

# 日本海の船舶起源の窒素酸化物排出量推定と光化学オキシダント濃度に及ぼす影響評価

## Estimation of NO<sub>x</sub> emissions from ships in the Japan sea and impact to ambient ozone concentrations

交河 茂晴 (大阪大学)                      嶋寺 光 (大阪大学)  
 加賀 昭和 (大阪大学)                    近藤 明 (大阪大学)  
 井上 義雄 (大阪大学)

Shigeharu KOKAWA\*<sup>1</sup> Hikari SHIMADERA\*<sup>1</sup> Akikazu KAGA\*<sup>1</sup> Akira KONDO\*<sup>1</sup> Yoshio INOUE\*<sup>1</sup>

\*<sup>1</sup> Osaka University

The study estimated the amount of NO<sub>x</sub> by ship emission in Japan sea. The influence of ship emission on ozone (O<sub>3</sub>) concentrations in Hyogo prefecture was examined on July 2008 based on MM5/CMAQ model. The analysis was performed by three sets of simulation scenarios:(1) with ship emission(12-mile limit)(E12) (2) with ship emission(200-mile limit)(E200) (3) without ship emission.(EB).The model results suggested that NO<sub>x</sub> emitted from the ships enhanced the O<sub>3</sub> concentrations levels in the coast areas during daytime. NO<sub>x</sub> emission increased by 8 ppb at coast areas and by 6 ppb at inland due to fine and calm condition.

### 1. はじめに

光化学オキシダント濃度は近年増加傾向にある。光化学大気汚染は再び注目を集めており、その実態把握のために広域数値シミュレーションモデルが用いられるようになってきている<sup>(1)</sup>。より正確に実態把握するために自動車や工場に比べて規制の少ない船舶起源の NO<sub>x</sub> 排出を考慮してシミュレーションする必要がある。

本研究では、兵庫県における光化学オキシダント濃度に対する日本海の船舶起源の NO<sub>x</sub> 排出の影響を調べるために気象/大気質モデルを用いて数値シミュレーションを行った。対象期間は気温の上昇、日射量の増加、植生起源揮発性有機化合物(VOC)の排出量の増加などにより昼間に高濃度 O<sub>3</sub> が出現しやすい夏季として 2008 年 7 月を選んだ。

### 2. 光化学反応

ここでは、地表に近い下層大気において O<sub>3</sub> 生成に関わる光化学反応について簡単に述べる。より詳細な反応機構については、Kley et al.<sup>(2)</sup>、Jenkin and Clemitshaw<sup>(3)</sup>などに記述されている。O<sub>3</sub> 生成には、NO<sub>x</sub> (= NO + NO<sub>2</sub>) および VOC が重要な役割を果たす。O<sub>3</sub> は日中に以下の反応によって生成される。



ここで、 $h\nu$  は日射に含まれる紫外線、M は第 3 体 (主に N<sub>2</sub>) である。一方で、NO は以下の反応により O<sub>3</sub> を分解する。



主に光化学反応によって VOC と CO から生成される。RO<sub>2</sub> と HO<sub>2</sub> が存在すると以下のように、O<sub>3</sub> を消費せず



反応(R1) ~ (R3)では、O<sub>3</sub> と NO<sub>2</sub> の和は保存されており、この和をオキシダント (O<sub>x</sub>) と定義し、光化学反応の議論に用いられることがある<sup>(2)</sup>。O<sub>x</sub> を用いることで、O<sub>3</sub> の遠方からの移流や、(R4)、(R5)による NO<sub>2</sub> 生成あるいはそれに伴う O<sub>3</sub> 生成を評価することができる。

### 3. 船舶排出量推定

日本海の船舶起源の NO<sub>x</sub> 排出量の推定では、日本海を北区 (青森県 ~ 富山県)、西区 (石川県 ~ 島根県) に分けて船種 (漁船、内航船舶、内航自航、外航船舶) ごとに排出量を推定した。推定方法はシップ・アンド・オーシャン財団の調査報告書<sup>(4)</sup>の設定を参考に、年間燃料消費量から排出係数を乗じることで NO<sub>x</sub> 排出量を推定した。Table.1 に船種ごとの年間燃料消費量、Table.2 に船種ごとの NO<sub>x</sub> 排出量を示す。

Table.1 Fuel consumption in Japan sea (Gg/year)

	漁船	内航自航	内航商船	外航商船	合計
日本海北区	195	146	117	65	523
日本海西区	440	73	136	109	758
日本海全体	635	219	253	174	1281

Table.2 NOx emissions in Japan sea (Gg/year)

	漁船	内航 自航	内航 商船	外航 商船	合計
日本海北 区	16.9	12.6	8.5	5.6	43.6
日本海西 区	38.3	6.3	11.9	9.4	65.9
日本海全 体	55.2	18.9	20.4	15	109.5

#### 4. 計算手法

##### 4.1 数値モデルの概要

本研究で使用した数値モデルは、米国国立大気研究センター (NCAR) およびペンシルバニア州立大学 (PSU) により開発された the Fifth-generation PSU/NCAR Mesoscale Model (MM5) のバージョン 3.7 と、米国環境保護庁 (EPA) により開発された the EPA models-3 Community Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ) のバージョン 4.6 である。

MM5 は非静力学平衡・圧縮性のメソスケールモデルであり、主な特徴としては、鉛直座標系に気圧準拠の  $\sigma$  座標系を採用していること、ネスティング手法による計算領域の高解像度化が可能であること、各物理過程において複数のオプションを有していることなどの点が挙げられる。

CMAQ は 3 次元オイラー型の大気質モデルで、半球から局地スケールまで対応しており、気象モデルから得られた気象場や、発生源などの入力条件をもとに、様々な大気汚染物質濃度の分布、湿性・乾性沈着量が計算できるように設計されている。

##### 4.2 計算条件

計算期間は、2008 年 7 月を選び、それぞれの期間で 5 日間の助走計算を行った。Fig. 1 に本研究における計算領域および計算精度の評価に用いた観測地点を示す。

計算領域は、ランベルト正角円錐図法で表される 32.0° N, 122.5° E を中心とする東アジア域である。ネスティング手法を用いて、格子数 105 × 81 の 54km 格子領域 (D1), 格子数 72 × 72 の 18km 格子領域 (D2), および兵庫県域を中心とする格子数 72 × 72 の 6km 格子領域 (D3) の 3 領域で計算を行った。鉛直方向には、地表面から上空 100hPa までを 24 層に分割し、地表面に接する層の中心高さは地上約 15m とした。また、数値計算による気象場の予測精度評価のために、兵庫県下の気象官署 4 地点 (豊岡, 姫路, 神戸, 洲本), および D3 内の高層気象観測官署 3 地点 (米子, 浜松, 潮岬) における観測値を用いた。O<sub>3</sub> 濃度の予測精度評価には、兵庫県下の一般環境大気測定局から南北軸に 5 地点 (豊岡, 柏原, 西脇, 二見, 洲本) を選んだ。

MM5 の初期・境界条件は、D1 には水平解像度 1° × 1° の全球データである米国環境予測センターの最終解析データ (NCEP.FNL) を用いた。D2 には日本域で利用できる高解像度 (地上データは 0.05° × 0.0625°, 各圧力平面のデータは 0.1° × 0.125°) の気象庁メソ数値予報モデルの客観解析値 (GPV-MSM) を用い、GPV-MSM に含まれていない地中・表面温度のみ NCEP.FNL を用いた。D3 の境界条件は、D2 の計算結果を用いた。MM5 の物理スキームには、積雲過程に Grel et al. 雲微物理過程および放射過程に Dudhia, 大気境界層過程に Hong and Pan, 地表面過程に Dudhia の手法を用いた。

CMAQ の初期・境界条件は、D1 には CMAQ の初期設定値を用いた。D2 および D3 の境界条件は、それぞれ D1 および D2 の計算結果を用いた。CMAQ の化学反応スキームには、気相反応系に Statewide Air Pollution Research Center version 99 (SAPRC99), エアロゾル系に AERO4 を用い、雲・液相反応オプションを用いた。

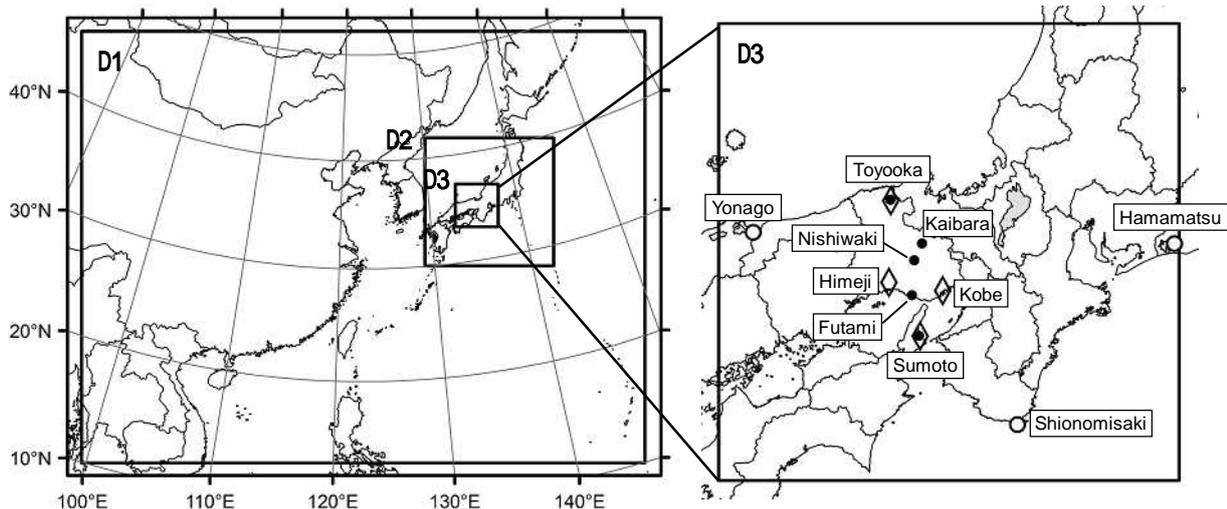


Fig.1 Modeling domains and locations of observation sites



## 5. MM5/CMAQ の計算結果と考察

Fig. 3 に、日本海の船舶からの NO<sub>x</sub> 排出を考慮していない計算(EB)から、日本海の船舶からの NO<sub>x</sub> 排出を 200 海里に設定した場合(ES200)、12 海里に設定した場合(ES12)との兵庫県下の一般環境大気測定局 5 地点におけるオゾン濃度の差を示す。EB で昼間には強いピークが現れる場合にしばしば計算で濃度上昇を再現できずに過小評価となっていたが、2,4,5,9,11,13,23,26,27,28,29,31 日に ES12 では豊岡における昼間での濃度上昇の再現性を向上できた。また、9,19,31 日では柏原、西脇、二見でも再現性を向上できた。Fig. 4 に、D3 内の各時間での平均オゾン濃度、Fig.5 に D3 内の各時間での平均オゾン濃度差(ES200-EB,ES12-EB)をそれぞれ示す。Fig.5 でも、昼間のオゾン濃度が上昇したことが分かる。ES12 では、夜間に平均オゾン濃度が 0.4~0.6ppb 減少した。

Fig. 6 に、2008 年 7 月 9 日における ES12 でのオゾン、NO、NO<sub>2</sub>濃度と ES12 と EB のオゾン、NO、NO<sub>2</sub>濃度差の空間分布を示す。14 時に広範囲で船舶排出によってオゾン濃度が上昇した。よって、船舶起源の NO<sub>x</sub> 排出が日本海側の地域での昼間での濃度上昇の要因であることが考えられる。しかし、夜間には計算であまり濃度が下がらずに過大評価となった。これは、夜間での陸風の影響で船舶から排出された NO<sub>x</sub> が陸地まで到達できずオゾンの消失反応が抑制されていることが原因である。よって、オゾン濃度は移流の影響で大きく変化することが明らかになった。

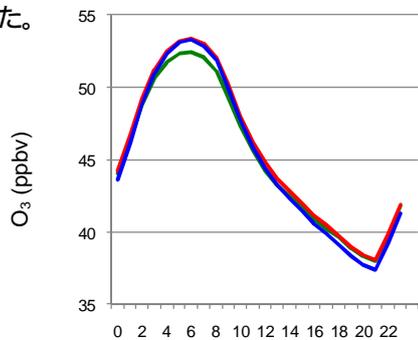


Fig. 4

Fig. 4 the predicted monthly average O<sub>3</sub> concentrations at each time in D3 on July 2008

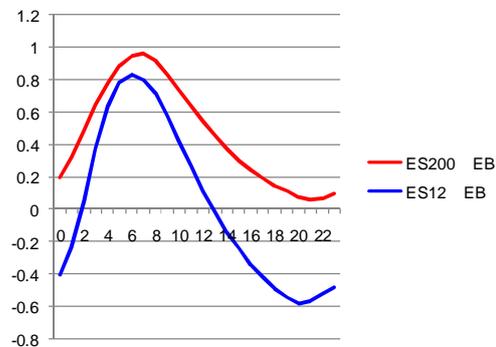


Fig.5

Fig. 5 the difference of the predicted monthly average O<sub>3</sub> concentrations at each time in D3 on July 2008

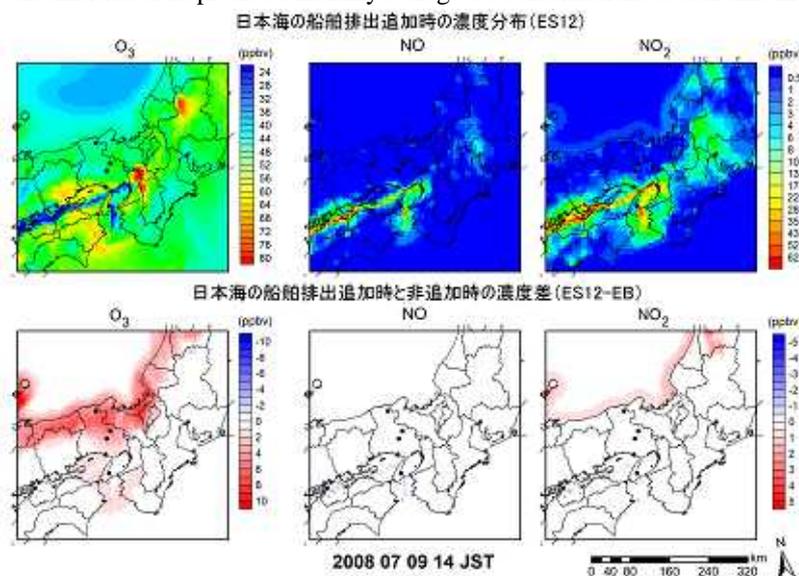


Fig. 6 Spatial distributions of the predicted O<sub>3</sub>,NO and NO<sub>2</sub> concentrations and the difference of the predicted O<sub>3</sub>,NO and NO<sub>2</sub> concentrations(ES12-EB) at 14JST on July 9

## 6. 結論

兵庫県における光化学オキシダント濃度に対する日本海の船舶起源の NO<sub>x</sub> 排出は、昼間での濃度上昇に影響を及ぼしていることが分かった。日本海側に面している唯一の常時観測局である豊岡で特にその影響が顕著である。また、濃度変動は移流による影響が比較的大きいことが分かった。

### 参考文献

- (1) 黒川, 大原, 早崎, 鶴野, “ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析”, 大気環境学会誌, 43(4) (2008), pp. 209-224
- (2) Kley, D., Kleinmann, M., Sanderman, H., Krupa, S., “Photochemical oxidants: State of the science”, Environ Pollut, 100 (1-3) (1999), pp. 19-42
- (3) Jenkin, M.E. and Clemitshaw, K.C., “Ozone and other secondary photochemical pollutants: Chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer”, Atmos Environ, 34 (16) (2000), pp. 2499-2527
- (4) 財団法人 シップ・アンド・オーシャン財団 船舶排ガスの地球環境への影響と防止技術の調査報告書(1998 年)