

窒素酸化物高濃度現象に関する研究（IV）

——二酸化窒素の高濃度の気象条件——

Studies on the Phenomenon of the highly Concentrated NO_x (IV)
— Meteorological Conditions of the highly Concentrated NO₂ —

西原 幸一 橋本 魁躬 藤井 裕士 冠野 祐男
Kouichi NISHIHARA Osami HASHIMOTO Hiroshi FUJII Yoshio KANNO

増井 武彦
Takehiko MASUI

三好 健治
Kenji MIYOSHI

本県の沿岸部や島しょ部では、春から梅雨期の夜間18時～24時頃、二酸化窒素の高濃度がよく現れる^{1), 2)}。昨年に引き続き4年度も同様の調査を行い、発生原因是前報²⁾のとおり、接地逆転層内で一酸化窒素がオキシダント等により、二酸化窒素に酸化されて出現することが、平成4年と3年の相違から、確認できた。さらに二酸化窒素が高濃度になる条件を考察した結果、2点が重要であることがわかった。又、そのためには地上風、上層風、上空との気温差の三つの気象要素があることがわかった。

1. 接地逆転層が形成される時刻……………地上風
2. 昼間の混合層内の二酸化窒素とオキシダントの濃度……………上層風
上空との気温差

はじめに

本県では春から梅雨期に二酸化窒素が高濃度になり、沿岸部や島しょ部で顕著に現れる¹⁾。二酸化窒素の高濃度の時期について、小木曾ら³⁾は東京圏では冬に、大阪圏では春に高濃度日が多くなると報告している。また池沢ら⁴⁾は阪神間の自排局では春に高濃度になると報告している。このように本県は阪神地方と同様な傾向を示している。

この原因を究明することにより、汚染防止対策の資料とするため、中讃地域に於て平成3年より調査を実施している。3年度には、窒素酸化物が高濃度になる気圧配置から、汚染機構を考察した。4年度には、このことを確認するとともに、高濃度になる条件について、各汚染質と気象の経時変化から、さらに検討を行った。その結果を報告する。

調査方法

1. 調査期間

平成4年5月13日～7月15日

内、パイロットバルーン及び低層ゾンデによる上空気象調査

第1回、5月26日～5月27日

第2回、6月16日～6月17日

第3回、7月7日～7月8日

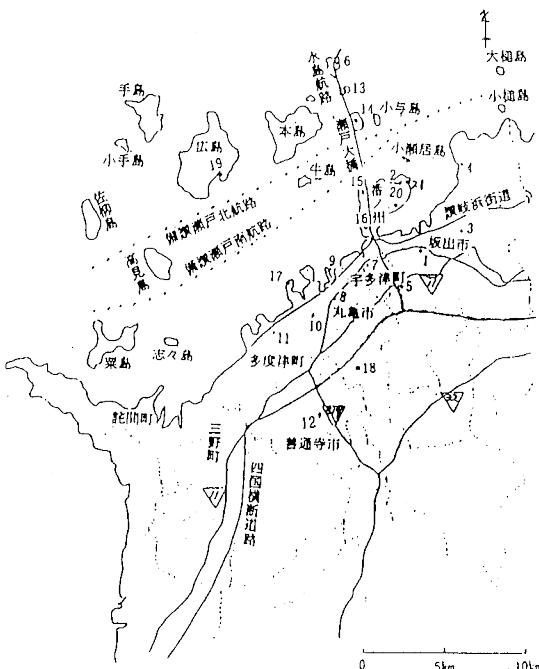


図1 調査地点位置図

2. 調査地点

図1のとおりで、特別観測地点7地点（うち窒素酸化物観測地点6地点）・常時観測局12局及び気象関係の2地点で行った。

また海からの距離により3地域に区分し表1に示した。

表1 調査地点及び項目

地域	地点番号	地 点 名	項目				
			窒 素 酸 化 物 ガルツマン法	化 学 発 光 法	オキシダント	気 象 関 係	
						地 上 風	上 層 風
海から 1 km以下	2	瀬 居 島	○			○	
	4	相 模 坊 神 社	○			○	
	6	櫃 石 島	○			○	
	9	丸 亀 競 舟 場	○			○	●
	11	多 度 津 町 役 場	○		○	○	
	13	岩 黒 島	●			○	
	14	与 島	●				
	15	沙 弥 島	●				
	16	大 東 川 事 務 所	●			●	
	17	丸亀市浄化センター		●		●	
	19	丸亀市広島町江の浦				●	
	20	四国電力坂出発電所				○(煙突195m)	○(煙突50m+195m)
	21	瀬 居 中 学 校				●(門口付近)	●(低層ゾーン)
海から 1~2 km	1	坂 出 市 役 所	○		○	○	○
	3	林 田 出 張 所	○		○	○	
	7	宇 多 津 町 役 場	○		○	○	
	8	丸 亀 市 役 所	○		○	○	
	10	城 坛 小 学 校	○		○	○	
海から 2 km以上	5	川 津	○		○	○	
	12	善 通 寺 市 役 所	○		○	○	
	18	郡 家 公 民 館		●			

注) ○は常時監視項目、●は特別観測項目

結果及び考察

1. 平成4年度のNO及びNO₂濃度の特徴

平成4年と前年の調査期間中のNO及びNO₂の平均濃度を表2に、日平均値の変化を図2、図3に示した。4年は高濃度であった3年と比べて、低濃度で特にNOが低かった。

表2 期間中のNO及びNO₂の平均濃度 (ppb)

	海から1 km以下の 10地点平均 (最低~最高)	海から1~2 kmの 5地点平均 (最低~最高)	海から2 km以上の 3地点平均 (最低~最高)	全地点平均 (最低~最高)
NO	9 (5~13)	6 (4~8)	3 (2~5)	7 (2~13)
	23 (9~39)	15 (10~21)	8 (4~13)	18 (4~39)
NO ₂	22 (18~26)	19 (15~23)	15 (12~20)	20 (12~26)
	27 (16~33)	24 (19~30)	20 (17~25)	25 (16~33)

中讃地域の5~7月の島しょ部と沿岸から2 km以下の常時監視局11局の平均風速は、4年が1.8m/s. 3年が1.6m/sで3年が弱かった。

また調査期間中の四国電力坂出発電所（以下四電と略する）の高度50mと195mの気温から見た気温の逆転現象

3. 調査項目及び測定方法

調査項目は表1に示した。測定方法は、前報²⁾と同様である。また高松地方気象台の気象データ⁵⁾、大気汚染気象通報に記載された高層気象資料等を参考にした。

は、表3のとおりである。これによれば平成4年は前年のほぼ半分の時間数となっていて、接地逆転があまり起らなかったことがわかる。

表3 期間中の四電50mと195mの気温の逆転時間

	5月13日~31日	6月	7月1日~15日	全期間
平成4年	32	81	16	129 (2.0時間/日)
平成3年	84	93	77	254 (4.0時間/日)

陸地部の坂出市役所と島しょ部の櫃石島の気温は表4のとおりである。3年は櫃石島が2.2°Cも大幅に低かったが、4年は櫃石島が0.4°C低いのみであった。

表4 期間中の坂出市役所と櫃石島の気温 (°C)

	5月13日~31日	6月	7月1日~15日	全期間
平成 4年	坂出	18.4	21.8	24.4
	櫃石	18.2	21.3	24.0
平成 3年	坂出	20.0	23.0	25.5
	櫃石	17.6	21.2	23.7

海水温が低いこの時期は、風速が弱くなると櫃石島で気温が下がり、このような気温差になったと考えられ、

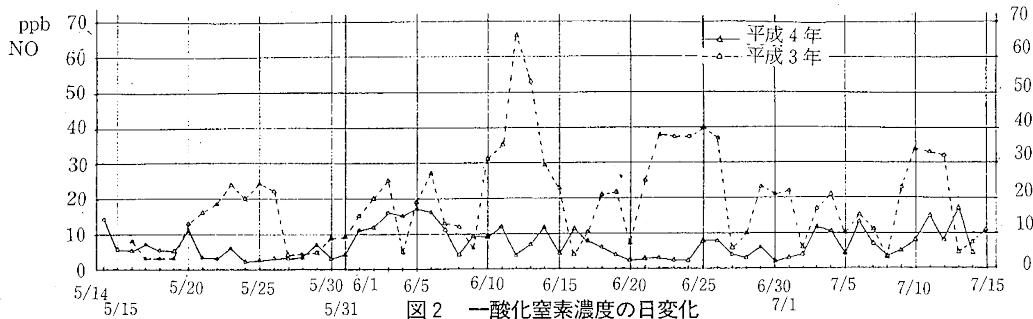


図2 一酸化窒素濃度の日変化

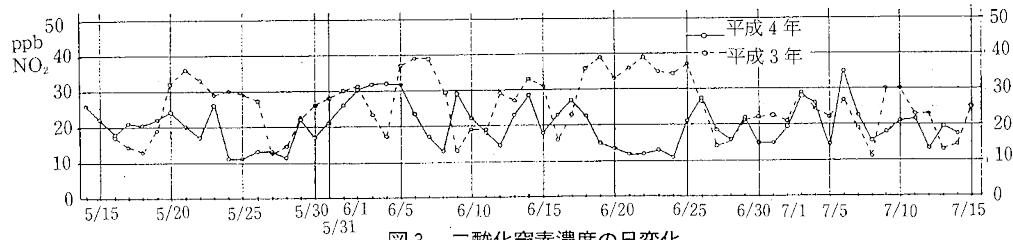


図3 二酸化窒素濃度の日変化

4年は強い接地逆転層があまり形成されなかったことが、このことからも示されている。

NO・NO₂の高濃度の出現機構について、前報²⁾では次のように結論づけている。すなわちNOは接地逆転層内の地表発生源から排出されたものが、そのまま酸化されずに出現し、NO₂は昼間の混合層内のNO₂と、夜間接地逆転層内のNOが昼間混合層内で生成したOX等により酸化され出現する。この点から見れば4年は接地逆転層の形成が少なかったので、3年と比較してNOは低濃度になつたことが説明できる。またNO₂は酸化反応が関与するためNO程は顕著ではなかったと考えられた。

2. 上空気象調査日における窒素酸化物及びオキシダントの経時変化

NO₂は発生源からの直接寄与は1割程度⁶⁾とされており、夜間のNO₂の高濃度は、OX等により酸化され起こる⁷⁾と言われていることから、NO₂・OX・NOの経時変化と、その時の上空気象について、5～7月に月1回の割合で実施した。調査日は調査期間の項で記した日の12時から翌日12時の各1日、計3日間である。窒素酸化物等の変化を図4～6に示し、上空気象を図7～9に示した。NOとNO₂は特別観測点を含め、海から1km以下10地点・1～2km5地点・2km以上3地点計18地点の平均で、OXは常時監視局の各々1地点・5地点・2地点計8地点の平均である。

5月26日～27日は、上空に寒気が入って不安定な気象

が5月上旬から連続していた時期で、この日も2000mで気温が1～3°Cと低く地上との差は大きく、大気の鉛直拡散は良く、また風も夜間の下層を除いて強く水平拡散も良い状態であった。昼間はNO・NO₂ともに低く、夜間も四電の気温からすると逆転層は無く、低層ゾンデの結果からも24時～6時に逆転が起つたのみで、NO・NO₂とも低かった。OXは拡散が良かった日としては高かった。

この結果から、鉛直拡散が良い状態ではNO・NO₂とも低いことが示された。しかしOXは低くはなく、上空からの移流が考えられた。このような時には後日拡散が悪くなつた場合、NO₂が急増する可能性があり今後の検討課題と考えられる。

6月16日～17日は、鉛直方向の気温差はやや大きく、昼間は鉛直拡散は悪くないと考えられたが、風が弱く水平拡散は悪く、夜間には四電では22時～4時の間、低層ゾンデでは18時～6時の間気温の逆転が起つていた。20時～22時にNO・NO₂とも濃度が増加し、OXは急に減少した。22時以後はNO・NO₂はゆっくり減少しOXは低濃度が続いた。

この日は前線の北側で昼間は日射があり風が弱く、夜間接地逆転が起つていた。これらの条件から考えるとNO₂が高濃度となる形であったが、最も高濃度の地点でも16日が38ppb、17日が40ppbで特に高濃度とは言えなかつた。この原因は低層ゾンデの測定結果からわかるとおり気温差が比較的大きく、昼間の拡散が良かったため

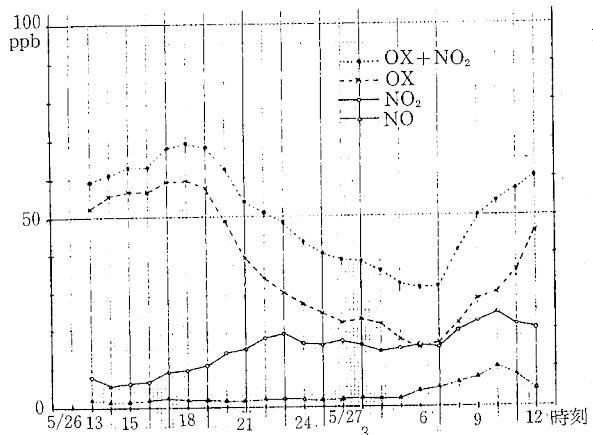


図4 5月26日～27日の窒素酸化物等の経時変化

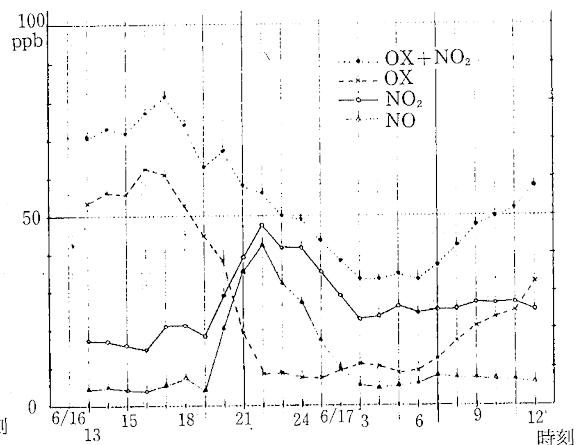


図5 6月16日～17日の窒素酸化物等の経時変化

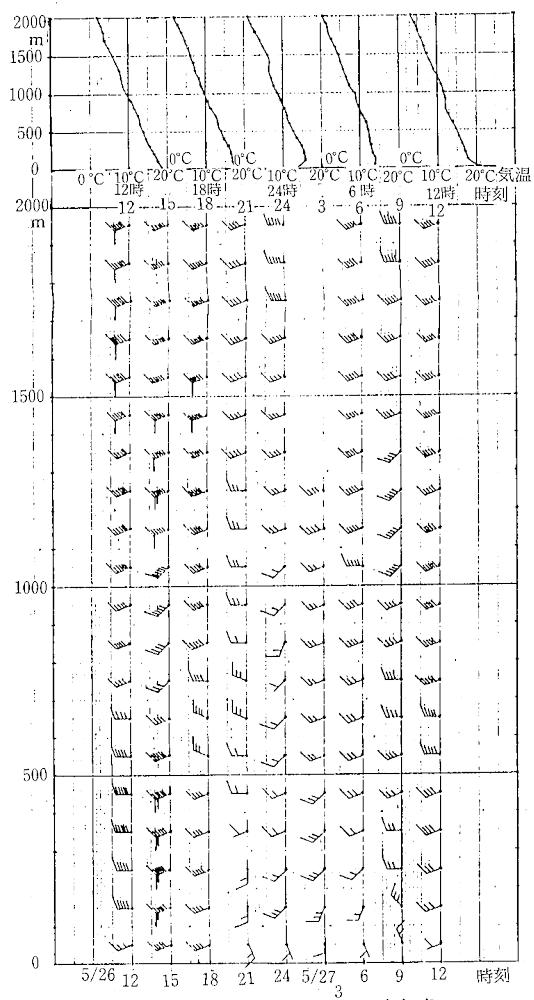


図7 5月26日～27日の上空気象

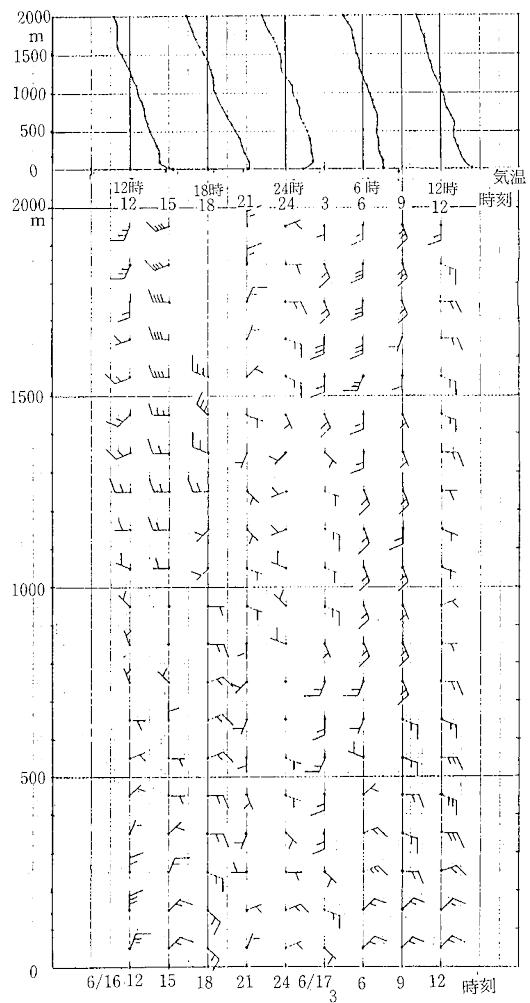


図8 6月16日～17日の上空気象

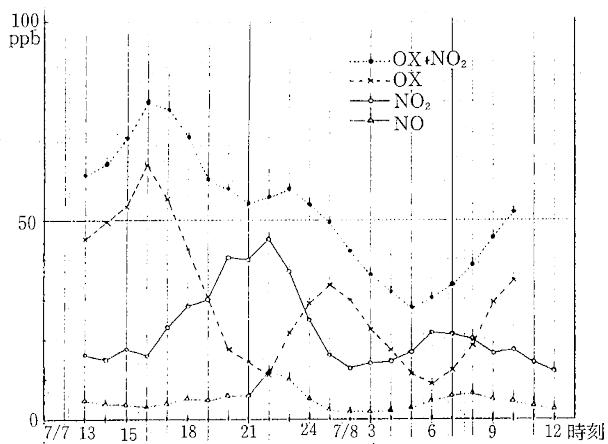


図 6 7月7日～8日の窒素酸化物等の経時変化

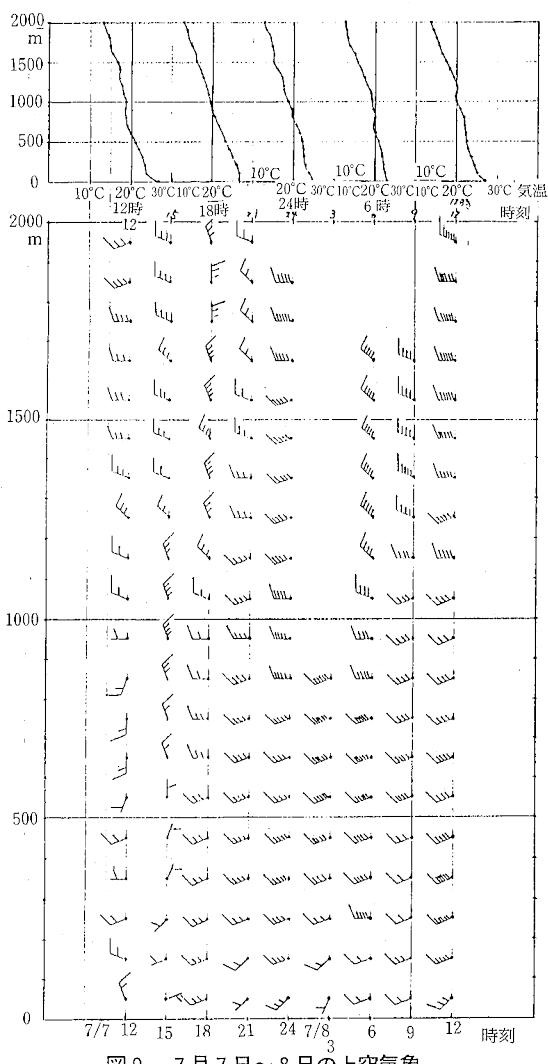


図 9 7月7日～8日の上空気象

混合層内のNO₂やOX等の量が少なかったものと推定された。

7月7日～8日は、21時までは地上では風が弱かった。しかしその後風が強くなり、四電の気温の逆転は18時～22時に起こりその後解消し、低層ゾンデでは18時に逆転していたが24時には、解消していた。17時～22時頃まではNO₂の濃度が増加しOXが急に減少したが、その後NO₂が急に減少しOXが増加した。

この結果から、風が強くなると接地逆転層が解消し、NO₂は低くなり上空の消費されていないOXが流入してOXが増加することが示された。

この3日間の気象と汚染の状態から、表5に示す条件が推定でき、6月の調査時のように夜間の条件は揃っていても、昼間にNO₂とOXの合計量が多くなければ、特に高濃度にはならないことがわかった。

表5 調査日の状況と高濃度の条件

	昼			夜	汚染質濃度
	上空との 気温差	上層の 風速	日照		
5月26日～ 27日	大	強	有	無(四電) 24時～6時 (ゾンデ)	低い
6月16日～ 17日	大→中	弱	有	22時～4時 (四電) 18時～6時 (ゾンデ)	少し高い
7月7日～ 8日	小	中→強	有	18時～22時 (四電) 18時 (ゾンデ)	少し高い →低い
高濃度の 条件	小	弱	有	18時以前 から有 (ゾンデ)	
高濃度時 の状態	NO ₂ とOXの合計量の增加			NO ₂ 急増	

3. NO₂濃度経時変化の解釈

NO₂の高濃度は夜間の接地逆転層の形成時刻と、昼間の混合層内のNO₂とOXの合計量が重要であることがわかった。またNO₂とOXの合計量は蓄積することも考えられた。そこで図3の平成4年のNO₂の日変化で、拡散が良く低濃度であった5月30日から、4年では高濃度になった6月5日までの7日間の経時変化を詳細に調査した。

NO₂とOXは両項目とも測定を行っている8監視局の平均を用い、風速及び気温差は四電の測定値を用いた。調査結果は図10のとおりである。

毎日の変化の特徴は、5月30日は上空に寒気を伴った低気圧が通過し、風もやや強く接地逆転は形成されにくかったと考えられ、NOはほとんど無く夜のNO₂の増加及びOXの減少も幅が小さかった。

31日は風は弱くなつたが、接地逆転層の形成は遅く、NO₂は少し増加しただけであった。

6月1日は17時頃から風が弱くなり、接地逆転層が形成され、2日朝までこの状態が続いた。NO濃度は高くなり、NO₂は急増しOXは急減した。NO₂+OXの量は13～20時まではほぼ一定で推移し、21時22時は高くなりその後6

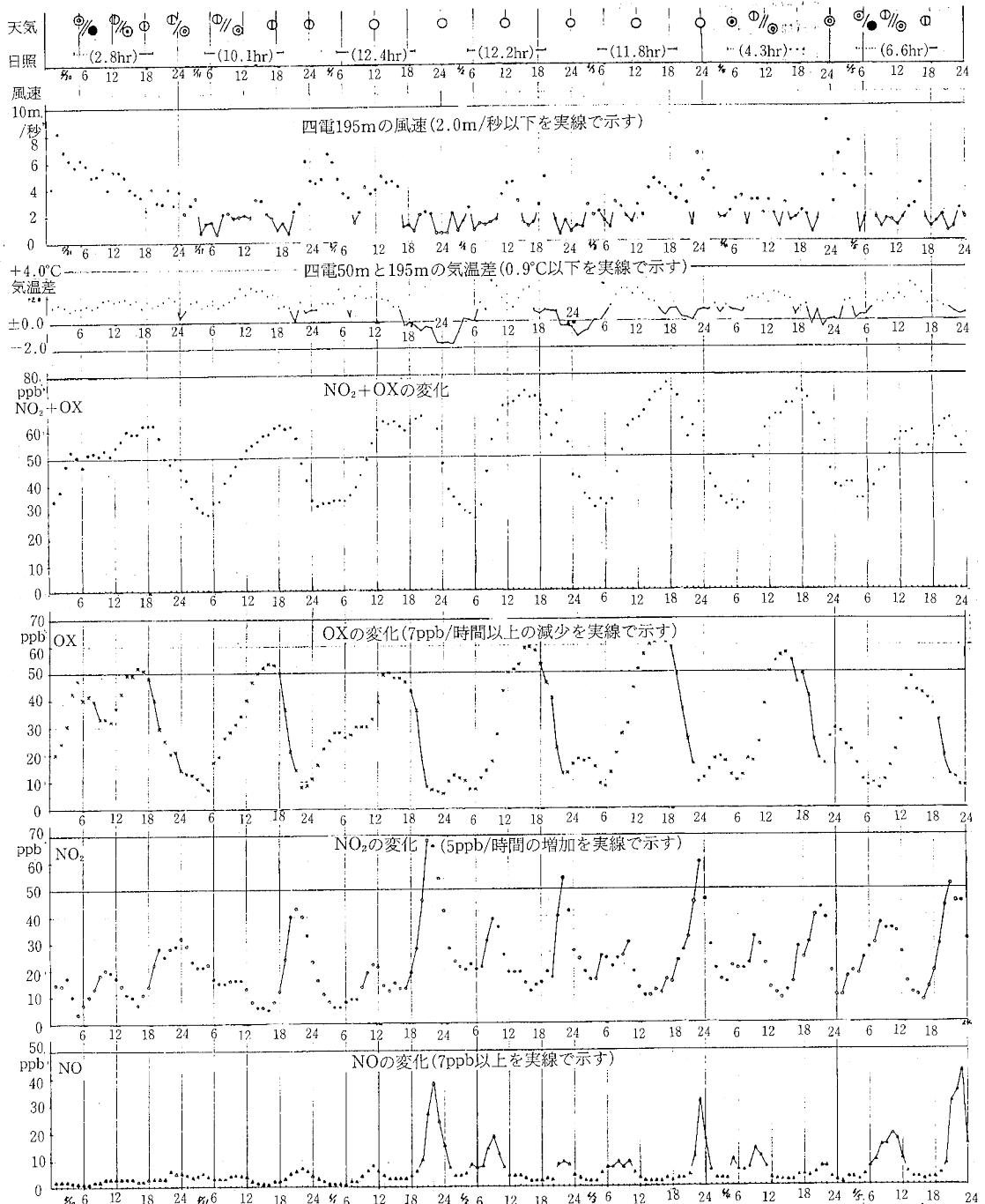


図10 5月30日～6月5日の汚染質及び気象の経時変化

時まで減少した。

2日の夜は1日とほぼ同様な気象状態であったが、NO₂は1日程高濃度にはならなかった。18時～19時に風が少し強かったことから、この間に接地逆転層が形成されなかつたためと考えられ、NOが高濃度にならないことからもこのことが示されている。この時間帯は夜遅くより車などの負荷量が多いと考えられ、この時間帯の接地逆転層の有無が、その後のNO₂濃度に影響することが示されている。

3日も1日からほぼ同様な気象状態であり、午後のNO₂+OXの量は多くなった。またOXも最も高濃度になり汚染質が蓄積してきていることが示されている。しかし風が強いため接地逆転の程度が弱く、夜間のNO₂の急増は1日より小さかった。この日は最も汚染質が蓄積している事から、1日の夜の気象状態であれば最もNO₂が高濃度になったと推定された。

4日は朝は霧で昼は晴れたり曇ったりで日照は少なく、NO₂+OXの量はほぼ同じであったが、OXはやや下がっていた。そこでNO₂の夜間の増加は少なかったが、日平均は変わらなかった。

5日は朝に弱い雨があり昼過ぎまで雲が多くなった。NO₂は午前中にやや高く夜の増加は少なかったが、日平均はほとんど変わらなかった。

7日間の経時変化をまとめると、NO₂+OXの量は7時から昼まで増加しその後20時頃まで横ばい状態で夜中から6時まで減少するという日変化を繰り返しながら、3日まで徐々に増加していた。4日はほぼ同じで5日は減少しした。これは汚染質の蓄積状況の指標になると考えられた。

つぎに夜間にNO₂が急増したのは1日で3日と2日もやや少ないが同様な傾向であった。この日の夜間、NO₂が急増した時にNO₂+OXの量が一時的に増加していた。夜間のNO₂の急増はNO+O₃→NO₂+O₂の酸化反応が重要⁷⁾とされており、この反応式であればNO₂+O₃は一定となり、増加したのは内陸側又は上空からOX等が接地逆転層内に取り込まれたものと考えられた。

又NO₂は31日以外の9時頃にOXに先行して少し増加している。これは混合層の発達に伴って上空から取り込まれたオゾンにより、NOが酸化されたものと考えられ、このことは鵜野ら⁸⁾によって報告されている。

ま と め

本県の春から梅雨期にかけて、沿岸部や島しょ部ではNO₂が夜間に高濃度になる。そこでNO₂・OX・NOの汚染質と気象の経時変化を詳細に検討したところ、次のことがわかった。

1. 4年度はNOは低濃度で、NO₂も高濃度になることは

少なかった。気温の接地逆転の時間数が少なく、前報の機構が確認できた。

2. NO₂が高濃度になるには、昼間は上空との気温差が小さいこと、上層風が弱いこと、夜間は地上風が弱く早い時間から気温の接地逆転が起こること、の三つの気象条件がある。

このような気象となった時、昼間に混合層内のNO₂+OXの量が増加し、夜間に接地逆転層内で排出されたNOが酸化され、NO₂が急増する。

またこのような気象状態が継続した場合、NO₂+OXの量は徐々に蓄積していく。

本県のNO₂高濃度の条件はこのことで説明できたが、春に同様に高濃度になる阪神間の自排局について池沢ら⁹⁾の報告では、10時～17時の日中の時間帯に高濃度になっており、汚染質の量も今後検討する必要があると考えられた。

お わ り に

この調査研究の実施に際し、多大の協力を頂いた坂出市役所、丸亀市役所、瀬居中学校、岩黒小中学校、与島開発総合センター、沙弥海の家、香川県下水道公社大東川事務所、丸亀市広島支所、丸亀市浄化センター、郡家公民館の方々に深謝いたします。

文 献

- 1) 西原幸一、瀬戸義久、岩崎幹男 他：香川県環境研究センター所報、16, 49 (1991).
- 2) 西原幸一、瀬戸義久、藤井裕士 他：香川県環境研究センター所報、16, 57 (1991).
- 3) 小木曾毅、近藤照明、金子正洋：第31回大気汚染学会講演要旨集、230、大気汚染研究協会 (1990).
- 4) 池沢正、鳥橋義和、森口祐一：第31回大気汚染学会講演要旨集、236、大気汚染研究協会 (1990).
- 5) 高松地方気象台：香川県気象月報
- 6) 木村富士男、相川光明：天氣、38, 315、日本気象学会
- 7) 環境庁大気規制課：窒素酸化物総量規制マニュアル、公害研究対策センター (1982).
- 8) 鵜野伊津志、若松伸司：大気汚染学会誌、27, 246、大気汚染研究協会 (1992).
- 9) 池沢正、森口祐一：大気汚染学会誌、28, 244、大気汚染研究協会 (1993).