

光化学オキシダント濃度の日内変動の推移

山神 真紀子

Trends in the Diurnal Variation of Ozone Concentrations

Makiko Yamagami

シミュレーションモデル ADMER-PRO を用いて、過去の光化学オキシダント (Ox) 高濃度事例について、NO_x・VOC 排出量削減による Ox 濃度の日内変動の変化を推定したところ、NO_x 排出量を削減すると、日最高値と日最低値の差分 (Δ Ox) が低下することがわかった。

名古屋市内にある Ox の常時監視測定局について 2011 年度から 2018 年度までの Δ Ox の傾向を調べたところ、14 局中 12 局で低下傾向にあり、排出量の削減効果が表れていた。一方、Ox 濃度の日最低値の上昇により、削減効果が日最高値の低下には至っていない地点があることが明らかとなった。月別の傾向では、4、6、8、9 月はほとんどの地点で Δ Ox が低下しているのに対し、5 月はすべての地点で Δ Ox が上昇傾向にあり、5 月には排出量の削減効果が表れていないことがわかった。

はじめに

光化学オキシダント (Ox) の環境基準は、1 時間値が 0.06 ppm 以下であることと定められているが、全国的に環境基準達成率は極めて低く、2018 年度 (平成 30 年度) の全国の環境基準達成率は、一般環境大気測定局 (一般局) で 0.1%、自動車排出ガス測定局 (自排局) で 0% であった¹⁾。名古屋市においては、2019 年度は全局 (14 局) で環境基準が非達成であり²⁾、1996 年度から 1 局も環境基準を達成していない状況が続いている。Ox は揮発性有機化合物 (VOC) と窒素酸化物 (NO_x) の光化学反応により生成するが、NO_x 排出量の削減により Ox 濃度の改善効果が現れる NO_x 律速状態と、VOC 排出量の削減により Ox 濃度の改善効果が現れる VOC 律速状態の 2 つの特徴的な状態が知られている^{3,4)}。既報のシミュレーション結果により、名古屋市内は NO_x 律速状態にあると推定されている⁵⁾が、直近 10 年間で NO_x 濃度が 3 分の 2 程度に低下したにもかかわらず、Ox の昼間の年平均値は上昇傾向にある²⁾。一方、昼間の 1 時間値が 0.06 ppm を超えた時間数を 2010 年度と 2017 年度で比較すると、市内には増加した地点と減少した地点があり一律ではないこと、0.06 ppm を超える時間数は 5 月に最も多くなっていたことがわかった⁶⁾。

そこで、シミュレーションモデルを用いて、NO_x、

VOC 排出量を削減した場合の Ox 濃度の日内変動がどのように変化するかを調べた。また、Ox 濃度の日最高値と日最低値の差分 (Δ Ox) が、実測値でどのように変化しているか、市内の状況についてまとめた。

方 法

1. 調査地点

名古屋市内に設置してある常時監視測定局で、Ox 濃度を測定している一般局 11 局と自排局 3 局の計 14 局を対象とした (図 1)。



図 1 光化学オキシダント測定地点

2. 光化学オキシダント濃度データ

常時監視測定局において Ox の自動測定機の測定方法が、14 局すべてで紫外線吸収法⁷⁾ (乾式法) となった 2011 年度から 2018 年度までの測定結果を対象とした。

3. モデル

シミュレーションモデルは、独立行政法人産業技術総合研究所で開発された ADMER-PRO (Ver1.0) を使用した^{4,8)}。ADMER-PRO には排出量データとして 2005 年度のデータが内蔵されている。そこで、基準年を 2005 年度とし、削減効果計算の対象日は Ox の高濃度日の再現性評価で再現性が良好⁵⁾であった 2005 年 6 月 25 日とした。排出量の削減は、愛知県と隣の 11 府県 (岐阜県、三重県、静岡県、長野県、富山県、石川県、福井県、滋賀県、京都府、大阪府、奈良県) を対象に、名古屋市内の削減率と同程度と仮定し、一律に削減してシミュレーションを行った。名古屋市内において NOx 濃度を継続して測定している一般局 11 局の NOx 濃度平均値は、2005 年度の 38 ppb に対して 2018 年度は 16 ppb (2005 年度比 42%) であったことから、 NOx の排出量は 2005 年排出量の 42% として計算した。VOC 排出量は、2018 年度の大気中非メタン炭化水素 (NMHC) 濃度が 2005 年度比で 74% であったものの、個々の VOC 濃度は不明であることから、2005 年と同じ 100% としたケースと、十分に低い 19% としたケースで計算した。

結果と考察

1. シミュレーション結果

2005 年度の排出量で計算した 2005 年 6 月 25 日の守山保健センターにおける Ox 濃度の日内変化と、排出量を削減して計算した日内変化を図 2 に示す。

まず、 NOx 排出量を基準年の 42% とし、VOC 排出量を削減させなかった場合 ($NOx42\%_VOC100\%$) と VOC を大きく削減させた場合 ($NOx42\%_VOC19\%$) の Ox 濃度を比較すると、両者はほとんど変わっていないことがわかる。これは、この地点が VOC 排出量の削減では Ox 濃度が低下しない NOx 律速状態となっていることを示している。

次に、2005 年度の排出量で計算した結果 (base2005) と NOx 排出量を削減させた場合 ($NOx42\%_VOC100\%$) を比較すると、 NOx 排出量の削減により日最高値が低下することがわかった。一方、夜間の日最低値は NOx

排出量の削減により上昇した。日最高値と日最低値の差分 (図中の ΔOx) は、 NOx 排出量を削減すると小さくなることがわかった。そこで、この ΔOx を排出量の削減効果の指標として使用することとした。

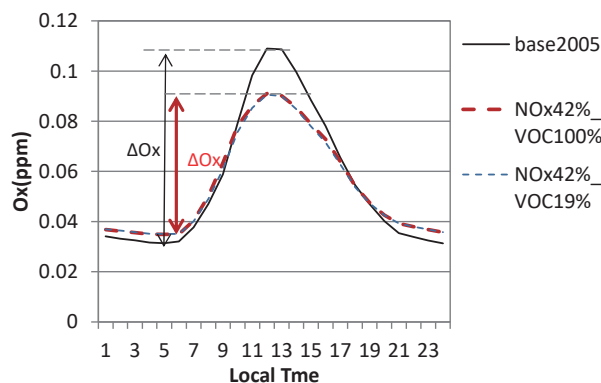


図 2 シミュレーションモデルにより計算した Ox 濃度と排出量を削減した Ox 濃度の日内変化 (守山保健センター, 2005.6.25)

2. Ox 濃度実測値の経年変化

2011 年度から 2018 年度の惟信高校における Ox 濃度の日最高値、日最低値、日最高値-日最低値 (ΔOx) の日ごとの変動、10 日間移動平均、回帰直線を図 3 に示す。

日最高値の回帰直線の傾きは 0.0002 で正の値となった。この地点では日最高値が上昇傾向にあることを示している。また、日最低値の回帰直線の傾きは 0.0014 となり、日最低値も上昇傾向にあることがわかった。また、その上昇率は日最高値よりも大きいことがわかった。日最高値-日最低値 (ΔOx) の回帰直線の傾きは -0.0011 で負の値となり、 ΔOx は低下傾向にあることがわかった。排出量の削減効果は、 ΔOx の低下として表れていた。しかし、日最低値の上昇により日最高値の低下には至っていないことがわかった。

市内 14 局における ΔOx の回帰直線の傾きを図 4 に示す。14 局中 12 局で傾きは負の値となり、市内のほとんどの地点で排出量の削減効果が見られることがわかった。一方、テレビ塔と中村保健センターでは、この傾向が見られなかった。

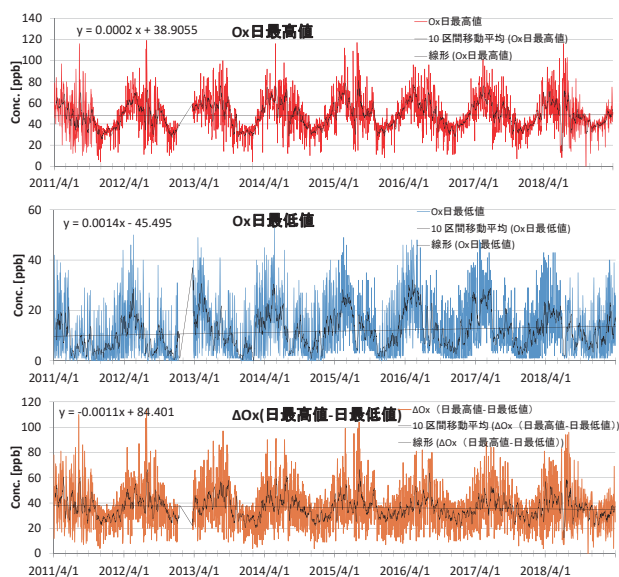


図3 O₃濃度日最高値（上段）、日最低値（中段）、ΔO₃（日最高値-日最低値）（下段）の経年変化（惟信高校）

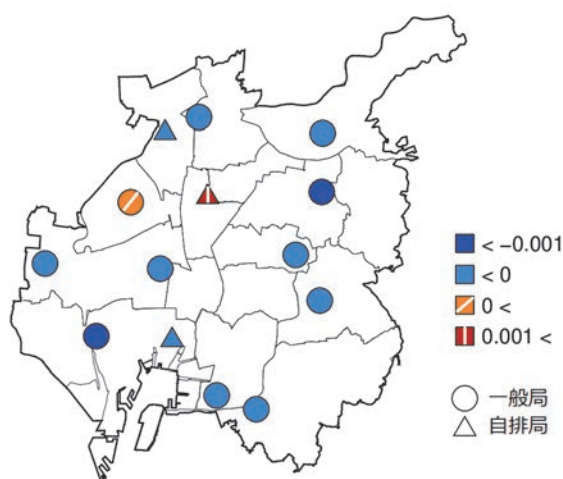


図4 ΔO₃（日最高値-日最低値）の経年変化（2011～2018年度）の回帰直線の傾き

3. ΔO₃の月別変化

2011年度から2018年度までのΔO₃の回帰分析を、4月から9月まで月別に行った。月毎の回帰直線の傾きを表1に示す。

4, 6, 8, 9月はほとんどの地点でΔO₃の傾きが負になり、排出量の削減効果が表れていると言える。7月のΔO₃の傾きは正と負が混在しており、正の値になっている地点が多かった。5月のΔO₃の傾きはすべての地点で正の値となった。5月は他の月と異なり削減効果が見られず、O₃濃度の状況は悪化していると言える。この結果は、前報⁶⁾で0.06 ppmを超える時間数が5月に最も増加していたこととも符合する。この5月の特異的な傾向の原因はわからなかった。また、全体

的に一般局よりも自排局で削減効果が見られていない傾向にあり、その原因として自動車由来のNO_x濃度が関係していることが示唆される。

表1 ΔO₃（日最高値-日最低値）の回帰直線の傾き

	4月	5月	6月	7月	8月	9月
一般局						
中村保健センター	-0.003	0.035	0.004	0.030	0.003	-0.001
八幡中学校	-0.014	0.001	-0.006	-0.008	-0.027	-0.032
白水小学校	-0.006	0.020	-0.004	0.002	-0.005	0.000
天白保健センター	-0.001	0.021	-0.020	0.004	-0.017	-0.013
大高北小学校	-0.012	0.008	-0.007	0.015	-0.006	-0.003
守山保健センター	-0.020	0.011	-0.002	0.025	-0.006	-0.014
滝川小学校	-0.007	0.016	-0.014	0.003	-0.016	-0.020
富田支所	-0.008	0.024	-0.010	0.006	0.010	-0.023
城北つばさ高校	-0.006	0.017	-0.015	0.003	-0.025	-0.021
惟信高校	-0.016	0.004	-0.007	-0.007	-0.021	-0.017
国設名古屋	-0.015	0.005	-0.024	-0.003	-0.038	-0.032
自排局						
テレビ塔	0.029	0.012	0.004	0.023	0.001	0.004
名塚中学校	0.002	0.024	-0.005	0.013	-0.032	-0.012
港陽	-0.011	0.005	-0.006	0.009	-0.003	0.007

太字:>0

まとめ

シミュレーションモデルの結果から、O₃濃度の日最高値と日最低値の差分（ΔO₃）を削減効果の指標として、名古屋市内の傾向をまとめた。

名古屋市内にある常時監視測定局14局中12局でΔO₃が低下傾向にあり、排出量の削減効果が表れていた。一方、日最低値の上昇により、削減の効果が日最高値の低下に至っていない地点があることが明らかとなった。月別の傾向では、4, 6, 8, 9月はほとんどの地点でΔO₃が低下しているのに対し、5月はすべての地点でΔO₃が上昇傾向にあり、今後解明が必要である。

謝辞

この内容の一部は、国立環境研究所と地方環境研究所のⅡ型共同研究「光化学オキシダントおよびPM2.5汚染の地域的・気象的要因の解明」で行いました。

文献

- 1) 環境省：平成30年度大気汚染の状況
https://www.env.go.jp/air/osens/jokyo_h30/index.html
- 2) 名古屋市環境局：令和元年度大気汚染常時監視結果
<http://www.city.nagoya.jp/kankyo/page/0000129706.html>
- 3) Sillman, S., Logan, J. A., Wofsy, S. C.: The sensitivity of ozone to nitrogen oxides and hydrocarbons in regional ozone episodes, *J. Geophys. Res.*, **95**, 1837-1851 (1990)

- 4) 井上和也, 安田龍介, 吉門 洋, 東野晴行: 関東地方における夏季地表オゾン濃度の NO_x, VOC 排出量に対する感度の地理分布 第 I 報 大小 2 種類の植物起源 VOC 排出量推定値を入力した場合の数値シミュレーションによる推定, 大気環境学会誌, **45**, 183-194 (2010)
- 5) 荒川翔太, 山神真紀子, 高柳聡子: 光化学オキシダントの NO_x, VOC 排出量削減による改善効果の推定, 名古屋市環境科学調査センター年報, 3, 36-41 (2014)
- 6) 山神真紀子: 2010 年度から 2017 年度における名古屋市の光化学オキシダント濃度の推移, 名古屋市環境科学調査センター年報, 7, 15-18 (2018)
- 7) 環境省 水・大気環境局: 環境大気常時監視マニュアル第 6 版 (2010)
https://www.env.go.jp/air/osen/manual_6th/00cover.pdf
- 8) 産業技術総合研究所: 二次生成に対応した広域大気モデル ADMER-PRO Ver.1.0
<https://admer-pro.aist-riss.jp/>