

## VOCの削減効果算定に用いたシミュレーションモデルについて

## ○ シミュレーションモデルについて（別紙1）

環境省はSPM、オキシダントの濃度予測を行うために、定常型モデル、非定常型モデルの2種類のシミュレーションを行った。このうち、SPMは定常型モデル、非定常型モデルの両方で、オキシダントは非定常型モデルで予測が可能である。

定常型モデルは、環境影響評価等で一般的に使われている手法、非定常モデルは米国環境保護庁、米国各州で用いられている手法であり、SPM、オキシダントの濃度予測モデルとしては現時点で最適の方法である。

## ○ シミュレーション結果の精度について（別紙2）

シミュレーション結果については、SPMについては「浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル」、オキシダントについては「米国環境保護庁大気質モデル性能評価指標」の方法によって、実測結果と照合して再現性の評価が行われている。

その結果、シミュレーション結果（対象地域内の原因物質の反応によって生成した濃度+バックグラウンド濃度）の再現性は十分確保されているものと判定されている。

## ○ VOC削減によるSPM・オキシダントの改善効果について（別紙3）

シミュレーション結果を基に、VOCを削減した場合のSPM、オキシダントの改善効果を計算すると、別紙のとおりになる（中央環境審議会 第11回大気環境部会 資料5と同じ）。

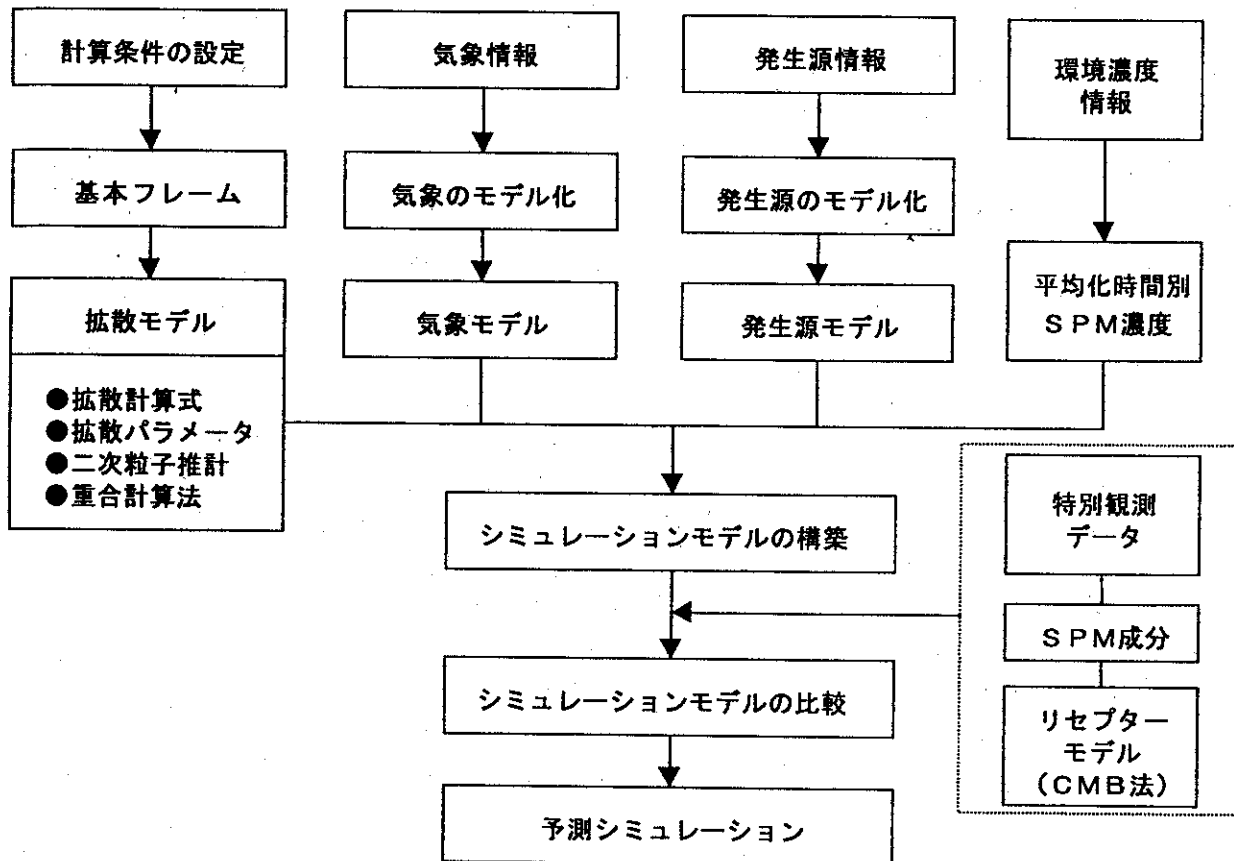
(別紙1) シミュレーションモデルの概要

		定常型モデル	非定常型モデル
概要		環境影響評価等で幅広く使用されているモデル。汚染物質を風下方向に一様に正規分布状に移流拡散させ、移流拡散中に一様に反応を起こすことにより濃度予測するもの。	米国環境保護庁を中心に大学・研究機関協力のもと開発したモデル。汚染物質を物質保存式、運動方程式を用いて移流拡散させ、移流拡散中に物質質量に応じて一様に反応を起こすことにより濃度予測するもの。
特徴		<ul style="list-style-type: none"> <li>・平均濃度の計算に適する</li> <li>・発生源と環境濃度が1:1の関係となるため、発生源寄与の特定が容易</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・時間的濃度変動の計算（高濃度再現）に適する</li> <li>・大気中の気体、液滴、粒子の相変化とその光化学反応の非線形性を考慮。</li> <li>・オキシダントについても再現可能</li> </ul>
モデルの内容	気象場の再現	風向・風速データを用いたクラスター解析により気象ブロックを設定し、ブロックごとの代表的な気象データを適用する	風速、日射量・気温・湿度データ等を使用し、物質保存式、運動方程式を用いて気象場を再現する
	発生源データの入力	SPM原因物質の各種発生源ごとに、位置、高度、時刻、発生量等の情報を入力する	
	汚染物質の濃度予測	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量を解析型モデルにより推計し、濃度再現を行う	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量をCBMモデル等により推計し、濃度再現を行う
再現性評価		NO <sub>x</sub> 、SO <sub>x</sub> 、SPMについて期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する	オキシダント、SPM、NMHC等13物質について期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する
使用実績		NO <sub>x</sub> ・PM法総量削減計画に使用	全米各州、東京都、JCAP(※)でも同様のモデルを運用

※ 財団法人石油産業活性化センターが実施している大気環境改善のためのプログラム

# (1) 定常モデルの概要

定常型モデルは、排出された原因物質の移流・拡散を大気拡散式により再現しつつ、各種SPM原因物質が反応等によりSPMとなる過程を算出し、着地点のSPM濃度を算出するものである。



## ○大気拡散式の概要

煙源形態	有風時	無風時	拡散パラメータ等	備考
点源	点源ブルーム式	点源簡易パフ式	Pasquill安定度 無風用Pasquill安定度	
線源	JEA平行風式 JEA直角風式	JEA無風・弱風式	Pasquill安定度 無風用Pasquill安定度	道路から測定地点までの距離が200m以内の場合に適用
	線源ブルーム式	線源簡易パフ式	Pasquill安定度 無風用Pasquill安定度	道路から測定地点までの距離が200mより長い場合に適用
面源	面源ブルーム式	面源簡易パフ式	Pasquill安定度 無風用Pasquill安定度	

## ○二次生成粒子推計モデル

$$\begin{aligned}
 [\text{SO}_4^{2-}] &= [\text{SO}_x] \cdot A_{\text{SO}_x} \{1 - \alpha \cdot \exp(-K_{i,s} t)\} \\
 [\text{NO}_3^-] &= [\text{NO}_x] \cdot A_{\text{NO}_x} \{1 - \beta \cdot \exp(-K_{i,N} t)\} \times Pk_{\text{NO}_x} \\
 [\text{Cl}^-] &= [\text{HCl}] \cdot A_{\text{HCl}} \times Pk_{\text{HCl}} \\
 [\text{SOC}] &= [\text{THC}] \cdot A_{\text{HC}} \{1 - \gamma \cdot \exp(-K_{i,HC} t)\} \times Pk_{\text{THC}}
 \end{aligned}$$

$A_{\text{SO}_x}$  :  $\text{SO}_x$  から  $\text{SO}_4^{2-}$  への換算係数

$A_{\text{NO}_x}$  :  $\text{NO}_x$  から  $\text{NO}_3^-$  への換算係数

$A_{\text{HCl}}$  :  $\text{HCl}$  から  $\text{Cl}^-$  への換算係数

$A_{\text{HC}}$  :  $\text{THC}$  から  $\text{SOC}$  への換算係数

$K_{i,s}$  :  $\text{SO}_x$  から  $\text{SO}_4^{2-}$  への変換率

$K_{i,N}$  :  $\text{NO}_x$  から  $\text{NO}_3^-$  への変換率

$K_{i,HC}$  :  $\text{THC}$  から  $\text{SOC}$  への変換率

$\alpha$ 、 $\beta$ 、 $\gamma$  :  $\text{SO}_x$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{THC}$  の初期比率 ( $\alpha=0.95$ ,  $\beta=\gamma=1.0$ )

$Pk_{\text{NO}_x}$  : 粒子状物質存在率 ( $\text{NO}_3^-$  のガスへの昇華率を差し引いた係数)

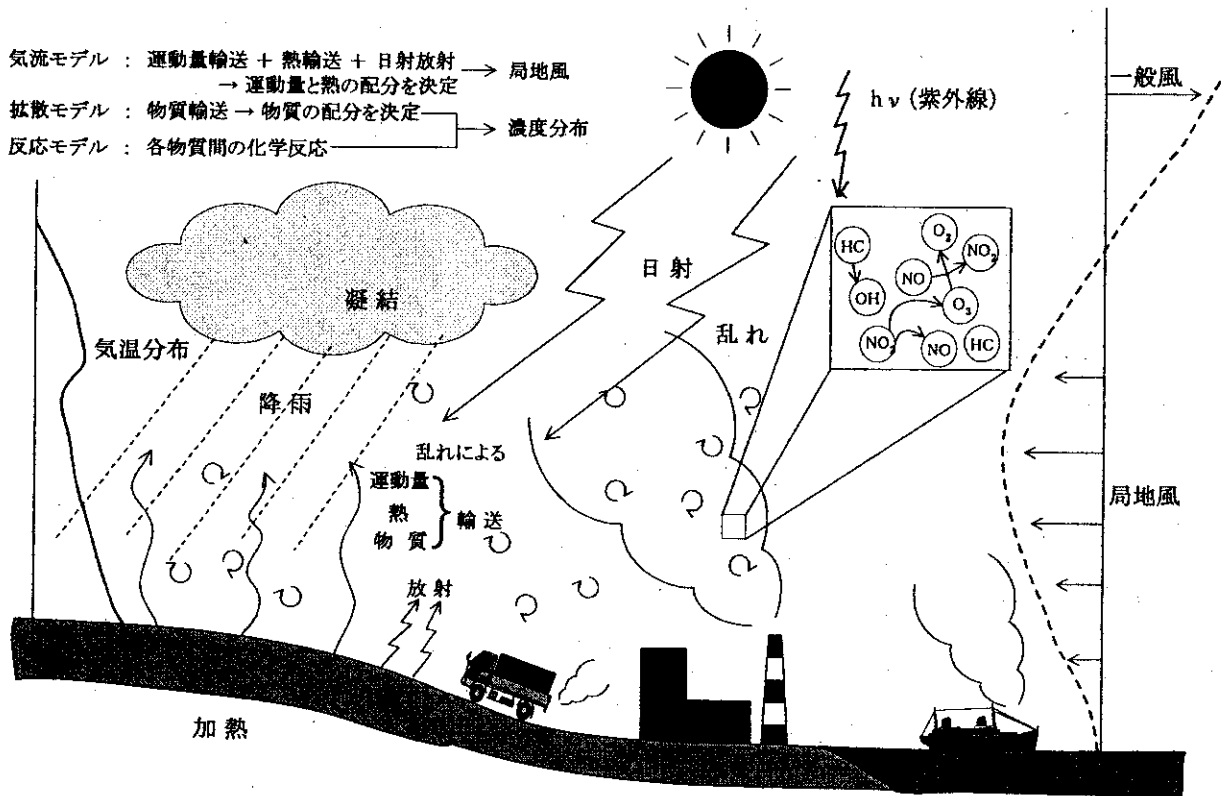
$Pk_{\text{HCl}}$  : 粒子状物質存在率 ( $\text{Cl}^-$  のガスへの昇華率を差し引いた係数)

$Pk_{\text{THC}}$  : 粒子状物質存在率 ( $\text{SOC}$  のガスへの昇華率を差し引いた係数)

$\text{SOC}$  : 二次生成有機炭素

## (2) 非定常モデルの概要

非定常型モデルは、大気汚染物質の移流・拡散を表現する風速や乱流、光化学反応に影響する日射量・気温・湿度などの気象場を再現しつつ、大気中での光化学反応、粒子化反応等を非線形モデルを用いて再現し、着地点のSPM濃度、オキシダント濃度を算出するものである。



地域大気環境モデルの概念図

### ○局地気象モデル

項目	内容	項目	内容
基礎方程式	<ul style="list-style-type: none"> <li>・水平風の運動方程式</li> <li>・熱力学方程式</li> <li>・水蒸気保存式</li> <li>・乱流エネルギー方程式</li> <li>・静水圧平衡式</li> <li>・連続の式</li> </ul>	数値計算手法	<ul style="list-style-type: none"> <li>・空間差分は中央差分</li> <li>・時間差分はADI法</li> <li>・上部境界条件は放射境界条件</li> <li>・側面境界条件は放射境界条件(水平風)、移流境界条件(その他)</li> </ul>
物理過程	<ul style="list-style-type: none"> <li>・大気-地表面のエネルギー交換</li> <li>・地表面温度予報</li> <li>・大気境界層での乱流輸送</li> <li>・放射過程</li> <li>・凝結過程</li> <li>・降水過程</li> </ul>	入力条件	<ul style="list-style-type: none"> <li>・GPV</li> <li>・標高データ</li> <li>・土地利用データ</li> <li>・海面温度データ</li> <li>・積雪深データ</li> </ul>

○光化学反応モデル (CBM-IVモデル)

有機化合物中のC-C間結合に着目し結合状態や反応性の度合いを踏まえて光化学反応の再現を行い、反応生成物の生成量を推計するもの。

No.	Reaction	Reaction Rate Data		
		Pre-factor (ppm <sup>2</sup> min <sup>-1</sup> )	Temp. Factor exp((-E/R)/T)	Rate Constant : 298K (ppm <sup>2</sup> min <sup>-1</sup> )
1)	NO2			radiation dependent
2)	O			4.323 E+06
3)	O3 + NO	8.383 E+04	*EXP ( 1176/T)	2.884 E+01
4)	O + NO2	2.843 E+03	*EXP (- 1370/T)	1.375 E+04
5)	O + NO2	1.375 E+04		2.309 E+03
6)	O + NO2	2.309 E+02	*EXP ( 687/T)	2.438 E+03
7)	O3 + NO2	3.233 E+02	*EXP ( 602/T)	4.731 E-02
8)	O3 + NO2	1.760 E+02	*EXP (- 2450/T)	5.300 E-02* <sub>k</sub>
9)	O3	5.300 E-02		*** see notes
10)	O3			*** see notes
11)	O3			*** see notes
12)	O3 + H2O	1.147 E+05	*EXP ( 390/T)	4.248 E+05
13)	O3 + OH	2.344 E+03	*EXP (- 940/T)	1.000 E+02
14)	O3 + HO2	2.100 E+01	*EXP (- 680/T)	2.999
15)	O3 + NO3	3.390 E+01		5.390 E+01* <sub>k</sub>
16)	NO3 + NO	1.909 E+04	*EXP ( 250/T)	4.416 E+04
17)	NO3 + NO2	3.650 E+01	*EXP (- 1280/T)	5.901 E-01
18)	NO3 + NO2	7.249 E+02	*EXP ( 250/T)	1.853 E+03
19)	N2O5 + H2O	1.900 E-06		1.900 E-06
20)	N2O5	2.100 E+16	*EXP (-10897/T)	2.778
21)	NO + NO	2.800 E-05	*EXP ( 530/T)	1.539 E-04
22)	NO + NO2 + H2O	1.800 E-11		1.800 E-11
23)	OH + NO	5.654 E+02	*EXP ( 806/T)	9.799 E+03
24)	OH + HONO	1.976 E-01		1.976 E-01* <sub>k</sub>
25)	OH + HONO	9.770 E+03		9.770 E+03
26)	HONO + HONO	1.500 E-05		1.500 E-05
27)	OH + HNO3	1.537 E+03	*EXP ( 713/T)	1.882 E+04
28)	OH + HNO3	7.900	*EXP ( 1000/T)	2.79 E+02
29)	HO2 + NO	5.482 E+03	*EXP ( 240/T)	1.227 E+04
30)	HO2 + NO2	1.640 E+02	*EXP ( 740/T)	2.025 E+03
31)	HO2 + PNA	2.876 E+15	*EXP (-10121/T)	5.115
32)	HO2 + PNA	1.909 E+03	*EXP ( 380/T)	6.833 E+03
33)	HO2 + HO2	8.739 E+01	*EXP ( 1150/T)	4.144 E+03
34)	HO2 + HO2 + H2O	7.690 E-10	*EXP ( 5800/T)	2.181 E-01
35)	OH + H2O2	2.550 E-01		2.550 E-01* <sub>k</sub>
36)	OH + HO2	4.720 E+03	*EXP (- 187/T)	2.520 E+03
37)	OH + CO	3.220 E+02		3.220 E+02
38)	FORM + OH	1.500 E+04		1.500 E+04
39)	FORM			radiation dependent
40)	FORM			radiation dependent
41)	FORM + NO3	4.302 E+04	*EXP (- 1550/T)	2.370 E+02
42)	ALD2 + O	9.300 E-01		9.300 E-01
43)	ALD2 + OH	1.739 E+04	*EXP (- 986/T)	6.360 E+02
44)	ALD2 + OH	1.037 E+04	*EXP ( 250/T)	2.400 E+04
45)	ALD2 + NO3	3.700		3.700
46)	C2O3 + ALD2			radiation dependent
47)	C2O3 + NO2	7.915 E+03	*EXP ( 250/T)	1.831 E+04
48)	C2O3 + NO2	1.180 E-04	*EXP ( 5500/T)	1.223 E+04
49)	C2O3 + C2O3	5.818 E+18	*EXP (-14000/T)	2.220 E-02
50)	C2O3 + HO2	3.700 E+03		5.700 E+03
51)	OH	9.800 E+03		9.800 E+03
52)	OH	6.821 E+03	*EXP (- 1710/T)	2.100 E+01

No.	Reaction	Reaction Rate Data		
		Pre-factor (ppm <sup>2</sup> min <sup>-1</sup> )	Temp. Factor exp((-E/R)/T)	Rate Constant : 298K (ppm <sup>2</sup> min <sup>-1</sup> )
53)	FAR			1.203 E+03
54)	ROR			6.250 E+16
55)	ROR + NO2	9.545 E+04	*EXP (- 8000/T)	9.545 E+04
56)	O + OLE	2.200 E+04		2.200 E+04
57)	OH + OLE	1.756 E+04	*EXP (- 324/T)	5.920 E+03
58)	O3 + OLE	7.740 E+03	*EXP ( 504/T)	4.200 E+04
59)	NO3 + OLE	2.104 E+01	*EXP (- 2105/T)	1.800 E-02
60)	O + ETH	1.135 E+01		1.135 E+01
61)	OH + ETH	1.540 E+04	*EXP (- 792/T)	1.853 E+03
62)	O3 + ETH	3.000 E+03	*EXP ( 411/T)	1.192 E+04
63)	OH + TOL	1.358 E+01	*EXP (- 2833/T)	2.700 E-03
64)	TO2 + NO	3.106 E+03	*EXP ( 322/T)	9.150 E+03
65)	OH + CRES	1.200 E+04		1.200 E+04
66)	CRES + NO3	2.500 E+02		2.500 E+02
67)	CRO + NO2	8.100 E+04		8.100 E+04
68)	OPEN + OH	3.250 E+04		3.250 E+04
69)	OPEN + OH	2.000 E+04		2.000 E+04
70)	OPEN + O3	9.040		9.040 * <sub>k</sub>
71)	OH + XYL	4.400 E+04		4.400 E+04
72)	OH + MGLY	0.93ALD2 + 0.62C2O3 + 0.70FORM + 0.03XO2 + 0.89CO + 0.08OH + 0.78HO2 + 0.20MGLY		8.030 E-02
73)	O + ISOP	0.70HO2 + 0.50XO2 + 0.20CRES + 0.80MGLY + 1.10PAR + 0.30TO2		*EXP (- 500/T)
74)	OH + ISOP	2.453 E+04	*EXP ( 118/T)	1.500 E-02
75)	O + ISOP	2.800 E+04		3.520 E+04
76)	OH + ISOP	9.840		2.800 E+04
77)	OS + ISOP	2.700 E+04		9.840 * <sub>k</sub>
78)	NO3 + ISOP	0.60HO2 + 0.80ALD2 + 0.55OLE + 0.80XO2 + 0.50CO + 0.45ETH + 0.90PAR		2.700 E+04
79)	XO2 + NO	XO2 + FORM + 0.67HO2 + 4.700 E+02		1.420 E+05
80)	XO2 + NO2	0.40MGLY + 0.20C2O3 + 1.00ETH + 0.20ALD2 + 0.13XO2N		1.420 E+05
81)	XO2 + NO2	FORM + 0.40ALD2 + 0.55ETH + 0.20MGLY + 0.10PAR + 0.08CO + 0.44HO2 + 0.10OH		1.420 E+05
82)	XO2N + NO	XO2N		1.800 E-02
83)	XO2N + NO	XO2N		4.700 E+02
84)	XO2N + NO	XO2N		1.200 E+04
85)	XO2N + NO	XO2N		2.000 E+03
86)	XO2N + NO	XO2N		1.000 E+03

## ○二次生成粒子推計モデル

### ①無機粒子化モデル

無機粒子化モデルでは、 $\text{SO}_2$  ( $\text{H}_2\text{SO}_4$ )、 $\text{HNO}_3$ 、 $\text{HCl}$ 、 $\text{NH}_3$  の各ガスの平衡反応を用いて粒子化量を推計した。

- 1)  $\text{H}_2\text{SO}_4(\text{g}) \rightleftharpoons \text{H}^+(\text{aq}) + \text{HSO}_4^-(\text{aq})$
- 2)  $\text{NH}_3(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{NH}_3(\text{g})$
- 3)  $\text{NH}_4^+(\text{aq}) + \text{NO}_3^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{NH}_3(\text{g}) + \text{HNO}_3(\text{g})$
- 4)  $\text{NH}_4^+(\text{aq}) + \text{Cl}^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{NH}_3(\text{g}) + \text{Cl}(\text{g})$
- 5)  $\text{H}^+(\text{aq}) + \text{SO}_4^{2-}(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{HSO}_4^-(\text{aq})$
- 6)  $\text{NH}_4^+(\text{aq}) + \text{OH}^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{NH}_3(\text{g}) + \text{H}_2\text{O}(\text{aq})$
- 7)  $\text{H}^+(\text{aq}) + \text{NO}_3^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{HNO}_3(\text{g})$
- 8)  $\text{H}^+(\text{aq}) + \text{Cl}^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{HCl}(\text{g})$
- 9)  $\text{H}^+(\text{aq}) + \text{OH}^-(\text{aq}) \rightleftharpoons \text{H}_2\text{O}(\text{aq})$
- 10)  $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{HCl}(\text{g}) \rightleftharpoons \text{NH}_4\text{Cl}(\text{s})$
- 11)  $\text{NH}_3(\text{g}) + \text{HNO}_3(\text{g}) \rightleftharpoons \text{NH}_4\text{NO}_3(\text{s})$
- 12)  $2 \cdot \text{NH}_4^+(\text{aq}) + \text{SO}_4^{2-}(\text{aq}) \rightleftharpoons (\text{NH}_4)_2\text{SO}_4(\text{s})$
- 13)  $3 \cdot \text{NH}_4^+(\text{aq}) + \text{HSO}_4^-(\text{aq}) + \text{SO}_4^{2-}(\text{aq}) \rightleftharpoons (\text{NH}_4)_3\text{H}(\text{SO}_4)_2(\text{s})$

$$\text{平衡定数} \quad K(T) = K(T_0) \cdot \exp \left[ a \left( \frac{T_0}{T} \right) - 1 + b \left( 1 + \ln \left( \frac{T_0}{T} \right) - \frac{T_0}{T} \right) \right]$$

$K(T)$ : 温度 $T$ における平衡定数

$T$ : 温度(K)

$T_0$ : 298(K)

$a, b$ : 定数

### ②有機粒子化モデル

有機粒子化モデルでは、有機化合物が気相反応により凝縮性有機化合物を生成し、その後粒子化するものをモデル化して推計した。

$$C_P = Y \cdot \Delta_G - S_G$$

$C_P$ : 二次有機粒子生成濃度

$Y$ : 収率

$\Delta_G$ : 有機化合物の反応濃度

$S_G$ : 有機化合物の飽和蒸気圧

## (別紙2) シミュレーション結果の評価方法

### ① 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルによるSPM評価方法

- 1)  $a_0 \leq \frac{1}{3}(Y - BG) + BG$
- 2)  $a_0 \leq \frac{2}{5}(Y - BG) + BG$
- 3) 回帰直線の傾きが 0.8 から 1.2 の範囲内でできるだけ 1 に近く、かつ、相関係数が少なくとも 0.71 以上であり、可能な限り 0.8 以上であること。
- 4)  $\frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{5}$
- 5)  $\frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{4}$
- 6)  $\frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{3}$

$Y$ : 測定局についての実測値の平均値

$X$ : 測定局について計算値の平均値

$a_0$ : バックグラウンド濃度 ( $=Y - X$ )

$BG$ : 自然界バックグラウンド値等

$\frac{s'}{Y}$ :  $X + a_0$  からの変動係数

### ② 米国環境保護庁大気質モデル性能評価指標によるオキシダント評価方法

#### 1) Normalized Bias (NB)

$$NB = \frac{1}{N} \sum_N \frac{C_{obs} - C_{cal}}{C_{obs}} < \pm 0.15$$

#### 2) Normalized Gross Error (NGE)

$$NGE = \frac{1}{N} \sum_N \frac{|C_{obs} - C_{cal}|}{C_{obs}} < 0.35$$

#### 3) Maximum Prediction Accuracy (MPA)

$$MPA = \frac{C_{obs,max} - C_{cal,max}}{C_{obs,cal}} < \pm 0.20$$

$C_{obs}, C_{cal}$ : 各地点、各時刻における濃度の実測値と計算値

$N$ : 評価対象としたデータ数



### (別紙3) VOC削減によるSPM・光化学オキシダントの改善効果

#### 1. SPM環境基準達成率の改善効果

VOCを削減した場合の将来（平成22年度）における環境基準達成率の改善効果を推計するために、測定局ごとに、①VOC削減が無かった場合の将来の日平均値を推計し、②その結果にVOC削減時の改善効果を掛け合わせてVOC削減時の将来の日平均値を推計し、その値を用いて環境基準の達成・非達成の評価を行った。

表. VOC削減によるSPM環境基準達成率の改善効果(自動車NOx・PM法対策地域)

VOC削減率		平成12年度	平成22年度				
		—	0%減	20%減	30%減	40%減	50%減
環境基準達成率	一般局	81.1	92.6	94.9	95.5	95.7	95.7
	自排局	54.2	74.7	83.1	86.1	89.8	90.4
	合計	74.1	87.9	91.8	93.1	94.2	94.3

#### 2. 光化学オキシダントの改善効果

平成12年度の光化学オキシダント注意報の発令状況が、VOCを削減した場合どの程度改善するかを推計した。

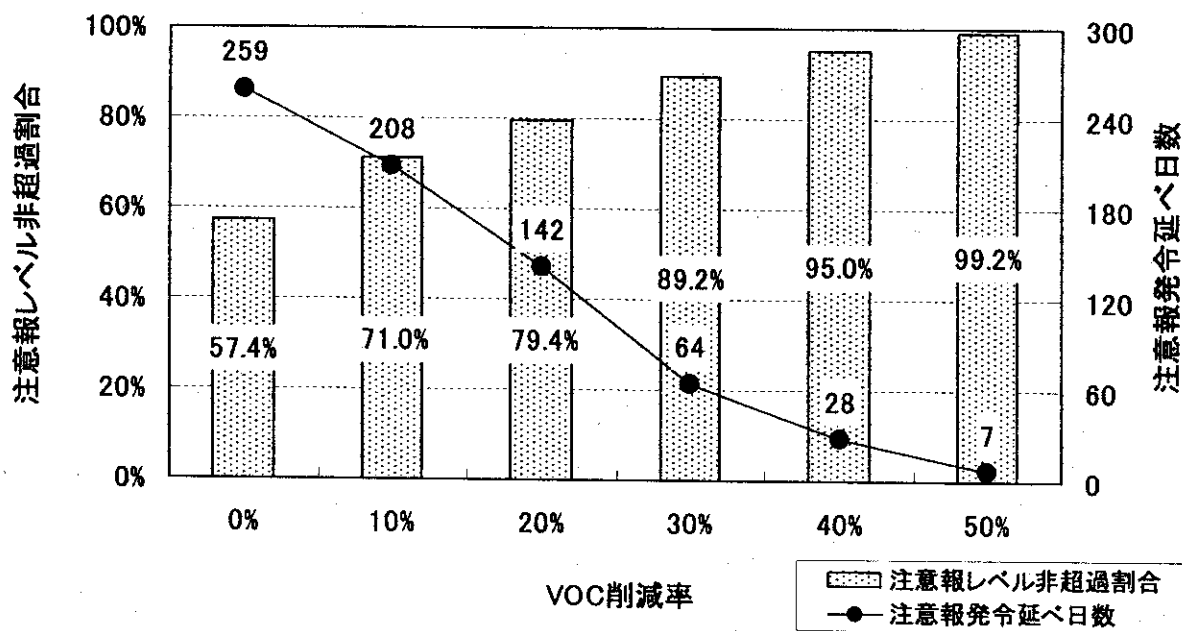


図. VOC削減による光化学オキシダント注意報レベル非超過割合の変化及び光化学オキシダント注意報発令延べ日数の変化