の濃度差（ $\Delta PO: [PO_{2001-05}] - [PO_{1990-94}]$ ）は全国平均で1.7ppbであった。PO 濃度が上昇していることから、NO による分解の減少によるだけでなく、Ox 濃度が実質的に増加していたことが確認された。また、 ΔPO が最も大きい地域は中国四国および九州で、次いで東海近畿、関東甲信静、最も小さい地域は東北北陸となり、大陸に近い西日本ほど ΔPO が大きい結果となった。関東甲信静および東海近畿では ΔPO に比べ ΔOx は2倍近く大きかった。大都市圏においては NO_x 濃度の低下が大きく、Ox 濃度の増加には、NO の酸化で消費される Ox が減少したことによる影響も大きいことが推定された。

また、季節別（春季3～5月、夏季6～8月、秋季9～11月、冬季12～2月）の ΔPO を図 5.1.8 に示す。春季には、西日本で ΔPO が高く、東日本では低い傾向が見られた。関東甲信静および東北北陸では、夏季における ΔPO が高くなるという他の地域とは異なる傾向を示した。

5.1.4.2. 季節変動パターンと高濃度出現パターンの傾向

O₃ 濃度の平均的な季節変動パターンを知る目的で月毎の PO 濃度の中央値を算出し、また高濃度の出現パターンを知る目的で、月毎の98%値の季節変化を併せて調べた。方法は上記と同様に、大気汚染時間値データベースの Ox、NO₂ および NO_x 濃度を用いて PO 濃度の時間値を算出した。調

査期間は 2001～2005 年度、1990～1994 年度および 1980～1984 年度の 3 期とした。

図 5.1.9 に任意に選択した沿岸地点における PO と O₃ (Ox) 濃度の中央値と PO 濃度の 98%値の季節変動パターン (2001～2005 年のデータ) を示した。PO 濃度の中央値は全ての地点において春季 (4～5 月) に最大値、夏季 (7～8 月) に最小値を示し、また多くの地点で秋季 (9～11 月) に極大が観察された。これらの変動は、日本におけるバックグラウンドオゾンの季節変動パターンを反映しているものと推察された。特に都市域 (図 5.1.9 では東京都) においては O₃ (Ox) の中央値では冬季 (12～1 月) に最小となり秋季の極大が不明瞭であるが⁶⁾、PO を用いることにより明瞭に観察されるケースが見られた。

PO 濃度の 98%値は中央値と類似の季節変動を示す地点が多く観察された。一方、図 5.1.9 の東京都など光化学オキシダントの生成能が大きいと考えられる地域では、中央値が最小となる夏季に最大値が観察された。図 5.1.10 には九州沿岸部 (長崎県) と東京都心のある地点における PO 濃度の 98%値の年代別季節変動パターンを示した。図 5.1.10 より、九州沿岸における PO98%値は中央値と同様に春季に最大となり、バックグラウンドオゾン濃度の寄与が大きいと考えられた。また春季の PO98%値が経年的に増加している傾向が観察された。一方、東京都心における PO98%値は夏季に最大であり、地域内での光化学生成が高濃度現象に大きく関与していることが示唆され、また、夏季の 98%値は経年的に増加している傾向が観察された。

5.1.5. まとめ・今後の課題

PO グループでは、日本における Ox 濃度季節変化とその経年変化の解析を進めるにあたり、① PO マイナス値の原因と取り扱いについての基礎検討を行い、更に②PO を用いた汚染事例解析を行った。PO を基本解析項目に加える際問題となった「マイナス値」については、以下のような結論を得た。

- PO マイナス値は PO 濃度過少評価の特別な例であり、マイナス値にならなくても PO 濃度が過小評価されているケースや過大評価されているケースもあると考えられた。
- PO マイナス値のみに対して特別な処理を行うのは適当でないと考えられた。
- NO_x 等の測定異常の他に考えられる PO 濃度の過大/過小評価の原因として、 α 値の設定の問題が挙げられた。
- α 値は発生源の状態によって変化することから、解析内容に応じた α 値を適用することが重要と考えられた。
- 基本解析では $\alpha = 0.1$ を採用し、その他の詳細な解析においては、解析対象に応じた α 値を適用することが適当と考えられた。
- α 値の推定方法として、互いに近接する二つの常時監視局のデータを用い、計算される PO 濃度が最もよく一致するような α 値を真の α 値とする手法を提案した。

汚染事例解析では、NO による O₃ の分解による影響を受けない PO を用いることで、以下のような解析例を示すことができた。

- 海風による汚染気塊の移流現象と考えられた汚染事例について、PO が最高濃度を示す時刻が風下の地点ほど遅延する現象を明瞭に観察することができた。
- 関西地域内の幾つかの地点における PO 濃度変動を比較し、PO 濃度の地点差が大きいことから地域内でのその場の光化学生成の寄与が大きいと考察した。この考察は、シミュレーション結果からの示唆とも定性的に一致した。

日本における Ox 濃度季節変化とその経年変化の解析は現在も進行中であるが、以下のような示唆が得られた。

- PO を指標とすることによって、O_x 濃度が NO による分解の減少によるだけではなく、全国的に O_x 濃度が実質的に増加していたことが確認された。
- 春季の O_x 増加量は西日本で多く、東日本で少ない傾向を示し、大陸からの移流の可能性が示唆された。
- PO 濃度の中央値は、全ての地点において春季に最大値、夏季に最小値を示し、また多くの地点で秋季に極大が観察され、これらの変動は、日本におけるバックグラウンドオゾンの季節変動パターンを反映しているものと推察された。
- 東京都心など光化学オキシダント生成能が大きいと考えられる地域では、PO98%値は夏季に最大であり、地域内での光化学生成が高濃度現象に大きく関与していることが示唆され、また、夏季の 98%値は経年的に増加している傾向が観察された。

NO_x の排出量が大きく異なる地域や時期の間で O_x の挙動を比較する際には、PO 濃度を用いた解析が有効であると考えられる。一方、PO 濃度は O_x および NO_x 濃度を用いて算出するため、双方の測定精度の影響を直接受けることになる。特に O_x については湿式測定器の精度の問題が取り上げられていることから、その影響を除外した解析手法が必要であると考えている。また、PO 濃度の算出精度は O_x および NO_x 濃度測定精度に直接影響される。近年、O_x については SRP を中心とした較正体系が整備されつつあるが、NO_x (NO₂) についても同様な取り組みが必要であると思われる。更に、PO の中では O₃ と NO₂ が単一物質として取り扱われるため、双方の汚染項目が同一のスケールで較正されていることが好ましい。気相滴定法は、この目的に最もあった較正手法であると考えられる。

参考文献

- 1) White, W. H.: Nitrogen oxides-ozone photochemistry in power plant plumes: comparison of theory with observation. *Environmental Science and Technology*, 11, 995-1000(1977)
- 2) 木村富士男: 近似解法による NO, NO₂, O₃ の反応拡散モデル, *大気汚染学会誌*, 13, 67-74(1978)
- 3) 木村富士男, 椎橋正幸: 定常近似法による NO, NO₂ の反応拡散モデルの長期平均濃度への適用, *大気汚染学会誌*, 23, 41-51 (1988)
- 4) Saito, S., Nagao, I., Tanaka, H.: Relationship of NO_x and NMHC to photochemical O₃ production in coastal and metropolitan areas of Japan, *Atmospheric Environment*, 36, 1277-86 (2002)
- 5) Itano, Y., Bandow, H., Takenaka, N., Saitoh, Y., Asayama, A., Fukuyama, J.: Impact of NO_x reduction on long-term ozone trends in an urban atmosphere, *Science of the Total Environment*, 379, 46-55 (2007)
- 6) 大原利眞編: 日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究, 国立環境研究所研究報告第 195 号(R-195-2007), 103-114 (2007).
- 7) 若松伸司, 鶴野伊津志, 須山芳明, 阿相敏明, 牧野宏: 飛行船を利用した大気汚染物質分布の観測, *大気汚染学会誌*, 25, 97-101 (1990)
- 8) 木村富士男, 椎橋正幸: 定常近似法による NO, NO₂ の反応拡散モデルの長期平均濃度への適用, *大気汚染学会誌*, 23, 41-51 (1988)
- 9) Clapp, L. J., Jenkin, M. E.: Analysis of the relationship between ambient levels of O₃, NO₂ and NO as a function of NO_x in the UK, *Atmospheric Environment*, 35, 1505-1515 (2001)
- 10) Carslaw, D. C., Beevers, S. D.: Investigating the potential importance of primary NO₂ emissions in a street canyon, *Atmospheric Environment*, 38, 3585-3594 (2004)

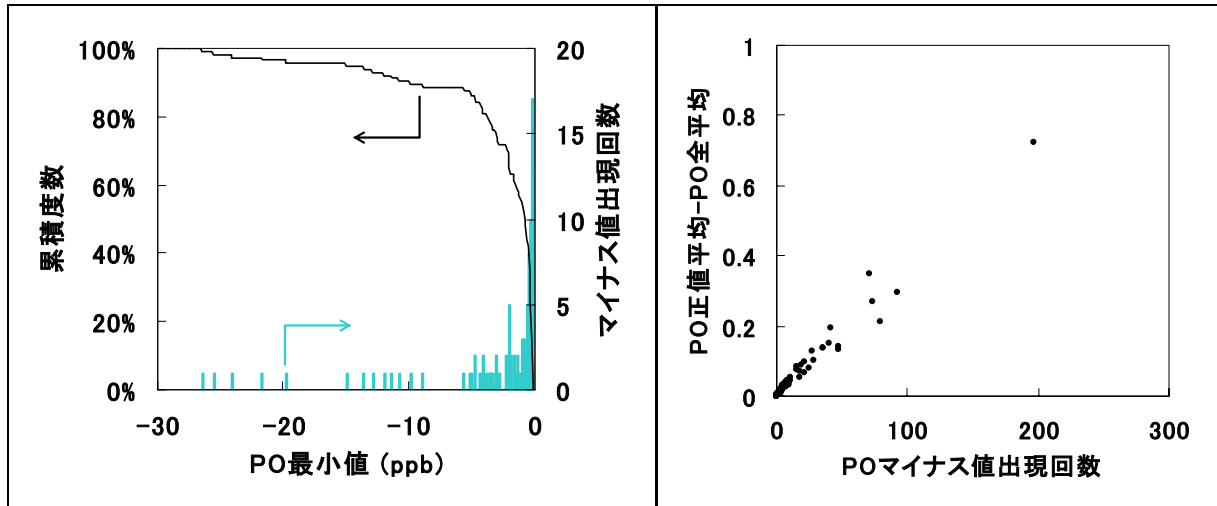


図 5.1.1. PO マイナス値の出現頻度分布

図 5.1.2. PO 正值平均値と全平均値の比較

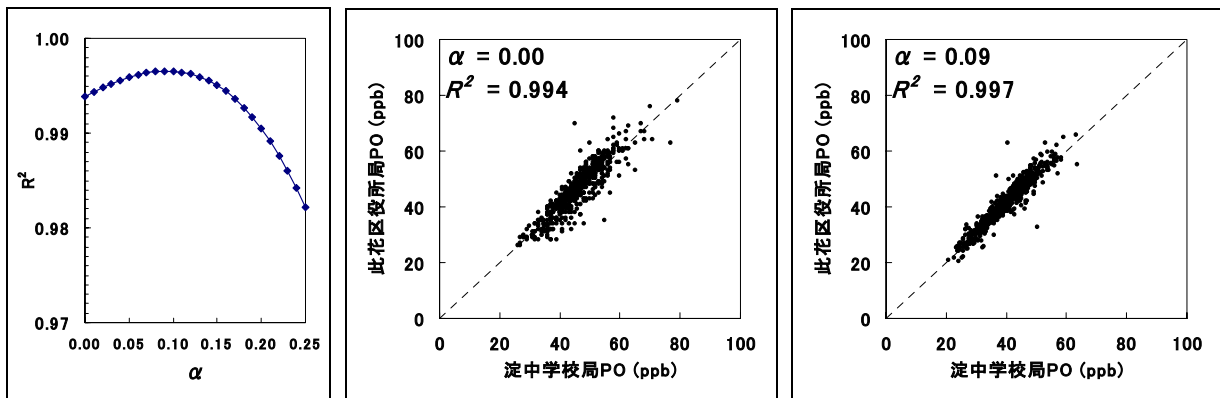


図 5.1.3. 大阪市の測定局を用いた α 値の推定例。左: 2007 年 1 月のデータによる α 値と R^2 値の関係, 中央: $\alpha = 0.00$ の時の PO 散布図, 右: $\alpha = 0.09$ の時の PO 散布図。

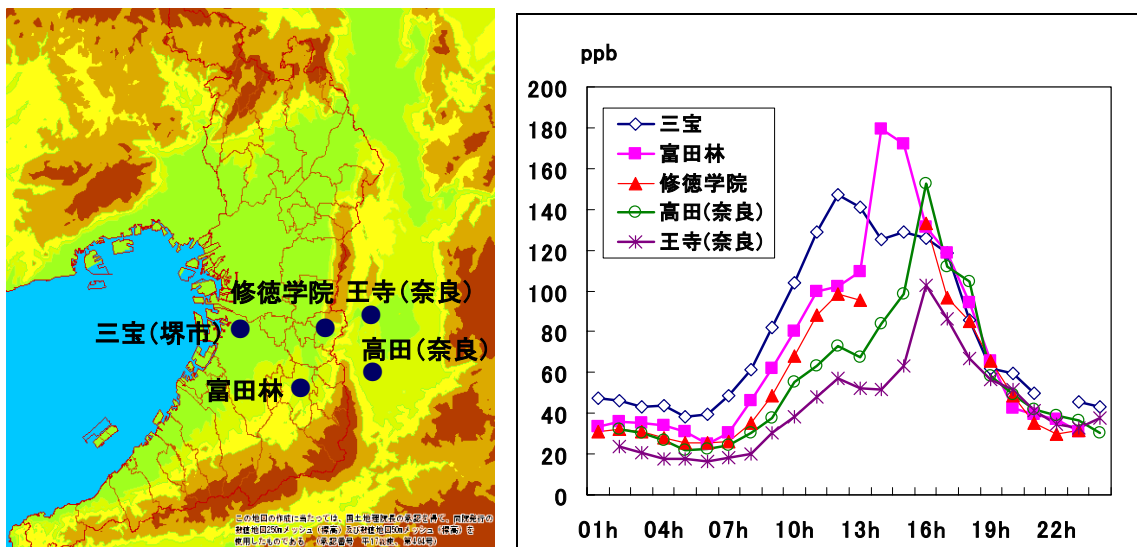


図 5.1.4. 1993 年 8 月 31 日の堺市とその風下地域における PO 濃度の経時変化。左は測定局の配置

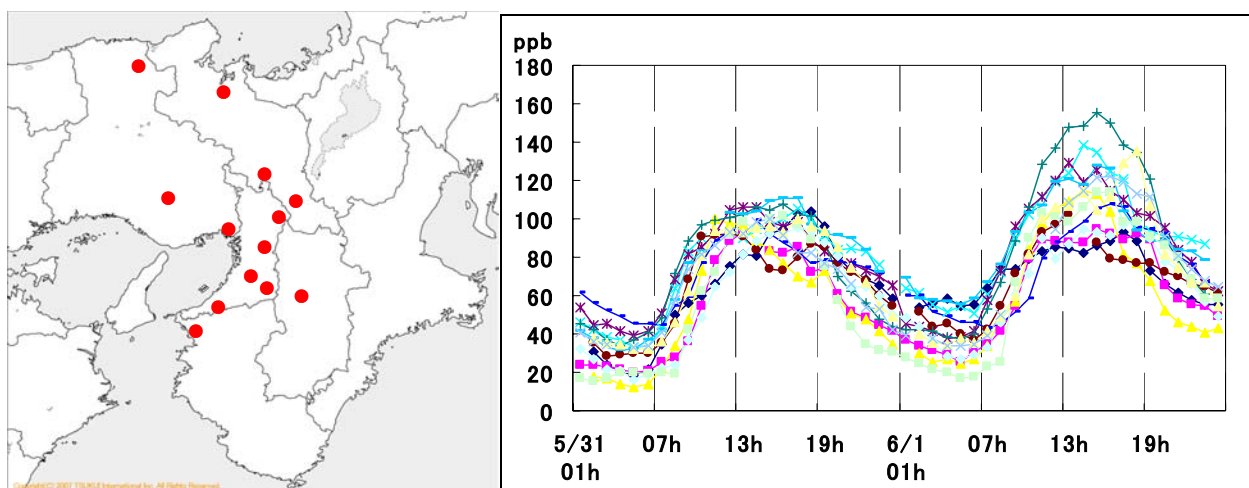


図 5.1.5. 2006 年 5 月 31 日 - 6 月 1 日の関西地域における PO 濃度の経時変化。左は測定局の配置

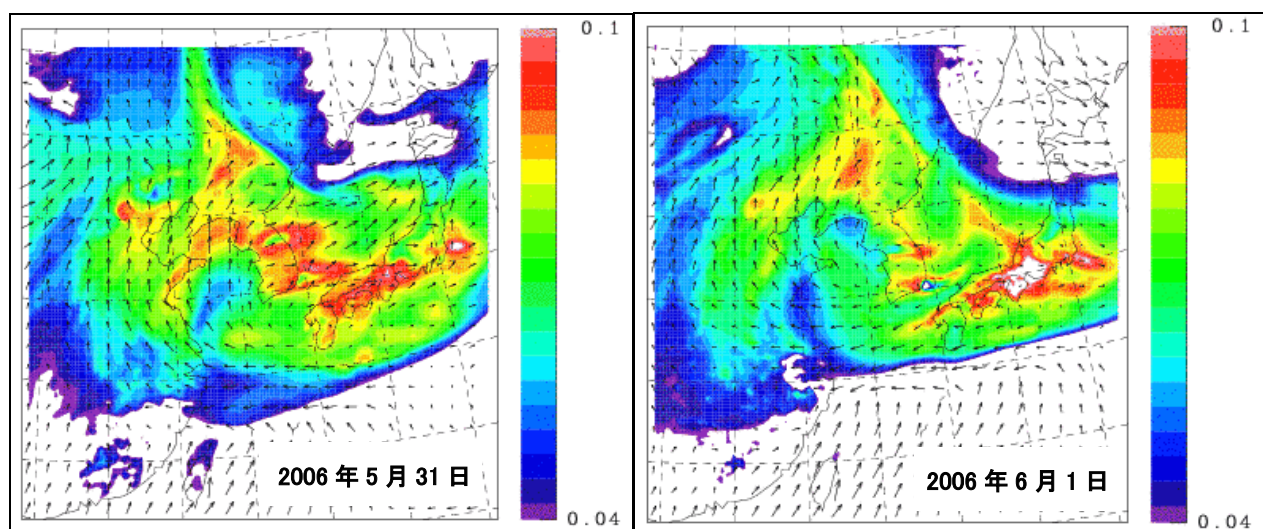


図 5.1.6. 国立環境研究所と九州大学のシミュレーションによる 2006 年 5 月 31 日(左)と 6 月 1 日(右)のオゾン濃度水平分布

表 5.1.1. 1990-1994 年度と 2001-2005 年度における地域別 Ox 濃度および PO 濃度

地域	n	Ox (ppb)			PO (ppb)		
		1990-94 平均	2001-05 平均	Δ Ox	1990-94 平均	2001-05 平均	Δ PO
九州	64	24.1	26.7	2.6	34.5	37.3	2.8
中国四国	89	24.1	27.0	2.9	36.9	39.9	3.0
東海近畿	189	22.6	25.0	2.5	40.0	41.4	1.4
関東甲信静	287	21.9	24.6	2.7	39.8	41.2	1.3
東北北陸	72	26.6	27.5	0.9	36.2	37.2	1.0
全国	701	23.0	25.5	2.4	38.6	40.3	1.7

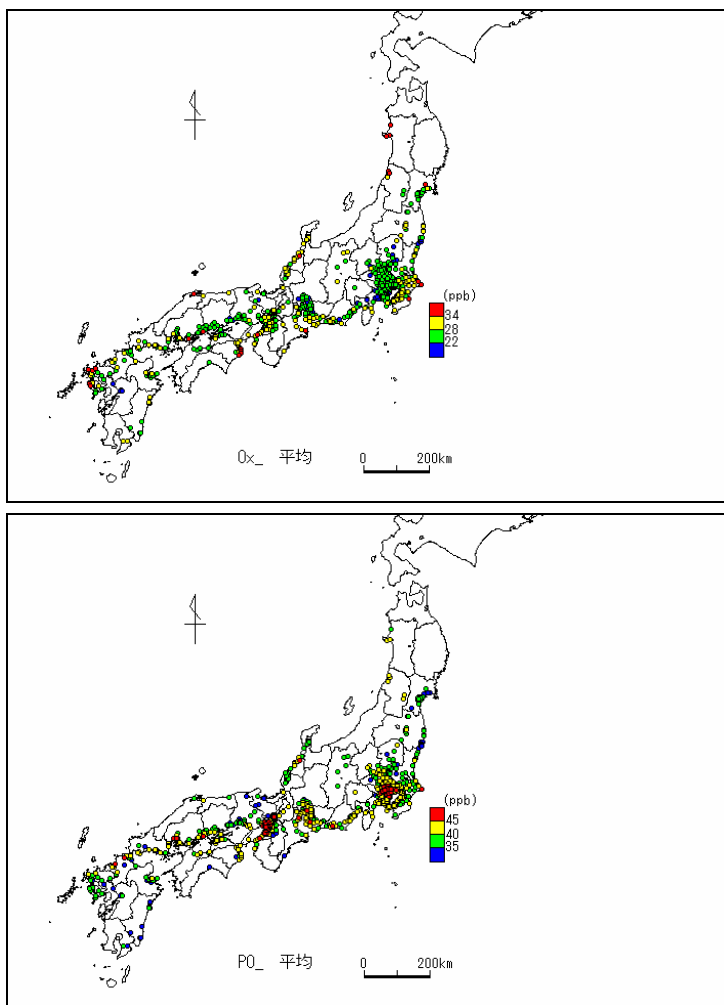


図 5.1.7. 2001-2005 年度における Ox 平均値(上)と PO 平均値(下)の分布

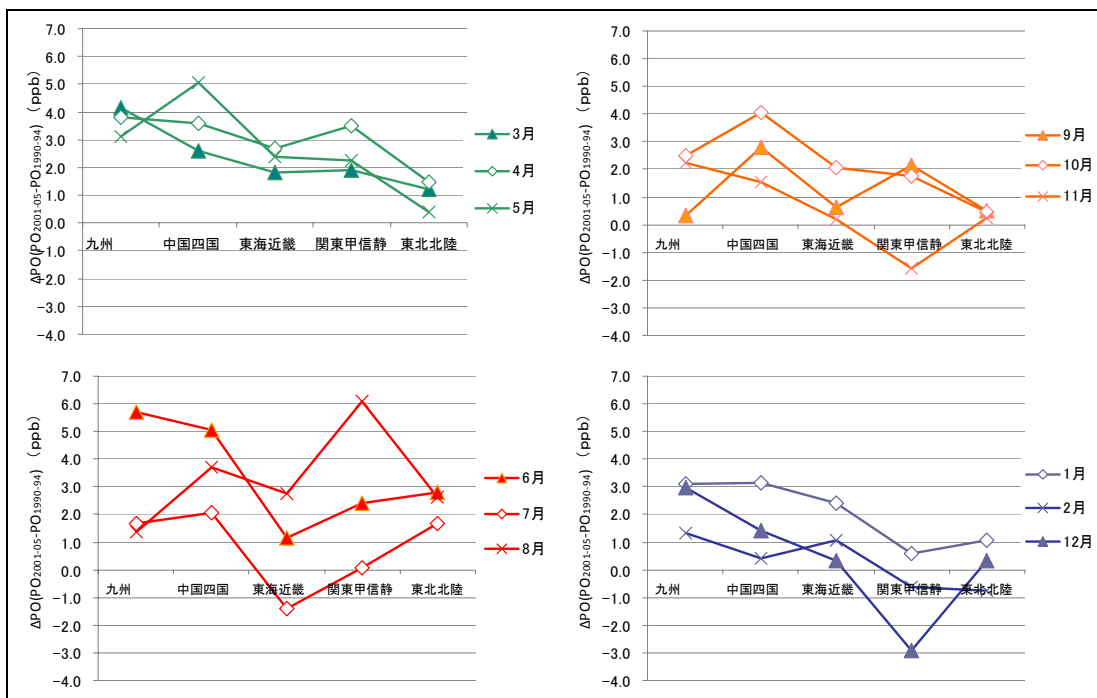


図 5.1.8. 1990-1994 年度と 2001-2005 年度の PO 濃度差 ($\Delta PO: PO_{2001-05} - PO_{1990-94}$)

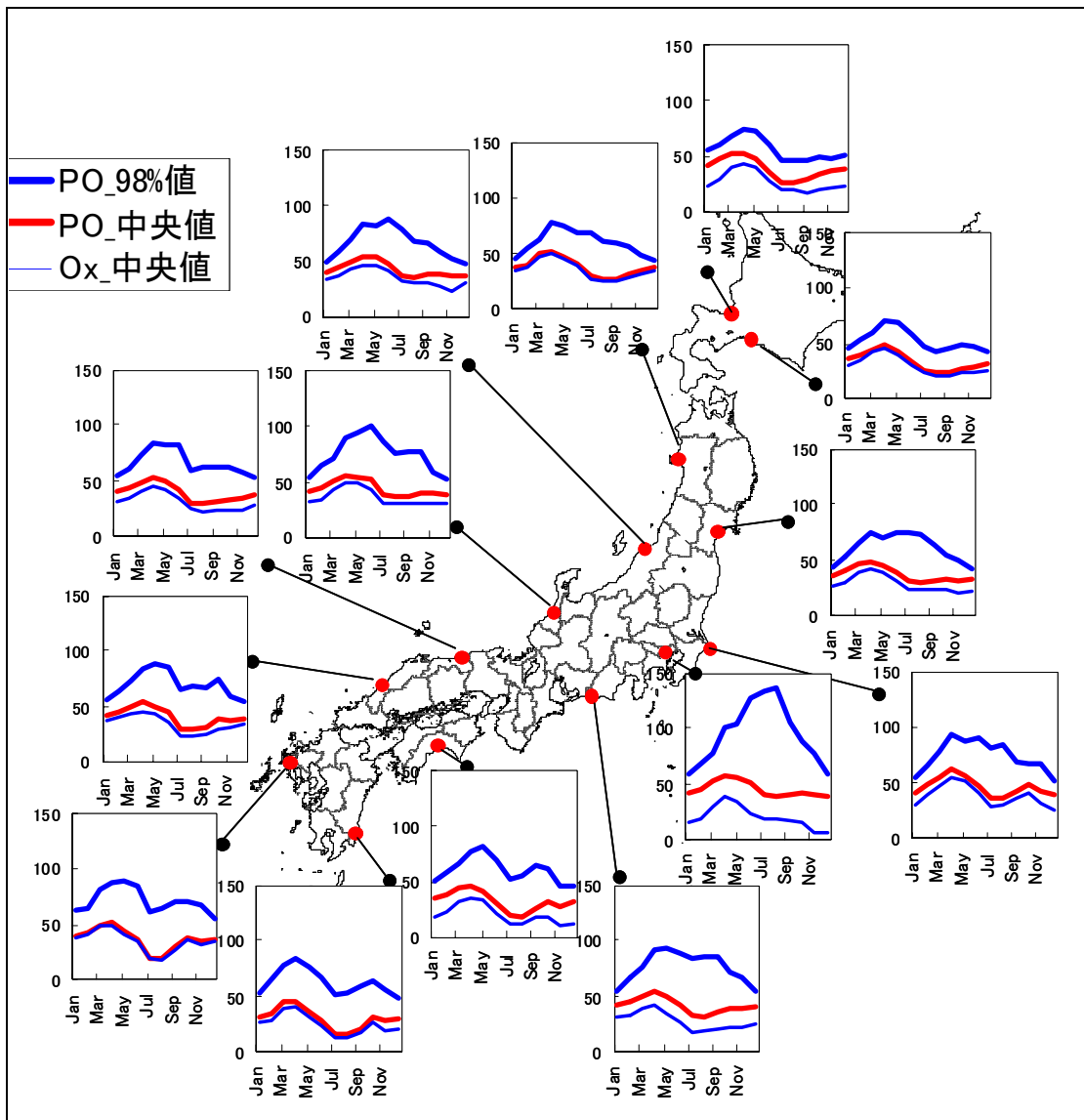


図 5.1.9. PO 濃度の中央値, 98%値, および Ox 濃度中央値の季節変動パターン(2001-2005 年度のデータ)

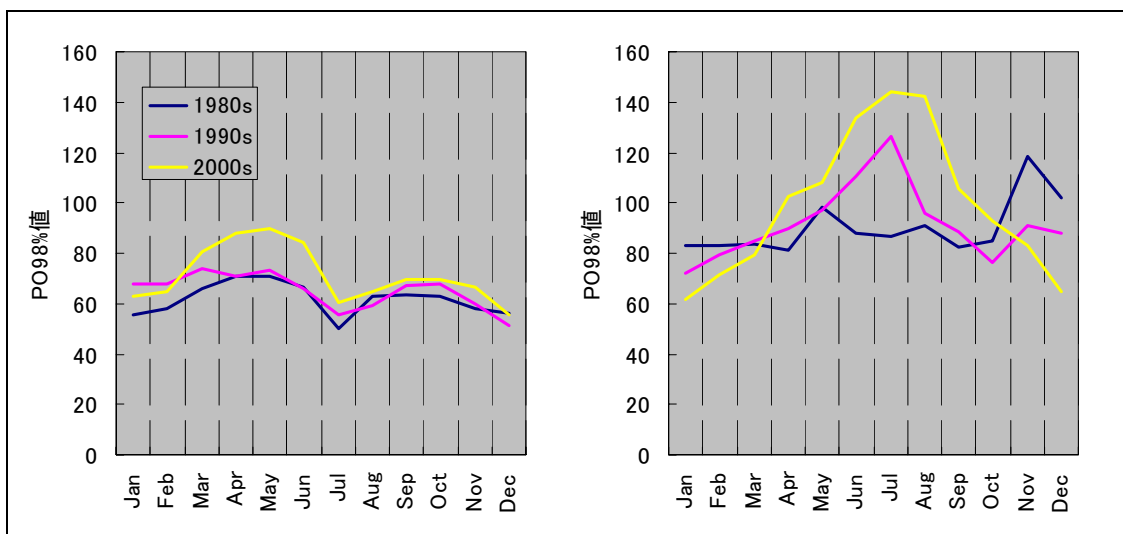


図 5.1.10. 九州沿岸(左)と東京都心(右)における PO 濃度 98%値の季節変化の経年変化

5.2. 衛星データ活用グループによる解析

5.2.1. 大気環境観測衛星の概要

アジア大陸を多く起源とする広域大気汚染に対して、その空間的分布、時間的変動を把握するためのモニタリング体制の構築は、設置数の限られている地上観測局ネットワークだけでは、限界がある。この問題を解決し、グローバルな大気汚染モニタリング体制を作るには、大気汚染を観測できるセンサを搭載した地球観測人工衛星の活用が待たれている。すでに欧米では、1990年代から大気汚染観測センサを持つ周回軌道衛星が打ち上げられている。さらに、アジア域を観測する静止衛星の打ち上げを望む声が大きくなっている。

本グループでは、人工衛星による大気汚染観測網が今後整備されていくことを予測して、現在利用可能な衛星データについて、いくつかの解析を試みた。

現在活用可能な衛星データは、GOME(衛星名:ERS-2)、SCIAMACHY(衛星名:ENVISAT)等の他に、OMI(Ozone Monitoring Instrument,衛星名:EOS Aura)、MODIS(MODerate resolution Imaging Spectrometer,衛星名:Terra, Aqua)がある。今回は、OMI と MODIS について、解析を行った。

OMI は、264~504nm の光を感知し、O₃、NO₂、SO₂、BrO、HCHO 及びエアロゾルを観測することができる。OMI で得られる観測値は、カラム量と言われ、一定の地表面積の気柱の中に存在する気体の分子の量である。したがって、対流圏、成層圏が一緒になった量であり、ここから対流圏のカラム量をさまざまな手法で算出する。データは、NASA により公開されており、大気汚染ガス探査衛星のホームページからダウンロードすることができる。

MODIS は、0.41~14.235 μm の観測ができるが、エアロゾル観測には、0.66~2.2 μm(赤~近赤外)の光を7つのバンドの値として用いている。観測の空間的な巾は、地上で2330kmあり、一日で全球を観測することが可能である。地上での空間分解能は、250mである。MODIS で得られる値は、AOD(Aerosol Optical Depth エアロゾル光学的深さ)とよばれ、以下の式であらわされる無次元量である。

$$AOD = \int_0^r \sigma(r) dr$$

ここで σ は、エアロゾルによる光の散乱や吸収による減衰をあらわす消散係数(Extinction Coefficient)、 r は高さである。MODIS データについても、OMI と同様にダウンロードすることができる。

5.2.2. OMI の解析

OMI データ解析の試みとして、対流圏 NO₂ データを用いた。これは、OMI で得られるカラム全量から、UARS(Upper Atmosphere Research Satellite:上層大気観測衛星)で得られるデータや、NASA/GSFC の化学輸送モデル(C7M)により、成層圏カラム量を推計し、それを除いて得られるデータである。OMI データには処理の段階として、Level0 から3までがある。ここでは、Level2でのグリッドデータ(L2G)を用いた。これは、OMI データを地上の緯経度の0.25°×0.25°ごとの値にしたものである。

5.2.2.1. NO₂ の週日変化

OMI の2007年対流圏 NO₂ データから、近畿地方の都市圏(京阪神)のグリッドデータを選び、週のうちの曜日ごとに平均を取ったものを図5.2.1に示す。OMI データの単位は、分子数/cm²である。図5.2.2は、当該地域にある NO₂ 地上測定局のうち、濃度が高い3局の2007年の曜日ごとの14時の値である。14時としたのは、OMI データ取得時刻が、13~14時に多いためである。この2つを比べると、日曜日が明らかに低くなっているが、土曜日が減していないところに違いがある。

5.2.2.2. 月平均値の変化

同じように、2007年の京阪神のグリッドの OMI 対流圏 NO₂データの月ごとの平均を取り、グラフにしたものが図 5.2.3 である。地上測定局であられる月変化と同様に、冬季に高い値を示している。

5.2.3. MODIS の解析

MODIS データについても、処理レベルにより L1~3 のデータがある。補正の方法については、海域と陸域で違いがあり、海域では、海面での反射などを除く方法、陸域では、陸水面を除く処理などがある。ここでは、L2 の 10km×10km グリッドのデータを用いた。

5.2.3.1. SPM 高濃度日の解析

2007年6月下旬に西日本に SPM 高濃度が発生した。特に6月26~29日にかけて、東海地方の濃度が高くなった。これは、東アジア規模の広域移流の寄与が要因の一つと考えられる。高濃度事象自体の解析は別項を参照されたい。ここでは、当日の Aqua/MODIS のデータより、AOD を画像化したものを示す(図 5.2.4)。欠測となっている部分が多いが、東海から西日本にかけての高濃度が見られるのと、高濃度域が、朝鮮半島から黄海にかけて広がっていることが推測される。

5.2.3.2. 黄砂飛来日の解析

2009年10月19日に季節はずれの黄砂が飛来した。九州、四国地方で黄砂日となった。この日の Terra/MODIS の AOD 分布を示す(図 5.2.5)。黄海から対馬海峡、日本海西部にかけて、高濃度のエアロゾルの存在が見られる。

5.2.4. 今後の解析

現在の段階では、上で見たように、定性的な解析でしかない。地上観測データとの相関がとれて、広域的な濃度分布の推計が可能となる。特に MODIS データと PM_{2.5} の実測データとの比較を行う必要があると考える。地上測定点での観測と、ライダーによる鉛直の観測、人工衛星による広域の観測の三者のコラボレーションによるモニタリング体制作りを旨ざしたいと考える。

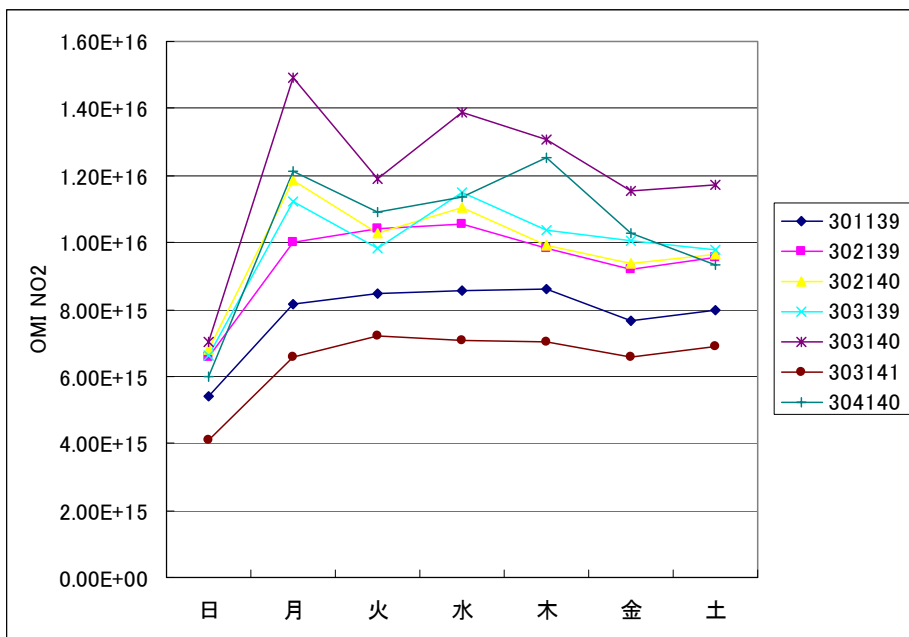


図 5.2.1. OMI 対流圏 NO₂2007 年週日変化グラフ(京阪神地域)

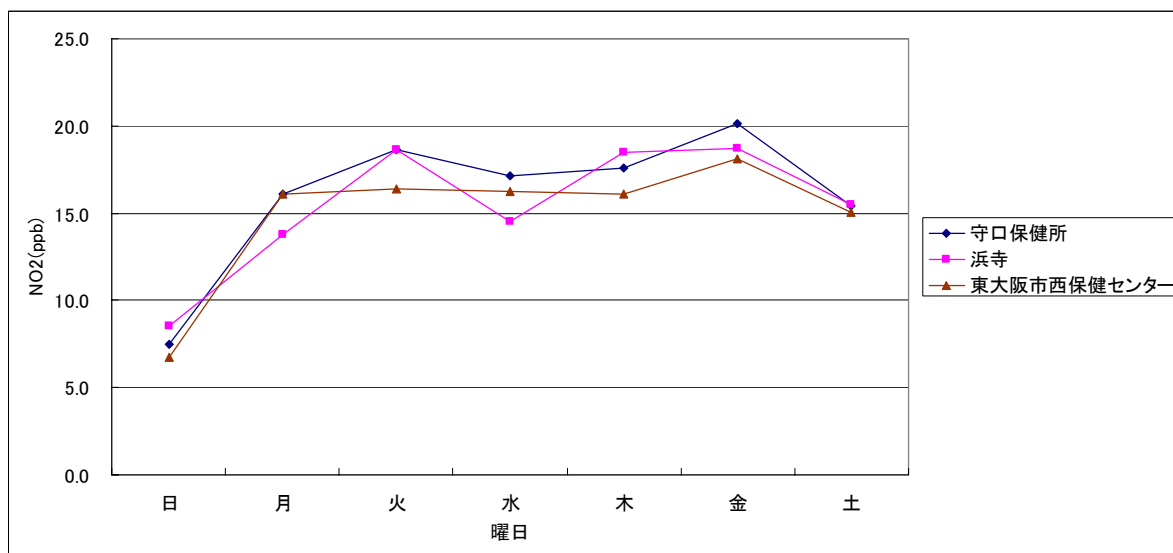


図 5.2.2. 2007 年地上測定局 NO₂ 濃度週日変化グラフ

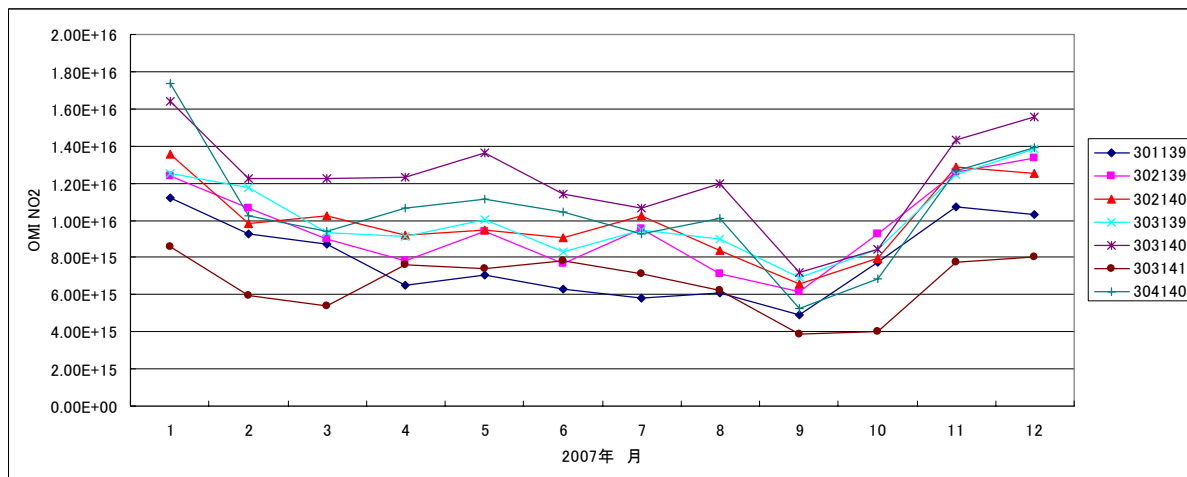


図 5.2.3. OMI 対流圏 NO₂2007 年月平均値の変化(京阪神地域)

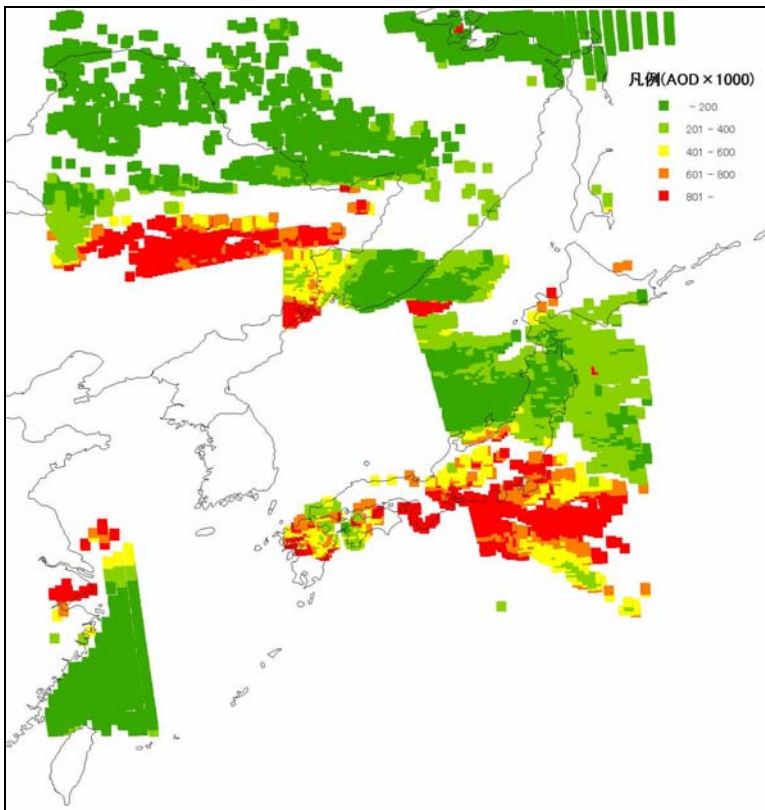


図 5.2.4. 2007 年 6 月 27 日 Aqua/MODIS による AOD 分布図

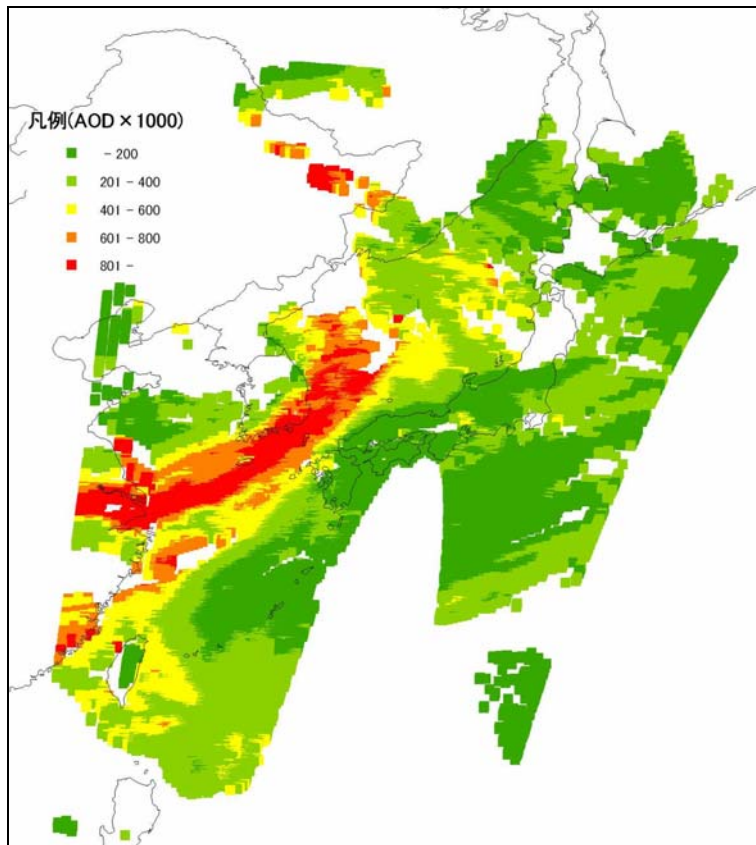


図 5.2.5. 2009 年 10 月 19 日 Terra/MODIS による AOD 分布図

5.3. Ox 測定法検討グループによる解析

我が国の大気汚染常時監視測定局における光化学オキシダント(Ox)濃度は経年的な増加傾向があるとされており、これには種々の要因が考えられている。また、測定が開始されてから 30 年以上が経過し、その間に測定法の変更が行われていることも指摘されている。

このように、Ox 濃度の経年変化等を解析するには、環境濃度以外にも測定法が変更された影響を考慮する必要がある。そこで共同研究に参加している全自治体の Ox 濃度測定結果および属性調査などを元に、継続性のある測定局のみによる Ox 濃度の経年変化や測定法の変更に伴う影響について検討した。

5.3.1. Ox 測定法の概要

Ox 自動測定機による測定法としては、環境省水・大気環境局による「環境大気常時監視マニュアル」では下記の 3 方法が認められている。

5.3.1.1. 紫外線吸収法 (O₃UV 法)

オゾン波長 254nm 付近に吸収帯が存在し、一般大気中では他の妨害物質による影響も受けにくい。従って、この領域を測定することでオゾン濃度を測定できる。Ox の殆どはオゾンであることから、このオゾン濃度を Ox 濃度とみなす。この方法は国際的に使用されており、我が国でも最近では主流となっている。通称「乾式」と呼ばれる。

5.3.1.2. 吸光光度法 (OX 法、OXW 法)

Ox により KI 溶液が酸化され、遊離されたヨウ素の黄褐色の発色を 365nm 付近で測定する。初期の機種(OX 法)は向流吸尿管の汚れによる感度の低下が見られたが、その後感度低下を防ぐ自動洗浄装置付きの機種(OXW 法)が開発された。しかし、維持管理が複雑で廃液の問題もあり、また現在では我が国だけの方法であることなどから、今後は OX 法および OXW 法による測定機は殆ど使用されなくなると思われる。通称「湿式」と呼ばれる。

5.3.1.3. 化学発光法 (O₃CL 法)

オゾンとエチレンの反応で起こる化学発光の強度を測定する方法だが、殆ど使用されていない。

5.3.2. Ox 校正法の概要

Ox 自動計測器の校正については、環境省の「オキシダント自動計測器の動的校正マニュアル」(昭和 52 年 7 月 20 日 環大企第 198 号)に示されたよう化カリウム滴定法 (KI 法) が大部分の自治体で使用されている。しかし、紫外線吸光光度法 (UV 法) や気相滴定法 (GPT 法) を使用している自治体も存在する。

5.3.3. 解析方法

測定法の違いによる Ox 濃度年平均値の経年変化等への影響を調べるため、共同研究に参加している全自治体の大気汚染常時監視データから、測定法に変更が無く 1999～2007 年度にかけて O₃UV 法を継続した 116 局と、OXW 法を継続した 208 局の合計 324 局を抽出した。これらの測定局について測定法別に地域分布や経年変化グラフを作成し、傾きや相関係数、相関係数の検定など

から経年変化の傾向や測定法変更による影響について検討した。

なお、測定法については各自治体の属性データから判断し、アンケート調査で各自治体の特徴や測定局の状況と問題点等についても把握して、データの信頼性に問題があると思われる測定局は除外した。

5.3.4. 測定法の違いによる O_x 濃度年平均値の解析

5.3.4.1. 測定法と O_x 濃度年平均値の推移

図 5.3.1 に 1990 年から 2006 年までの OXW 法と O₃UV 法における O_x 濃度年平均値の経年変化と測定局数の推移を示した。1970 年代に自治体による大気汚染の常時監視が始まってから 1980 年代前半までは OX 法が使用されていたが、その後は OXW 法への移行がなされた。さらに、1997 年頃から O₃UV 法への移行が始まり、2004 年度には OXW 法より O₃UV 法の方が設置局数は多くなった。現在は O₃UV 法が全体の 7 割以上に達している。しかし、未だに OXW 法の測定局も多く存在する。

O_x 濃度は、1997 年度は設置局数が少ない O₃UV 法が OXW 法より極めて高かったが、1998～1999 年度では両測定法がよく一致した。さらに、2000～2002 年度までは O₃UV 法の方が OXW 法より高く指示した。この期間は OXW 法が設置局数は多かったことから、総 O_x 平均値は OXW 法に近く、一般的に O₃UV 法の方が高くなる印象を与えた。2003 年度を境にして O₃UV 法の方が OXW 法より設置台数が多くなり、2003 年度は両測定法の平均値はよく一致した。2004 年度以降も O₃UV 法の方が OXW 法より高く、全局の年平均値は O₃UV 法に近づく傾向を示した。

なお、全体的には O₃UV 法の方が OXW 法より少し高い濃度になると思われるが、測定局には測定法別の地域的な偏り等があり、単純な濃度比較はできない。

5.3.4.2. 測定法別の O_x 測定局分布

地域ごとに測定局数に差があり測定局の地域的な偏りも考えられるため、同一測定法で継続測定している測定局の分布について検討した。

O₃UV 法がある程度普及したと考えられる 1999 年の時点で、O₃UV 法の割合の最も多い地域は関東甲信静地域であり、全測定局の 66%を占めていた。次いで北海道東北北陸地域が 40%、中国四国地域が 34%、東海近畿地域が 27%で、一番少ない九州地域は 17%であった。

5.3.4.3. 測定法別 O_x 濃度年平均値の経年変化

測定法別 O_x 濃度年平均値の経年変化を地域別に比較した(図 5.3.2～5.3.7)。9 年間の平均値は O₃UV 法が 28.0ppb、OXW 法が 25.5ppb であった。地域別で見ると、O₃UV 法は北海道東北北陸地域が 30.8ppb で最も高く、中国四国地域、九州地域、東海近畿地域と続き、関東甲信静地域が 24.6ppb と最も低濃度であった。OXW 法では北海道東北北陸地域が 27.4ppb で最も高く、九州地域、中国四国地域、東海近畿地域と続き、関東甲信静地域が 24.4ppb と最も低濃度であった。

経年変化を見ると、北海道東北北陸地域では明らかな増加傾向は認められず、関東甲信静地域では増加傾向は僅かであった。しかし、東海近畿地域以西の地域では、昼夜の別にかかわらず O₃UV 法および OXW 法のいずれも増加傾向を示した。

O₃UV 法と OXW 法の濃度差については、関東甲信静地域は OXW 法の方がやや高いか又は殆ど認められなかったが、北海道東北北陸地域、東海近畿地域、中国四国地域、九州地域では O₃UV 法の方が高くなる傾向を示した。

さらに、PO 濃度による経年変化についても検討したが、O_x 濃度よりも増加傾向はかなり低下していた。

5.3.4.4. O_x 濃度月平均値の経年変化

O_x 濃度年平均値と同様にして、月平均値の経年変化を検討した（図 5.3.8～5.3.11）。月別で見ると、O_x 濃度平均値が高濃度となる時期には OXW 法より O₃UV 法の方が高濃度で、OXW 法と O₃UV 法の濃度特性の違いが出ていることが示唆された。また、O_x 濃度月平均値の経年変化の増加傾向は、両測定法とも春季よりも秋季にその傾向が強かった。

なお、月別経年変化では特定の年に濃度の増加や低下の傾向が示されるなど変動が激しく、さらに詳細に解析するには日射量や気温などの気象要因も考慮する必要がある。

5.3.4.5. O_x 濃度ランク別年平均値の経年変化

OXW 法と O₃UV 法について、O_x 濃度年平均値の高い測定局から順に並べ、上位にある測定局から 3 等分に分割し、各グループの O_x 濃度年平均値を算出し、経年変化を比較した（図 5.3.12～5.3.14）。O_x 濃度年平均値が上位にあるグループでは昼間の O₃UV 法が OXW 法より高くなる傾向を示し、夜間での差は殆ど認められなかった。中位のグループでは測定法の違いによる濃度差は昼間及び夜間とも殆ど認められなかった。下位のグループでは昼間は濃度差が殆ど認められず、夜間では OXW 法が O₃UV 法より高くなる傾向を示した。

これらのことから、月別経年変化と同じく OXW 法と O₃UV 法の濃度特性の違いが確認された。

5.3.4.6. 各測定局の測定法変更による影響

本共同研究が実施した基本解析で使用した各自治体の選定 5 局（第 3 章参照）について、測定法別に作成した測定開始年度から 2007 年度までの O_x 濃度年平均値の経年変化グラフを作成し、傾きや相関係数、相関係数の検定などから、各測定局の O_x 濃度年平均値に対する測定法変更の影響について検討した。なお、解析対象とする測定局は局属性調査により測定法が明確な測定局のみを使用し、自治体ごとにまとめを行った。

その結果、調査した 52 自治体のうち、OX 法から OXW 法への移行に伴い O_x 濃度年平均値が増加傾向を示した自治体は 19%、OXW 法から O₃UV 法への移行に伴い O_x 濃度が増加傾向を示した自治体は 27%であった。また、OXW 法から O₃UV 法への移行に伴い O_x 濃度が逆に減少傾向を示した自治体も数カ所で見られた。なお、地域別の傾向は見られなかった。

このように、一部の測定局では測定法の変更による影響が示唆された。しかし、いずれも測定法の変更による変動は微小であり、判別が難しい場合も多かった。また、O₃UV 法への移行後も増加傾向が続くこともあった。従って、O_x 濃度の増加傾向の全てが測定法変更の影響ではないと思われる。

5.3.5. 考察

O_x 濃度年平均値の経年変化を見ると、OXW 法、O₃UV 法のいずれも、同一の測定法で継続測定した測定局において増加傾向が見られた。OXW 法から O₃UV 法へ移行した後も O_x 濃度年平均値の増加傾向が続いており、西日本の特に九州地域で増加傾向が高かった。また、測定法の変更による O_x 濃度年平均値の経年変化への影響も一部の測定局で示唆された。

これらのことから、測定法の変更による影響も一部の測定局で見られるが、それとは異なる経年的な O_x 濃度の増加傾向が確認され、特に西日本でその影響が強いことが明らかになった。最近の O_x 濃度年平均値の増加は、環境中の O_x 濃度の実際の増加を反映していると考えられる。

なお、関東甲信静地域では他地域と比較して OXW 法と O₃UV 法の O_x 濃度年平均値の差が少ないのは、関東地域は以前から O₃UV 法の測定局が多く、校正方法に UV 法が使用されている影響も

あると思われる。

今回は基礎調査として全国のデータから全体的な傾向についての検討を行ったが、さらに詳細な O_x 濃度の増加傾向の解析を進めるには、個々の測定局の地域的な偏りや環境変化、気象要因、校正等の保守管理なども考慮する必要がある。さらに、OXW 法から O_3UV 法への変更時期、測定機器の更新の時期は統一性がないことも考慮すべき点である。特に自治体では測定機の老朽化により 10 年前後の期間で全測定機の更新を行っているが、高濃度地域の測定局から更新される傾向があることも注意を要する。これらの問題点については、今後の課題として引き続き検討していきたい。

なお、 O_x 自動計測器の校正については、国際的な校正方法である UV 法へ移行することとされている。これに伴い、今まで KI 法で校正していた測定局については O_x 濃度年平均値が変化することが懸念される。今後もこれらの測定・校正方法を良く考慮し、 O_x 濃度の値を吟味することが必要であろう。

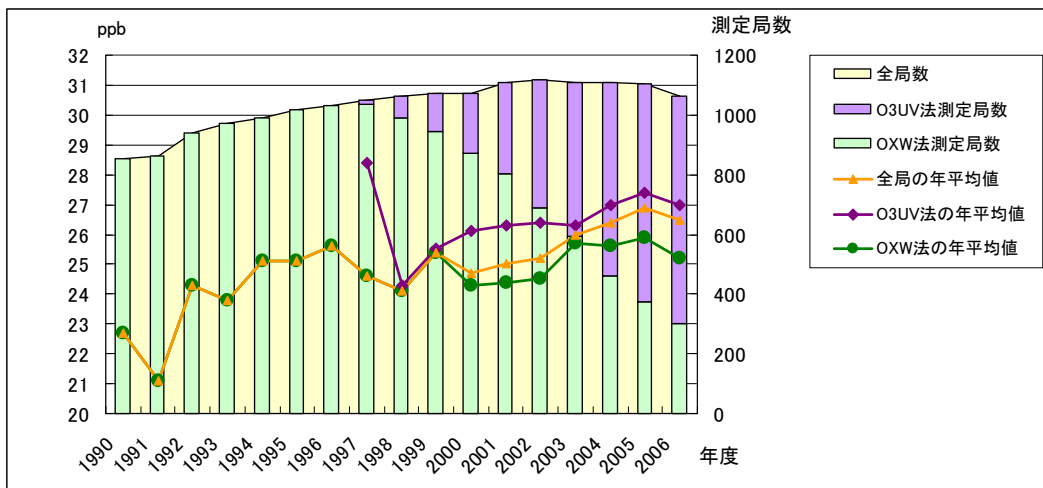


図 5.3.1. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化と測定局数の推移

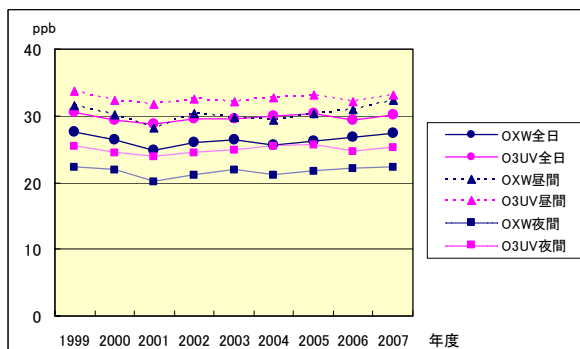


図 5.3.2. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化 (北海道東北北陸地域)

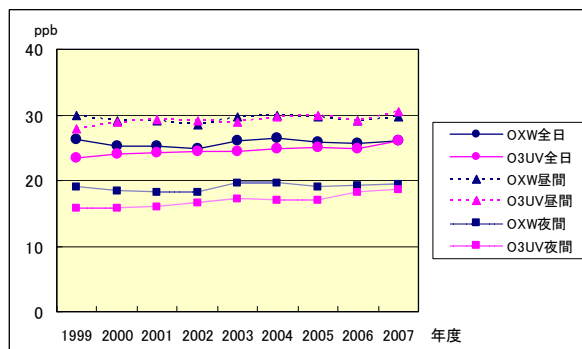


図 5.3.3. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化 (関東甲信越静地域)

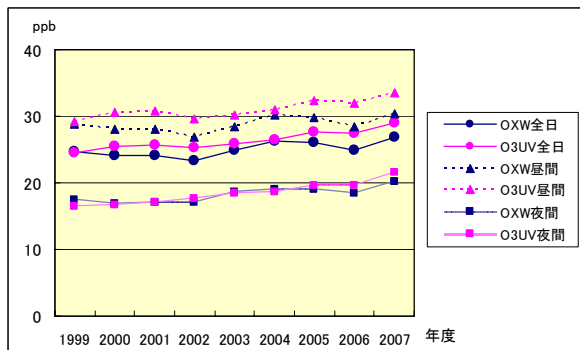


図 5.3.4. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化 (東海近畿地域)

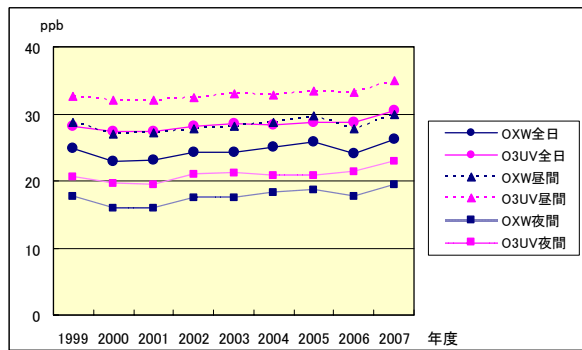


図 5.3.5. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化 (中国四国地域)

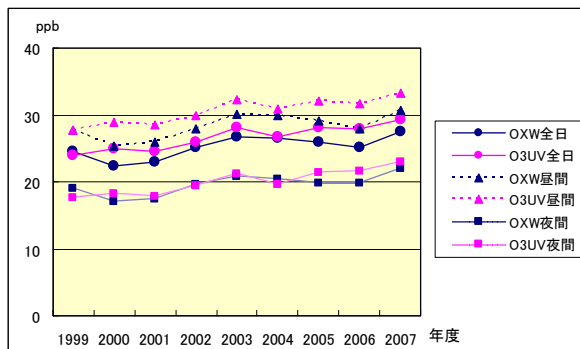


図 5.3.6. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化

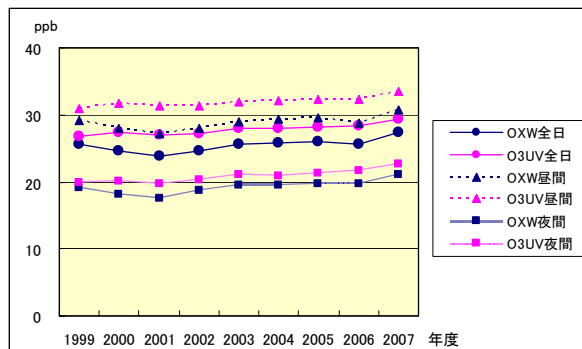


図 5.3.7. 測定法別 O₃ 濃度年平均値の経年変化

(九州地域)

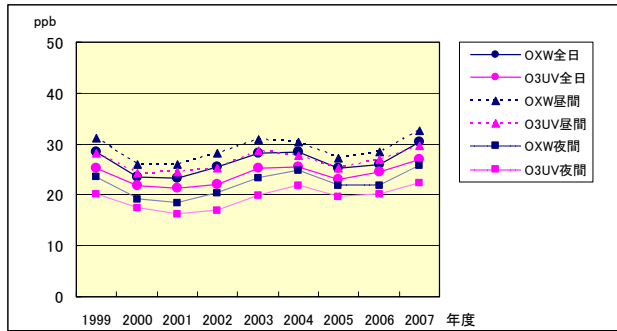


図 5.3.8. 測定法別 Ox 濃度月平均値の経年変化 (2月)

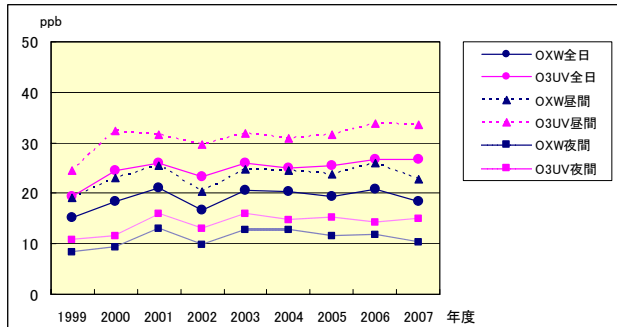


図 5.3.10. 測定法別 Ox 濃度月平均値の経年変化 (8月)

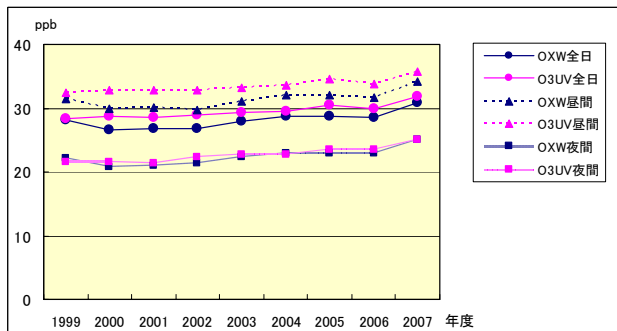


図 5.3.12. 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (上位濃度局グループ)

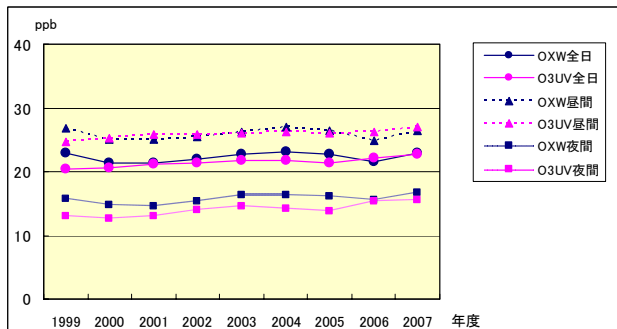


図 5.3.14. 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (下位濃度局グループ)

(全国)

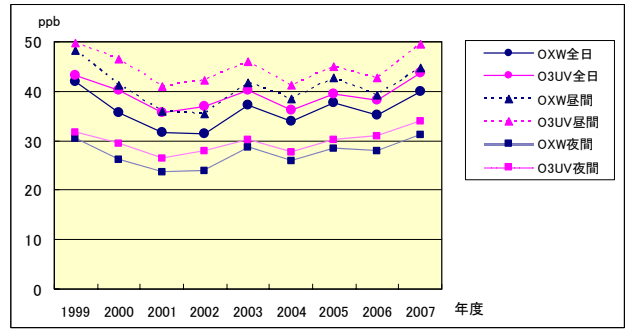


図 5.3.9. 測定法別 Ox 濃度月平均値の経年変化 (5月)

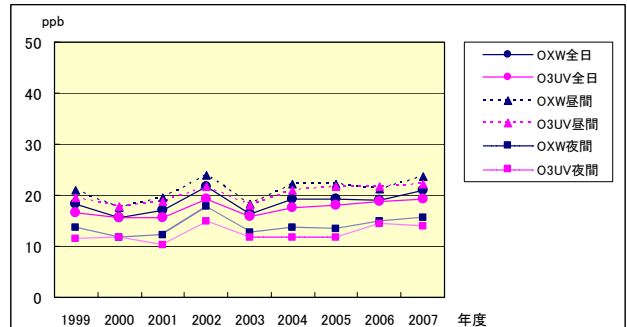


図 5.3.11. 測定法別 Ox 濃度月平均値の経年変化 (11月)

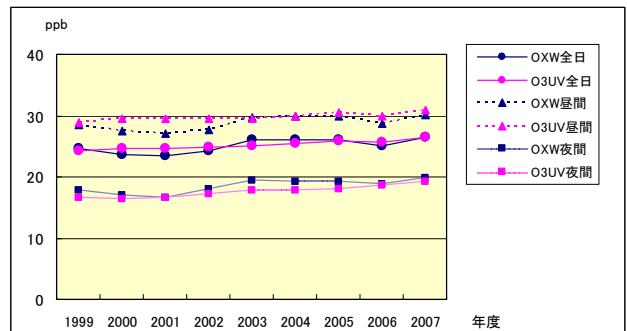


図 5.3.13. 測定法別 Ox 濃度年平均値の経年変化 (中位濃度局グループ)

5.4. 九州地域における高濃度の解析

5.4.1. はじめに

光化学オキシダント（以下、Ox）は、1970年代に光化学スモッグとして、関東地方を中心に大きな問題となった。その後、年平均濃度は横ばいの状態が長く続いていたが、近年、全国的な Ox 濃度の上昇傾向がいわれている。九州においても 2005 年度から 120ppb に迫る事例がたびたび観察されるようになり、九州で 2006 年には 2 回、2007 年には 5 回の注意報を発令するに至った。

この問題に対する九州地域での共同体制を、国立環境研究所と地方環境研究所の C 型共同研究九州グループとして進めていくことが各機関で合意されたが、その研究内容は、①Ox の高濃度事例解析（2006～2007 年）、②Ox の高濃度事例の分類、③硫酸イオン濃度調査、④Ox 測定精度管理である。また、これらの調査を共同で行っていくために、集められたデータを保有し配布するホームページを作成することになった。

本章は、共同研究の中の、Ox の高濃度事例解析（2006～2007 年）を中心に九州におけるオキシダントの高濃度を考察したものである。

5.4.2. 調査方法

九州内の大気常時監視測定局 118 局の 4 月から 8 月のデータをもとに解析を行った。また、対馬のデータは、酸性雨研究センターから提供されたデータを使用した。

硫酸イオン濃度は、2007 年 4 月～8 月に福岡県太宰府市（福岡県保健環境研究所屋上）で、2008 年 4 月～6 月には九州 8 自治体の環境研究所で毎日捕集し測定した。硫酸イオンはローボリュームサンプラー（20l/min で吸引）で 24 時間捕集し、イオンクロマトグラフ法で分析した。後方流跡線（以下、流跡線）は国立環境研究所地球環境センター CGER-METEX、または NOAA（U.S.A）の HYSPLIT を用いて作成した。

5.4.3. 結果と考察

5.4.3.1. オキシダントの高濃度日

九州で、2006～2007 年に光化学オキシダント濃度注意報を発令した日は、表 5.4.1 に示した 7 日である。7 日のうち、最も広域的な汚染は 2007 年 5 月 8 日で、120ppb を超えた局が 22 局（116 局中）、100ppb を超えた局が全局の 37% に及び、最高濃度も北九州市塔野での 153ppb である。続いて、2007 年 5 月 27 日で 120ppb 以上を 14 局で観測した。

この 7 日のうち、代表的な事例である 2007 年 5 月 8 日の後方流跡線、天気図、Ox 濃度が 100ppb を超えた局の経時変化、地域分布、硫酸イオン濃度を、図 5.4.1 に示している。九州南部に移動性高気圧があり、ゆっくり、東に移動している。流跡線は中国東岸青島付近が起点となっている。Ox 濃度の経時変化は全域でほぼ同じ挙動を示し、夜も高い地域も多い。Ox 高濃度地域は福岡から長崎、熊本、鹿児島、大分に広がっている。硫酸イオン濃度も非常に高い。

2007 年 5 月 8 日は、九州全域に及ぶような広域的な Ox 汚染であったが、それより 2 日前（5 月 6 日）に沖縄においても 80ppb を超す濃度が観測されている。沖縄で、全般に Ox 濃度は低く 80ppb を超すことは稀で、2007 年も 3 日しかない。図 5.4.2 に、その時の経時変化と流跡線を示している。沖縄で高くなった 6 日に流跡線は上海方向であるが、九州北部は異なり、Ox 濃度も低い。これが、8 日になると沖縄での流跡線が北に移り、逆に九州での流跡線が上海方向に変わる。この時、Ox 濃度は上昇し、120ppb を超している。この状況は、大原ら(2008)¹⁾がおこなったシミュレーションの結果とよく対応しており、中国大陸からの Ox 高濃度の移流の様子が顕著に表れた事例といえる。

注意報を発令した日の、流跡線からみると7例のうち6例が大陸からの流れを示しており、大陸以外は2006年6月7日のみである。

流跡線が大陸からの流れを示した6日には、概ね次のような特徴がある。

- ・移動性高気圧の通過を示す。
- ・夜のO_x濃度が80ppbを越すような高濃度をいずれかの局で示している。
- ・硫酸塩の濃度が20 μ g/m³を越すか近い値となっている。
- ・離島である壱岐と五島でO_x濃度が120ppbを越す値となっている(2007年)。

5.4.3.2. 高濃度日のSPM・SO₂との関係

O_xが高濃度日になった時、SPM、SO₂と同時に上昇しているケースがしばしば見られている。そこで、高濃度日におけるO_xと両成分の関係を検証した。

(1) O_xとSPMとの相関

表5.4.2に、高濃度日におけるO_xとSPMの全局での1時間値の相関係数と、各局で計算した24時間の両者の相関係数が0.7を超えた局の数を示している。

この表からO_xとSPMの関連が最も強く認められるのは、2006年5月30日と2007年5月27日であり、全体の相関係数も高く、局毎にみても50%近くの局で0.7以上の相関係数がある。図5.4.3.には、特に相関係数が高かった2006年5月30日の福岡県小郡市の筑後小郡局の経時変化グラフを示している。両局ともにO_xとSPMが同時に変化している様子を見ることが出来る。O_xの高濃度日にSPMとの類似した変化が常に起きているわけではないが、移流による影響が強い日にこの現象は起きており、SPMの同時移流を示唆している。

(2) O_xとSO₂との相関

表5.4.3に高濃度日におけるO_xとSO₂の全局での1時間値の相関係数と、各局で計算した24時間の両者の相関係数が0.7を超えた局の数を示している。O_xとSO₂の関連が比較的強いのは、2006年5月30日と2007年4月26日、5月8日、5月27日である。また70%近くの局で両者の変化に0.7以上の相関がある。各局で計算した24時間の両者の相関係数が0.7を超えた局の数が多いため、2006年5月30日、2007年5月8日、5月27日となっている。O_x、SO₂ともに昼間上昇するパターンが多いため、全般にSPMと比較すると似通った挙動をすることが多いが、これらの日には、SO₂の濃度が20ppbを越すような高濃度になる場合も多く、外からの移流を窺わせている。O_xとSO₂が類似した挙動を示している日の相関係数が高い地点は九州全体で観察できる。図5.4.4.に、特に相関係数が高かった2007年5月8日の福岡県前原市糸島局の経時変化グラフを示している。両局ともにO_xとSO₂が同時に変化している様子を見ることが出来る。特に、付近に大きな発生源が付近に存在しないにもかかわらずSO₂の濃度が高く、SPMと同じようにO_xとの同時移流が推定される。

5.4.3.3. 硫酸イオン濃度との関係

長崎県では、2007年度より壱岐・五島の離島でO_xの測定を開始した。これら離島局は、中国大陸と九州の間に位置し、周辺での排出量も少なく、移流の影響をみるには最適である。

O_xの壱岐・五島と九州内近接測定局の経時変化

離島(壱岐)とその九州本土での近接の測定局(糸島局)との経時変化を図5.4.5に示している。

両局の値の変化は概ね類似していることがわかる。

Ox 濃度と硫酸イオン濃度の関係

近年、煙霧と言われる大気が白く濁り視程が悪くなる現象が、頻繁にみられるようになった。煙霧時の粉じんを採取し分析したところ、その主要な成分は硫酸アンモニウムであることが分かった。オキシダントが高濃度になったとき、この煙霧現象が同時に観察されるケースも多い。

図 5.4.6 に 2007 年の壱岐での Ox と太宰府での硫酸イオンの濃度の経時変化を、示している。この図から Ox 濃度、硫酸イオン濃度とが同時上昇するケースがたびたびみられていることが分かる。硫酸イオン濃度が国内の SO₂ 濃度からは考えられない程高濃度 (20 μg/m³ 以上) になっていることを考え合わせると、Ox と同時に移流してきていると推定される。このことから、九州全体の硫酸イオンの分布を見るために、2008 年 4 月から 6 月まで九州 9 自治体で毎日の調査を実施した。

図 5.4.7 に、9 自治体の硫酸イオン平均濃度を示している。相対的に福岡県 3 地点、熊本県 2 地点が高く、宮崎県、沖縄県は低くなっている。

図 5.4.8 に、調査期間における硫酸イオン濃度の日変動を示している。変動の傾向を見ると、九州北西部の福岡県 3 地点、佐賀県、長崎県、熊本県 2 地点は多少の差はあるものの類似した変動をしていた。宮崎県は類似した変動を示すときもあったが全般的に低濃度で推移しており、沖縄県は全く異なる変動であった。硫酸イオン濃度が 15 μg/m³ を超えるような高濃度となったのは福岡県 3 地点、佐賀県、熊本市であった。また、この調査期間では 5 月が高頻度で、最も多かった福岡県では 5 回であった。この年、九州では 2 回の注意報発令があった。5 月 22 日に福岡県北九州市で、5 月 27 日には福岡県小郡市、佐賀県基山町で発令され、いずれも硫酸イオン濃度は高くなっていた。

図 5.4.9 に、福岡県における硫酸イオン濃度と Ox 濃度の日最高値の関係を示している。硫酸イオンと Ox 日最高値はこのように相関が 0.65 と有意であることから、硫酸イオン濃度と Ox 日最高値の関連が高いと言える。また、近似直線の傾き 2.3 は、硫酸イオン濃度の増加による Ox 日最高値の増加割合を示す。切片 38.1ppb は硫酸イオン濃度がゼロ、すなわち大陸からの影響を受けないときの Ox バックグラウンド濃度と考えた。これらの数値は傾向の類似している九州北西部の地域で近い値を示していた。なお、大陸影響も一様ではなく、また、大陸からの影響の他に地域での発生や成層圏からの流入などによってもずれが生じているものと考えられる。

表 5.4.4 に全調査地点の硫酸イオンと Ox 日最高値との関係を示している。相関係数は九州北西部と沖縄県が高く、両者の関連性が高いことを示している。傾きは九州北西部で 2 前後、沖縄県で高く 4.6、宮崎県は低く 1.3 で、相対的な大陸からの寄与割合と考えられる。切片は、大陸影響がない場合の Ox バックグラウンド濃度と考えており、九州北西部ではほぼ 40~50、宮崎で 54、沖縄では 26 と低くなっていた。

以上をまとめると、今回の調査期間における、九州の硫酸イオン濃度は九州北西部（福岡県 3 地点、佐賀県、長崎県、熊本県 2 地点）が高めで宮崎県、沖縄県が低めであった。硫酸イオンの高濃度は主に九州北部を中心とした広域で観察された。また、流跡線から大陸からの移流が窺えた。硫酸イオン濃度の経日変化は九州北西部で類似した傾向が見られ、宮崎県、沖縄県は異なる傾向を示していた。最後に硫酸イオンと Ox 日最高値の関係には地域差が見られ、この関係は大陸からの影響評価に有用であるのではないかと考えられる。

5.4.3.4. 流跡線方位との関係

後方流跡線は、高濃度が移流の影響ではないかと推定させるには重要な手段となる。そこで、離島での Ox 濃度が得られている 2003 年（対馬）、2007 年（壱岐）での Ox 濃度の流跡線方位別濃度を算出した。また、2003 年と 2007 年には、太宰府で硫酸イオン濃度も測定されているため併せ

て方位別濃度を算出した。方位は、北部九州を起点に 8 方位に分割し、毎日 15 時の後方流跡線を METEX により作成した。

図 5.4.10 に、2003 年と 2007 年（4 月～8 月）の方位の頻度割合を円グラフで示しているが、大陸方向と考えられる NNW～WSW 方向が合計で 2003 年は 22%で、2007 年は 43%であり、2007 年が大陸からの影響を受けやすい気象条件だったことが分かる。

図 5.4.11、図 5.4.12 に Ox と硫酸イオンの方位別での平均濃度とその最大と最小の差をそれぞれ示している。大陸方向とそれ以外の濃度が最低になる方位との差は、2003 年と 2007 年では Ox で 1.4 倍、硫酸イオンで 3.4 倍になっており、負荷量が増加していることを窺わせている。

5.4.3.5. 高濃度日 (80ppb 以上)の要因分類

Ox 濃度を上昇させる要因としては、地域での生成、大陸からの移流、成層圏オゾンの沈降などが考えられ、これらの要因を分類するために要素としては、図 5.4.13 に示すような項目をあげることが出来る。そこで、大陸からの影響があるか否かを判断するために図 5.4.14 に示すような手順で、Ox 高濃度日 (80ppb 以上) を分類した。その結果、2007 年は図 5.4.15 に示しているように、成層圏の沈降が 10%、移流が 44%、地域の生成が 2%と、移流の影響が大きいことが推定された。

5.4.4. まとめ

2006 年と 2007 年に Ox が 120ppb を超して注意報を発令したのは九州内の測定局で 7 日あり、この 7 日のうち、最も大きな汚染は 2007 年 5 月 8 日で、120ppb を超えた局が 22 局(116 局中)であった。7 日のうち 6 日が大陸からの流れを示しており、大陸以外は 2006 年 6 月 7 日のみである。

流跡線が大陸からの流れを示した高濃度日は、①移動性高気圧の通過を示す、②夜の Ox 濃度が 80ppb を超すような高濃度をいずれかの局で示している、③硫酸塩の濃度が 20 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超すか近い値となっている、④離島での測定結果が得られている 2007 年では壱岐と五島で 120ppb を超す値となっている などの特徴がみられている。

Ox が高濃度日なった時、SPM、SO₂と同時に上昇しているケースがあり、それらの関係を解析したところ、Ox と SPM の関連が最も強く認められるのは、2006 年 5 月 30 日と 2007 年 5 月 27 日であり、50%近くの局で両者の変化に 0.7 以上の相関係数があった。また、Ox と SPM が同じ挙動を示している日の現象は九州全体で観察された。同様に、Ox と SO₂の関連が強く認められるのは、2006 年 5 月 30 日と 2007 年 5 月 8 日、5 月 27 日であり、70%近くの局で両者の変化に 0.7 以上の相関係数があり、この現象も九州全体で観察されていた。

対馬、壱岐、五島などの離島は、大陸と九州の中間に位置し、大陸からの影響を直接的に受けると考えられるため、離島での Ox 濃度を解析した。壱岐・五島とその近接の九州本土内測定局とは、同様の濃度変化を示していることが明らかになった。

さらに、壱岐での Ox の濃度と太宰府での硫酸イオンの濃度には、同時期に上昇するケースがみられており、大陸からの同時移流が推定された。

Ox 濃度への大陸からの平均的な寄与を推定するために、2003 年の対馬、2007 年の壱岐でのオキシダント濃度の流跡線方位別濃度を計算した。2003 年対馬での、濃度が最高になる方位 NNW と最低の SSW の差は 28ppb で、2007 年壱岐での、最高になる方位 WNW と最低の SSW の差は 40ppb とかなり増加している。流跡線の方位別割合は、大陸方向の NNW～WSW 方向が 2003 年 22%、2007 年 43%と増加しており、2007 年の高濃度は、中国大陸での排出量の増大とともに気象要素の変化も勘案されなければならないと思われる。

Ox が高濃度を示す要因としては、大陸からの影響ばかりでなく、成層圏オゾンの沈降や地域での発生も重要である。それぞれの要因は複合して影響していると考えられるが、九州と大陸の間に位置する離島の測定局である対馬・壱岐・五島のデータや、流跡線、硫酸イオン濃度などを総合すれ

ば、高濃度日のいくつかのケースでは主要な要因を推定できることが分かった。すべてのデータが揃っている 2007 年の高濃度日を分類すると、移流と思われる高濃度日が全体の 44%を占めていた。

九州における近年の Ox の高濃度はかつてみられなかった現象であり、その主要な原因が中国大陸からの移流と推定されることから、今後中国での経済発展に伴いその影響はますます大きくなると予想され、継続的な監視と国際協力による効果的な対策が求められる。

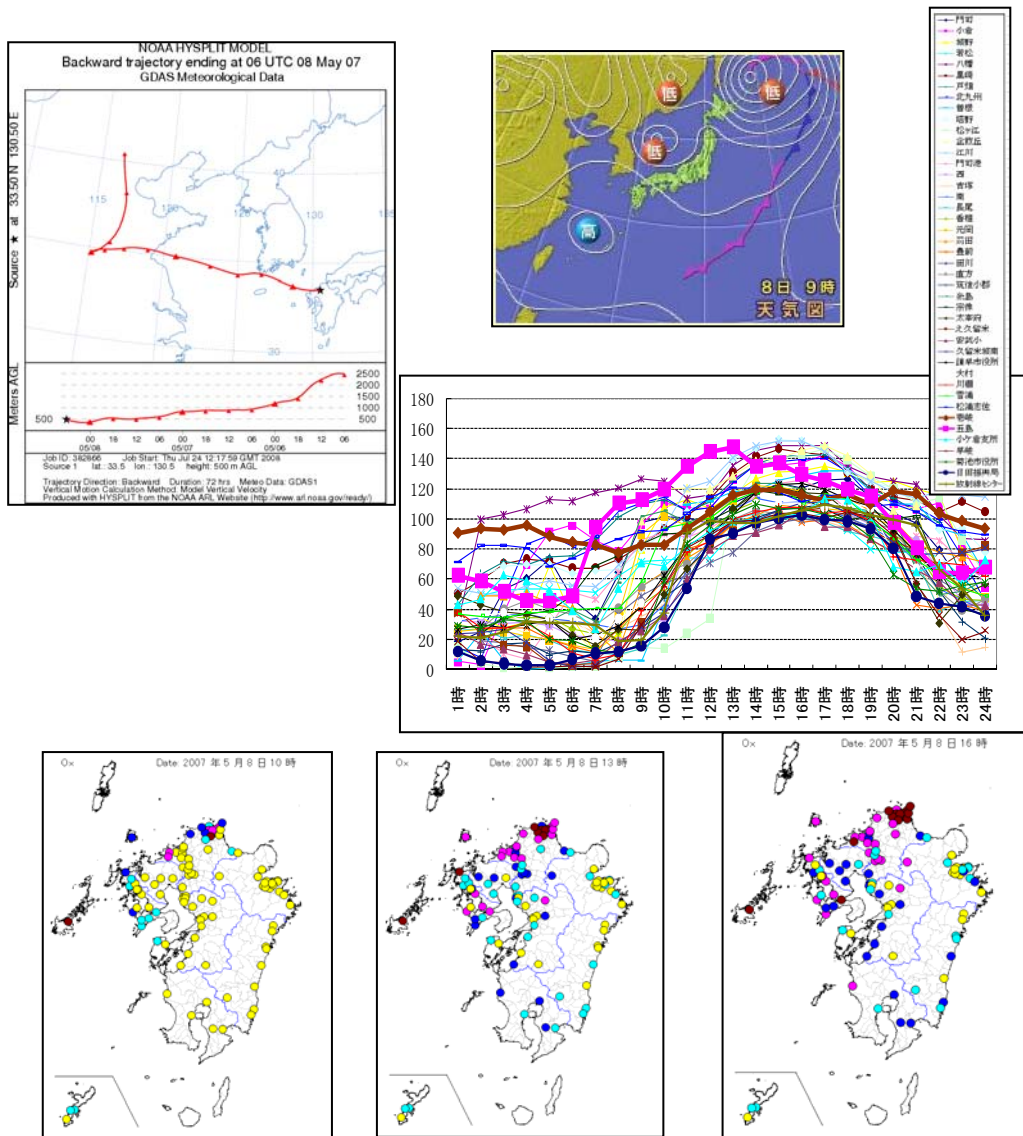
参考文献

- 1) 大原利眞, 鶴野伊津志, 黒川純一, 早崎将光, 清水厚: 2007 年 5 月 8, 9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染— オーバービュー —, 大気環境学会誌, 43, 198-208 (2008)

5.応用解析

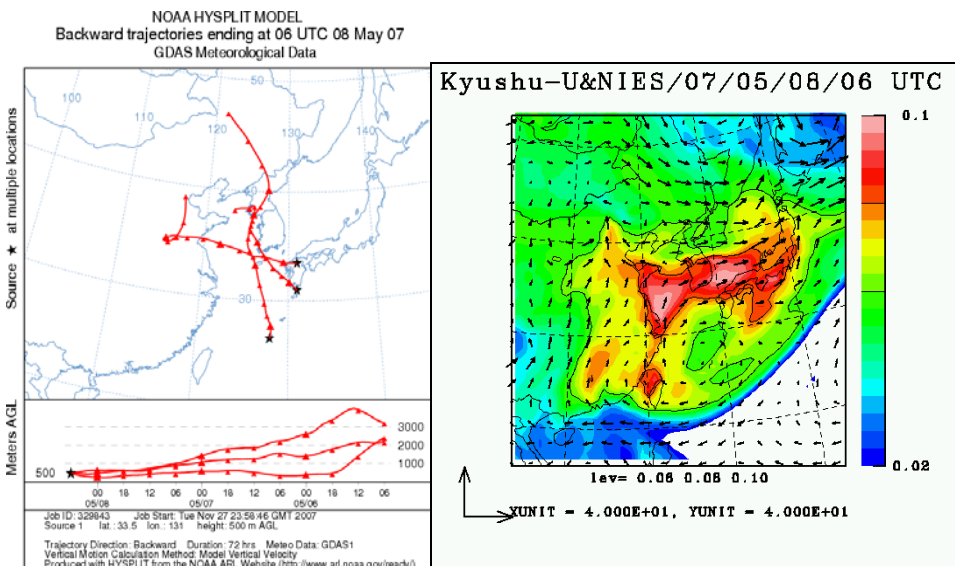
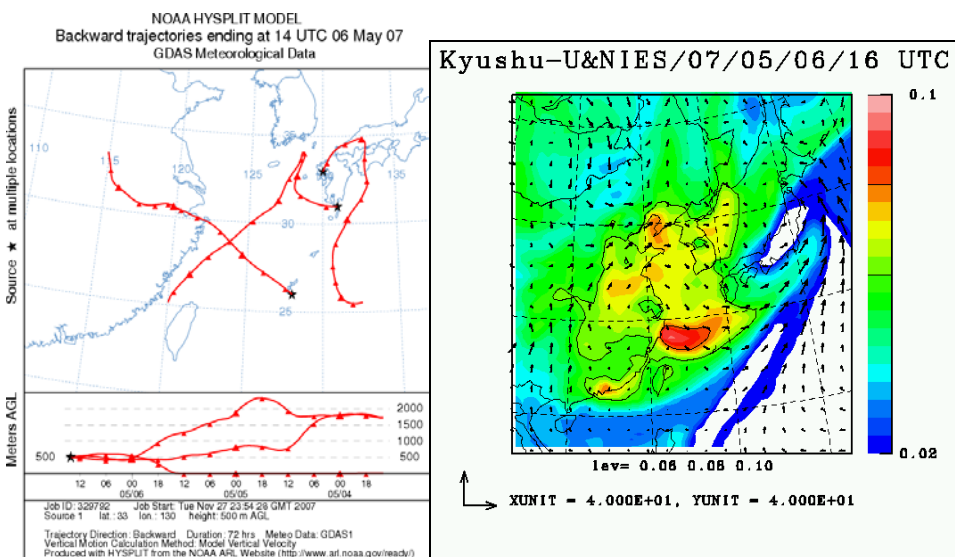
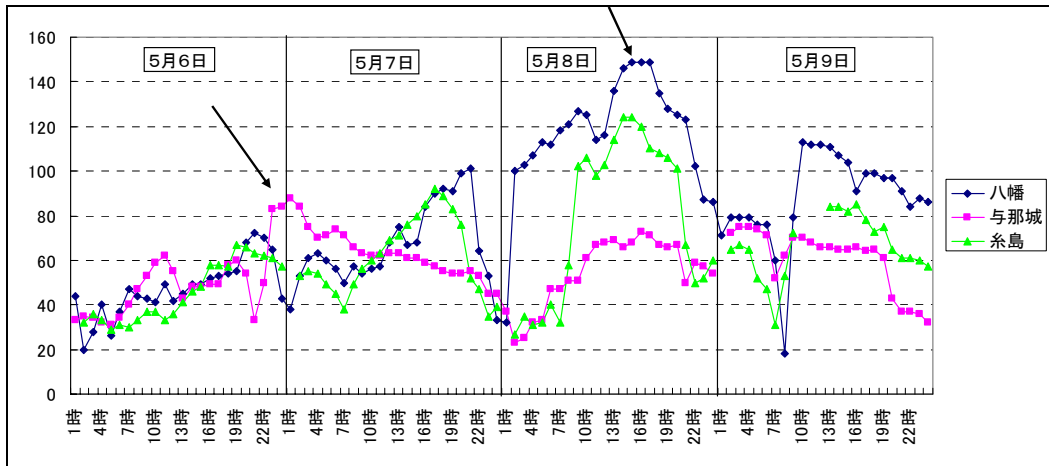
表 5.4.1. 2006 年、2007 年で注意報を発令した日及び濃度

	発令日	120ppb 以上局	超過局	100ppb以 上局数	1日最高 値平均	1日平均値 平均	最高値(局)
1	2006年5月30日	1	長崎県	27	88	57	120(小佐々)
2	2006年6月7日	2	熊本県1 福岡県1	11	72	41	123(錦ヶ丘)
3	2007年4月26日	3	長崎県2 福岡県1	19	87	60	145(五島)
4	2007年4月27日	10	長崎県5 福岡県5	36	86	51	151(五島)
5	2007年5月8日	22	長崎県5 熊本県 福岡県17	43	94	55	153(塔野)
6	2007年5月9日	6	福岡県4 熊本県1 大分県1	39	91	59	135(塔野)
7	2007年5月27日	14	福岡県12 長崎県1 鹿児島県1	40	92	62	141(松ヶ江)



硫酸イオン濃度 $25.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$

図 5.4.1. 2007 年 5 月 8 日の流跡線図・天気図・Ox 濃度経時変化グラフ・Ox 濃度分布



(光化学オキシダント・対流圏オゾン検討会資料より)

図 5.4.2. 2007 年 5 月 6~8 日の O_x 経時変化グラフ・流跡線図とシミュレーション結果

5.応用解析

表 5.4.2. 高濃度日の Ox と SPM の時間値相関係数および局毎の両者の相関係数が 0.7 を超えた局数

	高濃度日	SPM相関	
		相関係数	0.7以上局数
1	2006年5月30日	0.539	48
2	2006年6月7日	0.197	12
3	2007年4月26日	0.241	6
4	2007年4月27日	0.376	9
5	2007年5月8日	0.327	15
6	2007年5月9日	-0.632	6
7	2007年5月27日	0.607	59

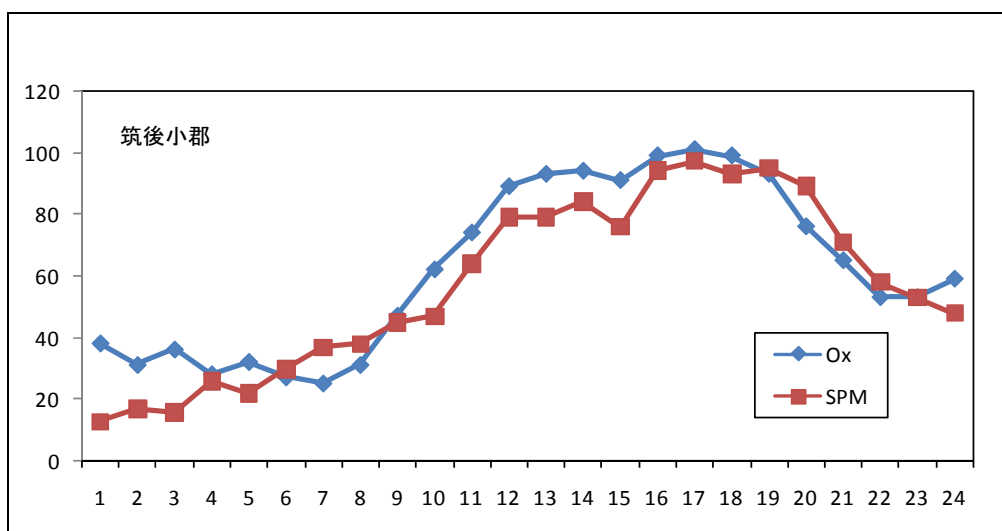


図 5.4.3. 2006 年 5 月 30 日の Ox と SPM 経時変化例(福岡県筑後小郡局)

表 5.4.3. 高濃度日の Ox と SO₂ の 1 時間値相関係数および局毎の両者の相関係数が 0.7 を超えた局数

	高濃度日	SO ₂ 相関	
		相関係数	0.7以上局数
1	2006年5月30日	0.481	75
2	2006年6月7日	0.089	36
3	2007年4月26日	0.459	59
4	2007年4月27日	0.235	56
5	2007年5月8日	0.496	74
6	2007年5月9日	0.212	41
7	2007年5月27日	0.423	65

表 5.4.4. 各調査地点における硫酸イオン濃度とOx 日最高値との関係

	硫酸イオンとOx日最高値		
	相関係数	傾き	切片
北九州市	0.52	2.0	44
福岡市	0.50	2.2	43
福岡県	0.65	2.3	38
佐賀県	0.45	1.9	49
長崎県	0.42	2.9	59
熊本県	0.47	2.3	41
熊本市	0.50	2.1	48
宮崎県	0.23	1.3	54
沖縄県	0.63	4.6	26

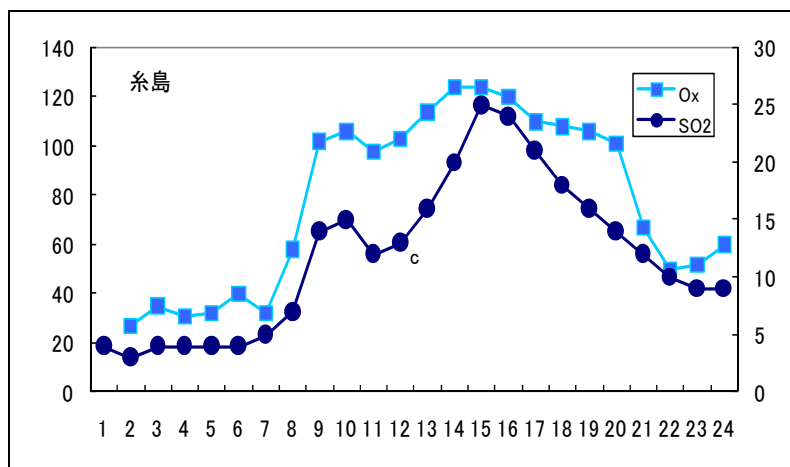


図 5.4.4. 2007 年 5 月 8 日の Ox と SO₂ の経時変化例(福岡県糸島局)

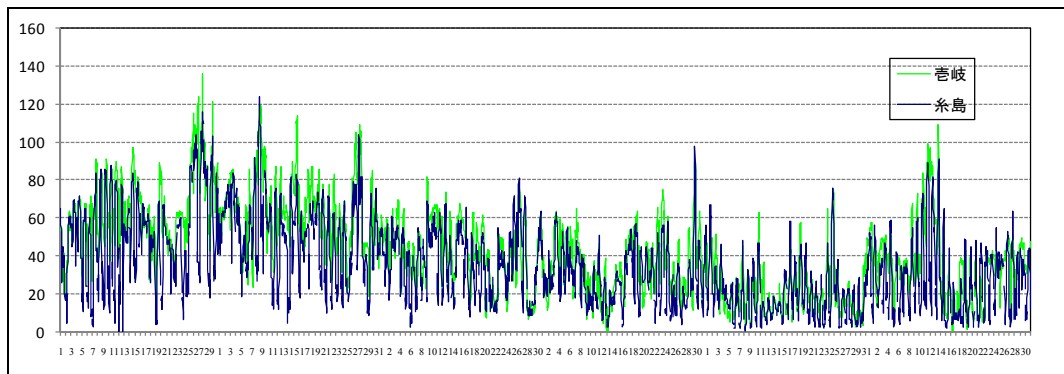


図 5.4.5. 吉岐と糸島の Ox 経時変化(2007 年 4 月～8 月)

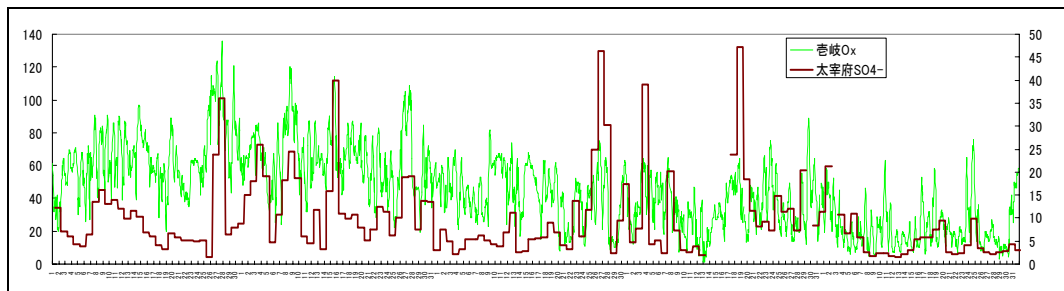


図 5.4.6. 吉岐での Ox 濃度と太宰府での硫酸イオン濃度の経時変化(2007 年 4 月～8 月)

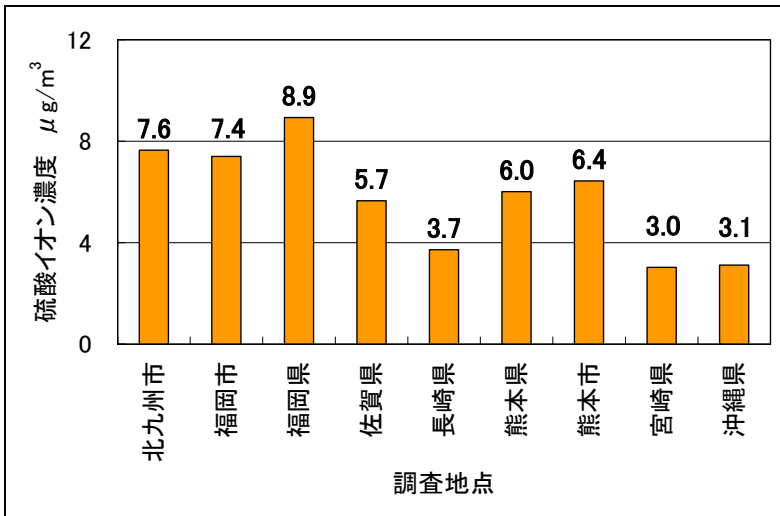


図 5.4.7. 九州各測定地点における平均硫酸イオン濃度(2008年4月～6月)

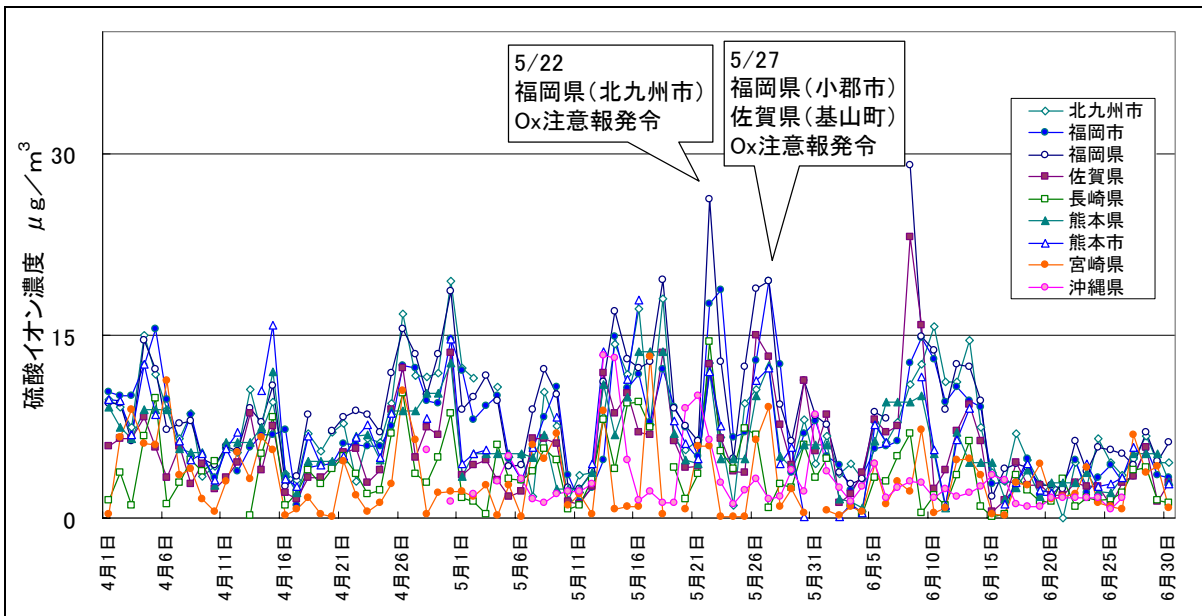


図 5.4.8. 九州各測定地点における硫酸イオン濃度の経日変化(2008年4月～6月)

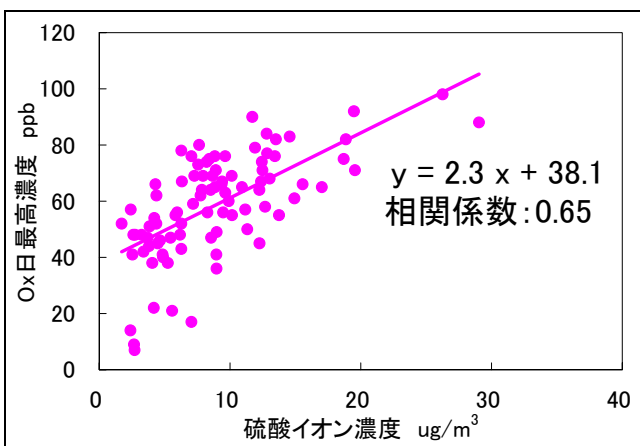


図 5.4.9. 福岡県における硫酸イオン濃度と Ox 日最高濃度との関係

2003 年

2007 年

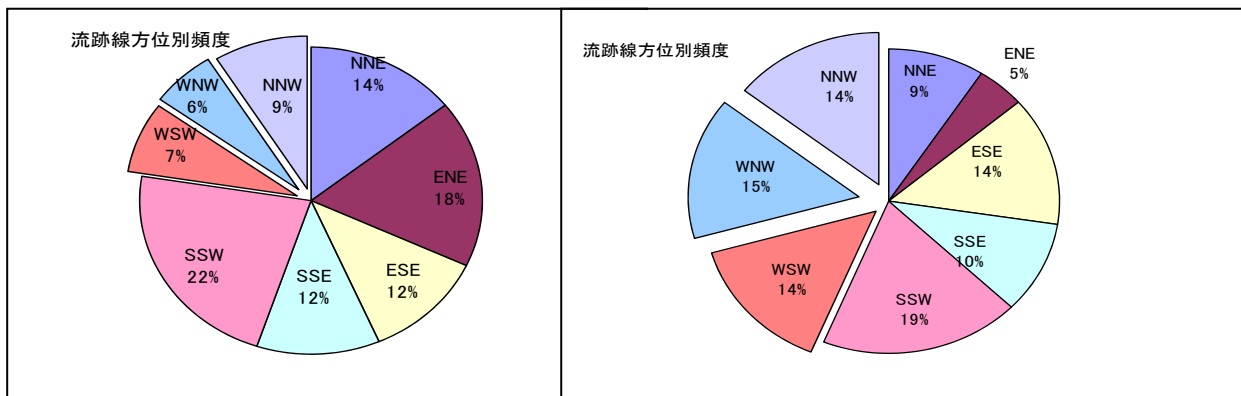


図 5.4.10. 後方流跡線の方位割合(4月~8月)

2003 年

2007 年

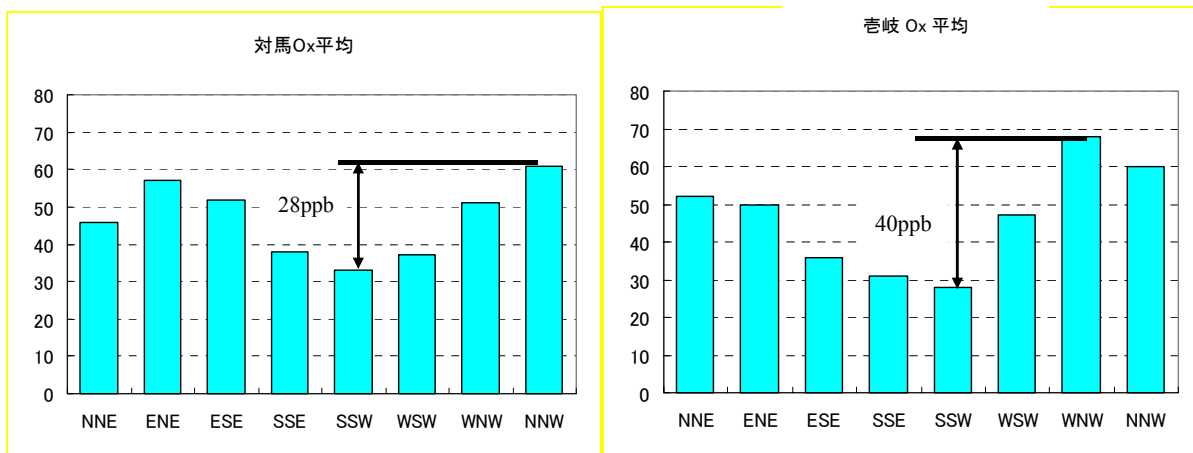
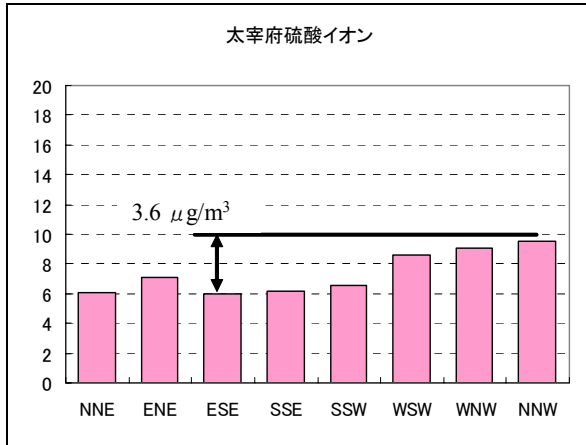


図 5.4.11. Ox の方位別平均濃度と最大・最小の差

2003 年



2007 年

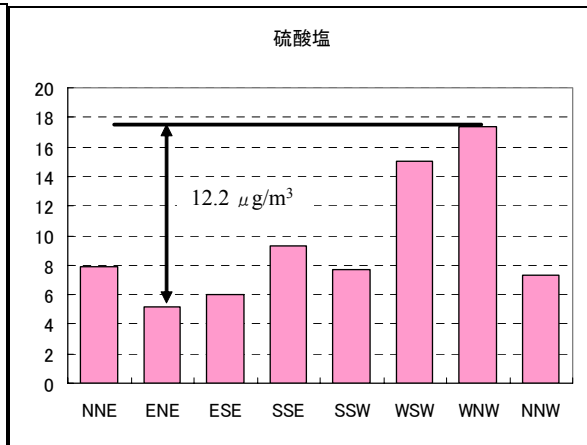
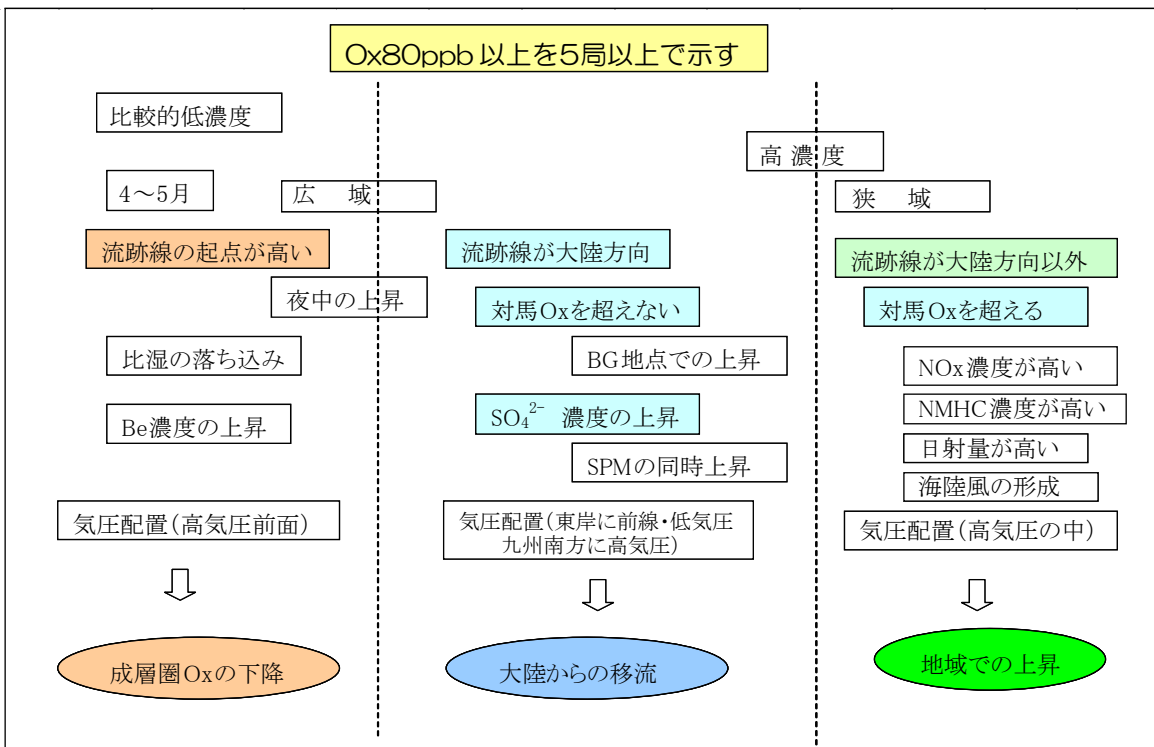


図 5.4.12. 硫酸イオン濃度の方角別平均濃度と最大・最小の差



図

5.4.13. Ox 濃度を上昇させる要因

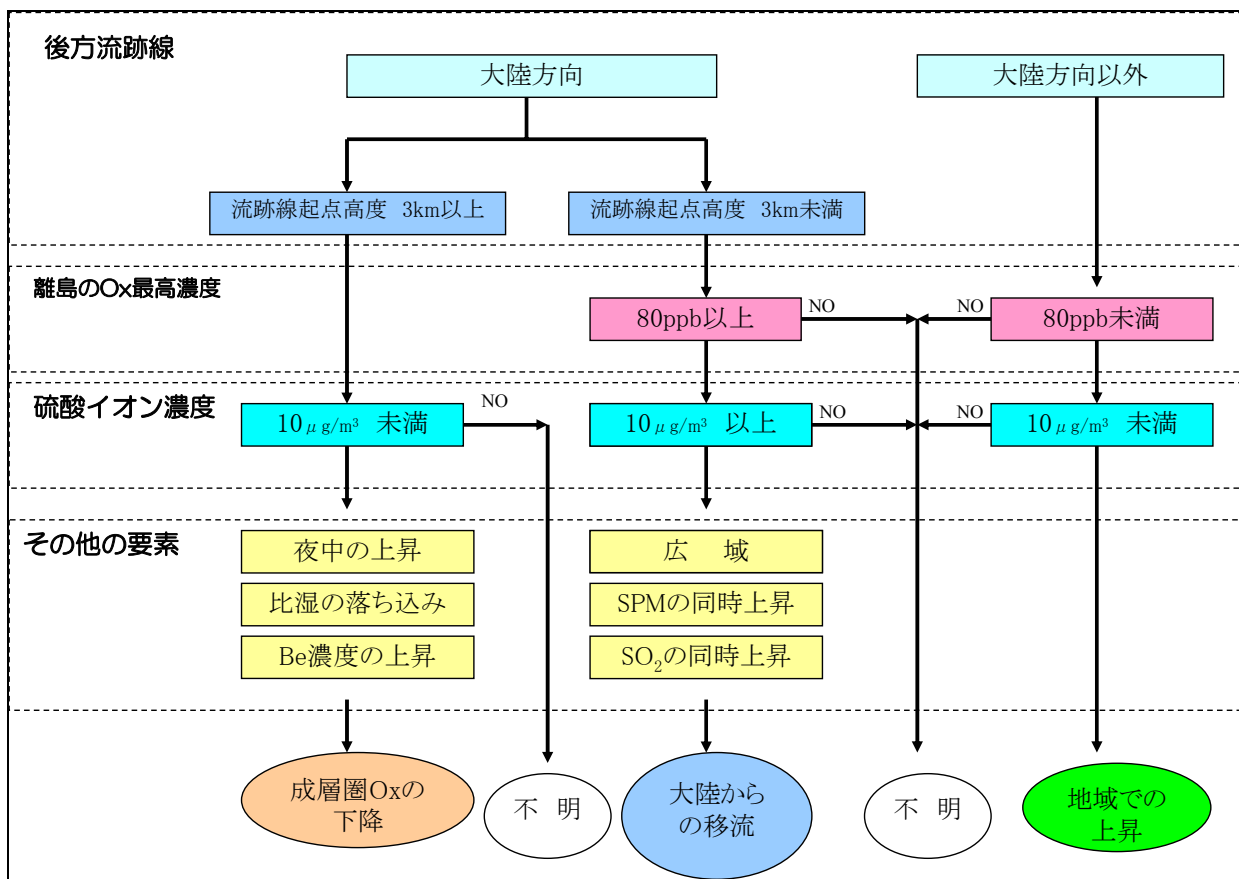


図 5.4.14. 要因分類のための判断基準

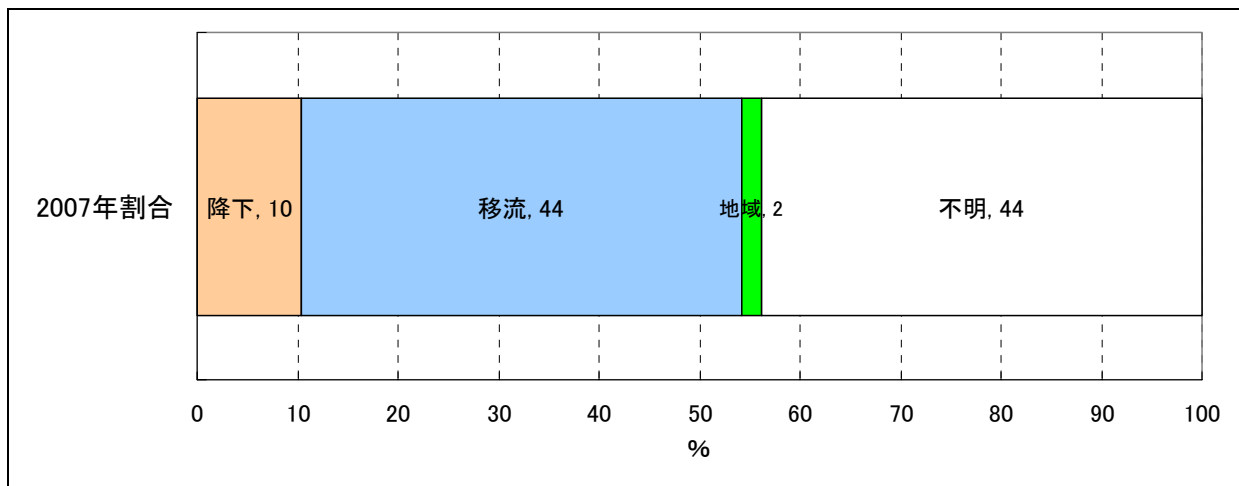


図 5.4.15. 高濃度日の主要な要因別による分類

5.5. 大気汚染予測システム

大気汚染予測システム¹⁾ (愛称 VENUS=Visual atmospheric ENvironment Utility System) とは、大気汚染物質の濃度を数値シミュレーションにより予測し、その結果を1時間毎の濃度分布予測図として視覚的に提供するシステムである。本節では、国立環境研究所が主体となり開発を進めてきた大気汚染予測システム (以下では、混乱の生じない範囲で「予測システム」と表記) の、シミュレーション部分を中心に概要を紹介する。

5.5.1. 開発の経緯

当日もしくは数日先の大気汚染状況は、大気関係としては天気予報に次いで一般の関心が非常に高い予測であろう。各地方自治体の担当部署では、前日までの状況や当日の大気汚染観測結果に気象予報などの情報を併せて、大気汚染物質の高濃度の持続・悪化を予測し各種の注意報等を発令しているが、近年は大陸からの越境大気汚染を主たる原因として起きている可能性の強い高濃度事例も少なからず見受けられ、これまでの情報だけでは予測することが困難な場合も多い。この困難の打開策の一つが、長距離輸送の影響を加えた数値シミュレーションによる予測の使用である。現在のシミュレーション技術では、各地点の物質濃度を完全に予測 (再現) すること自体は困難であるが、高濃度域の広域分布はある程度以上の精度で予測できると考えられ、高濃度域の持続・悪化を予測する上で重要な広域輸送の影響を勘案することが容易になる。

このような、想定される利用方法を考慮して、以下のような仕様を持つシステムが望まれた。

- ・ 毎晩自動的に計算を行い、当日と翌日の大気汚染状況を予測し、毎朝公開する。
- ・ 予測計算される大気汚染物質の種類は、オゾン、浮遊粒子状物質を含む。
- ・ 結果の閲覧画面が直観的かつ簡便な操作性を持つ。(物質・日時等の選択が容易)
- ・ 最新の予報結果だけでなく、過去の予報結果も遡って閲覧できる。
- ・ 予測の対象領域は、当初は関東地域とし、その後、関西地域等順次各地域に広げる。
- ・ 対象領域での水平計算格子間隔は数キロ程度の細かさである。かつ、大陸からの寄与を考慮するために全体の計算範囲は東アジア域を含む。

十分な計算精度で、かつ、毎日一定時間内に計算を終了するためには、かなり優れた計算機資源が必要であり、例えば自治体ごとに個々にこのようなシステムを構築することは必ずしも現実的で無い。そこで、予てより研究用途に大気汚染の数値シミュレーションを活用してきた国立環境研究所が、その技術を核として、平成 16 年からシステム開発に着手した。電力中央研究所や地方環境研究所との共同研究により開発を進め、平成 20 年 4 月に、環境 GIS 上で関東地域を対象とした大気汚染予測システムの公開に至った。その後、関西地域を開発し、また、環境省の予算により中部地域と九州地域が開発され、平成 21 年 6 月にこれら 3 地域が追加公開された。また、平成 21 年度には、計算機プラットフォームが、研究ベースの計算機から国立環境研究所の大型計算機スカラーシステムに移行された。現在、東北地域版と中国四国地域版の開発が進められており、平成 22 年度に追加公開の予定である。

5.5.2. 計算対象領域

数値シミュレーション (予測を含む) においては、一般的に投影地図上で長方形の計算対象領域を設定し、その領域を長方形 (正方形であることが多い) に分割した計算格子を設定し、その格子毎に予測したい変数を定義し、計算プログラムを解く。上述したように、予測システムの計算対象領域はなるべく広く、また、計算格子はなるべく小さい (以下では、計算解像度が高い、と表現) ことが望まれる。なぜなら、計算領域が広げれば広範囲からの長距離輸送の寄与を取りこむことができる等の利点があり、また、計算解像度が高ければ、細かな分布状況が表現できる利点がある。

どちらも計算精度の向上に直接つながる利点である（実際には単純には精度が向上しないのが難しい）。しかし、広い計算領域と高い計算解像度を両立させた場合、計算格子数は膨大になり、計算機に高い負荷をかけることにつながる。超高性能の計算機環境を整えない限り、毎日朝までに計算を終えるという要求を満たせなくなるジレンマに陥る。これを解消する方法として、大気汚染予測システムが用いている手法がネスティング(nesting)と呼ばれる手法であり、以下で説明する。

ネスティングとは、プログラム言語の世界でも使われる言葉であり、「入れ子構造」のことである。ここで言うネスティングとは「計算領域」の入れ子構造であり、具体的に予測システムそのものを例として説明する。予測システムの計算領域は図 5.5.1 のように設定されている。大きな「東アジア」という四角と、それより小さな「日本」という四角、さらに小さな「関東」「中部」「関西」「九州」の各地域の四角と、大中小3段階の四角がそれぞれ計算領域を示す。東アジア領域は一辺100kmの解像度、日本領域は25kmの解像度、各地域は5kmの解像度で計算を行う。東アジア領域の計算結果が、計算毎に日本領域の計算境界条件として与えられながら計算は進む。また、日本領域の計算結果が、計算毎に各地域の計算境界条件として与えられながら計算は進む。こうすることによって、広い領域での輸送の効果等を取りこみながら狭い領域での細かな計算を行うことが可能になる。これがネスティング(この場合3段階のネスティング)である。東アジア領域全体を5kmの解像度で計算することは計算機資源として非常に困難であるが、ネスティングを用いれば東アジア全体の影響を粗い解像度ではあるが取り込みつつ特に関心のある各地域を5kmの解像度で計算することが可能になる。

広い領域から一方通行的に狭い領域に計算を受け渡すネスティングを1 way ネスティング、狭い領域の結果を広い領域にも返す双方向的なネスティングを2 way ネスティングと呼ぶ。予測システムでは、気象計算においても、大気汚染計算においても1 way ネスティングを用いている。

5.5.3. システムの概略

図 5.5.2 に大気汚染予測システムの流れを示す。システムは数値計算部分と可視化部分から構成される。数値計算部分は、気象計算と大気汚染計算の二つの計算サブシステムから成る。まず、数値予報の気象データを入力として、気象モデルが数日後までの風、気温、気圧、水蒸気量等を計算する。得られた気象データと別途用意した大気汚染物質排出量データを入力として、大気質モデル(大気汚染モデル)が光化学オキシダントや浮遊粒子状物質等の濃度を計算する。得られた物質濃度の水平分布等は可視化され、ホームページ上にアップロードされる。以上が予測システムの概略である。

現時点の予測システムでは、気象計算サブシステムとして領域気象モデル RAMS を使い、大気汚染計算サブシステムとして大気質汚染モデル CMAQ を使用している。入力する気象データとして気象庁の数値予報 GPV を使い、大気汚染物質排出量データとして EAGRID と REAS の2種を用いている。

以下では、これらのデータと数値モデルの概略を述べる。

5.5.3.1. 数値予報 GPV

いわゆる天気予報に使われている気象庁の数値予報モデルの計算結果が、気象業務支援センターを通して配信されているのが数値予報 GPV(Grid Point Value)である²⁾。

配信されるデータは、各気圧面における高度、東西風、南北風、鉛直風、気温、相対湿度であり、予測システムは鉛直風を除く5データを使用する。GPVには、地球全体を計算する全球数値予報モデル GPV(GSM)と日本周辺を細かく計算するメソ数値予報モデル GPV(MSM)の2種がある。一日の配信回数はGSMが4回、RSMが8回である。GSMはさらに、GSM全球域と日本周辺のみGSM日本域の2種のデータがある。水平解像度はそれぞれGSM全球域が約50km、GSM日本域が約20km、MSMが約5kmである。予測システムは毎日OUTCを初期時刻とするGSM全球域

データを、現時点では使用している。

5.5.3.2. 地域気象モデル RAMS

大気汚染の数値計算のためには表 5.5.1 に示すように多様な気象データが必要であり、数値予報の気象データだけでは数値計算を行うことができない。そのため、数値予報 GPV を入力データとして、気象モデルにより必要な気象データを計算する必要がある。気象モデルでは、データ同化により現実的な気象データを取り込み、現実的な計算結果を得られる仕組みになっている。

予測システムで用いている RAMS (Regional Atmospheric Modeling System) は米国コロラド州立大学で開発された領域気象モデルである。現在は新規の開発は行われていないが、現在でも世界最先端の領域気象モデルの一つである。Web 上で入手可能である³⁾。予測システムで使用している RAMS のバージョンは 4.4 である。

RAMS が採用しているデータ同化手法は、ナudging(nudging)と呼ばれる比較的単純な同化手法である。データ同化およびナudgingについては 5.5.5 節で再度説明する。

5.5.3.3. 大気質モデル CMAQ

気象モデル RAMS で計算された気象データ(表 5.5.1)と大気汚染物質排出量データ(後述)を入力データとして大気質モデルを走らせ、大気汚染濃度を計算する。

予測システムで用いている大気質モデルは、米国環境保護庁(EPA)国立暴露研究所(NERL(National Exposure Research Laboratory))で開発され、1998年に最初のリリースが行われた CMAQ (Community Multi-scale Air Quality modeling system) である。世界で代表的な大気汚染計算モデルの一つであり、現在も開発が続けられている。Web 上で入手可能である⁴⁾。

元来 CMAQ は地域気象モデル MM5⁵⁾との連携を念頭において開発された大気質モデルであったが、予測システムでは MM5 に代わって RAMS を使用しているのが特徴である。この連携を支えるのが、国立環境研究所が EPA/NERL との共同研究により 1999 年に開発した RAMS-CMAQ インターフェースである⁶⁾。このインターフェースを使用した RAMS-CMAQ 連携システム⁷⁾は、国立環境研究所以外でも日本と中国の複数の研究者によって使用され、得られた研究成果により数多くの誌上発表が行われている⁸⁻¹²⁾。

5.5.3.4. 大気汚染物質排出量データ

大気汚染物質の排出量データは、関東域の計算には環境省 3 次メッシュ排出量データ、関東以外の各地域の計算および日本域の計算には EAGRID、アジア域の計算には REAS というデータを用いている。それらに火山、植物起源の VOC、森林火災起源の BC 等の情報を付加して計算に用いている。地上付近の発生源が多いため、ほとんどのデータは地上(モデル内の最下層)で与えられるが、煙突や飛行機からの発生については、煙突高度もしくは上空でデータを与える。

EAGRID は計量計画研究所、埼玉大学、国立環境研究所の共同研究で作られた大気汚染物質排出量データである。Web 上¹³⁾にてデータおよび概要が入手できる。

REAS¹⁴⁾は国立環境研究所、海洋研究開発機構、九州大学、総合地球環境学研究所などの共同研究で作られた大気汚染物質排出量データである。

両者の詳細についてはそれぞれの参考文献等をご覧ください。

5.5.4. 予測計算のスケジューリング

毎日自動的に行われる予測計算の手順およびスケジュールを説明する。実時刻とシミュレーション内での時刻を区別し易くするため、本段落内のみシミュレーション内の時刻を斜体で表記する。まず、気象庁の GPV データを入手する。毎日 *OUTC* (日本時間 9 時) を初期時刻とする GPV データは 15 時頃(以下日本時間)に気象庁より配信され、これを 19 時頃に取得する。取得した GPV データを入力データとして、20 時頃から地域気象モデル RAMS により気象場を計算する。計算

開始時刻は翌日の午前3時であり、それより48時間後の3日後の3時までの計算が終了するのが、翌日の3時頃である。計算された風、気温、水蒸気量、降水量等の気象データは、一旦ハードディスクに保存される。引き続いて、保存された気象データと大気汚染物質排出量データ(5.5.3.4節)を入力として、大気質モデルCMAQにより、各種物質の発生・反応・輸送・乾性湿性沈着等の各過程を考慮して方程式を解くことにより、オゾン、NO_x、SO_xをはじめとする多種の気体やサルフェート、ナイトレートをはじめとする各種のエアロゾルの大気中濃度や沈着量が計算され出力される。RAMSの風と温度、CMAQの主要物質の濃度は、図化したあと可視化システムへと渡され公開される。以上は現時点での設定であり、将来的には変更がありえる。

5.5.5. 予測計算の原理

大気汚染の予測は、各物質濃度の支配方程式をプログラム化して計算機中で解き、濃度を計算することにより行われる。個々の地点における物質濃度の支配方程式は実際には少々複雑な微分方程式であるが、詳細な式の紹介は本稿の趣旨外でもあるので、次のように言葉の式で書くことにする。

(物質濃度の単位時間当たりの変化)

$$=(\text{発生})+(\text{移流})+(\text{反応})+(\text{乾性沈着})+(\text{湿潤過程})+(\text{拡散})+(\text{その他})$$

右辺は、各時刻・各地点の状態によりそれぞれ決まる量である。まず、「発生」は、各関連物質の発生量である。大気汚染シミュレーションで排出量データを入力データとして与えるのは既に述べた。「移流」は、物質が大気の動きにより輸送される効果で、計算するためには三次元の風速データが必要である。「反応」は物質の生成消滅に関わる全ての反応であり、気相反応、液相反応、エアロゾル反応およびこれらの間の異相反応がある。物質濃度・気温・太陽放射量等の関係式として与えられる。「乾性沈着」は、物質が地表面や植物表面等へ付着することにより除去されるものであり、沈着の量は物質の種類と濃度および地表面の状態によって決められる。「湿潤過程」は雲や雨の存在に伴う過程で、雲内で成長中の雨水への取り込まれによる除去(rainout)と落下中の雨水への取り込まれによる除去(washout)の二つから成る。降水量や大気中の雨水・雲水量から計算できる。「拡散」は主に鉛直拡散を指し、大気境界層内で卓越する渦乱流による鉛直拡散と、積雲活動に伴う局所的な鉛直上昇の効果の二つが主であり、大気安定度や積雲の量から決定される。以上の物理・化学過程を定量的に表すのに必要な気象データが表5.5.1である。

「その他」は、例えば濃度観測データの取り込みによるデータ同化が考えられるが、現時点の予測システムでは大気汚染濃度にデータ同化を採用していない。もし、ナッジングによるデータ同化の場合には、この項は、

$$(\text{その他}) = (\text{観測物質濃度} - \text{計算物質濃度}) / \text{定数}$$

と書け、観測値より計算値の方が高ければ(低ければ)マイナス(プラス)の値を持ち、計算値を観測値に近付ける効果を持つ。定数は、観測値に近づくのに必要な時間スケールに相当し、大気汚染計算関係の気象モデルでは1日程度を用いることが多い。

さて、本節冒頭の式に戻り左辺を読みかえると、

$$(\text{単位時間当たりの物質濃度変化}) = (\text{単位時間後の物質濃度} - \text{現在の物質濃度}) / (\text{単位時間})$$

であるので、各種データにより右辺の値が決まれば、

$$(\text{単位時間後の物質濃度}) = (\text{現在の物質濃度}) + (\text{右辺}) \times (\text{単位時間})$$

という式により、一定時間後の物質濃度を求めることができる。これを繰り返せば有限時間後の物質濃度を求めることができるのが数値予報の原理である。実際には、上記の式に相当する微分方程式を、差分方程式に変換し、図5.5.1で示す計算領域それぞれで、等しい大きさの直方体に区切られた計算区域毎に定義された物質濃度を解いている。

5.5.6. 予測事例の紹介および使用上の留意点

予測事例として2009年5月8-9日の広域高濃度の際の大気汚染予測システムの結果を紹介する。この事例は2009年5月29日に行われた環境省の記者発表でも使用された。この事例では、5月8日に、鹿児島県で初めて光化学オキシダント注意報が発令されるなど、九州地方において広域的な光化学オキシダント濃度の上昇が見られ、5県で光化学オキシダント注意報が発令された。また、翌9日にも、山口県と九州4県で注意報が発令された。5月7日～9日の予測システムによる濃度予測結果を図5.5.3に、環境省「そらまめ君」による実測濃度分布及び光化学オキシダント注意報発令状況を図5.5.4に示す。九州地区を中心とした高濃度が精度よく予測できている。

実際には、この事例のように精度良く予測できる事例ばかりではない。高濃度気塊の輸送を予測する際に、その中心濃度や経路にはある程度の計算誤差が生じる。よって、現時点では例えば「本日〇時に〇市付近に高濃度気塊が到達し、最高濃度は〇ppbである」という情報に高い精度は期待できないと思われる。一方、例えば「本日中に大陸方面から高濃度気塊が九州付近に到達する」という情報はかなりの確度で信用できる。予測システムの使用に際しては、このような予測計算の信頼度が高い部分をうまく切り取って活用し、観測データと併せて参考にすることが望ましいと思われる。

5.5.7. 大気汚染予測システムとCFORSの比較

大気汚染予測システムは環境GISのホームページ¹⁵⁾下で公開されているが、同ページでは「東アジアの広域大気汚染マップ」¹⁶⁾も公開されている。同マップでは、黄砂、硫酸塩エアロゾル、人為起源微小粒子、オゾンの4物質の東アジア域での濃度分布が示されている。このうち、微小粒子とオゾンには大気汚染予測システムの結果が使用されている。また、黄砂と硫酸塩エアロゾルには化学天気予報システム(CFORS)の結果が使用されている。ここでは、このCFORSを紹介し大気汚染予測システムと簡単に比較する。

CFORSは九州大学で開発された、日本における先駆的な大気汚染の予測システムで、数多くの研究・論文に使用され、国際的にも良く知られている。九州大学においては、2001年から定常運用が続けられている¹⁷⁾。国立環境研究所のCFORSは、九州大学のCFORSを移植したものであり、2002年以降定常運用している。

CFORSも、気象モデルRAMSをベースにしている点で大気汚染予測システムと類似のシステムである。両システムが一番大きな違いは、大気汚染予測システムが大気中で詳細な化学反応を行う物質を主にターゲットにしているのに対し、CFORSが大気中の反応がない、もしくは非常に単純な物質をターゲットにしている点にある。複雑な光化学反応によって生成されるオゾンや微小粒子は、大気汚染予測システムでは時間をかけて反応計算しているが、CFORSの計算結果にはオゾンや微小粒子は無い。一方、CFORSは、反応を無視できる黄砂や、簡単な反応計算ですむ硫酸塩エアロゾルを計算し、特に黄砂については粒径分布を考慮していることもあり精緻に計算している。

5.5.8. 今後の課題

大気汚染予測システムの改良点には、予測計算精度の向上と、結果の見易さ・扱い易さの向上の両者がある。ここでは計算精度の向上についてのみ記述する。

計算精度の向上には以下の内容が考えられる。

- (1) 計算設定の工夫
- (2) 入力データの向上
- (3) 数値モデルの改良もしくは他モデルへの乗換
- (4) 計算機環境の向上

(1) は、予測システムそのものを変えるのではなく、使い方を工夫することにより計算精度を向上しようとするものである。例えば、計算解像度を上げる、計算領域を広くする、プログラム中の各種係数を調整するなどが考えられる。計算解像度や計算領域の問題は、計算機性能と運用スケジュールの要請で決まる部分が大きく、単純に変更できるものではないが、例えば、現行ではそれぞれ独立して計算を行っている関東・関西・中部・九州の4地域のシステムを統合することにより、改良の余地があるか検討中である。

(2) は、予測システムへの入力データを向上させることにより、計算精度を向上しようとするものである。既に説明したように主な入力データは気象予報データと大気汚染物質排出量データである。気象データについては、現在水平解像度約 50km の GPV(GSM 全球域)データ (5.5.3.1.節参照) を用いているが、これを日本周辺域の計算については水平解像度の高い GSM 日本域データもしくは MSM データに切り替えることが考えられる。排出量データについては、改良は研究ベースで順次進められており、それらの成果を待つて使用することが期待される。

(3) は、予測システムの根幹である気象モデルと大気質モデル自体を改良する方向である。現在使っている RAMS は、世界最先端の地域気象モデルであるが、現在新たな改良・開発は行われていない。これを例えば、現在も精力的に開発が続けられている気象モデル WRF に切り換えることが考えられる。一方の大気質モデルについても、CMAQ だけでなく他の大気質モデルの採用も考えられる。また、気象と大気質の計算を同時に行う WRF-Chem のようなモデルの採用も視野に入れることが考えられる。

(4) は、計算機環境の向上である。現在は、国立環境研究所の大型計算機スカラーシステムを使用しているが、平成 22 年度末には更新もしくは廃止となる。もし、更新により計算機環境が大幅に向上すれば、計算解像度の向上等の設定見直しが容易に行えることが期待される。

参考文献

- 1) 大気汚染予測システム : <http://www-gis5.nies.go.jp/osenyosoku/>
- 2) 数値予報 GPV : <http://www.jmbasc.or.jp/hp/online/f-online0.html>
- 3) 地域気象モデル RAMS : <http://bridge.atmet.org/users/software.php>
- 4) 大気質モデル CMAQ : <http://www.cmascenter.org/>
- 5) MM5 : <http://www.mmm.ucar.edu/mm5/>
- 6) Sugata S., Byun D., Uno I : Simulation of sulfate aerosol in East Asia using Models-3/CMAQ with RAMS meteorological data, Air Pollution Modeling and Its Application XIV, Gryning and Schiermeier eds., 267-275 (2001)
- 7) 鶴野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治ら : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築, 大気環境学会誌, 40, 148-164 (2005)
- 8) Yamaji, K., T. Ohara et al. : Future Prediction of Surface Ozone over East Asia using Models-3 Community Multiscale Air Quality Modeling System (CMAQ) and Regional Emission Inventory in ASia (REAS), J. Geophys. Res., 113, D08306, 10.1029/2007JD008663 (2008)
- 9) 黒川純一, 大原利眞, 早崎将光, 鶴野伊津志 : ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析, 大気環境学会誌, 43, 209-224 (2008)
- 10) Zhang Meigen, I. Uno, S. Sugata et al. : Numerical study of boundary layer ozone transport and photochemical production in east Asia in the wintertime, Geophys. Res. Lett., 29(11),1545, 10.1029/2001GL014368. (2002)
- 11) Ohara T. et al. : Long-term simulations of surface ozone in East Asia During 1980-2020 with CMAQ and REAS inventory. In: Borrego C.,Miranda A.I. eds., Air Pollution Modeling and Its Application 19, Springer, 136-144. (2008)
- 12) 板橋秀一ら : 2007 年春季に発生した東アジア域スケールの広域的越境汚染の化学輸送モデル

CMAQ による解析, 大気環境学会誌, 44, 175-185 (2009)

13) EAGRID : http://www-cger.nies.go.jp/cger-j/db/enterprise/eagrid/eagrid_index_j.html

14) Ohara T. et al. : An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020, Atmospheric Chemistry and Physics, 7, 4419-4444 (2007)

15) 環境 GIS : <http://www-gis.nies.go.jp/>

16) 東アジアの広域大気汚染マップ : http://www-gis5.nies.go.jp/eastasia/air_asia_top.html

17) CFORS : <http://cfors.riam.kyushu-u.ac.jp/~cfors/index.html>

環境GISとは | 掲載データ | 更新情報 | ご利用環境 | サイトマップ

環境GISトップ | 大気環境 | 水環境 | 化学物質 | 地球温暖化 | 測定地点マップ | 環境数値データベース

東アジアの広域大気汚染マップ | 大気汚染予測システム | 大気汚染予測の常時監視結果 | 有害大気汚染物質マップ | 規制・指定の状況 | 生活環境情報サイト | 全国自動車交通騒音マップ

環境GIS > 大気環境 > 大気汚染予測システム

大気汚染予測システム トップ

トップ | 東アジア | 日本 | 関東 | 中部 | 関西 | 九州

光化学オキシダント関連情報提供ホームページ | 予測図の作成状況 | 説明

大気汚染予測システム

国立環境研究所では大気汚染予測モデルの開発を進めています。そのモデルを用いて、光化学オキシダント及び二酸化窒素の大気汚染濃度の予測を行い、東アジア(100kmメッシュ)、日本(25kmメッシュ)、関東、中部、関西、九州地域(5kmメッシュ)の各地域の予測図を提供しています。予測図は、毎日1回、午前9時に、当日と翌日分が掲載されます。

地域名をクリックして下さい

東アジア

関東
中部
関西
九州

日本

[注意] このホームページは、光化学オキシダント関連情報提供ホームページ(気象庁・環境省)に基づき、研究成果の発信およびシミュレーションの精度向上のために問題点の指摘や研究上のフィードバックを得る目的で試験的に情報提供しております。業務として行っているものではありませんので、このホームページの情報を参考にした事象に関して一切の責任を負いません。

著作権・利用上の注意 お問い合わせ先 関連リンク

Copyright(C) National Institute for Environmental Studies. All Rights Reserved.

図 5.5.1. 大気汚染予測システムのトップページ¹⁾。

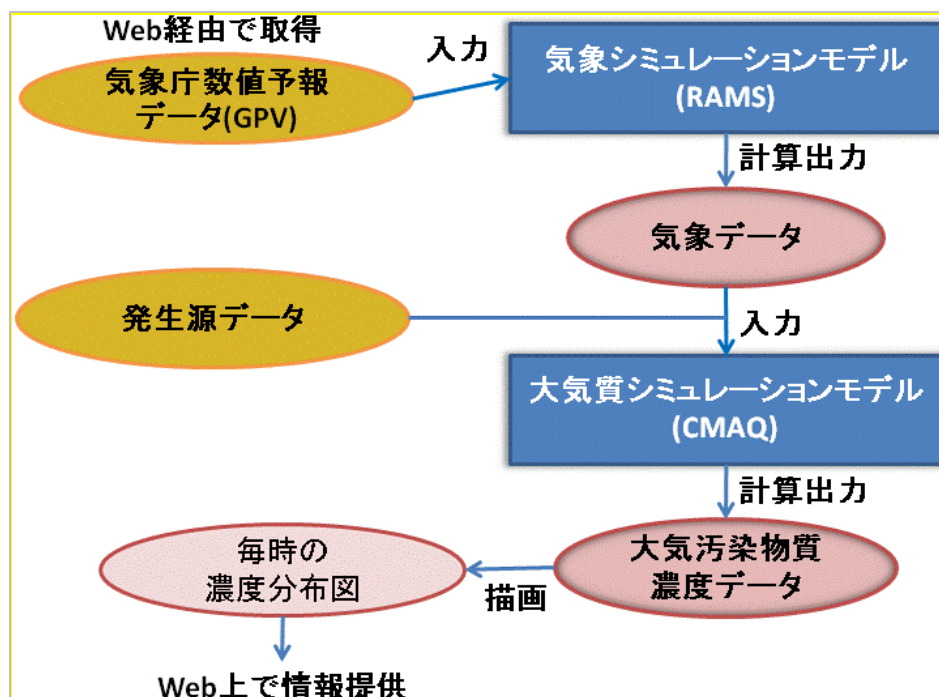


図 5.5.2. 大気汚染予測システムの構造およびデータの流れ。

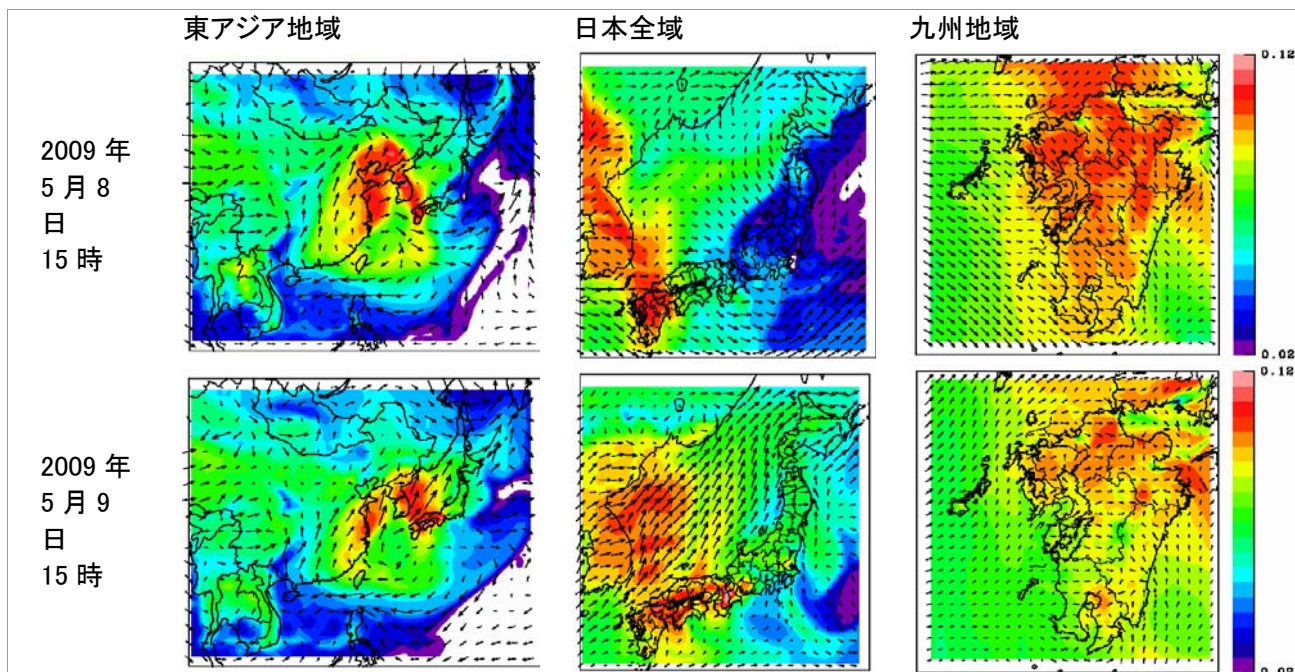


図 5.5.3. 大気汚染予測システムによる光化学オキシダント濃度の予測結果(単位は ppm)(環境省平成 21 年 5 月 29 日報道発表資料より)

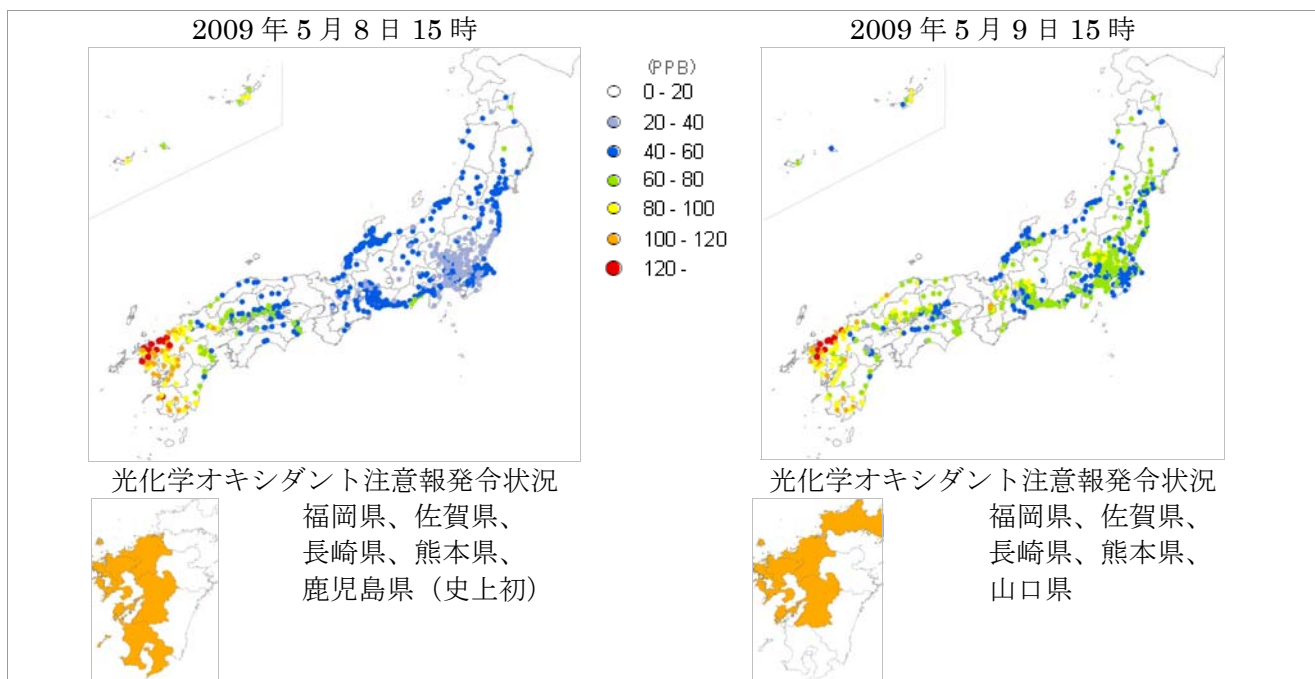


図 5.5.4. 図 5.5.3.に対応する日時における実測の光化学オキシダント濃度分布(単位は ppb)と光化学オキシダント注意報発令状況(環境省平成 21 年 5 月 29 日報道発表資料より)

表 5.5.1. 大気汚染の数値計算に使用される気象データ(大気質モデル CMAQ の場合)

風速	温度/気圧	水関係
西風速	表面温度 (地表面、海面)	水蒸気量
南北風速	気温	降水量 (積雲・大規模凝結別)
鉛直風速	表面気圧	雨水量
	各高度気圧	雲水量

6. まとめと課題

平成 19～21（2007～2009）年度に実施した本共同研究では、大気環境時間値データの整備、基本解析、高濃度エピソード解析、応用解析、大気汚染予測の試験公開と改良などにおいて、以下のような成果が得られた。

6.1. 時間値データの整備

参加機関等から提供された大気環境時間値データ及び測定局情報データを収集し、平成 20 年度までの全国のデータベースを作成した。

6.2. 基本解析

(1)のデータベースの 2007 年度までの時間値データを使用して、光化学オキシダント（Ox）と浮遊粒子状物質（SPM）の地域特性と全国特性を把握した。

- ・ 1985 年度以降の Ox 濃度年平均値の増加率はほとんどの自治体で正の値を示し、全国的に増加傾向にある。
- ・ 全国平均で 2000 年度以降の増加率が 1995 年度以降の増加率のほぼ倍となり、2000 年度以降から現在にかけて、Ox 濃度が急上昇している。2000 年度以降の Ox 濃度増加率の上昇は、九州地域や東海・近畿地域の西日本で高く、概ね大陸から離れるに従って増加率が小さくなっていることから、大陸からの越境汚染の影響が増大していることが示唆された。
- ・ Ox 高濃度出現頻度の経年変化は、Ox 濃度年平均値の経年変化とほぼ同様に増加傾向にあり、西日本を中心にして、特に 2000 年度以降、高濃度出現頻度が増加している。
- ・ 1990 年度以降の SPM 濃度年平均値の増加率はほとんどの自治体で負の値を示し、全国的に減少傾向にある。地域別には、関東・甲信静地域の減少率が最大で、九州地域の減少率が最小である。関東・甲信静地域の減少率が最大である原因は、ディーゼル車規制の効果と考えられ、一方、九州地域の減少率が最小となった原因としては、越境汚染（特にサルフェイト等の二次生成粒子）による影響の増大が考えられる。
- ・ SPM 高濃度出現頻度の経年変化は、SPM 濃度年平均値の経年変化とほぼ同様に減少傾向にあり、関東・甲信静地域の減少率が最大となり、九州地域の減少率が最小となった。

6.3. 高濃度エピソード解析

2007 年春～夏に発生した Ox と SPM の 4 期間（4 月 26～30 日、6 月 26～30 日、7 月 24～29 日、8 月上旬）の高濃度エピソードを対象に、大気汚染時間値データ、気象データ、トラジェクトリモデルや化学輸送モデルなどを使用して、その特徴や発生原因について把握した。特に、国内の地域間輸送や海外からの越境輸送などの広域輸送の影響に着目して解析した。

6.3.1. 2007 年 4 月 26～30 日

- ・ 西日本を中心に高濃度の Ox が観測され、北九州市、長崎県、熊本県で光化学オキシダント注意報が発令された。北九州市は 11 年ぶり、長崎県と熊本県は 2006 年に続き 2 年連続の発令であった。
- ・ 4 月 26 日～27 日にかけては、移動性高気圧が東シナ海から日本列島を通過し、高気圧の縁辺流によって大陸から気塊が流入した地域で Ox 濃度が上昇する典型的なパターンであった。早朝にも 100ppb を超える Ox 濃度が広域で観測されたこと、離島や郊外でも 120ppb を超過した

6.まとめと課題

こと、後方流跡線やシミュレーション結果からも大陸からの気塊が西日本に到達していると認められることなどから、大陸からの越境汚染の影響が大きかったと考えられる。

- ・ 福岡県における粒子中の硫酸イオン濃度が26～27日は $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超え、さらに、 SO_2 も10ppbを超えたことから、 SO_2 と硫酸(塩)粒子も、オゾンと同時に移流したのと考えられる。

6.3.2. 2007年6月26～30日

- ・ 近畿・東海・関東を中心に Ox が高濃度となり、26～30日にかけて18都府県で光化学オキシダント注意報が発令された。SPMも九州から関東の広範囲にわたり高濃度となった。この期間、大陸から九州南部にかけて梅雨前線が停滞し、西系の風が卓越していた。
- ・ 高濃度観測時(25～27日)の後方流跡線は、中国東岸や朝鮮半島を通過して西日本に到達していた。シミュレーション結果も Ox の高濃度気塊が中国東岸から移流する様子を示した。また、離島の五島では、25日夜間から Ox 濃度が上昇し26日早朝には100ppbを超える高濃度が観測され、これと同期して SO_2 と SPM も濃度上昇が見られた。更に、福岡県の粒子中の硫酸イオン濃度も高く、特に、25～27日にかけて $20\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える高濃度が観測された。
- ・ 以上から、この期間の高濃度発生には、大陸からの越境汚染の影響が大きかったと考えられる。ただし、東海・近畿地域で発生した SPM 高濃度については都市汚染の影響も考えられる。

6.3.3. 2007年7月24～29日

- ・ 関東、東海、近畿から九州に至る瀬戸内海沿岸、九州北部において、100ppbを超える高濃度 Ox が発生した。24日は、関東、西日本に高濃度がみられ、25日には関東、東海、近畿、中国、四国で、27～28日には、関東、東海、近畿で高濃度がみられた。また、SPMも、期間後半の28～29日に北陸から九州北部の広範囲で高濃度が観測された。
- ・ 期間を通して東シナ海上の高気圧に覆われて気圧傾度が小さく、日最高気温が連日 30°C を超え、日射量も多く、海陸風が多く見られた。後方流跡線は、24～25日にはばらついてはいたが、26日以降は中国東岸から朝鮮半島を経由して到達した。
- ・ ライダー観測やシミュレーションモデルによると、期間後半の28～29日には、高濃度の硫酸塩を含む気塊が中国北東部から西日本に移流したことを示す。また、西日本の日本海上の離島では、26日までは高濃度 Ox は観測されなかったが、27日以降は80ppbを超える高濃度 Ox が観測され、SPM や SO_2 の濃度上昇も認められた。
- ・ 以上の結果から、期間中の高濃度 Ox は地域汚染による影響が大きく、一方、期間後半の高濃度 SPM には越境汚染による影響が大きかったと考えられ、物質によって高濃度発生原因が異なることが示唆された。

6.3.4. 2007年8月上旬

- ・ 8月上旬の東北・関東・中部地域で観測された高濃度 Ox 汚染を解析した結果、関東地方から長野県、福島県及び新潟県への高濃度 Ox の輸送が確認された。
 - ・ 8月9～12日、長野県東部及び北部地域では、関東地方からの汚染気塊の流入によって、夕方から夜間にかけて Ox 濃度の上昇が認められた。長野県東部地域では、以前から、関東地方からの汚染気塊の流入により、春から夏にかけて日没後に Ox 濃度が上昇する現象が報告されているが、近年では、120ppbを超過するような事例も発生し、その影響が増大している。
 - ・ 8月1日に発生した福島県内の高濃度 Ox 現象は、関東北部で生成した Ox が南南西～南西の風により、栃木南部→栃木北部→福島のルートで輸送されたのと考えられる。
 - ・ 新潟県と群馬県境付近に位置する八海山(標高1150m地点)において、8月10日と11日の夜
-

間に、風向が北から南へ切り替わった後、Ox 濃度が上昇する現象がみられた。関東地方と新潟県・長野県における地上風・上層風の観測データ、常時監視測定局の Ox 測定濃度、モデルによる風と Ox 濃度などを総合的に解析した結果、海風によって関東地方内陸部へ輸送された高濃度オゾンが、局地風と上層の南風によって関東北部山岳域を越えて新潟県へ移流したと考えられる。

- ・ これまで、関東から長野県や山梨県への高濃度 Ox の輸送については、多数の研究結果が報告されているが、これに加えて、福島県及び新潟県への輸送が本研究によって確認された。

6.4. 応用解析

応用解析として、「ポテンシャルオゾン PO を用いたオゾンの地域特性と経年変動の解析」、「衛星データの活用」、「Ox 測定法の検討」の3つのテーマについて研究を進めた。

6.4.1. ポテンシャルオゾン PO を用いたオゾンの地域特性と経年変動の解析

- ・ 都市大気汚染の影響が大きい常時監視測定局における Ox 濃度データを使用して、オゾンの地域特性や経年変化を解析する場合に、NO によるタイトレーションの影響が除かれる PO を使用することの有効性が示された。
- ・ PO のトレンドは、Ox の場合と同様、全国的に上昇傾向を示すことから、NO の経年的減少の影響を除いても、オゾンが経年的に上昇していることが確認された。
- ・ 春季における PO の経年上昇は西日本で多く、東日本で少ない傾向を示し、オゾンの大陸からの移流の可能性が示唆された。
- ・ 全国の沿岸地域の常時監視測定局における PO 濃度の月別中央値は、春季に最大値、夏季に最小値、秋季に極大値をもつ季節変動を示す。この季節変動パターンは、日本周辺のリモート地点におけるオゾンの変動パターンと一致し、Ox 濃度を使用する場合よりも明瞭な変化が得られる。
- ・ 東京都心などの光化学生成能が大きいと考えられる地域における PO の 98%値は夏季に最大となり、地域内での光化学生成が大きいと考えられる。更に、これらの地域における夏季の 98%値は、経年的に増加していることから、地域内のオゾン生成量が増加していることが示唆された。

6.4.2. 衛星データの活用

- ・ 常時監視測定局で観測された NO₂ 地上濃度と衛星センサー OMI によるカラム NO₂ 濃度の時間変動（週内変動及び季節変動）を比較したところ、両者の変動パターンは一致した。このことから、都市大気汚染の広がりや測定局の空白地域における濃度を把握する場合に、衛星データが有効であると考えられる。

6.4.3. Ox 測定法の検討

- ・ 全国の常時監視測定局における Ox 測定法の推移を調査し、測定法の違いによる経年変化の違い、継続性のある測定局における経年変化の特徴、測定法の変更に伴う影響などについて検討した。
- ・ 1999～2007 年度において紫外線吸収法を継続した測定局 116 局と吸光光度法を継続した 208 局を対象に、それぞれの経年変化の違いを地域別・月別・濃度ランク別に比較した結果、測定法による変化傾向の違いは比較的小さいことが確認された。
- ・ 継続性のある測定局で経年変化を調べた結果、経年的な濃度増加が確認され、特に、西日本で

その傾向が大きいことが明らかとなった。

- ・ 測定法による影響は、一部の測定局では示唆されたが、その変化は微少であることがわかった。

6.5. 大気汚染予測の試験公開と改良

東アジア、日本、関東を対象とした大気汚染予測システムの試験公開を、国立環境研究所の環境GISホームページにおいて2008年5月から開始した。また、関西における詳細予測の準備を進めるとともに、中部と九州の詳細予測化についても環境省と協力して進め、2009年6月から、これらの地域の詳細予測の試験公開を開始した。更に、環境省と協力して、東北と中四国の詳細予測化に着手した。

以上のように、平成19～21（2007～2009）年度の3年間で、光化学オキシダントと浮遊粒子状物質の経年変化や地域特性に関する多くの知見が得られるとともに、データベースと解析ツールが整備された。また、これらの研究成果をまとめて、研究論文14編、大気環境学会年会などでの口頭発表48件を発表した。今後の主要な課題としては、以下の点があげられる。

- ① 大気環境時間値データを活用した研究を更に進めるとともに、独自の測定とそのデータ解析、EANET（東アジア酸性雨モニタリングネットワーク）測定データや衛星データの解析、モデル解析を組み合わせた統合的アプローチによって、新たな研究展開を図ること。
- ② 平成21年9月に環境基準が告示された微小粒子状物質PM_{2.5}に関する実態と発生機構の解明、発生源寄与率の評価などの研究を進めること。
- ③ 第1～3期のC型共同研究で整備・蓄積された協働型研究スタイル、研究ネットワーク、大気環境時間値データベース、解析ツールなどを活かし、また、これらを発展させて、我が国の大気環境の改善に資する研究を今後も推進すること。

以上に示した研究成果と今後の課題を踏まえて、平成22年度から、第4期のC型共同研究「PM_{2.5}と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究」（研究代表者：大阪市立環境科学研究所・板野泰之）を開始すべく、第3期の研究メンバーを中心として準備を進めているところである。この第4期研究では、微小粒子状物質PM_{2.5}と光化学オキシダントを対象として、その実態や地域特性を把握し、発生機構を解明するとともに、発生源寄与率を定量的に評価する研究を進める予定である。

資料 1. 共同研究プロジェクトの構成

1-1. 共同研究参加機関名簿

(平成 22年 1月現在)

参加機関名	担当者氏名	平成 19 年度	平成 20 年度	平成 21 年度
国立環境研究所	大原 利真	○	○	○
	菅田 誠治	○	○	○
	早崎 将光 <small>注)</small>	○	○	○
北海道環境科学研究センター	秋山 雅行	○	○	○
宮城県保健環境センター	高橋 誠幸	—	○	○
宮城県保健環境センター	仁平 明	○	○	○
秋田県健康環境センター	信太 穰	—	○	○
秋田県健康環境センター	池田 努	○	—	—
山形県環境科学研究センター	村岡 悟	○	○	○
福島県環境センター	五十嵐 俊則	—	○	○
福島県環境センター	吉田 明子	○	—	—
新潟県保健環境科学研究所	武 直子	○	○	○
新潟県保健環境科学研究所	遠藤 朋美	—	—	○
富山県環境科学センター	万尾 和恵	—	○	○
富山県環境科学センター	溝口 俊明	○	—	—
石川県保健環境センター	山田 肇	—	○	○
石川県保健環境センター	山原 敏	○	—	—
福井県衛生環境研究センター	山田 克則	○	○	○
茨城県霞ヶ浦環境科学センター	森田 陽一	—	○	○
埼玉県環境科学国際センター	武藤 洋介	○	○	○
千葉県環境研究センター	井上 智博	○	○	○
千葉県環境研究センター	押尾 敏夫	○	—	—

資料 1

財団法人東京都環境整備公社 東京都環境科学研究所	石井 康一郎	○	○	○
財団法人東京都環境整備公社 東京都環境科学研究所	石井 真理奈	—	○	○
財団法人東京都環境整備公社 東京都環境科学研究所	佐々木 啓行	○	—	—
神奈川県環境科学センター	斎藤 邦彦	○	—	—
山梨県衛生公害研究所	清水 源治	○	○	○
山梨県衛生公害研究所	佐々木 裕也	—	—	○
長野県環境保全研究所	中込 和徳	—	○	○
長野県環境保全研究所	町田 哲	—	○	○
長野県環境保全研究所	兒玉 家起	○	—	—
静岡県環境衛生科学研究所	篠原 英二郎	○	○	○
横浜市環境科学研究所	白砂 裕一郎	—	○	○
川崎市公害研究所	竹内 淨	○	○	○
岐阜県保健環境研究所	林 弘一郎	—	○	○
愛知県環境調査センター	冨田 孝子	○	—	—
愛知県環境調査センター	川上 七恵	—	○	○
愛知県環境調査センター	井上 広史	—	○	○
愛知県環境調査センター	伊藤 勝巳	○	—	—
滋賀県琵琶湖環境科学研究所センター	服部 達明	○	○	○
京都府保健環境研究所	高倉 尚枝	—	—	○
京都府保健環境研究所	谷口 延子	—	○	○
京都府保健環境研究所	平澤 幸代	○	—	○
京都府保健環境研究所	河村 秀一	○	○	—
京都府保健環境研究所	田村 義男	○	—	—
大阪府環境農林水産総合研究所	山本 勝彦	○	○	○
大阪府環境農林水産総合研究所	和田 峻輔	○	○	—
大阪府環境農林水産総合研究所	金本 隆志	—	—	○

兵庫県環境研究センター	坂本 美徳	—	○	○
兵庫県環境研究センター	池澤 正	○	—	—
和歌山県環境衛生研究センター	大谷 一夫	—	○	—
和歌山県環境衛生研究センター	野中 卓	—	—	○
名古屋市環境科学研究所	大野 隆史	○	○	○
名古屋市環境科学研究所	山神 真紀子	○	○	○
京都市衛生公害研究所	吉井 克英	○	○	○
大阪市立環境科学研究所	板野 泰之	○	○	○
神戸市環境保健研究所	鈴木 行夫	○	○	○
神戸市環境保健研究所	山路 章	—	○	○
鳥取県衛生環境研究所	福田 拓	—	○	○
鳥取県衛生環境研究所	盛山 哲郎	○	—	—
島根県保健環境科学研究所	田中 孝典	○	○	○
島根県保健環境科学研究所	佐川 竜也	○	○	○
島根県保健環境科学研究所	藤原 誠	○	○	○
岡山県環境保健センター	片岡 敏夫	○	○	○
岡山県環境保健センター	小川 登	○	○	○
広島県立総合技術研究所 保健環境センター	日浦 盛夫	—	○	○
広島県立総合技術研究所 保健環境センター	大原 真由美	○	○	○
広島県立総合技術研究所 保健環境センター	砂田 和博	○	○	○
山口県環境保健センター	長田 健太郎	○	○	○
徳島県保健環境センター	尾崎 宏実	—	○	○
徳島県保健環境センター	永峰 正章	—	—	○
徳島県保健環境センター	浅野 昭彦	○	—	—
香川県環境保健研究センター	藤井 裕士	—	—	○
香川県環境保健研究センター	壺井 明彦	○	○	—

資料 1

愛媛県立衛生環境研究所	山内 昌博	—	—	○
愛媛県立衛生環境研究所	白石 猛	—	—	○
愛媛県立衛生環境研究所	余田 幸作	—	○	—
愛媛県立衛生環境研究所	宇野 克之	○	○	—
愛媛県立衛生環境研究所	二宮 久	○	—	—
高知県環境研究センター	西 孝仁	○	○	○
福岡県保健環境研究所	岩本 真二	—	○	○
福岡県保健環境研究所	大久保 彰人	—	○	○
福岡県保健環境研究所	山本 重一	—	○	○
福岡県保健環境研究所	大石 興弘	○	—	—
佐賀県環境センター	高橋 秋彦	○	○	○
長崎県環境保健研究センター	古賀 康裕	—	—	○
長崎県環境保健研究センター	横瀬 健	—	—	○
長崎県環境保健研究センター	高藤 愛郁	○	○	—
長崎県環境保健研究センター	平良 文亨	—	○	—
長崎県環境保健研究センター	藤 哲士	○	—	—
熊本県保健環境科学研究所	工藤 聖	—	—	○
熊本県保健環境科学研究所	松本 依子	○	○	○
熊本県保健環境科学研究所	上野 一憲	○	○	—
大分県衛生環境研究センター	伊東 達也	—	○	○
宮崎県衛生環境研究所	祝園 秀樹	○	○	○
宮崎県衛生環境研究所	溝口 進一	—	—	○
鹿児島県環境保健センター	遠矢 倫子	—	○	○
鹿児島県環境保健センター	山田 正人	○	—	—
沖縄県衛生環境研究所	友寄 喜貴	—	—	○
沖縄県衛生環境研究所	与儀 和夫	—	○	○
沖縄県衛生環境研究所	普天間 朝好	—	○	—

福岡市保健環境研究所	山崎 誠	○	○	○
福岡市保健環境研究所	肥後 隼人	—	—	○
福岡市保健環境研究所	中島 亜矢子	—	○	—
福岡市環境局	畑野 和広	—	—	○
福岡市環境局	久保 祥三	○	○	—
北九州市環境科学研究所	肥塚 隆男	○	—	—
北九州市環境科学研究所	寺師 朗子	—	○	○
北九州市環境科学研究所	岡山 安幸	—	—	○
熊本市環境総合研究所	東瀬 謙二	○	○	○
熊本市環境総合研究所	福田 照美	○	○	○
国立環境研究所客員研究員	神成 陽容	○	○	○
	山川 和彦	○	○	○
愛媛大学	若松 伸司	○	○	○
中部大学	笠原 三紀夫	○	○	○
九州大学	鶴野 伊津志	○	○	○
奈良女子大学	野口 克行	—	○	○
(財)電力中央研究所	速水 洋	—	—	○

注) 平成 20 年 5 月から千葉大学

1-2. 解析グループメンバーリスト

(1) 地域グループ

◎グループ長 ○副グループ長

グループ名	メンバー氏名
北海道東北北陸グループ	◎秋山 雅行, ○武 直子, 五十嵐 俊則, 遠藤 朋美, 信太 穰, 高橋 誠幸, 仁平 明, 万尾 和恵, 村岡 悟, 山田 肇, 山田 克則
関東甲信静岡グループ	◎井上 智博, ○石井 康一郎, 石井 真理奈, 押尾 敏夫, 兒玉 家起, 斎藤 邦彦, 佐々木 啓行, 佐々木 裕也, 篠原 英二郎, 清水 源治, 白砂 裕一郎, 竹内 淨, 中込 和徳, 町田 哲, 武藤 洋介, 森田 陽一
東海近畿グループ	◎山本 勝彦, ○板野 泰之, 池澤 正, 井上 広史, 大谷 一夫, 大野 隆史, 金本 隆志, 川上 七恵, 河村 秀一, 坂本 美德, 鈴木 行夫, 高倉 尚枝, 谷口 延子, 田村 義男, 野中 卓, 林 弘一郎, 服部 達明, 平澤 幸代, 山神 真紀子, 山川 和彦, 山路 章, 吉井 克英, 和田 峻輔
中国四国グループ	◎佐川 竜也, ○長田 健太郎, 浅野 昭彦, 宇野 克之, 大原 真由美, 小川 登, 尾崎 宏実, 片岡 敏夫, 白石 猛, 砂田 和博, 盛山 哲郎, 田中 孝典, 壺井 明彦, 永峰 正章, 西 孝仁, 二宮 久, 日浦 盛夫, 福田 拓, 藤原 誠, 藤井 裕士, 山内 昌博, 余田 幸作
九州グループ	◎山崎 誠, ○山本 重一, 東瀬 謙二, 伊東 達也, 祝園 秀樹, 岩本 真二, 上野 一憲, 大石 興弘, 大久保 彰人, 岡山 安幸, 工藤 聖, 久保 祥三, 古賀 康裕, 平良 文亨, 高橋 秋彦, 高藤 愛郁, 寺師 朗子, 藤 哲士, 遠矢 倫子, 友寄 喜貴, 中島 亜矢子, 畑野 和広, 肥後 隼人, 福田 照美, 普天間 朝好, 松本 依子, 溝口 進一, 山田 正人, 与儀 和夫, 横瀬 健

(2) 応用解析グループ

◎グループ長 ○副グループ長

グループ名	メンバー氏名
ポテンシャルオゾングループ	◎山神 真紀子, ○板野 泰之, 池澤 正, 河村 秀一, 鈴木 行夫, 武 直子, 壺井 昭彦, 福田 照美, 和田 峻輔
衛星データ活用グループ	◎山本 勝彦, ○長田 健太郎, 佐川 竜也
Ox 測定法検討グループ	◎長田 健太郎, ○佐川 竜也, 秋山 雅行, 大野 隆史, 砂田 和博, 高橋 秋彦, 早崎 将光, 山川 和彦, 山崎 誠, 山田 克則, 山本 重一

資料 2. 研究会議の実施状況

1. 全体研究会

[平成 19 年度]

第 1 回研究会

日時：2007 年 5 月 23 日（水）13:00～5 月 24 日（木）16:00

会場：国立環境研究所東京事務所会議室（東京都千代田区）

議題：

1. 第 2 期研究の成果（研究報告）
2. 2007 年 5 月 8～9 日の広域的な光化学オキシダント汚染について（中間報告）
3. 第 3 期研究の進め方（討議）

第 2 回研究会

日時：2008 年 2 月 28 日（木）13:00～2 月 29 日（金）15:00

会場：フォーラムミカサ（東京都中央区）

議題：

1. 研究紹介

- ・ VOC の光化学反応性の増大トレンド（講演）
- ・ 人工衛星で観測された対流圏 NO₂ カラム量と大気常時監視局データの比較 2 期研究の最終報告（講演）

2. 基本解析結果について

- ・ 本年度の基本解析方針について（全体討議）
- ・ 地域特性の検討（地域グループ報告）

3. 本年度の高濃度汚染の地域特性について

- ・ SPM 高濃度汚染について（緊急アンケート調査結果報告）
- ・ 本年度（2007 年度）の高濃度汚染について（研究報告）
- ・ 2007 年 5 月 8～9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染：観測データ解析
- ・ 2007 年 5 月 8～9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染：モデル解析
- ・ 各地域の状況（地域グループ報告）

4. 今後の研究の進め方（討議）

[平成 20 年度]

第 1 回研究会

日時：2008 年 10 月 6 日（月）14:00～10 月 7 日（火）17:00

会場：TKP 浜松町ビジネスセンター（東京都港区）

議題：

1. 2007 年の SPM・Ox 高濃度発生事例解析結果について（中間報告）

- ・ 2007 年 4 月 26 日～4 月 29 日の Ox の事例解析
- ・ 2007 年 6 月 25 日～6 月 30 日の Ox・SPM の事例解析
- ・ 2007 年 7 月 24 日～7 月 29 日の Ox の事例解析
- ・ 2007 年 8 月上旬の Ox・SPM の事例解析

2. Ox 及び微小粒子状物質に関する環境省の取組について（講演）

3. 大気環境学会（2008 年 9 月）の発表報告

- ・ SPM・OX の広域高濃度現象の時空間変動

-
- ・ 2007年6月下旬のOx・SPM高濃度汚染についての一考察
 - ・ 九州地方における2007年の高濃度現象について
 - ・ 最近の中国・四国地方におけるOx・SPM高濃度事例解析(1)
 - ・ 最近の中国・四国地方におけるOx・SPM高濃度事例解析(2)
 - ・ 中国・四国地方における夜間のOx高濃度事象の解析
 - ・ POを用いた関西地域の高濃度オゾン現象の事例解析
 - ・ POを用いた日本におけるオゾンの季節変化パターン
4. 夜間高濃度発生に対する光化学オキシダント注意報の発令・解除体制の状況調査結果について（調査結果報告）
 5. 応用解析グループの活動について（中間報告）
 6. 研究協議

第2回研究会

日時：2009年3月5日（木）14:00～3月6日（金）17:00

会場：TKP 浜松町ビジネスセンター（東京都港区）

議題：

1. 基本解析に関する地域グループ検討結果（中間報告）
2. PM2.5のモニタリング測定について
環境大気中の粒子状物質の現状と期待される測定技術（講演）
3. Ox測定法に関する検討について（報告）
4. 最近のSPM・Ox高濃度発生状況について（中間報告）
5. 研究協議

[平成21年度]

第1回研究会

日時：2010年3月11日（木）14:00～3月12日（金）16:30

会場：愛知県産業労働センター（名古屋市）

議題：

1. 基本解析に関する地域グループ検討結果（最終報告）
2. 高濃度エピソードに関する地域グループ検討結果（最終報告）
 - ・ 2007年4月26日～4月29日のOxの事例解析
 - ・ 2007年6月25日～6月30日のOx・SPMの事例解析
 - ・ 2007年7月24日～7月29日のOxの事例解析
 - ・ 2007年8月上旬のOx・SPMの事例解析
3. 応用解析に関する検討結果（最終報告）
4. その他の検討結果報告（予測システム、アンケート調査結果等）
5. 研究協議

2. グループ会議

[平成19年度]

2007年8月21～22日	中国四国グループ会議（松山市）
2007年12月14日	東海近畿グループ会議（大阪市）
2008年1月21日	関東甲信静グループ会議（東京都）

2008年2月25日 九州グループ会議（太宰府市）

[平成20年度]

2008年5月22～23日 中国四国グループ会議（松山市）
2008年6月6日 衛星データ活用勉強会（奈良市）
2008年7月28日 東海近畿グループ会議（大阪市）
2008年7月29～30日 北海道東北北陸グループ会議（札幌市）
2008年8月19日 九州グループ会議（福岡市）
2008年8月28日 関東甲信静グループ会議（東京都）
2009年1月26日 東海近畿グループ会議（大阪市）
2009年1月28日 中国四国グループ会議（福岡市）
2009年2月2日 九州グループ会議（福岡市）
2009年2月9日 Ox測定法勉強会（東京都）
2009年2月10日 北海道東北北陸グループ会議（東京都）
2009年2月13日 関東甲信静グループ会議（東京都）

[平成21年度]

2009年8月25～26日 中国四国・九州拡大グループ会議（福岡市）
2009年11月16日 関東甲信静グループ会議（東京都）
2009年11月19～20日 北海道東北北陸・関東拡大グループ会議（東京都）
2009年12月1日 東海近畿グループ会議（大阪市）
2009年12月17～18日 中国四国・九州拡大グループ会議（福岡市）
2009年2月2日 北海道東北北陸グループ会議（東京都）

資料 3. 成果発表一覧

1. 論文発表

発表者	題目	掲載誌	巻(号)	ページ	刊年
井上 智博, 押尾 敏夫	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－2007年度分－(国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究)	千葉県環境研究センター年報	第7巻	58-59	2009
井上 智博	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－2008年度分－(国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究)	千葉県環境研究センター年報	第8巻	発行予定	2010
岩本 真二, 大石 興弘, 田上 四郎, 力 寿雄, 山本 重一	福岡県における光化学オキシダントの高濃度要因の分類	大気環境学会誌	43(3)	173-179	2008
大原 利真, 鶴野 伊津志, 黒川 純一, 早崎 将光, 清水 厚	2007年5月8,9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染－オーバービュー－	大気環境学会誌	43(4)	198-208	2008
小川 登, 片岡 敏夫	中国四国地方における光化学オキシダントの月別平均値等と気象との関係について	岡山県環境保健センター年報	(32)	1-5	2008
笠原 三紀夫, 谷尾 桂子, 西井 裕子, 環境基準研究会世話人会	大気環境基準に関する研究調査	大気環境学会誌	44(4)	A8-A16	2009
神成 陽容, 大原 利真	オゾン週末効果反転現象のメカニズム	大気環境学会誌	44(2)	82-90	2009
竹内 浄, 関 昌之, 井上 康明, 岩瀬 義男	川崎市田島局における光化学オキシダント濃度と一酸化窒素濃度に関する研究	大気環境学会誌	44(1)	52-57	2009
早崎 将光, 菅田 誠治, 大原 利真, 若松 伸司, 宮下 七重	1992 - 2004年度のSPM環境基準達成率に対する黄砂現象の影響	大気環境学会誌	42(3)	188-199	2007
早崎 将光, 大原 利真, 黒川 純一, 鶴野 伊津志, 清水 厚	2007年5月8-9日に発生した広域的な光化学オゾン汚染:観測データ解析	大気環境学会誌	43(4)	225-237	2008
福田 照美, 東瀬 謙二, 津留 靖尚, 中熊 秀光, 田島 幸治	熊本市における2006年度・2007年度の高濃度光化学オキシダント発生メカニズム解析	平成19年度熊本市環境総合研究所報	(15)	52-66	2008
山本 勝彦, 和田 峻輔, 高見 勝重, 服部 幸和	東アジア規模の大気汚染広域移流の大阪府域への影響について	環境技術	37(11)	793-798	2008
吉井 克英	京都市における光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質濃度	平成19年度京都市衛生公害研究所年報	第74号	100-110	2008
吉井 克英	京都市における光化学オキシダント及びポテンシャルオゾン濃度	平成20年度京都市衛生公害研究所年報	第75号	102-115	2009

2. 口頭発表

発表者	題目	学会等名称	開催都市名	年月
青柳 元喜, 森田 陽一	茨城県における光化学オキシダント及びSPMの地域特性(2)	第36回環境保全・公害防止研究発表会	富山市	2009.10
泉 喜子, 宇野 克之, 網本 智一, 二宮 久, 越智 久尚	愛媛県の東予地域における光化学オキシダント濃度について	第34回環境保全・公害防止研究発表会	大分市	2007.11
井上 智博, 押尾 敏夫	光化学オキシダントの高濃度汚染に関する研究(国環研のC型研究)	平成20年度千葉県環境研究センター事業検討会	千葉市	2008.05
井上 智博	光化学オキシダントの高濃度汚染に関する研究 -C型共同研究中間報告&平成20年度高濃度事例-	平成21年度千葉県環境研究センター大気騒音振動研究室事業検討会	千葉市	2009.05
宇野 克之, 網本 智一, 泉 喜子, 二宮 久	愛媛県における光化学オキシダント及び浮遊粒子状物質濃度	第23回公衆衛生技術研究会	松山市	2009.02
大野 隆史, 山神 真紀子	光化学オキシダントと粒子状物質の汚染機構解明に関する研究	平成21年度 名古屋市環境科学研究所調査研究発表会	名古屋市	2010.02
早崎 将光	全国の大気環境基準達成率の推移と現状 - 現環境基準の問題点 -	第34回大気環境学会近畿支部シンポジウム	大阪市	2008.01
福田 照美, 東瀬 謙二, 中熊 秀光, 田島 幸治	国立環境研究所との光化学スモッグに関する共同研究について	熊本県第1回光化学スモッグ対策検討会	熊本市	2007.06
福田 照美, 東瀬 謙二, 中熊 秀光, 田島 幸治	2007年3月~5月の熊本市と熊本県のオキシダント濃度の比較と解析	熊本県第2回光化学スモッグ対策検討会	熊本市	2007.07
福田 照美, 東瀬 謙二, 中熊 秀光, 田島 幸治	2006年、2007年5月から6月の熊本市のオキシダントの発生メカニズム解析について	熊本県第3回光化学スモッグ対策検討会	熊本市	2007.09
福田 照美, 東瀬 謙二, 中熊 秀光, 田島 幸治	光化学オキシダントの高濃度発生メカニズムについて	第33回九州衛生環境技術協議会 大気分科会	鹿児島市	2007.10
松本 依子, 上野 一憲, 今村 修	熊本県における光化学オキシダント濃度の変動	第9回熊本県保健環境科学研究所研究発表会	宇土市	2008.11
森田 陽一, 青柳 元喜	茨城県における光化学オキシダント及びSPMの地域特性(1)	第36回環境保全・公害防止研究発表会	富山市	2009.10
山内 昌博, 白石 猛, 大河 良樹, 網本 智一	愛媛県東予地域における2009年8月18日及び19日の光化学オキシダント高濃度事例について	第24回公衆衛生技術研究会	松山市	2010.02
山崎 誠	移流する大気汚染物質 - 福岡市の光化学オキシダントの現状 -	平成19年度福岡市保健環境研究所発表会	福岡市	2007.11
山本 勝彦	光化学スモッグの最近の動向と東アジア広域移流について	大阪府環境農林水産総合研究所研究成果報告会	大阪市	2007.10
山本 勝彦	東アジア規模の大気汚染広域移流の大阪府域への影響について	大阪環境測定分析事業者協会技術研修会	大阪市	2009.02
山本 勝彦, 佐川 竜也, 長田 健太郎	粒子状物質の高濃度事象について	大阪府環境農林水産総合研究所産官学連携セミナー2010	大阪市	2010.02
山本 重一, 岩本 眞二, 大久保 彰人, C型共同研究九州グループ	粒子状硫酸塩の越境汚染による九州地域への影響について	第25回全国環境研究所交流シンポジウム	つくば市	2010.02
和田 峻輔, 山本 勝彦, 高見	大阪府における大気汚染物質の広域移流の影響について	第22回全国環境研協議会東海・近畿・北陸支部研究会	大阪市	2008.02
和田 峻輔, 山本 勝彦	ポテンシャルオゾンを用いた大阪府におけるオキシダント汚染状況の解析	平成20年度大阪府環境農林水産総合研究所試験研究発表会	大阪市	2009.03

3. 大気環境学会年会発表

発表者	題目	学会等名称	開催都市名	年月
田中 孝典, 長田 健太郎, 大野 隆史, 若松 伸司, 大原利真, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	中国・四国地方における光化学オキシダント高濃度事例解析(1)	第48回大気環境学会年会	岡山市	2007.9
長田 健太郎, 田中 孝典, 大野 隆史, 若松 伸司, 大原 利真, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	中国・四国地方における光化学オキシダント高濃度事例解析(2)	第48回大気環境学会年会	岡山市	2007.9
早崎 将光, 大原 利真, 宮下 七重, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染(1)観測データ解析	第48回大気環境学会年会	岡山市	2007.9
大原 利真, 鶴野 伊津志, 黒川 純一, 早崎 将光, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	2007年5月に発生した広域的な光化学オキシダント汚染(2)モデル解析	第48回大気環境学会年会	岡山市	2007.9
大野 隆史, 山神 真紀子, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	光化学オキシダント濃度上昇がもたらす温室効果についての概念的評価	第48回大気環境学会年会	岡山市	2007.9
早崎 将光	OxおよびSPMの環境基準達成状況の過去・現在 - 常時監視局1時間値から得られる情報 -	第48回大気環境学会年会(特別集会2)	岡山市	2007.9
大野 隆史, 山神 真紀子, 国立環境研究所・C型共同研究グループ	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(1) - 2007年6月下旬のOx・SPM高濃度汚染についての一考察 -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
岩本 真二, 大石 興弘, 田上 四郎, 山本 重一, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(九州グループ)	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(2) - 九州地方における2007年の高濃度現象について -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
佐川 竜也, 長田 健太郎, 田中 孝典, 若松 伸司, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(中国四国グループ)	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(3) - 最近の中国・四国地方におけるOx・SPM高濃度事例解析(1) -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
長田 健太郎, 佐川 竜也, 田中 孝典, 若松 伸司, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(中国四国グループ)	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(4) - 最近の中国・四国地方におけるOx・SPM高濃度事例解析(2) -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
田中 孝典, 佐川 竜也, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(中国四国グループ)	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(5) - 中国・四国地域における夜間のオキシダント高濃度事象の解析 -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
和田 峻輔, 山本 勝彦, 山神 真紀子, 板野 泰之, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(POグループ)	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(6) - ボテンシャルオゾンを用いた関西地域の高濃度オゾン現象の事例解析 -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
板野 泰之, 山神 真紀子, 大原 利真, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(POグループ)	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(7) - ボテンシャルオゾンを用いた日本におけるオゾンの季節変化パターンの地域的な違いとその経年変化の解析 -	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
早崎 将光, 菅田 誠治, 大原 利真	浮遊粒子状物質および光化学オキシダントの広域高濃度現象の時空間変動	第49回大気環境学会年会	金沢市	2008.9
秋山 雅行, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(北海道東北北陸グループ)	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(1) - 北日本地域におけるOx濃度の長期変動と高濃度出現状況について -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
武藤 洋介, 清水 源治, 石井 康一郎, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(関東甲信静グループ)	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(2) - 関東甲信静地域におけるOx高濃度事例解析について(1) -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9

井上 智博, 中込 和徳, 町田 哲, 白砂 裕一郎, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(関東甲信静グループ)	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(3) - 関東甲信静地域におけるOx高濃度事例解析について(2) -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
竹内 浄, 石井 真理奈, 森田 陽一, 篠原 英二郎, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(関東甲信静グループ)	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(4) - 関東甲信静地域におけるOx高濃度事例解析について(3) -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
山本 勝彦, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(近畿・東海グループ)	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(5) - 近畿地方における光化学オキシダント移流への大阪湾海風の寄与について -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
佐川 竜也, 田中 孝典, 藤原 誠, 若松 伸司, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(中四国グループ)	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(6) - 近年の島根県におけるO3濃度およびSPM濃度の経年変動 -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
福田 照美, 岩本 真二, 山崎 誠, 大石 興弘, 山本 重一, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(九州グループ)	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(7) - 九州地方における2006年から2009年までの高濃度現象について -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
山本 重一, 山崎 誠, 岩本 真二, 大石 興弘, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(九州グループ)	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(8) - 九州地方における硫酸塩濃度との関係について -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
高橋 秋彦, 山崎 誠, 山本 重一, 長田 健太郎, 佐川 竜也, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(九州グループ, 中四国グループ)	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(9) - 2009年5月8日・9日の九州・中四国地域における光化学オキシダント高濃度事例について -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
山神 真紀子, 板野 泰之, 大原 利眞, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(POグループ)	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(10) - ポテンシャルオゾンを用いたOx濃度上昇傾向の評価 -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
板野 泰之, 山神 真紀子, 大原 利眞, 国立環境研究所・C型共同研究グループ(POグループ)	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(11) - 常時監視データを用いたNO2/NOx排出比の推定とその経年変化 -	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
早崎 将光, 菅田 誠治, 大原 利眞	1992 - 2007年の光化学オキシダント広域高濃度事例の出現特性	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9
早崎 将光, 森 育子, 清水 厚, 西川 雅高, 高菅 卓三	2006, 2007年の大規模黄砂期間における浮遊粒子常物質・汚染物質濃度の特徴	第50回大気環境学会年会	横浜市	2009.9

本報告書付属資料の Web 公開について

紙面の都合で本報告書に収録することができなかった研究成果は、以下のとおり、報告書付属資料として Web 公開している。

Web 公開している付属資料

1. 「第 3 章 基本解析」の関連資料
 - ・基本解析（各自治体の解析結果）
 - ・基本解析（地域のまとめ）の補足資料
 - ・地域グループが独自に行った解析
2. 「第 4 章 高濃度エピソード解析」の関連資料
 - ・高濃度エピソード解析の補足資料
 - ・地域グループが独自に行った高濃度エピソード解析
4. 「第 5 章 応用解析グループによる解析」の関連資料
5. 「夜間の高濃度発生時の対応に関するアンケート調査」調査結果報告
6. 大気時間値集計解析プログラムの概要

Web ページのアクセス方法

国立環境研究所ホームページ「光化学オキシダント等に関する C 型共同研究」ページ

URL : <http://www.nies.go.jp/pmdep/ctype/>

の「成果」のページから、上記資料の pdf ファイルが閲覧またはダウンロードできる。

RESEARCH REPORT FROM
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN
No.203
国立環境研究所研究報告 第 203 号
(R-203-2010)

「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
—国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究
最終報告(平成 19~21 年度)—」

問い合わせ先 大原 利眞
FAX:029-850-2580 E-mail: tohara@nies.go.jp

【平成 22 年 2 月編集委員会受付】
【平成 22 年 3 月編集委員会受理】
平成 22 年 3 月発行

発行 独立行政法人 国立環境研究所
〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16 番 2
電話 029-850-2343(ダイヤルイン)

印刷 前田印刷株式会社
住所 茨城県つくば市山中 152-4

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
March 2010

無断転載を禁じます

リサイクル適性の表示：紙へリサイクル可
本冊子は、グリーン購入法に基づく基本方針における「印刷」に係る判断の
基準にしたがい、印刷用の紙へのリサイクルに適した材料〔Aランク〕のみを
用いて作製しています。