

# 東京都における大気中の亜酸化窒素 (N<sub>2</sub>O) の 長期モニタリング結果について

小峯美奈子\* 早福正孝 古明地哲人 岩崎好陽  
(\*非常勤研究員)

## 要 旨

都内の大気中N<sub>2</sub>Oの連続測定を当研究所屋上で行った。95-99年度の東京都のN<sub>2</sub>Oの平均大気濃度は約316ppbであった。明確な季節変動はみられなかった。全データの変動係数は2.31%であった。日変化は21時がピークで14時頃低くなるパターンを示した。これは気温に伴う風速の希釈効果によるものと思われる。

N<sub>2</sub>O (X : ppb) とNO<sub>x</sub> (Y : ppb) の間に

$$Y=6.1176X-1884 \quad (R^2=0.5516 \quad n=24)$$

の関係式が得られた。

340ppb以上の高濃度は全データの約0.9%であった。この現象は特にS-SE系の風で、2-3m/sの弱風時に出現することが多かった。月別の高濃度の頻度をみると4月は高濃度全体の18%、6-8月は43%であり、夏季はS系の風による下水処理施設等の固定発生源の影響を受けていると思われる。一方、4月はN系の発生源は特定できなかったが、S方向に位置する固定発生源の影響を強く受けたものと思われる。

キーワード： N<sub>2</sub>O 連続測定 風向特性 高濃度現象

## 1 はじめに

亜酸化窒素(以下N<sub>2</sub>O)は温室効果ガスとして、1997年12月のCOP3の京都議定書において、二酸化炭素、フロン等とともに削減対象ガスに加えられた。大気中の寿命も約120年と長い。またフロンと同じく極めて安定で対流圏でほとんど分解されず、成層圏で紫外線との反応によってオゾン破壊物質にもなっている<sup>1)</sup>。発生源は主に海洋や、土壌等の自然寄与が多いが、1959年以降、大気濃度は急激に増加していることから人為的発生源もあり、今後の動向が注目されている<sup>2)</sup>。

東京都では平成7年に「東京都地球温暖化防止対策地域推進計画」を策定した<sup>3)</sup>。そのなかで都内の温暖化寄与率はそれぞれ二酸化炭素80%、メタン4%、フロン15%、N<sub>2</sub>O1%であるとしている。対策効果を判定するため、当所では二酸化炭素、フロン等の各種のモニタ

リングを行い、平成6年度より温室効果ガスとしてN<sub>2</sub>Oの測定を行っている。本稿では長期モニタリングによる、都内のN<sub>2</sub>Oの濃度特性についての検討結果を示す。

## 2 調査方法

### (1) 測定方法

測定方法は電子捕獲型検出器(Ni<sup>63</sup>)付きガスクロマトグラフ(ヤナコ応技製YON-IS型)方式である。試料は30分周期で自動採取分析し、その2試料を平均した濃度を1時間値とした<sup>4)</sup>。窒素酸化物は化学発光方式で測定した。

### (2) 測定場所

東京都環境科学研究所屋上

(江東区新砂1-7-5地上高約33m 準工業地域)

測定場所は北側に幹線道路である永代通りがあり、

東側に大型の貨物車が多く通る明治通りがある。南東約1.5kmの距離に下水処理センター（煙突高約150m）があり、南南東約2.5kmの距離に清掃工場（煙突高約100m）がある。また約8km南方に東京湾（海洋）があり、ゴミ最終処分場等埋立地がある。

### 3 測定結果と考察

#### (1) 経年変化

95年度からの経年変化の結果を表1に示す。測定開始年度の94年度はデータのばらつきが多いため本稿では95年度以降について解析した<sup>5)</sup>。

95-99年度の5年間の平均濃度は約316ppbであった。平均増加率は0.62%であり、わずかではあるが増加傾向がみられた。しかし各年をみるとその増加は一定ではない。95年度は317ppbであったが、97年度に314ppbまで下がった。しかし98年度には再び増加傾向となり、318ppbとなった。バックグラウンドレベルである気象庁の岩手県の綾里観測所は、1999年の年平均濃度が315ppbであり、その差は2ppbであった。この濃度差は都市部における人為的発生源の影響があると思われる。世界各地で測定されている実測値から全球平均濃度は約312ppbで、年増加率は約0.6ppb/年であるとされている。綾里は観測開始年である1990年より7ppb程度の増加となっており、地球規模で増加傾向にあると考えられる<sup>1)</sup>。

表1 N<sub>2</sub>Oの経年変化 (95-99年度)

	(ppb)
	年平均
95年度	317
96年度	316
97年度	314
98年度	318
99年度	317

#### (2) 経月変化

95-99年度の全データの月別平均値を表2に示す。3月から7月は317ppbで一定で、10月と1月に濃度が低くなった。年間の濃度差は4ppbであった。春と夏に発生量があり季節変動があるとしている例<sup>6)</sup>や、はっきりとした季節変化が見られなかった例<sup>7)</sup>などが報告されているが、今回の月別平均値の結果では、はっきりと

した季節変化の特徴は得られなかった。このように平均値でみると月別の濃度の差はみられないため、変動係数を用い、各月内の濃度のばらつきの大小を比較した(図1)。全データの平均の変動係数は2.31%であった。月別の変動係数では最大値は4月の3.12%で最小値は3月の1.65%となり、月内変動においては濃度にややばらつきがあるのがわかった。このばらつきの要因については(4)で述べる。

表2 N<sub>2</sub>Oの月別平均値 (95-99年度)

	(ppb)
4月	317
5月	317
6月	317
7月	317
8月	316
9月	316
10月	314
11月	317
12月	316
1月	315
2月	318
3月	317

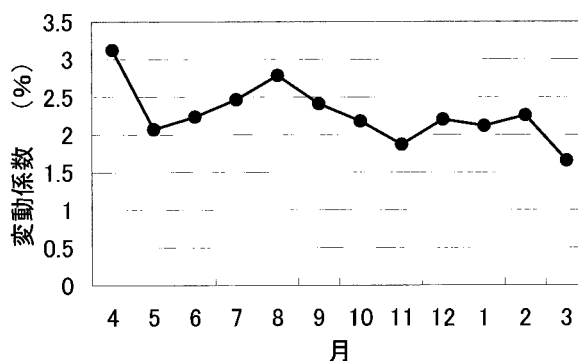


図1 N<sub>2</sub>Oの月別変動係数 (95-99年度)

#### (3) 日変化

95-99年度の全データの日変化を図2に示す。夜にかけて次第に濃度が上昇し、21時にピークを示し、その後人為活動とともに濃度は急激に下がり、14時頃に最低を示す、V字のパターンとなった。日変化パターンについて鶴田ら<sup>7)</sup>やCiceroneら<sup>8)</sup>の明け方高くなるパターンや明け方に低くなるパターンがある。その理由と

して局地的な発生源により起こるとしているが、これらは森林土壌の自然発生源について述べたものであった。また気温変化による濃度変動としている例<sup>4)</sup>や機器の感度等によるものとする例<sup>9)</sup>があるが、今回の測定結果からもそのようなことがいえるのかを検討するため、96-99年度の風速の日変化と比較してみた(図3)。これを見ると0時から明け方にかけて風は安定した速度で、夜明けとともに強くなりはじめ、15時頃に日の最大風速となり再び弱くなっていくパターンとなった。風速は昼間の気温上昇とともに強くなる。そのため大気が不安定となり、大気の拡散が起こる<sup>10)</sup>。このような風速の希釈効果によりN<sub>2</sub>Oは14時頃に最低を示す日変化パターンになったのではないと思われる。

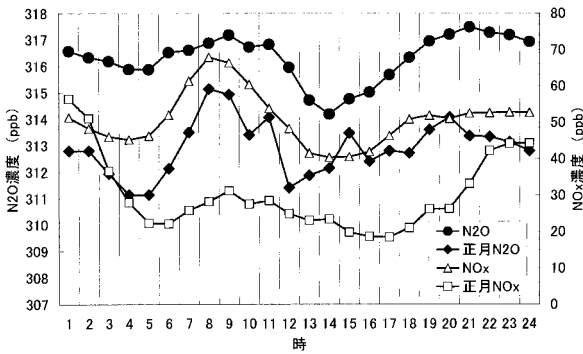


図2 N<sub>2</sub>OとNO<sub>x</sub>の日変化 (95-99年度)

燃焼による発生源があるものと考えられる。

国内のN<sub>2</sub>O総排出量は60-94千トン/年で、人為発生源は27-47千トン/年とされている。その内訳は固定発生源である燃焼施設が5.7-20千トン/年、移動発生源は18千トン/年、ごみ、汚泥焼却が2.2-5.7千トン/年と推計されている<sup>11)</sup>。

一方、都内のN<sub>2</sub>O排出量は2000トン/年で、運輸部門、廃棄物焼却の割合が1:1である。中でも燃焼に起因して発生する場合がほとんどであるとし、特に自動車の割合が大きいとしている<sup>3)</sup>。自動車の一般の走行状態では10ppm前後の濃度が排出されるとしている例<sup>12)</sup>等からN<sub>2</sub>Oもの発生に多少の影響を与えているものと思われるが、都内交通量<sup>13)</sup>とN<sub>2</sub>O濃度の日変化からははっきりした相関がみられなかった。

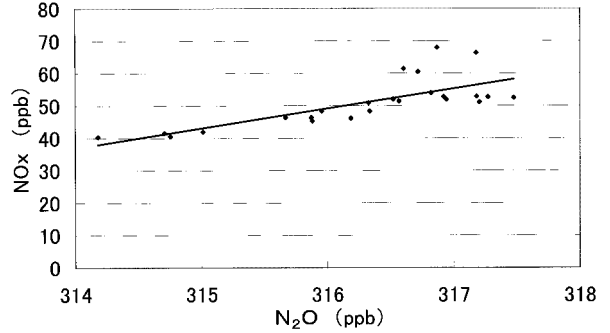


図4 N<sub>2</sub>OとNO<sub>x</sub>の相関 (95-99年度)

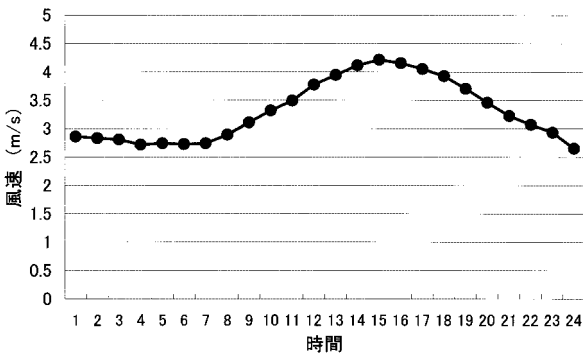


図3 風速の日変化 (96-99年度：環研)

燃焼から生成されるNO<sub>x</sub>の日変化を図2に示す。N<sub>2</sub>OおよびNO<sub>x</sub>の二物質とも類似したパターンとなった。

二物質の相関を95-99年度の日変化データを元にして図4に示す。N<sub>2</sub>O (X: ppb) とNO<sub>x</sub> (Y: ppb) の間に

$$Y = 6.1176X - 1884 \quad (R^2 = 0.5516 \quad n = 24)$$

の関係式が得られた。相関係数はR<sup>2</sup>=0.5516となり、両物質には正の相関があった。2つの物質に関連する

都内のN<sub>2</sub>Oの排出はそのほとんどが、燃焼によるものといわれているが、自動車等の移動発生源がN<sub>2</sub>Oの日変化に影響を与えているのかをみるために、自動車等の影響が少ないと思われる正月(95-99年度の1月1日~3日)の日変化と95-99年度全データの日変化をそれぞれの物質で比較してみた(図2)。日変化の中でN<sub>2</sub>Oの正月と通常日の差は最大で5ppbあり、平均で3ppbの差があった。またNO<sub>x</sub>は日変化の中で最大で40ppbの差があり、平均で21ppbの差があった。両物質とも社会活動に伴い、濃度が高くなる傾向になった。また、NO<sub>x</sub>の日平均値は正月が30.1ppb、通常が50.9ppbであった。これは通常の4割減であり、人為的発生による影響が大きいことがわかった。一方、N<sub>2</sub>Oの日平均値は正月が313ppb、通常が316ppbであった。これは通常の1割減であった。都内のN<sub>2</sub>Oの排出量は固定発生源と移動発生源が1:1の割合であるが、NO<sub>x</sub>のような明確に要因が特定される物質と違い、N<sub>2</sub>Oは自然寄与の高い

物質であり、人為的寄与は10%を越えないものとされているため<sup>14)</sup>、大気濃度中のN<sub>2</sub>Oの人為的寄与の特徴を捉えにくい。自動車との関連は不明確な点もあるが、NO<sub>x</sub>との相関はあるということが確認できた。

(4) 高濃度現象

(2)で述べたように、月によって変動係数が異なるということから、各月の高濃度出現が変動係数に影響を与えていると思われる。本項では高濃度現象について解析した。ここでは340ppb以上の値を高濃度とした。

全データの出現頻度分布を図5に示す。315-320ppbに頻度が多い対数正規分布になった。340ppb以上の高濃度値が331個検出され、これは全体の約0.9%である。高濃度の頻度を月別に示したものを図6に示す。

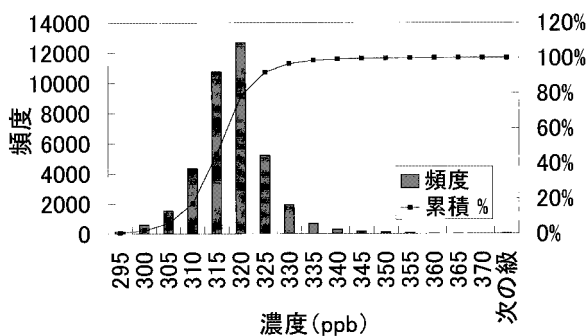


図5 N<sub>2</sub>Oの頻度分布 (95-99年度)

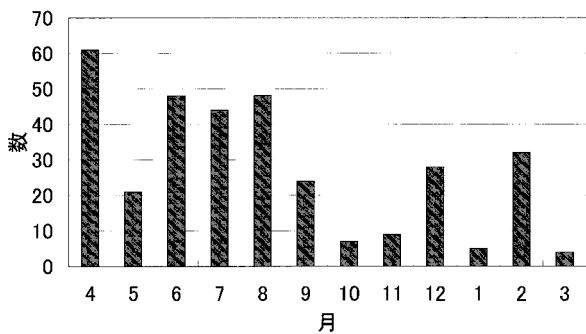


図6 月別の高濃度頻度 (95-99年度)

これをみると、主に春季から夏季に高濃度が多くみられた。4月は高濃度の頻度が全体の18%を占め、また6-8月は全体の43%であった。

この要因として気象的な影響が考えられるため、風速と風向について検討した。高濃度時の風速の頻度分布を示したものを図7に示す。SO<sub>2</sub>等の汚染物質同様、2-3m/s時の比較的風の弱い時に高濃度が出る場合が多かったが、風の強い場合でも高濃度は見られた。

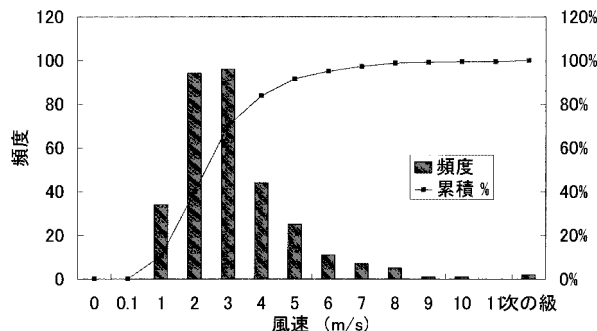


図7 N<sub>2</sub>Oの高濃度出現時における風速の頻度分布

高濃度の出現を風向別にみたものが図8である。SEが全体の10.6%、SSEが24.5%、NNWが12.7%であった。主にS系の風が多く、全体の48%と約半数となった。

また測定地点の95-99年度の主風向を図9に示す。主にN系(49%)とS系(24%)の風で、NNWは19%、

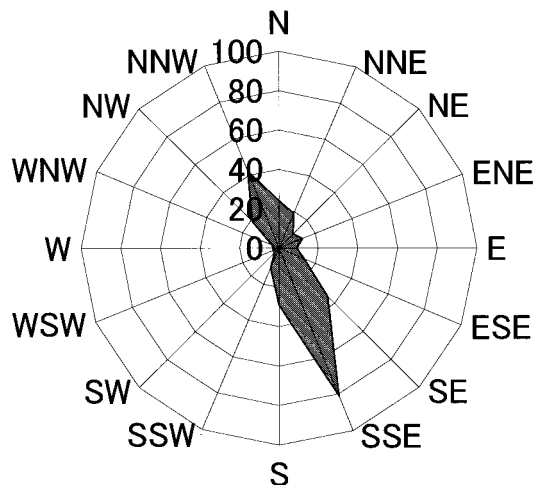


図8 N<sub>2</sub>Oの高濃度出現時の風向 (数字は出現数、カーム: 1個)

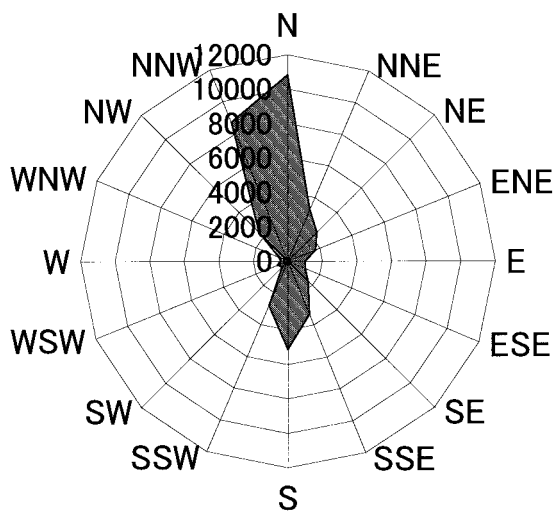


図9 環研の主風向 (95-99年度、数字は出現数、カーム: 88個)

Nは23%、Sが11%であった。このことから本測定局の主風向はN系が多いが、高濃度時はS系の特にS-SE間の場合が多かった。

風向別に平均濃度をそれぞれに出したものが図10である。これをみると95-99年度ではSSE、SE等のS系の風の場合、他の風向よりも比較的高濃度になることがわかった。6-8月はS系の風向の頻度が多かった。これらのことから、当測定局は他の風向よりも、S系の風の場合に高濃度が出現しやすい結果が得られた。

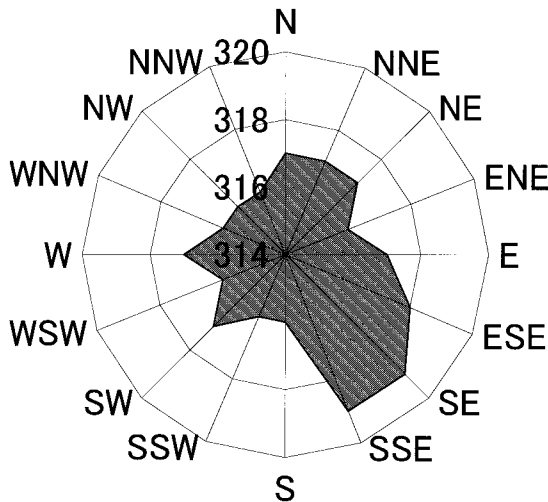


図10 N<sub>2</sub>Oの風向別平均濃度  
(95-99年度、数は濃度：ppb、カーム：88個)

当所ではN<sub>2</sub>O排出濃度の高いごみ焼却炉、汚泥焼却炉、ボイラーについて排出量や排出原因を調査し、ごみ焼却炉では10-20ppm、汚泥焼却炉では約100ppmという高濃度が排出されていることを報告している<sup>15)16)</sup>。本測定局の場合、夏季のS系の風が多い時は、固定発生源とされている下水処理施設等の影響を強く受けると思われる。一方、4月はN系とS系の風向頻度が他の月よりも多かったが、N方向にはそのような大規模な施設は見つからなかった。

また、都内における大気中のN<sub>2</sub>Oの測定において交差点に近いほど濃度が高く、自動車からの放出の可能性があると述べている例<sup>17)</sup>がある。しかし、高濃度の出現を時間別に見ると朝夕の交通量が多い時間帯ではなく、また風向はSSE、SEの頻度が高く、主風向であるN系の高濃度はそれほど多くなかった。自動車からのN<sub>2</sub>O排出量については、車両別や走行スピード等で異なってくる<sup>12)18)19)</sup>。そのため自動車等の移動発生源との明確な相関は得られなかった。

またN<sub>2</sub>O排出濃度が大きいとされているごみ焼却、汚泥焼却炉、ボイラー等の固定発生源についても報告<sup>20)24)</sup>があり、それらの測定結果等を踏まえ、今後のN<sub>2</sub>O等の温暖化対策を進めていく必要がある。

N<sub>2</sub>Oは二酸化炭素のような大きな変動がなく、年増加率も低い。自然寄与の割合が大きく、また二酸化炭素に比べるとその濃度は約1/1000であるが、単位濃度当たりの温室効果は約270倍とされており<sup>20)</sup>、無視できない。

また産業革命以降の人為的活動の増加と共に確実に蓄積されている。なかでもごみ焼却、汚泥焼却等の固定発生源などから高濃度が測定されている。また、移動発生源である自動車からもわずかではあるが濃度が確認されている。今後の自動車のNO<sub>x</sub>削減対策との関連を加えて対策を講じていくべきである。対策効果を把握するためにも大気濃度の変動には注目していくことが望まれる。

#### 4 まとめ

過去6年にわたるN<sub>2</sub>Oのモニタリングを行った結果、以下のことが得られた。

- (1) 95-99年度の5年間の平均濃度は約316ppbで、平均増加率は0.62%であり、わずかではあるが増加傾向がみられた。しかし各年をみるとその増加は一定ではなかった。
- (2) 経月変化では年間の濃度差が4ppbとなり、大きな濃度差はなかったが、月別の変動係数には差があることがわかった。月別変動係数の最大値は4月の3.12%で最小値は3月の1.65%であった。全データの平均の変動係数は2.31%であった。
- (3) 日変化では21時をピークに明け方から午後にかけて濃度が下がり、14時に最低を示すパターンとなった。これは15時頃をピークにする風速の日変化の逆の形となり、風速の希釈効果による大気濃度の変動が考えられる。

N<sub>2</sub>OおよびNO<sub>x</sub>の日変化は二物質とも類似したパターンとなったN<sub>2</sub>O (X : ppb) とNO<sub>x</sub> (Y : ppb) の間に

$$Y = 6.1176X - 1884 \quad (R^2 = 0.5516 \quad n = 24)$$

の関係式が得られた。相関係数はR<sup>2</sup>=0.5516となり、両物質には正の相関があり、2つの物質に関連する燃焼による発生源があるものと考えられるが、NO<sub>x</sub>のよ

うな自動車等の移動発生源との関連は得られなかった。  
(4) 340ppb以上の高濃度は全体の約0.9%の頻度であった。特にS-SE間のS系の風で、2-3m/sの比較的風の弱い時に出現することが多かった。また春季から夏季にかけて高濃度の頻度が見られた。4月は全体の18%であり、6-8月は43%を占めた。夏季はS系の風による下水処理施設等の発生源の影響があると考えられる。一方、4月はN系の発生源は特定できなかったが、S方向に位置する固定発生源の影響を強く受けたものと思われる。

#### 参考文献

- 1) 気象庁：気候変動監視レポート2000, pp.29~30(平成13年度)
- 2) 陽捷行：土壌および大気環境の変動とのかかわり, 大気汚染学会誌, 第29巻, 第3号, pp.A55~A64(1994)
- 3) 東京都：東京都地球温暖化防止対策地域推進計画, pp.2~8(平成7年5月)
- 4) 早福正孝：地球環境影響に関する調査研究(第3報)ー東京都における大気中の亜酸化窒素(N<sub>2</sub>O)のモニタリング結果ー, 東京都環境科学研究所年報, pp.275~279(1995)
- 5) 東京都環境科学研究所：地球環境関連データ集(平成4~6年度)~(11年度)
- 6) R.D.Bowden, J.M.Melillo, P. A. Steudler, J. D. Aber:Effects of nitrogen additions on annual nitrous oxide fluxes from temperate forest soils in the northeastern United States, J.Geophys.Res., 96(D5), 9321-9328(1991).
- 7) 鶴田治雄：つくばにおける大気中のN<sub>2</sub>O濃度の連続測定, 第36回大気環境学会講演要旨集, pp.461(1995)
- 8) R. J. Cicerone, J. D. Shetter, D. H. Stedman, T. J. Kelly, and S. C. Liu : Atomspheric N<sub>2</sub>O; Measurements to Determine Its Sources, Sinks, and Variations, J. Geophys. Res., 83(C 6), 3042-3050, (1978).
- 9) R. E Terry, R. L. Tate., J. M. Duxbury : Nitrous Oxide Emissions from Drained, Cultivated Organic Soils of South Florida, J. Air Poll. Contorol Assoc., 31, 11, 1173-1176(1981).
- 10) 近藤次郎：大気汚染ー現象の解析とモデル化ー, pp.57~66, pp.245~266, コロナ社, (1995)
- 11) 泉川碩雄：一酸化窒素のモニタリング手法, 第39回大気環境学会要旨集, pp.176~177(1998)
- 12) 平木隆年：都市大気中N<sub>2</sub>O濃度におよぼす自動車排ガスの影響, 兵庫県公害研究所研究報告, 第12号, pp.1~7(1980)
- 13) 東京都：都内自動車交通量調査報告書(平成11年度), pp.14~19(平成12年12月)
- 14) 玉置元則：大気中のN<sub>2</sub>Oの発生源と除去過程, 環境技術, vol. 12, No8, pp.23~33(1983)
- 15) 岩崎好陽：固定発生源から排出されるN<sub>2</sub>Oに関する検討, 東京都環境科学研究所年報, pp.25~28(1990)
- 16) 岩崎好陽：固定発生源からのN<sub>2</sub>O排出状況とその生成に関する考察, 大気汚染学会誌, 第27巻, 第2号, pp.85~91(1992)
- 17) 上野広行：都内における大気中亜酸化窒素の測定結果について, 東京都環境科学研究所年報, pp.184~187(1993)
- 18) 岩崎好陽：自動車から排出されるN<sub>2</sub>O測定結果, 第31回大気環境学会講演要旨集, pp.483(1990)
- 19) 阿部次雄：メタン・亜酸化窒素の放出源及び放出量の解明に関する研究, 運輸省交通安全公害研究所特定研究成果集, pp.10.1~10.5(1994)
- 20) 渡辺征夫：高負荷型屎処理施設から排出される亜酸化窒素, 大気汚染学会誌, 第27巻, 第6号, pp.225~233(1994)
- 21) 安田憲二：都市ごみ焼却にともなう亜酸化窒素の排出挙動, 廃棄物学会論文誌, Vol. 7, No. 1, pp.36~41, (1996)
- 22) 谷川昇：清掃工場における亜酸化窒素の排出特性, 東京都清掃研究所研究報告, pp.191~195(1995)
- 23) 谷川昇：清掃工場における亜酸化窒素の排出特性(第2報), 東京都清掃研究所研究報告, pp.157~159(1997)
- 24) 上野広行：ボイラーからの亜酸化窒素及びメタンの排出状況, 東京都環境科学研究所年報, pp.81~183(1993)