

高松市及びその周辺地域における 窒素酸化物高濃度現象に関する研究 (Ⅲ)

— 窒素酸化物の濃度分布 (3) —

Studies on the Phenomenon of the highly Concentrated Nitrogen Oxides in Takamatsu area(Ⅲ)
—Distribution of Nitrogen Oxides Concentrations in Takamatsu area(3)—

山下 彰子 田村 章 大津 和久 橋本 魁躬
Akiko YAMASHITA Akira TAMURA Kazuhisa OOTSU Osami HASHIMOTO
 塚本 武 増井 武彦
 Takeshi TSUKAMOTO Takehiko MASUI

In Takamatsu area, main arterial roads, such as Kansai-Shikoku Expressway were opened to traffic successively and traffic conditions have changed remarkably. In accordance with that, the concentration of nitrogen oxides have become higher in recent years.

We measured the concentration by using passive sampling devices and atmospheric nitrogen oxides automatic analyzers. Using those data, we have estimated regression equations, investigated the distribution of nitrogen oxides and seek the cause for the high concentration.

As a result, we have verified something about the high concentration phenomenon, such as the concentration of nitrogen oxides have appeared lower at street districts, seaside districts, island districts and inland districts with written and the concentration have shown close relation to wind, traffic condition etc..

はじめに

高松市及びその周辺地域の窒素酸化物による大気汚染は、主として自動車に起因するものと考えられる。また、当該地域は、年間約8万隻(1日平均約220隻)の船舶が入出港する¹⁾高松港があり、東備讃瀬戸航路をはじめとした航路をもつ瀬戸内海に面していることから、海域からの移流、船舶による汚染などもあると予想される。

そこで、平成6年度から8年度にかけて、簡易測定法及び、自動測定法を並用して調査を行った。

6年度には、簡易測定法による濃度分布状況や自動測定機による時刻別濃度推移などを解析し、海域からの移流が、臨海部に高濃度をもたらすことを報告²⁾した。

7年度には、臨海部のバックグラウンド地点等を追加し、濃度分布の経年変化を調査するとともに、自動車交通量との関係について解析を行った³⁾。

8年度は新しく島しょ部に地点を追加し、濃度分布の経年変化調査を行った。本報では、3年間のまとめ、新たに追加した島しょ部の解析、発生源からの影響についての検証等を行ったので、その結果について報告する。

調査方法

1. 調査期間

平成8年5月20日～8月12日

2. 調査地点

32地点で実施した。なお、島しょ部地点については、女木町は島の内陸部(港より約285m, 海岸より直線距離で約210m), 男木町は港の近く(港より約150m, 海岸より直線距離で約60m)に設置した。

3. 調査内容

前報同様³⁾, 32地点で、二酸化窒素及び窒素酸化物($\text{NO} + \text{NO}_2$)の濃度を、それぞれTEA試薬及びTEA-PT10混合試薬を用いた簡易測定法により測定した。試料交換期間は、2週間毎とした。

また、そのうち9地点で自動測定機(ザルツマン法)と並行測定を行った。

表1に調査地点及び調査項目を、図1に地点を示した。

表1 調査地点及び調査項目

区分	地点番号	地点名	項目<窒素酸化物>		備考
			簡易測定法	自動測定機	
市街部	1	栗林公園前	○	●	高松市
	2	高松市役所	○	●	"
	3	花園	○	●	"
	4	松島町	○	○	"
市街部・臨海部	5	高松港	○	○	"
	6	高松競輪場	○	●	"
	7	高松市営コート(南)	○	○	"
	8	高松市営コート(北)	○	○	"
臨海部	9	環境研究センター	○	○	"
	10	屋島西町	○	○	"
	11	生島町	○	○	"
	12	香西公民館	○	○	"
	13	浜ノ町	○	○	"
	14	郷東町	○	○	"
	15	春日町	○	○	"
	16	庵治町役場	○	○	庵治町
	17	牟礼町役場	○	○	牟礼町
	18	志度町役場	○	○	志度町
内陸部	19	伏石町	○	○	"
	20	林町	○	○	"
	21	元山町	○	○	"
	22	仏生山町	○	○	"
	23	十川東町	○	○	"
	24	三木町役場	○	○	三木町
	25	三木町平木	○	○	"
	26	高松南消防署	○	○	高松市
	27	鶴尾公民館	○	○	"
	28	国分寺町役場	○	○	"
島しょ部	29	香川町浅野	○	○	香川町
	30	香川町役場	○	○	"
	31	女木町	○	○	女木町
	32	男木町	○	○	男木町

(注) ●は大気汚染常時監視測定局である。

結果及び考察

1. 簡易測定値のザルツマン値への変換

前報³⁾と同様に、並行測定を行った地点における簡易測定法の測定値(以下「簡易測定値」と略す。)と、自動測定機の測定値(以下「自動測定値」と略す。)を用いて、相関を求めた。また、回帰分析により、簡易測定値をザルツマン法の値(以下「ザルツマン値」と略す。)に変換する式を算出した。なお、ここでは、データ欠測等を考慮して、並行測定を行ったうち、6地点のデータを採用した。

TEA法については、回帰式が $Y = 0.91X - 1.16$ 、相関係数が0.915、TEA-PTIO法については、回帰式が

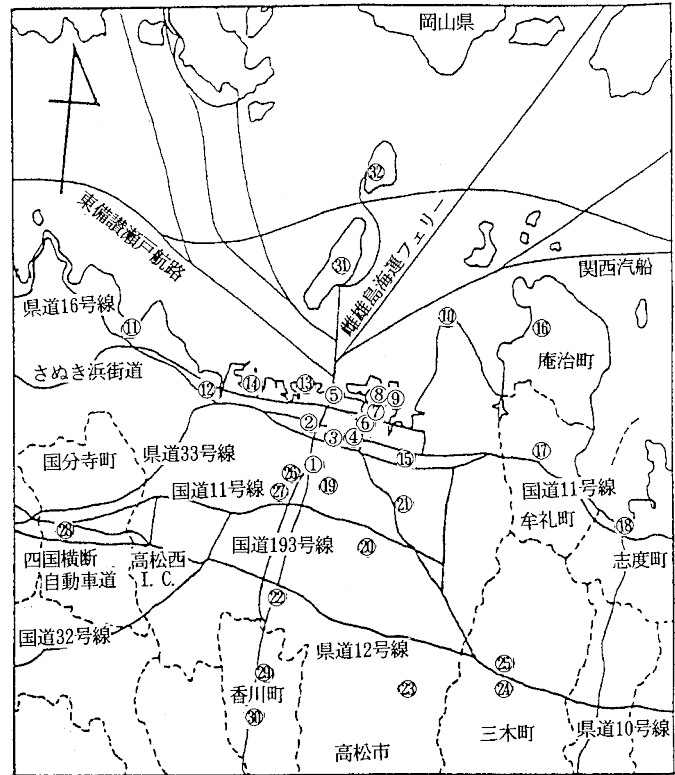


図1 調査地点

$Y = 1.29X + 1.50$ 、相関係数が0.971となり、相関係数はいずれも危険率1%で有意であった。(X:簡易測定値, Y:ザルツマン値)

表2に二酸化窒素と窒素酸化物の簡易測定値及び自動測定値、図2、図3にそれぞれの相関図を示した。

表2 簡易測定値及び自動測定値

項目	地点名	簡易測定値 ($\mu\text{g}/\text{日}\cdot 100\text{cm}^3$)	自動測定値 (ppb)
二酸化窒素	高松市役所	35.9	34.2
	花園	29.5	23.0
	環境研究センター	30.0	30.8
	志度町役場	22.9	26.6
	三木町役場	12.4	11.4
	国分寺町役場	21.7	19.8
窒素酸化物	高松市役所	52.0	68.5
	花園	39.6	42.3
	環境研究センター	45.4	57.0
	志度町役場	31.2	44.7
	三木町役場	13.6	16.1
	国分寺町役場	26.0	30.9

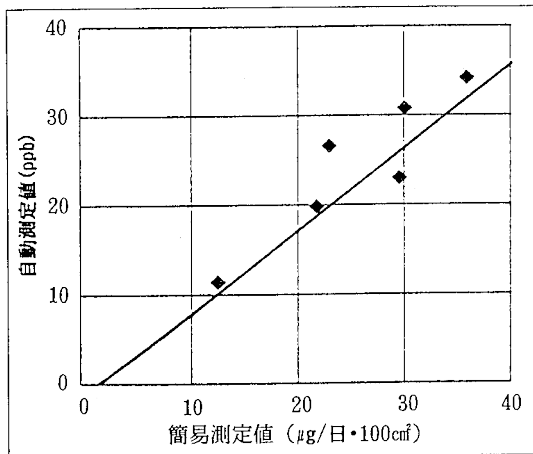


図2 簡易測定値と自動測定値（二酸化窒素）

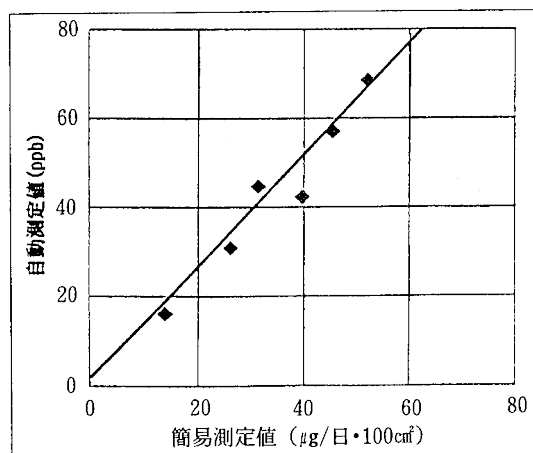


図3 簡易測定値と自動測定値（窒素酸化物）

自動測定値と簡易測定値との比率は、二酸化窒素が0.959、窒素酸化物が1.241であった。二酸化窒素については、気温の高い季節では自動測定値の方が低い値になるという報告⁴⁾と一致していた。

前年度と比較して、地点数の9から6への減少、調査期間などという条件差はあったが、本年度も良好な相関がみられた。

2. 一酸化窒素及び二酸化窒素の濃度分布

ここでは、一酸化窒素濃度と二酸化窒素濃度について、8年度の分布状況、及び3年間の推移をみた。

2-1 8年度の濃度分布

地点毎の簡易測定値と測定時間を加重平均して、それぞれの地点の二酸化窒素及び窒素酸化物の調査期間の平均濃度を求め、回帰式を用いてザルツマン値に変換した。

表3に地点毎の平均濃度を示した。なお、ここでの一酸化窒素濃度とは、窒素酸化物濃度から二酸化窒素濃度を差し引いたものである。

表3 窒素酸化物平均濃度（ザルツマン値）

区分	地点番号	地点名	一酸化窒素 (ppb)	二酸化窒素 (ppb)	窒素酸化物 (ppb)
市街部	1	栗林公園前	63.5	46.2	109.7
	2	高松市役所	34.1	31.5	65.6
	3	花園	23.9	25.7	49.6
	4	松島町	29.4	27.7	57.1
市街部・臨海部	5	高松港	62.0	37.2	99.1
	6	高松競輪場	61.2	35.4	96.7
	7	高松市営コート(南)	41.0	37.7	78.7
	8	高松市営コート(北)	34.2	32.1	66.4
臨海部	9	環境研究センター	30.9	26.1	57.1
	10	屋島西町	13.7	14.5	28.2
	11	生島町	20.8	19.1	39.9
	12	香西公民館	22.8	23.8	46.6
	13	浜ノ町	32.4	27.5	59.9
	14	郷東町	26.3	27.4	53.7
	15	春日町	17.5	19.3	36.8
	16	庵治町役場	14.7	16.9	31.7
	17	牟礼町役場	16.4	19.9	36.3
	18	志度町役場	19.1	19.7	38.7
内陸部	19	伏石町	13.4	17.6	31.0
	20	林町	10.7	13.1	23.8
	21	元山町	22.5	19.6	42.1
	22	仏生山町	7.8	11.9	19.7
	23	十川東町	9.9	10.9	20.8
	24	三木町役場	5.9	10.1	16.0
	25	三木町平木	6.5	9.0	15.5
	26	高松南消防署	26.0	26.0	52.0
	27	鶴尾公民館	13.0	17.1	30.1
	28	国分寺町役場	13.5	18.6	32.0
	29	香川町浅野	9.3	7.0	16.3
	30	香川町役場	7.2	8.7	15.9
島しょ部	31	女木町	17.6	20.8	38.4
	32	男木町	24.5	24.2	48.7

2-1-1 一酸化窒素

図4に4ppb毎にランク分けした分布図を示した。

栗林公園前をピークとして、高松市市街部の幹線道路※沿いの高松市役所、市街部及び臨海部の高松競輪場、高松港、高松市営コートなどで高濃度が出現していた。高松市営コートの南と北とでは差がみられた。また、内陸部になるに従って濃度の減衰が見られた。島しょ部の女木町は、臨海部の春日町と同程度の濃度、男木町は市街部の花園と同程度の濃度であった。

(※幹線道路：一般国道、主要地方道)

2-1-2 二酸化窒素

図5に4ppb毎にランク分けした分布図を示した。

瀬戸内海に隣接した環境研究センターや浜ノ町、郷東町などでは、市街部であり幹線道路に面した高松市役所と同程度の濃度が出現していた。島しょ部の女木町と男

木町では、濃度差はほとんどなかった。また、庵治町役場や生島町、屋島西町など、臨海部にあり自動車排出ガスの影響をあまり受けていないと考えられる地点においても、比較的高い濃度が出現していた。

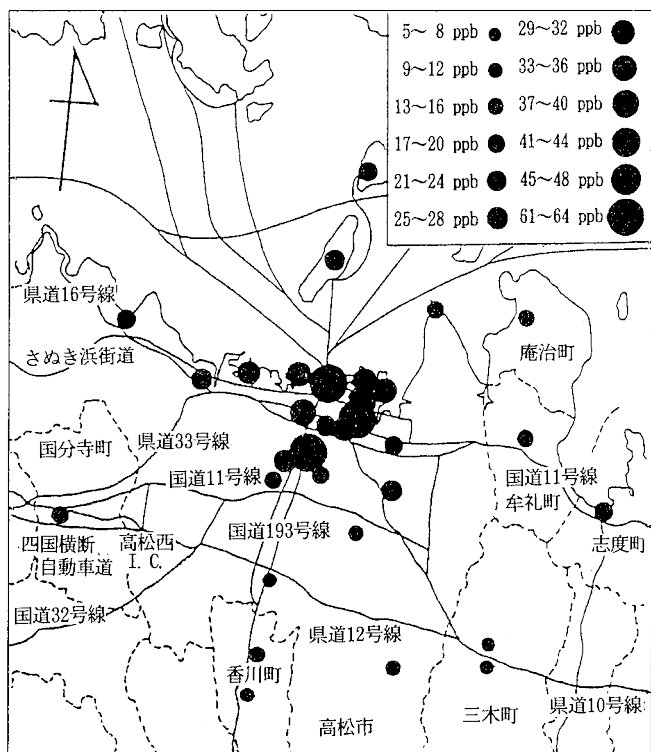


図4 一酸化窒素の濃度分布

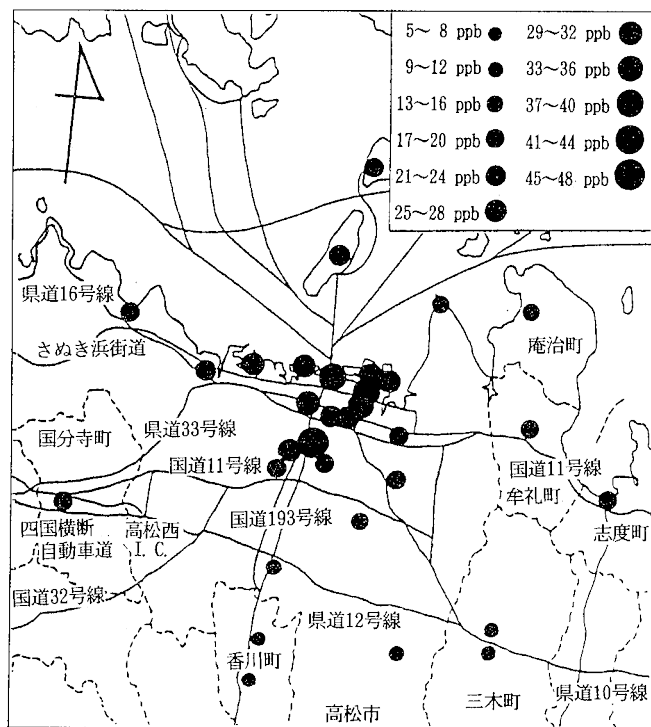


図5 二酸化窒素の濃度分布

2-2 3年間の濃度推移

3年間を通して測定を行った計15地点のデータを用いて、濃度の推移をみた。

表5、表6に3年間の一酸化窒素、二酸化窒素の濃度一覧を、図8、図9に濃度推移を示した。

一酸化窒素濃度については、図8から、大部分の点が $X=Y$ より下にあることから、平成8年度が高かったことが分かった。

表5 3年間の一酸化窒素濃度一覧

地点名	平成8年度	平成7年度	平成6年度
栗林公園前	63.5	50.4	41.0
高松市役所	34.1	27.8	26.0
花園	23.9	16.3	13.0
高松港	62.0	51.6	48.0
高松競輪	61.2	39.9	30.0
環境研究センター	30.9	22.7	20.0
生島公園	20.8	16.7	12.0
郷東町	26.3	21.3	13.0
春日町	17.5	8.7	8.0
庵治町役場	14.7	9.5	13.0
牟礼町役場	16.4	16.8	10.0
志度町役場	19.1	13.9	12.0
伏石町	13.4	9.4	6.0
仏生山町	7.8	5.3	3.0
十川東町	9.9	7.2	5.0

表6 3年間の二酸化窒素濃度一覧

地点名	平成8年度	平成7年度	平成6年度
栗林公園前	46.2	35.3	37.0
高松市役所	31.5	29.6	35.0
花園	25.7	26.7	26.0
高松港	37.2	38.7	47.0
高松競輪	35.4	33.4	33.0
環境研究センター	26.1	29.3	32.0
生島公園	19.1	16.4	22.0
郷東町	27.4	27.9	31.0
春日町	19.3	20.0	22.0
庵治町役場	16.9	23.0	21.0
牟礼町役場	19.9	22.8	23.0
志度町役場	19.7	21.1	20.0
伏石町	17.6	19.4	21.0
仏生山町	11.9	11.8	14.0
十川東町	10.9	9.6	13.0

二酸化窒素濃度については、図9から、データのばらつきは少ないが、 $X=Y$ より上に点があることから、濃度差こそ小さいが、平成8年度が多少低い傾向にあったことが分かった。

また、3年間の一酸化窒素と窒素酸化物の濃度比率は、6年度が35.4%、7年度が42.8%、8年度が50.5%であった。8年度については、最も高い比率であることから、自動車等発生源からの影響が大きかったと推定された。

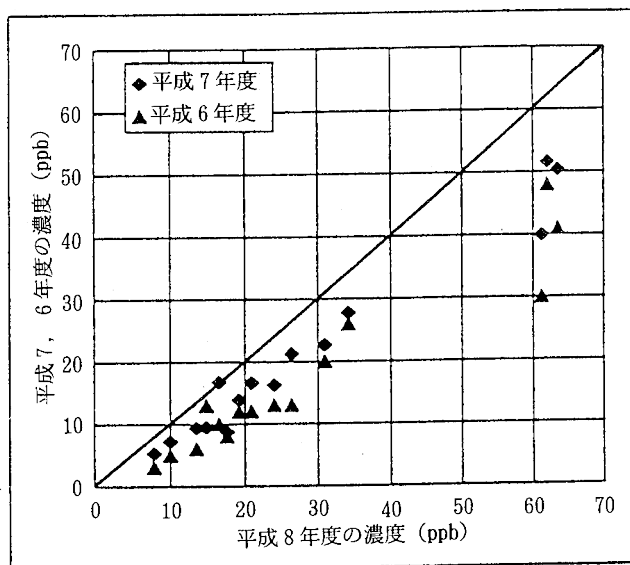


図8 一酸化窒素濃度の推移

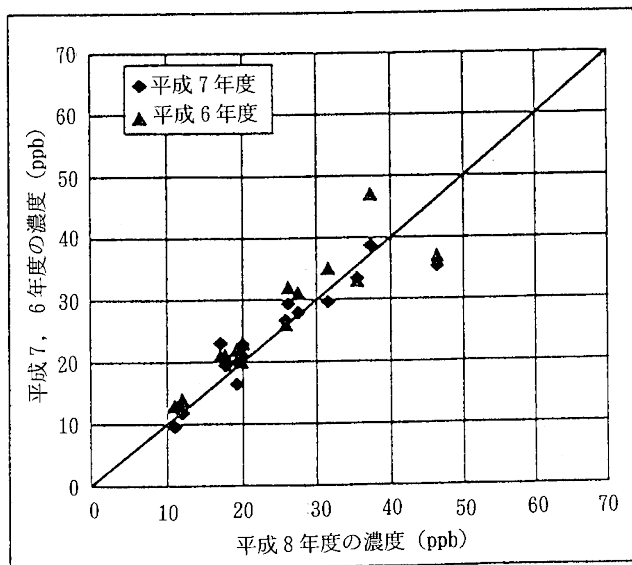


図9 二酸化窒素濃度の推移

3. 窒素酸化物濃度と測定位置、発生などの関係

2-1-2でも記したが、自動車排出ガスの影響の少ない臨海部地点で、比較的高い濃度が出現するという傾向が見られた。そこで、瀬戸内海に面している当該地域には、海域からの移流や、船舶などの影響があるとの予想をもとに、調査地点の濃度と、その位置や発生源などの関係について解析を行った。

3-1 島しょ部濃度の解析

本年度、新たに島しょ部地点として追加した女木町、男木町のデータを解析した。なお、前報³⁾と同様に、屋島西町の濃度を臨海部のバックグラウンド濃度として用いた。

3-1-1 一酸化窒素

女木町は17.6ppb、男木町は24.5ppbであった。2地点とも、臨海部バックグラウンド濃度の13.7ppbより高かった。

図1から分かるように、男木島は港に隣接する地点であり、出入港するフェリーや女木島との間を通過する東備讃瀬戸航路などからの影響を大きく受けている。一方、女木島は東備讃瀬戸航路からの影響は高さ300mの日蓮山に阻まれ、あまり大きくないものと考えられる。

従って、男木島と女木島の濃度差の6.9ppbが東備讃瀬戸航路や港湾からの影響であり、女木島と臨海部バックグラウンドとの濃度差の3.9ppbが海上部と臨海部のバックグラウンドの濃度差と見なすことができる。

3-1-2 二酸化窒素

女木町は20.8ppb、男木町は24.2ppbであった。2地点とも、臨海部バックグラウンド濃度の14.5ppbより高かった。

男木島と女木島の濃度差は3.4ppbと、一酸化窒素に比べ低くなっていた。これは、発生源からは大部分が一酸化窒素として排出されるため、一酸化窒素に比べ航路からの影響が少なかったものと考えられる。

また、女木島と臨海部バックグラウンドとの濃度差は6.3ppbであり、一酸化窒素よりも高くなっていた。これは、春期から梅雨期には、一酸化窒素とオゾンが反応して、陸風が卓越する21時頃に二酸化窒素の最高濃度が出現すること²⁾から、夜間に陸風によって海上に吹き戻された二酸化窒素に加え、昼間に船舶等から排出され、海上部に滞留していた一酸化窒素より生成した二酸化窒素によるものと考えられる。

3-2 一酸化窒素、二酸化窒素発生源の検証

ここでは、市街部・臨海部で、幹線道路をはさむ3地点(⑥高松競輪場, ⑦高松市営コート(南), ⑧高松市営コート(北))のデータをもとに、当該地域の窒素酸化物汚染が、自動車、海域からの移流、船舶からどの程度の影響を受けているかについて、風向別寄与を用いて濃度を計算し、解析を行った。

なお、競輪場で、簡易測定と自動測定の間をあわせるために、6月3日から7月1日、7月29日から8月12日のデータを用いた。風向別寄与度には、自動測定測定結果から算出したデータを、濃度計算には、簡易測定値と測定時間を加重平均して求めた平均濃度を用いた。

図6に位置関係を、表4と図7に高松競輪場における一酸化窒素、二酸化窒素の風向別寄与度を示した。

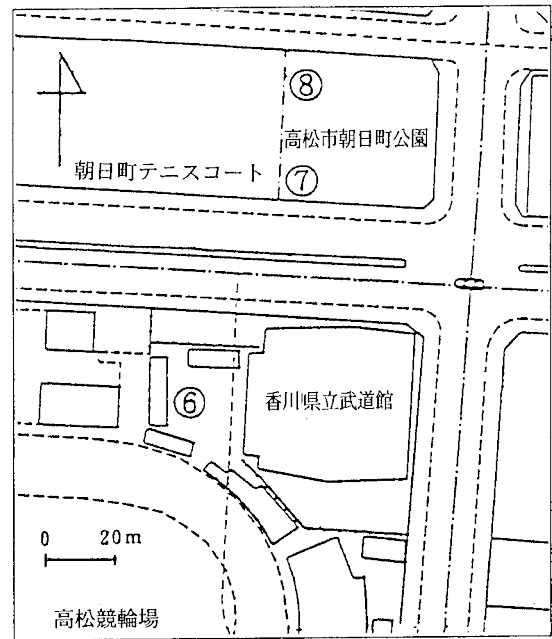


図6 3地点の位置関係

表4 高松競輪場における一酸化窒素、二酸化窒素の風向別濃度及び寄与率

	NNE	NE	ENE	E	ESE	SE	SSE	S	SSW	SW	WSW	W	WNW	NW	NNW	N	CALA	合計	
出現回数(時間数)	57	33	22	74	65	60	34	74	32	30	50	49	28	38	202	93	67	1008	
濃度 (ppb)	一酸化窒素	36	31	15	15	13	12	21	35	21	20	24	22	52	59	53	47	73	32
	二酸化窒素	38	31	25	23	23	21	25	29	31	22	19	17	36	45	41	41	39	30
寄与率 (%)	一酸化窒素	5.6	2.8	0.9	3.0	2.4	1.9	1.9	7.0	1.9	1.7	3.3	2.9	4.0	6.1	29.4	12.0	13.4	100
	二酸化窒素	6.8	3.2	1.7	5.4	4.7	3.9	2.7	6.6	3.1	2.1	2.9	2.6	3.2	5.3	25.7	11.9	8.2	100

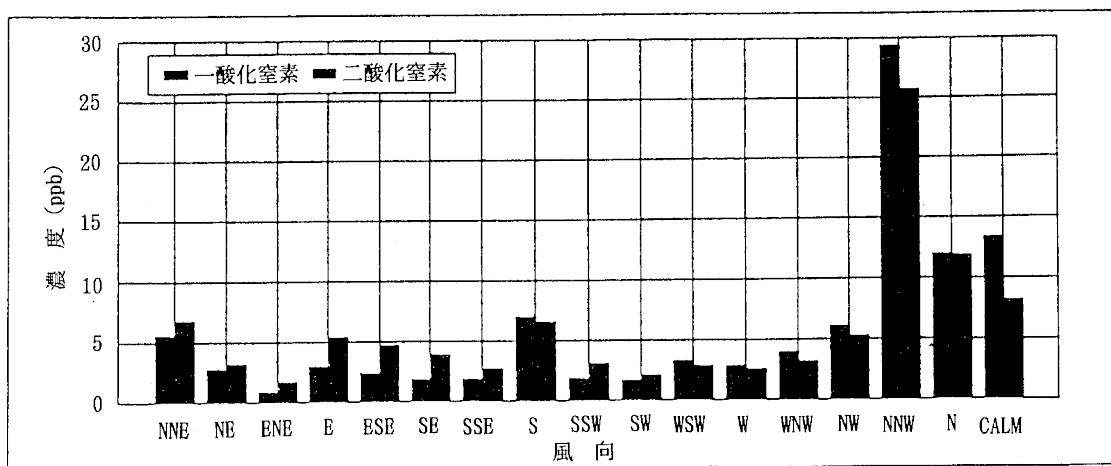


図7 高松競輪場における風向別寄与度

3-2-1 一酸化窒素

濃度については、競輪場が32.7ppb、市営コート(南)が32.0ppb、市営コート(北)が24.9ppbであった。

競輪場は、位置的にみて、北方向からは移流と自動車、南方向からは移流のみの影響をうけている。まず、風向別寄与率を用いて、移流と自動車の寄与濃度をそれぞれ算出した。

図7より、北方向の寄与率は67.5%(WNW→N→ENE, CALM/2の合計)、南方向の寄与率は26.8%(ESE→S→WSW, CALM/2の合計)と設定した。なお、0.4m/s以下の無風状態を示すCALMについては、南北にそれぞれ半分ずつ寄与するものとし、WとEについては、どちらにも寄与しないものとした。また、北方向からの移流は、臨海部バックグラウンド濃度に等しいものとした。

計算の結果、北方向からの移流は6.2ppb、北方向からの自動車の影響は15.9ppb、南方向からの移流は8.8ppbとなった。濃度中の48.6%は自動車から、45.9%は移流からの影響であり、自動車からの直接的影響の方が大きいことが確認された。

続いて、市営コート(南)を解析した。北方向からは移流のみ、南方向からは移流と自動車の影響をうけている。なお、移流の影響は競輪場と同様と考えた。その結果、北方向からの移流は6.2ppb、南方向からの移流は8.8ppb、南方向からの自動車の影響は15.2ppbとなった。濃度中の47.5%は自動車から、46.9%は移流からの影響であり、ここでも自動車からの直接的影響の方が大きいことが確認された。また、自動車の影響は、北方向からも南方向からも、ほぼ同じであったことが確認された。

市営コート(北)では、北方向からの移流は6.2ppb、南方向からの移流は8.8ppbであり、南方向からの自動車影響は8.5ppbという結果が出た。約35m南方向に位置する市営コート(南)よりも、自動車の影響は6.7ppb低く、その減衰率は44.1%であった。これは、同じ浜街道沿いで行った距離減衰調査⁴⁾の42.6%(地点間の距離が約45m)とほぼ一致していた。距離減衰予測式を用いて求めた減衰係数は0.047となり、距離減衰計算結果⁴⁾の0.009~0.044(およそ0.02程度と推定)と比較して、多少高めながらもよく似た結果がでた。また、減衰係数が大きいことから、急激に濃度が減少していることも推定された。

3-2-2 二酸化窒素

濃度については、競輪場が35.6ppb、市営コート(南)が31.9ppb、市営コート(北)が34.0ppbであった。

一酸化窒素と同様の方法で計算した結果、競輪場では、北方向からの移流は14.1ppb、北方向からの自動車影響は9.9ppb、南方向からの移流は9.5ppbとなった。また、濃度中の27.8%は自動車から、66.3%は移流からの影響であった。

市営コート(南)については、北方向からの移流は14.1ppb、南方向からの移流は9.5ppb、南方向からの自動車の影響は6.5ppbとなった。濃度中の20.4%は自動車から、74.0%は移流からの影響であった。

市営コート(北)については、北方向からの移流は14.1ppb、南方向からの移流は9.5ppbで、南方向からの自動車影響は8.5ppbとなった。濃度中の25.0%は自動車、69.4%は移流からの影響であった。

3地点とも、あまり濃度差が見られず、自動車からの影響は20.4~27.8%(平均24.4%)、移流からの影響は66.3~74.0%(平均69.9%)であり、移流の影響が大部分を占め、自動車の直接的影響が小さかったことが確認された。これは、二酸化窒素は比較的局地性が小さく、濃度変動の原因が共通するという報告⁸⁾と一致していた。

ま と め

1. 簡易測定値は自動測定機の測定値と高い相関のあることが確認できた。
2. 市街部地点，臨海部にある市街部地点，島しょ部地点，内陸部地点の順に高濃度が出現していた。
また，自動車等発生源からの影響が大きくなってきていることが推定された。
3. 島しょ部は，船舶からの影響を直接的にうけていることが推定できた。
4. 高松市及びその周辺地域の大气汚染は，汚染源，それからの風向別寄与や距離といった影響が重なり合っていることが推定できた。

文 献

- 1) 運輸省運輸政策局情報管理部：港湾統計（年報），6, 74(1995)
- 2) 橋本魁躬，大津和久，田村章 他：香川県環境研究センター所報，19, 51 (1994)
- 3) 橋本魁躬，大津和久，田村章，長尾裕一：香川県環境研究センター所報，20, 61 (1995)
- 4) 西川恵，山本務，高橋敏夫：香川県公害研究センター所報，14, 69 (1989)
- 5) 西川恵，小山健，瀬戸義久：香川県公害研究センター所報，13, 69 (1988)
- 6) 小山健，瀬戸義久，中野智：香川県公害研究センター所報，12, 55 (1987)
- 7) 小山健，三木正信，久保正弘 他：香川県公害研究センター所報，11, 49 (1986)
- 8) 菊地立：千葉県公害研究所研究報告，12 (1)，3 (1980)
- 9) 松本幸雄，新藤純子，廣崎昭太 他：大気汚染学会誌，26 (3)，136 (1991)