

日本 VOC及光化学氧化剂、 颗粒物对策

(一般财团法人)日本环境卫生中心
亚洲大气污染研究中心(ACAP)

坂本和彦

今天的內容

1. 前言

2. NO₂、SPM(≡ PM₇):

机动车尾气对策

3. SPM(≡ PM₇)、Ox:

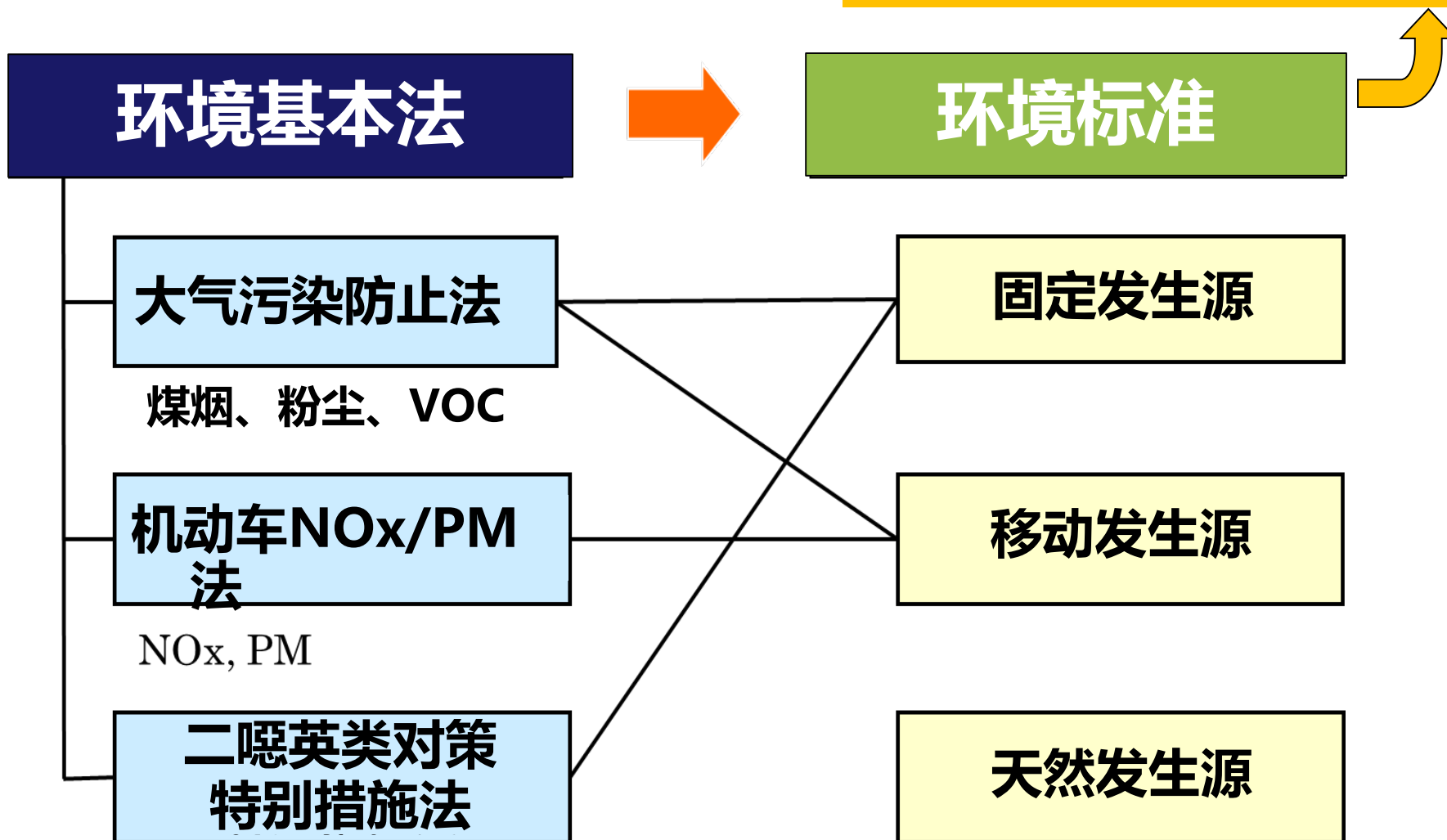
VOC排放控制对策

4. PM_{2.5}:

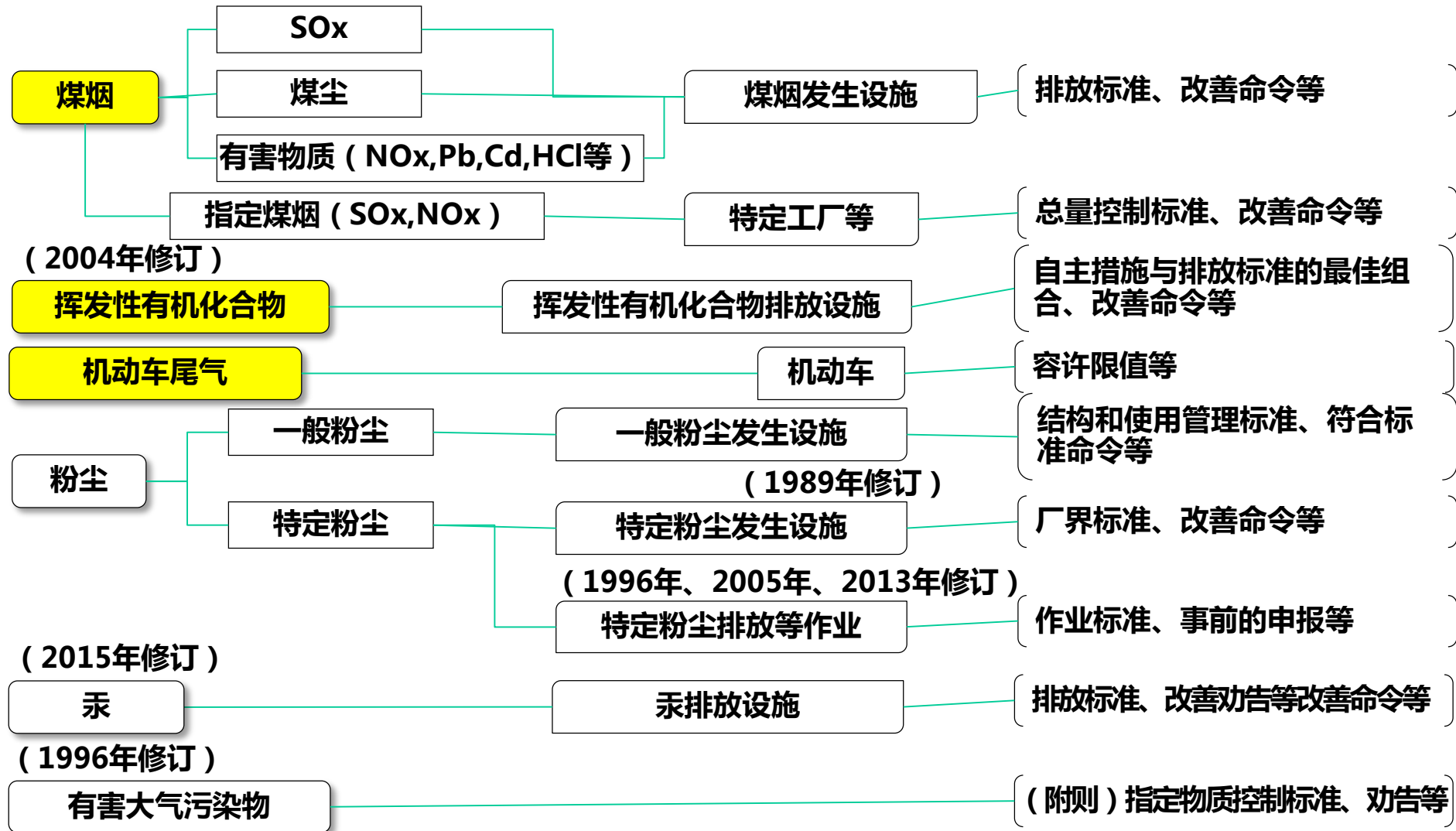
一次颗粒物/前体物的发生源对策

大气环境保护相关的法律限制

大气环境的日常监测



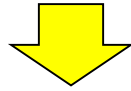
大气污染防治法(1968年)



大气污染情况的监测

环境标准(环境基本法第16条)

政府就大气污染、水污染、土壤污染及噪声相关的环境条件，分别制定保护人体健康和维护生活环境的理想标准。



政府制定“环境标准”为政府希望将大气和水质保护到何种程度的行政目标，并为达到标准采取各种政策和措施。

1. 大气污染相关的环境标准

- ① 1969年 硫氧化物(1973年修改为二氧化硫)(SO₂) 小时值的日均值为0.04ppm以下，且小时值为0.1ppm以下
- ② 1970年 一氧化碳(CO) 小时值的日均值为10ppm以下，且小时值的8小时平均值为20ppm以下
- ③ 1972年 悬浮颗粒物(SPM) 小时值的日均值为0.10mg/m³ 以下，且小时值为0.20mg/m³ 以下
- ④ 1973年 二氧化氮(1978年修订)(NO₂) 小时值的日均值为0.04ppm-0.06ppm的范围内或以下
- ⑤ 1973年 光化学氧化剂(Ox) 小时值为0.06ppm以下，且非甲烷总烃浓度上午6-9时的3小时平均值为0.02ppmC-0.031ppmC的范围内或以下
- ⑥ 2009年 9月 细颗粒物(PM_{2.5}) 年均值：15μg/m³ 日均值：35μg/m³

大气污染物的寿命与输送距离

输送距离 (km) \ 寿命 1秒 ⁻ 10分钟 ⁻ 10分钟 ⁻ 10分钟 ⁻	1秒 ⁻ 10分钟 ⁻	10分钟 ⁻ 数日 ⁻	数日 ⁻ 1~2周 ⁻	2周 ⁻ 数年 ⁻
局地规模 10m ⁻ 1km	粉尘 沙粒			
中小尺度 1 - 数100km		NO, NO ₂ , O ₃ 粗大颗粒物		
跨区域~半球 100 ⁻ 1万km			SO ₂ , NO ₂ , O ₃ 细颗粒物	
半球~地球 1万 ⁻ 数10万km				CO ₂ , CO, COS, CH ₄

今天的內容

1. 前言

2. NO₂、SPM(≡ PM₇):

机动车尾气对策

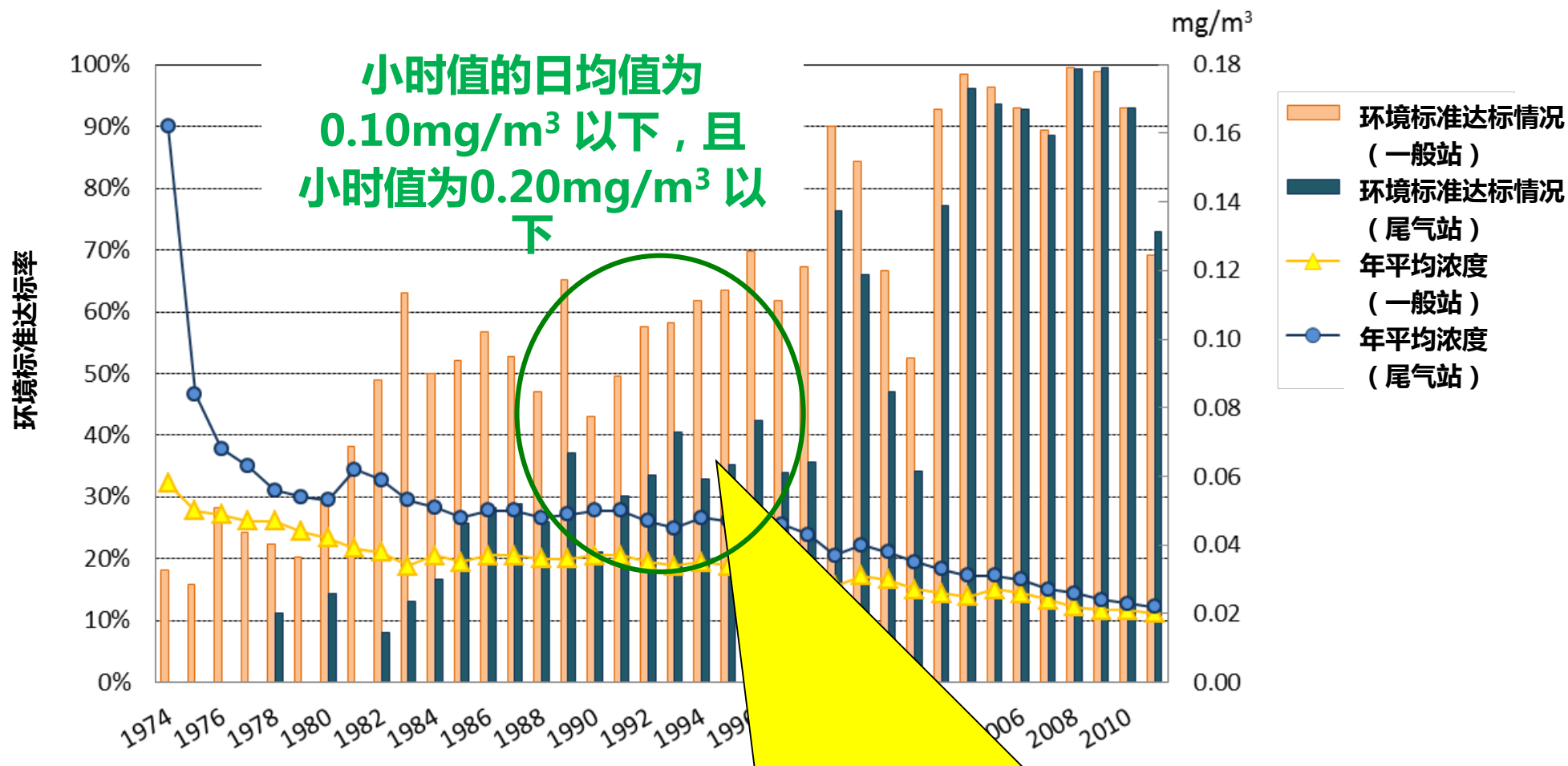
3. SPM(≡ PM₇)、Ox:

VOC排放控制对策

4. PM_{2.5}:

一次颗粒物/前体物的发生源对策

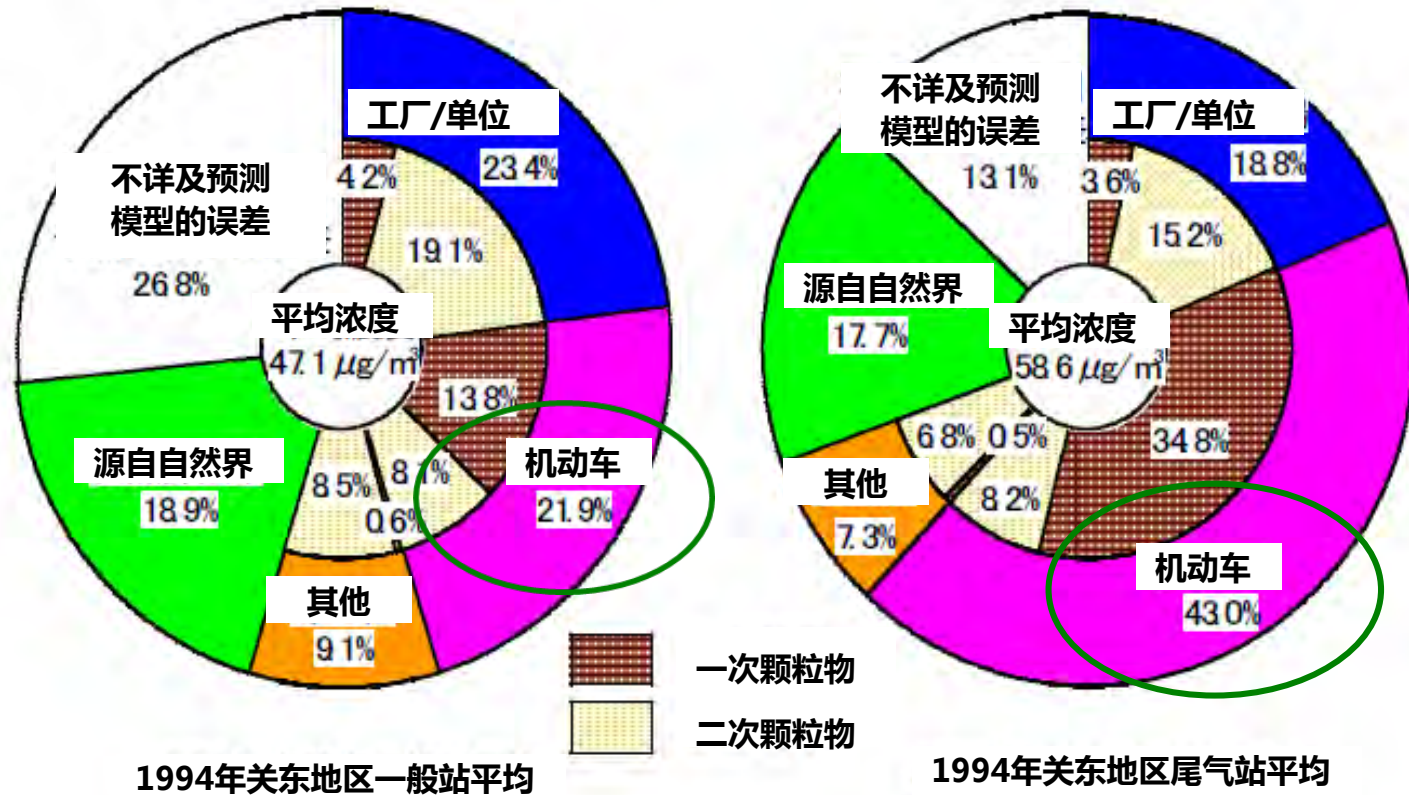
大气中浓度的推移(SPM \equiv PM₇)



**1990年代环境标准达标率较低，
尤以机动车尾气监测站更低。**

SPM(≡ PM₇)(1994)不同发生源贡献浓度比例

例 出处：摘自环境省环境管理局《2004年度结果报告书》



大多源自货车(87%)、大客车(6%)(柴油车)

⇒ 加强柴油车尾气排放控制的必要性

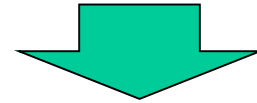
机动车单车限制

< 新车尾气排放单车限制机制 >

环境省

大气污染防治法 第19条

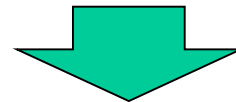
机动车尾气排放的容许限值



道路运送车辆法

国土交通省

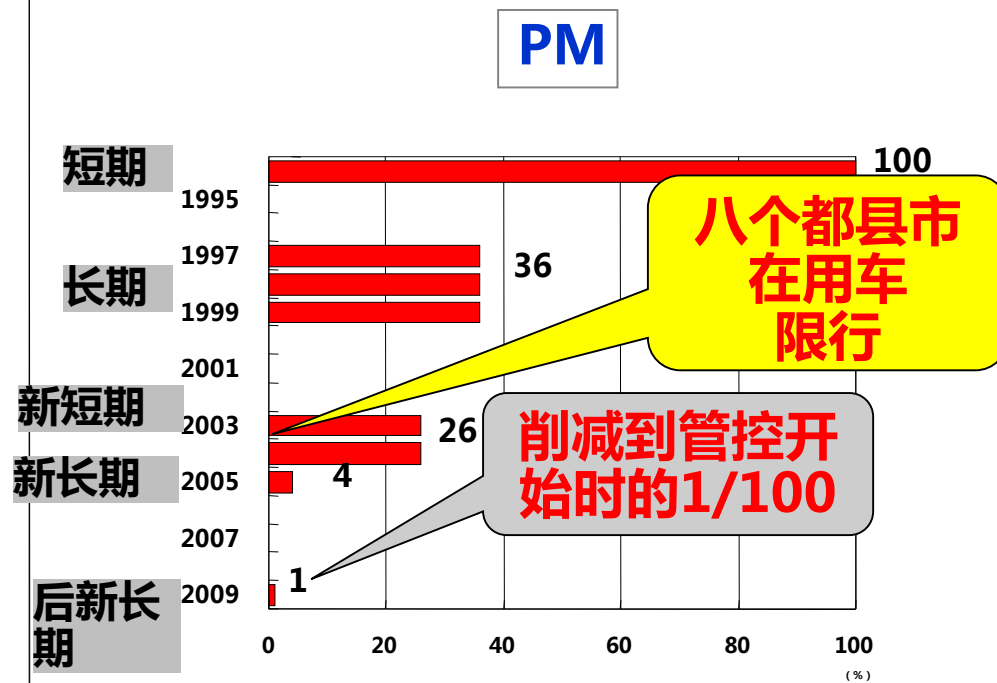
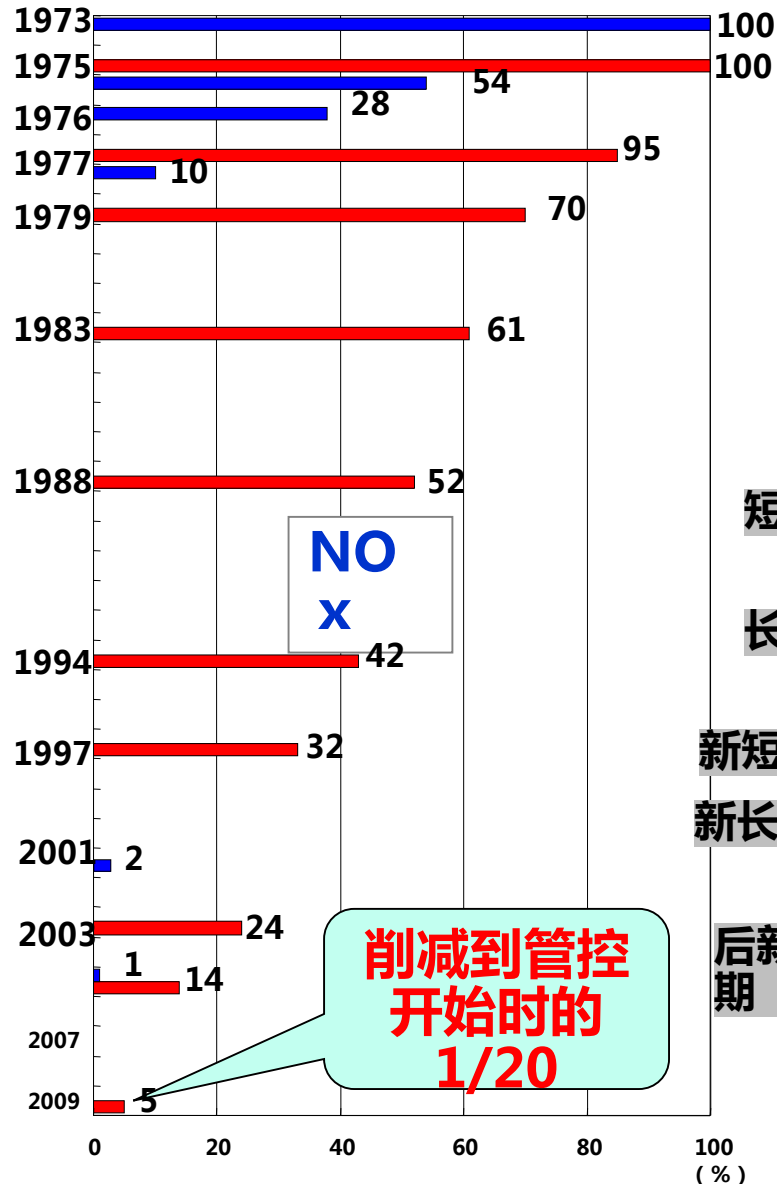
以安全标准对机动车尾气排放的标准作出规定。



不符合标准的不予新车登记注册。

2010年以前的新车尾气排放单体限制

< 限值的推移 >

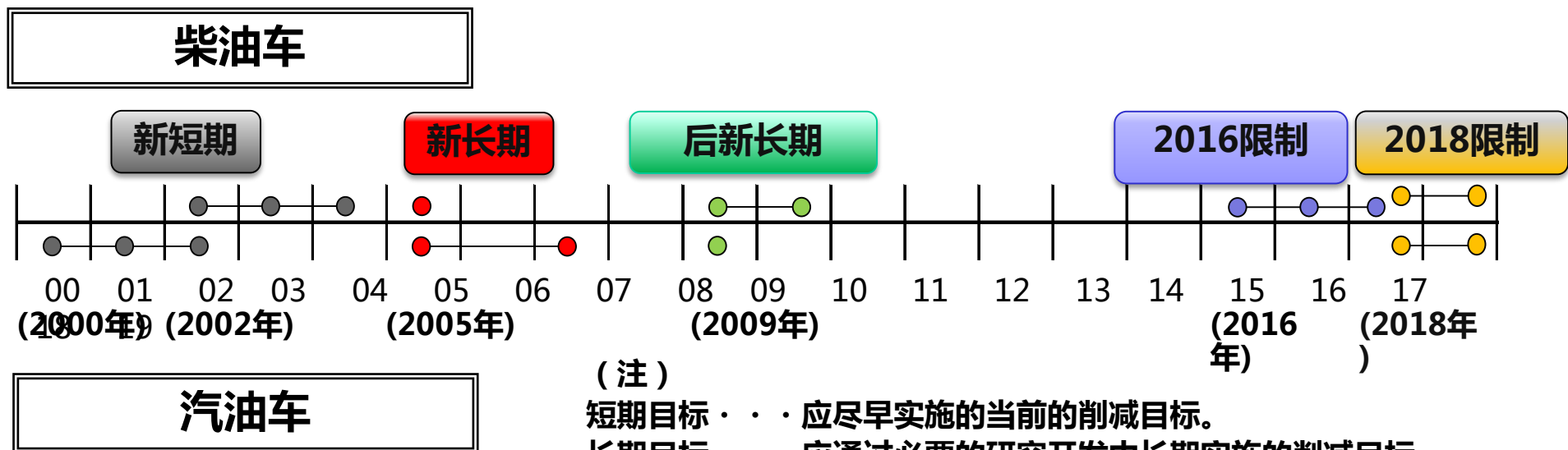


(注) 短期目标 . . . 应尽早实施的当前的削减目标。
长期目标 . . . 应通过必要的研究开发中长期实施的削减目标。

新车尾气排放的单体限制

不同燃料的尾气排放限制强化的经过

- 2016年限制（适用于车体总重量超过3.5t的货车/大客车）
中央环境审议会第10次报告（2010年7月）中，提出了以下的适用建议。
2016年：下述以外车辆
2017年：卡车
2018年：车体总重量7.5t以下
- 2018年限制（适用于轿车及车体总重量3.5t以下的货车/大客车）
中央环境审议会第12次报告（2015年2月）中，提出了以下的适用建议。
2018年：小客车（含轻型小客车）及车体总重量1.7t以下的货车/大客车
2019年：轻型货车及车体总重量1.7t以上3.5t以下的货车/大客车



机动车NOx、PM法概要

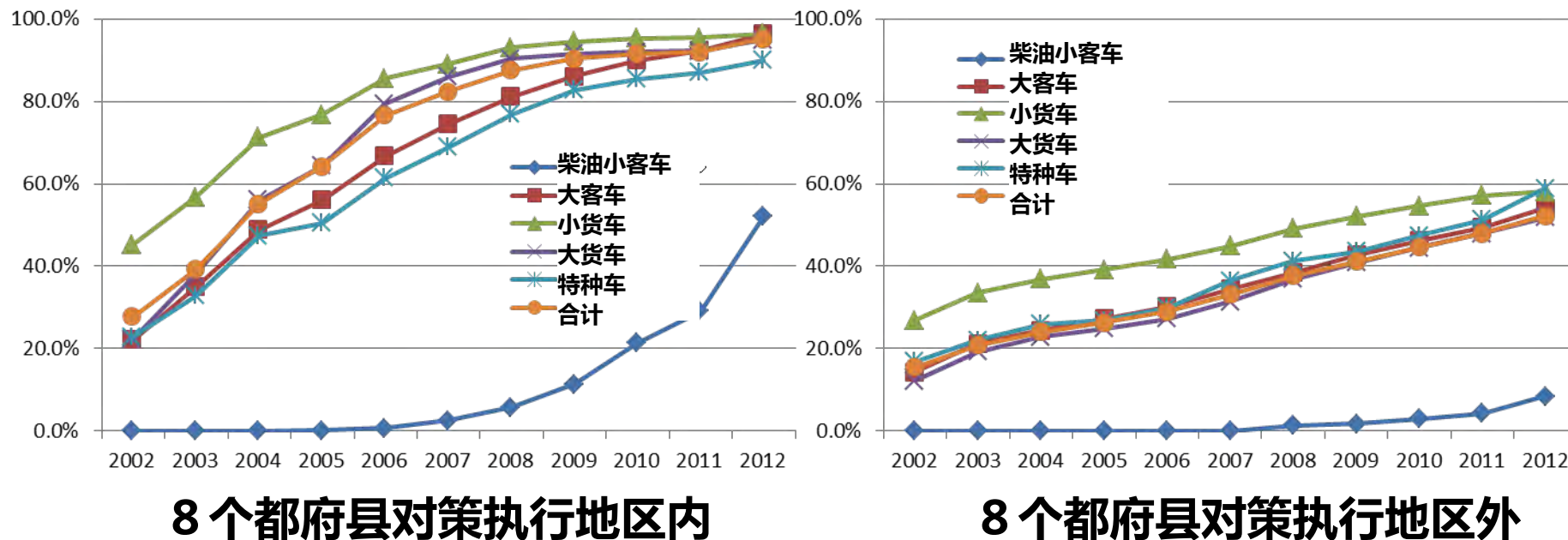
车型限制 = 针对正在使用的机动车的尾气排放限制

- 对象地域： 首都圈、大阪兵库圈、爱知三重圈
- 主要对策：（国家）总量减排基本方针的变更、
（自治体）总量减排计划的制定、车型限制、针对企业的措施、
局地污染对策※、外地车对策※
 - 对象：货车、大客车、柴油小客车 等
 - 限值：柴油乘用车、货车、大客车（3.5吨以下）
 - • • 等同于汽油车
 - 货车、大客车（超过3.5吨）
 - • • 等同于限制施行当时（平成14（2002）年）
最新的柴油车（长期限制条件车）
 - 超过限值的机动车：不予登记注册（不予车检更新）
 - 首次登记后的宽限时间：根据车型设定宽限时间

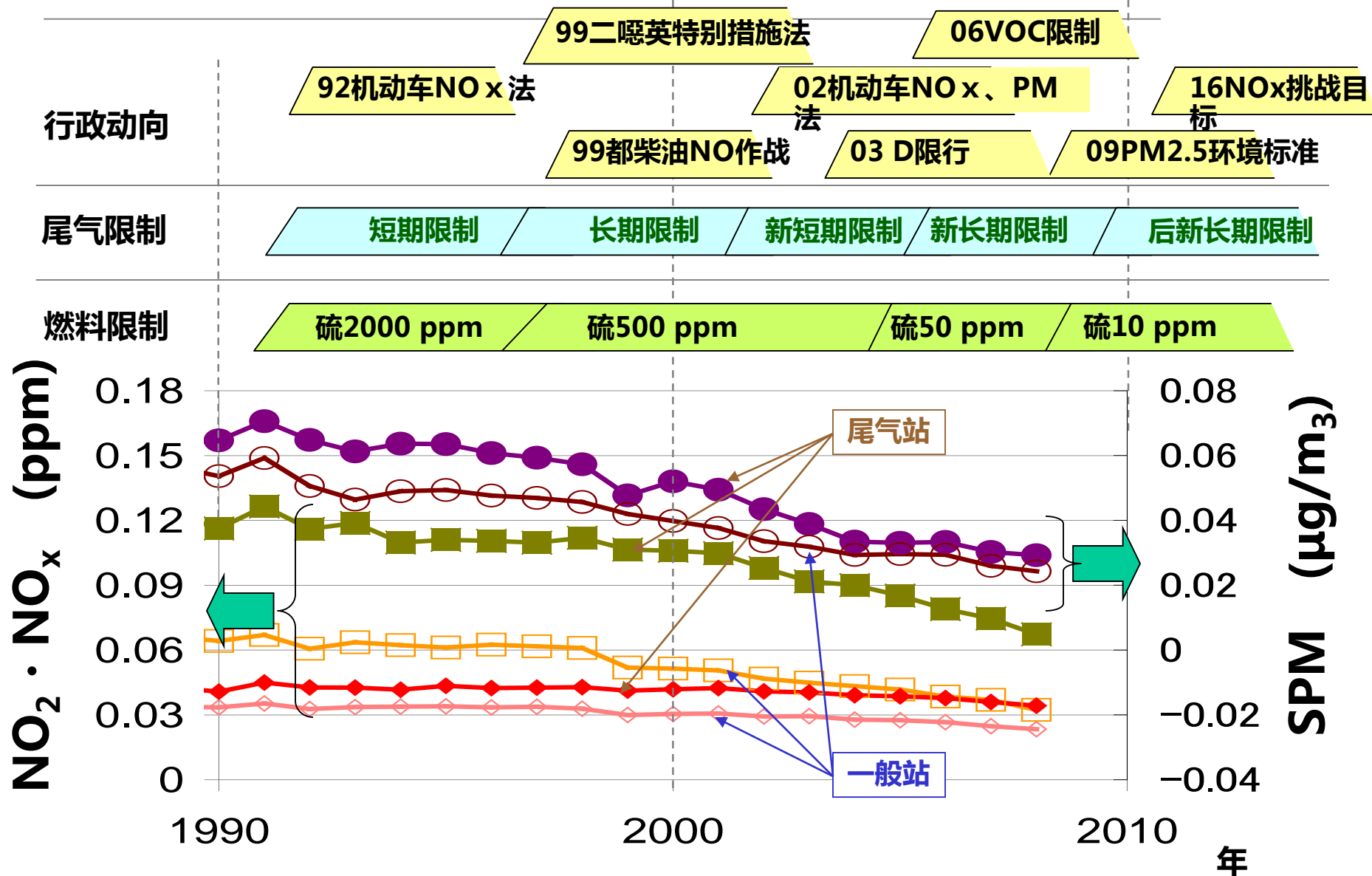
车型限制的效果

- **对策执行地区内排放标准符合率的提升高于非对策地区，更换成低尾气排放车辆的步伐比非对策地区更快。**
- **排放标准符合率逐年递增，但非对策地区的符合率仅为对策执行地区的约 1 / 2，对策执行地区以外符合排放标准车辆的普及滞后。**

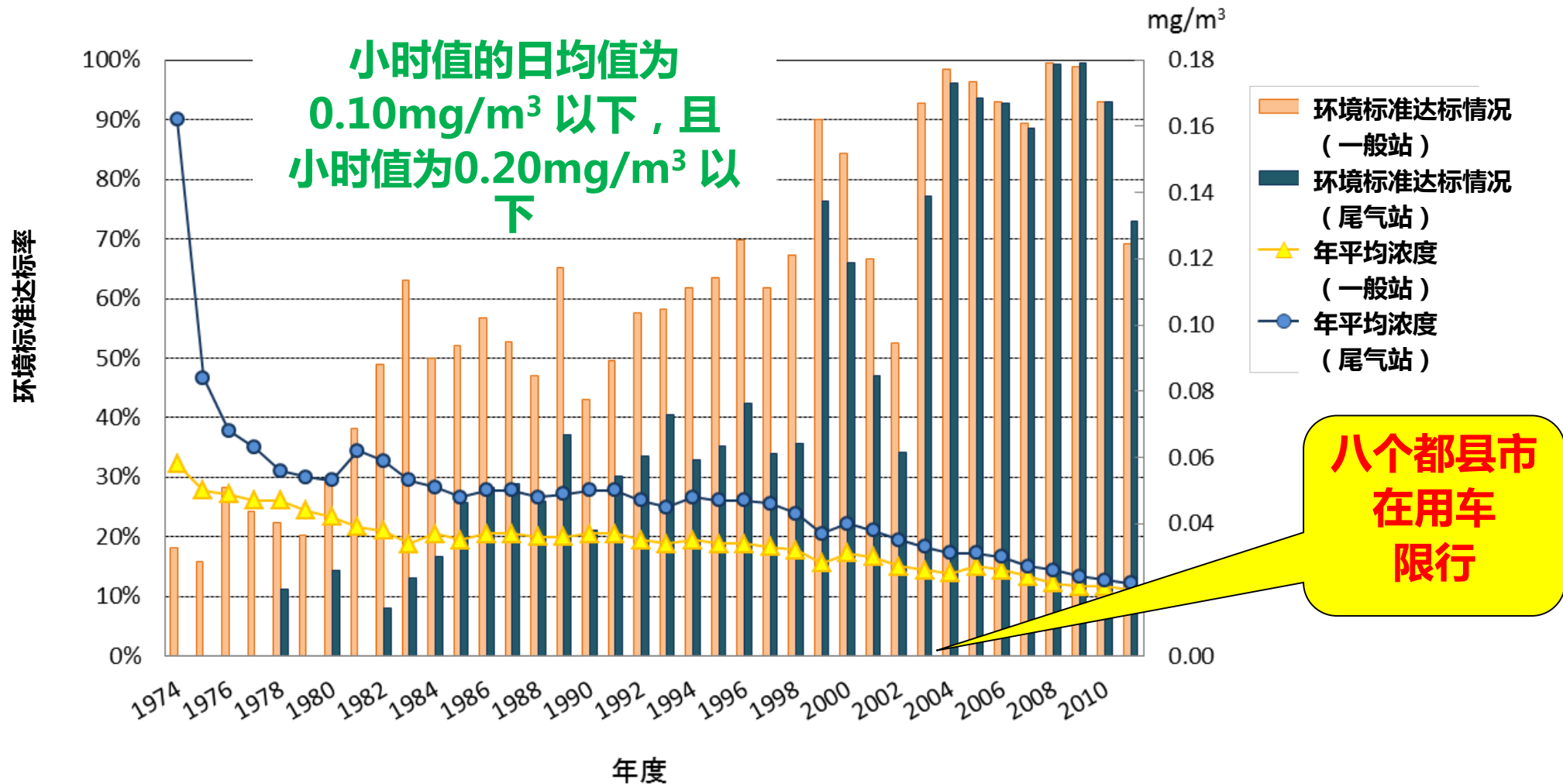
保有机动车排放标准符合率



大气环境浓度的推移与管控的动向

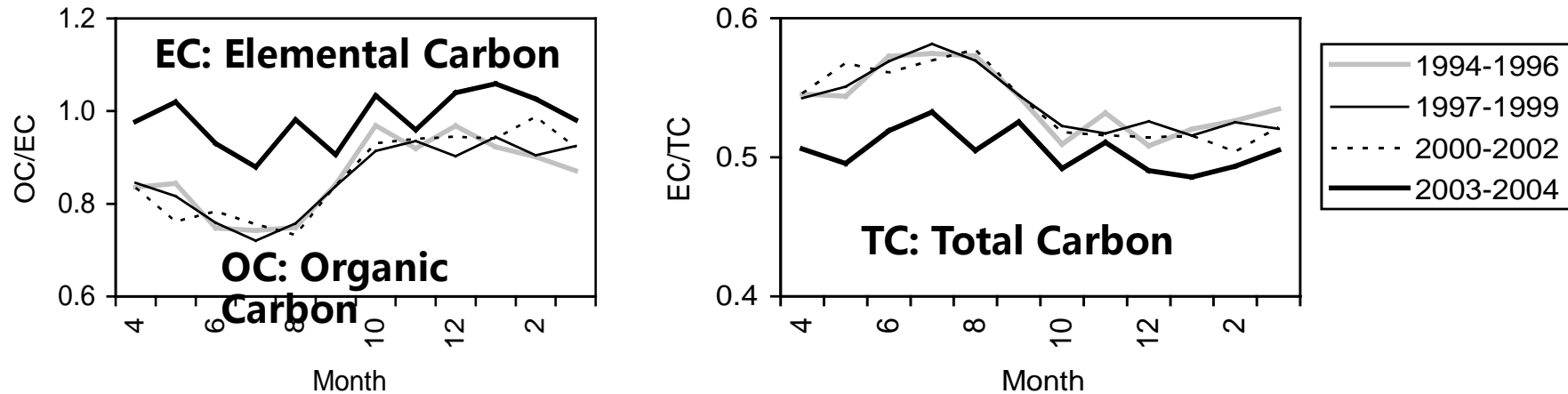


大气中浓度的推移(SPM \equiv PM7)



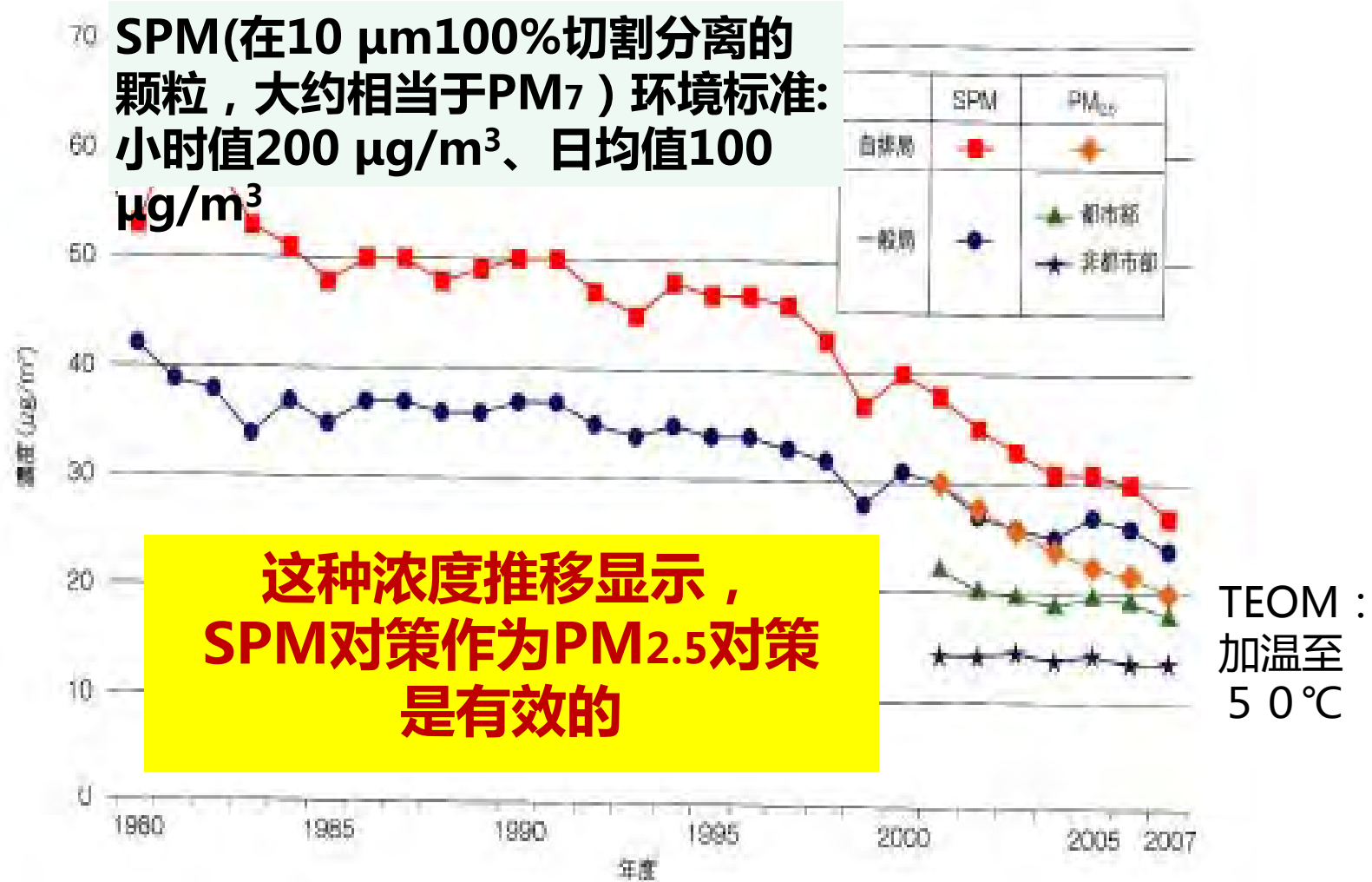
一般站和尾气站环境标准达标率都很高

柴油车限行(2003)的效果



- 显示出首都圈柴油车限行（2003年10月开始）之后碳组分发生变化的可能性
 - 有机碳(EC)排放量相对下降？
- 对限行前后的OC/EC比、EC/TC比的比较
 - 可见2003年以后EC下降
 - 柴油车贡献率高的EC得以有效降低(安装DPF的效果等)
- 不仅是道路沿线，限行对一般大气环境亦有效果

日本SPM(≡ PM₇)和PM_{2.5} 浓度的经年变化



2009年 PM_{2.5}环境标准值 年均值15 μg/m³、日均值 35 μg/m³

今天的內容

1. 前言

2. NO₂、SPM(≡ PM₇):

机动车尾气对策

3. SPM(≡ PM₇)、Ox:

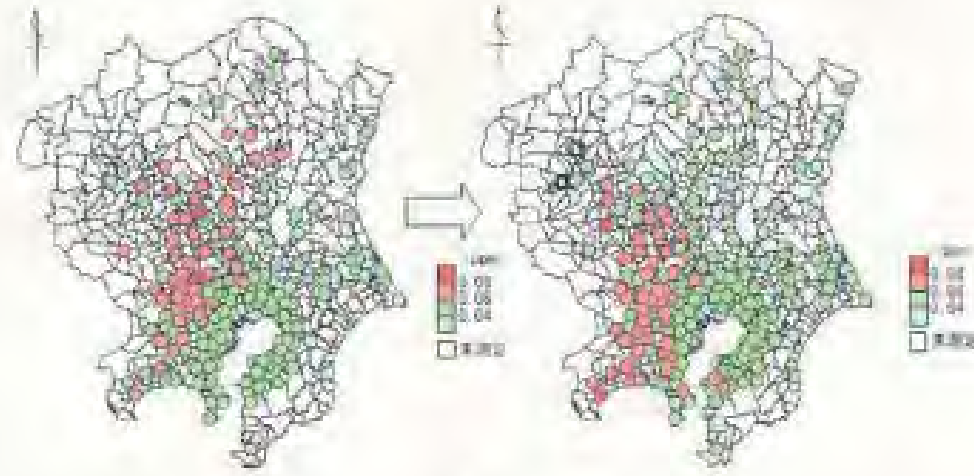
VOC排放控制对策

4. PM_{2.5}:

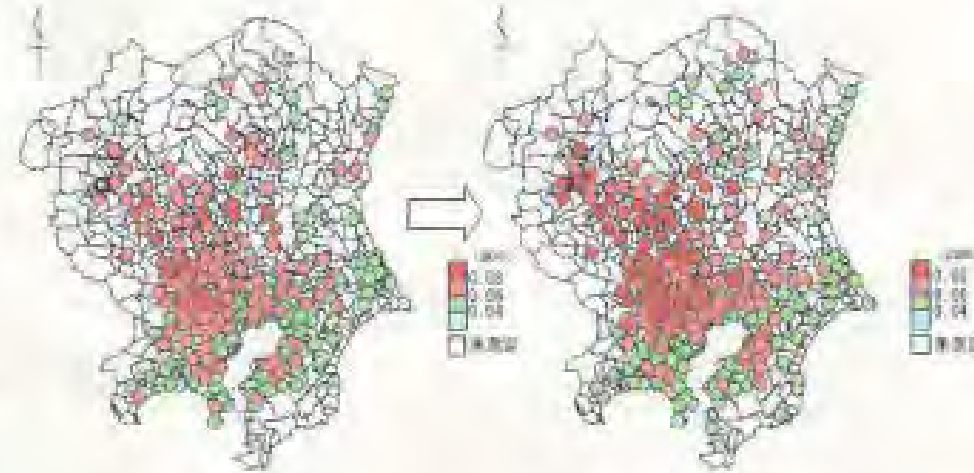
一次颗粒物/前体物的发生源对

策

“高浓度日”中13~16时的 光化学氧化剂浓度三年年均值

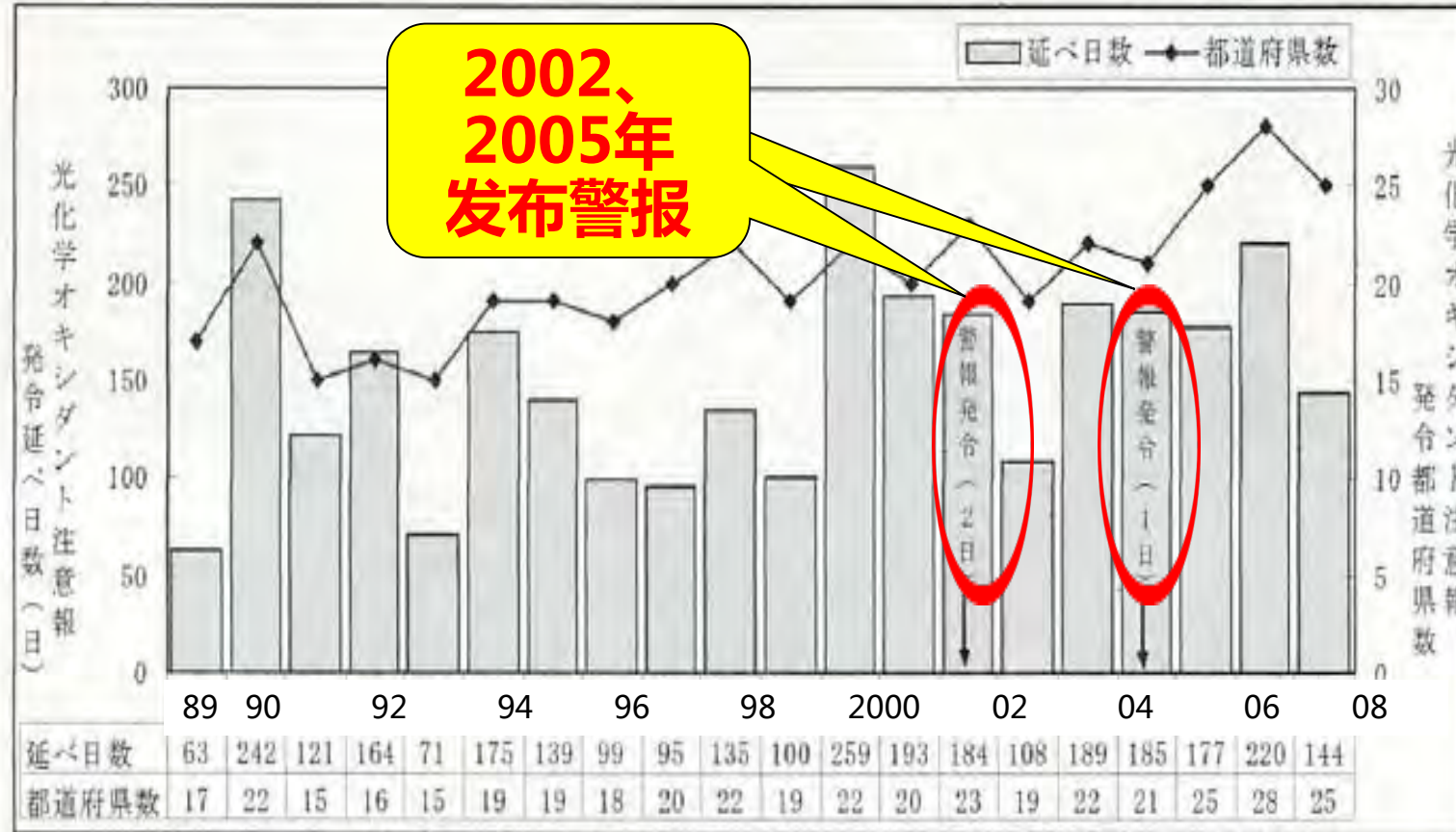


1977~1979
1980~1982

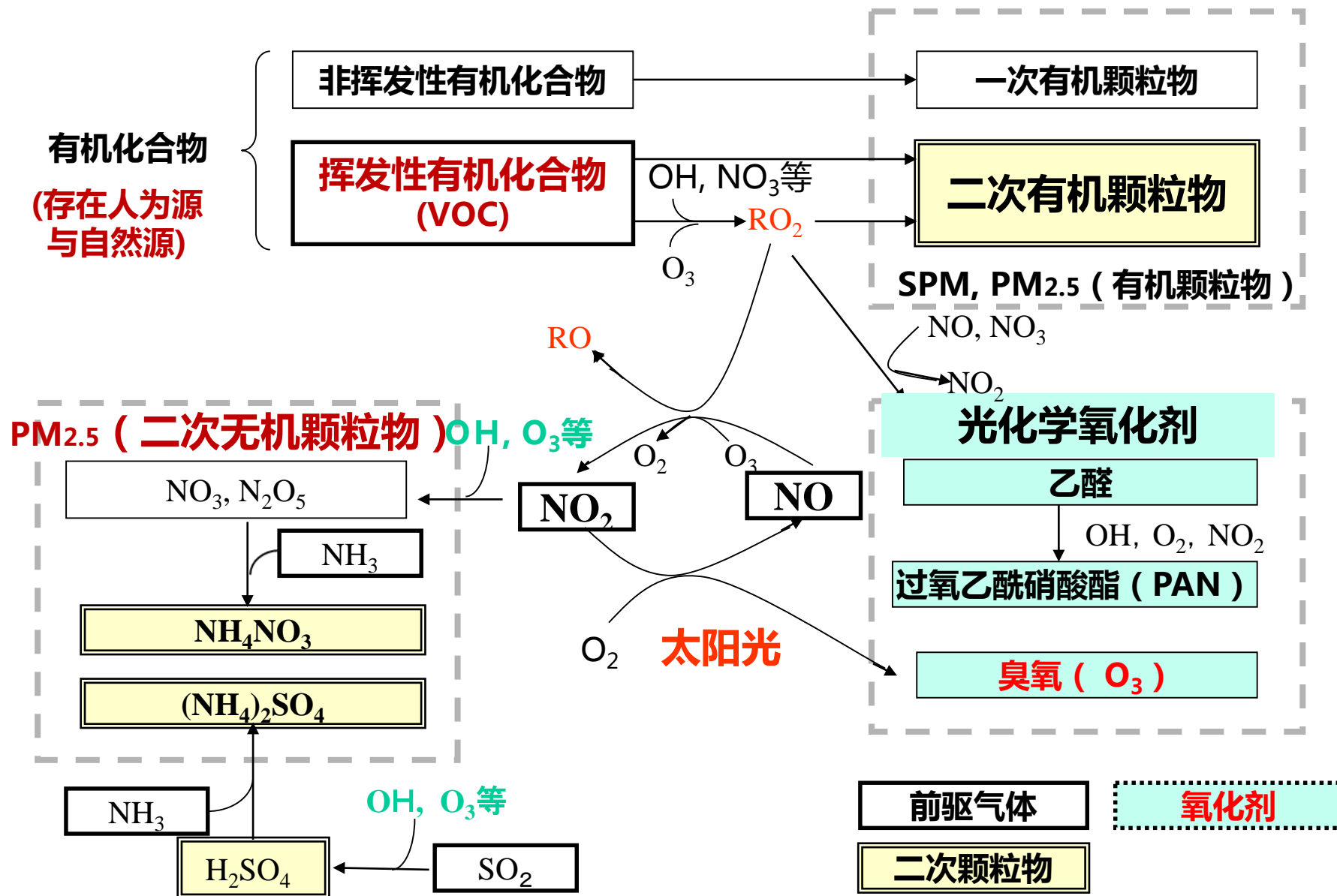


1990~1992
2000~2002

光化学氧化剂注意预警发布天数 及发布都道府县数量的推移



光化学反应造成二次颗粒物或氧化剂的生成

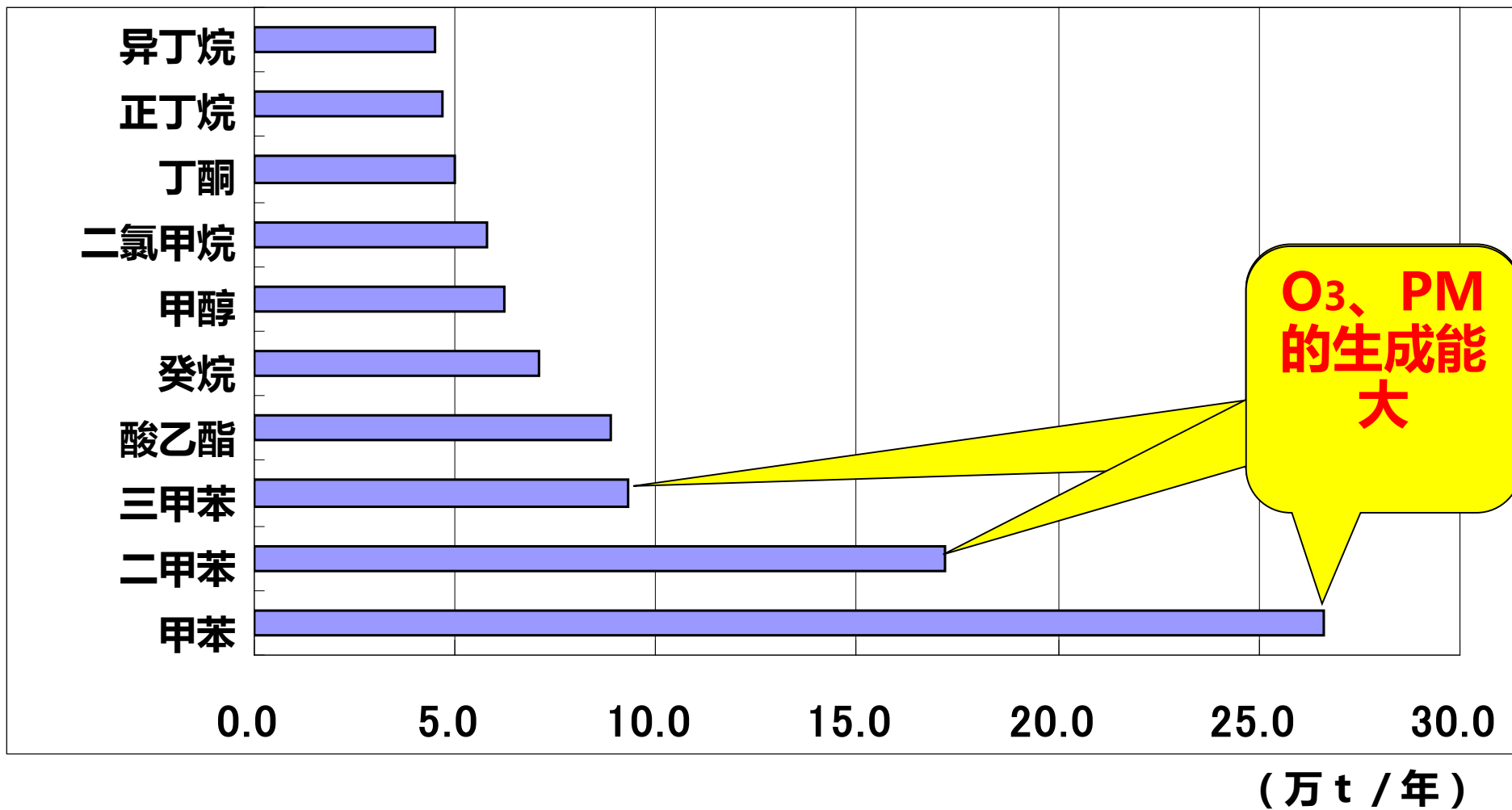


日本VOC排放量的具体情况 (2000年度)

	排放比例 (%)		排放比例 (%)
固定发生源 (约140万吨)	90	涂装	43
		印刷用溶剂	13
		石化产品	5
		干洗	5
		橡胶用溶剂	3
		粘合剂	3
		储存设施	2
		发货设施	2
		加油站	8
		其他	5
移动发生源	10	机动车	8
		特殊机动车	1
		其他	1

日本具有代表性的VOC排放量(2000年度)

固定发生源：移动发生源 = 90：10



VOC减排的SPM、Ox浓度改善效果推测

- 前提条件

 - 对象年度：2001年度夏季、冬季

 - 反应模型：使用CBM-IV的非线性模型

 - 评估地点：关东10处、关西7处

(VOC和NOx减排情况下改善效果的推测)

- 仅VOC削减30%时的改善效果推测

SPM	平均7.1% (3.5~15%)的推测改善效果，可使NOx、PM法对策执行地区内环境标准达标率提高到约93%
Ox	平均23.8% (7.0~55%)的推测改善效果，可使未达到Ox注意预警发布级别数量的监测站比例升至约9成

(挥发性有机化合物(VOC)排放控制研究 (2003.12))

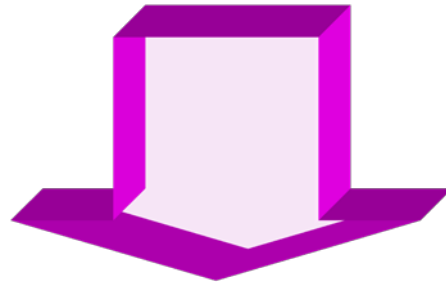
对策框架

通过法律限制与企业自主措施的**最佳组合**手法，实施高效的VOC排放控制
(目标为2000~2010年削减3成)



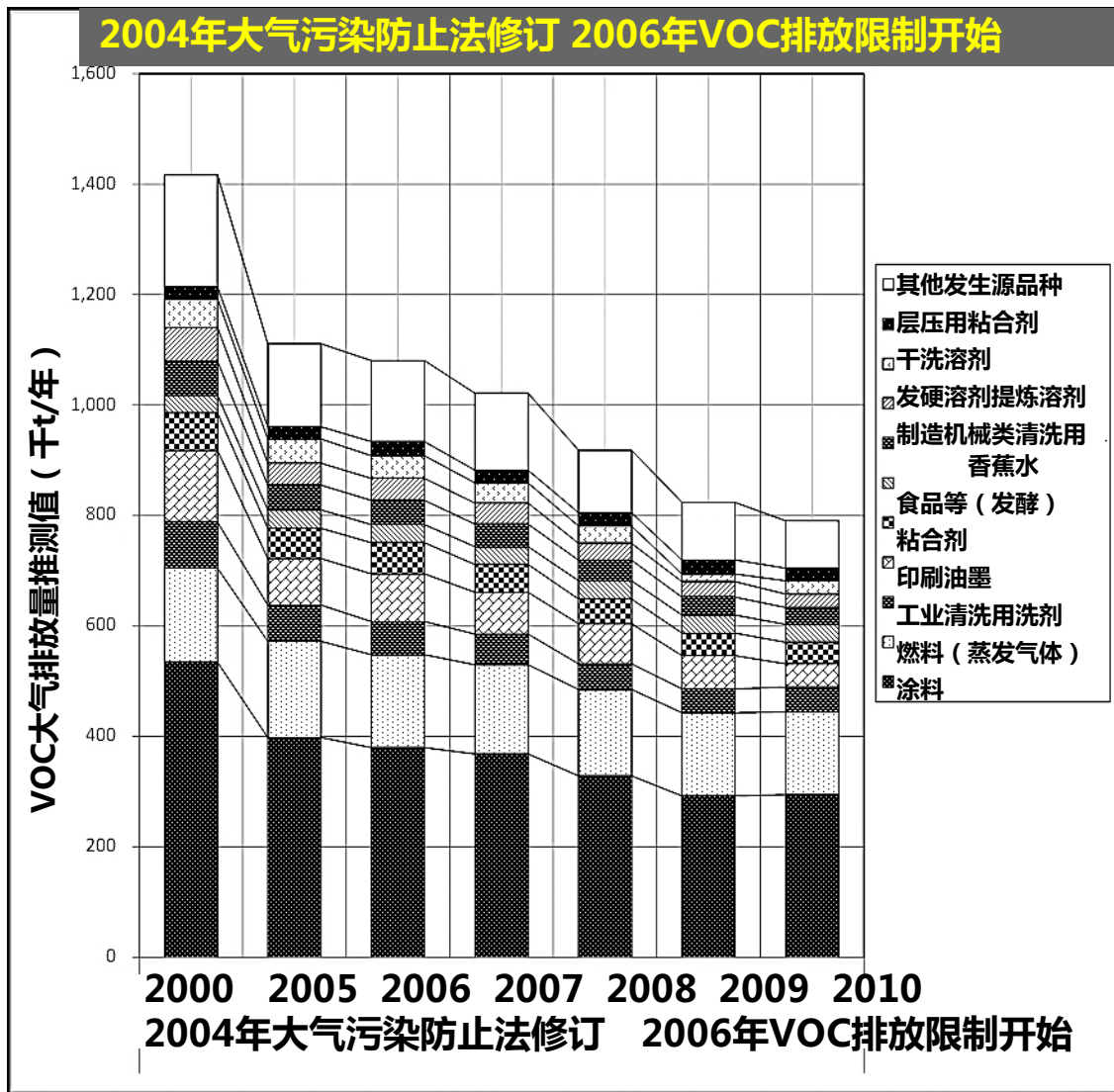
国民的努力

- **伴随日常生活的VOC排放或飞散的控制**
 - 家庭等使用涂料时，采用低VOC涂料
 - 使用时适度不浪费
- **采购时选择低VOC产品**



需要国民也为促进VOC排放控制做出努力。

挥发性有机化合物（VOC）排放量的推移



来自固定发生源的排放量

2000年度 142万吨



2005年度 111万吨



2010年度 79万吨

(比2000年度 削减44%)
(比2005年度 削减29%)



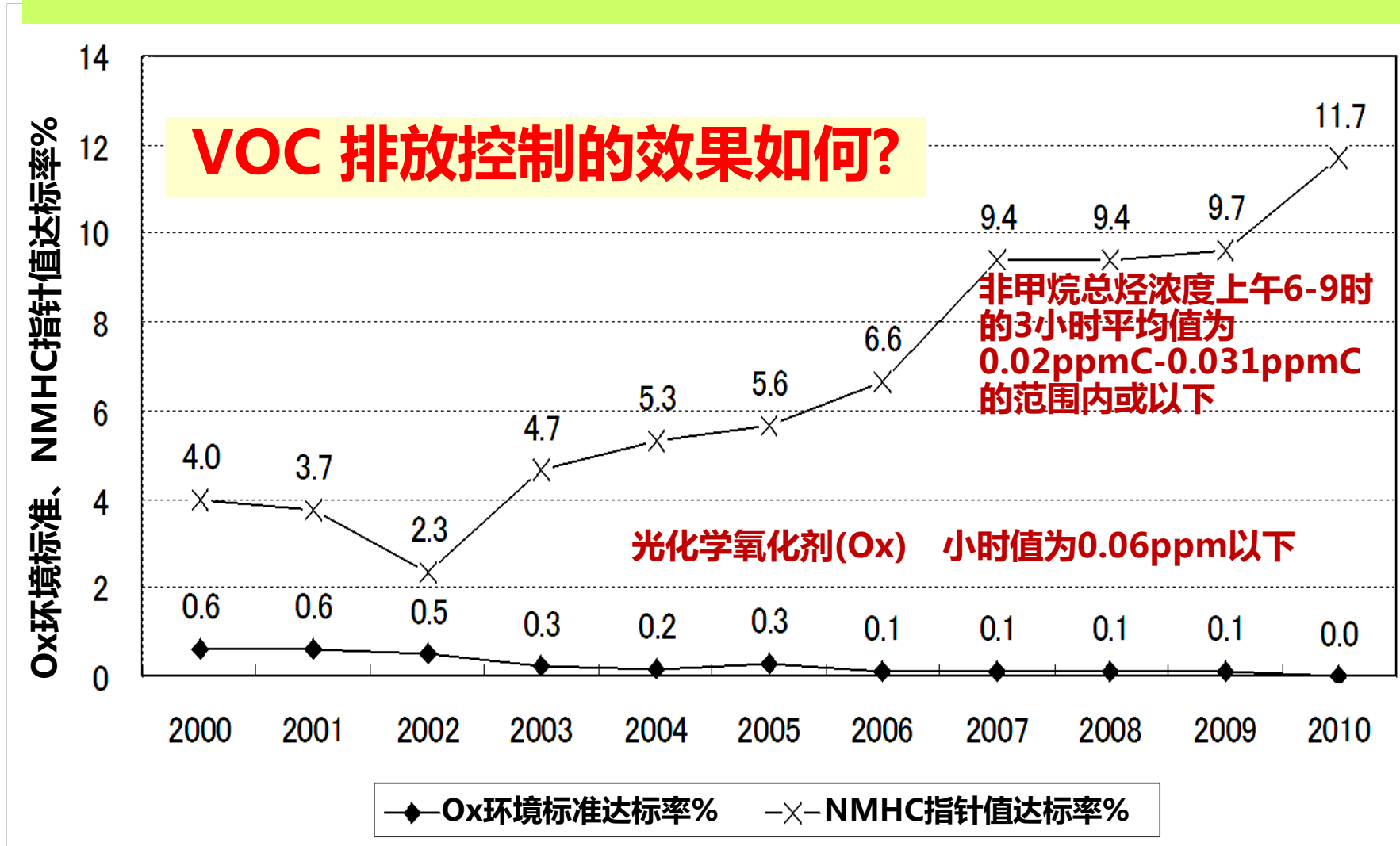
实现稳步减排

摘自《VOC排放清单（环境省）》

迄今为止VOC排放控制对策的结果与效果

- 2010年末VOC排放量超出了目标
比2000年度削减44%
- 悬浮颗粒物 (SPM(\equiv PM₇))因机动车尾气排放限制的强化等超过了当初预测的**约为93%的环境标准达标率**。VOC排放控制制度等带来的前体物浓度降低，定性显示了VOC削减的效果。
- **光化学氧化剂(O_x \equiv O₃)的年均值呈增加趋势，但高浓度比例呈减少趋势。**

光化学氧化剂环境标准达标站的推移



Ox环境标准达标率 (2010年度): 一般站和尾气站均为0%

合理表示光化学氧化剂环境改善效果的指标

- 8小时移动平均值的日最高值
- 年代表值: 日最高值的年第99百分位值
(年第99百分位值 ≡ 暖季第98百分位值)

观察经年变化要看3年间的移动平均数值

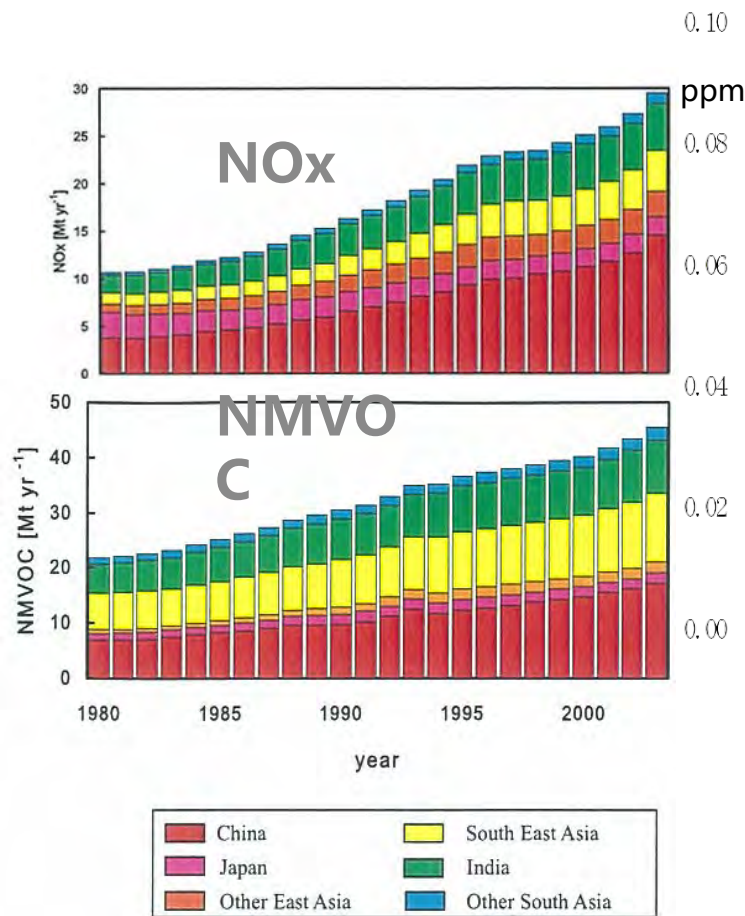
光化学氧化剂的经年变化及其要因

- NO带来的O₃滴定效果降低(NO_x排放量的减少)
$$\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{O}_2 + \text{NO}_2$$
- 越境大气污染的增加
- 前体物浓度降低使局地光化学生成量减少

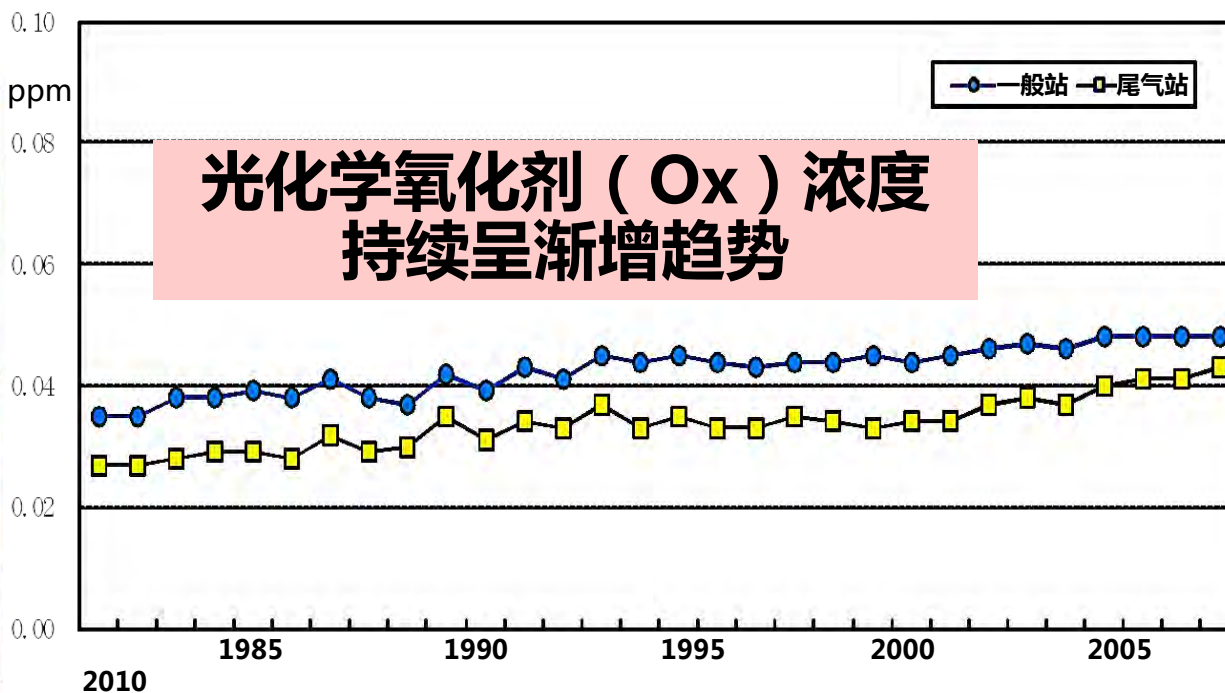
(光化学氧化剂调查研究会报告书, 2014年3月)

亚洲整体的NO_x, NMVOC 排放量推测值的推移

日本光化学氧化剂白天最高小时值 年均值的推移



亚洲整体的NO_x, NMVOC
排放量推测值
(Ohara, et al., 2007)

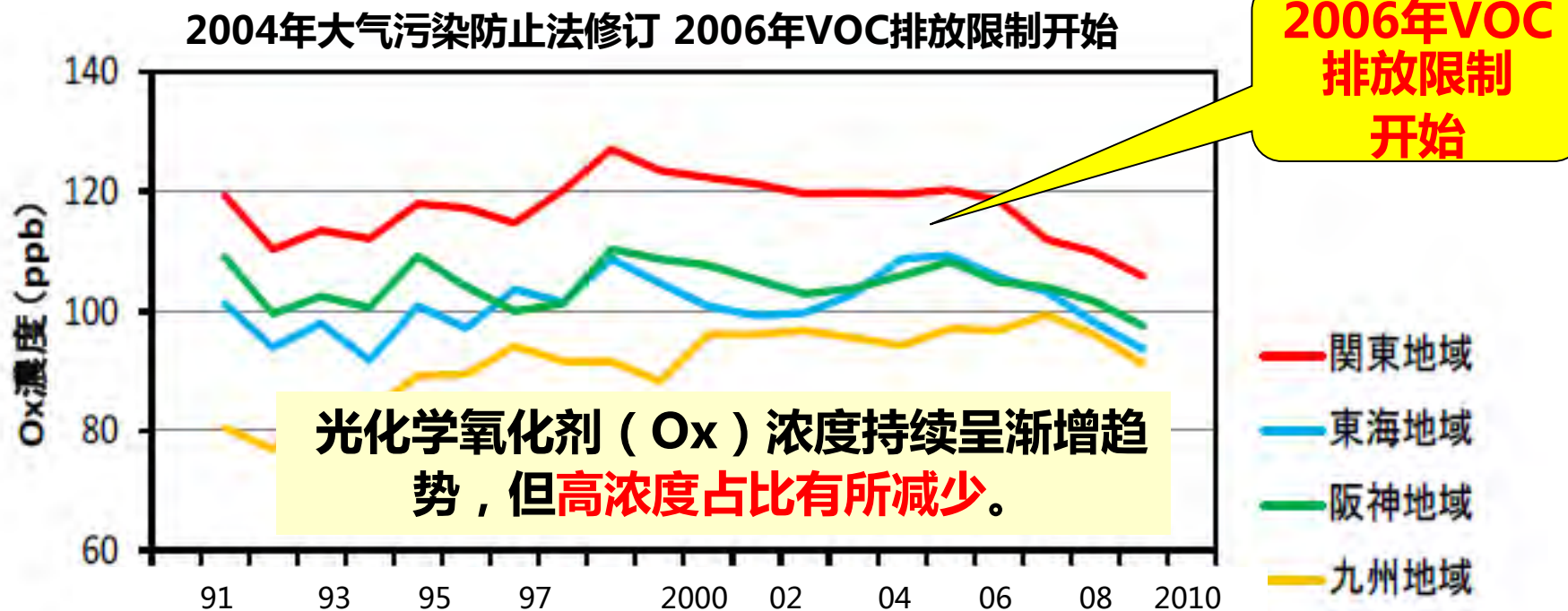


东亚大气污染物排放量的精密把握和跨区域污染影响相关的科学和定量化知识经验的积累

- 东亚排放量增加给Ox浓度增加带来影响
- 排放地区的污染与越境污染的同时降低

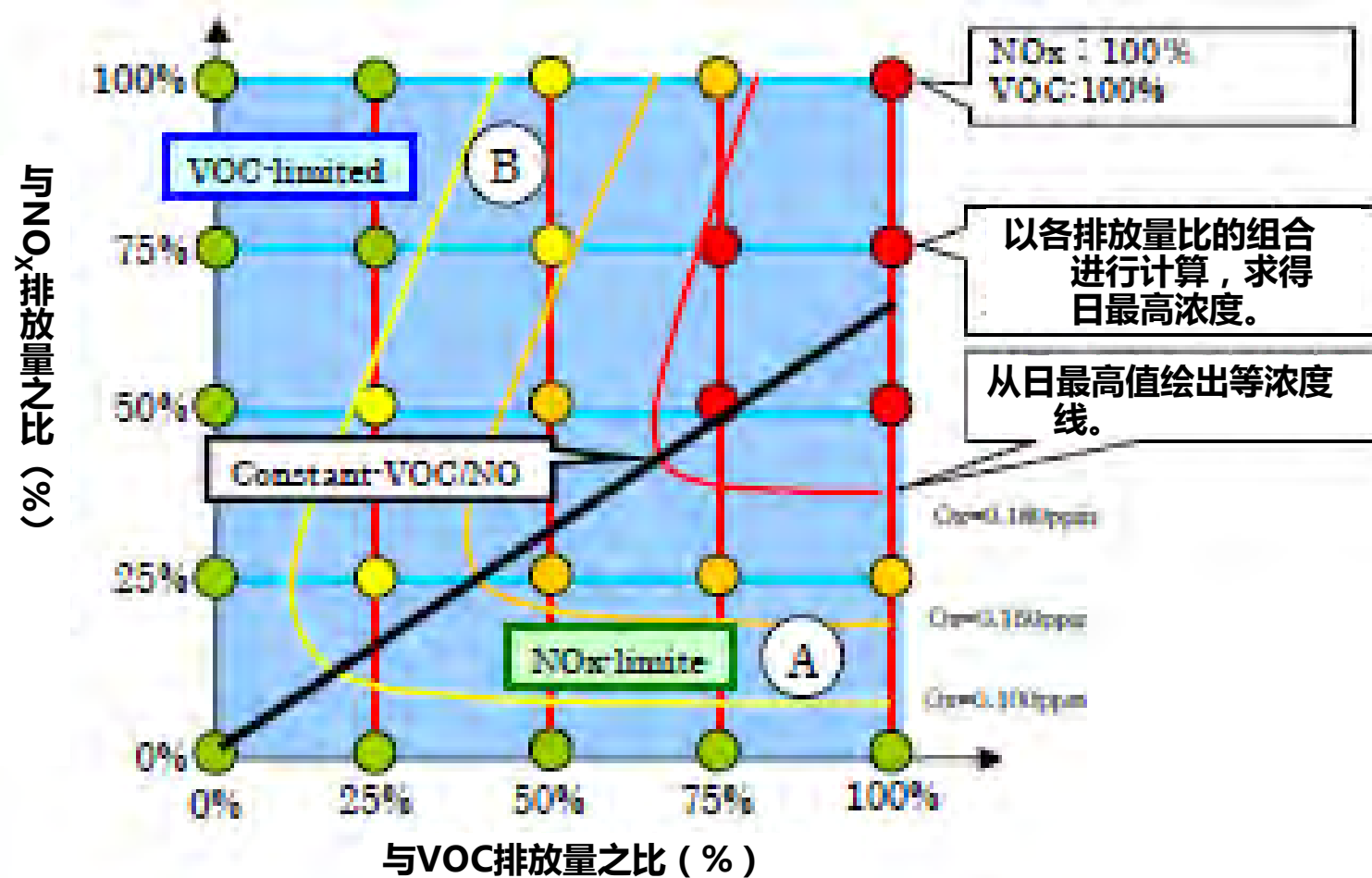
跨区域大气环境管理

日最高8小时值的年第99百分位值 显示的区域内最高值(3年移动平均)的经年变化



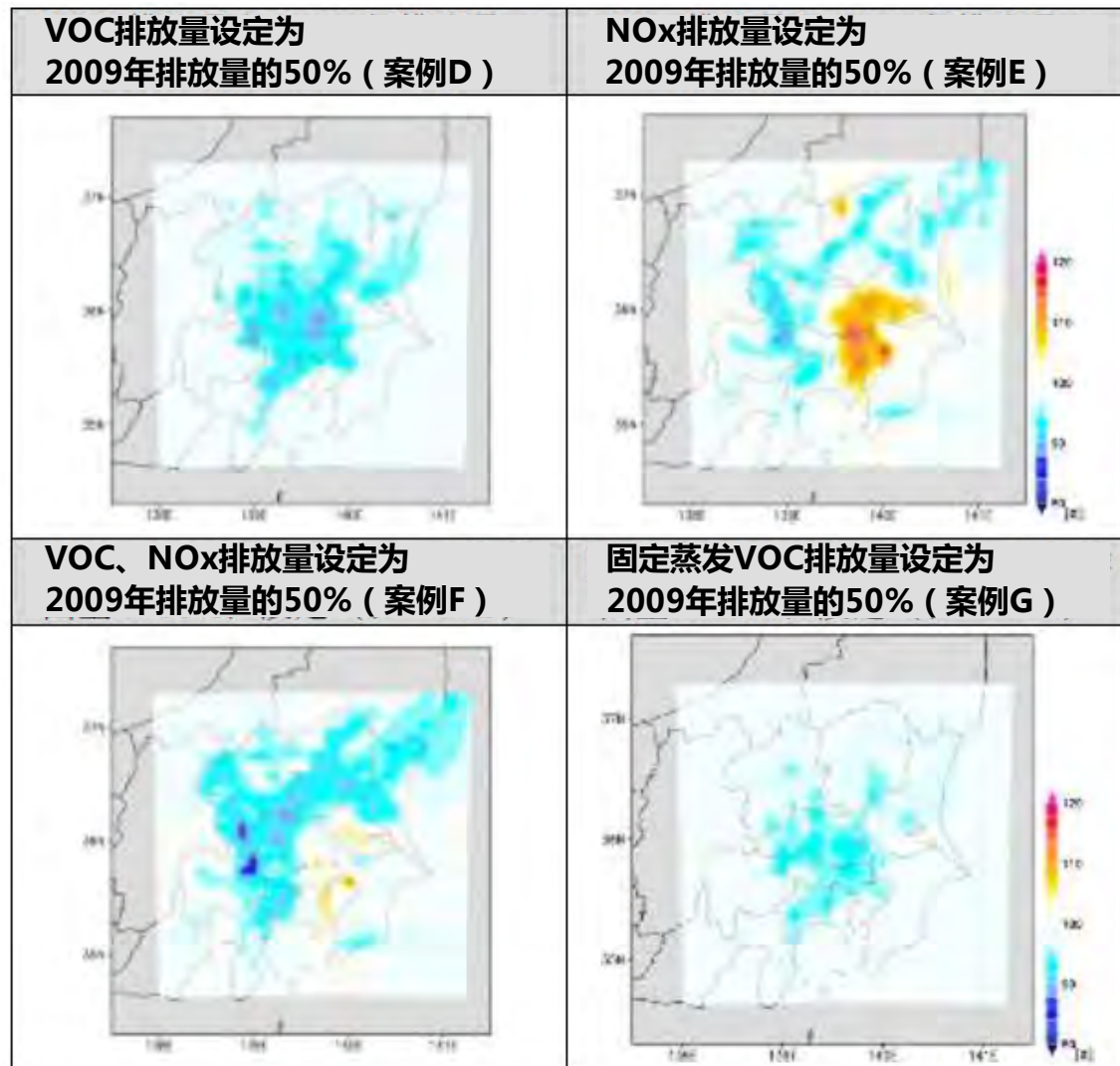
(光化学氧化剂调查研究会报告书, 2014年3月)

臭氧浓度对于NO_x浓度、VOC浓度的依赖性 (环境省, 2010)



VOC/NO_x比对臭氧浓度(光化学反应指标)有很大影响

模拟显示的 O₃日最高8小时值的暖季第98百分位值



<p>全区域降低</p>	<p>东京湾周边 增大</p>
<p>在部分区域最大 程度降低， 亦有部分区域 增大</p>	<p>全区域降低</p>

今后机动车尾气减排对策的整体概念 (第13次报告) (2017.5)

○当量比燃烧直喷车(汽油车)的PM减排对策 与柴油小客车、稀燃直喷车同样的限值

适用包括(尾气测试法: WLTC(Worldwide Light vehicles Test Procedure)的
WLTP(Worldwide harmonized Light vehicles Test Procedure))

○加油时燃料油气减排对策

促进燃料零售业通过自主措施引进stage 2
(汽油加油机增加油气回收功能)

○停车时的燃料油气减排对策

汽油车的燃料油气减排对策

- 循环工况的停车测试天数: 由1天改为2天
- 循环工况: 将原国内尾气测试改为
国际统一的循环工况测试(WLTC)
- 尾气容许目标限值: THC 2 g/test (改为汽油低燃料
透过性的燃料管)

今天的內容

1. 前言

2. NO₂、SPM(≡ PM₇):

机动车尾气对策

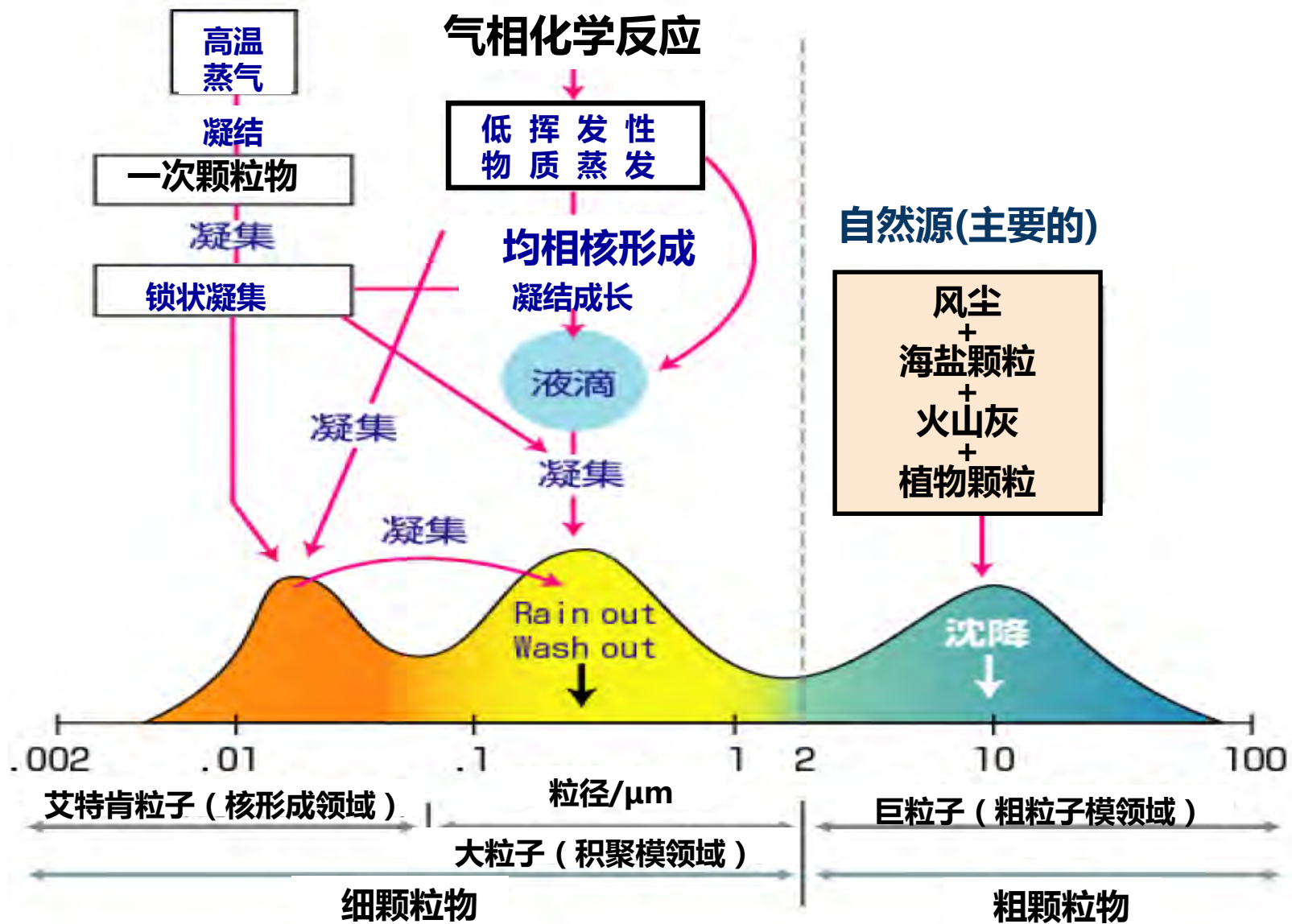
3. SPM(≡ PM₇)、Ox:

VOC排放控制对策

4. PM_{2.5}:

一次颗粒物/前体物的发生源对策

大气颗粒物的机制

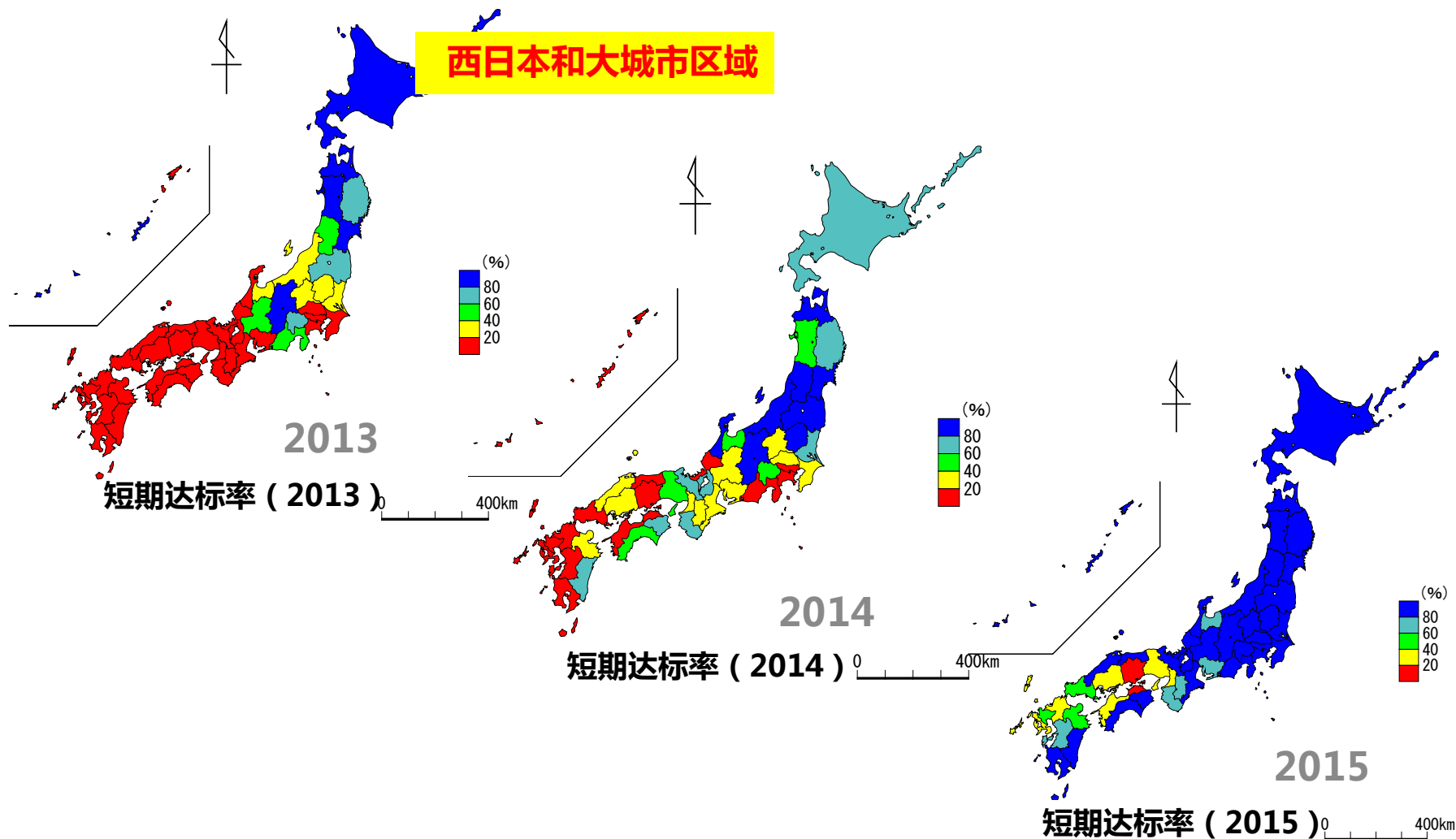


各国的PM2.5环境标准值($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

Dockery et al. (1993): 6个城市的年龄调整死亡率之比与PM2.5浓度的关系

		年均值	日均值	
美国		12	35	1997年 15 65 2006年 35 2013年 12
EU		25		2008年
中国		35	75	2016年1月1日起适用 (部分地区先行实施)
韩国		25	50	2015年1月1日起适用
WHO	AQG	10	25	2007年 指针值 一次暂定目标值 二次暂定目标值 三次暂定目标值
	TI-1	35	75	
	TI-2	25	50	
	TI-3	15	37.5	
日本		15	35 (70)*	2009年 提醒注意的暂定指针

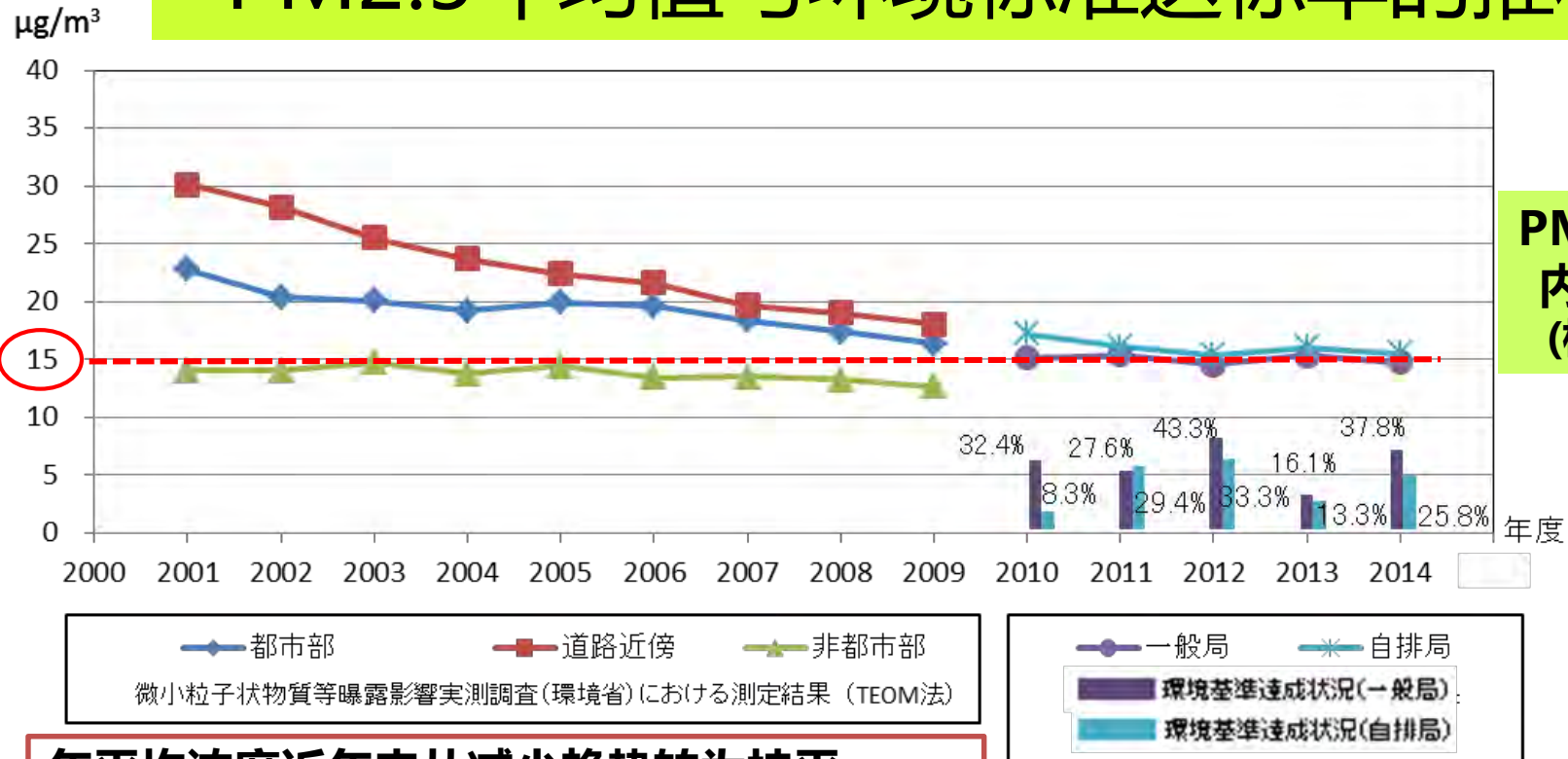
各都道府县PM2.5短期达标率的推移



(摘自2016年度第2次PM2.5日常监测等数据研究会(2018) 资料

3)

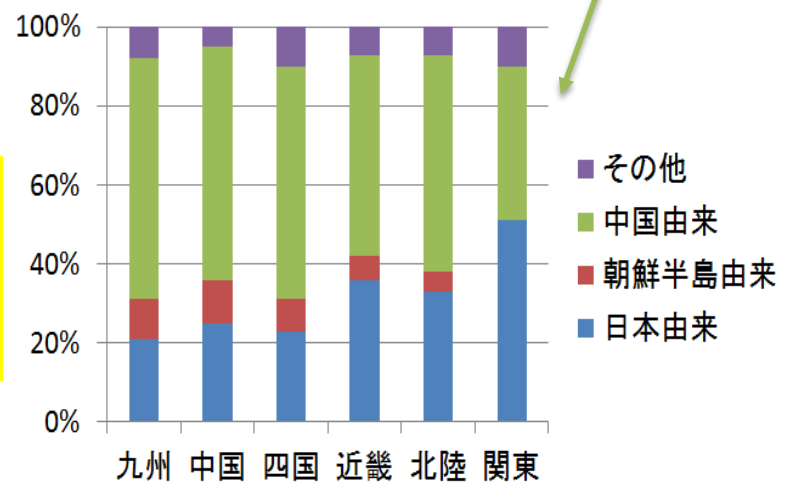
PM2.5年均值与环境标准达标率的推移



PM2.5 (2010年平均)的国内及国外贡献率推测示例 (根据金谷有刚(2013)编制)

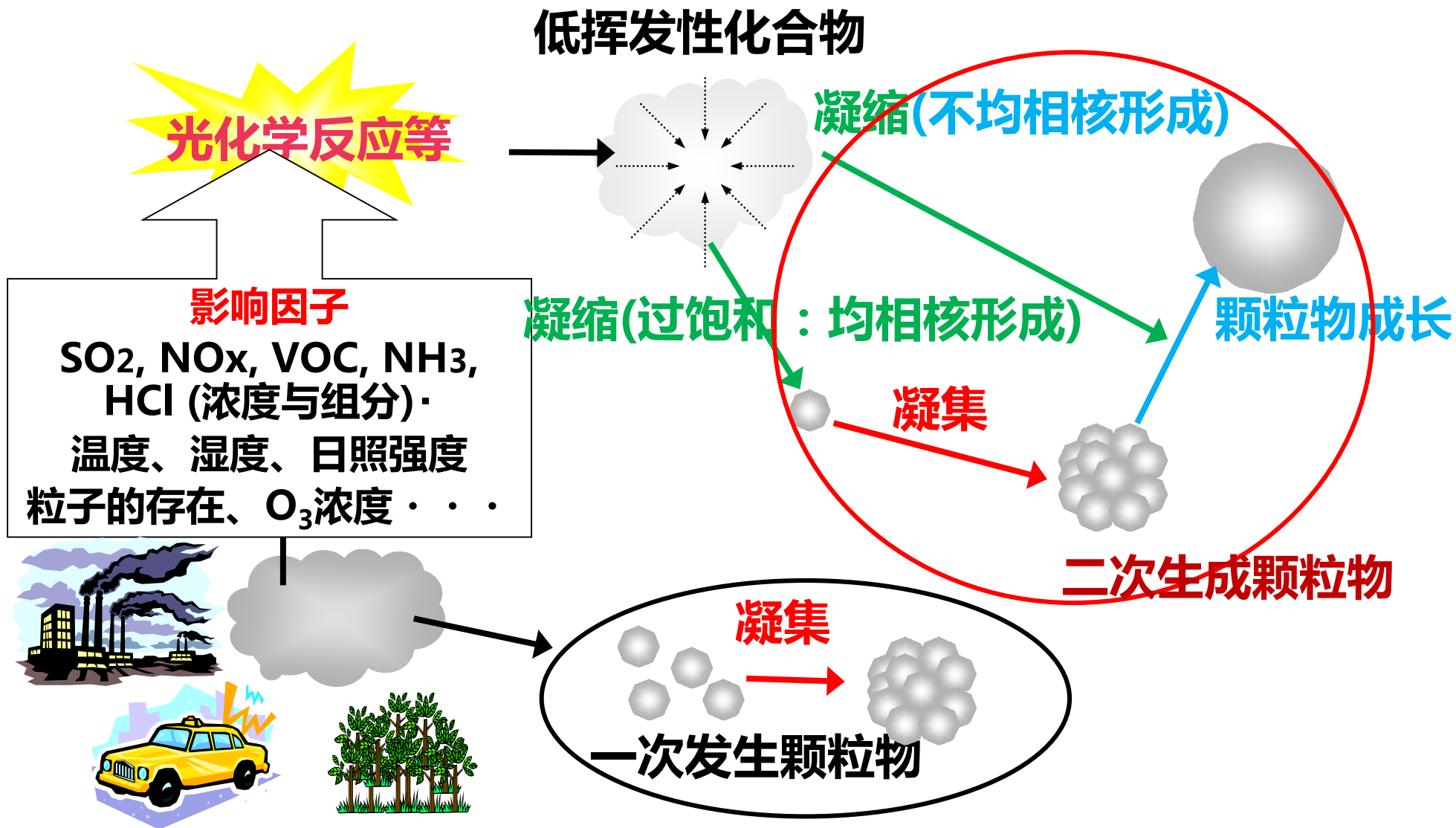
年平均浓度近年来从减少趋势转为持平
 2014年度环境标准达标率为：
 一般站37.8%、尾气站25.8%

· SPM对策：作为PM2.5对策也有效
 · PM2.5浓度/环境标准达标率的地区分布：
 国内城市污染加上越境污染

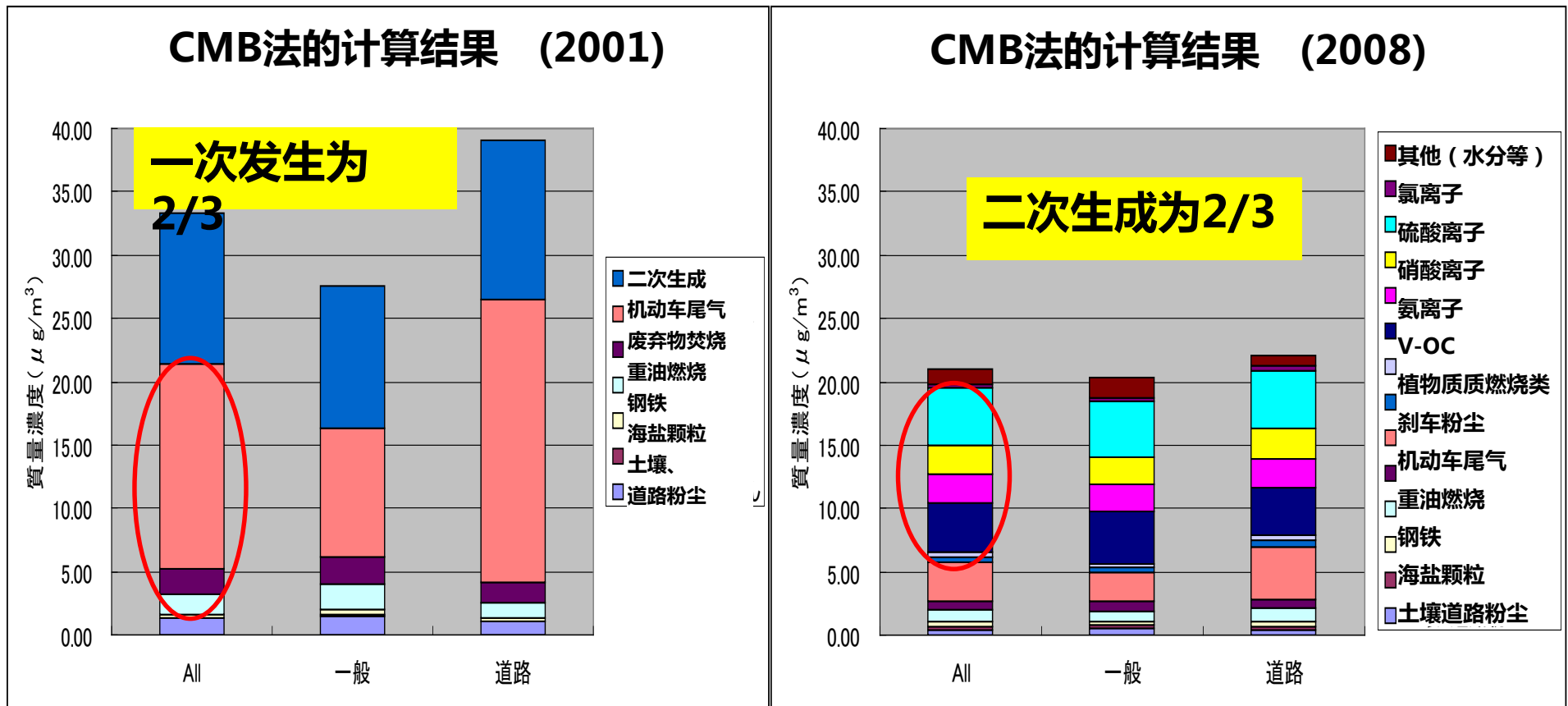


(出处:根据第8次中央环境审议会大气和噪声振动分会 (2015)资料1-2, p.18,22修改)

一次发生与二次生成

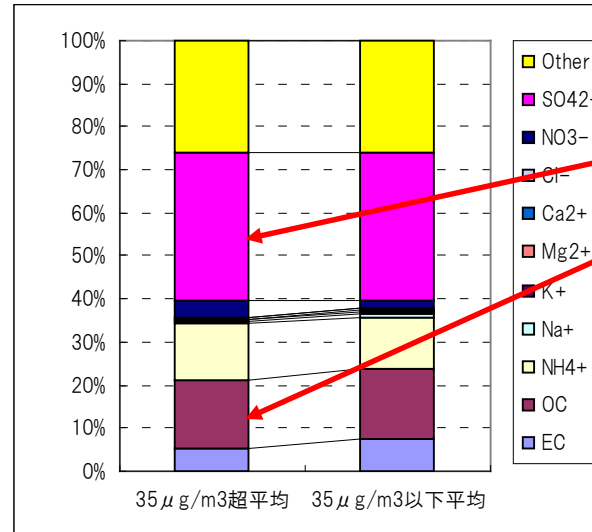
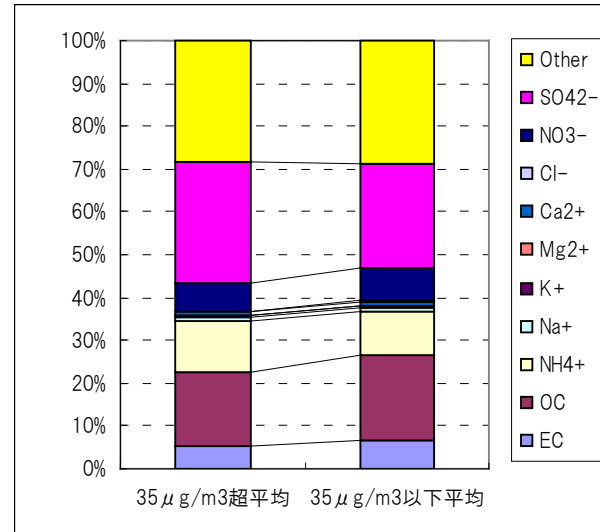


采用CMB法进行的发生源贡献浓度比较 (左: 2008、右: 2001)



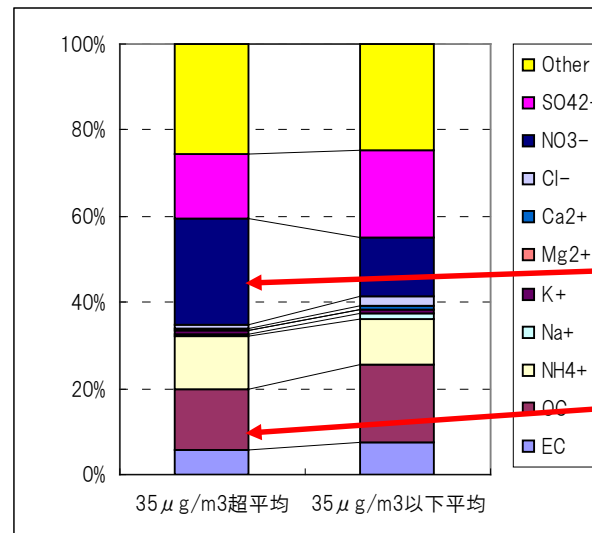
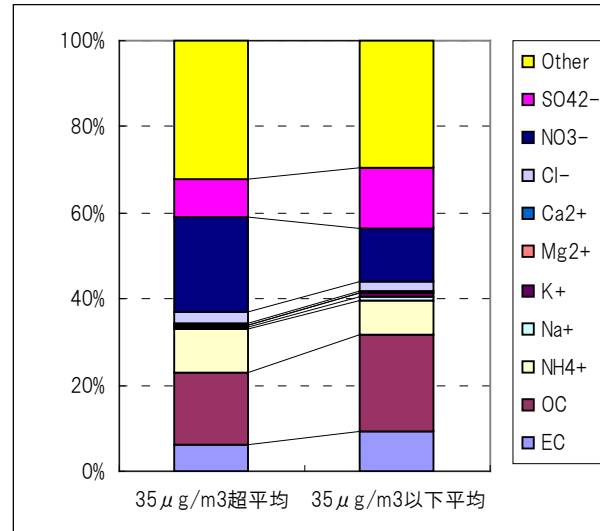
东京都细颗粒物研究报告书 (2011.7)

都内(2008年度)高浓度日 PM_{2.5}组分的季节变化



暖季:
硫酸盐与
有机物

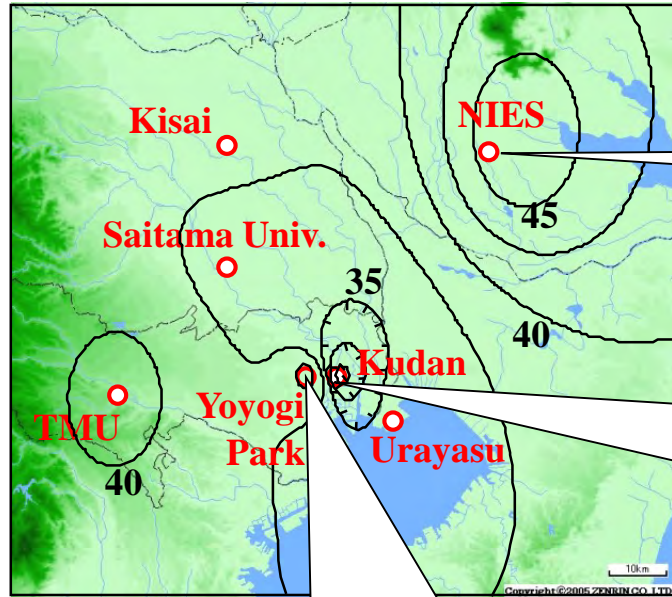
春季 夏季
秋季 冬季



冷季:
硝酸盐
与有机物

碳同位素分析(2008夏季)

pMC (%)的空间分布



最高值

最低值
都心
(九段)

比九段高10%

观测地点	pMC (%)
浦安	37.3
九段	29.1
埼玉大学	35.5
骑西	38.8
国立环境研 (筑波)	47.0
首都大 (八王子)	41.0
代代木公园	41.1

□ pMC 的空间分布显示，和田园地区相比首都圈源自生物质的贡献较低。

□ 但城区竟然也有29%源自生物质的碳贡献。

二次生成有机颗粒物(SOA)与 一次发生有机颗粒物(POA)

大气中的有机颗粒物

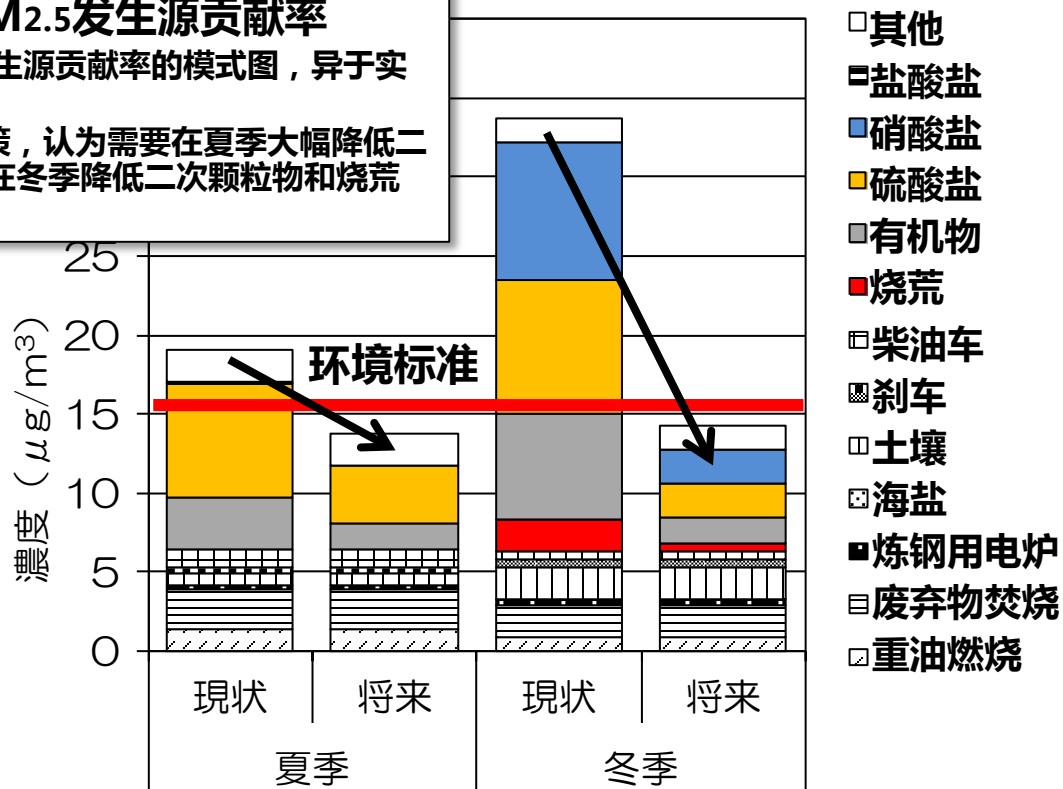


二次颗粒物对策的重要性

夏季和冬季的PM2.5发生源贡献率

注1) 此为PM2.5发生源贡献率的模式图，异于实际情况。

注2) 作为PM2.5对策，认为需要在夏季大幅降低二次颗粒物的贡献率，在冬季降低二次颗粒物和烧荒的贡献率的话。




二次颗粒物

一次颗粒物

- PM2.5的二次颗粒物贡献率为50-70%，要实现环境标准达标，需要采取二次颗粒物对策
- 夏季的二次颗粒物主要是硫酸盐和有机物，冬季则以硝酸盐为主
 - SO₂的环境标准达标良好。问题在于越境污染? . . . SO₂排放控制(船舶的排放气体)?
 - NO_x限制使NO₂环境标准基本达标 . . . 作为PM2.5对策的NO_x排放控制?
 - 通过对VOC(人为源/生物源) 二次生成有机颗粒物(SOA)的分析和把握，可推定前体物排放限制的效果。VOC排放控制?
- 还需要探讨对于其他烧荒等生物质燃烧的限制。
- 凝缩性颗粒物贡献的解析 → → 对策的探讨?

今后的课题

- 各种发生源排放的PM_{2.5}(包括凝缩性颗粒物)以及植物源挥发性有机化合物(BVOC)排放清单的系统性建设
- 源于BVOC的有机颗粒物(指标化合物:SOA、POA)的分析及其贡献率的推定
- 不同季节自然源/人为源有机颗粒物比例的把握
- 二次生成有机颗粒物生成机理的解析
- 越境污染的监测与贡献率推定
- 模拟模型的精密化(高时间分解数据的建设与
化学传输模式(CTM)的改良)

- 有效的PM_{2.5}降低对策的预测



**感谢
各位的聆听。**

模拟模型的构建和完善

- 发生源清单数据的整理

- ①东亚领域

- 人为源排放物质：REAS2.1

- 植物源排放物质：MEGAN

- ②日本领域

- 船舶以外：JEI-DB

- 船舶：海洋政策研究财团整理的清单

- 模拟的设定

- ①模拟的条件设定

- 对象年度：2001-2010

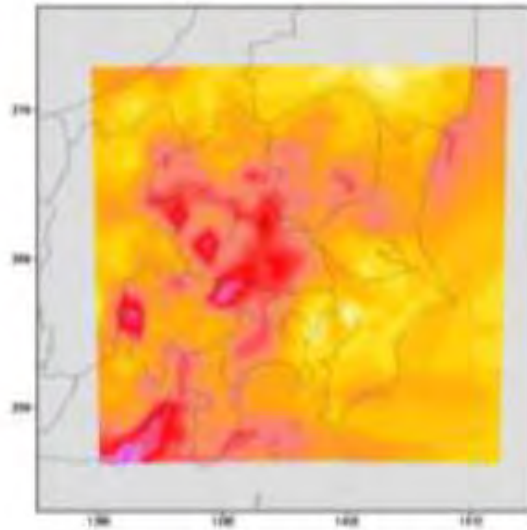
- 模型：WRFv3.5.1，CMAQv4.7.1

- 领域：考虑地区内生成及来自其他地区的影响，以东亚领域（60km）为父域，关东九州领域为子域（10km）。

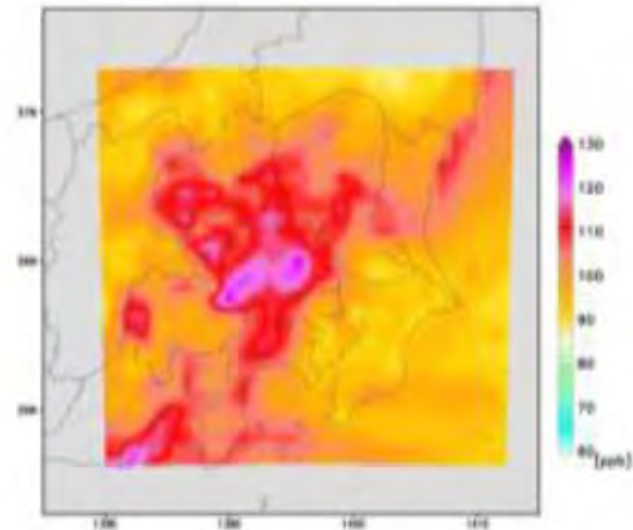
- ②东亚领域边界条件的设定

- 东亚领域边界值使用全球运输模型（MOZART）的输出值

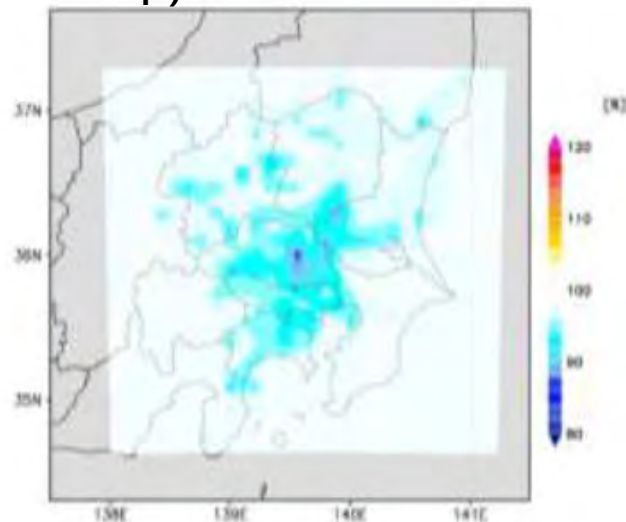
O₃日最高8小时值暖季第98百分位值



案例A (所有排放量设定为2009年)



案例B (关东固定蒸发VOC排放量设定为2001年)



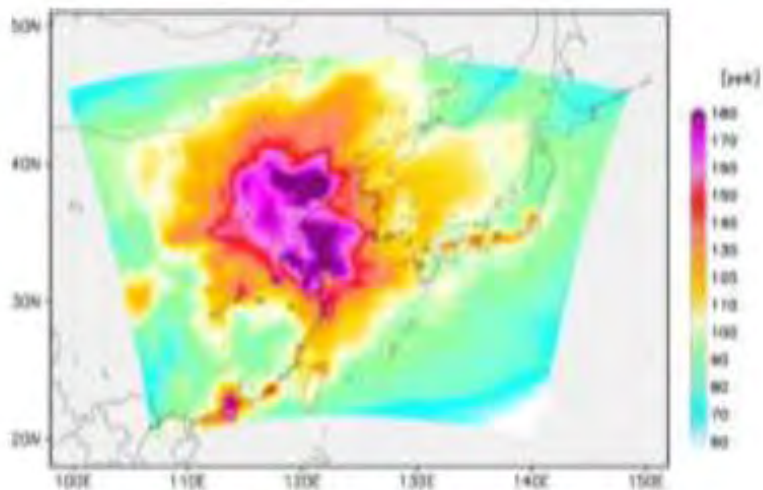
O₃新指标相当值的浓度比

(案例A / 案例B)

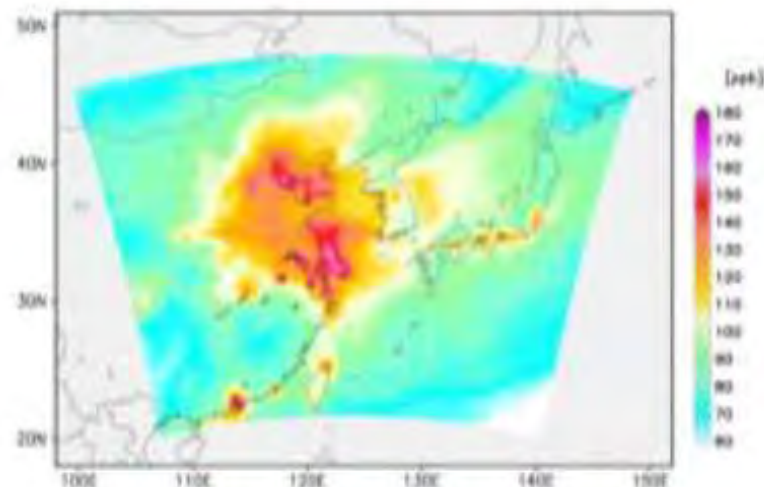
从东京都东部到埼玉县
东部为**0.85 - 0.90**左右
VOC减排效果显著

(2015光化学氧化剂调查研究会第3次资料2)

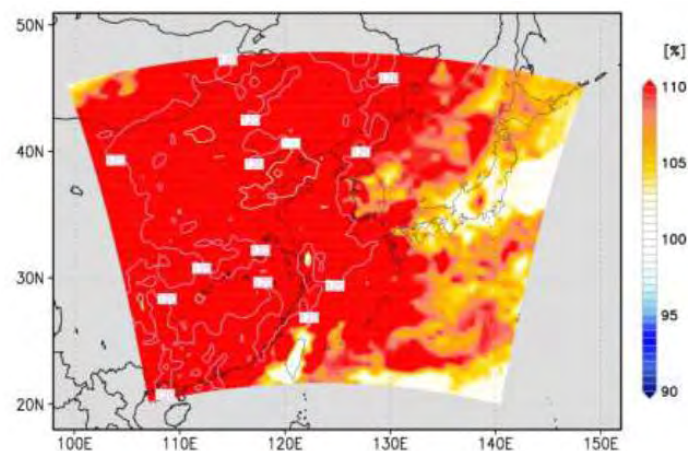
O₃日最高8小时值暖季第98百分位值



案例A (所有排放量设定为2009年)



案例C (来自东亚大陆的排放量设定为2001年)



**O₃新指标相当值的浓度比
(案例A / 案例C)**

**从九州地区的1.08到关东地区的1.02，
显示出 越境污染的增加**

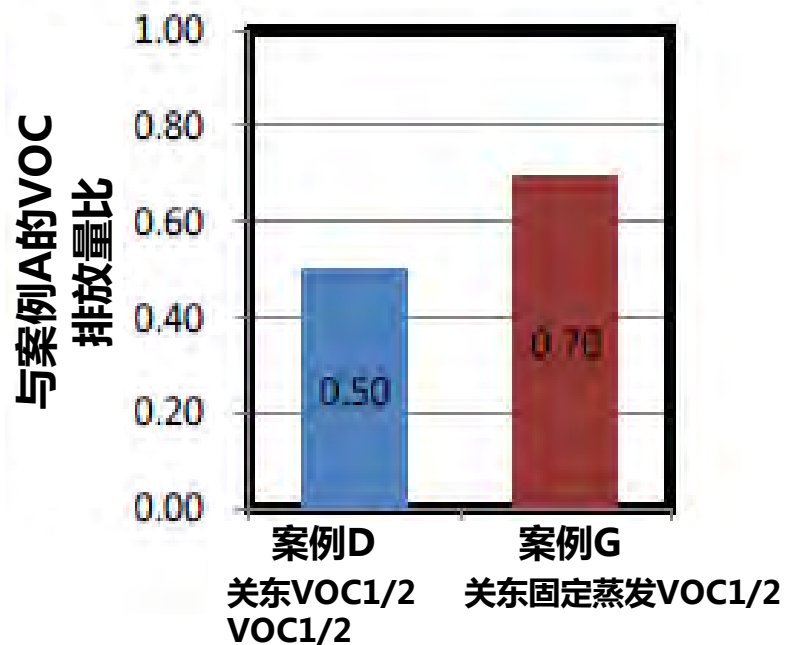
(2015光化学氧化剂调查研究会第3次资料2)

NO_x与VOC排放量的削减效果

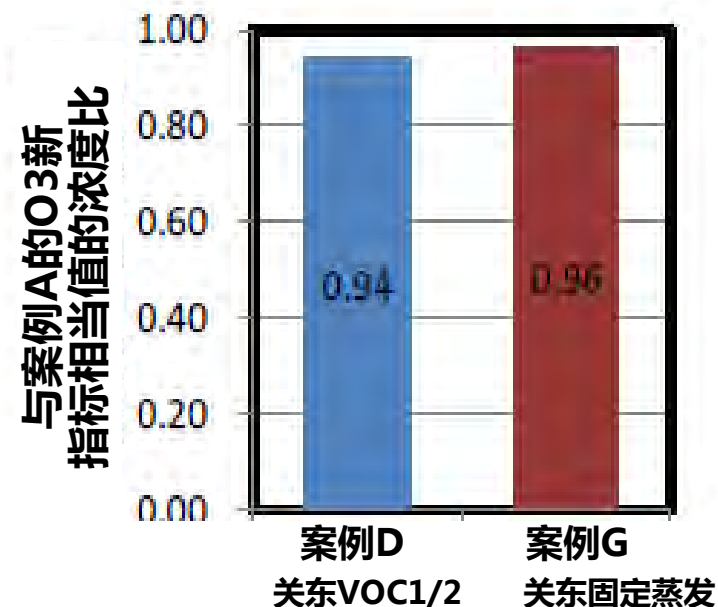
案例	大气污染物排放量的设定年				气象场的 设定年	备注
	东亚大陆	东京人为源VOC	关东NO _x	关东 ⁶ 左记以外		
A	2009年	2009年	2009年	2009年	2009年	【基准案例(2009年)】
D		2009年×1/2	2009年			关东人为源VOC削减的灵敏度的把握
E		2009年	2009年×1/2			关东人为源NO _x 削减灵敏度的把握
F		2009年×1/2	2009年×1/2			关东人为源VOC和No _x 同时削减灵敏度的把握
G		仅固定蒸发VOC 2009年×1/2	2009年			关东固定蒸发VOC削减效果的把握(通过与案例D的比较观察灵敏度的差异)

VOC排放量比与O₃新指标相当值的浓度比

< VOC排放量比 >



< O₃新指标相当值的浓度比 >

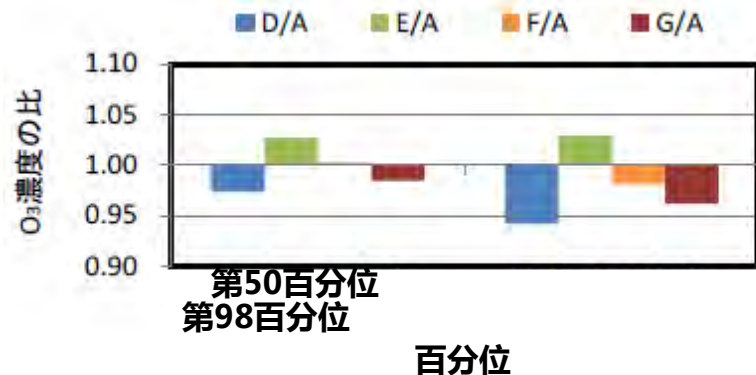


VOC单位削减量的O₃新指标相当值的降低效果

案例D (0.12) < 案例G (0.13) ，显示固定蒸发VOC排放削减和整体的VOC排放削减相比，O₃新指标相当值的降低效果更大

设定案例和浓度测定范围的灵敏度

案例	大气污染物排放量的设定年		浓度测定范围的灵敏度
	东京人为源VOC	关东 NOx	
D	2009年×1/2	2009年	与中浓度范围相比较，高浓度范围O3浓度的灵敏度高。
E	2009年	2009年×1/2	中浓度范围和高浓度范围的O3浓度的灵敏度未见较大差异。
F	2009年×1/2	2009年×1/2	
G	仅固定蒸发VOC 2009年×1/2	2009年	与中浓度范围相比较，高浓度范围O3浓度的灵敏度高。



(2015光化学氧化剂调查研究会第3次资料2)