

国立環境研究所特別研究報告

Report of Special Research from the National Institute for Environmental Studies, Japan

SR - 42 - 2001

都市域におけるVOCの動態解明と大気質に及ぼす  
影響評価に関する研究  
(特別研究)

Studies of VOCs distribution and it's effects on urban air quality

平成 10 ~ 12 年度

FY 1998 ~ 2000

NIES



独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

都市域におけるVOCの動態解明と大気質に及ぼす  
影響評価に関する研究  
(特別研究)

Studies of VOCs distribution and its effects on urban air quality

平成 10 ～ 12 年度

FY 1998 ～ 2000

独立行政法人 国立環境研究所

NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

特別研究「都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究」

(期間 平成 10 ~ 12 年度)

特別研究責任者：森田昌敏

特別研究幹事：若松伸司・田邊 潔・森口祐一

報告書編集担当：若松伸司・上原 清・菅田誠治・田邊 潔・森口祐一・  
櫻井健郎・松橋啓介

## 序

本報告書は平成 10 年度から 12 年度の 3 年間にわたって実施した特別研究「都市域における VOC の動態解明と大気質に及ぼす影響評価に関する研究」の成果を取りまとめたものである。環境大気中に存在する VOC (volatile organic compounds: 揮発性有機化合物) は主要なものだけでも 100 種類以上あり、光化学大気汚染の原因物質であると同時に、それ自身が有害である物質も多く、実態の把握が急がれていた。

本研究においては大気汚染物質として重要ではあるが、これまで研究が遅れていた VOC の発生源把握に関する研究を中心に実施し、環境中での挙動解明も行っている。具体的には、発生源寄与の大きい塗料・溶剤関連の発生量の精査を行うとともに、自動車からの発生量を燃料供給系からの蒸発発生も含めて把握した。またトンネル調査結果を基に実走行状態での発生状況を調査した。これとともに、都市・広域スケールにおける VOC の環境動態を、フィールド観測、数値モデル、風洞実験により解析・評価した。

本研究により VOC の発生量の推定方法や主要発生源の実態ならびに環境影響の基本的な部分を把握することができたが、全体像の解明と今後の動態把握には更なる研究の継続が必要である。

本研究の成果が今後の都市大気環境改善のための研究の発展に役立てば幸いである。

本研究を進めるにあたり、研究所外の多くの方々からご助言とご支援を頂いた。ここに深く御礼申し上げます。

平成 13 年 9 月

独立行政法人 国立環境研究所  
理事長 合 志 陽 一

## 目 次

1	研究の目的と経緯	1
1.1	研究の背景	1
1.2	研究の目的と実施内容	1
1.3	本研究で得られた成果の概要	2
1.3.1	VOC 排出量推計に関する調査・研究	2
1.3.2	VOC 環境動態に関する調査・研究	4
1.3.3	風洞実験による沿道大気汚染の研究	5
2	研究の成果	7
2.1	VOC の発生源別，成分別，地域別排出量に関する調査・研究	7
2.1.1	VOC 排出量推計の問題点と本研究における推計対象	7
2.1.2	塗料溶剤関連の VOC 排出量推計	9
2.1.3	自動車排出ガス中の VOC 等各種成分の排出量推計	11
2.1.4	自動車燃料供給系からの VOC 蒸発排出量推計	14
2.1.5	トンネル調査による自動車からの VOC 排出係数の実態把握	16
2.1.6	VOC 排出量の地域分布推計の試みと推計手法の今後の課題	19
2.2	VOC 環境動態とモデル評価に関する調査・研究	22
2.2.1	VOC 成分の自動測定と地域比較	22
2.2.2	数値モデルによる都市大気汚染解析 - 関西地域における春季大気汚染と VOC -	23
2.2.3	数値モデルによる広域大気汚染解析 - 東アジアスケールの大気汚染と VOC -	24
2.3	風洞による沿道大気汚染の実験・研究	32
2.3.1	道路幅，建物高さ，大気安定度による影響	32
2.3.2	複雑な道路構造の影響に関する基礎的検討	36
2.3.3	沿道大気汚染濃度分布の予測手法の検討	38
2.4	総括および研究展望	43
2.4.1	まとめと今後の課題	43
2.4.2	研究展望	46
[ 資 料 ]		
	研究の組織と研究課題の構成	49
1	研究の組織	49
2	研究課題と担当者	50
	研究成果発表一覧	51
1	誌上発表	51
2	口頭発表	54

# 1 研究の目的と経緯

## 1.1 研究の背景

VOC (volatile organic compounds : 揮発性有機化合物)<sup>\*</sup>が大気環境に及ぼす影響の代表的なものとして、光化学大気汚染があげられる。光化学大気汚染は940年代に米国のロスアンゼルスにおいて顕在化した<sup>1</sup>が、その対策は現在に至るまで不十分であり、先進国のみならず途上国の大都市において大きな問題となっている。

光化学大気汚染の主要な原因物質は窒素酸化物( $\text{NO}_x$ )と揮発性有機化合物(VOC)である。これらの汚染物質が太陽からの紫外線のエネルギーを受けて光化学反応を起こしオゾンなどを生成させるが、このときに微小粒子も同時に発生する。このようにVOCは多くの大気汚染に深く関与しているが発生源の実態は良くわかっていない。また、VOCは環境大気中に様々な形で存在し、主要な成分だけでも100種類以上にのぼる。それぞれの成分間のオゾン生成ポテンシャルは100倍以上の開きがある。このためオゾンやエアロゾルの生成に及ぼすVOCの寄与を定量的に把握するためには成分ごとの情報が発生源と環境濃度それぞれに対して必要である。一方、VOCの中には、それ自身が人体に有害な物質もある。大気汚染防止法の改正によって有害大気汚染物質対策が本格化し、ベンゼン等の汚染実態の把握とリスク評価が急がれている。

このようにVOCはキーとなる大気汚染物質であるが、発生量、濃度分布と変動、汚染メカニズムなどに関する体系的な研究がなされておらず、データの収集・蓄積ばかりでなく、適切なモニタリング頻度・地点数・配置などの判断や、発生源と汚染・リスクの関係の理解などに資するためのモデル解析などの研究が必要とされている。特に都市域における実態把握が緊急に必要となっている。

## 1.2 研究の目的と実施内容

このような背景を踏まえ、本研究ではVOC成分が大

気環境質に及ぼす影響を評価することを目的として、固定発生源や移動発生源からのVOCの排出量の推計に関する調査・研究、VOC成分の測定システムの開発とフィールドにおける実態把握調査・研究、風洞実験や数値モデルを用いた発生源と環境濃度との関連性評価に関する研究を3年間にわたり実施した。平成0年度、平成11年度においては(1)固定発生源、移動発生源からのVOC排出量のマクロ推計調査(2)トンネル調査による自動車からのVOC排出量の実態把握(3)フィールド観測によるVOC環境動態の把握(4)モニタリング・モデリングの研究を並行して行った。最終年度である平成12年度においてはVOC発生源調査研究、フィールド調査研究、モニタリング・モデリングの研究をとりまとめた。またPM<sub>2.5</sub>・DEP研究に向けての予備的な調査、解析を行った。本特研の実施に当たっては、特別研究「輸送・循環システムに係る環境負荷の定量化と環境影響の総合評価手法に関する研究」(H8~10)、革新的環境監視計測技術先導研究「大気有害化学物質監視用自動連続多成分同時計測センサー技術の開発に関する研究」(H9~11)、JCAP\*\*「大気質改善のための自動車・燃料等の技術開発プログラム」(H9~13)等の国立環境研究所内外の関連プロジェクトとの積極的な連携をとった。

具体的には、種々のVOCの排出量の推計、現状のNMHC測定器に代わるVOC多成分分析法による環境モニタリング、二次生成大気汚染に関するモデルの適用と検証などを系統的に行い、VOC汚染と二次生成大気汚染の動態・実態を解明することによって、適切なモニタリングのあり方、VOC発生源対策の方向性などを明らかにするとともに、モニタリングを補う実態把握方法を検討することを研究の目的とした。

VOCやこれに起因する二次生成大気汚染の実態・動態を解明するためには、VOC排出量の総量だけでなく、その成分組成や空間分布の推計が重要である。VOCの

\* 揮発性有機化合物の総称がVOCであるが、VOC成分の中の反応性の低いメタンを除外した総称をNMVOC (non methane organic compounds) と言う。またメタンとメタン以外の化合物を一括して測定する方法としてメタン・NMHC (non methane hydrocarbon) 測定器があるが、アルデヒドなどの含酸素化合物は計測されない。メタンとNMHCの全体をTHC (total hydrocarbon) または単にHCと言う。

\*\* JCAP: Japan Clean Air Program. 自動車排ガスによる大気汚染低減のため、自動車と自動車燃料に関わる環境負荷低減技術の開発を、石油業界と自動車業界が協力して研究開発するプログラム。

発生源として大きなウェイトを占める自動車について、我が国における排出量の見積もりと、諸外国での値の間に大きな開きがあり、排気ガス以外のエバポエミッション（燃料供給系統からの蒸発による排出）等を含めた正確な排出実態の把握が必要とされている。そこで、自動車トンネルでのVOC計測を行い、実走行状態での排出係数を推定した。その他の発生源については、既存の排出係数の精査、地方自治体による化学物質使用実態調査結果、汚染物質排出・移動登録（PRTR）パイロット調査データなどに基づいてVOCの排出係数を検討した。VOC排出量の空間分布の推計に当たっては、活動量あたりの排出係数と、道路交通量や工業統計などの社会・経済活動量データとを組み合わせて地域ごとの排出量を推計するシステムを開発した。環境モニタリングについては、VOC成分の中で重要な成分を40程度選び連続自動分析し国内外の測定値を評価した。これらのデータや特別観測による立体分布データ、気象観測データ等を利用して、大気汚染シミュレーションモデルによる解析を行った。また風洞実験やモデル解析を行い局所、都市、広域大気汚染のメカニズムを解析・評価した。

### 1.3 本研究で得られた成果の概要

#### 1.3.1 VOC排出量推計に関する調査・研究

##### （1）VOCの発生源別排出推計手法の検討

まず、従来の調査において対象とされてきた発生源ごとの推計手法を再整理するとともに、排出量の把握対象に大きな漏れがないかどうかを検討した。大規模固定発生源については、今後事業者による排出量の把握・報告が進むと見込まれることから、本研究では非点源に力点をおくこととした。自動車起源の排出について、従来推計対象とされてきた通常走行時の排気管からの排出に加え、コールドスタート時の排出増加、アイドリング時の排出、燃料供給系からの蒸発による排出や未規制自動車の寄与を加えて概算値を推計した結果、その寄与は従来の推計結果よりもかなり大きくなることが見込まれた。そこで、本研究では、総排出量に占める割合が大きく、既存の調査・推計の延長のみでは誤差が大きいと考えられるものの中から、固定蒸発発生源のうち、塗料・溶剤関連 移動発生源のうち自動車排出ガス 自動車燃料供給系からの蒸発発生の3分野について、成分別・地域別の排出量推計を行った。また、自動車の走行時の排出について、自動車トンネル内外の実測濃度をもとに、

成分別の排出係数の推定を行った。

これらの結果を踏まえ、本研究で詳細な推計対象としなかった発生源も含め、排出推計の現状と主な課題をまとめた。

##### （2）塗料・溶剤関連の排出推計

我が国において最大のVOC人為発生源と考えられている塗料溶剤の蒸発による排出量について、成分別、地域別推計を試みた。従来の推計例では、塗料製造業による溶剤の種類別使用量を出発点とし、VOCの成分組成は、大気中のVOC濃度実測データから推定していたが、この方法では、溶剤種類の変更や除去対策などの状況を反映しにくいこと、溶剤組成を正しく表現していないことなどの問題があった。そこで本研究では、推計の出発点を、需要産業別の塗料の生産量とし、塗料の用途を需要産業別、地域別に追跡する考え方を適用し、これに塗料種類別の溶剤含有率、使用量、溶剤の成分組成を組み合わせることによって、溶剤使用の実態をよりきめ細かに反映させることを試みた。出荷された塗料に含まれる溶剤の量と、塗装時に希釈用および洗浄用に使用される溶剤の量を、塗料の用途ごとに推計した結果、VOCの発生量は90.9万トンと推計された。これらの大部分が大気中に排出されるが、一部は廃溶剤として回収・再生利用されたり、建屋から排出される際に燃焼処理される。その量を差し引いて、大気中への排出量を求めた結果、82.5万トンと推計された。塗料の用途別内訳では建物、自動車、電気・金属などが上位を占めた。

##### （3）自動車排出ガス関連の排出推計

シャシーダイナモ試験等で得られた車種別排出係数に基づいて通常走行時の排気管からのVOC等の排出量推計を行った。本研究では、普通貨物車の重量区分別の走行量や、昼間の走行量と夜間を含む1日の走行量の比（昼夜率）が車種別、道路種別に異なることなどを考慮することによって推計手法の改善を行った。車種別、燃料種別、道路種別の発生量を求めた結果、VOCには、ベンゼンのように主にガソリン車から排出される物質と、ホルムアルデヒドのように、主にディーゼル車から排出される物質があり、後者の車種別寄与率は、NO<sub>x</sub>や粒子状物質（PM）の車種別排出寄与率と類似のパターンを示した。一方、ガソリン車からの排出が多い物質では、排ガス規制の緩い軽貨物車からの排出が多いことが

特徴であった。今回の詳細な推計対象には加えなかったが、二輪車からの排出も多いと考えられ、実態把握が望まれる。VOC総量でみた場合も、ガソリン車とディーゼル車、乗用車と貨物車からほぼ同等の寄与がみられたが、これは、軽貨物車などのガソリン車からの排出寄与の大きい物質と、大型のディーゼル車からの排出寄与の大きい物質が含まれるためである。また、道路種別の内訳結果からは、車種別排出寄与を反映して、ホルムアルデヒドでは、PMやNO<sub>x</sub>と同様、大型車の比率の大きい幹線道路の割合が大きく、ベンゼンでは細街路からの寄与も相対的に大きくなっていった。

なお、走行している普通貨物車の平均車量は、大型車ほど保有1台当たりの一定期間内の走行距離が大きいという性質を組み入れた結果、従来用いられてきた方法に比べて大きな値となった。排出量の推計値もこれとともにより実態に近い値となっていると考えられる。平成9年度のVOC排出量の推計値は23.4万tとなったが、これは平成6年値の従来推計値25.1万tに比べて7%の減少であった。NO<sub>x</sub>排出量が26%増であったことを考え合わせると、従来の推計値が貨物車の車重の設定による過小推計であった一方で、この間の新型車への代替によるVOC排出係数の低下がみられたためと考えられる。

#### (4) 自動車燃料供給系からのVOC蒸発排出量推計

自動車に関連するVOC排出については、通常走行時の排気管からの排出だけでなく、駐車時などにおける車両内の燃料供給系統からの蒸発による排出(エバポエミッション)、自動車や給油施設へのガソリン供給時の蒸発による排出の存在が指摘されている。本研究では、駐車中の気温変化に伴う燃料タンクの呼吸による排出(呼吸ロス)、自動車へのガソリン給油時における燃料タンクからの排出(給油時ロス)、ガソリンスタンドにおけるガソリン受入時の地下タンクからの排出(受入時ロス)の3種の排出について、排出量を推計・把握した。

具体的には自動車保有台数、ガソリン販売量、気温の3つの統計情報を基礎として推計を行った。他の排出源に関する推計手法開発と同様、詳細な地域分布の推計を目指し、地域ごとにガソリン組成成分別の蒸発量の物理化学計算を行い、気温分布、地域別自動車保有台数、ガソリンスタンド位置などの地域分布データを計算に用いた。

ガソリン組成は、本研究において札幌、東京、北九州

で夏と冬に採取し、成分分析を行った40種のガソリン組成を基にして、製油所別系列別組成を考慮の上、都道府県別に推定した。同時に、組成成分ごとのモル分率を算出し、物理化学計算の基礎データとした。

給油時ロスを例に、ガソリンからの蒸発量の月別推移を見ると、気温の高い夏季には冬季の2~3倍の排出量となることが分かった。また、比較的蒸発量の少ない成分ほど、季節差が大きい傾向が見られた。

#### (5) トンネル調査による自動車からのVOC排出係数の実態把握

自動車からのVOCの排出は、従来、総排出量のうち10%強を占めるとされてきたが、本研究では寄与率がより高い可能性が指摘されている。また、自動車の使用は人口の分布とある程度対応しており、影響への寄与は総排出量への寄与に比べて高い可能性がある。さらに、化合物によって排出の状況や物理化学的な性質や毒性が異なるため、個別化合物の排出情報が必要である。実走行に対応した車種別の排出係数(一台、単位走行距離当たりの排出量)は、排出総量の推計や排出の抑制の検討に有用な情報であるが、日本では限られた報告しかなかった。トンネル調査では、トンネルに出入りする空気中のVOC濃度と交通量とを測定し、その結果から、トンネル内を走行する自動車からのVOCの排出実態を調べるため、実際に道路を走行している形式・年式・整備状況等が異なる多数の車両からの、平均的な排出状況を知ることができる。また、排気管からの排出以外の、車両内の燃料供給系からの蒸発による排出も含めて把握できる点が優れている。本研究では、走行速度と車種構成とが異なる二つのトンネルにおける調査結果を解析・評価した。トンネルAは市街地における対向各1車線の比較的短いトンネル(約350m)で、ラッシュ時には渋滞が見られた。トンネルBは高速道路のトンネル(約1,200m)で、両方向各3車線の独立した構造のうち片方向について調査した。

トンネルAの調査では、交通量は日中に多く、深夜から早朝にかけて少なかった。車種構成は比較的一定であり、ガソリン車が大部分を占めていた。平均車速は0~50km/hの範囲であった。トンネルAで得られたVOC個別成分排出係数の中ではトルエンが最も高く、NMHCの15%に相当した。トンネルBでは、平日と週末について調査が行われたが、一日総交通量は同程度、総交通量



が深夜2～4時頃に最低となる変化パターンは共通していた。また、大型車両率は平日で高く週末に低かった。平均車速は76km/hであった。トンネルBにおいても、トルエンの排出係数をもっとも大きかった。

大型車両率が高いと排出係数が高い成分は、*n*-オクタン、*n*-ノナン、1,3-ブタジエン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、スチレン、ホルムアルデヒド、大型車両率が高いと排出係数が低い成分は2,2,4-トリメチルペンタン、2,3,4-トリメチルペンタン、2-メチル-2-ブテンであった。日本における自動車からのVOCの排出係数についての情報は限られており、特にトンネルBでは、これまで国内ではほとんど情報のなかった化合物についての排出係数が得られた。両トンネルで得られた総交通量に対する排出係数を、互いに、また、日本における台上試験の結果および海外のトンネル調査結果と比較し評価した。台上試験との比較では、トンネルA、Bともに化合物による値の大小の傾向は類似していたが、台上試験のガソリン車とディーゼルエンジン車とのいずれよりも大きい排出係数が得られた。この差は、トンネル調査の結果は、実際に道路を走行している、形式・年式・整備状況等が異なる多数の車両からの、平均的な排出状況をより反映していることによると考えられる。

### 1.3.2 VOC環境動態に関する調査・研究

#### (6) VOC成分の自動測定と地域比較

炭化水素成分の実態に関しては発生源、環境濃度ともに経年的な変化を把握できるデータは極めて不十分である。このため、環境大気中におけるVOCの動態把握を目的として、独自の開発した自動分析システムを用いて、関東地域等においてフィールド観測を実施した。また、同一の自動分析システム関東地域とメキシコ市に設置しデータを収集・解析し、地域的な特徴を把握した。メキシコ市との比較測定の結果によれば、メキシコ市におけるVOC濃度は関東地域と比較して極めて高く、中でもプロパン、ブタンは10～30倍の値を示した。しかしベンゼン濃度に関しては関東地域とメキシコ市との間に大きな濃度差はなかった。共同フィールド観測のうち、1999年の夏季は北太平洋の高気圧が北偏していたため大気汚染は低濃度で推移したが、モデル検証のためのデータセットを得た。冬季においては、大気汚染物質が蓄積し高濃度が出現するメカニズムを立体的に把握することができた。また、今回の観測において初めてアルデヒド類

や、ガス状硝酸などの立体分布を把握することができた。

#### (7) 関西地域における春季大気汚染とVOC

関西地域においては冬季と共に、春季にも大気汚染の濃度が上昇する。この地域における高濃度汚染を解明するために、数値モデルを用いた検討を行った。まず、1993年4月に実施した航空機観測等のデータベースを用いてモデルを検証し、このモデルを基に発生源が環境濃度に及ぼす影響を評価した。解析の結果、大阪湾周辺地域の二酸化窒素汚染には大阪湾上の船舶から排出された窒素酸化物が大きな寄与を及ぼしていること、二酸化窒素汚染の分布には大阪湾周辺の局地風循環の影響が大きいことがわかった。また大阪平野周辺の丘陵・山岳地域においてオゾンの濃度が高くなる理由として、混合層の発達に伴う上空からのバックグランドオゾンが取り込みと、地上付近での一酸化窒素との反応によるオゾンの消失が原因であることがわかった。

数値実験から以下の結果が得られた。1) 二酸化窒素の生成過程を期間平均で評価するとモデル領域内からの直接一次排出量の割合が10%、モデル境界からの流入量の割合が40%、モデル領域内での反応による生成が50%であった。モデル領域内での反応による生成0%の内訳は+60%がオゾンとの反応による生成、-10%が光化学反応による消失である。2) 大阪湾周辺地域の地上におけるオゾンのソースを期間平均で評価すると、光化学反応による生成寄与が10%、バックグランドオゾンの寄与が90%となっており、バックグランドオゾンの寄与が圧倒的に大きい。3) 発生源強度を変えた数値実験の結果によれば、モデル領域内の窒素酸化物排出の削減量と環境中の二酸化窒素濃度との間には線形関係が成立しており、窒素酸化物排出総量の削減が二酸化窒素濃度の低減に効果的である。4) 炭化水素発生源の発生量の削減は二酸化窒素の環境濃度の低減にはあまり貢献しない。5) 二酸化窒素濃度に対するバックグランドオゾンの寄与は大きいですが、特バックグランドオゾンの濃度が低い場合に、その傾向が顕著である。

#### (8) 広域大気汚染解析

急速な経済発展による燃料消費の増加を背景に、東アジアでは越境大気汚染が問題であり続けている。この越境大気汚染に関する研究を実施した。本特別研究にお

いては、現在もEPAで開発が続けられている第三世代の大気質モデリングシステム Models-3/CMAQを用いてEPAと共同で、東アジアにおける大気物質輸送の解析を実施した。解析項目は硫酸エアロゾル、オゾンの濃度分布と、VOC発生源に関する感度解析である。移動性の高低気圧の到来により、高気圧の後面で高濃度域が北東方向に運ばれ、その後冬型の気圧配置が戻り朝鮮半島付近は北傾向の風となり高濃度域は南へと運ばれること。このように、冬型の気圧配置が緩み、また強まることが硫酸エアロゾルやオゾンの輸送に関与していることがわかった。またオゾン分布のVOC排出量に対する感度実験を行った。計算にあたっては、中国大陸からのVOCの発生量として現状の推定値を用いた場合と、VOC発生量を半分に設定した場合の比較を行った。オゾンの月平均値でくらべると、両者の計算の濃度差は、差の大きいところでVOC発生量を半分に設定した場合の方が5ppb程度濃度が低くなっていた。差の大きい地点で詳細に比べると、数ppbから20ppb程度日最高濃度が低くなっていることがわかった。

#### (9) 大気汚染濃度のトレンド

大気汚染濃度の経年的な変化傾向を調べるために、20年間にわたるトレンド解析を行った。解析の結果、東京首都圏地域や近畿地域等の大都市地域ばかりではなく、全国的にオキシダントの年平均値が増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局におけるオキシダントの経年変動も増加の傾向が認められ、これと共にナイトレートの沈着量も増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局は全国の測定局の中でも、最も窒素酸化物濃度が低い測定局の一つであり、近傍には大きな大気汚染発生源がないことから大陸方面からの移流大気汚染量が増加していると考えられる。

#### 1.3.3 風洞実験による沿道大気汚染の研究

VOCの発生源として大きな比重を占める自動車排ガスによる沿道大気汚染に関する風洞実験を実施した。自動車排ガスによる大気汚染の濃度は、沿道周辺地域において最も高くなる。特に、両側を高い建物にはさまれた谷間の道路（ストリートキャニオン）では、従来から局所高濃度汚染の発生が懸念されながらも、大気汚染物質の拡散機構は明らかでなかった。この理由は主に、沿道における流れと拡散の場が複雑かつ多様で扱いにくかつ

た点にある。本研究においてはレーザー流速計を用いて市街地模型内部の強く乱れた流れ場を測定し、道路形状（道路の幅、沿道の建物高さなど）や大気安定度と汚染濃度分布との関連を調べた。

#### (10) 道路幅、建物高さ、大気安定度による影響

道路幅・建物の高さ・大気安定度などの影響を観察しやすくするために、街並みを単純な形状のブロック（街区模型）で置き換えた実験を実施した。この基礎的な模型のほかに実市街地の縮尺模型を用いた事例研究も実施した。測定対象としては最近数年間の自動車排ガス測定局測定結果でNO<sub>2</sub>またはSPM濃度が高く、道路構造が特異でない交差点を選定し、縮尺1/300の模型を製作し実験を実施した。

実験の結果、次のことが明らかになった。1) 道路幅が沿道建物の1倍から2倍程度のとき、ストリートキャニオンには建物とほぼ同じスケールの、安定な渦（キャピティ渦）ができる。2) ストリートキャニオン内部の大気汚染濃度分布はキャピティ渦の強さや安定性によって変わる。例えば、道路の風下側の建物が周辺の建物よりも高く、キャピティ渦の勢いが強いときには濃度が低い。逆に、道路風下側の建物が周辺よりも低くキャピティ渦ができないときには濃度が高くなる。大気安定度の影響も同様である。キャピティ渦が強くなる不安定成層時（晴れた日の日中）にはストリートキャニオン内部の濃度は低く、逆転層が強くとキャピティ渦の勢いが弱まるとき（晴れた日の夜間）に濃度が高まる。3) ストリートキャニオン内部の濃度分布を簡易に予測できる改良SRIモデルを提案し、予測式のさらなる実用化への展望を示した。

#### (11) 複雑な道路構造の影響に関する基礎的検討

複雑な道路構造の影響を調べるために、二段階に分けて実験を行った。第一には交差点を中心とした幹線沿道周辺市街地の濃度分布を広い範囲で立体的に測定し、沿道大気汚染の周辺市街地への広がりを把握した。第二には地上との高架道路との二重構造になっている道路断面内部の流れと大気汚染物質の拡散状況を測定し、二重構造化した道路における局所大気汚染濃度分布の現状の把握、高架道路の存在の有無による影響の評価、高架道路の高さによる沿道大気汚染濃度分布の変化の把握などを実施した。

交差点周辺市街地の濃度分布に関しては、周辺の建物と気象との相互関連性を主に通風阻害による高濃度発生の関連で解析・評価した。二重構造（平面＋高架道路）の道路断面における濃度分布に関しては、高架道路がストリートキャニオン内部の濃度分布に及ぼす影響を調べるために、高架道路の高さを現況、現況の1.5倍、現況の2倍、高架道路なしの4段階に変えて道路断面内部の濃度分布と流れ場を詳しく調べた。実験結果によれば、現況と高架道路なしの分布を比べると、地上付近の濃度分布には大きな差が見られなかった。これについては次の二つの理由が考えられる。第一には、ストリートキャニオン内への新鮮空気の流入は風下建物の壁面近くの比較的薄い層によって行われるので、高架道の存在影響を強く受けない。このために、ストリートキャニオン全体の換気量が高架道の存在によって大きく低下しない。第

二には、建物側面下部からの汚染物質の流出が高架道路の存在によって増加し、このために地上付近の風速低下による濃度上昇が相殺されるためである。すなわち、高架道がない場合、このケースでは建物高さや道路幅の比率は約1.4倍であり、ストリートキャニオン内には強いキャビティ渦ができる。このため、地上の汚染ガスはキャビティ渦によってストリートキャニオン内を循環し、均一化した後に道路の上部または建物側面から排出される。一方、高架道路がある場合には道路面に強いキャビティ渦が存在しない。このため、大気汚染物質は弱い逆流によって風上建物下部に運ばれた後、強く攪拌されずに、濃度の高いままストリートキャニオンの隙間の建物端から風下に流出してしまう。以上の理由から、高架道の存在によるストリートキャニオンの全体的な濃度上昇が少ないものと推察した。

## 2 研究の成果

環境大気中におけるVOCの動態を評価するにあたってはそれぞれの成分の光化学大気汚染生成能と有害性、および濃度が重要なファクターとなる。中程度の光化学大気汚染生成能の物質であっても濃度が高ければ光化学オゾンのトータルな生成量は大きい。表1にオゾン濃度増加の寄与を示す指標であるMIRと発ガンユニットリスクを示す指標であるURを代表的な成分について示す。MIR, URともに高い値を示す物質として1-3ブタジエン、ホルムアルデヒドがある。ベンゼンはMIRは低いがURは高い。本研究においては光化学反応性、濃度、有害性を軸にVOCの発生源と環境動態を明らかにする。

### 2.1 VOCの発生源別、成分別、地域別排出量に関する調査・研究

#### 2.1.1 VOC排出量推計の問題点と本研究における推計対象

VOCの発生源は多様であり、その分類について明確な規定はないが、環境庁（当時）により実施された委託調査によれば、表2のような分類が用いられてきている。

表1 代表的なVOCについての光化学大気汚染生成能（MIR：炭化水素成分、単位重量あたりのオゾン生成量）と発ガンユニットリスク（UR：単位濃度あたりの発ガン率）

単位  
オゾン濃度増加の寄与（MIR: オゾン/グラム VOC成分）米国 CARB  
発ガンユニットリスク（UR: 1マイクログラム/立法メートル）米国 EPA

(アルカン類)		
メタン	MIR=0.010	
エタン	MIR=0.147	
プロパン	MIR=0.33	
イソペンタン	MIR=0.88	
(アルケン類)		
プロピレン	MIR=6.6	
イソブレン	MIR=6.5	
1-3-ブタジエン	MIR=7.7	UR=2.8×10 <sup>-4</sup>
(アルキン類)		
アセチレン	MIR=0.37	
(芳香族類)		
ベンゼン	MIR=0.3	UR=2.2-7.8×10 <sup>-6</sup>
トルエン	MIR=1.9	
mキシレン	MIR=6.0	
o,pキシレン	MIR=5.2	
エチルベンゼン	MIR=1.8	
(含酸素化合物)		
ホルムアルデヒド	MIR=6.2	UR=1.3×10 <sup>-5</sup>
アセトアルデヒド	MIR=3.8	UR=2.2×10 <sup>-6</sup>

表2 人為起源VOC発生源の分類例

総量	固定	蒸発系	精油所・油槽所			
			製造工程			
			給油所			
			溶剤使用	塗装	工場ライン	自動車新車
						電気・金属
					工場パッチ	自動車補修
						機械・鉄道
					工場ラインパッチ	木工・建築資材
					屋外塗装	建物
						構造物
					船舶	
				その他		
			工業用溶剤	印刷インキ		
				その他		
			クリーニング			
その他						
燃焼系						
移動	自動車	規制対象車	乗用車, バス	ガソリン車		
				ディーゼル車		
			貨物車	ガソリン車		
			ディーゼル車			
		二輪車				
		産業・建設・農業機械				
船舶						
航空機						
鉄道						



また、自動車の走行時の発生について、自動車トンネル内外の実測濃度をもとに、成分別の排出係数の推定を行い、シャーシダイナモ試験等による従来の報告値との比較を行った。

### 2.1.2 塗料溶剤関連のVOC排出量推計

VOCの排出実態把握のために、我が国において最大の人為発生源と考えられている塗料溶剤の蒸発による排出量について、成分別地域別推計を試みた。

#### (1) 排出推計手法

##### 1) 推計の基本的考え方

従来の推計例では、平成2年度に調べられた塗料製造業による溶剤の種類別使用量を出発点として、これと需要産業別の塗料溶剤使用量伸び率から近年の使用量を推定し、需要産業別の溶剤使用量構成比によって各産業に配分していた。また、需要産業の活動量を示す指標で地域分布推計を行っていた。VOCの成分組成は、溶剤の成分組成ではなく、発生源周辺における大気中VOC濃度実測値から推測した組成を用い、排出抑制対策による除去率は昭和58年度調査で得られた全用途一律の値を用いていた。これらの方法では、需要産業ごとの溶剤種類の違いや除去対策などの状況を反映しにくいこと、実際に塗料に含まれる溶剤の成分を正しく反映していないこと、および一部でデータが古く精度が悪いことなどの問題があった。

そこで本研究では、図2に示すフローに従いより実態に即した推計を目指した。まず、推計の出発点を従来の溶剤使用量ではなく、需要産業別の塗料の生産量とした。すなわち溶剤起源のVOCの排出は塗料の消費に付随するという視点から、生産・出荷された塗料の用途を需要産業別、地域別に追跡する考え方を適用し、これに塗料種類別の溶剤含有率、使用量、溶剤の成分組成を組み合わせることによって、需要産業別の溶剤使用の実態をよりきめ細かに反映させることを試みた。排出抑制対策による除去率も、産業別に与えるよう、業界へのヒアリングを行った。

##### 2) 全国排出量の推計方法

上記の考え方に沿った推計方法の概略を以下に示す。推計は平成9年度を対象としたが、それ以前のデータしか利用できない場合が多く、必要に応じて補正を加えた。

日本塗料工業会が行った用途別・種類別塗料生産

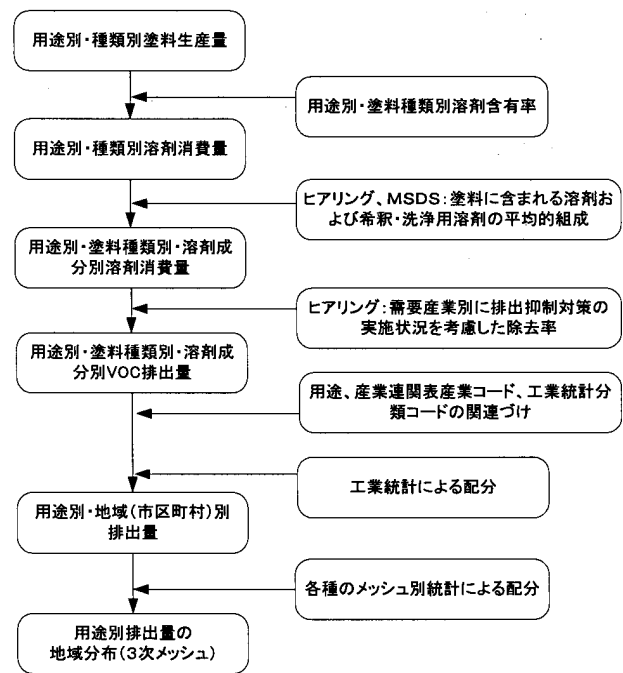


図2 塗料溶剤関連のVOC排出推計フロー

量、溶剤使用量などに関する調査研究を基礎データとして用いた。これは平成2年度データであるため、化学工業統計における種類別塗料生産量、日本塗料工業会による用途別塗料販売量などの時系列データを用いて、フレーター法による収束計算で近年の用途別・種類別塗料生産量を推計し、その妥当性を業界ヒアリングにより確認した。

この生産量と、用途別・塗料種類別溶剤含有率に関する平成2年時点の業界資料およびその後の動向に関する関連業界（日本塗料工業会、大手塗料使用事業所）ヒアリング結果から平成9年度における用途別・塗料種類別溶剤消費量を推定した。この際、塗料として生産・出荷されたものに含まれる溶剤のほか、希釈・洗浄用の溶剤についても、塗料の用途・種類別に推定した。

MSDS（製品安全データシート）、関連業界（日本塗料工業会、大手塗料使用事業所）ヒアリングなどにより、用途別・塗料種類別に溶剤の平均的組成を、トルエン、キシレンなど主要10数成分について推定した。この組成と、溶剤消費量から、成分別の溶剤消費量を求めた。

関連業界（塗装機器工業会、排ガス処理装置メーカー、大手塗料使用事業所）ヒアリングにより、平成9年度における排出抑制対策実施状況を考慮した大気排出率を設定した。

以上のデータに基づいて、用途ごとに塗料の種類・溶剤の成分別に全国における塗料溶剤の蒸発によるVOC排出量を推計した。

### 3) 排出量の地域分布推計方法

VOCやこれに起因する二次生成大気汚染の動態解明のためには、上述の成分別発生量とともに、発生量の空間分布の推計が重要である。そこで、以下の方法を用いて、塗料需要産業の活動量を示す指標から排出量の地域分布を推計した。

平成2年および7年の産業連関表による塗料の産出先別金額と日本塗料工業会による用途別塗料販売量との対応関係を考慮し、さらに産業連関表の部門分類と工業統計の業種区分の対応表を介して、日本塗料工業会における用途区分と工業統計・事業所統計の業種区分の関連づけを行った。

上記結果と、工業統計（都道府県・市区町村別原材料使用額）に基づいて、製造業関連塗料について用途別溶剤成分別VOC排出量を地域（市区町村）に配分した。これをさらにメッシュ事業所統計（該当産業従業者数）で3次メッシュ（経緯度により区分された約1km×1kmの格子）に配分した。

建物、構造物、自動車補修、家庭用、路面表示等の用途による排出については、以下の方法で3次メッシュに配分した。i) 建物：建築統計（補修用途は、産業連関表から新築の1/3以下となり比率が低いことを確認し、対象から除外）による市区町村への配分、メッシュ夜間人口による住宅分、およびメッシュ昼間人口によるオフィス分のメッシュへの配分を行った。ii) 構造物：橋梁、土木とプラントの用途構成比を産業連関表から2：1と推定し、前者はメッシュ別土地利用別面積（幹線交通）で直接3次メッシュに、後者は、工業統計総工業出

荷額で市区町村に配分した後、メッシュ別土地利用別面積（建物用地）で3次メッシュに配分を行った。iii) 自動車補修：市区町村別自動車保有車両数およびメッシュ事業所統計自動車整備事業者数で3次メッシュに配分した。iv) 家庭用：メッシュ夜間人口で直接3次メッシュに配分した。v) 路面表示：道路統計年報の道路事業費（舗装新設・補修）で都道府県に配分し、メッシュ別道路面積（DRM（デジタル道路地図）をメッシュ分割し、メッシュ内道路延長および車線数から算出した）で3次メッシュに配分した。

### (2) 結果と考察

平成9年度の塗料の出荷量の推計値は約220万トンであり、用途別では、建物（61万トン）、自動車（新車36万トン+補修11万トン）、電気・金属（27万トン）などが上位に位置する。塗料の種類別では、溶剤型の合成樹脂塗料が約100万トンを占める。出荷された塗料に含まれる溶剤の量と、塗装時に希釈用および洗浄用に使用される溶剤の量を、塗料の用途ごとに推計した結果、その総量は90.9万トンと推計された。これらの大部分が大気中に排出されるが、自動車製造業や工業製品製造業などでは、排出抑制対策のために一部は廃溶剤として回収・再生利用されたり、建屋から排出される際に燃焼処理される。その量を差し引いた大気中への排出量は82.5万トンと推計された。図3および4に、それぞれVOC排出量の塗料用途別内訳と溶剤成分別内訳を示す。塗料出荷量と同様に、用途別では建物、自動車、電気・金属などが上位を占める。成分別では、従来の推計方法に比べて、

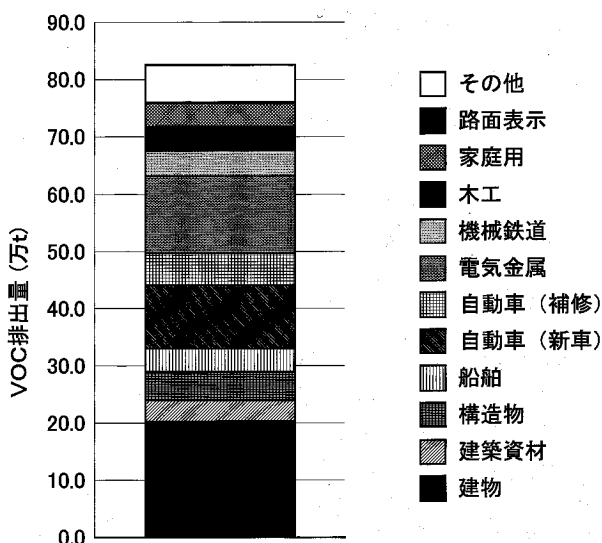


図3 塗料用途別の溶剤起源VOC排出量

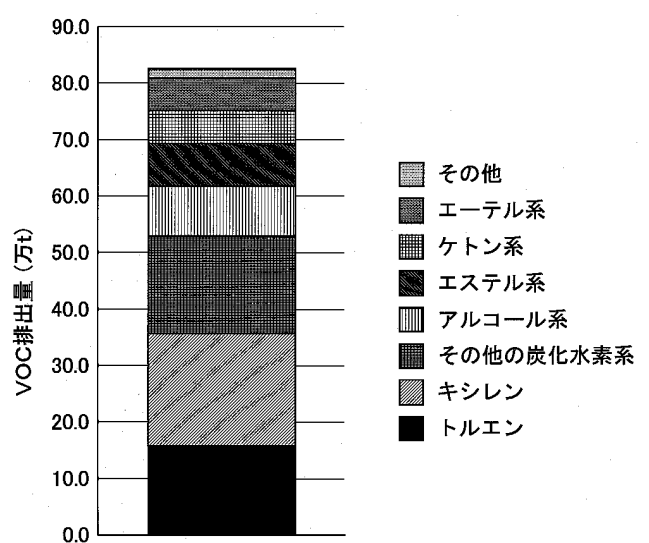


図4 溶剤成分別VOC排出量

キシレンの比率が高目に得られたが、これは、「PRTRのための塗料標準組成表」において、溶剤中のキシレンの構成比が高かったことによる。溶剤の成分構成比について、本推計では、資料や業界ヒアリングをもとに設定したが、その値の妥当性については、実際の塗料の分析や発生源における排出濃度との比較等によって検証する必要がある。

なお、従来のNMHC（非メタン炭化水素）排出推計では、平成6年度の溶剤消費総量は90.1万トン、全国一律除去率-7.46%を考慮した総排出量は83.4万トンとされており、全体として大きな変化はおきていないようである。なお、適用した地域分布推計手法の性質上、人口、産業の集中地域で溶剤起源のVOCが集中して排出される結果となっており、組成についても地域間で多少の偏りがある結果となった。

### 2.1.3 自動車排出ガス中のVOC等各種成分の排出量推計

#### (1) 自動車排出ガス原単位、排出総量推計の現状

自動車排出ガスはさまざまな大気汚染物質の重要な発生源である。我が国では、自動車排出ガス中のVOCについてはHC（総炭化水素）として排出規制が行われ、環境濃度のモニタリングもHCあるいはNMHCとして測定されている。光化学オキシダントの生成要因物質として、自動車排ガス起源のHCの排出量やその成分構成について、従来から調査研究が行われてきているが、HCとVOCとが必ずしも明確に区別されていない場合が多い。

自動車排ガスの各種成分の排出規制は、特定のテストモードでの排出係数（走行距離あたりの排出量）について実施されているが、実際の排出係数は走行モードに大きく依存する。実走行モードのシャシーダイナモ試験に基づく排出係数を用いた規制物質等の排出量の全国レベルでの推計が、環境庁により行われ、平成0年に平成6年までの推計値が報告されている。この報告では、シャシーダイナモ試験で実測されたCO<sub>2</sub>排出係数に基づく全国の自動車排ガス起源のCO<sub>2</sub>排出量と、自動車用燃料消費量の統計値から推計されたCO<sub>2</sub>排出量の比較が行われ、前者が後者の約70%と、過小となることが指摘されている。このことは、VOCやNO<sub>x</sub>などについても、同様の推計手法を適用すると過小予測となる恐れがあることを意味する。

一方、このこととは別に、こうしたシャシーダイナモ

試験による測定値が実際の使用条件下による排出量よりも過小となる要因もいくつか指摘されてきた。そのひとつは、エンジン始動直後、とくに低温時において、排ガス処理装置の触媒が十分に機能しない段階で生じる、いわゆるコールドスタート時の排出増加である。また、とくにVOCについては、排気管からの排出だけでなく、エバポエミッション（車両内の燃料供給システムからの蒸発による排出）の存在が指摘されている。

そこで本研究では、排気管からの排出について、シャシーダイナモ試験による車種別排出係数と走行量に基づく排出量推計の精緻化を行い、従来の推計法との比較を行った。また、エバポエミッションの寄与、および燃料給油施設で生じる蒸発エミッションについては、次項(2.1.4)で扱う。なお、コールドスタート時の排出増加については、JCAPプロジェクトで詳細に調査されていることから、本研究では対象外とした。

#### (2) 通常走行時の排気管からのVOC等の排出量推計

ここでは、シャシーダイナモ試験等で得られた車種別排出係数に基づいて、国全体の排出量および地域分布を推計する手法について述べる。本研究では、VOCの総量および主要成分を求めるためにこれを適用するが、推計手法自身は汎用性があり、車種別・速度別排出係数が得られていれば、NO<sub>x</sub>や粒子状物質（PM）などの排出推計にも利用できる。排出係数からの「積み上げ」に基づく方法が過小推計になる要因を検討し、本推計では、普通貨物車の重量区分別の走行量や、昼間2時間の走行量と夜間を含む24時間の走行量の比（昼夜率）が車種別に異なることなどを考慮することによって推計の改善を行った。また、こうした係数を地方区分別に設定して推計を行うことで、排出量分布推計をより正確に行うことを目指した。

##### 1) 方法

道路交通センサス全国データより、8車種別昼夜間別に走行台キロの推計を行った。12時間調査区間についても、道路種別による昼夜率の差異を考慮して8車種別に夜間交通量の推計を行った。

自動車輸送統計年報による全国走行量と道路交通センサスで得られた幹線道路走行量の差から、細街路における走行量の推計を行った。その際、自動車輸送統計は一部の特種車の走行量データを含まないため、諸分類別



自動車保有車両数統計より消防車や非貨物特種車等の走行量を推計した。

同一の車種区分に多様な車格の車が含まれ、排出係数が台キロ当たりではなくトンキロ当たりで与えられる「普通貨物車」について、走行量からみた平均的な車重を設定した。まず、普通貨物車を営業用、自家用各々について、保有台数の車重別の分布を参照して大型、小型に2分し、自動車輸送統計年報による輸送トン数、輸送トンキロに合うように、大型、小型別に年間平均走行距離を求めた。この際、車両の自重と積載能力の関係、積載率の実績を用いて、貨物の輸送トンキロを車量の自重

を含めたトンキロに変換した。

センサス交通量、細街路交通量それぞれについて、20車種別に速度の関数として求めた排出係数（平成0年3月末時点での車齢構成に基づく）を乗じて、排出量を推計する。排出係数は、既存研究・調査から一部未公表を含む生データの提供を受け、全観測データから最小二乗法により独自に関数を求めた。対象物質は、HC総量およびVOCの個別成分のうちホルムアルデヒド、ベンゼン、1,3ブタジエンの3物質とした。また、従来の推計値との比較のためNO<sub>x</sub>、PMについても推計を行った。VOC排出推計を図5に示す。

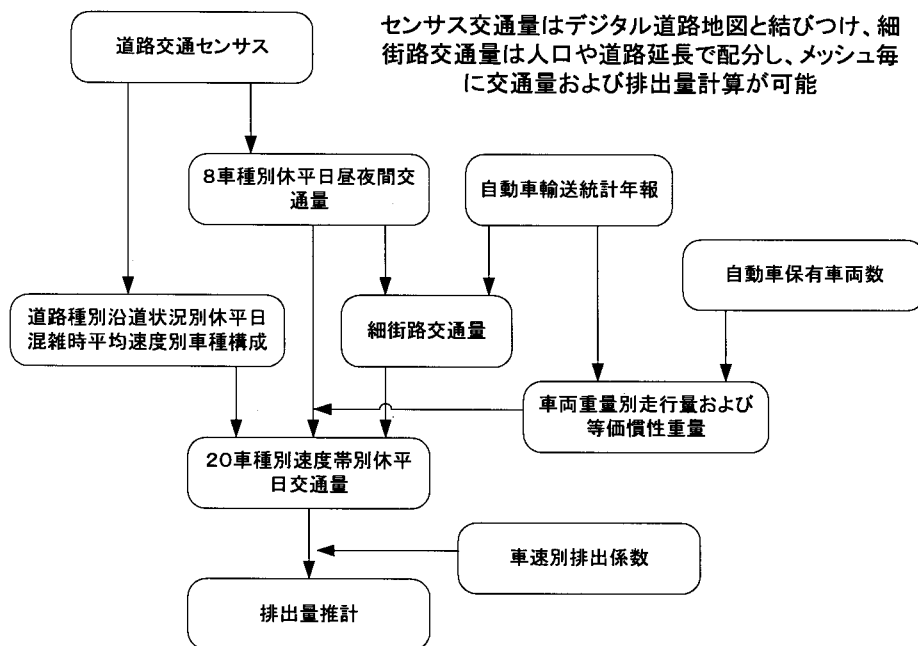


図5 自動車排気ガス起源のVOC排出推計フロー

表3 道路種別・車種別ベンゼン排出量（単位：t）

	細街路	国土開発 幹線自動 車道等	都市高速 道路	一般国道 (直轄)	一般国道 (その他)	主要地方 道(都道府 県道)	主要地方 道(指定市 道)	一般都道 府県道		
総量	23.9	2.4	0.7	25.9	20.1	29.6	3.5	23.3		129.4
ガソリン	23.9	2.4	0.7	25.9	20.1	29.6	3.5	23.3		129.4
軽油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.0
乗用車	355.5	65.8	17.2	188.0	120.9	175.7	22.3	119.1		1,064.6
ガソリン	318.6	59.2	15.4	168.5	108.3	157.4	20.1	106.8		854.3
軽油	34.4	6.1	1.7	19.5	11.8	17.1	2.0	11.8		102.9
乗合車	7.1	7.2	1.1	9.9	7.7	9.9	1.0	6.7		50.6
ガソリン	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.2
軽油	7.0	7.2	1.1	9.9	7.6	9.9	1.0	6.7		50.4
軽貨物	529.0	8.3	3.9	119.4	119.8	183.4	18.1	155.6		1,138.4
ガソリン	529.3	8.3	3.9	119.4	119.8	183.4	18.1	155.6		1,138.4
軽油	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0		0.0
貨客車	75.0	35.6	8.1	44.6	33.9	45.0	3.4	30.1		276.5
ガソリン	36.0	29.4	5.3	23.1	18.9	21.8	1.0	14.3		148.7
軽油	39.8	7.2	2.8	21.5	15.0	23.2	2.5	15.8		127.8
貨物車	58.2	121.3	20.1	170.8	78.4	94.3	8.6	53.8		605.5
ガソリン	0.9	3.9	0.4	2.8	1.4	1.5	0.1	0.8		10.7
軽油	57.3	118.3	19.7	168.1	77.1	92.8	8.5	53.0		594.8
特種車	50.8	17.9	2.1	24.0	13.2	18.3	1.7	11.1		139.2
ガソリン	1.7	1.7	0.1	0.9	0.6	0.7	0.0	0.4		8.1
軽油	49.1	16.2	2.0	23.0	12.7	17.7	1.6	10.7		131.1
合計	1,101.1	258.5	53.2	582.6	394.1	556.3	58.6	399.7		3,404.2
ガソリン	875.0	74.6	20.5	317.8	250.2	372.6	41.8	287.7		2,298.0
軽油	187.7	155.0	27.3	240.8	124.2	180.7	16.7	119.9		1,008.0

## 2) 結果と考察

推計結果は、表3に例示するように、車種別、燃料種別、道路種別に得られる。図6は、上記の対象について推計された排出量の車種別寄与を示したものである。車種は道路交通センサスの貨客車と小型貨物車を統合した7車種区分で示している。VOCには、ベンゼンのように主にガソリン車から排出される物質と、ホルムアルデヒドのように主にディーゼル車から排出される物質があり、後者の車種別寄与率は、NO<sub>x</sub>やPMの車種別排出寄与率と類似のパターンを示す。一方、ガソリン車からの排出が多い物質では、排ガス規制の緩い軽貨物車からの

排出が多いことが特徴である。ここでの推計対象には加えなかったが、二輪車からの排出も多いと考えられ、実態把握が望まれる。1,3-ブタジエンについては、ガソリン車/ディーゼル車、乗用車/貨物車の双方からの寄与が見られたが、推計の基となる排出係数の測定に困難な点があると考えられており、他の物質に比べて推計の精度は低い。VOC総量でみた場合も、ガソリン車とディーゼル車、乗用車と貨物車からほぼ同等の寄与がみられるが、これは、先に述べたとおり、軽貨物車などのガソリン車からの排出寄与の大きい物質と、大型のディーゼル車からの排出寄与の大きい物質が含まれるためである。

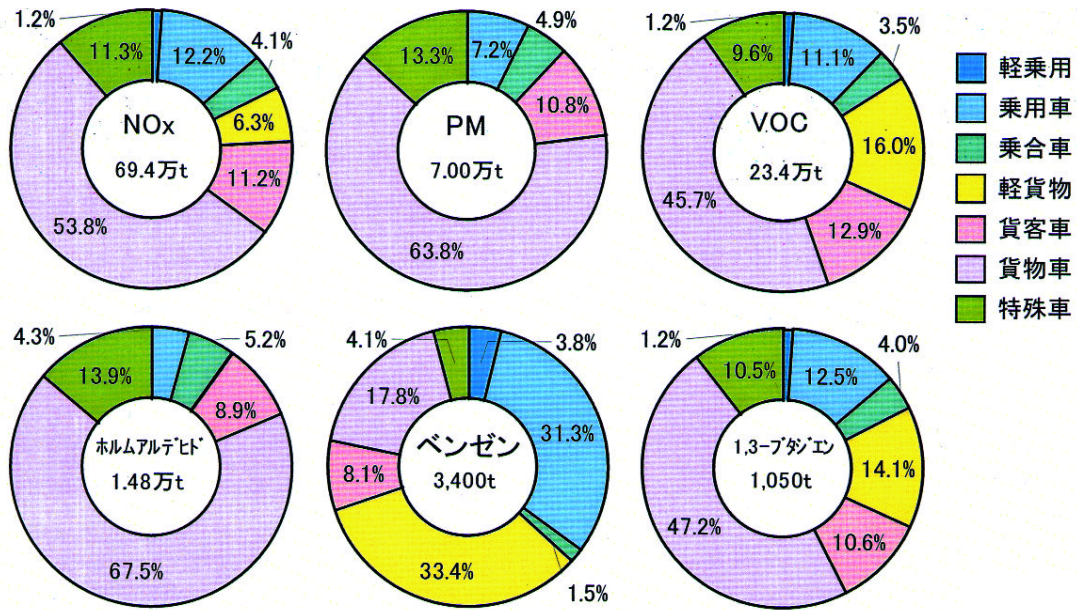


図6 物質別車種別排出比率

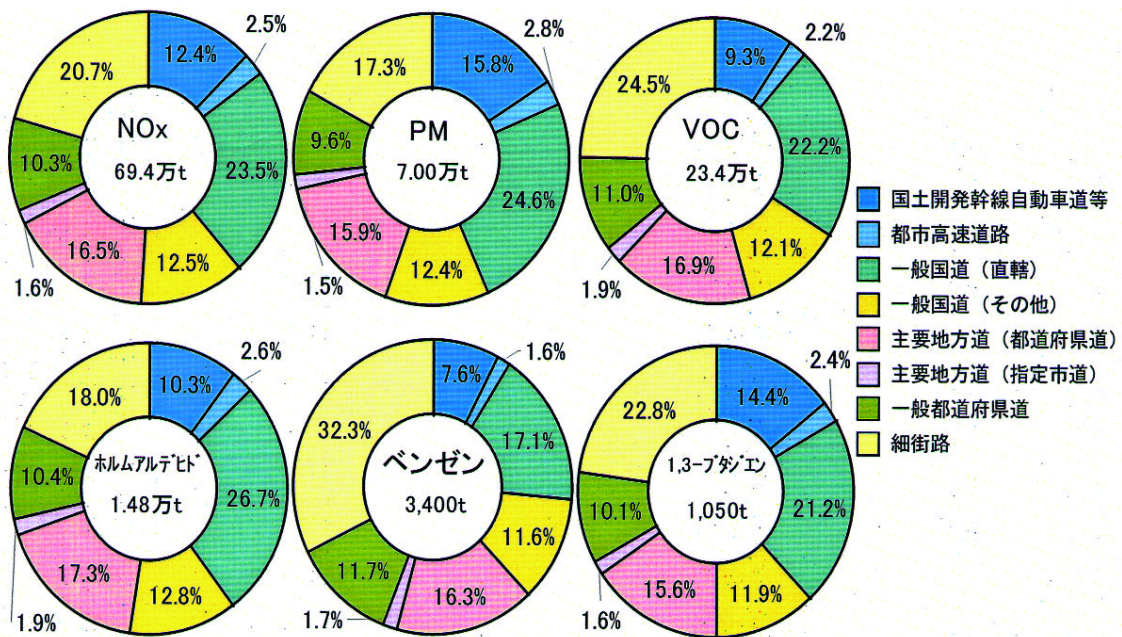


図7 物質別道路種別排出比率

一方、図7は、道路種別の内訳を示したものである。上記の車種別排出寄与を反映して、ホルムアルデヒドでは、PMやNO<sub>x</sub>と同様、大型車の比率の大きい幹線道路の割合が大きく、ベンゼンでは細街路からの寄与も相対的に大きくなっている。

なお、走行している普通貨物車の平均車重は、大型車ほど保有1台当たりの一定期間内の走行距離が大きいという性質を組み入れた結果、従来用いられてきた保有台数ベースの平均車重や東京都内におけるナンバープレート調査に基づく方法に比べて大きな値となった。排出量の推計値もこれとともにより実態に近い値となっていると考えられる。平成9年度のVOC排出量の推計値は23.4万トン、となったが、これは平成6年値の従来推計値25.1万トンに比べて7%の減少であった。NO<sub>x</sub>排出量が26%増であったことを考え合わせると、従来の推計値が貨物車の車重の設定による過小推計であった一方で、この間の新型車への代替によるVOC排出係数の低下がみられたためと考えられる。

本研究による自動車走行時の排ガス推計手法は、車種別・速度帯別の排出係数が得られれば、他の物質についても適用可能であり、自動車交通に起因する大気環境負荷物質の排出推計手法として利用することができる。ここでは、全国推計を行ったが、地方ブロック別に自動車輸送統計データを生かした推計を行うこともできる。また、大型車の通行が特に多い高速道路の交通量を始めに

引き去った上で、同様の推計を行った方が、より妥当な推計となると考えられる。

#### 2.1.4 自動車燃料供給系からのVOC蒸発排出量推計

ここでは、自動車や給油施設へのガソリン供給時や駐車時に蒸発により排出されるVOCの推計を行った。

##### (1) 方法

駐車中の気温変化に伴う燃料タンクの呼吸による排出(呼吸ロス)、自動車へのガソリン給油時における燃料タンクからの排出(給油時ロス)、ガソリンスタンドにおけるガソリン受入時の地下タンクからの排出(受入時ロス)の3つの排出について、推計・把握した。なお、呼吸ロス等の対策としての自動車のキャニスター、受入時ロス対策としてのペーパーリターンについては、その効率および装備・活用率などから、十分な排出防止効果が得られていないと考えられるため、考慮しないことにした。推計フローを図8に示す。推計の基礎データとして、自動車保有台数、ガソリン販売量、気温、ガソリン組成などを用い、他の発生源に関する推計手法開発と同様、環境動態モデルへの入力データとして用いられるように、詳細な地域分布(3次メッシュ単位)を求めた。

自動車保有台数は、市区町村別車種別業態別自動車保有台数と燃料別車種別自動車保有台数を用いて、地域別燃料別車種別業態別自動車保有台数を算出した。さらに、3次メッシュ人口を用いて、この結果を3次メッシュに

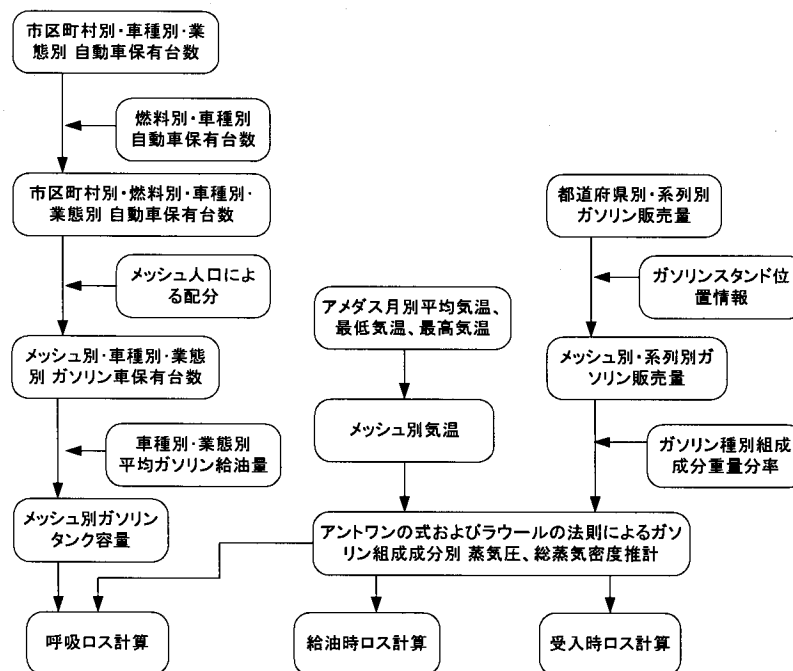


図8 ガソリン蒸発起源のVOC排出推計フロー

配分し、車種別業態別平均ガソリン給油量を用いて呼吸に関するメッシュ別ガソリンタンク容量を求めた。

ガソリン販売量については、都道府県別系列別ガソリン販売量を、ガソリンスタンド位置情報を用いて3次メッシュに配分した。ガソリンスタンド位置情報は、電話帳に基づいて作成された市販のガソリンスタンドデータ(73,000件あまり)から、名称や位置情報を用いて、事務所や重複するデータを取り除き、通産省統計とほぼ一致する50,000件程度に絞り込んだものを用いた。ガソリン組成は、本研究において札幌、東京、北九州で夏と冬に採取し、成分分析を行った10種のガソリン組成を基にして、物流センサスなどを利用し、製油所別系列別組成を考慮に入れた都道府県別の平均組成を推計した。

気温はアメダス観測点における月別平均気温の最近0年間平均値を用いて3次メッシュに補間した。

これらのデータから、以下の手順で排出量を計算した。3次メッシュ毎に該当する気温でのガソリン組成成分毎の蒸気圧をアントワンの式で計算した(アントワン定数およびその推定値を使用)。ラウールの法則を用いて、ガソリン中の組成成分のモル分率と上記で計算された純物質の蒸気圧から、気相における組成成分の分圧を計算した。全圧は、計算することのできた組成成分の分圧の合計を、それらのガソリン中のモル分率の合計(計算カバー率)で割り戻して推定した。平均気温で求められた蒸気圧を密度に換算し、メッシュ別ガソリン販売量を乗

じて給油時ロス排出量、地下タンク温度を5 と仮定して求めた蒸気密度に販売量を乗じて受入時ロス排出量を算出した。また、最低気温から最高気温に気温上昇するにつれて、ガソリンタンク空間内のガソリン蒸気の膨張およびガソリン蒸気圧の上昇が起こってタンクから漏出する蒸気量を呼吸ロス排出量として計算した。

この計算方法の妥当性は、実験で求められたガソリン組成と、温度を0~40 に変化させた場合の蒸気組成および密度の報告値<sup>2)</sup>を用いて、概ね±10~20%の誤差であることにより確認した。

## (2) 結果と考察

図9に計算された3種の排出量の全国合計の月別変化を示す。また、図10に、2月と8月の給油時ロスの組成比率を示す。給油時ロスは、気温が高くなるほど大きく、夏季には冬季の2~3倍となることがわかった。またこの排出は地域による気温差によっても大きく異なっていた。また、図10の例から明らかなように、排出組成は、C4、C5の低沸点化合物が常に大半を占めるが、高沸点の比較的蒸発量の少ない成分ほど、季節差が大きい傾向があった。受入時ロスは、地下タンク温度、ローリーから補給されるガソリンの温度などで微妙に変わると思われるが、十分な情報が得られず、地下に5 でたまっていた蒸気が押し出されるとして仮に計算したため、月別販売量の変化に相当する変化だけが見えている。呼吸ロ

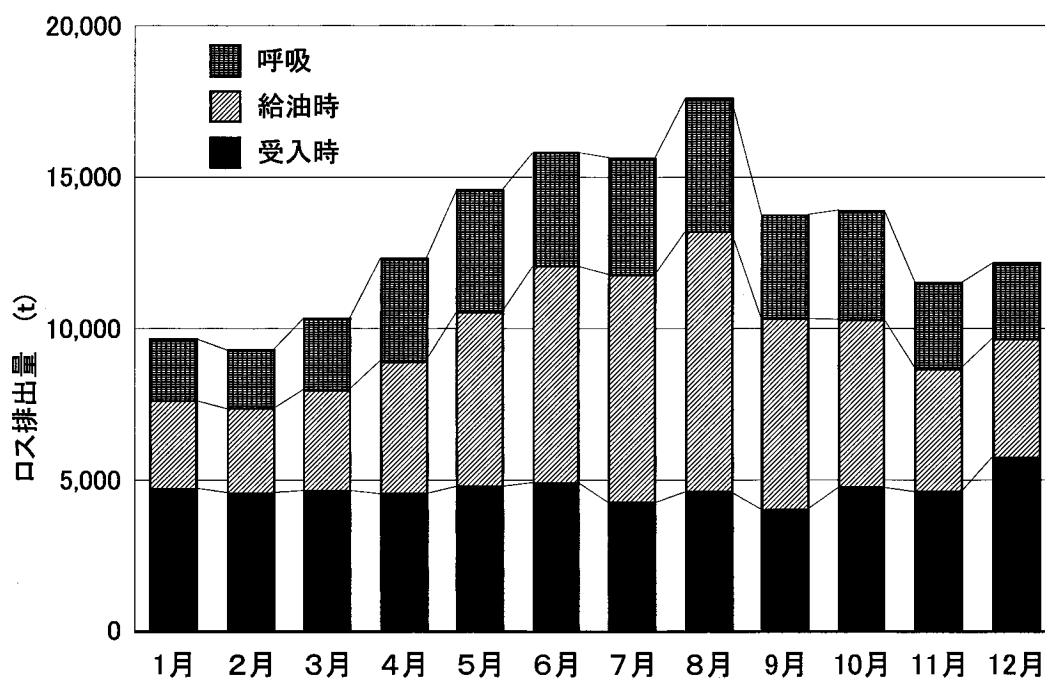


図9 受入時・給油時・呼吸ロスの月別推移

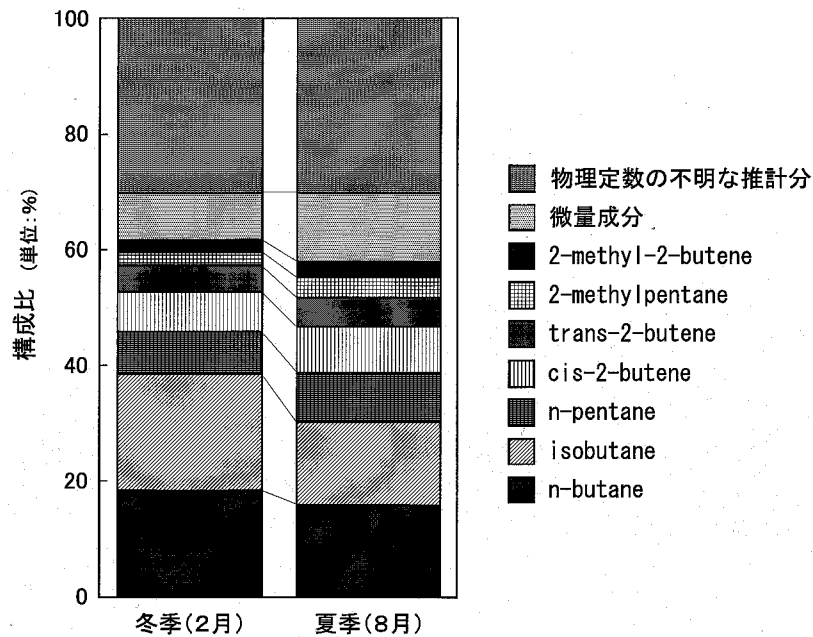


図10 給油時ロスの蒸気組成の例

スは、平均給油量の半分の空きを残してタンクに市販ガソリンが入っているとして計算した。この排出量は、気温の高さだけでなく、気温差の大きい月に大きくなっていった。なお、実際には、ガソリンの低沸点成分が蒸発で失われて、日に日に呼吸ロスが減ると考えられることから、この計算は、過大推計になっていると思われる。

以上のように、若干推計精度を向上させる工夫がまだ必要とされるものの、季節別、地域別（3次メッシュ）、成分別にかなり変化するガソリン蒸発排出量を詳細に推計することができた。従来のガソリン蒸発排出推計は、NMHCトータルとして、昭和50年に実測から出された排出係数受入時ロス1.08kg/k<sub>l</sub>、給油時ロス1.44kg/k<sub>l</sub>にガソリン販売量を乗じて求められてきた。この方法では、受入時ロス5.82万トン、給油時ロス7.75万トン、合計13.57万トンとなるが、本研究では、受入時ロス約5.6万トン、給油時ロス約6.2万トン、合計約11.9万トンである。受入時ロスは前述の簡略な仮推計であるが、給油時ロスは、気温の地域差を考慮したため、より妥当な推計となっていると考えられる。

なお、ガソリン蒸発は、その排出要因から明らかなように、人口集中地域およびガソリンスタンドが立地する幹線道路沿いに著しく偏った分布をしていた。

## 2.1.5 トンネル調査による自動車からのVOC排出係数の実態把握

### (1) 背景と目的

自動車関連の排出は、VOCの主要な発生源の一つと考えられ、日本においてはNMVOCの総排出量のうち10%強を占めると推定されてきたが、この推定の精度は高くなく、本研究では寄与率がより高い可能性を指摘している。また、自動車の使用は人口の分布とある程度対応しており、影響への寄与は総排出量への寄与に比べ高い可能性がある。したがって、自動車からのVOCの排出に関する情報が求められている。化合物によって排出の状況や物理化学的な性質や毒性が違うため、詳細な評価には個別化合物の情報が必要である。実走行に対応した、車種別の排出係数（一台、単位走行距離あたりの排出量）は、排出総量の見積もり、および排出の抑制を考えるにあたり、有用な情報となるであろう。しかしながら、VOCの実走行状態での排出係数については、トンネル調査や台上試験によって海外では調べられてきているが、日本では報告が限られていた。

自動車由来の排出物質を調査するいくつかの方法のうち、トンネル調査とは、実際に使われている自動車トンネルで、トンネルに出入りする空気中のVOC濃度と交通量とを測定し（数時間～数日程度）、その結果から、トンネル内を走行する自動車からのVOCの排出を調べる方法である（図11）。実際に道路を走行している、形式・年式・整備状況等が異なる多数の車両からの、平均

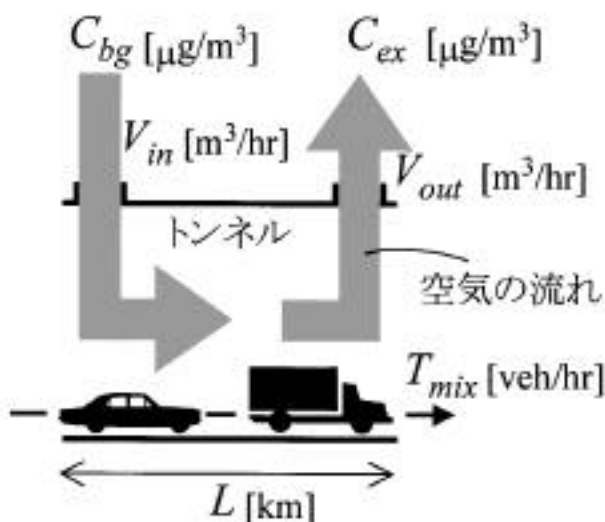


図11 トンネル調査の概念図(トンネルB)  
送気量 $V_{in}$ 、排気量 $V_{out}$ 、一定時間内の通過交通量 $T_{mix}$ 、送気と排気中の物質濃度 $C_{bg}$ と $C_{ex}$ 、トンネル長 $L$ を用いて排出係数を計算する。

的な排出状況を知ることができる点、また、排気管からの排出以外の、燃料の蒸発による排出も含めて把握できる点が優れている。

以上を踏まえて、日本における実際に走行している車両からのVOCの排出係数を、トンネル調査によって求めることを目的とした研究を行った。

## (2) 方法

調査対象には、首都圏の都市域から、走行速度と車種構成とが異なる二つのトンネルを選定した。

### 1) トンネルA

トンネルAは市街地における比較的短いトンネル(約350m)で、両端の出口の50~100m先には信号がありラッシュ時には渋滞が見られる。トンネル内は対向各一車線で、車線を隔てる壁はない。トンネル両端の上部およびトンネル中間部で、連続した24時間に2時間の試料空気の採取を12回行った。同時に目視によって10車種区分で交通量を記録した。空気の収支については情報が得られなかった。分析項目は、一酸化炭素、窒素酸化物、非メタン炭化水素(NMHC)と10の個別VOC(図12参照)である。

排出係数の算出は次のように行った。トンネル内の濃度からトンネル外の濃度を差し引いた値がトンネル内の排出に対応する。ここで、排出係数がよく調べられている窒素酸化物の値を基準にして、濃度比から排出係数を推算した。すなわち、文献中の車種ごとの窒素酸化物の

排出係数を用いて、車種ごとの交通量より、トンネルAでの窒素酸化物の排出係数を推定した。次に、VOCおよびNMHCの排出係数を、窒素酸化物に対する濃度(差し引き濃度)比から算出した。なお、結果の算出には、トンネル内濃度と外気濃度の比を検討し、すべての分析項目について十分な信頼性が得られていると判断した5つの測定時間帯の値を用いた。

### 2) トンネルB

トンネルBは高速道路のトンネル(約1,200m)であり、両方向が独立しており各3車線ある。その片方向について調査した。トンネル両端近くに設定されている換気所の吸気口と排気口で空気を採取した。平日と週末とに、1時間あるいは2時間の採取を各10回ずつ行った。同時に、自動計測(大型および小型の2車種区分)および目視(7車種区分、一部の時間帯)にて交通量を記録した。トンネル換気条件は、排出係数の算出が適切に行えるように設定した。分析対象は85種類の個別VOCである。各採取時間帯ごとに濃度と換気量からトンネル内での排出量を算出した。この排出量と総交通量の比を取るか、排出量を交通量で回帰することで排出係数を算出した。また、大型車両および小型車両からの排出特性の差を検討するために、総交通量に対する排出係数の、大型車両率(全車両数に占める大型車の比率)に対する関係を検討した。なお、結果の算出には、欠測等がなかった4(アルデヒドについては10)の測定時間帯の値を用いた。

いずれのトンネルでも試料はキャニスター(容器)に採取し、ガスクロマトグラフィー・質量分析法によって測定した。ただし、アルデヒド類は、2,4-ジニトロフェニルヒドラジン-シリカ吸着管に採取し、吸光光度検出器を装着した高速液体クロマトグラフで、非メタン炭化水素は、テドラーバッグに採取し、水素炎イオン化検出器を装着したガスクロマトグラフで、それぞれ測定した。

## (3) 結果

### 1) トンネルA

交通量は2時間当たり両方向合わせて334~2,586台の範囲であり、日中に多く、深夜から早朝にかけて少なかった。車種構成は全時間帯・両方向を通じて比較的一定であり、ガソリン車が大部分(85%程度)を占めると推定された。平均車速は採取時間帯ごとにおよそ

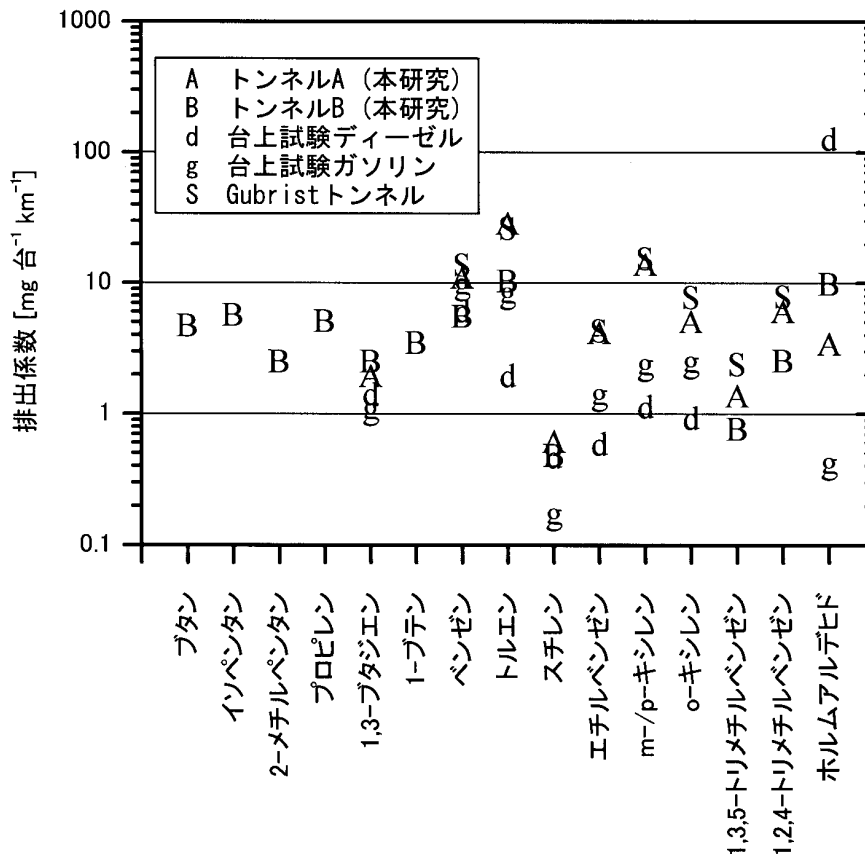


図12 代表的なVOCについての総交通量に対する排出係数とその比較

トンネルAで排出係数を得た化合物 (VOC) と、トンネルBで排出係数を得た化合物のうち排出係数の大きい方から10化合物とのどちらかに含まれるものを示した。トンネルAではブタン、イソペンタン、2-メチルペンタン、プロピレン、1-ブテンの値は得られていない [ 桜井ら, 大気環境学会誌 35巻, 343頁 ]。トンネルBでは、エチルベンゼン、m-/p-キシレン、o-キシレンの値は得られていない [ 星ら, 第10回大気環境学会年會講演會要旨集 451頁を一部修正 ]。台上試験は1,3-ブタジエン、ベンゼン、トルエン、スチレン、エチルベンゼン、m-/p-キシレン、o-キシレンについて平均車速46km/hの走行モードの値を示した [ 泉川ら, 東京都環境科学研究所年報 1999, 159頁 ]。Gubristトンネルについては、ベンゼン、トルエン、スチレン、エチルベンゼン、m-/p-キシレン、o-キシレン、1,3,5-トリメチルベンゼン、1,2,4-トリメチルベンゼンの値が報告されていた [ Staehelinら, The Science of the Total Environment 169巻, 141頁 ]。いずれの報告もm-キシレンとp-キシレンは分離しない測定法が用いられているので合計値として表示した。

30~50 km/hの範囲であった。

トンネルAで得られた10化合物の排出係数を図12に示した。測定した個別VOCのうちではトルエンが最も高く29 [mgveh<sup>-1</sup> km<sup>-1</sup>]であった。この値はNMHCの15%に相当した。

## 2) トンネルB

自動計測による総交通量の範囲は、一時間あたり581~4,211台であった。平日と週末の一日総交通量は同程度であり、総交通量が深夜2~4時頃に最低となる変化パターンは共通していた。また、大型車両率は変動が観察され(6.8~49%), 平日で高く週末に低かった。大型車両率は、一日のうちでは、平日には夕方から夜にかけて低く、深夜から早朝にかけて高い傾向が見られ、週

末は全体的な傾向としては平日と類似していたが、日曜日の経時変化は平日と異なる部分もあった。自動計測値には目視計測値に対して若干の系統的な誤差が認められたので、適宜補正した交通量を用いた。車速(一時間値)は56~86 km/hの範囲で平均76 km/hであった。

一部の化合物で、一部の時間帯で外気濃度がトンネル排気よりも高くなる現象が見られた。このような化合物については、得られた値の信頼性が低いおそれがあるため排出係数を計算しなかった。トンネルAで排出係数を得たVOCのうち、エチルベンゼン、m-/p-キシレン、o-キシレンについては、この結果排出係数が得られなかった。また、一部の化合物については必ずしもトンネル内で排出されていると判断できなかったため、排出係数を計算しなかった。最終的に、分析した85化合物のうち38

化合物について排出係数を得た。

図12にトンネルBより得られた総交通量に対する排出係数を、値の大きい方から10化合物に、トンネルAでも排出係数を得たスチレンと1,3,5-トリメチルベンゼンとを加えた12化合物について示した。トンネルBにおいても、排出係数を得た化合物のうちではトルエンの排出係数がもっとも大きかった。

総交通量に対する排出係数を大型車両率で回帰して、回帰の決定係数が0.25より大きくかつ危険率 $<0.05$ のときに、大型車両率に対する傾向があると判断したところ、38化合物は次の3群に分類された。大型車両率が高いと排出係数が高い（大型車の排出係数がより大）：8化合物（*n*-オクタン、*n*-ノナン、1,3-ブタジエン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、スチレン、ホルムアルデヒド）。大型車両率が高いと排出係数が低い（小型車の排出係数がより大）：3化合物（2,2,4-トリメチルペンタン、2,3,4-トリメチルペンタン、2-メチル2-ブテン）。傾向なし：その他27化合物。

#### （4）考察

日本における自動車からのVOCの排出係数についての情報は限られており、特にトンネルBでは、これまで国内ではほとんど情報のなかった化合物についての排出係数が得られた。

なお、トンネルBのように空気量の収支の情報を得ることができれば、排出係数を直接計算することができるが、それが可能な測定場所は限られてくる。トンネルAでの排出係数の推定に用いた方法は、排出組成の測定によって排出係数を推定する際の一手法として位置づけ得る。

両トンネルで得られた総交通量に対する排出係数を、お互いに、また、日本における台上試験の結果および海外のトンネル調査（スイスGubristトンネル）の結果と比較して図12に示した。トンネルA、Bの結果は値の大小は見られたが、比較可能な化合物間の傾向としては一致していると判断した。Gubristトンネルの結果は、トンネルAの結果に近かった。これはGubristトンネルにおいて大型車両率が1~24%と比較的低く、ガソリン車が多い交通組成であったと推測できることと矛盾しない。ただし、平均車速はGubristトンネルは90 km/hとトンネルAよりも速かった点に留意する必要がある。台上試験との比較では、トンネルA、Bともに化合物ごとの値の

大小の傾向は類似していたが、台上試験のガソリン車とディーゼルエンジン車とのいずれよりも大きい排出係数が、比較可能な化合物の多くで観察された。この差は、トンネル調査の結果は、実際に道路を走行している、形式・年式・整備状況等が異なる多数の車両からの、平均的な排出状況をより反映していることによると考える。排出係数の比較に当たっては、車速、車両重量、勾配等のエンジン負荷に影響を与える要因をより詳細に把握した上で行うことが、今後の課題として挙げられる。

なお、本稿では総交通量に対する排出係数を議論したが、車種区分ごとの排出係数の算出については、データの解析方法を含めてさらに検討が必要であり、今後、類似の調査なども合わせて知見を集約し、解析していく必要がある。

#### （5）まとめ

自動車からのVOCの実走行状態での排出係数について、日本では情報が限られていた状況を踏まえて、日本における実際に走行している車両からのVOCの排出係数を、トンネル調査によって求めることを目的とした研究を行った。調査対象には、首都圏の都市域から、走行速度と車種構成とが異なる二つのトンネル（A、B）を選定した。トンネルAでは10、トンネルBでは38のVOCについて排出係数を計算した。測定した化合物中ではいずれのトンネルでもトルエンの排出係数がもっとも大きかった。トンネルA、Bの結果は値の大小は見られたが、比較可能な化合物間の傾向としては一致していた。海外のあるトンネルで得られた排出係数はトンネルAの結果と近かった。台上試験との比較では、台上試験のガソリン車とディーゼルエンジン車とのいずれよりも大きい排出係数が、比較可能な化合物の多くで観察されたが、これはトンネル調査の結果は、実際に道路を走行しているさまざまな車両からの排出状況をより反映していることによると考える。

#### 2.1.6 VOC排出量の地域分布推計の試みと推計手法の今後の課題

##### （1）VOC排出量の地域分布推計

発生源ごとの推計手法において既に触れたとおり、本研究では排出量の地域分布の推計にも力点を置いた。研究目的において述べたとおり、VOCは光化学大気汚染の原因物質であると同時に、一部の成分はそれ自身が人



体に有害な物質であり、これらの問題に対する影響評価や対策立案、あるいはその基盤となる環境中での動態解明において、排出量の地域分布に関する情報が不可欠である。従来、光化学大気汚染の動態解明のためのモデル研究では、5～10kmメッシュ程度の空間分解能での排出量の地域分布推計が行われてきたが、本研究では有害大気汚染物質としてのVOCの影響評価における利用を考慮し、1kmメッシュないしそれ以上の詳細な排出分布の推計を試みた。近年、地理情報システム（GIS: Geographic Information System）の技術が発展して環境分野での利用も進みつつあり、さまざまな物質の発生源に関する情報をGIS上に集積できれば、調査研究や行政施策の情報基盤として有効に活用できると考えたためである。

本研究で詳細な推計対象とした発生源のうち、2.1.2の塗料溶剤関連については、実際の排出点すなわち塗料が使用される場所を厳密に同定することは事実上不可能であり、塗料の使用と関連すると考えられる社会指標を用いて、地域配分を行った。一方、自動車の走行時の排出については、少なくとも幹線道路分については、詳細な地域分布推計が可能となりつつある。すなわち、道路交通センサス等による地点別の交通量調査結果を、GIS上に格納され、デジタル化された道路地図と結びつけ、こ

れに2.1.3で述べた排出係数と車種別走行量に基づく排出推計手法をあてはめればよい。2.1.4で対象とした燃料給油時の排出については、個別の給油施設の位置情報としてカーナビゲーション用に整備されたデータが利用可能であり、給油施設ごとの燃料販売量を一定と仮定して地域分布推計を行った。

図13に塗料溶剤起源の排出量分布の推計結果を、図14に給油時の排出量の分布推計結果を、図15に幹線道路走行時の排気管からの排出量分布の推計結果を各々示す。ここでは、VOC総量の分布を示したが、個別成分についても同様の分布推計を行うことができる。その応用事例として、ある事例研究対象地域を設定し、ベンゼンについて自動車関連の排出量を上記の方法で推計し、別途大規模発生源からの排出量を推計した上で、拡散モデルによって大気中濃度を求めた。これと実測濃度の比較を行ったところ、大規模発生源周辺の濃度が過大に、それ以外の地域の濃度が過小に予測される結果となった。対象地域外からの移流や、対象地域内での未把握の発生源の存在などが示唆される。十分な精度が得られれば、発生源データをもとにしたこうした濃度推計は、有害大気汚染物質によるリスクを地域単位で評価したり、排出削減対策の効果を予測したりする上で、有効な手法となりうると思われる。

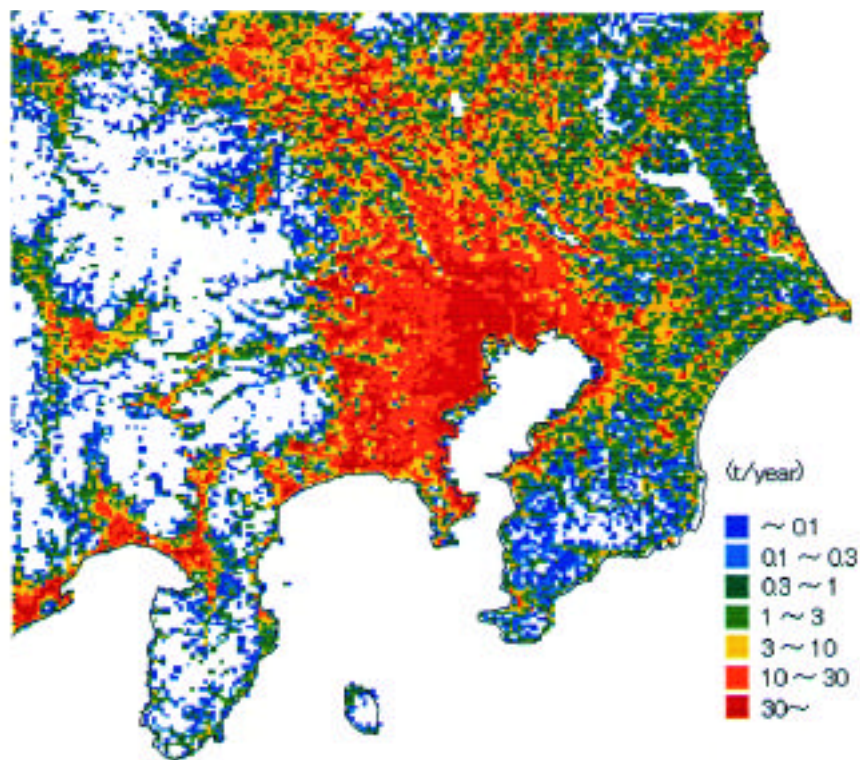


図13 塗料溶剤起源のVOC排出量の地域分布推計結果

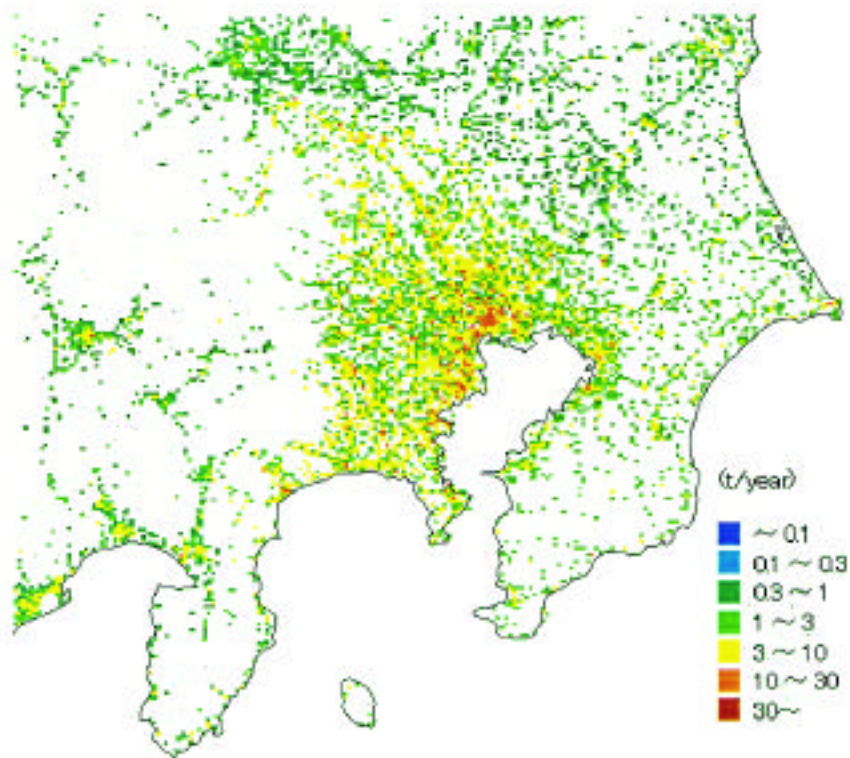


図14 ガソリン給油ロスによるVOC排出量の地域分布推計結果

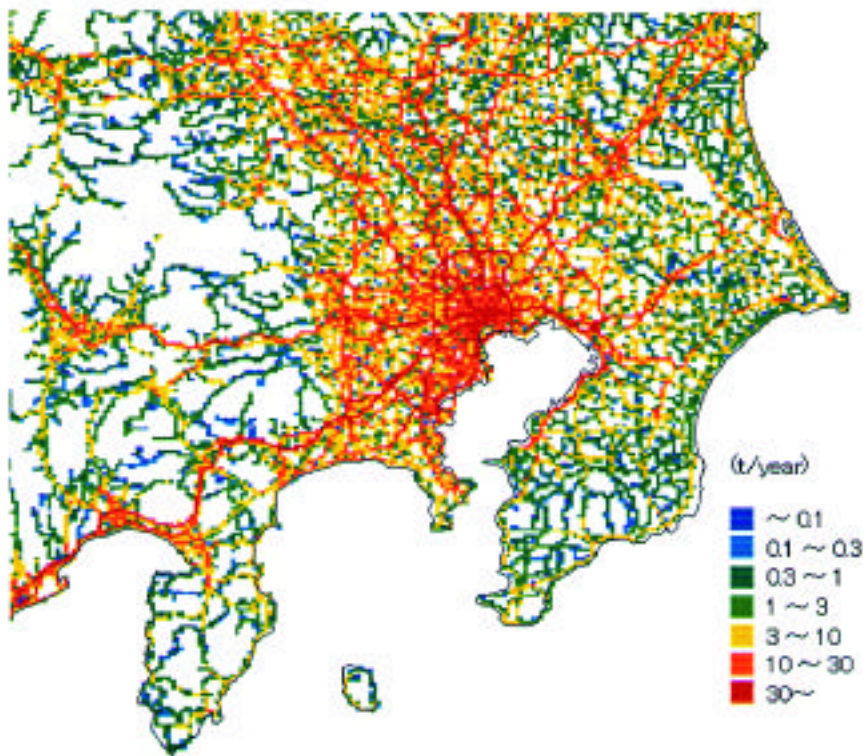


図15 幹線道路走行によるVOC排出量の地域分布推計結果

このように、他の目的で整備された地理情報と組み合わせるなどの工夫により、実際に地域分布の推計を試みたが、結果の妥当性、精度の検証は本研究の範囲では十分には行えていない。これには、推計された排出量分布

を入力条件として動態モデルによる大気中濃度分布の予測を行い、実測値と比較するなどの研究がさらに必要である。

## (2) VOC排出量推計手法のまとめと課題

以上、本研究では塗料溶剤および自動車関連の排出を中心に、VOCの排出推計を行ったが、2.1.1で述べたとおり、これら以外にも多種多様なVOC発生源が存在する。本研究で排出量推計方法の開発・改良に取り組んだ分野は、図1に示した排出量シェアで60～70%をカバーしていると推定されるが、この割合自身をより正確に求めるには、残された30～40%分の排出量についての推計手法の開発・改良が必要である。本研究での研究対象としなかった発生源を含め、発生源類型別の排出推計手法の現状を表4にまとめた。

### 参考文献

- 1) 泉川ら (1999) 自動車からの有害大気汚染物質の排出量. 東京都環境科学研究所年報, 159-168., 環境庁環境保健部環境安全課 (1998) PRTRパイロット事業中間報告 など
- 2) 梶村広秋・須山芳明・オ木義夫・山本明夫・永見康二 (1983) 自動車へのガソリン給油時における炭化水素排出量. 大気汚染学会誌, 18 (5) 432-438

## 2.2 VOC環境動態とモデル評価に関する調査・研究

### 2.2.1 VOC成分の自動測定と地域比較

炭化水素成分の実態に関しては発生源、環境濃度ともに経年的な変化を把握できるデータは極めて不十分である。このため、環境大気中におけるVOCの動態把握を目的として、独自の開発した自動分析システムを用いて、関東地域等においてフィールド観測を実施した。また、同一の自動分析システム関東地域とメキシコ市に設置し1998年8月から連続観測を行い両地域におけるデータを収集・解析し、地域的な特徴を把握した。これとともに本研究実施期間中の1999/8/3-8/6, 1999/12/8-12/10, 2001/8/1-8/3にJCAPプロジェクトと共同で、関東地域を対象に大規模フィールド観測を実施した。

観測データはJCAP報告書に詳細に記載されているので割愛する。共同フィールド観測のうち、1999年の夏季は北太平洋の高気圧が北偏していたため大気汚染は低濃度で推移したが、モデル検証のためのデータセットを得た。冬季においては、大気汚染物質が蓄積し高濃度が出現するメカニズムを立体的に把握することができた。ま

表4 発生源類型別のVOC排出推計の現状と課題

発生源区分		本研究における更新, 改善内容	推計手法の概要	推計方法の主要な課題
燃焼系発生源	大規模固定発生源	対象とせず	大気汚染物質排出量総合調査による施設別・燃料種別消費量×排出係数	排出係数の設定 (現状ではばい煙発生施設暖房用ボイラーの値で代用) 排出実態の把握が必要
	中小事業所	対象とせず	燃料種別消費量×排出係数	
	家庭	対象とせず	排出なしと扱われている	
	自動車	排出係数の更新, 車種別走行台キロ推定方法の改善	車種別・走行速度域別走行台キロ×排出係数	
	船舶	対象とせず	船舶の主機・補機エンジンの馬力×1隻・1時間あたりの排出係数×乗荷率	
	航空機	対象とせず	LTOサイクル排出量: 機種別着陸機数×LTOサイクル排出係数×モード所用時間	
蒸発発生源	製油所・油槽所	対象とせず	・石油精製: 能力×排出係数 ・潤滑油製造: 潤滑油製造量×排出係数 ・製油所・油槽所貯蔵施設: 製油所出荷量×排出係数 ・製油所・油槽所貯蔵施設: 昭和58年度推計の値をそのまま利用	排出係数が1970年代のもの中心であり, 更新, 推計方法の再検討が必要
	石油化学工業	対象とせず	石油化学基礎製品: 各物質の生産量×排出係数	排出係数が1980年代のものであり, 更新が必要
	給油所	給油所の地理的分布を含め再推計	ガソリン販売量×受入ロス・給油ロス	
	塗装	業界ヒアリング, 統計値更新などにより再推計	塗料消費量×溶剤含有率×(1-除去率)	
	印刷	業界ヒアリング等により資料収集。数値は更新せず。	印刷インキ消費量×溶剤含有率×(1-除去率)	溶剤含有率・除去率の設定
	接着剤使用工程	対象とせず	接着剤出荷量×溶剤含有率	溶剤含有率の設定, 除去率の検討
	金属表面処理	対象とせず	溶剤出荷量×(金属表面処理に使用する溶剤の割合)×排出係数	金属表面処理に使用する溶剤の割合, 排出係数
	ゴム溶剤	環境庁大気規制課業務(H11年度)の成果を反映	溶剤揮発油使用量×排出割合	
	クリーニング溶剤	対象とせず	溶剤消費量(1990)をドライクリーニング機会稼働台数で年次補正	有機塩素系から石油系への溶剤転換を反映させる必要あり
	自動車燃料タンク呼吸ロス等	新たに推計	燃料タンクの容量, 気温変化などから推定	
自然発生源	植物起源	対象とせず	植生区別面積×排出係数	排出係数の設定 (海外の排出係数を適用)

た、今回の観測において初めてアルデヒド類や、ガス状硝酸などの立体分布を把握することができた。

表5にメキシコ市と東京のVOC成分測定例の比較を示す。メキシコ市との比較測定の結果によれば、メキシコ市におけるVOC濃度は関東地域と比較して極めて高く、中でもプロパン、ブタンは10～30倍の値を示した。しかしベンゼン濃度に関しては関東地域とメキシコ市との間に大きな濃度差はなかった。

## 2.2.2 数値モデルによる都市大気汚染解析

### — 関西地域における春季大気汚染とVOC —

環境大気中VOC濃度の経年的な変化に関するデータは殆ど得られていないが、一般環境大気環境測定局において非メタン炭化水素の測定は継続的になされている。本特別研究に先立って実施した特別研究『環境負荷の構造変化から見た都市の大気と水質問題の把握とその対応策に関する研究』1993-1996（国立環境研究所特別研究

報告, SR-26-98, pp94, ISSN1341-3635)の研究結果によれば環境大気中の非メタン炭化水素濃度は一般的に減少の傾向にある。これに比べて窒素酸化物の濃度は都心地域においては減少の傾向が出ている測定地点はあるものの、全般的な傾向としては横ばいで推移している。環境濃度の傾向が発生源の変化の傾向を反映していると考え、数値モデルを用いた解析を実施した結果、光化学オゾンの濃度が従来よりも内陸地域で相対的に高くなることがわかった。この解析結果は関東、関西地域における実測濃度の傾向と一致しており、炭化水素濃度の変化が環境濃度の分布に影響を及ぼすことが示唆された。

一方、関西地域においては、冬季とともに春季においても大気汚染濃度が上昇することが知られている。『環境負荷特別研究』においてはフィールド観測やモデル研究により、春季の高濃度発現には光化学反応の寄与が大きいことを示したが、本特別研究においては、モデル研究を基にVOCの役割を主に解析検討した。研究の結果、

表5 メキシコ市と東京のVOC成分測定例の比較

(ppb)	Tokyo (平均値)	Mexico City (1998年2月)	
	日本 (東京)	メキシコ	(メキシコシティ)
1. プロパン (propane)	7.8	<u>200.7</u>	Propane
2. イソペンタン (isopentane)	8.5	28.5	
3. エタン (ethane)	5.5	<u>27.2</u>	Ethane
4. トルエン (toluene)	8.8	<u>21.6</u>	Toluene
5. n-ブタン (n-butane)	11.8	<u>73.1</u>	n-Butane
6. n-ペンタン (n-pentane)	4.8	11.3	
7. エチレン (ethylene)	9.6	<u>42.6</u>	Ethylene
8. ホルムアルデヒド (formaldehyde)			
9. アセトン (acetone)			
10. m-p-キシレン (m&p-xylenes)	1.7	2.9	
11. ベンゼン (benzene)	2.7	<u>3.2</u>	Benzene
12. 2-メチルペンタン (2-methylpentane)			
13. アセチレン (acetylene)	5.6	<u>59.2</u>	Acetylene
14. イソブタン (isobutane)	6.8	<u>30.5</u>	i-Butane
15. 2-2-4-トリメチルベンゼン (2,2,4-trimethylpentane)			
16. イソプレン (isoprene)			
17. n-ヘキサン (n-hexane)	4.8	11.9	
18. プロピレン (propylene)	2.3	<u>20.4</u>	Propylene
19. 3-メチルペンタン (3-methylpentane)			
20. アセトアルデヒド (acetaldehyde)			
21. 1,2,4-トリメチルベンゼン (1,2,4-trimethylbenzene)	0.9	2.1	
22. o-キシレン (o-xylene)	0.1	2.9	
23. 3-メチルペンタン (3-methylpentane)			
24. エチルベンゼン (ethylbenzene)	1.3	2.0	

以下の点が明らかとなった。

関西地域においては冬季と共に、春季にも大気汚染の濃度が上昇する。この地域における高濃度汚染を解明するために、数値モデルを用いた検討を行った。まず、1993年4月に実施した航空機観測等のデータベースを用いてモデルを検証し、このモデルを基に発生源が環境濃度に及ぼす影響を評価した。

解析の結果、大阪湾周辺地域の二酸化窒素汚染には大阪湾上の船舶から排出された窒素酸化物が大きな寄与を及ぼしていること、二酸化窒素汚染の分布には大阪湾周辺の局地風循環の影響が大きいことがわかった。また大阪平野周辺の丘陵・山岳地域においてオゾンの濃度が高くなる理由として、混合層の発達に伴う上空からのバックグランドオゾンの取り込みと、地上付近での一酸化窒素との反応によるオゾンが消失が原因であることがわかった。

この地域における数値実験の結果以下のことが明らかとなった。

- (1) 二酸化窒素の生成過程を期間平均で評価するとモデル領域内からの直接一次排出量の割合が0%、モデル境界からの流入量の割合が40%、モデル領域内での反応による生成が50%であった。モデル領域内での反応による生成50%の内訳は+60%がオゾンとの反応による生成、-10%が光化学反応による消失である。
- (2) 大阪湾周辺地域の地上におけるオゾンのソースを期間平均で評価すると、光化学反応による生成寄与が10%、バックグランドオゾンの寄与が90%となっており、バックグランドオゾンの寄与が圧倒的に大きい。
- (3) 発生源強度を変えた数値実験の結果によれば、モデル領域内の窒素酸化物排出の削減量と環境中の二酸化窒素濃度との間には線形関係が成立しており、窒素酸化物排出総量の削減が二酸化窒素濃度の低減に効果的である。
- (4) 炭化水素発生源の発生量の削減は二酸化窒素の環境濃度の低減にはあまり貢献しない。
- (5) 二酸化窒素濃度に対するバックグランドオゾンの寄与は大きい、特バックグランドオゾンの濃度が低い場合に、その傾向が顕著である。

## 2.2.3 数値モデルによる広域大気汚染解析

- 東アジアスケールの大気汚染とVOC -

急速な経済発展による燃料消費の増加を背景に、東ア

ジアでは越境大気汚染が問題であり続けている。この越境大気汚染の問題も含め、大陸規模から地球規模の環境問題（酸性雨、地球温暖化、オゾン等）を考えるにあたって、数値シミュレーションモデルの役割は非常に大きい。他の環境問題と同様、結果を実験して確かめることができない性質上、コンピュータ内に仮想的実験装置を構築することが重要になる。近年計算機性能は目覚ましい速さで進歩しており、その進歩を背景として現在大気質モデリングの分野には二つの流れが起きていると考えられる。一つは、ヨーロッパを中心として始められつつある現業的大気質予報の流れである。これは化学天気予報とも言い換えることができ、天気予報のように数日先の化学物質分布をリアルタイムで予報していく。背景としてはデータ同化の手法の進歩や排出量データの充実等がある。もう一つはモデルの精緻化・包括化である。以前は採り入れることが計算機性能上困難だった要素も含めた詳細なオイラー型大気質モデルを用いることが可能になってきている。

米国の環境保護庁（EPA）は、精緻・包括化の進んでいる最近の三次元オイラー型の大気質モデルを第三世代と称している。（この呼び方は研究者間で必ずしも共通ではないが、）彼らの呼び方によれば、1980年代以降開発が続けられてきたRADM（Regional Acid Deposition Model）、UAM（Urban Airshed Model）といったモデルは第二世代であり、それ以前のパフ型、プリューム型のラグランジュ型モデルが第一世代である。第三世代のモデルにはCMAQやこれら第二世代のモデルの後継バージョンが含まれている。本特別研究においては、現在もEPAで開発が続けられている第三世代の大気質モデリングシステムModels-3/CMAQを用いてEPAと共同で、東アジアにおける大気物質輸送の解析を実施した。

### (1) Models-3/CMAQについて

Models-3/CMAQ（以下CMAQ）は、米国環境保護庁（EPA）から1998年に最初のリリースがなされた大気質モデリングシステムである。（Models-3の3は第三世代の3であるが、Models-2やModels-1が存在していたわけではない。）では、第三世代のモデルの特徴は、（これはCMAQの特徴でもあるが、）何であろうか？

それは個々の計算手法の革命的進歩といった類であるというよりも、第二世代で培われた手法を基に、より包括的総合的なモデルを構築しようとしていることにある

と言える。

第一に、対象となる物質・現象を一つに限定していない。第二世代のモデルが酸性雨、光化学オキシダントといったようにそれぞれ対象を限定していたのに対して、酸性雨、光化学オキシダント、浮遊粒子状物質、その他、数値モデルで扱いうるすべての問題をまとめて扱うことを目指している。

第二に、考慮すべき物理・化学過程を可能な限り多く取り込んでいることである。移流、拡散、気相反応、乾性沈着は言うに及ばず、液相反応、湿性沈着、エアロゾル生成・反応、積雲対流による鉛直拡散等、第二世代で培われた手法をすべて取り込んでいる。

第三に、対象とする空間スケールについては、ネスティングの手法を用いて一辺数千キロ（格子間隔が百数十km）の大陸スケールから一辺数十キロ（格子間隔が1km程度）の都市スケールまでをまとめて扱うことができる。

つまり、個々の手法としては、第二世代から受け継いだものをベースにして、それらを統合して扱うことに第三世代の新味があると言える。詳細な数値モデルが必ずしも現象の理解を簡単にするとは言えないが、様々な物質を様々な過程とともにいくつかのスケールで総合的に考えることによって新たに見えることがあるはずであ

る。また、詳細なモデルの個々のモジュールを個別にON/OFF可能にしておくことにより、現象を単純化して捉えることも可能である。

図16はCMAQを例にした大気質モデリングシステムの構成を表す模式図であり、計算時のデータの流れを示している。システムの外部データとして主要なのは気象データと排出量データの二つであり、他に地形データや土地利用（植生）データ等が必要である。気象データと排出量データはそれぞれインターフェースモジュールを通して化学輸送モデル本体に必要な変数に変換され引き渡される。図中の矢印は計算に必要なデータの流れを、四角で囲まれた文字は計算結果に大きく影響を及ぼす要素を、それぞれ示している。太線で囲まれた部分がモデリングシステムである。

以下にCMAQシステムの個々のモジュール・要素の概要を簡単に示す。

- ・領域・空間解像度：空間解像度（格子間隔）としては100km程度から1km程度までが実際に使用されている。大きな適用領域としては、東アジアと北米大陸を含む領域で北太平洋を超えるエアロゾル輸送の解析に使用した例がある。
- ・ネスティング：1ウェイの多重ネスティングが可能である。これにより大陸スケールから都市スケールまで通

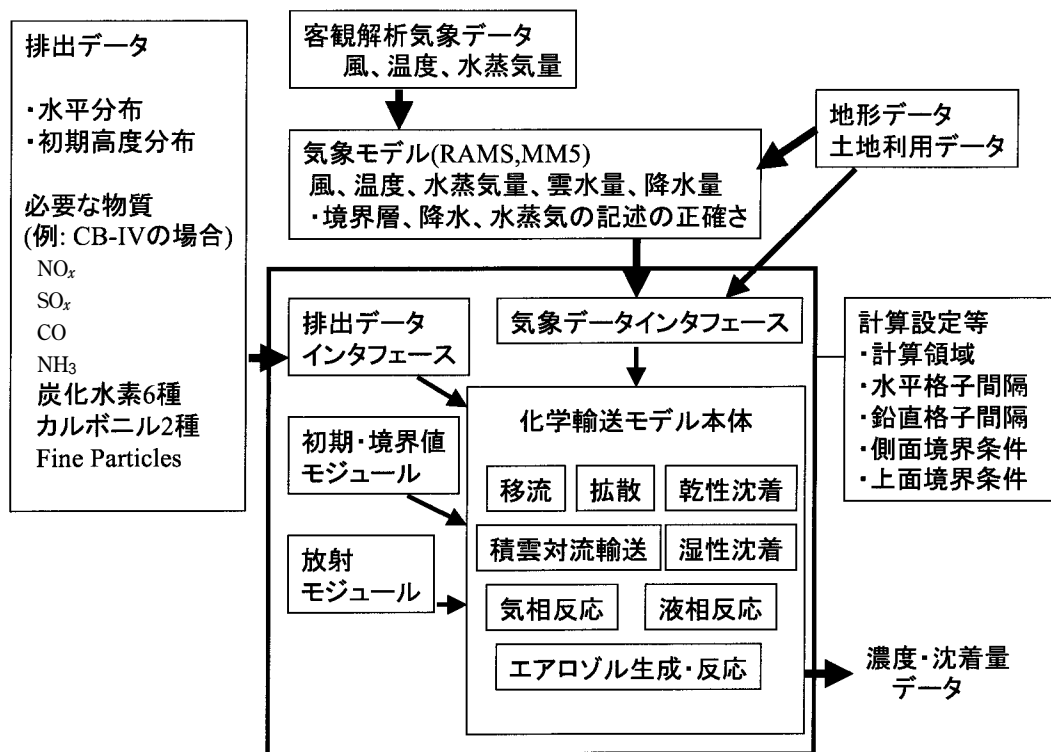


図16 大気質モデリングシステムの概念図

して扱うことが可能である。

- ・初期条件：各物質について水平一様の初期分布，または前の計算結果の任意の時間からのリスタートが可能である。

- ・側面境界条件：各物質ごとに東西南北のそれぞれの側面境界ごとの鉛直プロファイルを規定している。

- ・地表面：都市域，農地，水など1種類の土地利用の割合をそれぞれの格子で与える。

- ・気象データ：風速・温度等のみならず，降水や雲についても詳細なデータを入力として必要とするため，観測データや客観解析気象データだけでは不十分であり，地域気象モデルの計算結果を用いる。デフォルトで想定されている地域気象モデルは MM5 ( Mesoscale Model Generation 5 ) ( RAMS ) であるが，本特別研究の一環として実施したとCMAQ開発チームの共同研究 ( 担当：菅田 ) によりRAMS ( Regional Atmospheric Modeling System ) を用いることも可能になっている。

- ・気相反応：必要に応じて化学メカニズム ( 現在はCB-4またはRADM-2から ) を選択することができる。自分で設定した化学メカニズムを用いることも容易である。例えばCB-4を選択した場合の反応種を図17に示す。

- ・液相反応：CB-4やRADM-2を拡張し，液相反応も含められるようになっている。

- ・エアロゾルスキーム：考慮されるエアロゾルは Sulfate, Nitrate, Ammonium, Primary organic, Anthropogenic secondary organic, Biogenic secondary organic, Elemental carbon, Sea salt, Unspecified anthropogenic, Soilの10種類。0.1 μm未満，0.1 ~ 2.5 μm，2.5 ~ 10 μmの3モードの正規対数分布を用いたmodalメソッドにより計算されている。

- ・排出量データ：排出量データとして与える物質は図7の中で枠に囲まれ示されている。

- ・対流性雲による混合：対流性の雲が存在している格子では雲底高度から雲頂高度まで瞬時に鉛直混合が起きるようになっている。

- ・化学解法スキーム：QSSAまたはSMV GEAR法の選択が可能。

- ・移流スキーム：PPM ( Piecewise Parabolic Method ) またはBott Schemeが選択可能

- ・移流補正スキーム：代表的な地域気象モデルであるMM5やRAMS等では，厳密な意味での質量保存が成り立っていない。このために単なる移流では物質の保存性

### CB-IV (CMAQ仕様)反応種リスト

Nitrogen Species	Atomic Species	Hydrocarbons	Operators	Species added for aerosols
<b>NO</b>	<b>O</b>	<b>PAR</b>	<b>XO<sub>2</sub></b>	<b>SULAER</b>
<b>NO<sub>2</sub></b>	<b>O<sub>1D</sub></b>	<b>ETH</b>	<b>XO<sub>2</sub>N</b>	<b>TOLAER</b>
<b>HONO</b>	Odd Hydrogen Species	<b>OLE</b>	Products of organics	<b>XYLAER</b>
<b>NO<sub>3</sub></b>	<b>OH</b>	<b>TOL</b>	<b>TO<sub>2</sub></b>	<b>CSLAER</b>
<b>N<sub>2</sub>O<sub>5</sub></b>	<b>HO<sub>2</sub></b>	<b>XYL</b>	<b>OPEN</b>	<b>TERPAER</b>
<b>HNO<sub>3</sub></b>	Carbon oxides	<b>ISOP</b>	<b>ISPD</b>	<b>TERP<sub>b</sub></b>
<b>PNA</b>	<b>CO</b>	Organic nitrogen	Species added for aqueous chemistry	Ammonia
Oxidants	Carbonyls and phenols	<b>PAN</b>		<b>NH<sub>3</sub></b>
<b>O<sub>3</sub></b>		<b>NTR</b>		
<b>H<sub>2</sub>O<sub>2</sub></b>		Organic Radicals	<b>FACD</b>	
Sulfur Species	<b>FORM</b>	<b>C<sub>2</sub>O<sub>3</sub></b>	<b>AACD</b>	
<b>SO<sub>2</sub></b>	<b>ALD<sub>2</sub></b>	<b>ROR</b>	<b>PACD</b>	
<b>SULF</b>	<b>MGLY</b>	<b>CRO</b>	<b>UMHP</b>	
	<b>CRES</b>			

図17 CB-4 化学メカニズムを用いる場合の気相反応における反応種のリスト  
枠で囲まれている物質は，発生量としての入力が必要な物質。

が壊れる結果となる。これを防ぐために、CMAQでは独自の移流補正スキームを開発・採用している点が長所のひとつである。

・鉛直拡散スキーム：K-theoryによる鉛直拡散。

## (2) 数値実験設定

日本、朝鮮半島、中国東半部を含む領域において、1997年1月1ヵ月間を対象としてCMAQの計算を行った。

予備積分期間の5日間を含めて、1996年12月27日から1997年1月31日まで計算したRAMSの気象データを、CMAQの気象インターフェースMCIPにより変換し、CMAQの化学輸送モデル本体に与えて同じ期間走らせた。計算範囲は回転ポラーステレオ座標上で東経130°北緯35°を中心とする約4000km四方であり、格子間隔は80kmである。格子数はRAMSで50×50グリッド、CMAQでは四方にそれぞれ1グリッドの境界領域を設定するため48×48グリッドである。

### 1) RAMS

鉛直座標は約18kmをトップとする23層で-z座標系を用いている。地上に近い6層の高度は順に47.7, 157.3, 288.7, 446.5, 635.8, 862.9 mである。用いたオプションは、非静力学、簡単化したKuo積雲パラメタリゼーション、Meller-Yamadaレベル2.5鉛直拡散スキーム、Louis (1979) の地表面フラックス等である。経緯度2.5度間隔・一日二回のECMWFデータのナッジング(引き戻し)を境界条件として現実的な気象場を得られるようにした。ナッジングの強さ(e-folding time)は側面境界で600秒と最も強く、端から5グリッドは徐々にナッジングを弱め、それより中央の領域では半日とした。

### 2) CMAQ

鉛直座標は下層6層についてはRAMSと同じとし、それより高い高度を間引いて14層とした。(トップは同じ)用いたオプションは、移流にPPM、化学メカニズムにCarbonBond 4 (CB-4) 化学ソルバーにQSSAである。

### 3) 排出量データ

排出量についてはGEIA (Global Emissions Inventory Activity), Akimoto and Narita(1994), Piccot et al. (1992), Murano et al. (1995), Zhao and Wang(1994)等から得たデータを当該グリッドに変換して用いた。排出の鉛直プロファ

イルは格子ごと・各時刻ごとに、気象インターフェースMCIPで判定される境界層高度より下の高度で混合比が一定になるように与えた。

## (3) 解析結果

### 1) 硫酸エアロゾル

図18に非海塩硫酸エアロゾル濃度の時系列について地上観測と比較して、CMAQの結果を示す。青島、済州島、五島列島の福江の3地点であり、この3地点はほぼ一直線上に並んでいる。

図18を見ると、間欠的に訪れる硫酸エアロゾルの濃度ピークをモデルはおおむね再現している。青島では過小傾向にあるもののピークの時期はきちんと再現されている。また、済州島と福江では特に月の後半において非常に良い対応を示している。

次にこれらの濃度ピークがもたらされる機構を調べるために硫酸エアロゾルの水平分布を時間を追って調べた。その結果、福江で観測された6回のピーク(11, 14, 18, 20, 24, 27日)のうち、27日のピークを除く5回はほぼ同じ輸送パターンによって運ばれてきたものであることがわかった。それを示したのが図19である。これは、上海付近の中国沿岸部に位置する高濃度中心が一旦朝鮮半島北部に運ばれ、それから南下して九州域に運ばれるものである。まず、12日の2時には高濃度域は青島から上海付近にかけての沿岸部海上に位置している(図19a)。同日20時には南北に伸張しつつ朝鮮半島北部へと高濃度域が移動していく(図19b)。13日14時には高濃度域は南下に転じ、14日8時頃に、北から南へ打ちつけたような形で高濃度域が九州北部へともたらされている(図9c, d)。これを気圧配置と結びつけると、図9のaからbにかけては、移動性の高低気圧の到来により、低気圧の前面で高濃度域が北東方向に運ばれ、その後冬型の気圧配置が戻り朝鮮半島付近は北傾向の風となり高濃度域は南へと運ばれる。このように、冬型の気圧配置が緩み、また強まることによって、このパターンの輸送が起きていることがわかった。

一方、唯一の例外である27日のピークは、上海付近から九州域に一直線に近い経路で高濃度域が運ばれてきたことがわかった。これは他のケースに比べ通過する移動性高気圧の位置が南であったためと考えられる。

次に、与える気象データの影響と、排出量の初期鉛直プロファイルの与え方の影響を調べるために図9の結果



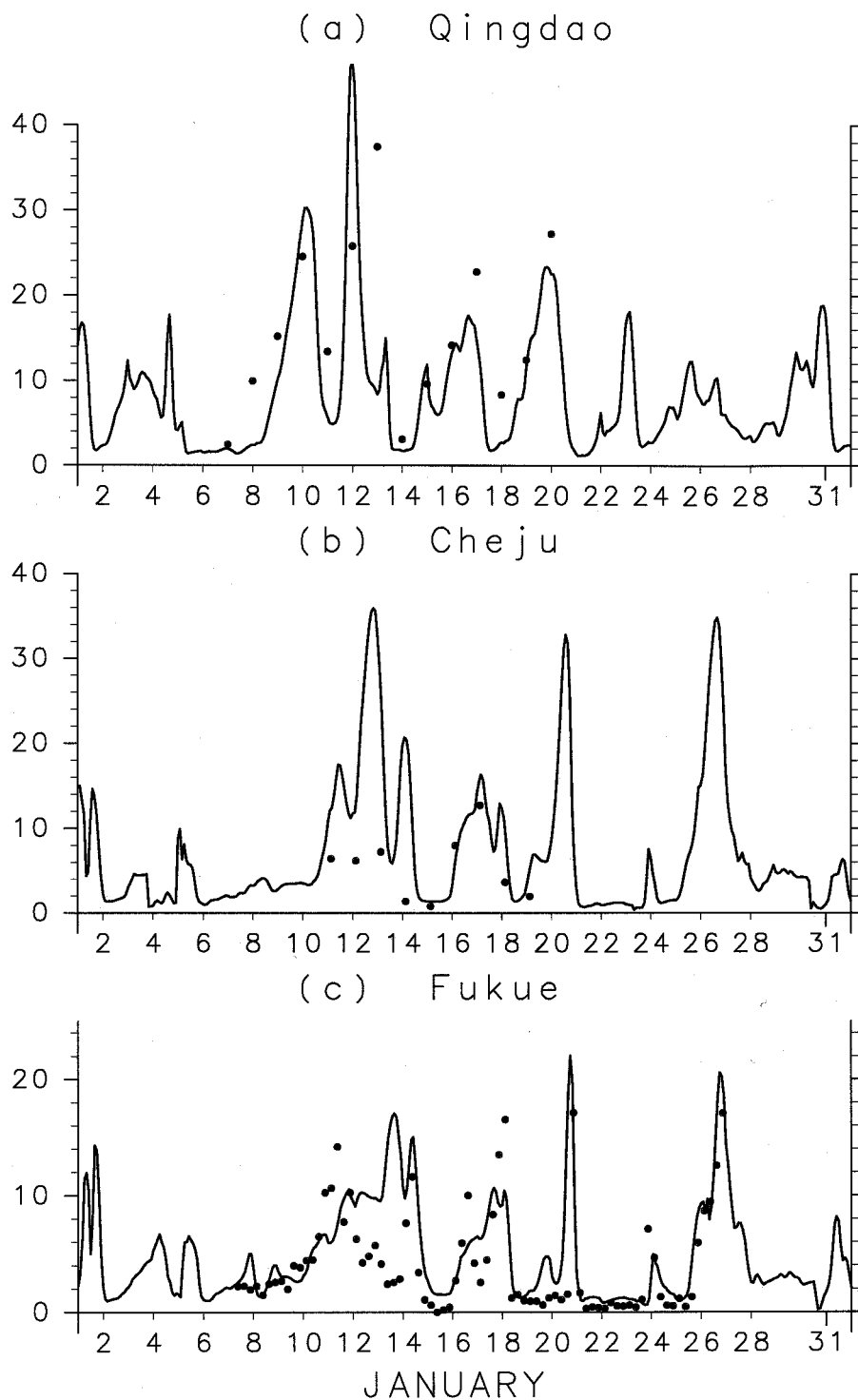


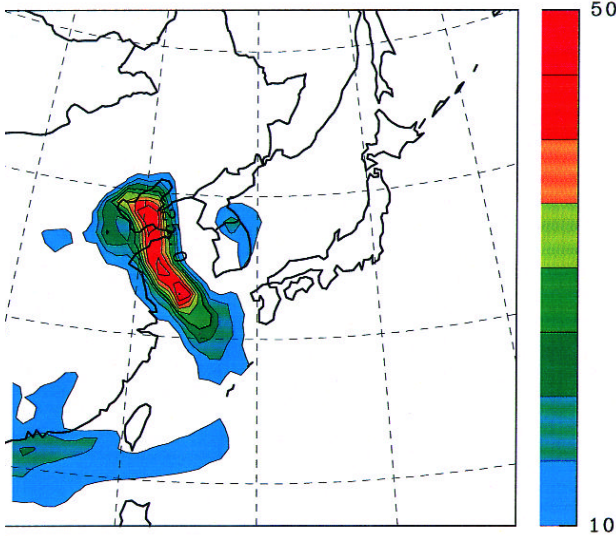
図18 計算結果と実測の比較例

1997年1月の(a)青島,(b)濟州島,(c)福江における非海塩硫酸エアロゾルの濃度時系列。黒点が地上での観測値,実線がモデルCMAQの第一層(高度約50m)の計算結果。縦軸の単位はマイクログラム/立方メートル,横軸は1月1日0時(GMT)を1とする日数。

をコントロールランとして,内部領域におけるナッジングの強さをコントロールの半日から1日へと弱くしたラン(ケース1),これに加えてSO<sub>2</sub>排出量の鉛直分布を,最下層から順に40,40,15,5%に振り分けて与えたラン(ケース2)の2ケースを行った。その結果を図20に示す。まず,コントロールとケース1を比べることにより,

気象データを求める際のナッジングの強さは,特に下流域である濟州島と福江で,かなり大きな違いを生み出していることがわかる。発生源に近い青島では,輸送距離が短いため影響が少ないと考えられる。また,ケース1と2を比べると,いずれの地点でも排出量の鉛直分配の影響はほとんどないことがわかった。

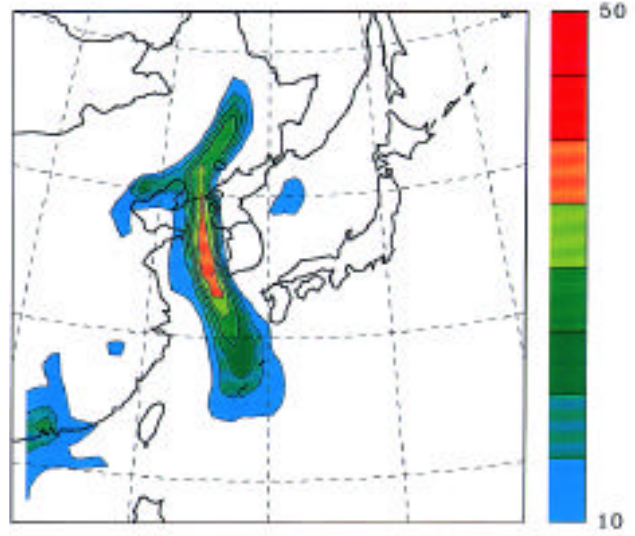
1997/01/12.02:00:00



CONTOUR INTERVAL = 5.000E+00

(a)

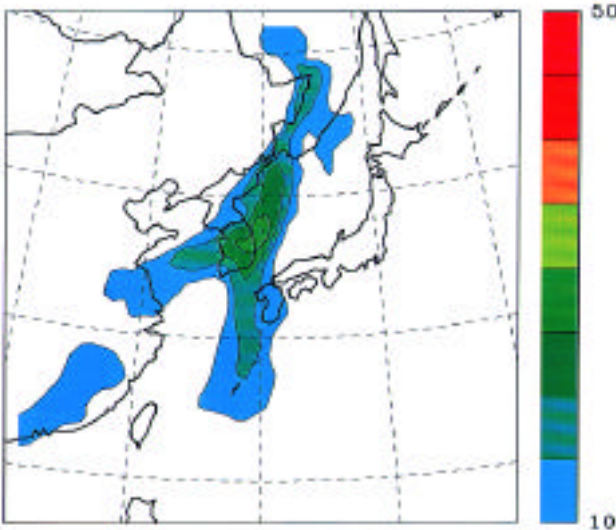
1997/01/12.20:00:00



CONTOUR INTERVAL = 5.000E+00

(b)

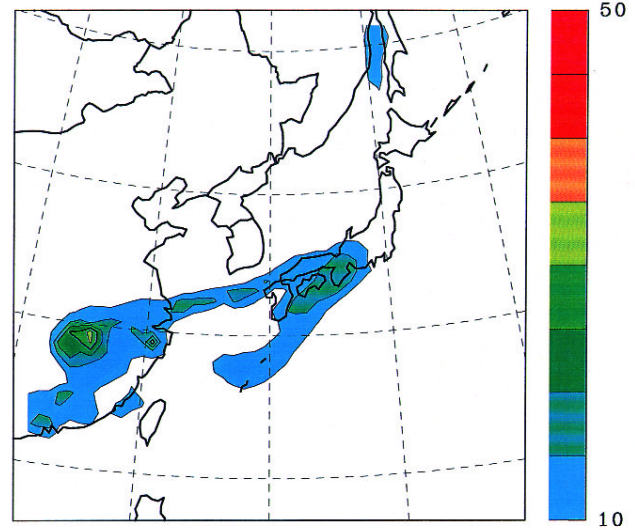
1997/01/13.14:00:00



CONTOUR INTERVAL = 5.000E+00

(c)

1997/01/14.08:00:00



CONTOUR INTERVAL = 5.000E+00

(d)

図19 (a)-(c) CMAQの第一層における非海塩硫酸エアロゾル濃度分布の時間変化  
 コンター間隔は5マイクログラム/立方メートルで、10マイクログラム/立方メートル以上の濃度にはハッチが掛けてある。(a) 1997年1月12日0200GMT,(b) 1997年1月12日2000GMT,(c) 1997年1月13日1400GMT,(d) 1997年1月14日0800GMT

## 2) オゾン

オゾンについての結果を図21に示す。島根県の松江におけるオゾンの地上観測と、CMAQの結果を比較したものである。モデル結果は地上約50mであるため、観測結果は境界層がある程度発達していると思われる9時から18時の平均濃度と、日最高濃度の両方で示し比較している。これを見ると、モデルが平均濃度ならびに最高濃度

の両者のトレンドをある程度再現できていることがわかった。

## 3) オゾン分布のVOC排出量に対する感度実験

中国大陸からの炭化水素の発生データベースは信頼性が低いので詳細な感度解析を今の段階で実施することはあまり意味がない。このため今回はオゾンシミュレー

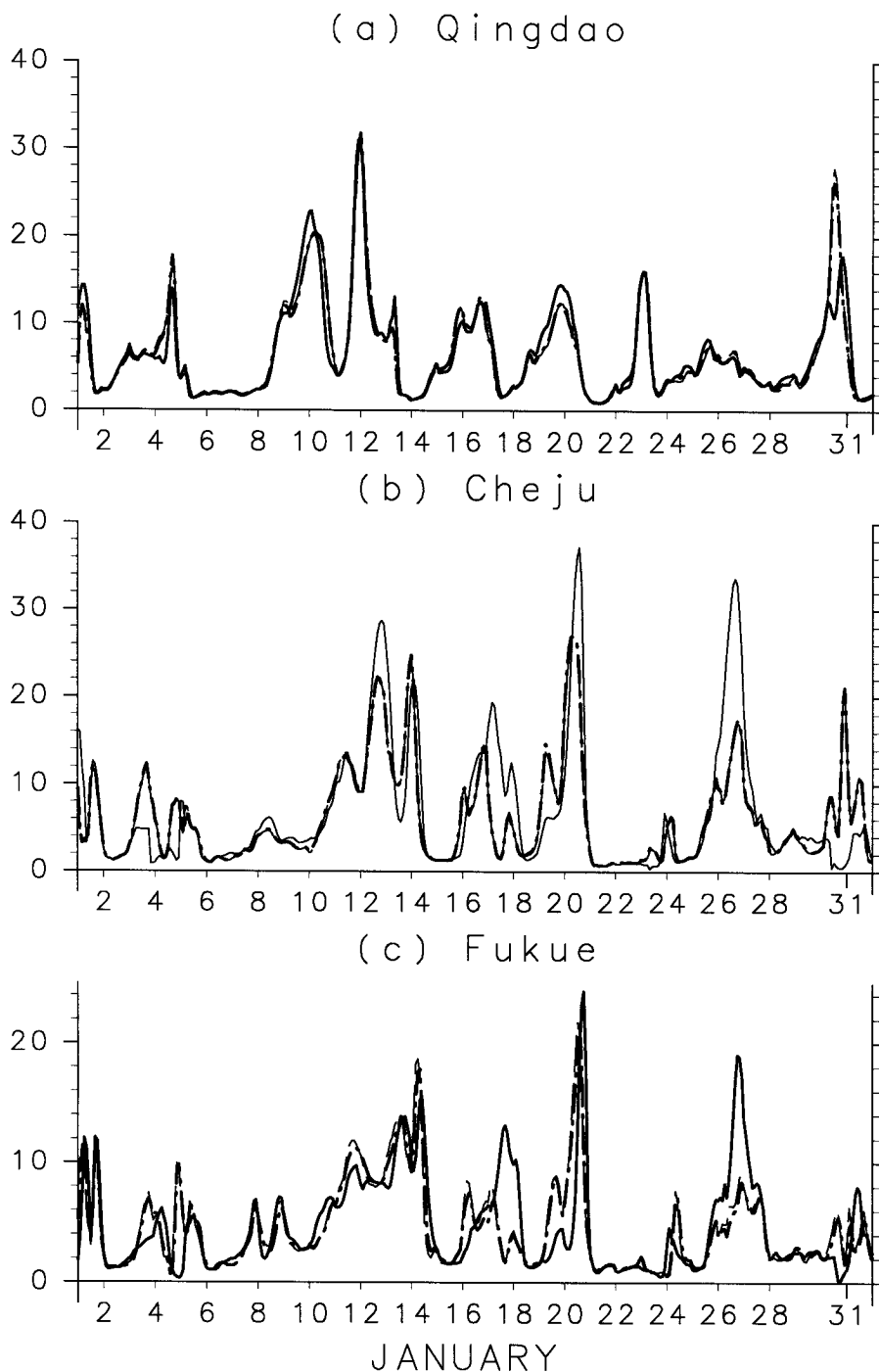


図20 硫酸エアロゾルの濃度時系列に対する気象データおよび排出量データの影響を示す図  
 コントロールラン（図18と同じ）が実線，RAMSのナッジングの強さを変更したものが破線，さらにSO<sub>2</sub>排出量の鉛直分布を，最下層から順に40,40,15,5%に振り分けて変更したものが一点鎖線である。破線と一点鎖線はほとんど重なり合っている。

ションのVOC排出量に対する感度について調べるために，VOC排出量をコントロールランの半分にただけで，ほかは同一の条件でランを行った。

大陸におけるVOCの発生量として現状の推定値を用いた場合と，VOC発生量を半分に設定した場合の比較計算結果を図22 (a)，(b) に示す。図22 (a) は現状の発生量で計算した結果であり，図22 (b) はVOC発生量を半分に設定した場合とのオゾン濃度差を示す。二つの

ランで月平均地上第一層のオゾン濃度差を見ると（図2 (b)），差の大きいところでVOC排出半分のランの方が5 ppb程度濃度が低くなっている。差の大きい地点で詳細に比べると，数ppbから20ppb程度日最高濃度が低くなっていることがわかった。

#### 4) 大気汚染濃度のトレンド

大気汚染濃度の経年的な変化傾向を調べるために，20

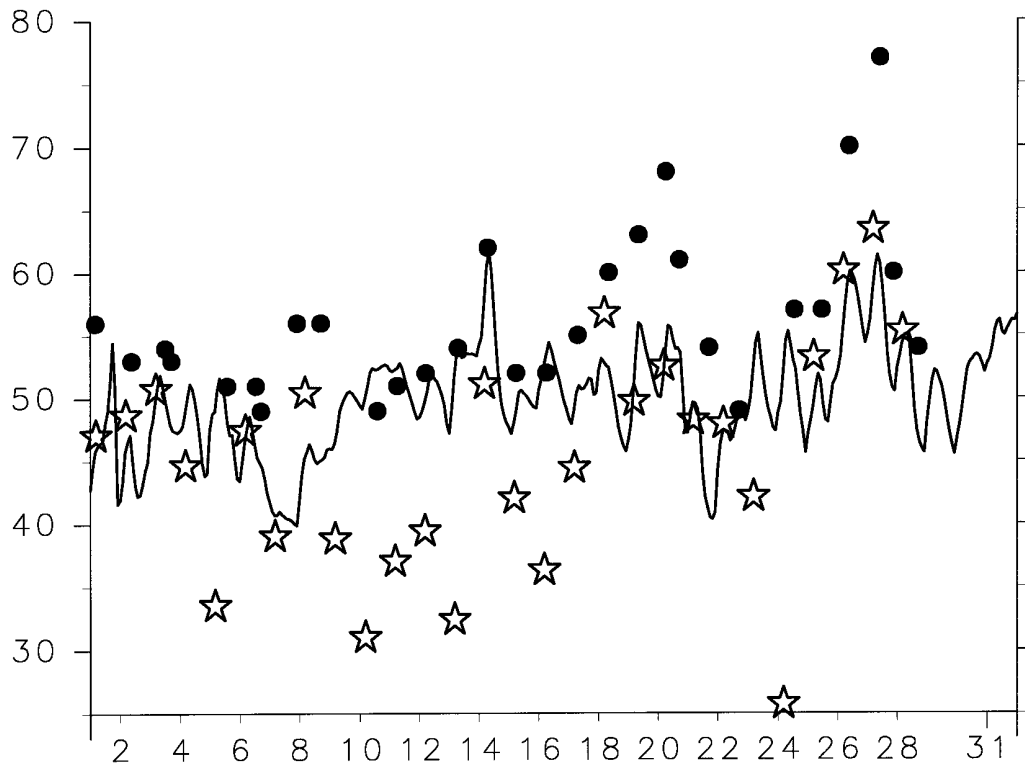
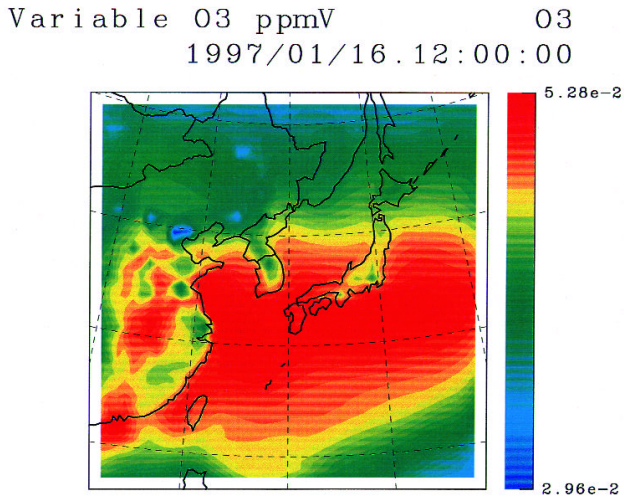
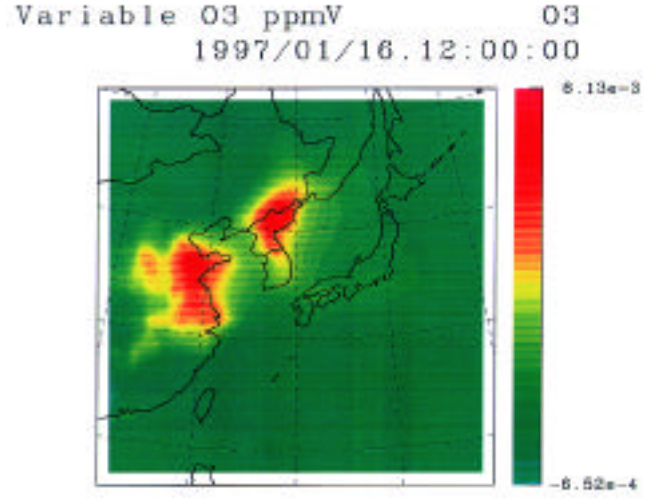


図21 国設松江大気汚染測定局におけるオキシダントとCMAQの計算結果の比較  
 実線が計算結果であり、★が日最高オキシダント、○が各日の9時から8時までの濃度の平均を示す。  
 縦軸の単位はppb.



(a)



(b)

図22 大陸におけるVOCの発生量の影響を示す図  
 (a) 現状の推定値を用いた場合。(b)(a)の計算結果とVOC発生量を半分に設定した場合との濃度差。(地上第一層での月平均オゾン濃度。コンター間隔は0.001ppm = 1ppb)

年間にわたるトレンド解析を行った。解析の結果、東京首都圏地域や近畿地域等の大都市地域ばかりではなく、全国的にオキシダントの年平均値が増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局におけるオキシダントの経年変動も増加の傾向が認められ、これと共にナ

イトレート沈着量も増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局は全国の測定局の中でも、最も窒素酸化物濃度が低い測定局の一つであり、近傍には大きな大気汚染発生源がないことから大陸方面からの移流大気汚染量が増加していると考えられる。本特別研究で

検証した数値モデルを用いて、大陸方面からのVOCや窒素酸化物が我が国に大気環境に及ぼす影響を評価するためには、発生源の把握に関する研究を実施する必要がある。

#### 参考文献

- 1) Akimoto, H. and H. Narita, Distribution of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and CO<sub>2</sub> emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with 1° x 1° resolution, Atmos. Environ., 28, 213-225, 1994
- 2) Louis, J.-F., 1979, A parameteric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. Boundary-Layer Meteor., 17, 187-202
- 3) Murano, J., S. Hatakeyama, T. Mizuguchi, and N. Kuba, Gridded ammonia fluxes in Japan, Water Air and Soil Pollution, 85, 1915-1920, 1995
- 4) Piccot, S., S.D. Watson, and J.W. Jones, A global inventory of volatile organic compound emissions from anthropogenic sources, J. Geophys. Res., 97, D9, 9897-9912, 1992
- 5) Zhao, D. and A. Wang, Estimation of anthropogenic ammonia emissions in Asai, Atmos. Environ., 28, 689-694, 1994

### 2.3 風洞による沿道大気汚染の実験・研究

VOCの発生源として大きな比重を占める自動車排ガスによる沿道大気汚染について、風洞実験によって調べた結果を示す。自動車排ガスによる大気汚染の濃度は、沿道周辺地域において最も高くなる。特に、両側を高い建物にはさまれた谷間の道路（ストリートキャニオン）では、従来から局所高濃度汚染の発生が懸念されながらも、大気汚染物質の拡散機構は明らかでなかった。この理由は主に、沿道における流れと拡散の場が複雑かつ多様で扱いにくかった点にある。本研究においてはレーザー流速計を用いて市街地模型内部の強く乱れた流れ場を

測定し、道路形状（道路の幅、沿道の建物高さなど）や大気安定度と汚染濃度分布との関連を調べた。

#### 2.3.1 道路幅，建物高さ，大気安定度による影響

##### (1) 実験方法

##### 1) 風洞の概要

国立環境研究所の大気拡散風洞を用いた。測定部の寸法は縦2m，横3m，高さ2m，長さ24mであり，測定部に大気安定度を再現するために気流温度（10～90℃）と床面（0～110℃）の温度を調節できる。

##### 2) 相似則

流れ場に関する相似条件を満たすために、模型の風上側12mにわたって縦横10cm高さ5cmのブロック（粗度）を並べた（図23）。これによって大都市における風速の鉛直分布に近い接近流（ $U$ （平均風速）（ $Z$ （高さ）<sup>1/3</sup>）を再現し、流れ場に関する相似条件を満たした。風洞の基準風速は1.5ms<sup>-1</sup>とした。大気安定度の相似条件としてバルクリチャードソン数（ $R_b$ ）の一致を考慮した。実験条件のうち最も強い安定成層（逆転層， $R_b=0.78$ ）は冬期の夜間に、最も強い不安定成層（ $R_b=-0.21$ ）は夏期日中の気象条件に相当するものとする。ただし、

$$R_b = g H (T_H - T_0) / \{ (T + 273) U_H^2 \} \quad (1)$$

$g$ ：重力加速度， $H$ ：ストリートキャニオン高さ， $T_H$ ：高さ $H$ における温度， $T_0$ ：床パネル温度， $T$ ：温度， $U_H$ ：高さ $H$ における風速とする。

##### 3) 風洞模型

道路幅・建物の高さ・大気安定度などの影響を観察し

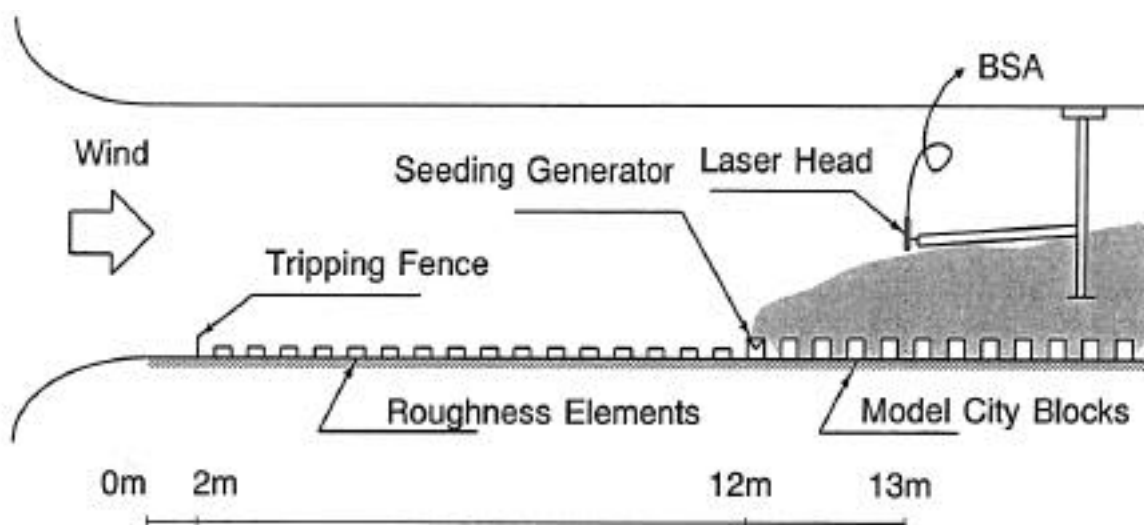


図23 粗度と模型の設置状況

やすくするために、街並みを単純な形状のブロック（街区模型）で置き換えた。一辺10cmの立方体を一つの街区に見立て、風洞の主流と直交する道路幅を10cm、主流と平行な道路幅を5cmとする模型配列を基本形状とした（図24）。街区模型の先頭から5列目の道路を測定対象とし、道路幅を $L$ （道路幅）/ $H_s$ （基準街区高さ） $=1/2 \sim 6$ に、道路風上（ $H_U$ ）または風下（ $H_D$ ）建物高さを（ $H_U$  or  $H_D$ ）/ $H_s=0 \sim 2$ にそれぞれ変化させた。

これらの基礎的な模型のほかに実市街地の縮尺模型を用いた事例研究も実施した。

測定対象としては最近数年間の自動車排ガス測定局測定結果で $\text{NO}_2$ またはSPM濃度が高く、道路構造が特異でない交差点を選定し、縮尺1/300の模型を製作した（写真1，図25）。交差点では北西（NW）から南東（SE）へ抜ける国道（幅：約35m、交差点部で中央車線が掘割からトンネルになっている）と北東（NE）から南西（SW）に通る国道（幅：約30m、平面と高架道路の2重構造になっている）が交わっている。沿道周辺市街地における5～6階建て以上の中層建物は幹線沿道に集中しており、後背側の建物はほとんど2階建て住宅である。

#### 4) 流れ場の測定方法

トラバース装置に取り付けたレーザー流速計によってストリートキャニオン内部の流れを成分（ $u$ ：流れ方向，

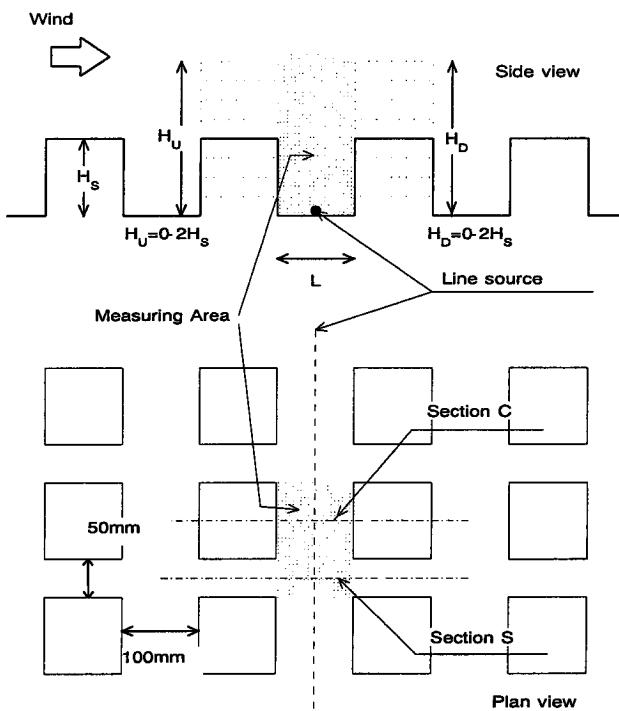


図24 街区模型の配置方法

$v$ ：スパン方向， $w$ ：鉛直方向）ごとに測定した。

#### 5) 濃度分布の測定方法

自動車排ガスに模するため、模型床面に置いたパイプ（線源，直径5mm）からトレーサガス（ $\text{C}_2\text{H}_6$ ：20% +  $\text{N}_2$ ：80%）を排出した。街区模型を用いた実験においては、長手方向に一樣にガスが出るよう線源を調整した。トラバース装置に取り付けた直径3mmの細管からサンプリングガスを採取し9チャンネル炭化水素分析計によって濃度を測定した。

#### (2) 実験結果と考察

##### 1) 道路幅による流れの変化

道路幅と街区高さが同じ時（ $L/H=1$ ），ストリートキャニオンの内部には安定した渦（キャビティ渦）ができる。道路中央から排出されたトレーサガスはキャビティ渦の逆流によって風上に吹き寄せられ、風上側の道

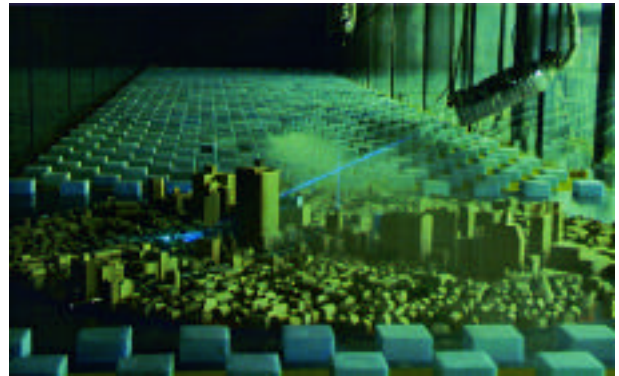


写真1 1/300市街地模型図

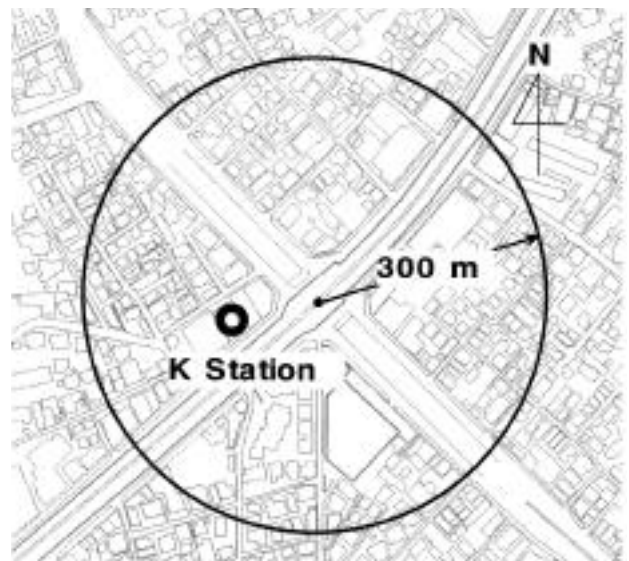


図25 市街地模型の作製範囲

路の濃度が高くなる(図26b)。道路が狭い時キャビティ渦は前後の建物に制限されて十分に発達できないので( $L/H=0.5$ , 図26a), ストリートキャニオン内部の風速は低く, 濃度は高くなる。キャビティ渦は道路幅が $L/H=1.0\sim 2.0$ の時に最も安定し, 強くなる(図26b,c,d)。

ここで, 可視化実験等の結果を参考にしてキャビティ渦の成り立ちについて考える。乱流境界層流中におかれた単独の立方体模型の背後には模型高さ $H$ とほぼ同じ大きさの渦ができる。この渦は円柱背後にできるカルマン渦のように次々と下流に放出されるが, 乱れが大きく, 渦の回転速度よりも風下に流される速度のほうが早い。このために肉眼による可視化実験などでは渦として観察されにくく, 通常は建物背後に定在する渦だけが認識される。ストリートキャニオンのように風下にも建物があると, 渦は放出されずに風下の建物前面にとどまる。さらに, 前面壁に沿って生じる下降流によって加速される。

このような理由から, 道路幅が $L/H=1.0\sim 2.0$ の時のキャビティ渦は最も強く, 安定である(図27a)。

道路幅が建物高さの3倍くらい( $L/H\sim 3$ )のときには, キャビティ渦は前後に動きやすく不安定になる。しかし, ストリートキャニオンの内部にいくつもの渦ができるほどのゆとりはない。キャビティ渦は風下の建物前面で不安定に滞留し(図27b), それ壊れると風上建物背後から新しいキャビティ渦が供給される。こうした過程が不規則に繰り返される。さらに道路幅が大きくなる( $L/H>4$ )と渦は風上建物の背後から次々と放出され, 風下建物前面にぶつかる(図27c)。一部の渦は風下建物前面に滞留するがすぐに壊れる。

ストリートキャニオンの中央で測定された風速の主流方向成分( $u$ )の頻度分布は, このような流れ場の変化を反映している(図28)。すなわち,  $L/H=1.0\sim 1.5$ の時には逆流の頻度が高く, キャビティ渦が安定してでき

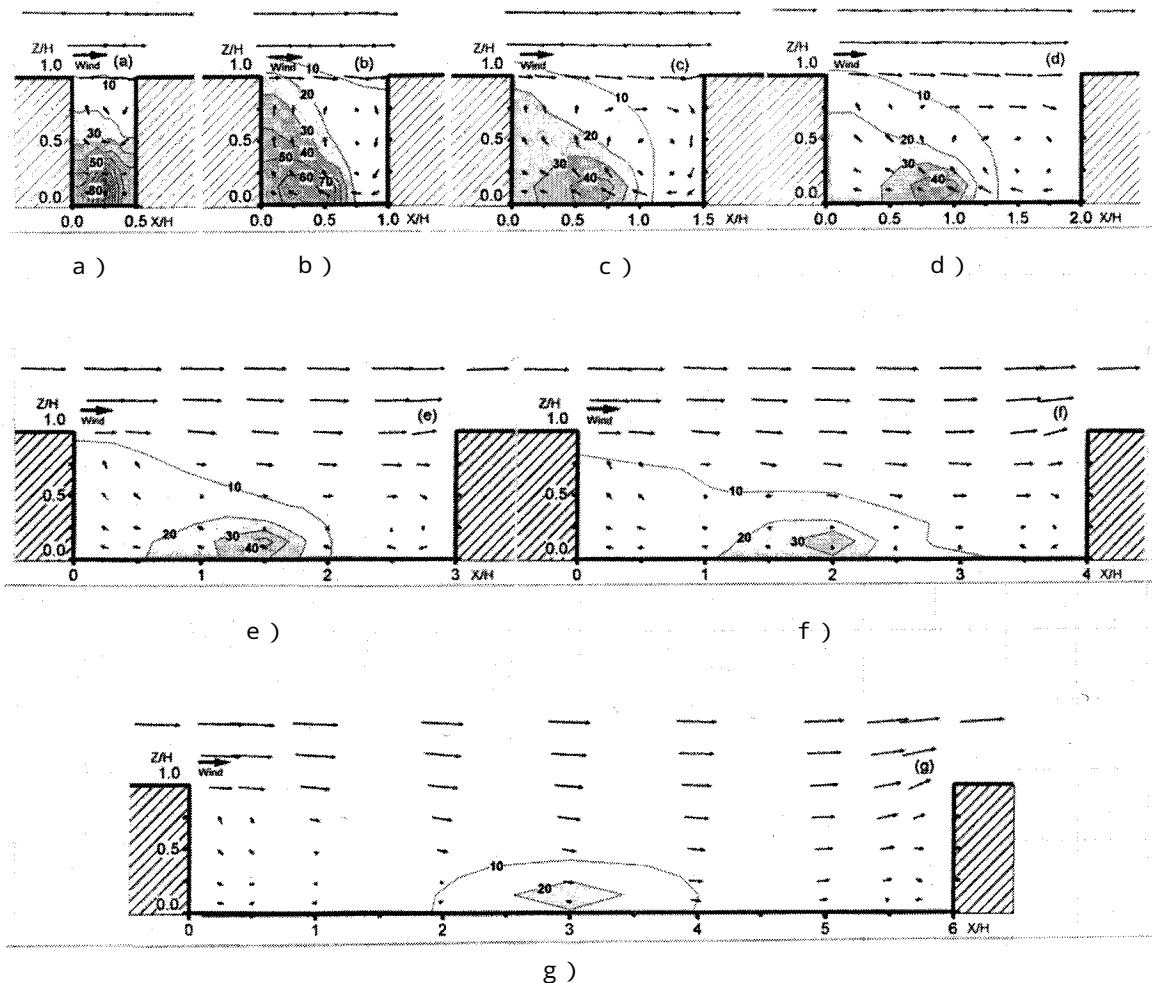


図26 道路幅におけるストリートキャニオン内部の流れと濃度 ( $C_n$ ) 分布の変化  
 $C_n$ (無次元濃度) =  $C$ (測定濃度) / ( $q$ (トレーサーガス排出量) /  $U$ (風洞基準風速))  
 $H$ (ストリートキャニオン高さ)

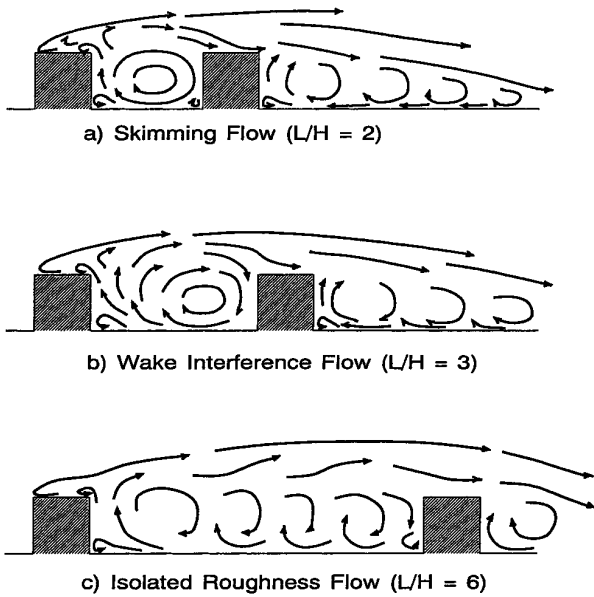


図27 ストリートキャニオン流れの模式図

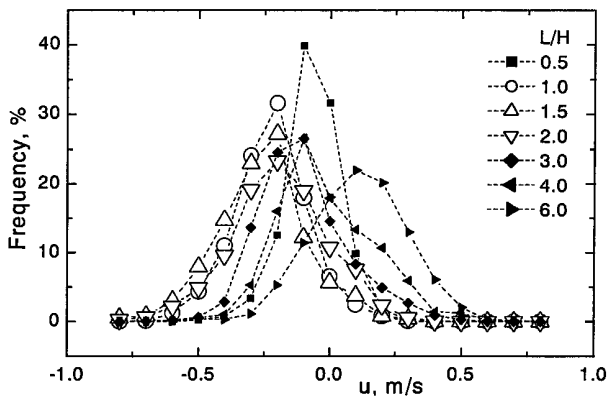


図28 ストリートキャニオン中央下部における主流方向風速成分uの頻度分布

ていることを示す。道路幅が広がるにつれて逆流が減り順流頻度が増加し、キャビティ渦が不安定になることがわかる。

こうした不規則な流れも時間平均すると、例えば、 $L/H=3.0, 4.0$ のベクトル場（図26e, f）のように地上付近の平均風速は非常に弱く、キャビティ渦が前後に引き伸ばされたような流れパターンが生じているようにしか見えない。しかし、実際には逆流と順流が激しく入れ替わり流れは非常に乱れているから、ストリートキャニオンの中央から排出されたトレーサースガスは平均の流れ場が示すのとは逆の風下方向へも大きく広がっている。このような非定常な場の拡散を、平均の流れ場のみから予測することは難しい。

## 2) 建物高さによる流れの変化

道路風下側の建物 ( $H_D$ ) が周辺街区 ( $H_S$ ) よりも高

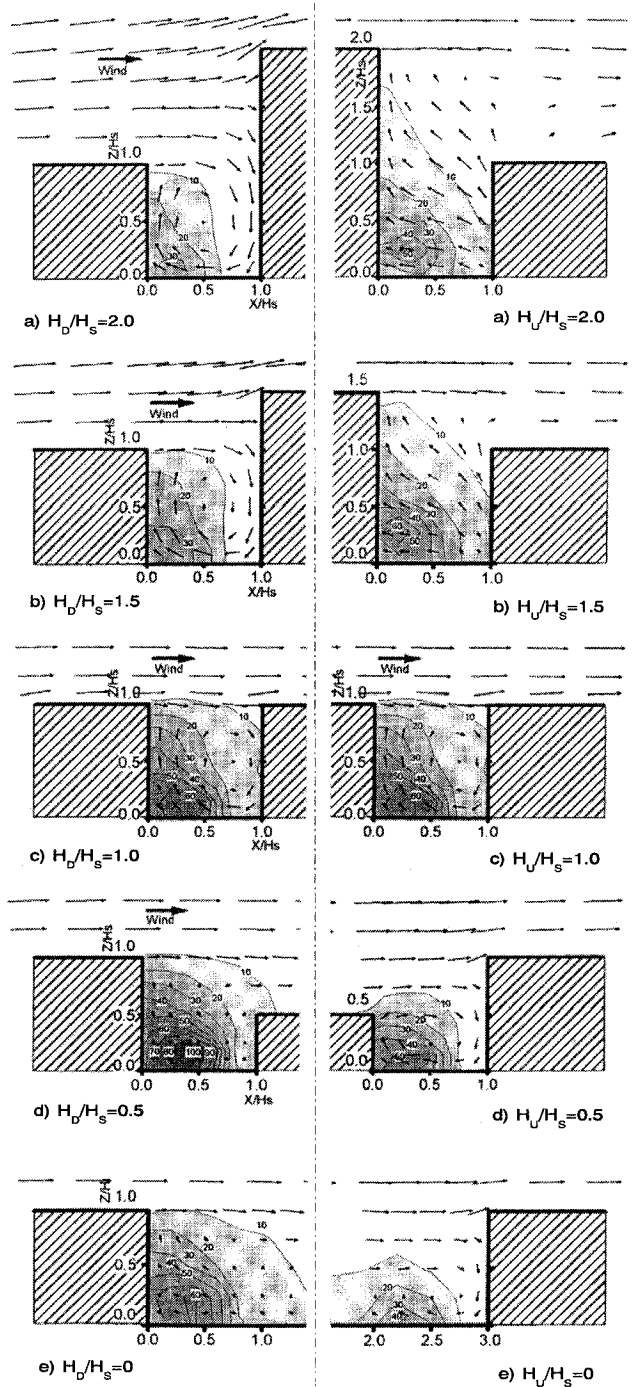


図29 道路前後の建物高さによるストリートキャニオン内部の流れと濃度 ( $C_n$ ) 分布の変化

紙面を節約するために図29の風下建物の半分を、図30の風上建物の半分をそれぞれ切り取り、二つを前後になぎ合わせるようにして表示している。

図30 道路前後の建物高さによるストリートキャニオン内部の流れと濃度 ( $C_n$ ) 分布の変化

いとき、ストリートキャニオンのキャビティ渦は強くなる（図29a, b）。これは建物前面壁に沿う下降流によって、キャビティ渦が加速されるからである。強いキャビティ渦が生じているときには渦の軸方向の連続性が強まるためストリートキャニオン内の流れの二次元性が強くな



る。このためにストリートキャニオンの切れ目で風が前後に通り抜けやすく見える道路断面（図24 Section S）にもキャビティ渦が生じやすくキャニオン断面（Section C）との濃度差は小さくなる。

風下建物が周辺街区よりも低い時にはキャビティ渦はできず、ストリートキャニオン内部の風速は低く停滞気味となり、濃度は高い（図29d, e）

道路の風上側の建物（ $H_U$ ）が周辺の建物や風下側の建物より高い時、ストリートキャニオンにはキャビティ渦はできない（図30a, b）。流れは全体として単独建物周辺の流れに似て、その背後では建物に向かう流れが生じる。地上の大気汚染物質は風上建物壁面に沿って逆流・上昇し、建物上端近くから風下に放出される。その様子は煙突効果と似ている。

ストリートキャニオン低部ではキャビティ渦の有無にかかわらず逆流が生じており、道路風上側の濃度は風下より常に高い。

### 3) 大気安定度による流れの変化

大気が不安定時には浮力による上下方向の気塊の混合が激しい。このためにキャニオン上方の速い流れからストリートキャニオン内部への運動量の伝達が盛んになり、キャビティ渦が加速される。結果、ストリートキャニオン内部の汚染は強く攪拌され、濃度は中立のときよりも低下する（図31d）。このことは、同時にストリートキャニオン内部の上下温度差を小さくして不安定度を弱める。不安定成層は上下温度差がある程度以上大きくなると、浮力による攪拌が強まるためにそれ以上強くはなりにくい。

逆に、安定が強いときにはキャニオン上部からの運動量伝達が小さくキャビティ渦の勢いが弱まるので、さらに強い上下温度差の形成が促される。安定成層条件があ

る程度以上に強くなると、上下の温度差がストリートキャニオン内部の風速を弱め、それがさらに強い温度成層を作り出すという正方向の帰還がかかる。結果、地上付近の風速は非常に弱く濃度は高くなる。このように、地上付近の風速がほとんど無風にまで落ち込んでしまうような強い安定成層条件下では他の温度条件のときと比べて濃度分布パターンが上下に圧縮されたような形になる（図31a）。冬季夜間の $\text{NO}_2$ 濃度が高くなるのはこうした気象条件によるものと考えられる。

### 2.3.2 複雑な道路構造の影響に関する基礎的検討

実験は次の二段階に分けて行っている。第一には交差点を中心とした幹線沿道周辺市街地の濃度分布を広い範囲で立体的に測定し、沿道大気汚染の周辺市街地への広がりを把握する。第二には地上と高架道路との二重構造になっている道路断面内部の流れと大気汚染物質の拡散状況を詳しく測定し、1) 二重構造化した道路における局所大気汚染濃度分布の現状を把握する 2) 高架道路の存在の有無、また、高架道路の高さによる沿道大気汚染濃度分布の変化を調べる 3) 単純な形状に理想化した街区模型と実市街地の模型とから得られた流れ場、濃度場を比べて研究手法の問題点を検討する。実験は現在も継続中であるが、本節では、整理を終えたところまでを速報する。

#### (1) 交差点周辺市街地の濃度分布

交差点を中心にして、半径50mの範囲を約25mのメッシュ間隔で面的に測定した。測定高さは実寸法で地上1.5m, 6.5m, 10.2m, 20mに相当する。測定点数は一風向につき約600点である。測定高10.2mは交差点近くにある既設自動車排ガス測定局のサンプリング高さであり、測定高20mは交差点を南西から北東にとる高架道

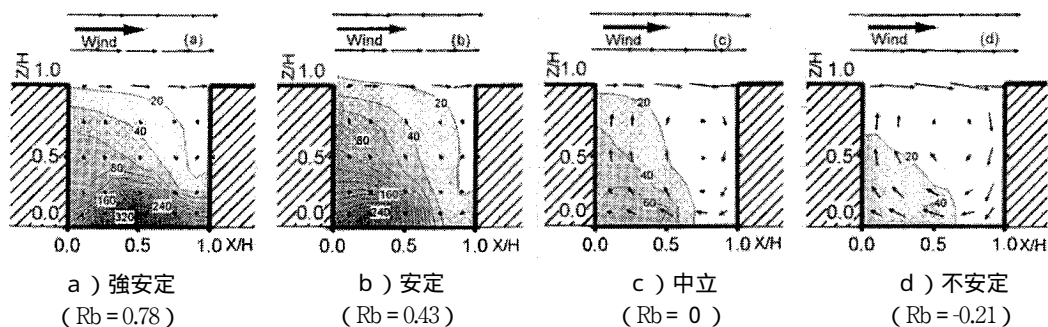


図31 大気安定度によるストリートキャニオン内の流れと濃度分布の変化

路よりも若干高い位置にある。実験風向は現地において出現頻度の高いN, SE, S, SSW, NNWの5風向とし、自動車排ガス測定局を含めた数箇所については観測値との年平均値の比較を行うために16方位の実験を行っている。実験は現況に加えて、高架道路からのトレーサーガス排出がない場合、また、風向SEについては高架道路そのものがない場合の実験も行っている。

風向SEのとき、風は交差点で交わる幹線道路の一方(NW=SE, 幅35m)に平行で、もう一方の幹線道路(NE=SW, 幅30m, 地上+高架道路の二重構造)と直交する。現地における自動車排ガス測定局の観測値はこの風向のときに最も高い。地上の高濃度は交差点近傍で掘割となっているNW=SE道路の中央部分に現れ、次いで、風と直交するNE=SW道路の風下に広がる(図32)。本事例の場合、高さ30m以上の比較的大きな建物はNE=SW道路沿道に多く、これらの建物近傍で局所的な濃度の偏りが生じている。

交差点南東側の高さ70mの建物の影響はさらに大きい。風向SEのとき、この建物側面から交差点にかけた

道路上ではビル風による風速増加が見られる(図33, 印:SEの地上風速が高い)。建物前面道路における濃度上昇が小さいのはこのためと考える。逆に、交差点NW側の道路に対しては、70m建物と交差点周囲の建物および高架道路などが全体として通風を阻害する。このために高濃度が生じるものと考えられる。

交差点SW側の自動車排ガス測定局を含む一角の濃度が比較的高いのも、70m建物あるいはその西側に隣接する30m建物の風下の弱風域にあるためであり、風向SEのとき既設自動車排ガス測定局で高濃度が生じている原因の一つと考えられる。

## (2) 二重構造(平面+高架道路)の道路断面における濃度分布

高架道路がストリートキャニオン内部の濃度分布に及ぼす影響を調べるために、高架道路の高さをa)現況 b)現況の1.5倍 c)現況の2倍 d)高架道路なし、の4段階に変えて道路断面内部の濃度分布と流れ場を詳しく調べた。測定位置は1)道路の両側に比較的大きな建物

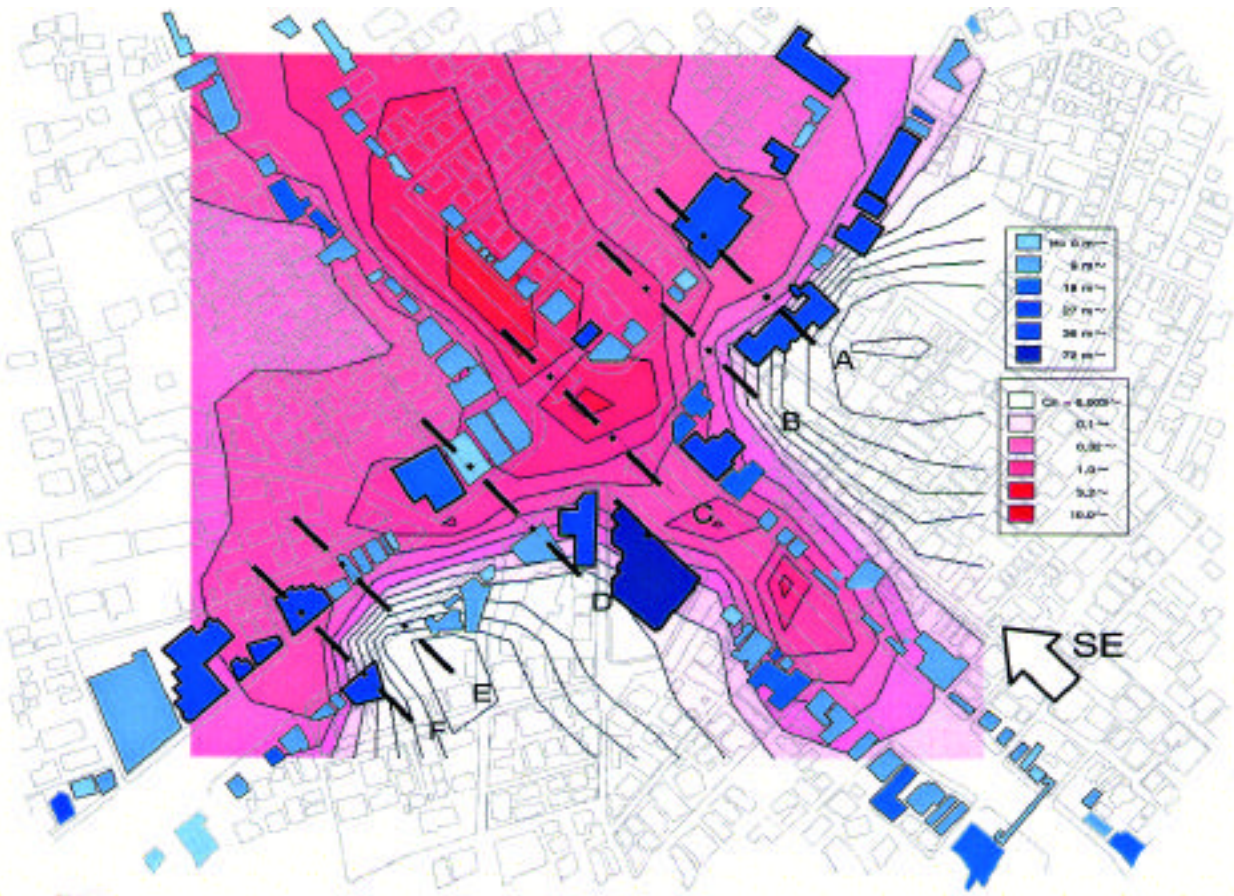


図32 K交差点周辺の沿道大気汚染濃度 $C_n$ 分布, 風向SE

$C_n$ : 無次元濃度 =  $C$ (測定値) /  $C_s$ (基準濃度) = (交差点内部で発生したトレーサーガスの総量) / (交差点の対角長さ: 50m × 沿道建物の平均高さ: 20m × 高さ20mにおける風速:  $U_{20m}$ )

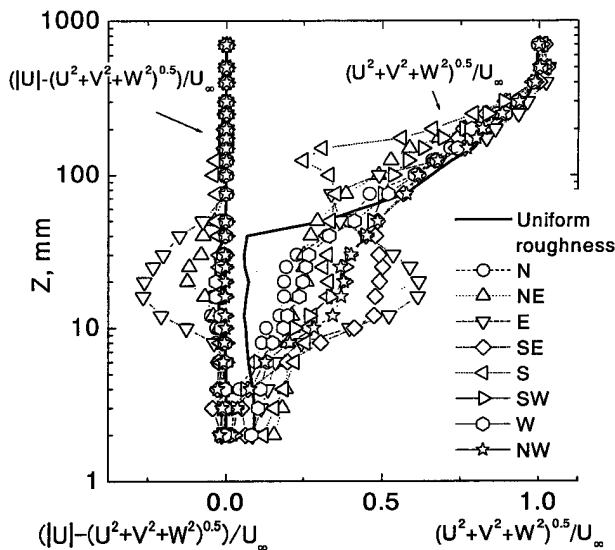


図33 交差点中央部における風速鉛直分布  
 横軸はU, V, W, 3成分の合成風速を風洞の基準風速で無次元化したものである。図は左側はU成分と合成風速の差であり, V, W成分の寄与の大きさを示している。

( $H > 40\text{m}$ )がある場合(ストリートキャニオン, 図32, A断面) 2) 道路の両側が空き地の場合(図32, B断面) 3) 交差点(図32, C断面) 4) 既設自動車排ガス測定局を含む, 高層建物( $H > 70\text{m}$ )の風下側(図32, D断面) 5) 風上が空き地で風下に低層建物( $H < 10\text{m}$ )がある場合(図32, E断面) 6) 中規模の建物( $H \sim 30\text{m}$ )に挟まれた道路(図32, F断面)とする。ここではA断面(ストリートキャニオン)の濃度分布測定結果だけを示す。

道路断面の流れは高架道によって上下に分断されている。そのため, 高架道の上と下では濃度分布パターンが異なっている(図34a~c)。高架道の下では緩やかな逆流によって汚染が風上に運ばれ, その一部が建物壁面に沿って上昇する。高架道の上にはキャピティ渦ができており, 下から上昇してきたトレーサガスを巻き込み上方に放散する。どの条件の時にも, 風下建物の前面壁に低濃度の層ができています。ここから, ストリートキャニオン内部へ新鮮空気が流入している。以上のことから, 図34の矢印で示すような流れパターンが生じていると推定できる。実験当初は高架道路によって蓋をされたストリートキャニオン内部の濃度は高くなるものと考えた。高架道の存在によって地上の風速が低下することが容易に推察されるからである。しかし, 現況(図34a)と高架道路なし(図34d)の分布を比べると, 地上付近の濃度分布には大きな差がない。高架道路の高さが変化した場合(図34b, c)も同様であり, 予想に違う。これにつ

いては次の二つの理由が考えられる。

第一には, ストリートキャニオン内への新鮮空気の流入は風下建物の壁面近くの比較的薄い層によって行われるので, 高架道の存在影響を強く受けない。このために, ストリートキャニオン全体の換気量が高架道の存在によって大きく低下しない。

第二には, 建物側面下部からの汚染物質の流出が高架道路の存在によって増加し, このために地上付近の風速低下による濃度上昇が相殺されるためである。すなわち, 高架道がない場合, このケースでは建物高さや道路幅の比率は約1.4倍であり, ストリートキャニオン内には強いキャピティ渦ができる。このため, 地上の汚染ガスはキャピティ渦によってストリートキャニオン内を循環し, 均一化した後に道路の上部または建物側面から排出される。一方, 高架道路がある場合には道路面に強いキャピティ渦が存在しない。このため, 大気汚染物質は弱い逆流によって風上建物下部に運ばれた後, 強く攪拌されずに, 濃度の高いままストリートキャニオンの隙間の建物端から風下に流出してしまう。

以上の理由から, 高架道の存在によるストリートキャニオンの全体的な濃度上昇が少ないものと考えられる。ただし, 本節の実験では測定実施上の制限から, 最も低い測定点を床面から15mm(実寸法では4.5mm)とした。このために, 地上近くの高濃度をとらえていない可能性がある。事実, 交差点周辺市街地の濃度分布測定(測定高さ5mm)においては, 少数ではあるがかなりの高濃度が測定される場所がある。高架道路がある場合には, 局所的に高濃度が発生する可能性は高い。この問題については今後とも検討を続けたい。

### 2.3.3 沿道大気汚染濃度分布の予測手法の検討

#### (1) 改良SRIモデルの提案

SRIモデル(Johnson, 1973)による濃度予測値とフィールド観測値のとの比較は過去に何度か行われており, かなりよくあうという報告がある一方, 道路形状や大気安定度によっては観測値との差が大きく, ストリートキャニオン内部の流れの変化に見合った係数を用いる必要も指摘されている。本節では道路幅や大気安定度が変化した場合を含めて, ストリートキャニオン全域を統合して予測する算術モデルについて検討する。

SRIモデルによる予測誤差がストリートキャニオンの中央や風下側で大きいことの第一の理由は, それが平均

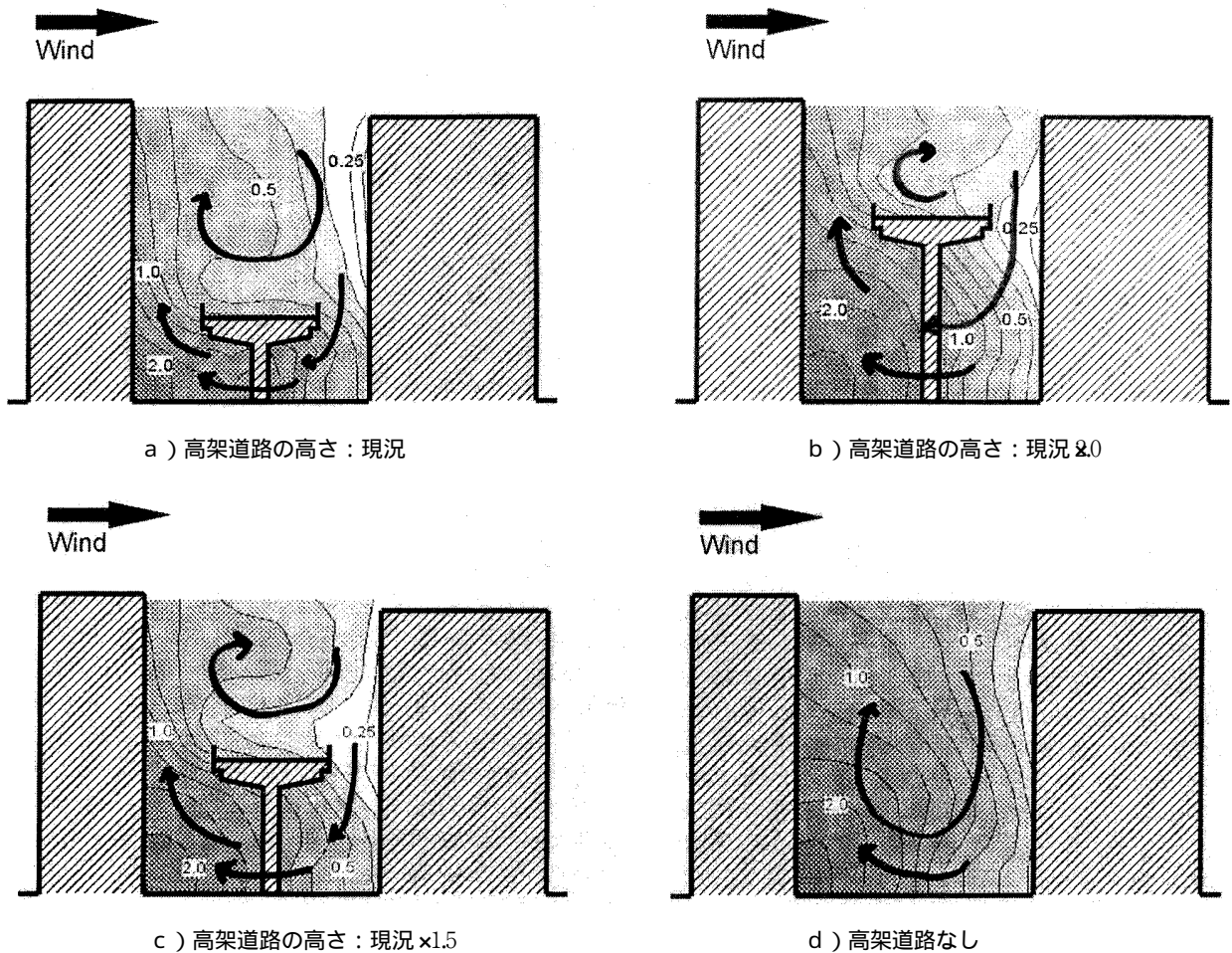


図34 二重構造化したストリートキャニオン（図2A断面）の濃度分布

の流れ場による汚染物拡散だけしか考慮しない点にあると考える。つまりSRIモデルにおいてはストリートキャニオン底部の汚染ガスはキャビティ渦によって風上側に運ばれるのみで風下へは拡散せず、風下側の濃度に対してはキャビティ渦によってストリートキャニオンの上部から内部へ戻る再循環の寄与があるだけと考えている。だから、SRIモデルではストリートキャニオンの風下側の濃度は一定になるとみなしている。しかし、実際の排ガスは排出源の風下側へも広がっているし、道路が広がれば風下側への拡散はさらに多くなる（図26）。このような濃度分布を表す近似式として次式を考えた。

$$C = q / \{A \exp(B \theta) U r\} \quad (2)$$

式は対象とする地点の濃度上昇が大気汚染物質の排出量 $q$ に比例し、風速 $U$ と輸送距離 $r$ に反比例する点においてSRIモデルと同じであり、SRIモデルの係数 $K$ に対応する下線部 $A \exp(B \theta)$ が、角度 $\theta$ （図35）によって増減するところが異なっている。AとBは経験的に定める数値で、Aは全体的な濃度の高さを、Bは濃度分布の前後方向の非対称性を表す。例えば、負のBは風上側の濃度

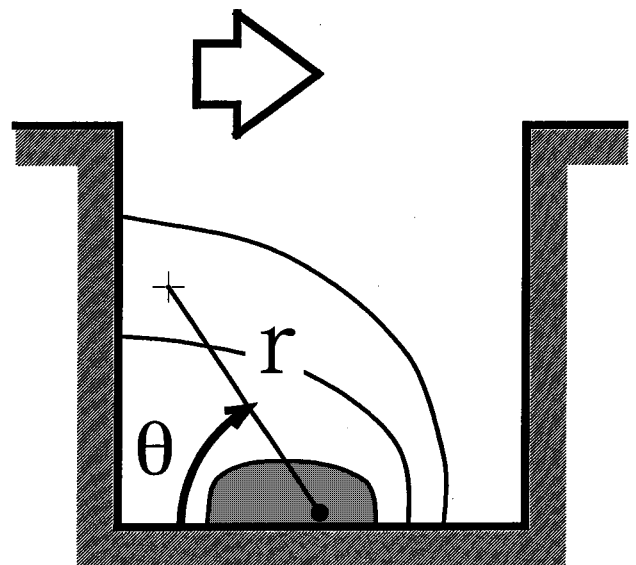


図35 改良SRIモデルにおける輸送距離 $r$ と角度 $\theta$

が高い分布を、ゼロは前後に対象な濃度分布であることを示す。ここではAとBを、一例として図36（ $L/H = 1$ ,  $R_b$ の変化）と図37（道路幅の変化，線源位置：風上）のように定め、各点の濃度を予測して風洞実験値と比較した。図38より、極端に安定が強い場合（ $R_b = 0.79$ ）の

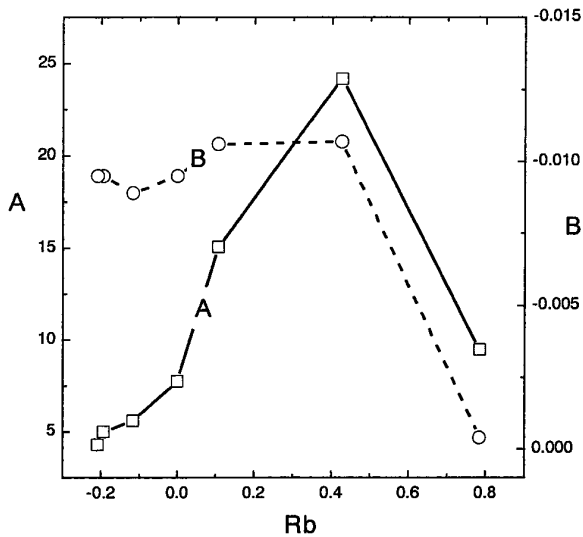


図36 種々の大気安定度に対するAとBの値 (L/H=1, Rb=0.79~0.21)

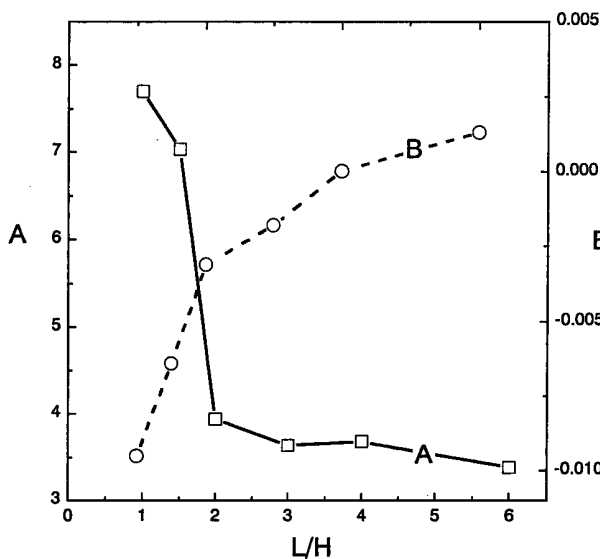


図37 種々の道路幅に対するAとBの値 (L/H=1.5~6, 中立)

予測値が若干ずれている (印) 以外は全体に良く一致している。また、線源が風上建物直後に置かれた場合にはすべての道路幅に対して実験値と予測値は良く一致している (図39)。

## (2) 簡易予測手法の課題

前項で紹介した改良SRIモデルでは、係数をストリートキャニオンの形状や大気安定度の要素や分布の非対称性を考慮して決めたことによって、オリジナルのSRIモデルより精度のよい予測が可能となっている。しかしモデル中で用いた係数 (A, B) は風洞実験によって求めた濃度分布に予測結果が一致するように定めたものであり、予測に先立って、先験的に与えられるものではない。

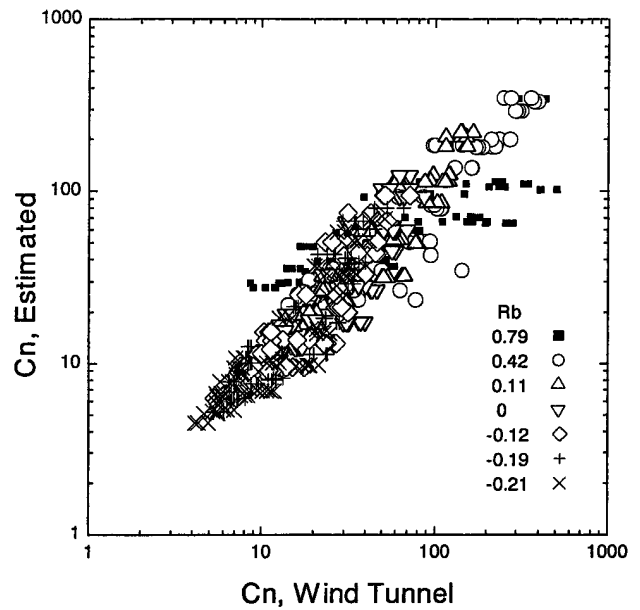


図38 改良SRIモデルによる濃度予測値と風洞実験結果の比較 (L/H=1, Rb=0.79~0.21)

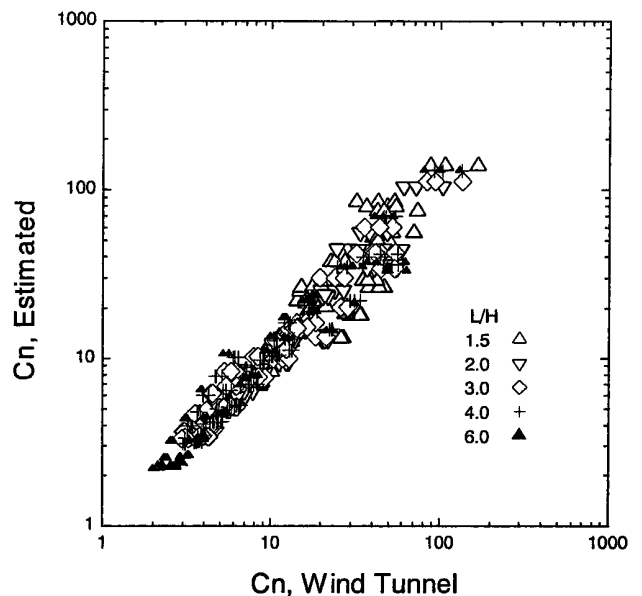


図39 改良SRIモデルによる濃度予測値と風洞実験結果の比較 (L/H=1.5~6, 中立)

実用的には、予備知識のない者がこれら係数を現場の道路構造や周辺建物などの状況に従って、与えることが望ましい。

この予測をさらに実用に近づける試みの一つとしてストリートキャニオンの通風率 $A_{ST}$ を導入する。 $A_{ST}$ は、道路幅 $L$ とキャニオン上端の風速 $U_H$ の積 (図40) に対するストリートキャニオンの実質換気量  $Q_{ST}$  の割合であり ( $A_{ST}=Q_{ST}/(L(U_H))$  で定義される。ただし  $Q_{ST}=q/C_{av}$  : ストリートキャニオンの実質換気量,  $C_{av}$  : ストリートキャニオン内部の平均濃度,  $q$  : 汚染ガス排出量)

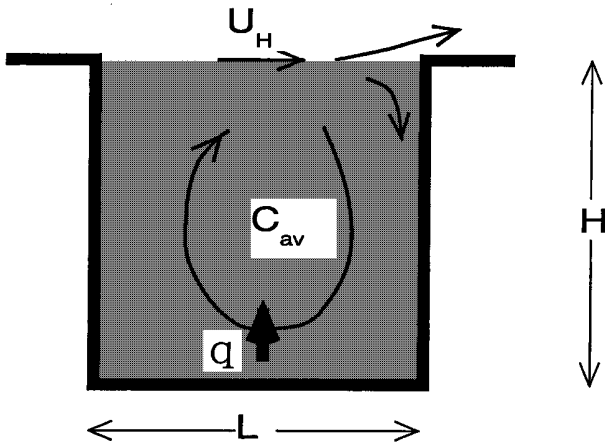


図40 ストリートキャニオン内部の流れと拡散の模式図

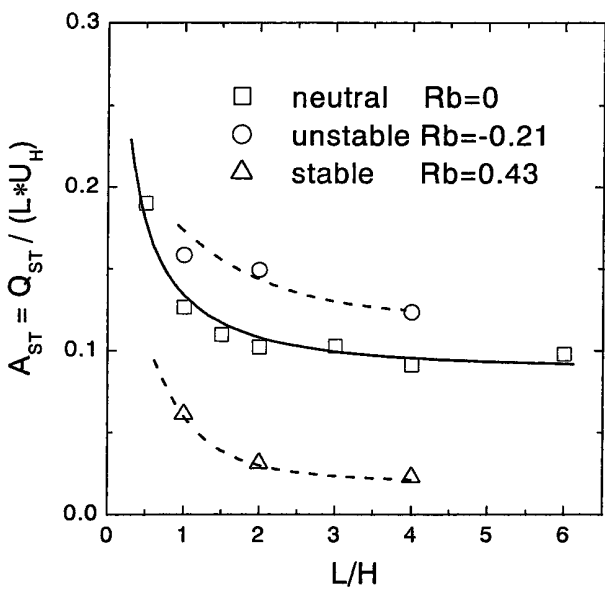


図41 道路幅と通風率の関係

である。例えば、風洞実験から求めた $A_{ST}$ の道路幅 $L/H$ に対する変化は図41、大気安定度 $Rb$ （バルクリチャーソン数）に対する変化は図42、道路前後の建物高さ（ $H_U/H_s$ ,  $H_D/H_s$ ,  $H_U$ ：風上側建物高さ,  $H_D$ ：風下側建物高さ,  $H_s$ ：周辺街区高さ）による変化は図43のようになる。 $A_{ST}$ は文字通りストリートキャニオンの風の通りやすさを示す指標であり、通風に最も影響の強い要素のひとつである道路幅によって基準化した量であるために、極端に大気安定度の強い場合などを除けば、0.1~0.2程度と変化の幅は小さい。 $A_{ST}$ を用いる利点は、おおよその値を決めると、市街地の一般風速や道路幅、交通量から推定される汚染物質の排出量などからストリートキャニオン内部の平均濃度を予測できる点にある。

Johnson (1973) のSRIモデルにおける“7”や、前節で提案した予測式中の“A”などがストリートキャニオン

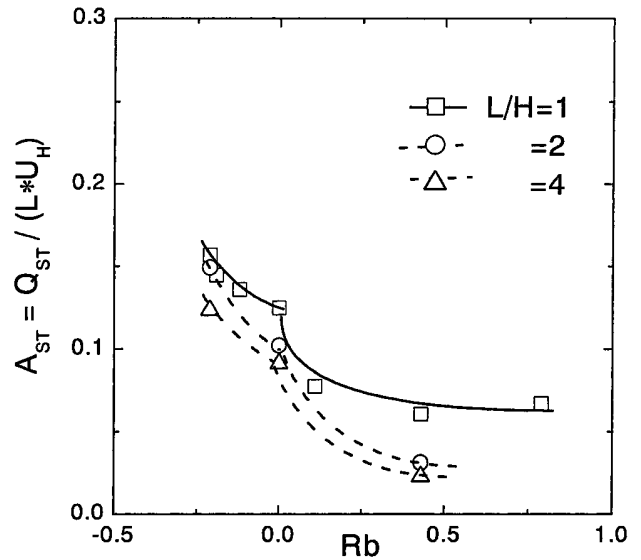


図42 大気安定度と通風率の関係

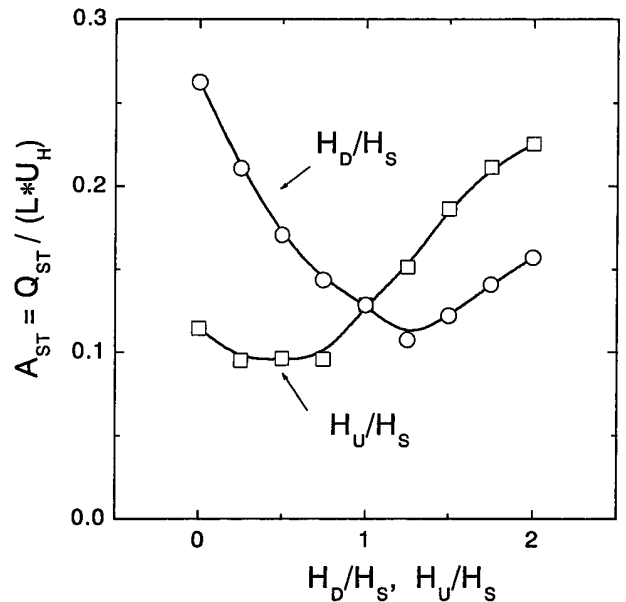


図43 道路前後の建物高さ通風率の関係

ン全般の濃度の大きさを決定する係数であることを考えれば、それを $A_{ST}$ から求めることはきわめて合理的といえる。

さらに、風洞実験で得られた濃度分布をそのストリートキャニオン自体の平均濃度 $C_{av}$ で無次元化すると、道路幅の変化に対しては図44（図の横軸を道路幅 $L$ で基準化している）、大気安定度の変化に対しては図45、道路の風下側建物の変化に対しては図46、風上建物高さの変化に対しては図47のようになる。それぞれの図には、いくつかの実験条件の結果を重ね合わせている。同じ等高線どうしは比較的近いところを通り、道路幅や大気安定度、沿道の建物高さなどが変わっても $C_{av}$ を基準とした

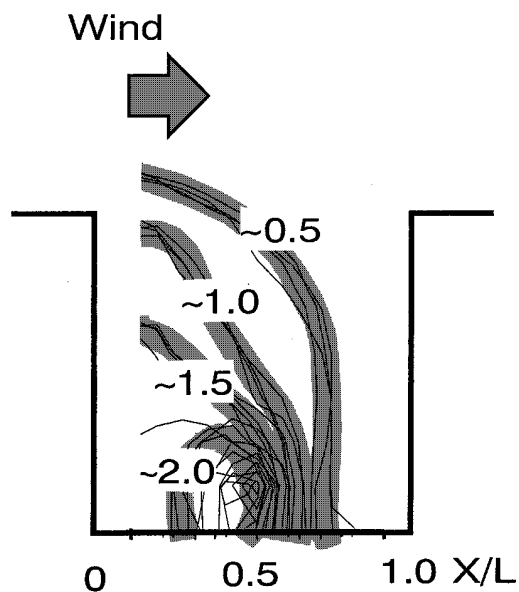


図44 種々の道路幅 ( $L/H = 1 \sim 3$ ) における濃度分布  
濃度分布は、それぞれの実験条件におけるストリートキャニオン内部の平均濃度 ( $C_{av}$ ) に対する濃度比を表したものである。等高線が1.0以上の場所では、道路全体の平均値よりも濃度が高い。

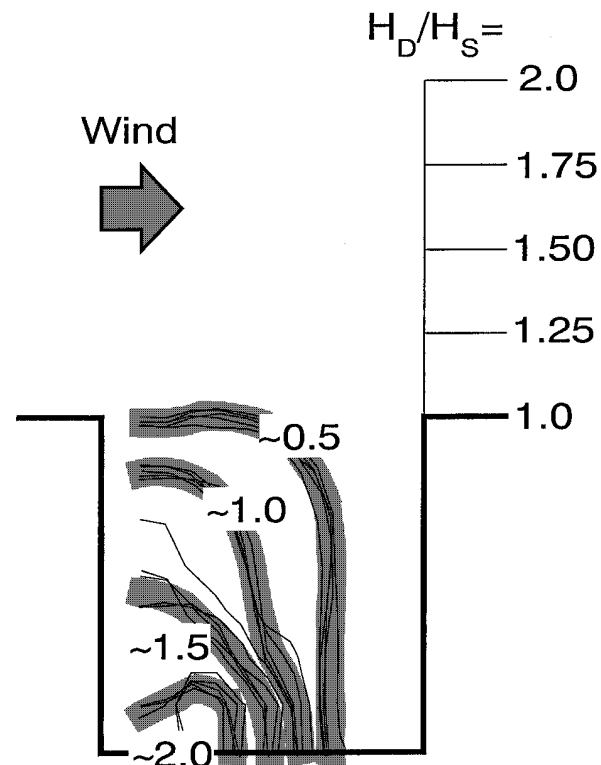


図46 種々の風下建物高さ ( $H_b/H_s = 1.0 \sim 2.0$ ) における濃度分布

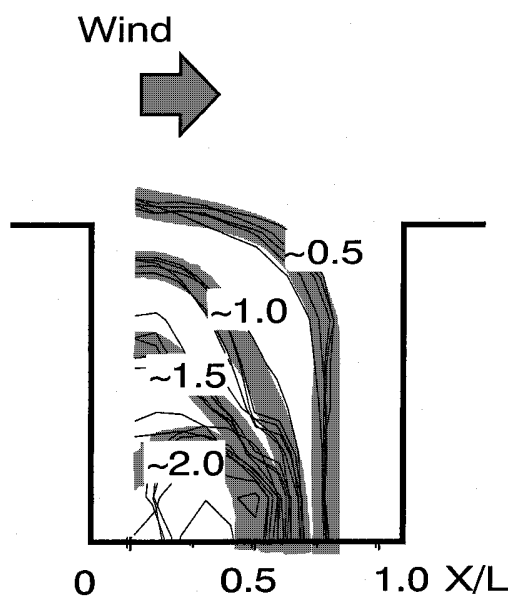


図45 種々の大気安定度 ( $R_b = -0.21 \sim 0.11$ ) における濃度分布

分布パターンはよく似ている。

こうした濃度分布の類似性は、沿道における流れ場と大気汚染物質の拡散構造が、ある範囲内の道路構造の変化に対して大きく変わらないことを示しており、この分布形状が前節で提案した改良SRIモデルの係数Bを決める手がかりを与える。今後、さらに実験を積み重ねることによって現場での実用に耐えうる予測式の提案に結び付けたいと考えている。

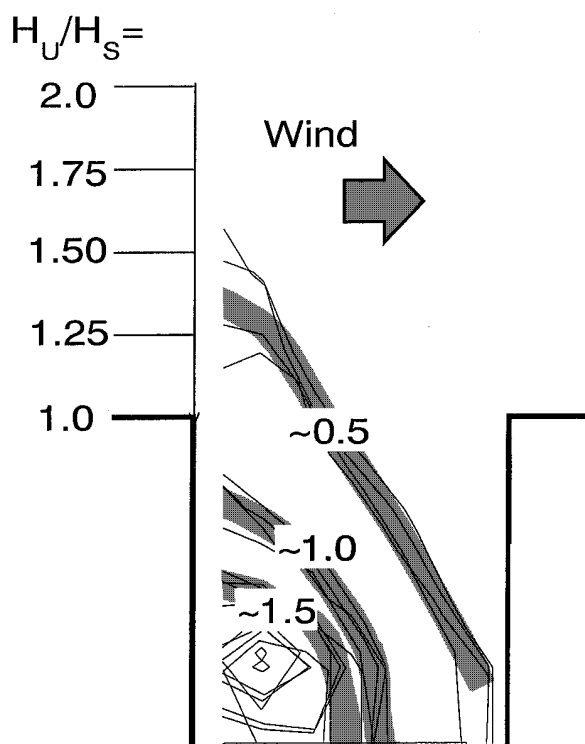


図47 種々の風下建物高さ ( $H_b/H_s = 1.25 \sim 2.0$ ) における濃度分布

### (3) まとめ

市街地を単純な形状のブロック模型で置き換えた街区模型と、実市街地の縮尺模型を用いて風洞実験を行い、次のことが明らかになった。

1) 道路幅が沿道建物の1倍から2倍程度のとき、ストリートキャニオンには建物とほぼ同じスケールの、安定な渦(キャビティ渦)ができる。

2) ストリートキャニオン内部の大気汚染濃度分布はキャビティ渦の強さや安定性によって変わる。例えば、道路の風下側の建物が周辺の建物よりも高く、キャビティ渦の勢いが強いときには濃度が低い。逆に、道路風下側の建物が周辺よりも低くキャビティ渦ができないときには濃度が高くなる。大気安定度の影響も同様である。キャビティ渦が強くなる不安定成層時(晴れた日の日中)にはストリートキャニオン内部の濃度は低く、逆転層が強くとキャビティ渦の勢いが弱まるとき(晴れた日の夜間)に濃度が高まる。

3) ストリートキャニオン内部の濃度分布を簡易に予測できる改良SRIモデルを提案し、予測式のさらなる実用化への展望を示した。

#### 参考文献

W.B. Johnson, F.L. Ludwig, W.F. Dabberdt and R.J. Allen:  
An urban diffusion simulation model for carbon monoxide.  
JAPCA 23,490-498, 1973

## 2.4 総括および研究展望

### 2.4.1 まとめと今後の課題

#### (1) VOC発生量・VOC組成の推計

固定蒸発発生源のうち最も大きな発生源である、塗料・溶剤関連からのVOC発生量、移動発生源のうち自動車排ガス、自動車燃料起源からの蒸発発生について、地域別・成分別の発生量推計を行った。また、これら以外の発生源についても、従来の推計値の再検討を行い、上記3分野の推計結果と合わせて、全国のVOCの発生総量の発生源種類別内訳を推定した。これらの結果を総合的にとりまとめ、最新の発生量と組成を把握した。解析の結果、平成9年度の塗料関連からの大気中への排出量は、82.5万トンと推計された。塗料の用途別、VOC成分別の内訳は建物、自動車、電気・金属などが上位を占

めた。VOCの種類別では、従来の推計値に比べて、キシレンの比率が高い結果が得られたが、これは、「PRTRのための塗料標準組成表」において、溶剤中のキシレンの構成比が高く設定されていることによる。溶剤の種類別使用量の経年変化をもとに推計すると、キシレンの比率がより低く、トルエンの比率がより高い結果となり、従来の推計による物質構成比に近づく。溶剤の成分構成比について、本推計では、資料や業界ヒアリングをもとに設定したが、その値の妥当性については、大気中濃度との比較等によって検証する必要がある今後の課題である。

これまでは、自動車起源のVOCの比率は人為発生源全体のうち15%程度であると考えられていた。これまで主に規制自動車のテールパイプからの発生量を中心に推計がなされていたが、これに加えてエバポエミッション(走行中や駐車時の車からの蒸発による発生)、アイドリング、コールドスタート時の排出増加が考慮されなければならない。本研究においては、これらの要因を新たに追加し、自動車寄与の推計を行った。その結果、自動車起源のVOCの比率は22%程度であることが明らかとなった。自動車に関連するもう一つの発生源としては、給油や温度変化に伴うガソリン蒸気の大気への放出がある。これによる寄与分を自動車関連のVOCとして評価すると、総体としての自動車の比率は27%程度となることが明らかとなった。本研究においては、十分な検討ができなかった二輪車等の未規制自動車の寄与も大きいいため、今後とも継続的に自動車起源のVOCの推計値の修正が必要である。

本研究による自動車走行時の排ガス推計手法は、車種別・速度帯別の排出係数が得られれば、他の物質についても適用可能であり、自動車交通に起因する大気環境負荷物質の排出推計手法として利用することができる。今回は、全国推計を行ったが、地方ブロック別に自動車輸送統計データを生かした推計を行うこともできる。また、大型車の通行が特に多い高速道路の交通量を始めに引き去った上で、同様の推計を行った方が、より妥当な推計となると考えられる。

ガソリンの蒸発や排ガスは有害化学物質(ベンゼン等)汚染の動態把握の観点からも調査を進める必要がある。蒸発成分と量はガソリン組成や気温影響が大きいいため、全国のガソリンスタンドからのサンプリングと成分分析を行った。この結果を基に蒸発ガソリンの環境負荷に関



する検討を行い季節変化や地域分布を明らかにした。PRTR（汚染物質排出移動登録制度）の結果等を取りまとめ、固発生源（点源）からの有害化学物質の発生量は約35万トン/年/全国であること、主要成分はトルエン、キシレン、ジクロロメタン、ジクロロベンゼンであり、22万トン/年/全国で全体の63%程度を占めることを明らかにした。しかし、これ以外にも塗装・溶剤の生産量から推計すれば、面源からのVOC発生が100万トン/年以上あると考えられる。固定発生源の中でも特に発生寄与率が高い塗装・溶剤関連、印刷関連のVOC発生の現状を把握する為に関連業界のヒアリングを行い最新の知見を明らかにした。これとともに大気汚染予測モデルへの入力データベースを更新した。

## （2）トンネル調査による自動車からのVOC発生量・VOC組成の推計

自動車の走行時の発生について、自動車トンネル内外の実測濃度差をもとに、成分別の排出係数の推定を行い、シャーシダイナモ試験等による従来の報告値との比較を行った。走行速度や車種構成が異なる二つのトンネル調査（トンネルA、B）データを解析・評価した。トンネルAは市街地における比較的短いトンネル（約350m）で、両側には信号がありラッシュ時には渋滞が発生する。トンネルBは高速道路のトンネル（約1,200m）である。両トンネルともに、1日～数日程度の測定結果を、同時に観測した交通量と併せて解析した。Aトンネルでは車種構成がほぼ一定であったので、得られたエミッションファクター（EF）は、市街地における現実の車種構成の、比較的低速の走りに対応する値と考えた。Bトンネルでは車種構成に変化が見られたので、車種構成の変化とVOC組成とのEFの関係を国内外の実験・観測結果と比較評価した。トンネルデータにより得られたEFは、従来の推定値と同程度または大きめであった。

大型車両率が高いと排出係数が高い成分は、*n*-オクタン、*n*-ノナン、1,3-ブタジエン、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、スチレン、ホルムアルデヒド、大型車両率が高いと排出係数が低い成分は2,2,4-トリメチルペンタン、2,3,4-トリメチルペンタン、2-メチル-2-ブテンであった。日本における自動車からのVOCの排出係数についての情報は限られており、特にトンネルBではこれまで国内ではほとんど情報のなかった化合物についての排出係数が得られた。両トンネルで得られた総交通量に対

する排出係数を、お互いに、また、日本における台上試験の結果および海外のトンネル調査結果と比較し評価した。実際に道路を走行している、形式・年式・整備状況等が異なる多数の車両からの、平均的な排出状況を把握することはリアルワールドでのVOC排出実態を知るためには、極めて重要である。今後は、条件の異なる複数のトンネルでの定常的なモニタリングが望まれる。またトンネルデータにより得られたEFを基にPM<sub>2.5</sub>・DEPの発生量を推定する手法の検討を行うのが、今後の課題である。

## （3）大気環境中におけるVOCの動態把握

関東地域等においてフィールド観測を実施した。また、同一の自動分析システム関東地域とメキシコ市に設置しデータを収集・解析し、地域的な特徴を把握した。メキシコ市との比較測定の結果によれば、メキシコ市におけるVOC濃度は関東地域と比較して極めて高く、中でもプロパン、ブタンは10～30倍の値を示した。しかしベンゼン濃度に関しては関東地域とメキシコ市との間に大きな濃度差はなかった。関東地域におけるフィールド観測では、冬季においては、大気汚染物質が蓄積し高濃度が出現するメカニズムを立体的に把握すること、アルデヒド類や、ガス状硝酸などの立体分布を把握することができた。

関西地域における春季大気汚染とVOCの関連性解析では関西地域における春季の高濃度大気汚染には大阪湾周辺地域の二酸化窒素汚染には大阪湾上の船舶から排出された窒素酸化物がに大きな寄与を及ぼしていること、二酸化窒素汚染の分布には大阪湾周辺の局地風循環の影響が大きいことがわかった。また大阪平野周辺の丘陵・山岳地域においてオゾンの濃度が高くなる理由として、混合層の発達に伴う上空からのバックグランドオゾンが取り込みと、地上付近での一酸化窒素との反応によるオゾンの消失が原因であることがわかった。数値実験から以下の結果が得られた。モデル解析の結果から、炭化水素発生源の発生量の削減は二酸化窒素の環境濃度の低減にはあまり関与せず、バックグランドオゾンの寄与が大きいことが示された。

広域大気汚染解析のモデル解析し、オゾン分布のVOC排出量に対する感度実験を行った。計算にあたっては、中国大陸からのVOCの発生量として現状の推定値を用いた場合と、VOC発生量を半分に設定した場合

の比較を行った。オゾンの月平均値でくらべると、両者の計算の濃度差は、差の大きいところでVOC発生量を半分に設定した場合の方が5ppb程度濃度が低くなっていた。差の大きい地点で詳細に比べると、数ppbから20ppb程度日最高濃度が低くなっていることがわかった。

大気汚染濃度のトレンド解析によれば、東京首都圏地域や近畿地域等の大都市地域ばかりではなく、全国的にオキシダントの年平均値が増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局におけるオキシダントの経年変動も増加の傾向が認められ、これとともにナイトレートの沈着量も増加傾向にあることがわかった。国設松江大気汚染測定局は全国の測定局の中でも、最も窒素酸化物濃度が低い測定局の一つであり、近傍には大きな大気汚染発生源が無いことから大陸方面からの移流大気汚染量が増加していると考えられる。

大阪での春季の解析結果、広域大気汚染解析のモデル解析結果、松江での濃度トレンド等の今回の研究結果は大陸方面からのVOC流入とこれによるオゾン濃度上昇の重要性を示唆しており、今後の継続的なモニタリング、や大陸を含む発生源調査が不可欠であることを示している。

#### (4) 風洞実験による沿道大気汚染の研究

VOCの発生源として大きな比重を占める自動車排ガスが沿道大気に及ぼす影響を風洞を用いて実験・解析した。街並みを単純な街区模型で置き換えた実験や実市街地の縮尺模型を用いた実験により道路幅、建物高さ、大気安定度による影響を検討した。実験の結果、道路幅が沿道建物の1倍から2倍程度のとき、ストリートキャニオンには建物とほぼ同じスケールの、安定な渦(キャビティ渦)ができること、ストリートキャニオン内部の大気汚染濃度分布はキャビティ渦の強さや安定性によって変わること、キャビティ渦が強くなる不安定成層時にはストリートキャニオン内部の濃度は低く、逆転層が強くキャビティ渦の勢いが弱まるとき(晴れた日の夜間)に濃度が高まることがわかった。

ストリートキャニオン内部の濃度分布を簡易に予測できる改良SRIモデルを提案し、予測式のさらなる実用化への展望を示した。モニタリングステーションの最適配置や地域代表性の評価に当たっては問題とする道路空間内部における大気汚染濃度分布を明らかにする必要がある。そこで任意の道路条件に対する予測手法を開発する

ために風洞実験を行い予測式  $C = q / \{A \exp(B \cdot U_r)\}$  を提案した。ここで、 $C$ は自動車排ガスによる濃度増加、 $q$ は汚染ガスの排出量、 $U$ は一般風速、 $r$ は汚染源から対象地点までの距離、 $\theta$ は汚染源から対象地点を見上げた仰角、 $A$ と $B$ は実験的に定める係数である。この関係を一般化するための風洞実験を実施した。これとともに実市街地ならびに複雑な道路構造地域における拡散モデルを検証するための風洞実験を行った。モデル解析に関しては風洞実験によりストリートキャニオン内の大気汚染分布と気象条件、道路構造条件との関連性を明らかにした。また、ストリートキャニオン両側の建物の高さによって道路内部の流れと拡散がどのように変化するかを詳しく調べ風洞模型実験の結果をまとめた。まず、ストリートキャニオン全体の換気性能を示す指標として通風率( $A_{ST} = Q_{ST} / (L \times U_H)$ )を導入し、道路幅・建物の高さ・大気安定度などの条件から通風率を介してストリートキャニオンの平均濃度を大まかに見積もる手法を提示した。ただし $Q_{ST} = q / C_{av}$ ：ストリートキャニオンの実質換気量、 $C_{av}$ ：ストリートキャニオン内部の平均濃度、 $q$ ：汚染ガス排出量、 $L$ ：道路幅、 $U_H$ ：上空風速である。また、ストリートキャニオン内部の濃度分布をそれ自身の平均濃度によって基準化すると、道路幅・建物高さ・大気安定度などのかなりの範囲にわたって分布形状が類似することがわかり、今後の沿道汚染濃度分布予測実用化への手がかりを得た。

これとともに、高架道路などの複雑な道路構造の影響に関する基礎的検討を行った。実験結果によれば、高架道路あり、と高架道路なしの分布を比べると、地上付近の濃度分布には大きな差が見られなかった。この要因として、第一には、ストリートキャニオン内への新鮮空気の流入は風下建物の壁面近くの比較的薄い層によって行われるので、高架道の存在影響を強く受けない。このために、ストリートキャニオン全体の換気量が高架道の存在によって大きく低下しないこと、第二には、建物側面下部からの汚染物質の流出が高架道路の存在によって増加し、このために地上付近の風速低下による濃度上昇が相殺されるためであることが考えられる。すなわち、高架道がない場合にはストリートキャニオン内には強いキャビティ渦ができる。このため、地上の汚染ガスはキャビティ渦によってストリートキャニオン内を循環し、均一化した後に道路の上部または建物側面から排出される。一方、高架道路がある場合には道路面に強い

キャビティ渦が存在しない。このため、大気汚染物質は弱い逆流によって風上建物下部に運ばれた後、強く攪拌されずに、濃度の高いままストリートキャニオンの隙間の建物端から風下に流出してしまうと推察される。

以上の理由から、高架道の存在によるストリートキャニオンの全体的な濃度上昇が少ないものと考えられる。ただし実験では測定実施上の制限から、最も低い測定点を床面から15mm（実寸法では4.5m）とした。このために、地上近くの高濃度をとらえていない可能性がある。事実、交差点周辺市街地の濃度分布測定（測定高さ5mm）においては、少数ではあるがかなりの高濃度が測定される場所がある。高架道路がある場合には、局所的に高濃度が発生する可能性は高い。この研究課題に関しては更に詳細な実験・解析の継続実施を行っている。

#### 2.4.2 研究展望

本特別研究は、これまでのガス状大気汚染物質に関する研究の中では調査・研究が最も遅れていたVOCの発生源把握と環境中での動態解明に焦点を当て、3年間にわたり実施したが、この研究成果は独立行政法人国立環境研究所が平成13年度から実施する、重点特別研究『大気中微小粒子状物質（PM2.5）・ディーゼル排気粒子（DEP）等の大気中粒子状物質の動態解明と影響評価』（略称PM2.5・DEP研究プロジェクト）に引き継がれることになる。大気中微小粒子の研究は、残された大気汚染研究の中でも最も困難な部分である。VOCが環境大気中の微小粒子に及ぼす役割は、良くわかっていない。PM2.5・DEP研究を推進して行く中でもVOC関連の研究課題は益々、重要となる。

具体的な課題として、発生源の把握が上げられる。本特別研究ではVOCの実走行状態での排出係数について、日本では情報が限られていた状況を踏まえて、日本にお

ける実際に走行している車両からのVOCの排出係数を、トンネル調査によって求めることを目的とした研究を行った。今後はPM2.5・DEPを含めて実験方法、データ解析方法の検討が必要である。

自動車排ガスの各種成分の排出規制は、特定のテストモードでの排出係数（走行距離あたりの排出量）について実施されているが、実際の排出係数は走行モードに大きく依存する。実走行モードのシャシーダイナモ試験に基づく排出係数を用いた規制物質等の排出量の全国レベルでの推計が、環境庁（当時）により行われ、平成0年に平成6年までの推計値が報告されている。この報告では、シャシーダイナモ試験で実測されたCO<sub>2</sub>排出係数に基づく全国の自動車排ガス起源のCO<sub>2</sub>排出量と、自動車用燃料の消費量統計値から推計されたCO<sub>2</sub>排出量の比較が行われ、前者が後者の約70%と、過小となることが指摘されている。このことは、VOCやNO<sub>x</sub>などについても、同様の推計手法を適用すると過小予測となる恐れがあることを意味する。一方、このこととは別に、こうしたシャシーダイナモ試験による測定値が実際の使用条件下による排出量よりも過小となる要因もいくつか指摘されてきた。そのひとつは、エンジン始動直後、とくに低温時において、排ガス処理装置の触媒が十分に機能しない段階で生じる、いわゆるコールドスタート時の排出増加である。これらの諸点に関しての実験室的研究も必要である。

これとともにPM2.5・DEPの測定技術開発や、これを用いた環境モニタリング、発生源と環境濃度の関連性を把握するための、風洞モデルや数値モデルの開発を推進しなければならない。PM2.5・DEP問題は局所的な課題と広域的な課題が相互に関連し合っているため、広い分野での研究協力を行くことが極めて重要である。

**[ 資 料 ]**

## 研究の組織と研究課題の構成

### 1 研究の組織（当時）

#### [ A 研究担当者 ]

##### 地域環境研究グループ

統括研究官	森田昌敏
都市大気保全研究チーム	若松伸司・上原 清
交通公害防止研究チーム	田邊 潔・近藤美則
水改善手法研究チーム	森口祐一・櫻井健郎・松橋啓介
主任研究官	松本幸雄

##### 大気圏環境部

大気物理研究室	菅田誠治
大気反応研究室	畠山史郎・酒巻史郎
高層大気研究室	杉本伸夫・松井一郎

##### 化学環境部

計測技術研究室	相馬悠子
---------	------

#### [ B 客員研究員 ]

秋山 雅行	（北海道環境科学研究センター）	（平成 10 ～ 12 年度）
阿相 敏明	（神奈川県環境科学センター）	（平成 10 年度）
宇都宮 彬	（福岡県衛生公害センター）	（平成 10 ～ 12 年度）
鷓野伊津志	（九州大学応用力学研究所）	（平成 10 ～ 12 年度）
大原 利真	（静岡大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
神田 学	（東京工業大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
木村富士男	（筑波大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
坂本 和彦	（埼玉大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
清水 源治	（山梨県衛生公害研究所）	（平成 10 ～ 12 年度）
外岡 豊	（埼玉大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
坂東 博	（大阪府立大学）	（平成 10 ～ 12 年度）
森川多津子	（日本自動車研究所）	（平成 10 ～ 12 年度）
泉川 碩雄	（東京都環境科学研究所）	（平成 10 ～ 11 年度）
石井康一郎	（東京都環境科学研究所）	（平成 10 ～ 11 年度）
星 純也	（東京都環境科学研究所）	（平成 10 ～ 11 年度）
服部 幸和	（大阪府公害監視センター）	（平成 10 ～ 11 年度）
長田健太郎	（山口県環境科学センター）	（平成 11 年度）

#### [ C 研究協力者 ]

今村 清	（大阪府公害監視センター）	（平成 10 ～ 11 年度）
佐藤 啓市	（大阪府立大学大学院）	（平成 11 年度）
白石 泰介	（埼玉大学理工学部）	（平成 11 年度）

2 研究課題と担当者（\*客員研究員，\*\*共同研究員）

（1）VOCの発生量推定手法に関する研究

田邊 潔・森口祐一・若松伸司・松橋啓介・外岡 豊\*・長田健太郎\*・大原利眞\*

（2）自動車からのVOC発生量の推定に関する研究

森口祐一・田邊 潔・櫻井健郎・近藤美則・若松伸司・泉川碩雄\*・石井康一郎\*・星 純也\*・  
服部幸和\*・今村 清\*\*・佐藤啓市\*\*

（3）環境大気中におけるVOCの挙動解明に関する研究

若松伸司・上原 清・菅田誠治・松本幸雄・杉本伸夫・松井一郎・畠山史郎・酒巻史郎・森田昌敏・  
相馬悠子・秋山雅行\*・阿相敏明\*・宇都宮彬\*・鶴野伊津志\*・大原利眞\*・神田 学\*・木村富士男\*・  
坂本和彦\*・清水源治\*・坂東 博\*・森川多津子\*・白石泰介\*\*

## 研究成果発表一覧

### 1 誌上発表

発表者	題 目	掲 載 誌	巻(号)	ページ	刊年
鵜野伊津志, 森 淳子, 宇都宮彬, 若松伸司,	梅雨期の東アジアスケールの長距離物質輸の解析	大気環境学会誌	33(2)	109-116	1998
鵜野伊津志, 村野健太郎, 若松伸司	春季の移動性高気圧通過時の二次大気汚染物質の長距離輸送と変質過程の数値解析	大気環境学会誌	33(3)	164-178	1998
田邊 潔	有害大気汚染物質の測定方法と制度管理の考え方	環境と測定技術	25(1)	64-77	1998
上原 清, 村上周三, 老川 進, 若松伸司	温度成層下のストリートキャニオン内部流れに対する道路幅の影響に関する風洞実験 - 市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 - その4	日本建築学会論文報告集	510	37-44	1998
上原 清	ストリートキャニオン内の流れと拡散に関する温度成層風洞実験	日本風工学会誌	75	37-42	1998
鵜野伊津志, 菅田誠治	日本域の春季の対流圏オゾン高濃度シミュレーション	天気	45	425-439	1998
Morikawa T, Wakamatsu S., Tanaka M., Uno I., Kamiura T, Maeda T, Ohara T.	C2-C5 hydrocarbon concentration in central Osaka	Atmospheric Environment	32	2007-2016	1998
Maeda T, Tanabe, K. Morita M.	Long-Term Monitoring of Hazardous Volatile Organic Air Pollutants Using Capillary GC-MS. LC/GC	The Magazine of Separation Science	16	478-486	1998
Wakamatsu S., Uno I., Ohara T.	Spring time photochemical air pollution in Osaka - Field observation -	Journal of Applied Meteorology	37	1100-1106	1998
Wakamatsu S., Ohara T., Uno I.	Spring time photochemical air pollution in Osaka - Model analysis -	Journal of Applied Meteorology	37	1107-1116	1998
Wakamatsu S., Uno I., Ohara T., Kenneth L., Schere	A study of the relationship between photochemical ozone and its precursor emissions of nitrogen oxides and hydrocarbons in the Tokyo area	Atmospheric Environment	33	3097-3108	1999

発 表 者	題 目	掲 載 誌	巻(号)	ページ	刊年
上原 清, 村上周三, 老川 進, 若松伸司	ストリートキャニオン内部の大気汚染物質拡散に対する道路幅および大気安定度の影響に関する風洞実験 - 市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 - その5	日本建築学会論文報告集	524	45-52	1999
松尾朋浩, 窪田英樹, 伊地知健, 鎌田紀彦, 若松伸司	運動時の温熱性発汗特性と平均皮膚表面温度の予測	日本建築学会計画系論文集	526	107-113	1999
石井康一郎, 泉川碩雄, 中村 健, 星 純也, 櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司	自動車用トンネルを利用した排出ガス調査(1)	東京都環境科学研究所年報		40-45	1999
Uehara K., Wakamatsu S.	Wind tunnel experiments on how thermal stratification affects flow in and above urban street canyons	Atmospheric Environment	34(10)	1553-1562	2000
櫻井健郎	自動車から排出される揮発性有機化合物(VOC)についてのトンネル調査	国立環境研究所ニュース	19(1)	5-6	2000
大原利眞, 神成陽容, 若松伸司, 鶴野伊津志	東京湾原油流出事故による大気環境影響の数値解析	大気環境学会誌	35(2)	103-112	2000
櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司, 針谷謙一	市街地の車道トンネルにおける自動車起源揮発性有機化合物の組成	大気環境学会誌	35(6)	343-354	2000
Sugata S., Byun D., Uno I.	Simulation of sulfate aerosol in east asia using MODELS-3/CM AQ with RAMS meteorological data	Millennium NATO/CCMS international technical meeting on air pollution modelling and its applications	24	267-275	2000
若松伸司	気象と大気汚染発生機構	日本の大気汚染の歴史		339-351	2000
上原 清, 村上周三, 若松伸司, 池澤 正	高さの異なるストリートキャニオン内の流れと拡散に関する風洞実験 - 市街地における汚染物の拡散に関する実験的研究 - その6	日本建築学会論文報告集	541	37-42	2001
若松伸司	都市域における大気環境モニタリングシステムの新構築に関する研究	文部省科学研究費成果報告		86	2001
田邊 潔, 前田恒昭, 星 純也, 泉川碩雄, 森田昌敏	試料平均化採取・GC/MSによる揮発性有害大気汚染物質自動分析装置の開発	環境化学	11(1)	51-64	2001



発 表 者	題 目	掲 載 誌	巻(号)	ページ	刊年
星 純也, 泉川碩雄, 前田恒昭, 森田昌敏, 田邊 潔	揮発性有害大気汚染物質自動分析 装置による長期連続測定および手 分析法との比較	環境化学	11(2)	193-204	2001
大原利眞, 若松伸司, 鶴野伊津志, 神成陽容	関西地域における春季高濃度汚染 の数値シミュレーション(1)数 値モデルの構築と立体観測データ による検証	大気環境学会誌	36(4)	208-230	2001
大原利眞, 若松伸司, 鶴野伊津志	関西地域における春季高濃度汚染 の数値シミュレーション(2)汚 染発生機構の感度解析	大気環境学会誌	36(4)	231-243	2001
Tanaka M., Warashina M., Itana Y., Tsujimoto Y., Wakamatsu S.	Effects of super-light-duty gaso- line and LPG-fueled cars on 16 ambient hydrocarbons at road- sides in Japan	Chemosphere-Global Change Science 3	3	199-207	2001
若松伸司	都市・広域大気汚染の生成機構解 明に関する研究	大気環境学会誌	36(3)	125-136	2001
桜井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司, 星 純也, 石井康一郎, 中村 健, 泉川碩雄	高速道路トンネル交通車両からの 揮発性炭化水素の排出係数	大気環境学会誌			(投稿中)

2 口頭発表

発表者	題 目	学会等名称	開催都市名	年月
田邊 潔	モニタリングの精度について（精度管理の考え方）	大気環境学会関東支部測定方法部会有害大気汚染物質モニタリングに関する検討会	川 崎	1998.2
Tanabe K.	Two examples of Japan's environmental monitoring programmes on chemicals	OECD workshop on Improving the Use of Monitoring Data in the Exposure Assessment of Industrial Chemicals	Berlin	1998.5
上原 清	ストリートキャニオン内の流れと拡散に関する温度成層風洞実験	日本風工学会年次研究発表会	東 京	1998.6
上原 清, 若松伸司, 老川 進	ストリートキャニオン内部における温度成層の影響	日本建築学会大会	福 岡	1998.9
上原 清, 若松伸司, 山尾幸夫, 河田 忠, 老川 進	ストリートキャニオン内部の大気汚染物質拡散に及ぼす道路幅と大気安定度の影響に関する風洞実験	第39回大気環境学会年会	札 幌	1998.9
大原利眞, 神成陽容, 若松伸司	東京湾重油流出事故による大気環境影響の数値解析	第39回大気環境学会年会	札 幌	1998.9
若松伸司	都市域の光化学オゾン	第39回大気環境学会年会	札 幌	1998.9
前田恒昭, 坂井亜紀, 市岡耕二, 田邊 潔	有害大気汚染物質（揮発性）長期モニタリングシステムの開発	日本分析化学会第47年会	岐 阜	1998.10
Wakamatsu S.	Photochemical Air pollution Trend in Japan	Atmospheric sciences and Applications to Airquality 6th International conference	Beijing	1998.11
若松伸司	大都市の大気保全の実態	塗料講座 - 環境対応塗料の展望 -	東 京	1998.11
Moriguchi Y., Konndo Y.	Inventory Analysis and Impact Assessment towards Comprehensive LCA of Automobiles	3rd Int. Conf. Ecobalance	Tsukuba	1998.11
若松伸司	メキシコシティの光化学大気汚染の実態と機構	第31回'99建築設備技術会議	東 京	1999.1
上原 清, 若松伸司, 池澤 正, 吉村 陽, 山尾幸夫, 河田 忠	道路両側の建物高さが異なるストリートキャニオン内の濃度分布に関する風洞実験	大気環境学会関東支部大気質調査部会講演会	東 京	1999.7

発 表 者	題 目	学会等名称	開催都市名	年月
若松伸司	国環研をとりまく最近のテーマとその展開について	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
若松伸司, 吉門 洋	「気象拡散の解析・モデリング」分科会モデルディスカッション「気象拡散研究の展開軸は？ - 大気環境対策への対応 - 」	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
若松伸司	都市・広域大気汚染の研究	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
星 純也, 泉川碩雄, 前田恒昭, 市岡耕二, 坂井亜紀, 田邊 潔	有害大気汚染物質の連続測定法の検討	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
石井康一郎, 泉川碩雄, 星 純也, 中村 健, 櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司	自動車トンネルにおける自動車起源化合物の測定 1 - 窒素酸化物を中心として -	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
星 純也, 石井康一郎, 泉川碩雄, 中村 健, 櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司	自動車トンネルにおける自動車起源化合物の測定 2 - 揮発性有機化合物 -	第 40 回大気環境学会年会	津	1999. 9
上原 清, 村上周三, 老川 進, 若松伸司	前後に高さの異なるストリートキャニオン内外の流れに関する温度成層風洞実験	日本建築学会大会	東広島	1999. 9
森口祐一, 田邊 潔, 松本幸雄, 桜井健郎, 松橋啓介, 中杉修身, 片谷教孝, 川原博満, 松田 了	GIS を用いた環境リスクの評価と管理のための情報システムの開発	環境科学会 1999 年会	豊 橋	1999. 10
星 純也, 泉川碩雄, 前田恒昭, 市岡耕二, 田邊 潔	有害大気汚染物質の連続自動測定法の評価	第 9 回環境化学討論会	札 幌	2000. 6
石井康一郎, 泉川碩雄, 星 純也, 中村 健, 櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司	自動車トンネルにおける自動車起源化合物の測定 3 - 排出係数の推定を中心として -	第 41 回大気環境学会年会	浦 和	2000. 9
市岡耕二, 富田由佳, 北浜静夫, 前田恒昭, 田邊 潔	有害大気汚染物質の自動分析装置の長期運用について	第 41 回大気環境学会年会	浦 和	2000. 9
服部幸和, 鎌田堯義, 中村茂行, 森口祐一, 田邊 潔	大阪府における有害大気汚染物質の濃度分布について	第 41 回大気環境学会年会	浦 和	2000. 9

発 表 者	題 目	学会等名称	開催都市名	年月
上原 清, 若松伸司, 池澤 正, 吉村 陽, 山尾幸夫, 河田 忠	沿道濃度分布の簡易予測手法	第 41 回大気環境学会年 会	浦 和	2000.9
上原 清, 山尾幸夫, 林 誠司, 吉川康雄, 森川多津子, 老川 進, 若松伸司	交差点周辺の流れと拡散に関する風洞実 験 - ケーススタディ - (速報)	第 41 回大気環境学会年 会	浦 和	2000.9
上原 清, 村上周三, 若松伸司, 大岡龍三	建物周辺気流に関する風洞実験のクリ ティカル Re 数に関する研究	日本建築学会大会	郡 山	2000.9
上原 清, 若松伸司	風洞実験による道路沿道の高濃度汚染気 候に関する研究	第 16 回全国環境・公害 研究所交流シンポジウム	つくば	2001.2
石井康一郎, 星 純也, 泉川碩雄, 中村 健, 櫻井健郎, 田邊 潔, 森口祐一, 若松伸司	自動車用トンネルを利用した排出ガス調 査法について	第 16 回全国環境・公害 研究所交流シンポジウム	つくば	2001.2
菅田誠治, 若松伸司	大気質モデルによる大陸スケールの物質 動態の解析	第 16 回全国環境・公害 研究所交流シンポジウム	つくば	2001.2
森口祐一, 田邊 潔, 松橋啓介, 櫻井健郎,	自動車用トンネルを利用した排出ガス調 査法について	第 16 回全国環境・公害 研究所交流シンポジウム	つくば	2001.2

REPORT OF SPECIAL RESEARCH FROM  
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

**国立環境研究所特別研究報告**

SR-42-2001

---

平成 13 年 9 月 28 日発行

編 集 国立環境研究所 編集委員会

発 行 独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506 茨城県つくば市小野川 16 番 2

電話 0298-50-2343 (ダイヤルイン)

---

印 刷 株式会社 イ セ ブ

〒305-0005 茨城県つくば市天久保 2 丁目 11-20

Published by the National Institute for Environmental Studies

16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan

September 2001