

豊橋技術科学大学建設工学系 西沢匡人
豊橋技術科学大学エコロジー工学系 北田敏廣

1. はじめに

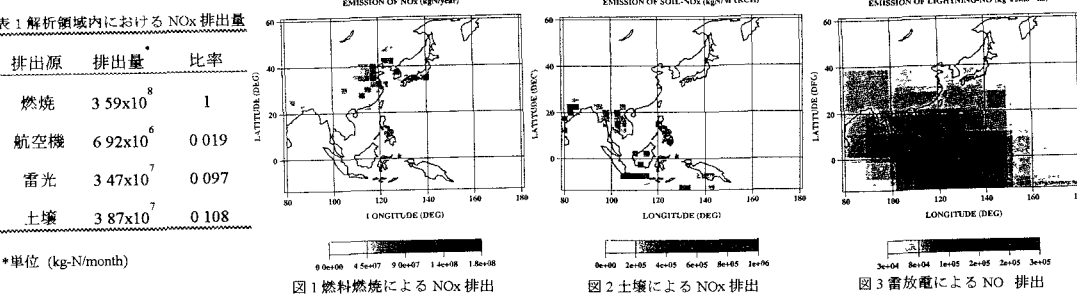
窒素酸化物NO_x(NO, NO₂)は、人為的には主として空気中での燃料の高温燃焼に伴って年間25Tg-N程度生成し、他にほぼ同程度の自然起源の発生があると推測されている。これらの化学種は、O₃、OHの生成に関わることを通じて、大気環境に関するほとんどの重要な現象(温暖化、酸性雨、成層圏オゾン層破壊等)を支配する鍵となる物質であると考えられる。ところで、NO_xの人為発生源の90%以上が地表にあると考えられるにもかかわらず、近藤(名大太陽地球環境研)らの観測によれば、太平洋上等の遠隔地では対流圏上層から中層にかけてむしろ濃度が高いことが見いだされており、lightning(雷放電)による生成や航空機による排出など、対流圏中・上層への直接排出の寄与がかなりあるのではないかと推測される。いづれにしても、対流圏下層で大量放出される人為NO_xとこれらの中・上層で発生するNO_xの対流圏大気化学への相対的寄与度を調べるのが、地球大気の微量化学組成を理解し、その将来を予測する上で極めて重要であると考えられる。第1ステップとして、本研究では、東アジア、西太平洋域を主たる対象にし、上記の各種排出源の調査を行い、さらに、三次元空間での輸送・反応シミュレーションによって、雷放電・航空機の上空NO_x排出が、NO_x濃度、OHラジカル濃度に与える影響を調べた。さらに、S化合物およびN化合物の広域沈着量分布についても調べた。なお、シミュレーションと同時期にPEM-WEST-Bの観測が行われており、計算結果と観測値との比較も部分的に行った。

2. NO_x排出源

NO_x排出源には、燃焼に伴う生成(ほとんどが大気境界層内の地表面近くで排出され、一部分が航空機排ガスとして対流圏上層で排出)、土壌からの排出・バイオマス燃焼、雷放電に伴う大気中での生成、成層圏からの流入(成層圏でN₂OからNO_xが生成)が考えられている。バイオマス燃焼と土壌生成NO_xの地理的分布は重なっていることが知られている。また、バイオマス燃焼の中心は、乾季のアフリカや南米の草原地帯にあることも知られている。本報では、燃料燃焼以外の地表起源の排出源としては、土壌生成のみを考慮した。

PEM-WEST-Bの主対象地域である東アジア(図1の範囲; 図1は燃料燃焼に伴うNO_x排出強度の分布を示す)に対してこれら排出源の強度および分布を検討した。用いた情報は、航空機以外の燃焼に伴う人為排出がAkimoto and Narita(Atmos. Env., 1994)、航空機排出がICAO環境保護委員会報告(Committee on Aviation Environmental Protection, 1995)、土壌からの生成がYienger and Levy(J. Geophys. Res., 1995)、lightningによるNO_x生成がKumar et al. (J. Geophys. Res., 1995)である。

表1に東アジア地区(図1)の各排出源からの1ヶ月のNO_x排出量を示す。ただし、土壌からのNO_xは1990年2月を、航空機NO_xは1992年4月を、燃焼に伴う人為NO_xは1987年の年間値を12で除したものを、また、lightningによるNO_xは1978年から1980年までの3年間の、かつ12月~2月の3ヶ月間の平均値を示す。表1に示す相対強度は、燃焼に伴うNO_x源を基準にとったときの各排出源の相対的な強さを示す。土壌起源と雷放電がそれ



ぞれ燃料燃焼の10%程度となっているが、本研究で用いたこれらの値は、従来考えられていた中では、小さい方に属する。特に雷放電によるNO_x排出の不確定性は大きい。図2, 3, 4に、それぞれ土壌起源、雷放電、航空機排出NO_xの空間分布を示す。ただし、上空排出の二つの排出源については、緯度および経度方向に2.5° x 2.5° の底面積を持つ気柱内の総排出量を意味する。シミュレーションにおいては、これらの総排出量が高度方向に分配されている。

3. シミュレーションモデル

モデルは、豊橋技術科学大学北田研究室で継続的に開発されてきた地球規模輸送・反応・沈着モデルである。基礎方程式は、球座標で表現した多成分系の大気拡散・反応方程式系である。(1)移流・拡散(計算に使用した場の元情報: ECMWF全球解析場; 水平方向解像度2.5° x 2.5°、時間解像度12時間、鉛直方向範囲地表面~10hPa)、(2)サブグリッド積雲対流(ECMWFの気象場情報一すなわち、湿度、鉛直方向流速の鉛直分布一を基にして、境界層内大気と上層大気の交換を行う)、(3)化学反応(LLA, 1986年を基本にした約90の化学反応)、(4)乾性沈着(NO₂, HNO₃, PAN, SO₂, SO₄²⁻, O₃, H₂O₂ に適用)、(5)湿性沈着(北田による定式化, 1994年、ECMWFデータを利用した雲頂高度の推定、図5に一例を示した降水分布の使用; HNO₃, SO₂, SO₄²⁻, H₂O₂ に適用)等の諸過程を含む。鉛直方向は、地表から10hPaまでを17の格子点でカバーする。鉛直方向には、地形に沿ったσ座標による変数変換が施されている。タイムステップは30分、計算期間は1994年2月21日00GMT~3月15日00GMTである。

4. 計算結果

4.1 観測値との比較

PEM-WEST(B)(Pacific Exploratory Mission-West, Phase B)の観測はDC-8を用いて2月~3月に行われた。米国西海岸を出発してからハワイを経由し南回りに日本を経てアラスカ経由出発点にもどると言う大規模な観測である。途中、グアム、香港、日本(横浜基地)を起点に集中的な観測フライトを重ねている。多くの化学種が測定されているが、各フライトは地表近くから下部成層圏まで大きく高度をかえながら広い範囲を移動するものであり、観測値と比較してシミュレーション結果の信頼度を調べるには、かなり厳しいテストである。図6, 7は日本を起点とした観測: Mission 15(3月5日実施)の飛行ルート、高度変化およびルートに沿っての各種化学種(NO, HNO₃, C₂H₄, O₃)の濃度変化について観測値と計算値を示したものである。NO, HNO₃の比較について計算値の方がやや低い濃度を示すが、その他の化学種についてはかなり良く観測値を再現している。

4.2 雷放電・航空機等上空NO_xソースによる対流圏大気への影響

上空NO_xソースによってどの程度NO_x(= NO+NO₂)濃度および大気化学における重要化学種であるOHラジカル濃度が変化するかを、これらの上空ソースをON/OFFにした二つのケースを比較することにより検討した。図8a, bは、3月15日00GMTの高度10kmにおける、上空ソースを含めた場合の、NO_x(図8a)およびOH(図8b)濃度の増加分を示す。両者ともに赤道近くのボルネオ、セレベス島の上空付近でもっとも増加量が多い。両図の比較よりNO_xとOH濃度の相関が高いことも明瞭に示されている。ここには示さないが10km面でのNO_x濃度分布図と比較して、比率の高い所でこの高度におけるNO_x濃度の約20%が上空起源のNO_xソースの寄与と見積もることができる。OH濃度が相対的に高ければSO₂→SO₄²⁻の酸化速度等が大きくなりSO₄²⁻の沈着量分布にも影響すると考えられる(次項参照)。

4.3 酸性物質の沈着量分布

図9a, bは、1994年2月21日00GMT~3月15日00GMTまでの、地表起源のNO_x, SO₂のみを排出源として考慮した場合のN-化合物(図9a)およびS-化合物(図9b)の沈着量(kmol/m²)の分布を示す。ここに、N-化合物の沈着量とは、NO₂, HNO₃, PANの乾性沈着とHNO₃の湿性沈着の和を意味する。同様に、S-化合物の沈着量は、SO₂, SO₄²⁻の乾性および湿性沈着を含む。図10a, bは、すべてのNO_x排出源を考慮し、観測に基づくHNO₃, SO₂, SO₄²⁻のバックグラウンド濃度(順に、100, 10, 5pptv)もシミュレーションに取り入れた場合の沈着量分布である。図9, 10の比較は、一つはN-分の沈着量はむしろ低緯度で多いこと、S-分も直接の排出源の増加はないものの大陸の排出源の東方太平洋上で沈着量の増加が見られる。S-分沈着の増加は、OH増加に伴うSO₂酸化速度の増大が寄与しているとも考えられる。いずれの現象も今後の検討を要する。

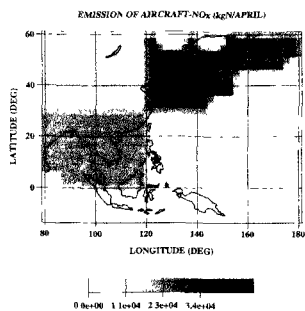


図4 航空機による NOx 排出

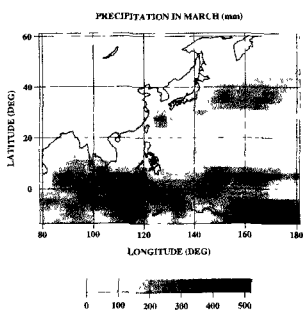


図5 1994年3月の降水量

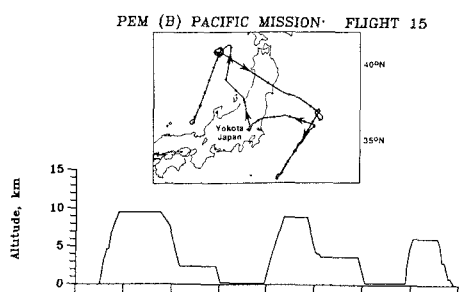


図6 MISSION15の飛行ルートと高度変化

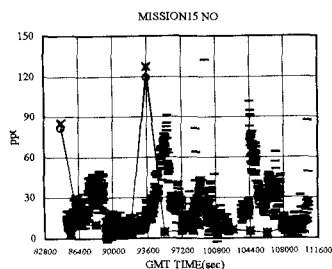


図7a NOの観測値と計算値との比較

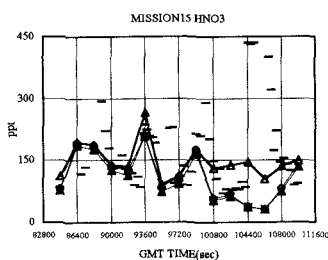


図7b HNO3の観測値と計算値との比較

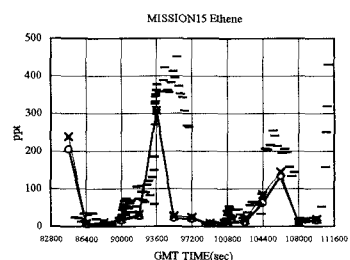


図7c C2H4の観測値と計算値との比較

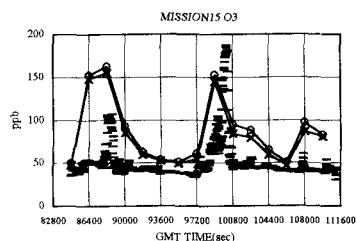


図7d O3の観測値と計算値との比較

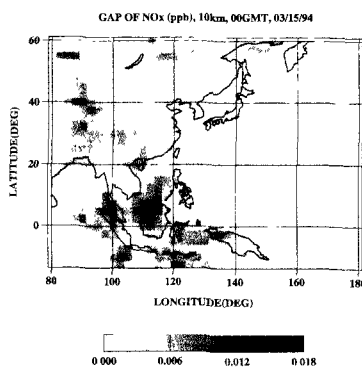


図8a NOx濃度の増加分

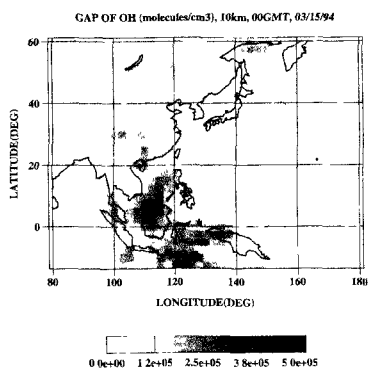


図8b OH濃度の増加分

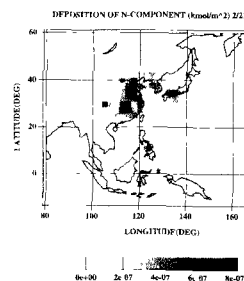


図9a N-化合物の沈着量

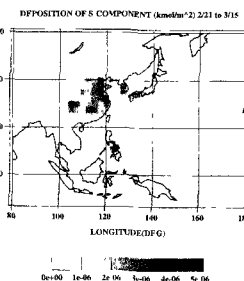


図9b S-化合物の沈着量

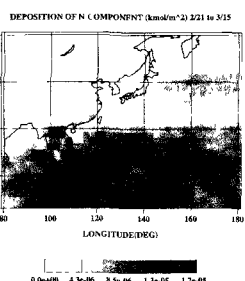


図10a N-化合物の沈着量

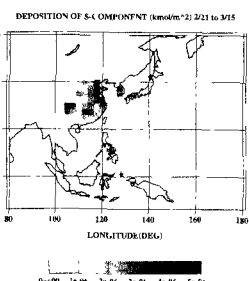


図10b S-化合物の沈着量