

# 揮発性有機化合物の上空における濃度分布

## Distribution of Volatile Organic Compounds over Saitama Prefecture

竹内庸夫, 唐牛聖文, 植野 裕

Tsuneo Takeuchi, Masafumi Karaushi, Yutaka Ueno

### 1 はじめに

当所では、フロン類を始めとした様々な揮発性有機化合物に関する調査を地上の数地点で継続して実施している。その結果、経年推移、季節変動、地域特性等が明らかになってきた<sup>1,2)</sup>。大気中の汚染質は地上の発生源から排出され、拡散されながら、移流、変質、分解していくが、その過程を把握するために上空の大気調査をすることは有意義であると考えられる。そこで、1994年からヘリコプタ等を使用した調査を実施し、上空における揮発性有機化合物の濃度分布について検討してきたので、その結果を報告する。

### 2 方法

#### 2・1 調査時期及び調査地点

調査時期及び飛行ルートを表1に、試料採取地点を図1に示す。第2回のみセスナ機を、それ以外はヘリ



図1 試料採取地点

表1 上空調査の時期及び飛行ルート

回数	調査時期	飛行ルート及び試料採取高度
1	1994年8月17日	大宮(300,600,900m) → 熊谷(300,600,900m) → 栗橋(500m) → 上里(500m)
2	1997年2月4日	浦和(地上,300,600,900,1200m) → 鶴ヶ島(300m) → 東秩父(1200m) → 熊谷(地上,300,600,900,1200m) → 桶川(300m)
3	1997年8月1日	浦和(地上,300,600,900,1200m) → 鶴ヶ島(300m) → 東秩父(1200m) → 熊谷(地上,300,600,900,1200m) → 騎西(300m) → 桶川(300m) → 浦和(300m)
4	1998年2月26日	浦和(地上,300,600,900,1200m) → 熊谷(地上,300,600,900,1200m)
5	1998年8月25日	浦和(地上,300,600,900,1200m) → 東秩父(1200m) → 熊谷(地上,300,600,900,1200m)
6	1999年2月15日	浦和(地上,300,600,900,1200m) → 東秩父(1200m) → 熊谷(地上,300,600,900,1200m)
7	1999年10月5日	浦和(地上,400,800,1200m) → 東秩父(1200,1600m) → 熊谷(地上,400,800,1200,1600m)

「地上」にはヘリコプタによる約10m高度での採取を含む  
第7回の熊谷における1600m高度は深谷で採取

コプタを使用し、いずれも13:30から15:00の間に飛行して大気を採取した。試料採取地点のうち東秩父は山間部であり、堂平山の山頂付近で調査した。ここは山頂の標高が876mであるので、1200m高度とは地上から約300mに相当する。

## 2・2 調査方法

第1回から第3回までは地上で行っているフロン類の調査方法<sup>2)</sup>により測定した。内容積2ℓのステンレス製真空ビンを用い、ヘリコプタ等の窓から約70cm外へ出したテフロン管を通して上空の大気を導入した後、ガラス製注射筒で加圧採取した。その後、液体酸素により冷却濃縮し、GC-ECDで分析した。分析成分は、CFC11, CFC12, CFC113, 1,1,1-トリクロロエタン、四塩化炭素、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンである。

第4回以降は地上における有害大気汚染物質調査の一環として揮発性有機化合物を調査している方法<sup>3)</sup>を準用して測定した。採取口にメンブランフィルタを装着した内容積6ℓのキャニスターを用い、真空からその高度における常圧近くまで約2分間で大気を採取した。その後、窒素ガスで加圧希釈し、液体窒素により冷却濃縮してGC/MSで分析した。分析成分は、それまでの物質に、塩化ビニルモノマー、1,3-ブタジエン、ジクロロメタン、アクリロニトリル、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン、キシレン(o-, m-, p-各異性体の総量)及びプロモメタンを加え、さらに第6回からはHFC134a及びHCFC22を追加した。

## 3 結果

### 3・1 気象状況

大気汚染常時監視測定局の測定データから求めた調

査時間帯の地上における気象状況を表2に示す。第2回は晴天ながら一日中10m/sを越す強風が吹き続いていた。第3回は熊谷で視程が悪く、1200m高度では目視によりスモッグの境界面が確認できた。第4回は調査前日まで数日間降雨が続き、当日も1000mより上空では雲が多かった。第7回は1200m以上の上空で雲が多く、予定していた1600m高度での試料採取に制約を受けた。

第5回以降はヘリコプタ付属の温度計により試料採取高度における気温を計測したので、その結果を図2に示す。第5回(1998年8月)の浦和における1000m程度、第7回(1999年10月)の浦和と熊谷における1000m程度及び東秩父における1400m程度の高度で温度減率が低く、安定な大気層の存在が確認できた。

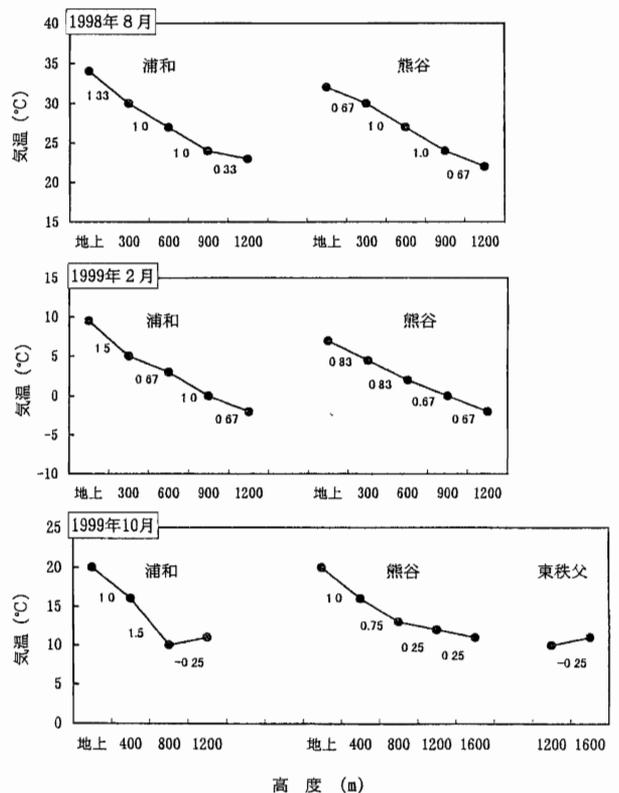


図2 気温の高度変化

図中の数値は温度減率(°C/100m)を表す。

表2 地上における気象状況

回数	1		2		3		4		5		6		7	
調査日	1994.8.17		1997.2.4		1997.8.1		1998.2.26		1998.8.25		1999.2.15		1999.10.5	
天候	晴れ		晴れ		晴れ		くもり		晴れ		晴れ		くもり	
地点	浦和	熊谷	浦和	熊谷	浦和	熊谷	浦和	熊谷	浦和	熊谷	浦和	熊谷	浦和	熊谷
風向	S	ESE	WNW	WNW	S	SE	NNE	NNW	S	ESE	SW	E	E	SSE
風速m/s	3.5	2.5	12.1	5.6	3.4	1.4	2.7	1.0	3.5	2.2	1.5	1.8	1.9	1.7
気温 °C	36.0	35.0	7.5	6.3	33.6	34.1	11.1	11.4	33.6	34.5	9.6	8.6	20.1	21.3
湿度 %	34	51	26	33	59	49	55	60	44	48	27	31	52	53

### 3・2 フロン類の上空における濃度分布

CFC11, CFC12, CFC113, 1,1,1-トリクロロエタン及び四塩化炭素については毎回調査を実施し、代替フロンであるHFC134a, HCFC22及びくん蒸剤として使用されているプロモメタンは途中から追加して測定した。また、トリクロロエチレン及びテトラクロロエチレンについても毎回継続して測定しているため、フロン類と対比してここでまとめた。

浦和、熊谷等で高度別に試料採取した結果を図3に示す。CFC11, CFC12, CFC113及び四塩化炭素は、1998年2月にCFC12が上空600mで濃度が高くなっているほかは大きな変化がなく、1998年8月以降は高度によらず一定の濃度になっている。1,1,1-トリクロロエタンは1997年2月までは熊谷において上空が低濃度になる傾向が見られたが、それ以降はフロンと同様にほぼ一定濃度になっていた。これらの物質は大気中における寿命が長く安定なので、生産が全廃されて排出量が減少したことにより、立体的に均一な分布をするようになったものと考えられる。

トリクロロエチレンとテトラクロロエチレンでは、特にトリクロロエチレンがしばしば地上または低空において高濃度になっており、近傍での排出が推定できる。これらの傾向は地上において継続して実施している調査結果<sup>2)</sup>と一致する。また、HFC134aとHCFC22は、最近の1999年10月の調査で上空ほど濃度が低くなる傾向が認められたが、プロモメタンは各高度とも濃度が低いため、傾向が確認できなかった。

つぎに、同一高度における地点間の濃度変化を図4に示す。このうち、1994年8月のものは栗橋と上里の500m高度を大宮と熊谷の600m高度と比較した。1994年8月には地点間の差が顕著に認められたが、1997年2月以降は濃度差が小さくなっていた。しかし、トリクロロエチレンとHCFC22はしばしば地点間でばらつきが見られ、局地的な排出があると考えられる。

### 3・3 揮発性有機化合物の上空における濃度分布

3・2で述べたフロン類以外の揮発性有機化合物の高度別濃度変化を図5に示す。ジクロロメタン、ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン及びキシレンは地上における濃度が高く、概ね上空ほど低濃度になる傾向が見られた。濃度が大きく低下する高度は温度減率が低下する高度とほぼ一致していた。温度減率が0.4℃/100m以下となる高度より上空では最も高濃度であるト

ルエンでも1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下の低い濃度となり、地上発生源からの影響があまり及ばないと考えられる。地上における濃度が1  $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下である物質では、高度による濃度変化が顕著ではなく、1,3-ブタジエンが概ね高度が高くなるほど低濃度になっている程度であった。しかしながら、1,3-ブタジエンが1999年2月に1200m高度で著しく濃度が上昇していたこと、アクリロニトリルが600m程度の高度で数回濃度が上昇していたことなど、特徴的な現象も見られた。これらの現象が現れたのは、いずれも調査した高度の範囲では上空まで安定な大気層が存在しないときであり、以前に排出された高濃度気塊が上空に達したものと考えられる。

つぎに、同一高度における地点間の濃度変化を図6に示す。多くの物質で地点間の大きな濃度差が認められ、低空と上空で濃度差が逆転するものもあった。このことは、地上からの局所的な排出の多さを示唆するものである。

また、地上における継続調査では山間部である東秩父は都市部である浦和及び熊谷よりこれらの物質の濃度が低いが、同一高度で比べるとあまり差が見られなかった。東秩父で観測される濃度の低さは、発生源からの距離に加えて、その標高も大きく影響していると考えられる。

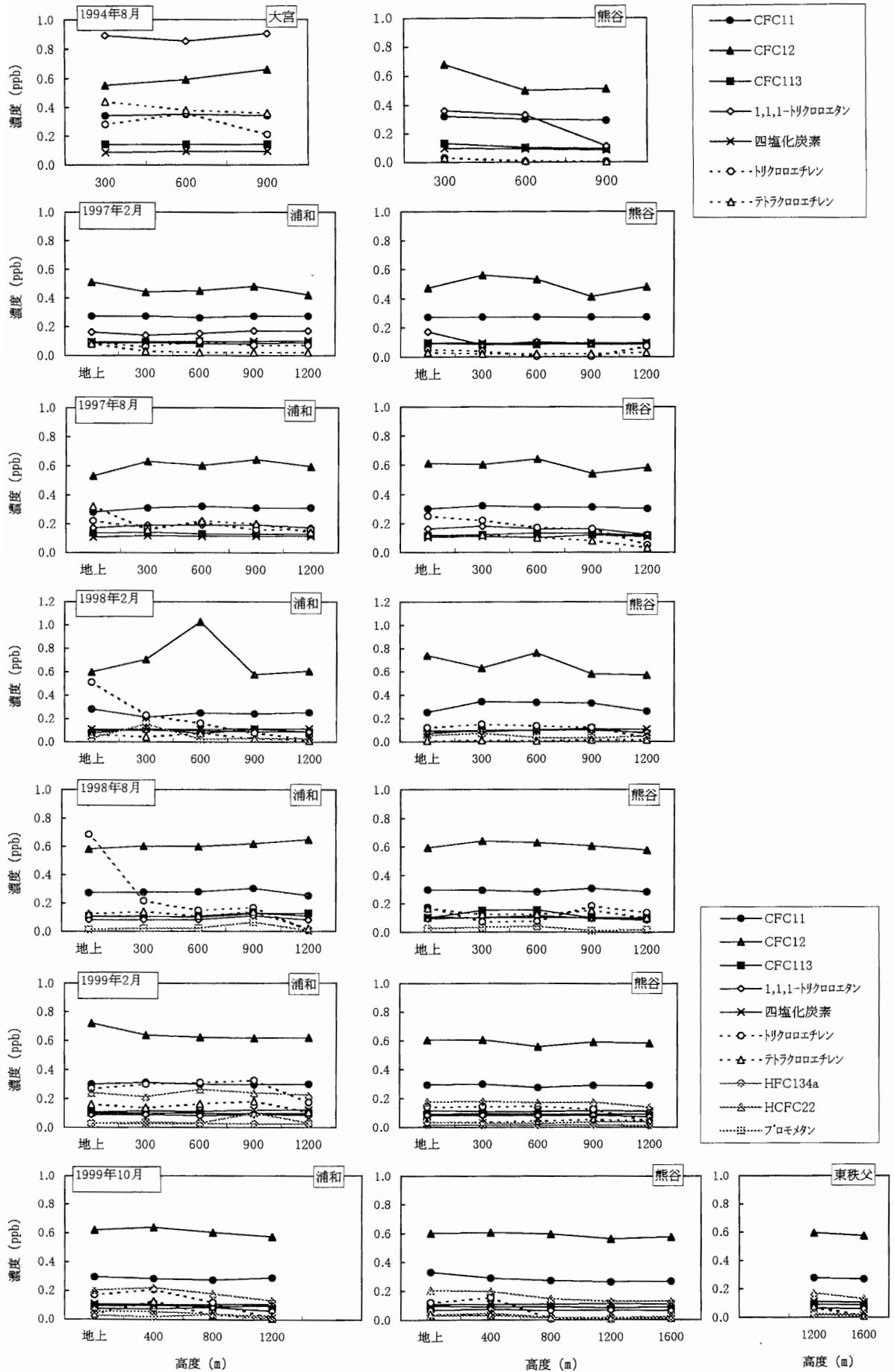


図3 フロン類濃度の高度変化

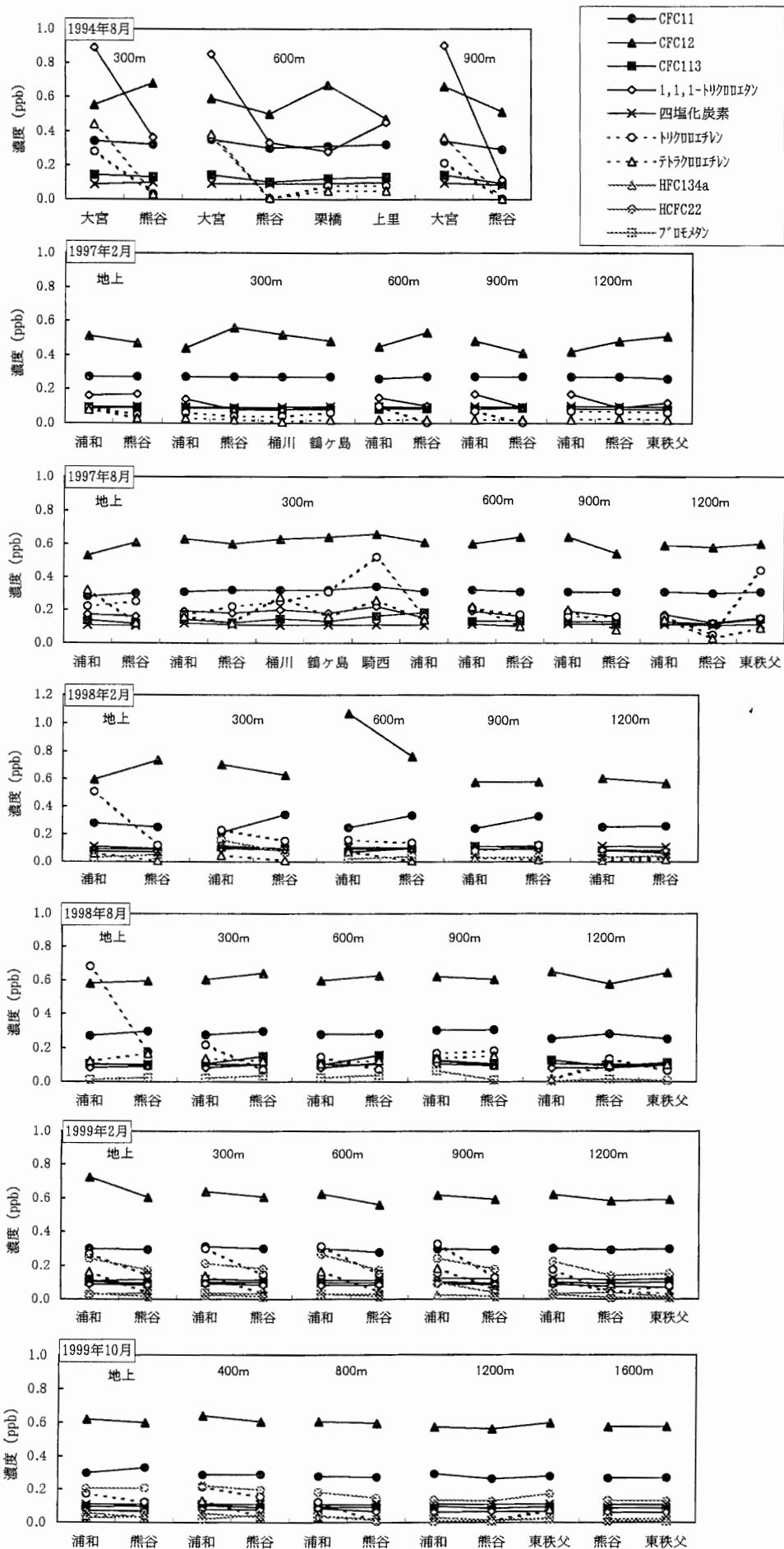


図4 フロン類濃度の高度別地点比較

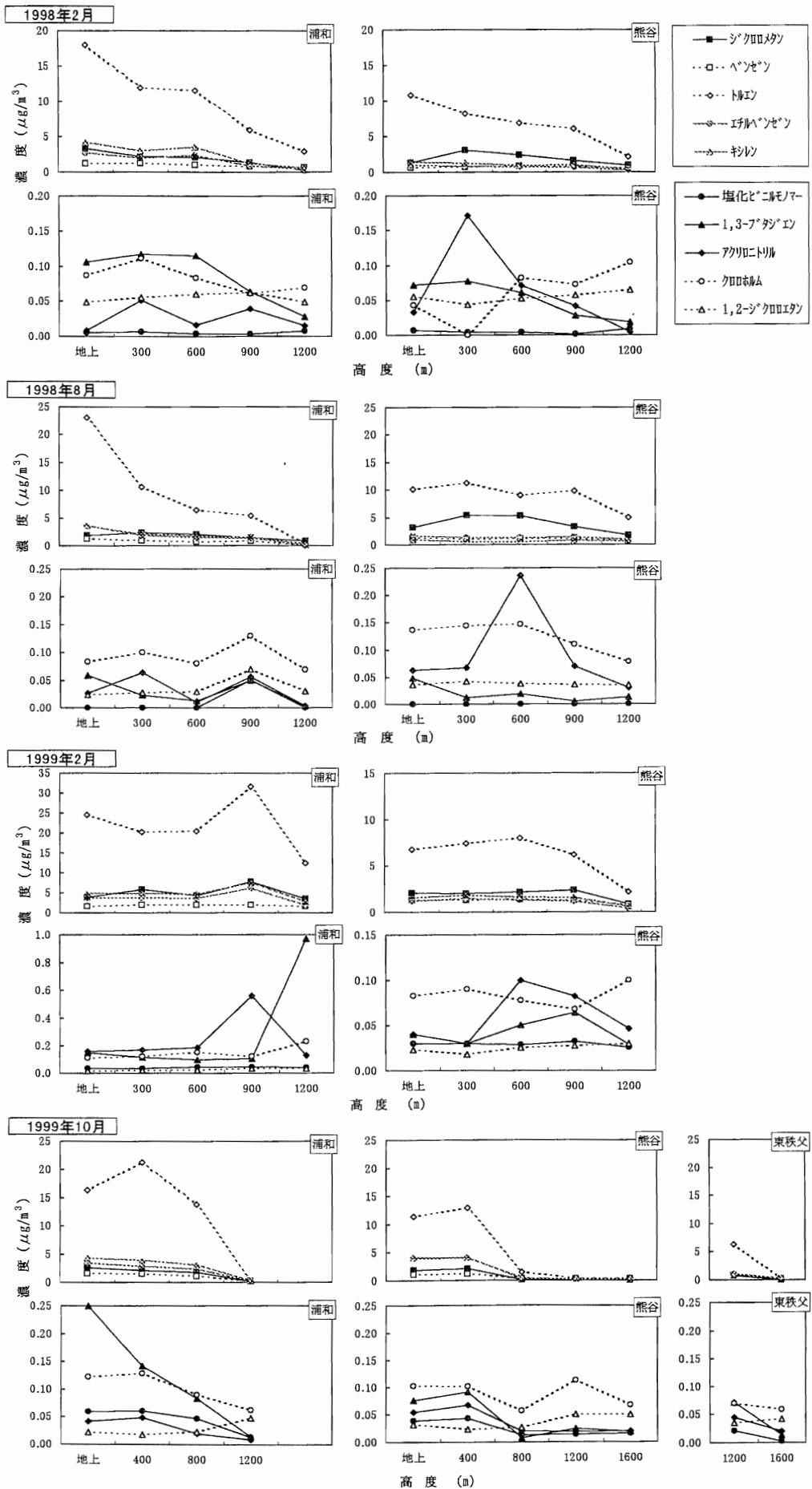


図5 揮発性有機化合物濃度の高度変化

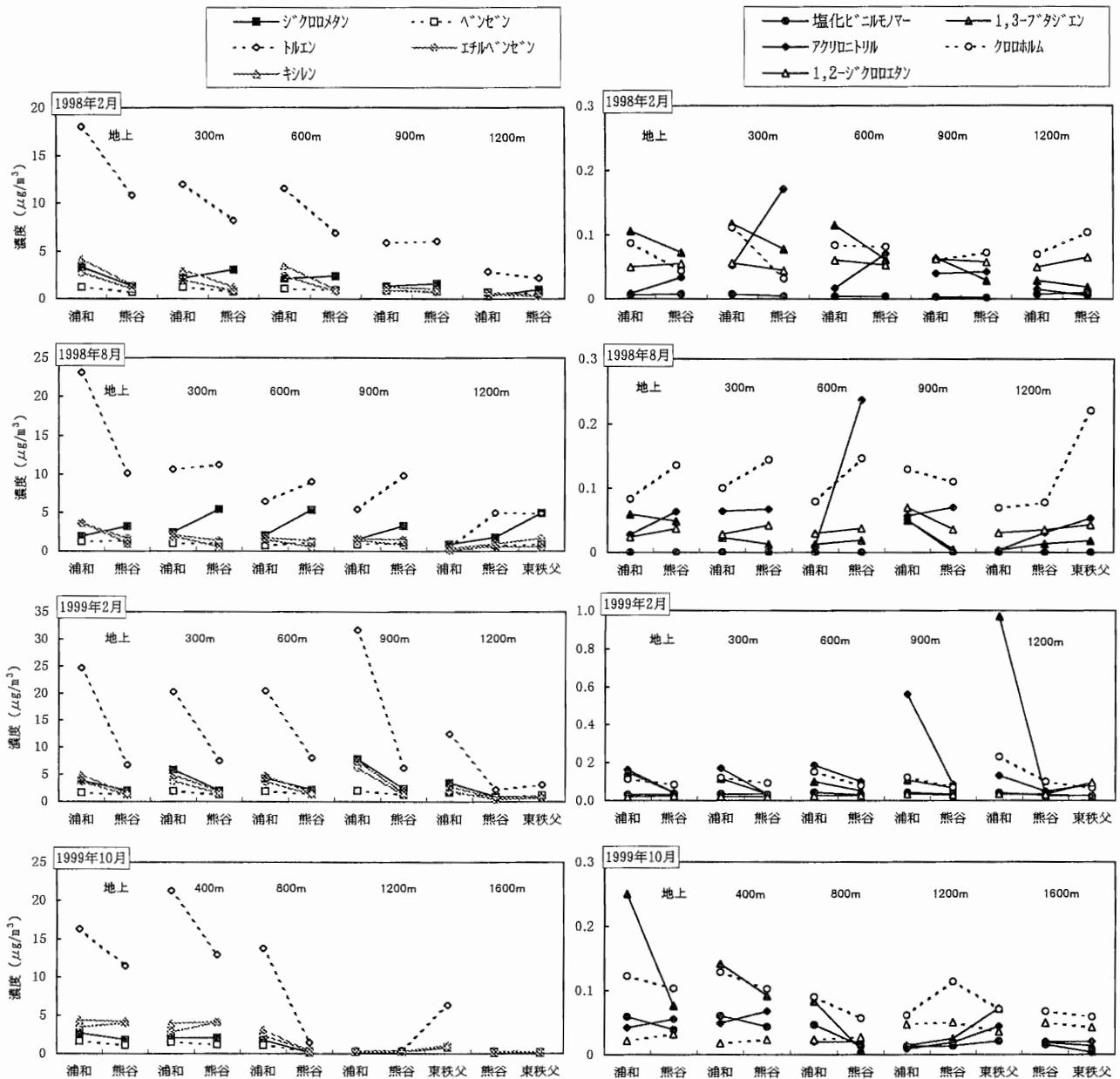


図6 揮発性有機化合物濃度の高度別地点比較

#### 4 おわりに

ヘリコプタ等を使用して、埼玉県上空で揮発性有機化合物の濃度分布を把握する調査を行った。

その結果、フロン類のうち1995年に生産が全廃された物質については、脱フロン対策の効果が現れており、最近では立体的に均一な濃度分布になっていることが分かった。しかし、トリクロロエチレンは地上での排出量が多いと考えられる高度分布が確認でき、これらのことは地上における継続調査の結果と同様であった。また、代替フロンも上空より地上で濃度が高い傾向が認められた。

フロン類以外の揮発性有機化合物では、ジクロロメタン、ベンゼン、トルエン、エチルベンゼン及びキシ

レンなど排出量の多いと考えられる物質の濃度が地上で高く、上空ほど低下する傾向が認められた。これらの物質は、特に温度減率が $0.4^{\circ}\text{C}/100\text{m}$ 以下となる高度より上空では極めて低い濃度になることが分かった。

#### 文献

- 1) 竹内庸夫ら：埼玉県における大気中フロン類の挙動，埼玉県公害センター研究報告，〔20〕，26-33，1993.
- 2) 竹内庸夫ら：大気中有機塩素化合物の推移，埼玉県公害センター研究報告，〔23〕，7-13，1996.
- 3) 環境庁大気保全局大気規制課：有害大気汚染物質測定方法マニュアル（平成9年2月），20-30，1997.