

1. 川崎市における大気中アンモニア濃度について

Investigation of Atmospheric Ammonia in KAWASAKI

柴田幸雄	Yukio SHIBATA
中村清治	Seiji NAKAMURA
井上俊明	Toshiaki INOUE
黒沢芳則	Yoshinori KUROSAWA
市橋正之	Masayuki ICHIHASHI
寺部本次	Motoji TERABE

1 はじめに

大気中のアンモニアは、動植物等の有機物やアンモニウム塩がバクテリア等により分解する際に発生し、主に土壌、海洋等の自然発生によるところが大きいと推定されている。その他、都市部においては下水道、し尿処理場、化学工場、精油所、化石燃料の燃焼による発生も考えられる。近年では、窒素酸化物排出対策としてのアンモニア脱硝装置からの排出等も考えられる。

放出されたアンモニアは、植物、地表、水面、雨滴への沈着や吸収、またガスや粉じん等との反応によるエアロゾル形成等によって消費される。アンモニアは大気中でSO₂、NO_x等、他のガス状成分及び粒子状成分等と反応しアンモニウム塩に変換しエアロゾルになる。そのため最近では一次汚染物質としてよりも二次汚染物質として大気中の挙動に関心が持たれている。

また一方、アンモニアは溶液導電率方式二酸化硫黄自動計測器の指示に対し負の影響を与える干渉成分としても注目されている。

以上のような背景下において、大気中のアンモニア濃度を把握するため昭和56年度の季節別調査に引き続き57年度は一年間の定期調査を行ったので報告する。

2 調査方法

2.1 調査期間及び試料採取時間

調査期間：昭和57年4月～昭和58年3月 月2回試料採取

試料採取時間：原則として午前10時より翌日午前10時までの24時間サンプリング

2.2 調査地点

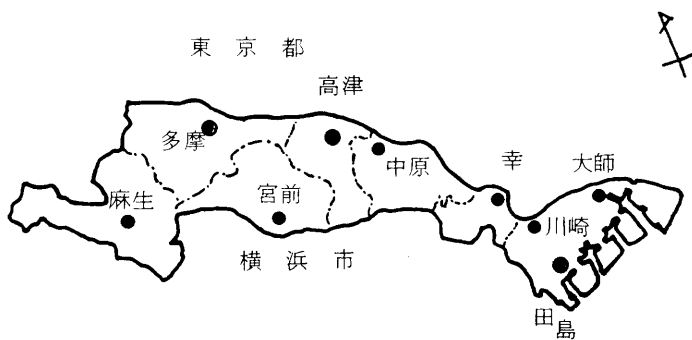
調査は図1に示す9地点で行った。

2.3 調査項目

大気中のアンモニアを粒子状物質中のアンモニウム塩（以下粒子状アンモニアという。）及びガス状のアンモニアとに分け測定した。

2.4 測定方法

2.4.1 試料採取方法



調査地点	測定場所
大師	大師保健所
田島	公害研究所
川崎	公害監視センター
幸	幸保健所
中原	中原保健所
高津	高津区役所
宮前	宮前測定所
多摩	多摩保健所
麻生	麻生測定所

図1 アンモニアの調査地点

テフロンろ紙 (FP-065) で粒子状物質を、シュウ酸ろ紙でガス状アンモニアをそれぞれ分別捕集した。通気速度は約3 l/minとした。

2.4.2 分析方法

イオン交換水を用い、テフロンろ紙は超音波抽出、シュウ酸ろ紙は振とう抽出し、それぞれの抽出液を試料溶液としインドフェノール法で分析した。

なお、試料捕集用紙の調製法、試料採取装置及び分析方法は、本報前号ならびに臨海地区大気汚染調査報告書に準じた。

2.5 大気中のアンモニア濃度の算出

大気中の粒子状アンモニア及びガス状アンモニア濃度は次式により算出した。

$$C = W \times \ell \times \frac{1000}{V \times \frac{273 + 20}{273 + t}}$$

C : アンモニア濃度 [$\mu\text{g NH}_3 / \text{m}^3 (20 \text{ }^\circ\text{C})$]

W : 検量線により求めた試料中のアンモニア濃度 ($\mu\text{g NH}_3 / \text{ml}$)

ℓ : ろ紙の抽出液量 (ml)

V : 試料採気量 (ℓ)

t : 平均気温 ($^\circ\text{C}$)

3 調査結果

一年間にわたる調査結果は付表1のとおりで、このうち田島、高津、多摩における結果のまとめを表1に示した。粒子状およびガス状アンモニアそれぞれの年平均濃度を図2に示した。また各成分の地点別濃度推移を図3、4に示した。

(1) 粒子状アンモニア濃度

表1から最高、最低、年平均濃度ともに田島<高津<多摩の順にやや高くなる傾向がみられるが、有意な差は認められなかった。図3の濃度推移をみると、3地点とも8月に最低、11月に最高濃度を示し、5月~10月の期間は比較的低濃度に推移した。

表1 アンモニア濃度測定結果

単位： $\mu\text{g}\text{NH}_3/\text{m}^3$

調査地点	成分	最高	最低	年平均
田 島	粒子状 NH_3	9.4	0.8	3.2
	ガス状 NH_3	5.8	0.8	2.8
高 津	粒子状 NH_3	10.4	1.2	3.7
	ガス状 NH_3	7.1	1.7	3.9
多 摩	粒子状 NH_3	10.6	1.3	4.2
	ガス状 NH_3	9.8	2.2	5.4

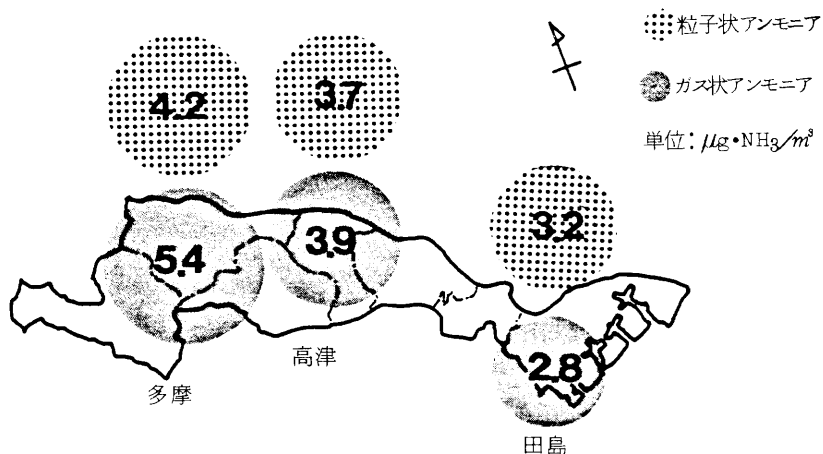
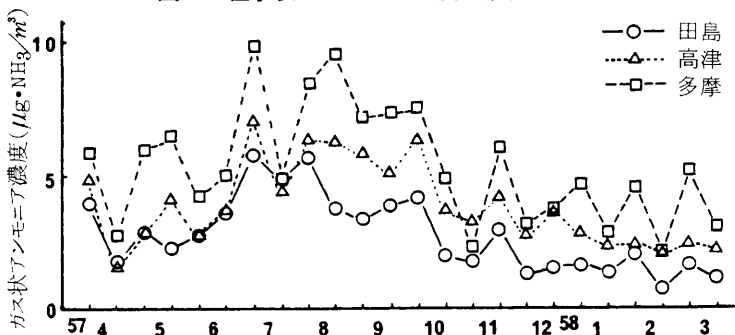
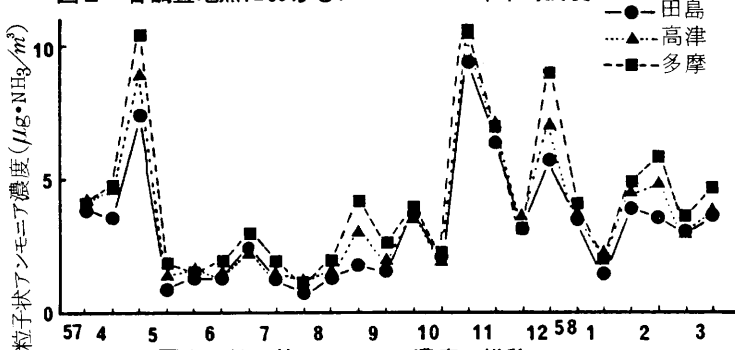


図2 各調査地点におけるアンモニアの年平均濃度



(2) ガス状アンモニア濃度

表1から最高、最低、年平均濃度ともに田島<高津<多摩の順に高くなる傾向であった。図4の濃度推移をみると、3地点とも7月に最高、2月~4月に最低濃度を示し、6月~10月の期間に比較的高濃度がみられ粒子状とは対象的なパターンであった。

4 考察

(1) 粒子状アンモニア濃度の地点間の比較と推移

粒子状アンモニア濃度は表1及び図3から明らかのように、地点間の年平均濃度差は、 $1 \mu\text{gNH}_3/\text{m}^3$ 程度であり、地点間の相関は0.95~0.99と非常に高く(表2)、変動パターンはほぼ一致していた。これは一般にいわれるように、粒子状アンモニアは $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 、 NH_4HSO_4 、 NH_4NO_3 、 NH_4Cl 等で、気体から二次的に生成した粒子が主なものであり³⁾、広域的な分布を示すためと推測される。このような変動パターンを示すことは、昭和56年度臨海地区大気汚染調査協議会による調査結果⁴⁾においても同様であった。

5月~10月に他の期間より低濃度を示す傾向が認められることの理由の一つに次のことが考えられる。大気中の NH_4NO_3 は NH_3 と HNO_3 との平衡状態にあり、気温の上昇により NH_4NO_3 粒子の生成が押えられる^{5)~7)}。しかしながら粒子状アンモニアの多くは大気中の SO_2 から生成される硫酸塩として存在し、 $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4^{2-}$ への変換率は光化学反応等により促進され、夏期に高いともいわれている。本調査日のうち、光化学注意報が発令された5月11日に高濃度を示している。従って、夏期において低い濃度を示す傾向があると考えられるが、光化学の発生日には高濃度を示すことも予想される。

各地点とも比較的高い濃度を示した11月9日と12月2日は両日も雨天であった。相対湿度と粒子状アンモニアには相関があるとの報告もあるが、本調査においては、明確な関係は得られなかった。

表2 3地点間の粒子状アンモニア濃度の相関

調査地点	田 島	高 津
高 津	0.987	
多 摩	0.954	0.980

表3 3地点間のガス状アンモニア濃度の相関

調査地点	田 島	高 津
高 津	0.850	
多 摩	0.810	0.894

(2) ガス状アンモニア濃度の地点間の比較と推移

各地点の濃度には、表3に示すように高い相関($r=0.81\sim0.89$)が得られたが、図3、4を比較すると、粒子状アンモニアほどではなかった。その理由として、ガス状アンモニアの発生源には土壌浄化槽、下水道、その他固定発生源等、地域差があって環境濃度に影響しているためと考えられる。先に述べた56年度臨海地区大気汚染調査協議会の調査⁴⁾における経日変化でも、ガス状アンモニアは各調査地点で異なった変動パターンを示していた。

(3) アンモニア濃度と他因子の関係

昭和56年度の調査において高度な相関関係が認められた、粒子状アンモニア濃度と浮遊粉じん濃度(デジタルダスト値)、ガス状アンモニア濃度と気温の関係について常時監視局のデータをを用い検討

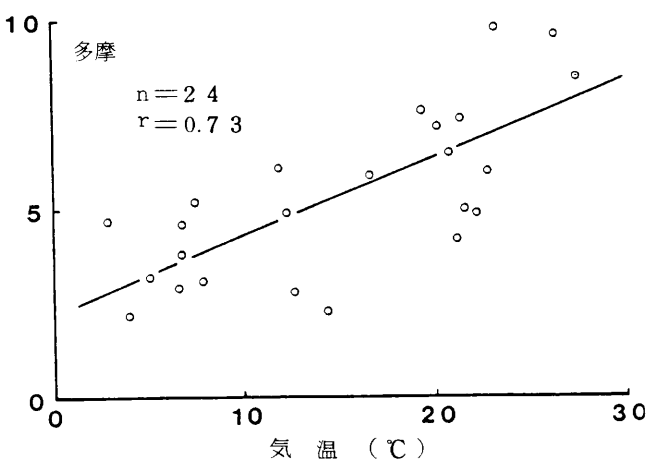
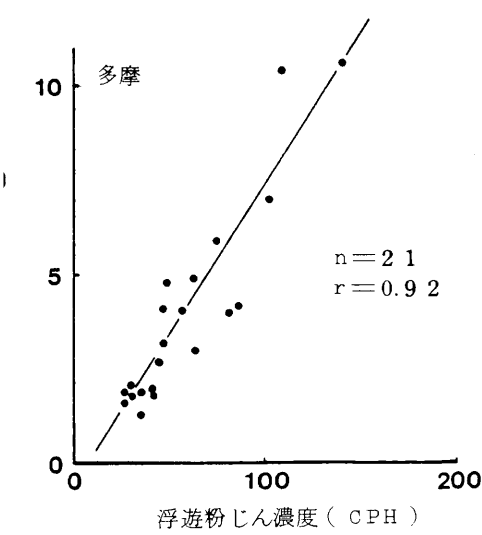
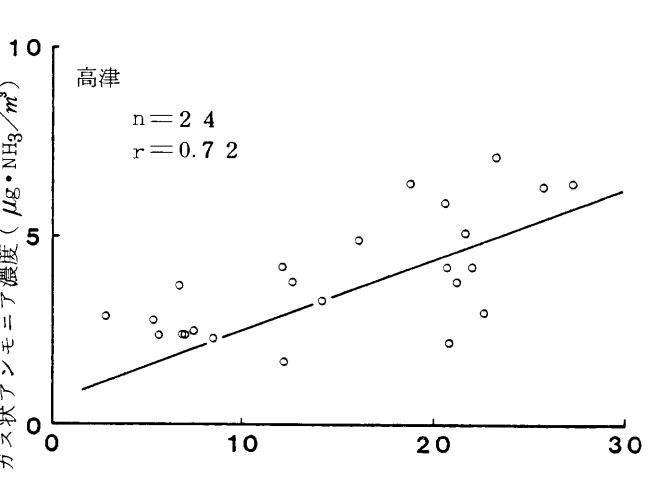
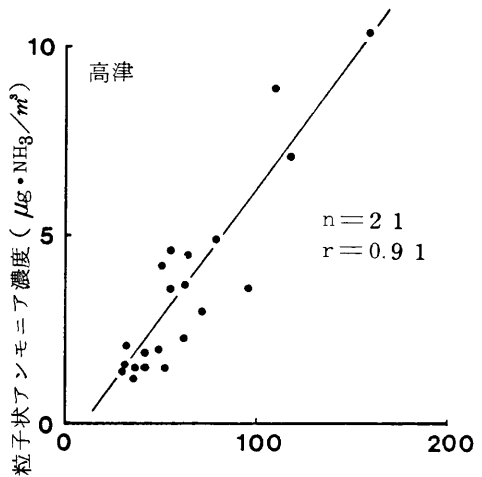
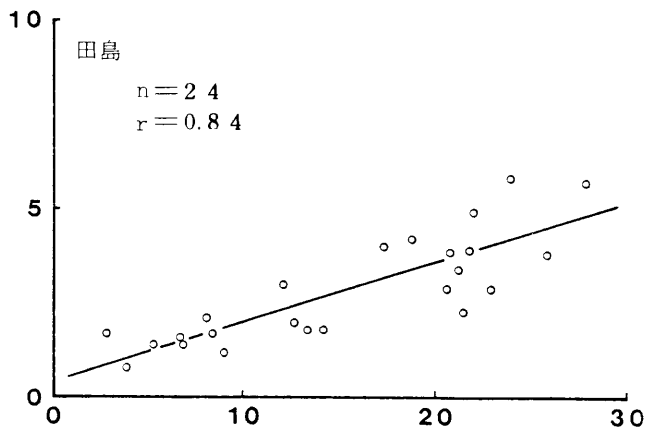
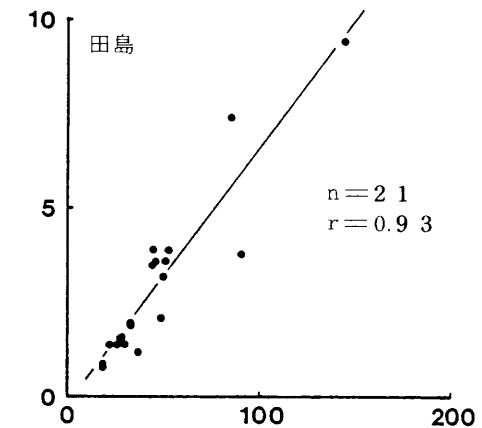


図5 粒子状アンモニア濃度と浮遊粉じん濃度の関係

図6 ガス状アンモニア濃度と気温の関係

した。

ア、粒子状アンモニア濃度と浮遊粉じん濃度の関係

田島、高津、多摩における関係を図5に示した。相関係数0.91～0.93と高い相関を示している。このことから、浮遊粉じん中にアンモニアがある割合で存在していることが予想される。

イ、ガス状アンモニア濃度と気温の関係

田島、高津、多摩における関係を図6に示した。相関係数は0.72～0.84と良い相関が得られた。つまり気温が高くなるとガス状アンモニア濃度も高くなることを示している。これは、気温の上昇によりNH₄NO₃等のアンモニウム塩の生成が押えられること、土壤温度の上昇により土壤から発生するアンモニアの量が増加することや、気温の上昇によりアンモニアの蒸気圧が高くなること等に起因していると考えられる。

(4) 他都市との比較

本調査結果と他都市において近年行われた調査結果との比較を表5に示した。バックグラウンドとして測定した岩手県三陸町は低濃度であるが、他の都市部においてはほぼ同様な値であった。

表4 大気中のアンモニア濃度

測定地点	時期	粒子状	ガス状	$\mu\text{g}\cdot\text{NH}_3/\text{m}^3$	
				備考	
川崎市(田島)	1982～3	0.8～9.4	0.8～5.8		本調査結果
岩手県三陸町 ¹⁰⁾	1978,11	0.2	0.9		
前橋市 ¹¹⁾	1979	1.0～5.0	2.1～14.2		四季別
大阪府 ⁷⁾	1980	1.9～9.9	1.4～6.9		
福井市 ¹²⁾	1981～2	—	3.5～5.0		
神奈川県 ⁴⁾	1981,7	1.2～3.3	2.7～8.2		
	1982,2	2.9～5.8	0.7～4.8		
Warren,MI ¹³⁾	1979,9	—	0.9	MAX	2.8
	1980,1	—	0.6		1.4
	1980,5	—	0.9		5.7

5 まとめ

本調査は川崎市における大気中のアンモニア濃度を把握する目的で実施したもので、結果をまとめると次のとおりである。

- (1) 全調査地点における粒子状アンモニア濃度範囲は0.6～10.6 $\mu\text{g}\text{NH}_3/\text{m}^3$ 、ガス状アンモニア濃度範囲は0.8～9.8 $\mu\text{g}\text{NH}_3/\text{m}^3$ であった。
- (2) 田島、高津、多摩における粒子状アンモニア濃度の年平均値は、3.2～4.2 $\mu\text{g}\text{NH}_3/\text{m}^3$ 、ガス状アンモニア濃度の年平均値は、2.8～5.4 $\mu\text{g}\text{NH}_3/\text{m}^3$ であった。
- (3) 各地点の濃度推移は、粒子状アンモニアでは各地点ほぼ一致した変動パターンであったが、ガス

状アンモニアはそれほど一致していなかった。なお、ガス状アンモニアの濃度は夏期に高い傾向があった。

(4) 粒子状アンモニアは浮遊粉じんと、ガス状アンモニアは気温と高い相関関係にあった。

文 献

- 1) 柴田幸雄他：シュウ酸ろ紙捕集法によるアンモニア測定法の検討，川崎市公害研究所年報，9，21～31（1981）
- 2) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：アンモニア濃度調査，臨海地区大気汚染調査報告書，87～94（1980）
- 3) 角脇裕他：都市大気中における二次粒子の挙動と生成機構(I)，公害と対策，18(6)，553～558（1982）
- 4) 神奈川県臨海地区大気汚染調査協議会：アンモニア濃度の調査，臨海地区大気汚染調査報告書，77～103（1981）
- 5) 角脇裕：都市大気中における二次粒子の挙動と生成機構(II)，公害と対策，18(7)，667～671（1982）
- 6) “ ”：都市大気中におけるエアロゾル成分，ガス成分の濃度変動に及ぼす気温影響，第22回大気汚染学会講演要旨集，506（1981）
- 7) 田口佳介他：大阪における大気中アンモニア及びアンモニウム塩濃度，第8回環境保全公害防止研究発表会要旨集，52（1981）
- 8) T.V. Healy：Ammonia and related Atmospheric Pollutants at Harwell，Atmos, Environ 8(4)，681（1974）
- 9) 金熙江他：土壌発生アンモニア量の測定，第22回大気汚染学会講演要旨集，233（1981）
- 10) 橋本芳一他：大気中アンモニアの挙動，大気汚染学会誌 14(10)，30～33（1979）
- 11) 島田好彦他：前橋市における大気中アンモニア及びアンモニウム塩濃度，大気汚染学会講演要旨集 120（1980）
- 12) 正通寛治他：環境大気中未規制物質調査，大気汚染学会講演要旨集，195（1982）
- 13) S.H.Cade,R.J.Countess and N.A.Kelly：Nitric acid and Ammonia in Urban and Rural locations. Atmospheric Environment. 16(10),2501～2506（1982）

付表1 アンモニア濃度測定結果

単位: $\mu\text{g NH}_3/\text{m}^3$ (20℃)

調査 地点	月・日 NH ₃ 成分	57 4		5		6		7		8		9		10		11		12		58 1		2		3		最高 濃度	最低 濃度	年平均 濃度
		20 ~ 21	27 ~ 28	11 ~ 12	25 ~ 26	15 ~ 16	29 ~ 30	13 ~ 14	27 ~ 28	10 ~ 11	17 ~ 18	16 ~ 17	28 ~ 29	12 ~ 13	26 ~ 27	9 ~ 10	17 ~ 18	13 ~ 14	22 ~ 23	11 ~ 12	26 ~ 27	15 ~ 16	24 ~ 25	15 ~ 16	29 ~ 30			
田島	粒子状	3.9	3.6	7.4	0.9	1.4	1.4	2.4	1.2	0.8	1.4	1.9	1.6	3.8	2.0	9.4	6.4	3.2	5.7	3.5	1.6	3.9	3.6	3.0	3.7	9.4	0.8	3.2
	ガス状	4.0	1.8	2.9	2.3	2.9	3.7	5.8	4.9	5.7	3.8	3.4	3.9	4.2	2.0	1.8	3.0	1.4	1.6	1.7	1.4	2.1	0.8	1.7	1.2	5.8	0.8	2.8
	総	7.9	5.4	10.3	3.2	4.3	5.1	8.2	6.1	6.5	5.2	5.3	5.5	8.0	4.0	11.2	9.4	4.6	7.3	5.2	3.0	6.0	4.4	4.7	4.9	11.2	3.0	6.1
高津	粒子状	4.2	4.6	8.9	1.4	1.6	1.5	2.3	1.5	1.2	1.5	3.0	2.0	3.6	1.9	10.4	7.1	3.6	6.9	3.7	2.2	4.5	4.9	3.0	3.9	10.4	1.2	3.7
	ガス状	4.9	1.7	3.0	4.2	2.8	3.8	7.1	4.4	6.4	6.3	5.9	5.1	6.4	3.8	3.3	4.2	2.8	3.7	2.9	2.4	2.4	2.1	2.5	2.3	7.1	1.7	3.9
	総	9.1	6.3	11.9	5.6	4.4	5.3	9.4	5.9	7.6	7.8	8.9	7.1	10.0	5.7	13.7	11.3	6.4	10.6	6.6	4.6	6.9	7.0	5.5	6.2	13.7	4.4	7.7
多摩	粒子状	4.1	4.8	10.4	1.8	1.6	1.9	3.0	1.9	1.3	1.8	4.2	2.7	4.0	2.1	10.6	7.0	3.2	9.0	4.1	2.1	4.9	5.9	3.7	4.7	10.6	1.3	4.2
	ガス状	5.9	2.8	6.0	6.5	4.2	5.0	9.8	4.9	8.5	9.6	7.2	7.4	7.6	4.9	2.3	6.1	3.2	3.8	4.7	2.9	4.6	2.2	5.2	3.1	9.8	2.2	5.4
	総	10.0	7.6	16.4	8.3	5.8	6.9	12.8	6.8	9.8	11.4	11.4	10.1	11.6	7.0	12.9	13.1	6.4	12.8	8.8	5.0	9.5	8.1	8.9	7.8	13.1	5.0	9.6
大師	粒子状											2.0	1.6											2.7	3.9			
	ガス状											3.7	3.8											1.8	1.5			
	総											5.7	5.4											4.5	5.4			
川崎	粒子状									0.6	1.0												3.9	3.8				
	ガス状									4.5	5.7												2.0	1.3				
	総									5.1	6.7												5.9	5.1				
幸	粒子状							2.4	1.4											4.8	2.3							
	ガス状							5.0	4.2											1.8	0.9							
	総							7.4	5.6											6.4	3.2							
中原	粒子状					1.5	1.1												3.9	5.9								
	ガス状					3.3	2.9												1.9	2.3								
	総					4.8	4.0												5.8	8.2								
宮前	粒子状			3.8	1.3										9.9	6.6												
	ガス状			1.6	1.9										0.8	1.5												
	総			5.4	3.2										10.7	8.1												
麻生	粒子状	3.3	3.7										3.8	1.2														
	ガス状	1.8	1.4										1.9	1.5														
	総	5.1	5.1										5.7	2.7														