

札幌におけるオゾンと光化学生成物質の挙動

北海道大学工学部衛生工学科

○村尾直人

同 上

正会員

太田幸雄

同 上

溝口 勲

1. はじめに

地表付近で観測されるオゾンには、大気汚染物質の光化学反応により生成されるものと、成層圏からの輸送によるものがある。大都市域の夏期の日中には前者が卓越するが、他の地域や期間では、双方の寄与を考える必要があり、したがって、定量的なオゾンに対する汚染の予測・対策においては、光化学反応による生成量と成層圏から輸送量を個々に算定することが重要な課題である。

北半球の中緯度圏では、春期において、成層圏あるいは対流圏上層からの輸送によると考えられるオゾン濃度の増加がみられる。日本においても同様で、札幌では地上オキシダント濃度の一時間値が、春期に年間の最大値(80~100 ppb)をとり、夏期には低い値(50 ppb 以下)となる。

本研究では、春期と夏期において各種大気汚染物質の測定を行い、得られた濃度変動から、光化学反応による生成量および上層からの輸送量を評価し、また、輸送の寄与が大きいと考えられる事例について流跡線解析を行うことにより、対流圏下層のオゾンの挙動を明らかにすることを目的とした。

2. 方法

測定期間は、1987年4月20日~5月10日および8月5日~19日とした。測定項目は、上層からの輸送の指標として ^7Be 、光化学反応に関して、 HNO_3 、 NO_3^- 、 SO_2 、 SO_4^{2-} 、PANとし、 PAN 、 $\text{HNO}_3(\text{total})$ 、 Fs 値 $=\text{ex.SO}_4^{2-}/(\text{ex.SO}_4^{2-} + \text{SO}_2)$ を光化学指標とした。以上の項目は北海道大学工学部屋上で測定を行った。また、オゾンは札幌市郊外の手稲山山頂(標高1000m)で測定した。

流跡線の作成は、Reiterの方法(エネルギーの式と経路長の式から求める)を用いた。

3. 測定結果および考察

3-1 オゾンと各種汚染物質の挙動

手稲山のオゾン濃度は数日スケールで変動し、観測期間中、40~100 ppbを示した(図1)。80 ppbを上回る高濃度日は、いずれも高気圧下の晴天日であった。各種汚染物質濃度とオゾン濃度の相関係数は表1に示す。また、図1にみられるオゾン濃度と850mbarの気温との間の強い正の相関関係(相関係数0.91)は、後で述べる高低気圧による輸送の結果生じるもので、春期に特有の現象である。一方、成層圏空気の指標である ^7Be と数日スケールで挙動の一致がみられるが、相関係数としては、0.56程度である。これは、両者の生成機構の違いによるものと思われる。

また、光化学反応の指標としたFs値、PAN濃度とオゾン濃度との間に挙動の一致はみられなかった。PAN濃度は、春期は日変動が小さく、また、観測期間を通じて1 ppb以上、夏期は、朝夕に濃度が低下し、日中の最大濃度が1 ppb程度となった。日最大濃度が2.5 ppb以上となった日の気温、風速は、いずれも低温、強風で、測定した濃度は、都市境界層内での光化学反応によって生成したものではなく、地域規模の対流圏下層の濃度であると思われる。

地上測定局のオキシダント濃度変動は、朝夕の NO_x 排出により、朝に低く、日中に高い光化学型になり、日最大値は(日変化の小さい)手稲山のオゾン濃度にはほぼ一致した。オゾンや NO_x の光化学型の濃度変動、気温とオゾン濃度との正の相関関係は、光化学と上層からのオゾンの輸送のいずれによっても生じる関係で、従来の統計予測に用いられる指標によって、両者を区別することができない。

3-2 流跡線解析

以上より、札幌で春期にみられる高濃度オキシダント濃度については、850mbarより上層から輸送されるオゾンの寄与が境界層内での光化学反応による寄与よりも大きいと考え、地表近くでオゾン濃度が80ppb以上となった4例について、流跡線解析を行った。図2に、代表的な解析例として、1987年4月30日21:00に、八甲田山上空(769mb)を通過する流跡線(温位面304K)を示す。この日手稲山では21:00に86ppb、八甲田山では23:00に106ppbと、広域でのオゾン濃度上昇がみられる。観測されたオゾンの濃度変動およびオゾン濃度と気温との正の相関関係は、総観規模の(等温位面)輸送により生じたと考えられる。輸送過程をまとめると次のとおりである。すなわち、中国大陆を東進する低気圧の西～南縁での下降流によって、対流圏中層の気塊が下方に輸送され、さらに、低気圧に続く高気圧による沈降によって、地表付近に達し、オゾン濃度の上昇をもたらす。この間の時間スケールは、およそ2～3日である。

3-3 オゾン濃度の季節変動

オゾンゾンデデータ(1969～1980)の季節変動をみると、対流圏下層(850mb)に春季(4月)のピークがみられるが、中層(400～500mb)では6月に最大値となり7月の濃度も4月上まわっている。地表付近のオゾンの濃度季節変動に関して、対流圏中層のオゾンの濃度変動と共に、対流圏内での輸送過程の考慮が必要である。対流圏内での中層から下層への輸送に関しては、春期にみられる高低気圧の連続的な通過が重要と思われる。

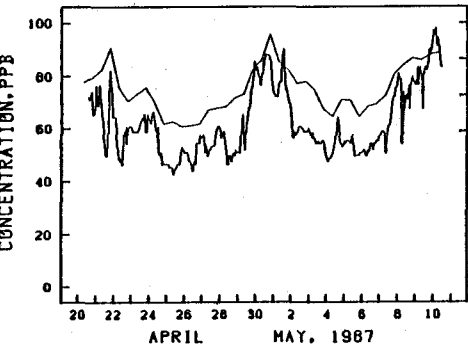


図1 手稲山におけるオゾン濃度(太線)と850mb気温

表1 各種汚染物質濃度間の相関係数(春期)

	O ₃	Nitrate	Sulfate	fs	¹ Be	PAN
O ₃	1.00					
Nitrate	0.83***	1.00				
Sulfate	0.75***	0.81***	1.00			
fs	0.15	0.09	0.33	1.00		
¹ Be	0.56*	0.51	0.64**	0.21	1.00	
PAN	0.18	0.26	-0.07	0.29	-0.08	1.00

(Significant level ***0.01% ** 0.1% * 1%)

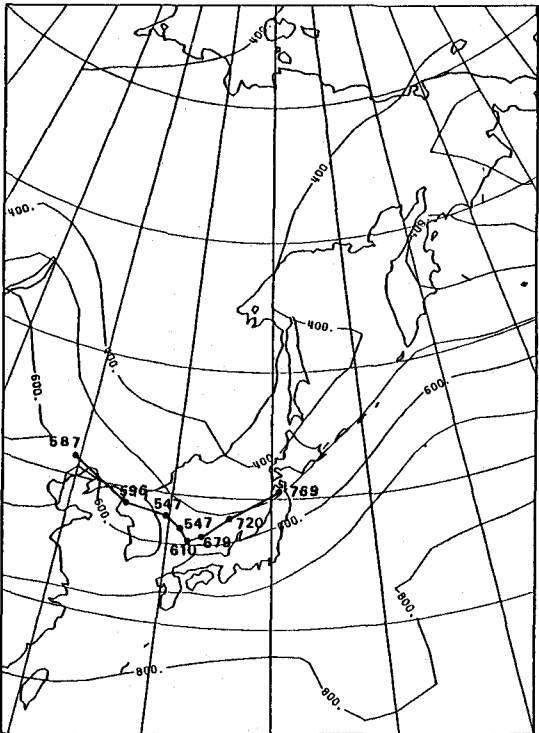


図2 流跡線解析例(1987年4月27～30日)
等高線は4月27日21:00 304K 温位面上の気圧
流跡線

4/27 9:00 21:00 4/30 9:00 21:00