

濃尾平野における非メタン炭化水素の排出源強度の推定

—— 鉛直 1 次元拡散/反応モデルの利用 ——

豊橋技術科学大学 中西 秀樹
豊橋技術科学大学 正会員 北田 敏廣

1、はじめに

非メタン炭化水素は、大気中での化学反応を通じて、酸性雨や温暖化物質の動態に影響を与える極めて重要な化学物質であるが、同時にその排出源強度に非常な不確定性を持つものでもある。この認識のもとに、濃尾平野・伊勢湾域の微量化学物質を対象に行われた広範な航空機観測データを用いて、都市部における非メタン炭化水素排出源強度の特性を検討した。また、鉛直 1 次元の輸送・反応モデルにより計算した物質濃度と航空機による観測値を比較することにより排出源強度(特に、炭化水素類の相対的排出源強度)の妥当性を検討した。

2、使用データ

鉛直 1 次元の輸送・反応モデルに使用した排出源強度は、平成 6 年の大気広域予測調査結果¹⁾において、推定された非メタン炭化水素の「固定排出源」と「移動排出源」をあわせたものを使用した。

3、解析方法

各種非メタン炭化水素および NO_x、SO_x の平均的な排出強度を用いて次の鉛直 1 次元の輸送・反応モデルによるシミュレーションを行い、

$$\rho \frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\rho K_v \frac{\partial C_i}{\partial z} \right) + R_i(\rho C_1, \rho C_2, \dots) \quad i = 1, 2, \dots, 42$$
$$- \rho K_v \frac{\partial C_i}{\partial z} = Q_i - \rho v_{g,i} C_i$$

濃度の計算値と航空機による観測値を比較して排出強度の妥当性を検討したが、その具体的な手法を下に示す。

①表 1¹⁾の年間総排出量を表 2³⁾の発生源成分表によって、各物質量に変換した。

②各種非メタン炭化水素濃度の初期鉛直分布には、一宮上空 300m で得られた観測値²⁾の 1/10 濃度を持つ一様分布を使用し、排出源強度としては①で求めた値を用い鉛直 1 次元輸送・反応シミュレーションを 0:00 から 2 日間行った。

4、結果および考察

4.1 各種非メタン炭化水素の相対強度の適正化の考察

愛知県の非メタン炭化水素の類排出特性を調べた。まず、一宮・伊勢湾上空 300m²⁾で得られた観測値の特性を見るために、外国の大都市域での観測値⁴⁾との比較を行った。その結果を図 1~4 に示す(これらの図で用いられている炭化水素類の分類の仕方を表 3 に示す。例えば、表 3 の Arom (芳香族炭化水素類)は toluene と xylene を合わせたものを表す。)。ただし、一宮・伊勢湾の濃度は、上空 300 m における 93 年 11 月 24、25 日の日中濃度の平均値であるのに対し、外国のデータは各都市における地上濃度である。従って、濃度の絶対値では図 1 のように差が見られる。しかし、図 2 のように Ethane 濃度を 1 としたときの相対濃度グラフで、それぞれの地域を比較すると、高度等の諸条件の違いにも

表1 非メタン炭化水素発生源の市区町村配分に使用した指標

発生源カテゴリー	地域分類指標	組成分類	H 2 排出量 (t/年)
1 貯蔵 製油所	出荷額	石油精製	146
2 貯蔵 油槽所	出荷額	石油精製	724
4 貯蔵 石油化学	出荷額	石油化学	49
5 貯蔵 その他	出荷額	石油化学	159
7 出荷 製油所	出荷額	石油精製	339
8 出荷 油槽所	出荷額	石油精製	639
10 出荷 石油化学	出荷額	石油化学	4
11 出荷 その他	出荷額	石油化学	38
19 給油	走行量	ガソリン蒸気	7118
20 製造等 製油所	出荷額	石油精製	4
21 製造等 石油化学	出荷額	石油化学	172
22 製造等 燃料製造	出荷額	石油化学	123
23 製造等 インキ	出荷額	石油化学	0
24 製造等 その他	出荷額	石油化学	365
32 製品包装 自動車車体用	出荷額	塗装	32166
33 製品包装 造船用	出荷額	塗装	31
34 製品包装 その他	出荷額	塗装	56776
36 施設保守塗装	出荷額	塗装	37
38 その他塗装	出荷額	塗装	14282
40 印刷インキ	出荷額	塗装	18032
41 ポリエチレンラミネート	出荷額	塗装	1509
43 金属表面処理	出荷額	塗装	17043
44 クリーニング	人口	石油化学	5774
45 その他溶剤使用 接着剤使用	出荷額	塗装	4531
46 その他溶剤使用 ゴム用	出荷額	塗装	2552
47 その他溶剤使用 その他	出荷額	塗装	16151
移動発生源 自動車			自動車排ガス
			19887

表2 炭化水素の発生源成分表 (重量%)

	自動車排ガス	ガソリン蒸気	石油精製	石油化学	塗装
ethane	3.1	0.0	3.0	3.0	0.0
ethylene	12.0	0.0	2.9	49.9	0.0
acetylene	5.5	0.0	1.6	1.8	0.0
propane	6.1	1.8	20.2	4.3	0.0
propene	5.6	0.0	2.8	3.9	0.0
butane	19.6	34.3	22.8	8.0	0.0
pentane	16.4	48.9	21.3	6.8	0.0
hexane	10.5	12.6	10.8	6.9	0.0
benzene	5.6	0.9	4.3	3.4	0.0
toluene	10.5	1.0	7.1	7.6	25.7
xylene	5.1	0.5	3.2	4.4	74.3
合計	100	100	100	100	100

表3 成分変換表

ethane	ethane	ethane	Ethane
ethylene	ethylene	ethylene	Ethylene
acetylene	acetylene	propane	C3H8
propane	propane	propene	Alkene
propylene	propene	butane	Alkane
i-butane	butane	pentane	
n-butane		hexane	
i-pentane	pentane	toluene	Arom
n-pentane		xylene	
2-m-pentane	hexane	acetylene	
3-m-pentane			
n-hexane			
benzene	benzene		
toluene	toluene		
e-benzene	xylene		
p-m-xylene			
o-xylene			

解析の際は、性質の似ている化学物質を、左から右へまとめた

関わらずお互いかなり良い一致が見られる。これにより、一宮・伊勢湾上空 300m の観測濃度は、非合理的なものではなく、シミュレーションによる計算濃度との比較を通じて排出源強度の適正化を論ずるための基準になると判断した。

4.2 シミュレーションによる鉛直濃度変化

鉛直 1 次元の輸送・反応シミュレーションによって得られた 2 日目の 12:00 の上空 300m での計算値と、一宮・伊勢湾での上空 300m の観測値を比較したのが図 3 である。図 3 は、Ethylene と Arom について計算値が観測値よりもかなり大きいことを示している。この原因は、表 10 による分類と、その分類の各排出源の排出源強度の算定に、不備があったことによると考えられる。そこで、計算によって得られた濃度と観測値を比較して、あまりに違うところに係数をかけて、観測値に近づけてみることにした。本研究では、試算的に幾度かのシミュレーションを行った。その結果より、Arom と C_6H_6 中の Benzene では 1/6、Ethylene には 1/4 という係数を得た。そして、この係数によって修正された排出源強度を用いてシミュレーションした結果が図 4 の相対濃度グラフである。

5、まとめ

本研究によって、日本の都市部の非メタン炭化水素について以下のことが分かった。

- ①愛知県非メタン炭化水素の濃度組成は、外国の大都市とはほぼ同様であった。
- ②推定した非メタン炭化水素排出源強度を用いてシミュレーションした上空 300m の濃度と、一宮・伊勢湾上空 300m の観測濃度のより良い一致を得るためには、元の排出源強度に次の係数を乗ずるのが適当と推測された：Arom と C_3H_8 中の Benzene に対して 1/6、Ethylene に対して 1/4。
- ③推定した排出源強度は、Ethane を 1 とするモル比で表すと（図 1～4 で使用した記号で分類）

Ethane	1	Alkene	1.47
Ethylene	1.91	Alkane	9.32
C_3H_8	1.75	Arom	9.71

のようになる。

謝辞：データを使用させていただいた（財）中部空港調査会および愛知県航空対策局に深甚の謝意を表します。

参考文献

- 1)平成 6 年度大気広域予測調査結果(光化学オキシダント予測編)(1995)
- 2)平成 5 年度大気調査(上空)報告書(1994)
- 3)若松伸司、鶴野伊津志、R.A.Wadden(1984)：非メタン炭化水素の発生源組成分布と光化学反応性の研究、国立公害研究所報告、No.61,7-24
- 4)P.Warneck(1988)：Chemistry of the Natural Atmosphere., Academic Press Inc.,753pp

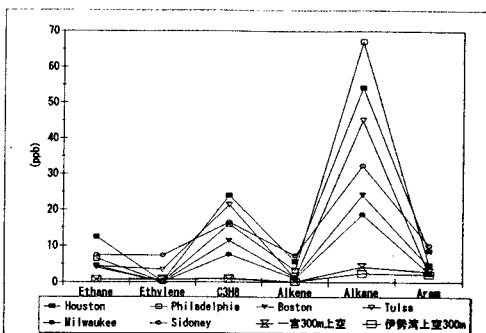


図1 一宮・伊勢湾300m上空と外国のデータ

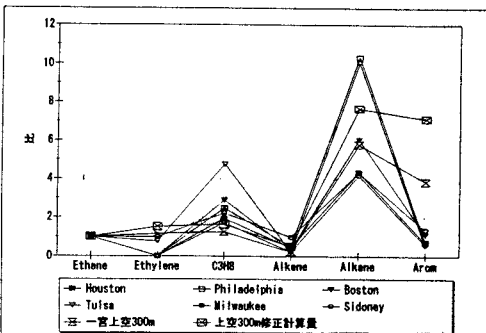


図2 一宮・伊勢湾上空300mと外国の比

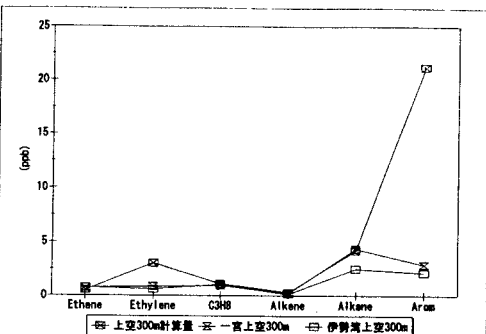


図3 一宮・伊勢湾300m上空と計算値

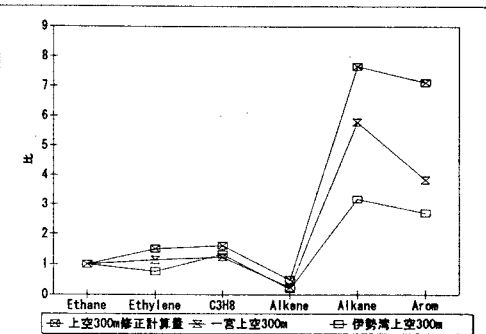


図4 一宮・伊勢湾上空300mと修正計算値の比