

## 人為起源の窒素酸化物・揮発性有機化合物による関東でのオゾン律速状況の試算

環境システム学専攻 47-156794 中川雄貴(2017 年 9 月修了) 指導教員: 戸野倉賢一教授

キーワード: 光化学オキシダント、大気環境モデリング、燃料蒸発ガス

### 1、諸言

近年、主に都市部での光化学オキシダント濃度の漸増が問題となっている。光化学オキシダントはオゾンやペルオキシアシルナイトレート等からなる大気中の二次生成酸化物質の総称であり、高濃度曝露によって人体の主に呼吸器への悪影響があるだけでなく、長期間曝露による農作物の減収が報告されている。光化学オキシダントの主成分であるオゾン ( $O_3$ ) は大気中で窒素酸化物( $NO_x$ )との連鎖反応サイクルによって生成と消失を繰り返しているが、揮発性有機化合物(volatile organic carbons, VOCs)の存在下では連鎖反応サイクルの一部が変化し、 $O_3$ の消失過程がなくなる事で  $O_3$ 濃度の増加につながる事がわかっている<sup>1</sup>。

日本ではこれらの  $O_3$  生成の原因となる VOC、 $NO_x$  について排出量の削減努力が長い間行われてきた。Fig. 1 に環境省のモニタリング結果から作成した  $O_3$  とその生成原因物質の日本での年平均値の推移を示す<sup>2</sup>。VOC と  $NO_x$  については大気汚染防止法をはじめとした法規制によって年々地表域の大気中濃度は減少傾向にある。しかしそれらの二次生成物質である  $O_3$  は長い間横ばいもしくは微増を続けていることがわかる。

Sillman ら(1990)によると  $O_3$  の生成速度には環境中の VOC と  $NO_x$  の排出速度による律速段階がある事が報告されており、この律速段階について大気輸送化学モデルを用いて東アメリカについて計算を行ったのが Fig. 2 である<sup>3</sup>。Fig. 2 の縦軸は VOC の排出速度を、横軸は  $NO_x$  の排出速度を、等高線は  $O_3$  濃度を表している。VOC の排出量が多く  $NO_x$  排出量の少ない領域では、 $NO_x$  の排出量削減が  $O_3$  濃度の削減に大きく寄与する一方で VOC の排出量削減はオゾン濃度の変化に寄与せず、このような状態を“ $NO_x$  律速領域”と呼ぶ。反対に VOC の排出量が少なく  $NO_x$  の排出量が多い領域では、VOC の排出量削減が  $O_3$  濃度の削減に大きく寄与するが、 $NO_x$  の排出量削減はオゾン濃度の削減にはつながらずむしろ

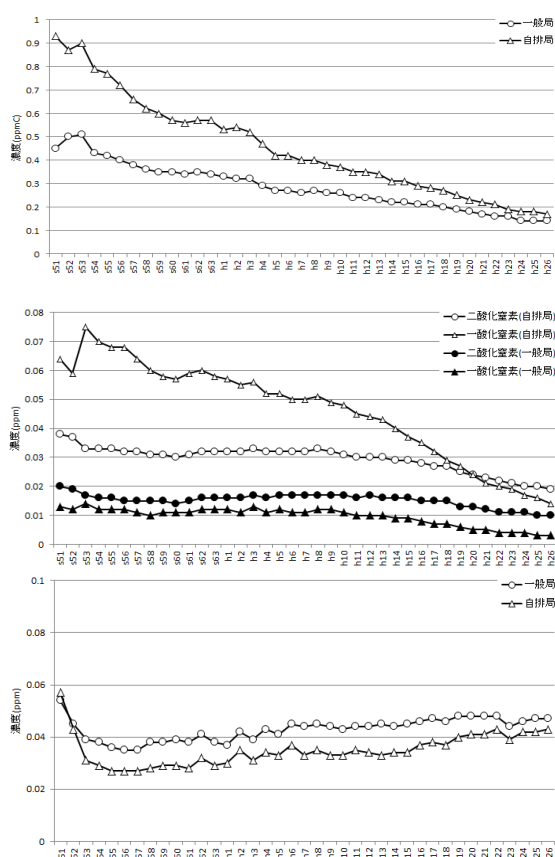


Fig.1. 年平均値の推移、上図：VOC、  
中図： $NO_x$ 、下図： $O_3$ 。

O<sub>3</sub> 濃度の増加につながる危険性があることがわかる。このような状態を“VOC 律速領域”と呼ぶ。日本の地表域 O<sub>3</sub> 濃度の削減のためには日本の原因物質の排出状況がどの領域にあるのかを明らかにし、状況に合わせた原因物質の削減を行っていくことが必要である。

## 2、研究目的

本研究では原因物質の排出量を調整したシミュレーションを複数行うことで、日本の関東における O<sub>3</sub> の律速状態の解明を行うとともに、律速状態に基づいた排出量削減が大気中 O<sub>3</sub> 濃度の削減にどの程度寄与するのかを調査する。

## 3、計算方法

本研究では大気中のオゾン濃度分布の計算を大気輸送モデリングシステムである ADMER-PRO により行った<sup>4</sup>。ADMER-PRO は光化学反応モデルを用いることで今回対象とするオゾンのような大気中二次生成物質を含む複数物質について同時に評価することが可能であることが特徴としてあげられる。

Table 1 は本研究で用いた計算条件である。排出量データをはじめとした各種データは ADMER-PRO に内蔵されている 2005 年のものを用いて計算を行っている。本研究では大気中オゾン濃度が高くなる夏季について計算を行った。日程は気象パターン分類によって 7 月から 9 月にかけて最も頻出する典型的な天候の日程を選択した。水平方向の計算領域として関東の 1 都 6 県を含む領域を 5 km

メッシュで分割したマルチボックスモデルによって計算を行っている。鉛直方向には地表から 20 km までの領域を不均等に分割したメッシュによって計算を行い、評価には地表に最も近い 50m のメッシュを用いている。また、原因物質の排出量については VOC、NO<sub>x</sub> とともに 2005 年の人為起源排出量を 100%とし、それぞれを 10%刻みで 0%まで削減した全 121 パターンの計算を行っている。

## 4、結果

各計算について得られた O<sub>3</sub> 濃度分布図の一例が Fig. 3 である。Fig. 3 は NO<sub>x</sub>、VOC の排出量をそれぞれ 70%に設定した 2015 年に相当すると考えられる計算結果である。この結

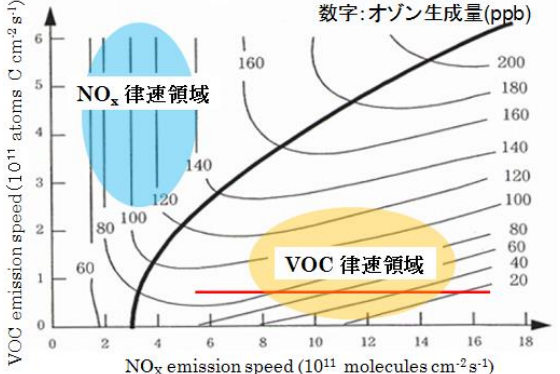


Fig.2. アメリカ東部におけるオゾン濃度と VOC、NO<sub>x</sub> の排出量の関係。

Table 1. 計算条件

期間	2005/7/29/15:00～ 2005/8/1/12:00 2005/8/2/15:00～ 2005/8/5/12:00
評価対象範囲	関東(1都6県)、5 kmメッシュ
使用データ	2005年の気象データ、 各排出量データ
気温	時別値
計算パターン	VOC、NO <sub>x</sub> について2005年の 排出量を100%として VOC、NO <sub>x</sub> をそれぞれ10%刻みで 減少させた計121シナリオ

果から目的とするメッシュの $O_3$ 濃度を121パターンについて抽出することで、 $O_3$ の律速関係図を作成している。本研究では都市部の代表として横浜の、郊外の代表として前橋の地点のメッシュデータを用いている。

Fig. 4、Fig. 5はそれぞれ都市部、郊外部について作成した $O_3$ の律速関係図である。都市部ではVOC排出量の削減がオゾン濃度削減に効果的である一方で $NO_x$ 排出量の削減によって $O_3$ 濃度の増加につながってしまう、VOC律速の状態にあることがわかる。これは東京湾沿岸を中心とした工場などの固定発生源や交通機関などの移動発生源に起因する人為起源の $NO_x$ 排出量が非常に多いことが原因として考えられる。反対に郊外部ではVOC、 $NO_x$ の排出量削減がともにオゾン濃度の削減に有効な混合律速の領域にあり、将来的に $NO_x$ の排出量のみが $O_3$ 濃度の変化に影響する $NO_x$ 律速の状態に移行していくと考えられる。郊外部では都市部に比べて人為起源の $NO_x$ の排出量が少ないことに加えて、自然起源のVOCの排出量が多いため都市部とこのような違いが生じるのだと考えられる。

これらの計算結果からVOCの削減が都市部、郊外部ともに有効であることが分かったため、VOCの排出源として大きな割合を占める燃料蒸発ガスについて削減を行った場合に $O_3$ 濃度分布にどれほど影響を与えるのかを試算した。計算は律速図作成の場合と同様の領域、期間、気象

条件で行い、2015年に相当すると考えられる $NO_x$ 、VOC各70%の条件での試算値と、2015年の条件からガソリンスタンドでの給油時蒸発ガスが削減された場合の試算値の比較を行った。Fig. 6は蒸発ガスの削減前と削減後との差分を各県庁所在地について抽出したものである。蒸発ガスの削減によって新宿区・横浜市・さいたま市などの都市部では0.5%~1%程度の $O_3$ 濃度の削減が見込まれるが、郊外の地域では減少幅は小さかった。これは都市部が

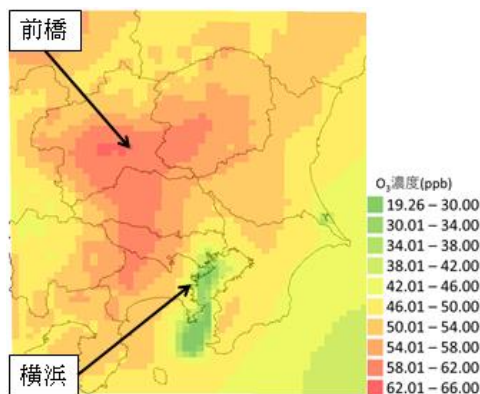


Fig.3.  $NO_x$ 70%、VOC70%の条件でのオゾン濃度分布図.

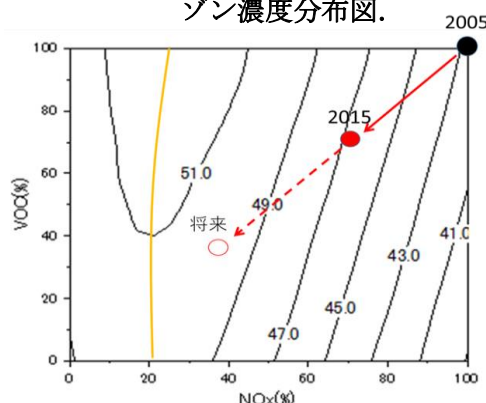


Fig.4. 都市部(横浜市)における $O_3$ の律速状態図

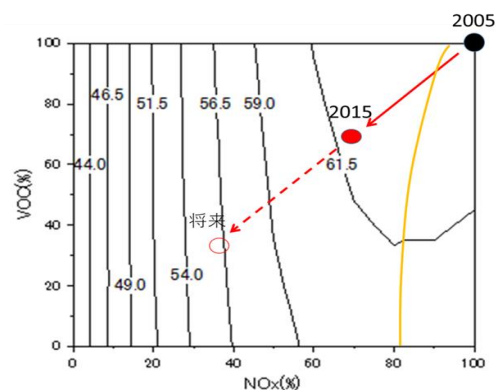


Fig. 5. 郊外部(前橋市)における $O_3$ の律速状態図

VOC 律速であり、郊外部が混合律速から NO<sub>x</sub> 律速に推移しているとする計算結果に一致している。これらの結果からガソリンスタンドでの蒸発ガスの削減は都市部・郊外部ともに O<sub>3</sub> 濃度の削減につながることを示唆された。

また、得られたデータから各メッシュについて人口・イネの収量によって加重をかけて作成した律速図が Fig. 7 および Fig. 8 である。黒点は 2015 年の排出状況に想定される点であり、矢印はこのまま削減を続けた際に変化していくと考えられる方向である。人口加重平均を考えると今まで通りの原因物質削減を続けた場合より O<sub>3</sub> 濃度が上昇するという結果になった。これは人口の集中している都市部の影響を大きく受けていると考えられる。イネ収量については VOC、NO<sub>x</sub> の削減がともに有効であり、これは郊外部の影響を大きく受けているためだと考えられる。

## 5、結言

今回、関東域における O<sub>3</sub> の律速状況の違いを明らかにした。また、このまま削減を続けた場合ヒトへの O<sub>3</sub> 暴露が増えることが示唆された。人間健康や農作物への被害を軽減するためには地域ごとの O<sub>3</sub> の律速状況を踏まえつつ原因物質の削減を行うことが必要だと考えられる。

## 6、参考文献

- 1、ジェイコブ DJ(著), 近藤豊(訳) (2002). 大気化学入門
- 2、環境省 大気環境モニタリング実施結果  
<http://www.env.go.jp/air/osen/monitoring.html>
- 3、S.Sillman et al.(1990). The Sensitivity of Ozone to Nitrogen Oxides and Hydrocarbons in Regional Ozone Episodes, Journal of Geophysical Research, Volume 95, Issue D2 20 February 1990 Pages 1837–1851
- 4、産業技術総合研究所 ADMER-PRO, <https://admer-pro.aist-riss.jp/>

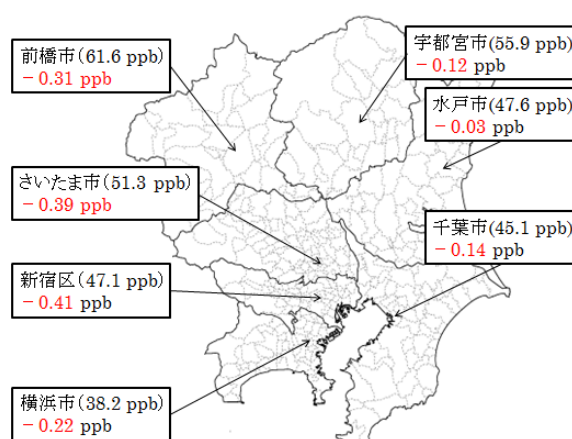


Fig.6. 蒸発ガス排出削減による O<sub>3</sub> 濃度の変化.

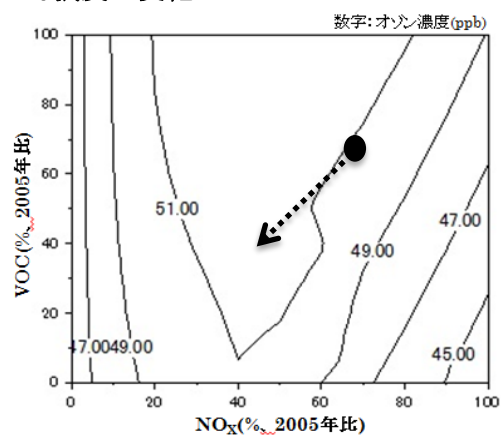


Fig.7. O<sub>3</sub> 濃度律速状態図 (人口加重平均).

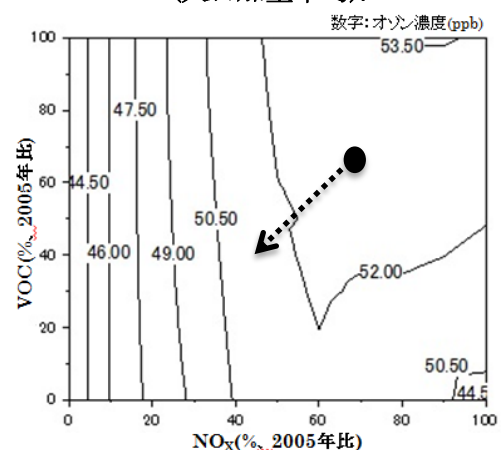


Fig.8. O<sub>3</sub> 濃度律速状態図 (イネ収量加重平均).