

## 新潟県における窒素酸化物濃度の季節変動

大泉 毅・福崎 紀夫

Keywords: NO<sub>x</sub>; NO<sub>2</sub>; 初冬季; 逆転層.

## 1 はじめに

二酸化窒素は、大都市とその周辺地域において環境基準の達成率が低い大気汚染物質である<sup>1)</sup>。関東地域では、初冬に二酸化窒素が高濃度となる現象が頻繁に出現し、発生源や気象要因との関係から解析が行われ、対策が検討されている<sup>1-4)</sup>。

新潟県においては、窒素酸化物そのものによる汚染は深刻化してはいないが、酸性雨の観測において関東地域と同様に窒素酸化物に由来する硝酸の降水酸性化に対する寄与割合の増加が指摘されている<sup>5)</sup>。したがって、窒素酸化物の新潟県における濃度の変動を把握することは、酸性雨の発生機構の解明あるいは二酸化窒素による汚染防止の観点からも重要である。ここでは、新潟県における窒素酸化物の季節的な変動を明らかにすると共に、その変動の原因について他の汚染物質濃度及び気象的要因との関係から検討する。

## 2 方 法

新潟県内の一般大気測定局で1989年度から1995年度に測定された窒素酸化物（ザルツマン法）濃度を用いて解析を行った<sup>6)</sup>。経年変化の解析には25局（県北東港地域9局、新潟地域9局、県央地域2局、魚沼地域1局、上越地域4局）の年平均値を、季節変動の解析には図1に示す各地域の代表地点5地点の月平均値を用いた。また、一酸化窒素から二酸化窒素への酸化に関わる成分としてオキシダント（中性ヨウ化カリウム溶液を用いる吸光光度法）、汚染物質の移動拡散に影響を与える大気安定度などの気象観測データを解析に用いた。

## 3 結果と考察

窒素酸化物（以下、NO<sub>x</sub> という）のうち、二酸化窒素（以下、NO<sub>2</sub> という）については環境基準が設定されて

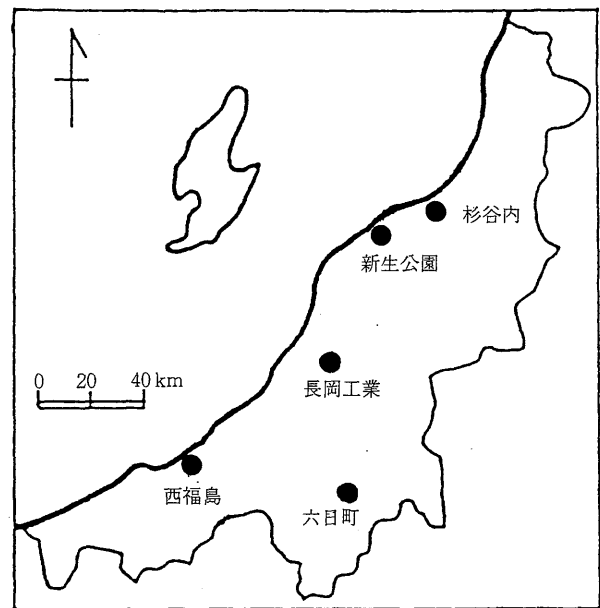


図1 代表調査地点の位置図

いる。化石燃料の燃焼により大気中に排出される窒素酸化物の大部分は一酸化窒素（以下、NO という）であり、これらが大気中でオゾン等の酸化性物質により NO<sub>2</sub> に酸化され、最終的には乾性沈着あるいは降水などに取り込まれて地上に降下することにより大気中から除去される。

## 3.1 年平均値

表1に新潟県の25局及び全国の一般大気測定局1171局<sup>7)</sup>の1989年度から1995年度における NO<sub>2</sub> 濃度の年平均値を示す。新潟県の地点別年平均値は4.0~17.6ppb の範囲にあり、全国平均値に比較して東消防署以外はいずれも低い値を示した。地域的には東港以北の測定局が比較的低い濃度を示している。また、この期間での経年変化に一定の傾向はみられない。

表1 NO<sub>2</sub> 年平均濃度の経年変化

年 度	NO <sub>2</sub> 年平均値 (ppb)													
	中 条	新発田	太郎代	笹 山	葛 塚	杉谷内	次第浜	別 行	正 庵	国設新潟	東消防署	石山中学	松浜中学	
1989	6	7	8	10	6	10	4	13	8	10	17	12	10	
1990	8	6	9	10	6	10	4	12	7	13	19	11	11	
1991	7	8	7	10	7	10	4	13	8	13	17	12	10	
1992	7	6	8	9	7	10	4	12	7	13	18	13	10	
1993	7	7	8	9	7	9	4	12	7	14	18	13	10	
1994	8	7	8	10	7	11	4	13	8	14	18	13	12	
1995	8	7	8	11	8	12	4	13	8	13	16	12	11	
平均 値	7.3	6.9	8.0	9.9	6.9	10.3	4.0	12.6	7.6	12.9	17.6	12.3	10.6	
標準偏差	0.7	0.6	0.5	0.6	0.6	0.9	0.0	0.5	0.5	1.2	0.9	0.7	0.7	

年 度	NO <sub>2</sub> 年平均値 (ppb)													
	木戸中学	内野中学	新生公園	金鉢山児公園	曾野木	燕	長岡工業	六日町	深 谷	西福島	大 崎	青海町役場	全国1171局	
1989	13	10	17	13	9	17	13	16	12	15	11	14	17	
1990	14	8	15	13	9	15	13	16	12	16	10	13	17	
1991	14	9	17	14	10	13	14	15	13	15	11	13	18	
1992	15	9	16	13	10	12	14	17	13	15	9	12	17	
1993	14	9	15	13	10	13	14	15	12	13	7	12	17	
1994	15	9	15	13	12	12	13	14	15	14	9	14	17	
1995	14	8	13	11	9	12	14	17	14	15	10	13	18	
平均 値	14.1	8.9	15.4	12.9	9.9	13.4	13.6	15.7	13.0	14.7	9.6	13.0	17.3	
標準偏差	0.6	0.6	1.3	0.8	1.0	1.8	0.5	1.0	1.1	0.9	1.3	0.8	0.5	

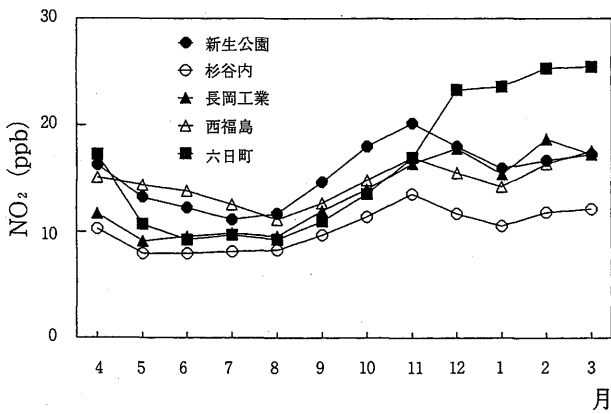


図2 NO<sub>2</sub> 濃度の季節変動 (1989~1995年度)

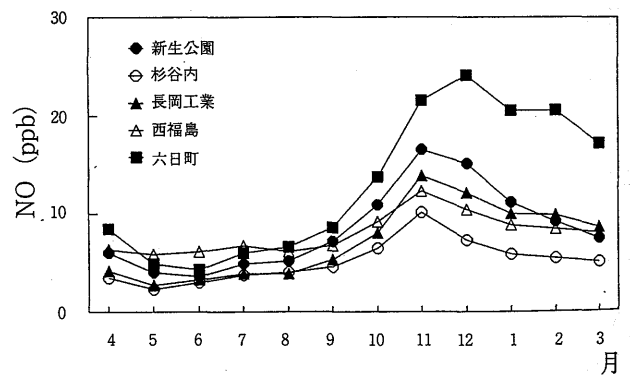


図3 NO 濃度の季節変動 (1989~1995年度)

### 3.2 季節変動

25測定局の内、地域的な代表性を考慮して5局を選定し、NO<sub>2</sub> 濃度の季節変動を図2に示した。六日町以外ではNO<sub>2</sub> 濃度は初冬季と春季にピークのある変動を示す。六日町は冬季間、高い濃度が継続する。NO<sub>2</sub> 濃度の季節変動に影響を与えることが予想される成分として、NO及びオキシダント(以下、Ox という)濃度の季節変動を図3、図4に示した。NOはNO<sub>2</sub>に比較して春季のピークはみられず、六日町以外は初冬の11月のみにピークをもつ変動を示す。六日町はやはり冬季に高い濃度が維持されている。NOは先に述べたように発生源から直接排出される汚染物質であり、その濃度は排出量と大気拡散の程度に大きく影響されると考えられる。表2に新潟県の中で大気汚染物質の排出量が多い新潟港周辺地域と上越地域におけ

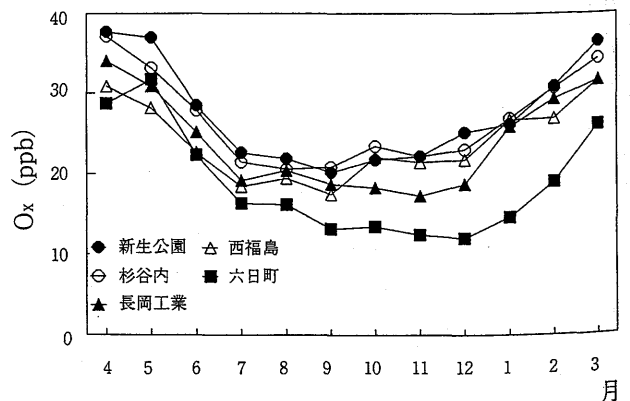


図4 オキシダント濃度の季節変動 (1989~1995年度)

る、暖房期と非暖房期のNO<sub>x</sub> 排出量の比較を示した<sup>8-10)</sup>。群小発生源において暖房期に排出量の増加がみられるが<sup>5)</sup>、

表2 暖房期と非暖房期の窒素酸化物排出量 (1992年度)

発 生 源	新潟港周辺地区 <sup>1)</sup>			上越地区 <sup>2)</sup>		
	非暖房期 <sup>3)</sup>	暖房期 <sup>4)</sup>	年間	非暖房期 <sup>3)</sup>	暖房期 <sup>4)</sup>	年間
	(10 <sup>3</sup> mol・day <sup>-1</sup> )					
工 場	549	555	551	1010	1040	1020
自 動 車	294	295	294	211	211	211
船 舶	13.6	14.0	13.8	18.9	11.1	15.8
航 空 機	3.43	2.79	3.22			
群小発生源	30.8	72.5	48.0	7.74	20.2	12.9
合 計	890	939	911	1250	1280	1260

1)年間値は文献 8)より, 非暖房期と暖房期の値は文献10)より引用.  
 2)年間値は文献 9)より, 非暖房期と暖房期の値は文献10)より引用.  
 3) 4月~10月, 4) 11月~3月

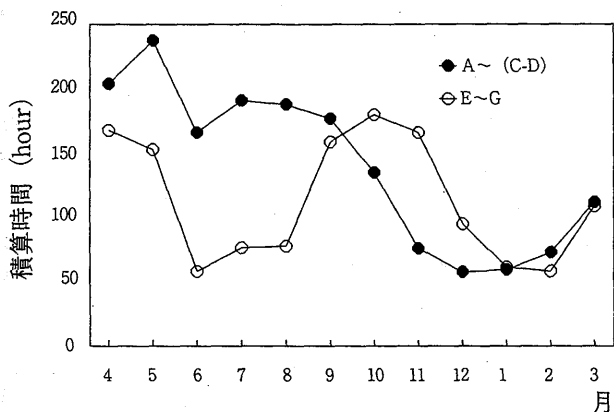


図5 大気安定度の季節変動 (杉谷内1993年度)  
 A~(C-D) : 不安定領域, E~G : 安定領域

量的に小さいために, 全排出量の暖房期における増加は数%程度である. したがって, 排出量の変動により NO の濃度変動を説明づけることはできない. 図5に1993年度に杉谷内測定局で観測したパスキルの分類による大気安定度<sup>13)</sup>の年変動を示した. 大気安定度における不安定領域(A~(C-D))の積算時間は, 春季から夏季に多く冬季に最も少ない. 逆に安定領域(E~G)は春季及び初冬に多い傾向にある. したがって, 不安定領域の低下と安定領域の増加が同時に観測される初冬季は, 一年の内で最も大気が安定する期間と考えられる. また, 夏季は逆に最も不安定な期間と考えられる. これらのことから, NO 濃度の初冬のピークは安定な大気により拡散が妨げられることが原因としており, さらに NO<sub>2</sub> 濃度の初冬ピークは前駆物質である NO の濃度上昇が原因と考えられる.

Ox は成層圏オゾンの降下の影響により<sup>14)</sup>, 各測定局共に3月~5月に濃度のピークが明確に現れる(図4). NO<sub>2</sub> の濃度変動にみられる春季のピークは, 春季の Ox 濃度の上昇により NO から NO<sub>2</sub> への酸化が促進されることが原因と考えられる.

冬季の六日町における NO<sub>2</sub> の高濃度の継続は, NO が高濃度レベルにあたるためと考えられるが, NO が高い濃度を継続する原因としては, 同地域が新潟県の中でも日射

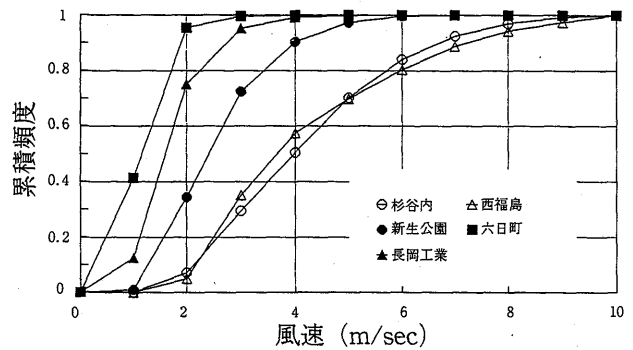


図6 冬季の日平均風速の累積頻度 (1990-1995年度, 11月~3月)

量の減少する冬季において風速が非常に弱く, 大気の拡散が充分に行われないことが原因の一つと考えられる(図6).

### 3.3 NO<sub>2</sub> の高濃度事例

NO<sub>2</sub> による大気汚染を評価する基準として, 環境基準のゾーンの下限值である日平均値40ppbを用い, 25局において, この値を超えた日数の積算値を図7に示した. 月平均値の変動と比較して, 冬季に高い傾向は類似しているが, 月平均値でみられる初冬のピークはみられず, 2月に明確なピークが存在する. この傾向は環境庁の集計による1995年度の全国状況と同様である<sup>7)</sup>.

新潟地域及び東港周辺地域の10測定局で40ppb を超える日平均値が観測された1996年2月13日の状況について以下に示す. 前々日まで続いた冬型の気圧配置が前日から弱まると共に気温が上昇し, 当日は日本海中部を低気圧が東進したため南風となり, 県内は曇り而下越, 佐渡で時々雨が降った. 図8に東港地区における2月の温位傾度<sup>15)</sup>の変動を示す. 11日までの冬型により気温の下がった接地層の上に, 気温の高い南風が流入し, 12日から強い逆転層が形成され, 14日の半ばまで継続されていることがわかる. この逆転層の継続により大気の拡散が妨げられ, 一時的に高濃度が比較的広い範囲で観測されたものと考えられる. 冬季のこの時期にみられる NO<sub>2</sub> の一時的な高濃度は, 季節

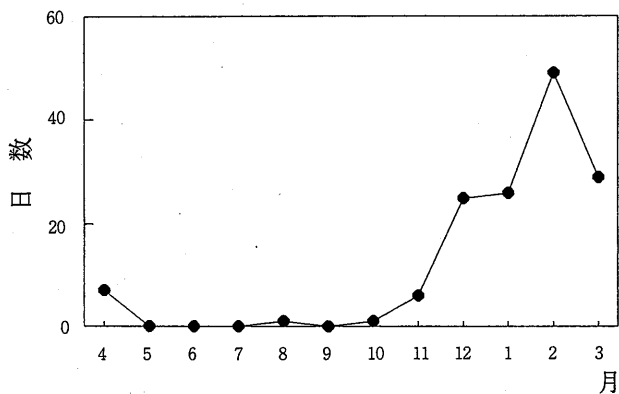


図7 NO<sub>2</sub> の日平均値40ppbを超えた日数  
(25測定局における1989~1995年度累計)

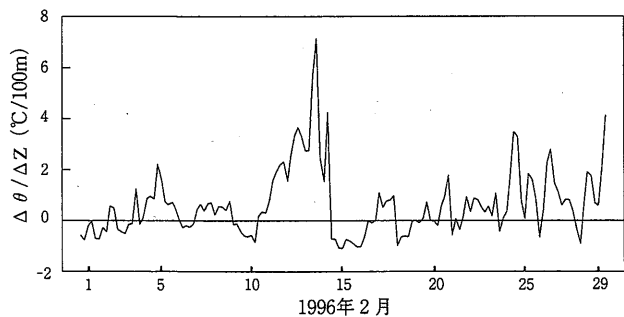


図8 1996年2月の温位傾度の変化  
(東新潟火力発電所)

風が弱まった期間に、暖気の流入などによりこのような強い逆転層が形成されることが原因の一つと考えられる。

#### 4 ま と め

新潟県における窒素酸化物濃度の季節変動について、気象因子や他の大気中成分濃度との関係から解析を行った結果、以下のことがわかった。

- 1) NO<sub>2</sub> 濃度の年平均値は全国平均値に比較して低く、経年変化に一定の傾向はみられない。

- 2) NO<sub>2</sub> 濃度は初冬季と春季に2つのピークがみられた。初冬季のピークは、前駆物質である NO の拡散が大気が安定であるために妨げられることが原因と考えられた。また、春季のピークは、オゾンなどの Ox 濃度が高いために、NO から NO<sub>2</sub> への酸化が促進されることが原因と考えられた。
- 3) NO<sub>2</sub> の日平均値の高濃度事例は2月に多くみられ、その原因の一つとして長期間継続する逆転層の形成が考えられた。

#### 文 献

- 1) 環境庁編：平成7年度版環境白書（各論），大蔵省印刷局，p.81（1995）。
- 2) 兼保直樹他：大気汚染学会誌，**29**，80（1994）。
- 3) 鶴野伊津志，若松伸司：大気汚染学会誌，**29**，179（1994）。
- 4) 吉門洋：大気汚染学会誌，**29**，351（1994）。
- 5) 関東地方公害対策推進本部大気汚染部会一都三県公害防止協議会：平成8年度酸性雨調査報告書，p.57（1997）。
- 6) 新潟県環境生活部環境対策課：大気汚染測定結果報告（平成元年度版（1989）から平成7年度版（1995））。
- 7) 環境庁大気保全局大気規制課：平成7年度一般環境大気測定局測定結果報告，（1996）。
- 8) 新潟県：東新潟火力発電所（4号機）に係る電源立地環境審査補助事業調査報告書，p.97（1994）。
- 9) 新潟県：直江津火力発電所（仮称）1号機，2号機及び3号機に係る電源立地環境審査補助事業調査報告書，p.3（1995）。
- 10) 株式会社数理計画より私信
- 11) 環境庁大気保全局大気規制課編：窒素酸化物総量規制マニュアル（改訂版），公害研究対策センター（1993）。
- 12) 福崎紀夫：大気汚染学会誌，**21**，296（1986）。