

平成18年度

**船舶起源の粒子状物質(PM)の
環境影響に関する調査研究報告書**

平成19年3月

海 洋 政 策 研 究 財 団
(財団法人 シップ・アンド・オーシャン財団)

はじめに

本報告書は、競艇の交付金による日本財団の助成金を受けて平成 18 年度に実施した「船舶起源の粒子状物質(PM)の環境影響に関する調査研究」事業の成果をとりまとめたものです。

船舶の排ガス中に含まれる窒素酸化物(NOx)及び硫黄酸化物(SOx)に対しでは、マルポール 73/78 条約付属書VIに基づき既に排出規制が開始されているところです。しかしながら、同付属書に定められた規制値は、NOx 及び SOx の人体への直接的な影響のみを考慮しており、これら物質が大気中の光化学反応により酸化・粒子化し、ディーゼル粒子とともに粒子状物質(PM)として長距離を移流拡散し、よって人体もしくは生態系へ間接的に影響することまでを考えたものではありません。

このため、平成 17 年 7 月に開催された国際海事機関(IMO : International Maritime Organization)の第 53 回海洋環境保護委員会(MEPC53 : Marine Environment Protection Committee)において、附属書VIの改正検討項目に上記の NOx 及び SOx に対する規制改正に加えて、PM 排出削減の検討が盛り込まれました。

本事業は、当財団の過去の船舶排ガス実態調査の実績と光化学反応解析に関するノウハウを生かし、船舶 PM の環境中での挙動と港湾域における影響度合いに対する評価を中心に今後の PM 対策に資する基礎的な調査に取り組んだものです。

本報告書が広く皆様に活用され、大気環境保全に貢献できることを期待致しております。

なお、本事業を実施するに当たっては、芝浦工業大学学長 平田 賢氏を委員長とする「船舶起源の粒子状物質(PM)の環境影響に関する調査研究委員会」各委員による熱心なご審議・ご検討を頂きました。また、港湾域における PM 実測調査および実船計測調査にご協力頂いた関係各所、各海運会社、オペレータ社等 関係者に対し、感謝の意を表する次第です。

平成 19 年 3 月

海 洋 政 策 研 究 財 団
(財団法人 シップ・アンド・オーシャン財団)

船舶起源の粒子状物質(PM)の環境影響に関する調査研究委員会 委員名簿

(順不同、敬称略)

委員長 平田 賢 芝浦工業大学 学長

委 員 高崎 講二	九州大学大学院 総合理工学研究院 環境エネルギー工学専攻 教授
溝畑 朗	大阪府立大学 産学官連携機構 先端科学イノベーションセンター センター長
若松 伸司	愛媛大学 農学部 生物資源学科 大気環境科学 教授
村岡 英一	(独)海上技術安全研究所エネルギー・環境評価部門 大気環境保全研究グループ 主任研究員
山崎 雅雄	(社)日本船主協会 海務部

関係者 中橋 亨	国土交通省 総合政策局 環境・海洋課 海洋室 課長補佐
上野 大輔	国土交通省 総合政策局 環境・海洋課 海洋室 専門官
高嶺 研一	国土交通省 海事局 安全基準課 専門官
三島 裕美	環境省 水・大気環境局 自動車環境対策課 課長補佐
白波瀬 道英	環境省 水・大気環境局 自動車環境対策課 環境専門調査員
藤田 昌廣	東京都環境局 環境改善部 大気保全課 規制担当係長

鈴木 潤	いであ(株) 参事
星 周次	いであ(株) 東京支社 環境コンサルタント事業部 環境技術グループ長
太田 晶久	いであ(株) 東京支社 環境コンサルタント事業部 環境技術グループ 研究員
水野 太史	いであ(株) 東京支社 環境コンサルタント事業部 環境技術グループ 研究員

事務局 工藤 栄介	海洋政策研究財団 常務理事
田上 英正	海洋政策研究財団 海技研究グループ長
西田 浩之	海洋政策研究財団 海技研究グループ長
玉眞 洋	海洋政策研究財団 海技研究グループ 調査役
華山 伸一	海洋政策研究財団 海技研究グループ 主任研究員
三木 憲次郎	海洋政策研究財団 海技研究グループ グループ長代理

目 次

1. 調査の概要	1
1.1 PMに関するシミュレーション	1
1.2 港湾域におけるPMの解析調査	2
1.3 PMの削減ポテンシャルに関する調査	3
1.4 PMの将来規制の枠組みに関する提言	3
2. 調査の背景と目的	4
2.1 背景と目的	4
2.2 調査計画の内容	5
3. 総説	7
3.1 粒子状物質(PM)の定義	7
3.2 PMの分類	7
3.2.1 発生源による分類	7
3.2.2 粒径による分類	8
3.3 健康への影響	9
3.4 我が国におけるSPM環境基準の達成状況	10
3.5 規制によるPM排出量の変化	12
3.6 PMに対する規制状況	13
3.7 PMの環境中の挙動の解析方法	14
4. PMに関するシミュレーションの概要	17
4.1 解析の内容	17
4.1.1 解析領域	17
4.1.2 解析期間	18
4.1.3 解析項目	18
4.2 一次粒子	19
4.2.1 モデルの概要	19
4.2.2 結果と考察	20
4.3 二次粒子	21
4.3.1 モデルの概要	21
4.3.2 結果と考察	23
4.4 オゾン濃度への影響	27
4.5 結論	28
4.5.1 一次粒子	28
4.5.2 二次粒子	28
4.5.3 オゾン濃度への影響	28
4.6 今後の検討課題	30
5. 港湾域におけるPMの調査解析の概要	31
5.1 大気中PM調査	31
5.1.1 調査概要	31
5.1.2 調査結果の概要	33
5.2 発生源別寄与の考察	39
5.3 船舶排気PM調査	42
5.3.1 調査概要	42
5.3.2 調査結果	43
5.4 各種発生源の成分組成の検討	44

5.4.1 発生源別成分組成の検討	44
5.4.2 発生源別成分組成のクラスター分析	45
5.5 今後の検討課題	52
6. PMの削減ポテンシャルに関する調査	53
6.1 PM発生要因と対策	53
6.1.1 PM発生要因	53
6.1.2 PM測定方法と組成	55
6.1.3 PM削減技術の基本的な考え方	57
6.2 PM削減技術	58
6.2.1 機関における対応	58
6.2.2 燃料対応	59
6.2.3 後処理技術	59
6.2.4 PMの削減ポテンシャルのまとめ	65
7. PMの将来規制の枠組みに関する提言	66
7.1 我が国の陸上におけるPM規制の概要	66
7.1.1 固定発生源から排出されるばいじんの排出規制	66
7.1.2 オンロード及びオフロード・ディーゼル・エンジンに対する規制	66
7.1.3 船舶機関に対する既存の規制	67
7.2 国際海事機関(IMO)などにおける船舶排ガス規制の最新動向	68
7.3 海外におけるIMO以外の船舶規制の動き	72
7.4 初年度調査のとりまとめ	74
資料編 I	000
資料編 II	000
資料編 III	000

1. 調査の概要

本調査では PM に関するシミュレーションおよび港湾域における PM の調査解析などを行い、わが国周辺地域における船舶から排出された PM の影響を把握した。調査の概要は以下のとおりである。

1.1 PM に関するシミュレーション

調査方法	東アジア域の外洋を航行する船舶の排ガスに起因する PM の影響を把握するため、既存の移流・拡散モデルを用いてシミュレーションを実施し、船舶から粒子として排出される一次粒子と、ガスとして排出された NOx、SOx が大気中で化学反応により粒子化した二次粒子の挙動を解析した。
調査結果	<p>①一次粒子</p> <p>船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより受ける物理サイズを持つ。このため、0-100 km の距離帶において、夏季で 60 %、冬季で 40 % 程度が海面に沈着すると推定される。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。</p> <p>②二次粒子</p> <ul style="list-style-type: none">太平洋上の航路帶から排出された SOx ガスは、比較的速やかに粒子化し、航路帶から 100 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較においても無視できる。粒子化した SO₄ 粒子は、ガス状物質に比較して遠距離まで到達する。したがって、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO₂ ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であると考えられる。太平洋上の航路帶から排出された NOx ガスは、NO₂ へ更に HNO₃ ガスにまで比較的速やかに酸化される。ただし、そこから粒子化へ進む速度は、SOx に比較して遅く、ガス状物質のままで大気中に存在する。粒子化の影響が少ないことからも、NOx の影響は SOx の影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。硫黄酸化物の乾性沈着量は、陸上では主に SO₂ ガスであるのに対して海洋上では SO₂ ガスと SO₄²⁻ 粒子は同程度である。一方窒素酸化物は陸上では主成分の HNO₃ ガスに加え NO ガスや NO₃⁻ 粒子も沈着するのに対して海洋上では HNO₃ ガスのみであり、陸上と海洋上で粒子化への影響が異なることが示唆された。
今後の課題	<p>①船舶排ガスの実状を踏まえた検討</p> <p>本調査において一次粒子のシミュレーションに用いた粒径は、良質な燃料を使用していると想定し 0.3 μm と設定している。しかし実際に運航している船舶では、380 cSt 程度の低質燃料が用いられており、実際にはこの粒径と異なる可能性がある。そのため、船舶からの一次粒子の粒径や排出量について、実際に運航している船舶での実状を踏まえて検討する必要がある。</p> <p>②近年の陸上排出量推移を踏まえた検討</p> <p>本調査においては、陸上の人為起源の排出量は 2000 年をベースとして設定しているが、近年は、たとえば中国などでは SOx は減少傾向だが NOx は増加している可能性があるなど、排出量の変化が大きいと考えられるため、近年の排出量の推移を踏まえた検討を行う必要がある。</p> <p>③一次粒子の詳細な 3 次元モデルによる検討</p> <p>一次粒子の影響をブルームモデルにより検討したが、長距離の評価に用いるには限界がある。そのため、簡易的に 3 次元モデルによる試算を行ったが、さらに湿性沈着等の詳細な過程を含んだ詳細な 3 次元モデルを用いた検討を行う必要がある。</p>

1.2 港湾域における PM の解析調査

調査方法	近年、船舶起源 PM の大気中での寄与率が相対的に増加していることが懸念されている。港湾周辺の大気環境に及ぼす船舶起因の微小な PM の寄与について検討するため、横浜港周辺において PM を採取して成分分析を行った。調査は大気環境 PM 調査を夏季に 2 地点、また船舶排気 PM 調査を停泊・荷役中のコンテナ船で実施した。
調査結果	<p>①大気中 PM 調査</p> <p>PM 中に占める主な成分割合は、炭素成分が 20 %前後、硫酸イオンが 25~28 %前後、アンモニウムイオンが 10 %前後であった。なお、質量濃度から分析対象成分の濃度を差し引いたその他不明分の割合が高く 30~36 %であった。</p> <p>環境省が関東地域 3 地点で実施した調査結果と比較すると、本調査ではその他不明分の割合が高くなっていた。また、成分を比較すると、本調査では環境省調査結果に比べて硫酸イオンがかなり多くなっていた。一因として、フィルターに捕集された硫酸イオンが高湿度によって潮解し、水分を吸収したことが考えられる。</p> <p>②発生源別寄与の考察</p> <p>平成 17 年版神奈川県の調査、および平成 16 年度の東京都の調査などから、大規模な港湾に面する地域における船舶からの一次粒子の PM 寄与率として 10 %あるいはそれ以上、二次粒子も含めた PM 寄与率としてはさらに多くなる可能性がある。</p> <p>③船舶排気 PM 調査</p> <p>船舶排気 PM の成分は SO_4^{2-} が最も多く 4 割近くを占め、次いで OC 約 24 %、EC 約 16 % の割合であった。</p> <p>成分分析結果中イオン成分の Ca^{2+} と金属として分析した Ca とで 10 倍以上の濃度差が見られたが、船舶排気には自動車排ガスと比較して潤滑油に Ca が多く含まれており、そのことが Ca 含有率を高めている可能性がある。</p> <p>④各種発生源の成分組成の検討</p> <p>本調査において作成した船舶から排出される成分組成を、他の発生源の成分組成と比較し、発生源間の分類が明確になされるかどうかについて検討したが、船舶と石油系燃料ボイラーよりの発生源間の分類が明確でないなどの問題が残った。</p>
今後の課題	<p>本年度調査は、横浜港周辺 2 地点における PM 現地調査と船舶排気 PM の調査を行い、それに基づいて発生源寄与率の試算を行った。しかしながら、環境大気中の PM 調査結果では、潮解現象が分析結果に影響していると考えられることや、一部のデータで既存調査結果との差が大きいなど、測定から分析段階での作業を再確認する必要があると考えられものがあった。また発生源別成分組成調査において、石油燃焼系ボイラーより船舶との区別を統計学的に明確にすることが出来なかった。</p> <p>このように、本調査結果では分析方法や、発生源情報の収集・解析などで再検討を行う必要のある項目があり、今後継続して検討していく必要がある。</p> <p>①横浜港周辺における夏季の PM 再調査</p> <p>測定手法から分析手法まで再精査し、現地調査結果の再確認を行い、これによって今年度調査結果の妥当性を確認するとともに、本年度以上に正確な PM の船舶寄与算定を目指す必要がある。</p> <p>②船舶起源の PM 成分組成の調査の継続</p> <p>本調査によって使用した船舶発生源の成分組成の精度向上を図るために、さらに船舶排ガス調査を実施する必要がある。</p> <p>③既存資料の収集</p> <p>発生源の成分組成については、特に石油系燃焼ボイラーよりの油種が本調査で使用した成分組成よりも質の高いものに変化している可能性があり、新たな成分組成を設定することによって船舶発生源の成分組成との差を明確にできる可能性があると考えられる。このため、引き続き石油系燃焼ボイラーよりの発生源の成分組成について既存資料の収集に努めていく必要がある。</p> <p>また、船舶排気データ情報の収集・整理、CMB 解析結果情報の収集・整理などを実施し、船舶からの寄与率算定結果の精度向上に努める必要がある。</p>

1.3 PM の削減ポテンシャルに関する調査

調査方法	削減技術のレビューとその評価を行い、既存データの整理及びメーカーへの聞き取りなどを行った。
調査結果	<p>低質燃料の使用を前提にした現在の状況では、硫酸ミストと凝集物および大気中で生じる二次粒子が、環境に影響を与える PM の大きな割合を示しており、これに対して一次粒子(いわゆるディーゼル粒子)の影響が相対的に少ないことには疑いない。このような現状では、低硫黄分をもつ良質燃料への転換が排出ポтенシャルとしても最も効果があるが、地域の特性、燃料切り替え時における安全性や燃料供給体制の確保など規制の実効性、などを総合的に考える必要がある。</p> <p>燃料転換を除いた削減技術としてポテンシャルをもつのは、①NOx 排出にも留意した燃焼改善技術、②燃料に対応した潤滑油の使用およびその供給システム、③排水による環境影響に留意した上での海水スクラバーの使用などであると考えられるが、いずれもコスト以前に技術的な困難さなどもあり、仮に対象を補機に限定したとしても、実用性までに開発しなければいけない課題が多くある。</p>
今後の課題	本年度調査は、2 年計画の初年度として、既存の処理技術および測定方法を整理した。次年度については、削減可能量とその際に期待できる大気環境改善効果について、定量的な解析を進める必要がある。

1.4 PM の将来規制の枠組みに関する提言

調査方法	IMO における付属書VI改正作業が行われた MEPC、BLG および BLG 中間会合、国際学会のなどに出席し、各国の PM 規制に対する考え方や地域規制について情報を収集した。
調査結果	<p>欧米各国においても、我が国と同様に PM 大気環境は高濃度が常態化した劣悪な状況にあり、またこの状況には二次粒子が大きく寄与していることが判明した。他方、陸上の発生源に対しては、二次粒子の削減の効果を意図して、良質燃料の使用を推奨したり、燃料中硫黄分を積極的に削減する動きがあることがわかった。</p> <p>また、本事業の成果のうちシミュレーション結果および解析結果について、BLG 中間会合にて発表を行い、その解析結果については各国科学者から高い評価を得た。</p>
今後の課題	<p>「船舶 PM 規制については、特に燃料中硫黄分から生じる二次粒子の削減を優先させるべき」という基本的な規制の考え方は、各国および IMO のワーキンググループ議長の同意を得られつつある。</p> <p>今後は、更に具体的な規制の枠組みについて、環境改善効果を含めて総合的に検討する必要がある。</p>

2. 調査の背景と目的

2.1 背景と目的

船舶からの排気ガスに含まれる粒子状物質(Particulate Matter; 以下 PM)については、平成 17 年 5 月に発効したマルポール 73/78 条約付属書 VI(船舶の環境汚染防止のための国際条約のうち、窒素酸化物(NOx)、硫黄酸化物(SOx)など大気汚染物質に関する排出規制を定めた付属書)において規制の対象にはなっていない。しかしながら、国際海事機関(International Maritime Organization; IMO)においては、平成 18 年 4 月から開始された同付属書の改正作業において、PM 規制の可否についての検討が始まっている。また、我が国においても、一部自治体で港湾付近における PM 対策を検討していることなどから、船舶に起因する PM については早急に実態を把握するとともに対応を検討する必要がある。

PM は、ディーゼルエンジンから排出時に粒子として排出される一次粒子(黒い粒子と呼ばれる)と、ガスとして排出された NOx、SOx などが大気中で光化学反応により固体化する二次粒子(白い粒子と呼ばれる)に大別できる。両者は、粒径、化学組成などが異なることから、大気中での寿命や挙動、健康影響の度合いも様々である。

船舶起源の PM の環境影響については、NOx、SOx に比較して、情報量が少ない。特に、二次粒子の生成とその環境への影響については、国内だけでなく欧州の港湾などにおいても無視できないと言われており、実態に基づく規制政策を提案することで国際的にも大いに貢献することが可能である。

そこで本事業では、船舶起因の PM の環境影響について現地データなどに基づいた調査・解析を行い、将来的な規制の必要性を判断し、またその具体的削減方法の検討を実施し、船舶排ガスの将来規制のあり方について提言を行うことで、大気環境改善を通じて、我が国の海運、造船、及び造船関連工業の持続的発展に寄与することを目的とする。

2.2 調査計画の内容

調査は平成 18 年度から 2 年計画とし、このうち平成 18 年度には、特に港湾周辺の大気環境に及ぼす船舶起因 PM の寄与について検討を行った。すなわち、一次粒子に関する現地調査を行うとともに、排ガス中の一次粒子の粒径分布の既存測定データなどから、一次粒子を中心に解析を行いこれらの寄与分についてまとめ、シミュレーション結果とともに規制の必要性に関して港湾大気環境サイドからの提言を行うため、以下を実施した。

(1) 船舶起因の PM の大気環境に対する影響の調査

① PM に関するシミュレーション

海洋上および港湾付近における既存のモデルの調査や、入力データの整備を行い、二次生成モデルを使用して船舶からの影響について予備的な計算を実施した。

② 港湾域における PM の調査解析

影響が懸念される横浜港周辺において PM を採取した。成分分析などからその一次粒子(発生源から PM の状態で排出された粒子)および二次粒子(発生源からはガス状物質として排出され大気中で固体に変換した粒子)の組成割合と粒度分布を実測した。また一次粒子の由来について、成分分析結果に基づき解析した。

(2) PM の削減ポテンシャルに関する調査

削減技術のレビューとその評価を行い、既存データの整理およびメーカーへの聞き取りなどから、(1)の影響が PM 一次粒子の対策によって、どの程度削減できるかの評価を行った。

(3) PM の将来規制の枠組みに関する提言

情報収集および成果の発表の場として IMO など国際会議および国際学会に出席し、上記成果および PM 規制の必要性に関して欧米諸国と議論を行った上で、PM の将来規制の枠組みに関して提言を行った。

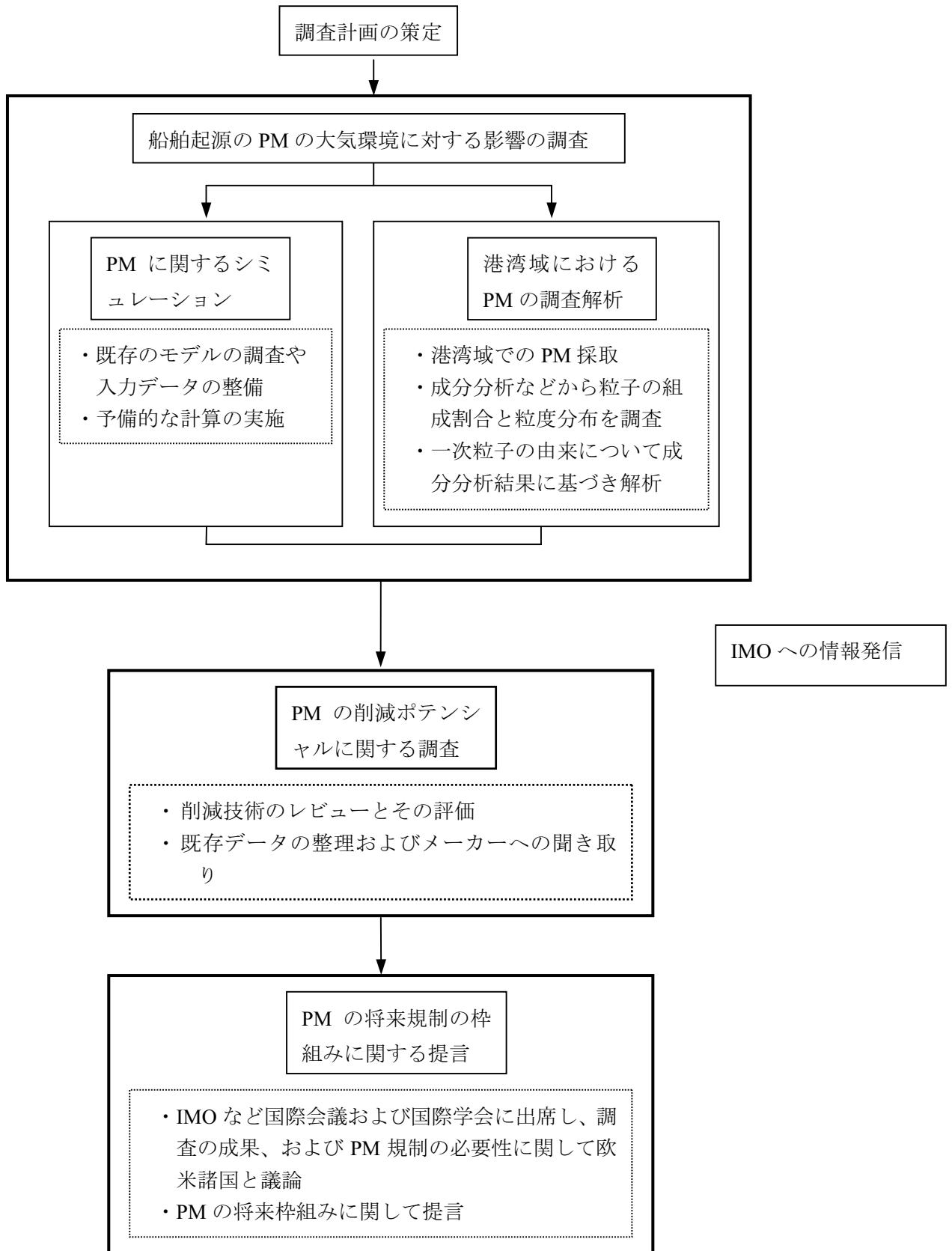


図 2.2-1 本調査のフロー図

3. 総説

3.1 粒子状物質(PM)の定義

大気汚染物質は、気体である SO_x(硫黄酸化物)、NO_x(窒素酸化物)などのガス状物質と、大気中に浮遊する PM に大きく分かれる。このうち PM(Particulate Matter : 粒子状物質)は大気中に固体または液体の形で浮遊する微小な粒子である。

また、PM の発生源には様々なものがあり、発生過程によって粒径(粒子の大きさ)や化学組成などが異なるため、大気中の挙動、寿命など大気環境への影響や健康影響について、未知な点も多い。

3.2 PM の分類

3.2.1 発生源による分類

発生源・生成機構によるPMの分類を表 3.2-1に示す。

大気中の PM の起源は様々であり、発生源からみた場合は、燃料などが燃焼する過程で排出されるばいじん(いわゆる「すす」)のような人為起源のものと、土壤や海塩粒子のような自然起源のものとに分類される。また、生成機構の違いからみた場合は、粒子として大気中に直接排出される一次粒子と、ガス状物質として排出された SO_x、NO_x、VOC(volatible organic compounds : 挥発性有機化合物)から光化学反応などにより生成される二次粒子とに分類される。

本調査の対象となる船舶起源の PM についても、燃料の燃焼に伴い排出されるディーゼル黒煙などの一次粒子と、ガスとして排出された SO_x 等が大気中で粒子化して生成される二次粒子がある。船舶では燃料として硫黄分が多い重油が使われ、SO_x の排出量が多いため、船舶起源の PM は、ディーゼル車などの陸上発生源と比べると、二次粒子の割合が大きい可能性がある。

表 3.2-1 PM の主な発生源と生成機構

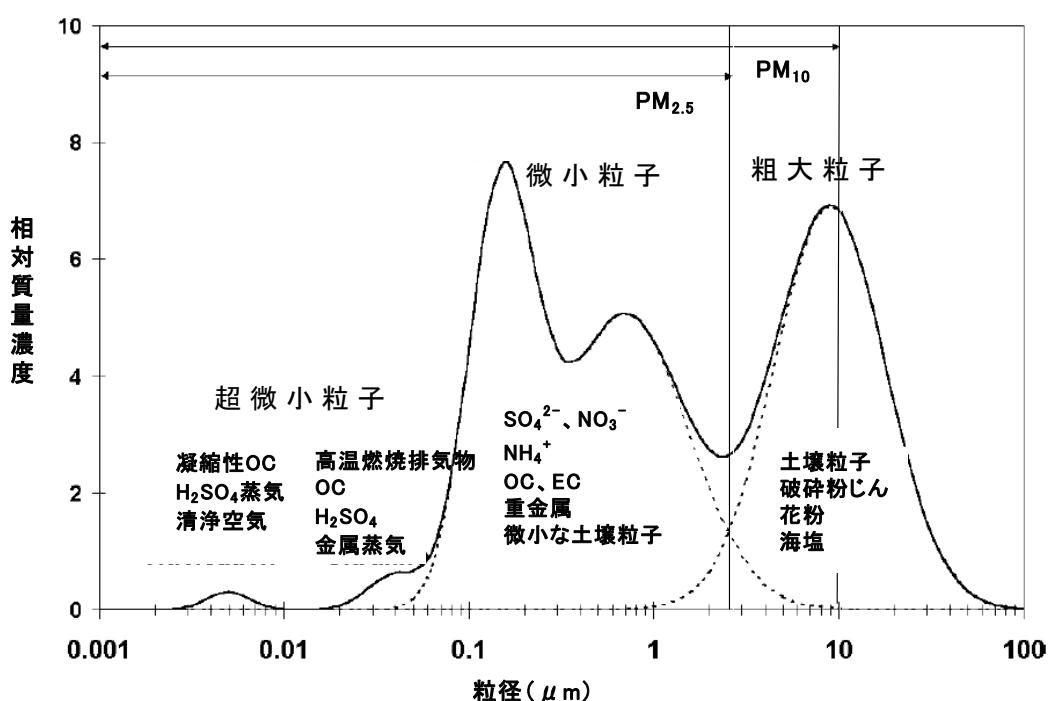
	人為起源	自然起源
一次粒子	<p>【固定発生源】 ・ばいじん、粉じん発生施設 ・一般家庭等 【移動発生源】 ・自動車 ・船舶 ・建設機械、航空機</p>	<ul style="list-style-type: none">・海塩粒子・土壤粒子・中国大陸からの黄砂・花粉・火山灰
二次粒子	<ul style="list-style-type: none">・SO₄²⁻、NO₃⁻ : 燃焼由来のSO_x、NO_xガスからの変換・VOC : 燃焼や蒸発系発生源(塗装、給油所など)由来の VOC からの変換	<ul style="list-style-type: none">・SO₄²⁻ : 火山由来のSO_xなどからの変換、海洋のDMSからの変換・NO₃⁻ : 雷放電、森林火災由来のNO_xからの変換・NH₄⁺ : 土壤などから発生するNH₃からの変換

3.2.2 粒径による分類

PMは発生源や生成機構によって粒径が異なる。PMを粒径によって区分すると、粗大粒子(おおむね粒径 2~10 μm)、微小粒子(おおむね粒径 0.1~2 μm)、超微小粒子(おおむね粒径 0.1 μm 未満)に分けられる(図 3.2-1参照)。粗大粒子は、主として機械的な力により飛散した土壤粒子や海塩粒子などの自然起源の一次粒子からなる。これに対して、微小粒子や超微小粒子(以下、両者を合わせて「微小粒子」と言う。)は、主として燃焼過程による人為起源の一次粒子や、大気中でガスが粒子化してできる人為起源・自然起源の二次粒子からなる。このため、人為起源の炭素成分、金属成分(バナジウムなど)や硫酸塩、硝酸塩などは微小粒子に多く含まれている。人為起源の微小粒子について一次粒子と二次粒子の粒径を比較すると、一次粒子の粒径のほうが大きい。一般に、粒子は粒径が大きいものほど重力によって早く落下するため、二次粒子の方が輸送距離は長くなると考えられる。また、排ガスは一次粒子のみが含まれるが、大気中では輸送過程で生成される二次粒子が加わるため、排ガスと環境大気ではPMの粒径分布は異なる。

船舶起源の PM は、燃焼過程によるものであり、一次粒子、二次粒子とともに微小粒子である。二次粒子についてはガスから生成されるため、粒径はディーゼル車と同様と考えられるが、一次粒子については使用燃料の違いが粒径に影響している可能性が考えられる。

なお、PMは、測定対象とする粒径範囲によって表 3.2-2に示すように分類される。
後述する「港湾域における PM の調査解析」においては、海外のデータとの比較、船舶起源の PM の多くが PM2.5(粒径 2.5 μm 以下)の領域に含まれることなどを考慮して、PM2.5 を対象に調査および解析の結果を記載した。



出典) John G. Watson : Visibility: Science and Regulation , Air & Waste Manage. Assoc , 52 , pp.628-713(2002).

図 3.2-1 大気中 PM の粒径別質量濃度の代表的分布

表 3.2-2 測定対象とする粒径範囲による粒子状物質の分類

種類	内容
TSP	大気環境中に浮遊する全 PM(Total Suspended Particulates)のこと。
SPM、PM10	大気環境中に浮遊する PM のうち、おおむね粒径 10 μm 以下の粒子のこと。日本では SPM (Suspended Particulate Matter : 浮遊粒子状物質)として環境基準が設定されている。
PM2.5	大気環境中に浮遊する PM のうち、おおむね粒径 2.5 μm 以下の粒子のこと。米国、カナダ、オーストラリアなどの基準値となっており、WHO からも指針値が示されている。
ばいじん 粉じん	排出時の粒子状物質の区分。 「ばいじん」は、「ばい煙」のひとつで、すすや燃えかすの固体粒子状物質のことをいう。燃焼以外から発生する固体粒子は、法的には「粉じん」として区別する。「ばいじん」、「粉じん」は人為起源から直接排出される PM であり、粒径の規定はないが、一般的には環境中の PM よりは大きな粒子を含む。

3.3 健康への影響

PM による健康影響は、PM の粒径によって異なる。一般に、粒径が 10 μm より大きい粒子は、呼吸により鼻から入っても大部分は鼻腔の粘膜に補足されるが、10 μm 以下の小さな粒子は気管に入りやすく、健康上有害な影響を及ぼす。このため、わが国では、粒径 10 μm 以下の粒子を浮遊粒子状物質(SPM)と定義し、大気環境基準の設定や大気汚染防止法による規制・監視が行われてきた。粒径 10 μm 以下の粒子を対象とした根拠は下記のとおりであり、基準値そのものは当時の知見をもとに、呼吸器系器官に対する長期的影響および短期的影響を考慮して設定されている(「浮遊粒子状物質に係る環境基準の設定について」(昭和 47 年環大企 27 号))。

- (1) 粒径 10 μm 以下の粒子は、沈降速度が小さいため大気中に比較的長期間滞留すること。
- (2) 粒径 10 μm 以下の粒子は、そのほとんどが気道又は肺胞に沈着し、人の健康上有害な影響を与えること。

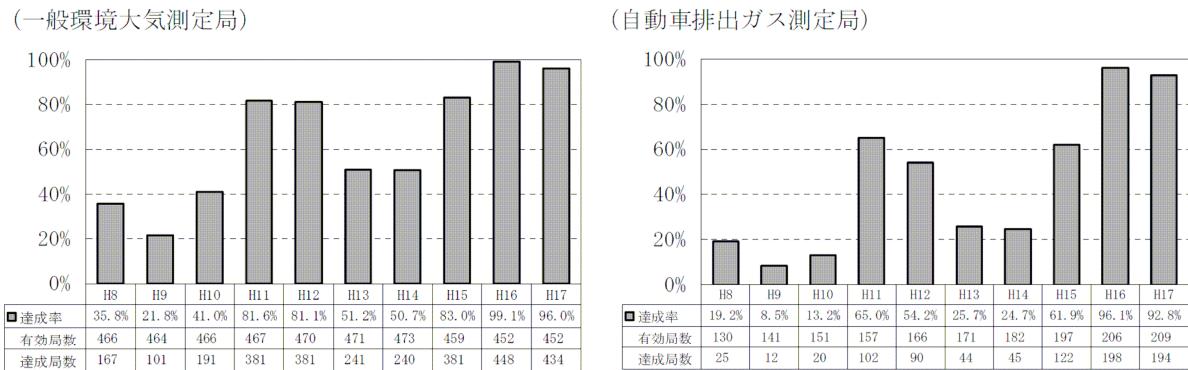
一方、その後の PM による健康影響に関する研究・知見の集積によって、PM と呼吸器系疾患や循環器系疾患、発がん性、アレルギー性喘息、花粉症等の様々な健康影響との関連性が懸念されるようになり、その原因として微小粒子が注目されるようになった。これは、粗大粒子と微小粒子の成分組成の違いと、粒径が小さい粒子ほど肺の奥に達しやすく、かつ体外から排除されにくることによる。粗大粒子は自然由来の物質が多く、人体に有害な物質が少ない一方で、微小粒子は、粒子が小さいため、気道や肺に沈着しやすく、成分組成も人為的な燃焼起源の粒子、例えばディーゼル排気微小粒子(DEP)や硫酸塩、硝酸塩などの人体に有害な物質が多く含まれている。このため、PM による健康影響は微小粒子が主な原因であり、「今後の自動車排出ガス低減対策のあり方について」(平成 12 年 11 月 1 日 自動車排出ガス専門委員会第四次報告)においても、微小粒子による発がん性、気管支ぜん息、花粉症等の健康影響との関連が懸念されるとの見解が示された。

近年は、さらに小さな領域の超微小粒子($0.1 \mu\text{m}$ 以下、図 3.2-1)による健康影響が注目されている。この領域は、ナノ粒子あるいはPM_{0.1}とも呼ばれ、粒径が小さいため肺に長く沈着する割合が高いこと、沈着した粒子は毛細血管などに入り全身に影響を及ぼす可能性があることなどの健康影響が懸念されており、生体影響や大気中の計測方法などについて日本を含め各国で研究が進められている。

3.4 我が国における SPM 環境基準の達成状況

我が国ではSPMを対象に 1972 年(昭和 47 年)に大気汚染に係る環境基準「1 時間値の 1 日平均値が 0.10 mg/m^3 以下かつ 1 時間値が 0.20 mg/m^3 以下であること」が定められている。「自動車から排出される窒素酸化物および粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法」(平成 4 年法律第 70 号)(以下、「自動車NOx・PM法」と言う。)の対象地域におけるSPM環境基準の達成率は図 3.4-1に示すとおりであり、平成 15 年度以降大きく改善されたものの、全局達成には至っていない。平成 14 年 10 月には、自動車NOx・PM法に基づいてディーゼルトラック等に対する車種規制(「3.6 PMに対する規制状況」参照)が施行されており、このようなディーゼル車に対する規制強化が平成 15 年度からのSPM濃度の改善につながったと考えられる。

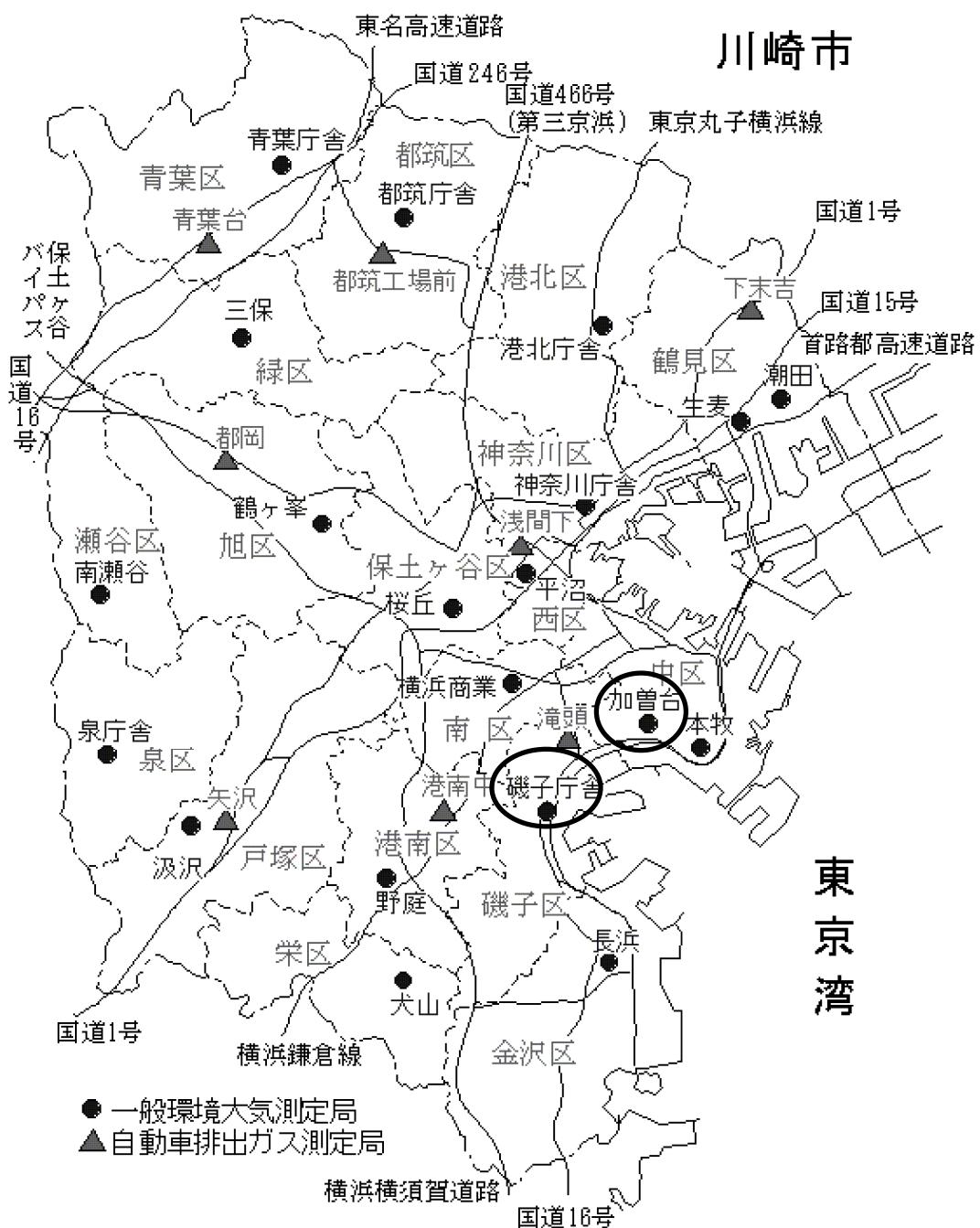
なお、SO₂(二酸化硫黄)についてはほぼ 100 %の環境基準達成率で推移しているが、NO₂(二酸化窒素)については、SPMと同様に基準を達成していない測定局があり、自動車に対する規制強化が行われている。



出典) 「平成 17 年度大気汚染状況について」(2006 年 10 月、環境省水・大気環境局)

図 3.4-1 自動車 NOx・PM 法の対象地域における SPM の環境基準達成率の推移

横浜市が市内 28 局(一般局 : 20 局、自排局 8 局、図 3.4-2参照)で行っている常時監視結果によると、平成 16 年度においては、一般局の磯子区総合庁舎を除いて環境基準が達成されている。また、一般局中で 1 時間値が環境基準 0.20 mg/m^3 を超えた局は、中区加曾台と磯子区総合庁舎の 2 局のみである(表 3.4-1、表 3.4-2)。このように、平成 16 年度においては、道路周辺に存在する自排局において環境基準が達成されているにもかかわらず、港湾の近辺において達成されていない一般局が存在した。固定発生源および自動車の規制が強化されていることを考慮すると、船舶からの寄与が近年相対的に増加している可能性が考えられる。



出典) 「平成 16 年度の大気汚染状況について」(横浜市環境創造局環境科学研究所)

図 3.4-2 横浜市による大気汚染常時監視測定局の位置

表 3.4-1 SPM の環境基準適合局数の推移

(適合局数/全測定期数)

年	平成 8	9	10	11	12	13	14	15	16
一般局	2/19	5/20	4/20	17/20	5/20	19/20	16/20	13/20	19/20
自排局	0/8	0/8	0/8	4/8	3/8	4/8	3/8	3/8	8/8

備考 一般局：一般環境大気測定局

自排局：自動車排出ガス測定局

出典) 「平成 16 年度の大気汚染状況について」(横浜市環境創造局環境科学研究所)

表 3.4-2 一般局における SPM の環境基準の達成状況(平成 16 年度)

測定局	年平均値	1 日平均値の年間 2 %除外値	短期的評価		長期的評価		
			1 時間値が 0.20 mg/m ³ を超えた時間数	日平均値が 0.10 mg/m ³ を超えた日数	2 日連続超過の有無	長期的評価による 0.10 mg/m ³ を超えた日数	環境基準の適否
	mg/m ³	mg/m ³	時間	日	日	日	適○・否×
鶴見区潮田交流プラザ	0.032	0.071	0	1	無	0	○
神奈川区総合庁舎	0.032	0.070	0	0	無	0	○
港北区総合庁舎	0.029	0.061	0	0	無	0	○
中区加曾台	0.031	0.069	3	1	無	0	○
磯子区総合庁舎	0.030	0.074	7	2	有	2	×
保土ヶ谷区桜丘高校	0.027	0.065	0	0	無	0	○
西区平沼小学校	0.027	0.063	0	1	無	0	○
金沢区長浜	0.020	0.045	0	0	無	0	○
鶴見区生麦小学校	0.030	0.068	0	0	無	0	○
中区本牧	0.029	0.059	0	0	無	0	○
戸塚区汲沢小学校	0.030	0.066	0	0	無	0	○
港南区野庭中学校	0.033	0.070	0	0	無	0	○
旭区鶴ヶ峯小学校	0.029	0.060	0	0	無	0	○
瀬谷区南瀬谷小学校	0.034	0.067	0	0	無	0	○
南区横浜商業高校	0.029	0.068	0	0	無	0	○
栄区犬山小学校	0.027	0.063	0	0	無	0	○
緑区三保小学校	0.029	0.062	0	0	無	0	○
青葉区総合庁舎	0.029	0.062	0	0	無	0	○
都筑区総合庁舎	0.027	0.060	0	0	無	0	○
泉区総合庁舎	0.029	0.066	0	1	無	0	○

備考：SPM の環境基準評価

短期的評価：1 時間値の 1 日平均値が 0.10 mg/m³以下であり、かつ、1 時間値が 0.20 mg/m³以下であること。

長期的評価：1 年間の測定を通じて得られた 1 日平均値のうち、高いほうから数えて 2 %の範囲にある測定値を除外した後の最高値(1 日平均値の年間 2 %除外値)を環境基準と比較して評価を行う。ただし、上記の方法に関わらず環境基準を超える日が 2 日以上連續した場合には非達成とする。

出典) 「平成 16 年度の大気汚染状況について」(横浜市環境創造局環境科学研究所)

3.5 規制による PM 排出量の変化

PM の排出量のうち、人為起源による PM の排出量の推定例として、神奈川県における PM 排出量の推計値を表 3.5-1 に示す。平成 17 年度推計値によると一次粒子は 5,800 トン、二次粒子は 14,440 トンであり、一次粒子が約 3 割、二次粒子が約 7 割を占めている。都市域では、一次粒子の主要な発生源はディーゼル車であったが、近年の排出ガス規制の導入により削減が進んでおり、自動車の一次粒子排出推計量は平成 9 年度の 2,960 トン(12.4 %)に対し、平成 17 年度では 980 トン(4.8 %)と小さくなっている。これは、後述するように、自動車 NOx・PM 法などによる規制の効果

である。一方、船舶の一次粒子排出推計量は平成 17 年度においても同程度と推定され、相対的に船舶からの寄与が大きくなっている。

他方、二次粒子については、平成 9 年度の 15,480 トン(65.1 %)に対し、平成 17 年度では 14,440 トン(71.3 %)、削減量は約 7 %となっており、同時期の一次粒子の削減量 30 %と比べ少ない。このように二次粒子対策は陸上発生源を含め遅れており、相対的に二次粒子の影響が大きくなっている可能性がある。

表 3.5-1 神奈川県における PM 排出量の推計値

発生源区分	平成 9 年度		平成 17 年度	
	排出量 (トン/年)	構成比 (%)	排出量 (トン/年)	構成比 (%)
一次粒子 排出量	自動車	2,960	12.4	980
	その他(工場・事業場、家庭、船舶等)	5,340	22.5	4,820
	小計	8,300	34.9	5,800
二次粒子生成量	15,480	65.1	14,440	71.3
一次・二次粒子計	23,780	100.0	20,240	100.0

出典) 「神奈川県自動車排出窒素酸化物および自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003 年 7 月、神奈川県)より作成

3.6 PM に対する規制状況

我が国では、PM に対する規制は、かつては工場・事業場に対するばいじん対策が主であったが、平成 5 年からディーゼル車に対する排出ガス規制が始まり、以降、規制値が順次強化されている。また、大都市地域において環境基準の達成率が特に低いことから、自動車 NOx・PM 法が平成 13 年に制定され、首都圏・中部圏・近畿圏の一部を対象に排出基準に適合しない車両の登録を規制する措置が導入された。このような排出規制や自動車 NOx・PM 法による規制に加え、首都圏では、条例により、自動車 NOx・PM 法の適用を受けない地域からの流入車をも含め、排出基準に適合しない自動車の運行を禁止する独自の制度が設けられている(表 3.6-1 参照)。このように自動車に対する規制は、排出規制値の設定、指定地域における全国一律規制をより厳しい上乗せ規制の設定による地域規制、さらに規制適用外の地域からの流入規制という流れで、移動発生源に対しても厳しい規制の枠組みがつくられている。

表 3.6-1 自動車 NOx・PM 法による車種規制と自治体の条例による運行規制の概要

	自動車 NOx・PM 法による車種規制	一都三県における条例による運行規制
対象地域	8 都道府県(埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県、愛知県、三重県、大阪府および兵庫県)の一部	埼玉県、千葉県、東京都、神奈川県の全域(島部を除く)
規制物質	NOx、PM	PM
対象自動車	対象地域内に車検登録されている車両	対象地域内を運行する自動車
対象車種	トラック、バス、特種車、ディーゼル乗用車	トラック、バス、特種車
規制開始時期	平成 14 年 10 月	平成 15 年 10 月

出典) 「自動車 NOx・PM 法の車種規制について」(2005 年 9 月、環境省・国土交通省)より作成

さらに、排ガス中の NOx・PM 除去のための排気後処理装置を十分に機能させるためには軽油中の硫黄分の低減が必要なことから、燃料規制が導入され、軽油中の硫黄分は 2003 年には当時の基準の 500 ppm から 50 ppm へ、さらに 2007 年からは 10 ppm へと大幅に低減される見込みである。

PM に対する規制は、国際的にも強化される方向にあり、WHO(World Health Organization : 世界保健機関)では、2006 年に PM2.5 および PM10 に対する大気質指針を初めて設定した。また、米国では 2006 年 12 月から PM2.5 のより厳しい大気環境基準が施行されている。

一方、船舶に対する規制は、「海洋汚染等および海上災害の防止に関する法律」(昭和 45 年法律第 136 号)に基づき、平成 17 年 5 月から、NOx 排出規制および燃料規制(硫黄分の規制)が導入された。これは、MARPOL73/78 条約付属書VIの内容をとりこんだものである。しかし、附属書VIにおいても PM は規制外であり、二次粒子対策に結びつく燃料規制については、実態の硫黄分 2.8 % に対して規制値は 4.5 % と高く実質的な規制効果はごく小さいと考える。

なお、IMOにおいては、2006 年 4 月から船舶に対する PM 規制の可否について検討が開始されており、国内的にも IMO の今後の動向が注目されている。

3.7 PM の環境中の挙動の解析方法

環境中の PM の解析手法として、移流・拡散モデルによる手法とリセプターモデルによる手法がある。移流・拡散モデルは、排出量データ、気象データ、拡散パラメータ、粒子の生成・変換・除去過程等を考慮した数値シミュレーションを行い、環境濃度を推定する方法である。移流・拡散モデルでは、排出量や気象条件と環境濃度との関係の検討や、将来において排出量を削減した場合の環境濃度低減への効果の検討などについて、広域でのシミュレーションが可能である。しかし、広域での排出量を正確に把握することや、粒子の生成過程を正確に再現することなどに困難が伴う。また、粒子の生成・変換過程を含んだ数値シミュレーションを狭い範囲の港湾区域に適用することは、船舶発生源に比べて他の発生源の比率が圧倒的に大きいため、船舶影響を抽出することが困難である。

一方、リセプターモデルは統計的手法により PM の発生源寄与を解析する方法であり、リセプターモデルの代表的な手法として、CMB 法(Chemical Mass Balance Method; 化学質量収支法)がある。CMB 法とは、環境中のある地点で PM を採取した場合、採取された PM が様々な発生源から排出された PM の合計であることと、発生源が特徴的な成分組成を持つことを利用し、発生源の成分組成と環境中で採取された PM の成分組成から統計的に発生源別の寄与を推定する方法である(図 3.7-1 参照)。CMB 法は比較的簡易な手法で発生源別の寄与が推定できるという利点があり、自治体や環境省の調査でよく採用されている。環境省による解析例を図 3.7-2 に示す。

CMB 法に使用する発生源の成分組成は、自動車排出ガス規制や工場等で使用する燃料油種の低硫黄化などから、近年、大きく変化している可能性がある。

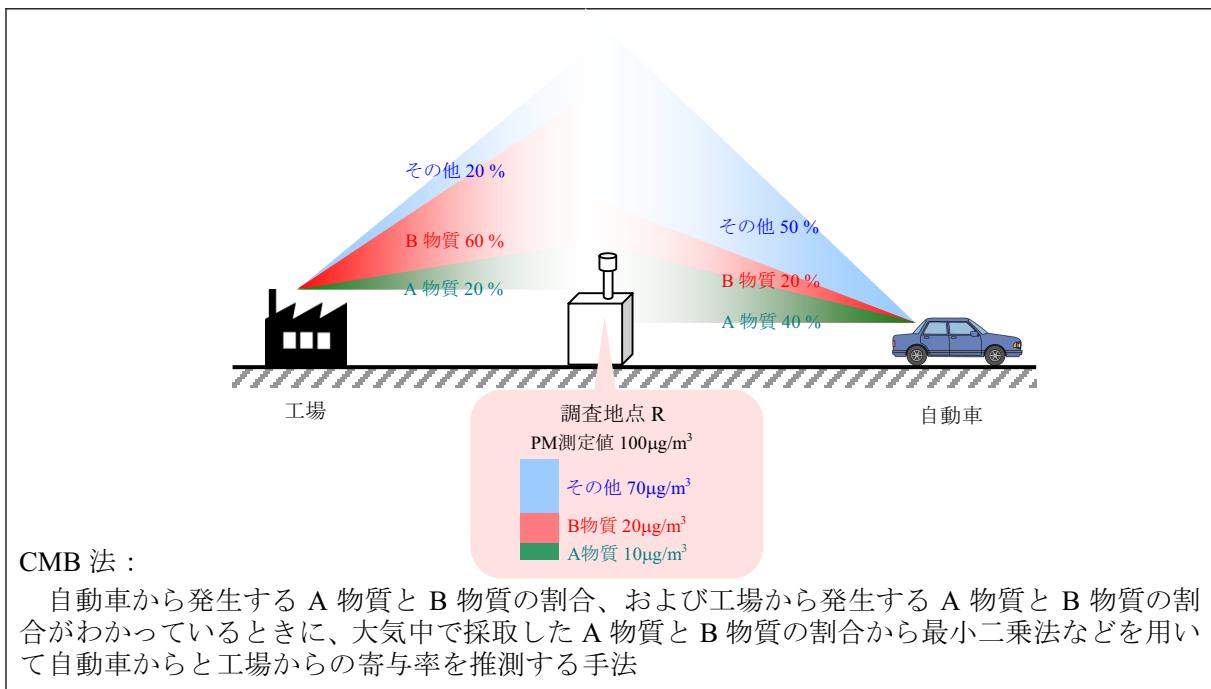
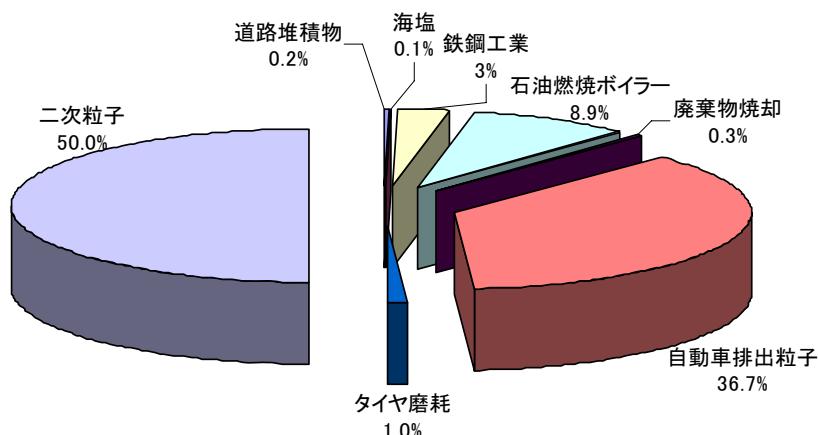


図 3.7-1 CMB 解析手法のイメージ図

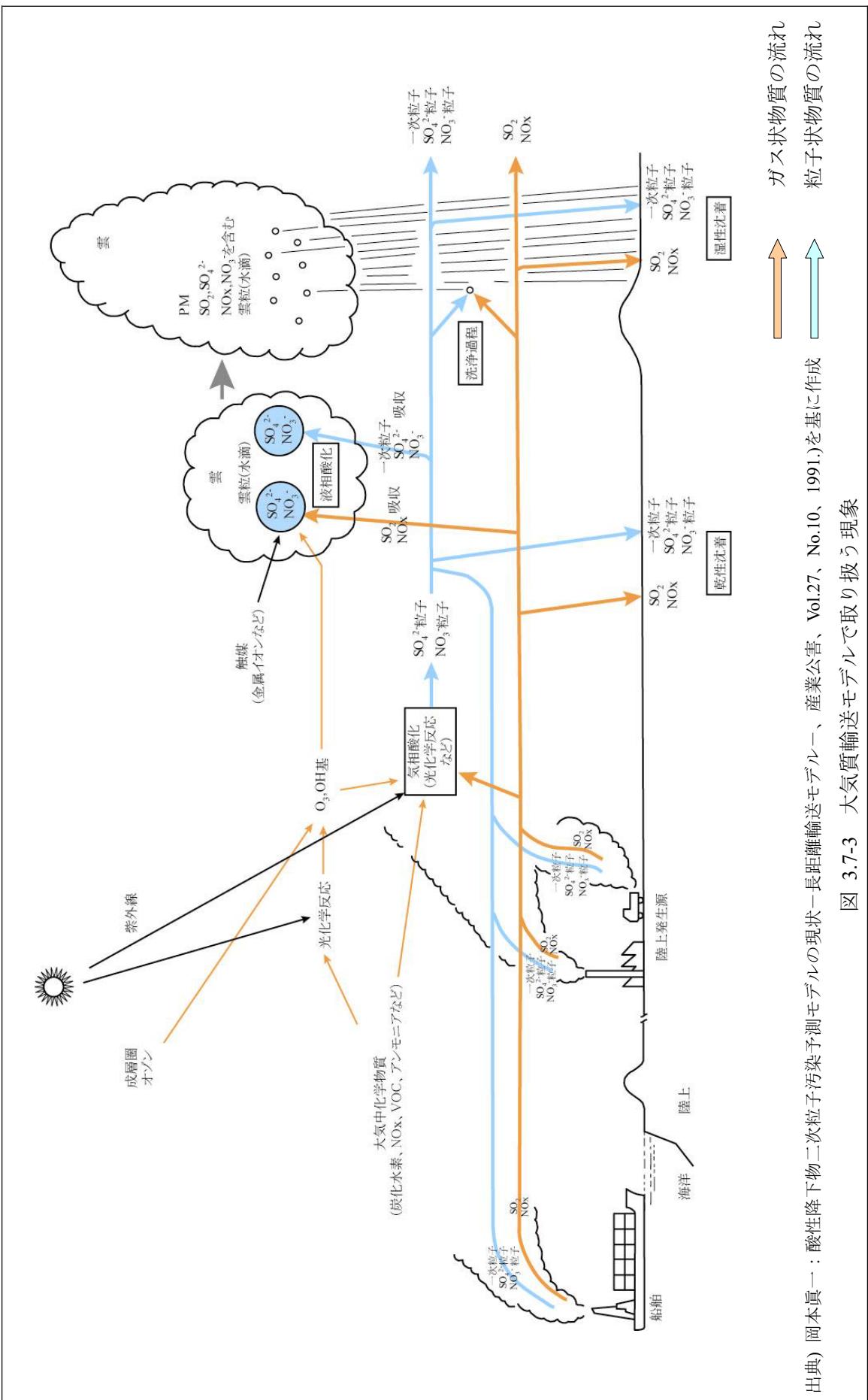


出典) 「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査 調査報告書」(2001年11月、環境省環境管理局)より作成

図 3.7-2 CMB 法を用いた微小粒子の発生源別寄与の解析例(神奈川県池上交差点)

本調査では、移流・拡散モデルによる手法を用いて、外洋を航行する船舶からのPMの長距離輸送について解析を行った。船舶起源のPMには一次粒子と二次粒子があり、両者は粒径や大気中の反応性の違いから、大気中の挙動が異なる。このため、一次粒子と二次粒子に分けて解析を行った。特に、二次粒子の解析に当たっては、大気中の様々な大気汚染物質を、汚染物質相互の影響や、ガス状物質から二次粒子生成過程などの化学反応過程、乾性沈着過程(重力による沈降や地表への衝突・吸収などにより大気から除去される過程)・湿性沈着過程(雨や雪に取り込まれて大気から除去される過程)などの物理過程を含めて取り扱うことができる広域シミュレーションモデルを用いた(図 3.7-3参照、モデルの詳細は「PMに関するシミュレーション結果」参照)。

また、広域シミュレーションモデルでは解析できない局所的なPMの影響を把握するため、港湾周辺におけるPMの環境濃度の測定、およびこれまでほとんど情報が得られていない船舶排出ガス中のPMの成分分析を行った。



出典) 岡本眞一: 酸性降下物二次粒子汚染予測モデルの現状—長距離輸送モルダー、産業公害、Vol.27、No.10、1991)を基に作成
図 3.7-3 大気質輸送モデルで取り扱う現象

4. PMに関するシミュレーションの概要

ここでは東アジア域の外洋を航行する船舶の排出ガスに起因するPMの影響を把握するため、既存の移流・拡散モデルを用いてシミュレーションを実施し、船舶から粒子として排出される一次粒子と、ガスとして排出されたNOx、SOxが大気中で化学反応により粒子化した二次粒子の挙動を解析した。

4.1 解析の内容

4.1.1 解析領域

日本近海の主要外航航路(アジア・日本・北アメリカを結ぶ航路)を含む約2,000 km × 500 kmの領域を対象として、航行船舶からのPMの大気中濃度や沈着量について航路からの距離による変化等を解析した(図 4.1-1参照)。この解析領域は、以下のことから船舶起因のPMの海洋上での挙動を把握するのに適しているため選定した。

- ①大気汚染物質排出量はほとんどが船舶発生源であること
- ②陸上発生源から離れているため陸上からの影響が小さいこと
- ③領域内のほとんどが海面であるため気候条件が海洋性であること
- ④アジア・日本・北アメリカを結ぶ主要航路であり代表性があること

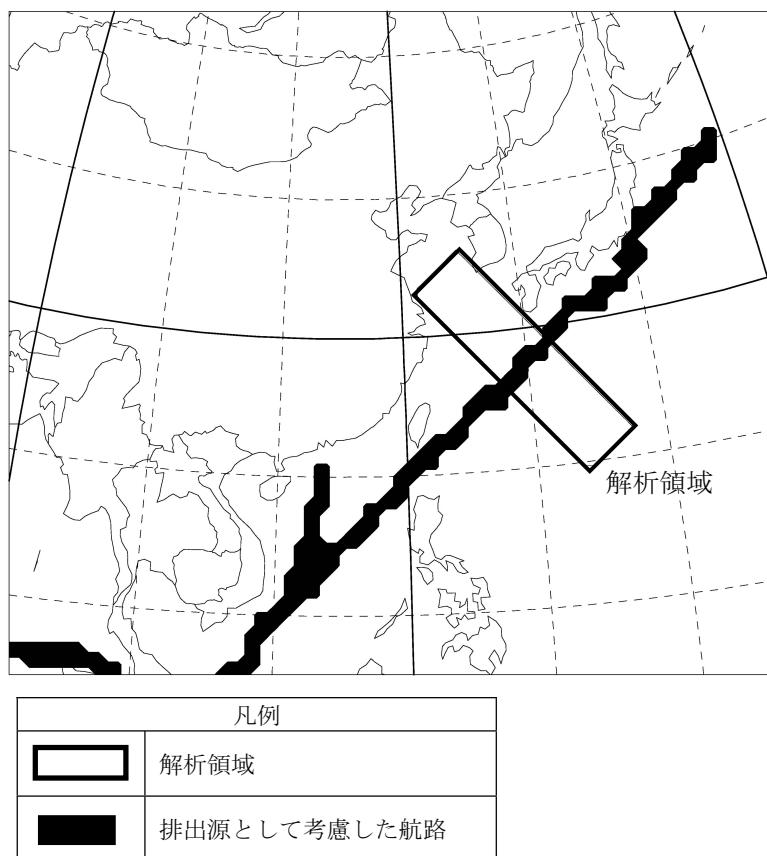


図 4.1-1 シミュレーションの解析領域

4.1.2 解析期間

風向・風速、気温・湿度、降水量などの気象条件によって船舶からのPMの影響範囲が変化すると考えられるため、夏季と冬季について解析を行った。解析期間は以下のとおりである。

夏季 2000年8月16日～31日

冬季 2000年1月16日～31日

4.1.3 解析項目

解析項目を表4.1-1に示す。

一次粒子のシミュレーションでは、船舶からのPMの代表的な成分である元素状炭素(EC)を対象として解析を行った。また、二次粒子のシミュレーションでは、船舶の排出ガスから二次生成される硫酸塩(SO_4^{2-})、硝酸塩(NO_3^-)、二次粒子の生成に関与しているガス状物質の SO_2 、 NO 、 NO_2 、 HNO_3 、 O_3 を対象に解析を行った。なお、二次粒子のシミュレーションモデル内では、解析項目とはしていないが人為起源・天然起源のVOCなども取り扱っており、解析項目との相互作用が盛り込まれている。

表 4.1-1 シミュレーションによる解析項目

一次粒子	元素状炭素(EC)
二次粒子	硫酸塩(SO_4^{2-})、硝酸塩(NO_3^-)
ガス状物質	二酸化硫黄(SO_2) 一酸化窒素(NO) 二酸化窒素(NO_2) 硝酸ガス(HNO_3) オゾン(O_3)

4.2 一次粒子

4.2.1 モデルの概要

一次粒子のシミュレーションは、広く用いられているプルームモデル^{*1}に重力沈降および海面への乾性沈着^{*2}の効果を取り入れたモデルを用いて行った。シミュレーションに用いた主な条件を以下に示す。なお、モデルの詳細は資料編Iに示す。

- ・風速

航路付近における平均的な風速として8月は6.0 m/s、1月は10.3 m/sとした。

- ・船舶排出ガス中の一次粒子の粒径

ディーゼル粒子の粒径は陸上の固定ディーゼル発生源と同程度であると仮定し、代表粒径を0.3 μmとした。

- ・乾性沈着速度

既存文献を参考に、代表粒径0.3 μmを考慮して、海面上の乾性沈着速度を0.5 cm/sと設定した。

***1 プルームモデル：**物質の移流・拡散を解析的に取り扱うモデル。大気質の計算では、大気の状態が定常・一様であると仮定して、大気汚染物質の広がりを計算するモデル。水平方向・鉛直方向の濃度の広がりは正規分布で表される。図4.2-2は、点煙源から排出されるときのプルームの概念図である。航路のような線煙源の場合は、y方向の濃度分布は一様になる。

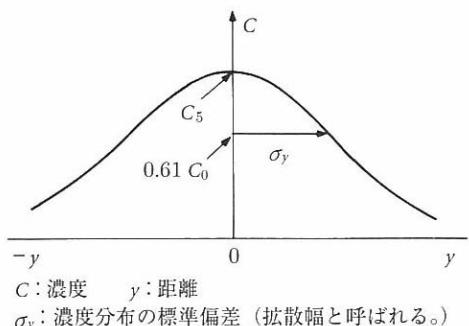


図 4.2-1 水平方向の広がり

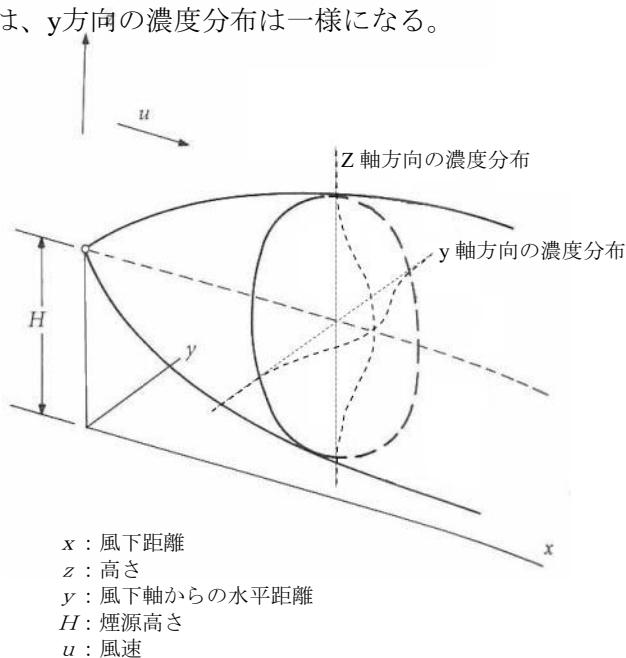


図 4.2-2 プルームモデルの概念図

出典) 「新公害防止の技術と法規 2006 [大気編]」(2006年1月、社団法人産業管理協会)

***2 乾性沈着：**重力による沈降や拡散、地表面への衝突などにより、大気からPMが除去される過程のこと。一定時間内に乾性沈着により大気から除去される量を乾性沈着速度という。

4.2.2 結果と考察

距離帯別の一次粒子の沈着量および大気中の残存量を図 4.2-3に示す。図中左端の灰色の棒グラフは計算期間中に排出された一次粒子の総量を示しており、航路帯からの距離帯別に海面への沈着量を斜線、大気中の残存量を白色で示している。なお、大気中の残存量(白色部分)は、排出量から沈着量を差し引いた値であり、その距離帯からより遠方へ輸送される粒子も含んでいるため、実際的一次粒子の大気中濃度は、非常に小さな値となる。船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより大きく受ける物理サイズを持つ。このため、航路からの距離が 0~100 km 帯では、排出ガス量に対する沈着量の割合は夏季で約 6 割、冬季で約 4 割となっている。後述する硫黄酸化物や窒素酸化物の二次粒子の乾性沈着速度は 0.1~0.2 cm/s程度であり、二次粒子よりも早く海上に沈着することを示している。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。また、0~1,000 km 帯では夏季で約 8 割、冬季で約 7 割が沈着している。なお、ここでは湿性沈着を考慮していないので、実際に期待できる沈着量はさらに大きいと考えられる。

なお、二次粒子のシミュレーションと同様の 3 次元モデルを用いて試算した結果では、船舶航路からの距離が 0~1,000 km 帯において、排出ガス量に対する沈着量の割合は夏季で約 6 割、冬季で約 3 割であり、ブルームモデルによる計算結果と同様に二次粒子よりも早く海上に沈着することを示している(資料編 I 図 4.6-2 参照)。ただし、この 3 次元モデルは検討段階のものであり、今後も精査が必要である。

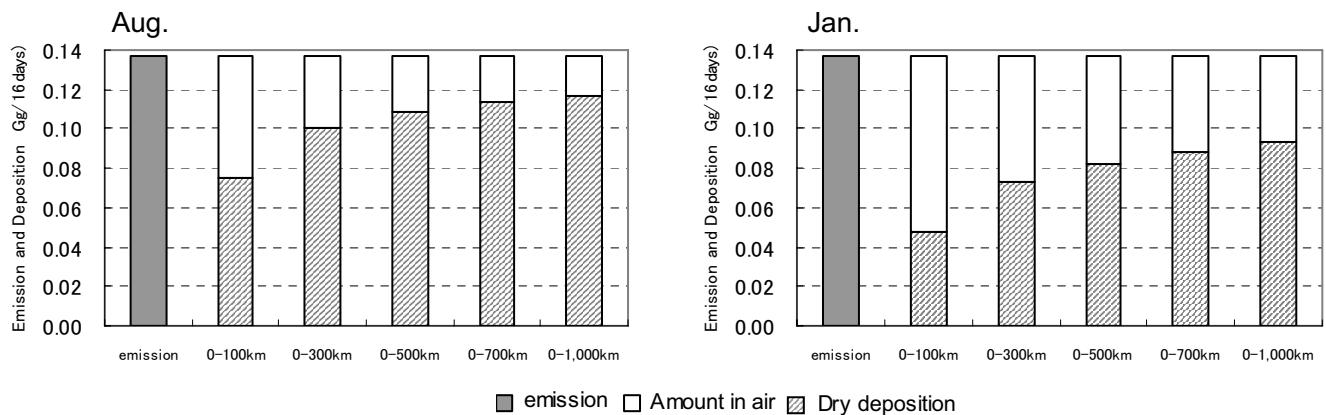


図 4.2-3 一次粒子の距離帯別存在量・乾性沈着量

4.3 二次粒子

4.3.1 モデルの概要

船舶から排出されたガス状の大気汚染物質は、化学反応等により粒子化し、一次粒子より広範囲に影響を及ぼすことが考えられる。このため、ガス状物質およびガス状物質から粒子化した二次粒子についてシミュレーションを行った。

シミュレーションに用いたモデルは、ガス状物質から二次粒子への生成過程を組み込んでいる大気質輸送モデルのCMAQ^{*3}を用いた。CMAQの計算に必要な気象条件はRAMS^{*4}のシミュレーション結果を用いた。なお、今回の検討には、九州大学応用力学研究所(鵜野研究室)によるRAMS/CMAQ連携システムの計算結果を活用した(図 4.3-1参照)。

ここで用いた CMAQ は米国やヨーロッパで多く用いられているモデルである。また、RAMS/CMAQ 連携システムはすでに数多くの論文として発表されて信頼を得ているシステムであり、システムを用いた計算結果については、日本周辺での大気の清浄な地点(利尻、竜飛、八方、隠岐、辺戸、小笠原等)の観測結果と対比して検討され、良い再現性のあることが確認されている。

計算に用いた船舶および東アジア域の大気汚染物質排出量は、人為起源・自然起源を含めて、2000 年をベースとして算出された値を用いている。

なお、本調査では船舶の影響を、船舶起源の他に人為起源・自然起源を含めた計算結果(①)から、船舶起源を除いた人為起源・自然起源の計算結果(バックグラウンド濃度^{*5} : ②)を引いて求めている(①-②)。そのため、バックグラウンド濃度が清浄である外洋上では、付加された船舶排出ガスが環境中の汚染物質を消費する反応が進む場合もあるため、船舶の影響(①-②)が負として計算されることもある。

*3 RAMS : RAMS(Regional Atmospheric Modeling System)は、コロラド州立大学で開発された3次元気象モデルであり、温度、水蒸気、風速・風向、降水、降雪、雲などの気象成分の時間変化をシミュレートできるモデルである。

*4 CMAQ : CMAQ(Community Multiscale Air Quality model)は、アメリカ環境保護庁(EPA)が1998年に発表した大気シミュレーションモデルで、大気中の様々な大気汚染物質を、汚染物質相互の影響も含めて同時に取扱うことが可能である。モデル内では、物質の輸送・拡散過程に加えて、ガス状物質同士の相互反応や光による反応を取り扱う気相反応過程、ガス状物質から二次粒子へ生成過程を取り扱うエアロゾル過程、雲中の雨滴内や雨滴とガス状物質との反応を取り扱う液相反応過程などの化学反応過程と、ガスや粒子が大気から地上へと沈着する乾性沈着過程や降水によってガスや粒子が大気から地上へと沈着する湿性沈着過程などの物理過程を含めて取り扱っている。広域での大気汚染シミュレーションが可能なモデルである。

なお、今回用いたバージョンのCMAQでは、SO_x・NO_xと海塩粒子の反応は取り扱っていない。

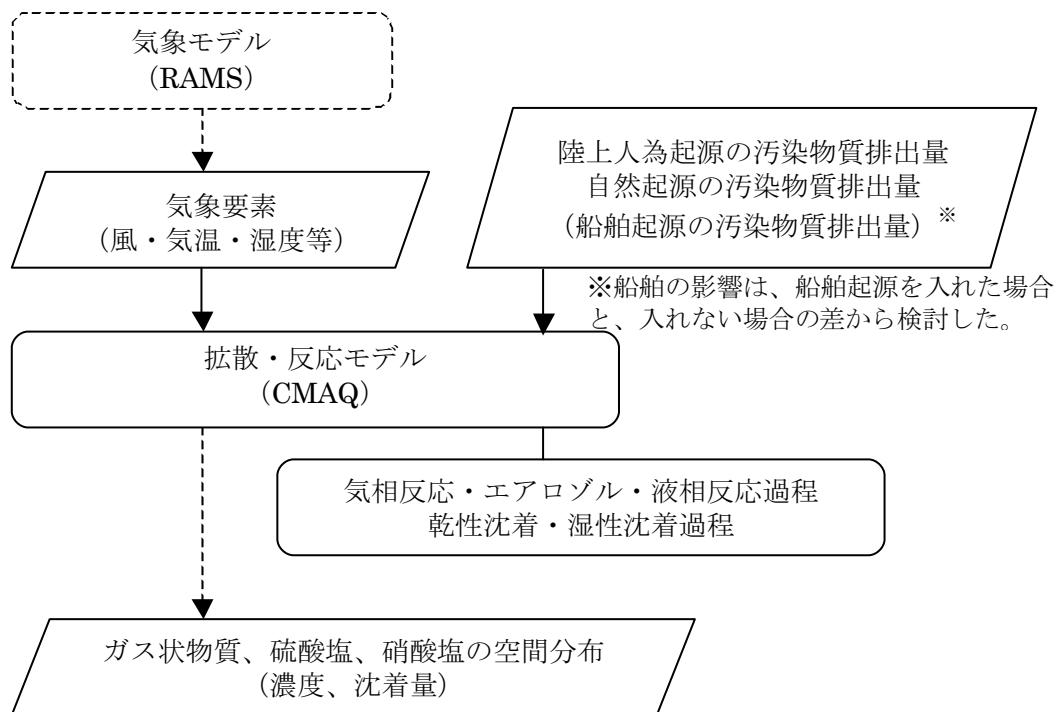


図 4.3-1 RAMS/CMAQ 連携システムの概要図

*5 バックグラウンド濃度：一般にバックグラウンド濃度は、注目している発生源以外の影響によって決定される濃度や自然界にバックグラウンドとして存在している濃度という意味で使用されることが多い。本調査では、船舶排出源の影響に注目しているため、船舶以外の人為起源の発生源と自然起源の発生源からの影響をバックグラウンド濃度と定義した。

4.3.2 結果と考察

(1) 硫黄酸化物

(a) 距離帯別の大気中濃度

硫黄酸化物の距離帯別の大気中濃度は図 4.3-2に示すとおりである。図中の SO_2 はガス状物質、 SO_4^{2-} はガス状物質から生成された二次粒子である。

SO_2 の大気中濃度は、航路帯から 100 km以上離れるとかなり低くなっている。これは大気の拡散によって薄められたためと、二次粒子への粒子化が促進されたためであると考えられる。

また、 SO_2 は 8 月より 1 月に若干高く、 SO_4^{2-} は 1 月より 8 月に高くなっている。これは、1 月と比べて 8 月は二次粒子 SO_4^{2-} への粒子化がより促進されたと考えられ、大気中の湿度が高いことや、一般に夏は冬に比べて光化学反応が進み OH ラジカル^{*6}などの活性物質がより増加したことなどのためと考えられる。

図 4.3-2 は粒子化した SO_4^{2-} 粒子がガス状物質に比較して遠距離まで到達することを示しており、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO_2 ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であることを示唆している。

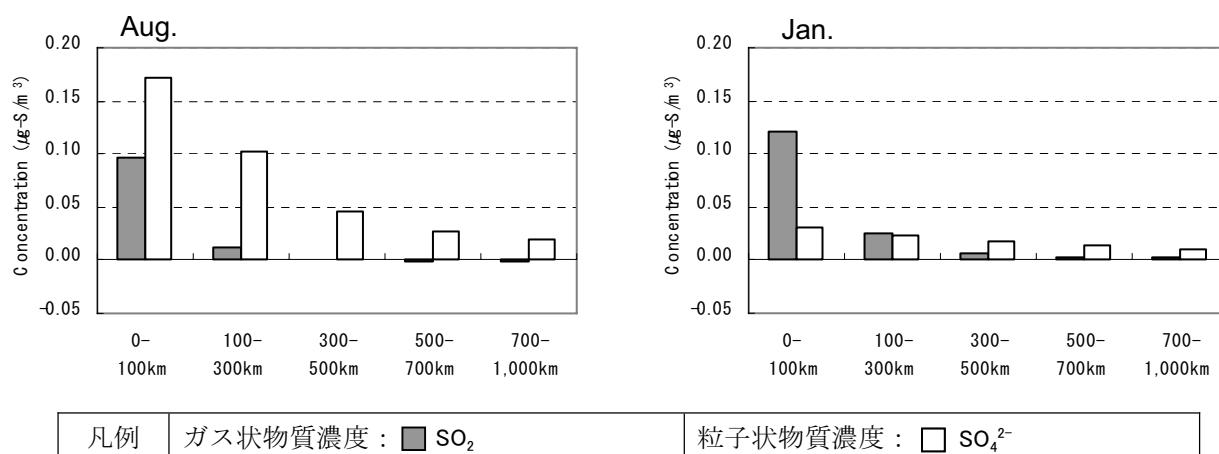


図 4.3-2 硫黄酸化物の距離帯別の大気中濃度

*6 OH ラジカル：水分子から一つ水素原子が分離して酸素原子一つと水素原子一つから成る構造をしており、他の物質と反応しやすく、 SO_2 ガスを HSO_3 に、 NO_2 ガスを HNO_3 ガスに変換させる。OH ラジカルによって変換した HSO_3 は、 SO_3 を経由して粒子状の硫酸ミスト・硫酸塩となる。 HNO_3 は、 NH_3 などと反応して硝酸塩となる。

(b) バックグラウンド濃度との比較

ここでは、船舶起源を除いた人為起源と自然起源のみの排出量を用いて計算した結果をバックグラウンドとし、バックグラウンド濃度と船舶排出ガスの寄与濃度との比較を行った。

バックグラウンドの大気中濃度は図 4.3-3に示すとおりである。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

バックグラウンドの SO_4^{2-} の減衰率は船舶からの SO_4^{2-} の減衰率に比べて小さいが、これは陸上発生源の排出量が大きく、700-1,000 km帶では陸上からの影響を大きく受けているためである。

バックグラウンド濃度に対する船舶排出ガスの寄与率は図 4.3-4に示すとおりである。

船舶による大気中濃度の寄与率は、航路帯付近ではやや大きいが、比較的速やかに粒子化し、航路帯から 100 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は絶対値としてもバックグラウンド濃度との比較においても無視できるほど小さくなっている。

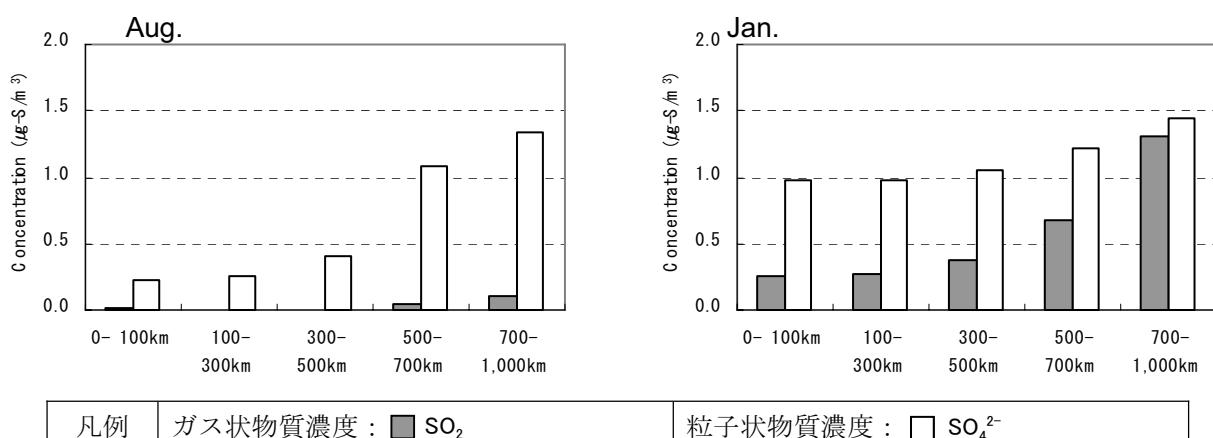


図 4.3-3 バックグラウンドにおける硫黄酸化物の距離帯別の大気中濃度

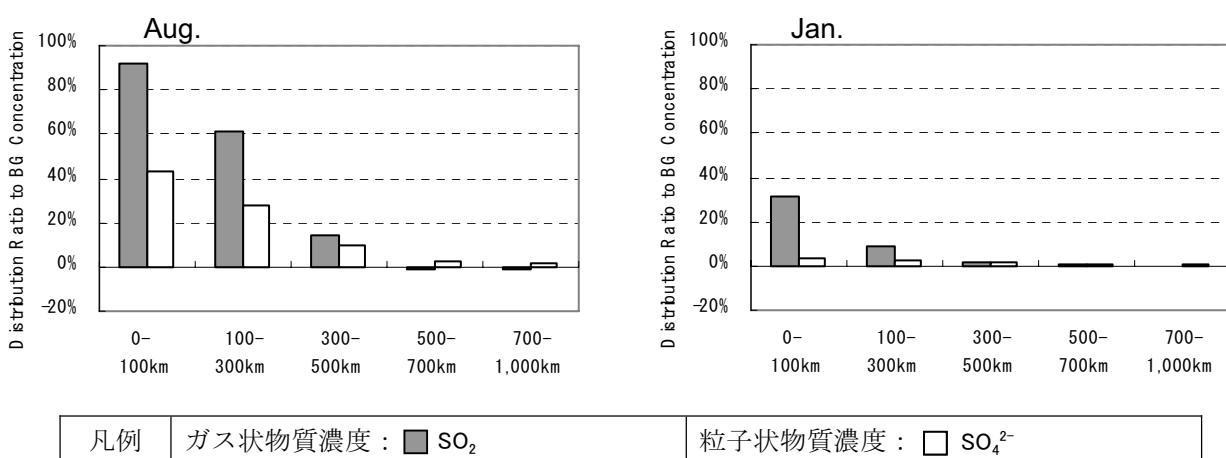


図 4.3-4 バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(硫黄酸化物)

(2) 硝酸物

(a) 距離帯別の大気中濃度

窒素酸化物の距離帯別の大気中濃度は図 4.3-5に示すとおりである。図中のNO、NO₂、HNO₃はガス状物質、NO₃⁻は二次粒子である。

図は、NOを主成分とする排出ガスは人体に有害なNO₂へ、更にHNO₃ガスにまで比較的速やかに酸化されていること、しかし、そこから粒子化へ進む速度はSOxに比較して遅く、ガス状物質のままで大気中を挙動することを示している。

海上ではNH₃はほとんど発生せず、また陸上起源のNH₃は海上に輸送されてくるまでに陸上起源のSO₂やNOxの粒子化に消費されている。このため、船舶起源のSO₂やNOxの粒子化に必要なNH₃が十分になく粒子化が促進されないため、粒子状物質のNO₃⁻がほとんど存在しない。ただし、SO₄はHNO₃よりも沸点が低く液滴となる蒸気圧(濃度に比例)も低いため液滴となりやすく、大気中でNH₃がなくとも硫酸ミストとして単体で粒子化していると考えられる。

また、8月にHNO₃が多いのは、気温が高いことや日射量が多いために気相反応がより進むためと考えられる。

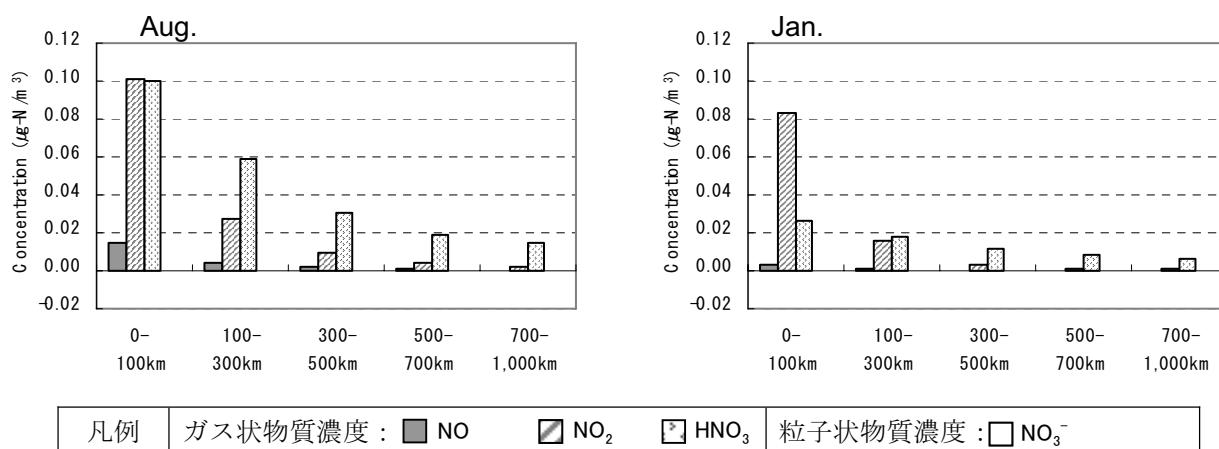


図 4.3-5 硝酸物の距離帯別の大気中濃度

(b) バックグラウンド濃度との比較

バックグラウンドの大気中濃度は図 4.3-6に示すとおりである。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

窒素酸化物についても硫黄酸化物と同様に陸上発生源の排出量が大きいため、中国大陸に近い 700-1,000 km 帯では陸上からの影響を大きく受けていることがわかり、特にNO₃⁻は陸上からの影響を大きく受け易い冬季にはバックグラウンド濃度が高くなっている。

次にバックグラウンド濃度に対する船舶排出ガスの寄与率は図 4.3-7に示すとおりである。図では大気中のガス状物質(NO、NO₂、HNO₃)は 0-100 km 帯の船舶発生源を含む地域ではバックグラウンド濃度とほぼ同等であるが、船舶発生源から離れた地域ではバックグラウンド濃度のほうが圧倒的に多くなっており、300 km 以上離れた地域では船舶排出ガスの影響は無視できるほど小さいと考えられる。

粒子化の影響が少ないとからも、NO_xの影響は SO_xの影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。

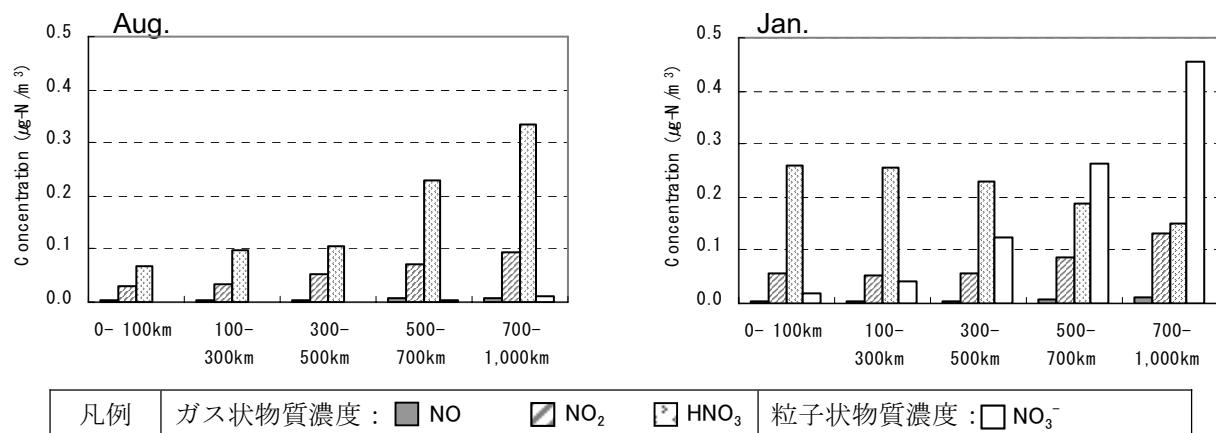


図 4.3-6 バックグラウンドにおける窒素酸化物の距離帯別の大気中濃度

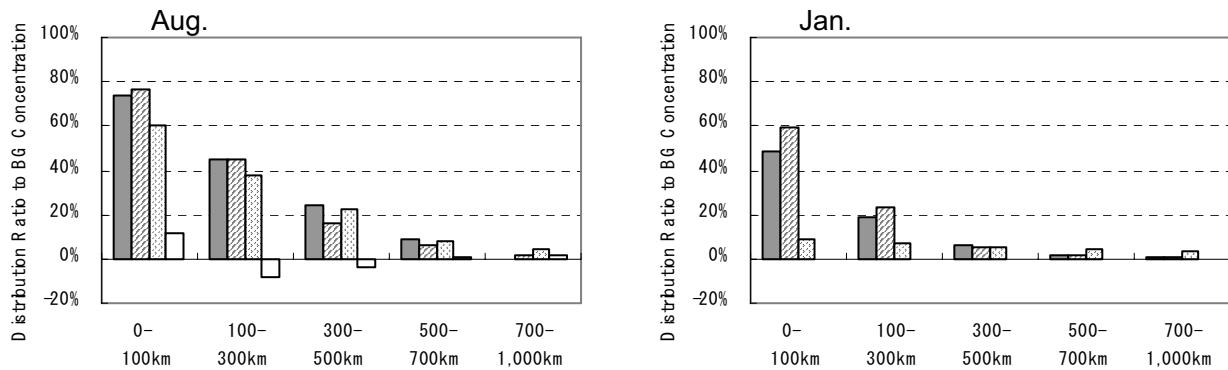


図 4.3-7(1) バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(窒素酸化物)

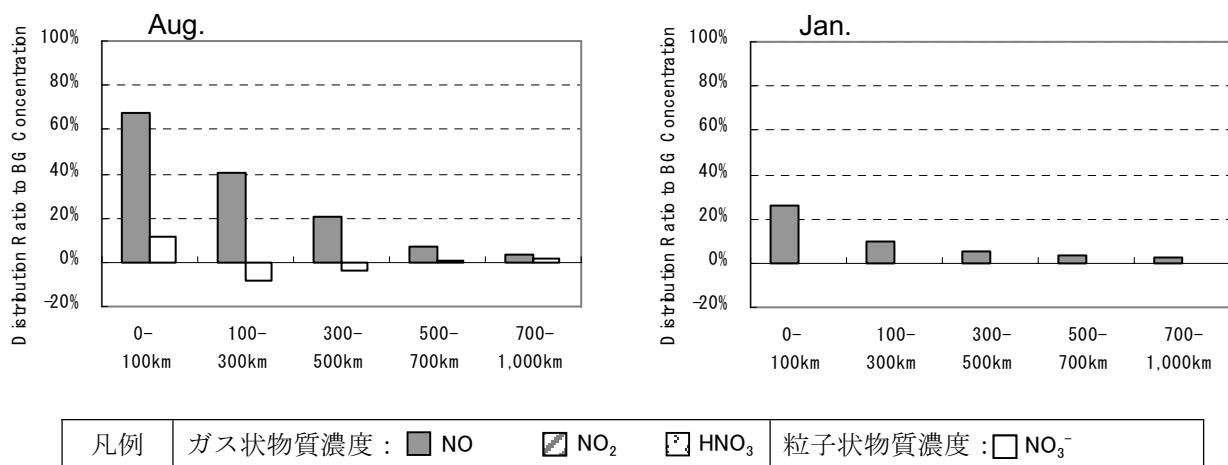


図 4.3-7(2) バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(窒素酸化物)

4.4 オゾン濃度への影響

船舶から排出される窒素酸化物は、光化学反応により地表付近のオゾン濃度を増加させる可能性があり、IMOにおいても大洋上の船舶排出ガス NOx によるオゾン濃度への影響が懸念されていることから、船舶排出ガスによるオゾン濃度への影響を調査した。

船舶からの排出ガスがあるときとないときのオゾン濃度と、その濃度差を図 4.4-1 に示す。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

船舶排出ガスの影響は、夏季に大きく、船舶発生源を含む 0-100 km 帯では、バックグラウンド濃度(船舶なし)の 30 %程度を占めているが、その絶対量は大きいものではない。

これは、NOx 単体では海洋の清浄大気中においてオキシダントの生成が充分に行われないことに起因する。航路帯から 700 km 以上離れた沿岸域でのオゾンの増加量は、通常この海域において測定されるバックグラウンド濃度に比較して無視しうる量である。

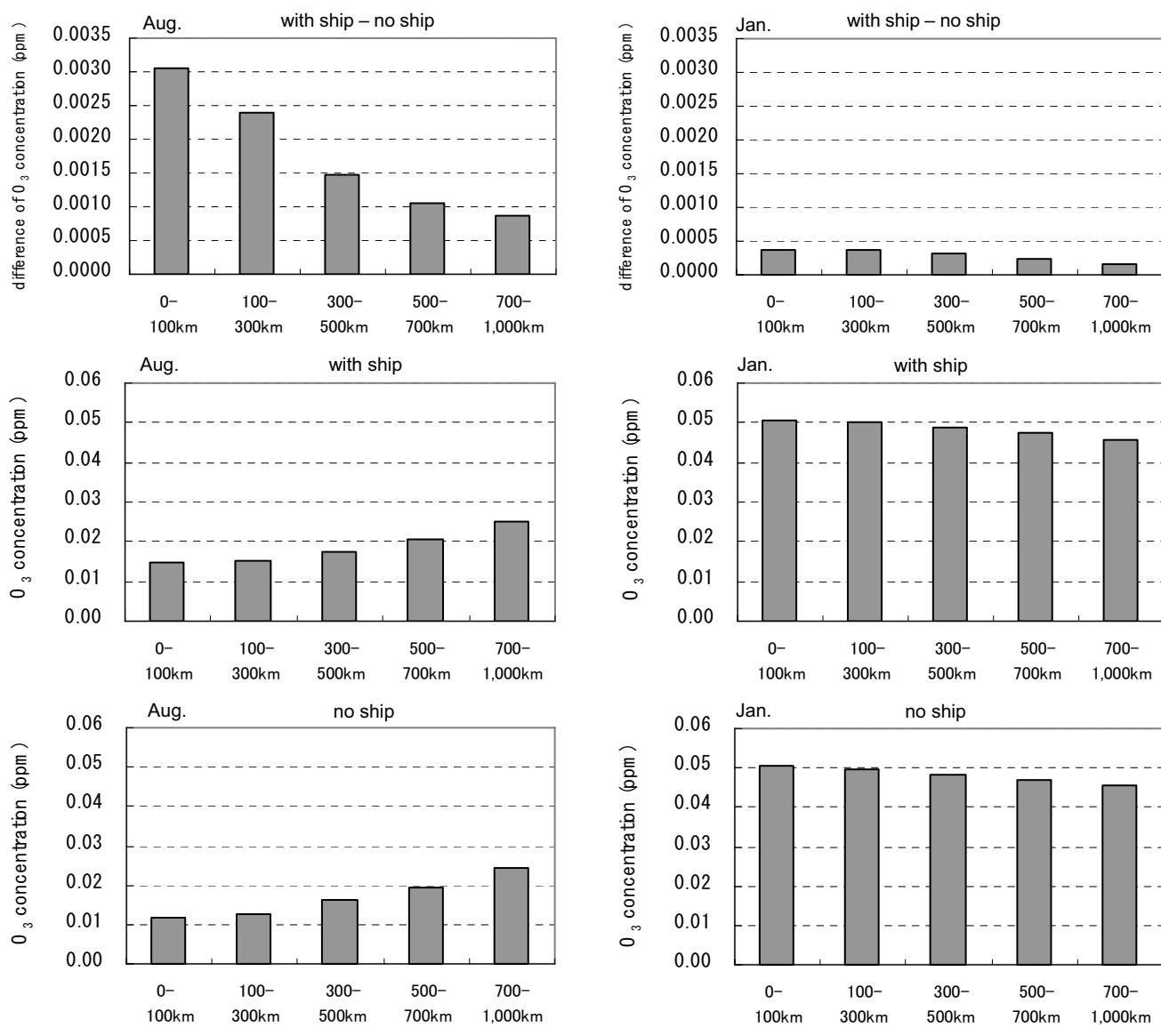


図 4.4-1 オゾン濃度

4.5 結論

4.5.1 一次粒子

- 船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより受ける物理サイズを持つ。このため、0-100 km の距離帯において、夏季で 60 %、冬季で 40 %程度が海面に沈着すると推定される。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。

4.5.2 二次粒子

- 太平洋上の航路帯から排出された SO_x ガスは、比較的速やかに粒子化し、航路帯から 100 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較においても無視できる。
- 粒子化した SO₄ 粒子は、ガス状物質に比較して遠距離まで到達する。したがって、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO₂ ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であると考えられる。
- 太平洋上の航路帯から排出された NO_x ガスは、人体に有害な NO₂ へ更に HNO₃ ガスにまで比較的速やかに酸化される。ただし、そこから粒子化へ進む速度は、SO_x に比較して遅く、ガス状物質のままで、大気中で挙動する。これは、SO₄ が硫酸ミストとして単体でも粒子化するのに対して、硝酸はアンモニアなどアルカリイオンが存在しないと粒子化が進まないことに起因している。
- その HNO₃ ガス状濃度は、航路帯から 300 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較において無視できる。
- 粒子化の影響が少ないことからも、NO_x の影響は SO_x の影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。
- 硫黄酸化物の乾性沈着量は、陸上では主に SO₂ ガスであるのに対して海洋上では SO₂ ガスと SO₄²⁻ 粒子は同程度である(図 4.5-1 参照)。一方窒素酸化物は陸上では主成分の HNO₃ ガスに加え NO ガスや NO₃ 粒子も沈着するのに対して海洋上では HNO₃ ガスのみであり、陸上と海洋上で粒子化への影響が異なることが示唆された(図 4.5-2 参照)。

4.5.3 オゾン濃度への影響

- 船舶排出ガスに起因するオキシダントの生成量は航路帯付近においては、バックグラウンドに比較して最大で 3 割程度あるものの、その絶対値は大きなものではない。これは、NO_x 単体では海洋の清浄大気中においてオキシダントの生成が充分に行われないことに起因する。沿岸域でのオゾン増加量は、バックグラウンド濃度に比較して無視しうる。

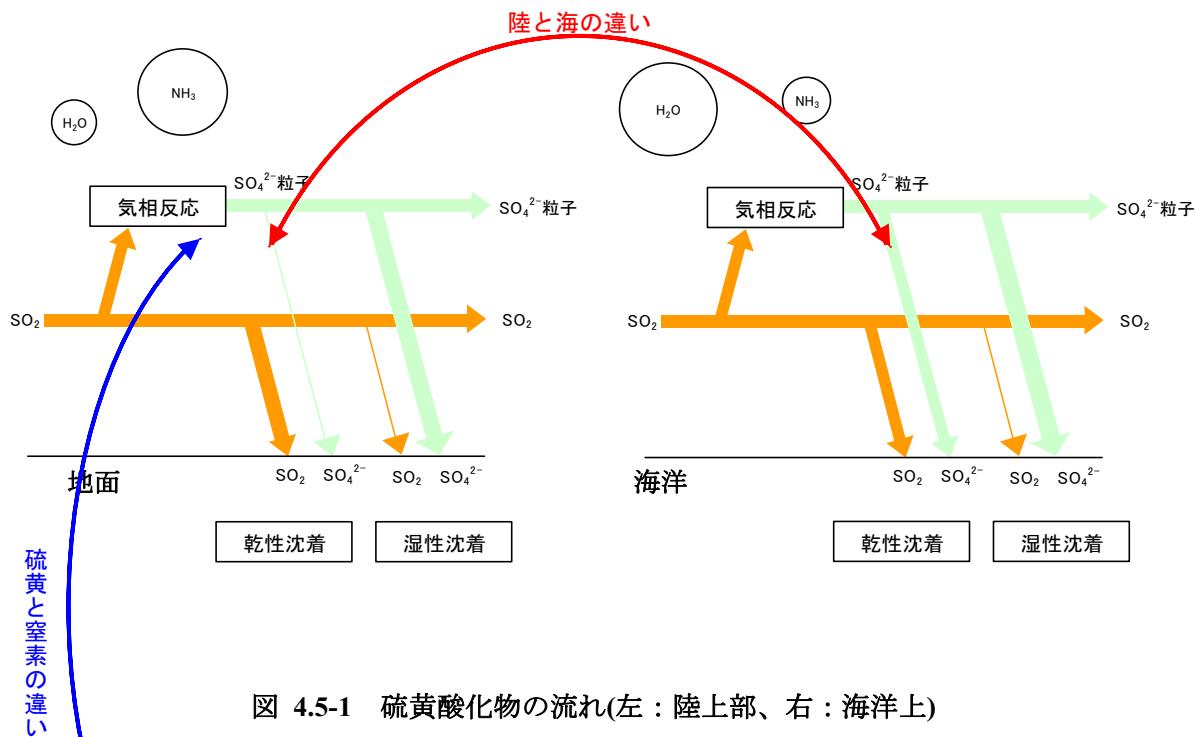


図 4.5-1 硫黄酸化物の流れ(左：陸上部、右：海洋上)

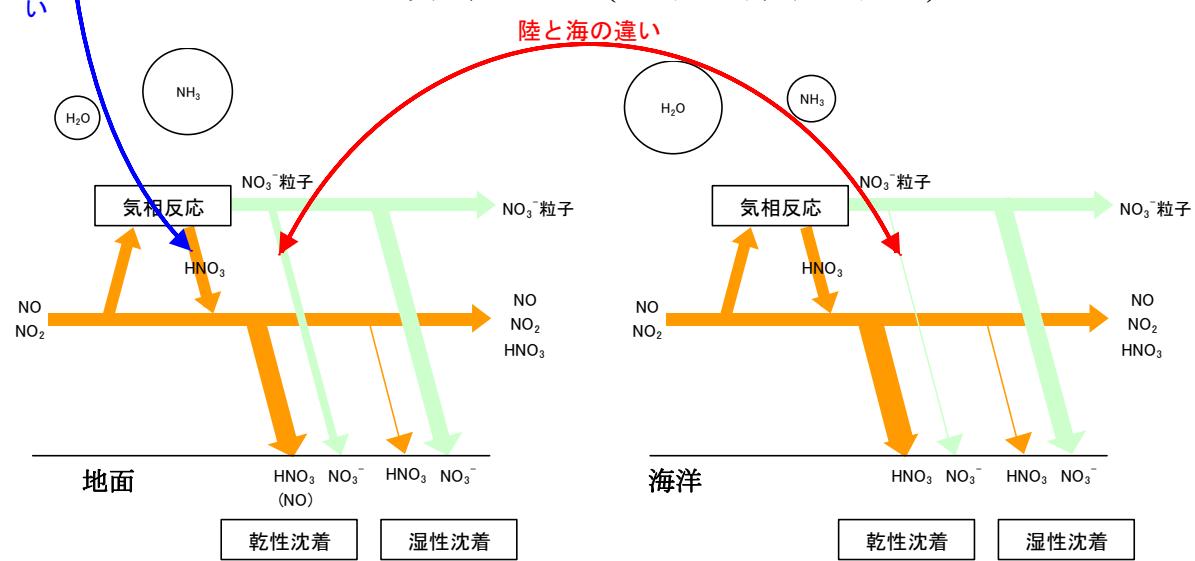


図 4.5-2 窒素酸化物の流れ(左：陸上部、右：海洋上)

→ ガス状物質の流れ
→ 粒子状物質の流れ

注) 上の 2 図は、図 3.7-3に示したPMとガス状物質の流れのうち、気相反応から沈着過程での陸上部と海洋上との相違を定性的に強調したもの。

4.6 今後の検討課題

本調査では既存の拡散モデルを用いて外洋上において船舶から排出される粒子状物質についてその影響を検討し、一次粒子より広範囲への影響が考えられる二次粒子でも航路帯から離れた地域への影響はバックグラウンド濃度に対して無視できるほど十分に小さいとの結論を得た。しかし、調査の中で以下のような課題が残ると考えられた。

(1) 船舶排出ガスの実状を踏まえた検討

本調査において一次粒子のシミュレーションに用いた粒径は、良質な燃料を使用していると想定し $0.3 \mu\text{m}$ と設定している。しかし実際に運航している船舶では、 380 cSt 程度の低質燃料が用いられており、実際にはこの粒径と異なる可能性がある。そのため、船舶からの一次粒子の粒径や排出量について、実際に運航している船舶での実状を踏まえて検討する必要がある。

(2) 近年の陸上排出量推移を踏まえた検討

本調査においては、陸上の人為起源の排出量は 2000 年をベースとして設定しているが、近年は、たとえば中国などでは SO_x は減少傾向だが NO_x は増加している可能性があるなど、排出量の変化が大きいと考えられるため、近年の排出量の推移を踏まえた検討を行う必要がある。

(3) 一次粒子の詳細な 3 次元モデルによる検討

一次粒子の影響をブルームモデルにより検討したが、長距離の評価に用いるには限界がある。そのため、簡易的に 3 次元モデルによる試算を行ったが、さらに湿性沈着等の詳細な過程を含んだ詳細な 3 次元モデルを用いた検討を行う必要がある。

5. 港湾域における PM の調査解析の概要

5.1 大気中 PM 調査

5.1.1 調査概要

近年、船舶起源 PM の大気中での寄与率が相対的に増加していることが懸念されていることから、港湾周辺の大気環境に及ぼす船舶起因の微小な PM の寄与について検討するため、横浜港周辺において PM を採取して成分分析を行った。

(1) 調査期間

港湾周辺の大気環境調査期間は平成 18 年 7 月 30 日(日)～8 月 6 日(日)までの 7 日間とし、毎日 1 回ずつ PM のサンプルを採取した。

(2) 調査地点

大気環境調査の調査地点としては、船舶から排出されるPMによる影響が比較的大きいと考えられる場所で、我が国の代表的な港湾である横浜港周辺を選定した。具体的な調査地点は「大黒海づり公園」および「中区加曾台」の2地点を選定した。調査地点の位置を図5.1-1、調査地点の概要を表5.1-1に示す。

このうち、大黒海づり公園は、周辺に大黒ふ頭、本牧ふ頭等の大型船が利用する岸壁があり、前面海域は主要航路として多数の船舶が航行している。また、横浜港では夏季に南～南西の風が卓越し、本牧ふ頭および前面航路からのPMの影響を受け易い場所と考えられる。

中区加曾台は、横浜港磯子地区の北側に位置し、横浜港磯子地区との間には首都高速湾岸線が東西に通っている。このため、南寄りの風の場合、横浜港を利用する船舶と首都高速湾岸線の自動車の両者からPMの影響を受けていると考えられる。また、この場所は「3.4我が国におけるSPM環境基準の達成状況」で述べたように、横浜港磯子地区の西側にある磯子総合庁舎とともに、平成16年度にSPMが環境基準(短期的評価)を超えていた局であるが、このときは南寄りの風が観測された際に高濃度が連続して観測されている。

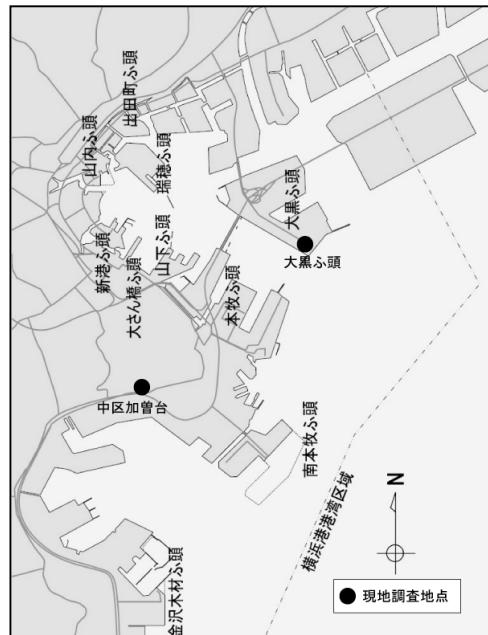


図 5.1-1 調査地点の位置(概要)

表 5.1-1 調査地点の概要

調査地点	住 所	管理者
大黒海づり公園	鶴見区大黒ふ頭 20 番地先	横浜港ターミナル運営協会
中区加曾台	中区根岸加曾台 1-1	横浜市環境創造局

(3) PM の採取方法

大気中の PM は、専用のエアサンプラーを用いてフィルター(ろ紙)上に捕集する方法により行った。大気中の PM は、粒径によって大気中の挙動や健康影響などが異なるが、本調査では「3 総説」で述べた理由から、米国などで環境基準が設定されている PM2.5(粒径 2.5 μm 以下の粒子)を対象に、PM を採取した。

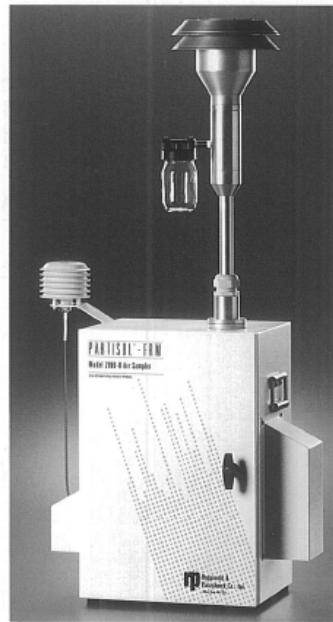
【PM の採取方法】

PM の採取は、専用のサンプラーを用いて、フィルター上に捕集することにより行った。採取前後のフィルターの重さの増加分から、PM の採取量を求め、質量濃度(大気 1 m^3 当たりの PM の重さ)に換算した。

【PM サンプラー】

米国連邦規格(Federal Reference Method)に準拠したサンプラー(FRM-2000)を用いた。本サンプラーは、「大気中微小粒子状物質(PM2.5)質量濃度測定方法暫定マニュアル」(2000 年 9 月、環境庁大気保全局企画課)を満足する仕様となっている。

PM サンプラーの概観



(4) 成分分析項目

PM を捕集したフィルターは、重量を測定した後に成分分析に用いた。分析項目は、船舶、自動車、海塩など様々な発生源から排出される PM の成分のうち特徴的と考えられるものを主として選定し、次のとおりとした。

- ・炭素成分：EC(Elemental Carbon;元素状炭素)、OC(Organic Carbon;有機炭素)
- ・無機成分：イオン SO_4^{2-} (硫酸イオン)、 NO_3^- (硝酸イオン)、 Cl^- (塩素イオン)、 Na^+ (ナトリウムイオン)、 Ca^{2+} (カルシウムイオン)、 K^+ (カリウムイオン)、 NH_4^+ (アンモニウムイオン)
- 金属類 Na(ナトリウム)、Al(アルミニウム)、K(カリウム)、Ca(カルシウム)、V(バナジウム)、Mn(マンガン)、Fe(鉄)、Zn(亜鉛)、Se(セレン)、Ni(ニッケル)、As(ヒ素)、W(タングステン)

5.1.2 調査結果の概要

(1) 大気環境調査期間中の気象および大気質濃度の状況

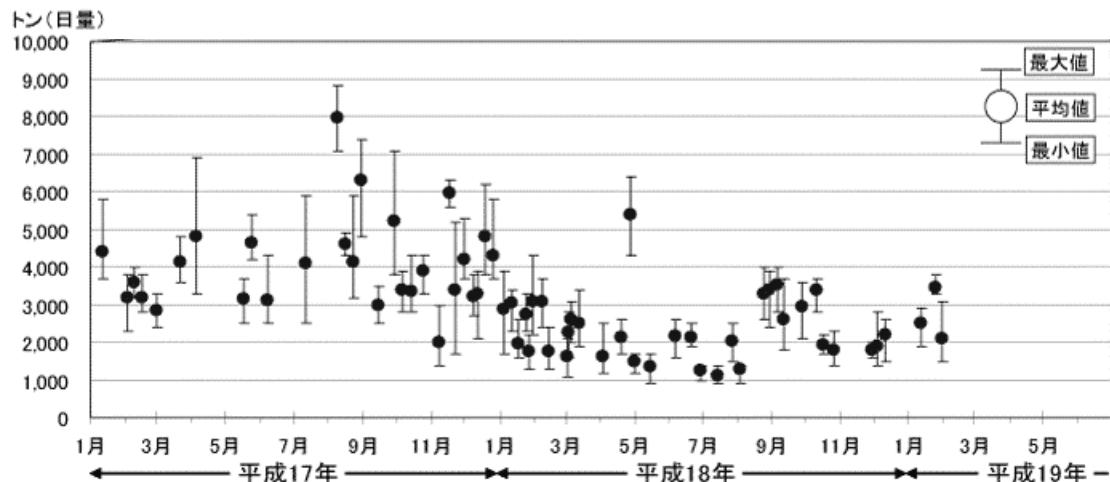
(a) 横浜地方気象台の気象の概況

横浜地方気象台の観測結果によると、調査期間の前半は曇りの日が多く、後半は晴れの日が続いた。調査期間を通じて降水はなかった。

1～3日目の平均気温は23℃程度、4～7日目の平均気温は26～28℃で、期間中の相対湿度は日平均湿度が67～73%、日最高湿度が76～89%であった。

調査期間の風向をみると、1～2日目は東風や北風が卓越していたが、3日目以降は南風が卓越しており、3日目以降は船舶からの影響が比較的大きくなりやすい期間であったと考えられる。

なお、広域的にPM濃度に寄与しているものとして、三宅島の噴火によるSO₂の排出が考えられる。気象庁が発表している「三宅島 火山ガス(二酸化硫黄)放出量」によると、図5.1-2に示すように、本調査期間の平成18年7月末から8月初めにかけては、二酸化硫黄放出量が少なめで、1,000～2,000トン/日であった。後述する大気汚染常時監視局におけるSO₂濃度と併せて判断しても、調査期間中、三宅島の噴火による二酸化硫黄から生じる二次粒子の寄与は少なかったと判断した。



出典)気象庁ホームページ「三宅島 火山ガス(二酸化硫黄)放出量」
(http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/320_Miyakejima/320_So2emission.htm)

図 5.1-2 三宅島 火山ガス(二酸化硫黄)放出量

(b) 大気質濃度の状況

① PM 濃度

現地調査によって得られたPM濃度の日変化を図 5.1-3に示す。

大黒海づり公園では平均値は $34 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $18\sim52 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

また、中区加曽台では平均値は $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $15\sim47 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。

調査日別の濃度は、2 地点ともほぼ同様の傾向で変化しており、3 日目および6 日目～7 日目の濃度が高かった。

調査期間中の PM 濃度は 3 日目、6～7 日目に高く、また、3 日目、6～7 日目は船舶寄与が大きいと予想される南風が卓越していたことから、本調査では日曜日を含む 7 日目を除外して、3 日目と 6 日目を成分分析対象として調査を行った。

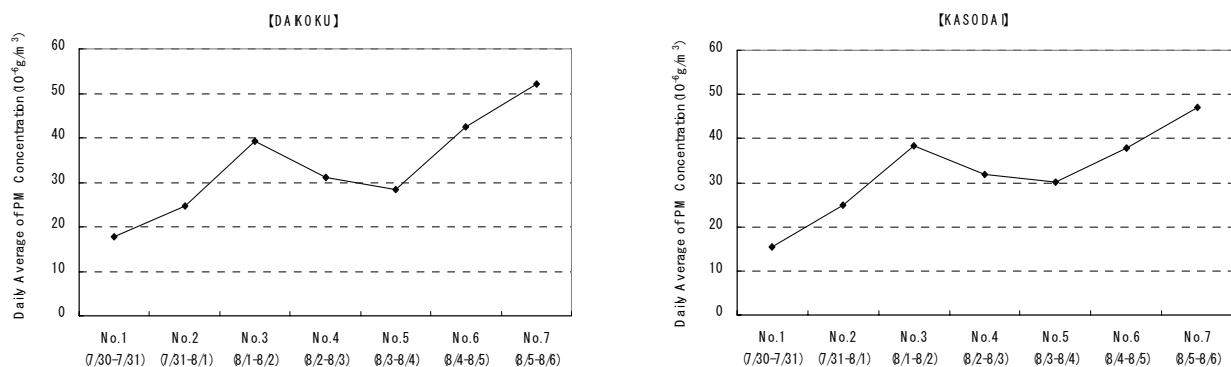


図 5.1-3 PM 濃度の推移

② 周辺の大気汚染常時監視局における大気質濃度

現地調査を実施した期間中の周辺の大気汚染常時監視局における測定結果を図 5.1-4に示す。

SPM濃度は現地調査結果とほぼ同様の傾向を示しており、3日目、6日目、7日目に比較的濃度が高くなっていた。

SO_2 濃度は5日目が他の測定日に比べて若干濃度が高いが、最大値は0.05 ppm程度で全般的に低い濃度で推移していた。また、 NO_x 濃度は調査日による違いが比較的小さかった。

O_3 濃度は3日目、4日目、7日目に比較的高く、SPM濃度と同様の傾向であった。

NMHC^{*7}濃度は、中区本牧、神奈川県庁、金沢区長浜で測定されているが、中区本牧では他の地点よりも濃度が高く推移しており、特に、6日目、7日目は平均で0.6 ppmCを超えていた。NMHCは、塗装施設、石油精製、石油化学製品等の製造、貯蔵から排出され、根岸湾地区の化学プラント、石油化学施設等の影響が考えられる。

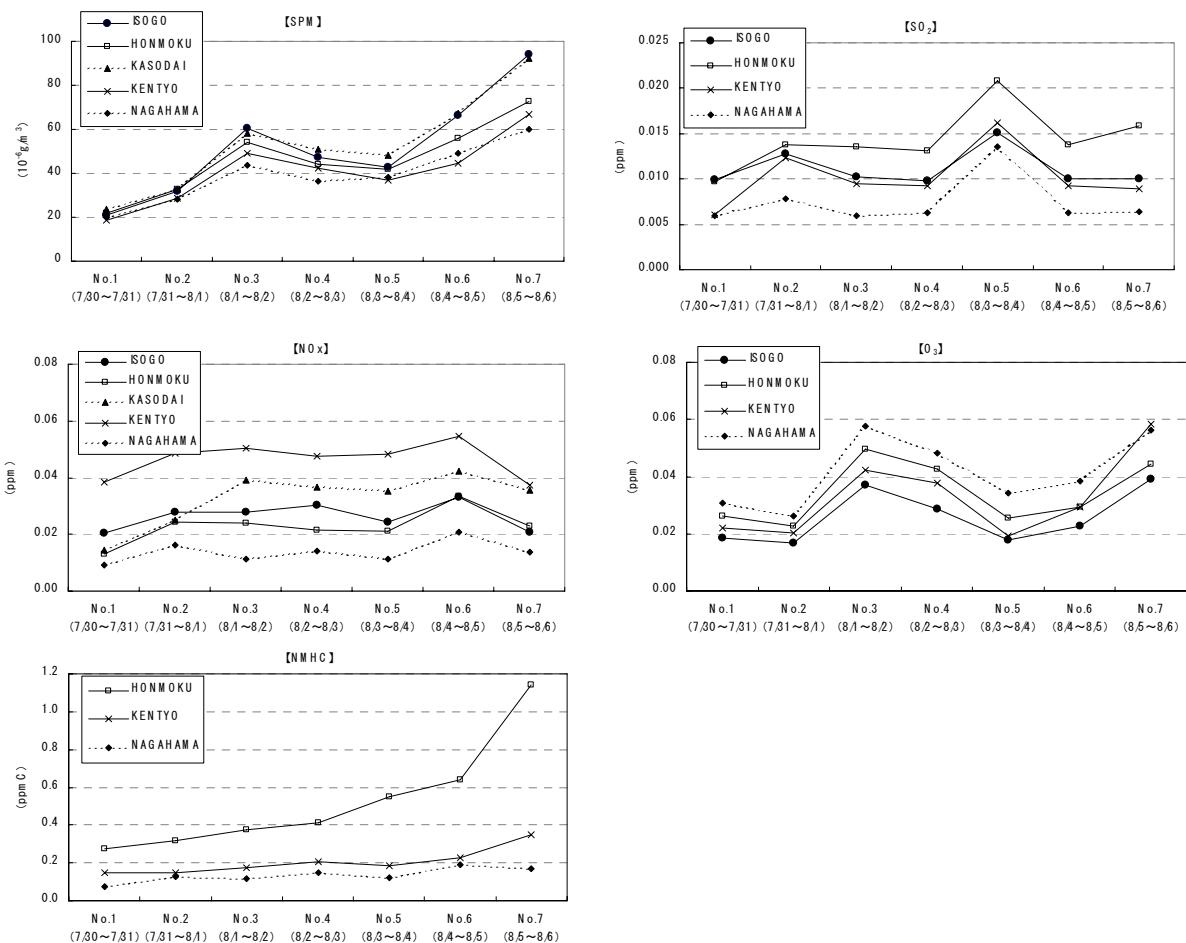


図 5.1-4 周辺の大気汚染常時監視測定局における測定結果

*7 NMHC(Non-Methane hydrocarbons : 非メタン炭化水素) : メタンを除くガス状の炭化水素類のことである。大気中で光化学反応することで、PM、光化学オキシダントの生成原因となる。

(2) 成分分析結果

大気環境中のPMの成分分析結果は、表 5.1-2、図 5.1-5に示すとおりである。

環境省が関東地域 3 地点で実施した調査結果との比較を図 5.1-6に示す。PM中に占める主な成分割合は、炭素成分が 20 %前後、硫酸イオンが 30 %前後、アンモニウムイオンが 12~13 %であった。なお、質量濃度から分析対象成分の濃度を差し引いたその他不明分の割合が高く、29~35 %であった。調査場所や調査時期の違いから環境省の調査結果を本調査結果と単純に比較することはできないが、本調査ではその他不明分の割合が高くなっている。一方、成分を比較すると、本調査では、環境省調査結果に比べて硫酸イオンがかなり多い。このことから、フィルターに捕集された硫酸イオンが高湿度によって潮解^{*8}し、水分を吸収したことが不明分を増加させた一因と考えられる。潮解現象については、高湿度となる夏季の調査では避けられない現象であるが、分析過程で湿度を十分低く抑えて水分の除去を行った後に秤量を行うなど、試料の管理については今後細心の注意を払う必要がある。

表 5.1-2 大気環境中 PM の成分分析結果

分析項目		大黒海づり公園		中区加曾台	
		3日目	6日目	3日目	6日目
質量濃度		39.3	42.4	38.3	37.9
炭素成分	有機炭素 OC	5.65	6.02	5.20	5.21
	元素状炭素 EC	2.18	3.07	2.92	2.94
	総炭素 TC	7.84	9.09	8.11	8.15
水溶性イオン成分	硫酸イオン SO ₄ ²⁻	12.9	12.2	12.1	11.2
	硝酸イオン NO ₃ ⁻	0.43	0.26	0.31	0.26
	塩素イオン Cl ⁻	<0.012	<0.011	<0.012	<0.010
	アンモニウムイオン NH ₄ ⁺	5.0	4.9	5.0	4.5
	ナトリウムイオン Na ⁺	0.18	0.16	0.22	<0.084
	カルシウムイオン Ca ²⁺	0.39	<0.34	0.57	0.45
	カリウムイオン K ⁺	<0.06	<0.06	<0.06	<0.05
金属類	ナトリウム Na	0.15	0.25	0.24	0.17
	アルミニウム Al	0.18	0.47	0.37	0.27
	カリウム K	0.09	0.15	0.15	0.15
	カルシウム Ca	0.19	0.70	0.57	0.27
	バナジウム V	0.021	0.049	0.014	0.029
	マンガン Mn	0.0063	0.0073	0.0099	0.0079
	鉄 Fe	0.11	0.090	0.14	0.13
	ニッケル Ni	0.0084	0.0163	0.0043	0.0105
	亜鉛 Zn	0.026	0.042	0.031	0.043
	ヒ素 As	0.00057	0.0012	0.00079	0.00101
	セレン Se	0.0017	0.0008	0.0017	0.0007
	タングステン W	<0.00011	<0.00011	<0.00011	0.00038

*8 潮解(ちょうかい)：大気の湿度が高い時、大気中の水蒸気圧が粒子表面の飽和水蒸気圧より大きくなり、粒子が大気中の水(気体)をとりこむ現象のこと。

大黒海づり公園

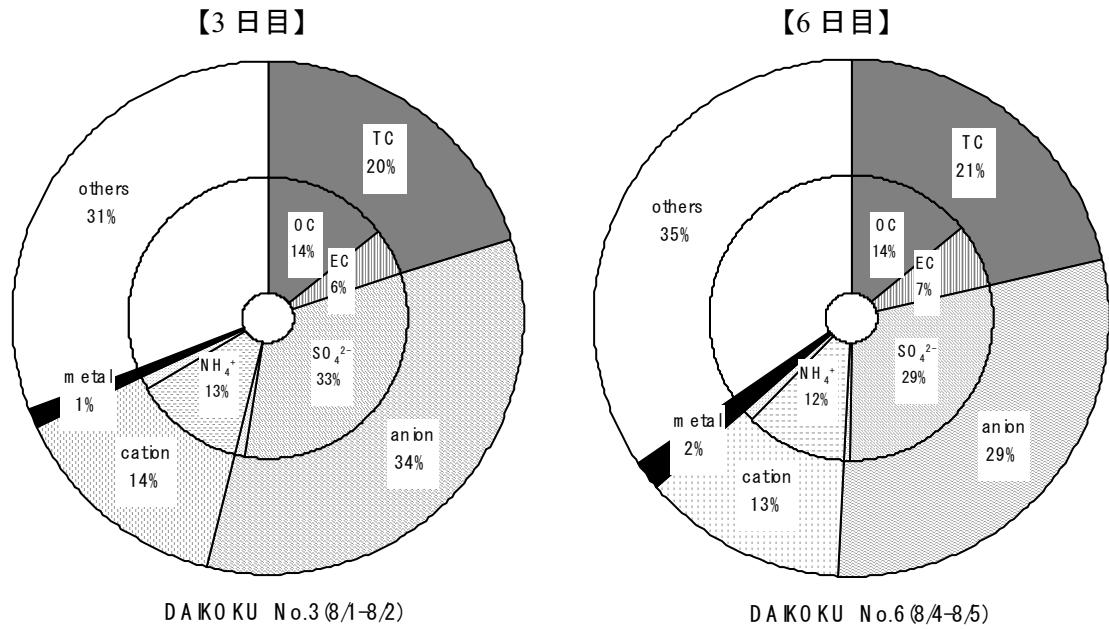


図 5.1-5(1) 主な成分構成比(大黒海づり公園)

中区加曾台

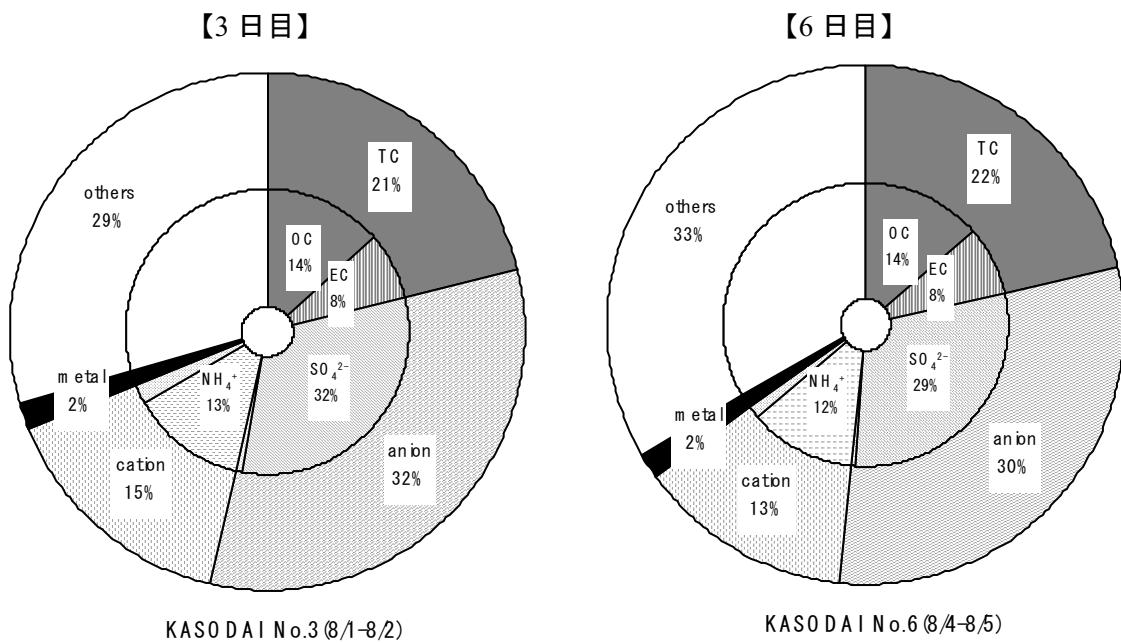
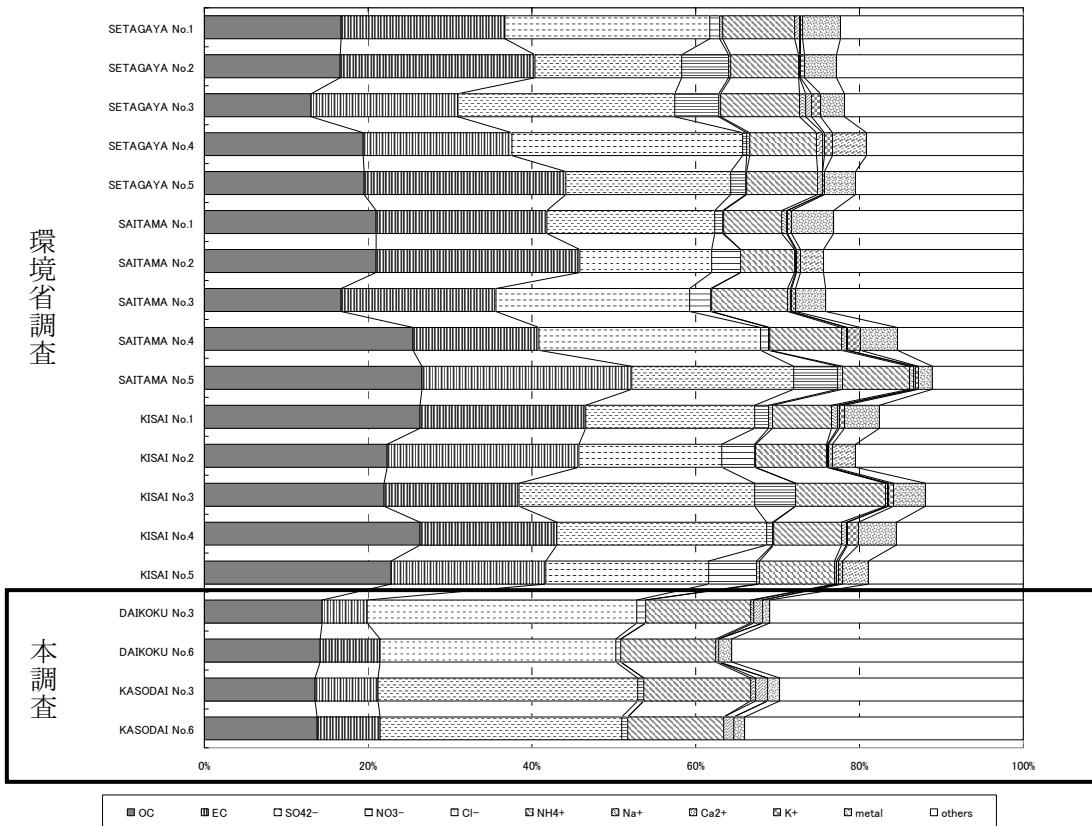


図 5.1-5(2) 主な成分構成比(中区加曾台)



出典) 「平成 15 年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004 年 3 月、(財)日本気象協会)

注) 環境省調査の測定時期: 平成 15 年 7 月 26 日～8 月 6 日のうちの、隔日 5 日間

図 5.1-6 環境省調査と本調査の成分分析結果の比較(成分構成比)

5.2 発生源別寄与の考察

PM の各発生源からの寄与について既存文献で述べられている事項から船舶寄与について考察した。

神奈川県の調査⁹によると、県全体のPM(一次粒子)総排出量に占める船舶の寄与率(平成9年度のPM推計排出量割合)は9%と試算されている。この寄与率は神奈川県全体における排出寄与率であり、港湾地域周辺での排出寄与率はこれよりも高いことが予想される。また、平成17年度の船舶排出量を平成9年度と同等と仮定した場合、平成17年度の総排出量に対する船舶の寄与率は、主に自動車からの排出量が大幅に減少したために、13%に上昇する(表5.2-1参照)。

また、東京都の調査¹⁰によると、中央区、港区、品川区、大田区、江東区、江戸川区の沿岸域6区を対象にしたPM排出量に対する船舶の寄与率は、一次粒子で13.9%、二次粒子を含めると24.5%と試算されている(表5.2-1参照)。

上記の神奈川県と東京都における資料によると、大規模な港湾に面する地域におけるPM(一次粒子)に対する船舶の寄与率として十数%あるいはそれ以上の可能性がある。また、東京都の検討委員会報告書によると、沿岸域6区のSOx排出量の5割以上を船舶が占めており、SOxから生じる二次粒子に占める船舶の寄与も表5.2-1に示すように約25%と大きく推定されている。このことは、横浜港付近においても、二次粒子も含めたPMに対する船舶の寄与率は、15%程度よりさらに多くなる可能性を示している。

ただし、発生源が異なる場合、排出される代表粒径や排出される高さが異なり、それによって大気中での移流・拡散・沈着効果あるいは、化学的な挙動も異なってくるため、排出量の寄与率がそのまま環境濃度に対する寄与率に結びつかないことに注意が必要である。また、二次粒子のPM排出量については、両調査ともSOxおよびNOx排出量より、発生源ごとに経験式に基づく推定を行っている。また、二次粒子のバックグラウンド濃度については、ここでは考慮されていない。このため、二次粒子の寄与については、今後さらに充分な精査が必要であると考える。

表5.2-1 神奈川県と東京都における船舶排出PMの寄与率算定結果

単位: %

	神奈川県		東京都 平成16年度
	平成9年度	平成17年度	
一次粒子のみ	9.3	13.3 ^{注1}	13.9
二次粒子を含む全粒子	—	—	24.5

注1) 神奈川県の平成17年度の寄与率は、船舶からの排出量が平成9年度から変化していないとして試算した値

注2) 神奈川県は県全体の排出量に対する寄与率、東京都は沿岸6区の排出量に対する寄与率

出典)「平成17年版 かながわ環境白書」(2006年3月、神奈川県)、「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)、「船舶等による大気汚染対策検討委員会報告書」(2005年3月、東京都環境局)より作成

*9 神奈川県におけるPM総排出量に占める船舶寄与率(一次粒子)

「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成。

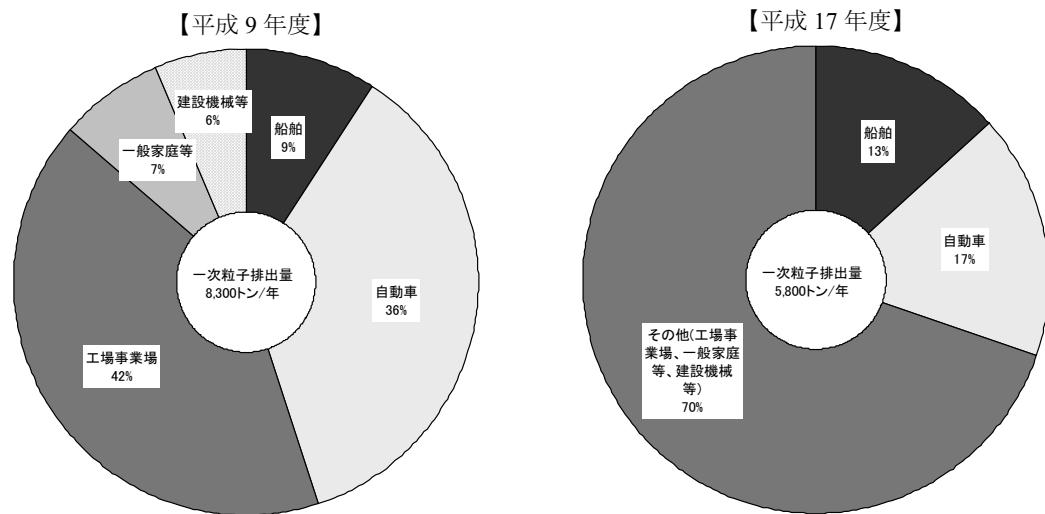


図 一次粒子の発生源別排出寄与率

表 発生源別 PM 排出量

発生源区分		平成 9 年度		平成 17 年度	
		排出量 (トン/年)	構成比(%) 一次粒子 (全粒子)	排出量 (トン/年)	構成比(%) 一次粒子 (全粒子)
一次粒子 排出量	自動車	2,960	35.7 (12.4)	980	16.9 (4.8)
	船舶	770	9.3 (3.2)	770	13.3 (3.8)
	工場事業場	3,430	41.3 (14.4)	4,820	83.1 (23.8)
	一般家庭等	610	7.3 (2.6)		
	建設機械等	530	6.4 (2.2)		
	小計	8,300	100 (34.9)	5,800	100 (28.7)
二次粒子生成量		15,480	— (65.1)	14,440	— (71.3)
一次・二次粒子計		23,780	— (100)	20,240	— (100)

出典) 「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成

注) 平成 17 年度は自動車以外の内訳は示されていない。

表中の [] は、船舶からの PM 排出量が平成 9 年度から変化しないと仮定し試算したもの。

出典) 「平成 17 年版 かながわ環境白書」(2006年3月、神奈川県)

「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成

*10 東京都沿岸域 6 区(江戸川区、江東区、中央区、港区、品川区、大田区)を対象とした船舶 PM の寄与率(二次粒子を含む)

停泊中船舶 15 隻の排出ガス測定と船舶事業者等へのアンケート調査(荷役機械、車両の稼動状況)、平成 15 年東京港港勢および平成 16 年入出港データから排出量の推計を行っている。

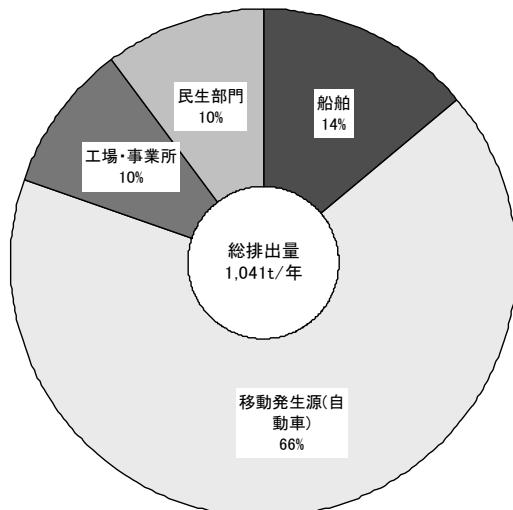


図 一次粒子の排出寄与率

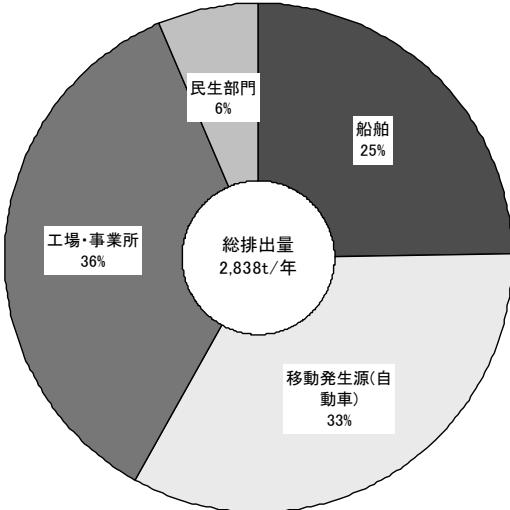


図 二次粒子を含めた排出寄与率

表 発生源別 PM 排出量

(上段: 排出量 トン/年、下段()は構成比 %)

発生源		SOx排出量	SPM総排出量				
			一次粒子		二次粒子		合計
			ばいじん	硝酸塩	硫酸塩	二次計	
東京港内	停泊中船舶	1,898 (53.5)	145 (13.9)	47 (7.6)	503 (42.6)	550 (30.6)	695 (24.5)
	荷役機械等	1.4 (0.0)	0 (0.0)	8.9 (1.4)	0.4 (0.0)	9.3 (0.5)	9.3 (0.3)
沿岸部6区	自動車	243 (6.9)	690 (66.3)	233 (37.8)	19 (1.6)	252 (14.0)	942 (33.2)
	工場・事業所	1,388 (39.1)	99 (9.5)	260 (42.2)	653 (55.3)	913 (50.8)	1,012 (35.7)
	民生部門	16 (0.5)	107 (10.3)	67 (10.9)	5.4 (0.5)	72.4 (4.0)	179.4 (6.3)
	合計	3,546	1,041	616	1,181	1,797	2,838

注) 東京港内および沿岸 6 区(江戸川区、江東区、中央区、港区、品川区、大田区)

出典) 「船舶等による大気汚染対策検討委員会報告書」(2006 年 3 月、東京都環境局)を基に作成

5.3 船舶排気 PM 調査

5.3.1 調査概要

船舶以外の発生源から排出される PM の成分は様々な文献によってある程度判明しているが、船舶については情報がないため、船舶の煙突から排出される PM を採取し、成分分析を行った。

(1) 調査時期

平成 18 年 8 月 22 日(火)

(2) PM の採取方法

港内に停泊中の外航コンテナ船^{*11}を対象に、補助ディーゼル発電機運転時の排出ガス中の PM を煙突口にて採取した。(写真参照)

なお、航行中の 2 サイクル主機機関は、補助ディーゼル発電機とは潤滑油の供給形式が異なり、また使用される燃料に対応してシリンドー油の性状も大きく異なることが知られている。これに伴い両者の PM の成分組成が異なる可能性が充分に考えられる。しかし、港湾域における両者の活動量を考えると、コンテナ船の補助ディーゼル発電機は停泊中の冷凍冷蔵コンテナへの電力供給などで 10 年前に比較して負荷・搭載定格容量の双方で大きくなっているのに対して、主機機関は港湾域内では負荷が 20 %以下に低減していることなどがこれまでの調査から明らかになっている。また、ディーゼル補機からの排ガス量は、主機機関のそれより 50 倍以上になるとの推計結果もある。このことから、本港湾域で排出される船舶由来の PM については、補助ディーゼル発電機からの影響がほとんどであると判断し、本調査では補助ディーゼル発電機のみを調査および CMB 法の対象とした。

*11 調査を実施したコンテナ船の主な諸元

補助ディーゼル発電機 2,200 kW × 4 基(試料採取時は 3 基が稼働)

使用燃料 C 重油(180 cSt 級)

(3) 分析項目

成分分析の項目は大気環境 PM 調査と同様とした。

なお、大気中 PM 調査は粒径 2.5 μm 以下の粒子(微小粒子)を対象に採取した。一方、船舶排気 PM 調査は、粒径 2.5 μm より大きな粒子も含む全粒径(微小粒子 + 粗大粒子)の粒子を採取しており、両者で採取した PM の粒径範囲が異なると考えられるが、燃料の燃焼に伴い排出される PM は大部分が粒径 2.5 μm 以下であると考えられることから、粒径範囲によって成分組成が異なる影響は小さいものと考えられる。



【写真】船舶排気 PM の採取状況

5.3.2 調査結果

船舶排気PMの成分分析結果は、表 5.3-1に示すとおりである。 SO_4^{2-} が最も多く4割近くを占め、次いでOC約24%、EC約16%の割合であった。

結果を詳細に見るとイオン成分の Ca^{2+} と金属として分析したCaとで10倍以上の濃度差が見られた。大気環境の測定ではほとんどの場合で両者は同程度であったことから、イオン成分と金属成分の採取時刻の違いによる濃度差、あるいは Ca^{2+} とCaの分析値のいずれかに大きな測定誤差が含まれている可能性がある。なお、船舶排気には、自動車排出ガスと比較して、潤滑油にCaが多く含まれており、そのことがCa含有率を高めている可能性がある。

なお、今後は、船舶排気PMの成分組成をより精査する意味で、船舶ディーゼル機関に使用されている燃料の成分や潤滑油の成分も含めて検討することが必要と考えられる。

表 5.3-1 船舶排気PMの成分分析結果

項目		構成比(重量%)
炭素成分	有機炭素 OC	23.59
	元素状炭素 EC	15.83
水溶性イオン成分	硫酸イオン SO_4^{2-}	38.3
	硝酸イオン NO_3^-	0.00
	塩素イオン Cl^-	0.00
	アンモニウムイオン NH_4^+	0.37
	ナトリウムイオン Na^+	0.00
	カルシウムイオン Ca^{2+}	2.3
	カリウムイオン K^+	0.00
	ナトリウム Na	0.093
金属類	アルミニウム Al	0.058
	カリウム K	0.014
	カルシウム Ca	0.18
	バナジウム V	0.95
	マンガン Mn	0.0028
	鉄 Fe	0.19
	ニッケル Ni	0.42
	亜鉛 Zn	0.017
	ヒ素 As	0.00086
	セレン Se	0.0017
	タングステン W	0.000068

5.4 各種発生源の成分組成の検討

5.4.1 発生源別成分組成の検討

各種の発生源から排出される排出ガスの成分組成の特性を見るために既存資料から成分組成の調査を行った。

成分組成の調査結果は表 5.4-1のとおりである。

船舶以外の主要発生源は、環境省や地方自治体などで発生源の特定を行う際に多く用いられている海塩、道路堆積物、自動車排気、鉄鋼工業、石油系燃焼ボイラー、廃棄物焼却とした。

OC、EC は自動車排気、Na は海塩、Al、Ca は道路堆積物や鉄鋼工業、K は廃棄物焼却、V、Ni は石油系燃焼ボイラーや船舶、Fe、Mn、Zn は鉄鋼工業のそれぞれ指標成分として選定した。As、W については、磯子石炭火力発電所が稼動しているため石炭燃焼排気の指標として測定したが、排出ガス対策の進んでいる発電所からの寄与が大きく見積もられることはないとの判断から石炭火力を発生源から外した。

なお、鉄鋼工業、廃棄物焼却、石油系燃焼ボイラーの成分組成は、20 数年前の測定値である。特に、石油系燃焼ボイラーの成分組成は A、B、C 重油燃焼を併せたものであり、現在の A 重油燃焼がほとんどである状況とは異なっていると考えられる。また、船舶の成分組成は、本調査における船舶排出ガス調査の結果を用いているが、コンテナ船一隻の調査であるため、大きな誤差を含んでいる可能性がある。このように発生源別成分組成について今後さらに検討することが必要と思われる。

表 5.4-1 発生源別の成分組成

単位：重量%

No	項目	海塩	道路 堆積物	自動車 排気	鉄鋼工業	石油系燃焼 ボイラー	廃棄物 焼却	船舶
1	OC	0	9.07	9.31	0	0	0	23.6
2	EC	0.00000	1.39	49.4	0.5	50	5	15.8
3	Na	30.4	1.16	0.0076	1.4	1	12	0.093
4	Al	0.00003	5.9	0.16	1.00	0.21	0.42	0.058
5	K	1.1	1.05	0.020	1.3	0.085	20	0.014
6	Ca	1.17	5.	0.15	4.5	0.085	1.1	0.18
7	V	0.00001	0.015	0.00073	0.013	0.46	0.0027	0.95
8	Mn	0.00001	0.11	0.0019	2.2	0.012	0.033	0.0028
9	Fe	0.00003	5.1	0.099	15.7	0.46	0.61	0.19
10	Ni	0.00000	0.00000	0.00099	0.29	0.2500	0.000	0.42
11	Zn	0.00000	0.12	0.062	5.2	0.04	2.6	0.017
12	As	0.00000	0.00072	0.00037	0.010	0.0023	0.015	0.00086
13	W	0.00000	0.00069	0.00007	0.0047	0.002	0.01	0.00007

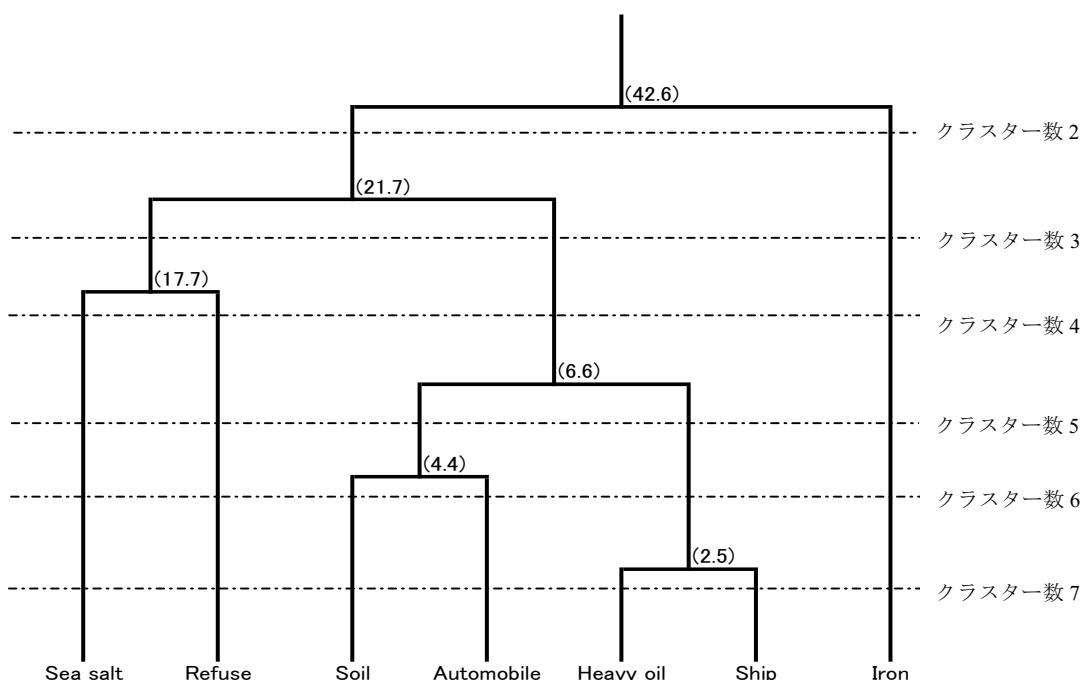
- 出典) 海塩 : 化学大辞典編集委員会編：化学大辞典、海水、共立出版、Vol.2、pp.249-251(1960).
 道路堆積物 : 財団法人日本気象協会：平成 12 年度ディーゼル排気微粒子排出実態調査業務報告書(2001)における横浜市(磯子区瀧頭)のデータ
 自動車排気 : 「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査」(2001 年 11 月、環境省環境管理局)
 鉄鋼工業 : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英：鉄鋼工業より放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、15、pp.69-76(1980).
 石油系燃焼ボイラー : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英：ボイラより放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、14、pp.296-303(1979).
 廃棄物焼却 : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英：都市廃棄物焼却炉より放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、14、pp.190-196(1979).
 船舶 : 本調査結果(停泊中の外航コンテナ船の排ガス中粒子を測定)

5.4.2 発生源別成分組成のクラスター分析

(1) 本調査における発生源別成分組成のクラスター分析

表 5.4-1に示した発生源別成分組成が各発生源を特徴付けるものとして利用可能かどうかを判断するため、発生源間の類似性についてクラスター分析^{*12}を行った。

クラスター分析の結果は図 5.4-1に示すとおりである。図では石油系燃焼ボイラーと船舶の成分組成が特に類似しており、発生源別の寄与率を求める際には両発生源を明確に区別するのが困難であることを示している。また、図中でクラスター数 3 の位置に着目すると、海塩粒子が廃棄物焼却と同じグループとなっているなど、燃焼系の発生源と自然由来のものがよく分離できていない可能性がある。



注：()内の数字はユークリッド距離^{*13}

図 5.4-1 発生源別成分組成のクラスター分析結果

*12 クラスター分析

クラスター分析は、対象となるデータ群を数学的に類似しているサンプル同士で順次グルーピングする方法の総称である。クラスター分析の結果は、データ群の類似性を視覚的に示すデンドログラム(樹形図)として表現される。

*13 ユークリッド距離

データ群の類似性の判定基準はいくつかあるが、取扱が容易なユークリッド距離が良く用いられる。異なるデータ群間で要素の差の 2 乗和を、その異なるデータ間の距離の指標とするもので、それが近いほど 2 つのデータ群は類似している指標となる。

(2) 既存調査事例による発生源別成分組成のクラスター分析

次に、既存の調査において発生源の区別が明確になされているかどうかを見るために、環境省が平成13年度に発生源寄与率の調査を実施した事例と、関東地方1都7県3市(東京都、神奈川県、千葉県、埼玉県、茨城県、栃木県、群馬県、山梨県、横浜市、川崎市、千葉市)合同で発生源寄与率の調査を実施した事例を用いて発生源別成分組成を検討した(環境省の調査事例は表5.4-2、関東地方合同調査事例は表5.4-3参照)。

なお、環境省の事例では発生源の検討を本調査の項目数13項目よりも多い21項目で実施している(両者で一致している項目は表中の網掛けの9項目。)。また、関東地方合同調査の事例では、本調査に比較して成分数は少ないが、重油燃焼、廃棄物焼却の成分組成データが環境省のデータに比べて新しいものとなっている。

表 5.4-2 環境省の発生源の検討で用いた発生源の成分組成

単位：重量%

No	項目	道路堆積物	海塩	鉄鋼工業	石油系燃焼ボイラー	廃棄物焼却	自動車排気	ブレーキ粉塵
1	EC	1.08	0.00000	0.5	50.	5.	49.4	15.3
2	Na	1.02	30.4	1.36	1.	12.	0.00764	0.760
3	Al	5.7	0.00003	0.999	0.21	0.42	0.157	1.94
4	K	1.1196	1.1	1.32	0.085	20.	0.0197	0.35
5	Ca	5.20	1.17	4.51	0.085	1.1	0.146	3.18
6	Sc	0.00126	0.00000	0.00013	0.00001	0.00005	0.00001	0.0004
7	Ti	0.447	0.00000	0.1	0.074	0.09	0.0146	0.901
8	V	0.01402	0.00001	0.0125	0.46	0.0027	0.00073	0.0059
9	Cr	0.03124	0.00000	0.316	0.021	0.085	0.00116	0.0421
10	Mn	0.10438	0.00001	2.2	0.012	0.033	0.00193	0.0720
11	Fe	5.084	0.00003	15.7	0.46	0.61	0.0989	9.12
12	Co	—	0.00000	0.0044	0.0031	0.0021	0.00015	0.0016
13	Cu	0.0242	0.00000	0.37	0.0001	0.36	0.0113	1.3
14	Zn	0.09868	0.00000	5.15	0.04	2.6	0.0624	0.33
15	Rb	0.004110	0.00035	0.00768	0.0002	0.026	0.00005	0.00207
16	Sb	0.002140	0.00000	0.009	0.00069	0.0952	0.00196	0.213
17	Ba	0.0374	0.00009	0.05	0.1	0.039	0.00989	1.19
18	La	0.002380	0.00000	0.00098	0.004	0.00077	0.00003	0.0007
19	Ce	0.00423	0.00000	0.00687	0.007	0.017	0.00011	0.0024
20	Sm	0.00036	0.00000	0.00002	0.00076	0.00005	0.00000	0.0001
21	Th	—	0.00000	0.00004	0.00004	0.00005	0.00000	0.0002

出典) 「平成15年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004年3月、(財)日本気象協会)

網掛けは、本調査の分析項目と一致する項目。

表 5.4-3 関東地方合同調査による発生源の検討で用いた発生源の成分組成

単位：重量%

No	項目	自動車	重油燃焼	廃棄物焼却	海塩粒子	道路粉じん	鉄鋼
1	EC	55.7	30.28	0.291	0	4.0	0
2	Na	0.008	0.664	5.26	30.42	1.1	1.4
3	Al	0.020	0.539	0.646	0.00003	6.5	1.0
4	K	0.234	0.434	4.77	1.1	0.97	1.3
5	Ca	0.045	0.212	2.6	1.2	6.0	4.5
6	V	0.005	0.212	0.00286	0.000005	0.021	0.013
7	Mn	0.012	0.019	0.0247	0.000005	0.15	2.2

出典) 「平成 16 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書」(2006 年 3 月、関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議)

環境省の調査事例(表 5.4-2)、関東地方合同調査事例(表 5.4-3)を用いたクラスター分析結果はそれぞれ図 5.4-2(1)、図 5.4-3(1)に示すとおりである。また、それぞれの事例に本調査で実施した船舶発生源の成分組成を加えた場合のクラスター分析結果はそれぞれ図 5.4-2(2)、図 5.4-3(2)に示すとおりである。

結果を図 5.4-1 と比較すると、項目数が本調査(13 項目)よりも多い 21 項目で実施している環境省の調査事例(図 5.4-2(1))では、燃焼系の発生源と、自然由来の発生源とがよく分離されていた。一方、関東地方合同調査(図 5.4-3(1))では、項目数が 7 項目と少ないが、環境省の調査事例と同じく燃焼系の発生源と自然由来の発生源とがよく分離されており、項目数が少なくても選定次第では有用なものとなりうると考えられる。

いずれにしろ、本調査での船舶排気 PM 調査で得られた船舶の発生源組成を加えた発生源間の類似性は、人為起源と天然起源の成分組成が明確に区別できないなどの問題があり、発生源組成の文献調査等も含めて今後も検討が必要である。

なお、環境省の調査事例と関東地方合同調査事例に本調査で実施した船舶発生源の成分組成を加えて他の発生源との類似性を検討すると、環境省の調査事例(図 5.4-2(2))では、船舶は重油燃焼などと類似している。一方、関東地方合同調査事例(図 5.4-3(2))では、船舶は重油燃焼などと大きく離れている。関東地方合同調査事例の発生源組成は検討している項目数が少ないためクラスター分析を行った場合にやや不安定になる可能性があるが、今後この資料に船舶発生源の成分組成を加えて発生源寄与の検討を行っていきたい。

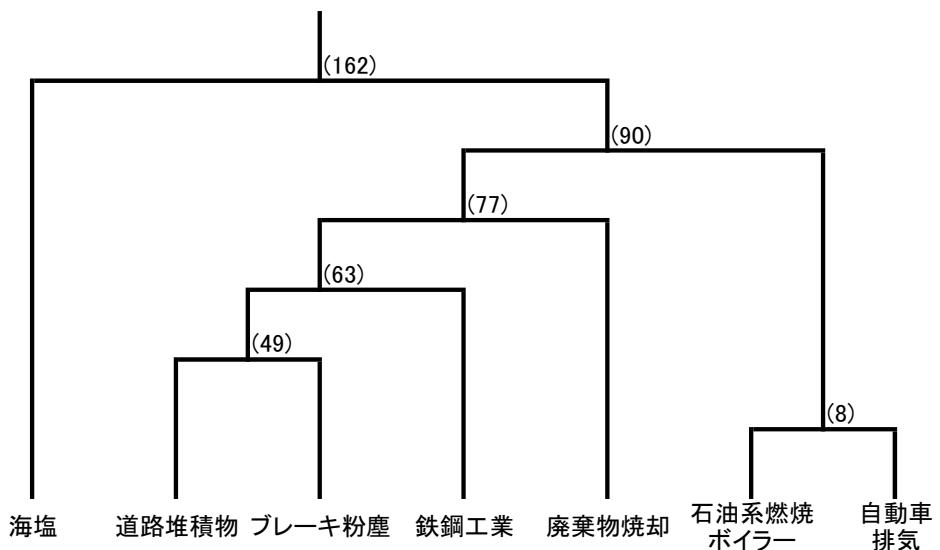


図 5.4-2(1) 環境省発生源別成分組成のクラスター分析結果

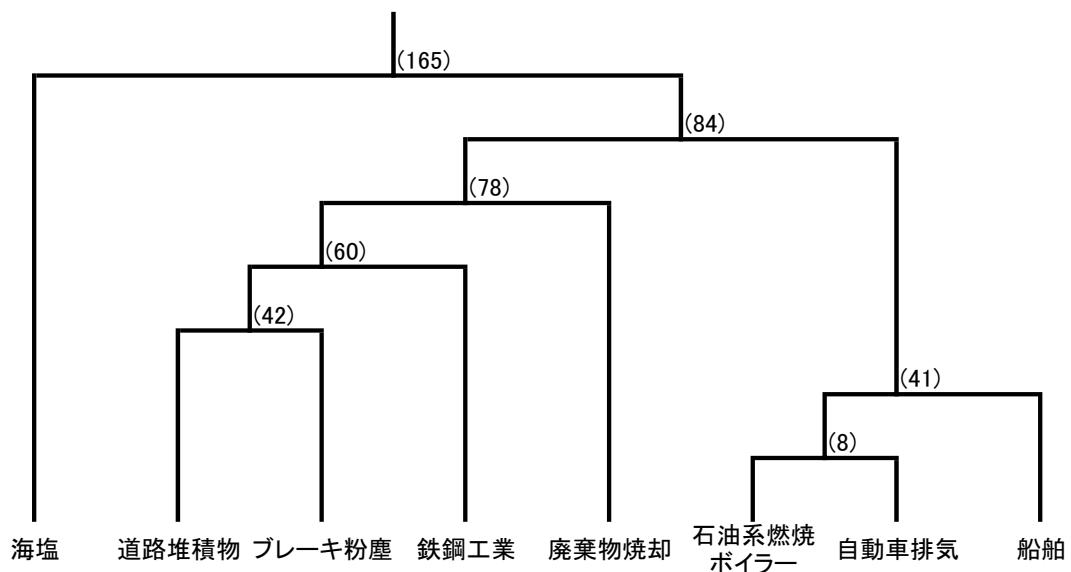


図 5.4-2(2) 環境省発生源別成分組成(船舶を追加)のクラスター分析結果

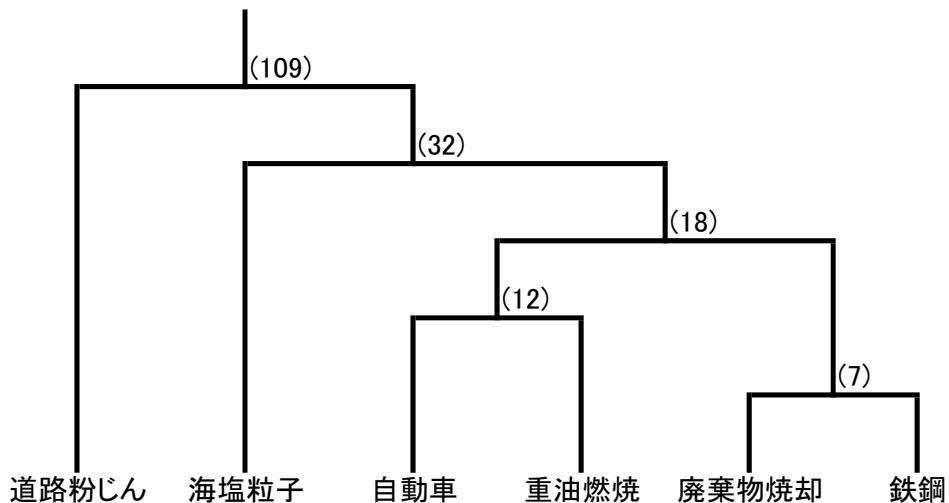


図 5.4-3(1) 関東地方合同調査発生源別成分組成のクラスター分析結果

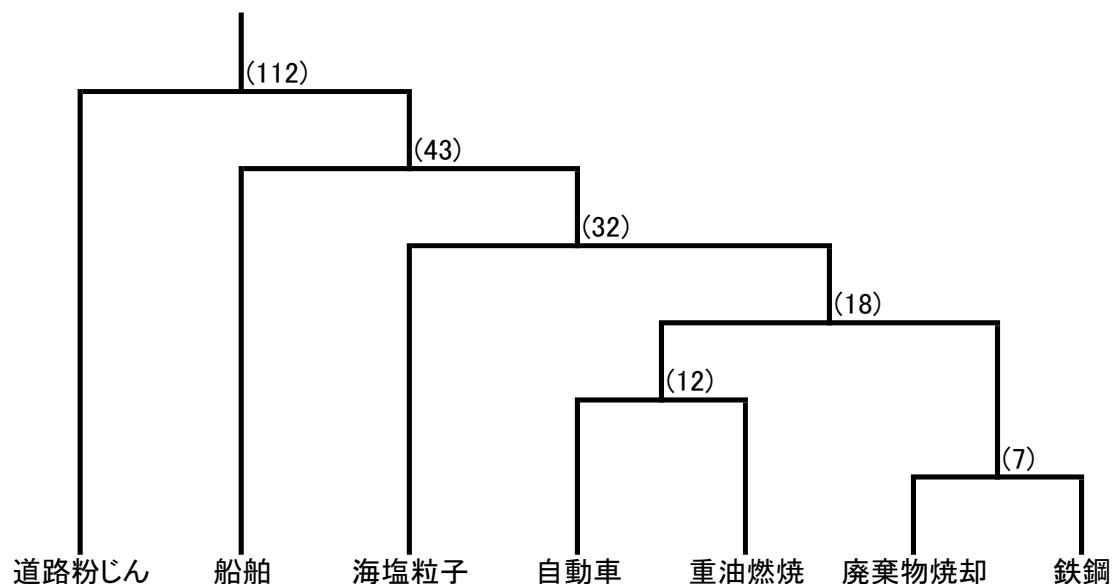


図 5.4-3(2) 関東地方合同調査発生源別成分組成(船舶を追加)のクラスター分析結果

(3) 石炭火力発電所の排出 PM 成分組成の検討

「5.4.1 発生源別成分組成の検討」では、排ガス対策が進んでいることから石炭火力発電所を発生源として外した。しかし、横浜市内で稼動している石炭火力発電所からのPM排出量は、神奈川県全体の排出量の7%程度(表 5.4-4参照)であり、他の発生源と比較して無視できないと考えられることから、石炭火力発電所からのPMを含めた成分組成についても他の発生源との類似性を検討した。

表 5.4-5に「石炭火力」を追加した発生源別成分組成を示す。

図 5.4-4に本調査における発生源別成分組成のクラスター分析結果(再掲)を、図 5.4-5に本調査の発生源別成分組成に石炭火力を追加した場合のクラスター分析結果を示す。

石炭火力の発生源組成は、土壤にやや類似し、船舶排気とは少し異なっている。

表 5.4-4 石炭火力発電所からの PM 排出量

発生源	磯子火力 排出量 (t/年)	神奈川県	磯子火力 の割合 (%)	適用時期
		排出量 (t/年)		
リプレース前	603	8,300	7.3	H14.3 以前
リプレース後(1号機のみ)	422	5,800	7.3	H14.4～H22.6

出典) 「磯子火力発電所新1・2号機環境影響調査書」(1995年10月、電源開発株式会社)を基に作成

注) 神奈川県の排出量は、平成9年度または平成17年度の推計値を当てはめた。

なお、平成22年6月以降の2号機増設に合わせて、更なる全PM排出量の削減が計画されている。

表 5.4-5 「石炭火力」を追加した発生源別成分組成

単位：重量%

	海塩	道路堆積物	自動車排	鉄鋼工業	石油系燃焼 ボイラー	廃棄物焼却	船舶	石炭焚きボ イラー
OC	0	0.0907	0.0931	0	0	0	0.236	0.0036
EC	0	0.0139	0.494	0.005	0.5	0.05	0.158	0.0151
TC	0	0.1046	0.587	0.005	0.500	0.05	0.394	0.0187
Na	0.304	0.012	0.0000764	0.0136	0.01	0.12	0.00093	0.0085
Al	0.0000003	0.059	0.00157	0.00999	0.0021	0.0042	0.00058	0.098
K	0.011	0.0105	0.000197	0.0132	0.00085	0.2	0.00014	0.011
Ca	0.0117	0.05	0.00146	0.0451	0.00085	0.011	0.0018	0.029
V	0.0000001	0.00015	0.0000073	0.000125	0.0046	0.000027	0.0095	0.00028
Fe	0.0000003	0.051	0.000989	0.1570	0.0046	0.0061	0.0019	0.026
Mn	0.0000001	0.0011	0.0000193	0.0220	0.00012	0.00033	0.000028	0.00003
Ni	0	0	0.0000099	0.0029	0.0025	0	0.0042	0.00006
Zn	0	0.0012	0.000624	0.0515	0.0004	0.026	0.00017	0.00007
As	0	0.0000072	0.0000037	0.000103	0.000023	0.00015	0.0000086	0.00004
W	0	0.0000069	0.0000007	0.0000474	0.00002	0.0001	0.0000007	0.0000004

出典)石炭焚きボイラー：「浮遊粉じんの発生源推定に関する調査研究報告書」(1989年3月、横浜市公害研究所)

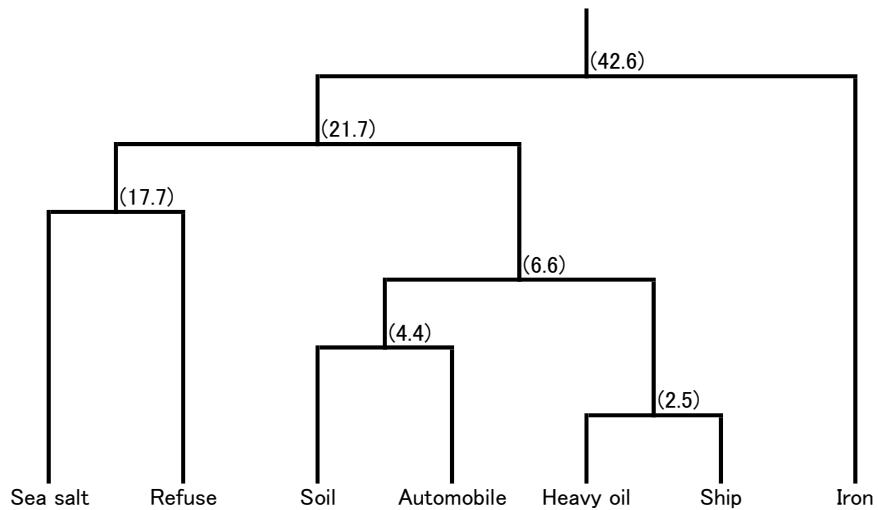


図 5.4-4 クラスター分析結果(本調査の発生源別成分組成)(図 5.4-1を再掲)

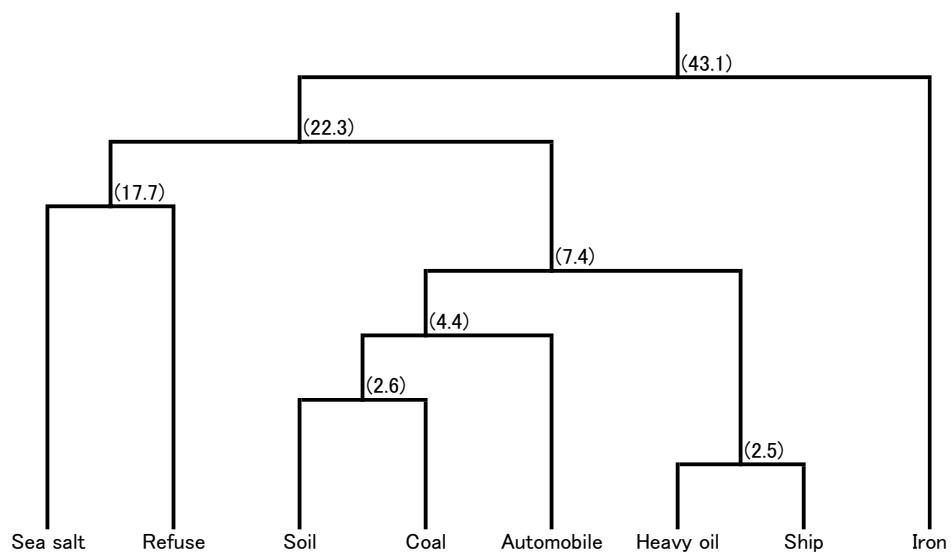


図 5.4-5 クラスター分析結果(本調査の発生源別成分組成に石炭火力を追加した場合)

5.5 今後の検討課題

本年度調査は、横浜港周辺 2 地点における PM 現地調査と船舶排気 PM の調査を行い、それに基づいて発生源寄与率の試算を行った。しかしながら、環境大気中の PM 調査結果では、潮解現象が分析結果に影響していると考えられることや、一部のデータで既存調査結果との差が大きいなど、測定から分析段階での作業を再確認する必要があると考えられものがあった。また発生源別成分組成調査において、石油燃焼系ボイラーと船舶との区別を統計学的に明確にすることが出来なかつた。

このように、本調査結果では分析方法や、発生源情報の収集・解析などで再検討を行う必要のある項目があり、今後継続して検討していく必要があると考えられる。

(1) 横浜港周辺における夏季の PM 再調査

測定手法から分析手法まで再精査し、現地調査結果の再確認を行う。これによって今年度調査結果の妥当性を確認するとともに、本年度以上に正確な PM の船舶寄与算定を目指す。

実施に際しては今年度調査結果を踏まえ、調査地点、調査方法等について精査・再検討を行う。

(2) 船舶起源の PM 成分組成の調査の継続

本調査によって使用した船舶発生源の成分組成の精度向上を図るため、さらに 2 隻程度で船舶排ガス調査を実施する。

(3) 既存資料の収集

発生源の成分組成については、特に石油系燃焼ボイラーの油種が本調査で使用した成分組成よりも質の高いものに変化している可能性があり、新たな成分組成を設定することによって船舶発生源の成分組成との差を明確にできる可能性があると考えられる。このため、引き続き石油系燃焼ボイラーの発生源の成分組成について既存資料の収集に努めていく。

また、船舶排気データ情報の収集・整理、CMB 解析結果情報の収集・整理などを実施し、石炭燃焼の発生源の検討も含めて、船舶からの寄与率算定結果の精度向上に努める。

6. PM の削減ポテンシャルに関する調査

6.1 PM 発生要因と対策

6.1.1 PM 発生要因

ディーゼル機関では、点火機関の混合気内を火炎が伝播する爆発燃焼に比較して、燃焼速度は緩慢である。特に船用機関においては、高温・高圧空気内に低質で高粘度の燃料を噴射するため、燃焼そのものの不均一性は避けられず、未燃物由来の粒子状物質発生が避けられない。また、燃料中硫黄分起因あるいは潤滑油起因の PM 発生についても、たとえば自動車用高速ディーゼル機関に比較して影響が大きく、現時点ではその対策は技術的に大きな困難をともなう。

ディーゼル機関内における粒子発生機構の概略を図 6.1-1 に示した。

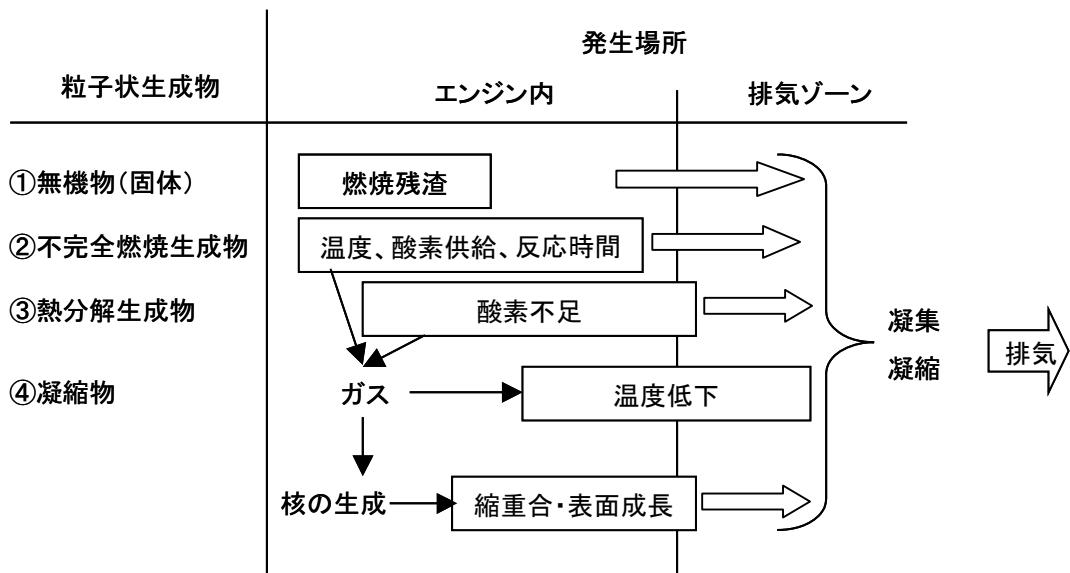


図 6.1-1 ディーゼルエンジンからの粒子発生状況

ここで、①燃焼残さとは燃料中に含まれる酸化ケイ素、酸化アルミ、その他金属類の無機物および未燃炭素を指す。仮に燃料が理論上の完全燃焼が行われたとしても無機物としての固体 PM は発生する。また、ごく一部の燃料中重質分も充分な酸化反応時間が得られず残さとして残る。

次に、②の不完全燃焼生成物とは、燃焼時、酸素供給が不十分なため、部分的に酸化されたものである。③の熱分解生成物とは、酸化反応の前に他の領域での燃焼による輝炎からの輻射熱により、分解又は重合したもの。重質油のように炭素数の多い炭化水素においては、この過程によりかご状のセノスファー粒子が生じることも知られている。

②および③は反応面からの区別が上記のようにできるが、機関内においてはその区別は困難であり、またこれらの未燃分および熱分解生成物がスワールなどの混合により、酸素と出会い燃焼する経路も考えられている。

凝縮物としては大きく 2 つに分けることができる。

高温でガス状であった物質が、エンジンからの排気過程において冷却により、凝縮・粒子化する。またエンジン内の酸素欠乏領域において、ガス状物質が縮重合などの反応により高沸点物質となり、凝縮・粒子化する。船舶のディーゼル機関においては、前者の過程、SOx の硫酸

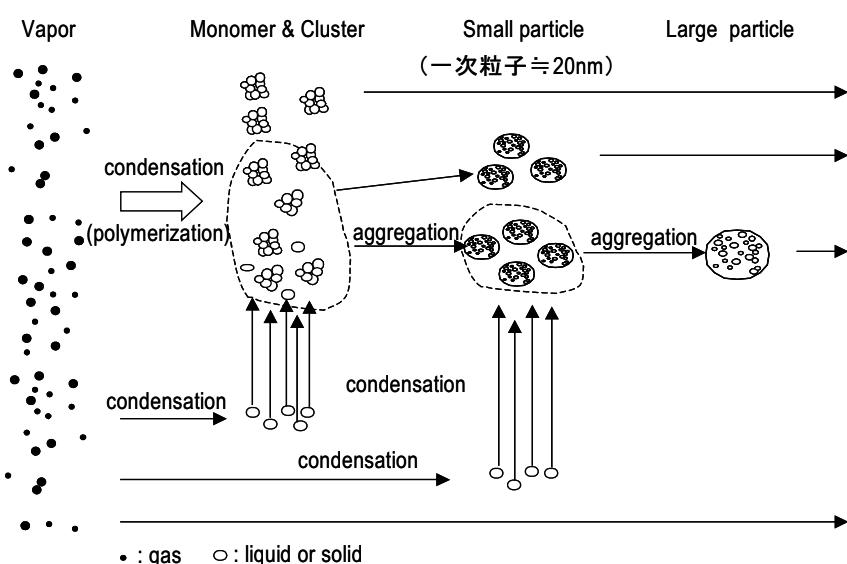
ミストへの移行が大きな排出要因となる。

凝縮・粒子化過程については、図 6.1-2に示すようなモデルが考えられている。(吉原、2001)¹⁾、(森吉、2005)²⁾

シリンドー内には燃料からの蒸発成分が酸素欠乏領域では気体状で存在している。高温下では、炭素数が少ない飽和直鎖炭化水素(パラフィン)は、低分子化合物に分解された後、酸素と結合し簡単に完全燃焼する。一方、芳香族(不飽和環状化合物)は熱力学的に高温状態では炭素数が多い方が安定であるため、無酸素状態では、縮重合反応により炭素数の多い化合物(多環芳香族)になり、単分子又はクラスターとして存在する。クラスター同士の凝集、ガス成分のクラスター表面への凝縮(含む反応)などの表面反応により成長し、粒子前駆体となる。この粒子前駆体が凝集し、20 nm 程度の一次粒子となる。一次粒子が更に凝集し、大きな粒子へと成長して行く。ガス成分には、燃料および潤滑油由来の炭化水素が含まれている。

エンジン内の高温領域で遊離炭素又は燃焼残さ無機物のように固体として存在している微粒子が粒子状固体の成長核となり、ガス状の炭化水素が酸素と反応し生じた燃焼残さと凝集して成長して行く。これが比較的燃焼状態が良好な場合に発生するドライストとと言われるものである。

このような炭素粒子を中心とした反応とは別に、燃料中の硫黄分が燃焼雰囲気下の高温で SO₂、SO₃の気体まで酸化される。しかし、ガス温度の低下とともにSO₃は露点以下で直ちに凝縮し、SO₃同士又は他の粒子と凝集し粒子化する。同時に硫酸ミストは燃焼ガス中の水分を吸収し、粒径とその重量を成長させる。これらの凝集過程は、大気放出後の常温においても続くため、4章で示した大気中モデルにおいても、一部その過程がモデルに取り込まれている。



上図の condensation には表面反応、縮重合(縮合、重合)などの反応を伴う凝縮も含まれる。

図 6.1-2 Formation and Growth of Particle in Aerosol Process(³森吉、05 より作成)

¹吉原：“ディーゼル車排ガスの微粒子除去技術”，CMC出版(2001).

²森吉：自動車研究、vol27、p27、12,(2005).

³森吉：自動車研究、vol27、p27、12,(2005).

6.1.2 PM 測定方法と組成

このように、ディーゼルエンジンから排出される PM は、すす分を核として、その周囲に液相の炭化水素分や硫酸塩が付着したものである。このため、測定方法により、凝縮物の補足量が大きく影響する。また、フィルターを用いて捕集する場合、粒子の成長が充分に行われない時点で捕集を行うと、フィルターを超微小粒子が抜けてしまい、過小評価になる可能性がある。このため、近年は希釈法と呼ばれる清浄な大気で排ガスを 50 °C程度まで丁寧に希釈冷却した後に、PM を採取する方法が主体となっている。

図 6.1-3は、大型陸上ディーゼル機関においてHeavy Fuel Oil (HFO)とMarine Diesel Oil (MDO)に含まれるPMを、2つの異なる測定方法により測定した結果の一例である。希釈法であるISO 8178 と直接採取法であるEPA 17では、捕捉されるPMのParticulate componentsが異なるため、結果として得られるPM濃度に大きな違いが認められる。一般に希釈法においては凝集分と超微小粒子が捕集されるため、その濃度は直接採取法に比較して大きくなる。また、硫黄分を含む低質燃料を用いた場合は、図 6.1-3に示すように良質な燃料に比較して高い排出濃度を示す。

船舶機関においては、2サイクル低速機関でA重油使用時の希釈法を用いたデータでは、DP が 1割程度であるのに対して、硫酸ミスト 7割、その他のSOF分(主に潤滑油経由)が 2割程度の成分になるとの計測データがある(図 6.1-4参照)。このように、現状の船用機関においては、PM排出量削減のためには、燃料中の硫黄分のトラップもしくは除去、あるいは潤滑油対策が優先されることは明らかである。

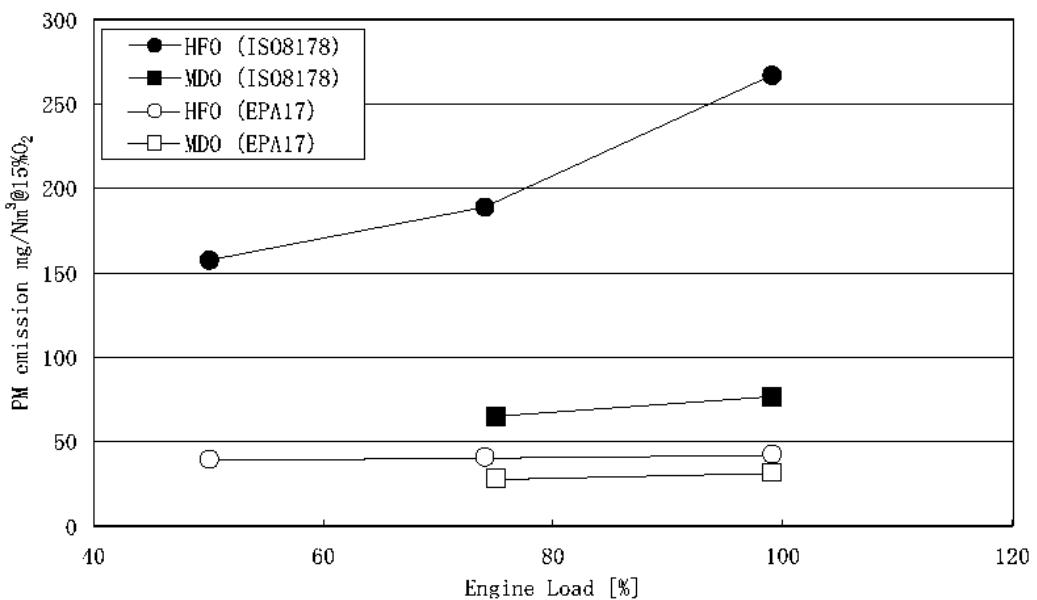


図 6.1-3 低速 2stroke 発電用機関粒子状物質計測結果

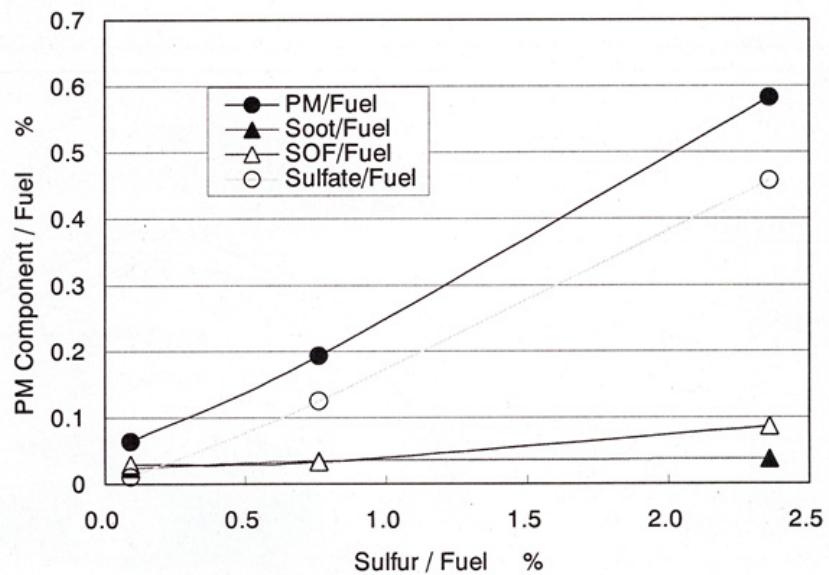


図 6.1-4 希釈法による舶用 PM 組成成果(4 サイクル中速機関の測定例)

社団法人 日本マリンエンジニアリング学会、平成 17 年、平成 16 年度 船舶排出大気汚染物質削減技術検討調査報告書より抜粋

6.1.3 PM 削減技術の基本的な考え方

このようなPMの発生要因に対して、表 6.1-1に示すような基本的考え方ができる。

PM削減の方策として、後者のガスから生成する粒子対策として、燃焼をできる限り完全に行うことと、粒子前駆体となる可能性のある物質(芳香族系、アセチレン系)を燃料から取り除く方策が考えられる。完全燃焼に近づける方策として、高セタン価、低分子化、燃料の微粒化、エンジン内での均一混合などによる燃焼改善があるが、良く知られているようにディーゼルエンジンは酸素過剰で運転されるため、完全燃焼による高温化で NOx の発生量が増大する。一般に、PM排出量と NOx 排出量はトレードオフの関係にあり、NOx 排出濃度への影響を無視した PM 削減方策は、現在の付属書VIの規制の枠組みの中では、現実的ではない。

また、燃料以外の PM 発生対策として潤滑油も無視できない。潤滑油は潤滑性とシリンダー内面の清浄にする効果とともに、舶用機関においては高硫黄燃料の燃焼生成物がシリンダー壁面においてミスト化しコロージョンを発生させることを抑えるため、同生成物を中和する役割も担っている。このため、カルシウムなどの微小アルカリ希土類粒子を多く混合しており、これは PM 排出量の増加に寄与しているものと考えられる。

表 6.1-1 PM 削減対策の基本的考え方(G ; gas, S ;solid, L ;liquid)

由来	現象	排出物		PM 対策	
		ガス状の排出	PM	エンジン側対応	燃料対応
燃料	完全燃焼 (主機など)	NOx、SOx	燃料中の無機物、Sulfate		低硫黄化 高純度化
	不完全燃焼 (港湾内の部分負荷時および補機 DG)	NOx、SOx 、 HC	Smoke(S) SOF(L)	表 5.6.2 に記載	低硫黄化 高セタン価 低分子化 残留炭素減 脱アロマ
潤滑油	熱分解	HC、一部硫酸塩	Smoke(S) SOF(L)	潤滑油消費量削減のためのエンジン構造・ピストンリング構造の改変	燃料の耐熱性向上 (高沸点化) 燃料の脱S化
	不完全燃焼	HC、一部硫酸塩	Smoke(S) SOF(L)		

6.2 PM 削減技術

6.2.1 機関における対応

1990 後半から自動車用小型ディーゼルエンジンは革新的技術の導入により、画期的な進歩をとげている。これらのエンジンは、コモンレールシステム、VGT(Variable Geometry Turbocharger)、4バルブ化、可変スワールコントロール、EGR(Exhaust Gas Recirculation)などが導入されており、それ以前の旧型ディーゼルエンジンとは、燃焼状態に明確な創意が認められる。これらの技術により、燃焼室内の燃焼状態が従来型機関に比較して、厳密に制御され、燃費だけでなく NOx および PM 削減に貢献してきている。これら全ての技術が大型、低速回転のマリンエンジンに適用される訳ではないが、電子制御、コモンレール化など一部の技術は応用されつつある。

燃焼改善技術はこのように種々あるが、マリンエンジン対応技術をここでは以下のように分類する。

燃焼改善－主として PM 対策

- ・ 高圧噴射による燃料の微粒化
- ・ SAC ボリュームの低減化
- ・ スラリー化燃料(エマルジョン化)
- ・ 潤滑油対策

(1) 高圧噴射による燃料の微粒化

燃料の噴射圧を高めれば、燃料は微粒化され、また噴霧の質も改善される。エンジン負荷に影響されない高圧噴射法としてコモンレール方式が代表的である。コモンレール方式は燃料噴射のタイミング、噴射量をコントロールする ECU を設置することにより、燃焼および燃焼温度を調整できることに特徴がある。逆にいえば燃料コントロール(電子制御エンジン)との組み合わせでなければ、全負荷域において十分な性能を発揮することはできない。

単なる燃料の微粒化だけでは、PM 削減に効果はあるが、NOx の増大を招くことになり、対策技術としては不十分である。このため、燃料噴射率コントロール技術との組み合わせが理想的となるが、コスト的には高くなる。また高圧噴射をコントロールできる電磁バルブなどが必要であり、レトロフィットが難しい場合がある。

(2) SAC ボリュームの低減化

燃料噴射ノズルの先端の空間に残った燃料が、シリンダー内に注入(滴下)されると、この液滴は、燃焼期間が過ぎているため、不完全燃焼のまま排気され PM 発生の要因となる。燃料滴下は高負荷時にはシリンダー内圧力が高いため滴下しにくいが、低負荷時にはシリンダー内圧力が低いため、滴下し易く影響が大きい。この技術対応は噴射ノズルの交換で対応できるため、レトロフィット技術として有効と考えるメーカーもある。

(3) EGR(Exhaust Gas Recirculation)

燃焼排ガスの一部をエンジンに燃焼空気として戻し、燃焼温度を低くすることにより NOx 削減を図る技術である。EGR ガスをクーラーで冷却し、更に燃焼温度を下げることが可能とな

る。ただし、EGR ガス量を多くすると燃焼効率を悪くし、PM 発生の増大に繋がる。排気ガスを循環するため、排気ガス中の SOx による硫酸腐食および PM の循環ラインにおける蓄積が懸念されるため、高硫黄燃料・重質油への適用は注意を要する技術である。

(4) 潤滑油対策

潤滑油由来の PM は全体の PM 発生量、特に SOF 発生量に大きな影響を与える。潤滑油対策はその点で重要である。対策としては潤滑油性状とエンジン構造の 2 つに分かれる。

a.潤滑油性状

潤滑油としては、沸点ができる限り高いのが望ましいが、母体が炭化水素であるため限度がある。潤滑油としては高温安定性を重視することから、環状化合物に Co、Mo などの金属を配位した油が主流である。以前は硫黄、磷化合物が使用されていたが、PM 発生要因になることから、金属化合物に変わった。潤滑油については、石油精製会社が、常に研究開発を進めており、性能は良くなることが期待できるが、限度はある。

b.シリンダー壁における消費量対策

潤滑油を最も消費する場所と言われている。シリンダー壁に均一に厚みを保つ必要があり、潤滑油の高温に晒される面積が大きくなるため、蒸発する機会が多い。必要最小量の潤滑油注入に留めることによる、PM 削減効果は大きい。ディーゼルエンジンは高圧になるため、シリンダーリングにおけるシールも重要であり、リークによる PM 発生が問題となる。

6.2.2 燃料対応

自動車用ディーゼルエンジン燃料対応としては発生原因との関連から、低硫黄化、軽質化、脱アロマ化が現実にすすんでおり、これらに伴う潤滑性をの低下についても潤滑油やピストンリングの対応などによりほぼ実用化されている。

一方、重質油を使うマリンエンジンにとって、低硫黄化は共通の対策であるが、軽油の言おう含有レベルとは、大きな差異があり、直接の比較はできない。

現在の重質油は接触分解の水素添加反応の残さが主体となっている。このため、重質油中には、蒸発性の低い芳香族分、アスファルテン分が増加する。流動性を増すため、脱硫で得られ、芳香族が増加した軽質分が希釈材として用いられる。このような重質油は、芳香族が多い燃料となり、PM 発生の可能性が高い。

6.2.3 後処理技術

陸上定置式燃焼装置からの排ガス処理、すなわち NOx、SOx、PM 対策は概ね別々の装置を用いて実施されている。しかしながら、各論で述べるように後処理装置の性能を十分に引き出すように、上流の燃焼操作が設計されており、燃焼・後処理を含めて 1 つのシステムとして考えられている。

この考えが顕著なのは、自動車ディーゼル排ガスの後処理方法である。処理装置の設置場所の関係から、NOx 除去、PM 除去、未燃炭化水素除去を一体化する必要がある(たとえばガソリン車における 3 元触媒法など)。一体化実現のために、前節で述べたように燃料性状(硫黄含有量、燃焼性、芳香族含有)の改質やそれにあわせたエンジン設計を行っている(エンジン単体で

の未燃炭化水素排出濃度は必ずしも低くない)。

船舶についても、搭載機器のコンパクト化は同様の要求事項であるが、自動車に比べ余裕はある。自動車との大きな相違点は燃料問題である。コスト面及び燃料体系という点から、燃料を今直ぐ、切り替えることは難しい。SOxフリーは望ましいが、自動車用軽油ほどのレベルをただちに期待することはできない。このため一定のSOx存在下でも対応可能な技術を評価するということが必要と考えられる。

現在他分野も含め、マリンディーゼルエンジン排ガスの後処理に適用可能と考えられる技術の、適用条件を次表に簡単にまとめた。

表 6.2-1 後処理技術の適用条件

処理対象物	後処理技術	SOx の 存在	ダスト の存在	排ガス組 成調整	処理温度	レトロ フィット
PM	DPF	適用可		不要	再生時高	可能
	CR-DPF	不可		必要	低温可	燃焼条件を 変更する必 要がある
	EP(電気集塵器)	適用可		不要	SO ₃ 露点以 上	可能
SOx、PM	湿式スクラバー (海水、水マグネシ ウムスラリーなど)		適用可	不要		可能
	乾式スクラバー		適用可	不要	SO ₃ 露点以 上	可能

SOx存在下での触媒被毒がある場合、SO₂酸化によるサルフェート生成は適用不可としている。ダスト付着、堆積(対応策があれば良い△で表示)による性能劣化および耐久性欠如は適用不可としている。

処理温度未記入の技術は操作温度が広く採れることを示している。

一般的に低温でも性能が発揮できる高活性触媒は、活性が高い故に硫酸や一酸化炭素など同じく活性の高い排ガス中成分により被毒され易い性質を持っており、かつ活性点(多くの場合細孔内にある)を覆うダストの存在を嫌う傾向がある。

(1)スクラバー法

スクラバーは設置コストが安いことから、高効率を期待しない有害ガス除去、粉塵除去に用いられてきている。スクラバー水として海水を用いる方法は、海岸設置の定置型燃焼設備の SO_x 除去として利用されている例がある。日本では SO_x 吸収剤としてカルシウムを用いる石灰・石膏法が主流であるが、海外では海水を利用し、マグネシウム(水酸化マグネシウム)を吸収剤とする水マグ法が多く採用されている。

排ガス処理用の海水スクラバーはタンカーの不活性ガス製造システムの一部として、タンカーに搭載されている例がある。ただし、処理対象ガスはボイラー排ガスであり、ディーゼルエンジン排ガスは処理されていない。また、陸上定置用と異なり、アルカリ吸収剤を添加しないのが、船舶用海水スクラバーの特徴とも言える。

2万 DWT 以上のタンカーにはイナートガスシステム(IGS)の設置が義務付けられている(SOLAS,1974)。この場合のイナートガス中の酸素濃度は 8 vol %以下とする必要がある。

IGS としては以下のように 2 種類ある。

Flue Gas Method(FGM) : ボイラー燃焼ガスを利用する。

Generator Method(GM) : PSA(Pressure Swing Adsorption)などによる IG の製造(不純物の混入を嫌う、ケミカル類、LNG、LPG に利用)

FGMはGMに比べ製造コストが低いことおよびガスを大量に製造することが可能であることから、大型原油タンカーなどに用いられている。IGSのフロー図の例を図 6.2-2に示す。IGSの原料としては、負荷が 90 %以上となるボイラー排ガスが用いられる。ディーゼルエンジン搭載船であってもディーゼル排ガスが利用されることはない。この理由として、高負荷時のボイラー排ガスの組成は安定しており且つ、酸素濃度 5 %以下を確保できることである。

海水スクラバーの性能として、ボイラー排ガス中の硫黄分(SO₂, SO₃)の 95 wt%以上、ダストの 90 wt%以上の除去が付随して行われるとされている。ただし、EUのレポートではSO_x対策を主とした海水スクラバーの評価を行っているが、PMの削減率は 15~25 %と低い値におさまっている(Entec UK, 2005)⁴⁾。SO₂はガスとして液に吸収されるが、粒子状(液体)のSO₃(サルフェート)およびその他粒子は、スクラバー水粒子との衝突によりスクラバー水に捕捉(たたき落と)される。このため、大きい粒子(1 μm以上)の捕捉率は高いが、小粒子および疎水性のSOF、カーボン粒子は捕捉率が低い。なお、SO₂は 50 °C以下の水に良く溶解し、水中でSO₃²⁻に解離するため、溶解度は大きいが、溶解量が増加し、液が酸性になると溶解度は低下する。このため、アルカリ溶液を反応液として使用しない海水スクラバーでは、反応液である海水の循環利用は期待できない。ガス状物質であるSO_xと粒子状物質であるPMでは、最適な除去効率を得るシステム要件が異なり、さらに海水を用いた場合は両者の除去に対応する機器設計は困難と考える。

スクラバー排水をそのまま放流すると、付近海面にダスト又は油分が浮遊し、海面汚染となることから、多くの船は冷却水等で薄めて放流している。放流排水による環境への影響について

4) Entec UK : “EC/DGE、Ship Emissions / Assignment、Abatement and Market-based Instruments ; task 2C Final Report、Aug.2005.

ては、今後検討の必要がある。MALPOL73/78 条約 付属書 I では排水中の鉱物油濃度として 15 ppmを規定しているが、それ以外の物質については、基準を設けていない。特にスクラバー水に排ガス中の油分やPAH、SS、 SO_3^{2-} 、重金属(バナジウム、ニッケル、水銀、銅、鉛など)が混入した場合、液は酸性となり、また SO_3^{2-} 由来の高COD水となる。同時に、重金属やPAHを含んだ排水となる可能性がある。このため、現在MEPCにおいてはSECAで使用されるEGCSに限定して排水クライテリアを作成中である。このような排水を高度処理するためには、非常にコストがかかるため、今後の排水基準の動向が重要になると考える。

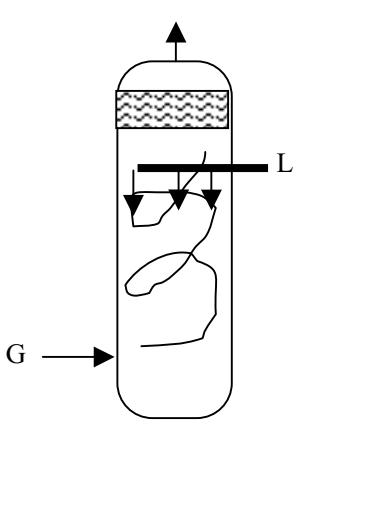
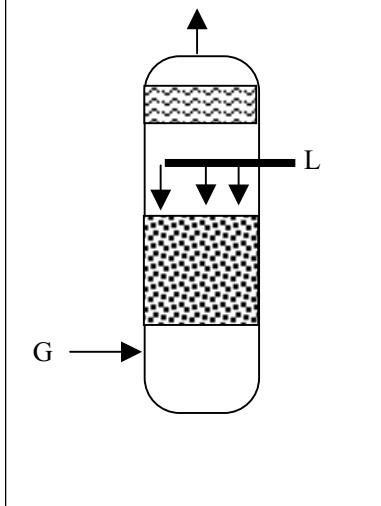
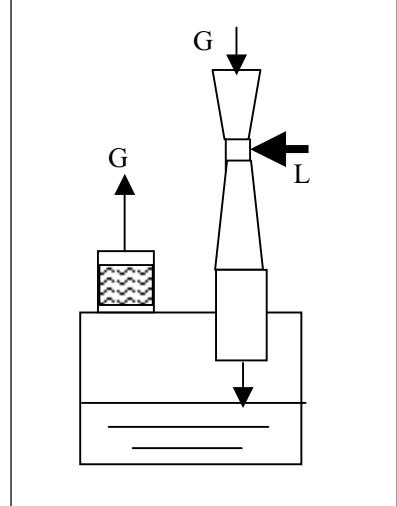
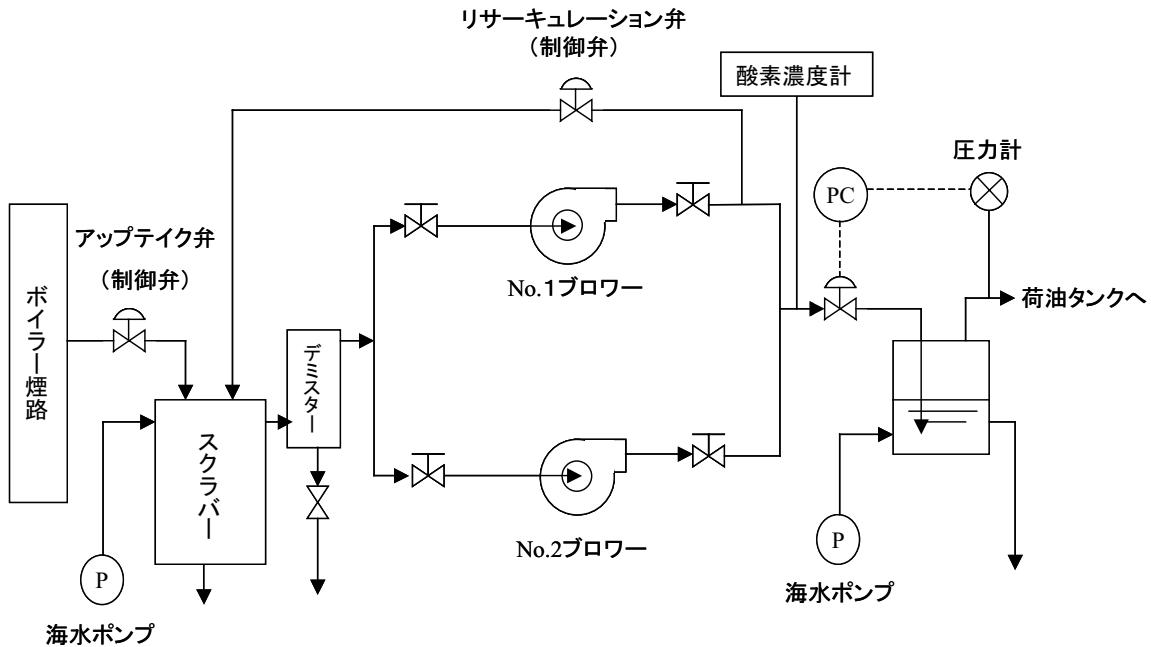
		
スプレー塔	充填塔	ベンチュリースクラバー ジェットスクラバー
塔内のガス流速は 2 m/sec 以下。 圧力損失が少ないが、除去効率は低い。 ガスを旋回させ、効率を上げるタイプもある。塔内に邪魔板を設置するタイプもある。 圧力損失を少なくする場合に利用。	ガス流速は 1 m/sec と非常に遅く、塔径が大きくなる傾向にある。 充填物の代わりに棚段を設置するタイプもある。 スプレー塔より効率は期待できるが、処理量の柔軟性に欠ける。	ガスの押し込め力で液を吸引する。液注入量を増加させることにより、ガス吸引力を増すことも可能。気液混合流体を液面に衝突させ、粒子を捕捉する。 エネルギー消費量が多い。送液ポンプの能力次第であるが、幅広い操作範囲が確保できる。

図 6.2-1 代表的スクラバー例



(タンカー荷役実務研究会：“大型タンカーの実務”、株成山堂書店、pp152(1985)より抜粋)

図 6.2-2 イナートガスシステム(EGS)のフロー図

(2) 乾式スクラバー

排煙脱硫設備が初期のころ、日本では湿式スクラバー(石灰・石膏法)が主流であったが、米国では排ガスダクトに石灰スラリー(又は石灰粉末)を噴霧し、バグフィルター又はサイクロンで石灰粒子を回収するといいわゆるドライスクラバーが用いられていた。最近では、焼却炉排ガスに粉末活性炭炭を投入しダイオキシンを吸着させる方式が行われている。粉末活性炭はコスト高であるため、重曹粉末を注入し酸性ガスの除去と同時にダスト捕捉が行われている。ドライスクラバーは、設備的に簡単であるが投入粉末とガス中の除去目的物の接触確率によって除去率が決まるため、高い除去率は望めない。

(3) 電気集塵器(EP ; Electrostatic Precipitator)

高電圧コロナ放電により、粒子を帶電(+側)させ、陰極側に静電力で粒子を捕集する方法で陰極に付着した粒子は衝撃力で剥離され回収される。通常は、EP の前段に粗粒子除去用のサイクロン又は衝突(慣性)型エリミネーターとの組み合わせで使用されている。

日本国内では、圧力損失が少ないと、除去性能が高いことからゴミ焼却場の排ガス処理に採用されていた。しかしながら、EP 内においてダイオキシン再合成(デノボ合成)が 300 °C 附近でも行われることが判明した後、塩素(又は塩化水素)が存在しない、又は 200 °C 以下(デノボ合成が起きない)という特殊雰囲気での利用に限定されたため、国内で市場を失っている。ダスト捕捉率は 90 %以上と高い。

欧州では固定施設ディーゼル排ガス後処理用として検討が始まられている(Diesel Net

Technology guide)⁵⁾。この場合の技術的問題点として、以下が上げられている。

排ガス中の塩化水素濃度。ダイオキシン発生問題

通常原油中の塩素分は 1 ppm 以下にコントロールした後、精製に入る。軽質燃料への塩素混入量は少ないが、重質油に蓄積される可能性がある。潤滑油中の塩素濃度のコントロールと併せての検討が必要。

① 有機炭素分(SOF)対策

SOF に対する捕集データは少ない。一部の SOF は液状であるため電極に接触した後に剥離しやすいことも問題となる。

② 硫黄成分(SO_2 、硫酸ミストなど)による電極腐食

硫酸の露点以上の温度での操作が必要。エンジン出力により排ガス温度および流量が変化するため、温度を硫酸露点以上に常に保持することが可能か？

EPは電極版の間を流れるガス流速を、粒子が捕捉できるように遅くする必要がある。このため設備が大型になる傾向がある。また、 SO_2 はスルーするため、将来 SOx が厳しくなった時、 SOx 対策が後付けで必要となる可能性がある。

(4) DPF(Diesel Particulate Filter)

ディーゼル排ガスを耐高温のフィルターでろ過し、フィルターに捕捉された粒子を 500～700 °C で燃焼処理する。燃焼処理において、温度は 1000 °C 近くまで上昇するため、フィルター素材として SiC、コーナーライトなどのセラミックが用いられている。フィルターユニットを 2 系列以上設置し、ろ過、再生を切り替える交互再生方式を DPF と呼んでいる。

一方、フィルター表面に白金、パラジウムなどの貴金属系酸化触媒を担持し、低温で PM を酸化除去する連続再生方式がある(CR-DPF ; Continuous Regeneration Diesel Particulate Filter)。CR 方式は、 SOx 存在下では、 SO_2 の酸化によるサルフェートの増大、 SOx の触媒被毒による耐久性に問題があり、低硫黄燃料用技術である。

交互再生方式では再生時にフィルターを 500 °C 以上にする必要があり、加熱方法としてヒータ加熱、バーナ加熱、燃料燃焼加熱などの方法がある。大型ディーゼルトラックなどのレトロフィット用として、ヒータ加熱方式が最も普及している。交互再生方式はフィルターの熱履歴の問題があり、サーマルショックに強いセラミック素材の開発が続けられている。

EU では、自動車用として、CR-DPF とエンジンの電子制御と組み合わせた燃料供給加熱が主流となっている。EU では低硫黄燃料を前提としており、排ガス温度が低下する低負荷時に燃料を過剰注入し、フィルターでの酸化加熱用としている。

連続再生方式は交互再生方式に比べ設置スペースが少なく済むというメリットがあるものの、低硫黄燃料とエンジン電子コントロールが不可欠である。

DPF のマリンエンジン適用上の問題点として下記の点があげられる。現実に一部の PCC において補機 DG を対象に、DPF が試験的に採用されているが、この場合も A 重油相当の燃料を使用しており、現在のような平均 2.8 % 程度程度の重油を使用した場合の DPF の利用は現時点

5) http://www.dieselnet.com/tech/diesel_comb.html

では、非常に困難と考える。

① 硫黄成分(SO₂、硫酸ミストなど)の捕集効率

高負荷時には排ガス温度が 350 °C以上となり、無水硫酸は気体として存在する。このため、フィルターには捕捉されない。逆に低負荷時にはガス温度が低く、無水硫酸の露点以下では、フィルター負荷を増大させる可能性がある。

② 重質油利用時の DPF の有効性

重質油利用時の DPF の有効性については、まだ開発段階である。港湾区域への環境影響が大きいと考えられる港湾内の低負荷運転時に発生するろ過性状の悪い PM に対応可能かどうかの見極めが必要となる。エンジン内温度および排ガス温度低下により生成する粘着性の高い PM 対応が可能かどうかの確認が必要である。

6.2.4 PM の削減ポテンシャルのまとめ

以上、PM の削減技術について、陸上における技術を中心に概観してきた。

低質燃料の使用を前提にした現在の状況では、硫酸ミストと凝集物および大気中で生じる二次粒子が、環境に影響を与える PM の大きな割合を示しており、これに対して一次粒子(いわゆるディーゼル粒子)の影響が相対的に少ないことには疑いない。このような現状では、低硫黄分をもつ良質燃料への転換が排出ポテンシャルとしても最も効果があると考えられる。しかしこのような、良質燃料への転換については、これまでコストの問題などから国内外ともに充分に議論されてこなかった。しかし、7 章で紹介するように、IMO においても港湾付近あるいは全世界における燃料の制限について議論が行われており、その動向が注目される。ただし、2 章で検討してきたシミュレーション結果などを含めた地域の特性、燃料切り替え時における安全性や燃料供給体制の確保など規制の実効性、などを総合的に考える必要がある。

燃料転換を除いた削減技術としてポテンシャルをもつのは、①NOx 排出にも留意した燃焼改善技術、②燃料に対応した潤滑油の使用およびその供給システム、③排水による環境影響に留意した上での海水スクラバーの使用などであると考えられるが、いずれもコスト以前に技術的な困難さなどもあり、仮に対象を補機に限定したとしても、実用性までに開発しなければいけない課題が多くある。

さらにコストを見込んだ場合、良質燃料の使用あるいは陸電の使用の方が、全体のシステムとしては最適になる可能性もあると考える。将来的には、ディーゼル機関そのものの稼動負荷を低減させるような枠組みを導入することを考慮るべきであろう。たとえば、停泊中荷役中における陸電使用は港湾域内における一次粒子・二次粒子双方の大幅な削減に繋がる。導入コストは非常に高いものとなるが、港湾域において PM 大気環境対策が望まれる場合には、局地的な導入やその環境改善効果について定量的に検討していくことも必要になると考えられる。

7. PM の将来規制の枠組みに関する提言

7.1 我が国の陸上における PM 規制の概要

日本では、環境基本法に定めるように大気環境を保全し、国民の健康を保護するとともに、生活環境を保全することを目的として環境基準値が設定されており、この達成を目的に「大気汚染防止法」や「自動車 NOx・PM 法」などの法律およびそれを補完する形で各地方自治体において条例が制定されている。日本における PM 規制の枠組みを概観する。

7.1.1 固定発生源から排出されるばいじんの排出規制

大気汚染防止法では、固定発生源(工場や事業場)から排出されるばいじんについて、施設の種類及び規模ごとに排出ガス $1\text{ m}^3\text{N}$ あたりのばいじん量($\text{g}/\text{m}^3\text{N}$)で排出基準を定めている。試験モードはなく、全ての負荷時において基準値以下であることが義務付けられる。ここでいう「ばいじん」とは、JIS Z8808 に定める直接法により測定されるものであり、「排ガス中に含まれる固体粒子であって付着水分を除いたもの」であるDust分である(JIS Z8808-1995 : Methods of measuring dust concentration in flue gas)。この方法は、Hot Filter法とも呼ばれ、機関から排出直後の高温ガスをそのまま石英フィルター上に捕集するものである。したがって、粒径 $10\mu\text{m}$ 以上の比較的速やかに重力沈降する粒子も含めて捕集している可能性がある一方で、逆に $1\mu\text{m}$ 未満の微小粒子および排ガスが冷却されるにつれて一部の高沸点VOCがミスト化することによって生じる粒子、および既に生成した微粒子が排気温度の低下とともに、周辺のミストやガスなどを吸着し成長する凝集ダストは捕集されていない可能性が高い(図 6.1-3 参照)。

なお、都道府県は、住民の健康を保護し、または生活環境を保全する必要があると判断した場合には、大気汚染防止法の排出基準よりも厳しい基準を定めることができるシステム(上乗せ規制)となっている。二次粒子の大きな要因となる燃料中硫黄分についても、別途大気汚染防止法に定められた硫黄酸化物に対する総量規制により、排出源ごとに上乗せ規制が可能である。その他公害防止協定や行政指導などにより我が国の主な港湾を抱える大都市域においては、事実上、C 重油相当の燃料を陸上の固定発生源において使用・燃焼させること自体が困難な状況にある。このため、我が国の港湾区域における陸上固定発生源からの SOx 排出量は、著しく削減された状況にありこれに伴う硫酸塩二次粒子の環境負荷も非常に小さくなっていると考えられる。

一方、港湾地域において測定される二次粒子に占める硫酸塩の割合は、5. 章でみてきたように、夏場では 50%前後を占めており、。

7.1.2 オンロード及びオフロード・ディーゼル・エンジンに対する規制

自動車排出ガス規制は、大気汚染防止法に基づき、自動車の種類別に排出される物質ごとの排出基準値が定められている。規制開始時の平成 6 年以来、平成 17 年 10 月からの新長期規制に至るまで 4 回にわたり規制強化されており、一台当たりの削減率は規制開始時に比べ 96 % に達しており、世界で最も厳しい水準の規制を行っている。

加えて、平成 22 年度の環境基準達成をおおむね確実なものとし、その後においても維持していくため、新長期規制以降も世界最高水準の排出ガス規制を実施する予定であり、中央環境

審議会答申「今後の自動車排出ガス低減対策のあり方について」(第八次答申、平成 17 年 4 月 8 日。(以下「中央環境審議会第八次答申」という。))において示されている 09 年目標(以下「09 年目標」という。)では、同じくディーゼル重量車の例を見ると、新長期規制に比べ窒素酸化物については 65 %を削減、粒子状物質については 63 %を削減し、ガソリン自動車とほぼ同じレベルを達成することとなる。

例えば、オンロード・ディーゼル・エンジンのうち、重量トラック($3.5 \text{ t} < \text{GVW}$)より排出される粒子状物質(PM)について現在設定されている基準値は、 0.027 g/kWh (試験モード：JE05 モード)である。ここで言う PM とは、エンジンからの排ガスを清浄な空気を流した希釈トンネルで 52°C 以下になるよう希釈・冷却し、捕集フィルターにより捕捉された粒子状物質のことである。

排出ガスの規制強化のためには燃料中の硫黄分の低減も重要であり、順次低減された結果、現行では 50 ppm 以下となっている。更に新長期規制以降の排出ガス低減技術の開発の進展を促すため、軽油については平成 19 年から、ガソリンについては平成 20 年から 10 ppm 以下とされる。なお、石油業界の自主的取組により平成 17 年 1 月から硫黄分 10 ppm 以下の軽油の供給が沖縄、離島部を除き開始された。

一方、フォークリフトやコンバイン等の従来未規制であった公道を走行しない特殊自動車については、PM 及び黒煙が規制されている。例えば、定格出力 130 kW 以上 560 kW 未満のオフロード・ディーゼル・エンジンから排出される PM については、 0.17 g/kWh 、黒煙については 25 %(試験モード：8 モード)が規制値として定められている。ここで言う黒煙とは、Spot Smokemeter で測定されるものである。

更に、「特定特殊自動車排出ガスの規制等に関する法律」(平成 17 年法律第 51 号)により、平成 18 年 10 月から新たに排出ガス規制が開始されたており。この規制により、全国ベースで、平成 22 年度には、窒素酸化物の年間排出量で約 9 万トン、粒子状物質の年間排出量で約 2 千トンが削減されるとの試算があり、これにより、沿道以外の地域についての濃度(バックグラウンド濃度)低減などの効果も見込まれる。加えて、特殊自動車の排出ガス規制強化については、排出ガス試験の国際的な基準調和について検討の上、平成 22 年頃の達成を目指とした新たな排出ガス許容限度目標について検討を行うこととしている。

その他、産業界による小型汎用ディーゼルエンジンに関する自主規制として、国内エンジンメーカーが主な会員となっている日本陸用内燃機関協会 Japan Land Engine Manufacturers Association (LEMA)では、 19 kW 未満の小型汎用ディーゼルエンジンの排ガス自主規制 voluntary regulation を実施している。自主的に規制している対象物質には、PM 及び smoke が含まれている。

7.1.3 船舶機関に対する既存の規制

日本における船舶からの排出ガスに関する規制は、神奈川県が条例にて、船舶の往来が激しい横浜港及び川崎港の港湾区域における船舶からのビジブルスモークについて排出規制を設けている。その制限濃度は、リングルマン濃度 1 度(総トン数が 3,000 トン未満の船舶については適用除外)としている。

その他、川崎市および神戸市においては、それぞれ低硫黄分燃料の使用と機関の良好な管理

及び低硫黄使用燃料使用を要請する条例が存在する。これらの条例は、民間企業や埠頭公社など、埠頭の運営管理者が、そこを使用する船舶に対して低硫黄燃料の使用を要請する間接的な形式を取っており、船舶に対して直接的に使用燃料を制限する法律や条例は現時点では存在しない。

また、公害防止協定や事業所の環境影響評価作業の過程において、荷役中における良質燃料の使用あるいは陸上電源の使用が検討されている事業所も数は少ないが、数例ある。

7.2 国際海事機関(IMO)などにおける船舶排ガス規制の最新動向

IMOにおける付属書VIの改正に関する主な会議と審議内容(予定を含む)を表 7.2-1下表に示した。また改正作業の内容を定めたTORを表 7.2-2に、最新の 2006 年 11 月に行われたBLG中間会合における審議内容を含めた各汚染物質の規制予測を表 7.2-3に示した。

MARPOL 73/78 条約VI付属書は 2005 年 5 月に発効しており、もともと同附属書の NOx 規制には、5 年毎の見直し規定があり、それを見越した規制値が欧米では既に提案・実施されている。このように、欧米は国内に比較して、船舶排ガス規制に積極的である。その理由として、①陸上の固定発生源に対する規制が日本国内に比較して進んでいないこと、②酸性雨など海を越えて陸上に影響する場合が多く、船舶排ガスの寄与が疑われるがあげられる。

その一つの事例として、グーテンバーグ議定書があげられる。同議定書は、長距離越境大気汚染条約(Convention on Long-range Trans-boundary Air Pollution)において、採択された 6 つの議定書の一つであり、正式名称は、酸性化・富栄養化・地上レベルオゾン低減議定書(1999 年採択)である。同議定書では、2010 年を目標年として、EU 全体で 1990 年ベースから SOx 排出量を 63 %、NOx 排出量を 41 %、VOC 排出量を 40 %、アンモニア排出量を 17 % まで削減させることを目標に、各国の排出目標を設定している。ここで、各排出量には、領域内を通過航行する船舶からの排出量が含まれている。特に、EU15 ヶ国(EEZ 内)において、船舶排ガスの寄与率が、2010 年では NOx で 40 %、SOx では 44 % になると推定されている。これが規制強化の最大の根拠。米国での状況も同様。2020 年には、SECA を導入しても SOx で 50 % を超えると予測されている。わが国でも、EEZ 内における当財団の排出量予測では、NOx、SOx ともに 40 % 前後でその寄与率は同等になりつつある。また、航行量および港湾内での活動量の伸びも問題視されており、特にコンテナ船の増加や停泊時の発電容量の増加は、現行の NOx 規制機関の導入による単体規制を超えた伸びを示しており、結果的に特に港湾内の NOx、SOx 排出量が今後とも伸び続けるという試算が欧州各国で示されている。

このような中、各国の排出量目標に対する中間評価の取りまとめが行われているが、陸上排出源のみの対策で削減目標が困難な国においては、船舶を含めた移動発生源に排出税などをかけて、削減を図ることが検討中である。なお、ノルウェーでは本年より NOx についても排出税が導入予定であったが、国際運航船舶は最終的に除外された。

これらの議論の中では、IMOにおける規制議論では、PMについては表 7.2-3に示すように、燃料の硫黄分に起因するものが多く、燃料中規制を優先させることで合意されている。このため、6 章に示すような、燃焼改善やPMを対象にした後処理装置を導入するような規制は、今回の改正においては盛り込まれない見込みである。

なお、SOx 規制案は、SECA のみの燃料中硫黄分を下げる B 案とグローバルキャップを大幅にさげる C 案について議論がなされているが、コスト面、燃料供給体制、燃料切り替えによる船舶側の作業と安全性の確保など、実行上更に検討すべき課題が多く、2007 年 4 月に開催予定の BLG においても最終決着がつかず複数の規制案が併記されたまま同年 7 月に開催の MEPC において引き続き議論される可能性が高いと考える。

表 7.2-1 IMO における付属書VIの改正に関する主な会議と審議内容

日付	会議名	主な内容
2005 年 5 月	-	付属書VIの発効 (日本国内においては、海防法の改正が施行)
2005 年 7 月	MEPC53	付属書VIの発効を受けて同改正について合意。TOR を作成。NOx、SOx の規制強化だけでなく、PM 排出規制、既存船の SOx、PM 規制の検討が盛り込まれる(2 項、参照)。
2006 年 3 月	MEPC54	付属書VI改正の議論はなし。 SOx 規制海域で使用される排ガススクラバーの排水基準の検討。
2006 年 4 月	BLG10	付属書VI改正の集中審議。 NOx 規制値の 3 段階の強化に合意。PM 排出には、燃料中の硫黄分が大きく影響していること、ガス状の SOx も大気中で、粒子状物質に変換することが認識された。
2006 年 10 月	MEPC55	付属書VI改正の議論はなく、GHG の議論がメイン。 SOx 用排ガススクラバーの排水基準の検討。 陸電の使用を今回の付属書VI改正作業に含めないことに合意。
2006 年 11 月	BLG-WGAP	付属書VI改正の集中審議。 NOx の Tier1 および Tier2 の規制値の設定以外に、NOx、PM に対する既存船規制、燃料中の硫黄分規制、PM 規制、VOC 規制についても検討された(3 項、参照)。
2007 年 4 月	BLG11	付属書VI改正の集中審議。 中間報告書が作成。NOx の Tier2 規制値については、固まるか? SOx の規制値については、流動的。
2007 年 7 月	MEPC56	BLG11 で作成された改正内容を検討。最終案化。
2008 年 3 月	MEPC57	最短で変更内容が採択される。NOx 規制は自動的に発効?
2010 年		NOx 規制 Tier2 が施行?
2015 年		NOx 規制 Tier3 が施行? SOx グローバルキャップが 1 %程度に

MEPC(海洋環境保護委員会)、BLG(バラ積み液体・ガス小委員会)の略。

表 7.2-2 付属書VIの改正に関する TOR(Term Of Reference)

.1	examine available and developing techniques for reduction of emission of air pollutants;
.2	review the relevant technologies and potential for reduction of NOx, and recommend future limits of NOx emission;
.3	review technology and the need for reduction of SOx, justify and recommend future limits of SOx emission;
.4	review the technology and potential for reduction of VOC;
.5	with a view to controlling emissions of particulate matter (PM), study current emission levels of PM from marine engines, including their size distribution, quantity, and recommend actions to be taken for the reduction of PM from ships. Since reduction of NOx and SOx emission is expected to also reduce EPM emission, estimate the level of PM emission reduction through this route;
.6	consider reducing NOx and PM limits for existing engines;
.7	consider whether Annex VI emission reductions or limitations should be expanded to include diesel engines that use alternative fuels and engine systems/power plants other than diesel engines;
.8	review the texts of Annex VI, NOx Technical Code and related guidelines and recommend necessary amendments.

.5 項が、PM と二次粒子からの影響を考慮するという MEPC における作業検討事項を示す。

表 7.2-3 大気汚染物質別の付属書VI改正内容案
(BLG 大気汚染 WG 中間会合の審議などを受けて作成)

対象物質	主な改正内容案	備考
NOx	<p>新造機関に対しては、既に行われている Tier1 に対して下記の 2STEP で規制強化を行う。現行 Tier1 は、およそ回転数によって異なるが、850～1,100 ppm(@13 %O₂ 換算)</p> <p>Tier2(2010-2012 年ごろ、規制値決定後 3 年という提案あり) 燃焼改善を中心に、現行規制(Tier1)からさらに 20-30 %程度の削減。国内メーカーは、細かい技術的な問題を除くと、2010 年であっても 20 %以内であれば対応可能としている。</p> <p>Tier3(2015-2017 年ごろ) SCR および水利用技術を中心に、現行規制(Tier1)からさらに 50 %以上の削減を目標とする。A 重油相当の使用が大前提となるか？規制値および実行可能時期については、まだ議論が残されており、次回 BLG に持ち越し。</p> <p>既存船については、必要性を認めるものの、現在のような型式認証を前提とした規制は困難であることを認識。</p>	<p>小型高速 4 サイクルについては、EPA、EU の規制との整合性や陸上機関との整合性を取る可能性があり、この場合定格回転数ではなくシリンダー当たりの排気量をパラメータにした新たなカテゴリーを新設する可能性がある。今回の中間会合において、使用燃料や常用回転数などが異なる場合、同じ低減対策が適用できない場合が多いことが、EPA などから指摘され、4 サイクル機関については、使用燃料により個別の対</p>

対象物質	主な改正内容案	備考
	<p>日本から、地理的規制(港湾及び沿岸域では、Tier3 規制を適用するが、陸上への直接的な影響が少ない外洋域においては、適用外とするもの)を提案しているが、現時点では Switching Point の設定根拠や、実効性などから、一部の賛成しか得られていない。</p>	策と削減割合がまとめられている。次回 BLG にて各国から具体的な規制値を改めて提案。
SOx	<p>燃料中の硫黄分が PM 排出量に対して直接的な影響があることを認識(特に希釈法で測定した場合、全 PM 量のおよそ 8 割が硫酸塩、残りが Diesel Particle と Soluble Organic Fraction)。</p> <p>Global Cap については、これまで具体的な数値の議論なかったが、INTERTANKO より、グローバルキャップを 1.0 %とする提案が出された。これを受けて、下記 4 案またはその組み合わせにまとめられた(D 案は具体的内容について、次回改めてデンマークと EU から提案される)。</p> <p>A 案：現在の規制を維持する案</p> <p>B 案：SECA の規制強化を優先する案</p> <ul style="list-style-type: none"> ・グローバルキャップ(現行 4.5 %)は変更しない(多少の削減を検討すべきという少数意見あり) ・SECA におけるキャップ(現行 1.5 %)について <ul style="list-style-type: none"> 第 1 段階：1.0 %以下 [2010]年から 第 2 段階：0.5 %以下 [2015]年から <p>residual fuel(残さ油)でも、distillate fuel(A 重油相当油)でも OK。</p> <p>C1 案：船舶がディーゼル機関(NOx 規制がかかる全ての機関)で使用する燃料を、現在の残さ油(residual fuel)から A 重油相当油(distillate fuel)に転換する。副次的にグローバルキャップを下げる案 →第 14 規則だけでなく第 18 規則の改正も必要。</p> <p>第 1 段階：1.0 %以下 [2012]年から(供給状況を考慮して延期する可能性あり)</p> <p>第 2 段階：0.5 %以下 [2015]年から</p> <p>C2 案：規制値は C1 案と同様であるが、硫黄分の規制値に限定するもの、つまり低硫黄含有残さ油の使用や、高硫黄含有残さ油であっても排気ガススクラバーの使用により実質的な排出値を下げる方策を認める案</p> <p>D 案：港に入る船舶に対する規制を新たに設定する案 0.5 %以下の硫黄分の精製油を使用する又は同等の硫黄分の排出に抑える他の方法(陸上の電気を使用する等)などを入港する船舶に求めることを可能とし、規制のためのガイドラインを策定の上で、各港が規制開始の 6 ヶ月前までに IMO に通報する。</p>	財団より文章を提出。

対象物質	主な改正内容案	備考
	なお、海水スクラバーなどによる SOx 後処理は、side stream や排水処理が負担となるため、現時点では実現の可能性が薄い。	
PM	粒径別に大気中の寿命が異なること、人体への影響も異なることから、シミュレーションモデルによる評価をもとに、規制の必要性を検討。PM については燃料の硫黄分に起因するものが多く、燃料中規制を優先させることで合意。 PAH(Poly Aromatic Hydrocarbon)や重金属など、燃料由来の有害物質の含有量が高い場合は、良質燃料を用いる陸上発生源に対して質量ベースの規制値が厳しくなる可能性がある。	財団より文章を提出。
VOC	Management Plan の作成を中心に船舶側の対策がノルウェー、INTERTANKO から提案されている。陸上へのベーパーリターンと処理装置の設置はコスト負担の問題などから、今回の改正作業には盛り込まれない見込み。リード蒸気圧などにより規定される積み込み禁止貨物の提案は盛り込まれない見込み。	喜入備蓄基地が、ノルウェー、米国に続き 3 番目に原油の回収装置の設置を決定。
冷媒	モントリオール議定書に基づいた現行規制を強化する提案(特に使用過程における漏洩量の把握と規制)を UK、INTERTANKO などが出している。	京都議定書の枠組みとダブらないことを確認。
CO2	MEPC58 までは、大きな変更を行わない。ただしベースラインの検討と市場メカニズムの導入については平行して作業。	ISO TC8/SC2 において別途 ISO 化の作業が開始されている。

7.3 海外における IMO 以外の船舶規制の動き

海外における IMO 以外での船舶規制の動きのうち、主なものを紹介する。

ここで注目されるのは、港湾内での排出に関心が集まっている点である。EU 指令もカルフォルニア州における規制プログラムも、港湾内に停泊・荷役中の船舶を規制対象にしており、特に SOx については、良質燃料あるいは陸電を使用することにより、実質的な排出量を大きく削減することを目指している。

なお、陸電については付属書VIの改正作業には含めず、ISO 化を優先させることが、2006 年 10 月の MEPC55 において合意されているが、欧州、米国内などで陸電使用への動きが加速化している。ISO TC8/SC3 において標準化作業が進行中。国内では船技協内に委員会が設置。船種別(Cruise、Containership & RORO、Ferry、Tanker/LNG、Bulker)に電気的な技術的基準を設置され、ISO 化への動きが急ピッチで進んでいる。この規則には、コネクター、電圧周波数など以外に、ブラックアウトの有無、力率の調整などの規格を、船種ごとに作成する予定である。

表 7.3-1 EU における船舶使用燃料規制の概要

EU(硫黄分規制、Directive 2005/33/EC of the European Parliament and Council Modifying Directive 1999/32 as Regards the Sulfur Content of Marine Fuels,)

- 2006 年 1 月 1 日より、SECA 以外の海域を含めて EU 域内の港間を航行する定期客船の使用燃料中硫黄分を 1.5 %以下にする
- 2010 年 1 月 1 日より、港湾で停泊中の船舶および内水面のみを航行する船舶の使用燃料中硫黄分を 0.1 %以下にする
- SECA の新たな設定なども検討する可能性あり

陸電の使用に関する勧告(COMMISSION RECOMMENDATION of 8 May 2006、2006/339/EC)を発表。今後の港湾整備において陸電供給の陸側施設の設置を考慮するとともに、上記の停泊中の燃料規制は、陸電を使用する船舶に対して適用されないことを明記。

表 7.3-2 カルフォルニア州における船舶排ガス規制プログラム

カルフォルニア州(LA 港、LB 港の船舶排ガス対策プログラム案)

- 船舶速度削減プログラムの完全遵守(当初は適用範囲を離岸距離 20 海里とし、その後 40 海里まで範囲を拡大する。)
- 主要または補助エンジン内の硫黄軽油(MGO)燃料の使用を 2007 年から 0.2 %以内に抑えるかそれと同様の削減措置。当初は適用範囲を停泊地と離岸距離 20 海里内とするが、その後 40 海里まで拡大する。
- ロサンゼルス港の全ての主要コンテナ、一部の液体バルク、航海ターミナルで停泊中に出される排気ガス対策として、5 年以内に海岸部発電(またはその類)を導入する(2006 年 12 月～2011 年第 4 四半期までに港湾側の整備を終了)。ロングビーチ港においては全てのコンテナターミナルと原油ターミナルから停泊中に出される排気ガスに対して 5 年から 10 年以内に同様の措置を導入する(2006～2011 年までに港湾側の整備を終了)。
(実施時期の時間的差異はロングビーチ港の広範囲にわたるインフラ整備スケジュールによる。なお、インフラ整備に要する予算措置が取られている)
- 新たな船舶と港を頻繁に使用する車両の主、副エンジンに NOx および PM(粒子状物質)制御装置を使用する。

7.4 初年度調査のとりまとめ

本年度の結果から、PM 規制の将来の枠組みに関する考察は下記のように取りまとめられる。

- 港湾付近における PM の大気環境は、国内、海外を見ても劣悪な状況にある。本年度の港湾大気調査においても劣悪な状況は確認された。

しかし、移動発生源および固定発生源に対する規制に比較すると、船舶 PM に対する規制は一次粒子に対しても二次粒子に対しても充分に検討されてこなかった。
- 船用機関から排出される PM は、いわゆるディーゼル粒子を主成分とする一次粒子と、SO_x および NO_x といったガス状物質が、大気中において光化学反応を経て粒子(微小な硫酸塩や硝酸塩)に転換した二次粒子に大別される。
- 重質油を用いる船用ディーゼル機関においては、燃料中の硫黄分が粒子化した一次粒子が、PM 排出重量の 8 割以上を占めていると考えられる。これとは別に大気中においても、残りの SO_x、NO_x の大部分が、比較的速やかに二次粒子(硫酸塩)まで酸化され、100 km 以上の長距離を移流することが、シミュレーション結果により明らかになった。

このような、粒子も含めた環境中の挙動の解析は、国内外において先進的な解析結果である。
- 二次粒子の影響が大きい現状では、ディーゼル粒子(一次粒子)の低減を目的とした機関の燃焼技術の改善では、十分に実効性のある大気環境改善効果は期待できない。このため、二次粒子除去を目的として、燃料転換や後処理装置といった複合的な対策を行う必要がある。特に硫酸塩の生成・排出量は、燃料中の硫黄分にほぼ比例するため、燃料転換 特に低硫黄化について、その将来的な可能性を真剣に検討することが必要となる。
- 東アジア域の外洋において排出される船舶 PM は、陸域に到着するまでに一部海面へ沈着する。これらの効果やバックグラウンド濃度との比較を考慮すると、港湾域に対する外洋域における影響濃度は無視できるレベルにある。このため、港湾域の大気環境に改善効果にプライオリティを置いた対策を選択することが望ましい。

ただし、PM の大気中での挙動、特に二次粒子の挙動は、地域・海域によって大きく変動することも考えられ、効果的な対策を実施するためには、二次粒子も含めた粒子の生成量、粒度分布や構成成分ごとの大気中での挙動、人の健康や環境への影響程度を更に解明することが重要である。
- 今後更に検討を要する削減対策は下記のようにまとめられる。
 - ① 使用燃料の低硫黄化を含めた燃料転換

二次粒子を含めて大幅な削減が期待できる。燃料代の高騰を招くことから、削減シナリオによる大気環境改善効果、コストおよび実施上の問題点を抽出することが必要。
 - ② 後処理装置(脱硝、脱流装置および排ガススクラバーの設置)

NO_x の将来規制に対応する SCR 装置や乾式の DPF は、粒子の除去率が必ずしも高くない。排ガス温度を下げるなど、硫酸塩を含めた二次粒子を除去可能な技術の抽出および除去に伴い生じる副生成物の処理方法の検討。
 - ③ 港湾域の陸電化

①の燃料転換は、コストが高くかつ供給体制に問題がある場合も考えられる。港湾域における、環境改善には停泊時の陸電使用もオプションとして検討すべきである。
- 本調査は 2 年計画の初年度であり、港湾域における環境影響などに中間的な暫定値を含んでいる。このため、ここまで述べた提言についてもさらに解析を進め、必要に応じて修正を施すこととしたい。

資料編 I IMO 提出文書

(BLG 小委員会 第一回大気汚染ワーキンググループ中間会合へ、日本国から提出)



INTERSESSIONAL MEETING OF THE
BLG WORKING GROUP ON AIR
POLLUTION
1st session
Agenda item 2

BLG-WGAP 1/2/7
18 October 2006
ENGLISH ONLY

REVISION OF MARPOL ANNEX VI, THE NOX TECHNICAL CODE AND RELATED GUIDELINES

Basic information on particulate matter emitted from marine engines

- the fate in the atmosphere of diesel particulate and
secondary particulate matter from NOx and SOx**

Submitted by Japan

SUMMARY

Executive summary: This document provides background information regarding the fate in the atmosphere of particulate matter from marine diesel engines at the sea lane in the West Pacific Ocean. The information includes the production, transport, dispersion and deposition rate of both diesel particulate and secondary particulate matter, which are caused from SOx and NOx through photochemical process.

Action to be taken: Paragraph 6

Related documents: MEPC 53/24/Add.1, annex 14, BLG 10/14/1, BLG 10/14/11, BLG 10/14/15 and BLG 10/WP.3, Paragraph 14

1 Background

1.1 Particulate matter, also known as PM, is one of the air pollutants from ships. In July 2005, the Marine Environment Protection Committee (MEPC), at its 53rd session, decided to start a comprehensive review on MARPOL Annex VI, including not only NOx/SOx but also other pollutants such as particulate matter. The Committee agreed to include this item in the terms of reference of the BLG Sub-Committee (MEPC 53/24/Add.1, annex 14).

1.2 The terms of reference for the revision of MARPOL Annex VI required for PM emission control not only for reduction of diesel particulate matter but also reduction of NOx and SOx, which indirectly contribute to PM (as secondary particulate matter) concentration reduction.

1.3 At the tenth session of the BLG Sub-Committee, a Working Group on Air Pollution was established. At this session, the Working Group noted the importance of basic information about fate and transport in the atmosphere as follows in BLG 10/WP.3, paragraph 14. "The Group agreed that the Sub-Committee should strongly encourage submissions to the forthcoming intersessional meeting concerning relevant research and modelling studies concerning particulate matter generated by ships as well as the fate and transport of ship-generated PM".

1.4 Japan is willing to respond to the request by the Working Group and so illustrate the fate in the atmosphere of particulate matter from marine diesel engine at the sea lane in the West Pacific Ocean. The information includes the production, transport, dispersion and deposition rate of both diesel particulate and secondary particulate matter caused from SO_x and NO_x by photochemical process. For the analysis of diesel particulate, we use Gaussian plume model, which is extended for the gravity effect and deposition rate, and for the analysis of secondary particulate matter, we use the 3D dynamic model (RAMS/CMAQ model) to estimate geographical range, which effected by secondary particulate matter under the real climate conditions and photochemical process. These results will provide as fundamental information for the future control scheme of the whole PM.

2 Basic Information for the fate of diesel particulate

2.1 The ambient residence time of particles varies with their size. In general, coarse particles tend to settle rapidly from the atmosphere. The travel distance of coarse particle could be about one to tens of kilometres. By contrast, fine particles remain suspended longer in the atmosphere, and tend to be transported hundreds to thousands of kilometres. Combustion with low quality residual fuel and/or with bad maintained control will produce coarse particle, such as soot. But this paragraph is about the diesel particulate, which is emitted in exhaust gas under good combustion condition.

Outline of model used for primary particle evaluation

2.2 We decided to examine the fate of diesel particulate using each typical weather condition in August and January at the West Pacific Ocean near the coast of Japan. For the estimation, we set the analysis area showed in Fig .1, which include the main sea lane near the south Japanese coast. The details of the model are shown in the annex to this document.

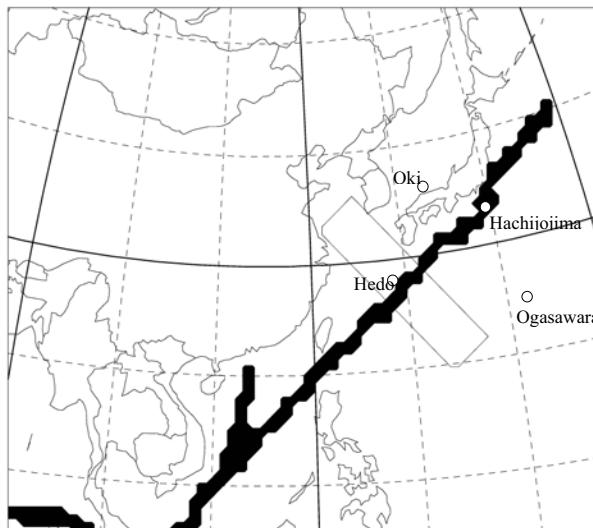


Fig.1 Estimation Area for the PM analysis

Deep hatching shows the emission area of the sea lane for the international sea trade between Japan, China and USA. A rectangle shows a calculation area in this analysis.

2.3 The analysis periods for extraction of weather conditions are shown below. The main wind direction is continuously southeast in the summer, northwest in winter for at least 48 hours in the period, respectively. For the estimation, it was assumed that there were uniform wind velocity and wind direction in the analysis periods.

Summer	16-31 August 2000
Winter	16-31 January 2000

2.4 Since most of the diesel particle is produced during the good combustion condition, domain size of diesel particulate from marine engine will be estimated as 0.3 micrometers in this calculation. In addition, the combustion experiment in Japan shows average size of 0.3 micrometers used distilled fuel, and in the CMAQ model, we also set the particle size at 0.3 micrometers.

2.5 Since the DP emitted from the vessel goes and descends in the direction of the lee by gravity, we use Gaussian plume model in the centre of plume falling with gravity effects and deposition rate which is introduced from the chemical/physical effects of sea surface and fine particulate size.

2.6 Although deposition rate are varied with the surface, roughness, the chemistry kind of a particle, etc., in this calculation, we assumed uniform rate of 0.5 cm/s, because of its flat surface.

Results and analysis

2.7 The deposition rate/quantity of DP according to distance from sea lane are shown in Fig. 2. The left end bar shows the total amount of the diesel particle emission during the calculation period, and the height of the other bar shows change of deposition quantity and the amount of existence in the atmosphere as the distance from the sea lane becomes large, respectively.

2.8 We should emphasize that the particulate matters, which are remained in the atmosphere after deposition, diffuse widely into the direction of lee distance and a horizontal direction. Therefore, the concentration of PM is very small as distance becomes far; order of under micro gram per cubic meter.

2.9 In the zone of zero to 100 km from the centre of the sea lane, about 60% in the summer and 40% in winter of total DP emission will deposit to the sea surface, respectively.

2.10 Since particle size of DP is larger than the secondary particle produced from the SOx and NOx, we can expect much larger decrease rate with wet deposition. For DP from marine engine, we should take a priority to reduce the influence of short-distance, such as at port and near the port.

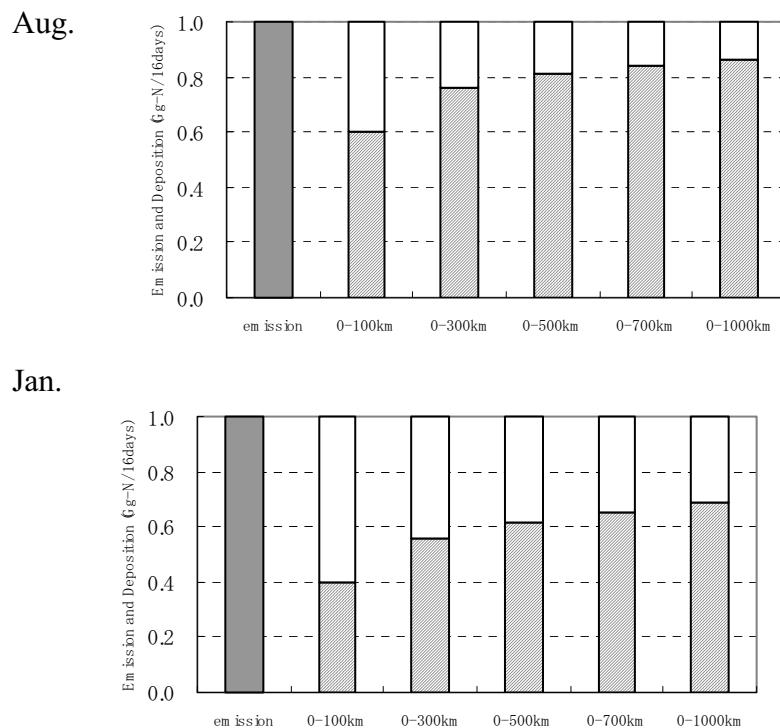


Fig.2 Comparison between diesel particulate emission and dry deposition amount, classified by distance from sea lane

3 Basic Information for the fate of secondary particle from SOx and NOx emission

Outline of model used for primary particle evaluation

3.1 This estimation for the environmental effects by SOx/NOx emission from the typical sea lane is a summary of the calculation result of the long range simulation system of the air pollution substance by the RAMS/CMAQ system developed in our country (Application Dynamics Research Institute, Kyushu University).

3.2 RAMS (Regional Atmospheric Modelling System domain weather model system) is the 3D weather analysis model developed in Japan at National Institute for Environmental Studies and the Meteorological Agency.

3.3 CMAQ (Community Multiscale Air Quality model) is the air simulation model which the United States Environmental Protection Agency (EPA) released in 1998, and is the model created for the purpose of chemistry process also including the gas-solid reaction and the dry/wet deposition.

3.4 Comparison between the observation and RAMS/CMAQ model is checked both at a point on land and on an island near the sea lane (Oki, Hatijoujima, Ogasawara, etc.), and the calculation result is very near from actual value (see annex to this document).

3.5 The area for calculation and the time period are the same as diesel particulate (see Chapter 2).

Results and analysis

Secondary particulate matter from SOx

Concentration of SOx gas and sulphate particulate emitted from sea lane

3.6 The concentration of SOx in the atmosphere at each range, classified by distance from the sea lane is shown in Fig. 3. SO₂ is a gaseous substance and the SO₄²⁻ is the secondary particulate matter which is produced from the SO₂ gaseous.

3.7 For SO₂ gaseous, the concentration is very low in the area by 100km or more from the sea lane, because SO₂ gaseous will be changed into a sulphate particulate matter (secondary particle) rapidly.

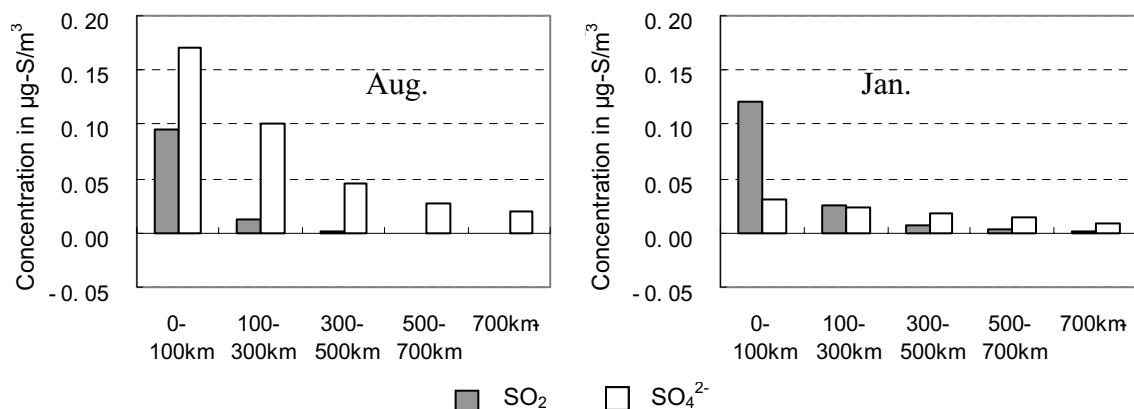


Fig.3 Concentration distribution of sulphur dioxide gas (SO₂) and sulphate particulate matter (SO₄²⁻) classified by distance from the sea lane

Background concentration of SOx gas and sulphate particulate emitted from sea lane

3.8 The background concentration in model without SOx emission from ships in the same area described in paragraph 3.7 is shown in Fig.4. Since the land source emission from the whole East Asia is huge, the concentration in more than 700km from sea lane, which is a belt near the coastline, is high in both gas and sulphate.

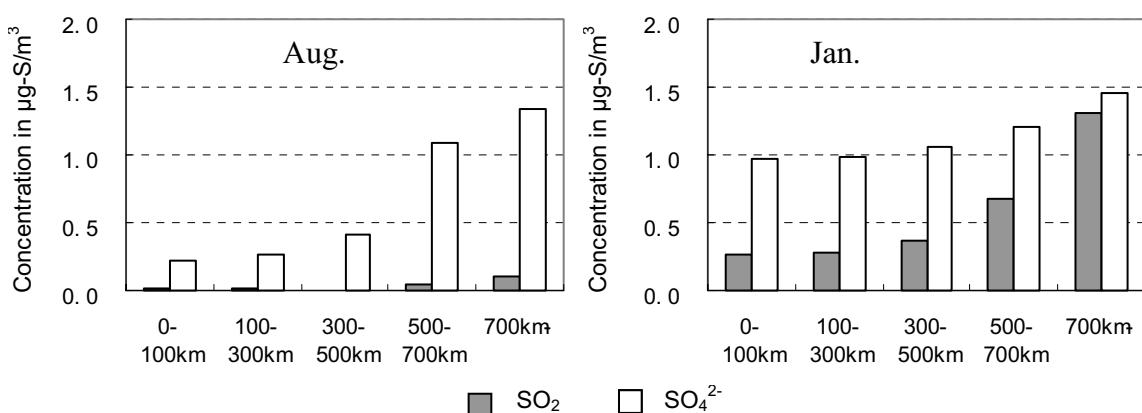


Fig.4 Background concentration of sulphur dioxide gas (SO₂) and sulphate particulate matter (SO₄²⁻) classified by distance from the sea lane

3.9 The SOx contribution of the concentration to the background is shown in Fig.5. In the area which exceeds 300km from the sea lane, the contribution is very low, and it is thought that the influence can be negligible in both SOx gaseous and sulphate, and in both seasons, respectively.

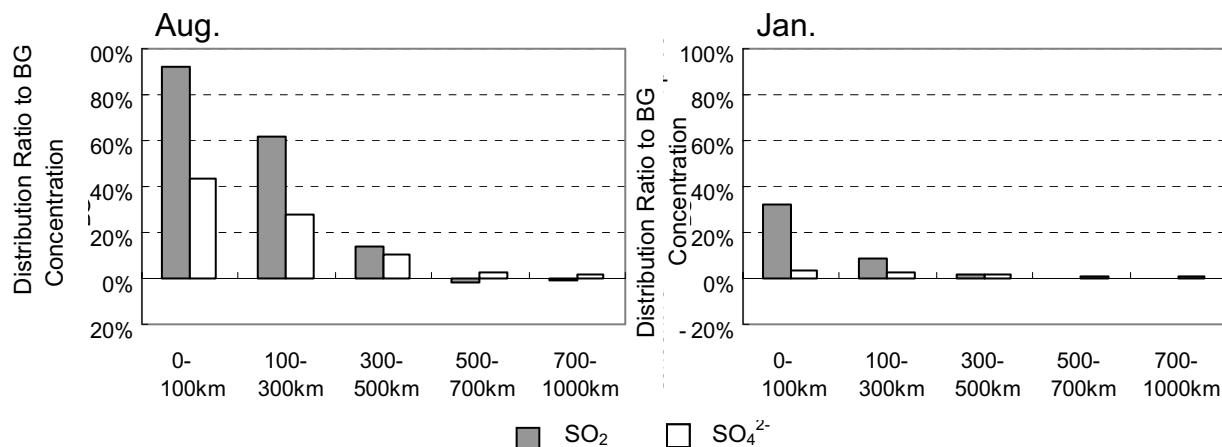


Fig.5 Background concentration of sulphur dioxide gas (SO_2) and sulphate particulate matter(SO_4^{2-}) classified by distance from the sea lane

Secondary particulate matter from NOx

Concentration of NOx gas and nitrate particulate emitted from sea lane

3.10 In Fig. 6, the concentration of NOx in the atmosphere at each range, classified by distance from the sea lane is shown. NO, NO_2 and HNO_3 are a gaseous substances and only NO_3^- is the secondary particulate matter which is produced from the NOx gaseous.

3.11 Unlike SOx, it can grasp that there are more amounts of total gaseous substances than amounts of particulate matter. Moreover, in the summer, with higher temperature and more UV radiation the photochemical reaction is more aggressive than in winter, HNO_3 gas, a more oxidative substance, is highly produced than NO_2 gas.

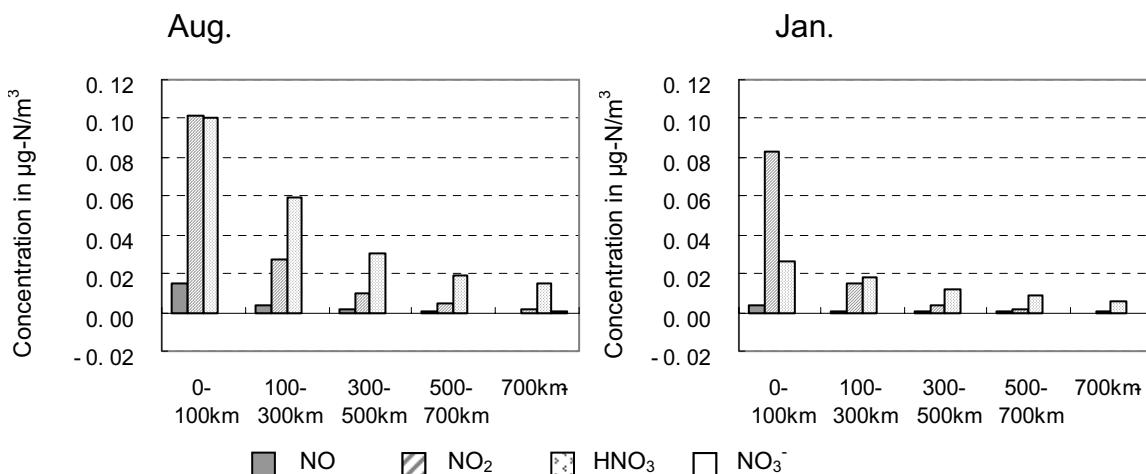


Fig.6 Concentration of gas (NO , NO_2 and HNO_3) and nitrate particulate matter (NO_3^-) classified by distance from the sea lane

3.12 The background concentration in model without NOx emission from ships in the same area described in paragraph 3.11 is shown in Fig. 7. Since the land source emission from the whole East Asia is huge, the concentration in the 700km belt near the coastline is high in both gas and nitrate.

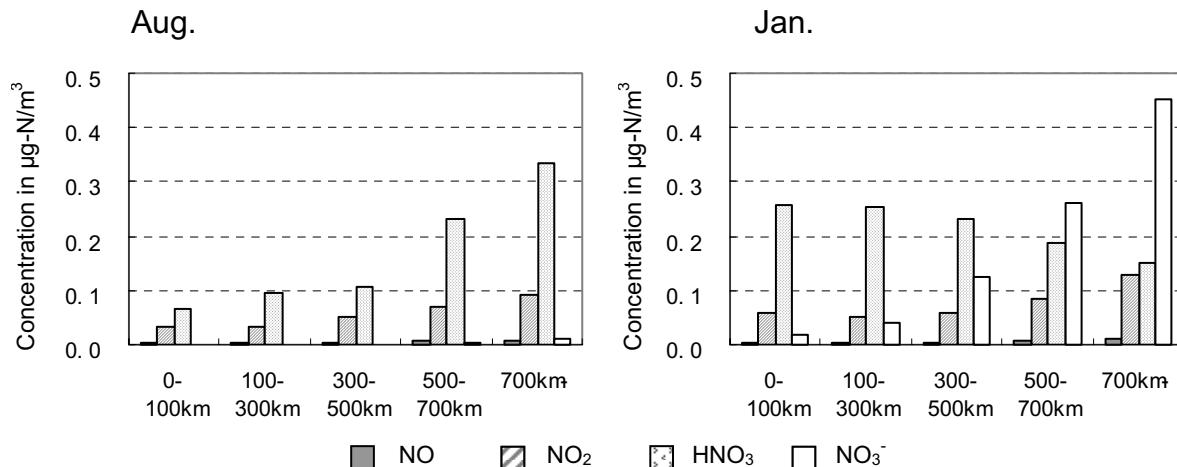


Fig.7 Background concentration of nitrate gas (NO, NO₂ and HNO₃) and nitrate particulate matter (NO₃⁻) classified by distance from the sea lane

Background concentration of NOx gas and nitrate particulate emitted from sea lane

3.13 The NOx contribution of the concentration to background is shown in Fig.8.

3.14 Although the gaseous substance in the atmosphere (NO, NO₂, HNO₃) is an almost equivalent value in the area of 0-100km range, containing the sea lane in the coastal area, background concentration has increased overwhelmingly. Moreover, in the area more than 300km away from the sea lane, the concentration as total gaseous nitrate substances (NO, NO₂, HNO₃) can be negligible compared to the background in the area which is more than 300km away from the sea lane.

3.15 In the area which exceeds 300km from the sea lane, the contribution by NOx from ships is very low, in both NOx gaseous and nitrate, and in both seasons, respectively.

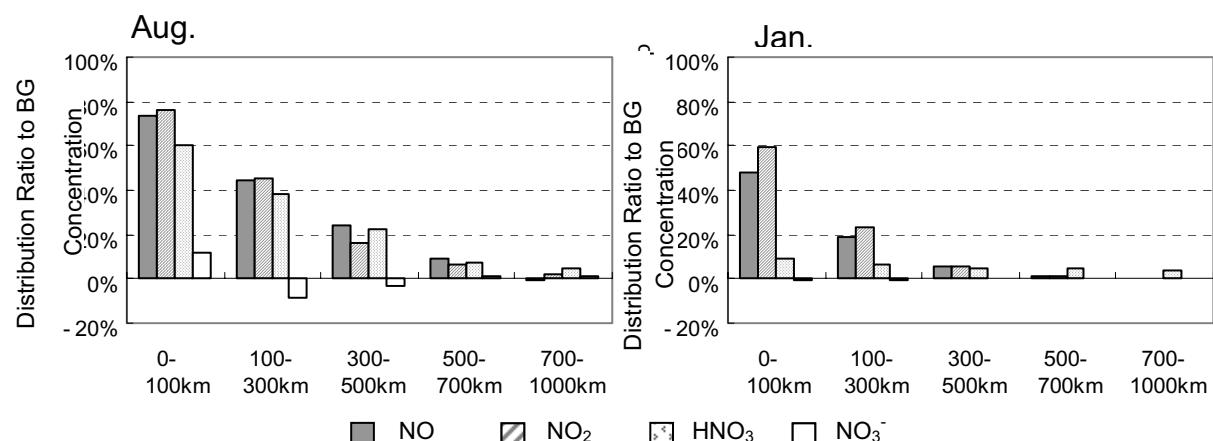


Fig.8 Concentration distribution of nitrate gas (NO, NO₂ and HNO₃) and nitrate particulate matter (NO₃⁻) classified by distance from the sea lane

4 Effects on ozone concentration by vessel exhaust gas

4.1 Fig. 9 is a figure about those with a vessel generation source, ozone concentration when nothing, and its concentration difference. The contribution of a vessel exhaust gas (NOx) is large in the summer, and forms about 30% of background concentration (without NOx from ships in Fig. 9) with 0-100km area containing a sea lane.

4.2 The absolute concentration is not so high; the O₃ increases near the coast can be negligible as compared with background concentration. The lack of VOCs emission, which is one of the precursors for O₃, is the reason for the lower contribution to O₃ concentration in the ocean.

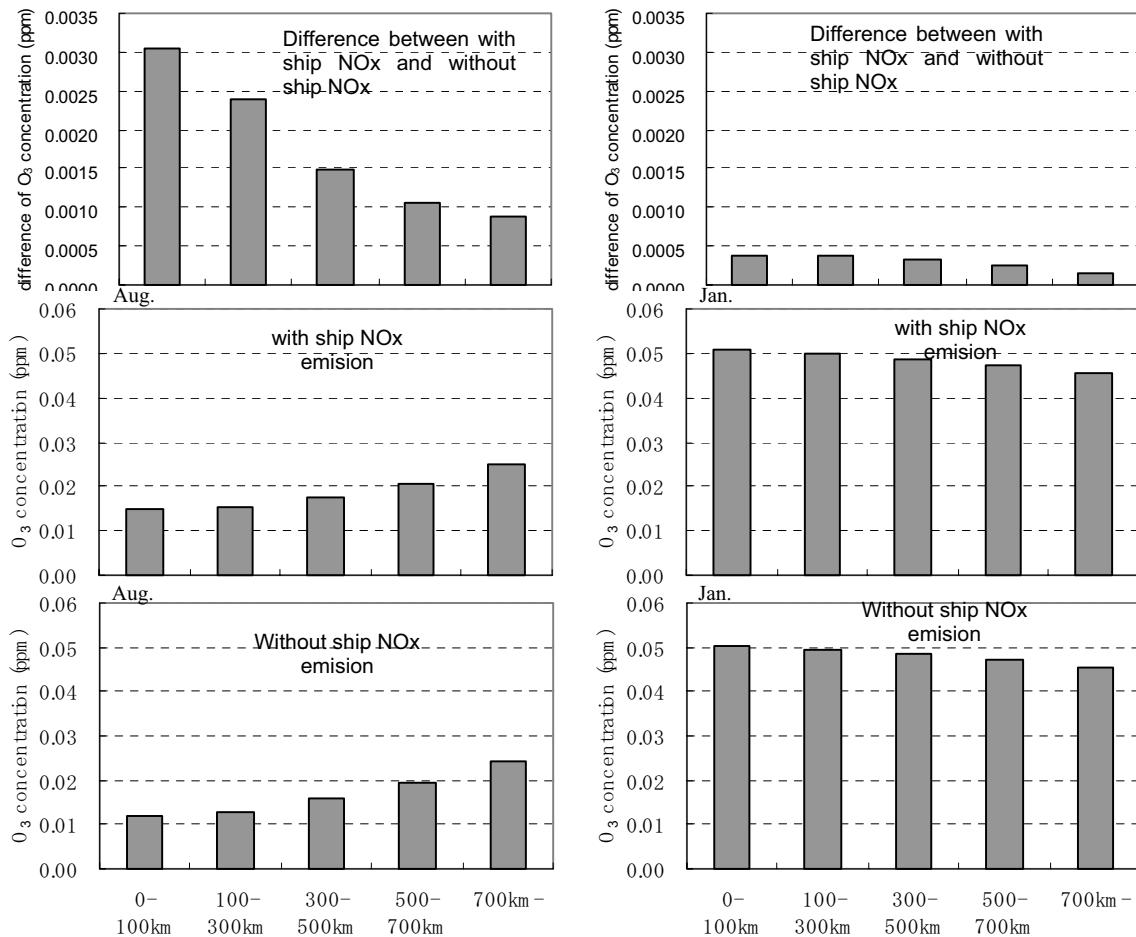


Fig.9 O₃ Concentration at the sea lane w/wo NOx emission from ships

5 Conclusion

5.1 Unlike the secondary particulate matter produced from SOx/NOx, the diesel particulate emitted from marine engines has large enough physical size to be influenced more by gravity. For this reason, in the range of zero to 100 km, it is presumed that about 40% in the summer and 60% in winter of the total emission will deposit to sea surface even without rain fall effects. Therefore, the DP can be expected to affect narrow areas (such as less than 100 km from emitted position) compared with the secondary particle.

5.2 The RAMS/CMAQ integrated model was applied to the West Pacific Ocean including typical sea lane between Japan, USA and China, and evaluation of effects by SOx/NOx to secondary particulate matter was carried out. According to the calculation, reaction of secondary particulate matter from SOx/NOx has a large variation between seasons. This would be influenced greatly by weather conditions, average wind speed and average precipitation and also chemical reaction rate. For the long-distance evaluation, the results or recommended actions for the reduction of PM from ships may change greatly by climate zones of the earth.

5.3 The SOx emitted from the typical sea lane at the calculation area will change to sulphate or SO₄ aerosol comparatively in short-term or short-range, and the SO₂ gaseous concentration at the area which is more than 100km away from the sea lane can be negligible compared to the background concentration of SO₂.

5.4 Sulphate or SO₄ aerosol reaches to longer distances compared to SO₂ gaseous. When we consider the total PM reduction including secondary particulate matter from SOx, it is effective to reduce SOx emission directly from emission, such as using low sulphur fuel and the post-treatment for exhaust gas. The SO₄ aerosol concentration at the area which is more than 300km away from the sea lane can be negligible compared to the background concentration of sulphate.

5.5 The NOx emitted from the typical sea lane at the calculation area will be oxidized to NO₂ and HNO₃ gas comparatively by photochemical reaction. However, the production rate of nitrate particulate matter is slower than SOx to sulphate. Although sulphuric acid itself goes to aerosol in the process of SOx to sulphate, nitric acid can change into the nitrate only when with enough alkali ion, such as ammonia, which less exist in the marine clean atmosphere .

5.6 The concentration as total gaseous nitrate substances (NO, NO₂, HNO₃) can be negligible compared to the background at the area which is more than 300km away from the sea lane.

5.7 Also the influence range of gas/particulate matter by NOx can be expected narrow compared with those by SOx. We might put priority to reduction of NOx emitted near coastline than that which is emitted far from the land.

5.8 Near the sea lane, O₃ production by NOx from ships contributes about 30 per cent compared to the background concentration. The absolute concentration is not so high. The O₃ increases near the coast can be negligible as compared with background concentration. The lack of VOCs emission, which is one of the precursors for O₃, is the reason for the lower contribution to O₃ concentration in the ocean.

6 Action requested of the Intersessional Meeting of the Working Group

6.1 The Intersessional Meeting is invited to consider the above comments and take action as appropriate.

ANNEX

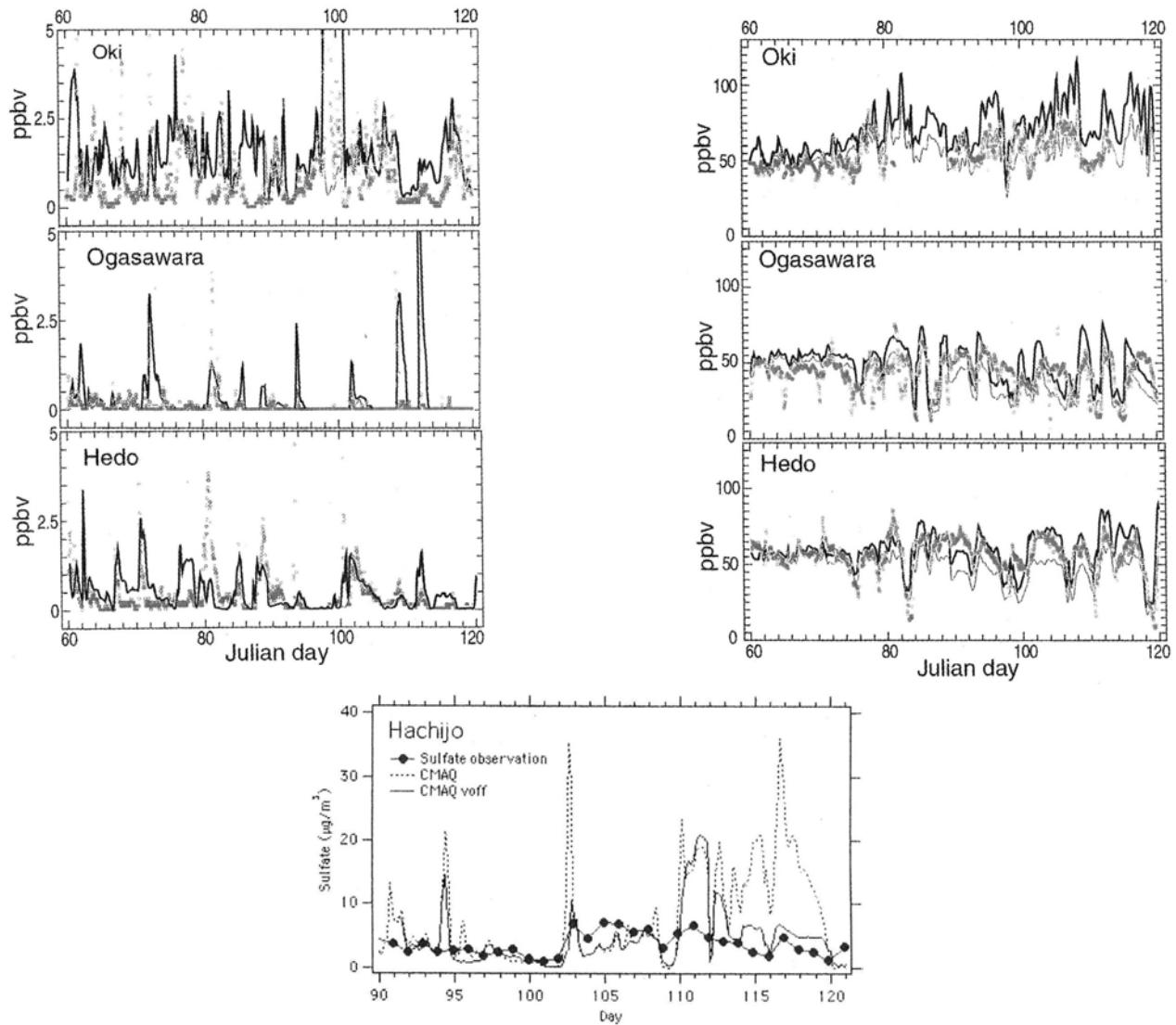
VERIFICATION OF RAMS/CMAQ MODELING

1.1 These figures show the hourly concentration between estimation and real measured value on small islands near the estimated area in Fig.1.

1.2 Upper left figure shows comparison of observed and model simulated surface O₃ concentration. Symbols are EANET observation at Oki, Ogasawara and Hedo island site, thick line is CMAQ O₃ corrected on the O₃ initial condition from high layer by observation at Happo site (more than 3,000m high), and thin line is the CMAQ O₃ on the default setting with ship emission.

1.3 Upper right figure shows comparison of observed and model simulated surface SO₂ concentration. Symbols are EANET observation at Oki, Ogasawara and Hedo island site, thick line is CMAQ SO₂ including the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama, and thin line is the CMAQ SO₂ without the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama.

1.4 Lower figure shows comparison of observed and model simulated surface SO₄ particulate concentration at Hachijo island. The black circle mark shows concentration for Hachijo island. Thick dashed line is CMAQ SO₄ including the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama, and straight line is the CMAQ SO₄ without the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama.



資料編Ⅱ PM シミュレーションに関する調査結果

目 次

I. PMシミュレーションに関する調査結果	エラー！ ブックマークが定義されていません。
1. 調査目的	1
2. 調査内容	1
3. 調査方法	1
3.1 調査に使用したモデルの概要	1
3.2 解析領域	5
3.3 解析期間	5
4. 調査結果	6
4.1 物質収支に係る検討	6
(1) 船舶からの排出がない場合の物質収支	6
(2) 船舶起源汚染物質の計算領域全体と解析領域における物質収支	6
(3) 解析領域内の物質収支の詳細検討	9
4.2 硫黄酸化物に係る詳細検討	12
(1) 距離帯別の大気中濃度	12
(2) 乾性沈着量	14
(3) 湿性沈着量	15
(4) バックグラウンド濃度との比較	17
(5) 高度別の大気中濃度	21
4.3 窒素酸化物に係る詳細検討	22
(1) 距離帯別の大気中濃度	22
(2) 乾性沈着量	24
(3) 湿性沈着量	24
(4) バックグラウンド濃度との比較	25
(5) 高度別の大気中濃度	29
4.4 オゾン濃度への影響	31
4.5 CMAQにおける二次生成粒子の粒径分布	33
(1) CMAQ内のエアロゾル過程	33
(a) 粒子化過程	33
(b) 粒子の成長	33
(c) 計算事例	33
(2) 観測による粒径分布	35
(3) 解析領域内の粒径分布の検討	36
4.6 一次粒子	37
(1) プルーム式による検討	37
(a) 検討手法	37

① 拡散モデル	37
② 気象条件	38
③ 大気安定度	38
④ 拡散パラメータ	39
⑤ 沈着量の計算	39
(b) 検討結果	40
(2) 差分式による検討	44
(a) 検討手法	44
① 拡散モデル	44
② 計算範囲、計算格子	44
③ 解析期間	44
④ 気象条件	44
⑤ 拡散係数	44
⑥ 沈降速度、沈着速度	44
⑦ 排出源	45
(b) 検討結果	45
5. 結論	46
5.1 一次粒子	46
5.2 二次粒子	46
5.3 オゾン濃度への影響	46
6. 今後の検討課題	48
(1) 船舶排ガスの実状を踏まえた検討	48
(2) 近年の陸上排出量推移を踏まえた検討	48
(3) 一次粒子の詳細な3次元モデルによる検討	48

1. 調査目的

ここでは東アジア域の概要を航行する船舶の排ガスに起因する PM の影響を検討するため、既存の拡散モデルを用いてシミュレーションを実施し、船舶から粒子として排出される一次粒子と、ガスとして排出された NOx、SOx が大気中で化学反応により粒子化した二次粒子の挙動を調査した。

2. 調査内容

船舶起源の PM のうち、ガス状物質として排出される硫黄酸化物、窒素酸化物について、粒子化の過程、反応速度等に関する知見を収集・解析し、ガス状物質として排出される硫黄酸化物、窒素酸化物が PM となり、地面に降下(乾性沈着)するまでの時間、地理的範囲等について検討を行った。

3. 調査方法

3.1 調査に使用したモデルの概要

今回の検討には、主にRAMS/CMAQ連携システム(図 3.1-3、表 3.1-1参照)による大気汚染物質の長距離輸送シミュレーションシステムの計算結果(九州大学応用力学研究所 鶴野研究室作成)を参考として活用し、代表的な外航船舶の航路帯からの船舶排ガスによる影響について検討を行った。

CMAQ(Community Multiscale Air Quality model)は、アメリカ環境保護庁(EPA)が 1998 年にリリースした大気シミュレーションモデルで、大気中の様々な大気汚染物質を、汚染物質相互の影響も含めて同時に取扱い、また、それらに関係する多くの物理・化学過程を含めて取り扱うことにより現象を解明することを目的として作成されたモデルで、広域での大気汚染シミュレーションが可能である。CMAQでは数種の気相反応系モデル、エアロゾル反応系モデルが用意されており、今回用いたCMAQ(ver.4.3)では、表 3.1-2に示すモデルが選択可能である。今回用いたAERO2 モデル、AERO3 モデルおよびMADRIDモデルでは、ガス状物質の SOx・NOx と粗大粒子である海塩粒子の反応はモデルに取り込んでいない。

なお、このモデルを用いた計算結果については、日本周辺での大気の清浄な地点(利尻、竜飛、八方、隱岐、辺戸、小笠原 等)の観測結果と対比して検討され、SO₂、O₃、SO₄²⁻等について、その変動は良い再現性のあることが確認されている(図 3.1-1～図 3.1-2)。

RAMS/CMAQ連携システムの概要は図 3.1-3および表 3.1-1に示すとおりである。

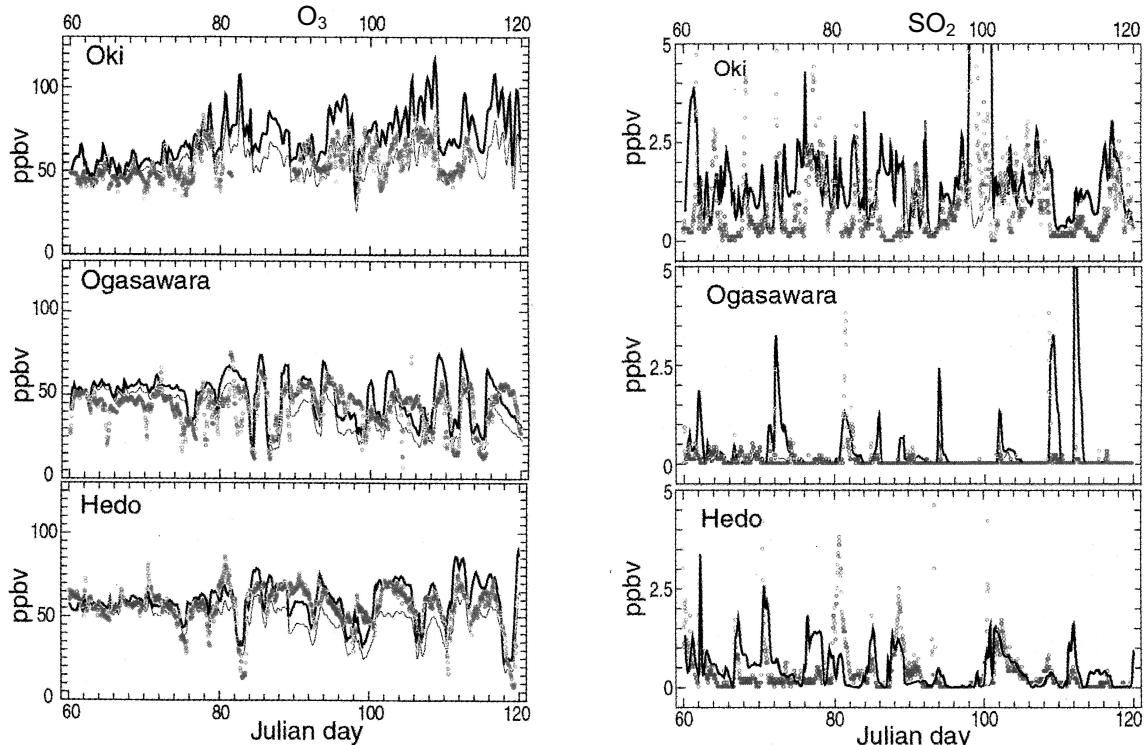
また、このモデルで用いられた東アジア域の人為・自然起源の大気汚染物質排出量のうち、燃料燃焼起源については、Streets et al.(2003a)¹⁾を用いている。また、バイオマス燃料による発生量については Takemura et al.(2000)²⁾および Streets et al. (2003b)³⁾などを用いている。

1) Streets, D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q.Fu, D.He, Z.Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber : An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, J. Geophys. Res., 108(D21), 8809, doi: 10.1029/2002JD003093, (2003a).

2) Takemura, T., H. Okamoto, Y. Maruyama, A. Numaguti, A. Higurashi, and T. Nakajima : Global three-dimensional simulation of aerosol optical thickness distribution of various origins. (2000).

3) Streets, D.G., K.F. Yarber, J.-H. Woo and G.R. Carmichael : Biomass burning in Asia : Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions., Global Biogeochem. Cycles, 17(4), 1099, doi:10.1029/2003GB002040, (2003b).

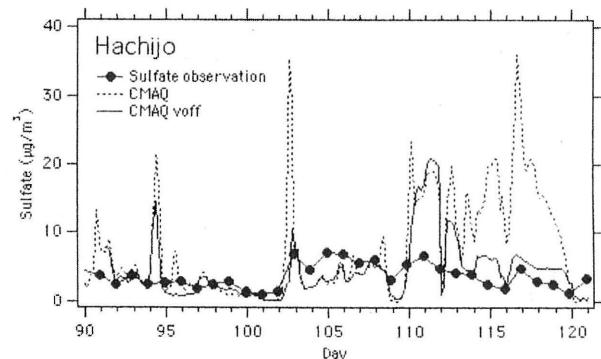
なお、本調査では船舶の影響を、船舶起源の他に人为起源・自然起源を含めた計算結果(①)から、船舶起源を除いた人为起源・自然起源の計算結果(バックグラウンド濃度：②)を引いて求めている(①-②)。そのため、バックグラウンド濃度が清浄である外洋上では、付加された船舶排出ガスが環境中の汚染物質を消費する反応が進む場合もあるため、船舶の影響(①-②)が負として計算されることもある。



Comparison of observed and model simulated surface O₃ concentration. Red symbols are EANET observation, thick line is CMAQ O₃ corrected based on the O₃ observation at Hapro site, and thin line is the CMAQ O₃ based on the default BCON setting.

出典) 鵜野伊津志、大原利眞、管田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫 : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションの構築、大気環境学会誌、40(4)、148～164、(2005)。

図 3.1-1 観測値と計算結果の比較(左 : O₃、右 : SO₂)



Comparison of observed and model simulated surface SO₄²⁻ concentration(VMAP) for Hachijo island. Thick dashed line is CMAQ SO₄ including the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama, and straight line is the CMAQ SO₄²⁻ without the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama.

出典) 鵜野伊津志、大原利眞、管田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫 : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションの構築、大気環境学会誌、40(4)、148～164、(2005)。

図 3.1-2 SO₄²⁻の観測値と計算結果の比較

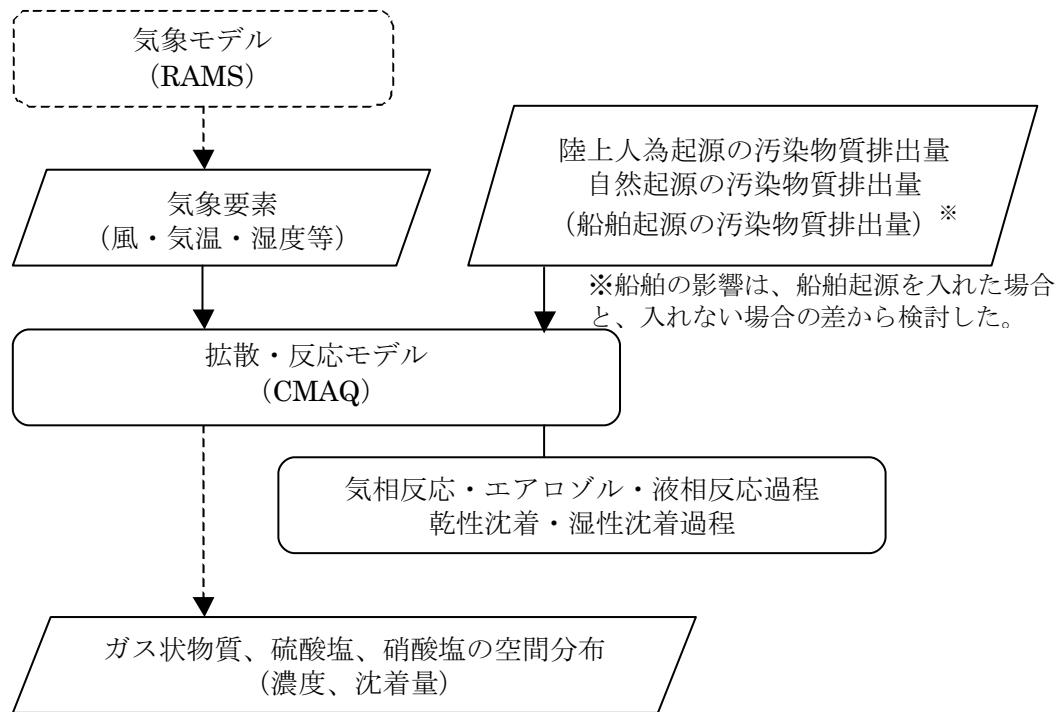


図 3.1-3 RAMS/CMAQ 連携システムの概要図

表 3.1-1 RAMS/CMAQ 連携システムの概要

	モデル名	モデルの概要
気象モデル	RAMS	コロラド州立大学が開発した圧縮性非静力学方程式をベースに開発された領域気象モデルで、3次元の気象成分(温度、水蒸気、風速、風向、降水、降雪、雲など)の時間変化をシミュレートする。 この気象モデルでの計算範囲は東西 8,000 km、南北 7,200 km (80 km 格子)である。鉛直方向には上空 23 km までの22層に分割して計算している。
気相反応系モデル	SAPRC-99	214 の反応式、72 の反応成分を用いたモデル。
エアロゾル反応系	AERO3	大気エアロゾルの発生、核形成、無機・有機成分の反応・凝縮・凝集を計算するモデルで、粒径分布は Aitken モード、accumulation モード、Coarse モードによる 3 つの対数正規分布の重ね合わせで表現されており、粒子生成、凝集、乾性・湿性沈着などのプロセスが含まれる。 なお、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- については Aitken モードと accumulation モードで表現されている。
液相反応系	RADM	化学種の雲水への取り込み、ガス成分と雲水中の成分との間の気液平衡、粒子の雲水への取り込みを計算する。
乾性沈着スキーム	—	エアロゾルの乾性沈着速度は、動力学抵抗、分子粘性抵抗、重力沈降が考慮され、粒径別に乾性沈着速度が算出される。 ガスの乾性沈着速度は動力学抵抗、分子粘性抵抗、表面抵抗の 3 種類の抵抗から算出される。
湿性沈着スキーム	—	ガス状物質はヘンリー則に従って雲水・雨水に吸収され、エアロゾルは完全に雲水・雨水に吸収されると仮定する。 湿性沈着量はこのようにして求められた物質の雲中濃度と降水強度を雲のライフタイム(1 時間)の間に積分することで計算する。

表 3.1-2 CMAQ (Ver4.3)で選択可能なモデル

反応系	モデル
気相反応系	CBM-IV、RADM2、SAPRC-99
エアロゾル反応系	AERO2、AERO3、MADRID

3.2 解析領域

日本近海の主要外航航路を含む約 $2,000 \text{ km} \times 500 \text{ km}$ の領域を対象として、航行船舶からの PM の大気中濃度や沈着量について航路からの距離による変化等を解析した(図 3.2-1参照)。この解析領域は、以下のことから船舶起因の PM の海洋上での挙動を把握するのに適しているため選定した。

- ①大気汚染物質排出量はほとんどが船舶発生源であること
- ②陸上発生源から離れているため陸上からの影響が小さいこと
- ③領域内のほとんどが海面であるため気候条件が海洋性であること
- ④アジア・日本・北アメリカを結ぶ主要航路であり代表性があること

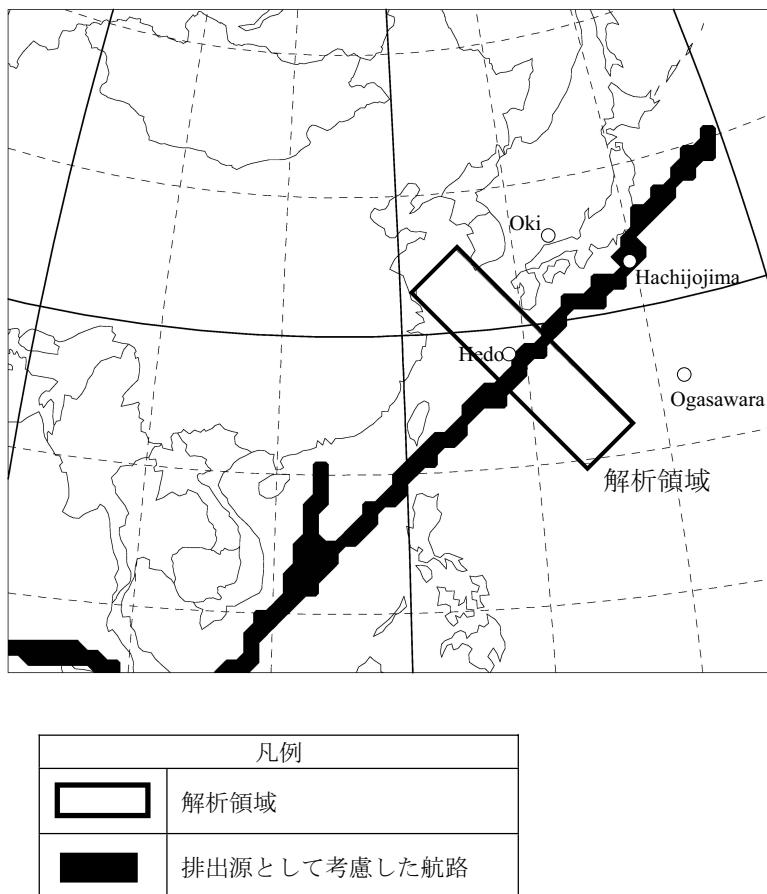


図 3.2-1 調査領域

3.3 解析期間

風向・風速、気温・湿度、降水量などの気象条件によって船舶からの PM の影響範囲が変化すると考えられるため、夏季と冬季について解析を行った。解析期間は以下のとおりである。

夏季 2000 年 8 月 16 日～31 日

冬季 2000 年 1 月 16 日～31 日

4. 調査結果

4.1 物質収支に係る検討

(1) 船舶からの排出がない場合の物質収支

船舶からの排出がない場合の計算領域全体(東アジア全域)における物質収支は図 4.1-1に示すとおりであり、硫黄酸化物をみると、8月はほぼ 100 %、1月は約 55 %、窒素酸化物については8月は約 65 %、1月は約 45 %となっている。

計算領域内に沈着する割合は硫黄酸化物・窒素酸化物とともに 1 月に低くなっている。この原因として、冬季は上空の風が強く計算領域外へ拡散されていることや、気象モデルによる降水量が過小評価されているために湿性沈着量が少なく見積もられている可能性があることなどが考えられる。

(2) 船舶起源汚染物質の計算領域全体と解析領域における物質収支

船舶起源の硫黄酸化物および窒素酸化物の計算領域全体と解析領域における物質収支は図 4.1-2に示すとおりであり、船舶からの排出がない場合と同様の傾向を示している。

8月に計算領域全体の物質収支が 100 %を超えていているが、これは計算領域外の発生源からの寄与が加わっているためと思われる。また、船舶なしの場合の物質収支と同様に、夏季に比べて冬季で低くなっている。

解析領域における物質収支は、硫黄酸化物については8月では約 80 %、1月では約 40 %、窒素酸化物については8月では約 85 %、1月では約 30 %となっており、冬季で少なくなっているが、計算領域全体と同様の傾向が見られることから、アジア地域の特性であると考えられる。

なお、解析領域では航路帯を挟んだ約 1,000 km の領域を対象として物質収支を調査したが、当然航路帯と平行方向の領域外へ出て行く物質や領域外から入ってくる物質がある。このため、解析領域の物質収支は、あくまでも航路帯と平行方向に解析領域外へ出て行く物質量と入ってくる物質量が同量であると仮定した時のものである。

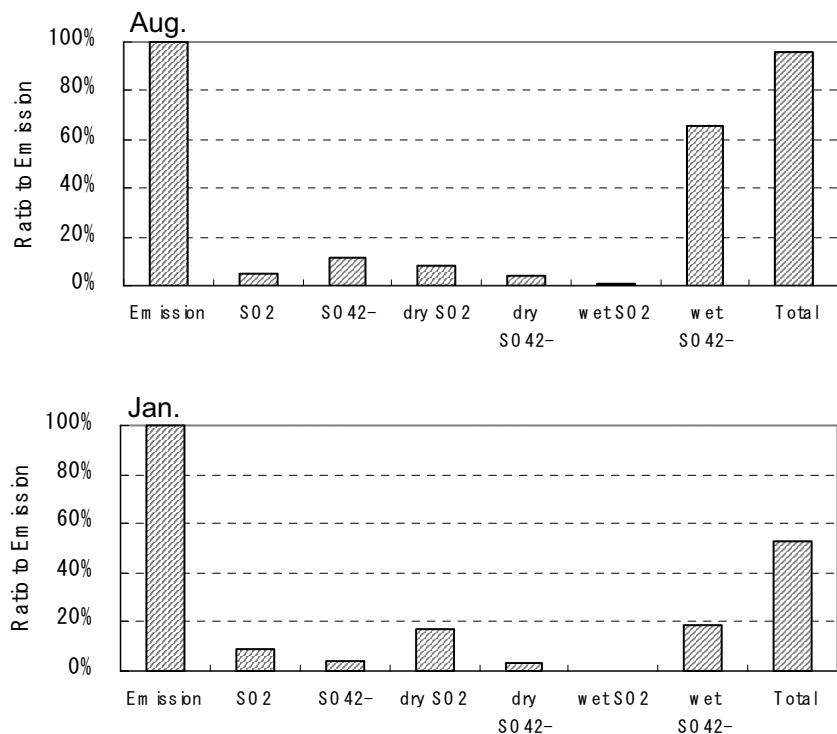


図 4.1-1(1) 船舶からの排出がない場合の硫黄酸化物の物質収支(計算領域全体)

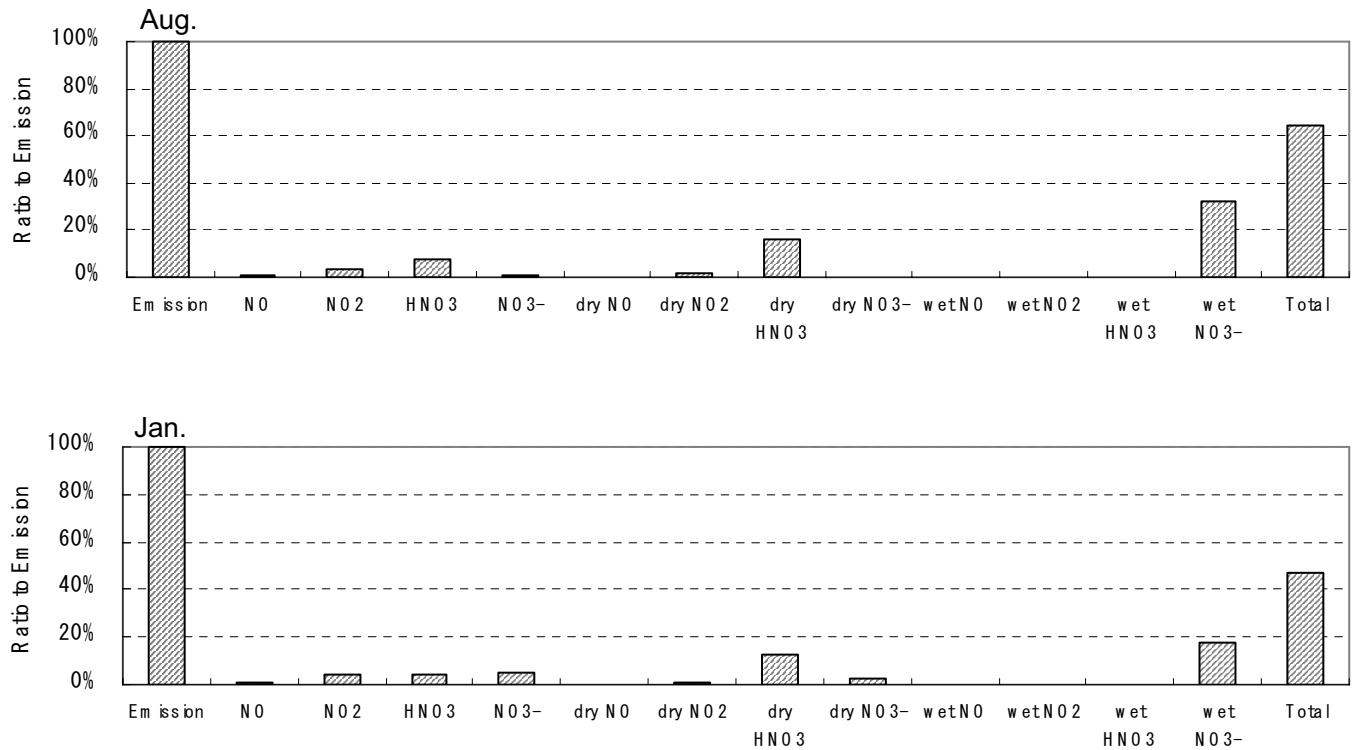


図 4.1-1(2) 船舶からの排出がない場合の窒素酸化物の物質収支(計算領域全体)

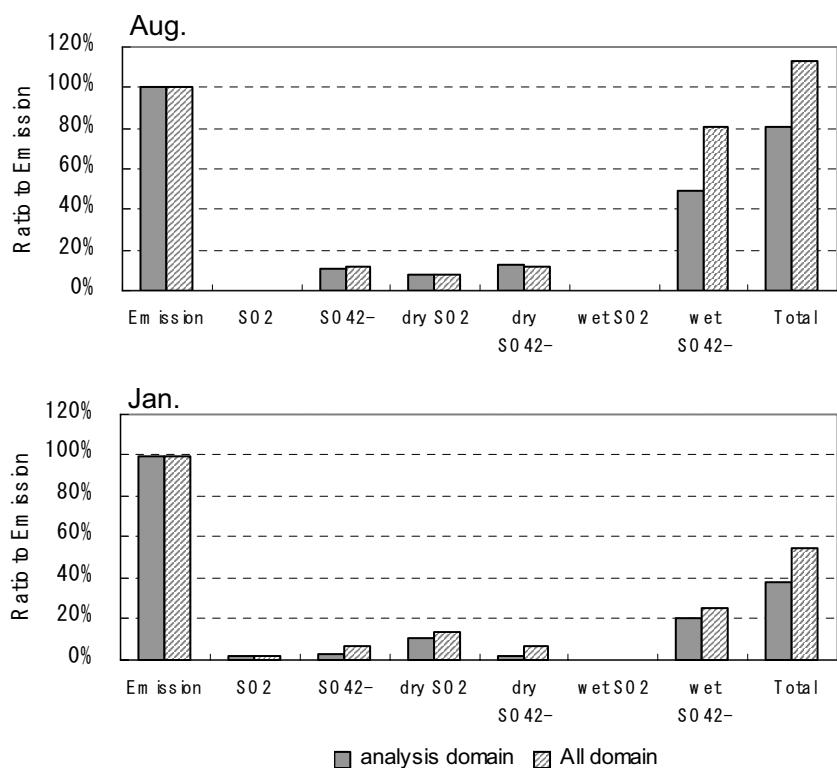


図 4.1-2(1) 計算領域全体と解析領域における硫黄酸化物の物質収支比較(船舶起源のみ)

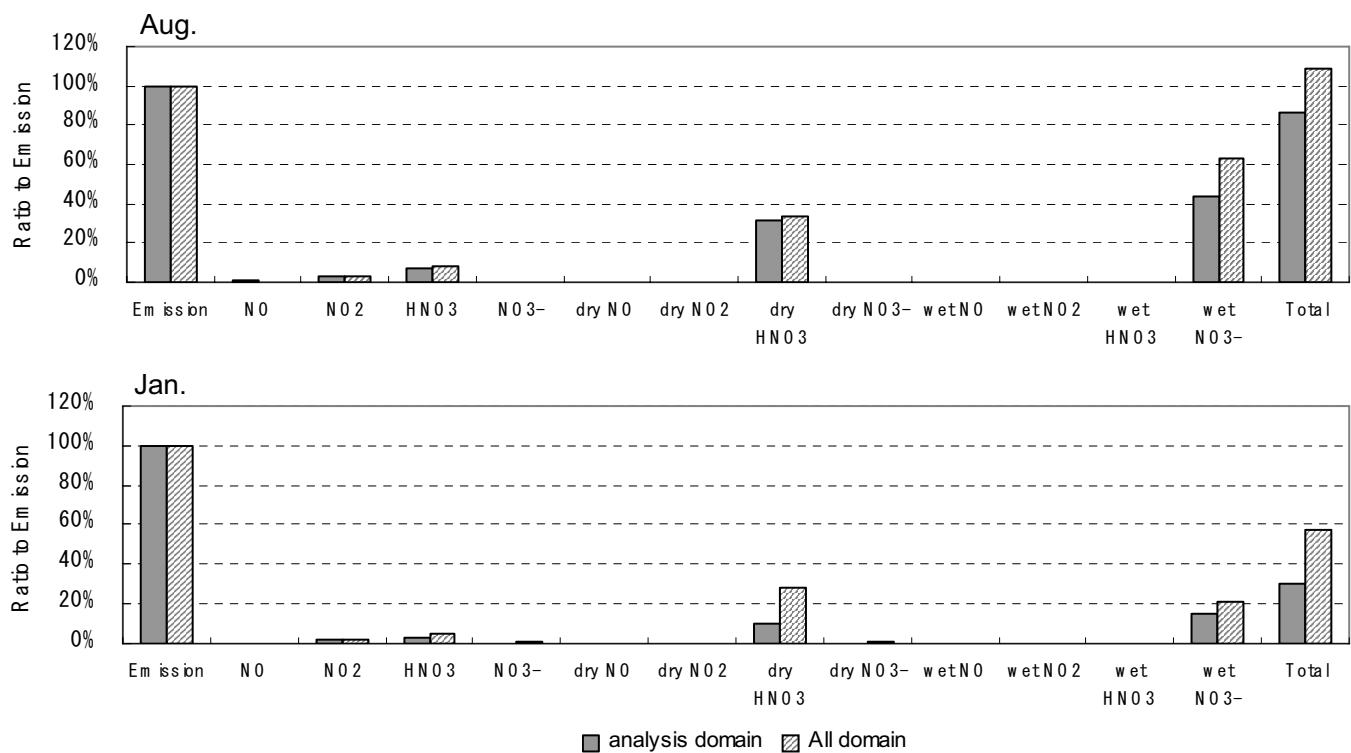


図 4.1-2(2) 計算領域全体と解析領域における窒素酸化物の物質収支比較(船舶起源のみ)

(3) 解析領域内の物質収支の詳細検討

船舶から排出された硫黄分と窒素分の影響範囲を検討するため、船舶からの硫黄酸化物排出量と窒素酸化物排出量に対する距離帯別の沈着量と大気中の存在量を調査した。

本調査では航路帯を中心として、両側約1,000 km幅の解析領域を設定し、船舶の影響について検討を行った(図 3.2-1参照)。

調査結果は図 4.1-3に示すとおりである。

8月の硫黄酸化物については、発生源から700 kmまでに約50%が、1,000 kmまでに約60%が沈着している。これに対して、1月は発生源から700 kmまでに約35%が、1,000 kmまでに約35%が沈着しており、8月に比べて1月は解析領域内に沈着する割合が低くなっている。

8月の窒素酸化物についても硫黄酸化物と同様の傾向が見られた。

冬期に調査地域内の沈着の割合が低い原因としては、8月は降水量が多く(図 4.1-4参照)湿性沈着量が多いことや、8月は1月に比べて粒子化が進み(図 4.1-5参照)乾性沈着量も多いこと、8月に比べて1月は上空の風が強く拡散を促進させる方向に働いていることなどが考えられる。

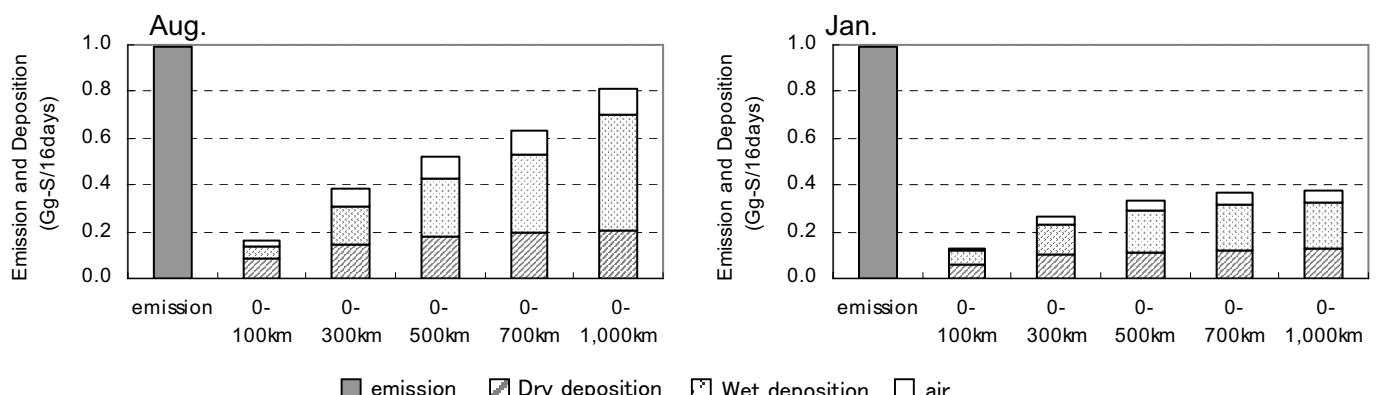


図 4.1-3(1) 硫黄酸化物の物質収支

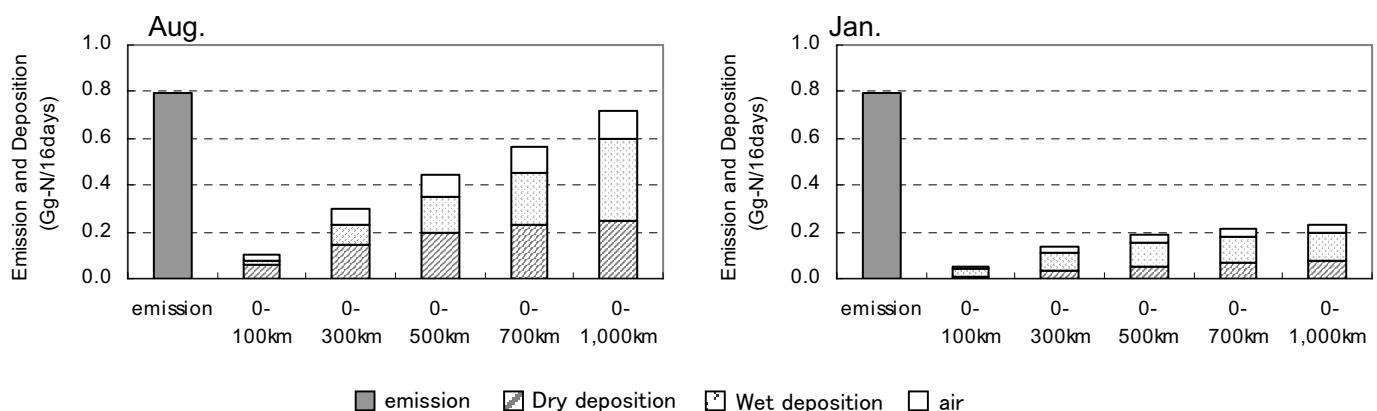


図 4.1-3(2) 窒素酸化物の物質収支

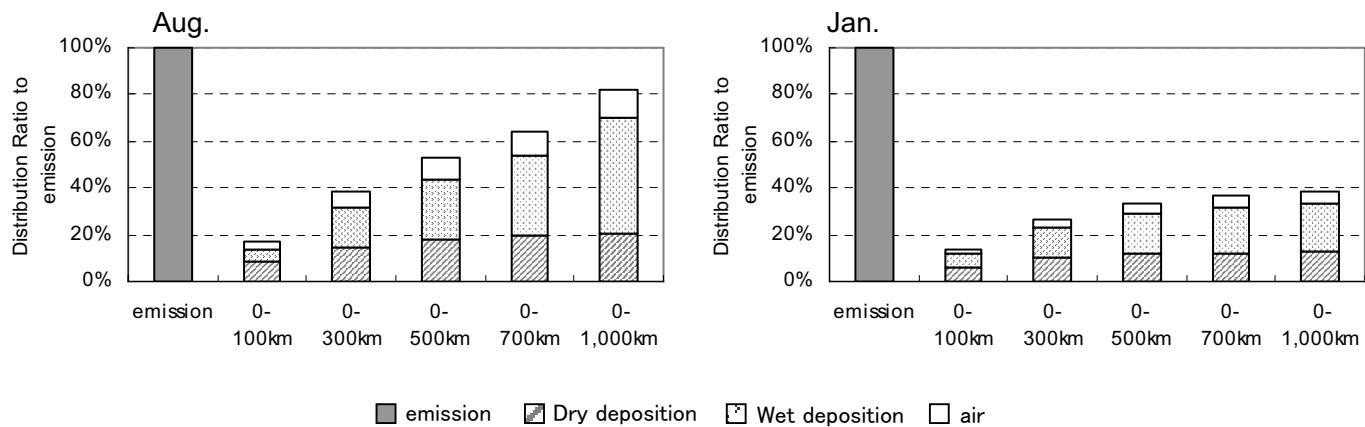


図 4.1-3(3) 硫黄酸化物の物質収支(排出量比)

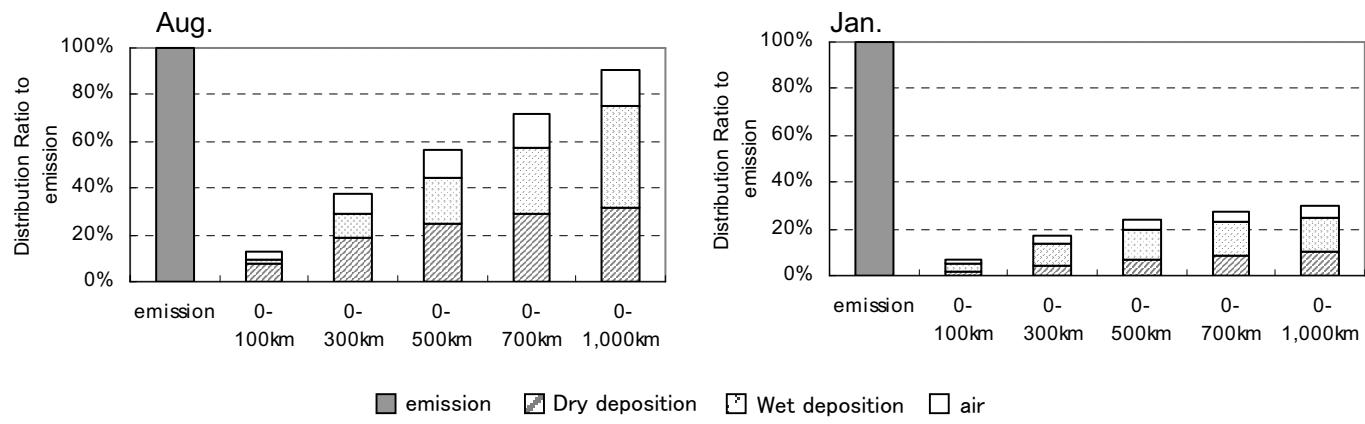


図 4.1-3(4) 氮素酸化物の物質収支(排出量比)

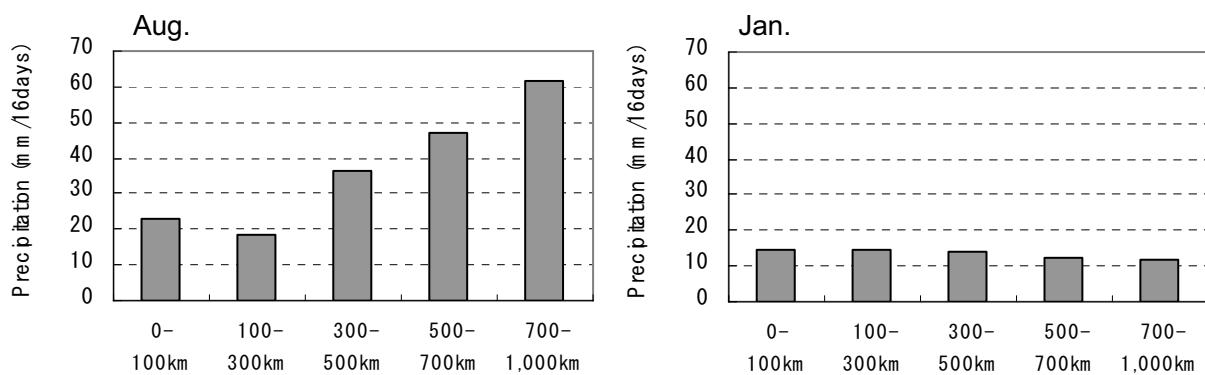


図 4.1-4 距離帯別の降水量

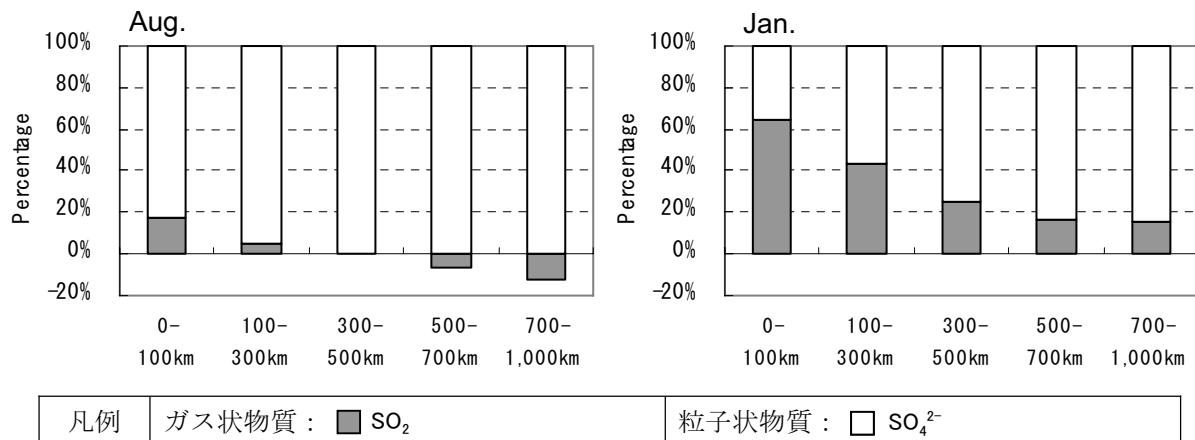


図 4.1-5(1) 硫黄酸化物の距離帯別のガス体・粒子体比率

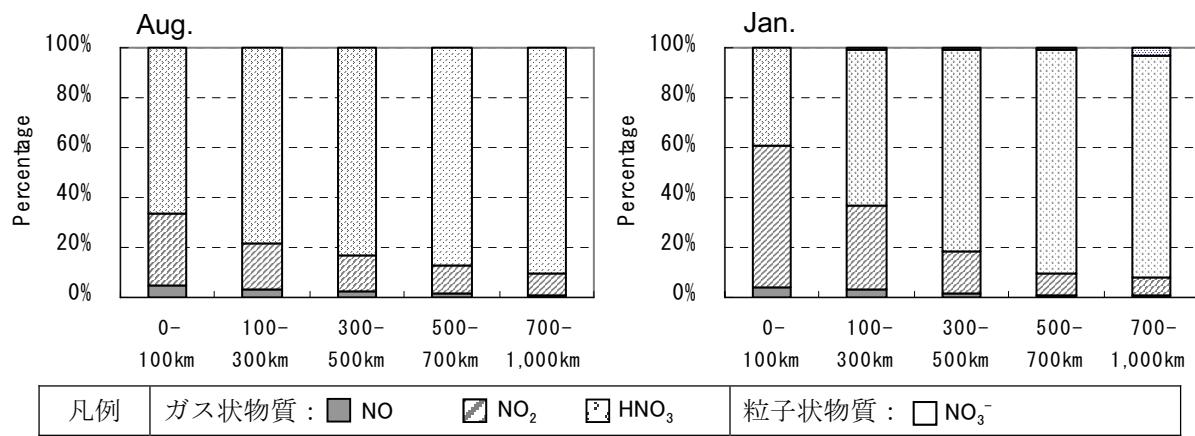


図 4.1-5(2) 窒素酸化物の距離帯別のガス体・粒子体比率

4.2 硫黄酸化物に係る詳細検討

(要点)

- 太平洋上の航路帯から排出された SO_x ガスは、比較的速やかに粒子化し、航路帯から 100 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較においても無視できる。
- 粒子化した SO₄ 粒子は、ガス状物質に比較して遠距離まで到達する。したがって、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO₂ ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であると考えられる。

(1) 距離帯別の大気中濃度

硫黄酸化物の距離帯別の大気中濃度は図 4.2-1 に示すとおりである。

SO₂ の大気中濃度は、航路帯から 100 km 以上離れるとかなり低くなっている。これは大気の拡散によって薄められたためと、二次粒子への粒子化が促進されたためであると考えられる。

また、ガス状 SO₂ は 8 月より 1 月に若干高く、粒子状 SO₄²⁻ は 1 月より 8 月に高くなっている。これは、1 月と比べて 8 月は二次粒子 SO₄²⁻ の粒子化がより促進されたと考えられ、大気中の湿度が高いことや、絶対量は多くないが船舶排ガスの付加によるオゾン濃度が増加し、粒子化を促進する OH ラジカルがより増加したこと、などのためと考えられる。

図は粒子化した SO₄ 粒子がガス状物質に比較して遠距離まで到達することを示しており、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO₂ ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であることを示唆している。

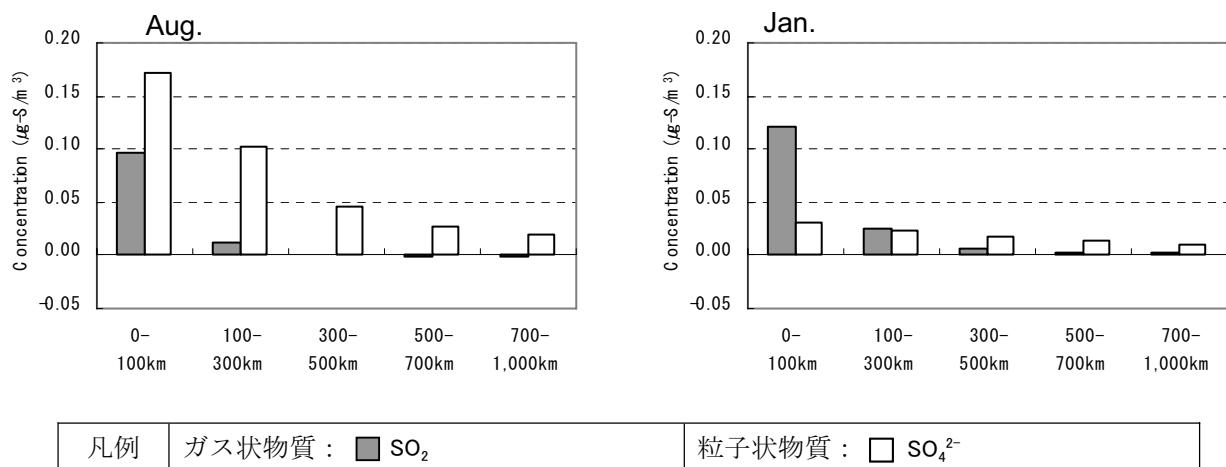


図 4.2-1(1) 硫黄酸化物の距離帯別の大気中濃度(最下層)

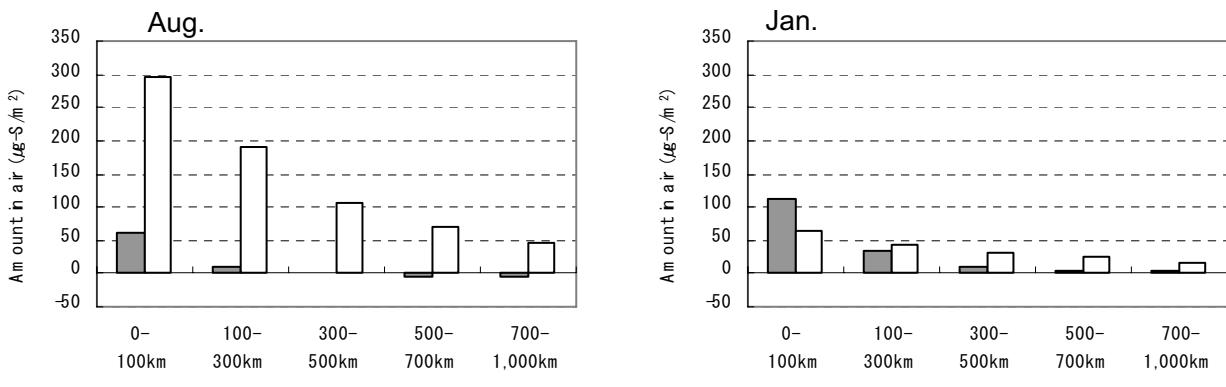


図 4.2-1(2) 硫黄酸化物の距離帯別の単位面積あたり存在量(高度約 4,300 mまで)

(2) 乾性沈着量

硫黄酸化物の距離帯別の乾性沈着量は図 4.2-2に示すとおりである。

乾性沈着量は最下層の大気濃度に乾性沈着速度を乗じることにより算出されるため、乾性沈着量の距離減衰傾向は大気中濃度とほぼ同様の傾向を示している。

粒子状 SO_4^{2-} の大気中濃度がガス状 SO_2 濃度よりも高いにもかかわらず、粒子状 SO_4^{2-} の乾性沈着量が小さいのは、一般に粒子状 SO_4^{2-} の乾性沈着速度がガス状 SO_2 に比べて小さいためである。藤田(1996)⁴⁾によれば、乾性沈着速度の平均値は、ガス状 SO_2 が 0.41 cm/s (7月)と 0.35 cm/s (8月)、粒子状 SO_4^{2-} が 0.11 cm/s (11月)であり、大気中濃度と乾性沈着量から推計した本調査の乾性沈着速度はほぼ同程度であった。

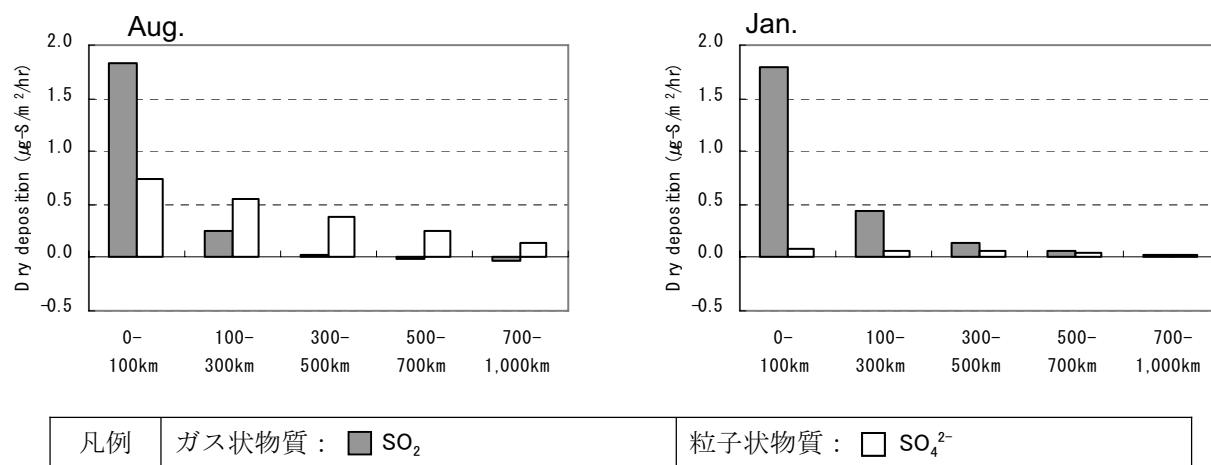


図 4.2-2 硫黄酸化物の距離帯別の乾性沈着量

4) 藤田慎一：日本列島における硫黄酸化物の收支、環境科学会誌、9、185-199、(1996)

(3) 湿性沈着量

硫黄酸化物の距離帯別の湿性沈着量は図 4.2-3に示すとおりである。

湿性沈着量のほとんどは粒子状 SO_4^{2-} であり、8月に多い傾向が見られるが、図 4.1-4に示した降水量と比較すると、1月は降水量が少ないにもかかわらず、湿性沈着量は多めに出ていている。

湿性沈着量は降水に取り込まれる高さの大気状態や降水現象発生地域の SO_4^{2-} 存在量など様々な要因によって変化するが、大気中の雲水量・雨水量を見ると(図 4.2-4参照)、1月の雲水量は8月よりも多く、大気中で水蒸気に取り込まれやすい状況となっていた(相対的に濃度の高い SO_4^{2-} が大気中に存在していた)ことが考えられる。

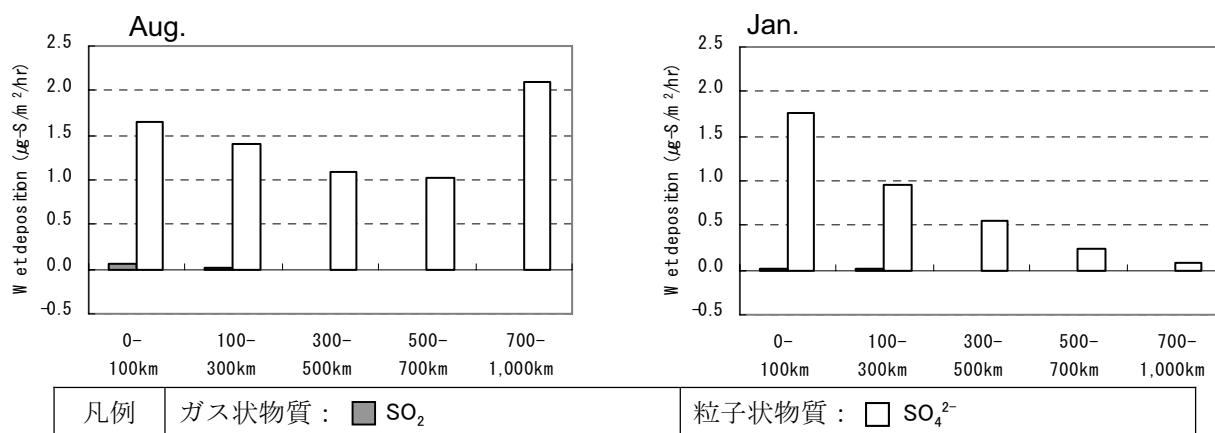


図 4.2-3 硫黄酸化物の距離帯別の湿性沈着量

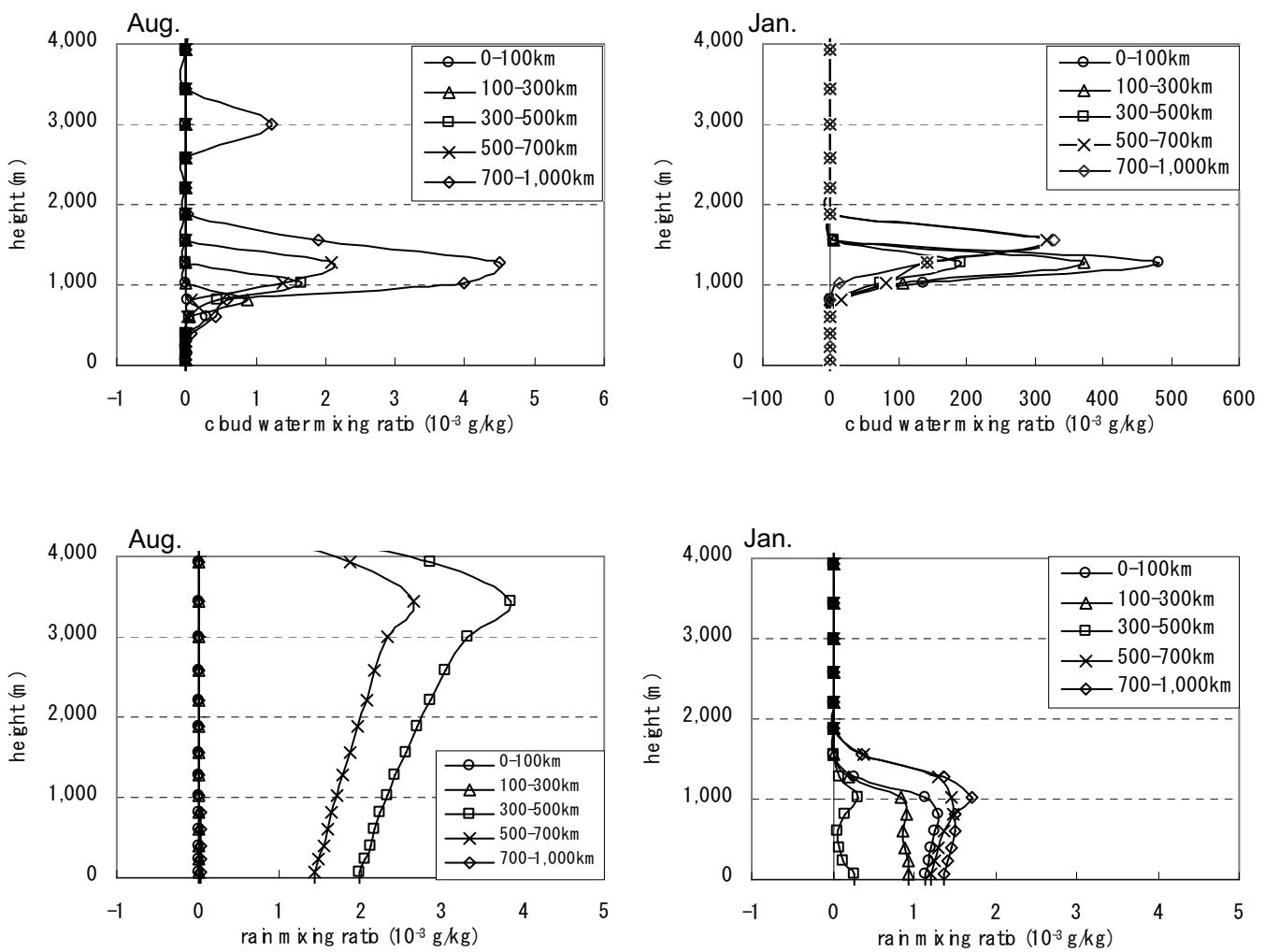


図 4.2-4 距離帯別の雲水量(上)および雨水量(下)

(4) バックグラウンド濃度との比較

ここでは、船舶起源を除いた人為起源と自然起源のみの排出量を用いて計算した結果をバックグラウンドとし、バックグラウンド濃度と船舶排出ガスの寄与濃度との比較を行った。

バックグラウンドの大気中濃度および沈着量とバックグラウンドに対する船舶排ガスの寄与率は図 4.2-5に示すとおりである。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

バックグラウンドの粒子状 SO_4^{2-} の減衰率は船舶からの粒子状 SO_4^{2-} の減衰率に比べて小さいが、図 3.2-1でもわかるように、これは陸上発生源の排出量が大きく、700-1,000 km帯では陸上からの影響を大きく受けているためである。

大気中の SO_2 については、船舶の発生源が含まれる 0-100 km帯では、船舶由来の濃度はバックグラウンド濃度と同レベルであるが、 SO_4^{2-} ではバックグラウンド濃度のほうが数倍高くなっている。これは、大陸起源の硫黄酸化物が長距離輸送される中で粒子化し、ガス状物質に対して粒子状物質の割合が多くなっているためであろう。

乾性沈着量および湿性沈着量は 0-100 km 帯においても船舶起源と同等又は数倍の値となっている。

大気中濃度の寄与率は、0-100 km帯では 8 月のガス状 SO_2 で約 90 %、粒子状 SO_4^{2-} で約 40 % と大きくなっているが、500-700 km帯以降では数%と小さくなっている。また、航路帶付近ではガス状 SO_2 の寄与率はやや大きいが、比較的速やかに粒子化し、航路帶から 100 km以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は絶対値としてもバックグラウンド濃度との比較においても無視できるほど小さくなっている。

粒子状 SO_4^{2-} よりもガス状 SO_2 で大きく、0-100 km帯で特に大きいのは、大陸発生源から離れている海洋上の解析領域ではガス状 SO_2 が粒子状 SO_4^{2-} へ変換しておりガス状 SO_2 の比率が小さくなっているためであると考えられる。

1 月より 8 月で寄与率が高くなっているのは、8 月は海洋から大陸向きの平均風により大陸発生源の影響を受けにくく、海洋上の 0-100 km においてバックグラウンド濃度が低いためである。

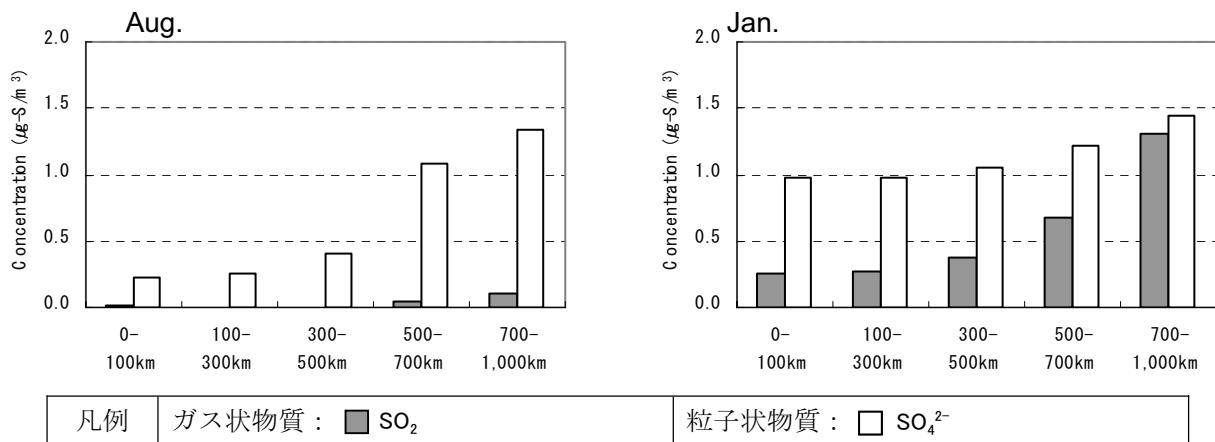


図 4.2-5(1) バックグラウンドにおける硫黄酸化物の距離帶別の大気中濃度

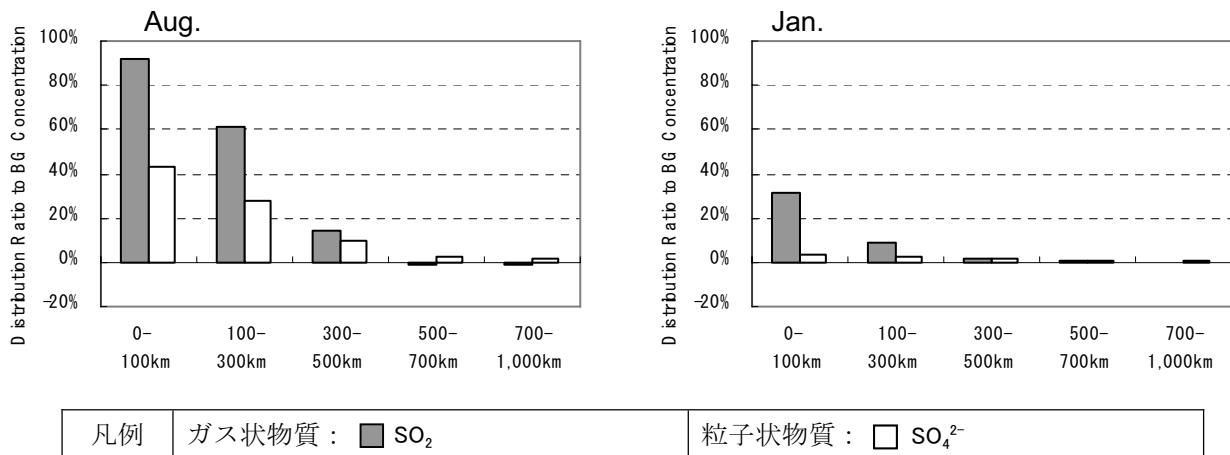


図 4.2-5(2) バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(硫黄酸化物)

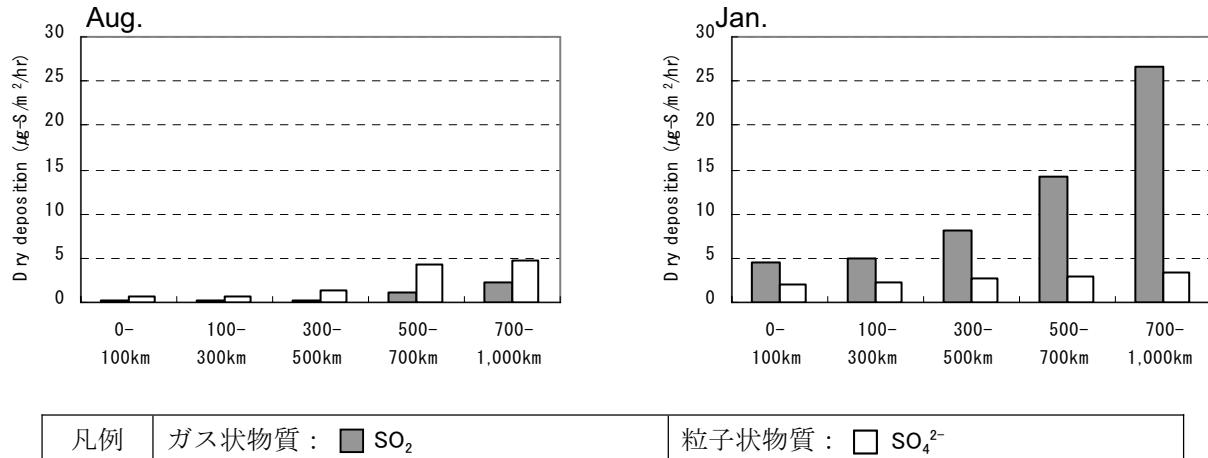


図 4.2-5(3) 硫黄酸化物の距離帯別の乾性沈着量(バックグラウンド値)

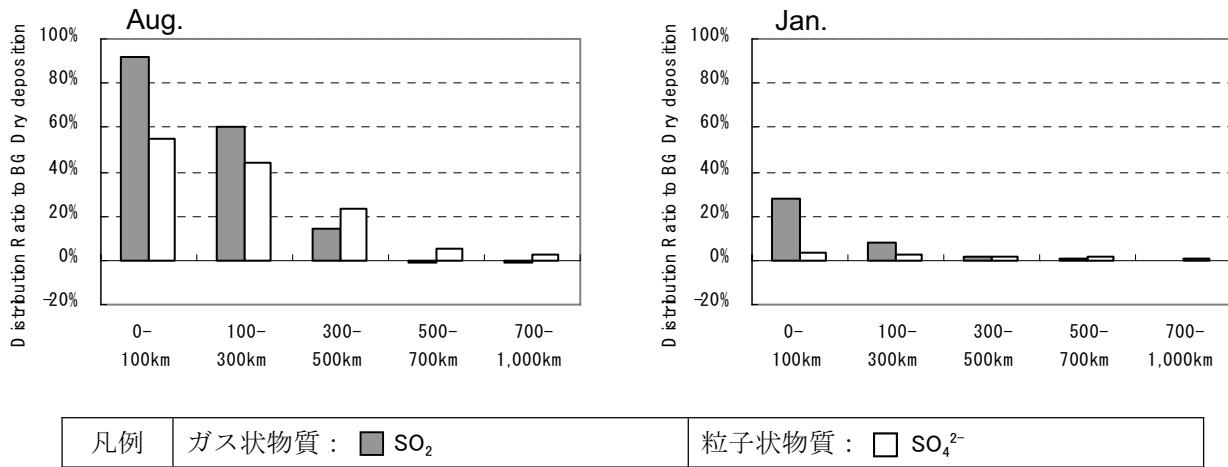


図 4.2-5(4) バックグラウンド値に対する船舶起源乾性沈着量の割合(硫黄酸化物)

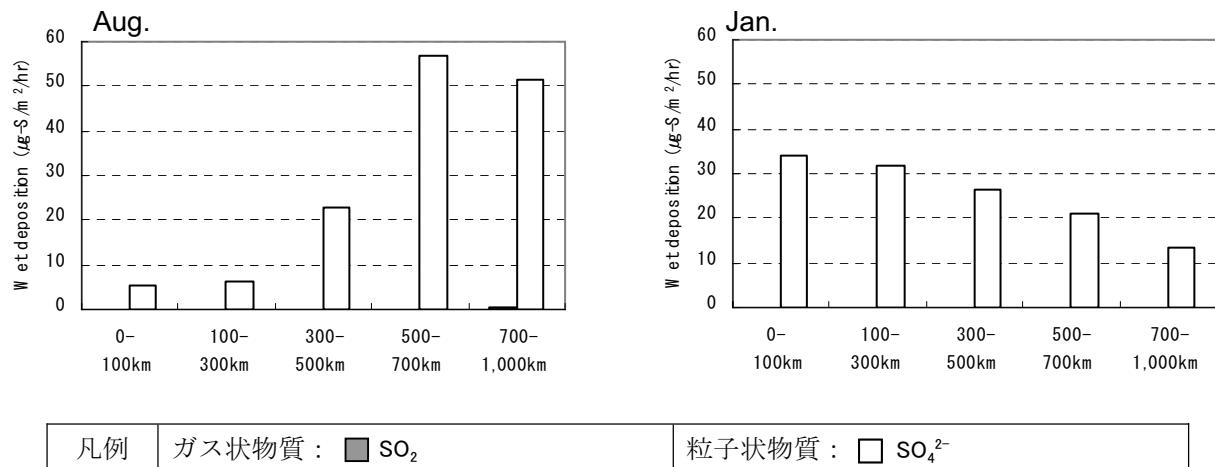


図 4.2-5(5) 硫黄酸化物の距離帯別の湿性沈着濃度(バックグラウンド値)

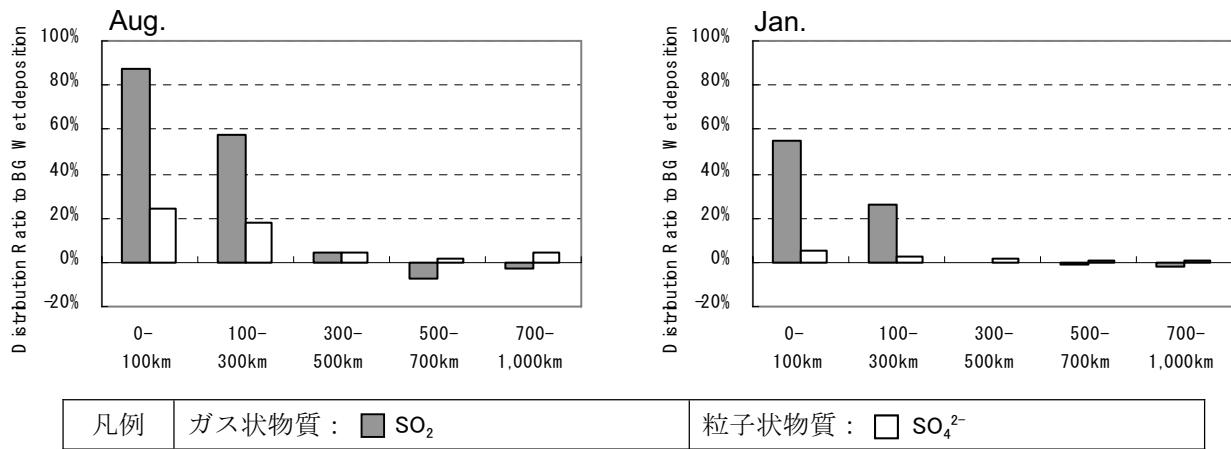


図 4.2-5(6) バックグラウンド値に対する船舶起源湿性沈着量の割合(硫黄酸化物)

(5) 高度別の大気中濃度

硫黄酸化物の高度別大気中濃度は図 4.2-6に示すとおりである。

SO_2 は2,000 m以下にほとんどが存在するが、 SO_4^{2-} は8月には一部が4,000 m付近まで上昇している。これは、 SO_2 が粒子化しながら鉛直方向にも拡がっている状況と考えられる。

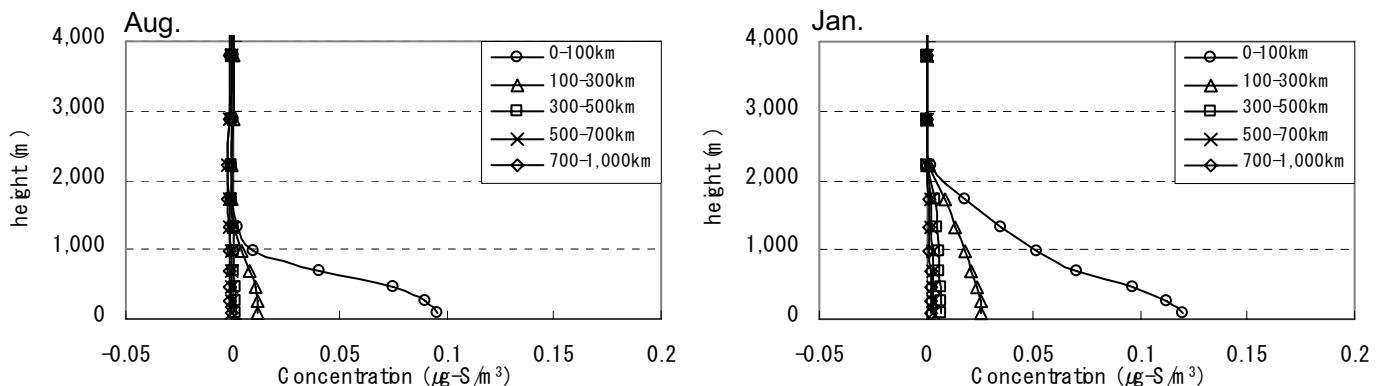


図 4.2-6(1) SO_2 の高度別の大気中濃度

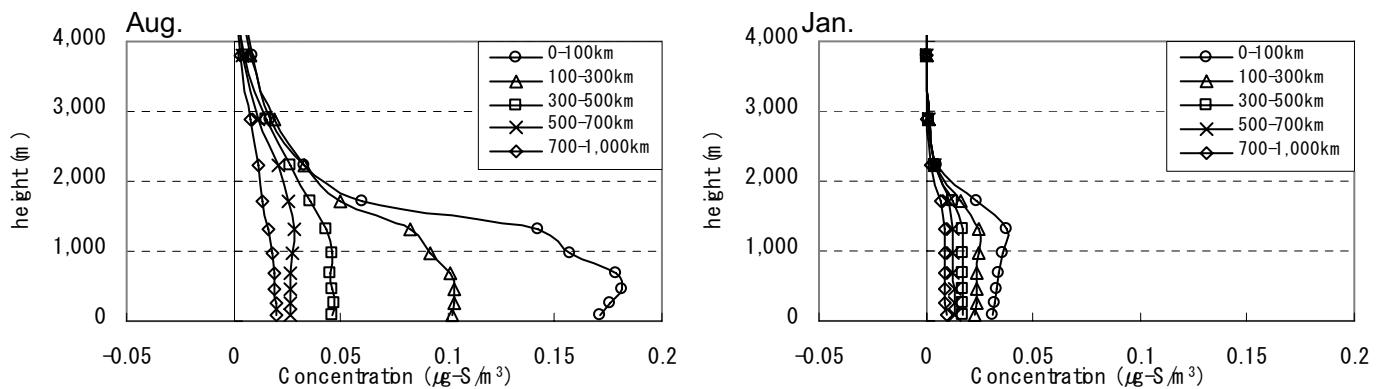


図 4.2-6(2) SO_4^{2-} の高度別の大気中濃度

4.3 窒素酸化物に係る詳細検討

(要点)

- 太平洋上の航路帯から排出されたNOxガスは、人体に有害なNO₂へ更にHNO₃ガスにまで比較的速やかに酸化される。ただし、そこから粒子化へ進む速度は、SOxに比較して遅く、ガス状物質のままで、大気中で挙動する。これは、SO₄が硫酸ミストとして単体でも粒子化するのに対して、硝酸はアンモニアなどアルカリイオンが存在しないと粒子化が進まないことに起因している。
- そのガス状濃度は、航路帯から 300 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較において無視できる。
- 粒子化の影響が少ないとからも、NOx の影響は SOx の影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。

(1) 距離帯別の大気中濃度

窒素酸化物の距離帯別の大気中濃度は図 4.3-1に示すとおりである。

図は、NOを主成分とする排ガスは人体に有害なNO₂へ、更にHNO₃ガスにまで比較的速やかに酸化されていること、しかし、そこから粒子化へ進む速度はSOxに比較して遅く、ガス状物質のままで大気中を挙動することを示している。

海上ではNH₃はほとんど発生せず、また陸上起源のNH₃は海上に輸送されてくるまでに陸上起源のSO₂やNOxの粒子化に消費されている。このため、船舶起源のSO₂やNOxの粒子化に必要なNH₃が十分になく粒子化が促進されないため、粒子状物質のNO₃⁻がほとんど存在しない。ただし、SO₄はHNO₃よりも沸点が低く液滴となる蒸気圧(濃度に比例)も低いため液滴となりやすく、大気中でNH₃がなくとも硫酸ミストとして単体で粒子化していると考えられる。

8月にHNO₃が多いのは、気温が高いことや日射量が多いために気相反応がより進むためと考えられる。

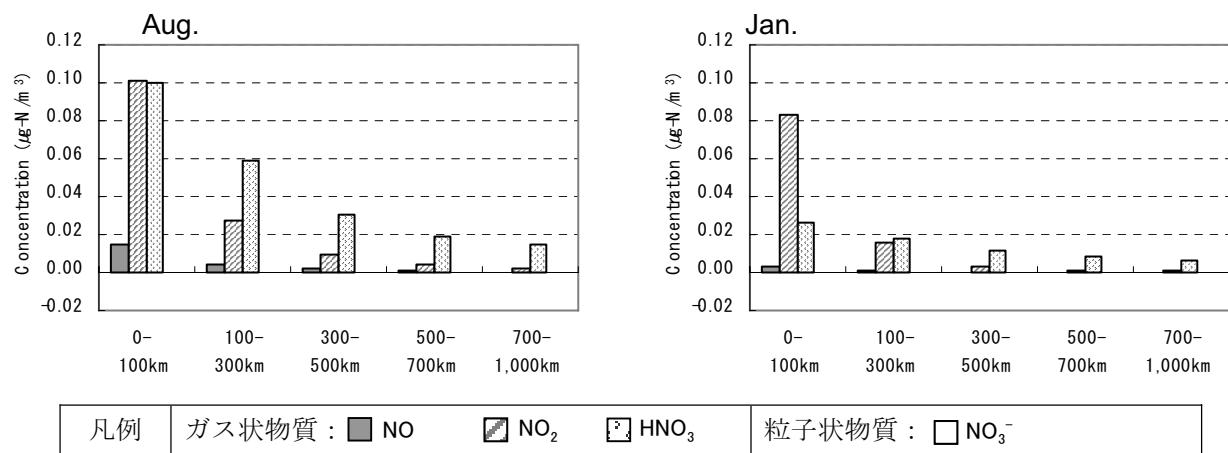


図 4.3-1(1) 窒素酸化物の距離帯別の大気中濃度(最下層)

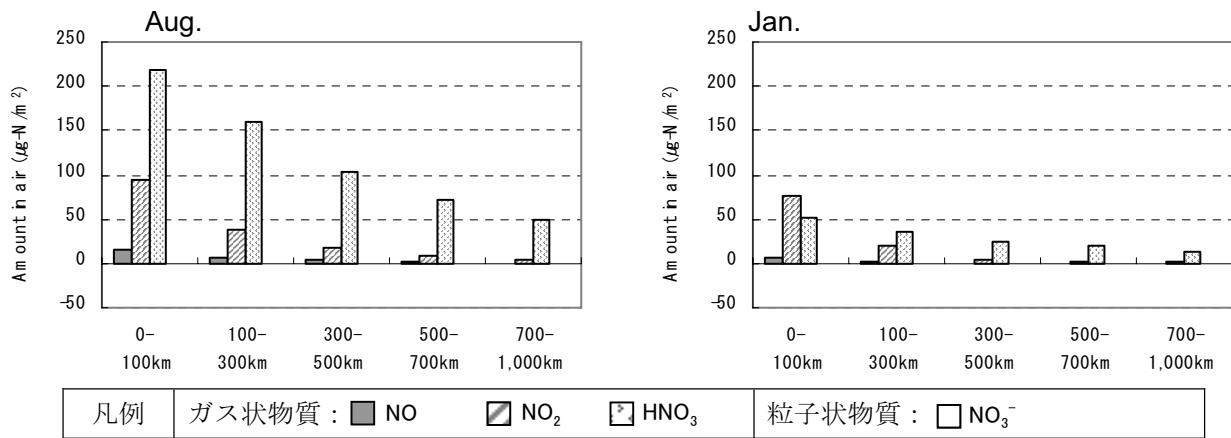


図 4.3-1(2) 窒素酸化物の距離帯別の単位面積あたり存在量(高度約 4,300 mまで)

(2) 乾性沈着量

窒素酸化物の距離帯別の乾性沈着量は図 4.3-2に示すとおりである。

乾性沈着量はほとんどがHNO₃であるが、これは乾性沈着速度に大きく寄与するヘンリイ一定数(水面への溶解のしやすさを示す定数)の違いによるものと考えられる。NO、NO₂のヘンリイ一定数はそれぞれ 0.002、0.01 mole atm⁻¹であるのに対し、HNO₃は 1.0×10^{14} mole atm⁻¹であり、HNO₃がNO、NO₂に比べて非常に水に溶け込み易いと考えられる。

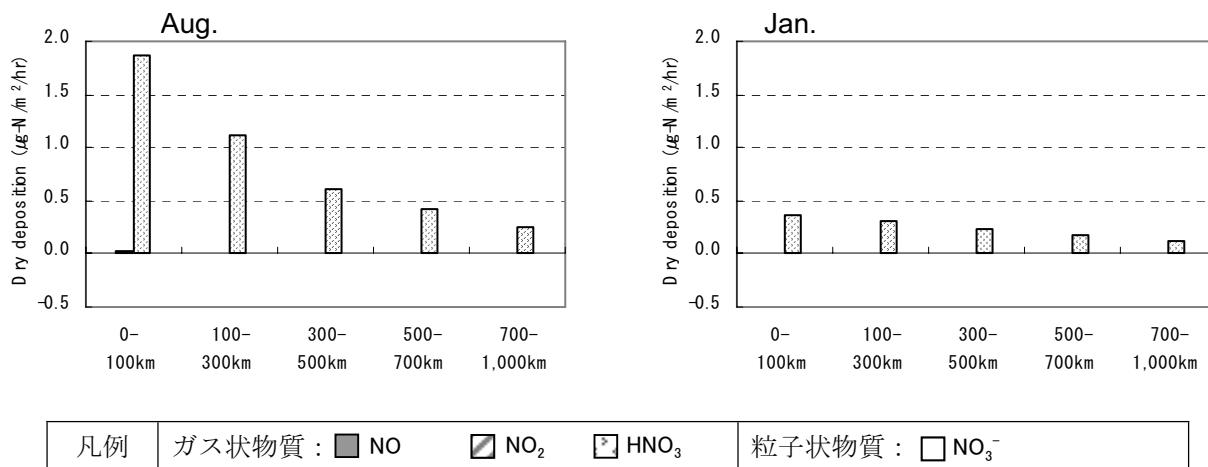


図 4.3-2 窒素酸化物の距離帯別の乾性沈着量

(3) 湿性沈着量

窒素酸化物の湿性沈着量は図 4.3-3に示すとおりである。

硫黄酸化物と同様に、1月は降水量が比較的少ないにもかかわらず湿性沈着量は多くなっている。これは、前述のように、1月は大気中で水蒸気に取り込まれやすい状況となっていたことが考えられる。

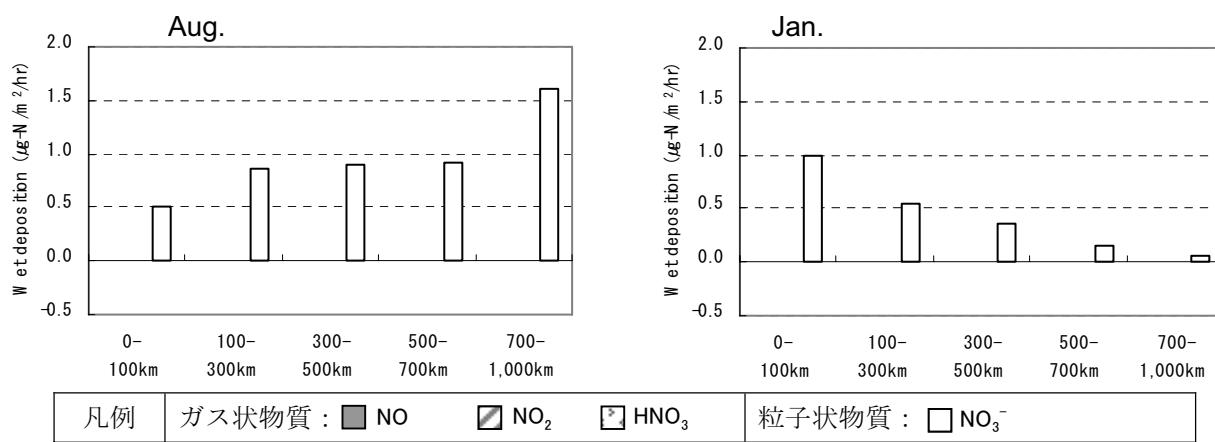


図 4.3-3 窒素酸化物の距離帯別の湿性沈着量

(4) バックグラウンド濃度との比較

バックグラウンドの大気中濃度および沈着量とバックグラウンドに対する船舶排ガスの寄与率は図 4.3-4に示すとおりである。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

硫黄酸化物と同様に陸上発生源の排出量が大きいため、中国大陸に近い 700-1,000 km帯では陸上からの影響を大きく受けていることがわかり、特にNO₃は陸上からの影響を大きく受け易い冬季にはバックグラウンド濃度が高くなっている。

乾性沈着量や湿性沈着量は 0-100 km 帯でも船舶起源の数倍の値が見られる。

大気中のガス状物質(NO、NO₂、HNO₃)は 0-100 km帯の船舶発生源を含む地域ではバックグラウンド濃度とほぼ同等であるが、船舶発生源から離れた地域ではバックグラウンド濃度のほうが圧倒的に多くなっており、300 km以上離れた地域では船舶排ガスの影響は無視できるほど小さいと考えられる。

粒子化の影響が少ないことからも、NOx の影響は SOx の影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。

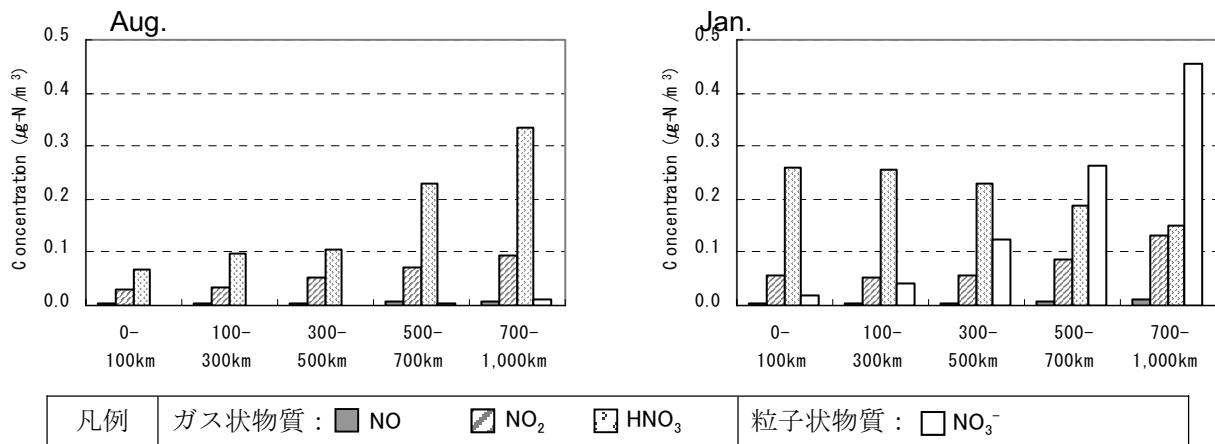


図 4.3-4(1) 窒素酸化物の距離帯別の大気中バックグラウンド濃度

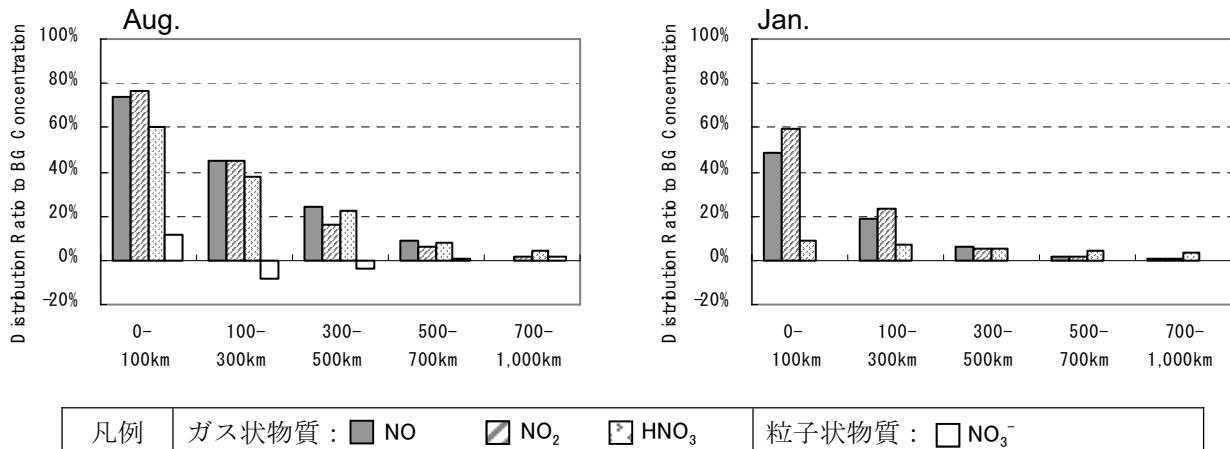


図 4.3-4(2) バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(窒素酸化物)

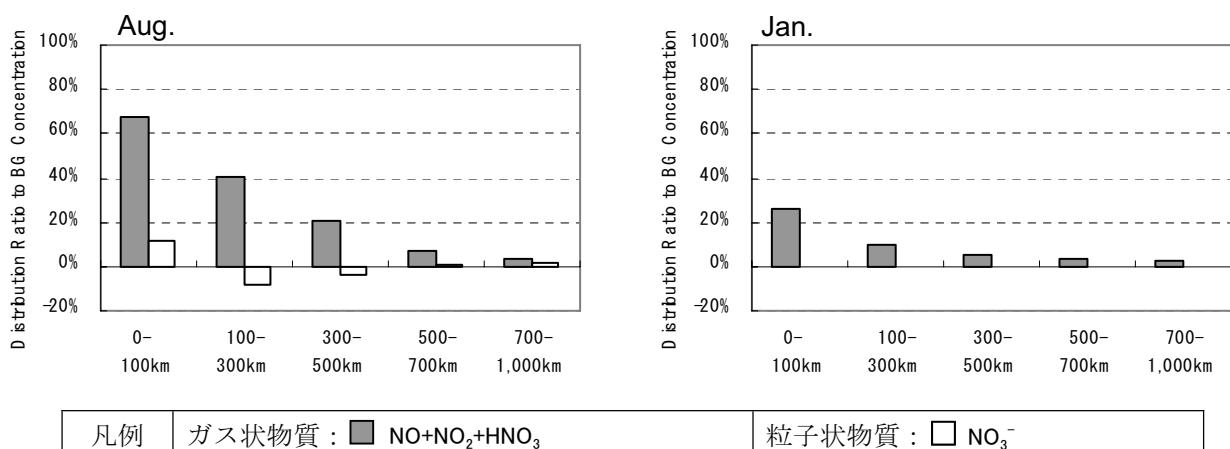


図 4.3-4(3) バックグラウンド濃度に対する船舶起源大気中濃度の割合(窒素酸化物)

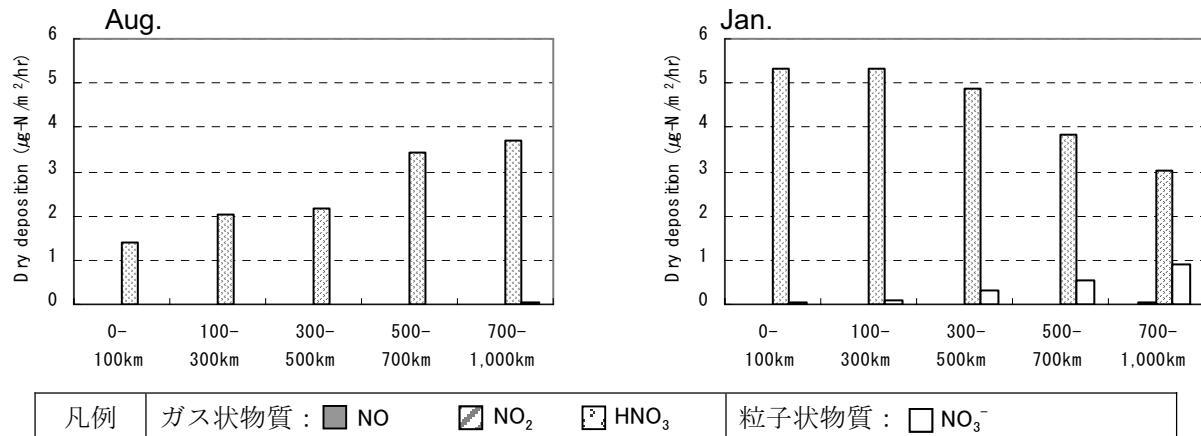


図 4.3-4(4) 塩素酸化物の距離帯別の乾性沈着量(バックグラウンド値)

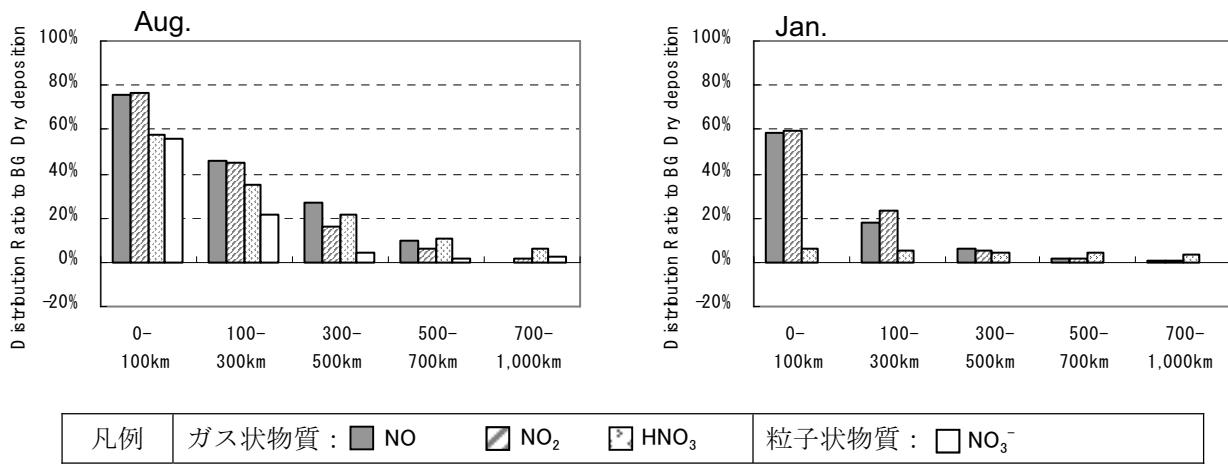


図 4.3-4(5) バックグラウンド値に対する船舶起源乾性沈着量の割合(塩素酸化物)

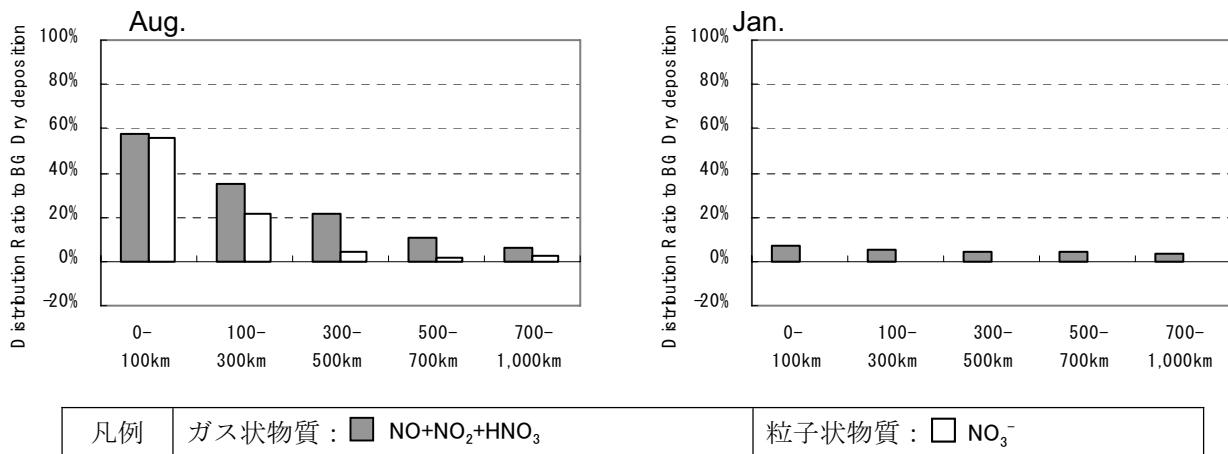


図 4.3-4(6) バックグラウンド値に対する船舶起源乾性沈着量の割合(塩素酸化物)

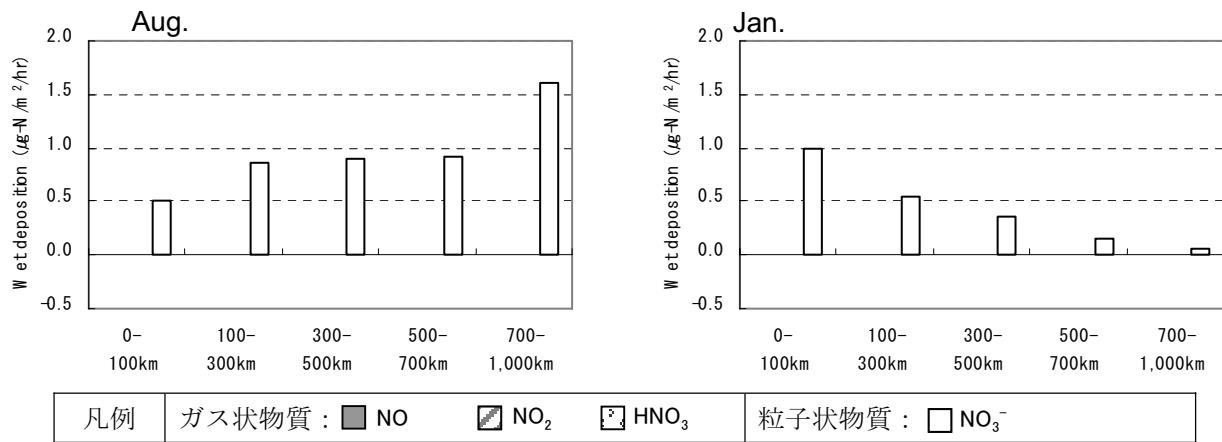


図 4.3-4(7) 窒素酸化物の距離帯別の湿性沈着量(バックグラウンド値)

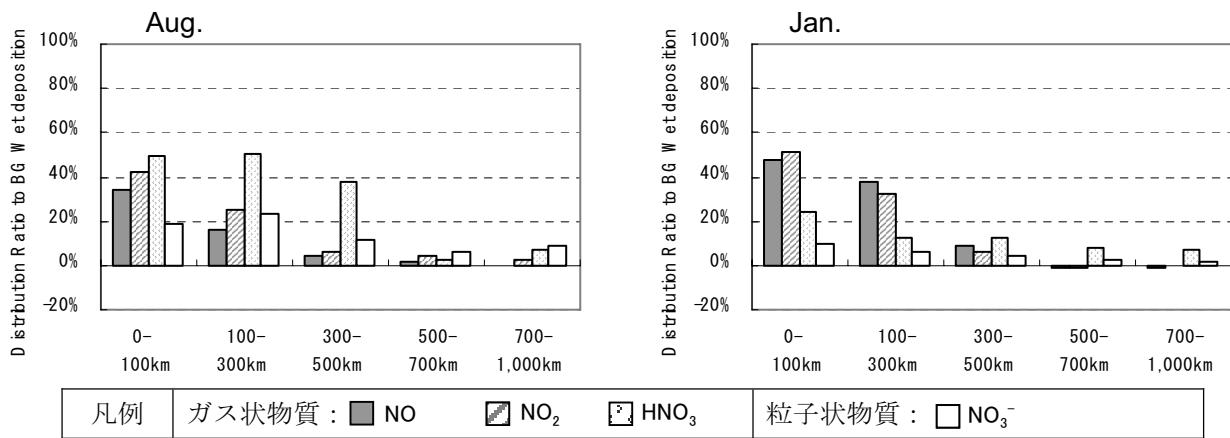


図 4.3-4(8) バックグラウンド値に対する船舶起源湿性沈着量の割合(窒素酸化物)

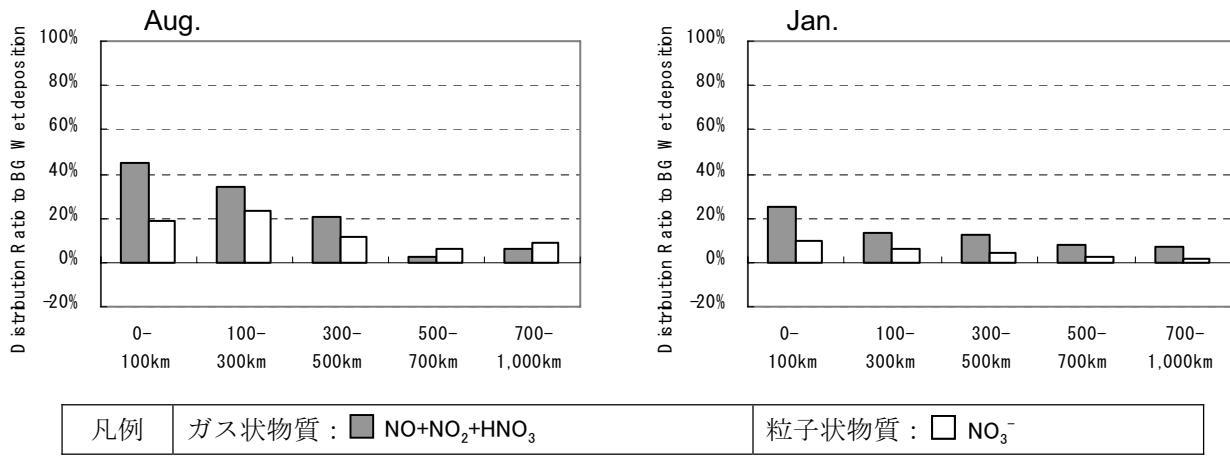


図 4.3-4(9) バックグラウンド値に対する船舶起源湿性沈着量の割合(窒素酸化物)

(5) 高度別の大気中濃度

窒素酸化物の高度別大気中濃度は図 4.3-5に示すとおりである。

NO、NO₂は硫黄酸化物と同様に高さ 2,000 m以下にほとんどが存在するが、HNO₃は 8 月には一部が 2,000 m以上まで上昇している。

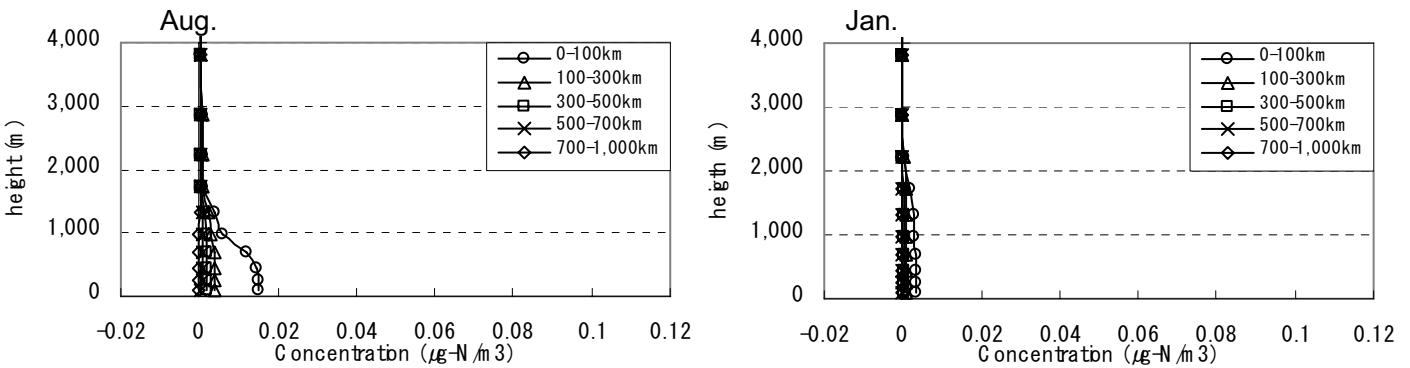


図 4.3-5(1) NO の高度別の大気中濃度

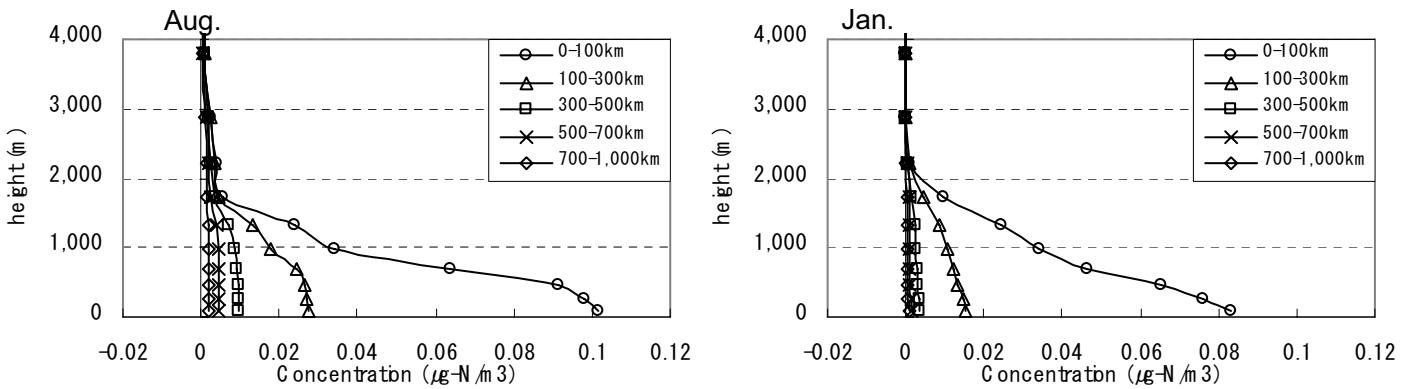


図 4.3-5(2) NO₂の高度別の大気中濃度

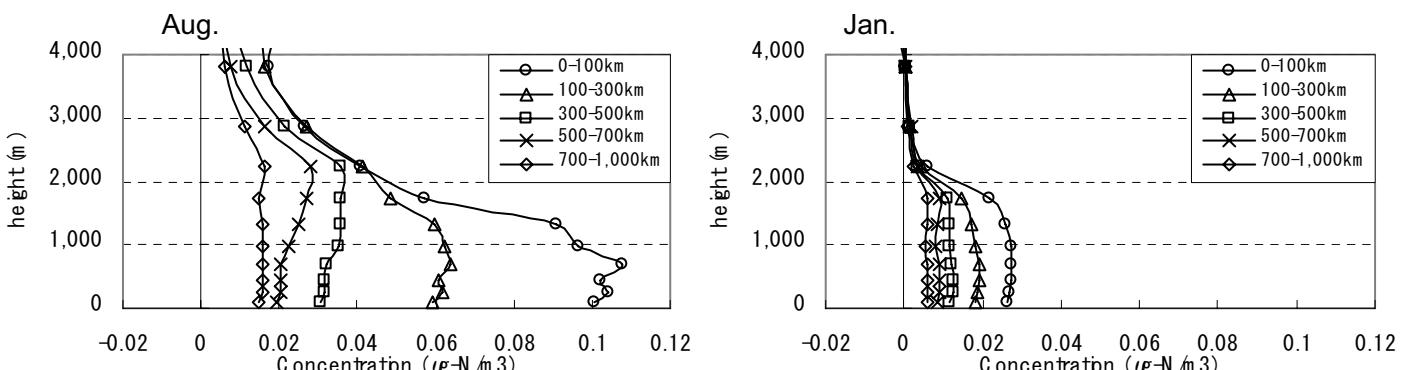


図 4.3-5(3) HNO₃の高度別の大気中濃度

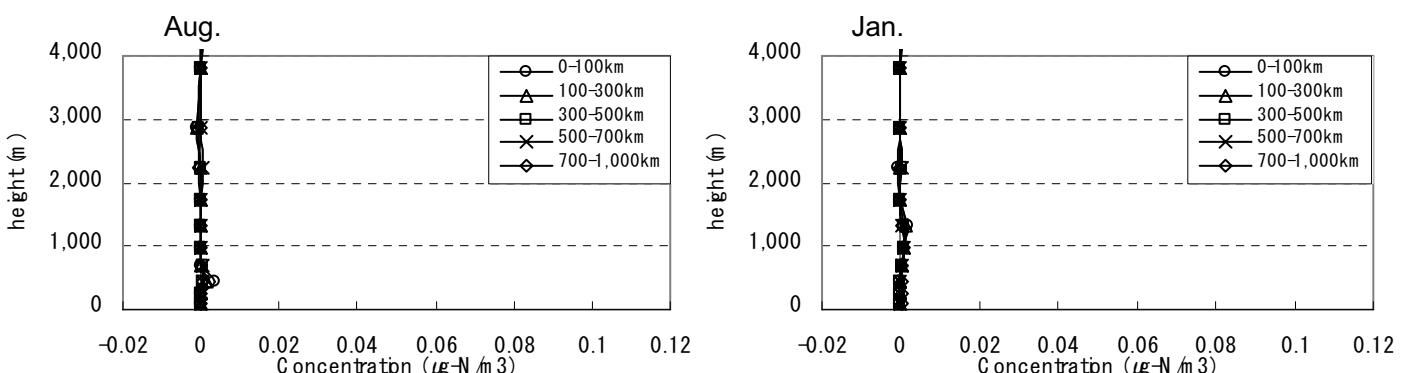


図 4.3-5(4) NO₃⁻の高度別の大気中濃度

4.4 オゾン濃度への影響

(要点)

- 船舶排ガスに起因するオキシダントの生成量は航路帯付近においては、バックグラウンドに比較して最大で3割程度あるものの、その絶対値は大きなものではない。これは、NOx単体では海洋の清浄大気中においてO_xの生成が充分に行われないことに起因する。沿岸域でのオキシダント増加量は、バックグラウンド濃度に比較して無視しうる。

船舶から排出される窒素酸化物は、光化学反応により地表付近のオゾン濃度を増加させる可能性があり、IMOにおいても大洋上の船舶排出ガス NO_xによるオゾン濃度への影響が懸念されていることから、船舶排出ガスによるオゾン濃度への影響を調査した。

船舶からの排ガスがあるときとないときのオゾン濃度と、その濃度差を図 4.4-1に示す。なお、外洋域での濃度は陸上部と比較して非常に清浄であった。

日本周辺におけるオゾンのバックグラウンド濃度は、冬季から春季に極大を示し、夏季には太平洋からの気塊に覆われるため、低濃度となることが知られている。これは1月にはVOCの存在量が十分になく、また紫外線も少ないため光化学オゾンへの反応が小さいのに対して、8月にはVOCの存在量が十分にあり紫外線も多いため光化学オゾンへの反応が進み、オゾンが消費されているためである。

本調査においても、バックグラウンド濃度(船舶なし)は夏季の特に大陸から離れた、低緯度の海域で低濃度となっている。

一方、船舶排ガスの影響は、夏季で大きく、船舶発生源を含む0~100 km帯では、バックグラウンド濃度(船舶なし)の30%程度を占めているが、その絶対量は大きいものではない。これは、NOx単体では海洋の清浄大気中においてオキシダントの生成が充分に行われないことに起因する。航路帯から700 km以上離れた沿岸域でのオゾンの増加量は、バックグラウンド濃度に比較して無視しうる量である。

船舶排ガス中のNOは、オゾンと反応してNO₂に変化する際にオゾンを消費するが、OHラジカルが存在する場合は、オゾンを使わずにNOがNO₂に変換される反応が進み、これにより生成したNO₂が紫外線により光分解し、光化学オゾンを発生しているものと考えられる。

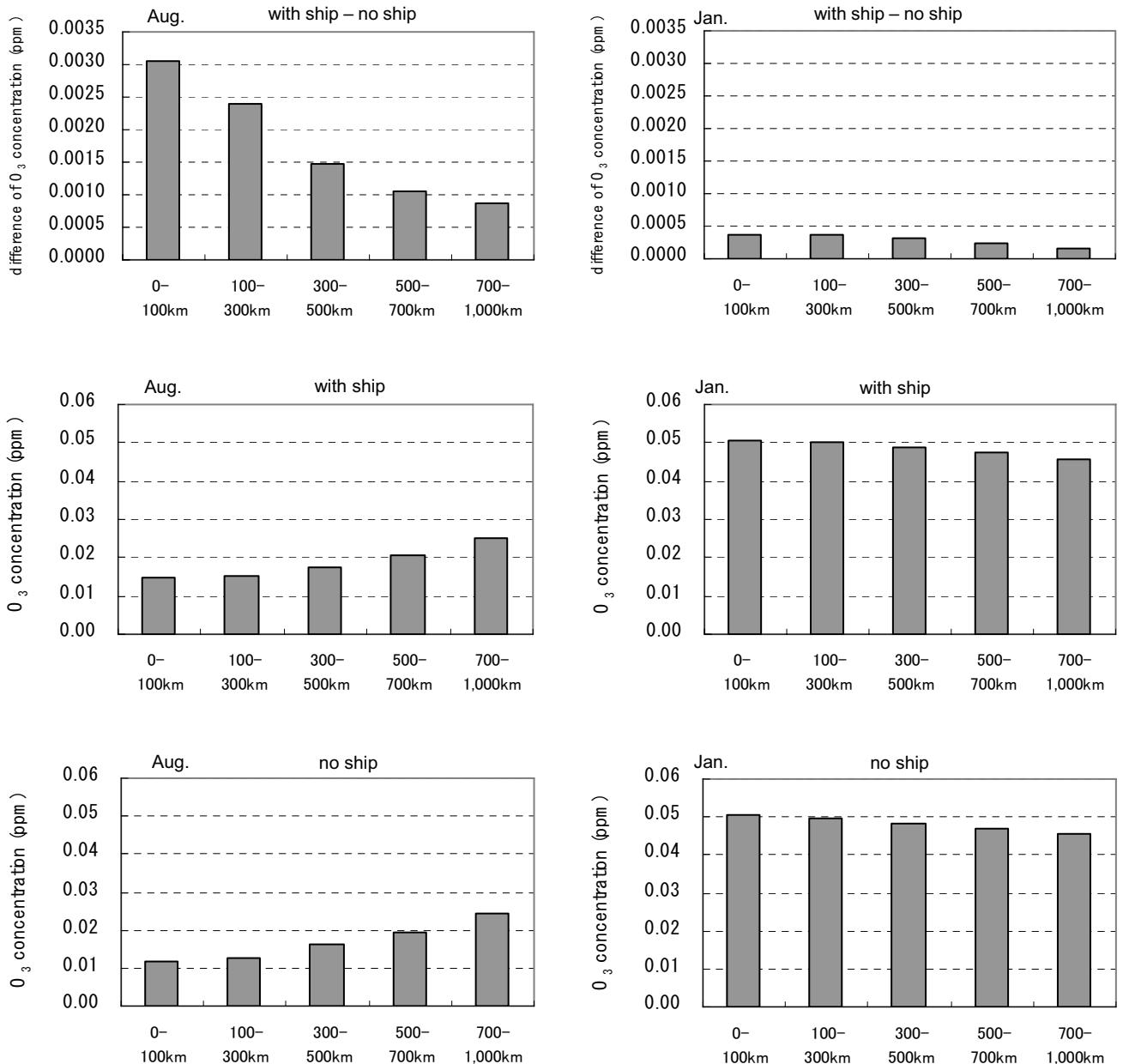


図 4.4-1 オゾン濃度

4.5 CMAQにおける二次生成粒子の粒径分布

(1) CMAQ内のエアロゾル過程

(a) 粒子化過程

CMAQのモデル内では、核生成は硫酸のみで起こると想定されており、核生成率はガス状 SO_2 の OH ラジカルによる生成率とガス状 H_2SO_4 の混合比から求められる。また、モデル内では新しく生成された粒子の粒径はすべて 3.5 nm と仮定している。核生成率は相対湿度、気温およびガス状 H_2SO_4 濃度に依存しており、計算タイムステップ内に化学反応により生成されたガス状 H_2SO_4 は、核生成と凝縮によりすべて粒子状に変換される。核生成により粒子化する粒子は Aitken となり、凝縮により粒子に付加する H_2SO_4 は Aitken と accumulation に配分される。

粒子がすでに存在している場合は、ガス状 H_2SO_4 の粒子化は凝縮成長のみで起こり、ガス状 H_2SO_4 の生成速度が凝縮成長速度を上回っている場合に新たな核生成が起こる。核生成によるエアロゾル存在量は凝縮による存在量に比べて無視できるほど小さい。

(b) 粒子の成長

モデル内で粒子の粒径分布は Aitken、accumulation、Coarse の 3 段階(モード)に分類され、それぞれ対数正規分布の重ねあわせで表現されている。エアロゾル粒子は、モード間あるいはモード内の凝集過程により成長する。凝集係数は化学種によらず、平均粒径と標準偏差だけの関数で表されている。

Aitken の粒子数は、核生成による増加、Aitken 同士の凝集による減少、accumulation への凝集による減少で計算される。accumulation の粒子数は accumulation 同士の凝集により減少していく。

このうち SO_4 と NO_3 については、Coarse 粒子には成長せず、Aitken と accumulation 粒子として取り扱われている(図 4.5-1 参照)。

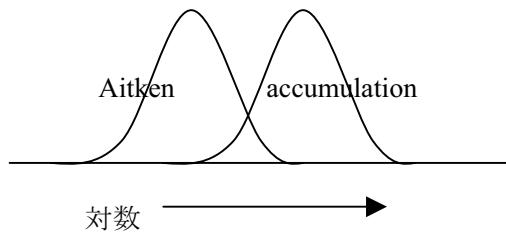


図 4.5-1 モデル内の粒径分布のイメージ

(c) 計算事例

図 4.5-2 は、CMAQ の簡単な Box Model を用いて試算された、大気中におけるエアロゾルの粒径分布の凝集過程を示したものである。

図では初期値と 12 時間後の粒径分布の状況が示されている。a 図(粒子数)をみると、初期値で 0.03 μm 附近に存在した Aitken 粒子が、12 時間後には 0.3 μm 附近的 accumulation 粒子に移行し、それに伴って b 図の accumulation 粒子の重量が増加している。

このように、CMAQ では、長距離輸送されるほとんどの粒子が accumulation 粒子として取り扱われているのがわかる。

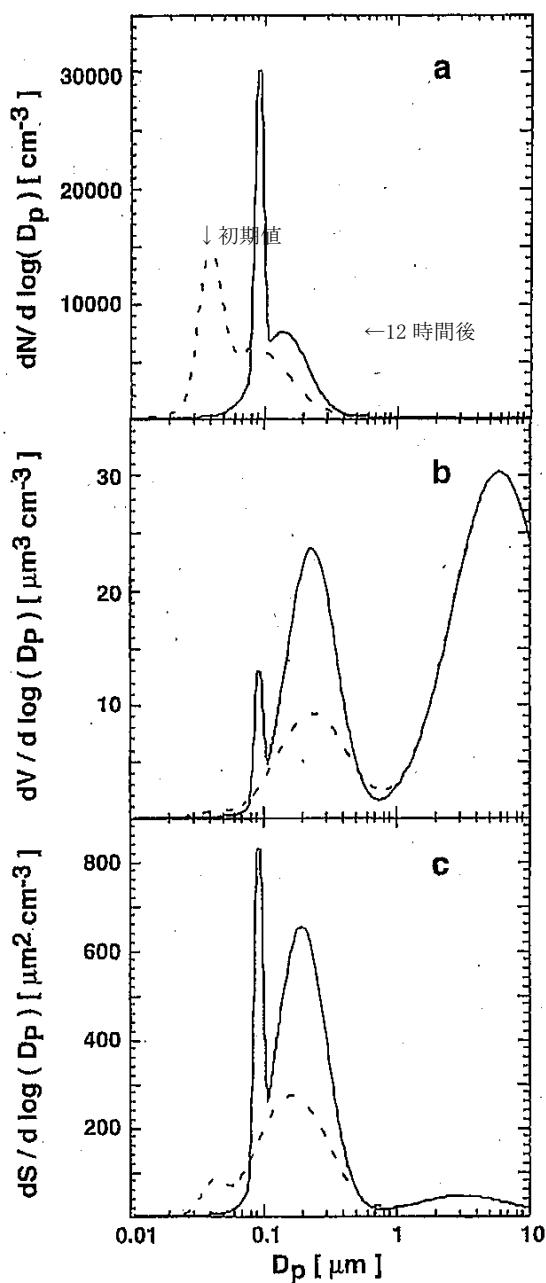


Figure 3. Size distributions for the Seigneur *et al.* [1986] Hazy case. (a) Number concentration distribution; (b) volume concentration distribution, (c) surface area concentration distribution. Values are shown for the initial time ($t = 0$) as a dashed curve and the final time ($t = 12$ hours) as a solid curve.

図 4.5-2 簡易なボックスモデルによる計算結果

出典 : Francis S. Binkowski and Shawn J. Roselle : Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model aerosol component – Model description -, Journal of Geophysical Research, 108, D6, 1-18, (2003).

(2) 観測による粒径分布

海洋上におけるエアロゾルの粒径分布を調査した例として、松本潔、植松光夫、他(2003)⁵⁾をみると、粗大粒子と微小粒子の存在割合は、SO₄では微小粒子が圧倒的に多くなっている。また、NO₃では粗大粒子の割合が微小粒子よりも多くなっている。

表 4.5-1 2001年3～5月に観測されたエアロゾル中イオン成分の粒径別平均濃度
(単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)

		SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻
利尻	粗大粒子	0.19	0.37
	微小粒子	2.29	0.28
八丈	粗大粒子	0.43	0.96
	微小粒子	3.19	0.40
父島	粗大粒子	0.23	0.37
	微小粒子	1.95	0.15

注)粗大粒子: 2.5～10 μm 、微小粒子: 2.5 μm 以下

同様の粒径分布結果は、陸上部での観測結果である日本の各自治体での観測結果でも示されている。

また、Spyros et al.(1993)⁶⁾によると、米国での観測結果であるが、エアロゾルの中心粒径としてSO₄: 0.3～0.6 μm 付近、NO₃: 0.8～1.0 μm 付近との観測結果が見られる。

他の粒径観測結果もすべて同様の結果であり、SO₄の粒径分布は微小粒子を中心としており、モデル内でのaccumulation粒子としての取扱いの妥当性を裏付けている。NO₃の粒径分布はSO₄より大きくaccumulation粒子からCoarse粒子にまたがって存在すると考えられる。なお、粗大粒子の重力落下効果を考慮すると、accumulation粒子としてモデル内で取り扱われたNO₃の大気中濃度および沈着量は過小評価の可能性がある。

5) 松本潔、植松光夫、早野輝朗、宇山悠紀子、太田一岳：VMAP島嶼観測網における海洋大気エアロゾルの科学的性状と輸送過程,月刊海洋 vol.36, No.2, p95～101, (2003).

6) Spyros N. Pandis et. Al.: Secondary Organic Aerosol Formation and Transport, Atmospheric Environment Vol.27A, No.15, p.2403～2416, (1993).

(3) 解析領域内の粒径分布の検討

海洋上の船舶起源以外の粒子状エアロゾルは大陸起源から輸送されてきたものがほとんどである。これらの粒子状エアロゾルは、発生源のない海洋上を輸送される過程において、Aitken 同士の凝集、Aitken から accumulation モードへの凝集により、海洋上の粒子状エアロゾルは accumulation に多く分布していると考えられる。

また、ガス状として排出された船舶起源のSO₂は、モデル内では、核生成による粒子化ではなく、海洋上にすでに存在している accumulation 粒子への凝縮成長により粒子化し、accumulation モードの粒子として存在するのがほとんどであると考えられる。

accumulation 粒子は凝集による除去や重力落下の効果が低いため、凝集して accumulation 粒子に移行する Aitken 粒子や、重力落下で消滅する Coarse 粒子に比べて大気中における滞留時間が長い。accumulation 粒子の有効な除去機構は雲過程であり、水蒸気の凝結による雲粒の形成過程において雲核となって取り込まれ、湿性沈着として雨水の落下過程で取り込まれて落下する割合が多いと考えられる。

4.6 一次粒子

(要点)

- 船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより受ける物理サイズを持つ。このため、0-100 km の距離帯において、夏季で 60 %、冬季で 40 % 程度が海面に沈着すると推定される。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。

船舶から排出される一次粒子のシミュレーションは、燃料の燃焼により一次粒子として排出される主成分の元素状炭素(EC)を対象とした。シミュレーションモデルは、風系場を一様として、広く用いられている大気拡散モデルのプルームモデルに重力沈降および海面への乾性沈着の効果を取り入れたモデルを用いて行った。

しかしながら、風系場を一様として扱うことに疑問が残ることや、全体的に 3 次元で扱えることから、二次粒子のシミュレーションモデルと同様の 3 次元数値モデル(差分式)を用いた試算も行った。

(1) プルーム式による検討

(a) 検討手法

CMAQ の計算を単純化するために、16 日間の平均的な気象場での検討ではなく、8 月と 1 月のそれぞれの代表的な気象場を用いて、EC の挙動を検討することとした。

本調査地域の風の状況を見ると(参考表参照)、8 月は南東寄りの風が一様に吹き、1 月は北西寄りの風が一様に吹いている時間が 4 日間近く継続している期間が見られる。また、これらの風の場が出現している頻度は 30 % 以上となっている。このため、8 月と 1 月の気象場は上記のような風の場で代表させることができると考えた。

① 拡散モデル

解析領域は海上であるため地形の影響による風の乱れがない。また、風向も上記のようにほぼ一様に風下に向かって長時間吹いている。このため、大気中の濃度がガウス分布を示すプルームモデルを用いて大気の拡散計算を実施し、EC の分布と沈着量について検討した。プルームモデルの適用範囲は 100 km 程度の範囲の同一気象場とみなせる範囲に摘要されるモデルであるが、本計算はすべて海上であり、風等の条件が一定であるため、プルームモデルを採用した。拡散式を以下に示す。

【拡散式】

$$C(R_1, R_2, z) = \int_{R^2}^{R^1} \sqrt{\frac{1}{2\pi}} \cdot \frac{Q_L}{\pi R \sigma_z u} \cdot \left[\exp\left\{-\frac{(z - He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} + \exp\left\{-\frac{(z + He)^2}{2\sigma_z^2}\right\} \right] dR$$

[記 号]

R_1, R_2	: 線煙源の積分区間(m)
R	: 煙源と計算点の水平距離(m)
z	: 計算点の z 座標(m)
Q_p	: 線煙源強度(kg/m·s)
u	: 風速(m/s)
He	: 有効煙突高(m)
σ_z	: 鉛直拡散パラメータ(鉛直方向の正規分布の標準偏差)

② 気象条件

8月は南東寄りの風が最も安定して吹いていた4日間の平均風速6.0 m/s、1月は北西寄りの風が最も安定して吹いていた4日間の平均風速10.3 m/sを用いて検討した。

③ 大気安定度

大気安定度の導出は、安達(1997)に従い、Monin-Obukhovの大気安定度長からGolderの値を用いて大気安定度に読み替える方法を用いた。海水温度、大気温度等を用いて、次式により、大気安定度長を算出し、表 4.6-1の関係から大気安定度を8月についてはC、1月についてはDとした。なお、海面上10mにおける風速は、RAMSの最下層(海面上75m)の風速をべき乗則に補正して用いた。

$$L_V = \frac{\theta_V \cdot C_{uN}^{3/2} \cdot u^2}{k \cdot g \cdot C_{TN}(\theta_V - \theta_{VS})}$$

L_V	: 大気安定度長(m)
k	: カルマン定数 0.4
g	: 重力加速度 9.8(m/s ²)
θ_{VS}	: 海面仮温位(K) (海水温度とした。8月: 約28°C、1月: 約22°C ^注)
θ_V	: 大気仮温位(K) (大気温度とした。8月: 約26°C、1月: 約14°C ^注)
u	: 海面上10mにおける風速(m/s)
C_{uN}	: 中立時の運動量抵抗係数(0.75 + 0.067 · u) × 10 ⁻³
C_{TN}	: 中立時の熱量抵抗係数 1.3 × 10 ⁻³

注)海水温、气温については、気象庁資料の過去30年間の平均値、およびRAMSデータの整合性を確認したうえで設定

表 4.6-1 大気安定度長 Lv と大気安定度

大気安定度	大気安定度長
B	-10m ≤ Lv < 0m
C	-25m ≤ Lv < -10m
D	25m < Lv
E	10m < Lv ≤ 25m
F	0m < Lv ≤ 10m

④ 拡散パラメータ

Pasquill-Gifford 線を安達(1997)の方法により、2段階安定側に読み取った上で、さらに、航行時の乱れ等を考慮し、初期拡散幅を 10 m に設定した。

⑤ 沈着量の計算

本計算では、粒子の移流・拡散過程における重力沈降による煙流主軸の低下および海面への沈着を考慮した。

i) 重力沈降による主軸の低下

船舶から排出された粒子は、風下方向に重力沈降によって向かって下降することから、拡散式中の有効煙突高(He)を下式に置き換えることで主軸低下の効果を考慮した。

$$He' = He - V_s \times x/u$$

He' : 主軸低下を考慮した有効煙突高(m)
 He : 有効煙突高(m)
 u : 平均風速(m/s)
 x : 風下の距離(m)
 V_s : 粒子の沈降速度(m/s)

粒子の沈降速度は、船舶排ガス中の粒子径を設定し、Stokes 式により求めた。

ii) 船舶排ガス中の粒子径

船舶排ガス中の EC は大部分が accumulation であると考えられる。本計算では、CMAQ では、一次粒子の平均粒径は、Aitken モードが 0.03 μm 、accumulation が 0.3 μm 、coarse モードが 6 μm が採用されており、これを参考に、0.3 μm を代表粒径として、沈降速度の計算に用いた。

iii) 沈着速度

本計算では、プルーム式中の鉛直濃度分布の反射項を補正する方法を用いて沈着による濃度減衰を計算した(次式参照)。

沈着速度は、地表面の種類や粗度、粒子の化学種などによって異なるが、本計算は海洋を対象としており、地表面の種類や粗度は一様とみなせることから、一律の沈着速度を与えることとした。水面における硫酸塩の乾性沈着速度は、環境省⁷⁾では 0.25~0.35 cm/s、大原ら⁸⁾ではほぼ 0.1~1.0 cm/s としており、本計算では、大原らの値を参考に、乾性沈着速度を 0.5 cm/s と設定した。なお、RAMS/CMAQ連携システムによるシミュレーション結果から、大気中濃度(最下層の濃度)と乾性沈着量を用いて計算すると、船舶起源の硫酸塩粒子の乾性沈着速度は約 0.1~0.2 cm/s となり、文献値と比較するとやや低い値となっている。

粒子の沈降速度については、前述と同様、Stokes 式により求めた。

7) 環境庁大気保全局大気規制課：浮遊粒子状物質汚染予測マニュアル、(1997).

8) 大原ら：エアロゾルの乾性沈着と大気環境インパクト、参考 1、(2003).

$$F(x, z) = \exp\left\{-\frac{(He - V_s x / u - z)^2}{2\sigma^2}\right\} + \alpha(x) \exp\left\{-\frac{(He - V_s x / u + z)^2}{2\sigma^2}\right\}$$

$$\alpha(x) = 1 - \frac{2V_d}{V_s + V_d + (uHe - V_s x) / \sigma_z \cdot (d\sigma_z / dx)}$$

V_s : 粒子沈降速度

V_d : 乾性沈着速度

He : 有効煙突高

u : 風速

x : 風下の距離

σ_z : 鉛直方向の拡散幅

計算に際しては、沈着なしの計算結果と上記を用いて海面での沈着を考慮した計算結果との差から沈着量を算出した。

(b) 検討結果

距離帯別のECの沈着量、および物質収支は図 4.6-1に示すとおりである。図中左端の灰色の棒グラフは計算期間中に排出された一次粒子の総量を示しており、航路帯からの距離帯別に海面への沈着量を斜線、大気中存在量を白色で示している。なお、大気中に存在している粒子(白色部分)は、距離が遠くなるに従い、風下距離方向、水平方向ともに拡散し、その濃度は非常に小さくなっていることに留意する必要がある。

船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより受ける物理サイズを持つ。このため、船舶航路からの距離が 0~100 km 帯では、排出ガス量に対する沈着量の割合は夏季で約 6 割、冬季で約 4 割となっており、0 ~1,000 km 帯では夏季で約 8 割、冬季で約 7 割となっている。硫黄酸化物や窒素酸化物の乾性沈着率と比較すると、一次粒子の乾性沈着率が高くなっています。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。

なお、ブルーム式では湿性沈着については考慮できないため、物質収支は硫黄酸化物や窒素酸化物と比較して低くなっていますが、乾性沈着を比較すると、硫黄酸化物や窒素酸化物よりも沈着率が高くなっています。EC はガス状物質よりも早く海上に沈着することを示唆している。

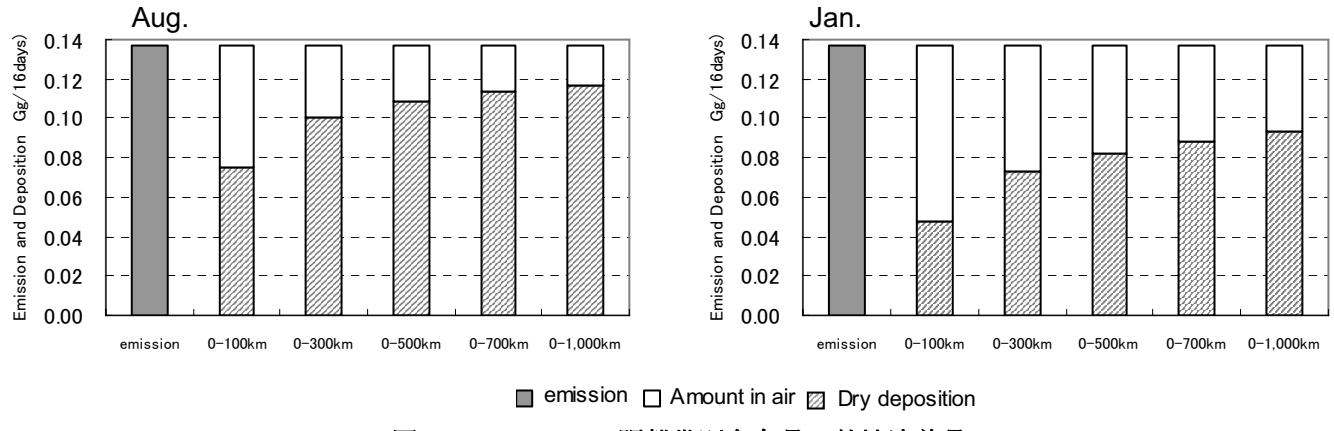


図 4.6-1(1) EC の距離帯別存在量・乾性沈着量

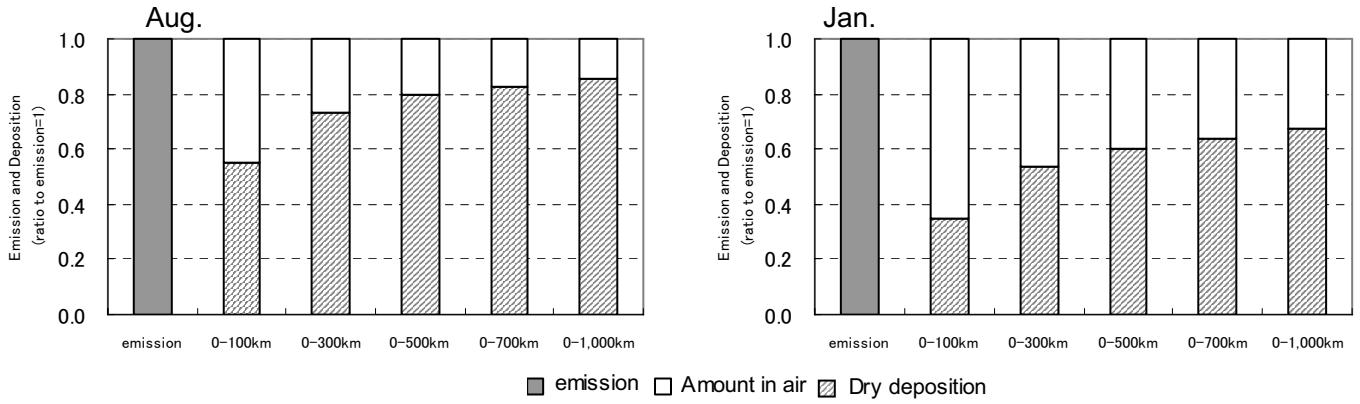


図 4.6-1(2) 一次粒子の距離帯別存在量・乾性沈着量(排出量比)

表 解析期間中の風向・風速(発生源中央地点、最下層メッシュ)

AUG

日付	2時	4時	6時	8時	10時	12時	14時	16時	18時	20時	22時	24時	(16方位・m/s) 平均	
20000816	wd	SSW	SW	SW										
20000816	ws	7.3	7.4	7.4	7.5	7.7	8.1	8.3	8.5	8.4	8.2	7.9	7.6	
20000817	wd	SW												
20000817	ws	7.3	7	6.7	6.4	6.4	6.8	7.1	7.4	7.5	7.6	7.7	7.7	
20000818	wd	WSW	SW	SW										
20000818	ws	7.6	7.2	6.6	6.1	5.9	6.1	6.4	6.7	6.9	7	7.1	7.1	
20000819	wd	SW	SW	SW	SW	SW	SSW	SSW	SSW	SSW	SSW	SSW		
20000819	ws	6.9	6.7	6.4	6.4	6.7	7.2	7.5	7.5	7.1	7	7.2	7.8	
20000820	wd	SSW	SSW	SSW	SSW	S	S	S	SSE	SSE	SSE	SE		
20000820	ws	8.4	8.1	7.1	6.2	6.2	6.9	7.1	6.5	5.4	4.8	4.8	4.9	
20000821	wd	SE	SE	ESE	ESE	ESE	ESE	ESE	E	E	E	E		
20000821	ws	5.2	5	5.6	5.8	6.1	6.4	6.6	6.6	6.7	7.1	7.3	7.5	
20000822	wd	E	E	ESE	ESE	ESE	SE	SE	SE	SE	SE	SE		
20000822	ws	7.6	7.6	7.6	7.5	7.5	7.6	8.1	7.9	7.2	6.8	6.6	6.7	
20000823	wd	SE												
20000823	ws	6.8	6.7	6.4	6.2	6.1	6	6.1	5.9	5.5	5	4.6	4.6	
20000824	wd	SE												
20000824	ws	4.8	4.9	4.8	4.7	4.3	3.9	3.7	3.8	4	4.2	4.5	5	
20000825	wd	SE												
20000825	ws	5.6	6	6.3	6.4	6.5	6.6	6.6	6.4	6.2	5.9	6.3	6.8	
20000826	wd	SE	SE	SE	ESE	ESE	ESE	ESE	ESE	E	E	E		
20000826	ws	6.9	7	7.3	7.5	7.6	7.6	7.8	8.3	8.9	9.4	9.9	10.5	
20000827	wd	E	E	E	E	E	E	E	ENE	ENE	ENE	ENE		
20000827	ws	11.2	12	12.6	13.4	14.2	15	15.3	15.4	15.7	16.3	17	17.2	
20000828	wd	E	E	E	E	E	E	E	E	E	ESE	ESE		
20000828	ws	17.5	17.5	17.1	17.1	17	16.6	16.4	16.3	16.6	16.5	16.9	16.9	
20000829	wd	ESE	SE	SE										
20000829	ws	16.7	16.2	15.7	15.8	16.1	16	15.9	15.2	14.3	13.9	14.1	13.8	
20000830	wd	SE	SE	SE	SE	SE	SSE	SSE	SSE	SSE	SSE	SSE		
20000830	ws	13.7	13.3	12.9	12.7	12.8	12.5	12.3	12	11.8	11.5	11.3	11.1	

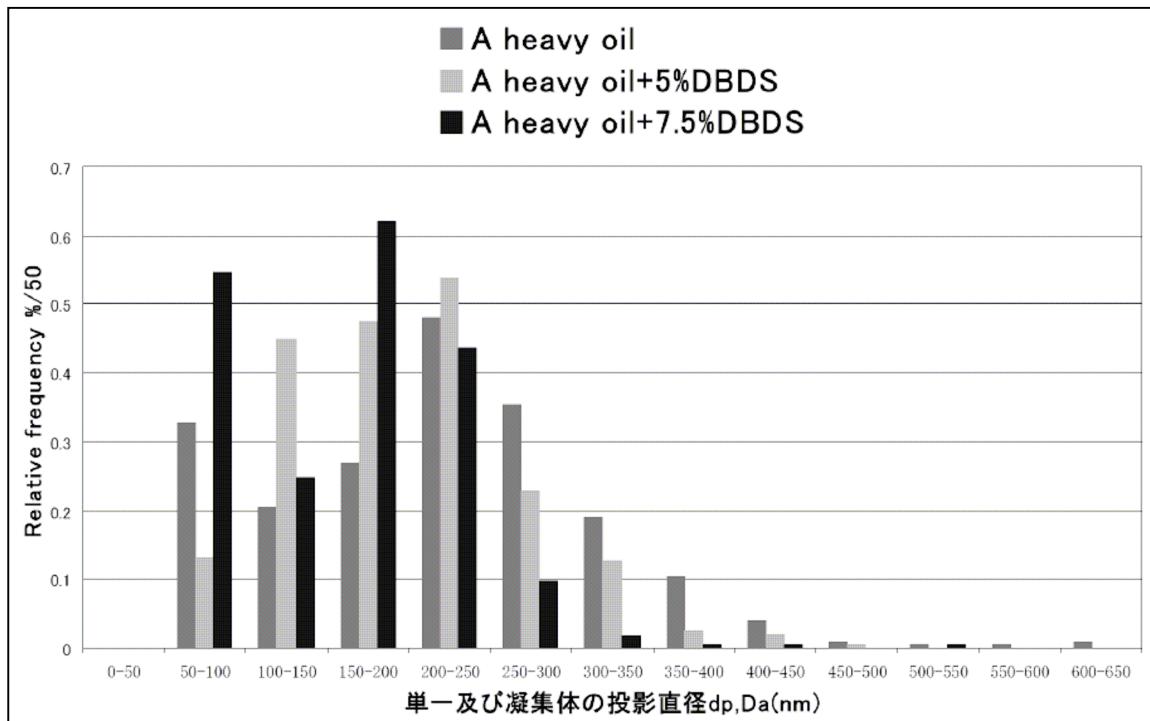
注) 8月22日～25日の平均風速を計算に用いた。

JAN

日付	2時	4時	6時	8時	10時	12時	14時	16時	18時	20時	22時	24時	(16方位・m/s) 平均
20000116	wd	W	WNW	NW	NNW	NNW	NNW	N	NNW	NNW	NW	NW	
20000116	ws	3.2	3.9	4	4.4	5.1	5.2	5.9	7.7	7.3	7.2	8.3	5.9
20000117	wd	NW											
20000117	ws	9.8	10.3	10.6	11.1	11.3	11.1	10.7	10.5	10.7	11	10.8	10.5
20000118	wd	NW	WNW	WNW	WNW	WNW							
20000118	ws	10.1	10.3	10.7	10.8	10.5	10.1	9.6	9.6	10	10.5	10.8	10.8
20000119	wd	WNW	WNW	NW									
20000119	ws	11	11.4	11.5	11.6	11.5	11.2	10.4	10.1	10	10	10.3	10.8
20000120	wd	NW	NNW										
20000120	ws	10.2	9.9	9.5	9.4	9.4	9.3	9.1	8.7	8.4	8.5	8.9	9.3
20000121	wd	NNW	N	N	NNE	NNE	NE	NE	ENE	E	E	ESE	
20000121	ws	9.3	8.9	8.4	7.9	7.2	6.6	5.9	5.2	4.7	4.4	4.4	6.4
20000122	wd	SE	SE	SE	SSE	SSE	SSE	SSE	S	S	S	S	
20000122	ws	4.4	4.5	5	5.7	6.9	7.9	8.6	8.9	9.2	9.4	9.6	7.5
20000123	wd	S	S	SSW									
20000123	ws	9.5	9.1	8.5	7.6	6.6	6.2	6.4	6.9	7.2	7.4	7.7	8
20000124	wd	SSW	SW	SW	SW	WSW	WSW	WSW	W	WNW	NW	NNW	
20000124	ws	8	8	7.6	6.8	5.9	5.5	4.7	4.5	5.3	8.7	11.1	11.2
20000125	wd	NNW											
20000125	ws	12	12	11.7	11.7	11.9	12.1	12.1	11.9	11.6	11.6	11.7	12
20000126	wd	NW											
20000126	ws	11.6	11.8	11.8	11.9	11.9	11.7	11.5	11.3	11.1	10.8	10.5	10.2
20000127	wd	NW	NW	NW	NW	NW	NW	NNW	NNW	NNW	N	N	
20000127	ws	9.9	9.7	9.4	9.3	9.1	8.9	8.6	8.4	8	7.4	6.3	8.4
20000128	wd	NNE	NNE	NNE	NNE	NNE	NE	ENE	ENE	E	E	E	
20000128	ws	4.7	4.5	4.8	4.9	4.8	4.8	4.8	4.5	4.2	3.7	3.3	4.3
20000129	wd	E	E	E	E	E	ESE	ESE	ESE	SE	SE	S	
20000129	ws	3	2.7	2.8	3	3.1	3.1	2.9	2.5	1.9	1.1	0.7	0.5
20000130	wd	NW	NW	NW	NNW								
20000130	ws	2.9	6.4	8.9	10.3	11	11.4	10.9	10.6	10.4	10.2	10.2	10.1

注) 1月17日～20日の平均風速を計算に用いた。

表 船用ディーゼルエンジン排気粒子の粒子径分布



出典) 西田修身: ディーゼル機関から排出される微粒子を顕微鏡で観いてみると(重油成分の違いから検討する)、
海事科学フォーラム、パネル D12、2004

(2) 差分式による検討

(a) 検討手法

① 拡散モデル

一次粒子である EC についても二次粒子の計算手法に近づけるために、風況が非定常な場合の濃度推定に適している 3 次元数値モデル(差分式)を用いた試算を行った。差分式は次式に示すとおりであり、重力沈降・乾性沈着を含んでいる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + u \frac{\partial C}{\partial x} + v \frac{\partial C}{\partial y} + w \frac{\partial C}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K_x \frac{\partial C}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(K_y \frac{\partial C}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) + Q - w_s \frac{\partial C}{\partial z}$$

C : 濃度

u, v : 水平風速

w : 鉛直風速

K_x : x 方向の水平拡散係数

K_y : y 方向の水平拡散係数

K_z : 鉛直拡散係数

Q : 発生量

w_s : 沈降速度、乾性沈着速度(最下層のみ)

② 計算範囲、計算格子

計算範囲、計算格子は、CMAQ の計算に用いた条件と同じとした。

③ 解析期間

解析期間は、各季 1 ヶ月間の計算結果のうち、CMAQ の解析に用いた下記の期間とした。

夏季 2000 年 8 月 16 日～31 日

冬季 2000 年 1 月 16 日～31 日

④ 気象条件

一次粒子の計算に用いる気象条件は、CMAQ の計算に用いた RAMS 気象モデルの 1 ヶ月間の計算結果である 2 時間毎・80 km メッシュの風向・風速(水平、鉛直)データを用いた。

⑤ 拡散係数

一次粒子(EC)の計算に用いる鉛直拡散係数は、CMAQ の計算に用いた RAMS 気象モデルの 1 ヶ月間の計算結果である 2 時間毎・80 km メッシュの拡散係数を用いた。水平拡散項は移流項に比べて影響が小さいため、x 方向・y 方向ともに一定値($100 \text{ m}^2/\text{s}$)を与えた。

⑥ 沈降速度、沈着速度

沈降速度：船舶排ガス中の粒子径を $0.3 \mu\text{m}$ を代表粒径とした粒径分布とし、Stokes 式により求めた粒径別沈降速度の平均値を用いた。

沈着速度：大原らの値を参考に、乾性沈着速度を 0.5 cm/s とした。

⑦ 排出源

一次粒子(EC)の排出源は、CMAQ の計算に用いられた船舶起源の発生源位置と同じとした。

(b) 検討結果

差分式による距離帯別のECの沈着量および物質収支は図 4.6-2に示すとおりである。

乾性沈着量についてプルーム式での計算結果と比較すると、夏季で約 40~70 %、冬季で 30~40 %と小さくなっている。発生源から近い 0~100 km 帯でプルームとの差が最も大きくなっているが、これはプルーム式と差分式で発生源の入力方法が異なり、これにより発生源近傍での濃度分布の違いが反映されたものであると考えられる。

また、湿性沈着については考慮できないため、物質収支は硫黄酸化物や窒素酸化物と比較して低くなっているが、乾性沈着で比較すると、硫黄酸化物や窒素酸化物よりも沈着率が高くなってしまっており、プルーム式での計算結果と同様に、EC はガス状物質よりも早く海上に沈着することを示唆している。

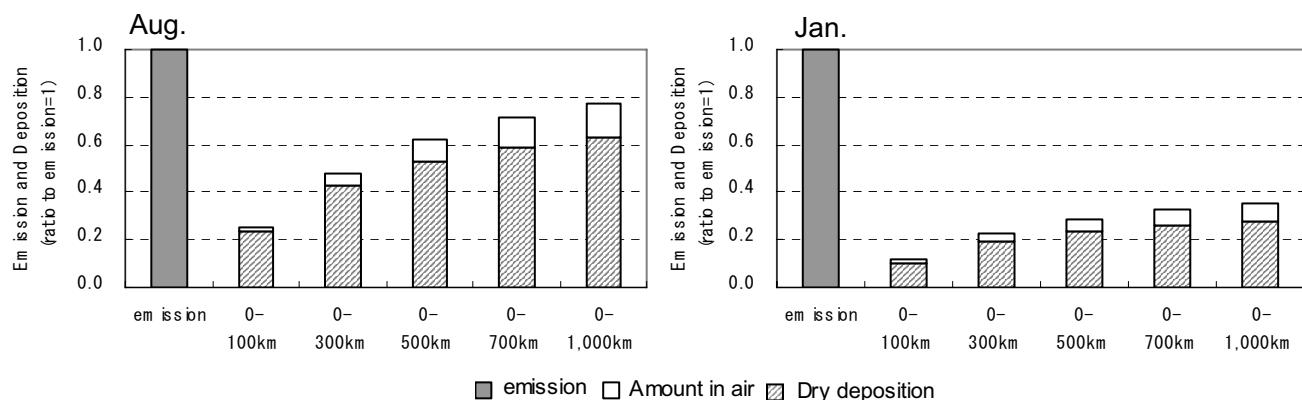


図 4.6-2 差分式による EC の距離帯別存在量・乾性沈着量

5. 結論

5.1 一次粒子

- 船舶から発生するディーゼル粒子は、ガス状物質あるいはそこから生じる二次粒子と異なり、重力の影響をより受ける物理サイズを持つ。このため、0-100 km の距離帯において、夏季で 60 %、冬季で 40 %程度が海面に沈着すると推定される。したがって、その影響範囲はガス状物質から生じる二次粒子に比較して狭いことが期待できる。

5.2 二次粒子

- 太平洋上の航路帯から排出された SO_x ガスは、比較的速やかに粒子化し、航路帯から 100 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較においても無視できる。
- 粒子化した SO₄ 粒子は、ガス状物質に比較して遠距離まで到達する。したがって、PM のうち二次粒子の影響を考慮した場合は、燃料転換あるいは SO₂ ガスや粒子を除去できる後処理対策が有効であると考えられる。
- 太平洋上の航路帯から排出された NO_x ガスは、人体に有害な NO₂ へ更に HNO₃ ガスにまで比較的速やかに酸化される。ただし、そこから粒子化へ進む速度は、SO_x に比較して遅く、ガス状物質のままで、大気中で挙動する。これは、SO₄ が硫酸ミストとして単体でも粒子化するのに対して、硝酸はアンモニアなどアルカリイオンが存在しないと粒子化が進まないと起因している。
- その HNO₃ ガス状濃度は、航路帯から 300 km 以上離れた地点でのガス状物質としての濃度は、絶対値としても、バックグラウンド濃度との比較において無視できる。
- 粒子化の影響が少ないことからも、NO_x の影響は SO_x の影響に比較して範囲が狭く、局地的な影響を重視した対策が望まれる。
- 硫黄酸化物の乾性沈着量は、陸上では主に SO₂ ガスであるのに対して海洋上では SO₂ ガスと SO₄²⁻ 粒子は同程度である(図 5-1 参照)。一方窒素酸化物は陸上では主成分の HNO₃ ガスに加え NO ガスや NO₃ 粒子も沈着するのに対して海洋上では HNO₃ ガスのみであり、陸上と海洋上で粒子化への影響が異なることが示唆された(図 5-2 参照)。

5.3 オゾン濃度への影響

- 船舶排ガスに起因するオキシダントの生成量は航路帯付近においては、バックグラウンドに比較して最大で 3 割程度あるものの、その絶対値は大きなものではない。これは、NO_x 単体では海洋の清浄大気中においてオキシダントの生成が充分に行われないことに起因する。沿岸域でのオゾン増加量は、バックグラウンド濃度に比較して無視しうる。

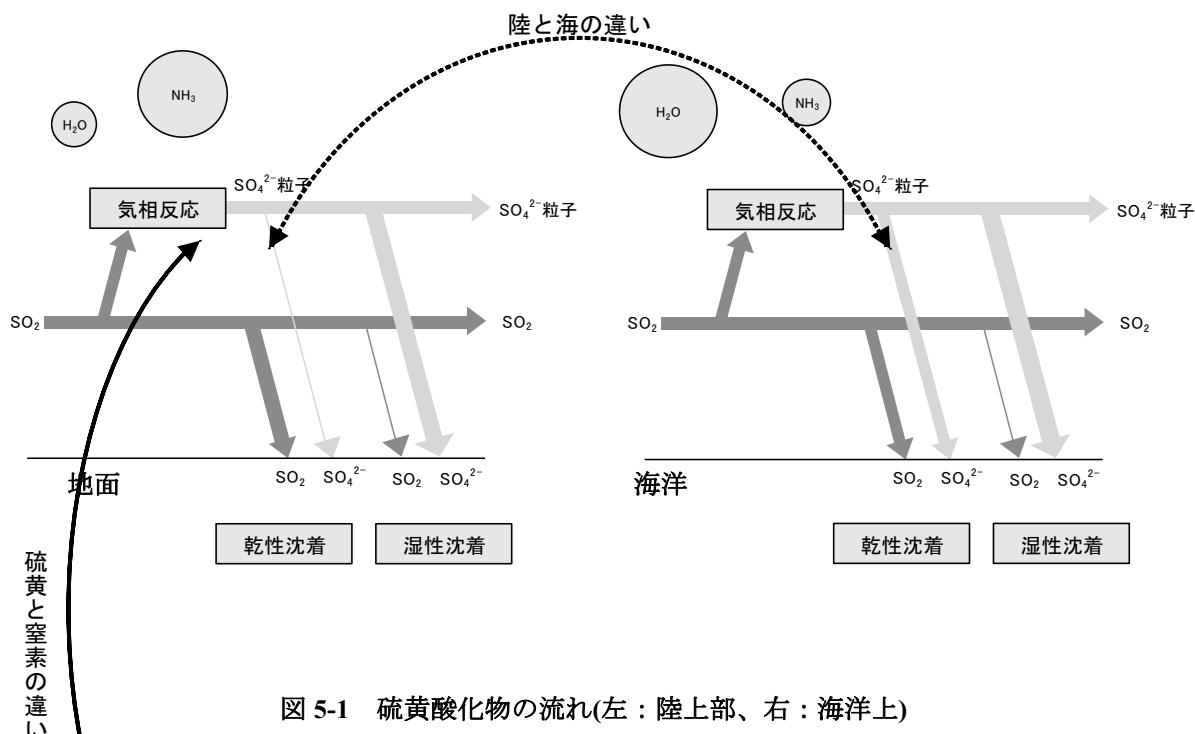


図 5-1 硫黄酸化物の流れ(左：陸上部、右：海洋上)

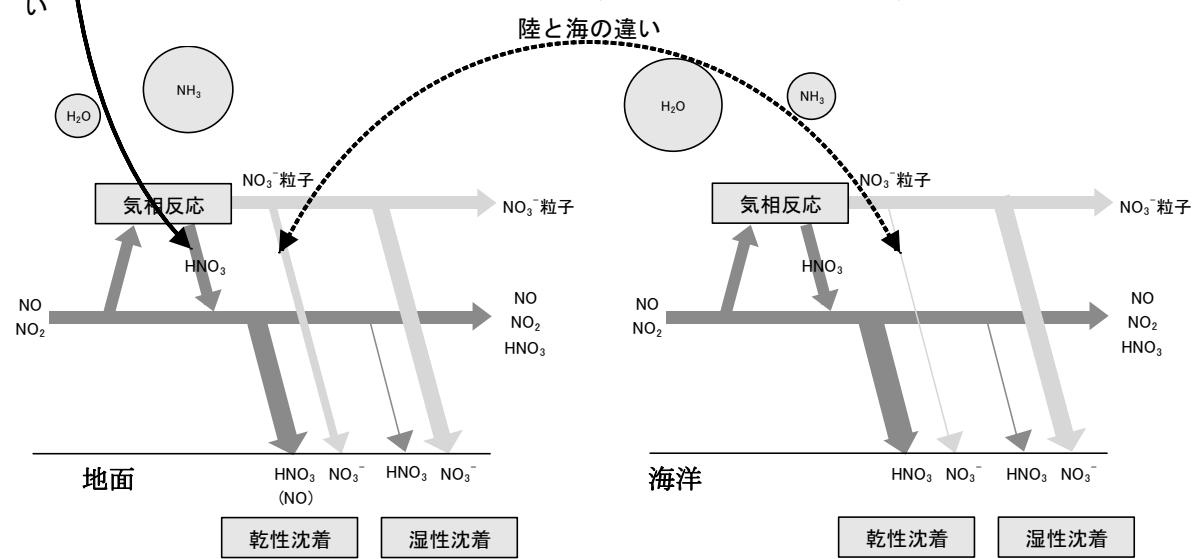


図 5-2 窒素酸化物の流れ(左：陸上部、右：海洋上)

→ ガス状物質の流れ
 → 粒子状物質の流れ

注) 上の2図は、本編 図 3-6 に示したPMとガス状物質の流れのうち、気相反応から沈着過程での陸上部と海洋上との相違を強調したもの。

6. 今後の検討課題

本調査では既存の拡散モデルを用いて外洋上において船舶から排出される粒子状物質についてその影響を検討し、一次粒子より広範囲への影響が考えられる二次粒子でも航路帯から離れた地域への影響はバックグラウンド濃度に対して無視できるほど十分に小さいとの結論を得た。しかし、調査の中で以下のような課題が残ると考えられた。

(1) 船舶排ガスの実状を踏まえた検討

本調査において一次粒子のシミュレーションに用いた粒径は、良質な燃料を使用していると想定し $0.3 \mu\text{m}$ と設定している。しかし実際に運航している船舶では、 380 cSt 程度の低質燃料が用いられており、実際にはこの粒径と異なる可能性がある。そのため、船舶からの一次粒子の粒径や排出量について、実際に運航している船舶での実状を踏まえて検討する必要がある。

(2) 近年の陸上排出量推移を踏まえた検討

本調査においては、陸上の人為起源の排出量は 2000 年をベースとして設定しているが、近年は、たとえば中国などでは SOx は減少傾向だが NOx は増加している可能性があるなど、排出量の変化が大きいと考えられるため、近年の排出量の推移を踏まえた検討を行う必要がある。

(3) 一次粒子の詳細な 3 次元モデルによる検討

一次粒子の影響をプルームモデルにより検討したが、長距離の評価に用いるには限界がある。そのため、簡易的に 3 次元モデルによる試算を行ったが、さらに湿性沈着等の詳細な過程を含んだ詳細な 3 次元モデルを用いた検討を行う必要がある。

(参考資料)CMAQ の計算結果の検証事例

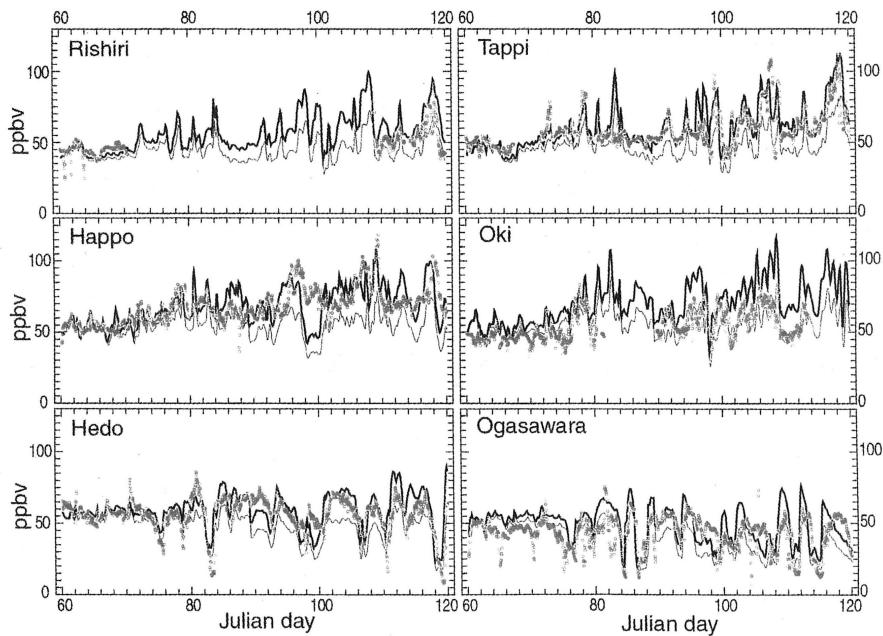


Fig. 7 Comparison of observed and model simulated surface O_3 concentration. Red symbols are EANET observation, thick line is CMAQ O_3 corrected based on the O_3 observation at Happo site, and thin line is the CMAQ O_3 based on the default BCON setting.

出典) 鵜野伊津志、大原利眞、管田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫 : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションの構築、大気環境学会誌、40(4)、148～164、(2005)。

図 O_3 の観測値と計算結果の比較

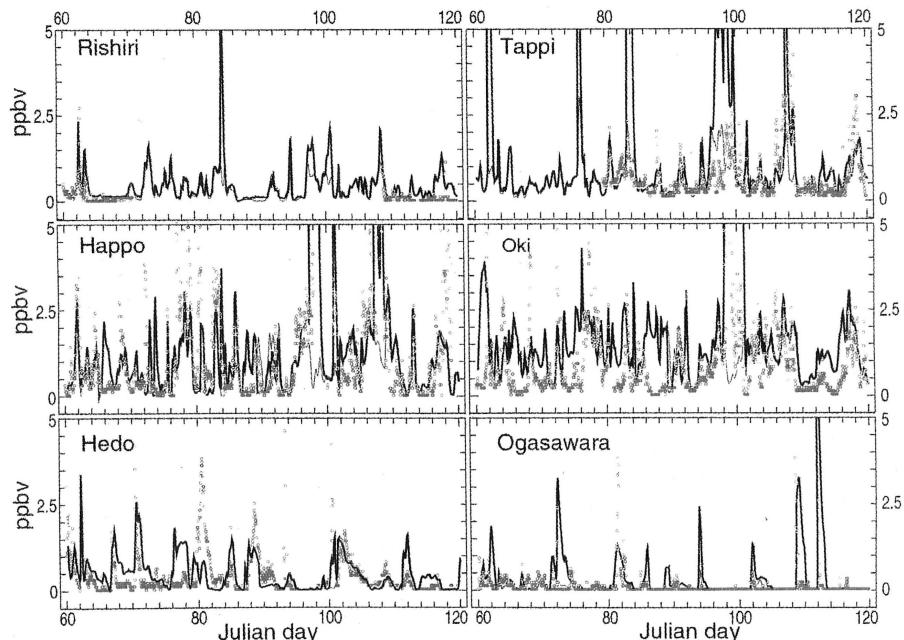


Fig. 8 Comparison of observed and model simulated surface SO_2 concentration. Red symbols are EANET observation, thick line is CMAQ SO_2 including the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama, and thin line is the CMAQ SO_2 without the effect of Mt. Miyakejima-Oyama.

出典) 鵜野伊津志、大原利眞、管田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫 : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションの構築、大気環境学会誌、40(4)、148～164、(2005)。

図 SO_2 の観測値と計算結果の比較

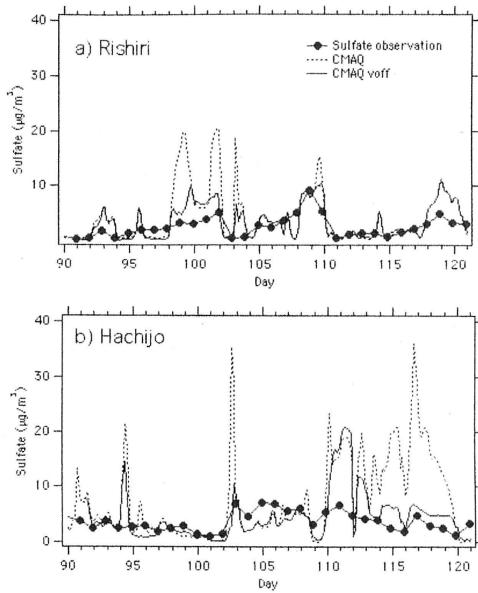


Fig. 10 Comparison of observed and model simulated surface SO_4 concentration (VMAP) for (a) Rishiri island and (b) Hachijo island. Thick dashed line is CMAQ SO_4 including the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama, and straight line is the CMAQ SO_4 without the effect of eruption of Mt. Miyakejima-Oyama.

出典) 鵜野伊津志、大原利眞、管田誠治、黒川純一、古橋規尊、山地一代、谷本直隆、弓本桂也、植松光夫 : RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションの構築、大気環境学会誌、40(4)、148~164、(2005).

図 SO_4^{2-} の観測値と計算結果の比較

資料編III 港湾域におけるPMの調査解析結果

目 次

T1. 調査目的.....	1
T2. 調査内容.....	1
3. 大気環境調査.....	1
3.1 調査方法.....	1
(1) 調査期間.....	1
(2) 調査地点.....	2
(3) PMの採取方法.....	4
(4) 成分分析項目.....	5
3.2 調査結果.....	7
(1) 大気環境調査期間中の気象および大気質濃度の状況.....	7
(2) 成分分析試料の選定.....	14
(3) 成分分析結果.....	17
(4) イオンバランスの検討.....	23
3.3 発生源別寄与の考察.....	26
(1) 船舶の寄与について.....	26
(2) 自動車排気の寄与について.....	29
(3) その他主要排出源のPM寄与.....	29
4. 船舶排気PM調査.....	31
4.1 調査方法.....	31
(1) 調査時期.....	31
(2) PMの採取方法.....	31
(3) 分析項目.....	31
4.2 調査結果.....	32
5. 各種発生源からの寄与割合の検討.....	33
5.1 発生源別成分組成の検討.....	33
(1) 本調査における発生源別成分組成のクラスター分析.....	34
(2) 既存調査事例による発生源別成分組成のクラスター分析.....	35
(3) 石炭火力発電所の排出PM成分組成の検討.....	39
5.2 CMB解析.....	41
(1) 基本式.....	41
(2) CMB解析の方法.....	41
(3) 大気環境濃度測定値の誤差.....	42
(4) 解析に用いる成分項目.....	44
(5) 石油系燃焼ボイラと船舶の寄与算定について.....	46
(6) 推計結果.....	48
5.3 環境省調査結果との比較.....	51

5.4 石炭燃焼を考慮したCMB解析	51
6. 今後の検討課題	54
(1) 横浜港周辺における夏季のPM再調査	54
(2) 船舶起源のPM成分組成の調査の継続	54
(3) 既存資料の収集	54
(4) 二次粒子についての検討	54

1. 調査目的

近年港湾に面した地域では船舶起源の PM の寄与率が相対的に増加していることが懸念されている。このため、本調査研究では、船舶起源の PM の環境影響について、横浜港において PM を採取・分析し、一次粒子と二次粒子の粒度分布等を明らかにしてその由来について検討することを目的とした。

2. 調査内容

本調査では船舶からの PM の影響が懸念される横浜港周辺において夏季に PM を採取し、成分分析などからその一次粒子および二次粒子の組成割合と粒度分布を実測した。また、船舶から排出される PM を採取し、船舶起源 PM の成分組成を明らかにした。さらに、これらの調査結果に基づき、横浜港周辺で採取された大気環境 PM の由来について推計を試みた。

3. 大気環境調査

3.1 調査方法

(1) 調査期間

調査時期は、以下のとおりである。

- ・大気環境調査：平成 18 年 7 月 30 日(日)～8 月 6 日(日)

	採取期間
1 日目	7/30(日)16 時頃～7/31(月)16 時頃
2 日目	7/31(月)16 時頃～8/1(火)16 時頃
3 日目	8/1(火)16 時頃～8/2(水)16 時頃
4 日目	8/2(水)16 時頃～8/3(木)16 時頃
5 日目	8/3(木)16 時頃～8/4(金)16 時頃
6 日目	8/4(金)16 時頃～8/5(土)16 時頃
7 日目	8/5(土)16 時頃～8/6(日)16 時頃

(2) 調査地点

大気環境調査の調査地点としては、船舶から排出されるPMによる影響が比較的大きいと考えられる場所で、我が国の代表的な港湾である横浜港周辺を選定した。具体的な調査地点は「大黒海づり公園」および「中区加曾台」の2地点を選定した。調査地点の位置を図3.1-1、調査地点の概要を表3.1-1に示す。

このうち、大黒海づり公園は、周辺に大黒ふ頭、本牧ふ頭等の大型船が利用する岸壁があり、前面海域は主要航路として多数の船舶が航行している。また、横浜港では夏季に南～南西の風が卓越し、本牧ふ頭および前面航路からのPMの影響を受け易い場所と考えられる。

中区加曾台は、横浜港磯子地区の北側に位置し、横浜港磯子地区との間には首都高速湾岸線が東西に通っている。このため、南寄りの風の場合、横浜港を利用する船舶と首都高速湾岸線の自動車の両者からPMの影響を受けていると考えられる。また、この場所は横浜港磯子地区の西側にある磯子総合庁舎とともに、平成16年度大気汚染常時監視測定結果(「日本の大気汚染状況」(2006年、環境省水・大気環境局編)において、SPMが環境基準(短期的評価)を超えていた局であるが、このときは南寄りの風が観測された際に高濃度が連続して観測されている。

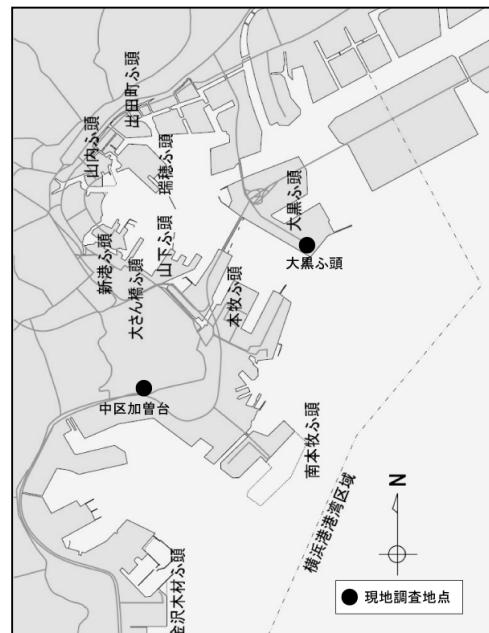


図3.1-1 調査地点の位置(概要)

表3.1-1 調査地点の概要

調査地点	住 所	管理者
大黒海づり公園	鶴見区大黒ふ頭20番地先	横浜港ターミナル運営協会
中区加曾台	中区根岸加曾台1-1	横浜市環境創造局

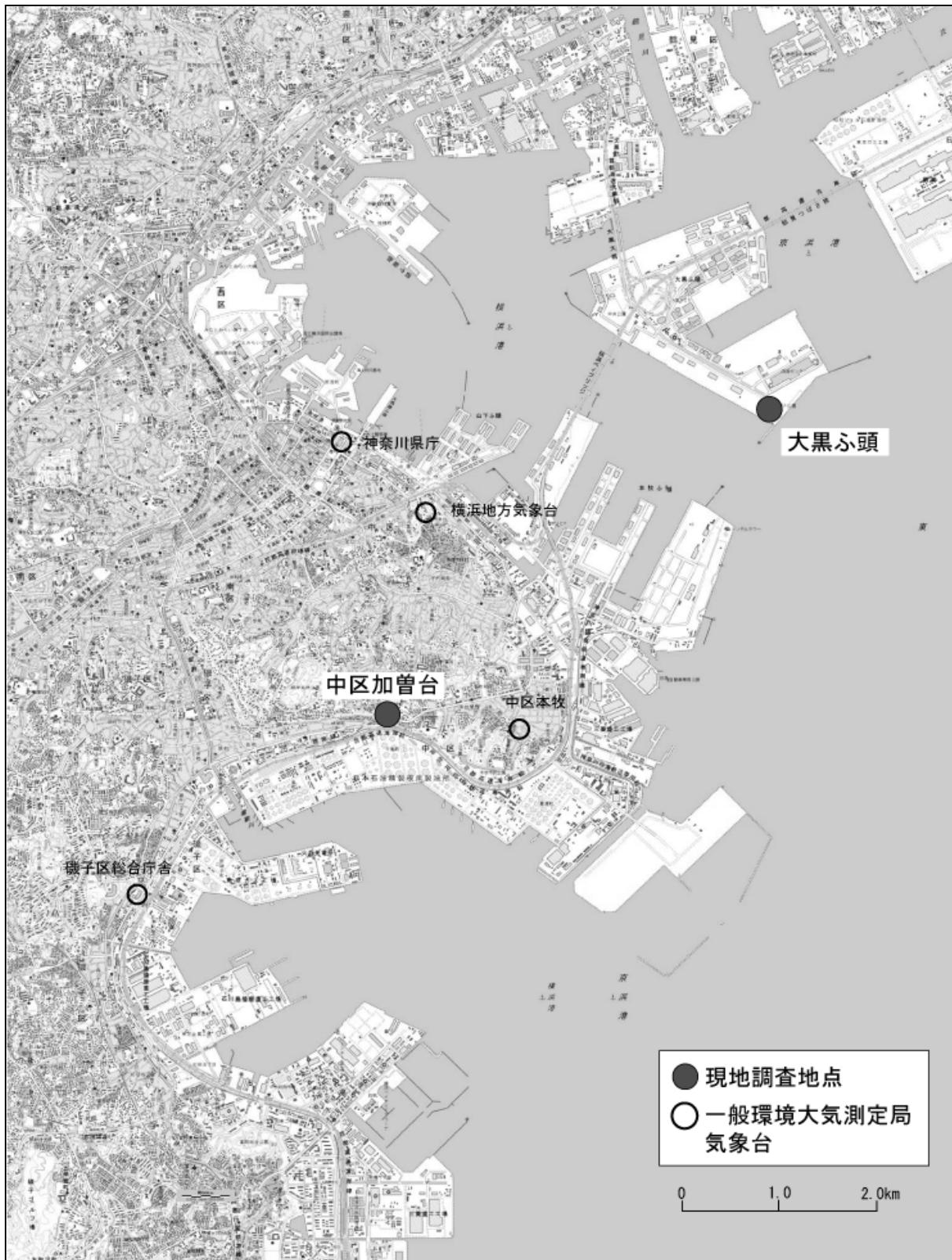


図 3.1-1(2) 調査地点および周辺の既存大気測定局などの位置

(3) PM の採取方法

大気中の PM は、専用のエアサンプラーを用いてフィルター(ろ紙)上に捕集する方法により行った。

【PM2.5、SPM】

PM2.5 および SPM サンプラーを用いて、大気環境中の PM2.5 および SPM を採取し、質量濃度および成分別濃度を測定した。サンプリング期間は連続 7 日間とし、24 時間ごとにフィルター交換を行った。

【PM2.5 の採取方法】

PM の採取は、専用のサンプラーを用いて、フィルター上に捕集することにより行った。捕集条件は以下のとおりである。採取前後のフィルターの重さの増加分から、PM の採取量を求め、質量濃度(大気 1 m³当たりの PM の重さ)に換算した。

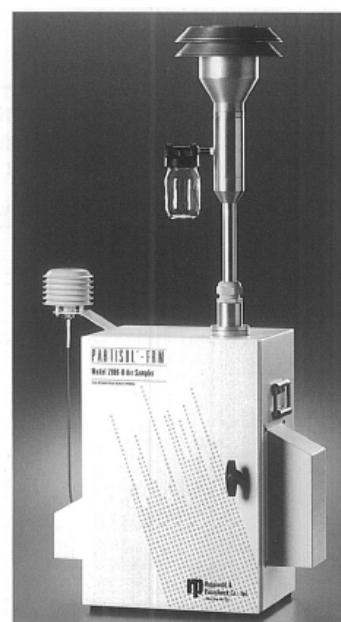
吸引流量：約 1 m³/時間

吸引時間：約 24 時間

吸引量：約 24 m³/日

【PM2.5 サンプラー】

米国連邦規格(Federal Reference Method)に準拠したサンプラー(FRM-2000)を用いた。本サンプラーは、「大気中微小粒子状物質(PM2.5)質量濃度測定方法暫定マニュアル」(2000 年 9 月、環境庁大気保全局企画課)を満足する仕様となっている。



PM サンプラーの概観

【粒径別 PM】

ローポリウムエアサンプラー(アンダーセンタイプ)を現地に設置し、PM(11 μm 以下)を 3 分級(~2.1 μm、2.1~7.0 μm、7.0~11 μm)に区分して採取した。サンプリング期間は連続 7 日間とし、24 時間ごとにフィルター交換を行った。

サンプリングに使用した機器等を表 3.1-2 に示す。

フィルターについては、分析項目に対応して石英フィルターとテフロンフィルターの 2 種類を用いた。

表 3.1-2 サンプリングに使用する機器、分析項目

使用機器	仕様	分析項目	フィルター
PM-2.5 サンプラー	型式：FRM-2000 吸引流量：16.7 L/min フィルター径：47 ϕ mm カット特性：2.5 μm (50 %カット)	質量濃度 炭素成分 イオン成分 金属類	石英 テフロン
SPM サンプラー	型式：ローポリウムボンブ LV40B、 多段型分粒装置 C-30 吸引流量：30 L/min フィルター径：55 ϕ mm カット特性：10.0 μm (100 %カット)		
ローポリウム エアサンプラー (アンダーセンタイプ)	吸引流量：28.3 L/min 電源：AC100 V 粒径分類：8 段階	質量濃度	石英

(4) 成分分析項目

PM を捕集したフィルターは、重量を測定した後に成分分析に用いた。分析項目は、船舶、自動車、海塩など様々な発生源から排出される PM の成分のうち特徴的と考えられるものを主として選定した。大気中 PM2.5 および SPM 試料の分析項目は次のとおりである。

- ・質量濃度
- ・炭素成分：EC(Elemental Carbon;元素状炭素)、OC(Organic Carbon;有機炭素)
- ・無機成分：イオン SO_4^{2-} (硫酸イオン)、 NO_3^- (硝酸イオン)、 Cl^- (塩素イオン)、 Na^+ (ナトリウムイオン)、 Ca^{2+} (カルシウムイオン)、 K^+ (カリウムイオン)、 NH_4^+ (アンモニウムイオン)
- 金属類 Na (ナトリウム)、 Al (アルミニウム)、 K (カリウム)、 Ca (カルシウム)、 V (バナジウム)、 Mn (マンガン)、 Fe (鉄)、 Zn (亜鉛)、 Se (セレン)、 Ni (ニッケル)、 As (ヒ素)、 W (タングステン)

試料の検体数および各分析項目に対応した分析方法は、表 3.1-3に示すとおりである。

なお、後述するように、大気中 PM 試料の成分分析については、周辺の SPM などの大気汚染物質濃度測定結果、風向等を踏まえ、船舶起源の PM の寄与が大きいと推定される日の 2 試料を選定した。

表 3.1-3(1) 大気中 PM 試料の検体数

器材区分	フィルター	粒径区分	サンプリング期間・頻度	試料数	分析項目別 検体数			
					質量濃度	炭素成分	イオン成分	金属類
①	石英	~2.1 μm	連続 24 時間 × 7 日間 × 2 地点	14	14	—	—	—
	石英	2.1~7.0 μm	〃	14	14	—	—	—
	石英	7.0~11 μm	〃	14	14	—	—	—
②	石英	PM2.5	〃	14	14	4	4	—
③	石英	SPM	〃	14	14	4	4	—
④	テフロン	PM2.5	〃	14	14	—	—	4
⑤	テフロン	SPM	〃	14	14	—	—	4
合 計				98	98	8	8	8

器材区分 : ①アンダーセン(石英)、②PM2.5 計(石英)、③SPM 計(石英)、④PM2.5 計(テフロン)、⑤SPM 計(テフロン)

表 3.1-3 (2) 試料の分析項目および分析方法(PM2.5 およびSPM)

区分	試 料	分析方法	濃度の算出
粉じん量の質量	PM2.5 テフロン 47 φ 14 検体 石英 47 φ 14 検体	秤量法	ろ紙の秤量値を積算流量で除して質量濃度を算出
	SPM テフロン 55 φ 14 検体 石英 55 φ 14 検体		
炭素成分の質量 OC、EC、TC	PM2.5 石英 47 φ より 8mm 径抜き 4 検体 打抜ちは 1 検体あたり 1 枚	熱分離光学補正法	分析値を積算流量で除して算出
	SPM 石英 55 φ より 8mm 径抜き 4 検体 打抜ちは 1 検体あたり 1 枚		
イオン成分の質量 SO ₄ ²⁻ 、NO ₃ ⁻ 、Cl ⁻ 、NH ₄ ⁺ 、Na ⁺ 、Ca ²⁺ 、K ⁺	PM2.5 石英 47 φ を 1/2 に分離して試料とした。 4 検体	イオンクロマトグラフ法	分析値を積算流量で除して算出
	SPM 石英 55 φ を 1/2 に分離して試料とした。 4 検体		
金属成分の質量 Na、Al、K、Ca、V、Mn、Fe、Zn、Se、Ni、As、W	PM2.5 テフロン 47 φ 4 検体	ICP-MS 法	分析値を積算流量で除して算出
	SPM テフロン 55 φ 4 検体		

- 注) 1. 粉じん量の質量は、テフロンフィルターでの測定結果を採用した。
 2. 炭素成分およびイオン成分の濃度は、石英フィルターとテフロンフィルターの粉じん量の質量比を用いて、テフロンフィルター当たりの濃度に換算した。

3.2 調査結果

(1) 大気環境調査期間中の気象および大気質濃度の状況

横浜地方気象台および大気汚染常時監視測定局の測定データ(速報値)により、調査時の気象状況および大気質の状況として、次の項目を把握した。

気象：

- ①対象局：横浜地方気象台、磯子区総合庁舎、金沢区長浜（各局の位置は図 3.1-1(2)参照）
- ②項目：天候、風向・風速・気温・湿度、降水量

大気質：

- ①対象局：磯子総合庁舎、中区本牧、中区加曾台、神奈川県庁（各局の位置は図 3.1-1(2)参照）
- ②SPM、SO₂、NOx、光化学オキシダント(Ox)、非メタン炭化水素(NMHC)

表 3.2-1 本業務で整理した周辺常監局の測定項目

測定期間 測定局名	項目 二酸化 硫黄	一酸化 窒素	二酸化 窒素	窒素 酸化物	光化学 オキシ ダント	非メタ ン炭化 水素	浮遊 粒子状 物質	風速	風向	温度	湿度
磯子区総合庁舎	●	●	●	●	●		●	●	●		
中区本牧	●	●	●	●	●	●	●	●	●		
中区加曾台	●	●	●	●			●	●	●		
神奈川県庁	●	●	●	●	●	●	●	●	●		
金沢区長浜	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●	●

なお、常監局における測定データは、環境省のホームページ「大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)(<http://w-soramame.nies.go.jp/>)」等により、速報値を収集し整理した。

(a) 横浜地方気象台の気象の概況

横浜地方気象台の観測結果によると、調査期間の前半は曇りの日が多く、後半は雲がほとんどない晴れの日が続き、調査期間を通じて降水はなかった。1～3日目の平均気温は23℃程度、4～7日目の平均気温は26～28℃で、期間中の相対湿度は日平均湿度が67～73%、日最高湿度が76～89%であった。

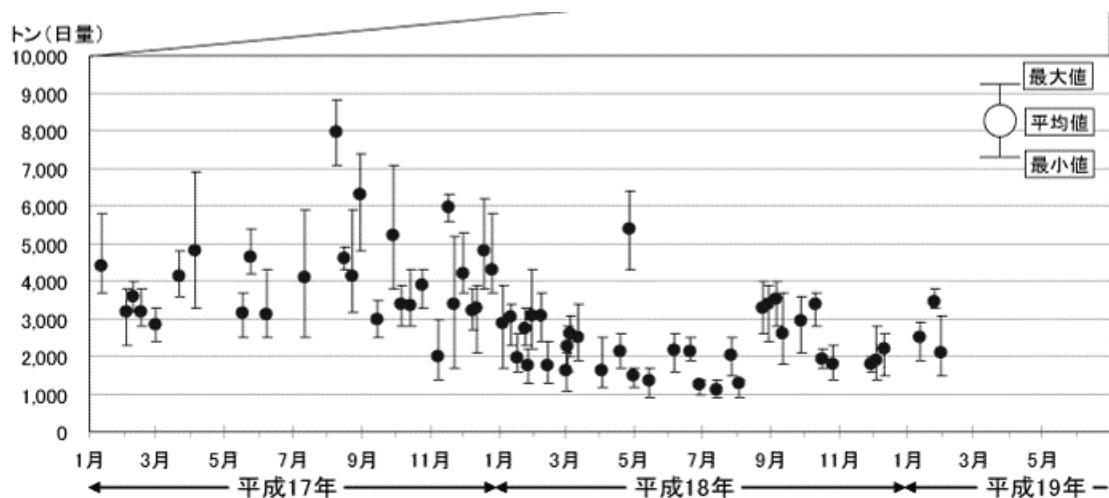
調査期間の風向をみると、1～2日目は東風や北風が卓越していたが、3日目以降は南風が卓越しており、3日目以降は船舶からの寄与が比較的大きくなりやすい期間であったと考えられる。

なお、広域的にPM濃度に寄与しているものとして、三宅島の噴火によるSO₂の排出が考えられる。気象庁が発表している「三宅島 火山ガス（二酸化硫黄）放出量」によると、図3-2に示すように、本調査期間の平成18年7月末から8月初めにかけては、二酸化硫黄放出量が少なめで、1,000～2,000トン/日であった。後述する大気汚染常時監視局におけるSO₂濃度と併せて判断しても、調査期間中、三宅島の噴火による二酸化硫黄から生じる二次粒子の寄与は少なかったと判断した。

表 3.2-2 調査期間中の気象状況

調査日	期間	天気・雲量	気温	相対湿度	風の状況
1日目	7/30 16時 ～7/31 16時	曇り・90%	平均 23.4 ℃ 最高 26.8 ℃ 最低 21.5 ℃	平均 67 % 最高 76 % 最低 57 %	昼間 東より 4 m/s 程度 夜間 北より 3 m/s 程度
2日目	7/31 16時 ～8/1 16時	曇り・90～100%	平均 22.5 ℃ 最高 25.6 ℃ 最低 20.4 ℃	平均 69 % 最高 76 % 最低 59 %	昼間 東より 3 m/s 程度 夜間 東より 2 m/s 程度
3日目	8/1 16時 ～8/2 16時	曇り・90～100%	平均 23.4 ℃ 最高 27.5 ℃ 最低 21.5 ℃	平均 73 % 最高 80 % 最低 60 %	昼間 南より 2 m/s 程度 夜間 南より 1 m/s 程度 他の期間と比べて弱風
4日目	8/2 16時 ～8/3 16時	前半(夕～明け方) 曇り・70～90% 後半(明け方～夕) 晴れ・10%	平均 25.5 ℃ 最高 31.3 ℃ 最低 22.5 ℃	平均 69 % 最高 82 % 最低 51 %	昼間 南より 3 m/s 程度 夜間 微風
5日目	8/3 16時 ～8/4 16時	晴れ・雲ほとんど無し	平均 26.8 ℃ 最高 32.6 ℃ 最低 23.0 ℃	平均 68 % 最高 82 % 最低 49 %	昼間 南より 4 m/s 程度 夜間 南より 2 m/s 程度
6日目	8/4 16時 ～8/5 16時	晴れ・雲ほとんど無し	平均 27.8 ℃ 最高 35.0 ℃ 最低 24.0 ℃	平均 68 % 最高 84 % 最低 39 %	昼間 南～東より 2 m/s 程度 夜間 南より 2 m/s 程度
7日目	8/5 16時 ～8/6 16時	晴れ・雲ほとんど無し	平均 27.8 ℃ 最高 32.9 ℃ 最低 23.6 ℃	平均 71 % 最高 89 % 最低 43 %	昼間 南より 4 m/s 程度 夜間 微風

注) 太枠内は成分分析を実施した日(3.2 (2) 参照)



出典) 気象庁ホームページ「三宅島 火山ガス（二酸化硫黄）放出量」
http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/320_Miyakejima/320_So2emission.htm

図 3-2 三宅島 火山ガス（二酸化硫黄）放出量

(b) 大気質濃度の状況

① PM2.5、SPM 濃度

現地調査によって得られたPM2.5濃度、SPM濃度の日変化を表 3.2-3および図 3.2-3に示す。

大黒海づり公園ではPM2.5の平均値は $34 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $18\sim52 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPMの平均値は $39 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $22\sim57 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、PM2.5/SPM比は76~94%（平均86%）であった。また、中区加曾台ではPM2.5の平均値は $32 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $15\sim47 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、SPMの平均値は $37 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、濃度範囲は $23\sim54 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であり、PM2.5/SPM比は65~94%（平均86%）であった。

調査期間中のPM濃度は3日目、6~7日目に高く、また、3日目、6~7日目は船舶寄与が大きいと予想される南風が卓越していたことから、本調査では日曜日を含む7日目を除外して、3日目と6日目を成分分析対象として調査を行った。

表 3.2-3 調査日別 PM2.5、SPM 濃度および構成比

時期	大黒海づり公園			中区加曾台		
	PM2.5 ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	SPM ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	PM2.5/SPM (%)	PM2.5 ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	SPM ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	PM2.5/SPM (%)
1 日目	18	22	81.8	15	23	65.2
2 日目	25	33	75.8	25	34	73.5
3 日目	39	45	86.7	38	43	88.4
4 日目	31	33	93.9	32	35	91.4
5 日目	28	36	77.8	30	32	93.8
6 日目	42	46	91.3	38	41	92.7
7 日目	52	57	91.2	47	54	87.0
平均値	34	39	86.4	32	37	85.9
最小値	18	22	75.8	15	23	65.2
最大値	52	57	93.9	47	54	93.8

注) テフロンフィルターによる分析値を示す。

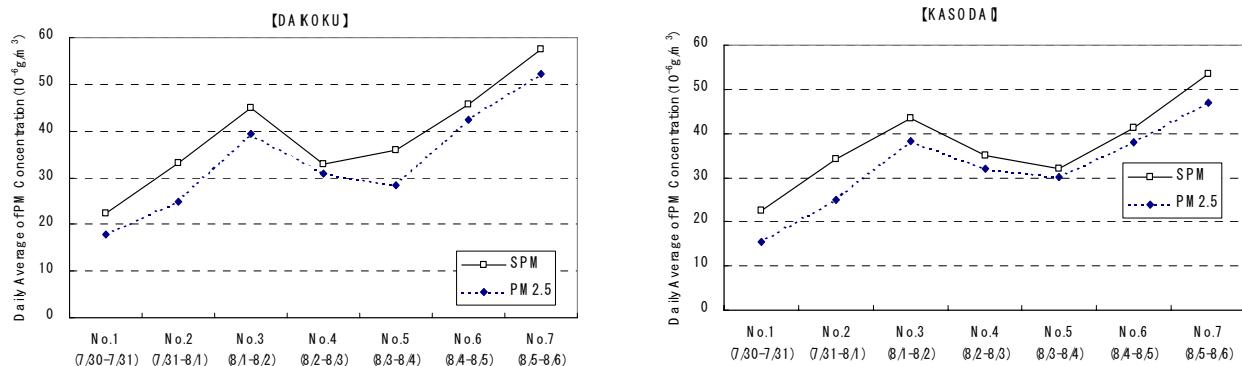


図 3.2-3 PM2.5、SPM 濃度の推移

② アンダーセンサンプラーによる粒径別濃度

アンダーセンサンプラーで採取した粒径別濃度および構成比を表 3.2-4および図 3.2-4に示す。

粒径別の構成比でみると、7日間の平均は、大黒海づり公園では、 $2.1\text{ }\mu\text{m}$ 未満が72%、 $2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$ が14%、 $7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$ が14%であり、中区加曾台では、 $2.1\text{ }\mu\text{m}$ 未満が79%、 $2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$ が12%、 $7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$ が9%であった。

粒径別濃度は、両地点とも $2.1\text{ }\mu\text{m}$ 未満の微小粒子が最も多く、また、中区加曾台は大黒海づり公園よりも、やや微小粒子の占める割合が多い傾向がみられた。特に、3日目については、粗大粒子の割合に地点間の違いが現れており、大黒海づり公園では粗大粒子が他の調査日よりも多かったにもかかわらず、中区加曾台では低濃度であった。

表 3.2-4 調査日別粒径別濃度および構成比

【大黒海づり公園】

調査日	全粒径	粒径別濃度($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)			粒径別構成比(%)		
		$\sim2.1\text{ }\mu\text{m}$	$2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$	$7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$	$\sim2.1\text{ }\mu\text{m}$	$2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$	$7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$
1日目	39.0	21.7	9.2	8.1	55.6	23.6	20.8
2日目	50.3	29.8	8.0	12.5	59.2	15.9	24.9
3日目	69.7	43.9	13.3	12.5	63.0	19.1	17.9
4日目	42.0	36.9	1.5	3.6	87.9	3.6	8.6
5日目	39.6	33.8	3.8	2.0	85.4	9.6	5.1
6日目	60.4	44.9	9.0	6.5	74.3	14.9	10.8
7日目	60.7	46.6	7.7	6.4	76.8	12.7	10.5
平均値	51.7	36.8	7.5	7.4	71.7	14.2	14.1
最小値	39.0	21.7	1.5	2.0	55.6	3.6	5.1
最大値	69.7	46.6	13.3	12.5	87.9	23.6	24.9

【中区加曾台】

調査日	全粒径	粒径別濃度($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)			粒径別構成比(%)		
		$\sim2.1\text{ }\mu\text{m}$	$2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$	$7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$	$\sim2.1\text{ }\mu\text{m}$	$2.1\sim7.0\text{ }\mu\text{m}$	$7.0\sim11\text{ }\mu\text{m}$
1日目	31.0	21.0	5.4	4.6	67.7	17.4	14.8
2日目	51.9	31.6	10.5	9.8	60.9	20.2	18.9
3日目	42.9	36.3	4.3	2.3	84.6	10.0	5.4
4日目	40.0	33.5	4.0	2.5	83.8	10.0	6.3
5日目	32.7	29.6	1.8	1.3	90.5	5.5	4.0
6日目	51.7	43.1	3.8	4.8	83.4	7.4	9.3
7日目	50.2	41.4	5.5	3.3	82.5	11.0	6.6
平均値	42.9	33.8	5.0	4.1	79.0	11.6	9.3
最小値	31.0	21.0	1.8	1.3	60.9	5.5	4.0
最大値	51.9	43.1	10.5	9.8	90.5	20.2	18.9

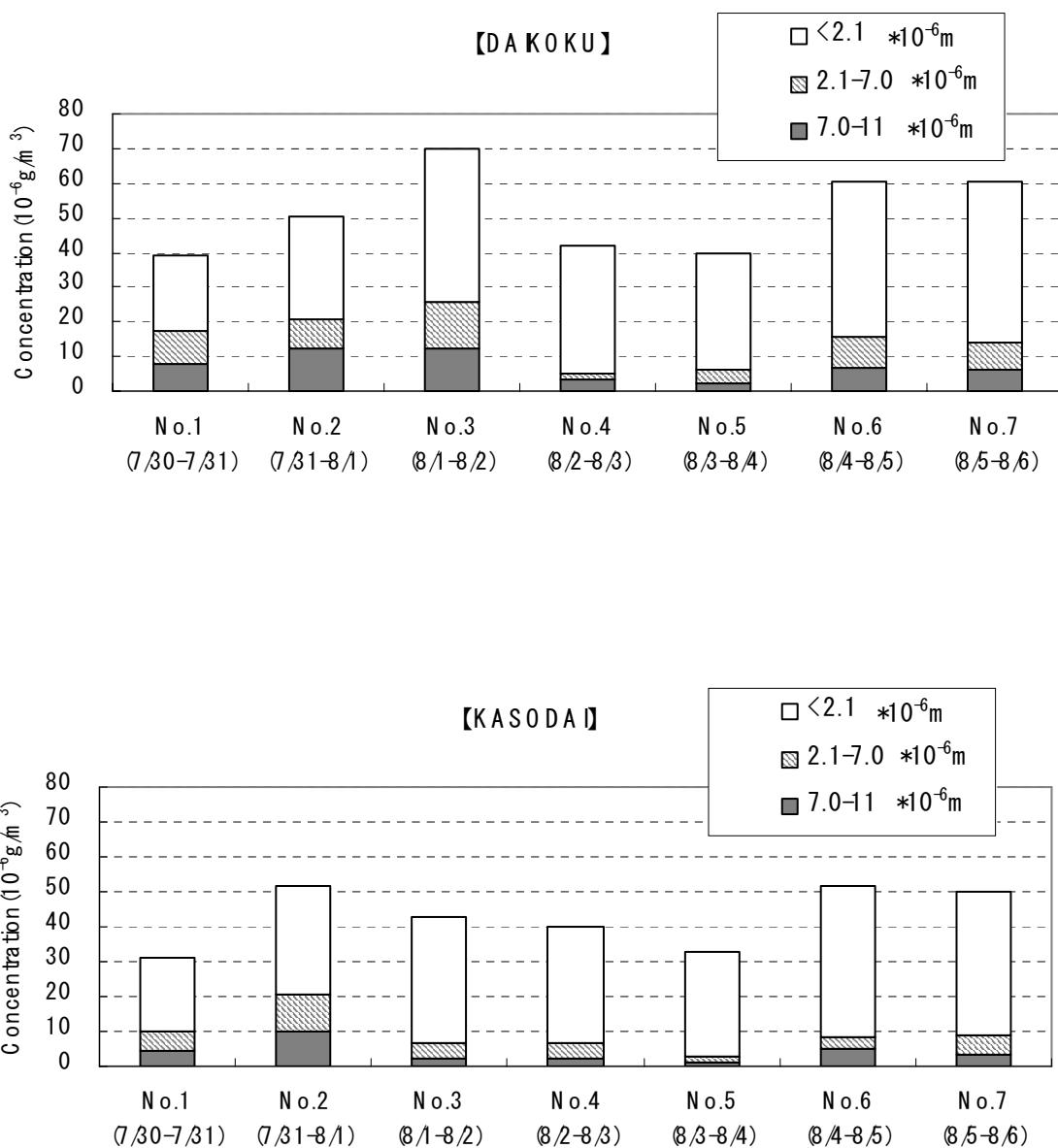


図 3.2-4 粒径別構成比の推移

③ 周辺の大気汚染常時監視測定局における大気質濃度

現地調査を実施した期間中の周辺の大気汚染常時監視測定局における測定結果を図 3.2-5 に示す。

SPM 濃度は現地調査結果とほぼ同様の変化傾向を示しており、3 日目、6 日目、7 日目に比較的濃度が高くなっていた。

SO_2 濃度は 5 日目が他期間に比べて若干濃度が高いが、ピーク値が 0.05 ppm程度で全般的に低い濃度で推移していた。また、 NO_x 濃度は調査日による違いが比較的小さかった。

O_3 濃度は 3 日目、4 日目、7 日目に比較的高く、SPM濃度と同様の傾向であった。

NMHC^{*1}濃度は、中区本牧、神奈川県庁、金沢区長浜で測定されているが、中区本牧では他の地点よりも濃度が高く推移しており、特に、6 日目、7 日目は平均で 0.6 ppmCを超えていた。NMHCは、塗装施設、石油精製、石油化学製品等の製造、貯蔵から排出され、根岸湾地区の化学プラント、石油化学施設等の影響が考えられる。

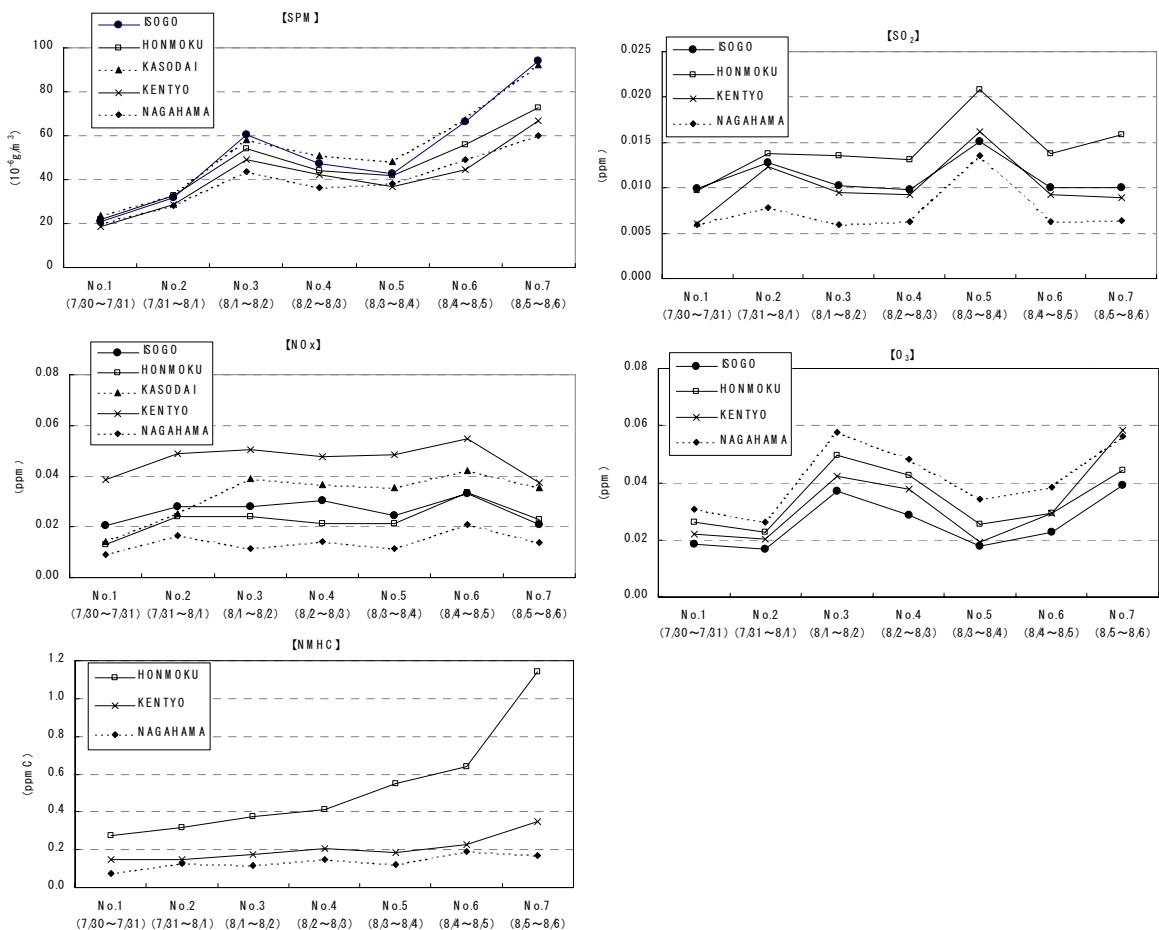


図 3.2-5 周辺の大気汚染常時監視測定局における測定結果

*1 NMHC(Non-Methane hydrocarbons : 非メタン炭化水素) : メタンを除くガス状の炭化水素類のことである。大気中で光化学反応することで、PM、光化学オキシダントの生成原因となる。

(2) 成分分析試料の選定

以上のような周辺の SPM などの大気汚染物質濃度測定結果、風向分布を踏まえて、成分分析を実施する大気中 PM 試料について 3 日目および 6 日目とした。

選定理由は以下のとおりである。

【3 日目】

- ・ SPM 濃度が比較的高濃度であった。
- ・ 調査前半の曇りの日の中で、船舶寄与が予想される南風が卓越していた唯一の日である。
- ・ 風の状況は、他の期間と比べて弱風であったが風向は 24 時間をとおして南よりの風が卓越しており、船舶寄与の可能性が高かった。

【6 日目】

- ・ 6~7 日目は、調査期間中最も SPM 濃度が高かった。
- ・ 風の状況は 6 日目、7 日目ともに船舶寄与が予想される南風が卓越していたが、7 日目は日曜日を含んでいるため、金曜日から土曜日にかけて実施した 6 日目を選定した。

(a) 試料選定日の風向風速

横浜地方気象台、および中区加曾台の常監局(中区加曾台)の観測値から大気環境PM調査時の風向風速を見ると以下のとおりであった(図 3.2-6、図 3.2-7参照)。

【3 日目】 気象台と中区加曾台の平均風速はそれぞれ 2.0 m/s、1.7 m/s であり、どちらも弱い風であった。風向は、気象台では風向の範囲が ESE~SSE、SW~WSW が多く、中区加曾台では SSE~SW が多かった。

【6 日目】 気象台と中区加曾台の平均風速はそれぞれ 2.8 m/s、2.6 m/s であり、3 日目と比較すると風速は強かった。風向については、気象台は SSW~SW、中区加曾台は SSW が卓越していた。

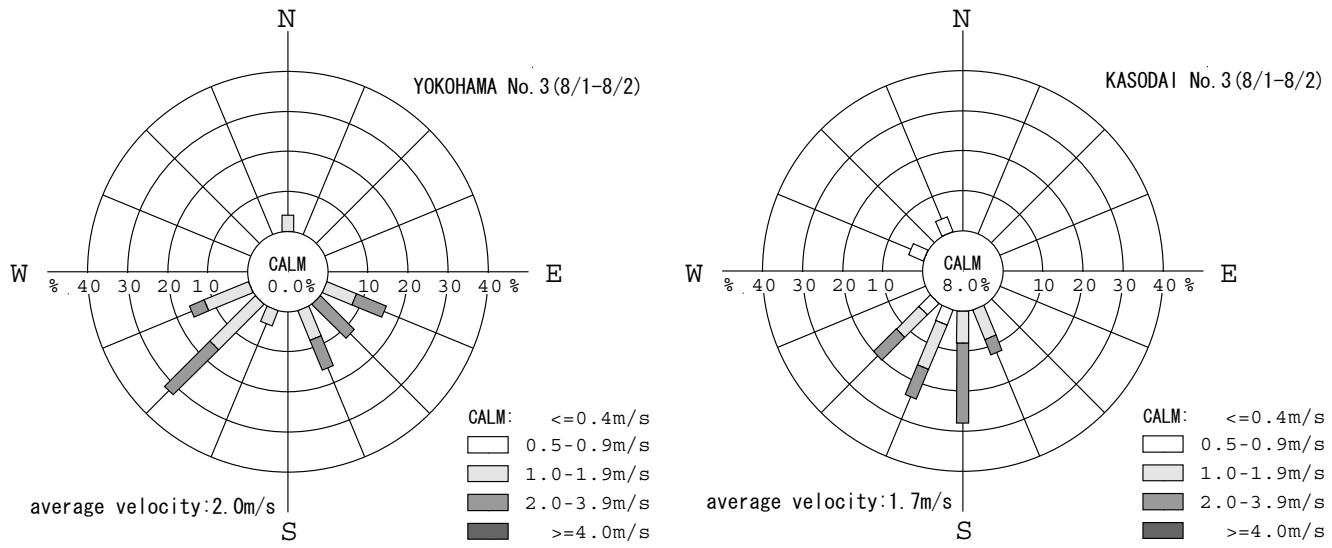


図 3.2-6 3 日目の風向別風速階級別出現頻度

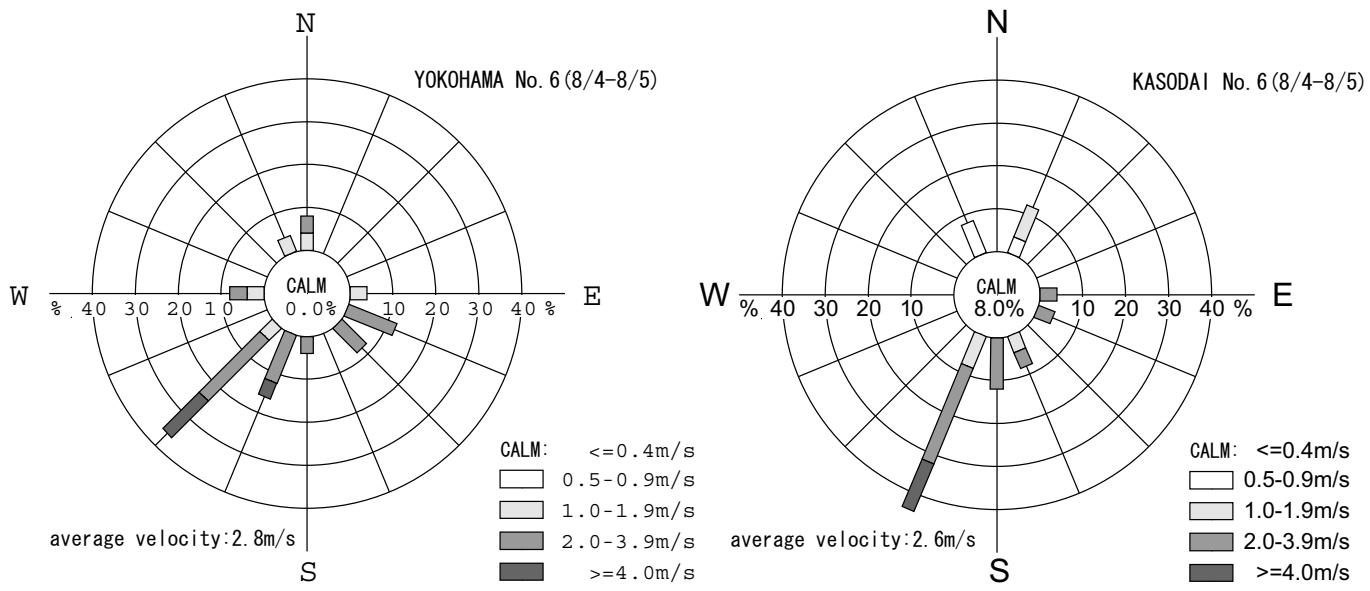


図 3.2-7 6 日目の風向別風速階級別出現頻度

(b) 試料選定日の気温湿度

横浜地方気象台で観測された3日目と6日目の気温と湿度の状況は図3.2-8および図3.2-9に示すとおりであった。

【3日目】 気温は比較的低く、平均23.4°C、最高27.5°C、最低21.5°Cであった。夜間は相対湿度が80%弱を推移し、昼間は相対湿度があまり下がらず60%程度であった。

【6日目】 気温は非常に高く、平均27.8°C、最高35.0°C、最低24.0°Cであった。夜間は相対湿度が80%前後を推移し、昼間は相対湿度が39%まで下がった。

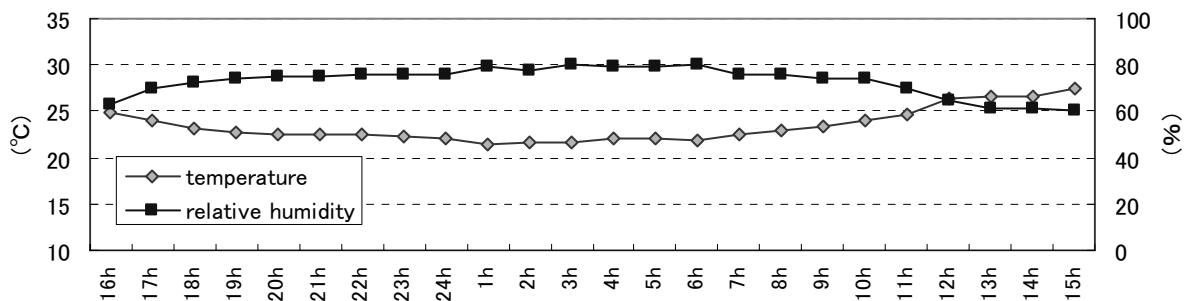


図3.2-8 3日目の時刻別気温・相対湿度(横浜地方気象台)

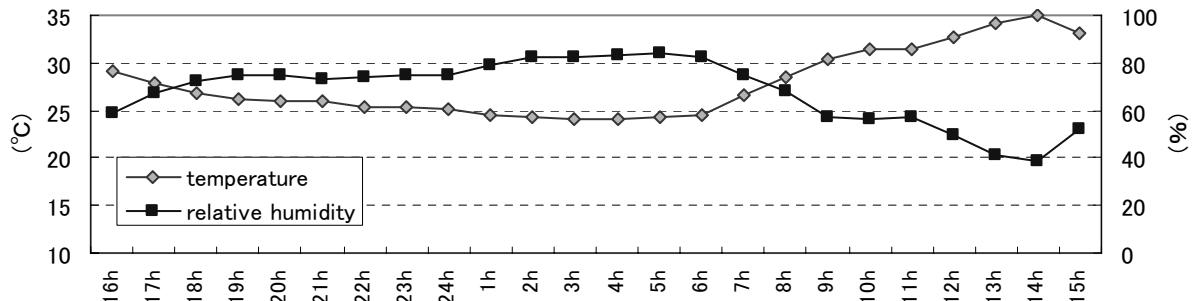


図3.2-9 6日目の時刻別気温・相対湿度(横浜地方気象台)

(3) 成分分析結果

大気環境中PM2.5およびSPMの成分分析結果は、表 3.2-5、図 3.2-10に示すとおりである。

環境省が関東地域3地点で実施した調査結果（「平成15年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」（2004年3月、(財)日本気象協会）との比較を図 3.2-11、図 3.2-12に示す。

PM2.5に占める主な成分割合は、炭素成分が20%前後、硫酸イオンが30%前後、アンモニウムイオンが12~13%であった。SPMに占める主な成分割合は、炭素成分が20%前後、硫酸イオンが24~27%、アンモニウムイオンが10%前後であった。なお、質量濃度から分析対象成分の濃度を差し引いたその他不明分の割合が高く、PM2.5で29~35%、SPMで35~39%であった。調査場所や調査時期の違いから環境省の調査結果を本調査結果と単純に比較することはできないが、本調査では、その他不明分の割合が高くなっている。一方、成分を比較すると、本調査では、環境省調査結果に比べて硫酸イオンがかなり多い。このことから、フィルターに捕集された硫酸イオンが高湿度によって潮解^{*2}し、水分を吸収したことが不明分を増加させた一因と考えられる。潮解現象については、高湿度となる夏季の調査では避けられない現象であるが、分析過程で湿度を十分低く抑えて水分の除去を行った後に秤量を行うなど、試料の管理については今後細心の注意を払う必要がある。

表 3.2-5(1) 大気環境中 PM2.5 の成分分析結果

($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

分析項目		大黒海づり公園		中区加曾台	
		3日目	6日目	3日目	6日目
質量濃度		39.3	42.4	38.3	37.9
炭素成分	有機炭素 OC	5.65	6.02	5.20	5.21
	元素状炭素 EC	2.18	3.07	2.92	2.94
	総炭素 TC	7.84	9.09	8.11	8.15
水溶性イオン成分	硫酸イオン SO_4^{2-}	12.9	12.2	12.1	11.2
	硝酸イオン NO_3^-	0.43	0.26	0.31	0.26
	塩素イオン Cl^-	<0.012	<0.011	<0.012	<0.010
	アンモニウムイオン NH_4^+	5.0	4.9	5.0	4.5
	ナトリウムイオン Na^+	0.18	0.16	0.22	<0.084
	カルシウムイオン Ca^{2+}	0.39	<0.34	0.57	0.45
	カリウムイオン K^+	<0.06	<0.06	<0.06	<0.05
金属類	ナトリウム Na	0.15	0.25	0.24	0.17
	アルミニウム Al	0.18	0.47	0.37	0.27
	カリウム K	0.09	0.15	0.15	0.15
	カルシウム Ca	0.19	0.70	0.57	0.27
	バナジウム V	0.021	0.049	0.014	0.029
	マンガン Mn	0.0063	0.0073	0.0099	0.0079
	鉄 Fe	0.11	0.090	0.14	0.13
	ニッケル Ni	0.0084	0.0163	0.0043	0.0105
	亜鉛 Zn	0.026	0.042	0.031	0.043
	ヒ素 As	0.00057	0.0012	0.00079	0.00101
	セレン Se	0.0017	0.0008	0.0017	0.0007
	タンクステン W	<0.00011	<0.00011	<0.00011	0.00038

注) 測定値が定量下限値未満の場合、<定量下限値とした。

表 3.2-5(2) 大気環境中SPMの成分分析結果

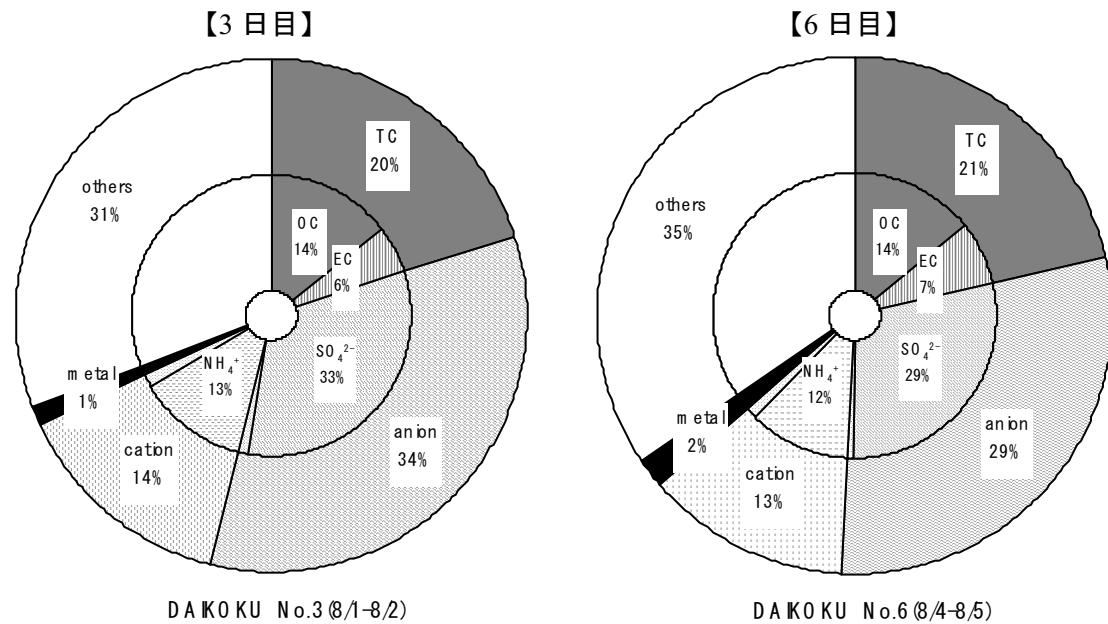
(μg/m³)

分析項目		大黒海づくり公園		中区加曾台	
		3日目	6日目	3日目	6日目
質量濃度		45.0	45.6	43.4	41.2
炭素成分	有機炭素 OC	5.91	6.73	5.32	5.96
	元素状炭素 EC	2.07	3.2	2.41	2.61
	総炭素 TC	7.99	9.93	7.72	8.58
水溶性イオン成分	硫酸イオン SO ₄ ²⁻	12.2	11.2	10.7	10.9
	硝酸イオン NO ₃ ⁻	1.60	1.61	1.68	0.81
	塩素イオン Cl ⁻	0.25	0.39	0.16	<0.01
	アンモニウムイオン NH ₄ ⁺	3.9	3.8	4.2	4.1
	ナトリウムイオン Na ⁺	1.23	1.33	0.84	0.62
	カルシウムイオン Ca ²⁺	0.52	0.64	0.38	0.45
	カリウムイオン K ⁺	<0.06	<0.06	<0.06	<0.05
金属類	ナトリウム Na	1.62	2.15	1.93	1.86
	アルミニウム Al	0.33	0.66	0.23	0.55
	カリウム K	0.16	0.11	0.16	0.12
	カルシウム Ca	0.53	0.89	0.35	1.00
	バナジウム V	0.025	0.029	0.011	0.019
	マンガン Mn	0.0126	0.0053	0.0135	0.0067
	鉄 Fe	0.35	0.10	0.40	0.17
	ニッケル Ni	0.0081	0.0279	0.0052	0.0123
	亜鉛 Zn	0.033	0.037	0.033	0.038
	ヒ素 As	0.00062	0.00066	0.00076	0.00069
	セレン Se	0.0020	0.0009	0.0016	0.0011
	タングステン W	0.00019	0.000098	0.00017	0.00036

注) 測定値が定量下限値未満の場合、<定量下限値とした。

*2 潮解(ちょうかい)：大気の湿度が高い時、大気中の水蒸気圧が粒子表面の飽和水蒸気圧より大きくなり、粒子が大気中の水(気体)をとりこむ現象のこと。

大黒海づり公園



中区加曾台

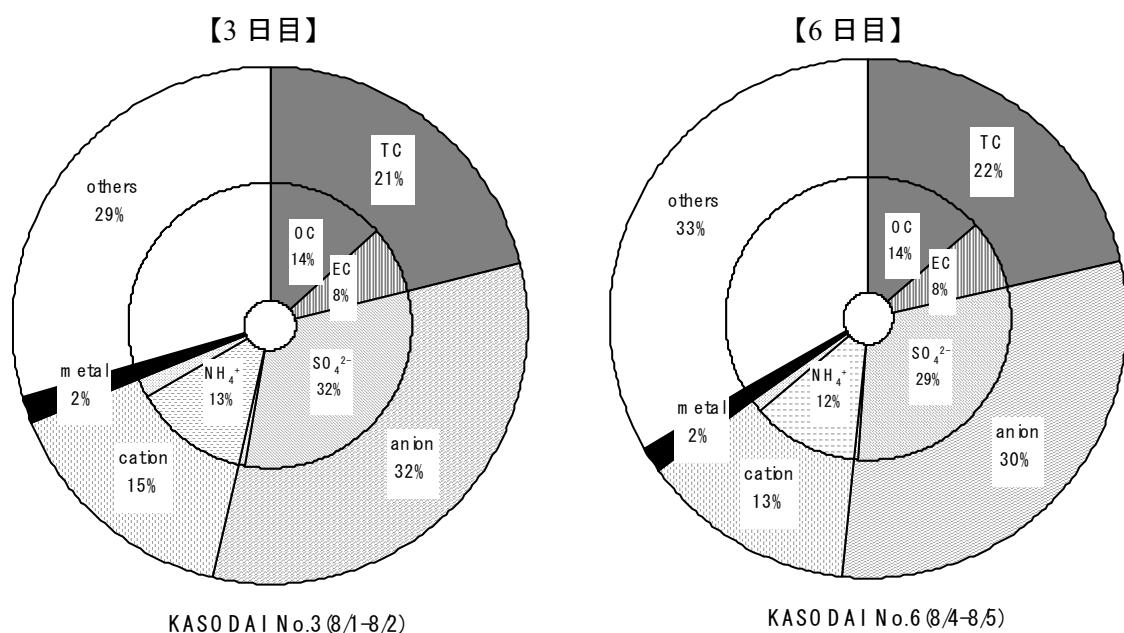
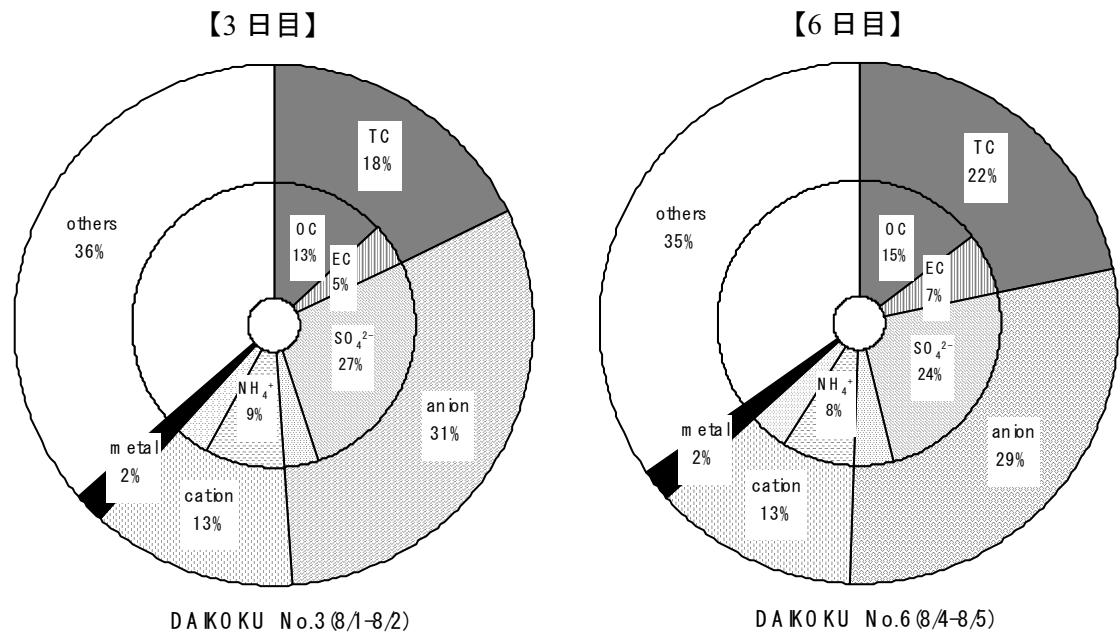


図 3.2-10(1) 主な成分構成比 (PM2.5)

大黒海づり公園



中区加曾台

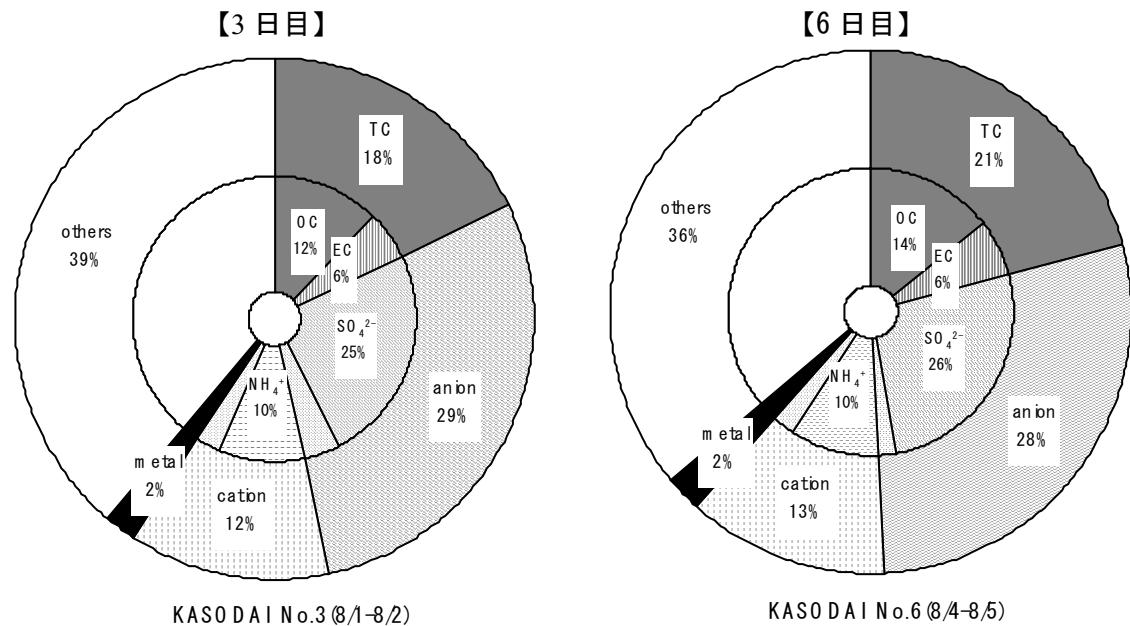
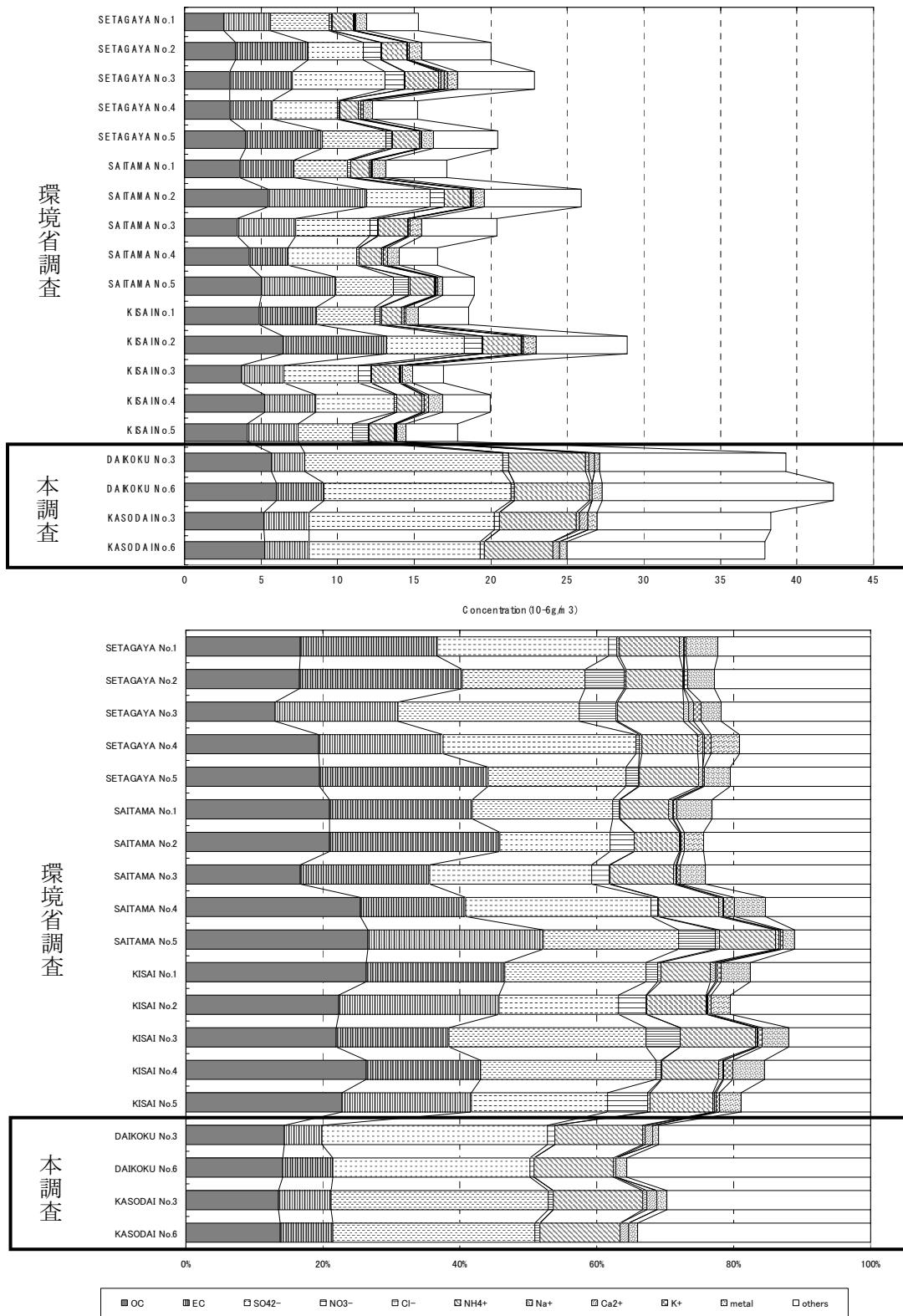


図 3.2-10(2) 主な成分構成比 (SPM)

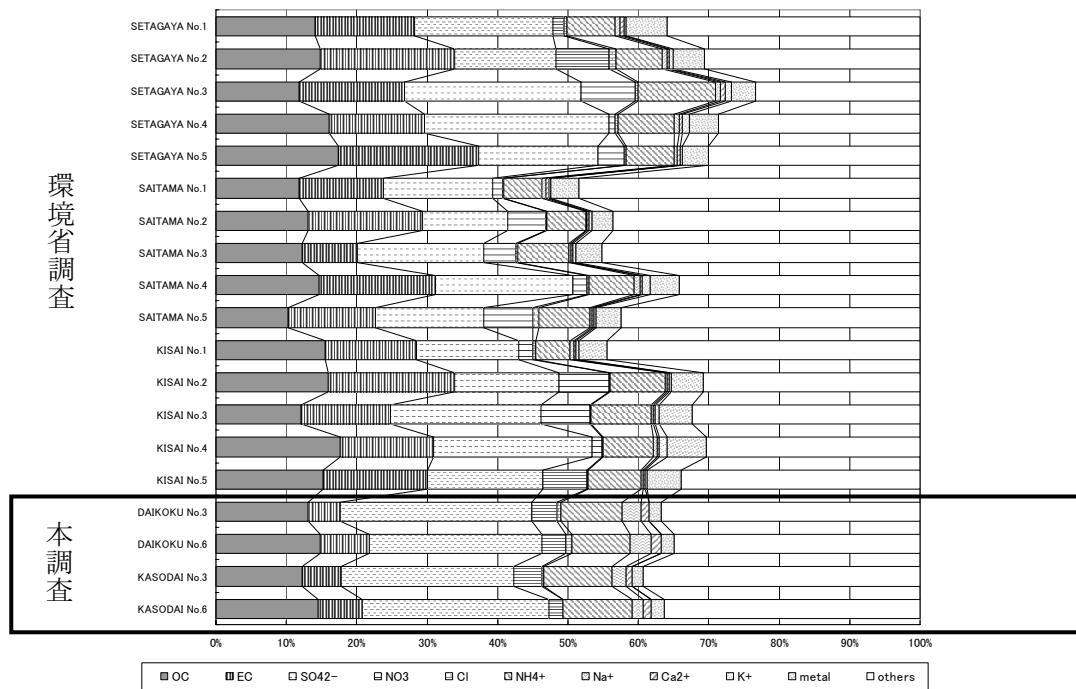
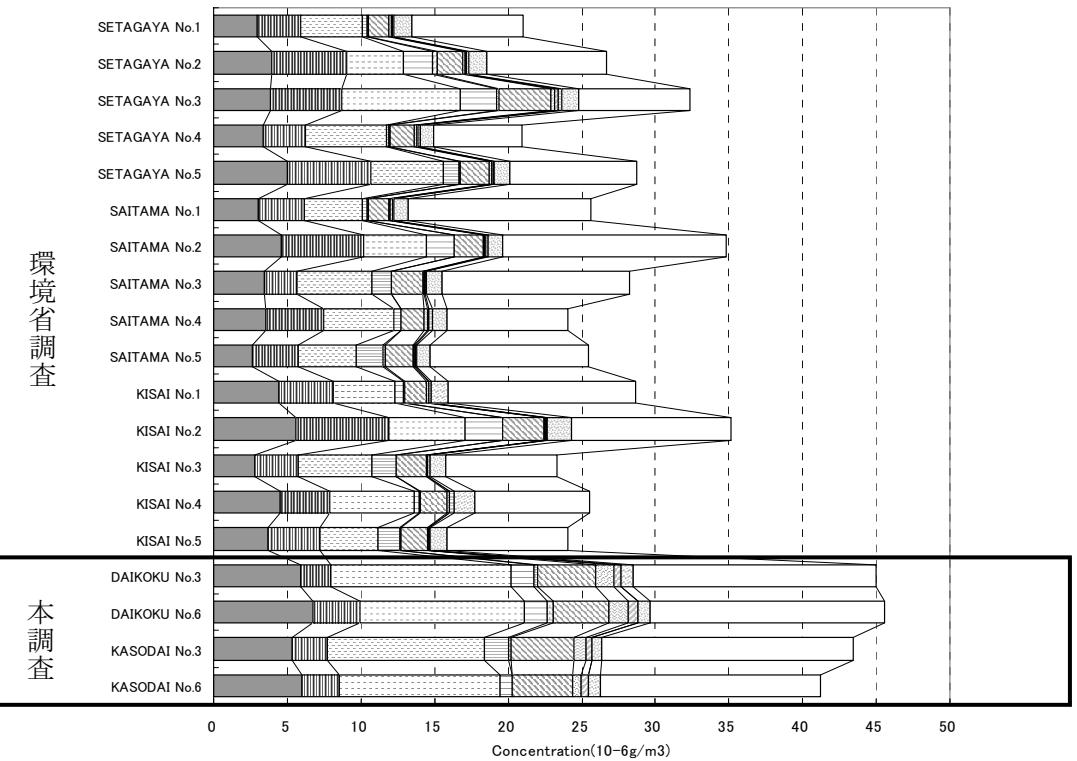


出典：「平成 15 年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004 年 3 月、(財)日本気象協会)

注：環境省調査の測定時期：平成 15 年 7 月 26 日～8 月 6 日のうちの、隔日 5 日間)

出典の環境省調査は、P.52 図 5.4-1、P.53 図 5.4-4 の環境省調査とは調査年度、調査地点、調査期間が異なる。

図 3.2-11 環境省調査と本調査の PM2.5 の成分分析結果比較(上図：成分濃度、下図：成分構成比)



出典：「平成 15 年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004 年 3 月、(財)日本気象協会)

注：環境省調査の測定時期：平成 15 年 7 月 26 日～8 月 6 日のうちの、隔日 5 日間)

出典の環境省調査は、P.52 図 5.4-1、P.53 図 5.4-4 の環境省調査とは調査年度、調査地点、調査期間が異なる。

図 3.2-12 環境省調査と本調査の SPM の成分分析結果比較(上図：成分濃度、下図：成分構成比)

(4) イオンバランスの検討

イオン成分の分析結果を用いて、イオンバランス^{*3}について検討を行った。

イオン成分の分析値をそのまま用いてイオンバランスをとると、全般的に陽イオン側に偏る傾向がみられた。イオン成分の中で主に海塩粒子が起源と考えられるNa⁺とCl⁻の比をみると、Cl⁻の割合がイオンバランス上Na⁺と釣り合う量よりも少なかった（表 3.2-6参照）。この原因としては、Cl⁻が夏季の高温によってサンプリングの過程でフィルターから揮散した可能性や、大気中での海塩粒子と硝酸ガスの反応により、NaNO₃が生成され、塩素がガス化したことが考えられる。このため、ここでは、Na⁺の当量分のCl⁻がガス化したものと仮定し、Cl⁻の不足分を補ってイオンバランスの検討を行った。

イオンバランス算出結果は図 3.2-12に示すとおりである。陽イオン：陰イオンの比は、大黒海づり公園ではほぼ1:1となったが、中区加曽台では陽イオンの方が若干多くなった。

イオン成分を詳細に見ると、大黒海づり公園、加曽台とも、イオンの大部分をNH₄⁺とSO₄²⁻が占めていた。NH₄⁺とSO₄²⁻を比較すると、NH₄⁺がやや高いことから、(NH₄)₂SO₄やNH₄NO₃として多く存在していたと考えられる。

また、Na⁺、Ca²⁺はそれぞれ粗大粒子である海塩粒子、土壤粒子として存在しているため、PM2.5中のNa⁺、Ca²⁺は数%と少ない結果となった。また、NO³⁻については、大気中の硝酸ガスが海塩粒子と反応して、NaNO₃として存在していたと思われ、PM2.5中の割合は小さくなっている。

*3 イオンバランス

イオンバランスとは、文字通りプラス(+)イオン（「陽イオンまたはカチオン(cation)」とも言う）と、マイナス(−)イオン（「陰イオンまたはアニオン(anion)」とも言う）のバランスを比較するものである。プラスイオンとマイナスイオンの比較は、下に示す換算式からそれぞれ算出されるイオン当量濃度をもって行う。理論的には、プラスイオンの総量とマイナスイオンの総量は等しくなる。

イオン当量濃度換算式：

$$\text{イオン当量濃度}(\mu\text{eq}/\text{m}^3) = \text{測定結果}(\mu\text{g}/\text{m}^3) \div \text{分子量}(\text{g/mol}) \times \text{価数}(\text{eq/mol})$$

表 3.2-6(1) イオン当量濃度(PM2.5)

単位 : 10^{-6} eq/m³

項目	大黒海づり公園		中区加曾台	
	3日目	6日目	3日目	6日目
SO ₄ ²⁻	0.269	0.254	0.253	0.233
NO ₃ ⁻	0.007	0.004	0.005	0.004
Cl ⁻	0.008	0.007	0.009	0.004
陰イオン計	0.284	0.266	0.267	0.241
NH ₄ ⁺	0.278	0.271	0.277	0.248
Na ⁺	0.008	0.007	0.009	0.004
Ca ²⁺	0.019	0.000	0.028	0.022
陽イオン計	0.305	0.278	0.314	0.274
陽イオン/陰イオン比	1.07	1.05	1.17	1.14

注) Cl は Na と同じイオン当量濃度を持つものとして補正した。

表 3.2-6(2) イオン当量濃度(SPM)

単位 : 10^{-6} eq/m³

項目	大黒海づり公園		中区加曾台	
	3日目	6日目	3日目	6日目
SO ₄ ²⁻	0.254	0.232	0.222	0.227
NO ₃ ⁻	0.026	0.026	0.027	0.013
Cl ⁻	0.054	0.058	0.036	0.027
陰イオン計	0.334	0.316	0.285	0.267
NH ₄ ⁺	0.216	0.208	0.234	0.227
Na ⁺	0.054	0.058	0.036	0.027
Ca ²⁺	0.026	0.032	0.019	0.022
陽イオン計	0.296	0.298	0.289	0.276
陽イオン/陰イオン比	0.89	0.94	1.01	1.04

注) Cl は Na と同じイオン当量濃度を持つものとして補正した。

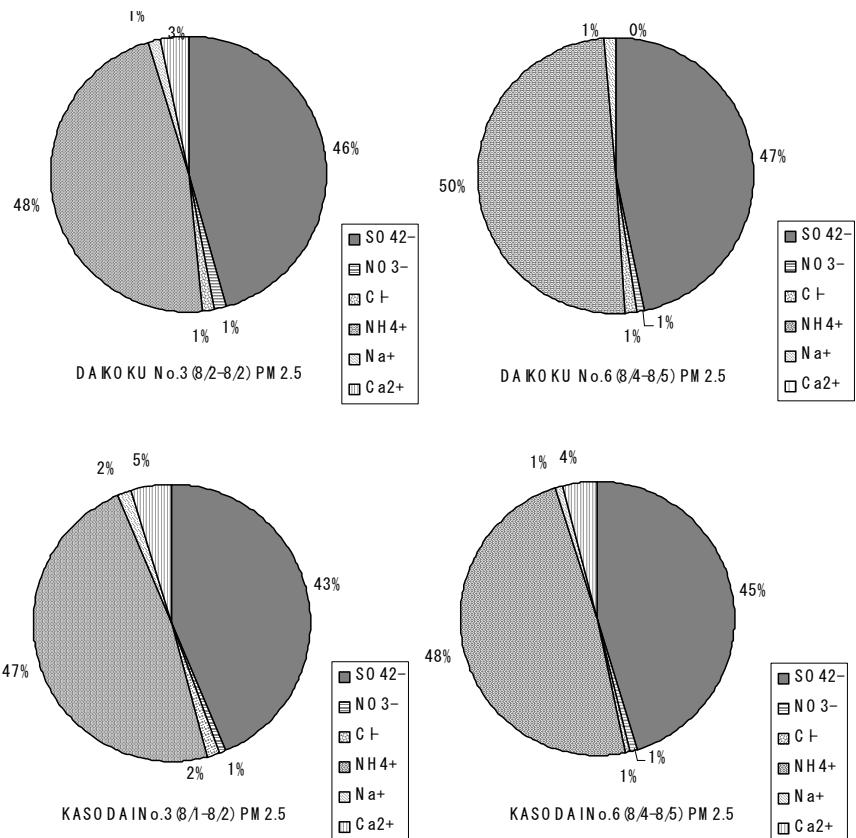


図 3.2-13(1) イオンバランス(PM2.5)

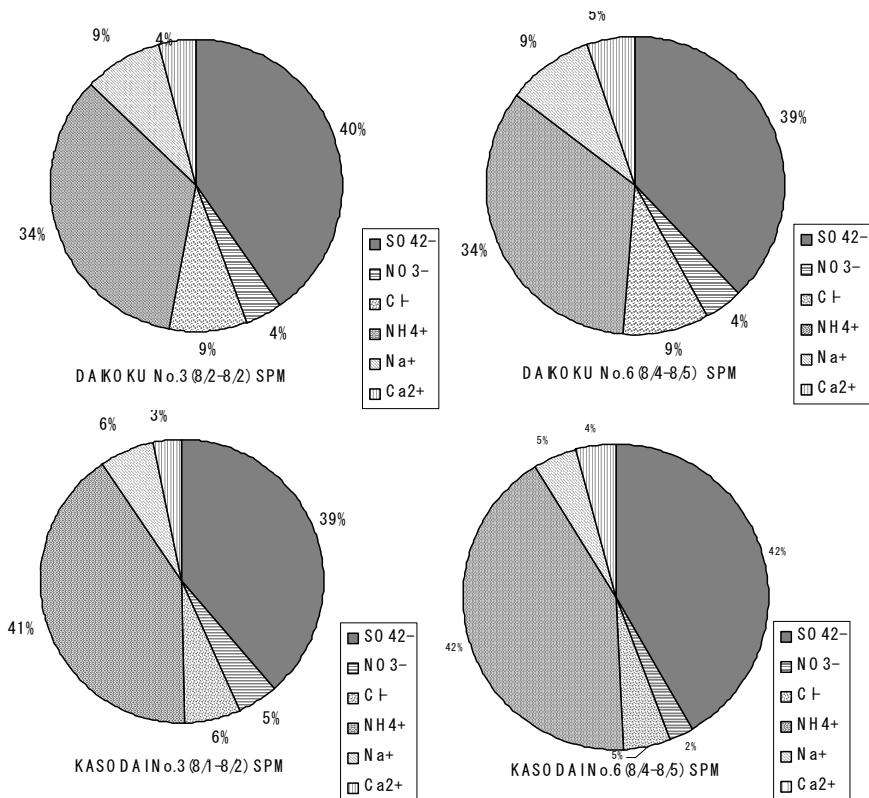


図 3.2-12(2) イオンバランス(SPM)

3.3 発生源別寄与の考察

PM の各発生源からの寄与について既存文献で述べられている事項から考察した。

(1) 船舶の寄与について

神奈川県の調査^{*4}によると、同県全体のPM(一次粒子)総排出量に占める船舶の寄与率(平成9年度のPM推計排出量割合)は9%と試算されている。この寄与率は神奈川県全体における排出寄与率であり、港湾地域周辺での排出寄与率はこれよりも高いことが予想される。また、平成17年度の船舶排出量を平成9年度と同等と仮定した場合、平成17年度の総排出量に対する船舶の寄与率は、主に自動車からの排出量が大幅に減少したために、13%に上昇する(表3.3-1参照)。

また、東京都の調査^{*5}によると、中央区、港区、品川区、大田区、江東区、江戸川区の沿岸域6区を対象にしたPM排出量に対する船舶の寄与率は、一次粒子で13.9%、二次粒子を含めると24.5%と試算されている(表3.3-1参照)。

上記の神奈川県と東京都における資料によると、大規模な港湾に面する地域におけるPM(一次粒子)に対する船舶の寄与率として十数%あるいはそれ以上の可能性がある。また、東京都の検討委員会報告書によると、沿岸域6区のSOx排出量の5割以上を船舶が占めており、SOxから生じる二次粒子に占める船舶の寄与も表3.3-1に示すように約25%と大きく推定されている。このことは、横浜港付近においても、二次粒子も含めたPMに対する船舶の寄与率は、15%程度よりさらに多くなる可能性を示している。

ただし、発生源が異なる場合、排出される代表粒径や排出される高さが異なり、それによって大気中での移流・拡散・沈着効果あるいは、化学的な挙動も異なってくるため、排出量の寄与率がそのまま環境濃度に対する寄与率に結びつかないことに注意が必要である。また、二次粒子のPM排出量については、両調査ともSOxおよびNOx排出量より、発生源ごとに経験式に基づく推定を行っている。また、二次粒子のバックグラウンド濃度については、ここでは考慮されていない。このため、二次粒子の寄与については、今後さらに充分な精査が必要であると考える。

表 3.3-1 神奈川県と東京都における船舶排出 PM の寄与率算定結果

単位：%

	神奈川県		東京都 平成16年度
	平成9年度	平成17年度	
一次粒子のみ	9.3	13.3 ^{注1}	13.9
二次粒子を含む全粒子	—	—	24.5

注1) 神奈川県の平成17年度の寄与率は、船舶からの排出量が平成9年度から変化していないとして試算した値

注2) 神奈川県は県全体の排出量に対する寄与率、東京都は沿岸6区の排出量に対する寄与率

出典)「平成17年版 かながわ環境白書」(2006年3月、神奈川県)、「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)、「船舶等による大気汚染対策検討委員会報告書」(2005年3月、東京都環境局)より作成

*4 神奈川県におけるPM総排出量に占める船舶寄与率(一次粒子)

「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成。

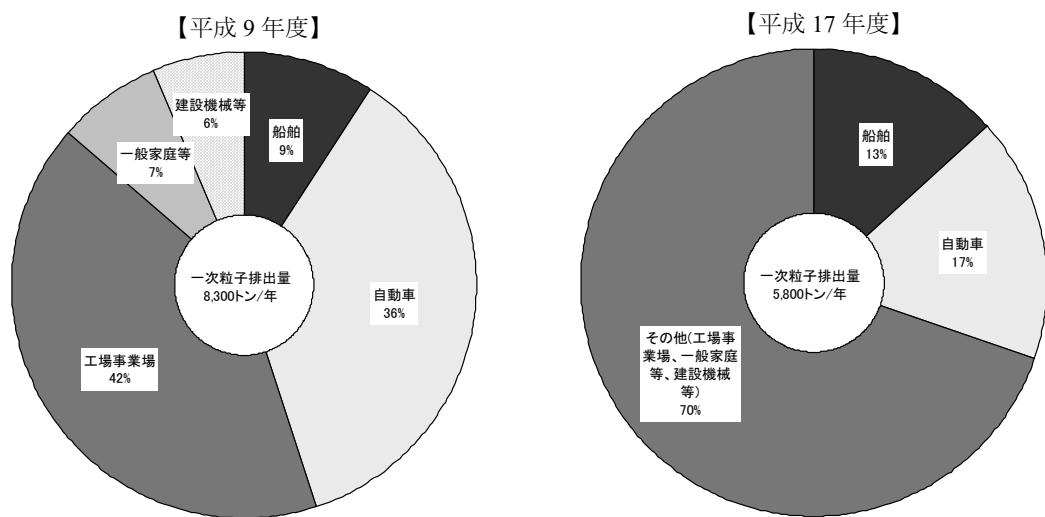


図 一次粒子の発生源別排出寄与率

表 発生源別 PM 排出量

発生源区分		平成 9 年度		平成 17 年度	
		排出量 (トン/年)	構成比(%) 一次粒子 (全粒子)	排出量 (トン/年)	構成比(%) 一次粒子 (全粒子)
一次粒子 排出量	自動車	2,960	35.7 (12.4)	980	16.9 (4.8)
	船舶	770	9.3 (3.2)	770	13.3 (3.8)
	工場事業場	3,430	41.3 (14.4)	4,820	83.1 (23.8)
	一般家庭等	610	7.3 (2.6)		
	建設機械等	530	6.4 (2.2)		
	小計	8,300	100 (34.9)	5,800	100 (28.7)
二次粒子生成量		15,480	— (65.1)	14,440	— (71.3)
一次・二次粒子計		23,780	— (100)	20,240	— (100)

出典) 「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成

注) 平成 17 年度は自動車以外の内訳は示されていない。

表中の [] は、船舶からの PM 排出量が平成 9 年度から変化しないと仮定し試算したもの。

出典) 「平成 17 年版 かながわ環境白書」(2006年3月、神奈川県)

「神奈川県自動車排出窒素酸化物及び自動車排出粒子状物質総量削減計画」(2003年7月、神奈川県)より作成

*5 東京都沿岸域 6 区(江戸川区、江東区、中央区、港区、品川区、大田区)を対象とした船舶PM の寄与率(二次粒子を含む)

停泊中船舶 15 隻の排出ガス測定と船舶事業者等へのアンケート調査(荷役機械、車両の稼動状況)、平成 15 年東京港港勢および平成 16 年入出港データから排出量の推計を行っている。

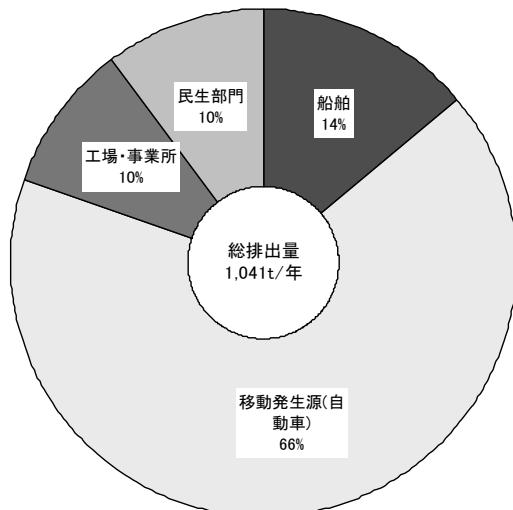


図 一次粒子の排出寄与率

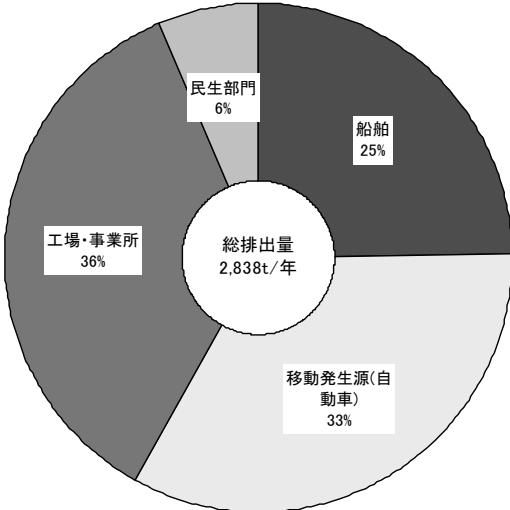


図 二次粒子を含めた排出寄与率

表 発生源別 PM 排出量

(上段:排出量 トン/年、下段()は構成比 %)

発生源		SOx排出量	SPM総排出量				
			一次粒子		二次粒子		合計
			ばいじん	硝酸塩	硫酸塩	二次計	
東京港内	停泊中船舶	1,898 (53.5)	145 (13.9)	47 (7.6)	503 (42.6)	550 (30.6)	695 (24.5)
	荷役機械等	1.4 (0.0)	0 (0.0)	8.9 (1.4)	0.4 (0.0)	9.3 (0.5)	9.3 (0.3)
沿岸部6区	自動車	243 (6.9)	690 (66.3)	233 (37.8)	19 (1.6)	252 (14.0)	942 (33.2)
	工場・事業所	1,388 (39.1)	99 (9.5)	260 (42.2)	653 (55.3)	913 (50.8)	1,012 (35.7)
	民生部門	16 (0.5)	107 (10.3)	67 (10.9)	5.4 (0.5)	72.4 (4.0)	179.4 (6.3)
	合計	3,546	1,041	616	1,181	1,797	2,838

注) 東京港内および沿岸 6 区(江戸川区、江東区、中央区、港区、品川区、大田区)

出典) 「船舶等による大気汚染対策検討委員会報告書」(2005 年 3 月、東京都環境局)を基に作成

(2) 自動車排気の寄与について

一般的に自動車排気の影響を強く受けていない地点と強く受けている地点の大気測定では、自動車排気のSPM寄与はそれぞれ30%程度と50%程度といわれている^{*6}。

関東地方1都9県4市による浮遊粒子状物質合同調査報告書^{*7}によれば、一般地域における夏季の自動車排気の微少粒子への寄与は、平成12年度で約43%、平成13年度で約25%、平成14年度で約32%、平成15年度で約22%、平成16年度で約17%となっており、年々減少傾向にある。近年のディーゼル排ガス対策の効果がうかがえる。

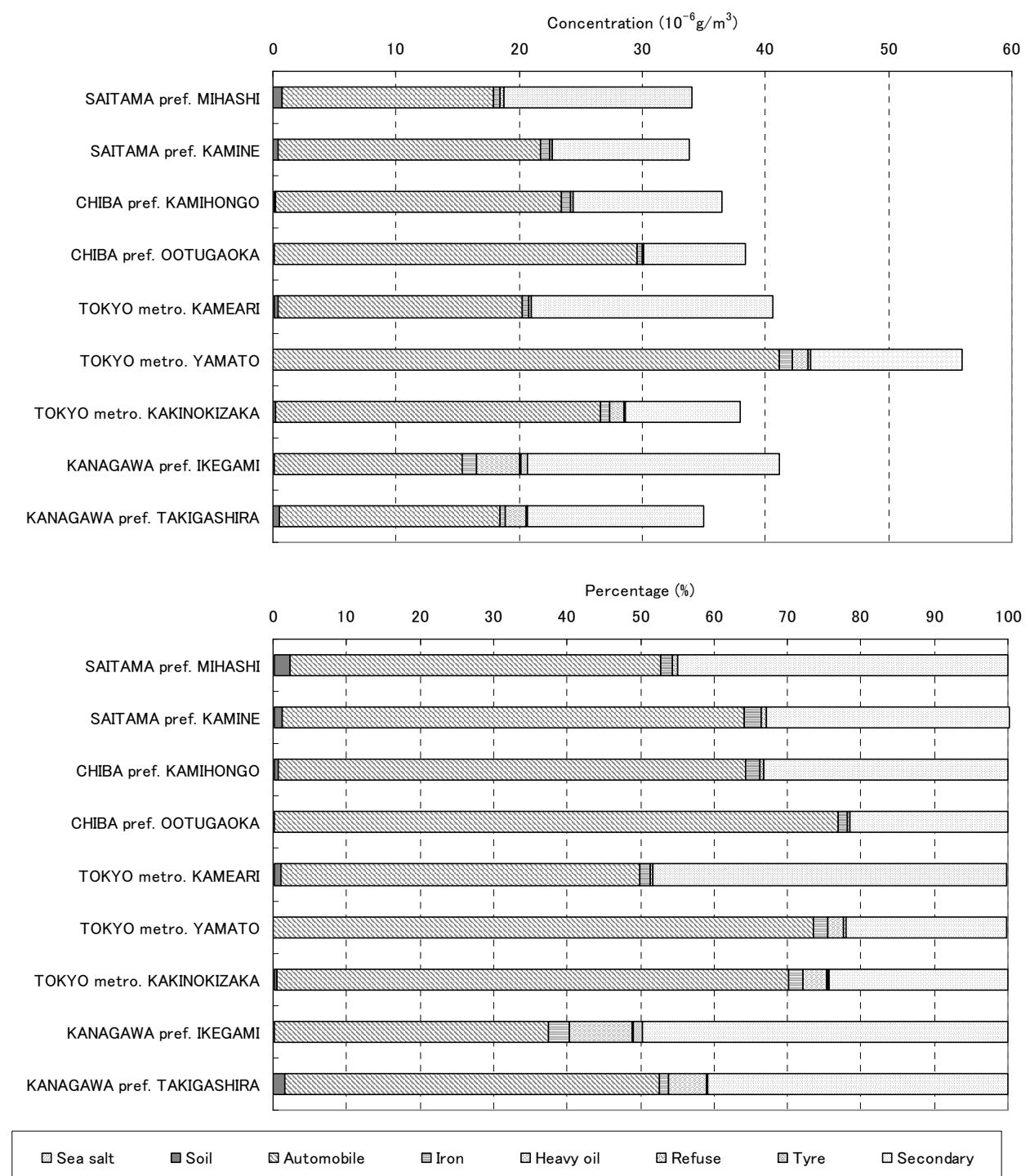
*6 出典：今後の自動車排出ガス総合対策中間報告(2005年12月、環境省)等

*7 出典：平成16年度浮遊粒子状物質合同調査報告書(2006年3月、関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議)

(3) その他主要排出源のPM寄与

環境省は平成13年度の夏季に関東地方で微小粒子(<2.1 μm)について成分分析を行いCMB解析を実施している（「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査 調査報告書」(2001年11月、環境省環境管理局))。図3.3-1はその結果をグラフ化したものである。

環境省調査結果では自排局周辺で測定しているため自動車排気からの寄与が50%以上と圧倒的に多くなっており、次いで、二次粒子の寄与が22~50%、石油系燃焼ボイラーが8.9%以下、鉄鋼工業が2.8%以下、道路堆積物が2.2%以下となっており、海塩粒子、廃棄物焼却およびタイヤ磨耗はともに1%以下となっている。



出典：「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査 調査報告書」(2001年11月 環境省環境管理局)

注：環境省調査の測定時期：平成13年8月20日～29日のうちの7日間、対象：微小粒子($<2.1 \mu\text{m}$)

出典の環境省調査は、図3.2-11～図3.2-12の環境省調査とは調査年度、調査地点、調査期間が異なる。

図3.3-1 CMB解析事例(上図：発生源別の寄与濃度、下図：発生源別の寄与率)

4. 船舶排気 PM 調査

4.1 調査方法

船舶以外の発生源から排出される PM の成分は様々な文献によってある程度判明しているが、船舶については情報がないため、船舶起源 PM の成分組成を得ることを目的として、外航コンテナ船を対象に、停泊時に稼働中のディーゼル発電機から排出される PM を採取し、成分分析を行い、船舶起源一次粒子の代表的な成分組成を作成した。

(1) 調査時期

平成 18 年 8 月 22 日(火)

(2) PM の採取方法

港内に停泊中の外航コンテナ船^{*8}を対象に、補助ディーゼル発電機運転時の排ガス中の PM を煙突口にて採取した。(写真参照)

なお、航行中の 2 サイクル主機機関は、補助ディーゼル発電機とは潤滑油の供給形式が異なり、また使用される燃料に対応してシリンダー油の性状も大きく異なることが知られている。これに伴い両者の PM の成分組成が異なる可能性が充分に考えられる。しかし、港湾域における両者の活動量を考えると、コンテナ船の補助ディーゼル発電機は停泊中の冷凍冷蔵コンテナへの電力供給などで 10 年前に比較して負荷・搭載定格容量の双方で大きくなっているのに対して、主機機関は港湾域内では負荷が 20 %以下に低減していることなどがこれまでの調査から明らかになっている。また、ディーゼル補機からの排ガス量は、主機機関のそれより 50 倍以上になるとの推計結果もある。このことから、本港湾域で排出される船舶由來の PM については、補助ディーゼル発電機からの影響がほとんどであると判断し、本調査では補助ディーゼル発電機のみを調査および CMB 法の対象とした。

*8 調査を実施したコンテナ船の主な諸元

補助ディーゼル発電機 2,200 kW×4 基(試料採取時は 3 基が稼動)

使用燃料 C 重油(180 cSt 級)

(3) 分析項目

成分分析の項目は、大気環境 PM 調査と同様とした。

なお、大気中 PM 調査は粒径 2.5 μm 以下の粒子(微小粒子)を対象に採取した。一方、船舶排気 PM 調査は、粒径 2.5 μm より大きな粒子も含む全粒径(微小粒子+粗大粒子)の粒子を採取しており、両者で採取した PM の粒径範囲が異なると考えられるが、燃料の燃焼に伴い排出される PM は大部分が粒径 2.5 μm 以下であると考えられることから、粒径範囲によって成分組成が異なる影響は小さいものと考えられる。



【写真】船舶排気 PM の採取状況

4.2 調査結果

船舶排気PMの成分分析結果は、表 4.2-1に示すとおりである。 SO_4^{2-} が最も多く4割近くを占め、次いでOC約24%、EC約16%の割合であった。

結果を詳細に見るとイオン成分の Ca^{2+} と金属として分析したCaで10倍以上の濃度差が見られた。大気環境の測定ではほとんどの場合で両者は同程度であったことから、イオン成分と金属成分の採取時刻の違いによる濃度の差、あるいは Ca^{2+} とCaの分析値のいずれかに大きな測定誤差が含まれている可能性がある。なお、船舶排気には、自動車排ガスと比較して、潤滑油にCaが多く含まれており、そのことがCa含有率を高めている可能性がある。

なお、今後は、船舶排気 PM の成分組成をより精査する意味で、船舶ディーゼルに使用されている燃料の成分や潤滑油の成分も含めて検討することが必要と考えられる。

表 4.2-1 船舶排気 PM の成分分析結果

項目		構成比(重量%)
炭素成分	有機炭素 OC	23.59
	元素状炭素 EC	15.83
水溶性イオン成分	硫酸イオン SO_4^{2-}	38.3
	硝酸イオン NO_3^-	0.00
	塩素イオン Cl^-	0.00
	アンモニウムイオン NH_4^+	0.37
	ナトリウムイオン Na^+	0.00
	カルシウムイオン Ca^{2+}	2.3
	カリウムイオン K^+	0.00
	ナトリウム Na	0.093
金属類	アルミニウム Al	0.058
	カリウム K	0.014
	カルシウム Ca	0.18
	バナジウム V	0.95
	マンガン Mn	0.0028
	鉄 Fe	0.19
	ニッケル Ni	0.42
	亜鉛 Zn	0.017
	ヒ素 As	0.00086
	セレン Se	0.0017
	タンクステン W	0.000068

5. 各種発生源からの寄与割合の検討

5.1 発生源別成分組成の検討

各種の発生源から排出される排出ガスの成分組成の特性を見るために既存資料から成分組成の調査を行った。

成分組成の調査結果は表 5.1-1 のとおりである。

船舶以外の主要発生源は、環境省や地方自治体などで発生源の特定を行う際に多く用いられている海塩、道路堆積物、自動車排気、鉄鋼工業、石油系燃焼ボイラー、廃棄物焼却とした。

OC、EC は自動車排気、Na は海塩、Al、Ca は道路堆積物や鉄鋼工業、K は廃棄物焼却、V、Ni は石油系燃焼ボイラーや船舶、Fe、Mn、Zn は鉄鋼工業のそれぞれ指標成分として選定した。As、W については、磯子石炭火力発電所が稼動しているため石炭燃焼排気の指標として測定したが、排出ガス対策の進んでいる発電所からの寄与が大きく見積もられることはないとの判断から石炭火力を発生源から除外した。

なお、鉄鋼工業、廃棄物焼却、石油系燃焼ボイラーの成分組成は、20 数年前の測定値である。特に、石油系燃焼ボイラーの成分組成は A、B、C 重油燃焼を併せたものであり、現在の A 重油燃焼がほとんどである状況とは異なっていると考えられる。また、船舶の成分組成は、本調査における船舶排出ガス調査の結果を用いているが、コンテナ船一隻の調査であるため、大きな誤差を含んでいる可能性がある。このように発生源別成分組成について今後さらに検討することが必要と思われる。

表 5.1-1 発生源別の成分組成

単位：重量%

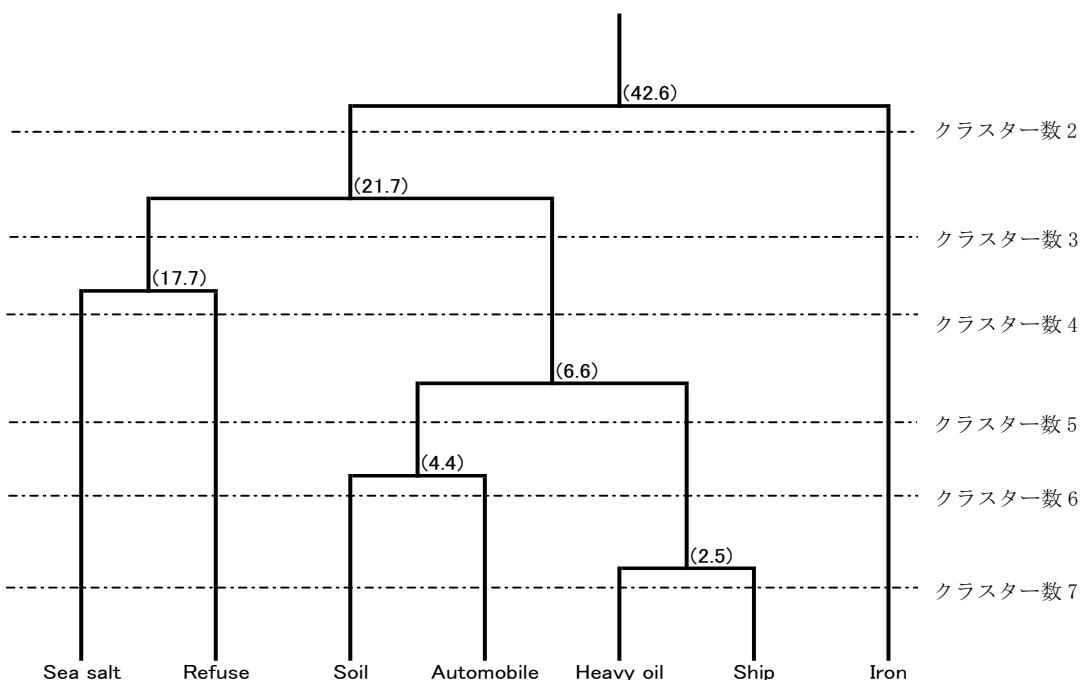
No	項目	海塩	道路 堆積物	自動車 排気	鉄鋼工業	石油系燃焼 ボイラー	廃棄物 焼却	船舶
1	OC	0	9.07	9.31	0	0	0	23.6
2	EC	0.00000	1.39	49.4	0.5	50	5	15.8
3	Na	30.4	1.16	0.0076	1.4	1	12	0.093
4	Al	0.00003	5.9	0.16	1.00	0.21	0.42	0.058
5	K	1.1	1.05	0.020	1.3	0.085	20	0.014
6	Ca	1.17	5.	0.15	4.5	0.085	1.1	0.18
7	V	0.00001	0.015	0.00073	0.013	0.46	0.0027	0.95
8	Mn	0.00001	0.11	0.0019	2.2	0.012	0.033	0.0028
9	Fe	0.00003	5.1	0.099	15.7	0.46	0.61	0.19
10	Ni	0.00000	0.00000	0.00099	0.29	0.2500	0.000	0.42
11	Zn	0.00000	0.12	0.062	5.2	0.04	2.6	0.017
12	As	0.00000	0.00072	0.00037	0.010	0.0023	0.015	0.00086
13	W	0.00000	0.00069	0.00007	0.0047	0.002	0.01	0.00007

- 出典) 海塩 : 化学大辞典編集委員会編：化学大辞典、海水、共立出版、Vol.2、pp.249-251(1960).
 道路堆積物 : 財団法人日本気象協会：平成 12 年度ディーゼル排気微粒子排出実態調査業務報告書(2001)における横浜市(磯子区滝頭)のデータ
 自動車排気 : 「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査」(2001 年 11 月、環境省環境管理局)
 鉄鋼工業 : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英：鉄鋼工業より放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、15、pp.69-76(1980).
 石油系燃焼ボイラー : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英 : ボイラより放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、14、pp.296-303(1979).
 廃棄物焼却 : 真室哲雄、溝畑 朗、久保田寅英 : 都市廃棄物焼却炉より放出される浮遊粒子の元素組成、大気汚染学会誌、14、pp.190-196(1979).
 船舶 : 本調査結果(停泊中の外航コンテナ船の排ガス中粒子を測定)

(1) 本調査における発生源別成分組成のクラスター分析

表 5.1-1に示した発生源別成分組成が各発生源を特徴付けるものとして利用可能かどうかを判断するため、発生源間の類似性についてクラスター分析^{*9}を行った。

クラスター分析の結果は図 5.1-1に示すとおりである。図では石油系燃焼ボイラーと船舶の成分組成が特に類似しており、発生源別の寄与率を求める際には両発生源を明確に区別するのが困難であることを示している。また、図中でクラスター数 3 の位置に着目すると、海塩粒子が廃棄物焼却と同じグループとなっているなど、燃焼系の発生源と自然由来のものがよく分離できていない可能性がある。



注：()内の数字はユークリッド距離^{*10}

図 5.1-1 発生源別成分組成のクラスター分析結果

*9 クラスター分析

クラスター分析は、対象となるデータ群を数学的に類似しているサンプル同士で順次グルーピングする方法の総称である。クラスター分析の結果は、データ群の類似性を視覚的に示すデンドログラム(樹形図)として表現される。

*10 ユークリッド距離

データ群の類似性の判定基準はいくつかあるが、取扱が容易なユークリッド距離が良く用いられる。異なるデータ群間で要素の差の 2 乗和を、その異なるデータ間の距離の指標とするもので、それが近いほど 2 つのデータ群は類似している指標となる。

(2) 既存調査事例による発生源別成分組成のクラスター分析

次に、既存の調査において発生源の区別が明確になされているかどうかを見るために、環境省が平成13年度に発生源寄与率の調査を実施した事例と、関東地方1都7県3市(東京都、神奈川県、千葉県、埼玉県、茨城県、栃木県、群馬県、山梨県、横浜市、川崎市、千葉市)合同で発生源寄与率の調査を実施した事例を用いて発生源別成分組成を検討した(環境省の調査事例は表 5.1-2、関東地方合同調査事例は表 5.1-3参照)。

なお、環境省の事例では発生源の検討を本調査の項目数13項目よりも多い21項目で実施している(両者で一致している項目は表中の網掛けの9項目)。また、関東地方合同調査の事例では、本調査に比較して成分数は少ないが、重油燃焼、廃棄物焼却の成分組成データが環境省のデータに比べて新しいものとなっている。

表 5.1-2 環境省の発生源の検討で用いた発生源の成分組成

単位：重量%

No	項目	道路堆積物	海塩	鉄鋼工業	石油系燃焼 ボイラー	廃棄物焼却	自動車排気	ブレーキ粉塵
1	EC	1.08	0.00000	0.5	50.	5.	49.4	15.3
2	Na	1.02	30.4	1.36	1.	12.	0.00764	0.760
3	Al	5.7	0.00003	0.999	0.21	0.42	0.157	1.94
4	K	1.1196	1.1	1.32	0.085	20.	0.0197	0.35
5	Ca	5.20	1.17	4.51	0.085	1.1	0.146	3.18
6	Sc	0.00126	0.00000	0.00013	0.00001	0.00005	0.00001	0.0004
7	Ti	0.447	0.00000	0.1	0.074	0.09	0.0146	0.901
8	V	0.01402	0.00001	0.0125	0.46	0.0027	0.00073	0.0059
9	Cr	0.03124	0.00000	0.316	0.021	0.085	0.00116	0.0421
10	Mn	0.10438	0.00001	2.2	0.012	0.033	0.00193	0.0720
11	Fe	5.084	0.00003	15.7	0.46	0.61	0.0989	9.12
12	Co	—	0.00000	0.0044	0.0031	0.0021	0.00015	0.0016
13	Cu	0.0242	0.00000	0.37	0.0001	0.36	0.0113	1.3
14	Zn	0.09868	0.00000	5.15	0.04	2.6	0.0624	0.33
15	Rb	0.004110	0.00035	0.00768	0.0002	0.026	0.00005	0.00207
16	Sb	0.002140	0.00000	0.009	0.00069	0.0952	0.00196	0.213
17	Ba	0.0374	0.00009	0.05	0.1	0.039	0.00989	1.19
18	La	0.002380	0.00000	0.00098	0.004	0.00077	0.00003	0.0007
19	Ce	0.00423	0.00000	0.00687	0.007	0.017	0.00011	0.0024
20	Sm	0.00036	0.00000	0.00002	0.00076	0.00005	0.00000	0.0001
21	Th	—	0.00000	0.00004	0.00004	0.00005	0.00000	0.0002

出典) 「平成15年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004年3月 (財)日本気象協会)

網掛けは、本調査の分析項目と一致する項目。

表 5.1-3 関東地方合同調査による発生源の検討で用いた発生源の成分組成

単位：重量%

No	項目	自動車	重油燃焼	廃棄物焼却	海塩粒子	道路粉じん	鉄鋼
1	EC	55.7	30.28	0.291	0	4.0	0
2	Na	0.008	0.664	5.26	30.42	1.1	1.4
3	Al	0.020	0.539	0.646	0.00003	6.5	1.0
4	K	0.234	0.434	4.77	1.1	0.97	1.3
5	Ca	0.045	0.212	2.6	1.2	6.0	4.5
6	V	0.005	0.212	0.00286	0.000005	0.021	0.013
7	Mn	0.012	0.019	0.0247	0.000005	0.15	2.2

出典) 「平成 16 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書」(2006 年 3 月 関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議)

環境省の調査事例(表 5.1-2)、関東地方合同調査事例(表 5.1-3)を用いたクラスター分析結果はそれぞれ図 5.1-2(1)、図 5.1-3(1)に示すとおりである。また、それぞれの事例に本調査で実施した船舶発生源の成分組成を加えた場合のクラスター分析結果はそれぞれ図 5.1-2(2)、図 5.1-3(2)に示すとおりである。

結果を図 5.1-1 と比較すると、項目数が本調査(13 項目)よりも多い 21 項目で実施している環境省の調査事例(図 5.1-2(1))では、燃焼系の発生源と、自然由来の発生源とがよく分離されていた。一方、関東地方合同調査(図 5.1-3(1))では、項目数が 7 項目と少ないが、環境省の調査事例と同じく燃焼系の発生源と自然由来の発生源とがよく分離されており、項目数が少なくて選定次第では有用なものとなりうると考えられる。

いずれにしろ、本調査での船舶排気 PM 調査で得られた船舶の発生源組成を加えた発生源間の類似性は、人為起源と天然起源の成分組成が明確に区別できないなどの問題があり、発生源組成の文献調査等も含めて今後も検討が必要である。

なお、環境省の調査事例と関東地方合同調査事例に本調査で実施した船舶発生源の成分組成を加えて他の発生源との類似性を検討すると、環境省の調査事例(図 5.1-2(2))では、船舶は重油燃焼などと類似している。一方、関東地方合同調査事例(図 5.1-3(2))では、船舶は重油燃焼などと大きく離れている。関東地方合同調査事例の発生源組成は検討している項目数が少ないためクラスター分析を行った場合にやや不安定になる可能性があるが、今後この資料に船舶発生源の成分組成を加えて発生源寄与の検討を行っていきたい。

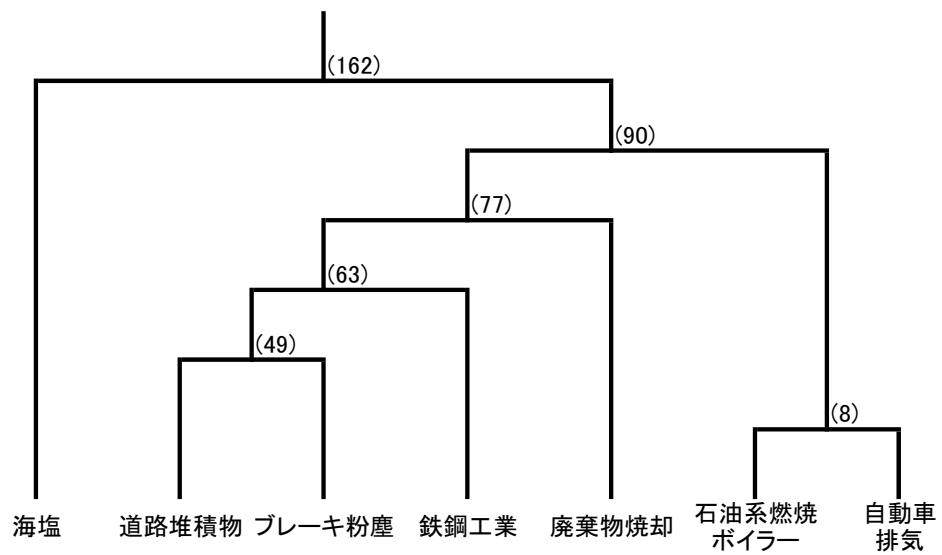


図 5.1-2(1) 環境省発生源別成分組成のクラスター分析結果

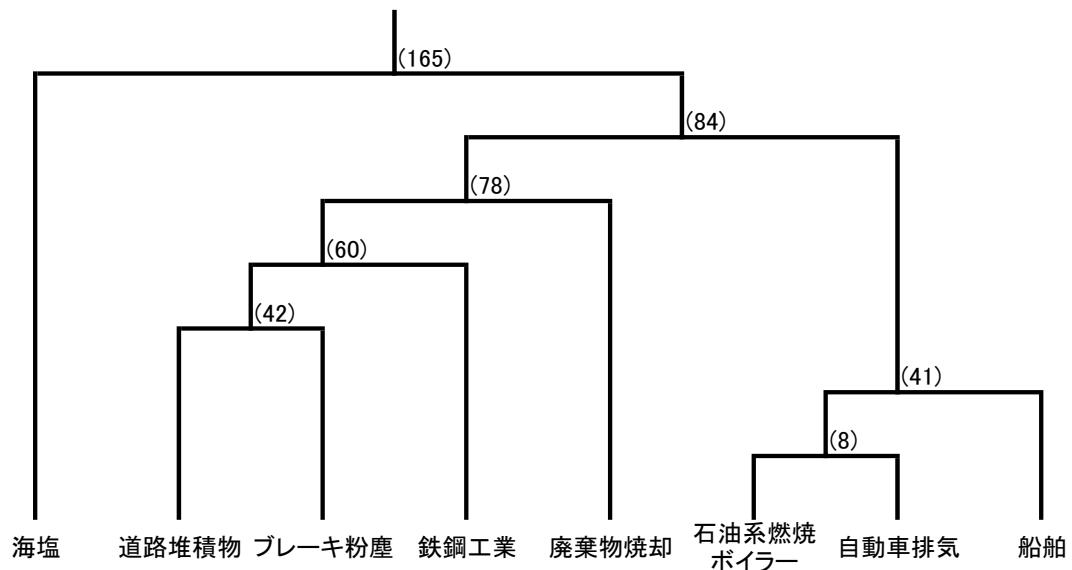


図 5.1-2(2) 環境省発生源別成分組成(船舶を追加)のクラスター分析結果

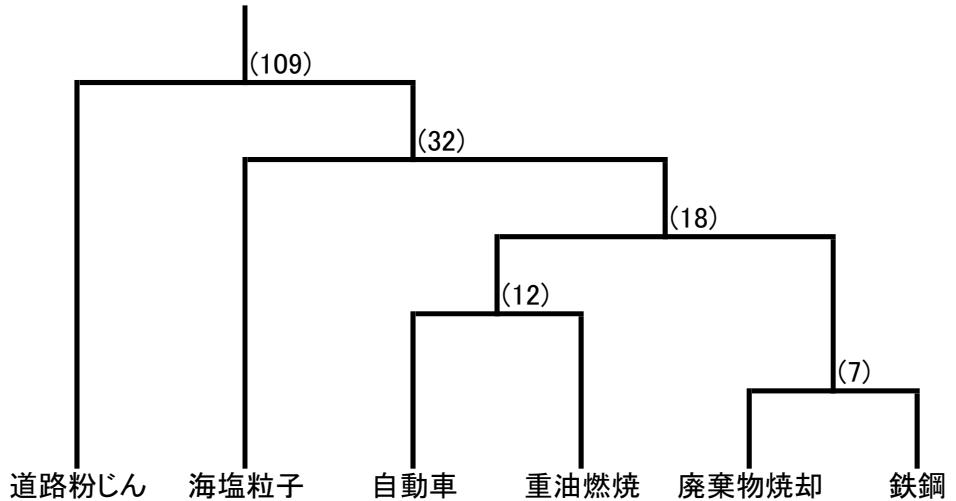


図 5.1-3(1) 関東地方合同調査発生源別成分組成のクラスター分析結果

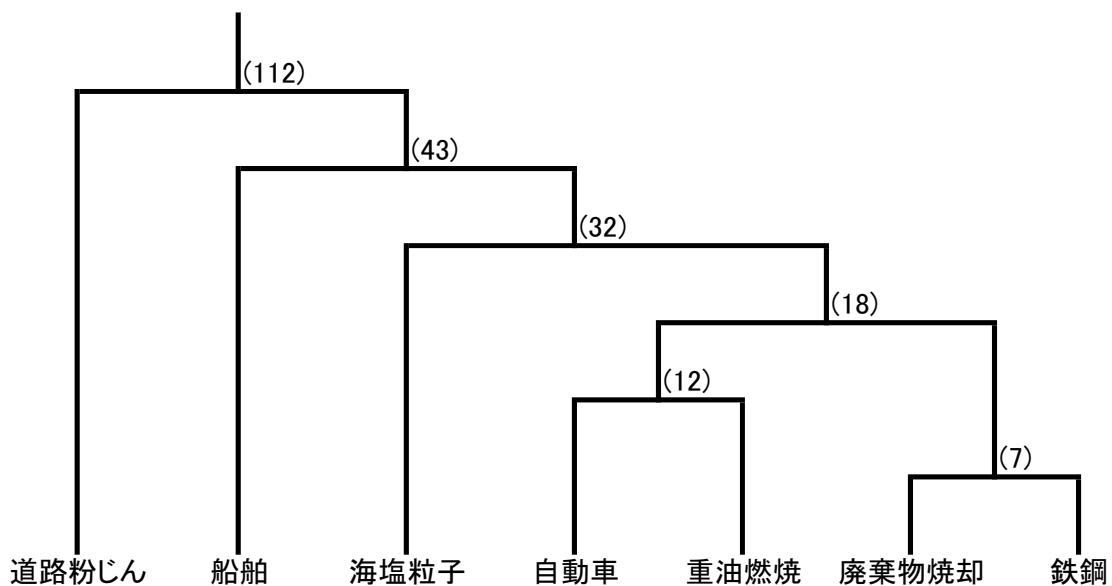


図 5.1-3(2) 関東地方合同調査発生源別成分組成(船舶を追加)のクラスター分析結果

(3) 石炭火力発電所の排出 PM 成分組成の検討

「5.1 発生源別成分組成の検討」では、排ガス対策が進んでいることから石炭火力発電所を発生源として外した。しかし、横浜市内で稼動している石炭火力発電所からのPM排出量は、神奈川県全体の排出量の7%程度(表 5.1-4参照)であり、他の発生源と比較して無視できないと考えられることから、石炭火力発電所からのPMを含めた成分組成についても他の発生源との類似性を検討した。

表 5.1-5に「石炭火力」を追加した発生源別成分組成を示す。

図 5.1-4に本調査における発生源別成分組成のクラスター分析結果(再掲)を、図 5.1-5に本調査の発生源別成分組成に石炭火力を追加した場合のクラスター分析結果を示す。

石炭火力の発生源組成は、土壤にやや類似し、船舶排気や石油系燃焼ボイラーとは少し異なる。

表 5.1-4 石炭火力発電所からの PM 排出量

発生源		磯子火力 排出量 (t/年)	神奈川県	磯子火力 の割合 (%)	適用時期
			排出量 (t/年)		
磯子火力	リプレース無し	603	8,300	7.3	H14.3 以前
	1号機のみリプレース	422	5,800	7.3	H14.4～H22.6
	1+2号機リプレース	240	5,800	4.1	H22.7～

出典) 「磯子火力発電所新1・2号機環境影響調査書」(1995年10月、電源開発株式会社)を基に作成

注) 神奈川県の排出量は、平成9年度または平成17年度の推計値を当てはめた。

表 5.1-5 「石炭火力」を追加した発生源別成分組成

単位：重量%

	海塩	道路堆積物	自動車排	鉄鋼工業	石油系燃焼 ボイラー	廃棄物焼却	船舶	石炭焚きボ イラー
OC	0	0.0907	0.0931	0	0	0	0.236	0.0036
EC	0	0.0139	0.494	0.005	0.5	0.05	0.158	0.0151
TC	0	0.1046	0.587	0.005	0.500	0.05	0.394	0.0187
Na	0.304	0.012	0.0000764	0.0136	0.01	0.12	0.00093	0.0085
Al	0.0000003	0.059	0.00157	0.00999	0.0021	0.0042	0.00058	0.098
K	0.011	0.0105	0.000197	0.0132	0.00085	0.2	0.00014	0.011
Ca	0.0117	0.05	0.00146	0.0451	0.00085	0.011	0.0018	0.029
V	0.0000001	0.00015	0.0000073	0.000125	0.0046	0.000027	0.0095	0.00028
Fe	0.0000003	0.051	0.000989	0.1570	0.0046	0.0061	0.0019	0.026
Mn	0.0000001	0.0011	0.0000193	0.0220	0.00012	0.00033	0.000028	0.00003
Ni	0	0	0.0000099	0.0029	0.0025	0	0.0042	0.00006
Zn	0	0.0012	0.000624	0.0515	0.0004	0.026	0.00017	0.000007
As	0	0.0000072	0.0000037	0.000103	0.000023	0.00015	0.0000086	0.00004
W	0	0.0000069	0.0000007	0.0000474	0.00002	0.0001	0.0000007	0.0000004

出典) 石炭焚きボイラー：「浮遊粉じんの発生源推定に関する調査研究報告書」(1989年3月、横浜市公害研究所)

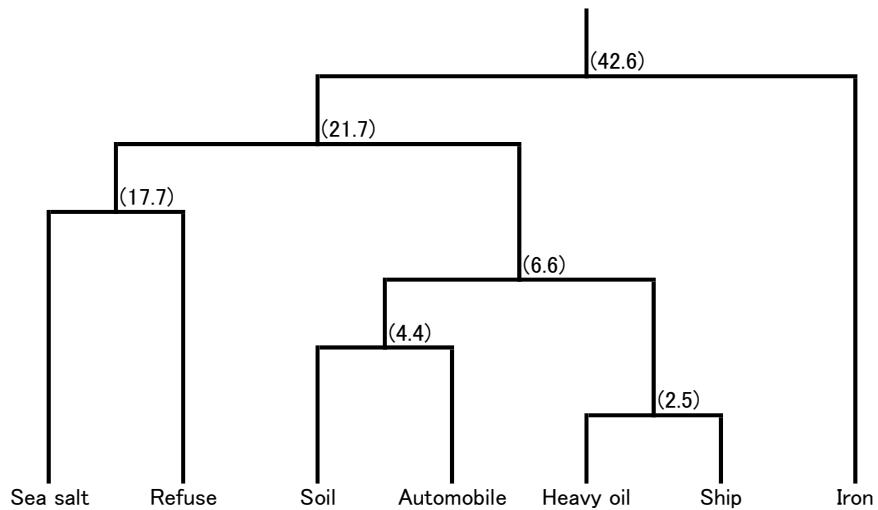


図 5.1-4 クラスター分析結果(本調査の発生源別成分組成) (図 5.1-1を再掲)

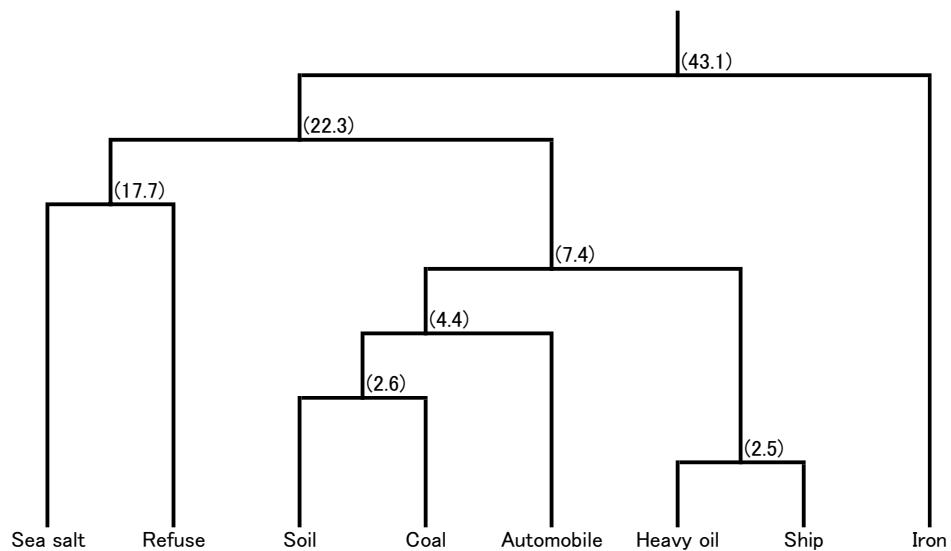


図 5.1-5 クラスター分析結果(本調査の発生源別成分組成に石炭火力を追加した場合)

5.2 CMB 解析

後述するように、CMB 解析に用いる発生源の成分組成が船舶と石油系燃焼ボイラーで類似しており、両者を明確に区別することができなかった。このため、CMB 解析の手法および解析結果については、参考として記載した。

(1) 基本式

CMB 解析の基本的な考え方は以下のとおりである。

環境大気中で観測されるPMの成分*i*の質量濃度 C_i は、発生源別の成分*i*の質量濃度を重ね合わせたものと仮定する。発生源*j*の成分*i*の質量濃度は、発生源*j*粒子の成分*i*の含有率 F_{ij} に、測定点にもたらされる発生源*j*からの寄与濃度 S_j を掛け合わせたものになる。これを式に示すと次のようになり、この考え方に基づいて各発生源の寄与を求めている。

$$C_i = \sum_{j=1}^N F_{ij} \cdot S_j \quad (i = 1 \sim M) \dots \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{式 } 1)$$

ここで、 M : 化学成分数

N : 発生源数

C_i : 環境大気中で観測されるPMの成分*i*の質量濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

F_{ij} : 発生源*j*粒子の成分*i*の含有率

S_j : 発生源*j*からの寄与濃度($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

(2) CMB 解析の方法

測定された化学成分数*M*が発生源数*N*と同数以上であると、それぞれの発生源の寄与濃度 S_j は、(式 1)の連立方程式を解いて求めることができる。

CMB の解析手法としては指標元素法、線形計画法、最小二乗法、重み付き最小二乗法などの手法があるが、本調査の CMB 解析では、測定誤差を計算に反映することができる重み付き最小二乗法を用いることとした。

【重み付き最小二乗法】

最小二乗法は、環境大気中の分別質量濃度 C_i についての残差二乗和 χ^2 (式 2)を最小にする寄与濃度 S_j の組を求める方法である。

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^M (C_i - \sum_{j=1}^N F_{ij} \cdot S_j)^2 \dots \dots \dots \dots \dots \quad (\text{式 } 2)$$

ここで、 M 、 N 、 C_i 、 F_{ij} 、 S_j : (式 1)と同じ

χ^2 : 残差二乗和

環境大気PMの化学成分データは個別の測定誤差を伴い、計算に際して測定誤差を考慮する場合、残差二乗和 χ^2 は(式 2)の代わりに(式 3)とする。ここでは、環境大気中で観測されたPMの成分*i*の質量濃度 C_i と、発生源の寄与濃度 S_j と成分*i*の含有率 F_{ij} とから算出される質量濃度の総和とが同等の誤差を持つと仮定している。

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^M \left\{ \frac{1}{\sigma_{C_i}^2} \left(C_i - \sum_{j=1}^N F_{ij} \cdot S_j \right)^2 \right\} \quad \dots \dots \dots \dots \quad (\text{式 } 3)$$

σ_{C_i} : C_i の標準偏差

残差二乗和 χ^2 が最小になるのは、残差二乗和 χ^2 を寄与濃度 S_j で偏微分しその結果がゼロとなる場合(式 4)である。この条件を解くことで寄与濃度 S_j の組が求められる(式 5)。

$$\frac{\partial \chi^2}{\partial S_j} = 0 \quad (j=1 \sim N) \quad \dots \dots \dots \dots \quad (\text{式 } 4)$$

$$S = (F \cdot W \cdot F)^{-1} \cdot F \cdot W \cdot C \quad \dots \dots \dots \dots \quad (\text{式 } 5)$$

ここで、 $C : C_i(i=1 \sim M)$ を要素とする $i \times 1$ 行列

$S : S_j(j=1 \sim N)$ を要素とする $j \times 1$ 行列

$F : F_{ij}(i=1 \sim M, j=1 \sim N)$ を要素とする $M \times N$ 行列

$W : (1/\sigma_{C_i})^2(i=1 \sim M)$ を対角成分にもつ $M \times M$ 正方行列

$'F : F$ の転置行列

$(\)^{-1}$: 逆行列

(3) 大気環境濃度測定値の誤差

CMB解析に使用する大気環境濃度測定値の誤差として、サンプリング誤差および分析誤差を考慮した(表 5.2-1参照)。サンプリング誤差については、流量計の誤差 5 %その他の要因を考慮して最低 10 %とした。分析誤差については測定値に対する定量下限値の割合から設定した。

定量下限値が測定値の 10 %以上の場合、定量下限値を測定値の誤差とし、定量下限値が測定値の 10 %未満の場合、測定値の誤差を 10 %とした。また、TC の誤差は、炭素分析用のろ紙秤量の誤差を考慮し、測定値の 20 %とした。

その結果、本調査における測定誤差は、TC で 20 %、Ca で 10~29 %、W で 10~100 %、他は 10 %前後に設定された。一方、前述の環境省の調査事例(「平成 15 年度 浮遊粒子状物質成分別環境濃度解析調査報告書」(2004 年 3 月 (財)日本気象協会))における測定誤差は、EC で約 5 %、Ca で 40 %、V で 3~9 %、他の成分は 10 %前後に設定されている。本調査と環境省調査事例とで、測定誤差を比較すると、多くの成分で 10 %前後の測定誤差を設定していることや Ca の測定誤差が比較的大きい点は同じであるが、環境省調査の方が炭素成分や V の測定誤差が小さく設定されている。

表 5.2-1(1) CMB 解析で使用する環境濃度測定値と誤差(PM2.5)

	大黒海づり公園				中区加曾台			
	3日目		6日目		3日目		6日目	
	測定値 ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	誤差 (%)						
TC	7.83	20	9.09	20	8.12	20	8.15	20
Na	0.15	10	0.25	10	0.24	10	0.17	10
Al	0.18	11	0.47	10	0.37	10	0.27	10
K	0.09	14	0.15	10	0.15	10	0.15	10
Ca	0.19	29	0.70	10	0.57	10	0.27	20
V	0.021	10	0.049	10	0.014	10	0.029	10
Fe	0.11	13	0.09	16	0.14	10	0.13	11
Mn	0.0063	10	0.0073	10	0.0099	10	0.0079	10
Zn	0.026	10	0.042	10	0.031	10	0.043	10
As	0.00057	10	0.00120	10	0.00079	10	0.00101	10
Ni	0.0084	10	0.0163	10	0.0043	10	0.0105	10
W	0.00011	100	0.00011	100	0.00011	100	0.00038	29

表 5.2-1(2) CMB解析で使用する環境濃度測定値と誤差(SPM)

	大黒海づり公園				中区加曾台			
	3日目		6日目		3日目		6日目	
	測定値 ($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)	誤差 (%)						
TC	7.98	20	9.93	20	7.73	20	8.57	20
Na	1.62	10	2.15	10	1.93	10	1.86	10
Al	0.33	11	0.66	10	0.23	15	0.55	10
K	0.16	12	0.11	18	0.16	11	0.12	15
Ca	0.53	10	0.89	10	0.35	14	1.00	10
V	0.025	10	0.029	10	0.011	10	0.019	10
Fe	0.35	10	0.10	10	0.40	10	0.17	10
Mn	0.0126	10	0.0053	10	0.0135	10	0.0067	10
Zn	0.033	10	0.037	10	0.033	10	0.038	10
As	0.00062	10	0.00066	10	0.00076	10	0.00069	10
Ni	0.0081	10	0.0279	10	0.0052	16	0.0123	10
W	0.00019	18	0.000098	39	0.00017	18	0.00036	10

(4) 解析に用いる成分項目

表 5.1-1に示した発生源別成分組成および表 5.2-1に示した環境濃度の成分組成を用いて、CMB解析に用いる成分項目について検討した。

炭素成分については、ECのみを用いてCMB計算を行ったところ、不明分がかなり多くなることや、発生源寄与率が一般的に考えられている値とかなり異なるなど、妥当な寄与率を求めることができなかつた(表 5.2-2参照)。そこで、発生源プロファイルのEC比と本調査でのECとは分析方法の相違などから直接比較ができると考えられるため、炭素成分については、TC(OC+EC)として検討した。

炭素成分の少なかつた理由として近年の自動車排ガス規制によるディーゼル排気の改善や、分析方法の相違による誤差、測定から分析にかけて生じた誤差などが考えられるが、不明である。

表 5.2-2 CMB 法による発生源別寄与率算定結果(炭素成分を EC として計算した場合)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海づり公園		中区加曾台		大黒海づり公園		中区加曾台	
	3 日目	6 日目	3 日目	6 日目	3 日目	6 日目	3 日目	6 日目
海塩	0.2	1.4	1.3	0.2	10.4	14.0	13.2	12.0
道路堆積物	4.9	5.2	8.3	6.2	13.5	3.0	10.9	7.3
自動車排気	1.6	25.1	21.4	11.8	-0.7	5.2	0.8	-13.6
鉄鋼工業	0.4	0.5	0.5	0.5	0.6	0.3	0.8	0.3
石油系燃焼ボイラー	11.1	-13.6	-6.5	5.2	10.6	11.8	11.8	32.1
廃棄物焼却	1.1	1.7	1.5	1.9	0.8	1.0	0.7	1.2
船舶	-0.9	17.7	6.3	4.1	-1.3	2.2	-3.6	-11.2
不明	81.6	62.1	67.2	70.1	66.1	62.5	65.5	71.9

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

船舶排気PMのカルシウムについては、イオン成分(Ca^{2+})と金属成分(Ca)で測定値の差が大きかったため、 Ca^{2+} とCaとをそれぞれ用いた場合の両者で計算したが、両者の計算結果が大きく変化することはなかった(表 5.2-3参照)。

表 5.2-3(1) CMB 法による発生源別寄与率算定結果(船舶排気の成分組成に Ca を採用)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海釣り公園		中区加曽台		大黒海釣り公園		中区加曽台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
海塩	0.2	1.2	1.3	0.1	10.7	14.8	13.5	12.7
道路堆積物	4.4	4.4	8.1	5.5	13.3	2.3	10.6	6.8
自動車排気	29.5	43.5	41.2	37.2	24.1	41.9	22.7	28.1
鉄鋼工業	0.3	0.4	0.4	0.5	0.5	0.3	0.7	0.2
石油系燃焼ボイラー	14.5	-4.0	-5.0	12.2	11.5	14.5	12.5	34.3
廃棄物焼却	0.9	1.6	1.4	1.8	0.6	0.6	0.5	0.8
船舶	-2.8	12.2	5.5	0.2	-1.9	0.8	-4.0	-12.4
不明	52.9	40.6	47.0	42.6	41.1	24.7	43.4	29.5

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

表 5.2-3(2) CMB 法による発生源別寄与率算定結果(船舶排気の成分組成に Ca^{2+} を採用)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海釣り公園		中区加曽台		大黒海釣り公園		中区加曽台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
海塩	0.3	1.7	1.5	0.3	10.7	14.7	13.6	12.8
道路堆積物	4.5	4.9	8.1	5.6	13.4	2.6	10.9	7.2
自動車排気	31.0	51.0	43.5	40.0	25.4	44.7	23.2	31.0
鉄鋼工業	0.3	0.5	0.5	0.5	0.5	0.3	0.7	0.2
石油系燃焼ボイラー	11.5	-22.2	-10.9	6.0	8.8	8.4	11.7	28.5
廃棄物焼却	0.9	1.6	1.4	1.8	0.7	0.7	0.5	0.9
船舶	-1.1	22.6	8.8	3.7	-0.3	4.2	-3.6	-9.3
不明	52.6	39.8	47.1	42.2	40.9	24.4	42.9	28.7

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

(5) 石油系燃焼ボイラーと船舶の寄与算定について

炭素成分をTC(OC+EC)として検討した時のCMB解析の結果を表 5.2-4に示す。この結果では、石油系燃焼ボイラーや船舶の寄与にマイナスの寄与が算定される場合があり、石油系燃焼ボイラーと船舶の寄与が地点や時期の違いでばらつきが大きく、石油系燃焼ボイラーと船舶の寄与の分離が不明確であった。これは、クラスター分析結果でもみられたように石油系燃焼ボイラーと船舶の成分組成が類似しているためと考えられる。

表 5.2-4 CMB 法による発生源別寄与率算定結果(石油系燃焼ボイラーと船舶の成分組成を用いた場合)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海釣り公園		中区加曽台		大黒海釣り公園		中区加曽台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
海塩	0.2	1.2	1.3	0.1	10.7	14.8	13.5	12.7
道路堆積物	4.4	4.4	8.1	5.5	13.3	2.3	10.6	6.8
自動車排気	29.5	43.5	41.2	37.2	24.1	41.9	22.7	28.1
鉄鋼工業	0.3	0.4	0.4	0.5	0.5	0.3	0.7	0.2
石油系燃焼ボイラー	14.5	-4.0	-5.0	12.2	11.5	14.5	12.5	34.3
廃棄物焼却	0.9	1.6	1.4	1.8	0.6	0.6	0.5	0.8
船舶	-2.8	12.2	5.5	0.2	-1.9	0.8	-4.0	-12.4
不明	52.9	40.6	47.0	42.6	41.1	24.7	43.4	29.5

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

そこで、石油系燃焼ボイラーと船舶のいずれかの発生源を外しCMB計算を行った。つまり、石油系燃焼ボイラーと船舶とを分離せず、いずれかひとつの発生源として計算した。その結果は表 5.2-5、および表 5.2-6に示すとおりである。

結果を見ると、石油系燃焼ボイラーと船舶以外の寄与率は、自動車排気を除いて大きな変動はなく、船舶を除いた場合の石油系燃焼ボイラーの寄与率(4~17 %)は、石油系燃焼ボイラーを除いた場合の船舶の寄与率(2~10 %)よりも常に大きくなっていた。

そこで、ここでは石油系燃焼ボイラーを除いたときの船舶の寄与率をそのまま船舶の寄与率とし、石油系燃焼ボイラーの寄与率は船舶を除いて計算した石油系燃焼ボイラーの寄与率からこの船舶の寄与率を差し引いた値とした。

なお、海塩、道路堆積物、自動車排ガス、鉄鋼工業、廃棄物焼却のそれぞれの寄与は、船舶を除き算定した表 5.2-5のものを採用した。

表 5.2-5 CMB 法による発生源別寄与率算定結果(石油系燃焼ボイラーを用いた計算ケース)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海釣り公園		中区加曽台		大黒海釣り公園		中区加曽台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
海塩	0.4	0.6	1.1	0.2	11.1	14.9	14.2	13.8
道路堆積物	4.6	3.6	7.9	5.6	13.2	2.2	10.6	7.9
自動車排気	29.6	33.5	34.8	35.5	25.5	41.3	26.2	39.0
鉄鋼工業	0.3	0.3	0.3	0.4	0.5	0.3	0.8	0.3
石油系燃焼ボイラー	8.9	16.6	4.4	11.6	7.8	15.8	4.5	10.0
廃棄物焼却	0.8	1.5	1.3	1.7	0.5	0.6	0.4	0.6
船舶	—	—	—	—	—	—	—	—
不明	55.3	43.9	50.1	45.0	41.4	24.9	43.4	28.3

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

表 5.2-6 CMB 法による発生源別寄与率算定結果(船舶を用いた計算ケース)

単位 : %

	PM2.5				SPM			
	大黒海釣り公園		中区加曽台		大黒海釣り公園		中区加曽台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
海塩	0.7	1.1	1.2	0.5	11.4	15.3	14.4	14.1
道路堆積物	4.9	4.4	8.1	6.1	13.4	3.1	10.6	8.4
自動車排気	33.3	40.3	36.6	40.4	28.7	48.6	28.2	43.7
鉄鋼工業	0.3	0.4	0.4	0.4	0.6	0.3	0.8	0.3
石油系燃焼ボイラー	—	—	—	—	—	—	—	—
廃棄物焼却	0.8	1.5	1.3	1.6	0.4	0.6	0.4	0.6
船舶	4.9	9.8	2.5	6.6	4.4	8.0	2.3	5.2
不明	55.0	42.6	49.9	44.3	41.1	24.1	43.4	27.7

注) CMB 法による解析寄与率算定は、重み付き最小二乗法を用いた。

(6) 推計結果

CMB解析と前述の仮定によって、推計した発生源別寄与を表 5.2-7から表 5.2-8、図 5.2-1から図 5.2-2に示す。前述のように、船舶と石油系燃焼ボイラーとの区別は明確になされておらず、正確なCMB計算とはなっていないが、ここでは参考値として示した。

(a) PM2.5 の推計結果

船舶による寄与は、大黒海づり公園で 5 %～10 %弱、中区加曽台では 2 %強～7 %弱となつておらず、大黒海づり公園での寄与が中区加曽台に比べて多くなっていた。大黒海づり公園が船舶の影響をより大きく受けていることを示唆している。

石油系燃焼ボイラーの寄与は、2～7 %程度であり、結果として船舶の寄与よりも少なめに計算された。

海塩の寄与は大黒海づり公園、中区加曽台とも 0～1 %程度であり、非常に低い。後述する環境省の事例でも、微小粒子(<2.1 μm)における寄与が 0～0.2 %であり、海塩粒子が 2.5 μm 以上で存在していることを示唆している。

自動車排ガスの寄与は、30 %弱から 35 %程度であり、今回検討に利用した発生源の中で最も寄与率が高くなっている。

(b) SPM の推計結果

船舶による寄与は、大黒海づり公園で 4 %強～8 %程度、中区加曽台では 2 %強～5 %強となつておらず、PM2.5 と同様に大黒海づり公園での寄与が中区加曽台に比べて多くなっていた。

石油系燃焼ボイラーの寄与は、2～8 %程度であり、結果として船舶の寄与とほぼ同等であった。

海塩の寄与は大黒海づり公園、中区加曽台とも 11～15 %程度あり、PM2.5 の寄与割合よりも多い。

自動車排ガスの寄与は、25 %強から 40 %強であり、PM2.5 と同様に今回検討に利用した発生源の中で最も寄与率が高くなっている。一般的に自動車排気の影響を強く受けていない地点と強く受けている地点の大気測定では、自動車排気の SPM 寄与はそれぞれ 30 %程度と 50 %程度といわれている注)。大黒海づり公園、中区加曽台とも自動車排気の影響を比較的受け易い地点であることを考慮すると、本調査結果はほぼ妥当な値であると考えられる。

注) 出典：今後の自動車排出ガス総合対策中間報告(2005 年 12 月、環境省)等

なお、鉄鋼工業、廃棄物焼却、石油系燃焼ボイラーのプロファイルは、20 数年前の既存資料を用いている。特に、石油系燃焼ボイラーのプロファイルは A、B、C 重油燃焼を併せたものであり、現在の A 重油燃焼がほとんどである状況とは異なっていると考えられる。また、船舶プロファイルは、本調査における船舶排ガス調査の結果を用いているが、コンテナ船一隻の調査であるため、大きな誤差を含んでいる可能性がある。発生源プロファイルについて今後さらに検討することが必要と思われる。

表 5.2-7 発生源別寄与算定結果(PM2.5) (参考)

	寄与濃度($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)				寄与率(%)			
	大黒海釣り公園		中区加曾台		大黒海釣り公園		中区加曾台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
質量濃度	39.3	42.4	38.3	37.9	100	100	100	100
海塩	0.16	0.26	0.41	0.06	0.4	0.6	1.1	0.2
道路堆積物	1.82	1.51	3.04	2.14	4.6	3.6	7.9	5.6
自動車排気	11.65	14.20	13.35	13.47	29.6	33.5	34.8	35.5
鉄鋼工業	0.13	0.15	0.13	0.16	0.3	0.3	0.3	0.4
石油系燃焼ボイラー	1.55	2.87	0.71	1.89	3.9	6.8	1.9	5.0
廃棄物焼却	0.32	0.65	0.50	0.63	0.8	1.5	1.3	1.7
船舶	1.94	4.15	0.97	2.51	4.9	9.8	2.5	6.6
不明	21.7	18.6	19.2	17.0	55.3	43.9	50.1	45.0

注) CMB 法による解析寄与率算定は、最小二乗法を用いた。

表 5.2-8 発生源別寄与算定結果(SPM) (参考)

	寄与濃度($10^{-6}\text{g}/\text{m}^3$)				寄与率(%)			
	大黒海釣り公園		中区加曾台		大黒海釣り公園		中区加曾台	
	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目	3日目	6日目
質量濃度	45.0	45.6	43.4	41.2	100	100	100	100
海塩	5.01	6.78	6.16	5.69	11.1	14.9	14.2	13.8
道路堆積物	5.95	1.02	4.59	3.25	13.2	2.2	10.6	7.9
自動車排気	11.45	18.84	11.36	16.08	25.5	41.3	26.2	39.0
鉄鋼工業	0.24	0.13	0.34	0.11	0.5	0.3	0.8	0.3
石油系燃焼ボイラー	1.51	3.53	0.95	1.98	3.4	7.7	2.2	4.8
廃棄物焼却	0.21	0.28	0.16	0.27	0.5	0.6	0.4	0.6
船舶	1.98	3.67	1.00	2.14	4.4	8.0	2.3	5.2
不明	18.6	11.4	18.8	11.7	41.4	24.9	43.4	28.3

注) CMB 法による解析寄与率算定は、最小二乗法を用いた。

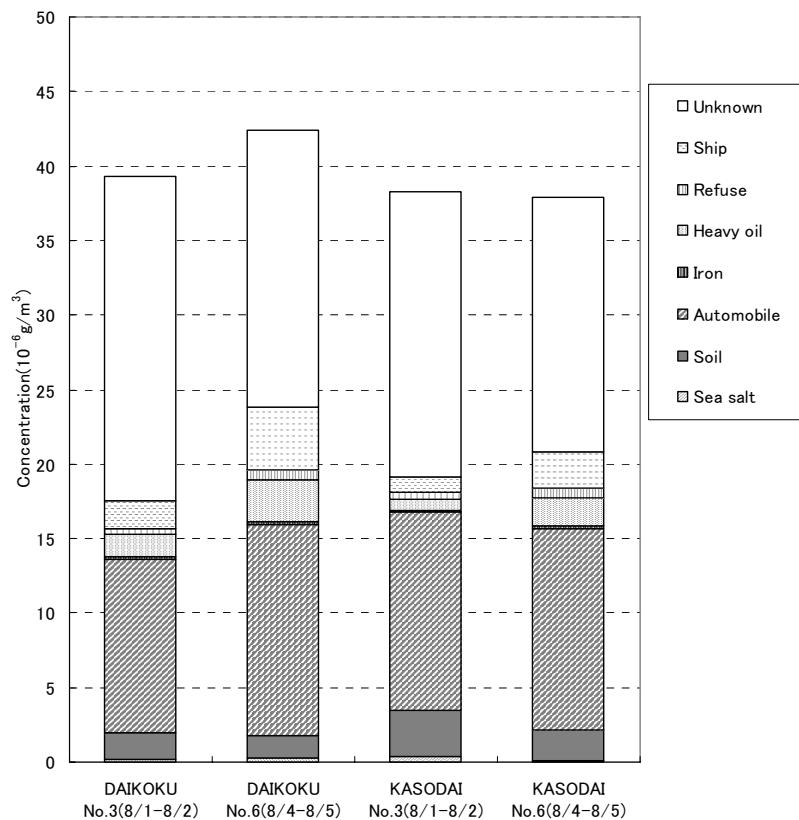


図 5.2-1 発生源別の PM2.5 寄与濃度 (参考)

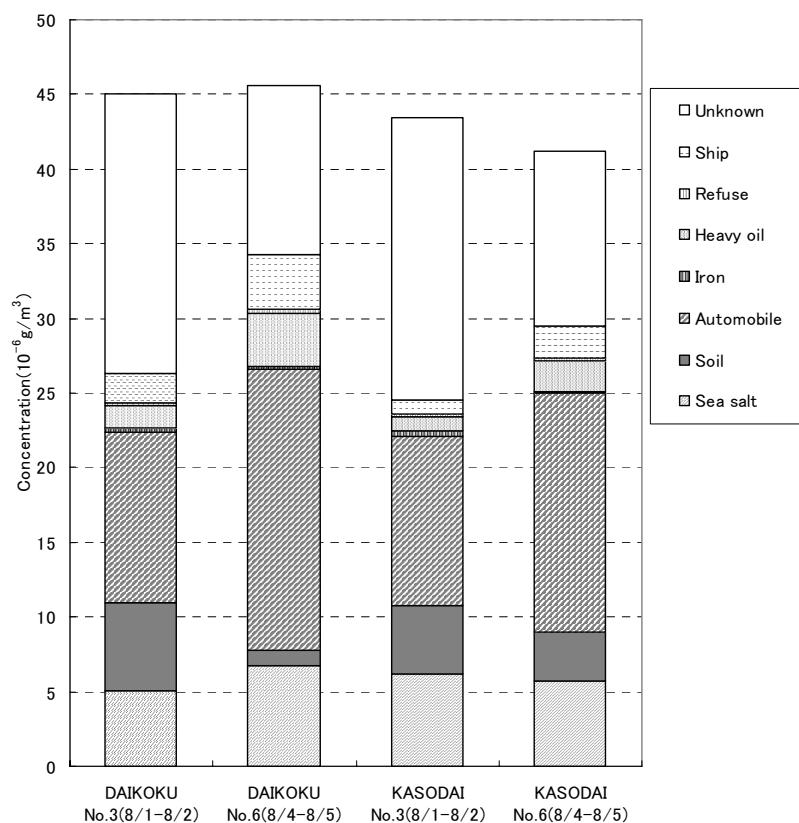


図 5.2-2 発生源別の SPM 寄与濃度 (参考)

5.3 環境省調査結果との比較

環境省が平成 13 年度の夏季に関東地方で大気調査とCMB解析を実施しているため、本調査結果を環境省調査結果との比較を行った。図 5.4-2～図 3.3-1はその結果である。

環境省調査結果では自排局周辺で測定しているため自動車排気からの寄与が 50 %以上と圧倒的に多くなっており、次いで二次粒子の寄与である。本調査は自動車排気の影響を強く受けた場所での調査ではないため、自動車排気の寄与は 25 %～40 %程度で、環境省調査結果に比べるとやや少なっている。

なお、環境省が実施した CMB の解析では、実測濃度値から一次粒子として説明される部分を除いた有機炭素とイオン成分の合計を二次粒子として示している。これに対して本調査結果ではイオン成分の一次粒子としての寄与を分離せず、二次粒子を含めて不明分として示している。船舶からの排ガスには SOx が多く含まれ、二次粒子の寄与が大きいと考えられるため、二次粒子を含めた船舶の影響を明らかにすることが重要である。

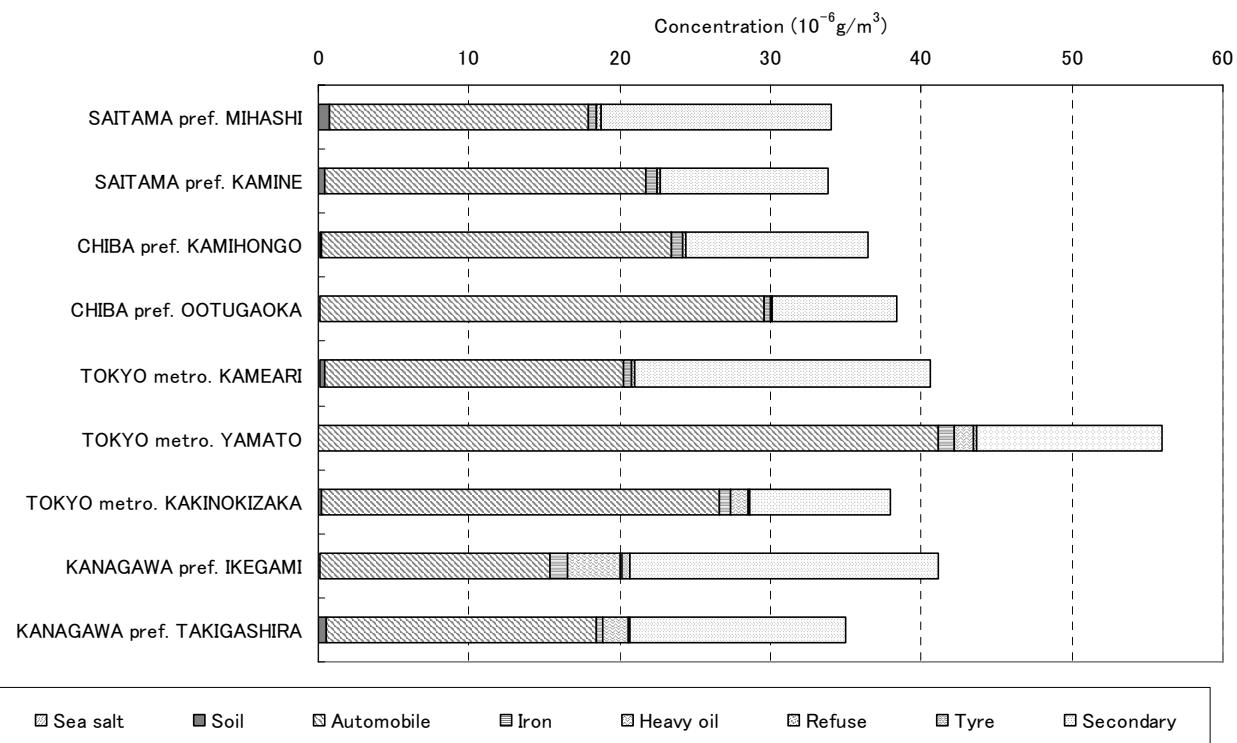
5.4 石炭燃焼を考慮した CMB 解析

これまでの CMB 解析では、船舶と石油系燃焼ボイラーとの区別は明確になされておらず、正確な CMB 計算とはなっていなかった。

そこで、「5.1 (3) 石炭火力発電所の排出PM成分組成の検討」で示したように、横浜市内で稼動している石炭火力発電所からのPM排出量は、神奈川県全体の排出量の 7 %程度であり、他の発生源と比較して無視できないと考えられること、また、クラスター分析結果から石炭火力の発生源組成は、土壤にやや類似しているものの石油燃焼発生源や船舶発生源とは区別できる可能性があることから、石炭火力を考慮したCMB解析を実施することが考えられた。

しかし、以下に掲げる理由により本調査においては、石炭火力を加えた CMB 解析までは実施せず、今後の課題に留めた。

- ・石炭燃焼による PM 排出は、発生源が高煙突であるため、地上付近での濃度寄与割合はかなり小さくなることが考えられる。
- ・本調査で得られている「石炭焚きボイラー」の成分組成は、1988 年頃に横浜市が調査したもので、現在排ガス対策が進んでいる石炭火力発電所からの PM の成分組成と一致しない可能性がある。
- ・石炭燃焼の寄与割合は、ここまで CMB 解析では土壤、石油系燃焼、その他不明分などに含まれていると考えられるが、誤差が大きく、数 %の寄与分について明確に分離することが困難と考えられる。
- ・石炭燃焼には、横浜市内の石炭火力発電所だけでなく、寄与割合は小さいかもしれないが他の石炭燃焼発生源からの影響も考えられる。石炭燃焼の寄与割合を解析し石炭火力発電所と特定することは、船舶からの発生源寄与を特定することを目的とした本調査の趣旨とは若干異なり、誤解を招くおそれがある。



出典：「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査 調査報告書」(2001年11月、環境省環境管理局)

注：環境省調査の測定時期：平成13年8月20日～29日のうちの7日間、対象：微小粒子(<2.1 μm)

出典の環境省調査は、図3.2-11～図3.2-12の環境省調査とは調査年度、調査地点、調査期間が異なる。

図 5.4-1 CMB 解析事例(発生源別の寄与濃度)

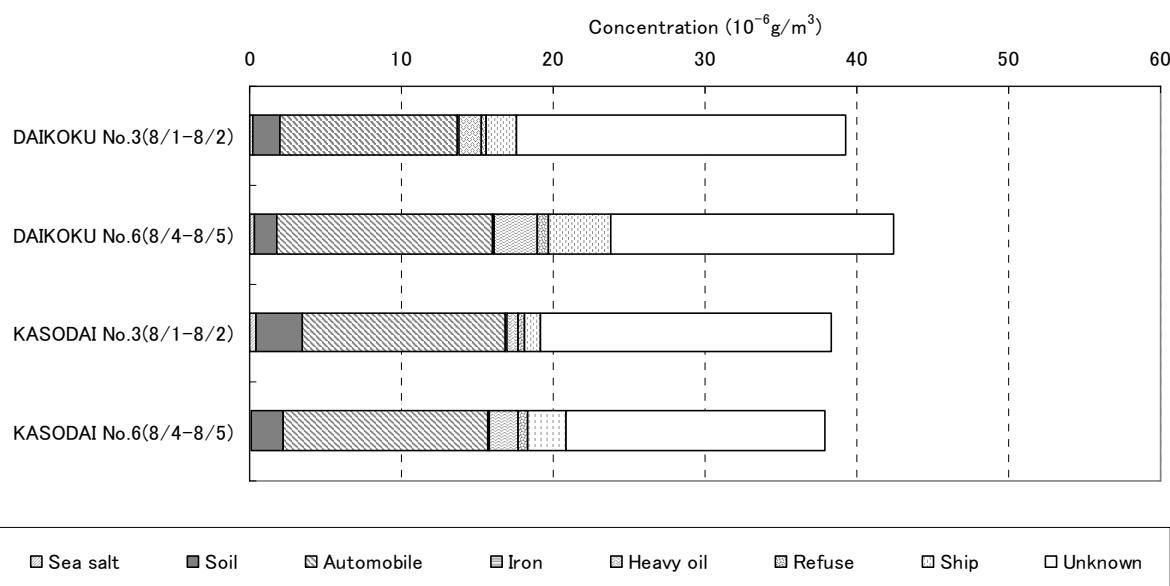
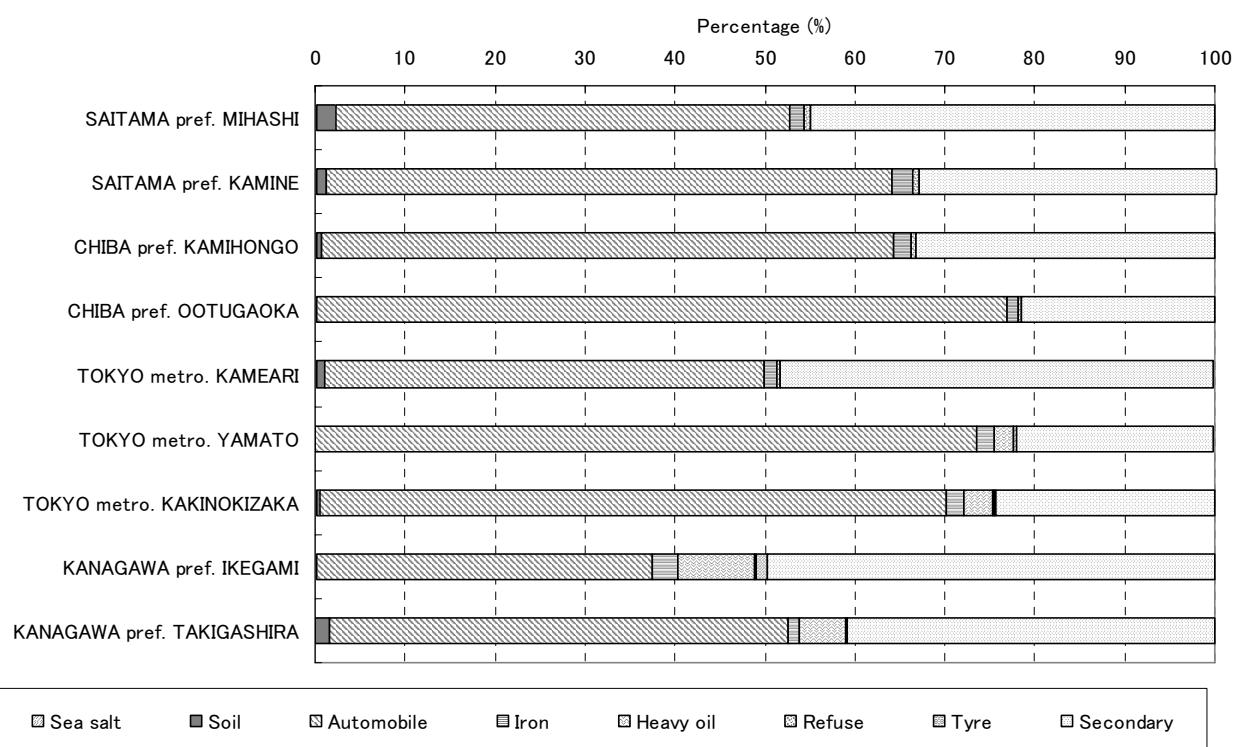


図 5.4-2 本調査のCMB解析結果(PM2.5発生源別の寄与濃度)



出典：「粒子状物質総量削減計画に係る粒子状物質実態調査 調査報告書」(2001年11月、環境省環境管理局)

注：環境省調査の測定時期：平成13年8月20日～29日のうちの7日間、対象：微小粒子(<2.1 μm)

出典の環境省調査は、図3.2-11～図3.2-12の環境省調査とは調査年度、調査地点、調査期間が異なる。

図 5.4-3 CMB 解析事例(発生源別の寄与率)

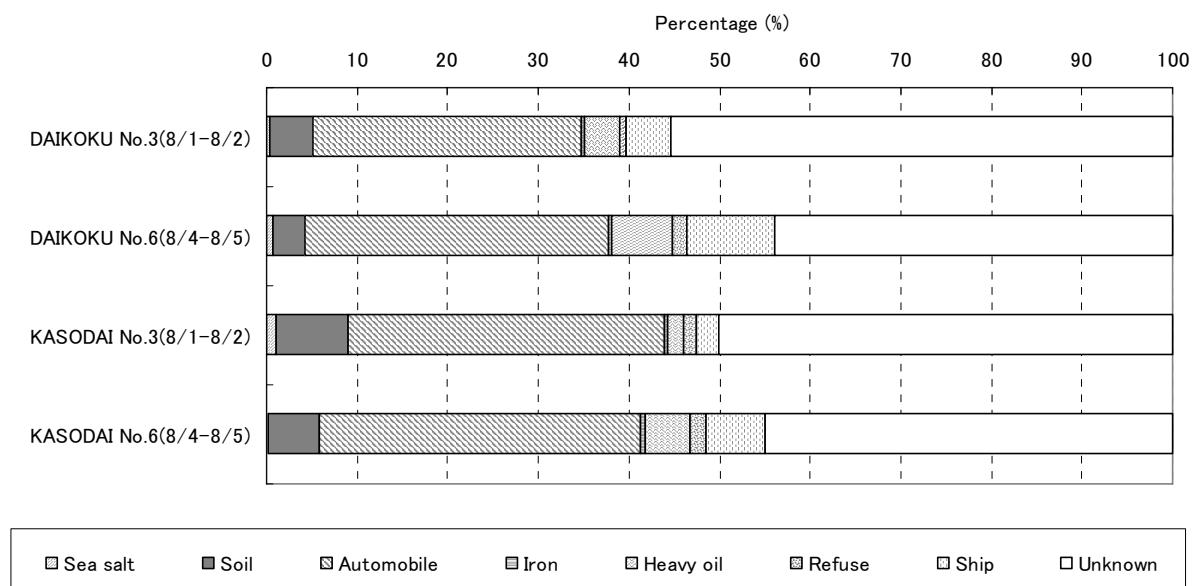


図 5.4-4 本調査のCMB解析結果(PM2.5 発生源別の寄与率)

6. 今後の検討課題

本年度調査は、横浜港周辺 2 地点における PM 現地調査と船舶排気 PM の調査を行い、それに基づいて発生源寄与率の試算を行った。しかしながら、環境大気中の PM 調査結果では、潮解現象が分析結果に影響していると考えられることや、一部のデータで既存調査結果との差が大きいなど、測定から分析の段階での作業を再確認する必要があると考えられものがあった。また発生源別成分組成において、石油燃焼系ボイラーと船舶との区別を統計学的につけることが出来なかった。

このように、本調査結果では分析方法や、発生源情報の収集・解析などで再検討を行う必要のある項目があり、今後継続して検討していく必要がある。

(1) 横浜港周辺における夏季の PM 再調査

測定手法から分析手法まで再精査し、現地調査結果の再確認を行う。これによって今年度調査結果の妥当性を確認するとともに、本年度以上に正確な PM の船舶寄与算定を目指す。

実施に際しては今年度調査結果を踏まえ、調査地点、調査方法等について精査・再検討を行う。

(2) 船舶起源の PM 成分組成の調査の継続

本調査によって使用した船舶からの発生源プロファイルの精度向上を図り、CMB 解析における船舶からの発生源寄与率計算結果の精度向上を目指し、さらに 2 隻程度で船舶排ガス調査を実施する。

(3) 既存資料の収集

発生源の成分組成については、特に石油系燃焼ボイラーの油種が本調査で使用したプロファイルよりも質の高いものに変化している可能性があり、新たな成分組成を設定することによって船舶発生源の成分組成との差を明確にできる可能性があると考えられる。このため、引き続き石油系燃焼ボイラーの発生源の成分組成について既存資料の収集に努めていく。

また、船舶排気データ情報の収集・整理、CMB 解析結果情報の収集・整理などについても来年度実施し、石炭燃焼の発生源の検討も含めて CMB 解析結果の精度向上に努める。

(4) 二次粒子についての検討

船舶からの排ガスには SOx が多く含まれ、二次粒子の寄与が大きいと考えられるため、二次粒子を含めた船舶の影響を明らかにすることが重要である。CMB 法は一次粒子の寄与を推定する手法であり、港湾近傍での船舶による二次粒子の影響を把握することが今後の検討課題である。

用語・略語集

用語	説明
CMB 法	「リセプターモデル」参照
CMAQ	CMAQ(Community Multiscale Air Quality model)は、アメリカ環境保護庁(EPA)が1998年に発表した大気シミュレーションモデルで、大気中の様々な大気汚染物質を、汚染物質相互の影響も含めて同時に取扱うことが可能である。モデル内では、物質の輸送・拡散過程に加えて、ガス状物質同士の相互反応や光による反応を取り扱う気相反応過程、ガス状物質から二次粒子へ生成過程を取り扱うエアロゾル過程、雲中の雨滴内や雨滴とガス状物質との反応を取り扱う液相反応過程などの化学反応過程と、ガスや粒子が大気から地上へと沈着する乾性沈着過程や降水によってガスや粒子が大気から地上へと沈着する湿性沈着過程などの物理過程を含めて取り扱っている。広域での大気汚染シミュレーションが可能なモデルである。なお、今回用いたバージョンの CMAQ では、SOx・NOx と海塩粒子の反応は取り扱っていない。
DMS	dimethylsulfide の略であり、ジメチルサルファイド、硫化ジメチルともいう。主に海洋表層の微生物／植物プランクトンによって作られ、大気中で酸化されて硫酸塩となる。
IMO	International Maritime Organization の略であり、国際海事機関のこと。IMOは船舶の安全及び船舶からの海洋汚染の防止等、海事問題に関する国際協力を促進するための国連の専門機関として、1958年に設立された。国際貿易に従事する海運に影響のあるすべての種類の技術的事項に関する政府の規則及び慣行について、政府間の協力のための機構となり、政府による差別的措置及び不必要的制限の除去を奨励し、海上の安全、能率的な船舶の運航、海洋汚染の防止に関し最も有効な措置の勧告等を行うことを目的としている。
NMHC	Non-Methane hydrocarbons : 非メタン炭化水素。メタンを除くガス状の炭化水素類のことである。大気中で光化学反応することで、PM、光化学オキシダントの生成原因となる。
OH ラジカル	水分子から一つ水素原子が分離して酸素原子一つと水素原子一つから成る構造をしており、他の物質と反応しやすく、SO ₂ ガスを HSO ₃ に、NO ₂ ガスを HNO ₃ ガスに変換させる。OH ラジカルによって変換した HSO ₃ は、SO ₃ を経由して粒子状の硫酸ミスト・硫酸塩となる。HNO ₃ は、NH ₃ などと反応して硝酸塩となる。
PM	Particulate Matter の略であり、粒子状物質のこと。大気中に固体または液体の形で浮遊する微小な粒子をいう。
PM _{2.5}	大気環境中に浮遊する PM のうち、おおむね粒径 2.5 mm 以下の粒子のこと。米国、カナダ、オーストラリアなどの基準値となっており、WHO からも指針値が示されている。
PM ₁₀ 、SPM	大気環境中に浮遊する PM のうち、おおむね粒径 10 mm 以下の粒子のこと。日本では SPM (Suspended Particulate Matter : 浮遊粒子状物質) として環境基準が設定されている。
RAMS	RAMS(Regional Atmospheric Modeling System)は、コロラド州立大学で開発された 3 次元気象モデルであり、温度、水蒸気、風速・風向、降水、降雪、雲などの気象成分の時間変化をシミュレートできるモデルである。
TSP	大気環境中に浮遊する全 PM(Total Suspended Particulates)のこと
VOC	Volatile Organic Compounds の略であり、揮発性有機化合物のこと。常温常圧で空气中に容易に揮発する物質の総称で、主に人工合成されたものを指す。大気中に放出され、光化学反応によってオキシダントや SPM (浮遊粒子状物質) の発生に関与していると考えられている。炭化水素(系物質)を主とするが、C,H 以外の元素が入っているものも含むため、炭化水素類(HC)より概念的には広い。
WHO	World Health Organization の略であり、世界保健機関のこと。健康を基本的人権のひとつととらえ、その達成を目的として 1948 年に設立された国連の専門機関。主な活動内容は、人の健康に関する情報の提供やガイドライン値の設定、多国間協力の推進、災害時緊急対策、感染症対策などである。
一次粒子	粒子状物質は、生成機構の違いから一次粒子と二次粒子に区分できる。一次粒子は、発生源から大気中に粒子として直接排出される粒子であり、ディーゼルエンジンから排出される粒子や、自然起源の海塩粒子、土壤粒子などがこれに含まれる。

用語	説明
環境基準	環境基本法（1993）の第16条に基づいて、政府が定める環境保全行政上の目標。人の健康を保護し、及び、生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準。大気汚染に係る環境基準が定められている項目としては、二酸化硫黄、二酸化窒素、浮遊粒子状物質（SPM）、一酸化炭素、光化学オキシダントのほか、有害大気汚染物質としてベンゼン等がある。
乾性沈着	重力による沈降や拡散、地表面への衝突などにより、大気中から大気汚染物質が除去される過程のこと。一定時間内に乾性沈着により大気から除去される量を乾性沈着速度という。
気相反応	「CMAQ」参照
クラスター分析	クラスター分析は、対象となるデータ群を数学的に類似しているサンプル同士で順次グループニングする方法の総称である。クラスター分析の結果は、データ群の類似性を視覚的に示すデンドログラム（樹形図）として表現される。
自動車 NOx・PM 法	正式名称は「自動車から排出される窒素酸化物および粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法」。平成4年にNOxのみを対象（いわゆる「自動車NOx法」）として制定されたが、平成13年にPMを追加し自動車NOx・PM法として制定された。
湿性沈着	酸性雨のように、大気汚染物質が降水に取り込まれたのちに地表に降下すること。
粗大粒子	大気中を浮遊する粒子状物質のうち、おおむね粒径2~10 μmの粒子をいう。主として機械的な力により飛散した土壤粒子や海塩粒子などの自然起源の一次粒子からなる。
短期的評価	環境基準が1時間値や1日平均値で定められている項目について、測定を行った日または時間について評価を行うこと。
超微小粒子	おおむね0.1 μm以下の粒子。ナノ粒子あるいはPM0.1とも呼ばれ、近年になって、健康影響の面から注目されている。
潮解（ちょうかい）	大気の湿度が高い時、大気中の水蒸気圧が粒子表面の飽和水蒸気圧より大きくなり、粒子が大気中の水（気体）をとりこむ現象のこと。
ナノ粒子	「超微小粒子」参照
二次粒子	粒子状物質は、生成機構の違いから一次粒子と二次粒子に区分できる。二次粒子は、発生源から大気中にガス状物質として排出されたSOx、NOx、VOC（揮発性有機化合物）から光化学反応などにより生成される。
パックグラウンド濃度	一般にパックグラウンド濃度は、注目している発生源以外の影響によって決定される濃度や自然界にパックグラウンドとして存在している濃度という意味で使用されることが多い。本調査では、船舶排出源の影響に注目しているため、船舶以外の人為起源の発生源と自然起源の発生源からの影響をパックグラウンド濃度と定義した。
微小粒子	大気中を浮遊する粒子状物質のうち、おおむね粒径2 μm以下の粒子をいう。0.1 μm以下を超微小粒子として、区別する場合もある。主として燃焼過程による人為起源の一次粒子や、大気中でガスが粒子化してできる人為起源・自然起源の二次粒子からなる。
ブルームモデル	物質の移流・拡散を解析的に取り扱うモデル。大気質の計算では、大気の状態が定常・一様であると仮定して、大気汚染物質の広がりを計算するモデル。水平方向・鉛直方向の濃度の広がりは正規分布で表される。
ユークリッド距離	データ群の類似性の判定基準はいくつかあるが、取扱が容易なユークリッド距離が良く用いられる。異なるデータ群間で要素の差の2乗和を、その異なるデータ間の距離の指標とするもので、それが近いほど2つのデータ群は類似している指標となる。
リセプターモデル	統計的手法によりPMの発生源寄与を解析する方法であり、リセプターモデルの代表的な手法として、CMB法（Chemical Mass Balance Method；化学質量収支法）がある。CMB法とは、環境中のある地点でPMを採取した場合、採取されたPMが様々な発生源から排出されたPMの合計であることと、発生源が特徴的な成分組成を持つことを利用し、発生源の成分組成と環境中で採取されたPMの成分組成から統計的に発生源別の寄与を推定する方法



この報告書は、競艇交付金による日本財団の助成金を受けて作成しました。

平成18年度

船舶起源の粒子状物質(PM)の環境影響に関する調査研究報告書

平成19年3月発行

発行 海洋政策研究財団（財団法人 シップ・アンド・オーシャン財団）

〒105-0001 東京都港区虎ノ門1-15-16 海洋船舶ビル

TEL 03-3502-1828 FAX 03-3502-2033

<http://www.sof.or.jp>

本書の無断転載、複写、複製を禁じます。

ISBN 978-4-88404-191-5