

発生源削減によるオキシダント濃度低減効果の推定計算 (光化学反応拡散モデルによる)

宇田川 満 早福 正孝 伊藤 政志

1 はじめに

筆者らは、光化学大気汚染に関して、チャンバー実験、その結果を用いた光化学反応モデルの検討、東京湾上の大気汚染調査等、オキシダント高濃度汚染未然防止に向けて検討を加えてきた。ここでは、これまでのチャンバー実験結果、野外調査結果、流跡線解析結果等を用いて作成した光化学反応拡散モデルを用いて、一次汚染物質の発生源の削減によるオキシダント濃度への効果について試算を行ったので報告する。

2 光化学反応拡散モデルの概要

作成した光化学反応拡散モデルは、ラグランジュ型の拡散モデルと、化学物質数、ステップ数を選択できる光化学反応モデル、及び流跡線解析モデルから構成されている。作業フローを図1に示す。

(1) ラグランジュ・モデル

ラグランジュ型での汚染物質 l についての拡散方程式は次式で与えられる。

$$\frac{\partial C_l}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C_l}{\partial z} \right) + f_l + g_l \dots (1)$$

C_l : 汚染物質 l の濃度

K_z : 鉛直方向拡散係数

f_l : 汚染物質 l の反応生成速度

g_l : 汚染物質 l の単位時間発生濃度

上式の数値解法に際して、風と共に移動する多重ボックスを考える。ボックス (K) における汚染物質 l の濃度を $C_{l,h}$ 、ボックス (K) とボックス $(K-1)$ の境界での偏微分係数を $\left(\frac{\partial C_l}{\partial z}\right)_h$ 、鉛直方向拡散係数を $K_{z,h}$ として次式を得る。

$$\frac{\partial}{\partial t} C_{l,h} = \frac{1}{\Delta z} \left\{ K_{z,h+1} \cdot \left(\frac{\partial C_l}{\partial z}\right)_{h+1} - K_{z,h} \cdot \left(\frac{\partial C_l}{\partial z}\right)_h \right\} + f_{l,h} + g_{l,h} \dots (2)$$

$$\left(\frac{\partial C_l}{\partial z}\right)_h + f_{l,h} \left(\frac{C_{1,h}}{C_{p,h}}\right) + g_{l,h} \dots (2)$$

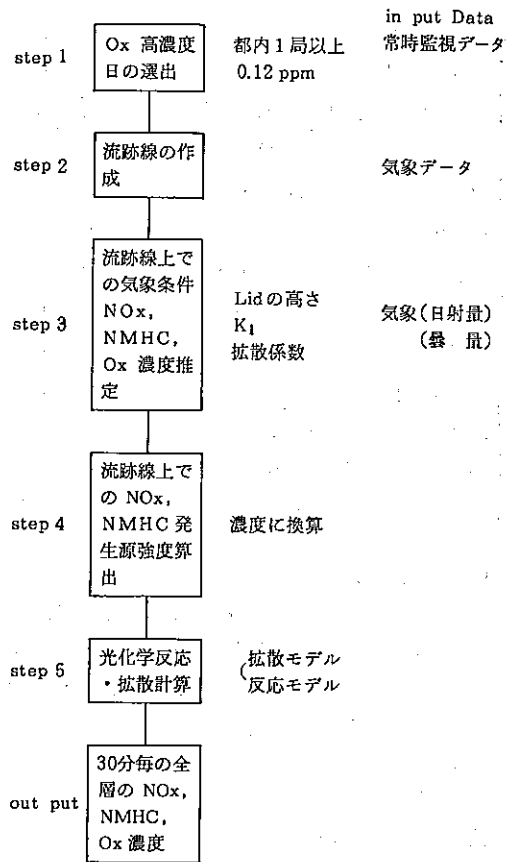


図1 光化学反応拡散モデル作業フロー

Δz : 垂直方向空間刻み幅

p : 反応汚染物質数

解法は、反応項はギャ法、垂直拡散項は克蘭ク・ニコルソン法を用いた。

(2) 光化学反応モデル

このモデルで使用される光化学反応モデルは、米国

表1 簡略モデル

No.	Reaction	Rate constant
1	$\text{NO}_2 + h\nu \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	k vary
2	$\text{O} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$	$\text{ppm}^{-2} \text{min}^{-1}$ 2.0×10^{-5}
3	$\text{O}_3 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	2.5×10^1
4	$\text{NO}_2 + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_3 + \text{O}_2$	4.5×10^{-2}
5	$\text{NO}_2 + \text{O} \rightarrow \text{NO} + \text{O}_2$	1.3×10^4
6	$\text{NO}_3 + \text{NO} \rightarrow 2\text{NO}_2$	1.3×10^4
7	$\text{NO}_2 + \text{NO}_3 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_5$	3.6×10^3
8	$\text{N}_2\text{O}_5 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{NO}_3$	min^{-1} 2.2×10
9	$\text{N}_2\text{O}_5 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{HNO}_3$	2.5×10^{-6}
10	$\text{NO} + \text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{HONO}$	$\text{ppm}^{-2} \text{min}^{-1}$ 1.0×10^{-5}
11	$2\text{HONO} \rightarrow \text{NO} + \text{NO}_2 + \text{H}_2\text{O}$	1.0×10^{-3}
12	$\text{HONO} + h\nu \rightarrow \text{OH} + \text{NO}$	k vary
13	$\text{OH} + \text{NO}_2 (+\text{M}) \rightarrow \text{HNO}_3$	8.0×10^3
14	$\text{OH} + \text{NO} (+\text{M}) \rightarrow \text{HONO}$	3.0×10^3
15	$\text{HO}_2 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{OH}$	3.0×10^3
16	$\text{HO}_2 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{HOOH} + \text{O}_2$	8.4×10^3
17	$\text{OH} + \text{O}_3 \rightarrow \text{HO}_2 + \text{O}_2$	8.4×10^1
18	$\text{O}_3 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{OH} + 2\text{O}_2$	2.4
19	$\text{PROP} + \text{OH} \rightarrow \text{ADD}$	2.5×10^4
20	$\text{ADD} + \text{NO} \rightarrow \text{X} + \text{NO}_2$	1.0×10^3

21	$\text{ADD} + \text{ADD} \rightarrow 2\text{X}$	1.2×10^4
22	$\text{ADD} + \text{RO}_2 \rightarrow \text{X} + \text{RO}$	1.0×10^3
23	$\text{X} \rightarrow \text{HCHO} + \text{HO}_2 + \text{RCHO}$	min^{-1} 1.0×10^5
24	$\text{PROP} + \text{O}_3 \rightarrow \text{OH} + \text{HO}_2 + \text{RCHO}$	8.0×10^{-3}
25	$\text{PROP} + \text{O}_3 \rightarrow \text{OH} + \text{RO}_3 + \text{HCHO}$	8.0×10^{-3}
26	$\text{BUT} + \text{OH} \rightarrow \text{RO}_2$	1.8×10^3
27	$\text{NO} + \text{RO}_2 \rightarrow \text{NO}_2 + \text{RO}$	1.8×10^3
28	$\text{RO} \rightarrow \text{HCHO} + \text{RO}_2$	min^{-1} 1.0×10^4
29	$\text{RO} \rightarrow \text{RCHO} + \text{RO}_2$	min^{-1} 1.5×10^5
30	$\text{RO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{RCHO} + \text{HO}_2$	0.4
31	$\text{HCHO} + h\nu \rightarrow \text{stable product}$	k vary
32	$\text{HCHO} + \text{OH} \rightarrow \text{HO}_2$	1.5×10^4
33	$\text{RCHO} + h\nu \rightarrow \text{stable product}$	4.2×10^{-6}
34	$\text{RCHO} + h\nu \rightarrow \text{RO}_2 + \text{HO}_2$	k vary
35	$\text{RCHO} + \text{OH} \rightarrow \text{RO}_3$	1.5×10^4
36	$\text{RO}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{RO}_2 + \text{NO}_2$	8.0×10^2
37	$\text{RO}_3 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{PAN}$	3.0×10^1
38	$\text{RO}_2 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{stable product}$	4.0×10^3
39	$\text{RO}_3 + \text{HO}_2 \rightarrow \text{stable product}$	4.0×10^3

※Rate constant の unit は表示されていないものは $\text{ppm}^{-1} \text{min}^{-1}$

EPAが光化学大気汚染の防止手法として開発されたEKMAモデルを、筆者らが行った、光化学反応系への一次汚染物質添加実験結果及び感度解析を行って得られた簡略モデルである。改良及び簡略化についてはすでに報告¹⁾しているので、ここでは簡略モデルのみを表1に示す。

(3) 流跡線作成方法

流跡線解析についてもすでに報告している²⁾ので、ここでは流跡線の作成方法の概要だけを示す。

各高濃度汚染日の最高オキシダント濃度(Ox max)出現時刻に測定局を通過する気塊を、測定局をリセプターとして早朝の6時まで遡及し流跡線を作成した。測定局の風向風速のデータから、各時間ごとのu成分、v成分を求め、内挿により30分ごとの気塊の位置での風を求める。ただし30分後の風のデータは次の時間のデータを用いる。気塊が近隣する測定局の500m以内に位置するときはその測定局の風のデータを用い、他

の場合は次式により内挿する。

$$u = \sum_{i=1}^n u_i \cdot \left(\frac{1}{r_i}\right)^2 / \sum_{i=1}^n \left(\frac{1}{r_i}\right)^2$$

u_i : i 測定点での u 成分

r_i : 気塊の位置と測定点との距離

まず、半径10km範囲内の測定局で内挿する。ただし測定局が3局に満たない場合は半径を2倍に拡大し、3局以上になるまで繰返す。v成分についても同様に処理する。

3 計算条件の設定

(1) 高さ方向の刻み幅

計算に際しての高さ方向の刻み幅は以下に示すように1,500mまでを10層に分割した。

50m, 100m, 200m, 300m, 400m, 500m, 600m, 800m, 1,000m, 1,500m

(2) 境界条件

・地表面……完全反射とする。即ち $\frac{\partial C}{\partial z} = 0$

。上面境界…境界濃度を C_b ,境界に隣接する最上層濃度を C_n ,その下層濃度を C_{n-1} としたとき, $C_b = 2C_n - C_{n-1}$ 但し $C_b > C_n$ の場合は $C_b = C_n$ とする。

(3) K_1 値

対象とする高濃度汚染日については、当時まだ公害研究所で日射量、紫外線量の測定を行っていないため、東京管区気象台の日射量から紫外線量を求める方法を用いた。まず当研究所屋上で観測した日射量と紫外線量の測定結果(1980年から1981年)から次式で示す回帰式を求めた。(図2参照)

$$UV = aR + b \quad r = 0.923 \quad UV: \text{紫外線量}$$

R: 日射量

この回帰式を用いて、対象日の東京管区気象台の日射量から紫外線量を求めた。次にLeo Zafonte³⁾らが紫外線量と K_1 値の同時測定結果から次式に示す, K_1 値推定式を示めている。この式を用いて先の回帰式から得られた紫外量で K_1 値を算出した。表2に計算した K_1 値の例を示す。

$$K_1 = \{0.079(1/\cos Z) + 0.022\} \cdot UV \quad 0^\circ < Z < 40^\circ$$

$$K_1 = \{0.160(1 - \cos Z) + 0.088\} \cdot UV \quad 40^\circ < Z < 90^\circ$$

K_1 : min^{-1}

UV: 波長 295 nm ~ 385 nm 域での紫外線強度 (mW/cm^2)

Z: 天頂角

天頂角 Z は次式で与えられる。

$$\cos(Z) = \cos(\text{緯度}) \times \cos(\text{赤緯}) \times \cos(\text{時角}) + \sin(\text{緯度}) \times \sin(\text{赤緯})$$

(4) 混合層高度 (Lid)

混合層の高度は一般的には気温の鉛直分布から求められるが、気温の鉛直分布データは高層気象台のみであることから、南関東大気環境調査報告書⁴⁾では気象観測結果から混合層高度(H)と積算日射量(I)との回帰式を求め、積算日射量から混合層高度を求める方法を提案している。混合層高度と積算日射量との関係は下式に示される。

$$H \approx \left(\frac{2A}{\rho C_p \Gamma} I \right)^{1/2}$$

ρ : 密度
 C_p : 定圧比熱
 Γ : 日の出前の温位勾配
 A: heat flux
 と日射量の比例定数

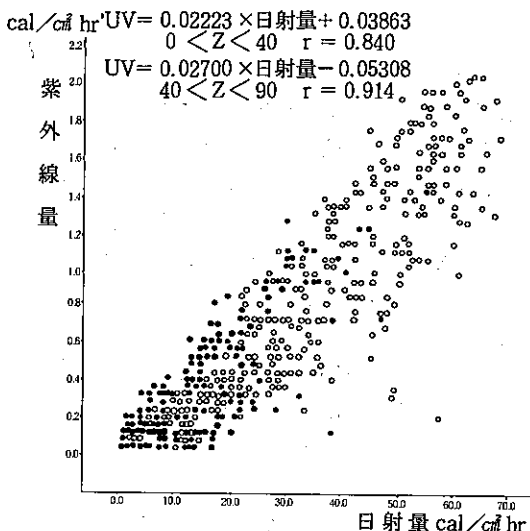


図2 紫外線量と日射量との関係 (1980.5.19 ~ 1980.10.2)

東京都公害研究所屋上

表2 紫外線量から求めた K_1 値

1978. 7. 6

時刻	6	7	8	9	10	11	12
K_1 値	0.014	0.045	0.092	0.164	0.205	0.302	0.378
時刻	13	14	15	16	17	18	
K_1 値	0.336	0.258	0.195	0.128	0.059	0.020	

K_1 : min^{-1}

南関東大気環境調査では、東京大手町で観測された上層気温、音波レーダから求めた混合層高度と積算日射量との関係は次式のように求めている。

$$H = 76.81 I^{0.499}$$

なおこの関係式は混合層高度が成長し続ける12時程度までが適用限界であるため、12時以降は実測混合層高度の減少割合を利用して推定している。ここではこの手法を採用して混合層高度を決定している。表3に計算例を示す。

表3 Lidの高さ (m)

1978. 7. 6

時刻	6	7	8	9	10	11	12
高さ	187	375	572	764	939	1,109	1,273
時刻	13	14	15	16	17	18	
高さ	1,326	1,381	1,435	1,251	1,069	886	

(5) 拡散係数 (Kz)

拡散係数 (Kz) については、ここでは一般に用いられている Shirらの方法⁵⁾を用いた。この方法は、日射量、風速、曇量、地面粗度から接地層の代表高度における拡散係数 Kz を求め、それを混合距離 (l) に比例させて各高度における Kz を求める方法である。いま、求める高度を Z とすると、次式に示すとおりである。

$$K_z(Z) = K_z(Z_1) \cdot \frac{l(Z)}{l(Z_1)} \quad l = K \cdot Z \cdot e^{-4Z/H}$$

K: Karman 定数 H: リッドの高さ

この方法を用いて計算した、結果の 1 例を図 3 に示す。

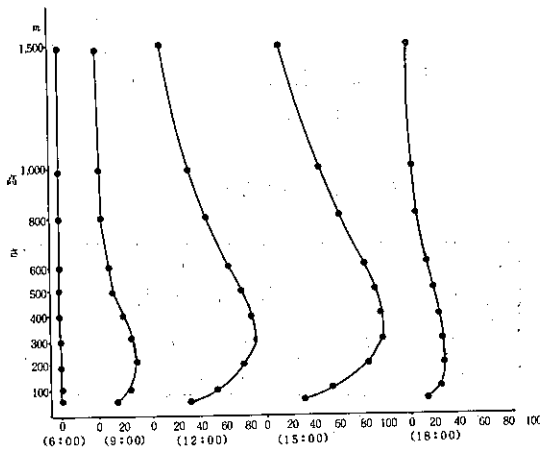


図 3 Kz 垂直分布 (m²/S)

(6) 初期濃度の設定

初期濃度については、本来ならば初期気塊が存在する地域の測定値を用いるのが最良の方法である。現時点では東京湾上にある東京灯標で窒素酸化物 (NOx)、非メタン炭化水素 (NMHC)、オゾン (O₃)、ホルムアルデヒド (HCHO)、炭化水素組成等の連続測定を行ない、各汚染質の濃度に関する知見^{6),7)}が得られているが、推定計算に用いられる期間にはこのようなデータがないため、東京湾岸に設置されている各都県の常時監視のデータを用いて、先に示した流跡線作成の時に採用した方法で早朝 6 時の NOx、NMHC の濃度を内外挿して求めた。

(7) 一次汚染物質排出量の推定

NOx、NMHC の反応系への供給量は、10km メッシュ内の各発生源からの各汚染物質の排出量を濃度に換算した。ただし、固定発生源については煙突高を考慮

し、煙突高が分布する高度のメッシュに添加した。

各汚染物質の各メッシュ排出強度については、東京都環境保全局大気規制課、自動車公害対策室の調査結果を引用した。神奈川県については、使用し得るデータについて、情報提供を受けて使用した。なお埼玉県に移流した場合については、一次汚染物質の反応系への添加はないものとして行った。

4 結果と考察

(1) シミュレーション結果

前述した光化学反応拡散モデルを用いて、シミュレーションを行った。対象とする期間は、1977年 5 月から 1978年 9 月末日までで、都内で Ox 濃度が 0.12ppm 以上の高濃度が出現した日について、代表的な通過リセプターを選定し、72 ケースについて行った。まず 72 ケースについて、早朝 6 時迄の流跡線を求め、そこをスタート地点として、その地点での NOx、NMHC の初期濃度を算出し、流跡線上の発生源からの一次汚染物質を添加し反応を進めながら選定リセプターを通過して Ox 濃度がピークになる迄追跡を行った。

ア 流跡線のパターン分類

72 のケースについて、まず流跡線のスタート地点、通過コースから分類を行った。この結果、相模湾から北上し東京都内に入り込むケースが 16 例、相模湾あるいは東京湾に到達しないで、神奈川県中北部から反転して北上するか、あるいは東方向に進んで東京都内に入るとするケースが 6 例見られる。その他はすべて東京湾風系に属するものである。これらのケースについて、スタート地点、都内進入時刻等からさらに細く分類したものを表 4 に示し、流跡線の主なものを図 4 に示す。

表 4 流跡線のパターン分類

型	通過コース	例数	
A ₁	相模湾又は神奈川県より北	12:30前に市街地に入る。	6
A ₂	上し	13:00以後に市街地に入る。	10
B	東京湾北部から東京中東部を通過する。		12
C ₁	東京湾南部から東京中東部を	12:30前に東京都に入る。	11
C ₂	通過するもので	13:00以後に東京都に入る。	8
D ₁	東京湾南部地域から東京西部	12:30以前に東京都に入る。	4
D ₂	を通過するもので	13:30以後に東京都に入る。	4
E	東京湾北部から西進する。		3
F	神奈川県中北部から北進する。		6
G ₁	12:30以前に東京都に入り	18時頃まで都内に留まる。	2
G ₂	13:00以後に東京都に入り		3
I	東京湾北部から神奈川県北部を通り東京西部で北上する。		2
J	相模湾から東京湾へ抜け、東京中東部を北上する。		1

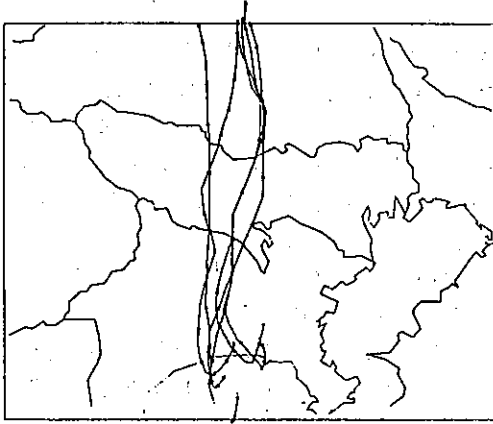


図 4-1 流跡線図 (Type A₁)

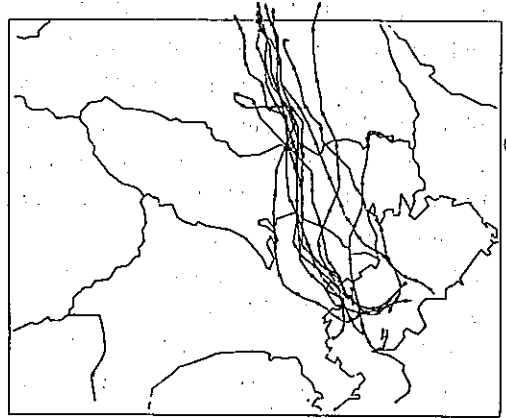


図 4-4 流跡線図 (Type C₁)

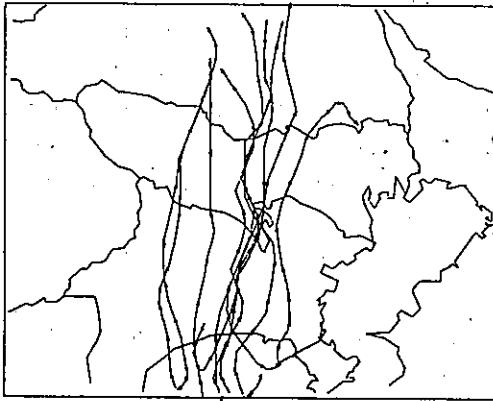


図 4-2 流跡線図 (Type A₂)

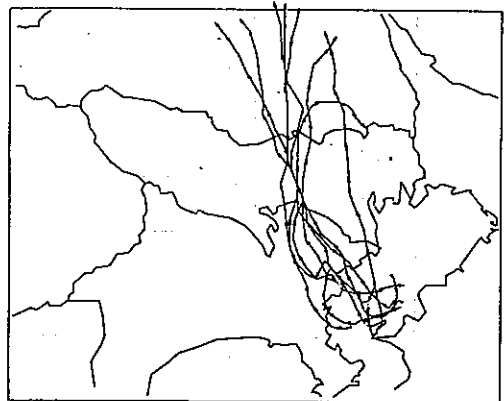


図 4-5 流跡線図 (Type C₂)

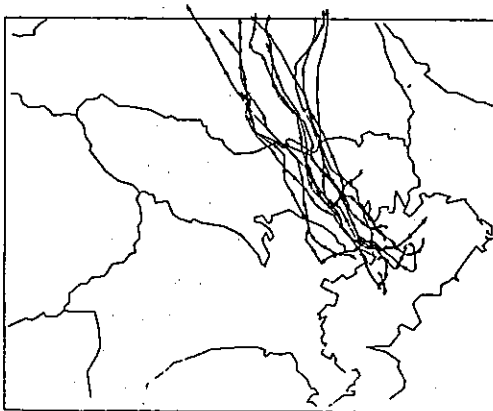


図 4-3 流跡線図 (Type B)

イ Ox max 値と一次汚染物質排出量

まず、光化学反応拡散モデル精度をみるために、一次汚染物質であるNO_x、NMHCの量とOx max 計算値との関係をもてみる。初期気塊のNO_x、NMHCの推定濃度を排出量に換算した。換算方法は、早朝6時のLidの高さを200mとし、10km×10kmメッシュの容積と推定初期NO_x、NMHCの濃度から算出した。また移流中に供給されるNO_x、NMHCの量は流跡線上の排出強度からその地点のLidの高さ以下の排出量を12時まで計算して求めた。この2つの排出量を加えて、反応系に供給される排出総量とした。このNO_x、NMHCの排出総量とモデルを用いて計算したOx max 値との量的な関係を図5に示す。この結果ではNO_x、NMHCの反応系への総排出量とOx max 値

との間で比較的良好な関係が得られている。したがって、使用したモデルの精度はかなり高いものと思われる。この計算結果からみる限りでは、早朝6時から12時迄の間に、 10km^2 の範囲でLidまでの高さの容積をもつ反応系への総排出量がNOxについては1,000 N m^3 、NMHCについては10,000 N m^3 以下に押えなければOx max値は0.12 ppm以下にならないことになる。しかし実際には色々な要因があり、排出量とOx maxとの量的な関係については一概に推定することはむずかしいものと思われる。したがって、少なくとも精度の高い発生源データと、初期気塊のNOx、NMHC等の一次汚染物質濃度の正確な推定が必要である。今後はこれらのデータを得たうえで検討を加える。

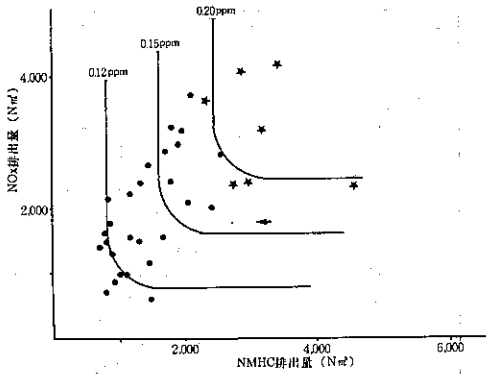


図 5-1 NOx, NMHC 排出量と Ox max 計算値との関係

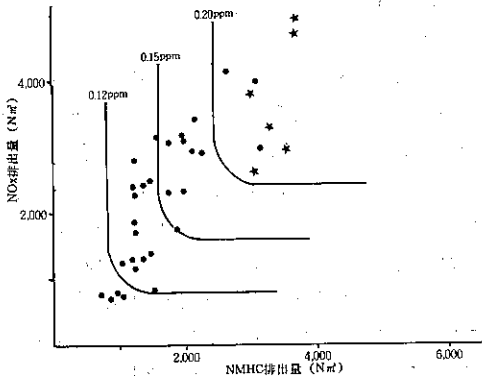


図 5-2 NOx, NMHC 排出量と Ox max 計算値との関係

ウ Ox max 濃度の比較

モデルの精度はかなり良いものと判断されるので、このモデルを用いて各々のケースについて、実測のOx max値と計算値との比較を行った。この結果、実測値に対する誤差が15%以内の例が20例、誤差範囲を30%までにする、この範囲内に入る例は50例となり全体の70%を占めることになる。

30%以上の誤差を生じた22例についてみてみると、まず過少評価したものは8例であった。このうち5例までが図4-2に示されるような相模湾沖から北上するA₂タイプである。過少評価される理由として考えられるのは、初期濃度の推定が低く見積られている点、また、このケースは比較的海上に長時間滞留する。この間、計算上一次汚染物質の供給が無い点などが考えられる。横浜市、国立公害研究所での船舶あるいは飛行機を用いた調査^{8), 9)}によると、早朝に陸風によって、京浜工業地域及び市街地の汚染気塊がブリューム状あるいはパフ状となって相模湾に到達し、相模湾上に初期汚染気塊が形成されるケースがみられると報告している。A₂タイプの初期濃度の推定に当っては、単に近傍の測定局のデータから外挿して求めており、上記の相模湾上の汚染気塊の形成等に対する配慮がなされていない。このような理由からA₂のようなタイプについては、相模湾海上に至るまでの流跡線から初期気塊の一次汚染物質濃度を正しく推定し、その濃度を初期気塊濃度として補正する必要があるものと思われる。なおこの過小評価された例は、一次汚染物質の発生源強度について、常時監視データを用いて濃度補正すると、30%以内の誤差に押えられることが確認されている。

次に過大評価した14例について検討を加えると、14例のうち8例までが図4-3に示されているように、東京湾岸付近をスタート地点として、湾岸の発生源強度の大きい地点での滞留時間が長いBタイプである。この原因として考えられるのは、相模湾系のA₂とは逆に、初期濃度の推定値が過大評価される可能性がある点、また、東京湾岸に比較的時間滞留するケースでは汚染物質の取込み量が多く見積られる可能性がある。まず初期濃度については、スタート地点によっては比較的高い濃度の高い測定局のデータから外挿する場合は、実際の濃度より高く評価される。実際に大田区糞谷測定局と海上の東京灯標について、都内でOx濃度が0.1

ppm以上となった日の6～9時の平均濃度を比較すると3割程度桃谷測定局の方がNO_x濃度は高い、Bタイプで他のケースより著しく初期濃度の高いケースが3例みられた。次に一次汚染物質の反応系への取り込み量についてみると、図5に示すNO_x、NMHCの総排出量とOx max計算値との関係について★印でプロットされている例がすべてBタイプである。いずれにしてもBタイプの反応系への取り込み量が多い。その傾向が特に強い例が2例みられた。これらの例はいずれも著しく高いOx濃度を示し、30%以上の誤差となっている。このようなケースについても、まず正しい初期気塊を正確に把握することが重要であるが、発生源の排出強度の高いエリアを通過する場合は取り込み方法によって著しく影響される可能性が強いため、風の立体構造を十分考慮して適切な手法を確立する必要があるものと思われる。

図6にタイプA₂と、先に指適したB例の一部を除外して、Ox maxの実測値と計算値の関係を示す。

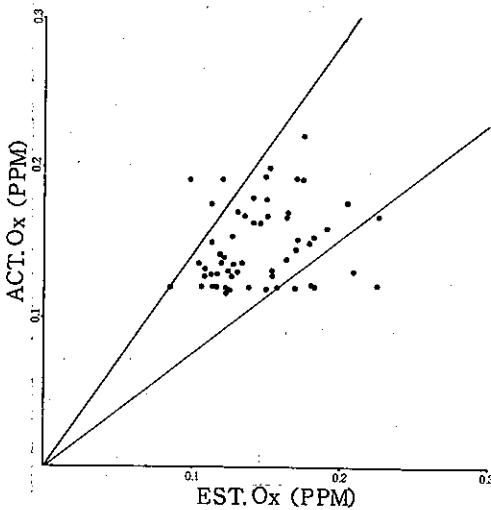


図6 Ox maxの実測値と計算値の比較

エ. Ox max時刻の比較

Ox max時刻はOx汚染エリアとの関係があるため重要な要素である。そこで流跡線上の実測のOx max時刻と計算値のOx max時刻について比較を行った。実測値より計算値の方が早くOx maxに達する例は少なくとも13例のみである。この13例のうち半数が過少

評価をしたA₂タイプであり、この点からみてもA₂タイプは一般例からはずれている。

実測値と計算値が1時間以内のものは34例と半数以下である。2時間以内とすると50例となり全体の約70%を占める。しかし平均風速を3 m/sとすると、1時間で約10kmで、丁度1メッシュずれることになる。一般に光化学反応モデルは、チャンバー実験結果に基づいているため、一般環境の場合よりOxを破壊する要因が多いため、計算値のOx max時刻の方が遅れる傾向がある。また今回の計算では埼玉県では一次汚染物質の導入量を零としているため、より計算値の方が遅れる例がかなりある。この点については今後検討すべき課題であろう。

計算値のOx max時刻が実測値より2時間30分以上遅れる例が18例みられるが、これらの例では実測のOx maxが比較的早い場合に多くみられる。このような場合は通常の光化学反応拡散モデルは追従することはできない。他に要因を求めべきであり、気象要素、炭化水素組成、正確な初期気塊の各汚染物質濃度等を含めて検討を加える必要がある。

以上、モデルを用いてのシミュレーション結果について述べたが、風の立体構造、初期気塊、流跡線の精度、一次汚染物質の取り込み方法等々の問題が残されており、Ox max値を定量的に正しく予測することは難しいが、以下に代表的な例を用いて発生源の削減によるOx max値に対する効果について検討を加える。

(2) 発生源の削減とOx max値の低減効果の推定

前述した光化学反応拡散モデルを用いて、初期濃度あるいは、反応系の中に取り込まれる発生源の排出量を削減した場合、Ox max値にどのような効果となって現われるかについて推定計算を行った。

ア. 初期濃度の低減及び通過コース上の発生源の削減効果

光化学スモッグのための初期気塊の形成されるメカニズムは、早朝の風によって異ってくる。陸風が比較的強い場合は東京湾の南海上あるいは相模湾上に汚染気塊は運ばれるものと思われる。また、早朝無風の状態が続くか、あるいは弱い南風が吹く場合は東京湾岸から内陸部にかけて汚染気塊が作られる。もっとも濃度の推定がむずかしいと思われる、早朝陸風によって東京湾が収束の場になるなど様々である。したがって正しく初期濃度を把握することはむずかしく、現時点では臨海部

表5 対象コースの計算結果

	番号 タイプ	初期濃度 ppb			Ox max 時刻		Ox max 濃度 ppm		取り込みQ Nm ³		Lid m		K ₁ (max)
		NOx	NMHC	Ox	実測	計算	実測	計算	NOx	NMHC	6時	12時	
相模湾系	1 A ₁	47	74	8	12:30	11:00	130	124	413	2,729	132	1,212	0.392
	2 A ₂	63	85	5	13:30	13:00	170	130	116	1,493	132	1,231	0.403
東京湾系	3 B	21	50	31	14:00	13:30	176	200	3,727	24,640	187	1,300	0.405
	4 B	39	50	1	15:00	16:00	145	166	1,853	20,786	132	1,069	0.277
	5 C ₁	55	64	10	14:30	14:30	221	174	1,986	7,696	187	1,160	0.378
	6 C ₁	19	74	7	15:30	16:00	158	190	2,583	20,149	132	1,027	0.301
	7 C ₁	52	96	8	15:00	16:00	170	163	1,304	4,847	132	1,027	0.301
	8 C ₂	21	61	10	15:00	15:30	164	141	1,986	4,341	187	1,273	0.426

にある常時監視局のデータからの外挿による以外にない。また得られたNOx, NMHCの初期濃度に対する固定発生源, 移動発生源の寄与率, 東京, 千葉, 神奈川の各発生源の寄与率等も全く分からない。これらの問題については, 現在行っている海上の汚染物質調査, トレーサ実験等で筆者等が解明を急いでいる。

ここでは, 初期濃度については発生源を区分して評価することができないので, 各発生源の寄与率は考えないで, 初期濃度そのものが低減された場合Ox max値にどのように影響を与えるかについて試みる。

対象とする8つのケースについて, 計算に必要な条件及び計算結果を表5に示す。

これらのケースについて, 初期濃度を30%, 50%低減し, さらに各々について, 6時から12時迄に通過するコース上の固定, 移動発生源の排出量を各々0%, 30%, 50%削減した場合についてのOx max値の減少率を求めたものを表6に示す。この結果によると, 相模湾から北上して多摩地域にOx高濃度汚染をもたらす相模湾風系と東京湾風系とでは著しく異った結果が得られている。

まず, No 1, No 2にみられる相模湾風系の例をみると, 初期濃度の依存度が強い。したがって初期濃度を30%低減すると約15%のOx maxが低減する。しかし, このコース上にはほとんど発生源はなく, 地上の発生源から供給されるNOx, NMHCの量は表5にみられるように非常に少ないため, 地上の発生源を30%削減してもOx max値の減少効果は著しく小さい。このようなケースの場合は初期気塊が形成される前に, 初期濃度に影響する発生源の規制を行うより他にOx

表6 初期濃度及び各発生源排出量の削減効果

番号 タイプ	計算値 Ox max	固・移 削減	初期濃度削減率				
			30%		50%		
			Ox max ppb	減少率 %	Ox max ppb	減少率 %	
相模湾系	124 ppb	0%	106	14.5	93	25.0	
			30%	101	18.5	87	29.8
			50%	98	21.0	84	32.2
2	130	0%	106	18.5	88	32.3	
			30%	105	19.2	87	33.1
			50%	104	20.0	86	33.8
東京湾系	200	0%	191	4.5	184	8.0	
			30%	160	20.0	153	23.5
			50%	138	31.0	130	35.0
4	166	0%	153	7.8	144	13.3	
			30%	133	19.9	122	26.5
			50%	118	28.9	107	35.5
5	174	0%	152	12.6	135	22.4	
			30%	138	20.7	121	30.5
			50%	128	26.4	111	36.2
6	190	0%	180	5.3	171	10.0	
			30%	151	20.5	143	24.7
			50%	130	31.6	121	36.3
7	163	0%	145	11.0	129	20.9	
			30%	132	19.0	117	28.2
			50%	123	24.5	108	33.7
8	141	0%	128	9.2	117	17.0	
			30%	114	19.1	104	26.2
			50%	103	27.0	95	32.6

濃度の低減方法はないことになる。

一方東京湾風系の場合では、初期濃度の低減によるOx maxの低減効果は相模湾系と比較するとかなり小さくなる。傾向としては、初期濃度の低減効果は初期濃度が低い程、また通過コース上の発生源からの一次汚染物質の供給量が多い程小さい。この関係を図示すると図7のようになる。この例から明らかなように、初期濃度低減効果のもっとも小さいNo.3は、表5に示すように通過コース上の発生源からの一次汚染物質の供給量が著しく大きい。したがって、この場合は先に示した相模湾系の例とは逆に、初期濃度低減ではOx max値をおさえることはむずかしいことになる。

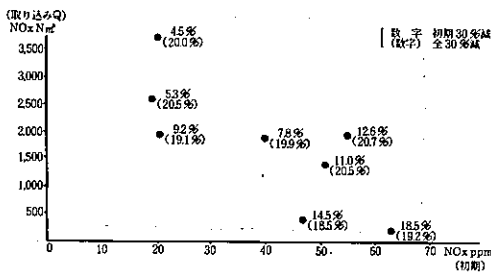


図7 初期濃度及び通過コース上の発生源の削減効果

このように、初期濃度と一次汚染物質の供給量との間に逆の力が働くため、両方を30%づつ削減した場合は、図7の()内数字にみられるように、どのコースを通過してもOx max値の低減効果は20%前後となることがわかる。したがって、すべてのケースについてOx max値を低減させるためには、初期濃度、6時から12時までの通過コース上の発生源の排出量の両方も削減することが必要であり、このためには、前日からの規制措置が要求される。また量的には、Ox max値を20%低減させるためには、初期濃度と発生源を各々30%削減しなければならない。同様にOx max値を30%低減するには各々50%の削減が必要である。

しかし、推定計算を行っているのは、1977年、1978年であり、当時と比較して、自動車排出ガス規制効果、固定発生源の総量規制効果が現われた場合には、このOx max値低減のための発生源削減割合は緩和されるものと思われる。

イ 13時以降の発生源の削減効果

現在、各自治体では、光化学スモッグ注意報、警報

等の発令基準を定め、注意報等の発令時には協力発生源に対して、発生源の20%削減措置を要請している。この措置はOx汚染との複合汚染を防ぐ目的が含まれているが、この削減措置はOx max値に対してどのような効果となって現われてくるかについて試算を行ってみた。その結果を表7に示す。試算に使用したのはC1タイプの4例である。この表から明らかなように、13時以降に自動車排出ガス、固定発生源に対して、どのように削減措置を講じても、Ox max値には全く影響は現われないことがわかる。

光化学スモッグの発生しやすい気象条件は2日ないし3日継続する例が多い。このことから、注意報発令後の削減措置は、複合汚染を防ぐ以外にも翌日に効果が現われる可能性はある。しかし、当日の0.12 ppmを越える高濃度を未然に防ぐためには、前日からの規制措置が必要であることが分かる。現時点では予測手法に若干問題が残されている。この問題が解決されるまでは、当日の高濃度汚染を防ぐためには、当日の予報段階での規制措置が必要と思われる。

表7 13時以降の通過コース上の発生源の削減効果

No	Ox max	Ox max	固定発生源			全発生源		
	実測値	計算値	30%	50%	100%	30%	50%	100%
1	128	154	154	153	153	149	146	140
2	139	163	163	164	164	164	165	166
3	158	190	189	189	187	182	177	165
4	159	163	163	163	163	160	158	153

ウ 通過コース上の固定発生源、自動車排出ガス個別の削減効果

臨海部から都心にかけての地上発生源排出量の大きい地域を通過するコースをたどるケースの場合は、初期濃度を低減するより、地上の発生源の排出量を削減の方が効果があることはすでに指摘した。実際に固定発生源と自動車排出ガスのどちらを削減した方がより効果的かについて検討を加える必要がある。

そこで表5に示す例について、固定発生源と自動車排出ガスに分けて、その削減効果を試算してみた。その結果を図8に示す。各ケースとも初期濃度はそのままにして、固定発生源、自動車排出ガスを別々に0%、10%、30%、50%、100%削減させるマトリックス表を

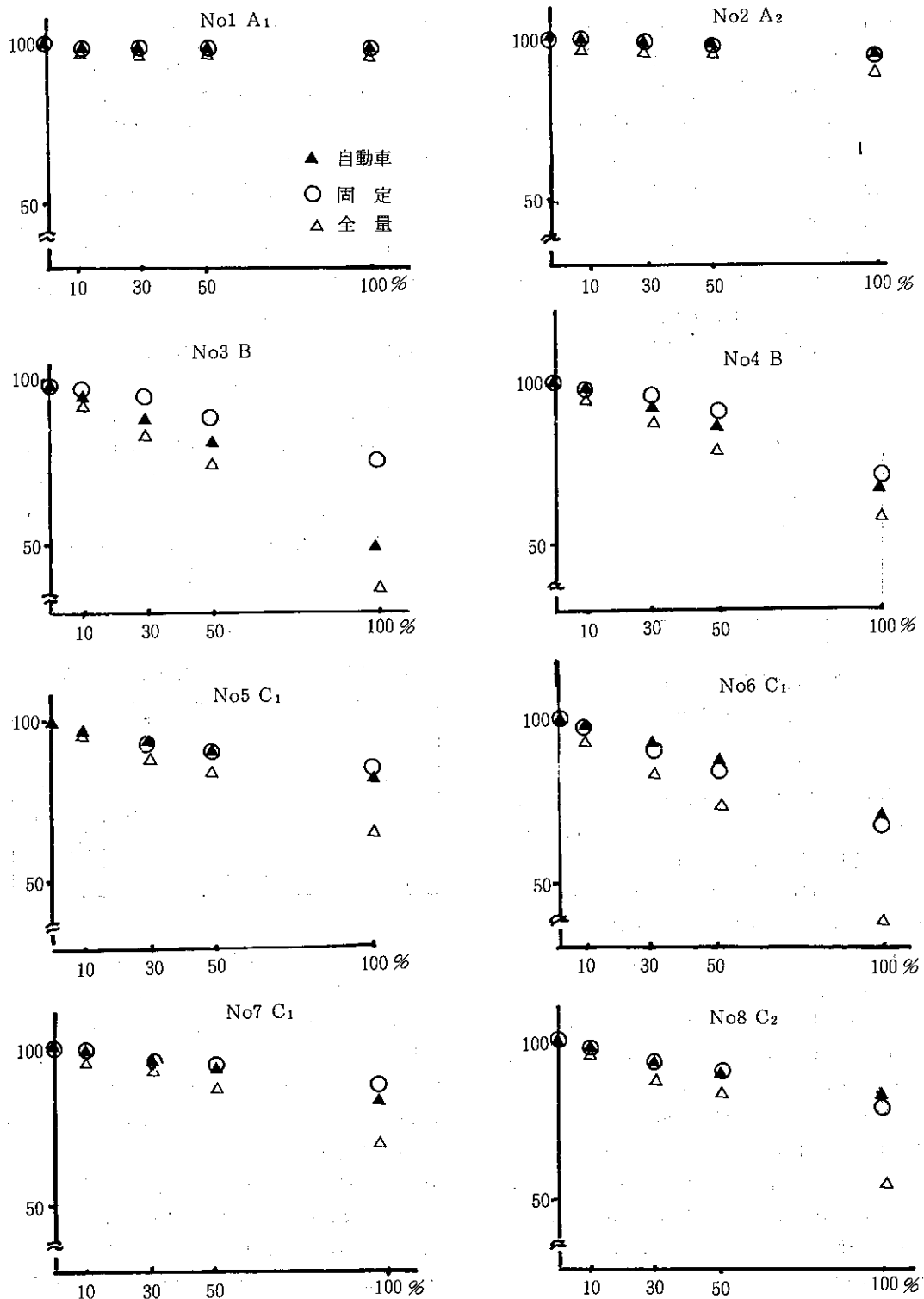


図8 通過コース上の自動車, 固定発生源の削減効果

作成し、削減0%を100としたときの減少効果を図示したものである。これらのデータをみると、No3 Bでは固定より自動車排出ガス削減効果が大きく現われているが、はっきり差が出てくるのは自動車を全面ストップした場合であり、実際には不可能なことである。一般的にみると、固定発生源、自動車排出ガスの寄与率はほとんど同程度であり、一方のみを、30%、50%削減しても、Ox max 値の低減効果はほとんど10%以内であり、あまり期待できない。このように、初期濃度を低減しない場合は、通過コース上の両方の発生源を30%削減したとしても、10%から15%の効果に止まってしまうものと思われる。

5 おわりに

以上、光化学反応拡散モデルの精度の検討及びこのモデルを用いて、各々のケースについて初期濃度、通過コース上の発生源の削減によるOx max 値低減効果について推定計算を行った。この結果、高濃度Ox汚染を防止するためには、初期濃度低減を図ると共に、通過する地上の固定・移動発生源の排出量の削減を行う必要があることが明らかとなった。このためには、注意報が発令されてからでは効果は少ない。したがって前日予報によって規制することが最良であるが、確たる予測モデルが開発されるまでは、少なくとも、早朝の当日予報時に規制措置を構ずる必要があるものと思われる。またこの規制措置に関しても、固定発生源に対してのみではなく、なんらかの方法で自動車に対しても削減措置を行う必要があるものと思われる。

このように、Ox高濃度汚染を未然に防止するためには、かなりの発生源の削減が必要であることを指摘したが、これはあくまで相対的なものであり、絶対量として、具体的に発生源の削減効果及び必要性を検討するに当たっては、できる限り、環境での光化学反応

条件に近似させたチャンバー実験結果による高精度の光化学反応モデルの検討、初期気塊の形成メカニズムの解明と初期一次汚染質濃度の予測手法の確立、精度の高い発生源データの確保等が必要である。これらの問題をできる限り早期に解明し、隣接県との情報交換を密にした、光化学大気汚染に対する広域的な防止体制作りが必要と思われる。

参 考 文 献

- 1) 宇田川満ほか：光化学反応系への一次汚染物質添加実験と反応モデルの適応性，東京都公害研究所年報1983年。
- 2) 宇田川満ほか：光化学オキシダント高濃度汚染日の流跡線解析，東京都公害研究所年報1982年。
- 3) Leo. Zafonte, Paul. L. Rieger and John. R. Holmes. Environ. Sci. Technol., Vol. 11, No 5 (1977)
- 4) 南関東大気環境調査報告書（広域移流拡散モデル開発）昭和52年3月，環境庁大気保全局。
- 5) C. C. Shir and L. J. Shieh: J. Appl. Meteor., Vol. 13 p. 185 - 204. (1974)
- 6) 宇田川満ほか：東京湾における大気汚染調査 - 第一報 - オゾン高濃度汚染現象，東京都公害研究所年報1983年。
- 7) 早福正孝ほか：東京湾における大気汚染調査 - 第二報 - 炭化水素成分について，東京都公害研究所年報1983年。
- 8) 南関東地域における光化学大気汚染に関する総合調査報告書，1983年2月，横浜市公害研究所。
- 9) 若松伸司ほか：環境大気中におけるO₃濃度の時刻変化と立体公布，国立公害研究所研究報告第44号，R-44-83。