

### オキシダント生成シミュレーション

#### 資料2-4- オキシダント生成シミュレーションに関する経過

年月日	審議会等	内容
平成14年度	-	「浮遊粒子状物質環境汚染実態解析調査」の中で、現況年及び将来年度におけるSPM濃度予測、固定発生源排出削減によるSPM及びオキシダント濃度低減効果推計などを実施
平成15年9月17日	中央環境審議会 第9回大気環境部会	固定発生源VOC排出削減について、有識者の意見を聞きつつ早急に検討を深めるよう指示
平成15年9月29日	VOC排出抑制検討会 (第1回)	全般的な議論
平成15年10月21日	VOC排出抑制検討会 (第2回)	関係業界へのヒアリング
平成15年11月7日	VOC排出抑制検討会 (第3回)	排出抑制精度の方向性、VOCの定義と測定方法
平成15年11月18日	VOC排出抑制検討会 (第4回)	議論の全体整理
平成15年12月9日	VOC排出抑制検討会 (第5回)	検討結果のとりまとめ
平成15年12月16日	中央環境審議会 第10回大気環境部会	議題：VOCの排出抑制について 他 VOC排出抑制検討会の検討結果の報告
平成16年1月13日	中央環境審議会 11回大気環境部会	議題：VOCの排出抑制について 他 VOC削減によるSPM・光化学オキシダントの改善効果について報告
平成16年1月26日	中央環境審議会 第12回大気環境部会	議題：VOCの排出抑制について 他 VOC削減効果算定に用いたシミュレーションモデルについて報告、法規制と自主取組の組合せによる対策を議論のたたき台として提示
平成16年2月3日	中央環境審議会 第13回大気環境部会	議題：VOCの排出抑制について 他 揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制のあり方について意見具申
平成16年7月1日	中央環境審議会 第14回大気環境部会	議題：揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制制度の実施に当たって必要な事項について(諮詢) 他
平成17年4月8日	中央環境審議会 第18回大気環境部会	議題：揮発性有機化合物(VOC)の排出抑制制度の実施に当たって必要な事項について(答申) 他

大気汚染防止法の改正：平成16年5月26日（施策の実施指針、排出基準の設定、事業者の責務等）  
大気汚染防止法施行令の改正：平成17年5月27日公布（除外物質、規制対象施設の種類・規模要件）

平成17年6月10日公布（報告検査の範囲、事務委任）

大気汚染防止法施行規則の改正：平成17年6月10日公布（排出基準、測定方法等）

## 資料2 - 4 - VOC削減効果算定に用いたシミュレーションモデルについて

### (1) 中環審大気環境部会提出資料

(第11回：平成16年1月26日、第12回：平成16年1月26日)

## VOCの削減効果算定に用いたシミュレーションモデルについて

### ○ シミュレーションモデルについて（別紙1）

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

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

### ○ シミュレーション結果の精度について（別紙2）

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

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

### ○ VOC削減によるSPM・オキシダントの改善効果について（別紙3）

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

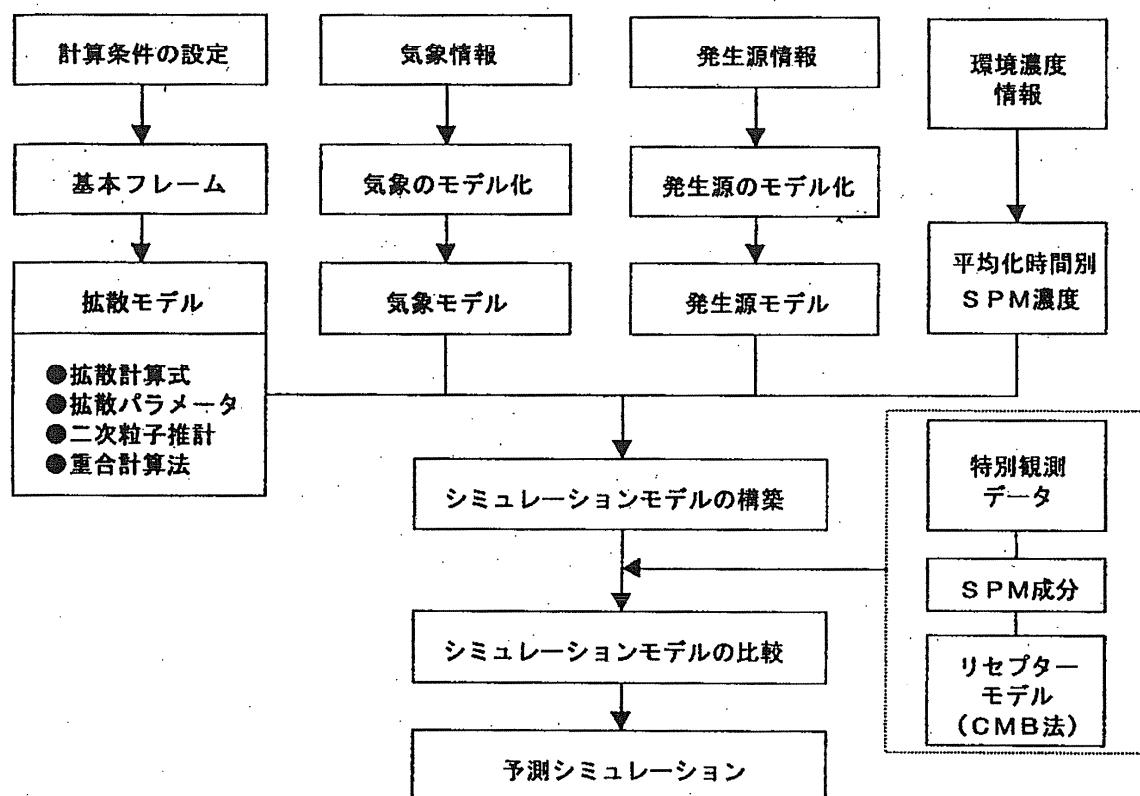
(別紙1) シミュレーションモデルの概要

	定常型モデル	非定常型モデル								
概要	環境影響評価等で幅広く使用されているモデル。汚染物質を風下方向に一様に正規分布状に移流拡散させ、移流拡散中に一様に反応を起こすことにより濃度予測するもの。	米国環境保護庁を中心に大学・研究機関協力のもと開発したモデル。汚染物質を物質保存式、運動方程式を用いて移流拡散させ、移流拡散中に物質量に応じて一様に反応を起こすことにより濃度予測するもの。								
特徴	<ul style="list-style-type: none"> <li>・平均濃度の計算に適する</li> <li>・発生源と環境濃度が1：1の関係となるため、発生源寄与の特定が容易</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・時間的濃度変動の計算（高濃度再現）に適する</li> <li>・大気中の気体、液滴、粒子の相変化とその光化学反応の非線形性を考慮。</li> <li>・オキシダントについても再現可能</li> </ul>								
モデルの内容	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">モ デ ル</td><td style="padding: 2px;">気象場の再現</td><td style="padding: 2px;">風向・風速データを用いたクラスター解析により気象ブロックを設定し、ブロックごとの代表的な気象データを適用する</td><td style="padding: 2px;">風速、日射量・気温・湿度データ等を使用し、物質保存式、運動方程式を用いて気象場を再現する</td></tr> </table>	モ デ ル	気象場の再現	風向・風速データを用いたクラスター解析により気象ブロックを設定し、ブロックごとの代表的な気象データを適用する	風速、日射量・気温・湿度データ等を使用し、物質保存式、運動方程式を用いて気象場を再現する	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">モ デ ル</td><td style="padding: 2px;">発生源データの入力</td><td style="padding: 2px;">SPM原因物質の各種発生源ごとに、位置、高度、時刻、発生量等の情報を入力する</td><td style="padding: 2px;"></td></tr> </table>	モ デ ル	発生源データの入力	SPM原因物質の各種発生源ごとに、位置、高度、時刻、発生量等の情報を入力する	
モ デ ル	気象場の再現	風向・風速データを用いたクラスター解析により気象ブロックを設定し、ブロックごとの代表的な気象データを適用する	風速、日射量・気温・湿度データ等を使用し、物質保存式、運動方程式を用いて気象場を再現する							
モ デ ル	発生源データの入力	SPM原因物質の各種発生源ごとに、位置、高度、時刻、発生量等の情報を入力する								
	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">モ デ ル</td><td style="padding: 2px;">汚染物質の濃度予測</td><td style="padding: 2px;">光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量を解析型モデルにより推計し、濃度再現を行う</td><td style="padding: 2px;">光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量をCBMモデル等により推計し、濃度再現を行う</td></tr> </table>	モ デ ル	汚染物質の濃度予測	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量を解析型モデルにより推計し、濃度再現を行う	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量をCBMモデル等により推計し、濃度再現を行う	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">モ デ ル</td><td style="padding: 2px;">再現性評価</td><td style="padding: 2px;">NOx、SOx、SPMについて期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する</td><td style="padding: 2px;">オキシダント、SPM、NMHC等13物質について期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する</td></tr> </table>	モ デ ル	再現性評価	NOx、SOx、SPMについて期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する	オキシダント、SPM、NMHC等13物質について期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する
モ デ ル	汚染物質の濃度予測	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量を解析型モデルにより推計し、濃度再現を行う	光化学反応、粒子化反応等による二次生成粒子量をCBMモデル等により推計し、濃度再現を行う							
モ デ ル	再現性評価	NOx、SOx、SPMについて期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する	オキシダント、SPM、NMHC等13物質について期・時間帯別の実測値とモデル計算値を評価する							
	<table border="1" style="width: 100%; border-collapse: collapse;"> <tr> <td style="padding: 2px;">モ デ ル</td><td style="padding: 2px;">使用実績</td><td style="padding: 2px;">NOx・PM法総量削減計画に使用</td><td style="padding: 2px;">全米各州、東京都、JCAP(※)でも同様のモデルを運用</td></tr> </table>	モ デ ル	使用実績	NOx・PM法総量削減計画に使用	全米各州、東京都、JCAP(※)でも同様のモデルを運用					
モ デ ル	使用実績	NOx・PM法総量削減計画に使用	全米各州、東京都、JCAP(※)でも同様のモデルを運用							

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

## (1) 定常モデルの概要

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



## ○大気拡散式の概要

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

## ○二次生成粒子推計モデル

$$\begin{aligned}
 [SO_4^{2-}] &= [SO_x] \cdot A_{so_x} \{ 1 - \alpha \cdot \exp(-K_{so} t) \} \\
 [NO_3^-] &= [NO_x] \cdot A_{no_x} \{ 1 - \beta \cdot \exp(-K_{no} t) \} \times P k_{no_x} \\
 [C1^-] &= [HC1] \cdot A_{hc1} \times P k_{hc1} \\
 [SOC] &= [THC] \cdot A_{hc} \{ 1 - \gamma \cdot \exp(-K_{hc} t) \} \times P k_{thc}
 \end{aligned}$$

$A_{so_x}$  :  $SO_x$  から  $SO_4^{2-}$  への換算係数

$A_{no_x}$  :  $NO_x$  から  $NO_3^-$  への換算係数

$A_{hc1}$  :  $HC1$  から  $C1^-$  への換算係数

$A_{hc}$  :  $THC$  から  $SOC$  への換算係数

$K_{so}$  :  $SO_x$  から  $SO_4^{2-}$  への変換率

$K_{no}$  :  $NO_x$  から  $NO_3^-$  への変換率

$K_{hc}$  :  $THC$  から  $SOC$  への変換率

$\alpha, \beta, \gamma$  :  $SO_x, NO_x, THC$  の初期比率 ( $\alpha=0.95, \beta=\gamma=1.0$ )

$P k_{no_x}$  : 粒子状物質存在率 ( $NO_3^-$  のガスへの昇華率を差し引いた係数)

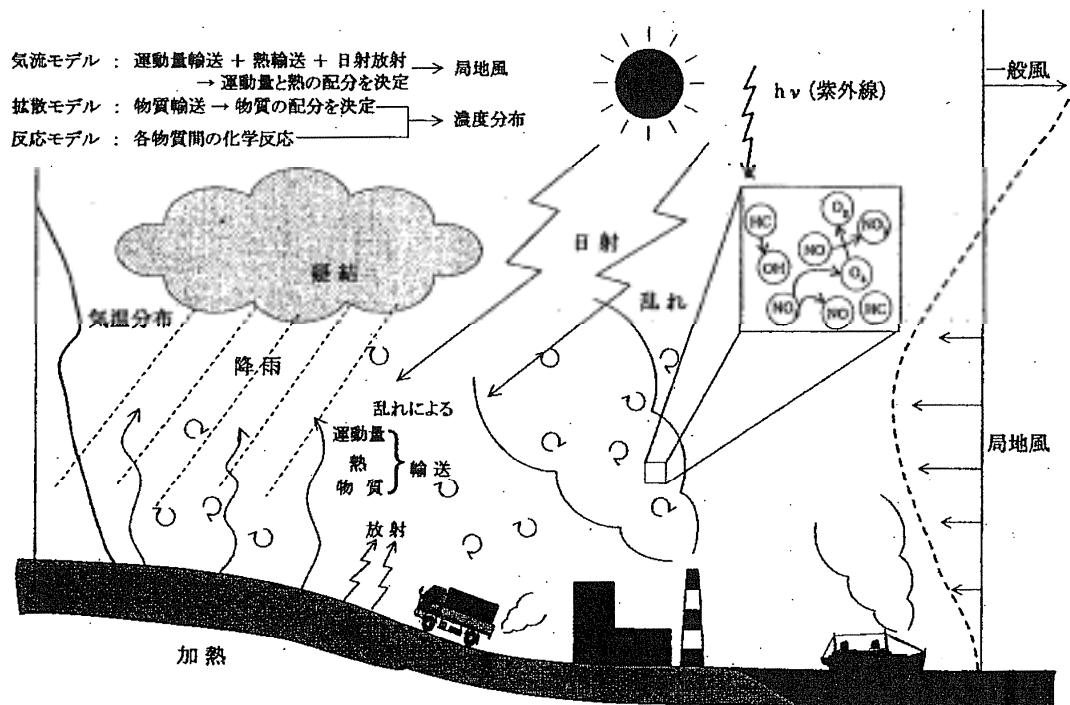
$P k_{hc1}$  : 粒子状物質存在率 ( $C1^-$  のガスへの昇華率を差し引いた係数)

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

$SOC$  : 二次生成有機炭素

## (2) 非定常モデルの概要

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



地域大気環境モデルの概念図

### ○局地気象モデル

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

#### ○光化学反応モデル（CBM-IVモデル）

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

Re	Reaction			Reaction Rate Data		
				Pre-factor (ppm <sup>-1</sup> min <sup>-1</sup> )	Temp. Factor $\exp(-E/RT)$	Rate Constant : 298K (ppm <sup>-1</sup> min <sup>-1</sup> )
1	NO2	-h <sup>1&gt;</sup> NO + O		8.383 E+04	+EXP (- 1175/T)	radiation dependent
2	O	----> OS		8.043 E+03	+EXP (- 1370/T)	4.323 E+06
3	O3	+ NO	----> NO2	1.375 E+04		2.664 E+01
4	O	+ NO2	----> NO	2.310 E+04		1.576 E+01
5	O	+ NO2	----> NO3	2.393 E+03	+EXP (- 827/T)	1.003 E+03
6	O	+ NO3	----> NO2	2.393 E+03	+EXP (- 802/T)	2.458 E+03
7	O3	+ NO2	----> NO3	1.780 E+02	+EXP (- 2450/T)	4.731 E-01
8	OS	-h <sup>1&gt;</sup> O		5.300 E-02		5.300 E-02k <sub>1</sub>
9	OS	-h <sup>4&gt;</sup> O1D				see notes
10	O1D	----> O		1.147 E+05	+EXP (- 390/T)	4.245 E+05
11	O1D	+ H2O	----> 2.00OH	5.265 E+04		5.265 E+04
12	OS	+ OH	----> HO <sub>2</sub>	1.003 E+01	+EXP (- 540/T)	0.000 E+02
13	OS	+ NO3	-h <sup>1&gt;</sup> 0.89NO2 + 0.11HO	3.390 E+01	+EXP (- 580/T)	3.390 E+01k <sub>1</sub>
14	NO3	+ NO3	----> 2.00NO2	1.800 E+04	+EXP (- 1250/T)	4.416 E+04
15	NO3	+ NO3	----> NO + NO2	3.850 E+01	+EXP (- 1290/T)	5.901 E-01
16	NO3	+ NO2	----> N2O5	7.849 E+02	+EXP (- 166/T)	1.863 E+03
17	N2O5	+ H2O	----> 2.00HO3	1.910 E-06		1.910 E-06
18	N2O5	+ H2O	----> NO2 + NO2	2.100 E+00	+EXP (- 1083/T)	2.100 E+00
19	NO	+ NO2	----> NOONO	8.000 E-06	+EXP (- 530/T)	1.533 E-04
20	NO	+ NO2	+ H2O	1.600 E-11		1.600 E-11
21	OH	+ NO	----> HOONO	6.654 E+02	+EXP (- 806/T)	6.799 E+03
22	HONO	-h <sup>1&gt;</sup> OH + NO		1.976 E-01		1.976 E-01k <sub>1</sub>
23	OH	+ HONO	----> NO2	9.770 E+03		9.770 E+03
24	HONO	+ HONO	----> NO + NO2	1.500 E-05		1.500 E-05
25	OH	+ NO2	----> HO3	1.000 E+03		1.000 E+03
26	HO3	+ NO	----> OH + NO2	7.800 E+00	+EXP (- 713/T)	2.179 E+02
27	HO2	+ NO	----> OH + NO2	4.482 E+03	+EXP (- 1000/T)	1.227 E+04
28	HO2	+ NO2	----> PNA	1.864 E+02	+EXP (- 749/T)	2.025 E+03
29	PNA	----> HO2 + NO2		2.875 E+16	+EXP (-10121/T)	6.115
30	OH	+ PNA	----> NO3	1.809 E+03	+EXP (- 389/T)	8.833 E+03
31	HO2	+ HO2	----> H2O2	8.735 E+01	+EXP (- 1160/T)	4.181 E+01
32	HO2	+ HO2	+ H2O	7.600 E-10	+EXP (- 5800/T)	2.650 E-01k <sub>1</sub>
33	HO2	+ HO2	+ 00OH	2.500 E-01		2.500 E-01
34	OH	+ H2O2	----> HO2	4.730 E+03	+EXP (- 187/T)	3.220 E+03
35	OH	+ CO	----> HO2	3.220 E+02		3.220 E+02
36	FORM	+ OH	----> HO2 + CO	1.600 E+04		1.600 E+04
37	FORM	----> CO + 2.00HO2				radiation dependent
38	FORM	----> CO				radiation dependent
39	FORM	+ HO2	----> CO + HO2 + CO	4.302 E+04	+EXP (- 1550/T)	3.700 E+04
40	FORM	+ NO3	----> HNO3 + NO2 + CO	9.300 E-01		9.300 E-01
41	ALD2	+ O	----> C2O3 + OH	1.739 E+04	+EXP (- 988/T)	6.360 E+02
42	ALD2	+ OH	----> C2O3	1.037 E+04	+EXP (- 250/T)	2.400 E+04
43	ALD2	+ NO3	----> C2O3 + HNO3	3.700		3.700
44	ALD2	+ NO3	----> FORM + XCO <sub>2</sub> + CO + 2.00HO2			radiation dependent
45	C2O3	+ NO	----> NO2 + XCO <sub>2</sub> + FORM + HO2	7.915 E+03	+EXP (- 250/T)	1.832 E+01
46	C2O3	+ PAN	----> C2O3 + NO2	1.810 E-04	+EXP (- 5500/T)	1.233 E+04
47	C2O3	+ PAN	----> 2.00FORM + 2.00XCO <sub>2</sub> + 2.00HO2	6.615 E+18	+EXP (-14000/T)	2.220 E-02
48	C2O3	+ HO2	----> 0.78FORM + 0.79XCO <sub>2</sub> + 0.79HO2 +	3.700 E+03		3.700 E+03
49	OH	----> XCO <sub>2</sub> + FORM + HO2		9.800 E+03		9.800 E+03
50	OH	----> XCO <sub>2</sub> + FORM + HO2		6.621 E+03	+EXP (- 1710/T)	2.100 E+01

No.	Reaction		Reaction Rate Data			
			Pre-factor (ppm <sup>-1</sup> min <sup>-1</sup> )	Temp. Factor exp{(-E/R)/(T)}	Rate Constant : 298K (ppm <sup>-1</sup> min <sup>-1</sup> )	
40	PAR	OH	0. 87XO2 + 0. 13XO2N + 0. 11HO2 + 0. 11ALD2 + 0. 76ROR - 0. 11PAR	1. 203 E+03	1. 203 E+03	
40	ROR		0. 10ALD2 + 0. 96XO2 + 0. 94HO2 + 0. 94XO2N + 0. 02ROR - 2. 10PAK	6. 250 E+04	*EXP{(- 8000/T)}	1. 571 E+05
40	ROR		HO2	6. 646 E+04		0. 545 E+04
40	O	+ OLE		2. 200 E+04		2. 200 E+04
40			0. 63ALD2 + 0. 38RO2 + 0. 28XO2 + 0. 3DCO + 0. 20PFORM + 0. 02XO2N + 0. 12PAR + 0. 10OH	1. 756 E+04	*EXP{(- 324/T)}	6. 930 E+03
40			CO + ALD2 + HO2 - PAR + XO2 + PAR	7. 740 E+03	*EXP{(- 504/T)}	4. 200 E+04
40	OH	+ OLE				
40	O2	+ OLE	0. 50ALD2 + 0. 74FORM + 0. 33CO + 0. 44HO2 + 0. 22XO2 + 0. 10OH	2. 104 E+01	*EXP{(- 2105/T)}	1. 800 E-02
40	NO3	+ OLE	PAR + FORM + ALD2 + NO2 + PAR	1. 135 E+01		
40	O	+ ETH	FORM + CO + 0. 70XO2 + CO +	1. 640 E+04	*EXP{(- 792/T)}	1. 155 E+01
40	OH	+ ETH	XO2 + 1. 56PFORM + HO2 +	3. 000 E+03	*EXP{(- 411/T)}	1. 192 E+04
40	OH	+ TOL	0. 52ALD2 + FORM + 0. 42CO + 0. 12HO2 + 0. 68TOZ + 0. 36CRES + 0. 44HO2 +	1. 856 E+01	*EXP{(- 2935/T)}	2. 700 E-03
40	TOZ	+ NO	0. 90NO2 + 0. 90HO2 + 0. 90OPEN	1. 200 E+04		1. 200 E+04
40	OH	+ CRES	CRES + HO2 + 0. 80XO2 + 0. 60HO2 + 0. 30OPEN	2. 600 E+02		2. 600 E+02
40						
40	CRES	+ NO3	CRO + HNO3	5. 100 E+04		5. 100 E+04
40	CRO	+ NO2		2. 250 E+04		2. 250 E+04
40	OPEN			2. 000 E+04		2. 000 E+04
40	OPEN	+ OH	XO2 + 2. 00CO + CO	9. 040		9. 040
40			XO2 + FORM + 2. 00HO2 +			
70	OPEN	+ O3	0. 63ALD2 + 0. 52C2O3 + 0. 70PFORM + 0. 63XO2 + 0. 68CO + 0. 08OH + 0. 76HO2 + 0. 20MGLY	4. 400 E+04		4. 400 E+04
70			0. 70HO2 + 0. 50XO2 + 0. 20CRES + 0. 20MGLY + 1. 10PAR + 0. 30TOZ	8. 030 E-02	*EXP{(- 500/T)}	1. 500 E-02
70	OH	+ XYL		2. 463 E+04	*EXP{(- 115/T)}	3. 620 E+04
70	OH	+ MOLY	CO + C2O3 + HO2	8. 600 E+04		2. 800 E+04
70	O	+ ISOP	0. 60HO2 + 0. 80ALD2 + 0. 55OLE + 0. 60XO2 + 0. 60CO + 0. 45ETH + 0. 60PAR	9. 640		9. 640
70	OH	+ ISOP		2. 700 E+04		2. 700 E+04
70			CO + FORM + 0. 57HO2 + 0. 40MGLY + 0. 20C2O3 + 1. 00ETH	1. 420 E+05		1. 420 E+05
70	O3	+ ISOP	FORM + 0. 40ALD2 + 0. 55ETH + 0. 20MGLY + 0. 10PAR + 0. 08CO + 0. 44HO2 + 0. 10OH	1. 800 E-02		1. 800 E-02
70	NO3	+ ISOP	XO2N	2. 700 E+02		2. 700 E+02
70	XO2	+ NO	NO2	1. 200 E+04		1. 200 E+04
70	XO2	+ XO2		2. 600 E+01	*EXP{(- 1300/T)}	2. 000 E+03
70	XO2N	+ NO		1. 000 E+03		1. 000 E+03

## ○二次生成粒子推計モデル

### ①無機粒子化モデル

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

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

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

$K(T)$ : 温度  $T$ における平衡定数

$T$ : 温度( $K$ )

$T_0$ : 298( $K$ )

$a, b$ : 定数

### ②有機粒子化モデル

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

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

$C_P$ : 二次有機粒子生成濃度

$Y$ : 収率

$\Delta_G$ : 有機化合物の反応濃度

$S_G$ : 有機化合物の飽和蒸気圧

## (別紙2) シミュレーション結果の評価方法

### ① 浮遊粒子状物質汚染予測マニュアルによるS P M評価方法

$$1) \quad a_0 \leq \frac{1}{3}(Y - BG) + BG$$

$$2) \quad a_0 \leq \frac{2}{5}(Y - BG) + BG$$

3) 回帰直線の傾きが 0.8 から 1.2 の範囲内でできるだけ 1 に近く、かつ、相関係数が少なくとも 0.71 以上であり、可能な限り 0.8 以上であること。

$$4) \quad \frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{5}$$

$$5) \quad \frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{4}$$

$$6) \quad \frac{s'}{Y} \leq \frac{1}{3}$$

$Y$ : 測定局についての実測値の平均値

$X$ : 測定局についての計算値の平均値

$a_0$ : バックグラウンド濃度 ( $= Y - X$ )

$BG$ : 自然界バックグラウンド値等

$\frac{s'}{Y}$ :  $X + a_0$ からの変動係数

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

#### 1) Normalized Bias (NB)

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

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

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

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

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

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

$N$ : 評価対象としたデータ数

## VOC削減によるSPM・光化学オキシダントの改善効果

### 1. SPM環境基準達成率の改善効果

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

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

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

### 2. 光化学オキシダントの改善効果

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

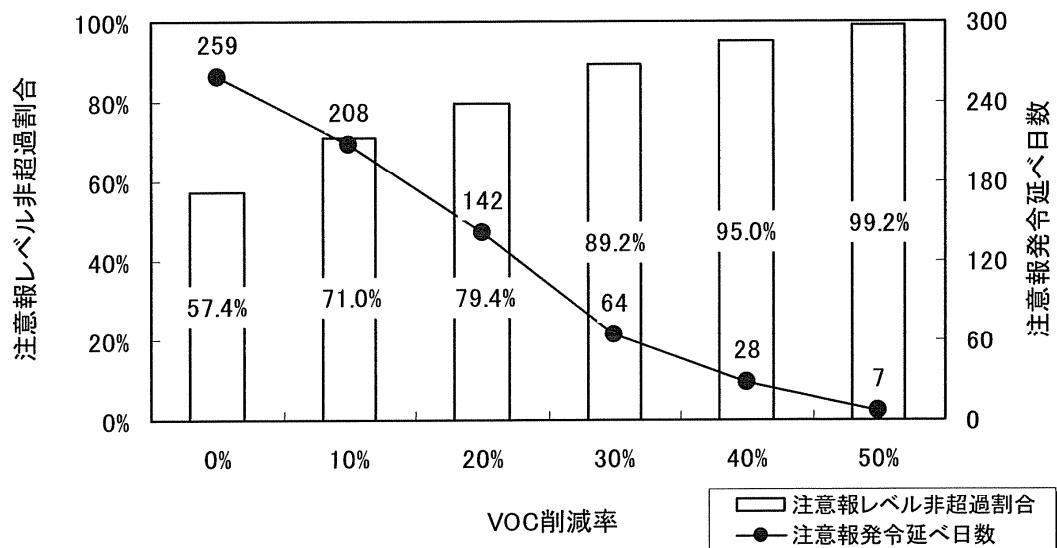


図 VOC削減による光化学オキシダント注意報レベル非超過割合の変化及び光化学オキシダント注意報発令延べ日数の変化

## 1. SPM改善効果の推計方法について

- ① 自動車NO<sub>x</sub>・PM法の車種規制など既定の自動車対策等が行われ、固定発生源からのVOC対策は行われない場合の将来のSPM改善効果を定常型シミュレーション（※1）を用いて推計し、平成12年度の大気環境常時監視測定結果（実測結果）の各測定局の日平均値（3.65日分）に掛け合わせ、将来の日平均値を推計した。この値を用いて環境基準の達成・非達成の評価（年間2%除外値が0.1mg/m<sup>3</sup>以下であり、かつ、2日以上連続して0.1mg/m<sup>3</sup>を超過しないこと）を行った。
- ② 次に、VOC削減によるSPM改善効果を非定常型シミュレーション（※1）を用いて推計し、①で求めた各測定局の将来の日平均値に掛け合わせ、VOC削減時の日平均値を推計した。この値を用いて、環境基準の達成・非達成の評価を行った。なお、環境基準が問題となるのは高濃度日であるため、改善効果の推計には、高濃度日における改善効果を推計できる非定常型シミュレーションを用いている。

## 2. 光化学オキシダント改善効果の推計方法について

- ① VOC削減による光化学オキシダント改善効果を非定常型シミュレーション（※1）を用いて推計した。なお、注意報レベルが問題になるのは高濃度日であるため、改善効果の推計には、高濃度日における改善効果を推計できる非定常型シミュレーションを用いている。
- ② ①の結果を平成12年度の大気環境常時監視測定結果（実測結果）の各測定局の1時間値に掛け合わせ、VOC削減時の各測定局の1時間値を推計した。この値を用いて光化学オキシダント注意報レベル（0.12ppm）の評価及び光化学オキシダント注意報発令延べ日数（※2）の算出を行った。

（※1）定常型シミュレーション及び非定常型シミュレーションは、既定の自動車対策（自動車NO<sub>x</sub>・PM法の車種規制、新長期規制、特殊自動車（オンロード）規制など）の効果を踏まえている。

（※2）延べ日数とは、都道府県を一つの単位として1年間の注意報等の発令日数を合計したもの。なお、同一日に同一都道府県内の複数の発令区域で注意報等が発令された場合、当該都道府県での発令日数は1日として数えている。

## (2) VOC 排出抑制検討会(平成15年12月)提出資料

### 20 VOC削減によるSPM・オキシダント濃度の改善効果

VOC削減によるSPM・オキシダント濃度の改善効果は、地域ごとの気象条件、大気の状況等によって異なるが、一定の前提条件の下で推計計算を行うと、その効果は以下のとおりになる。

#### ○前提条件

- ・対象年度：平成13年度の夏期・冬季
- ・反応モデル：CBM-IVを用いた非線形モデル
- ・評価地点：関東10カ所、関西7カ所

#### ○評価結果（評価地点のうち、代表的な4地点（関東2地点、関西2地点）のみ掲載）

##### (2) オキシダント濃度の改善効果（図5～図8）

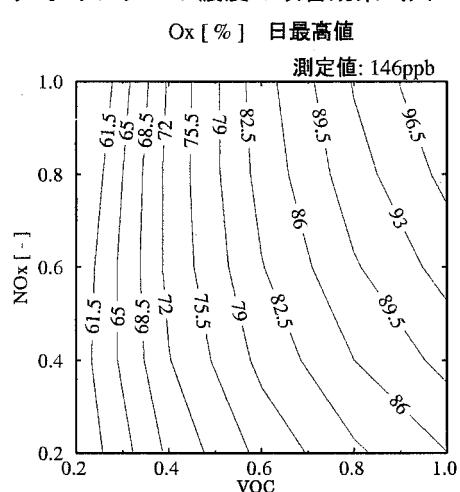


図5 橋本（神奈川県相模原市）

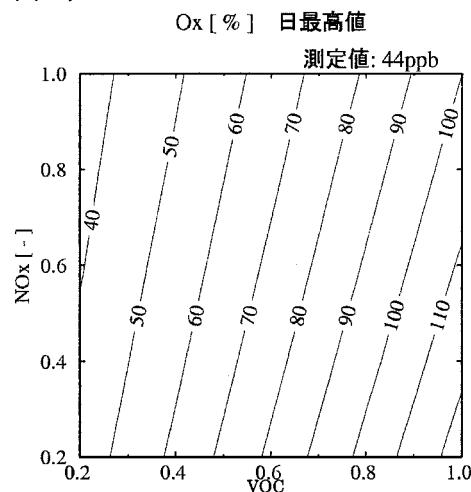


図6 宇田川町（東京都渋谷区）

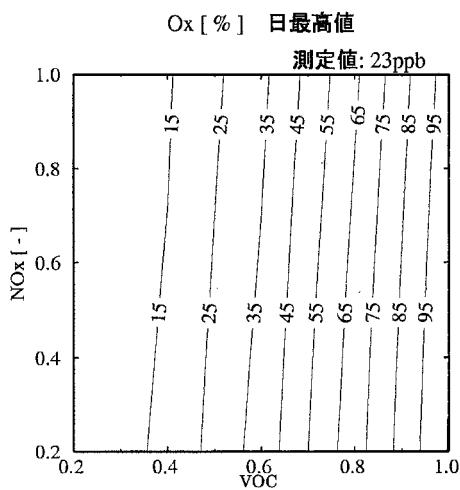


図7 貝塚市消防署（大阪府貝塚市）

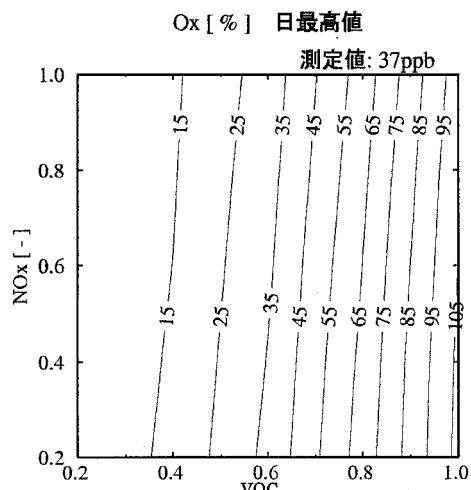
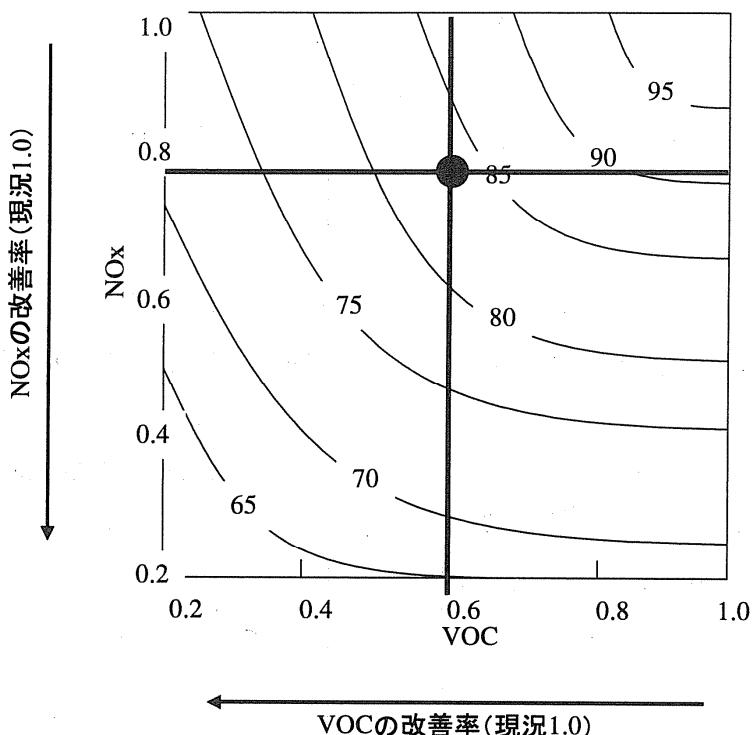


図8 長田（兵庫県神戸市）

### (参考) 改善効果グラフの見方

削減率グラフは、原因物質（VOC又はNO<sub>x</sub>）の改善率（削減前の排出量に対する削減後の排出量の比率）に応じて、原因物質の削減後の汚染物質（SPM又はオキシダント）の改善効果が分かるようになっている。例えば下図では、VOCを40%削減（改善率0.6）し、NO<sub>x</sub>を20%削減（改善率0.8）した場合、削減後の汚染物質は、現状比16%減となる。



仮にNO<sub>x</sub>は削減せずVOCを30%削減することとなれば、SPMは約7%程度、オキシダントは約24%程度改善することができる。

VOC 30%削減時のSPM・オキシダント改善効果 (%)

測定期	SPM改善効果(%)	Ox改善効果(%)
橋本	神奈川県相模原市	7.0
東青梅	東京都青梅市	7.0
廿五里	千葉県市川市	3.5
高階	埼玉県川越市	6.0
総和町役場	茨城県総和町	6.0
千葉県聾学校	千葉県千葉市	7.0
水海道保健所	茨城県水海道市	5.5
瀬崎	埼玉県草加市	4.0
宇田川町	東京都渋谷区	4.0
鷺沼プール	神奈川県川崎市	4.0
浜甲子園	兵庫県西宮市	4.5
平尾小学校	大阪府大阪市	5.5
大山崎	京都府大山崎町	5.0
貝塚市消防署	大阪府貝塚市	15.0
勝山中学校	大阪府大阪市	12.5
長田	兵庫県神戸市	14.0
久我	京都府京都市	10.0
全局平均		7.1
		23.8

○評価結果（評価地点のうち、代表的な4地点（関東2地点、関西2地点）のみ掲載）

### (1) SPM濃度の改善効果（図1～図4）

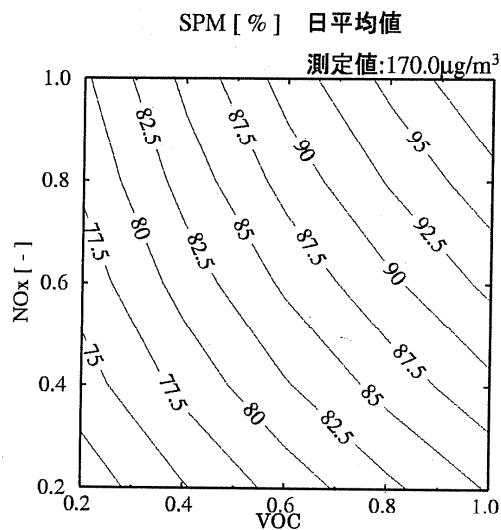


図1 橋本（神奈川県相模原市）

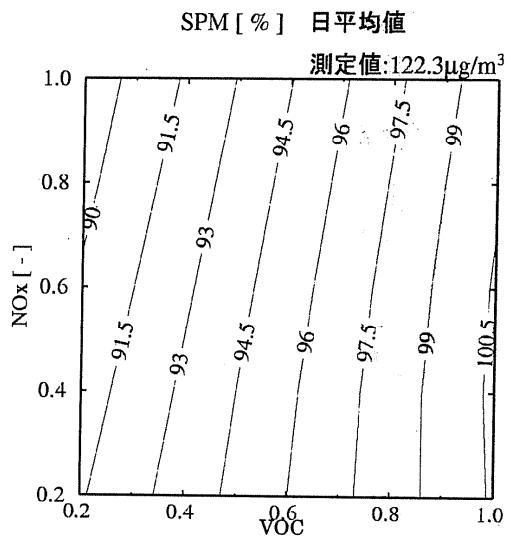


図2 宇田川町（東京都渋谷区）

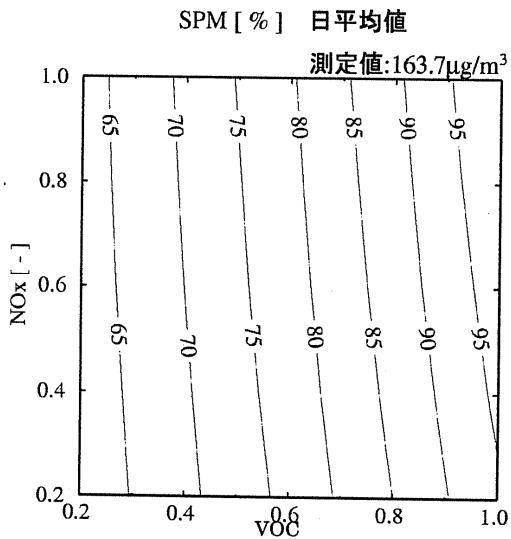


図3 貝塚市消防署（大阪府貝塚市）

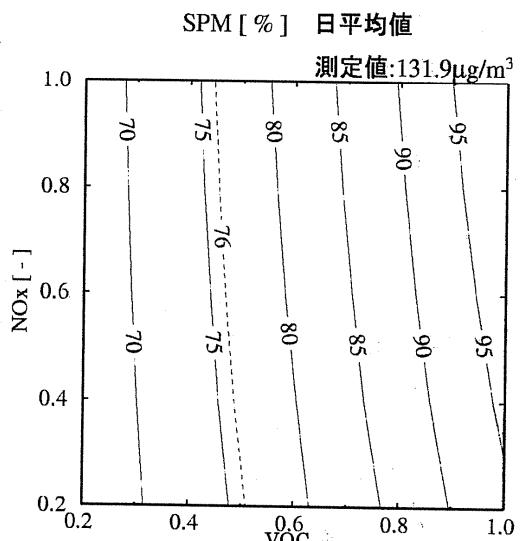


図4 長田（兵庫県神戸市）

(この頁空白)

## 資料2 - 4 - 4 オキシダント生成シミュレーションに関する現状

- ・シミュレーションの主要な構成要素に関し、平成15年度の検討時と現在を対比して示すと以下の通り。

### 【モデル】

項目	H15年度シミュレーションモデル	現在
気象モデル	ANEMOS (日本気象協会局地気象モデル)	WRFv3.1.1 ( <a href="http://www.wrf-model.org">http://www.wrf-model.org</a> )
拡散・輸送モデル	ANEMOS-AERO (日本気象協会拡散・反応モデル)	CMAQv4.7.1 ( <a href="http://www.cmascenter.org/">http://www.cmascenter.org/</a> )
反応モデル	気相反応モデル CBM- 粒子化モデル 無機：平衡反応のモデル化 有機：Pandis らの粒子化モデル	気相反応モデル SAPRC99 粒子化モデル AER05

### 【計算条件】

項目	H15年度シミュレーションモデル	現在( )
領域	気象モデル(約600km×600km) 大気質モデル(約200km×200km)	東アジア(約6240km×5440km) 日本(約600km×600km) 関東(約250km×250km) 関西(約250km×250km)
計算格子	気象モデル(水平5km) 拡散・輸送モデル(水平5km)	東アジア(水平80km) 日本(水平15km) 関東(水平5km)
計算格子数	気象モデル(120×120×25) 拡散・輸送モデル(40×40×25)	東アジア(78×68×14) 日本(40×40×24) 関東(50×50×24)
気象条件	気象モデルによる計算結果 (気象庁GPVを入力)	気象モデルによる計算結果 (気象庁及びNCEPのGPVを入力)
計算対象日	関東：平成13年6月26日 平成13年11月25日 関西：平成13年8月16日 平成14年1月15日	関東：平成13年度、平成17年度、 平成19年度、平成22年度、平成 32年度の年間(各365日) 関西：平成13年度、平成19年度、 平成22年度、平成32年度の年間 (各365日)
排出源	H14年度調査時に算定	提供排出量データを基本。 工場・事業場はマップ調査 VOCは環境省インベントリ調査に より補正

東アジア域シミュレーションは、国立環境研究所による計算結果の提供を受けた。

GPVはGrid Point Value、NCEPはNational Centers for Environmental Prediction、JATOPは一般財団法人石油エネルギー技術センターの略称。

## 【計算条件の設定方法】

項目	H15 年度シミュレーションモデル	現在
固定発生源 ( VOC )	H14 年度調査時に算定	環境省インベントリ調査により全量補正し、空間配分は JATOP 排出量によった。
移動発生源	H14 年度調査時に算定	JATOP 排出量
越境大気汚染	常時監視項目：測定局濃度から内挿 未測定項目：過去の調査研究事例から設定	東アジア域シミュレーション ( 国立環境研究所提供 )
自然発生源	植生 VOC を算定 ( 気温、日射量により補正 )	植生 VOC を算定 ( 気温、日射量により補正 )
気象条件	気象モデルにより計算	気象モデルにより計算

## 資料 2 - 4 - 法改正以降のシミュレーションに関する検討経過

- 平成 18 年 3 月にとりまとめられた中央環境審議会大気環境部会 VOC 排出抑制専門委員会報告「VOC の排出抑制に係る自主的取組のあり方について」では、「SPM 及び光化学オキシダントの生成に係るシミュレーションの改良及び検証のための実測データ取得や、広範囲な大気汚染物質の移流の影響の評価等、科学的知見のさらなる充実を図っていく必要がある」と指摘。
- これを受け平成 18 年度～22 年度において、モデルの改良やインベントリの修正を行ってきた。

年度	検討内容
平成 18 年度	シミュレーションフレームの検討 テスト計算 ( エピソード解析 )
平成 19 年度	基準年発生源データの整備 ( 以降、必要に応じて実施 ) モデルの改良 ( 気象モデル、CMAQ オプションの変更等 ) 基準年現況再現 ( エピソード解析 ) と精度検証 テスト計算 ( エピソード解析 )
平成 20 年度	問題点の整理 感度解析 テスト計算 ( 長期計算 )
平成 21 年度	モデルの改良 ( 気象モデル、CMAQ オプションの変更等 ) 環境基準達成率等の推定手順の検討 基準年・将来年の SPM 年平均、O <sub>x</sub> 120ppb 以上の日数計算 VOC 削減に伴う SPM / O <sub>x</sub> の低減効果検証 感度解析
平成 22 年度	新たな施策の必要性検討 ( シミュレーション ) これまでの施策評価とりまとめ

基準年：平成 12 年度、中間年：平成 17 年度、将来年：平成 22 年度、平成 32 年度

## 資料 2 - 4 -

### 平成 18 年度～平成 22 年度におけるシミュレーションに関する検討結果の概要

(「平成 22 年度揮発性有機化合物(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」より作成)

本調査は、平成 18 年 3 月末にまとめられた中央環境審議会大気環境部会揮発性有機化合物排出抑制専門委員会報告「揮発性有機化合物の排出抑制に係る自主的取組のあり方について」において、「浮遊粒子状物質(SPM)及び光化学オキシダントの生成に係るシミュレーションの改良及び検証のための実測データ取得や、広範囲な大気汚染物物質の移流の影響の評価等、科学的知見のさらなる充実を図っていく必要がある」と指摘されていることを受けて、平成 18 年度から 5 力年にわたり実施したものである。

## 1. 大気質モデルの選定

平成 18 年度調査において、既存の大気質シミュレーションモデルのレビューを行い、本調査においては、大気質モデルとして CMAQ(Community Multiscale Air Quality Model)を採用することとした。

## 2. モデルの改良

平成 19 年度調査から平成 22 年度調査において、シミュレーションモデルの改良を実施した。実施した作業項目は以下の通りである。

- ・ 気象モデルの変更 (MM5 WRF)
- ・ 気相化学反応モデルの変更(CB4 SAPRC)
- ・ 粒子化モデルの変更(AERO3 AERO4 AERO5)
- ・ WRF/CMAQ のバージョンアップ(平成 22 年度調査では WRF3.1.1 CMAQv4.7.1 を導入)
- ・ 気象モデルのパラメーター最適化
- ・ 気象モデルにおける 3 次元データ同化手法の検討
- ・ CMAQ での 3 段ネスティング手法の導入
- ・ PBL(境界層)高さ推定手法の変更
- ・ 二次生成エアロゾル生成モデルのパラメーター感度解析

### 3. 排出インベントリの整備

本調査では、大気質モデルによるシミュレーションを実施するに当たり、CMAQ 入力用に 2000 年、2005 年、2010 年、2020 年の排出インベントリデータを整備した。このうち、2000 年および 2005 年のインベントリデータとしては、原則として JCAP(現 JATOP)から提供された、広域自動車排出量推計システムおよび、広域自動車以外排出量推計システム(G-Beams)のデータを用いた。ただし、下記項目については、本調査の独自データによる置き換えあるいは補正を行った。

(図 1)

- ・ 大規模煙源については大気汚染物質排出量総合調査結果(マップ調査)の届出排出量データを用いた。
- ・ 固定蒸発発生源からの VOC 排出量については、発生源毎の VOC 排出量が「揮発性有機化合物(VOC)排出インベントリ(環境省)」と一致するように G-Beams の排出量を補正した。

また、2010 年及び 2020 年の排出インベントリについては、2005 年のインベントリをベースに、各種統計資料、既存調査報告書などから発生源ごとに適切な伸び率を設定することで推計した。

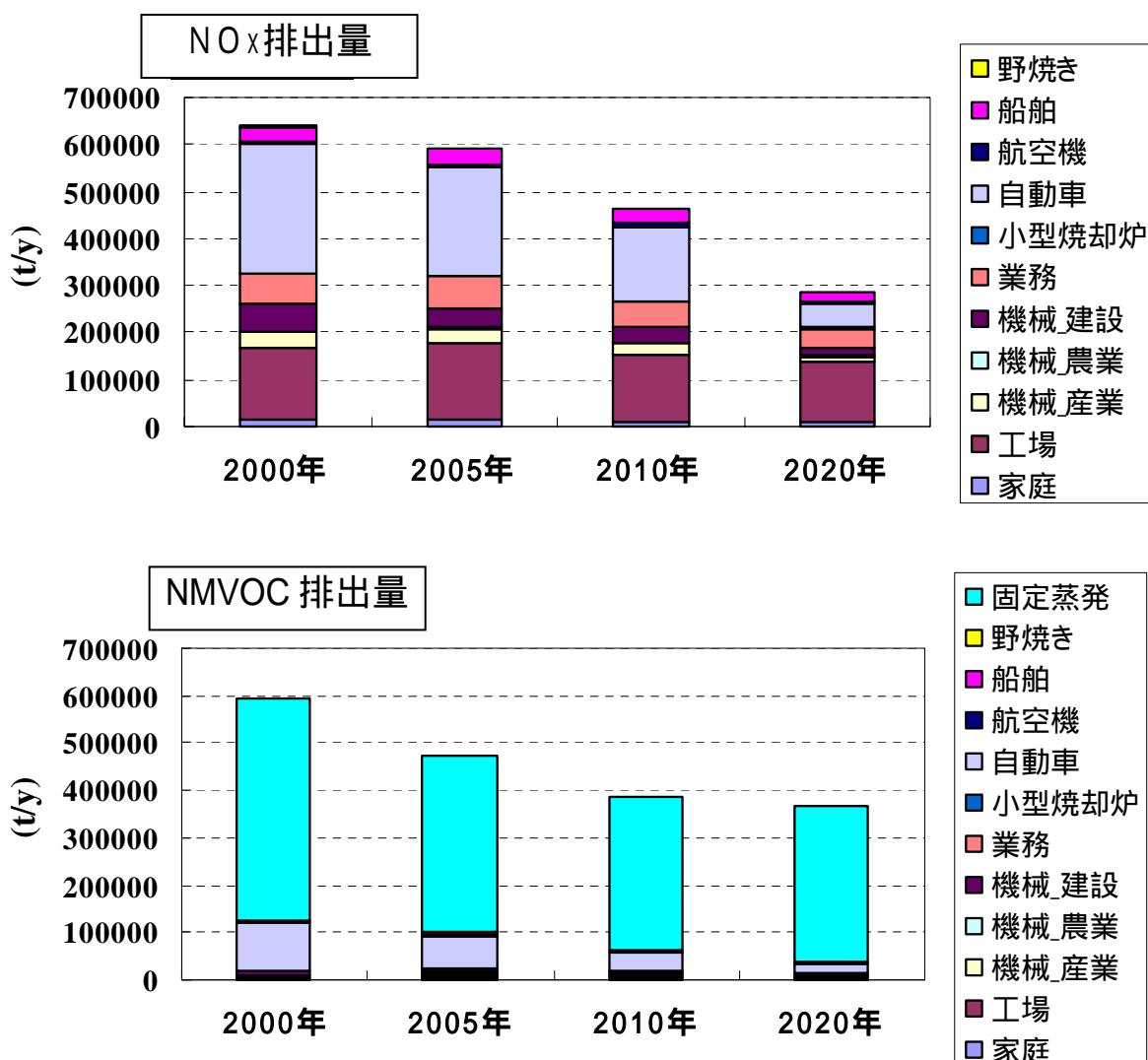


図 1 物質別年間排出量経年変化

## 4. モデルの精度検証及び将来濃度の評価

### (1) 濃度再現性の把握

測定値との比較により、シミュレーションモデルの精度検証を行った。

モデル改良後の精度は、光化学オキシダント(オゾン)の予測評価という観点では、夜間にモデルによる計算濃度が過大となる、エピソードによっては現況再現性が悪い等の課題は残るもの、夏季の高濃度事例に関しては、日中の濃度ピーク、分布を概ね再現していた（図 2）。

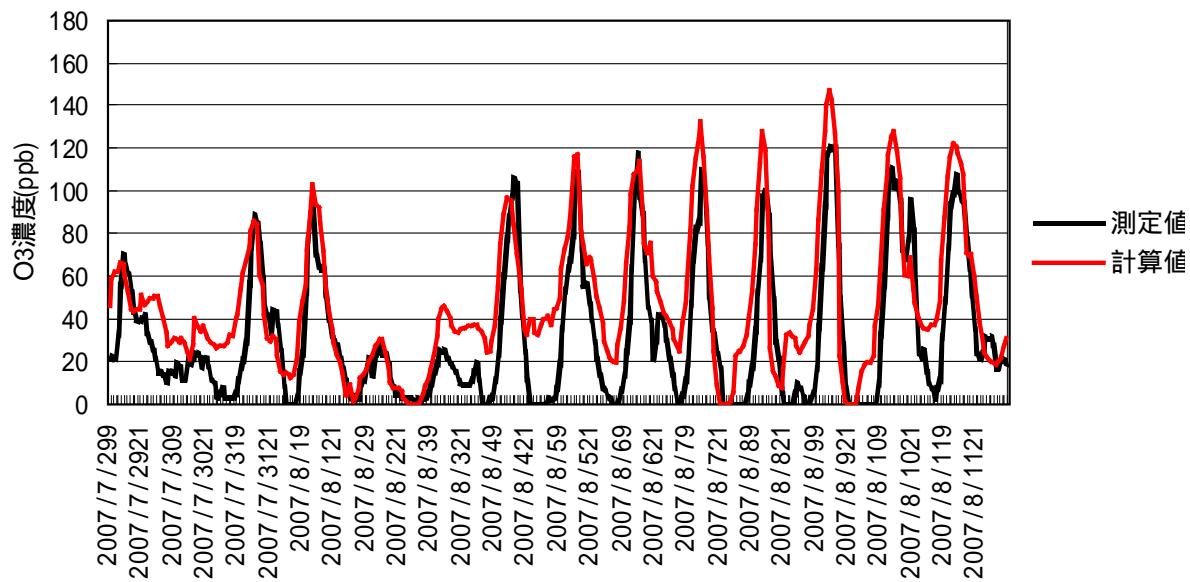


図 2 O3 濃度再現結果(埼玉県騎西地点)

また、年間計算を行った結果、月平均値の変化や 120ppb 以上の出現日数についてはおおむね再現できていた（図 3、図 4）。

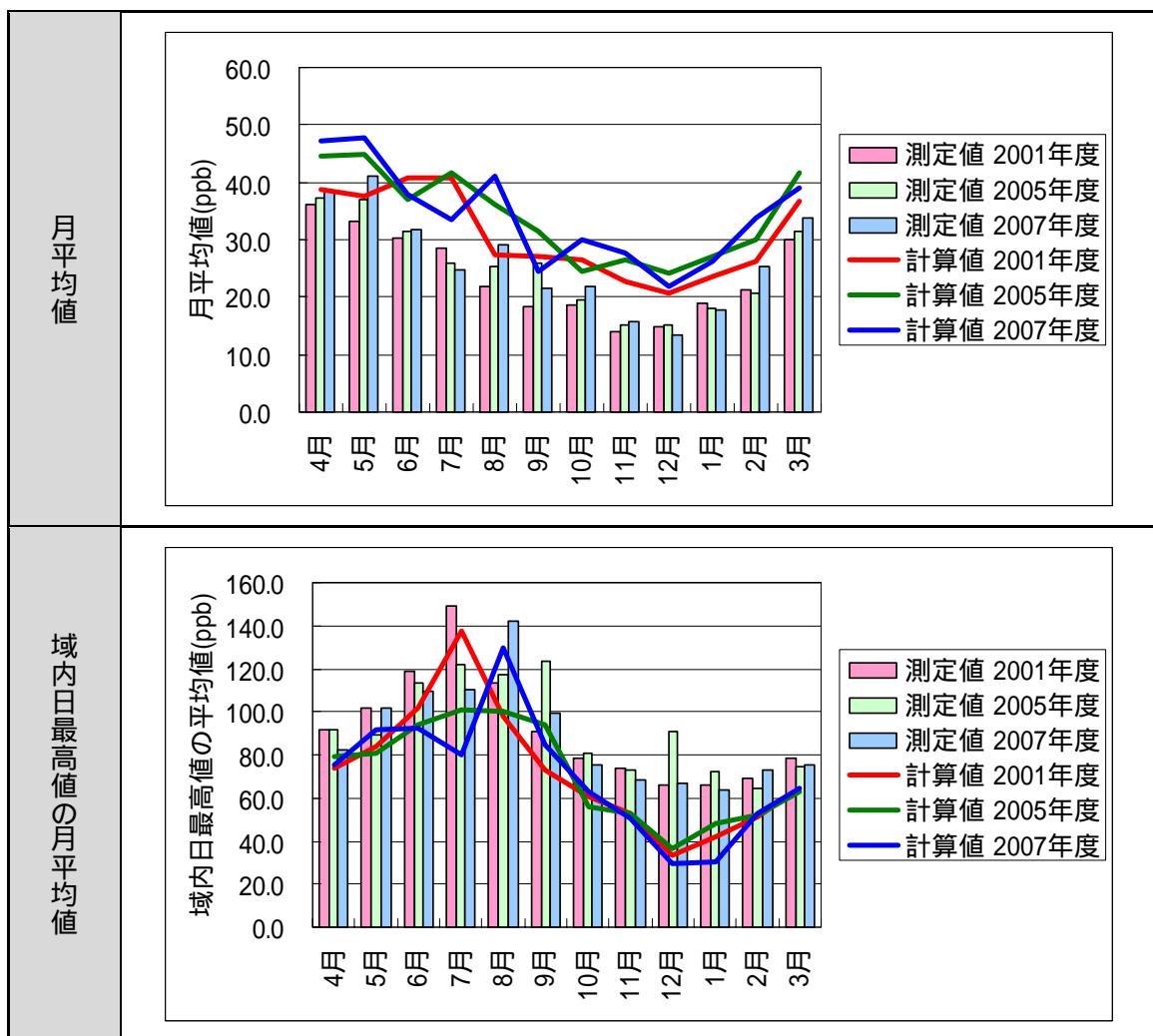


図 3 光化学オキシダント(オゾン)の再現結果(月平均値と域内日最高値の月平均値:関東全域)

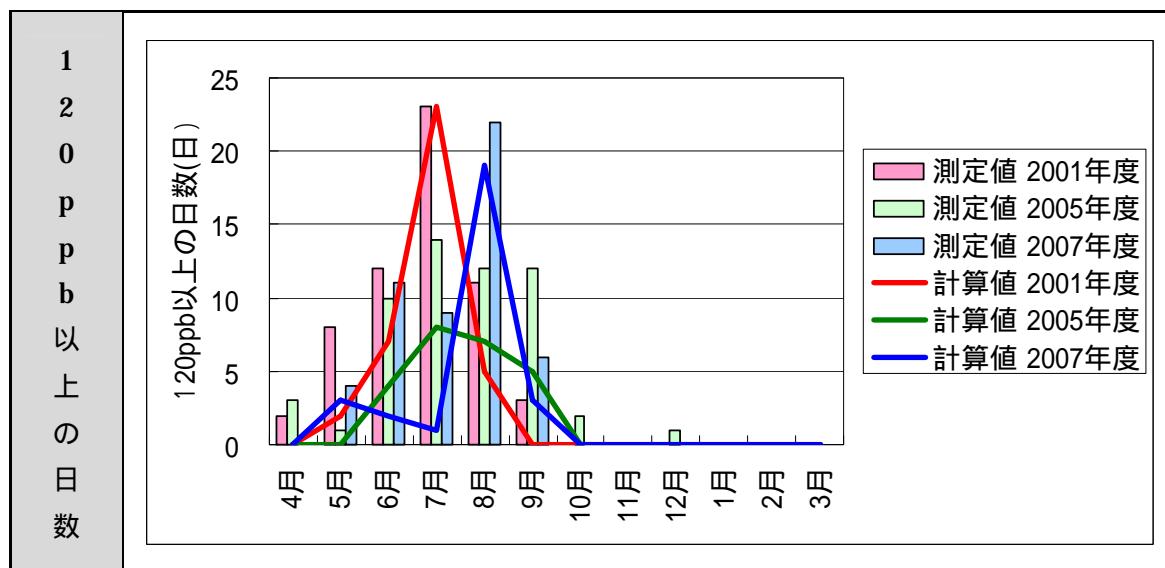


図 4 光化学オキシダント(オゾン)の再現結果(O<sub>3</sub> 濃度が 120ppb 以上の日数:関東全域)

## (2)各予測年度での比較

現況(2001 年)、中間年(2005 年)、将来基準年(2007 年)、将来年(2010 年、2020 年)の年間シミュレーションを実施し、測定値(2001、2005、2007)と比較した。モデルの概要及び計算条件は表 1 のとおりである。

表 1 比較に用いたモデル及び予測条件

項目	本調査
気象モデル	WRFv3.1.1
大気モデル	CMAQv4.7.1
サブモデル	SAPRC99、AERO5
PBL 評価	LID 計算
比較した実測値	大気汚染常時監視測定局測定値
インベントリ	現況 2001 年度 : 2000 年 JATOP インベントリ(平成 22 年度提供版) 現況 2005 年度 : 2005 年 JATOP インベントリ(平成 22 年度提供版) 現況 2007 年度 : 2005 年 JATOP インベントリ(平成 22 年度提供版) 将来 2010 年度 : 2005 年 JATOP インベントリを年度補正 将来 2020 年度 : 2005 年 JATOP インベントリを年度補正 将来排出量の設定は、表 2 に示すとおりである。
気象	各年度における WRF 計算結果を使用 2010、2020 年度は 2007 年度の WRF 計算結果を用いた。

表 2 排出量伸び率の設定方法一覧

		2010年(平成22年)	2020年(平成32年)
ばい煙発生施設	NOx	'温室効果ガス排出量データ'の産業部門からの燃料の燃焼に伴うCO2排出量2005年～2008年の年間伸び率を外挿して推計	'長期エネルギー需給見通し(再計算)'の産業部門からのエネルギー起源CO2排出量の試算結果H32/H17年比より推定
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
民生(業務・家庭)	NOx	'温室効果ガス排出量データ'の家庭または業務部門からの燃料の燃焼に伴うCO2排出量2005年～2008年の年間伸び率を外挿して推計	'長期エネルギー需給見通し(再計算)'の家庭または業務部門からのエネルギー起源CO2排出量の試算結果H32/H17年比より推定
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
自動車	NOx	'自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査'による排出量伸び率(H17年比)より推定	'自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査'による排出量伸び率(H17年比)より推定
	PM		
	CO		
	NMHC		
	SOx		
	NH3		
	摩耗巻上		
作業機械	NOx	'自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査'による排出量伸び率(H17年比)より推定	'自動車排出ガス原単位及び総量算定検討調査'による排出量伸び率(H17年比)より推定
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
船舶	NOx	'温室効果ガス排出量データ'の船舶部門からの燃料の燃焼に伴うCO2排出量2005年～2008年の年間伸び率を外挿して推計	'船舶起源の粒子状(PM)の環境影響に関する調査研究報告書'で推計された2020年頃の船舶排出量の対現況(2000年)比より推定
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
航空機	NOx	'温室効果ガス排出量データ'の航空機部門からの燃料の燃焼に伴うCO2排出量2005年～2008年の年間伸び率を外挿して推計	'長期エネルギー需給見通し(再計算)'の運輸部門からのエネルギー起源CO2排出量の試算結果H32/H17年比より推定
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
小型焼却炉	NOx	H17スライド	H17スライド
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
野焼き	NOx	H17スライド	H17スライド
	SOx		
	CO		
	NMVOC		
	PM		
固定蒸発発生源	NH3	H22/H17推計人口比率より推計	H32/H17推計人口比率より推計
	NMVOC		
植物	NMVOC	H17スライド	H17スライド
工業プロセス	NH3	H17スライド	H17スライド
家畜	NH3	H17スライド	H17スライド
肥料	NH3	H17スライド	H17スライド
土壤	NH3	H17スライド	H17スライド
人間	NH3	H22/H17推計人口比率より推計	H32/H17推計人口比率より推計
ペット	NH3	H22/H17推計人口比率より推計	H32/H17推計人口比率より推計
下水処理	NH3	H22/H17推計人口比率より推計	H32/H17推計人口比率より推計

2001年度、2005年度及び2007年度の計算値と測定値を比較すると、月平均値では各月とも計算値が測定値よりもやや高い結果となっている。また、域内日最高値では各月とも測定値が計算値よりもやや高い結果となった（表3、表4、図5）。

しかしながら、先述したとおり夏季の高濃度事例に関し日中の濃度ピークや分布を概ね再現していることから、後述するレスポンスファクターを用いた将来の高濃度日数の推定結果や、排出量に対する感度解析結果とあわせて、光化学オキシダント対策を検討するうえでの資料として十分に活用できるものと考えられる。

表3 光化学オキシダント(オゾン)の月平均値の測定値と計算値(関東全域)

O <sub>3</sub>	月	月平均値(ppb)							
		測定値			計算値				
		2001 年度	2005 年度	2007 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度
全地域	4月	36.2	37.2	38.3	38.7	44.6	47.1	50.1	54.6
	5月	33.2	37.0	41.0	37.5	44.7	47.7	50.6	55.0
	6月	30.3	31.6	31.8	40.7	37.0	37.9	40.2	43.9
	7月	28.6	26.0	24.7	40.8	41.6	33.4	35.8	39.7
	8月	21.8	25.5	29.0	27.4	36.2	41.0	42.3	44.2
	9月	18.3	25.9	21.7	27.0	31.4	24.5	27.2	31.6
	10月	18.8	19.6	21.7	26.5	24.6	30.1	34.2	41.1
	11月	14.1	15.2	15.8	22.6	26.6	27.7	31.7	39.0
	12月	14.8	15.3	13.3	20.7	24.0	21.8	25.4	32.5
	1月	18.8	18.1	17.7	23.7	27.2	26.3	30.1	36.8
	2月	21.1	20.6	25.3	26.2	30.1	33.8	36.9	42.1
	3月	29.9	31.6	33.6	36.6	41.7	39.0	42.2	47.1
	年間	23.8	25.3	26.2	30.7	34.2	34.2	37.2	42.3

表4 光化学オキシダント(オゾン)の域内日最高値の月平均濃度の測定値と計算値(関東全域)

O <sub>3</sub>	月	域内日最高値の平均(ppb)							
		測定値			計算値				
		2001 年度	2005 年度	2007 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度
全地域	4月	91.8	91.3	82.3	73.8	79.3	75.6	74.9	75.8
	5月	101.7	89.6	102.1	83.6	80.5	91.4	89.4	91.0
	6月	119.0	113.2	109.8	101.6	93.7	92.1	88.5	89.5
	7月	148.8	121.6	110.2	137.5	100.7	79.8	78.0	82.2
	8月	113.1	117.0	142.1	97.8	100.0	129.8	121.6	120.0
	9月	90.7	123.8	99.3	72.9	93.8	84.5	81.4	79.6
	10月	78.7	80.5	75.7	60.5	56.2	62.9	64.2	67.5
	11月	73.8	72.7	68.4	52.6	53.1	50.4	51.6	53.8
	12月	66.0	90.8	66.5	33.4	36.8	29.1	31.8	35.5
	1月	65.8	72.4	63.8	42.1	48.3	30.4	32.3	36.1
	2月	68.9	64.8	73.2	51.5	51.8	52.6	53.9	55.6
	3月	78.1	74.4	75.3	64.2	63.1	64.5	65.0	66.6
	年間	97.9	97.0	96.5	81.0	78.8	81.2	79.4	80.6

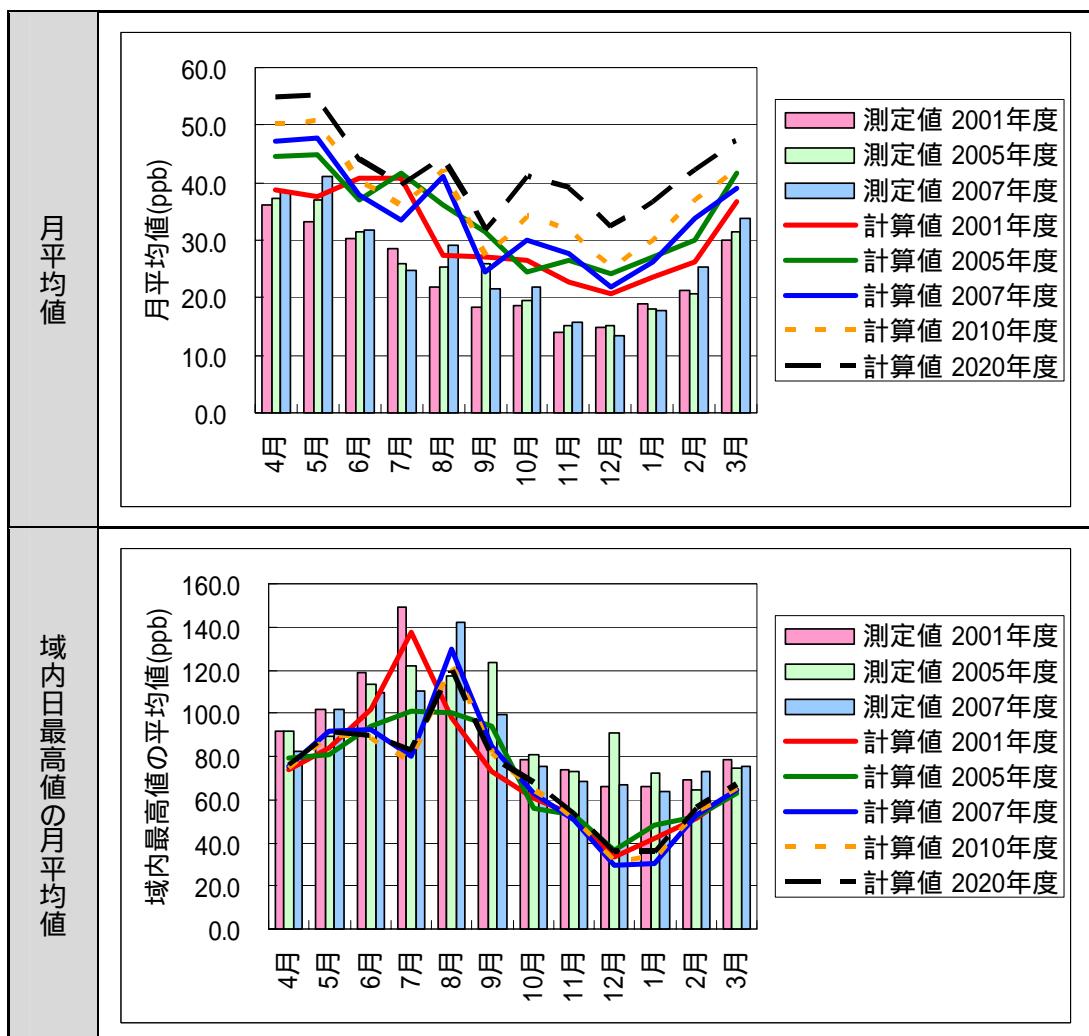


図 5 光化学オキシダント(オゾン)の月平均値と域内日最高値の平均値の比較(関東全域)

### (3)レスポンスファクターを用いた将来濃度の評価

前述のシミュレーション結果では、日ごとにその再現性は異なり、すべての計算日で精度よく計算できているとは限らない。

しかしながら、濃度の増減傾向についてはおよそ信頼できるものと考え、シミュレーションでの濃度変化傾向(濃度変化率)をレスポンスファクターとして表し、この値を濃度の実測値に乗じることにより将来濃度を推定し、日最高濃度が基準濃度(120ppb)以上となる日数を算出する方法により評価を行った。

ただし、計算日により再現性が異なるため、ここでは基準年度(2001年度)と将来年度(2010年度、2020年度)の計算結果の比を測定値に乘じることにより評価した(表5)。

表5 レスポンスファクターを用いた光化学オキシダント(オゾン)の将来超過日数の算出

番号	計算方法	変数: I 地点、J 日
	基準年度(2001年度)の測定値における測定局別・計算日別のO <sub>x</sub> 日最高濃度 O <sub>xobs</sub> 2001,I,J を算出	O <sub>xobs</sub> 2001,I,J
	基準年度(2001年度)シミュレーションにおける測定局別・計算日別のO <sub>3</sub> 日最高濃度 O <sub>3cal</sub> 2001,I,J を算出	O <sub>3cal</sub> 2001,I,J
	将来年度(2010年度または2020年度)シミュレーションの測定局別・計算日別のO <sub>3</sub> 最高濃度 O <sub>3cal</sub> 2010,I,J、O <sub>3cal</sub> 2020,I,J を算出	O <sub>3cal</sub> 2010,I,J O <sub>3cal</sub> 2020,I,J
	測定局別・計算日別に日最高濃度変化率 RF <sub>Ox</sub> 2010,I,J、RF <sub>Ox</sub> 2020,I,J を計算	RF <sub>Ox</sub> 2010,I,J = O <sub>3cal</sub> 2010,I,J / O <sub>3cal</sub> 2001,I,J RF <sub>Ox</sub> 2020,I,J = O <sub>3cal</sub> 2020,I,J / O <sub>3cal</sub> 2001,I,J
	基準年の測定値における測定局別・日別O <sub>x</sub> 日最高濃度(O <sub>xobs</sub> 2001,I,J)に、のRFを乗じて、将来のオキシダント濃度 O <sub>xobs</sub> 2010,I,J、O <sub>xobs</sub> 2020,I,J を推定	O <sub>xobs</sub> 2010,I,J = RF <sub>Ox</sub> 2010,I,J × O <sub>xobs</sub> 2001,I,J O <sub>xobs</sub> 2020,I,J = RF <sub>Ox</sub> 2020,I,J × O <sub>xobs</sub> 2001,I,J
	将来のオキシダント濃度 O <sub>xobs</sub> 2010,I,J、O <sub>xobs</sub> 2020,I,J から基準値超過日数を算出	N <sub>2010</sub> =Count(O <sub>xobs</sub> 2010,I,J 120ppb) N <sub>2020</sub> =Count(O <sub>xobs</sub> 2020,I,J 120ppb)

レスポンスファクター(RF)とは、現況再現シミュレーションと将来シミュレーションの測定局毎の計算濃度の比であり、計算濃度の変化率を示す。基準濃度の超過日数の解析では、現況の測定濃度にRFを乗じて予測した濃度を用いて日数を評価した。

レスポンスファクターを用いて推定した、シミュレーションによる 2010 年及び 2020 年の関東地方における将来濃度予測結果(120ppb 以上となった)日数を表 6 に示す。ここで 2001、2005、2007 年度は実測による日数である。

2010 年度における 120ppb 以上の高濃度日は 2007 年度と同程度であるが、2020 年度には大きく増加する傾向が示された。

表 6 光化学オキシダント(オゾン)の将来予測結果(120ppb 以上となった日数) RF 補正あり

月	全地点(日)					茨城県(日)					栃木県(日)				
	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度
4月	2	3	0	1	2	0	0	0	0	1	0	0	0	0	1
5月	8	1	4	6	11	1	0	1	3	3	5	0	2	2	4
6月	12	10	11	10	16	1	4	1	2	4	6	4	4	5	8
7月	23	14	9	10	16	11	6	3	3	3	11	5	2	3	2
8月	11	12	22	20	22	2	2	12	10	9	3	4	6	6	6
9月	3	12	6	7	14	0	6	2	4	5	0	8	3	4	4
10月	0	2	0	0	3	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
11月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12月	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1月	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3月	0	0	0	0	4	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
年間	59	55	52	54	89	15	18	19	22	25	25	22	17	20	25

月	群馬県(日)					埼玉県(日)					千葉県(日)				
	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度
4月	0	0	0	0	0	0	1	0	0	1	2	1	0	0	1
5月	6	0	4	5	6	4	1	2	3	5	3	1	2	2	3
6月	2	7	9	6	6	8	7	8	7	11	10	6	2	2	5
7月	10	7	3	3	3	21	10	5	6	8	12	12	5	5	8
8月	2	5	8	6	3	7	6	18	17	18	7	8	12	11	12
9月	2	5	4	3	4	0	9	3	3	7	0	9	1	2	7
10月	0	0	0	0	0	0	2	0	0	2	0	1	0	0	0
11月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1	0	0	0
1月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
2月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
年間	22	24	28	23	22	40	36	36	36	54	34	39	22	22	37

月	東京都(日)					神奈川県(日)				
	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度	2001 年度	2005 年度	2007 年度	2010 年度	2020 年度
4月	1	1	0	1	2	0	0	0	0	1
5月	2	0	2	2	4	0	0	2	2	2
6月	9	7	5	3	6	4	4	4	4	4
7月	13	9	6	5	11	9	1	5	5	6
8月	6	6	10	10	13	4	2	9	8	8
9月	0	7	1	2	8	1	4	2	2	6
10月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1
11月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
12月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1月	0	0	0	0	1	0	0	0	0	0
2月	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0
3月	0	0	0	0	2	0	0	0	0	0
年間	31	30	24	23	47	18	11	22	21	28

(注) は左隣の年度より日数が増加していることを示し、 は減少したことを示す。

## 5. 感度解析の実施

大気中の  $O_3$  は、 $NO_x$  と VOC の光化学反応に伴い生成する二次生成物質であるが、その生成量は前駆物質濃度 ( $NO_x$  および VOC) と非線形の関係にあることが知られている。 $NO_x \cdot VOC$  の排出量（または環境濃度）と  $O_3$  濃度の関係を示した模式図を図 6 に示す。

表 7  $NO_x \cdot VOC$  排出量と  $O_3$  濃度の関係図の作成における計算設定

項目	計算設定	
予測年度	2020 年度	
計算期間	2020 年 8 月 1 日 ~ 31 日	
排出量	VOC	2020 年度人為起源 VOC 排出量に対する比 : 0%、25%、50%、75%、100%
	$NO_x$	2020 年度 $NO_x$ 排出量に対する比 : 0%、25%、50%、75%、100%
	その他	2020 年度排出量

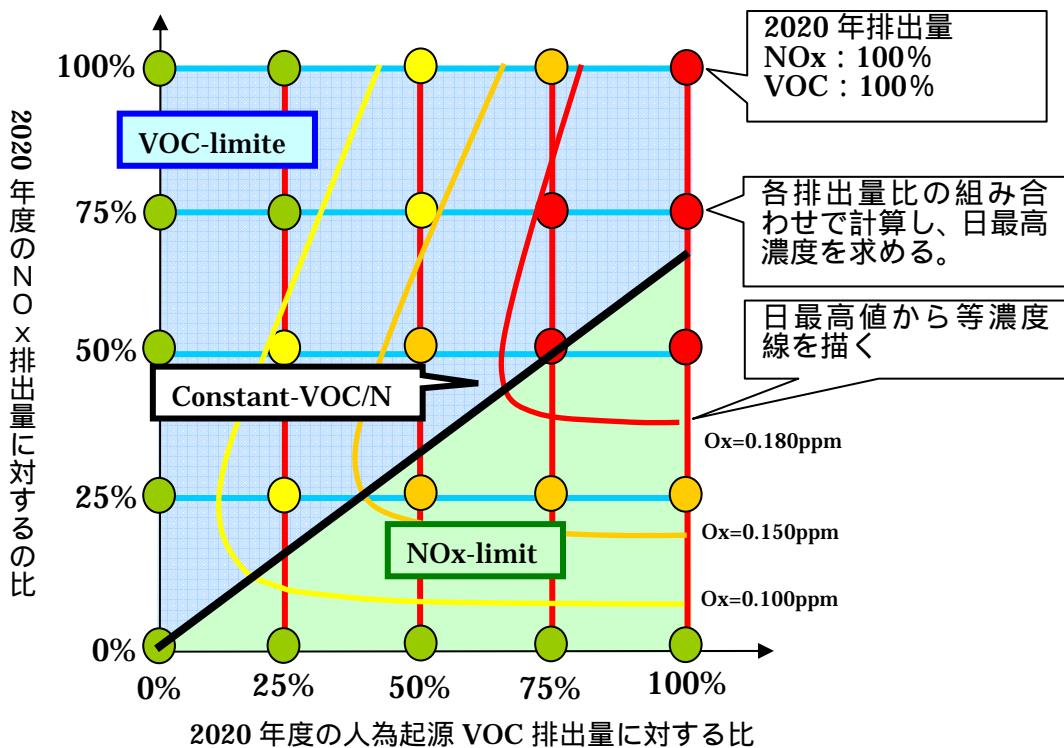


図 6  $NO_x \cdot VOC$  排出量と  $O_3$  濃度の関係図の模式図

大気中のオキシダントは、前駆物質である  $NO_x$  と VOC の光化学反応によって生じる二次生成物質であるが、その生成量は前駆物質の排出量に比例せず非線形の関係にあることが知られている。そこで、2020 年 8 月の関東地方を対象に、 $NO_x$  および VOC 排出量を段階的に変化させた場合の  $O_3$  日最高値を計算した(図 7)。

この結果、関東地方全域における 8 月の  $O_3$  日最高濃度は、削減率 50%で比較した場合、VOC 排出量を低減した方が、NOx 排出量を低減するよりも大きく低下することが示唆された(図(a))。

しかしながら、事例日により NOx・VOC 排出量と  $O_3$  日最高濃度の関係は異なること(図(b)と図(c))や、同じ事例日でも場所により大きく傾向が異なること(図(d)と図(e))が明らかとなった。

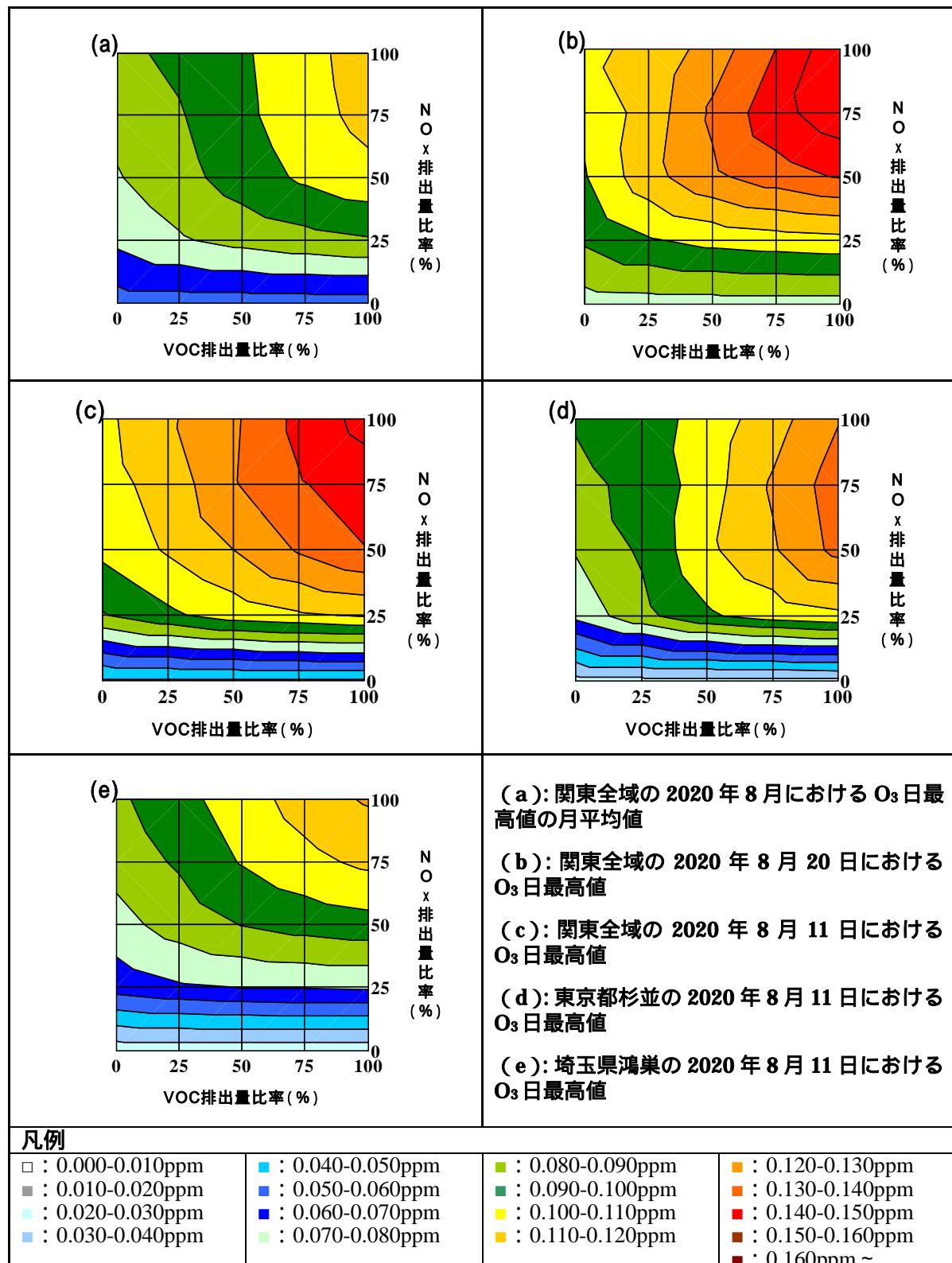


図 7 関東地域における NOx-VOC- $O_3$ 関係図(RF 補正無し・日最高値)

## 6. 現状の施策の効果検証

固定蒸発発生源からの VOC 排出量の削減施策(2010 年までに 2000 年比で 3 割削減)の効果を検証するためのシミュレーションを行った。

関東地方における光化学オキシダントの高濃度日数について、2010 年度を基本ケースとして、固定蒸発 VOC の排出量のみを 2000 年と同値に設定したシミュレーションを実施し、現行の VOC 削減対策の効果を検証した(表 8)。

シミュレーションの結果、比較ケース(2010 年度までに VOC 削減施策を実施しなかった場合に相当)では、基本ケースに比べて、120 ppb 以上となる高濃度日数が関東全域では年間 27 日増加することが見込まれた。この結果から、VOC の削減対策は光化学オキシダントの高濃度汚染や二次有機エアロゾル濃度の低減に寄与することが示唆された。

表 8 光化学オキシダント基準値超過日数(関東地域 都県別・年間・RF 補正あり)

地域	60 ppb 超過日数(日)			120 ppb 以上の日数(日)		
	基本ケース	比較ケース	差	基本ケース	比較ケース	差
茨城県	178	180	2	22	34	12
栃木県	158	159	1	20	33	13
群馬県	193	193	0	23	39	16
埼玉県	188	189	1	36	56	20
千葉県	168	168	0	22	37	15
東京都	160	160	0	23	38	15
神奈川県	153	153	0	21	28	7
関東全域	240	240	0	54	81	27

## 7. 将来シナリオ検討のためのシミュレーション

将来の更なる大気環境改善を目的とした具体的な対策を検討するために以下のシミュレーション(Case1 ~ Case4)を実施した。対象物質・指標としては、オキシダント(オゾン)の高濃度日(120 ppb 以上)の日数を解析した。比較対象とするのは 2020 年の単純将来(Case0)とし、関東地域について年間シミュレーションを実施した(表 9、表 10)。

表 9 将来シナリオ策定のためのシミュレーションにおけるケース設定

ケース	内 容
Case0	2020 年の単純将来ケース
Case1	固定蒸発発生源からの VOC 排出量を 2020 年からさらに 3 割削減
Case2	大規模固定発生源からの NOx の排出量を 2020 年からさらに 3 割削減
Case3	固定蒸発発生源からの VOC 排出量と大規模固定発生源からの NOx 排出量の両方を 2020 年からさらに 3 割削減
Case4	日本広域の境界濃度を 3 割削減

表 10 将来シナリオ検討のためのシミュレーションにおける共通設定

項目		内容		
共通設定	基準年度	2020 年度		
	気象	2007 年度		
	境界	2007 年度		
	計算期間	2007 年度		
	対象地域	関東広域、関東		

この結果、VOC 対策推進(Case1)では、O<sub>3</sub>日最高値 120 ppb 以上の日数が減少する一方で、固定発生源 NOx 対策推進(Case2)ではやや増加、Case1+Case2(=Case3)では、減少することが見込まれた。また、境界濃度が低下(Case4)では、高濃度日数の大幅な低減が見込まれた（表 11）。

表 11 将来シナリオ検討のためのシミュレーションの結果(RF 補正あり)

月	60ppb 超過日数(日)			120ppb 以上の日数(日)			月	60ppb 超過日数(日)			120ppb 以上の日数(日)		
	Case0	Case1	C1-C0	Case0	Case1	C1-C0		Case0	Case2	C2-C0	Case0	Case2	C2-C0
4月	29	29	0	2	2	0	4月	29	29	0	2	2	0
5月	30	30	0	11	10	-1	5月	30	30	0	11	12	1
6月	29	29	0	16	10	-6	6月	29	29	0	16	17	1
7月	25	24	-1	16	14	-2	7月	25	25	0	16	16	0
8月	27	26	-1	22	19	-3	8月	27	26	-1	22	23	1
9月	23	23	0	14	11	-3	9月	23	23	0	14	14	0
10月	20	20	0	3	0	-3	10月	20	20	0	3	5	2
11月	11	11	0	0	0	0	11月	11	11	0	0	0	0
12月	2	2	0	0	0	0	12月	2	2	0	0	0	0
1月	4	4	0	1	1	0	1月	4	4	0	1	1	0
2月	11	11	0	0	0	0	2月	11	11	0	0	0	0
3月	29	29	0	4	1	-3	3月	29	29	0	4	5	1
年間	240	238	-2	89	68	-21	年間	240	239	-1	89	95	6

月	60ppb 超過日数			120ppb 以上の日数(日)			月	60ppb 超過日数(日)			120ppb 以上の日数(日)		
	Case0	Case3	C3-C0	Case0	Case3	C3-C0		Case0	Case4	C4-C0	Case0	Case4	C4-C0
4月	29	29	0	2	2	0	4月	29	20	-9	2	0	-2
5月	30	30	0	11	9	-2	5月	30	30	0	11	4	-7
6月	29	29	0	16	11	-5	6月	29	25	-4	16	9	-7
7月	25	24	-1	16	14	-2	7月	25	23	-2	16	10	-6
8月	27	26	-1	22	20	-2	8月	27	26	-1	22	20	-2
9月	23	23	0	14	12	-2	9月	23	22	-1	14	11	-3
10月	20	20	0	3	1	-2	10月	20	13	-7	3	0	-3
11月	11	11	0	0	0	0	11月	11	3	-8	0	0	0
12月	2	2	0	0	0	0	12月	2	1	-1	0	0	0
1月	4	4	0	1	1	0	1月	4	1	-3	1	0	-1
2月	11	11	0	0	0	0	2月	11	3	-8	0	0	0
3月	29	29	0	4	1	-3	3月	29	15	-14	4	0	-4
年間	240	238	-2	89	71	-18	年間	240	182	-58	89	54	-35

(注) は基本ケースに対して比較ケースが増加したことを示し、 は減少したことを示す。

レスポンスファクター(RF)とは、現況再現シミュレーションと将来シミュレーションの測定期毎の計算濃度の比であり、計算濃度の変化率を示す。基準濃度の超過日数の解析では、現況の測定濃度にRFを乗じて予測した濃度を用いて日数を評価した。