

自動車排出ガス測定局における窒素酸化物濃度の低下について

Decrease of the concentration of nitrogen oxides at roadside monitoring stations.

中村 栄一 宮城 英徳*¹ 菅原 隆一
鈴木 康民

Eiichi NAKAMURA, Hidenori MIYAGI, Ryuichi SUGAWARA
Yasutami SUZUKI

1998年頃から県内の自動車排出ガス測定局（自排局）での窒素酸化物濃度、特に一酸化窒素（NO）濃度の減少傾向が見られるようになった。ほぼ同時期から測定機の乾式化が進められており、これが濃度低下の一因をなしていると考えられた。しかし、湿式測定機においても同様な濃度減少が見られたことから別な要因についても検討した結果、減少が見られる1998年度以前と以降とで測定局近傍道路の交通量及び車種構成に変化が殆どないこと、自動車特に大型車の排出ガス規制により1990年代後半から排出量がかなり低下してきていることなどから、観測されているNO濃度の減少は測定法の変更にとまなうものと自動車からの排出量の低下によるものが重畳的に観測されたものと考えられた。

キーワード：窒素酸化物濃度；自排局；乾式NOx計

Keywords : nitrogen oxides ; roadside monitoring station ; chemiluminescent-NOx detector

1 はじめに

県及び仙台市、石巻市が測定を行っている自動車排出ガス測定局での窒素酸化物の年平均濃度が、1998年度頃から漸減傾向にある。この現象の原因について若干の考察を行った。

だが、この期間の窒素酸化物の自排局と環境局の全局年平均値と乾式化率（全測定機に対する乾式測定機の割合）の推移を図1に示す。自排局の窒素酸化物濃度は1998年度頃から下がり始め、2002年度までずっと低下が続いている。特に一酸化窒素（NO）で顕著で、NO₂ではやや減

2 測定方式の推移

窒素酸化物の測定方式はザルツマン試薬による吸光度法が一般的であったが、1996年に環境基準等に係る測定法が改正されオゾンを用いる化学発光法、いわゆる乾式の測定機も使用できることになった。本県での乾式測定機の導入はオキシダント計で最も早く（1996年度）、その後徐々に他の測定項目にも導入が進められた結果、2002年度までに県で設置している環境局、自排局の二酸化硫黄計、窒素酸化物計およびオキシダント計が全て乾式化された。

表1は自排局の窒素酸化物計についてその乾式化の推移をまとめたもので、2002年度までで50%の乾式化率となっている。湿式測定機は仙台市設置の一部の局及び石巻市設置局で使用されている。

表1 自排局での窒素酸化物計乾式化の推移

(w：湿式，d：乾式)

局名	1997	1998	1999	2000	2001	2002
塩釜自排	w	w	w	w	d	d
名取自排	w	w	w	w	w	d
古川自排	w	w	d	d	d	d
五橋	w	w	w	w	w	w
台原	w	w	w	w	w	w
苦竹	w	w	w	w	w	w
木町	w	w	d	d	d	d
長命						d
将監						w
東六	w	w	w			
泉-2	w	w				
八幡町交差点	w	w	w	w	w	w
乾式化局数	0	0	2	2	3	5
総局数	10	10	9	8	8	10
乾式化率(%)	0	0	22.2	25	37.5	50

3 年平均値の推移

自排局では1999年度から徐々に乾式化が進められてき

* 1 食と暮らしの安全推進課

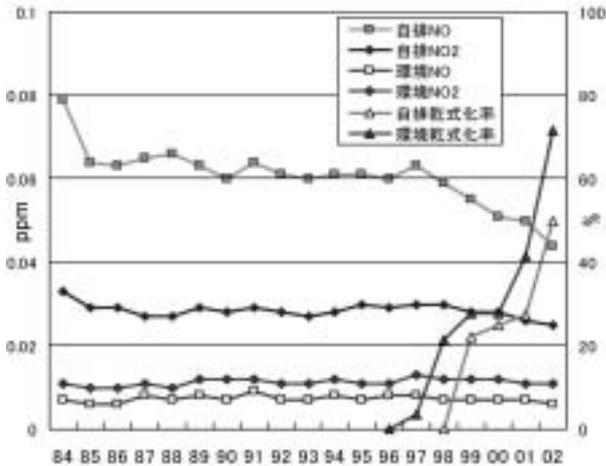


図1 年平均値の推移

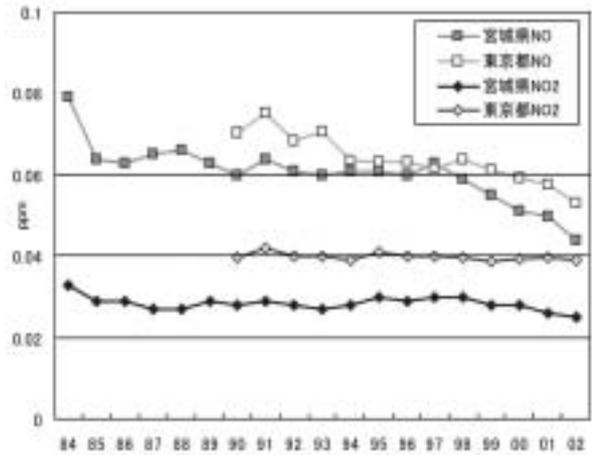


図3 東京都との比較（自排局）

少傾向が認められる。これに対し環境局ではNOとNO₂とも濃度の低下は認められない。自排局でのNO濃度の低下は乾式化率の増加に対応しているように見えるが、環境局では自排局に比べ乾式化率が高いにもかかわらず濃度との関連は見られない。

図2は測定局ごとのNOとNO₂の年平均値の推移である。やや大きめのマーカーで示したデータは乾式測定機による値で、その他は湿式測定機による値である。乾式が導入された局で共通しているのは、乾式に切り換わった年度の平均値はその前年度までの平均値に比べ大幅に低下し、さらにその後の年度でも低い傾向が継続している、という点である。しかし、乾式が導入されていない測定局（湿式局）でも1999年度以降平均値がやや低下する傾向が見られる局もあり、一概に乾式局のみが低下しているというわけでもない。NOではいずれの傾向も顕著であるが、NO₂では湿式局の濃度の低下はほとんど認められない。

図3は東京都のデータと比較したものである。乾式化の動向は不明であるが、東京都においても1999年頃からNO濃度が低下する傾向が認められ、本県とほぼ同様な推移で経過していることがわかる。

移で経過していることがわかる。

濃度低下を定量的につかむため、全局平均が比較的一定していた1985年度から1998年度までと1999年度以降の期間、及び湿式での測定期間（図2の小さいマーカー）と乾式（同、大きいマーカー）での測定期間とで、各測定局ごとのそれぞれの期間の平均濃度を調べた結果を表2に示す。なお、1984年度のデータは測定局数が少なくかつ配置が仙台市内に偏っているため除外した。

3.1 NO

1998年度以前と1999年度以降の期間平均濃度の比（低下率）は69.4～100.8%（平均77.5%）で、名取自排局を除いた全ての局で1999年度以降に濃度の低下が見られる。このうち乾式化された局（表中、局名の右に（d）と記された局）のみでは69.4～100.8%（平均79.3%）であるのに対し、2002年度まで乾式化が行われていない局（同、（w）と記された局）では69.4～86.2%（平均76.4%）と、湿式局のほうが低下率が大きい結果となっている。しかし、乾式化された局での湿式期間と乾式期間との比較では51.1～74.6%（平均65.0%）で、明らかに乾式化により濃度が低下していることが認められる。

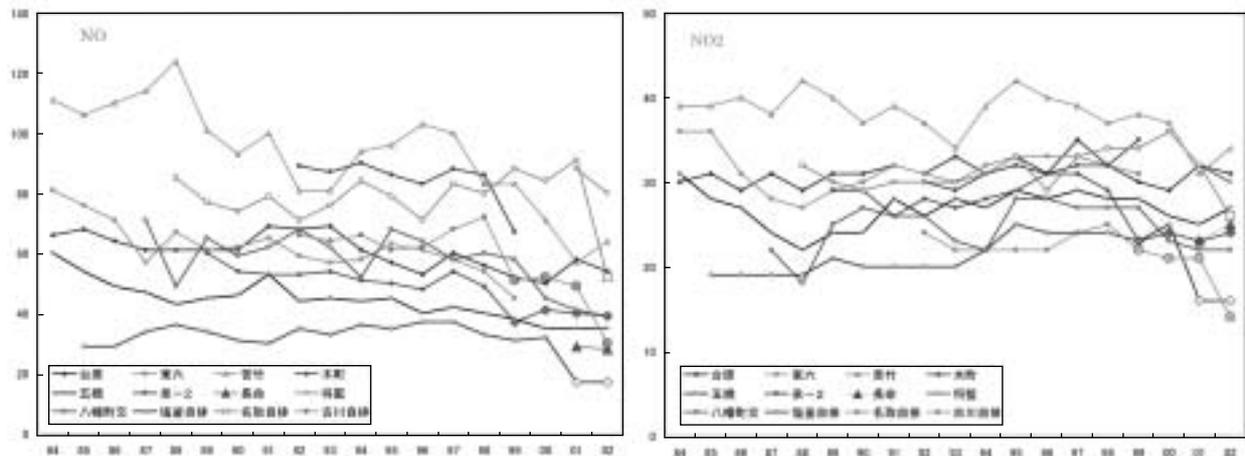


図2 測定局（自排局）ごとの年平均値の推移
（大きいマーカーは乾式測定機による値）

表2 自排局におけるNO及びNO₂濃度の低下率

NO	85-98 平均	99-02 平均	低下率 (%)	交通 量 伸び率*	湿式平均	乾式平均	低下率 (%)
塩釜自排(d)	33.5	24.3	72.4	1.03	33.3	17.0	51.1
名取自排(d)	78.1	78.8	100.8	1.07	80.1	52.0	64.9
古川自排(d)	65.6	45.5	69.4	0.89	65.6	45.5	49.4
台原(w)	62.1	53.5	86.2	1.02			
東六(w)	62.1	45.0	72.5				
苦竹(w)	99.0	68.8	69.4	1.02			
木町(d)	52.6	39.3	74.6	0.94	52.6	39.3	74.6
五橋(w)	45.5	35.8	78.6				
泉-2(w)	87.0	67.0	77.0	0.99			
長命	-	28.5	-	1.06	-	28.5	-
将監	-	84.0	-		84.0	-	-
八幡町交差点(w)	61.5	45.8	74.4	1.04			
平均(全局)			77.5	1.01			
平均(乾式)			79.3	0.98			65.0
平均(湿式)			76.4	1.02			

NO ₂	85-98 平均	99-02 平均	低下率 (%)	交通 量 伸び率*	湿式平均	乾式平均	低下率 (%)
塩釜自排(d)	21.1	20.0	94.6	1.03	21.5	16.0	74.4
名取自排(d)	31.0	32.0	103.2	1.07	31.6	26.0	82.2
古川自排(d)	23.0	19.5	84.8	0.89	23.0	19.5	84.8
台原(w)	31.4	30.5	97.0	1.02			
東六(w)	31.2	31.0	99.3				
苦竹(w)	38.8	35.0	90.2	1.02			
木町(d)	28.7	23.5	81.9	0.94	28.7	23.5	81.9
五橋(w)	26.6	26.5	99.7				
泉-2(w)	31.0	35.0	112.9	0.99			
長命	-	24.0	-	1.06	-	24.0	-
将監	-	31.0	-		31.0	-	-
八幡町交差点(w)	24.9	23.5	94.3	1.04			
平均(全局)			95.8	1.01			
平均(乾式)			91.1	0.98			80.8
平均(湿式)			98.9	1.02			

* 交通量伸び率は1999年/1997年比

3.2 NO₂

1998年度以前と1999年度以降では、名取自排局と泉-2局を除く全ての局で1999年度以降に全局平均で95.4%とわずかに濃度の低下が見られる。しかし、湿式局だけで見ると98.9%で濃度が低下しているとは言えず、乾式化された局による低下(91.1%)が全体の濃度低下を引き起こしていると考えられる。さらに、湿式期間と乾式期間との比較では平均80.8%乾式期間が低く、この点からも乾式化がNO₂の濃度低下の原因であると考えられる。

NO₂で濃度の低下が見られない原因としては次のようなことが考えられる。NOは近傍道路を走行する自動車起因がその大部分を占めると考えられ、かつ地表面付近での寿命が短いことから、観測されるNO濃度は自動車からの排出量を敏感に反映する。これに対しNO₂はNOに比べ寿命が長く、また光化学反応による減衰も本県ではそれほど大きくないと推定されることから、自動車交通の影響のほか比較的広域の事業所等の発生源の影響を受けて

いると考えられる。このため事業所等起因のNO₂による緩衝効果によって自動車排出量の変化に対し敏感に反応しないものと考えられる。

4 NOx濃度低下の要因

本県の自排局でのNO及びNO₂の年平均濃度を低下させる要因として、次のような事項が考えられる。

- (1) 湿式測定機の測定原理に起因する測定値の過大評価
公定法で決められたザルツマン係数および酸化率が実際の値と異なっている場合、特に酸化率が公定法の70%より大きいとNO濃度が過大評価される。¹⁾
- (2) 乾式測定機の測定原理に起因する測定値の過小評価
試料中水分によるクエンチが測定値に負の影響を与える。²⁾ また、コンバータの還元効率が劣化するとNO₂に負の影響を与える。
- (3) 環境大気中のNO及びNO₂濃度の低下
 - a) 周辺道路の自動車交通量または車種構成比の変化

表3 12時間交通量(平日)³⁾

自排局名 ^{*1)}	塩釜自排		名取自排		古川自排		台原		苦竹	
	1997	1999	1997	1999	1997	1999	1997	1999	1997	1999
調査単位区間番号	138	1037	116	1016	179	1077	仙409	仙4009	仙109	仙1009
乗用車	12,368	12,847	19,470	22,981	7,148	10,752	31,723	33,488	21,408	23,572
バス	269	159	134	199	12	191	960	898	622	654
小型貨物車	3,127	3,562	6,837	5,733	8,649	3,389	7,174	6,501	5,615	4,555
普通貨物車	1,881	1,616	7,129	7,174	1,713	1,329	1,602	1,308	2,179	1,754
合計	17,645	18,184	33,570	36,087	17,522	15,661	41,459	42,195	29,824	30,535
伸び率 ^{*2)}		1.03		1.07		0.89		1.02		1.02
大型車混入率 ^{*3)}	12.2	9.8	21.6	20.4	9.8	9.7	6.2	5.2	9.4	7.9
旅行速度 ^{*4)}	27.5	27.2	23.9	23.9	21.1	20.9	12.9	24.8	15.7	15.9

自排局名 ^{*1)}	木町		泉-2		長命		八幡町交	
	1997	1999	1997	1999	1997	1999	1997	1999
調査単位区間番号	仙115	仙1015	仙108	仙1008	仙421	仙4022	225	1118
乗用車	15,029	14,080	32,510	19,847	15,391	16,561	15,868	15,336
バス	617	602	567	464	291	323	224	187
小型貨物車	2,830	2,709	10,269	20,516	3,558	3,611	4,702	6,464
普通貨物車	986	880	6,926	8,735	1,648	1,695	1,467	1,145
合計	19,462	18,271	50,272	49,562	20,888	22,190	22,261	23,132
伸び率 ^{*2)}		0.94		0.99		1.06		1.04
大型車混入率 ^{*3)}	8.2	8.1	14.9	18.6	9.3	9.1	7.6	5.8
旅行速度 ^{*4)}	18.8	18.5	20.8	20.7	26.1	44.1	16.6	22.8

*1) 東六、五橋、将監の各局は付近に調査点がないため表から除いてある。

*2) 伸び率は1999年/1997年比

*3) 大型車混入率 = (バス + 普通貨物車) / 全交通量 × 100 (%)

*4) 平日ピーク時旅行速度 (km/h)

- b) 周辺道路の交通流の変化
- c) 自動車排出ガスの低NO_x化
- d) 周辺地域のNO_x固定排出源または排出量の減少

4.1 湿式測定機

湿式測定機の問題については、表2に示したように乾式化が行われていない局でも乾式化局と同様な濃度低下が見られることから1998年度以前の測定値が実際より高い値を示していたとは考えにくい。

4.2 乾式測定機

次に乾式測定機の問題であるが、前にも述べたように表2の1999年度以降の濃度低下率を見ると乾式化された局とされていない局の低下率には大きな差はないが、湿式期間と乾式期間で見るとNO、NO₂とも濃度の低下が見られ、特にNOでは湿式機に比べ大幅に低下している。このことから乾式機の導入が年平均値の低下を引き起こしている原因の一つと推定される。乾式測定機が低い濃度を示す原因として、NOについては除湿器(調湿器)の性能劣化、NO₂についてはコンバータの還元効率低下、ゼロ点のドリフトなどが考えられる。

4.3 環境大気中のNO濃度の低下

乾式化されていない局においても1999年度以降約24%

のNO濃度の低下が見られることは、測定機以外にも低下要因があることが予想される。これに対し、NO₂は乾式化されていない局での濃度低下は認められない。表3は1997年度と1999年度に行われた県内の交通センサス結果から自排局付近の区間のデータを抜き出したものである。これに基づいて、図4に全車交通量の伸び率と濃度低下率の関係を、また各区間での車種別構成比を図5に示した。

交通量伸び率と濃度低下率との間の相関は余りよくないがわずかに比例関係が認められる。図で大きいマーカーは乾式化された局、小さいマーカーは湿式の局の値である。両者の分布に明確な違いはなく、交通量が増大しているにもかかわらずNOでは名取自排を除いて、NO₂では名取自排と泉-2局を除いて、残り全ての局で濃度が減少している。回帰直線の傾きがNOとNO₂とでほぼ同じであることは、自排局全体で見ると両者の起因が自動車交通にあって周辺の排出源の影響はあまり無いか、あったとしても一定の寄与しか与えていないことをうかがわせる。

図5は1997年度と1999年度の車種別の構成比を比較したものである。年によって構成比が異なる局もあるが、

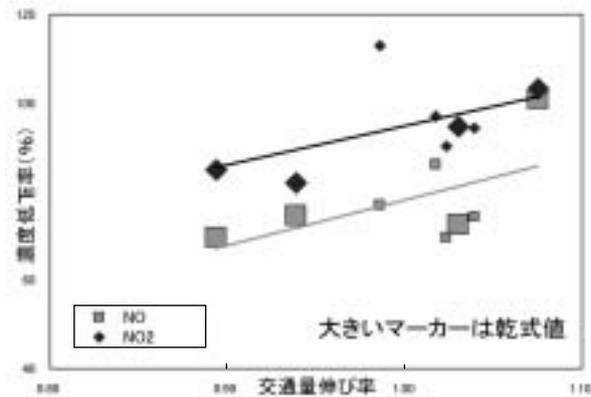


図4 交通量伸び率と濃度低下率との関係

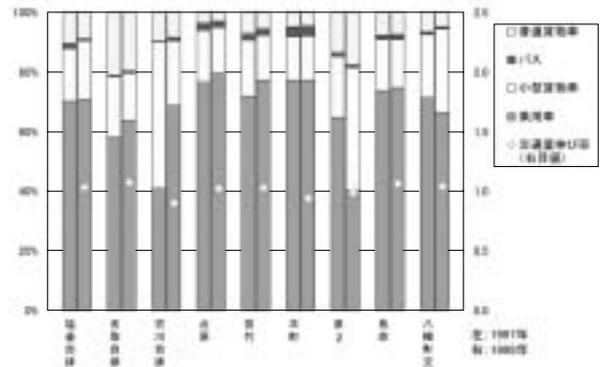


図5 車種別構成比

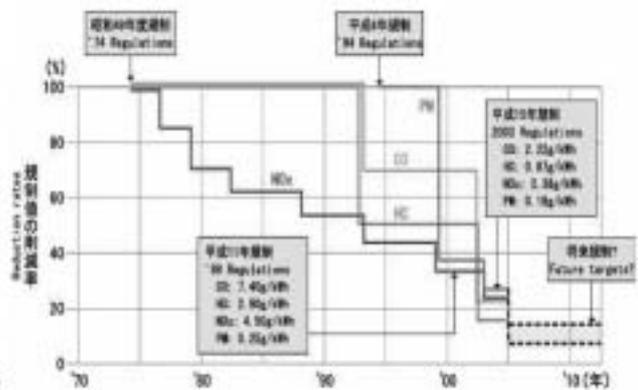
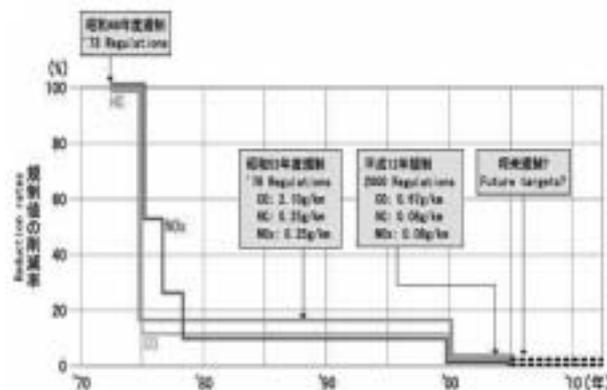


図6 ガソリン乗用車(左)と大型ディーゼル車(右)の排出ガス規制の推移

大型車(普通貨物車, バス)とその他の車両(小型貨物車, 乗用車)でみるとほとんど変化が無い。表3には旅行速度も示したが, 台原及び長命を除いてほとんど変化していない。

4.4 自動車排出ガス対策

自動車排出ガス規制は1966年ガソリン車のCO規制から始まり, 現在ではガソリン車及びLPG車についてはCO, HC, NOxが, ディーゼル車についてはこれに加えてPMおよびDEPが規制対象となっている。NOxに関していえば, ガソリン車はほぼ全て1978年度規制車となっており, ディーゼル車も段階的に規制が行われて, 低NOx化がかなり進んでいることがわかる。

5 まとめ

- (1) 乾式測定機の導入が年平均値低下の原因の一つになっている。特にNO₂の濃度低下は乾式測定機の導入のみによる可能性が大きい。
- (2) NOでは測定機の種類に関わらず濃度低下が見られることから, 自排局周辺でのNO濃度が実際に低下していると考えられる。
- (3) NO濃度の低下が起きる1998年の前と後とで自排局

付近の交通量, 通行車両の車種構成及び旅行速度はいずれもほとんど変化しておらず, これらが濃度低下の要因となっているとは考えにくい。

- (4) 自動車排出ガス規制によりNO_x排出量はかなり低下してきており, これが自排局周辺のNO濃度の低下の大きな要因と考えられる。
- (5) NO₂で濃度の低下が見られない原因として, 工場等に起因するNO₂がバックグラウンドとして存在するため自動車からの排出量減少が顕現しないことが考えられる。

参考文献

- 1) 阿相敏明: 大気汚染常時監視測定器の湿式法と乾式法のデータの比較, 第43回大気環境学会要旨集 1C1100, 251 (2002)
- 2) 板野泰之 ほか: 化学発光窒素酸化物計に対する水蒸気の影響, 第37回大気環境学会要旨集 K103, 435 (1996)
- 3) 平成9年度及び平成11年度道路交通量調査総括表(宮城県)