

沿道における二酸化窒素濃度の予測に用いるNO_x変換式

A NO_x conversion model for estimating NO₂ concentration near highways

山田俊哉* 大西博文** 大城 温***
Toshiya Yamada*, Hirofumi Ohnishi**, Nodoka Oshiro***
小根山裕之**** 百瀬成一*****
Hiroyuki Oneyama**** Seiichi Momose*****

ABSTRACT : When a NO₂ concentration is estimated near highways, the first step is to estimate a NO_x concentration and the second step is to convert the NO_x concentration into the NO₂ concentration by a NO_x conversion model. It is an issue to consider regional characteristics in the model, because the model is prepared by a regression analysis using data throughout Japan. Then we propose a model near the highways which includes the NO_x concentration of regional background as a variable in order to consider the regional characteristics related to the NO_x conversion. Details are described below.

KEYWORDS : a NO_x conversion model, regional characteristics,
a NO_x concentration of regional background, highways

1. はじめに

二酸化窒素 (NO₂) は、自動車排出ガスの一成分であり、自動車から排出されるNO_xの全NO_x量に占める割合が大きいことから、道路事業の環境影響評価においても予測・評価の対象とすることとされている。NO₂の予測は、当該道路を走行する自動車から排出される窒素酸化物 (NO_x) 総量から沿道の予測地点におけるNO_xの拡散濃度を予測し、このNO_x濃度をNO₂濃度に変換して行う。この変換に使用する式が、NO_x変換式である。

従来のNO_x変換式は全国の一般大気測定局、自動車排出ガス測定局のそれぞれの年平均値データから導出された回帰式に基づいて設定されていた。しかし、全国データから求めたNO_x変換式は、全国の平均的なNO_x変換を示すものであることから、地域性を考慮したNO_x変換式の設定が望まれてきた。

そこで、本稿ではNO_xのバックグラウンド濃度に着目して、当該道路を走行する自動車から排出されるNO_xからNO₂への変換程度について分析したところ、NO_xのバックグラウンド濃度の高い地域と低い地域とでは変換に有意な差が見られた。筆者らは、このことをNO_x変換式に含まれるパラメータに反映させる方法を提案する。これにより、地域のNO_xのバックグラウンド濃度に応じたNO_xからNO₂への変換が可能となり、この観点から地域性を考慮できることになる。

* 建設省土木研究所環境部交通環境研究室主任研究員
Public Works Research Institute
** 建設省土木研究所環境部交通環境研究室室長
*** 建設省土木研究所環境部交通環境研究室研究員
**** 前建設省土木研究所環境部交通環境研究室研究員
***** 株式会社環境技術研究所
Environmental Technical Laboratory, Ltd

2. 従来のNO_x変換式と課題

道路沿道におけるNO₂濃度の予測・評価の流れは、図-1のとおりである。自動車から排出されるNO_xをブルーム式・パフ式の大気拡散式により拡散計算し、NO_xの道路寄与の年平均値を予測した後、NO_x変換式によりNO₂濃度の年平均値に変換する。これにNO₂のバックグラウンド（以下「BG」という）濃度を加算し、年間98%値に換算して評価する。

従来のNO_x変換式は、 $Y = aX^b$ という式形であり、パラメータa及びbは、全国の常監局データから算出している。従来のNO_x変換式は道路寄与のNO_xをNO₂に変換するものであることから、全国の一般監視測定局（以下「一般局」という）及び自動車排出ガス測定局（以下「自排局」という）の年平均値を用い、自排局の年平均値からその自排局と同一市町村内にある全ての一般局の年平均値の平均値を差し引き、道路の影響と考えられるNO_x及びNO₂の年平均値（以下「道路寄与分」という）を算出した後、上記式形による回帰分析を行って求める。1977年～1985年の9年間の常監局データにより求めたNO_x変換式は、(1)式のとおりである。

$$[NO_2] = 0.0801[NO_x]^{0.701} \quad \dots\dots\dots(1)$$

ただし、[NO₂]：道路寄与NO₂の年平均値(ppm)

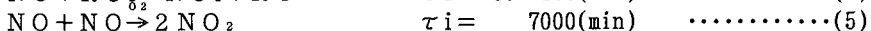
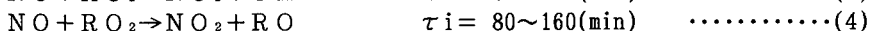
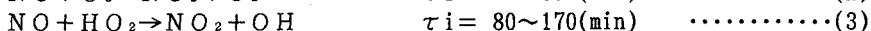
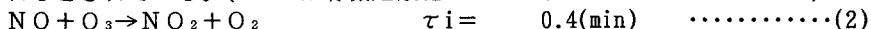
[NO_x]：道路寄与NO_xの年平均値(ppm)

このように、従来用いていたNO_x変換式は、全国のデータを対象にして求めた式であることから、全国的な平均的なNO_x変換を示すものである。これまでの調査によれば、都市部と地方部ではNO_x変換が異なるなど、地域性のあることが指摘されている。従来のNO_x変換式は、この地域性が反映されていないことが課題とされてきた。

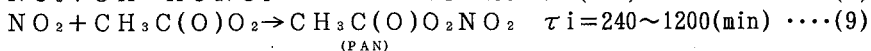
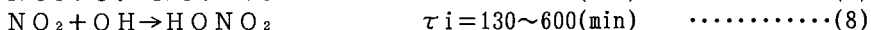
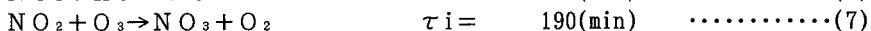
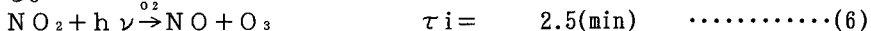
3. NO_x変換式の式形の検討

3. 1 道路沿道のNO_x変換のメカニズム

秋元(1985)¹⁾によれば、大気中に放出されたNOは、主に次の反応式によってNO₂に変換されるとされている。(RO₂は有機過酸化ラジカル、ROはオキシラジカル)



一方、生成したNO₂は、次の反応式により一部はNOに還元されたり、他の化合物に変化する。



(PAN)

反応式右側のτ_iは、ppmオーダーにおける特性時間(反応時間)である。最も早い酸化反応は、(2)式(オゾンによる酸化反応)である。他の反応は200倍以上も遅い。一方NO₂の分解反応で最も早い反応は(6)式の光分解反応であるが、(2)式に比べてやや遅い。

上記NOの酸化反応やNO₂の分解反応から、道路沿道では(2)式及び(6)式の反応が主であるとされている。また、発生源から遠方の一般環境においては、(2)式及び(6)式以外の反応が進むことから、道路沿道の反応とは異なるとされている。

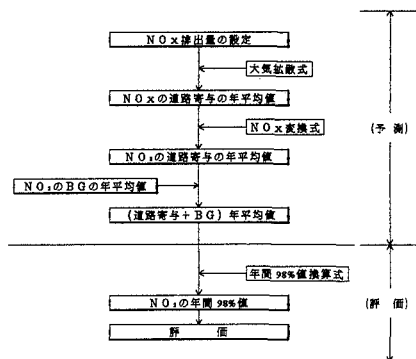


図-1 道路沿道における二酸化窒素濃度の予測・評価の流れ

3. 2 観測データの解析

上記NO_x変換のメカニズムを念頭において、1987年～1996年（10年間）の全国の常監局データを解析した。図-2は常監局データから算出した道路寄与分のNO_x年平均值とNO₂年平均值の関係図である。バラツキが大きいことから、バラツキの原因を検討する一環として、道路寄与分のデータをBGのNO_x濃度により分類した。図-3はNO_xのBG濃度を0.01ppm刻みで分類したときの道路寄与分のNO_x年平均值とNO₂年平均值の関係図である。BG濃度の低い地域では全国平均の上側に、またBG濃度の高い地域では下側に分布している。このことは、BG濃度によりNO_x変換が異なることを示唆していると考えられる。

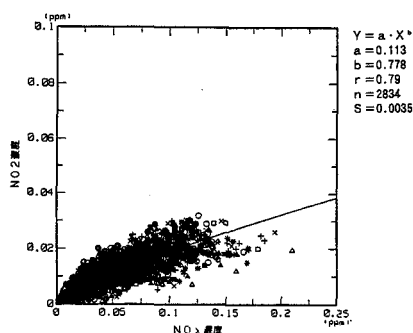


図-2 道路寄与分のNO_x年平均值とNO₂年平均值の関係

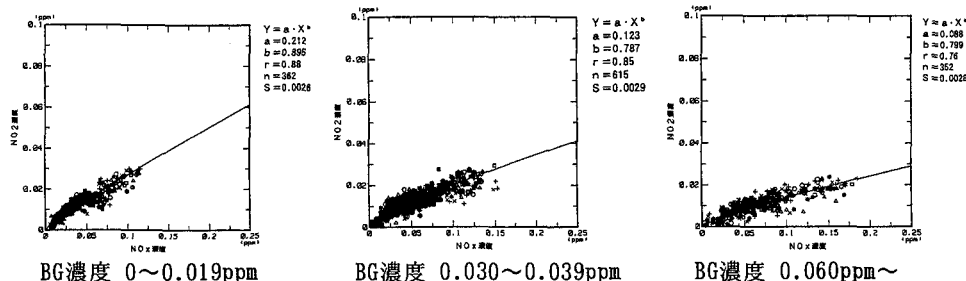
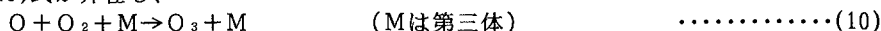


図-3 NO_xのBG濃度別の道路寄与NO_x年平均值と道路寄与NO₂年平均值の関係

前述のとおり、道路沿道におけるNO_x変換は、(2)式のオゾンによるNOの酸化反応が支配的である。この反応に必要なオゾンは一般環境から供給され、一般環境ではNO₂の分解反応からオゾンが生成されると考えられている¹⁾。例えば、(2)式と(6)式の間には次の(10)式が介在し、



これらの反応を考慮した場合のオゾンの定常濃度は次式で示される²⁾。

$$[O_3]_B \approx 1.5 \times 10^{-2} [NO_2]_B / [NO]_B \quad \dots\dots\dots(11)$$

ただし、 $[O_3]_B$: オゾンのBG濃度(ppm)
 $[NO_2]_B$: NO₂のBG濃度(ppm)
 $[NO]_B$: NOのBG濃度(ppm)

そこで、平成8年度の全国の常監局データ（年平均值）からNO₂/NOとO_x濃度（昼間の1時間値の年平均值）の関係を調べてみた（図4）。その結果、平均的な濃度において傾きはほぼ 1.5×10^{-2} となり、式(11)は概ね成り立つ。さらに、NOの代わりにNO_xを用い、NO₂/NO_xとO_x濃度の関係を調べた結果は、図5のとおりであり、比例関係が得られた。NO₂/NO_xを指標としてNO_x濃度との関係をみた結果は図6であり、NO₂/NO_xは、NO_x年平均值の増加に伴い減少する。したがって、図7のように、NO_xの年平均值の増加に伴いO_x濃度も減少する。

すなわち、NO_x濃度が増加するとNO₂/NO_xは減少し、O_x濃度も減少する。このことは、図3の解析結果を裏付けるものであり、NO_xのBG濃度が低い地域は、オゾン濃度が高くNO_x変換は促進されるが、逆の場合はオゾン濃度が低いことからNO_x変換が抑制されていると考えられる。

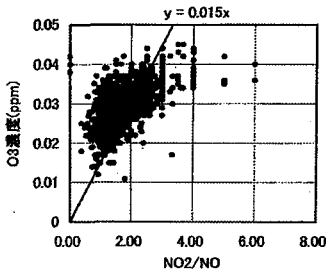


図-4 一般局のO₃とNO₂/NOの関係

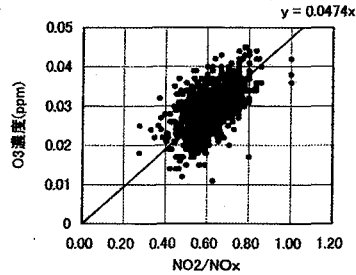


図-5 一般局のO₃とNO₂/NO_xの関係

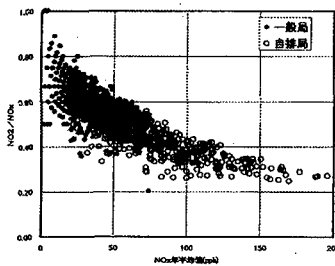


図-6 常監局のNO_xとNO₂/NO_xの関係

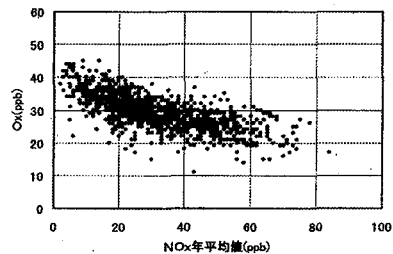


図-7 一般局のNO_xとO₃の関係

3.3 式形の検討

図-3のNO_xのBG濃度別散布図において、 $Y = aX^b$ の式形の係数a及びbを求めた結果は表-1のとおりである。係数bはほぼ一定であるが、係数aはNO_xのBG濃度が高くなるにつれ、暫時減少の傾向にある。

そこで、式形としては $Y = \alpha X^b$ を採用することとし、NO_x変換がBG濃度により異なることを踏まえ、

係数 α をNO_xあるいはNO₂のBG濃度による関数として与えることとした。検討の結果、相関の高い関数形は次の5種類である。

- ① $\alpha = a[\text{NO}_x]_{\text{BG}}^c$
- ② $\alpha = a\{1 - [\text{NO}_x]_{\text{BG}}\}^c$
- ③ $\alpha = a[\text{NO}_2]_{\text{BG}}^c$
- ④ $\alpha = a\{1 - [\text{NO}_2]_{\text{BG}}\}^c$
- ⑤ $\alpha = a\{1 - [\text{NO}_x]_{\text{BG}}/[\text{NO}_x]_{\text{T}}\}^c$

注) 添え字TはBG濃度と道路寄与分濃度を合わせた全体の濃度をあらわす。

相関の検討は、1987年～1996年(10年間)の常監局データから道路寄与分の年平均値を算出し、上記関数形の係数a, b, c、相関係数及び標準誤差を求めた。結果は表-2となり、いずれも従来の式形より精度は向上するが、検討した関数形間では大きな差は認められない。

そこで、10年間の常監局データを用いて①～⑤の関数形の各々についてパラメーターを設定し、その関数形を用いた変換式について計算値と実測値により検証を行った。結果は表-3となり、計算値と実測値の回帰直線($[\text{実測値}] = A \times [\text{計算値}] + B$)について検討したところ、⑤の関数形において最も係数Aが1に近く、係数Bが0に近くなり、⑤の関数形の再現性が高いことが確認された。

表-1 NO_xのBG濃度ランク別の回帰式

NO _x のBG濃度	回帰式: $[\text{NO}_2] = a[\text{NO}_x]^b$	
	係数a	係数b
～0.019ppm	0.212	0.895
0.020～0.029ppm	0.146	0.813
0.030～0.039ppm	0.123	0.787
0.040～0.049ppm	0.116	0.798
0.050～0.059ppm	0.114	0.842
0.060ppm～	0.088	0.799
全データ	0.113	0.778

このことから、NO_x変換式の式形としては、次式の式形を提案する。

$$[NO_2] = a[NO_x]^b \{1 - [NO_x]_{BG} / [NO_x]_T\}^c \dots\dots\dots(12)$$

ただし、[NO₂] : 道路寄与分の年平均NO₂濃度(ppm)
[NO_x] : 道路寄与分の年平均NO_x濃度(ppm)
[NO_x]_{BG} : NO_xの年平均BG濃度(ppm)
[NO_x]_T : 道路寄与分とBGの年平均濃度の合算値(ppm)
a, b, c : 係数(a=0.0613, b=0.425, c=0.750)

表-2 検討した関数形の係数及び精度

変換式式形 $Y = aX^b$ の α の関数形	係数 a	係数 b	係数 c	相関係数	標準誤差
従来形: $\alpha = a$	0.1132	0.7780	-	0.79	0.0035
① $\alpha = a[NO_x]_{BG}^c$	0.0373	0.8077	-0.3590	0.87	0.0028
② $\alpha = a\{1 - [NO_x]_{BG}\}^c$	0.1908	0.8102	10.647	0.87	0.0028
③ $\alpha = a[NO_2]_{BG}^c$	0.0248	0.8077	-0.4143	0.86	0.0029
④ $\alpha = a\{1 - [NO_2]_{BG}\}^c$	0.2051	0.8105	22.200	0.87	0.0028
⑤ $\alpha = a\{1 - [NO_x]_{BG} / [NO_x]_T\}^c$	0.0613	0.4249	0.7504	0.87	0.0028

表-3 計算値と実測値との関係

変換式式形 $Y = aX^b$ の α の関数形	[実測値] = A[計算値] + B	
	係数 A	係数 B
① $\alpha = a[NO_x]_{BG}^c$	0.898	0.00144
② $\alpha = a\{1 - [NO_x]_{BG}\}^c$	0.900	0.00142
③ $\alpha = a[NO_2]_{BG}^c$	0.893	0.00150
④ $\alpha = a\{1 - [NO_2]_{BG}\}^c$	0.894	0.00147
⑤ $\alpha = a\{1 - [NO_x]_{BG} / [NO_x]_T\}^c$	1.007	0.00037

3. 4 提案するNO_x変換式の特性

提案した式形と解析から求めた係数(a, b, c)に基づいてNO_xのBG濃度別にNO_x年平均値とNO₂年平均値の関係曲線を描くと、図-8となる。

この曲線は、図-3における全国平均の回帰曲線に対して上下に分散しており、NO_xのBG濃度の低い地域においては変換が促進され、高い地域においては変換が抑制される現象を反映した結果を与えている。このことから、提案するNO_x変換式は、NO_xのBG濃度の観点から地域性が考慮された式になっていると考える。

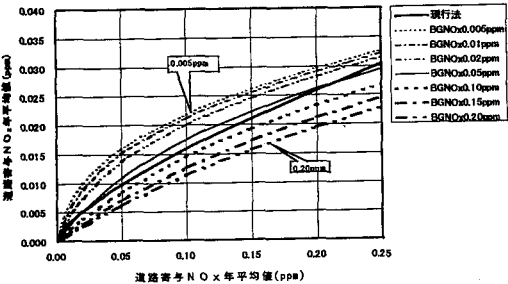


図-8 提案するNO_x変換式の曲線

4. 提案するNO_x変換式の整合性の検討

提案するNO_x変換式の実測値との整合性を検討した。検討に先立ち、比較対象として従来用いてきた $Y = aX^b$ の式形によるNO_x変換式を1987年～1996年の10年間の常監局データから次式のとおりに求めた。

$$[NO_2] = 0.113[NO_x]^{0.778} \dots\dots\dots(13)$$

ただし、[NO₂] : 道路寄与NO₂の年平均値(ppm)
[NO_x] : 道路寄与NO_xの年平均値(ppm)

表-4は、従来のNO_x変換式:式(13)と今回提案するNO_x変換式:式(12)による計算値と実測値の回帰式、相関係数、標準誤差を比較したものである。この結果によると、提案したNO_x変換式は、従来の変換式に比べて回帰式において傾きがやや高くなり、切片がやや低くなることから、45度の直線により近づいている。また、相関係数及び標準誤差はわずかではあるが改善され、精度の向上が認められる。

表-4 従来のNOx変換式との比較 注) 回帰式のXは計算値、Yは実測値。

式形	NOx変換式	回帰式	相関係数	標準誤差
従来形	$[NO_2]=0.113[NO_x]^{0.778}$	$Y=0.932X+0.0026$	0.94	±0.0030
提案形	$[NO_2]=0.0587[NO_x]^{0.416} \times (1-[NO_x]_{BG}/[NO_x]_T)^{0.630}$	$Y=0.962X+0.0016$	0.95	±0.0029

5. 提案するNOx変換式の経年変化

提案するNOx変換式は、1987年～1996年の10年間の常監局データから求めていることから、経年変化について検討した。まず年度別のデータにより回帰分析を行い、各年度毎にNOx変換式を求めた。

次に、各年度のNOx変換式を用いて、NOxのBG濃度：0.01、0.03、0.05ppm、NOxの道路寄与濃度：0.02、0.05、0.10ppmにおけるNO₂の計算値の経年変化を検討した。試算結果は図-9のとおりであり、年度によって多少の変化はみられるものの、試算結果はほぼ横ばい傾向にあり、大きな経年変化は認められない。

6. おわりに

本稿では、地域性を考慮したNOx変換式の確立を目指して検討を進めてきた。観測データを解析した結果、NOx変換の状況がNOxのBG濃度に影響されていること、NOxのBG濃度の高い地域はオゾン濃度が低く、このことによって変換が抑制されているのではないかと考えられた。

そこで、NOxのBG濃度を考慮した式形を検討し、不都合の生じない式形をNOx変換式として提案した。この結果、従来のNOx変換式に比べ精度が向上するのみならず、NOxのBG濃度の観点から地域性の反映されたNOx変換式を提案することができたと考える。

最後に、本研究の実施に当たって、「道路環境アセスメントマニュアルに関する大気環境予測評価委員会（委員長 横山長之）」の委員の皆様にご指導をいただいた。ここに記して謝意を表します。

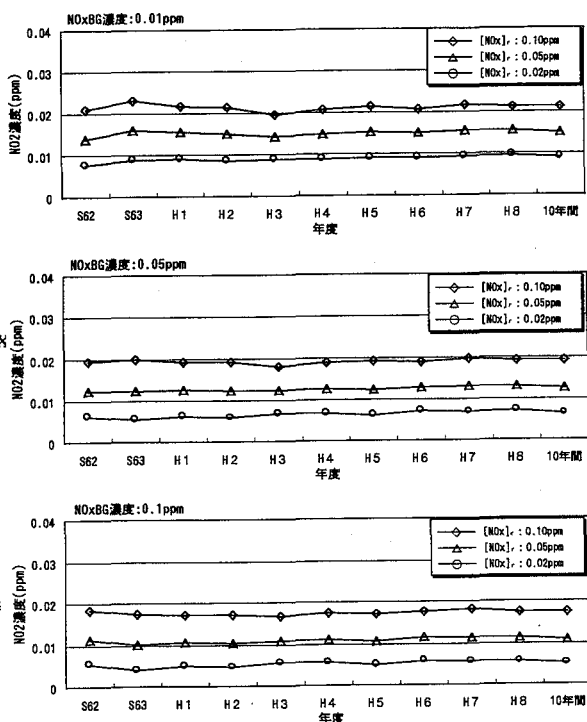


図-9 試算によるNO₂の道路寄与濃度の経年変化

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回大気汚染学会講演要旨集，P91-99(1985)
- 2) 日本化学会：窒素酸化物，丸善，p76(1977)