

26. 夏季の中部山岳のオゾン生成に及ぼす植物起源炭化水素の寄与推定

Numerical Simulation of Ozone Formation over Mountainous Central Japan in Summer Season

-Effects of Biogenic Hydrocarbon Emission and Emission Control of Anthropogenic-NO_x and -Non-methane Hydrocarbons over Urban Areas-

北田敏廣*・岡村 聖*・三溝 啓*

Toshihiro KITADA, Kiyoshi OKAMURA, and Kei SAMIZO

ABSTRACT; Air pollution transport over the Central Japan was numerically simulated in a typical land and sea breeze situation in summer season. The models used in the calculation were extensions of those described in Kitada et al. (1993) and (1998). Sensitivity of the production of ozone and acidic species to emissions of biogenic nonmethan-hydrocarbon(NMHC), and anthropogenic-NMHC and -NO_x were focussed; the ozone, sulfate, and nitrate are chemically produced in pollutants-rich air mass migrating from coastal big cities to central mountains. Some of the obtained results are as follows: (1) biogenic hydrocarbons could increase daily maximum ozone concentration as much as 20 ppb over the Nohbi and Kanto Plains, and (2) reduction of NO_x emission by 20% may result in increase of the ozone concentration by a few percent to almost 20% over the Nohbi Plain, indicating necessity of careful emission control.

KEYWORDS: tropospheric ozone, sulfate, nitrate, biogenic hydrocarbon, sea breeze

1. はじめに

中部地方は、中央に山岳部、沿岸に平野部を持つ地形特性のゆえに、夏季晴天時の傾度風の弱いときには、海風、谷風、平地一帯地風が、沿岸部から中部山岳に到る一連の流れを形成して、平野部で排出された大気汚染物質を1日の間に中央の山岳部まで輸送することが知られている(例えば、栗田、植田、1985)。筆者等は、先に、同様の気象場が数日継続した場合に、反応生成物を含むこれらの汚染物質がさらにどのような運命をたどるのかを、日本中央部全域を含む、東西550 km x 南北450 km x 高さ6.5 kmの領域を対象に、1995年7月26日から28日の3日間について、微量化学物質の輸送・反応・沈着のシミュレーションを行い明らかにした(Kitada et al., 1999)。真夜中に、中部全域の太平洋側の高度1500 m程度を中心に、オゾン、硫酸エアロゾル、

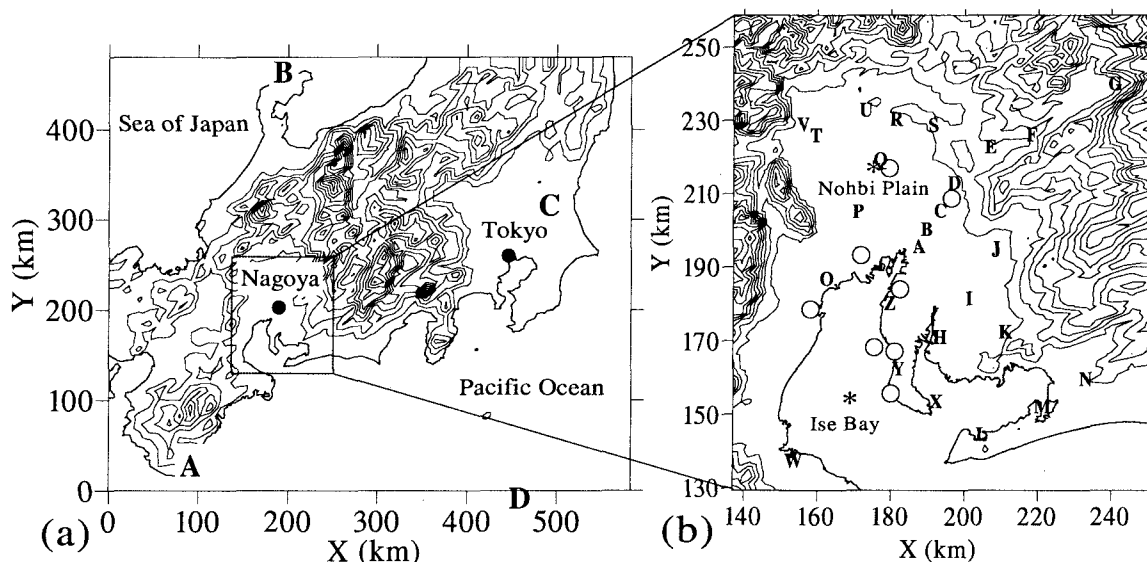


図 1: 計算領域: (a) 全対象領域, (b) 濃尾平野等の拡大図。

*豊橋技術科学大学エコロジー工学系, Dept. of Ecological Eng., Toyohashi Univ. of Technol., Toyohashi 441-8580, Japan.

硝酸等の反応生成物の高濃度層が形成されること等が推定され、暖候期に 70 – 80 日近く、このような気象状況の出現の可能性があることから（森ら、1994）、中部山岳生態系への長期阻害要因となり得ることが示唆された。本研究は、この研究を受けて、特に山岳部で排出される植物起源炭化水素（isoprene, α -pinene）と、沿岸大都市域における排出源制御が、この高濃度形成にどう影響するかを数値シミュレーションにより検討した。図 1 に全対象領域（図 1a）および濃尾平野等の拡大図（図 1b）を示す。

2. 植物起源炭化水素排出源の推定

シミュレーション期間は、以前と（Kitada et al., 1999）と同様に 1995 年 7 月 26 日 0600 – 同 28 日 0600JST の足掛け 3 日間である。当該期間中、太平洋高気圧の影響下で晴天が続き、光化学オキシダントが各地で高濃度に達した。この間、濃尾平野–伊勢湾域では航空機観測を含めた大規模な立体観測が行われた。例えば、流れについては、パイロットバルーン（6 点）、レーウィンゾンデ（2 点）、ドップラーソーダにより上層風の観測が行われたが、これらはすべて、県の大気環境測定局、アメダス等の地上風と共に、ナッジングにより気象場のシミュレーションに取り込まれている。

植物が反応的な炭化水素を放出することは良く知られており、人為起源の窒素酸化物や非メタン炭化水素との相互作用のなかでオゾン生成にどう影響するのかについても欧米でかなりの数の研究がなされている。本研究では、まず、もっとも重要な植物起源炭化水素であるイソプレン、 α -ピネンについてその排出源分布を推定した。三次メッシュ（ほぼ、1km 格子）を基にした植生調査ファイル（（財）自然環境研究センター）と、当日の気温分布、日射量を用いて、BEIS(Pierce et al., 1990) に倣って推定した。イソプレンは、日中のみの排出となるが、日平均し、かつ空間平均（10km x 10km）した排出強度を図 2 に示す（(a) isoprene, (b) α -pinene）。また、表 1 は、濃

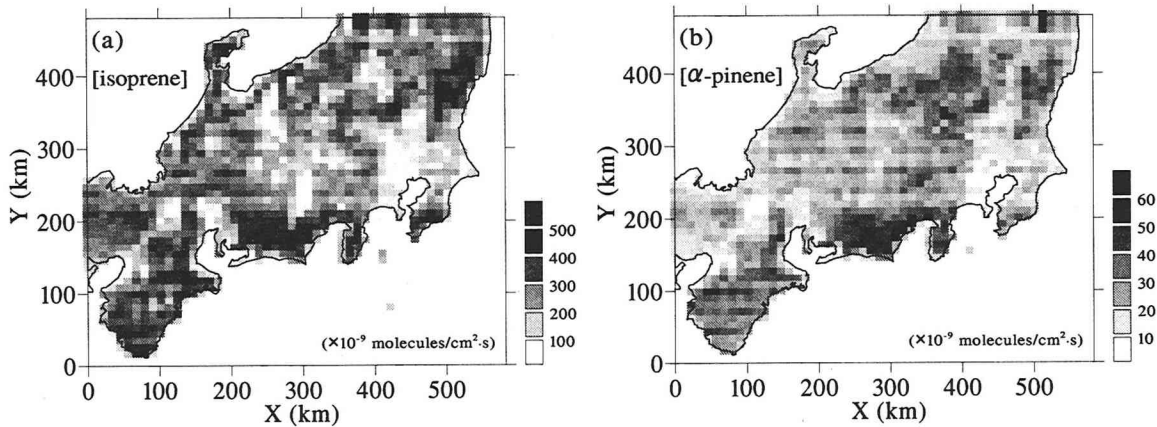


図 2: 排出源分布: (a) イソプレン, (b) α -ピネン。

表 1: 図 1b の領域に対する排出源の概要。

Chemical species.	Emission rate (kmol day ⁻¹)	Ratio ³
NO _x	7.90×10 ³	1
Ant – NMHC ¹	7.72×10 ³	0.978
C ₂ H ₆	0.47×10 ³	(0.059)
C ₃ H ₈ *	0.81×10 ³	(0.103)
ALKA#	2.90×10 ³	(0.367)
C ₂ H ₄	0.52×10 ³	(0.066)
ALKE ⁺	0.70×10 ³	(0.089)
AROM=	2.32×10 ³	(0.294)
Bio – NMHC ²	2.09×10 ³	
ISOP	1.64×10 ³	
PINENE	0.45×10 ³	

1, Ant-NMHC = C₂H₆ + C₃H₈ + ALKA + C₂H₄ + ALKE + AROM.

2, Bio-NMHC = ISOP + PINENE.

3, Ratio of emissions of various anthropogenic hydrocarbons to that of NO_x.

*, C₃H₈ stands for propane and benzene.

#, ALKA for $\geq$ C₄ alkanes.

+, ALKE for $\geq$ C₃ alkenes.

=, AROM for alkylbenzenes.

尾平野（図 1b）からの総排出量を人為起源物質および植物起源炭化水素について示したものである。isoprene, α -pinene 等とオゾンや OH ラジカルとの反応生成物について、専門誌に特集（J. Geophys. Res., Vol.103, No.D19, 1998）が組まれ、大気化学への寄与がさらに明らかになりつつあるが、反動的な生成物の比などについて不確定な部分も多くあり、これからも多分に改定される可能性が高そうだが、Lurmann et al. (JGR, 1986), Lloyd et al. (1983) のメカニズムに新しい反応速度係数を一部考慮して bio-NMHC の役割につき数値シミュレーションをおこなった。

3. シミュレーションケース

人為および自然起源の非メタン炭化水素排出強度と人為起源 NOx 排出強度をパラメータにいくつかのシミュレーションを実行した。表 2 にそれらのケースを整理して示す。

表 2: シミュレーションケース

Case No.	NO _x [#]	Ant-NMHCs [#]	Bio-NMHCs [#]	Others
70lrx	1	1.33	0	—
74lrx	1	1	0	—
71lrx	1	0.13	0	—
70lrxvv	1	1.33	1	—
74lrxvv (base)	1	1	1	—
75lrxvv	1	0.67	1	—
71lrxvv	1	0.13	1	—
74lrxnoinvv	1.2	1	1	—
74lrxnovv	0.8	1	1	—
742rxvv	1	1	1	off*
74lrxvvh	1	1	0.5	—
74lrxvvoh	1	1	1.5	—

#, Relative emission strength to those listed in Table 1.
*, All emission sources were turned off after 00 JST, i.e. midnight, on 27 July.

4. 結果

4. 1 中部山岳等のオゾンおよび硝酸濃度に対する植物起源炭化水素の影響

植物起源炭化水素 (isoprene, α -pinene ; 以下、Bio-NMHCs と略) の日最高オゾン濃度に対する寄与を見るために、図 3 (Bio-NMHCs あり; case 74lrxvv), 4(Bi-NMHCs なし; case74lrx) に、7 月 27 日の各点での日最高オゾン濃度の分布図 (地表レベル、高度 500 m および 1200 m) を示す。図 3, 4 を比較すれば、濃尾平野、関東平野共に、地表面および 500m 面で最大 20ppb 程度、Bio-NMHCs ありのケースの方がオゾン濃度は高い。1200m 面での寄与は、やはり上記の地表に近い高度ほどではないが、10ppb 程度濃度が高い領域が広く太平洋上に張り出している。

先に、夜間、高度 1500m 程度を中心に反応生成物の高濃度層が形成されることを示したが (Kitada et al., 1999)、図 5 は、この高濃度層に Bio-NMHCs がどの程度寄与しているかを示す。すなわち、図 5a が、27 日午前 0 時、1500 m 面での Bio-NMHCs によるオゾン濃度増加分 (左図: case 74lrxvv - case 74lrx)、図 5b がオゾン濃度の絶対値 (case 74lrxvv) である。中部山岳の太平洋側山沿いで最大 8ppb 程度の濃度増が見られるが、絶対値に対して約 10 % 程度の寄与率であることを示唆する。Bio-NMHCs の排出強度は伊豆半島から紀伊半島にかけて本州南岸で特に大きく (図 2)、日中、この南岸での海風の収束に伴い上層に輸送された人為 NOx と Bio-NMHCs から生成したオゾンが図 5a (および図 3c) に見られる本州南岸部での Bio-NMHCs による寄与率の相対的な上昇をもたらしたと見なせる。なお、硝酸濃度の場合は、植物起源炭化水素を含めたケースの方が濃度がやや低くなり、最大 1.4ppb 程度の減を示したが、代わって PAN(0.5ppb 程度)、isoprene と NO₃ の反応により生成した IPN4(0.7ppb 程度)が増加した。

4. 2 濃尾平野におけるオゾン濃度の各種排出源強度に対する感度 一人為炭化水素、NO_x、植物炭化水素—
7 月 27 日の日最高オゾン濃度が、排出源の変動 (制御) によってどのように変わり得るかを調べた。(1) 排出源強度そのものが、多くの不確定性を含むこと、(2) 都市環境の悪化を防ぐため排出源制御の可能性が高いこと、等から、排出源強度の変動に対するオゾン等反応生成物の感度を調べる意義がある。排出源変動のシナリオは、表 2 の通りである。基本ケース (case 74lrxvv) に対して、全領域一律に排出強度を変化させている。

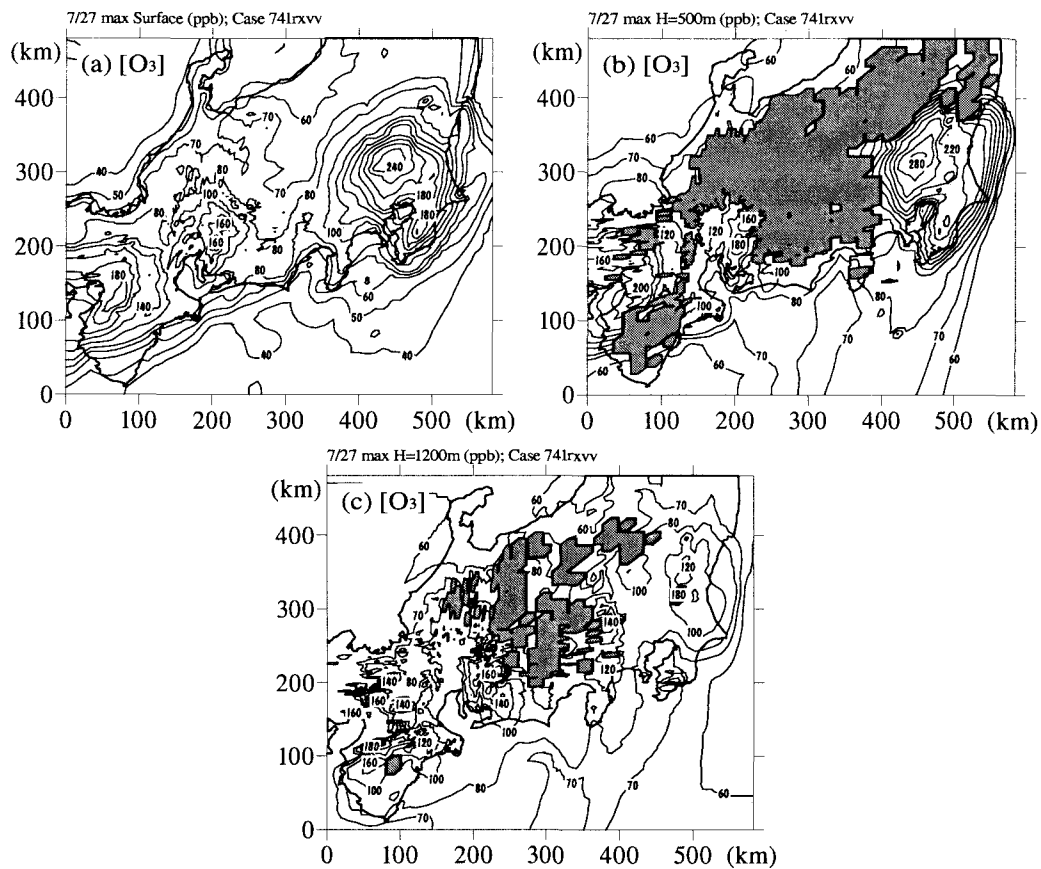


図 3: 7 月 27 日の各点での日最高オゾン濃度の分布図、但し Bio-NMHCs あり (case 741rxvv): (a) 地表レベル、(b) 高度 500 m、(c) 高度 1200 m。

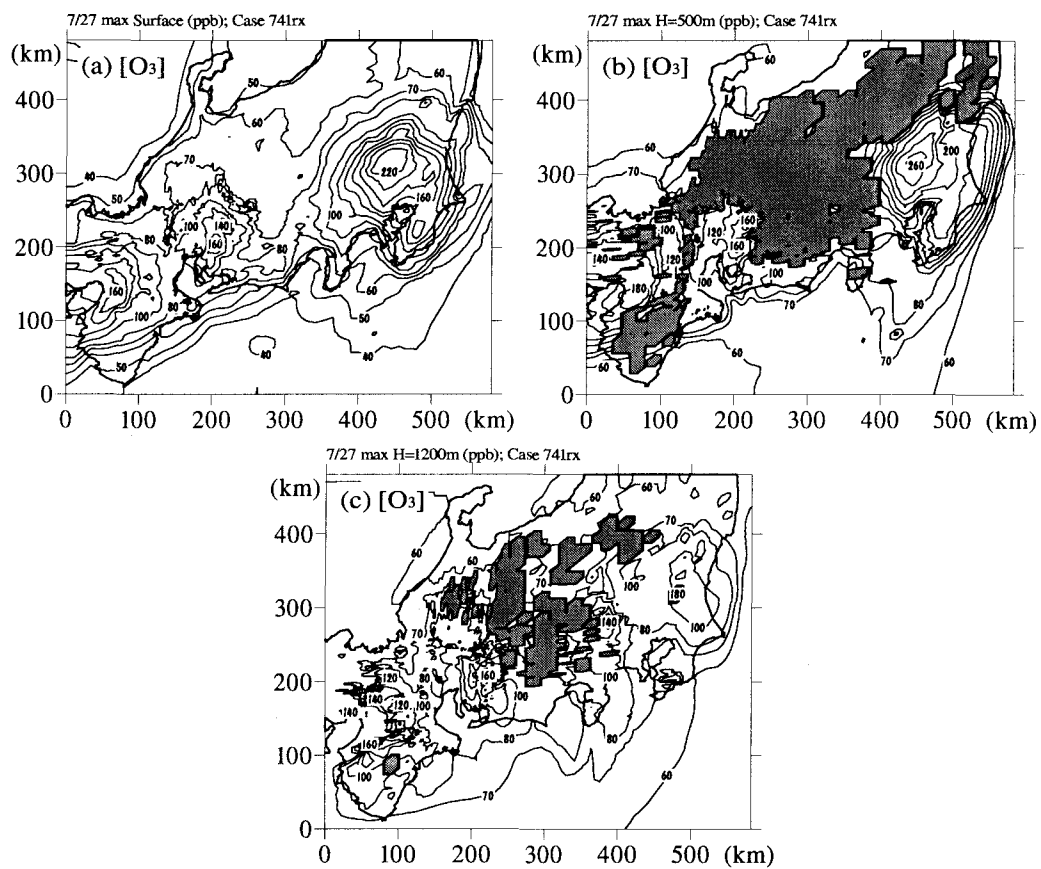


図 4: 図 3 と同様、但し Bio-NMHCs なし (case 741rx)。

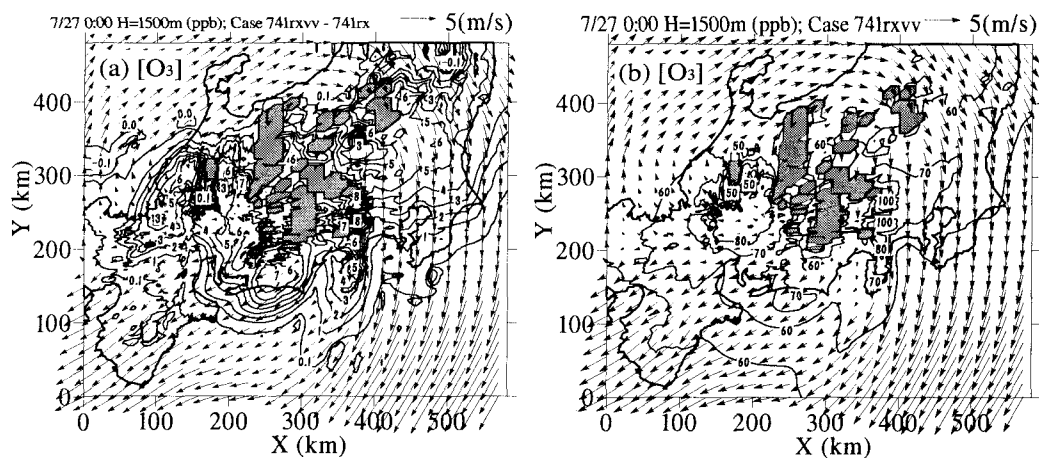


図 5: 27 日午前 0 時、1500 m 面での Bio-NMHCs によるオゾン濃度: (a) 増加分 (case 741rxvv - case 741rx), (b) 絶対値 (case 741rxvv)。

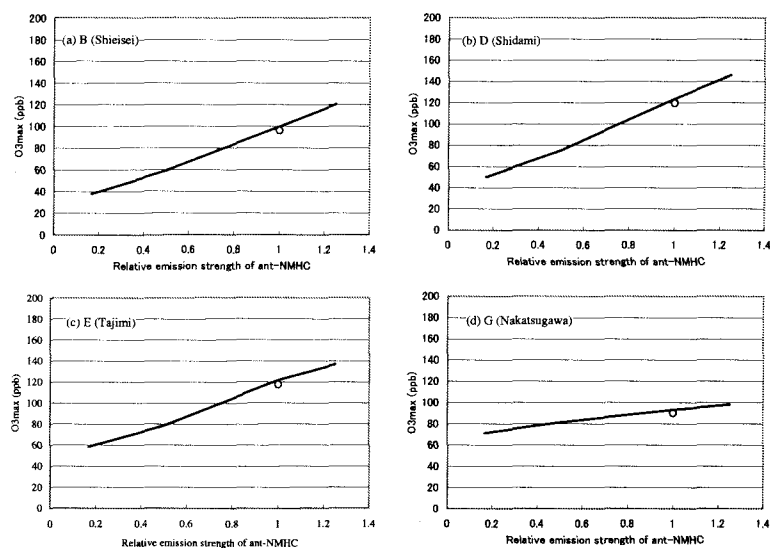


図 6: 人為炭化水素排出源強度に対する濃尾平野の各点における日最高オゾン濃度。

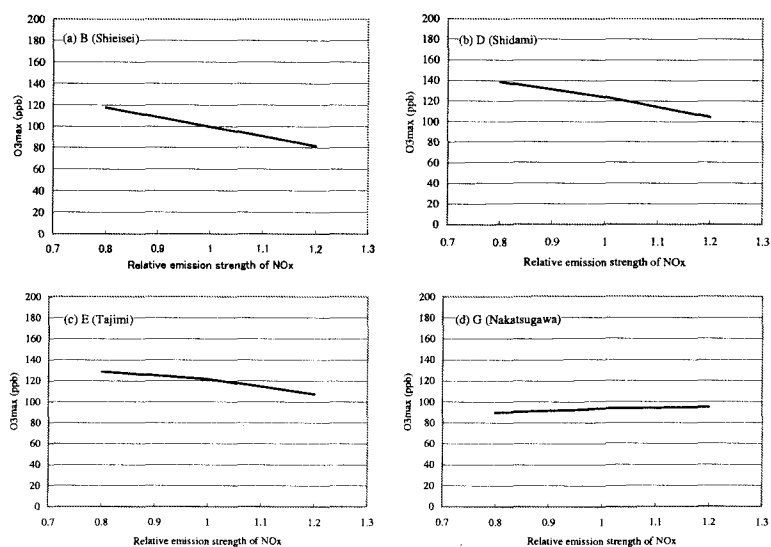


図 7: 図 6 と同様、但し人為 NO_x 源に対する感度。

濃尾平野の各点（B, D, E, G : 図 1 b 参照）における日最高オゾン濃度が、人為炭化水素排出源によってどう変わるのかを示すのが図 6、人為 NO_x 源に対する感度を示すのが図 7 である。名古屋およびその近縁辺部に位置する B, D, E 点では、日最高オゾン濃度が人為炭化水素源強度に対して正相関、人為 NO_x 源強度に対して逆相関であるという特徴が強く現れている。化学反応によるオゾン生成に関して、濃尾平野の中心部では、 NO_x は過剰にあって、炭化水素濃度が律速となっている状態を示唆する。すなわち、 NO_x 排出量のみを削減する制御方法は近縁部のオゾン濃度を増加させる危険性があることを意味する。また、かなり内陸の G 点（中津川）では、人為炭化水素排出、 NO_x 排出のいずれに対しても正相関である。図 6 中の丸印は、BASE ケースから植物起源炭化水素排出量のみを半分にした場合であるが、上記の 4 地点では日最高オゾン濃度に数 ppb 程度の減をもたらすのみである。

5. まとめ

以上、夏季の日本中央部での高気圧支配下において、大都市起源の汚染物質が、どのように移動し変質するかを丸 2 日（足掛け 3 日）間に渡って、筆者らの輸送・反応モデル、局地気象モデルを用いてシミュレートした。その結果、オゾン、硫酸エアロゾルなど都市大気から化学反応で生成する汚染物質が、中部山岳の上空の広域に渡って滞留すること、それらが、翌日の一般風+海風・谷風・平地-台地風等の反流によって沿岸部上空にもどってくること、また日中の陸上での混合層活動によって平野部のバックグラウンド濃度を高めること等が明らかになった。このことは、航空機観測の結果とも符合する。

isoprene, α -pinene など植物起源炭化水素が、オゾン生成等に与えている影響を定量的に評価した。図 3 と図 4 の差が、biogenic-NMHC によるオゾン濃度の増加を表すが、濃尾平野、関東平野では地表および高度 500m で共に最大で 20ppb 程度の寄与である。

人為起源炭化水素、窒素酸化物排出量に対する日最高オゾン濃度の感度を推定した。濃尾平野では、反応によるオゾン生成に関して人為炭化水素が律速であり、これの削減がオゾン濃度の減少につながると推定された。窒素酸化物のみの削減は、オゾン濃度の増加につながる危険性がある。このことは、中部山岳での夜間のオゾンその他の濃度にも影響し、例えば、20%の NO_x のみの排出削減は、27 日午前 0 時の 1500m 面でのオゾンを最大 7ppb、硫酸エアロゾルを最大 0.8ppb 増加させると推定された。

参考文献

- Kitada, T., P. C. S. Lee, and H. Ueda, 1993: Numerical modeling of long range transport of acidic species in association with meso- β -convective cloud across the Japan Sea resulting in acid snow over coastal Japan. Atmos. Environ., Vol. 27A, pp.1061-1076.
- Kitada, T., K. Okamura, and S. Tanaka, 1998: Effects of topography and urbanization on local winds and thermal environment in nohbi plain, coastal region of central Japan, J. Appl. Meteor., Vol. 37, pp.1026-1046.
- Kitada, T., K. Okamura, H. Nakanishi, and H. Mori, 1999: Production and transport of ozone in local flows over central Japan -Comparison of numerical calculation with airborne observation-, Air Pollution Modeling and Its Application XIII, Plenum Press, New York, in press.
- 栗田秀実、植田洋匡, 1985: 傾度風が弱い場合の大気汚染物質の長距離輸送と熱的低気圧および総観気象の関係. 大気汚染学会誌, Vol. 20, pp. 251-260.
- 森博明、小川弘、北田敏廣, 1994: 濃尾平野における海陸風の特徴と広域海風の出現条件、天気、Vol.41, pp.379-385.
- Lloyd, A.C., R. Atkinson, F.W. Lurmann, and B. Nitta, 1983: Modeling potential ozone impacts from natural hydrocarbons - I. Development and testing of a chemical mechanism for the NO_x -air photooxidations of isoprene and α -pinene under ambient conditions. Atmos. Environ., Vol.17, pp.1931-1950.
- Lurmann, F.W., Lloyd, A.C., and R. Atkinson, 1986: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling. J. Geophys. Res., Vol.91, pp.10905.