

II-394

層状雲・化学反応モデルによる雨水・霧水中の SO_4^{--} 濃度の推定

○ 京都大学(正会員) 池田有光
近畿電気工事 尾本和夫
京都大学(正会員) 平岡正勝

1. はじめに; 酸性降下物による土壌・湖沼水の汚染、植物・魚類等への有害性は世界各地で問題になっている。湿性沈降による汚染現象の定量的なモデルによる推定は非常に巨視的な方法(例えば、雲底下洗浄のみによる推定)によってきたのが実状である。本研究ではRutledgeらが開発した層状雲モデルに化学反応モデルを組み込むことによって空気中で蒸気が凝縮して液化する過程での汚染物質の取り込みと反応を考慮したモデルでもって湿性沈降の現象をミクロに捉えて、実測された雨水と霧水内の硫酸根濃度を推定できるかどうかの検討を加えた。

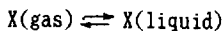
2. 利用データとモデルの概要; 解析は降水と霧水中の汚染物質濃度推定の二つのケースについて行ったが、降水汚染の解析ではカナダのロングポイントのデータを利用した。そこでは一日値で亜硫酸ガス濃度、粒子状硫酸濃度及び降水量、降水中の硫酸イオン濃度等が一年間観測されている。今回雨水に関して利用したデータは1982年のこれら観測値のうちロングポイントに雨が降った日に限定される。カナダのデータを利用した理由は発生源データをはじめ気象データ等が揃っており、汚染物質の総括的な長距離輸送過程の解析が可能であることによる。霧に関する解析では霧水中の硫酸イオン濃度と硝酸イオン濃度のデータは国立公害研究所の村野健太郎氏、群馬県衛生公害研究所の関口恭一氏が行った赤城山上の霧水観測および麓の大間々での大気汚染観測結果¹⁾のうち1985年9月15日のものを利用した。

硫酸化物物の反応拡散と湿性沈着および乾性沈着を含む長距離輸送過程のモデルには多くのものが提案されている。観測点近傍に到達する汚染大気についてのシミュレーションモデルについてはすでに発表済み²⁾であるので省略するが、基本的には濃度に比例する沈着速度と、反応速度を加えたバックトラジェクトリーモデルである。

層状雲モデルの概要は次のようなものである。雲水(q_c)、雨水(q_r)、雪(q_s)について、

$$\begin{aligned}\frac{\partial q_c}{\partial t} &= -W \frac{\partial q_c}{\partial z} + \text{PCOND} - \text{PRAUT} - \text{PRACW} - \text{PSACW} \\ \frac{\partial q_r}{\partial t} &= - (W + V_R) \frac{\partial q_r}{\partial z} - \frac{\partial(\rho V_R)}{\partial z} + \text{PRAUT} + \text{PRACW} - \text{PREVP} + \text{PMELT} \\ \frac{\partial q_s}{\partial t} &= - (W + V_S) \frac{\partial q_s}{\partial z} - \frac{\partial(\rho V_S)}{\partial z} + \text{PDEPI} + \text{PSACW} - \text{PMELT} - \text{PSUB}\end{aligned}$$

Fig.1に説明図を示しておく。雨水、雲水への気体の溶け込みは可逆過程として扱われる。



式で示すと平衡は

$$K_b = K_f / (K_H \text{LRT})$$

ここで、 K_f : 溶け込み速度(1/sec), K_b : 気相に戻る速度(1/sec), K_H : ヘンリー一定数(M/ppm), LRT : 換算係数(1/ppm/mol/K), M : mol/l, L : 水分の体積比(-), R : ガス定数(8.05 1·ppm/mol/K), T : 絶対温度(K)

汚染物質の相移行と反応式を示したものがTable 1である。PC1からPC12までの項は相移行と化学反応速度式が入る。層状雲モデルは雨になるまでの水分の挙動を扱っているものであるので酸性霧の生成過程も同モデルを一部改良すると利用することができる。赤城山では雨は降らず霧が山の傾斜を上りながら一部は樹木に吸着するので、霧の沈着量を山上の霧の濃度から推定できる。

3. 結果; ロングポイントにおける降雨のある日の計算値と実測値をTable 2,3に示す。Table 3のケース(2)(3)は従来の雲底下洗浄のみをモデル化した式を利用して求めた結果である。これによるとレインアウ

トを取り入れた今回のモデルはより実測値に値が近づいていることがわかる。

赤城山上でサンプルされた霧水中の硝酸塩と硫酸塩の実測値と計算値をFig.2,3 に示す。観測によると亜硫酸ガスと粒子状の硫酸塩濃度が 1) 村野健太郎ら、赤城山の南東面に発生する霧の化学成分(II),第27回大気汚染学会講演要旨集 242,(1986) とはならないが、計算による 大気汚染学会講演要旨集 254,(1986) とほとんど霧中へ移行している。 2) 池田有光ら、硫黄酸化物の大気中広域伝播過程の巨視的解析,第27回大気汚染学会講演要旨集

3) Rutledge S.A. et al., J. Geophys. Res., 91, 14385-14402, (1986)

Table 1 各化学種の濃度変化式

$$\begin{aligned}
 d(q_{SO_2})/dt &= -PC1 - PC1' \\
 d(q_{SO_2})/dt &= -PC3 - PC4 - PC5 - PC6 \\
 d(q_{SO_4})/dt &= PC3 + PC4 - PC7 - PC8 \\
 &\quad + 3/2*PC2 \\
 d(q_{SO_3})/dt &= PC6 + PC8 - PC10 \\
 d(q_{SO_4})/dt &= 3/2*PC9 + PC5 + PC7 + PC10 \\
 d(q_{H_2O_2})/dt &= -PC11 - PC12 \\
 d(q_{H_2O_2})/dt &= PC11 - PC2 \\
 d(q_{H_2O_2})/dt &= PC12 - PC9 \\
 q_{SO_2} : SO_2 \text{ ガス混合比 } g(SO_2)/g(\text{air}) \\
 q_{SO_4} : \text{大気中 } SO_4^{2-} \text{ 混合比 } g(SO_4^{2-})/g(\text{air}) \\
 q_{SO_4} : \text{雲水中 } SO_4^{2-} \text{ 混合比 } g(SO_4^{2-})/g(\text{air}) \\
 q_{SO_3} : \text{雪中 } SO_4^{2-} \text{ 混合比 } g(SO_4^{2-})/g(\text{air}) \\
 q_{SO_4} : \text{雨水中 } SO_4^{2-} \text{ 混合比 } g(SO_4^{2-})/g(\text{air}) \\
 q_{H_2O_2} : H_2O_2 \text{ ガス混合比 } g(H_2O_2)/g(\text{air}) \\
 q_{H_2O_2} : \text{雲水中 } H_2O_2 \text{ 混合比 } g(H_2O_2)/g(\text{air}) \\
 q_{H_2O_2} : \text{雨水中 } H_2O_2 \text{ 混合比 } g(H_2O_2)/g(\text{air})
 \end{aligned}$$

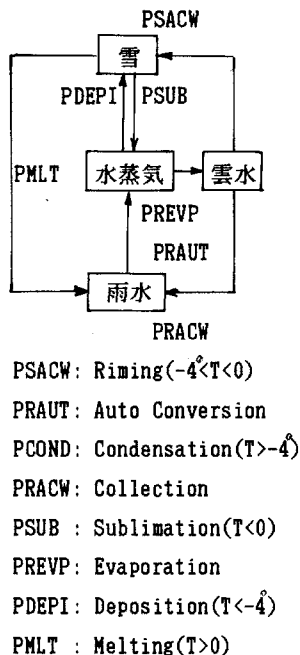


Fig.1 雲の微小物理過程 (Rutledge)

Table 2 降雨時の空気中の SO_2 と粒子状 SO_4^{2-} の平均濃度

月	3,4	5,6	7,8	9,10	11,12
SO_2 実測値	16.6	7.31	7.87	21.55	10.65
($\mu g/m^3$) 推定値	19.6	8.01	6.89	41.16	7.15
SO_4^{2-} 実測値	2.33	3.48	3.77	5.72	2.52
($\mu g/m^3$) 推定値	1.24	2.75	2/18	3.72	0.71

Table 3 ロングポイントにおける湿性沈着量(g/m^2)

ケース	月	3,4	5,6	7,8	9,10	11,12
実測値		0.698	0.721	0.312	0.644	0.146
(1)		0.581	0.388	0.208	0.322	0.102
(2)		0.350	0.314	0.179	0.257	0.247
(3)		0.262	0.260	0.084	0.315	0.110

- (1): 層状雲・化学反応モデルにより求めた湿性沈着量
(2): 大気中 SO_2 と SO_4^{2-} 観測データから求めた湿性沈着量
(3): 大気中 SO_2 と SO_4^{2-} 推定データから求めた湿性沈着量

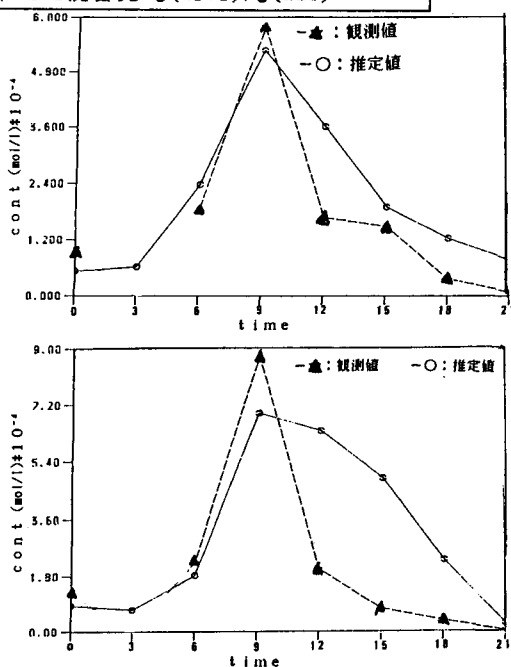


Fig. 2 赤城山の酸性霧の硫酸塩(上)と硝酸塩(下)濃度の観測値と計算値の時間変化