

瀬戸内沿岸域におけるオキシダント濃度の鉛直分布*

瀬戸 信也*

要 旨

春季の大竹市での係留ゾンデを用いた調査結果を対象に、オキシダント濃度の鉛直分布と気象条件との関連性について解析した。500 m 高度以下のオキシダント濃度は昼間に高く、夜間に低いが、濃度の日変化の振幅は地表付近で大きく、高度が増すにつれて小さくなる傾向が認められる。このようなオキシダント濃度の振舞は夜間の消費、朝方の鉛直混合、昼間の光化学反応によりある程度説明できる。オキシダントの高濃度は海陸風が吹き、かつ昼間を通して安定層が形成される条件のもとで出現している。さらに、地表オキシダント濃度が夜間に増大する現象について検討した。

1. はじめに

わが国では、大気環境中のオキシダント濃度の環境基準は、1時間平均値が 60 ppb 以下、と定められている。しかし、この環境基準は大部分の地点で達成されていない。たとえば、環境庁(1990)の報告によると、平成元年度の全国の一般環境大気測定局を対象とした場合、昼間の1時間値がすべて 60 ppb 以下の測定局の割合はわずか 1.9% であり、反面、注意報の発令基準である 120 ppb 以上の高濃度は全体の 29.9% の測定局で出現している。

一般に、暖候期には、都市大気中のオキシダントは窒素酸化物、炭化水素などの先駆物質から光化学反応により生成される、いわゆる“光化学オキシダント”の割合が大きく、高濃度時の緊急時の措置も光化学反応を抑制させるため、発生源から排出される汚染物質量を減少させてオキシダント濃度の低下を図るものである。オキシダントに関する研究も光化学オキシダントを対象にしたものが多く、たとえば、栗田ら(1985)は関東地方の都市域で生成された光化学汚染気塊が特定の気象条件のもとで長距離輸送されることを見出し、その機構について考察している。また、相模湾沿岸域では文部省「環境科学」特別研究「広域大気汚染の動態」研究班(1983)

による立体観測が行われ海陸風系と大気汚染物質の空間分布およびそれらの日変化の実態が明らかにされている。さらに、瀬戸内海の燧灘でも気象研究所(1984)により大規模な立体観測が行われ、オゾン濃度や窒素酸化物濃度の空間分布と局地気象との関係が論じられている。これらの研究はいずれも光化学汚染の視点から気象条件の役割について論じたものである。

一方、清浄な地域における自然起源のオゾン濃度はとりわけ春季に高くなることが、Singh *et al.* (1980)、溝口ら(1989)などにより指摘されている。都市域においても春季に自然起源のオゾンの寄与が大きくなると予想されるが、これを把握するには地表濃度の観測のみでは十分ではなく、濃度の鉛直分布を知ることが不可欠である。しかし、瀬戸内沿岸域では春季の都市域のオキシダント濃度の鉛直分布についての報告例はあまり見あたらない。

本報では大竹市で行われた係留ゾンデを用いた調査結果を対象にして、オキシダント濃度の鉛直分布とその時間変化の特徴、およびオキシダント濃度と気象条件との関連性について解析した。また、調査開始日の前夜に地表オキシダント濃度が増大する現象をみいだしたので、その由来についても検討した。

2. 調査方法

調査は広島県により1981年5月12日から16日までの期間、大竹市のほぼ中心部の総合市民会館の屋上(地上高:12 m)で行われた。調査地点および大気汚染測定局の配置を第1図に示す。大竹市は広島湾の西部沿岸の

* Case study on the vertical profile of oxidant concentration at the coastal region of Seto Inland Sea.

** Sinya Seto, 広島県環境センター。

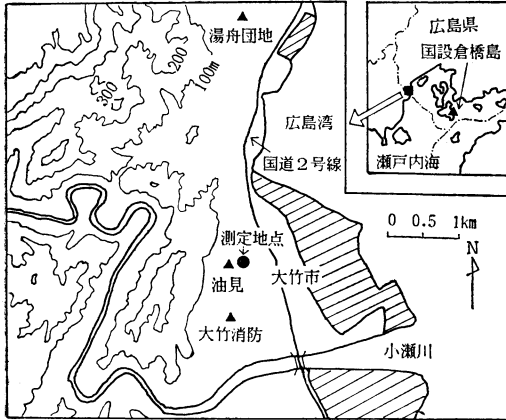
——1991年3月22日受領——

——1992年2月25日受理——

山口県との県境に位置し、海岸線はほぼ南北に走り、臨海部には製紙工業、石油化学工業などが立地している。市街地は工業地帯に隣接しており、そのすぐ背後には200~300 m の山並が迫っている。大気汚染測定局の湯舟団地は市の北部丘陵（海拔：50 m）に、油見と大竹消防は市の中心部に、それぞれ配置されている。

調査には AIR 社製の係留ゾンデ（TS-1A-1）にオゾンゾンデを搭載したものを使用した。オゾンゾンデは

中性ヨウ化カリウムを用いる電量法を採用しており、すべての酸化性物質を対象にしている。実際にはオキシダント濃度を測定していることになる。観測項目は、風向・風速、気温、相対湿度およびオキシダント濃度であるが、相対湿度は全期間にわたり欠測となった。データは気球の上昇時に収集され、1回の観測には約20分を要した。観測間隔は原則として2時間毎である。観測の上限高度は風速により異なるが、微風のもとでは概ね700 m である。なお、観測に先だって紫外線吸収法を原理とするオゾンモニター（Dasibi Model-1003 AH）との標準ガスによる並行測定を行い観測値に補正係数0.82を乗じている。観測値は瞬時値であるが、高さ方向に内挿して25 m 間隔のデータを算出した。解析にあたっては大気汚染測定局の汚染物質濃度や気象要素および気象官署の高層気象資料もあわせて用いた。

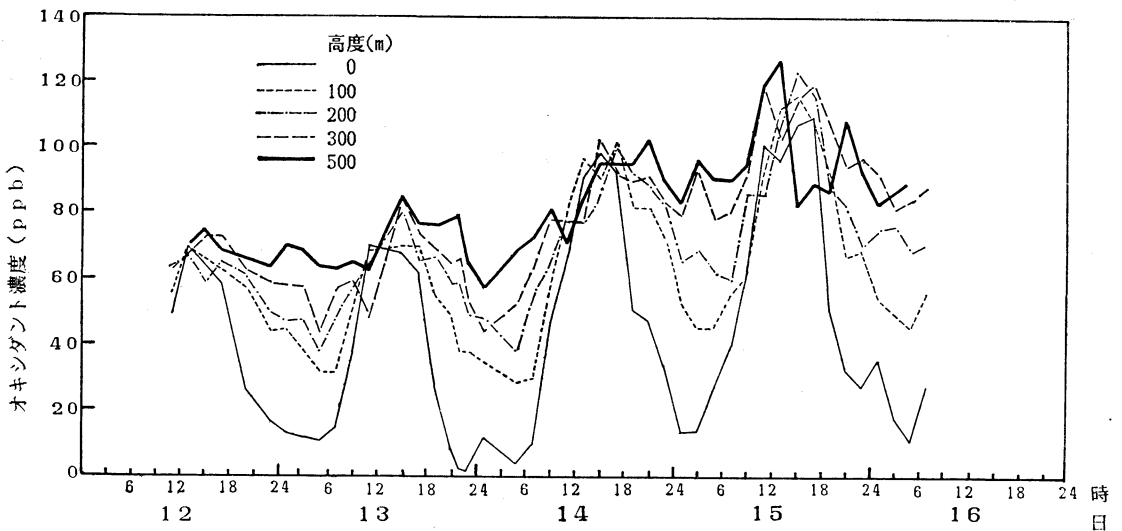


第1図 調査地点および大気汚染測定局の配置(●:係留ゾンデの観測地点, ▲:大気汚染測定局)。ハッチの領域は工業地帯, 等高線は100 m 間隔。

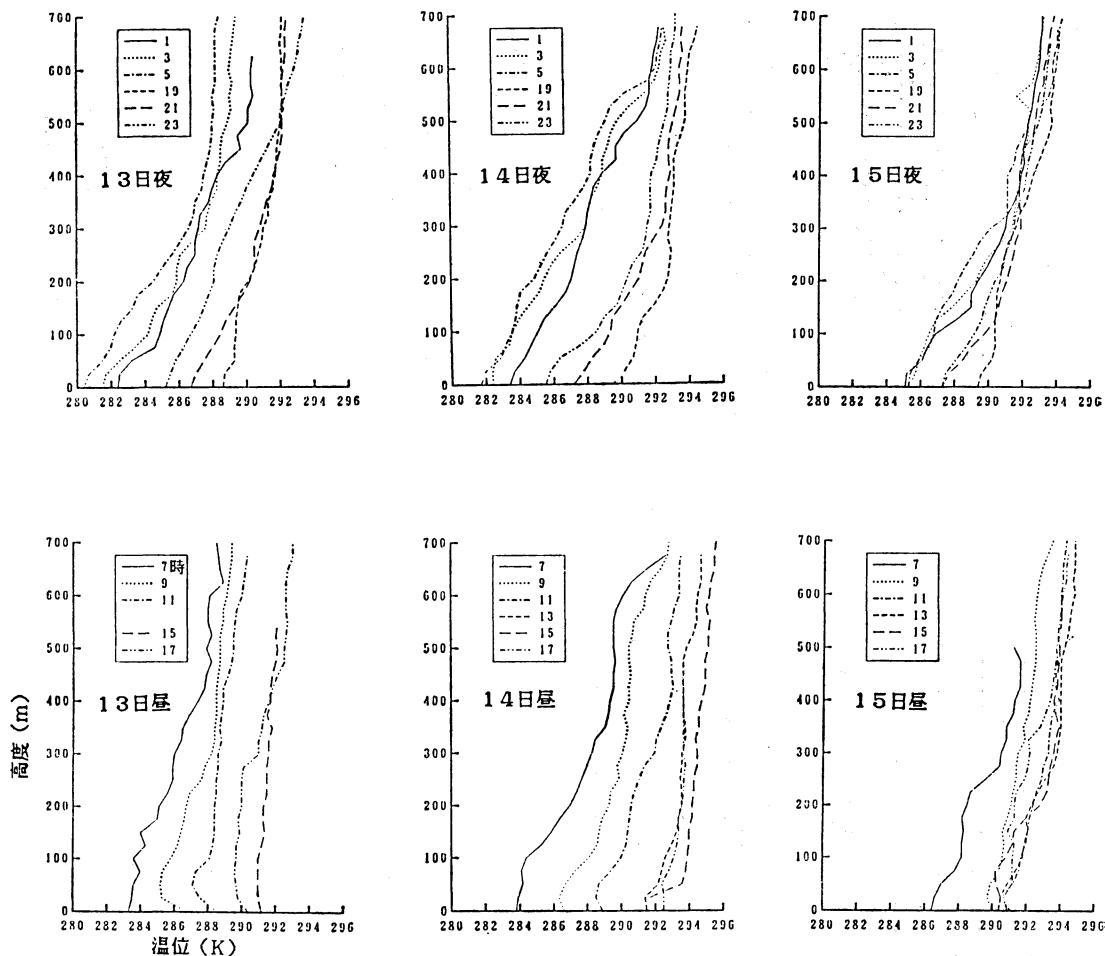
3. 結果

3.1 オキシダント濃度の鉛直分布

オキシダントの高度別濃度とその時間変化を第2図に示す。オキシダント濃度は高度によりかなり異なった変動をしていることがわかる。すなわち、地表面近くでは濃度の日変化の振幅が大きく、高度が増すにつれて振幅はしだいに小さくなる。500 m の高度では終日、高濃度が維持されているが、日変化は弱いながらも依然として認められる。また、13日から15日にかけてはすべての



第2図 オキシダントの高度別濃度とその時間変化 (1981年5月12~16日)。地上ステーションの高度:12 m を0 m としている。



第3図 温位の鉛直分布とその時間変化 (1981年5月13~15日).

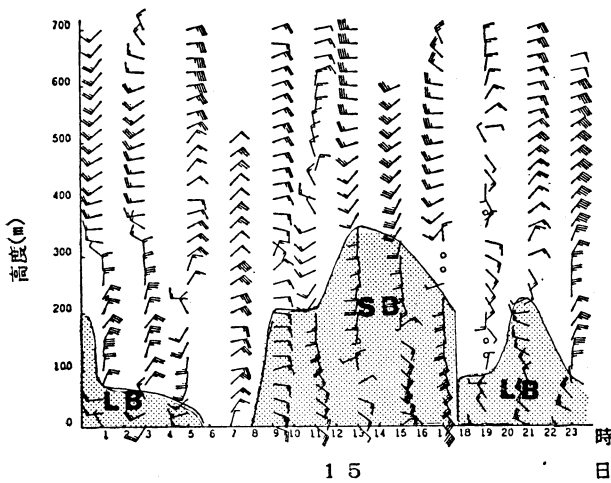
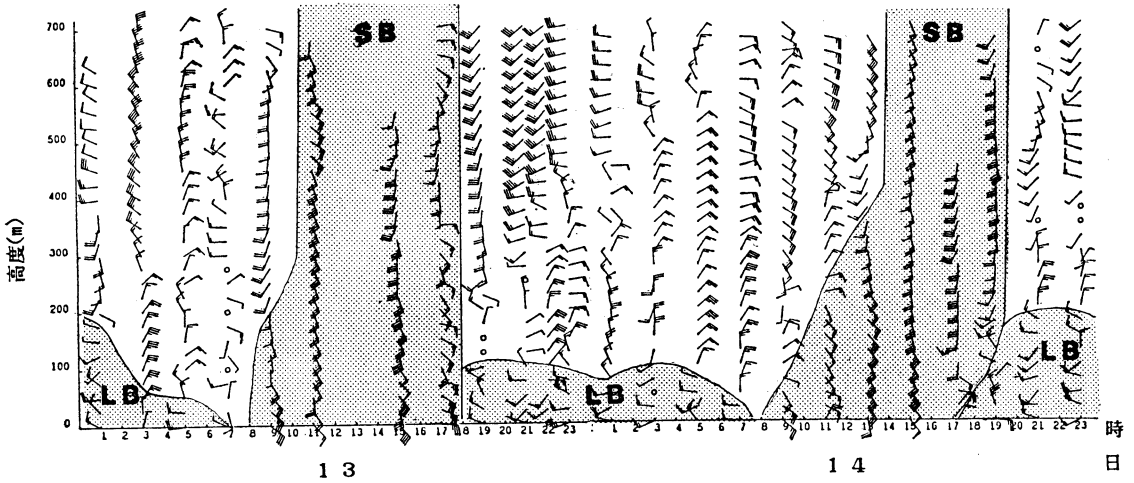
高度で日の経過とともにオキシダント濃度は平均的に増大する傾向が認められる。言い換えれば、オキシダント濃度は高度に固有の日変化成分とトレンドが重なり合った変動をしているように見える。

オキシダント濃度は夕方から早朝にかけて高度によって大きな濃度差を持って推移する(とりわけ地表面と100 m 高度間の濃度差が大きい)のに対し、日中は9時頃から地表面近くの濃度が急増し始め11時頃には500 m 以下の層では顕著な濃度差は認められなくなり、この状態が17時頃まで継続していることがわかる。その後、オキシダント濃度は地表面近くで急減し始め、高度による違いが現われる。

3.2 調査期間中の気象条件

本節では、1日分のデータがそろっている13~15日の気象条件について検討する。この期間の気象概況は、13日から14日にかけては移動性高気圧に覆われよく晴れているが、15日にはこの高気圧は東方に移り西日本は低気圧の影響を受けて曇りがちの天気になった。

第3図は昼夜別の温位の鉛直分布とその時間変化である。3日間ともに夕方から早朝にかけて強い安定層が形成されており、その厚さは日により多少異なるが概ね300~500 m である。この安定層は7時頃から日射により下方から消滅し始め、代わって混合層が形成されている。混合層の発達過程を日毎にみると、13日には9時に100 m 高度、11時に400 m 高度、15時に観測の上限高度の500 m 以上、に発達している。17時以降は放射冷



第4図
風向風速の時間一高度断面図(1981年5月13~15日). 長い矢羽根は1 m/s, 短い矢羽根は, 0.5 m/s, 旗印は5 m/s であり, ハッチの領域は海陸風を表わす(SB: 海風, LB: 陸風).

却に伴う安定層が下層から形成されている. 14日は混合層の発達やや遅く11時でも100 m程度であるが, それ以後は13日と同様に発達している. 15日は日中を通して500 m以下の層では混合層は形成されず, むしろ, 弱い安定層が維持されている.

風向風速の時間一高度断面図を第4図に示す. 宮田ら(1982)の地上風の解析によると大竹市内の海風の主風向は南東寄り, 陸風の主風向は西寄りであり, これに基づいて地上風をみると13~15日の期間は毎日, 海陸風が吹いている. 海陸風の領域を風向風速の鉛直方向の変化

のしかたから判断し, ハッチで示している. 海風は概ね南東寄りであるが200 m以上の高度では高度が増すにつれて風向が時計まわりに回転する傾向が読み取れる. 陸風の風向は南西~北西寄り, 風速は海風よりも弱く2 m/s以下である. 陸風の厚さは3日間をとおして100~200 mである. 一方, 海風の厚さは13~14日にかけては700 m以上に発達しているものの, 15日は上層風との境界が明瞭ではないが400 m程度と薄い. この現象は, 一義的には, 第1表に示すように海風の発生条件である日射が15日は13日, 14日と比べて弱いことに起因す

第1表 調査期間中の気象条件と汚染物質濃度
(1981年5月13~15日)

項目	13日	14日	15日
積算日射量 (MJ/m ² ・日)***	23	24	12
平均風速 (m/s)***	1.5	1.4	1.2
オキシダント日最高値 (ppb)*	55	65	83
窒素酸化物日平均値 (ppb)**	17	17	23

注1) 汚染物質濃度はいずれも1時間値を基にした統計量である。

2) 測定局 (*: 湯舟団地, **: 油見, ***: 大竹消防)

ると考えられる。海風は地表付近では3日間とも9時には既に吹いており、時間の経過とともに強さと厚さが増している。その後17~18時に陸風に交替している。なおこの期間中、福岡での高層気象観測によると、800 mb以下では風向の定まらない5 m/s前後の弱風が吹いており、一般風の高層風への影響は比較的小さいものと考えられる。

3.3 オキシダント濃度と気象条件の関連性

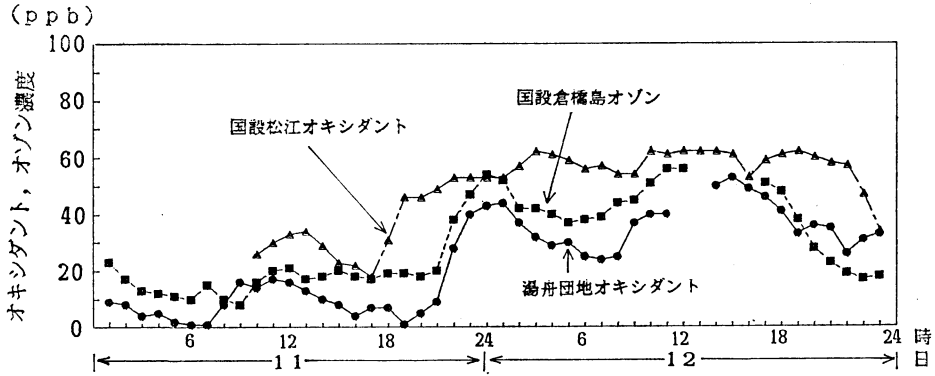
3.1節、3.2節の結果を基にして、オキシダント濃度と気象条件の関連性について調べてみる。オキシダント濃度が下層で夜間に減少する要因のひとつは一酸化窒素による急速な消費である。他のひとつはオキシダントの地表面への dry deposition であり、この効果は夜間に斜面上を降下する陸風により増大するものと考えられる。油見における夜間(20~5時)の窒素酸化物平均濃度は11 ppbであるが、後述するように夕方には30 ppb前後となる事実を考えあわせればオキシダントの減少は主に一酸化窒素による消費と推測される。夜間には第3図に示すように500 m以下の高度では強い安定層が存在するため、地表付近の一酸化窒素は上方への拡散が妨げられ、上層のオキシダント濃度の減少は小さい。

一方、第2図に示すように、毎日、朝の7時から11時にかけての期間、地表付近のオキシダント濃度が急速に増大している。13日のこの現象は朝方に発達する混合層内の対流により、下層の大気と高濃度オキシダントを含む上層の大気との鉛直混合に起因すると考えられる。混合層がよく発達した11時に200 m以下の層のオキシダント濃度が増大している反面、300 m以上の高度のオキシダント濃度が一時的に減少している事実は上下の大気が混合されたことを示唆している。また、14日の11時にも500 m以下の層のオキシダント濃度はほぼ一様とな

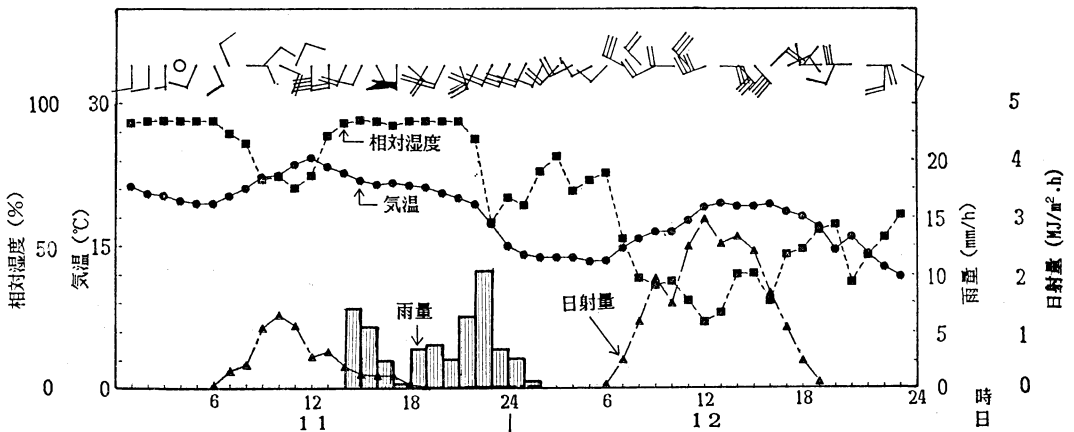
るがこの時、100~400 mの高度には弱い安定層がまだ残っているの上層では水平方向の移流も考慮する必要がある。

その後、13時から17時にかけては毎日、どの高度でもオキシダント濃度が高くなっているため、この現象を鉛直混合のみで説明するのは難しい。第1表に示すように湯舟団地の地表オキシダント濃度の日最高値は13日から15日にかけてに増大しており、また、油見の窒素酸化物濃度の日平均値は15日が最も高い。窒素酸化物濃度の日変化をより詳細にみるとどの日も8時頃から増大し始め正午前後に40~50 ppbの極大になり、その後減少して夕方に再び20~40 ppbの極大になり、以後は時間の経過とともに減少し明け方近くには5~10 ppbの低い濃度となる、といった日変化パターンである。なお、15日夕方に40 ppb前後の比較的高い濃度が出現していることが特徴的である。窒素酸化物濃度の昼間の一時的減少は対流に伴う上方への拡散および光化学反応による消費のためと考える。とりわけ15日の昼間にオキシダント濃度が高い要因は、13日から継続して吹いている海陸風循環により汚染物質がこの地域に停滞し、しだいに蓄積されたため日中を通して形成されている弱い安定層の中で、光化学反応が進行したことであると推測される。

オキシダント濃度の鉛直分布とその日変化は鶴田ら(1983,「広域大気汚染の動態」p. 110-121)の厚木での観測結果(1981年8月9~10日)と合致する点が多い。すなわち、昼間の海風層内でオキシダント濃度が増大し500 m以下の層ではほぼ一様になること、夜間の陸風層内でオキシダント濃度が急速に減少するがより上層では高い濃度が維持されていること、などである。このようなオキシダント濃度の日変化は基本的には彼らのモデルにより説明できると考えるが、3.2節で指摘したように大竹地域では陸風と海風の上層部の風の振舞はかなり複雑であり、このような風場の変動に対応した濃度変動もあるものと予想される。気象研究所(1984)の燧灘での観測では航空機観測とシミュレーションの結果を基に、「瀬戸内地方の汚染質の挙動には山岳、とくに四国山地により引き起こされる局地風による鉛直輸送が重要である」と示唆されている。瀬戸内沿岸域でのオキシダントの局地的な挙動を理解するには、中国地方から四国に至る、より広域的な地形条件もあわせて考慮する必要があるのかもしれない。



第5図 汚染物質濃度の時間変化 (1981年5月11~12日).



第6図 地上の風向風速, 気温, 相対湿度, 日射量および雨量 (雨量: 国設倉橋島, その他の気象要素: 大竹消防, 1981年5月11~12日). 風向風速の記号は第4図と同じ.

4. 夜間に地表オキシダント濃度が増大した日の事例解析

3節で述べたオキシダント濃度の変動特性について検討している際に, 地表オキシダント濃度が調査開始日の前夜に急速に増大する現象が観測された. 本節では夜間に地表オキシダント濃度が増大した現象について検討する.

第5図は11日から12日にかけての大気汚染測定局における汚染物質濃度の時間変化である. 湯舟団地のオキシダント濃度とともに, 大竹市から35km南東海上に位置する国設倉橋島のオゾン濃度, および大竹市から北東に130km離れた国設松江のオキシダント濃度を示している. 湯舟団地のオキシダント濃度は11日の22時から24時にかけて急速に増大しており, 国設倉橋島のオ

ゾン濃度の変動パターンも湯舟団地のオキシダント濃度とよく似ている. 国設松江のオキシダント濃度も11日18時から20時にかけて急速に増大しその後は60ppb前後で推移している. これらの結果から, オキシダント(オゾン)濃度が11日の夕方から夜間にかけて増大する現象は松江から倉橋島にいたる中国地方を北から南に縦断する領域で出現していることがわかる.

第6図は, 第5図と同期間の大竹消防における地上の風向風速, 気温, 相対湿度, 日射量, および国設倉橋島の1時間雨量である. 倉橋島では11日14時から12日2時までの間に49mmの大雨を記録しており, 大竹市でも11日の日雨量は43mmに達している. 降雨中にもかかわらず11日22時には88%であった相対湿度が23時には58%に急減していることと, このときの気温の低下率もそ

れ以前のもの比べて大きいことが注意される。なお、大竹市では11日13時頃から翌日の3時頃まで南～南西寄りの2～4 m/sの風が継続して吹いており、この期間、海陸風は出現していない。したがって、11日22時に相対湿度と気温が急変した現象は、たとえば陸風前線の通過のような局地風に伴うものではない。参考までに11日21時の地上天気図によると、西日本は日本海に中心を持つ低気圧の圏内にあり、寒冷前線は日本海から中国地方の東部を通り南西方向に延びている。この寒冷前線は西から東へ移動しており、対象地域を通過したのは11日夕刻頃とみられる。また、図は省略するが福岡の高層気象資料 (Aerological data of Japan, May 1981) によると11～12日の期間、西よりの20 m/s以上の強風が700 mb以上の層で吹いており、相対湿度40%以下の乾燥空気が900 mbの高度まで降下しており、15日まで維持されている。

春季の夜間に地表オキシダント (オゾン) が高濃度となる現象は数多く報告されており (たとえば、村尾ら, 1982; 近藤ら, 1982 など), いずれも成層圏オゾンに由来すると推測されている。Johnson *et al.* (1981) は寒冷前線周辺のオゾン濃度の空間分布を調べ、成層圏オゾンが対流圏へ降下する時に出現する対流圏界面の折れ込み現象 (Tropopause folding) の構造を明らかにしている。また、Muramatsu (1980) は春季の館野上空500 mb付近のオゾン濃度が大きい層の源は成層圏であることを等温位面解析により示している。Wakamatsu *et al.* (1989) はオゾンゾンデ観測により成層圏オゾンが対流圏に降下する様子をとらえており、上述した福岡の風向風速と相対湿度の鉛直分布は彼らの結果とよく似ている。したがって、11日の夜間に地表オキシダント (オゾン) 濃度が増大する現象は成層圏オゾンに由来する可能性が大きい。しかし、寒冷前線の北と南とでは対流圏オゾン濃度が異なっているため、前線の通過によってオゾン濃度が増大した、との解釈も否定できない。この現象の原因を明らかにするには複数の地点の上層気象解析が必要であろう。

5. まとめ

春季に大竹市で行われた係留ゾンデによる調査を対象にして、オキシダント濃度の鉛直分布と気象条件との関連性について解析し、次の結果を得た。

1) オキシダント濃度の日変化は地表面で最も顕著であり、高度が増すに伴いだいに小さくなる。オキシダント濃度は夜間には高度毎に濃度差を持って推移し、7

～11時にかけて地表面付近で急速に増大し、13～17時にはどの高度でも極大になり顕著な濃度差は認められなくなる。17時以後は再び地表面からオキシダント濃度が減少し始める。

2) 海風は700 m以上に発達する場合と、400 m以下に抑えられる場合とがある。前者は混合層がよく発達したときに、後者は弱い安定層が形成されているときに、それぞれ対応している。一方、陸風の厚さは海風に比較して薄く、100～200 m程度である。

3) 1) で述べたオキシダント濃度の鉛直分布とその日変化は、定性的ではあるが、夜間の消費、朝方の混合層内の対流による鉛直混合、昼間の光化学反応、の3つの連続した過程により説明できる。日中をとおして安定層が形成されている場合にはオキシダント濃度は光化学反応の進行に伴い増大する。

4) 夜間に、地表オキシダント濃度が急速に増大する現象をみだしその原因について検討した。

謝 辞

広島県環境保全課の方々には係留ゾンデと大気汚染測定局のデータを、環境庁大気規制課の方々には国設大気測定所のデータを、それぞれ使用させていただいた。本稿をまとめるに当たり広島女子大学宮田賢二教授には多くの有意義な助言をいただいた。また、審査員の方々には不備な点の指摘と適切な助言をいただいた。ここに深く感謝します。

参 考 文 献

- Johnson, W.B. and W. Viezee, 1981: Stratospheric ozone in the lower troposphere—I. Presentation and interpretation of aircraft measurements, *Atmos., Environ.*, 15, 1309-1323.
- 環境庁大気保全局大気規制課, 1990: 平成元年度一般環境大気測定局測定結果報告, 58-64.
- 気象研究所応用気象研究部, 1984: 局地風と大気汚染物質の輸送に関する研究, 気象研究所技術報告第11号, pp. 311
- 近藤裕昭, 吉門 洋, 水野建樹, 1982: 播磨地域の夜間に観測された高濃度オゾンについて, 公害, 17, 47-76.
- 栗田秀實, 植田洋匡, 1985: 傾度風が弱い場合の大気汚染物質の長距離輸送と熱的低気圧および総観気象の関係, 大気汚染学会誌, 20, 251-260.
- 宮田賢二編, 1982: 広島県の海陸風, 溪水社, 47-48.
- 溝口次夫, 光本茂記, 西川雅高, 1989: 日本列島を

覆う対流圏下層オゾンの動態に関する研究, 環境科学会誌, 2, 87-99.

文部省「環境科学」特別研究「広域大気汚染の動態」研究班, 1983: 広域大気汚染の動態, 「環境科学」研究報告, B163-R11-4, pp. 354.

Muramatsu, H., 1980: A case study of the transport of the stratospheric ozone into the troposphere, Papers in Meteorology and Geophysics, 31, 97-105.

村尾直人, 大喜多敏一, 太田幸雄, 1982: 成層圏オ

ゾンの地表オキシダント濃度に及ぼす影響に関する一考察, 天気, 29, 537-545.

Singh, H.B., W. Viezee, W.B. Johnson and F.L. Ludwig, 1980: The impact of stratospheric ozone on tropospheric air quality, J. Air Pollut., Control Ass., 30, 1009-1017.

Wakamatsu, S., I. Uno, H. Ueda, K. Uehara and H. Tateishi, 1989: Observational study of stratospheric ozone intrusions into the lower troposphere, Atmos., Environ., 23, 1815-1826.



教官の公募について

記

1. 公募人員: 理学部 助手 1名
2. 講座名: 情報科学科 計算機科学講座
3. 専門分野: 計算機科学または関連の分野で研究業績があり, 計算機教育及び研究に意欲のある方.
4. 応募資格: (I) 博士の学位を有するか, 又は確実に取得見込みのある方.
(II) 32歳以下が望ましい.
5. 着任時期: 1993年1月1日(予定)
6. 提出書類: (I) 履歴書
(II) 研究業績リスト
(III) 主な論文の別刷(コピー可)
(IV) 研究業績の説明及び将来の研究計画(2,000字程度)
(V) 推薦書(自薦の場合は意見を述べることのできる方2名の氏名, 及び連絡先)
7. 応募締切: 1992年9月30日(水) 必着

8. 宛先及び問い合わせ先:

高知市曙町 2-5-1

〒780 高知大学理学部情報科学教室主任

長沼英久

TEL 0888-44-0111 内線 203

9. その他: ①情報科学科は1990年4月に新設され「計算機科学」, 「情報数理学」, 「情報処理学」, 「情報基礎学(1993年度設置予定)」の4講座から構成されています(各講座は教授1, 助教授1, 助手1).

1994年4月には大学院理学研究科修士課程(情報科学専攻)の新設を予定しています. また, 1993年3月に教育用電子計算機システムが導入される予定です.

②封筒に「応募書類在中」と朱書き, 書留で送付のこと.