

令和 4 年 8 月 31 日現在

機関番号：82816

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K12302

研究課題名(和文) 植物由来VOCと自動車排出ガスの光化学反応が都市大気汚染物質の生成に与える影響

研究課題名(英文) Revealing the link between biogenic-VOC and vehicle emissions to urban photochemical air pollution

研究代表者

國分 優孝 (Kokubu, Yutaka)

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

研究者番号：10792533

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：街路樹が放出する植物由来VOC(BVOC)により、東京区部で大気汚染物質が生成することを明らかにした。東京区部の道路環境を再現する比率でBVOCと自動車排出ガスを混合し、光化学反応を起こす実験を行い、オゾンとPM2.5の生成を確認した。実験を再現する化学反応モデルを構築し、東京区部全域の夏を対象に、BVOCと自動車排出ガスによるオゾン生成量を推定した。その結果、ほとんどの地点のオゾン濃度上昇は中央値で20ppb程度であったが、最大で110ppbに達する高濃度も生じさせることが示された。オゾン生成へのBVOCの寄与度は、自動車からのNO排出量との量的な関係に強く影響を受け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

都心の街路樹から放出されるBVOCと自動車排出ガスの光化学反応によって、オゾンとPM2.5が生成することを明らかにした。その生成量を、東京区部全域という都市規模で評価した研究は世界で初めてである。オゾンの高濃度現象の緩和において、自動車排出ガスによる大気汚染度を考慮しながら、街路樹からのBVOC放出量を抑制することの有効性を示した。オゾン低減策を立案していく際の検討材料に大きく寄与する研究である。

研究成果の概要(英文)：We revealed that biogenic volatile organic compounds (BVOC) from street trees can lead to remarkable formation of air pollutants in the special wards of Tokyo. We confirmed formations of ozone and PM2.5 due to photochemical reactions between the gaseous mixtures BVOC and vehicle tailpipe exhaust, based on the mixing ratios of these two precursors that could occur at the traffic routes in Tokyo special wards. We performed photochemistry simulations across the Tokyo special wards during the summer season using a street tree BVOC emission inventory newly created in this study and the running vehicle emission inventory. Photochemical simulation results demonstrated that a maximum of 110 ppb diurnal ozone formation could occur by reactions between BVOC and vehicle fleet emissions, but a lower median concentration of 20 ppb was observed in most parts of the city. The effect of BVOC emission on ozone formation was highly sensitive to variations in NO emission intensity from mobile transport.

研究分野：大気環境科学

キーワード：植物由来VOC 都市大気汚染 光化学オゾン 都市樹木 自動車排出ガス 大気化学シミュレーション
排出量インベントリ 街路樹

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

オゾンや PM_{2.5} といった大気汚染物質の高濃度現象は、現在も解決できていない都市環境問題である。オゾンと PM_{2.5} は、大気に直接排出された揮発性有機化合物 (VOC) と窒素酸化物 (NO_x) が前駆物質となり、太陽光による光化学反応で生成される。都市域では、自動車や事業所が VOC と NO_x の主な排出源であるが、街路樹などの都市緑化樹木が放出する植物由来 VOC (Biogenic VOC、以下 BVOC) も、反応性の高い (大気汚染物質を生成しやすい) VOC の排出源として無視できない可能性が近年指摘されている。また近年の研究から、郊外と違い都市大気でのオゾン生成には、VOC が大きく関与している (VOC 律速条件にある) と考えられており、BVOC の反応性の高さを考えると、その量がたとえ微量であったとしても、局所的には VOC 排出源として大きな影響を持つ可能性が疑われている。特に、都市内部の道路一本一本に着目すると、沿道では自動車から排出される NO_x と街路樹から放出される BVOC が反応し、局所的な大気汚染物質生成が起こっている可能性は十分に考えられる。しかし、沿道のような高濃度 NO_x 条件下の大気に、街路樹からの BVOC が添加されたとき、オゾンと PM_{2.5} の濃度上昇にどれほど影響するのか、その実態は明らかになっていない。

2. 研究の目的

東京都心部として区部に着目し、沿道において自動車と街路樹に起因するオゾンと PM_{2.5} の生成が実際に起こりうるのかどうか、起こりうるのであれば、その生成量はどれほどか、そして、それが東京区部の大気質に対してどれくらい影響しているのか、室内実験と数値シミュレーションによる検証を通じて、解明を目指す。

3. 研究の方法

(1) 室内実験：スモッグチャンバーを用いて、街路樹が放出する代表的な BVOC と自動車排出ガスとの光化学反応によって生成する、オゾンと PM_{2.5} の量を明らかにする。
(2) 数値シミュレーション：化学反応モデルを用いて、(1) で明らかになったオゾンの生成量の数値的再現を行う。また、東京区部全域を対象として、BVOC と自動車排出ガスが沿道大気に放出された後の光化学反応過程を再現することができる、0 次元大気化学反応モデルを構築する。
(3) 大気濃度への影響評価：(2) で構築した 0 次元大気化学反応モデルを用いて、その入力データに、東京区部全域における街路樹からの BVOC 放出量と自動車排出ガスを与え、街路樹由来の BVOC が東京区部全域の沿道大気で生成するオゾンの量を推定し、大気濃度への影響を評価する。

4. 研究成果

(1) 室内実験

まず反応器である箱型テフロンバック (設計体積 2 m³) のスモッグチャンバーを作製した。そして、標準ガスを用いた予備実験から、VOC と NO_x による典型的な光化学反応の再現性を確認し、構築した実験系 (図 1) の有効性を実証した。構成は日本自動車研究所のものを参考にした。次に、構築したスモッグチャンバー内に、夏季の東京区部の沿道大気において想定される混合比率で、BVOC と実走行させた自動車の排出ガスを封入し、そこに紫外線を照射することで、街路樹がある沿道大気を模擬的に再現した。具体的には、2015 年 1 年間で BVOC 放出量が特に高くなることを確認した 7 月 14 日～8 月 16 日の午前 10 時～午後 2 時の間に着目し (図 2)、東京区部全域からの街路樹由来 BVOC と自動車由来 NO の総放出量のモル比率 (ガソリン車: BVOC / NO = 0.2、ディーゼル車: BVOC / NO = 0.02) を再現するように、自動車排出ガスを封入したスモッグチャンバー内の NO 初期濃度に基づいて BVOC (イソプレン、α ピネン) の添加量を調整した。そして紫外線光の照射後、スモッグチャンバー内の反応ガスを一定間隔で採取し、VOC 個別成分の濃度、オゾン濃度、粒子個数濃度を追跡した。その結果、オゾンと PM_{2.5} の前駆物質 (自動車排出ガス中の VOC や NO_x、添加した BVOC) が消費されながら、オゾンと PM_{2.5} が生成されていく様子が確認された (図 3)。このことから、東京都心部の沿道大気では、街路樹から放出される微量の BVOC でも、オゾンと PM_{2.5} の生成が起こりうるということが実験的に裏付けられた。ただし、ここで一口に沿道大気といっても、沿道を通行する自動車の種類 (ガソリン車、ディーゼル車、ハイブリッド車)、街路樹が放出する BVOC の成分や濃度によって、現実には様々な条件がある。そのため、自動車と街路樹に起因するオゾンと PM_{2.5} の生成を詳細に把握するため、街路樹がある沿道大気で想定される自動車排出ガスと BVOC の反応実験を様々な条件で繰り返し行った。具体的には、小型車・大型車・ハイブリッド車を含む 6 車種の実走行排出ガスと BVOC (イソプレン、α ピネン) との反応実験を、異なる組み合わせ条件で計 16 回 (小型

車 + BVOC 条件で 9 回、大型車 + BVOC 条件で 4 回、ディーゼル車 + BVOC 条件で 3 回) を行った。それぞれの実験結果を比較し、車種の違いや、自動車排ガスに含まれる PM_{2.5} の初期個数の違い、添加した BVOC 成分の違い、によるオゾンと PM_{2.5} の生成量の変化を明らかにした。

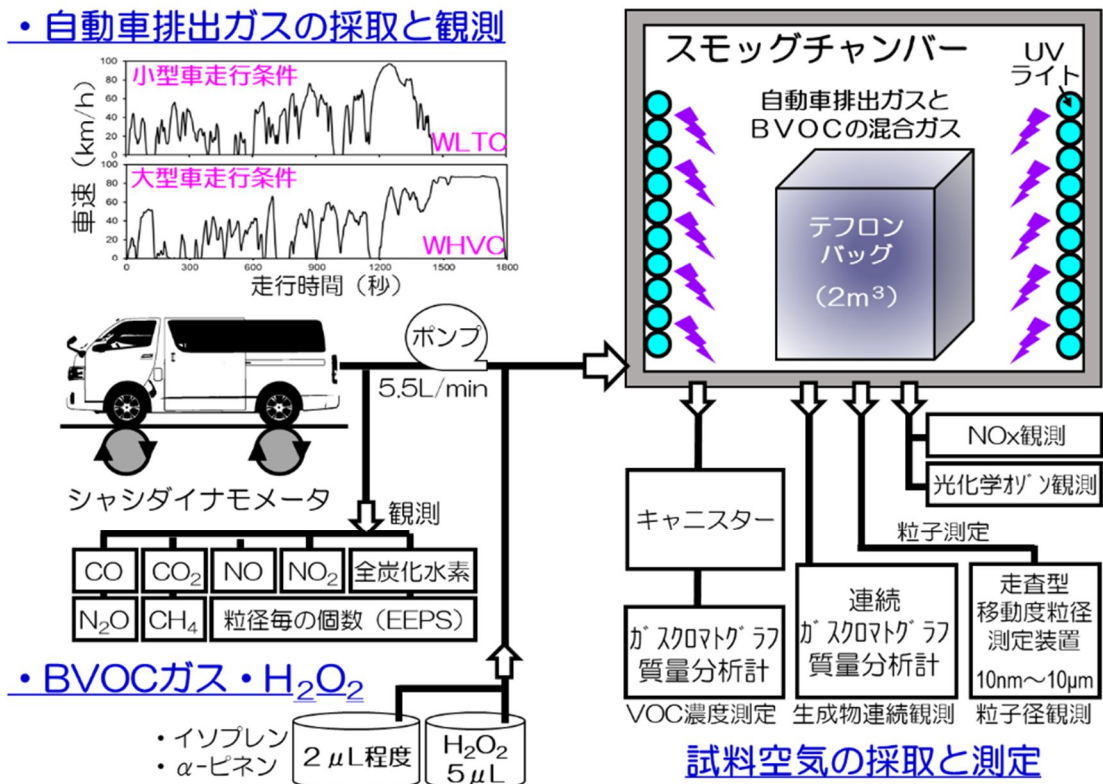


図 1 . 構築したスモッグチャンバー実験系の概念図 .

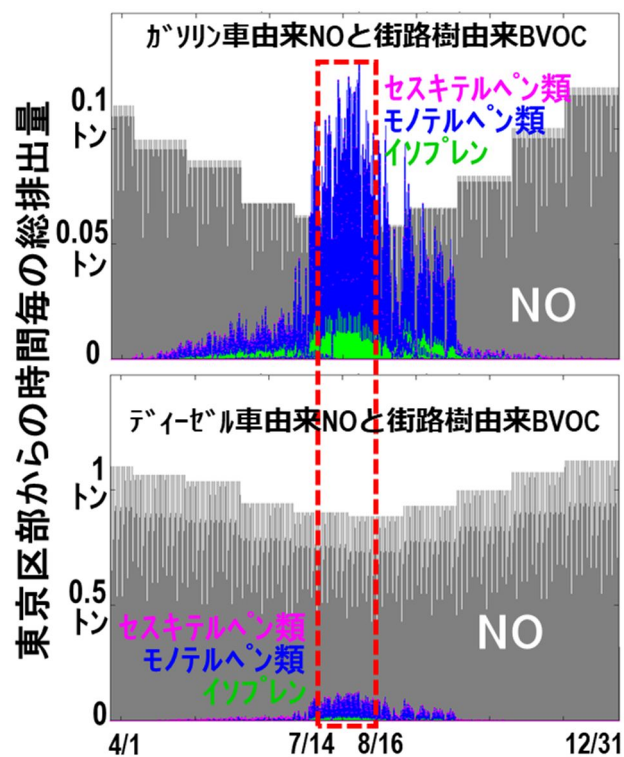


図 2 . 東京区部全域から放出されている街路樹由来 BVOC と自動車由来 NO .

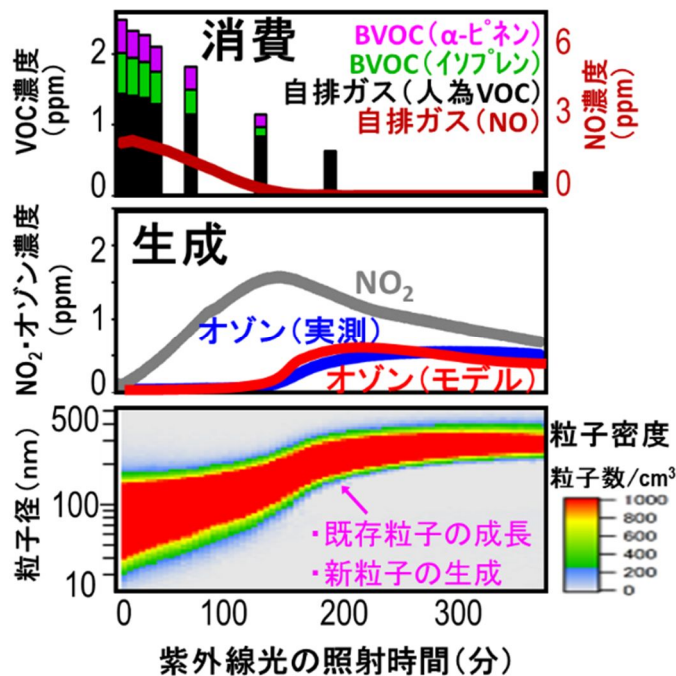


図3．スモッグチャンバー実験結果の一例．小型ガソリン車排出ガスとBVOC（イソプレンと ピネン）の光化学反応によるオゾンとPM_{2.5}の生成．

(2) 数値シミュレーション

既存の気相化学反応モデル(SAPRC-07、米国 Statewide Air Pollution Research Center)を用いて、実験結果のオゾン生成量がほぼ再現可能であることを確認した(図3)。ただし、現行のSAPRC-07に対して、PM_{2.5}によるオゾンとNO_xの取り込み反応を追加した結果、この改良でオゾン生成量の再現性がより高まることも確認した。次に、SAPRC-07に基づく既存の0次元大気化学反応モデル(The Framework for 0-D Atmospheric Modeling (FOAM)、米国NASA)に、本研究で整備した「街路樹由来BVOCと自動車排出ガスの時刻別、1×1kmメッシュ排出量データ」を入力データとして与えられるよう、現行の0次元大気化学反応モデルFOAMに改良を施した。この改良により、SAPRC-07で再現可能と確認された自動車排出ガスとBVOCの共存によるオゾン生成量推計が、東京区部全域にわたって実現できる環境が整った。

(3) 大気濃度への影響評価

(2)で構築した0次元大気化学反応モデルを用いて、自動車と街路樹に起因して東京区部全域の沿道大気において生成するオゾンの量を推定した。まず、東京区部を対象に、気象モデルWRFを用いて、2015年1年間の1×1km格子の気象データ(温度・日射量等)を準備した。そして、その気象データと、(2)で述べた「街路樹由来BVOCと自動車排出ガスの時刻別の1×1kmメッシュ排出量データ」の2015年1年間分を、0次元大気化学反応モデルに入力データとして与え、街路樹由来BVOCと自動車排出ガスの光化学反応を時間毎に追跡する計算を実行した。具体的には、1×1kmのモデル格子毎に、風などの空気の移動を考慮せず格子内で起こる光化学反応のみを再現する「0次元大気化学反応モデル」で、街路樹からのBVOCと自動車排ガス(NO_x・VOC・CO等)によるオゾン生成量を、2015年の1年間、時間毎かつ1km格子毎に計算した。その結果、夏季(7月14日～8月16日)局所的なエリアと時間において、街路樹からのBVOCの影響が大きくなるケースを確認した。BVOCと自動車排出ガスで生成するオゾンの量は、夏季の午後3時において、最大値で110ppb程度、中央値で20ppb程度であることが示された(図4左)。特に、自動車由来のNO排出量が1日当たり1,000kgより少ない1×1kmモデル格子において、オゾン生成へのBVOCの影響が大きくなることが示された(図4右)。また、東京区部全域からの街路樹由来BVOC放出量と自動車排出量を別々に±100%の範囲で変化させ、オゾン濃度に表れる変化を確認した。その結果、BVOC放出量の変動が、オゾンの高濃度の出現に大きく影響した。このことから、局所的なオゾン高濃度の緩和において、従来の自動車排出ガスの削減対策に加え、街路樹からのBVOC放出量の削減が有効であることが示唆された。ただし、BVOC放出量の削減は、単に一律的に削減するのではなく、自動車からのNOの排出量分布を考慮に入れ(特に、オゾン生成へのBVOCの影響が大きくなるNO排出量1,000kg/日・km²以下のエリアを対象として)適切に排出量制御を行うことが、街路樹と自動車排出ガスによるオゾン生成の抑制において重要であると考えられた。

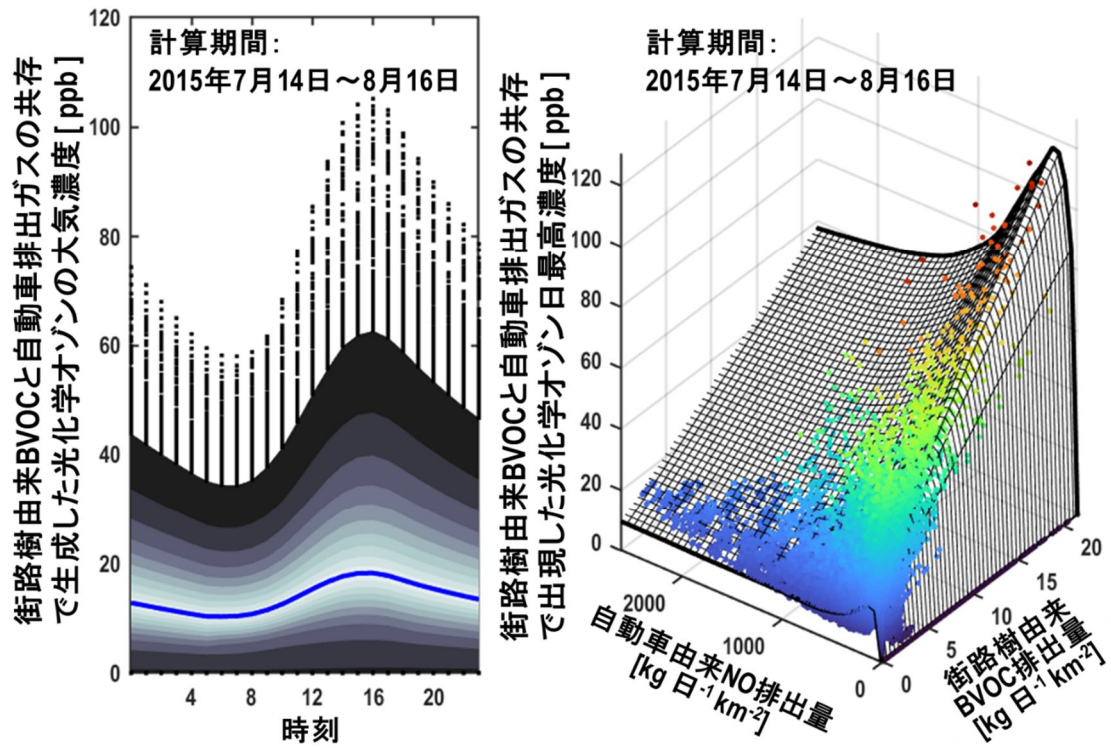


図4 . 東京区部全域の 1×1 km 毎に計算された街路樹由来 BVOC と自動車排出ガスの光化学反応によるオゾン生成量 . (左) 時刻別のオゾン濃度 . (右) 各 1×1 km 格子におけるオゾン日最高濃度、1日当たりの自動車由来 NO 排出量、1日当たりの街路樹由来 BVOC 放出量の関係 .

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 Yutaka Kokubu (研究代表者), Seiichi Hara, Akira Tani (研究協力者)	4. 巻 12
2. 論文標題 Mapping Seasonal Tree Canopy Cover and Leaf Area Using Worldview-2/3 Satellite Imagery: A Megacity-Scale Case Study in Tokyo Urban Area	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Remote Sensing	6. 最初と最後の頁 1505 ~ 1505
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/rs12091505	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3件（うち招待講演 1件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 秦 寛夫, 鶴丸 央, 岡田めぐみ, 柳井孝一, 後藤正大, 戸野倉賢一, 國分優孝
2. 発表標題 植物由来揮発性有機化合物と自動車排出ガスの光化学反応によるオゾン生成 - スモッグチャンバー実験による反応速度論評価 -
3. 学会等名 日本化学会 第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 國分優孝
2. 発表標題 都市大気汚染におよぼす樹木起源反応性有機ガスの影響評価 - 東京都心部のBVOC放出量インベントリの精緻化とスモッグチャンバー実験 -
3. 学会等名 大気環境学会植物分科会 (招待講演)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 Yutaka Kokubu (研究代表者)
2. 発表標題 Biogenic volatile organic compound emission from Tokyo urban area, Japan
3. 学会等名 AsiaFlux 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

東京都環境科学研究所ニュース：研究紹介「植物由来VOCと自動車排出ガスの光化学反応が都市大気汚染～」
<https://www.tokyokankyo.jp/kankyoken/wp-content/uploads/sites/5/2021/03/3f0c5dce4b41bcf9ef1f7378d2a7f211.pdf>

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	秦 寛夫 (Hata Hiroo) (00792532)	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 (82816)	2021年4月以降の所属： 国立研究開発法人産業技術総合研究所安全科学研究部門 環境暴露モデリンググループ研究員
研究分担者	鶴丸 央 (Tsurumaru Hiroshi) (30776349)	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 (82816)	

	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
研究協力者	戸野倉 賢一 (Tonokura Kenichi)		
研究協力者	谷 晃 (Tani Akira)		

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
研究協力者	望月 智貴 (Mochizuki Tomoki)		

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