

自動車排出ガス測定局の二酸化窒素環境基準未達成要因の検討 ()

- 松戸上本郷自動車排出ガス測定局における調査の解析結果 -

竹内和俊 大橋英明 西田寛子* 内藤季和

(* : 千葉県生活環境部大気保全課)

1 はじめに

千葉県では、2011年度に初めて二酸化窒素(NO_2)に係る環境基準が全常時監視測定局で達成された¹⁾。しかしながら、それまでの間、松戸上本郷自動車排出ガス測定局(上本郷局)及び船橋日の出自排局(日の出局)の2局で達成困難な状況が続いていた。その原因としては、近年の環境濃度の傾向から光化学オキシダント(O_x)の影響が疑われる状況にあった。

そこで、環境研究センターはこれら2局の NO_2 環境基準の達成を困難としている要因について、常時監視データから解析、検討^{2),3)}を進めた。一方、千葉県環境生活部大気保全課は O_x が NO_2 生成にどのように関与しているのかについて委託による測定調査を行い、得られた測定データの解析は環境センターに依頼した。このうち、日の出局の調査解析結果については前報⁴⁾で報告したが、ここでは上本郷局の調査解析結果について報告する。

2 調査・解析方法

2・1 調査地点

上本郷局及び比較対照地点として柏旭自排局(旭局)とした。なお、松戸五香一般環境大気測定局(五香局)及び松戸二ツ木一般局(二ツ木局)の常時監視データ(1時間値)も解析の対象データとした。

また、「窒素酸化物総量規制マニュアル〔新版〕」(公害研究対策センター)に示す方法により大気安定度を推計するため、日射量については松戸根本一般局のデータを用い、放射収支量については館野高層気象台のデータを用いた。

上本郷地域の調査地点等を図1に示す。

2・2 調査期間

2012年7月18日(水)~7月31日(火)

2・3 調査項目及び方法

調査項目は、上本郷局では一酸化窒素(NO)、 NO_2 、オゾン(O_3)及び風向・風速の瞬時値等とし、対照

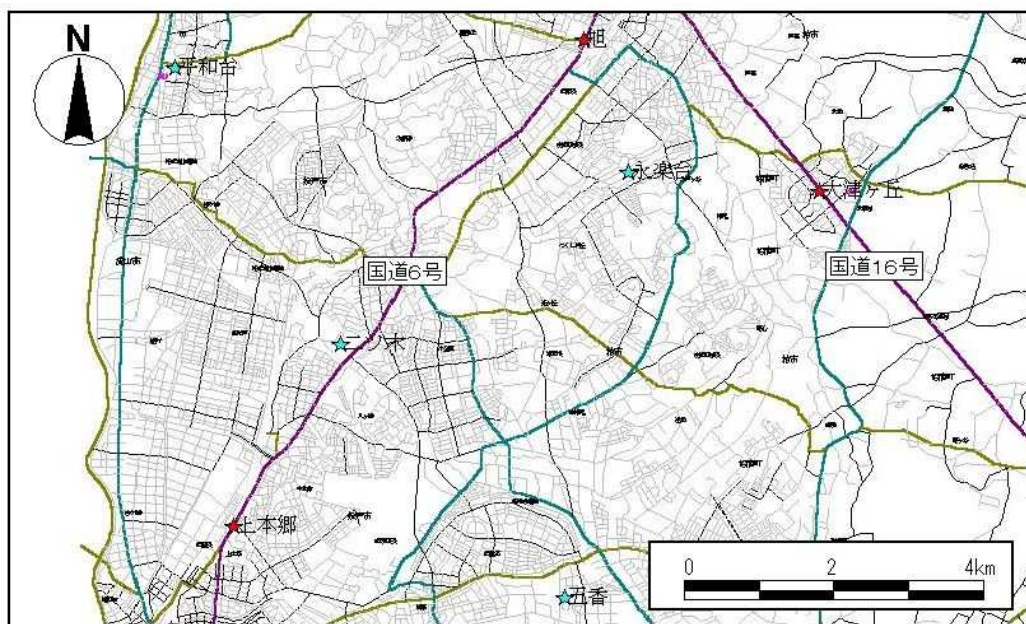


図1 上本郷地域における調査地点等(赤星印：自排局、青星印：一般局)

局である旭局では O₃ の瞬時値とした。各項目の測定方法は以下のとおりである。

ア NO 及び NO₂ : 上本郷局に設置されている化学発光法による NO_x 計の瞬時値を 1 分間に 1 回の割合で収集した。

イ O₃ : 環境研究センターの所有する O₃ 計を校正の上、上本郷局及び旭局に搬入して測定を行い、その瞬時値を NO 及び NO₂ と同じく 1 分間に 1 回の割合で収集した。

ウ 風向・風速 : 上本郷局及び五香局（一部期間）に設置されている風向・風速計の 10 分毎の移動平均値を 10 分に 1 回の割合で収集した。

3 解析結果

3・1 調査期間中の NO₂ 濃度日平均値等の推移

調査期間中の上本郷局及び旭局の NO 濃度日平均値の推移を図 2 に、同じく NO₂ 濃度日平均値及び五香局の Ox 濃度日平均値の推移を図 3 に示す。

図 2 から、調査期間中の上本郷局の NO 日平均値は 30 日及び 25 日の濃度が高く、最も日平均値が高かったのは 30 日の 52ppb である。旭局の NO も上本郷局と類似の変化、濃度レベルを示し、最も NO 日平均値の高かったのは 31 日の 54ppb である。

図 3 から、上本郷局の NO₂ 日平均値は環境基準値を超過した 25 日の 62ppb をピークとする山型の変化を示しており、NO₂ と NO は異なる濃度変化を示している。旭局の NO₂ 濃度も NO と同様に上本郷局と類似の変化を示すが、NO₂ 高濃度時の濃度レベルはやや低い状況にある。

また、図 3 から、この間の五香局の Ox 日平均値は 26 日の 54ppb をピークとする山型の変化を示し

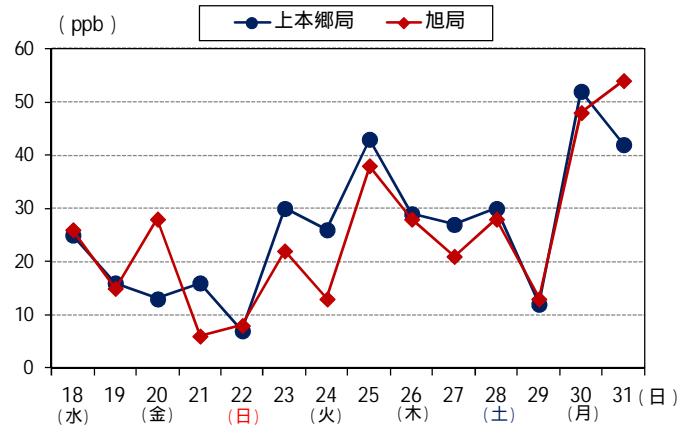


図 2 調査期間中の NO 日平均値の推移

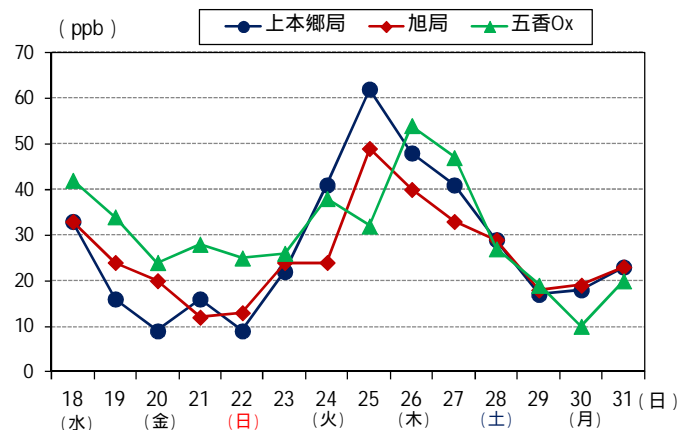


図 3 調査期間中の NO₂ 及び Ox 日平均値の推移

ており、ピーク日等はやや異なるが NO₂ とかなり一致した濃度変化を示している。

3・2 O₃ 濃度測定値の関係

上本郷局及び旭局に設置した O₃ 計による調査期間中の O₃ 濃度瞬時値の推移を図 4 に、上本郷局と旭局の O₃ 濃度の散布図を図 5 に示す。なお、図 5 には切片有りとした場合の回帰式（青字）と切片無しとした場合の回帰式（赤字）を示す。また、旭局については、23 日で O₃ 計の測定を中止している。

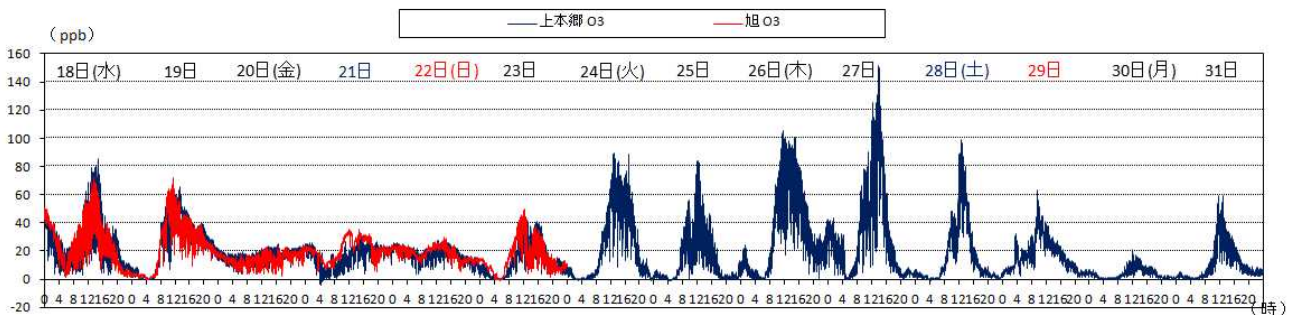


図 4 調査期間中の上本郷局及び旭局における O₃ 濃度瞬時値の推移

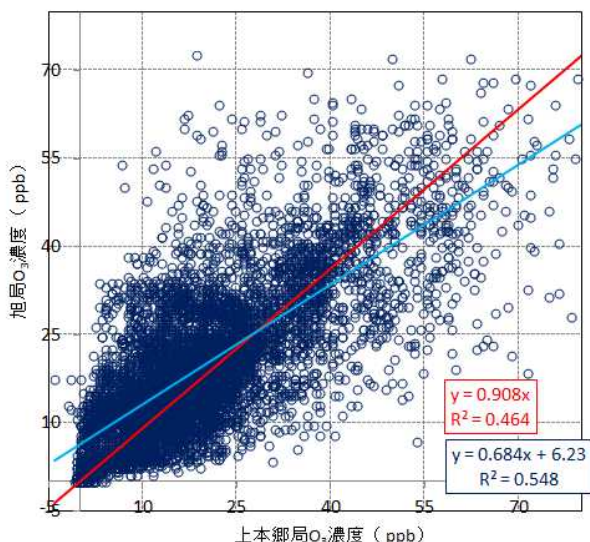


図 5 上本郷局及び旭局の O₃ 濃度瞬時値の関係

図 4 から、上本郷局と旭局の O₃ 瞬時値の推移は良く一致している。こうした関係を図 5 の散布図に見ると、旭局の O₃ 濃度のほうが上本郷局より 10% 近く低い傾向にある。ただし、24 日以降上本郷局では O₃ 濃度が上昇し 27 日 13 時 57 分には 151.6ppb の高濃度となり、そうした高濃度においても同様の变化、関係を示すかどうかは定かではない。

3・3 調査期間中の上本郷局等における汚染物質及び風向・風速等の推移

調査期間中の上本郷局における NO、NO₂ 及び

O₃ 濃度瞬時値の推移並びに五香局の Ox 濃度 1 時間値の推移を図 6 に示す。また、調査期間中の上本郷局の風向・風速の 10 分間毎の移動平均値を図 7 に示す。さらに、調査期間中の五香局の風向・風速（1 時間値及び一部 10 分値）の推移を図 8 に示す。なお、図 7 及び図 8 の左軸が風向で、上本郷局前面の道路は NE～SW に走っており、赤字で示した風向が道路方向からの風、緑字の風向が道路平行風となる。また、右軸は風速（m/秒）である。

図 6 から、NO 瞬時値は 30 日 5 時 34 分に 304ppb の最高濃度を示しているが、18 日～22 日及び 29 日には低濃度となっている。これら低濃度の期間を除くと、上本郷局の NO はほぼ毎日 4 時頃～7 時頃まで高濃度状態が発生している。一方、NO₂ は NO とは異なる変化を示し、NO 濃度が低下する 8 時頃から濃度上昇して、むしろ O₃ 濃度と一致した変化を示している。ただし、NO₂ 環境基準超過日の 25 日前後を見ると、24 日 16 時頃から 27 日 4 時頃まで 50ppb 前後の高濃度状態が継続しており、通常は夜間の O₃ 濃度の低下と一致して低下する NO₂ 濃度の高濃度状態が継続している。なお、NO_x 濃度の低い 21 日～22 日及び 28 日～29 日は土日である。

また、上本郷局の O₃ 瞬時値と五香局の Ox 1 時間

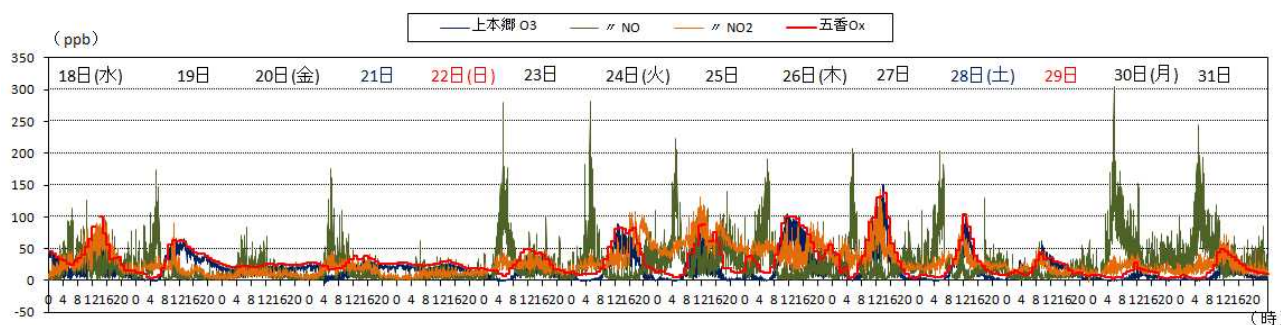


図 6 調査期間中の上本郷局における NO、NO₂、O₃ 濃度瞬時値及び五香局 Ox 濃度 1 時間値の推移

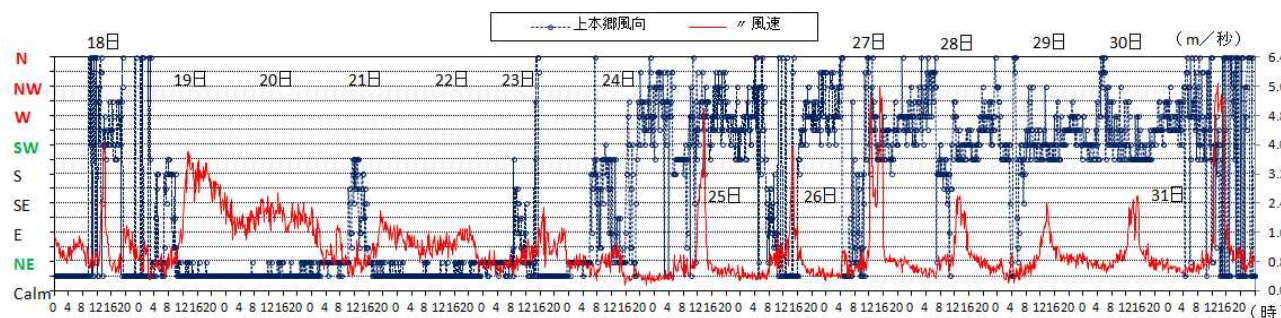


図 7 調査期間中の上本郷局における風向・風速の 10 分間毎の移動平均値の推移

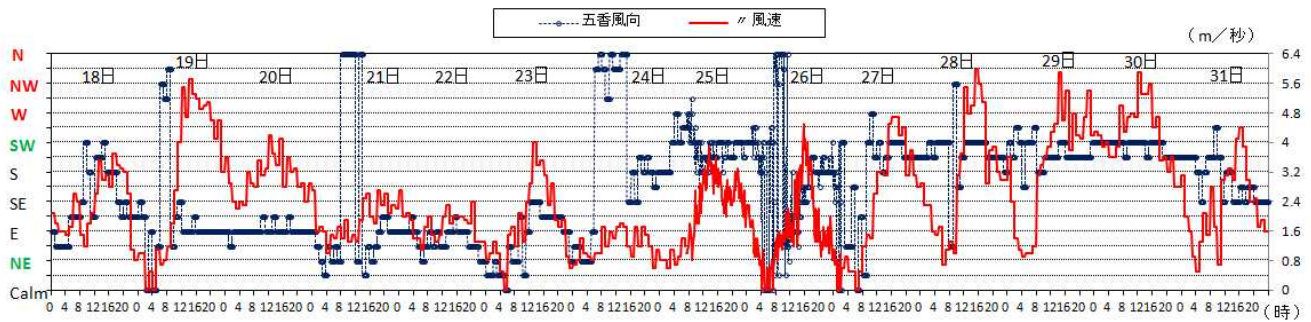


図 8 調査期間中の五香局における風向・風速の 1 時間値（一部 10 分間毎の移動平均値）の推移

値は非常に一致した変化傾向にあり、濃度レベルも大きく変わらない場合が多い。

図 7 及び図 8 から、上本郷局の風向は 18 日～24 日 16 時頃までは NNE～NE を主風向とする風系で、その後 SSW～NW の風系へと変化している。一方、五香局でも 18 日～24 日 6 時頃までは E 系の風が卓越し、その後 24 日 16 時頃から S～SW 系の風向へと変化している。この間の風速の変化を見ると、五香局の風向が E 系の間には上本郷局と五香局の風速は同様に变化するが、風速自体は上本郷局のほうが五香局より小さい。一方、五香局の風向が S～SW 系の間については、上本郷局の風速は全般的に小さく、日中の 13 時前後に風速が大きくなるだけの特異的な変化を示しており、五香局の風速の変化とは一致しない変化を示している²⁾。

なお、図示していないが、調査期間中の大気安定度については、前報⁴⁾と同様の傾向が認められた。

3・4 NO₂ 高濃度日における汚染物質及び風向・風速等の状況と各種寄与率の検討

3・4・1 NO₂ 高濃度日における汚染物質と風向・風速等の状況

調査期間中唯一の NO₂ 環境基準超過日の 7 月 25 日前後の汚染物質及び風向・風速等について検討す

るため、7 月 24 日～26 日の状況を図 9～図 11 に示す。なお、上本郷局の風向・風速の特異性²⁾から、風向・風速は五香局のものを示す。また、図 11 の軸の設定は図 7 及び図 8 と同様である。

図 9 から、NO 濃度は図 6 にも見られた 4 時頃～7 時頃の高濃度出現がいずれの日にも認められる。この高濃度は、早朝の比較的大気安定な状態の中で交通量が増加することにより発生するものと考えられる。この NO の高濃度が低下する頃から、図 10 のように O₃ 濃度が上昇し始め、これに伴って NO₂ 濃度も上昇傾向となるのが上本郷局の一般的な汚染物質の濃度変化の傾向である。

ただし、NO₂ 環境基準値を超過した 25 日の NO 濃度は 24 日や 26 日と異なり、日中も比較的高い状況にあったことが図 9 から分かる。また 図 9 から、NO₂ 濃度は 24 日の 16 時過ぎに、それまでの低濃度の状態から突如高濃度となる変化を示している。図 11 から、この 24 日 16 時過ぎの NO₂ 濃度の上昇前後の風向を見ると、それ以前の道路方向からの風向が、それ以降は SW 系の道路平行風を中心とした風向に変化しており、こうした風向の変化が突然の濃度上昇の一因となっていることが示唆される。

図 10 から、NO₂/NO_x の変化について見ると、

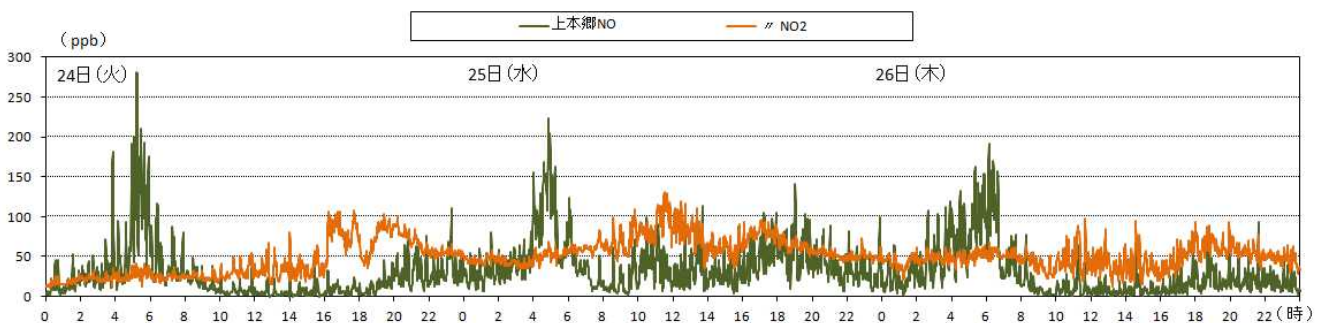


図 9 7 月 24 日～26 日における NO 及び NO₂ 濃度瞬時値の推移



図 10 7月24日～26日におけるO₃濃度瞬時値，五香局Ox濃度1時間値及びNO₂/NOxの推移



図 11 7月24日～26日における五香局の風向・風速の1時間値または10分間毎の移動平均値の推移

日中は日の出地域と同様⁴⁾にO₃濃度の上昇とほぼ一致した変化を示しており、O₃酸化によるNOからNO₂への変換の影響がうかがえる。一方、夜間はO₃濃度がほぼ「0ppb」に低下し、NO₂/NOxの高い状態となる場合が多く、日中と夜間でO₃に対するNO₂/NOxの関係が異なっている。このことは、上本郷地域の夜間においては、二次生成が進行してO₃濃度が低下し、NO₂/NOxが高い状態が支配的であることを示している。

3・4・2 NO₂濃度に及ぼす各種寄与率の推計

前報⁴⁾では、日の出地域のNO、NO₂及びO₃濃度の関係から、日の出地域のNO₂高濃度時における「地域のバックグラウンドNO₂濃度(地域BG)」、 「自動車排出NOからO₃酸化によりに変換するNO₂寄与濃度(オゾン酸化)」及び「ディーゼル車等から直接排出されるNO₂寄与濃度(自動車NO₂)」について一定のモデルを想定して検討を行った。このモデルは、日の出地域の道路方向からの風系を前

提に仮定したものであるが、上本郷局のNO₂濃度についても地域BG、オゾン酸化及び自動車NO₂の寄与があることは明らかである。したがって、高濃度期間を対象に同一のモデルによって試算し、その結果を評価、検討することは可能である。

ただし、日の出地域には道路と反対側の比較的近傍にBG局と見なすことのできる若松局が存在したが、上本郷地域にはこうした測定局が存在しない。そこで、図1に示した上本郷局に比較的近い五香局及び二ツ木局を地域のBG局と仮定し、日の出地域と同様のモデルを適用して検討を進めた。

日の出地域の(1)式及び(2)式⁴⁾に相当する式として、次の(3)式～(6)式を設定することができる。

図9に示した期間のうちNO₂濃度が特に高い期間として24日16時10分～26日7時10分(高濃度期間)を選択し、(5)式及び(6)式を適用して重回帰分析を実施した結果を表1に示す。なお、図11から、この間の風向はSW系の道路平行風である。

$$\text{上本郷 NO}_2 = a \times \text{五香 NO}_2 + b \times (\text{五香 Ox} - \text{上本郷 O}_3) + c \times \{ \text{上本郷 NO} - \text{五香 NO} + b \times (\text{五香 Ox} - \text{上本郷 O}_3) \} + \text{その他不明 NO}_2 \dots \dots \dots (3)$$

$$\text{上本郷 NO}_2 = a \times \text{二ツ木 NO}_2 + b \times (\text{二ツ木 Ox} - \text{上本郷 O}_3) + c \times \{ \text{上本郷 NO} - \text{二ツ木 NO} + b \times (\text{二ツ木 Ox} - \text{上本郷 O}_3) \} + \text{その他不明 NO}_2 \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 a 、 b 及び c は係数であり、上式を整理すると下の(5)式及び(6)式のとおりとなる。

$$\begin{aligned} \text{上本郷 NO}_2 &= a \times \text{五香 NO}_2 + b \times (1+c) \times (\text{五香 O}_x - \text{上本郷 O}_3) + c \times (\text{上本郷 NO} - \text{五香 NO}) \\ &+ \text{その他不明 NO}_2 \dots \dots \dots (5) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{上本郷 NO}_2 &= a \times \text{二ツ木 NO}_2 + b \times (1+c) \times (\text{二ツ木 O}_x - \text{上本郷 O}_3) + c \times (\text{上本郷 NO} - \text{二ツ木 NO}) \\ &+ \text{その他不明 NO}_2 \dots \dots \dots (6) \end{aligned}$$

表 1 から、切片の有無については、切片無しとした分析結果のほうが日の出地域と同様に大きな決定係数となっている。ただし、切片有りとして算出した回帰式の切片は日の出地域より大きい傾向にあり、日の出地域に比べ上本郷地域のほうが原因不明の寄与が大きいことを示唆している²⁾。

また、表 1 から五香局及び二ツ木局の分析結果を比較すると、切片有りとした場合の係数 a は五香局 0.966、二ツ木局 0.598 で大きな違いがある。これは図 12 に示すように、主に二ツ木局のほうが五香局より NO_2 濃度が高いことなどに由来するため、ここでは係数 a が 1 に近い五香局を上本郷局の BG 局⁴⁾ とするのが妥当と考えられる。

そこで、ここでは表 1 の五香局の切片有り・無し の両式を基本に検討を進める。一例として、五香局の切片無し式から上本郷局 NO_2 濃度を求め、高濃度期間における実測値と予測値の関係を図 13 に示す。

図 13 から、実測値と予測値は比較的良好な関係にあり、表 1 の結果から五香局の切片有り・無し式の $a \sim c$ の係数を求めると、切片有りの場合 a が 0.966、 b が 0.899 及び c が 0.0891、切片無しの場合 a が 1.23、 b が 0.799 及び c が 0.0542 と算出される。

このうち係数 a は、切片有り式ではほぼ 1 であるが、切片無し式では 1 を大きく上回る数値となっている。これは、既報²⁾ のとおり周辺建物等の影響を受けて空気塊が滞留し易い上本郷局では、原因の不明確な NO_2 濃度の寄与があり、切片有り式ではこうした影響が平均的な定数項の切片として分析されるが、切片無し式では主に「地域 BG」項の係数に反映されて分析されたためと考えられる。

また、係数 b は日の出地域では概ね 1 であった⁴⁾ が、上本郷地域では 1 より小さい数値となっている。この原因の一つとしては、自動車 NO_x 排出量の多い日の出地域は上本郷地域より NO リッチな環境に

表 1 重回帰分析結果

使用データ	y切片	決定係数	回 帰 式
五香局	有	0.477	$\text{NO}_2 = 0.966 \times \text{五香NO}_2 + 0.842 \times (\text{五香O}_x - \text{O}_3) + 0.0542 \times (\text{NO} - \text{五香NO}) + 12.8$
	無	0.961	$\text{NO}_2 = 1.23 \times \text{五香NO}_2 + 0.979 \times (\text{五香O}_x - \text{O}_3) + 0.0891 \times (\text{NO} - \text{五香NO})$
二ツ木局	有	0.456	$\text{NO}_2 = 0.598 \times \text{二ツ木NO}_2 + 0.758 \times (\text{二ツ木O}_x - \text{O}_3) + 0.0341 \times (\text{NO} - \text{二ツ木NO}) + 27.2$
	無	0.950	$\text{NO}_2 = 1.17 \times \text{二ツ木NO}_2 + 1.02 \times (\text{二ツ木O}_x - \text{O}_3) + 0.100 \times (\text{NO} - \text{二ツ木NO})$

(注) 「 NO_2 」、「 O_3 」及び「 NO 」は上本郷局の濃度である。

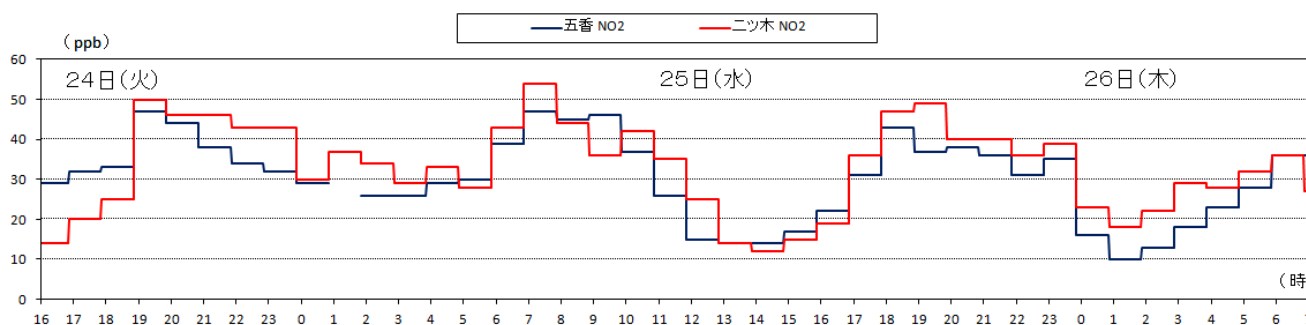


図 12 高濃度期間における五香局及び二ツ木局の NO_2 濃度の推移

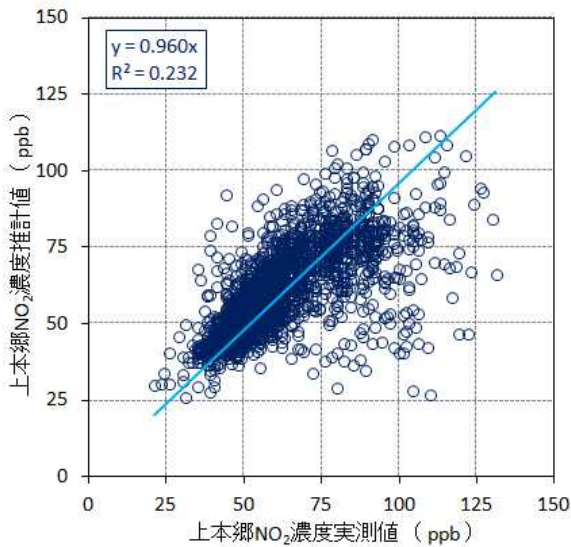


図 13 実測値と予測値の関係（五香局切片無し）

あり、 O_3 酸化による NO から NO_2 への変換反応が進行し易いためと考えられる。また、図 4 に示したように上本郷地域では非常に高い O_3 濃度が観測され、図 10 に示すように日中の上本郷局の O_3 濃度と五香局の O_x 濃度に大差がないことから、メカニズムは定かではないが、日中を中心に O_3 が局舎周辺に漸次流入しているためとも考えられる。

さらに、係数 c は「%」表示では、切片有り式の場合 8.9%、切片無し式の場合 5.4%である。上本郷局の NO_2 濃度に対する影響が最も大きい国道 6 号上

り線の NO_x 排出量の約 7 割が大型車由来、前報の表 1⁴⁾の NO_2/NO 割合⁴⁾を考慮すると日の出地域より低い値に推計されたことは妥当である。

次に、表 1 の五香局の切片有り・無しの式を高濃度期間の測定値に適用し、(3)式の第 1 項～第 4 項までの寄与濃度を算出して実測 NO_2 に対する寄与率(%)を求め、その推移を図 14 及び図 15 に示す。また、その集計結果を表 2 に示す。

図 14 及び図 15 から、自動車 NO_2 の寄与率は通常は 10%以下の低い値で推移しているが、 NO 濃度の高くなる 4 時頃～7 時頃に大きな値となっている。表 2 から、切片無し式の場合、自動車 NO_2 は最大値の約 40%の寄与率を示し、高濃度期間の平均値は 8%～9%程度で、切片有り式はその半分程度の寄与率に推計されている。

一方、地域 BG 及びオゾン酸化による寄与率は切片の有無によらず大きな変化を示しており、オゾン酸化による寄与率は 25 日の日中に高い寄与率を示している。ただし、24 日の 18 時前後及び 26 日の 1 時前後にも比較的高い寄与率となっており、日没後も残存する O_3 によって NO から NO_2 への変換が進行していることが分かる。結果として、表 2 に示すように、オゾン酸化による寄与率は切片の有無によ



図 14 高濃度期間における上本郷局の各寄与率の推移（切片有り式の場合）



図 15 高濃度期間における上本郷局の各寄与率の推移（切片無し式の場合）

表 2 高濃度期間における上本郷局の各寄与率集計結果

回帰式切片の有無	期 間	項 目	寄 与 率 (%)			
			地域BG	オゾン酸化	自動車NO ₂	不明
有り	24日16時10分～ 26日7時10分	平均値	48.7	24.8	4.9	21.6
		最大値	93.3	66.8	21.1	37.9
		最低値	15.5	-19.9	-1.9	12.2
無し	24日16時10分～ 26日7時10分	平均値	64.1	29.1	8.5	—
		最大値	126.0	146.0	38.6	—
		最低値	15.5	-18.3	-2.6	—

る違いは小さく、切片の有無により平均値でそれぞれ 20 数%及び約 30%と推計されている。

一方、地域 BG は切片の有無により平均値が約 50%及び 60 数%と推計されているが、上述のように切片無し式の係数 a が 1 より大きく、切片無し式の結果には原因不明の寄与率が上乘せされている。上乘せされている原因不明の寄与率は、係数 a の 1 を上回った数値に相当すると考えるのが妥当であり、結果的には表 2 の切片有り式により推計した平均値で約 20%弱が原因不明の寄与率と考えられる。

ただし、ここでの推計については、前報⁴⁾のように瞬時値と 1 時間値を同時に使用している点のほか、上本郷地域の高濃度期間における風系が SW 系の道路平行風であったことには注意を要する。

4 おわりに

本報では、千葉県内で NO₂ 環境基準が容易に達成されなかった上本郷局を対象に、O_x もしくは O₃ の影響解明を目的とした調査のデータを前報⁴⁾の方法を基に解析した。その結果、上本郷局の NO₂ 高濃度

日における各種寄与率の概況を推計、把握することができた。ただし、未解明な点も残されており、今後も調査を継続する予定である。

引用文献

- 1) 千葉県環境生活部大気保全課：平成 24 年度大気環境常時測定結果 平成 25 年 8 月 (2013)。
- 2) 竹内和俊：自動車排出ガス測定局の二酸化窒素環境基準未達成要因の検討 () - 松戸上本郷自動車排出ガス測定局に関する検討結果 - . 千葉県環境研究センター年報 (2012)。
- 3) 竹内和俊：自動車排出ガス測定局の二酸化窒素環境基準未達成要因の検討 () - 船橋日の出自動車排出ガス測定局に関する検討結果 - . 千葉県環境研究センター年報 (2013)。
- 4) 竹内和俊, 大橋英明, 西田寛子, 内藤季和：自動車排出ガス測定局の二酸化窒素環境基準未達成要因の検討 () - 船橋日の出自動車排出ガス測定局における調査の解析結果 - . 千葉県環境研究センター年報 (2013)。

The Examination of Unattainment Factors of the Nitrogen Dioxide Environmental Standard at Motor Exhaust Monitoring Stations ()

- The Analysis Result of the Investigation in Matsudo Kamihongo Motor Exhaust Monitoring Station -
Kazutoshi Takeuchi Hideaki Ohashi Hiroko Nishida Suekazu Naito

千葉県内で NO₂ 環境基準の達成が遅れた松戸上本郷自排局を対象に、主に O_x もしくは O₃ の道路沿道 NO₂ に対する影響について調査し、前報⁴⁾ で設定したモデルを用いて解析を行った。その結果、上本郷局の NO₂ 濃度に対する寄与率は地域のバックグラウンド濃度が 50%弱、オゾン酸化による寄与率が 20 数%、自動車 NO₂ による寄与率が数%、そして原因不明の NO₂ による寄与率が約 20%と推計された。

キーワード：環境基準、自排局、二酸化窒素、光化学オキシダント、オゾン、寄与率、モデル