

神戸市における大気中 NO_x , O_3 濃度の空間分布*

小 路 正 弘**

要 旨

神戸市上空の NO_x , O_3 濃度を、冬期と夏期の1日ずつ、ヘリコプターを用いて立体測定した。まず、測定器のステップ応答特性を解析して測定値を補正し、測定器の過渡応答特性を等価的にそろえる。次に、濃度の空間分布と逆転層等の対応を考察するとともに、 NO_x および O_3 濃度分布をスペクトル解析した。その結果、夏期には海岸近くの下層で O_3 濃度が高まる事例が明らかになった。また、 NO_x , O_3 濃度は、冬期については終日みごとな逆相関を呈する一方、夏期は朝夕逆相関、日中正相関という日変化が検出できた。

1. はじめに

大気汚染の解明には、地上の測定調査だけでは不十分であり、立体調査がぜひ必要である。航空機を使用した大気汚染物質の立体分布測定は、これまでにいくつかの報告がある。Hesterら(1975)は、汚染物質の垂直分布は複雑で濃度の高低レベルが交互に成層していると述べている。また、若松(1975)は、50回ほどの測定結果から高度500~700mに O_3 濃度の極大が出現しやすいと報告している。ここでは、立体分布の季節変化および日変化の概略的な検出を目的として、 NO_x 計、 O_3 計、それに温度計をヘリコプターに搭載して測定した。測定期日は、冬期と夏期を比較対照させるため、濃煙霧状態の冬期の1日と、光化学オキシダント濃度が上昇した夏期の1日とをそれぞれ選んでいる。一方、航空機は速度が速いから測定器の過渡応答特性を無視できない。過渡応答の補正には、伝達関数を用いたり微分補正をしたりする方法がある。Markowski(1975)は、後者の方法によって測定値を補正し、測定器の応答速度を等価的に速めている。ここでは、実測したステップ応答特性から過渡応答特性を解析し、その結果を利用して測定値を補正した。こうして得た NO_x , O_3 濃度の垂直分布と逆転層等との対応を考察する。さらに、水平分布をスペクトル解析したところ、 NO_x と O_3 濃度の空間分布の相関関係は、夏期の日中のみ正相関、夏期の朝夕および冬期はすべて逆相関という結果が得られた。なお、スペクトル解析

は、Panofskyの方法(草野, 1971)によった。

2. 調査概要

調査期日は、冬期を1975年2月14日、夏期を1975年9月25日に定めた。2月14日、西日本は高低気圧の鞍部に位置し、風がほとんどなく濃いスモッグに見舞われた。09時、全天絹層雲が張りつめていたが次第に雲が厚くなり、15時すぎから雨になった。一方、9月25日は、日本海に中心を持つ高気圧に覆われた。終日穏やかな晴天が続ぎ、日中は光化学オキシダントが上昇して光化学スモッグ広報が発令されている。

航空機に搭載した測定器の概要は第1表のとおりである。 NO_x 計は、 NO と NO_x とを同時には測定できない型であるので、両方測定する場合には最初 NO_x モードで測定し、次いで NO モードに切り替える方法をとった。 O_3 計は、特に携帯用に設計された小型軽量のものである。吸引口は、ヘリコプターのスキッド先端に、吸引方向が進行方向と逆向きになるよう取り付けられた。この位置なら、40 knots 以上の速度で飛行すれば、ヘリコプター回転翼のダウンウォッシュの影響を受けない(渡辺他, 1972)。温度計も感温部を断熱カバーで包んで上記と同じ位置に取り付けた。なお、 NO_x , O_3 計への気圧変化による影響や、空気との摩擦や圧縮が温度計に及ぼす効果は補正していない。また、地上の NO_x 濃度はザルツマン試薬を用いた吸光光度法(ザルツマン係数0.72)で測定した。

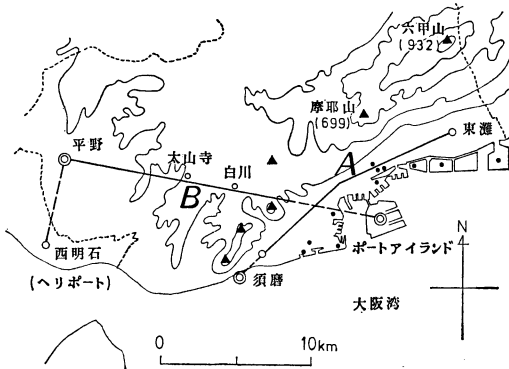
飛行コースは、被測定地域を、人口密度が高く工場も多い旧市街地(東灘~須磨)と、人家のまばらな西神の丘陵地帯とに大別して決定した。まず、垂直分布はポートアイランド、須磨海岸、および平野の3地点で、原則

* Distributions of NO_x and O_3 concentration in the atmosphere in Kobe City.

** M. Koji, 神戸市公害監視センター。
—1977年11月24日受領—
—1978年2月23日受理—

第1表 測定器概要

| 項目 | 測定器 | | | サンプリングパイプ | | |
|-----------------|--------|----------------|-------|-----------|------|-----|
| | 製造元 | 型名 | 測定原理 | 材質 | 内径 | 長さ |
| NO _x | Bendix | 8101-B | 化学発光法 | テフロン | 3 mm | 4 m |
| O ₃ | 紀本電子工業 | 804 | 〃 | 〃 | 4 mm | 4 m |
| 気温 | 日本科学工業 | アネモマスター AM-A11 | 白金抵抗線 | — | — | — |



第1図 飛行コース (◎印: 垂直分布測定地点, ・印: 排ガス量 ≥ 5万 Nm³/H, かつ有効煙突高さがある程度高い固定発生源).

として 100m 毎に測定した。各高度の測定は、所定の高度を速度 60 knots くらいで 1 分間ほど旋回し、その間の平均値をその高度の値とした。次に、水平分布は第 1 図の A, B の 2 コースで、高度 300m, 速度 100 knots に保って測定した。使用した航空機は、神戸市消防航空隊の小型ヘリコプター (川崎ヒューズ式 369 HS 型) で、タービンエンジンであるからスパークノイズは発生しない。

飛行回数は、2月14日が10~11時(午前)と13~14時(午後)の2回、9月25日は9~11時(朝)、13~15時(日中)、および16~17時(夕方)の3回である。以下では、それぞれの測定について、この括弧内の名称で呼ぶことにする。なお、NO と NO_x とに分けて測定したのは、9月25日の朝と日中だけで、他はNOの測定を割愛した。また、9月25日はパイロットバルーンによる上層風の観測も行なった。

3. 過渡応答特性

測定器のステップ応答特性を解析し、その結果を用いて測定値の補正方法を定める。

3.1. 理論

T₁, T₂, T₃ を時定数とする互いに独立な 3 個の 1 次おくれ要素が直列につながっている時、伝達関数 G(S) は (1) 式で表現される。

$$G(S) = 1 / (1 + T_1 S)(1 + T_2 S)(1 + T_3 S) \quad (1)$$

この系に、振幅が時間 t < 0 で 0, t ≥ 0 で 1 なるステップ入力を加えた時の出力、すなわち、ステップ応答関数 C(t) は、

$$C(t) = 1 - \frac{T_1^2 \exp(-t/T_1)}{(T_1 - T_2)(T_1 - T_3)} - \frac{T_2^2 \exp(-t/T_2)}{(T_2 - T_1)(T_2 - T_3)} - \frac{T_3^2 \exp(-t/T_3)}{(T_3 - T_1)(T_3 - T_2)} \quad (2)$$

となる。一方、(1) 式を周波数伝達関数に変換するには、S = jω (j = √-1, ω: 角周波数) とすればよい。結果は複素関数になるので、その振幅の 2 乗を求めると、

$$|G(j\omega)|^2 = 1 / \{ (T_1 T_2 T_3)^2 \omega^6 + (T_1^2 T_2^2 + T_2^2 T_3^2 + T_1^2 T_3^2) \omega^4 + (T_1^2 + T_2^2 + T_3^2) \omega^2 + 1 \} \quad (3)$$

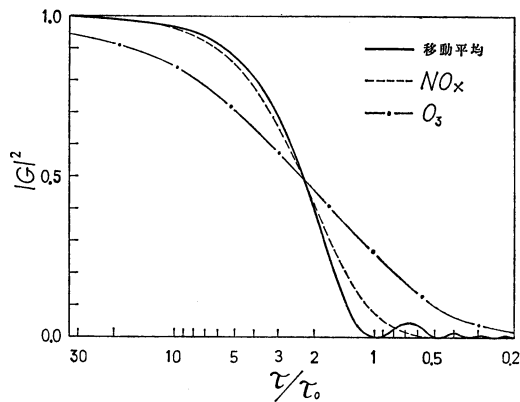
となる。(3) 式は、系のエネルギー伝達率を意味し、この場合は一種の低域通過フィルタに相当する。また、この伝達特性は、時定数の値によっては移動平均の伝達特性に近づく。今、周期 τ (= 2π/ω) の余弦波を平均化時間 τ₀ で移動平均すれば、エネルギー伝達率は次のようになる。

$$\left\{ \frac{1}{\tau_0} \int_{-\tau_0/2}^{\tau_0/2} \cos(\omega t) dt \right\}^2 = \left\{ \frac{\tau}{\tau_0} \sin \left(\pi \frac{\tau_0}{\tau} \right) / \pi \right\}^2 \quad (4)$$

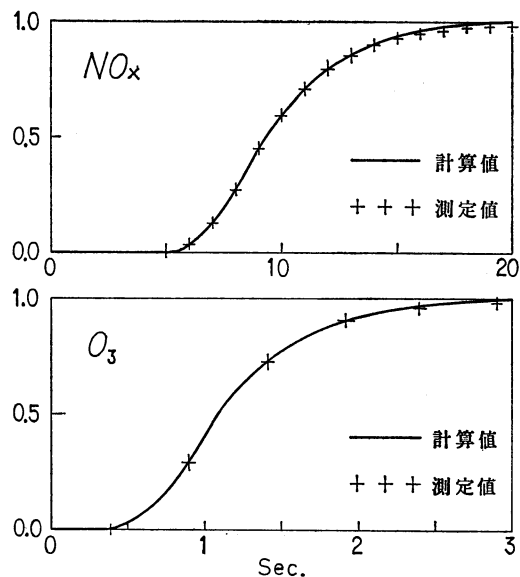
第 2 図は、(4) 式を τ/τ₀ の関数として示したもので、τ/τ₀ = 2.26 の時、エネルギー伝達率が 1/2 になる。

3.2. 測定器の過渡応答特性

濃度 1.3 ppm の標準 NO ガスとゼロガスとを切り替えて、NO_x モード時の NO_x 計のステップ応答特性を



第2図 変動エネルギーの周波数伝達特性。



第3図 測定器のステップ応答特性。

測定した。第3図は、立ち上がり特性の測定結果であるが、立ち下がりも全く同様である。入力を加えてから出力が現われ始めるまでのむだ時間は5.0秒、出力が現われ始めてから最終値の90%に達するまでの90%応答時間は9.0秒であった。

化学発光法の場合、過渡応答特性に影響する主要素として、反応セルの換気時間、化学反応時間、さらに、電子回路の平均化時間の三者が考えられる。そこで、ステップ応答特性に(2)式を仮定して、(2)式の値が実測したステップ応答特性にできるだけ近づくよう、3個の時定数を試行錯誤によって求めていく。最終的に得た(2)式

の値を図に描くと、第3図のとおり実測値とよく一致している。すなわち、測定器のステップ応答特性を(2)式でうまく近似できたことが分かる。この時、(3)式は周期20.7秒でエネルギー伝達率が1/2になることを示す。そこで、 $20.7 \div 2.26 = 9.1$ (秒)を τ_0 としてエネルギー伝達特性を描くと、第2図のごとく移動平均にかなり近い特性になる。

次に、O₃発生器から得た濃度0.16ppmのO₃を用いてO₃計のステップ応答特性を測定したところ、むだ時間は0.4秒、90%応答時間は1.5秒であった。エネルギー伝達特性は移動平均から少しはずれているが、平均化時間が0.81秒と小さく、O₃計の出力はNO_x計から見ると瞬間値にも等しい。

最後に、温度計のステップ応答特性を、航空機に取り付けた時に受ける風向と同じ方向から、風速10m/Sほどの冷風を当てて求めた結果、むだ時間は0.3秒、90%応答時間は10秒であった。気温の水平分布は測定しなかったため、温度計の応答はこれ以上解析しなかった。

3.3 測定値の補正

明らかになった測定器の過渡応答特性から、測定値の補正方法を次のように定めた。

垂直分布は、サンプリングパイプおよび測定器のむだ時間や90%応答時間に応じて、記録紙の時間軸をずらす。一方、水平分布についてはNO_x濃度はそのままとし、O₃濃度について測定値に9秒移動平均操作を施す。これにより、O₃の応答速度は等価的に遅くなるが、測定値の補正作業は簡単である。また、水平分布は速度100 knotsで測定したから、測定値はおよそ500mの空間移動平均濃度を示すことになる。

4. 結果

垂直分布と水平分布の測定結果の一例を、それぞれ第4図～第5図、第6図～第7図に示す。

4.1 2月14日の結果

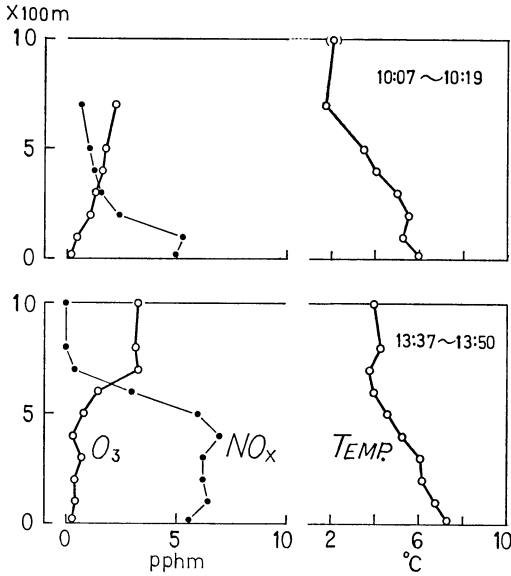
午前、高度100～200mと700m以上に二重の逆転層があった。一部大発生源の煙が接地逆転層を突き抜けて上の逆転層下端まで拡散する一方、ほとんどの煙が接地逆転層下に沈んでいる様子を肉眼でも観測できた。NO_x濃度の水平分布も大発生源の多い旧市街地東部の上空で高まっている。しかし、高度700m以上の空気は澄んでいてNO_x計もほぼ零を指した。旧市街地の地上10時のNO_x濃度は約24pphm(1時間値)だが、上空では須磨海岸上200mの13.5pphmが最高である。なお、地上のSO₂濃度は5pphmくらいであった。

午後になると、接地逆転層は押し上げられて衰弱したが、上の逆転層は健在であった。このため、接地逆転層下に沈んでいた NO_x が上の逆転層下端まで巻き上げら

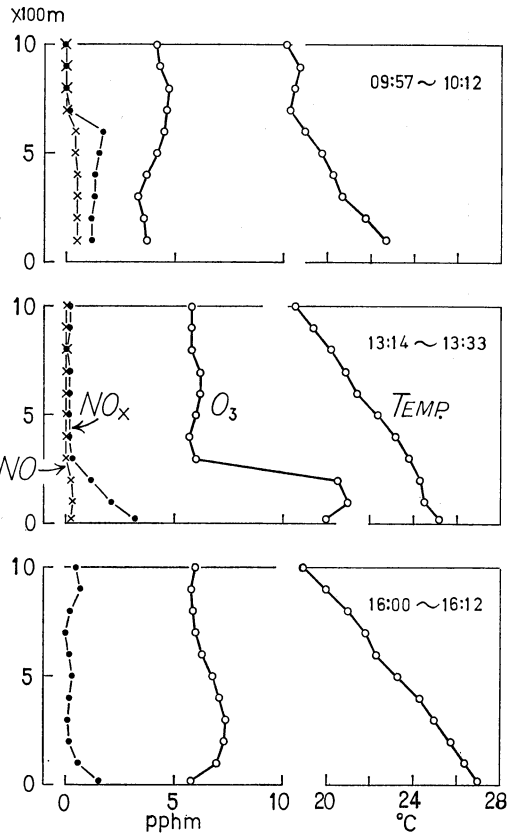
れ、地上の NO_x 濃度は 20 ppm と少し減少したが、水平分布でも、NO_x 濃度が一様に高濃度になっているが、O₃ 濃度は逆に極端に低くほとんど検出できなかった。第6図にも午後の O₃ 濃度は記入していない。また、午前午後を通して垂直、水平分布ともに NO_x, O₃ 濃度間の逆相関が顕著である。

4.2. 9月25日の結果

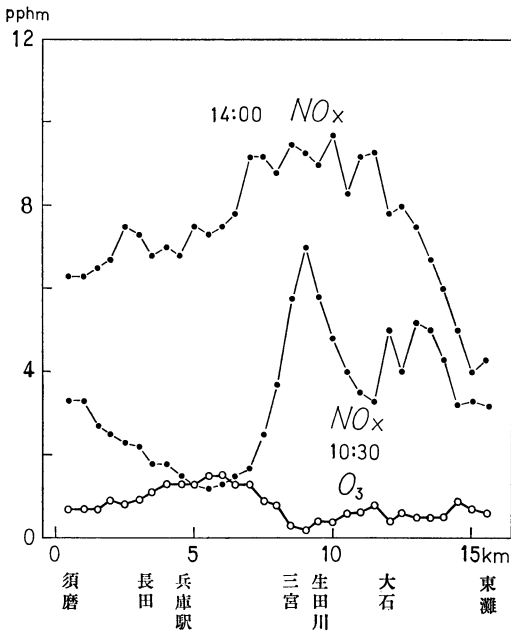
朝、高度 700~900m に逆転層があるが接地逆転はない。高度 100~200m を中心に 5m/s くらいの東風が吹いているが、500m 以上は無風に近い。この東風は11時には弱まった。NO_x 濃度は、逆転層下端以下は 1~2 ppm で、水平、垂直分布ともにだいたい一様である。この値は、2月14日に比し相当低いが、地上濃度は夏期としては平均的なものである。一方、O₃ 濃度は、逆転層の存在にかかわらず 4 ppm 前後で一定している。



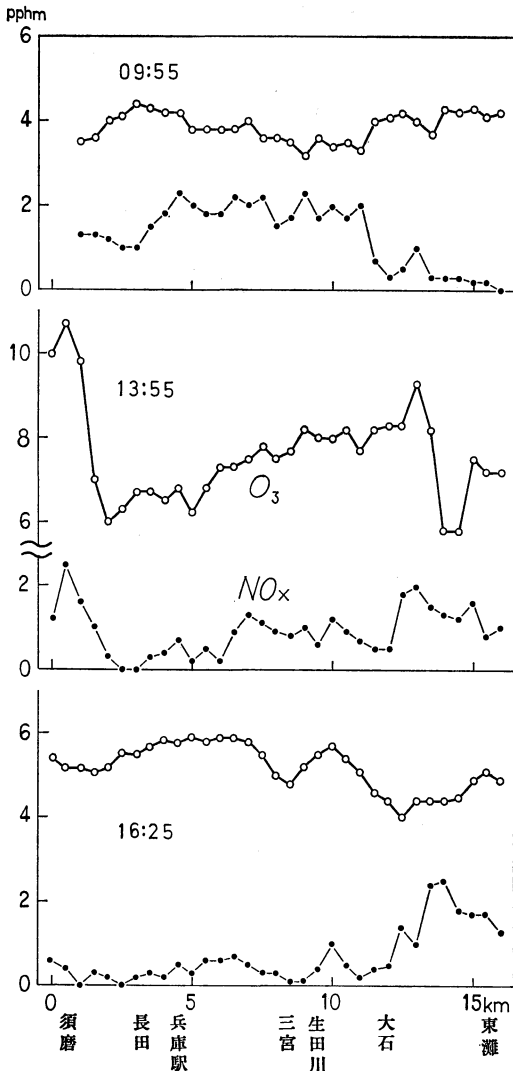
第4図 2月14日垂直分布測定結果(ポートアイランド)。



第5図 9月25日垂直分布測定結果(ポートアイランド、ただし朝のみ須磨海岸)。



第6図 2月14日水平分布測定結果(Aコース)。



第7図 9月25日水平分布測定結果 (Aコース)。

垂直分布の NO_x, O₃ 濃度の相関は、図では不明確であるが、ポートアイランドの高度 100m 以下に明瞭な逆相関が見られる (200m 以上欠測)。

日中になると上空の逆転層は消失し、替わって高度 100~200m に逆転層や安定層が出現した。また、光化学反応によって O₃ 濃度が全層にわたり上昇したが、高度 200m 以下での増加が激しく、ポートアイランド上空 100m で 13 ppm の最高を記録した。地上のオキシダント濃度の最高は 12 ppm である。朝から日中にかけて、地上の NO_x 濃度はあまり変化しなかったが、上

空の NO_x 濃度は減少する一方、NO_x, O₃ 濃度が正相関の分布になっている。

夕方には、高度 300m 以下で西風が強まり、すべての逆転層がなくなるとともに、下層の O₃ 濃度の山も崩れてなだらかになった。地上の NO_x やオキシダント濃度も下がり、NO_x, O₃ 濃度間に再び逆相関が見られる。

5. 考察

2月14日午後、上空に拡散した NO_x の多くは自動車が出したものと思われる。上空の NO_x 濃度の特色ある変遷は、市街地近くにある摩耶山観測所 (海拔約 700 m) でもよく捕えられている。この NO_x 濃度は、10時以前まで 7 ppm 以下であったのに、11時以後 20 ppm と急騰している。この間、摩耶山の SO₂ 濃度は 4 ppm くらいで大きい変動はない。したがって、SO₂ が自動車よりも主として工場から排出されていることを思えば、午後上空に巻き上げられた NO_x は、多くは自動車由来すると思われる。この傾向は、風洞実験結果 (神戸市, 1974) と一致する。

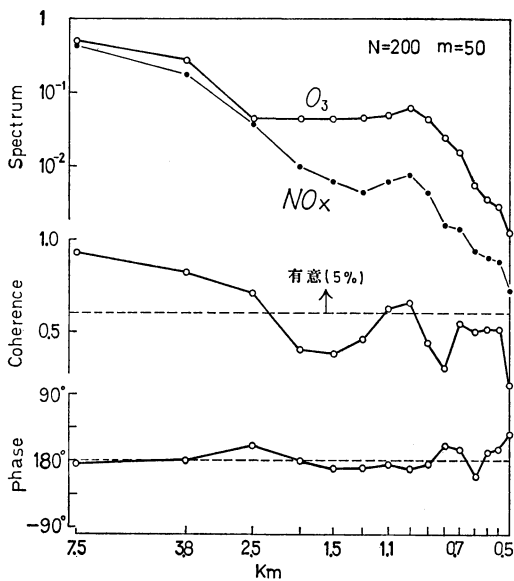
海風前線による NO_x ならびに O₃ 濃度の変動は、2月14日はそれらしきものがあつたが9月25日はなかった。2月14日の海風前線は、9~10時の間に上陸したが、ほとんど進行せずしばらくして消滅した。当日午前の B コース測定時に、全体に 2 ppm のところ、白川~太山寺間と平野~西明石の間地点で、ともに 6 ppm くらいの NO_x 濃度のピークを記録している。この時の地上風向を調査すると、白川と西明石を結ぶ線上の少し北に気流の収束域があり、上空の NO_x 濃度のピークは地上の気流収束に関係してできたと推定される。一方、9月25日の海風前線は、8時に上陸して順調に西進したが、気流の収束域に対応する NO_x や O₃ 濃度の変化はなかった。

9月25日の日中に高度 100~200m で O₃ 濃度が急上昇したのは、下層の安定層と関連があるかも知れない。海岸近くの下層では、高濃度 O₃ 層に対応するかのようになり、高度 100~200m に逆転層や安定層がある。しかし、少し内陸の平野では、安定層、O₃ 濃度の急増ともない。したがって、海風の進入によって沿岸にできる下層の安定層に、下層で O₃ 濃度が極大になる原因の一つを求められるのではないだろうか。神戸市では、本調査のほか、別の調査でも高度 300m 以下に O₃ 濃度の極大を観測している (小路, 1975)。これは、若松 (1975) の報告している高度よりずっと低く、神戸市沿岸の特色と言える。

NO_x と O₃ 濃度との関係は、9月25日の日中のみ正相

第2表 スペクトル解析による NO_x, O₃ 間の位相角度差一覧表 (+印: 0±45°, -印: 180±45°, そのほかは空白).

| | 波長 (km) | 7.5 | 3.8 | 2.5 | 1.9 | 1.5 | 1.3 | 1.1 | 0.9 | 0.8 | 0.7 | 0.6 | 0.5 |
|-----------------|-----------------|-----------------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| | A コース | 2/14 午前 (10:30) | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 9/25 朝 (09:55) | | - | - | - | - | - | - | - | - | + | - | + | - |
| 9/25 日中 (13:55) | | + | + | + | + | - | - | + | + | + | + | + | + |
| 9/25 夕方 (16:25) | | - | - | + | - | - | - | - | - | - | + | - | - |
| B コース | 波長 (km) | 13 | 6.3 | 3.2 | 2.2 | 1.6 | 1.3 | 1.1 | 0.9 | 0.8 | 0.7 | 0.6 | 0.5 |
| | 2/14 午前 (11:00) | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |
| | 9/25 朝 (10:30) | - | - | - | - | - | - | + | + | - | - | - | + |
| | 9/25 日中 (14:40) | + | + | + | - | + | - | - | - | - | + | + | - |
| | 9/25 夕方 (17:00) | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - | - |



第8図 スペクトル解析結果 (2月14日午前, Aコース).

関, 他は逆相関になっている.

Hesterら (1975) の夏期朝の測定結果では, NO_x のほか, NO, SO₂, CO, 粉じん等の濃度と O₃ 濃度とがいずれも逆相関の分布をしている. すなわち, 上空から拡散してきた成層圏起源の O₃ が, 地上から拡散してきた NO, 粉じん等 NO_x と高い相関を有する一次汚染物質に破壊されて, 逆相関が出現するものと思われる. ただし, 9月25日朝については時刻が9~11時で, すでに光化学反応が進行中と考えられる. したがって, この場

合の逆相関の原因は単なる破壊とは違った何か別の要因を考えるべきかも知れない. 一方, 9月25日日中の正相関は光化学反応の結果であろうが, これら相関々係をさらに詳しく検討するために, NO_x, O₃ 濃度の水平分布をスペクトル解析した. 解析に当たっては, 測定器の応答速度を考慮して測定値のサンプリング間隔を1.5秒とし, 周期10秒 (波長 0.5 km) の変動成分までを評価した.

第8図は, 解析結果の一例であるが, 全波長にわたり位相角度差が180°付近に集中し, NO_x, O₃ 濃度の逆相関々係が明確である. そこで, スペクトル解析結果のうち, 位相角度差に着目して第2表に整理した. +印が正相関, -印が逆相関である. これにより, 9月25日日中のみ正相関, 他は逆相関という姿が浮き彫りになる. 細かく見れば, 9月25日の朝の短波長域に正相関の領域があり, 光化学反応の進行を思わせる. さらに, 9月25日Bコースの夕方には逆相関しかないのに, Aコースの夕方には一部に正相関が残っている. これは, Aコースの測定時刻がBコースよりも30分ほど早かったために, O₃ の破壊が十分進んでいないためではないだろうか.

1日3回の測定では詳細な日変化は論じられないが, とにかく, 夏の朝夕は逆相関, 日中は正相関の分布になる一つの事例が明らかになった. ところで, 冬期の解析結果では, 検出限界とも言うべき周期10秒の変動成分まで位相角度差が180°近くにあり, 測定値の過渡応答補正に成功していることを裏づけている.

なお, 上層の逆転層であるが, 2月14日は暖気の移流に際して瀬戸内海に冷気が取り残されたため, また, 9月25日は日本海の高気圧の沈降気流によってできたと思

われる (小路他, 1976).

6. まとめ

神戸市上空の NO_x , O_3 濃度を, 冬期と夏期の1日ずつヘリコプターを用いて立体測定した。また, 測定器の過渡応答特性を等価的にそろえるべく, 測定器のステップ応答特性を解析し, 測定値を補正した。その結果, 濃度と逆転層との対応や NO_x , O_3 濃度分布の相関について, 以下のような興味ある知見を得た。

(1) 1975年2月14日(冬期)は, 午前, 上下二重の逆転層にふたをされており, 一部大発生源の煙を除き, 大部分の煙は接地逆転層の下に漂っていた。しかし, 午後, 接地逆転層の衰弱に伴い, 地上付近に沈んでいた汚染物質が上の逆転層下端まで拡散した。

(2) 1975年9月25日(夏期)は, 朝は沈降性逆転があり, 日中は光化学反応が進行して O_3 濃度が上昇した。特に海岸地方の高度 100~200m で上昇が著しく, これは, 海風によって沿岸下層に生ずる安定層と関係があるかも知れない。

(3) NO_x , O_3 濃度分布の相関は, 冬期は午前, 午後ともに逆相関である。一方, 夏期は, 朝夕逆相関であるが日中は正相関になっており, 光化学反応に伴う日変化がうかがわれる。これら相関々係は, スペクトル解析によって確認できた。

謝 辞

立体調査を行なうに際して, 心よく飛行を引き受けて

下さった 桂芳則 神戸市消防航空隊長をはじめ, 航空隊の皆様は厚く御礼申し上げる。また, 御協力いただいた 鍋山郁夫 神戸市公害監視センター所長, ならびに, 公害監視センターの諸氏に感謝する。

文 献

- Hester, N., R. Evans, C. Fitzsimmons, D. Mage and M. Price, 1975: Helicopter Platform Air Pollution Data I, The RAPS Program, Pap Air Pollut Control Assoc (USA), 75-40-4.
- 草野和夫, 1971: 透過率のスペクトル解析, 研究時報, 23, 399-400.
- 小路正弘, 1975: オキシダントと SO_2 のピークが近接する現象について, 天気, 22, 234.
- 小路正弘, 鍋山郁夫, 1976: 冬期と夏期における NO_x , O_3 垂直分布の一例, 大気汚染研究, 11, 317.
- 神戸市環境局公害対策部, 1974: 神戸市域における大気中の窒素酸化物濃度に関する研究調査 (風洞実験), 58.
- Markowski, G. R., 1975: A Useful Method for Transient Response Analysis and Data Correction Applied to Aircraft Plume Sampling, Pap Air Pollut Control Assoc (USA), 75-40-3.
- 若松伸司, 1975: 接地境界層内部でのオゾンの鉛直分布, 天気, 22, 514-520.
- 渡辺好弘, 吉川敏夫, 高中康恵, 高橋克己, 1972: ヘリコプターによる大気温度測定の実験 (1), 天気, 19, 497-504.