

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 NO_x、VOC の大気濃度が低減しているにも係わらず、O₃ (O_x) 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 NO_x、VOC の排出をさらにどの位削減すれば、O₃ (O_x) 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_{2.5} 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 NO_x、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

目次

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 O _x 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.....	14
2.3.4 インベントリデータのまとめ.....	14
2.4 シミュレーションモデルの設定.....	15
2.4.1 気象モデルの入力データ.....	15
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.....	17
2.5.1 再現性確認の考え方.....	17
2.5.2 統計値の算出方法について.....	18
2.5.3 気温及び風速の再現性について.....	21
2.5.4 遠隔地における O _x について.....	31
2.5.5 関東・九州地域における O _x 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.....	58

3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因の解析	58
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	58
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	70
3.1.4 まとめ	77
3.2 前駆物質(VOC、NOx)排出量削減の感度解析結果	78
3.2.1 解析の目的	78
3.2.2 シミュレーションの設定条件及び評価方法	78
3.2.3 排出量削減効果の概要	81
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	89
3.2.5 まとめ	100
3.3 シミュレーションモデルによる解析のまとめ	101
3.3.1 日本国内における Ox 濃度の長期変動要因	101
3.3.2 前駆物質排出量削減の感度解析	101
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	108
4.1 モニタリングに関する課題	108
4.2 シミュレーションモデルに関する課題	108
4.3 インベントリに関する課題	109
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	114
資料 2.1.2 解析作業部会	114
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

略語一覧

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
PO	: 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(O₃)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(O₃)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(O₃)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 NO_x 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、③NO_x 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。

- ① 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 O_x、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 O_x、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 O_x 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 O_x 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 O_x 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 NO_x 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、O_x 濃度(O_x 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。

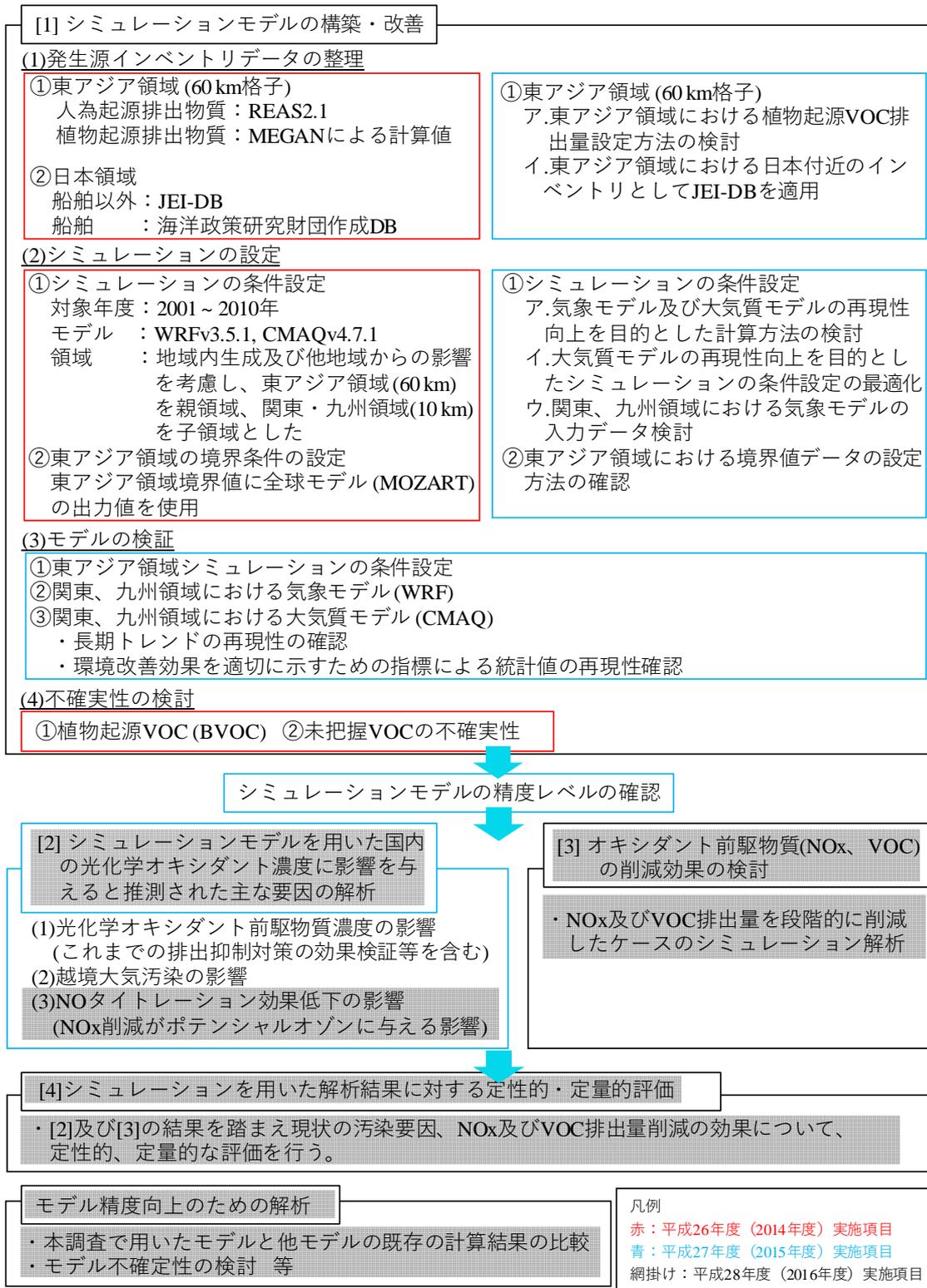


図 1-1 平成 26～28 年度(2014～2016 年度)の光化学オキシダント調査実施フロー

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

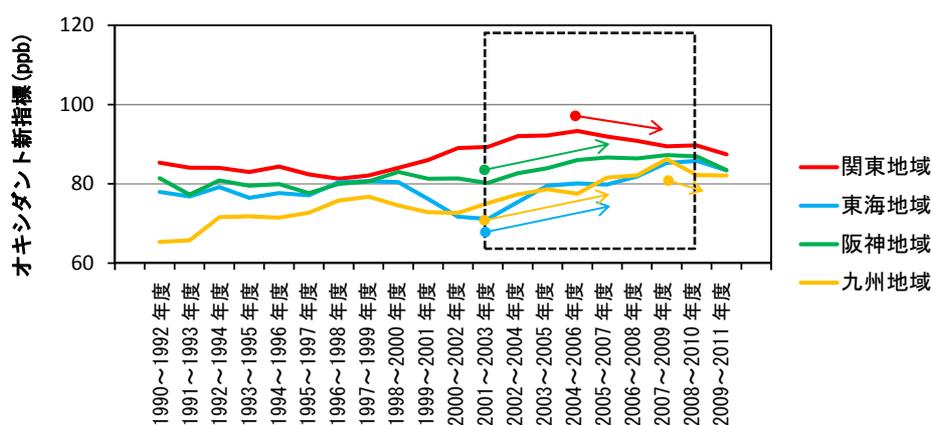
平成 25 年度の「光化学オキシダント調査検討会」において、環境改善効果を適切に示す指標として、「光化学オキシダント濃度の日最高 8 時間値の年間 99%値の 3 年平均値」(以下「オキシダント(Ox)新指標」と言う。)を定め、活用していくことが提言された。また、光化学オキシダント濃度の長期トレンドに影響を及ぼす主要な要因として、「前駆物質排出量の変化」、「越境大気汚染の増加」、「NO タイトレーション効果の低下」の重要性が示された。

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。



【各地域の Ox 濃度のトレンド】

関東地域 2004～2006 年度から低下 東海地域 2001～2003 年度から上昇

阪神地域 2001～2003 年度から上昇 九州地域 2001～2003 年度から上昇、2007～2009 年度以降低下

図 2-1 光化学オキシダント新指標の地域別経年変化(黒枠は解析対象期間)

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 CMAQ¹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、SIP²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 CAMx³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。

¹ CMAQ:Community Multi-scale Air Quality

² 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

³ 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 1 km 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、60 km 格子(東アジア領域)及び 10 km 格子(関東領域)を設定した(表 2-1)。

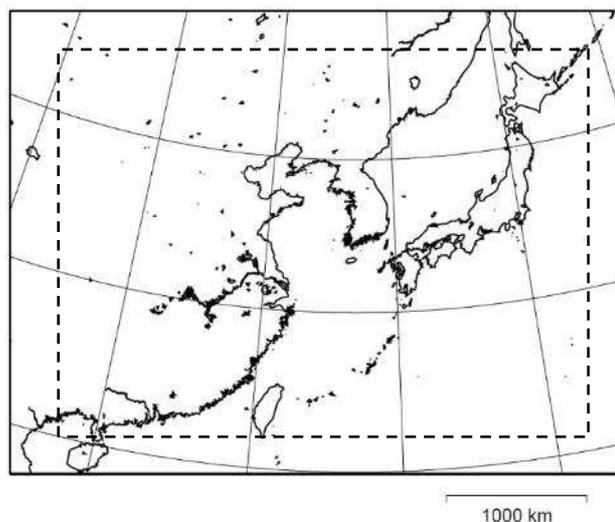


図 2-2 東アジア領域

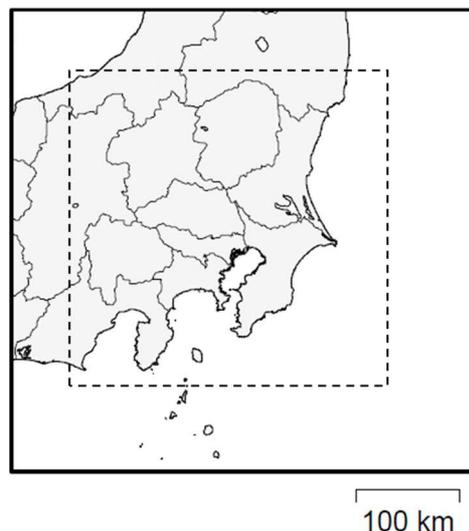


図 2-3 関東領域

表 2-1 各領域の水平格子サイズと計算領域の大きさ

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

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。REAS2.1 について、表 2-2 に示した。

表 2-2 REAS2.1 について

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 /開発プロジェクト	国立環境研究所 /環境省環境研究総合推進費 S-7

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	JEI-DB (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、本調査で用いて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。

表 2-4 排出量データの年次補正指標について

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)	総合エネルギー統計*1
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)	
6. 鉱業	エネルギー使用量(鉱業)	
7. 建設業	エネルギー使用量(建設業)	
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)	
10. 業務	エネルギー使用量(業務他)	
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	発生源品目別のVOC排出量推計結果 (2001年~2005年は線形内挿)	環境省VOC排出インベントリ*6
・化学品製造・塗料製造		
・食料品等(発酵)		
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		
・給油所		
19. 溶剤		
・塗料		
・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		
・洗浄用シンナー、リムーバー、道路舗装、 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	線形内挿	
22. 肥料施肥		
23. 野焼き		
24. 土壌		
25. 人間活動		
26. ペット犬		
27. 化学肥料製造		
28. 排水処理		

*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

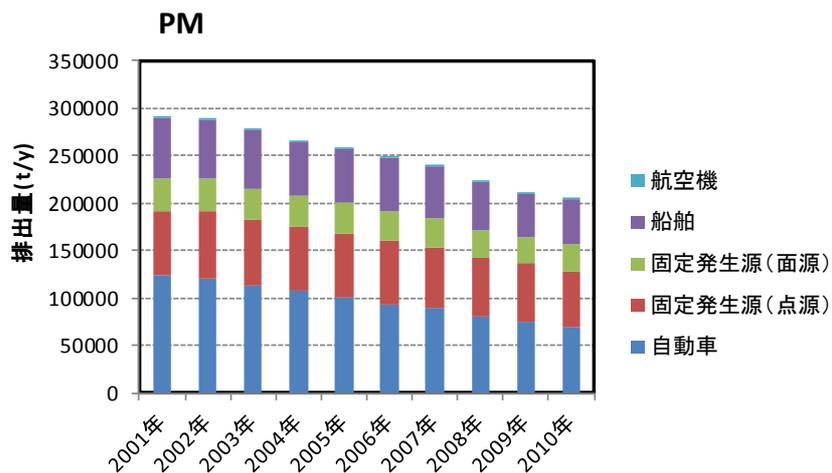
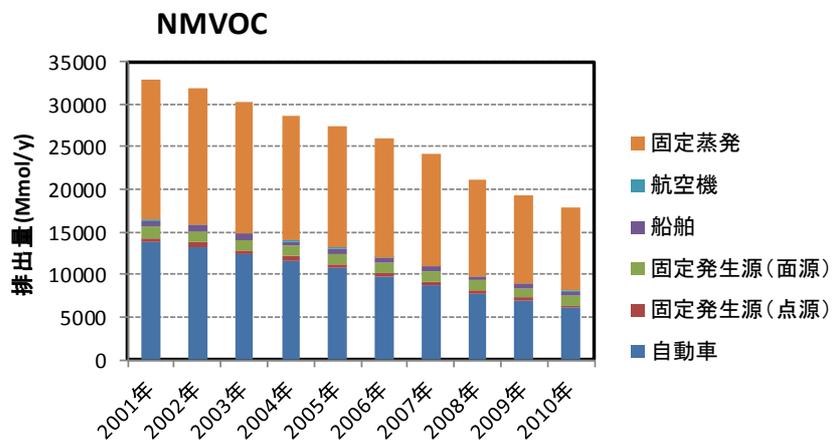
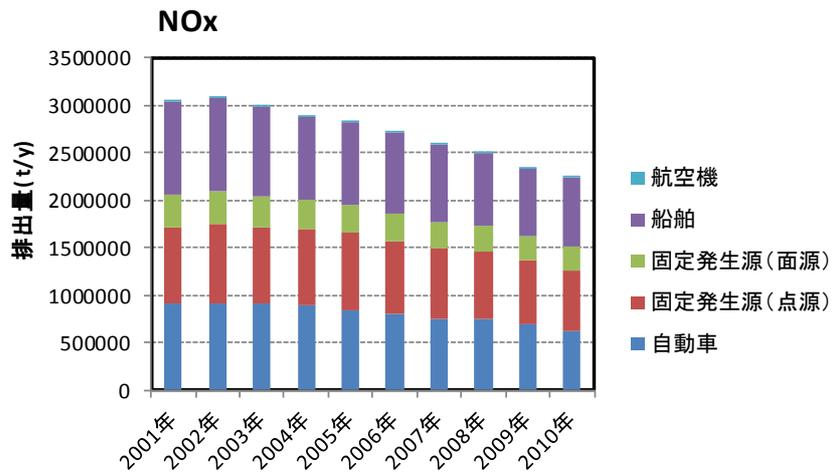
*3 国土交通省 HP (<http://www.mlit.go.jp/k-toukei/koukuu/koukuu.html>)

*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>)

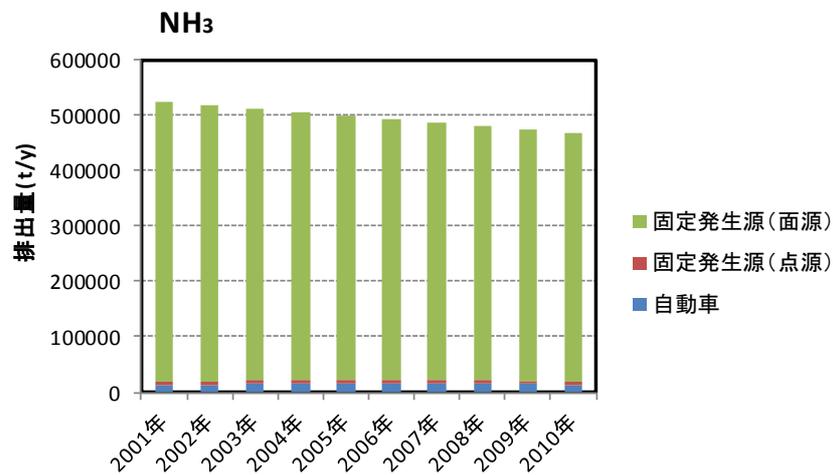
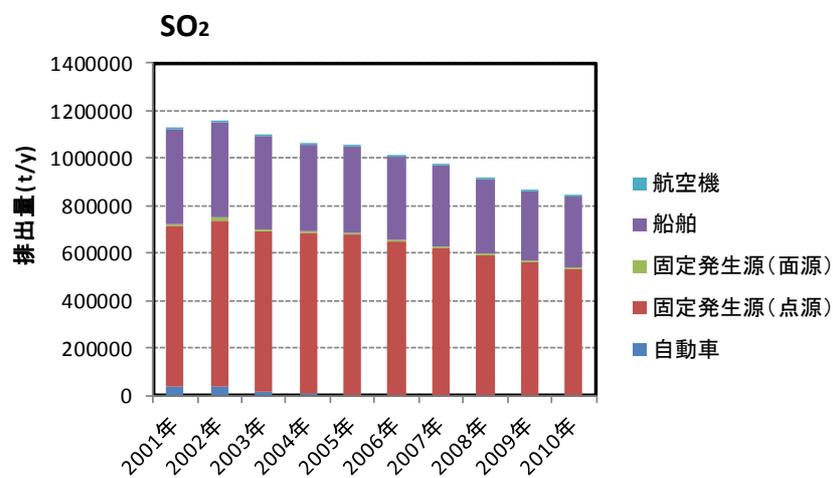
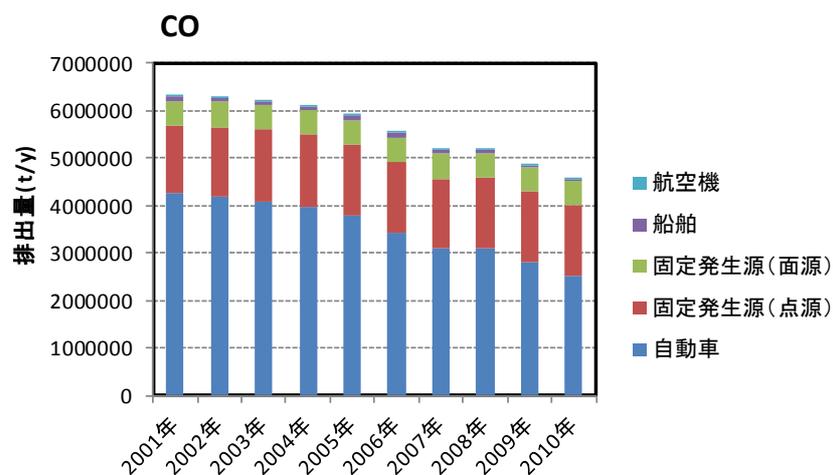
*7 林野庁 HP (<http://www.rinya.maff.go.jp/j/kouhou/toukei/>)



固定発生源(面源): 家庭、作業機械、小型焼却炉、家畜、肥料、野焼き、土壌、人間、ペット、肥料製造、排水処理

固定発生源(点源): 電気業、地域熱供給、都市ガス製造、農林業、水産業、鉱業、建設業、製造業、廃棄物焼却

図 2-4 国内排出量の経年変化 (NOx、NMVOC、PM)



固定発生源(面源): 家庭、作業機械、小型焼却炉、家畜、肥料、野焼き、土壌、人間、ペット、肥料製造、排水処理

固定発生源(点源): 電気業、地域熱供給、都市ガス製造、農林業、水産業、鉱業、建設業、製造業、廃棄物焼却

図 2-5 国内排出量の経年変化(CO、SO₂、NH₃)

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。

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

	東アジア領域(60 km 格子)	関東領域(10 km 格子)
人為起源	•REAS2.1 (ただし、日本付近は JEI-DB)	•JEI-DB(船舶以外) •海洋政策研究財団作成 DB(船舶)
植物起源	•MEGAN 計算値 (植生分布及び WRF 計算値から植物起源 VOC を毎時間計算)	•同左
備考	•2009 年及び 2010 年の排出量は 2008 年の排出量を設定した。 •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。	•補正係数または前後 2 断面(年)の線形補間により年次補正した。(表 2-4 参照)

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。

表 2-6 気象モデルの入力データ

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

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。

表 2-7 気象モデル及び化学輸送モデルの設定内容

対象年	2001～2010年の暖候期(4～9月)
解析対象領域	<p>東アジア領域</p> <p>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</p> <p>関東領域</p> <p>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</p>
気象モデル	<p>WRF</p> <p>気象モデルバージョン: WRFv3.5.1</p> <p>初期値・境界値: 東アジア領域 (60 km 格子) 大気データ : 気象庁全球客観解析データ 海面水温データ: NCEP リアルタイム全球海面水温 土壌データ : NCEP 客観解析値</p> <p>初期値・境界値: 関東領域 (10 km 格子) (2009 年のみ) 大気データ : 気象庁 GSM (日本域) 客観解析データ : 毎時大気解析 GPV (風、気温のみ) 海面水温データ: 気象庁日平均海面水温 土壌データ : NCEP 客観解析値</p> <p>雲物理 : Thompson graupel scheme 長波放射 : RRTM 短波放射 : Dudhia 接地層 : MYNN 地表面 : Noah land-surface 都市物理 : UCM 積雲対流 : Kain-Fritsch ナッジング : 格子点ナッジング 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</p>
化学輸送モデル	<p>CMAQ</p> <p>大気質モデルバージョン: CMAQv4.7.1</p> <p>水平拡散 : multiscale 鉛直拡散 : acm2 気相反応 : SAPRC99 粒子化 : AERO5 沈着 : areo_dep2 Cloud : cloud acm ae5</p> <p>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</p>
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
境界値	東アジア領域の境界値は、全球化学輸送モデル CHASER の出力値を使用

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 O_x 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 O_x 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。

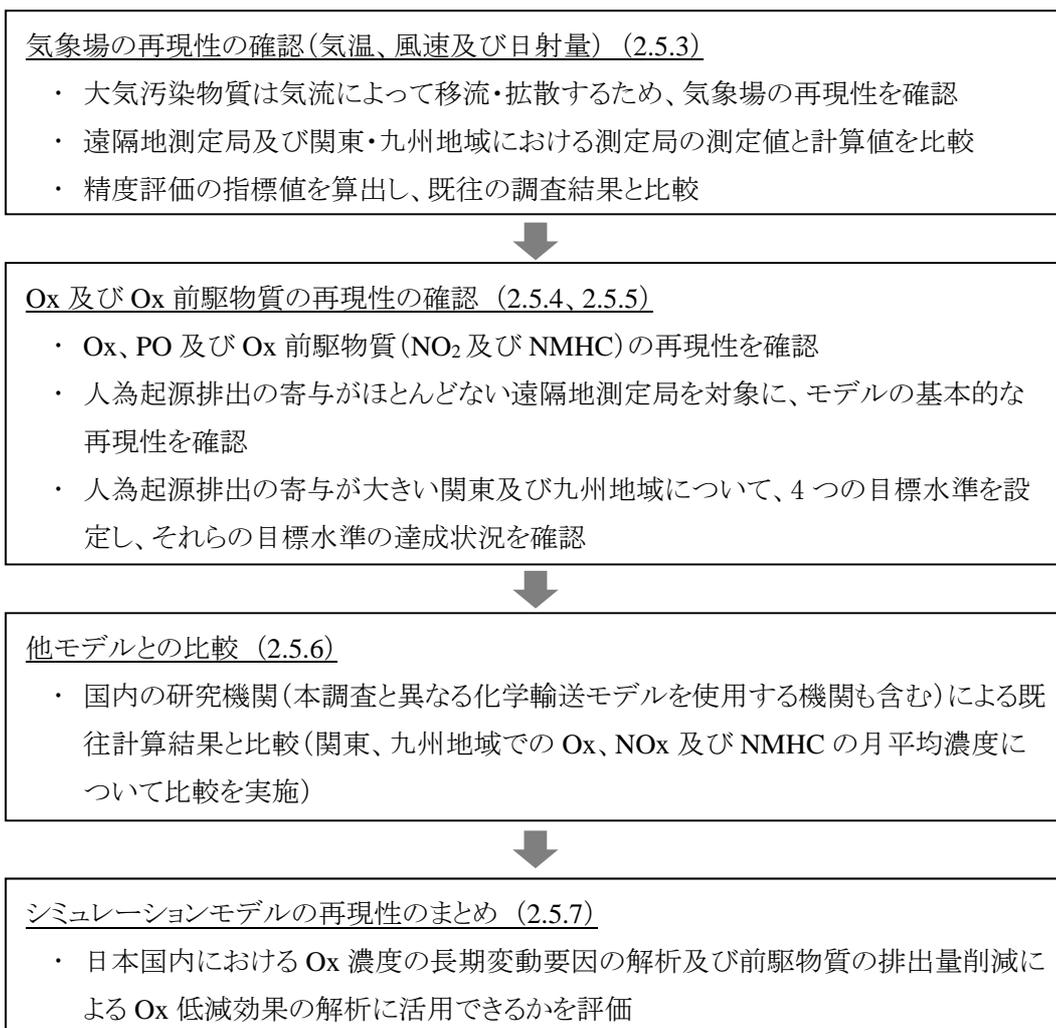


図 2-6 シミュレーションモデルの再現性の確認の流れ

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。

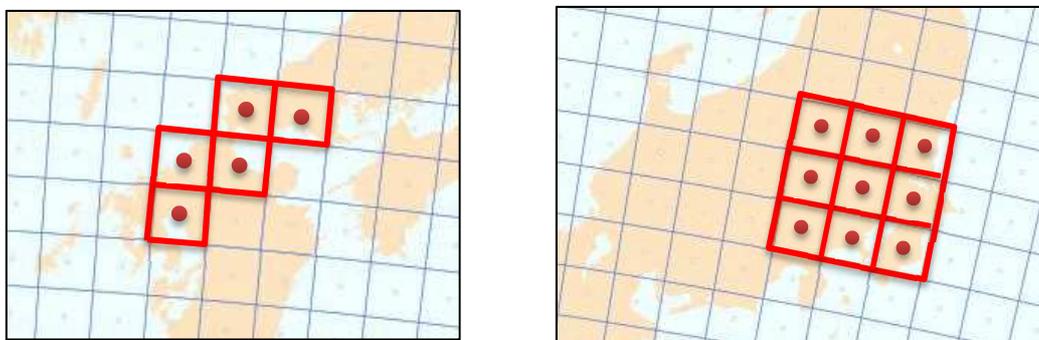


図 2-7 60 km 格子における解析対象格子(左図:九州地域、右図:関東地域)

(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 10 km 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。

10 km 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

- ① 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。

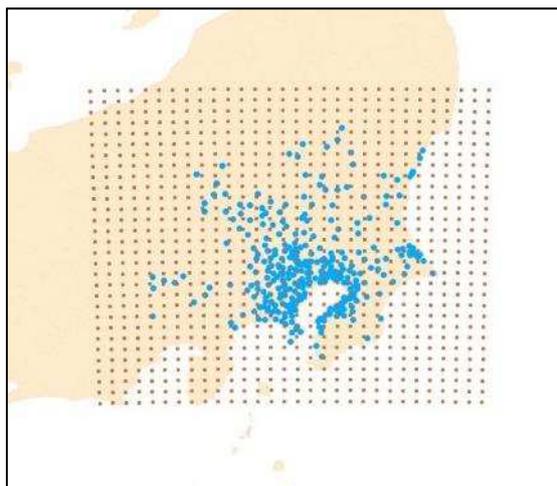


図 2-8 関東領域(10 km 格子)における格子の中心位置(■)と測定局(●)の場所

(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)。

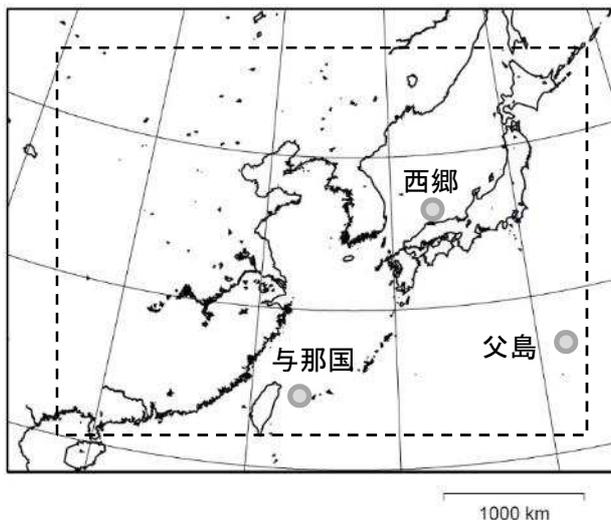


図 2-9 遠隔地モニタリングサイトの位置

表 2-8 モデル検証の実施内容(気象)について

評価要素	気温、風速(60 km 格子計算)
評価指標	BIAS、RMSE (C_{calc} 及び C_{obs} は時間値) $\text{BIAS} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_{\text{calc}} - C_{\text{obs}}) \quad \text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_{\text{calc}} - C_{\text{obs}})^2}$
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

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 $-1.0 \sim 1.0(^{\circ}\text{C})$ 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 $2.0 \sim 3.0(\text{m/s})$ の値となった。与那国は BIAS の値が $0.0 \sim 2.0(\text{m/s})$ 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。

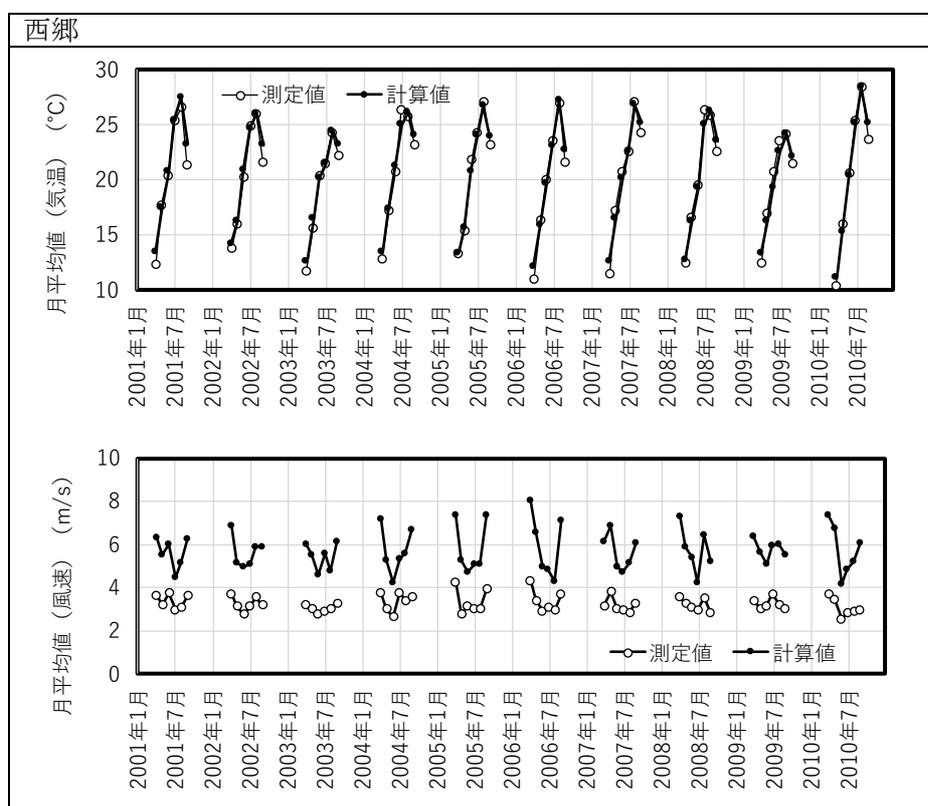


図 2-10 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、西郷)

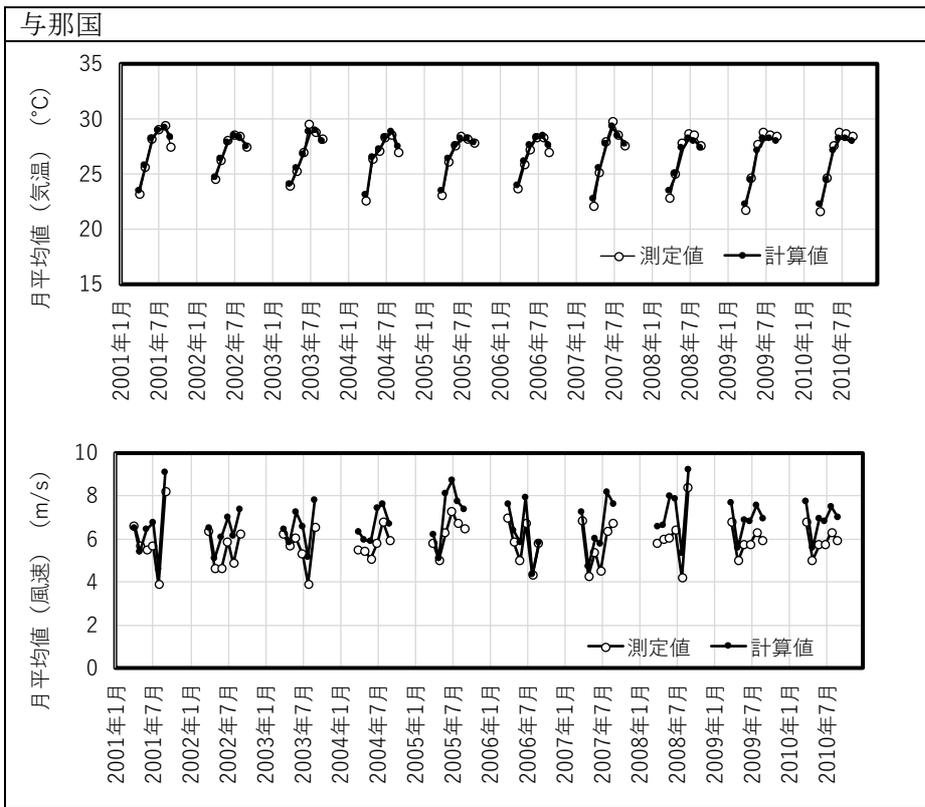


図 2-11 測定値と計算値の月平均値経年変化図(気温及び風速、与那国)

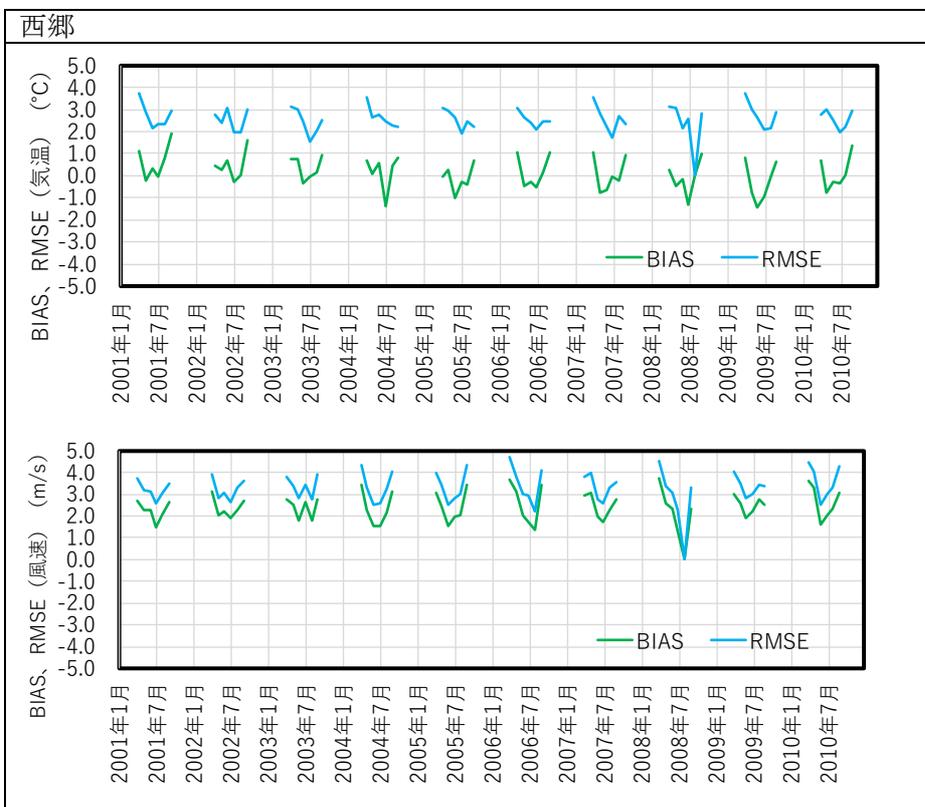


図 2-12 精度評価指標による評価結果(西郷)

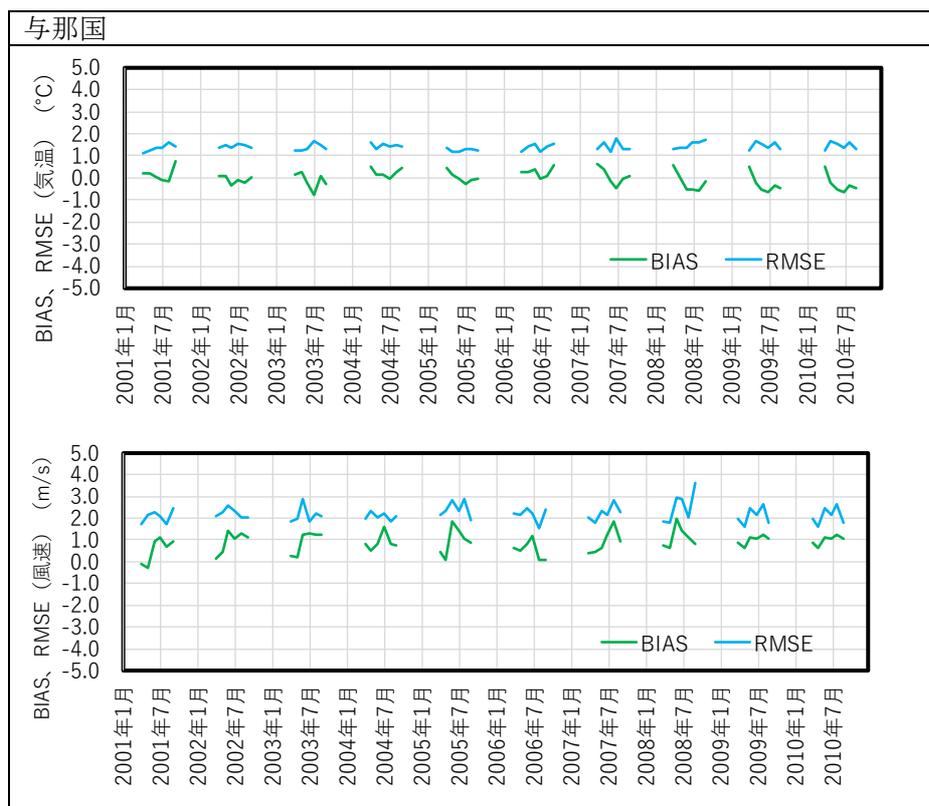


図 2-13 精度評価指標による評価結果(与那国)

(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)。

表 2-9 モデル検証の実施内容(気象)について

評価要素	気温、風速、日射量(10 km 格子)
評価指標	BIAS、RMSE (C_{calc} 及び C_{obs} は時間値)について $\text{BIAS} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_{\text{calc}} - C_{\text{obs}}) \quad \text{RMSE} = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C_{\text{calc}} - C_{\text{obs}})^2}$
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)

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 $-1.8 \sim 0.8(^{\circ}\text{C})$ 、RMSE は $1.5 \sim 4.5(^{\circ}\text{C})$ の範囲内であった。風速については、BIAS は $-0.2 \sim 2.4(\text{m/s})$ 、RMSE は $1.2 \sim 3.6(\text{m/s})$ の範囲内であった。一方、福岡については、気温の BIAS は $-2.9 \sim -0.2(^{\circ}\text{C})$ 、RSME は $1.5 \sim 3.2(^{\circ}\text{C})$ 、風速の BIAS は $0.9 \sim 3.4(\text{m/s})$ 、RMSE は $2.1 \sim 4.2(\text{m/s})$ の範囲内であった。

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

表 2-10 気温及び風速の精度評価指標値の比較

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

< 60 km 格子計算値 >

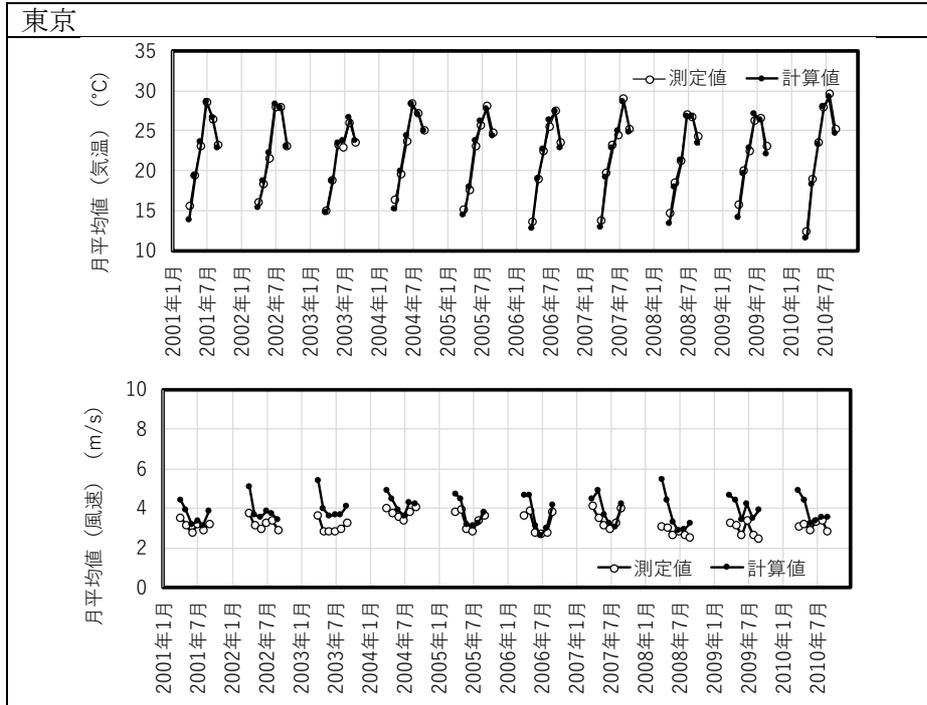


図 2-14 地上気象観測所における測定値と計算値の比較(東京)

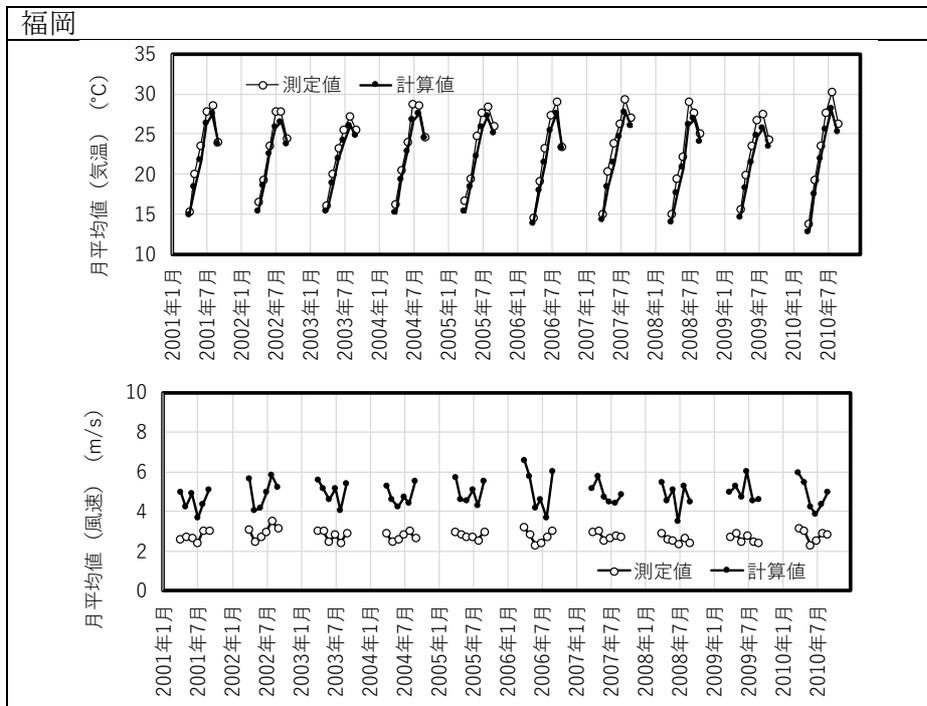


図 2-15 地上気象観測所における測定値と計算値の比較(福岡)

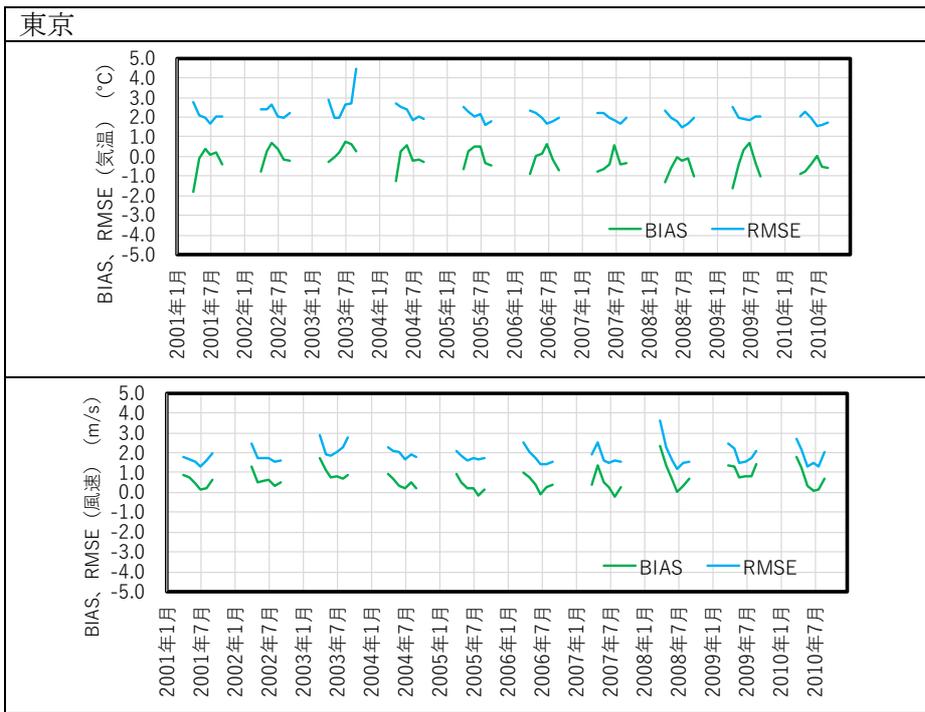


図 2-16 精度評価指標による評価結果(東京)

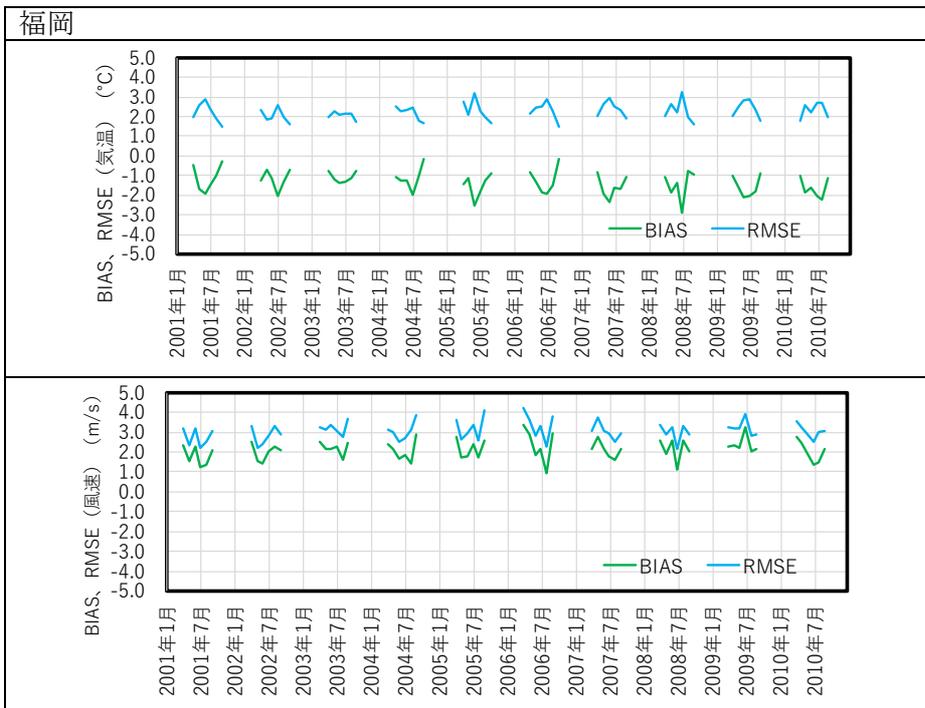


図 2-17 精度評価指標による評価結果(福岡)

< 10 km 格子計算値 >

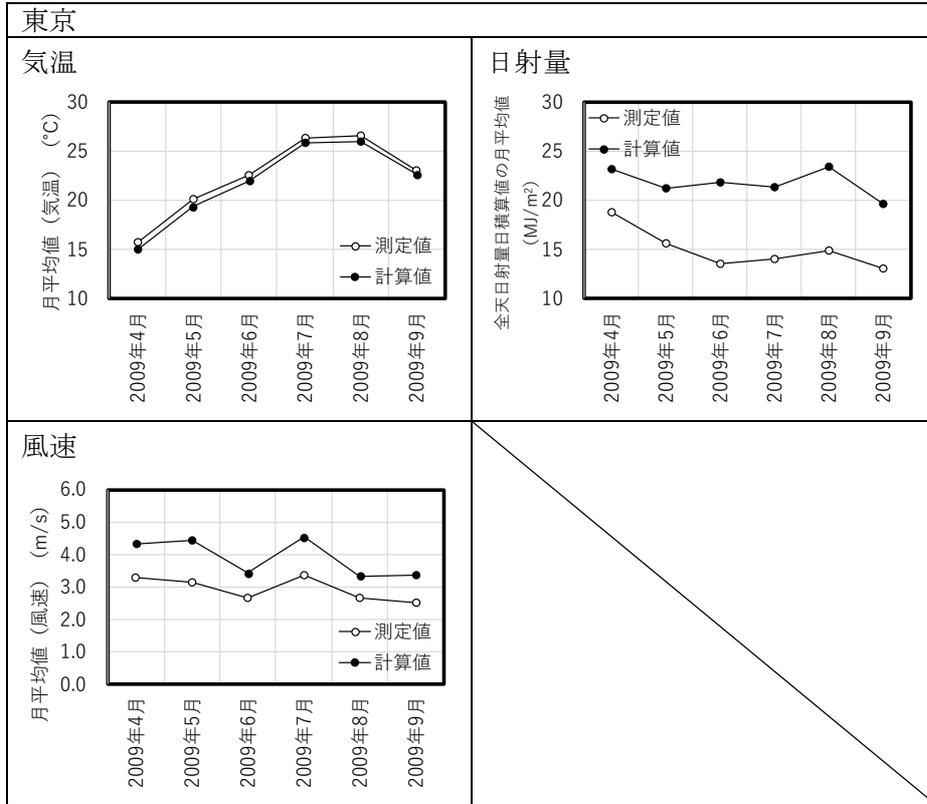


図 2-18 気象観測所における測定値と計算値の比較(東京)

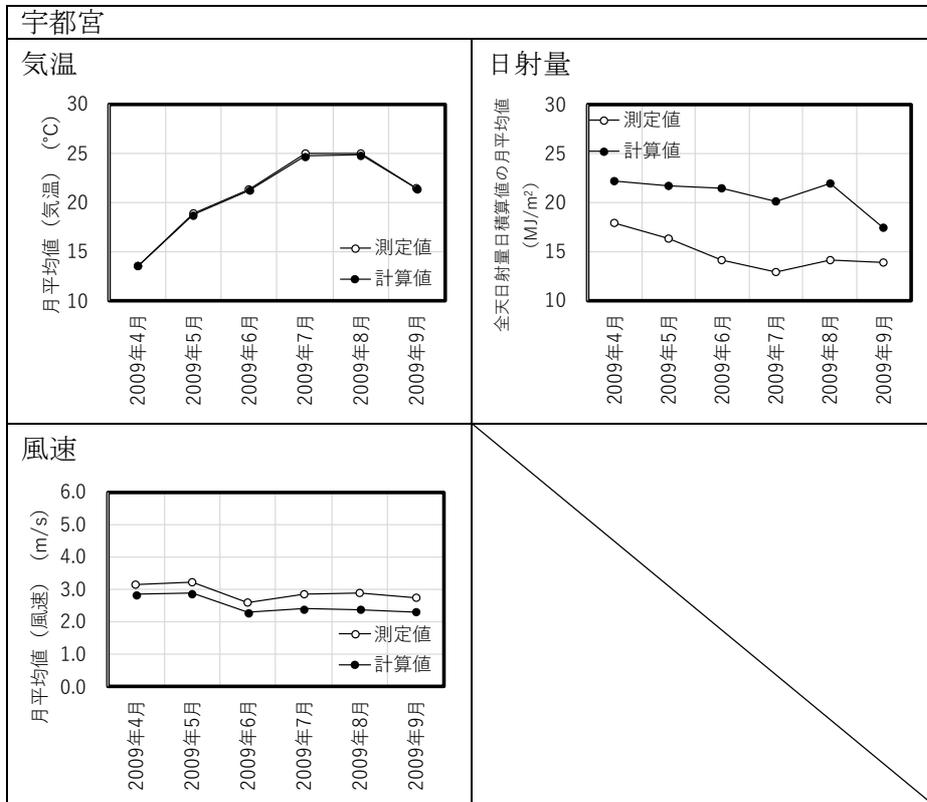


図 2-19 気象観測所における測定値と計算値の比較(宇都宮)

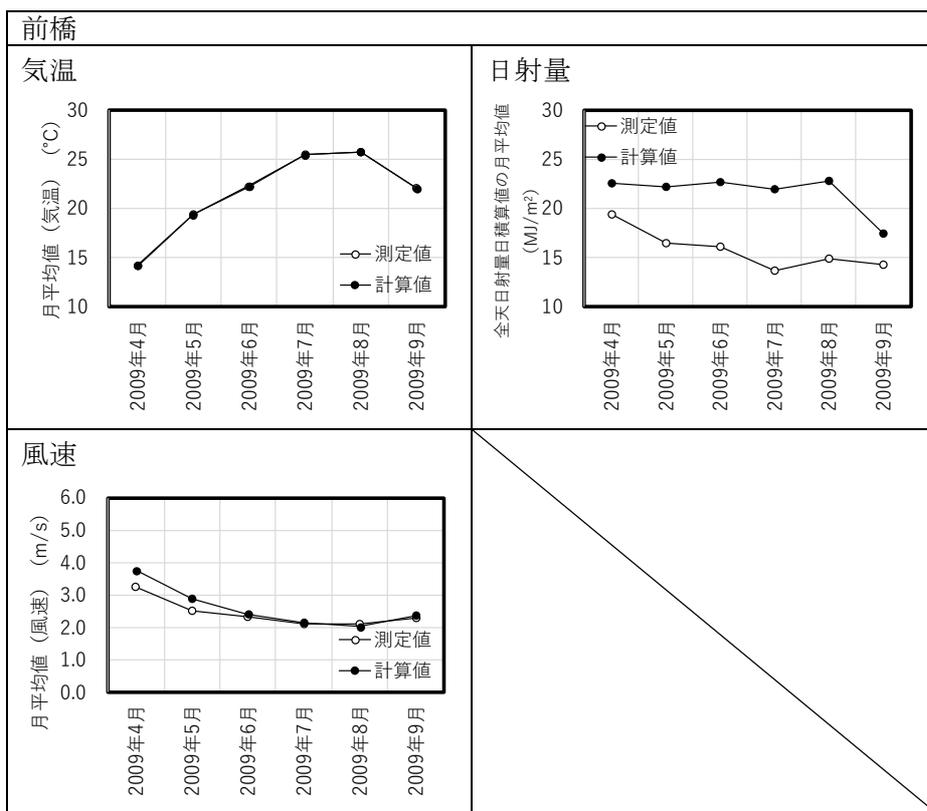


図 2-20 気象観測所における測定値と計算値の比較(前橋)

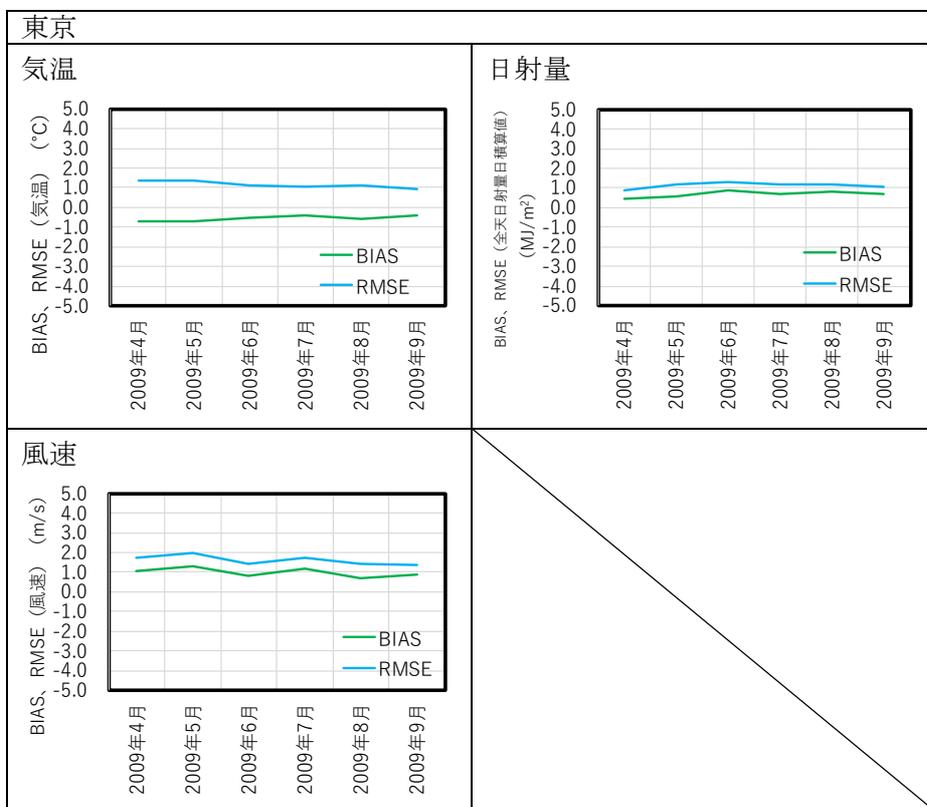


図 2-21 精度評価指標による評価結果(東京)

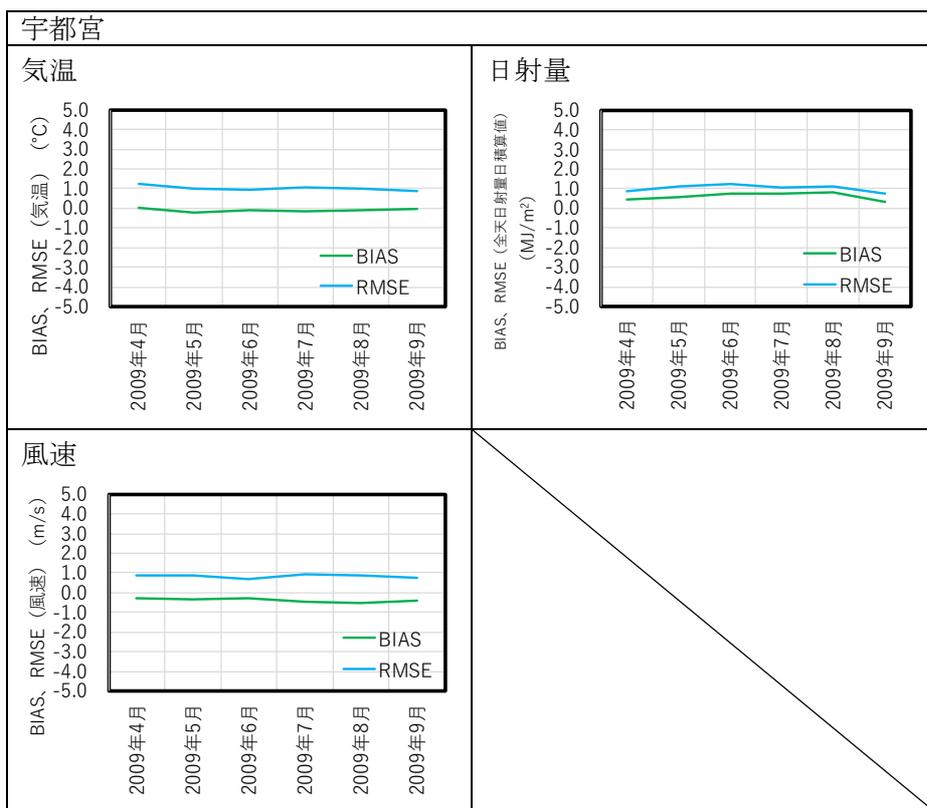


図 2-22 精度評価指標による評価結果(宇都宮)

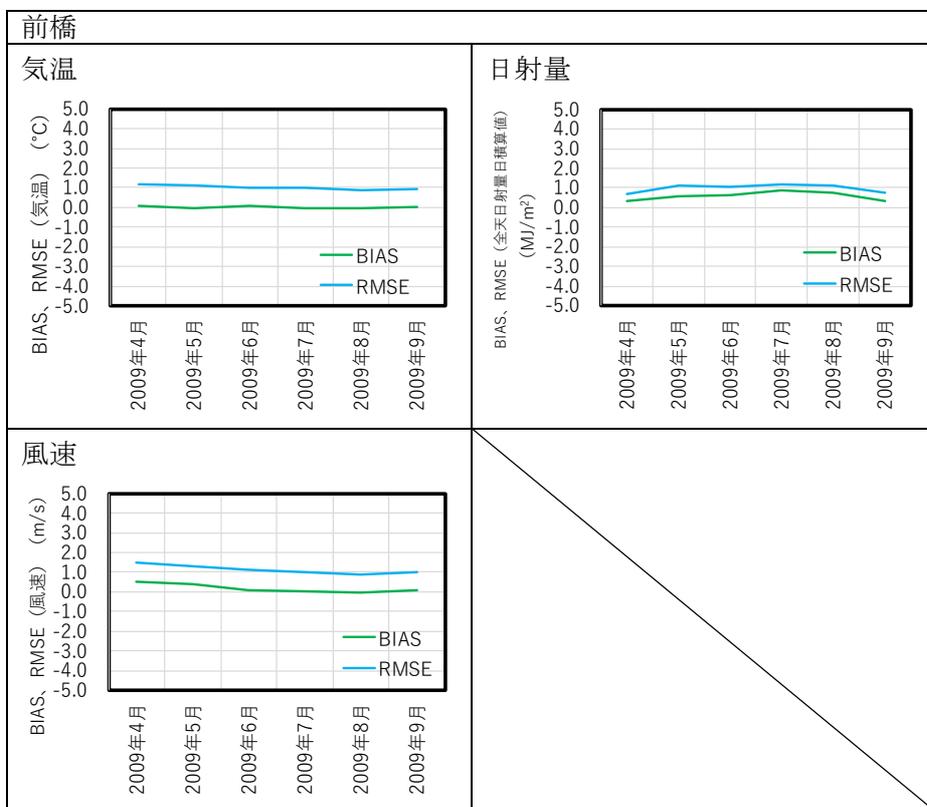


図 2-23 精度評価指標による評価結果(前橋)

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。

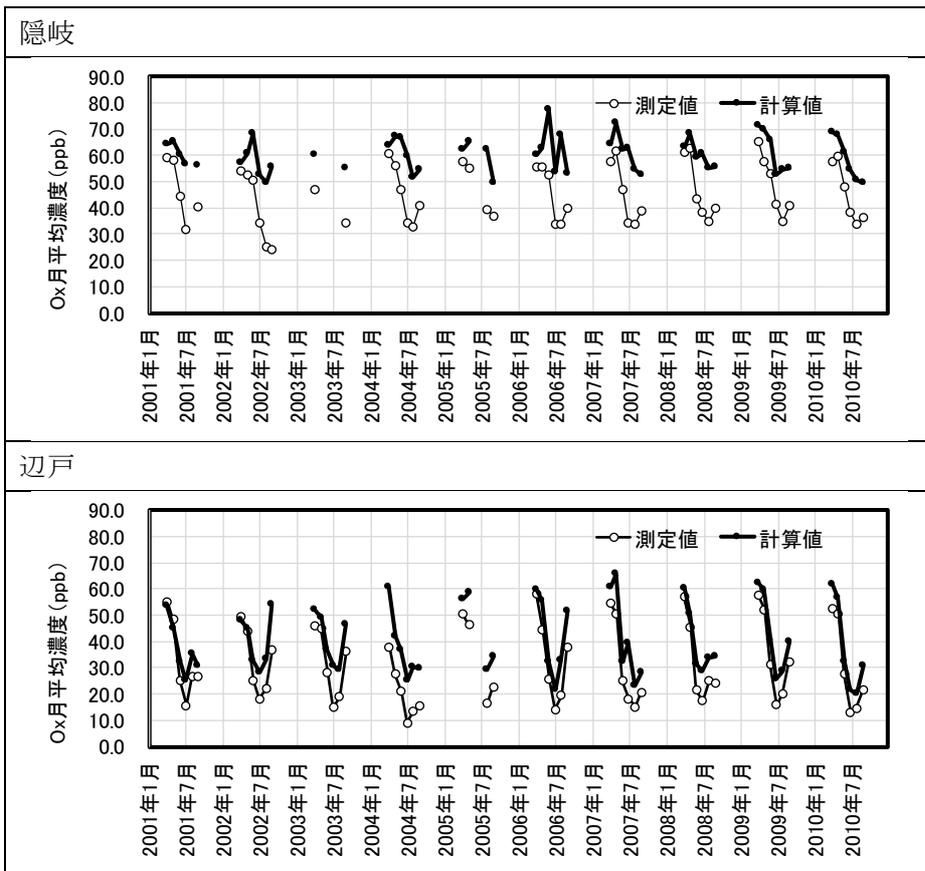


図 2-25 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の経年変化図(月平均値)

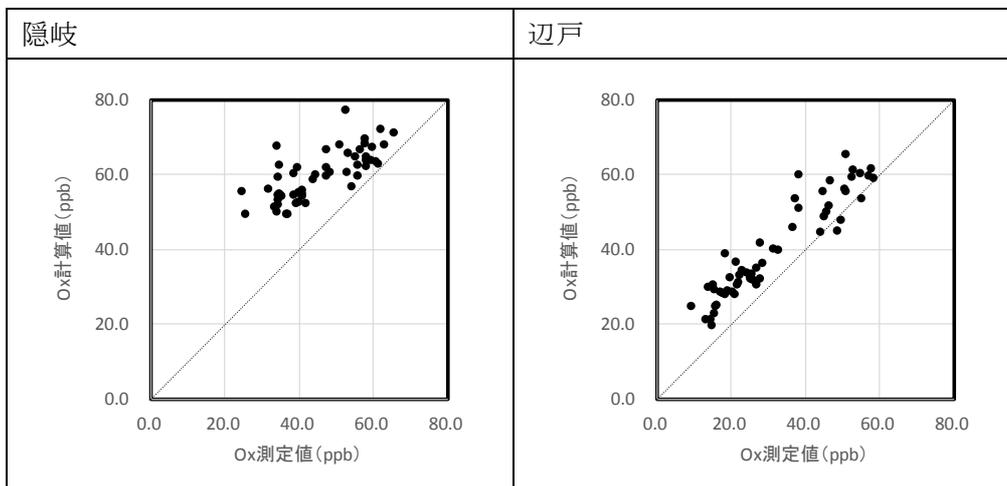


図 2-26 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の散布図(月平均値)

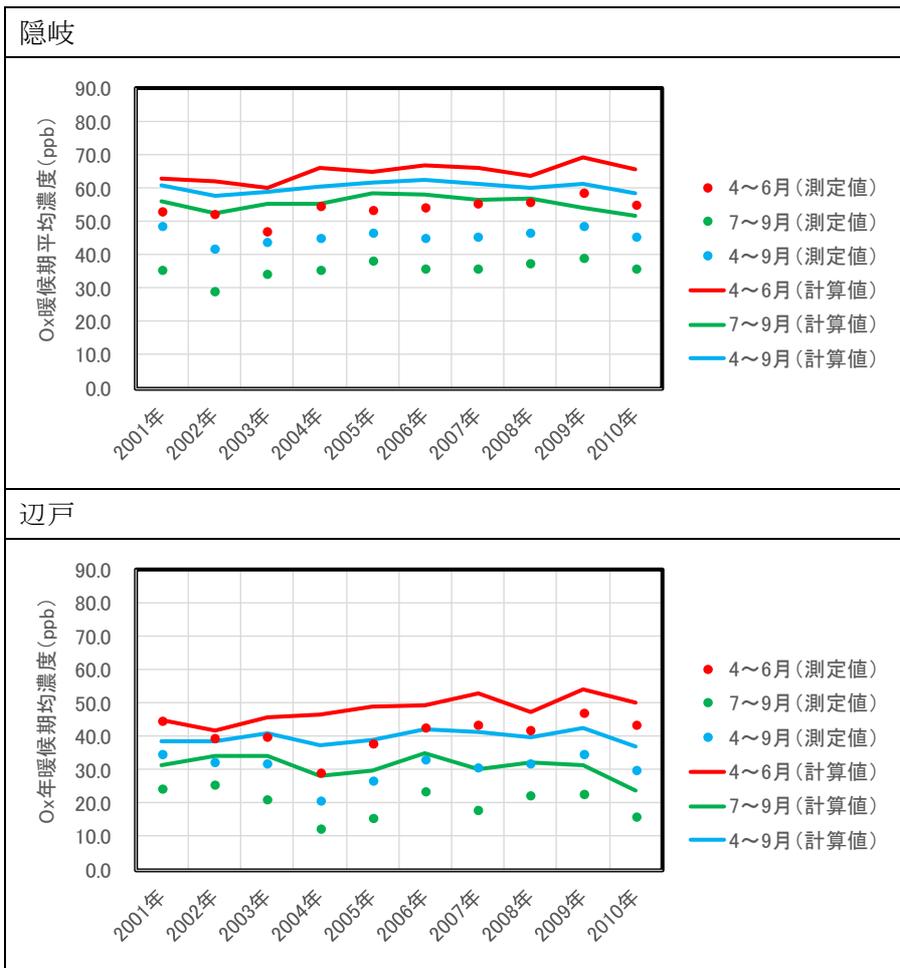


図 2-27 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の比較 (期間別)

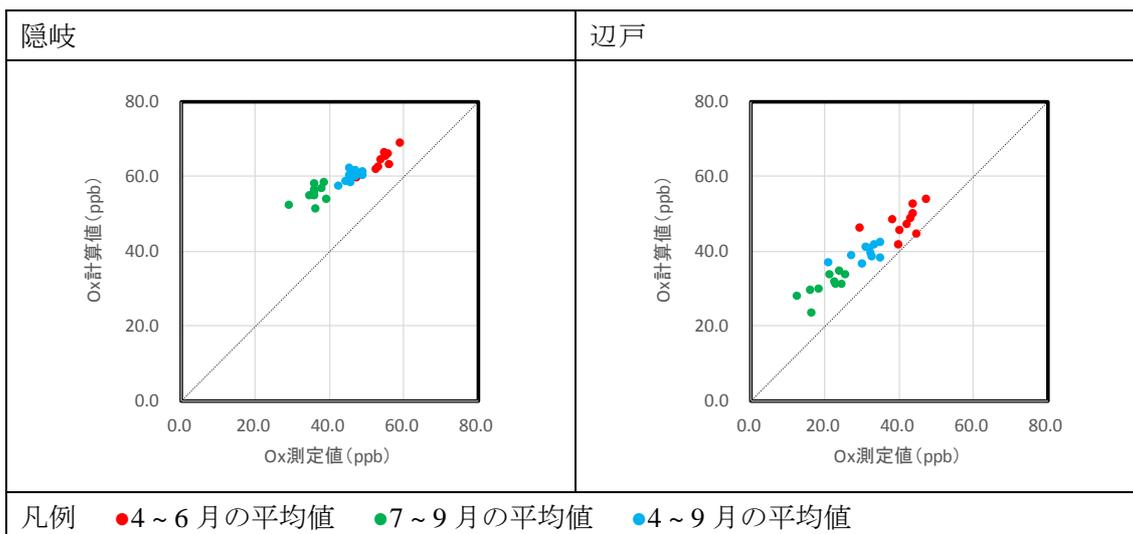


図 2-28 EANET モニタリングサイトにおける測定値と計算値の年の差分の散布図 (期間別)

2.5.5 関東・九州地域における O_x 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、O_x、PO 及び O_x 前駆物質(NO₂ 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 O _x 、NO _x 、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 O _x 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 NO ₂ 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。

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

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			

(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 style="list-style-type: none"> ・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)。 ・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)。
60 km 格子計算値 (PO)	<ul style="list-style-type: none"> ・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(図 2-33 及び図 2-35)。 ・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(図 2-34 及び図 2-36)。

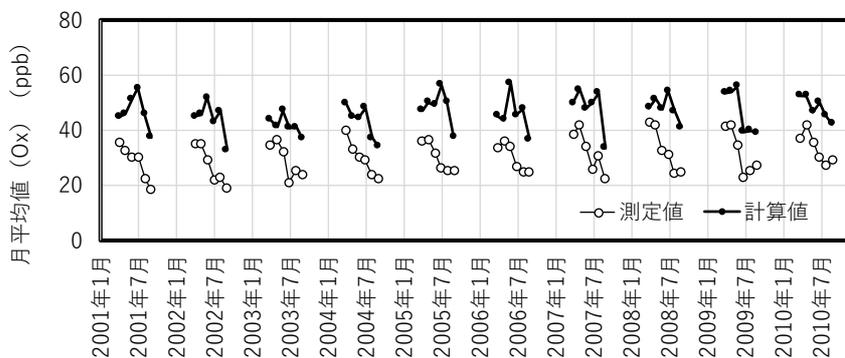


図 2-29 Ox 月平均値の経年変化図(関東地域)

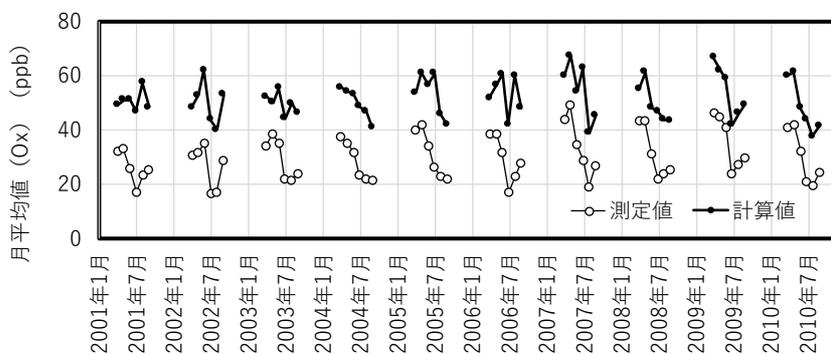


図 2-30 Ox 月平均値の経年変化図(九州地域)

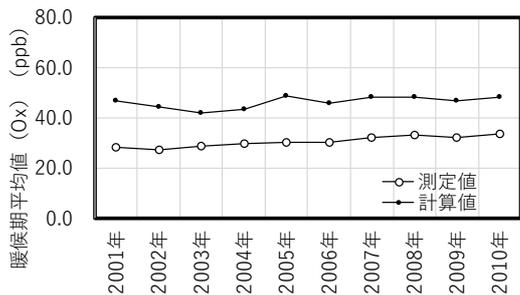


図 2-31 Ox 暖候期平均値の経年変化図
(関東地域)

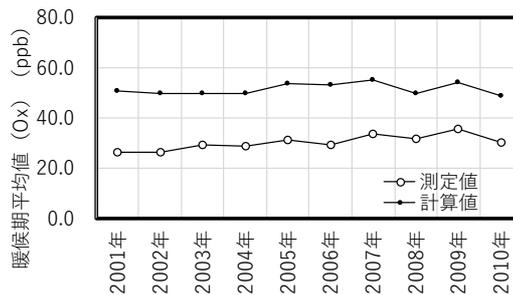


図 2-32 Ox 暖候期平均値の経年変化図
(九州地域)

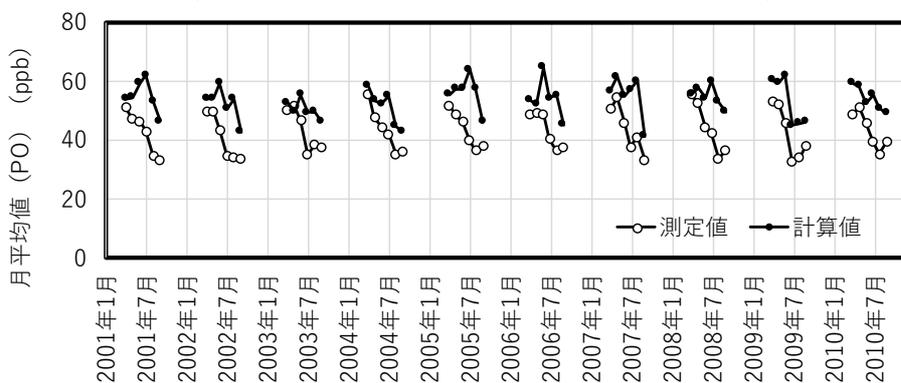


図 2-33 PO 月平均値の経年変化図(関東地域)

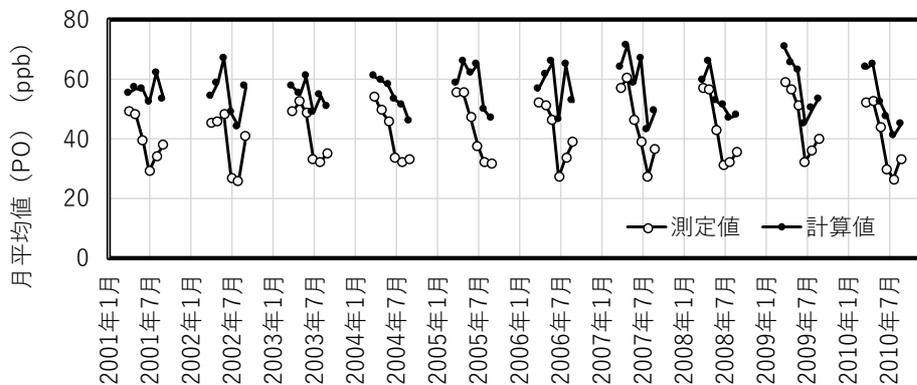


図 2-34 PO 月平均値の経年変化図(九州地域)

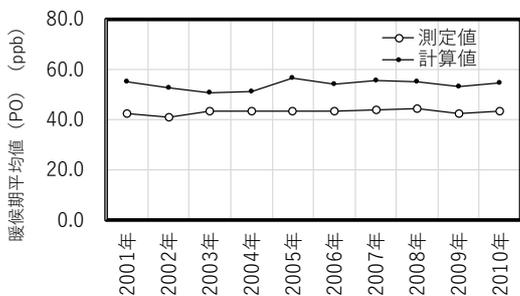


図 2-35 PO 暖候期平均値の経年変化図
(関東地域)

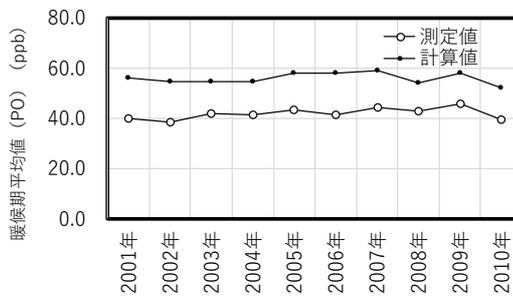


図 2-36 PO 暖候期平均値の経年変化図
(九州地域)

<NO₂>

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。

表 2-14 60 km 格子計算値(NO₂)について

60 km 格子計算値(NO ₂)	再現性の確認結果
暖候期平均値のトレンド	<ul style="list-style-type: none"> ・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)であり、概ね再現されていた(図 2-37 及び図 2-39)。 ・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、計算値は30% (4.1→2.8 ppb)、測定値は30% (15.8→11.0 ppb)であり、再現されていた(図 2-38 及び図 2-40)。

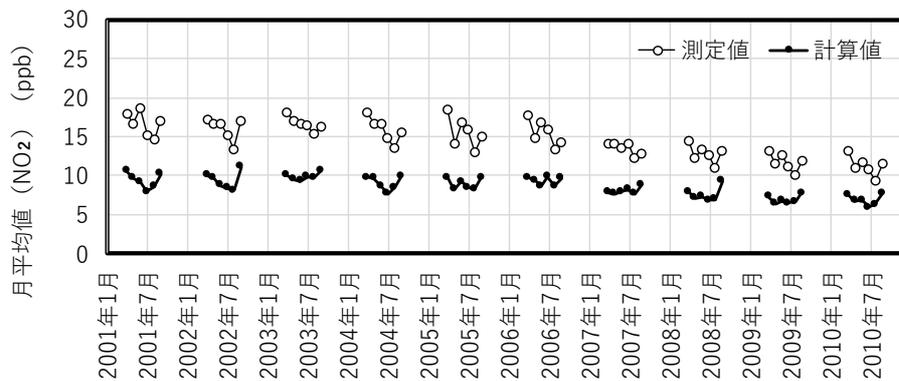


図 2-37 NO₂ 月平均値の経年変化図(関東地域)

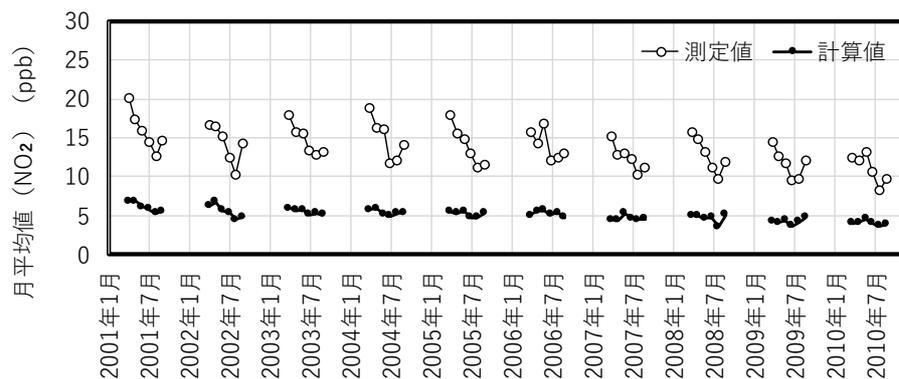


図 2-38 NO₂ 月平均値の経年変化図(九州地域)

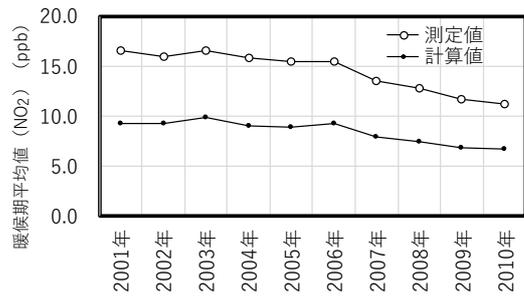


図 2-39 NO₂ 暖候期平均値の経年変化図
(関東地域)

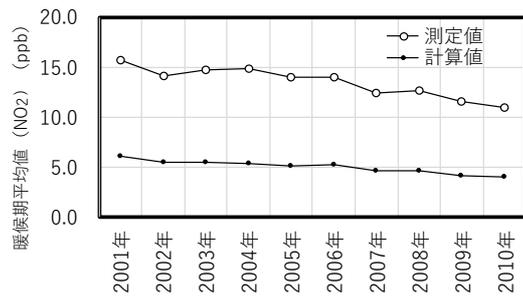


図 2-40 NO₂ 暖候期平均値の経年変化図
(九州地域)

<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。

表 2-15 60 km 格子計算値(NMHC)について

60 km 格子 計算値(NMHC)	再現性の確認結果
暖候期平均値の トレンド	<ul style="list-style-type: none"> ・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 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)。

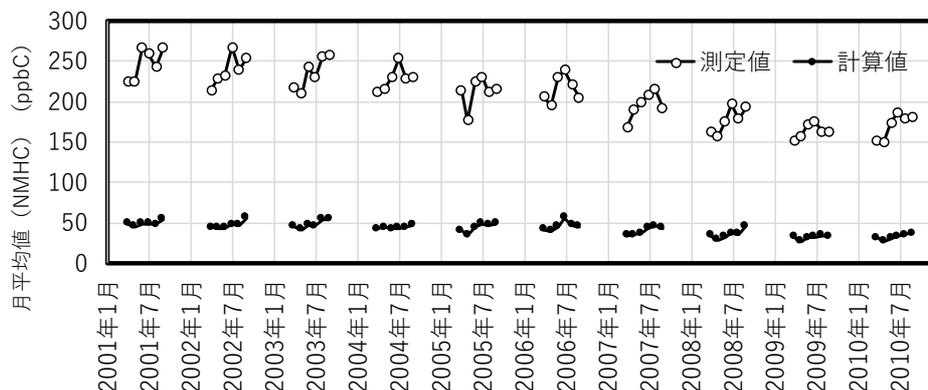


図 2-41 NMHC 月平均値の経年変化図(関東地域)

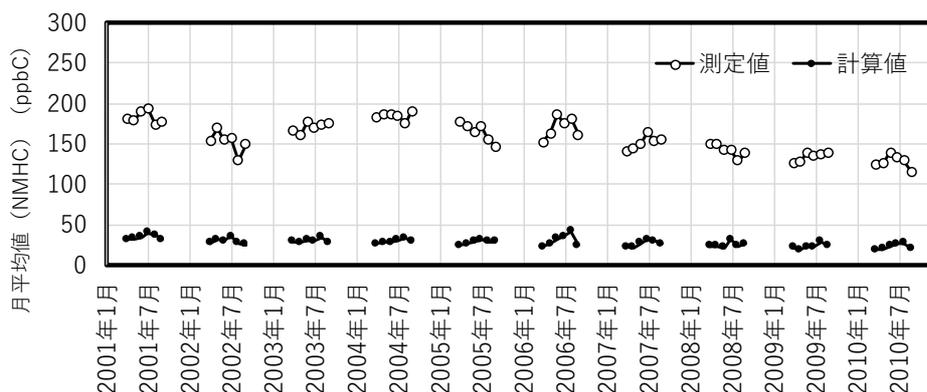


図 2-42 NMHC 月平均値の経年変化図(九州地域)

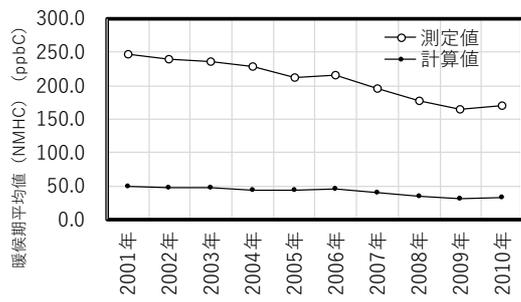


図 2-43 NMHC 暖候期平均値の経年変化図
(関東地域)

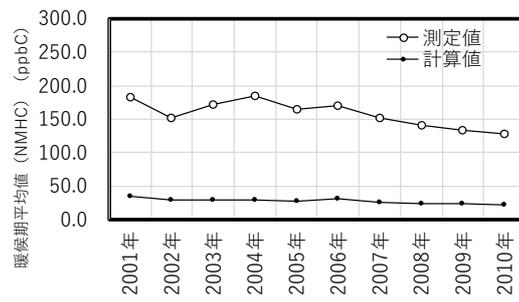


図 2-44 NMHC 暖候期平均値の経年変化図
(九州地域)

イ. Ox 新指標相当値の再現性

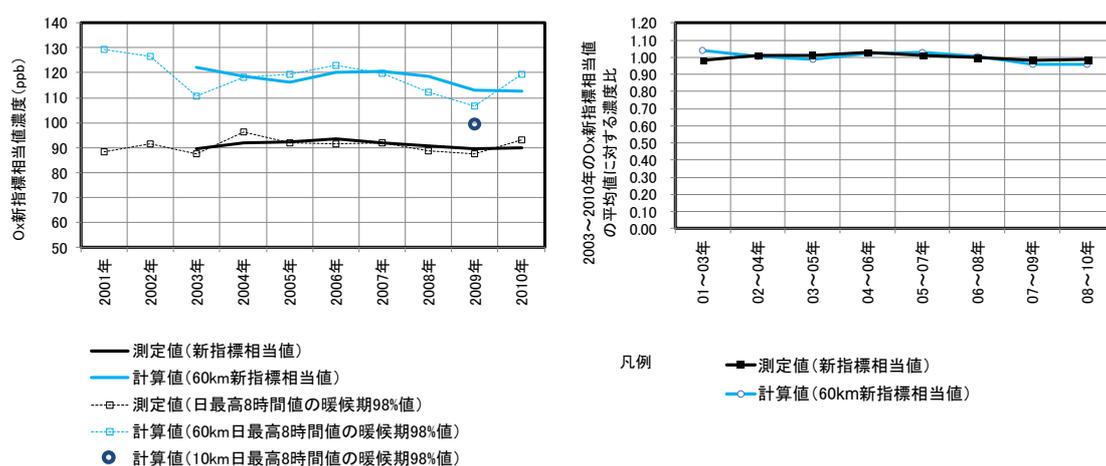
Ox 新指標相当値の再現性について、結果を以下に整理した。

< 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見られる 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見られる 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) >

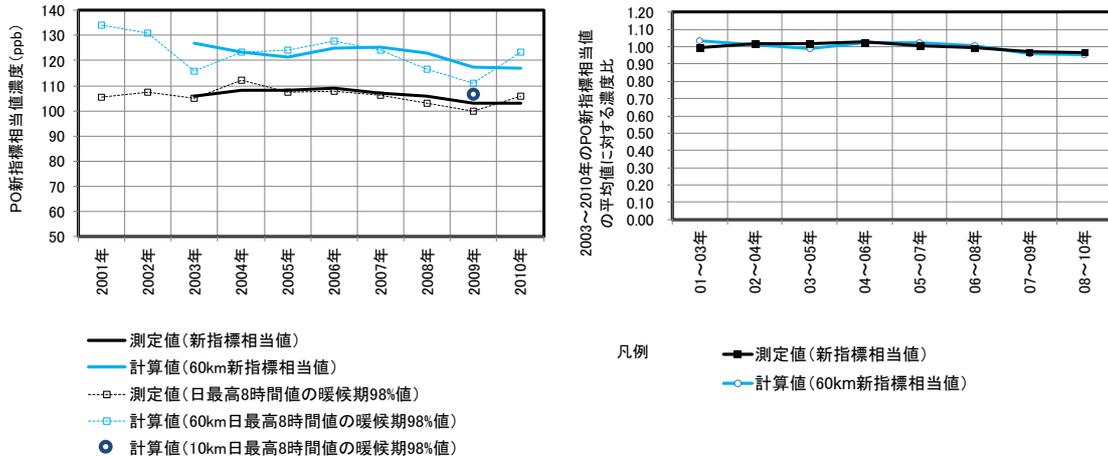
- ・ 2009 年の単年の Ox 統計値は、60 km と比較すると測定値に近い値であり(□と○の比較)、測定値に対して+12%であった(60 km 格子計算値は、測定値に対して+21%)。
- ・ 2009 年の単年の PO 統計値は、10 km 格子計算値は測定値に対して+6%、60 km 格子計算値は測定値に対して+11%であった。



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

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見られる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。

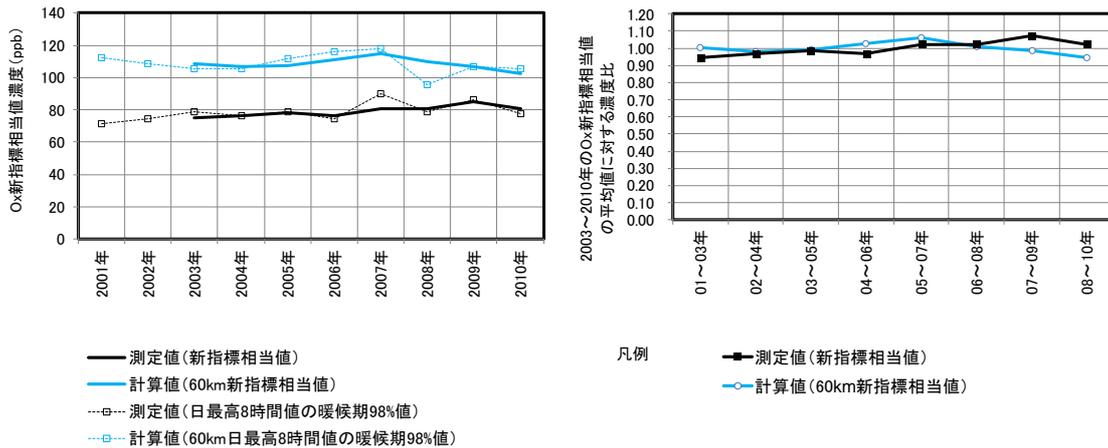
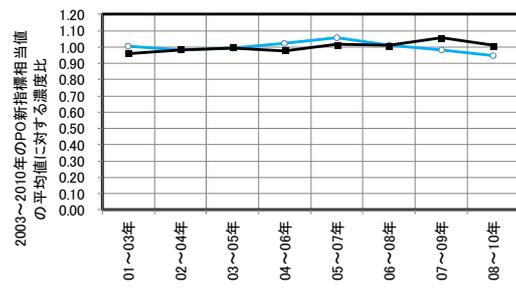
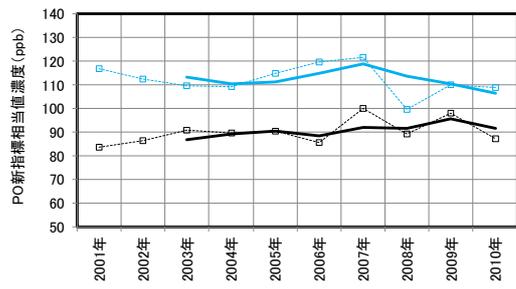


図 2-47 測定値及び計算値を対象とした Ox 新指標相当値(九州 60 km 格子)



— 測定値 (新指標相当値)
 — 計算値 (60km新指標相当値)
 - - □ - 測定値 (日最高8時間値の暖候期98%値)
 - - □ - 計算値 (60km日最高8時間値の暖候期98%値)

凡例
 — □ — 測定値 (新指標相当値)
 — ○ — 計算値 (60km新指標相当値)

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、60 km 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、10 km 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。

表 2-16 60 km 格子計算値(NO₂)について

60 km 格子 計算値(NO ₂)	評価指標の値(2001～2010年暖候期における評価指標の分布範囲)			再現性の確認結果
		<u>NB</u>	<u>NGE</u>	
月平均値の 評価	関東	-0.51～-0.29	0.29～0.51	<ul style="list-style-type: none"> ・関東及び九州地域ともに、計算値は測定値と比較して過小である。 ・評価指標の値から、関東地域の方が九州地域よりも再現性が高い。
	九州	-0.71～-0.54	0.54～0.71	
暖候期(4～9月) 平均値の評価	関東	-0.44～-0.40	0.40～0.44	
	九州	-0.64～-0.61	0.61～0.64	

表 2-17 10 km 格子計算値(NO₂)について

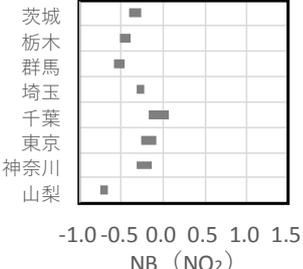
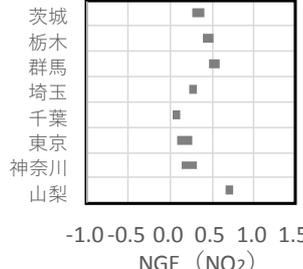
月平均値の精度評価結果																																																										
期間平均値	評価指標(NB)	評価指標(NGE)																																																								
関東地域 <table border="1"> <tr> <th>2009年</th> <th>測定値(ppb)</th> <th>計算値(ppb)</th> </tr> <tr> <td>4月</td> <td>13.2</td> <td>8.4</td> </tr> <tr> <td>5月</td> <td>11.6</td> <td>7.9</td> </tr> <tr> <td>6月</td> <td>12.6</td> <td>8.1</td> </tr> <tr> <td>7月</td> <td>11.0</td> <td>7.6</td> </tr> <tr> <td>8月</td> <td>10.2</td> <td>7.5</td> </tr> <tr> <td>9月</td> <td>12.0</td> <td>8.7</td> </tr> <tr> <td>4~9月</td> <td>11.7</td> <td>8.0</td> </tr> </table>	2009年	測定値(ppb)	計算値(ppb)	4月	13.2	8.4	5月	11.6	7.9	6月	12.6	8.1	7月	11.0	7.6	8月	10.2	7.5	9月	12.0	8.7	4~9月	11.7	8.0	関東地域 <table border="1"> <tr> <th>対象期間</th> <th>NB</th> </tr> <tr> <td>4月</td> <td>-0.36</td> </tr> <tr> <td>5月</td> <td>-0.32</td> </tr> <tr> <td>6月</td> <td>-0.36</td> </tr> <tr> <td>7月</td> <td>-0.30</td> </tr> <tr> <td>8月</td> <td>-0.26</td> </tr> <tr> <td>9月</td> <td>-0.28</td> </tr> <tr> <td>4~9月</td> <td>-0.31</td> </tr> </table>	対象期間	NB	4月	-0.36	5月	-0.32	6月	-0.36	7月	-0.30	8月	-0.26	9月	-0.28	4~9月	-0.31	関東地域 <table border="1"> <tr> <th>対象期間</th> <th>NGE</th> </tr> <tr> <td>4月</td> <td>0.36</td> </tr> <tr> <td>5月</td> <td>0.32</td> </tr> <tr> <td>6月</td> <td>0.36</td> </tr> <tr> <td>7月</td> <td>0.30</td> </tr> <tr> <td>8月</td> <td>0.26</td> </tr> <tr> <td>9月</td> <td>0.28</td> </tr> <tr> <td>4~9月</td> <td>0.31</td> </tr> </table>	対象期間	NGE	4月	0.36	5月	0.32	6月	0.36	7月	0.30	8月	0.26	9月	0.28	4~9月	0.31
2009年	測定値(ppb)	計算値(ppb)																																																								
4月	13.2	8.4																																																								
5月	11.6	7.9																																																								
6月	12.6	8.1																																																								
7月	11.0	7.6																																																								
8月	10.2	7.5																																																								
9月	12.0	8.7																																																								
4~9月	11.7	8.0																																																								
対象期間	NB																																																									
4月	-0.36																																																									
5月	-0.32																																																									
6月	-0.36																																																									
7月	-0.30																																																									
8月	-0.26																																																									
9月	-0.28																																																									
4~9月	-0.31																																																									
対象期間	NGE																																																									
4月	0.36																																																									
5月	0.32																																																									
6月	0.36																																																									
7月	0.30																																																									
8月	0.26																																																									
9月	0.28																																																									
4~9月	0.31																																																									
—	各都県(月平均値を対象とした評価指標の分布範囲) 	各都県(月平均値を対象とした評価指標の分布範囲) 																																																								
<ul style="list-style-type: none"> ・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。 ・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。 ・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 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 2-18 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 style="list-style-type: none"> ・測定値と計算値の差を測定値で標準化した値の和 ・モデルの系統的な誤差を表す
NGE (Normalized Gross Error)	$NGE = \frac{ C_{calc} - C_{obs} }{C_{obs}}$	<ul style="list-style-type: none"> ・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 ・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

C_{obs} , C_{calc} :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、MIR⁴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。

⁴ MIR(Maximum Incremental Reactivity): 光化学反応性を示す指標

表 2-19 主要 VOC 成分の再現性評価対象地点について

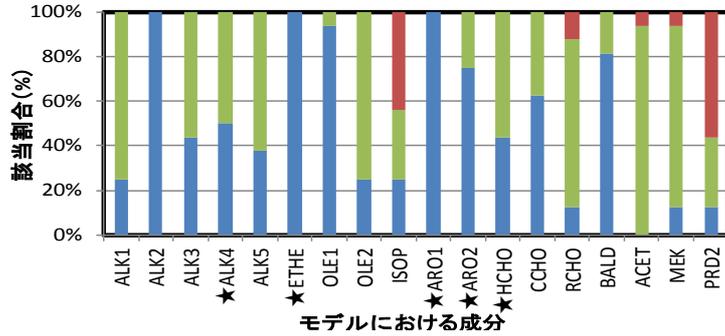
測定地点	戸田・蕨、鴻巣、幸手、寄居 ⁵
測定物質	パラフィン類:27 オレフィン類 :10 芳香族:17 ハロゲン化合物:22 フロン類 :11 アルデヒド類: 8 ケトン類 : 3 その他 :1
測定日	<2009 年> 4 月 23 日、5 月 19 日、6 月 10 日、7 月 9 日 8 月 11 日(鴻巣は 8 月 18 日)、9 月 9 日 <2010 年> 4 月 21 日、5 月 18 日、6 月 10 日、7 月 7 日、8 月 10 日、9 月 16 日
サンプリング時間	(昼夜測定)昼:6~18 時、夜:18~翌日 6 時

表 2-20 測定物質とモデルにおける成分分類

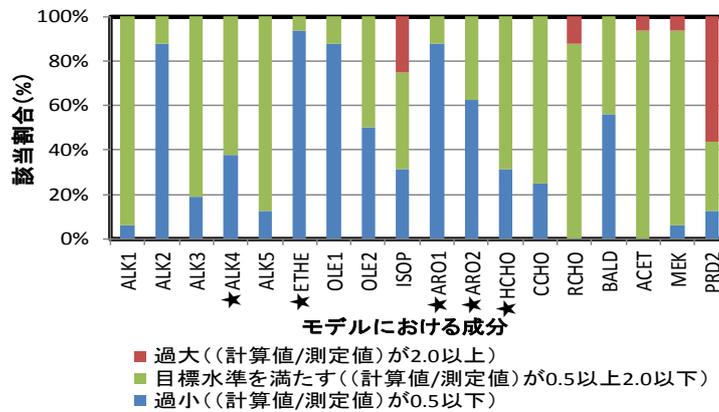
測定物質名	モデル VOC 成分	測定物質名	モデル VOC 成分	測定物質名	モデル VOC 成分	測定物質名	モデル VOC 成分
パラフィン類	エタン ALK1	オレフィン類	アセチレン ALK2	ハロゲン化合物	ジクロロメタン ALK1	アルデヒド類	ベンズアルデヒド BALD
	プロパン ALK2		エチレン ETHENE		1,2-ジクロロエタン ALK1		アセトアルデヒド CCHO
	イソブタン ALK3		2-メチル-1,3-ブタジエン ISOP		1,1-ジクロロエタン ALK1		ホルムアルデヒド HCHO
	n-ブタン ALK3		プロピレン OLE1		1,1,2-トリクロロエタン ALK1		プロピオンアルデヒド RCHO
	2,2-ジメチルブタン ALK3		1-ペンテン OLE1		1,2-ジブロモエタン ALK1		n-イソブチルアルデヒド RCHO
	イソペンタン ALK4		ト-2-ブテン OLE2		テトラクロロエチレン ALK1		イソバレルアルデヒド RCHO
	n-ペンタン ALK4		c-2-ブテン OLE2		クロロエタン ALK2		n-バレルアルデヒド RCHO
	シクロペンタン ALK4		1,3-ブタジエン OLE2		c-1,2-ジクロロエチレン ALK3		ヘキサナール RCHO
	2-メチルペンタン ALK4		ト-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-メチルペンタン ALK4		c-2-ペンテン OLE2		塩化ビニルモノマー ALK5		メチルエチルケトン MEK
	n-ヘキサン ALK4	芳香族	ベンゼン ARO1		1,1-ジクロロエチレン ALK5		メチルイソブチルケトン PRD2
	メチルシクロペンタン ALK4		トルエン ARO1		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-ジメチルペンタン ALK4		エチルベンゼン ARO1		ト-1,3-ジクロロプロペン ALK5		
	2,2,4-トリメチルペンタン ALK4		イソプロピルベンゼン ARO1		クロロメタン NROG		
	シクロヘキサン ALK5		n-プロピルベンゼン ARO1		クロロホルム NROG		
	2-メチルヘキサン ALK5		m&p-キシレン ARO2		四塩化炭素 NROG		
	2,3-ジメチルペンタン ALK5		o-キシレン ARO2		ブロメタン NROG		
	3-メチルヘキサン ALK5		m&p-エチルトルエン ARO2		1,1,1-トリクロロエタン NROG		
	n-ヘプタン ALK5		1,3,5-トリメチルベンゼン ARO2		クロロベンゼン NROG		
	メチルシクロヘキサン ALK5		o-エチルトルエン ARO2		m-ジクロロベンゼン NROG		
	2,3,4-トリメチルペンタン ALK5		1,2,4-トリメチルベンゼン ARO2		p-ジクロロベンゼン NROG		
	2-メチルヘプタン ALK5		1,2,3-トリメチルベンゼン ARO2		o-ジクロロベンゼン NROG		
	3-メチルヘプタン ALK5		m-ジエチルベンゼン ARO2	フロン類	HCFC22 NROG		
	n-オクタン ALK5		p-ジエチルベンゼン ARO2		CFCl12 NROG		
	n-ノナン ALK5		スチレン OLE2		CFCl11 NROG		
	n-デカン ALK5				HFC134a NROG		
	n-ウンデカン ALK5				CFCl114 NROG		
					HCFC142b NROG		
					HCFC123 NROG		
					HCFC141b NROG		
					CFCl113 NROG		
					HCFC225ca NROG		
					HCFC225cb NROG		

⁵ 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 格子計算値



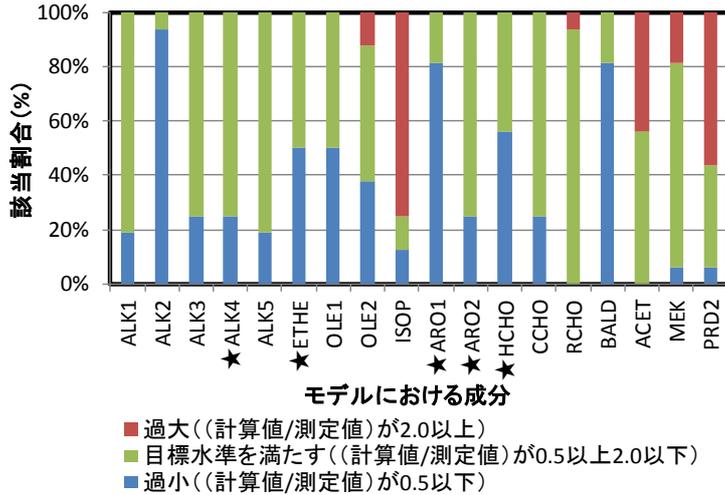
2009年 10km 格子計算値



(★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)

2010年 60km 格子計算値



(★は MIR と平均濃度の積の上位 5 成分)

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%以内にはほぼ収まっていた。
- ・ 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 10 km 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、60 km 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、NO_x 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、60 km 格子計算値及び 10 km 格子計算値のどちらも、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、60 km 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 O_x、NO₂、NO_x、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 (O_x、NO_x 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)。

表 2-21 各モデルの設定条件

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 4.4	WRF- Chem	WRF	WRF v3.7	WRF v3.3.1	WRF v3.5.1	WRF v3.3.1	WRF v3.3.1	WRF v3.5.1	
化学輸送モデル	ADMER- PRO	WRF- Chem	RAQM2	CMAQ v5.0.2	CMAQ v4.7.1	CMAQ v5.01	CMAQ v4.7.1	CMAQ v4.7.1	CMAQ v4.7.1	
気層反応 モジュール	CB4	RADM2	SAPRC 99	SAPRC 07tc	SAPRC 99	SAPRC 07tc	SAPRC 99	SAPRC 99	SAPRC 99	
粒子化 モジュール	なし	SORGAM	MADMS/ ISORROPI A2	AERO6	AERO5	AERO6	AERO5	AERO5	AERO5	
対象 年度	2001	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2002	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2003	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2004	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2005	○	○	-	-	○	○	○	○	
	2006	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2007	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2008	-	-	-	-	-	○	○	○	
	2009	-	-	-	-	-	-	○	○	
	2010	-	-	○	○	-	○	-	○	
空間 解像度	東アジア /アジア	-	80km	45km	45km	-	-	80km	60km	60km
	日本	(20km)※1	-	-	15km	20km	20km ※2	-	-	-
	関東	5km	-	-	5km	5km	5km ※2	-	-	10km
	九州 ※3	5km	-	-	-	-	-	-	-	-

※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 O_x 、 NO_x 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、 O_x 、 NO_x 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、 O_x 、 NO_x 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)

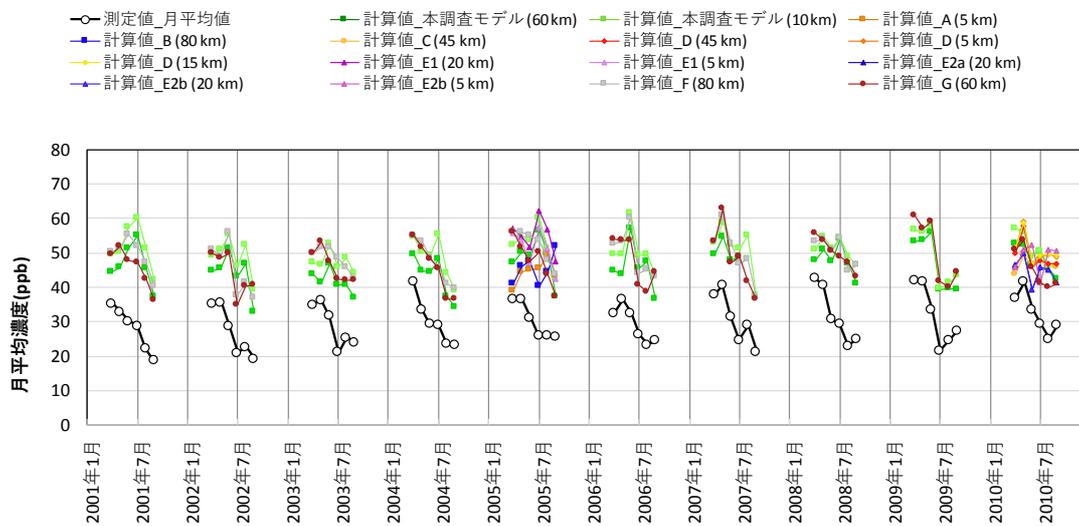


図 2-51 Ox 月平均値(関東地域)

対象物質:Ox (九州地域)

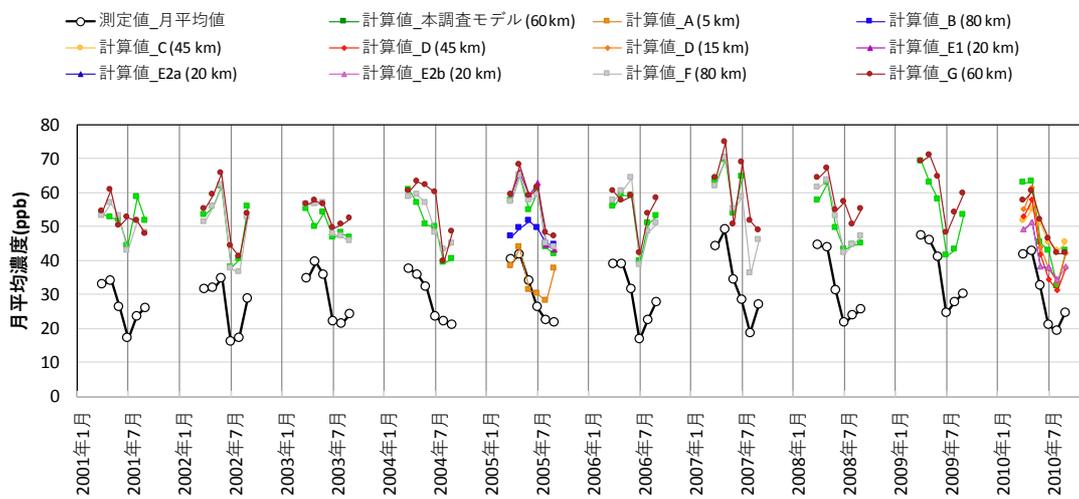


図 2-52 Ox 月平均値(九州地域)

対象物質:NOx (関東地域)

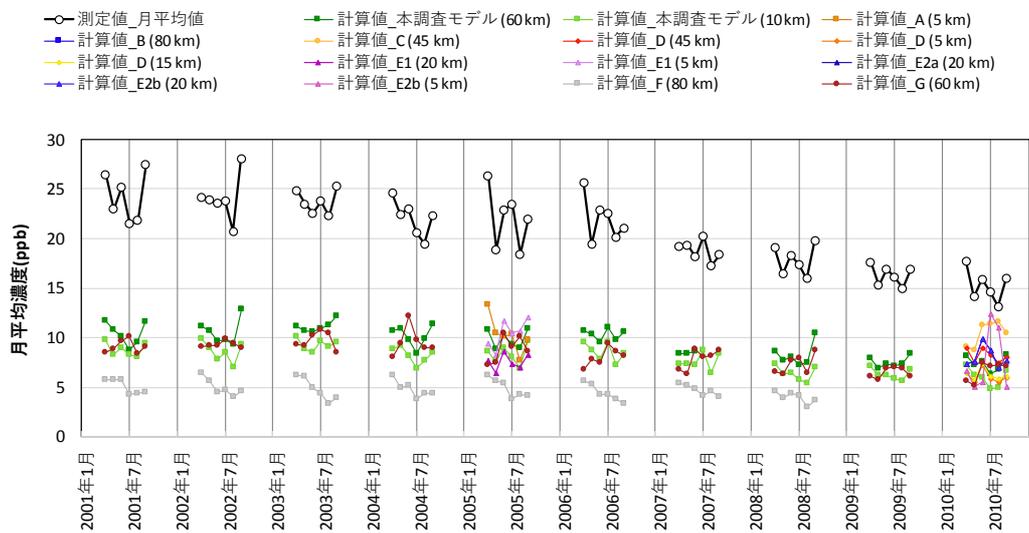


図 2-53 NOx 月平均値(関東地域)

対象物質:NOx (九州地域)

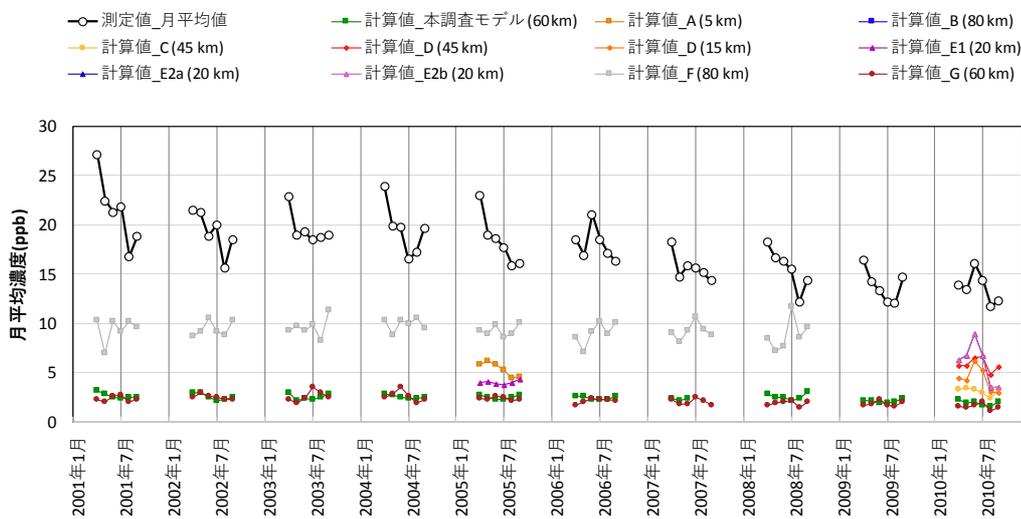


図 2-54 NOx 月平均値(九州地域)

対象物質:NMHC (関東地域)

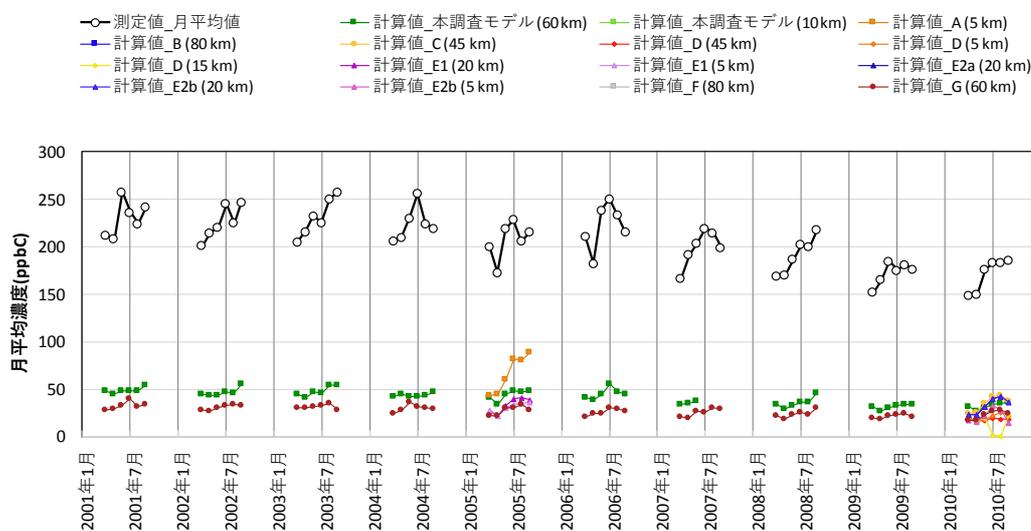


図 2-55 NMHC 月平均値(関東地域)

対象物質:NMHC (九州地域)

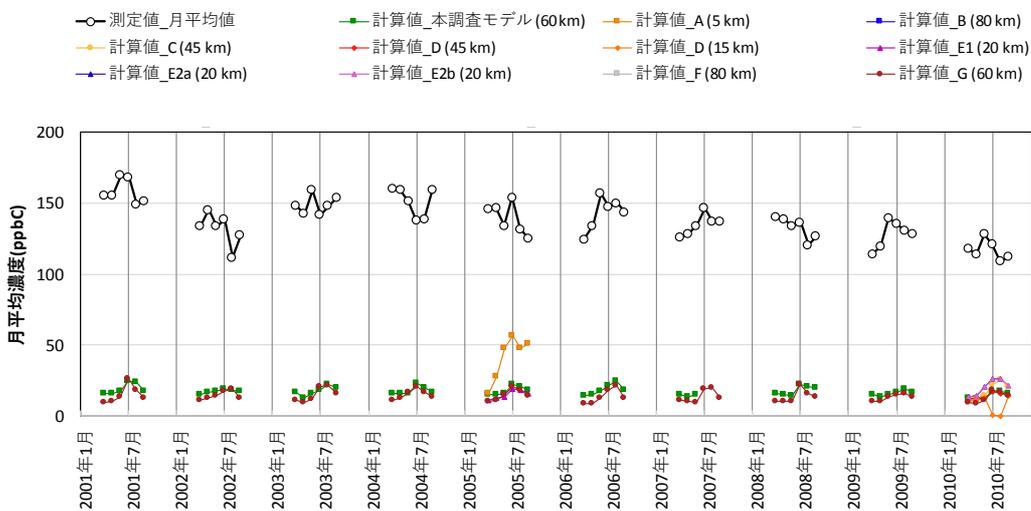


図 2-56 NMHC 月平均値(九州地域)

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(NO₂ 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、NO_x 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 NO_x 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 NO_x 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 O_x 濃度を過大評価する傾向があるため、計算された O_x 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 O_x 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 O_x 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 NO_x 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、「O_x 日最高 8 時間値の暖候期 98% 値」について、評価を行った。

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

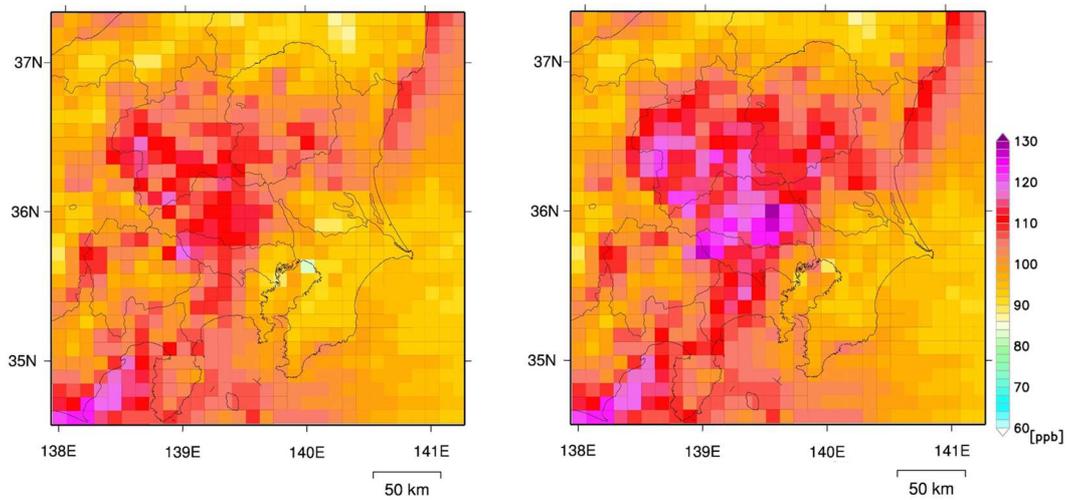
ケース	人為起源排出量の設定年			気象場の 設定年	備考
	東アジア 大陸	関東領域 固定蒸発 VOC	関東領域 固定蒸発 VOC 以外		
A	2009 年	2009 年	2009 年	2009 年	基準ケース(2009 年)
B		2001 年			2009 年を基準に、国内固定蒸発 VOC の排出量のみ 2001 年相当に変更した場合

(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、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。



ケース A

(2009 年基準ケース)

ケース B

(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)

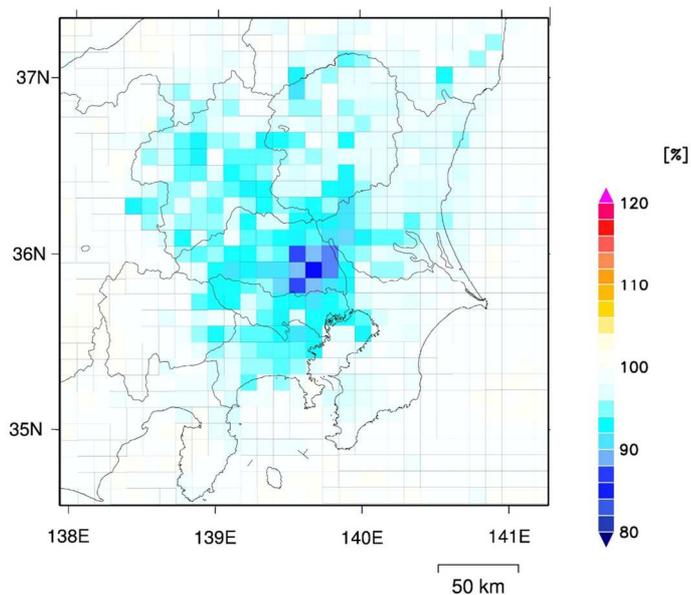


図 3-2 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度比(ケース A / ケース B)

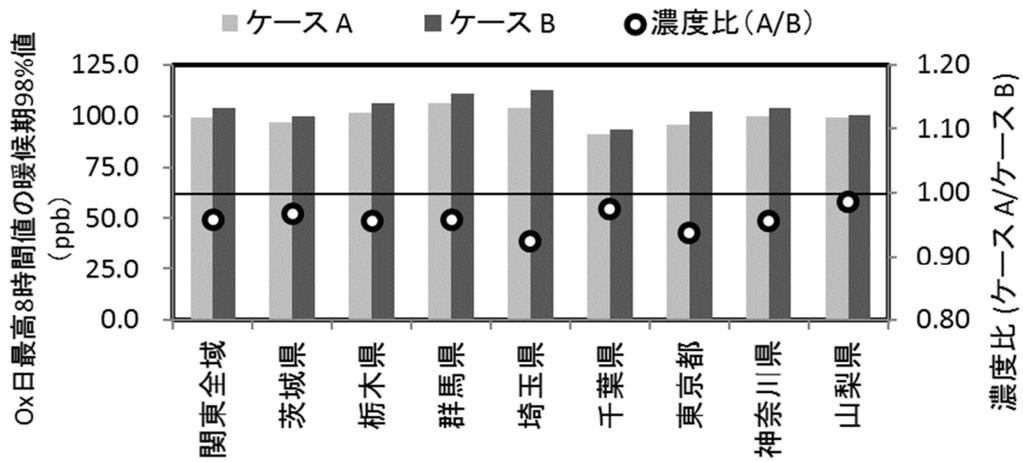


図 3-3 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の都県別平均濃度及び濃度比(ケース A/ ケース B)

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。

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

ケース	人為起源排出量の 設定年		気象場の 設定年	備考
	東アジア 大陸	国内		
A	2009 年	2009 年	2009 年	【基準ケース(2009 年)】
C	2001 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

(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。

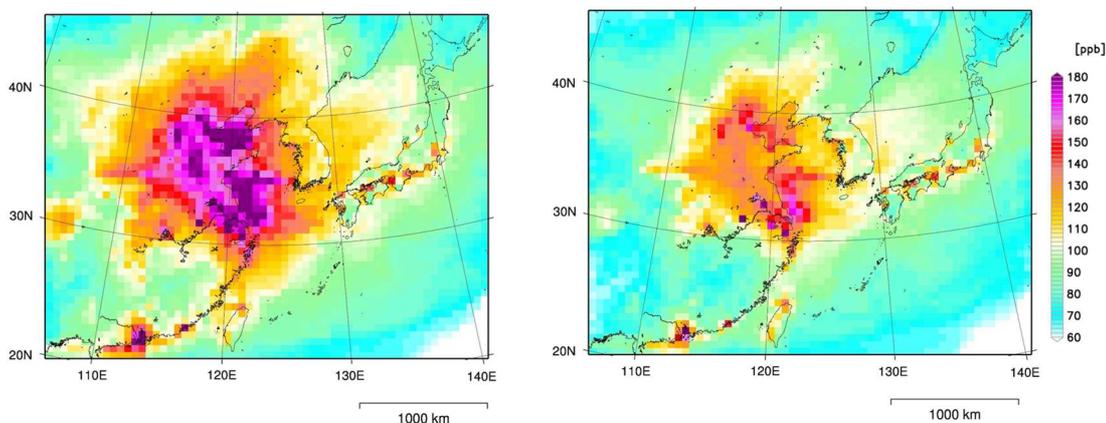
図 3-5 及び図 3-6 より日本国内の「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」の濃度差(比)に着目すると、九州地方で濃度差(比)が大きく、越境大気汚染の影響を強く受けているものと考えられる。また、全体的には西日本と比較すると東日本の方が濃度比は小さく、越境大気汚染の影響も相対的に小さいものと判断される。なお、東北地方北部から北海道にかけて濃度比がやや高くなっている傾向がみられるが、これらの地域では「Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値」の絶対値が低いため、わずかな濃度差でも濃度比としては大きく算定されることに留意する必要がある。

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)。

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	人為起源排出量の 設定年		気象場の 設定年	備考
	東アジア 大陸	国内		
A'	2001 年	2001 年	2001 年	【基準ケース(2001 年)】
C'	2009 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



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)

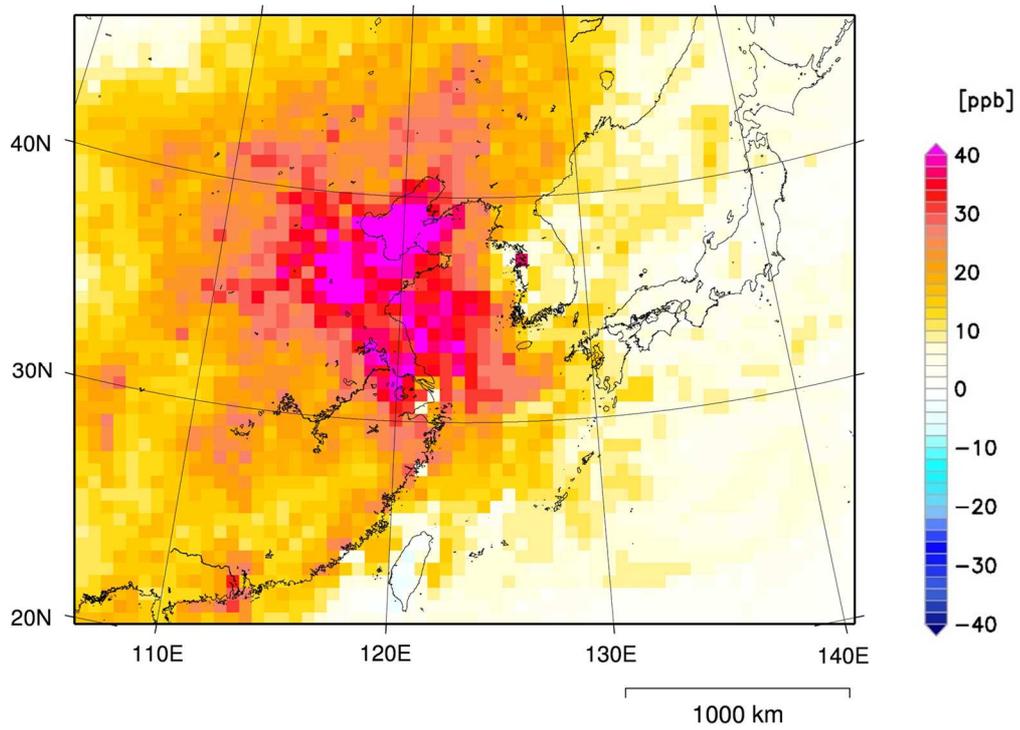


図 3-5 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度差(ケース A - ケース C)

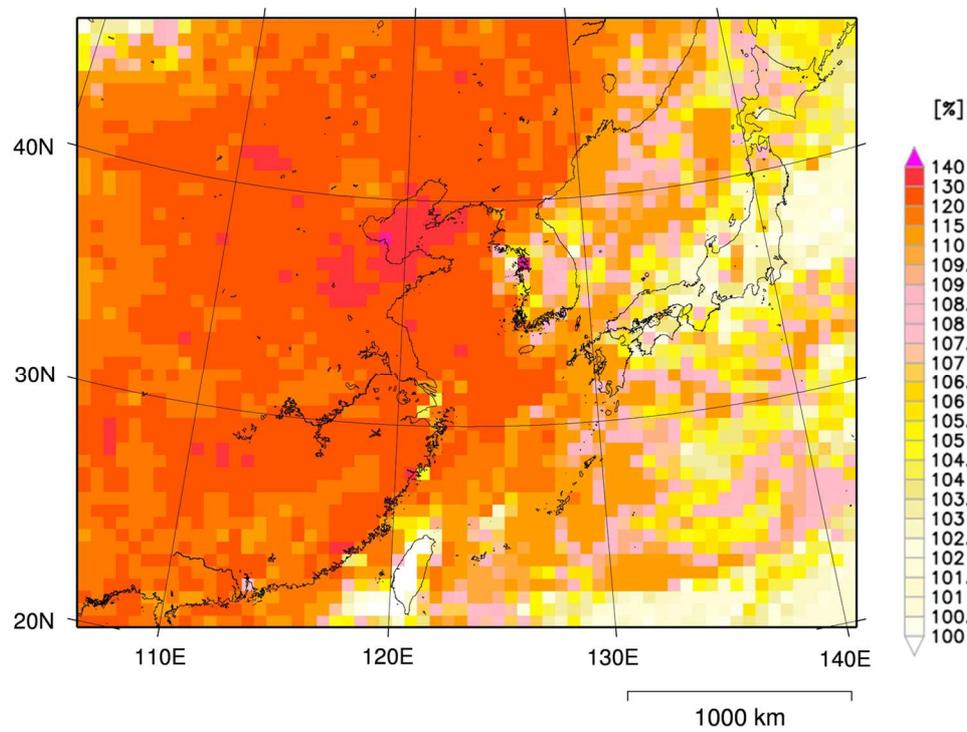


図 3-6 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値の濃度比(ケース A / ケース C)

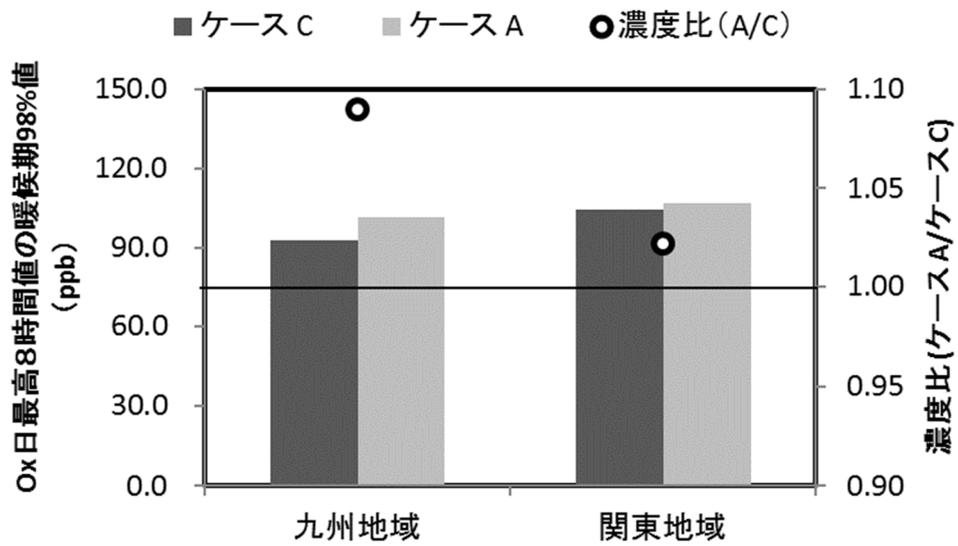


図 3-7 地域別 Ox 日最高 8 時間値の暖候期 98%値及び濃度比(ケース A/ ケース C)

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なり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。

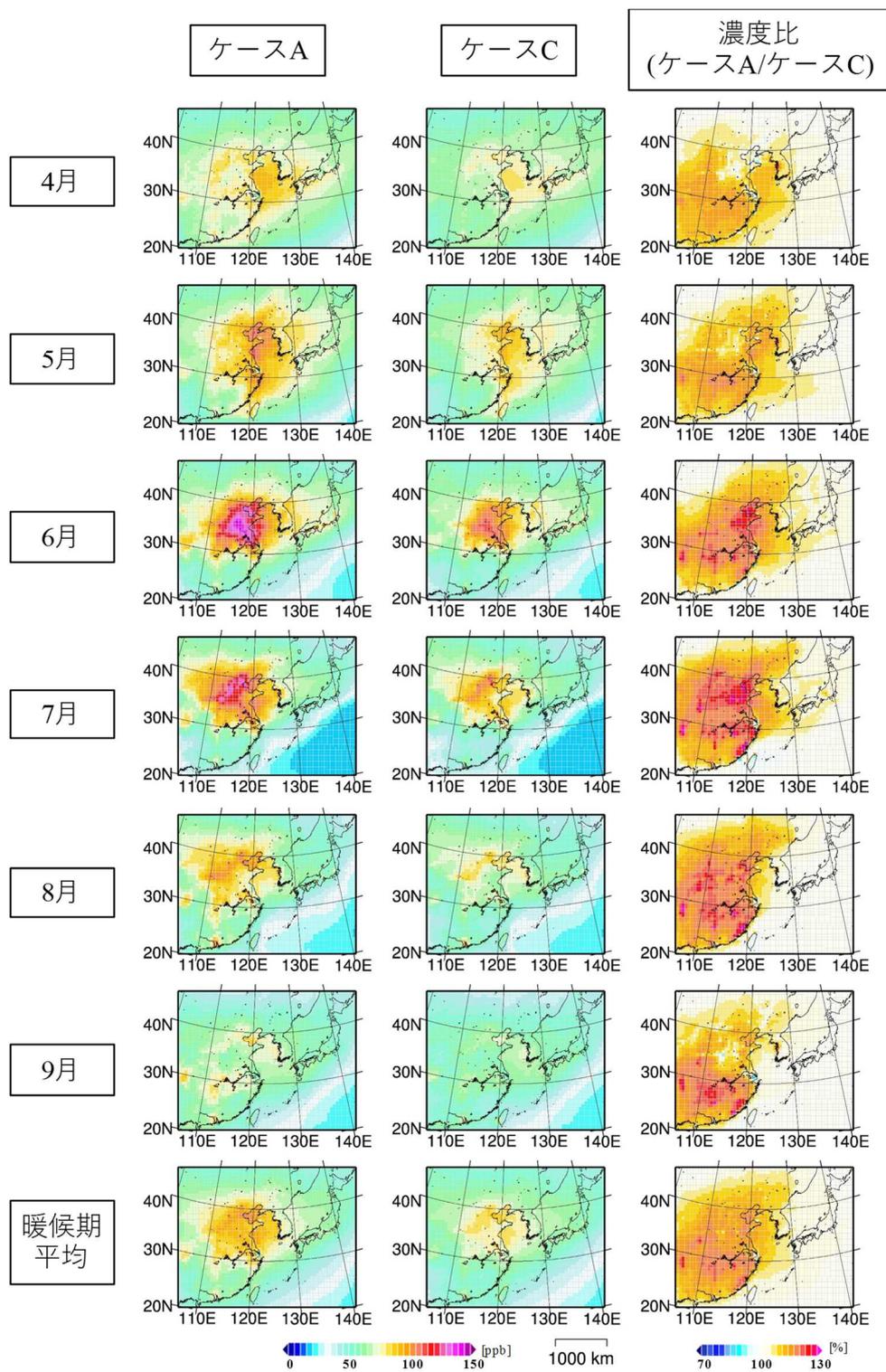
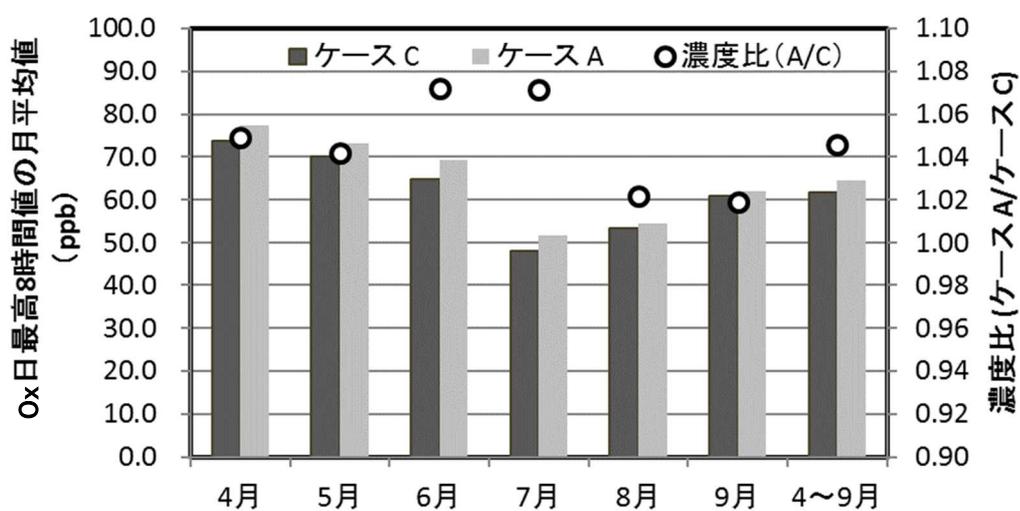


図 3-8 Ox 日最高 8 時間値の月平均値及び濃度比(ケース A / ケース C)の分布

【九州地域】



【関東地域】

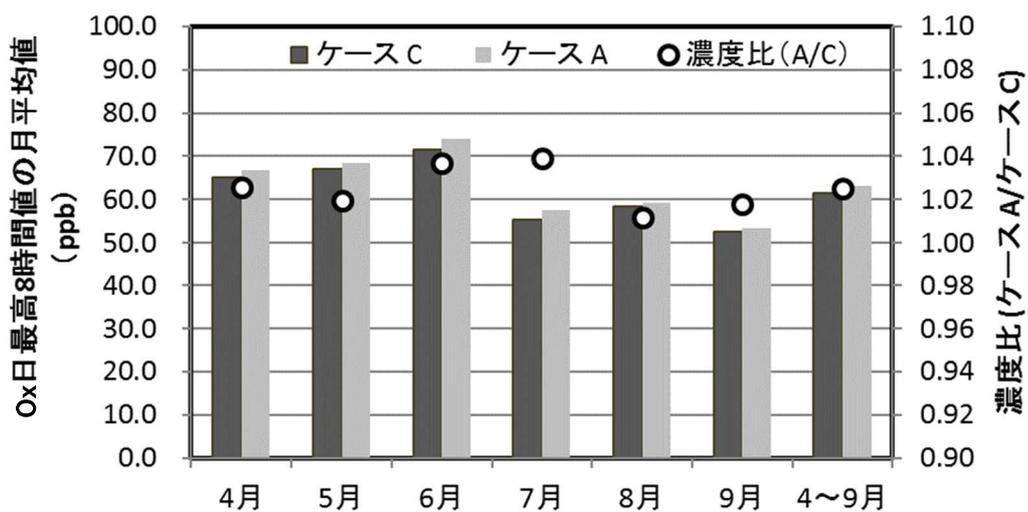


図 3-9 地域別のOx日最高8時間値の月平均値及び濃度比(ケースA/ケースC)

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(O₃)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_3 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。

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

ケース	大気汚染物質排出量の設定年		気象場の設定年	備考
	東アジア大陸	国内		
A	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)】
C	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

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_3 及び PO)について、基準ケースの計算結果からの変化量(ΔO_3 及び ΔPO)を算出した場合、 ΔO_3 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_3 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_3 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、 ΔO_3 及び ΔPO 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、 ΔO_3 及び ΔPO 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_3 、 ΔPO 及び $\Delta O_3 - \Delta PO$ の空間分布を示す。図 3-11 から日本付近では ΔO_3 、 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。 ΔO_3 と ΔPO の差は東京、名古屋、大阪、福岡周辺で大きく(すなわち $\Delta O_3 > \Delta PO$)、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 10 km 格子のシミュレーション結果による、 ΔO_3 、 ΔPO 及び $\Delta O_3 - \Delta PO$ の空間分布を図 3-12 に示す。図 3-12 より、関東地域では ΔO_3 、 ΔPO はどちらも北関東で負の値となっている。 ΔO_3 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 ΔO_3 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 O_3 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 ΔO_3 と ΔPO 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(ΔO_3 及び ΔPO が正の値となる)につながるが、この場合 ΔO_3 と ΔPO 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 NO_x)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、 O_3

濃度の変化は小さかったことから、NO_x 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。

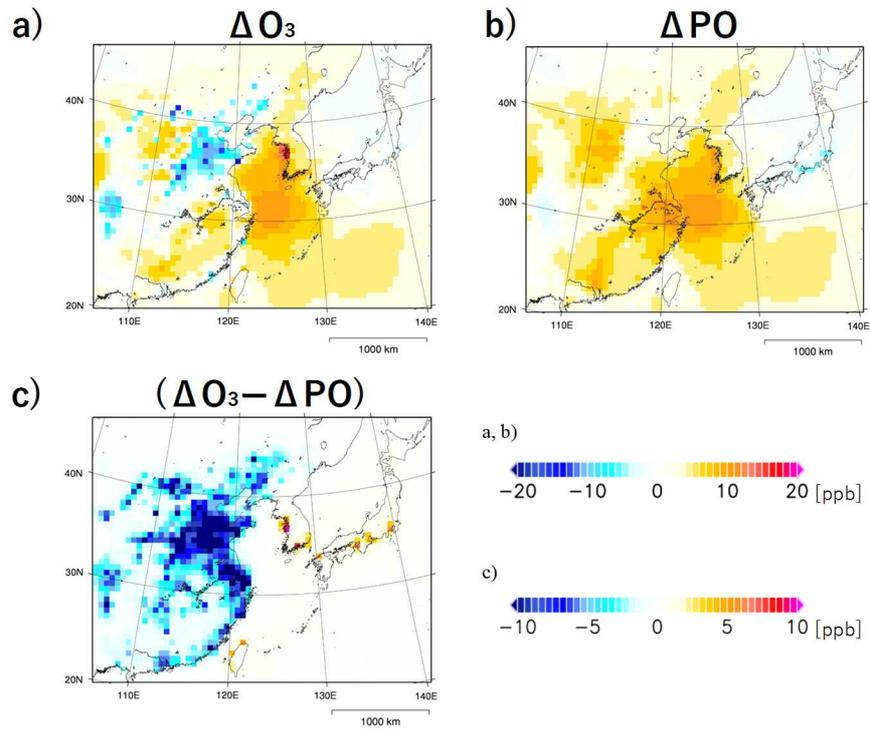


図 3-10 (ケース A - ケース D)の空間分布 (60 km 格子計算値 暖候期平均)

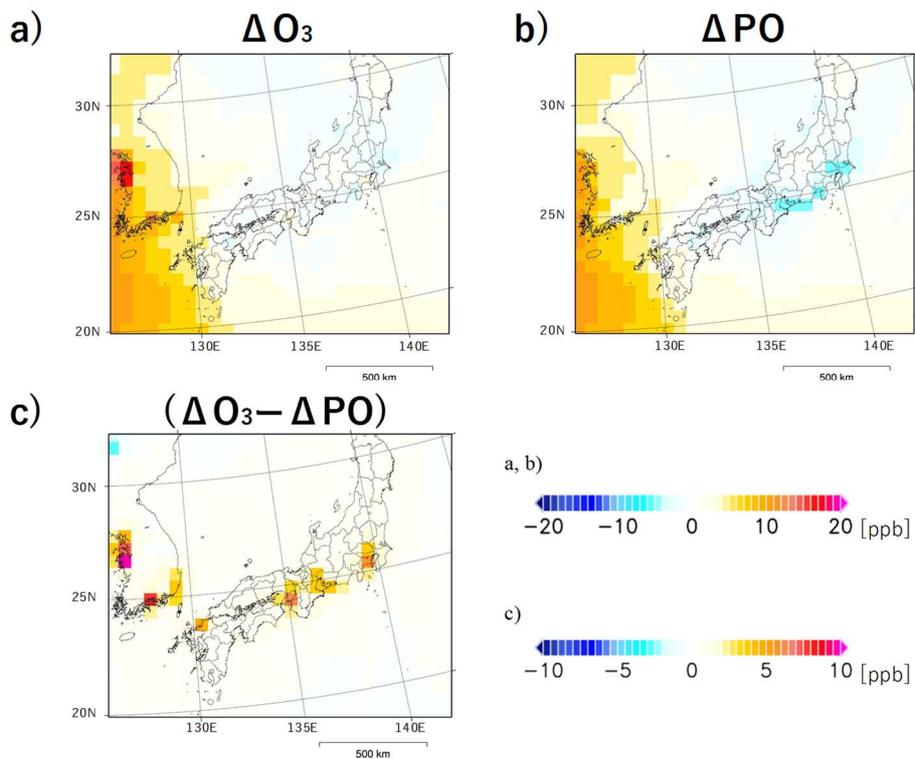


図 3-11 (ケース A - ケース D)の空間分布日本付近 (60 km 格子計算値 暖候期平均)

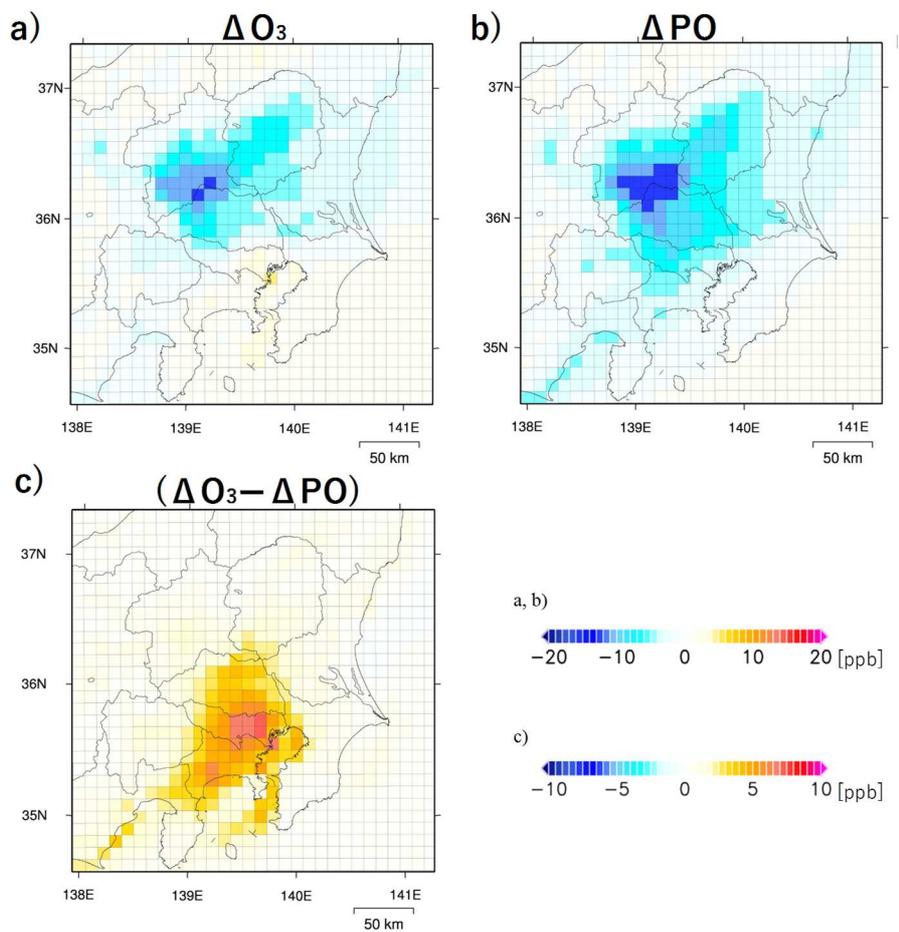


図 3-12 (ケース A - ケース D)の空間分布 (10 km 格子計算値 暖候期平均)

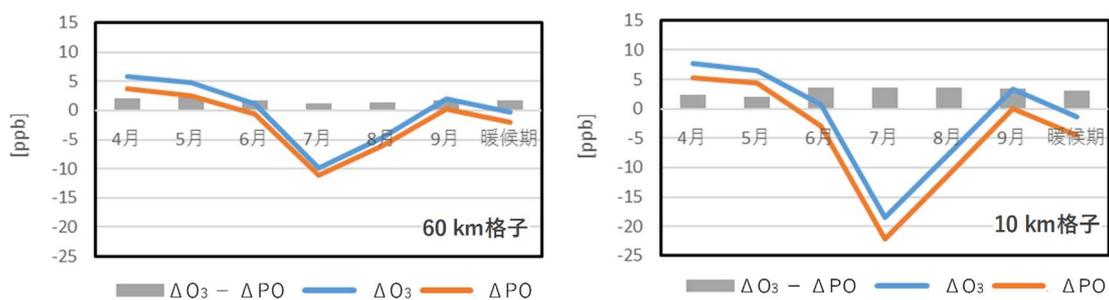


図 3-13 関東地域における月別 ΔO_3 及び ΔPO の比較(ケース A - ケース D)

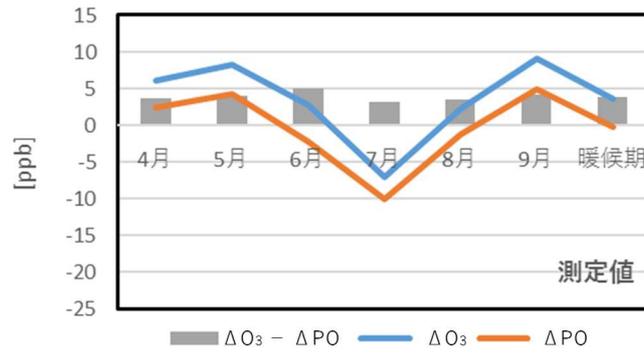


図 3-14 関東地域における月別 ΔO_3 及び ΔPO の比較 (測定値)

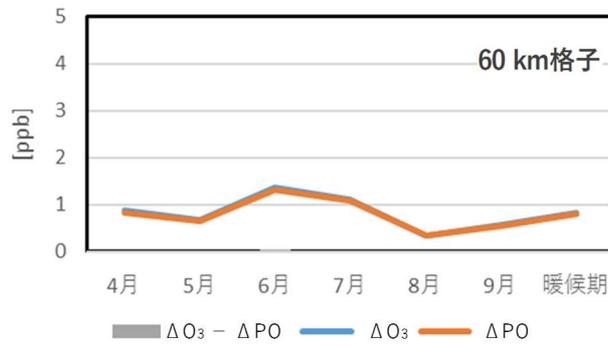


図 3-15 関東地域における月別 ΔO_3 及び ΔPO の比較 (参考ケース: ケース A - ケース C)

【参考: NO タイトレーション効果について】

NO はオゾン(O₃)と反応しオゾンを減少させる。この「NO + O₃ → NO₂ + O₂」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だけに注目した場合、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(ΔO_x)と PO 濃度の変化量(ΔPO)より以下のことが推定できる。

- ・ ΔO_x に比べ ΔPO が小 : NO によるタイトレーション効果の影響が大きい
 - ・ ΔO_x 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 O_x 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。

$$[PO] = [O_3] + [NO_2] - \alpha \times [NO_x] \cdots \cdots (1)$$

α: 発生源における NO_x 濃度に対する NO₂ 濃度の比率

(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(O₃)とポテンシャルオゾン(PO)の変化量(ΔO_3 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、O₃と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、 ΔO_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、NO_x) 排出量削減の感度解析結果

3.2.1 解析の目的

O_x 前駆物質である VOC や NO_x 排出量を削減した場合に、O_x 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 O_x 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、10 km 格子でのシミュレーションを実施した。O_x 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 NO_x を、図 3-16 に示すように 16 ケース (○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 NO_x 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、NO_x 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。

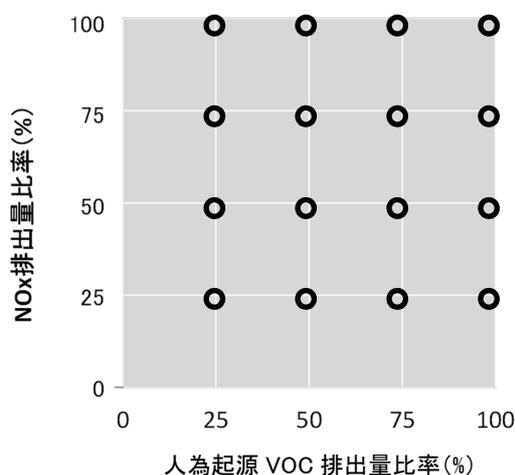


図 3-16 前駆物質排出削減感度解析における VOC 及び NO_x 排出量の設定

(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 NO_x 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。

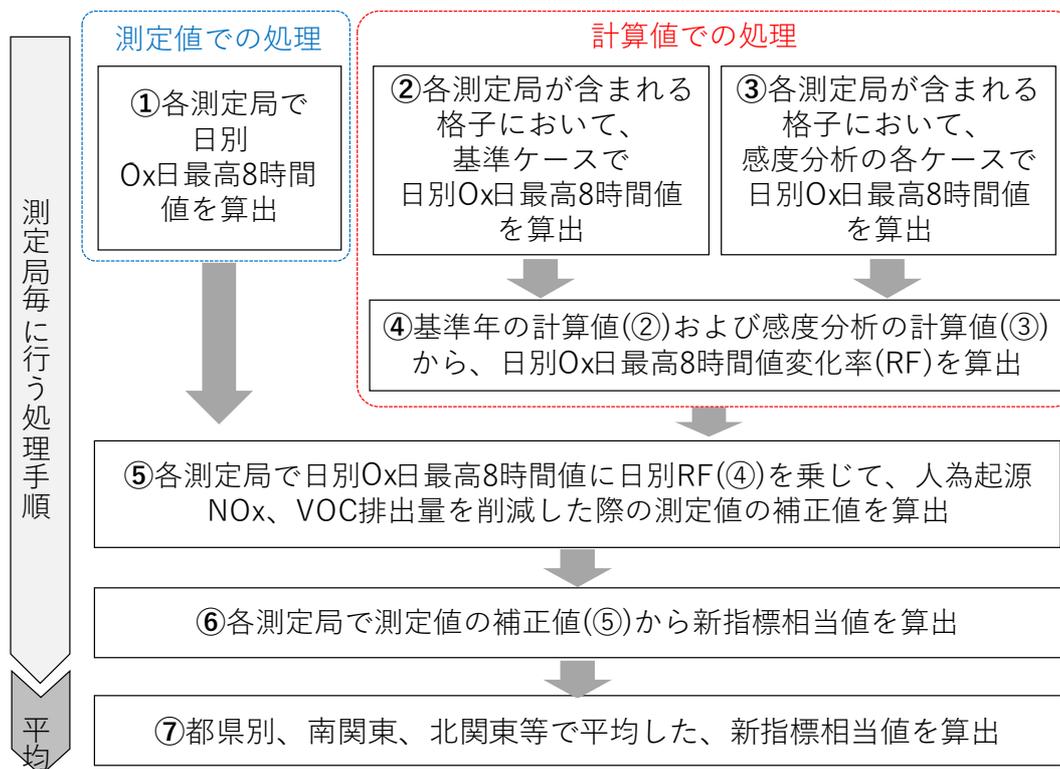


図 3-17 新指標相当値算出フロー

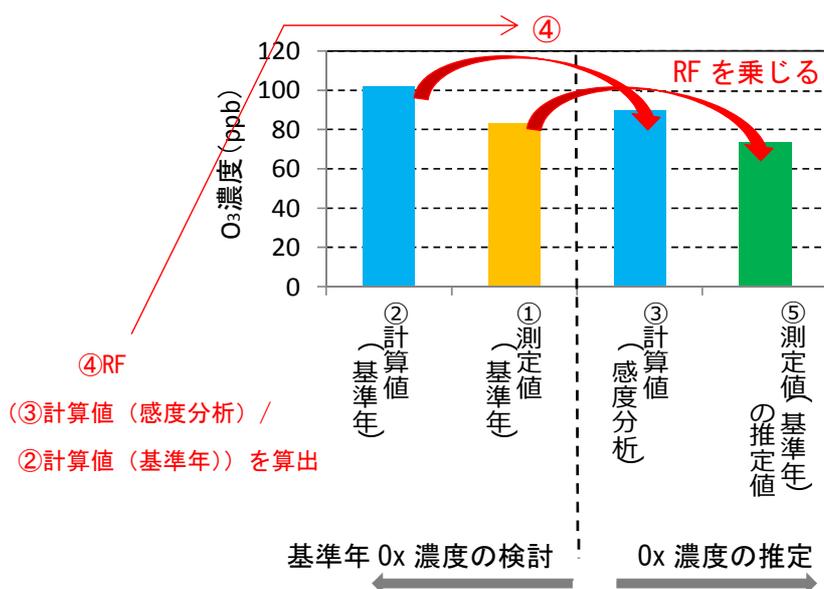


図 3-18 RFを用いた計算値の補正方法イメージ

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 時間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。

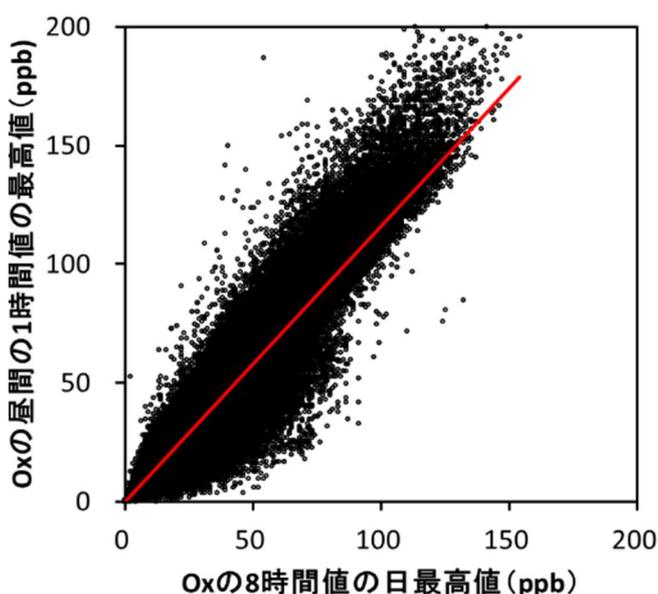


図 3-19 昼間の 1 時間最高値と日最高 8 時間値の関係(関東地域全体)

(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)

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)

	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
8 時間値 (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
	東京都	$Y = 1.19 X - 1.09$	51.2	68.0	101.5
	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

(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⁶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。

⁶ 排出量削減ケースは次のように表記した。

Vxx-Myy 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。

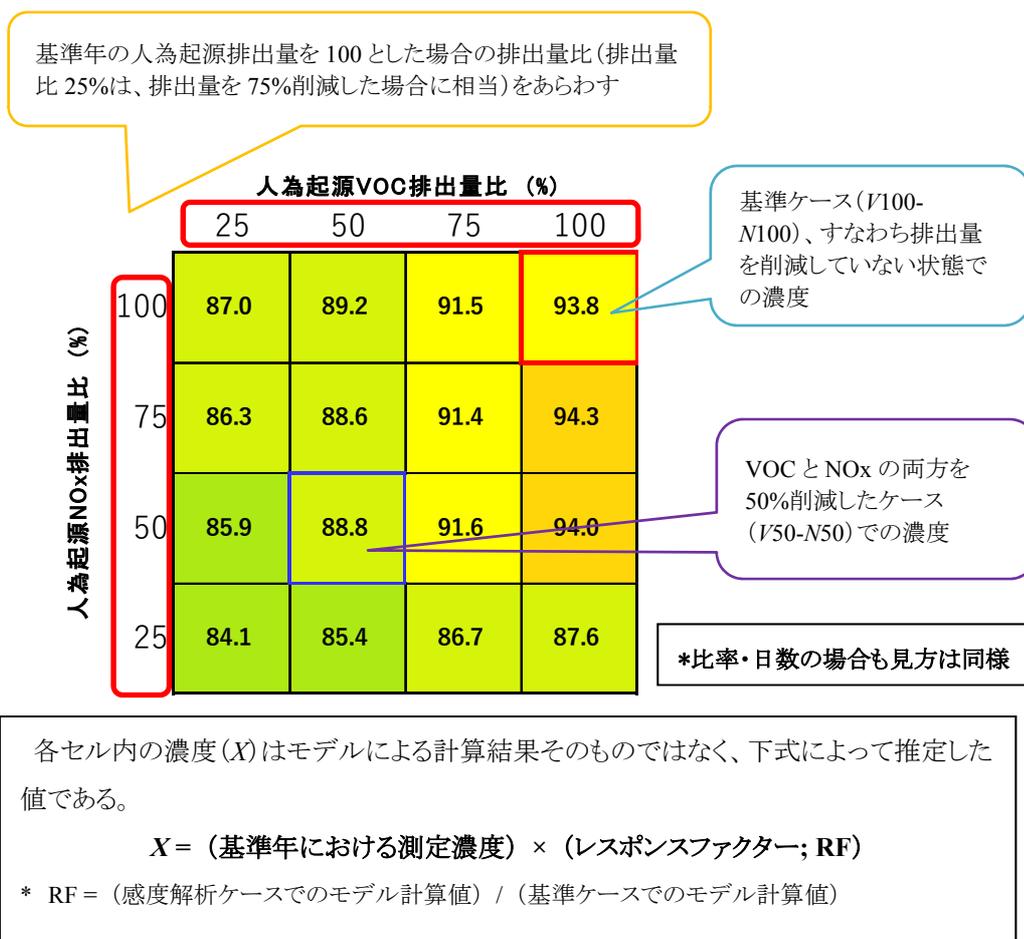


図 3-20 感度解析結果(濃度)の見方

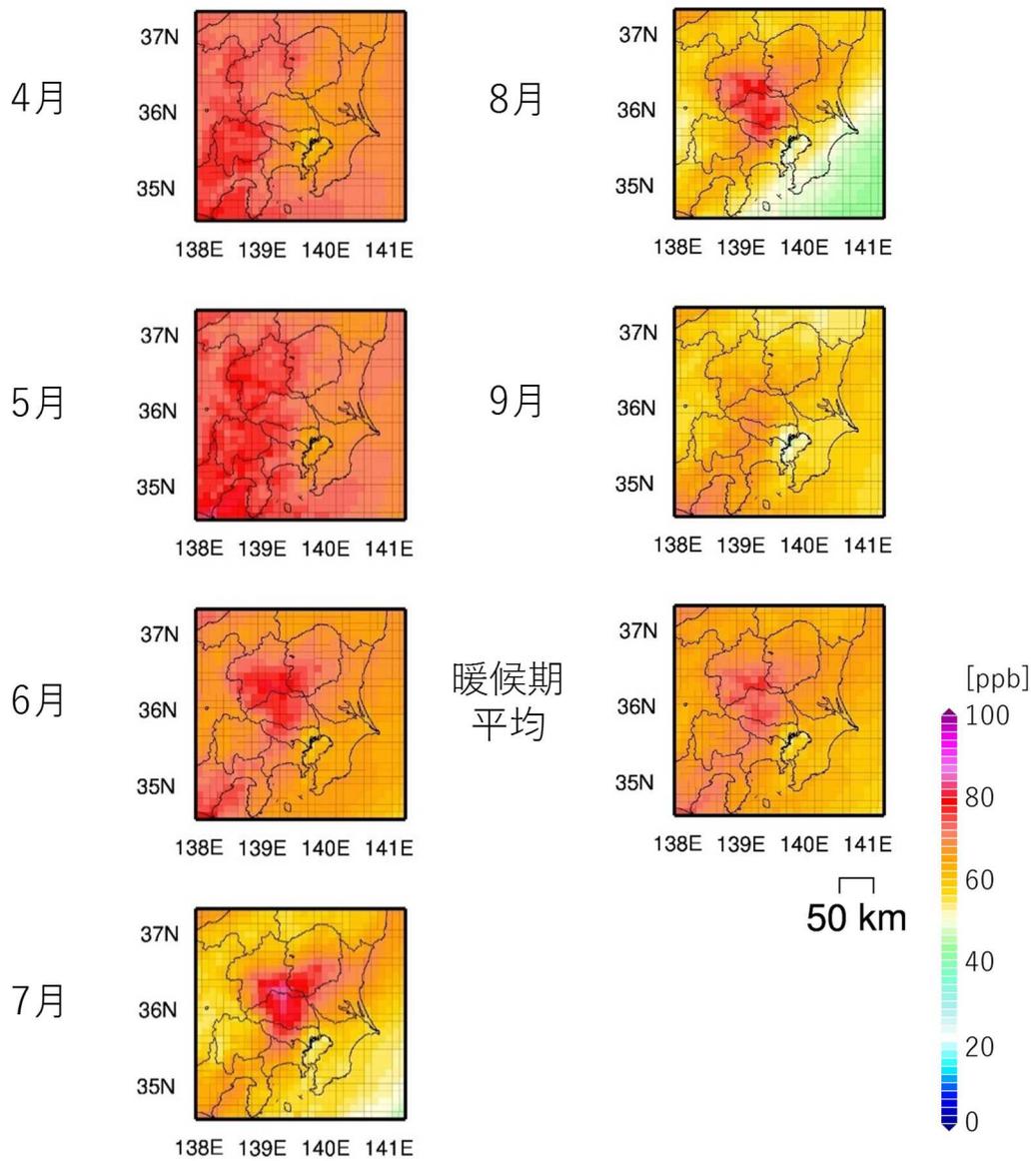


図 3-21 Ox 日最高 8 時間値の月平均値の空間分布 3 年平均値(2008 ~ 2010 年)
(基準ケースの計算値)

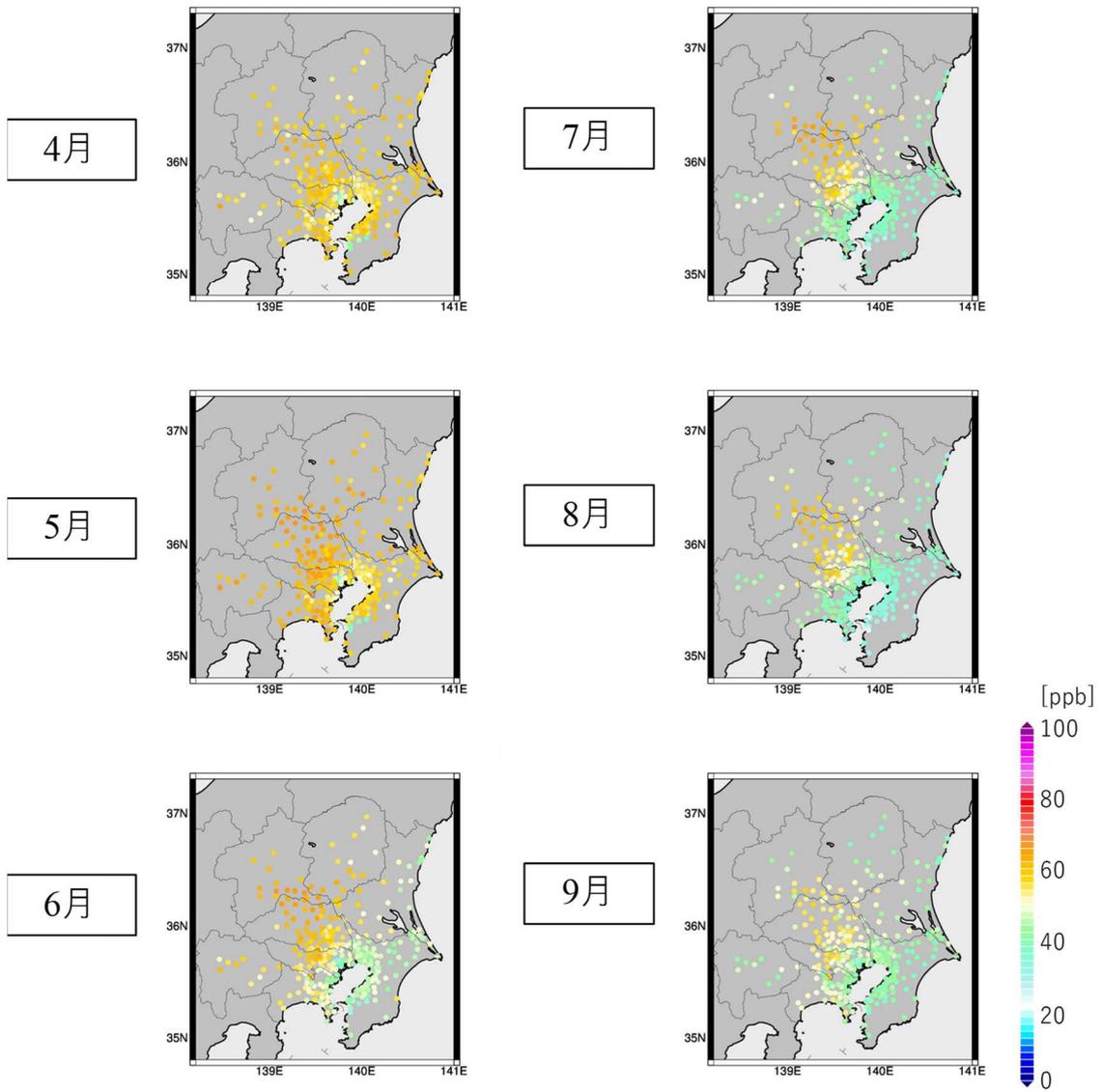
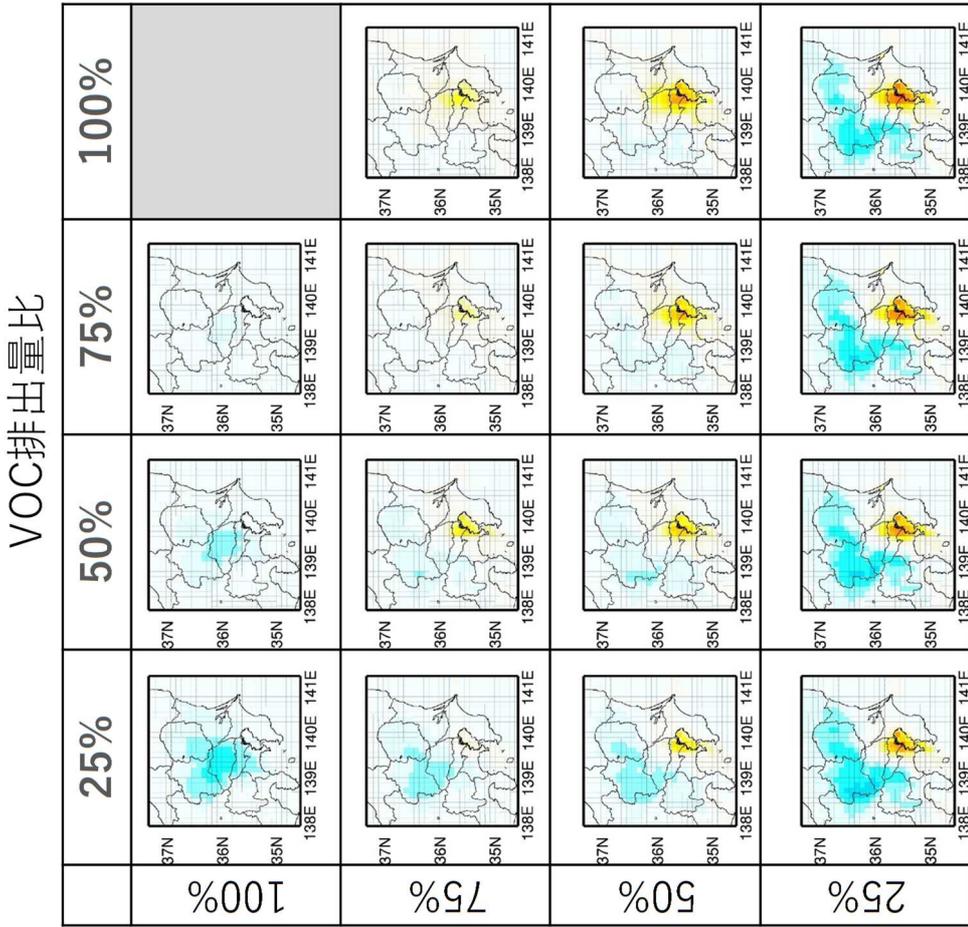


図 3-22 Ox 日最高 8 時間値の月平均値の空間分布 3 年平均値(2008 ~ 2010 年)
(測定値)



50 km

Ox日最高8時間値
月別平均値濃度比
(5月)

NOx排出量比



図 3-23 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5月)

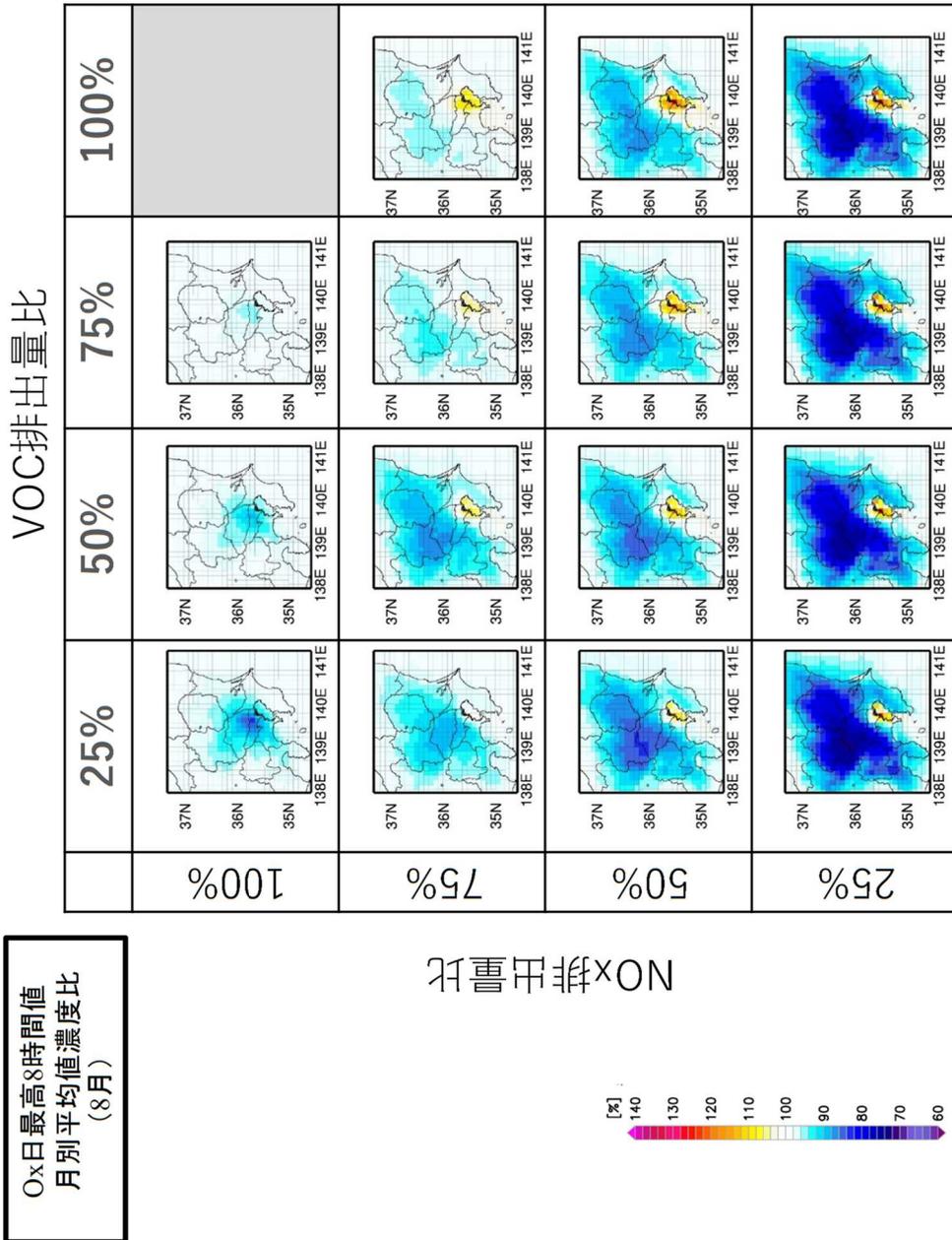


図 3-24 前駆物質排出量削減ケースにおけるOx日最高8時間値の月平均値の濃度比3年平均値(2008~2010年)(基準ケースとの比 8月)

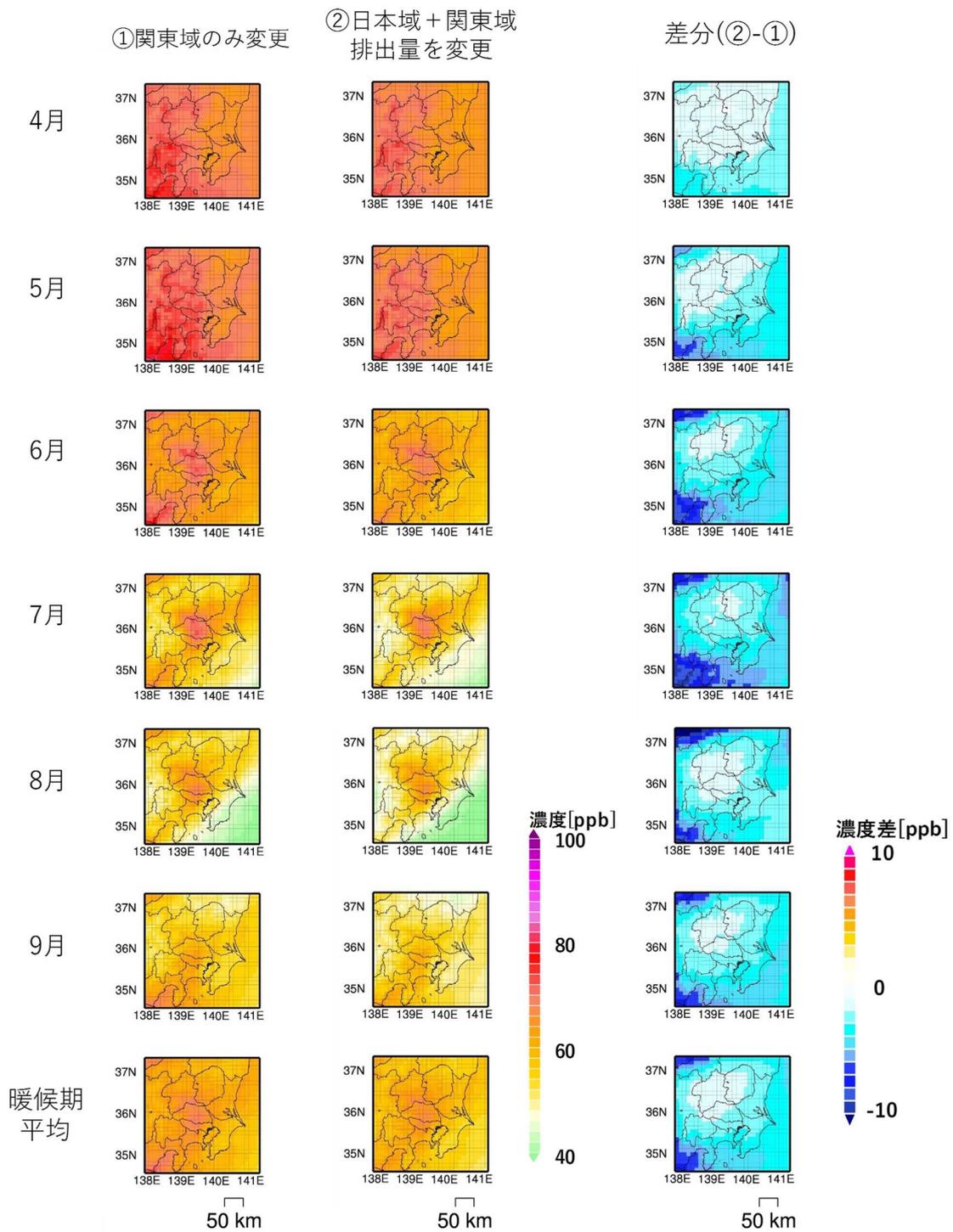


図 3-25 親領域の国内排出量を変更した場合の Ox 日最高 8 時間値の月平均値の比較
3 年平均値(2008 ~ 2010 年) (V50-N50 ケース)

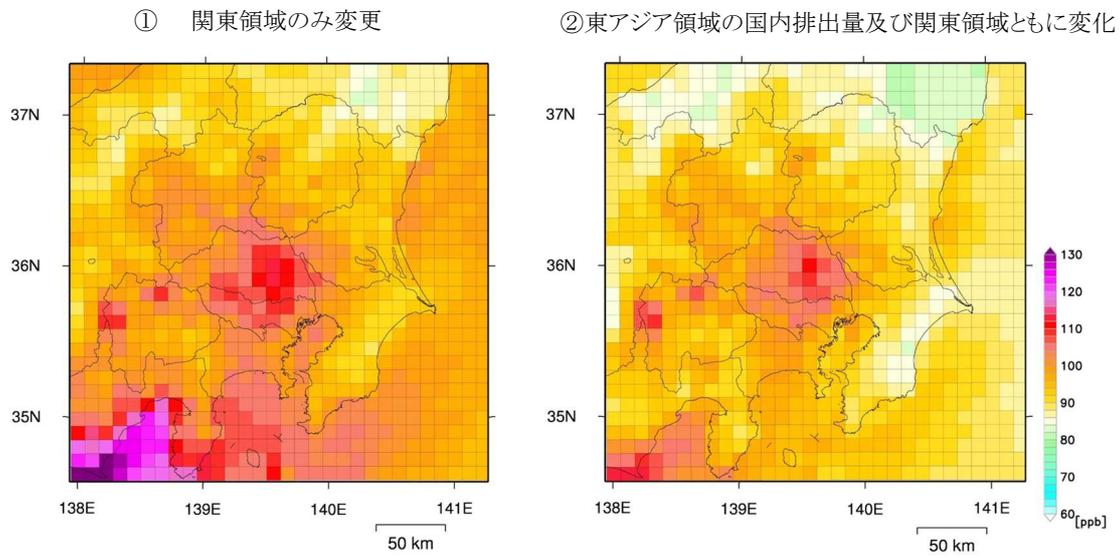


図 3-26 Ox 新指標相当値の分布 (2008 ~ 2010 年)

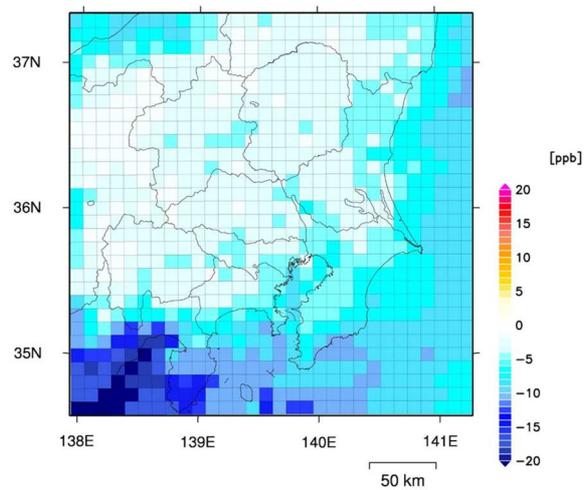


図 3-27 Ox 新指標相当値の差の分布 (②-①)
(2008 ~ 2010 年)