

詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪 予測モデルの開発

DEVELOPMENT OF THE PREDICTION MODEL FOR ACID RAIN AND SNOW CONSIDERING THE DETAILED CLOUD MICROPHYSICAL PROCESSES

大石 哲¹・松井 光弘²・池淵 周一³

OISHI Satoru, MATSUI Mitsuhiro and IKEBUCHI Shuichi

¹正会員 博(工) 山梨大学助教授 工学部土木環境工学科(〒 400-8511 甲府市武田4-3-11)

²正会員 修(工) 大阪市水道局(〒 530-8501 大阪市北区南扇町6-28)

³フェロー 工博 京都大学教授 防災研究所水資源研究センター(〒 611-0011 宇治市五ヶ庄)

Recently the issue of acid rain and acid snow is deeply concerned as one of the global environmental problems. Many prediction models for acid rain have been developed. However most of them are using the parameterized cloud microphysical processes so called bulk method. The size distribution of cloud droplets is important for considering the transportation and transformation of acidic species among each water phases. The size distribution of cloud droplets is calculated by detailed microphysical processes so called bin method. Therefore in this study we developed the prediction model for acid rain and acid snow by using the detailed microphysical processes. Moreover we also investigated the mechanism of acid rain and snow by using the developed model.

Key Words : acid rain and acid snow, cloud microphysics model, bin method, topography

1. はじめに

酸性雨問題は社会・政治問題から環境問題まで多岐にわたる問題であるので、酸性雨に対する科学的取り組みは様々な方面からアプローチがなされている。土木分野においても、芝¹⁾は降水粒子に酸性物質が取り込まれる過程について微細な検討を重ねており、熱田ら²⁾は時間スケールが細かい降水水質分析データを指標化することを通して酸性物質が降水に取り込まれる過程を調査した。井伊ら³⁾は降水の溶存成分および同位体比についての時空間的変動特性の解析を行っている。このようにデータや素過程に対する知識が蓄積されてきた状況で望まれるものは酸性雨モデルであろう。

Rutledge and Hobbs⁴⁾は大気の力学過程、雲物理過程とともに化学過程を取り込んだ数値モデルを作成し、数値計算による酸性雨問題へのアプローチを最初に体系化した。このモデルはバルク法による雲物理過程を有していた。バルク法とは降水粒子を雨粒、雲粒、雲氷などのカテゴリーに分けて、その質量混合比で雲物理過程を表現しようとする方法である。日本における

酸性雨モデルの開発も、多くは雲物理としてバルク法、化学過程においてはRutledge and Hobbs⁴⁾を基本としており、Kitada et al.⁵⁾が2次元バルクタイプ酸性雨モデルによるアプローチをしている。ヨーロッパにおける対流圏物質の輸送と化学変化過程の解明に関する共同研究(EUROTRAC)⁶⁾で開発されたEURAD (Eulerian gridpoint model)⁷⁾では、MM5に化学過程を取り込んで酸性物質のメソ α - β スケールの挙動を考察している。日本でもMM5ベースの酸性雨モデルはWang et al.⁸⁾が開発している。このMM5ベースの酸性雨モデルもバルクタイプである。

一方、降水粒子を径で区分してその数密度を予報変数とする雲物理過程をbin法とよぶ。bin法では降水粒子の粒径分布が予報変数であるのに対し、バルク法ではそれはあらかじめ与えておく。したがってbin法であれば降水粒子の粒径分布が時間変化する様子を表現できる。このことは酸性物質を降水粒子内部に取り込む速度が降水粒子の半径の関数であることから重要であると考えた。

そこで、本研究では大石ら⁹⁾によって開発されてき

た bin 法による雲物理過程をもつ 2 次元雲解像モデルに Rutledge, Hegg and Hobbs¹⁰⁾を参考にした化学過程を導入して、詳細な雲物理過程を有する雲解像スケールの酸性雨モデルを開発することを試みた。さらにここでは、そのモデルを用いて、雲の中における酸性物質の挙動とそのメカニズムのうち、地形の効果が酸性雨に与える影響を調査した。

2. モデルの概要

(1) 雲物理モデル

本研究で使用する雲解像モデルは Takahashi¹¹⁾、高橋ら¹²⁾、大石ら⁹⁾によって開発されてきたものである。本研究では主風速方向と鉛直方向の 2 次元モデルを用いている。

このモデルの力学的特徴は、非静水力学モデル、AE 系 (非弾性系) であること、加えて、テンソル解析を用いた座標変換により地形の表現が可能なことであり、雲物理的特徴は bin 法を用いた降水粒子の発達過程を表現していることである。本モデルで考慮している降水粒子は球形のものが水滴、霰、雹であり、円板形が氷晶である。球形のものは径で 45 のクラスに細分化され、円板形は径方向に 21、厚さ方向に 5 クラスに細分化される。考慮している微物理過程は、凝結過程、衝突併合過程、凍結・着氷過程、融解過程の 4 つであり、降水粒子の分裂は考慮していない。モデル内の微物理過程の詳細については大石ら⁹⁾を参照されたい。

(2) 化学物質収支モデル

本研究で使用する化学物質収支モデルは Rutledge, Hegg and Hobbs¹⁰⁾をベースにしている。本研究での改変点は、バルク法で雲物理過程を表現している Rutledge, Hegg and Hobbs¹⁰⁾では (3) 式などにおいて粒径で積分する部分をあらかじめ決められた粒径分布によって解析的に積分してパラメータ化しているのに対し、本研究では bin 法で求められた粒径分布とその落下速度で積分を行っている点である。

本モデルが取り扱う酸性物質としては硫酸エアロゾル (硫酸アンモニウム)、SO₂(gas)、硝酸エアロゾル、HNO₃(gas)、アンモニウムイオン (硫酸アンモニウム)、酸化剤としてはたらく H₂O₂ である。それぞれの物質は大気中を移流し、降水粒子に溶け込んだ後は降水粒子とともに大気中を移流する。本研究で用いている雲解像モデルでは降水粒子の分布を陽に表現しているが、酸性物質が溶け込む降水粒子として水滴を雲粒と雨粒に、氷晶を雲氷と雪に、雹、霰を 1 つのクラスとして種類を分けた。大別して降水粒子に溶け込む過程としては、1) 固体のエアロゾル粒子が凝結核として雲粒に取り

込まれる過程。2) 凝結による成長の際に気体が降水粒子に溶け込む過程。3) 雨粒、雪、雹、霰が落下する際に下にある酸性物質を捕集する過程である。また、上記の降水粒子の相変化の際に各相間の酸性物質は他の相に移動する。以下に本モデルの開発および考察にあたって重要な化学物質が降水粒子に取り込まれる過程を詳しく述べる。

a) 降水粒子への硫酸の取り込み

硫酸イオンは液相の降水粒子 (雲粒、雨粒) に溶け込んだ SO₂ が酸化して生じる。SO₂ の降水粒子への溶解量は式 (1) で計算する。ただし、以下に述べる PC, PG は各過程での物質の移動量 [g(物質)/g(air) sec] である。

$$PC_1 = 10^3 C_{1i} Q_{SO_2} q_{cnd,i}, \quad (1)$$

$$C_{1i} = \frac{1.75 \times 10^{-14}}{[H_i]} \exp\left(\frac{5.19 \times 10^3}{T}\right),$$

ここで、 $q_{cnd,i}$ は降水粒子の凝結成長量であり、 i は降水粒子の種類 (雲粒、雨粒) を区別する。Q_{SO₂} は SO₂ の混合比 (g/g)、[H_{*i*}] は降水粒子 i の水素イオン濃度、 T は気温 (氷点下の場合は 273K) である。次に溶け込んだ SO₂ が酸化され硫酸イオンが生成される量は式 (2) で計算する。

$$PC_2 = 10^3 C_{2i} Q_{SO_2} Q_i, \quad (2)$$

$$C_{2i} = \frac{5.37 \times 10^{-19}}{([H_i])^{0.9}} \exp\left(\frac{6.778 \times 10^3}{T}\right) + (Q_{H_2O_2,i}/Q_i) \frac{2.67 \times 10^{-2}}{([H_i])^{0.27}} \exp\left(\frac{2.41 \times 10^3}{T}\right),$$

ここで、Q_{H₂O₂,*i*} は降水粒子 i 中の H₂O₂ の混合比、Q_{*i*} は降水粒子 i の混合比である。

b) 降水粒子への硝酸ガスの取り込み

硝酸ガスは水に対する溶解度が高いために凝結成長している際にはすべて溶解するものとする。もし、雲粒と雨粒が両方凝結成長している場合は雲粒に吸収されるものとする。また、低温で液相の降水粒子が存在しないために雲粒、雨粒に吸収されなかった硝酸ガスは固相の降水粒子 (氷晶、霰、雹) に吸収される。硝酸ガスの氷晶、霰、雹への取り込み量は式 (3) で計算される。

$$PG = Q_{HNO_3} \sum_{D_i} 2\pi \times 0.75 \times K_D D_i (0.65 + 0.44 Sc^{1/3} Re^{1/2}) N(i), \quad (3)$$

$$Sc^{1/3} Re^{1/2} = \left(\frac{\nu}{D_i}\right)^{1/3} \left(\frac{V_i(r_i) 2 D_i}{\nu}\right)^{1/2},$$

ただし、 K_D は硝酸ガスの拡散係数 (1.1×10^{-5} [m²/s]) である。Q_{HNO₃} は硝酸の混合比、 D_i は降水粒子の粒径で i は降水粒子の種類 (雪、霰、雹) と大きさによるクラスを区別する。N(i) はクラス i の降水粒子の数密度、 ν は大気の動粘性係数であり 1.34×10^{-5} [m²/s] を用いた。V_{*i*} は降水粒子 i の落下速度である。

3. 適用と考察

ここでは酸性物質の大気での挙動が正しく計算されていることを検証するために、様々な大気条件における初期値・境界値を導入して、実際の観測データと比較をする。その後、山岳地形の有無が雲生成機構を通して酸性物質挙動に与える影響を評価する。

(1) 化学物質の入力条件

化学物質は Rutledge, Hegg and Hobbs¹⁰⁾に基づいて高度 h で一様に指数関数 $Q_i = Q_i(0) \exp(-h/HI_i)$ で、初期条件および境界条件として与えた。表-1)に各化学物質の地表濃度 $Q_i(0)$ と低減係数 HI_i を示す。

表-1 モデルに入力した化学物質の初期条件,

化学物質	地表濃度 [g/g]	地表濃度 [ppb]	HI_i [km]
SO ₂	4.3×10^{-9}	1.95	2.0
SO ₄ ²⁻	3.1×10^{-9}	—	3.5
NH ₄ ⁺	1.6×10^{-8}	—	3.5
H ₂ O ₂	5.9×10^{-10}	0.506	∞
NO ₃ ⁻	7.7×10^{-10}	—	3.5
HNO ₃	1.7×10^{-9}	0.780	2.0
PAN	4.2×10^{-9}	0.014	∞

(2) 実測データとの比較によるモデルの検証

まず、本研究で開発した数値モデルの検証を行うために、実測データと比較した。そのため、表-2)に硫酸イオン濃度の観測結果および計算結果の平均値、表-3)に硝酸イオン濃度の観測結果および計算結果の平均値を示した。表の数値の単位はいずれも $[\mu\text{eq}/\ell]$ (マイクロ当量/リットル)であり、1 eq は一価の酸または塩基を中和するのに必要な量である。降雨タイプにsnowとあるのは雪の計算事例、c.cとあるのは対流性 (convective) の冷たい雨の計算事例である。

比較に用いた観測結果は環境庁が平成5年度～平成9年度の5年間に実施した第3次酸性雨対策調査において収集したデータのうち大気の状態に関するものである。比較する地点として、冬季の酸性雨、酸性雪が問題となる日本海岸からは新潟、都市地域として大阪、田園地域として大阪に近接する京都八幡を選択した。測定値として降雨量によって重みをつけた月平均の値を用い、その平均値と最大値・最小値およびそれが観測された月を表-2および表-3に示した。

計算結果は対流性降雨の場合8事例、層状性降雨の場合2事例、雪の場合1事例の計11事例を計算し、得られた硫酸イオン、硝酸イオン濃度に降雨量の重みをつけた領域平均値を算出し、さらにその11事例での平均値および最大値・最小値とその時の降雨タイプを表-2および表-3に示した。対流性降雨の事例では山岳の有

無、水平風の強弱、氷相過程の有無を変化させ、層状性降雨の事例では山岳の有無を変化させた。

観測値で特徴的なのはまず、降水量が少ない時期にイオン濃度が高くなっていることである。モデルにおいても、降水量が少ない事例でイオンの濃度は高く計算された。このことは降水量が増えることによって線形的に物質の降下量が増えるわけではないことを示している。

観測値の大気中の化学物質の量が特定できないので一概には言えないが硫酸イオン濃度においてモデルの計算値は観測値のオーダーと一致している。また、実際の観測値とモデルの計算値を比較してみると、硫酸イオンに関して大阪、京都八幡においても冬季に濃度が高くなっている。太平洋側の都市やその近郊では冬季と夏季において汚染物質の大気中の量に大きな差がないと考えられるのでモデルにおいてうまく再現できていると言える。

一方、より定量的に見ると、モデルでは硝酸イオンは観測値と比較して定量的に同程度の値を算出しているが、硫酸イオンは観測値と比較して過小な値を算出している。橋本¹³⁾によれば、数値計算によって硫酸イオンは過小に計算され、硝酸イオンは過大に計算される傾向があり、その原因は今のところ良く分かっていないという。一方、芝ら¹⁾によれば、硫酸の液相酸化反応を考慮すると理想条件の数値計算において解離平衡のみの場合と比較して水素イオン濃度で1.6倍ほどの酸化反応が起こり、その時間スケールは100秒にも及ぶという。本研究で用いた式(2)がこの過程を正確に表現できていないことが、硫酸イオンを過小に評価している原因として十分に考えられる。

以上の議論をふまえた上で、実際の酸性雨の主要因が硫酸イオンであることから以下の考察では主として硫酸イオンを対象に議論を行う。ただし、各計算例において硫酸イオンと硝酸イオンは定性的に同様の挙動を示しているため、本研究の硫酸イオンの議論はほとんどそのまま硝酸イオンのメカニズムを述べているといえる。

(3) 対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下について与える影響

ここでは、対流性の降雨の大気状態をモデルに与え、また、2次元のベル型山岳地形 (標高1600m) を与えた場合と平らな地形に初期刺激として高温の飽和した空気塊を計算領域の下層に与えた場合において硫酸イオンの挙動を調査する。その際、対流性降雨の気温プロファイルとしてはブラントバイサラ振動数が 10^{-4} になるように与え、地表気温を300[K]とした。また、水蒸気プロファイルとしては地表の相対湿度が0.87%、地

表-2 硫酸濃度の観測値と計算値 [$\mu\text{eq}/\ell$],

	Observed			Calculated
	Niigata	Osaka	Yawata	Model
average	57.6	30.0	32.3	18.3
max. (month)	139 (Apr)	47.7 (Dec)	56.0 (Dec)	30.0 (snow)
min. (month)	14.9 (Jul)	17.4 (Sep)	19.7 (May)	10.2 (c.c)

表-3 硝酸濃度の観測値と計算値 [$\mu\text{eq}/\ell$],

	Observed			Calculated
	Niigata	Osaka	Yawata	Model
average	15.3	12.3	19.1	13.7
max. (month)	39.9 (Apr)	20.7 (Dec)	27.9 (Nov)	22.5 (snow)
min. (month)	4.91 (Sep)	6.13 (Oct)	10.2 (Jan)	7.7 (c.c)

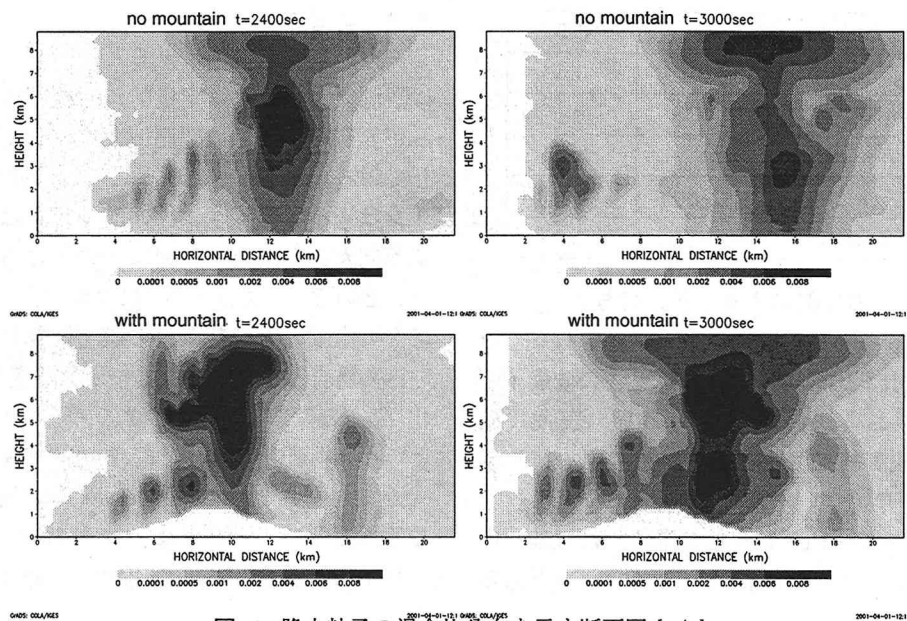


図-1 降水粒子の混合比分布を示す断面図 [g/g].

表 1200[m] で 0.99%, それより上では高度が増すほど相対湿度が減るように与えた。

山岳地形がある場合とない場合の計算結果を比較することで、山岳地形の有無についての総降水量と硫酸イオンの総降下量について考察をする。図-1は地形なし (no mountain, 上段) と地形あり (with mountain, 下段) の雲中の降水粒子の混合比分布を示した。図-2, 図-3 は 地形なし, 地形ありの降雨強度の時系列変化を示した。図-4, 図-5は同様に硫酸イオン降下量の時系列変化を示した。図-6, 図-7 は 総降水量と硫酸イオンの総降水量を実線 (地形なし) と波線 (地形あり) で示したものである。

まず、総降雨量を比較する。図-6 をみると地形なしの場合では 15[km] 地点付近をピークとする緩やかな

降水分布となっているが、地形ありの場合では 10[km] 地点に局地的に大きな降水量のピークがある。図-1より、地形の有無に関わらず雲が高度5[km] 以上に発達して、霰、雹などの氷粒子が融解して雨になっていることがわかる。したがって、図-2, 図-3の 40 分過ぎの降水分布は冷たい雨によって形成されたものと考えられる。

一方、図-7から地形なしの場合において硫酸イオンが最大の降下量を示すのは 10[km] 付近であり、これは雨が降り始めた場所と一致している。また、地形ありの場合では硫酸イオンの降下量が最大となる地点は 10[km] 地点付近であり、6-8[km] 地点でも硫酸イオンの降下量が多い。このように、硫酸イオンが地形の影響を受けている理由については以下のように考えられる。

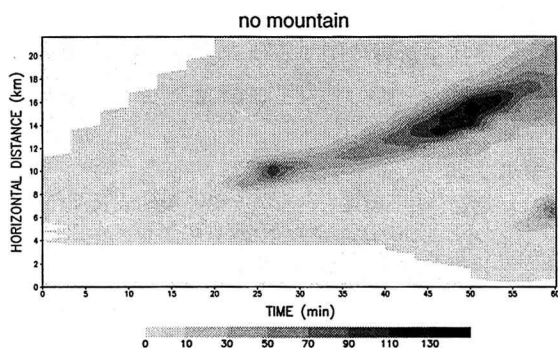


図-2 地形なしで計算した降雨強度の時間 (x-axis) および空間 (y-axis) 変動 [mm/hr].

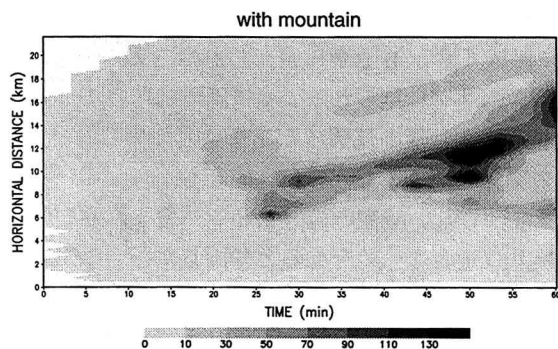


図-3 地形ありで計算した降雨強度の時間 (x-axis) および空間 (y-axis) 変動 [mm/hr].

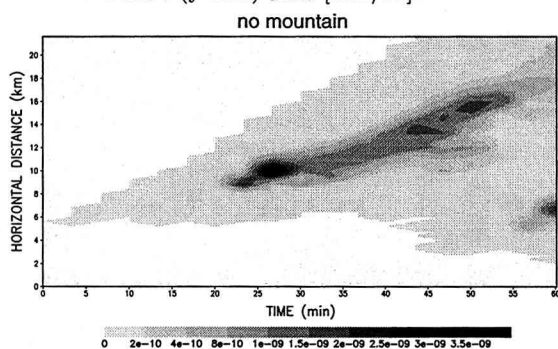


図-4 地形なしで計算した硫酸イオン降下量の時間 (x-axis) および空間 (y-axis) 変動 [g/cm²s].

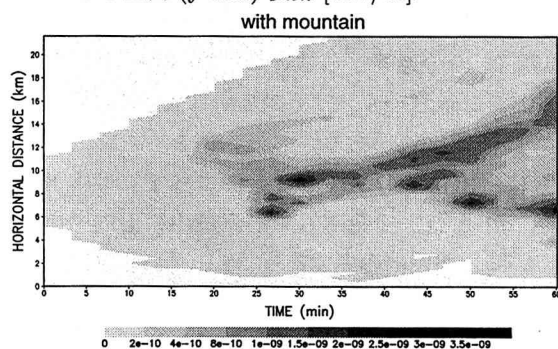


図-5 地形ありで計算した硫酸イオン降下量の時間 (x-axis) および空間 (y-axis) 変動 [g/cm²s].

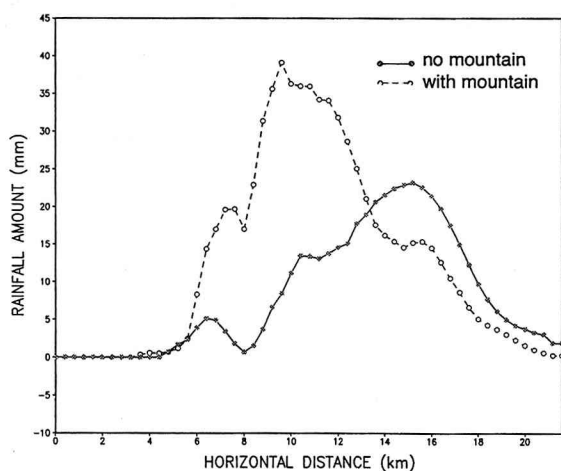


図-6 総降雨量の空間変動 [mm].

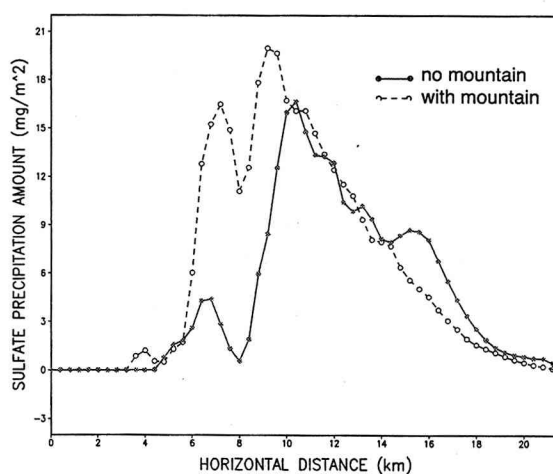


図-7 総硫酸イオン降下量の空間変動 [mg/m²].

地形なしの場合では、図-1の上段に示されるように、最初にできた対流性雲が十分に発達してから雨を一度に降らせて、その後は雨を降らせて衰弱しながら風により移流している。対流性雲が十分に発達してから雨が降る際に硫酸イオンも上空に蓄えられたものが一度に降下するので図-4に見られるように降雨初期の10[km]地点での降雨は大量の硫酸イオンを含んでいる。それが図-7の実線（地形なし）の最大値をもたらしている。その後はほぼ等しい濃度の硫酸イオンが含まれるので、図-7の実線（地形なし）を見ると降雨量が多い16[km]地点付近に小さなピークがある。

地形ありの場合では、図-1の下段に示されるように、発達した雲は山の風下斜面（10[km]地点付近）で雨を降らせ、さらに新しく風上斜面で生じた雲が加わって同一箇所に雨を降らせていることが分かる。風下斜面においては40分過ぎから強い降雨が生起しているので、その影響で硫酸イオンはその場所に大量に降る。それが図-7の波線（地形あり）の最大値をもたらしている。さらに、山岳地形があることによって雲は風上斜面（6-8[km]地点）で発達している最中にも弱い雨を降らせている。弱い雨の中であっても、それより風上側に降雨がないために硫酸イオンが含まれていて総硫酸イオン量としては第2のピークを形成し、その程度は降雨量における第1ピーク（10[km]地点付近）に対する第2ピーク（6-8[km]地点）の比よりは大きくなる。

以上より、対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下に与える影響は大きく、それは地形が降雨量に与える影響より大きな影響を総硫酸イオン量に与えているという結果が得られた。

4. おわりに

本研究では詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪予測モデルの開発とその適用を試み、酸性物質降下についての以下の結果が得られた。

まず、bin法を用いて降水粒子の粒径分布を計算できる雲解像モデルに、硫酸イオンや硝酸イオンなどの化学物質の取り込みや輸送過程を導入したモデルを完成させた。次に、本研究で開発した雲解像酸性雨モデルは、硫酸イオンについてはやや過小評価であり、硝酸イオンについては適当な値を算出している。これは、その他の酸性雨モデルの傾向と同じであった。最後に、対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下に与える影響は大きく、それは地形が降雨量に与える影響より大きな影響を総硫酸イオン量に与えているという結果が得られた。

本研究で開発したモデルと大気中に酸性物質の観測データ、検証データの蓄積とあいまって酸性雨、酸性

雪のメカニズム解明の一助となることを願い、本研究の結論とする。

謝辞：本研究は日本学術振興会 科学研究費補助金基盤研究(B)(2)「酸性雪の長距離輸送とそれが流出過程に及ぼす影響に関する研究」（代表：池淵周一）の援助を受けた。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 芝定孝・平田雄志・八木俊策：凝結成長期における雲粒の酸性化におよぼす酸化反応の影響，水工学論文集，第45巻，pp.277-282，2001。
- 2) 熱田洋一・坂本康・西田継：イオン当量濃度割合の多変量解析と変動特性解析による降水水質の検討，水工学論文集，第45巻，pp.283-288，2001。
- 3) 井伊博行・平田健正・佐原尚美・伏井邦彦：和歌山県と大阪府における降水中の溶存成分および水素，酸素同位対比，水工学論文集，第45巻，pp.289-294，2001。
- 4) Rutledge, S.A. and P.V.Hobbs: The mesoscale and microscale structure and organization of clouds and precipitation in midlatitude cyclones. XII: A diagnostic modeling study of precipitation development in narrow cold-frontal rain bands. *Journal of Atmospheric Science*, **41**, pp.2949-2972, 1974.
- 5) Kitada, T., P.C.S.Lee and H.Ueda: Numerical modeling of long range transport of acidic species in association with meso- β -convective clouds across the Japan sea resulting in acid snow over coastal Japan-I, Model description and qualitative verifications. *Atmospheric Environment*, **27A**, pp.1061-1076, 1993.
- 6) Borrell, P. and P.Grennfelt: EUROTRAC - Organization Structure and Achievements, Transport and Chemical Transformation of Pollutants in the Troposphere, Springer, pp.3-18, 2000.
- 7) Ebel, A., H.Elbern, H.J.Jakobs, M.Memmesheimer, M.Laube, A.Oberreuter and G.Piekorz: Simulation of Chemical Transformation and Transport of Air Pollutants with the Model System EURAD, Tropospheric Modelling and Emission Estimation, pp.27-45, 1997.
- 8) Wang, Z., T.Maeda and M.Hayashi: A nested air quality prediction modeling system for urban and regional scales: Application for high-ozone episode in Taiwan, Abstract book of Acid rain 2000, p.28, 2000.
- 9) 大石哲・木谷有吾・中北英一・池淵周一：詳細な雲物理過程を考慮した豪雨に及ぼす地形の影響に関する数値実験的研究，土木学会水工学論文集，第41巻，pp.117-122，1997。
- 10) Rutledge, S.A., D.A.Hegg and P.V.Hobbs: A Numerical Model for Sulfur and Nitrogen Scavenging in narrow Cold-Frontal Rainbands, 1. Model Description and Discussion of Microphysical Fields, *Journal of Geophysical Research*, **91 D13**, pp.14385-14402, 1986.
- 11) Takahashi, T.: Warm rain, giant nuclei and chemical balance, *Journal of Atmospheric Science*, **33**, pp.269-286, 1974.
- 12) 高橋劭・阿波田康裕：詳細な雲の微物理過程を考慮した二次元積雲の数値実験，京都大学防災研究所年報，第36号B-2，pp.189-217，1993。
- 13) 橋本芳一：身近な地球環境問題，pp.40-43，1997。

(2001. 10. 1受付)