

## 光化学大気汚染三次元モデルの感度解析

国立公害研究所

○若松伸司、鵜野伊津志

米国EPA大気科学研究所

Kenneth L. Schere

イリノイ大学

Richard A. Waddden

### 1. はじめに

自動車や工場事業所等から排出された窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) や炭化水素 (HC) は環境大気中において太陽の紫外線を受け光化学反応を起こしその結果オゾン ( $\text{O}_3$ ) 等の二次生成物質が生成する。  $\text{NO}_x$  や HC 等の原因物質の大きさと  $\text{O}_3$  濃度との間には一定の比例関係が無く、その時その時の発生源からの  $\text{NO}_x$  と HC の濃度比や、境界条件により大きく異なった挙動を示す。これは  $\text{O}_3$  が複雑な化学反応の結果生成することによるものである。またこの光化学二次生成物質は気象条件によっては長時間にわたり同じ場所に滞留したり、長距離にわたって輸送されたりするためその動態は極めて複雑である。このような  $\text{O}_3$  と  $\text{NO}_x$ 、HC の関係を正しく把握するためには物理・化学過程を正しく取り込んだ光化学大気汚染三次元モデルの利用が必要となる。一般的にモデルは移流・拡散を数値的に解くメインの部分と、気流の立体分布、拡散係数、化学反応、発生源からの  $\text{NO}_x$ 、HC 排出量を予測するサブモデルから構成される。モデルの確立にあたってはモデルに含まれるこれらの部分（モジュール）が正しく機能しているか否か、その予測の精度と誤差にモジュール間で極端な違いはないか等々を実験データや観測データをもとにして検証しておく必要がある。このようにして組み立てられたモデルはその利用に先立って各種の感度解析がなされる。すなわち入力情報の不確定性がモデルの計算結果に及ぼす影響の程度を知っておくことがモデルの利用にあたって最も重要である。本研究においては初期条件、境界条件及び、発生源組成分布が計算結果に及ぼす影響を明らかにする。

### 2. 三次元モデルによる解析

今回使用したモデルは米国 SAI 社が EPA の要請により開発した三次元オイラー モデルを基本としている。計算は 1981 年 7 月に関東地方において気象の立体分布と大気汚染物質の航空機観測を行った時のデータを用いて実行した。フィールド観測が行われた 16 日と 17 日にかけて関東地域において高濃度の光化学大気汚染が出現した。この間の平均風速は 2m/s 程度と弱風であり、海陸風循環が発達し極めて複雑な気流場が構成されていた。観測期間中には 23 地点において毎時刻の上層風が観測されており、4 地点では気温の垂直分布が求められたため、モデル計算において最も重要な風の立体分布並びに混合層の時刻変化はこれらの実測データを利用した。

モデル計算の領域は図 1 に示した東西 183km、南北 172km の範囲であり約 6km の正方形メッシュを用いた。垂直方向には 5 層及び 20 層のグリッドを設定した。化学反応のスキームとしては HC の炭素間の結合形態により (1) 一重結合炭素原子 (PAR)、(2) 高反応性の二重結合炭素原子 (OLE)、(3) 低反応性の二重結合炭素原子 (ETH)、(4) 反応性のあるアロマティック環 (ARO)、(5) カルボニル基 (CARB) の 5 種に分類して取り扱う CBM スキームを利用した。一般に光化学反応に関係する炭化水素成分の排出量は非メタン炭化水素 (NMHC) 総量として年間単位で推定されているにすぎないため計算を行うにあたってはそれぞれの発生源ごとにこれら 5 種類の炭化水素組成分布、並びにその時刻変化を求めなければならない。今回の計算では炭化水素の主成発生源である自動車排出ガス、ガソリン蒸発、石油精製、塗料・溶剤、石油化学プラントからの 5 種の発生源について日本とアメリカの実測データ等をもとに表 1 に示すような 2 種類の組成分布表を作成し利用した。

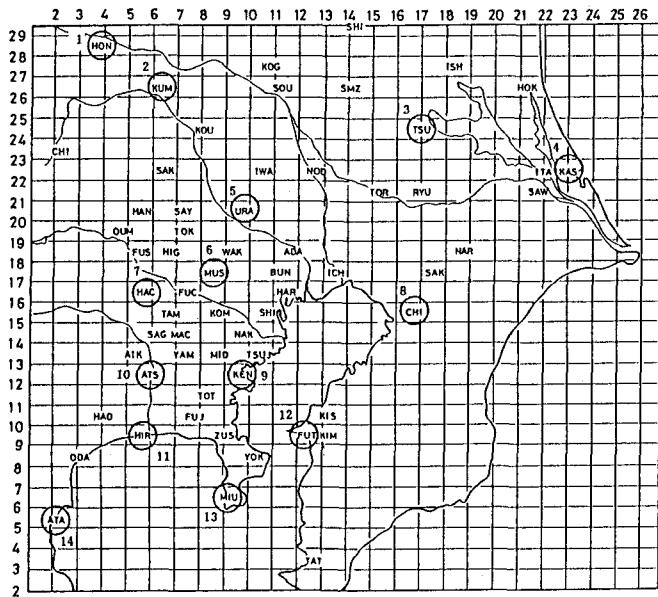


図1 光化学大気汚染三次元モデルの計算メッシュ

### 3. 感度解析結果及び考察

IICの発生源組成分布が計算結果に及ぼす影響を知るために異なる初期条件、境界条件に対して2種類の組成分布を用いて感度解析を行ったが $O_3$ 濃度の時刻変化の差はたかだか1ppb程度であった。一方境界条件の変化は $O_3$ 濃度の変化に大きな影響を及ぼすことが明らかとなった。図2には5層モデルを用いて得られた結果を用いて図1に示した14地点における7月16日と17日の最下層における $O_3$ 日最高値を2種類の境界条件について示した。図の縦軸は境界条件として実測データを用いた場合であり横軸は実測値の1/10の値を用いた計算結果を示す。計算結果によれば $O_3$ の最高濃度は1日目については2種類の境界条件による差はほとんど無いが、2日目には全地点において10~20 ppb程度実測値を用いた方が高くなることが示された。本計算は1981年7月16日の午前4時に実測データを初期条件としてスタートし翌日の午後8時まで連続40時間にわたり実施している。このため1日目の結果には初期条件の影響が少なからず反映しているものと考えられる。

7月16日、17日ともに関東地域は典型的な夏型の気圧配置のもとにあり夜間から午前中にかけては陸風による北系の風が、午後から夜にかけては海風による南系の風が卓越したため東京首都圏地域から排出された汚染物質は早朝には南側の境界面から流出し、昼過ぎに再び計算領域内に最流入していた。このような条件下では境界面からの汚染物質の流入、すなわち境界条件が極めて重要な役割を持つことがわかった。このことをより詳細に明らかにするために垂直方向を20層に細分割し、初期状態に関しても初期条件をゼロとして24時間演算を行って得られた濃度場を初期条件として利用した。境界条件として実測値を用いた場合と境界濃度をすべてゼロとした場合の最下層（地上から100mの間の平均）の濃度変化を図3に示した。地点番号2の熊谷は北の境界線に近い地点であり、地点番号9の神奈川県庁はほぼ計算領域の中央付近に位置し汚染発生量も多い地点である。このため熊谷においては境界条件の差による $O_3$ の濃度差が極端に現れるのに対し、神奈川県庁においてはその差は小さい。

Component	Weight %				
	Vehicle Exhaust	Gasoline Vapor	Petroleum Refinery	Paint Solvents	Petrochemical
Ethane	3.1	0.0	3.0	0.0	3.0
Ethylene	12.0	0.0	2.9	0.0	50.0
Acetylene	5.5	0.0	1.6	0.0	1.8
Propane	6.1	1.8	20.2	0.0	4.3
Propylene	5.6	0.0	2.8	0.0	3.9
Isobutane	4.6	15.2	6.7	0.0	2.6
n-Butane	15.0	10.1	16.1	0.0	5.5
Isopentane	10.4	35.8	14.4	0.0	4.0
n-Pentane	8.0	13.1	6.9	0.0	2.8
2-Methylpentane	3.8	6.3	3.7	0.0	1.5
3-Methylpentane	2.3	3.1	2.1	0.0	1.1
n-Hexane	4.4	3.2	5.0	0.0	4.3
Benzene	5.6	0.0	4.3	0.0	3.4
Toluene	10.5	1.0	7.1	25.7	7.7
Ethylbenzene	1.6	0.1	1.0	32.5	1.6
p,m-Xylene	2.4	0.3	1.3	30.3	1.4
o-Xylene	1.1	0.1	0.9	11.5	1.1
	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

Component	Weight %				
	Vehicle Exhaust	Gasoline Vapor	Petroleum Refinery	Paint Solvents	Petrochemical
Ethane	3.1	0.1	4.8	0.0	3.0
Ethylene	18.2	0.0	0.7	0.0	50.0
Acetylene	7.8	0.0	0.1	0.0	1.8
Propane	6.7	1.7	21.3	0.0	4.3
Propylene	3.2	0.0	0.8	0.0	3.9
Isobutane	1.2	18.4	4.7	0.0	2.6
n-Butane	9.0	41.7	17.6	0.0	5.5
Isopentane	7.2	20.2	16.9	0.0	4.0
2-Methylpentane	3.2	8.5	7.3	0.0	2.8
3-Methylpentane	2.3	3.1	8.3	1.0	1.5
n-Hexane	1.4	1.1	3.8	1.8	4.3
Benzene	6.6	1.3	1.4	0.0	3.4
Toluene	14.1	1.3	4.6	67.4	7.7
Ethylbenzene	2.0	0.4	0.6	6.2	1.6
p,m-Xylene	6.6	0.4	1.5	17.1	1.4
o-Xylene	3.9	0.2	0.8	5.5	1.1
	100.0	100.0	100.0	100.0	100.0

(a) 主に日本におけるデータを用いた推定値

(b) 主にアメリカにおけるデータを用いた推定値

表1 炭化水素成分の発生源組成分布

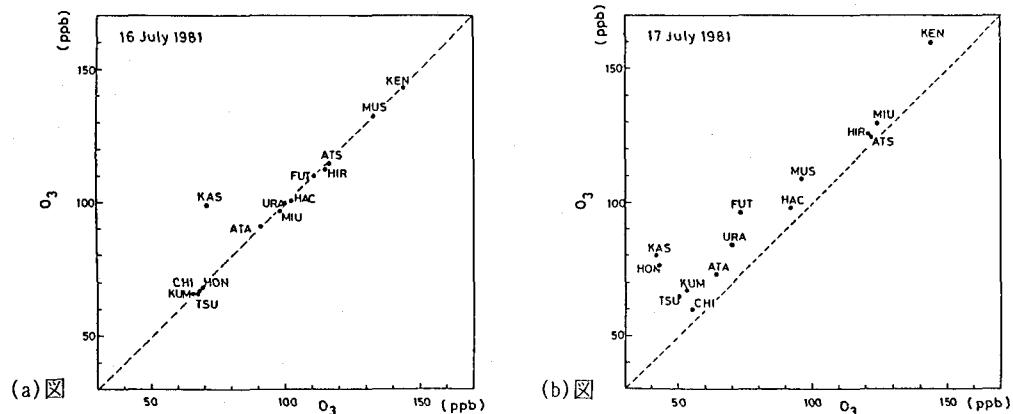


図2 5層モデルを用いて得られた1~4地点(図1に示す)における最下層メッシュの日最高O<sub>3</sub>濃度。縦軸は境界条件として実測データを利用した場合の計算結果で、横軸は実測値の1/10を境界条件として用いた場合のそれぞれの1989年7月16日((a)図)、及び7月17日((b)図)における計算結果を示す。

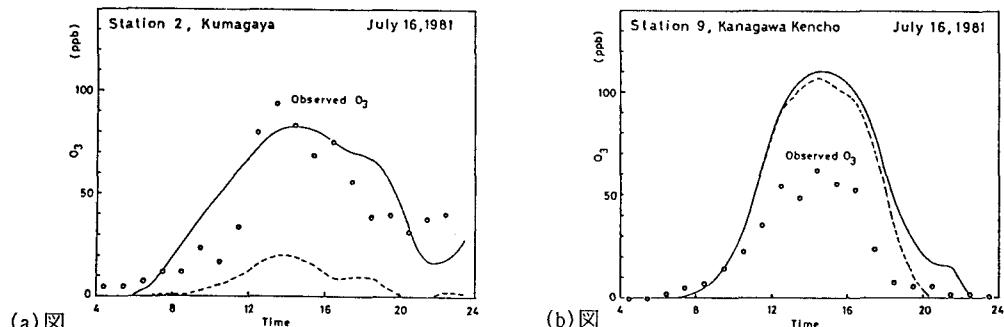


図3 20層モデルを用いて得られた熊谷((a)図)及び神奈川県庁((b)図)の最下層メッシュ(100m)におけるO<sub>3</sub>濃度変化。図中の○印は実測値、実線は実測の境界濃度を境界条件として用いた場合の計算結果、破線は境界条件を全濃度ゼロとした場合の計算結果である。