

幹線道路沿道におけるNO_x挙動

三浦米吉

NO_x Behavior on Both Sides of National Highway of the Route

Yonekichi Miura

要 旨

東名岡崎インターの西側に位置する国道1号線の両側でNO_x (NO + NO₂), O₃ (1時間値), 風向風速 (1分間値) を1987年から94年まで連続測定するとともに94年1月に5日間、鉛直方向に3水準のNO_x濃度を測定した。

自動車排ガスによる沿道NO_x濃度増加とNO₂濃度の構成要因別寄与率の推定、冬季の光化学反応によるO₃生成を介した沿道NO₂濃度の増加および沿道NO_xの鉛直濃度分布の特徴について解析した。

- (1)沿道NO₂濃度の寄与率は風上濃度が80～50%, O₃酸化により生成する分が10～40%, 自動車の直接排出分が10～20%であった。
- (2)冬季においても光化学反応によって沿道NO₂を増加させていることが確認できた。
- (3)沿道NO_xの鉛直濃度分布から走行風による初期拡散の到達高さを9m～14mと判断した。
沿道NO₂濃度を低減するには排出量の削減とともに、光化学反応も考慮する必要がある。

Abstract

Continuous measurements of NO_x(NO + NO₂), O₃ and wind speeds and directions were carried out from 1987 to 1994 on both sides of the Route 1 in Okazaki City, Aichi, Japan. The concentrations of NO_x and O₃ were measured every hour, and the wind speeds and directions were recorded every minute. Vertical distributions of NO_x concentration were observed in three levels for 5 days in January, 1994. The NO_x behavior on both sides of Route 1 was suggested as follows:

- (1) The back ground component of NO₂ is 50-80%,

the oxidized component is 10-40%, the exhausted component from vehicles is 10-20%.

- (2) The oxidized component of NO₂ is caused by O₃ photochemical oxidations which is thought to be a rare case in winter.

- (3) The mixing height due to vehicles is thought to be 9-14 m on the basis of NO_x vertical distributions

The photochemical oxidation of NO should be considered to solve a problem of high-level NO₂ on the roadside .

キーワード

NO, NO₂, NO_x, O₃, 光化学反応, 大気汚染, 幹線道路, 鉛直濃度分布

1. はじめに

公害が大きな社会問題となって以降、固定発生源と移動発生源との窒素酸化物 (NO_x = NO + NO₂) の排出規制が強化された結果、全国で大気環境濃度を観測している常時監視測定局 (一般環境大気測

定局と自動車排ガス測定局との総称。常監局、一般局、自排局と略す) のNO濃度は経年的に減少した。しかし、NO₂濃度は横這いないし、微増であった。NO₂濃度変化がNO濃度と比例関係になく、NO_x排出量の削減がNO₂の濃度低減に直接結びつかないことは判っていた。この原因は大気中のオゾ

ン(O_3)の影響であるといわれていた¹⁾。

1978年に環境庁が NO_2 環境基準を改訂し、85年度までに環境基準を達成するとを宣言したため、85年までに達成できないことが予測できた80年ごろから NO_2 高濃度原因を解明する研究が国立環境研究所、資源環境技術総合研究所などを中心に各自治体の環境研究所において実施された^{2, 3)}。

85年度には大都市圏の常監局、特に沿道に設置された自排局に多くの未達成局が残った⁴⁾。

これら背景のもとに自動車排ガスの影響が大きいと考えられる沿道において、 NO_2 高濃度原因を解明する実験を85年に開始し、94年に終了した。

沿道 NO_2 濃度の構成要因は、広域的に存在するバックグラウンド分、道路上の自動車から直接排する分およびNOで排出され O_3 酸化により NO_2 が生成する分であるといわれている。

本研究に着手する以前に我々は、幹線道路沿道と道路の影響が少ない後背地との同時測定を実施した。沿道 NO_2 濃度の構成要因のうちからNOで排出され O_3 酸化により生成する分は、後背地と沿道との O_3 の濃度差に等しいと仮定して、要因の構成比率を下記のように推定した。

「広域的に存在するバックグラウンド分：自動車から直接排出する分：NOで排出して O_3 により酸化生成する分＝4：3：3」

この実験では沿道と後背地との間に NO_x 発生源が存在しているため、 O_3 酸化により NO_2 が生成する分は後背地と沿道との O_3 の濃度差に等しいという仮定には無理があり、推定が不正確になった。単一道路の自動車影響に限定して要因の構成比率を推定することにより、 NO_2 高濃度原因が解明できる可能性があると考えて本実験を計画した。

国道1号線両側において NO_x を長期間連続測定し、沿道と後背地との組合せを国道1号線を挟んだ風下側と風

上側とに置き換えて、沿道 NO_2 濃度構成要因の比率を再度推定した。さらに、 NO_x 濃度の鉛直分布を5日間測定し、発生源としての国道1号線沿道の状態を把握した。

本報告では沿道 NO_2 高濃度原因の解明を目的として以下の項目について解析した。

- ①自動車排ガスによる沿道 NO_x 濃度の増加
- ②冬季の光化学反応による NO_2 生成
- ③沿道 NO_x の鉛直濃度分布

2. 測定方法

長期間の連続測定には場所の選定が重要である。85年に愛知県下で環境基準が未達成であった岡崎市大平自排局付近の国道1号線両側に必要な観測室が設置できる場所を借用した。鉛直濃度分布の測定も同じ場所で行った。測定地点付近の地図をFig. 1に示す。

選定した測定地点は東名高速道路岡崎インターの西側に位置し、付近の国道1号線は東南方向から西北西方向になっている。年間を通じての主風向

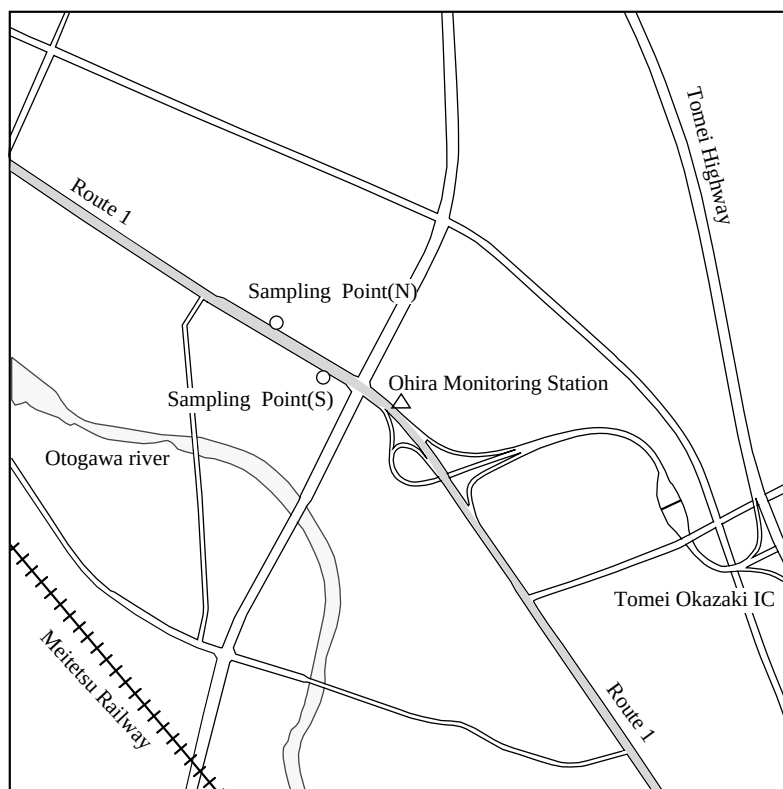


Fig. 1 Local location of observation site.

は西北西～北北西であるため、横断する風は少ない。

国道1号線を走行する自動車の台数の時刻変化をFig. 2に示す。平日の昼間は両方向で1時間当たり約2500台の自動車が走行する、そのうち大型車は約600台であり、終日ほぼ一定である。夜間は全体の走行台数が徐々に減少するため、相対的に大型車混入率が高くなる。朝の通勤時間に走行台数が急激に上昇する。休日の昼間は全体の走行台数が同じで、大型車が約200台になる。大型車の走行台数の変化をみると土曜日は平日から休日への移行日にあたり、月曜日の早朝は逆に移行する時間にあたる。

2. 1 NO_x濃度の測定

NO_xの連続測定および鉛直濃度分布の測定には常監局と同じ湿式のザルツマン法を用いた。大気を一定流速で1時間、ザルツマン溶液にバブリングし

てNO₂を反応・吸収させて発色した波長540nmの吸光度を測定して濃度を求める。NOは反応・吸収しないため、KMnO₄溶液を通過させ、酸化生成したNO₂で濃度を求める。

2. 2 連続測定

NO_xとO₃とは1時間値を、風向風速は1分間値を連続測定した。NO_xは大気中窒素酸化物自動測定装置(電気化学計器 GPH-74M)を、O₃はオゾンモニター(荏原実業 EG2001F)を、風向風速は微風向風速計(小笠原計器製作所 WC-B11)を使用した。両側の観測室間を電話回線で接続し、測定データを一方に集めてデータロガー(小笠原製作所 OKSAM1200)に収録した。連続測定の要点をTable 1に示す。

風は大気汚染物質濃度の挙動に大きく影響する重要な因子である。今回の実験では風向風速の影響を詳細に解析するため、極力短時間の平均値を求めるための測定法を検討した。ベーン方式の微風向風速計を用いたため、重量による慣性が大きく、測定データの信頼性を考慮して、1分間値が適当と判断した。

2. 3 鉛直分布の測定

国道1号線の自動車が排出するNO_xの初期拡散を把握するためには大型車の形状を考慮したうえで容易に測定できる高さ水準数とを検討した。その結果、高さは3m, 5m, 10mの3水準とし、3mは連続測定の値を利用した。北側は受電用の電柱を利用し、南側は10mのアルミニウムポールを立てた。同じ条件で吸引するため、5mと10mとのサンプリングチューブは同じ長さのテフロン管を用いた。所定の高さに取り付けしたテフロン管から大気をポンプで約5l/minで吸引しておき、別のポンプでザルツマン液に0.3l/minで導入した。捕集ガス量は乾式

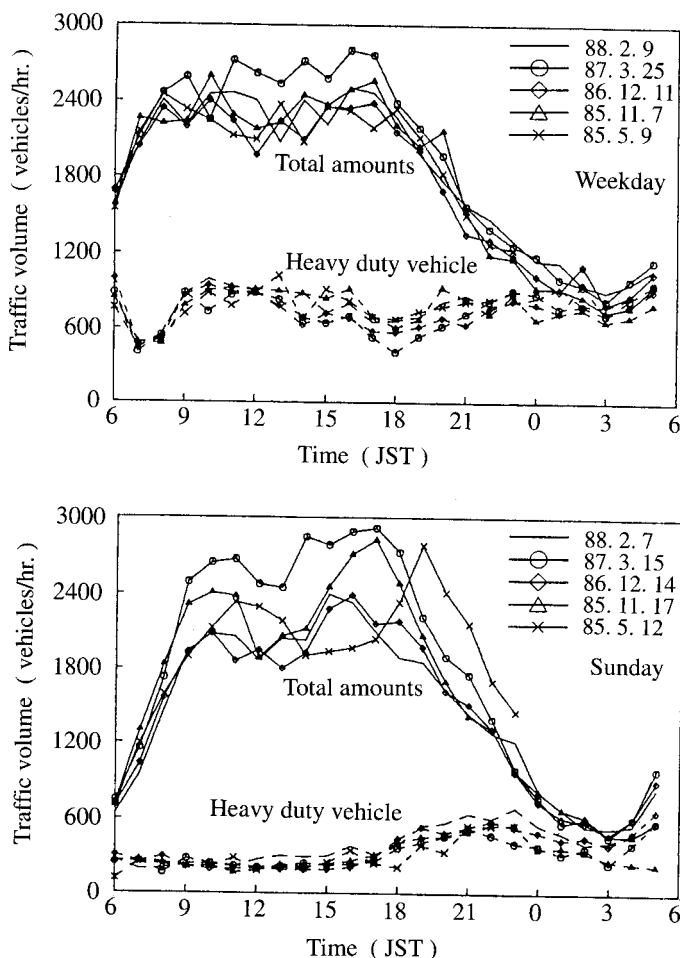


Fig. 2 Traffic volume on the Route 1.

Table 1 Measurement of the components.

Time interval	1989.10～1994.3	
Point	Northside of the Route 1	Southside
Components	NO, NO ₂ , O ₃ (every hours)	←
Wind	Directions, speeds (every minutes)	—

C_d : 濃度差 ($= C_a - C_b$)

L_a, L_b : バックグラウンド

A_k, B_k : 最大上乘せ濃度

θ : 測定風向

ϕ : 国道1号線の直交軸に補正する角度

国道1号線両側の NO_x 濃度をそれぞれ式(1)と式(2)とで表現する。安定風で狭い風速範囲をとれば、 $L_a = L_b$, $A_k = B^k$ となり、濃度差 C_d は式(3)となる。式(3)に安定風の測定データを適応して係数(最大上乘せ濃度 A_k)を最小二乗法で求め、回帰曲線を決定して実験式とした。実験式により直交風時の濃度差を求め、最大上乘せ濃度とした。安定風時の NO_x 濃度と実験式とをFig. 5に、最大上乘せ濃度をTable 3に示す。実測した NO_x 濃度は実験式の近くに分布している。実験式から算出した最大上乘せ濃度は測定値の最大値に近く、風速が強くなるとともに減少していき、妥当な推定と考えられる。

風上側から風下へ国道1号線を横断する大気には自動車直接排出する NO_2 が上乘せされるとともに NO で排出されても O_3 酸化により NO_2 が生成され、濃度が増加している。その増加分は O_3 濃度の減少分に等しいと仮定し、測定値を用いて自動車の直接排出による NO_2 濃度増加分を推定した。

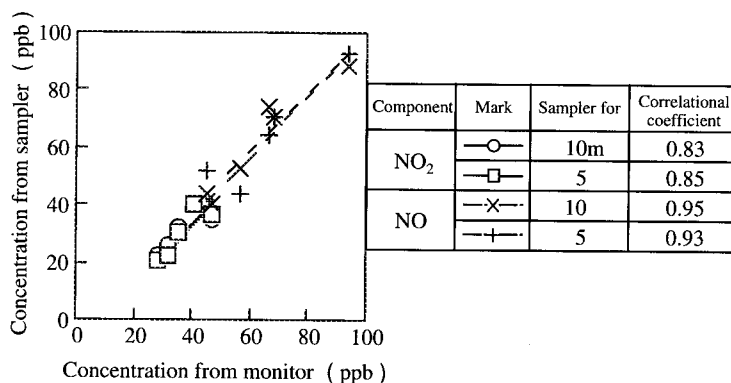


Fig. 4 Comparison of the both methods.

$$[\text{NO}_2]_a = [\text{NO}_2]_b + [\text{NO}_2]_e + [\text{NO}_2]_r \quad \cdots \cdots (4)$$

$$[\text{NO}_2]_r = [\text{O}_3]_b - [\text{O}_3]_a \quad \cdots \cdots (5)$$

$$[\text{NO}_2]_e = [\text{NO}_2]_a - [\text{NO}_2]_b + [\text{O}_3]_a - [\text{O}_3]_b \quad \cdots \cdots (6)$$

$[\text{NO}_2]_a, [\text{O}_3]_a$: 風下濃度 (測定値)

$[\text{NO}_2]_b, [\text{O}_3]_b$: 風上濃度 (〃) = バックグラウンド

$[\text{NO}_2]_e$: 自動車が直接排出する分の濃度

$[\text{NO}_2]_r$: O_3 酸化により生成する濃度

風下側沿道の NO_2 濃度は式(4)のように3種の構成要因からなっている。要因のなかで O_3 酸化により生成する分 $[\text{NO}_2]_r$ は仮定によって式(5)で表現でき、自動車が直接排出する分 $[\text{NO}_2]_e$ は式(6)となる。沿道 NO_2 について構成要因の寄与率を推定し、風速による寄与率変化をFig. 6に示す。

沿道 NO_2 濃度の寄与率は風上濃度が50~80%,

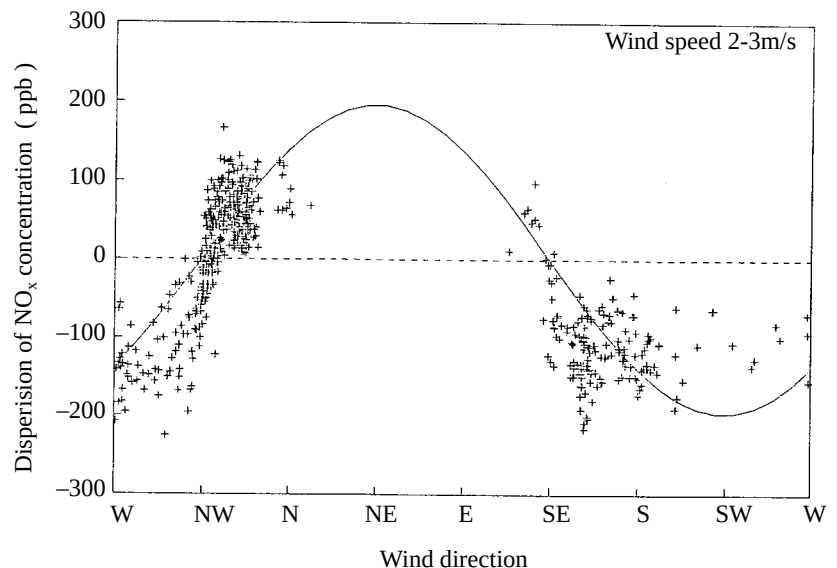


Fig. 5 Measurement data and regression curve.

Table 3 Estimated maximum concentration by emission.

Wind speed	Comp	NO_x (ppb)	NO (ppb)	NO_2 (ppb)	Data number
0~1m/s		283	262	21	23
1~2		234	203	31	205
2~3		194	144	49	355
3~4		177	120	57	341
4~5		170	118	51	265

O₃酸化により生成する分が10～40%，自動車の直接排出分が10～20%であった。直接排出分の寄与率は風速とともに増加するが，汚染濃度全体の減少が大きく，濃度としては減少した。

3.2 光化学反応によるNO₂生成

沿道NO₂高濃度は春季と冬季とに多く出現している。その原因は風速が弱く，希釈が少ないことおよび光化学反応によりO₃が生成し，NOを酸化してNO₂高濃度が出現することである。春季は日照時間も長く，紫外線も強くて光化学反応が原因と考えられていた。ここでは冬季における光化学反応の影響を検討した。

NOの存在下ではO₃は反応して減少するため，木村ら⁵⁾が提案したポテンシャルオゾンPO (= O₃ + NO₂) の考え方をを用いて解析した。

$$[PO]_B = [PO] - (1 - \alpha)[NO_x]$$

$$= [PO]_p + [PO]_N \dots\dots\dots (7)$$

[]_B: 広域の濃度

[]_p: 光化学反応による生成濃度

[]_N: 光化学反応がない時間の濃度

[]: 測定濃度

(1 - α): 発生源NO_x中のNO₂比率

(研究者間で最も一般的な値である0.1と仮定)

ポテンシャルオゾンの構成は式(7)で示される。

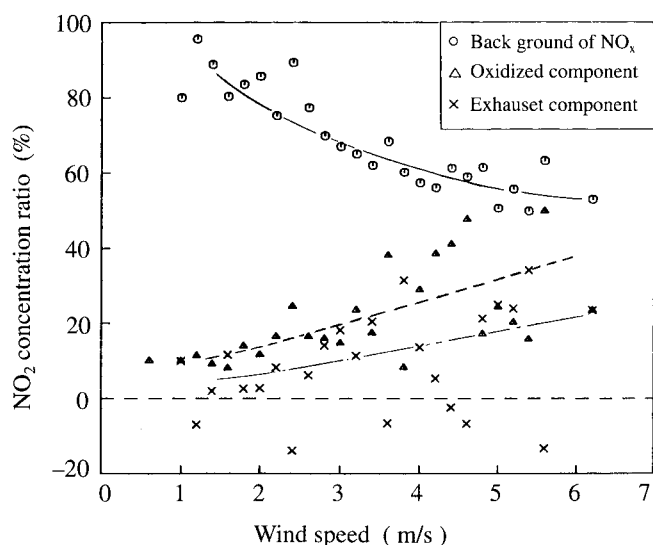


Fig. 6 Wind speed dependency of NO₂.

この解析に供した測定データは1990～92年の3年間に於ける11，12，1，2月の冬季4ヶ月である。[NO₂]，[O₃]と[PO]_Bとの時刻別平均値をFig. 7に示す。[NO₂]はほぼ横這いであり，[O₃]と[PO]_Bとは平行で推移している。

[PO]_Bの時刻別の平均濃度をFig. 8に示す。式(7)の[PO]_Nと[PO]_{PM} ([PO]_pのうちで最大の値)をFig. 8によって求めた。即ち，早朝に現れる最低値は光化学反応が関与していないので[PO]_Nとし，光化学反応で生成して蓄積した午後の最高値を[PO]_{PM}と

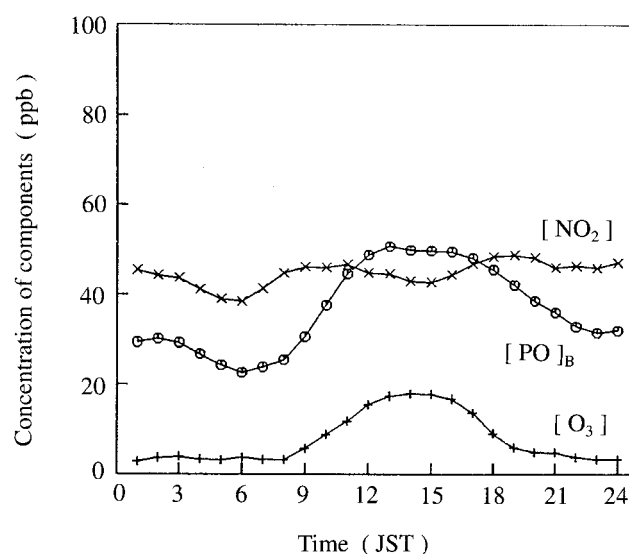


Fig. 7 Daily trends of trace gases (averaged for a year).

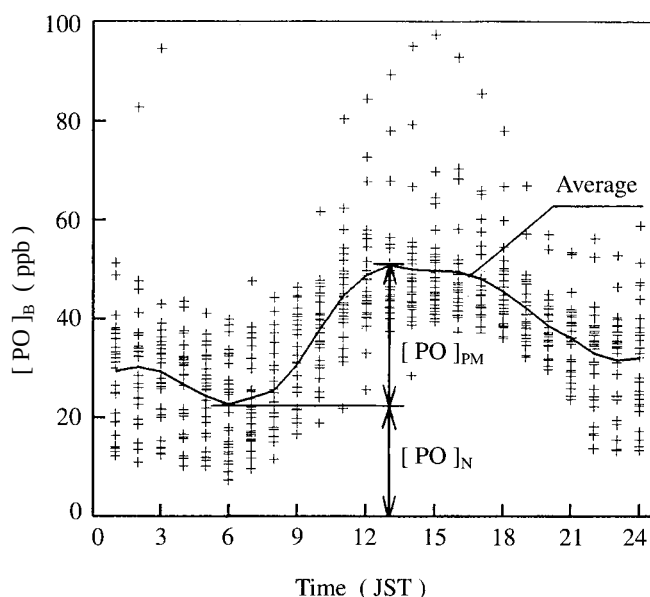


Fig. 8 Daily trends of potential ozone.

した。 $[PO]_D (= (1 - \alpha)[NO_x])$ は発生源が直接排出する NO_2 である。日照時間に対する $[PO]$ の構成要因別変化をFig. 9に示す。光化学反応以外による濃度と発生源中の NO_2 に由来する濃度とはほぼ一定で、 $[PO]_{PM}$ は日照時間に伴って僅かに増加している。

風速1.5m/sで分けて、 $[PO]_{PM}$ と日照時間との関係をFig. 10に示す。風速が小さい場合には日照時間の増加に伴う $[PO]_{PM}$ の増加が顕著である。即ち、 NO_2 高濃度現象が起きやすい風が弱く、おだやかな日には多量の光化学オゾンが生成し、 NO_2 高濃

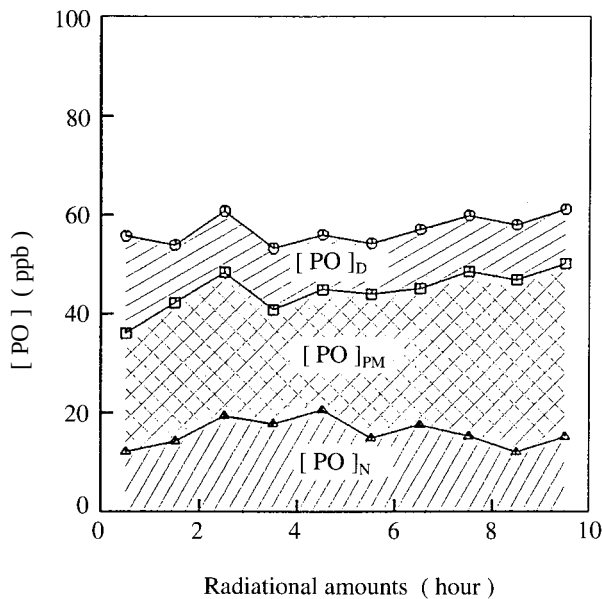


Fig. 9 The relationships between potential ozone and radiational amounts.

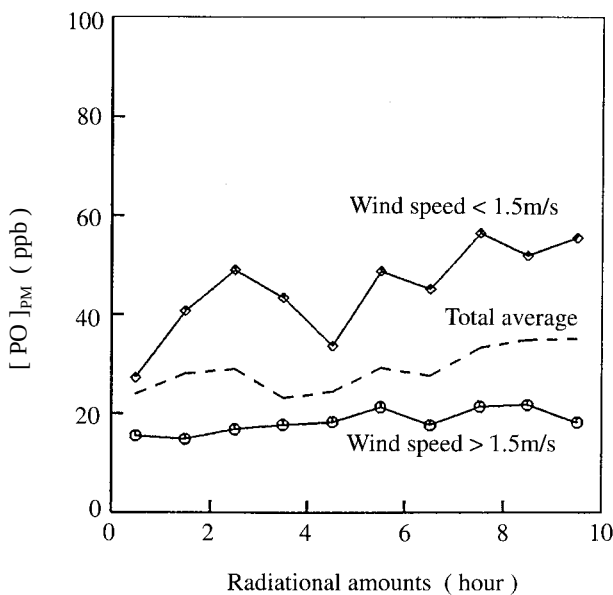


Fig. 10 Wind speed dependency of potential ozone.

度に影響していることが明かとなった。この現象が沿道観測値のみで確認できたことは重要である。

沿道 NO_2 濃度を低減するには発生源の排出量を削減するとともに、冬季においても光化学反応によって生成した O_3 を介して生成する NO_2 も考慮する必要がある。

3.3 沿道における鉛直濃度分布の特徴

国道1号線上の自動車は NO_x を排出しており、一般環境大気の NO_x 発生源とみなされる。発生源としての国道1号線の特徴を明らかにするため、鉛直濃度分布を測定した。

まず鉛直濃度測定時の風向風速について述べる。風向風速の1分間値を1時間ごとにベクトル平均した結果をFig. 11に示す。10, 11日の早い時刻に南よりの風はあるが、全般的に西北西～北西であり、同じ風向に様々な風速が出現した。

NO_x と NO_2 との鉛直濃度分布で21日の結果をFig. 12に示す。 NO_x は風速が弱い朝方の濃度レベルが高く、時刻とともに低下している。Fig. 11に示す風速は大きくなっており、濃度と風速との関連が

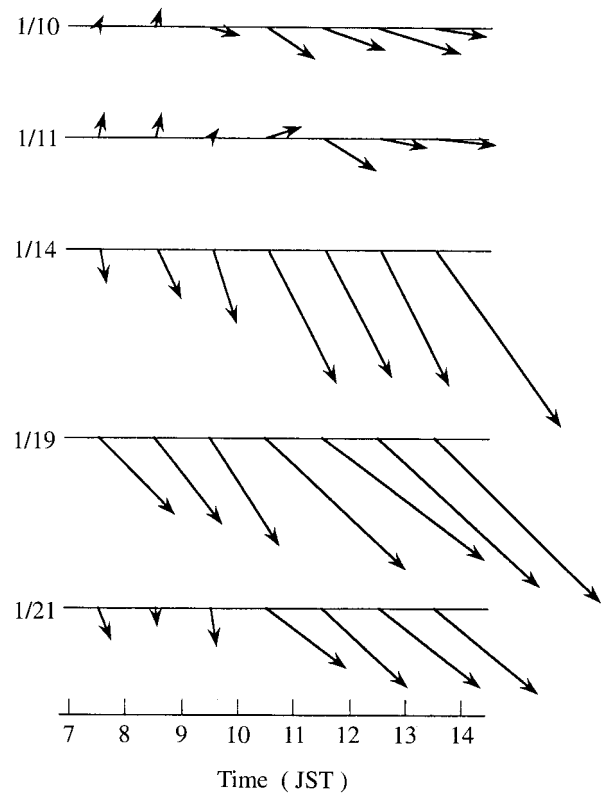


Fig. 11 Hourly averaged wind vector.

ある。NO₂は上下の濃度差が小さく、上空からのO₃により、NOが酸化されて生成することが示唆されている。

鉛直濃度分布を測定した1時間値が25回分あり、高さ方向の濃度勾配を解析し、走行風による初期拡散到達高さを推定した。

上方濃度から下方を引いて濃度勾配を計算した。NO_xの濃度勾配と風速との関係を**Fig. 13**に示す。10mと5mとの濃度から求めた濃度勾配をD(10-5)、同様に5mと3mとはD(5-3)と表現する。NO_xのD(5-

3)は変動範囲が広く、5mまでは走行風の直接影響が大きいことを示している。D(10-5)は変動が小さく風速による値の変化も小さい。5m以上では走行風の直接影響が小さくなることを示している。

走行風による初期拡散高さのNO_x濃度が高さ方向にガウス分布であると仮定して推定した。

$$C = A \exp(B H^2) \cdots \cdots (8)$$

C : 濃度

A, B : 係数

H : 高さ

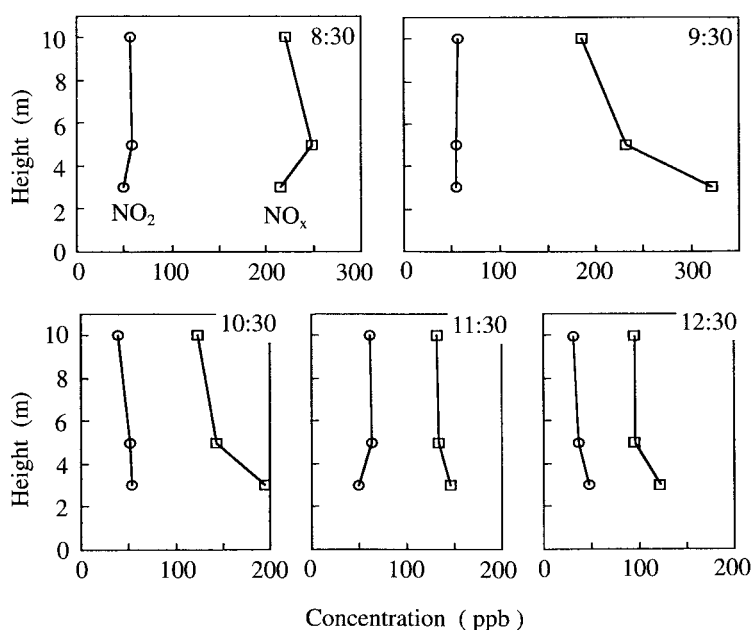


Fig. 12 NO_x vertical distribution.

高さ方向の濃度を式(8)に適用し、最小二乗法によって係数を求め、高さ方向に延長して濃度の分布範囲が最も狭くなる高さを走行風による初期拡散の到達高さとした。ある自動車が出した汚染物質が後続の自動車により、上方と左右に拡散混合し、高濃度の汚染気塊がある高さまで到達する。この高さの求め方および結果を**Fig. 14**に示す。走行風による初期拡散の到達高さを9~14mと判断した。バラツキはあるが、風速が大きくなるにつれて到達高さが低くなる傾向を示している。大型車の形状から妥当な高さと考えられる。国道1号線を一般環境大気発

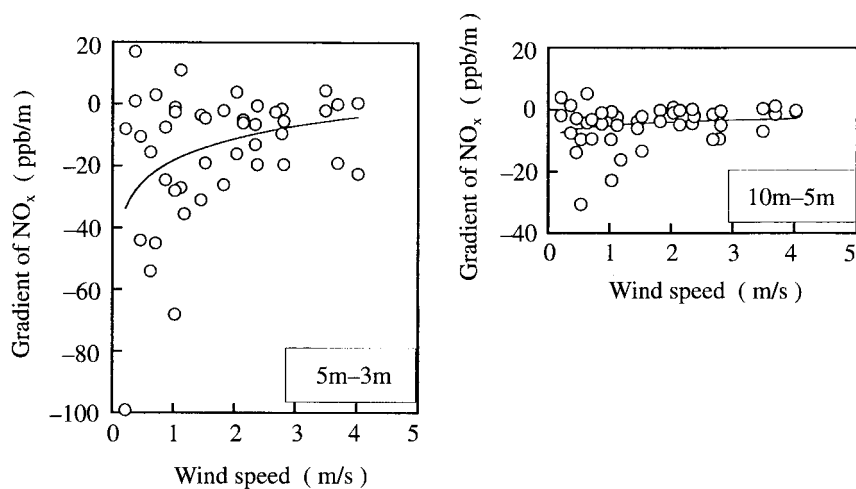


Fig. 13 Wind speed dependency concentration gradient of NO_x.

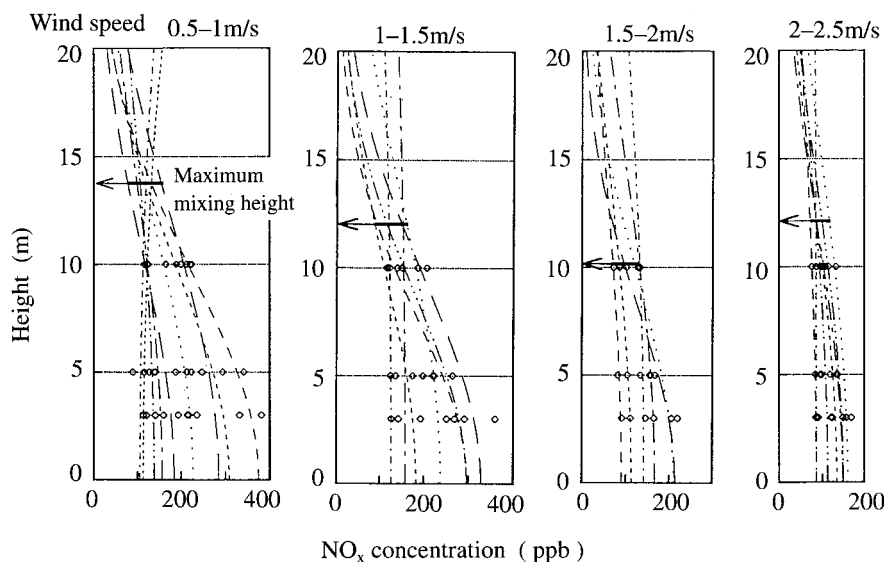


Fig. 14 NO_x vertical distribution and maximum mixing height.

生源と考えた場合、風速4m/s以下の条件下では汚染気塊は幅20数m、高さ10数mのかまぼこ型を想定した。

4. まとめ

国道1号線沿道両側において、NO_x、O₃の連続測定とNO_xの鉛直濃度分布測定との結果を解析して以下のことがわかった。

- (1)沿道NO₂濃度の寄与率は風上濃度が50～80%，O₃酸化により生成する分が10～40%，自動車の直接排出分が10～20%であった。
- (2)冬季においても光化学反応で生成したO₃がNOのNO₂への反応を促進し、沿道NO₂高濃度現象を引き起こしていることが確認できた。
- (3)鉛直濃度分布の特徴から大型車の走行による初期拡散の到達高さを9m～14mと判断した。

沿道NO₂濃度を低減するには発生源の排出量を低減するとともに、冬季においても光化学反応によって生成したO₃を介して生成するNO₂も考慮する必要がある。

参 考 文 献

- 1) 秋元肇："大気中における窒素酸化物の化学的挙動", 第26回大気汚染学会要旨集, (1985), 91～98
- 2) 吉門洋, 河本稔："流跡線モデルによる光化学大気汚染の生成・拡散シミュレーション", 大気汚染学会誌, **20**(1985), 198～204
- 3) 鵜野伊津志, 植田洋匡, 若松伸司："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**(1989), 130～143
- 4) 環境庁大気保全局：昭和61年度の一般環境大気測定結果報告, (1987)
- 5) 木村富士男："近似解法によるNO, NO₂, O₃の反応拡散モデル", 大気汚染学会誌, **13**(1978), 67～75

著 者 紹 介



三浦米吉 Yonekichi Miura

生年：1946年。

所属：反応制御研究室。

分野：大気環境に関する研究。

学会等：大気環境学会，環境科学会会員。