

<報文>

## 福岡県における地域汚染由来の高濃度オゾン に対するNOx, VOC排出量削減の効果\*

山村由貴\*\*, \*\*\*・力 寿雄\*\*・中川修平\*\*・山本重一\*\*

キーワード ①オゾン ②NOx排出量 ③VOC排出量 ④化学輸送モデル ⑤感度解析

### 要 旨

地域汚染の影響でオゾン濃度が高まった2018年夏季の高濃度日を対象に、九州エリアのNOx, VOC排出量の削減が福岡県内のオゾン濃度に与える影響について、化学輸送モデルを用いて解析した。その結果、VOC排出量削減がオゾン濃度変化に与える影響は小さく、NOx排出量削減は、NOx排出量の多い福岡市・北九州市を含む福岡県北側ではオゾン濃度が増加させ、福岡市より南側のエリアでは減少させることが判った。NOx排出量の多いエリアにおいてNOx排出量を削減すると、下層ではNOとの反応等によって消滅するオゾン量が減少し、上層では光化学反応によって生成するオゾン量が減少すると考えられる。そのため、NOx排出量の多い県の北側エリアではNOx排出量の削減によりオゾン濃度が増加し、北側エリアの上層で生成したオゾンが輸送される福岡市より南では、オゾン濃度が減少したと考えられる。

### 1. はじめに

福岡県において、環境基準を達成していない大気汚染物質は、微小粒子状物質（以下、PM<sub>2.5</sub>）と光化学オキシダントである<sup>1)</sup>。（以下、光化学オキシダントとオゾンと同義として取り扱う。）PM<sub>2.5</sub>については、中国の大幅なSO<sub>2</sub>, NOx等の削減に伴い、越境大気汚染濃度が減少したことから、県内のPM<sub>2.5</sub>濃度は減少傾向にある<sup>1)2)</sup>。一方、光化学オキシダントについては、図1に示すように、前駆物質であるNOxやVOCの濃度が減少しているにも関わらず、オゾン濃度は増加傾向にある。

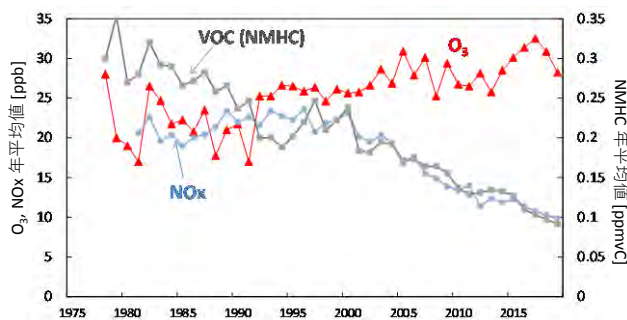


図1 福岡県内NOx, VOC（非メタン炭化水素NMHC）, O<sub>3</sub>濃度の経年変化

この原因の一つとして、日中のオゾン生成濃度が、

当該エリアのNOx, VOC排出量変化に対して、非線形的に変化することが挙げられる。オゾン濃度とNOx, VOC濃度との関係の模式図を図2に示す（井上ら(2010)<sup>3)</sup>をもとに加筆）。

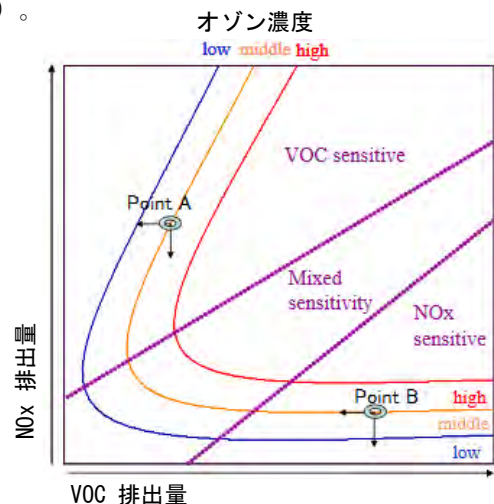


図2 NOx, VOC排出量に対するオゾン濃度の感度の模式図

オゾン濃度とNOx, VOC濃度との関係は、以下の2種類に分けられる<sup>4)</sup>。

- (1) NOx-sensitive領域：オゾン濃度はNOx排出量の削減で減少するが、VOC排出量の削減ではほとんど

\*The effect of NOx, VOC emission-reducing on local high-concentration ozone in Fukuoka

\*\*Yuki YAMAMURA, Hisao CHIKARA, Shuhei NAKAGAWA, Shigekazu YAMAMOTO (福岡県保健環境研究所) Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences

\*\*\*Yuki YAMAMURA(九州大学総合理工学府) Interdisciplinary Graduate School of Engineering Science, Kyushu University

減少しない

- (2) VOC-sensitive領域：オゾン濃度はVOC排出量の削減で減少するが、NOx排出量の削減ではほとんど減少しない

例えば、対象エリアが図2のPoint Aに該当した場合、オゾン濃度はVOC排出量を削減すると減少するが、NOx排出量を削減しても減少しない（VOC-sensitive領域）。一方Point Bに該当した場合、オゾン濃度はNOx排出量を削減すると減少するが、VOC排出量を削減しても減少しない（NOx-sensitive領域）。

また、(1), (2) 間の遷移的な状態として、以下が定義されることもある<sup>5)</sup>。

- (3) mixed-sensitive領域：NOx排出量, VOC排出量いずれの削減でもオゾン濃度が減少する状態

さらに、図1には示されていない状態であるが、以下の状態も確認されている<sup>3)6)</sup>。

- (4) NOx-titration：オゾン濃度が(OHラジカル連鎖反応による)生成ではなく、排出されたばかりのNOxによる消失に支配される状態

- (5) insensitive：オゾン濃度がいずれの排出量にも影響されない状態

オゾン濃度を低減させるための効果的な前駆物質の排出削減対策を策定するためには、対象とするエリアが図2のどの領域に位置するか、すなわち、NOxやVOCをどのように削減するとオゾン濃度低減に効果的であるかを把握する必要がある。この把握に対して、非線形的な反応過程を考慮することができる化学輸送モデルによるシミュレーションは、非常に有効である。実際に、2006年度に施行されたVOC排出抑制制度は、環境省によるシミュレーション結果<sup>7)</sup>が根拠となっている。環境省によるシミュレーションでは、2000年を基準としてVOC排出量を30%削減した場合の2010年における光化学オキシダント注意報発令延べ日数を試算し、VOC排出量を削減しない場合の259日から64日に減少すると推定した。VOC排出抑制制度の導入によって高濃度出現延べ日数が大きく低減すると予測されたことが、制度導入につながった。また、井上ら(2010)<sup>3)</sup>は、関東地方で高濃度オゾンが出現した夏季の複数日を対象に、化学輸送モデルによるシミュレーションを行い、関東地方のオゾンについて、VOC-sens, mixed-sens, NOx-sens, NOx-titration, insensitiveエリアの地理的分布を明らかにした。

本研究では、福岡県内のオゾン濃度低減に資するデータを得るため、地域汚染の影響でオゾンが高濃度となった2018年夏季の複数日を対象に、九州エリアのNOx, VOC排出量の削減が福岡県内のオゾン濃度に与える影響について、化学輸送モデルを用いて解析した。また、瀬戸内地方からオゾンが流入して高濃度となったケースについ

ても、オゾン濃度のNOx排出量に対する感度の変化を解析した。

## 2. 方法

### 2.1 化学輸送モデル

気象場の計算には、領域気象モデルWeather Research and Forecasting model (WRF) Version 3.9.1.1を使用した。計算領域は、図3に示す東アジア域(D01)と西日本域(D02), 福岡県を含む北部九州域(D03)とし、D01を64 km × 64 km, D02を16 km × 16 km, D03を4km × 4kmで3wayネスティングした。

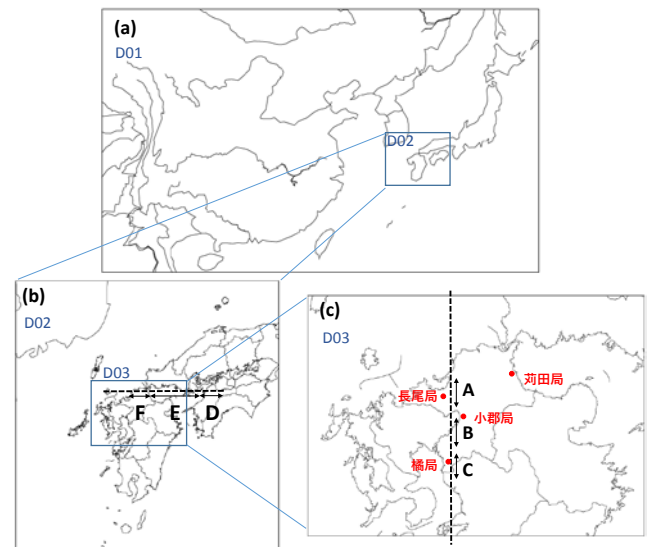


図3 計算領域

気象データには米国環境予報センター (NCEP) の全球客観解析データ (FNL)<sup>8)</sup>を使用した。土地利用には、WRFに付随するUnited States Geological Survey (USGS) のデータを利用した。表1にWRF計算条件を示す。

表1 WRF計算条件

モデル	WRF (Version 3.9.1.1)
計算領域・解像度	64 km × 64 km (D01: 東アジア) 16 km × 16 km (D02: 西日本) 4km × 4km (D03: 北部九州)
鉛直層数	39 (~100 hPa)
地理データ	USGS GTOPO30 (地形) USGS 25 Category (土地利用)
気象データ	NCEP FNL
解析期間	2018. 6. 1~2018. 8. 31

化学輸送モデルには、CMAQ Version 5.0.2を使用した。大気中の汚染物質およびその前駆物質の反応過程は、気相化学反応にSAPRC07, エアロゾル過程にAER06を使用した。計算領域、解像度、鉛直層数はWRFと同様であり、東アジア域 (D01) の計算結果を西日本域 (D02), 西日本域(D02)の計算結果を北部九州域(D03)計算の境界条件に使用した。計算期間は2018年5月21日～8月31日とし、6月～8月を解析対象期間とした。

CMAQの計算に使用した各排出量データを表2に示す。なお、東アジアの排出量データであるRegional Emission inventory in Asia (REAS) version 2<sup>9)</sup>に含まれるNH<sub>3</sub>は月変化をもたないため、Streets et al. (2003)<sup>10)</sup>に基づいて排出量の季節変動を補正した。

表2 排出量データ

東アジア人為起源 (日本を除く)	Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2
国内人為起源 (自動車・船舶を除く)	EAGrid2010-Japan <sup>11)</sup>
国内船舶	OPRF's Ship Emission inventory <sup>12)</sup>
国内自動車	JATOP Emission Inventory -Data Base 2011 Automobile Source (JEI-DB2011-AS) <sup>13)</sup>
植物起源	Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN) version2.04 <sup>14)</sup>
火山	Aerosol Comparisons between Observations and Models (AeroCom) <sup>15)</sup> 気象庁火山活動報告資料 (阿蘇山, 桜島) <sup>16)</sup>

## 2.2 プロセス解析

CMAQのProcess analysisのIntegrated Process Rates (IPRs)では、指定成分の濃度の増加・減少に対する、各物理・化学過程の寄与を求めることが可能である。オゾンに関するIPRsでは、気相反応過程 (CHEM) の他に液相過程 (CLDS), 水平移流・拡散 (HADV・HDIF), 鉛直移流・拡散 (VADV・ZDIF), 乾性沈着 (DDEP)が含まれており、ある時間のオゾン濃度変化率[ppb/hr]は式(1)で表される。

$$\frac{\Delta O_3}{\Delta t} = (CHEM) + (CLDS) + (HADV \cdot HDIF) + (VADV \cdot ZDIF) + (DDEP) \quad (1)$$

本研究では、オゾン生成・消滅に関する気相反応過程 (CHEM)を考察に使用した。

## 2.3 解析対象日

福岡県内の大気常時監視局である荇田局, 長尾局, 小郡局, 橘局を対象に、いずれかの局のオゾン濃度が80ppbを超えた合計10日を高濃度日として抽出した。荇田局は県の東側, 瀬戸内沿海に位置する。長尾局は県の西側, 交通量の多い福岡市内に位置する。小郡局は県の中心付近, 橘局は県の南端付近に位置し、共に付近に大きなNOx, VOCの発生源は存在しない。各局の位置は、図3中に示す。

九州エリアで生成したオゾンに対するNOx, VOC排出量削減の影響について検証するため、九州外から流入したオゾン濃度が高いと考えられる日は除外した。抽出した高濃度日のうち、6月21日, 24日, 25日は地域発生源の少ない離島エリアである長崎県対馬局のオゾン濃度が80ppbを超えており、越境汚染によって国外から流入したオゾン濃度が高いと考えられたため、除外した。また、7月19日については、四国の南海上に存在する台風の影響により、瀬戸内エリアのオゾンが九州へ流入していたため、除外した。ただし、7月19日については、3.4で別途解析を行う。抽出した日および解析対象日の選定結果を

表3 解析対象日

	年	月	日	Ox1時間値の最高値 [ppb]				備考	
				荇田	長尾	小郡	橘		
2018	6		2	63	87	97	84		
			3	59	82	91	72		
			4	50	83	93	75		
			9	69	73	83	63		
			21	89	77	84	62	越境汚染(対馬89ppb)	
			22	63	81	88	68		
			24	67	81	79	71	越境汚染(対馬96ppb)	
			25	48	80	103	79	越境汚染(対馬80ppb)	
			7	19	75	55	94	70	台風の影響で瀬戸内から汚染が流入
			8	18	46	46	84	55	

表3に示す。以下、抽出した高濃度日6日を平均した時間変化を、高濃度日の特徴と定義して議論する。

### 2.4 感度解析

北部九州(D03)のNOx, VOC排出量分布を図4に示す。福岡県内で排出量が多いのは、主に北九州エリアと福岡市エリア(図4中黒丸エリア)である。北九州エリアは工業地帯を有しており、福岡市エリアは商業都市であり、自動車交通量が多い特徴を有する。

本研究では、感度解析として、計算期間中継続して九州のNOxまたはVOC排出量を3割削減した計算と、全排出量を含む標準計算の3ケースの計算を行った。得られた結果の中から表3で示した高濃度日を抽出し、オゾン濃度の時間変化を平均した。この平均オゾン濃度に対して、NOxまたはVOC排出量を3割削減した計算と標準計算との差を比較した。さらに、瀬戸内エリアからオゾンが流入した7月19日については、当日のみNOx排出量を3割削減した計算を行い、標準計算との比較を行った。

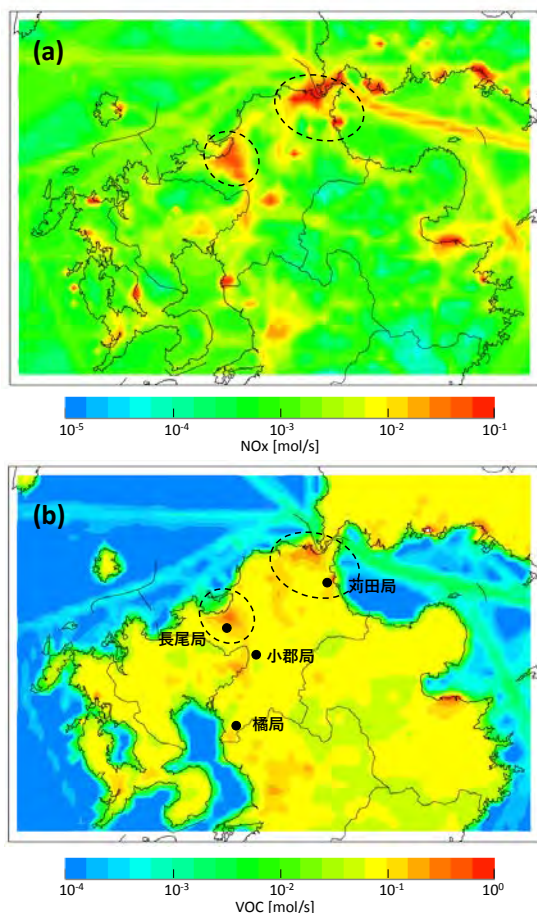


図4 北部九州(D03)のNOx, VOC排出量の水平分布(地上~約2000mのカラム濃度の日平均値), (a) NOx排出量, (b) VOC排出量(植物起源VOCを除く)

なお、削減したVOCは、Kitayama et al. (2019)<sup>17)</sup>を参考に、SAPRC07で考慮されている40成分から、植物起源VOCを除いた36成分とした。削減対象としたVOC一覧を表4に示す。

表4 削減対象としたVOC

物質名 (SAPRC07中表記)	詳細
TOLU	Toluene
ETHE	Ethene
HCHO	Formaldehyde
MEOH	Methano
ETOH	Ethanol
ACET	Acetone
MXYL	M-xylene
OXYL	O-xylene
PXYL	P-xylene
MEK	$5 \times 10^{-13} < kOH [cm^3 mol^{-2} s^{-1}] < 5 \times 10^{-12}$ のKetonesおよびアルデヒド以外の酸化物
BENZ	Benzene
CCHO	Acetaldehyde
PRPE	Propene
ACYE	Acetylene
ACRO	Acrolein
MACR	Methacrolein
AACD	Acetic acid
BALD	Aromatic aldehyde
FACD	Formic acid
GLY	Glyoxal
MGLY	Methylglyoxal
ALK1	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 5 \times 10^2$ のAlkaneおよび揮発性芳香族化合物
ALK2	$2.5 \times 10^2 < kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 5 \times 10^2$ のAlkaneおよび揮発性芳香族化合物
ALK3	$2.5 \times 10^3 < kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 5 \times 10^3$ のAlkaneおよび揮発性芳香族化合物
ALK4	$5.3 \times 10^3 < kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 1 \times 10^4$ のAlkaneおよび揮発性芳香族化合物
ALK5	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] > 1 \times 10^4$ のAlkaneおよび揮発性芳香族化合物
AR01	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 2 \times 10^4$ のAromatics
AR02	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] > 2 \times 10^4$ のAromatics
OLE1	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] < 7 \times 10^4$ のAlkenes
OLE2	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] > 7 \times 10^4$ のAlkenes
PRD2	$kOH [ppm^{-1} min^{-1}] > 5 \times 10^{-12}$ のAromatics
RCHO	Lumped C <sub>3</sub> + aldehydes
BACL	Biacetyl
CRES	Phenols and cresols
B124	1,2,4-Trimethylbenene
13BDE	1,3-Butadiene

### 3. 結果と考察

#### 3.1 モデルの再現性評価

2.3で抽出した高濃度日について、苅田局、長尾局、小郡局、橘局の1:00~24:00のオゾン濃度観測値をCMAQによる計算値と比較し、相関係数Rと共に図5に示す。いずれの局も相関係数は0.9以上であり、濃度の変動傾向は概ね再現できていた。長尾局については、計算に使用した国内の自動車起源NOx排出量データが2010年を対象としたものであったため、交通量の多い福岡市エリアのNOx排出量が現在よりやや過大であった可能性がある。これにより、NOxによるオゾン消滅反応が過大となり、オゾン濃度が観測に比べて過小となった可能性が考えられる。また、小郡局は福岡市の風下に位置し、福岡市エリアから流入するオゾンの影響を強く受けるため、長尾局と同様に過小傾向となったと考えられる。

#### 3.2 オゾンの生成と輸送

CMAQで計算した高濃度日の、オゾン濃度と風向風速の水平分布の時間変化を図6に示す。図中の網掛部は標高200m以上のエリアである。図6から、11:00に北九州エリアと福岡市エリア（長尾局付近、図6(b)灰点線丸部）の風下で濃度が上昇し始めていることが判る。その後、14:00から17:00にかけて、海風の侵入に伴い、高濃度オゾンは小郡市（小郡局付近）を経て大牟田市（橘局付近）へと流れた。20:00になると、全域で濃度が下がっていた。

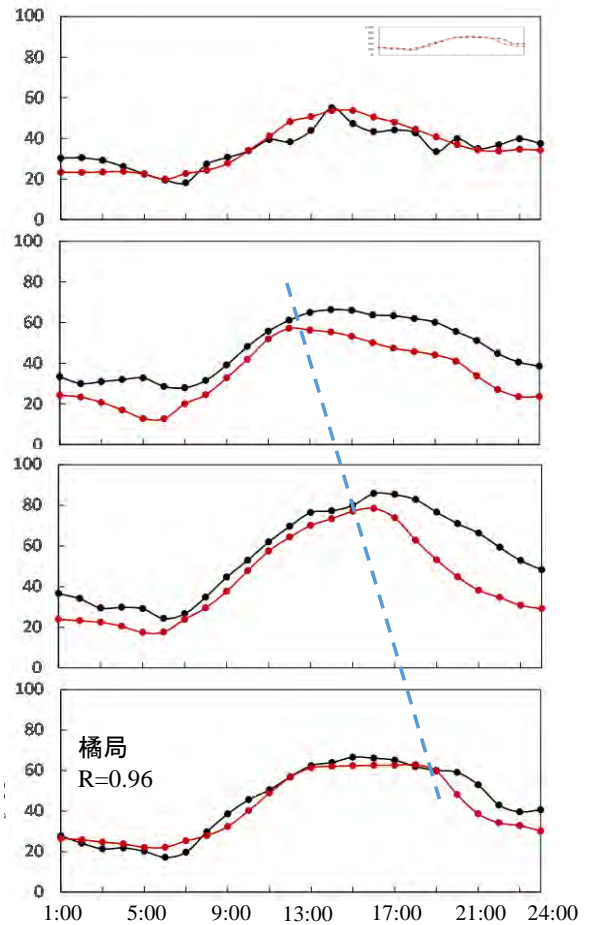


図5 観測値と計算値との比較  
(a) 苅田局, (b) 長尾局, (c) 小郡局, (d) 橘局

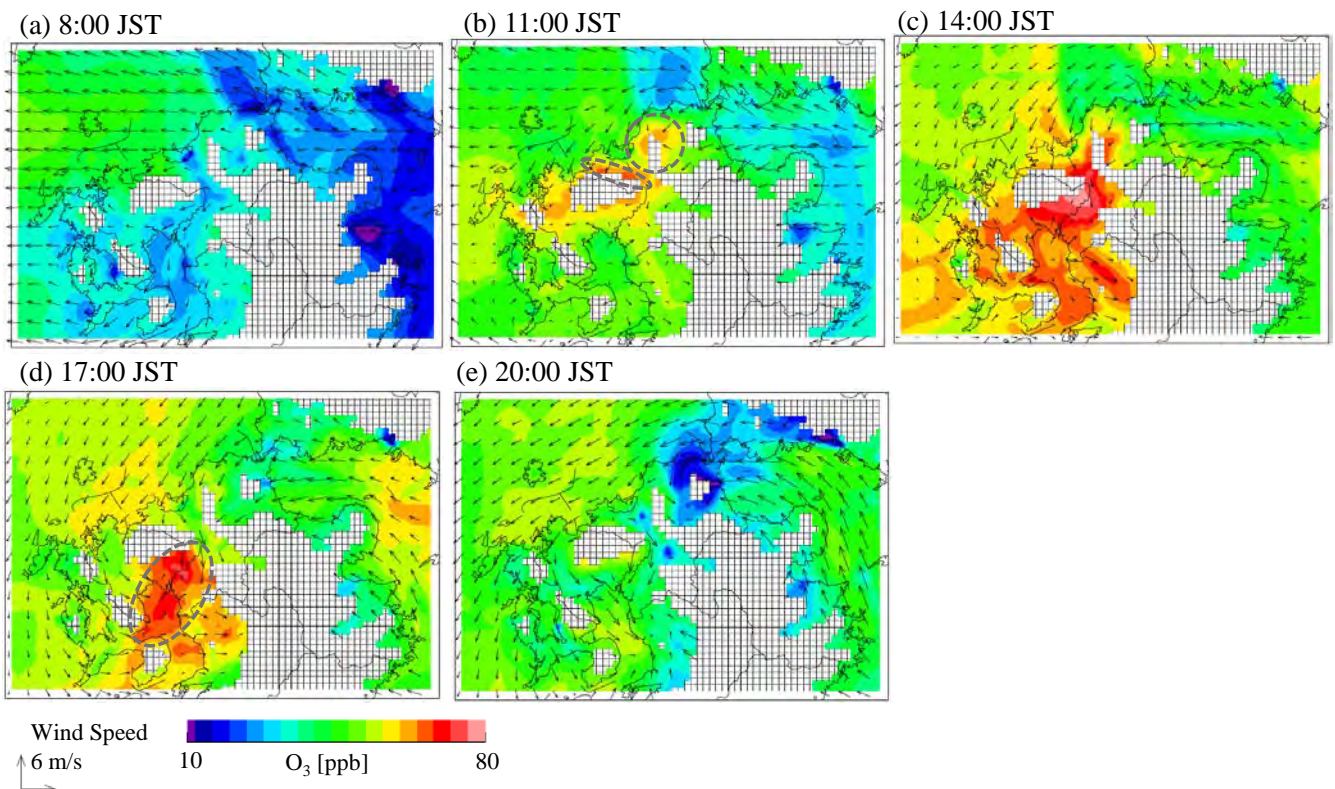


図6 高濃度日のオゾン濃度と風向風速の水平分布

図5においても、オゾン濃度のピークが時間と共に長尾局、小郡局、橘局と玄海灘側から南へ順に移動しており（図5中青点線），図6の海風に対応していることが確認できた。高濃度日における，図3(c)中の黒点線方向に沿った断面図の経時変化を図7に示す。図7中には，オゾン濃度（カラーコンター），温位（コンター線），風向を示している。また，CMAQのIPRsによって求めたオゾンの生成・消滅率を図8に示す。長尾局（福岡市）における気相反応によるオゾンの生成・消滅率 [ppb/hr]の鉛直分布を図8(a)，地上約15mにおける気相反応，乾性沈着，水平移流・拡散，鉛直移流・拡散によるオゾンの生成・消滅率 [ppb/hr]の，長尾局における時間変化を図8(b)，小郡局における時間変化を図8(c)に示す。

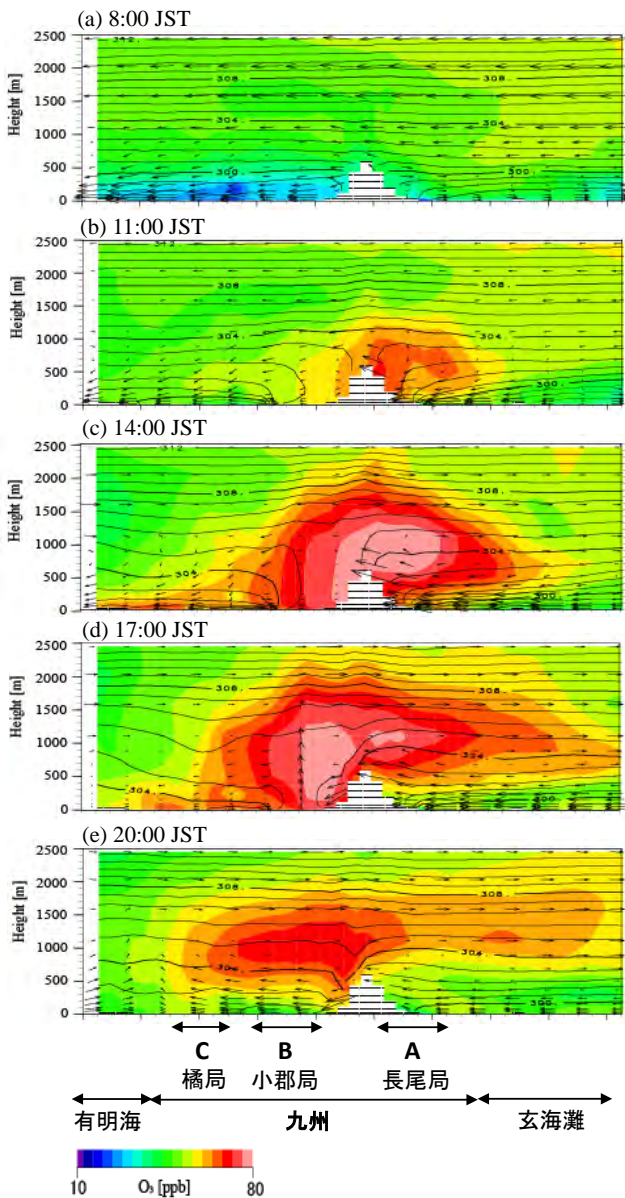


図7 オゾン濃度のD03断面図の経時変化  
(オゾン濃度：カラーコンター，温位：コンター線)

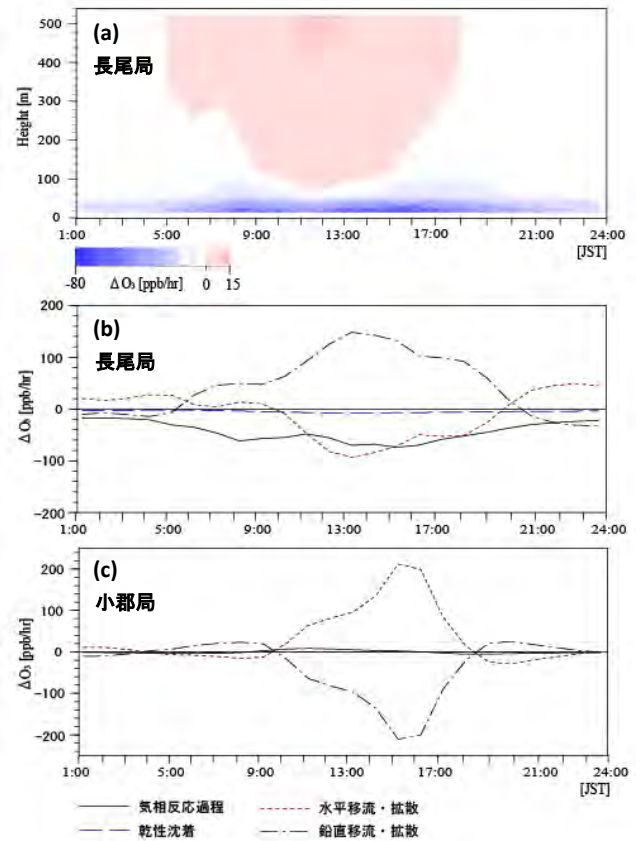


図8 オゾン濃度変化率，(a)気相反応による濃度変化率鉛直分布（長尾局），地上約15mにおける各過程による濃度変化率；(b)長尾局，(c)小郡局

オゾンの生成・消滅率は，正であればオゾンの生成，負であれば消滅を意味する。図7から，11:00から17:00にかけて，福岡市の上空（図3(c)中エリアA，長尾局付近）の高度500～2000m付近で濃度が上昇していたことが判る。一方，地上付近は上空ほど濃度が上昇していなかった。これらは，図8(a)において，長尾局（福岡市）の気相反応によるオゾンの生成・消滅率が上空で正，地上付近で負，すなわち上空では光化学反応によってオゾンが生成し，地上付近ではNOとの反応等によってオゾンが消滅していたことと整合している。また，図7から，14:00，17:00には海風の侵入に伴い，福岡市上空のオゾンが小郡局から橘局付近（図3中エリアB，C）まで輸送されていたことが判る。なお，地上から約1000m付近までは海風となっているが，それより上空では反流により，陸から海へ向かって風が流れており，上空のオゾンが一部玄海灘方向へ輸送されていることが判る。また，11:00から17:00にかけて，混合層が地上～1000m付近まで発達していることが確認できる。図8(b)から，長尾局（福岡市）の地上付近では，オゾン濃度は鉛直移流・拡散によって増加し，気相反応と水平移流・拡散によって減少している。これは，

福岡市上空で生成したオゾンが、混合層内の鉛直混合によって地上付近まで下降してNOと反応し、鉛直混合しながら、海風によって小郡局方面へ水平に輸送されていたことを示していると考えられる。一方、図8(c)から、小郡局の地上付近では、オゾン濃度は主に水平移流・拡散によって増加し、鉛直移流・拡散によって減少している。これは、小郡局の地上付近へ福岡市から水平方向に流入した高濃度気塊が、鉛直混合によって混合層内を拡散したことによると考えられる。また、小郡局の地上付近では気相反応の寄与は小さいが、これは福岡市に比べて付近のNOx排出源量が少なかったためと考えられる。

図7(e)、図8(c)から、20:00には福岡市から水平に流入する気塊のオゾン濃度が下がるため、小郡局・橋局においても地上付近の濃度が下がっている。

### 3.3 九州のNOx, VOC削減による福岡県内オゾン濃度の変化 -地域汚染による高濃度日-

2.4で述べた、九州のNOxまたはVOC排出量を3割削減した計算と、全排出量を含む標準計算について、オゾンが高濃度となる11:00から17:00までを平均し、(a) 標準計算のオゾン濃度の水平分布、(b) 九州のNOxを3割削減した計算と標準計算のオゾン濃度の差、(c) 九州のVOCを3割削減した計算と標準計算のオゾン濃度の差、として図9に示す。図9(b)、(c)は、オゾン濃度の変化量を表し、NOx, VOC削減によってオゾンが減少した場合は負(寒色)、増加した場合は正(暖色)を示す。なお、図9(b)、(c)において、海上でも濃度変化がみられているが、これは2.4で述べたように、計算期間中継続して九州のNOxまたはVOC排出量を3割削減した計算し、その中から高濃度日を抽出しているためである。図9(b)から、福岡県では、福岡市エリアおよび玄海灘沿海(糸島を除く)、北九州エリアおよび瀬戸内海沿海でNOx削減によりオゾンが増加しており、福岡市エリアより南では、NOx削減によりオゾンが減少していることが判る。

苅田局、長尾局、小郡局、橋局における、九州のNOxを3割削減した場合と標準計算のオゾン濃度の時間変化を図10に示す。図10から、苅田局と長尾局ではNOx削減によってオゾン濃度が増加し、小郡局と橋局では日中のオゾンが高濃度となる時間帯を中心にオゾン濃度が低下している。図9(b)を図4(a)と比較すると、オゾン濃度が増加したのは、苅田局を含む北九州エリアや長尾局を含む福岡市エリアといった、NOx排出量の多いエリアであることが判る。これは、NOxが減少することで、地上付近でNOとの反応等によって消滅するオゾンの量が減少したためと考えられる。対して、NOx削減によりオゾンが減少した福岡市エリアより南(小郡局、橋局を含む)は、福岡市上空で生成したオゾンが輸送されていたエリアである。これは、福岡市付近では、NOx排出量削減により、地上付近で消滅するオゾンの量が減少したが、同時に上空で光化学反応によって生成す

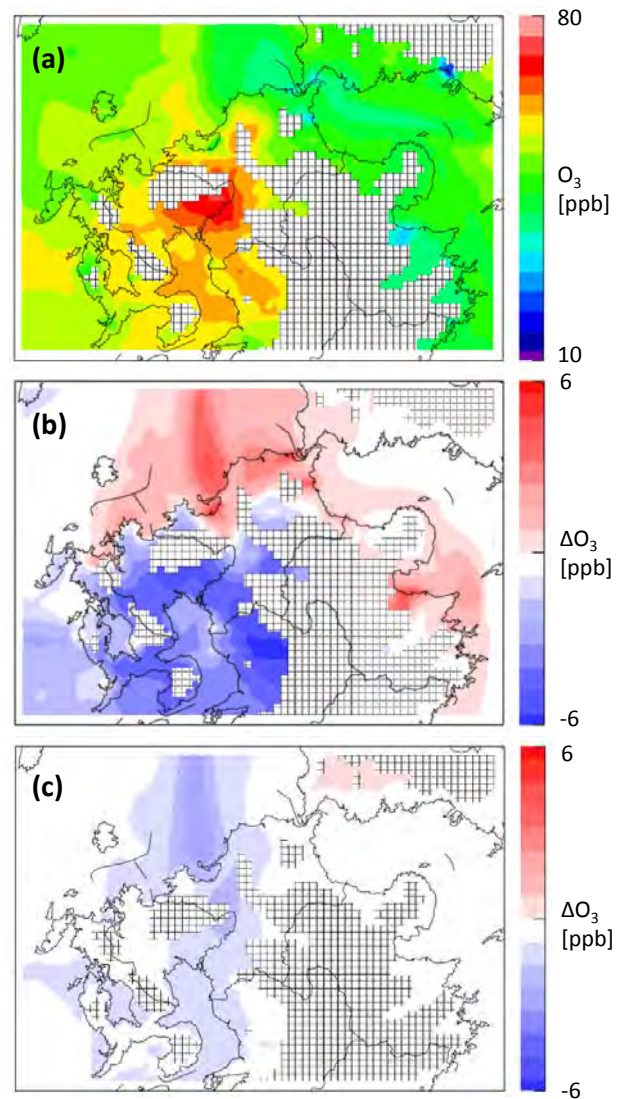


図9 オゾン濃度の水平分布(11:00~17:00平均値)  
(a) 標準計算、(b) 九州のNOxを3割削減した計算と標準計算とのオゾン濃度の差、(c) 九州のVOCを3割削減した計算と標準計算とのオゾン濃度の差

るオゾンの量も減少したことで、福岡市上空から南へ輸送されるオゾン濃度が減少したためと考えられる。

また、VOC排出量を削減した場合は、図9(c)から、福岡県全域でオゾン濃度が減少していたことが判る。しかし、その減少濃度は最大でも3ppb程度であり、NOxに比べてVOCの影響は小さいことが示唆された。以上のことから、高濃度日の福岡県は、主にNOx-titrationエリア(図9(b)の暖色領域、玄海灘沿海および瀬戸内海沿海)とNOx-sensitiveエリア(図9(b)の寒色領域、福岡市エリアより南側)で構成されていることが明らかになった。

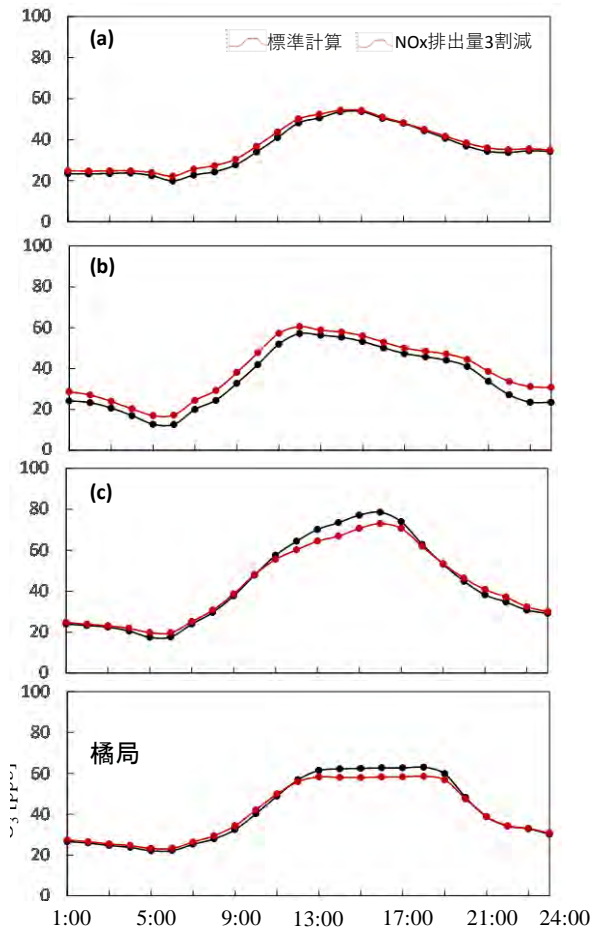


図10 九州のNOxを3割削減した場合のオゾン濃度と標準計算のオゾン濃度の時間変化  
(a) 苅田局, (b) 長尾局, (c) 小郡局, (d) 橘局

### 3.4 九州のNOx削減による福岡県内オゾン濃度の変化 -瀬戸内からの移流-

3.3では、主に九州内で生成したオゾンが高濃度となった日を対象に、長期（解析期間である6月1日から8月31日まで）にわたってNOx, VOCを削減した場合のオゾン濃度の変化について議論を行った。ここでは、九州外からオゾンが流入したことで高濃度となった日について、該当日当日のみNOxを削減した場合の変化について検討する。

7月19日は、九州の南海上を北進していた台風の影響で、瀬戸内地方の風向が東よりになり、瀬戸内エリアで生成されたオゾンが福岡県内の瀬戸内沿海や北九州を中心とした九州地方へ流入していた。7月19日の、図3(b)中の黒点線方向に沿った断面図のオゾン濃度経時変化を図11(a)から(e)に示す。図11中には、オゾン濃度（カラーコンター）、温位（コンター線）、風向を示している。また、図11(c)の白枠内に該当するD03エリアの断面図を(f)に示す。11:00に四国（図3(b)中エリアD）から瀬戸内海（図3(b)中エリアE）でオゾン濃度が上昇し、14:00から20:00にかけて北九州（図3(b)中エリアF）上空へ輸送され

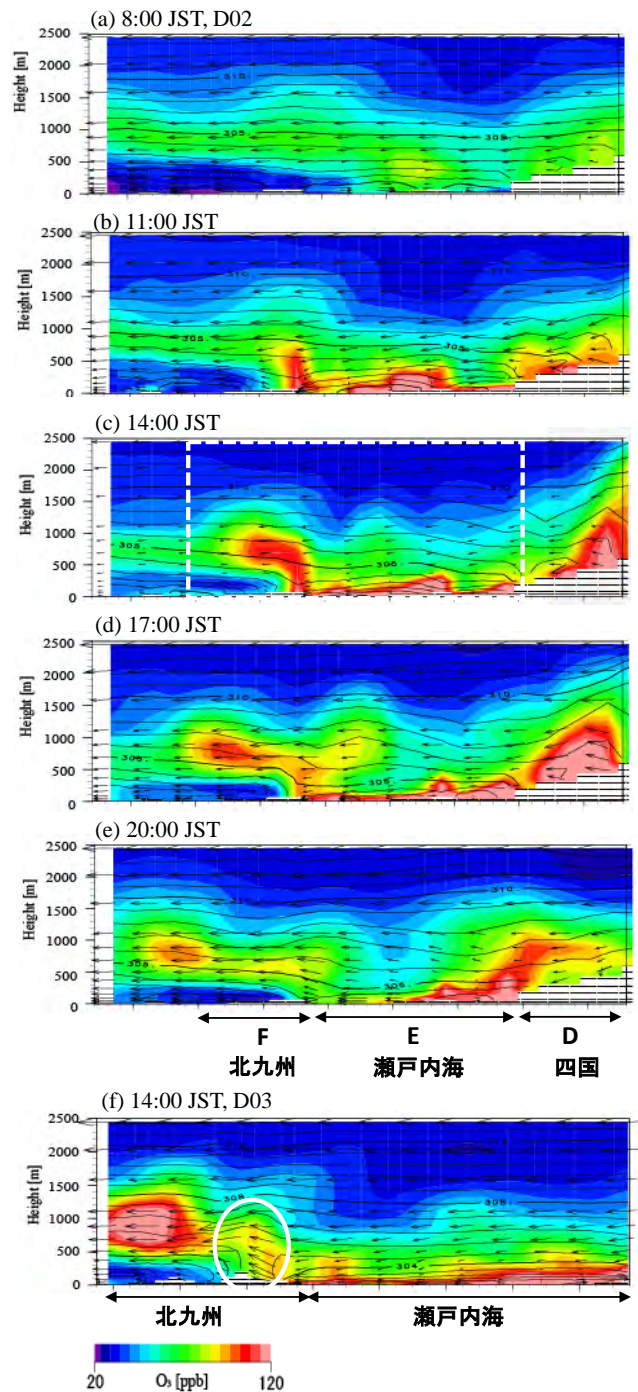


図11 オゾン濃度の断面図の経時変化  
(オゾン濃度：カラーコンター、温位：コンター線)  
(a)-(e) D02断面図, (f) (c)の白枠エリアのD03断面図

ていたことが判る。なお、瀬戸内海から北九州へ高濃度オゾンが流入する際、オゾン濃度が鉛直方向へ立ち上がっているように見えるが（図11(f)中白丸）、これは、陸上では混合層が発達していたため、海上から流入した気塊が鉛直方向に拡散されたことによる。

また、北九州エリアは地上付近のオゾン濃度が低いが、これは、3.3で述べた福岡市エリアと同様に、NOとの反応等によって消滅するオゾンの量が多かったためと考えられる。



また、同時に上空では光化学反応によるオゾン生成が起きていたと考えられ、そこに瀬戸内エリアから輸送されたオゾンが加わったことで、さらに高濃度となったとみられる。

この7月19日について、九州エリアのNOxを19日の9:00から3割削減した計算と、全排出量を含む標準計算について、オゾンが高濃度となる11:00から17:00までを平均し、(a) 標準計算のオゾン濃度の水平分布、(b) 九州のNOxを3割削減した計算と標準計算のオゾン濃度の差、として図12に示す。図12(a)から、19日は高濃度日平均(図9(a))より濃度が上がっているエリアが多く、特に、瀬戸内エリアで生成したオゾンの流入の影響が大きい福岡県内の瀬戸内沿海や北九州を中心に、より高濃度となっていたことが判る。

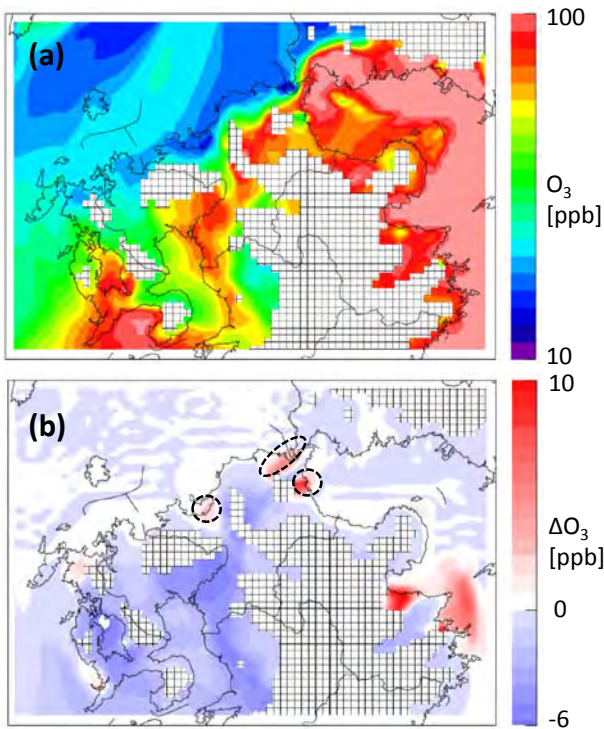


図12 7月19日オゾン濃度の水平分布  
(a) 標準計算, (b) 19日の9:00から九州のNOxを3割削減した計算と標準計算とのオゾン濃度の差

さらに、図12(b)では、NOx排出量の多い北九州の一部エリアと福岡市エリアではオゾン濃度の増加がみられるものの、その他エリアは概ね減少傾向となっている。図9(b)と比較しても、濃度減少傾向のエリアが増加していることが判る。これらのエリアでは、九州エリアのみの汚染の影響を受けていた場合と、瀬戸内エリアから汚染が流入した場合で、NOx排出量削減に対するオゾン濃度の感度が変わっている。Seinfeld and Pandis (2016)<sup>19)</sup>では、

シミュレーションによって、アトランタのオゾン濃度が図13 (Seinfeld and Pandisをもとに加筆) のようにNOx, VOC排出量に依存することが示されている。図13中のPoint Cでは、NOx排出量を削減するとオゾン濃度が増加する(図13中 Point C下矢印)。一方、Point Cよりオゾン濃度の高いPoint C'では、NOx排出量を削減するとオゾン濃度が減少する(図13中 Point C'下矢印)。福岡県内においても、九州エリア外からの汚染の流入によって汚染状況が変化することで、NOx排出量削減に対するオゾン濃度の感度が変わった可能性がある。

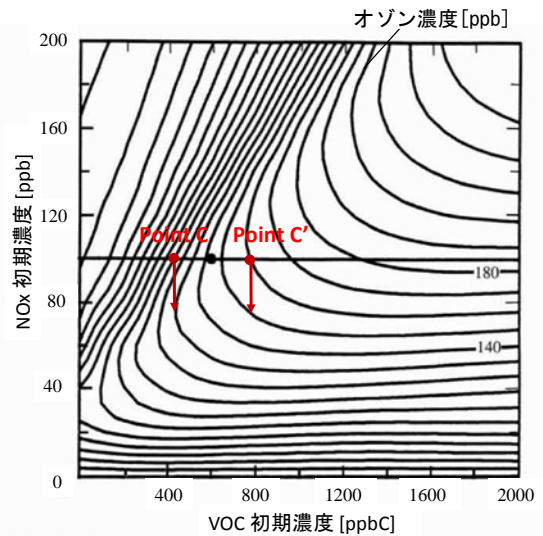


図13 アトランタにおけるNOx, VOC排出量に対するオゾン濃度の感度

以上のことから、光化学オキシダントの環境基準達成に向けて、長期にわたるNOx, VOCの排出量削減のオゾン濃度抑制効果を検証するとともに、急性的な健康被害抑制のために、オゾン濃度上昇が予測される日に対して、当日のNOx, VOC排出量削減の効果をエリアごとに検証し、政策へつなげることが重要である。

#### 4. 結言

地域汚染の影響でオゾンが高濃度となった夏季の福岡県を対象に、九州エリアのNOx, VOC排出量の削減が県内オゾン濃度に与える影響について、化学輸送モデルを用いて解析した。その結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 福岡県内の高濃度日のオゾン濃度は、NOx排出量の多い福岡市エリア、北九州エリアで低く、福岡市エリアより南で高い傾向がみられた。
- (2) 化学輸送モデルのProcess analysisによる解析の結果、福岡市付近では、上空では光化学反応によるオゾンの生成、地上付近ではNOとの反応等によるオゾンの消滅が起きていたことが判った。また、上

空で生成したオゾンは、海風によって福岡市エリアより南側へ輸送されていた。

- (3) 九州のNO<sub>x</sub>排出量を3割削減すると、福岡市エリア、北九州エリアを含む福岡県北側エリアではオゾン濃度が増加し、福岡市エリアより南側ではオゾンが減少する傾向がみられた。これは、NO<sub>x</sub>排出量の多い北側エリアでは、NO<sub>x</sub>排出量削減によって、地上付近でNOとの反応によって消滅するオゾン量が減少すると同時に、上空で光化学反応によって生成するオゾン量も減少したことによると考えられる。
- (4) VOC排出量を削減した場合は、福岡県全域でオゾン濃度が減少していたが、その減少濃度はNO<sub>x</sub>排出量を削減した場合に比べて小さかった。
- (5) 九州域で生成したオゾンに瀬戸内エリアから流入したオゾンが加わって高濃度となった日については、地域生成のみの場合より、NO<sub>x</sub>排出量削減によってオゾン濃度が減少するエリアが増加した。

本研究により、福岡県域のオゾン濃度のNO<sub>x</sub>、VOC排出量に対する感度の地理的分布が初めて示された。これにより、NO<sub>x</sub>、VOC排出量削減施策に対するオゾン濃度の応答を明らかにすることができる。

一方で、使用した国内の排出量データの対象が2010年であり、現在のNO<sub>x</sub>、VOC排出量とはやや異なることなど、課題も残されている。また、入力する植物起源VOCによって、対象エリアのオゾンのNO<sub>x</sub>、VOC削減への感度が変化することも指摘されている<sup>18)</sup>。今後、福岡県内のオゾン濃度を下げる効果的な前駆物質の排出量削減対策を策定するため、更新した排出量データや日本の詳細な植生データを用いた、より再現性の高い計算を行っていくことが重要と考えられる。

## 謝辞

排出量データの作成は、大阪大学大学院工学研究科の嶋寺光博士からプログラムをご提供いただきました。ここに記して深く謝意を表します。

## 5. 引用文献

- 1) 福岡県：福岡県環境白書 令和元年版第5章第2節，[https://www.pref.fukuoka.lg.jp/uploaded/life/391051\\_54474084\\_misc.pdf](https://www.pref.fukuoka.lg.jp/uploaded/life/391051_54474084_misc.pdf) (2020. 10. 19アクセス)
- 2) 鷗野伊津志，王哲，弓本桂也，板橋秀一，長田和雄，入江仁士，山本重一，早崎将光，菅田誠治：PM<sub>2.5</sub>越境問題は終焉に向かっているのか？，大気環境学会誌，**52**(6)，177-184，2017
- 3) 井上和也，安田龍介，吉門洋，東野晴行：関東地方における夏季地表オゾン濃度のNO<sub>x</sub>、VOC排出量に対する

- 感度の地理分布，大気環境学会誌，**45**(5)，183-194，2010
- 4) Jacob D. J. (著)，近藤豊 (訳)：大気化学入門，pp. 245-246，東京大学出版会，東京，2002
  - 5) Sillman S., He D., Pippin M. R., Daum H. P., Imre G. D., Kleinman I. L., Lee J. H., Weinstein-Lloyd J. : Model correlations for ozone, reactive nitrogen, and peroxides for Nashville in comparison with measurements: Implications for O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-hydrocarbon chemistry, *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, **103**(D17), 22629-22644, 1998
  - 6) Sillman S., He D. : Some theoretical results concerning O<sub>3</sub>-NO<sub>x</sub>-VOC chemistry and NO<sub>x</sub>-VOC indicators, *Journal of Geophysical Research Atmospheres*, **107**(D22), 4659, 2002
  - 7) 環境省：VOC削減によるSPM・光化学オキシダントの改善効果 中央環境審議会第11回大気環境部会議事録配布資料 資料5, <http://www.env.go.jp/council/07air/y070-11a.html> (2020. 10. 18アクセス)
  - 8) CISL: Research Data Archive, <http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2/> (2020. 10. 18アクセス)
  - 9) Kurokawa J., Ohara T., Morikawa T., Hanayama S., Janssens-Meanhout G., Fukui T., Kawashima K., Akimoto H. : Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys*, **13**, 11019-11058, 2013
  - 10) Streets D. G., Yarber K. F., Woo J.-H., Carmichael G. R. : Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions, *Global Biogeochemical Cycles*, **17**(4), 10/1-10/20, 2003
  - 11) 福井 哲央，國領 和夫，馬場 剛，神成 陽容：大気汚染物質排出インベントリ—EAGrid2000—Japanの年次更新，大気環境学会誌，**49**，117-125，2014
  - 12) 海洋政策研究財団：平成22年度 排出規制海域設定による大気環境改善効果の算定事業報告書，ISBN978-4-88404-265-3，2010
  - 13) (一財)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
  - 14) Guenther A., Karl T., Harley P., Wiedinmyer C., Palmer P. I., Geron C. : Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, **6**, 3181-3210, 2006
  - 15) Diehl T., Heil A., Chin M., Pan X., Streets D.,

- Schultz M., Kinne S.: Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO<sub>2</sub> from 1980 to 2010 for hindcast model experiments, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, **12**, 24895–24954, 2012
- 16) 気象庁: 各火山の活動状況, [https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/open-data/data\\_index.html](https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/open-data/data_index.html) (2020.10.18アクセス)
- 17) Kitayama K., Morino Y., Yamaji K., Chatani S.: Uncertainties in O<sub>3</sub> concentrations simulated by CMAQ over Japan using four chemical mechanism, *Atmospheric Environment*, **198**, 448–462, 2019
- 18) Pierce T., Geron C., Bender L., Dennis R., Tonnesen G., Guenther A.: Influence of increased isoprene emissions on regional ozone modeling, *J. Geophys. Res.* **103** (D19), 25611–25629, 1998
- 19) Seinfeld J. H., Pandis S. N.: *Atmospheric Chemistry and Physics: From Air Pollution to Climate Change* 3rd Edition, p209, Wiley, America, 2016