

## II-515 日本周辺地域への適用を考慮した多国間酸性雨輸送の総合モデル

豊橋技術科学大学

学生会員 李志成

豊橋技術科学大学

正会員 北田敏廣

九州大学

正会員 植田洋匡

はじめに 日本海沿岸の諸地域における最近の観測データは、冬期季節風時の大陸側からの気流が卓越する時期に酸性物質降下量のピークがあり、従って、これに大陸諸国から排出された汚染物質の長距離輸送に基づくものが大きく寄与していることを示唆している。大陸諸国から大量の大気汚染物質が排出されている（例えば、S分の場合、中国、朝鮮半島、台湾からSO<sub>2</sub>に換算して、年間約1800万トン）。大陸起源の汚染質は、排出後、移流、拡散、乾性沈着、気相・液相化学反応、湿性沈着など諸過程を経て、酸性物質に変換されて行くものであり、酸性物質降下量の予測のためにには、中国大陆における排出源分布に関する情報とともに、これらのプロセスを組み込んだ輸送／反応モデルの使用が不可欠である。<sup>1), 2)</sup> 本報告は、以上の経緯をふまえて冬期季節時に日本海上で生成する対流雲によって、大陸の汚染気塊から酸性物質が生成する過程を記述する輸送・反応モデルについて述べ、さらに、その数値解析例を示すものである。

酸性雨（雪）モデル 大気中の水分相として考慮するのは、（水蒸気の他に）雲水、雲冰、雨、雪、雪あられの5種類である。用いた雲物理モデルはBulk waterタイプである。詳細は他に譲るが<sup>2)</sup>、水分相汚染質の輸送／反応方程式は次式であたえられる：

$$\frac{\partial C_{i+q}}{\partial t} + u \frac{\partial C_{i+q}}{\partial x} + v \frac{\partial C_{i+q}}{\partial y} + w \frac{\partial C_{i+q}}{\partial z} - \frac{q}{\rho} \frac{\partial V}{\partial z} C_{i+q} = (R_{i+q} + kT_{i+q} + G_{i+q}) / \rho$$

ここに、G<sub>i+q</sub>は気相－水相間の物質移動速度（このうち、ガス吸收／放散に関連した部分に使用する平衡関係を表1に示す）<sup>2)</sup>、R<sub>i+q</sub>は雲水（雨水）相化学反応項（表2）<sup>2)</sup>、T<sub>i+q</sub>は各水相間の汚染質移動速度である。T<sub>i+q</sub>項の大部分は、各相間の水分移動速度を与える雲物理モデルのアウトプットとして与えられる。なお、水分相の輸送化学種は、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、S (IV) (i.e. SO<sub>2</sub>(aq) + HSO<sub>3</sub><sup>-</sup> + SO<sub>3</sub><sup>2-</sup>)、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>の6種である。また、化学反応は雲水と雨水相でのみ有効と仮定した。他に、H<sup>+</sup>が液相におけるイオンバランスから決まり、OH、HO<sub>2</sub>は気相との平衡を仮定する。さらに、Na<sup>+</sup> (1.35 × 10<sup>-6</sup>M)、Ca<sup>2+</sup> (5 × 10<sup>-6</sup>M)、Mg<sup>2+</sup> (1.0 × 10<sup>-6</sup>M)、Mn<sup>2+</sup> (1.0 × 10<sup>-6</sup>M)、Fe<sup>3+</sup> (1.0 × 10<sup>-6</sup>M)、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> (8 × 10<sup>-6</sup>M)、Cl<sup>-</sup> (1.60 × 10<sup>-6</sup>M)を液滴におけるバックグラウンドとして仮定した。

冬期日本海上の雲生成 冬期に大陸上で作られた冷気塊が暖かい日本海上を（南）東進するとき、下層から熱、水蒸気を供給され対流が生ずる。この対流は次第に主風向を軸とするロール状渦に組織化され、渦の上昇域に筋状の雲列が生じる。このような状況の下、大陸起源の汚染気塊からの酸性物質生成を調べるべく、まずこの雲生成のシミュレーションを行った。この時期、日本海上の対流雲の背はそれ程高くない<sup>3)</sup>。また、雲頂高度と筋状雲列間の距離から見たロール渦のアスペクト比には経験的に見てはつきりとした関係がある。以上のことから、図1に示すような仮想的な2次元領域を考え、これが日本海上を吹走する場合を想定した。領域内に、2対の渦を想定した流れ場を与え（最大鉛直流速1.5m/s）、その下で雲物理モデルを動かした。すなわち、雲物理の結果が流れに影響を与えることのない診断的な計算を行った。後に述べるように、ロール渦の高さや初期の水蒸気分布などのは、啓風丸により観測された値<sup>4)</sup>を用いた。図2が12時間後の雲水場（最大0.32g/kg-air）と雪の場（最大1.15g/kg-air）である。この時、渦の上昇域での降雪強度は、1.6mm/hr (6時間後)、2.6mm/hr (9時間後)、2.7mm/hr (12時間後)である。この降

雪強度は他の結果と較べても妥当な値である<sup>5)</sup>。

酸性雪の生成 前節で得られた雲物理場を用いて、酸性雪の輸送解析を行った。汚染物質の初期分布(午前8時)は、気相一次元モデルを前もって使用し、調整した。主な物質の初期値地上濃度は次の様である(単位: ppb):  $[SO_2] = 22$ ,  $[SO_4^{=}] = 0.8$ ,  $[NO_x] = 40$ ,  $[HNO_3] + [NH_4NO_3] = 4.3$ ,  $[O_3] = 26$ ,  $[H_2O_2] = 0.6$ ,  $[NH_3] = 0.3$ 。また、海面に対する気相物質の乾性沈着速度には次の値を用いた: ( $HNO_3: 1.8$ ,  $SO_2: 1.6$ ,  $SO_4^{=}: 0.04 \text{ cm/s}$ )。後に述べるように、以上初期値を用いた汚染物質の6時間目と12時間目の物質収支を示す。S分(dry sulfate)について見ると、最初に、(2対のロール渦域を含む)全領域内に存在していた気相の  $SO_2 + SO_4^{=}$  (: 30.3 mole) が、以下の様に分配された。

6時間後: 気相 ( $SO_2 + SO_4^{=}$ ) 71.8%, 雲水相 ( $S(I\vee) + SO_4^{=}$ ) 2.0%, 雪相 ( $S(I\vee) + SO_4^{=}$ ) 2.2%, 乾性沈着による除去 ( $SO_2 + SO_4^{=}$ ) 22.5%, 湿性沈着による除去 ( $S(I\vee) + SO_4^{=}$ ) 1.5%; (合計の総モル数: 30.4)。

12時間後: 気相 43.6%、雲水相 2.2%、雪相 2.5%、乾性沈着 32.8%、湿性沈着 5.2%; (合計の総モル数: 30.7)

水平風速15m/sを仮定すると、12時間の経過は気塊が約650km洋上を進んだ状態に相当しほぼ朝鮮半島等から日本沿岸までの距離に当たる。12時間後の結果は、初期総量の約5%弱のS分が、雲水相と雪相に存在することを示し、従つて日本に降下し得ることを示唆している。この計算結果に影響を与える外的要因には、気相物質の初期濃度分布、濃度比、雪雲生成に関する物理変数(流れ場、水蒸気場、気温場)等があり、これらに対する感度解析を実施中である。なお、図3a,b,cに12時間後の雲水のpH分布と  $SO_4^{=}$  濃度分布、さらに雪に含まれる  $SO_4^{=}$  濃度を示す。図3aより、雲水のpHの最小値は約3.3である。また、雲水中の最大  $SO_4^{=}$  210  $\mu M/l$  であり、雪中のそれは約160  $\mu M/l$  である(図3a,b,c参照)。

参考文献 1) 北田敏廣: 第4回環境工学連合講演会論文集、学術会議環境工学研連、41(1989.3月)、2) Kitada,T.,Lee,P.C.-S.,Ueda,H.: Proc. 18th ITM on air Poll. Modelling and Its Appl., NATO-CCMS/U. British Columbia, 2, 499-506(1990)、3) 駒林誠(1972)海洋科学、3、77、4) メソ気象調査グループ(1988)天気、23、7、5) 二宮洸三(1981)雨とメソシステム、東京堂。

