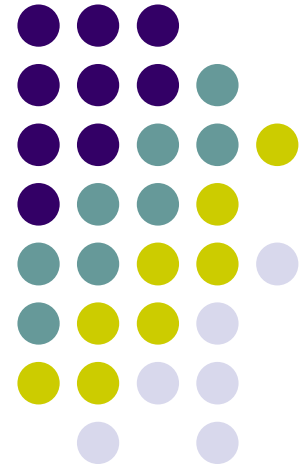


# 光化学オゾン対策としてのVOCs 排出管理の現状と新たな方向性

産総研 安全科学研究部門  
環境暴露モデリンググループ 井上和也



# 本日の発表内容



- VOCs排出管理の現状とその効果
- 光化学オゾン汚染問題の特徴（非線形性）
- 大気シミュレーションによるオゾン削減効率  
地理分布の推定
- 衛星観測データ解析によるオゾン感度レ  
ジーム地理分布の推定
- 新たなVOCs排出管理の方向性

概論

研究成  
果とそれ  
に基づく  
提案

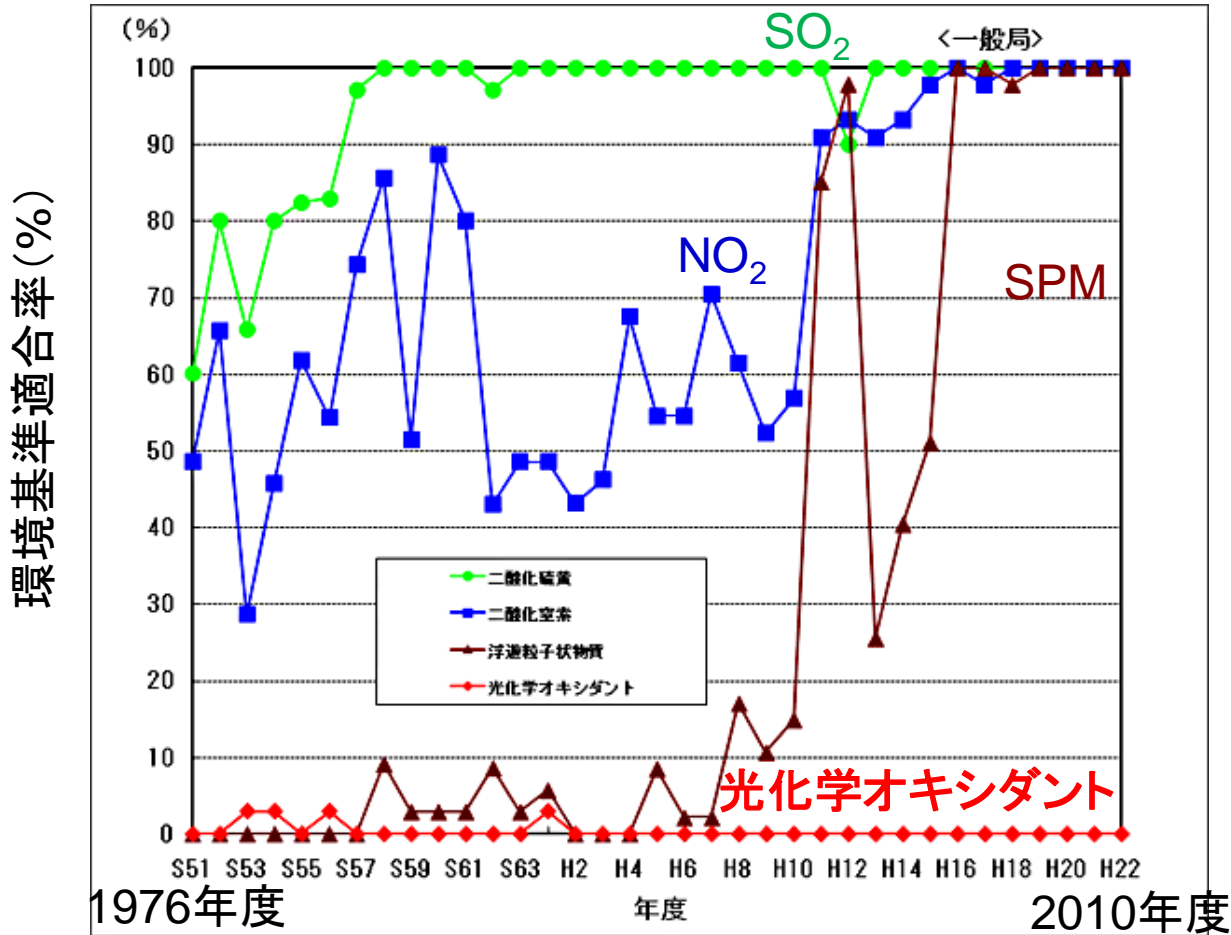


# VOCs排出管理の現状とその効果

# 光化学オゾン~未解決の大気汚染~



東京都の一般測定局における各大気汚染物質の環境基準適合率



出典：  
<http://www.metro.tokyo.jp/INET/CHOUSA/2011/07/6017r400.htm>

- 直接排出物質による大気汚染はいずれも改善傾向にあり、近年では環境基準達成率はほぼ100パーセント
- 光化学オキシダント(≡オゾン)だけは例外



# VOCsとは

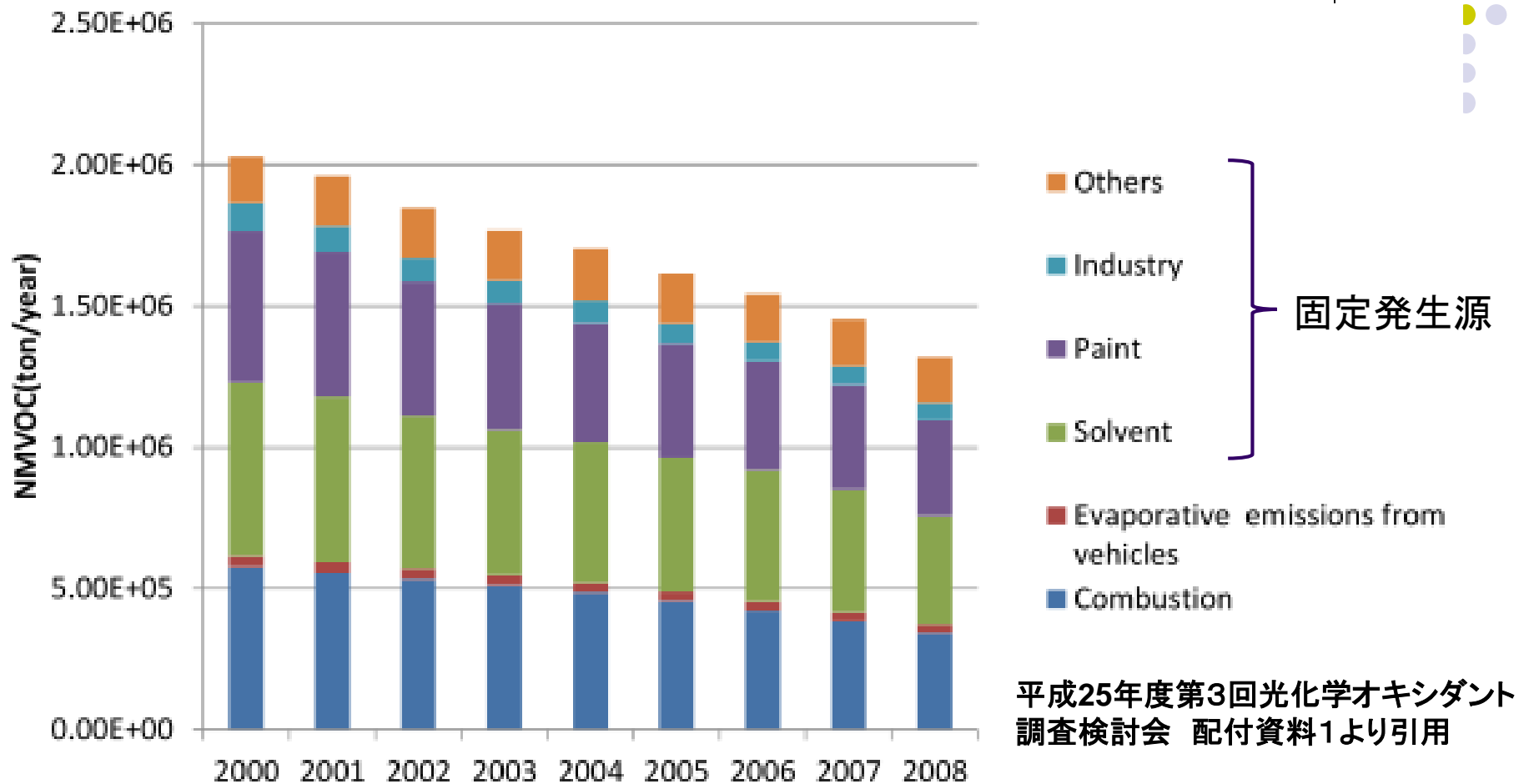
- Volatile Organic Compounds (揮発性有機化合物)
- 数百種類からなる多様な物質の混合物
- 大気中の化学反応によってオゾンを生成 (VOCsはオゾンの原因物質)
- 物質により単位排出量あたりのオゾン生成能は大きく異なる ( $0.1 \sim 10 \text{ g-O}_3 / \text{g-C}$ )



# VOC排出抑制制度

- 光化学オゾン汚染対策として平成18年度(2006年度)より実施
- 目標:工場等の固定発生源からのVOCs排出量を平成22年度(2010年度)までに平成12年度(2000年度)比で3割程度抑制すること
- 全物質、全国一律の対策

# 人為起源VOC排出量の経年変化

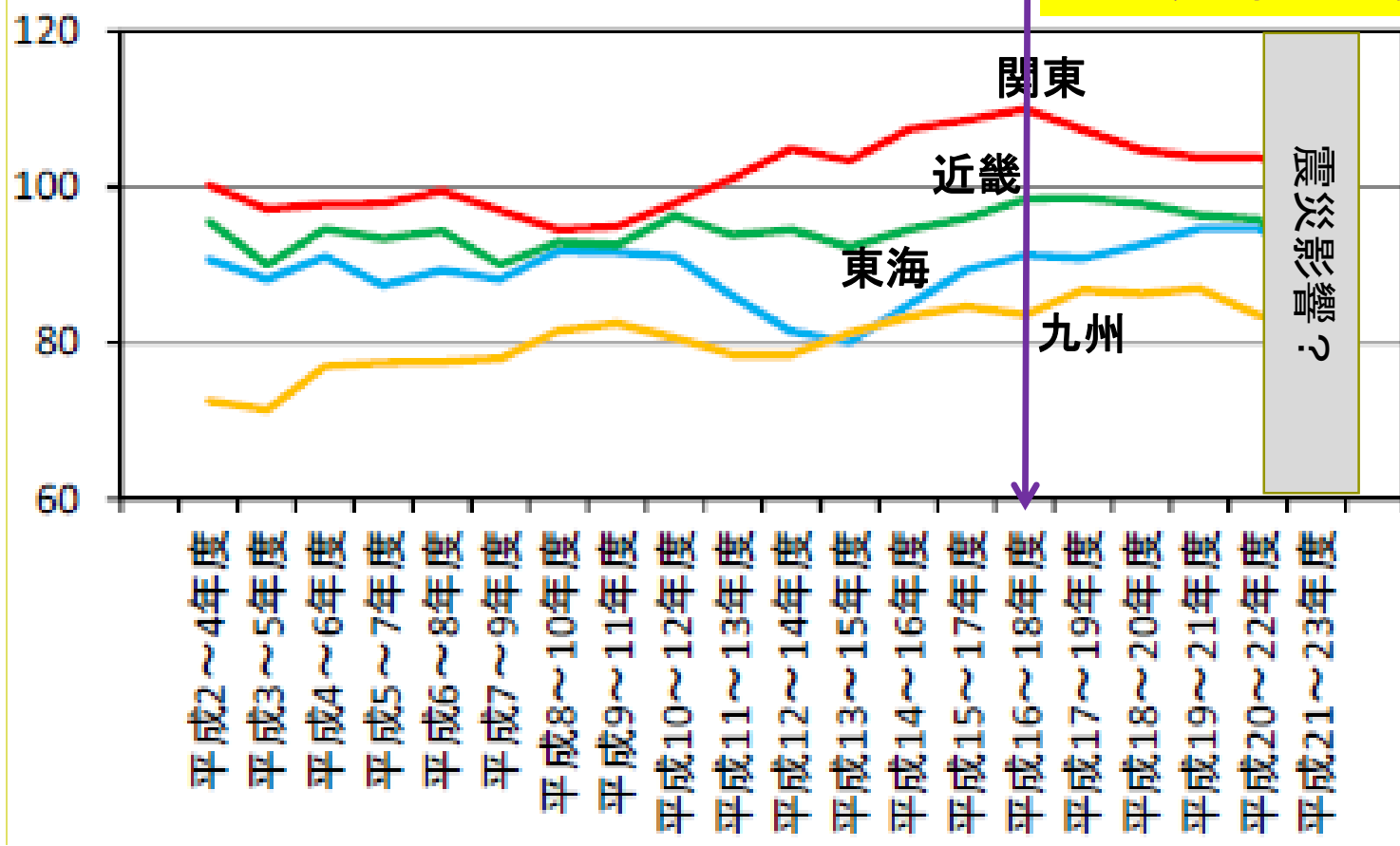


- 固定発生源のVOC排出量は順調に減少し、2008年度には前倒しで目標を達成

# VOC排出抑制制度の効果

## ～地方別の高濃度オゾン経年変化～

昼間の最高一時間値の年間98パーセンタイル値の域内平均値の経年変化  
(3年移動平均)



VOC排出抑制制度の施行

調査期間

光化学オキシダント  
調査検討会報告書  
(平成26年3月)別紙  
より引用

### ● 成否入り乱れた結果

- 関東地方では減少傾向がみられるが、その他の地方でははっきりした減少傾向はみられない



# より実効的なVOC排出削減対策のためによく議論されること



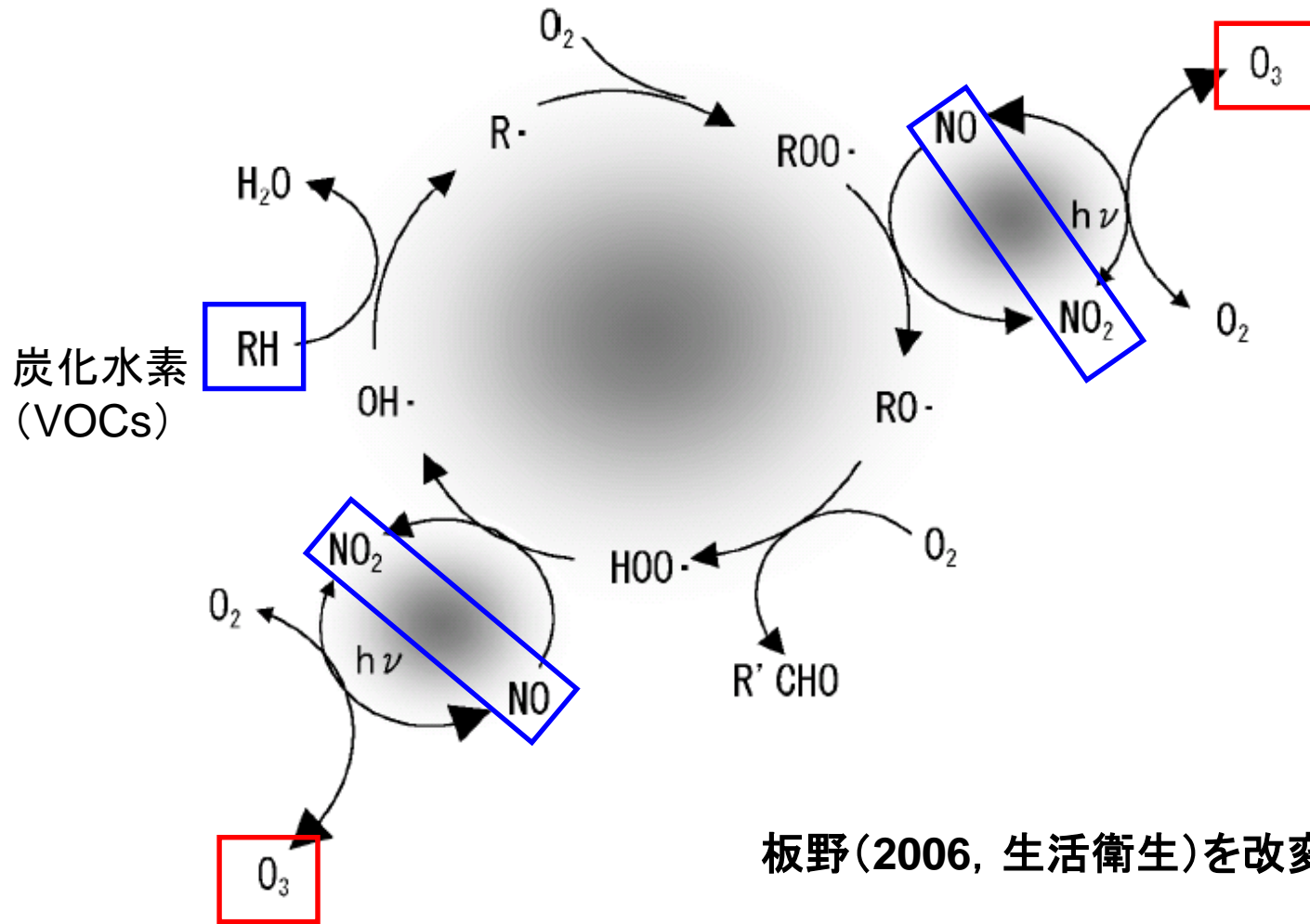
- 各物質のオゾン生成能を考慮し、オゾン生成能の高い物質に重点を置いた排出削減対策へ
  - VOCs総量削減からVOCs総オゾン生成能削減へ

OK?



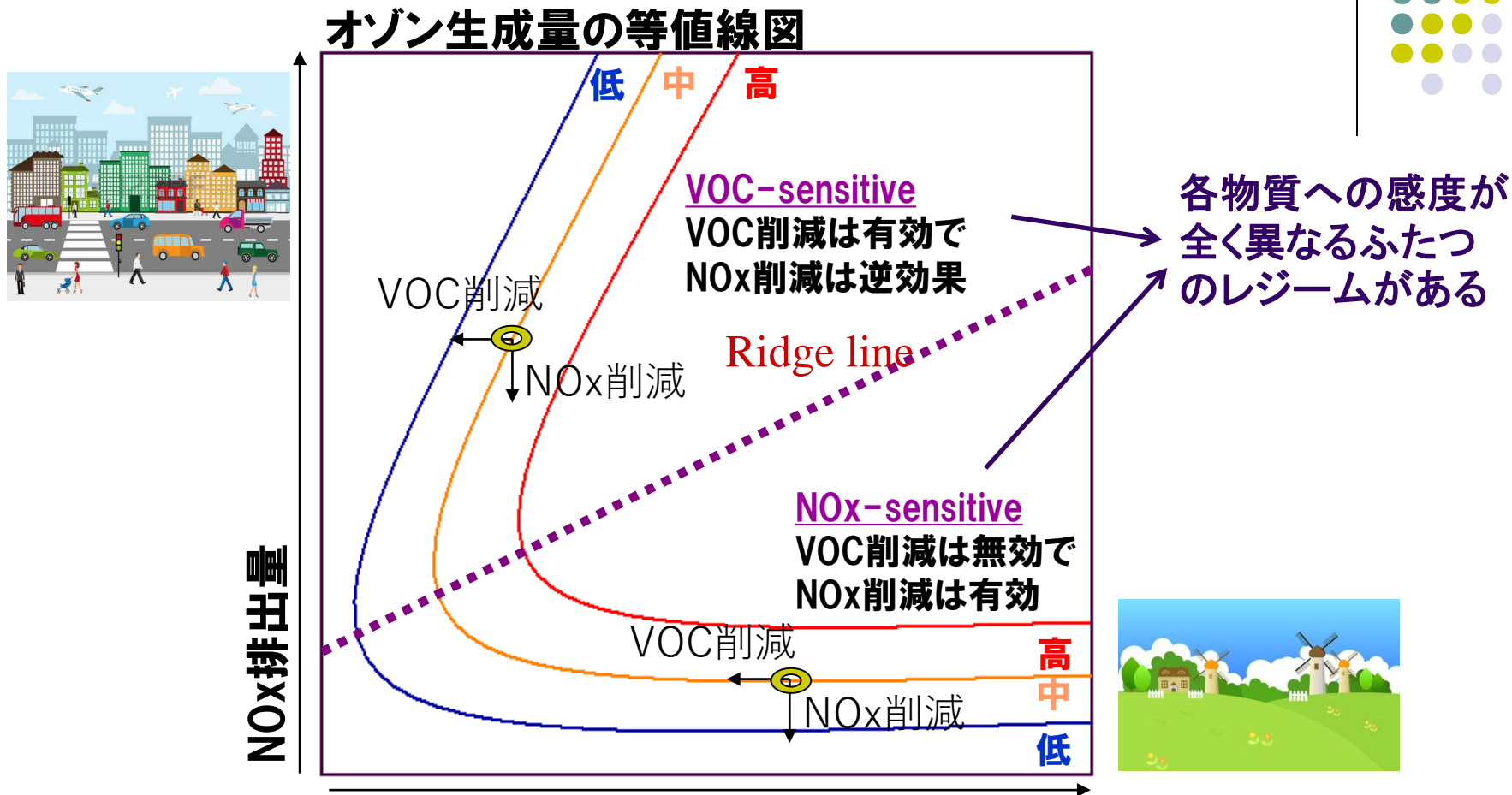
# 光化学オゾン汚染問題の特徴 (非線形性)

# オゾン生成反応



- オゾンは、数百種類の炭化水素 (VOCs) のほか窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>) も関与する非常に複雑な反応を経て生成される

# オゾン生成量と前駆物質排出量の関係



∧ VOC排出量(オゾン生成能重み付きVOC排出量の総和)

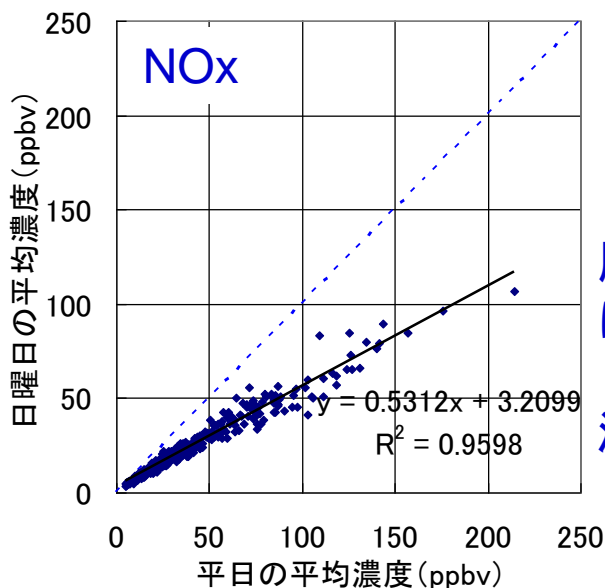
- どちらのレジームかによって各物質の削減対策の効果がまったく異なる
- レジームと対策の組み合わせによっては逆効果になったり効果が得られなかったりすることがある

# オゾン汚染問題の特徴(非線形性)を示す一つの観測事実～オゾン濃度の週末/平日比の地理分布～

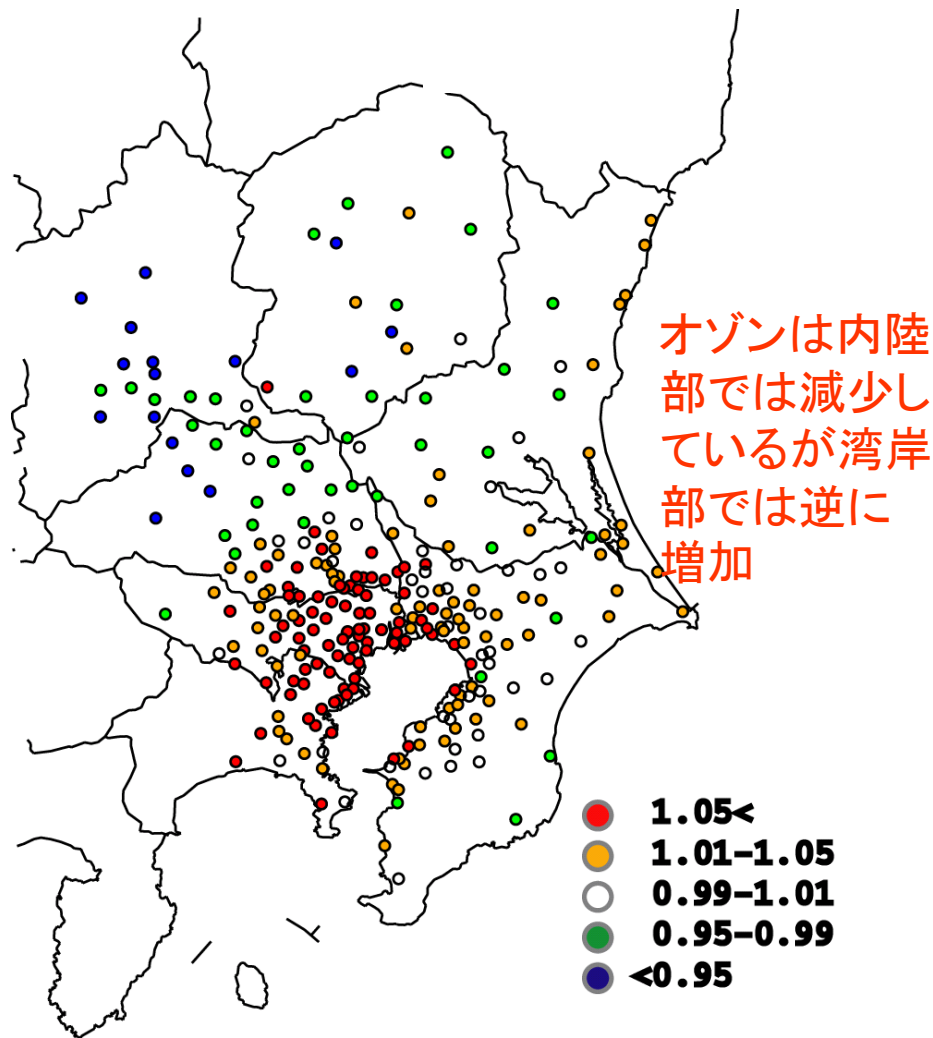
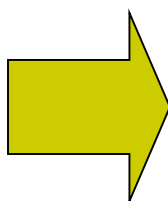
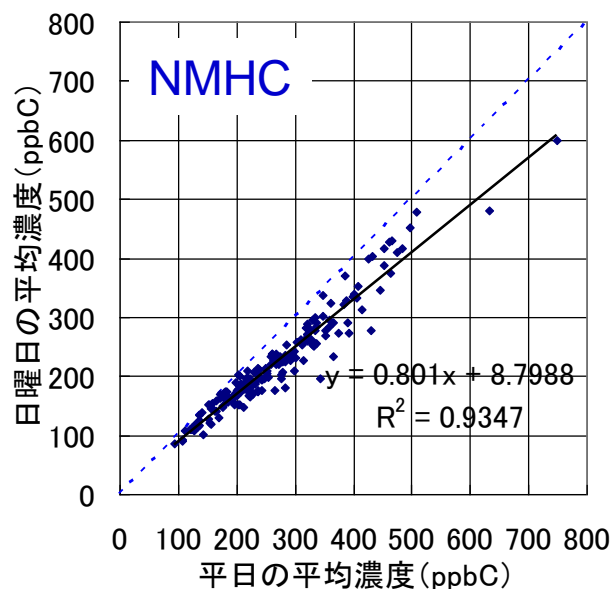
集計期間: 1999～2003年の4～9月



オゾン1時間最高値の日曜日/平日比



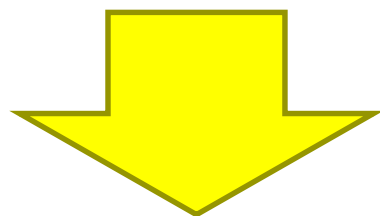
原因物質  
は一様に  
日曜日に  
減少





# 真に実効的なVOCs対策を求めて

- オゾン生成能を考慮するだけでは不十分
- オゾン生成感度(レジーム)の地域分布を考慮した対策が効果的なのではないか？



以下の研究を実施

- 大気シミュレーションによるオゾン削減効率地理分布の推定
- 衛星観測データによるオゾン感度レジームの地理分布推定

整合性確認



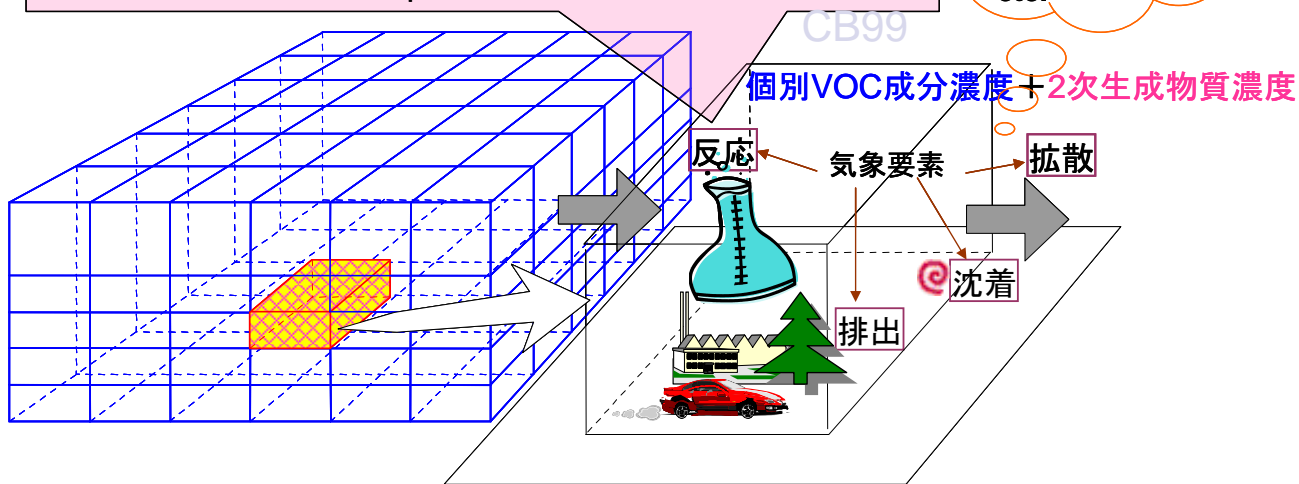
# 大気シミュレーションによるオゾン削減効率地理分布の推定

# 使用モデル(ADMER-PRO)の概要



## 3次元オイラー型化学輸送モデル

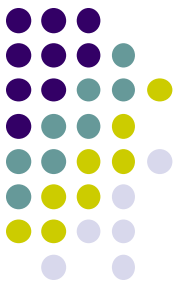
- $\text{NO}_x + \text{VOCs} + \text{光} \rightarrow \text{ホルムアルデヒド, オゾン, ...}$   
✓ 36の化学種、93の反応式で表現(既存のモデルを利用)
- 個別VOC成分 + OH  $\rightarrow$  products



- 個別VOC成分と2次生成物質の濃度を同時に評価
- 気象パターン類型化機能も搭載しており、例えば夏の代表日といった情報も提供できる



# 地方別オゾン削減効率の算出



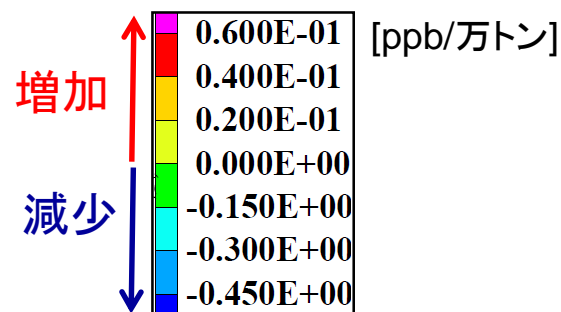
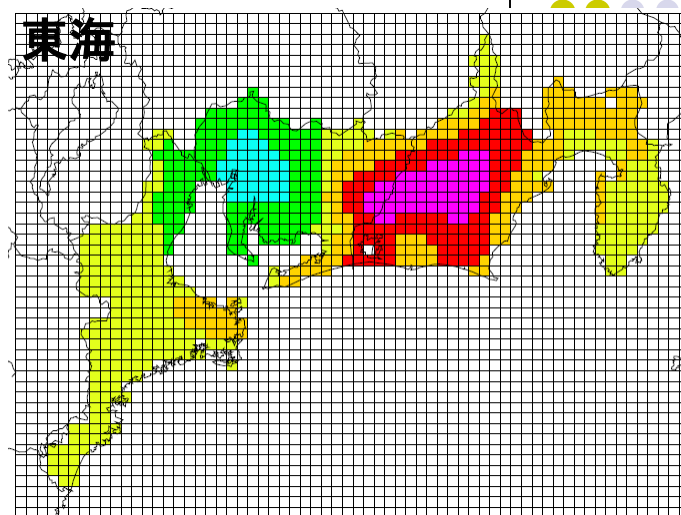
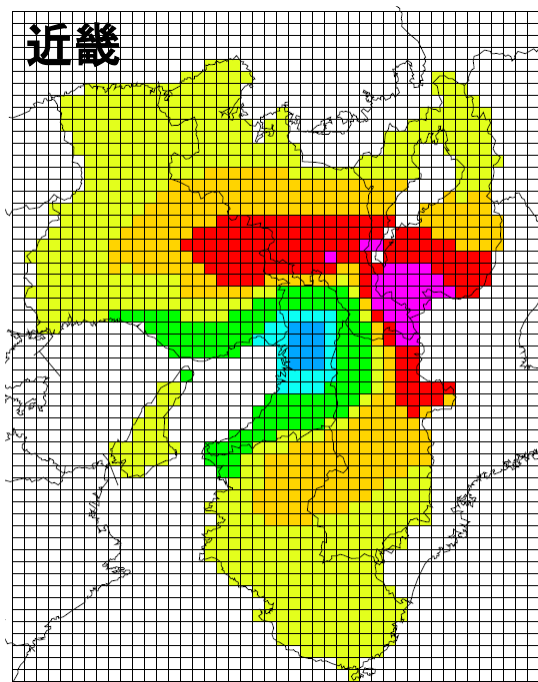
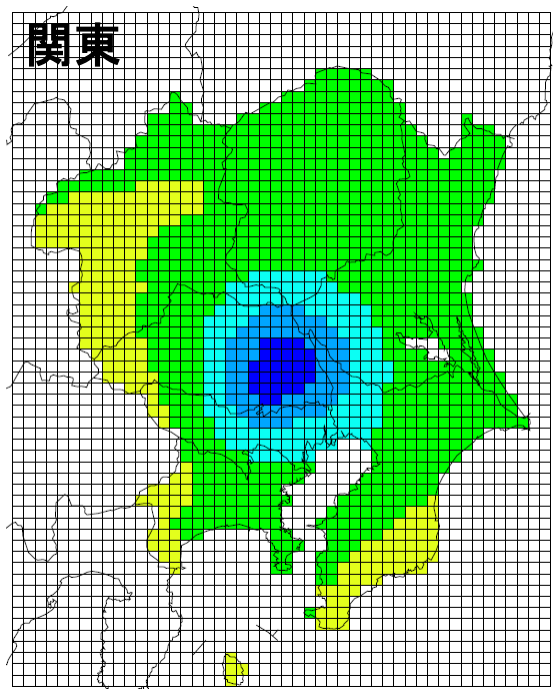
- ベースケース(2000年度)、VOC削減ケース(塗装用途のVOC排出量を2008年度の実績データに合わせて各地方別に一律低減)のシミュレーションを実施し、以下の指標を算出

算出指標	算出式
オゾン濃度削減効率 (ppt/ ton/yr)	(オゾン濃度低減量の平均値) / (排出削減量)
オゾン <b>暴露</b> 削減効率 (ppt/ ton/yr)	(オゾン濃度低減量の <b>人口加重</b> 平均値) / (排出削減量)

- 評価対象地方: 関東地方、近畿地方、東海地方
- 評価対象日: 夏季典型気象パターンの代表日(2000年8月3日等)
- 評価対象要素: オゾン濃度の8時間(10-18時)平均値

# オゾン濃度変化量の推定結果

(単位年間VOC削減量あたり)



- 単位VOC削減量当たりのオゾン濃度低減量は地方ごとに大きく異なる
  - 関東ではその他の地方に比べて低減している領域が大きくかつ低減量も大きい
  - 近畿、東海では(わずかに)増加している領域の方が多い

# 地方別オゾン削減効率の算出結果



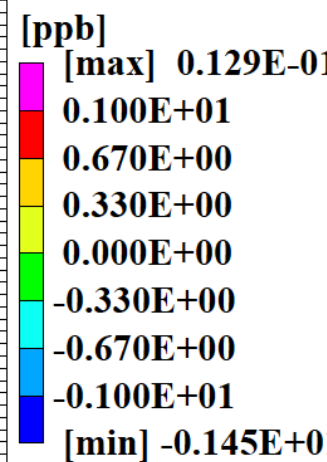
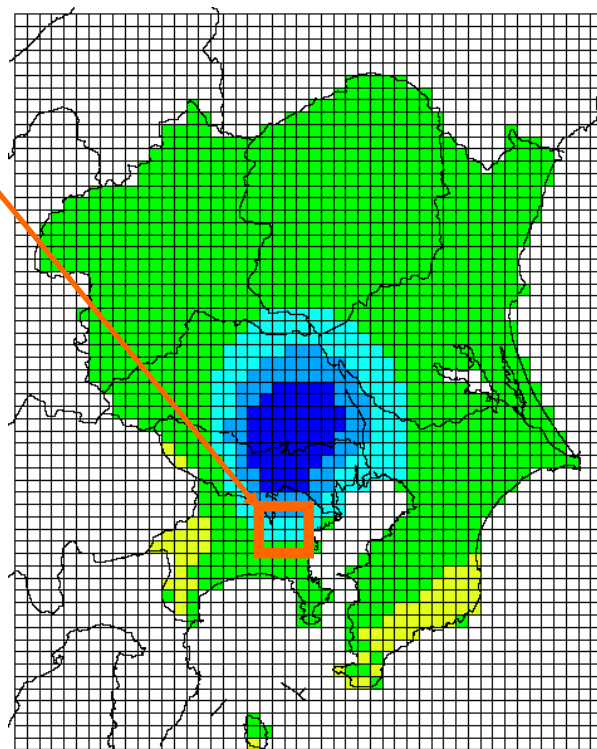
	オゾン濃度削減効率(ppt/ton/yr)	オゾン暴露削減効率 (ppt/ton/yr)
関東地方	0.0075	0.0200
近畿地方	-0.0001	0.0100
東海地方	-0.0004	0.0067

- オゾン濃度削減効率は地方ごとに大きく異なり、**関東地方は他の地方より顕著に高い**
  - この傾向は、実測で見られたVOC排出抑制制度実施以降の高濃度オゾン低減量の地方別傾向と一致
- オゾン暴露削減効率も同様の傾向であるが、値はどの地方もオゾン濃度削減効率より大きい

# オゾン削減効率地理分布(関東地方詳細解析)の推定



1. この矩形領域内のみでの固定蒸発VOC排出量(塗装用途)をゼロに削減してシミュレーション
2. ベースケースからのオゾン濃度変化量(右図)の平均値および人口加重平均値を求める
3. 以下の式で上記矩形領域の各指標値を算出

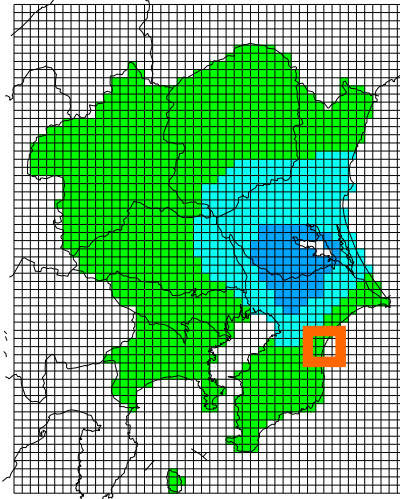
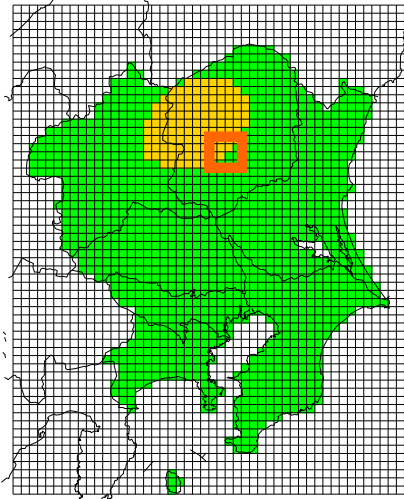


算出指標	算出式
オゾン濃度削減効率 (ppt/ ton/yr)	(オゾン濃度低減量の平均値)/(排出削減量)
オゾン <b>暴露</b> 削減効率 (ppt/ ton/yr)	(オゾン濃度低減量の <b>人口加重</b> 平均値)/(排出削減量)

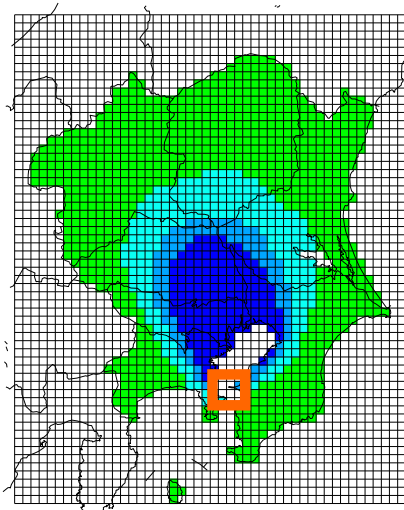
矩形領域を変えて上記の計算を順次行い、これらの指標の地理分布を得る

# オゾン濃度変化量の推定結果例

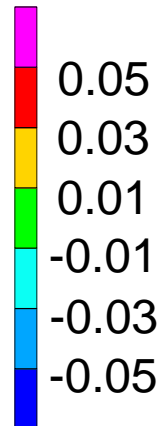
(単位年間VOC削減量あたり)



黄土色の矩形は  
排出削減メッシュ

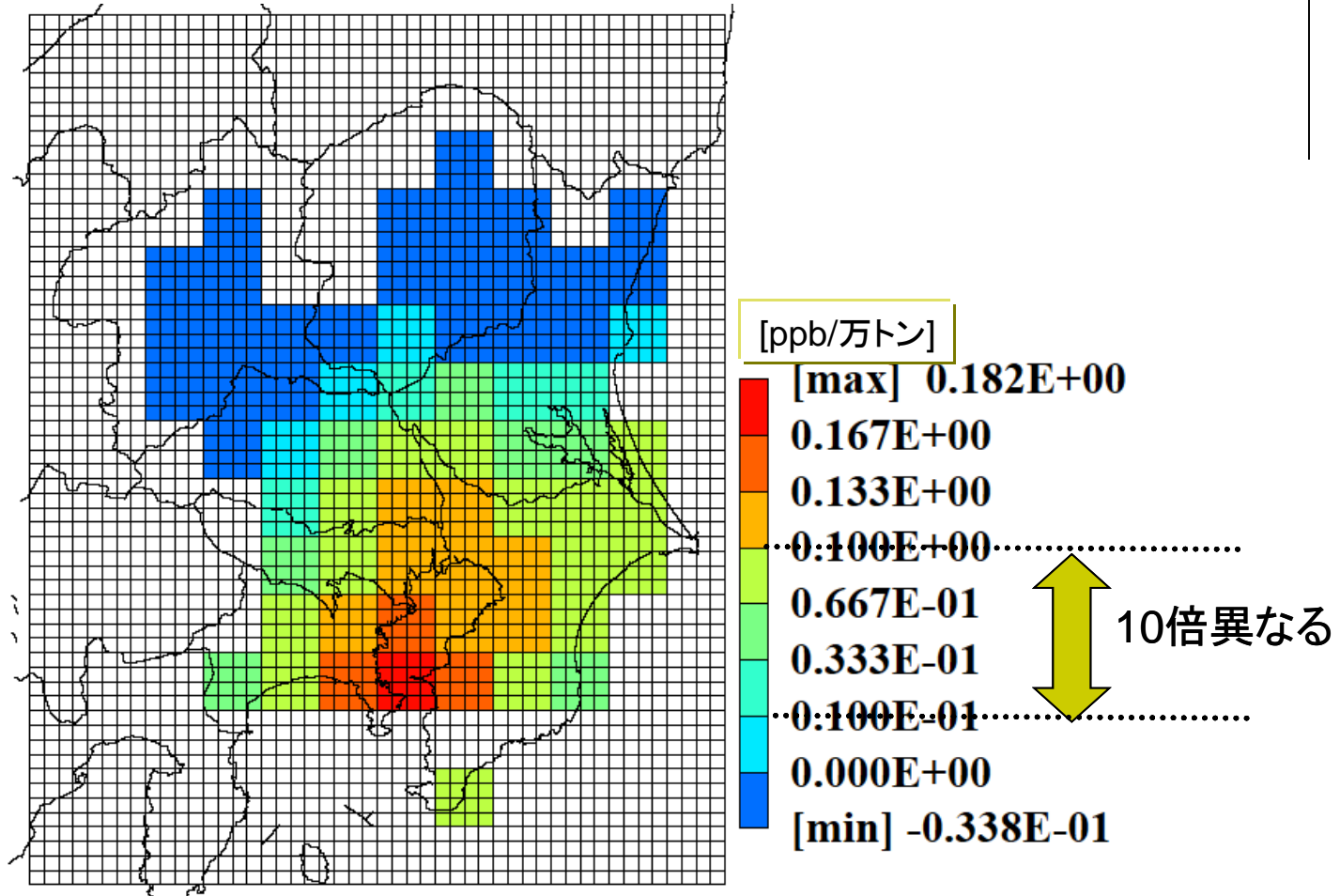


[ppt / (ton/yr)]



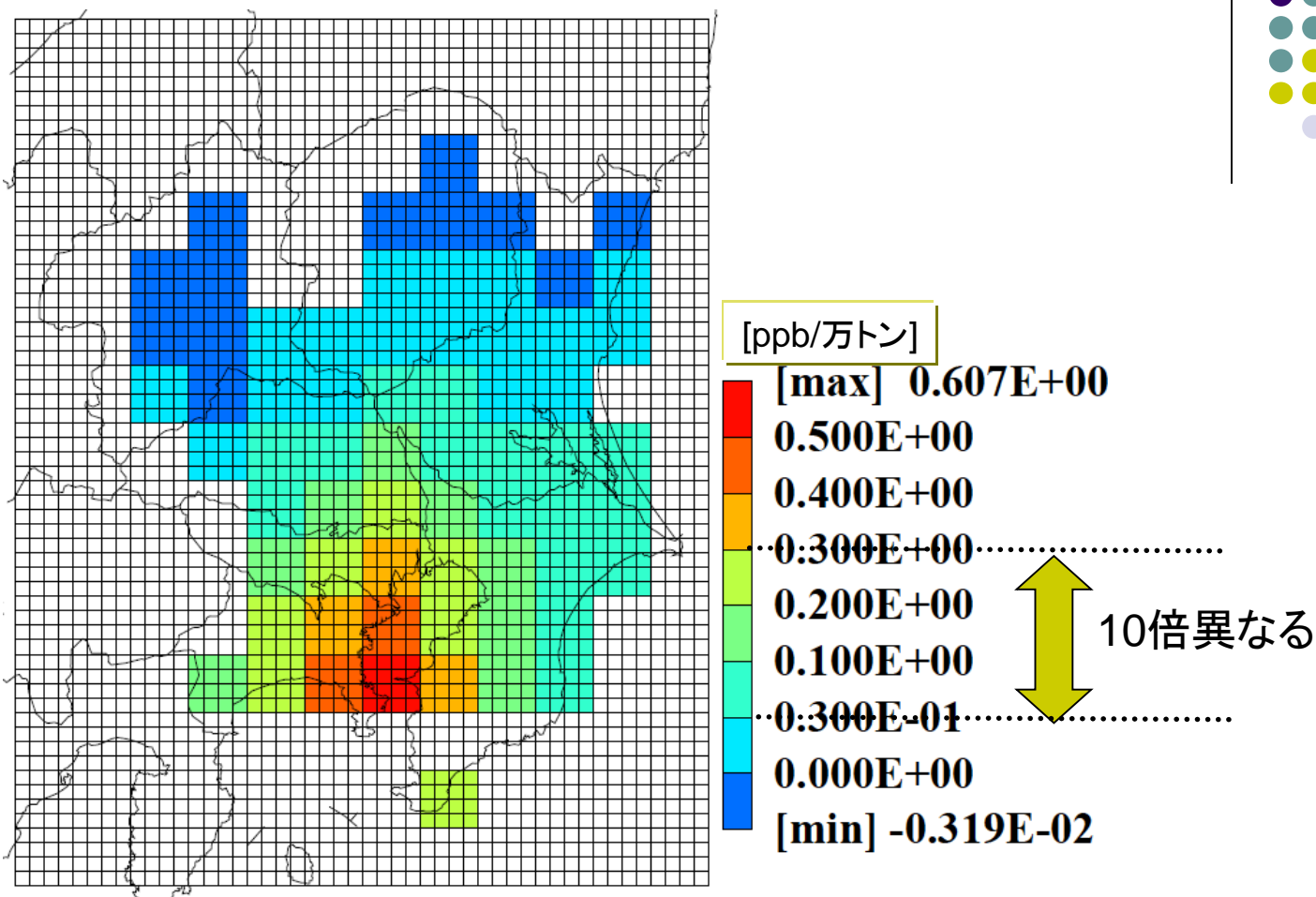
- オゾン濃度低減量は排出削減を行う場所によって大きく異なる
  - 東京湾岸部での排出削減は広域的に大きなオゾン濃度低減をもたらす
  - 栃木県(関東北部)での排出削減はオゾン濃度の(わずかな)増加をもたらす

# オゾン濃度削減効率の算出結果



- 東京湾岸部で大きく、関東北部で小さい(10倍以上異なる)
- 値が負の地域もある

# オゾン暴露削減効率の算出結果



- 全体的な傾向はオゾン濃度低減効率の地理分布と類似
- オゾン暴露削減効率では値が高い地域が東京湾岸部により集中

オゾン暴露量(≒健康被害量)を削減するために効果的な対策地域はごく限られることを示唆



# 衛星観測データ解析によるオゾン 感度レジーム地理分布の推定



# 観測によってオゾン感度レジームを診断する方法

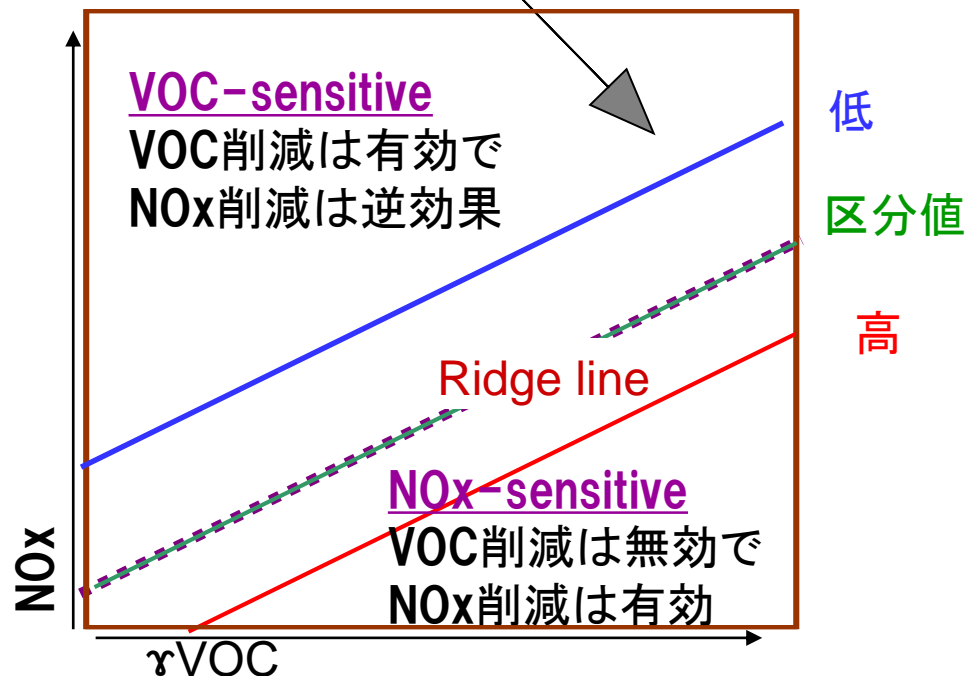


## ● “光化学指標”を測定する

- ✓ 光化学指標として、光化学反応式の理論的考察等により、 $H_2O_2/HNO_3$ 濃度比、 $HCHO/NO_2$ 濃度比など多くの指標が提案されている
- ✓ なかでも $HCHO/NO_2$ 濃度比は分母・分子とも衛星により観測されているため極めて有用である可能性がある

“光化学指標”とは  
それを測定することにより感度レジーム (VOC-sensitive or NOx-sensitive) を判定できる指標(下図参照)

“光化学指標”の等値線

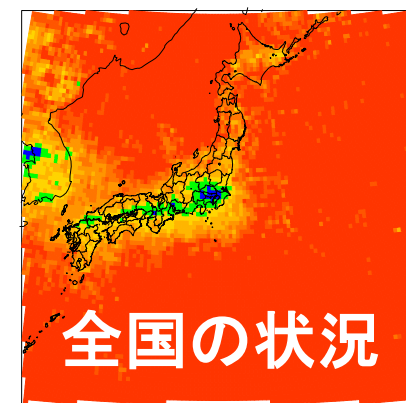
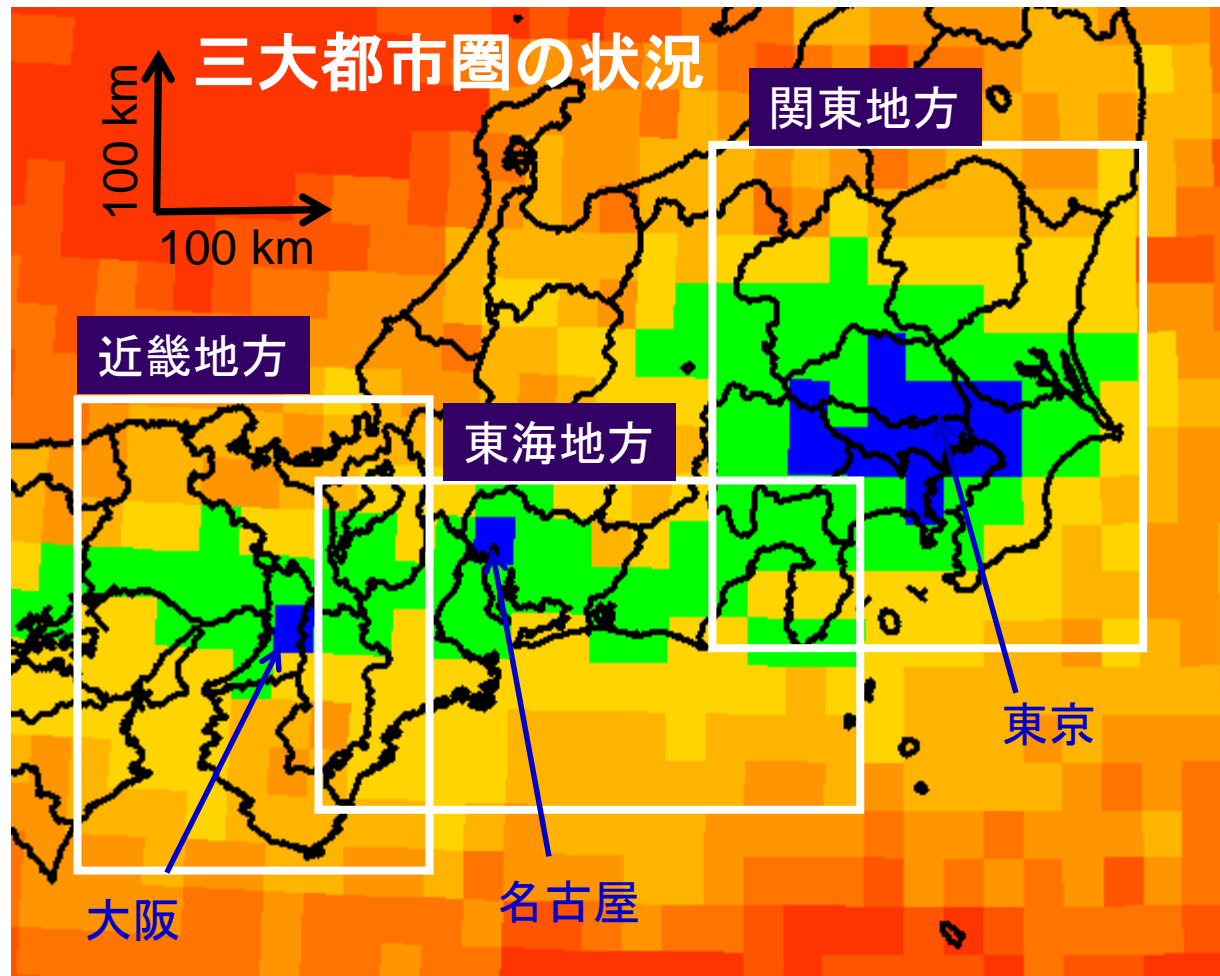


# 衛星観測 (OMI) データによるオゾン感度レジームの判定法



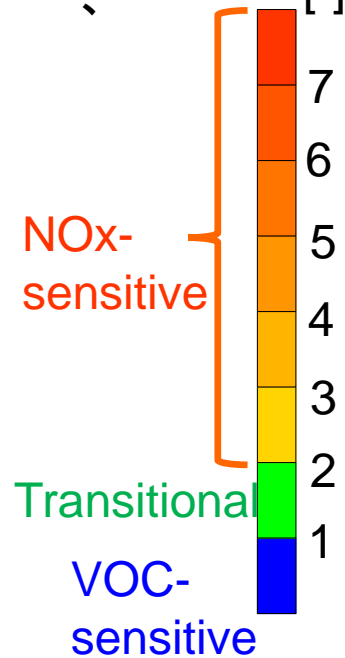
- 米国の先行研究 (Duncan et al., 2010, Atmos. Env.) に従い、以下の判定基準を採用
  - $\text{HCHO}/\text{NO}_2$  カラム濃度比  $< 1$  のとき → VOC-sensitive (VOC削減が有効、NO<sub>x</sub>削減は逆効果)
  - $1 < \text{HCHO}/\text{NO}_2$  カラム濃度比  $< 2$  のとき → Transitional (遷移領域)
  - $2 < \text{HCHO}/\text{NO}_2$  濃度比 のとき → NO<sub>x</sub>-sensitive (NO<sub>x</sub>削減が有効、VOC削減は無効)

# オゾン感度レジームの判定結果 (2005-06年の7-8月)

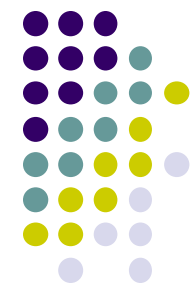


HCHO/NO<sub>2</sub>  
カラム濃度比

[-]

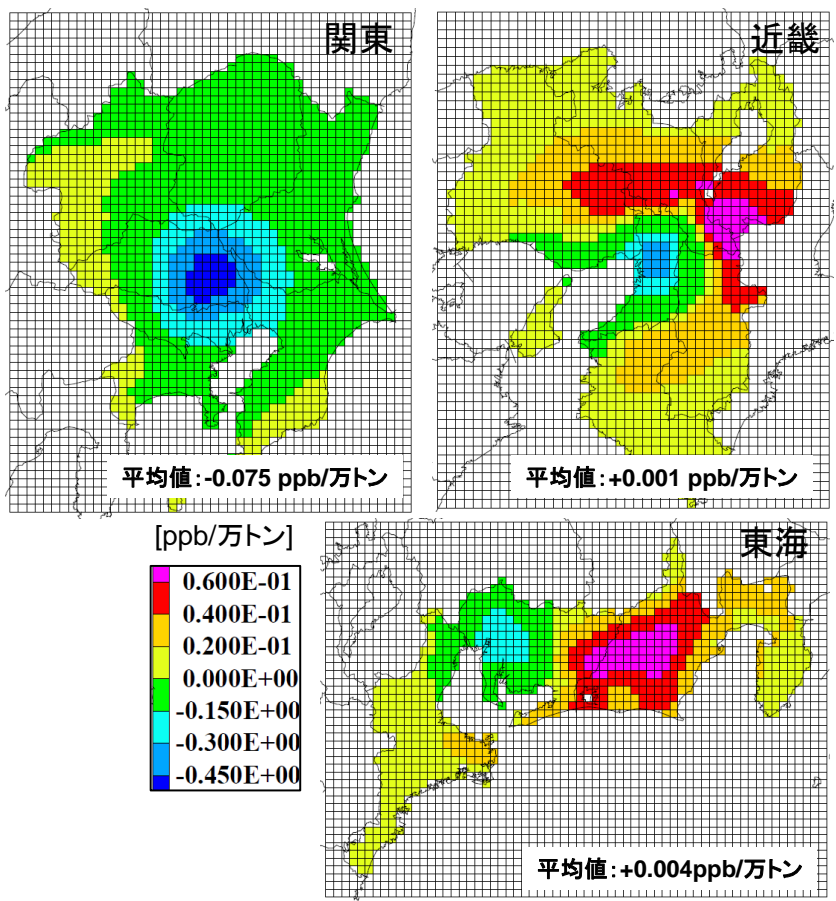


- 関東は近畿・東海地方に比べてVOC-sensitiveの領域が顕著に多い
- 全国的にはNOx-sensitiveの領域が多い



# シミュレーション結果との比較：地方別オゾン濃度感度について

シミュレーションによって推定された単位年間VOC排出量削減量あたりのオゾン濃度変化(再掲)



・エミッションは2000年を基準として削減実験を実施  
・計算対象は同年8月のオゾン高濃度典型日の8時間(10-18時)平均値

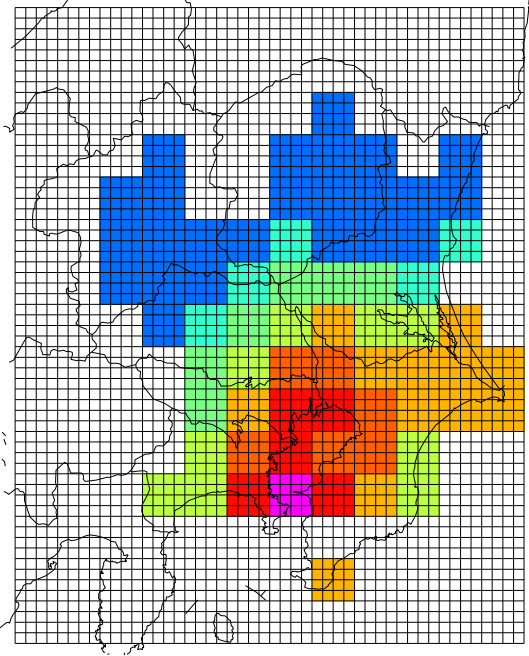
- ・シミュレーションでは関東はVOC削減が有効である領域(緑～青)が他地方に比べて顕著に多いと推定

衛星データ解析によって導出された傾向と定性的に一致

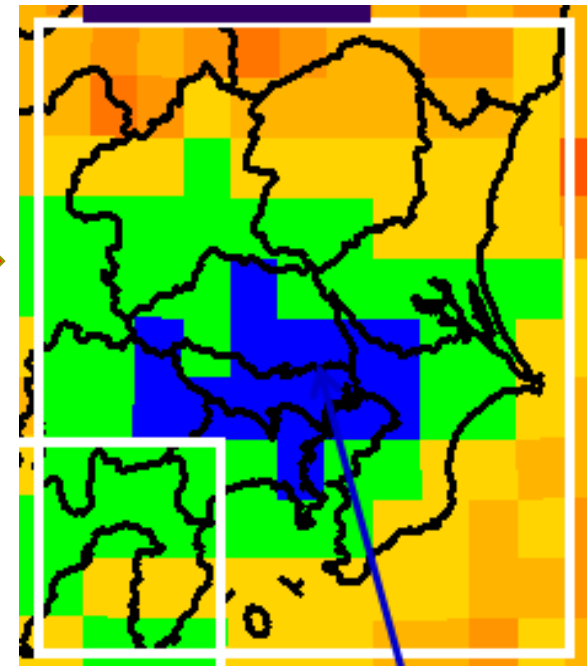
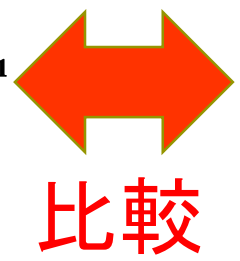


# シミュレーション結果との比較：関東地方内の の詳細なオゾン濃度感度分布

シミュレーションによる  
オゾン濃度低減効率  
地理分布の推定結果



衛星観測データによるオゾン感度  
レジーム判定結果



NOx-  
sensitive

VOC-  
sensitive

- 衛星データでVOC-sensitiveと判定された地域(右図の青色)では概ねシミュレーションによるVOC排出削減感度も高い(赤～橙)
- 衛星データでNOx-sensitiveと診断された地域(右図の橙色)では概ねシミュレーションによるVOC削減感度が負(青色)となっている

衛星データ解析によって導出された傾向と定性的に一致



# ふたつの研究のまとめ

- 大気シミュレーションによりオゾン削減効率<sup>①</sup>は地域により大きく異なることを明らかにした
  - 関東で大きく、近畿、東海では小さい
  - 関東内では東京湾岸部で大きく北部で小さい
- 衛星観測データの解析によりオゾン感度レジーム<sup>②</sup>の地域分布を明らかにした
  - 推定されたオゾン感度レジームの地理分布はシミュレーションで推定されたオゾン濃度削減効率<sup>①</sup>地理分布の推定結果と整合的であった
  - 全国的にはNO<sub>x</sub>-sensitiveの領域が多かった

# 光化学大オゾン対策としての新たな VOCs排出管理の方向性



- オゾン感度レジームの地理分布も考慮した対策へ！
  - VOCs排出量はVOC-sensitiveの領域やそれが多しい産業分野を中心に削減
  - VOCsのみでなくNOxの排出削減にも目を向けるべき



ありがとうございました。