

課題番号：5MF-2203

研究課題名：バックグラウンド濃度の把握による VOC 等大気汚染物質予測精度の向上と地域排出源による健康リスク評価の高精度化

研究代表者名：星 純也（（公財）東京都環境公社 東京都環境科学研究所）

体系的番号：JPMEERF20225M03

重点課題：主【重点課題⑯】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【重点課題⑮】化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究

研究実施期間：2022（R4）年度～2024（R6）年度

## 【研究体制】

### サブテーマ1

星純也（（公財）東京都環境公社 東京都環境科学研究所）

長田和雄（名古屋大学）

櫛島智恵子（（公財）東京都環境公社 東京都環境科学研究所）

熊谷貴美代（群馬県衛生環境研究所）

齊藤伸治（（公財）東京都環境公社 東京都環境科学研究所）

坂本祥一（群馬県衛生環境研究所）（2022年度まで）

鶴丸央（（公財）東京都環境公社 東京都環境科学研究所）

齊藤由倫（群馬県衛生環境研究所）（2023年度から）

### サブテーマ2

茶谷聡（国立環境研究所）

# 1. 研究背景、研究開発目的及び研究目標

## 【研究背景】

大気中のVOCは光化学オキシダント（Ox）やPM2.5の二次生成の原因となるだけでなく、それ自体が有害で人の健康に対するリスクを有するものがある。Ox等の二次生成物質の評価や対策立案のためには領域化学輸送モデルによるモデルシミュレーションの活用が欠かせないが、現状のモデルの精度には課題が残る。これまでのメンバーらの研究で、モデルではシミュレーション計算領域への移流の影響を過小評価していること（茶谷ら：大気環境学会誌,57,35-52

（2022））や小笠原父島で観測したバックグラウンド（BG）濃度が、都内の大気中化学物質に対してリスクベースで3割以上を占めることが示されている

（環境研究総合推進費 JPMEERF19S20405）。これらの結果は自治体等が地域のOxや健康リスクの低減のための対策を立案し、効果検証を行う際に地域内のモニタリングだけでは正確に評価できないことを示しており、地域ごとに評価に適したBG地点の選定、観測及び、シミュレーションモデルの精度向上のために必要なBG濃度の把握を進めていく必要がある。

## 【研究開発目的】

本研究では関東平野をケーススタディとして、BG濃度を把握することでシミュレーションモデルの改良を図るとともに、地域汚染の正確な評価と効果的な対策立案のための観測手法を提案していく。関東平野内のVOC等の大気汚染物質濃度に対するBG地点、日本列島全体のBG地点で多くのVOC成分濃度を観測する。BG地点はシミュレーション実施時の評価領域内の境界条件の計算値と比較しモデルの精度向上に資するための地点を中心に選定する。

また、遠隔地でのBG濃度観測手法の確立も行う。電源の確保や大きな機材の設置が困難なBG地域のVOC濃度評価ツールとして、パッシブサンプラーによる測定を検討し、地域汚染の正確な評価と効果的な対策立案のための観測手法を提案していく。

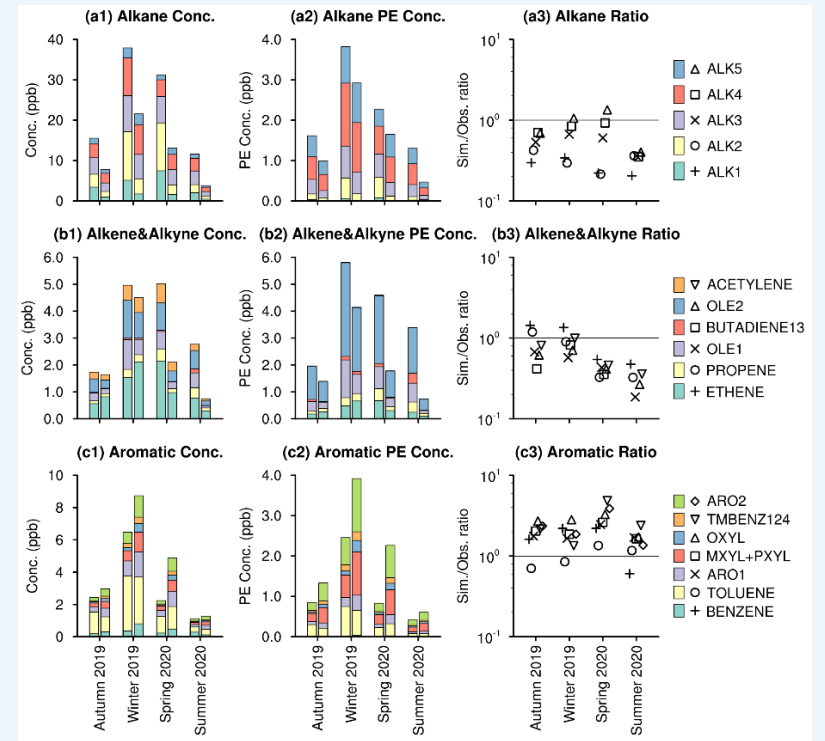


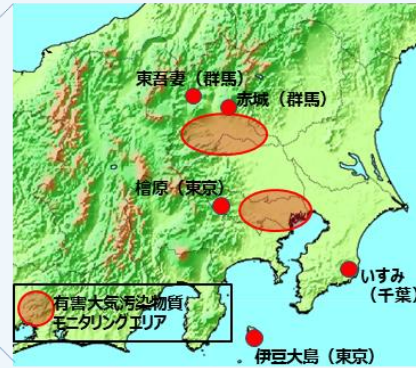
Fig. Observed (left) and simulated (right) concentrations and propylene equivalent (PE) concentrations, and ratios of simulated concentrations against observed concentrations of SAPRC07 species included in each VOC group during target periods in each season. Values averaged over five monitoring stations during target periods are shown.

# 1. 研究背景、研究開発目的及び研究目標

## 【研究目標（全体目標）】

季節変動を踏まえた形で関東地方、日本全国の大気中化学物質のバックグラウンド濃度を把握し、観測データから関東地域内と地域外汚染の影響の切り分けを行う。また、モデル解析を実施し、観測データによるモデル境界条件の検証を行うことでシミュレーションモデルの改善を図る。さらに、パッシブサンプラーによるバックグラウンド観測手法を開発し、簡易なバックグラウンドモニタリングによる地域内汚染対策の効果検証手法を提示していく。

### BG観測地点



2022年度：予備調査  
2023年度：全国のBG  
（四季別観測）  
：関東のBG  
（各月観測）  
VOCを中心に約120物質測定

### モデルシミュレーション



d01



d02

領域気象モデル：  
WRF-ARW version 4.3  
領域化学輸送モデル：  
CMAQ version 5.3.3  
BG観測データによる境界条件の検証

モデルの精度改善

### パッシブサンプリング法の検討



VOC用



アルデヒド用



酸化エチレン用

吸着剤：	活性炭等	DNPH含浸シリカゲル	HBr含浸合成活性炭
抽出溶媒：	二硫化炭素	アセトニトリル	トルエン/アセトニトリル
分析：	GC/MS	LC,LC/MS	GC/MS

- 実大気を用いたサンプリングレートの整備
- BG観測での適用性評価

## 2. 研究目標の進捗状況 (1)進捗状況に対する自己評価（サブテーマ1）

### サブテーマ1：バックグラウンド観測手法の確立と関東平野のバックグラウンド濃度の把握

#### 【サブテーマ1の研究目標】

季節変動を踏まえた形で関東地方、日本全国の大気中化学物質のバックグラウンド濃度を把握

- サブテーマ2のモデルシミュレーションで十分な検証が行える地点数、測定回数でデータを整備
- 関東内外のVOC等の影響の切り分け

パッシブサンプラーによる簡易なバックグラウンドモニタリング手法の検討

#### 【令和4年度の研究計画】

常時監視データを用いたBG測定の時期等の予備解析及び、秋季～冬季に観測地点全てで予備観測

東京あるいは名古屋において、パッシブサンプラーとキャニスターによる並行測定を行い、広範な物質のサンプリングレートを決定した後、BG予備観測時にパッシブサンプラーによる並行採取を行い、BG測定による精度評価を実施

#### 【令和5年度の研究計画】

季節別の全国BGの観測及び有害大気汚染物質モニタリングに合わせた関東BG観測

BG地点によるパッシブモニタリングデータを充実させ、BG観測手法の確立

#### 【令和6年度の研究計画】

主にパッシブサンプラーを用いて、全国多地点のBG観測を実施

→ 全国の沿岸部や離島、関東各県の平野外縁部で測定を行い、BG地点の地点間変動を確認

【自己評価】 計画通りに進展している



## 2. 研究目標の進捗状況

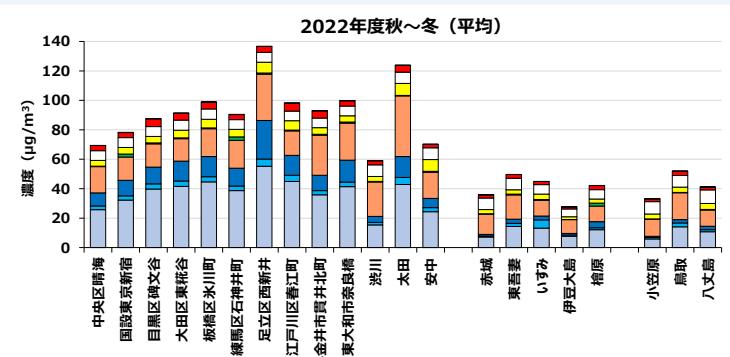
### (2)自己評価に対する具体的な理由・根拠と目標達成の見通し（サブテーマ1）

#### 【具体的な理由・根拠】

BG調査については2022年度中に観測予定の全地点で予備調査を実施することができ、2年目の通年のモニタリングを滞りなく実施できる体制を構築できた。また、予備調査の結果、想定以上にBG濃度の高い物質があることや、物質のよって関東平野部に対するBG濃度の影響が大きく異なる観測結果が得られた。パッシブサンプリングについては、サンプラーの仕様によってBG観測での適用に限界があることを明らかにするとともに、多くのVOC類についてSRを整備した。パッシブサンプラーのSRの整備やBG観測におけるパッシブサンプラーの適用性評価は、今後、自治体等でのパッシブサンプラーの活用方法について提案する基礎的データとなった。

#### 【目標達成の見通し】

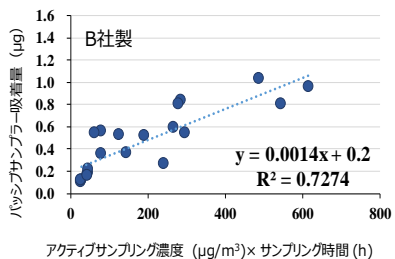
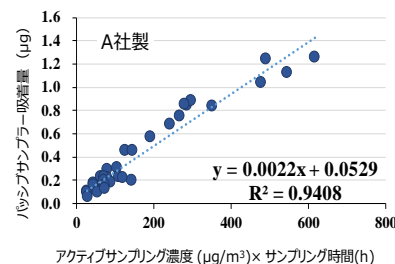
これまでの予備調査等で、BG観測における課題の抽出やその対応を整理できており、今後、通年でのBG観測を予定通り実施することによってBG濃度の把握や関東におけるBG濃度の影響の評価、モデル計算に必要な観測データの収集は十分に可能であると考えられる。



2022年秋～冬の東京、群馬の平野部及びBG観測におけるVOC平均値。

VOC合計値を各成分の積み上げで示している。物質によって平野部に対するBG濃度の高低に違いがある。関東のBGと全国のBGに相当する地点で大きな差が見られない。

#### ホルムアルデヒド



実大気におけるSR算出調査のまとめ。多くの物質で実大気濃度をベースにしたSRを整備するとともに、SRを算出できず、環境大気での適用が困難な物質を明らかにした。

(物質数)

測定対象物質 (最大)	混合溶液が 作れない (CS <sub>2</sub> に溶けない 等)	溶媒に隠れて測 定できない	検量線作成	SR算出	標準手法サン プリング対象外	大気濃度が低く SRが算出 できない	パッシブサン プリングの値がばら ついているSRが算出 できない
99	18	8	73	49	9	10	5

オゾンスクラバーが含有されているA社製はアクティブサンプリングと濃度変動が整合的だが含有されていないB社製は大気濃度変動を追従しない。環境大気の測定ではパッシブサンプラーにおいてもオゾンの除去が必要であることが分かった。

## 2. 研究目標の進捗状況 (1)進捗状況に対する自己評価（サブテーマ2）

### サブテーマ2：バックグラウンド観測データによるモデルシミュレーションの高精度化

#### 【サブテーマ2の研究目標】

サブテーマ1で得られた観測データを活用した計算を実行し、観測データによる境界条件の検証を行うことで、領域化学輸送モデルを用いたシミュレーションによるOx、VOC、有害大気汚染物質の濃度再現性の改善を図る。

#### 【令和4年度の研究計画】

本研究で実施する観測地点、対象物質に合わせたシミュレーションモデルの条件設定

#### 【令和5年度の研究計画】

令和5年度前半までに得られたBG観測データと、関東平野内の測定結果である東京都及び群馬県の有害大気汚染物質モニタリングデータを用いた予備的なシミュレーションの実施

#### 【令和6年度の研究計画】

令和5年度までに得られた年間のBG（全国、関東）観測データ、及び有害大気汚染物質モニタリングデータを用い、モデル計算値と実測値の整合の評価

得られた結果を基にモデルの課題を抽出

令和6年度に得られた多地点のBGデータを用いて、境界条件の推計結果の検証

#### 【自己評価】 計画通りに進展している

## 2. 研究目標の進捗状況

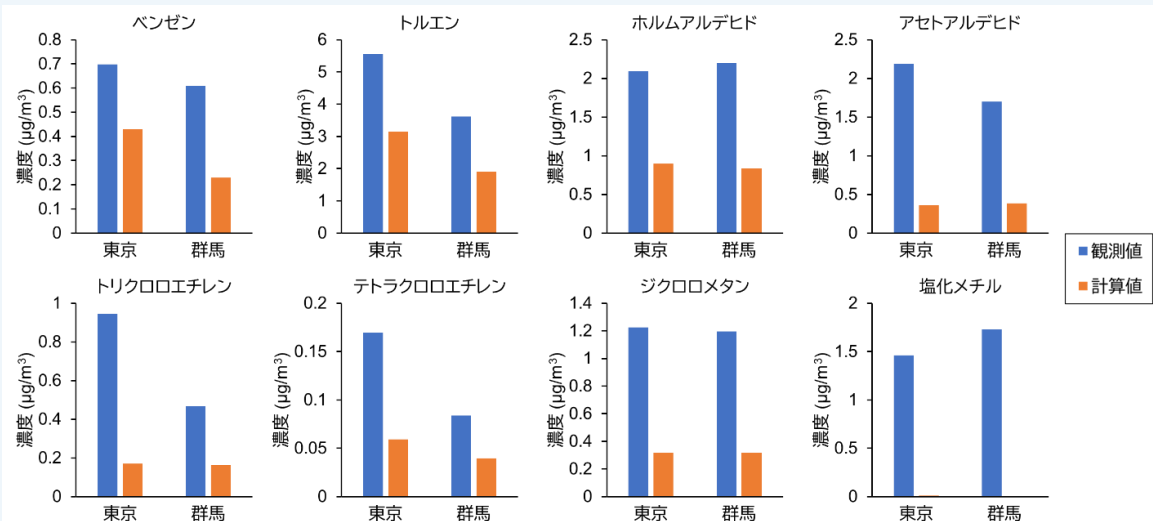
### (2)自己評価に対する具体的な理由・根拠と目標達成の見通し（サブテーマ2）

#### 【具体的な理由・根拠】

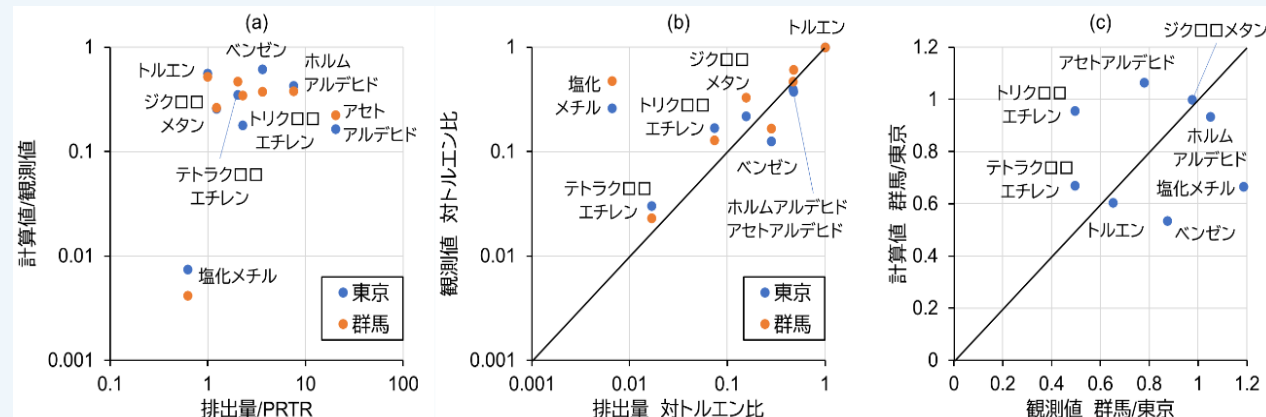
有害大気汚染物質モニタリング調査による濃度観測値と計算値の都県内全地点の年平均値の比較すると、計算値が実測値に対して過小評価になる傾向があった。この原因について、成分別の排出量と濃度の関係から考察を加えた。これらの解析からは、広域的な輸送の影響など、排出量以外の要因が示唆され、本研究で実施しているバックグラウンド地域における観測が有用に寄与することが示唆された。これらの結果によって、今後、バックグラウンド地域における濃度観測値との比較検証を行う際の着眼点を明らかにすることができた。

#### 【目標達成の見通し】

試算を行うことにより、バックグラウンド地域における観測データの活用についての着眼点を明らかにすることができた。今後、モデルの更新と排出量データの精査を行い、観測データを活用した上で、目標を達成することは十分に可能であると考えられる。



有害大気汚染物質モニタリング結果（青）とシミュレーションによる計算値（オレンジ）の比較。多くの物質で計算値が過小評価している。



(a)モデルで用いた排出量はPRTRの排出量よりも多く、PRTRデータで排出量の更新をしてもモデルの過小評価は解決されない。(b)塩化メチルはトルエンに対して排出量は2桁小さいが、観測値は1桁以内の差になっている。観測値が広域的な輸送の影響を受けている可能性が示された。(c)群馬/東京の比が観測値と計算値で異なっている物質は計算値がいずれかの地域の排出量を再現できていない、広域的な輸送の影響を再現できていないなどの課題がある。

### 3. 研究成果のアウトカム（環境政策等への貢献）

#### 【行政等が活用することが見込まれる成果】

これまでの調査結果からバックグラウンド地域におけるVOC等の濃度は想定以上に高い物質もあり、また、物質種によって都市域との濃度差も異なることが明らかになりつつある。地方自治体等が地域の排出削減対策を実施し、その効果を検証するためにはバックグラウンド濃度の評価も必須であると考えられる。本研究では評価対象地域外の排出による対象地域への影響把握のためにはどのような地点での観測が必要かを明らかにして、研究成果を全国で展開できる基盤を構築する。

一方、地方自治体にとって当該地域内であっても、交通が不便で設備が十分に整っていないバックグラウンド地域における観測は様々な困難を伴う。本研究で開発・検討するパッシブサンプラーによる多成分VOCの測定は、電源が確保できないようなバックグラウンド地域においても、各々の自治体が独自に観測を行うための簡易・安価なツールを提供する。本研究により、地域汚染と流入汚染の切り分けによる地域での効果的な大気汚染対策の展開が期待できるとともに、現在の有害大気汚染物質モニタリングデータの更なる活用も期待できる。



# 4. 研究成果の発表状況

## 【誌上発表（査読あり）：2件】

長田和雄、小山慎一、大塚克弘、星純也、櫛島智恵子：大気環境学会誌, 58, 67-73 (2023)

VOC パッシブサンプラーのバッテリー駆動による自動切替装置の開発,

S. CHATANI, K. KITAYAMA, S. ITAHASHI, H. IRIE and H. SHIMADERA: Sci. Total Environ., 894, 165058 (2023) (IF : 9.8)  
Effectiveness of emission controls implemented since 2000 on ambient ozone concentrations in multiple timescales in Japan: An emission inventory development and simulation study

## 【その他の成果発表：2件】

東京都環境科学研究所NEWS、No.40、p1-2、  
「環境研究総合推進費に採択されました」

東京都環境科学研究所NEWS、No.43、p3、  
「研究紹介 大気中化学物質のバックグラウンド調査」

## 【口頭発表（学会等）：7件】

星純也、櫛島智恵子、齊藤 伸治：  
第63回大気環境学会年会 (2022)

星純也、櫛島智恵子、長田和雄、熊谷貴美代、坂本祥一：  
第2回環境化学物質3学会合同大会（第31回環境化学討論会）(2023)

櫛島智恵子、星純也、長田和雄、熊谷貴美代、坂本祥一：  
第2回環境化学物質3学会合同大会（第31回環境化学討論会）(2023)

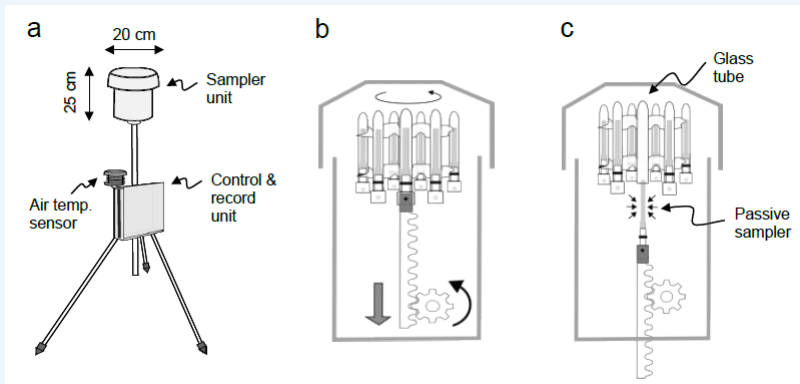
【予定】星純也、櫛島智恵子、齊藤伸治、鶴丸央、熊谷貴美代、坂本祥一、長田和雄：  
第64回大気環境学会年会 (2023)

茶谷聡、國分優孝、高橋和清、星純也：  
第63回大気環境学会年会 (2022)

茶谷聡、北山響：  
第63回大気環境学会年会 (2022)

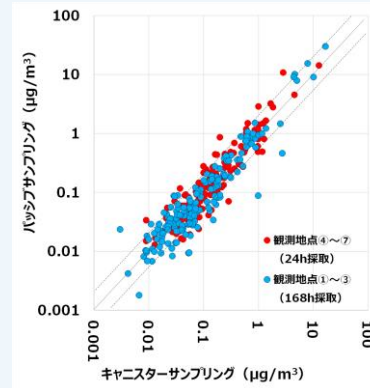
【予定】茶谷聡、熊谷貴美代、星純也：  
第64回大気環境学会年会 (2023)

開発したVOC Passive Automatic Sampler (VPAS)



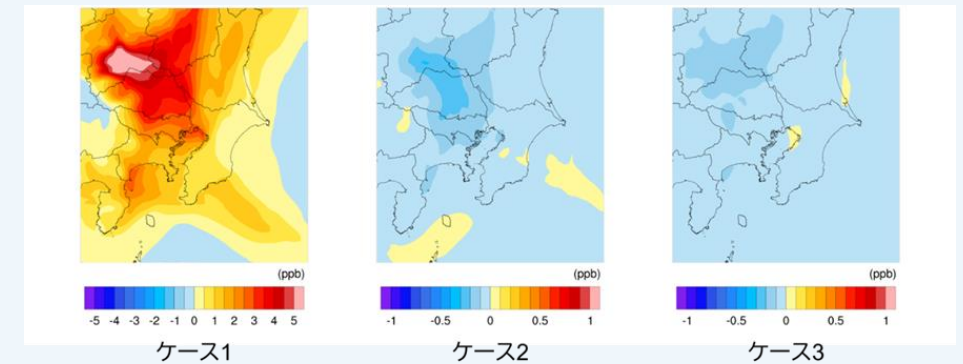
長田ら:大気環境学会誌,58,(2023)

パッシブサンプラーのBG地点での適用性評価



星ら:第2回環境化学物質3学会合同大会 (2023)

VOCの濃度再現性がオゾン濃度計算値に及ぼす影響の感度解析



茶谷ら:第63回大気環境学会年会 (2022)

## 5. 研究成果の効率性

- 一部のBGの試料採取を現地の事業者に委託することによって、観測地への往復の時間を短縮し、業務の効率化に努めた。
- 鳥取大学乾燥地研究センター、東京管区気象台の協力を得てBG観測に適したサンプリング地点を確保することができた。また、伊豆大島では東京管区気象台、東京地方検察庁の協力を得て、計画に無かったVOCの風向別採取の観測を追加することができた。
- モデルシミュレーションを担当するサブテーマ2のメンバーも一部のBG観測に参加した。観測地点において、シミュレーション実施者の視点で観測方法や現地の発生源等を確認することにより、現地の状況により即した形でモデル計算の評価を行える体制とした。