

10 大気汚染広域立体調査

1. 概要

光化学スモッグに関する調査、研究の一環として、昭和48年度、一都三県（東京、埼玉、神奈川、千葉）による立体的な共同調査が前年に続いて計画された。本県もこの調査に参加し、フィールドにおける光化学スモッグの発生機構についての調査を実施して実態の一部を明らかにすることができた。

調査はヘリコプターに測定機器を搭載して、光化学スモッグの指標とされるオゾン濃度の高度別分布、水平飛行による広域的な水平分布を測定するものである。高度別分布の測定に際しては、多くの地点について測定し地域的な特徴を求めると特定地点について経時的な変化を測定して発生機構を追求する方法が考えられるが、本県ではヘリコプターの性能、経費などの関係から後者を選んだ。

＊ 本文は「光化学スモッグ広域立体調査報告書」（昭和49年3月、埼玉県公害センター）を要約したものである。

2. 測定方法

(1) 測定機器および測定項目

測定に使用したヘリコプター、測定機器は次のとおりである。

ヘリコプター	アルエットII型（東邦航空）
測定項目	測定機器
O ₃ （ケミルミ法）	紀本製
SO ₂ （溶液導電率法）	同上
NO _x （ザルツマン吸光光度法）	同上
HC（ガスクロFID法）	真空びんに採取後測定
気温（サーミスター）	

なお、SO₂、NO_xは測定方法が湿式で安定性、応答速度などの点に問題があるので解析では省略した。

(2) サンプリング

主な測定対象である O_3 は壁効果によって簡単に消滅するのでサンプリングに注意する必要がある。ヘリコプターではローターの影響を考慮する必要があり、また、飛行中に機外の大気を採取する場合も気流の乱れをさける必要がある。このため、サンプリングチューブ(テフロン $8 \times 1.0 \phi$)はヘリコプターのスキッド先端に固定した。その先端は飛行方向と反対の方向とし、さらに先端の周辺には小孔をあけて圧力変動を防ぐようにした。

(3) O_3 測定機の校正

O_3 測定機は2% KIを用いて校正した。しかし、上空で測定する場合にはケミルミチャンパー内の気圧低下の影響やサンプリング流量の変化などが考えられ、校正に影響を与えることが懸念される。このため、埼玉県堂平山(標高 $850m$ までの地点)および栃木県那須岳($1500m$ までの地点)の高所で O_3 の動的校正を行ない、気圧低下の影響を調べた。結果は図1に示すとおりである。外気圧と応答量の関係は O_3 濃度 $0.1ppm$ 以下ではバラツキはあるものの外気圧低下と応答量低下の傾向がおおむね一致する。しかし、 $0.15ppm$ 以上になると応答量の低下がやや小さくなる傾向がみられた。この結果から高度 $1500m$ 程度までは O_3 測定値に対して最大 -15% の補正を必要とすることがわかった。

(4) 高度別分布の測定

ヘリコプターによる高度別の測定方法として前年度は測定高度ごとに半径 $200m$ で5分間施回、測定する方法であった。しかし、今回はエンジン排気の影響を防ぐために図2のように、各測定高度で気流と直角方向にZig Zag型の飛行経路をとりながら風上側に進む方法に改めた。また、下降時は半径 $200m$ のラセン状に $200m/min$ で降下する方法とし、連続的な高度別分布を測定した。

(5) 水平分布の測定

広域的な測定を短時間に行なうにはヘリコプターのように飛行しながら連続測定する方法がよい。この場合、主風向と直角方向(Cross Wind)に経路をとる測定と風向に沿う経路(down wind)での測定が考えられる。本県ではSSWの風向のときの光化学スモッグ発生頻度が高いこと、またこの場合、地上では地域的な濃度差が東西でみられることからcross windの水平分布を求めることを主眼とし、down windの水平分布は当日の状況のみて実施することとした。cross windの経路としては県南部の県境付近を対象としてSSWに直角な線をひき、東京都保谷市、埼玉県川口市、千葉県流山市を結ぶ線とし、この間の高度 $300, 600, 1000m$ について O_3 濃度の水平分布を測定した。

3. 測定結果

調査は3日間を予定したが、天候待ちなどのため、延べ5日にわたった。ここでは紙面の都合で代表的な例についてのみ記述する。

(1) O_3 濃度の高度別分布(昭和48年7月25日)

埼玉県朝霞市上空における高度別分布の実測例を図3に示す。あらかじめ設定された測定高度は300, 500, 700, 1000mである。各高度でZig Zag飛行により測定した O_3 濃度とこれを補足するため上昇時、下降時の連続測定値をプロットして示した。前に述べたように、1地点の時間的な変化として高度別分布をとらえることを目的としたので、RUN-1~RUN-4はそれぞれ7時、10時、13時、16時前後における測定である。

RUN-1は、早朝で光化学反応がまだ十分行なわれず発生源活動も少ない時期の分布を求めたもので、全体的に O_3 濃度は低いが高高度700mに明瞭なピークの存在が認められた。RUN-2は光化学反応の初期にあたる10時の測定で、RUN-1にくらべ高度1000m以下で分布に大きな変化がみられた。すなわち、高度300mでは7時の測定値と比較して O_3 濃度は2倍以上に達している。しかし、7時にピークを示した高度700mや1000m付近での増加割合はそれほど大きくはない。もっとも顕著なことは測定中に大小の濃度変動がみられたことで、以後の測定においてもこの変動現象にはしばしば遭遇した。変動の大きさは O_3 濃度として5ppmにも達することがあり、長さのスケールに換算すると数10m~数kmに相当した。

RUN-3は本県において典型的な高濃度を示す時刻に相当するもので、活発な光化学反応の時期を対象としたものである。10時の測定とくらべ高度900m以下では変化が小さいが、1000m付近の高度での濃度上昇が大きく、1200m以上では急減している。また、濃度変動もRUN-2と同様に著しかった。反応がほぼ終わったとみられる時期のRUN-4では下層の濃度が減少し、高度1500mまでほぼ一様の分布を示し、濃度変動も少なく上昇時、下降時の測定値は再現性よく得られた。

なお、同時に観測した気温分布からみると、いずれの場合も高濃度層の上限に相当する高度には等温ないし逆転の強い安定層の存在が認められ、光化学反応と大気安定度が密接な関係にあることが明らかとなった。

(2) O_3 濃度の水平分布(昭和48年8月3日)

この測定では時速150km/hで前述の保谷一流山間を水平飛行し、高度300, 600,

1000mでの O_3 濃度の分布を求めた。測定は午前、午後の2回実施した。図4に測定結果を示す。

RUN-15は午前の測定で、高度300mにおいて流山市上空の濃度が低い。流山市から草加市に向かう途中では顕著な濃度上昇がみられ、草加-保谷間はほぼこの濃度が維持されていて変化は少ない。保谷市上空で高度600mに上昇した後の折り返しのコースでは濃度は全般的にやや高くなっており、特に流山市上空では高度300mにくらべて著しく増加している。流山市で高度1000mに上昇し、再び折り返したコースでの濃度は600mのときより低下し、ほぼ300mでの分布に近い。

RUN-16は同じ日の午後、同一コースを水平飛行したときの分布であるが、この日の光化学反応は強くなかったので O_3 濃度はそれほど高くなかった。しかし、午前中のRUN-15とくらべて明らかな変化が認められる。すなわち、流山市上空では高度300mでの濃度が高く、他の地域では変化が小さい。高度600mでは濃度はやや減少しているがほぼ高度300mと同じ傾向である。高度1000mでは流山市上空の濃度が高く、また、流山-草加市間には濃度の急減しているところがある。この日のデータでみる限り、流山、草加付近での O_3 濃度分布には特異な現象があるように思われる。

(3) O_3 濃度の水平分布(昭和48年8月3日)

保谷-流山市間の水平飛行を実施したあと、帰路のコースを変更して、保谷-東松山市間の高度300mを水平飛行した。このコースはそのときの大気の流れ方向に沿ったもので、 O_3 濃度は図5に示すように風下(北部)ほど漸増していることが明らかである。また、RUN-15では川越を過ぎて東松山に向かう途中の田園地帯で大きな濃度変動がみられた。このときの気温の観測値にはとくに目立った変化は認められなかったが、全般的には北部ほど気温が低下しており、このような O_3 濃度の変動現象は地表面温度やこれに基因する上昇気流、下降気流とも関連があるものと推測される。

(4) 炭化水素の成分分析

大気中の炭化水素の測定は、通常、全炭化水素または非メタン炭化水素を測定することにより行われているが、炭化水素の各成分は光化学的な反応性がそれぞれ異なるので炭化水素に起因する大気汚染問題は各成分を個々に測定してはじめて検討を行ない得るものと考えられる。今回はこの方法論の実験として、各調査時に採取した上空の大気について成分分析を行ない、各成分の分離技術の実用上の問題と、現有の分析技術で検出定量された各成分の推移と光化学反応の進行との関連性を見出せる程度の精度で求められるかの2点について検討

した。

分離測定の方法は、アピエゾン L を 7 m 充填したカラムに F I D をデュアルで用いた昇温 60°C で、液体酸素による冷却凝縮と温水による加熱導入を用いて、サンプルサイズは 300 μl (真空ビン使用) とした。

この方法によると、クロマトグラム S N 比 10 を定量の限界として n-ヘキサンで 4 ng となり、分離検出される 30 種前後のうち、10 数種の成分については充分に大気中の濃度の変動を測定できることがわかった。

しかし、充填カラムのため分離が完全でなく、ピークの同定に多少疑問の残る成分もあり、逆にそのような成分の方が特徴的な分布をしていることもあって、検出された成分のうち、イソブタン、n-ヘキサン、ベンゼン、メチルシクロペンタジエン(未同定)、n-オクタン、n-プロピルベンゼン等がオゾンの生成と参照して光化学反応過程のうえで注目されるとの知見が得られたに止まった。

4. まとめ

埼玉県は、その地理的位置から光化学反応に密接な関係をもつ風系や発生源の影響を受けやすい環境にあり、今回の調査でその実態の一部を明らかにすることができた。本調査結果をまとめると次のとおりである。

- (1) 埼玉県における光化学反応による O_3 の生成機構を高度別分布からみたとき、図 6 に示すモデルが考えられる。1 は早朝で日射が弱く 1 次汚染物質の量が少ないときで、 O_3 濃度は低く上下一様の分布である。2 は部分的に光化学反応がはじまり、濃度は大気安定層に対応した高度で高くなる。3 は日射や 1 次汚染物質質量が増加してやや活発な反応段階で、このときは地上でも濃度上昇が著しい。4 は反応の強い時期で地上から上空までの高濃度層が厚くなる。3, 4 の段階では濃度変動が著しい。5 は反応が終り、生成した O_3 が風に従って流れるだけの過程で地上濃度は下がり始めるが上空には濃度の高い層が残される。
- (2) 水平飛行に関しては地域的な変化が認められ、特に埼玉県東部方面で特異な分布が目立った。
- (3) O_3 濃度の変動現象をしばしば認めたが、この変動の大きさは反応の初期から終期にかけて著しく、光化学反応の強さに関係するものと考えられる。この変動は長さのスケールに換算すると数 10 m ~ 数 km であった。
- (4) O_3 濃度は内陸部ほど高い傾向がみられ、この現象は O_3 生成に時間を要すること、広域

的に1次汚染物質の新たな供給があることなどが原因と考えられる。

- (5) 光化学反応を解明する一手法として上空大気の炭化水素成分分析を行ない、各成分の変化から反応過程を研究する可能性について検討し、その一端を知ることができた。より詳細なことは今後の課題である。

図1 外気圧の低下と応答量低下の関係

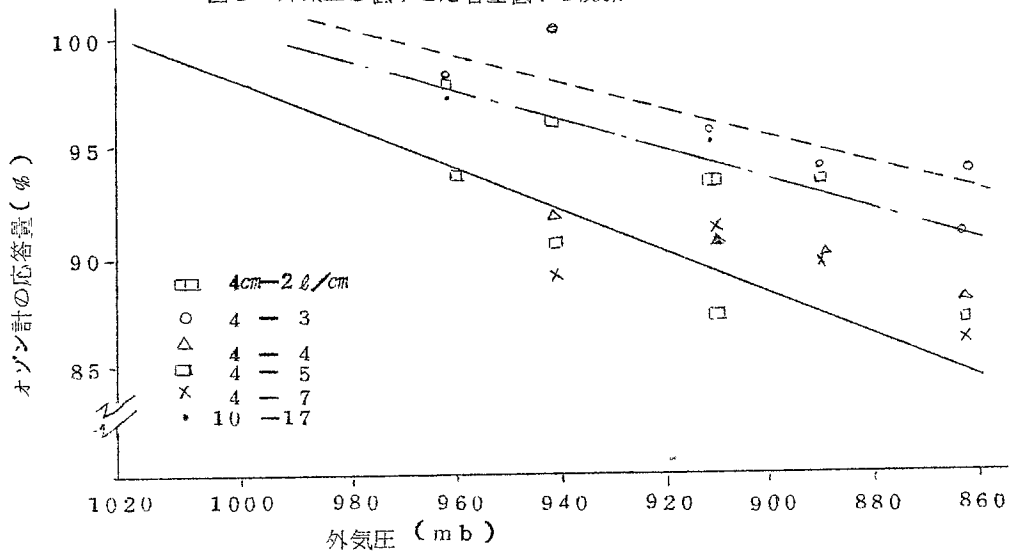
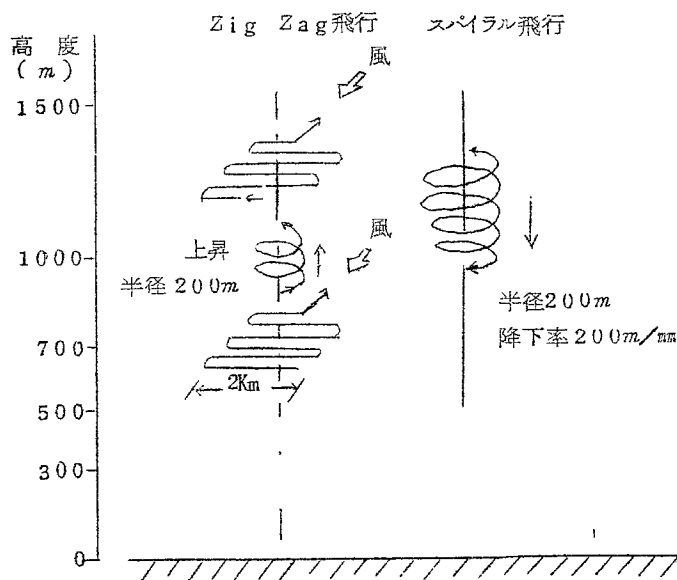


図2 高度別測定時の飛行方法



測定地点：朝霞市

7/25

RUN 1 ○ --- ○ 7:40~7:46

RUN 2 ● — ● 10:23~10:28

RUN 3 △ — △ 13:22~13:28

RUN 4 ▲ - - - ▲ 16:26~16:32

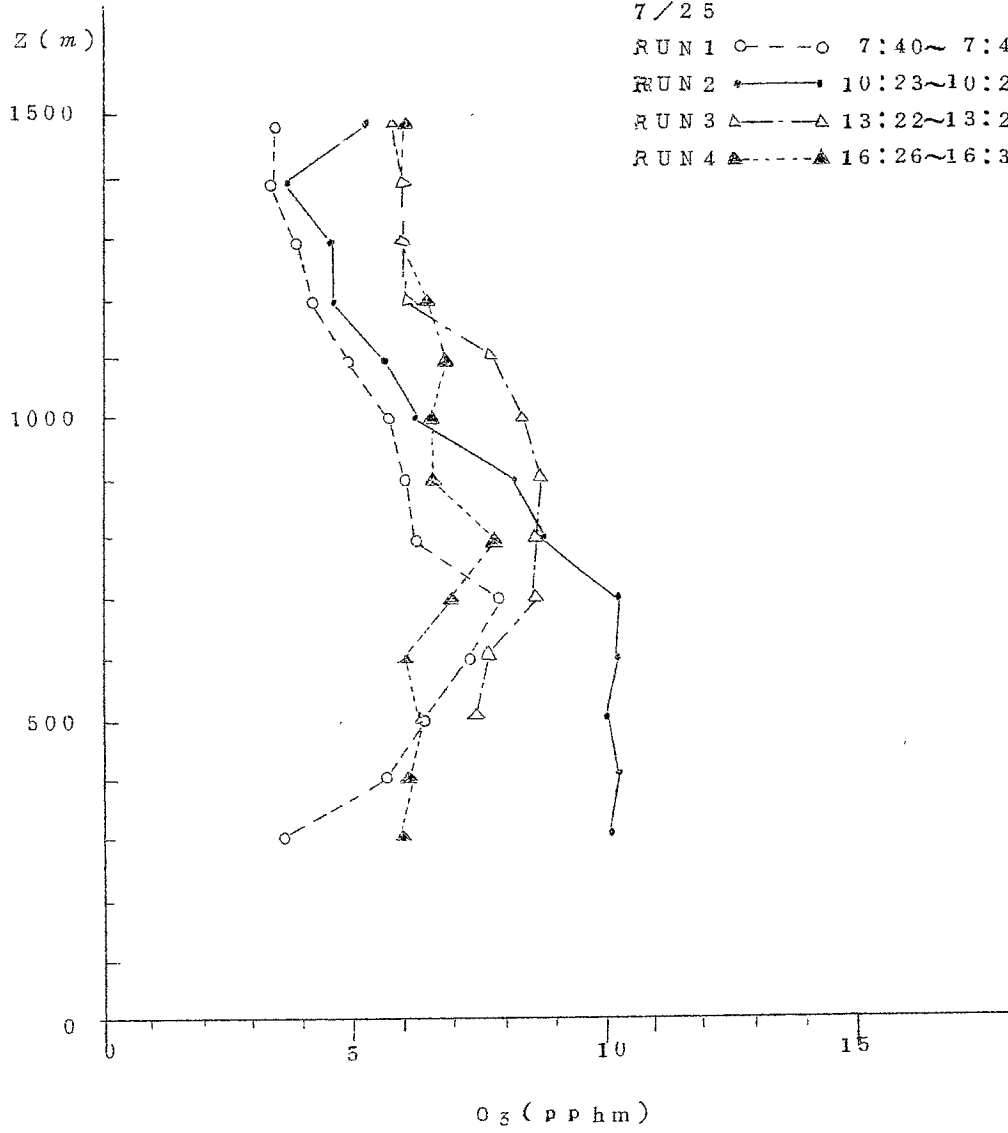


図3 O₃濃度の高度別分布

46
28
28
32

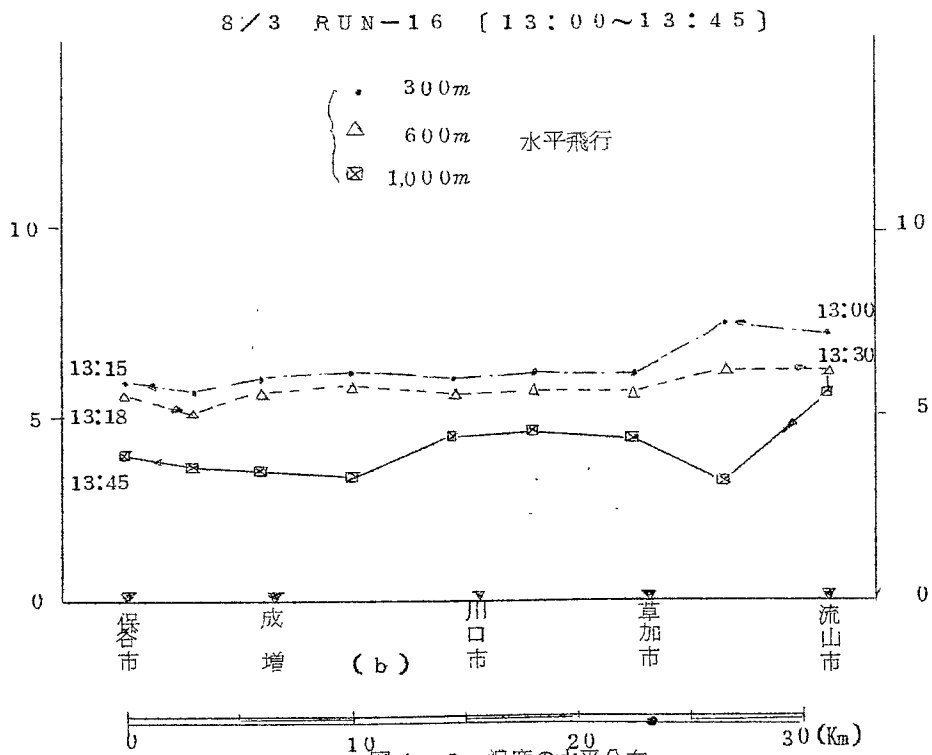
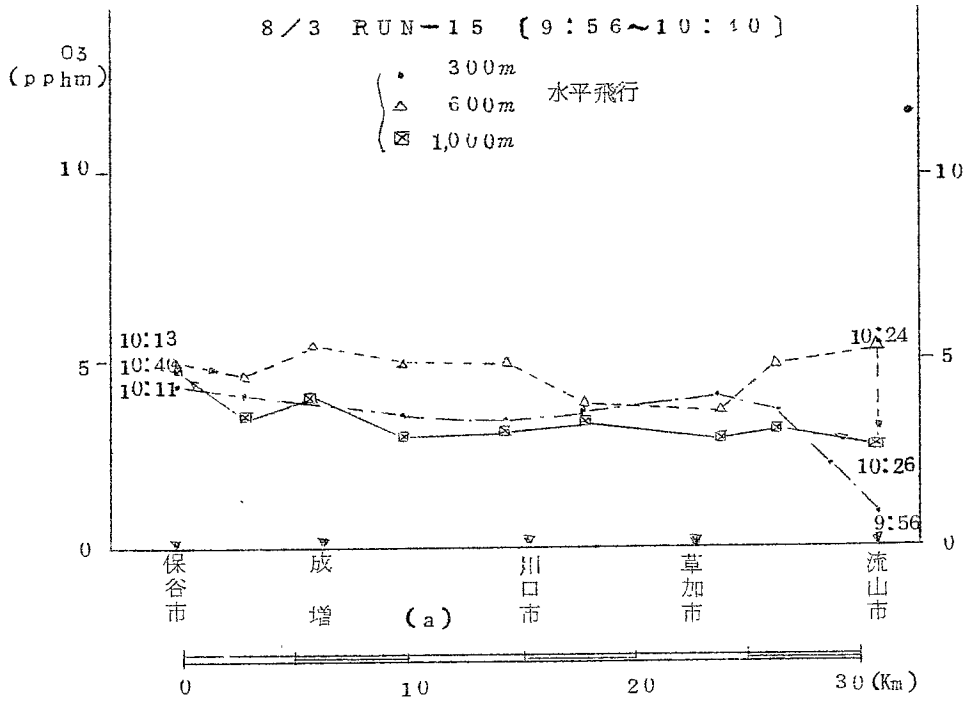


図4 O₃濃度の水平分布

8/3 RUN-15. 16 [AM/P.M.]

高度 300m
 { ° RUN-15 10:44~10:58(AM)
 △ RUN-16 13:49~14:02(RM)

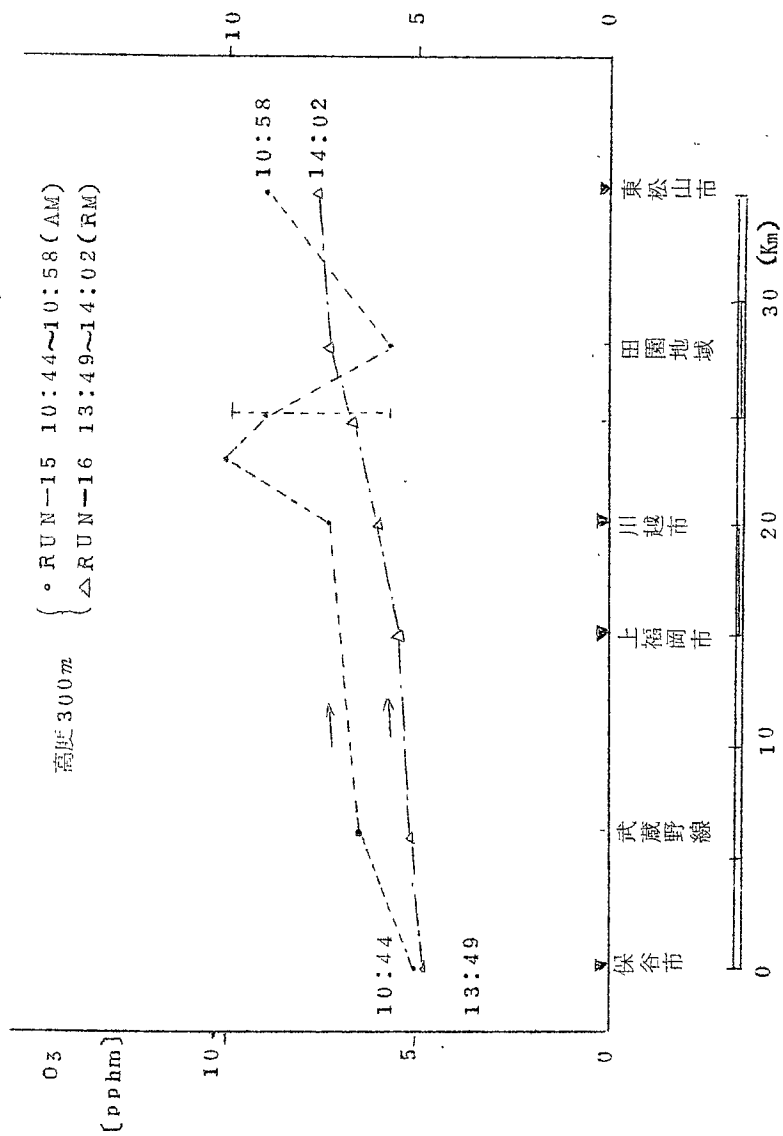


図5 O₃濃度の水平分布

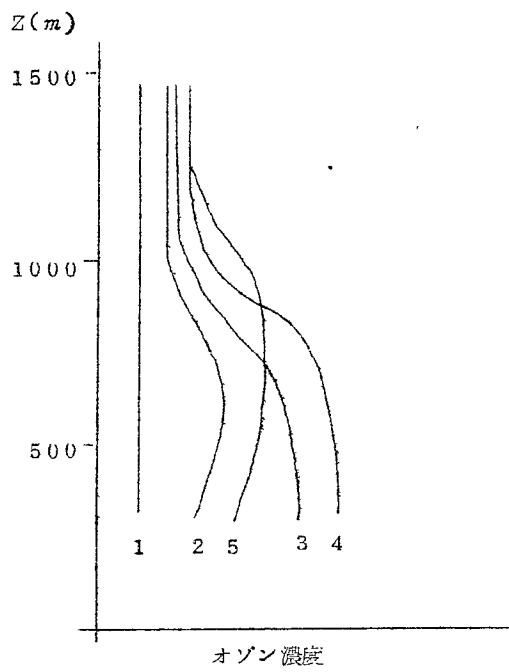


図6 オゾン濃度の高度別分布からみた生成機構モデル