

レーザーレーダーで観測される 都市域の夜間低層大気構造と高濃度大気汚染

松井 一郎*・笹野 泰弘*

摘 要

都市域の夜間における窒素酸化物高濃度汚染現象の発現は都市境界層高度、平均風速と密接に関係していることを、ミー散乱レーザーレーダーを用いた低層大気構造の観測データを基に論じた。ミー散乱レーザーレーダーはエアロゾルの高度分布を時間的に連続して捉えることができる。エアロゾルの高度分布は大気の成層構造を反映することから、都市境界層の検出に用いることができる。都市境界層高度と平均風速の積の逆数で定義される停滞指数(Stagnant Factor)を用いて夜間平均の窒素酸化物(NO_x)濃度、二酸化窒素(NO_2)濃度を表現することができる。

キーワード：窒素酸化物、高濃度汚染、都市境界層、レーザーレーダー、停滞係数

1. はじめに

近年の都市域における大気汚染状況はおおむね低減または横ばい状態が続いており、自動車の排ガス規制、燃料規制などの施策の効果が現われているものと考えられる¹⁾。しかしながら、冬季のある特殊な気象状況のもとでは強い接地逆転層あるいは高度の低い都市境界層が形成され、例えば窒素酸化物の高濃度汚染が引き起こされる例などが報告されている。

この種の都市に特有の都市境界層の出現と窒素酸化物の高濃度汚染の関係について、鶴野ら^{2,3)}は札幌市における120 mのテレビ塔やカイツーン等を用いた詳細な観測データをもとに論じている。彼らによれば、夜間の都市中心部では平均的な建物高度の約2倍程度の高度の上空に気温逆転層が生じ、その下部で弱安定から等温位の混合層(都市境界層)になっている。顕著な都市境界層が出現した時には境界層外縁での鉛直拡散が抑えられることから高濃度大気汚染が発現し易く、また、翌朝の熱的な対流混合層の発達にも影響が及ぶことを見いだした。

本研究ではこのような都市境界層が高濃度大気汚染と密接に関係している事実を踏まえ、約1ヶ月に亘って東京都心部で実施したレーザーレーダー連続観測で得られた低層大気構造の日変化デー

タを基に、高濃度大気汚染発現の状況を調べた。本研究で用いたレーザーレーダーはエアロゾルの鉛直分布を時間的に連続して測定することができる。エアロゾルの鉛直分布は低層大気の安定度分布を強く反映することから、エアロゾルの分布状態をトレーサーとして低層大気構造を捉えることができる⁴⁾。

窒素酸化物の高濃度汚染現象を以下では、はじめに二酸化窒素と一酸化窒素(NO)の和、つまり $\text{NO}_x (= \text{NO}_2 + \text{NO})$ 濃度と低層大気構造の関係について議論する。これは、 NO 、 NO_2 はオゾンとの反応を通して変化するのに対し、 NO_x は沈着と光化学反応による変質が無視できる場合には、保存量として扱えるため第一近似として輸送・拡散のみで議論することができるからである。

第2節でまず、レーザーレーダーによる観測について概要を述べる。装置の詳細などについては松井⁵⁾に詳しく報告されている。第3節では NO_x 濃度の日変化パターンについて述べる。以下でも詳しく述べるように、日変化、日平均などを考える場合に通常は0時から24時を1日として日の区切りを設定しているが、ここでは15時を日界として用いる。これは高濃度発現のメカニズムを考えると、夕刻から翌朝にかけて形成される夜間の都市境界層の存在が最も重要と考えられるからである。

1990年10月23日 受理

* 国立環境研究所, 〒305 茨城県つくば市小野川16-2

第4節ではレーザーレーダー観測から得られた都市境界層の上限高度データと風速データの積の逆数で定義される停滞係数 (Stagnant Factor) S を指標とすると、夜間の平均 NO_x濃度と良い相関が得られることを示す。NO_xと NO₂の間には高い相関があることから停滞係数 S が大きいときには NO_x、NO₂ともに高濃度となり、月平均値を大きく越えることを示す。

2. レーザーレーダーによる都市大気の観測

2.1 観測およびデータ処理方法

観測には、鉛直情報だけを観測するミー散乱レーザーレーダー⁵⁾を用いた。主な仕様と装置の構成を表1、図1に示す。ミー散乱は用いる波長と同程度の大きさの粒子からの散乱が最も効率的で、本研究で用いるレーザーレーダーは波長 0.532 μm (YAG レーザーの第2高調波)を用いていることから、サブミクロンからミクロンのオーダーのエアロゾルからの散乱の寄与が最も大きい。この程度の大きさの粒子は空気中での自然落下速度が十分に小さく、大気の流れの場のトレーサーとすることができる。

観測は気象庁構内(東京都千代田区大手町)において1988年11月29日から12月28日までほぼ連続して行った。途中、雨による観測の中断(12月3日0時~6時, 12月4日16時~12月5日7

時)と、レーザー発振器の不調による中断(12月16日19時~12月20日0時)があった他は、データ収録用の磁気テープの交換のための短時間の停止があっただけで、延べ28日間の連続観測が実施された。以下では、環境庁のNO₂汚染予報事業の実施された期間である12月1日から27日までのデータを解析した。

観測データは、レーザー発振繰り返しが10パルス/秒で、600パルス分の信号を計算機内で積算処理をした後、磁気テープに記録した。磁気テープには高度方向に高度7.5 kmまで高度分解能7.5 mで1000ワードのデータが時間的に連続して記録されている。

レーザーレーダーデータは背景光レベルの除去、距離自乗の補正を行い、大気の透過率は1に等しいとの仮定のもとに、後方散乱係数に比例する量(以下では、便宜上エアロゾル濃度と呼ぶ)を得る。大気透過率を1と置くことはエアロゾル濃度が高いとき必ずしも適当な近似ではないが、以下に述べるような構造抽出のデータ処理を施す限りはあまり問題とならない。レーザーレーダー信号はさらに、望遠鏡とレーザービームの重なり関数(Y(R): Rは高度)の補正がなされる。これは、レーザービームと望遠鏡視野の重なりが近距離(低高度)に対しては不十分なために、元来、期待されるエアロゾル濃度に信号は比例せず歪んでいるものを補正するものである。Y(R)関数はSasano et al.⁶⁾の方法により実験的に決めた。すなわち、日中の対流混合層が十分に発達しており、エアロゾル濃度の分布が高度方向に一様と考えられるときのデータから求められた見かけのエアロゾル濃度分布は、Y(R)関数の形そのものに他ならない。レーザーレーダーデータは後の解析の便宜上、時間幅10分、高度分解能20mのメッシュデータ化して用いる。

エアロゾル濃度鉛直分布構造は大気の安定度分布を反映する。Sasano et al.⁷⁾は日中の混合層高度に関し、(1)式で定義される規格化された濃度勾配(NCG; Normalized Concentration Gradient)

$$NCG(R_i) = \frac{\{C(R_{i+1}) - C(R_{i-1})\}}{C(R_i)(R_{i+1} - R_{i-1})} \times 100(\%/m) \quad (1)$$

(ここで、C(R_i)は高度R_iでのエアロゾル濃度)を指標として求めたエアロゾル層上端高度が、気温分布から決めた上空逆転層(混合層の上端)高度と良い対応関係を持つことを示した。以下では、

表1 ミー散乱レーザーレーダー装置のおもな仕様

Material	Nd : YAG+SHG
Wavelength	532 nm
Output energy	50 mJ/pulse
Repetition rate	10 Hz
Type	Newtonian
Diameter	500 mm
Focal length	1.2 m
Type	(Hamamatsu R329)
Type	(Autnics S121)
Min. sample	50 nsec/word
Accuracy	10 bits
Computer	(SORO M343)
MT	(SORO MTU-80)

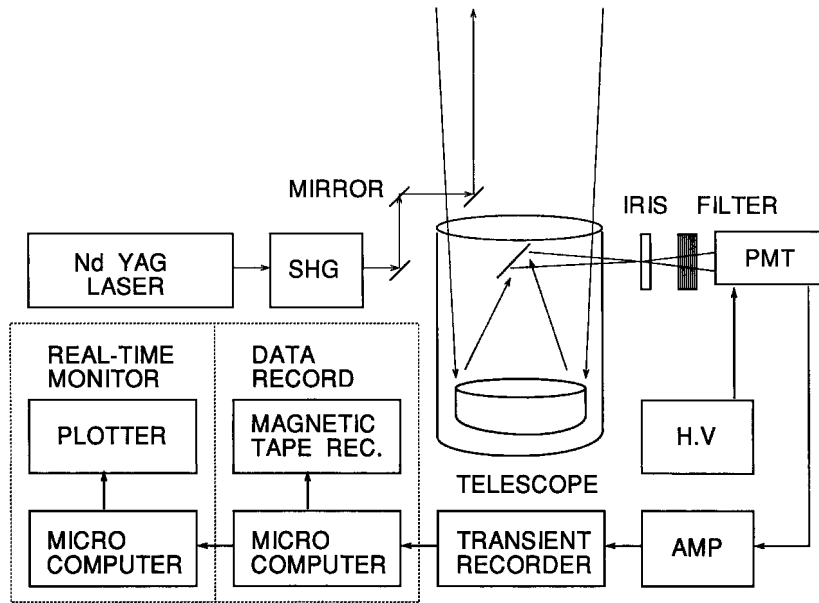


図1 ミー散乱レーザーレーダー装置の構成図

夜間の都市境界層発現時においても同様の考え方でエアロゾル層の上端がこれらの大気構造を表わしていると仮定する。日中の混合層高度抽出においてはNCGが50%/100mを越える高度の内、地表に最も近いものをもってエアロゾル層高度とSasano et al.⁷⁾は定義したが、以下では夜間の安定層下で拡散がもともと抑制されていて顕著な混合状態にない可能性があることを考慮し、条件を30%/100mにゆるめて用いた。但し、50%/100mとした時ときほど大きな差異は生じない。なお、エアロゾル層高度が2000mを越える場合にはこれを2000mとおいた。エアロゾル濃度鉛直分布と、このようにして求められるエアロゾル層高度の例が松井⁵⁾に示されている。

2.2 低層大気構造

前項で述べた方法で求めたエアロゾル層上端高度の日変化例を図2に示す。この日(12月8日)は日本付近は移動性高気圧におおわれ、快晴で穏やかな風の日で、夜間には放射冷却作用による地表面の冷却が期待される気象条件であった。図に見られるように地表面に接するエアロゾル層の上端は深夜より高度200m付近に停滞して朝9時まで持続している。それ以降は、このエアロゾル層上端高度は時刻とともに上昇し、午後2時頃には最高高度に達している。これは典型的な熱対流による混合層の発達を示している^{7,8)}。夕方以降、再

びエアロゾル層の高度は350m付近にあり夜半まで持続している。

なお、日中の混合層内外でのエアロゾル濃度の鉛直方向の急勾配に比べて、夜間の低層エアロゾル層上端ではそれほど急峻な勾配を形成していないので、ここで定義した夜間のエアロゾル層高度は都市境界層の厚さを表わす指標のひとつと考えるのが適当であろう。12月1日から27日にかけてのエアロゾル層高度の変化に関する全データは松井⁵⁾に示されている。

3. 窒素酸化物濃度の日変化

3.1 窒素酸化物濃度および気象データ

本論文で用いる窒素酸化物濃度データおよび気象データは「国設東京」と呼ばれる大気汚染測定局(東京都新宿区百人町東京都衛生試験所4階屋上)において測定された毎正時前1時間の平均値である。風速データも同様に1時間平均値である。なお、12月1日から27日にかけての期間中、NO₂濃度が環境基準である60ppbを越えた日は12月7日、8日、9日、14日、19日、20日、24日の7日間であった。

3.2 窒素酸化物濃度の日変化パターン

12月1日から27日までの毎時のNO_x濃度の平均と標準偏差を求めて日変化パターンを描いてみると1日の内で日の出後の午前中に小さなピーク

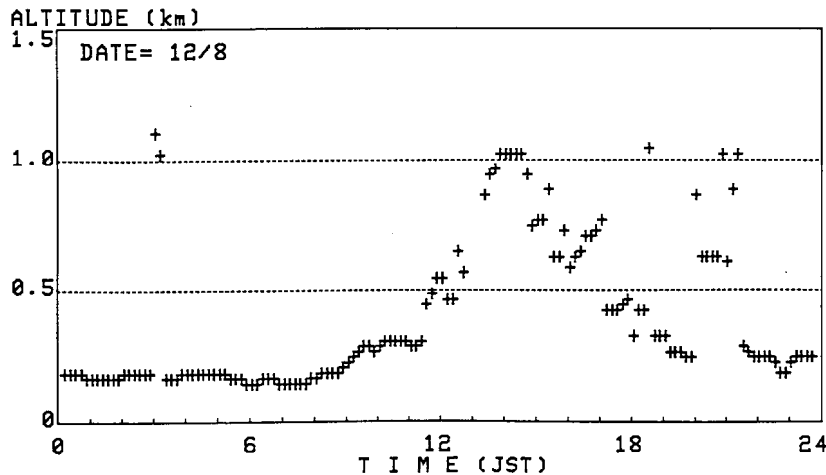


図2 NCGにより求めたエアロゾル層上端高度の日変化の例(12月8日)

となった後、15時頃に最低濃度となり、再び夕刻から夜間にかけて濃度が上昇する。これは窒素酸化物の排出源のほとんどが自動車などの移動排出源であり、朝夕に交通量の極大があることと、夕方から翌朝にかけて接地逆転あるいは都市境界層が形成され易いという事情にその原因を求めることができる。

日平均の窒素酸化物濃度を高めている原因は夜間に発生する高濃度であると考えられる。そこで、以下では15時から翌日6時までの間を夜間とみなしこの間の挙動に的を絞った議論する。特に断わらない限り、以下で夜間平均とは15時から翌日6時までの平均を指すことにし、日付はその前半15時から24時までを含む日をもって示すことにする。

NO_x 濃度、 NO_2 濃度、風速の夜間平均値(12月1日から26日の26個)、およびこの期間中の濃度の平均値(月平均値と呼ぶ)、標準偏差を求め表2に示した。 NO_x 濃度、 NO_2 濃度のそれぞれについて個々の夜間平均値が(月平均+標準偏差)を越える日を「高濃度日」、(月平均-標準偏差)を越えない日を「低濃度日」と呼ぶことにすると、 NO_x 高濃度日は26日の内の5日間(12月7日、8日、14日、19日、24日)が該当した。これら NO_x 高濃度日の濃度日変化パターンの例(12月14日)を図3に示した。図には各時刻の月平均値及びそれに標準偏差を加減した値が描かれている。いずれの「高濃度日」においても15時以降すぐに、(月平均+標準偏差)の曲線を越えて高濃度が発達している。一方、15時以降すぐは高濃度発生のパターンを示しながらも、その後濃度が急減して夜間

平均としては「高濃度日」に該当しなかった日は12月20日である。「低濃度日」には、いずれの日にも15時以降、低い濃度レベルが持続している。

4. 都市境界層構造と NO_x 濃度

都市境界層の高度は地表面粗度(建築物など)による機械的混合や人工熱源の及ぶ範囲であるとすれば、地表付近から排出された汚染質はおよそこの高度領域の中に拡散し、分布するものと考えられる。したがって、非反応性あるいは反応によっても保存される汚染質(例えば NO_x)の濃度は都市境界層が薄ければ、一般に高くなると期待される。また、風の弱い日にはそれだけ汚染質の水平方向の輸送が小さくなるため、同様に高濃度となる。

夜間平均の風速、夜間平均の都市境界層の厚さの関数として、夜間平均の NO_x 濃度を図4にプロットした。ここで夜間平均の都市境界層の厚さは、第2節で定義した10分毎のエアロゾル層上端の高さを $H(i)$ とし、(2)式で求めた。なお、(2)式では NO_x 濃度は都市境界層の厚さに逆比例すると考えられるので、調和平均により表わしている。

$$H_m = \left\{ \frac{1}{90} \sum_{i=1}^{90} [1/H(i)] \right\}^{-1} \quad (2)$$

レーザーレーダーの欠測等により15時間分(90個)のデータが揃っていない日はプロットしていない。図4に見られるように「高濃度日」の発生は H_m の小さいときに集中しており、またこの時、平均風速も小さい。「低濃度日」は H_m が大きいとき、あ

表2 NO_x, NO₂, 平均風速 W, 都市境界層厚さ H, 停滞係数 S の 15 時から翌日 6 時までの間の夜間平均値

月日	NO _x (ppb)	NO ₂ (ppb)	W _m (m/s)	H _m (m)	S _m (0.001 s/m ²)	レーザーレーダー 観測の有無
12/ 1	160.1	47.6	0.7	205	3.39	yes
12/ 2	88.0	41.7	1.0	—	—	no
12/ 3	102.6	41.7	1.0	306	2.05	yes
12/ 4	74.8	54.6	0.8	—	—	no
12/ 5	25.3	21.4	2.8	1568	0.186	yes
12/ 6	124.9	45.7	1.0	383	1.70	yes
12/ 7	244.2(*)	82.4(*)	0.9	246	3.04	yes
12/ 8	303.7(*)	79.3(*)	0.7	318	3.53	yes
12/ 9	84.9	48.5	1.4	407	0.811	yes
12/10	101.3	45.2	1.0	408	1.15	yes
12/11	114.3	43.1	1.1	285	1.43	yes
12/12	127.2	55.1	1.5	319	1.46	yes
12/13	98.0	49.7	1.1	339	2.45	yes
12/14	300.3(*)	87.1(*)	0.8	212	3.22	yes
12/15	56.9	35.5	1.5	572	0.403	yes
12/16	116.9	40.9	1.3	—	—	no
12/17	45.0	32.7	1.9	—	—	no
12/18	136.7	48.7	1.5	—	—	no
12/19	303.1(*)	73.5(*)	0.6	238	4.61	yes
12/20	126.9	53.7	1.3	236	1.45	yes
12/21	36.1	29.1	2.1	1943	0.242	yes
12/22	25.5	21.9	2.5	2000	0.198	yes
12/23	176.5	57.5	1.0	315	1.81	yes
12/24	298.9(*)	90.1(*)	0.9	252	3.77	yes
12/25	28.2	25.1	3.1	392	0.206	yes
12/26	74.9	39.4	1.5	358	0.858	yes
平均	129.8	49.7				
std	87.8	18.8				

(*) 印は「高濃度日」を示す

るいは風速の大きいときに限られる。都市境界層の厚さはある程度、風速の関数ともなっている。これは都市境界層の形成が機械的な混合に起因することに関係している。図4において12/25日は18時まで風速5 m/s以上、24時まで風速3 m/sであり都市境界層は形成されていないが、24時以後に風速が2 m/s以下となり都市境界層が形成されているために、平均値が特異な値となっている。

風速と都市境界層の厚さの積は一種の換気容量の指標となる⁹⁾。また、その逆数は汚染気塊の停滞の程度を表わすと考えることができる。これを停滞係数(Stagnant Factor) S と書けば、風速を W とし各時刻 i (10 分毎) の停滞係数 S(i) は(3)式

$$S(i) = 1 / \{W(i)H(i)\} \quad (3)$$

とおける。但し、風速は1時間値データがあるのみなので、各時刻帯で同一の値を用いている。夜間平均の停滞係数 S_m は(4)式で表わされる。

$$S_m = \frac{1}{90} \sum_{i=1}^{90} S(i) \quad (4)$$

図5に夜間平均の停滞係数と NO_x濃度の関係を示した。12/1, 3, 13日を除いた観測データから求められる停滞係数と NO_x濃度との相関係数は0.98であり、良い対応関係が見られる。停滞係数がおよそ 2.6×10^{-3} より大きいとき NO_x「高濃度日」、

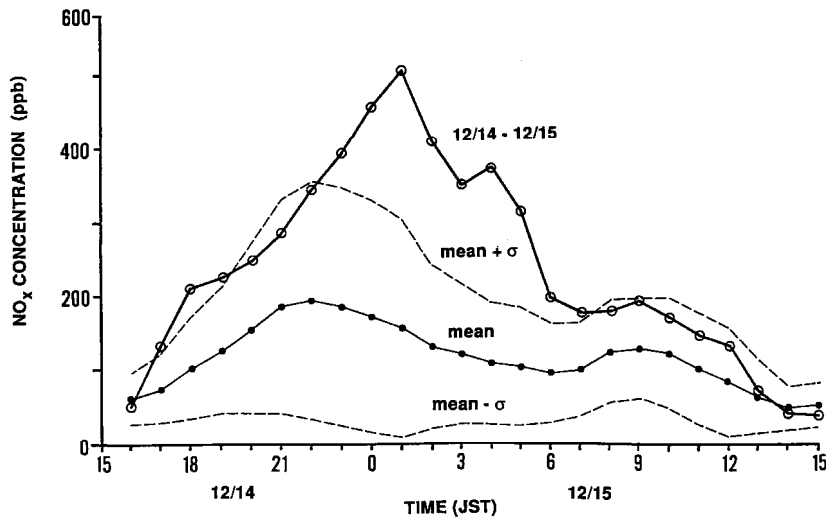


図3 NO_x高濃度日の濃度日変化パターンの例 (12月14日)

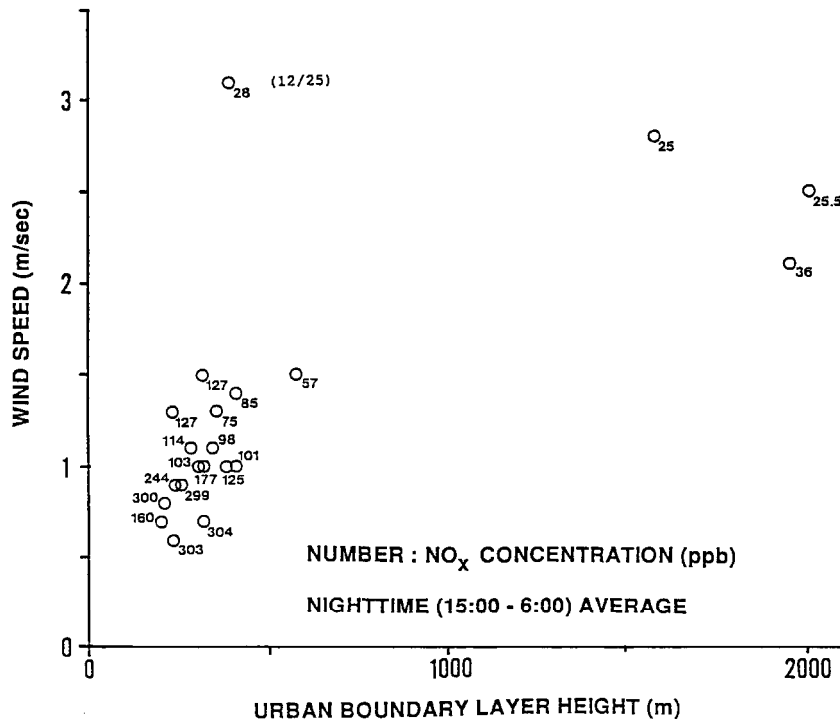


図4 夜間平均の都市境界層高度と夜間平均風速の関係：数値はNO_x濃度 (ppb) を示している

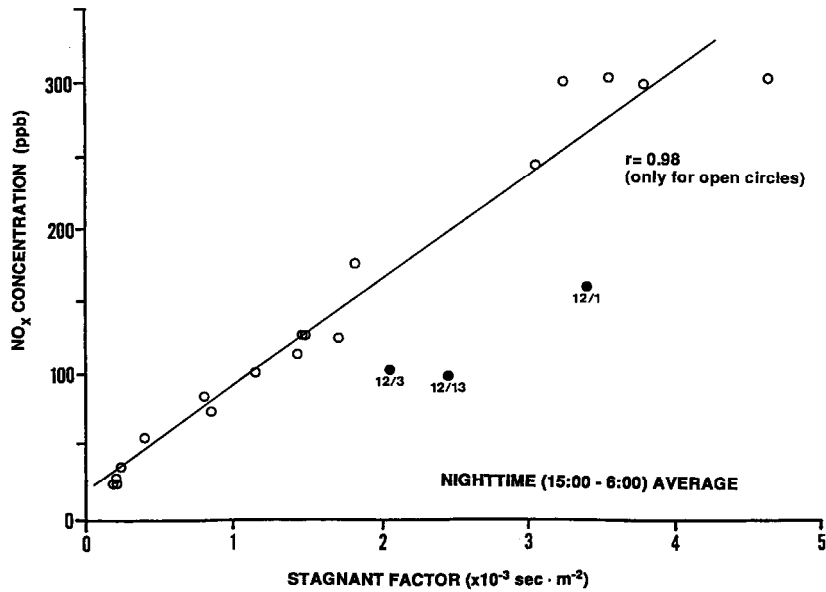


図5 夜間平均の停滞係数と夜間平均 NO_x濃度の関係：相関係数は白丸から求めている

およそ 0.3×10^{-3} より小さいとき「低濃度日」となっている。

停滞係数が大きいにも拘らず NO_x濃度の低いケースが3例(12月1日, 3日, 13日)見られる。12月3日, 13日については, 15時前後に低層の雲の構造を捉えており, 都市境界層の厚さとしては適当でないためである。曇った日は放射冷却が起こりにくく顕著な都市境界層は形成されないため, 一般に高濃度は発生しにくい。

一方, 12月1日は風も弱く, 平均の都市境界層の厚さも薄いので, 高濃度の発生がもたらされてもおかしくない気象条件のように見える。この日のエアロゾル層高度と NO_x濃度の日変化パターン(図6)から分かることは, 15時から16時直後にかけて, 高度の低い境界層は見られず, これに対応して NO_x濃度も高濃度発生のパターン(図3)と異なり, 15時以降すぐの濃度の増大が見られないことである。このことは, NO_x濃度の高濃度日の出現にあたっては15時以降の早い時刻から都市境界層が形成され, 高濃度気塊の蓄積が始まる必要があることを示している。

NO₂濃度についてはどうであろうか。図7に夜間平均の NO_x濃度と NO₂濃度の関係を示している。これによれば, NO_x濃度と NO₂濃度の間にはほぼ一対一の関係があり, NO_xの増大につれて NO₂も増大する。しかし, 両者の比例関係は一定ではなく, NO₂/NO_x比は NO_x濃度が低いときは ~ 0.8 ,

NO_x濃度が高い「高濃度日」には ~ 0.3 程度の値をとる。NO₂の濃度変動幅は NO_xのそれに比べて小さい。これは, 鶴野^{2,3)}で論じられているように, 上空のバックグラウンドオゾンとの反応を抜きにしては説明できない。

しかしながら, NO₂濃度と停滞係数の関係という観点だけから見れば, NO₂の「高濃度日」の発生もまた停滞係数で記述できる。夜間平均の停滞係数が 3.0×10^{-3} 以上の時, NO₂の夜間平均値(但し, 15時から翌日6時)は環境基準の60 ppbを越える。

5. おわりに

本論文ではレーザーレーダー観測から得られる夜間の都市境界層の厚さと NO_x濃度の日変化パターンについて調べた。都市境界層の厚さと風速の積の逆数で定義される停滞係数をパラメータとして, NO_xおよび NO₂の「高濃度日」が説明できることを示した。すなわち, 15時から翌日6時までの平均の停滞係数が 3.0×10^{-3} を越えるとき, この時間帯の NO₂濃度は60 ppbを越える。夜間の高濃度の発現が全日平均の高濃度発生に大きく寄与している。

謝辞： 本研究で用いた窒素酸化物濃度および風のデータは環境庁大気保全局大気規制課より提供して頂いた。ここに謝意を表す。なお, レーザ

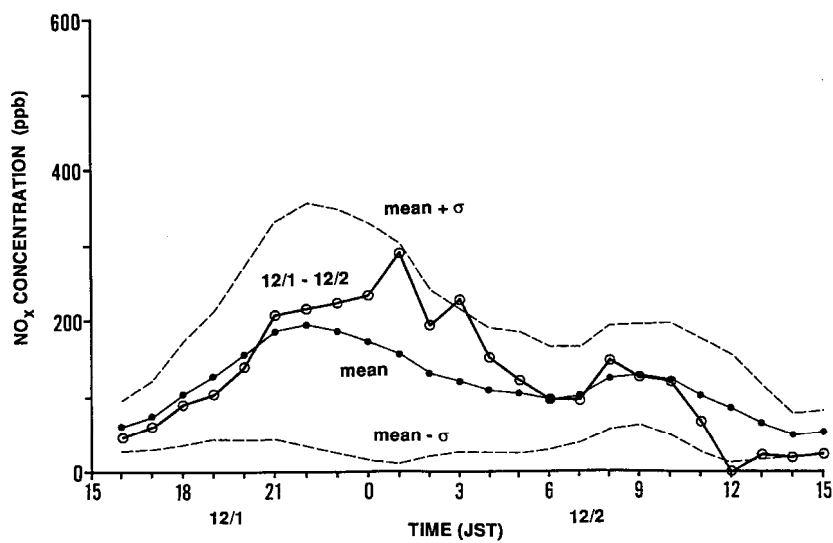


図6 高濃度の発生条件を満たしていながら、NO_x高濃度日とならなかった12月1日の濃度日変化パターン

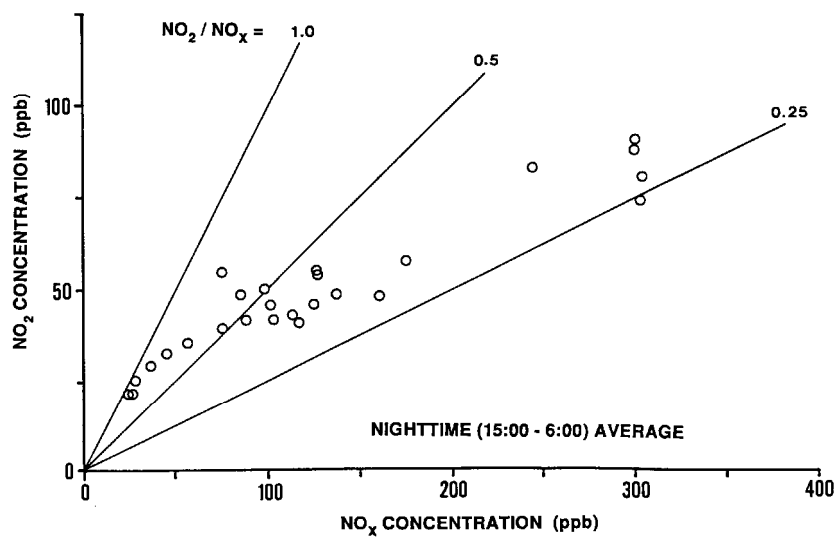


図7 夜間平均のNO_x濃度と夜間平均のNO₂濃度の関係

ーレーダー観測はNO₂汚染予報事業の一環として公害健康被害補償予防協会と環境庁により実施されたものである。

文 献

- 1) 環境庁大気保全局 (1987) 昭和 61 年度一般環境大気測定局測定結果報告.
- 2) 鶴野伊津志・若松伸司・植田洋匡 (1988) 夜間の都市境界層と大気汚染質の動態. 大気汚染学会誌, **23** (2), 103-114.
- 3) 鶴野伊津志・植田洋匡・若松伸司 (1989) 夜間の都市域における NO₂ の高濃度発現メカニズム. 大気汚染学会誌, **24** (2), 130-143.
- 4) Sasano, Y., H. Shimizu, N. Sugimoto, I. Matsui, N. Takeuchi and M. Okuda (1980) Diurnal variation of the atmospheric planetary boundary layer observed by a computer-controlled laser radar. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **58** (2), 143-148.
- 5) 松井一郎 (1990) ミー散乱レーザーレーダーによる都市域における低層大気構造の連続観測. 光学, **19** (7), 438-446.
- 6) Sasano, Y., H. Shimizu, N. Takeuchi and M. Okuda (1979) Geometrical form factor in the laser radar equation : an experimental determination. *Appl. Opt.*, **18**(23), 3908-3910.
- 7) Sasano, Y., A. Shigematsu, H. Shimizu, N. Takeuchi and M. Okuda (1982) On the relationship between the aerosol layer height and the mixed layer height determined by laser radar and low-level radiosonde observations. *J. Meteorol. Soc. Japan*, **60** (3), 889-895.
- 8) 松井一郎・笹野泰弘・清水 浩・竹内延夫 (1986) 混合層高度連続観測用簡易型レーザーレーダーの製作. 電気通信学会論文誌, **J69-C** (5), 588-594.
- 9) 河村 武 (編) (1979) 大気環境の科学 3 : 都市の大気環境. 東京大学出版会, 106 pp.

Mie Lidar Measurements of Nocturnal Urban Boundary Layer Height and Its Relation to Severe Air Pollution

Ichiro MATSUI and Yasuhiro SASANO

(National Institute for Environmental Studies,
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305 Japan)

Abstract

High concentration of air pollutants like nitrogen oxides found in an urban area during the nighttime was shown to be closely related to urban boundary layer (UBL) heights and wind speed. The UBL heights were estimated from continuous measurements of aerosol profiles with a Mie lidar. Since the aerosol profiles reflect the structures of UBL, they can be used to infer the heights of UBL. When defining a stagnant factor as an average of the reciprocal of the product between the height of UBL and the wind speed, the nighttime averages of nitrogen oxide and nitrogen dioxide were shown to be linearly proportional to the stagnant factor.

Key Words : nitrogen oxides, air pollution, urban boundary layer, laser radar, stagnant factor