

12. 一次元モデルによる対流圏オゾンの輸送・反応過程の評価

A One-Dimensional Modeling Study on Transport and Photochemical
Production of Tropospheric Ozone

村尾直人*、太田幸雄*、山形 定*、池内和泉*

Naoto MURAO, Sachio OHTA, Sadamu YAMAGATA, Izumi Ikeuchi

ABSTRACT; A one-dimensional photochemical model of the troposphere has been developed to estimate stratospheric contribution to the tropospheric ozone concentrations. The diffusion module has been changed so that we can distinguish ozone formed by the photochemical reactions from that transported from the stratosphere. Calculations of the tropospheric chemistry indicate that the diffusion module can compute tropospheric profiles of trace constituents from different sources adequately. However, the model can not reproduce summer maximum in the middle troposphere. Also, it tends to underestimate ozone concentrations in the upper troposphere. These model deficiencies are caused by the limitations of one-dimensional treatment. The resulting estimates indicate that stratospheric inputs can account for a maximum of ca. 10 % of the ozone at surface, ca. 50% at the middle troposphere in late winter and spring and for less during the rest of the year. An uncertainty study indicate that the results are highly depend upon the stratospheric flux and not so upon the NO formation rate by lightning.

KEYWORDS; Tropospheric ozone, Stratospheric ozone intrusion, One-dimensional model

1. 緒言

I P C Cの最近の報告書では、地球温暖化に対するオゾン、エアロゾルの影響が大きく取り上げられ、将来の温暖化予測において、これらの成分の濃度変動の把握が重要な課題とされている。オゾンやエアロゾルが CO_2 や CH_4 などと異なる点は、濃度の空間変動が大きいことにある。オゾン濃度の変動は日射と地球放射の双方に影響を持つが、その影響は、特に観測の乏しい圏界面付近の濃度変動に敏感である¹⁾。これらの点が、近年の成層圏オゾンの減少、人間活動に伴う対流圏オゾンの増加の気候影響評価およびその将来予測を難しくしている。以上のような気候影響とともに、対流圏オゾンは対流圏光化学過程の中心的役割を果たしており、温室効果ガスであるメタンの濃度変動や、大陸スケールの酸性雨現象にも大きく影響している。一方、都市環境に目を転じてみると、昨今の NO_2 問題は、自動車から排出されたNOを都市境界層にとりこまれた対流圏オゾンが酸化することによって生じている。

近年の観測から、北半球における対流圏オゾンは増加傾向にあり、その原因として人間活動に伴う炭化水素や窒素酸化物があげられている。しかし、対流圏中のオゾン濃度は、成層圏からの輸送、対流圏中の生成・消滅、地表での破壊の四つの過程から決定されており、オゾンの濃度変動に対するこれらの過程の相対的役割を明らかにする必要がある。特に成層圏からの輸送量と対流圏中の生成量の区別は古くからの課題である。近年の欧米における研究では、成層圏オゾンの地表濃度への寄与は比較的小さいことが推定されているが、東アジア地域は世界的にみてもジェット気流がもっとも発達し、成層圏-対流圏の物質交

* 北海道大学工学部環境工学科 Department of Environmental Engineering, Hokkaido Univ.

換がもっとも盛んな地域と考えられ、欧米とは別の評価が必要と思われる

以上のことを背景にして、本研究ではまず起源別の濃度計算が可能になるように拡散計算法の変更を行った。次に、その計算法を一次元モデルに組み込み、年間の対流圏オゾン濃度変動に対する輸送・反応の寄与を求めた。

2. モデルの概要

2. 1 一次元モデルと拡散計算法の変更

地域変動の大きいオゾンの動態をモデル化する場合には三次元モデルの使用が必要であるが、本研究では拡散計算法の変更とその性能評価を目的としたため、もっとも簡便な一次元モデルを使用した。一次元モデルは水平方向に一様な場を対象としているため、計算結果を個々の観測と比較することは適当ではないが、本研究では、北半球中緯度の気象データおよび発生源データを使用し結果の比較を行うこととした。

本研究で使用した一次元モデルの概要を表1に示した。以下に特に重要な過程を概説する。

- (A) 大気汚染物質の発生：北半球中緯度の比較的清浄な陸上を対象として、12種類の炭化水素とNOを地表からの人為排出として与えた。また自然起源として、成層圏からのオゾン、NOの流入、雷によるNOの生成を与えた。このうち、成層圏からのオゾン流入については、Follows and Austin²⁾をもとにパラメータ化を行い、3月に最大、9月に最小のフラックスをモデルの最上層に与えた。また雷によるNOの生成については、積雲の統計データに基づく雷の発生回数から生成するNOの総量を求め、積雲内の鉛直気流速度によって各層に配分した。
- (B) 鉛直拡散：モデルを構成する過程のうちで、同一物質を起源別に異なる物質として扱おうとするときに問題となるものの一つが拡散計算である。すなわち、同一物質を起源別に異なる物質とすると、拡散はそれぞれの濃度差によって計算されるが、実際には同じ物質なので起源別に想定した物質の合計濃度で拡散計算を行わなければならない。このため、以下のように拡散計算法の変更を行った。
- ・オゾンを成層圏起源オゾン $O_{3, st}$ と反応起源オゾン $O_{3, reac}$ として別物質として取り扱う。
 - ・まず、時間 $t = t_0$ の $O_{3, st}$ および $O_{3, reac}$ の合計（以下、 $O_{3, total}$ ）濃度に関して通常の拡散計算を行う。解法に陰解法であるクランクニ科尔ソン法を用いると、時間 Δt 後の拡散計算結果は時間 $t = t_0$ および $t = t_0 + \Delta t$ における拡散フラックスから計算されるので、この計算によって、時間 $t = t_0 + \Delta t$ における $O_{3, total}$ 濃度とともに $O_{3, total}$ の拡散フラックス($t = t_0$ および $t = t_0 + \Delta t$)を計算できる。
 - ・ $O_{3, st}$ および $O_{3, reac}$ は計算上、別物質と扱っているが同一物質なので現実の拡散現象では両者に区別はない。したがって、時間 $t = t_0$ および $t = t_0 + \Delta t$ における $O_{3, st}$ および $O_{3, reac}$ の拡散フラックスは、時間 $t = t_0$ および $t = t_0 + \Delta t$ における $O_{3, total}$ の拡散フラックスを、各

表1 対流圏一次元モデルの概要

モデル	拡散、積雲対流、反応、沈着、発生を考慮した鉛直一次元モデル
対象地域	北半球中緯度（北緯 40 度）の比較的清浄な陸上
鉛直層	地表～圏界面までを 10 層に分割
発生源	人為発生源 NO、エタン、エチレンなど12 種類の炭化水素 雷によるNO生成（積雲の統計資料により計算） 成層圏からの O_3 、NOの流入
反応	Stockwell らの反応機構 ³⁾ （48 種の化学種、107 の反応） 解法はギア一法による
光解離定数	太陽天頂角により日変化、中層雲による散乱・遮蔽効果を考慮
沈着	文献値により、乾性沈着速度、洗浄比を仮定

層での $O_{3, st}$ および $O_{3, reac}$ の構成割合によって配分することによって求めることができる。これらのフラックスが求められれば、時間 $t = t_0 + \Delta t$ における $O_{3, st}$ および $O_{3, reac}$ 濃度を克蘭クニコルソン法により求めることができる。

2. 2 予備計算と反応機構の変更

2. 1 に示した拡散計算法の変更を用いて、対流圏オゾンの起源別濃度計算を一月に関して行ったところ、対流圏オゾン濃度に対する成層圏オゾンの寄与は、対流圏全層にわたって数%に留まった。この結果は明らかに現実と異なっているが、その原因は反応に関する以下の点にある。

成層圏から流入したオゾンは、対流圏中で次の光解離反応を起こす。



同時にオゾンは雷により生成したNOや成層圏から流入したNOと反応する。



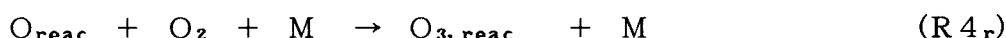
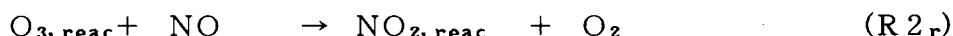
R2で生成した NO_2 は以下の反応を経てオゾンを生産する。



同様に、R1で生成した $O(^1D)$ も以下の反応を経てオゾンを生産する。



R1～R5の反応は迅速に進むため、R4でできるオゾンを $O_{3, reac}$ として取り扱うと先に述べたような結果を生じると考えられる。しかし、我々が観測を行って上層起源と考えているオゾンは、R3～R5の反応を経て再生されているオゾンも含んでいるものと思われる。以上の点が生ずることは、反応を含まない輸送計算結果から反応がなければどのような分布になるか、といった議論を行うことの問題である。すなわち、これまでに行われてきた対流圏オゾンに対する成層圏起源オゾンの寄与推定に関する計算で、輸送計算のみを行った結果と反応を含む計算を行った結果の差により推定を行う方法（例えば、levyら⁴¹⁾）には大きな問題があるといえる。本研究では反応機構を以下のように変更し、成層圏オゾンの消滅・再生を計算で取り入れることとした。すなわち、R1～R5に関連する物質のうち、成層圏起源のオゾンの反応によって生じる O 、 $O(^1D)$ および NO_2 をオゾンと同様に起源別物質として取り扱うこととして、人為起源物質を起源として生成する O 、 $O(^1D)$ および NO_2 と区別することにした。たとえば、R2～R4は以下のような反応に変更した。



起源別物質として取り扱う O 、 $O(^1D)$ および NO_2 のうち、 NO_2 についてはオゾンと同様に $NO_{2, st}$ と $NO_{2, reac}$ の合計濃度を用いて拡散計算を行った。

3. 結果および考察

以上のモデルを用いて計算した対流圏オゾン濃度の季節変動および成層圏オゾンの寄与率を図1に示した。先に述べたとおり、オゾンは地域的な変動が大きいため、一次元モデルの結果を特定の観測と比較するのは適当ではないが、図には1969～1980年に札幌でオゾンゾンデによって観測されたオゾンの季節変動(各月の平均値)をあわせて示した。図から明らかなように、オゾン濃度の計算結果は上層で過少評価となっており、また、対流圏中層でみられる夏季の濃度増加を再現できていない。これらの原因については、いずれも一次元モデルの使用によるものと思われる。まず、上層でオゾン濃度が過少評価になることについては積雲対流に関する以下のような問題があると考えられる。モデルで扱った積雲対流の計算法の妥当

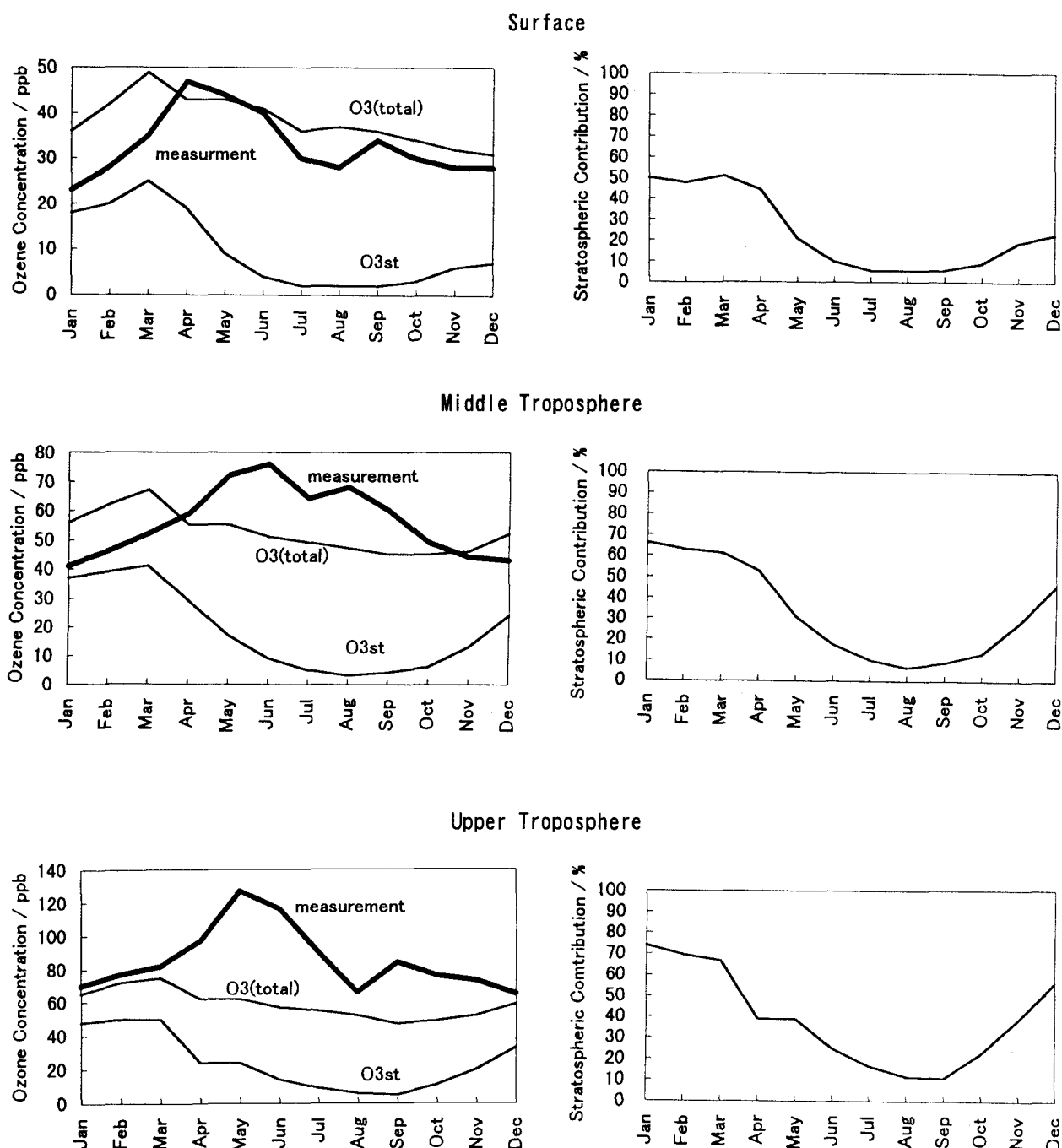


図1 対流圏オゾン濃度の季節変動(左)と成層圏オゾンの寄与率(右): 観測値は札幌の値

性についてはすでにラドン濃度に関するモデル計算で検討済である⁴⁾。上層空気と下層空気の混合の役割を持つ積雲対流が生じた場合、上層で高く、下層で低い濃度分布を持つオゾンでは、上層濃度の低下、下層濃度の上昇が起こる。しかし、積雲対流が起こる頻度は高々数%にすぎない。このため、現実の大気中では周辺空気との混合によってその濃度変化は抑えられるが、一次元モデルではこのような周囲からの移流・拡散を考慮しないため、前述のような問題が生じると考えられる。特にその効果は下層空気の直接輸送がある上層で著しい。一方、夏季における中層の濃度増加が再現できない点については、中層の濃度増加が反応によるものか、輸送によるものかを明らかにしなければならない。図1から明らかなように、反応による生成は夏季に増加傾向にある。しかし、一次元モデルによる結果によれば、NOを発生量を増加してもオゾン濃度が全体に上昇するだけで、冬季に低く夏季に高い季節変動は再現できない⁵⁾。この点については今後さらに検討を必要とするが、現段階では、一次元モデルが移流を考慮していないために中層の変動を再現できないのではないかと考えている。

図1の結果では、寄与率は春季に最大、夏季～秋季に最小の季節変動を示し、下層で5～50%、上層では10～73%となっている。この計算では積雲対流の効果が過剰に見積もられており、成層圏オゾンの寄与は、上層で過少評価、下層で過大評価と考えられる。

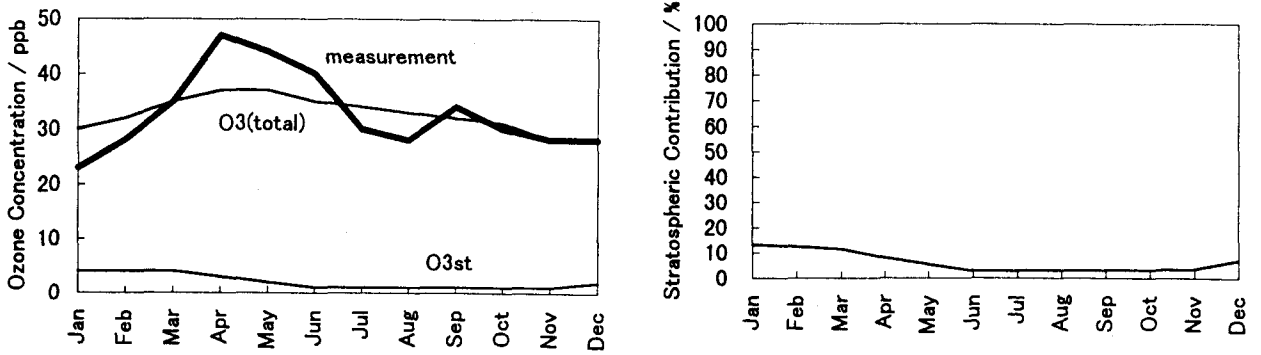
積雲対流の効果を明らかにするために、積雲対流を除いた計算を行った。結果を図2に示す。図1と異なり、上層でのオゾン濃度が観測値に近いレベルになっていることがわかるが、中層での問題は解決していない。寄与率は図1と同様に春季に最大、夏季～秋季に最小の季節変動を示し、下層で1～13%、上層では25～70%となっている。この値は積雲対流を含まないため、上層で過大評価、下層で過少評価になっていると思われるが、積雲対流の頻度を考慮すれば、図2の値の方が現実に近いと考えられる。中緯度地域で $^7\text{Be}/^{10}\text{Be}$ 比を利用した成層圏オゾンの寄与率推定はなされていないが、極域での測定に基づく推定値は春季に10～15%、夏季に数%とされており、図2の値より若干高い値となっている。

さらに今後のデータ整備のため、本モデルを利用して成層圏オゾンの寄与率推定に最も重要なパラメータと考えられる成層圏からの流入フラックスおよび雷によるNO生成について感度解析を行ったところ、雷によるNO生成は現在の推定値の範囲では大きな影響を及ぼさないことが分かった。寄与率は成層圏からの流入フラックスに強く依存しているが、この値は地域変動が大きく、ジェット気流が強い東アジア地域と他の地域ではかなりの違いが考えられる。東アジアにおける観測によるデータ整備が期待される。

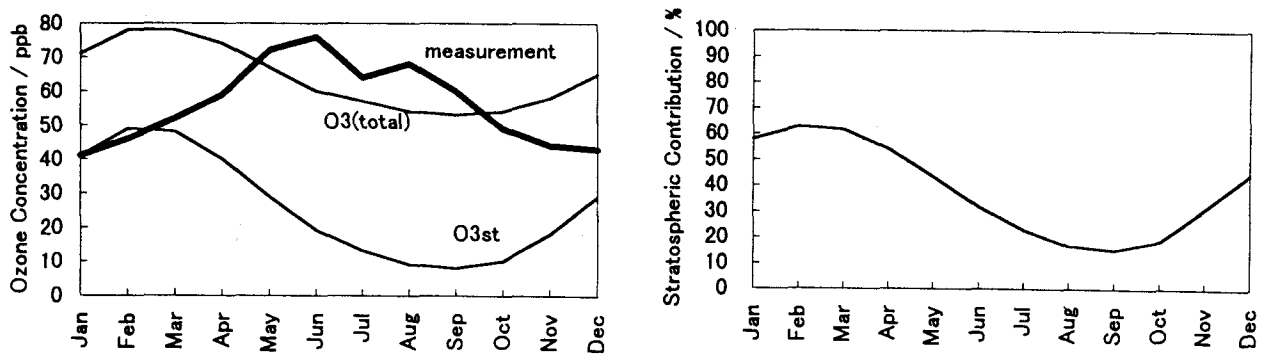
4. まとめ

起源別濃度計算を行うために拡散計算法の変更を行い、成層圏オゾンと反応生成によるオゾンを別物質として扱うことが計算上可能となった。変更した計算法を一次元モデルに組み込み、対流圏オゾン濃度に対する成層圏からの輸送と対流圏中の反応による生成を見積もった。今後の課題として、これらの手法を三次元モデルに組み込み、地点別の評価を行うことがあげられる。

Surface



Middle Troposphere



Upper Troposphere

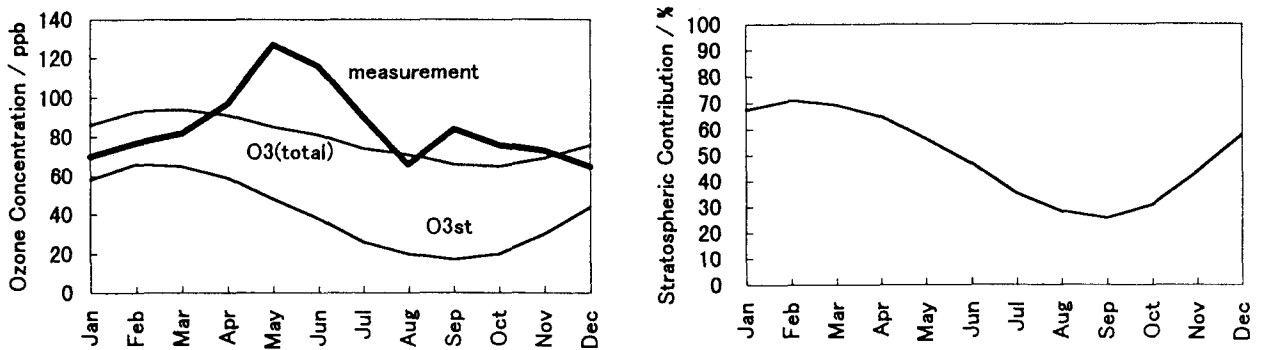


図2 対流圏オゾン濃度の季節変動(左)と成層圏オゾンの寄与率(右): 観測値は札幌の値
積雲対流を考慮しない場合

参考文献

- ¹⁾ Yung, Y. L. (1980) J. Atmos. Sci., 37. ²⁾ Follows, M. J. and Austin, J. F. (1992) J. Geophys. Res., 97, 18047-.
- ³⁾ Stockwell, W. R. et al. (1990) J. Geophys. Res., 95, 16343-.
- ⁴⁾ 高橋信英(1995)、北海道大学修士論文
- ⁵⁾ 小杉智純(1994)、北海道大学卒業論文
- ⁶⁾ Dibb, J. E. et al. (1994) J. Geophys. Res., 99, 12855-.