Environment Research and Technology Development Fund

# 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

5-1802 2020年船舶燃料油硫黄分規制強化による大気質改善効果の評価 (JPMEERF20185002)

平成30年度~令和2年度

Assessment Study for Air Quality Improvement Obtained from the 2020 Global Sulphur Limit in Marine Fuels

〈研究代表機関〉 明星大学

〈研究分担機関〉 早稲田大学 一般財団法人電力中央研究所 大阪大学

〈研究協力機関〉 国立研究開発法人国立環境研究所 日本大学 香川高等専門学校 弓削商船高等専門学校 水産大学校 神戸大学

### ○図表番号の付番方法について

- 「I. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「II. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。
- 「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

目次

I. 成果の概要	• • • • • • 1
1. はじめに (研究背景等)	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
T 48 0 23/4m	
Ⅱ. 成果の詳細 ■ 1  N的世世界PRの構築 ト 航行 N的 世世 ガスの 外 豊 美 野 連 度	三天,河山
Ⅱ-1 船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度	<b>予測</b> ・・・・・・ 1 6
(明星大学) 要旨	
タロ 1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
4. 桐木及いち祭 5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
0. 列用文献	
Ⅱ-2 船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM2.5汚染改善効果の観	測的評価 ・・・・・・ 2 3
(早稲田大学,一般財団法人電力中央研究所)	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
Ⅱ-3 船舶排出物質がわが国の大気質に及ぼす影響の評価	• • • • • • 3 5
(大阪大学)	

 <u></u>

1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細	• • • • • • 5 2
V 英文Abstract	• • • • • • 5 5

#### I. 成果の概要

課題名 5-1802 2020年船舶燃料油硫黄分規制強化による大気質改善効果の評価 課題代表者名 櫻井 達也 (明星大学 准教授)

重点課題 主:【重点課題15】大気・水・土壌等の環境管理・改善のための対策技術の高度化及び 評価・解明に関する研究

副:

行政要請研究テーマ(行政ニーズ) (5-14) 瀬戸内海周辺におけるPM2.5高濃度要因の解明

研究実施期間 平成30年度~令和2年度

研究経費 (千円)

	契約額	実績額 (前事業年度繰越分支出額含む)
平成 30 年度	27, 856	28, 138
令和元年度	26, 921	27, 186
令和2年度	22, 269	22, 634
合計額	77, 046	77, 958

本研究のキーワード 瀬戸内海, MARPOL条約附属書VI, 2020年船舶燃料油硫黄分規制強化, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>, 大気質モデル, 排出インベントリ

#### 研究体制

(サブテーマ1) 船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測 (明星大学)

(サブテーマ2) 船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM<sub>2.5</sub>汚染改善効果の観測的評価(早稲田大学,電力中央研究所)

(サブテーマ3) 船舶排出物質がわが国の大気質に及ぼす影響の評価(大阪大学)

### 研究協力機関

国立研究開発法人国立環境研究所,日本大学,香川高等専門学校,弓削商船高等専門学校,水産大学校,神戸大学

### 1. はじめに(研究背景等)

2016年10月に開催された第70回海洋環境保護委員会 (MEPC70) での決定を受け、2020年1月より船舶燃料油中硫黄分濃度の規制上限値がこれまでの3.50%から0.50%に強化された (以下,2020IMO規制強化)。同規制強化は排ガス中のSO2のみならず、硫酸塩の削減も目的としているため、船舶の航行密度が高い地域においてはPM2.5濃度の低減化につながることが期待されている。

ここ数年、中国大陸での大気汚染対策により、日本国内における $PM_{2.5}$ に対する環境基準達成率が改善傾向を示しており、例えば2019年度における $PM_{2.5}$ の環境基準達成率は、一般環境大気測定局(以下、一般局)で98.7 %(824/835局)まで改善している。しかしながら、岡山県と香川県ではそれぞれ50.0 %(10/20局)および58.3 %(7/12局)に留まっており、越境大気汚染の影響を受けやすい九州地方よりも達成率が低い状況にある。両県は、瀬戸内海を挟んだ地理的関係にある。瀬戸内海は中国山地と四国山

地に挟まれた内海であり、その沿岸には大規模固定発生源地域が複数存在する。そして海上には多くの船舶が往来する。したがって瀬戸内海の船舶から排出された汚染物質が、たとえば海陸風循環流や海上の滞留冷気層に蓄積・変質して高濃度の $PM_{2.5}$ を生成し、沿岸部に影響する可能性は検討に値する。瀬戸内地域が船舶排出物質の影響を強く受けているのであれば、この2020IMO規制強化により同地域の $PM_{2.5}$ 汚染が改善すると予想される。そして、その改善度合いによっては、今後の $PM_{2.5}$ 対策に影響する可能性がある。

#### 2. 研究開発目的

本課題は、2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価を目的とした観測およびシミュレーション研究(<u>GLIMMS-AQ</u>: study on Global Limit for Marine Fuels Sulphur to better Air Quality)である。2020年1月1日の同規制強化を跨いで、船舶排ガスの影響が強いと予想される瀬戸内地域をモデル地域として長期連続観測及び短期集中観測を実施し、これらのデータの解析と数値シミュレーションを通じて、船舶排出物質が蓄積・変質して瀬戸内海沿岸部の $PM_{2.5}$ に影響する過程を考察した。更には、同規制強化による $PM_{2.5}$ 汚染の改善程度を定量的に評価したうえで、同規制強化後の発生源寄与評価に基づき、2020年以降の $PM_{2.5}$ 対策の方向性を検討した。

研究遂行にあたり、以下3つのサブテーマを設定した。

# 【サブテーマ1】船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測

サブテーマ3で使用する船舶排出量データを構築する。また、船舶排出量推計システムを開発し、 サブテーマ2で取得する観測結果の解析用に関門海峡通過船舶の排出量を推計する。

### 【サブテーマ2】船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM2.5汚染改善効果の観測的評価

瀬戸内地域でのPM<sub>2.5</sub>等長期観測と関門海峡での一次物質の高時間分解観測(短期集中観測)を行い、規制強化の効果を観測結果から評価する。また、海面付近の鉛直濃度分布を測定し、長期観測データとともにサブテーマ3で使用する大気質モデルの検証用に提供する。

### 【サブテーマ3】船舶排出物質が日本の大気質に及ぼす影響の評価

大気質モデルにより規制強化の効果と規制強化後の発生源寄与を評価するとともに、瀬戸内海の船舶排出物質が沿岸のPM<sub>2.5</sub>に影響する過程を解明する。

# 3. 研究目標

※ ここでは様式に従い、最終年度の契約時に提出した研究目標を記載している。よってその内容は 最終年度の活動に係る目標となっている。全体目標は「I.成果の概要」第2章を参照されたい。

全体目標	2020年1月の規制強化を挟んだ長期連続観測及び短期集中観測,並びに数値シ
	ミュレーション解析を通じて、船舶排出物質が蓄積・変質して瀬戸内海沿岸部の
	PM <sub>2.5</sub> に影響する過程を解明する。更には、同規制強化によるPM <sub>2.5</sub> 汚染の改善程度
	を定量的に評価したうえで、同規制強化後の発生源寄与評価に基づき、2020年以
	降のPM <sub>2.5</sub> 対策の方向性を示すことを目指す。

サブテーマ 1	船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測	
サブテーマリーダー /所属機関	櫻井 達也/明星大学	
目標	AISのリアルタイムデータを入力データとして、航行する各船舶の排出強度と	

大気中濃度分布を推計するシステムを開発する。同システムをサブテーマ2の
短期集中観測に適用し,通過船舶を対象とした燃料中硫黄分の逆推計,並びに
船舶排ガスの沿岸着地濃度を推定する。

サブテーマ 2	船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM2.5汚染改善効果の観測的評価	
サブテーマリーダー	速水 洋/早稲田大学	
/所属機関	逐小 仟/ 平相田八子	
目標	引き続き、長期連続観測と短期集中観測を行う。これまでの観測データを整理	
	して,船舶燃料油硫黄分規制の前後におけるPM2.5等の変化を解析し,規制の効果	
	を観測データから定量的に評価する。なお、最終年度の短期集中観測は2020年9	
	月頃に実施し、長期連続観測は2021年1月まで継続する予定である。	

サブテーマ 3	船舶排出物質がわが国の大気質に及ぼす影響の評価	
サブテーマリーダー	嶋寺 光/大阪大学	
/所属機関	場守	
目標	サブテーマ1で構築された船舶排出量データベースを入力とする大気質モデ	
	ルを用いて瀬戸内地域におけるシミュレーションを実施し、サブテーマ2で得	
	られた大気観測結果との比較によって妥当性を確認したうえで、船舶排出の寄	
	与および規制強化の効果を定量的に評価する。	

#### 4. 研究開発内容

本研究(GLIMMS-AQ)では、二次生成物質を含めた長期・広域的評価と、一次物質による短期・局所的評価を、観測と数値シミュレーションのそれぞれにより行うことで、2020IMO規制強化によるPM<sub>2.5</sub>汚染の改善効果と船舶寄与濃度の定量化を行った。

長期・広域的評価では、規制強化の開始(2020年1月1日)前後それぞれ1年間にわたり、瀬戸内海沿岸部において $PM_{2.5}$ 等の濃度と、地表付近の汚染物質の挙動に影響する境界層高さを測定した。また、2019年および2020年の10月に、マルチコプタを用いた海面上における $PM_{2.5}$ 等の鉛直濃度分布観測を実施した。これらのデータを、国等による気象・大気質および船舶交通量等のデータと併せて整理し、規制強化の効果を観測ベースで評価した(サブテーマ 2)。別途、非定常三次元オイラー型の気象・大気質モデルにより規制強化の効果を求め、観測とモデルの双方で規制強化の効果を評価した。また、モデルにより瀬戸内地域の船舶排出物質が沿岸域の $PM_{2.5}$ に及ぼす過程を解明するとともに、規制強化後の $PM_{2.5}$ に対する船舶排出物質の寄与度を推計した(サブテーマ 3)。これらの計算に必要な船舶排出量データは、2015年度(実績)と2020年度(予想)を対象に作成した(サブテーマ 1)。

短期・局所的評価では、船舶が眼前を航行する関門海峡早鞆瀬戸の両岸において一次物質(SO<sub>2</sub>, NOx, 粒子状物質)の濃度を測定した。観測は2018年9月20日~10月4日,2019年8月29日~9月11日,2020年8月26日~9月15日の計3回実施した。各観測期間において、通過船舶の有無と風況データから濃度データを整理し、規制強化による船舶寄与濃度の変化を定量化した(サブテーマ 2)。また、求めた船舶寄与濃度から拡散モデルにより船舶の排出強度を逆推計し、規制強化による排出量の変化を定量的に評価した(サブテーマ1&2)。

以上を通じて、2020年以降のPM2.5対策の方向性を検討した。

#### 5. 研究成果

### 5-1. 成果の概要

# (1) 船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測 (サブテーマ1)

2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価を行うにあたり、GLIMMS-AQでは2015年度を対象に船舶からの大気汚染物質排出量データを整備し、国内の海域および陸域における大気汚染物質の排出状況を評価した。併せて、燃料油中硫黄分を0.50%とした場合の排出量も推計し、2020年以降に期待されるSOxおよびPM2.5排出量の削減効果についても考察した。

排出量は航行船舶,停泊船舶,並びに漁船の主機および補機機関の燃焼に由来する大気汚染物質を対象に,空間解像度は3次メッシュベースで,時間解像度は1時間単位で推計した。推計で必要となる活動量については,航行船舶には船舶自動識別装置 (AIS: Automatic Identification System) の陸上局データを,停泊船舶には2015年度港湾調査データを,漁船には2015年に至近となる2013年漁業センサスデータを使用して作成した。排出量の推計では,定格機関出力,航海速力,推進年等の船舶固有情報が必要となる。航行船舶を対象とした排出量の算定では,AIS情報に含まれるIMO番号から船舶を特定し,それぞれに実際の固有情報を船舶明細書等から適用することで,より実態に則した排出量の算定を行った。停泊船舶および漁船を対象とした排出量の算定では,必要な情報を船種・船型毎に作成した回帰式に基づくモデルや統計値を適用して推計した。

図0.1に,作成した船舶排出量データのうち,瀬戸内海および東京湾を中心とした $SO_2$ 排出量(ton/grid/yr)の水平分布を例示した。格子解像度は概ね1x1 kmであり,航路も鮮明に見て取れることから,精度の高い地理的分布を有した船舶排出量が算定できたものと考えられる。航行船舶を対象とした活動量の整備では,衛星AISデータも利用可能であった。しかしながら同データは,輻輳海域では混信により船舶の捕捉率が低下することが指摘されている。本研究では,日本沿岸海域における排出量を精度良く算定することを目的としたため,衛星データではなく陸上局データを採用した。今後の船舶排出量データベースの構築では,実際の船舶エンジンを対象とした排ガス計測による排出量の定量化,並びに衛星AISを活動量算定に適用するといった試みが必要と考える。

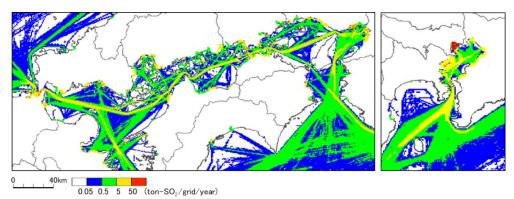


図0.1 瀬戸内海および東京湾周辺における航行・停泊船舶からのSO<sub>2</sub>排出量の水平分布

この船舶排出量データベースにおける排出量算定手法の妥当性検証を目的として、船舶排ガス直接観測とガウス型プルームモデルによる拡散計算の結果を比較した。比較対象とした船舶排ガスの直接観測は、サブテーマ2において関門橋橋脚付近(下関側)にて実施したものである。ここでは得られた測定項目のうち $SO_2$ ,  $CO_2$ , 並びに風向風速データを解析に使用した。拡散計算は、 $SO_2$ 濃度が上昇した際の通過船舶を対象に実施した。通過船舶の特定は、船舶自動識別装置(AIS: Automatic Identification System)や定点カメラから行った。拡散計算で使用する船舶からの $SO_2$ 排出量を算定するためには、対象船舶の燃料油中硫黄分濃度(Fuel Sulphur Content: FSC)の情報が必要となる。ここでは観測された $SO_2$ および $CO_2$ を用いて、以下の式(2.1)からFSCを算出した。式中のバックグラウンド濃度(bkg)には濃度上昇直前の値を使用し、濃度が下降した値までを積分の対象とした。なお、船舶排ガス直接観測の測定方法や地点に関する詳細は本報告書II-203.2を参照されたい。

(2.1)

$$FSC = 0.232 \frac{\int [SO_2 - SO_{2,bkg}]_{ppb} dt}{\int [CO_2 - CO_{2,bkg}]_{ppb} dt} [\%sulphur]$$

本研究では、研究期間中に3度の船舶排ガス直接 観測を実施したが、測定されたSO<sub>2</sub>濃度(10秒値) で最も高濃度となったのは、2019年9月5日の167 ppbであった。ここでは、その濃度を対象とした排 出量算定手法の妥当性検証の結果を紹介する。

図0.2に、対象事例における $SO_2$ および $CO_2$ の濃度変動を示した。この濃度上昇について、式 (2.1)から算出されたFSCは2.22%となり、一般的なC重油中のFSCと同程度の値となった。

図0.3には,ガウス型プルームモデルより計算し た煙軸高さにおけるSO2濃度の計算結果を示した。 SO2濃度の計算値は、発生点から100 m程までは400 ppbほどの高濃度となり、風下距離170 m付近で観 測値と一致する結果となった。同時刻におけるAIS 情報より,同濃度上昇をもたらしたと考えられる 通過船舶は、濃度上昇時、観測点から150~200 m ほど離れた位置を航行していたことが把握でき, 同計算値は観測値と矛盾していないことが確認で きた。ここで紹介した計算事例以外にも,複数の 高濃度を対象とした同様の妥当性検証を実施した が,同様に計算値は観測値と矛盾の無い範囲で一 致したことを確認した。このことから,本研究に おける船舶排出量の算定手法は, 実際の航行船舶 排ガスの排出構造に則したものであると考えられ た。なお、ここで構築した拡散モデルは港湾周辺 を対象とした高濃度SO2の発生源調査, 更には曝露 影響評価にも活用することが可能となる。

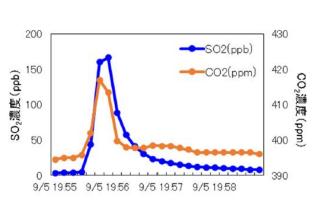


図0.2 2019年9月5日に測定されたSO<sub>2</sub>および CO<sub>2</sub>の濃度変動(10秒値)

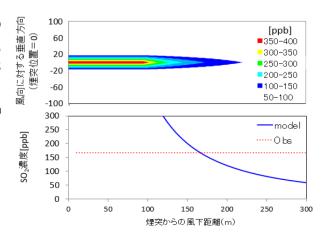


図0.3 対象事例におけるSO<sub>2</sub>濃度の拡散計算 (model)と観測値(obs.)の比較。上段 は煙軸高さにおける計算結果の水平分 布,下段は同高さにおける風下距離と濃 度の関係。

サブテーマ1では、COVID-19感染拡大に伴う船舶活動量の変化を把握するため、瀬戸内海での2020年1~6月における衛生AISデータを購入し、船舶の航行距離(活動量に相当)を月別に解析した。瀬戸内海を航行する貨物船(Cargo),タンカー(Tanker),並びに旅客船(Passenger)の航行距離を速度帯別に集計したところ、COVID-19感染拡大による影響を最も受けたのが旅客船であった。2020年3~4月の航行距離は前後の月の半分程度に留まっており,かつ低速度帯での航行が多い状況であったことが判った。他方,貨物船およびタンカーは,旅客船に見られたような航行距離の大幅な減少は見られず、2020年4月7日に発出された第一回目の緊急事態宣言下であっても,海運に従事する船舶は通常通り運行されていたものと考えられた。活動量の減少が確認された旅客船は,貨物船およびタンカーに比べて航行距離はもともと少なく,また旅客船の多くは低硫黄燃料油で航行している現状から,COVID-19の感染拡大による $SO_2$ や硫酸塩の排出量変化への影響は大きくなかったものと考えられた。

2020IM0規制強化後を想定した船舶排出量データベースにおいて、活動量の減少が確認された旅客船による瀬戸内海での排出割合は、航行時で $SO_2:16\%$ 、 $NO_x:19\%$ 、 $PM_{2.5}:16\%$ であった。つまり、2020年3~4月はCOVID-19の感染拡大によってこのうちの半分程度が減少したと考えれば、これら3物質は全体に占める10%弱の排出量が減少したものと想定でき、期間的かつ総量でみてもその影響は限定的であったものと考えた。

# (2) 船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM2.5汚染改善効果の観測的評価 (サブテーマ2)

サブテーマ2の目的は、2020IMO規制強化により期待される瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>等の変化を観測により捉えることにある。その変化を評価するには、規制強化が開始される2020年1月1日の前後で同仕様の観測を行い、差分を求めるのが最も直接的である。そこで本研究では、長期平均的な濃度の変化を観測するための長期連続観測と、沿岸に到達した船舶排出ガスの濃度を測定する短期集中観測を行った。

長期連続観測は、瀬戸内海に面する荘内半島の中程に位置する香川県三豊市詫間と、愛媛県上島町 弓削で実施した。両地点には、PM2.5質量濃度自動モニタ(詫間:紀本電子 PM-712,弓削:紀本電子 SPM-613D) を設置して,2018年10月より1時間濃度を連続測定した。化学成分については,ローボリ ューム・エア・サンプラ (東京ダイレックGS-10N) を設置し、2018年12月よりガス状・粒子状物質を 捕集した。この観測結果から、規制強化前後(2019年と2020年)について各月の濃度変化(Δで表記) を求めた(図2.5)。なお、1月と2月については試料数が少ないため1月下旬から2月中旬について平 均値を求めた。また、月単位の気象(風向風速、降水量)に両年で大きく変化のないことは、風配図 などを作成して確認した。すると,両地点ともΔ硝酸イオンは小さいのに対し,Δ非海塩起源硫酸イ オンは大きく変化し,7月まで前年より低く,8月に前年を上回った以降,前年と同程度となった。2020 年8月は西之島火山ガスの影響が考えられる。  $\Delta$  SO<sub>2</sub>はその8月でも前年を下回り、同様の傾向は  $\Delta$  ヴ ァナジウムに強く表れた。なお, ヴァナジウムは重油燃焼の指標とされる。ΔSO<sub>2</sub>の月変化はΔ非海塩 起源硫酸イオンとΔヴァナジウムの中間のような特徴がある。2020年2~5月は国内外でのCOVID-19に ともなう経済活動縮減の影響が予想され,8月以降は西之島火山ガスの影響が懸念される。特に7月以 前でΔヴァナジウムとΔSO2がよく対応しているが,この期間の両成分はともに近傍の重油発生源に 由来すると考えられる。北米ではECAにより沿岸部のヴァナジウム濃度が顕著に減少したとの報告<sup>4</sup> もある。衛星AISデータを用いた船舶航行量の解析では、瀬戸内海ではCOVID-19にともなう船舶活動 量の減少は限定的であったことから, 瀬戸内地域でも船舶燃料油硫黄分の減少によりヴァナジウム濃 度が減少した可能性がある。また, 地点間で比較すると上記の対応関係はいずれも弓削地点で明瞭で ある。弓削地点の結果に近似直線を仮定すると直線の傾きは0.42であり、これから粒子化率(=Δ非 海塩起源硫酸イオン/( $\Delta SO_2 + \Delta$ 非海塩起源硫酸イオン))を求めると0.30となった。これは排出時 の粒子化率より明らかに大きく, 二次生成の寄与が示唆される。

短期集中観測は、関門海峡の最狭部である早鞆の瀬戸の沿岸で実施した。早鞆の瀬戸は幅約600 mであり、船舶は沿岸から近いところで200 m程度のところを航行する。1日あたりの船舶航行量は500~600隻であり、大型船舶も多いことから、わが国で船舶排出ガスの影響を捕らえる最適地のひとつと考えられる。観測は関門橋の下関側橋脚付近において2019年8月29日~9月11日と2020年8月26日~9月15日(台風による中断を含む)に実施した。測定項目は、SO<sub>2</sub>、NOx、CO<sub>2</sub>、風向風速などである。

 $CO_2$ 濃度の変化から船舶排出ガスを捕らえたと判断した事例(2019年83例,2020年107例)について,燃料油中硫黄分濃度(FSC)を推計した(図2.8)。その結果,2019年は3%付近と0.5%付近の出現頻度が高かったが,2020年はほぼすべての事例が0.5%以下であった。すなわち規制強化前にはA重油相当の低硫黄油を使用する船舶とC重油相当の燃料油を使用する船舶が航行していたが,2020年はほぼすべての船舶が新規制値に準拠していたとみられる。

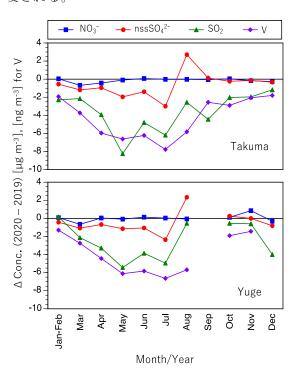
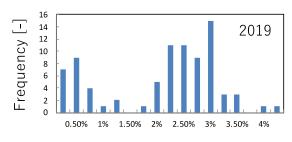
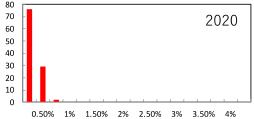


図2.5 規制強化前後の月平均濃度の変化





Estimated fuel sulfur content

図 2.8 推定された船舶燃料油硫黄分の出現頻度

前述の長期観測は地上の定点で実施するものである。これを補足し、瀬戸内地域における汚染状況 を面的にも把握するために衛星計測データを取得して解析を実施した。使用したデータは衛星Terra に搭載された中分解能撮像分光放射計 (Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer: MODIS) によるエアロゾルに係るプロダクト (MODO3\_4K) である。2001年から2020年の20年間について微小粒 径に相当するエアロゾル光学的厚さ (fine-mode AOD: AOD;) を調べたところ, 瀬戸内地域のAOD;は2020 年が最小となった。そこで、瀬戸内海近辺の常時監視測定局(以下、常監局)におけるNOxおよびSO2 と、AODfの2018年から2020年までの月平均値の変動を解析した。結果を図2.11に示す。2020年は本研 究課題の目的である2020IMO規制強化の影響のほか,2019年12月末に中国湖北省武漢市を発端とした 新型コロナウィルスの蔓延による人間活動への著しい制限の影響が考えられる。まずNOxとSO2に共通 して経年的な減少が見られるが、2018-2019年の平均値に対する2020年の変化率として見ると、Noxは -10%前後であるのに対して, SO<sub>2</sub>は-30%前後であった。緊急事態発出期間を含む4-5月を見ると, NO<sub>x</sub>は -30%程度を示し, SO<sub>2</sub>は-40-50%の変化率を示した。つまり, 2020年における減少率はNO<sub>x</sub>よりもSO<sub>2</sub>の ほうが大きく, 瀬戸内海では新型コロナウィルスにともなう船舶活動量の減少は限定的であったこと から、2020年1月1日に開始された2020IMO規制強化の効果は瀬戸内海のSO2濃度に現れていることが考 えられた。AOD<sub>f</sub>は2020年には概ね2018-2019年平均値に対して減少傾向を示したが、1-3月および7月 に-30%程度,6月には最大で-60%ほどの変化を示した。瀬戸内地域においては,新型コロナウィルス に伴うわが国の経済活動の停滞のほか、SO2濃度の減少が示したように船舶燃料油硫黄分規制の効果 もAODfの減少に影響したと考えられる。

地上付近におけるPM2.5濃度の動態は、上記の長期連続観測や常監局の観測結果から得られるが、 PM<sub>2.5</sub>濃度が上空にどれほどまで及んでいるのかは,従来まではほとんど把握ができていなかった。と りわけ海面上となると、情報量は極端に少ない。そこで、近年バッテリー性能の向上によって滞空時 間も伸びつつあるマルチコプタにPM2.5等の観測機器を搭載し、瀬戸内海の上層の大気質を測定した。 測定地点は香川県三豊市詫間の沖合約100 mであり、2020年10月12日から16日までで15回飛行できた。 観測期間中の風向は概ね北の方角であり,海側(岡山県方面)の大気環境を捉えられたものと想定さ れる。晴天日における観測であったため、気温は日中に高くなる日内変動を示し、また、その鉛直分 布は早朝を除いて上層ほど低くなる典型的な鉛直温度勾配を示した。湿度も日中に低くなる日内変動 を示し,鉛直方向への変化は大きくはなかった。 $PM_{2.5}$ 濃度は2日目を除いて $10~\mu g/m^3$ 以下と低濃度で, この場合には大きな鉛直勾配は見られなかった。2日目のフライトではPM2.5濃度の高濃度イベントを 捉えた。早朝の高度10-30 mでは30 μg/m³に近い高濃度であり, この高濃度は高度500 mにまで見ら れた。午前中に高度10-100 mの濃度は $20~\mu$  g/m $^3$ にまで低下したが、高度300 mでは依然として $30~\mu$  $g/m^3$ に近い高濃度が観測された。昼間は $15~\mu~g/m^3$ にまでさらに低下し,以降, $PM_{2.5}$ 濃度は低下した。 マルチコプタによる観測から得られた14日早朝の高濃度は、周辺の常監局2局でも同様に観測され ていた。これについて周辺の大気質と気象のデータと併せて解析したところ, 岡山県側から香川県側 に輸送されたPM2.5が早朝の逆転層形成によって海上にトラップされ,それが高濃度につながったよう な状況が推察された。PM2.5高濃度が課題となっている瀬戸内海では,特に岡山県と香川県の瀬戸内海

側でPM<sub>2.5</sub>環境基準達成率が短期・長期基準ともに満たされていないが、ここに考察したような気象状況も関連した局所的な輸送による高濃度生成が一つの要因と考えられた。

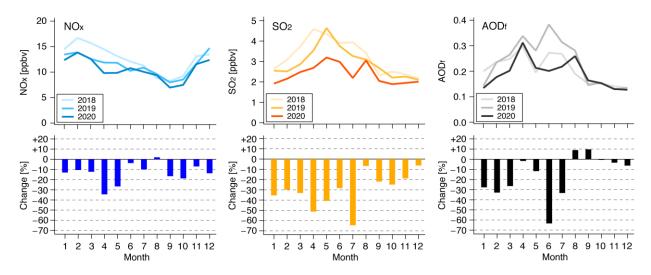


図2.11 瀬戸内海周辺の常監局におけるNOxおよびSO<sub>2</sub>濃度と微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ (AOD<sub>f</sub>) の2018年から2020年までの(上)月平均値および(下)2018-2019年の平均値に対する2020年の月平均値の変化率

(3) 大気質モデルを用いた瀬戸内地域における船舶排出寄与および規制効果の評価(サブテーマ3) 日本国内の他地域に比べてPM2.5濃度が高い瀬戸内地域を対象に、地域特有の高濃度現象の出現要因 を解明すること、船舶排出の寄与および2020IMO規制強化の効果を定量的に評価することを目的として、非定常三次元オイラー型の大気質モデルを用いて解析を実施した。瀬戸内地域は、概ね中国地方、四国地方の瀬戸内海沿岸から5 km未満の範囲と定義した。日本国内の人為起源排出量データとして、船舶排出はサブテーマ1によるもの、その他はJ-STREAM(環境研究総合推進費5-1601)によるものを用いた。規制強化に伴う排出量削減による大気質改善効果は、規制強化前と強化後の船舶排出量データを使用した2ケースの大気質シミュレーション結果の差によって評価した。気象場とその他部門の排出量は2ケースで同一とした。また、規制強化後の発生源別寄与は、J-STREAMに倣い、基準ケースと対象発生源の排出量2割削減ケースの濃度差の5倍として評価した。対象発生源は、日本国内の船舶、大規模固定発生源、自動車、その他人為起源、国外の人為起源とした。

瀬戸内地域における高濃度には、排出特性である船舶航行および大規模固定発生源の集中に加えて、気象特性による空気塊の滞留が影響している可能性がある。サブテーマ2で実施したマルチコプタによる観測でも、気象状況が関連した局所的な輸送による高濃度生成が推察された。そこで、反応・沈着しない仮想的なトレーサーを水平一様に定常放出する数値実験により、空気塊の滞留性を評価した。トレーサー濃度は瀬戸内地域の年平均値で除して無次元化して用いた。瀬戸内地域でトレーサー濃度が年間上位5%の日を、滞留性が高く地域的な発生源の影響を強く受ける地域汚染日と定義した。比較のため、瀬戸内地域でPM2.5濃度観測値が年間上位5%の日を、PM2.5高濃度日と定義した。

図0.4に、2019年におけるトレーサー濃度の解析結果を示す。トレーサー濃度は、瀬戸内海やその沿岸部では、内陸の盆地と同程度に高くなった。これは、瀬戸内海は、中国山地と四国山地に囲まれているため外洋に比べて風速が小さく、また外洋に比べて海面温度が低いため冷気層が形成されやすく大気境界層 (PBL) が低いためであると考えられる。日平均トレーサー濃度は、風速が小さいほど、PBLが低いほど高くなる明瞭な相関関係が確認できた。したがって、トレーサー濃度が気象特性による空気塊の滞留性を示す指標として有用である。トレーサー濃度の地域差については、瀬戸内地域がその他中国四国地域の約1.25倍高くなった。これは、瀬戸内地域特有の空気塊の滞留が、同地域における排出物質による高濃度に寄与することを示唆している。また、期間別平均トレーサー濃度より、地域汚染日には空気塊の滞留時間が年平均の2倍以上長くなることが示唆された。

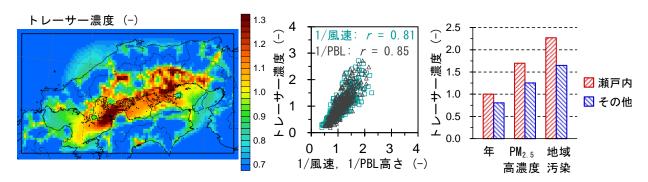


図 0.4 2019 年におけるトレーサー濃度解析結果:年平均トレーサー濃度の空間分布(左),瀬戸内地域における日平均トレーサー濃度と日平均 10-m 風速,日平均 PBL 高さ(年平均値で除して無次元化)の逆数の関係(数値は相関係数)(中),瀬戸内地域,その他中国四国地域における期間別平均トレーサー濃度(右)

図0.5に2019年における瀬戸内地域とその他中国四国地域におけるSO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の期間別平均値を示す。大気質モデルは瀬戸内地域とその他中国四国地域の濃度差, すなわち瀬戸内地域特有の高濃度を概ね再現した。地域差は, 特に地域汚染日において顕著となった。近傍の発生源の影響を強く受けるSO<sub>2</sub>濃度の地域差は, トレーサー濃度(図0.4)よりもはるかに大きかった。したがって, 瀬戸内地域特有の高濃度は主に排出特性によるものであり, 気象特性によってその影響が増強されていること

が示唆された。図0.6に、地域汚染日平均での $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ 濃度の空間分布を示す。水平方向には瀬戸内海とその沿岸、鉛直方向にはPBL内で顕著に高濃度となっており、瀬戸内地域における排出物質の滞留が確認できる。 $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ ともに瀬戸内海および沿岸地域で高濃度となっているが、二次生成の寄与も大きい $PM_{2.5}$ は、 $SO_2$ に比べて空間勾配が小さく、広域的に分布している様子が確認できる。

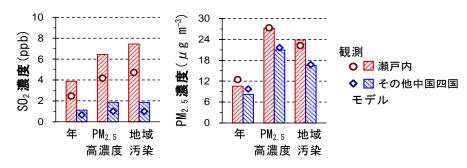


図 0.5 2019 年の瀬戸内地域, その他中国四国地域における SO<sub>2</sub> 濃度(左), PM<sub>2.5</sub> 濃度(右)の期間別平均値

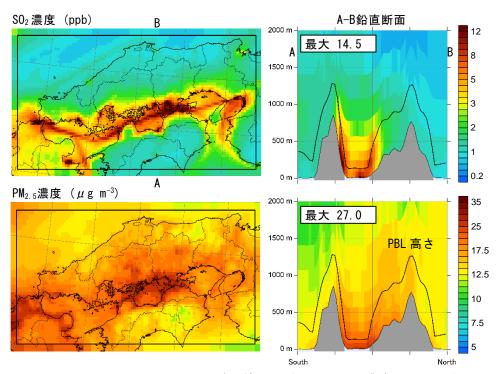


図 0.6 2019 年における地域汚染日平均 SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub> 濃度の空間分布

サブテーマ 2 における詫間,弓削における長期観測と大気質モデルの比較として,図0.7に,半旬平均 $SO_4^2$ -濃度と規制強化前後での月別の平均 $SO_2$ 濃度変化 ( $\Delta SO_2$ ) に対する平均 $SO_4^2$ -濃度変化 ( $\Delta SO_4^2$ ) を示す。半旬平均 $SO_4^2$ -濃度については,いずれの地点においても濃度レベル,時間変動が良好に再現されており,大気質モデルの信頼性の高さが確認できた。規制強化前後での濃度変化については, $\Delta SO_2$ の幅は詫間の方が弓削よりも大きかったが, $\Delta SO_4^2$ -の幅は両地点で同程度であった。この傾向は観測とモデルで一致しており,モデルにおける  $\Delta SO_4^2$ -/ $\Delta SO_2$ は概ね妥当であると考えられる。詫間と弓削の傾向の違いの原因として,詫間周辺の方が弓削周辺よりも船舶排出量が集中しており,詫間では規制強化に伴って $SO_2$ 濃度が変化しやすく,弓削では輸送過程で $SO_2$ の乾性沈着による除去や $SO_4^2$ -への変質がより進んでいることが考えられる。

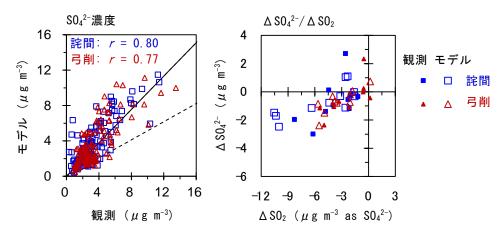


図 0.7 2019 年~2020 年における詫間,弓削での半旬平均  $SO_4^2$ 濃度(左)と月別の平均  $SO_2$ 濃度 変化( $\Delta SO_2$ )に対する平均  $SO_4^2$ 濃度変化( $\Delta SO_4^2$ )(右)

図0.8に、2019年における地域汚染日平均での $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ 濃度に対する規制強化による濃度低減効果の空間分布を示す。航路付近を中心に濃度低減効果が大きく、そこから離れるにつれて効果は小さくなるが、 $PM_{2.5}$ は、 $SO_2$ に比べて広域的な効果が確認できる。これは、船舶から排出された $SO_2$ が、沿岸、内陸へと輸送される過程で $SO_4$ 2-へと変質していくためである。また、濃度低減効果における硫黄分の $PM_{2.5}$ /(ガス+ $PM_{2.5}$ )比は、瀬戸内海の航路付近では10%以下であったが、沿岸では20%程度、内陸では30%以上となった。

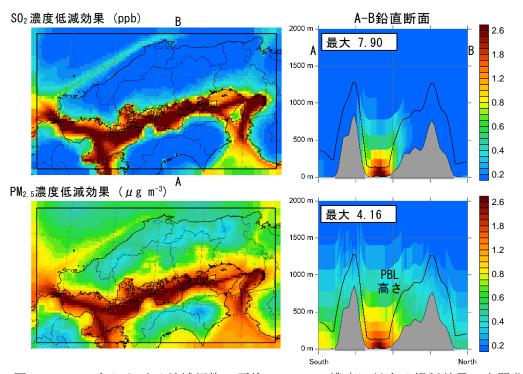


図 0.8 2019 年における地域汚染日平均 SO2, PM2.5 濃度に対する規制効果の空間分布

図0.9に、2019年の瀬戸内地域、その他中国四国地域における期間別平均 $PM_{2.5}$ 濃度に対する規制効果と規制強化後の船舶排出寄与、および規制強化後の発生源別寄与率を示す。瀬戸内地域における  $PM_{2.5}$ 濃度に対する規制効果は、年、 $PM_{2.5}$ 高濃度日、地域汚染日平均でそれぞれ0.59、1.14、1.59  $\mu$  g/m³となった。同様に、規制強化後の船舶排出寄与は、それぞれ0.61、1.62、1.97  $\mu$  g/m³となった。これらを積算すると規制強化前の船舶排出寄与が推計できる。瀬戸内地域における $PM_{2.5}$ 濃度に対する船舶排出の寄与率は、規制前には年、 $PM_{2.5}$ 高濃度日、地域汚染日平均でそれぞれ11.3%、10.1%、14.9%

であったが、規制強化後にはそれぞれ6.1%, 6.2%, 8.8%に低下した。船舶航行が集中する瀬戸内地域、空気塊が滞留しやすい地域汚染日では、それぞれ他地域、他期間よりも高い規制効果が得られた。国内の発生源対策効果を適切に評価する上で、滞留性を考慮することは重要であると考えられる。規制強化後の発生源別寄与率については、年、PM2.5高濃度日、地域汚染日平均のいずれも国外人為起源が最も高くなった。しかし、地域汚染日においては、大規模固定発生源の寄与率(24%)は、国外人為起源の寄与率(31%)に近い値であり、今後の国内の大気汚染対策において重要な発生源である。

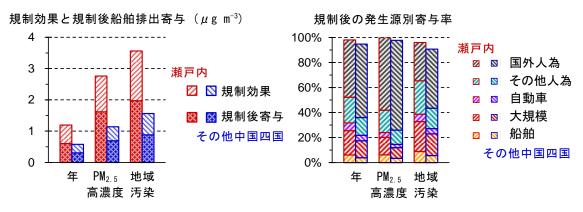


図 0.9 瀬戸内地域, その他中国四国地域における PM<sub>2.5</sub> 濃度に対する規制効果と規制後の船舶排 出寄与(左) および規制後の発生源別寄与率(右)の期間別平均値

規制強化の環境基準達成状況に対する影響を評価するために、得られた規制効果を2018年度の瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>測定局(58局)の環境基準達成評価値に適用した。その結果、図3.18に示すとおり、長期基準非達成局は9局から4局に減少(岡山県3局、香川県1局、愛媛県1局減少)し、短期基準非達成局は17局から12局に減少(岡山県2局、香川県1局、愛媛県2局減少)した。また、環境基準非達成局は18局から13局に減少(岡山県2局、香川県1局、愛媛県2局減少)した。したがって、規制強化によって環境基準達成状況の改善に寄与する効果が得られることが確認できた。

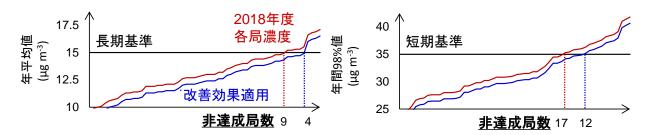


図 3.18 瀬戸内地域における規制強化による大気質改善効果の 2018 年度 PM<sub>2.5</sub> 濃度観測値への適用による環境基準達成状況の変化

#### 5-2. 環境政策等への貢献

対策検討に必要な発生源寄与度や排出量変化による大気濃度の応答(感度)は、実測が困難なことから数値モデルにより推計するのが一般的である。数値モデルの計算では、各種発生源からの大気汚染物質排出量を入力データとして準備する必要がある。陸域排出量データについては、J-STREAM(環境研究総合推進費5-1601)などの研究プロジェクトにおいて適宜更新が図られている。他方、船舶排出量データは海洋政策研究財団(現、笹川平和財団海洋政策研究所)が構築した排出量データが広く利用されているものの、同データは2005年度の船舶活動量をベースとしたものであり、最新の活動量を用いた船舶排出量データの構築が望まれていた。このような背景のもと、サブテーマ1では、航行船舶、停泊船舶、並びに漁船を対象とした船舶排出量データベースを構築した。本研究では推計の対象年次を2015年度及び2020年度に更新しつつ、2005年度排出量データの推計手法に含まれていた不確実性を解消にすることに成功した。構築した船舶排出量データベースは既に一般に公開されており、国等で実施されるPM2.5対策に係る検討等において順次使用されている。

環境省は2010年度より船舶と航空機が港湾や空港周辺の大気環境に及ぼす影響の把握に努めており,2017年度には関門海峡において船舶排出物質影響を捉えるための大気調査を実施した。サブテーマ2で実施した短期観測はこれとほぼ同様の調査を踏襲したものであり,得られたデータは環境省調査結果を補強するものである。

サブテーマ3では、サブテーマ2で得られた観測データとの比較によって妥当性が確認された大気質モデルを用いて、船舶航行が集中し、他地域に比べてPM<sub>2.5</sub>濃度が高い瀬戸内地域を対象に解析を実施した。モデル解析より瀬戸内地域特有の高濃度現象の出現要因を解明するとともに、船舶排出の寄与および2020IMO規制強化の効果を定量的に評価した。2018年度の瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>測定局(58局)の環境基準達成評価値に適用した場合、長期基準非達成局は9局から4局に、短期基準非達成局は17局から12局に、環境基準非達成局は18局から13局に減少する結果が得られたことから、2020IMO規制強化は環境基準達成状況の改善に寄与することを示した。規制強化後も、地域特有の高濃度事象においては、大規模固定発生源の寄与率(24%)は国外人為起源の寄与率(31%)に近い値であり、国内では今後のPM<sub>2.5</sub>対策における優先順位が高い発生源であることを示した。また、大規模固定発生源の中でも、電気業は排出量が最も多いことから、重要な発生源であることを見出した。

# <行政等が既に活用した成果>

- 1)環境省の以下検討会において、サブテーマ1で構築した船舶排出量データベースが大気質シミュレーションの入力データとして活用された。
  - ① 2019年度 光化学オキシダント調査検討作業部会
  - ② 2020年度 微小粒子状物質 (PM2.5) ・光化学オキシダント総合対策推進検討会
- 2)環境省の以下検討会において、サブテーマ1で構築した船舶排出量データベースが発生源分布の 解析に使用された。
  - ① 2020年度 移動体排出量推計作業部会
  - ② 2020年度 PM2.5排出インベントリ及び発生源プロファイル策定検討会
- 3)環境省による「2020年度 船舶・航空機排出大気汚染物質の環境影響把握に関する検討会」において、本研究課題の成果が船舶による大気環境影響の評価に参照された。

### <行政等が活用することが見込まれる成果>

1) 船舶排出量データは海洋政策研究財団(現, 笹川平和財団海洋政策研究所)が構築した排出量データが広く利用されているものの,同データは2005年度の船舶活動量をベースとしたものであり,最新の活動量を用いた船舶排出量データの構築が望まれていた。本研究で構築した船舶排出イン

ベントリの公開により、2015年以降を対象とした大気質モデルによる二次汚染物質濃度の解析および再現性向上、そして発生源寄与割合のより正確な推計を実現することが可能となった。また、環境省のPM<sub>2.5</sub>排出インベントリ及び発生源プロファイル業務における排出インベントリの構築と改良にも貢献しうるものと考える。

- 2) サブテーマ2で取得した,粒子成分濃度や海面上における観測データおよび解析結果は常監局からは得られないものであり、対策検討業務におけるモデルのより詳細な検証と、環境省が実施しているPM<sub>2.5</sub>成分自動測定の検証、解析、活用などへの有用な参考情報になり得る。またサブテーマ1とともに構築した拡散モデルは、港湾周辺を対象とした高濃度SO<sub>2</sub>の発生源調査、更には曝露影響評価にも活用することが可能となる
- 3)数値シミュレーションにより,瀬戸内地域のPM2.5濃度に対する2020IMO規制強化前後での船舶排出 寄与を推計した結果,地域特有の高濃度条件下において規制強化前には約15%の寄与であったが, 規制強化後は約9%に低下したことを明らかにした。また,この大気質改善効果は,2018年度にお ける同地域の環境基準未達成局を18局(全58局中)から13局に減少させる効果に相当し,同地域 における環境基準達成状況の改善に資することを明らかにした。
- 4) 数値シミュレーションにより、瀬戸内地域特有の高濃度は域内の排出によるものであり、地域に特有の気象がそれを増強することが判明した。同地域では2020IMO規制強化後も依然として高濃度大気汚染が発生するが、域内の発生源対策により改善する可能性がある。特に、地域特有の高濃度PM<sub>2.5</sub>に対する大規模固定源の影響度は約24%を占め、対策の優先度は高い。また、解析に用いた地域特有の気象による空気塊の滞留性の評価手法は、局所的な大気汚染が発生しやすい地域・期間の判別を可能とするものであり、今後の大気汚染対策の検討においても有用であると考えられる。

#### 5-3. 研究目標の達成状況

全体目標について、計画通りに観測および数値シミュレーションから2020IM0規制強化による瀬戸内での大気質改善効果を検証するに至った。また、瀬戸内地域での2020年以降におけるPM<sub>2.5</sub>対策の方向性検討を示すに至った。

サブテーマ1では、船舶固有情報を網羅した「船舶明細データベース」を構築し、AISデータに含まれるIMO番号から一隻ごとに実際の固有情報を引き出して、より精度の高い排出量算定を行う手法を開発した。そして、同算定手法および排出量解析の内容を1編の査読付き論文として発表した。現在、構築した船舶排出量データベースは既に一般に公開されており、国等で実施される $PM_{2.5}$ 対策に係る検討等において順次使用されている。よって、計画にて掲げた研究目標は達成したものと考える。

サブテーマ2では、計画通り各種観測を通じて解析に必要なデータを取得し、規制強化の効果や地域特有の汚染現象を評価した。特に長期連続観測では、汚染状況を面的にも把握するために衛星計測データを追加で解析し、その内容を1編の査読付き論文として発表した。COVID-19による経済活動の縮小や西之島火山ガスの影響など想定外の事象により観測結果の評価は容易ではないが、COVID-19による船舶活動量への影響はAISデータから評価するなどし、結果として2020IMO規制強化に伴う大気質改善効果を示唆するに至った。

サブテーマ3では、非定常三次元オイラー型の大気質モデルを用いて、日本国内の他地域に比べて PM<sub>2.5</sub>濃度が高い瀬戸内地域を対象に、地域特有の高濃度現象を再現するとともにその出現要因を明らかにし、船舶排出の寄与および規制強化の効果を定量的に評価した。また、発生源寄与評価手法の検討に関する内容は、1編の査読付き論文として発表した。よって、研究目標は達成したものと判断できる。

### 6. 研究成果の発表状況

### 6-1. 査読付き論文

### <件数>

3件

### <主な査読付き論文>

- 1) T. Sakurai, M. Ito, and S. Hanayama: Asian Journal of Atmospheric Environment, Vol. 15 (1), https://doi.org/10.5572/ajae.2020.096 (2021) (Cite Score:2.0), Development of Air Pollutants Emission Inventories for Ships around Japan on a High Geographical Resolution.
- 2) S. Itahashi, T. Sakurai, H. Shimadera, S. Araki, and H. Hayami: Environmental Research Letters, https://doi.org/10.1088/1748-9326/ac03db (2021) (IF:6.096), Long-term trends of satellite-based fine-mode aerosol optical depth over the Seto Inland Sea, Japan, over two decades (2001-2020) (in press)
- 3) S. Chatani, H. Shimadera, S. Itahashi, K. Yamaji K.: Atmospheric Chemistry and Physics, Vol. 20, 10311-10329 (2020) (IF: 5.958), Comprehensive analyses of source sensitivities and apportionments of PM<sub>2.5</sub> and ozone over Japan via multiple numerical techniques.

# 6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項はない。

### 6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	0 件
その他誌上発表(査読なし)	1 件
口頭発表(学会等)	28 件
「国民との科学・技術対話」の実施	1 件
マスコミ等への公表・報道等	0 件
本研究に関連する受賞	0 件

# 7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

# 8. 研究者略歷

研究代表者:櫻井 達也

東京理科大学大学院理学研究科修了,博士(理学),酸性雨研究センター研究員,日本エヌ・ユー・エス(株)コンサルタント,現在,明星大学理工学部准教授

#### 研究分担者:

1) 速水 洋

北海道大学大学院工学研究科修了,博士(工学),電力中央研究所副研究参事,現在,早稲田大学理工学術院国際理工学センター 教授

2) 板橋 秀一

九州大学大学院総合理工学府修了,博士(理学),現在,電力中央研究所主任研究員

3) 嶋寺 光

大阪大学大学院工学研究科修了,博士(工学),電力中央研究所特別契約研究員,現在,大阪大学工学研究科准教授

### Ⅱ. 成果の詳細

### Ⅱ-1 船舶排出量DBの構築と航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測

明星大学 櫻井 達也

#### 「要旨」

2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価を行うにあたり、本研究(GLIMMS-AQ)では2015年度を対象に船舶からの大気汚染物質排出量データを整備し、国内の海域および陸域における大気汚染物質の排出状況を評価した。併せて、燃料油中硫黄分を0.50%とした場合の排出量も推計し、2020年以降に期待されるSOxおよびPM2.5排出量の削減効果についても考察した。

排出量は航行船舶,停泊船舶,並びに漁船の主機および補機機関の燃焼に由来する大気汚染物質を対象に,空間解像度は3次メッシュベースで,時間解像度は1時間ベースで推計した。推計で必要となる活動量については,航行船舶には船舶自動識別装置(AIS: Automatic Identification System)の陸上局データを,停泊船舶には2015年度港湾調査データを,漁船には2015年に至近となる2013年漁業センサスデータを使用して作成した。

本推計におけるボトムアップ推計の不確実性を評価するため、ここでは内航船を対象に、燃焼消費量の推計値および統計値を比較した。本推計より得られた内航船による燃料消費量は、航行時:2,339 Gg/yr および停泊時:480 Gg/yrとなり、合計で2,819 Gg/yrとなった。これに対し、総合エネルギー統計より集計した2015年度における内航船の燃料消費量は旅客:959 Gg/yrおよび貨物:2,221 Gg/yrとなり、合計で3,180 Gg/yrであった。よって、本推計結果は統計値に対して89%程となり、推計結果に矛盾はないものと考えた。推計値が統計値よりも過小となった要因には、AISで捕捉されなかった船舶、もしくはAIS未搭載船の存在などが考えられた。

瀬戸内海( $21,827 \text{ km}^2$ )および東京湾( $1,380 \text{ km}^2$ )を対象に、それら海域と周辺陸域における $SO_2$ ・ $PM_{2.5}$ 排出総量の比較を示した。周辺陸域とした都府県は、瀬戸内海が11府県(計 $61,260 \text{ km}^2$ )、東京湾が3都県(計 $9,612 \text{ km}^2$ )である。陸域における排出量集計には、環境省による $PM_{2.5}$ 等大気汚染物質排出インベントリを利用した。陸域および海域での全排出量に占める船舶排出量の割合は、瀬戸内海で $SO_2:29\%$ 、 $PM_{2.5}:40\%$ 、 $NO_x:22\%$ に、東京湾で $SO_2:36\%$ 、 $PM_{2.5}:28\%$ 、 $NO_x:13\%$ に及んだ。東京湾では、 $SO_2$ および $PM_{2.5}$ ともに単位面積当たりの排出強度が非常に大きくなったことから、船舶の航行密度が高く、局所的に排出強度が大きくなっている状況が伺えた。20201M0規制強化によってC重油が硫黄含有量0.50%の燃料油に代替された場合、船舶からの $SO_2$ 排出量は瀬戸内海で24%、東京湾で22%に、 $PM_{2.5}$ 排出量は瀬戸内海で39%、東京湾で36%にまで減少する結果となった。

以上,サブテーマ1では計画通り,航行船舶を対象とした排出量データの推計を実施し,精度の高いデータベースを構築するに至った。構築した船舶排出量データベースは既に一般に公開されており,国等で実施されるPM2.5対策に係る検討等において順次使用されている。

# 1. 研究開発目的

対策検討に必要な発生源寄与度や排出量変化による大気濃度の応答(感度)は,実測が困難なことから数値モデルにより推計するのが一般的である。数値モデルの計算では,各種発生源からの大気汚染物質排出量を入力データとして準備する必要がある。陸域排出量データについては,J-STREAM(環境研究総合推進費5-1601)などの研究プロジェクトにおいて適宜更新が図られている。他方,船舶排出量データは海洋政策研究財団(現,笹川平和財団海洋政策研究所)が構築した排出量データが広く利用されているものの,同データは2005年度の船舶活動量をベースとしたものであり,最新の活動量を用いた船舶排出量データの構築が望まれている。そこで本研究では,2015年度の船舶活動量をベースとした船舶排出量データの整備を進めることとした。

#### 2. 研究目標

※ ここでは様式に従い、最終年度の契約時に提出した研究目標を記載している。よってその内容は 最終年度の活動に係る目標となっている。全体目標は「I.成果の概要」第2章を参照されたい。

AISのリアルタイムデータを入力データとして、航行する各船舶の排出強度と大気中濃度分布を推計するシステムを開発する。同システムをサブテーマ2の短期集中観測に適用し、通過船舶を対象とした燃料中硫黄分の逆推計、並びに船舶排ガスの沿岸着地濃度を推定する。

### 3. 研究開発内容

2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価を行うにあたり、GLIMMS-AQでは2015年度を対象に船舶からの大気汚染物質排出量データを整備し、国内の海域および陸域における大気汚染物質の排出状況を評価した。排出量は航行船舶、停泊船舶、並びに漁船の主機および補機機関の燃焼に由来する大気汚染物質を対象に、空間解像度は3次メッシュベースで、時間解像度は1時間単位で推計した。推計対象とした汚染物質は $SO_2$ 、 $SO_4^{2-}$  ( $PM_{2.5}$ )、 $PM_{2.5}$ 、 $NO_x$ 、NMVOC、CO,  $CO_2$ 07種である。

# 3. 1 排出係数について

大気汚染物質の排出量は、活動量に排出係数を乗ずることで算定される。 $SO_2$ は燃料油中に含まれる硫黄分の燃焼反応によって生成・排出されるため、その排出係数はg- $SO_2/g$ -Fuelとなる。そのため、必要となる活動量は航行時および停泊時に主機および補機によって消費される燃料消費量となる。また、排出係数の設定には燃料油中硫黄分の情報が必要となる。本研究では外航船は全てC重油で航行しているものと想定し、各種資料より、外航船のC重油には2.45% を、内航船および漁船のC重油、A重油、軽油にはそれぞれ2.33%, 0.40%, 0.001%を設定した2 。なお内航船および漁船については、船型別に油種の使用比率を設定した。2020年以降に期待されるSOx・PM排出量の削減効果については、外・内航船で使用されるC重油の硫黄分が0.50%になるものと仮定し、推計を行った。

 $PM_{2.5}$ および $SO_4^2$ の排出係数については、燃料油中硫黄分濃度をS(%)として以下の式(1.1)および式(1.2)により設定した $^{3}$ )。

よって、ここで必要となる活動量は、航行時および停泊時における主機及び補機の機関出力(kW)となる。式(1.1)および式(1.2)は、希釈法(ISO8178)によって算定された燃料油中硫黄分毎の排出原単位より求めた回帰直線となっている。

 $NO_x$ の排出係数の場合,本研究ではMARPOL条約におけるTier1及びTier2規制値を適用しており,その単位は機関回転数ごとに設定された機関出力当たりの排出量 (g/kWh) となる。よって,必要となる活動量は $PM_{2.5}$ と同様,航行時及び停泊時における主機及び補機の機関出力 (kW) となる。なお,船舶は規制値よりも低い排出量で航行しているため,ここで算定される排出量は実際のものよりも大きい保守的な算定結果になっている点に留意されたい。

その他汚染物質の排出係数は、海洋政策研究財団(現,笹川平和財団海洋政策研究所)が構築した排出量データ<sup>3)</sup>と同一のものを適用した。

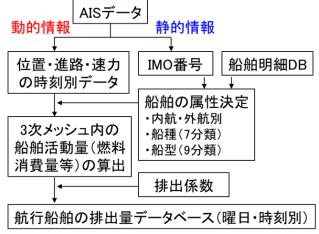


図 1.1 航行船舶排出量データの作成手順フロー

#### 3. 2 活動量について

### (1) 航行船舶を対象とした活動量の算定手法

図1.1に、航行船舶を対象とした大気汚染物質排出量の算定フローを示した。船舶活動量の算定には船舶自動識別装置(AIS: Automatic Identification System)の陸上局データを使用した。AISとは、衝突防止を目的に2002年から搭載が義務化された装置であり、船舶間及び対陸上局で相互に動的情報(位置・速度など)をやり取りするシステムである。衛星により受信したAISデータも利用可能であるが、輻輳海域では混信により船舶の捕捉率が低くなることが指摘されている。本研究では日本沿岸海域における排出量を精度良く算定することを目的としたため、衛星データではなく陸上局データを採用した。

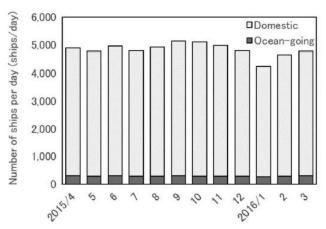


図 1.2 2015 年の各月における国内主要港湾への 内航船 (Domestic) および外航船 (Oceangoing) の入港隻数

本研究では推計対象年を2015年と設定したが、費用面の事情により、ここでは2015年9月のAISデータを使用し、それを概ね12倍することで年間排出量とした。図1.2に、2015年の各月における国内主要港湾への船舶入港隻数を示した。9月は年間で最も入港隻数が多かった月であり、ここで算定した年間排出量は実際よりも大きく保守的に評価されていることに留意されたい。

式(1.3)および式(1.4)は、必要となる活動量がそれぞれ機関出力および燃料消費量となる汚染物質として、 $NO_x$ 及び $SO_2$ 排出量の算出方法を例示したものである。なお、本報で示す  $SO_2$ の推計結果は式(1.4)に示す通り、 $SO_x$ から $SO_4$ 2-として排出される量を差し引いたものとなっている。

 $NO_x$ 排出量(g/h) = 排出係数(g/kWh)×機関定格出力(kW)×機関負荷率(%) ··· (1.3)

 $SO_2$ 排出量(g/h) = 燃料消費量 $(g/h) \times S(\%) \times M_{SO2}/M_S - SO_4^{2-} \times M_{SO2}/M_{SO4}$  ···· (1.4)

NOx排出係数: MARPOL Annex VIにおけるNOx排出規制値を適用

M<sub>S02</sub> : SO<sub>2</sub>分子量 (=64)
M<sub>S</sub> : 硫黄分子量 (=32)
M<sub>S04</sub> : SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>分子量 (=96)
S : 燃料油中硫黄含有率

更に、機関負荷率と燃料消費量は以下の式(1.5)および式(1.6)によって算出される<sup>3)</sup>。

機関負荷率(%)=85%×(Vn³/Vs³) ··· (1.5)

燃料消費量 $(g/h) = SFC(g/kWh) \times$ 機関定格出力 $(kW) \times$ 機関負荷率(%) ···· (1.6)

Vn : 航行実速力 (knot), Vs : 航海速力 (knot),

SFC : 標準燃料消費率 (Standard Fuel Consumption)

式(1.3)~(1.6)において、活動量算出に必要なパラメータのうち、航行実速力はAISより取得可能である。標準燃料消費率は、先行研究 $^{3)}$ で示された値と同じものを使用した。それら値は $^{2}$ nd IMO GHG Study等の文献値より船種・船型別に設定されたものとなっている。機関定格出力および航海速力は船舶エンジンの固有情報となる。更には、 $^{1}$ NO $_{x}$ 排出係数となる $^{1}$ NO $_{x}$ 排出規制値を決定するためには船舶の建造年情報が必要であり、それも船舶の固有情報となる。AISに含まれる航行船舶の固有情報は船名・ $^{1}$ MO番号・全長であり、機関定格出力や船型(総トン数)に関する情報は含まれていない。そこで本研究では、推

計に必要な固有パラメータを一隻ごとに当てはめるべく,一般社団法人日本海運集会所が発行する「日本船舶・内航船舶明細書」並びにIHSマークイットが販売する「IHS Maritime World Shipping Encyclopedia」から,表1.1に示すような船名やIMO番号といった船舶識別情報の他,総トン数,航海速力,機関識別,機関定格出力の各情報を含んだ独自の「船舶明細データベース」を作成した。これにより,AISデータに含まれるIMO番号から一隻ごとに実際の固有情報を引き出して,排出量の算定を行うことが可能となった。

### (2) 停泊船舶を対象とした活動量の算定方法

停泊船舶については、補機およびボイラーの燃焼に 起因する排出量推計を行った。まず、各港湾に停泊す る船舶の隻数データを、政府統計の総合窓口(e-Stat) における2015年度港湾調査データをベースとして船 種・船型別に作成した。先行研究<sup>3)</sup>では、排出量算定 のパラメータとなる補機の機関定格出力を、船種・船

表1.1 船舶明細データベースの構成

船舶明細DBの内容	使途
IMO番号**	AIS情報との検索・
船名	A15情報との検系・   引用対象
全長	71 加 刈 承
建造年	NOx規制(Tier1/2) 対象船の選別
船種	
船籍	<b>朳揺・朳刑▽八の</b>
総トン数区分	船種・船型区分の 振り分け
内外航区分	1/12 9 / 1/17
船種コード	
航海速力	機関負荷率算定
機関定格出力総トン数	活動量算定

※ 国際海事機構 (IMO) が SOLAS 条約に基づき船舶 に与える 7 桁の固有番号。所有者や船籍が変更 されても廃船になるまで変更されない。

型毎に作成した回帰式より推定した。本研究でも同手法を踏襲し、補機の定格出力及び燃料消費量を船種・船型別に推計し、排出量推計のための活動量とした。その他、補機の負荷率やSFCなど他のパラメータは先行研究<sup>3)</sup>と同一とした。

港湾別に推計した活動量は、港湾区域内に位置する3次メッシュ内に均等按分し、排出係数を乗じることで停泊船舶の排出量データベースを作成した。

### (3)漁船を対象とした活動量の算定方法

漁船の活動量は、2015年に至近となる2013年漁業センサスにより海域別(都道府県・大海区別)、トン数区分別の延べ漁業従事日数を求め、船型別に、航行速力や操業・航行時間等の活動パターンを想定して燃料消費量等を算出した。その他、機関負荷率やSFCなど他のパラメータ、海域への活動量の按分方法は先行研究<sup>3)</sup>と同一とした。

### 4. 結果及び考察

# 4.1 内航船を対象とした排出量推計結果の誤差評価

本推計におけるボトムアップ推計の不確実性を評価するため、燃料消費量について推計値および統計値を比較することとした。外航船については、日本周辺での燃料消費量の実状を示す統計値などが存在しないため、不確実性を評価することはできない。他方、内航船の航行範囲は概ね陸上AIS局の受信範囲内にあり、国内における内航船向け燃焼販売量などのデータも存在する。そこでここでは内航船を対象に、燃焼消費量の推計値および統計値を比較することとした。

本推計より得られた内航船による燃料消費量は、航行時: 2,339~Gg/yrおよび停泊時: 480~Gg/yrとなり、合計で2,819~Gg/yrとなった。これに対し、総合エネルギー統計をもとに集計した2015年度における内航船の燃料消費量の統計値は旅客: 959~Gg/yrおよび貨物: 2,221~Gg/yrとなり、合計で3,180~Gg/yrであった。よって、本推計結果は統計値に対して89%程度であり、推計結果に矛盾はないものと考えた。推計値が統計値よりも過小となった要因には、AISで捕捉されなかった船舶、もしくはAIS未搭載船の存在などが考えられる。

### 4.2 航行船舶排出ガスの沿岸着地濃度予測に基づく排出量算定手法の妥当性評価

この船舶排出量データベースにおける排出量算定手法の妥当性検証を目的として、船舶排ガス直接観

測とガウス型プルームモデルによる拡散計算の結果を比較した。比較対象とした船舶排ガスの直接観測は、サブテーマ2において関門橋橋脚付近(下関側)にて実施したものである。ここでは得られた測定項目のうち $SO_2$ ,  $CO_2$ , 並びに風向風速データを解析に使用した。拡散計算は、 $SO_2$ 濃度が上昇した際の通過船舶を対象に実施した。通過船舶の特定はAISデータや定点カメラから行った。拡散計算で使用する船舶からの $SO_2$ 排出量を算定するためには、対象船舶の燃料油中硫黄分濃度(Fuel Sulphur Content: FSC)の情報が必要となる。ここでは観測された $SO_2$ および $CO_2$ を用いて、式(2.1)からFSCを算出した。式中のバックグラウンド濃度(bkg)には濃度上昇直前の値を使用し、濃度が下降した値までを積分の対象とした。なお、船舶排ガス直接観測の詳細は本報告書II-2の3.2を参照されたい。

ここでは、2019年9月5日に測定された167 ppb(10秒値)の $SO_2$ 濃度を対象に拡散予測計算を実施し、その計算結果と測定値の比較から排出量算定手法の妥当性を検証した。図0.2に、対象事例における $SO_2$  および $CO_2$ の濃度変動を示した。この濃度上昇について、式(2.1)から算出されたFSCは2.22%となり、一般的なC重油中のFSCと同程度の値となった。図0.3には、ガウス型プルームモデルより計算した煙軸高さにおける $SO_2$ 濃度の計算結果を示した。 $SO_2$ 濃度の計算値は、発生点から100 mの距離までは400 ppbほどの高濃度となり、風下距離170 m付近で観測値と一致する結果となった。同時刻におけるAIS情報より、同濃度上昇をもたらしたと考えられる通過船舶は、濃度上昇時、観測点から $150\sim200$  mほど離れた位置を航行していたことが把握でき、同計算値は観測値と矛盾していないことが確認できた。ここで紹介した計算事例以外にも、複数の高濃度を対象とした同様の妥当性検証を実施したが、同様に計算値は観測値と矛盾の無い範囲で一致したことを確認した。このことから、本研究における船舶排出量の算定手法は、実際の航行船舶排ガスの排出構造に則したものであると考えられた。

### 4.3 瀬戸内海および東京湾を対象とした陸域および海域での排出量比較

図0.1に,作成した船舶排出量データのうち,瀬戸内海および東京湾を中心としたSO<sub>2</sub>排出量(ton/grid/yr)の水平分布を例示した。格子解像度は概ね1x1 kmであり,航路も鮮明に見て取れることから,精度の高い地理的分布を有した船舶排出量が算定できたものと考えられる。

図1.3には、瀬戸内海 (21,827 km²) および東京湾 (1,380 km²) と、それら海域を囲む都府県を対象に積算 した,海域および陸域におけるSO<sub>2</sub>,PM<sub>2.5</sub>,並びにNO<sub>x</sub>の排 出総量を示した。積算対象とした都府県は、瀬戸内海が 和歌山・大阪・兵庫・岡山・広島・山口・福岡・大分・愛 媛・香川・徳島の11府県 (計61,260 km²), 東京湾が千葉・ 東京・神奈川の3都県 (計9,612 km²) となっている。排 出量はSO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>, 並びにNO<sub>x</sub>ともに対象面積の広い瀬戸内 海を取り囲む11府県で最大となった。瀬戸内海における 船舶からの排出総量はSO<sub>2</sub>:55.0 Gg/yr, PM<sub>2.5</sub>:9.6 Gg/yr, NO<sub>x</sub>: 95.6 Gg/yrであり、陸域及び海域での全排出量に占 める割合はSO<sub>2</sub>:29%, PM<sub>2.5</sub>:40%, NO<sub>x</sub>:22%となった。東京 湾を見た場合, 船舶からの排出総量はSO<sub>2</sub>:14.7 Gg/yr, PM<sub>2.5</sub>: 2.4 Gg/yr, NO<sub>x</sub>: 21.6 Gg/yrであり, 陸域及び海域 での全排出量に占める割合はSO<sub>2</sub>:36%, PM<sub>2.5</sub>:28%, NO<sub>x</sub>: 13%となった。東京湾では、SO2およびPM2.5ともに単位面積 当たりの排出強度が他と比べて非常に大きいことから, 船舶の航行密度が高く,局所的に排出量が大きくなって いる状況であることが伺えた。

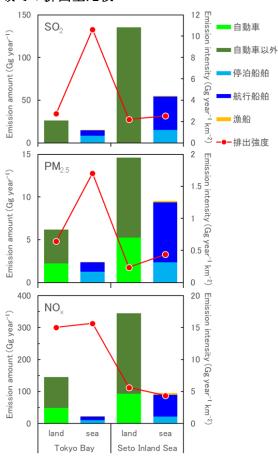
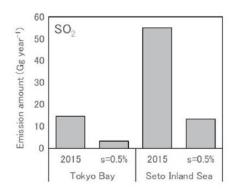


図1.3 瀬戸内海および東京湾を対象 とした海域および陸域における SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>, NO<sub>x</sub>排出総量の比較

### 4. 4 燃料油規制で期待されるSOxおよびPM2.5の削減効果

図1.4には、2020IM0規制強化によって期待される瀬戸内海および東京湾での $SO_2$ および $PM_{2.5}$ の排出削減量を示した。規制強化によってC重油が硫黄含有量0.50%の燃料油に代替された場合、 $SO_2$ 排出量は瀬戸内海で24%、東京湾で22%に、 $PM_{2.5}$ は瀬戸内海で39%、東京湾で36%にまで減少する結果となった。 $PM_{2.5}$ 排出量におけるその他成分(図中0thers)の減少は、 $SO_4$ 2-に付随する水分の減少に起因したものである。なお、 $SO_x$  ( $=SO_2+SO_4$ 2-) 排出量に占める $SO_4$ 2-の割合は、何れの場合も重量ベースで6%弱となった。



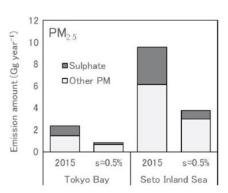


図1.4 2020硫黄分規制強化によって期待される瀬戸内海および東京湾での SO<sub>2</sub>およびPM<sub>2.5</sub>の排出削減量

# 4. 5 COVID-19感染拡大と船舶活動量の変化について

サブテーマ1では、COVID-19感染拡大に伴う船舶活動量の変化を把握するため、瀬戸内海での2020年1~6月における衛生AISデータを購入し、船舶の航行距離(活動量に相当)を月別に解析した。

図1.5は,瀬戸内海を航行する貨物船(Cargo),タンカー(Tanker),並びに旅客船(Passenger)の航行距離を速度帯別に集計したものである。COVID-19感染拡大による影響を最も受けたのが旅客船である。2020年3~4月の航行距離は前後の月の半分程度に留まっており,かつ低速度帯での航行が多い状況であったことが見て取れる。他方,貨物船およびタンカーは,旅客船に見られたような航行距離の大幅な減少は見られず,2020年4月7日に発出された第1回目の緊急事態宣言下であっても,海運に従事する船舶は通常通り運行されていたものと考えられた。

2020IMO規制強化後を想定した船舶排出量データベースにおいて、活動量の減少が確認された旅客船による瀬戸内海での排出割合は、航行時で $SO_2:16\%$ ,  $NO_x:19\%$ ,  $PM_{2.5}:16\%$ であった。つまり、2020年3~4月はCOVID-19の感染拡大によってこのうちの半分程度が減少したと考えれば、これら3物質は全体に占める10%弱の排出量が減少したものと想定でき、期間的かつ総量でみてもその影響は限定的であったものと考えた。

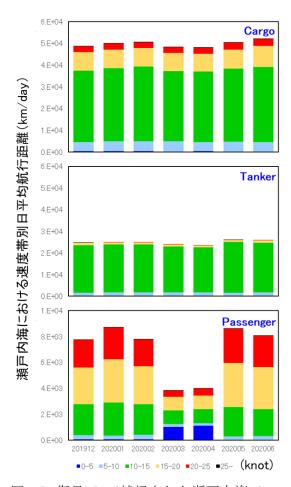


図1.5 衛星AISで捕捉された瀬戸内海での 2020年1~6月における貨物船(Cargo), タンカー, 旅客船 (Passenger) の速度 帯別日平均航行距離。

#### 5. 研究目標の達成状況

船舶排出量データの活動量として使用したAISデータには、排出量の算定に必要となる船舶固有の情報、例えば機関定格出力や航海速力の情報が含まれておらず、船の大きさを示すデータは全長のみとなっている。そのため、現在広く使用されている2005年度排出量データの算定<sup>3)</sup>では、船舶明細書などの情報を収集して全長及び総トン数、そして総トン数及び機関定格出力の散布図を船種・船型別に作成し、そこから回帰的に関係式を設定した。同手法では、AISのようなビッグデータの処理に係る計算負荷を軽減する反面、実際の機関定格出力との差が不確実性として発生することになる。サブテーマ1ではこの不確実性を解消すべく、ほぼ全ての船舶固有情報を網羅した独自の「船舶明細データベース」を構築し、AISデータに含まれるIMO番号から一隻ごとに実際の固有情報を引き出して、排出量の算定を行う手法を開発した。本手法は計算負荷が高く、排出量の算定にはこれまで以上の時間を必要としたが、より精度の高い排出量データを構築することができた。また、排出量の算定手法およびその結果解析を1編の査読付き論文として発表した。

現在,構築した船舶排出量データベースは既に一般に公開されており,国等で実施されるPM<sub>2.5</sub>対策に係る検討等において順次使用されている。よって,計画にて掲げた研究目標は達成したものと考える。

### 6. 引用文献

- 1) International Maritime Organization: Air pollution and Energy Efficiency Sulphur monitoring for 2015, IMO Marine Environment Protection Committee, MEPC 69/5/7 (2016).
- 2) 日本内航海運組合総連合会: 第14 回内航海運における使用燃料油,潤滑油に関する実態調査報告書(2017).
- 3)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(2011)

### Ⅱ-2 船舶燃料油硫黄分規制強化によるPM2.5汚染改善効果の観測的評価

早稲田大学 理工学術院国際理工学センター 速水 洋 一般財団法人電力中央研究所 環境科学研究所 板橋 秀一

<研究協力者>

日本大学 生物資源科学部 中村 篤博(平成30年度)

香川高等専門学校 情報工学科 金澤 啓三 (平成31年度~令和2年度)

弓削商船高等専門学校 総合教育科 伊藤 武志 弓削商船高等専門学校 情報工学科 高木 洋 水産大学校 海洋生産管理学科 酒出 昌寿

水産大学校 名誉教授 前田 和幸(平成30年度) 神戸大学 海事科学部 山地 一代(平成30年度)

### [要旨]

船舶燃料油硫黄分の規制強化により期待される瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>等の変化を観測により捉えるため、規制強化が開始される2020年1月1日の前後に、長期平均的な濃度の変化を観測するための長期連続観測と、沿岸に到達した船舶排出ガスの濃度を測定する短期集中観測を行った。

長期連続観測は、瀬戸内海に面する荘内半島の中程に位置する香川県三豊市詫間と、愛媛県上島町弓削で実施した。両地点における2020年のガス状・粒子状成分濃度は2019年より概して減少した。月別にその減少量を求めたところ、ヴァナジウムの濃度減少量がSO<sub>2</sub>の濃度減少量と良く対応していた。ヴァナジウムは重油燃焼の指標とされ、SO<sub>2</sub>とともに近傍の重油発生源に由来すると考えられた。非海塩起源硫酸イオンは西之島火山ガスや二次生成の寄与が示唆された。

地上の定点で実施した長期連続観測を補足し、瀬戸内地域における汚染状況を面的にも把握するため、衛星計測の微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ(fine-mode AOD:  $AOD_f$ )を調べた。その結果、瀬戸内地域の $AOD_f$ は過去20年間で2020年が最小であり、新型コロナウィルスのともなうわが国の経済活動の停滞のほか、 $SO_2$ 濃度の減少が示したように船舶燃料油硫黄分規制の効果が影響したと考えられた。

短期集中観測は、関門橋の下関側橋脚付近において2019年8月29日~9月11日と2020年8月26日~9月15日に実施した。 $CO_2$ 濃度の変化から船舶排出ガスを捕らえたと判断した事例(2019年83例,2020年107例)について、燃料油中硫黄分濃度(FSC)を推計したところ、2019年は3%付近と0.5%付近の出現頻度が高かったが、2020年はほぼすべての事例が0.5%以下であった。すなわち規制強化前にはA重油相当の低硫黄油を使用する船舶とC重油相当の燃料油を使用する船舶が航行していたが、2020年はほぼすべての船舶が新規制値に準拠していたと考えられた。

瀬戸内海上空においてマルチコプタに搭載した各種センサにより $PM_{2.5}$ 濃度等の鉛直分布を測定した。測定地点は香川県三豊市詫間の沖合約100 mであり、2020年10月12日から16日までで15回飛行した。 $PM_{2.5}$  濃度は10月14日を除いて $10~\mu$  g/m³以下と低濃度で、この場合には大きな鉛直勾配は見られなかった。10月14日は早朝に高度10-30 mでは $30~\mu$  g/m³に近い高濃度であり、この高濃度は高度500 mにまで見られた。これについて周辺の大気質と気象のデータと併せて解析したところ、岡山県側から香川県側に輸送された $PM_{2.5}$ が早朝の逆転層形成によって海上にトラップされ、それが高濃度につながったような状況が推察された。 $PM_{2.5}$ 高濃度が課題となっている瀬戸内海では、特に岡山県と香川県の瀬戸内海側で $PM_{2.5}$ 環境基準達成率が短期・長期基準ともに満たされていないが、ここに考察したような気象状況も関連した局所的な輸送による高濃度生成が一つの要因と考えられた。

#### 1. 研究開発目的

本サブテーマの目的は、船舶燃料油硫黄分の規制強化により期待される瀬戸内地域におけるPM2.5等の変化を観測により捉えることにある。その変化を評価するには、規制強化が開始される2020年1月1日の前後で同仕様の観測を行い、差分を求めるのが最も直接的である。そこで本研究では、長期平均的な濃度の変化を観測するための長期連続観測と、沿岸に到達した船舶排出ガスの濃度を測定する短期集中観測を行った。環境濃度は気象にも影響されるため、その影響を可能な限り低減する策を施す必要がある。長期連続観測では、平均化時間を長く取ることにより気象の影響の均一化が期待される。短期集中観測では、規制強化の前後で変化しない指標物質を同時に測定することにより気象の影響はほぼ無視できると考えた。

上記の長期観測は地上の定点で実施するものである。これを補足し、瀬戸内地域における汚染状況を面的にも把握するために衛星計測データを取得して解析を実施した。また、地上付近におけるPM2.5濃度の動態は、上記の長期連続観測や常時監視測定局(以下、常監局)の観測結果から得られるが、PM2.5濃度が上空にどれほどまで及んでいるのかは、従来まではほとんど把握ができていなかった。近年バッテリー性能の向上によって滞空時間も伸びつつあるマルチコプタに観測機器を搭載することで、瀬戸内海の上層の大気質を実測することを目的として集中観測を実施した。

#### 2. 研究目標

※ ここでは様式に従い、最終年度の契約時に提出した研究目標を記載している。よってその内容は 最終年度の活動に係る目標となっている。全体目標は「I.成果の概要」第2章を参照されたい。

引き続き、長期連続観測と短期集中観測を行う。これまでの観測データを整理して、船舶燃料油硫黄分規制の前後におけるPM<sub>2.5</sub>等の変化を解析し、規制の効果を観測データから定量的に評価する。なお、最終年度の短期集中観測は2020年9月頃に実施し、長期連続観測は2021年1月まで継続する予定である。

### 3. 研究開発内容

#### 3.1 瀬戸内地域における長期平均汚染物質濃度の改善効果の評価

長期連続観測は、瀬戸内海に面する2地点とした(図2.1)。ひとつは瀬戸内海に突出した荘内半島の中程に位置する香川高等専門学校詫間キャンパス(香川県三豊市;以下「詫間」という。)と、もうひとつは燧灘と備後灘を挟む対岸に位置する弓削商船高等専門学校(愛媛県上島町;以下「弓削」という。)である。詫間地点は4階建て建屋の屋上(地上高約13 m)で、海岸から約460 mの距離にある。弓削地点も4階建て建屋の屋上(地上高約13 m)で、海岸から約270 mの距離にある。両地点には、PM<sub>2.5</sub>質量濃度自動モニタ(詫間:紀本電子 PM-712、弓削:紀本電子 SPM-613D)を設置して、2018年10月より1時間濃度を連続測定した。

化学成分については、ローボリューム・エア・サンプラ(東京ダイレックGS-10N)を設置し、2018年 12月よりガス状・粒子状物質を捕集した。サンプラは、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)の乾性沈着モニタリング等で採用されている四段ろ紙法<sup>1)</sup>とした。ろ紙材は上流側からPTFE (Pall TEFLO)、ポリアミド(Pall Ultipor N66)、6%炭酸カリウム含浸セルロース(Advantec No. 51A)、5%リン酸含浸セルロース(Advantec No. 51A)であり、フィルタホルダ(東京ダイレック NILUフィルタホルダ)に装填した。フィルタホルダの最上段には、インパクタ方式のPM2.5分流器(東京ダイレック製)を装着した。標準の流量は毎分2 Lとした。サンプラは毎月1、6、11、16、21、26日の午前9時に切り替わるよう設定した。すなわち、各サンプルは半旬120時間(26日開始分は前後する)の連続捕集物である。一度にセットするサンプル数は原則として2~3本とし、フィールドブランク1本とともに交換した。捕集後のサンプラは冷蔵保存し、月一回の頻度で冷蔵のまま電力中央研究所(千葉県我孫子市)の実験室に送付し、半片を超音波にて超純水に抽出の後イオンクロマトグラフ(Thermo Fisher Scientific Dionex ICS-5000)にて無機イオン(S04²、N03⁻、C1⁻、Na⁺、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺、NH₄⁺)を分析した。残り半片は、微量金属成分分

析に供した。詫間地点には雲底計 (Vaisala CL-31) も設置し,2018年10月より大気境界層高度を連続測定した。いずれの観測も2021年1月末まで継続した。解析では,周辺の常時監視局データ(速報値)も使用した。

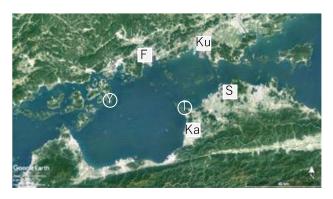


図 2.1 本研究の長期連続観測地点

T:詫間地点,Y:弓削地点,F:福山市曙小学校局,Ku:倉敷市松江局,Ka:観音寺市役所局,S: 坂出市役所局

### 3. 2 沿岸大気質に影響する航行船舶排出ガスの改善効果の評価

短期集中観測は,関門海峡の最狭部である早鞆の瀬戸の沿岸で実施した。早鞆の瀬戸は幅約600 mであり,船舶は沿岸から近いところで200 m程度のところを航行する。1日あたりの船舶航行量は500~600隻であり,大型船舶も多いことから,わが国で船舶排出ガスの影響を捕らえる最適地のひとつと考えられる。そこで2018年9月20日から10月4日に関門橋下関側橋脚付近において予備観測を実施し,本観測の仕様を決定した。本観測は予備観測と同地点において2019年8月29日~9月11日と2020年8月26日~9月15日(台風による中断を含む)に実施した。使用機器は, $SO_2$ 計(Thermo 43C-TLE),NOx計(Thermo 42C-TL), $CO_2$ 計(LICOR LI7000),風向風速計(光進電気工業 MVS350)である。測定レンジは, $SO_2$ 計を100 ppb,NOx計を500 ppbとした。この観測では船舶排出ガスのプルームによる濃度の急上昇を捕らえるため,平均化時間を可能な限り短くする必要があるが,これは測定精度との妥協をともなう。欧州での同様の観測 $^2$ )では $SO_2$ 計の応答を高速化するため炭化水素類(HC)の妨害を抑制するHCキッカーを外して運用されていた。しかしながら事前に試験したところ,測定値が不安定になったため,HCキッカーを装着したまま測定に使用した。測定器により応答時間が異なるが,測定器からの信号は10秒平均値を記録するようにした。海峡を通過した船舶の情報は、水産大学校が受信したAIS(Automatic Identification System;船舶自動識別装置)を使用するとともに,ビデオカメラにより海峡を連続撮影し通過船舶を確認した。

### 3.3 衛星計測データを用いた瀬戸内地域の汚染状況の把握

3. 1の長期連続観測を補足し、瀬戸内地域における汚染状況を面的にも把握するために衛星計測データを取得して解析を実施した。使用したデータは衛星Terraに搭載された中分解能撮像分光放射計(Moderate Resolution Imaging Spectroradiometer: MODIS)によるエアロゾルに係るプロダクト(MODO3\_4K)である。このプロダクトからは可視域 $0.55~\mu m$ のエアロゾル光学的厚さ(Aerosol Optical Depth: AOD)および $1~\mu m$ を基準とした微小粒径の割合(Fine-Mode Fraction: FMF)を示した情報が得られる。特に海上は自然起源である海塩粒子の影響も受けるが、これらの情報をもとに微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ(fine-mode AOD: AODf)を算出することで,人為起源に由来するエアロゾル汚染の状況を捉えることを目的とした。レベル2の衛星の軌道に沿った $3~\mu m$ の水平解像度を有する $5~\mu m$ の状況を捉えることを目的とした。レベル2の衛星の軌道に沿った $3~\mu m$ の水平解像度を有する $5~\mu m$ の状況を扱えることを目的とした。レベル2の衛星の軌道に沿った $3~\mu m$ の水平解像度を有する $5~\mu m$ の状況を扱えることを目的とした。レベル2の衛星の軌道に沿った $3~\mu m$ の水平解像度を有する $5~\mu m$ の状況を扱えることを目的とした。レベル2の衛星の軌道に沿った $3~\mu m$ の水平解像度を有する $5~\mu m$ の状況を扱えることを目的とした。

### 3. 4 瀬戸内地域における海面上PM25等の鉛直濃度分布の把握

2019年10月1日から3日に淡路島西淡(神戸大海洋実習施設)と、2020年10月12日から16日に香川県三豊市においてセンサ類を搭載したマルチコプタ型の小型無人航空機により海面上PM<sub>2.5</sub>等の鉛直濃度分布を測定した。ただし、2019年の観測では台風18号の強風と陸風により有効なデータが得られなかったため、2020年の観測についてのみ記す。図2.2には観測位置とマルチコプタの代表的飛行経路を示す。観測位置は3.1による長期連続観測地点から直線距離で5kmほどの位置にあり、備讃瀬戸を臨む。離着陸用ステーションから100m海側に出て、後に上空へと飛行する経路をとった。10、30、100、300、500mの高度を対象とし、低高度側から各高度に停止して2-3分計測しながら上層へと向かい、離着陸用ステーションへと戻るが、上昇時に空気塊を攪拌していることが考えられるため、センサ類による観測結果は上昇時のもののみを使用した。観測の実施は2020年10月13日から15日の晴天に恵まれた3日間に行い、1日に5回、日の出から日の入りまで約3時間間隔で実施し、期間中に合計15回分の観測データを得た。



図2.2 2020年10月に実施した海面上PM<sub>2.5</sub>等の鉛直濃度分布測定の実施場所(左地図中の赤丸地点) および代表的な飛行経路。離着陸用ステーションから海側が北(岡山県方面)に相当する。

# 4. 結果及び考察

#### 4.1 瀬戸内地域における長期平均汚染物質濃度の改善効果の評価

図2.3に、詫間地点と周辺常監局における月平均 $PM_{2.5}$ 濃度を示す。なお、弓削地点の $PM_{2.5}$ 濃度測定値については、 $PM_{2.5}$ モニタ(TSI 8534)を介した器差測定から詫間地点より2倍ほど高く表示されることが判明したため、絶対濃度の使用は見送った。詫間地点の $PM_{2.5}$ 濃度は周辺常監局と同様の濃度レベルと月変化を示し、概して2月、5月、11月に濃度が上昇する。2020年8月は5日、7日、8日に濃度が急増したが、いずれも西日本を中心とする広域的な高濃度現象であった。この期間を含む半旬の硫酸分濃度が高く(後述)、西之島で発生した火山ガスの影響 $^{3}$ が示唆される。坂出市役所局は近傍に大規模な工場・事業場を抱え $^{3}$ 80、 $^{3}$ 90、 $^{3$ 

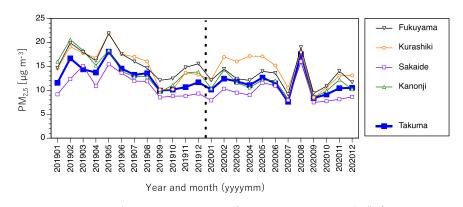


図 2.3 本観測ならびに周辺常監局の PM2.5 月平均濃度

図2.4は,詫間・弓削両地点における $SO_2$ と $PM_{2.5}$ の非海塩起源硫酸イオンおよび硝酸イオンの測定結果である。 $SO_2$ 濃度は両地点とも2019年に高い。2019年は両地点の濃度は同程度であったが,2020年は弓削のほうがやや高い。非海塩起源硫酸イオン濃度はレベル,変動ともよく一致した。これに対し硝酸イオン濃度は明らかに詫間で高く,変動は必ずしも弓削と同調しない。2020年11月に弓削のみ高い濃度を示したが,周辺での野焼き等局所的な影響とみられる。両地点は海を隔てて約40~kmの距離にあるが,半旬平均でみると非海塩起源硫酸イオンは同じ履歴を持ち,硝酸イオンはそれぞれの地域周辺に由来すると考えられる。

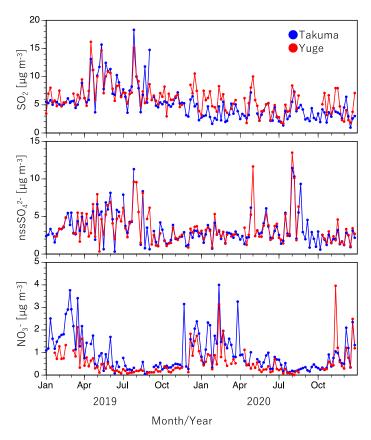
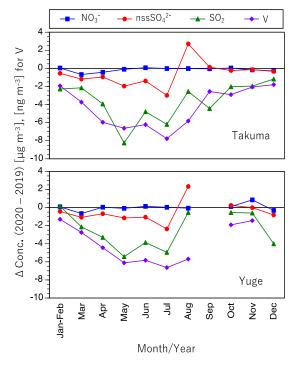
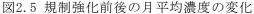


図 2.4 詫間・弓削地点における旬平均濃度の推移

次に,規制強化前後の濃度を比較するため,PM2.5中の硝酸イオン,非海塩起源硫酸イオン,ヴァナジ ウム,および $SO_2$ について月平均濃度の差分( $\Delta$ で表記する)を求めた。その月変化を図2.5に、 $\Delta SO2$ に 対するΔ非海塩起源硫酸イオンとΔヴァナジウムの関係を図2.6に示す。なお,月単位の気象(風向風速, 降水量)に両年で大きく変化のないことは、風配図などを作成して確認してある。両地点ともΔ硝酸イ オンは小さく, Δ非海塩起源硫酸イオンは7月まで前年より低く, 西之島火山ガスの影響が示唆される8 月に前年を上回った以降,前年と同程度となった。ΔSO<sub>2</sub>は8月でも前年を下回り,同様の傾向はヴァナ ジウムに強く表れた。ヴァナジウムは重油燃焼の指標とされ、非海塩起源硫酸イオンにみられる西之島 火山ガスの影響は考えにくい。ΔSO<sub>2</sub>の月変化はΔ非海塩起源硫酸イオンとΔヴァナジウムの中間のよう な特徴がある。2020年2~5月は国内外でのCOVID-19にともなう経済活動縮減の影響が予想され、8月以降 は西之島火山ガスの影響が懸念される。特に7月以前でΔヴァナジウムとΔSO₂がよく対応しており,こ の期間の両成分はともに近傍の重油発生源に由来すると考えられる。北米ではECAにより沿岸部のヴァ ナジウム濃度が顕著に減少したとの報告4)もあり、瀬戸内地域でも船舶燃料油硫黄分の減少によりヴァ ナジウム濃度が減少した可能性がある。また、地点間で比較すると上記の対応関係はいずれも弓削地点 で明瞭である。弓削地点の結果に近似直線を仮定すると直線の傾きは0.42であり、これから粒子化率(=  $\Delta$ 非海塩起源硫酸イオン/ ( $\Delta$  SO<sub>2</sub>+  $\Delta$  非海塩起源硫酸イオン)) を求めると0.30となった。これは排出 時の粒子化率より明らかに大きく, 二次生成の寄与が示唆される。

以上は濃度のみで議論したが、今後、統計データが出揃い瀬戸内海に位置する各種重油発生源の排出量の変化が明らかになれば、船舶燃料油中硫黄分規制強化の効果を評価できる可能性がある。その際は、上述のように2020年6、7月について検査するのが適切と考えられる。





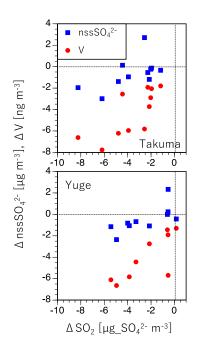


図2.6 SO<sub>2</sub>に対する非海塩起源硫酸塩とヴァナジ ウムの月平均濃度の変化

# 4. 2 関門海峡における短期集中観測

各観測期間の濃度出現範囲を図2.7に示す。 $CO_2$ はこの2年間でほとんど変化がなく,NOxはやや減少した。これに対し $SO_2$ は大幅に減少し,中央値は前年の約1/7( $4.1 \rightarrow 0.6$  ppb),最高値は同約1/10( $166.5 \rightarrow 16.3$  ppb)である。沿岸の濃度は船舶との位置関係や風向風速,安定度にも依存するため一概にはいえないが, $SO_2$ 濃度のみが激減したことは船舶燃料油規制強化が沿岸大気質の改善に有効であったと考えることができる。

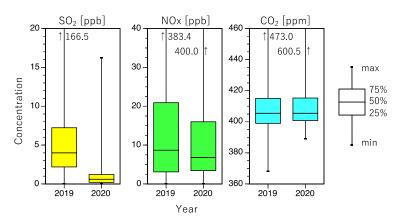


図 2.7 関門海峡で測定した汚染物質濃度の出現範囲

燃料油中硫黄分濃度 (FSC, Fuel Sulfur Content) は,以下の式に示すように排出ガス中 $SO_2/CO_2$ 比に比例することが知られている。

$$FSC = 0.232 \frac{\int [SO_2 - SO_{2,bkg}]_{ppb} dt}{\int [CO_2 - CO_{2,bkg}]_{ppb} dt} [\%sulphur]$$
 ..... (2. 1)

ここで、添え字bkgはバックグラウンド濃度を表し、排出ガスによる濃度上昇の前後の濃度から推測する。CO2濃度の変化から船舶排出ガスを捕らえたと判断した事例(2019年83例、2020年107例)についてFSCを求めた結果が図2.8である。これによると2019年は3%付近と0.5%付近の出現頻度が高かったが、2020年はほぼすべての事例が0.5%以下であった。すなわち規制強化前にはA重油相当の低硫黄油を使用する船舶とC重油相当の燃料油を使用する船舶が航行していたが、2020年はほぼすべての船舶が新規制値に準拠していたとみられる。

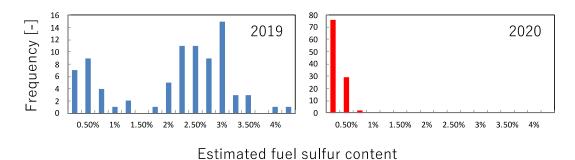


図 2.8 推定された船舶燃料油硫黄分の出現頻度

# 4.3 衛星計測データを用いた瀬戸内地域の汚染状況の把握

図2.9には瀬戸内海における20年間の $AOD_f$ の長期トレンドを示す。瀬戸内海における $AOD_f$ は春季~夏季にかけて最大,秋季~冬季にかけて最小となる季節変動を示した。 $PM_{2.5}$ 地上観測は冬季にも高濃度となる場合があるが,冬季に $AOD_f$ が低いのは雲の影響が大きな際に衛星計測データそのものが得られていない可能性 $^{51}$ などが考えられる。環境基準が設定される2009年以前の $PM_{2.5}$ 地上観測データは限定的であるが, $AOD_f$ の経年変化からは2004-2009年ごろが最もエアロゾル汚染が深刻であったことが示唆された。以降,瀬戸内海における $AOD_f$ は減少傾向を示しているが,瀬戸内海周辺の常監局の $PM_{2.5}$ 濃度も同様に経年的な減少傾向を示していた。

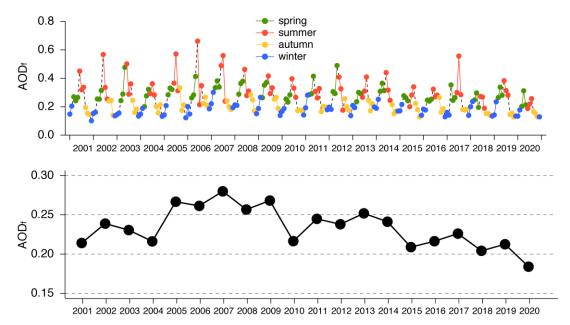


図2.9 微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ (AOD<sub>f</sub>) の2001年から2020年までの(上) 月平均値と(下) 年間平均値の時系列

図2.10には瀬戸内海の周辺海域までを含む $AOD_f$ の空間分布を2012年から2020年まで年平均値について示す。空間分布の経年変化から示されるように、西側(九州北部)にも高濃度が見られ、大陸からの越境大気汚染の影響が考えられるが、2015年以降、その影響は減少しており、越境輸送の影響が減少してきていること $^6$ が考えられた。例えば黄海上の $AOD_f$ を時系列で見てみると、やはり減少傾向を示しており、わが国の西側に位置する瀬戸内海における越境輸送の影響の大きさが示唆される結果となった。このような経年的な減少傾向の中で、図2.9の時系列および図2.10の空間分布図からわかるように、2020年はこ20年間で $AOD_f$ が最小となった。

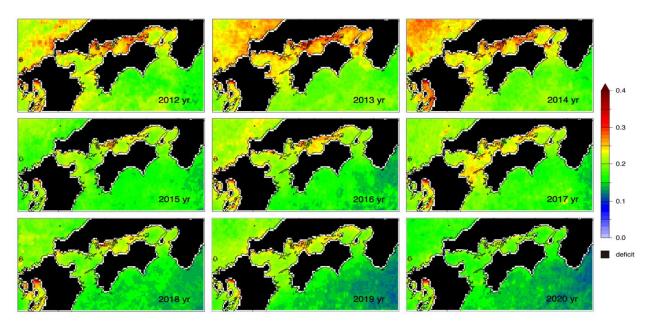


図2.10 微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ (AOD<sub>f</sub>) の2012年から2020年までの年間平均値の 空間分布図

20年間で最小値をとった2020年について、その要因を考察するために、瀬戸内海近辺の常監局における $NO_x$ および $SO_2$ と、 $AOD_f$ の2018年から2020年までの月平均値の変動を解析した。結果を図2.11に示す。2020年は本研究課題の目的である船舶燃料油硫黄分規制の影響のほか、2019年12月末に中国湖北省武漢市を発端とした新型コロナウィルスの蔓延による人間活動への著しい制限の影響が考えられる。まず $NO_x$ と $SO_2$ に共通して経年的な減少が見られるが、2018-2019年の平均値に対する2020年の変化率として見ると、 $NO_x$ は-10%前後であるのに対して、 $SO_2$ は-30%前後であった。緊急事態発出期間を含む4-5月を見ると、 $NO_x$ は-30%程度を示し、 $SO_2$ は-40-50%の変化率を示した。このようなことから、2020年における減少率は $NO_x$ よりも $SO_2$ のほうが大きく、2020年1月1日に開始された船舶燃料油硫黄分規制の効果は瀬戸内海の $SO_2$  濃度に現れていることが考えられた。 $AOD_f$ は2020年には概ね2018-2019年平均値に対して減少傾向を示したが、1-3月および7月に-30%程度、6月には最大で-60%ほどの変化を示した。以下では1-3月と6-7月の2期間に着目し、空間分布からこの変化について考察を行う。

 $A0D_f$ が大幅な減少を示した1-3月および6-7月の2期間に着目し、これらの期間平均の2018、2019、2020年の空間分布および2018-2019年の平均値に対する2020年の変化率を示す(図2.12)。1-3月平均の空間分布からは、 $A0D_f$ の東アジア一帯での減少傾向が見られる。中国では2020年1月23日から2ヶ月以上にわたってロックダウンという手段がとられた。この期間の中国の経済活動の停滞を受けて、黄海、東シナ海、日本近海の広域で $A0D_f$ が減少したものと考えられる。わが国の $PM_2$ .5濃度は2-3月にやはり減少しており、中国のロックダウン時の排出量減少の影響を受けた越境大気汚染の減少に加え、暖冬という気象条件も影響を及ぼしていたことが報告でされている。6-7月平均の空間分布を見ると、黄海では増加傾向も見られ、瀬戸内海の減少傾向は局所的なものであった。新型コロナウィルスの影響を受けたわが国の経済活動の停滞の影響を受けたことのほか、 $S0_2$ 濃度の減少が示したように、船舶燃料油硫黄分規制の効果も $A0D_f$ の減少に影響をもたらしたことも考えられた。

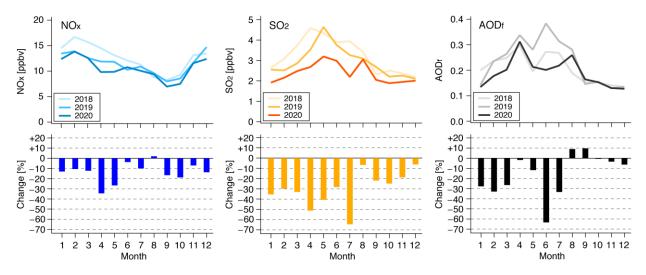


図2.11 瀬戸内海周辺の常監局におけるNOxおよびSO<sub>2</sub>濃度と微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ (AOD<sub>f</sub>) の2018年から2020年までの (上) 月平均値および (下) 2018-2019年の平均値に対する 2020年の月平均値の変化率

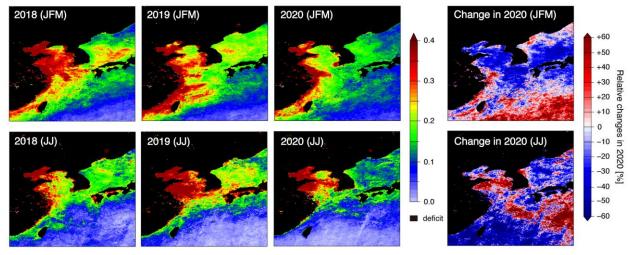


図2.12 微小粒径に相当するエアロゾル光学的厚さ (AOD<sub>f</sub>) の2018年から2020年までの(上) 1-3月 平均および(下) 6-7月平均と,2018-2019年平均値に対する2020年の変化率の空間分布図

#### 4. 4 瀬戸内地域における海面上PM2.5等の鉛直濃度分布の把握

図2.13には全フライトについての $PM_{2.5}$ 濃度および気象要素(気温,湿度,風向・風速)の観測結果を示す。各結果の上部には観測時間帯を示しており,D(数字)F(数字)が観測日とフライト順序を指している。例えば,D2F3は2日目の第3フライトを意味する。観測期間中の風向は概ね北の方角であり,海側(岡山県方面)の大気環境を捉えられたものと想定される。晴天日における観測であったため,気温は日中に高くなる日内変動を示し,また,その鉛直分布は早朝のD2F1とD3F1を除いては上層ほど低くなる典型的な鉛直温度勾配を示した。早朝の詳しい内容については後述する。湿度も日中に低くなる日内変動を示し,鉛直方向への変化は大きくはなかった。 $PM_{2.5}$ 濃度は2日目を除いて $10~\mu g/m^3$ 以下と低濃度で,この場合には大きな鉛直勾配は見られなかった。2日目のフライトでは $PM_{2.5}$ 濃度の高濃度イベントを捉えた。早朝のD2F1に見られるように,高度10-30~mでは $30~\mu g/m^3$ に近い高濃度であり,この高濃度は高度500~mにまで見られた。午前中のD2F2では高度10-100~mの濃度は $20~\mu g/m^3$ にまで低下するが,高度300~mでは依然として $30~\mu g/m^3$ に近い高濃度が観測された。昼間のD2F3では $15~\mu g/m^3$ にまでさらに低下し,以降, $PM_{2.5}$ 濃度は低下した。

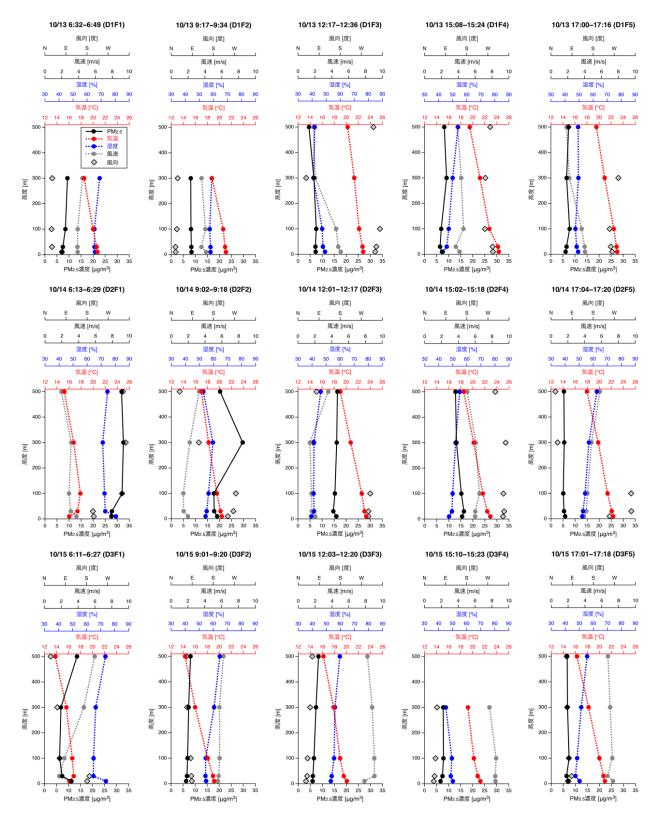


図2.13 2020年10月に実施したマルチコプタによるPM<sub>2.5</sub>濃度および気象要素(気温,湿度,風向・風速)の鉛直濃度分布

図2.14にはマルチコプタによる $PM_{2.5}$ 濃度と,周辺の常監局(多度津町役場および観音寺市役所,位置については図2-3-1を参照)による $PM_{2.5}$ 濃度の観測期間中の時系列を示す。マルチコプタによる観測濃度は最下層である海面上10 mのデータのみを示す。マルチコプタによる観測から得られた14日早朝の高濃度は,周辺の常監局2局でも同様に観測されており,14日8時に観音寺市役所で24  $\mu$  g/m³の最大値を,14

日9時に多度津町役場で28  $\mu$  g/m³の最大値を示した。マルチコプタによる観測と同様に、常監局でも昼ごろから濃度は低下した。翌日の15日5時にも観音寺市役所では26  $\mu$  g/m³の高濃度が観測されたが、多度津市役所では15  $\mu$  g/m³前後であった。

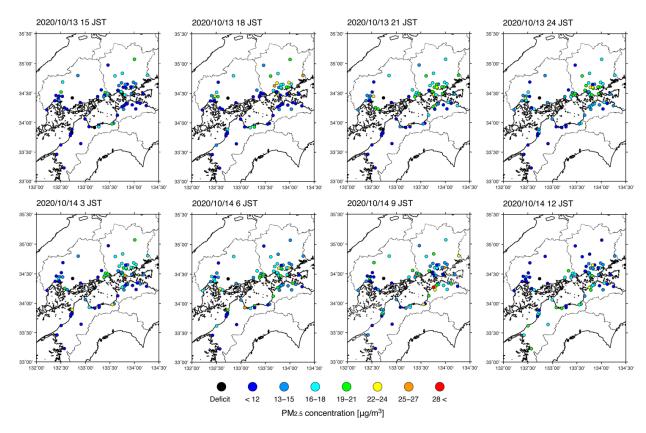


図2.14 2020年10月13日15時から14日12時までの3時間毎の常時監視測定局(一般局)のPM<sub>2.5</sub>濃度の空間分布図

観測期間中に高濃度が見られた14日の周辺状況からその要因について考察するため,図2.15には瀬戸内海の周辺4県(広島県,岡山県,愛媛県,および香川県)の常監局(一般局)の速報値について13日15時から14日12時まで3時間毎にその空間分布図を示す。13日15時の段階では瀬戸内4県にわたって低濃度であったが,13日夕方から夜にかけて岡山県の瀬戸内沿岸において高濃度が観測されるようになる。この後に14日明け方にかけては岡山県と香川県の瀬戸内海側で濃度がやや高くなり,9時に多度津市役所で28  $\mu$  g/m³の最大値を,また,この時間帯の前後に香川県のほぼすべての観測局の $PM_{2.5}$ 濃度はその日の最大値を示していた。

図2.13に示したマルチコプタによる鉛直観測でほぼ北風の状況下にあったことや図2.15に示す高濃度の空間分布の推移から,香川県側における $PM_{2.5}$ 高濃度の要因として岡山県側からの局所的な輸送があることが考えられた。図2.13に示したD2F1の気温は,高度10-30 mのほうが高度100 mよりも気温が低い逆転層の状況にあることを示しており,下層の風向は南より(離発着ステーションの陸地側)で弱風であった。このような状況から,岡山県側から香川県側に輸送された $PM_{2.5}$ が早朝の逆転層形成によって海上にトラップされ,それが高濃度につながったような状況が推察された。 $PM_{2.5}$ 高濃度が課題となっている瀬戸内海では,特に岡山県と香川県の瀬戸内海側で $PM_{2.5}$ 環境基準達成率が短期・長期基準ともに満たされていないが,ここに考察したような気象状況も関連した局所的な輸送による高濃度生成が一つの要因と考えられた。ただし,似たような気象状況は15日の早朝にも見られたが,15日は観音寺市役所では局所高濃度が見られたものの多度津町役場では見られなかった。今後は今までに蓄積されている常監局による観測結果を活用し,今回推察されたような高濃度形成の頻度を検証し,瀬戸内海の高濃度 $PM_{2.5}$ の実態解明を進めることなどが必要である。

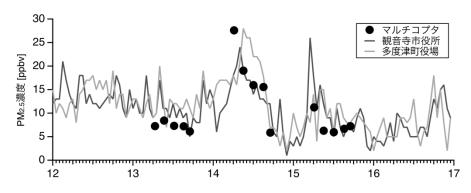


図2.15 2020年10月に実施したマルチコプタによる最下層(海面上10 m)のPM<sub>2.5</sub>濃度および周辺の常時監視測定局(観音寺市役所および多度津町役場)におけるPM<sub>2.5</sub>濃度の時系列

## 5. 研究目標の達成状況

計画していた観測のうち、瀬戸内地域2地点における長期連続観測と関門海峡における短期集中観測はほぼ計画通りに実施できた。COVID-19による経済活動の縮小や西之島火山ガスの影響など想定外の事象により観測結果の評価は容易ではないが、船舶燃料油中硫黄分の規制強化による効果を確認することができた。

#### 6. 引用文献

- 1) 玉置元則,平木隆年,藍川昌秀,西川嘉範,田口圭介,松本光弘(2001)乾性沈着モニタリングにおける4段ろ紙法の技術的評価,大気環境学会誌,36,308-317.
- 2) Køcks, M., Lindholst, S., and Ravnsbæk, J. (2016) Remote sensing of sulphur and particle emission from ships, Environmental project, No. 1835.
- 3) 長崎大学 (2020) 長崎および沖縄における火山起源の高濃度PM<sub>2.5</sub>の観測, https://www.nagasaki-u.ac.jp/ja/about/info/science/science209.html (2021.05.10アクセス)
- 4) Spada, N. J., Chen, X., White, W. H., and Hyslop, N. P. (2019) Decreasing vanadium footprint of bunker fuel emissions, Environmental Science and Technology, 52, 11528-11534.
- 5) 板橋秀一, 速水洋, 嶋寺光, 鵜野伊津志 (2014) 地上観測PM<sub>2.5</sub>と衛星観測AODの対応関係, 大気環境学会誌, 49, 149-156.
- 6) 鵜野伊津志, 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 (2017) PM2.5越境問題は終焉に向かっているのか?, 大気環境学会誌, 52, 177-184.
- 7) 板橋秀一, 王哲, 弓本桂也, 鵜野伊津志 (2020) COVID-19に対する中国のロックダウン期間におけるPM<sub>2.5</sub>越境輸送の変容, 大気環境学会誌, 55, 239-247.

## Ⅱ-3 船舶排出物質が日本の大気質に及ぼす影響の評価

国立大学法人大阪大学

大学院工学研究科 嶋寺 光

〈研究協力者〉

国立大学法人大阪大学 大学院工学研究科 荒木 真

国立研究開発法人国立環境研究所 地域環境保全領域 茶谷 聡(令和1~令和2年度)

#### [要旨]

瀬戸内地域特有の高濃度現象の出現要因を解明すること,2020IM0規制強化に伴う大気質改善効果を評価すること,規制強化後のPM<sub>2.5</sub>濃度に対する発生源別寄与評価に基づいて今後のPM<sub>2.5</sub>対策の方向性を示すことを目的として,大気質モデルを用いて研究を実施した。

瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>濃度特性の把握を目的として、大気常時監視測定データを解析し、瀬戸内地域とその他中国四国地域のPM<sub>2.5</sub>、SO<sub>2</sub>濃度差が、瀬戸内地域特有の高濃度の指標として有効であることや高濃度要因の解明に資する可能性を示した。PM<sub>2.5</sub>濃度が高かった2013年度および規制強化前後の2019年と2020年を対象に大気質シミュレーションを実施した。再現性評価の結果、大気質モデルが瀬戸内地域とその他中国四国地域の濃度差を概ね再現でき、瀬戸内地域特有の高濃度を概ね再現できることが示唆された。瀬戸内地域特有の高濃度日では、瀬戸内海とその沿岸において顕著に高濃度となっており、瀬戸内地域で排出された汚染物質の滞留が確認された。

瀬戸内地域における高濃度には、排出特性である船舶航行および大規模固定発生源の集中に加えて、気象特性による空気塊の滞留が影響している可能性がある。そこで、反応・沈着しない仮想的なトレーサーを水平一様に定常放出する数値実験により、空気塊の滞留性を評価した。瀬戸内地域でトレーサー濃度が年間上位5%の日を、滞留性が高く地域的な発生源の影響を強く受ける地域汚染日と定義した。また、瀬戸内地域でPM2.5濃度観測値が年間上位5%の日を、PM2.5高濃度日と定義した。トレーサー濃度は瀬戸内地域の方がその他中国四国地域よりも平均約25%高く、近傍の発生源の影響を強く受けるSO2濃度は瀬戸内地域の方が3~4倍程度高かった。したがって、瀬戸内地域特有の高濃度は、主に排出特性によるものであり、空気塊の滞留によってその影響が増強されていることが示唆された。

規制強化に伴う排出量削減による大気質改善効果は、サブテーマ 1 で整備された規制強化前と強化後の船舶排出量データを使用した2ケースの大気質シミュレーション結果の差によって評価した。気象場とその他部門の排出量は2ケースで同一とした。瀬戸内地域における $PM_{2.5}$ 濃度低減効果( $\mu$  g/m³)は、年、 $PM_{2.5}$ 高濃度日、地域汚染日平均でそれぞれ0.59、1.14、1.59となった。船舶航行が集中する瀬戸内地域、空気塊が滞留しやすい地域汚染日では、それぞれ他地域、他期間よりも高い大気質改善効果が得られた。また、得られた $PM_{2.5}$ 濃度低減効果を、2018年度の瀬戸内地域における $PM_{2.5}$ 測定局(58局)の環境基準達成評価値に適用した結果、非達成局が18局から13局に改善された。さらに、 $SO_2$ 濃度変化に対する $PM_{2.5}$ 中  $SO_4$ 2-濃度変化について、サブテーマ 2 で詫間、弓削における長期観測によって得られた結果との比較により、大気質モデルの結果が概ね妥当であることを示した。

規制強化後の発生源寄与評価は、日本国内の船舶、大規模固定発生源、自動車、その他人為起源、国外の人為起源を対象に実施した。各発生源の寄与は、規制強化後ケースと対象発生源別の排出量2割削減ケースの濃度差の5倍として評価した。瀬戸内地域におけるPM2.5濃度に対する発生源寄与率は、年、PM2.5高濃度日、地域汚染日平均のいずれも国外人為起源が最も高くなった。しかし、地域汚染日においては、大規模固定発生源の寄与率(24%)は、国外人為起源の寄与率(31%)に近い値であり、国内では今後のPM2.5対策における優先順位が高い発生源であることを示した。また、大規模固定発生源の中でも、電気業は排出量が最も多いことから、重要な発生源であることが示唆された。

#### 1. 研究開発目的

非定常三次元オイラー型の大気質モデルを用いて、瀬戸内地域特有の高濃度現象を再現するとともに、高濃度現象の出現要因を解明する。また、瀬戸内地域において、2020IMO規制強化に伴う大気質改善効果を評価する。さらに、規制強化後のPM<sub>2.5</sub>濃度に対する発生源別寄与を評価し、今後のPM<sub>2.5</sub>対策の方向性を示す。

#### 2. 研究目標

※ ここでは様式に従い、最終年度の契約時に提出した研究目標を記載している。よってその内容は 最終年度の活動に係る目標となっている。全体目標は「I.成果の概要」第2章を参照されたい。

サブテーマ1で構築された船舶排出量データベースを入力とする大気質モデルを用いて瀬戸内地域 におけるシミュレーションを実施し、サブテーマ2で得られた大気観測結果との比較によって妥当性を 確認したうえで、船舶排出の寄与および規制強化の効果を定量的に評価する。

#### 3. 研究開発内容

#### 3. 1 大気汚染常時監視データに基づく瀬戸内地域におけるPM2.5濃度特性の解析

瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>濃度特性の把握を目的として、図3.1 に示す瀬戸内地域および周辺地域において、一般環境大気測定局(一般局)のPM<sub>2.5</sub>の観測データを地域間で比較した。また、地域内の排出量変動の影響を考察する目的で、同様の解析をSO<sub>2</sub>についても行った。地域区分について、瀬戸内地域として、概ね山口県から岡山県および愛媛県から徳島県の瀬戸内海沿岸から5 km未満の範囲を定義した。比較対象として九州北部から近畿地方の範囲で瀬戸内海沿岸から20 km以上離れた地域をその他西日本とし、それをさらに九州、その他中国四国、近畿に区分した。

濃度経年変化の解析において時間的な代表性を考慮するため

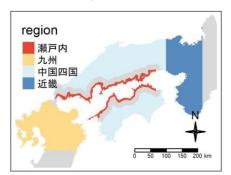


図3.1 瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>濃 度特性解析のための地域区分

に、 $PM_{2.5}$ については解析対象測定局を $2012\sim2019$ 年度の継続測定局に限定した。 $SO_2$ については2012年以前においても測定局数の変化が小さいため、 $2010\sim2019$ 年度の継続測定局を対象とした。これらの期間で、瀬戸内地域とその他西日本の濃度経年変化を比較した。

地域間の差の解析には,各地域における解析対象測定局のPM<sub>2.5</sub>およびSO<sub>2</sub>の日平均濃度の中央値を用い,瀬戸内海沿岸地域の中央値と,同じ日の瀬戸内海沿岸地域と九州,その他中国四国,および近畿のそれぞれの中央値との差を比較した。

## 3. 2 大気質モデルによる瀬戸内地域特有の高濃度の再現

瀬戸内地域における2020IMO規制の効果を適切に評価するためには、瀬戸内地域特有の高濃度現象を良好に再現できる大気質モデルが必要となる。大気質シミュレーションには、気象モデルとしてWeather Research Forecasting model (WRF)  $^{1)}$ v3.8,大気質モデルとしてCommunity Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ)  $^{2)}$ v5.2.1を用いた。計算対象期間は、PM<sub>2.5</sub>濃度常時監視測定の開始以降で最も濃度が高かった2013年度および規制強化前後の2019年と2020年とした。CMAQの計算領域は、図3.2に示すとおり、東アジア領域(D1),九州~関東領域(D2),瀬戸内周辺領域(D3)の3領域とし、格子数はそれぞれ127×107、84×66、96×54、水平解像度はそれぞれ45 km、15 km、5 kmとした。鉛直層は、地表~上空100 hPaを30層に分割した。瀬戸内地域およびその他中国四国地域における大気質モデルの再現性は、PM<sub>2.5</sub>濃度が測定された一般局において評価した。

表3.1に、WRF/CMAQの主な入力データおよび物理・化学過程オプションの設定を示す。物理・化学過程 オプションの詳細については各モデルのマニュアル<sup>1,2)</sup>等を参照されたい。計算ケースについて、気象場

を2013年度, 2019年, 2020年とするケースをそれぞれM13, M19, M20, 日本からの人為起源排出量の推計 基準年を2010年,2015年,2020年とするケースをそれぞれE10,E15,E20とした。これらを組み合わせ, 2013年度, 2019年, 2020年の再現計算ケースはそれぞれM13E10, M19E15, M20E20とした。E15, E20では 日本国内の船舶はサブテーマ1のデータ、日本国内のその他人為起源はJ-STREAM (環境研究総合推進費5-1601) によるデータ<sup>3)</sup>を使用した。なお、日本国内の人為起源排出におけるE15とE20の差異は、規制強化 による船舶排出の削減のみである。したがって、E20には、COVID-19拡大に伴う経済活動縮小をはじめ、 2015~2020年にかけての活動量変化等は反映されていない。また、日本国外の人為起源排出量には2010 年基準のHTAP v2.2<sup>4)</sup>を使用し、E15、E20では中国からの排出量はJ-STREAM同様の方法で2017年に補正し た。火山起源排出にはAeroCom<sup>5</sup>における、アジアにおいて大規模な噴火が確認されていない2009年1月1 日のデータを用いた。したがって、2020年8月の西之島噴火等による排出量の変動は考慮されていない。 表3.2に,各排出ケースでのD3における大気汚染物質の合計および船舶からの排出量を示す。D3のSO2

排出量に船舶が占める割合は、E10、E15、E20でそれぞれ31%、31%、10%であった。同様に、一次PM。5で は、それぞれ31%、43%、23%であった。図3.3に、E15ケースでのD3におけるS $0_2$ および一次 $PM_{2.5}$ の排出量分 布を示す。瀬戸内海で船舶からの排出量が集中していることが確認できる。

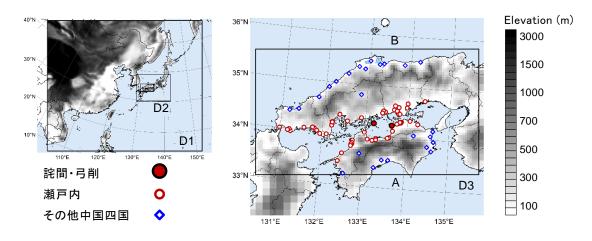


図3.2 CMAQの計算領域と再現性評価に用いたPM2.5濃度測定局の位置 (A, B:鉛直断面空間分布の描画位置, 詫間を通過)

表3.1 WRF/CMAQの主な入力データおよび物理・化学過程の設定

		設定
WRF	地形,土地利用	USGS (30 sec), 国内土地利用のみ国土数値情報 (100 m)
	初期・境界	M13: JMA MSM-GPV (0.125 x 0.1 deg, 3 hr)
		NCEP FNL (1 deg, 6 hr)
		NCEP/NOAA RTG_SST_HR (1/12 deg, daily)
		M19/20: NCEP FNL (0.25 deg, 6 hr)
		OSTIA SST (0.05 deg, daily)
	物理過程	M13: Kain-Fritsch (D1, D2), WSM6, Dudhia/RRTM, YSU, Noah, FDDA with
		$G_{t, q, uv} = 1.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ (D1, D2)}, 0.5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1} \text{ (D3)}$
		M19/20: Grell 3D (D1, D2), WSM6, RRTMG, MYNN3, Noah, FDDA with $G_{t,\ q}$ =
		$5.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (D1), $3.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (D2), $1.0 \times 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (D3 over PBL),
		$G_{uv} = 1.0 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$
CMAQ	D1境界濃度	M13: MOZART-4/GEOS5
		M19/20: WACCM (Gas, PM <sub>2.5</sub> )
	排出	国外人為: HTAP v2.2
		国内人為: E10: OPRF (船舶), JEI-DB (自動車), EAGrid2010 (その他)
		E15/20: サブテーマ1 (船舶), J-STREAM (その他)
		植生: MEGANv2.04
		火山: AeroCom
	化学過程	SAPRC07 & AERO6nv with Aqueous chemistry

 $NH_3$  $NO_x$  $SO_2$ PM<sub>2.5</sub> 合計 191.7 E10 74.9 586.9 38.5 船舶 59.7 12.0 () 153.3 合計 541.8 207.4 27.1 E15 66.9 船舶 0 120.5 11.6 64.8 E20 合計 66.9 541.8 158.3 20.2 120.5 船舶 15.7 0 4.6

表3.2 各排出ケースでのD3における大気汚染物質排出量(Gg y-1)

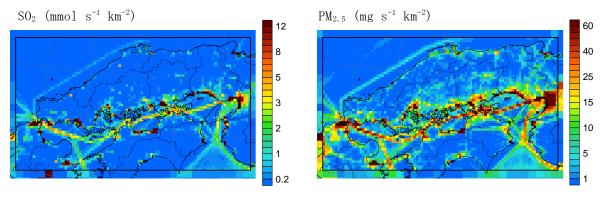


図 3.3 D3 における SO<sub>2</sub> および一次 PM<sub>2.5</sub> 平均排出強度 (E15 ケース)

## 3. 3 瀬戸内地域における気象特性が大気質に及ぼす影響の評価

瀬戸内地域では、中国山地と四国山地に囲まれていること、中国地方・四国地方の両岸で海陸風循環が生じること、瀬戸内海の海面温度が低いことで冷気層が形成されること等によって、空気塊が滞留しやすいという気象特性があると考えられる。瀬戸内地域における高濃度には、排出特性である船舶航行および大規模固定発生源の集中に加えて、この気象特性が影響している可能性がある。そこで、反応・沈着しない仮想的なトレーサーを、D3の範囲(D3境界での循環を表現するため、D2から計算)の第1層(M13ケースでは地表〜約55 m、M19/20ケースでは地表〜約26 m)で水平一様に定常放出し、その濃度によって空気塊の滞留性を評価した。このトレーサー濃度が高いことは、地表付近の空気の滞留時間が長い、すなわち換気効率が悪いことを意味する。なお、トレーサー濃度は、瀬戸内地域の一般局における年平均値で除して無次元化して用いた。

本研究では、計算対象期間の各年において、瀬戸内地域の一般局平均での日平均トレーサー濃度が年間上位5% (18日)の日を、滞留性が高く地域的な発生源の影響を強く受ける地域汚染日と定義した。また、瀬戸内地域の一般局平均での日平均PM2.5濃度観測値が年間上位5% (18日)の日を、PM2.5高濃度日と定義した。年平均、PM2.5高濃度日平均、地域汚染日平均での濃度、規制強化の効果、発生源寄与およびそれらの地域差を解析し、気象特性による空気塊の滞留が大気質に及ぼす影響を評価した。

## 3. 4 2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価

規制強化に伴う排出量削減による大気質改善効果は,2019年の気象場で規制強化前後の船舶排出を使用したM19E15ケースとM19E20ケースの差によって評価した。また,この大気質改善効果を瀬戸内地域の一般局におけるPM2.5濃度観測値に適用し,環境基準達成状況に対する影響について検討した。

サブテーマ 2 では詫間,弓削における長期観測によって、 $2019\sim2020$ 年における $SO_2$ 濃度変化に対する  $PM_{2.5}$ 中 $SO_4^{2-}$ 濃度変化の関係が得られている。この関係について大気質モデルにおける妥当性を評価するために、2019年度と2020年度の再現計算ケースであるM19E15とM20E20の比較も行った。上述のとおり M20E20ではCOVID-19拡大に伴う経済活動縮小の影響は考慮されていないが、この妥当性評価に対する影響は小さいと考えられる。

#### 3.5 2020IMO規制強化後の発生源寄与評価

規制強化後のPM<sub>2.5</sub>対策の方向性を示すために、M19E20ケースにおける発生源寄与評価を実施した。対象発生源は、日本国内の船舶、大規模固定発生源、自動車、その他人為起源、国外の人為起源とした。各発生源の寄与評価にはbrute force method (BFM) を用い、J-STREAM同様、基準ケースと対象発生源別の排出量2割削減ケースの濃度差の5倍として評価した。

表3.3に,E20ケースでのD1およびD3における対象発生源別の大気汚染物質排出量を示す。規制強化後は瀬戸内地域に集中する大規模固定発生源が相対的により重要になっている。表3.4にD3における大規模固定発生源の排出量内訳を示す。電気業が占める割合が最も大きく、次いで鉄鋼業あるいはパルプ・紙・紙加工品製造業の割合が大きい。

	D1				D3				
_	$NH_3$	$NO_x$	$SO_2$	PM <sub>2.5</sub>	$NH_3$	$NO_x$	$SO_2$	PM <sub>2.5</sub>	
合計	11020.7	30453.9	18849.9	9180.6	66.9	541.8	158.3	20.2	
国内船舶	0	475.7	58.7	17.5	0	120.5	15.7	4.6	
国内大規模固定	0	796.3	358.5	21.0	0	294.2	140.7	6.8	
国内自動車	15.6	407.7	0.9	23.8	3.9	100.6	0.2	5.9	
国内その他人為	414.0	102.9	3.4	16.4	63.0	22.6	0.7	2.8	
国外人為	10591.2	27881.1	13909.5	9102.0	0	0	0	0	

表3.3 E20ケースでのD1およびD3における発生源別大気汚染物質排出量 (Gg y<sup>-1</sup>)

表3.4 D3における大規模固定発生源の排出量内訳

	$NO_x$	$SO_2$	PM <sub>2.5</sub>
電気業	26.2%	44.9%	13.7%
石油・石炭製品製造業	6.5%	7.2%	7.8%
鉄鋼業	18.2%	12.5%	8.2%
化学工業	7.6%	9.5%	7.8%
パルプ・紙・紙加工品製造業	4.4%	4.6%	10.5%
窯業・土石製品製造業	13.8%	2.6%	8.2%
廃棄物処理	4.6%	1.8%	5.8%
その他	18.7%	17.0%	38.1%

#### 4. 結果及び考察

# 4. 1 大気汚染常時監視データに基づく瀬戸内地域におけるPM2.5濃度特性の解析

図3.4に瀬戸内海沿岸地域とその他西日本における年平均PM2.5濃度およびSO2濃度の経年変化を箱ひげ 図で示す。PM<sub>2.5</sub>については、瀬戸内海沿岸域の方がその他西日本よりも一貫して高濃度となっていた。 またいずれの地域も2013年度をピークとして以降は低下していた。地域間の差については,2012年度に 2.6  $\mu$  g/m<sup>3</sup>であった中央値の差は2017年以降に特に縮小し,2019年度では0.6  $\mu$  g/m<sup>3</sup>となっていた。な お,年98%値については,同様に瀬戸内海沿岸域の方が一貫して高く,2013年度以降に低下傾向であった が、2017年度はやや上昇しその後低下していた。SO<sub>2</sub>についても、PM<sub>2.5</sub>と同様に瀬戸内海沿岸域の方がそ の他西日本よりも一貫して高濃度となっていた。いずれの地域も2012年度以降に緩やかな低下傾向が見 られた。なお,年2%除外値についても同様の傾向が見られた。図3.5に日平均PM2.5濃度およびSO2濃度に ついて瀬戸内海沿岸地域の中央値と、同じ日の瀬戸内海沿岸地域と九州、その他中国四国、および近畿 のそれぞれの中央値との差を示す。PM2.5については, 瀬戸内地域の中央値と, 瀬戸内地域とその他西日 本の中央値の差に正の相関が認められた。この関係は、特に瀬戸内地域とその他中国四国の間で明瞭で あった。また、濃度差の頻度分布では、濃度差が大きい階級が経年的に減少傾向にあった。一方、相関 関係(回帰直線の傾き)に経年的な変化は見られなかった。SO2については、PM2.5に比べてより明瞭な正 の相関が認められた。相関関係(回帰直線の傾き)に経年的な変化は見られなかった。また、瀬戸内地 域の中央値はその他中国四国の中央値より常に大きく、船舶航行や大規模固定発生源の集中といった瀬 戸内地域特有の発生源の影響が考えられる。

以上の大気常時監視データの解析から、瀬戸内地域とその他中国四国とのPM<sub>2.5</sub>, SO<sub>2</sub>濃度差が、瀬戸内地域特有の高濃度の指標として有効であることや高濃度要因の解明に資する可能性が示された。

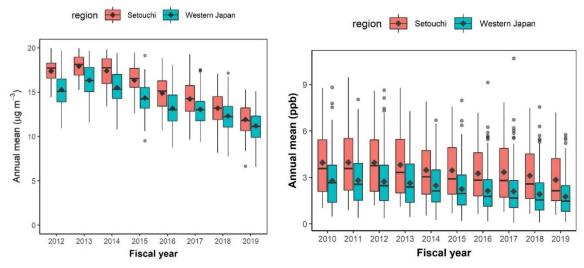


図3.4 瀬戸内地域とその他西日本におけるPM<sub>2.5</sub> (左)およびSO<sub>2</sub> (右)の年平均濃度の経年変化(箱内部の直線は中央値,四角形は平均値を表す)

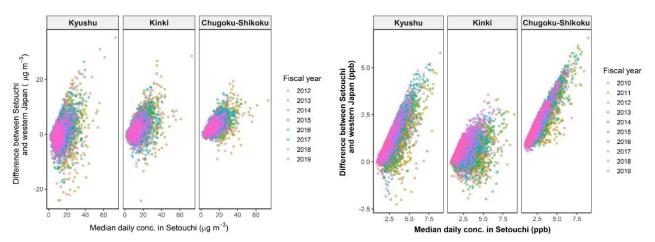


図3.5 瀬戸内地域とその他地域のPM2.5 (左) およびSO2 (右) の局別日平均濃度の中央値の比較

#### 4. 2 大気質モデルによる瀬戸内地域特有の高濃度の再現

大気質モデルによる年平均濃度の再現性を評価した。図3.6に、瀬戸内地域とその他中国四国地域の各一般局における2013年度の平均 $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ 中 $SO_4^{2-}$ 濃度の観測値と計算値の比較を示す。 $SO_2$ 濃度については、瀬戸内とその他中国四国の平均濃度は、観測で3.5 ppbと1.5 ppb、計算で3.8 ppbと1.4 ppbと

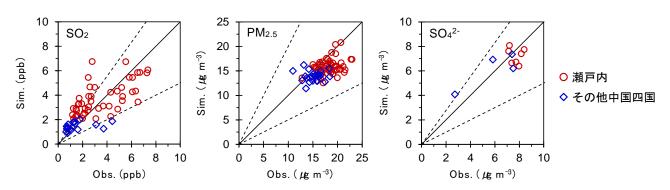
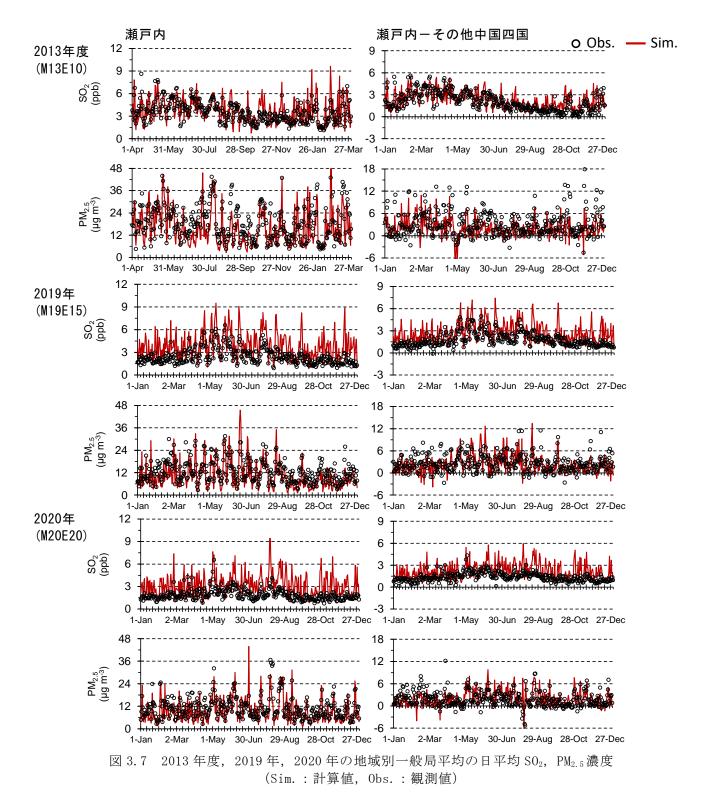


図 3.6 2013 年度の瀬戸内地域とその他中国四国地域の局別年平均  $SO_2$ ,  $PM_{2.5}$ ,  $PM_{2.5}$ 中  $SO_4^{2-}$ 濃度 (Sim.: M13E10 計算値, Obs.: 観測値,  $SO_4^{2-}$ 濃度は 2 週間×4 季節の平均)

なり、観測と計算でともに瀬戸内の方がその他中国四国よりも明らかに高かった。測定局ごとの再現性にはばらつきはあるものの、平均的には地域差が再現された。 $PM_{2.5}$ 濃度については、瀬戸内とその他中国四国の平均濃度は、観測で $18.5~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ と $15.4~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ 、計算で $15.9~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ と $13.7~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ となった。全体としてやや濃度が過小評価されたものの、瀬戸内地域の方が高濃度となる地域差は概ね再現された。 $SO_4^{2-}$ 濃度については、瀬戸内とその他中国四国の平均濃度は、観測で $7.7~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ と $6.3~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ ,計算で $7.2~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ と $6.4~\mu\,\mathrm{g/m^3}$ となり、地域差はやや過小評価されたものの概ね再現された。

大気質モデルによる日平均濃度の再現性を評価した。2013年度,2019年,2020年における日平均SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度について,図3.7に,瀬戸内地域および地域差(瀬戸内ーその他中国四国)での時系列変化を



		$SO_2$		PM <sub>2.5</sub>	
		瀬戸内	地域差	瀬戸内	地域差
M13E10	r	0.79	0.81	0.86	0. 68
	NMB	6%	12%	-14%	-32%
M19E15	r	0.77	0.75	0.86	0.67
	NMB	58%	54%	-15%	-13%
M20E20	r	0.70	0.64	0.82	0.57
	NMB	69%	62%	-12%	9%

表3.5 地域別一般局平均での日平均SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の再現性に関する統計指標

示す。また,表3.5に,再現性に関する統計指標として,観測値と計算値間の相関係数 (r) および正規化平均バイアス (NMB) を示す。2019年,2020年で瀬戸内地域の $SO_2$ 濃度が過大評価となり,それに伴って地域差も過大評価となったが,日々変動の傾向は,全ての期間, $SO_2$ , $PM_2$ 5の両方,瀬戸内および地域差について概ね再現された。したがって,瀬戸内地域特有の高濃度の出現条件は再現されていると考えられる。近傍の発生源の影響を強く受ける $SO_2$ 濃度については,観測と計算でともにほぼ全ての日で瀬戸内の方が高濃度となった。 $PM_2$ 5濃度については,その他中国四国の方が高濃度となる日も見られるが,ほとんどの日で瀬戸内の方が高濃度である。前者は日本海側からの越境汚染気塊の流入等によるものであると考えられる。後者のうち,比較的大きな地域差が見られる日は,瀬戸内地域の気象特性による空気塊の滞留の影響を強く受けていると考えられる。上述のとおりM20E20ケースではCOVID-CO

サブテーマ 2 における詫間, 弓削における長期観測結果との比較として, 図3.8に, 2019~2020年の半旬平均 $PM_{2.5}$ 中 $SO_4^2$ 濃度の時系列変化を示す。いずれの地点においても, 濃度レベル, 短期・長期的な時間変動が良好に再現された。大気質モデルでは2020年8月の西之島噴火による排出量増加は考慮されていないにも関わらず, 同期間の高濃度が現れている。この期間は日本列島が太平洋高気圧に覆われており, 太平洋からの南寄りの風が卓越する条件下で, 桜島等の他の火山の影響も受けていた可能性がある。

以上の再現性評価の結果から、大気質モデルが瀬戸内地域とその他中国四国地域の濃度差を概ね再現できること、すなわち瀬戸内地域特有の高濃度を概ね再現できることが示された。瀬戸内地域特有の高濃度日の例として、2013年9月13日における濃度空間分布を図3.9に示す。水平方向には瀬戸内海とその沿岸、鉛直方向には大気境界層(PBL)内で顕著に高濃度となっており、瀬戸内地域で排出された汚染物質の滞留が確認できる。

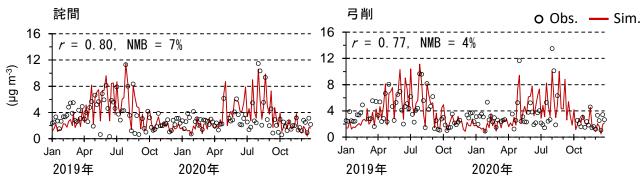


図 3.8 2019~2020 年の詫間, 弓削における半旬平均 PM<sub>2.5</sub>中 SO<sub>4</sub><sup>2</sup>-濃度 (Sim.: M19E15, M20E20 計算値, Obs.: 観測値)

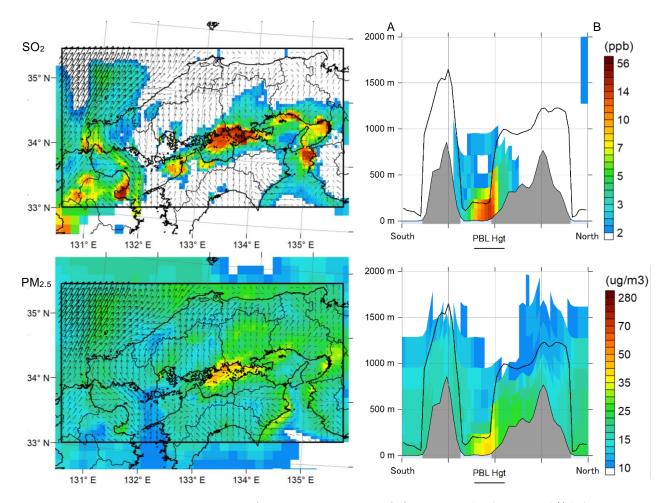


図 3.9 2013 年 9 月 13 日 10 時における SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub> 濃度の空間分布 (M13E10 計算値) (左:水平分布, 第 1 層, 右:鉛直分布, 図 3.2 の A-B 断面)

# 4. 3 瀬戸内地域における気象特性が大気質に及ぼす影響の評価

図3.10に,2019年における平均トレーサー濃度,10-m風速,PBL高さ,海面温度の空間分布を示す。トレーサー濃度は、陸域においては、風速が小さい盆地で高く、風速が大きい山地で低くなっている。瀬戸内海やその沿岸部では、内陸の盆地と同程度のトレーサー濃度となっている。これは、瀬戸内海は、中国山地と四国山地に囲まれているため外洋に比べて風速が小さく、また外洋に比べて海面温度が低いため冷気層が形成されやすくPBLが低いためであると考えられる。図3.11に,2019年における地域別の一般局平均での日平均トレーサー濃度と日平均風速、PBL高さの逆数の関係を散布図で示す。瀬戸内地域、その他中国四国地域のいずれにおいても、風速が小さいほど、PBLが低いほど、トレーサー濃度が高くなる明瞭な相関関係が確認できた。以上の検討により、トレーサー濃度が空気塊の滞留性を示す指標として有用であることが示された。

本研究では、上述のとおり、瀬戸内地域の一般局平均での日平均トレーサー濃度が年間上位5%の日を滞留性が高く地域的は発生源の影響を強く受ける地域汚染日、また日平均 $PM_{2.5}$ 濃度観測値が年間上位5%の日を $PM_{2.5}$ 高濃度日と定義した。図3.12に、計算対象期間の各年における瀬戸内地域の一般局平均での日平均 $PM_{2.5}$ 濃度観測値を高濃度順に示し、あわせて同日の日平均 $PM_{2.5}$ 濃度計算値、日平均トレーサー濃度を示す。2013年度は、 $PM_{2.5}$ 観測値上位5%日、10%日、20%日に、 $PM_{2.5}$ 計算値上位5%日はそれぞれ10日、15日、16日、トレーサー濃度上位5%日はそれぞれ1日(図3.9に濃度分布を示した2013年9月13日)、1日、9日含まれる。2019年は、同様に、 $PM_{2.5}$ 計算値上位5%日はそれぞれ11日、16日、18日、トレーサー濃度上位5%日はそれぞれ11日、16日、18日、トレーサー濃度上位5%日はそれぞれ5日、2020年は、同様に、 $PM_{2.5}$ 計算値上位5%日はそれぞれ11日、14日、18日、トレーサー濃度上位5%日はそれぞれ5日、8日、14日含まれる。2013年度に比べて2019年、2020年は、 $PM_{2.5}$ 濃度上位日にトレーサー濃度上位日が含まれる割合が高くなっている。これは、 $PM_{2.5}$ 濃度

度に対する越境汚染の寄与が近年減少し、地域汚染の寄与が相対的には増加したことを示唆している。 空気塊の滞留性と瀬戸内地域における高濃度の関係として、図3.13に、2019年における瀬戸内地域の日平均トレーサー濃度と日平均SO<sub>2</sub>、 $PM_{2.5}$ 濃度の地域差(瀬戸内ーその他中国四国)の散布図を示す。 $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ 濃度計算値・観測値いずれも、トレーサー濃度が高いほど地域差が大きくなる(瀬戸内地域で相対的に濃度が高くなる)という明瞭な相関関係が確認できる。トレーサー濃度はWRFによる気象場を基にした計算値であるため、 $SO_2$ 、 $PM_{2.5}$ 濃度の地域差との相関は、計算値の方が観測値よりも高くなった。また、近傍の発生源の影響を強く受ける $SO_2$ は、 $PM_{2.5}$ よりも相関係数が高くなった。

地域別一般局平均でのトレーサー, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の年, PM<sub>2.5</sub>高濃度日, 地域汚染日平均値について, 図3.14に2019年の比較,表3.6に2013年度,2019年,2020年の数値を示す。地域汚染日平均のトレーサー 濃度は年平均の2倍以上であり,地域汚染日には空気塊の滞留時間が年平均に対して2倍以上長いことが 示唆された。瀬戸内地域とその他中国四国地域の差は,全体として,年平均 〈 PM<sub>2.5</sub>高濃度日 〈 地域汚染日の順に大きくなった。トレーサー濃度は,瀬戸内地域の方がその他中国四国地域よりも平均約25%高くなった。仮に両地域の排出特性が同様であれば,その大気汚染濃度に対する寄与は瀬戸内地域の方が約25%高くなることが示唆される。一方,近傍の発生源の影響を強く受けるSO<sub>2</sub>濃度は,瀬戸内地域の方

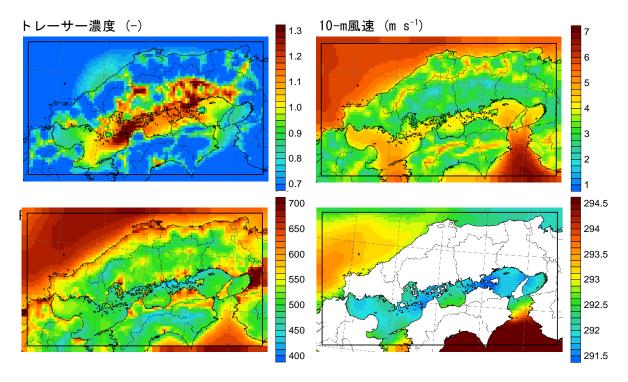


図 3.10 2019 年の平均トレーサー濃度, 10-m 風速, PBL 高さ, 海面温度の空間分布 (M19 計算値)

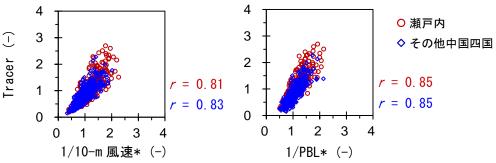


図 3.11 瀬戸内地域とその他中国四国地域の一般局平均での 2019 年の日平均トレーサー濃度と 10-m 風速, PBL 高さの逆数の関係 (M19 計算値, \*: 風速, PBL 高さは瀬戸内地域の一般局における年平均値で除して無次元化)

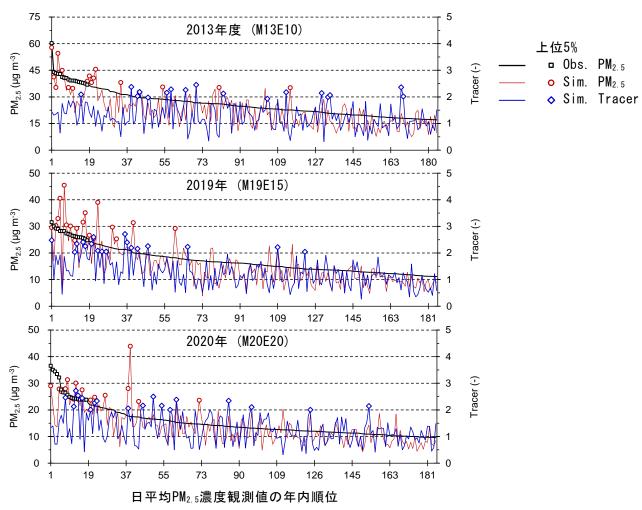


図 3.12 2013 年度,2019 年,2020 年における瀬戸内地域の一般局平均での日平均  $PM_{2.5}$  濃度観測値年間上位 50%日における  $PM_{2.5}$  濃度計算値,トレーサー濃度計算値 (Sim.:計算値,0bs.:観測値)

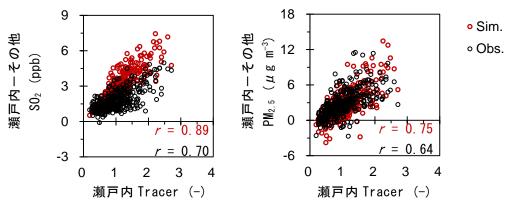


図3.13 2019年の日平均トレーサー濃度(瀬戸内地域,一般局平均,M19計算値)と日平均SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の地域差(瀬戸内地域ーその他中国四国地域,一般局平均,Sim.: M19E15計算値,Obs.: 観測値)の関係

が3~4倍程度高く,地域差がトレーサー濃度よりもはるかに大きい。したがって,瀬戸内地域特有の高濃度は,主に排出特性によるものではあるが,気象特性である空気塊の滞留によってその影響が増強されていると考えられる。

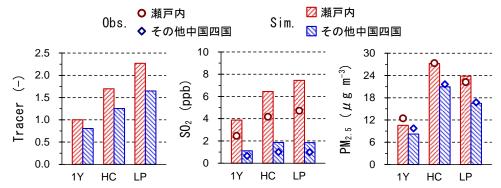


図 3.14 2019 年の地域別一般局平均でのトレーサー, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub> 濃度の年 (1Y), PM<sub>2.5</sub> 高濃度日 (HC), 地域汚染日 (LP) 平均値 (Sim.: M19E15 計算値, Obs.: 観測値)

表3.6 地域別一般局平均でのトレーサー, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の年, PM<sub>2.5</sub>高濃度日, 地域汚染日平均値

	_	Tracer(-)		$SO_{2}$ (	(ppb)	$PM_{2.5} (\mu g m^{-3})$	
		瀬戸内	その他	瀬戸内	その他	瀬戸内	その他
2013年度	(M13E10)						
年	観測	_	_	3.54	1.47	18.57	15.45
	計算	1.00	0.79	3.76	1.44	15.89	13.75
PM <sub>2.5</sub> 高	観測	_	_	5. 13	2.09	41.15	33. 26
	計算	1.48	1. 19	6.11	2.75	36.30	31.53
地域汚染	観測	_	_	5.48	1.34	25.26	19.36
	計算	2. 15	1.74	6. 17	1.62	22.54	17. 57
2019年	(M19E10)						
年	観測	_	_	2.45	0.66	12.45	9.75
	計算	1.00	0.80	3.88	1.12	10.56	8. 22
PM <sub>2.5</sub> 高	観測	_	_	4. 17	1.00	27.33	21.61
	計算	1.70	1.25	6.45	1.86	27.24	20.96
地域汚染	観測	_	_	4.71	0.99	22.23	16.74
	計算	2. 27	1.65	7.45	1.85	23.83	16. 51
2020年	(M20E20)						
年	観測	_	_	1.89	0.51	10.95	9. 10
	計算	1.00	0.80	3.20	0.98	9.59	7. 57
PM <sub>2.5</sub> 高	観測	_	_	3.04	0.96	27.53	24.69
	計算	1.53	1. 22	5.67	2.27	24.05	20.04
地域汚染	観測	_	_	2.73	0.59	18.67	14. 22
	計算	2.25	1.68	5.70	1.35	21.38	15. 21

#### 4. 4 2020IMO規制強化による大気質改善効果の評価

規制強化による大気質改善効果(M19E15-M19E20)として,図3.15に,年平均S02とPM2.5濃度およびそれらの低減効果の水平分布を示す。船舶排出が集中する航路・湾港付近においては,S02で1.2~2.6 ppb程度,PM2.5で0.8~1.2  $\mu$ g/m³程度の濃度低減効果が確認できる。いずれも航路・湾港からの距離に応じて濃度低減効果は小さくなるが,二次生成の寄与も大きいPM2.5は,S02に比べて濃度低減効果は広域に及んでいる。図3.16に,年平均,地域汚染日平均のPM2.5濃度低減効果とPM2.5~S/Total~S濃度低減効果比の鉛直分布を示す。地域汚染日には瀬戸内地域でPBLが低く,高い濃度低減効果が得られている。また,航路近傍では低減効果においてPM2.5~Sの割合が小さいが,沿岸,内陸へと輸送される過程でS02からS042~の変質が進むことで,PM2.5~Sの割合が高くなっている。図3.17に,地域別一般局平均でのS02,PM2.5濃度改善効果の年,PM2.5高濃度日,地域汚染日平均値を示す。地域汚染日平均の濃度低減効果は年平均の2倍以上となり,PM2.5高濃度日平均よりも大きかった。したがって,瀬戸内地域において空気塊が滞留し地

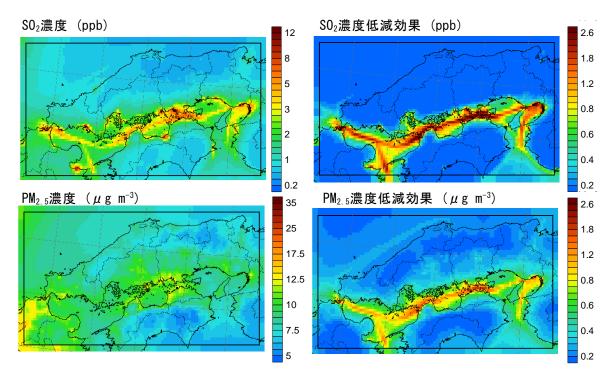


図 3.15 年平均  $SO_2$ ,  $PM_{2.5}$  濃度 (M19E15) とそれらに対する規制強化による低減効果 (M19E15 - M19E20) の空間分布

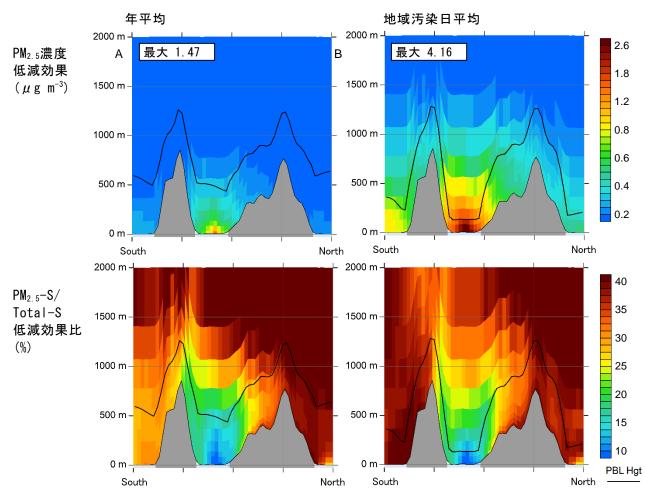


図 3.16 年平均,地域汚染日平均の PM<sub>2.5</sub> 濃度低減効果 (M19E15-M19E20) と PM<sub>2.5</sub>-S/Total-S 濃度低減効果比の鉛直分布 (図 3.2 の A-B 断面,図中の数値は断面における最大低減効果)

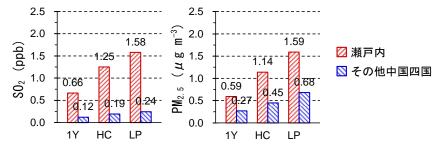


図 3.17 地域別一般局平均での SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub> 濃度低減効果 (M19E15-M19E20) の 年 (1Y), PM<sub>2.5</sub> 高濃度日 (HC), 地域汚染日 (LP) 平均値

域的な高濃度現象が発生しやすい条件下では、沿岸域においてもより大きな規制強化の効果が得られる。

規制強化による大気質改善効果を、瀬戸内地域において2018年度に $PM_{2.5}$ が測定された一般局(58局)の $PM_{2.5}$ 濃度観測値に適用し、環境基準達成状況に対する影響について検討した。これらの局における $PM_{2.5}$ 濃度観測値の年平均値は、全測定局平均で13.0  $\mu$  g/m³、環境基準非達成局(18局)平均で15.0  $\mu$  g/m³であった。同様に、年間98%値はそれぞれ32.0  $\mu$  g/m³、37.6  $\mu$  g/m³であった。各局の $PM_{2.5}$ 濃度の年平均値と年間98%値に、瀬戸内地域における年平均低減効果(0.59  $\mu$  g/m³)と $PM_{2.5}$ 高濃度日平均低減効果(1.14  $\mu$  g/m³)をそれぞれ一律に適用した。その結果、図3.18に示すとおり、長期基準非達成局は9局から4局に減少(岡山県3局、香川県1局、愛媛県1局減少)し、短期基準非達成局は17局から12局に減少(岡山県2局、香川県1局、愛媛県2局減少)した。また、環境基準非達成局は18局から13局に減少(岡山県2局、香川県1局、愛媛県2局減少)した。したがって、規制強化は、環境基準達成状況の改善にも寄与し得る。

規制強化による硫黄排出・沈着収支の変化についても解析を行った。図3.19に、年間の非海塩性硫黄の排出、乾性沈着、湿性沈着量とそれらの低減効果の空間分布を示す。規制強化に伴う収支の変化から、瀬戸内地域において船舶から排出された $SO_2$ は、約25%が同地域周辺で乾性沈着により除去されていることがわかる。また、沿岸、内陸へと輸送される過程で $SO_4$ 2-への変質が進み、一部は同地域周辺で湿生沈着により除去されるが、大部分は他地域へと広域的に輸送されていることがわかる。このことから、M19E15ケースではD3における非海塩性硫黄の排出量と沈着量は同程度であるが、湿生沈着により除去されている粒子状の硫黄は、大部分が領域外からの広域輸送に由来することがわかる。

大気質モデルにおける $SO_2$ 濃度変化( $\Delta SO_2$ )に対する $PM_{2.5}$ 中 $SO_4^{2-}$ 濃度変化( $\Delta SO_4^{2-}$ )の妥当性についても検討した。図3.20に,サブテーマ2の詫間,弓削での長期観測で得られた $2019\sim2020$ 年における月平均  $\Delta SO_4^{2-}/\Delta SO_2$ と,大気質モデルにおける瀬戸内地域一般局平均,詫間,弓削での月平均  $\Delta SO_4^{2-}/\Delta SO_2$ の比較を示す。大気質モデルにおける  $\Delta SO_4^{2-}/\Delta SO_2$ は,規制強化前後での気象および排出量変化の影響を考慮した場合(M20E20-M19E15)に加え,参考として規制強化前後での排出量変化のみの影響を考慮した場合(M19E20-M19E15)についても算出した。 $\Delta SO_2$ の幅は詫間の方が弓削よりも大きかったが, $\Delta SO_4^{2-}$ の幅は両地点で同程度であった。この傾向は観測と大気質モデルで一致しており,大気質モデルにおける  $\Delta SO_4^{2-}/\Delta SO_2$ は概ね妥当であると考えられる。詫間と弓削の傾向の違いの原因として,詫間周辺の方が弓削周辺よりも船舶排出量が集中しており(図3.3),詫間では規制強化に伴って $SO_2$ 濃度が変化しや

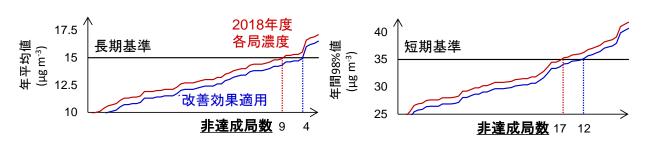


図 3.18 瀬戸内地域における規制強化による大気質改善効果の 2018 年度 PM<sub>2.5</sub> 濃度観測値への適用による環境基準達成状況の変化

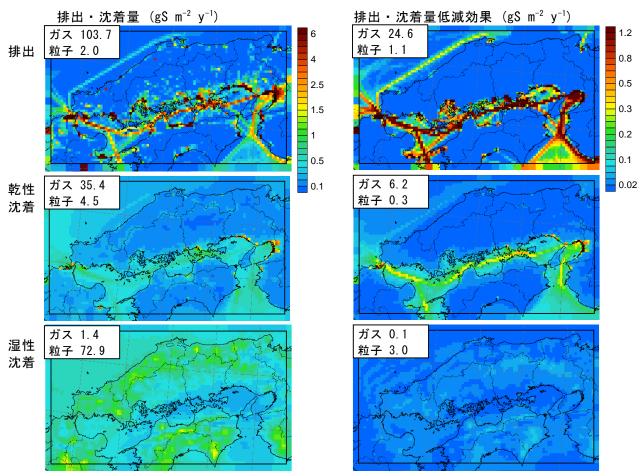


図 3.19 2019 年における非海塩性硫黄の年間排出,乾性沈着,湿性沈着量(M19E15)とそれらに対する規制強化による低減効果(M19E15-M19E20)の空間分布(図中の数値は D3 の総量(GgS y<sup>-1</sup>))

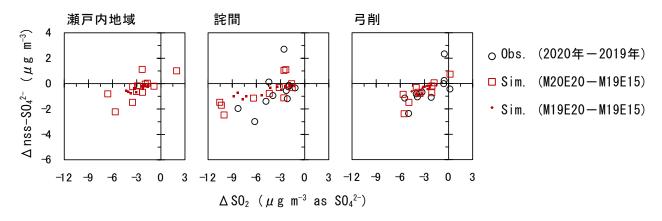


図 3.20 瀬戸内地域一般局平均, 詫間, 弓削での月別の平均  $SO_2$ 濃度変化( $\Delta SO_2$ )に対する平均  $PM_{2.5}$ 中  $SO_4^{2-}$ 濃度変化( $\Delta SO_4^{2-}$ )(Sim.: 計算値, Obs.: 観測値)

すく、弓削では輸送過程で $S0_4^{2-}$ への変質がより進んでいることが考えられる。規制強化前後での排出量変化のみの影響を考慮した場合(M19E20-M19E15)の平均 $\Delta S0_4^{2-}/\Delta S0_2$ は、瀬戸内地域一般局平均、詫間、弓削でそれぞれ0.133、0.116、0.137となった。これらは、船舶から排出時の粒子状S/ガス状S比(0.04 = 1.1/24.6(図3.19))よりも大きく、輸送過程で二次生成が進んでいることを示している。

#### 4.5 2020IMO規制強化後の発生源寄与評価

規制強化後のPM2.5対策の方向性を示すためにBFMによってM19E20ケースにおける発生源寄与を解析し

た。その結果として,図3.21に,地域別一般局平均での $SO_2$ , $PM_2.5$ 濃度の年, $PM_2.5$ 高濃度日,地域汚染日 平均値に対する日本国内の船舶,大規模固定発生源,自動車,その他人為起源,国外の人為起源の寄与を示す。瀬戸内地域については,表3.7に寄与率も示す。瀬戸内地域における規制強化後の船舶の $PM_2.5$ 寄与濃度は,年, $PM_2.5$ 高濃度日,地域汚染日平均でそれぞれ $0.61\,\mu\,g/m^3$ , $1.62\,\mu\,g/m^3$ , $1.97\,\mu\,g/m^3$ となった。なお,これらに規制強化による大気質改善効果(図3.17)を加えると規制強化前の船舶の $PM_2.5$ 寄与濃度が推計でき,それぞれ $1.20\,\mu\,g/m^3$ , $2.76\,\mu\,g/m^3$ , $3.56\,\mu\,g/m^3$ となる。瀬戸内地域における $PM_2.5$ 濃度に対する発生源寄与率は,年間, $PM_2.5$ 高濃度日,地域汚染日のいずれも国外人為起源が最も高くなった。しかし,地域汚染日においては,大規模固定発生源および国内その他人為起源は、国外人為起源に近い寄与率を示した。国内その他人為起源は様々な発生源部門をまとめたものであり,特定可能な大規模固定発生源への対策の優先順位がより高い。なお,大規模固定発生源の中では,電気業からの $PM_2.5$ 前駆物質や一次 $PM_2.5$ の排出量が最も多かった(表3.4)。

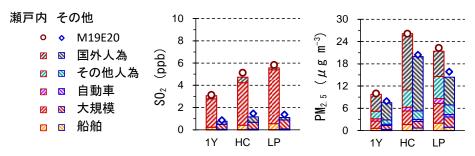


図 3.21 規制強化後の地域別一般局平均での SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の年(1Y), PM<sub>2.5</sub>高濃度日(HC), 地域汚染日(LP) 平均値に対する発生源別寄与

	中, FM2.5尚優及日, 地域仍架日平均個に対 9 0 光生像別 首 5 平							
		船舶	大	規模	自動車	その他	国外人為	
$SO_2$	年平均	,	7.2%	81.4%	0.0%	-0.8	9.0%	
	PM <sub>2.5</sub> 高濃度日平均	8	8.0%	74.6%	-0.2%	-0.3	9.7%	
	地域汚染日平均	9	9.4%	83.1%	-0.1%	-0.5	3. 1%	
PM <sub>2.5</sub>	年平均	(	6.1%	19.5%	6.2%	20. 5	5% 45.9%	
	PM <sub>2.5</sub> 高濃度日平均	(	6.2%	14.0%	3.9%	17.9	9% 58. 1%	
	地域汚染日平均	8	8.8%	23.9%	5.8%	26.8	30.6%	

表3.7 規制強化後における瀬戸内地域一般局平均でのSO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>濃度の 年、PM<sub>2.5</sub>高濃度日、地域汚染日平均値に対する発生源別寄与率

## 5. 研究目標の達成状況

本研究では、まず、大気質モデルが瀬戸内地域とその他中国四国地域の濃度差を概ね再現できること、すなわち瀬戸内地域特有の高濃度を概ね再現できることを確認した。瀬戸内地域特有の高濃度日では、瀬戸内海とその沿岸においてPBL内で顕著に高濃度となっており、瀬戸内地域で排出された汚染物質とそれに由来する二次汚染物質が滞留していることを明らかにした。このような条件下では、2020IMO規制強化によって高い大気質改善効果が得られることも明らかにした。また、規制強化による大気質改善効果は、環境基準達成状況の改善にも寄与することを示した。さらに、規制強化後の発生源別寄与評価から、今後のPM2.5対策のために重要な国内発生源は、大規模固定発生源であることを示した。発生源寄与評価手法の検討に関する内容は、1編の査読付き論文として発表した。以上より、計画に掲げた研究目標は達成したと判断できる。

## 6. 引用文献

1) Skamarock W.C. et al., A Description of the Advanced Research WRF Version 3, No. NCAR/TN-475+STR (2008), DOI: 10.5065/D68S4MVH

- 2) CMAQ User's Guide, https://github.com/USEPA/CMAQ/blob/master/DOCS/Users\_Guide/README.md
- 3) Chatani S. et al., Comprehensive analyses of source sensitivities and apportionments of  $PM_{2.5}$  and ozone over Japan via multiple numerical techniques, Atmospheric Chemistry and Physics, Vol. 20, 10311-10329 (2020), DOI: 10.5194/acp-20-10311-2020
- 4) Janssens-Maenhout G. et al., HTAP-v2.2: A mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution. Atmospheric Chemistry and Physics, Vol. 15, 11411-11432 (2015), DOI: 10.5194/acp-15-11411-2015
- 5) Diehl T. et al., Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO2 from 1980 to 2010 for hindcast model experiments. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, Vol. 12, 24895-24954 (2012), DOI: 10.5194/acpd-12-24895-2012

#### Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

## (1) 誌上発表

## <査読付き論文>

## 【サブテーマ1】

T. Sakurai, M. Ito, and S. Hanayama: Asian Journal of Atmospheric Environment, Vol. 15

 (1), https://doi.org/10.5572/ajae.2020.096
 (2021)
 (Cite Score: 2.0)
 Development of Air Pollutants Emission Inventories for Ships around Japan on a High Geographical Resolution.

# 【サブテーマ2】

1) S. Itahashi, T. Sakurai, H. Shimadera, S. Araki, and H. Hayami: Environmental Research Letters, https://doi.org/10.1088/1748-9326/ac03db (2021)(IF:6.096), Long-term trends of satellite-based fine-mode aerosol optical depth over the Seto Inland Sea, Japan, over two decades (2001-2020) (in press)

## 【サブテーマ3】

1) S. Chatani, H. Shimadera, S. Itahashi, K. Yamaji K.: Atmospheric Chemistry and Physics, Vol. 20, 10311-10329 (2020) (IF: 5.958), Comprehensive analyses of source sensitivities and apportionments of PM<sub>2.5</sub> and ozone over Japan via multiple numerical techniques.

## <その他誌上発表(査読なし)>

## 【サブテーマ1】

1) 櫻井 達也,速水 洋,板橋 秀一,嶋寺 光:2020 年船舶燃料油硫黄分規制強化で期待される大気質改善効果,環境技術,第50巻,第2号,70-75(2021)

#### (2) 口頭発表 (学会等)

# 【サブテーマ1】

- 1) 櫻井 達也, 速水 洋, 板橋 秀一, 嶋寺 光, 荒木 真, 中村 篤博:第59回大気環境学会年会(2018) 「自動船舶識別装置(AIS)情報を利用した船舶排ガスデータベースの構築」
- 2) T. SAKURAI:環境研究総合推進費 5-1601 国際シンポジウム「Model development and application contributing to effective strategy making for better air quality」(2019)「study on Global Limit for Marine Fuels Sulphur to better Air Quality」
- 3) 櫻井 達也,速水 洋,板橋 秀一,嶋寺 光:東京理科大学研究推進機構総合研究院 大気科学研究 部門 第3回成果報告会 (2019) 「2020 年船舶燃料油硫黄分規制強化による大気質改善効果の評 価について」
- 4) 櫻井 達也, 伊藤 美羽:第60回大気環境学会年会(2019)「船舶起源大気汚染物質の排出量インベントリの構築」
- 5) T. Sakurai:第25 届中国大气环境科学与技术大会(2019)「Development of AIS-based Emission Inventories of Air Pollutants from Ships」
- 6) 伊藤 美羽, 櫻井 達也:第61回大気環境学会年会(2020)「排ガス直接観測を利用した船舶由来 排出量算定手法の妥当性評価」
- 7) 櫻井 達也, 伊藤 美羽:第61回大気環境学会年会(2020)「2020年船舶燃料油硫黄分規制強化による SOx・PM 排出量削減効果の算定」

# 【サブテーマ2】

1) 速水 洋, 板橋秀一, 中村篤博, 伊藤武志, 高木洋, 櫻井達也:第60回大気環境学会年会(2019)

「瀬戸内地域のPM2.5組成について」

- 2) 板橋秀一,速水 洋,嶋寺 光,荒木 真,中村篤博,伊藤武志,櫻井達也:第60回大気環境学会年会(2019)「高解像度衛星計測による瀬戸内地域のPM<sub>2.5</sub>大気汚染状況の把握」
- 3) 速水 洋,板橋秀一,中村篤博,金澤啓三,伊藤武志,高木 洋:第61回大気環境学会年会(2020)「瀬戸内地域でとらえた船舶燃料油規制強化前後の大気質の変化」
- 4) 板橋秀一,速水 洋,嶋寺 光,荒木 真,櫻井達也:第61回大気環境学会年会(2020)「高解像度 衛星計測から見た瀬戸内地域のPM<sub>2.5</sub>大気汚染状況の変化」
- 5) 伊賀悠太,速水洋,三浦和彦,森樹大:第99回日本大気電気学会研究発表会(2021)「船舶燃料 に対する硫黄分規制の影響評価」

# 【サブテーマ3】

- 1) 荒木 真, 嶋寺 光, 櫻井 達也, 板橋 秀一, 中村 篤博, 速水 洋:第59回大気環境学会年会 (2018) 「瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>高濃度事例の解析(1) -観測データによる現況把握-」
- 2) 嶋寺 光, 荒木 真, 櫻井 達也, 板橋 秀一, 中村 篤博, 速水 洋:第59回大気環境学会年会 (2018) 「瀬戸内地域におけるPM<sub>2.5</sub>高濃度事例の解析(2) -大気質モデルによる再現計算-」
- 3) 飯田 章太, 嶋寺 光, 荒木 真, 松尾 智仁, 近藤 明:2018年度大気環境学会近畿支部研究発表会 (2018)「WRF/CMAQを用いた瀬戸内地域における気象特性が大気汚染に及ぼす影響の評価」
- 4) 飯田 章太, 嶋寺 光, 荒木 真, 松尾 智仁, 近藤 明:第60回大気環境学会年会 (2019) 「大気質 モデルを用いた瀬戸内地域の気象特性が大気汚染に及ぼす影響の評価」
- 5) 嶋寺 光, 荒木 真, 速水 洋, 中村 篤博, 伊藤 武志, 板橋 秀一, 櫻井 達也:第60回大気環境学 会年会(2019)「大気質モデルを用いた瀬戸内地域における大気汚染の時空間変動特性の解析」
- 6) 茶谷 聡, 嶋寺 光, 板橋 秀一, 山地 一代:第60回大気環境学会年会(2019)「2016年度のPM<sub>2.5</sub>と オゾン濃度に対する発生源感度・寄与の包括的解析~BFMによる発生源感度概観~」
- 7) 茶谷 聡, 嶋寺 光, 板橋 秀一, 山地 一代:第60回大気環境学会年会(2019)「2016年度のPM<sub>2.5</sub>と オゾン濃度に対する発生源感度・寄与の包括的解析~3手法による発生源感度・寄与の相互比較~」
- 8) Chatani S., Shimadera H., Itahashi S., Yamaji K.: 18th Annual CMAS Conference (2019)

  [Mutual comparison of source sensitivities and apportionments obtained by BFM, DDM, and ISAM on PM<sub>2.5</sub> and ozone concentrations over Japan]
- 9) Shimadera H., Araki S., Iida S., Matsuo T., Kondo A., Sakurai T., Itahashi S., Hayami H.: 18th Annual CMAS Conference (2019) \[ \int \text{Numerical evaluation of the impacts of emission and meteorological characteristics on air pollution in the Seto Inland Sea region, Japan \]
- 10) 嶋寺 光, 荒木 真:国立環境研究所と地方環境研究所との共同研究「光化学オキシダントおよび PM<sub>2.5</sub>汚染の地域的・気象的要因の解明」PM瀬戸内グループ会合 (2019)「瀬戸内海周辺のPM<sub>2.5</sub>を 対象とした大気質モデルによる研究」
- 11) 嶋寺 光:第4回 アジア域の化学輸送モデルの現状と今後の展開に関する研究集会 (2020)「瀬戸 内地域の気象・排出特性が大気汚染に及ぼす影響の評価」
- 12) 飯田 章太, 嶋寺 光, 荒木 真, 松尾 智仁, 近藤 明:第61回大気環境学会年会 (2020) 「WRF/CMAQを用いた瀬戸内地域の気象・排出特性が大気汚染に及ぼす影響の評価」
- 13) 荒木 真, 嶋寺 光:第61回大気環境学会年会(2020)「観測データに基づく瀬戸内地域における PM<sub>2.5</sub>濃度特性の解析」
- 14) 嶋寺 光, 荒木 真, 櫻井 達也, 茶谷 聡, 板橋 秀一, 速水 洋:第61回大気環境学会年会 (2020)「瀬戸内地域におけるモデル解析から見る船舶燃料油硫黄分規制強化による大気質改善効果の評価」
- 15) 平井 賢治, 嶋寺 光, 荒木 真, 櫻井 達也, 茶谷 聡, 松尾 智仁, 近藤 明:2020年度大気環境 学会近畿支部研究発表会 (2020)「大気質モデルを用いた船舶燃料油硫黄分規制強化による瀬戸 内地域の大気質改善効果の評価」

16) Thongthammachart T., Araki S., Shimadera H., Eto S., Matsuo T., Kondo A.: A&WMA's 114th Annual Conference (2021) 「High Spatiotemporal NO2 Predictions by an Integrated Model Combining Land Use Random Forests Technique and WRF/CMAQ Model in the Kansai Region of Japan」

# (3)「国民との科学・技術対話」の実施 【サブテーマ1】

1) 明星大学理工学部産学交流会 (2018 年 6 月 16 日) にて「大気汚染物質の排出規制に係る産学連携の事例紹介」を講演 (聴講者 50 名) <a href="https://corec.meisei-u.ac.jp/sangaku-2018">https://corec.meisei-u.ac.jp/sangaku-2018</a>

# (4) マスコミ等への公表・報道等>

特に記載すべき事項はない。

# (5) 本研究費の研究成果による受賞

特に記載すべき事項はない。

#### IV. 英文Abstract

# Assessment Study for Air Quality Improvement Obtained from the 2020 Global Sulphur Limit in Marine Fuels

Principal Investigator: Tatsuya SAKURAI

Institution: Meisei University

2-1-1 Hodokubo, Hino, Tokyo 191-8506 JAPAN

Tel: +81-42-591-9858

E-mail: tatsuya.sakurai@meisei-u.ac.jp

Cooperated by: Waseda University, Central Research Institute of Electric Power Industry, Osaka University

#### [Abstract]

Key Words: Seto Inland Sea, MARPOL Annex VI, 2020 IMO Global Sulphur Limit, SO<sub>2</sub>, PM<sub>2.5</sub>, Air Quality Model, Emission Inventories

This project is an observation and simulation study to evaluate the effect of the 2020 IMO global sulphur limit on air quality. Long- and short-term observations were performed in the Setouchi region, which was expected to be strongly affected by ship exhaust gas. Through observation data and numerical simulation analyses, the mechanism for high PM<sub>2.5</sub> pollutions around coastal areas was investigated. Moreover, quantitative evaluations were conducted to improve PM<sub>2.5</sub> pollution expected by the 2020 IMO sulphur limit. Then, the future direction of PM<sub>2.5</sub> countermeasures was assessed based on the evaluation of the source apportionment and sensitive analysis.

For the numerical simulation, air pollutant emission inventories for ships were developed considering ships in navigation, ships at anchor, and fishing boats. The first database was estimated using activity data of the 2015 Japanese fiscal year. The second set was estimated by considering marine fuel oil use with <0.50% sulphur content; the database had been released to the public and is being used in government studies on PM<sub>2.5</sub> countermeasures.

The short-term observation, conducted at Kanmon Straits, showed that the concentration of SO<sub>2</sub> in ship exhaust gas significantly decreased before and after the sulphur limit. The long-term observations, conducted at two special sites in the Setouchi region suggested that the decrease in the sulphur content of marine fuel oil decreased the concentration of vanadium in the atmosphere, although evaluating the observation results was not easy due to unexpected occurrences, such as COVID-19 and the impact of the volcanic gases (Nishinoshima).

The numerical simulation analysis suggested that the high PM<sub>2.5</sub> concentrations in the Setouchi region were mainly due to emission characteristics, which were enhanced by meteorological properties. Under such the region-specific condition, the simulated PM<sub>2.5</sub> decreased from approximately 15% to 9% due to the effect of the sulphur limit. This improvement in PM<sub>2.5</sub> is equivalent to a reduction in the number of stations that did not meet the environmental standard. Out of 58 stations, 18 had not met the standards, which improved to 13 stations in the 2018 fiscal year. After the sulphur limit, the contribution rate of the large-scale stationary sources accounted for approximately 24% of PM<sub>2.5</sub> under the region-specific condition, indicating that they were high-priority sources for future PM<sub>2.5</sub> countermeasures in Japan. Among the large-scale stationary sources, the electric power industry was the most significant because it emitted the largest number of PM<sub>2.5</sub> precursors.