

35. 北半球中緯度を対象とした反応・輸送モデルの開発

DEVELOPMENT OF CHEMICAL-TRANSPORT MODEL FOR THE TROPOSPHERE OF NORTHERN MID-LATITUDE

中山里美* 村尾直人** 太田幸雄** 山形 定**

NAKAYAMA Satomi, MURAO Naoto, OHTA Satio, YAMAGATA Sadamu

ABSTRACT: A two-dimensional channel model for the troposphere covering between 30N and 60N is constructed in order to simulate the effect of human activities on global troposphere. The model treats the processes of advection, diffusion, chemical transformation, emission from sources, dry and wet deposition and cloud transport. Calculated concentrations of ozone and PAN show a good agreement with observations. The amount of ozone is about 10~20ppb, which accounts for 20~60% of present ozone concentration. This amount depends primarily on local NO_x concentration. Calculated distribution of PAN reflects temperature field. Furthermore, we run the model with the anthropogenic emissions from East Asia increased to the same emission strength of the most industrialized part of the U.S. HNO₃ concentration increased significantly near the source area at low levels, whereas PAN shows little dependence on height and longitude. The difference of these behavior is explained by the difference of their removal process from atmosphere. On the other hand, ozone shows 50% decrease in winter and 50% increase in summer near the surface over East Asia.

KEY WORDS; tropospheric chemistry, tropospheric ozone, 2-dimensional model, East Asia

1. はじめに

近年、地球温暖化や酸性雨などの地球規模大気環境問題に対する対流圏内の光化学反応の重要性が指摘されている。特に、対流圏オゾンは光化学大気成分の代表的な物質であり、また動植物に対して有害物質であること、温室効果気体であること、反応によってOHラジカルを生成し、直接間接的に硝酸や硫酸の生成に寄与していることなど、対流圏において重要な役割を果たしている成分である。そのため、対流圏オゾンの挙動を明らかにすることは、地球規模大気環境問題を解決するためには必要不可欠である。

対流圏オゾンの濃度は、成層圏からの流入、地表面での沈着、対流圏内の光化学反応による生成消滅によって決定されており、オゾンの対流圏内の挙動を把握するためには、これらの各過程の寄与を定量的に見積もる必要がある。特に現在、オゾン濃度が年1%の割合で増加していることが観測されており、それには光化学反応による生成消滅過程が重要な役割を果たしていることが考えられるが、光化学反応による生成消滅量を正確に見積もるためには、窒素酸化物や炭化水素などの大気中の微量成分の挙動を正確に記述することが必要である。

本研究では、人間活動が対流圏大気環境におよぼす影響を評価することを目的とし、地球上で最も人間活動が盛んである北半球中緯度を対象として、経度-高度方向の2次元反応輸送モデルを開発した。このモデルを用いて現在の中緯度対流圏光化学環境の評価を行い、さらに将来の大気汚染の進行に伴う微量大気成分濃度の変化の予測を行った。

*;現在, (株)アジア航測, Asian Air Survey Co.Ltd. **; 北海道大学工学部衛生工学科, Department of Sanitary Engineering, Hokkaido Univ.

2. 北半球中緯度 2 次元反応輸送モデル

モデルの対象領域は、緯度方向は北緯 30° から 60°，経度方向は全経度，鉛直方向は地表～250hPa の対流圏とした。モデルは、大気微量成分の風による移流、渦拡散、大気中の光化学反応、自然および人為発生源からの排出、地表面への乾性および湿性沈着、積雲による鉛直輸送の各過程を考慮し、計算格子は緯度、経度方向は 10° ずつの 3×36 点、鉛直方向は 6 層とした。本モデルが対象とした地域は、現在地球上で最も人為汚染物質の排出量の多いヨーロッパなどの陸上から清浄な海域までを含み、汚染物質の排出源強度は経度方向に多様性を持つ。そのため、反応性が高く対流圏内の寿命の短い大気微量成分の濃度は変化に富むが、本モデルはそのような大気微量成分の濃度分布を 3 次元の全球モデルに比べて短い時間で計算することができるモデルである。ある物質 i に関するモデルの基礎式は次のようになる。

$$\rho \frac{\partial c_i}{\partial t} = -\frac{\rho u}{a \cos \phi} \frac{\partial c_i}{\partial \lambda} - \frac{\rho v}{a} \frac{\partial c_i}{\partial \phi} + \frac{1}{a^2 \cos^2 \phi} \frac{\partial}{\partial \lambda} \left[\rho K_x \frac{\partial c_i}{\partial \lambda} \right] \\ + \frac{1}{a^2} \frac{\partial}{\partial \phi} \left[\rho K_y \cos \phi \frac{\partial c_i}{\partial \phi} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[\rho K_z \frac{\partial c_i}{\partial z} \right] + R_i + S_i + D_i + T_i$$

ここで、 c_i は物質 i の体積混合比、 ρ は空気の密度、 a は地球の半径、 λ 、 ϕ 、 z は緯度、経度、高度、 u 、 v は風速、 K_x 、 K_y 、 K_z は拡散係数をあらわす。また、 R_i 、 S_i 、 D_i 、 T_i はそれぞれ大気中の反応、排出、沈着、積雲対流による濃度変化である。

(1) 移流拡散

移流計算に用いる風速のデータは 12 時間ごとの全球客観解析データを用いた。拡散係数は、水平方向は一定の $2.0 \times 10^5 \text{ m}^2/\text{sec}$ ¹⁾を用い、鉛直方向は全球規模の 3 次元移流拡散モデルで用いられたグリッドごとの月別拡散係数の値²⁾を用いた。数値計算法は移流および水平方向の拡散には 2 次モーメント法³⁾を、鉛直方向の拡散には Crank-Nicolson 法を使用した。

(2) 反応

反応スキームは、Stockwell et al.⁴⁾の地域規模の酸性沈着モデルに用いられた 61 物質、156 反応のものを使用した。物質の光解離定数は、空気分子による散乱、 O_2 と O_3 による吸収、エアロゾルと雲による散乱を考慮して、P3 近似法⁵⁾を改良した δ -P3 近似法で計算した。反応の数値計算法はギアー法を用いた。

(3) 大気中への排出

大気微量物質の排出源は、人為発生源としては地表における人間活動から NO 、 CO 、炭化水素類（以下 VOC）、飛行機から NO 、 CO を考え、自然発生源としては土壌中の微生物活動から NO 、雷放電から NO 、成層圏からのオゾン、 NO を考えた。排出量の緯度経度分布は、それぞれの文献値を基に排出源別、物質別に与えた^{6~9)}。VOC は、全炭化水素の排出量推定値に物質別の存在割合の測定値¹⁰⁾をかけて物質別の排出量とした。

成層圏から対流圏への大気の流入は、中緯度のジェット気流の近傍で、特にジェット気流が南から北へ向きを変えるところで最も活発におこっている。本研究では、Follows and Austin¹¹⁾をもとに、成層圏からの流入フラックスのパラメタ化を行った。これまでの研究では、オゾンの流入フラックスに関して全球（半球）一律の経験値を与えており、このように流入フラックスの季節、経度による変化を考慮した例はない。

(4) 沈着

乾性沈着は地表面を海、陸、雪または氷の 3 種類に分類し、それぞれに対する物質ごとの乾性沈着速度を Hough¹²⁾、Kasting and Singh¹³⁾をもとに与えた。湿性沈着は緯度、高度別の洗浄比を Isaksen and Rodhe¹⁴⁾

をもとに与えた。

(5) 積雲による微量大気成分の鉛直輸送

強い上昇気流によって形成される積乱雲は、対流圏内の各層から空気とともに微量大気成分を取り込むため、対流圏において物質を再分配する役目を果たしている。

本研究では、Feichter and Crutzen¹⁵⁾をもとに、積雲対流による物質の輸送過程を次の方法でパラメタ化した。すなわち、積乱雲内で上昇気流が起こると水蒸気は凝結し、その一部は雨として落下する。観測されている降水量の値から一回の積雲対流による凝結量を仮定し、一回の上昇気流の大きさを見積もった。

3. 中緯度対流圏における光化学大気成分の数値計算

2で述べたモデルを用いて現在の大気環境に関して1年間の計算を行った。また観測値が得られる物質については、観測値との比較を行い、モデルの再現性について評価した。さらに様々なパラメタについて、感度解析を行った。

(1) オゾン

図1に札幌におけるオゾンゾンデによる地表付近のオゾンの観測値と、計算値を示す。これによると、1年を通してほぼ濃度、および濃度の季節変化を再現することができた。次に、対流圏内の光化学反応過程によるオゾン濃度への寄与の大きさを知るため、反応を考慮せず、成層圏からの流入—地表における乾性沈着の過程のみを考慮した場合のオゾン濃度について、1年間の計算を行った。図2に45° N、

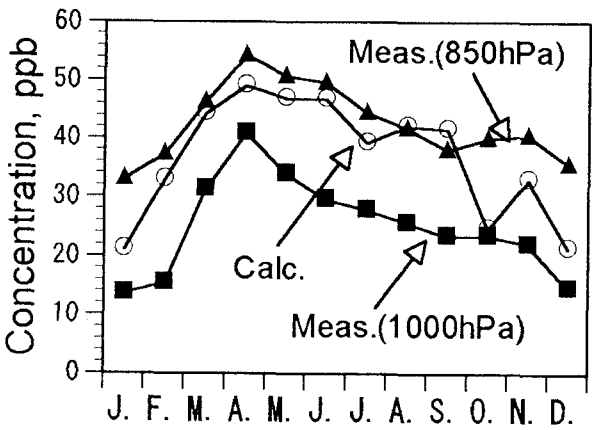


図1 札幌におけるオゾンゾンデによるオゾンの観測値と計算値との比較。

を示す。対流圏全域において、反応による濃度の上昇量が10~20ppb (現状のオゾン濃度の20~60%程度) あることがわかる。このようなオゾン濃度への反応の寄与はNO_x濃度に決定的に依存している。すなわち、夏季の人為汚染地域の対流圏下層においては、NO_x濃度が1ppbを上回る高濃度となるため、NO_xの光解離に始まる光化学反応によってオゾンが30~40ppb生成される。一方、夏季の海上の対流圏下層では、NO_x濃度が10ppt以下の低濃度となるため、オゾンは炭化水素から生成された過酸ラジカルと反応し、破壊されていることがわかった。

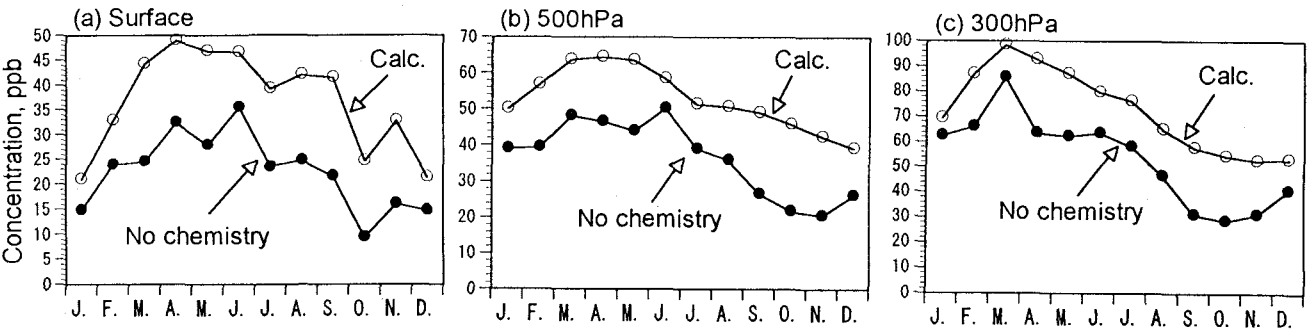


図2 対流圏各層のオゾン濃度の計算値の季節変化, 光化学反応過程を含んだ場合と含まない場合。
(a) 地表近く、(b) 中層(500hPa)、(c) 上層(300hPa)

(2) PAN

PANは炭化水素と NO_x を含む大気中で光化学反応によって生成される光化学大気成分である。PANの分解反応の反応速度は気温に大きく依存し、気温が 10°C 上昇するごとに5～6倍速くなる。そのため、PANは気温が低いときには安定な物質であるが、気温が高くなると熱分解して NO_2 を放出する。 NO_2 の対流圏内の寿命は短く、発生源の近傍に留まって長距離輸送されることはないが、PANの形になることによって長距離輸送が可能となる。図3にイギリスの清浄地域の地表におけるPANの観測値と計算値を示す。計算値は季節変化をよく再現している。

図4に3月の北緯 45° におけるPAN濃度の経度－高度分布を示す。PAN濃度はヨーロッパ($0\sim 30^\circ\text{E}$)、東アジア($120^\circ\text{E}\sim 160^\circ\text{E}$)、北米東岸($90^\circ\text{W}\sim 40^\circ\text{W}$)の3カ所の地表近くに高濃度域が見られる。PANの前駆物質となる NO_x や炭化水素の排出量はヨーロッパや北米東岸の方が大きいにも関わらず、PAN濃度は東アジアが最大となっている。この緯度帯において、東アジアはもっとも最下層の気温が最も低く、ヨーロッパと比べると月平均気温で 10°C 程度低い。そのため、東アジアでは地表近くにおけるPANの分解速度が他の地域と比べて遅く、PANの蓄積が進んで、最も濃度が高くなったと考えられる。以上のことから、PANの濃度分布には、前駆物質の発生源強度の寄与よりは、気温の寄与の方が大きいことがわかった。

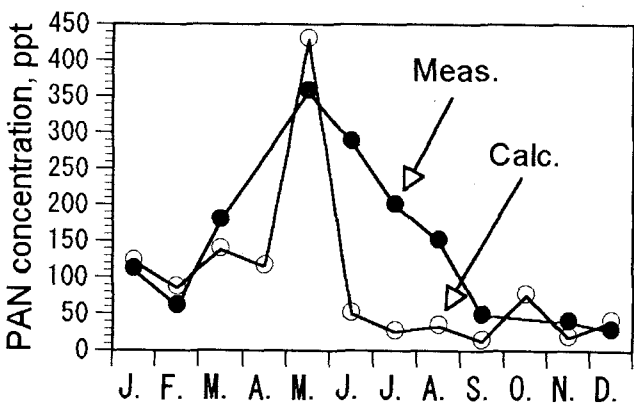


図3 イギリスにおけるPAN濃度の観測値とモデルによる計算値との比較。

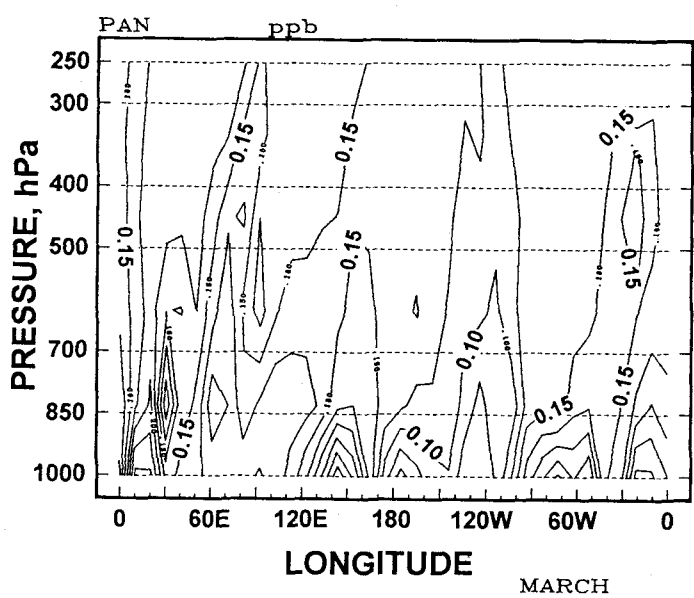


図4 $40^\circ\text{N}\sim 50^\circ\text{N}$ の緯度帯における3月のPAN濃度の緯度－高度分布。

4. 東アジアからの人為汚染物質排出量の増加に伴う光化学大気成分の変化

北半球中緯度圏に位置する国の中には、今後数十年間に大きな経済成長が見込まれ、それに伴って人為汚染物質の排出量の増加も予想される東アジア地域も含まれる。ここでは、東アジア地域の大气汚染物質の排出量が現在の北米大陸の工業地域の排出量まで増加した場合に、それに伴う大气微量成分濃度の変化、および変化の範囲について見積もるため、1年間の濃度計算を行った。

図5に1月の硝酸(HNO_3)とPAN濃度の現状の濃度からの変化量を%で示す。大气汚染物質の発生量の増加に伴い、 HNO_3 は 120°E から 150°W の東アジアから太平洋の全域にかけて、濃度が1.5倍以上に増加する。最も濃度増加が大きい領域は 150°E から 180° にかけての最下層で、 HNO_3 濃度は基本ケースの3倍以上に達する。これに対してPANの場合は、全経度にわたって対流圏全域で15～20%程度

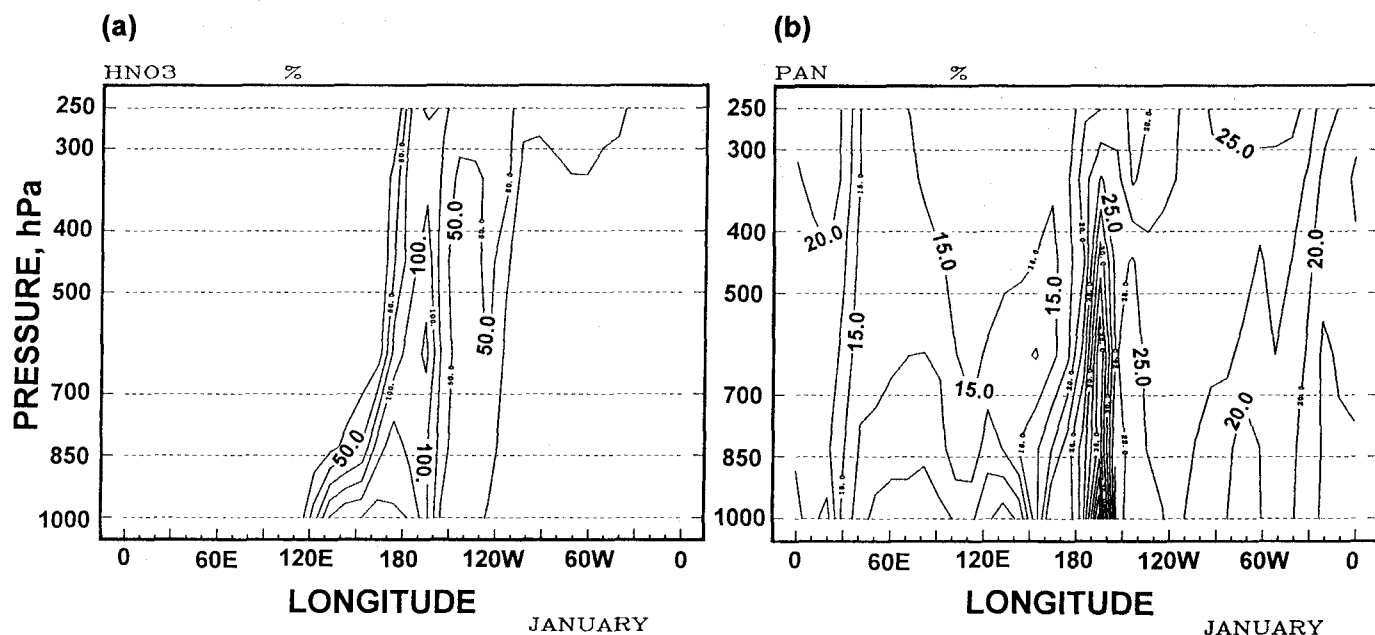


図5 東アジアからの人為汚染物質の排出量を増加させた場合の1月の(a)硝酸, (b)PAN濃度の変化.

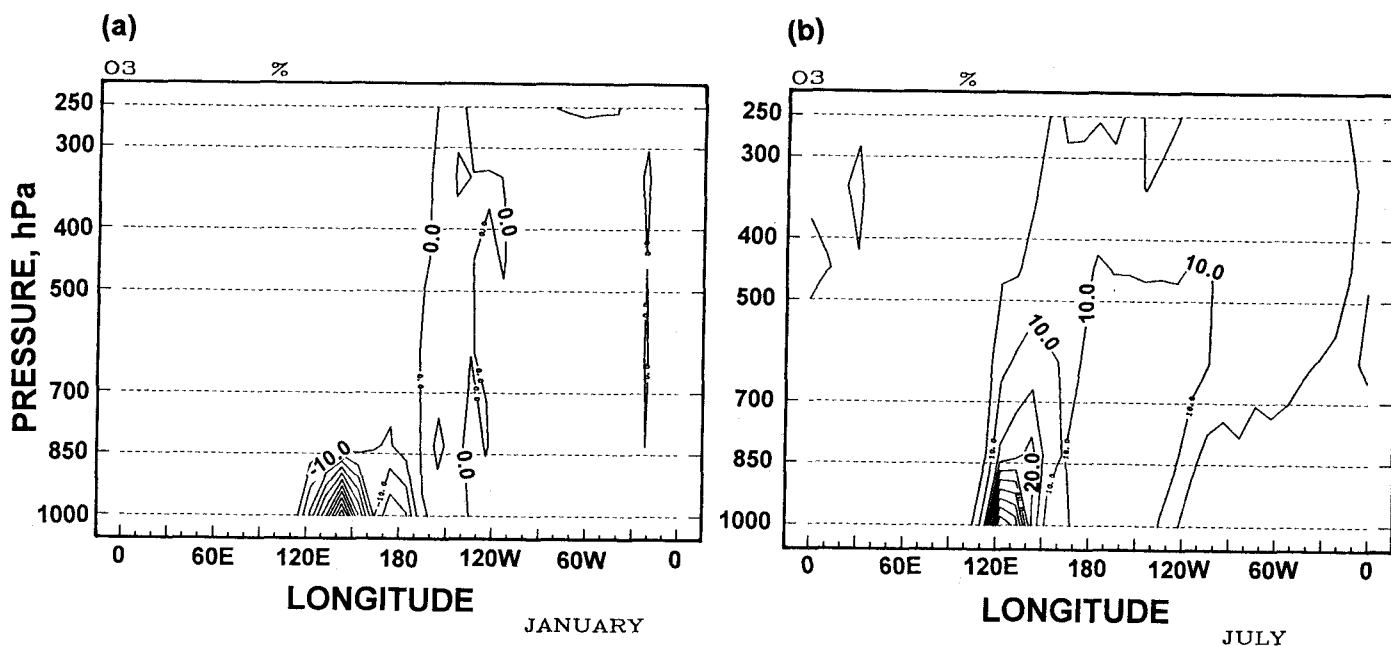


図6 東アジアからの人為汚染物質の排出量を増加させた場合の(a)1月, (b)7月のオゾン濃度の変化.

濃度が増加する。濃度変化割合が最大となるのは東部太平洋上の 165° W 付近で、40%程度の増加となる。 HNO_3 、PANはともに NO_2 を前駆物質とする二次汚染物質であるが、 HNO_3 は主に乾性沈着、湿性沈着によって大気中から除去されるのに対して、PANは熱分解反応によって消滅する。そのため、PANの分解反応の反応速度が遅い冬季には、PANの寿命は長くなり、増加したPANは対流圏全域に輸送され、全経度にわたって濃度を上昇させる。

図6に1月と7月のオゾン濃度の現状の濃度からの変化量を%で示す。オゾン濃度は1月には東アジアで最大50%程度減少し、また7月には東アジアで最大50%程度の増加、東アジアから太平洋全域にかけては

10%程度増加する。オゾンは NO_x による生成、破壊の両方の過程が存在し、季節によってその割合が異なるため、このような結果になったと思われる。以上のように、同じ物質を前駆物質とする二次汚染物質でもその特性によって挙動が異なること、特にオゾンの場合は季節の違いによっても挙動が異なることが明らかになり、対流圏内の光化学反応過程が重要であることが明らかとなった。

5. まとめ

大気微量成分の濃度分布を精密に表現することのできる経度－高度方向の2次元反応－輸送モデルを開発し、モデルの精度を検証した。また、将来の大気汚染の進行に伴う微量大気成分濃度の変化の予測を行った。

2次元反応－輸送モデルの再現性を検証した結果、オゾンやPANについては濃度をほぼ再現することができた。また、一年間のモデル計算を行い、光化学反応によるオゾン生成によって、オゾン濃度は一年を通じて10～20ppb上昇しており、寄与の大きさは NO_x 濃度に決定的に依存すること、PANの濃度分布には、気温分布が大きな影響を与えていることなどがわかった。さらにモデルパラメータに関する感度解析を行い、発生源強度についてよりいっそうのデータの蓄積が求められることを示した。

この2次元反応－輸送モデルを用いて、東アジアの大気汚染物質の排出量が増加した場合の影響の大きさ、および影響のおよぶ範囲について評価を行った。その結果、同じ物質を前駆物質とする二次汚染物質でもその特性によって挙動が異なることが示され、対流圏内の光化学反応過程が重要であることが明らかとなった。

参考文献

- 1) Solberg, S et al., in Ozone in the Atmosphere, p548-551, 1989, edited by R.D.Bojkov and P.Fabian, A Deepak Publishing, Hampton, Va.
- 2) Zimmermann, P.H., Sixteenth NATO/CCMS International Technical Meeting on Air Pollution Modeling and its Application, 1987
- 3) Prather, M.J., J.G.R., Vol.91(D6), 6671-6681, 1986
- 4) Stockwell, W.R. et al., J.G.R., Vol.95(D10), p16343-16367, 1990
- 5) Ohta, S. and M.Tanaka, J. Meteor. Soc. Japan, Vol.62(1), 1984
- 6) Hameed, S. and J.Dignon, Atmos.Env., Vol.22, No.3, p441-449, 1988
- 7) Piccot, S.D. et al., J.G.R., Vol.97(D9), p9897-9912, 1992
- 8) Beck, J.P. et al., Atmos. Env., Vol.26A, No.1, p17-29, 1992
- 9) Penner, J.E. et al., J.G.R. Vol.96(D1), pp.959-990, 1991
- 10) Derwent, R.G. and M.E.Jenkin, Atmos.Env., Vol.25A(8), p.1661-1678, 1991
- 11) Follows, M.J. and J.F.Austin, J.G.R., Vol.97(D16), p18047-18060, 1992
- 12) Hough, A.M., J.G.R., Vol.96(D4), p7325-7362, 1991
- 13) Kasting, J.F. and H.B.Singh, J.G.R., Vol.91(D12), p13239-13256, 1986
- 14) Isaksen, I.S.A. and H.Rodhe, Rep.AC-47, Int.Meteor.Inst., Stockholm, 1978
- 15) Feichter, J. and P.J.Crutzen, Tellus, 42B, 100-117, 1990