

相模湾および伊豆諸島近海における大気中の 汚染物質と「その輸送過程」に関する観測¹⁾

竹田 厚²⁾ 三澤 信彦²⁾ 石川 浩治²⁾
 鶴田 治雄³⁾ 前田 裕行³⁾ 鈴木 英世⁴⁾
 遠藤 辰雄⁴⁾ 長利 富勝⁵⁾

要 旨

沿岸地域における大気汚染物質の輸送過程に関連して、海上の大気中の窒素酸化物、オゾン、炭化水素、エアロゾル等の濃度と、風、日射量等の気象要素についての船上観測を、相模湾から伊豆諸島に至る海域で行なった。その結果、(1)北東風の時に、相模湾上の窒素酸化物やエアロゾルの濃度が、沿岸の都市域と同程度の値になることが観測され、高濃度の汚染気塊は34°N 近くの伊豆半島沖合いの海上にまで到達する。(2)陸上より相模湾上に輸送された汚染大気中で光化学反応により生成された高いオゾン濃度が観測された。(3)沿岸地域の大気の輸送機構の一つとして海陸風循環が注目されるが、相模湾の場合、海風の陸上側(風下側)への侵入距離は短時間に30km 以上にも達するのに対して、海上側(風上側)への風域の拡大は遅く、沖合10km にも及ばないこともある。……などの特徴的な事例が見出された。

1. はじめに

沿岸海域上の大気汚染に関する観測を、1976年5月下旬、相模湾とそれに続く伊豆諸島近海で、東大海洋研究所の淡青丸(258トン)を利用して行なった。

この観測は、沿岸地域における大気汚染物質の輸送過程の研究に関連して、海上の大気汚染の実態とその気象条件との関係についての予備知識を得ることを目的に、北大理学部、横浜・川崎両市の公害研究所および東大海洋研究所の三つの研究グループが共同で行なったもので、各グループはそれぞれエアロゾルの測定、大気汚染物質の測定および乱流輸送と海陸風の観測を担当した。データの詳細な解析やその結果の検討は、現在各グループの手で進められており、それぞれ別の機会に報告される予定であるが、ここでは、総括的に観測結果の概要を

報告し、その中に見出される二、三の特徴的な事例について、若干の検討を行なったので報告する。

沿岸地域の大気汚染物質の輸送過程は、海岸付近の大気中の汚染物質、とくに光化学オキシダントの濃度が、しばしば海風時に高まるという。単純な拡散過程では説明できない現象がある(たとえば、神奈川県公害対策事務局、1974)ことなどからも興味深い問題である。この輸送のプロセスには、拡散のほか、大気の局地的な運動に伴う移流の効果や物質間の化学反応過程なども重要であると考えられる。とくに沿岸地域の下層大気の状態は、海岸線を境に、境界条件が不連続に変化することにより、陸上と海上とで異なる。その結果、たとえば海陸風という、昼夜で流れの向きが反転する特有の循環流が現われ、シノプティックな場の風(一般風)が弱いときには、高濃度の光化学オキシダントが海風により沿岸地域から内陸へ輸送されていく等、汚染物質の輸送に顕著な効果をもたらすことが知られている(たとえば、河村、1972)。しかしながら、陸上および海上間の大気汚染物質の輸送過程に関しては、まだ観測例もなく、その実態も把握されていない。このような沿岸地域の局地的な輸送過程は、わが国のように、大都市や工場地帯など多量の汚染物質の排出源が海岸付近に集中している場合、大気汚染現象の基本的なプロセスの一つとして注目される

- 1) Observation on atmospheric pollutants and their transfer processes over the Sagami Bay and Izu Islands Sea.
- 2) A. Takeda, N. Misawa, K. Ishikawa, 東大海洋研究所.
- 3) H. Tsuruta, H. Maeda, 横浜市公害研究所.
- 4) H. Suzuki, 川崎市公害研究所.
- 5) T. Endo, T. Osari, 北大理学部地球物理学教室.
—1977年6月23日受領—
—1977年12月5日受理—

第1表 測定項目、測器および測定方法.

測定項目	測定(分析)器	測定方法		
		受感部取付(採取)位置	採取, 記録方法など	
汚染物質濃度	NO _x	窒素酸化物測定器 M-8440 (MONITOR LABS社)	前部甲板上 m. s. l 上 約 3.0m	テフロンチューブを通じて連続吸引, チャートレコーダに連続記録
	O ₃	オゾンモニターM-1003AH (DASIBI ENVIRONMENTAL社)	同上	同上
	炭化水素	FID ガスクロマトグラフ ガスクロマトグラフ—質量分析計 薄層クロマトグラフ	羅針甲板上 m. s. l 上 約 6m	1リットル真空ビンおよびハイポリウムエアサンプラーで採取, 下船後分析
	エアロゾル	Diffusion Battery+Ion Denuder +Aerosol Counter (いずれも自作)	船首楼, 前マスト m. s. l 上 { 1~2m 3カ所 { 5~7m 10~12m	塩ビチューブを通じて吸引, 原則として30分間隔で測定, 粒径は10 ⁻⁷ cm以上, 吸引量16.5リットル/分
気象要素	風向風速	超音波式風向風速計 SA-200 (海上電機)	羅針甲板上的のポール m. s. l 上 9.0m	チャートレコーダに連続記録
	乾湿球温度	アスマン通風乾湿計	前部甲板上 m. s. l 上 約 2.5m	観測時前10分間に数回読取
	水温	電気式水温計 HK(6) + MK 2 (村山電機)	船底部 m. s. l 下 2.5m	チャートレコーダに連続記録
	日射強度	ネオ日射計 MS-41 (英弘精機)	後部甲板ガントリー上 m. s. l 上 約 5.5m	同上

m. s. l : 平均水位

ければならない。

いままでに大気汚染に関連して多くの組織的観測が行なわれ, また, 常時監視測定網も各自治体の努力によって整備されてきたが, これらは陸上に限られ, 海上の大気についての観測データは無きに等しく, この問題を議論するには, 海上の大気汚染の観測が不可欠である。

なお, 観測を行なった海域は, 北は東京湾周辺の大気汚染物質大発源地帯をかかえた関東平野に, 南は太平洋に続いており, 地理的, 地形的にかなり一般性をもった議論ができる条件を備えている。また周辺の陸上には, 多くの大気汚染常時監視測定点があることも好都合な条件である。

2. 測定

この観測では, 航走中の船上で, 海面付近の大気中の窒素酸化物(NO_x), オゾン(O₃), 炭化水素等の気体

物質の濃度, エアロゾル濃度および風向風速, 乾湿球温度, 水温, 日射強度などの気象要素を同時に測定した。これらの測定項目と, それぞれの測器および測定方法の概略を第1表にまとめて示した。

今回使用したNO_xとO₃の測定器は, どちらも米国などではすでに陸上における常時監視用に使われており, 精度もよく性能や信頼性について基本的には問題なく, また, 乾式の方法なので, 従来から利用されている溶液を用いる湿式に比べて船の動揺による指示値の不安定性等もなく, 船上の測定には向いている。

大気を採取する際には, 自船からの排出物質や, 海水の飛沫が混入しないように, 吸入孔の設定は船首側の高いところに, またその導入管はできるだけ短くなるように注意を払う必要がある。NO_x, O₃およびエアロゾルについては, 船首楼, 前部甲板, 前部マストにサンプ

リング用チューブの吸入孔を固定し、ポンプによって2~20m離れた船室内の各測定器まで空気を引き入れた。

風向風速計については、風の流が乱されないように周囲に影響物がなくしかもなるべく高いところに取り付け、日射計については、周囲に日射をさえぎるものがなく、しかも周囲からの散乱光を受けないところに取り付け、船体の影響を極力避けるように配慮した。

各測定器からの出力信号を、それぞれの記録計のチャート上に記録し、下船後、読み取りと整理を行なった。エロゾルと乾湿球温度については、指示値をその場で読み取り、野帳に記入した。

船の位置、針路、速度および気象要素の一部については、船からデータの提供を受けた。これらのデータから真の風向風速(対地風向風速)を計算で求めた。

エロゾル濃度は、diffusion battery と ion denuder を通して、粒径について(1) 10Å~100Å, (2) 100Å~300Å, (3) 300Å 以上の3段階に分けて測定したが、ここではトータル数についてのみ議論するにとどめる。

また、フロンガスやベンゾピレン等の炭化水素関係の濃度についても、別の機会に報告する予定である。

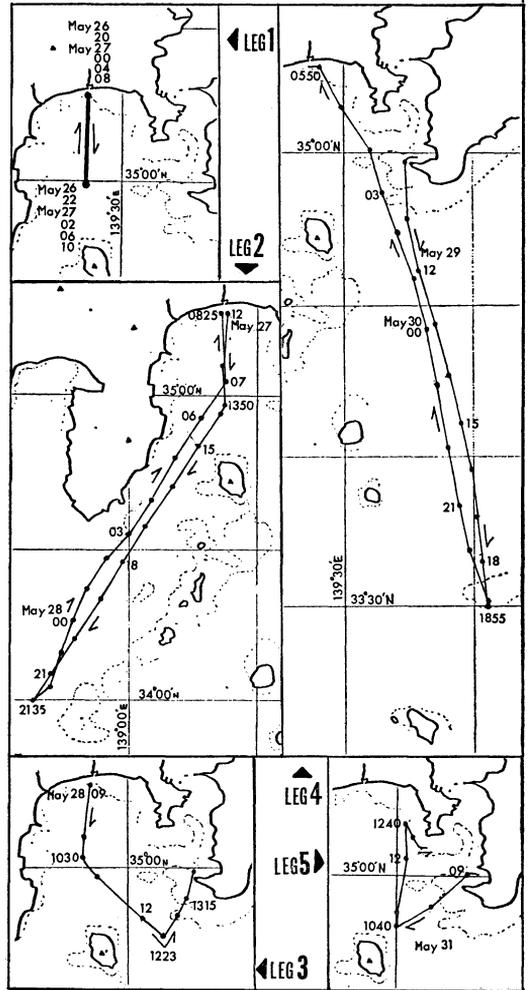
3. 観測の概要

KT-76-7 次研究航海は、5月26日に東京港を出港して6月1日に同港に戻るまでの6日間の航海であったが、この報告の主題である汚染物質の輸送過程に関連した観測には、このうち4日弱の時間を当てた。これを便宜上、Leg 1~Leg 5の5つの期間に区切る。各 Leg の航跡図すなわち測線を第1図に示すが、観測中、船は原則として巡航速度 10 kt で一定の針路をとりながら航走した。

観測期間中の5月27日から31日までの毎09時の地上天気図を第2図に示す。この期間、八丈島の南には前線があり、観測域では曇りの日が多く、また一般風も比較的強く、高低気圧の移動に伴って風向も何回となく変化した。なお、前半、この海域では、台風7605号および7606号によるうねりが残っており、淡青丸の動揺はかなり大きかった。

次に、各 Leg のねらい、コースと時間、気象状況等について、あらましを述べる。

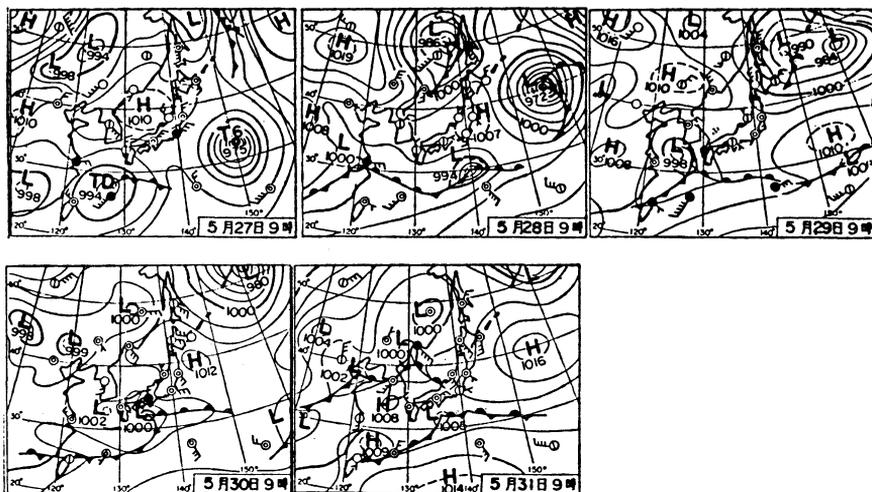
Leg 1; 相模湾上の各汚染物質の濃度の分布状態を観測するために、平塚沖2浬のところを基点として、そこを通る子午線(139° 20'E)に沿って湾の中央部に至る長さ20浬の測線上を、26日20時から27日正午まで4往復



第1図 淡青丸の航跡図。Leg 1~Leg 5 に区切って示す。なお、図中に記されている数字は月日および時刻を表わす(例、May 26・20は5月26日20時、0825は08時25分である)。

した。夜半過ぎまでは弱い南風の、そのあとはやや強い北風の一般風が吹き続き、また両日とも日射が弱かった。

Leg 2; 平塚沖の基点から Leg 1 の測線に沿って南下し、その南端から210°に針路をとり、大島と伊豆半島の間を抜けて三宅島西方の34°N線上で反転して、往路を逆にたどって基点まで戻るもので、27日の正午に始まり28日08時30分に終わった。この Leg では、北東風の継続を予想して、その流線方向に沿って各物質の濃度がどのように変化(あるいは減衰)していくかを調べよう



第2図 5月27日から5月31日までの午前9時における地上天気図（気象協会の雑誌「気象」より）。

とした。北東風は28日早朝までこの海域上を吹き続けた。

Leg 3；28日は相模湾は快晴で、この観測期間中で最も強い日射（最高1.3 ly/min）があり、気温も高く風は弱かった。この Leg は、そのような気象条件の下での海陸風や各物質濃度の分布状態を観測するために、平塚沖の基点を09時に出発し、Leg 1の測線の南端から大島東方海上をまわって15時に館山港に投錨するまでのコースをたどるものである。

Leg 4；各物質の濃度が、沖に行くに従って background level に近づいていく過程をみるために行なったもので、29日09時に館山港を出港して、八丈島東方の33°30'Nまで南下し、反転して30日06時に平塚沖まで戻るものである。この期間中は、この海域上を南寄りの風が吹き続き、気温も高かった。

Leg 5；相模湾沿岸海域の海陸風の様子を再度調べるために、31日午前から午後にかけて相模湾東部を北上するコースで観測を行なった。この日は、日射は比較的強く、また一般風は弱かったと考えられる。

4. 観測結果およびその検討

NOは、人為的には燃焼の過程で生成され、そのおもな排出源は工場や自動車であり、大気中で酸化されてNO₂に変化していく。これらの窒素酸化物（NOとNO₂とを合わせてNO_xと表わす）や炭化水素は、人間活動によって直接生成されて大気中に排出されるので、1次汚染物質と呼ばれる。O₃は、清浄大気中にも存在するが、汚染大気中でも光化学反応によって1次汚染物質か

ら生成され、2次汚染物質の一つである（いわゆる光化学オキシダントの主成分である）。エーロゾルについても、天然のものや1次的成因のもの、さらには光化学スモッグとして生成されるものが存在するが、今回の観測では測定に際してその区別はできない。

つぎに、観測の測定結果の概略を一括して第3図に示す。各 Leg について、30分または1時間ごとに各測定値の平均値（物質濃度については前30分間、風向風速、乾湿球温度および水温については前10分間、日射については前1時間の平均値）をプロットした。この図の縦軸は、上から順に、O₃、二酸化窒素（NO₂）、一酸化窒素（NO）の濃度（以上、単位；ppb）、エーロゾル濃度（単位；1 cm³中の全個数）、風向と風速（単位；風速はm/s、風向は上を北とする線分の向きで表わす）、乾湿球温度と水温（単位；°C）および日射強度（単位；ly/min）を表わしており、横軸はすべてに共通で時間をとってある。

このほかに、1976年5月の神奈川県、東京都、埼玉県、千葉県、川崎市および横浜市の各自治体関係機関の大気汚染常時監視測定網による、汚染物質濃度、風向、風速のデータをも参考にしながら、今回の観測結果に関していくつかの特徴的な事例について若干の検討を行なった。

4. 1 伊豆諸島海域での各物質濃度の水平分布について

まず、南寄りの風が吹き続き、観測域全体が太平洋上の大気におおわれていたと思われる Leg 4の測定結果を

みると、陸地のすぐ近くを除き、八丈島東方洋上から相模湾に至るまで、NO_x 濃度は測定器の検出限界である 2 ppb 以下であった。また、O₃ は、30 ppb 前後で時間に関係なくほとんど一定の濃度である。Robinson・Robbins⁵⁾(1970)によれば、海洋上のNO_xのbackground値は1 ppb₂以下であり、また、O₃のbackground値は、地表付近では変動が激しいが、Fabian・Pruchniewicz(1973)によれば、10~40 ppb 前後である。いっぽう、エーロゾルは、他の Leg に比べれば低い濃度ではあるが、今航海中最低値を記録した八丈島近くでも10³コ/cm³であり、三陸沖や日本海での濃度より4~5倍高い。Junge(1963)等によれば、background値は約2×10²コ/cm³である。これらより、この時の大気は、比較的一様に汚染されていたことを示している。

4. 2 相模湾上の汚染大気について

Leg 1におけるNO_x濃度の平均値は約25ppb、またエーロゾル濃度は10⁴コ/cm³弱とLeg 4にくらべてはるかに高かった。

Leg 2で最も特徴的な現象は、5月28日00時から06時までNO_x濃度が非常に高く、特に、02時から04時まで約2時間にわたって最高値80ppbを観測したことである。この時、船は、第1図にみられるように伊豆半島南端石廊崎沖から相模湾北部に向けて北東方向に進行中であった。船上での風は、北東風7m/s前後でこの時間中はほぼ一定であり、また、この北東風は、少なくとも27日午前中からずっと吹き続けている。これらより、この汚染気塊は、風上にあつて発生源が集中している東京湾沿岸地域で排出された汚染物質が起源で、相模湾上を比較的拡散されずに少なくとも100km以上風下へ輸送されていったと思われる。

いっぽう、00時よりNO₂濃度が増加し始めるとO₃濃度は減少し始め、O₃濃度が検出限界1ppb以下になる

とNO₂濃度は最高値60ppbで一定となり、同時にNO濃度が検出限界以上に増加して約20ppb程度存在している。これは、発生源より排出されたNOが、日射のない夜間に輸送されながら、主として大気中のO₃と反応してNO₂に変化する過程、すなわち、



という反応の結果によるものであり、排出時のNO濃度が非常に高いと、その大気中のO₃がほとんど反応してしまってもまだ未反応のNOが相当量残っていることをこの例は示していると考えられる。

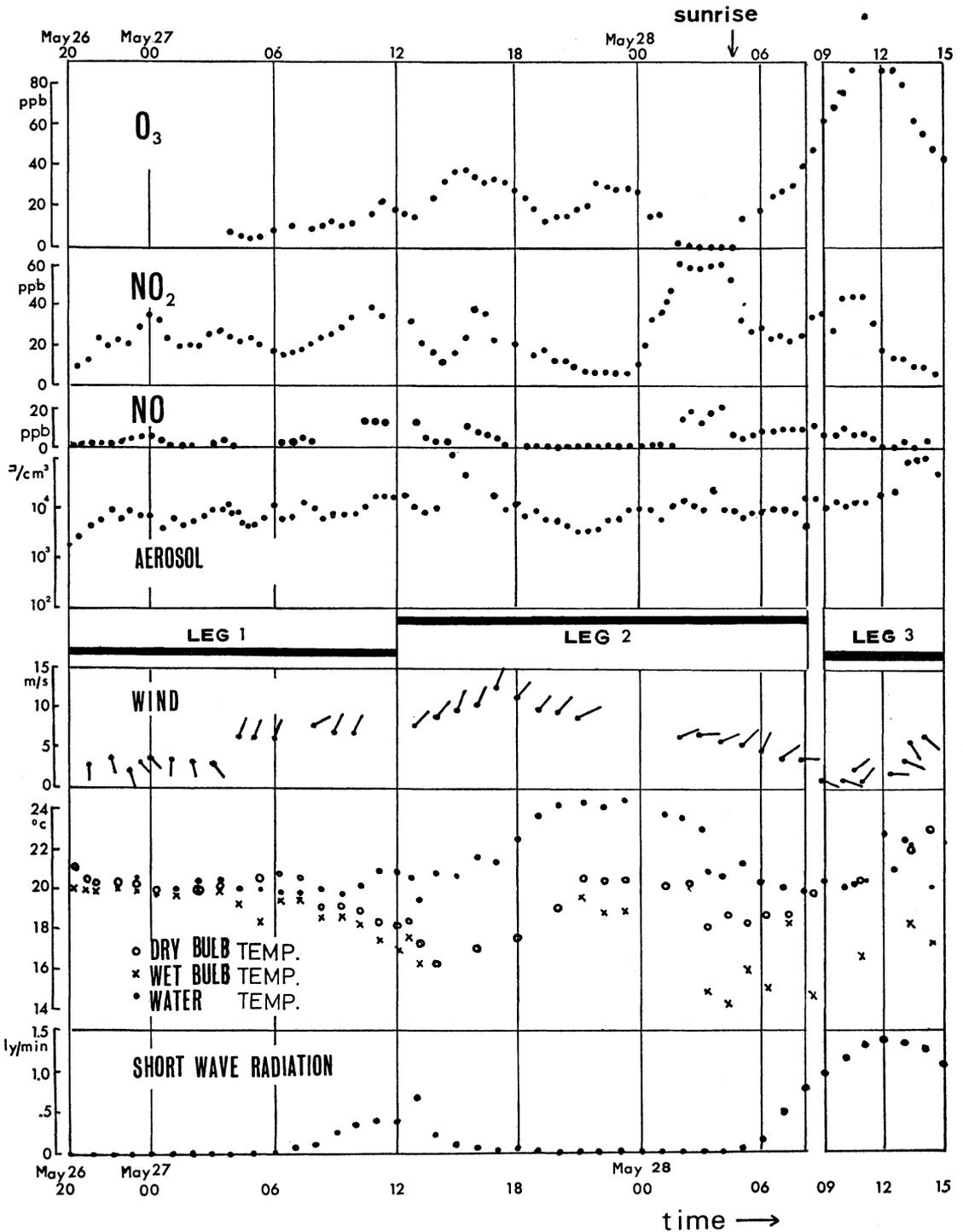
つぎに、Leg 2の後半からLeg 3にかけては、O₃濃度が、日射の増加とともに著しく上昇し、11時頃相模湾中央部から大島の北方海上で最高値120ppbを観測し、その後船が房総半島に近づくにつれて次第に減少していることが観測された。この時、NO、NO₂濃度とも比較的高く、各最高値は10ppbおよび40ppbである。この間、雲は殆どなく快晴で、船は相模湾内をほぼ南北に航走しており、午前中は船上の観測によれば、相模湾内は殆ど風がない状態である。これらより、前日からの北寄りの風で相模湾上に輸送された汚染大気中で、強い日射により光化学反応が進行してO₃が大量に生成され、その濃度が高くなったと考えられ、湾上でも光化学スモッグが発生していることが確認された。

このように、Leg 2~3での観測結果は非常に興味深いものであり、船上の他の観測データ、陸上のデータおよび汚染源の分布等の資料を参考にして、汚染物質の輸送過程を今後さらに詳しく検討する予定である。

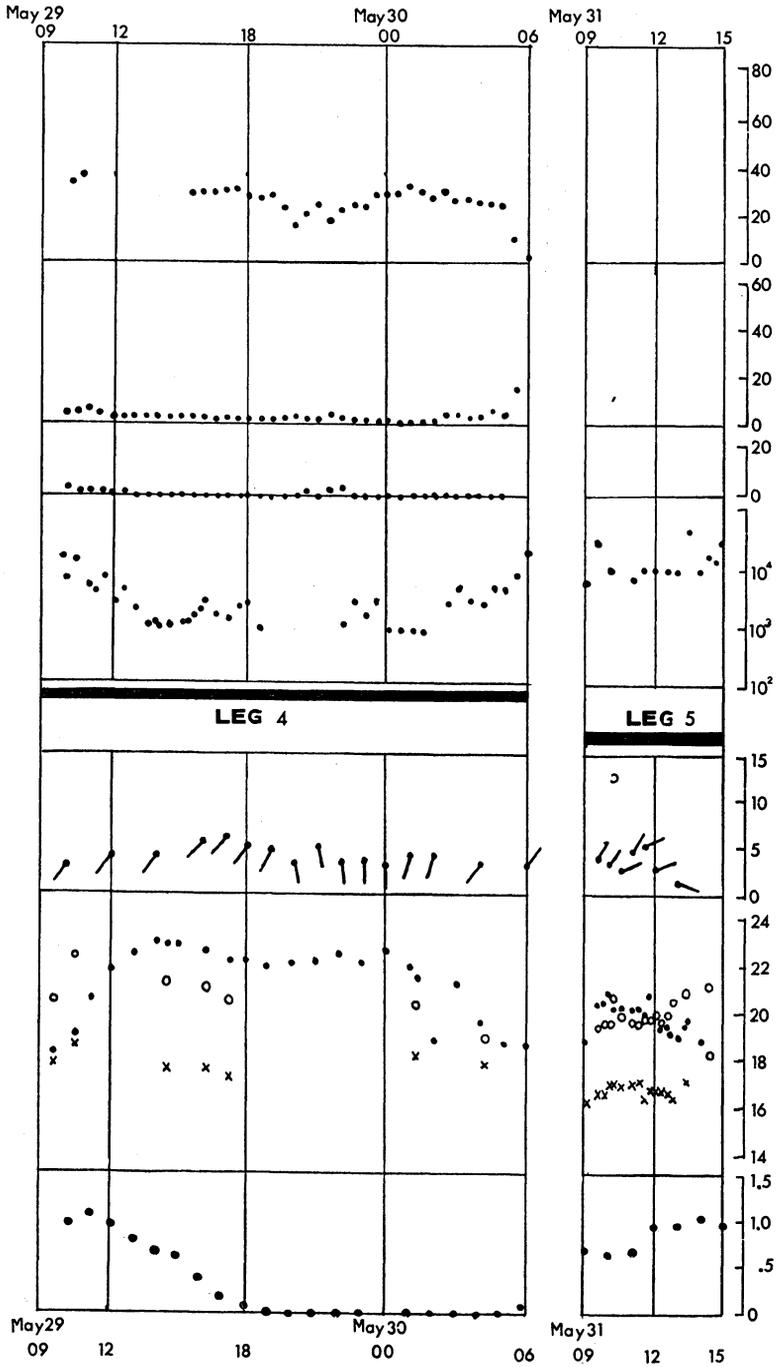
なお、Leg 2~3の期間中の相模湾上のNO_x濃度の最高値は80ppb、1時間平均値は38ppbであり、同期間を含む5月27日~28日の2日間について、沿岸の神奈川県内の都市部のNO_x濃度と比較したのが第2表である。これによれば、相模湾上のNO_x濃度は、小田原市

第2表 神奈川県内の各都市における5月27日01時より28日24時までのNO_x濃度
(単位; ppb, 大気汚染常時監視測定データより)。

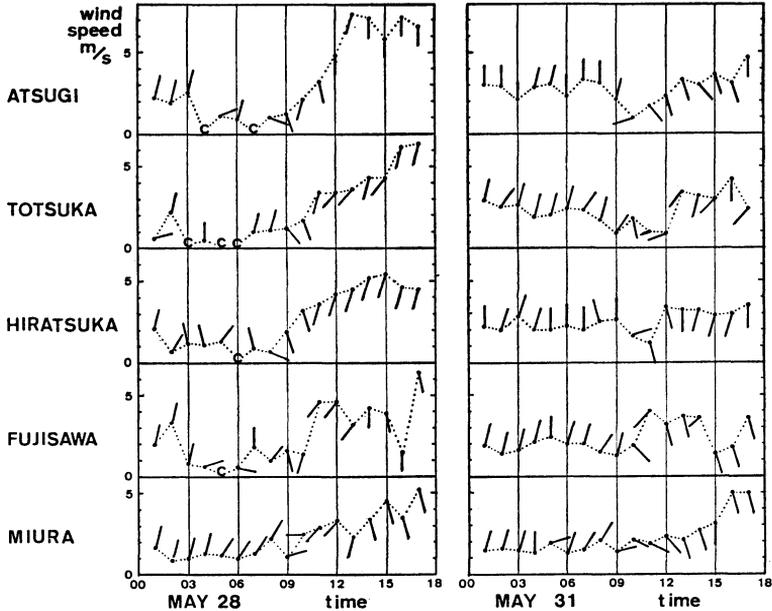
測定局	横浜 (県庁)	横須賀	藤沢	平塚	小田原	厚木	相模原
2日間の最高値 と その発生時刻	219 28日10時	219 28日02時	104 27日14時	133 28日11時	77 27日19時	85 28日05時	91 28日09時
2日間の平均値	98	56	51	42	35	48	41
1976年5月中の 1ヵ月平均値	80	40	52	44	26	50	36



第3図 観測期間中における各項目の測定結果の一覧図。詳しくは本文を参照されたい (なお, O₃, NO₂, NO 濃度の0は検出限界を示す)。



第3図 つづき



第4図 5月28日および5月31日の01時より17時までの、三浦、藤沢、平塚、戸塚、厚木における風向風速（大気汚染常時監視測定データより）、Cはcalm（風速 0.4 m/s 以下）を表わす。

と同程度であり、藤沢市よりは低いといえよう。

4.3 相模湾上の海（陸）風について

最初に述べたように、沿岸地域の汚染物質輸送における海陸風の寄与は興味ある問題であるが、一般には、海風によって、海岸付近で大気中に排出された汚染物質が内陸に運ばれて行く過程に関心が寄せられているようである。しかしながら、陸上から、いったん海上に流れ出した汚染気塊が拡散で十分に希釈されないうちに、再び陸上に流れ込むことは、現実であり得ることであり、とくに流れの向きが一昼夜の間に2度反転するプロセスを内在している海陸風循環については、当然、その移流効果が注目される場所である。

その意味で、海上における海陸風の動態を観測することが、この観測のねらいの一つであったが、この地域で最も顕著に海陸風が現われやすい季節を選んで実施したにもかかわらず、観測期間中の気象条件はあまり芳しくなく、十分なデータは得られなかった。それでも、Leg 3の5月28日とLeg 5の31日の2日間は、日射が強く、一般風は弱くて、陸風から海風に変わる過程を不十分ながら観測することができた。

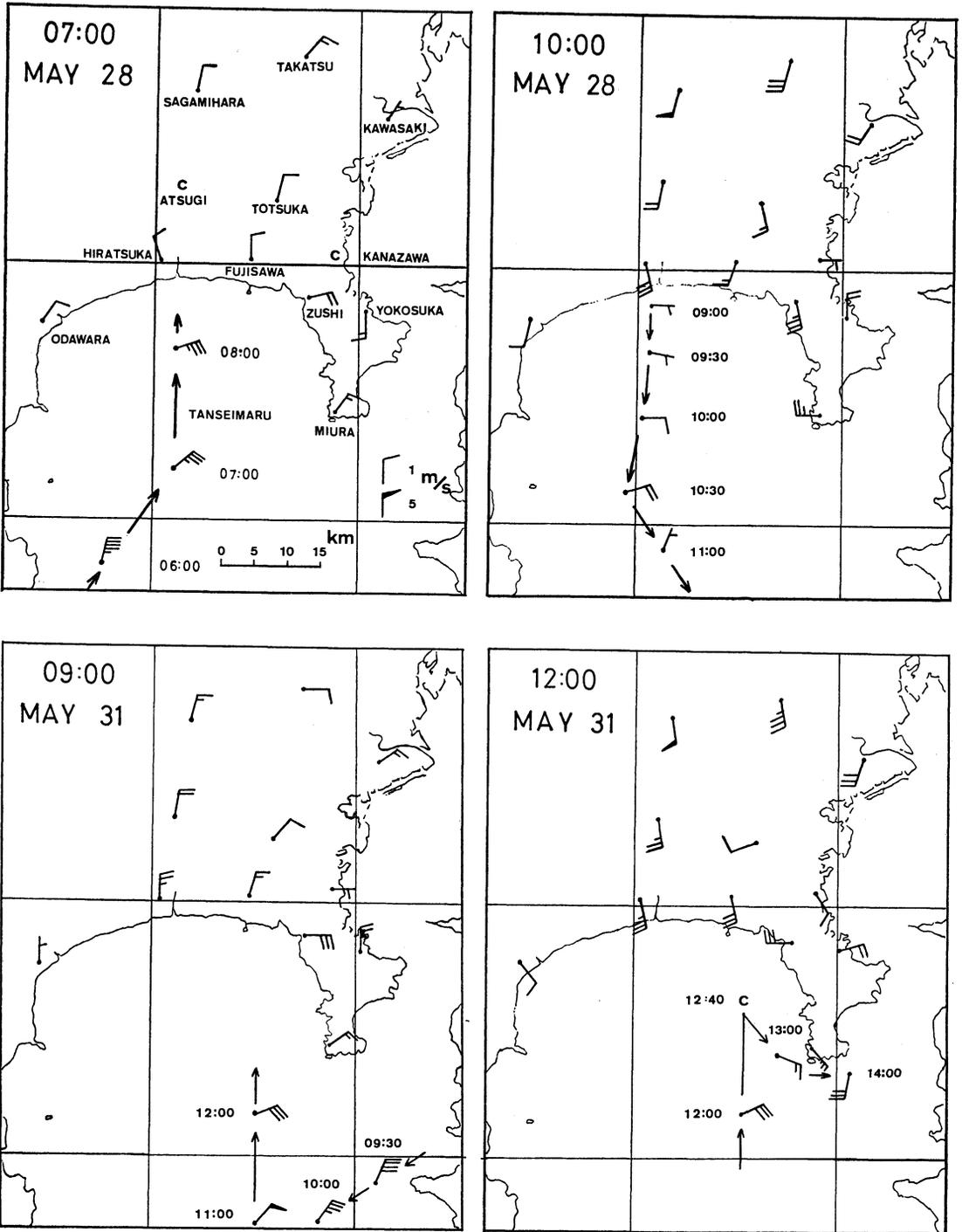
第4図に、両日午前から午後にかけての神奈川県東部のいくつかの地点における風の時間変化の様子を示した。また、第5図には、両日の陸風と海風とが交代する

前後の時間における陸上と海上（淡青丸上）の風の分布を示した。これによれば、海岸部から内陸にかけて北寄りの陸風から南寄りの海風への変化が明瞭に現われていることがわかる。このとき海上では、淡青丸が移動しながら観測を行なったが、海岸から10km程度の沖合いでも、海風がはっきりとは現われていない。

なお、いずれの場合も、観測した範囲の相模湾の水温の分布は、大体一様で著しい変化はみられなかった。

また、筆者らは過去に、“晴れた日の午後、4～5時間も前から海岸では 5 m/s 前後の海風が吹いていて風波も発達しているのに、そこから10 km程度沖の海上では、殆ど無風で、なごの状態が午前中から続いている”という例を、同じ相模湾の沿岸で何回か経験したこともある。

このわずかな事実だけから、海陸風による海風域の海上側への拡がり方について考えると、海風域は、海岸線に関して陸側と海側に対称的に拡がっていくのではないとみることもできる。すなわち、海側への拡がり方は、陸側へのそれに比べて遅く、また、距離的にもあまり沖合まで及ばない場合が多いように思われる。しかし現在のところ、この予想を積極的に支持するような、これ以上の観測データもなく、また理論的な仮説もないようである。



第5図 5月28日07時と10時、5月31日09時と12時の神奈川県東部における風向風速。また、各時刻の前後の淡青丸の船上における風向風速も同時に示した。

このように、海上の海陸風の実体については、意外にわかっていない面があり、十分な計画に基づく本格的な観測を行なうことによって明らかにされるべきである。

5. むすび

今回の観測は、沿岸地域の大气汚染物質の輸送過程に関連して、海上における、大气汚染状況と海陸風の動態について、予備的な知識を得ることをねらったものであった。その結果、今後の研究の発展に役に立つと思われる興味あることがらを知ることができた。それをまとめてみるとつぎのようである。

(1) 北東風のときに、相模湾や伊豆諸島付近の海上で、沿岸の都市域と同程度の濃度の NO_x やエアロゾルを含んだ汚染大気が観測された。これは、東京湾周辺地帯で汚染された気塊が、北東風によってあまり拡散されずに運ばれてきたものであろう。このように、風の状況によっては、かなり高濃度に汚染された気塊が、遠く 34°N 付近の外洋まで運ばれることも十分あり得ると思われる。

(2) いっぽう、南寄りの風が吹き続けると、この海域全体は、東京湾周辺地帯を通過してきた大気に比べてあまり汚染されていない大気におおわれるが、background値にまでは減少しておらず、エアロゾル濃度は八丈島付近でも日本海や三陸沖に比べて4~5倍高かった。

(3) 陸上から海上へあまり拡散されないまま輸送されてきたと思われる汚染大気中では、日射のない夜間には NO が O_3 と反応して NO_2 に変化していく過程が観測され、日射が存在すると光化学反応が進行して高い O_3 濃度が観測された。

(4) 相模湾上の海陸風に関しては、わずかなデータからの推測であるが、海上の海風域は陸上のそれに比べて

狭く、場合によっては海岸線から沖合 10km にも及ばないのではないかとと思われる。

なお、これらについても、さらに詳細な観測を行なうことにより事実をもっと明確にすべきであろう。

謝 辞

この観測は、最初にも触れたように、東大海洋研究所の淡青丸 KT-76-7 次航海研究 (共同利用 5 次) として実施されたもので、同船の上之清尚船長はじめ関係者の協力に深く感謝する。また、いろいろな協力および大気汚染常時監視測定データを提供していただいた神奈川県、東京都、埼玉県、千葉県、川崎市、横浜市の各機関の関係者の好意に感謝したい。なお、この研究は科学研究費 (特定研究「海洋環境保全」)「大気から海洋への汚染物質の降下に関する研究」の一環としても行なわれたものであり、研究代表者の浅井富雄教授の助言に謝意を表したい。

文 献

- 神奈川県公害対策事務局, 1974: 光化学公害の現状と対策, 16-31.
 河村 武, 1972: 大気汚染気象の動向とその背景, 天気, 19, 467-483.
 Fabian, P. and P.G. Pruchniewicz, 1973: Meridional distribution of tropospheric ozone from ground-based registrations between Norway and South Africa, Pure Appl. Geophys., 106/108, 1027-1035.
 Junge, C.E., 1963: Air Chemistry and Radioactivity, Academic Press, N.Y.
 Robinson, E. and R.C. Robbins, 1970: Gaseous nitrogen compound pollutants from urban and natural sources, J. Air Poll. Control Assoc., 20, 303-306.