

東京湾上における大気汚染調査—第一報—

—オゾン高濃度汚染現象について—

宇田川 満 早福正孝 伊藤政志
石黒辰吉

1はじめに

光化学大気汚染に関する野外調査は、光化学スモッグが発生してから今日に到るまで、色々の手段を用いて数多く実施してきた。^{1), 2), 3)} 初期気塊の存在が考えられる早朝の東京湾上での一次汚染物質調査についても、測定技術の向上とともに、かなり精度の高い測定結果が得られるようになった。しかし、いずれの調査も期間が短かく、ある気象条件下での汚染状況の把握はできるものの、初期気塊の形成メカニズムの解明にまで至っていない。そこで、この初期気塊の形成メカニズムを解明することを目的として、自動車排出ガス等近傍発生源の直接影響を受けず、種々の発生源に囲まれた、東京湾海上での一次汚染物質、二次汚染物質について長期間連続測定を実施している。その結果、夏季に海上で高濃度のオゾン(O_3)が検出されたので、若干の解析を加えて報告する。

2調査方法

(1) 調査場所の概要

調査場所名：東京灯標

東京灯標は東京の13号地から南へ約10km、羽田空港から東へ約7km、北緯 $35^{\circ}33'46''$ 、東経 $139^{\circ}49'53''$ の所に位置している。この灯台の見張室に測定機器を設置し、灯台のもつ自家発電装置を電源として測定機を稼動している。なおサンプリング孔は塔体上部、海面から約20mの高さに設置している。

(2) 調査期間

昭和56年6月24日開始 現在継続中

(3) 測定項目

連続測定項目……窒素酸化物($NO_x \cdots NO, NO_2$)
非メタン炭化水素(NMHC)
オゾン(O_3)：夏季のみ

その他.....ホルムアルデヒド(HCHO)
炭化水素組成(ガスクロマトグラフ)
(HCHO, HC組成は10日ないし
15日毎にガスサンプリングを行
なう。)

(4) 測定方法

O_3 : 化学発光法

NMHC : FID

NO_x : 化学発光法

HCHO : AHMD法

HC組成 : FID付ガスクロマトグラフ

(5) 比較測定地点

東京都公害研究所

測定項目は東京灯標と同じ(但し O_3 は除く)

(6) 測定機器の管理及び検体採取

夏期は1週間に1度、そのたの季節は10日～15日毎に通船を雇上げて行った。

(7) 気象データ

東京灯標に設置されている風向風速計(東京都港湾局所管)のデータを使用した。

3結果と考察

調査開始の6月24日から8月31日まで NO_x , NMHCの測定に加えて、 O_3 の測定を行ったので、 O_3 の高濃度汚染を中心に解析を行ったものである。表1に対象期間の測定結果を示す。

(1) 各汚染物質の測定結果の概要

ア NO_x

Ox 濃度にもっとも関係の深い NO_x については、表1に示されるように、期間平均値は比較的低い。これは地上を走る自動車排出ガス等の近傍発生源の直接影響

表1 東京灯標各汚染物質調査結果

単位: pphm

	7月			8月		
	平均	最高	7~9h 平均	平均	最高	7~9h 平均
NO	0.2	4.0	0.5	0.3	3.0	0.5
NO ₂	1.4	7.4	1.7	1.5	7.1	1.8
NOx	1.6	7.4	2.2	1.8	7.1	2.3
NMHC pphmc	44.5	197.0	45.2	—	—	—
O ₃ (10~18h 平均)	5.4	20.0	—	4.4	23.0	—

を受けないこと、北方向、西方向の発生源には比較的近いが、東方向、南方向の発生源の影響が少ないと、東京灯標（以下灯標とする）での対象期間の風配図等から判断すると、妥当な値と思われる。

都内の常時監視局のうち、東京湾に近い晴海測定局、臨海工業地域に近い糀谷測定局、住宅地域の国設東京、郊外で自動車排出ガスの影響の少ない多摩測定局について、同期間のデータの比較を行った結果を表2に示す。

灯標でのNOxの特徴としては、大規模発生源に比較近いにもかかわらず、発生源の影響の少ない多摩測定局と同様にNOがほとんどゼロで、日によって早朝に若干検出される程度である。この原因については、冬期の測定結果と異なることから、夜間でも若干存在するO₃による酸化が考えられる。

また灯標での早朝3時間（7時から9時）のNOxは、他の測定局と異なり、月平均濃度より早朝3時間平均濃度の方がかなり高くなっている。対象期間に都内でOx 0.10 ppm以上を記録した17日間について同様の比較をすると、さらに明確な差となっている。このことから灯標でのNOx濃度はOx汚染になんらかの影響

を与えているものと思われる。

イ NMHC

NMHCについては東京都で測定している3局との比較を行った。この結果を表3に示す。NMHCはNOxの場合と異なり、国設東京とほぼ同程度の濃度となっている。早朝の濃度についても他の測定局の場合と同じ傾向を示している。

表3 NMHC濃度比較

単位: pphmc

	7月			8月		
	平均	最高	7~9h 平均	平均	最高	7~9h 平均
国設	45.0	131	40.7	45.0	140	40.1
糀谷	71.0	184	63.3	64.0	185	59.7
江戸川	76.0	145	76.3	68.0	133	65.3
灯標	44.5	197	45.2	29.8	98	33.9

（但し灯標8月は1~12日まで）

ウ O₃

O₃については、常時監視局の測定値がOxであるため単純に比較することはできないが、OxのほとんどがO₃であることから、特に高濃度の出現回数の多かった狛江測定局、小平測定局、調布測定局、町田測定局につ

表4 O₃、Ox濃度比較 (10~18時) 単位: ppm

	7月		8月	
	平均	最高	平均	最高
調布	2.9	15	2.3	11
小平	3.2	16	2.6	14
狛江	2.9	16	2.4	12
灯標	5.4	20	4.4	23

表2 NOx濃度比較

単位: ppm

	7月				8月				Ox 0.1ppm 以上の日の 7~9h NOx 平均	
	平均値		NO ₂ /NOx 7~9h 平均		平均値		NO ₂ /NOx 7~9h 平均			
	NO	NO ₂	NOx	NOx	NO	NO ₂	NOx	NOx		
晴海	1.8	2.6	4.4	59%	4.8	1.3	2.1	3.4	62%	
国設	1.3	2.4	3.6	66	3.5	1.0	2.1	3.2	65	
糀谷	2.1	2.1	4.2	50	5.1	1.7	1.6	3.3	48	
多摩	0.3	1.6	1.8	80	1.7	0.4	1.2	1.6	75	
灯標	0.2	1.4	1.6	88	2.3	0.3	1.5	1.8	83	
									3.2	

いて比較を行った。この結果を表4に示す。日中の平均値、O₃ max値とも灯標の値の方がかなり高くなっている。発生源の影響による一次汚染物質濃度からみて当然のことと思われる。いずれにしても海上でのO₃濃度はかなり高くなることが判明した。このO₃高濃度汚染現象のメカニズムについては後述する。

エ 各汚染物質間の関係

灯標での対象期間の各汚染物質の関係については、各汚染物質とも光化学反応により濃度の変化が起こるため、濃度を比較することには若干問題があるが、傾向をみるためにNOxとNMHCについての相関をみた結果を表5に示す。灯標の場合はNOxはNO₂とみなせるため比較地點についてはNO、NO₂に分けて相関をみていく。この結果、地上局ではNO₂-NMHCの相関はかなり高い結果となっているが、灯標では相関はあるもののあまり良くない。

次に早朝のNOx濃度とO₃ maxとの相関をみたが、6時～9時のNOx-O₃ max、7時～9時のNOx-O₃ maxとも良い相関は認められなかった。

表5 NOxとNMHCの濃度相関

測定点	対象物質	相関係数	サンプル数
灯 標	NOx - NMHC	0.530	942
	NO ₂ - NMHC	0.738	1,153
	NO - NMHC	0.482	1,302
糀 谷	NOx - NMHC	0.647	1,146
	NO - NMHC	0.545	1,146
江戸川	NOx - NMHC	0.597	1,317
	NO - NMHC	0.578	1,317

(2) O₃高濃度汚染の事例解析

灯標でO₃の0.1 ppm以上の高濃度が出現した日は表6に示すとおり13日あった。都内で注意報、学校情報の発令日との関係をみると対象期間で、注意報⁵⁾が11回、学校情報が6回発令されている。灯標のみ0.1 ppm以上の濃度が出現した日は7月23日、8月6日、8日の3日間だけである。いずれにしても都内でO₃濃度が高くなる日は海上でもO₃濃度がかなり高くなっている。

以下に特徴のある高濃度汚染について、気象等のデータを用いて事例解析した結果を報告する。

表6 高濃度出現日(東京灯標)

10.0 ppbm以上

6月	29日(16-17, 13)		
7月	8日(11-14, 10)	19日(11-20, 17)	
	17日(11-18, 19)	18日(11-16, 20)	
	19日(12-15, 11)	22日(13-14, 10)	
	23日(14-15, 12)		
8月	6日(13-15, 12)	8日(12-16, 13)	
	8日(12-15, 12)	9日(11-18, 23)	
	10日(11-16, 16)		

()内の数字は、O₃ 10.0 ppbm以上出現時刻:

最高濃度

6月29日

灯標でのO₃の汚染は図1に示されるように、灯標での風が北成分に変った時点で高濃度が出現している。この日は、夜間は陸風が吹いているが、早朝6時頃から南東成分の風が吹き始めたため、早朝の汚染気塊は東京を越えて埼玉県方面へ移流し、そのため14～16時かけて埼玉県南の中部、西部に注意報が発令されている。埼玉県での注意報発令時には浦和ですでにN成分の風が吹いていることから汚染メカニズムは明らかではないが、いずれにしても、東京でもS成分の風から急にN成分の風に変った時点で埼玉県にあつたOx汚染気団が東京に移流し以下に示すようにつぎつぎとOx高濃度汚染が起こった。

Oxピーク時刻()内Ox ppb

14時：清瀬(126)

15時：調布(156), 府中(154), 小金井(175),

八王子(137)

16時：国設東京(130), 港(109), 狛江(137),

町田(132), 東京灯標(120)

17時：保土谷(149), 港南(148)

18時：戸塚(118)

この汚染気団が東京湾内に流入したために図1に示される汚染パターンが出現したものであり、非常にまれなケースである。

7月16日

図2にみられるように、灯標で長時間にわたって、O₃高濃度がつづくケースである。

東京湾岸の風の状態をみると、この日はかなり陸風の勢力が強く、神奈川県側では12時頃までN成分の風

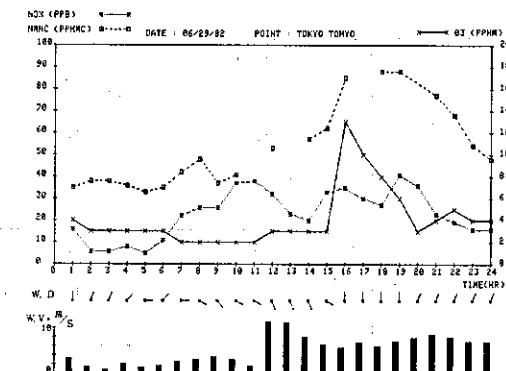


図1 東京灯標各汚染物質濃度変化 ①

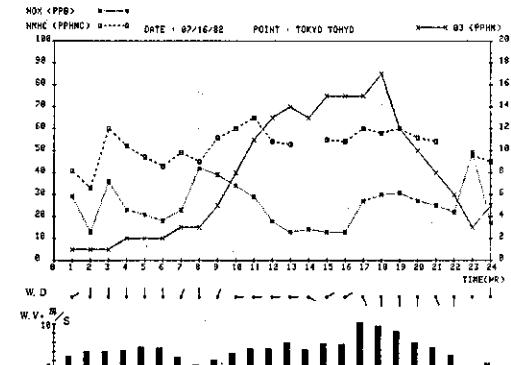


図2 東京灯標各汚染物質濃度変化 ②

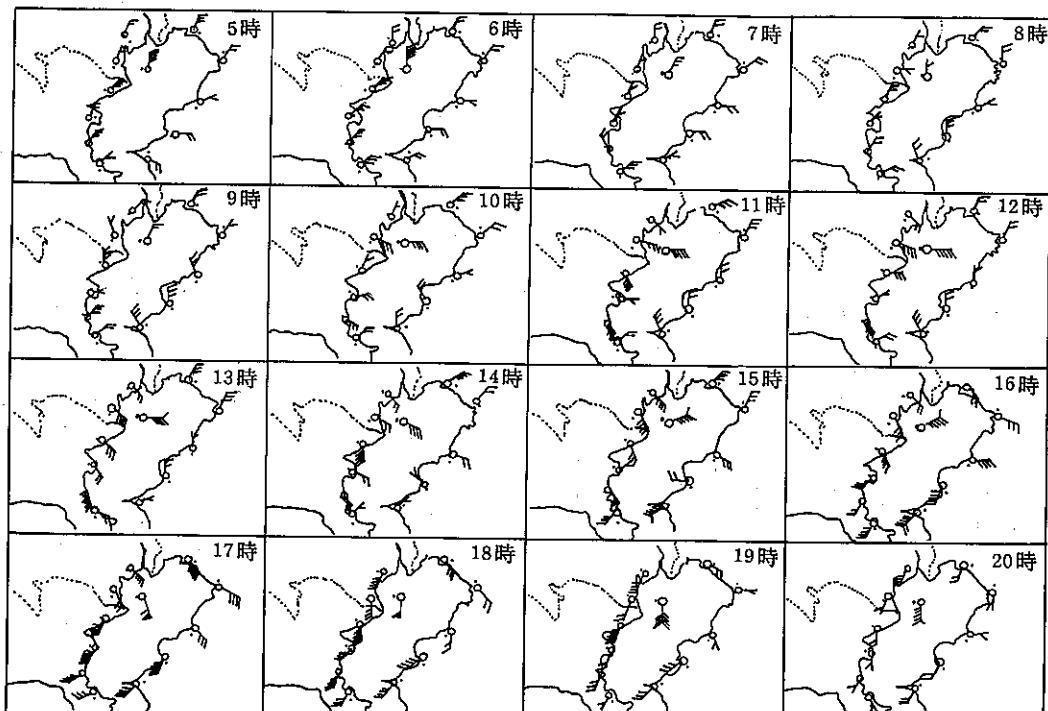


図3 東京湾岸の風向風速(7月16日)

が吹いていた。海風に変る10時頃から東京湾は風の発散場となり始めたため、東京灯標は下降流の影響を受けているものと推定される。この時点からO₃濃度が上昇し16時までこの状態がつづいている。このことから、東京湾上層部にかなり高濃度の汚染気塊があり、持続時間からするとその層はかなり厚いものと推察される。この点についてはデータを集積したうえでさら

に検討する必要があろう。図3に東京湾岸の風向風速の概略図を示す。

この日の汚染を特徴づける、長時間高濃度の持続について、先に述べた北成分の風の影響で相模湾上に汚染気塊が形成された。この気塊によって図4にみられるように逗子、三浦で高濃度のO_xが記録されている。

横須賀の風をみるとNE成分の風が15時には反転し

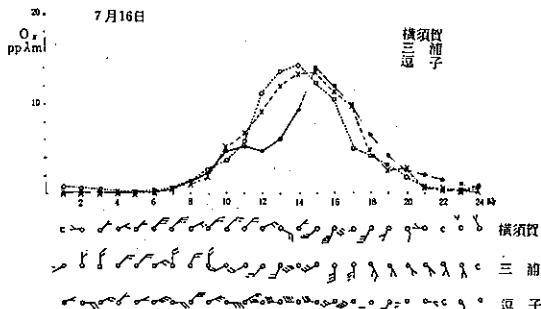


図4 神奈川県南岸のOx濃度変化グラフ（7月16日）

てSW成分の風が吹き始めている。この風の影響を受けて汚染気塊が再び東京湾内に逆流してきたため18時にO₃濃度がピークに達している。

なお、横須賀の対岸に位置する木更津でもこの影響を受け17時に0.125 ppmのOx濃度が記録されている。

7月17日

この日は、一都三県に光化学スモッグ注意報が発令されている広域汚染型の日である。（図5参照）。

風の状態をみると、神奈川県側でははっきりとした陸風がみられず、5時から7時にかけて弱風域となっている。東京湾上は10時頃から発散場になって図6に示すように13時には、金沢、灯標、木更津で同時に濃度が高くなっている。この日は先に指摘したように、はっきりとした陸風による収束がみられなかったため、臨海部に一次汚染物質が滞留し、湾内への流入量が少ないので、灯標での高濃度汚染時間は短く、上層部の汚染層は薄いものと推察される。

7月18日

灯標でのO₃汚染が前二例と異なったパターンを示している例である（図7、図8参照）。

風の状態は早朝から9時までN成分の風が一様に吹き、10時頃から東京湾の北の部分は海風が吹き発散場となるが、横須賀、富津等の南の部分は12時までN成分の風が吹いている。13時になると突然風は反転してS成分の風に変ると同時に木更津で0.127 ppmの高濃度が出現し、1時間後に灯標のO₃濃度がピークとなっている。これらの現象から、この日の灯標での高濃度O₃の出現は、下降気流によるものではなく、陸風で南下した汚染気塊が反転して吹き始めたS成分の風で東京湾内に逆流してきたために起った高濃度汚染で7月16

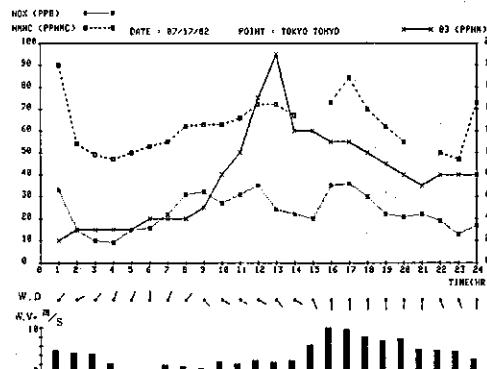


図5 東京灯標各汚染物質濃度変化 ③

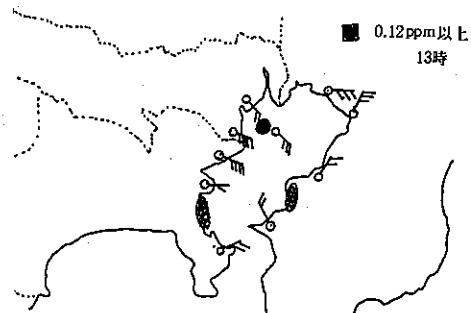


図6 発散場とOx汚染エリア（7月17日）

日の後半の現象と類似している。

8月8日

この日は東京灯標だけO₃濃度が0.12 ppmに達した日である。汚染のメカニズムは7月17日の場合と類似しており、早朝からE成分の風が入り込み、東京湾上が収束域とならない。したがって一次汚染物質であるNOxの早朝の濃度も低い。11時頃から14時頃まで東京湾内は発散場となるが、汚染気塊の形成が弱いため、比較的濃度、および高濃度持続時とも小さい。しかし、この日のようにE成分の風でも海上では0.12 ppmのO₃が出現することが判明した。（図9参照）。

8月9日

この日は灯標でもっとも高いO₃濃度が記録された日であり、7月16日と同様に陸風の勢力が強く、Ox高濃度汚染は、東京、神奈川を中心に起きている。東京湾岸の風の状態をみると、早朝から8時頃まで陸

風が吹き、東京湾上は強い収束の場となっている。その後灯標ではN成分の風が吹いているが、湾岸では弱風域となり、この状態が12時頃まで続いている。このため湾内にはかなりの一次汚染物質が流入したものと思われる。事実図10で明らかなように、NO_xの早朝の濃度がかなり高くなっている。このような気象条件下でO₃濃度は急激に上昇を始める。その後13時頃から発散場となったためO₃は18時まで高濃度が持続した。

以上特徴のある日について事例解析を加えた結果、6月29日のケースは別として、東京湾上でのO₃高濃度現象は2つの気象パターンに分類される。即ち、7月18日に代表されるパターンで、N成分の風がかなり遅くまで残り、急に反転してS成分の風に変るため、光化学反応が進んだ汚染気塊が東京湾内に逆流していく場合であり、7月18日以外にも2日同様な汚染が起こっている。もう一つのパターンは7月16日、8月9日に代表されるもので、早朝陸風の勢力が強く、東京湾上が強い収束の場となり、東京湾上に大きな汚染気塊が形成され、この気塊が光化学反応を起こし、高濃度のO₃を生ずる。やがて海風の発達によって、東京湾

上が発散場に変ると、上層部にまで及んでいる汚染気塊が下降流によって下降し、高濃度汚染が持続する場合である。この場合は早朝に形成される汚染気塊の大きさ、汚染の度合によって、海上のO_{3max}濃度、持続時間が左右されるようである。

また、NO_x、O₃の濃度変化の様子を見ると、いずれの日も、チャンバー実験でみられるパターンと非常に良く似ている。高濃度日では早期のNO_xの濃度とO₃

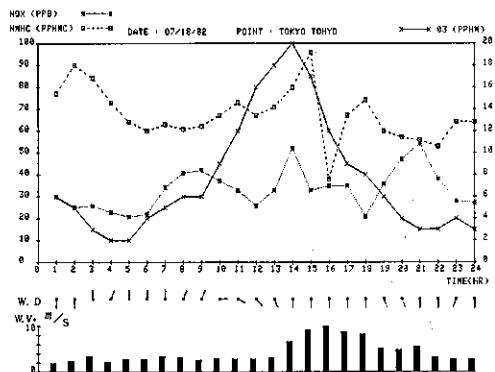


図7 東京灯標各汚染物質濃度変化 ④

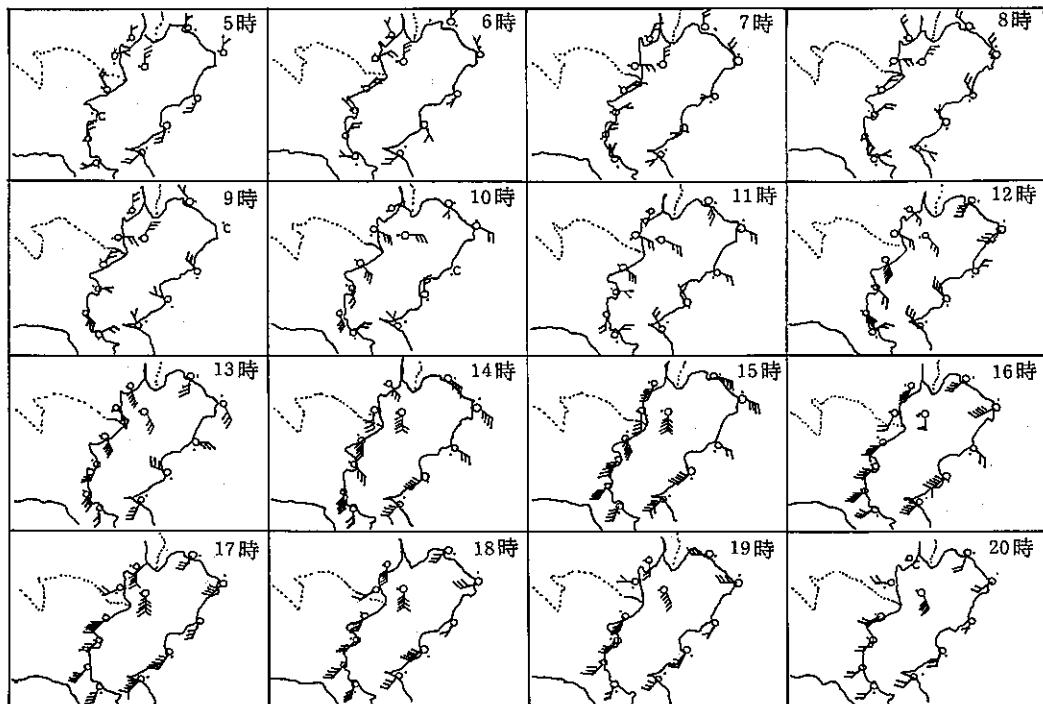


図8 東京湾岸の風向風速(7月18日)

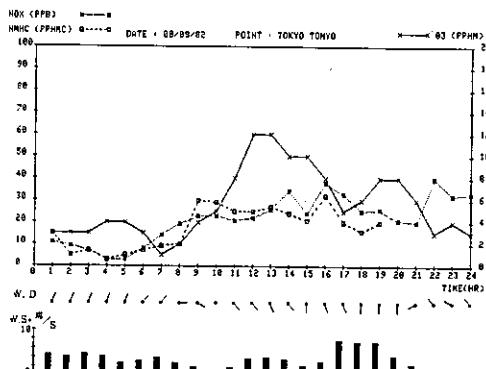


図9 東京灯標各汚染物質濃度変化 ⑤

max については例数が少ないため、はっきりとした量的関係はみいだせない。これらの点については、更にデータを集積したうえで検討を加えたい。

3 まとめ

今回の解析は東京灯標での O_3 高濃度現象について検討を加えたものであり、また例数が少ないのではっきりとした結論を下すまでには至っていないが、東京湾上でも、かなり長時間に渡って O_3 高濃度汚染が起こることが分かった。また、この高濃度現象は、東京湾、相模湾に形成される汚染気塊に密接な関係があることが判明した。この汚染気塊については事例解析の結果から、早朝の陸風の条件によって、かなり大きな範囲で、かつ、かなりの上層にまで及んでいるものと推察される。

この初期気塊の形成メカニズムについては、現在なお本調査は継続されているので、十分のデータを用い

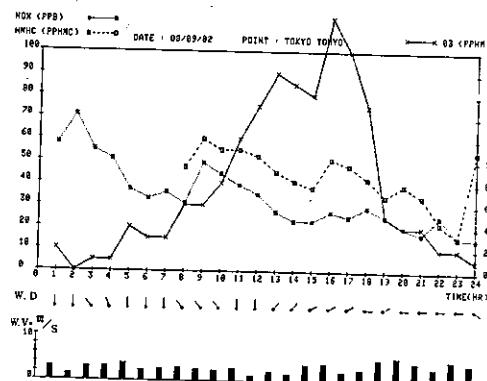


図10 東京灯標各汚染物質濃度変化

て、今後検討を加えるものである。

なお調査に当って御協力をいただいた、海上保安庁横浜第三管区保安本部、東京航路標識事務所の職員の方々、および汚染物質測定データ、気象観測データの使用に当って御協力をいただいた、神奈川県、千葉県、横浜市、川崎市、東京都港湾局の関係職員の方々に謝意を表する。

参考文献

- 1) 東京都公害研究所：東京スモッグに関する調査研究第二報、昭和47年3月。
- 2) 東京都公害研究所：東京スモッグに関する調査研究第三報、昭和49年3月。
- 3) 宇田川満ら、光化学大気汚染に関する野外調査結果について、公害研究所年報、1981。
- 4) 東京都環境保全局：今夏における光化学スモッグについて、環境保全関係資料2-1-大1、昭和56年11月。