

豊橋技術科学大学 正員 北田 敏彦
同上 学生員 稲田 寧

(序) いろいろな空間スケールでの大気汚染現象のモデル化は、人間の活動が環境に及ぼす影響を正しく評価するためにも、極めて重要な課題である。最近、大気中での硫酸塩や硝酸塩生成の問題とも関連して、気体状および粒子状物質に対する消滅、生成機構としての雲(特に積雲)の役割が注目されている。すなわち、大気境界層から押し上げられた気塊は雲によってフィルターされる。雲粒子中に移動した物質は、液相反応を伴いつつ雲とともに動く。雲は、蒸発して再び気相(エアロゾルを含む)にもどるか、あるいは雨となって地表に落ちる。したがって、一般に、大気中に放出された物質の行方をトレースするためには、気相(エアロゾルを含む)のみならず雲ならびに雨水相についても物質収支をとる総合的なモデル化が必要である(Fig.1)。これらのことを背景とし、本報では、先に筆者らが提案した SO_x - NO_x - HC 系の地域規模モデルを用いて、大気化学に及ぼす雲の効果をシミュレーションにより明らかにしようとするものである。計算は空間一次元ならびに二次元(海陸風場)について行なふ。

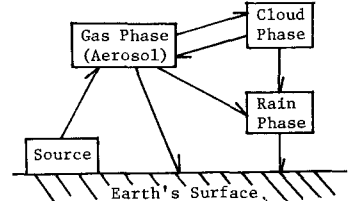


Fig.1 Schematic of the transport of air pollutants emitted into the atmosphere.

(モデルの概要) 本研究では、第1段階として①雲は、単に、気相物質に対する sink/source としてのみ働き、②気相-液相(雲)間の物質移動現象は、後に述べるように一次反応速度定数によってモデル化することとする。さらに、雲の効果は、光量子フラックスを減らし光分解反応の速度を遅らせるものとしてモデル化する。

1. 支配方程式系 計算に用いた化学反応系は、84の気相反応と雲粒子による気相物質の10個の除去/生成反応よりなる。大気中での寿命が比較的長く、化学反応のみならず輸送過程を考慮する物質は、19(NO , NO_2 , HNO_2 , HNO_3 , NH_3 , $RONO_2$, RO_2NO_2 , PAN , H_2C_2 , O_3 , SO_2 , SO_4^{2-} , paraffines, C_2H_4 , olefines, aromatics, $HCHO$, $RCHO$, $ROOH$)であり、その支配方程式は次式である。

$\frac{\partial C_i}{\partial t} = L_1 C_i + L_2 C_i + L_3 C_i + R_i(C_1, C_2, \dots, C_{47})$, $i=1, 19$ (1) 二に、 L_1, L_2, L_3 は線型作用素で、たとえば $L_1 = -\frac{\partial}{\partial x} u + \frac{\partial}{\partial x} K_H \frac{\partial}{\partial x}$ 。また、 R_i は非線型化学反応項で、これを通じて(1)式は互いに couple している。次に、寿命の短い物質には定常状態法を適用し次式であらめす。 $R_i(C_1, C_2, \dots, C_{47}) = 0$, $i=20, 41$ (2) 式(1)と(2)に適切な境界条件を付したものが、系の支配方程式である。

2. 雲粒子による除去反応

雲粒子による気相物質の除去過程は、第一近似として気相抵抗による律速であると仮定できる。雲粒子が球形であると仮定し、その平均粒径(r)、粒子数密度(N_p)、気体の分子拡散係数(D_{ig})、フーリー定数(A)を与えれば、雲粒子による除去は、次式で速度定数とする一次反応と考えられる。

雲粒子による気相物質の除去過程は、第一近似とし

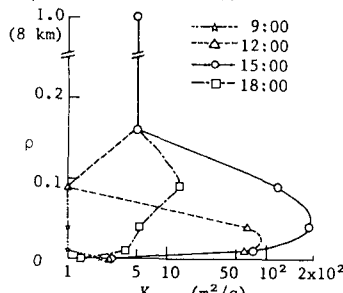


Fig.2 An example of eddy diffusivity profile from Yamada & Mellor's model(1975)

Table 1 Removal rates for soluble species calculated by the parameterization procedure discussed in the text

Species	$k_{i, wet} (s^{-1})$
HNO_3	0.06
NH_3	0.102
SO_2	0.28(-4)
SO_4^{2-}	-0.28(-4)
PAN	0.018
$HCHO$	0.086
$RCHO$	0.071
H_2O_2	0.088
HNO_2	0.07
$ROOH$	0.065

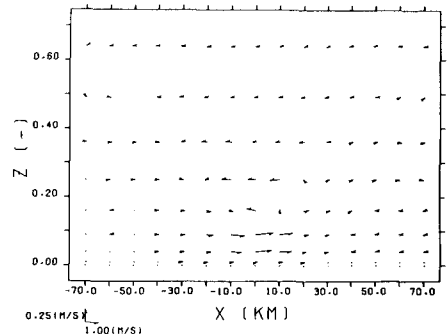


Fig.3 Sea breeze circulation at 3:00 p.m.

$h_{i, wet} = D_i g \frac{4\pi r N_A f}{C_i} \quad (3) \quad \text{ここに、} f = 1 - \frac{H_i C_i^0}{C_i}$
 液相反応を含むた液滴-気相間物質移動の数値計算
 より¹⁾、 f は、 $f=0$ ($H_i > 0.1$ 時)、 $f = 1 - \frac{H_i - 0.01}{0.1}$

($0.01 < H_i \leq 0.1$)、 $f=1$ ($H_i \leq 0.01$) とモデル化した。得
 られた $h_{i, wet}$ を表 1 に示す(但し、 $r=0.0003$ m, 雲粒子
 の水量 $15 \mu\text{g}/\text{m}^3\text{-air}$)。3. 渦散場と流れ場 Yama-

da & Mellor (1975) のレベル 3 の乱流境界層モデルによ
 る乱流熱フラックスから K_v の鉛直分布の日変化を推
 定した (Fig. 2)。また、二次元計算の場合の K_H は、水
 平方向格子サイズ Δx に適合する値 ($1000 \text{ m}^2/\text{s}$) に固定

した。二次元流れ場には、光本 (1981) のモデルによる海陸風場を用いた (Fig. 3 に例を示す)。4. 数値計算法 (1)
 式を 3 つの一次元輸送方程式と 1 つの非線型化学反応方程式に、time splitting の概念を用いて分割し、有限要素
 法 (輸送方程式) と区分的擬似解析解 (化学反応方程式系) を用いて解いた³⁾。輸送方程式と化学反応方程式に異
 なる時間刻みを使えるなど極めて有効な方法である。

(計算結果及び考察) 高度 2000 m に雲の層を設定し、それ以下の大気境界層で 0.1 m/s の上昇流があるとい
 う条件で一次元の計算を行なった(排出源はなく、19 の物質の初期分布を設定)。計算開始後 6 時間 (正午) の SO_4^{2-} 、
 H_2O_2 の濃度分布を Fig. 4, 5 に示す。 SO_4^{2-} は雲粒 3 中のみならず気相でも生成し、大気境界層内 ($\rho=0.25$ (二次元
 高度; 2000 m に相当) 以下) では、雲の存在によって減少した photon flux を反映して、雲のない場合に比べて、
 むしろ SO_4^{2-} 濃度は低い (Fig. 5)。一方、雲の高さでは、液相での SO_4^{2-} 生成により、高い SO_4^{2-} 濃度を示す。Fig. 4 は、
 H_2O_2 の水に対する高い溶解性のため、雲のレベルでの急速な気相→液相移動があることを示している。以上、雲
 (あるいは雨) の存在は、気相物質の組成を変える可能性を示し、ひとたび雲(雨) 層を通り抜けた気塊の気相物質の
 組成は、気相反応だけではシミュレートできないことを予想させている。Fig. 3 にその一部を示した海陸
 風流れ場を用いて、二次元計算を行なった。Fig. 6 (雲なし)、7 (雲あり) に SO_4^{2-} 濃度分布の変化の一部を
 示す。雲の層における SO_4^{2-} の生成が濃度分布に与える影響、海陸風にもなうサーキュレーションが反応生成物質
 を輸送する有様がうかがえる。

(結論) 本研究は、Fig. 1 で示した
 気相ブロックと雲の相のブロックの
 相互作用を、その簡単なモデル化
 により予測しようとしたもので、第
 一ステップとして目的は達せられ
 た。これらを検証するデータの
 収集を提案したい。

- 1) Carmichael, G.R., Kitada, T., and Peters, L.K. (1982): Proc. of 13th Int. Tech. Meeting on Air Poll. Modelling and its Appl., pp.180-190 Ile des Embiez, France.
- 2) (1982): Proc. of 4th Int. Conf. on Precipitation Scavenging, Dry Deposition and Resuspension, Santa Monica, U.S.A.
- 3) Kitada, Carmichael, and Peters (1983): Proc. of 3rd Int. Symp. on Numerical Methods in Engineering, pp.223-233, Paris, France.

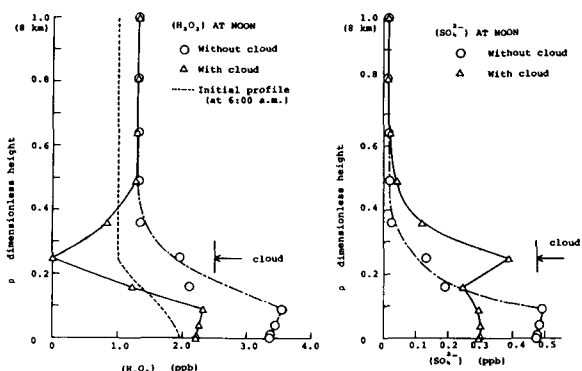


Fig. 4 Comparison of the H_2O_2 concentration profiles. Fig. 5 The same as for Fig. 4 but for SO_4^{2-} after 6 hrs simulation using 1-dimensional model with and without cloud layer.

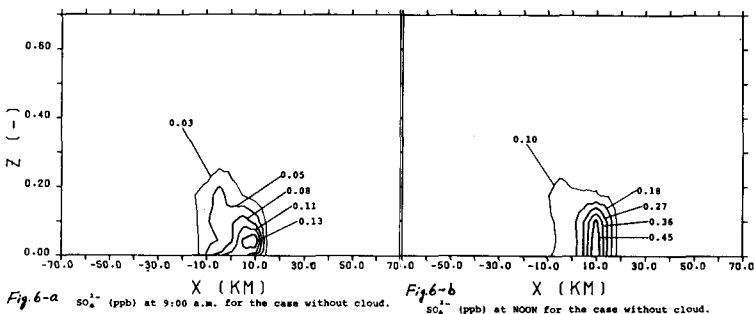


Fig. 6-a SO_4^{2-} (ppb) at 9:00 a.m. for the case without cloud. Fig. 6-b SO_4^{2-} (ppb) at NOON for the case without cloud.

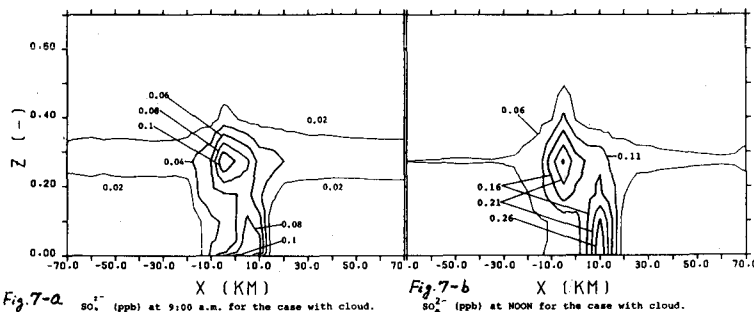


Fig. 7-a SO_4^{2-} (ppb) at 9:00 a.m. for the case with cloud. Fig. 7-b SO_4^{2-} (ppb) at NOON for the case with cloud.