

論文の内容の要旨

論文題目 駐車中のガソリン自動車から排出される揮発性有機化合物が大気環境に与える影響の評価

氏名 秦 寛夫

本研究では、駐車中のガソリン車両から排出される燃料蒸発ガスが大気環境に与える影響の評価という題目で、実験とシミュレーションによる検討を行った。本博士論文は全5章と付録からなる。

第1章では、国内外における大気汚染の歴史から言及し、近年の日本国内において対流圏オゾンや微小粒子状物質（PM_{2.5}）濃度が依然として環境基準値を満たしていないことを示した。さらにそれら汚染物質の前駆体として、揮発性有機化合物（VOC）が挙げられ、VOCの排出を削減することの重要性と、VOCの大規模発生源として駐車中のガソリン車両から排出される燃料蒸発ガスについて詳細を述べている。

第2章では、駐車中のガソリン車両の燃料タンクから発生する蒸発ガスの発生挙動に関し、専用の実験施設 SHED を用いて、様々な環境温度、燃料蒸気圧、タンク内空隙率の条件下で調査を行った。さらに熱力学理論に基づき、外気温変化による燃料タンク内から発生する蒸発ガスの発生量を予測する半経験的推計式(1)を導出し、適切なパラメータを設定することにより、実験値を精度良く再現できることを示した。

$$\Delta w_b = \frac{MV_m P_{\text{exp}}}{\Delta H_m} \left[\exp \left\{ \frac{\Delta H_m}{R} \left(\frac{1}{T_r} - \frac{1}{T_2} \right) \right\} - \exp \left\{ \frac{\Delta H_m}{R} \left(\frac{1}{T_r} - \frac{1}{T_1} \right) \right\} \right] \quad (1)$$

第3章では、燃料タンク内から発生する蒸発ガスの大気放出を防ぐために各ガソリン車両に装着されているチャコールキャニスター（活性炭を詰めた容器）の、蒸発ガス吸着能力とエンジン吸入空気による洗浄能力、及びキャニスターの経年劣化状況について調査実験を行った。キャニスターの蒸発ガス吸着能力はキャニスターの体積に比例することを示し、吸着量と体積の関係を定式化した。同様にエンジン吸入空気によるキャニスターの洗浄能力は、キャニスター内の蒸発ガス吸着量と吸入空気量に依存することが示され、それらの関係を定式化した。また、キャニスターの経年劣化は車両の利用状況（年数や走行距離）に依

らず、5割前後生じることが確認された。これらの実験結果とキャニスター内の蒸発ガスの吸着、洗浄による脱着、大気への放出に関する物質収支を仮定し、Figure 1 に示すような、任意時間における駐車中のガソリン車から排出される VOC 発生を算出する時間発展モデルを構築した。さらに、第 2 章で行った実験結果を本モデルが再現できるか比較した結果、本モデルの再現性が高いことを示した。

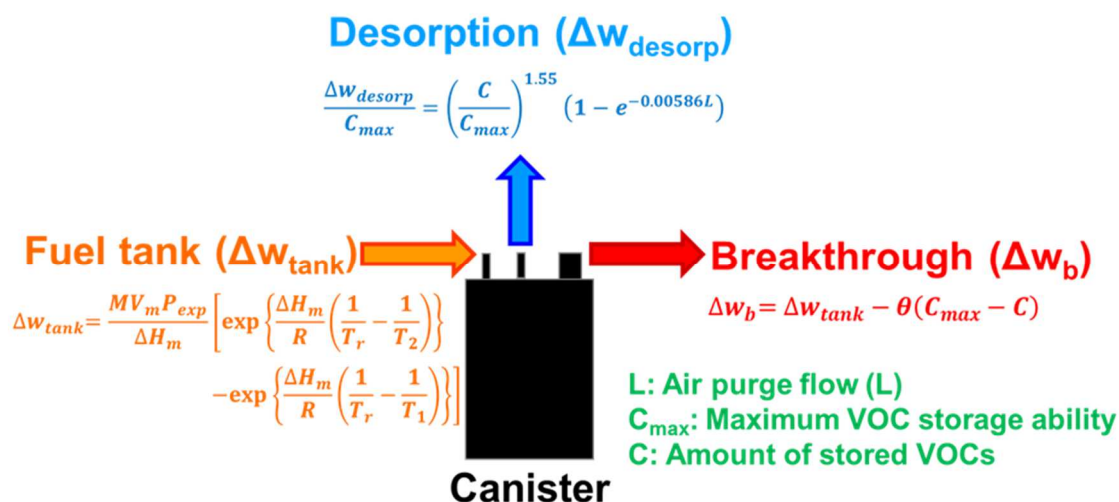


Figure 1: キャニスター内の物質収支に基づく燃料蒸発ガス発生量の推計モデル。

第 4 章では、第 2 章と第 3 章で得られた実験結果やモデルをベースに、2015 年の国内における蒸発ガス発生量の 1 時間値を算出し、VOC 排出インベントリーとして出力するプログラムの開発を行った。本プログラムを用いて燃料蒸発ガスの期間別発生量を比較したところ、平均気温の高い夏季において特に蒸発ガスが多く発生することが示唆された。本インベントリーと既存の燃料蒸発ガス以外のインベントリー、及び領域化学輸送モデル CMAQ を用いて、夏季における燃料蒸発ガスの対流圏オゾン濃度と二次生成有機粒子濃度への寄与率の感度解析を行った。想定したシナリオは、インベントリーを変化させないベースシナリオ、燃料配管等からの染み出しによる蒸発ガスの発生量をゼロとした場合、キャニスター破過時に燃料タンクから発生する蒸発ガスの発生量をゼロとした場合、及び染み出しとキャニスター破過時の蒸発ガスの発生量をゼロとした場合の 4 つとした。Figure 2 に示したように、感度解析の結果から、蒸発ガスの排出を抑制することでさいたま市を中心にオゾン濃度、二次生成有機粒子濃度共に期間平均値減少することが示唆された。さらにオゾン濃度と二次生成有機粒子濃度の減少量の経時変化を確認した結果、Figure 3 に示したように、さいたま市を中心にオゾン濃度の時間値が最大で 3 ppb 程度減らせることがわかり、蒸発ガス対策のオゾン濃度減少への寄与が示唆された。一方で二次生成有機粒子濃度に対しては、蒸発ガス発生量の削減による減少量の絶対値が低く、寄与率が低いことが示唆された。

● Shinjuku ● Yokohama ● Chiba ● Saitama ● Utsunomiya ● Maebashi ● Mito

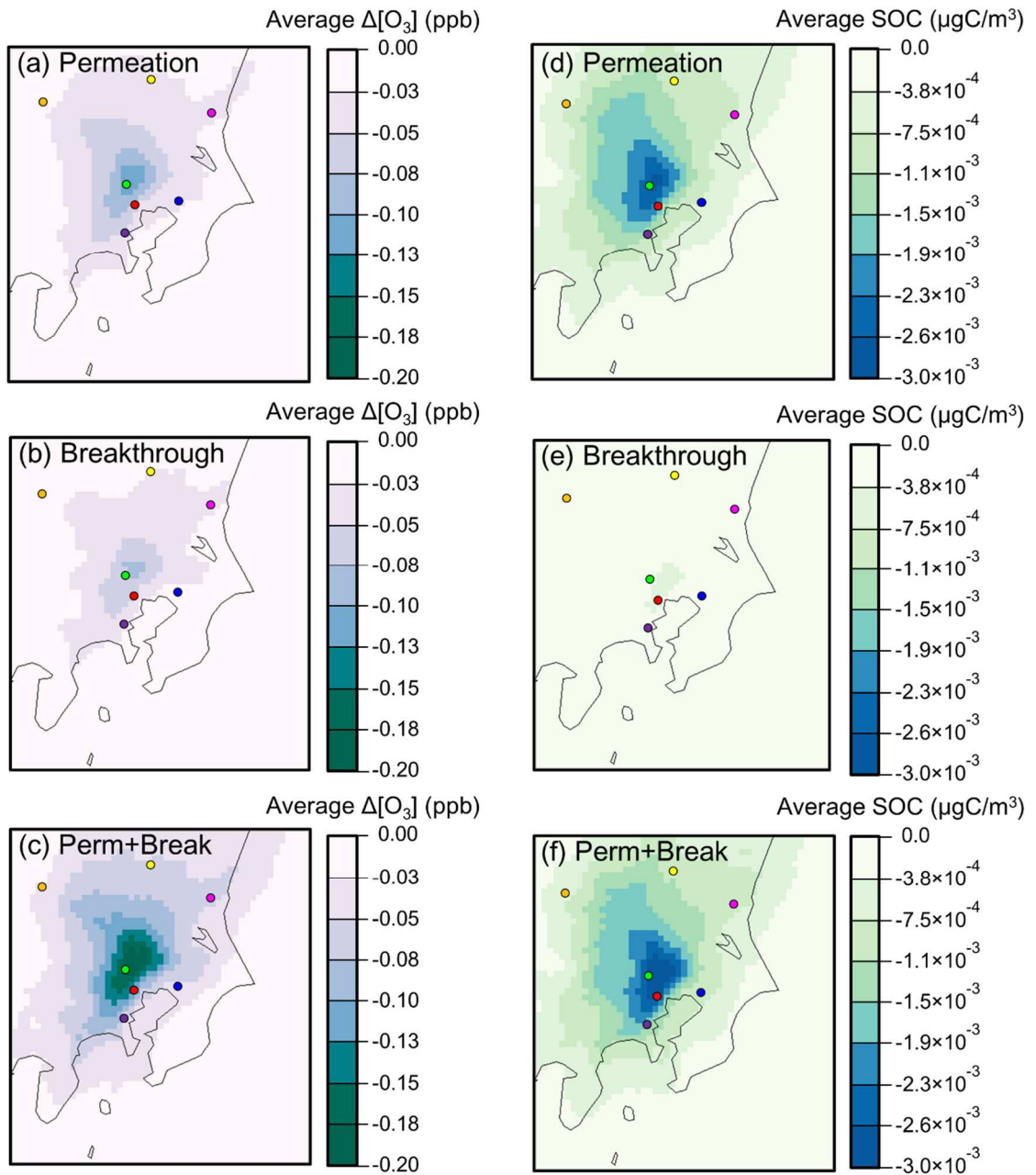


Figure 2: CMAQ を用いて行った、対流圏オゾン濃度と二次生成粒子への蒸発ガスの寄与率を推計した結果。(a), (c), (e)はそれぞれ、蒸発ガス全て、キャニスター破過時、染み出しによる蒸発ガスの対流圏オゾン濃度への影響を、(b), (d), (f)はそれらの二次生成粒子濃度への影響を示している。

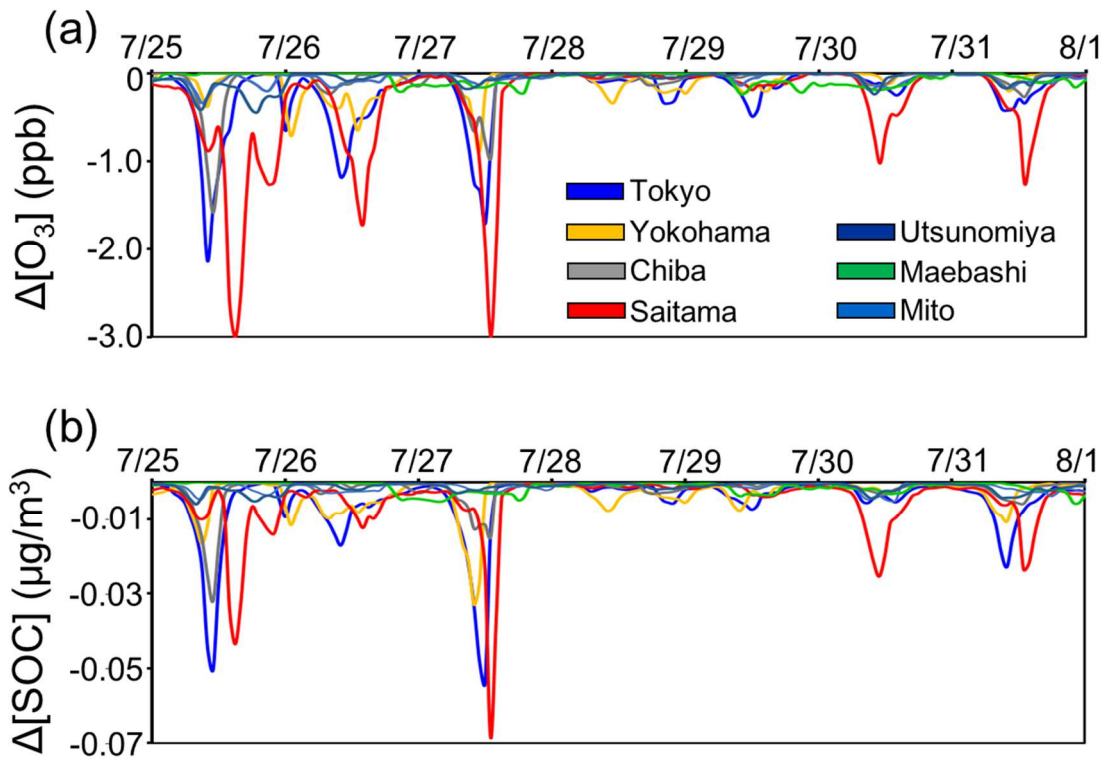


Figure 3: 関東一都六県の県庁所在地における燃料蒸発ガスの発生を抑制した場合の濃度変化の経時変化 (a) 対流圏オゾン, (b) 二次生成有機粒子.

第5章では、本論文の総括と展望を述べた。付録では、大気化学を理解する上で不可欠な大気中の光化学反応やエアロゾル生成に関する基礎理論をはじめ、本研究で用いた気象モデルや領域化学輸送モデルの詳細、その他本研究の各章の補遺を記述した。