

自動車排出ガス測定局の二酸化窒素濃度寄与率推計モデルについて

竹内和俊

1 はじめに

千葉県は、二酸化窒素（NO₂）に係る環境基準が容易に達成されない松戸上本郷及び船橋日の出自動車排出ガス測定局（日の出局）の2局を対象に、環境基準の達成に向けた各種の調査・解析を実施し、対策等の検討を進めている。そのうちの道路沿道における調査結果の解析の一環として、沿道のNO₂濃度に対する主要な要素の寄与率を推計するモデル（寄与率推計モデル）を既報のとおり設定^{1）、2）}し、得られた寄与率推計結果の評価を行ってきた。

本報では、この寄与率推計モデルの妥当性を再検証すると共に、既報では報告されていない晩秋～初冬季の寄与率の状況について報告する。

2 調査・解析方法

日の出地域を対象に、寄与率推計モデルの妥当性を再検証するため既報^{1）}と同様に夏季調査を実施したほか、晩秋～初冬季の道路沿道における寄与率の状況を把握するため秋季調査を実施した。

2・1 調査地点

日の出局及び対照地点として船橋若松一般環境大

気測定局（若松局）を調査地点とした。調査地点の配置を図1に示す。

2・2 調査期間

ア 夏季調査

2013年7月1日(月)14時～7月29日(月)15時

イ 秋季調査

2013年11月18日(月)10時～12月16日(月)10時

2・3 調査項目及び方法

調査項目は一酸化窒素（NO）、NO₂、オゾン（O₃）の瞬時値及び風向・風速の移動平均値とし、各項目の測定方法は以下のとおりである。

ア NO 及び NO₂ : 日の出局及び若松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 計を校正して日の出局に搬入し、若松局に設置されている O₃ 計と共に、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 : 日の出局及び若松局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。

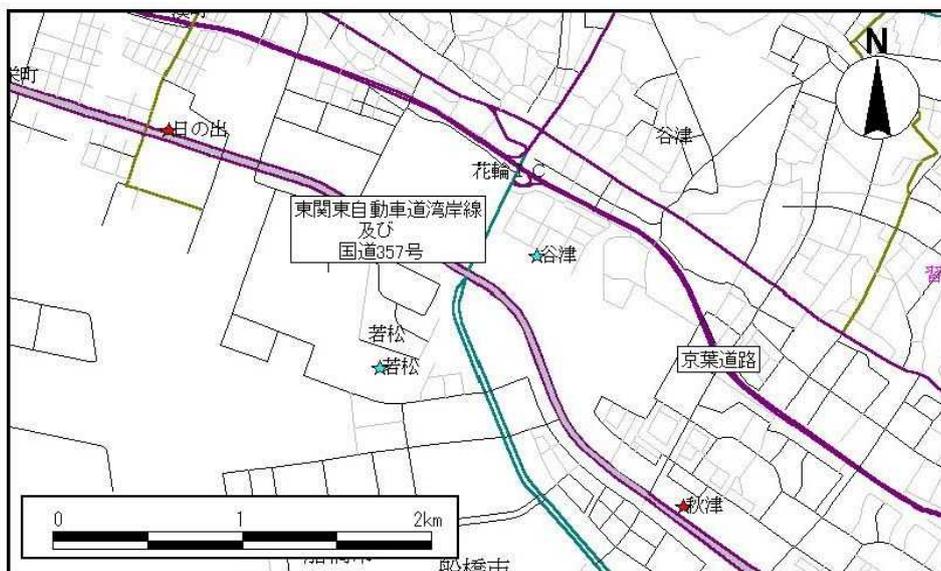


図1 日の出地域における調査地点等（赤星印：自排局、青星印：一般局）

3 寄与率推計モデル

既報¹⁾の調査結果から、NO₂が高濃度となる道路（図1参照）方向からの風系時の日の出局におけるNO₂濃度は次式により決定されると仮定した。

このうち第1項は、道路方向からの風系時であれば、風上側の一般局である若松局のNO₂濃度と同等と仮定できる。第2項は、若松局のオキシダント（Ox）濃度と日の出局のO₃濃度の差に依存して反応が進行すると仮定した。また、第3項は、環境研究センターが過去に実施したRSD調査³⁾から排気筒から排出されるNO及びNO₂の濃度の関係について表1に示す結果が得られており、自動車排気ガ

スの寄与によるNO濃度に比例すると仮定することができる。この自動車排出NO濃度は、日の出局のNO濃度を若松局のバックグラウンド（BG）NO及びO₃との反応により消滅するNOで補正したものと考えられる。これらの事項を踏まえると、次式は(1)式または(2)式のとおりとなる。

なお、次式及び(1)式の第1項は日の出局のNO₂濃度に対する地域BGの寄与濃度（地域BG）、第2項は自動車排気ガス中のNOのO₃酸化による寄与濃度（オゾン酸化）、第3項は自動車排気ガス中のNO₂の直接的な寄与濃度（自動車NO₂）、そして第4項は原因不明の寄与濃度となる。

$$\begin{aligned} \text{日の出 NO}_2 &= \text{地域のバックグラウンド NO}_2 \text{濃度} \cdots \cdots \cdots \text{第1項} \\ &+ \text{自動車排出 NO から O}_3 \text{酸化によりに変換する NO}_2 \text{寄与濃度} \cdots \cdots \text{第2項} \\ &+ \text{ディーゼル車等から直接排出される NO}_2 \text{寄与濃度} \cdots \cdots \text{第3項} \\ &+ \text{その他不明の発生源からの NO}_2 \text{寄与濃度} \cdots \cdots \text{第4項} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{日の出 NO}_2 &= a \times \text{若松 NO}_2 + b \times (\text{若松 Ox} - \text{日の出 O}_3) + c \times \{ \text{日の出 NO} - \text{若松 NO} + \\ &b \times (\text{若松 Ox} - \text{日の出 O}_3) \} + \text{その他不明 NO}_2 \cdots \cdots \cdots (1) \end{aligned}$$

ここで、a、b及びcは係数であり、(1)式を整理すると下の(2)式のとおりとなる。

$$\begin{aligned} \text{日の出 NO}_2 &= a \times \text{若松 NO}_2 + b \times (1+c) \times (\text{若松 Ox} - \text{日の出 O}_3) + c \times (\text{日の出 NO} - \text{若松 NO}) \\ &+ \text{その他不明 NO}_2 \cdots \cdots \cdots (2) \end{aligned}$$

表 1 自動車排出NO及びNO₂濃度の関係

車種	用途	NO		NO ₂		NO ₂ /NO (%)
		測定車両数(台)	NO濃度平均値(ppb)	測定車両数(台)	NO ₂ 濃度平均値(ppb)	
ディーゼル車	普通貨物	586	928	421	149	16.1
	特種	115	968	87	151	15.6
	バス	13	619	11	296	47.8
	小型貨物	169	529	97	112	21.2
	普通乗用	21	331	14	67	20.2
	小型乗用	22	270	10	59	21.9
	合計	926	827	640	143	17.3
ガソリン車	普通貨物	7	341	5	11	3.1
	特種	13	57	6	18	31.4
	小型貨物	250	132	176	-4	-2.9
	普通乗用	810	166	507	4	2.6
	小型乗用	905	162	597	8	4.9
	合計	1985	160	1291	5	3.1
軽自動車	軽貨物	172	250	98	2	0.7
	軽乗用	274	215	163	3	1.3
	特種	5	808	5	2	0.3
	不明	12	242	8	-18	-7.3
	合計	463	235	274	2	0.7
その他	CNG車	7	18	6	4	20.5
	LNG車	16	387	16	-5	-1.3

そこで、(2)式の「日の出NO₂」を従属変数とし、「若松NO₂」、「若松Ox - 日の出O₃」及び「日の出NO - 若松NO」を説明変数として、切片有り・無しによる重回帰分析を実施した。分析した期間は、既報¹⁾のとおり風向を考慮して2012年7月4日10時30分～5日19時30分及び2012年7月5日0時1分～5日19時30分と2通りとした。なお、既報¹⁾では、日の出局の濃度には瞬時値を、若松局の濃度には1時間値を使用している。

重回帰分析を実施した結果を表2に示す。表2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大きな決定係数となり良い結果が得られている。これは、道路方向には対象道路以外に特に大きな発生源がないため「その他不明NO₂」を考慮する必要はなく、3つの説明変数で日の出NO₂が十分に説明されるためである。また、風向の変化を考

表 2 重回帰分析結果

期 間	y切片	決定係数	回 帰 式
4日10時30分～5日19時30分	有	0.797	$NO_2 = 0.819 \times \text{若松}NO_2 + 0.916 \times (\text{若松}Ox - O_3) + 0.142 \times (NO - \text{若松}NO) + 7.11$
4日10時30分～5日19時30分	無	0.984	$NO_2 = 0.970 \times \text{若松}NO_2 + 1.06 \times (\text{若松}Ox - O_3) + 0.131 \times (NO - \text{若松}NO)$
5日0時1分～5日19時30分	有	0.688	$NO_2 = 0.823 \times \text{若松}NO_2 + 0.901 \times (\text{若松}Ox - O_3) + 0.0980 \times (NO - \text{若松}NO) + 12.1$
5日0時1分～5日19時30分	無	0.988	$NO_2 = 0.976 \times \text{若松}NO_2 + 1.12 \times (\text{若松}Ox - O_3) + 0.108 \times (NO - \text{若松}NO)$

(注) 「NO₂」、「O₃」及び「NO」は日の出局の濃度で、瞬時値を、若松局の濃度は1時間値を用いている。

慮して期間を2つに区分して解析したが、基本的には結果に大きな違いは認められなかった。

ただし、既報¹⁾の解析では決定係数の最も大きい表2の4番目の重回帰式を採用して解析を行ったため、本報でも第4式を採用して解析を進めるが、濃度については若松局も瞬時値を使用する。また、第4式を採用すると(2)式からa～cの係数はaが0.976、bが1.01及びcが0.108と求められるが、これらの数値の評価は既報¹⁾のとおりである。

4 結果

4・1 調査期間中のNO₂濃度等の推移

2013年度調査では、夏季及び秋季調査ともNO₂環境基準値を超過する高濃度日は観測されず、NO₂

濃度日平均値の最高値は夏季が7月9日の48.8ppb、秋季が12月6日の52.9ppbであった。そこで、NO₂日平均値が最も高かった日を中心に3日間の汚染物質及び風向・風速の状況を図2～図5に示す。なお、図3及び図5の左軸が風向で、日の出局前面の道路はESE(東南東)～WNW(西北西)に走っており、赤字で示した風向が道路方向からの風となる。また、右軸は風速(m/秒)である。

図2及び図3から、S系の卓越する夏季調査では道路方向からの風系時にNO₂濃度が上昇しており、特にNO₂高濃度が継続した期間は9日9時40分～11日1時40分の間であった。一方、図4及び図5から、秋季調査では道路方向からのS系の風も入るがN系の風向となる場合も多く、結果的にNO₂濃

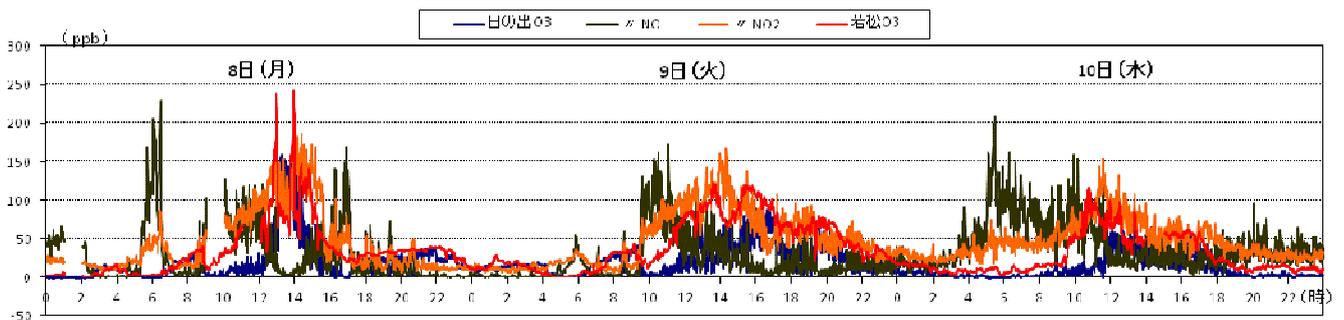


図 2 夏季調査(7月8日～10日)における汚染物質濃度の変化

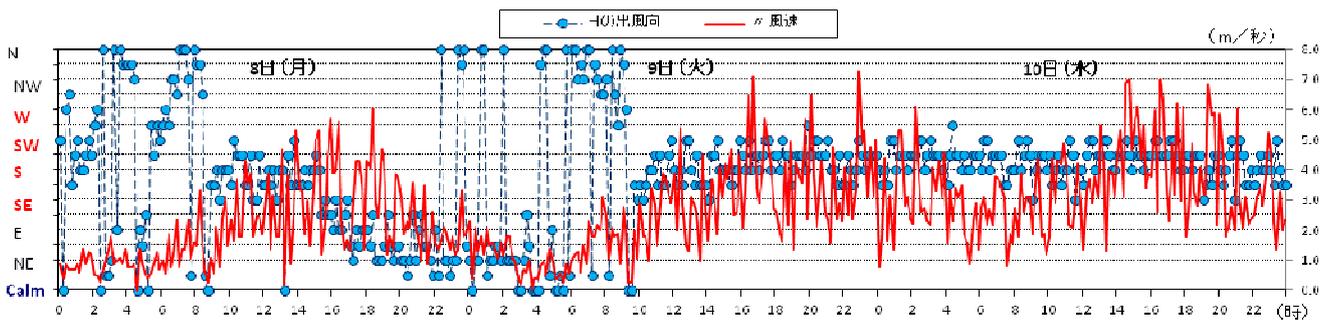


図 3 夏季調査(7月8日～10日)における日の出局の風向・風速の変化

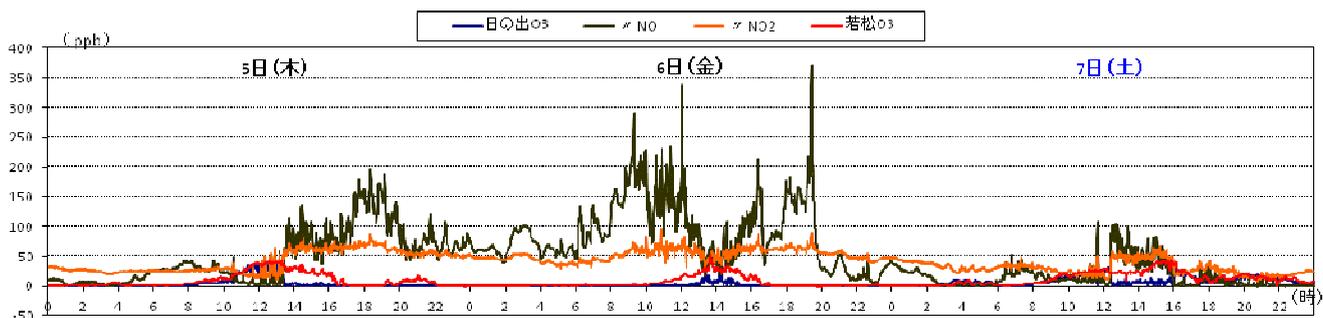


図 4 秋季調査（12月5日～7日）における汚染物質濃度の変化

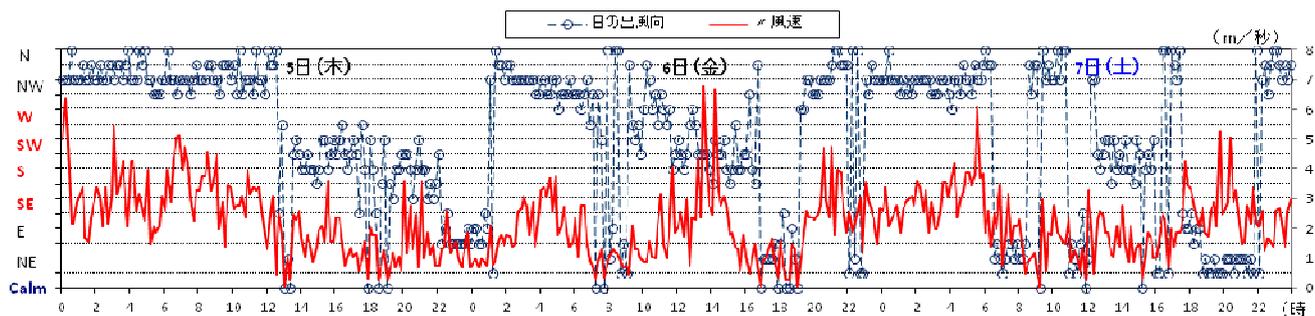
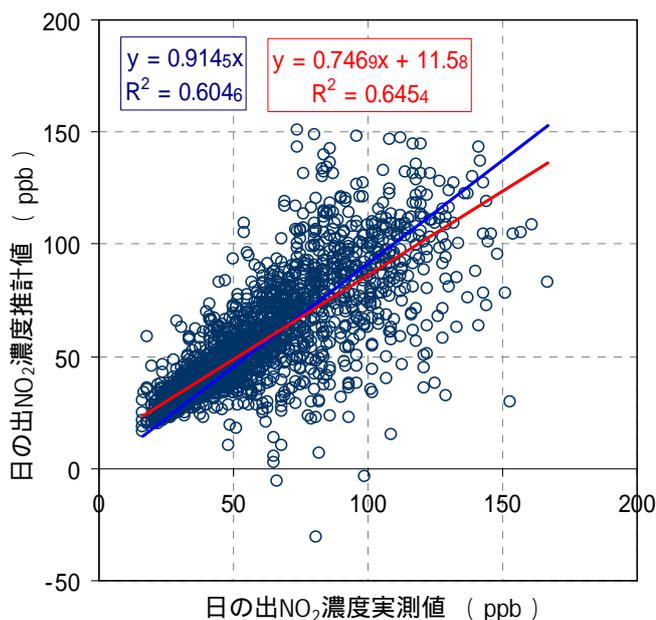


図 5 秋季調査（12月5日～7日）における日の出局の風向・風速の変化

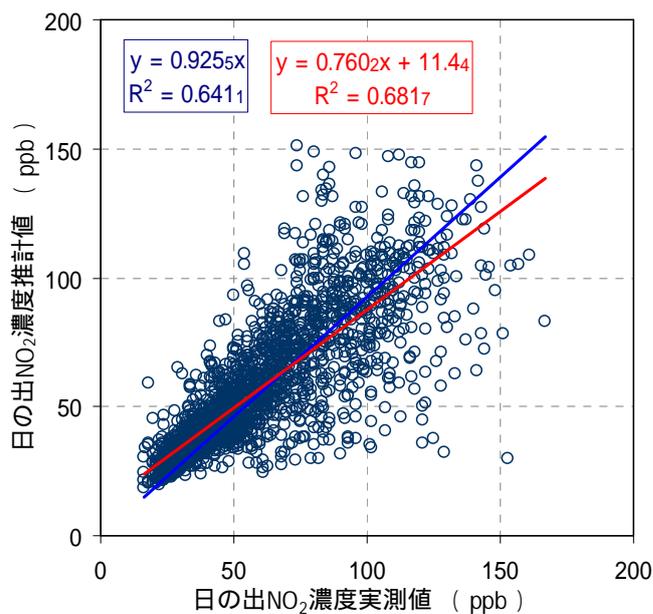
度が 50ppb を超える高濃度が継続したのは 12 月 5 日 13 時 21 分～6 日 21 時 31 分の間であった。

4・2 寄与率推計モデルによる NO₂ 濃度の再現性
 上述の夏季及び秋季調査における NO₂ 高濃度期間に表 2 の第 4 式を適用し、NO₂ 濃度の実測値と寄与率推計モデルによる推計値の関係を求め、夏季及び秋季調査の関係を図 6 及び図 7 に示す。なお、表

2 では若松局の NO、NO₂ 及び Ox 濃度 1 時間値を用いたが、ここでは NO、NO₂ 及び O₃ 濃度瞬時値に置き換えた。ただし、1 時間値に換えて瞬時値を用いたため、若松局と日の出局の O₃ 濃度差や日の出局と若松局の NO 濃度差に負値が発生した。そこで、ここではこれらの負値データを使用した場合と除外した場合の両方について検討を進める。



a 負値データ使用



b 負値データ除外

図 6 夏季調査の NO₂ 高濃度期間における日の出局 NO₂ 濃度実測値と推計値の関係

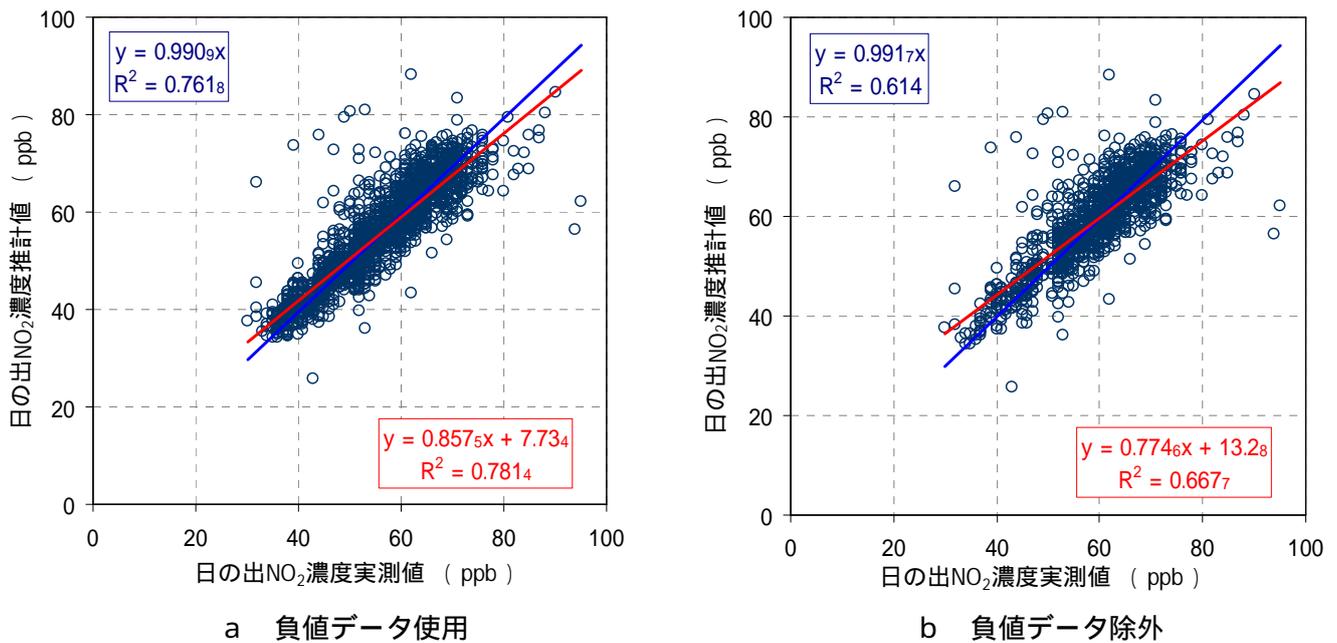


図 7 秋季調査の NO₂ 高濃度期間における日の出局 NO₂ 濃度実測値と推計値の関係

図 6 及び図 7 から、夏季はややバラツキが大きい
が既報¹⁾の寄与率推計モデルにより NO₂ 濃度が良
く再現されている。また、負値データの使用の有無
による違いも大差のない結果となっている。

なお、負値データが発生した原因としては機差に
よるもののほか、一般局の若松局が比較的安定した
瞬時値で推移する一方、自排局の日の出局が自動車
排気ガスの影響を受けて汚染質の濃度変動が大きい
ことが挙げられる。また、図 1 に示すように、国道
357 号への垂直距離は日の出局と若松局で 900m 弱
の差があり、2 m / 秒 ~ 3m / 秒の平均的な風速で考

慮すると道路直交風の場合 450 秒 ~ 300 秒程度の時
間的な差 (Time Lag) があり、この時間差によって
両局が測定している気塊に微妙なズレが生じること
の影響も考えられる。

4・3 寄与率の推計結果

上述の夏季及び秋季調査における NO₂ 高濃度期
間を対象に寄与率推計モデルから求めた NO₂ 濃度
の実測濃度に対する各種寄与率を求め、その集計結
果を表 2 に、夏季及び秋季調査における各種寄与率
の推移をそれぞれ図 8 及び図 9 に示す。

表 3 から、夏季調査では負値データを使用した場

表 3 夏季及び秋季調査の NO₂ 高濃度期間における日の出局の各寄与率集計結果

区分	項目	寄与率 (%)			
		地域BG	オゾン酸化	自動車NO ₂	寄与率計
夏季調査 (負値データ使用)	平均値	51.5	37.6	11.0	100.1
	最大値	135.6	156.5	118.6	327.1
	最低値	10.4	-61.0	-5.5	-37.6
夏季調査 (負値データ除外)	平均値	51.4	38.4	11.2	101.0
	最大値	135.6	156.5	118.6	327.1
	最低値	10.4	0.0	0.4	19.4
秋季調査 (負値データ使用)	平均値	81.2	11.9	6.8	99.9
	最大値	131.2	94.7	56.5	206.4
	最低値	23.2	-4.0	-16.4	59.9
秋季調査 (負値データ除外)	平均値	71.3	16.4	12.5	100.2
	最大値	128.1	94.7	56.5	206.4
	最低値	23.2	0.0	0.2	59.9

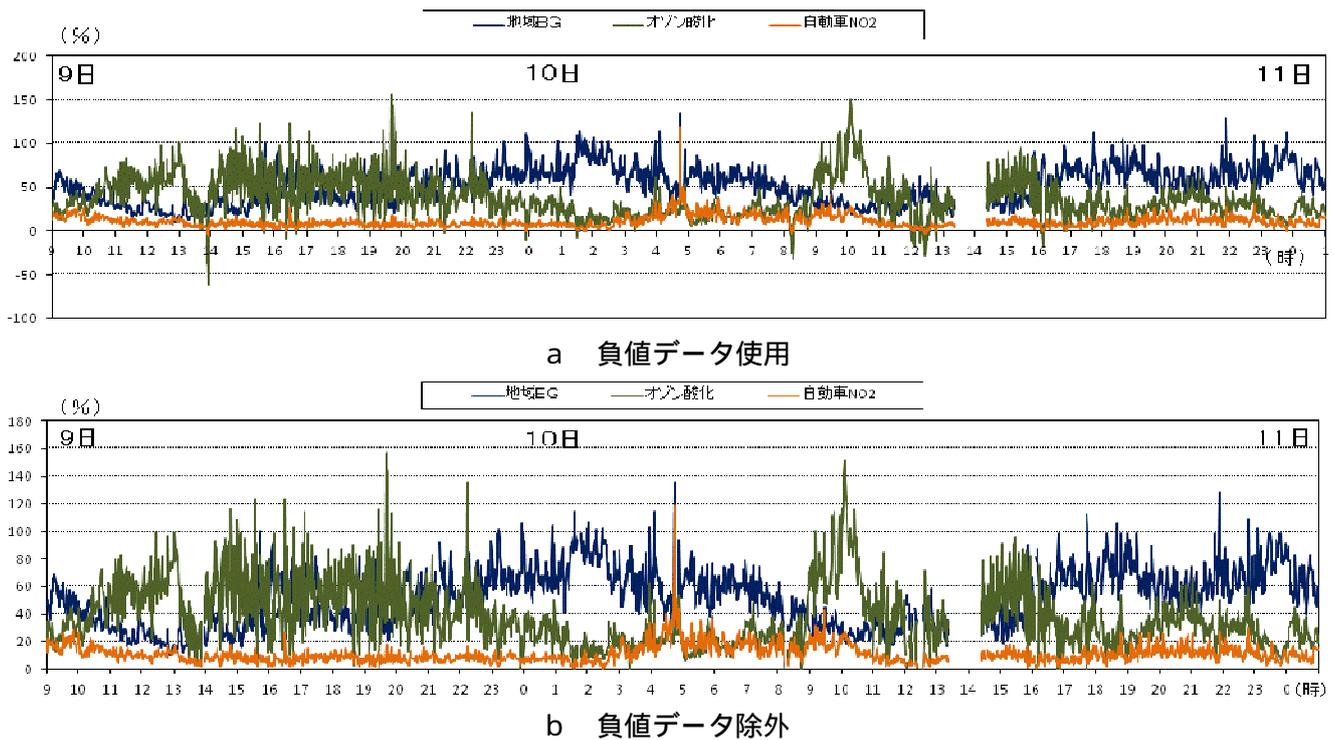


図 8 夏季調査の高濃度期間における日の出局の各種寄与率の推移

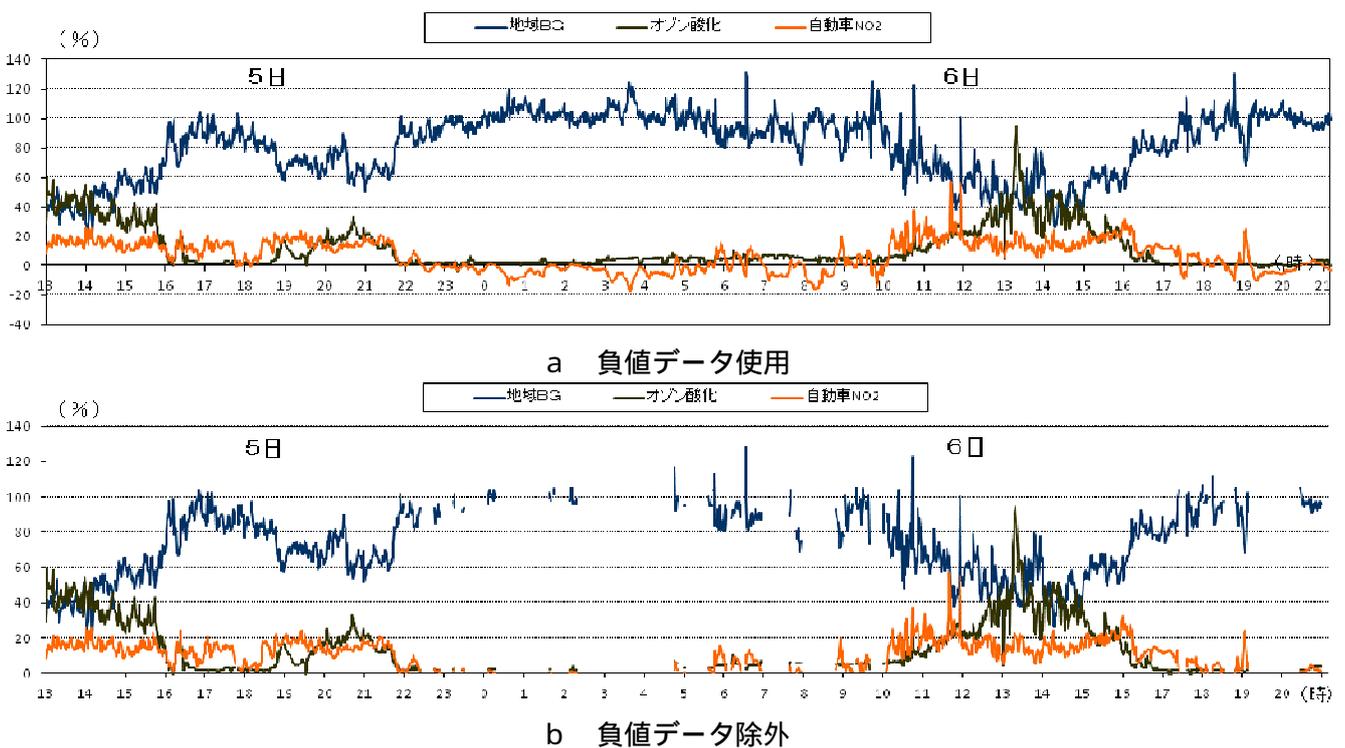


図 9 秋季調査の高濃度期間における日の出局の各種寄与率の推移

合も除外した場合も各種寄与率の平均値には大差がなく、「地域BG」が50%程度、「オゾン酸化」が40%弱及び「自動車NO₂」が10%程度で、この結果は既報¹⁾の結果と概ね同様であった。また 図8から、

各種寄与率の推移も既報¹⁾と大差がなく、「地域BG」は夜間に高く、「オゾン酸化」は中間に高いのに対して「自動車NO₂」は概ね10%前後で推移するが大型車混入率の高い時間には比較的大きな寄与

率となる。

一方、秋季調査では負値データを使用した場合と除外した場合で平均値に差が認められる。この主な原因は、夜間の日の出局と若松局のNO濃度に殆ど差がないため、NO濃度差に多くの負値生じたことによる。このことから、晩秋～初冬季における日の出局のNO₂高濃度時の平均的な寄与率は、「地域BG」が70%～80%、「オゾン酸化」が10数%及び「自動車NO₂」が10%前後と考えるのが妥当である。したがって、晩秋～初冬季におけるNO₂高濃度時の平均的な各種寄与率は夏季に比べ、「地域BG」が20%～30%増加、「オゾン酸化」が20%以上減少し、「自動車NO₂」は大きくは変わらない結果となった。また、図9から、各種寄与率の推移については

変化の傾向は夏季と違わないが、レベルには違いが認められる。なお、負値を除外した場合には前述の理由から、夜間に多くの欠測が発生している。

こうした寄与率推計結果の妥当性について検討するため、夏季及び秋季調査期間中の船橋市内の全常時監視測定局におけるNO₂濃度1時間値の推移を図10に示す。

図10から、夏季には日の出局だけが極めて高いNO₂濃度を示しており、これに次いで船橋市内のもう一局の自排局である海神局の濃度が高く、それ以外の一般局は大差のない濃度となっている。一方、晩秋～初冬季には市内全局のNO₂濃度の変化及び濃度レベルはほぼ同じである。したがって、日の出局では、夏季には「オゾン酸化」が、晩秋～初冬季

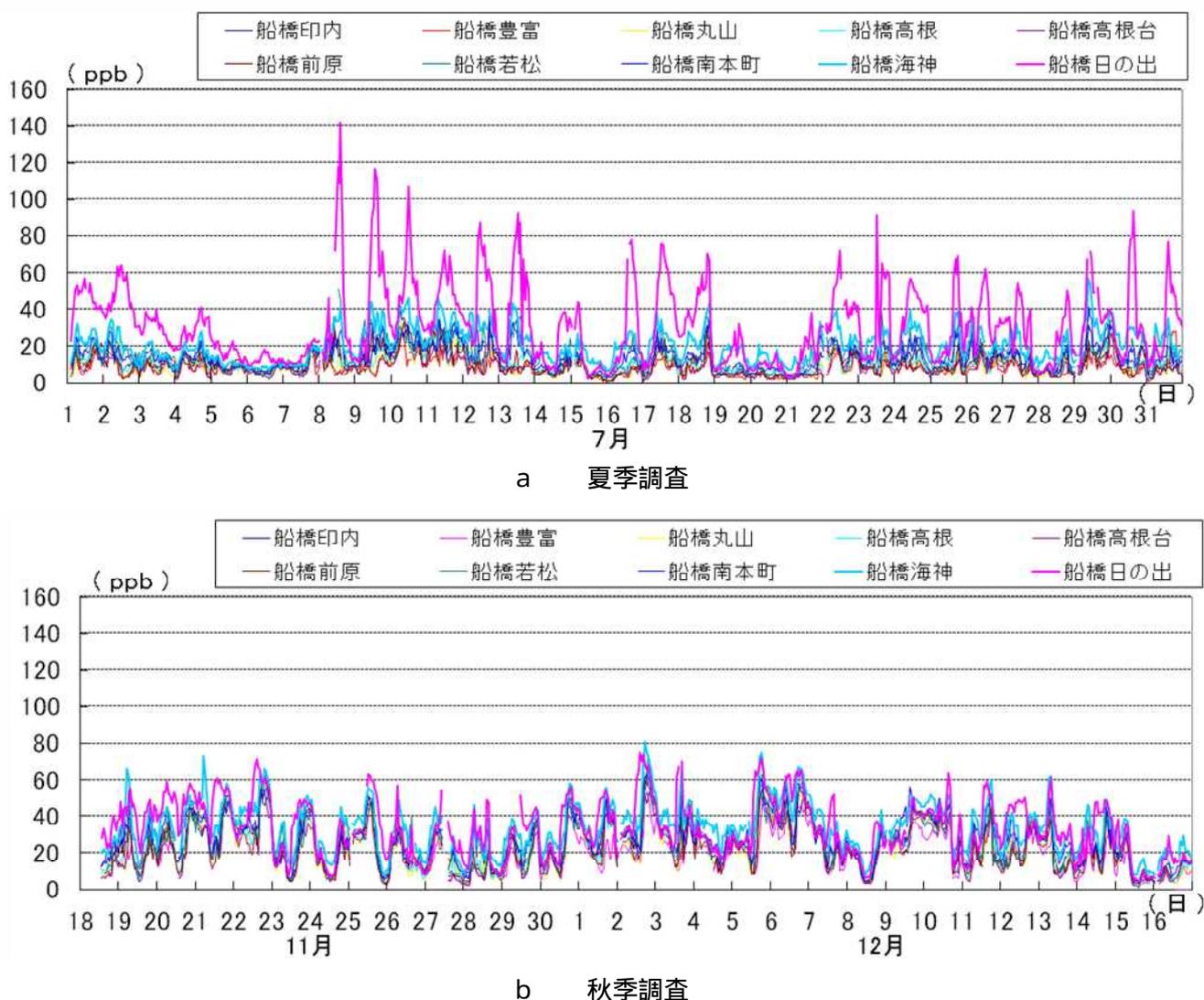


図 10 夏季及び秋季調査期間中の船橋市内全測定局におけるNO₂濃度の推移

には「地域 BG」が支配的であり、寄与率推計結果の妥当性が伺える。

ここで、2000 年度以降の千葉県内の全一般局及び全自排局における NO₂ 環境基準超過日の発生状況を図 11 に示す。

図 11 から、一般局では年度が改まるにつれ NO₂ 環境基準の超過日は減少しているものの、晩秋～初冬季に超過日が発生する傾向に変わりはない。一方、自排局では年度が改まるにつれ晩秋～初冬季の超過日は減少しているものの、春季～夏季における環境基準超過日の発生状況はあまり変わっていない。し

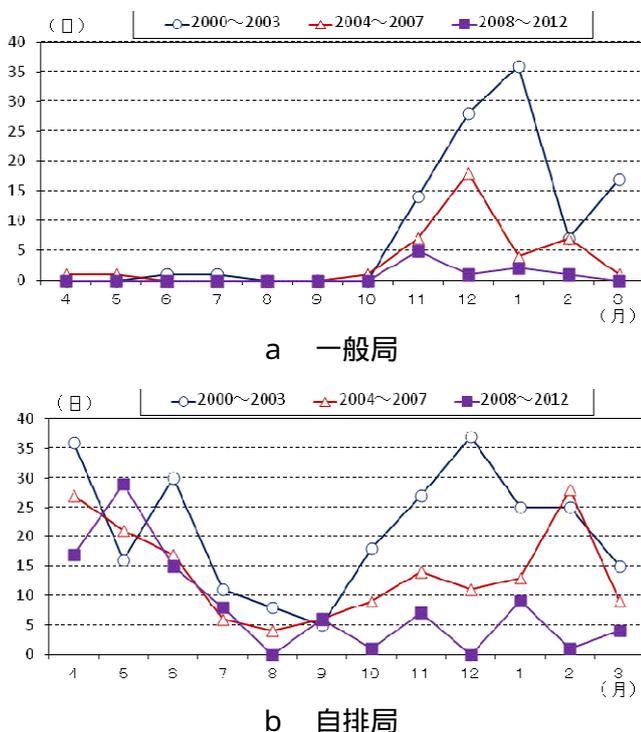


図 11 2000 年度以降における千葉県内の一般局及び自排局における NO₂ 環境基準超過日発生状況

たがって、これまでの調査・解析の結果やこうした傾向から、日の出局や上本郷局など自排局では今後は春季～夏季に環境基準の超過日が発生する可能性が高いと言える。

5 おわりに

千葉県内の NO₂ 環境基準未確保自排局を対象に、2012 年度末から各種調査、解析を行ってきた。2014 年度には、これらの結果を踏まえてシミュレーションによる対策の検討を実施する予定である。

謝辞

本報告の基となった調査は、千葉県環境生活部大気保全課、環境研究センター及び関係市が協力して実施したものであり、関係者の方々には大変お世話になりました。ここに記して深謝いたします。

引用文献

- 1) 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) .
- 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おける調査の解析結果 - . 千葉県環境研究センター年報(2013) .
- 3) 竹内和俊：リモートセンシングによる自動車排気ガス実態調査() - 千葉県内の主要幹線道路における調査結果 - . 千葉県環境研究センター年報第 7 号, p202 ~ 209 (2008) .

A Model for Estimation of Contribution of Nitrogen Dioxide Concentration at Motor Exhaust Monitoring Stations Kazutoshi Takeuchi

2012 年度調査で道路沿道の NO₂ 濃度に対する各種寄与率を推計するモデルを設定した。ここでは、設定した寄与率推計モデルを再検証すると共に、当該モデルを用いた晩秋～初冬季の寄与率の状況についても検討した。その結果、日の出局の NO₂ 濃度に対する晩秋～初冬季の寄与率は、地域バックグラウンドが 70%～80%、オゾン酸化が 10 数%及び自動車 NO₂ が 10%前後の寄与率と推計された。

キーワード：寄与率推計モデル、自排局、二酸化窒素、環境基準、地域バックグラウンド、オゾン酸化