

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04287

研究課題名（和文）VOC個別成分濃度の実態に基づく大気汚染物質濃度予測の高精度化

研究課題名（英文）Improvement of air quality simulations based on individual VOC concentrations

研究代表者

茶谷 聡（Chatani, Satoru）

国立研究開発法人国立環境研究所・地域環境保全領域・主幹研究員

研究者番号：40394837

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,000,000円

研究成果の概要（和文）：2019年秋から2020年夏まで各季節2日間ずつ、東京都区内の5地点において、大気中のVOC個別成分濃度の観測を行った。また、同期間を対象に、大気質シミュレーションを実行した。シミュレーションによるVOC濃度計算値は過小評価であり、関東地方外からの輸送の影響が示唆された。反応性の高いVOC成分のうち、Alkeneは過小評価、Aromaticは過大評価であり、それぞれ燃料の漏出と塗料からの排出量の影響が示唆された。VOC濃度計算値と観測値の乖離がオゾン濃度計算値に及ぼす影響を解析したところ、最大で5ppb程度の違いを生じさせることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気汚染物質であるオゾンの濃度低減策を検討するためには、大気質シミュレーションが不可欠である。オゾンの原因物質であるVOCの個別成分濃度の実態を観測により明らかにし、大気質シミュレーションによる濃度計算値と詳細に比較することにより、排出インベントリと大気質シミュレーションの問題点と改良の方向性が明確に示された。得られた知見を基に改良された大気質シミュレーションは、オゾン濃度のより確実な濃度低減策の立案に大きく寄与するものである。

研究成果の概要（英文）：Ambient concentrations of individual VOC species were measured at five locations in Tokyo 23 wards for two days in each season from autumn 2019 to summer 2020. Air quality simulations for the corresponding periods were performed. The simulations underestimated VOC concentrations, implying uncertainties in transport from outside of Kanto region. Among reactive VOC species, alkenes were underestimated while aromatics were overestimated. Uncertainties in emissions from fuel evaporation and paint were implied respectively. Discrepancies between measured and simulated VOC concentrations could alter simulated ozone concentrations by 5 ppb.

研究分野：大気環境科学

キーワード：揮発性有機化合物 個別成分濃度観測 排出インベントリ 化学輸送モデル

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

日本全国において、有害な大気汚染物質である光化学オキシダント(オゾンとほぼ同意)の濃度が連続的に観測されているが、環境基準値を満たしている地点はほぼ皆無である。オゾンは、人の健康や植物などに悪影響を及ぼすだけでなく、温室効果ガスとしても知られており、大気中濃度の低減が急務となっている。オゾンは、さまざまな発生源から排出される揮発性有機化合物(VOC)と窒素酸化物(NO_x)から、大気中での光化学反応を経て生成される。これまでに、発生源から排出されるVOCと NO_x を抑制する数多くの対策が施されてきており、大気中のVOCに含まれる非メタン炭化水素(NMHC)や NO_x の濃度は低減傾向にあるものの、オゾンの濃度はほぼ横ばいもしくは若干上昇傾向という矛盾が生じている。原因物質であるVOCと NO_x が減っているのにオゾンはなぜ減らないのか、原因を明らかにし、有効な濃度低減策に結びつけることが求められている。

2. 研究の目的

大気中のオゾン濃度と NO_x やVOCの排出量との複雑な非線形関係を表現するために、領域化学輸送モデルが用いられている。しかしながら、モデルで計算されるオゾン濃度は過大評価である一方、VOCの濃度は過小評価であり、有効なオゾン濃度低減策を検討する上で、問題点の原因究明と解決が不可欠である。そこで本研究では、実大気におけるVOC個別成分濃度の実態を観測で明らかにし、領域化学輸送モデルによるVOC濃度計算結果との比較検証を通して、モデルに含まれている光化学反応過程と、モデルが入力として用いるVOCの排出インベントリの改良を図る。そして、モデルによるオゾン濃度の再現性を向上させ、有効なオゾン濃度低減策の立案に貢献することを目的とする。

3. 研究の方法

東京都江戸川区の鹿骨、江東区の東京都環境科学研究所(都環研) 杉並区の久我山、大田区の東糀谷、練馬区の石神井の5地点において、VOCの個別成分濃度の観測を行った。観測期間は、季節別に、2019年10月15日~17日(秋季)、2019年12月9日~11日(冬季)、2020年4月20日~22日(春季)、2020年6月29日~7月1日(夏季)の4回とした。各季節とも、1日3回(18時~6時、6時~12時、12時~18時)の大気の採取を2日間続けて行い、計6試料を得た。アルデヒド類以外のVOCs(126成分)の試料の採取および分析に関しては容器採取-ガスクロマトグラフ質量分析法に従った。アルデヒド類(13成分)については、固相捕集-高速液体クロマトグラフ質量分析法に従った。

VOCの個別成分濃度の観測期間を含む2019年9月1日から2020年7月31日までを対象に、大気質シミュレーションを実行した。気象場の計算には領域気象モデルのWeather Research and Forecasting(WRF)-Advanced Research WRF(ARW) version 4.2.1、大気汚染物質の計算には領域化学輸送モデルのCommunity Multiscale Air Quality(CMAQ) modelling system version 5.3.1を使用した。化学反応メカニズムはSAPRC07とした。入力データとして用いた日本国内のVOCの排出量は、発生源別のVOC組成プロファイルを用いて個別成分に分解した上で、対応するSAPRC07の成分毎にまとめてシミュレーションで用いたほか、VOCの個別成分やSAPRC07の成分毎に排出量の総量を集計し、考察に用いた。

4. 研究成果

全ての観測地点と季節において、シミュレーションによるVOC濃度の計算値は観測値に比べて過小評価であった(図1)。特に、Alkaneに含まれるEthaneやPropane、Ketoneに含まれるAcetoneなどの過小評価が顕著であった。シミュレーション上で地域別にVOC排出量を変化させて大気中の濃度への感度を評価したところ、多くのVOC成分の濃度計算値が東京都内および関東地方からの排出量の影響を強く受けているのに対し、過小評価が顕著なEthane、Propane、Acetoneなどについては、関東地方外からの輸送の影響も強く受けていた。関東地方への流入量の過小評価が、濃度の過小評価の原因となっている可能性が示唆された。日本国内だけでなく周辺各国における排出量や、シミュレーションでの境界濃度の精度向上が求められる。

ただし、これらの成分の大気中での反応性は低いいため、オゾン生成に対する影響は相対的に小さいと考えられる。反応性による違いを考慮するために、PropyleneとOHラジカルとの反応速度定数を基準とし、各成分のOHラジカルとの反応速度定数の比を濃度に乗じたプロピレン等価濃度で比較したところ、観測値と計算値の乖離は小さくなった。反応性の低いAlkaneやKetoneの割合は小さくなり、代わりに反応性の高いAlkeneやAromaticの割合がより大きく現れた。Alkeneは過小評価である一方、Aromaticは過大評価であった。同じく反応性の高いBiogenicについては、冬に濃度観測値が高い傾向があり、計算値は大幅な過小評価であった。都心部における植物からのVOCの排出実態の解明が必要である。Aldehydeについても過小評価であったが、発生源からの排出に加え、大気中でのVOCの光化学反応でも生成することから、さまざまな要因が影響していると考えられる。

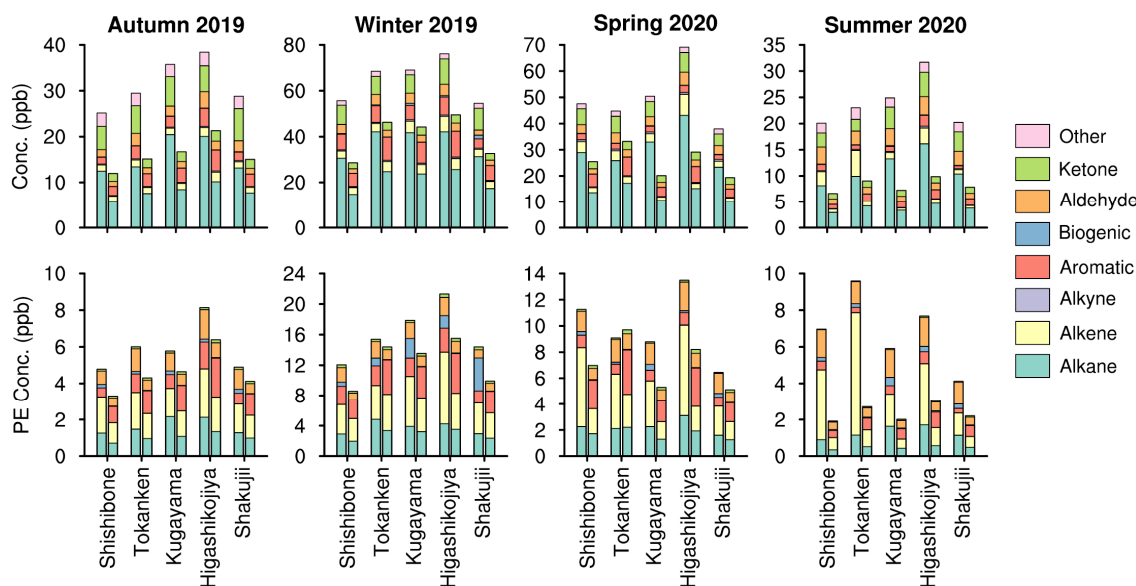


図1 各地点における観測期間平均 VOC 成分濃度（上段）とプロピレン等価濃度（下段）の観測値（左側）と計算値（右側）の比較

反応性の高い Alkene の過小評価と Aromatic の過大評価の原因を明らかにするために、VOC の各成分について、排出量に対する発生源別の排出割合を算出した。SAPRC07 の成分のうち、Alkene に属する OLE1、OLE2 と、Aromatic に属する ARO1 と ARO2 について、東京都内における排出量総量に対する発生源の排出割合を図 2 に示す。OLE1 と OLE2 の排出量に対しては燃料の漏出の割合が高く、Alkene の濃度の過小評価の主要因となっていることが示唆された。一方、ARO1 と ARO2 の排出量に対しては塗料の割合が高く、Aromatic の濃度の過大評価の主要因となっていることが示唆された。このように、シミュレーションによる成分別の濃度再現性と排出量に対する発生源別の排出割合を総合的に解析することにより、排出インベントリの改良に結びつく知見を得ることができた。

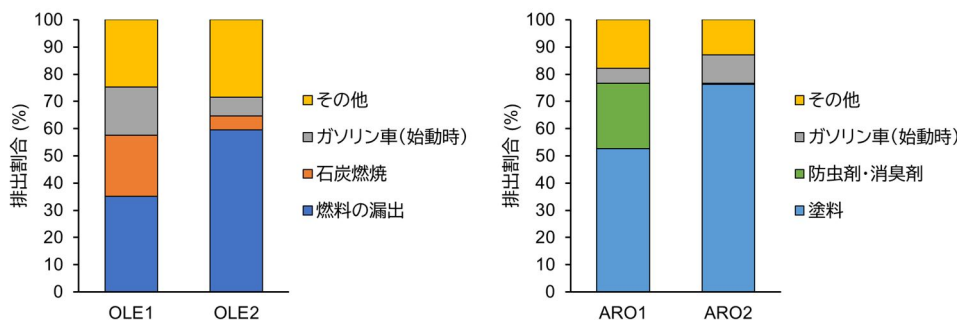


図2 東京都内における SAPRC07 成分の OLE1、OLE2、ARO1、ARO2 の排出量総量に対する発生源別排出割合

シミュレーションによる VOC 濃度計算値と観測値との乖離がオゾン濃度の計算値に及ぼす影響を評価するため、2 ケースの感度解析を行った。ケース 1 では、VOC の成分別に排出量と境界濃度に倍率を乗じて濃度計算値と観測値を一致させ、オゾン濃度計算値の変化を評価した。ケース 2 では、ケース 1 に加えて、化学反応メカニズムの化学反応式に変更を加えた。大気中には非常に多くの VOC 成分が存在しているが、それらの化学反応の全てをシミュレーションで明示的に表現するのは計算負荷的に困難であるため、類似した個別の VOC 成分とその化学反応式を集約して表現する化学反応メカニズムが搭載されている。ただし、本研究で用いた化学反応メカニズムの SAPRC07 では、アメリカにおける VOC 排出量中の個別成分割合を用いて化学反応式が集約されており、それをそのまま日本に適用できるとは限らない。そこでケース 2 では、本研究で観測された VOC 濃度中の個別成分割合、および東京都における VOC 排出量中の個別成分割合を用いて化学反応式を独自に集約し、オゾン濃度計算値の変化を評価した。

2020 年夏（6 月 29 日～7 月 1 日）を対象に計算されたオゾン平均濃度計算値の変化の水平分

布を図3に示す。排出量と境界濃度に倍率を乗じたケース1では、北関東においてオゾン濃度に5 ppb以上の上昇が見られた。一方、濃度および排出量中の個別成分割合に応じて化学反応メカニズムを変更したケース2では、北関東においてオゾン濃度が低下したが、その程度は1 ppbにも満たなかった。この結果から、化学反応メカニズムにおいて成分と化学反応式を集約するのに用いられる個別成分割合よりも、集約後の濃度絶対値の再現性の方が、オゾン濃度の精度向上に対して重要であることが明らかになった。ただし、VOC成分濃度の計算値と観測値の乖離を埋めると、もともと過大評価であったオゾン濃度計算値がさらに上昇してしまうことから、VOC以外の要因の改良により、オゾン濃度計算値を低下させることも重要である。

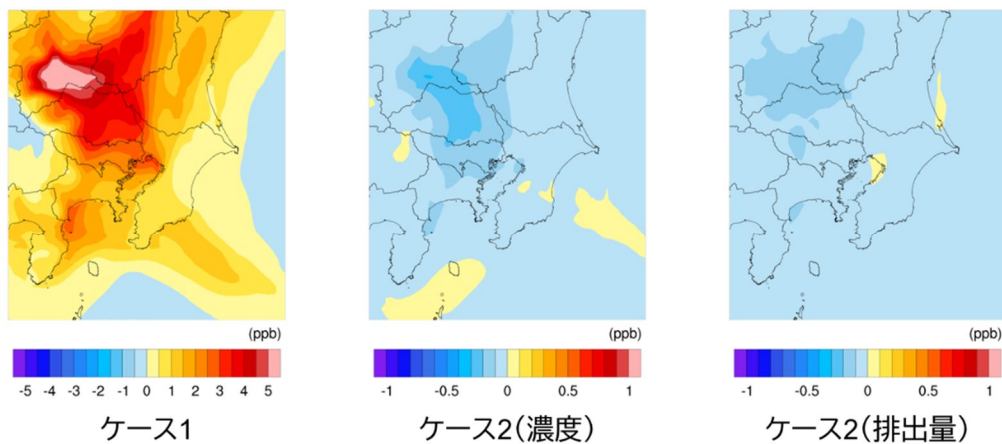


図3 2020年6月29日～7月1日におけるオゾン平均濃度計算値の変化の水平分布

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 茶谷 聡、國分 優孝、高橋 和清、星 純也	4. 巻 57
2. 論文標題 東京都内におけるVOC個別成分濃度観測に基づく排出インベントリと大気質シミュレーションの検証	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 大気環境学会誌	6. 最初と最後の頁 35 ~ 52
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.11298/taiki.57.35	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 星 純也、國分優孝、高橋和清、茶谷 聡
2. 発表標題 東京都内におけるVOC個別成分濃度の空間的・時間的変動の解析（1）都内5地点におけるVOC観測結果
3. 学会等名 第61回大気環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 茶谷 聡、國分優孝、高橋和清、星 純也
2. 発表標題 東京都内におけるVOC個別成分濃度の空間的・時間的変動の解析（2）シミュレーションによる再現性検証
3. 学会等名 第61回大気環境学会年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	國分 優孝 (Kokubu Yutaka) (10792533)	公益財団法人東京都環境公社（東京都環境科学研究所）・環境資源研究科・研究員（移行） (82816)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	星 純也 (Hoshi Junya) (70506617)	公益財団法人東京都環境公社（東京都環境科学研究所）・環境資源研究科・副参事研究員 (82816)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関