## 光化学オキシダント調査検討会 報告書

# 平成 29年 3月

光化学オキシダント調査検討会

## 緒言

平成 24~25 年度に設けられた前身の「光化学オキシダント調査検討会」では、各種の環境対 策により近年我が国の NOx、VOC の大気濃度が低減しているにも係わらず、O<sub>3</sub>(Ox)の平均濃度 が増加し続けているという大きな矛盾に取り組み、常時監視局観測データの解析からその要因を 明らかにしてきました。これに引き続き平成 26~28 年度に設置された本検討会では、これらの要 因を化学輸送モデルによるシミュレーション計算から裏付け、今後 NOx、VOC の排出をさらにどの 位削減すれば、O<sub>3</sub>(Ox)の抑制がもたらされるかについてシミュレーションによる感度解析を行い、 将来のオキシダント削減戦略に対するガイドラインを提供する事を目的に検討を行って参りました。

光化学オキシダントや PM<sub>2.5</sub> に代表される二次汚染物質による大気汚染には、大気輸送と化学 反応が密接に結びついた非常に複雑な過程が含まれ、新しい大気化学反応の解明やモデルの 改良等の研究が現在なお盛んに行われています。したがって、光化学オキシダントにつきまして も、今後の対策をより有効なものにするためには、こうした最先端の科学的知見を行政施策の立案 に生かして行く事の重要性が、前身の検討会や本検討会での議論を通じて指摘されてきました。

本報告書はこのような観点に立って、現状で最善と思われるモデルの一つを用いて我が国のオ キシダント汚染の現状を解析し、今後の NOx、VOC 削減の感度を明らかにするとともに、モデルシ ミュレーションを用いた光化学オキシダント抑止戦略をより効果的なものにするための今後の調査 研究のあり方についての提言をまとめたものです。

本報告書が、今後の我が国の光化学オキシダント対策に対する有効な一助となることを願って やみません。

> 平成 29 年 3 月 光化学オキシダント調査検討会 座長 秋元 肇

1	はじめに	2
	1.1 本調査の背景	2
	1.2 本調査の目的	3
	1.3 本調査の概要	4
	1.3.1 シミュレーションモデルの構築	4
	1.3.2 シミュレーションモデルの検証	4
	1.3.3 Ox 濃度に影響を及ぼす 3 つの要因の解析	4
	1.3.4 前駆物質排出量削減の感度解析	4
2	シミュレーションモデルの条件及び検証	6
	2.1 シミュレーション解析の目的	6
	2.2 シミュレーションフレームの検討	6
	2.2.1 解析対象期間	6
	2.2.2 シミュレーション解析対象地域	7
	2.2.3 シミュレーション解析対象月	7
	2.2.4 シミュレーションモデルの検討	7
	2.2.5 排出インベントリデータ	9
	2.3 排出インベントリデータの整理	10
	2.3.1 排出インベントリデータの整理(東アジア)	10
	2.3.2 排出インベントリデータの整理(日本国内)	10
	2.3.3 東アジア領域計算における日本国内インベントリデータの使用	
	2.3.4 インベントリデータのまとめ	
	2.4 シミュレーションモデルの設定	
	2.4.1 気象モデルの入力データ	
	2.4.2 東アジア領域境界値データ	15
	2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ	16
	2.5 シミュレーションモデルの再現性の確認	
	2.5.1 再現性確認の考え方	
	2.5.2 統計値の算出方法について	
	2.5.3 気温及び風速の再現性について	
	2.5.4 遠隔地における Ox について	
	2.5.5 関東・九州地域における Ox 及び前駆物質の再現性	35
	2.5.6 構築したシミュレーションモデルと他モデルとの比較	52
	2.5.7 シミュレーションモデルの検証のまとめ	57
3	シミュレーションモデルによる解析の結果と考察	

# 目次

3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因の解析	
3.1.1 前駆物質排出量変化(固定蒸発 VOC 排出量削減)の影響の解析	
3.1.2 越境大気汚染の解析	63
3.1.3 NO タイトレーション効果の低下の影響解析	
3.1.4 まとめ	
3.2 前駆物質(VOC、NOx)排出量削減の感度解析結果	
3.2.1 解析の目的	
3.2.2 シミュレーションの設定条件及び評価方法	
3.2.3 排出量削減効果の概要	
3.2.4 Ox 新指標相当値及び高濃度日発生日数による評価	
3.2.5 まとめ	
3.3 シミュレーションモデルによる解析のまとめ	
3.3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因	
<b>3.3.2</b> 前駆物質排出量削減の感度解析	
3.3.3 モデルの不確定性について	103
4 今後の調査研究のあり方と課題	
4.1 モニタリングに関する課題	
4.2 シミュレーションモデルに関する課題	
4.3 インベントリに関する課題	
4.4 今後の国際協力に関する課題	110
4.5 今後の光化学オキシダント対策に関する提言	110
資料1光化学オキシダント調査検討会・解析作業部会名簿	112
資料2検討会・解析作業部会の開催状況	114
資料 2.1 平成 26 年度(2014 年度)	114
資料 2.1.1 検討会	
資料 2.1.2 解析作業部会	
資料 2.2 平成 27 年度(2015 年度)	115
資料 2.2.1 検討会	115
資料 2.2.2 解析作業部会	115
資料 2.3 平成 28 年度(2016 年度)	117
資料 2.3.1 検討会	117
資料 2.3.2 解析作業部会	117
資料3参考文献	118

BVOC	: Biogenic Volatile Organic Compounds		
	生物起源揮発性有機化合物		
CAMx	: Comprehensive Air Quality Model with Extensions		
CHASER	: CHemical AGCM for Studies of atmospheric Environment and Radiative forcing		
CMAQ	: Community Multiscale Air Quality		
EANET	: Acid Deposition Monitoring Network in East Asia		
	東アジア酸性雨モニタリングネットワーク		
EPA	: Environmental Protection Agency		
	環境保護庁		
GPV	: Grid Point Value		
	格子点数値情報		
GSM	: Global Spectral Model		
	全球モデル		
HTAP	: Task Force on Hemispheric Transport of Air Pollution		
	大気汚染の半球輸送タスクフォース		
JATOP	: Japan Auto-Oil Program		
	大気環境改善を目指した自動車業界と石油業界の共同研究プログラム		
JEI-DB	: JATOP Emission Inventory Data Base		
MEGAN	: Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature		
MIR	: Maximum Incremental Reactivity		
	単位量の VOC が生成しうる最大のオゾン量(最大増加反応性)		
NB	: Normalized Bias		
NCEP	: National Centers for Environmental Prediction		
	米国環境予報センター		
NGE	: Normalized Gross Error		
NMHC	: Non-Methane Hydrocarbons		
	非メタン炭化水素		
NMVOC	: Non-Methane Volatile Organic Compounds		
	非メタン揮発性有機化合物		
Ox	: Oxidant		
	オキシダント		
РО	: Potential Ozone		
	ポテンシャルオゾン		

REAS	: Regional Emission inventory in ASia
	アジア地域排出インベントリ
RF	: Response Factor
	レスポンスファクター
RMSE	: Root Mean Square Error
	二乗平均誤差
SIP	: State Implementation Plan
	米国環境基準達成のための州政府の実施計画
SLCP	: Short-lived climate pollutant
	短寿命気候汚染物質
SOA	: Secondary Organic Aerosol
	二次生成有機エアロゾル
VOC	: Volatile Organic Compounds
	揮発性有機化合物
WRF	: Weather Research and Forecasting model

【光化学オキシダント(Ox)とオゾン(O3)の区別について】

環境基準の告示において、光化学オキシダントとは、「オゾン、パーオキシアセチルナイトレートその他の 光化学反応により生成される酸化性物質(中性ヨウ化カリウム溶液からヨウ素を遊離するものに限り、二酸 化窒素を除く。)」とされている。光化学オキシダントの大部分はオゾン(O<sub>3</sub>)である。光化学オキシダントの 測定値に対するオゾン以外の成分の寄与は極めて小さいことから、光化学オキシダントの測定法にはオゾ ンを測定対象とする紫外線吸収法及び化学発光法も含まれている。一方、本調査のシミュレーションモデ ルで解析対象としている物質はオゾン(O<sub>3</sub>)である。このため、「オキシダント」「オゾン」という用語につい て、本報告書では「光化学オキシダント(Ox)」という用語に統一する(但し、化学反応に関する説明等でオ ゾン(O<sub>3</sub>)を明記する必要がある場合は除く)。

## 1はじめに

#### **1.1 本調査の背景**

平成26年度の光化学オキシダントの環境基準達成率は、一般局で0%、自排局で3.6%であり、環境基準はほとんど達成されておらず、関東地方等を中心に依然として注意報の発令がみられる状況である。

平成24年4月に閣議決定された第四次環境基本計画において、「光化学オキシダントについては、広域大気汚染や気象条件の変化等の影響を大きく受けやすい注意報等とは別に、環境改善効果を適切に示す指標について検討を行い、結論を得ることを目指す。」とされた。

これを踏まえ、環境省では、平成24、25年度の2年間にわたり「光化学オキシダント調査検討 会」(以下「本検討会」という。)において、20年以上にわたる我が国の大気汚染常時監視データの 多角的解析を実施し、前駆物質削減対策による光化学オキシダントの長期トレンドを評価するため の指標について検討を行った。その結果、新たに「日最高8時間平均値の年間99%値の3年平 均値」を指標として活用することが「光化学オキシダント調査検討会報告書(平成26年3月)」に おいて提案された。

この指標を用いて、注意報発令レベルの超過割合が多い地域である関東地域や阪神地域等の 域内最高値の経年変化をみると、近年、域内最高値が低下しており、高濃度域の光化学オキシダ ントの改善が示唆されている。

さらに、上記報告書において、この指標を用いて過去の光化学オキシダント(Ox)濃度を解析した結果、地域別の長期トレンドは、①VOC及びNOx排出量の低下に伴う局地的オゾン生成量の減少による高濃度域の光化学オキシダントの低減、②越境大気汚染の増加による光化学オキシダントの増加、③NOx排出量の減少に伴うNOタイトレーション効果の低下による都市部の光化学オキシダントの増加の3つの要因の組み合わせによって説明できることが示された。

本報告書は、平成26~28年度に本検討会がこれらの要因についてシミュレーションモデル(以下「モデル」と示す)による解析を行った結果を取りまとめたものである。

#### 1.2 本調査の目的

平成 25 年度検討会報告書では、モニタリングデータの多角的解析から明らかとなった、光化学 オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす 3 つの要因の寄与割合は、季節及び地域によっ て異なり、より定量的な議論は今後のモデルシミュレーションを用いた解析が必要であるとされた。

この平成 25 年度検討会報告書を踏まえ、平成 26 ~ 28 年度の光化学オキシダント調査検討会では、以下の2つを目的として、調査検討を実施した。

- 我が国の光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす3つの要因である「前駆物 質排出量の変化」、「越境大気汚染の増加」、「NOタイトレーション効果の低下」について、 それぞれの寄与の程度を、シミュレーションモデルを用いて明らかにすること。
- ② ①で構築したシミュレーションモデルを用いて、これまでの光化学オキシダント対策の効果検 証や、前駆物質排出量削減の感度解析等から、今後のさらなる Ox 濃度低減対策に資する 知見を得ること。

#### 1.3 本調査の概要

#### 1.3.1 シミュレーションモデルの構築

光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす3つの要因の解析、今後の光化学オキシダント濃度低減対策に資する知見を得るために、シミュレーションモデルの構築を行った。 シミュレーションモデルは、気象モデルとしてWRF、化学輸送モデルとしてCMAQを採用し、排 出量インベントリデータとして、REAS、MEGAN、JEI-DB 等を用いてモデル入力用データを整 備した。

#### 1.3.2 シミュレーションモデルの検証

構築したシミュレーションモデルについては、以下のような観測データや既存調査事例との比較により、検証を行った。

- ・人為起源排出量の影響が小さいリモートサイトにおける Ox、NO2 月平均濃度の検証
- ・国内代表地域(関東地域、九州地域)における Ox、NO2、NMHC 月平均濃度または日平均 濃度の検証
- ・国内代表地域(関東地域、九州地域)におけるOx新指標の長期トレンドの検証
- ・国内代表地点における VOC 成分別濃度の検証
- ・他の研究機関等で実施された既往調査事例(モデル計算値)との比較

#### 1.3.3 Ox 濃度に影響を及ぼす 3 つの要因の解析

構築したシミュレーションモデルを用いて、光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及 ぼす3つの要因である「前駆物質排出量の変化」、「越境大気汚染の増加」、「NOタイトレーショ ン効果の低下」について、寄与の程度を検証した。検証にあたっては、2001 ~ 2010年の間で気 象場が異常年でない年を基準年(ベースケース)として選定した。次に3つの要因を反映した排 出インベントリデータを設定し、それぞれシミュレーションによって得られたOx濃度またはPO(ポ テンシャルオゾン)濃度をベースケースの計算結果と比較することによって評価した。

#### 1.3.4 前駆物質排出量削減の感度解析

シミュレーションモデルを用いて、前駆物質排出量削減の感度解析を実施した。感度解析では、オキシダントの前駆物質である人為起源の VOC 及び NOx 排出量をそれぞれ段階的に削減した場合のシミュレーションを実施し、Ox 濃度(Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値及び高 濃度日発生日数)に及ぼす影響(感度)を解析した。本調査の実施フローを図 1-1 に示す。



・[2]及び[3]の結果を踏まえ現状の汚染要因、NOx及びVOC排出量削減の効果について、 定性的、定量的な評価を行う。

モデル精度向上のための解析	
・本調査で用いたモデルと他モデルの既存の計算結果の比較	赤:平成26年度(2014年度)実施項目 青:平成27年度(2015年度)実施項目
・モデル不確定性の検討 等	網掛け:平成28年度(2016年度)実施項目

図 1-1 平成 26~28 年度(2014~2016 年度)の光化学オキシダント調査実施フロー

## 2シミュレーションモデルの条件及び検証

#### 2.1 シミュレーション解析の目的

平成 25 年度の「光化学オキシダント調査検討会」において、環境改善効果を適切に示す指標として、「光化学オキシダント濃度の日最高 8 時間値の年間 99%値の 3 年平均値」(以下「オキシダント(Ox)新指標」と言う。)を定め、活用していくことが提言された。また、光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす主な要因として、「前駆物質排出量の変化」、「越境大気汚染の増加」、「NO タイトレーション効果の低下」の重要性が示された。

シミュレーション解析の目的は、これらの要因が Ox 濃度へ及ぼす影響を、定性的・定量的に明 らかにすること、また、これまでの光化学オキシダント対策の効果検証や、前駆物質排出量削減の 感度解析等から、今後のさらなる光化学オキシダント濃度低減対策に資する知見を得ることである。

#### 2.2 シミュレーションフレームの検討

#### 2.2.1 解析対象期間

光化学オキシダント濃度の長期トレンドの要因を把握するためには、少なくとも10年単位での 解析が必要である。測定データから評価したオキシダント新指標(1990~2011年度を対象)の統 計結果(図 2-1)によると、2001~2010年度の期間(図 2-1において破線で囲んだ期間)におい て、関東、東海、阪神、九州地域の光化学オキシダント濃度の経年トレンドが異なることが明らか となっている。このような、地域によって異なるトレンドをモデルで再現することが、オキシダントの 変動要因を解析する上で重要と考えられることから、本調査のシミュレーション解析対象期間を 2001~2010年暖候期とした。また、前駆物質排出量削減の感度解析においては、直近の2008 ~2010年の3年間の暖候期を解析対象とした。



#### 2.2.2 シミュレーション解析対象地域

シミュレーション解析対象地域としては、光化学オキシダントの域内生成の影響が大きく、 VOC 成分分析調査等の測定データが多い関東地域と、東アジア大陸からの大気汚染物質の 移流の影響が大きい九州地域を設定した。

#### 2.2.3 シミュレーション解析対象月

「2.1 シミュレーション解析の目的」で示したように、Ox 新指標を活用し評価する必要があるが、 平成 25 年度検討会報告書において、「日最高 8 時間値の年間 99%値」と「日最高 8 時間値の 暖候期 98%値」は概ね一致していることが示されているため、本調査では暖候期(4~9月)を解 析対象月とした。

#### 2.2.4 シミュレーションモデルの検討

(1) 気象モデル

本調査で用いる気象モデルは、①現在も改良が進められていること、②国内、海外における実績が十分にあること、③大気質モデルとして採用した CMAQ<sup>1</sup>との親和性が高いこと等から、WRF(Skamarock et al., 2008)を使用することとした。

(2) 化学輸送モデル

米国では、SIP<sup>2</sup>策定のために、シミュレーションによる評価を行うことが義務付けられてお り、シミュレーションに用いる化学輸送モデルとしては、大多数の州で、最新版の CMAQ 又は CAMx<sup>3</sup>を用いている(環境省, 2010a)。また、CMAQ は現在もバージョンアップが進められて いる点、オープンソースであり、モデルの移植性や扱いやすさに優れている点等から、本調査 においても、シミュレーションに用いる化学輸送モデルとしては CMAQ を用いることとした。

サブモデルは、気相反応モデルとして SAPRC99、粒子化モデルとして AERO5 を用いることとした。

(3) シミュレーションモデルの領域について

シミュレーションを実施する上で、シミュレーションモデルの領域及び格子間隔は計算時間 に大きく影響するため、本調査の目的を考慮したうえで、適切に設定した。検討結果を以下に 示した。

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> CMAQ:Community Multi-scale Air Quality

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> 米国における排出源に対する排出規制等を含む米国環境質基準(NAAQS:National Ambient Air Quality Standards)達成のための州実施計画、SIP:State Implementation Plan

<sup>&</sup>lt;sup>3</sup> 米国 ENVIRON 社の大気質モデル、CAMx: Comprehensive Air Quality Model with Extensions

ア. シミュレーションモデルの領域

本調査では越境汚染の影響も検討する必要があることから、東アジア領域の計算を行い、ネスティングによって、関東領域の計算を行った。今回設定した東アジア領域を図 2-2 に、関東領域を図 2-3 に示す。図中の外枠は気象モデル(WRF)の設定領域、内枠(点線)は、化学輸送モデル(CMAQ)の設定領域を示す。

イ. 格子間隔

本調査では、光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす要因と考えられる 「NOタイトレーション効果の低下」の影響について検討するために、本来であれば1km程 度以下の空間分解能が必要であると考えられるが、10年間の4~9月という長期間の計算 を行うことを考慮して、60km格子(東アジア領域)及び10km格子(関東領域)を設定した (表 2-1)。



図 2-2 東アジア領域

図 2-3 関東領域

領域	水平格子サイズ	計算領域(東西 × 南北 × 鉛直高さ)	
東アジア	60 km	3,300 km × 2,700 km × 16 km	
関東	10 km	450 km × 450 km × 16 km	

表 2-1 各領域の水平格子サイズと計算領域の大きさ

#### 2.2.5 排出インベントリデータ

(1) 東アジアの排出インベントリデータ

本調査では、東アジア地域を対象とした人為起源排出インベントリとして、東アジア全体を カバーした最新のアジア域排出インベントリである REAS 2.1 を用いた。

REAS (Regional Emission inventory in ASia)は、海洋研究開発機構 地球環境フロンティ ア研究センター及び国立環境研究所を中心とした研究グループが開発した大気汚染物質と 温室効果ガスのアジア域排出インベントリであり、1980年から2003年までの排出量が推計さ れている(Ohara et al., 2007)。2013年には REAS 2.1 に更新されており、2000~2008年にお ける経緯度 0.25 度グリッド排出量が推計され(Kurokawa et al., 2013)、現在も更新が進んで いる。

(2) 日本国内の排出インベントリデータ

本調査では、国内の発生源インベントリとして、2000~2010年を対象として、幅広い排出源 をカバーし、環境省で作成中の大気汚染物質排出インベントリでも活用されている JEI-DB (JATOP Emission Inventory-Data Base)(石油エネルギー技術センター, 2012a)を用いた。な お、このデータは船舶からの排出データを含まないことから、船舶からの排出データについて は、海上技術安全研究所が作成したインベントリ(海洋政策研究財団, 2013)を用いた。

(3) 植物起源 VOC の排出インベントリデータ

本調査では、植物起源 VOC の排出インベントリとして、計算対象時の気象データを考慮し て植物起源 VOC 排出量を算出する MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature) (Guenther et al., 2006)を用いた。

#### 2.3 排出インベントリデータの整理

本調査で用いる排出インベントリデータの整理にあたっては、計算対象期間である 2001 ~ 2010 年の各年に対して月別、時刻別に整理することとした。具体的は整理方法については以下に示し た通りである。

#### 2.3.1 排出インベントリデータの整理(東アジア)

東アジア領域の人為起源の発生源インベントリデータとして、REAS 2.1 (Kurokawa et al., 2013)を用いた。REAS 2.1 は 2000 ~ 2008 年を対象としているため、2009 年及び 2010 年については直近年である 2008 年の排出量を設定した。REAS 2.1 について、表 2-2 に示した。

項目	内容
対象領域	アジア全域
対象年	2000~2008 年
空間分解能	0.25 度
時間分解能	月別
研究機関	国立環境研究所
/開発プロジェクト	/環境省環境研究総合推進費 S-7

表 2-2 REAS2.1 について

## 2.3.2 排出インベントリデータの整理(日本国内)

(1) 排出インベントリデータの整理方法

国内の発生源インベントリについては、日本全国を対象として二次メッシュ単位(約 10 km 格子)で整理を行った。使用した排出量データベースの仕様は表 2-3 に示すとおりである。

表 2-3 使用した国内発生源イン・	ベントリのデータベース
--------------------	-------------

発生源	使用したデータベース対象年		
船舶 海洋政策研究財団作成 DB (海洋政策研究財団, 2013)		2010 年	
自動車	<b>JEI-DB</b> (石油エネルギー技術センター, 2012a)	2000年、2005年、2010年	
上記以外	JEI-DB	2000年、2005年、2010年	

(2) 排出量の年次補正方法

排出量データベースで推計対象となっていない年の排出量は、表 2-4 に示すように、以下の2通りで実施した。

① 補正係数を設定する方法

② 前後2断面(年)の線形内挿による方法

なお、①について、補正の基となるデータは上記データベースで集計されている至近の年 データとして、空間配分、月別時刻別配分はそのままとした。

補正後の排出量を物質別に集計した結果を図 2-4 及び図 2-5 に示す。また、本調査で用 いる化学輸送モデル(CMAQ SAPRC99/AERO5)に入力する際の PM 及び VOC の成分分 解は、既往報告(石油エネルギー技術センター, 2012b)に基づいて設定した。

発生源	年次補正指標	出典	
1. 電気業	エネルギー使用量(自家用+事業用発電)		
2. 地域熱供給	エネルギー使用量(地域熱供給)	]	
3. 都市ガス製造	エネルギー使用量(一般ガス製造)		
4. 農林業	エネルギー使用量(農林)		
5. 水産業	エネルギー使用量(水産)	1	
6. 鉱業	エネルギー使用量(鉱業)	総合エネルギー統計*1	
7. 建設業	エネルギー使用量(建設業)	1	
8. 製造業	エネルギー使用量(製造業)		
9. 家庭	エネルギー使用量(家庭)	1	
10. 業務	エネルギー使用量(業務他)	1	
11. 船舶	エネルギー使用量(船舶)		
12. 自動車	国立環境研究所集計排出量	*2	
13. 作業機械	線形内挿		
14. 航空機	燃料消費量	航空輸送統計*3	
15. 廃棄物焼却	ごみ排出量	日本の廃棄物処理*4	
16. 小型焼却炉	小型焼却炉設置数(50kg/h~200kg/h)	ダイオキシン類特別措置法施行状況*5	
17. 工業プロセス			
·化学品製造·塗料製造			
<ul> <li>・食料品等(発酵)</li> </ul>			
18. 燃料蒸発			
・製油所・原油			
・製油所・潤滑油			
・石油精製・貯蔵出荷施設			
・天然ガス貯蔵			
・都市ガス生産	発生源品目別のVOC排出量推計結果	理告省2000世山 ないがなりまた	
・給油所	(2001年~2005年は線形内挿)	泉現省 VOC 排山イン ベンドリーO	
19. 溶剤			
<ul> <li>・塗料</li> </ul>			
・インキ、接着剤、工業用洗浄剤、 クリーニング用洗剤、ゴム用溶剤	_		
・粘着剤・剥離剤、ラミネート用接着剤、			
コンバーティング溶剤、コーティング溶剤、			
湿し水 ・ 洗浄田ミンノナー 11ムーバー 道路鋪荘	-		
くん蒸剤、農薬、殺虫剤、漁網防汚剤			
20. 植物	森林面積	森林統計*7	
21. 家畜			
22. 肥料施肥			
23. 野焼き			
24. 土壤	编彩内插		
25. 人間活動	ル水ハシドル1中		
26. ペット犬			
27. 化学肥料製造			
28. 排水処理	7		

表 2-4 排出量データの年次補正指標について

\*1 資源エネルギー庁 HP (http://www.enecho.meti.go.jp/statistics/total\_energy/) \*2 永島作業部会委員提供データ \*3 国土交通 HP (http://www.mlit.go.jp/k-toukei/koukuu/koukuu.html)

\*4 環境省 HP (http://www.env.go.jp/recycle/waste\_tech/ippan/index.html)

\*5 環境省 HP (https://www.env.go.jp/chemi/dioxin/report.html)

\*6 環境省 HP (http://www.env.go.jp/air/osen/voc/inventory.html)

\*7 林野庁 HP (http://www.rinya.maff.go.jp/j/kouhou/toukei/)











図 2-4 国内排出量の経年変化 (NOx、NMVOC、PM)



図 2-5 国内排出量の経年変化(CO、SO<sub>2</sub>、NH<sub>3</sub>)

#### 2.3.3 東アジア領域計算における日本国内インベントリデータの使用

東アジア領域の計算においても、日本国内の排出量とその時間変動(日内、週内変動を含む)を適切に反映するために、日本周辺の排出量については REAS2.1 のデータを日本国内の インベントリデータ(JEI-DB)に置き換えて使用することとした(参考資料図1)。

## 2.3.4 インベントリデータのまとめ

本調査で整理した東アジア領域(60 km 格子)及び関東領域(10 km 格子)で用いた排出イン ベントリデータの相違について、表 2-5 に整理した。

	東アジア領域(60 km 格子)	関東領域(10 km 格子)
1 光 扫 22	•REAS2.1	・JEI-DB(船舶以外)
入為起你	(ただし、日本付近は JEI-DB)	・海洋政策研究財団作成 DB(船舶)
	・MEGAN 計算値	・同左
古版却石	(植生分布及びWRF計算値か	
恒初起你	ら植物起源 VOC を毎時間計	
	算)	
	・2009年及び2010年の排出量	・補正係数または前後2断面(年)の線
	は 2008 年の排出量を設定し	形補間により年次補正した。(表 2-4
<b>冲</b> 本	た。	参照)
加巧	・日本付近については、関東領	
	域(10 km 格子)と同様の年次	
	補正を実施した。	

表 2-5 東アジア領域及び関東領域の排出インベントリデータの比較

#### 2.4 シミュレーションモデルの設定

## 2.4.1 気象モデルの入力データ

気象モデルの入力データとして、表 2-6 に示すデータを利用した。

要素	データ	60 km 格子計算	10 km 格子計算
十与	気象庁GSM(日本域)客観解析データ	0	0
入入	毎時大気解析 GPV (風、気温のみ)	—	0
海面水温	気象庁日平均海面水温	0	0
土壤水分量	NCEP 客観解析値	0	0

表 2-6 気象モデルの入力データ

#### 2.4.2 東アジア領域境界値データ

本調査では、シミュレーションによって、光化学オキシダント濃度の長期的な増減傾向が再現 できているかについて確認する必要があることから、解析対象期間である 2001 ~ 2010 年のデー タが揃った全球化学輸送・気候モデル CHASER (CHemical AGCM for Studies of atmospheric Environment and Radiative forcing) (Sudo et al., 2002)の計算結果を東アジア領域の境界値とし て採用した。

CHASER で扱う化学種とCMAQ で扱う化学種は一致しないため、それぞれの化学種を対応 表にしたがって対応させた(参考資料 表 1)。また、CHASER の格子点と本解析のシミュレーシ ョンモデルの格子点は一致しないため、CHASER 格子点データの内挿によって、本調査のシミ ュレーションモデルの境界上の格子点におけるデータを設定した。

## 2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ

本調査で用いた気象モデル及び化学輸送モデルの設定内容を表 2-7 に整理した。

対象年	2001~2010年の暖候期(4~9月)				
解析対象領域	東アジア領域				
	領域の大きさ(CMAQ):東西 3,720 km×南北 2,940 km×鉛直 16km				
	水平格子間隔 :60 km				
	水平格子点数(WRF) :72×59 個				
	水平格子点数(CMAQ):62×49 個				
	鉛直格子間隔 :可変 (20 m ~ 6 km)				
	鉛直層数 :30 層				
	関東領域				
	領域の大きさ(CMAQ) :東西 300 km×南北 300 km×鉛直 16 km				
	水平格子間隔 :10 km				
	水平格子点数(WRF) :45×45 個				
	水平格子点数(CMAQ):30×30 個				
	鉛直格子間隔 :可変 (20 m ~ 6 km)				
	鉛直層数 :30 層				
気象モデル	WRF				
	気象モデルバージョン:WRFv3.5.1				
	初期値・暗界値・車アジア領域(60 km 格子)				
	初期他・現介値: 東ノンノ 頑奥(00 km 俗丁) 大気データー・気免庁全球安組叙析データ				
	人気ノーク : 気象/1 生球谷観時/1 ノーク 海西水泪データ・NCED IIアルタイト 今球海西水泪				
	(				
	170労旭・児介旭・				
	・毎時大気解析 GPV(風気温のみ)				
	・ 西町へ X/時回 OF V (周、 X(血のの) 海面水温データ・気象庁日 亚均海面水温				
	199回小価/ ン・X18/1日十約79回小価 十壌データ ·NCFP 宏観解析値				
	雲物理 :Thompson graupel scheme				
	長波放射 :RRTM 伝述な社 D 単に				
	短波放射 :Dudhia 技い図 AGDA				
	後地僧 :MYNN    地志子 N A A A A A A A A A A A A A A A A A A				
	地表面 :Noah land-surface				
	都巾物理 :UCM 建電社法 Kin Dial				
	積雲 対流 :Kain-Fritsch 土 い ング ・ 株 ス た 土 い ング				
	アツンンク:俗子点アツンンク				
ル学齢光エデル	へにノノック时间は7日で、対象期间でのる4~9月を理続で計算 CMAO				
化子期达てノル	CMAQ + 与 広 エデルバージョン: CMAO: 471				
	人、人員でノノレバーション、CMAQV4.7.1 水亚広勘 :multiceele				
	水平払散:multiscale				
	新世辺取:acm2 与相互広:SAPPCOO				
	ス/作区心:SAFKC99 始えた AEDOS				
	松丁1L :AEKU3   沈美 : area damy2				
	化相 : areo_uepv2 Cloud : cloud acm ae5				
	Cioud acin aes				
	スピンアップ時間は7日で、対象期間である4~9月を連続で計算				
ネスティング	CMAQ について、関東領域は親領域からのネスティングを実施				
	東アジア領域の境界値は、全球化学輸送モデル CHASER の出力				
ウロクトIIE	値を使用				

表 2-7 気象モデル及び化学輸送モデルの設定内容

#### 2.5 シミュレーションモデルの再現性の確認

#### 2.5.1 再現性確認の考え方

本調査で構築したモデルが、日本国内における Ox 濃度の長期変動要因の解析及び前駆物 質の排出量削減による Ox 低減効果の解析に活用できるかどうか、という観点からシミュレーショ ンモデルの再現性の確認を行った。再現性の確認の流れについて図 2-6 に整理した。

気象場の再現性の確認(気温、風速及び日射量) (2.5.3)

- ・ 大気汚染物質は気流によって移流・拡散するため、気象場の再現性を確認
- ・ 遠隔地測定局及び関東・九州地域における測定局の測定値と計算値を比較
- ・精度評価の指標値を算出し、既往の調査結果と比較

Ox 及び Ox 前駆物質の再現性の確認 (2.5.4、2.5.5)

- ・ Ox、PO 及び Ox 前駆物質(NO2 及び NMHC)の再現性を確認
- ・ 人為起源排出の寄与がほとんどない遠隔地測定局を対象に、モデルの基本的な 再現性を確認

・ 人為起源排出の寄与が大きい関東及び九州地域について、4 つの目標水準を設定し、それらの目標水準の達成状況を確認

## 

他モデルとの比較(2.5.6)

・国内の研究機関(本調査と異なる化学輸送モデルを使用する機関も含む)による既 往計算結果と比較(関東、九州地域でのOx、NOx及びNMHCの月平均濃度に ついて比較を実施)

シミュレーションモデルの再現性のまとめ (2.5.7)

・日本国内における Ox 濃度の長期変動要因の解析及び前駆物質の排出量削減に よる Ox 低減効果の解析に活用できるかを評価

図 2-6 シミュレーションモデルの再現性の確認の流れ

#### 2.5.2 統計値の算出方法について

本解析においては、新指標相当値、月平均値及び暖候期平均値を統計値として使用する。 以下、新指標相当値の定義及び各統計値の算出方法(計算値及び測定値)について整理した。

(1)新指標相当値の定義

前述したように、オキシダント新指標の定義は、「日最高8時間値の年間99%値の3年平 均値」であるが、平成25年度(2013年度)調査における解析で、暖候期(4~9月)を対象とし た測定値の場合、「日最高8時間値の暖候期(4~9月)98%値の3年平均値」と「日最高8 時間値の年間99%値の3年平均値(新指標)」の値が概ね一致することが明らかになってい る。以上のことから、本調査では、暖候期(4~9月)を対象にシミュレーションの計算を実施す るため、「日最高8時間値の暖候期(4~9月)98%値の3年平均値」を新指標相当値として 扱った(以下「新指標相当値」と示す)。

(2) 60 km 格子計算における統計値の算出方法(九州地域、関東地域)

60 km 格子計算において、九州地域及び関東地域の統計値を算出するための格子は、図 2-7 において赤枠で囲んだ格子である(九州地域 5 個、関東地域 9 個)。

「日最高8時間値の暖候期98%値」及び「月平均値及び暖候期平均値」の算出方法は以下に示すとおりである。

- ア.日最高8時間値の暖候期98%値
  - ① 各格子の「日最高8時間値の暖候期98%値」を算出。
  - ② 各地域に含まれる全格子について①の値を平均。
- イ. 月平均値及び暖候期平均値
  - ① 各格子の「月平均値」及び「暖候期平均値」を算出。
  - ② 各地域に含まれる全格子について①の値を平均。





図 2-7 60 km 格子における解析対象格子(左図:九州地域、右図:関東地域)

(3) 10 km 格子計算における統計値の算出方法(関東地域)

測定局密度と計算格子密度との関係を把握するために、関東地域の10km格子点を、図 2-8において茶色の点(■)で示した。また、同図において、測定局(一般環境大気測定局)の 存在する場所を、青色の点(●)で示した。

10km 格子計算における統計値の算出は、測定局を含む格子の計算値を対象とした。なお、1つの測定局のデータについて1つの計算値を対応させたため、ある格子に複数の測定局が含まれる場合、同一格子の計算値が、測定局数と同じ数だけ統計値算出に用いられている。

計算値について、「日最高8時間値の暖候期98%値」及び「月平均値及び暖候期平均値」の算出方法を以下に示した。

- ア.日最高8時間値の暖候期98%値
  - ① 測定局を含む格子の「日最高8時間値の暖候期98%値」を算出。
  - ② 解析対象とした各都県(茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県及び山梨県)の測定局を含む格子について①の値を平均。
  - ③ 関東地域の統計値として、②の値を平均。

イ. 月平均値及び暖候期平均値

- 測定局を含む格子の「月平均値」及び「暖候期平均値」を算出。
- ② 解析対象とした各都県(茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県及び山梨県)の測定局を含む格子について①の値を平均。
- ③ 関東地域の統計値として、②の値を平均。



図 2-8 関東領域(10 km 格子)における格子の中心位置(=)と測定局(•)の場所

(4) 測定値を対象とした統計値の算出方法

測定値を対象とした「日最高8時間値の暖候期98%値」及び「月平均値及び暖候期平均値」の算出方法は以下に示すとおりである。

- ア.日最高8時間値の暖候期98%値
  - ① 測定局の「日最高8時間値の暖候期98%値」を算出。
  - ② 解析対象とした各都県(茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神 奈川県及び山梨県)の測定局についての値を平均。
  - ③関東地域の統計値として、②の値を平均。
- イ. 月平均値及び暖候期平均値
  - ① 測定局の「月平均値」及び「暖候期平均値」を算出。
  - ② 解析対象とした各都県(茨城県、栃木県、群馬県、埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県及び山梨県)の測定局について①の値を平均。
  - ③ 関東地域の統計値として、②の値を平均。

#### 2.5.3 気温及び風速の再現性について

(1) 解析の目的

大気汚染物質は気流によって移流、拡散するため、気象場の再現性について把握すること が必要である。そこで、遠隔地測定局及び気象庁の地上気象観測所を対象に、測定値と気 象モデル(WRF)による計算値を比較し、シミュレーションによる気象要素の再現性について 確認した。

#### (2) 遠隔地測定局における再現性の確認

ア. 解析方法

遠隔地測定局の検証地点として、父島、西郷及び与那国を選定した(図 2-9)。計算デ ータの抽出は、測定地点に最も近い格子点の第一層目のデータを対象とした。また、測定 値が存在する時間データを対象に計算値の統計処理を実施した。モデルの性能評価指標 としては、一般的に多く利用されている BIAS、RMSE を用いた(表 2-8)。



1000 km

図 2-9 遠隔地モニタリングサイトの位置

評価要素	気温、風速(60 km 格子計算)		
評価指標	BIAS、RMSE(C <sub>calc</sub> 及び C <sub>obs</sub> は時間値)		
	$BIAS = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (C_{calc} - C_{obs}) \qquad RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (C_{calc} - C_{obs})^2}$		
評価対象領域	東アジア領域(60 km 格子)		
評価対象期間	2001~2010年の10年間の暖候期(4~9月)		
検証地点	父島、西郷、与那国		

表	2-8	モデル検証の実施内容	(気象)について
---	-----	------------	----------

イ. 解析結果

越境汚染の影響が大きいことが想定される与那国及び西郷の結果について、図 2-10~ 図 2-13 に示した。父島の結果については、参考資料 図 2~ 図 3 に掲載した。これらの 結果から明らかになった内容を以下に整理した。

- ・気温の BIAS は、全地点とも概ね-1.0~1.0(℃)の間に収まった。
- ・西郷は、10年を通じて4月及び9月の気温の計算値が過大評価となる傾向がみられた。また、他の2地点(父島、与那国)は、西郷と比較すると、期間を通して RMSE の値が小さいことから、再現性が相対的に高いと考えられた。

風速の BIAS は、父島及び西郷で 2.0 ~ 3.0 (m/s)の値となった。 与那国は BIAS の値 が 0.0 ~ 2.0 (m/s) に収まった。 RMSE と併せて評価すると、 与那国の風速の再現性は相 対的に高いと考えられた。



図 2-10 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、西郷)



図 2-11 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、与那国)



図 2-12 精度評価指標による評価結果(西郷)



図 2-13 精度評価指標による評価結果(与那国)

## (3) 関東・九州地域における再現性確認

ア. 解析方法

関東地域は、東京(10 km 及び 60 km 格子計算値)、宇都宮及び前橋(10 km 格子計算値)、また、九州地域は、福岡(60 km 格子計算値)を対象に、風速、気温、日射量(日射量は 10 km 格子計算値のみ)の計算値及び測定値の月平均値を算出した。また、モデルの 精度評価指標として BIAS、RMSE を算出した(表 2-9)。

評価要素	気温、風速、日射量(10 km 格子)		
評価指標	BIAS、RMSE(C <sub>calc</sub> 及び C <sub>obs</sub> は時間値)について		
	$BIAS = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (C_{calc} - C_{obs}) \qquad RMSE = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} (C_{calc} - C_{obs})^2}$		
評価対象領域	関東領域(60 km 及び 10 km 格子)及び九州領域(60 km 格子)		
評価対象期間	2001~2010年の10年間の暖候期(4~9月)		
検証地点	(気象官署)東京、福岡(60 km 格子)、宇都宮(10 km 格子)、前橋		
	(10 km 格子)		

表 2-9 モデル検証の実施内容(気象)について

イ. 解析結果

東京、福岡(60 km 格子計算値)の気温及び風速の経年変化と精度評価指標について 図 2-14 ~ 図 2-17 に示した。また、東京、宇都宮、前橋(10 km 格子計算値)の気温、風速 及び日射量の経年変化図及び精度評価指標について図 2-18 ~ 図 2-23 に示した。

60 km 格子計算値の場合、東京の 10 年間の気温の BIAS は-1.8 ~ 0.8( $^{\circ}$ C)、RMSE は 1.5 ~ 4.5( $^{\circ}$ C)の範囲内であった。風速については、BIAS は-0.2 ~ 2.4(m/s)、RMSE は 1.2 ~ 3.6(m/s)の範囲内であった。一方、福岡については、気温の BIAS は-2.9 ~ -0.2( $^{\circ}$ C)、RSME は 1.5 ~ 3.2( $^{\circ}$ C)、風速の BIAS は 0.9 ~ 3.4(m/s)、RMSE は 2.1 ~ 4.2(m/s)の範囲 内であった。

10 km 格子計算値の場合、気温の BIAS は-0.7 ~ -0.4( $^{\circ}$ C)、RMSE は 1.0 ~ 1.4( $^{\circ}$ C)、風速の BIAS は-0.7 ~ 1.3(m/s)、RMSE は 1.4 ~ 2.0(m/s)、日射量の BIAS は 0.4 ~ 0.9 (MJ/m<sup>2</sup>) 程度、RMSE は 0.9 ~ 1.3(MJ/m<sup>2</sup>) 程度であった。

60 km 格子計算値と10 km 格子計算値の比較として東京の計算結果(気温及び風速) に着目すると、60 km 格子計算値より10 km 格子計算値の方が、再現性が高い傾向がみられた。

ウ. 既往調査結果との比較

気温及び風速の精度評価指標値について、既往調査結果(環境省,2010b)と本調査結 果を比較した結果を表 2-10 に示す。既往調査結果は、WRFv3.1.1を用いた関東領域(15 km 格子)の計算により得られたものである。

表 2-10より、本調査の 60 km 格子計算結果では、既往調査と比較して精度評価指標 がやや劣る結果となったが、関東(10 km 格子計算結果)については、ほぼ同等の精度で あることが確認された。

	既往調査		本調査	
	BIAS	RMSE	BIAS	RMSE
気温	-0.2 ~ 1.3 (°C)	1.7 ~ 2.4 (°C)	東京(60 km 格子) -1.8 ~ 0.8(℃) 福岡(60 km 格子) -2.9 ~ -0.2(℃) 関東(10 km 格子) -0.7 ~ -0.4(℃)	東京(60 km 格子) 1.5 ~ 4.5(℃) 福岡(60 km 格子) 1.5 ~ 3.2(℃) 関東(10 km 格子) 1.0 ~ 1.4(℃)
風速	-0.4 ~ 0.0 (m/s)	1.2 ~ 1.8 (m/s)	東京(60 km 格子) -0.2~2.4(m/s) 福岡(60 km 格子) 0.9~3.4(m/s) 関東(10 km 格子) -0.7~1.3(m/s)	東京(60 km 格子) 1.2 ~ 3.6 (m/s) 福岡(60 km 格子) 2.1 ~ 4.2 (m/s) 関東(10 km 格子) 1.4 ~ 2.0 (m/s)

表 2-10 気温及び風速の精度評価指標値の比較

<60 km 格子計算值>









図 2-16 精度評価指標による評価結果(東京)



図 2-17 精度評価指標による評価結果(福岡)

<10 km 格子計算值>



図 2-19 気象観測所における測定値と計算値の比較(宇都宮)







図 2-21 精度評価指標による評価結果(東京)






図 2-23 精度評価指標による評価結果(前橋)

## 2.5.4 遠隔地における Ox について

(1) 解析の目的

ローカルの人為起源排出量の影響が小さい地域の Ox 濃度の再現性及び東アジア大陸 由来の越境汚染の再現性の確認を目的として、遠隔地における計算値と測定値を対象に解 析を行った。

(2) 解析方法

遠隔地モニタリング測定局として EANET モニタリングサイト(利尻、小笠原、隠岐及び辺戸)を選定し(図 2-24)、これらの地点を対象にオキシダントの測定値と 60 km 格子計算値を 比較することによってシミュレーションの再現性について検討した。



図 2-24 遠隔地モニタリングサイトの位置

(3) 解析結果

東アジア大陸由来の越境汚染の影響が大きいと考えられる辺戸及び隠岐について、2001 ~ 2010年の暖候期(4~9月)における測定値と計算値の月平均値の経年変化図を図 2-25 に示した。また、測定値と計算値の月平均値の散布図を図 2-26 に示した。利尻及び小笠原の結果については、参考資料 図 4~ 図 7 に掲載した。

図 2-25 及び図 2-26 より、地点の特徴として以下のことが示された。

- ・ 小笠原及び辺戸については、春季に濃度が高くなり、夏季に濃度が低くなる傾向を比 較的再現していた。
- 利尻及び隠岐の2地点は、小笠原及び辺戸と比較すると、再現性が低い。
   (測定値では暖候期中に20 ppb 程度まで低下する月があるが、計算値ではこのような
   傾向を適切に再現できておらず、過大評価となっていた)

2001 ~ 2010 年の3 期間(4~6月、7~9月、4~9月)における期間平均値を図 2-27 に示し、モデルの再現性を期間別に確認した。図 2-27より以下のことが明らかとなった。

- ・利尻及び小笠原の2地点について他の地点と比較すると、4~6月の期間平均値の測 定値と計算値の絶対値の差が小さかった。
- ・ 7~9月の期間平均値について、測定値と比較して計算値が過大となる傾向が4地点 で共通してみられた。
- ・ 対象とした4地点の中では、期間を通して隠岐における計算値が測定値と比較して最 も過大である傾向がみられた。

春季(4~6月)及び夏季(7~9月)の再現性を比較するために、季節別に測定値、計算値の散布図を作成し、結果を図 2-28 に示した。図 2-28 より以下のことが明らかとなった

・ 対象とした4地点とも、4~6月の計算値は、7~9月の計算値と比較すると、再現性が 高い傾向が見られた。



図 2-25 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の経年変化図(月平均値)



図 2-26 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の散布図(月平均値)





図 2-27 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の比較(期間別)



#### 2.5.5 関東・九州地域における Ox 及び前駆物質の再現性

(1) シミュレーションモデルの再現目標

現在の国内におけるモデルの再現性能を踏まえて、当面達成を目指す再現目標として表 2-11 に示す4項目を設定し、シミュレーションモデルの再現性について確認した。

再現目標① ~ ④の検証は、60 km 格子計算値の評価については、2001 ~ 2010 年の計算結果(関東及び九州地域)を対象とした。また、10 km 格子計算値の評価は、気象場が異常年でないことが確認されている 2009 年の計算結果(関東地域)を対象とした。なお、目標④については、主要 VOC 成分の測定データが整備された 2009 年(10 km 及び 60 km 格子計算値)及び 2010 年(60 km 格子計算値)の関東地域の計算結果を対象とした。

なお、Ox、PO 及び Ox 前駆物質 ( $NO_2$  及び NMHC)の月平均値の再現性の評価について は、参考資料 表 2 ~ 表 26 に整理した。

表 2-11 シミュレーションモデルの再現目標

1	Ox、NOx、NMHC の長期トレンド
	【目標:基本的な増減傾向を再現すること】
2	Ox 新指標相当値(日最高 8 時間値の暖候期 98%値の 3 年平均値)
	【目標:数十%以内で再現すること】
3	NO2の期間平均値の再現性
	【目標:数十%以内で再現すること】
4	主要 VOC 成分の再現性
	【目標:50~200%以内で再現すること】

なお、NMHC の計算値は、表 2-12 に示したように、SAPRC99 におけるモデル成分の計 算値に係数を乗じることにより算出した。

モデル成分	代表的な物質	係数	モデル成分	代表的な物質	係数
ALK1	エタン等	2.00	ARO1	トルエン等	7.31
ALK2	プロパン等	2.59	ARO2	キシレン等	8.36
ALK3	n-ブタン等	4.04	ISOPRENE	イソプレン	5.00
ALK4	n-ペンタン等	5.19	TERP	テルペン類	10.00
ALK5	シクロヘキサン等	8.11	BENZENE	ベンゼン	6.00
ETHE	エチレン等	2.00	SESQ	セスキテルペン	15.00
OLE1	プロピレン等	5.16			
OLE2	1,3-ブタジエン等	5.15			

表 2-12 SAPRC99 におけるモデル成分とNMHC 算出のための係数

(2) 達成状況の確認

ア. 長期トレンドの再現性

長期トレンドの再現性について、物質別(Ox 及び PO、NO2、NMHC)に確認した。以下に結果を整理した。

<Ox 及び PO>

60 km 格子計算値を対象とした Ox 及び PO の暖候期トレンドの再現性の確認結果に ついて、表 2-13 に整理した。

表 2-13 Ox 及び PO について

暖候期平均値の トレンド	再現性の確認結果
60 km 格子 計算値 (Ox)	<ul> <li>・関東地域については、2002年以降の上昇トレンドを概ね再現している(図 2-29及び図 2-31)。</li> <li>・九州地域については、2009年までの上昇トレンド及び 2010年の下降トレンドを概ね再現している(図 2-32及び図 2-34)。</li> </ul>
60 km 格子 計算値 (PO)	<ul> <li>・関東地域については、10年間のトレンド(ほぼフラット)を再現している</li> <li>(図 2-33及び図 2-35)。</li> <li>・九州地域については、2007年以降の測定値の変動を再現している</li> <li>(図 2-34及び図 2-36)。</li> </ul>



図 2-29 Ox 月平均値の経年変化図(関東地域)





 $< NO_2 >$ 

60 km 格子計算値を対象とした NO2の暖候期トレンドの再現性の確認結果について、 表 2-14 及び図 2-37 ~ 図 2-40 に整理した。

60 km 格子 計算値(NO <sub>2</sub> )	再現性の確認結果
	・関東地域については、下降トレンドを再現している。10 年間の濃度低下率は、計算値は 32% (7.7→5.7 ppb)、測定値は 25% (16.5→11.2 ppb)で
暖候期平均値の	あり、概ね再現されていた(図 2-37 及び図 2-39)。
トレンド	<ul> <li>・九州地域についても、下降トレンドを再現している。10 年間の濃度低下</li> <li>率は 計算値は 30%(41→28 nph) 測定値は 30%(158→110 nph)で</li> </ul>
	あり、再現されていた(図 2-38 及び図 2-40)。

表 2-14 60 km 格子計算値(NO<sub>2</sub>)について



図 2-38 NO<sub>2</sub>月平均値の経年変化図(九州地域)



<NMHC>

60 km 格子計算値を対象とした NMHC の暖候期トレンドの再現性の確認結果について、表 2-15 及び図 2-41 ~ 図 2-44 に整理した。

60 km 格子 計算値(NMHC)	再現性の確認結果
	・関東地域については、下降トレンドを再現している。10 年間の濃度低下 率は、測定値は 31% (247.2→170.4 ppbC)、計算値は 33% (48.8→32.5
暖候期平均値の トレンド	ppbC)であり、概ね再現されていた(図 2-41 及び図 2-43)。 ・九州地域についても、下降トレンドを再現している 10 年間の濃度低下
	率は、測定値は 30% (182.4→128.0 ppbC)、計算値は 34% (34.3→22.8 ppbC)であり 概ね再現されていた (図 2-42 及び図 2-44)

表 2-15 60 km 格子計算値(NMHC)について



図 2-41 NMHC 月平均値の経年変化図(関東地域)



図 2-42 NMHC 月平均値の経年変化図(九州地域)



(関東地域)



2006年 2007年 2008年 2009年 2010年

イ. Ox 新指標相当値の再現性

Ox 新指標相当値の再現性について、結果を以下に整理した。

<関東地域 60 km 格子計算値について(図 2-45 及び図 2-46)>

- ・ Ox 測定値から集計した新指標相当値と比べると、全体的に過大であり、その範囲は +26~+37%であった。
- ・ PO 測定値から集計した新指標相当値と比べると、全体的に過大であり、その範囲は +12~+20%であった。
- ・ Ox 及び PO 測定値を対象とした新指標相当値でみられる 2004 ~ 2006 年以降の下降トレンドを概ね再現していた。
- ・ Ox 及び PO 測定値を対象とした 3 年平均値を算出する前の単年の統計値でみられ る 2003 年の濃度低下、翌年の濃度上昇、2009 年の濃度低下、翌年の濃度上昇等、 年々の変化を概ね再現していた。

<関東地域 10 km 格子計算値について(図 2-45 及び図 2-46)>

- 2009 年の単年の Ox 統計値は、60 km と比較すると測定値に近い値であり(□と○の 比較)、測定値に対して+12%であった(60 km 格子計算値は、測定値に対して +21%)。
- 2009 年の単年の PO 統計値は、10 km 格子計算値は測定値に対して+6%、60 km 計算値は測定値に対して+11%であった。



図 2-45 測定値及び計算値を対象とした Ox 新指標相当値

(関東 60 km 格子、10 km 格子)



(左図:PO新指標相当値 右図:2003~2010年PO新指標相当値の平均値に対する濃度比)

図 2-46 測定値及び計算値を対象とした PO 新指標相当値(関東 60 km 格子、10 km 格子)

<九州地域 60 km 格子計算値について(図 2-47 及び図 2-48)>

- ・ Ox 測定値を対象にした新指標相当統計値と比べると、全体的に濃度が高く、その範囲は+25 ~ +45%であった。
- PO 測定値を対象にした新指標相当統計値と比べると、全体的に濃度が高く、その範囲は+16~+30%であった。
- ・ Ox 及び PO 測定値を対象とした3年平均値を算出する前の単年の統計値でみられる2007年の濃度上昇、2008年の濃度低下、2009年の濃度上昇といった年々の変化を再現していたが、より長期的な漸増傾向を再現することはできていない。



図 2-47 測定値及び計算値を対象とした Ox 新指標相当値(九州 60 km 格子)



図 2-48 測定値及び計算値を対象とした PO 新指標相当値(九州 60 km 格子)

ウ. NO2の月平均値の再現性

60 km 格子計算値を対象とした月平均値の再現性の確認結果(2001~2010年の暖候期を対象)について、参考資料 表 2~表 21 に示し、再現性の確認結果及び評価指標の値について表 2-16 に整理した。

また、10 km 格子計算値を対象とした月平均値の再現性の確認結果について、参考資料表 22 ~ 表 26 に示し、再現性の確認結果及び評価指標の値について、表 2-17 に示した。なお、表 2-17 において、NB 及び NGE の各都県統計の欄の「月平均値を対象としたの評価指標の分布範囲」とは、月毎に算出した NB 及び NGE のうち、最小となった月の統計値と最大となった月の範囲を意味する。NB 及び NGE の算出方法を表 2-18 に示した。

表 2-16より、60km 格子計算値の月平均値は、関東地域については、29~51%の過小評価、九州地域については、大幅(54~71%)な過小評価であった。暖候期(4~9月)の評価は、関東地域については、40~44%の過小評価、九州地域については、61~64%の過小評価であった。

また、表 2-17より、10km 格子計算値(関東地域)の月平均値は、26~36%の過小評価であった。暖候期(4~9月)の評価は、31%の過小評価であった。

60 km 格子	評価指 期に3	旨標の値(2001 - おける評価指標	- 2010 年暖候 の分布範囲)	再現性の確認結果
計算值(NO <sub>2</sub> )		<u>NB</u>	<u>NGE</u>	
月平均値の	関東	-0.51 ~ -0.29	0.29 ~ 0.51	・関東及び九州地域ともに、計算値
評価	九州	-0.71 ~ -0.54	0.54 ~ 0.71	は測定値と比較して過小である。 ・評価指標の値から、関東地域の方
暖候期(4~9月)	関東	-0.44 ~ -0.40	$0.40 \sim 0.44$	が九州地域よりも再現性が高い。
平均値の評価	九州	-0.64 ~ -0.61	0.61 ~ 0.64	

表 2-16 60 km 格子計算値(NO<sub>2</sub>)について

月平均値の精度評価結果									
	期間平均	値		評価指標()	NB)		評価指標(NGE)		
関東地域	戉		関	國東地域		₿	周東地域		
2009年	測定値(ppb)	計算値(ppb)		対象期間	NB		対象期間	NGE	l
4月	13.2	8.4		4月	-0.36		4月	0.36	
5月	11.6	7.9		5月	-0.32		5月	0.32	ł
6月	12.6	8.1		6月	-0.36		6月	0.36	ł
7月	11.0	7.6		7月	-0.30		7月	0.30	
8月	10.2	7.5		8月	-0.26		8月	0.26	l
9月	12.0	8.7		9月	-0.28		9月	0.28	
4~9月	11.7	8.0		4~9月	-0.31		4~9月	0.31	
	直を対象と ◆布範囲) 0.5 1.0 1.5 NO2)	: 名 L	A都県(月平均値) た評価指標の分 茨城 栃木 群馬 与東京 東京 中奈川 山梨 -1.0-0.5 0.0 ( NGE	≦を対象 ·布範囲) · · の ・ の 、 の 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、 、	ک .5				
<ul> <li>・関東地域における月平均値を対象とした NB から、計算値は測定値と比べると過小(-36~-26%)であった。</li> <li>・関東地域における暖候期を対象とした NB から、計算値は測定値と比べると過小(-31%)であった。</li> <li>・精度評価指標 NB 及び NGE の値から、相対的に再現性の高い(NB 及び NGE の値が 0</li> </ul>									
に近い)都県(上位3都県)は、千葉県、東京都及び神奈川県であった。									

表 2-17 10 km 格子計算値(NO<sub>2</sub>)について

表 2-18	精度評価指標の算出方法

指標	計算式	備考
NB (Normalized Bias)	$NB = \frac{C_{calc} - C_{obs}}{C_{obs}}$	<ul> <li>測定値と計算値の差を測定値で標準</li> <li>化した値の和</li> <li>モデルの系統的な誤差を表す</li> </ul>
NGE (Normalized Gross Error)	$NGE = \frac{ C_{calc} - C_{obs} }{C_{obs}}$	<ul> <li>測定値と計算値の差の絶対値を測定 値で標準化した値の和</li> <li>値が0に近ければ、測定値と計算値 の差が小さく、精度がよいと考えられる</li> </ul>

Cobs, Ccalc:各地点の月平均値を対象

※暖候期(4~9月)を対象とした精度評価指標は、月平均値を対象とした精度評価指標の値を平均した。

エ. 主要 VOC 成分の再現性

主要 VOC 成分の再現性評価対象地点について、表 2-19 に示した。測定物質はモデルにおける成分毎に分類・集計した(表 2-20)。なお、本解析は埼玉県内の限られた地点及び期間を対象とした評価であり、関東全域における傾向を示したものではないことに留意する必要がある。

測定値及び計算値について、各成分の平均値を4~6月(春)、7~9月(夏)の昼間、夜間でそれぞれ算出し、比(計算値 / 測定値)を算出した。この作業により、モデルにおける成分毎に、地点数(4) × 季節(2) × 昼夜(2) = 16事例について比が求められる。評価はこの比が、「過小(0.5以下)」「再現性の目標水準を満たす(0.5以上 2.0以下)」「過大(2.0以上)」のどのカテゴリーに分類されるかで実施した。なお、主要 VOC 成分としては、MIR<sup>4</sup>と平均濃度の積が大きい上位 5 物質(ALK4、ETHE、ARO1、ARO2 及び HCHO)を対象とした。

2009 年の 60 km 格子計算値及び 10 km 格子計算値を対象にした解析結果を図 2-49 に、2010 年の 60 km 格子計算値を対象にした解析結果を図 2-50 に示した。

図 2-49 及び図 2-50 より、60 km 格子計算値は、年によって傾向の異なる成分がみられ るが、2010 年については、主要 VOC 成分のうち ARO1、HCHO は過小の事例が多く、そ の他の成分は再現性の目標水準を満たす事例が多数を占めている。また、図 2-49 より、 10 km 格子の計算値では、ALK4 及び HCHO は、再現性の目標水準を満たす事例が多 数を占めたが、その他の成分は過小の事例が多数を占めている。

<sup>&</sup>lt;sup>4</sup> MIR (Maximum Incremental Reactivity): 光化学反応性を示す指標

測定地点	戸田·蕨、鴻巣、幸手、寄居 <sup>5</sup>
測定物質	パラフィン類:27 オレフィン類:10 芳香族:17 ハロケン化物:22
	フロン類 :11 アルデヒド類: 8 ケトン類 : 3 その他 :1
測定日	<2009年>
	4月23日、5月19日、6月10日、7月9日
	8月11日(鴻巣は8月18日)、9月9日
	<2010年>
	4月21日、5月18日、6月10日、7月7日、8月10日、9月16日
サンプリング時間	(昼夜測定)昼:6~18時、夜:18~翌日6時

表 2-19 主要 VOC 成分の再現性評価対象地点について

表 2-20 測定物質とモデルにおける成分分類

測定物質名		モデル VOC成分	レ 測定物質名		モデル VOC成分		測定物質名			測定物質名	
パラフィン類	エタン	ALK1	オレフィン類	アセチレン	ALK2	ハロゲン化物	ジ・クロロメタン	ALK1	アルデヒド類	ベンズアルデヒド	BALD
	プロパン	ALK2		エチレン	ETHENE		1,2-シ クロロエタン	ALK1		アセトアルテ゛ヒト゛	CCHO
	イソフ・タン	ALK3		2-メチルー1,3-ブタジエン	ISOP		1,1-シ*クロロエタン	ALK1		ホルムアルテ゜ヒト゜	нсно
	n-プタン	ALK3		プロピレン	OLE1		1,1,2-トリクロロエタン	ALK1		プロピオンアルデヒド	RCHO
	2,2ージメチルプタン	ALK3		1-ペンテン	OLE1		1,2-ジブロモエタン	ALK1		nーイソフ <sup>・</sup> チルアルテ <sup>・</sup> ヒト <sup>・</sup>	RCHO
	イソペンタン	ALK4		t−2−フ <sup>*</sup> テン	OLE2		テトラクロロエチレン	ALK1		イソハ・レルアルテ・ヒト・	RCHO
	n-^°ンダン	ALK4		c-2-プテン	OLE2		クロロエタン	ALK2		nーバレルアルテ <sup>°</sup> ヒト゛	RCHO
	シクロヘンタン	ALK4		1,3-7*ダシ*エン	OLE2		c-1,2-ジクロロエチレン	ALK3		ヘキサナール	RCHO
	2ーメチルヘッンタン	ALK4		t−2−ペンテン	OLE2		トリクロロエチレン	ALK3	ケトン類	アセトン	ACET
	3ーメチルヘッンタン	ALK4		c−2−ペン <del>テ</del> ン	OLE2		塩化ビニルモノマー	ALK5		メチルエチルケトン	MEK
	nーヘキサン	ALK4	芳香族	ペンセン	AR01		1,1-ジクロロエチレン	ALK5		メチルイソプチルケトン	PRD2
	メチルシクロヘシンタン	ALK4		トルエン	AR01		c=1,3=ジクロロプロペン	ALK5	その他	アクリロニトリル	ALK5
	2,4ージメチルペンタン	ALK4		エチルヘンセン	AR01		t-1,3-ジクロロプロペン	ALK5			
	2,2,4ートリメチルヘンタン	ALK4		イソフ゜ロヒ゜ルヘ゛ンセ゛ン	AR01		クロロメタン	NROG			
	シクロヘキサン	ALK5		nープロピルベンゼン	AR01		クロロホルム	NROG			
	2ーメチルヘキサン	ALK5		m&p-キシレン	ARO2		四塩化炭素	NROG			
	2,3ージメチルペンタン	ALK5		oーキシレン	ARO2		フ・ロモメタン	NROG			
	3ーメチルヘキサン	ALK5		m&pーエチルトルエン	ARO2		1,1,1-トリクロロエタン	NROG			
	n− <b>^フ</b> ゚タン	ALK5		1,3,5ートリメチルヘンセン	ARO2		クロロヘンセン	NROG			
	メチルシクロヘキサン	ALK5		oーエチルトルエン	ARO2		mージクロロベンゼン	NROG			
	2,3,4ートリメチルヘンタン	ALK5		1,2,4ートリメチルヘンセン	ARO2		pーシ <sup>*</sup> クロロヘ <sup>*</sup> ンセ <sup>*</sup> ン	NROG			
	2ーメチルヘフ <sup>°</sup> タン	ALK5		1,2,3ートリメチルヘンセン	ARO2		oージクロロヘンセン	NROG			
	3ーメチルヘフ。タン	ALK5		mーシ゛エチルヘ゛ンセ゛ン	ARO2	7ロン類	HCFC22	NROG			
	nーオクタン	ALK5		pーシ <sup>・</sup> エチルヘ・ンセ <sup>・</sup> ン	ARO2		CFC12	NROG			
	nーノナン	ALK5		スチレン	OLE2		CFC11	NROG			
	nーデカン	ALK5					HFC134a	NROG			
	nーウンテ <sup>*</sup> カン	ALK5					CFC114	NROG			
							HCFC142b	NROG			
							HCFC123	NROG			
							HCFC141b	NROG			
							CFC113	NROG			
							HCFC225ca	NROG			
							HCFC225cb	NROG	]		

<sup>&</sup>lt;sup>5</sup> 埼玉県大気環境調査事業報告書 (https://www.pref.saitama.lg.jp/a0504/taikihoukokusyo.html)

2009年 60km 格子計算值



2009年 10km 格子計算值



(★は MIR と平均濃度の積の上位 5 成分 上図:60 km 格子計算値 下図:10 km 格子計算値)

図 2-49 成分別にみた計算値と測定値の比の該当割合(2009年)



図 2-50 成分別にみた計算値と測定値の比の該当割合(2010年)

(3) シミュレーションモデルの再現目標の達成状況のまとめ

シミュレーションモデルの再現目標の達成状況について、以下に物質別に整理した。

- ア. Ox 及び PO について
- <遠隔地モニタリングデータと計算値の比較>
  - ・ 解析対象とした全地点について、2001~2010年を通して計算値が過大であった(図 2-25)。
  - ・ 再現性には季節性が見られ、夏季と比較して春季(4~6月)の再現性が高かった(図
     2-27及び図 2-28)。

<シミュレーションモデルの再現目標に対する状況>

#### 目標①:長期トレンドの基本的な増減傾向を再現すること

・ 60 km 格子計算値について、関東地域及び九州地域における Ox 暖候期平均濃度の 2001 ~ 2010 年の長期トレンドの特徴を概ね再現していた(図 2-31 及び図 2-32)。

#### 目標②:Ox 新指標相当値について数十%以内で再現すること

- ・ Ox 新指標相当値(60 km 格子計算値)について、九州地域については、2007 年以降のトレンドの再現性に課題がみられたが、関東地域については、10 年間のトレンド及び単年度の変化傾向は概ね再現していた。絶対値の再現については、関東地域においては、全ての年(2001~2010年)で測定値に対して 26~37%の過大評価、九州地域においては、25~45%の過大評価であったが、目標の数十%以内にほぼ収まっていた。
- NO タイトレーション効果を考慮した指標であるポテンシャルオゾン(PO) 濃度の新指標相当値(60 km 格子計算値)も Ox と同様に過大ではあるが、目標の範囲内に収まっていた(図 2-45 及び図 2-46)。
- ・ Ox の日最高 8 時間値暖候期 98%値(2009 年 10 km 格子計算値)は、全体的に過 大傾向(+12%)ではあるが、目標の数十%以内に収まっており、また、60 km 格子計 算値(+21%)よりも過大傾向が小さかった(図 2-45 及び図 2-46)。
- ・ POの日最高8時間値暖候期98%値(2009年10km格子計算値)もOxと同様に過 大(+6%)ではあるが、目標の数十%以内に収まっていた。また、60km格子計算値に ついても、同様に目標の数十%以内(+11%)に収まっていた(図2-45及び図2-46)。

イ.NO2について

<シミュレーションモデルの再現目標に対する状況>

#### 目標①:長期トレンドの基本的な増減傾向を再現すること

・ 関東及び九州地域ともに、NOx 濃度の代替指標としての NO2 濃度の計算値は測定 値と同様に下降トレンドを示しており、両者の 10 年間の濃度低下率も概ね同程度で あった(図 2-37 ~ 図 2-40)。

#### 目標③:NO2の期間平均値について数十%以内で再現すること

- ・ 関東地域の暖候期平均値については、60 km 格子計算値で、29~51%の過小評価、10 km 格子計算値では 31%の過小評価であった(表 2-16 及び表 2-17)。九州地域については、60 km 格子計算値で、大幅(54~71%)な過小評価であった(表 2-16)。
- ウ.NMHC について
- <シミュレーションモデルの再現目標に対する状況>

## 目標①:長期トレンドの基本的な増減傾向を再現すること

・ 関東及び九州地域どちらも、VOCの代替指標としてのNMHC濃度の計算値は、測 定値の下降トレンドを示しており、両者の10年間の濃度低下率も概ね同程度であっ た(図 2-41~図 2-44)。

#### 目標④:主要 VOC 成分について 50~200%で再現すること

- 2009年の評価事例では、60km格子計算値及び10km格子計算値のどちらとも、
   主要 VOC 成分(ALK4、ETHE、ARO1、ARO2、HCHO)のうち、ETEH、ARO1、
   ARO2 については過小となる事例が多かったが、ALK4及びHCHOは目標水準を満たす事例が多かった(図 2-49)。
- 2010年の評価事例では、60km格子計算値は、主要 VOC 成分のうち ARO1、
   HCHO は過小となる事例が多かったが、ALK4、ETHE 及び ARO2 は概ね目標水準 を満たした(図 2-50)。

## 2.5.6 構築したシミュレーションモデルと他モデルとの比較

(1) 解析の目的

本調査で使用したシミュレーションモデルの計算結果の妥当性について評価することを目的として、他モデルの計算結果及び測定値との比較を行った。

(2) 解析結果

比較対象のモデルとしては、作業部会委員から提供された8モデルを用いた。各モデルの 設定条件の概要は表 2-21 に示すとおりである。解析は九州地域及び関東地域を対象とし、 各モデルにおいて図 2-8 に示す解析対象格子内に中心が存在する格子で平均した値で評 価を行った(各モデルの詳細設定は参考資料表 27 に掲載)。

各モデルにおいて Ox、NO<sub>2</sub>、NOx、NMHC、PO を対象に、月平均値及び時刻別平均値を 算出し比較を行った(Ox、NOx 及び NMHC 以外の月平均値ならびに時刻別平均値は参考 資料図 8~図 14 に掲載)。

設定	項目	モデルA	モデルB	モデルC	モデルD	モデルE1	モデルE2	モデルF	モデルG	本調査
気象モデル		RAMS	WRF-	W/DE	WRF	WRF	WRF	WRF	WRF	WRF
		4.4	Chem	VVIXI	v3.7	v3.3.1	v3.5.1	v3.3.1	v3.3.1	v3.5.1
化学輸送モデル		ADMER-	WRF-		CMAQ	CMAQ	CMAQ	CMAQ	CMAQ	CMAQ
		PRO	Chem	NAQIVIZ	v5.0.2	v4.7.1	v5.01	v4.7.1	v4.7.1	v4.7.1
気層反応		CB/		SAPRC	SAPRC	SAPRC	SAPRC	SAPRC	SAPRC	SAPRC
モジュー	ール	CD4	NADIVIZ	99	07tc	99	07tc	99	99	99
粒子化				MADMS/						
モジュー	ール	なし	SORGAM	ISORROPI	AERO6	AERO5	AERO6	AERO5	AERO5	AERO5
				A2						
	2001	-	-	-	-	-	-	0	0	0
	2002	-	-	-	-	-	-	0	0	0
	2003	-	-	-	-	-	-	0	0	0
计会	2004	-	-	-	-	-	-	0	0	0
入家 在 使	2005	0	0	-	-	0	-	0	0	0
	2006	-	-	-	-	-	-	0	0	0
	2007	-	-	-	-	-	-	0	0	0
	2008	-	-	-	-	-	-	0	0	0
	2009	-	-	-	-	-	-	-	0	0
	2010	-	-	0	0	-	0	-	0	0
	東アジア	_	80km	45km	45km	_	_	80km	60km	60km
<b></b>	/アジア		OUKIII	43KIII	TOKI			OOKIII	OOKIII	OORITI
田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田田	日本	(20km)%1	-	-	15km	20km	20km **2	-	-	-
DT INVIX	関東	5km	-	-	5km	5km	5km *2	-	-	10km
	九州 ※3	5km	-	-	-	-	-	-	-	-

表 2-21 各モデルの設定条件

※1:解析対象データには含まれないが、親領域としての設定。

※2:モデル E2 には、パラメーター等の微調整を施した2種類が存在する(以降モデル E2a、E2b と表記)。

※3:九州域を対象にした実験が存在するモデルのみ記載。

(3) 解析結果

構築したシミュレーションモデルの 60 km 格子計算値(2001 ~ 2010 年暖候期における Ox、NOx及び NMHC の月平均値)を関東地域について図 2-51 ~ 図 2-53 に示した。また、 九州地域の計算値を図 2-54 ~ 図 2-56 に示した。各図には、他モデルの計算値及び測定 値も併せて示した。なお、本解析ではモデル間の比較に主眼を置いているため、比較には対 象領域内の全格子の平均値を用いている。一方で、測定局は領域内に不均一に分布してい るため、測定値の平均値と計算値を比較すると差が大きくなる傾向があることには留意する必 要がある。

図 2-51 ~ 図 2-56 から、Ox、NOx及び NMHC の月平均濃度について、関東及び九州地 域ともに、本調査で用いたシミュレーションモデルの値は他モデルの計算値と同程度の値を 示した。また、濃度変動についても類似した挙動がみられた。

同様に時刻別平均濃度についてモデル間で比較した結果においても、本調査で用いたシ ミュレーションモデルは他モデルと類似した日内変化及び濃度を示した(参考資料 図 10~ 図 14)。

このことから、本調査で構築したシミュレーションモデルは、Ox、NO<sub>x</sub>及び NMHC の月平均 濃度について、現在の研究レベルのモデルと同等の傾向、再現性を有していると判断した。

#### 対象物質:Ox (関東地域)



図 2-51 Ox 月平均值(関東地域)





図 2-52 Ox 月平均值(九州地域)

#### 対象物質:NOx (関東地域)



図 2-53 NOx 月平均值(関東地域)

## 対象物質:NOx (九州地域)





## 対象物質:NMHC (関東地域)



図 2-55 NMHC 月平均值(関東地域)

## 対象物質:NMHC (九州地域)



図 2-56 NMHC 月平均值(九州地域)

#### 2.5.7 シミュレーションモデルの検証のまとめ

シミュレーションモデルの検証結果について、シミュレーションの再現性の確認の流れ(図 2-6)及びシミュレーションモデルの再現性の目標水準を踏まえて以下に整理した。

(1)気象要素の再現について

気温及び風速の精度評価指標値について、既往調査結果と本調査結果での統計結果を 比較した結果、本調査の 60 km 格子計算値(東京)及び 10 km 格子計算値(関東)について は、既往調査結果とほぼ同等の再現性を有していることが確認できた。

(2) 長期トレンドの再現について

Ox の新指標値や暖候期平均濃度については、測定値の基本的な増減傾向を再現していた。また、前駆物質濃度 (NO<sub>2</sub> 及び NMHC) については、10 年間の減少割合が測定値とほぼ 同様であることが明らかとなった。

(3) 定量的な再現について

Ox 計算値(新指標相当値)は測定値に対して、60 km 格子計算値で 26~37%の過大評価、10 km 格子計算値で 12%の過大評価であった。NO2 計算値(暖候期平均値)は 60 km 格子計算値で、関東地域については、40~44%の過小評価、九州地域については、61~64%の過小評価であり、10 km 格子計算値では 31%の過小評価であった。VOC 主要成分については、60 km 格子及び 10 km 格子計算値ともに、測定値に対して、50~200%の濃度比である物質が多数を占めた。

(4) 他モデルとの比較について

関東及び九州地域のOx、NOx 及び NMHC の月平均値及び時刻別平均値について、本 調査によるモデル計算値を国内の研究機関(本調査で用いた WRF/CMAQ システム以外も 含む)による既往計算値と比較したところ、本調査で用いたモデルは、他モデルとほぼ同等の 再現性を有していることが確認された。

以上のことから、本調査で構築したモデルは、当初設定した目標水準を概ね達成しているものと判断され、また、現在、国内の研究機関で使用しているモデルとほぼ同等の性能を有していると考えられた。よって、我が国における地表オキシダントの長期変動要因の解析、さらに、オキシダント前駆物質である VOC 及び NOx の排出削減によるオキシダント低減効果の感度解析に本シミュレーションモデルを使用した。

# 3シミュレーションモデルによる解析の結果と考察

2 章で示したように、本調査で構築したモデルは、その再現性において幾つかの課題はありつ つも、当初設定した目標水準を概ね達成し、また、現在、国内の研究機関で使用しているモデルと ほぼ同等の性能を有していると考えられることから、我が国における地表オキシダントの長期変動 要因の解析、及びオキシダント前駆物質である VOC 及び NOx の排出削減によるオキシダント低 減効果の感度解析に使用した。なお、モデルは Ox 濃度を過大評価する傾向があるため、計算さ れた Ox 濃度そのものではなく、基準ケースとの濃度の差分または濃度比等で評価を行った。

## 3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因の解析

#### 3.1.1 前駆物質排出量変化(固定蒸発 VOC 排出量削減)の影響の解析

(1) 解析の目的

平成 25 年度検討会報告書において、関東地域では Ox 濃度測定値の統計結果からオキ シダント新指標値の域内平均値は、2007 年度(平成 19 年度)より低下傾向にあることが指摘 された。この要因としては、VOC 及び NOx の排出抑制にともなう、前駆物質濃度低下が考え られる。そこで本調査では、これまでの光化学オキシダント対策のうち、2006 年度(平成 18 年 度)より実施された「揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制制度」について、光化学オキシ ダント濃度にどのような影響があったかを把握することを目的として、シミュレーションによる解 析を実施した。

(2) シミュレーションの設定条件

シミュレーションの気象場、排出量の設定条件を表 3-1 に示した。その他のシミュレーショ ンモデルの基本設定は、「2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ」と同様とした。基準ケ ースは、気象場が異常年でないことが確認されている 2009 年の暖候期とし、関東領域を対象 として 10 km 格子で計算を実施した。基準ケースでは東アジア大陸及び国内の排出量につ いても 2009 年として設定した(ケース A)。一方、比較ケースは大気汚染物質の排出量につ いて、関東領域の固定蒸発発生源からの VOC 排出量のみを 2001 年相当のものに差し替 え、東アジア大陸及び国内排出量(関東領域固定蒸発発生源以外)を 2009 年で固定した (ケース B)。「揮発性有機化合物 (VOC)の排出抑制制度」により、国内の固定蒸発発生 源からの 2009 年の VOC 排出量は、2001 年と比較すると約 38%減少している。なお、本解 析では、ケース B のシミュレーションにおいても、関東領域の境界値となる親領域(東アジア 域)については、基準ケースの計算結果を適用した。

上記ケース A とケース B の計算結果より、関東地域を対象として、「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」について、評価を行った。

	人為起源排出量の設定年				
ケース	東アジア 大陸	関東領域 固定蒸発 VOC	関東領域 固定蒸発 VOC以外	気象場の 設定年	備考
А	2009 年	2009 年	2009 年	2009 年	基準ケース(2009年)
В		2001 年			2009 年を基準に、国内固定蒸 発 VOC の排出量のみ 2001 年 相当に変更した場合

表 3-1 固定蒸発 VOC 排出量削減の影響解析シミュレーションの設定

(3) 解析結果

ケース A とケース B について、計算格子毎に「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」を 算出した結果を図 3-1 に示す。また、ケース A とケース B の濃度比(ケース A/ ケース B) を図 3-2 に示す。図 3-1 より、ケース A(基準ケース)と比較すると、ケース B(固定蒸発 VOC 排出量を 2001 年に変更)では「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」は最大 10 ppb 程度増加する。図 3-2 より濃度比(ケース A/ ケース B)に着目すると、ケース A(基準ケー ス)ではケース B(固定蒸発 VOC 排出量を 2001 年に変更)よりも、関東地域全域で「Ox 日 最高 8 時間値の暖候期 98%値」が小さくなった。特に、東京都東部~埼玉県南東部にかけ て、濃度比が 0.85 ~ 0.90 程度に低下していることが示された。

ケース A、ケース B についてシミュレーション結果から「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」を計算格子毎に算出し、都県別及び全県で平均した結果を図 3-3 に示す。図 3-3 より、関東地域の都県別に評価した場合、固定蒸発 VOC 排出量削減の効果は埼玉県が最 も大きく、濃度比は 0.92 となった。関東地域全体(8 都県平均)での濃度比は 0.96 であった。

以上の結果より、「揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制制度」による、これまでの固定 蒸発 VOC 排出量の削減効果により、関東地域では「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」 が低下したと考えられる。特に東京都東部から埼玉県東部における地域で削減効果が比較 的大きかった。これらの結果は、「平成 25 年度検討会報告書」において整理した測定値の解 析結果にも整合しており、固定蒸発 VOC 排出量の削減による Ox 低減効果が確認された。





(固定蒸発 VOC 排出量を 2001 年に変更)

図 3-1 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の分布(左図:ケース A 右図:ケース B)



図 3-2 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度比(ケース A/ケース B)



図 3-3 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の都県別平均濃度及び濃度比(ケース A/ケース B)

#### 3.1.2 越境大気汚染の解析

(1) 解析の目的

我が国の光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす要因の1つとして、中国 をはじめとした、東アジア大陸からの大気汚染物質排出量の増大の影響が考えられる。そこ で国内の光化学オキシダント濃度に対する、越境大気汚染の増大の影響の程度を把握する ことを目的として、シミュレーションによる解析を実施した。

### (2) シミュレーションの設定条件

シミュレーションの気象場、排出量の設定条件を表 3-2 に示した。その他のシミュレーション モデルの基本設定は、「2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ」と同様とした。基準ケー スは、気象場が異常年でないことが確認されている 2009 年とし、東アジア大陸及び国内の排 出量についても 2009 年として設定した(ケース A)。一方、気象場及び国内大気汚染物質排 出量を 2009 年で固定し、東アジア大陸からの大気汚染物質排出量のみを 2001 年の排出量 に差し替えた設定を比較ケース(ケース C)とした。すなわち、ケース C は 2009 年を基準とし て、仮に東アジア大陸での大気汚染物質排出量が 2001 年のままであった場合の状況に相 当する。なお、2009 年(本調査では 2008 年排出量と同値;2.3.1 参照)の東アジア大陸の大 気汚染物質排出量は、2001 年と比較すると NOx では 48%、VOC は 19% 増加している。一 方で国内排出量は、同期間で NOx は 23%、VOC は 42%減少している(図 2-4)。シミュレー ションは東アジア領域を対象として、60 km 格子で暖候期(4~9月)について実施した。

上記ケース A とケース C の計算結果より、九州地域及び関東地域に着目して、「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」について、評価を行った。また、越境大気汚染の月毎の影響を 把握するため「Ox 日最高 8 時間値の月平均値」についても評価を行った。

ケース	人為起源排出量の 設定年		気象場の	/# #
	東アジア 大陸	国内	設定年	)佣石
Α	2009 年			【基準ケース(2009年)】
С	2001年	2009 年	2009 年	2009 年を基準に、東アジア大陸の排出量のみ 2001 年相当に変更した場合

表 3-2 越境大気汚染の影響解析シミュレーションの設定

(3) 解析結果

ア.Oxの日最高8時間値の暖候期98%値への影響

ケース A とケース C について、計算格子毎に「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」 を算出した結果を図 3-4 に示す。また、ケース A とケース C の濃度差(ケース A – ケー ス C)を図 3-5 に、濃度比(ケース A/ ケース C)を図 3-6 に示す。

図 3-4より、2009年の基準ケース(ケース A)から、東アジア大陸の排出量のみ 2001年 に変更したケース(ケース C)では、中国大陸(華北平原)だけでなく東シナ海から日本海 の日本周辺でも「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」が低下する結果となった。すなわち、2001 年から 2009 年にかけての東アジア大陸の大気汚染物質の排出量増加によって、日本周辺の「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」が増大した可能性が示唆された。

図 3-5 及び図 3-6 より日本国内の「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」の濃度差 (比)に着目すると、九州地方で濃度差(比)が大きく、越境大気汚染の影響を強く受けてい るものと考えられる。また、全体的には西日本と比較すると東日本の方が濃度比は小さく、 越境大気汚染の影響も相対的に小さいものと判断される。なお、東北地方北部から北海道 にかけて濃度比がやや高くなっている傾向がみられるが、これらの地域では「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」の絶対値が低いため、わずかな濃度差でも濃度比としては大きく 算定されることに留意する必要がある。

さらに、九州地域及び関東地域について、「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」の濃度比(ケース A/ケース C)を集計したところ、九州地域は 1.08、関東地域は 1.02 となり、 九州地域の方が関東地域よりも、越境大気汚染の影響が相対的に大きいことが定量的にも 示された(図 3-7)。

なお、これらの傾向は基準ケースを2001年に設定(ケース A')し、東アジア大陸からの 排出量のみを2009年に差し替えたシミュレーション(ケース C')を実施し、同様に「Ox 日 最高 8 時間値の暖候期98%値」の濃度比(ケース C'/ケース A')を算出した場合でも確 認された(参考資料 図 15)。

ケース	人為起源排出量の 設定年		気象場の	(世 支
	東アジア 大陸	国内	設定年	加方
A'	2001 年		2001 年	【基準ケース(2001 年)】
C'	2009 年	2001年		2001 年を基準に、東アジア大陸の排出量のみ 2009 年相当に変更した場合

表 3-3 越境大気汚染の影響解析シミュレーションの設定(基準年変更)



ケース A(2009 年基準ケース) ケース C(東アジア大陸排出量を2001 年に変更) 図 3-4 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の分布(左図: ケース A 右図: ケース C)



図 3-5 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度差(ケース A-ケース C)



図 3-6 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度比(ケース A/ケース C)


図 3-7 地域別 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値及び濃度比(ケース A/ケース C)

#### イ. Ox 日最高8時間値の月平均値への影響

越境大気汚染の月毎の影響を把握するためケース A とケース C について、日最高 8 時間値の月平均値を算出した。それぞれのケースの日最高 8 時間値の月平均値の分布 及びと両ケースの濃度比(ケース A/ケース C)の分布を図 3-8 に示した。また、九州地 域及び関東地域の日最高 8 時間値の月平均値と濃度比を図 3-9 に示した。

図 3-8 のケース A の濃度分布より、2009 年暖候期は、6 月に中国大陸の濃度が最大となり、7 月は太平洋高気圧の張り出しにより、日本付近は濃度が比較的低い等の傾向がみられる。濃度比に着目した場合、沖縄~九州地域において、4~7 月にかけての濃度比が比較的大きいが、前述のとおり7 月については濃度の絶対値が比較的低いため、わずかな濃度差でも比が大きく算出される点には留意する必要がある。また、全体的な傾向として「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」と同様、東アジア大陸に近いほど濃度比が大きくなる傾向がみられる。

同様の傾向は図 3-9からも示唆され、九州地域における日最高8時間値の月平均値の 濃度比は4~7月が8、9月と比較すると大きくなり、最大で1.07程度であった。一方、関 東地域における日最高8時間値の月平均値の濃度比は、6~7月が他の月よりも大きい が、濃度比は最大で1.04程度であり、九州地域よりも小さい結果となった。

以上のことから、東アジア大陸におけるオキシダント前駆物質排出量の増加は、「Ox 日 最高8時間値の暖候期98%値」と同様に、Ox 日最高8時間値の月平均値についても増 大要因となり、関東地域よりも九州地域の方がその影響が大きいことが確認された。



図 3-8 Ox 日最高8時間値の月平均値及び濃度比(ケース A/ケース C)の分布

【九州地域】





図 3-9 地域別の Ox 日最高 8 時間値の月平均値及び濃度比(ケース A/ケース C)

# 3.1.3 NO タイトレーション効果の低下の影響解析

(1) 解析の目的

NO はオゾン(O<sub>3</sub>)と反応しオゾンを減少させるため(NO タイトレーション効果)、オゾン濃度 の変動要因について、オゾン濃度のみに注目した場合、オゾン生成そのものによるものか、タ イトレーションによるオゾン減少によるのかを判断することが困難である。「平成 25 年度検討 会報告書」においても我が国の光化学オキシダント濃度の長期トレンドには、窒素酸化物の 排出抑制による局所的な NO 濃度低下によってもたらされた「NO タイトレーション効果の低 下」による都市部における光化学オキシダント濃度の増加が示されている。

そこで、本解析ではオゾンとポテンシャルオゾン(PO)の変化量(ΔO<sub>3</sub>及び ΔPO)の差に着 目し、「NO タイトレーション効果の低下」による都市部における光化学オキシダント濃度の増 加について、シミュレーションモデルでも再現することを確認し、この現象を裏付けることを目 的とした。

(2) シミュレーションの設定条件及び評価方法

ア. シミュレーションの設定条件

シミュレーションの気象場、排出量の設定条件を表 3-4 に示した。その他のシミュレーシ ョンモデルの基本設定は、「2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ」と同様とした。基 準ケースは、気象場が異常年でないことが確認されている 2009 年の暖候期とし、東アジア 域を対象とした 60 km 格子及び関東領域を対象とした 10 km 格子で実施した計算結果を 解析した。基準ケースでは東アジア大陸及び国内の排出量についても 2009 年として設定 した(ケース A)。一方、比較ケースは 2001 年の大気汚染状況を再現したケースとした(ケ ース D)。すなわち、ケース D では、気象場、東アジア大陸及び国内排出量について全て 2001 年に設定した。また、参考ケースとして「3.1.2 越境大気汚染の解析結果」で実施し た、気象場及び国内大気汚染物質排出量を 2009 年で固定し、東アジア大陸からの大気 汚染物質排出量のみを 2001 年の排出量に差し替えたケース(ケース C)のシミュレーショ ン結果についても、評価を行った。

	大気汚夠	染物質排出量の設定年	左毎担の	
ケース	東アジア 大陸	国内	設定年	備考
Α	2009 年	2009 年	2009 年	【基準ケース(2009年)】
D	2001 年	2001 年	2001 年	【比較ケース(2001年)】
С	2001 年	2009 年	2009 年	【参考ケース】 東アジア大陸の排出量変 化のみを考慮したケース

表 3-4 NOタイトレーション効果低下の影響解析の設定ケース

イ. 評価方法

基準ケースから変更した比較ケースの計算結果(O<sub>3</sub>及び PO)について、基準ケースの 計算結果からの変化量(ΔO<sub>3</sub>及び ΔPO)を算出した場合、ΔO<sub>3</sub>に比べ ΔPO が小さい場合 は NO タイトレーションの効果の低下による影響が大きいと考えられる。一方、ΔO<sub>3</sub>と ΔPO の差が小さい場合、地域内生成または他地域からの移流により実質的に O<sub>3</sub>が増減したと 考えられる。

そこで、上記ケース A とケース D のシミュレーション結果から暖候期平均濃度を対象と した(ケース A - ケース D)により、 $\Delta O_3$ 及び  $\Delta PO$  を求め、空間分布を把握するとともに、 関東地域を対象として、 $\Delta O_3$ 及び  $\Delta PO$  の領域平均値を比較した。

(3) 解析結果

図 3-10 及び図 3-11 に、60 km 格子の暖候期平均のシミュレーション結果による(ケース A- ケース D)の ΔO<sub>3</sub>、 ΔPO 及び ΔO<sub>3</sub> - ΔPO の空間分布を示す。 図 3-11 から日本付近で は ΔO3、 ΔPO はどちらも九州から東シナ海にかけては正の値が分布しているが、 関東から近 畿・中国地方にかけては、一部の地域で負の値が分布している。ΔO3とΔPOの差は東京、名 古屋、大阪、福岡周辺で大きく(すなわち △O3 > △PO)、これらの地域では NO タイトレーショ ン効果の影響が大きいことが示唆される。また、関東領域 10km 格子のシミュレーション結果 による、ΔO3、ΔPO 及び ΔO3 - ΔPO の空間分布を図 3-12 に示す。図 3-12 より、関東地域で は ΔO<sub>3</sub>、 ΔPO はどちらも北関東で負の値となっている。 ΔO<sub>3</sub> と ΔPO の差は関東南部で大きな 正の値となっている。次に関東地域について月平均濃度の ΔO3 と ΔPO を比較した結果を図 3-13 に示す。図 3-13 より、暖候期を通じて、 $\Delta O_3 - \Delta PO$  は正の値(すなわち  $\Delta O_3 > \Delta PO$ )とな っており、関東地域ではNOタイトレーション効果低下の影響があったことが示唆される。ま た、この傾向は 60 km 格子よりも 10 km 格子の計算結果の方が顕著にみられる。このことは、 空間解像度を高くしたことにより、NOタイトレーション効果がよりなまされずに反映されたもの と思われ、都市大気のシミュレーションに 10 km 程度の解像度を用いることの優位性が示され たものと考えられる。また、測定値による解析結果(図 3-14)でも、関東地域の暖候期ではPO 濃度はほとんど変化がないにもかかわらず O3濃度のみが上昇しており、本調査のシミュレー ション結果は観測結果とも整合していることが確認された。

また、基準ケースに対して、東アジア大陸の排出量変化のみを考慮した参考ケースから(ケース A-ケース C)を算出し、同様に関東地域について月平均濃度の  $\Delta O_3 \ge \Delta PO$  を比較した結果を図 3-15 に示す。図 3-15 より、東アジアの排出量のみが 2001 年から 2009 年にかけて増加することは、 $O_3$ 及び PO 濃度の増大( $\Delta O_3$ 及び  $\Delta PO$  が正の値となる)につながるが、この場合  $\Delta O_3 \ge \Delta PO$  は、ほぼ同値であり、 $O_3$ そのものの移流が  $O_3$ 濃度増加に寄与していることが示唆される。

これらの結果から、関東地域については、2009年は2001年と比較して前駆物質(VOC及びNOx)の排出削減によって、POが暖候期平均では減少したものと考えられるのに対し、O3

濃度の変化は小さかったことから、NOx 排出量の削減により、NO 濃度が減少したことで、NO タイトレーション効果が低下したことが示唆された。



図 3-10 (ケース A-ケース D)の空間分布 (60 km 格子計算値 暖候期平均)



図 3-11 (ケース A-ケース D)の空間分布日本付近(60 km 格子計算値 暖候期平均)



図 3-12 (ケース A-ケース D)の空間分布 (10 km 格子計算値 暖候期平均)



図 3-13 関東地域における月別 ΔO3 及び ΔPO の比較(ケース A-ケース D)



図 3-14 関東地域における月別 ΔO3 及び ΔPO の比較 (測定値)



図 3-15 関東地域における月別 ΔO3 及び ΔPO の比較(参考ケース:ケース A - ケース C)

【参考: NO タイトレーション効果について】

NO はオゾン(O<sub>3</sub>)と反応しオゾンを減少させる。この「NO + O<sub>3</sub>  $\rightarrow$  NO<sub>2</sub> + O<sub>2</sub>」の反応によっ てオゾン濃度が減少する効果を「NO タイトレーション(titration)効果」と呼ぶ。オゾン濃度の変動 要因についてオゾン濃度のみに注目した場合、オゾン生成そのものによるものか、タイトレーショ ンによるオゾン減少によるのかを判断することが困難である。

ポテンシャルオゾン(PO)は NO によるタイトレーションでは変化せず、過酸化ラジカルと NO の 反応やオゾンの他地域からの移流の影響等があった場合は増加する。このことから、光化学オキ シダント濃度の変化量(ΔOx)と PO 濃度の変化量(ΔPO)より以下のことが推定できる。

・ΔOx に比ベΔPO が小:NO によるタイトレーション効果の影響が大きい

・ΔOx とΔPO の差が小:地域内生成または他地域からの移流により実質的に Ox 増加 本調査では(1)式により PO 濃度の算出を行っているが、α値は日本で推定されてきた一般的な 値である「0.1」を使用している。

(光化学オキシダント調査検討会「光化学オキシダント調査検討会報告書-今後の対策を見すえた調査研究のあり方について-」平成24年3月より抜粋)

#### 3.1.4 まとめ

(1) 前駆物質排出量変化(固定蒸発発生源の VOC 排出量削減)の影響

これまでの光化学オキシダント対策のうち、2006 年度(平成 18 年度)より実施された「揮発 性有機化合物(VOC)の排出抑制制度」について、光化学オキシダント濃度にどのような影響 があったかを把握することを目的として、シミュレーションによる解析を実施した。関東地域を 対象とした 10 km 格子のシミュレーションモデルにより、2009 年を基準として「揮発性有機化 合物(VOC)の排出抑制制度」が実施されなかった場合を想定した Ox 濃度を、基準ケースと 比較することによって評価を行った。

シミュレーションの結果から、固定蒸発 VOC 排出量の削減対策によって、関東地域では Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値が低下し、特に東京都東部から埼玉県東部における地 域で削減効果が大きいことが示唆された。これらの結果は、2013 年度(平成 25 年度)までに 実施した測定濃度の解析結果とも整合し、固定蒸発 VOC 排出量の削減による Ox 低減効果 が確認されたものと考えられる。

(2) 越境大気汚染増加の影響

国内の光化学オキシダント濃度に対する、越境大気汚染の増加の影響の程度を把握する ことを目的としてシミュレーションによる解析を実施した。東アジア域を対象とした 60 km 格子 のシミュレーションモデルにより、2009 年を基準として、仮に東アジア大陸での大気汚染物質 排出量が 2001 年のままであった場合の状況を再現した。この結果を基準ケースの Ox 濃度と 比較することによって評価を行った。

シミュレーションの結果から、東アジア大陸における Ox 前駆物質(VOC 及び NOx)排出量の増大によって、日本国内の広い範囲で Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の増加に寄与していることが示唆された。また、この増加割合は関東地域よりも九州地域の方が大きいことが確認された。

(3) NO タイトレーションの影響

関東地域における 2001 年と 2009 年のシミュレーション結果から、オゾン (O<sub>3</sub>)とポテンシャ ルオゾン (PO) の変化量 (ΔO<sub>3</sub> 及び ΔPO) の差に着目し、「NO によるタイトレーション効果の低 下」による都市部における光化学オキシダント濃度の増加の影響を評価した。

シミュレーションの結果から、 $O_3 \ge PO$ の暖候期平均濃度を 2001 年と 2009 年について比較すると、 $\Delta O_3 - \Delta PO$  は正の値(すなわち  $\Delta O_3 > \Delta PO$ )となっており、関東地域では NOx 排出削減に伴い、NO 濃度が減少したことにより NO タイトレーション効果が低下し、 $\Delta O_3$ 濃度の減少が抑制されたことが示唆された。また、この結果は測定データの解析結果とも整合していることが確認された。

## 3.2 前駆物質(VOC、NOx)排出量削減の感度解析結果

### 3.2.1 解析の目的

Ox 前駆物質である VOC や NOx 排出量を削減した場合に、Ox 濃度がどの程度変化するか (感度)を把握することは、今後の光化学オキシダント対策の検討において重要である。そこで本 調査では、気象場について異常年でないことが確認されている 2009 年の前後の年を含め、 2008 ~ 2010 年の関東地域を対象として、関東地域内の前駆物質排出量を段階的に削減したシ ミュレーションを実施し、前駆物質排出量削減が Ox 濃度に及ぼす影響を解析した。

### 3.2.2 シミュレーションの設定条件及び評価方法

(1) シミュレーションの設定条件

シミュレーションモデルの基本設定は、「2.4.3 シミュレーションモデルの設定のまとめ」と同様とし、本調査では2008~2010年の関東地域を解析対象として、10km格子でのシミュレーションを実施した。Ox前駆物質排出量については関東領域内の人為起源 VOC または人為起源 NOx を、図 3-16に示すように16ケース(oで示した排出量比率)で設定した。排出量比率は、基準年における人為起源 VOC 及び人為起源 NOx 排出量を100とした。

なお、親領域である東アジア領域の計算では排出量は変化させない(関東領域の境界値 は変化しない)こととしたが、VOC、NOx 排出量比をそれぞれ 50%にした条件のみ、親領域で ある東アジア領域の計算においても国内排出量を変化させた条件で計算を行い、両者の比 較を行った。



図 3-16 前駆物質排出削減感度解析における VOC 及び NOx 排出量の設定

## (2) 評価方法

ア.新指標相当値による評価

図 3-16 に示した 16 ケースでシミュレーションを実施し、VOC 及び NOx の排出量比率 を変えた場合の、関東地域におけるオキシダント新指標相当値を算出した。 「2.5 シミュレーションモデルの再現性の確認」で整理したとおり、本調査で用いたシミュレ ーションモデルは、基準ケースにおいて Ox 濃度を過大評価する傾向が確認されている。こ のため、本調査では米国 EPA のガイドライン(U.S.EPA, 2007)でも採用されている手法に準 じ、基準ケースと感度分析ケースの計算結果の比(レスポンスファクター: RF)を測定値に乗 じることで感度解析ケースにおける新指標相当値の評価を行った。





イ. 高濃度日発生日数による評価

前駆物質削減による Ox 濃度の評価指標として、Ox 日最高 8 時値による高濃度日発生 日数についても解析を行った。

高濃度日の閾値としては、「平成 25 年度検討会報告書」より昼間の Ox 1 時間最高値と 日最高 8 時間値の関係についての解析結果(図 3-19 及び 表 3-5)を参考に、昼間の Ox 1 時間最高値 60、80、120 ppb に概ね相当する日最高 8 時間値として 50、70、100 ppb の 3 つを設定し、この値以上となった日数を算出した。



図 3-19 昼間の1時間最高値と日最高8時間値の関係(関東地域全体) (光化学オキシダント調査検討会「光化学オキシダント調査検討会 報告書 -光化学オキシダ ントの解析と対策に向けた指標の提言-」平成26年3月より抜粋)

	都府県	一次回帰式 Y=1時間値 X=8時間値	1 時間値 =60 ppb	1 時間値 =80 ppb	1 時間値 =120 ppb
	千葉県	Y = 1.13 X - 0.02	53.0	70.7	106.0
	神奈川県	Y = 1.12 X + 0.91	52.5	70.3	105.9
8時間値	東京都	Y = 1.19 X - 1.09	51.2	68.0	101.5
(ppb)	埼玉県	Y = 1.20 X - 1.04	50.9	67.6	100.9
	栃木県	Y = 1.15 X + 0.21	51.9	69.3	104.0
	群馬県	Y = 1.16 X + 0.78	50.9	68.0	102.4

表 3-5 昼間の1時間最高値と日最高8時間値の関係(都県別)

(光化学オキシダント調査検討会「光化学オキシダント調査検討会 報告書 -光化学オキシダントの解析と対策に向けた指標の提言-」平成 26 年 3 月 より抜粋)

#### 3.2.3 排出量削減効果の概要

図 3-21 に本調査で対象とした 2008 ~ 2010 年の Ox 日最高 8 時間値の月平均値及び暖候 期平均の計算結果(3 年平均)を示す。図 3-21 より関東地域の Ox 日最高 8 時間値の月平均 値は、全般的に春季(4~6月)に高くなる傾向が示された。一方で7月及び8月については、 月平均濃度としては、相対的に低く、特に沿岸部付近では顕著であった。これらの傾向は図 3-22 に示したとおり、測定値の分布とも概ね一致することが確認できた。

また、2008 ~ 2010 年の Ox 日最高 8 時間値の月平均値について、基準ケースと排出量削減 ケース<sup>6</sup>の濃度比を 5 月(春季)、8 月(夏季)について整理した結果(3 年平均)を図 3-23 及び 図 3-24 に示す。この結果より、排出量削減ケースにおける Ox 日最高 8 時間値の月平均値の 変化量は、5 月(春季)の方が小さく、8 月(夏季)が大きいことが示された。

さらに、2008~2010年を対象とした V50-N50の排出量削減ケースについて、関東領域内の 排出量のみを変化させた場合(境界濃度は変わらない)と、親領域である東アジア域の日本国 内排出量から変化させた場合(境界濃度も変化する)の Ox 日最高 8 時間値の月別平均値を比 較した結果(3年平均)を図 3-25 に示す。図 3-25 の結果より、関東地域の内陸部は境界濃度 の影響は小さい一方で、沿岸部や千葉県では相対的に境界濃度の影響が大きいことが示唆さ れた。

同様に Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値についても境界濃度の変化の影響を比較した (図 3-26 ~ 図 3-27)。この結果からも、関東地域内陸部では境界濃度の変化の影響は小さい が、太平洋沿岸部や千葉県では、比較的影響が大きいことが示された。

これらの結果は、夏季には関東地域内で排出された前駆物質によって生成される Ox の影響 が大きいのに対して、春季には越境汚染を含む関東地域外からの流入影響が大きく、域内の生 成が少ないために、域内で排出された前駆物質の影響が小さくなるものと解釈される。

これらのことから、シミュレーションモデルによる前駆物質排出量削減の感度解析結果をOx 対策検討に活用する際には次の点に留意する必要がある。

- ・本調査の解析結果は、厳密には関東領域内のみの排出量を削減した場合の感度を評価したものである。そのため、境界濃度の寄与が相対的に大きくなる春季に高濃度が出現する年については、日本国内全体での排出量削減時と比較して感度が過小評価されている可能性がある。
- ・本調査では人為起源排出量のみを削減対象とした感度解析としている。このため、VOC に関しては植物起源 VOC の寄与があるため、人為起源 VOC 排出量比と VOC 全体の排出量比は異なる点に留意する必要がある。各感度解析ケースにおける、NOx 濃度及びNMHC 濃度の変化は参考資料 図 20~ 図 21 に示した。

<sup>&</sup>lt;sup>6</sup> 排出量削減ケースは次のように表記した。

*Vxx-Nyy xx*:VOC 排出量比 yy:NOx 排出量比 (例 V50-N50: VOC、NOx の排出量比をともに 50%としたケース)

- ・本調査では、基準ケースと感度分析ケースの計算結果の比(レスポンスファクター:RF)を測定値に乗じることで感度解析ケースにおける新指標相当値の評価を行ったが、本手法を用いた V0-N0等、基準ケースとは排出量が大きく異なる場合の推定結果については、妥当性等について今後検討の余地がある。
- ・感度解析結果の見方を図 3-20 に示したが、シミュレーションモデルの結果には不確実性が 伴うため、個別ケースの濃度そのものではなく、他の感度解析ケースや他地域の同一条件 での数値の大小関係(濃度差や濃度比等)に着目して解釈する必要がある。



各セル内の濃度(X)はモデルによる計算結果そのものではなく、下式によって推定した 値である。

X=(基準年における測定濃度)×(レスポンスファクター; RF)

\* RF= (感度解析ケースでのモデル計算値) / (基準ケースでのモデル計算値)

図 3-20 感度解析結果(濃度)の見方



図 3-21 Ox 日最高 8 時間値の月平均値の空間分布 3 年平均値(2008~2010 年) (基準ケースの計算値)



図 3-22 Ox 日最高 8 時間値の月平均値の空間分布 3 年平均値(2008~2010 年) (測定値)







図 3-24 前駆物質排出量削減ケースにおける Ox 日最高 8 時間値の月平均値の濃度比 3 年平均値(2008~2010 年)(基準ケースとの比 8 月)



図 3-25 親領域の国内排出量を変更した場合のOx日最高8時間値の月平均値の比較 3年平均値(2008~2010年)(V50-N50ケース)



図 3-26 Ox 新指標相当値の分布(2008~2010年)



図 3-27 Ox 新指標相当値の差の分布(②-①) (2008~2010 年)

#### 3.2.4 Ox 新指標相当値及び高濃度日発生日数による評価

(1)新指標相当値による評価

前駆物質排出量削減時の Ox 新指標相当値(Ox の日最高 8 時間値の暖候期 98%値の 3 年平均値)を算出し、都県別に整理した結果を図 3-28 に示す。

図 3-28 より新指標相当値は、VOC 排出量を削減した場合は全都県で減少する傾向が見られた。また、NOx 排出量が変化しない場合は、どのケースにおいても VOC 排出量削減により、Ox 新指標相当値が減少する傾向が見られた。VOC 排出量のみの削減効果として V50-N100 の削減ケースに着目した場合、埼玉県で最大 9.0 ppb 低下する結果となった。

NOx 排出量を削減した場合は、Ox 新指標相当値が増大する傾向が多くの都県で見られ、 特に埼玉県、東京都、神奈川県で顕著であった。この傾向は NOx 排出量のみを削減したケ ースで顕著であり、NOx 排出量のみの削減効果として V100-N50 の削減ケースに着目した場 合、埼玉県、東京都及び神奈川県ではそれぞれ 10.8 ppb、13.0 ppb、9.6 ppb 増加する結果と なった。

また、VOCとNOx 排出量を同時に削減したケース(例: V50-N50)では、概ね VOC 排出量 のみ削減ケース(V50-N100)とNOx 排出量のみ削減ケース(V100-N50)の中間的な効果を示 した。ただし、群馬県や山梨県においては、両ケースよりも削減効果が大きい結果が示され た。

これらの結果は、既存の観測データ解析やモデル解析に基づく調査結果(井上ら,2010; 神成,2006; Kiriyama et al.,2010)とも整合しており、東京湾周辺の都市域(発生源地域)では VOC 律速であるが、発生源から離れるにしたがってレジームシフトを起こし、内陸地域(風下 地域)では NOx 律速になるという O<sub>3</sub> 生成・消滅機構によって理論的に説明できる(参考資料 図 16)。

前駆物質排出量削減時の新指標値の変化傾向は、都県によって異なるものの、茨城県、 栃木県、群馬県で比較的類似性が高く、同様に埼玉県、東京都、千葉県、神奈川県で類似 性が見られた。前者を北関東、後者を南関東と定義して、各地域に属する都県の平均値を整 理した結果を図 3-29 に示す。

地域別の特長として、北関東では VOC 排出量の削減が Ox 新指標相当値の低減に大きく 寄与するが、NOx 排出量のみの削減ではほとんど変化がないことが示唆された。また、VOC と NOx 排出量を同時に削減すると、VOC のみ削減時より、Ox 低減効果がやや大きくなるこ とが示唆された。一方で、南関東では北関東と同様に、VOC 排出量の削減は Ox 新指標相 当値の低減に大きく寄与するが、NOx 排出量は 25%程度までの削減では新指標値の増大 に寄与する可能性が示唆された。また、VOC と NOx の同時削減ケースでは、それぞれ単独 の排出量削減ケースの中間的な効果を示した。

			"津庄」	[nnh]						<del></del> г	ベー	スケースを	:した <b>油 広 比</b> [0/]				
			版区	[hhn]						<u>夏</u> 差[p	ַמ	. <u> </u>		_ 濃度.	<u>[[</u> ]		
		25	50	75	100			25	50	75	100		25	50	75	100	
¥	100	83.3	85.2	87.1	89.0		100	-5.6	-3.7	-1.9	0.0	100	93.7	95.8	97.9	100.0	
次城	75	83.8	85.7	87.9	90.1		75	-5.1	-3.3	-1.0	1.1	75	94.2	96.3	98.8	101.2	
城	50	83.9	85.9	87.9	89.6		50	-5.1	-3.1	-1.1	0.7	50	94.3	96.6	98.8	100.7	
	25	82.6	83.6	84.5	85.2		25	-6.4	-5.4	-4.4	-3.8	25	92.8	94.0	95.0	95.7	
		25	50	75	100	1		25	50	75	100	I	25	50	75	100	
뜎	100	86.7	88.8	90.9	93.2		100	-6.5	-4.4	-2.2	0.0	100	93.1	95.3	97.6	100.0	
你	75	86.0	88.2	90.8	94.2		75	-7.2	-5.0	-2.4	1.0	75	92.3	94.6	97.4	101.1	
県	50	85.9	89.3	92.6	95.6		50	-7.2	-3.9	-0.6	2.4	50	92.2	95.8	99.3	102.6	
	25	85.3	86.8	88.2	89.2		25	-7.9	-6.4	-5.0	-4.0	25	91.5	93.1	94.7	95.8	
		25	50	75	100		I	25	50	75	100		25	50	75	100	
₽¥	100	90.9	93.7	96.5	99.3		100	-8.4	-5.6	-2.8	0.0	100	91.6	94.3	97.1	100.0	
町馬	75	89.2	92.0	95.4	98.6		75	-10.1	-7.3	-3.9	-0.7	75	89.9	92.7	96.1	99.3	
県	50	88.0	91.3	94.3	96.8		50	-11.2	-8.0	-5.0	-2.5	50	88.7	91.9	94.9	97.5	
	25	84.4	85.9	87.3	88.6		25	-14.9	-13.4	-12.0	-10.7	25	85.0	86.5	87.9	89.2	
												· 					
		25	50	75	100		1	25	50	75	100	1	25	50	75	100	
.1.	100	84.8	85.6	86.3	87.2		100	-2.4	-1.6	-0.9	0.0	100	97.3	98.1	98.9	100.0	
山利	75	84.0	84.7	85.4	86.3		75	-3.2	-2.5	-1.8	-0.9	75	96.3	97.1	98.0	99.0	
未県	50	82.8	83.3	83.8	84.2		50	-4.4	-3.9	-3.5	-3.1	50	94.9	95.5	96.0	96.5	
	25	80.8	80.9	81.1	81.3		25	-6.5	-6.3	-6.1	-6.0	25	92.6	92.8	93.0	93.1	
		VO	о <del>н</del> еци.	르바/ჿ	0	Γ	濃度					1					
		25	<b>C19F田</b> 50	<b>里に</b> (9 75	<b>•</b> ) 100				78		00	00 02		100			
(%)	100	$\triangleleft$	<b>VOC</b> 肖	削減	- 0	70	濃度差	É	10		ŏŏ	90 92		102			
빠 거	75			NOx		-2	0		-12		-4	-2 2 4		1			
)x排出	50			削洞	د		濃度と	Ł								(p	
ŭ	25				$\bigtriangledown$	80	)		88		94	98 102 10	4	11	2	1	



(都県別 Ox 新指標相当值:茨城県、栃木県、群馬県、山梨県)

			濃   唐	[nnh]						×¥[	ベー	スケースを	を基準とした					
			版区	hhn			l			<u>z 走 [p</u>	ַמַק	·		<u> </u>	<u>[[</u> ]			
	I	25	50	75	100		1	25	50	75	100	I	25	50	75	100		
亾	100	89.3	92.9	97.1	101.8		100	-12.6	-9.0	-4.8	0.0	100	87.6	91.2	95.3	100.0		
均玉	75	91.9	96.2	101.4	107.2		75	-10.0	-5.6	-0.5	5.4	75	90.2	94.5	99.5	105.3		
上県	50	95.4	101.1	107.1	112.7		50	-6.4	-0.8	5.3	10.8	50	93.7	99.2	105.2	110.6		
	25	98.8	102.7	106.0	108.6		25	-3.1	0.9	4.1	6.7	25	97.0	100.9	104.0	106.6		
	I	25	50	75	100	Ì	1	25	50	75	100	1	25	50	75	100		
Ŧ	100	78.0	79.2	80.5	81.9		100	-3.9	-2.7	-1.5	0.0	100	95.2	96.7	98.2	100.0		
」 葉	75	79.4	80.6	82.1	84.1		75	-2.6	-1.3	0.2	2.1	75	96.9	98.4	100.2	102.6		
~ 県	50	80.8	82.4	84.4	86.4		50	-1.2	0.4	2.4	4.4	50	98.6	100.5	103.0	105.4		
-	25	81.5	82.6	83.8	84.9		25	-0.5	0.7	1.8	2.9	25	99.4	100.8	102.2	103.6		
	100	25	50	75	100			25	50	75	100	]	25	50	75	100		
申	100	84.8	88.4	92.5	97.0		100	-12.3	-8.7	-4.5	0.0	100	87.4	91.1	95.3	100.0		
不京	75	89.7	93.6	98.1	103.4		75	-7.3	-3.4	1.1	6.3	75	92.5	96.5	101.1	106.5		
都	50	94.8	99.3	104.7	110.0		50	-2.2	2.3	7.7	13.0	50	97.7	102.4	108.0	113.4		
	25	98.2	101.9	105.4	108.3		25	1.1	4.9	8.4	11.3	25	101.2	105.0	108.7	111.6		
	1	25	50	75	100		1	25	50	75	100	ı	25	50	75	100		
神	100	85.0	86.4	88.3	90.6		100	-5.6	-4.2	-2.4	0.0	100	93.8	95.3	97.4	100.0		
奈	75	87.3	89.2	92.2	95.7		75	-3.3	-1.4	1.6	5.0	75	96.3	98.5	101.7	105.5		
Ш	50	91.1	93.9	96.8	100.2		50	0.5	3.3	6.1	9.6	50	100.6	103.7	106.8	110.6		
県	25	92.8	95.1	97.3	99.5		25	2.2	4.5	6.7	8.8	25	102.4	104.9	107.4	109.8		
		VO	C排出		(-)	[	濃度					-						
		25	<b>5</b> 0	<b>至此</b> (7 75	100	7(	<u>ן</u>		78		88	90 92		1(	)2			
(%)	100	0 <●●			[	, 濃度詞	É	10		00	JU JZ		102					
번 문 건	75			NOx 当时运	c l	-2	20		-12		-4	-2 2 4		1	2			
Ox排E	50		削減				濃度比	t										
ž	25				$\vee$	8	0		88		94	98 102 10	)4	11	12			

図 3-28(2) Ox 前駆物質削減効果

(都県別 Ox 新指標相当値:埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県)



図 3-29 Ox 前駆物質削減効果(地域別 Ox 新指標相当値)

(2) 高濃度発生日数による評価

前駆物質排出量削減時に Ox 日最高 8 時間値が 50 ppb、70 ppb、100 ppb を越えた日数 について、都県別に整理した結果を図 3-30 に、基準ケースにおける発生日数からの変化率 を整理した結果を図 3-31 に示す。

図 3-30 及び図 3-31 より、Ox 日最高 8 時間値が 50 ppb の発生日数は排出量削減による 変化が少なく、100 ppb 以上の発生日数は変化が大きい結果となった。70 ppb 以上の発生日 数は 50 ppb と 100 ppb の中間的な変化量となる都県が多く見られた。例として VOC 排出量 を 50%削減したケース(V50-N100)では、Ox 日最高 8 時間値が 50 ppb 以上の日数は 5 ~ 10%しか減少しないが、100 ppb 以上の日数は 38 ~ 58%減少する。このことから、高濃度事例 において前駆物質排出量削減の感度が大きくなることが示唆された。

Ox 日最高 8 時間値が 100 ppb 以上の発生日数に着目した場合、VOC 排出量のみを 50%に削減したケース(V50-N100)では、各都県とも出現日数が基準ケースの 50%程度まで 減ることが予想される一方で、NOx 排出量のみを 50%に削減したケース(V100-N50)では群 馬県、山梨県を除いて、基準ケースよりも発生日数が増加する結果となった。また、VOC と NOx 排出量の同時削減ケース(V50-N50)では、Ox 新指標相当値での評価と同様に、概ね VOC 排出量のみ削減ケース(V50-N100)と NOx 排出量のみ削減ケース(V100-N50)の中間 的な効果を示した。ただし、群馬県や山梨県においては、両ケースよりも削減効果が大きい結 果が示された。

閾値別に見た場合の前駆物質排出量削減による変化傾向は、山梨県、千葉県、東京都、 神奈川県ではどの濃度でも Ox 新指標相当値と類似した傾向が見られた。茨城県、栃木県で は NOx 排出量のみ削減による日数の増大傾向は、100 ppb 以上において顕著であり、50 ppb 及び 70 ppb 以上の発生日数では微増または減少傾向となる。

新指標相当値での評価と同様に、高濃度発生日数についても北関東、南関東で平均し整理した結果を図 3-32、図 3-33に示す。図 3-32及び図 3-33より、北関東では、Ox 日最高8時間値が100 ppb以上の発生日数に着目した場合、VOC 排出量の削減は高濃度発生日数の削減に大きく寄与するが、NOx 排出量のみの削減では50%程度の削減まで減少に寄与しない可能性が示唆された。50 ppb以上及び70 ppb以上の発生日数については VOC とNOx 排出量どちらの削減においても減少する可能性が示唆された。また、VOC と NOx 排出量を同時に削減した場合、VOC のみ削減時とほぼ同等か、より大きく高濃度発生日数の削減に寄与することが示唆された。

南関東では、Ox 日最高 8 時間値が 100 ppb 以上の発生日数に着目した場合、北関東と 同様に VOC 排出量の削減は高濃度発生日数の削減に大きく寄与するが、NOx 排出量は 25%程度の削減までは発生日数の増大に寄与する可能性が示唆された。また、VOC と NOx 排出量を同時に削減した場合には、それぞれ単独に削減した場合の中間的な効果を示し た。

		E	∃最高 50 pp	8時間 <sup>,</sup> <b>b以上</b>	値			E	]最高 <mark>70 pp</mark>	8時間 <b>b以上</b>	値 			日最高8時間値 100 ppb以上				
		25	50	75	100			25	50	75	100			25	50	75	100	
	100	235	242	247	254		100	50	56	61	67		100	1	2	2	4	
茨	75	240	246	251	256		75	53	57	64	70		75	1	2	3	4	
巩旦	50	238	243	246	250		50	52	57	62	67		50	1	2	3	4	
	25	222	224	226	227		25	43	45	47	49		25	1	2	2	2	
												, 						
	]	25	50	75	100	1		25	50	75	100	1		25	50	75	100	
栃	100	265	274	282	291		100	72	81	89	99		100	2	3	5	7	
木	75	262	270	278	285		75	69	78	86	94		75	2	4	5	8	
県	50	248	256	263	267		50	63	70	77	83		50	3	5	7	9	
	25	216	219	222	224		25	50	54	57	59		25	3	4	4	5	
		25	50	75	100			25	50	75	100			25	50	75	100	
	100	324	334	342	350		100	114	128	141	152		100	4	6	9	12	
群	75	323	333	341	349		75	105	119	131	142		75	3	5	7	11	
馬	50	307	316	322	327		50	92	103	111	119		50	3	5	7	9	
県	25	268	272	275	277		25	63	68	72	75		25	3	4	4	5	
	j					J						J						
	1	25	50	75	100			25	50	75	100			25	50	75	100	
	100	272	276	280	287		100	71	73	77	81		100	1	2	2	3	
山梨	75	260	265	271	274		75	65	68	70	73		75	1	1	2	2	
県	50	244	247	251	254		50	57	59	62	64		50	1	1	1	2	
	25	221	222	223	224		25	46	47	47	48		25	0	1	1	1	
			VOC掛	出量比	<b>է</b> (%)			50 ppb	<b>以上</b> の	発生日	数							
		100	25 5 	0 75	100 — •		100		160	0	22	20	2	80		340		
	%) <b>겨</b> 룉	75	V	OC削減	NOx			70 ppb	以上の	発生日	数					1.0.0		
	x排出₫	50		i	削減		0	L00 pp	30 <b>b以上</b> 0	, D発生E	6 ∃数	U	90 1			120	150 (日	
	NO	25			$\forall$		0		6		1	2		18 24			30 (日	

図 3-30(1) 都県別の暖候期積算 Ox 高濃度日発生日数 (測定局あたり、3 年積算日数:茨城県、栃木県、群馬県、山梨県)

		E	∃最高 50 pp	8時間 <b>b以上</b>	值 -	]		E	∃最高 <b>70 pp</b>	8時間 <sup>·</sup> <b>b以上</b>	値			E	∃最高8時間値 <b>100 ppb以上</b>			
		25	50	75	100			25	50	75	100			25	50	75	100	
	100	283	299	313	326		100	83	98	115	132		100	3	6	9	14	
均工	75	304	318	331	341		75	95	113	131	148		75	5	8	14	22	
工県	50	312	324	333	341		50	106	122	138	150		50	7	14	20	26	
	25	294	302	307	311		25	101	109	115	120		25	12	15	18	21	
	100	25	50	/5	100		100	25	50	75 26	100		100	25	50	75	100	
千	100	1/9	100	191	198		100	30	33	30	40		100	1	1		2	
葉	75	193	199	204	209	· .	/5	35	38	43	47		75	1	1	2	2	
県	50	202	207	211	215		50	40	44	50	54		50	1	2	2	3	
	25	200	203	206	208		25	43	47	50	52		25	1	2	2	3	
		25	50	75	100			25	50	75	100			25	50	75	100	
	100	222	237	251	264		100	57	67	78	90		100	3	4	6	10	
東	75	257	271	284	295		75	75	87	100	113		75	4	7	11	16	
示    都	50	282	295	306	316		50	93	106	118	131		50	7	12	17	23	
HI-	25	290	299	306	311		25	101	110	119	126		25	11	14	18	21	
	100	25	50	75	100		100	25	50	75	100		100	25	50	75	100	
神	100	189	197	205	213	-	100	46	51	56	63		100	2	3	4	5	
奈	75	209	217	225	233	· .	75	55	62	69	77		75	3	4	5	7	
川	50	226	234	242	248		50	66	75	82	89		50	4	6	8	10	
75	25	231	238	243	247		25	72	76	81	85		25	5	7	8	10	
			VOC掛	作出量と 0 75	<mark>분 (%)</mark>		[	50 ppb	以上の	発生日	数							
	(%	100	$\triangleleft$		o		100	70	16	) 20	22 */	20	2	80		340	40 (E	
	·) 光 ()	75	v	して印候	NOx		0	ro ppb	30	光土口 )	<u>مر</u> ۶	0		90		120	14	
	)x排出	50			削減			100 pp	b以上	D 発生E	∃数	~					(E	
	Ň	25			$\bigtriangledown$		0		6		1	2	18 24				3 (E	

図 3-30(2) 都県別の暖候期積算 Ox 高濃度日発生日数 (測定局あたり、3 年積算日数:埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県)











図 3-32 地域別の暖候期積算 Ox 高濃度日発生日数(測定局あたり、3 年積算日数)



図 3-33 地域別の暖候期積算 Ox 高濃度発生日数の変化率(基準ケース比)

### 3.2.5 まとめ

関東地域における VOC 及び NOx の排出削減効果を評価するために、10 km 格子のシミュ レーションモデルを用い、関東地域の 2008 ~ 2010 年を対象として、人為起源排出量の削減に 伴う感度解析を実施した。解析にあたっては、基準ケースと感度分析ケースの計算結果の比(レ スポンスファクター: RF)を測定値に乗じることで感度解析ケースにおける Ox 濃度の評価を行っ た。

(1) Ox 新指標相当値による評価

VOC 排出量を削減すると各都県で新指標相当値は減少し、VOC のみ 50%削減ケースでは、埼玉県で最大 9.0 ppb 低下する結果となった。一方、NOx 排出量を削減したケースでは、新指標相当値が増大することがあり、特に NOx のみ 50%削減ケースにおける埼玉県(10.8 ppb 増加)、東京都(13.0 ppb 増加)、神奈川県(9.6 ppb 増加)で顕著であった。また、 VOC と NOx 排出量を同時に 50%削減したケースでは、概ね VOC 排出量のみ削減ケースと NOx 排出量のみ削減ケースの中間的な効果(即ち、NOx 削減ケースよりも効果はあるが VOC 削減ケースに比べると小さい)を示したが、北関東では、VOC と NOx 排出量を同時に 削減すると、VOC のみ削減時より、Ox 低減効果がやや大きくなることが示唆された。

(2) 高濃度発生日数による評価

Ox 日最高 8 時間値が 50 ppb、70 ppb、100 ppb を閾値として、前駆物質排出量削減時に それぞれの閾値を越えた日数について、都県別に整理した。閾値が 50 ppb の発生日数は排 出量削減による変化が少なく、100 ppb 以上の発生日数は変化が大きい結果となった。Ox 日 最高 8 時間値が 100 ppb 以上の発生日数に着目した場合、VOC 排出量のみを 50%に削減 したケースでは、各都県とも出現日数が基準ケースの 50%程度まで減ることが予想される一 方で、NOx 排出量のみを 50%に削減したケースでは群馬県及び山梨県を除いて、基準ケー スよりも発生日数が増加する結果となった。また、VOC と NOx 排出量を同時に 50%削減した ケースでは、Ox 新指標相当値での評価と同様に、VOC 排出量のみ削減ケースと NOx 排出 量のみ削減ケースの中間的な効果を示したが、北関東では、VOC のみ削減時とほぼ同等 か、より大きく高濃度発生日数の削減に寄与することが示唆された。

#### 3.3 シミュレーションモデルによる解析のまとめ

### 3.3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因

2013 年度(平成 25 年度)までの調査結果において、関東、中部、関西及び九州の4地域を 対象に、2001~2010年に一般環境大気測定局で測定された Ox 濃度等の長期変化を解析し た結果、Ox 新指標による長期トレンドの変化は「前駆物質排出量の変化」「越境大気汚染の増 加」「NO タイトレーション効果の低下」の3つの要因が組み合わさっていることが示唆された。そ こで、シミュレーションモデルを用いてこれらの要因を解析した結果、以下の点が確認された。

#### ① 前駆物質排出量変化(固定蒸発発生源の VOC 排出量削減)の影響

固定蒸発 VOC 排出量の削減対策によって関東地域では Ox 新指標相当値が低下し、特に 東京都東部から埼玉県東部における地域で削減効果が大きい。これらの結果は、2013 年度 (平成 25 年度)までに実施した測定濃度の解析結果とも整合しており、固定蒸発 VOC 排出量 の削減による Ox 低減効果が確認されたと考えられる。

2 越境大気汚染増加の影響

東アジア大陸における Ox 前駆物質 (VOC 及び NOx) 排出量の増大によって、日本国内の 広い範囲で Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98% 値が増加した。この増加割合は関東地域よりも 九州地域の方が大きい。

③ NO タイトレーションの影響

関東地域において O<sub>3</sub> と PO の濃度を 2001 年と 2009 年について比較すると、 $\Delta O_3 - \Delta PO$  は 正の値(すなわち  $\Delta O_3 > \Delta PO$ )となっており、関東地域では NOx 排出削減に伴い、NO 濃度が 減少したことにより NO タイトレーション効果が低下し、O<sub>3</sub> 濃度の減少が抑制されたことが示唆さ れた。

#### 3.3.2 前駆物質排出量削減の感度解析

関東地域における VOC 及び NOx の排出削減効果を評価するために、10 km 格子のシミュ レーションモデルを用い、関東地域の 2008 ~ 2010 年を対象として、人為起源排出量の削減に 伴う感度解析を実施した。Ox 濃度の解析結果を要約すると以下のとおりである。

・関東領域内の VOC 及び NOx 排出量を一律に 25%刻みで 25~100%に削減した場合のシ ミュレーション結果によると、VOC 削減は Ox 高濃度事例の減少につながるが、NOx 削減 だけを実施すると、東京湾周辺の南関東においては Ox 高濃度事例が増加する可能性が 示された。また、VOC 及び NOx を同時に削減すると、それぞれの物質を同じ割合だけ削減 したケースに比べて中間的な効果(即ち、NOx 削減ケースよりも効果はあるが VOC 削減ケ ースに比べると小さい)を示すが、北関東では VOC と NOx 排出量を同時に削減すると、 VOC のみ削減時より、Ox 低減効果が同等かやや大きくなる可能性が示された。
- ・物質別の排出削減効果に着目すると、内陸域では VOC 及び NOx の同時削減が Ox 低減 に有効であるのに対して、東京湾周辺域では特に VOC 削減による効果が顕著である。
- ・これらの結果は、既存の調査研究結果(観測データ解析やモデル解析に基づく結果)とも整合しており、東京湾周辺域(発生源地域)では VOC 律速であるが、発生源から離れるにしたがってレジームシフトを起こし、内陸域(風下地域)では NOx 律速になるという O3 生成・ 消滅機構によって理論的に説明できる。
- ・季節別に着目すると、一般的に夏季における Ox の低減効果は大きいことから、夏季の注意 報発令日の低減対策としては有効である一方、春季における効果は限定的である。この原 因として、夏季には関東地域内で排出された前駆物質によって生成される Ox の影響が大 きいのに対して、春季には大陸からの越境汚染を含む関東地域外からの流入影響が大き く、域内の生成が少ないために、域内で排出された前駆物質の影響が小さくなるものと考え られる。
- ・域内の排出削減によって夏季のOx高濃度が低減しても春季の低減効果が小さいために、
   春季に高濃度が発生しやすい年には排出削減効果が小さくなりやすい。このことから、新指標値や各年の暖候期98%値を大幅に低減するためには、域内の排出削減と同時に、大陸からの越境汚染を含む域外での対策が必要である。

#### 3.3.3 モデルの不確定性について

「2.5 シミュレーションモデルの再現性の確認」で整理したとおり、本調査で用いた大気質シミュレーションモデルについては、Ox 濃度の過大評価や VOC 及び NOx 濃度の過小評価の傾向等課題が明らかとなった。このような課題については、下記のような要因が影響しているものと考えられる。

【排出インベントリの不確実性に起因するもの】

- ・年間排出量や排出量の空間分布・月別・時刻別排出量の実態との乖離
- ・発生源別 VOC 組成の不確実性
- ・植物起源 VOC 排出量の不確実性
- ・未把握 VOC 発生源・成分(Missing VOC)の存在 等

【シミュレーションモデルに起因するもの】

- ・モデルでは未考慮のO3生成・消滅過程の存在
- ・風や気温・日射量(紫外線量)等の気象場の再現性不足
- ・モデル境界値の不確かさ
- ・格子サイズの違いにより再現可能な大気現象の限界 等

【その他】

- ・計算値と比較できる観測データの不足
- ・計算値と比較する観測データの代表性・測定誤差 等

今後の大気環境施策検討におけるシミュレーションモデルの更なる活用に向けては、これらの要因について分析を行い、改善を図る必要があるものと考えられる。本調査では、これらの要因のうち、「植物起源 VOC 排出量の不確実性」と「未把握 VOC 発生源・物質(Missing VOC)の存在」がシミュレーション結果に及ぼす影響について整理した。

(1) 植物起源 VOC 排出量の不確実性

植物起源 VOC (BVOC)は、大気中における反応性が比較的高い物質が多く、Ox 生成 にも大きな影響を与えている。一方で、その排出量の推計値には不確実性が大きく、大気質 シミュレーションモデルに入力する BVOC 排出量の違いは、Ox 濃度の再現性や、Ox 濃度の NOx、VOC 排出量に対する感度の予測結果にも大きな影響を及ぼすことが指摘されている (井上ら, 2010)。

本調査においては、BVOCの排出量は、MEGANを用いて推計を行い、時刻別にモデル に入力したが、BVOC 排出量は樹種や生育環境により大きく異なることが指摘されている (松永, 2010; 松永ら, 2012; Bao et al., 2008)。MEGAN では樹種による基礎放出量の違いや 気温や日射量による BVOC 排出量の変動は考慮されているものの、日本国内の BVOC の 排出実態を必ずしも反映していない可能性がある。そこで、本調査では、MEGAN で推計さ れた BVOC 排出量を 1/2 倍及び 2 倍にしたケースでシミュレーションを行い、「3.2 前駆物質 (VOC、NOx)の排出量削減の感度解析結果」に及ぼす影響を確認した(参考資料 図 17~ 図 19 に掲載)。

前駆物質排出量を削減した場合の Ox 濃度におよぼす感度を比較するため、BVOC 排出 量が標準の場合(BVOC×1と表記)とBVOC 排出量を2倍とした場合(BVOC×2と表記) の 2009 年 8 月を対象とした排出量削減ケースの Ox 日最高 8 時間値月平均値(図 3-17 に 示したフローにしたがって測定値に RFを乗じた推定値)を図 3-34 に示す。この結果より BVOC×2 では Ox 前駆物質の削減効果は、BVOC×1と比較して VOC のみを削減した場 合の感度が低下し(Ox 濃度があまり低下しなくなる)、NOx も併せて削減した場合には感度 が増加する(Ox 濃度がより低下するようになる)。地域別では群馬県、埼玉県、東京都で感度 変化が顕著であった。

NOx、VOC 双方の排出量を 50%削減したケース(V50-N50)における Ox 日最高 8 時間値 の 8 月平均値に着目すると、BVOC × 2 と BVOC × 1 の差は最大 2 ppb 程度であった。この ため今回の解析事例では BVOC 排出量の不確実性が Ox 濃度の再現性に与える影響はそ れほど大きくないと言える。しかし、定性的には前駆物質排出量削減の感度は変化し、事例 日によっては本調査事例よりも大きな影響を及ぼす可能性もある。また、BVOC × 2 では山間 部を中心に NMHC 濃度が 1.5 倍程度まで増加することから、BVOC 排出量の不確実性は現 状のシミュレーションモデルにおける NMHC 濃度の過小評価の一因となっていることも考えら れる。このため、今後の Ox 対策を検討するうえでは日本国内の BVOC 排出量の実態把握、 BVOC 排出インベントリの精緻化が望まれる。



図 3-34(1) 都県別のOx 日最高8時間値の8月平均値 (左:BVOC×1における推定値、中央:BVOC×2における推定値、右:差分)





(2) 未把握 VOC 発生源・成分 (Missing VOC) の影響検討

「2.5 シミュレーションモデルの再現性の確認」で整理したとおり、本調査におけるシミュレーションモデルでは、NMHC が測定値に比較すると過小評価となっている。シミュレーションモデルによる NMHC の過小評価は他の先行事例でも見られ、モデルで考慮する VOC 成分を増やすと、NMHC の計算値と測定値の乖離が小さくなる事例が報告されている(Kanaya et al., 2007)。NMHC の過小評価は、本調査で使用した排出インベントリでは「2.3 排出インベントリデータの整理」で記載のとおり、植物起源・人為起源ともに、現時点で把握しうる VOC 発生源からの排出量を考慮しているものの、未把握の発生源・物質が存在している可能性を示唆している。また、既知の発生源についても排出量の推定については不確かさがあり、これがNMHC の過小評価に関連している可能性もある。

大気中には、数百種以上の VOC が存在するとされるが、全成分について濃度を把握する ことは困難である。過去の調査事例では埼玉県内の 100 成分の個別 VOC の積算値が NMHC 濃度のおよそ 7 割に相当する事例(埼玉県, 2016)や千葉県内の 43 成分の個別 VOC 濃度の積算値が NMHC 濃度の 4 割程度であった事例(竹内ら, 2010)、関東地方での 63 成分の個別 VOC 濃度の積算値が NMHC 濃度の 5 割程度であった事例(佐々木ら, 2009)等が報告されている。したがって、NMHC の測定濃度をシミュレーションモデルで精度 よく再現するためには、NMHC として寄与が大きい VOC 成分を把握し、排出インベントリや モデル上で考慮する必要がある。

このように、光化学オキシダントの重要な前駆物質である VOC は、もう一方の前駆物質で ある NOx と比較すると、排出インベントリについて、排出量、組成、空間・時間配分において、 現状では不確実性が大きく、精緻化が必要と考えられる。また、最近の研究では、NMHC 濃 度とは別に、大気成分の個別濃度の測定結果と各成分の OH ラジカル反応性を考慮して積 算した OH 反応性についても、実測された OH 反応性と比較すると小さいことが指摘されてい る(中嶋ら, 2009; Chatani et al., 2009)。これは、大気中にはオキシダント生成に関わる未把握 VOC (Missing VOC)が存在することを示唆しており、これらの未把握 VOC については、現状 の大気質シミュレーションモデルでは考慮されていない。

すなわち、一次排出の VOC 及び、大気中での反応過程において二次的に生成する VOC について、未把握の VOC が存在していると考えられ、本調査ではこれらを Missing VOC と定義して、光化学オキシダント生成に与える影響を考察した最近の調査事例について、文献整理を行った(参考資料 表 28~表 31)。

これら既往調査の結果から、Missing VOC の存在は、シミュレーションモデルにおける、Ox 濃度の再現性及び前駆物質排出量を変化させた場合の感度にも影響する可能性が示唆さ れた。しかしながら、NMHC 濃度や OH 反応性における計算値と測定値との乖離が何に起因 しているかは、現時点では明確となっていない。したがって、今後シミュレーションモデル結果 の信頼性を向上させる上では、Missing VOC の実態解明ならびにモデルへの反映にも取り 組む必要があると考えられる。

## 4 今後の調査研究のあり方と課題

#### 4.1 モニタリングに関する課題

光化学オキシダント対策を検討するためには、前駆物質の継続的なモニタリングデータを蓄積 するとともに、光化学オキシダントのモニタリングの精度管理を適切に行うことが不可欠である。

特に、VOC については、本調査の関東地域を対象に実施したシミュレーションにおいて、VOC の削減は、将来の光化学オキシダント濃度の低減に重要な役割を果たすことが示された。また、 VOC は、PM<sub>2.5</sub>の成分として重要な二次有機エアロゾル(SOA, secondary organic aerosol)の原因 物質でもあるが、我が国では光化学オキシダントや NOx などに比して、時間的、空間的に十分な 測定データが得られていない。VOC は主要なものだけでも数十種類以上に及び、発生源ごとにそ の組成が異なるとともに、それぞれの成分の光化学反応性、PM<sub>2.5</sub>生成能等が異なっており、光化 学オキシダントの生成機構を科学的に理解し、シミュレーションモデルを検証するためには、VOC 成分の測定データを質的・量的にさらに強化する必要がある。特に、都市汚染ならびに越境汚染 の影響が大きな地域において、光化学オキシダントの生成に関係する主要な VOC 成分の長期 的・連続的なデータと3次元の短期的な時系列データを集積することが望まれる。前者に関して は、光化学オキシダントや PM<sub>2.5</sub>に関連する大気質濃度や、気象要素と併せて総合的にモニタリン グするスーパーサイトを設置し、観測を継続すること、後者に関しては航空機等を利用した集中観 測を実施することが有効である。

#### 4.2 シミュレーションモデルに関する課題

(1) 再現性の向上

本調査で使用したシミュレーションモデルは、再現性に関する設定目標を概ね満たし、既存 の調査研究用モデルと同等の再現性を有している。また、長期観測データの解析から示唆さ れたオゾン濃度の長期トレンドに影響を及ぼす3つの要因に対する応答を基本的に再現で きている。これらのことから、Ox 濃度の長期トレンドに影響を及ぼす要因の解析や排出削減 効果の感度解析等には使用できると考えられる。

しかしながら本調査で用いたシミュレーションモデルは、現在我が国で用いられている多くの モデルと共通に次のような課題があることから、その原因を把握し、さらに改良を継続すること が必要である。

- ・関東、九州の両地域ともに、シミュレーションモデルの予測による暖候期の平均濃度が実 測値と比べて光化学オキシダントは過大に、NO2は過小に、NMHCは過小に推計するこ と。また、光化学オキシダントの新指標値についても過大に推計すること。
- ・主要 VOC 成分のうち、特にトルエンとエチレン等を実測値と比べて過小に推計すること。

今後、NOx、VOC 削減に伴う将来にわたる光化学オキシダント濃度の変動の議論のためには、大気中のエアロゾルと前駆物質との相互作用等によって生じる反応メカニズム、汚染物質

の輸送・沈着プロセス、前駆物質の排出実態などについての解明をさらに進める必要があると 考えられる。また、モニタリングデータや衛星観測データの活用、海外のシミュレーションモデ ルとの比較検討等により、シミュレーションモデルの再現性を総合的に検証することが望まれ る。

(2) 排出削減による光化学オキシダントの感度評価の妥当性の検証

シミュレーションモデルを都市における光化学オキシダント汚染に適用する場合には、常時 監視局等の測定データによる検証が必須である。さらにシミュレーションモデルを利用して前 駆物質の削減対策の効果を評価しようとする場合には、これに加えて、前駆物質の変化に対 する光化学オキシダント濃度等の応答(即ち、モデル感度)をシミュレーションモデルが正しく 表現できているかを VOC と NOx の排出量比が変化することによって生じる、週末の光化学 オキシダント高濃度現象(週末効果)や大気中の光化学反応性の指標となる OH ラジカル濃 度の実測との比較などの形で検証する必要がある。

(3) 排出削減効果の感度解析に関する課題

本調査では、前駆物質の排出削減による感度解析において、関東地域内の排出量のみを 削減し、域外の排出量を固定して実施した。一方、部分的な解析結果によると、域外排出量 を削減した効果は、特に春季に一定程度あることが示唆された。このため、今後、域外排出量 を削減した場合の感度を確認する必要がある。また、関東以外の地域では、大気汚染物質の 排出状況、気象場、越境汚染の影響などが関東地域とは異なると考えられることから、それら の地域における感度解析を進める必要がある。

#### 4.3 インベントリに関する課題

排出インベントリは、大気汚染対策の根幹に関わる基礎情報であり、光化学オキシダント対策の みならず、大気汚染対策を総合的に推進するためには、大気汚染物質の排出インベントリの整備・ 更新を継続して行う必要がある。環境省では、2013 年度(平成 25 年度)から「PM<sub>2.5</sub> 排出インベン トリ及び発生源プロファイル策定検討会」において、JEI-DB (JATOP Emission Inventory Data Base)をベースとした大気汚染物質排出インベントリの整備を進めているところであるが、排出量及 び大気中での反応性の観点から重要な排出源に関するインベントリの更なるデータ拡充は重要な 課題である。例えば、温室効果ガスに関しては条約に基づき各国の排出量の提出が義務付けられ ていることから、我が国では国立環境研究所内に温室効果ガスインベントリオフィスが設置されて いる。これまで温室効果ガスの排出インベントリでは大気汚染物質についても副次的に取り扱われ てきたが、大気汚染物質は短寿命気候汚染物質としても重要性を増していることから、今後より組 織的・継続的にインベントリが整備されることが望ましい。

光化学オキシダントとの関係においては VOC と NOx が重要である。特に VOC に関しては、 Missing VOC を把握することや野外観測によって植物起源 VOC の不確実性をさらに低減させる ことが望まれる。また、インベントリの不確実性の評価において、衛星・地上観測データに基づき逆 推計した排出量と比較する手法の活用を研究すべきものと思われる。

#### 4.4 今後の国際協力に関する課題

「3.3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因」や「3.3.2 前駆物質排出量削減の感度解 析」で記したように、光化学オキシダント対策としては、国内対策と越境汚染対策の両面を考慮す ることが必要である。越境汚染に対する国際的な取組は具体的には、「光化学オキシダント・対流 圏オゾン検討会報告書 -中間報告-」(平成 19 年 12 月)において、(1) 調査研究面での国際 協力、(2) アジア諸国との協力の下、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の枠組み におけるオゾンモニタリング、(3) 大気汚染対策に関する近隣諸国との協力、(4) 長距離越境大気 汚染条約・半球移動タスクフォース(TF HTAP)等の地球規模の国際的な枠組みとの連携等が挙 げられている。今後は、米国の大気モデル研究の取り組み等も参考にし、シミュレーションモデル に係わる共通の問題点の国際的な議論や、諸外国と情報交換するための場を設けることが有効で ある。

#### 4.5 今後の光化学オキシダント対策に関する提言

(1) 新たな指標の更なる活用

我が国においては、大気汚染防止のための様々な取組の強化によって、VOC や NOx の 大気中濃度が多くの地域で減少しているにも関わらず、光化学オキシダントについては、昼 間の日最高1時間濃度の年平均値の漸増傾向や注意報発令地域の広域化が見られ、環境 基準達成率も極めて低い水準にとどまってきた。このような中で、これまで光化学オキシダント 濃度の指標として「環境基準の達成状況」、「光化学オキシダント注意報等の発令状況」、「昼 間の日最高1時間濃度の年平均値」等を用いてきたが、気象要因による年々変動が大きく、 長期的な環境改善効果を適切に示す指標となり得ないことが問題点として指摘されてきたた め、本検討会では、光化学オキシダントに関する環境改善効果を適切に示すための統計的 に堅牢な指標として、日最高8時間平均値の年間99%値の3年平均値を指標として活用す ることを平成26年3月に提案した。今後、この指標に基づく対策効果の把握を推進すること が適当である。

なお、我が国では光化学オキシダントの環境基準値は設定後40年以上が経過しており、その間、蓄積されてきた健康影響や汚染実態に関する最新の科学的知見や諸外国の対策の 状況等を踏まえ、上記の新指標に基づく光化学オキシダントの目標のあり方等を検討していく ことが必要である。

(2) 国内における前駆物質の削減対策への取り組み

中央環境審議会大気・騒音振動部会微小粒子状物質等専門委員会において取りまとめら れた「微小粒子状物質の国内における排出抑制策の在り方について – 中間取りまとめ–」 (2015年3月)において提言されているように、短期的課題とされている VOC や NOx について、排出規制等の取組状況、排出実態や排出抑制技術の状況等を踏まえ、追加的な対策の可能性を検討するとともに、総合的な対策に取り組む上での基礎となる現象解明や情報整備等の中長期的課題に取り組む必要がある。

また、高濃度の光化学オキシダントの発生を抑制するためには、VOCとNOxの排出量比 を充分に考慮して両者を削減する必要性が示唆されたことなどの本調査結果を踏まえ、光化 学オキシダント対策のさらなる推進について、具体的に検討する必要がある。

(3) 光化学オキシダントとPM2.5の総合的対策の展開

現在、微小粒子状物質(PM<sub>2.5</sub>)は光化学オキシダントとともに環境基準を超過している大気 汚染物質の一つであり、環境基準の達成が喫緊の政策課題となっている。

PM<sub>2.5</sub>の主要成分である硝酸塩(NO<sub>3</sub>-)と有機二次粒子(SOA)の前駆物質はそれぞれ NOx、VOCであり、光化学オキシダントの前駆物質と共通するものが多い。また、PM<sub>2.5</sub>を構 成する二次粒子の多くは、大気中の光化学反応でオキシダントと同時に生成する。このため、 実際の解析には共通のシミュレーションモデルを用いて解析することが望ましく、両者を共に 制御する視点からの複眼的な対策が求められる。

# 資料1光化学オキシダント調査検討会・解析作業部会名簿

氏名	所属	職名	期間	
	ー般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	所長	2014 2016年度	
○秋元 肇	国立研究開発法人 国立環境研究所	客員研究員	2014~2016牛皮	
板野 泰之	大阪市立環境科学研究所 調査研究課	研究主任	2014~2016年度	
井上 和也	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	主任研究員	2014~2016年度	
指宿 堯嗣	一般社団法人 産業環境管理協会	技術顧問	2014~2016年度	
岩崎 好陽	公益社団法人 におい・かおり環境協会	会長	2014~2015年度	
浦野 紘平	環境資源システム総合研究所	所長 (横浜国立大学名誉教授)	2014~2016年度	
大原 利眞	国立研究開発法人 国立環境研究所 福島支部準備室	総括 (研究担当)	- 2014 ~ 2016年度	
	国立研究開発法人 国立環境研究所	フェロー		
小野 和則	JX日鉱日石エネルギー株式会社 社会環境安全部	環境安全部 担当マネージャー 2015年度		
金谷 有剛	国立研究開発法人 海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野	分野長代理	2014~2016年度	
古関 恵一	東燃ゼネラル石油株式会社究所 中央研究所 戦略企画・調査部	部長	2016年度	
坂本 和彦	埼玉県環境科学国際センター	総長	2014~2016年度	
	ー般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター	所長		
下原 孝章	福岡県保健環境研究所 環境科学部 大気課	課長	2014年度	
紫竹 益吉	一般社団法人 日本化学工業協会 環境安全部	部長	2014~2016年度	
竹内 庸夫	埼玉県環境科学国際センター 研究企画室	室長	2014~2015年度	
橋本 光正	一般社団法人 日本塗料工業会	専務理事	2014~2015年度	
八田 拓士	JX日鉱日石エネルギー株式会社 社会環境安全部	チームスタッフ	2014年度	
星 純也	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	2014~2016年度	
向井 人史	国立研究開発法人 国立環境研究所 地球環境研究センター	センター長	2014~2016年度	
米原 洋一	一般社団法人 日本塗料工業会	専務理事	2016年度	
若松 伸司	愛媛大学 農学部	名誉教授	2014~2016年度	

#### 資料-表 1-1 光化学オキシダント調査検討会委員(五十音順 敬称略)

o: 座長

期間中に所属に変更のあった委員は両方を記載した。また職名は各所属での最終的なものを記載した。

氏名	所属	職名	期間
井上 和也	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	主任研究員	2014~2016年度
〇大原 利眞	国立研究開発法人 国立環境研究所 福島支部準備室	総括(研究担当)	2014 2017年度
	国立研究開発法人 国立環境研究所	フェロー	2014~2010十戌
梶野 瑞王	気象庁 気象研究所 環境・応用気象研究部	2016年度	
金谷 有剛	国立研究開発法人 海洋研究開発機構 地球表層物質循環研究分野	2014~2016年度	
黒川純一	一般財団法人 日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター大気圏研究部	2015~2016年度	
滝川 雅之	国立研究開発法人 海洋研究開発機構 北極環境変動総合研究センター 北極化学物質循環研究ユニット	ユニットリーダー	2016年度
茶谷 聡	国立研究開発法人 国立環境研究所 地域環境研究センター大気環境モデリング研究室	主任研究員	2016年度
永島 達也	国立研究開発法人 国立環境研究所 地域環境研究センター	主任研究員	2014~2016年度
速水 洋	一般財団法人 電力中央研究所 環境科学研究所	上席研究員	2014~2016年度
森川 多津子	一般財団法人 日本自動車研究所	主任研究員	2014~2016年度

資料-表 1-2 光化学オキシダント解析作業部会委員(五十音順 敬称略)

## o: 部会長

期間中に所属に変更のあった委員は両方を記載した。また職名は各所属での最終的なものを記載した。

# 資料2検討会・解析作業部会の開催状況

## 資料 2.1 平成 26 年度(2014 年度)

## 資料 2.1.1 検討会

## 第1回(平成26年9月12日)

- (1) 平成 26 年度 光化学オキシダント調査検討について
- (2)シミュレーションによる要因の検討について
- (3)シミュレーションによる対策の検討について
- (4)その他

#### 第2回(平成26年12月24日)

- (1) シミュレーションを用いた解析結果について
- (2) 今後の予定について
- (3) その他

#### 第3回(平成27年3月16日)

- (1) 光化学オキシダント解析作業部会における検討状況
- (2)シミュレーションを用いた解析結果について
- (3) 次年度の作業計画(案) について
- (4)その他

## 資料 2.1.2 解析作業部会

#### 第1回(平成26年10月3日)

- (1) 光化学オキシダントシミュレーションによる解析作業部会について
- (2)シミュレーションを用いた解析方法についての検討
- (3)その他

## 第2回(平成26年12月9日)

- (1)シミュレーションを用いた解析結果について
- (2)その他

## 第3回(平成27年2月23日)

- (1)今年度の解析項目について
- (2)シミュレーションを用いた解析結果について
- (3) 次年度の作業計画(案) について
- (4)その他

## 資料 2.2 平成 27 年度(2015 年度)

資料 2.2.1 検討会

#### 第1回(平成27年9月4日)

- (1) 光化学オキシダント調査検討について
- (2) 平成 26 年度の解析結果について
- (3) 平成 27 年度の解析計画について
- (4)その他

## 第2回(平成28年1月15日)

- (1) これまでの検討内容と対応状況について
- (2) シミュレーションモデルの構築・改善について
- (3) シミュレーションモデルを用いた解析について
- (4) その他

## 第3回(平成28年3月25日)

- (1)これまでの検討内容と対応状況について
- (2)シミュレーションを用いた解析結果について
- (3)その他

## 資料 2.2.2 解析作業部会

#### 第1回(平成27年9月24日)

- (1) 光化学オキシダントシミュレーションによる解析作業部会について
- (2) 平成 26 年度調査における計算結果の精度について
- (3) 平成 27 年度解析計画について
- (4)シミュレーションモデルの構築・改善について
- (5)その他

#### 第2回(平成27年10月30日)

- (1)追加検討項目及び対応状況について
- (2) 再現性向上に関する作業について
- (3)60km格子における計算結果を対象とした解析結果
- (4)10 km 格子における計算結果を対象とした解析結果
- (5)他モデルとの比較結果について
- (6)その他

## 第3回(平成27年11月10日)

- (1)追加検討項目及び対応状況について
- (2) 再現性向上に関する作業について
- (3)60 km 格子における計算結果を対象とした解析結果
- (4)10km格子における計算結果を対象とした解析結果
- (5) 平成 27 年度の解析計画について
- (6)その他

## 第4回(平成27年12月2日)

- (1)追加検討項目及び対応状況について
- (2) 排出量データの比較について
- (3)60km格子における計算結果を対象とした解析結果
- (4)10km格子における計算結果を対象とした解析結果
- (5) 平成 27 年度の解析計画について
- (6)その他

#### 第5回(平成28年2月16日)

- (1) 指摘事項及び対応状況について
- (2) 指摘事項に対する解析結果
- (3)シミュレーションモデルを用いた解析結果
- (4) 第3回検討会の議題について
- (5)その他

## 資料 2.3 平成 28 年度(2016 年度)

資料 2.3.1 検討会

#### 第1回(平成28年9月21日)

- (1) 平成 28 年度の解析作業計画について
- (2) 光化学オキシダント調査検討会報告書の作成について
- (3)その他

## 第2回(平成29年1月13日)

- (1) オキシダント前駆物質削減効果の検討結果について
- (2) 光化学オキシダント調査検討会報告書(案)について
- (3) その他

#### 第3回(平成29年3月14日)

- (1) 光化学オキシダント調査検討会報告書(案)について
- (2) その他

#### 資料 2.3.2 解析作業部会

#### 第1回(平成28年8月26日)

- (1) 平成 28 年度光化学オキシダント調査検討業務について
- (2) 平成 28 年度の解析作業計画について
- (3) 光化学オキシダント調査検討会報告書の作成について
- (4)その他

#### 第2回(平成28年10月11日)

- (1)オキシダント前駆物質(VOC 及び NOx)削減効果の検証に関する解析結果
- (2) NO タイトレーション効果の解析結果
- (3)シミュレーションの精度検証に関する解析結果
- (4) 光化学オキシダント調査検討会報告書(素案)について
- (5)その他

### 第3回(平成28年12月9日)

- (1)オキシダント前駆物質削減効果の検証結果(追加事項)
- (2)他モデルの計算結果との比較検討結果
- (3) モデル精度向上のための検討結果(BVOC 不確実性シミュレーション)
- (4) 光化学オキシダント調査検討会報告書案について
- (5)指摘事項への対応結果
- (6)その他

## 資料3参考文献

- Bao, H., Kondo, A., Kaga, A., Tada, M., Sakaguti, K., Inoue, Y., Shimoda, Y., Narumi, D.
  Machimura, T., Biogenic volatile organic compound emission potential of forests and paddy fields in the Kinki region of Japan, *Environ. Res.*, **106 (2)**, 156-169, (2008)
- Chatani, S., Shimo, N., Matsunaga, S., Kajii, Y., Kato, S., Nakashima, Y., Miyazaki, L., Ishii, K., Ueno, H., Sensitivity analyses of OH missing sinks over Tokyo metropolitan area in the summer of 2007, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 8975-8986, (2009)
- 井上和也,安田龍介,吉門洋,東野晴行,関東地方における夏季地表オゾン濃度の NOx, VOC 排出量に対する感度の地理分布 第 I 報 大小 2 種類の植物起源 VOC 排出量推定値を入 力した場合の数値シミュレーションによる推定,大気環境学会誌,45,183-194,(2010)
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., Geron, C., Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, 6, 3181-3210, (2006)
- 海洋政策研究財団, 排出規制海域設定による大気環境改善効果の算定事業 報告書(平成 25 年3月)(2013)
- 環境省,微小粒子状物質(PM2.5)対策のあり方検討調査 報告書(平成 22 年 3 月)(2010a)
- 環境省,揮発性有機化合物(VOC)の浮遊粒子状物質及び光化学オキシダントの生成に係る調 査報告書(平成22年3月),(2010b)
- 環境省,光化学オキシダント調査検討会報告書 -今後の対策を見すえた調査研究のあり方について-(平成24年3月),(2012)
- 環境省,光化学オキシダント調査検討会報告書 ~光化学オキシダントの解析と対策へ向けた 指標の提言~(平成26年3月),(2014)
- Kanaya, Y., Cao, R., Akimoto, H., Fukuda, M., Komazaki, Y., Yokouchi, Y., Koike, M., Tanimoto, H., Takegawa, N., Kondo, Y., Urban photochemistry in central Tokyo: 1. Observed and modeled OH and HO<sub>2</sub> radical concentrations during the winter and summer of 2004, *J. Geophys. Res.*, 112, D21312, (2007)
- 神成陽容,関東・関西地域における光化学オキシダント濃度の週末効果に関する解析 第1報 二種類の週末効果反転現象の発見,大気環境学会誌,45,209-219,(2006)
- Kiriyama, Y., Hayami, H., Itahashi, S., Shimadera, H., Miura, K., Nakatsuka, S., Morikawa, T., Effect of NOx and VOC Controls for Surface Ozone Concentration in Summertime in Kanto Region of Japan, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **50**, 8-15, (2010)
- Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T.,
  Kawashima, K., Akimoto, H., Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian
  regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, 13, 11019-11058, (2013)

- 黒川純一,猪股弥生,光化学オキシダント生成に関わる未計測 VOC の探索(3)化学モデルに よる未計測 VOC の光化学オキシダント生成能の評価,環境省環境研究総合推進費終了研究 等成果報告書(平成 28 年 5 月,環境省), pp.63-84, (2016)
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., Hayasaka, T., An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980 - 2020, *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 4419-4444, (2007)

埼玉県, 平成 26 年度 大気環境調査事業報告書, pp37-56, (2016)

- 佐々木寛介,木下輝昭,石井康一郎,坂本和彦,大気中 VOC 組成と発生源寄与の解析,大気 環境学会誌,44,136-146,(2009)
- Skamarock, W.C., Klemp, J. B., Dudhia, J., Gill, D.O., Barker, D. M., Duda, M.G., Huang, X.-Y., Wang, W., Powers, J.G., A description of the advanced research WRF version 3, NCAR/TN-475+STR, 126pp, (2008)
- Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa., J., Akimoto, H., CHASER: A Global Chemical Model of the Troposphere 1.Model Description, *J.Geophys.Res.*, **107**, (2002)
- 石油エネルギー技術センター自動車・新燃料部, JATOP 技術報告書 大気改善研究自動車排出 量推計(平成24年3月),(2012a)
- 石油エネルギー技術センター自動車・新燃料部, JATOP 技術報告書 大気改善研究 PM2.5 広域 シミュレーション用発生源組成プロファイル (VOC、PM 及び NOx) (平成 24 年 3 月), (2012b)
- 竹内和俊 渡邉剛久 石井克巳 内藤季和 中西基晴, 揮発性有機化合物の光化学反応に関する 一考察, 平成 22 年度千葉県環境研究センター年報, (2011)
- 松永壮,高分子量生物起源揮発性有機化合物(BVOC)の放出と特徴,低温科学,68,41-44, (2010)
- 松永壮, 中塚誠次, 茶谷聡, 望月智貴, 谷晃, Muller, O, 高分子量生物起源揮発性有機化合物 の放出と国内インベントリ, 大気環境学会誌, 47(1), A6-A8, (2012)
- 中嶋吉弘,松田裕明,井出滋雄,宮崎洸治,山崎晃司,岡崎創,長田拓也,田島洋介, Suthawaree, J.,加藤俊吾,下紳郎,松永壮, Apel, E., Greenberg, J., Guenther, A., 上野広行, 佐々木啓行,星純也,吉野彩子,横田久司,石井康一郎,梶井克純, OH ラジカル寿命観測 による都市大気質の診断II-東京都心部における総合観測-,大気環境学会誌, 44, 33-41, (2009)
- U.S.EPA, Guidance on the Use of Models and Other Analyses for Demonstrating Attainment of Air Quality Goals for Ozone, PM2.5, and Regional Haze, EPA -454/B-07-002, (2007)

参考資料

# 図目次

参考資料-図 1 日本付近のインベントリの置き換え範囲1
参考資料-図 2 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、父島)2
参考資料-図 3 精度評価指標による評価結果(気温及び風速、父島)2
参考資料-図 4 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の経年変化図(月平均値)3
参考資料-図 5 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の散布図(月平均値)
参考資料-図 6 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の比較(期間別)
参考資料-図 7 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の年の差分の散布図(期間別)4
参考資料-図 8 PO 月平均值(暖候期平均值、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 9 NO2月平均值(暖候期平均值、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 10 Ox 時別平均值(暖候期平均值、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 11 PO 時別値(暖候期平均値、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 12 NOx 時別値(暖候期平均値、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 13 NO2時別値(暖候期平均値、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 14 NMHC 時別値(暖候期平均値、上:関東地域、下:九州地域)
参考資料-図 15 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98% 値の濃度比(ケース A' / ケース C')
参考資料-図 16 オゾン反応レジームの概念図
参考資料-図 17 BVOC を変化させた場合の Ox 日最高 8 時間値 8 月平均値の変化 40
参考資料-図 18 基準ケース(V100-N100)との Ox 濃度比(日最高8時間値8月平均値)
参考資料-図 19(1) 都県別 Ox 日最高 8 時間値の 8 月平均値
参考資料-図 20 前駆物質削減による NMHC、NOx 濃度の変化 北関東
参考資料-図 21 前駆物質削減による NMHC、NOx 濃度の変化 南関東

表目次

参考資料-表	1	CHASER とCMAQ の成分対応表	1
参考資料-表	2	精度評価指標による評価結果(2001 年 60 km 格子計算値	関東地域)5
参考資料-表	3	精度評価指標による評価結果(2002 年 60 km 格子計算値	関東地域)6
参考資料-表	4	精度評価指標による評価結果(2003 年 60 km 格子計算値	関東地域)7
参考資料-表	5	精度評価指標による評価結果(2004 年 60 km 格子計算値	関東地域)8
参考資料-表	6	精度評価指標による評価結果(2005 年 60 km 格子計算値	関東地域)9
参考資料-表	7	精度評価指標による評価結果(2006 年 60 km 格子計算値	関東地域)10
参考資料-表	8	精度評価指標による評価結果(2007年 60 km 格子計算値	関東地域)11
参考資料-表	9	精度評価指標による評価結果(2008 年 60 km 格子計算値	関東地域)12
参考資料-表	10	) 精度評価指標による評価結果(2009年 60km 格子計算値	関東地域) 13
参考資料-表	11	精度評価指標による評価結果(2010年 60 km 格子計算値	関東地域) 14
参考資料-表	12	2 精度評価指標による評価結果(2001 年 60 km 格子計算値	九州地域)15
参考資料-表	13	時 精度評価指標による評価結果(2002 年 60 km 格子計算値	九州地域)16
参考資料-表	14	特度評価指標による評価結果(2003 年 60 km 格子計算値	九州地域)17
参考資料-表	15	i 精度評価指標による評価結果(2004 年 60 km 格子計算値	九州地域)18
参考資料-表	16	5 精度評価指標による評価結果(2005年 60km格子計算値	九州地域)19
参考資料-表	17	<sup>1</sup> 精度評価指標による評価結果(2006 年 60 km 格子計算値	九州地域)20
参考資料-表	18	3 精度評価指標による評価結果(2007年 60 km 格子計算値	九州地域)21
参考資料-表	19	) 精度評価指標による評価結果(2008 年 60 km 格子計算値	九州地域)22
参考資料-表	20	) 精度評価指標による評価結果(2009年 60km 格子計算値	九州地域)23
参考資料-表	21	精度評価指標による評価結果(2010年 60km格子計算値	九州地域)24
参考資料-表	22	2 精度評価指標による評価結果(2009年 10km格子計算値	関東地域) 25
参考資料-表	23	3 精度評価指標による評価結果(2009年 10km格子計算値	都県別)26
参考資料-表	24	精度評価指標による評価結果(2009年 10km格子計算値	都県別)27
参考資料-表	25	i 精度評価指標による評価結果(2009年 10km格子計算値	都県別)28
参考資料-表	26	5 精度評価指標による評価結果(2009年 10km格子計算値	都県別)29
参考資料-表	27	'他モデルとの比較における、各モデルの詳細設定条件	
参考資料-表	28	3 Missing VOC に関連する既往調査事例(1)	
参考資料-表	29	Missing VOC に関連する既往調査事例(2)	
参考資料-表	30	Missing VOC に関連する既往調査事例(3)	
参考資料-表	31	Missing VOC に関連する既往調査事例(4)	51



参考資料-図 1 日本付近のインベントリの置き換え範囲

CHASER	CMAQ
化学種	化学種
C10H16 テルペン	TRP1
C2H4	ETHENE
C2H6	ALK1
C3H8	ALK2
C5H8 イソプレン	ISOPRENE
CH2O	НСНО
СНЗСНО	ССНО
CH3COCH3	ACET
СНЗОН	MEOH
СНЗООН	СООН
СО	CO
DMS	SO2
H2O2	HO2H
HNO3	HNO3
HNO4	HNO4
BC 質量濃度	AECJ
ダスト 質量濃度	ASOIL
硝酸塩(NH4NO3)粒子 質量濃度	ANO3J
OC 質量濃度	AORGPAJ
海塩粒子 質量濃度	ACLK:ANAK=3:2で分配
SOA 質量濃度	AOLGB
硫酸塩((NH4)2SO4)粒子 質量濃度	ASO4J
MPAN	MA_PAN
N2O5	N2O5
NH4	ANH4J
NO	NO
NO2	NO2
NO3	NO3
03	03
その他のNMVOC	ALK3:ALK4:ALK5=1:1:1で分配
PAN	PAN
SO2	SO2

参考資料-表 1 CHASER とCMAQ の成分対応表



参考資料-図 2 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、父島)



参考資料-図 3 精度評価指標による評価結果(気温及び風速、父島)



参考資料-図 4 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の経年変化図(月平均値)



参考資料-図 5 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の散布図(月平均値)



参考資料-図 6 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の比較(期間別)



参考資料-図 7 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の年の差分の散布図(期間別)



参考資料-表 2 精度評価指標による評価結果(2001 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 3 精度評価指標による評価結果(2002 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 4 精度評価指標による評価結果(2003 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 5 精度評価指標による評価結果(2004 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 6 精度評価指標による評価結果(2005 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 7 精度評価指標による評価結果(2006 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 8 精度評価指標による評価結果(2007 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 9 精度評価指標による評価結果(2008 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 10 精度評価指標による評価結果(2009 年 60 km 格子計算値 関東地域)



参考資料-表 11 精度評価指標による評価結果(2010年 60km 格子計算値 関東地域)


参考資料-表 12 精度評価指標による評価結果(2001 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 13 精度評価指標による評価結果(2002 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 14 精度評価指標による評価結果(2003 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 15 精度評価指標による評価結果(2004 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 16 精度評価指標による評価結果(2005 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 17 精度評価指標による評価結果(2006 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 18 精度評価指標による評価結果(2007 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 19 精度評価指標による評価結果(2008 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 20 精度評価指標による評価結果(2009 年 60 km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 21 精度評価指標による評価結果(2010年 60km 格子計算値 九州地域)



参考資料-表 22 精度評価指標による評価結果(2009年 10km 格子計算値 関東地域)

Ox							
		評価指標()	NB)		評価指標(N	(GE)	
	関東	地域		厚	周東地域		
) 計算値(ppb)		対象期間	NB		対象期間	NGE	
56.7		4月	0.36		4月	0.36	
55.8		5月	0.33		5月	0.33	
56.6		6月	0.62		6月	0.62	
39.5		7月	0.71		7月	0.71	
41.3		8月	0.64		8月	0.64	
43.2		9月	0.57		9月	0.57	l
48.9		4~9月	0.54		4~9月	0.54	ł
	各都 評 茨标 # 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5 5	県(月平均値る 省標の分布範囲 <sup>成木</sup> 馬玉葉 京 川 県 -1.0-0.5 0.0 ( NB (C	を対象とした 王 1) 1.5 1.0 1.5 ()x)	名 部 ;	本都県(月平均値を 平価指標の分布範囲 茨城 栃木 群馬 埼玉 千葉 東京 中奈川 山梨 -1.0-0.5 0.0 0 NGE(	と対象とし7 目) 	<i>k</i>
る月平均値を 5暖候期を対象 3 および NGE 5 県及び茨城!	対象とした	:した NB か : NB から、計 いら、相対的に げられる。	ら、計算値 算値は測定 こ精度レベル	は 注 値 し レの	定値と比べるとう と比べると過大(54 高い都県(上位 3	過大(33 4%)であっ 新県)とし	~ っ し
	i)       計算値(ppb)         56.7         55.8         56.6         39.5         41.3         43.2         48.9    る月平均値を 5暖候期を対象 5暖く期を対象 B および NGE E県及び茨城!	回     計算値(ppb)       56.7       55.8       56.6       39.5       41.3       43.2       48.9       各都       評価損       茨城:       第価損       万方の方法       第一       55.8       56.6       39.5       41.3       43.2       48.9       各都       評価損       茨城:       東京       神奈川       山       3月平均値を対象とした       5暖候期を対象とした       5時に見及び茨城県があい	Image: Constraint of the symbol       評価指標()         Image: State of the symbol       対象期間         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol         Image: State of the symbol       Image: State of the symbol	Jox           評価指標(NB)           関東地域	J     評価指標(NB)       期東地域     関東地域       0)     計算値(ppb)       56.7     55.8       56.6     5月       39.5     6月       41.3     8月       9月     0.57       43.2     9月       43.2     9月       9月     0.57       48.9     4~9月       58     57       6     6.6       7.7     0.71       43.2     9月       0.57     4~9月       4.3.9     -1.0-0.5       58     59       6.6     1.0       58     57       58     57       58     58       58     58       58     58       58     58       57     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       58     51.0       57     51.0       58     51.0       58     <	OX         評価指標(NB)         評価指標(N           期東地域         関東地域         関東地域         対象期間         NB           1         56.7         5.7         0.33         5.6           55.8         5月         0.33         6.6           39.5         7月         0.71         7月           41.3         8月         0.64         8月           9月         0.57         9月         4~9月           48.9         4~9月         0.54         各都県(月平均値を対象とした           水         ボホ<	J         評価指標(NB)         評価指標(NGE)           調算地域         開東地域         開東地域         開東地域           1         対象期間         NB         4月         0.36           55.8         5月         0.33         56.6         5月         0.33           56.6         5月         0.62         7月         0.71           41.3         9月         0.57         4         9月         0.57           48.9         4~9月         0.54         各都県(月平均値を対象とした         客都県(月平均値を対象とした         評価指標の分布範囲)

参考資料-表 23 精度評価指標による評価結果(2009 年 10 km 格子計算値 都県別)

РО									
	平均值			評価指標(NB)			評価指標(NGE)		
関東地域	戉			関東地域			関東地域		
2009年	測定値(ppb)	計算値(ppb)		対象期間	NB		対象期間	NGE	
4月	53.3	64.2		4月	0.21		4月	0.21	
5月	51.9	62.7		5月	0.21		5月	0.21	
6月	46.0	63.6		6月	0.38		6月	0.38	
7月	32.6	46.1		7月	0.41		7月	0.41	
8月	33.9	47.9		8月	0.41		8月	0.41	
9月	37.8	50.7		9月	0.34		9月	0.34	
4~9月	42.6	55.9		4~9月	0.33		4~9月	0.33	
	_		7	合 和 県 (月 平 均 個 と評 価 指 標 の 分 布 筆 茨 城 栃 木 群馬 埼 玉 千 東京 神奈川 山梨 -1.0 - 0.5 0.0 C NB (P	を対象とし 範囲) 	7	<ul> <li>              ・             ・</li></ul>	を対象とし 範囲) 0.5 1.0 1.5 PO)	
・関東地 41%) <sup>-</sup>	・関東地域における月平均値を対象とした NB から、計算値は測定値と比べると過大(21~								
・関東地域における暖候期を対象とした NB から、計算値は測定値と比べると過大(33%)であっ									
た。									
·関東地	域及び全都	県で計算値	が涯	则定値と比べると述	過大である	るが、	Ox と比較すると	過大の程	
度が低	気減した。								
·精度評	価指標 NB	および NGE	の値	直から、相対的に制	精度レベ1	レの	高い都県(上位3	都県)とし	
て、東京都、埼玉県及び神奈川県があげられる。									

参考資料-表 24 精度評価指標による評価結果(2009 年 10 km 格子計算値 都県別)

NO <sub>2</sub>							
平均值		評価指標	(NB)		評価指標	(NGE)	
関東地域	関	東地域		関東	地域		
2009年 測定値(ppb) 計算·	値(ppb)	対象期間	NB		対象期間	NGE	
4月 13.2	8.4	4月	-0.36		4月	0.36	
5月 11.6	7.9	5月	-0.32		5月	0.33	
6月 12.6	8.1	6月	-0.36		6月	0.62	
7月 11.0	7.6	7月	-0.30		7月	0.71	
8月 10.2	7.5	8月	-0.26		8月	0.64	
9月 12.0	8.7	9月	-0.28		9月	0.57	
4~9月 11.7	8.0	4~9月	-0.31		4~9月	0.54	
_	た評価指標の分布範囲) た評価指標の分布範囲) た評価指標の分布範囲) た評価指標の分布範囲) た評価指標の分布範囲)						
<ul> <li>・関東地域における月平均</li> <li>(-36~-26%)であった。</li> <li>・関東地域における暖候期</li> <li>った。</li> <li>・精度評価指標 NB および</li> <li>て 千黄県 東京教及び</li> </ul>	匀値を対象と 期を対象としす び NGE の値	した NB から、計 た NB から、計 から、相対的に料	+算値は測注 算値は測定 青度レベル	定値と比 2値と比 の高い	セベると過小 :べると過小(- :都県(上位 3	31%)であ 都県)とし	
て、十葉県、東京都及び神奈川県かあけられる。							

参考資料-表 25 精度評価指標による評価結果(2009 年 10 km 格子計算値 都県別)

NMHC							
	平均値			評価指標(1	NB)	評価指標(N	GE)
関東地域			₿	<b> 夏東地域</b>		周東地域	
2009年 測定	E値(ppb)	計算値(ppb)		対象期間	NB	対象期間	NGE
4月 1	152.2	35.6		4月	-0.77	4月	0.77
5月 1	157.5	32.5		5月	-0.79	5月	0.79
6月 1	L70.9	34.0		6月	-0.80	6月	0.80
7月 1	L75.2	35.6		7月	-0.80	7月	0.80
8月 1	L62.8	34.8		8月	-0.79	8月	0.79
9月 1	L63.1	36.0		9月	-0.78	9月	0.78
4~9月 1	163.6	34.6		4~9月	-0.79	4~9月	0.79
	_		1	各都県(月平均値 した評価指標の分 <sup>茨城本</sup> <sup>新本</sup> <sup>新本</sup> <sup>東京</sup> <sup>中奈川</sup> 山梨 -1.0-0.5 0.0 ( NB (1)	重を対象と う布範囲) 0.5 1.0 1.5 MHHC)	各都県(月平均値 した評価指標の分 <sup>茨城 栃木</sup> 群馬 埼葉 東京 神奈川 山梨 -1.0-0.5 0.0 ( NGE (	Tを対象と う布範囲) 
<ul> <li>・関東地域に</li> <li>77%)であ</li> <li>・関東地域に</li> <li>った。</li> <li>・精度評価指</li> <li>て、東京都</li> </ul>	おける。 った。 おける明 標 <b>NB</b> :	月平均値を対 爰候期を対象 および NGEの 県及び埼玉県	象としの値が	とした NB から、 た NB から、計	計算値は港 算値は測定 精度レベル	Ξ値と比べると過/ と比べると過小(- 高い都県(上位 3	ト(-80 ~ - 79%)であ 都県)とし

参考資料-表 26 精度評価指標による評価結果(2009 年 10 km 格子計算値 都県別)

915	说定項目	モデルA	モデルB	モデルC	モデルD	モデルE1	モデルE2	モデルF	モデルG	本調査
気象モデル		RAMS4.4	WRF-Chem	WRF	WRFv3.7	WRFv3.3.1	WRFv3.5.1	WRFv3.3.1	WRFv3.3.1	WRFv3.5.1
化学輸送モ	デル	ADMER-PRO	WRF-Chem	RAQM2	CMAQV5.0.2	CMAQv4.7.1	CMAQv5.01	CMAQv4.7.1	CMAQv4.7.1	СМАQ4.7.1
気層反応モき	11ービジ	CB4	RADM2	SAPRC99	SAPRC07tc	SAPRC99	SAPRC07tc	SAPRC99	SAPRC99	SAPRC99
粒子化モジュ	1/ーエ	なし	SORGAM	MADMS/	AERO6	AERO5	AERO6	AERO5	AERO5	AERO5
				ISORROPIA2						
発生源デー	人為起源	なし	REASv2	MICS-Asia Phase III	REASv2.1	REAS, INTEX-B, GEIA	[中国] 清華大学 1	REASv2.1	REASv2.1	REASv2.1
¢	(アジア領域)				(2008)		[中国以外のアジア] IIASA-GAINS			
	人為起源	ADMER-PRO内蔵	REASv2	MICS-Asia Phase III	JEI-DB2014	JATOP	JEI-DB2010改	REASv2.1	JATOP	JEI-DB
	(日本霊異記)									
	バイオマス	ADMER-PRO内蔵	FINN	MICS-Asia Phase III	GFED v4.1	なし	GFEDv4.0、	GFEDv3.1	GFEDv3.1	1
	燃焼				日本域はJEI-DB2014		アジア領域のみ			
	植生起源	ADMER-PRO内蔵	MEGAN	MICS-Asia Phase III	MEGAN v2.1	MEGAN2.04	MEGANver2.1	MEGANv2.04	MEGANV2.1	MEGANv2.10
		(気象条件による補正)			日本域はMEGAN	(日本領域は樹木を	+JATOP + WRF気象	(+WRF気象場)	(+WRF気象場)	
		はADMER-PRO気象場			v2.04 + JEI-DB	JATOP データに入替	場			
		にてオンラインで実				し土地利用を変更)				
		施)				(EF はMEGAN2.1で設				
						定されたものを使用)				
	火山起源	なし	なし	MICS-Asia Phase III	JEI-DB2014	AME	JMAのみ12火山考慮	ACESS+JMA	AEROCOM+JMA	なし
								(日本域)	(日本域)	
東アジア領払	或の境界値	境界値データはオゾン	1	MRI-CCM2/	MOZART-4	MOZART月平均値	MOZART月平均值	CHASER	CHASER	CHASER
		のみ日本域のオゾンゾ ンデデータより作成		MASINGARmk2		(CO及びO <sub>3</sub> )	(CO、O <sub>3</sub> のみ)			
メッシュサ	東アジア		東アジア(80 km)	アジア(45 km)	アジア(45 km)		東アジア(40 km)	東アジア(80 km)	東アジア(60 km)	東アジア(60 km)
イズおよび			2005年	2010年	2010年		2010年	2001~2008年	2001~2010年	2001~2010年
計算対象年	日本	日本域(20 km)			日本(15 km)	日本(20 km)	日本(20 km)			
					2010年	2005年	2010年			
	関東/九州	関東、九州(5 km) 2005年			関東( 5 km) 2010年	関東(5 km) 2005年	関東(5 km) 2010年			関東( 10 km) 2001~2010年
		-								

各モデルの詳細設定条件
他モデルとの比較における、
参考資料-表 27

## 関東地域



## 九州地域



## 関東地域



## 九州地域

























参考資料-図 15 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度比(ケース A' / ケース C')



参考資料-図 16 オゾン反応レジームの概念図



 $(\pm: BVOC \times 2 - BVOC \times 1, \pm: BVOC \times 0.5 - BVOC \times 1)$ 

**汨**冨田粮 × ON



参考資料-図 18 基準ケース(V100-N100)との Ox 濃度比(日最高 8 時間値 8 月平均値) (左上:BVOC × 0.5、右上:BVOC × 1、左下:BVOC × 2)



参考資料-図 19(1) 都県別 Ox 日最高 8 時間値の 8 月平均値 (左:BVOC×1 における推定値、中央:BVOC×0.5 における推定値、右:差分)



参考資料-図 19(2) 都県別 Ox 日最高 8 時間値の 8 月平均値 (左:BVOC×1 における推定値、中央:BVOC×0.5 における推定値、右:差分)



参考資料-図 21 前駆物質削減による NMHC、NOx 濃度の変化 南関東 a) NMHC、b) NOx、c) NMHC の変化比(%)、d) NOx の変化比(%)

タイトル	Urban photoc 1. Observed a summer of 20	hemistry in central Tokyo: and modeled OH and HO2 radical 004	concentrations during the winter and
著者	Y. Kanaya, R Tanimoto, N.	. Cao, H. Akimoto, M. Fukuda, Y Takegawa and Y. Kondo	Y. Komazaki, Y. Yokouchi, M. Koike, H.
出典	J. Geophys. R	Res., 112, D21312, 2007	
概要	2004 年の 定した。また、 した場合、モ についても考	冬季及び夏季に、都内において 、ボックスモデルを用いて計算値 デル上での VOC については、ネ :慮したところ、計算値と観測値の	OH ラジカル及び HO2 ラジカル濃度を測 と観測値の比較を行った。 NMHC に着目 則定した VOC 成分に加え未測定の成分 D差が小さくなり再現性が向上した。
内容	2004年の冬 2004年の冬 20測測です。 20測測です。 20測測です。 20測測です。 20測測です。 20加定です。 20でのた。 定です。 20でのた。 20でので、 20 20でので、 20 20 20 20 20 20 20 20 20 20	○季及び夏季に都内(駒場)におまた、ボックスモデル(RACM)を 夏季は14成分、冬季は30成分 5、存在するであろう他のVOCを は合計50数種のVOCsを ースについても計算した。未 は2001~2002年に駒場で -タセットから、アセチレンに ととして推定した(Table 2)。 けるNMHC濃度の観測値 つる計算値の比率(計算値/ 着目すると、未計測の成分を 考慮することにより、冬季は 夏季は0.43→0.71となり、 とした(Figure 2.)。 句場のCO濃度比から、CO 発生源が同じかつ、同程度 いるものと仮定すると、観測さ の84~91%がモデル上で再 が示された。	はいて OH ラジカル及び HO <sub>2</sub> ラジカル濃度 用いて計算値と観測値の比較を行った。 の VOC を測定したが、日本の他都市も た、アセチレン濃度の関数などの形で考慮
	Table 2. Observed           RACM Category	and Assumed Hydrocarbons in Categories of RAC Observed Species	M <sup>*</sup> Assumed Species
	ЕТН НС3 НС5 НС8	ethane acetylene, propane, n-/i-butane, methanol [W] n-/i-pentane, n-hexane	<ul> <li>2,2-dimethylbutane (0.3), 2,2-dimethylhexane (0.15)</li> <li>2,/3-methylpentane (0.4, 0,2), 2,3-dimethylbutane (0.2),</li> <li>3,3-dimethylpentane (0.2), cyclopentane (0.05)</li> <li>methyleyclopentane (0.2), cyclohexane (0.05),</li> <li>2-methylhexane (0.069), 2,3-dimethylpentane (0.027),</li> <li>3-methylhexane (0.3), n-heptane (0.25),</li> <li>methyleyclowane (0.1),</li> <li>2-/3-methylheptane (0.027, 0.05), n-octane (0.15),</li> <li>nonane (0.032),</li> <li>decane (0.041)</li> </ul>
	ETE OLT	ethene propene, 1-butene, styrene [W], isobutene [W]	2-methyl-1-butene (0.0321), 1-pentene, 3-methyl-1-butene, 4-methyl-1-pentene, styrene [S]
	OLI	trans-2-butene [W], cis-2-butene	2-methyl-2-butene, trans-/cis-2-pentene, cyclopentene, trans-/cis-2-hexene, trans-2-butene [S]
	ISO API	isoprene	1,3-butadiene [W]
	LIM TOL	benzene, toluene, ethylbenzene (C $_8 \times 29.3\%$ ) [W],	ethylbenzene (toluene $\times$ 18.7%) [S], styrene [S]
	XYL	styrene [W] p-/m-xylene (C <sub>8</sub> × 46.2%) [W], o-xylene (C <sub>8</sub> × 24.6% [W], 1,3-/1,2-/1,4-ethylmethlbenzene (C <sub>9</sub> × 44.7%) [W], 1,2,3-/1,2,4-/1,3,5-trimethylbenzene (C <sub>9</sub> × 55.3%) [W]	<ul> <li>b) p-/m-xylene (toluene × 29.5%) [S],</li> <li>o-xylene (toluene × 15.7%) [S],</li> <li>1,3-/1,2-/1,4- ethylmethlbenzene (toluene × 12.2%) [S],</li> <li>1,2,3-/1,2,4-/1,3,5- trimethylbenzene (toluene × 15.1%) [S]</li> </ul>
	<sup>a</sup> [W], winter; [S], su	ummer. Values in parentheses are factors used to scale the	ir concentrations to acetylene. See text for details.

参考資料-表 28 Missing VOC に関連する既往調査事例(1)

参考資料-表 29 Missing VOC に関連する既往調査事例(2)

タイトル	光化学オキシダント生成に関わる未計測 VOC の探索 (3)化学モデルによる未計測 VOC の光化学オキシダント生成能の評価
著者	一般財団法人日本環境衛生センター アジア大気汚染研究センター 黒川純一・猪股弥生
出典	環境省環境研究総合推進費終了研究等成果報告書(平成28年度5月,環境省)
概要	大気中の OH 減衰速度について、標準インベントリデータによる CMAQ の計算値と 観測値を比較したところ、Missing 分は計算値が過小となった。この過小分の Missing VOC について、スギから排出される未同定テルペン類や二次生成 VOC における未同 定物質を想定し、CMAQ を用いて OH 減衰速度やオゾン生成に対する感度解析を行 った。
	大気中の OH 減衰速度について、標準インベントリデータによる CMAQ の計算値と観 測値を比較したところ、Missing 分は計算値が過小となった(図(3)-6)。 <sup>20</sup> <b>3</b> <sup>g</sup> (2013年7-8月) <sup>20</sup> <b>つくば(2013年11月)</b> <sup>10</sup> <b>つくば(2014年2月)</b>
	$\begin{bmatrix} 5 \\ 15 \\ \hline 15 \\ \hline 16 \\ \hline 16 \\ \hline 17 \\ \hline 8 \\ \hline 10 \\ \hline 8 \\ \hline 5 \\ 0 \\ \hline 17 \\ \hline 8 \\ \hline 10 \\$
内容	<ul> <li>図(3)-6 各野外観測における OH 減衰速度の標準実験結果と観測結果の比較。Missing は、観測結果では全未計測物質による OH 減衰速度への寄与分、モデル計算結果では「モデル内で定義されている変数の内観測データが存在しないもの」による寄与分</li> <li>そこで、計測物質について、OH 反応性が観測値と計算値でほぼ一致するように排出量と境界値を調整して行ったシミュレーションを基準とし、以下の感度実験を行った。</li> <li>(a) スギ起源 VOC 排出量の更新 スギから排出される BVOC について、これまで考慮されていなかった未同定デルペン 類またはセスキテルペン類を TERP または SQT としてモデルに追加 →スギのテルペン類は夏季に排出量が少なく、OH 減衰速度、O3 濃度に対する影響はほとんど見られなかった。</li> <li>(b) 未同定 VOC 二次生成物の類似物質として、SAPRC-07 で定義されている R6OOH、RAOOH、PROD2 を想定し、これらの生成係数を大きくした。</li> <li>→R6OOH の生成係数操作に対する OH 減衰速度の感度は、芳香族から生成される</li> </ul>
	R6OOH に対してのみではほとんど見られず、少なくとも全ての一次 VOC から生成される未同定二次 VOC を考慮する必要があることが示された(図(3)-12)。



図(3)-12 未同定 VOC 二次生成物に対する感度実験の OH 減衰速度の比較(FM 多摩における 夏季集中観測期間平均値)。OBS:観測結果、BASE:基準実験結果、(r6/ra/pr)x#:芳香族 VOC と OH との反応に対する感度実験結果、(r6/ra/pr)px##:全一次 VOC と OH との反応に対する感度 実験結果、(r6/ra/pr)allx#:全 VOC と OH との反応に対する感度実験結果、r6: R6OOH、ra: RAOOH、pr: PROD2、x5/x10/x20: SAPRC-07 における生成係数に対する倍数

また、上記(b)感度解析ケースでオゾン濃度を計算したところ、夏季観測期間平均で 1~4 ppbv、応答の大きい日では 8 ppbv 程度の差がみられた(図(3)-13)。



図(3)-13 (a) ~ (e) R6OOH 生成係数 10 倍感度実験と基準実験におけるオゾン濃度の差。(a)芳香族 VOC 実験との差、(b)、(d)全一次 VOC 実験との差、(c)、(e)全 VOC 実験との差、(f) 基準実験 オゾン濃度。(a) ~ (c)及び(f):日中夏季期間平均値、(d)、(e):応答の大きかった 2013 年 7 月 22 日 12 時の値

さらに、VOC 排出量を基準ケースから 0.5 倍及び 1.5 倍したケースのオゾン濃度の 差分(感度)については、未同定二次生成 VOC を考慮しないと過大評価する可能性が 示唆された(図(3)-14)。





参考資料-表 30 Missing VOC に関連する既往調査事例(3)


タイトル	OH ラジカル寿命観測による都市大気質の診断 II -東京都心部における総合観測-
著者	中嶋吉弘,松田裕明,井出滋雄,宮崎洸治,山崎晃司,岡崎創,長田拓也,田島洋 介,J. Suthawaree,加藤俊吾,下紳郎,松永壮,E. Apel, J. Greenberg, A. Guenther,上 野広行,佐々木啓行,星純也,吉野彩子,横田久司,石井康一郎,梶井克純
出典	大気環境学会誌, 44, 33-41, 2009
概要	2007年夏季に東京都江東区においてレーザーポンプ・プローブ法を用いた OH ラジカル寿命測定および大気微量成分濃度の観測を行った。OH ラジカル反応性の実測値と大気微量成分濃度の測定により得られた計算値との間には差異がみられ、OH ラジカルとの未知の反応物質が存在することが確認された。
内容	2007 年夏季に東京都江東区においてレーザーボンプ・プローブ法を用いた OH ラジ カル寿命測定及び大気微量成分濃度の観測を行った。OH ラジカル反応性の実測値と 大気微量成分濃度の測定により得られた計算値を比較した (Fig. 4)。Fig. 4(b)に示す、 OH ラジカルの反応性の実測値 (Kmeas) 及び計算値 (Kcalc)の差は、OH + NO <sub>2</sub> 反応速 度定数の誤差やエアロゾルの関与では説明することが困難な、OH ラジカルと反応する 未知の化学物質であると考えられる。この未知の化学物質にし、未知の化学物質が植物起 源 VOCs のような日変動を示す化学物質とは異なる発生源であることを示唆している。 未知の化学物質による OH ラジカルの反応性への寄与は、全ての観測期間で確認さ れ、その大きさは OH ラジカル反応性の 26.3%を占めていた。

参考資料-表 31 Missing VOC に関連する既往調査事例(4)