

大気中メタン濃度の挙動について

増田 恵子 中野 欣嗣

1. はじめに

当研究所で行っている非メタン炭化水素連続測定から、しばしば高濃度メタン現象の記録が得られたため、都区内の他の地点での炭化水素測定結果と合わせて報告する。

メタンは光化学反応には寄与が少ないとされている安定な物質であるが、反応性のある非メタン炭化水素測定の際に全炭化水素中に含まれているため、環境基準を全炭化水素で設定する場合や、今までの全炭化水素計での測定値を整理する場合に影響を与えると考¹えられる。また、光化学反応との関係は少ないとしても、高濃度では単独でも別の影響が出てくるのではないかと考えられる。これらの理由からメタンの高濃度現象を取り上げてみた。

2. 測定およびデータ

当研究所の測定は、炭化水素連続測定器 (Beckman Model 6800) で行った。サンプリングは、1974年5月から1975年5月までは当研究所1階東北隅の建物外に内径8mmのテフロン管を長さ約1mを出して外気を導入し、1975年5月以降は当研究所屋上から内径8mm長さ約20mのテフロン管で導入した。そして急激な濃度変化を緩衝するために、パイレックスガラス製の3ℓびんのトラップを介し、試料を測定器とバイパスして2ℓ/minの流量でダイヤフラムポンプで引いた。その際、測定器の計量管には約100ml/minで試料が流れ込み、それを5分間隔で測定し、全炭化水素(THC)、メタン(CH₄)、一酸化炭素(CO)のデータを得た。また1975年5月以降は、炭化水素連続測定器 (APHA-501 堀場製作所) や非メタン直接連続測定器 (HCM-3 A島津製作所) も同時に運転した。

江戸川と世田谷測定室のデータは、1974年5月から10月まで東京都公害局企画部で行った炭化水素濃度測定調査の結果を用いた。これは都内4地点で炭化水素連続測

定器 (Bendix 8201 紀本電子) を使用して行われた委託調査である。この都内4地点の中には公害研究所屋上も含まれているのでこの結果も使用したが、公害研のデータ解析には主に Beckman 6800 によるものを使用している。なお Bendix による測定では、試料導入は4地点ともトラップを介することなく直接行った。表1に測定方式についてまとめた。

3. 測定結果と考察

以下に、メタン高濃度現象の出現の様子を述べる。

図1-Aおよび1-Bは、高濃度メタン出現時の炭化水素連続測定器のチャートである。Aは Beckman 6800 によるものであり、Bは APHA-501による。両者とも当研究所において同時刻に得られたものである。これより高濃度現象に現在までは少なくともa、bふたつの型があることがわかる。aでは気象データなどで拡散係数を求めれば、メタンピークの時間的拡がりより発生源からの距離が求められるであろう。しかし拡散係数を求めるのが困難であるため、ここではそれは試みていない。bはメタンピークの立ち上がりが急であることから、bの型の現象は発生源がかなり近くにあると推定できる。a、bの型の出現割合は計算していないが、bは少ない。

表2はメタンの高濃度現象の割合を計算したものである。メタン濃度1時間平均値250pphm以上をメタン高濃度現象とすると、江戸川においてはそれは総測定時間数の4.7%であり、公害研においてもその割合は約4%であった。以下ではメタン1時間平均値250pphm以上を高濃度現象と呼ぶことにする。

図2は、江戸川、公害研、世田谷におけるメタン濃度の日変化パターンとそれぞれの地点における測定期間中の1時間最高値を示している。このデータには3地点の比較のためすべて Bendix 8201 によるデータを使用した。この日変化図は24時を中心にして描かれている。この図よりメタン濃度は、江戸川においては夜から朝にか

表1 各地点の測定

| | Bendix 8201 | Beckman 6800 | APHA-50 | HCM-3A |
|-----|---|--|---|---|
| 公害研 | 1974.5.~10. 委託調査 トラップなし 5min/cycle | 1974.5.~10. 1975.4.~9. トラップあり 5 min/cycle 採気 1975.5まで1階から 1975.5より屋上から | 1975.5.~9. トラップあり 2 min/cycle 授気屋上より | 1975.6~8. トラップあり 10 min/cycle 採気屋上より |
| 江戸川 | " | — | — | — |
| 世田谷 | " | — | — | 1975.8~10 トラップなし 10min/cycle |

図1-A 公害研における 1975.6.9. AM 3:00~8:00 の THC, CH₄, CO 測定チャート (Beckman 6800)

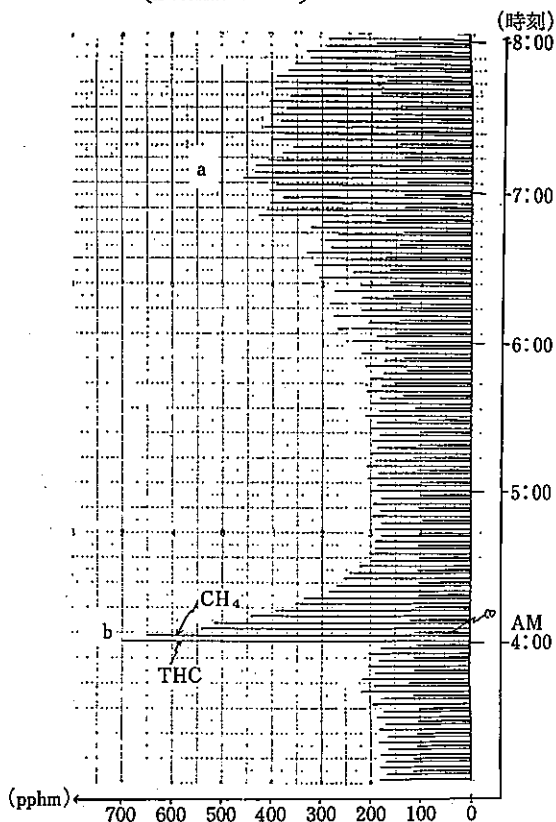


図1-B 公害研における 1975.6.9. AM 1:00~10:00 の CH₄, NMHC の測定チャート (APHA 501)

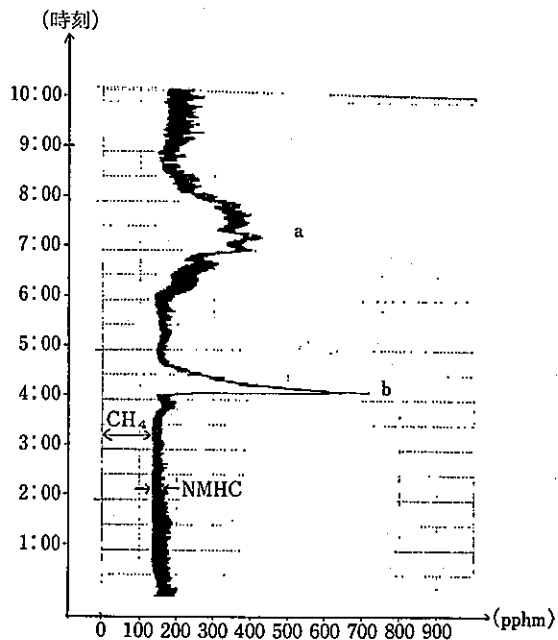


図2 CH₄の日変化パターン

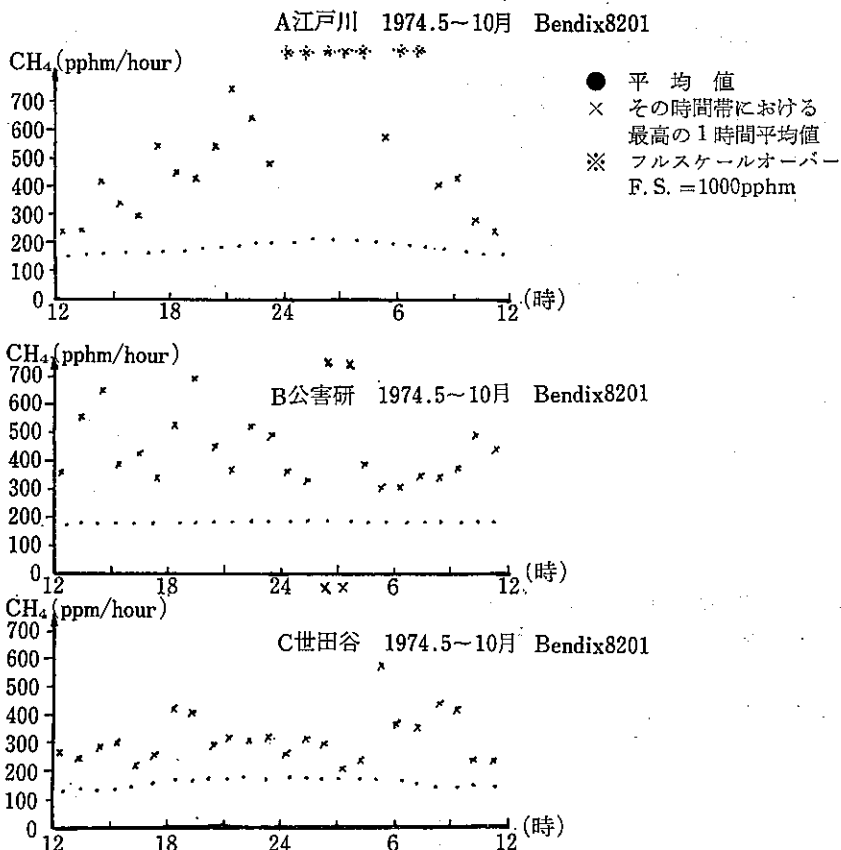


表2 メタンの濃度分布
(1974.5~10 江戸川 Bendix 8201)

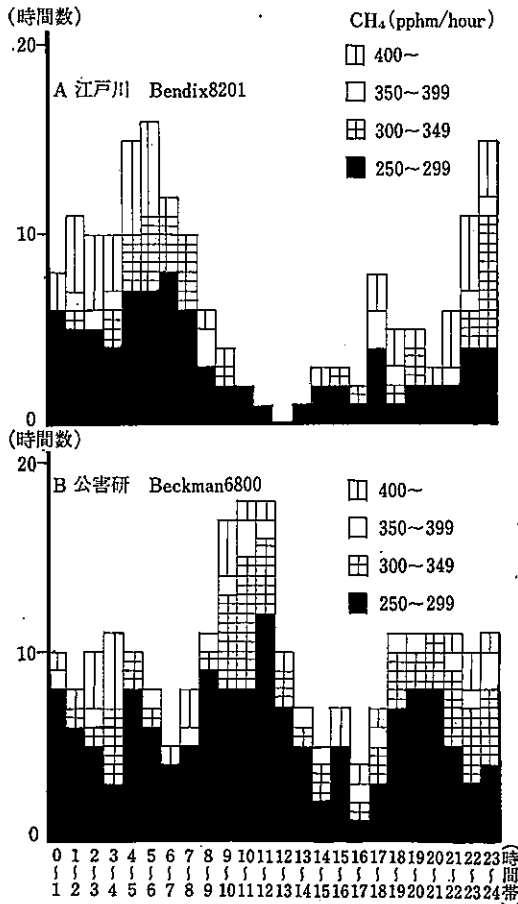
| メタン濃度(pphm/hour) | 時間数 (%) |
|------------------|--------------|
| 0~99 | 0 (0.0) |
| 100~149 | 709 (19.3) |
| 150~199 | 2490 (68.2) |
| 200~249 | 285 (7.8) |
| 250~299 | 80 (2.2) |
| 300~349 | 32 (0.9) |
| 350~399 | 10 (0.3) |
| 400~449 | 16 (0.4) |
| 450~499 | 11 (0.3) |
| 500~549 | 8 (0.2) |
| 550~599 | 5 (0.1) |
| 600~649 | 2 (0.1) |
| 650~699 | 2 (0.1) |
| 700~749 | 0 (0.0) |
| 750~799 | 2 (0.1) |
| 合計 | 3650 (100.0) |

表3 THc-NMHC NMHC-CO の相関
(1975.7.11~7.22 公害研 Beckman 6800)

| | THO—NMHO | NMHO—CO |
|------------------------|--|---|
| 全データ | r=0.680 n=182 a=0.304 b'=-16.974 | r=0.895 n=182 a=2.480 b=26.387 |
| メタン 上限5%カット データ | r=0.841 n=173 a=0.528 b'=-116.278 | r=0.896 n=173 a=2.472 b=28.386 |
| メタン 上限10%カット データ | r=0.873 n=164 a=0.583 b'=-126.647 | r=0.895 n=164 a=2.494 b=27.646 |

$$\text{NMHC} = a(\text{THc} + b') \quad \text{CO} = a \cdot \text{NMHC} + b$$

図3 CH₄ 250pphm/hour以上の時間帯分布



けて高いことがわかる。また、江戸川においては、夜から朝にかけての時間帯ごとの最高値が、日中の最高値と比較してかなり高いと言える。しかし、公害研、世田谷においては特別な傾向はない。

表3は1975年7月11日から7月22日までの公害研における Beckman6800 のデータを使用し、THC—NMHC (非メタン炭化水素)、NMHC—CO の相関をとったものである。メタン上限5%カットデータとは、メタン1時間平均値の高い方から、全データ数の5%にあたる個数だけ除いた残りのデータを意味している。同様にメタン上限10%カットデータとは、メタンの高いものから、全データ数の10%にあたる個数だけ除いた残りである。一般にCOは自動車排気ガスからの寄与が大きいとされている。一方、NMHCは自動車排気ガスおよび工場な

どを発生源と考えることができる。この計算に使用したデータは10日以上にわたっているにもかかわらず、NMHC—COの相関係数がほぼ0.9という高い値を示していることはNMHCも自動車排気ガスからの寄与が大きいことを意味している。また、NMHC—THCの相関が全データを使用しての計算の場合よくないことから、 $NMHC = a(THC + b)$ の式を用いてNMHCを推定することは東京のような高濃度メタン現象のある地域ではできず、非メタン炭化水素を測定する必要がある事がわかる。

図3は、メタン高濃度現象データを4段階に類別し、時間帯分布をとったものである。ここでは、江戸川のものは Bendix 8201 の記録を、公害研は Beckman 6800 のものを用いた。300 pphm 以上に注目すると、江戸川では特に深夜および早朝に高濃度現象が多いことがわかるが、公害研ではその他にも9~13時頃にしばしば高濃度がみられる。

図4は、やはりメタン高濃度現象について、その時点での風向別に分類したものである。気象データは、公害局監視部大気監視課の測定結果を用いた。これは毎正時に測定したもので、1時間の最多風向とは言えないが、およその様子はつかめる。また風速が弱い場合は風向は不安定であるが、Calm (0.2m/s 以下) 以上の場合は風速に関係なく風向データを使用した。結果は公害研でA、江戸川でBのようになった。

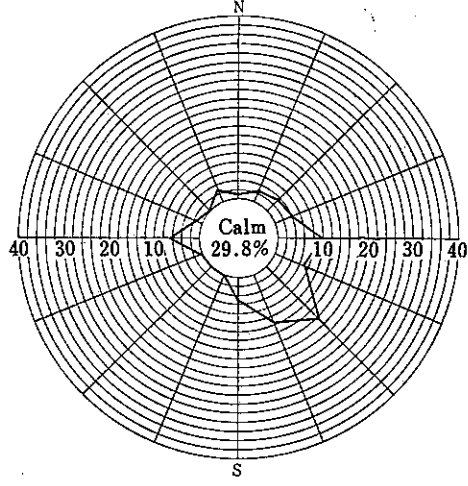
以上の結果をまとめてみると、メタン高濃度現象について次のことが言える。

- (1) 高濃度現象は全体の5%以下である。
- (2) 現象に現在までに少なくともふたつの型——図1のa、b——がある。bはかなり近い発生源からのものと考えられる。aは気象条件などで拡散係数が求められ、発生源からδファンクション的な発生があると想定すれば、メタンのピーク幅より発生源からの距離が求められる可能性がある。
- (3) 江戸川では高濃度現象は深夜から早朝に特に多い。一方、公害研ではその他にも9~13時頃にも高濃度現象がある。
- (4) この現象時の風向は、公害研でS~SE、江戸川でSW~WSW高濃度現象時の3分の1以上をしめる。

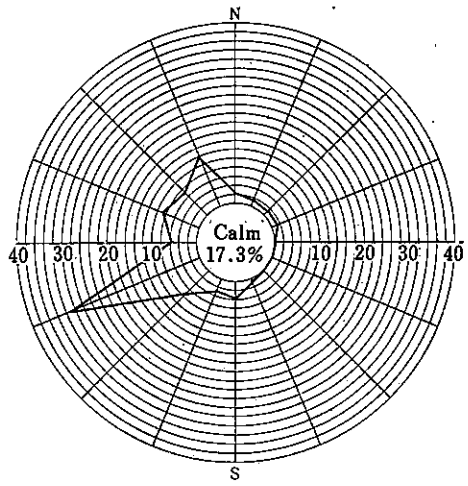
データとしてはかかげていないが、風向、風速のデータ、高濃度現象出現前の風向変化からの時間のデータを

図4 CH₄ 1時間平均値 250 pphm 以上の風向別頻度分布

1974.511~10:30
 公研 (Beckman6800)
 250pphm/hour以上のCH₄
 データ数 104



江戸川 (Bendix 8201)
 データ数 145



図中の頻度は

$$\frac{\text{ある風向のCH}_4\text{250pphm/hour. 以上の観測時間数} \times 100}{\text{その風向の総観測時間数}}$$

用い、高濃度メタン発生源を1点と想定すると発生源の位置を計算できる。これを行うと、江戸川からSW~W SWへ10~30km、公害研からSE~Sへ3~10kmと推定される。

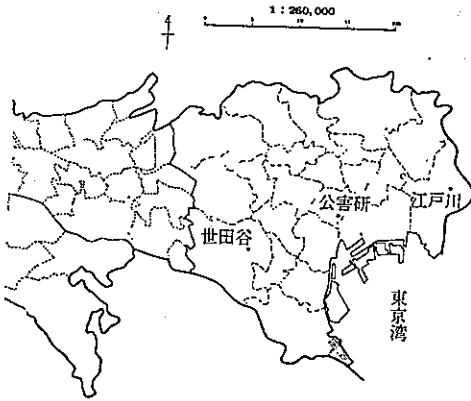
この高濃度現象の原因について3は3地点の関連もとって見たが、関連性のあるデータが少ないことや、この

3地点が風の流線上に並んでいないことから、今のところ何も言えない。3地点の位置関係は図5に示すとおりである。

4. ま と め

大阪方面ではこの現象がないとの情報がある。また長

図 5 3 測定点の位置



野ではメタン濃度は夜間に多少高くなるが、特別な高濃度現象はないとのことである¹⁾。これからもこの現象を調べて行くつもりであるが、発生源の推定と結びつけてやってみたい。

なお、この報告にあたって、公害資源研究所八巻直臣様、蓬原南津子様に助言をいただいたことを感謝いたします。

参 考 文 献

大気汚染研究 Vol. 10, No. 4, 1975 (603) 461

「大気中のメタン濃度」