

# 最近の川崎市内における光化学オキシダントの実態について

## The Situation of Recent Photochemical Oxidant in Kawasaki City

山田 大介 YAMADA Daisuke 福永 顕規 FUKUNAGA Akinori  
高垣 勇介 TAKAGAKI Yusuke 小林 幸雄 KOBAYASHI Yukio

### 要旨

光化学オキシダント対策として、その原因物質である揮発性有機化合物や窒素酸化物の排出量削減が進んでいるにも関わらず、未だに本市を含む南関東（東京都、埼玉県、千葉県、神奈川県）の広域で、毎年複数回光化学スモッグ注意報が発令されている。そのため、本市の光化学オキシダントの実態把握のため、大気常時監視データを用いて解析した。光化学オキシダントとその原因物質である揮発性有機化合物（非メタン炭化水素で代用）及び窒素酸化物の経年推移を確認したところ、非メタン炭化水素と窒素酸化物は減少傾向であったにもかかわらず、光化学オキシダントは増加傾向であった。一方で、光化学オキシダントの月毎の経年推移をみると、2000年度以降ではどの月も増加傾向を示したが、2013年度以降に限定すると光化学スモッグ注意報が発令が少ない4～6月及び10～3月では増加もしくは横ばいに推移し、発令が多い7～9月では減少傾向を示した。2013年度以降の光化学スモッグ注意報発令時の状況を見ると、ほぼ本市だけに発令される局所型は約1割で、約9割は本市を含む南関東広域で発令される広域型であった。

キーワード：光化学オキシダント、揮発性有機化合物、非メタン炭化水素、窒素酸化物

Key words：Photochemical oxidant、Volatile organic compounds、Non-methane hydrocarbon、Nitrogen oxides

### 1 はじめに

光化学オキシダント ( $O_x$ ) は、ペルオキシアセチルナイトレートやアルデヒド類など大気中の酸化成分の総称であるがその主成分はオゾン ( $O_3$ ) である。 $O_3$  は、地上付近では二酸化窒素 ( $NO_2$ ) と酸素 ( $O_2$ ) が紫外線を受けて反応することで発生し、揮発性有機化合物 (VOC) の存在下で大きく増加する。 $O_x$  が増加し、0.12ppm 以上を1時間以上継続すると判断される場合に都道府県により光化学スモッグ注意報が発令されるが、近年でも、依然として本市を含む南関東で毎年複数回発令されている。そのため、国では光化学スモッグ対策の一環として2004年に大気汚染防止法を改正し、 $O_x$  の原因の1つであるVOCの排出規制を2006年4月1日から開始した<sup>1)</sup>。更に、VOCに係る排出規制と事業者の自主的取組を共に推進し、適切に組み合わせるベスト・ミックスにより、固定発生源からのVOC排出総量を2010年度までに2000年度比で3割程度削減を目指した。結果として、全国で3割を超える44%削減を達成し<sup>2)</sup>、本市では46%削減を達成した。しかしながら、その後も毎年光化学スモッグ注意報が発令されていることから、 $O_x$  濃度の低減と光化学スモッグ注意報発令日数の低減に向けて、本市の  $O_x$  の実態把握を行った。

### 2 解析方法

#### 2.1 調査地点

川崎市内の一般環境大気測定局9局(大師、田島、川崎、幸、中原、高津、宮前、多摩、麻生)を対象

とした(図1)。

#### 2.2 調査期間及び調査項目

調査期間は、2000～2019年度とし、詳細な解析は2013～2019年度のデータを使用した。

解析に用いたデータは、 $O_x$  とその原因物質の窒素酸化物 ( $NO_x$ ) 及び非メタン炭化水素 (NMHC)、更に風向・風速などの気象データを用いた。

本市以外の南関東の  $O_x$ 、 $NO_x$ 、NMHC については、II型共同研究「光化学オキシダントおよびPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明」から提供されたデータを用い、風向・風速については気象庁の南関東のデータを使用した<sup>3)</sup>。また、天候については、横浜気象台の日ごとの天気概況<sup>4)</sup>を参照した。

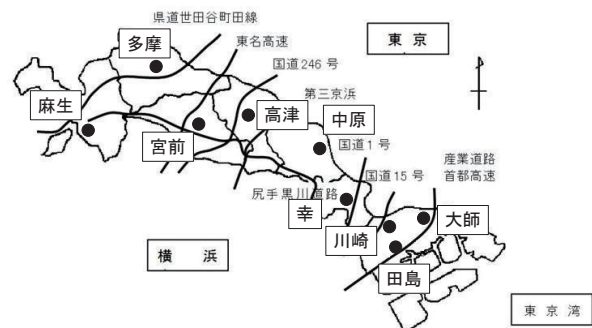


図1 川崎市の一般環境大気測定局

### 3 解析結果

#### 3.1 $O_x$ 、 $NO_x$ 、NMHCの経年推移

本市における日中(5時～20時)  $O_x$  濃度の年平均

値の経年推移を図2に、NOx濃度の年平均値の経年推移を図3に、NMHC濃度の経年推移を図4に示す。日中Ox濃度は、2000年度以降経年的に増加傾向であったが、2014年度以降は横這いで推移していた。NOx及びNMHCは20年間で減少傾向であり、日中Oxと対照的であった。

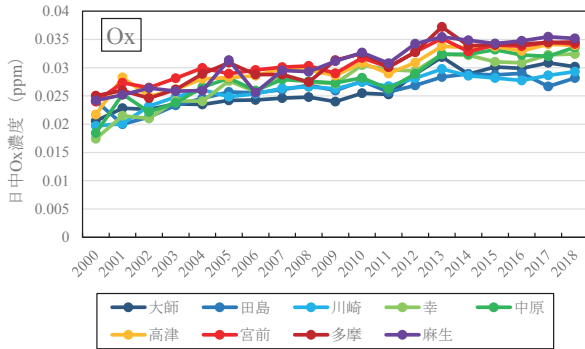


図2 日中Ox濃度の年平均値の経年推移

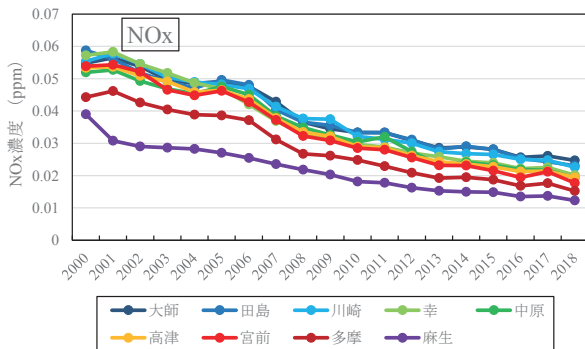


図3 NOx濃度の年平均値の経年推移

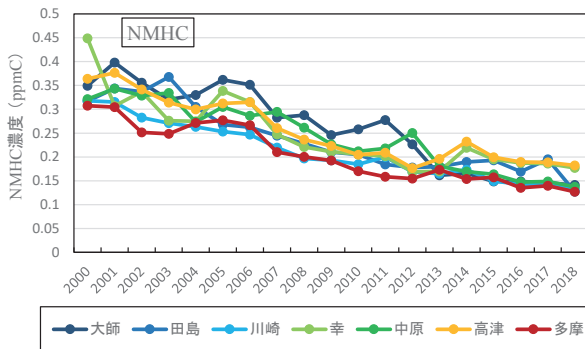


図4 NMHC濃度の年平均値の経年推移（宮前と麻生は未測定）

また、日中Ox濃度、全日Ox濃度、夜間Ox（0～5時、20～24時）濃度の年平均値の経年推移を図5に示す。日中Ox濃度と同様に、全日Ox濃度及び夜間Ox濃度は経年的に増加しており、日中と夜間の差はほぼ一定で推移していることから、Oxが日中に増加したのではなく、Oxのバックグラウンド濃度が増加したと考えられる。

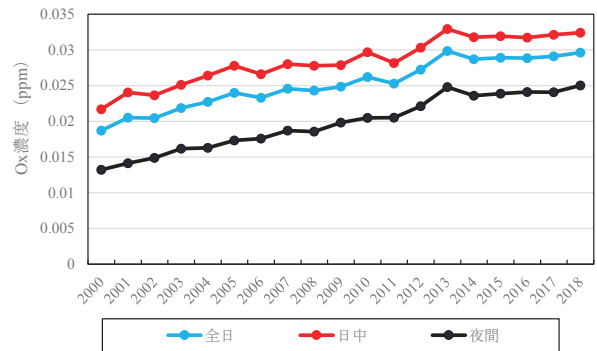


図5 全日Ox濃度、日中Ox濃度、夜間Ox濃度の年平均値の経年推移

### 3.2 日中Ox濃度の月毎の経年推移

本市の日中Ox濃度は経年的に増加していたが、光化学スモッグ注意報は、主に7月から8月に発令されていた（図6）。2000年度から2019年度にかけて本市で発令された135回の光化学スモッグ注意報のうち、7月に54回（40%）、8月に50回（37%）発令されていた。また、発令回数は、2013年度まで年に10回以上の年度があったが、その後は減少し、2016年度以降は年度あたり4～6回で推移していた。

このことから、日中Ox濃度の月毎の平均値についても経年推移を確認した結果、2000～2019年度にかけては全ての月でOx濃度が経年的に増加傾向であった（傾き  $2.4 \times 10^{-4} \sim 1.1 \times 10^{-3} \text{ppm/年}$ ）（図7）。しかしながら、光化学スモッグ注意報が近年で最多の11回を記録した2013年度以降でOxの月毎の経年推移をみると、7月～9月では減少傾向であり（傾き  $-2.0 \times 10^{-4} \sim -2.6 \times 10^{-3} \text{ppm/年}$ ）、その他の月では増加ないし横這いの傾向を示した（傾き  $3.8 \times 10^{-5} \sim 8.1 \times 10^{-4} \text{ppm/年}$ ）（図8）。

また、図7及び図8の月毎のOxの平均値をみると、光化学スモッグ注意報が多く発令される7月と8月より、5月と6月のほうがOx濃度が高かった。これは、図9に示すとおり、Ox1時間値の出現頻度が7月と8月では0～0.03ppmで65%を占めるのに対し、5月と6月では0.02～0.05ppmで60%を占めており、Oxのバックグラウンド濃度が5月と6月で高いためと考えられる。この理由として、春季では成層圏

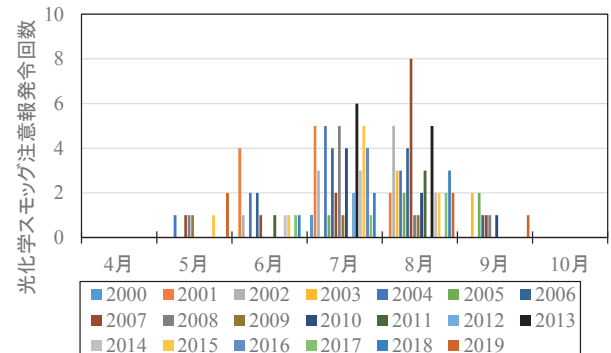


図6 光化学スモッグ注意報の月別発令数

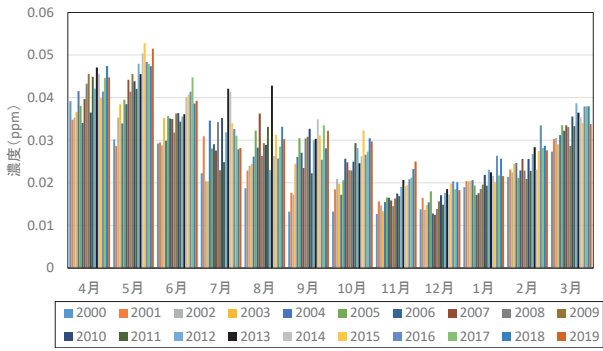


図7 月別日中Ox濃度の経年推移(2000~2019)

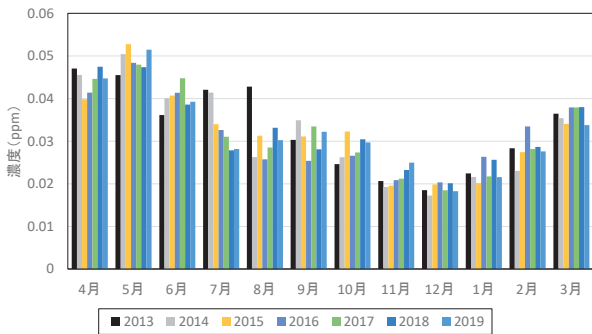


図8 月別日中Ox濃度の経年推移(2013~2019)

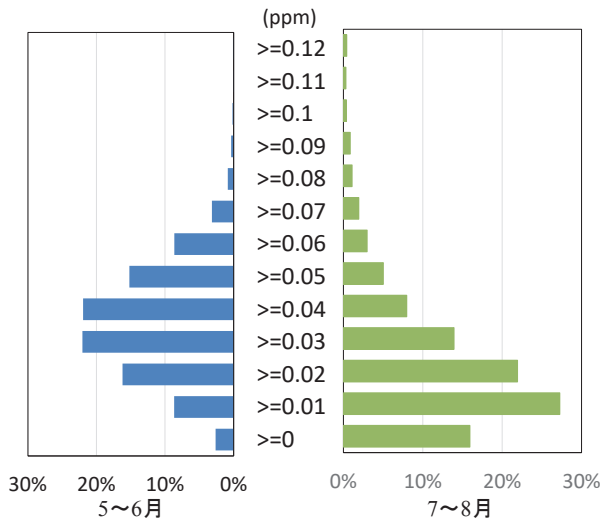


図9 5~6月(左)と7~8月(右)の一般局9局の平均Ox1時間値の出現頻度(2013~2019)

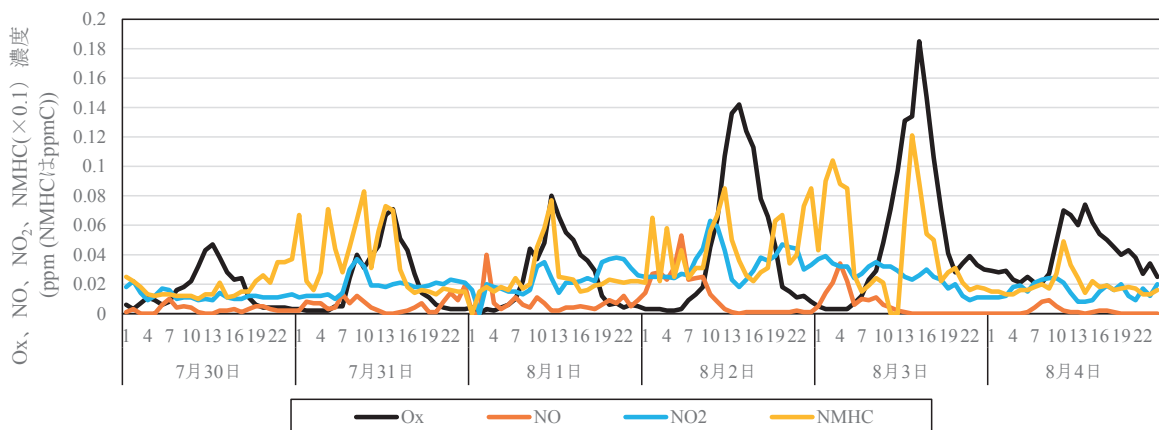


図10 2018年7月30日から8月4日までの大師一般局のOx及び原因物質の濃度推移

オゾン降下と大陸から来た移動性高気圧に伴う越境汚染によりOxの濃度が高くなり<sup>5)</sup>、7~8月ではOx濃度が低い海洋性気塊の出現頻度が高いためと考えられる<sup>6)</sup>。

一方で、光化学スモッグ注意報が発令される0.12ppm以上の高濃度は、5月と6月ではほとんど出現せず、7月と8月ではしばしば発生していた。

### 3.3 O<sub>x</sub> 高濃度現象の実態把握

#### 3.3.1 O<sub>x</sub> 高濃度現象の気象条件

光化学スモッグ注意報が発令されるようなO<sub>x</sub>高濃度現象は、本市では7月と8月に多く発生するが、夜間に陸からの海への風(川崎市では風向が北西から北東の風)、日中に海からの陸への風(川崎市では風向が東南東から南西の風)が吹く海陸風と密接な関連性があることが知られている<sup>7)</sup>。また、関東地域で海陸風が支配的な気象条件が継続すると、光化学スモッグ注意報が連続して発令されることがある<sup>4)</sup>。その一例として、2018年8月2日から8月3日にかけて発生したO<sub>x</sub>高濃度現象におけるO<sub>x</sub>とその原因物質の大師測定局における濃度推移を示す(図10)。

この事例におけるO<sub>x</sub>とその原因物質の推移では、まず朝方にNOが増加し、次にNOの低下とともにNO<sub>2</sub>、NMHC、O<sub>x</sub>の増加がみられ、O<sub>x</sub>高濃度時にはNOはほぼ0ppmとなる傾向がみられた。また、7月30日からNO<sub>2</sub>とNMHCが蓄積するに従い、O<sub>x</sub>の日ごとのピークも高くなっていき、8月2日と8月3日にO<sub>x</sub>が0.12ppm以上となり、光化学スモッグ注意報が発令された。このように、海陸風が支配的な気象条件の日(以後、「海陸風日」と略)にO<sub>x</sub>が高濃度となりやすいが、その定義について、今回の解析では「本市の一般局で、風向が夜明け前に北西から北東であり、日中に東南東から南西に変化した日」と定義した。更に、2013年から2019年に発令された光化学スモッグ注意報45回について気象条件を確認したところ、海陸風日と判定されたのは43回であり、光化学スモッグ注意報のほとんどが海陸風日に発令されていたことがわかった。

### 3.3.2 0x 高濃度現象の発生地域の区分

0x は広域大気汚染物質であり、0x 高濃度現象は南関東の広域で発生することが多いが、ほぼ本市のみに局所的に発生することもあるため、光化学スモッグ注意報が、南関東広域で発令されたか（広域型）、ほぼ本市のみで発令されたか（局所型）を確認した。また、広域型と局所型については、関<sup>8)</sup>に従って以下の4通りに区分し（表1）、その例を図11、12にあげた。

表1 広域型と局所型の分類

| 分類  | 概要                     |
|-----|------------------------|
| 広域型 | B型 東京湾岸全体が高濃度域         |
|     | N型 主として川崎市域以北に高濃度域が分布  |
|     | S型 主として川崎市域以南に高濃度域が分布  |
| 局所型 | L型 川崎市域とその近傍のみに高濃度域が限局 |

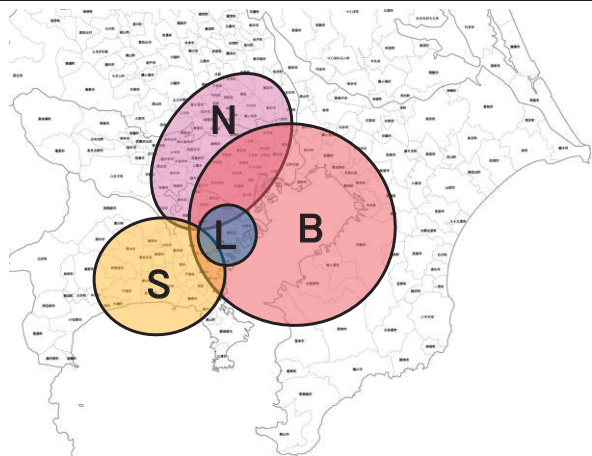


図11 B型、N型、S型、L型のイメージ図

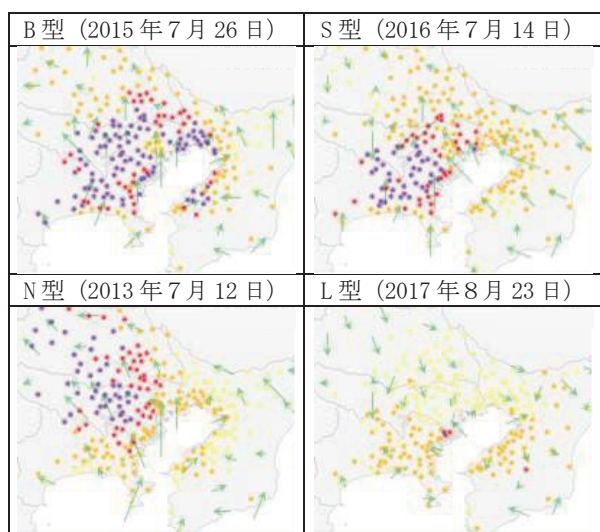


図12 B型、N型、S型、L型の南関東での0x分布の一例（●0.12ppm以上、●0.10ppm以上、●0.06ppm以上、●0.04ppm以上）

その結果、2013～2019年の光化学スモッグ注意報の発令回数45回のうち、広域型が40回（89%）と大半を占め、その中でもB型が22回と広域型の半数以上を占めた（表2）。

表2 光化学スモッグ注意報の広域型と局所型の発令回数と割合（2013～2019）

|       | 広域型 |    |    | 局所型 |
|-------|-----|----|----|-----|
|       | B型  | N型 | S型 | L型  |
| 回数(回) | 22  | 13 | 5  | 5   |
| 割合(%) | 49  | 29 | 11 | 11  |

### 3.3.3 本市における0x 高濃度現象時の0x 最高濃度の範囲

2013～2019年に発令された光化学スモッグ注意報45回について、発令された日における0x 最高濃度の濃度別出現頻度を図13に示す。広域型では、0x 最高濃度は0.120～0.129ppmが最も多く、次いで0.130～0.139ppm、0.150～0.159ppmと続き、0.190ppm以上の高濃度も4.4%（2回）出現していた。一方で、局所型では、0.120～0.129ppmと0.130～0.139ppmのみ出現していた。この結果は、広域型のほうが、局所型よりも0x 最高濃度が高くなる傾向を示した。

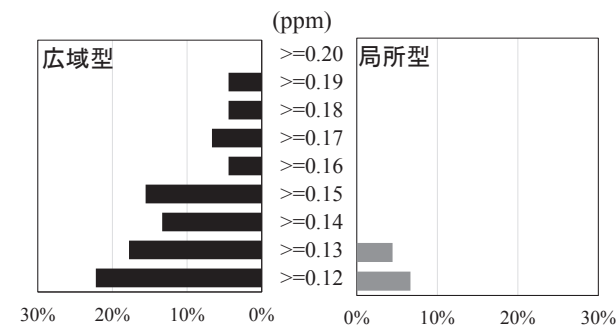


図13 光化学スモッグ注意報発令時における市内0x 最高濃度の濃度別出現頻度

2013～2019年で、広域型の0x 最高濃度の出現頻度を図14に示す。B型の0x 最高濃度の出現頻度は、

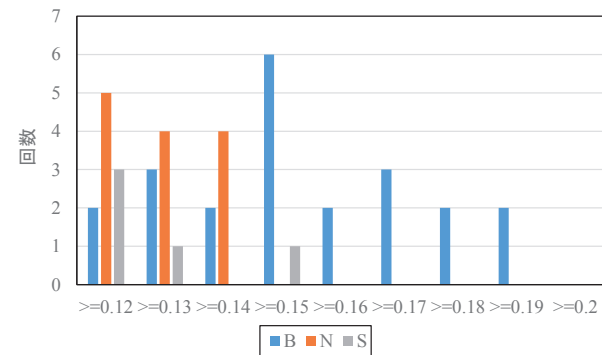


図14 B型、N型、S型の0.10ppmごとの最高濃度の出現回数



0.150～0.159ppm の回数が最も多く 6 回となり、0.160ppm 以上となったことも複数回あった。しかしながら、N 型の 0x 最高濃度の出現頻度は 0.140～0.149ppm までであり、S 型の 0x 最高濃度の出現頻度は 0.150～0.159ppm までであり、B 型ほどの高濃度にはならなかった。このことから、東京湾を中心に発生する B 型が最も高濃度になりやすいことがわかった。

### 3.3.4 本市における光化学スモッグ注意報発令時の 0x 最高濃度とその到達時刻との関係

光化学スモッグ注意報発令日の 0x 最高濃度とその到達時刻を図 15 に示す。最高濃度到達時刻が遅いほど、図 15 内の矢印に示すように 0x 最高濃度が高くなる傾向もみられたが、2017 年に 13 時で 0.194ppm に到達した事例もあった。

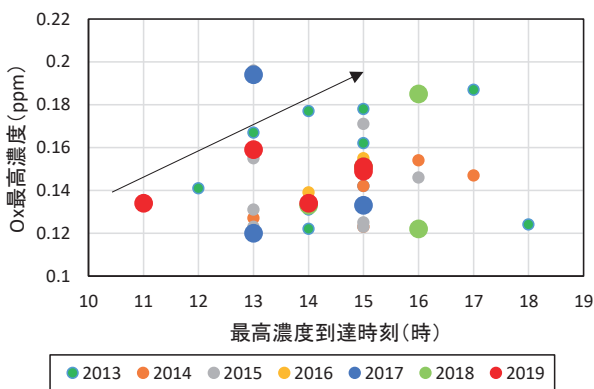


図 15 光化学スモッグ注意報発令日の 0x 最高濃度とその到達時刻 (2017～2019 年は大きめの円としている)

## 4 まとめ

- (1) 本市の日中 0x 濃度は、その原因物質の NOx や NMHC が減少傾向にも関わらず、増加傾向にあった。一方で、月毎の日中 0x 濃度の推移をみると、2013 年以降では 7～9 月にかけて減少傾向がみられた。
- (2) 日中 0x の月毎の平均値は、5～6 月のほうが、7～8 月よりも高い。その理由として、5～6 月の 0x ベース濃度が、7～8 月の 0x ベース濃度よりも高いためと考えられる。一方で、0.12ppm 以上の 0x の高濃度は、5～6 月ではめったになく、7～8 月にしばしば現れた。
- (3) 本市における光化学スモッグ注意報が発令されるような 0x 高濃度現象は、広域型と局所型があるが、広域型のほうが多く発生していた。また、0x 最高濃度も、広域型のほうが高かった。

## 5 謝辞

0x の解析にあたり、川崎市環境審議会副会長の若松伸司愛媛大学名誉教授に多大なる御指導と御鞭撻を賜りました。ここに深謝の意を表します。また、II 型共同研究「光化学オキシダントおよび PM2.5 汚染の地域的・気象的要因の解明」参加機関の国立環境研究所及び地方環境研究所の方々から、関東圏の大気常時監視データの提供と多大なる御指導と御鞭撻を賜りました。ここに深謝の意を表します。

## 文献

- 1) 環境省：揮発性有機化合物 (VOC) の排出抑制制度の概要  
<https://www.env.go.jp/air/osen/voc/seido/001.pdf>
- 2) 環境省：揮発性有機化合物 (VOC) 排出インベントリ検討会 (第 22 回)  
[http://www.env.go.jp/air/osen/voc/inventori\\_kento/22/index.html](http://www.env.go.jp/air/osen/voc/inventori_kento/22/index.html)
- 3) 気象庁  
<http://www.jma.go.jp/jma/index.html>
- 4) 横浜気象台  
<https://www.jma-net.go.jp/yokohama/>
- 5) 若松伸司：都市・広域大気汚染の生成機構解明に関する研究、大気環境学会誌、第 36 号、125～136(2001)
- 6) 秋元肇：光化学スモッグをとりまく国内外状況—我が国におけるオキシダントの増加と東アジアオゾン汚染—、環境技術、32、510～516(2003)
- 7) 環境科学研究報告：大気汚染調査研究報告、広域大気汚染の動態、文部省「環境科学」特別研究「広域大気汚染の動態」研究班、B163-R11-4、1～354(1983)
- 8) 関昌之：川崎市における光化学大気汚染問題への取組について (1)～光化学オキシダントを中心とした非定常型モデル解析～、第 50 回大気環境学会年会、140～142(2009)