

# 千葉県における二酸化窒素の短期的高濃度汚染について

竹内和俊

## 1 目的

千葉県では、環境基準の長期的評価が定められている大気汚染物質のうち微小粒子状物質を除く二酸化硫黄（SO<sub>2</sub>）、二酸化窒素（NO<sub>2</sub>）、浮遊粒子状物質（SPM）及び一酸化炭素について、全常時監視測定局での長期的評価が100%達成（2014年度現在）されている。それに対して環境基準の短期的評価については、SO<sub>2</sub>では希に100%達成する年度もあるが、継続して達成される状況<sup>1)</sup>には至っておらず、SPMでは一度も達成されていない状況<sup>2)</sup>にある。そこで、既報<sup>1)・2)</sup>では、SO<sub>2</sub>及びSPMの環境基準に係る短期的評価の問題点等について検討を進めてきた。

一方、NO<sub>2</sub>については、1978年度の環境基準の改訂により短期的評価は廃止されたが、SO<sub>2</sub>、NO<sub>2</sub>及びSPMは我が国における大気保全行政の発端となった典型的な汚染物質であること、NO<sub>2</sub>に係る環境基準の元となった当時の中央公害対策審議会（中公審）のクライテリアには1時間値(0.1ppm～0.2ppm)も含まれることから、NO<sub>2</sub>の短期的な高濃度汚染について検討することにも大きな意義があると考えら

れる。そこで、千葉県の最近の年度において、中公審の1時間値のクライテリアの下限值である0.1ppm（100ppb）以上の事例を収集、整理して、その現況及び問題点等について検討したので報告する。

## 2 研究方法

千葉県環境生活部大気保全課が行っている大気環境常時監視測定結果から、2000年度～2014年度においてNO<sub>2</sub>濃度の1時間値が100ppb以上となった事例（超過事例）を収集、整理して解析した。

## 3 結果

### 3・1 二酸化窒素に係る環境基準等の達成状況

1978年度にNO<sub>2</sub>に係る環境基準が改定されて以降の千葉県における環境基準達成状況及びNO<sub>2</sub>濃度の1時間値のクライテリア達成状況を、一般環境大気測定局（一般局）及び自動車排出ガス測定局（自排局）に分けて表1に示す。

表1から、一般局では早くも1979年度に環境基準が達成されたが、継続的に達成されるようになって

表1 千葉県における局区分別NO<sub>2</sub>環境基準等の達成状況

項目 \ 局区分	一般局	自排局
環境基準初達成年度	1979年度（昭和54年度）	2011年度（平成23年度）
環境基準継続達成状況	2001年度（平成13年度）から継続達成している。	2011年度（平成23年度）から継続達成している。
1時間値クライテリアの上限200ppb達成状況	2006年度（平成18年度）に初めて200ppb以上の時間が「0時間」となり継続達成されているが、この年度の超過局は香取新島局で工事の影響を受けたもので、実質的には2005年度（平成17年度）から継続達成されている。	1998年度（平成10年度）に初めて200ppb以上の時間が「0時間」となり、継続達成されている。
1時間値クライテリアの下限100ppb達成状況	2014年度（平成26年度）に初めて100ppb以上の時間が「0時間」となり、初達成された。	2014年度（平成26年度）現在も達成されていない。

たのは平成に入ってからで2001年度以降のことである。一方、自排局の環境基準は容易に達成されず、中でも船橋日の出局及び松戸上本郷局の2局の達成が困難<sup>3)</sup>であったが、2011年度に初めて船橋日の出局の環境基準が達成され、一般局から32年遅れて自排局での100%達成がなされた。ただし、その後は100%達成が継続されて2014年度現在に至っている。

それに対してクライテリアについては、表1のように、自排局では上限200ppbが1998年度に一般局より早く達成されているが、下限100ppbは2014年度現在も達成されていない。したがって、千葉県道路沿道でNO<sub>2</sub>が200ppbを超えるような高濃度汚染の発生は1998年度に既に解消されているが、100ppbの達成は現在も困難な状況にあると言える。ただし、後述のように近年NO<sub>2</sub>濃度が100ppbを超える自排局は船橋日の出局を中心に一部の自排局に限られている。

一方、表1のように、一般局ではクライテリアの上限200ppbの達成は実質的に2005年度と自排局より7年遅いが、下限100ppbは2014年度に初めて達成されている。ただし、2000年度～2014年度の間一般局で200ppbを超える高濃度が観測された事例は、銚子笹本局の2005年2月7日17時の233ppb、木更津畔戸局の2005年11月22日13時の211ppb及び近傍での工事の影響を受けた香取新島局での2006年12月13日～17日の間の8時間の計10時間のみである。

上記2事例うち、銚子笹本局の200ppb超過事例は単発、短時間の高濃度で、その時の風向はE、風速は1.6m/秒であった。その後、2008年3月9日17時～19時の風向SE、風速1.5m/秒～1.7m/秒時にも108ppb～151ppbの高濃度が類似例として発生しているが、発生源を推定するに足るその他の情報は十分になく、発生原因は不明である。一方、木更津畔戸局の200ppb超過事例は2005年11月22日12時～16時の主風向N～NNE、風速1.0m/秒～1.8m/秒時に観測されたNO<sub>2</sub>濃度104ppb～211ppbの最高値であった。そ

の後、2006年2月15日10時～14時の主風向N～NNE、風速1.4m/秒～3.0m/秒時にもNO<sub>2</sub>濃度108ppb～147ppbの類似の事例が発生しており、測定局の位置及び風向等を考慮すると京葉臨海工業地帯の発生源の影響などを受けた短期的高濃度と推察される。

いずれにしても、表1のとおり、一般局では2014年度にクライテリアの下限値100ppbを達成しており、現在は短期的なNO<sub>2</sub>高濃度汚染が生ずる可能性は低下している。

### 3・2 一般局

#### 3・2・1 超過事例集計結果

一般局における超過事例を年度別・月別に集計し、表2に示す。なお、前述のように、2014年度は超過事例の観測がなく、表2に2014年度は記載していない。また、全年度における超過事例の発生時間数、超過時の平均風速及びNO<sub>2</sub>濃度平均値を風向別に集計して図1に示す。

表2から、年度別には2002年度までは年間延べ100時・局を超える事例が認められるが、2003年度以降減少して100時・局を下回っている。しかしながら、超過事例が顕著に減少したのは、表2のように2009年度以降である。

同じく表2から、超過事例を月別に見ると11月～1月が計100時・局を超えて多く、合計488時・局と全超過事例608時・局の80%以上を占めている。こうした状況を図1に見ると、超過時の風向別NO<sub>2</sub>濃度に大差はないが、NW～NNE及びCALM時の発生件数がいずれも50時・局を超えて多く、その時の風速は弱いことが分かる。

したがって、一般局の超過事例の多くは大気が安定する初冬季の混合層高度が低く、逆転層等が形成される時期に発生しており、主に煙源高度の低い自動車排気ガスの影響を受けたものと言える。

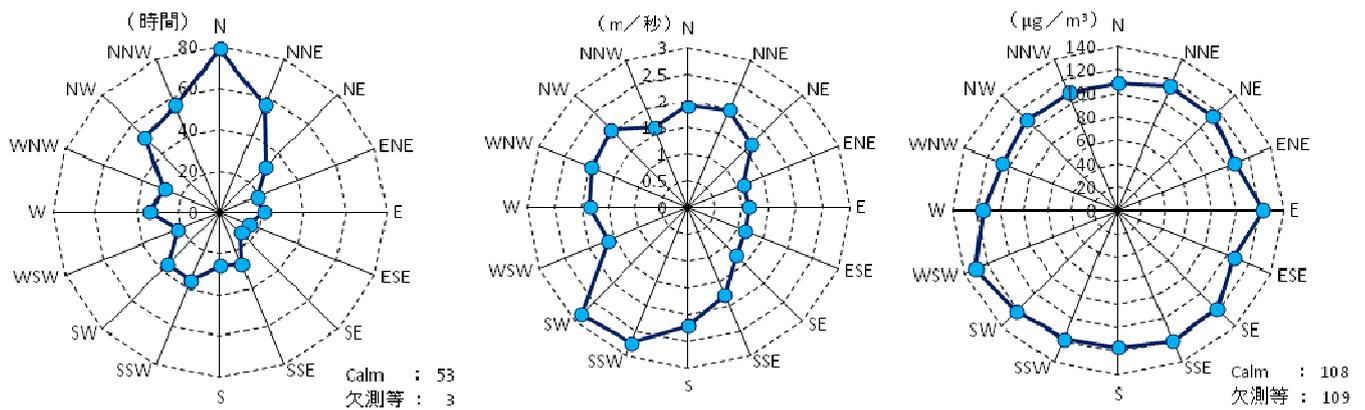
なお、年度別に見た場合、2008年度も11月の事例を除くと、事例数は2時・局のみと少ない。この2008年11月の事例は、11月7日16時頃から夜間にかけて千葉県内の比較的広い地域で発生した超過事例であり、広域的に1時間値が100ppb

を超えた恐らく千葉県最後の短期的 NO<sub>2</sub> 高濃度汚染である。そこで、この NO<sub>2</sub> 高濃度汚染の発生状況について見るため、2008 年 11 月 6 日～8 日

における全一般局の NO<sub>2</sub> 濃度及び風速の状況を図 2 に、主な日時の汚染状況を一般局のデータのみで作成したカラー面コンターとして図 3 に示す。

表 2 年度別・月別に見た一般局での 1 時間値 100ppb 以上の発生状況  
(時・局：時間×局数、局は延べ数)

年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	合計
2000	日	0	1	0	0	2	0	2	4	6	4	2	2	23
	局	0	1	0	0	2	0	3	11	7	3	2	7	36
	時・局	0	1	0	0	2	0	4	29	43	9	5	14	107
2001	日	0	0	2	1	0	0	3	3	2	8	1	1	21
	局	0	0	1	1	0	0	4	6	4	24	1	2	43
	時・局	0	0	4	2	0	0	4	9	13	68	1	5	106
2002	日	0	0	0	1	0	0	1	1	3	3	0	0	9
	局	0	0	0	1	0	0	1	11	6	25	0	0	44
	時・局	0	0	0	2	0	0	2	20	9	69	0	0	102
2003	日	1	0	0	0	0	1	0	2	5	4	1	0	14
	局	1	0	0	0	0	1	0	1	2	2	1	0	8
	時・局	1	0	0	0	0	1	0	3	10	7	2	0	24
2004	日	1	1	0	0	0	0	0	3	3	4	1	5	18
	局	2	1	0	0	0	0	0	12	3	10	1	4	33
	時・局	2	1	0	0	0	0	0	26	5	19	1	6	60
2005	日	1	0	0	1	0	0	1	3	0	1	2	0	9
	局	5	0	0	1	0	0	1	1	0	4	14	0	26
	時・局	7	0	0	1	0	0	2	7	0	9	22	0	48
2006	日	2	1	0	1	0	0	2	2	9	0	2	0	19
	局	2	1	0	1	0	0	2	1	2	0	3	0	12
	時・局	5	3	0	1	0	0	2	5	47	0	5	0	68
2007	日	0	0	0	0	0	1	0	0	0	1	0	2	4
	局	0	0	0	0	0	1	0	0	0	9	0	1	11
	時・局	0	0	0	0	0	1	0	0	0	17	0	4	22
2008	日	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	1	0	2
	局	0	0	0	0	0	0	0	16	0	0	1	0	17
	時・局	0	0	0	0	0	0	0	47	0	0	2	0	49
2009	日	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	1	3
	局	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	1	2
	時・局	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	2	4
2010	日	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	2
	局	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	2
	時・局	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	2	0	3
2011	日	0	0	0	0	0	0	0	2	2	0	0	0	4
	局	0	0	0	0	0	0	0	3	2	0	0	0	5
	時・局	0	0	0	0	0	0	0	11	2	0	0	0	13
2012	日	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
	局	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
	時・局	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
2013	日	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
	局	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
	時・局	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
合計	日	6	3	2	4	2	2	9	23	30	27	11	11	130
	局	11	3	1	4	2	2	11	64	26	78	24	15	241
	時・局	16	5	4	6	2	2	14	159	129	200	40	31	608



a 超過時間                      b 超過時の平均風速                      c 超過時のNO<sub>2</sub>濃度  
 図1 全年度における一般局の風向別超過時間、平均風速及び平均NO<sub>2</sub>濃度

図2及び図3から、6日15時頃までは風が強く、県内のNO<sub>2</sub>濃度は低い状況にあったが、16時頃から北東の風に運ばれて比較的NO<sub>2</sub>濃度の高い気塊が県北西部に広がり、この地域の濃度をやや上昇させた。その後、7日12時頃から西よりの風により東京湾或いは東京方面からNO<sub>2</sub>濃度の高い気塊が東葛、葛南及び千葉市や市原市の湾岸地域に流入し、7日16時頃からの風速の低下、大気の安定化により県内発生源の影響も加わって高濃度化が進行した。その結果、松戸市と市川市、浦安市、船橋市、習志野市、千葉市及び市原市の東京湾岸の広い地域でNO<sub>2</sub>濃度100ppb以上の超過事例が多発したが、7日深夜から風が再び強まり濃度は低下している。

### 3・2・2 超過事例多発局の状況

一般局のうち超過事例の多い測定局及びその状況を表3に示す。なお、表3の香取新島局は、上述のように測定局近傍での工事用車両の排気ガスの影響を受けたものであり、特定の高濃度となる風向は存在しないため示していない。

表3から、超過事例が多発している一般局はほぼ東京よりの東葛・葛南地域及び千葉市～富津市の東京湾岸地域の測定局に限られている。このうち、自動車排気ガスの影響を強く受けていると考えられる東葛・葛南地域の一般局は、11月～1月に多くの超過事例が発生しているが、千葉市～富津市に至る湾岸地域の一般局ではそれ以外の月の超過事例も比較

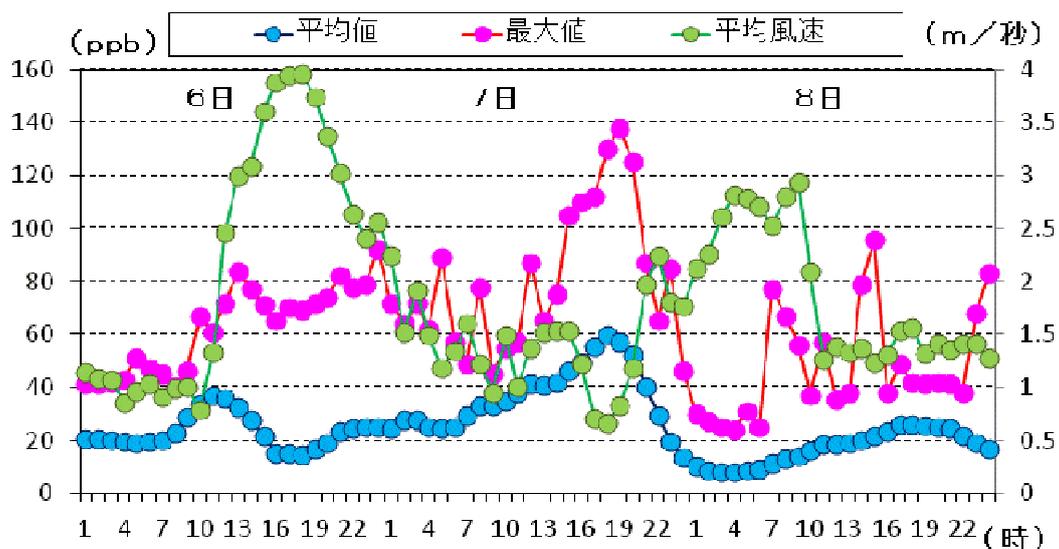


図2 全一般局におけるNO<sub>2</sub>濃度及び平均風速の状況 (2008年11月6日～8日)

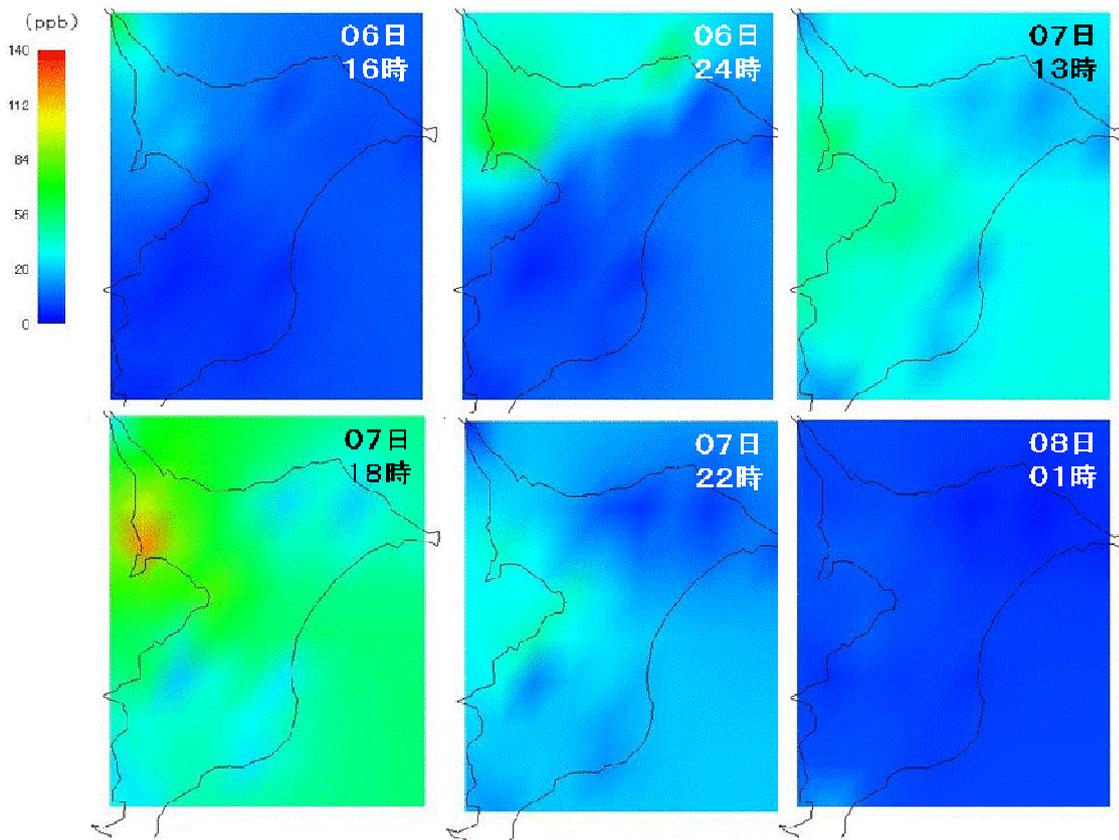


図3 2008年11月6日～8日の主な時刻における県内NO<sub>2</sub>濃度の分布状況

表3 1時間値100ppb以上の発生事例の多い一般局とその状況 (時・局)

測定局名	地域名	100ppb以上の濃度となった時間数等					高濃度となる 風向
		合計	2000年度～ 2008年度	2009年度 以降	11月～1月	それ以外 の月	
市川本行徳	葛南	73	73	0	70	3	NW～NNE
松戸根本	東葛	63	63	0	53	10	SSE～SSW WNW～NNW
香取新島	北総	53	53	0	50	3	—
市川二俣	葛南	36	28	8	29	7	N
浦安猫実	葛南	30	30	0	25	5	NW～N
君津俵田	君津	21	21	0	10	11	N
木更津畔戸	君津	19	19	0	11	8	N～NNE
千葉浜野	千葉	17	17	0	10	7	W～WNW
千葉今井	千葉	16	16	0	10	6	WNW
富津市富津	君津	13	13	0	9	4	N～NE
市川八幡	葛南	12	12	0	8	4	NW～N
千葉寒川	千葉	12	12	0	6	6	W～WNW
船橋若松	葛南	11	4	7	10	1	CALM
船橋南本町	葛南	11	11	0	8	3	SE～SSE
習志野谷津	葛南	11	11	0	11	0	NW
野田市野田	野田	10	10	0	7	3	CALM
市原岩崎西	市原	10	10	0	7	3	W～WNW
君津久保	君津	10	10	0	7	3	NNW～N

的多く、京葉臨海工業地帯の発生源の影響を受けた短期的NO<sub>2</sub>高濃度汚染の影響も窺える。

ただし、2009年度以降については、表3の多発局

でも超過事例は殆ど無く、葛南地域にある市川二俣局及び船橋若松局の2局でのみ比較的多くの超過事例が発生している。このうち、市川二俣局は京葉道

路と湾岸道路（国道 357 号及び東関東自動車道湾岸線）の 2 つの幹線道路に挟まれ、その周辺には多くの物流センターも立地しており、明らかに自動車排気ガスの影響を受け易い測定局である。また、船橋若松局も北東側約 500m を湾岸道路が通り、周辺には物流センターがあつて同様に自動車排気ガスの影響を受け易い測定局と考えられる。ただし、これらの測定局で超過事例が観測されたのも 2011 年度までであり、自動車排気ガスの影響を受け易い一般局での短期的な高濃度に対する懸念はかなり低下したと見ることができる。

なお、表 2 の 2012 年度及び 2013 年度に各 1 件だけ発生した超過事例は、2012 年度が袖ヶ浦蔵波局の 2012 年 11 月 29 日 15 時の NO<sub>2</sub> 濃度 105ppb、2013 年度が君津宮下局の 2013 年 11 月 1 日 5 時の NO<sub>2</sub> 濃度 130ppb であり、どちらも京葉臨海工業地帯周辺の測定局である。したがって、2014 年度に一般局でクライテリア下限の 100ppb 以上の観測時間が「0 時間」となったが、京葉臨海工業地帯周辺の測定局では特異的な気象条件や発生源条件が重なることによって、クライテリアの下限 100ppb 超えが発生する可能性が全くないとは、現時点では言い切れない。

### 3・3 自排局

自排局における超過事例を年度別・月別に集計し、表 4 に示す。また、全年度における超過事例の発生時間数、超過時の平均風速及び NO<sub>2</sub> 濃度平均値を風向別に集計して図 4 に示す。更に、自排局のうち超過事例の多い測定局及びその状況を表 5 に示す。

表 4 から、年度別には、2002 年度までは延べ年間 200 時・局程度事例が認められ、2003 年度～2008 年度は 100 時・局程度で、2009 年度以降 100 時・局を下回り超過事例の顕著な低下が認められる。2009 年度以降に超過事例の顕著な低下が認められた点については、一般局の結果と一致している。

一方、超過事例を月別に見ると、5 月～8 月がいずれも合計で 120 時・局以上と多く、特に 6 月及び 7 月の超過事例が多い。これらの月以外で 120 時・局を超える月は 11 月及び 1 月のみである。一般局では全超過事例の 80%以上が 11 月～1 月に観測さ

れているが、自排局でも 11 月～1 月の観測例は多いものの計 352 時・局で全超過事例 1393 時・局の約 25%に過ぎず、6 月及び 7 月の計 389 時・局全体の約 28%を下回っている。このように 5 月～8 月に超過事例が多いのは、道路沿道における NO<sub>2</sub> の短期的高濃度現象においては、既報<sup>3)</sup> のように一酸化窒素（NO）のオゾン酸化により発生する NO<sub>2</sub> の寄与が大きいため、オキシダント注意報など高濃度のオゾンが発生し易い 5 月～8 月に NO<sub>2</sub> の短期的高濃度も発生し易いためと考えられる。

こうした傾向を図 4 に見ると、風向別の NO<sub>2</sub> 濃度に大差はないが、風向別の超過時間数が 100 時・局を超える風向は S、SSW 及び CALM のみと極端に偏っている。このうち、S 及び SSW は、表 5 のように最も超過事例数の多い船橋日の出局の濃度が上昇する風向にあたっていることに由来しているが、CALM は一般局と同様に初冬季の大気の安定した状況で発生する NO<sub>2</sub> 高濃度汚染時の風速条件に当たっている。

最後に表 5 から、超過事例の多い自排局の中でも船橋日の出局及び松戸上本郷局の超過事例が特に多いことが分かる。全年度では、船橋日の出局単独で 627 時・局と全体の 45%以上を占め、2 局合計で 824 時・局と 60%近くを占めている。更に、2009 年度以降については、船橋日の出局単独で 96 時・局と全超過事例 143 時・局の約 67%を占めており、2 局合計で 124 時・局 86%以上を占めている。

また、月別の超過事例の傾向を見ると、表 5 の自排局は概ね県内の都市域にある局が多く、5 月～8 月以外の月の超過事例も比較的多い傾向にある。特に、監視対象道路の南側にあつて路端距離の長い浦安美浜局や千葉真砂自排局では、5 月～8 月の超過事例がなく、一般局と同様に 11 月～1 月の超過事例が多くなっており、監視対象道路からの直接的な影響に加えて、地域としての濃度上昇の影響が伺える。

## 4 おわりに

過去 3 年に亘り SO<sub>2</sub>、SPM 及び NO<sub>2</sub> の短期的評価や短期的高濃度について解析を進めてきた。その

結果、大気環境の改善傾向を再確認することができたほか、SO<sub>2</sub>やSPMに対する火山の影響を窺うこともできた。このように典型的な汚染物質の改善傾

向は顕著であるが、光化学オキシダントや微少粒子状物質など今後も検討を要する項目もあり、更なる調査研究の進展に期待したい。

表4 年度別・月別に見た自排局での1時間値100ppb以上の発生状況 (延べ時・局)

年度	項目	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月	合計
2000	日	5	7	7	8	6	4	1	2	4	0	4	1	49
	局	5	2	6	4	3	8	4	8	7	0	4	2	53
	時・局	25	12	33	28	17	23	13	25	21	0	5	4	206
2001	日	4	1	9	9	3	1	2	4	4	4	0	1	42
	局	4	1	5	8	4	3	7	7	5	7	0	2	53
	時・局	11	1	37	40	12	6	17	18	18	18	0	4	182
2002	日	2	4	6	7	6	1	3	2	6	3	1	1	42
	局	2	2	5	6	5	1	4	7	14	16	1	1	64
	時・局	4	14	18	33	26	1	24	15	27	73	3	1	239
2003	日	3	1	7	0	6	6	1	0	2	0	1	1	28
	局	4	2	5	0	6	4	1	0	2	0	1	1	26
	時・局	12	7	10	0	29	24	1	0	2	0	1	1	87
2004	日	2	2	2	4	1	1	4	2	1	1	0	3	23
	局	5	1	4	4	1	2	1	10	1	6	0	3	38
	時・局	7	2	6	22	3	3	5	30	1	18	0	6	103
2005	日	3	0	4	2	2	3	0	0	2	1	10	3	30
	局	1	0	6	2	2	4	0	0	3	1	11	1	31
	時・局	5	0	14	8	5	16	0	0	8	2	54	7	119
2006	日	5	3	6	5	6	1	2	2	0	1	3	2	36
	局	2	2	3	4	2	2	5	2	0	1	5	2	30
	時・局	8	3	25	17	18	6	12	2	0	1	9	2	103
2007	日	0	5	2	4	6	3	0	3	3	3	0	4	33
	局	0	3	1	2	4	2	0	4	3	6	0	2	27
	時・局	0	22	4	13	11	7	0	5	3	19	0	10	94
2008	日	6	9	5	6	3	1	0	2	0	1	0	0	33
	局	4	4	3	3	2	1	0	10	0	1	0	0	28
	時・局	16	36	9	13	7	1	0	34	0	1	0	0	117
2009	日	1	4	2	0	0	2	1	0	0	3	1	1	15
	局	2	3	2	0	0	1	1	0	0	3	1	1	14
	時・局	3	14	8	0	0	2	1	0	0	4	1	1	34
2010	日	1	0	1	5	1	3	0	2	1	1	2	0	17
	局	2	0	2	2	1	2	0	2	1	2	4	0	18
	時・局	2	0	6	11	2	15	0	3	1	2	5	0	47
2011	日	0	1	2	1	0	1	2	0	1	0	0	0	8
	局	0	1	2	1	0	2	1	0	1	0	0	0	8
	時・局	0	1	2	2	0	3	3	0	1	0	0	0	12
2012	日	0	2	0	5	0	2	0	0	0	0	0	2	11
	局	0	1	0	2	0	1	0	0	0	0	0	2	6
	時・局	0	3	0	16	0	4	0	0	0	0	0	2	25
2013	日	0	2	0	3	0	0	0	0	0	0	0	0	5
	局	0	1	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	2
	時・局	0	5	0	6	0	0	0	0	0	0	0	0	11
2014	日	0	1	1	3	0	2	0	0	0	0	0	0	7
	局	0	1	1	2	0	1	0	0	0	0	0	0	5
	時・局	0	3	2	6	0	3	0	0	0	0	0	0	14
合計	日	32	42	54	62	40	31	16	19	24	18	22	19	379
	局	31	24	45	41	30	34	24	50	37	43	27	17	403
	時・局	93	123	174	215	130	114	76	132	82	138	78	38	1393

