

(77) 低公害車からのアンモニアガスの発生と関越自動車トンネル  
排気中窒素成分が谷川岳山頂近辺の降雨に及ぼす影響

Generation of Ammonia gas from three-way catalyst equipped vehicles and the effect of  
exhausted  $\text{NH}_3$  and  $\text{NO}_x$  to rainfall in the Tanigawa mountain region

○ 青井 透\*、森 邦広\*\*、池田正芳\*\*\*  
Toru AOI\*, Kunihiro MORI\*\*, Masayoshi IKEDA\*

**Abstract:** On load measurement test of  $\text{NH}_3$  gas generation from three-way catalyst equipped vehicles was carried out with pure water absorption method. The result showed that  $\text{NH}_3$  gas was exhausted considerable degree from any catalyst equipped vehicles.  $\text{NH}_3$  emissions showed a strong increase with aggressive driving conditions.

The Kan-etsu highway tunnel that is the longest in Japan run through Tanigawa-dake mountain area with two large exhaust and intake air holes. 4 rainwater station were equipped around the air holes and on summit and foot area. From July to October in 2002, all rain water samples were recovered and analyzed  $\text{NH}_3$  and  $\text{NO}_x$ . The concentration of InorgN showed very high value on the station near the ventilation holes, and very low value at the station apart from the holes. It was made clear that the exhaust vehicle gas strongly affect the nitrogen concentration in rain water.

**Keywords;** Ammonia gas, three-way catalyst,  $\text{NO}_x$ , rainfall, Kan-etsu highway tunnel

## 1.はじめに

平成3年に4車線化が完成した関越自動車トンネルは、日本列島の脊梁山脈である谷川連峰を貫通する我国最長(世界第五位)の自動車トンネル(全長約11km)であるが、換気のための空気孔(立坑)が新潟側(万太郎立坑)と群馬側(谷川立坑)に設けられており、強制吸排気(集塵処理後排気)を行っている。森は谷川岳に2000回以上登頂しており気象観測を継続しているが、青井との共同研究開始以来、谷川岳山頂等の降雨・降雪の成分分析も実施している<sup>1)</sup>。

青井と池田は、群馬県西部の鐮川・烏川水系で水質調査を行い、この水系では人為的な汚濁がない森林地帯源流部沢水でも無機態窒素濃度は1mg/l前後の高い値を示すことがわかったため、同流域の各中学校に雨水サンブラを設置して雨水水質を通年で測定したところ、降雨中無機態窒素( $\text{NH}_4\text{-N} + \text{NO}_x\text{-N}$ :ここに $\text{NO}_x\text{-N}$ とは酸化態窒素のことで $\text{NO}_2\text{-N}$ と $\text{NO}_3\text{-N}$ の和である)の年間加重平均濃度は2mg/l前後を示し、夏季には月加重平均濃度で3~4mg/lにも達することを確認したので、源流部の高い窒素濃度の由来は降雨であると推論した<sup>2)~4)</sup>。そこで計算した月別の無機態窒素降下量分布から、この窒素成分の由来を首都圏と仮定し、夏の海風(南東風)によって群馬県内陸部に輸送されて降下するという仮説をたてると、多くの現象が説明できることを示した<sup>5)</sup>。

一般に大気中に含まれる窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )・硫黄酸化物( $\text{SO}_x$ )は大気汚染物質であり、その由来は発電所や各種焼却施設排気ガスまたは自動車排気ガスとされているが、大気中に含まれるアンモニア( $\text{NH}_3$ )の由来については、豚・牛・鶏などの畜舎、また化学肥料や堆肥を施肥した農地や下水処理などの排水処理施設が主たる発生源とされている。ところが上記した鐮川・烏川流域の雨水測定データを検討する<sup>3)4)</sup>と、月毎の無機態窒素降下量は大幅に変化するが、月別降下量はその月の南風比率と強い相関があり、6~8月の夏季に極大になることと、検出された無機態窒素のうち概ね1/2は常に $\text{NH}_4\text{-N}$ であることから、この $\text{NH}_4\text{-N}$ の大半は県内のローカルな発生ではなく、 $\text{NO}_x\text{-N}$ と共に夏季首都圏から粒子(パーティクル)として飛来するものと考えられる。

\* 群馬工業高等専門学校環境都市工学科教授(Department of Civil Eng., Gunma College of Tech.)

\*\* 登山家(Naturalist)

\*\*\* (株)西原テクノサービス(Nishihara Techno Service Co. Ltd.)

また人為的な影響を殆ど受けていないと思われる谷川岳山頂部(海拔1963m)の降雨を測定していると、常にNO<sub>x</sub>-Nに対して8割程度のNH<sub>4</sub>-Nが検出されるが、山岳地帯の中心部には前述のようなNH<sub>4</sub>-Nの発生源は存在しないために、このNH<sub>4</sub>-Nの由来については不明であるが、関越自動車トンネルの排気ガスが影響している可能性は十分考えられる<sup>6)</sup>。

欧米および国内の最近の研究で、三元触媒付の低公害車がNH<sub>3</sub>の発生源であると報告されている<sup>7)~11)</sup>ので、本研究では実際に低公害車排気ガスからのNH<sub>3</sub>発生の有無を、複数の低公害車の実走行試験により確認するとともに、谷川岳に4箇所の雨水測定点を設置して、2002年春季から秋季の同一期間降雨をほぼ全量採水して各態窒素と降雨量を測定し、関越自動車トンネル排気ガスの影響について検討したので報告する。なお同様な雨水調査を関東平野上流端に位置する前橋市(群馬高専:関越自動車道路前橋インターに隣接)及び箕郷町(高崎市北部で榛名山山麓に位置する)でも、継続しているので、これらのデータも比較のために使用した。

## 2. 大気中NH<sub>3</sub>の存在状況と発生源に対する従来の研究

大気環境の研究者が、大気中NH<sub>3</sub>の実態と由来について種々の検討をしているが、その由来はNO<sub>x</sub>-Nと比較して不明な点が多いのが現状である。例えば村野<sup>12)</sup>はNH<sub>3</sub>の降下量は米国より日本の方が大きく、NO<sub>x</sub>がNH<sub>3</sub>と化合すると粒子状物質(NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>)となり、乾性沈着速度が低下するのでより長距離を輸送されると述べている。村野はさらに、豚及び家畜・肥料からのNH<sub>3</sub>発生量を、日本全国を緯度・経度1度で分割した各グリッド別フラックスとして検討し、北関東と九州に高い値が見られると報告している。また藤田<sup>13)</sup>は、過去10年間で降水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>とNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度が漸増しているが、国内の発生源で説明することは難しく硫黄化合物と同様に圏外からの輸送が考えられるとしている。

桜井<sup>14)</sup>は、電力中央研究所の事業所のある4箇所(東京都狛江・神楽坂、千葉県我孫子、群馬県赤城(宮城村))で、大気中NH<sub>3</sub>濃度の通年観測を実施し、微粒子状NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は通年で東京の神楽坂が最も高く(8月は赤城が高い)、赤城は夏を除いて最も低いこと、ガス状のNH<sub>3</sub>もほぼ同様に神楽坂が全般的に高く、赤城は7月に一度最大となり春から秋までは二番目に高いがその他の季節は最も低いこと、測定の微粒子とガス状アンモニアの割合は約5割ずつであることを示している。この報告は、畜産・農業由来以外の発生源が東京に存在することを示唆している。

また群馬県衛生環境研究所の田子等<sup>15)</sup>は、赤城山・榛名山及び平地部の前橋市で、2001年春から秋にかけてガス及び微粒子の組成を測定し、山岳部の微粒子は(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>が多く平地ではそれにNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>が加わることで、平野部のガス状物質ではNH<sub>3</sub>が突出して他県よりも高いが山岳部では1/3に減少すると述べている。

## 3. 低公害車からのNH<sub>3</sub>発生に関する従来の研究

本論文で検討する低公害車とは、三元触媒装着車(排気ガス中のNO<sub>x</sub>を還元すると同時にCO、HCを酸化して有害物質を減少させる:53年排ガス適合車)を意味している。この低公害車からのNH<sub>3</sub>発生について国内では断片的に報告はあるが、低公害車の三元触媒が大気中NH<sub>3</sub>の発生源であるという認識はまだ殆どなされていないと思われる。数少ない報告の中で例えば、横山等<sup>7)</sup>

表1 実走行排気ガス中NH<sub>3</sub>測定試験に用いた車種一覧

| No. | 年式  | 車種            | 排気量 (CC) | 燃料   | 触媒   | 備考     |
|-----|-----|---------------|----------|------|------|--------|
| 1   | H8  | ホンダステップワゴン    | 2000     | ガソリン | 三元触媒 |        |
| 2   | S53 | エルフ2tトラック     | 2800     | 軽油   | 触媒なし | ディーゼル  |
| 3   | H8  | BMW 318iS     | 1900     | ガソリン | 三元触媒 |        |
| 4   | H1  | マツダ RX-7      | 654×2    | ガソリン | 触媒なし | ロータリー車 |
| 5   | H3  | ホンダ CIVIC VTI | 1500     | ガソリン | 三元触媒 | VTEC   |
| 6   | H12 | スズキ ワゴンR      | 660      | ガソリン | 三元触媒 | ターボ車   |
| 7   | H6  | マツダ MPV       | 3000     | ガソリン | 三元触媒 | 旧モデル   |
| 8   | H12 | ホンダ ロゴ        | 1300     | ガソリン | 三元触媒 |        |

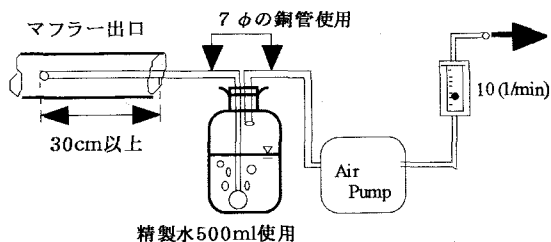


図1 排気ガス中NH<sub>3</sub>回収装置概要フロー図

はSutton<sup>9)</sup>のデータを用いて自動車排ガスからのNH<sub>3</sub>発生量を検討対象に含めて千葉県内のNH<sub>3</sub>発生源について比較している。また鷺山等<sup>8)</sup>はシャシダイナモメーターを用いて、各種車両の排出ガス調査を実施し、三元触媒装着車からのNH<sub>3</sub>排出量は、触媒非装着車や酸化触媒車に比べて多いとしているが、何れも控えめなトーンである。

海外では英国のSutton等<sup>9)</sup>が、農業由来以外のNH<sub>3</sub>発生源について検討し、自動車の三元触媒は下水処理場及び下水の農地灌漑とともに大量のNH<sub>3</sub>を発生するとしている。米国のKean等<sup>10)</sup>は1999年夏季サンフランシスコ湾岸の高速道路トンネル排気を午後2時間ずつ計8回実施しNH<sub>3</sub>、NO<sub>x</sub>、CO及びCO<sub>2</sub>を測定した結果、トンネル排気中のNH<sub>3</sub>-N/NO<sub>x</sub>-Nは0.68であり、三元触媒付のガソリンエンジン車は燃料を多消費する運転モードで大量のNH<sub>3</sub>が発生するが、これは三元触媒の機能低下によるとしている。また同じく米国のDurbin等<sup>11)</sup>は、三元触媒を用いた自動車から大気へのNH<sub>3</sub>の排出は三番目に大きな要因(最大の排出源は畜産排泄物、二番目は土壌からの揮散)としたうえで、排ガス対策無しからULEV(Ultra Low Emission Vehicle)までの

乗用車39台を用いて、各モードのシャシダイナモ試験を実施し排ガス量と排ガス各濃度を測定した。その結果、NH<sub>3</sub>の発生はモードにより大きく異なるが、積極的な運転を行うと発生量が増大すること、また燃料ガソリン中の硫黄分の低下がNH<sub>3</sub>の増加をもたらすと述べている。

#### 4.調査方法

##### 4-1 自動車排気ガスのNH<sub>3</sub>測定法

自動車排ガスの測定法は、JISに示されている(JIS D1030,他に排ガス中各成分分析方としてK0103(硫黄酸化物),K0104(窒素酸化物),K0099(アンモニア)がある)が、主要な測定法は自動測定装置であり、簡単に適用することができない。また車載式の装置ではないために、実走行試験に適用できない。そこで簡単なアンモニア態窒素回収装置を独自に開発し、各種のガソリン車(表1)を用いて実走行試験を行った<sup>2)</sup>。対象に用いた自動車のなかにはディーゼルトラックと触媒を外したガソリン車(マツダRX-7 ロータリーエンジン)も含まれている。本回収装置は、図1に示すよう

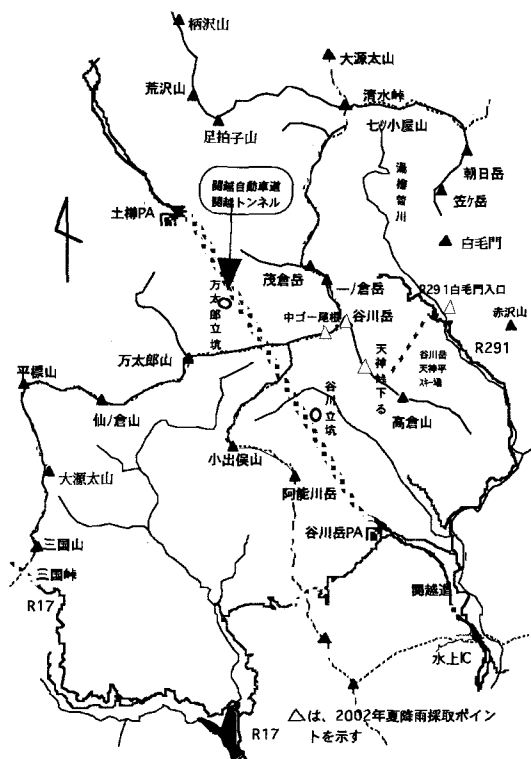


図2 谷川岳山頂部の各降雨採取点と関越自動車トンネル空気孔(吸排気孔)の位置関係

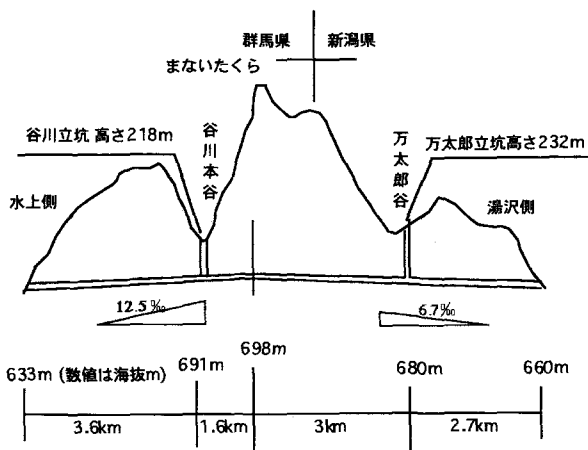


図3 関越自動車トンネルの断面図と空気孔位置

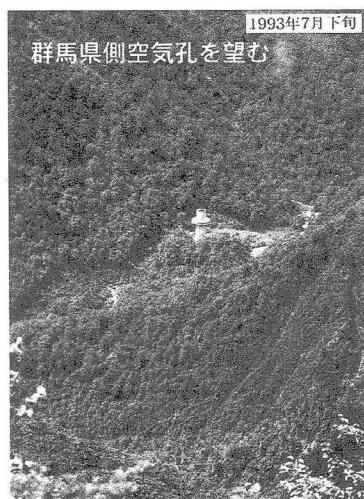


写真1 関越自動車トンネル  
群馬県側空気孔

中ゴー尾根(下山口分岐)の雨水サンブラ

2002年7月12日

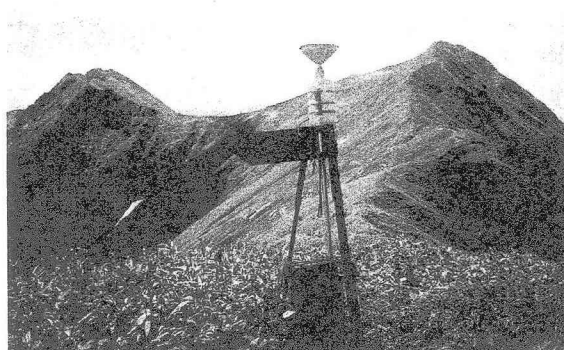


写真2 谷川岳中ゴー尾根(マナイタグラを望む)  
と設置した雨水サンブラ

に排気管内の排ガスを7mm径の銅管(排気管に30cm以上挿入)を通して定量(10l/分)・定圧で吸引するもので、排ガスは散気球で曝気されて精製水500mlに吸収させたのちにその吸収水を分析して、走行モードと発生量の関係を得た。NH<sub>3</sub>回収率の確認はできなかったが、吸引時間は1分に限定し極低濃度のNH<sub>4</sub>-Nを精密測定した。本来窒素酸化物として排出されるのはNOであるが、NOの水への溶解度はO<sub>2</sub>程度ととても低いために吸収は極僅かであるが、この水吸収法ではアンモニア態窒素は殆ど回収されると想定されるので、窒素全体の物質収支はとれなくても、運転モードとNH<sub>3</sub>発生量の関係については確認が可能である。

校内に各走行コースを設定し、各試験車にこの回収装置を装着して、30km定速走行、連続加減速、短距離急加減速の3モードで排気ガス測定を実施した<sup>2)</sup>。次に試験に用いたガソリン車のうちNo.1の三元触媒車(1.97l, 53年排ガス適合車)を用いて、比較的すいている郊外道路や渋滞の県道および直進できない住宅地内など各モードで走行し排気ガス測定を継続した。水質分析は、ECは携帯用水質測定器(東亜電波CM-14P)、NH<sub>3</sub>-NについてはオートアナライザーACCS-IIを使用した。

#### 4-2 関越自動車トンネル排気ガスの谷川岳山頂部での影響調査

太平洋側と日本海側の分水嶺である谷川連峰を貫通する関越自動車トンネルと、谷川岳との位置関係を図2に示した。図2には、本調査のために設置した4箇所の雨水採水点(△印)と尾根筋および新潟県群馬県の二つの立坑(空気孔=給排気孔(○印))の位置関係も示した。図3には関越自動車トンネルの断面図と空気孔の位置を示した。自動車トンネルの勾配は、群馬側で12.5%・新潟側で6.7%であり、群馬側の方が勾配が急である。写真1は尾根筋から眺めた群馬側空気孔である。

雨水採水点の一つである中ゴー尾根下山口の

表2 校内走行試験に用いた三元触媒付  
ガソリン車6車種1分間吸引試料の平均水質

| 項目          | EC   |      | NH <sub>3</sub> -N |      |
|-------------|------|------|--------------------|------|
| 単位          | mS/m |      | mg/l               |      |
| 大気吸引        | 0.86 | 0.50 | 0.21               | 0.23 |
| アイドリング (冷)  | 1.26 | 0.46 | 0.08               | 0.12 |
| 外周テスト30km定速 | 1.25 | 0.55 | 0.38               | 0.35 |
| 加減速 (弱)     | 2.30 | 1.19 | 2.50               | 1.28 |
| 加減速 (強)     | 3.05 | 0.68 | 3.72               | 0.74 |
| アイドリング (暖)  | 1.78 | 0.78 | 1.04               | 0.55 |

注記:数字の右段(斜体)は標準偏差を表す

表3 ガソリン車触媒の有無及ディーゼル車による  
NH<sub>3</sub>-N濃度の相違

| 走行モード       | ガソリン車 |      | ディーゼル<br>トラック |
|-------------|-------|------|---------------|
|             | 三元触媒  | 触媒無  |               |
| 大気吸引        | 0.21  | 0.15 |               |
| アイドリング (冷)  | 0.08  | 0.05 | 0.20          |
| 外周テスト30km定速 | 0.38  | 0.02 | 0.09          |
| 加減速 (弱)     | 2.50  | 0.02 | 0.05          |
| 加減速 (強)     | 3.72  | 0.03 | 0.03          |
| アイドリング (暖)  | 1.04  | 0.02 | 0.02          |

注記:数値の単位はmg/l、三元触媒は6台分データの平均値  
濃度は排気ガス1分間吸引試料測定値である

雨水サンブラを写真2に示した。雨水サンブラはろ紙へのNH<sub>3</sub>の吸着を避けるために、合成繊維のメッシュストレーナーのみを使用した。中ゴ-尾根下山口(海拔約1800m)は新潟側の空気孔(万太郎立坑)と群馬側空気孔(谷川立坑)のどちらの排気も通過する尾根筋の鞍部に位置している。山頂(海拔1963m)の採水点は、やや距離はあるが両方の排気が到達する位置にある。天神峠下の採水点(海拔約1400m)は、万太郎立坑の排気は到達しない位置にあり、麓の白毛門入口(海拔約700m)採水点は両立坑からの排気ガスの影響を全く受けない場所である。白毛門入口採水点は、上越線土合駅から国道291号線を谷川岳ロープウェ-方向にやや登った位置にあり、国道を通過する自動車の排気ガスの影響を受ける。4箇所の雨水採水は、2002年7月12日に開始し10月23日に終了した。

水質項目としては、各態窒素の他に、EC、Cl<sup>-</sup>をそれぞれ携帯用水質測定器(Cl<sup>-</sup>は笠原理化学工業CL-2Z)で測定した。降雨量は、回収する毎に溜まった雨水の容積を測定し降雨量に換算した。

## 5.調査結果

### 5-1 自動車排気ガスからのNH<sub>3</sub>の発生

表1に示した対象車種中No.2及びNo.4を除いた、6台の三元触媒付ガソリン車の1分間吸引試料(吸収水)の水質測定結果は、ほぼ同様な傾向を示したので、平均水質と標準偏差を表2に示した。EC(電気伝導度)はCO<sub>2</sub>を含む溶存イオンの濃度を示している。実走行試験の前に大気による空試験も実施したが、大気中には若干のNH<sub>3</sub>-Nが含まれているので、大気吸引よりも冷気アイドリング排気の方がNH<sub>3</sub>-N濃度は低下した。実走行モードでは、30km/h定速走行ではあまりNH<sub>3</sub>-Nの発生は見られなかったが、急加減速モードではNH<sub>3</sub>-N濃度は3.72mg/lまで上昇し、全ての三元触媒車からNH<sub>3</sub>ガスが発生することが確認された。各走行モード終了後ただちに、暖気アイドリングモードで測定したが、冷気アイドリングと異なり、1.04mg/lのNH<sub>3</sub>-Nが観察されたことは、三元触媒が加熱されて活性化したためと思われる。

表3には、三元触媒装着の有無及びディーゼルエンジントラック(空荷)の各NH<sub>3</sub>-N測定結果を示したが、三元触媒非装着車およびディーゼルエンジン車からは、殆どNH<sub>3</sub>-Nは排出されておらず、低公害車の三元触媒からはNH<sub>3</sub>-Nが発生していることがわかった。

次に三元触媒装着車1台(No.1:53年排ガス適合車)に対して、一般公道走行試験を実施した。比較的している郊外道路や渋滞の県道および直進できない住宅地内などで実施した、各走行モードと各項目測定結果(校内走行モードも含む)を表4に示し、NH<sub>3</sub>-N濃度のみを図4に横棒グラフで示した。

校内の急加減速試験でのNH<sub>3</sub>-N濃度は4.2mg/lであったが、郊外の県道走行では、速度が上がるほどNH<sub>3</sub>-N濃度は上昇し、80km/hの走行速度では8.9mg/lの最高値を記録した。これらの試験結果は、走行時の排出窒素成分全量を測定しているわけではなく、定性的なものではある

表4 三元触媒付ガソリン車一般道走行での各モードと1分間吸引試料の水質

| 走行モード           | EC<br>mS/m | NH <sub>3</sub> -N<br>mg/l | 備考       |
|-----------------|------------|----------------------------|----------|
| 大気吸引            | 0.75       | 0.09                       | 校内試験6/7  |
| アイドリング(冷)       | 0.90       | 0.04                       |          |
| 外周テスト30km定速     | 0.89       | 0.05                       |          |
| 加減速(弱)          | 1.26       | 1.82                       |          |
| 加減速(強)          | 2.47       | 4.20                       |          |
| アイドリング(暖)       | 1.38       | 1.53                       | 校外試験5/21 |
| 渋滞の県道30km/h     | 2.13       | 3.26                       |          |
| 市道/信号待右折有       | 2.79       | 4.1                        |          |
| 郊外県道信号無50km/h   | 3.38       | 4.7                        |          |
| 郊外県道信号無80km/h   | 5.47       | 8.91                       |          |
| 高速道路側道          | 3.58       | 6.74                       |          |
| 住宅内道路1          | 4.08       | 5.57                       |          |
| 住宅内道路2          | 3.64       | 5.63                       |          |
| アイドリング(1.5h走行後) | 1.37       | 0.99                       |          |

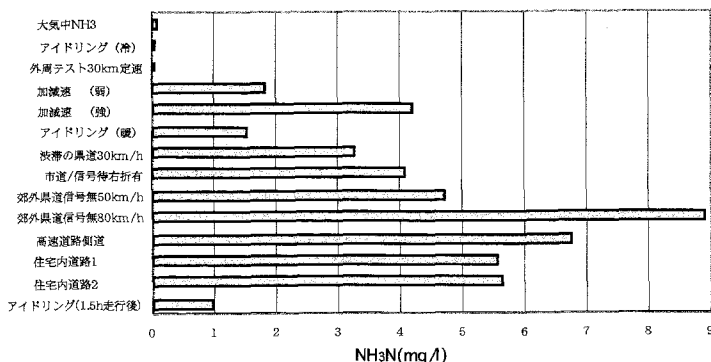


図4 三元触媒付ガソリン車各走行モードでの1分間吸引試料中NH<sub>3</sub>-N濃度

が、速度が上昇するほど、または急加速などの操作をするとNH<sub>3</sub>-Nの発生量が増加することを示している。

例えば都内の幹線道路での信号による頻繁な加減速時や高速道路走行の条件では、大量のNH<sub>3</sub>-Nが発生することがわかる。本調査では排出ガス量の測定は実施できなかったが、急加速や高速走行時にはアクセル開度が上がるため排出ガス量も増加するので、NH<sub>3</sub>-N排出量は相乗的に増加すると思われる。従来このような自動車の実走行に伴うNH<sub>3</sub>-Nの発生は殆ど報告されておらず、大気環境の研究者を含めても、殆ど認知されていない状態であると思われる。

平成10年に環境庁から出された「低公害車等排出ガス技術指針」では、自動車排出ガス中有害物質の排出を規制値より25%, 50%, 75%低減した自動車に対する認定を行っている。一般的に夫々LEV, GLEV, ULEVとよばれるこれら低公害車の排ガス中NH<sub>3</sub>については実測していないが、本テスト結果から想定すると、NOxの排出量が減少した部分は三元触媒により還元されNH<sub>3</sub>に変換している可能性が高いと思われる。

## 5-2 谷川岳中ゴ-尾根下山口および山頂の降雨水質

2002年夏季から秋季にかけて実施した4箇所の雨水採水点のうち、中ゴ-尾根下山口および山頂の降雨水質分析結果を表5に示した。4箇所の採水点の回収日は全て同一であり、本表には回収サイクル毎の水質と降雨量を示している。下欄の加重平均とは、濃度と降雨量から降下量を出し、全降雨量で割り戻した加重平均値のことである。8月29日の水質には編みかけがしてあるが、この日の回収試料はともに著しく高い窒素濃度を示した。

両測定点を比較すると、NH<sub>4</sub>-N, NOx-N共、中ゴ-尾根下山口の方が約1.3倍高い濃度を示し降雨量も多かった。

## 5-3 谷川岳各降雨測定点の無機態窒素降下量の比較

調査のために設置した降雨測定点4箇所の、雨水の各水質加重平均濃度と降下量・回収降雨量を表6に示した。無機態窒素平均濃度は、中ゴ-尾根1.

表5 谷川岳中ゴ-尾根下山口および山頂の降雨中各成分濃度及び降雨量  
実測値一覧(測定期間:2002年7月12日→10月23日)

| 中ゴ-尾根下山口降雨 |      |     |       |       |       |        | 降雨量   |
|------------|------|-----|-------|-------|-------|--------|-------|
| 月日         | EC   | Cl- | NH4-N | NO2-N | NOx-N | InorgN | (mm)  |
| 7.12       | 0.58 | 1   | 0.32  | 0.003 | 0.28  | 0.60   | 120   |
| 7.18       | 1.49 | 1   | 0.17  | 0.003 | 0.20  | 0.37   | 97.0  |
| 7.20       | 0.79 | 1   | 0.55  | 0.013 | 0.42  | 0.97   | 24.9  |
| 7.23       | 1.90 | 2   | 0.74  | 0.003 | 0.64  | 1.39   | 5.5   |
| 7.25       | 4.68 | 2   | 1.55  | 0.005 | 1.37  | 2.93   | 17.6  |
| 8.5        | 0.79 | 1   | 0.50  | 0.003 | 0.31  | 0.80   | 80.6  |
| 8.8        | 3.65 | 2   | 1.13  | 0.003 | 1.56  | 2.68   | 8.2   |
| 8.14       | 0.64 | 1   | 0.12  | 0.003 | 0.24  | 0.36   | 95.5  |
| 8.24       | 1.25 | 1   | 0.23  | 0.003 | 0.35  | 0.58   | 103.6 |
| 8.26       | 1.61 | 2   | 0.69  | 0.008 | 0.55  | 1.24   | 8.8   |
| 8.29       | 7.34 | 3   | 2.85  | 0.081 | 3.22  | 6.07   | 17.0  |
| 9.18       | 1.79 | 2   | 0.61  | 0.002 | 0.65  | 1.27   | 113.9 |
| 10.3       | 1.85 | 2   | 0.55  | 0.004 | 0.70  | 1.25   | 110.6 |
| 10.10      | 6.53 | 1   | 2.25  | 0.002 | 2.61  | 4.86   | 44.3  |
| 10.17      | 7.43 | 4   | 1.33  | 0.001 | 2.10  | 3.44   | 22.4  |
| 10.23      | 1.60 | 1   | 0.25  | 0.003 | 0.33  | 0.57   | 90.0  |
| 加重平均       | 1.83 | 1.4 | 0.54  | 0.00  | 0.62  | 1.16   | Σ960  |

| 谷川岳山頂降雨 |      |     |       |       |       |        | 降雨量  |
|---------|------|-----|-------|-------|-------|--------|------|
| 月日      | EC   | Cl- | NH4-N | NO2-N | NOx-N | InorgN | (mm) |
| 7.12    | 0.60 | 1   | 0.04  | 0.000 | 0.14  | 0.18   | 75   |
| 7.18    | 0.39 | 1   | 0.01  | 0.004 | 0.07  | 0.07   | 64.2 |
| 7.20    | 0.75 | 1   | 0.18  | 0.002 | 0.30  | 0.48   | 22.2 |
| 7.23    | 2.27 | 1   | 0.56  | 0.000 | 0.67  | 1.23   | 7.2  |
| 7.25    | 4.65 | 2   | 0.80  | 0.000 | 0.71  | 1.51   | 14.5 |
| 8.3     | 1.00 | 1   | 0.52  | 0.001 | 0.25  | 0.77   | 57.6 |
| 8.5     | 0.95 | 1   | 0.33  | 0.001 | 0.24  | 0.57   | 32.8 |
| 8.8     | 3.83 | 3   | 1.28  | 0.001 | 1.79  | 3.06   | 10.3 |
| 8.14    | 2.20 | 1   | 0.71  | 0.003 | 1.01  | 1.72   | 40.0 |
| 8.22    | 1.17 | 1   | 0.12  | 0.001 | 0.28  | 0.41   | 75   |
| 8.24    | 1.91 | 1   | 0.20  | 0.001 | 0.96  | 1.17   | 8.5  |
| 8.29    | 8.01 | 4   | 1.98  | 0.061 | 2.91  | 4.89   | 7.9  |
| 9.18    | 2.14 | 2   | 0.96  | 0.002 | 0.57  | 1.54   | 75   |
| 10.3    | 1.96 | 2   | 0.06  | 0.000 | 0.59  | 0.64   | 75   |
| 10.10   | 4.21 | 2   | 0.70  | 0.004 | 1.05  | 1.75   | 31.6 |
| 10.17   | 6.63 | 2   | 0.60  | 0.002 | 1.20  | 1.80   | 17.6 |
| 10.23   | 2.24 | 1   | 0.22  | 0.003 | 0.37  | 0.58   | 59.4 |
| 加重平均    | 1.85 | 1.4 | 0.38  | 0.00  | 0.49  | 0.87   | Σ674 |

注記:単位はEC(mS/m),その他の水質は(mg/l),InorgN=NH4-N+NOx-N

表6 谷川岳2002年夏の各採取地点降雨中各成分の加重平均濃度と降下量及び降雨量

| 加重平均濃度 | EC   | Cl-  | NH4-N | NO2-N | NOx-N | InorgN | 降雨量 |
|--------|------|------|-------|-------|-------|--------|-----|
| 中ゴ-尾根  | 1.83 | 1.4  | 0.54  | 0.00  | 0.62  | 1.16   |     |
| 山頂     | 1.85 | 1.4  | 0.38  | 0.00  | 0.49  | 0.87   |     |
| 天神峠下   | 1.22 | 1.2  | 0.20  | 0.00  | 0.21  | 0.41   |     |
| 白毛門入口  | 1.24 | 1.3  | 0.08  | 0.00  | 0.15  | 0.23   |     |
| 水上町    | 1.71 | 1.6  | 0.62  | 0.01  | 0.58  | 1.20   |     |
| 箕郷町    | 2.21 | 1.27 | 0.89  | 0.01  | 0.93  | 1.82   |     |
| 群馬高専   | 2.65 | 1.46 | 1.23  | 0.02  | 1.34  | 2.73   |     |

注記:単位はEC(mS/m),その他はmg/l, InorgN=NH4-N+NOx-N  
雨水採水時期は、共に2002年7/12→10/23の同一期間

| 降下量合計 | Cl-  | NH4-N | NOx-N | InorgN | 降雨量 | Nx/NH |
|-------|------|-------|-------|--------|-----|-------|
| 中ゴ-尾根 | 1326 | 521   | 591   | 1112   | 960 | 1.13  |
| 山頂    | 932  | 254   | 333   | 587    | 674 | 1.31  |
| 天神峠下  | 831  | 137   | 145   | 283    | 686 | 1.06  |
| 白毛門入口 | 923  | 56    | 106   | 162    | 697 | 1.91  |
| 水上町   | 744  | 282   | 266   | 548    | 456 | 0.94  |
| 箕郷町   | 570  | 397   | 416   | 813    | 447 | 1.05  |
| 群馬高専  | 768  | 649   | 706   | 1434   | 526 | 1.09  |

注記:降下量単位は(mg/m2/期間),また降雨量はΣmmAq, Nx/NHとはNOx-N/NH4-N

16mg/l, 山頂0.87mg/l, 天神峠下る0.41mg/l, 白毛門入口0.23mg/lであり、麓の白毛門に対して中ゴ-尾根の濃度は5倍にも達し、驚くべき高濃度を示した。一般には、山の高度が高くなるほど人為的な活動は影響を受けにくくなるので、雨水中窒素濃度も低下する傾向にあるが、本測定では濃度が逆転しており、二つの空気孔両方からの排気ガスを受ける中ゴ-尾根下山口測定点の窒素濃度が最も高く、麓の天神平ロープウェイ-山麓駅に向かう国道近辺に設置した白毛門入口の窒素濃度が最も低いという、予想を覆す結果となったことから、この測定結果は関越自動車トンネルの排気ガスが、谷川岳山頂部降雨濃度に非常に大きな影響を及ぼしていることを示している。

測定点4箇所の $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{NO}_x\text{-N}$ 降下量を対比して表6下段に示した。中ゴ-尾根下山口の $\text{NH}_4\text{-N}$ 降下量521( $\text{mg}/\text{m}^2/\text{期間}$ )に対して、山頂は254また白毛門入口は56であり、白毛門入口の9倍以上(無機態窒素では7倍)、山頂の倍以上の $\text{NH}_4\text{-N}$ が中ゴ-尾根下山口に降下しているのは、空気孔からの自動車排気ガスが $\text{NH}_4\text{-N}$ の一つの発生源であることを示している。 $\text{NO}_x\text{-N}$ 降下量についても降下量順位は同じであり、中ゴ-尾根下山口の $\text{NO}_x\text{-N}$ 降下量は山頂降下量の2倍弱であるが、これも同様に自動車排気ガスが寄与していると思われる。

#### 5-4 谷川岳各点の無機態窒素降下量とその他の地点の降下量の比較

谷川岳各測定点4箇所と全く同一期間に採取した水上町(森宅)、群馬郡箕郷町(青井宅、榛名山の南面に位置する)及び群馬高専(前橋市)の雨水水質と降下量も表6に記載した。また各地点の期間中各態窒素加重平均濃度と降下量を図5に示した。降雨量はいずれの場所も全量回収しているので、窒素降下量の比較が可能である。水上町は関越自動車道路が関越トンネルに入る直前の位置にあり、高速道路は町よりも海拔の高い場所を走っているため、登り勾配でアクセルを踏み込んだ(積極的な)運転から発生する大量の窒素化合物は水上町に降り注ぐ地形となっている。また群馬高専は、関越自動車道前橋インターチェンジの西側に隣接しており、夏休みは前橋インターチェンジ付近も帰省ラッシュで渋滞が頻発する状況である。

雨水の無機態窒素濃度で比較すると、中ゴ-尾根と水上町がほぼ同一(1.2mg/l)で群馬高専では2.7mg/lと高い値を示すのは、首都圏からの海風に由来する窒素<sup>5)</sup>に加えて、夏休み中は渋滞を頻繁におこす前橋インターチェンジの排気ガスの影響が考えられるが、窒素降下量の比較では中ゴ-尾根は降雨量が多いため、水上町や箕郷町よりも高い値となるのは驚くべきことである。中ゴ-尾根の無機態窒素降下量は換算すると1.1t/ $\text{km}^2$ /測定期間となる。谷川岳山頂と水上町の同降下量は0.59tと0.55tであり、ほぼ同じ降下量であった。また群馬高専と箕郷町の同降下量はそれぞれ1.43, 0.81tであるが、2002年の年間降下量は群馬高専で3.09t/ $\text{km}^2$ /y, 箕郷町で2.3t/ $\text{km}^2$ /yであったので、測定期間中の降下量は群馬高専で年間降下量の46%, 箕郷町で35%であった。霞ヶ浦の窒素沈着量が1.0t/ $\text{km}^2$ /yである<sup>13)</sup>ことを考えると、ここに示した群馬県内の窒素降下量は、白毛門入口と天神峠下るを除いて、霞ヶ浦の降下量を越えることになり、群馬高専では霞ヶ浦の3倍量の窒素が年間降下していることになる。

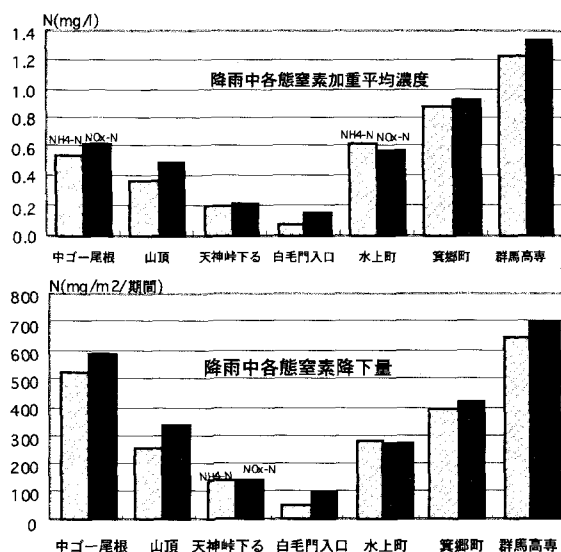


図5 谷川岳各地点及び水上・前橋等各採水点での降雨中各態窒素成分の相違  
(2002年7月12日から10月23日)

## 6.まとめ

以上の検討から次の結論が導ける。

- 1.三元触媒を装着した低公害車からは、窒素酸化物に加えて $\text{NH}_3$ が発生しており、特に高速で長い登り道を走る場合や、急加速をするような運転モードでは、大量の $\text{NH}_3$ が発生している。
- 2.谷川岳各降雨測定点の無機態窒素降下量では、関越自動車トンネル空気孔(排気孔)に最も近い中ゴ一尾根下山口が最も降下量が多く、麓の白毛門入口の7倍にも達するのは、トンネル排気孔から排出される排気ガスの影響を、大きく受けていると思われる。
- 3.2002年夏季から秋季の同一期間中無機態窒素降下量は、中ゴ一尾根下山口で $1.1\text{t}/\text{km}^2$ 、前橋の群馬高専で $1.43\text{t}/\text{km}^2$ と高い値であり、谷川岳山頂と水上町ではそれぞれ $0.59\text{t}$ と $0.55\text{t}$ で同程度であった。これらの数値は、霞ヶ浦の窒素降下量を越える高い値である。

## 謝辞

本研究の一部は、クリタ水・環境科学振興財団および下水道振興基金研究発表助成により実施した。また関越自動車トンネルの資料は、日本道路公団湯沢管理事務所より頂いたものである。自動車排気ガスの調査では、群馬高専の多くの学生及び教職員に協力頂いた。そして膨大な試料の分析は岸分析主任の貢献が大きい。ご協力いただいた多くの方々に厚くお礼申し上げる。

## 参考文献

- 1)森邦広、青井透、阿部聡、池田正芳(2002)谷川岳を含む利根川最上流から利根大堰までの栄養塩濃度の推移と流出源の検討、土木学会環境工学研究論文集、Vol.39,pp235-246
- 2)青井透、池田正芳、阿部聡(2002)首都圏と群馬県での大気中窒素化合物の広域移動と降雨中アンモニア態窒素への自動車排気ガスの関与、土木学会第39回環境工学研究フォーラム講演集、pp92-94
- 3)青井透、池田正芳(2003.3.4)群馬県西部の降雨中窒素濃度の年間変動と低公害車が排出するアンモニア態窒素の関与、第37回日本水環境学会年会講演集、p5
- 4)青井透、池田正芳(2003)群馬県及び首都圏降雨中窒素濃度測定と河川水質に及ぼす影響、第40回下水道研究発表会、pp919-921
- 5)青井透(2003)利根川上流域の高い窒素濃度と首都圏より飛来する大気汚染物質との関係1、月刊「水」、No.642, pp26-33
- 6)青井透(2003)利根川上流域の高い窒素濃度と首都圏より飛来する大気汚染物質との関係2、月刊「水」、No.643, pp18-25
- 7)横山新紀、押尾敏夫(2002)千葉県における酸性雨原因物質の排出量の把握(5)-都市地域と農業地域の $\text{NH}_3$ 発生源の比較-、第43回大気環境学会年会講演要旨集、p398
- 8)鷲山享志、中澤誠、鈴木正明(1998)自動車からのアンモニアの排出量調査、神奈川県環境科学センター研究報告、No.21,pp7-11
- 9)Sutton,M.A., Dragosits,U., Tang,Y.S. and Fowler,D.(2000)Ammonia emissions from non-agricultural sources in the UK, Atmospheric Environment, Vol.34,pp855-869
- 10)Kean,A.J., Harley,R.A., Littlejohn,D. and Kendall,G.R.(2000)On-Road Measurement of Ammonia and Other Motor Vehicle Exhaust Emissions, Environ.Sci.Technol., Vol.34,pp3535-3539
- 11)Durbin,T.D.,Wilson,R.D., Norbeck,J.M., Miller,J.W., Huai,T. and Rhee,S.H.(2002) Estimates of the emission rates of ammonia from light-duty vehicles using standard chassis dynamometer test cycles, Atmospheric Environment, Vol.36,pp1475-1482
- 12)村野健太郎(1996)窒素系化合物で汚染が憂慮される日本の土壌、資源環境対策、Vol.32,No.16,pp49-51
- 13)藤田慎一、高橋章、速水洋、桜井達也(2000)日本列島における硝酸イオンとアンモニアイオンの湿性沈着量、環境科学会誌、Vol.13,pp491-501
- 14)桜井達也、清野能弘、中江茂、藤田慎一(2002)関東地方におけるアンモニアの動態解析、大気環境学会誌、Vol.37,No.2,pp155-165
- 15)田子博、梶塚義則、今井克江、大谷仁己、嶋田好孝(2002)群馬県平野部と山岳部におけるガス/エアロゾルの測定、群馬県衛生環境研究所年報、Vol.34,pp109-112