

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 -

竹内和俊 大橋英明 西田寛子¹⁾ 内藤季和

(1 : 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。しかしながら、それまでは特定の自動車排出ガス測定局で NO_2 環境基準が容易に達成されない状況が続いていた¹⁾。県内で NO_2 環境基準の達成が遅れた自排局は、松戸上本郷自排局(上本郷局)及び船橋日の出自排局(日の出)の2局であり、近年の環境濃度の傾向から光化学オキシダント(Ox)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 Ox 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て実施することとした。

本報では、このうちの日の出局における調査の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

日の出局及び比較対照地点として習志野秋津自排局(秋津局)とした。なお、船橋若松一般環境大気測定局(若松局)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、日射量については習志野東習志野一般局のデータを用い、放射収量については館野高層気象台のデータを用いた。

日の出地域の調査地点等を図1に示す。

2・2 調査期間

2012年7月3日(火)~7月16日(月)

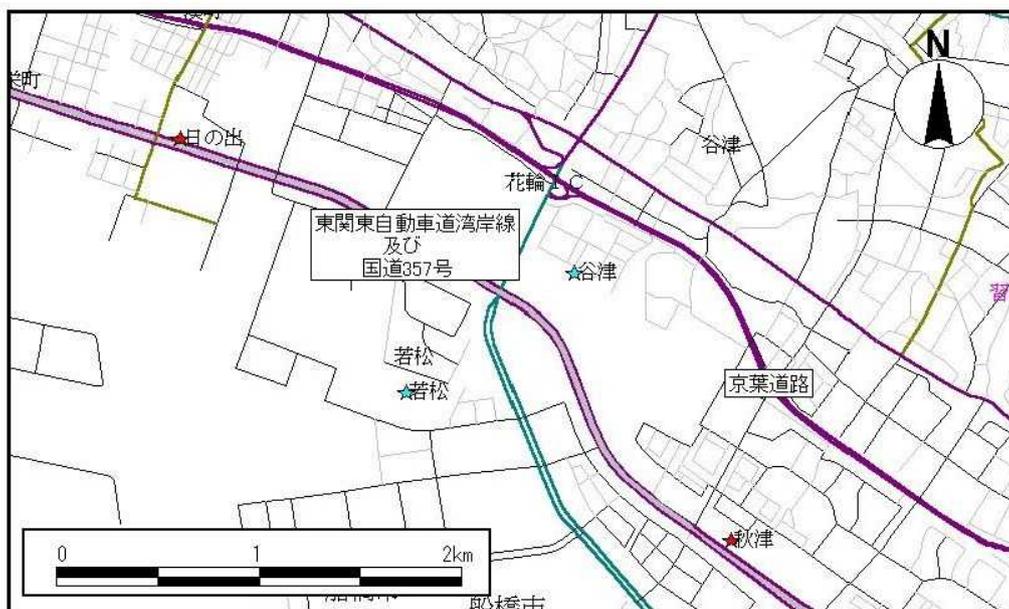


図1 日の出地域における調査地点等(赤星印：自排局、青星印：一般局)

2・3 調査項目及び方法

調査項目は、日の出局では一酸化窒素(NO)、 NO_2 、オゾン(O_3)及び風向・風速の瞬時値等とし、対照局である秋津局では O_3 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 NO_2 : 日の出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 O_3 : 環境研究センターの所有する O_3 計を校正の上、日の出局及び秋津局に搬入して測定を行い、その瞬時値を NO 及び NO_2 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 NO_2 濃度日平均値等の推移

調査期間中の日の出局及び秋津局の NO 濃度日平均値の推移を図2に、同じく NO_2 濃度日平均値及び若松局の O_x 濃度日平均値の推移を図3に示す。

図2から、調査期間中の日の出局の NO 日平均値は2山型の変化を示し、最も日平均値が高かったのは5日の60ppbである。一方、秋津局の NO 濃度も日の出局と同様の変化を示しているが、 NO 濃度のレベルは日の出局に比べてかなり低い状況にある。

図3から、調査期間中の日の出局の NO_2 日平均値も2山型の変化を示しているが、ピーク間の濃度差は NO に比べて大きく、5日は64ppbと NO_2 環境基準値を超過しているが、10日は40ppbと20ppb以上低い値となっている。一方、秋津局の NO_2 濃度も NO と同様に日の出局と概ね一致した変化を示すが、濃度レベルは NO に比べて小さい。

また、図3から、この間の若松局の O_x 日平均値は4日の39ppbをピークとして濃度が低下している。

3・2 O_3 濃度測定値の関係

日の出局及び秋津局に設置した O_3 計による調査期間中の O_3 濃度瞬時値の推移を図4に、日の出局と秋津局の O_3 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

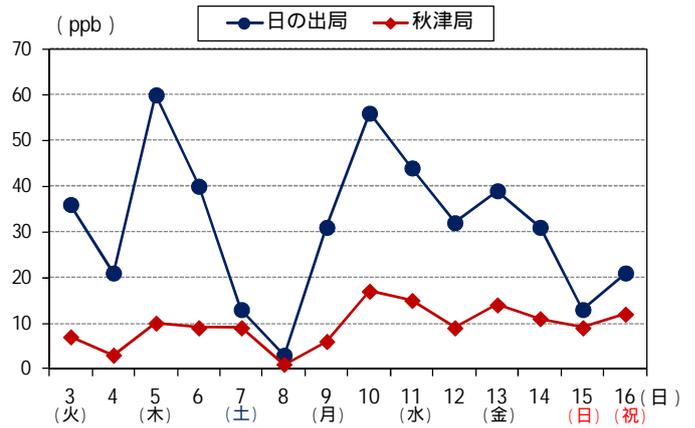


図2 調査期間中の NO 日平均値の推移

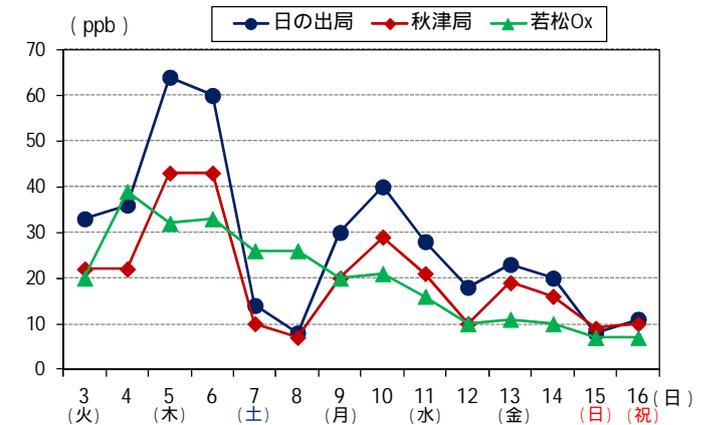


図3 調査期間中の NO_2 及び O_x 日平均値の推移

片無しとした場合の回帰式(赤字)を示す。

図4から、日の出局と秋津局の O_3 瞬時値の推移は良く一致している。ただし、詳細に見ると4日~6日、9日及び11日~12日など日の出局が秋津局より明らかに低い O_3 濃度を示している。

こうした関係を図5の散布図から見ると、多くは1対1の線付近に分布しているが、バラツキの程度を超えて秋津局の O_3 濃度のほうが明らかに高いデータが多く存在する。この原因は、図2に示すように日の出局と秋津局の NO 濃度レベルに違いがあり、両局周辺に流入する O_3 の NO NO_2 変換反応による O_3 消費量に違いが生じるためと考えられる。

したがって、日の出局と秋津局の O_3 濃度は通常ほぼ一致した濃度変化を示すが、 NO 濃度の状況等により秋津局の濃度が高くなる場合が多いと言える。

3・3 調査期間中の日の出局等における汚染物質及び風向・風速等の推移

調査期間中の日の出局における NO 、 NO_2 及び

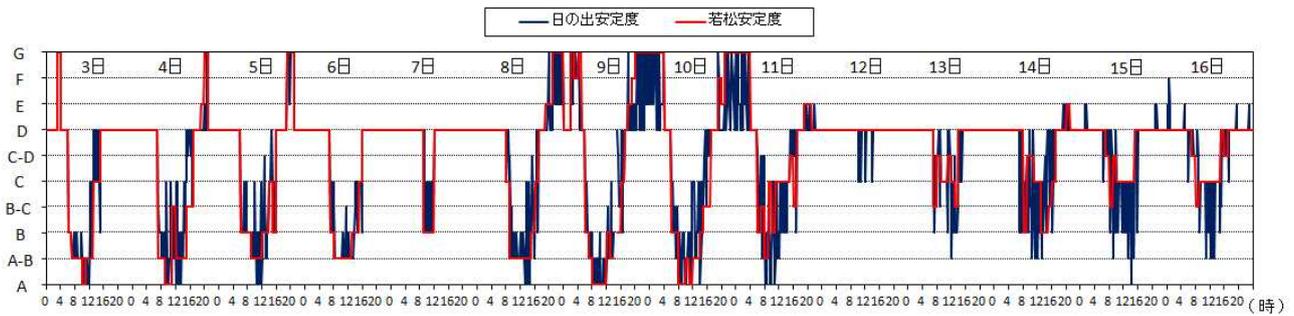


図 8 調査期間中の日の出局及び若松局における大気安定度の推移

は低濃度となっている。NO₂濃度は、こうしたNO濃度の変化と概ね一致する傾向で変化しており、NO₂環境基準値を超過した5日から6日に高濃度を示している。なお、NO_x濃度の全般的に低い7日～8日及び14日～16日は土日及び祝日である。

一方、日の出局のO₃瞬時値と若松局のO_x1時間値について見ると、概ね一致した変化傾向にあり、特にNO及びNO₂瞬時値の低い期間には極めて一致した変化を示している。それ以外の期間では変化の傾向は一致するものの、日の出局のO₃が若松局のO_xより低い状態にある。

図7から、調査期間中の風向はWSW～SSEの道路方向からの風向の出現頻度が高いが、上述のNO及びNO₂濃度の低い期間にあってはNNW～ENEの道路反対方向からの風系となっている。なお、図7から、11日以降のNO及びNO₂濃度の低下は風速が大きくなったことによることが分かる。

図8から、調査期間中の日の出局の(10分値風速による)大気安定度と若松局の大気安定度は概ね一致した変化を示している。NOやNO₂濃度の高い5日～6日や9日～10日の夜間には安定度Gなど安定な状態が、日中には安定度Aなど不安定状態が出現している。一方、7日～8日や11日以降の低濃度日には概ね安定度Dの中立状態が継続している。

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推計

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

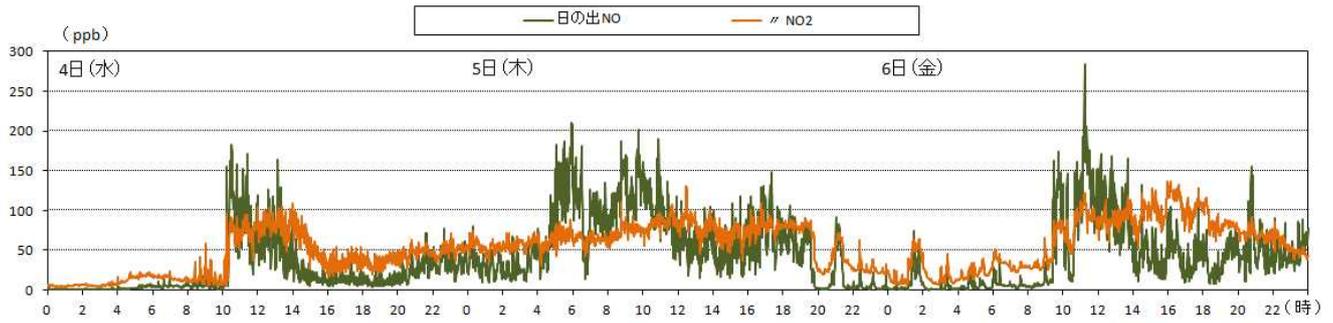
調査期間中唯一のNO₂環境基準値の超過日である7月5日前後の汚染物質及び風向・風速等について検討するため、7月4日～6日の状況を図9に示

す。なお、図9のcの軸の設定は図7と同様である。

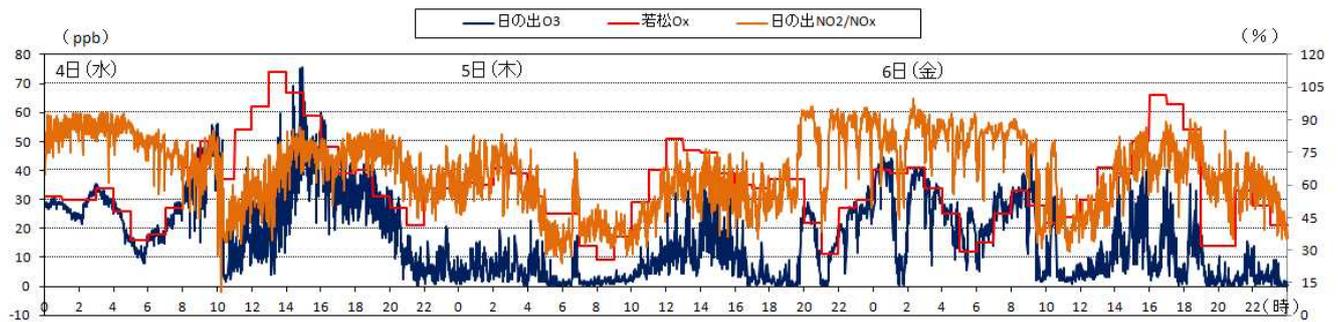
図9のbから、日の出局のO₃瞬時値と若松局のO_x1時間値は概ね一致した変化を示すが、例えば4日0時～10時には極めて一致した変化、濃度レベルを示している。図のcからこの間の風向は全て道路反対方向からの風系で、図のaからこの間のNO及びNO₂濃度は低い状態にあり、図のbからこの間のNO₂/NO_x(NO_x:NO+NO₂)は概ね高い状況にある。すなわち、道路と反対方向からの風系の場合、日の出局ではNO_x濃度が低く、NO₂/NO_xの高い状況となり、かつ日の出局と若松局のO_x濃度が同じレベルとなっており、移流によってこの地域に流れ込んだ二次生成のある程度進行した気塊が地域の汚染物質濃度を支配する状況になっている。

その後、4日の10時過ぎに風系が反転し、道路方向からの風系が5日の20時近く(第1期間:4日10時30分～5日19時30分)まで継続し、この間日の出局のNO₂濃度は風速の大きい4日の15時～19時を除き、概ね50ppbを超える高濃度となっている。こうした高濃度の間については、図9のbのようにO₃濃度とNO₂/NO_xの変化が極めて良く一致している。また、この間の特徴として若松局のO_x1時間値と日の出局のO₃瞬時値は、同様の傾向で変化するものの濃度差は広がっており、日の出局では自動車から排出されたNOのNO₂への変換のためO₃が消費されていることが伺える。

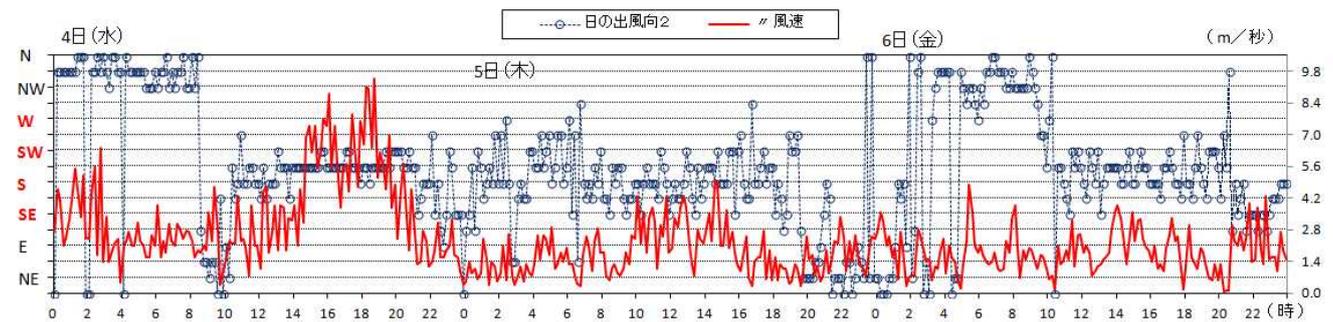
さらに、5日の20時近くには再び風系が道路反対方向に変化し、この風系が6日の10時頃まで継続する。その後、再び風系が道路方向の風系へと変化し、図には示していないがNO₂瞬時値が100ppbを超える高濃度が7日の3時頃(第2期間:6日10



a NO 及び NO₂ 濃度瞬時値の推移



b O₃ 濃度瞬時値，若松局 Ox 濃度 1 時間値及び NO₂ / NOx の推移



c 風向・風速の 10 分間毎の移動平均値の推移

図 9 7月4日～6日における汚染物質，NO₂ / NOx 及び風向・風速の変化

時 40 分～7日 2 時 60 分の期間)まで継続(図 6 参照)し、結果として図 3 のように 6 日の NO₂ 日平均値も 60ppb に達している。調査期間中の低濃度時及び高濃度時の汚染物質濃度等の特徴は、ほぼ上述の傾向と一致している。

3・4・2 NO₂ 濃度に及ぼす各種寄与率の推計

上述の結果を踏まえると、NO₂ が高濃度となる道路方向からの風系時の日の出局の NO₂ 濃度は次式により決定されることが考えられる。

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 濃度とほぼ同等の濃度にあると考えられる。第 2 項は、図 9 の

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

bに見られる若松局の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できる。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⁴⁾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濃度をバックグラウンドNO及びO3との反応により消滅するNOなどで補正したものと考えられる。

したがって、これらの事項を踏まえ、上式は次の(1)式及び(2)式のように書き換えることができる。

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

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

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

なお、(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。

そこで、「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。重回帰分析を行った期間は、第1期間の4日10時30分~5日19時30分の期間及び5日0時1分~5日19時30分と2通りとした。対象期間を分けた理由は、図9のように第1期間は概ね道路方向の風系であるが、4日の深夜の一部に道路反対風が入っており、4日のデータを使用せず、環境基準値の超過日である5日だけの解析も必要と判断したためである。なお、第1期間の解析によって得られた結果については、第2期間のデータにより回帰式の有効性について検証した。

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はないため「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、念のため第1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、ここ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、以下の解析を進める。この第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。

このうち係数aについては、想定のとおりほぼ1に近い数値でこの程度の違いはNOx計の機差の範囲内と考えても問題はないが、ここで使用した若松局のNO2は1時間値、日の出局のNO2は瞬時値で

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

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	$NO_2 = 0.819 \times \text{若松}NO_2 + 0.916 \times (\text{若松}O_x - O_3) + 0.142 \times (\text{NO} - \text{若松}NO) + 7.11$
4日10時30分～5日19時30分	無	0.984	$NO_2 = 0.970 \times \text{若松}NO_2 + 1.06 \times (\text{若松}O_x - O_3) + 0.131 \times (\text{NO} - \text{若松}NO)$
5日0時1分～5日19時30分	有	0.688	$NO_2 = 0.823 \times \text{若松}NO_2 + 0.901 \times (\text{若松}O_x - O_3) + 0.0980 \times (\text{NO} - \text{若松}NO) + 12.1$
5日0時1分～5日19時30分	無	0.988	$NO_2 = 0.976 \times \text{若松}NO_2 + 1.12 \times (\text{若松}O_x - O_3) + 0.108 \times (\text{NO} - \text{若松}NO)$

(注) 「NO₂」、「O₃」及び「NO」は日の出局の濃度である。

あることに注意を要する。また、係数 b は概ね 1 であり、自動車から排出される NO については、ppb 単位での若松局の O_x と日の出局の O₃ の差にほぼ等しい量の NO が NO₂ に変換されていると考えることができる。さらに、係数 c は「%」表示では 10.8% である。この係数 c については、日の出局の NO_x 濃度に対する影響が最も大きいと考えられる国道 357 号下り線の NO_x 排出量の 90% 以上が大型車由来と推定されていること、表 1 から普通貨物車の NO₂/NO が約 16% であることを考慮するとやや小さい値に推計されていると考えられる。

次に、表 2 の第 4 式の有効性を検証するため、第 2 期間の実測値と第 2 期間に第 4 式を適用して算出した推計値との関係を求め図 10 に示す。なお、図 10 には切片無しの回帰式を示した。

図 10 から、実測値と推計値は極めて良く整合しており、NO₂ が高濃度となる道路方向からの風系時

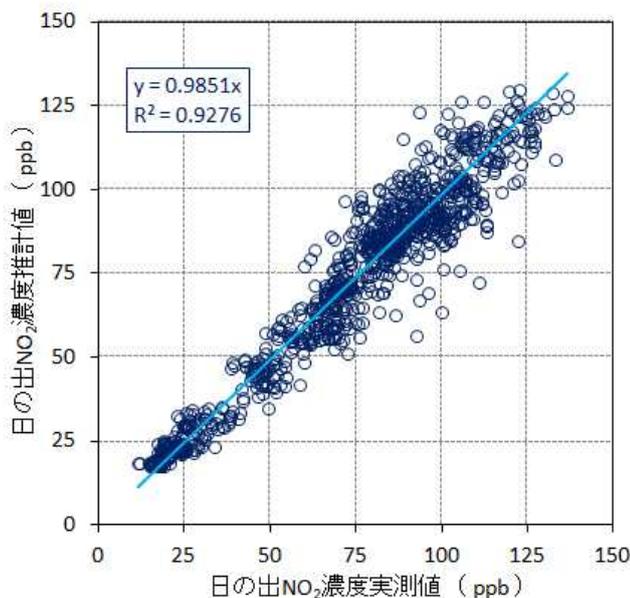


図 10 NO₂ 濃度実測値と NO₂ 濃度推計値の関係

における表 2 の第 4 式の有効性を確認することができる。そこで、表 2 の第 4 式を第 1 期間及び第 2 期間の測定値に適用し、(1)式の第 1 項～第 3 項までの寄与濃度を算出し、実測 NO₂ に対する寄与率 (%) を求めてその推移を図 11 に示す。また、その集計結果を表 3 に示す。なお、図 11 には第 1 期間のうち 5 日 0 時 1 分～5 日 19 時 30 分のみを示し、表 3 には第 1 期間全体、5 日 0 時 1 分～5 日 19 時 30 分の期間及び第 2 期間の 3 通りを示した。

図 11 から、自動車 NO₂ の寄与率は概ね 10% 前後で推移しており、大きな変化は示していない。表 3 でも最大約 40%、最低 0% 程度で、平均値は概ね 11%～14% となっている。これとは反対に地域 BG 及びオゾン酸化による寄与率は大きな変化を示す。図 11 の変化を見ると、5 日 0 時～4 時にはオゾン酸化による寄与率が概ね 60% の高い寄与率を占め、4 時～6 時には地域 BG とオゾン酸化による寄与率が共に 40% となった。その後、6 時～12 時の間は地域 BG の寄与率が 8 時の 80% 以上をピークとした山型に変化し、12 時～19 時までそれぞれ若干の違いはあるが地域 BG とオゾン酸化による寄与率はほぼ 40% 前後の値で推移している。

こうした寄与率の変化から、夜間から早朝に掛け

表 3 日の出局における各寄与率集計結果

区 分	期 間	項 目	寄 与 率 (%)		
			地域BG	オゾン酸化	自動車NO ₂
第1期間	4日10時30分～ 5日19時30分	平均値	52.2	37.5	11.9
		最大値	161.3	138.7	37.7
		最低値	18.5	-66.4	-6.5
	5日0時1分～ 5日19時30分	平均値	47.4	38.8	13.9
		最大値	101.6	82.8	37.7
		最低値	18.5	7.3	4.0
第2期間	6日10時40分～ 7日2時60分	平均値	59.9	29.4	11.1
		最大値	152.8	62.8	28.2
		最低値	28.2	-4.4	-1.7



図 11 日の出局における各寄与率の推移 (5日0時1分~5日19時30分)

ては、日中に生成された O_3 がある程度の濃度で残存する気塊が地域の環境を支配し、夜間でも NO から NO_2 への変換が進行する場合、日中に O_3 酸化が進行し、 O_3 が少なく NO_2 濃度の高い気塊が地域の環境を支配する場合の2通りのケースが存在することが分かった。

結果として、表3から日の出局における NO_2 が高濃度となる道路方向からの風系における平均的な寄与率について見ると、地域BGによる寄与率が50%程度、オゾン酸化による寄与率が40%弱、自動車から直接排出される NO_2 による寄与率が11%~14%程度と考えられる。ただし、オゾン酸化によって NO から NO_2 へと変換される原料としての NO の大部分も、対象道路を走行する自動車から排出されたものである点には注意を要する。

4 おわりに

本報では、千葉県内で NO_2 環境基準が容易に達成されなかった日の出局を対象に、 O_x もしくは O_3 の影響解明を目的とした調査のデータを解析した。そ

の結果、 NO_2 高濃度日における各種寄与率を推計するモデルを設定し、オゾン酸化による寄与率が比較的高い状況にあることが判明した。今後は、もう一つの上本郷局についても検討を進める予定である。

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：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)。

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

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

千葉県内で NO_2 環境基準の達成が遅れた船橋日の出自排局を対象に、主に O_x もしくは O_3 の道路沿道 NO_2 に対する影響について調査し、一定のモデルを設定して解析を行った。その結果、日の出局の NO_2 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%程度と大きい、オゾン酸化によって生成される NO_2 の寄与率も40%弱と比較的大きく、 NO_2 環境基準の達成を困難としている状況が判明した。

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