

B-22

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

群馬工業高等専門学校環境都市工学科 ○青井 透、池田正芳、阿部 聡

1.はじめに

降雨中の窒素を分析すると、酸性雨の原因となる硝酸態窒素のほかに、アンモニア態窒素が検出される。このアンモニア態窒素の由来については、農村の畜産や堆肥製造、または畑地などが原因とされ、ほかに都市の下水処理場などが発生源として上げられているが、ごく最近まで三元触媒を使用している低公害ガソリン車の排気ガスは、アンモニア態窒素の発生源として明確に議論されていなかった。最近になって低公害車の三元触媒が都市部でのアンモニア態窒素の発生源の一つであるとする論文が発表され、都市部のノンポイントソースとして自動車排気ガスの位置づけが必要ながことが認識されはじめている。

本研究室では、最近の数年間利根川上流の高い窒素濃度について検討しているが、谷川山頂や鐺川水系の降雨中に硝酸態窒素とほぼ同濃度のアンモニア態窒素を観測しており、群馬県で降下する湿性降下物に含まれるアンモニア態窒素は、首都圏から大気汚染物質の広域移動として輸送されてくるものが大半を占めるのではないかと予測している。この現象の作業仮説を図1に示した。大気汚染と水質汚濁が窒素をキーワードに連続しているとするモデルである。

2.湿性降下物に含まれる窒素成分に関する本研究室の
今までの研究

本研究室では、昨年の夏から烏川・鐺川水系の中学校の協力を頂き、広域的な雨水の調査を実施している。図2に利根川の流域図と調査対象範囲を示すが、夏季大気安定すると小笠原高気圧が卓越してくるので、海風(地上風)に乗って首都圏の大気成分が矢印の方向で群馬に飛来し、碓氷峠を越えて軽井沢・長野に流れることは一般的に知られている。

図3には、上記調査結果の一例として、松井田西中学校で採取した雨水1年分(2001~02年)の月別各態窒素加重平均濃度と月降雨量(以上は下図)及び濃度と降雨量から計算した月別各態窒素降下量(上図)を示した。松井田西中の位置は図2にも示したが、碓氷峠の入口にあたり夏季海風の直下に位置する。月別の窒素降下量は、冬に低く夏に高く概ね月の南風比率に比例しており、首都圏から

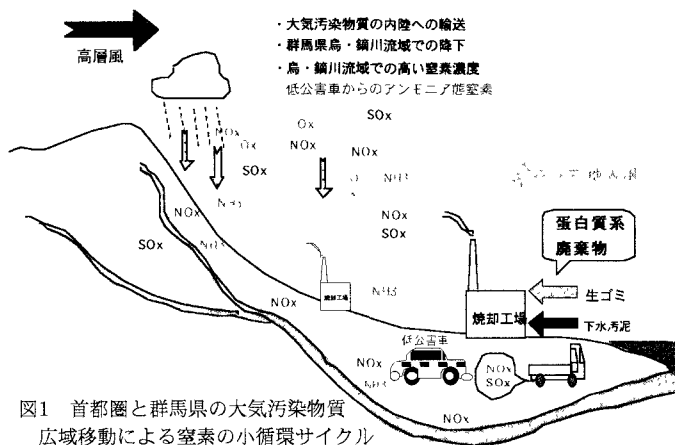
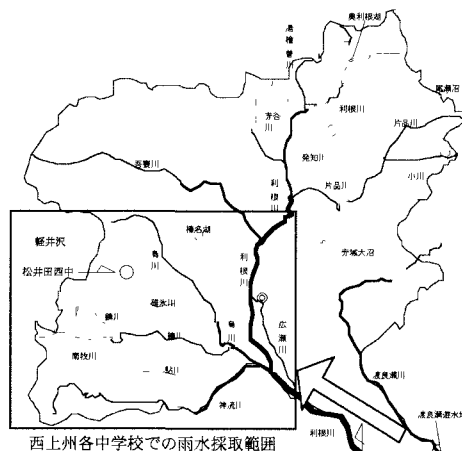
図1 首都圏と群馬県の大気汚染物質
広域移動による窒素の小循環サイクル図2 群馬県平野部の夏季
海風の風向と雨水採取地点

表1 校内実走行排気ガス測定テストコース一覧

No.	コース名	周回距離	概要
1	定速巡回	740m	校内主要道路 30km/h停止無
2	連続加減速	310m	E・M棟周回 一時停止4回/周
3	急加減速短距離	125m	加減速の連続 段差有1箇所

注:No.3のコースは定速無、常に加速か減速

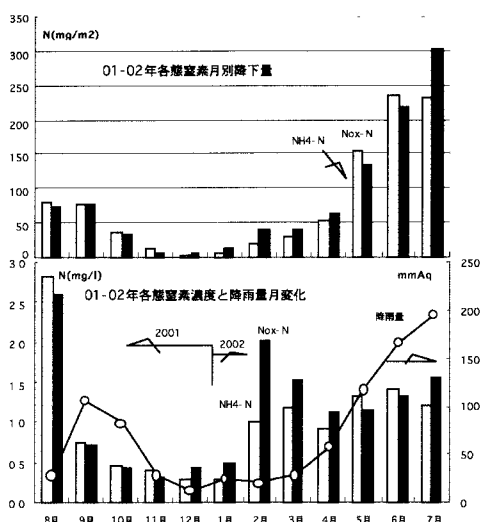


図3 松井田西中学校01-02年月別降雨中窒素濃度・降雨量と窒素降下量

の風の影響が強くなる。またアンモニア態窒素と硝酸態窒素の比は通年で約1対1であり、農業や畜産由来のアンモニア態窒素があるとしても、大半のアンモニア態窒素は、首都圏からパーティクルの形で飛来しているものと思われる。このような傾向は、どの測定点でも観測されている。

3.自動車排気ガスのアンモニア態窒素測定方法

自動車排気ガスの測定法は、JISに示されてい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。そこで簡単な自動アンモニア態窒素回収装置を独自に開発し(図4)、各種のガソリン車を用いて実走行試験を行った。

図4の自動回収装置は、排気管内の排ガスを定量・定圧で吸引するので、精製水に吸収されたのちにその吸収水を分析することで、走行モードと発生量の関係が得られる。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O₂程度ととても低いために、この水吸収法ではアンモニア態窒素は相当の比率で回収されるが、NOの回収はごく僅かであり窒素全体の物質収支はとれない。校内の走行コースを表1、図5に示したが、30km定速走行、連続加減速、短距離急加減速の3モードで実施した。実走行試験に用いた車種の一覧を表2に示した。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、一般道を走行して排気ガス測定を実施した。全ての測定は、吸引ポンプ作動時間を1分で統一し、吸収濃度を低いレベルにとどめた。水質分析は、pH・ECは携帯用水質測定器、各態窒素についてはオートアナライザーを使用した。

4.結果及び考察
校内走行テストでの、各モード排ガス中アンモニア態窒素濃度の変化を図7に示した。表2のテスト車

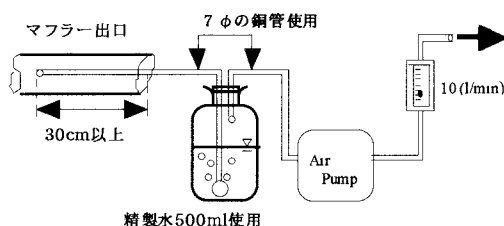


図4 排気ガス中NH₄-N回収装置概要図

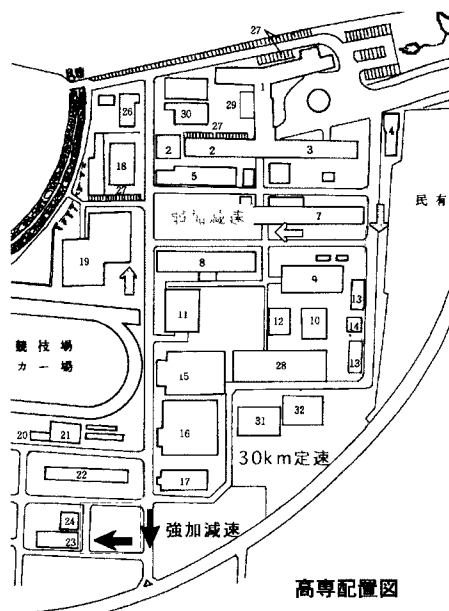


図5 ガソリン車排ガス測定時の各コース

表2 校内実走行排気ガス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	いすゞ エルフ	2800	軽油	触媒なし	ディーゼル
3	H8	BMW 318 iS	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	H1.2	ホンダ ロゴ	1300	ガソリン	三元触媒	
9	H11	ミツビシパジェロイオ	1800	ガソリン	三元触媒	GDI

のうち、4は触媒を外して実験した。また2はディーゼルトラックなので、結果には含めていない。4の触媒無のテスト車の測定結果は、図7棒グラフの右側に示した。左側の棒グラフは触媒付テスト車の測定平均値であるが、どの車も同じ挙動を示した。触媒無のテスト車では、殆どアンモニア態窒素の発生は認められなかったが、触媒付テスト車では、定速走行ではあまり排出されないアンモニア態窒素が、急加減速では高い濃度で検出され、三元触媒付の低公害車

は、相当量のアンモニア態窒素を発生していることがわかった。この試験で実施した加減速モードは、信号機が連続する首都圏の主要幹線で頻繁に出現するモードである。

次に表2中No.1の三元触媒車の一般道走行試験結果を、図8に示した。図には回収水のアンモニア態窒素の他にECとpHを示したが、アンモニア態窒素とECの相関は良好であり、またpHはアンモニア態窒素濃度が高いと上昇しており、窒素酸化物の溶解量が少ないことを示している。ここに示した結果は、1分間の吸収量を示しているので、走行距離当りの発生量は別途の計算となるが、低速定速走行以外はいずれの走行モードでもアンモニア態窒素の発生が多いことがわかる。

5.まとめ

本実験の結果は、首都圏で大量に走行している低公害車が、アンモニア態窒素の大きな発生源であることを示しており、図1に示した作業仮説が裏付けられた。

首都圏に対する利根川水系の水源としての重要さは、増加する一方であるが、水源の劣化が首都圏から飛来する大気により引き起こされていることは皮肉なことである。今後流域管理の点では大気由来の窒素を含めて考えることが必要と思われる。

西上州での雨水採集には多くの中学校に協力頂いた。ここに記してお礼申し上げる。尚本研究の一部は、昭和シェル石油環境研究助成財団および下水道振興基金研究助成により実施したものである。

参考文献

- 池田正芳、阿部聡、青井透(2002)窒素濃度の高い利根川支流鐺川での自然植生による浄化効果、第39回土木学会環境工学研究フォーラム講演集(投稿中)
 青井透、森邦広、池田正芳、阿部聡(2002)利根川支流鐺川水系の高い窒素濃度と降雨中窒素との関係、第53回全国水道研究発表会論文集、pp580-581
 青井透(2001)群馬県と首都圏の窒素の循環を考える、上州路、あさを社、11月号、pp14-21
 横山新起、押尾敏夫、原宏(2002)千葉県における酸性雨原因物質の排出量の把握(5)、第43回大気環境学会年会講演要旨集、p398
 村野健太郎(1993)酸性雨と酸性霧、掌華房、p114
 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、Vo.37,(2),pp155-165
 JISK0099(1998)排ガス中のアンモニア分析方法、JISK0104(2000)排ガス中の窒素酸化物分析方法、日本規格協会

表3 三元触媒付低公害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

Mode	走行状況	pH	EC	NH4-N	Nox-N	InorgN	走行距離
1	校内周固定速25km/h	3.78	1.03	0.01	0.07	0.09	
2	アイドリング(5分走行後)	3.73	0.95	0.00	0.03	0.04	
3	渋滞の県道30km/h	4.44	2.13	3.26	0.01	3.27	
4	市道/信号待ち右折有	4.45	2.79	4.1	0.03	4.13	200
5	郊外県道信号無50km/h	4.71	3.38	4.7	0.03	4.73	750
6	郊外県道信号無80km/h	5.12	5.47	8.91	0.03	8.94	1050
7	高速道路側道	4.88	3.58	6.74	0.01	6.75	700
8	住宅内道路1	4.9	4.08	5.57	0.02	5.59	340
9	住宅内道路2	4.82	3.64	5.63	0.01	5.64	300
10	アイドリング(1.5時間走行後)	4.12	1.37	0.99	0.01	1.00	

注記:平成10年登録、H社Sワゴン、走行距離8万km、昭和53年排ガス適合、排気量1.97l
 1分間吸引精製水試料の水質、単位はEC(mS/m),各N濃度(mg/l),走行距離(m/min)

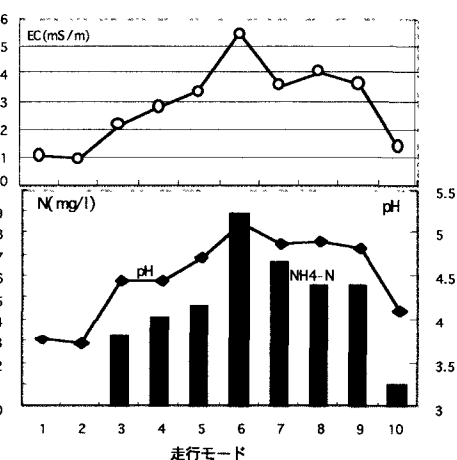
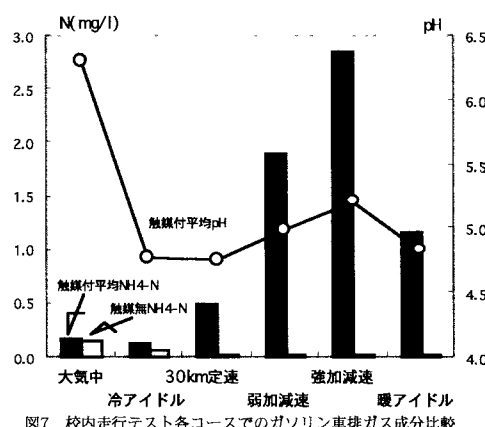


図8 実走行試験各モードのNH4-N濃度・pH・ECの変化