

# 大気質モデルを用いた日本の大気汚染に対する船舶排出寄与の推計

大阪大学 ○嶋寺 光 松尾 智仁 近藤 明

## 1. はじめに

日本では、1968年の大気汚染防止法の制定以降、その改定とともに大気汚染対策の強化が進み、大気汚染問題は改善されてきた。大気環境基準の達成状況について、二酸化硫黄 ( $\text{SO}_2$ )、一酸化炭素 (CO)、二酸化窒素 ( $\text{NO}_2$ )、浮遊粒子状物質 (SPM) については、近年の達成率はほぼ 100%となっている。しかし、オゾン ( $\text{O}_3$ ) を主成分とする光化学オキシダント ( $\text{O}_x$ ) および微小粒子状物質 ( $\text{PM}_{2.5}$ ) については、一般環境大気測定局 (一般局) における環境基準達成率は、2014 年度でそれぞれ 0%および 37.8%<sup>1)</sup>と多くの地域で環境基準未達成の状況であり、更なる濃度低減には効率的な大気汚染対策が求められる。 $\text{O}_x$ と  $\text{PM}_{2.5}$ の大部分は、大気中で複雑な反応を経て生成される二次生成物質である。これらの二次生成物質の濃度低減対策の検討には、多様な前駆物質の発生源と濃度の関係をシミュレーションにより明らかにできる大気質モデルが有用である。

大気汚染の発生源には、自動車や工場・発電所等の大規模燃焼源などがあるが、海洋に囲まれた日本においては、船舶も重要な発生源である。船舶は、2020 年より燃料の硫黄分濃度の規制が強化される<sup>1)</sup>など、今後も大気汚染対策の強化が期待される。そこで本研究では、船舶排出規制に伴う大気環境改善の可能性を示すことを目的に、大気質モデルを用いて現在の日本における大気汚染に対する船舶排出の寄与を推計した。

## 2. 計算方法

大気汚染物質の発生源寄与解析には、大気質モデル Community Multiscale Air Quality modeling system v5.0.2 (CMAQ)<sup>3)</sup>に実装されている、Integrated Source Apportionment Method (ISAM)<sup>4)</sup>を用いた。ISAMは、対象発生源から排出される物質およびそこから生成される二次生成物質にタグ情報を付与し、それらを追跡することで発生源寄与を推計する、タグ付きトレーサー法の一つである。タグ付きトレーサー法では、一度の大気質シミュレーションで、複数の発生源からの寄与を同時に推計できる。本研究では、2010 年度の日本における大気汚染に対する、国内の船舶、自動車、その他の排出、および国外からの流入の寄与を推計した。

図 1 に示す通り、計算領域は、東アジアを対象とする格子数  $76 \times 76$  の 64km 格子領域 (D1) と日本を対象

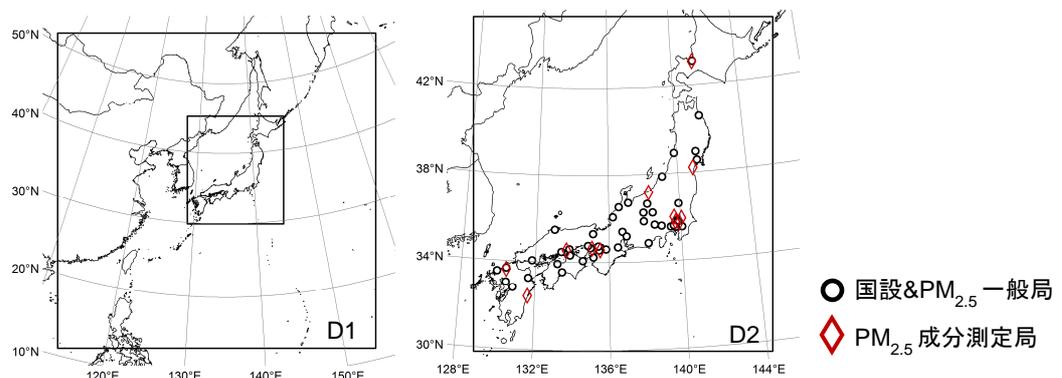


図 1 計算領域と大気質モデル再現性評価に用いた観測地点

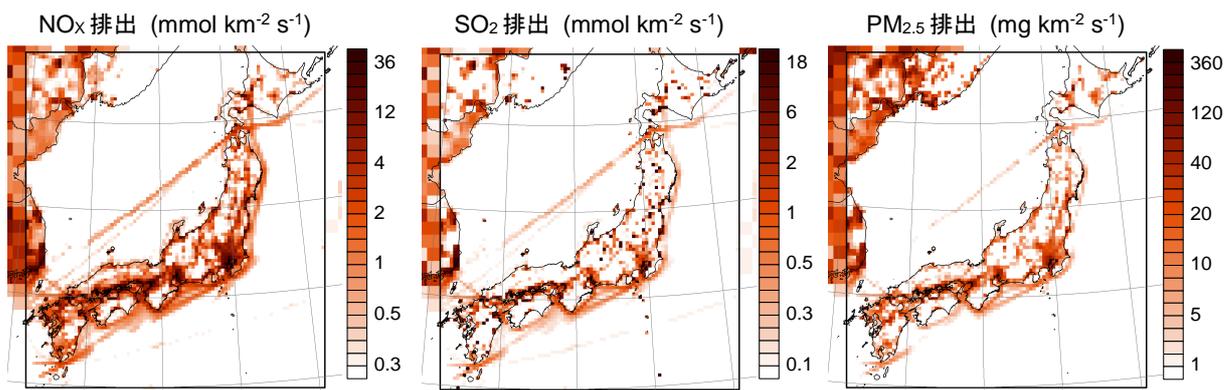


図2 D2におけるNO<sub>x</sub>, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>の平均排出量分布

とする格子数 92×104 の 16km 格子領域 (D2) とした。CMAQ の再現性評価には、一般局のうちの国設局と対期間の 2010 年度に PM<sub>2.5</sub> の測定が行われた測定局の計 50 地点と、PM<sub>2.5</sub> 成分濃度の測定が行われた 12 測定局 (PM<sub>2.5</sub> 成分測定局) における観測値を用いた。

CMAQ の入力条件として、気象場の作成には、気象モデル Weather Research and Forecasting model v3.5.1 (WRF)<sup>5)</sup> を用いた。大気汚染物質の排出量には、人為起源については、日本国内の船舶は海洋政策研究財団 (OPRF) による排出インベントリ<sup>6)</sup>、自動車は Japan Auto-Oil Program (JATOP) による排出インベントリ<sup>7)</sup>、その他は EAGrid2010-Japan<sup>8)</sup> を用い、日本国外は Janssens-Maenhout et al.<sup>9)</sup> による全球排出インベントリを用いた。これらの排出インベントリの対象年は、本研究の対象期間にあわせて全て 2010 年とした。自然起源については、植生、火山、バイオマス燃焼、海塩、土壌性ダストを考慮した。WRF の計算結果、D1 の境界濃度、CMAQ の化学反応モデルの設定については、Shimadera et al.<sup>10)</sup> と同一である。

図2に、D2における窒素酸化物 (NO<sub>x</sub>)、SO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub> の排出量分布を示す。SO<sub>2</sub> については、主要な人為発生源は、船舶や大規模燃焼源である。また日本国内では、火山からの SO<sub>2</sub> 排出量は、人為起源よりもはるかに多い。NO<sub>x</sub> および PM<sub>2.5</sub> については、SO<sub>2</sub> の主要な人為発生源に加えて、自動車からの排出量も多い。NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub> の年間総排出量は、D1 でそれぞれ 30.7Tg、33.3Tg、10.6Tg、D2 でそれぞれ 2.6Tg、3.1Tg、0.3Tg である。D2 において船舶および自動車排出が総排出量に占める割合は、NO<sub>x</sub> でそれぞれ 24% および 23%、SO<sub>2</sub> でそれぞれ 8% および 0%、PM<sub>2.5</sub> でそれぞれ 16% および 12% である。

### 3. 計算結果

CMAQ による 2010 年度の日本における大気汚染の再現性評価のために、日最大 1 時間 O<sub>3</sub> 濃度および日平均 NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>、PM<sub>2.5</sub> 濃度について、一般局 50 地点における観測値と計算値の比較を行った。表 1 に統計指標による比較、図 3 に各一般局における年間値の比較、図 4 に一般局平均での時系列変化の比較を示す。O<sub>3</sub> 濃度については、計算で年間を通しての時間変動が良好に再現された。年平均値では空間変動はあまり明確ではないが、高濃度日を反映する年間 98 パーセンタイル値では、前駆物質の発生源が集中する東京周辺において他地域よりも高い濃度が観測されており、CMAQ もその傾向を概ね再現した。NO<sub>2</sub> 濃度については、東京および大阪周辺においては計算でほぼ濃度レベルを捉えているが、その他の地域では過小評価となっている地点が多い。また季節別では、冬季に過小評価となる傾向が強くなった。SO<sub>2</sub> 濃度については、全局平均濃度は観測値と計算値で近い値となった。他の物質に比べて空間変動の再現性はやや悪いものの、平均的な時間変動は年間を通して良好に再現された。PM<sub>2.5</sub> 濃度については、全体的にやや過小評価となったものの、年平均値と

表1 一般局における日最大1時間 $O_3$ 濃度および日平均 $NO_2$ ,  $SO_2$ ,  $PM_{2.5}$ 濃度の大気質モデル再現性に関する統計指標

	$O_3$	$NO_2$	$SO_2$	$PM_{2.5}$
Sample number	15059	16133	15053	15315
Mean Obs.	48.9 (17.8)	13.3 (8.1)	2.6 (2.1)	15.0 (10.2)
Mean Sim.	52.5 (15.7)	9.5 (8.2)	2.2 (1.8)	12.0 ( 8.9)
$r$	0.77	0.71	0.39	0.75
MBE	3.6	-3.9	-0.4	-3.0
RMSE	12.1	7.3	2.2	7.5
PF2	97%	62%	56%	78%
IA	0.86	0.80	0.62	0.84

平均値の行の括弧内は標準偏差.  $r$ : 相関係数, MBE: mean bias error, RMSE: root mean square error, PF2: 観測値に対してファクター2以内である計算値の比率, IA: index of agreement. 平均値, MBE, RMSEの単位は,  $O_3$ ,  $SO_2$ ,  $NO_2$ はppb,  $PM_{2.5}$ は $\mu g m^{-3}$ .

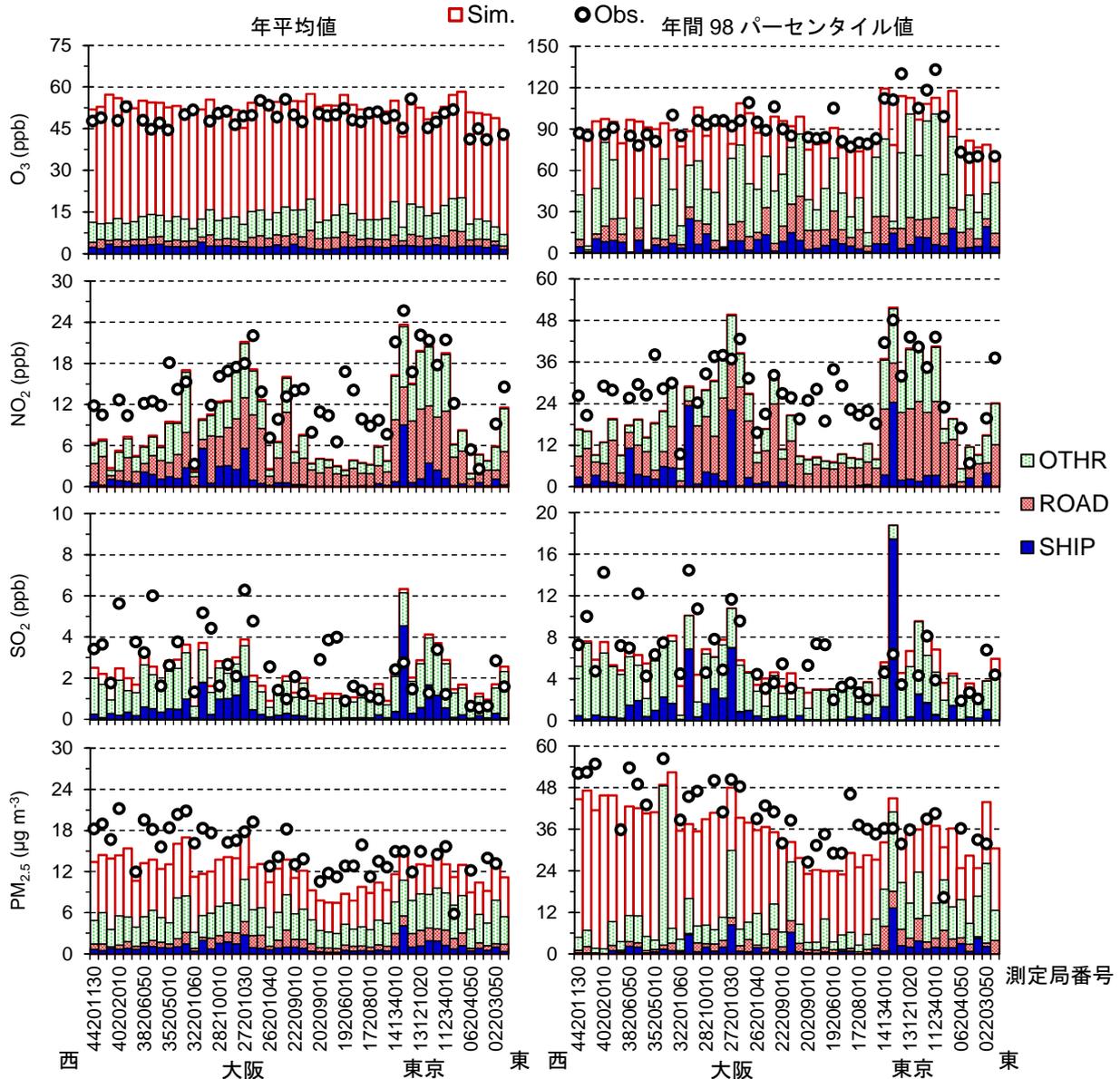


図3 一般局における日最大1時間 $O_3$ 濃度および日平均 $NO_2$ ,  $SO_2$ ,  $PM_{2.5}$ 濃度の年平均値および年間98パーセンタイル値と発生源寄与推計結果

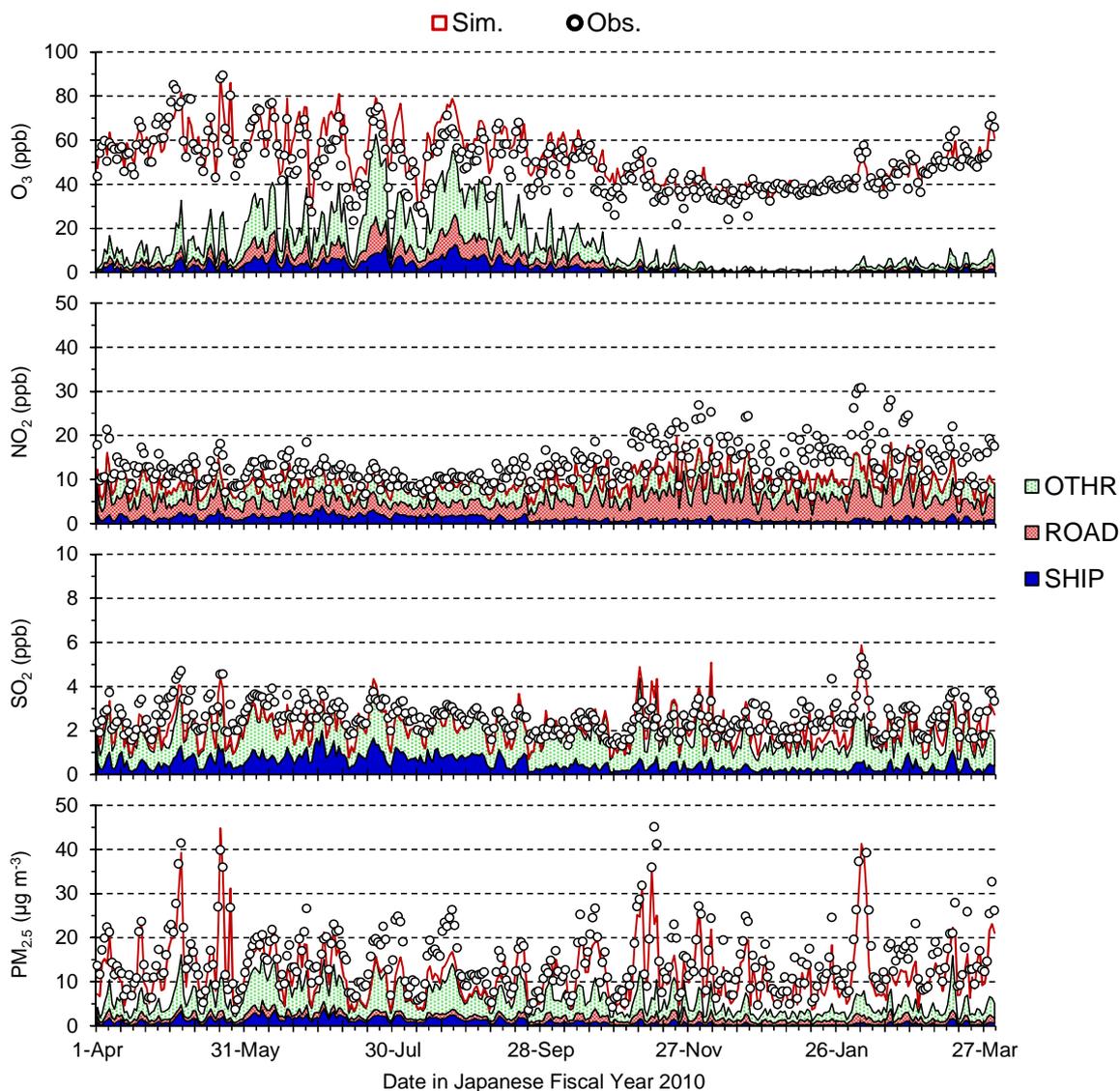


図4 日最大1時間O<sub>3</sub>濃度および日平均NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の一般局平均時系列変化と発生源寄与推計結果

年間98パーセンタイル値のいずれについても、西側から東側にかけて濃度が減少するという空間変動の傾向は、観測と計算で一致した。また、時間変動についても、夏季の二次生成や11月中旬の黄砂の過小評価と考えられるものを除けば、高濃度ピークを含めて良好に再現された。

PM<sub>2.5</sub>については全成分を合計した質量濃度だけでなく成分別の再現性も重要であるため、PM<sub>2.5</sub>成分測定局12地点において、主要成分であるOA、元素状炭素(EC)、硫酸塩(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)、硝酸塩(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>)、アンモニウム塩(NH<sub>4</sub><sup>+</sup>)の日平均濃度について観測値と計算値の比較を行った。表2に統計指標による比較、図5に各測定局における平均値の比較を示す。PM<sub>2.5</sub>質量濃度は、上述の一般局における比較と同様、やや過小評価ではあるが、CMAQによる再現性は概ね良好である。成分別の濃度レベルは、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>はほぼ観測値と一致、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>はやや過大評価、ECとSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>はやや過小評価、OAは明らかに過小評価となっており、今後の改善が必要である。

図3～5では、D2における日本国内の船舶、自動車、その他の排出による各物質の大气中濃度への寄与推計結果を示している。これらの寄与の合計と濃度計算値の差分は、D2境界からの流入寄与であり、ほぼ国外からの流入寄与に相当する。また表3に、本研究で対象とした一般局50地点における発生源別の寄与率を示す。O<sub>3</sub>濃度については、秋季・冬季は寄与の大部分が国外からの流入であり、年平均値に対しては国内排出

表2 PM<sub>2.5</sub>成分測定局における大気質モデル再現性に関する統計指標

	PM <sub>2.5</sub>	OA	EC	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>
Sample number	674	674	674	674	601	671
Mean Obs.	19.9 (15.0)	5.0 (3.3)	1.3 (0.9)	5.1 (4.7)	2.0 (3.0)	2.3 (2.2)
Mean Sim.	16.2 (13.6)	2.1 (2.2)	0.8 (0.7)	4.0 (3.7)	3.0 (3.7)	2.1 (1.9)
<i>r</i>	0.86	0.63	0.78	0.83	0.75	0.83
MBE	-3.7	-2.9	-0.4	-1.1	1.0	-0.1
RMSE	8.5	3.9	0.7	2.8	2.7	1.3
PF2	82%	24%	69%	81%	52%	80%
IA	0.91	0.63	0.81	0.88	0.83	0.90

平均値の行の括弧内は標準偏差。 *r* : 相関係数, MBE : mean bias error, RMSE : root mean square error, PF2 : 観測値に対してファクター2以内である計算値の比率, IA : index of agreement. 平均値, MBE, RMSE の単位は  $\mu\text{g m}^{-3}$ .

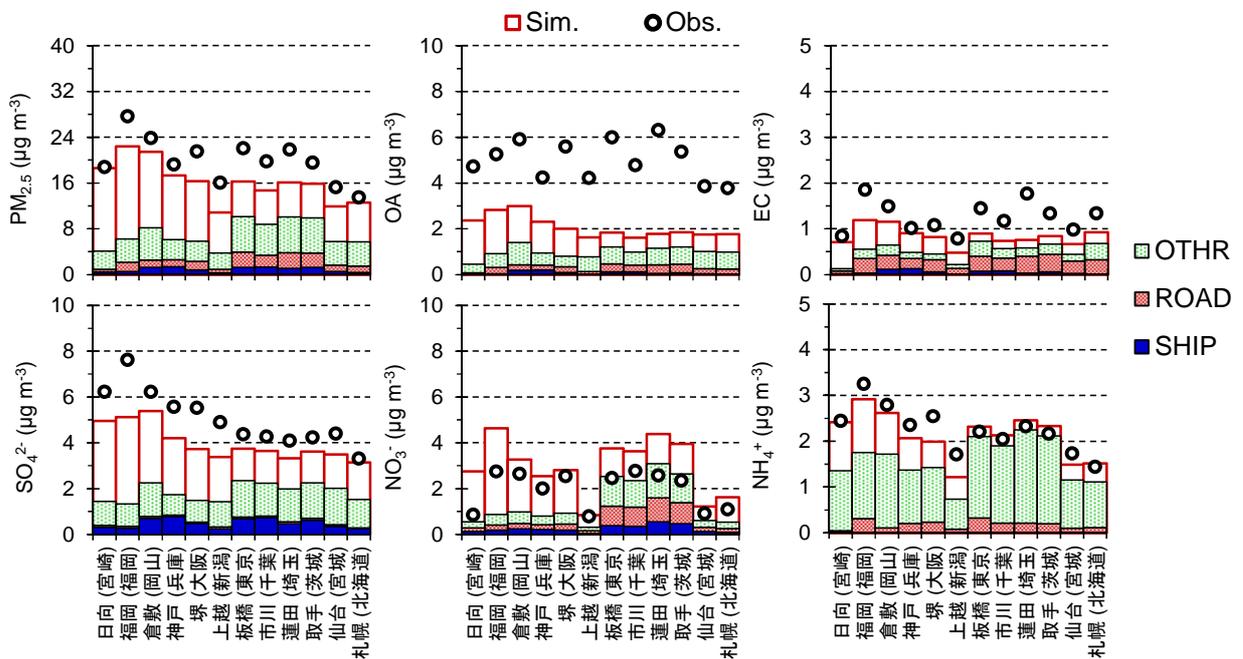


図5 PM<sub>2.5</sub>成分測定局における平均PM<sub>2.5</sub>濃度と発生源寄与推計結果

の寄与は高くはない。しかし、大陸からの長距離輸送の影響を受けにくく、また反応が活発で高濃度となる夏季においては、船舶を含めた国内排出の寄与が高くなっており、年間98パーセンタイル値に対する寄与も、その点を反映している。NO<sub>2</sub>濃度については、大気中で反応速度が速く、寿命が短いことから、国外からの流入寄与は非常に小さくなった。船舶の寄与は、海風が顕著となる夏季には自動車に匹敵するが、冬季には小さくなった。SO<sub>2</sub>濃度については、春季・夏季においては船舶の寄与が大きな割合を占めている。また、国外からの流入寄与については、濃度ピーク時に比較的大きく、平均では大陸に近い西側でやや大きくなった。PM<sub>2.5</sub>濃度については、SO<sub>2</sub>濃度で見られた国外からの流入寄与の傾向がより顕著に確認できる。また、船舶の寄与は、SO<sub>2</sub>濃度に対する寄与が高いことを反映して、成分別ではSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度に対する寄与が比較的高くなった。図6に示すように、D2における平均PM<sub>2.5</sub>濃度は大陸に近い西側でより高濃度となっており、これは国外からの流入寄与を反映している。また沿岸部では、船舶排出の寄与率は、自動車排出の寄与率と同等以上であることがわかる。

表3 一般局における日最大1時間O<sub>3</sub>濃度および日平均NO<sub>2</sub>, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度に対する発生源寄与率

		O <sub>3</sub>	NO <sub>2</sub>	SO <sub>2</sub>	PM <sub>2.5</sub>
年平均値	船舶	5.0% ( 1.0%)	11.8% (11.6%)	17.0% (14.3%)	7.6% ( 4.3%)
	自動車	5.8% ( 2.0%)	47.7% (14.5%)	0.4% ( 0.2%)	9.2% ( 4.1%)
	その他	14.8% ( 3.2%)	38.0% ( 8.2%)	65.8% (12.5%)	32.9% ( 6.1%)
	国外	74.4% ( 4.5%)	2.5% ( 1.8%)	16.9% ( 8.7%)	50.4% (11.1%)
年間98パーセンタイル値	船舶	8.1% ( 5.7%)	12.6% (16.4%)	16.2% (18.6%)	4.9% ( 5.9%)
	自動車	11.6% ( 6.9%)	51.1% (18.1%)	0.3% ( 0.3%)	5.6% ( 4.9%)
	その他	35.4% (17.4%)	35.4% (13.2%)	66.4% (22.1%)	23.1% (17.3%)
	国外	44.9% (23.7%)	0.9% ( 0.5%)	17.1% (21.3%)	66.4% (23.5%)

括弧内は標準偏差.

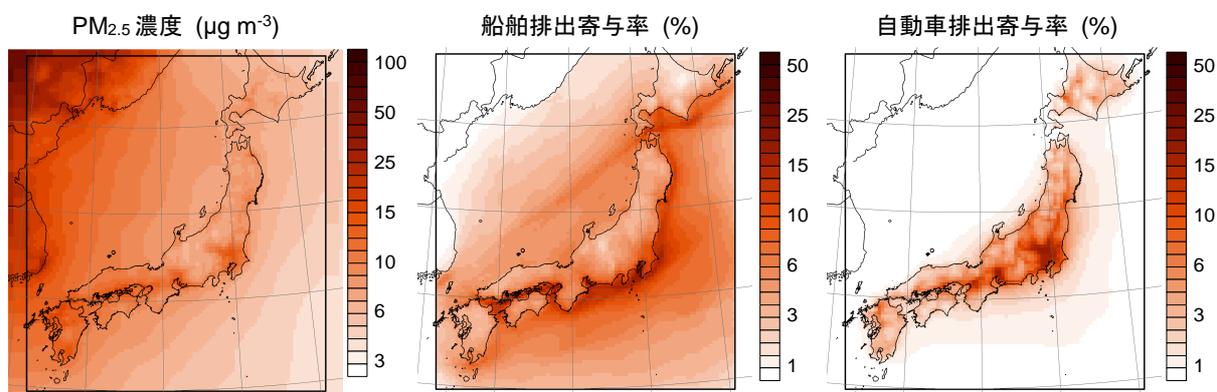


図6 D2における平均PM<sub>2.5</sub>濃度とそれに対する船舶および自動車排出による寄与率の空間分布

#### 4. まとめ

大気質モデルを用いて、2010年度の日本における大気汚染に対する船舶排出の寄与を推計した。国内の高O<sub>3</sub>濃度および年平均PM<sub>2.5</sub>濃度に対する船舶排出の平均寄与は、それぞれ8.1%および7.6%であり、自動車排出の寄与の11.6%および9.2%に近い値となった。また沿岸部では、船舶排出は、自動車と同等以上の寄与があった。以上より、船舶排出規制が、大気環境改善のために重要であることが示された。

#### 参考文献

- 1) 環境省, 平成26年度大気汚染状況 (2016)
- 2) 国土交通省, 国際海事機関, 世界の全海域での船舶燃料油の硫黄分規制を2020年から強化 (2016)
- 3) D.W. Byun and K.L. Schere, Appl. Mech. Rev., 59 (2006), 51-77.
- 4) R.H.F. Kwok et al., Atmos. Environ., 80 (2013), 398-407.
- 5) W.C. Skamarock and J.B. Klemp, J. Comput. Phys., 227 (2008), 3465-3485.
- 6) OPRF, 平成24年度 排出規制海域 (ECA) 設定による大気環境改善効果の算定事業報告書 (2013).
- 7) 石油エネルギー技術センター, JATOP 技術報告書: 自動車排出量推計, JPEC-2011AQ-02-06 (2012).
- 8) 福井ほか, 大気環境学会誌, 49-2 (2014), 117-125.
- 9) G. Janssens-Maenhout et al., Atmos. Chem. Phys., 15 (2015), 11411-11432.
- 10) H. Shimadera et al., Adv. Meteorol., Article ID 5694251 (2016).