

II-392 硫酸化物の長距離輸送中挙動の季節変動について

○京都大学工学部 学生会員 岡田直樹
 京都大学工学部 正会員 池田有光
 京都大学工学部 正会員 平岡正勝

(1) 目的

SO_x の長距離輸送によって起こる高濃度汚染をモデル化する試みは、現在北欧や北米を中心として行われている。なかでもバックトラジェクトリーを用いるラグランジュモデルは SO_2 濃度、 SO_4^{2-} 濃度、そしてそれぞれの乾性・湿性沈降量を計算するのに必要なパラメータを推定できるという特徴をもつ。ここでは、すでに求められているトラジェクトリーを用いていま述べたパラメータを推定し、その結果についての考察をおこなった。

(2) 方法

北米地域の51か所の気象観測点で観測された850mb面の風向・風速を用いて輸送の流跡を日単位で推定し、あらかじめ面源強度で与えられる排出源について各流跡に寄与するものを同定する。同定された各排出源からは以下の拡散式にしたがって拡散するものと仮定する。

$$X_i = \frac{Q_i}{H \cdot u \sqrt{2 \cdot \pi} \cdot \sigma_y} \cdot \exp \left(- \frac{y^2}{2 \cdot \sigma_y^2} \right)$$

この式では、混合層内では汚染物質が一様に拡散されるとしている。そして、輸送中の SO_2 の変質・除去に関する式を以下のように表す。

$$\frac{d(SO_2)}{dt} = - (K_t + K_w + K_d) \cdot \overline{(SO_2)}$$

$$\frac{d(SO_4^{2-})}{dt} = \frac{3}{2} \cdot K_t \cdot \overline{(SO_2)} - (K_w' + K_d') \cdot \overline{(SO_4^{2-})}$$

ここで、 K_t は SO_2 から SO_4^{2-} への反応速度定数、 K_w は SO_2 の湿性沈着速度定数、 K_d は SO_2 の乾性沈着速度定数、 $K_w' = 10 \cdot K_w$ 、 $K_d' = 0.1 \cdot K_d$ である。また、 K_w は降雨強度に比例するとし、 K_d は乾性沈降速度を混合層高度で除した値としている。また、バックトラジェクトリーの出発点（カナダのロングポイント）を含む格子では以下の物質収支式を与えた。

$$H \cdot \Delta x^2 \frac{d(SO_2)}{dt} = H \cdot u \cdot \Delta x \cdot \sum (\overline{(SO_2)}) - (\overline{(SO_2)}) + Q - K_a \cdot H \cdot \Delta x^2 \cdot (\overline{(SO_2)})$$

$$H \cdot \Delta x^2 \frac{d(SO_4^{2-})}{dt} = H \cdot u \cdot \Delta x \cdot \sum (\overline{(SO_4^{2-})}) - (\overline{(SO_4^{2-})}) - K_b \cdot H \cdot \Delta x^2 \cdot (\overline{(SO_4^{2-})}) + \frac{3}{2} \cdot K_t \cdot H \cdot \Delta x^2 \cdot (\overline{(SO_2)})$$

$$(\therefore K_a = K_t + K_w + K_d, \quad K_b = \tilde{K}_w' + K_d')$$

以上の式をもちいて変質・除去を考慮した大気中 SO_2 濃度、 SO_4^{2-} 濃度が計算され、観測値に最も近くなるように非線形最小二乗法（マルカート法）をもちいて K_t 、 K_w 、 K_d の3つのパラメータを2カ月ごとに1年間推定した。

(3)結果

パラメータのシミュレーション結果を図1、2に示す。推定したパラメータのうち5、6月は観測値に欠損が多く信頼性が非常に低いと考えられる。5

、6月以外の月のパラメータの値は、これまでの研究で得られている値と比較してほぼ妥当な値が得られた。 K_t と K_d については夏の方が冬よりも値が大きいという季節変動を示した。 K_w については明確な季節変動が認められなかったので年間を通して一定値を与えた。

（ $K_w = 0.0435 \times P$ 、 P は降雨強度）また、

K_t は夏の方が冬に比べて約1オーダー

大きい値を示しており、また春に比べて秋の方が値が大きいことがわかる。

これに対して、 K_d の方は夏の値が冬の2.5倍程度にとどまっており、 K_t に比べて変動が少ないといえる。

K_d は、先に述べたように乾性沈着速度を混合層高度で除した形で表されるが、乾性沈着速度は地表面の状態や気象条件、気温、風速などにより大きく変化する。乾性沈着速度は地表面が雪の時よりも森林や植生層に覆われているほうが大きくなり、推定結果はこの傾向をよく表しているといえる。

また、パラメータのうち K_t は反応速度定数であるから温度との間にArrhenius式に見られる指数関数的相関があると考えた。図3に、得られたパラメータの値と平均気温とをプロットした結果を示す。図3より K_t は温度との間に高い相関を示していることがわかる。この結果は、将来の極東地域への長距離輸送モデルの適用に大きく役立つものと考えられる。

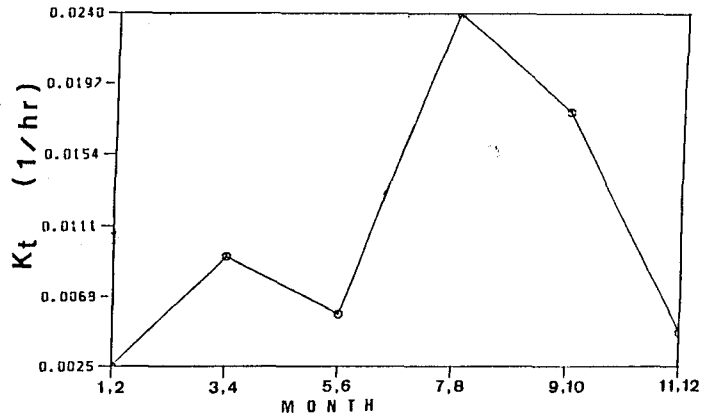


図1 K_t （反応速度定数）の季節変化

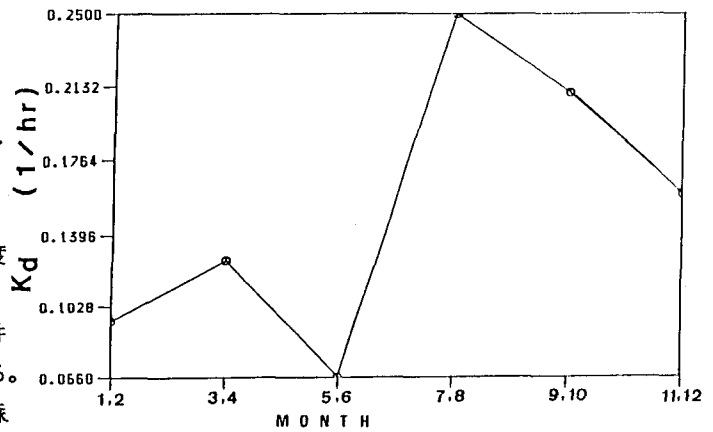


図2 K_d （乾性沈着速度係数）の季節変化

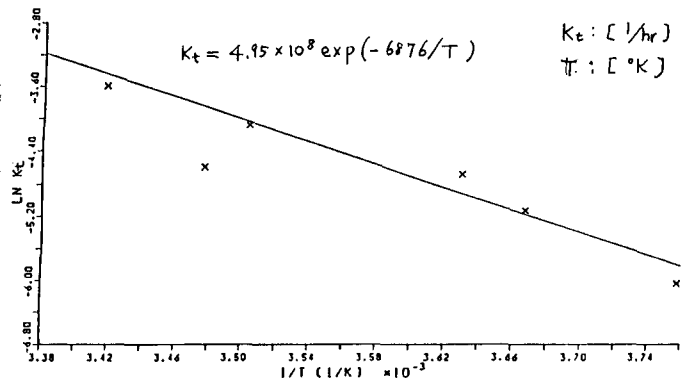


図3 Arrhenius式を用いた K_t と T の関係