

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

荒川 翔太, 山神 真紀子, 高柳 聡子

Estimation of the Improvement Effect by Reducing NO_x and VOC

Emissions of Photochemical Oxidants.

Shouta Arakawa, Makiko Yamagami, Satoko Takayanagi

近年、名古屋では、光化学オキシダント（O_x）の原因物質（NO_x 及び VOC）の排出量が削減されているにも関わらず、O_x の高濃度時間数は平成 18 年度以前と比べて増加している。そこで本研究では、名古屋で高濃度を観測した日に対して、NO_x 及び VOC の排出削減による O_x の日最高値の改善効果を、シミュレーションモデルを用いて推定した。その結果、シミュレーションの対象とした平成 17 年度の高濃度日 1 日については、市内のどの測定地点においても、NO_x 排出量を平成 17 年度比で約 70%以下に削減することで効果が現れ、VOC 排出量の削減ではほとんど現れないことが示唆された。

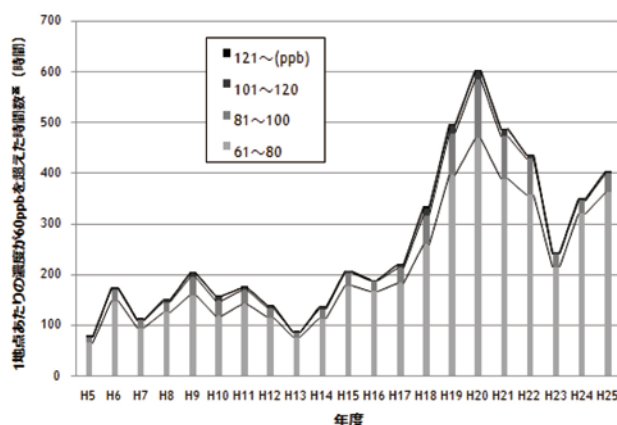
はじめに

光化学オキシダント（以下、O_x）は、工場・事業場、自動車などから排出される、大気中の窒素酸化物（以下、NO_x）と揮発性有機化合物（以下、VOC）が、太陽光（特に紫外線）を受けて、複雑な光化学反応を起こすことにより生成される大気汚染物質である。

近年、NO_xについては『自動車から排出される窒素酸化物及び粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法（自動車NO_x・PM法）』に基づくNO_x・PM排出削減対策（2004）等の実施、VOCについては大気汚染防止法等に基づく工場・事業場に対する排出規制の取組の効果により、O_xの原因物質の排出量は削減されてきた。

一方、名古屋のO_xの環境基準及び環境目標値（いずれも1時間値が60ppb以下であること）は、平成8年度以降、全ての常時監視測定地点で非達成が続いており、超過した時間数は平成18年度以前と比べて増加している（図1）。さらに、平成5年度から17年度まで、光化学スモッグ予報・注意報は1回も発令されていないが、平成18年度以降は毎年発令されている（図2）。

そこで本研究では、シミュレーションモデルの基準年度である平成 17 年度を対象に、名古屋で高濃度を観測した高濃度日 1 日に対して、NO_x 及び VOC の排出削減による O_x の日最高値の改善効果を推定した。



※市内の各測定地点で60ppbを超えた時間数の合計を地点数で割ったものである。

図1 光化学オキシダントの高濃度時間数の推移

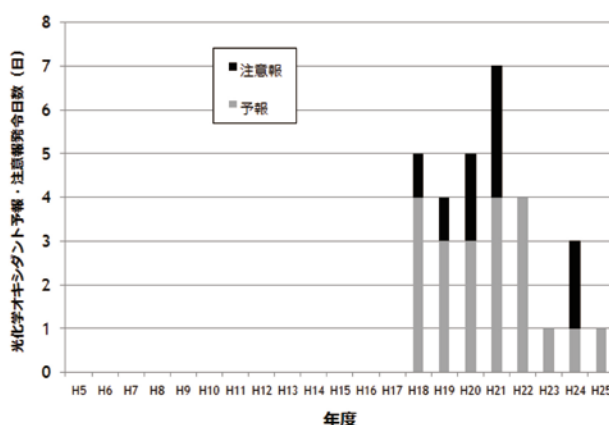


図2 光化学スモッグ予報・注意報発令日数の推移

方法

日中に生成されるOx濃度は、ある地域におけるNOx及びVOC排出量の変化に対して、非線形的に変化する複雑なものであるが、一般的に以下の2種の特徴的な状態（律速状態）があることが知られている¹⁾。

(A) NOx律速；NOx排出量の削減によりOx濃度の改善効果が現れ、VOC排出量の削減ではほとんど現れない状態。

(B) VOC律速；VOC排出量の削減によりOx濃度の改善効果が現れ、NOx排出量の削減ではほとんど現れない状態。



図3 改善効果グラフの概念図

律速状態を把握することで、NOx及びVOC排出量の削減によるOxの改善効果を明らかにすることができる。図3の改善効果グラフは、律速状態の把握に適しており、例えば、NOx律速を示すA点を含む領域（状態境界線より下方の領域）では、VOC削減を行うことはOx濃度低減には有効ではなく、NOx削減が有効であることがわかる。一方、VOC律速を示すB点を含む領域（状態境界線より上方の領域）では、VOC削減を行うことはOx濃度低減に有効であるが、NOx削減は有効ではないことがわかる。

本研究では、まずOxの高濃度日を対象に、使用モデルの再現性評価を行った。次に、再現性が良好であった対象日について、NOx及びVOC排出量を削減した場合のシミュレーションを実施し、その結果から、名古屋の改善効果グラフを作成した。

1. シミュレーションモデル

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 Ver1.0²⁾を用いた。ADMER-PROは、モデルによる大気中濃度分布推定、前処理（モデルへの入力データ作成等）、後処理（結果の描画など）を行う一連のシステムである。

ADMER-PROには、気象モデルRAMS（the Regional Atmospheric Modeling System）に人工排熱過程を組み込んだものを基本とし、これに化学物質の排出・反応・沈着過程を組み込んだ3次元オイラー型化学輸送モデルが内蔵されている。排出量データは、平成17年度を対象にしてEAGrid2000-JAPAN³⁾に準じる方法でNOx、VOC、CO、SO₂について原則3次メッシュ（約1×1km）単位で推計されたものが内蔵されている。

2. 計算対象領域

計算対象領域は、図4のとおり、東日本から西日本の広い範囲を覆うグリッド1と、名古屋を中心に、近畿・中部地方の一部を覆うグリッド2から構成される。

水平方向のグリッド間隔は、グリッド1が20km、グリッド2が5kmである。鉛直方向には、地表～上空20kmまでを不等間隔で29層に分割し、最下層の厚さは50mとした。

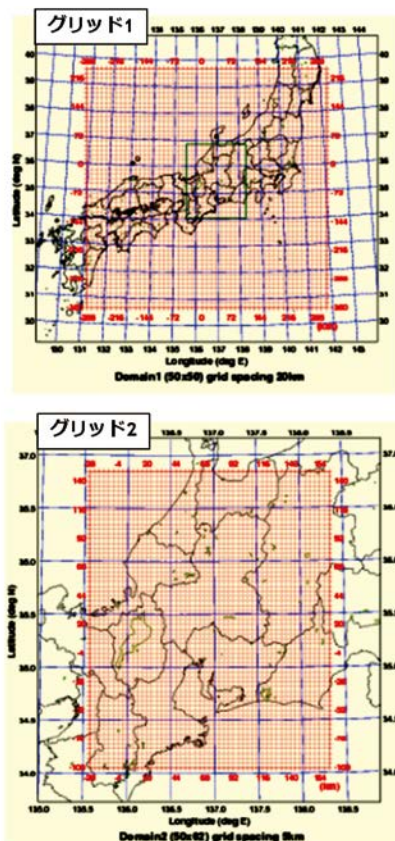


図4 計算対象領域

なお、計算結果を示す際は、すべてグリッド2の結果を用いる。

3.計算対象日

基準年度は、シミュレーションモデル内蔵の排出量データの対象年度である平成17年度とした。そして、基準年度において、名古屋の常時監視測定地点（以下、測定地点）14地点で、高濃度（1地点でも100ppbを超えた日）が3日間連続して観測された6月24～26日を、計算対象日とした。

4.シミュレーションモデルの再現性評価

4.1.方法

シミュレーションモデルの計算精度を確認するため、計算対象日の観測値と計算値を比較し、再現性の評価を行った。なお、評価指標には、米国EPAがOxの1時間値に対して定めている大気質モデルの性能評価指標であるEPA指標（NB;Normalized Bias, NGE;Normalized Gross Error, MPA;Maximum Prediction Accuracy）を用いた^{1), 4), 5)}。

EPA指標の計算式及び評価基準を表1に示す。C_{obs}は名古屋の各測定地点で観測された値が60ppb以上となった時間の1時間値であり、Nはその総時間数である。C_{calc}はその時刻の計算結果であり、測定地点を含むグリッドにおける計算値である。

表1 EPA指標

指標	計算式	評価基準
NB	$NB = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{C_{calc,i} - C_{obs,i}}{C_{obs,i}}$	$NB \leq \pm 0.15$
NGE	$NGE = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \frac{ C_{calc,i} - C_{obs,i} }{C_{obs,i}}$	$NGE \leq 0.35$
MPA	$MPA = \frac{C_{calc,max} - C_{obs,max}}{C_{obs,max}}$	$MPA \leq \pm 0.20$

4.2.結果

表2に、再現性評価結果を示す（評価基準内であった項目には網掛けをしている）。NBについては、6月25日、26日の2日で評価基準に適合した。不適合であった6月24日は、全て評価基準より大きな値にな

っており、計算値が観測値より過大となっていることがわかる。NGEについては、全ての対象日で評価基準に適合した。MPAについては、6月25日で評価基準に不適合であったが、大きく外れることもなく、日最高値の再現性はどの対象日も概ね良好といえる。

表2 再現性評価結果

対象日	N	NB	NGE	MPA
6月24日	50	0.25	0.30	0.137
6月25日	68	0.00	0.24	-0.213
6月26日	46	-0.02	0.19	-0.164

5.排出量削減シミュレーション

NB、NGEの2項目の評価基準に適合し、60ppb以上の濃度が観測された時間数Nが最も多かった6月25日について、基準年度に対するNOx及びVOC排出量の比をそれぞれ100%、70%、50%、30%と変化させた場合のシミュレーション（計16パターン）を実施した。

排出量を変化させる領域は、都道府県別に指定し、図4のグリッド2の領域に含まれる全ての都道府県を、その対象とした。また、削減を行う発生源種は、人為起源の全ての項目を対象とした。

結果及び考察

排出量削減シミュレーション結果から作成した名古屋の測定地点における改善効果グラフを図5に示す。ここで、等濃度線上の数値は、排出量を削減した場合のOx濃度を示す。図中の記号は、大気環境シミュレーション結果（浮遊粒子状物質）報告書⁶⁾で推定された各年度のNOx及びVOC(HC)排出量（表3）をもとに描画されている。ただし、平成17年度の排出量については実測値、20～27年度は推定値である。

表3 NOx及びVOC(HC)排出量の推定値⁶⁾

	NOx		VOC(HC)	
	総排出量 (t/年)	H17 年度比 (%)	総排出量 (t/年)	H17 年度比 (%)
H17	12,196	100	4,000	100
H20	10,122	83	3,200	80
H22	8,789	72	2,695	67
H25	7,318	60	2,240	56
H27	6,394	52	1,947	49

この結果から、どの地点においても、NO_x 律速であることが推定された。ただし、NO_x 排出量を削減したとしても、平成 17 年度比で 70%以上ある場合は、縦軸方向に対する等濃度線が粗であり、O_x 濃度はほとんど低減しないことが推定された。また、VOC 排出量の削減では、O_x の改善効果はほとんど得られなかった。したがって、概ねどの地点においても、平成 22 年度頃

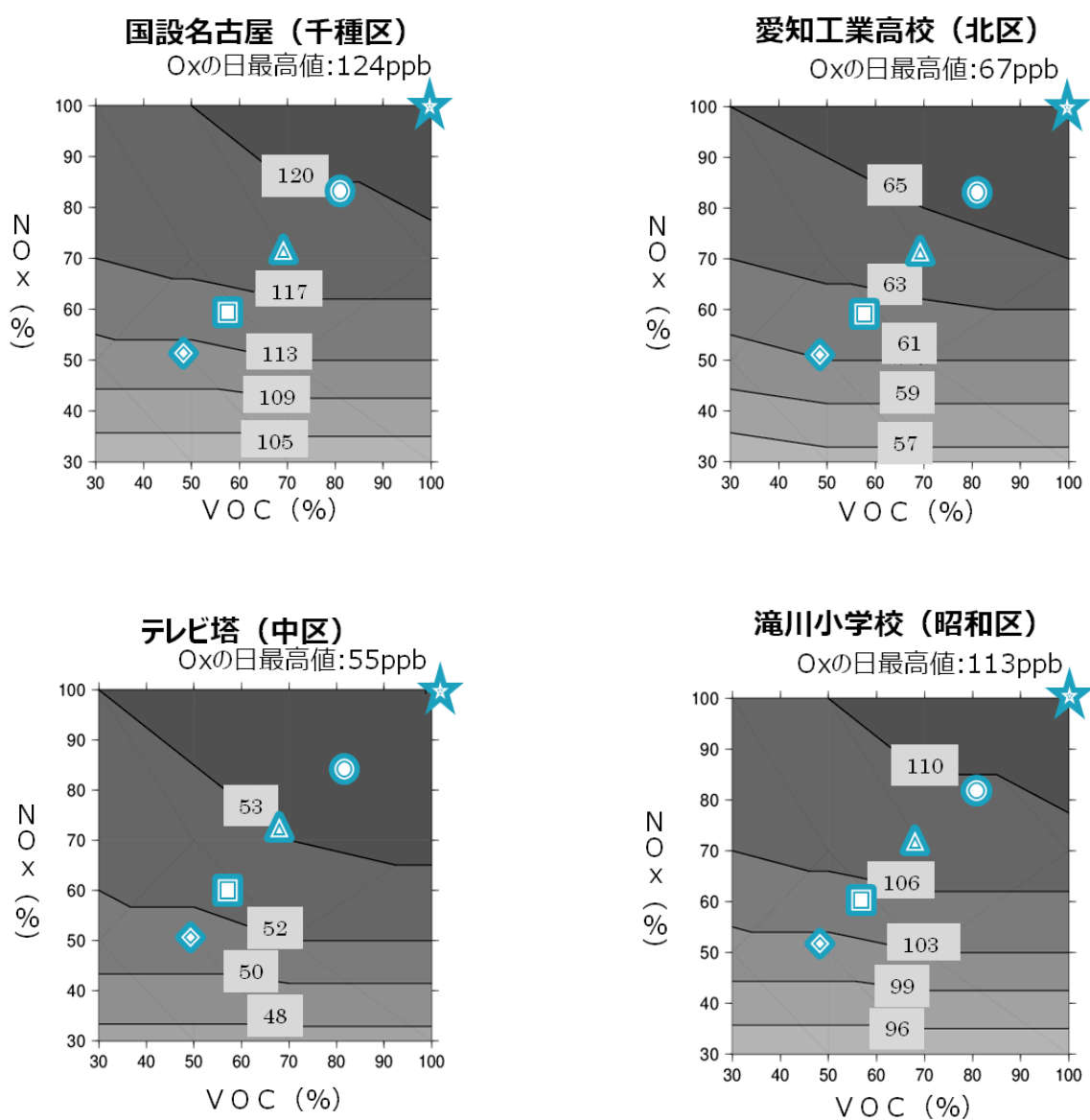
までは、いずれの排出量の削減に対しても改善効果は現れないが、それ以降は NO_x 排出量の削減により改善効果が現れることが示唆された。

今後は、他の対象日についても、排出量削減シミュレーションを実施し、同様の結果が現れるか検証を行いたいと考えている。

<改善効果グラフについて>

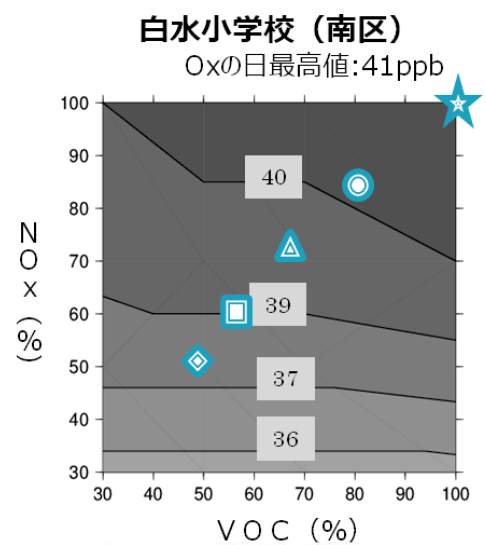
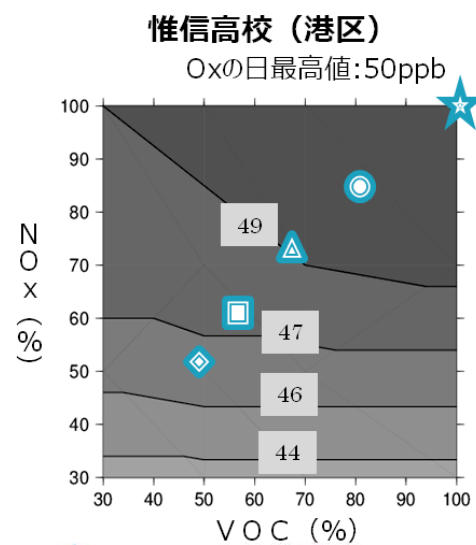
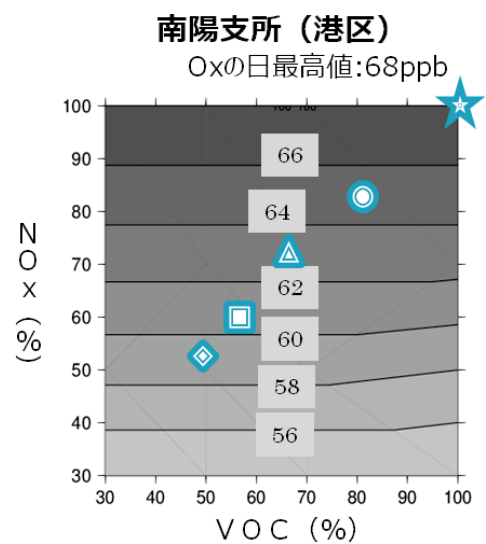
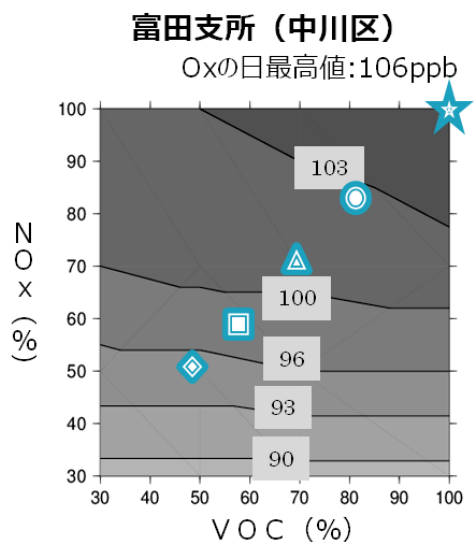
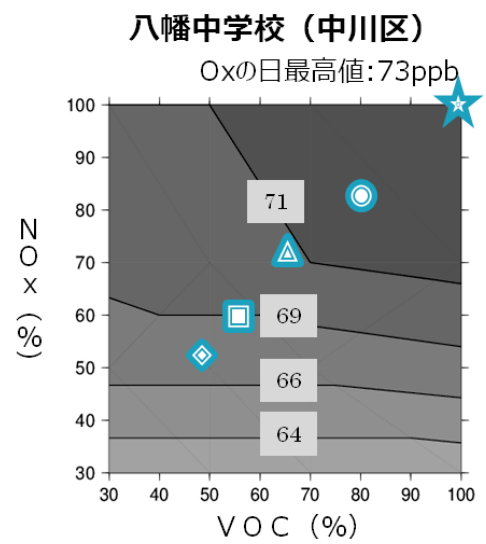
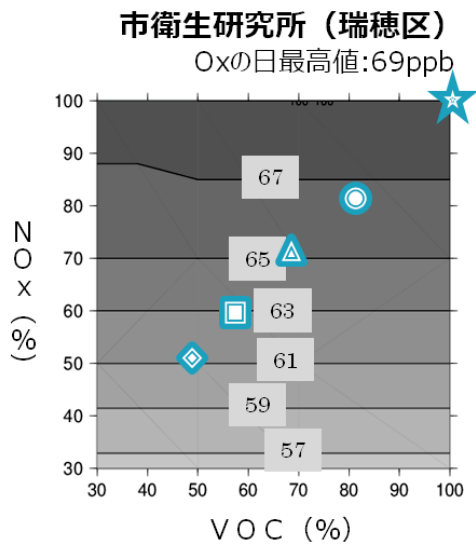
縦軸：基準年度（平成 17 年度）の NO_x 排出量に対する比（%）

横軸：基準年度（平成 17 年度）の VOC 排出量に対する比（%）



★：平成17年度 ○：平成20年度 △：平成22年度 □：平成25年度 ◇：平成27年度

図 5-1 名古屋における平成 17 年 6 月 25 日の改善効果グラフ



★：平成17年度 ●：平成20年度 ▲：平成22年度 □：平成25年度 ◆：平成27年度

図 5-2 名古屋における平成 17 年 6 月 25 日の改善効果グラフ

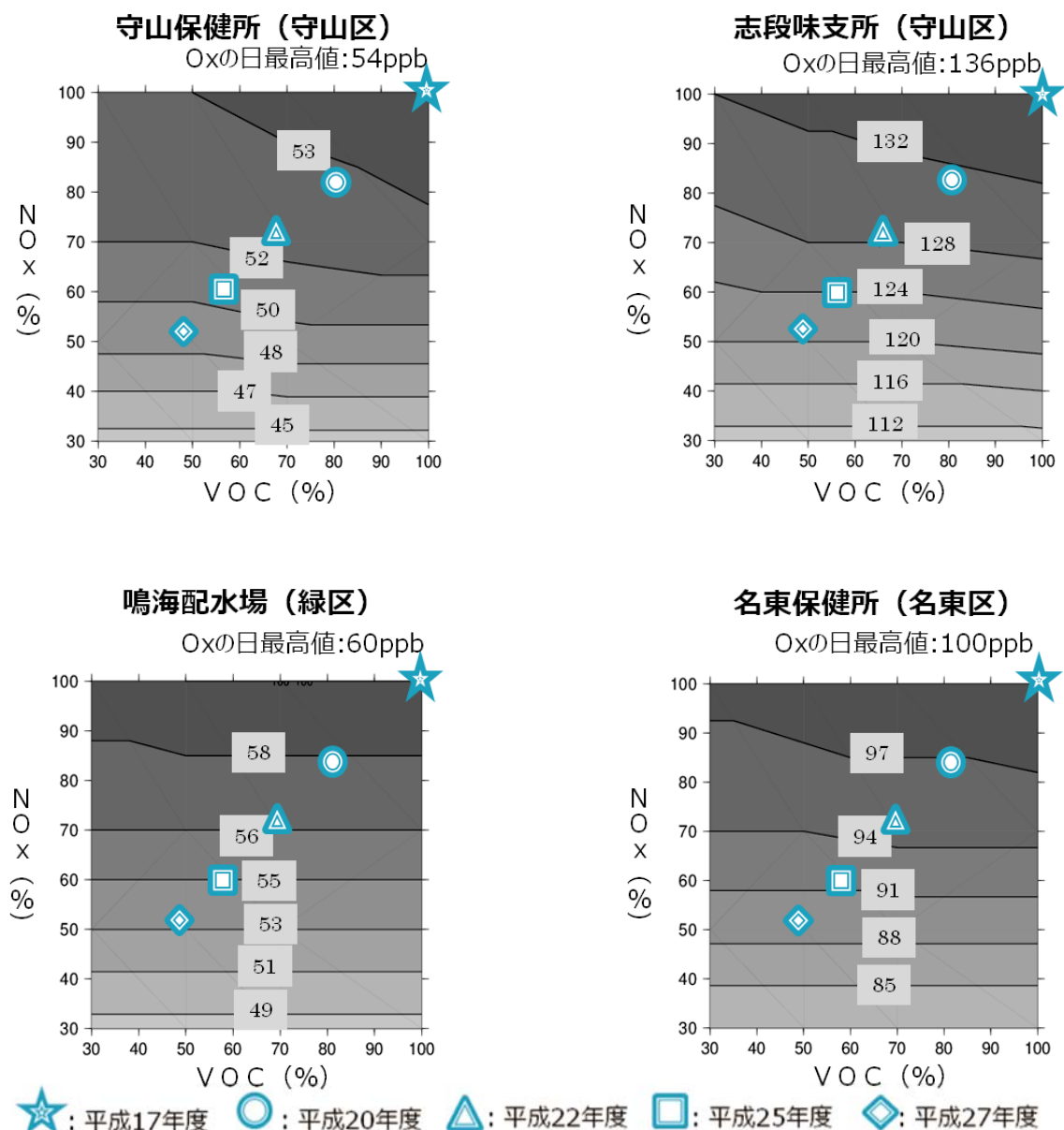


図 5-3 名古屋における平成 17 年 6 月 25 日の改善効果グラフ

文 献

- 1) 環境省光化学オキシダント調査検討会：光化学オキシダント調査検討会報告書，環境省（2012）
- 2) ADMER-PRO Version1.0 操作マニュアル，
http://www.aist-riss.jp/software/admer-pro/ADMER-PRO_V10_manual.pdf
- 3) Kannari A, Tonooka Y, Baba,T Murano K : Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, *Atmos. Environ.*, **41**, 3428-3439（2007）
- 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 NOx, 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) U.S. EPA : Guidance on the use of models and other analyses for demonstrating attainment of air quality goals for ozone, PM2.5, and regional haze, EPA-454/B-07-002, U.S. EPA（2007）
- 6) 名古屋市環境科学研究所：大気環境シミュレーション結果（浮遊粒子状物質）報告書，名古屋市環境科学研究所（2009）