

資料

神奈川県上空におけるフロン濃度分布

菊川城司、須山芳明、阿相敏明、鈴木正明、牧野宏、金子幹宏
(大気環境部)

Field Study on Chlorofluorocarbons Concentration over Kanagawa Prefecture

George KIKUGAWA, Yoshiaki SUYAMA, Toshiaki ASOU, Masaaki SUZUKI,
Hiroshi MAKINO, Mikihiro KANEKO
(Air Quality Division)

1. はじめに

フロン類の地上における濃度に関する調査は、さまざまな研究機関によって実施されているが、比較的low高度の上空におけるフロン濃度に関する調査はほとんど行われていない。

当センターでは、毎年ヘリコプターを用いた大気汚染調査を実施しているが、1992年1月に、地球温暖化ガス(二酸化炭素、亜酸化窒素、メタン及びフロン類)の上空濃度分布調査を行った。この調査結果のうち、オゾン層破壊物質でもあるフロン類について神奈川県上空の平面及び垂直濃度分布について報告する。考察にあたっては、同時に測定した二酸化炭素等のデータを参考として用いた。

2. 調査方法

2.1. 調査物質

フロン11、フロン12、フロン113の3種類のフロン類、二酸化炭素、メタン、亜酸化窒素、窒素酸化物

2.2. 調査期間

調査期間は、1992年1月13日午後、14日午前、16日午前、午後の3日間とした。

2.3. 調査地点

1月13日は、神奈川県内の上空における平面濃度分布を主に調査した。(図1)この日は、横浜市金沢区(横浜ヘリポート)から杉田沖、横浜港、横浜市鶴見区を経て川崎市中原区まで北に飛び、中原区から川崎市高津区、横浜市緑区を経て津久井町まで県北部を西に向かい、さらに伊勢原市、平塚市を経て、県中央部を平塚沖まで南下し、相模湾を東に向かって江ノ島沖、横須賀市追浜を通過してヘリポートへ戻るコースをとり、上空300mにおける平面分布調査を行った。横浜港、津久井町、平塚沖では、100~1500mの垂直分布も調査した。

1月14日と16日は、東京湾臨海部の都市域、工業地域を中心に飛行コースをとった。(図2、3、4)1月14日は横浜港で100~900mの垂直濃度分布を調査した。1月16日の午前は、金沢区、中原区、保土ヶ谷区、横浜港、扇島で上空300mにおける濃度を調査し、横浜港では100~900mの垂直濃度分布も調査した。16日の午後は、午前中と同じ4地点に加え、第二海保で上空300mの濃度分布を調査し、扇島では100~900mの垂直濃度分布も調査した。

2.4 試料の採取方法及び分析方法

試料の採取は、真空瓶、ポンプをヘリコプターに搭載し、ヘリコプターの外に出したテフロンチューブからポンプで外気を真空瓶に送り込み行った。真空瓶は、テフロンニードルバルブ付きのガラス製で2口のものを用い、あらかじめ純空気を加圧に充てんし、サンプリングの際は、上空において、真空瓶内を試料空気で置換し、加圧採取(1.4Kg/cm²)した。なお、調査に用いたテフロンチューブ及びポンプは、あらかじめブランクテストを行い、コンタミネーションがないことを確認し使用した。

採取した試料は、0.5mlの計量管に直接導入し、6方コックを用いてECDガスクロマトグラフにより分析した。ガスクロは島津のGC-9A、カラムはシリコンDC-550を充填したパックドカラムを用い、分析条件は30℃から90℃までの昇温分析とし、昇温速度は10℃/minで行った。

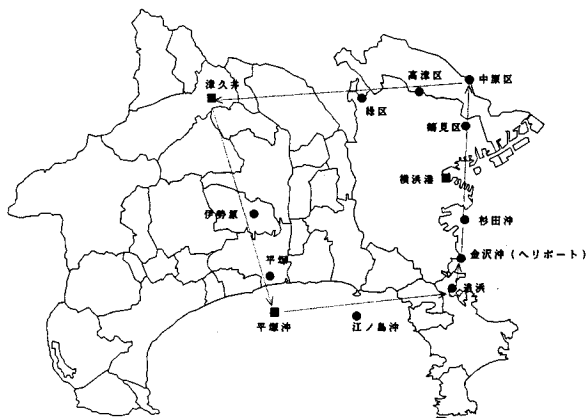
3. 調査結果

3.1 調査日の気象概況

1月13日は、南海上に高気圧があり、日本海を低気圧が通過し、午後には西のほうから低気圧が近づいた。県内の風は、朝には全体に弱く北～北東風で、午後には南よりの相模湾海風がみられ、調査時には南東風に変化していた。上層観測結果(館野9時)によれば、200mまで強い接地逆転がみられ、大気は比較的安定状態であった。

1月14日は、前線が日本の東海上にあり、西高東低の冬型の気圧配置であった。午後には前線が徐々に日本から遠ざかった。県内の風は強く、朝方は北風であったが、午後には北東風となった。上層観測結果(館野9時)によれば、200mまで接地逆転がみられたが、上層には寒気が入り、比較的不安定な状態を示した。

1月16日は、移動性高気圧が日本の東へ進み、西から気圧の谷が近づいたため、午後の調査時に



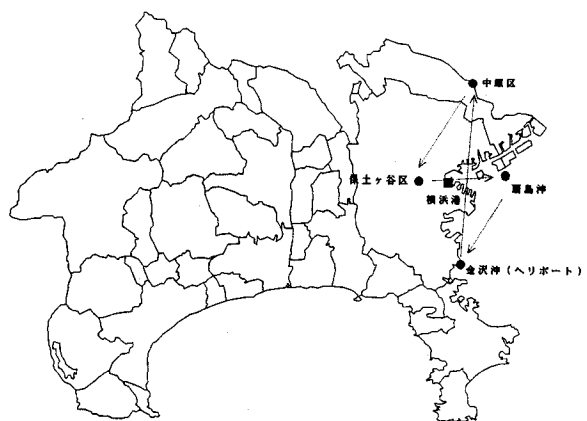
(●、■は、サンプリング地点、■の地点では垂直分布も調査した。)

図1 1992年1月13日午後の飛行コース及びサンプリング地点



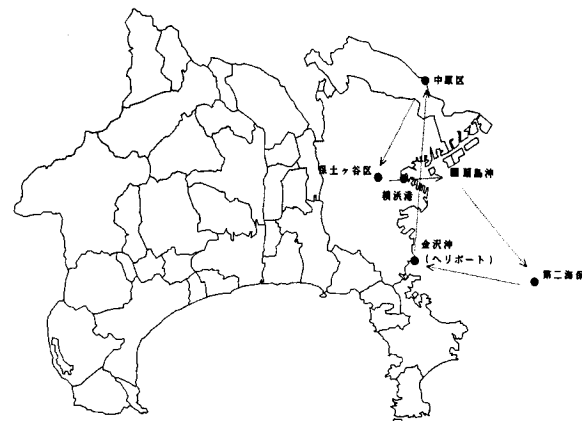
(●、■は、サンプリング地点、■の地点では垂直分布も調査した。)

図2 1992年1月14日午後の飛行コース及びサンプリング地点



(●、■は、サンプリング地点、■の地点では垂直分布も調査した。)

図3 1992年1月16日午前の飛行コース及びサンプリング地点



(●、■は、サンプリング地点、■の地点では垂直分布も調査した。)

図4 1992年1月16日午後の飛行コース及びサンプリング地点

は小雨がぱらついた。県内の風は、朝方は3m/s程度の北風であったが、午後には北東風となり、やや弱まった。上層観測結果(館野9時)によれば、150mまで接地逆転がみられたが、その上空は0.6℃/100mの遞減状態を示していた。

3.2 各フロン濃度の平均値

3日間の調査で全部で43検体の試料が得られ、濃度の平均値は、フロン11が0.39ppb(0.16~0.86ppb)、フロン12が0.73ppb(0.45~1.14ppb)、フロン113が0.40ppb(0.01~1.77ppb)であった。

3.3 1月13日の結果

図5に、1月13日午後の神奈川県上空300mにおけるフロン及び同時に測定した二酸化炭素の濃度分布を示した。各物質とも、県の南部から、北部に行くにしたがって濃度が高くなる傾向がみられ、特に北東部の中原区でフロン113が高濃度になっていた。また、南部の海岸沿いでは東部、西部の差はあまりみられなかった。

以上のような濃度分布を示した理由としては次のようなことが考えられる。調査時には、神奈川県内は南風が卓越しており、このために相模湾内では低濃度となり、これより北になるにしたがって発生源からの影響と移流によって濃度が上昇し

たと考えられた。同時に測定した二酸化炭素の平面分布も、フロンとはほぼ同様に、南部よりも北部のほうが高濃度の濃度分布を示していたことから、この日の神奈川県北部のフロンの高濃度は、産業活動からの排出の影響を受けていることが考えられた。

図6に1月13日午後の津久井町、横浜港、平塚沖におけるフロン及び二酸化炭素濃度の垂直分布を示した。フロン濃度は、比較的濃度の高かった津久井では、調査高度が高くなるにしたがって濃度が低くなる傾向が顕著にみられた。また、横浜港、平塚沖の両地点でも、高度の高い方が多少、濃度が低くなる傾向がみられた。二酸化炭素もほぼ同様の傾向で、下層から上層への拡散状況がみられ、いずれも地表面近くから排出されていることを示していた。

また、同時に測定したその他の物質の濃度は、亜酸化窒素は308~315ppb、メタンは1.70~1.86ppm、非メタン炭化水素は0.31~0.76ppmであった。これらの物質は、平面的にも、立体的にも明瞭な濃度分布はみられず、フロンとは異なった発生源分布を示していることが考えられた。これは、フロンが人為的影響によるものであるのに対し、これらの物質が自然界からの影響が強いためと推測された。

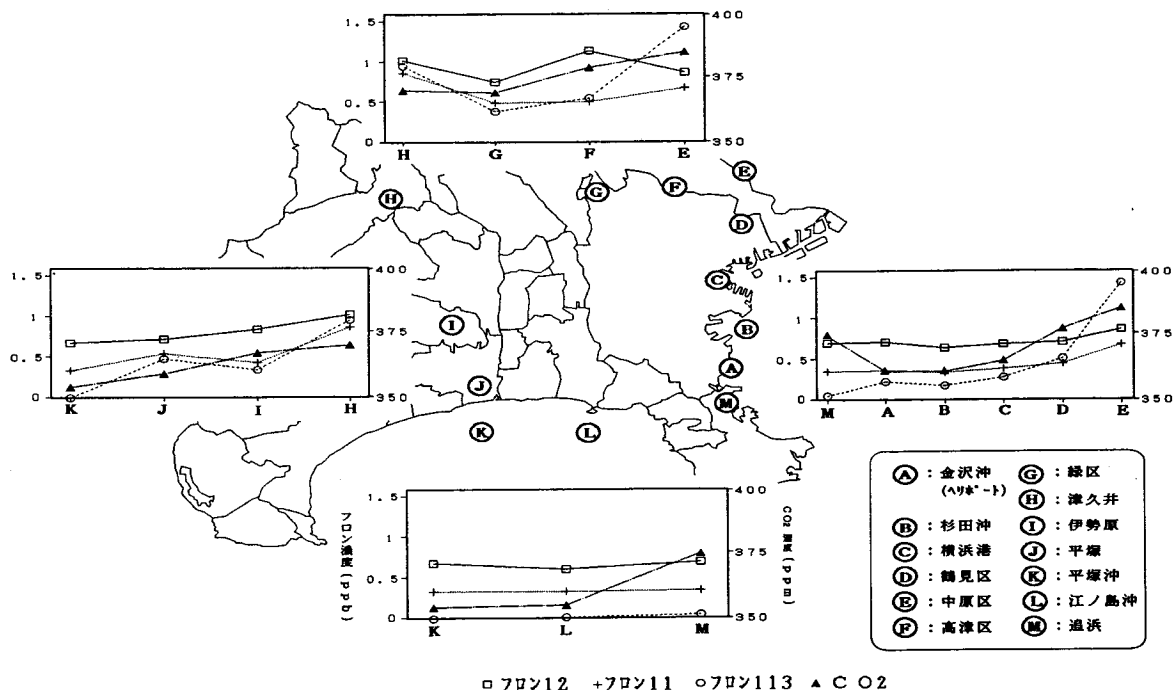


図5 上空300mにおけるフロン類及び二酸化炭素の濃度分布(1992.1.13PM)

3.4 1月14日の結果

図7に1月14日午前の上空300mにおけるフロン及び窒素酸化物の濃度分布を示した。この日は調査地点が2地点のみであるが、フロン11とフロン12は地点差があまりないのに比べ、フロン113は、横浜港は金沢沖の4倍程度の濃度になっていた。この日の午前中は北風が卓越しており、横浜港におけるフロン113の高濃度は、風上である川崎、横浜の工業地域からの影響を受けているものと考えられた。

図8に1月14日午前横浜港におけるフロン及び窒素酸化物の濃度の垂直分布を示した。この日の調査結果も1月13日午後と同様に、高度が高い方がフロン濃度は低くなる傾向がみられた。また、窒素酸化物濃度、気温分布から、混合層高度は400m程度と考えられるが、この混合層内で

フロン113濃度が高いことから、フロン113の発生源は自動車と同様に低煙源であることが推測された。

3.5 1月16日の結果

図9に、1月16日午前神奈川県上空300mにおけるフロンの濃度分布を示した。また、図10に1月16日午後神奈川県上空300mにおけるフロン及び窒素酸化物の濃度分布を示した。

1月16日午前の濃度分布をみると、フロン113の濃度変動が、フロン11、フロン12に比べ大きく、横浜港が高い濃度となっていた。これは、1月14日と同様に、北風が卓越しており、風上にある脱脂、洗浄工場からの影響を受けているためと思われる。

午前と午後とを比べると、フロン11、フロン12

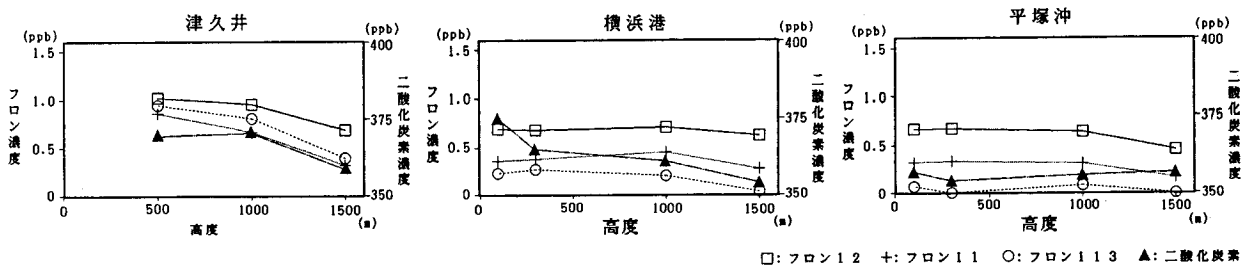


図6 フロン類及び二酸化炭素の垂直濃度分布(1月13日午後)

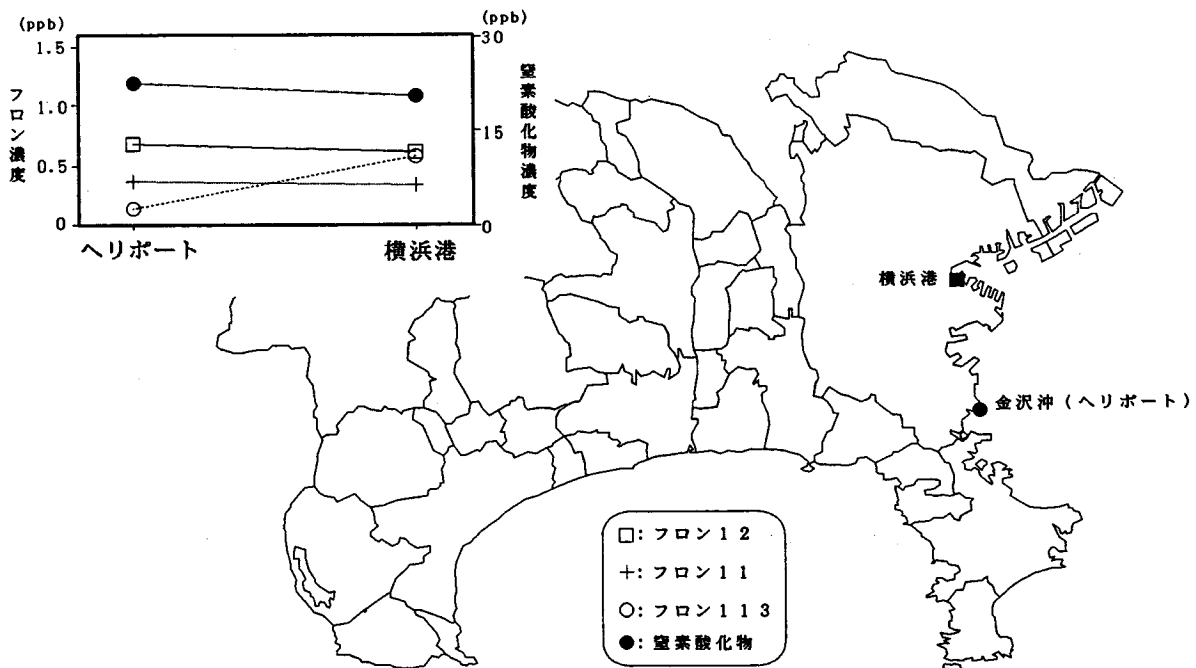


図7 上空300mにおけるフロン及び窒素酸化物濃度(1月14日午前)

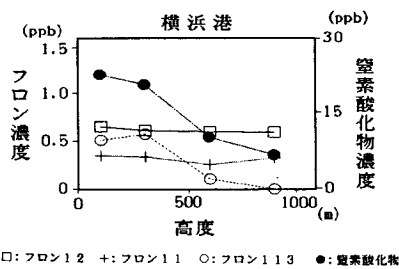


図8 フロン類及び窒素酸化物の垂直濃度分布(1月14日午前)

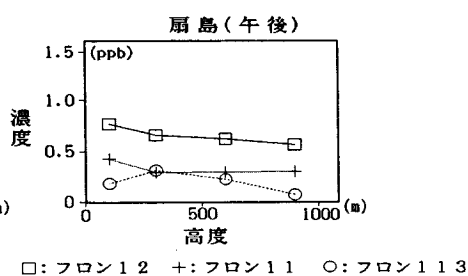
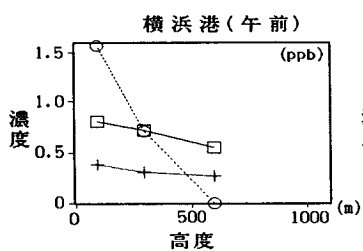


図11 フロン類の垂直濃度分布(1月16日)

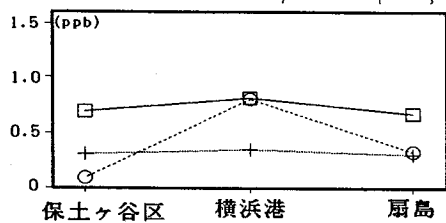
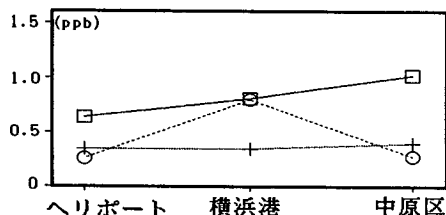


図9 上空300mにおけるフロン濃度(1月16日午前)

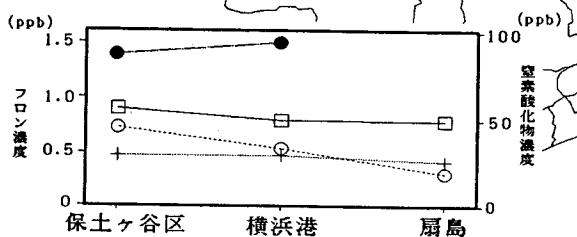
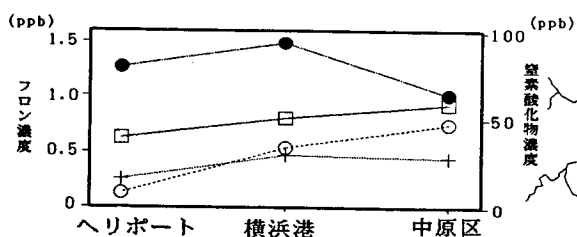


図10 上空300mにおけるフロン及び窒素酸化物濃度(1月16日午後)

はあまり変化がみられなかった。しかし、フロンの113は、午前中については横浜港の濃度が他の地点よりも高濃度であったが、午後になると横浜港は少し濃度が下がり、中原区と保土ヶ谷区で高濃度となっていた。このことは、北風から北東風となり、風が弱まったため、保土ヶ谷区方面に汚染物質が流れたことが考えられた。

図11に1月16日午前の横浜港、午後の扇島におけるフロンの濃度の垂直分布を示した。この日の調査結果も1月13日、14日と同様に、高度が高い方が濃度は低くなる傾向がみられた。特に、午前中の横浜港におけるフロンの113は濃度変化が激しく、高度100mでは1.5ppbを超える高濃度を示していたが、300、600mと高度の上昇にともなって、濃度は急激に減少していた。この日の混合層高度は、300m付近にあり、この層内で高濃度となったことが考えられた。

3.6 各調査物質間の相関

1月13日午後に調査した各フロンの濃度及び二酸化炭素、メタン等の各物質濃度の相関係数を表1に示した。また、1月13日午後、14日午前、16日午前、16日午後の各フロンの濃度間の相関係数を表2に示した。

1月13日午後の各物質間の相関係数をみると、3種類のフロンの相関が最も高く、二酸化炭素とフロンの相関も比較的高い相関を示していた。亜酸化窒素、メタン等は、フロンの相関がやや低くなっており、これらの物質が自然発生源からの影響が大きいと考えられた。

また、調査した3日間のフロンの相関をみると、フロンの11と12は、3日間とも比較的高い相関を示したが、フロンの113と他の2種類のフロンの相関については、調査日によって相関係数にばらつきがみられた。

4. まとめ

(1) 上空300mにおけるフロンの濃度の平面分布は、横浜、川崎の工業地域の風下側で高くなる傾向がみられた。

(2) 上空100～1500mのフロンの濃度の垂直分布は、高度が高くなるにつれて、濃度は低くなる傾向がみられた。フロンは、混合層内で高く、その上部で低くなっていることから、比較的低い高度から排出されていることがわかった。

(3) フロンの11及び12の平面分布、垂直分布は、濃度変化が小さく、類似した傾向を示していたが、フロンの113は濃度変動が大きく、フロンの11、

表1 1月13日午後の調査における各物質の相関係数(n=19)

	フロンの12	フロンの113	メタン	非メタン炭化水素	二酸化炭素	亜酸化窒素
フロンの11	0.77	0.85	0.50	0.36	0.49	0.41
フロンの12		0.64	0.54	0.53	0.62	0.21
フロンの113			0.48	0.40	0.60	0.52
メタン				0.53	0.19	0.14
非メタン炭化水素					0.16	0.12
二酸化炭素						0.26

表2 各フロンの相関係数

	1月13日 n=22	1月14日 n=5	1月16日AM n=7	1月16日PM n=9	3日間合計 n=43
フロンの11：フロンの12	0.78	0.74	0.84	0.87	0.74
フロンの11：フロンの113	0.86	0.32	0.77	0.58	0.61
フロンの12：フロンの113	0.66	0.22	0.50	0.67	0.58

フロン12と異なったパターンを示した。この理由として、フロン113は他の2種類のフロンに比べてバックグラウンド濃度が低いこと、また、神奈川県におけるフロン113の使用量がフロン11、フロン12に比べて多く、主な使用形態もフロン11が発泡剤、フロン12が冷媒、フロン113が洗浄用となっており、発生源が異なっていること等が考えられた。

(4) フロンの濃度分布は、二酸化炭素や窒素酸化

物の濃度分布と同じ傾向がみられ、産業活動からの排出の影響を受けていることがわかった。

以上のように、神奈川県冬季の工業地域、都市域におけるフロン類の濃度は、上空100～1500mの高度では、拡散、混合による濃度の均一化はみられず、発生源の影響を受けた濃度分布をしていることがわかった。