

## 下層大気における窒素酸化物の垂直分布

早 福 正 孝 宇田川 満

### 1 はじめに

SO<sub>2</sub>とCOは環境基準を達成しているが、NO<sub>x</sub>については現時点でも環境基準を越える地域が多い。国を始めとし各自治体ともNO<sub>2</sub>の環境基準達成に現在対策を進めている段階である。この10年間のNO<sub>2</sub>の経年変化を見ても、その年の気象条件に大きく左右され、62年度の三大都市（東京、神奈川、大阪）のNO<sub>2</sub>濃度は61年度に比べ大幅に増加した。特に晩秋から初冬にかけて大気が安定しているときは逆転層の形成により大気汚染が悪化することが多い。この時期の大気汚染調査は以前から様々な所で実施されているが、<sup>1)2)</sup>ここでは地上から高さ数10mの下層大気（接地気層）内の窒素酸化物（NO<sub>x</sub>）を中心に大気汚染物質の立体分布について考察している。都市では中高層の居住建築の増加に伴い、生活空間が次第に上層に広がってきている。環境基準は面的な視点から捕えているが、立体的な視点からは捕えられていない。今後中高層建築はますます増加するのは間違いない。従って面的視点を含めた立体的視点に立った長期連続測定が必要となるものと思われる。ここでは環境のNO<sub>x</sub>の動きを細かにみるため、従来よく採用されている1時間値の代わりに5分間平均値を用いて検討を行っている。あわせて汚染物質の採取時間についても検討を加えている。

### 2 調査方法及び調査期間

調査は当研究所屋上（採気孔高さは地上から約33m）と地上（高さ約1.5m）にそれぞれ化学発光法のNO<sub>x</sub>計を設置し測定を行った。測定機の校正は4 ppm程度の標準ガス（NO）で行った。風向風速は当研究所屋上に設置してある（地上約45m）風向風速計で測定した。NO<sub>x</sub>計に併置した紫外線吸収法のオゾン（O<sub>3</sub>）計でO<sub>3</sub>を測定した。温度は東京タワーの常時監視データを

用いた。

NO<sub>x</sub>の細かな動きをみるためにNO<sub>x</sub>は5分間（平均）毎の測定を行った。測定期間は1987年11月20日から1988年1月7日までで、そのうち本報告はNO、NO<sub>2</sub>（NO<sub>x</sub> - NO）濃度が5分間値で0.1 ppmを顕著に越えた日（以下、高濃度日という）を中心にデータを扱っている。高濃度日の比較として1月1日～3日の低濃度汚染日（正月）を採用した。

### 3 調査場所の概要

調査場所である当研究所は東京湾岸の「夢の島」埋立地から北に約3～4 km入った所にある。当研究所の周囲は南北に広い空地があり、北約180mの所に幹線道路である永代通りがある。西約40mに高さ約25mの建物があり、東側には高い建物はなく、東約100mの所に産業道路があり、トラック類が多く走行している。なお南東約1.5 kmの所に水処理センター（煙突の高さ約150m）と南南東約2.4kmの所に清掃工場（煙突の高さ約100 m）がある。

### 4 調査結果と考察

#### (1) 調査期間中の最高濃度

調査期間中のNOとNO<sub>2</sub>（NO<sub>x</sub> - NO）の最高濃度（5分間平均値）は地上NO：971ppb（この時の1時間値：705ppb；12/17, 5時）、NO<sub>2</sub>：177ppb（同：166 ppb；12/16, 12時）、屋上NO：505ppb（同：461 ppb；12/16, 12時）、NO<sub>2</sub>：156 ppb（同144 ppb, 12/16, 12時）であった。当調査対象地域においては気象条件によって1 ppmにもせまるようなNO濃度や、環境基準値（0.04～0.06 ppm NO<sub>2</sub>）の2倍から4倍ものNO<sub>2</sub>濃度になることが判明した。

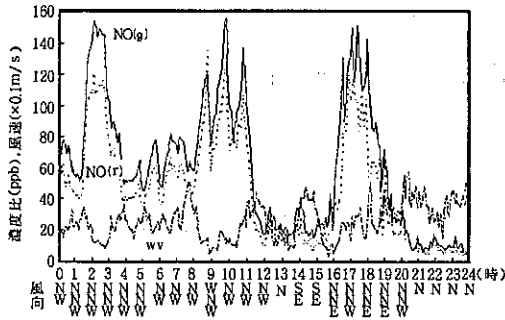


図1 NO(g), NO(r)と風速(WV) (1987年11月27日)  
添字(g)は地上, (r)は屋上を表す

(2) 高濃度日の測定結果例 (1987年11月27日)

高濃度日の測定結果の一例を図1~4に、またこの日の温度の垂直分布を図5に示す。地上の一酸化窒素 (NO(g)) と屋上の一酸化窒素 (NO(r)) 及び風速 (WV) を図1に、地上の二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>(g)) と屋上の二酸化窒素 (NO<sub>2</sub>(r)) と風速を図2に示してある。地上と屋上のNO(r)/NO(g)比とNO<sub>2</sub>(r)/NO<sub>2</sub>(g)比をみたのが図3である。地上と屋上のNO<sub>x</sub>の中に占めるNO<sub>2</sub>の割合をみたのが図4である。地上、屋上ともNOの高濃度が頻発しているのがわかる。地上はNOが高く、NO<sub>2</sub>は逆に屋上の方が高い結果を示している。この日は風速が弱く2~4 m/sで、14~15時に南東の風が一時侵入した以外は一日中北成分の風であった。風向からみて、汚染発生源は測定地点の北側にある幹線道路と思われる。図3からNO(r)/NO(g)比が午後かなり変動しているのに対

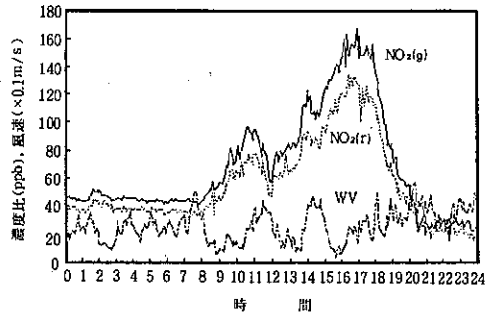


図2 NO<sub>2</sub>(g), NO<sub>2</sub>(r)と風速 (1987年11月27日)

し、NO<sub>2</sub>(r)/NO<sub>2</sub>(g)比はさほど大きな変動を示していない。これは鉛直方向のNO<sub>2</sub>濃度にあまり差がないことを示し、NOは地上の汚染源の寄与が大きいことを示している。図4から地上と屋上のNO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比に差がないことがわかる。

汚染質と風速の関係をみると、NO濃度は風速が遅くなると低くなり、風速が早くなると濃度が高くなる傾向を示している (図1)。一方、NO<sub>2</sub>と風速の関係はNOの場合のような顕著な傾向はみられない (図2)。この違いは近傍発生源からくるNOは風速の影響を受けやすいの比べ、NO<sub>2</sub>はNO → NO<sub>2</sub>へ転換されたNO<sub>2</sub>が移流されてくるためにNOほど顕著に風速との関係が明瞭にみられないものと思われる。それは図4に示すNO<sub>x</sub>の中のNO<sub>2</sub>の割合 (NO<sub>2</sub>/NO<sub>x</sub>比) の変化と風速との関係からもいえる。つまり風速が強 (弱) になるとNO濃度は下 (上) がる (図1) が、近傍発生源

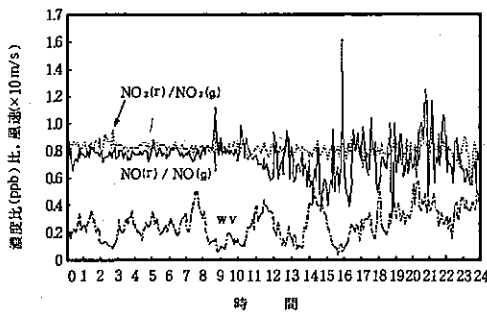


図3 NO(r)/NO(g)比, NO<sub>2</sub>(r)/NO<sub>2</sub>(g)比と風速 (1987年11月27日)

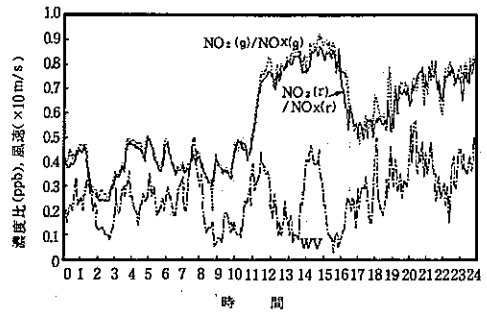


図4 NO<sub>2</sub>(g)/NO<sub>x</sub>(g)比, NO<sub>2</sub>(r)/NO<sub>x</sub>(r)比と風速 (1987年11月27日)

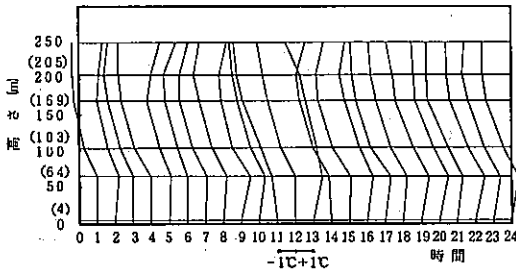


図5 東京タワーにおける気温垂直分布 (1987年11月27日)  
(上下の測定地点の温度差:( )内の数字は測定高度)

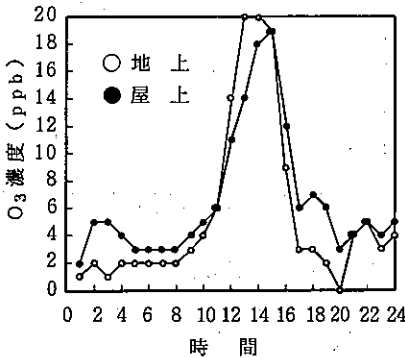


図6 地上と屋上のO<sub>3</sub> (1987年11月27日)

表1 NO, NO<sub>2</sub> 濃度の変動具合

	NO (g)	NO <sub>2</sub> (g)	NO (r)	NO <sub>2</sub> (r)
正月	97.1	35.8	108.5	36.9
高濃度日	79.8	37.3	80.9	38.7

変動係数 (%)

(注) 添字 g は地上, r は屋上

表2 正月と高濃度日のNO, NO<sub>2</sub>比

	NO (r) /NO (g)	NO <sub>2</sub> (r) /NO <sub>2</sub> (g)	NO <sub>2</sub> (g) /NOx (g)	NO <sub>2</sub> (r) /NOx (r)
正月	0.58	0.82	0.72	0.77
高濃度日	0.68	0.81	0.45	0.48

(注) 添字 g は地上, r は屋上

にNO<sub>2</sub>が多ければNO<sub>2</sub>/NOx比の変化はNOと風速の関係のようになるはずである。ところが図4では風速が強(弱)くなるとNO<sub>2</sub>/NOx比は大き(小)くなっている。これはNO<sub>2</sub>が近傍よりも遠方から移流されてくる割合が大きいことによると考えられる。

この日の温度の垂直分布をみると(図5), 等温ないし逆転状態が形成されていることがわかり, これが汚染を強めているものと思われる。この日の地上と屋上のO<sub>3</sub>の変化をみたのが図6である。日中12~15時のNO濃度が低いときにO<sub>3</sub>濃度が上昇し, 16時以降のNO濃度の上昇と共にO<sub>3</sub>濃度が減少し, それと共にNOとO<sub>3</sub>との反応により生じたNO<sub>2</sub>が増加している。

(3) 高濃度汚染日と低濃度汚染日の比較

上述のように高濃度汚染日にはNOとNO<sub>2</sub>の単位時間内の濃度変動にかなりの違いがあることが明らかになった。この濃度変動を低濃度汚染日(1988年1月1日~3日)と高濃度汚染日(調査期間中の12日間)を比較した結果が表1である。NO<sub>2</sub>は鉛直方向に関係なく, さらに汚染濃度の大小に関係なく急激な濃度変動は少ないことがわかる。NO<sub>2</sub>はNOの酸化によって生成される。環境中ではこれに日射が関与するが, 当調査期間中が冬季で紫外線量が少ないためNOからNO<sub>2</sub>への転換が遅い。そのため急激な濃度変動幅が小さいものと思われる。NO<sub>2</sub>に比べNOは濃度変動幅が大きい。これは汚染源の影響が大きいことを示している。つまり紫外線が少ないためNO<sub>2</sub>への転換が遅く, NOの形で直接移流されてくることによる。ここでは3の「調査場所の概況」で述べたように道路からかなり近いことが関係していると考えられる。

低濃度汚染日の方が高濃度日よりNO (g), NO (r)ともに濃度の変動幅が大きい。これは汚染の低い正月の方が高濃度日に比べNO濃度が一般的に低いため, 短時間でも高濃度ガスが移流してくると, その影響が大きく現われるものと思われる。

低濃度汚染日と高濃度日のNOとNO<sub>2</sub>の比較した結果を表2に示す。屋上のNO濃度は地上の6~7割, そして屋上のNO<sub>2</sub>濃度は地上の約8割である。採取孔の高さ約33mというのは通常の団地の建物で10~12階に相当する。この結果から汚染濃度の大小に関係なく, 接地気層内のこの程度の高さではNO<sub>2</sub>は地上濃度の約2割しか減衰しないのがわかる。NOとNO<sub>2</sub>の減衰率の違い

いはこの気層内のO<sub>3</sub>と関係があると思われるが、現時点ではその定量的関係はつかめていない。

NO<sub>x</sub>の中に占めるNO<sub>2</sub>の割合は低濃度汚染日が7~8割、高濃度日が約5割で低濃度汚染日の方が約1.6倍高い。この割合は地上も屋上も同じである。低濃度汚染日のNO<sub>2</sub>比が高いのは近傍発生源から調査地域への汚染負荷量(主としてNO)が少ないため、結果としてNO<sub>2</sub>比が高くなったことによる。

(4) NO、NO<sub>2</sub>の採取時間

汚染物質を採取して濃度を求め、その結果を目的に応じて解析する場合、採取時間は十分検討して採取する必要がある。Sutton<sup>3)</sup>によると、瞬間採気から約2分間採気まではかなりの急激な濃度変動があるが、2分以上になるとこの変化は小さいという。

汚染物質の採取時間はその物質の環境中における濃度と分析精度(または分析感度)との関係で決める場合もある。環境基準物質の測定では全て1時間平均値が採用されている。発生源で測定する場合は目的に応じて採取時間を変えているが、一般の環境測定では1時間採取の場合が多い。

ここで取り扱ってきたNO、NO<sub>2</sub>のデータは5分値を使ってきた。この採取時間を変化させた場合どうなるかを見たのが図7~9である。各々採取時間を15、30、60分にして5分値と比較している。5分値と15分値はかなり変化に対応性があり、30分になると細かい変動は見にくくなり、60分値では細かい変動はほとんど見れないといってよい。

この濃度変動を変動係数を用いて採取時間との関係をみたのが図10である。高濃度日と高濃度汚染日をNO、NO<sub>2</sub>に分けて比較している。採取時間は5分から4時間まで変化させている。NO<sub>2</sub>はこの時間変化内では5~6%の変動であるが、NOの場合は約20%の変動差が出ている。NO<sub>2</sub>は高濃度日と低濃度汚染日との差は全くないといってよく、採取時間は従来から環境測定で行われている1時間で十分である。一方、NOは汚染程度の大小により濃度変動が異なるため、採取時間の設定には注意を要するものと思われるが、例えば発生源の影響を検討するには15分程度の連続採取(図7)が必要であろう。

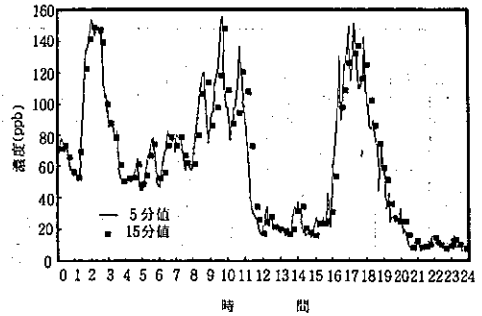


図7 NOの5分値と15分値の比較(1987年11月27日)

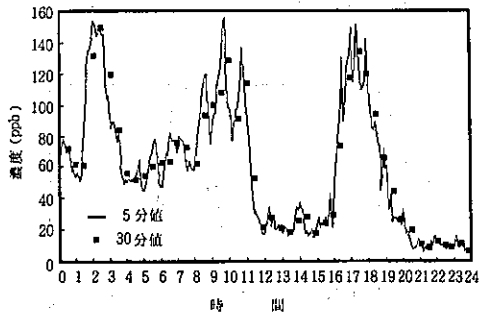


図8 NOの5分値と30分値の比較(1987年11月27日)

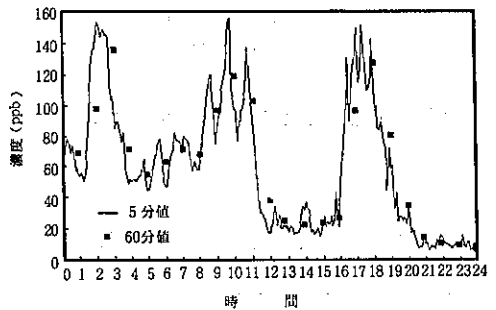


図9 NOの5分値と60分値の比較(1987年11月27日)

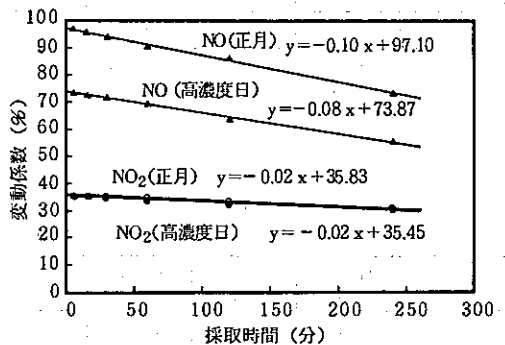


図10 NO、NO<sub>2</sub>の採取時間の違いによる濃度変動

## 5 まとめ

晩秋から初冬にかけて、臨海地域における接地気層内の中高層居住建築を想定した窒素酸化物の垂直分布調査から、次の事が明らかとなった。

1)  $\text{NO}_2$ は $\text{NO}$ に比べ環境濃度の変動は小さい。

この変動は汚染濃度の大小、鉛直方向の条件の違いはあっても同じである。

2) 10~12階建て相当の高さ(約30m)では、地上に比べ $\text{NO}$ が3~4割濃度減衰するのに対し、環境基準物質である $\text{NO}_2$ の減衰は約2割である。この傾向は高濃度汚染日でも、正月に代表されるような低濃度汚染日においても変わらない。

3) 5分間平均値から4時間平均値までの採取時間における濃度変動をみると、 $\text{NO}_2$ は5~6%、 $\text{NO}$ は約20%の濃度変動の差が出る。採取時間は測定及び解析の目的に応じて決定すべきであるが、環境の $\text{NO}_2$ の細かな動きをみるには1時間採取値で十分対応できるが、

$\text{NO}$ の細かな動きをみる場合は注意して採取時間を設定すべきである。 $\text{NO}$ について細かな濃度変動を見る場合には、15分程度の採取時間が必要であろう。

なお、今回の調査は臨海地域という限られた地域で実施したものであるが、内陸地域についてもデータを蓄積すれば、さらに一般的特徴(傾向)がつかめるものと思われる。

## 参考文献

例えば

- 1) 菊地 立 他: 浅い谷の住宅地における接地気温逆転層内の $\text{NO}_x$ 濃度, 第23回大気汚染学会講演要旨集, p248, (1982)
- 2) 岡崎 淳 他: 市原市郡本における冬季の $\text{NO}_x$ 調査: 同上, p247, (1982)
- 3) Sutton, O.G.: Micrometeorology (Mc Graw-Hill, New York), (1953)