

発生源における NO₂/NO_x 比率調査 (その1)

石井 康一郎 上野 広行 内田 悠太 秋山 薫

横田 久司 三好 猛雄* 鈴木 智絵**

(*現・国立環境研究所 **非常勤研究員)

1 はじめに

近年、各種発生源対策によって環境中の窒素酸化物 (NO_x=NO+NO₂) 濃度が低減しているが、一方でその中の二酸化窒素 (NO₂) 濃度の割合が徐々に上昇している¹⁾。この上昇原因の一つとして発生源側の変化が考えられる。特に自動車では、ディーゼル車からある割合で NO₂ が排出されるが、ディーゼル車走行規制以後に導入された粒子状物質 (PM) 用後処理装置に用いられる酸化触媒の酸化作用のため、排出ガス NO_x 中の NO₂ の割合が増加している^{2,3)}と報告されている。しかし、単体規制の強化により最新規制車の NO_x 排出量は大幅に低下しているため、自動車排出ガス全体として考えると、環境に排出される NO₂ の総量や NO₂/NO_x が増加しているかどうかは不明であり、実際に発生源における調査によって解明することが必要である。今回、走行中の自動車排出ガスを対象として、周辺環境濃度の影響を処理しやすい自動車専用トンネルで調査を行い、過去に実施したデータ^{4,5)}と比較した結果を含めて報告する。

2 調査方法

調査は東京都道環状 8 号線の自動車専用トンネル内 (外回り) で 2010 年 12 月 16 日 (木) から 21 日 (火) まで行った。

調査方法は前回と同様、入口と換気塔内にサンプリング点を設置して、NO_x、一酸化炭素(CO)、微小粒子状物質(PM_{2.5})、アルデヒドおよび揮発性有機化合物(VOC)の測定および採取を行った。(トンネル入口および出口でのオゾン(O₃)濃度はほぼゼロであり、トンネル内での NO₂ 生成を無視できた。) PM_{2.5}, VOC 及びアルデヒド (DNPH 法) は 16 日～ 20 日の朝 10 時から 18 時まで 2 時間毎に大気試料を採取し分析に供した。他の汚染質は調査期間中連続測定した。

トンネル内のサンプリング地点を図 1 に示した。トン

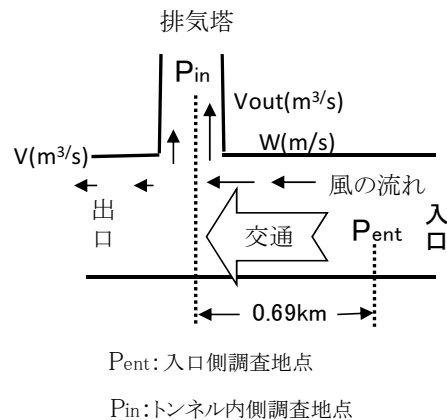


図1 調査トンネルの概要(断面図)

ネル出口での空気流量($V: \text{m}^3/\text{s}$)は (1)式⁵⁾により計算した。(風向は入口から出口方向にプラスにとる。)

$$V = V_{\text{OUT}} + W \times D \quad \dots\dots(1)$$

ここで、 V_{OUT} は排気塔排風量(m^3/s)、 W は超音波風速計で測定したトンネル内の風速(m/s)、 D はトンネル断面積で 39m^2 である。

車種別 (大型車、小型貨物車、小型乗用車) 交通量、トンネル内風速及び換気ファンの運転状況はトンネル管理事務所から提供を受けた。

3 結果

(1) NO, NO₂ 濃度と NO₂/NO_x (Vol%)比率の時間変化

トンネル走行自動車に由来する排出ガス中の大気汚染物質濃度($C: \text{ppm}$)を次式により求めた。

$$C = C_{\text{ex}} - C_{\text{in}} \quad \dots\dots(2)$$

ここで、 C_{ex} は換気塔内 (出口) での濃度、 C_{in} は入口での濃度である。

図 2 に、調査期間中の自動車由来 NO, NO₂ 濃度から計算した NO₂/NO_x 比率 (Vol%) 及び車種別交通量を示した。

調査期間の NO₂/NO_x 比率の変化は、おおよ次の 3 つに区分できる。①調査開始の木曜日 10 時から金曜日

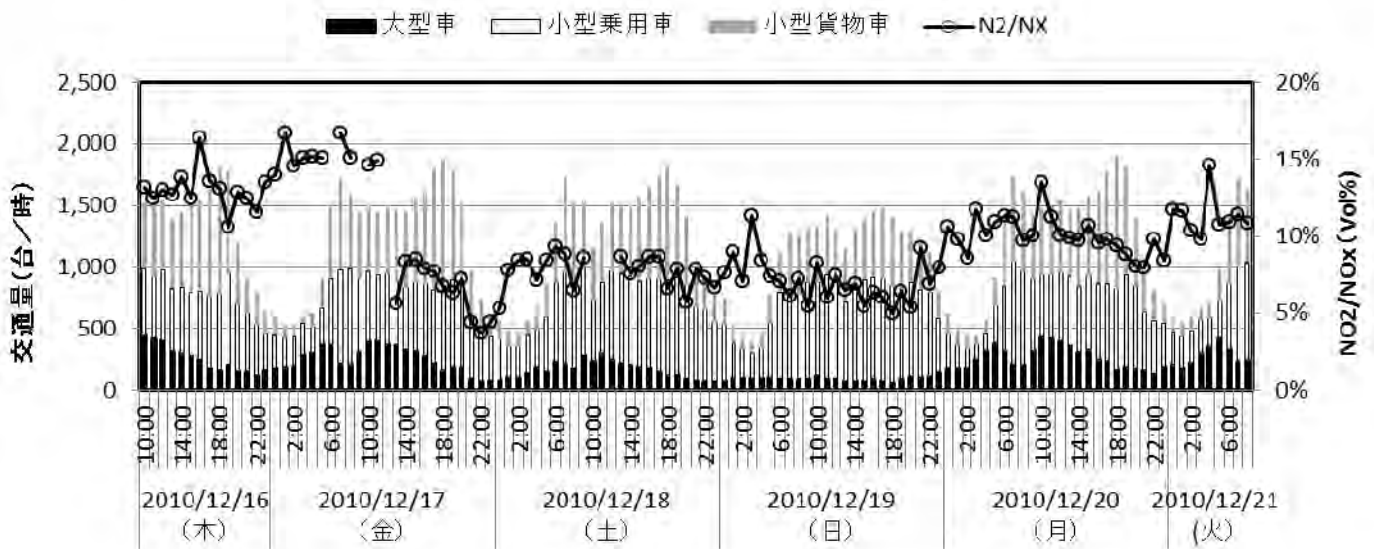


図2 NO₂/NO_x比率と車種別交通量の時間変化 (2010年)

11時まで (10%~17% : 平均 15% (σ :3.4%))、②金曜日 12時から日曜日 23時まで (4%~9% : 平均 7% (σ :1.9%))、③月曜日から火曜日まで (8%~15% : 10% (σ :2.7%)) である。日曜日は平日より総交通量で 90%程度、大型車台数では 37%程度に減少、土曜日は総交通量で同程度に、大型車台数では 65%程度にそれぞれ減少していた。NO₂/NO_x 比率の変化傾向は、車種別交通量、特にほとんどがディーゼル車である大型車の交通量の変化とよく対応している (小型乗用車はほとんどガソリン車であり、

小型貨物車はガソリン車とディーゼル車が混在している)。しかし、平日の4日間は総交通量及び大型車交通量が各日同程度であるにも拘わらず、NO₂/NO_x 比率が異なることについては、現時点では説明がつかない。比率は車速によって大きく変化する⁶⁾ことから走行速度との関係から考察することが必要と思われる。このように平日間のデータには明らかな違いがあるので、以後、平日全体の平均値ではなく、平日データを2群として議論する。

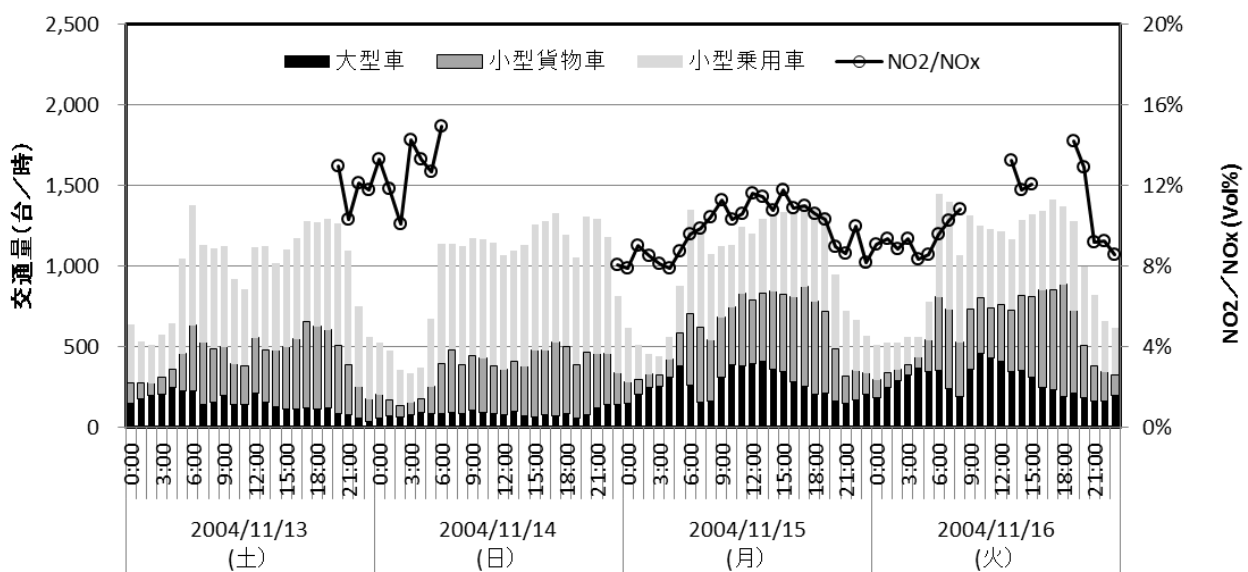


図3 車種別交通量とNO₂/NO_xの時間変化 (2004年)

NO_x (NO₂) 濃度の時間平均値は、①木曜日 10 時～金曜日 11 時で 0.43 (0.062)ppm, ②金曜日 12 時～日曜日 23 時で 0.31 (0.022)ppm, ③月曜日～火曜日に 0.43 (0.044) ppm であり、大型車交通量の少ない土曜日と日曜日を含む期間②は平日に比べいずれの濃度も低かった。

比較のため 2004 年に行った調査データから同様のグラフを作成し、図 3 に示した。前回調査では、日曜日には出口側から空気が流入したため、NO_x 濃度を欠測とせざるを得なかったが、平日 (月曜日から火曜日朝まで) の平均 NO₂/NO_x 比率は 9.9% (σ:1.3%) であり、また、NO_x (NO₂) 濃度の時間平均値は 0.57 (0.056)ppm であった。前回の比率は、今回調査の③月曜日～火曜日とほぼ同程度であり、①木曜日～金曜日と比較して 5% 程度低下していた。また、NO_x (NO₂) 濃度は 75% に低下しており、これは最新規制車への代替が進んだためと思われる。

(2) 排出量からみた NO₂/NO_x(W%)比率

トンネルから排出される自動車排出ガス由来の NO, NO₂ 量は、(1) 式で求めたトンネル内流量に(2)式で求めた各濃度を乗じて(3)式により求めることができる。

$$Q_{NO,NO_2} = V \times C_{NO,NO_2} \dots\dots(3)$$

ただし、NO, NO₂ 濃度は μg/m³ に換算した。

大型ディーゼル車 1 台あたりの NO_x 排出量は、ガソリン乗用車のそれに比較して大きい(車速 20km/h で 50 倍程度)⁷⁾ ので、毎時間の排出量は大型車交通量に依存すると考えられる。両者の散布図を図 4 に示したが、高い相関を示して

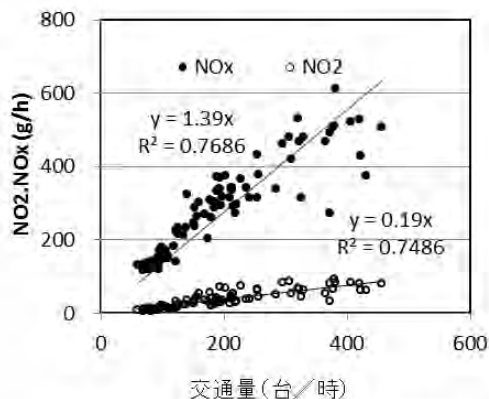


図4 NO_x,NO₂排出量と大型車交通量 (2010年)

いる。回帰直線の傾きから大型車の排出係数 (EF) を求めると、EF (NO +NO₂) は 2.01g/km、EF(NO₂) は 0.28g/km となった。(トンネル長さ 0.69km で除して 1km に換算した。) また、NO₂/NO_x の重量比率(W%)を 1 時間毎のデータから求

めると、木曜日～金曜日で 18% (σ: 3.5%)、金曜日～日曜日で 8.9% (σ: 2.0%)、月曜日～火曜日に 12.8% (σ: 1.8%) であった。

2004 年のデータから同様の手順で図 5 の散布図を作り、2 つの排出係数および NO₂/NO_x (W%) を求めたところ、EF(NO+NO₂) が 3.33g/km、EF(NO₂) が 0.48g/km、重量比率は月曜日～火曜日の平均で 14.3% (σ: 1.6%) であった。

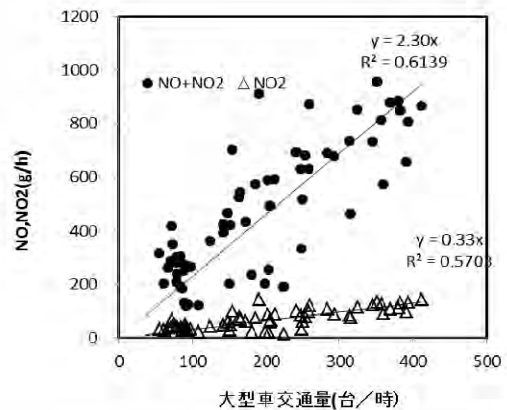


図5 大型車交通量とNO, NO₂排出量 (2004年)

2010 年の結果は、2004 年に比べ大型車の EF(NO+NO₂) が 60%、EF(NO₂) が 58% に低下していた。重量比率は、14.3% から 12.8% (月曜日～火曜日)、18% (木曜日～金曜日) へと変化が見られた。

(3) NO₂/NO_x (Vol%)比率と大型車混入率

自動車由来の NO₂, NO 濃度は大型車排出の寄与が大きいことから、大型車混入率 (大型車数/総交通量) に注目し、濃度比率との関係から大型車の排出比率の推定を試みた。両者の散布図を図 6 に示したが、NO₂/NO_x 比率に影響する走行速度を一定の範囲に収めるため、時間交通量の範囲がほぼ一定の 2 種類のデータ群 (○、●印) を使用した。1 時間の交通量が 1400～1550 台である ●印のデータ群を使い、(4) 式の比率と混入率の相関式を得た。(決定係数は 0.7847 であった。)

$$R = 0.32M + 0.04 \dots\dots(4)$$

ここで R は排出比率、M は大型車混入率である。(4) 式は大型車の排出比率を r₁、小型貨物車と小型乗用車の平均排出比率 r₂ とした (5) 式を変形したものであるため、切片 0.04 は r₂ と考えることができる。

$$R = r_1 \times M + r_2 \times (1 - M) \dots\dots(5)$$

しかし、M=1 の時に大型車の排出比率 (r₁) が得られるわけではない。大型車の NO_x 排出係数は小型車のそれに比べ

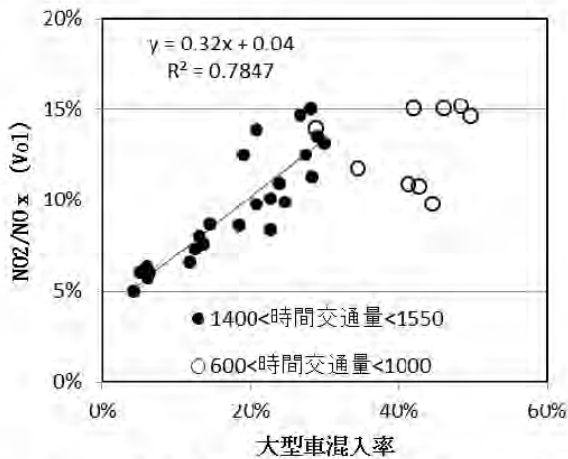


図6 大型車混入率とNO₂/NO_x比率 (2010年)

大きいため、大型車混入率(M)が大きい領域では、Rは大型車の比率 r_2 で決まり、一定値となる。この値が大型車の排出比率の推定値と考えられる。直線関係のある範囲の混入率 ($M < 30\%$) よりやや高い $M=40\%$ の時のRを求めると13%程度となる。また、○印は時間交通量600~1000台のデータであるが、この平均値が走行量の少ない(車速の高い)時の大型車の排出比率と考えられ、Rの平均値は13% ($\sigma : 2.2\%$)となる。

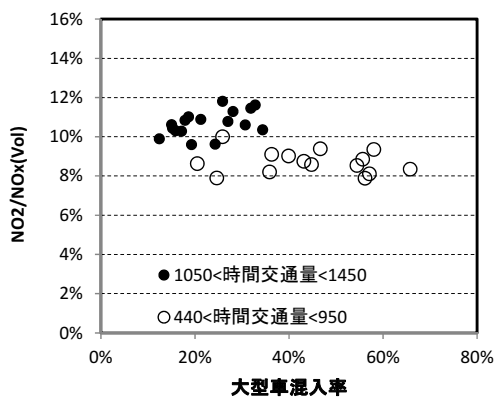


図7 大型車混入率とNO₂/NO_x比率 (2004年)

2004年の結果を図7に示したが、混入率と濃度比率との間により相関は得られなかった。調査当時の大型車と小型車のNO_x排出係数の違いは2010年よりさらに大きかったため、図中●より更に大型車混入率の低いデータを使用しないと直線関係が得られないと思われる。そこで、大型車混入率の高い領域で平均をとり、走行量の多い場合(●)11%、少ない場合(○)9%のNO₂/NO_x (Vol%)比率を得た。

4 まとめ

自動車専用トンネル内で排出ガスを調査した結果、自動車由来のNO_x中のNO₂の平均比率 (Vol%) は、①木曜日10時から金曜日11時までで平均 15%、②金曜日12時から日曜日23時までで平均 7%、③月曜日から火曜日までで平均 10%であり曜日によって変化があった。平日の間で比率が相当に異なることについては、今後更に調査を進め実態を明らかにする必要がある。

平日の比率は、2004年 (9.9%) と今回調査との間で、同程度で推移または5%程度上昇したと言える。また、両年間で大型車のEF(NO+NO₂)及びEF(NO₂) は60%程度に低減していた。また、大型車(ディーゼル車)の排出ガス中のNO₂/NO_x(Vol%)を推定したところ、前回9~11%、今回13%であり、若干上昇していると考えられた。

調査実施に当たりご配慮いただいた、東京都建設局第三建設事務所及び財団法人東京都道路整備保全公社の関係者の方々に感謝いたします。

参考文献

- 1) 東京都環境局環境改善部：大気汚染常時測定局測定結果 (平成21年度年報) p.429 (2010)
- 2) 横田久司、田原茂樹、上野広行、坂本和彦：連続再生式DPFの排出ガス低減効果等について、エアロゾル研究, 18(3) pp.185-194 (2003)
- 3) 木下輝昭、小谷野眞司、岡村整、横田久司：大型ディーゼル車への酸化触媒装着によるNO₂排出量比率の変化について、東京都環境科学研究所年報2007, pp.29-33
- 4) 星純也、石井康一郎、井原真理子、小島茂喜、桜井健郎、森口祐一、田邊潔、若松伸司：自動車トンネルを利用した排出ガス調査(Ⅲ)——一般道トンネルを利用した調査結果——東京都環境科学研究所年報 2002, pp.12-19
- 5) 上野広行、石井康一郎、星純也、栗田恵子、天野冴子、三矢律子、木下輝昭、中川智史、井原真理子：自動車トンネル調査による排出ガス規制の評価、東京都環境科学研究所年報 2004, pp.27-32
- 6) 石井康一郎、飯田靖雄：ディーゼルトラックから排出される二酸化窒素(NO₂)について、大気環境学会誌, 35 (1) pp.1-11(2000)
- 7) 東京都環境局：平成17年度及び平成22年度における都内自動車排出ガス量等算出調査委託報告書 (平成19年3月)