

柏崎大気測定局における汚染物質濃度の変動特性

福崎 紀夫^{*}, 高木 諒^{**}

(平成 21 年 10 月 30 日受理)

Concentration Variations of Air Pollutants Observed at Kashiwazaki Environmental Air Quality Monitoring Station

Norio FUKUZAKI^{*} and Ryou TAKAGI^{**}

Concentration variations of air pollutants observed from April 1990 through December 2007 at the Kashiwazaki Air Quality Monitoring Station in Niigata Prefecture were analyzed. While annual mean concentrations of NO and NO₂ showed no remarkable trends, those of SPM were in clear downward trends, and Ox was in an upward trend. On the other hand, those of SO₂ decreased remarkably from 1990 to 2001, however, they have increased slightly in recent years. Monthly averaged concentrations of Ox are higher from February through May and hourly concentrations show a peak around 2 to 3 pm. The daily average concentrations of Ox were higher on Saturdays and Sundays, which is known as the weekend effect. Monthly average concentrations of NO and NO₂ were higher from November through December and hourly concentrations showed diurnal variations with peaks in the morning and evening. Monthly mean concentrations of SPM were higher from April through August and hourly concentrations are higher from 7 to 9 pm. The maximum concentrations of SO₂, SPM and Ox during the period investigated were recorded at an exceptional time, influenced by the eruption of the Miyake-jima volcano, by the Kosa phenomenon, and also the occurrence of the long-range transport of air pollutants from the continental area.

Key words: air pollutants, concentration variation, seasonal variation, Kashiwazaki

1 . はじめに

各種の自然及び人為発生源から大気中に排出された汚染物質は、拡散による希釈作用や風による遠方への輸送作用を受けながら、また、汚染物質相互間及び光化学反応などの化

* 環境科学科 教授

** 物質生物システム工学科 卒業生

学変化を受け二次汚染物質を生成しつつ、大気中に滞留したのち乾性及び湿性沈着過程によって大気から除去される。大気における汚染物質濃度は、発生源排出量、汚染物質の物理・化学的性質、気象及び地形などによって季節及び時間ごとに変動する。こうした、日々の大気汚染状況は、大気汚染防止法に基づき道府県知事が常時監視しその結果を公表しなければならないとされている。平成 20 年 4 月 1 日現在、新潟県内には一般環境大気の常時監視測定局は 29 局設置されており（この内、新潟市内に 9 局）、測定結果は年度ごとに公表されている^[1]。しかし、その主な内容は大気環境基準値との比較であり、各地域の濃度変動特性については報告されていない。また、光化学オキシダントに関しては、昼間の測定値が主たる解析対象であり夜間の測定値を含めた解析はなされていない。近年、大気汚染物質の長距離越境移流が指摘されており^[2,3]、夜間の測定値を含めた解析が求められている。本報告では、新潟工科大学が立地する柏崎地域の環境の現状を把握する目的の一環として、柏崎一般環境大気測定局（以下、「柏崎大気測定局」という。）に焦点を絞り、大気汚染物質濃度等の変動を解析しその原因を探ることを目的とした。なお、柏崎大気測定局においては光化学オキシダントを除き近年では継続して環境基準を達成している^[1]。

2. 方法

2.1 測定局の位置

柏崎大気測定局は、1990 年 4 月から柏崎市比角 1 丁目 3(北緯 37 度 22 分 20 秒,東経 138 度 34 分 05 秒)において測定が開始されたが、2005 年 3 月末に柏崎市扇町 2(北緯 37 度 22 分 06 秒,東経 138 度 34 分 16 秒)に移設され、2005 年 4 月以降この地点で測定が継続されている。Fig.1 にこれらの位置を示す。



Fig.1 The location of the Kashiwazaki Air Quality Monitoring Station.

2.2 測定項目及び測定方法

柏崎大気測定局における測定項目は、二酸化硫黄 (SO_2)、窒素酸化物 (NO , NO_2 , NO_x)、光化学オキシダント (O_x)、浮遊粒子状物質 (SPM) 及び風向・風速 (WD, WS) である。測定方法は、 SO_2 では 1990 年 4 月から 2000 年 3 月が溶液導電率法、2000 年 4 月以降は紫外

線蛍光法である。また、NO、NO₂及びその濃度和であるNO_xでは、1990年4月から1999年3月がザルツマン法、1999年4月以降は化学発光法が使用されている。O_xでは、1990年4月から1999年3月は中性ヨウ化カリウム法が、1999年4月以降は紫外線吸収法が用いられている。SPMでは1990年4月から2007年12月まで継続して線吸収法が用いられている。これらの測定方法の詳細は、大気汚染常時監視マニュアル^[4]に記載されている。なお、WD及びWSの測定には1990年4月から継続して風車型風向風速計が採用されているがその測定値は参考値扱いとされている。

2.3 解析対象データ

経年変化の解析には1990年4月から2007年12月の時間値データの年平均値を使用した。したがって、2007年度の年平均値は4月から12月の平均値となっている。月別平均濃度(風速)変化の解析には1990年4月から2007年12月の時間値データの月平均値を使用した。曜日ごとの濃度変化解析には2003年1月から2007年12月の時間値データの曜日別平均値を使用した。また、1990年4月から2007年12月の時間値データを用いて、これまでの測定値における最高値についてその原因を検討した。

2.4 流跡線解析

気象解析の一環として実施した流跡線解析には、国立環境研究所地球環境研究センターの「対流圏モニタリングデータ評価のための支援システムCGER-GMET」^[5]を利用した。

3. 結果と考察

3.1 風向風速の特徴

柏崎地域はFig.1に示すように海岸線が北東-南西方向に走っていることから、海陸風により昼は北西系、夜間は南東系が主風向を示す。また、冬季には北西～西系の季節風が卓越する。Fig.2に月別及び時間別風速変化を示す。Fig.2(1)に示す4～9月には、海風が進入する8時頃から風速は増加し、13～14時頃にピークを示したのち19時頃まで徐々に減少する。Fig.2(2)に示すように10月及び3月は(1)と同様な上昇傾向が見られるが上昇幅は小さい。1月、2月及び12月は昼間の海風の増加が明確でなく、かつ風速が1日を通して3m/sec前後と大きい。5月～9月の夜間の風速は1.2～1.5m/sec程度で安定している。

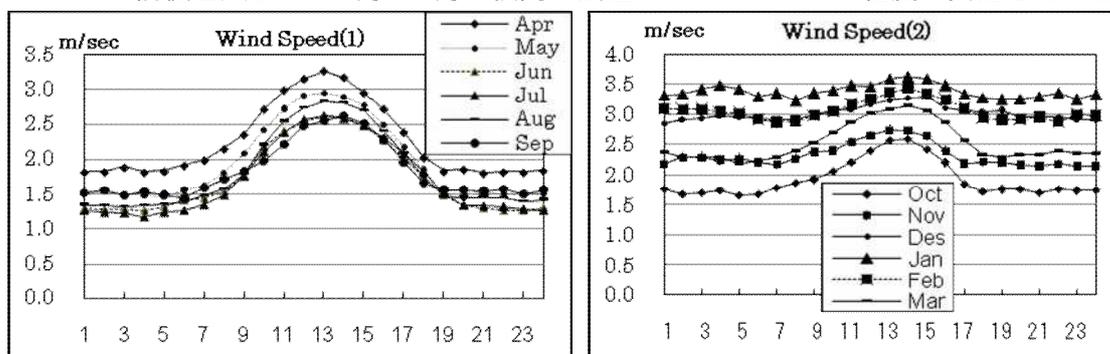


Fig.2 Monthly and hourly variations of wind speed.

3.2 経年変化

1990年度から2006年度の経年変化を Fig.3 に示す。SO₂では1999年度まで明確な減少傾向が見られる。2000年度に約1.5ppbの急落の後2001年度を最低値として以降微増傾向が見られる。NOでは1998年度までは横ばい傾向が見られたが、1999年度に約2ppb急落した。その後2004年度までは横ばいであったが2005年度わずかに上昇の後、ほぼ横ばいで推移している。NO₂は横ばい傾向が、Oxでは微増傾向が見られる。一方、SPMでは明確な減少傾向が見られる。SO₂及びNOにおける年平均値の急落は、2.2で述べた測定方法の変更の可能性が考えられる。すなわち、SO₂の湿式測定法は溶液導電率法であり、吸収液に溶解し導電率を上昇させる物質の影響を受けやすく^[4]、また、大気バブリング時の吸収液蒸発による導電率上昇の影響を受ける。また、NOの湿式測定法では、硫酸酸性過マンガン酸カリウムを用いてNOをNO₂に酸化した後に、ザルツマン法による吸光光度法で測定される。NOからNO₂への酸化率として70%が用いられているが、実際には85%とかなり高いことが報告されており、湿式法では高めの値として測定されていた可能性がある^[6]。なお、2004年度から2005年度以降NO及びNO₂濃度がやや高くなっており、測定局が比角小学校グラウンド隣の交通量の多い道路脇に移転したことによる影響の可能性も考えられる。

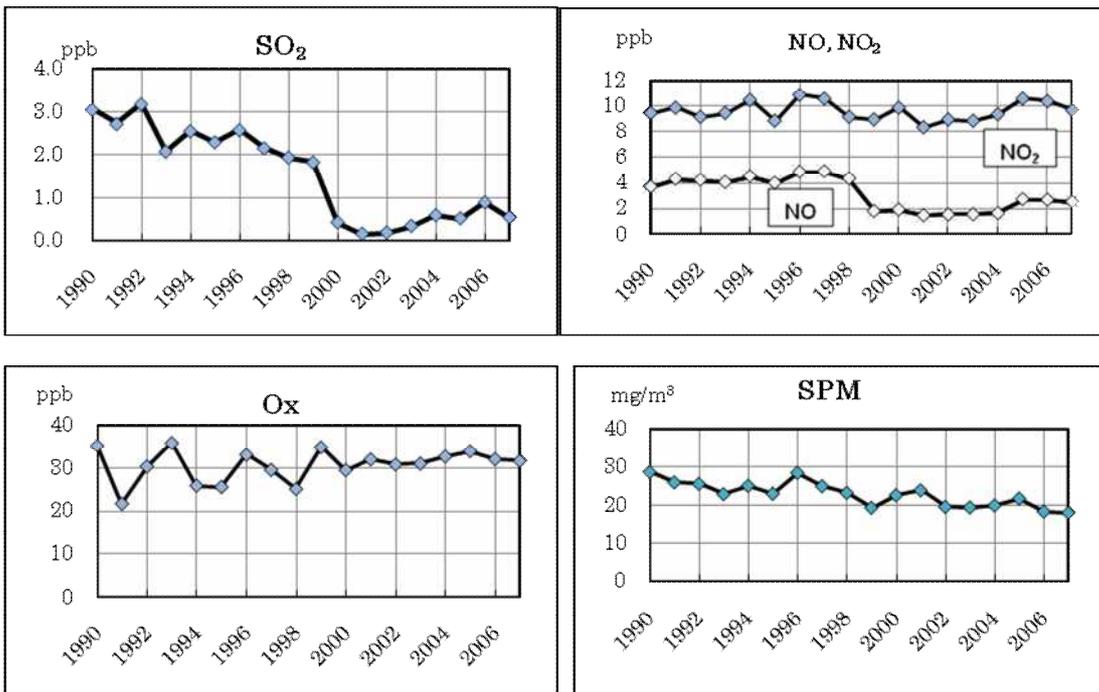


Fig.3 Concentration variations of annual average

3.3 月別変化

月別濃度変化を Fig.4 に示す。SO₂では9月が特異的に高い値となっている。これは、後に述べる三宅島の噴火の影響が見られた2000年9月以前の測定値にも見られていたが近年では見られない。NOでは11・12月をピークに10月から2月に高い値となっている。NO

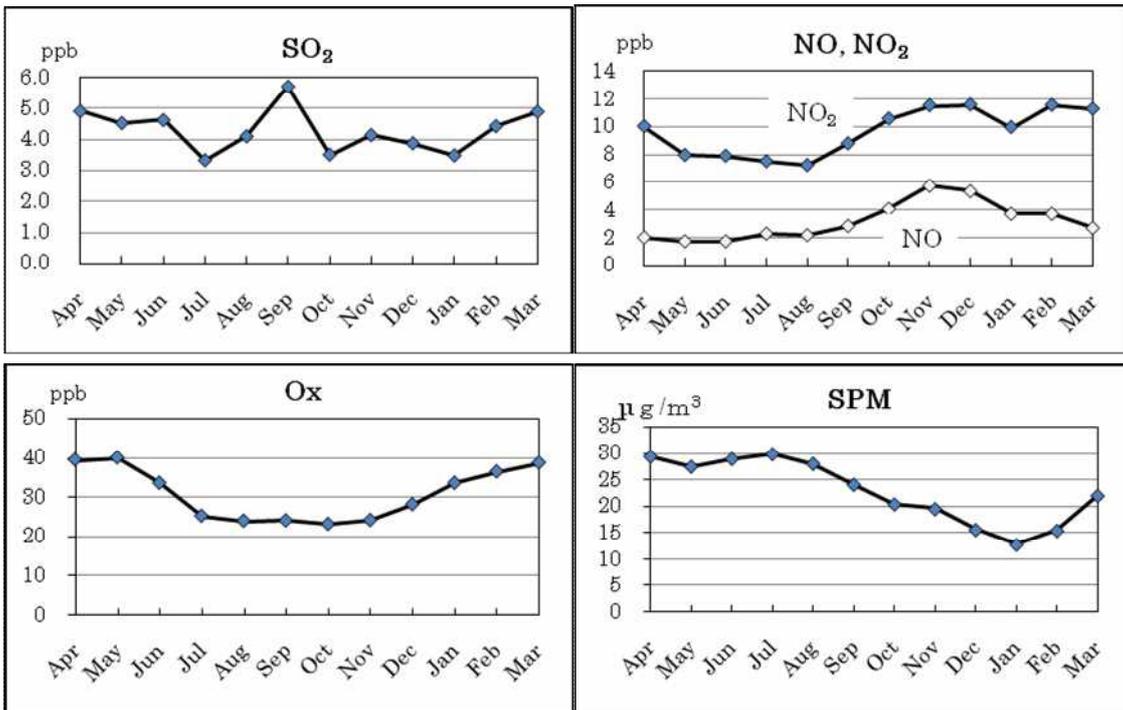


Fig.4 Monthly average concentration variations of air pollutants

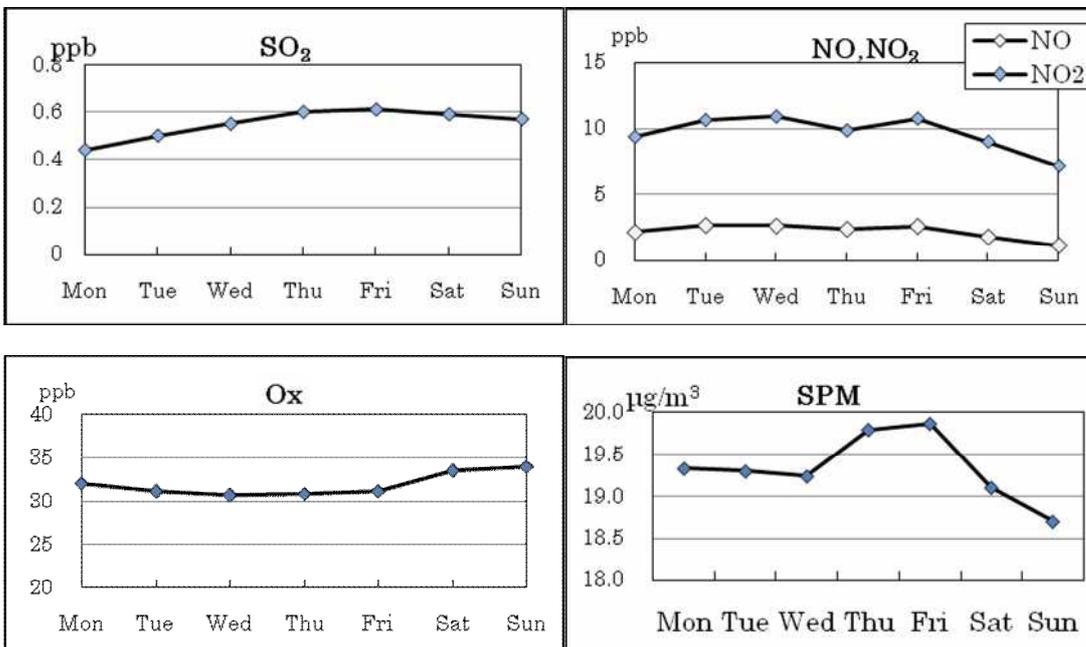


Fig.5 Concentration variations of daily average in the week.

は、工場ボイラーや自動車排ガスなど地表面における発生源が主であることから、放射冷却により大気が安定化しやすい晩秋から初冬に濃度が高くなることが報告されている^[7,8]。一方、NO₂ではNOと同様に11~12月にピークとなるが、1月にやや低い値となった後に2

月から3月にも11~12月と同程度の濃度となっている。この原因として長距離輸送も含め他地域からの移流が考えられるが別途詳細な解析が必要である。NOxでは8~10月を最低値とし、3~5月をピークとする1山型の季節変化が見られる。こうした季節変化については、地域における光化学反応による生成寄与よりも長距離越境移流の寄与が大きいことが指摘されている^[2,3]。SPMでは1月を最低月として3月から上昇し4~8月に高い値を示しており、黄砂現象、ガス状物質からの2次生成及び測定ろ紙への結露の可能性等^[4]が考えられるが、関東地方に見られるような初冬期における高濃度現象^[8,9]は見られていない。

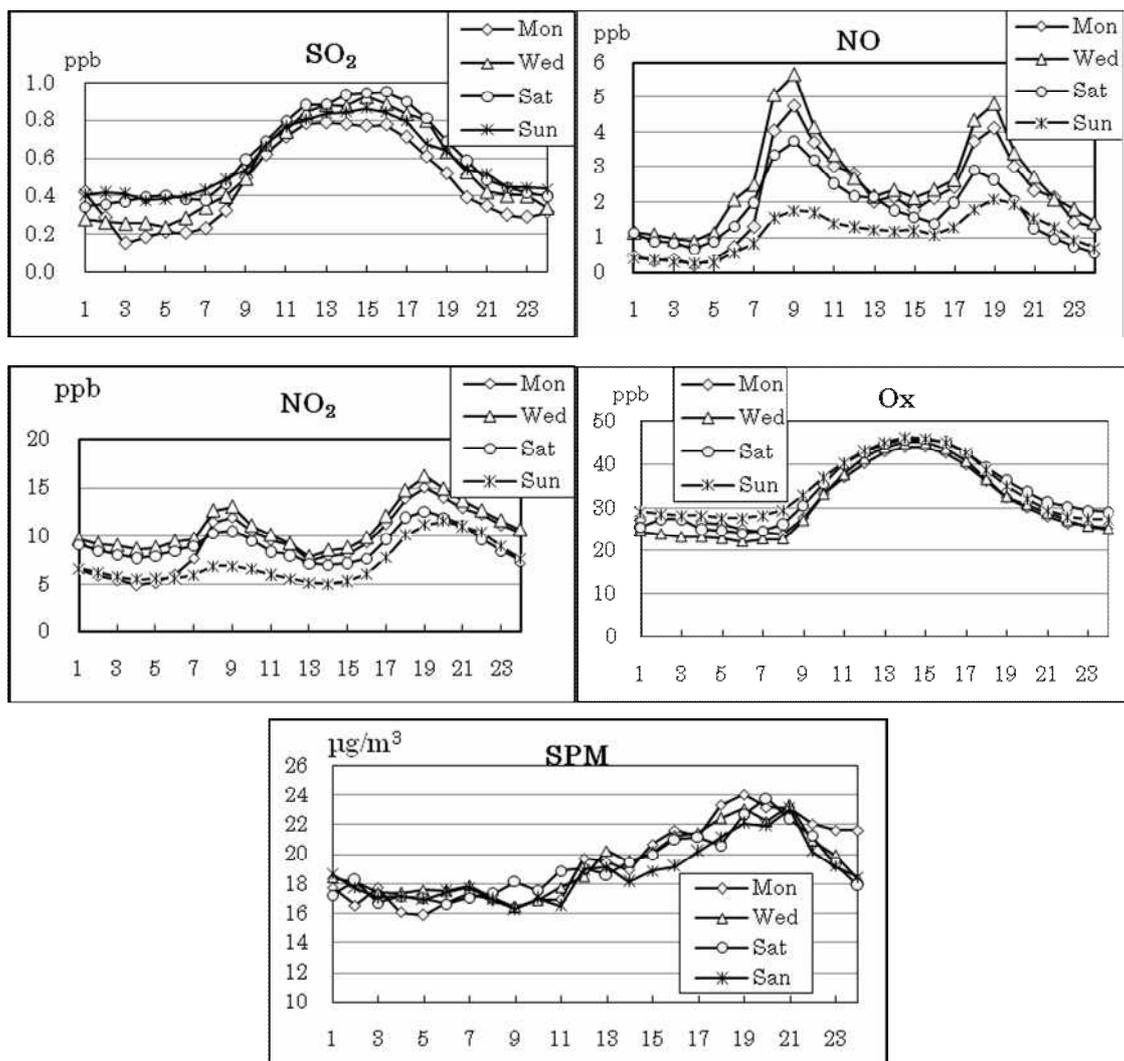


Fig.6 Hourly average concentration variations of air pollutants in the week.

3.4 曜日変化

3.4.1 曜日別平均濃度

曜日別平均濃度を Fig.5 に示す。SO₂では木・金曜日を頂点とした緩やかな変化を見せ、月曜日が最も低い値となっている。SPM も同様に木・金曜日を頂点としているが最

も低い値は日曜日でありその低下が著しい。NO 及び NO₂ では同様な曜日変化を示し日曜日に最低値となり、木曜日にもやや濃度低下が見られる。一方、Ox は他と変化の特徴が大きく異なり、土・日曜日が高く水・木曜日が低い値となっている。これは NO が低下する土曜日・日曜日に Ox 濃度が上昇する週末効果として報告されている現象^[10-12]であり、主に週末の NO 排出量の低下が Ox の消費を低下させる効果が大きいことに由来するものである。

3.4.2 曜日別時刻変化

曜日（月・水・土・日）及び時刻別濃度変化を Fig.6 に示す。SO₂ では各曜日とも日中の午後に高くなる傾向が見られ月曜日の未明が最も低い値となっている。NO 及び NO₂ は各曜日とも 9 時と 19 時をピークとする朝晩の二つのピークが見られる。NO 及び NO₂ とも日曜日に明確に低下する。NO では日曜を除き朝のピークが夕方のもより高いのに対して、NO₂ では夕方のピークが朝のピークよりも高いという違いが見られる。一方、Ox では曜日に無関係に 14・15 時頃をピークとする 1 山型の変化を示し、上に述べたように日曜日が最も高い値を示しており、他の汚染物質と異なり日曜日の朝に低濃度とはならない。SPM では、明け方から午前 9 時くらいまでが低く、夕方にかけて徐々に高くなり 19 時から 21 時頃をピークとする 1 山型の変化を示すが曜日による違いは明確ではない。

3.5 高濃度事例解析

1990 年 4 月の測定開始以来、2007 年 12 月までの間で SO₂、NO・NO₂、Ox 及び SPM について最高濃度が観測された時の状況について検討した。

3.5.1 SO₂

2000 年 7 月 8 日に三宅島雄山で噴火がはじまり、同年 8 月末から 9 月には関東東海地域等で高濃度 SO₂ によるものと考えられる異臭騒ぎが発生した^[13,14]。柏崎局においても同年 9 月 16 日 5 時には Fig.7 に示す様に SO₂ 濃度が 128ppb を記録し、この日 SO₂ に関する環境基準値（1 時間値の 1 日平均値 40ppb、1 時間値 100ppb）を大幅に超過した。同時刻に到着した気塊の流跡線は Fig.7 に示すように三宅島付近から発しており、三宅島の噴火による影響が示唆される。

3.5.2 NO・NO₂

1994 年 1 月下旬の NO 及び NO₂ 濃度の 1 時間値の変化を Fig.8 に示す。1 月 26 日 18 時に NO で 182ppb、NO₂ で 78ppb が記録された。この時間帯には SO₂ も 8ppb が記録されている。風は南東～東、風速 0.5m 程度であった。詳しい状況は不明であるが何らかの原因で付近の工場のボイラー排ガス等の影響があったためではないかと考えられる。

3.5.3 Ox

2007 年 5 月上旬の Ox 濃度の 1 時間値の変化を Fig.9 に示す。5 月 8 日の午後には 100ppb を、9 日の 15 時～17 時には 120ppb を超える濃度が記録された。9 日 15 時に柏崎に到着した気塊はその流跡線から中国沿岸部から流入したことが示唆される。報告されている解析結果^[2,3]に示されるように、中国東部地域からの大気汚染物質の長距離輸送の影響が示唆

される .

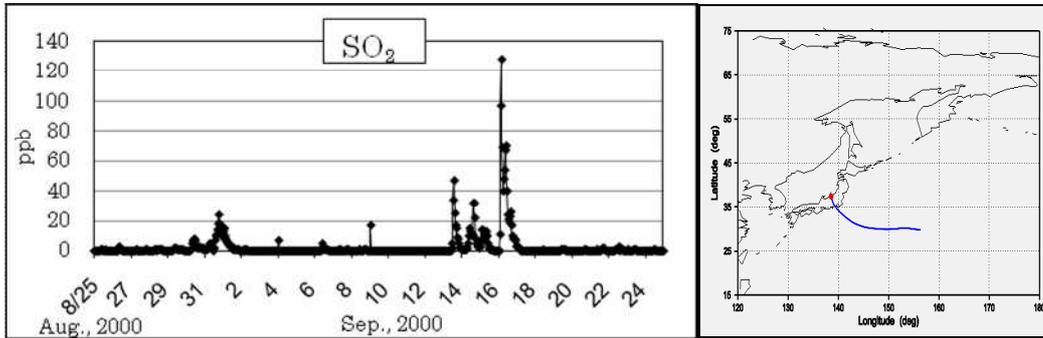
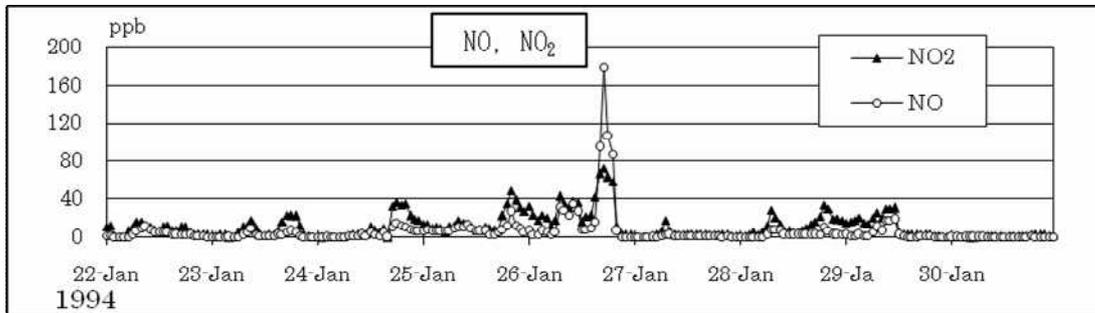


Fig.7 Concentration variation of SO₂ and air mass trajectory arrived at 5 am, Sep. 16, 2000.



g.8 Concentration variation of NO and NO₂ .

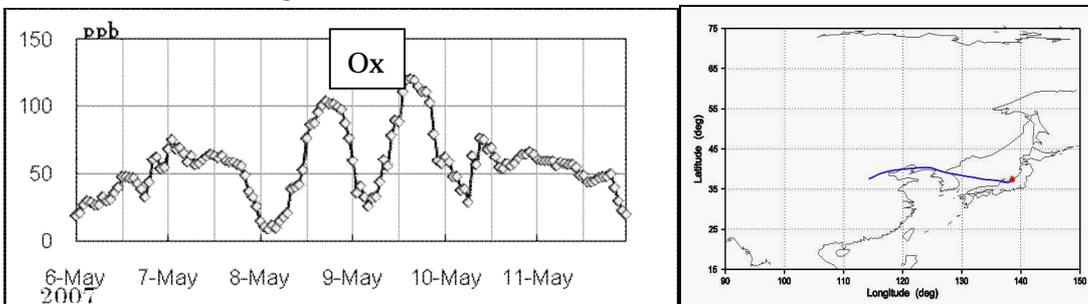


Fig.9 Concentration variation of Ox and air mass trajectory arrived at 3 pm, May 10, 2007.

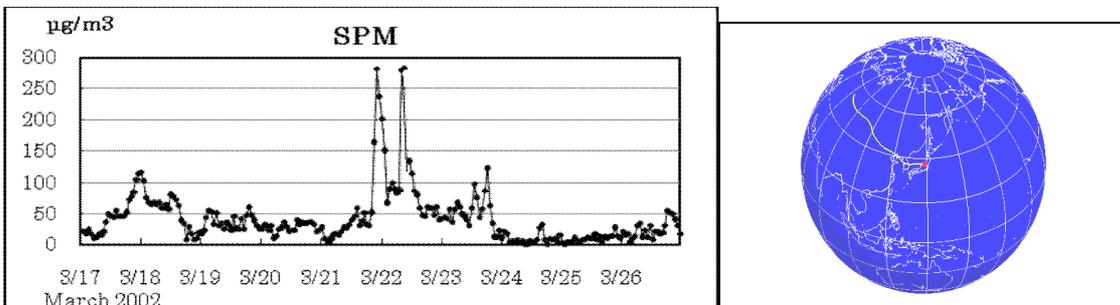


Fig.10 Concentration variation of SPM and air mass trajectory arrived at 0 am, March 22, 2002.

3.5.4 SPM

2002年3月中～下旬におけるSPM濃度の1時間値の変化をFig.10に示す。3月21日23時には $283\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、22日9時には $284\mu\text{g}/\text{m}^3$ が記録された。22日0時に柏崎に到着した気塊の流跡線は中国北西部の砂漠地帯を經由しており黄砂の影響が示唆される。

4. まとめ

柏崎一般環境大気測定局（柏崎大気測定局）における測定開始（1990年4月）から2007年12月までの大気汚染物質濃度等を解析し以下が判明した。

北西系季節風が卓越する12月～2月を除き海陸風が発達する。海岸線が北東-南西に走っている関係から海風（9時～18時）は北西系、陸風は南東系となる。

SO_2 及びSPM濃度は経年的に低下しているが、 SO_2 は近年微増傾向にある。NO及び NO_2 濃度は横ばい、Oxは微増傾向にある。

Ox濃度は2-5月に高く、時刻的には14-15時頃にピークを示す。他の汚染物質と異なり土曜日と日曜日にやや高い値を示す。これは週末効果として知られている現象である。

NO濃度は11・12月が高く、時刻変化では朝夕に高くなる2山型の変化を示す。 NO_2 濃度は11・12月及び2月・3月に高く、NOと同様に朝夕に高く、日曜日に低下する。

SPM濃度は4～8月に高く、19-21時頃をピークとする1山型の変化を示す。

解析対象期間中の SO_2 、NO・ NO_2 、Ox及びSPMの最高値は、それぞれ、三宅島の噴火、近隣工場排ガス、大気汚染物質の長距離輸送及び黄砂の影響が考えられる。

謝辞

本報告に使用した柏崎大気測定局の時間値データは新潟県民生活・環境部環境対策課から提供を受けた。記して謝意を表する。

文献

- [1] 新潟県民生活・環境部環境対策課：各年度大気汚染測定結果報告
- [2] 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(4)，pp.198-208，2008.
- [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(4)，pp.225-237，2008.
- [4] 環境省 水・大気環境局：大気汚染常時監視マニュアル 第5版，2007.
- [5] 勝本正之，古橋規尊，鶴野伊津志，林田佐智子，井手玲子，稲垣美智子，橋本正雄，會 継美，中根英昭，藤沼康実：対流圏モニタリングデータ評価のための支援システム(CGER-GMET)の開発 - トラジェクトリ計算および気象場表示システム

△；国立環境研究所，2002.

- [6] 阿相敏明，君塚玲子：窒素酸化物常時監視測定機の湿式法と乾式法のデータの比較，神奈川県環境科学センター研究報告，27，pp.120 -121，2004.
- [7] 鵜野伊津志，若松伸司：冬期の高濃度 NO₂ 汚染の光化学ボックスモデルによる解析；大気環境学会誌，27(5)，pp.246 -257，1992.
- [8] 水野建樹，近藤裕昭，松川宗夫：関東平野において初冬に粉塵が極めて高濃度になる気象条件について；大気環境学会誌，25，pp.143 -154，1990.
- [9] 兼保直樹，吉門 洋，近藤裕昭，森屋 岳，鈴木基雄，白川泰樹：組成別 SPM 濃度シミュレーション・モデルの開発と初冬期高濃度大気汚染への適用（ ）；大気環境学会誌，37(3)，pp.167 -183，2002.
- [10] 神成陽容，山本宗一：東京における休日の大気環境の特性；大気環境学会誌，33(6)，pp.384 -390，1998.
- [11] 坂本美德，吉村 陽，小坂 浩，平木隆年：兵庫県における週末オキシダント濃度に関する一考察；大気環境学会誌，40(5)，pp.201 -208，2005.
- [12] 武 直子，村山 等，福崎紀夫：新潟県内における光化学オキシダントの週末効果；新潟理化学，32，pp.1 -10，2007.
- [13] 山川和彦，山神真紀子：三宅島噴火に伴う東海・近畿・北陸地域の硫黄酸化物高濃度事例；全国環境研会誌，26(4)，pp.243 -248，2001.
- [14] 梅田てるみ，加藤善徳：酸性雨等による金属材料への影響調査 -三宅島火山ガス放出後の金属溶出量，腐食量の状況 -；大気環境学会誌，39(1)，pp.11 -20，2004.