

光化学オキシダントに対する発生源感度解析の適用

An application of sensitivity analysis of the emission sources
for photochemical oxidants

伊藤 晃佳 *1
Akiyoshi ITO

森川 多津子 *1
Tazuko MORIKAWA

早崎 将光 *2
Masamitsu HAYASAKI

Abstract

In this study, we confirm the reproducibility of an air quality model by comparison with observations and discuss the improvement of the reproducibility of photochemical oxidant (Ox) concentrations. We also calculate the sensitivity of each emission source to Ox. The improvement of the underestimation of NOx and NMHC is appropriate for Ox and the emission increases, the reaction model improves and the spatial resolution improves. In the case of Ox, since it has a negative source sensitivity, it is necessary to apply it to a limited range such as application to the daily-maximum concentration of Ox. Only when the concentration of photochemical Ox was high, the source sensitivity to photochemical Ox was calculated and it was found that all sources had almost the same source sensitivity.

1. はじめに

光化学オキシダント(以下、光化学Ox)は、二酸化窒素(NO₂)や揮発性有機化合物(VOC)といったガス状物質を前駆物質として、大気中での化学反応によって生じる大気汚染物質であり、健康影響の観点から、大気環境基準が設定されている。光化学Oxの大気環境基準は1973年に設定されたが、今日まで、大気環境基準達成率はほぼ0%で推移しており^{1,2)}、現在、国や地方自治体を中心に、前駆物質の発生源対策と光化学Ox低減の効果などが検討されている。大気中での光化学Ox濃度は、各発生源からの前駆物質の排出量や大気中での光化学反応、気象要因など、様々なメカニズムが影響するため、光化学Oxの低減効果の評価には、これらのメカニズムを考慮することができる大気シミュレーションの活用が有効である。近年では、効果評価の政策判断に、大気シミュレーションを活用する例が増えているが、一方で、現状の大気シミュレーションでは、光化学Ox濃度の現況再現性

が十分とは言えず、改善が必要である。

本研究では、光化学Ox濃度の大气シミュレーションでの計算結果を観測結果と比較することにより大気シミュレーションの現況再現性の確認を行い、光化学Ox濃度を対象とした大気シミュレーションの現況再現性改善の方向性を検討した。また、光化学Oxに対する各発生源の感度を試算した。

2. 方法

2.1 大気シミュレーションの計算設定

大気シミュレーションには、気象モデルWRF (Weather Research and Forecasting model³⁾, ver 3.8.1)と大気質モデルCMAQ(Community Multiscale Air Quality modeling system⁴⁾, ver 5.2.1)を用いた。計算対象領域は、東アジア領域と日本領域とし、それぞれ水平格子解像度は、40 km, 20 kmとした。対象年度は2015年度とし、国内の人為発生源は環境省PM_{2.5}排出インベントリ⁵⁾を用いた。その他の計算条件を含めてTable 1にまとめて示す。

*1 一般財団法人日本自動車研究所 エネルギー・環境研究部
博士(工学)

*2 一般財団法人日本自動車研究所 エネルギー・環境研究部
博士(理学)

Table 1 Calculation setup in this study

Calculation setup	Description
Calculation domain	Domain 1 (D1): East Asia region, Domain 2 (D2): Japan region
Meteorological model	WRF: Weather Research and Forecasting Model, ver 3.8.1 Initial and boundary condition: NCEP-FNL of 1-degree resolution
Air quality model	CMAQ: Community Multiscale Air Quality modeling system, ver 5.2.1 Gas-phase and aerosol chemical mechanism: SAPRC07tc-ae6
Horizontal grid	D1: 40 km resolution, D2: 20 km resolution
Vertical grid	30 layers, σ -P coordinate system, Top height: 100 hPa, Thickness of the bottom layer: 30 m
Anthropogenic emission data	D1: Data from Tsinghua University and IIASA-GAINS, D2: PM _{2.5} emission inventory (MOE)
Natural emission data	D1: MEGAN, GFEDv4, D2: MEGANver2.10, JATOP, volcanic emission
Study period	April, 2015 to March, 2016

なお、大気シミュレーション結果の評価に用いる観測結果については、関東地方の一般環境に設置されている大気汚染常時監視局(以下、一般局)の観測値を用いた。

2.2 発生源感度解析

発生源感度解析とは、ある発生源からの排出量を一定割合削減した時の大気汚染濃度の変化量から、どの発生源対策がより効果的であるかを算出する手法であり、濃度の低減量が大きいほど、その発生源対策がより有効であることを示している。本研究では、排出量を20%低減した時の濃度変化量を用い、式(1)およびFig. 1で定義する発生源感度を用いて、各発生源の感度を算出し比較した。

$$\text{発生源感度} = (C_{\text{base}} - C_{\Delta 20\%}) \div 0.20 \quad (1)$$

ここで、 C_{base} は、ベースケースでの濃度計算結果、 $C_{\Delta 20\%}$ は、ある発生源の排出量を20%低減したケースでの濃度計算結果である。

得られた発生源感度の大きい・小さい、およびプラス・マイナスについては、次のように考えることができる。

- ・大きい：排出量変化による濃度変化が大きい。
- ・小さい：排出量変化による濃度変化が小さい。
- ・プラス：排出量低減により、濃度が低減する。
- ・マイナス：排出量低減により、逆に濃度が増加

する。

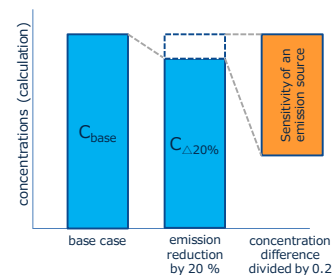


Fig. 1 Definition of the sensitivity of emission sources

なお、対象発生源は、越境輸送、船舶、固定発生源(燃焼)、固定発生源(蒸発VOC)、植物VOC、自動車とし、自動車については、影響を詳細に確認するため、自動車NO_x、自動車VOCに分けて評価した。

3. 結果と考察

3.1 大気シミュレーションの現況再現性

Fig. 2は、季節ごと、平日・土曜・休日ごとに平均した時刻別の光化学O_x濃度の計算値と観測値を示しており、対象は、関東地方の320局の一般局としている。

これらの結果から、光化学O_x濃度は、夜間に低く、日中に高くなる明瞭な日変動を示しており、大気シミュレーションによる計算値でも、その日変動の傾向が再現されているが、観測値に比べ計算値が過大となっており、観測値と計算値は、ほ

ば平行に推移していた。したがって、大気シミュレーションでは、光化学Oxの計算値を全体的に押し下げる方向の改善を取り入れる必要があると考えられる。

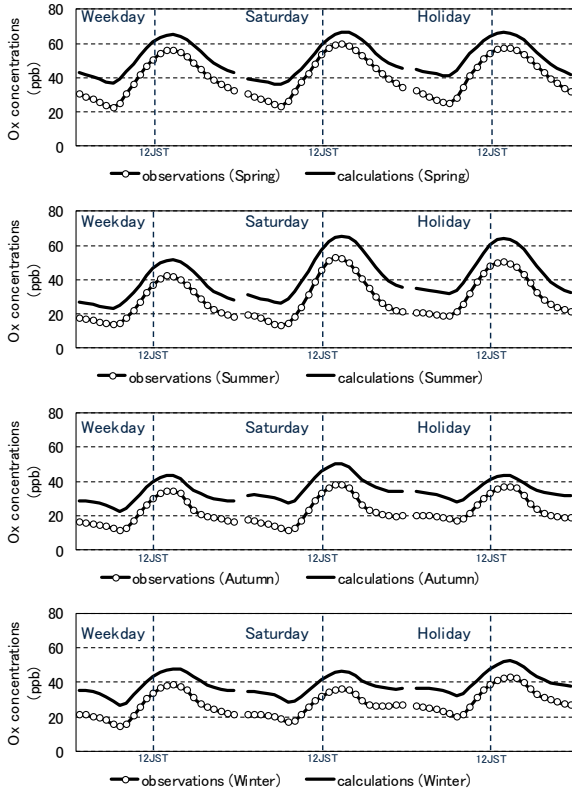


Fig. 2 Comparisons between observations and calculations of hourly concentrations of photochemical Ox averaged on weekdays, Saturdays and holidays, in each seasons

光化学Oxは、1日の中で、通常、日中に生成し、夜間から早朝にかけて消失するサイクルを繰り返している。Fig.2に示す観測値と計算値は、いずれの季節、いずれの週日においても、ほぼ同じ日サイクルとなっていることが分かるが、濃度レベルが、計算値の方が過大となっている。これらの特徴から、特に、夜間から早朝にかけての光化学Oxの消失の実態をより正しく大気シミュレーションに反映することで、光化学Oxの現況再現性がより向上することが考えられる。

3.2 光化学 Ox に対する各発生源の感度解析

3.2.1 発生源感度解析の試算

Fig.3は、東京都内のある一般局での2015年7月下旬から8月上旬の光化学Oxに対する各発

源の感度の時系列の試算結果を示している。

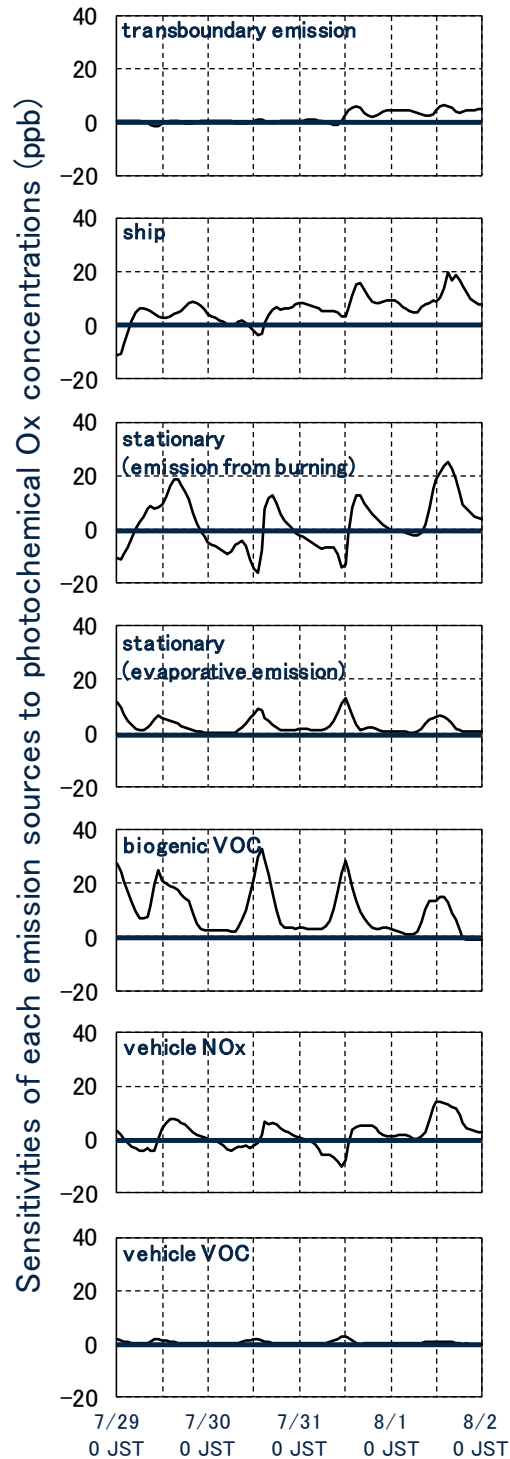


Fig. 3 Sensitivities of each emission sources to photochemical Ox concentrations

これらの結果より、NOxを排出する発生源（船舶、固定燃焼発生源、自動車NOx）は、主に午前中にマイナスの感度が現れていることから、これらの発生源は、排出量を低減すると、逆に光化学Oxが増加する可能性があることが分かる。一方

で、VOCを排出する発生源（固定蒸発発生源、植物VOC、自動車VOC）は、終日、プラスの感度が現れていることから、これらの排出量を低減すると、光化学Ox濃度も低減することがわかる。ただし、光化学Ox濃度が最大となる日中に限って言えば、いずれの発生源でも、光化学Oxに対してマイナスの感度がほとんど発生していないことが確認できた。

3.2.2 各発生源の感度解析結果

前節の結果を参考に、日中の光化学Ox高濃度時に対する各発生源の感度を算出した。ここで、光化学Ox高濃度は、関東地方の各観測局で2015年度の光化学Oxの観測値が100ppbを超えた観測局および時刻を対象とした。対象となった事例数は2,914例であった。

Table 2に、光化学Ox高濃度時における各発生源の光化学Oxへの感度の平均と標準偏差を示す。その結果、植物VOCの感度がやや高いものの、人為発生源については、いずれもほぼ同等の感度となっていると計算された。この結果から、光化学Ox高濃度の低減対策としては、種々の発生源を対象とした総合的な対策が必要であることが示唆される。

Table 2 Sensitivities of each emission sources to photochemical Ox concentrations in high Ox concentration episodes

emission source	sensitivity to Ox concentration	
transboundary emission	5.6 ±	4.9
ship	2.4 ±	5.8
stationary (emission from burning)	9.2 ±	12.5
stationary (evaporative emission)	7.4 ±	6.5
biogenic VOC	14.2 ±	13.4
vehicle NOx	6.9 ±	9.0
vehicle VOC	1.4 ±	1.2

average ± standard deviation

unit: ppb

4. まとめ

本研究では、光化学Ox濃度の大气シミュレーションでの計算結果を観測結果と比較することにより大气シミュレーションの現況再現性の確認を行い、光化学Ox濃度を対象とした大气シミュレーション

の現況再現性改善の方向性を検討した。また、光化学Oxに対する各発生源の感度を試算した。得られた結果は、以下のとおりである。

- (1) 大气シミュレーションによる計算値は、光化学Oxの日変動の傾向を再現しているが、観測値に比べ計算値が過大評価であった。
- (2) 大气シミュレーションの現況再現性改善の方向性としては、夜間から早朝にかけての光化学Oxの消失をより正しく反映することが必要であると考えられた。
- (3) 光化学Oxに対する各発生源の感度について、NOxを排出する発生源では、マイナスの感度（排出量低減により、逆に光化学Ox濃度が増加する）が現れることがあったが、VOCを排出する発生源は、終日、プラスの感度（排出量低減により、光化学Ox濃度が低減する）であった。
- (4) 日中の光化学Ox高濃度時には、いずれの発生源も概ねプラスの感度となっていた。光化学Ox高濃度時における各発生源の感度を算出した結果、いずれの発生源も、ほぼ同等の感度となっていると計算され、総合的な発生源対策の重要性が示唆された。

参考文献

- 1) 環境省：平成29年度大気汚染状況について、https://www.env.go.jp/air/osen/jokyo_h29/29_4.html (2020.1.31)
- 2) 大気環境学会 環境基準研究会：大気環境学会50周年記念事業 大気環境基準のあり方に関する調査・研究、大気環境学会誌、第44巻特別号、p.1-32 (2009)
- 3) Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D.M., Wang, W., Powers, J.G., 2008. A description of the Advanced Research WRF version 3. Nat. Center Atmos. Res. 1-113 NCAR/TN-475+STR, (Boulder, CO, USA).
- 4) Byun, D.W., Schere, K.L., 2006. Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. Appl. Mech. Rev. 59, 51-77.
- 5) 社会システム株式会社：環境省委託業務 平成29年度PM_{2.5}インベントリおよび発生源プロファイル策定委託業務報告書(2018)