

大気中の硫黄酸化物濃度場の推定を用いた降雨による除去過程解明の試み

A study on the scavenging process by rainfall using the estimation of the concentration of sulfur dioxide in the atmosphere

桑川 高徳¹

Takanori Kumekawa

藤野 誠¹

Makoto Fuzino

塩谷 哲司²

Tetsuhi Shioya

長谷部 正彦³

Masahiko Hasebe

ABSTRACT: There are many matters in the atmosphere. It is many ions in rainfall such as sulfate ion or nitric ion. These ions are dissolved in the drops of rain. Many matter are caught by raindrops in the cloud or the other. Therefore, it is thought that a pollutant is removed by rainfall. And it estimated that a pollutant is close relation with ion in raindrops.

In this paper, firstly, it is measured concentration of sulfur dioxide as one of pollutant matters in the atmosphere at ground surface in Utsunomiya. Next, it is estimated the distribution of sulfur dioxide concentration at the height in the atmosphere using LES(large Eddy Simulation) model. And lastly, by compared concentration of sulfate in the atmosphere and concentration of sulfate ion in rainfall, it is obtained the rate of washing. As a result, it is clear that it is able to estimate the scavenging of the concentration of sulfate with information of water quality in rainfall.

KEYWORD; Sulfur dioxide, LES model, A pollutant, Washout, Scavenging process

1 はじめに

酸性雨は大気中のSO_xやNO_xなどの酸性化物質が降雨に取り込まれることにより、降雨が酸性化するものである。降雨を酸性化させる原因物質の1つである二酸化硫黄は、栃木県内において多くが内陸性由来であることが推定されている⁽¹⁾。

酸性化物質が降雨に取り込まれる過程にはレインアウトやウオッシュアウトがあり、これらは雲の発生過程、気団、降雨の移動経路等に関係している⁽²⁾。また、大気浮遊物質が降雨に取り込まれ地表に到達することは、大気中における酸化物質が降雨によって除去される過程とも理解される。ウオッシュアウトの場合には、雲底下から地表までの雨滴に大気中の酸性化物質が取り込まれ、その結果、降雨により大気中の酸性化物質が除去されるものと推定される⁽³⁾⁽⁴⁾。これまでの観測結果から、栃木県内ではウオッシュアウトによる降雨が観測されており、特に県南地域においてはその傾向が強いことが示されている⁽⁵⁾。

この研究では、まず、実際の降雨における酸性化物質の降雨特性を検討し、その除去過程について明らかにする。次に、地上に設置された大気汚染物質観測結果を用い、この時の風速・気温・湿度等の気象条件から、LESモデルを用いて雲底までのSO₂の濃度場を推定する。推定された大気中の汚染物質濃度と観測された降雨中のイオン濃度との比較から、SO₂の除去過程を解明することとする。

¹ 栃木県立宇都宮工業高校土木科 Department of Civil Engineering, Utsunomiya Technical High School

² 株式会社ピーシー PC Co., Ltd.

³ 宇都宮大学大学院工学研究科 Faculty of Engineering, Utsunomiya University

2 観測地点及びSO₂濃度分布

図1に宇都宮の観測場所を示す。今回の研究では、宇都宮市をエリアとした。宇都宮市は東西12km、南北16kmで、地上大気観測地点(宇都宮市)が6ポイント設置されている。降雨の観測は、宇都宮工業高校及び宇都宮大学で1降雨ごとに採取し、硫酸イオン、硝酸イオン、ナトリウムイオン、カルシウムイオン等が分析された。降雨中の溶存イオンの分析は、採取した降雨をフィルターで濾過した後、イオンクロマトグラフにより分析した。

図2に宇都宮大学工学部屋上(1999年7月～11月)で観測した降雨の硫酸イオン濃度変化を示す。図2から、硫酸イオン濃度は平均で2.45ppmと平均的な降雨と比較して少ない⁽⁶⁾。

3 硫酸イオンの大気濃度場の推定

3.1 LESモデルについて

LES (Large Eddy Simulation) は実用上の大気乱流モデルとしては、直接シミュレーションに最も近い⁽⁷⁾⁽⁸⁾。LESでは計算格子の幅より小さいスケールの運動の影響をLES乱流モデルで記述し、計算格子の幅より大きいスケールの運動のみを直接に計算することによって、直接数値計算より粗い計算格子で乱流の数値解析を行うものである。

今回の計算は、ナビエ・ストークス方程式を用いた⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾⁽¹¹⁾。粘性項に比べ非線型慣性項の影響を無視するとすれば、ナビエ・ストークス方程式と連続の方程式は

$$\frac{Du}{Dt} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} \left[K_x \frac{\partial u}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[K_z \frac{\partial u}{\partial z} \right] \quad (1)$$

$$\frac{Dv}{Dt} = -\frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left[K_x \frac{\partial v}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[K_z \frac{\partial v}{\partial z} \right] - g \quad (2)$$

$$L = \text{div} u = 0 \quad (3)$$

である。ここで、 $u \cdot v$: 風速成分、 p : 圧力、 ρ : 気流密度、 $K_x \cdot K_z$: 運動量拡散係数、 g : 重力加速度。

式(1)、(2)及び連続の式(3)より圧力に関するポアソン形の方程式は

$$\nabla^2 p = \text{div} D_x + \text{div} D_z - \text{div}(u \cdot \nabla)u - \frac{\partial L}{\partial t} \quad (4)$$

である。ただし

$$D_x = \left[\frac{\partial}{\partial x} \left[K_x \frac{\partial u}{\partial x} \right], \frac{\partial}{\partial x} \left[K_x \frac{\partial v}{\partial x} \right] \right] \quad (5)$$

$$D_z = \left[\frac{\partial}{\partial z} \left[K_z \frac{\partial u}{\partial z} \right], \frac{\partial}{\partial z} \left[K_z \frac{\partial v}{\partial z} \right] \right] \quad (6)$$

ここで、 u は風速ベクトルである。

また、拡散係数は最もシンプルなものとして以下のように示す。

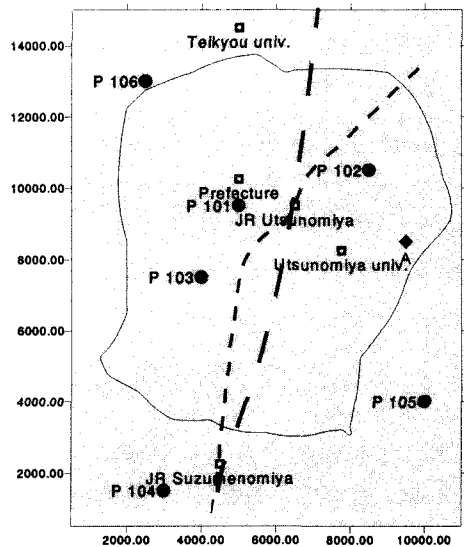


図1 宇都宮市における観測地点一覧
(黒丸100、101、102、104、105、106が大気汚染観測地点、Utsunomiya.univ.が降雨観測地点)

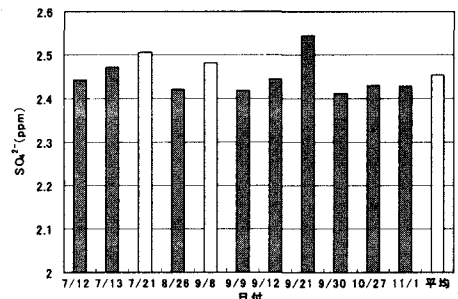


図2 降雨観測における硫酸イオン濃度

$$K_x = \lambda^2 \left[\frac{\partial u}{\partial z} \right] \quad (7)$$

熱、水蒸気、についての移流拡散型の方程式は

$$\frac{DT}{Dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left[K_{Tx} \frac{\partial T}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[K_{Tz} \frac{\partial T}{\partial z} \right] \quad (8)$$

$$\frac{DH}{Dt} = \frac{\partial}{\partial x} \left[K_{Hx} \frac{\partial H}{\partial x} \right] + \frac{\partial}{\partial z} \left[K_{Hz} \frac{\partial H}{\partial z} \right] \quad (9)$$

である。ここで、 T ：気流温度、 H ：気流の比湿、 $K_{Tx} \cdot K_{Tz}$ ：熱拡散係数、 $K_{Hx} \cdot K_{Hz}$ ：水蒸気拡散係数である。また、水蒸気・熱の拡散係数は運動量拡散係数と等しいとした。計算は、差分法を用い、計算スキームは神田らの手法を改良して用いた⁽⁷⁾。

3. 2 濃度拡散モデルについて

フィックの拡散方程式の最も簡単な場合(3次元、速度 u と拡散係数 α が定数)の解はロバート(Robert)により与えられた⁽⁹⁾⁽¹²⁾⁽¹³⁾。

連続的に点源から煙が放出される場合の濃度 $C(x, y, z)$ は

$$C(x, y, z) = \frac{C_0}{4\pi\alpha r} \exp \left[-\frac{u}{2\alpha} (r - x) \right] \quad (10)$$

となる。ここで C_0 ：点源から排出される煙の濃度、 α ：拡散係数、 $r = (x^2 + y^2 + z^2)^{1/2}$ である。ここで、 x 方向だけの拡散を考えると($y=z=0$)、式(10)は

$$C(x) = \frac{1}{4\pi\alpha x} C_0 \quad (11)$$

となり、いま風速 u は一定と仮定しているので点源から x だけ離れた位置での濃度束 N は

$$N = C(x)u = \frac{1}{4\pi\alpha x} C_0 u \quad (12)$$

となる。

3. 3 大気濃度場の推定結果

対象地域は宇都宮市中心地東西10km、南北15kmのエリアとした。気温、湿度等は観測ポイントでの気象データを用いた。

(1)7月21日午前11時

①晴天の日、最高日射量：900W/m² ②温度：29.6℃ ③湿度：0.71 ④アルベド：0.15

⑤地衡風：10m(一定) ⑥地表面の温度：14.6℃

(2)9月8日午前11時

①曇天の日、最高日射量：800W/m² ②温度：28.7℃ ③湿度：0.77 ④アルベド：0.15

⑤地衡風：10m(一定) ⑥地表面の温度：13.7℃

両日ともに13:00付近で降雨が始まった。

得られている気象条件が地表のみのため、今回の解析では、初期条件とし、温度は気温減率(0.6℃/100m)により求めた気温を、湿度は気温による影響を考慮し、高さ方向に3000mまでを解析対象とした。格子点は X, Y 方向が1kmメッシュで、高さ方向が30メッシュとした。また、計算は0.4秒ステップで3時間計算した。9月8日の観測結果と計算結果を図3、4に示す。図3では市内6箇所(宇都宮市中央公民館、泉が丘小学校、宮の原小学校、雀宮中学校、瑞穂野北小学校、細谷小学校)で得られたデータを元にした SO_x の推定分布図である。図3、4とも地表面における値である。

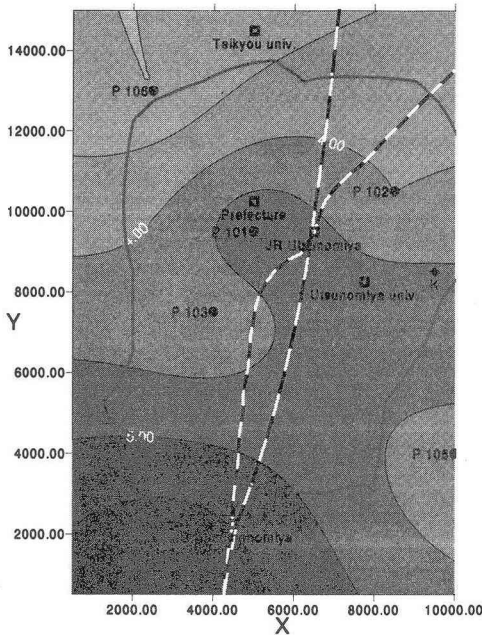


図3 9月8日13:00 SOx濃度分布
(観測結果)

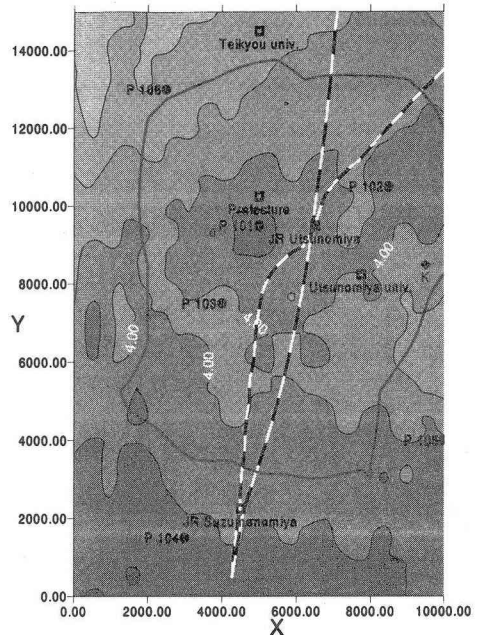


図4 9月8日13:00 SOx濃度分布
(計算結果)

4 降雨によるSOx除去過程について

4.1 Washout (雲底下洗浄), Rainout (雲中洗浄)について

雨滴や雪片は慣性衝突、さえぎり、拡散沈着等によりエアロゾルを補足して洗浄を行う。したがって、大気中の濃度が降雨により取り込まれる過程が降雨による洗浄過程と言い換えることができる。

ウォッシュアウトでは、地表から雲底までの物質が雨によって叩き落とされるため、降雨の初期に多くのイオンが含まれたために、溶存イオン濃度が高くなっていると言われている⁽⁴⁾。また、Rainoutは雲中において主に汚染物質が取り込まれることを示す。

図5に観測降雨例を示す。この降雨は、1997年8月に観測された雷雨である。電気伝導度ECが降雨初期に高く、降雨初期にイオン濃度が高いことが推定される。

湿性沈着効果を表す因子として洗浄係数 k 及び洗浄比 H がある⁽¹⁴⁾。

次の濃度束 N から酸性化物質の濃度分布を求める。X方向については

$$N = BC_0u \quad (13)$$

ここで、 C_0 は物質の濃度、 u はx方向の風速、 B は係数である。

一回の降水によりもたらされるある酸性降下物の湿性沈着量を D 、降水量を R 、雨水中の酸性降下物の濃度を C_w として湿性沈着量は次式より求まる。

$$D = C_w \cdot R \quad (14)$$

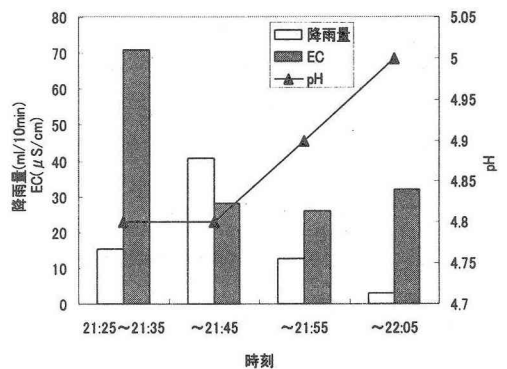


図5 雷雨製降雨の観測結果
(宇都宮工業高校屋上)

ここで、酸性降下物が雨水中に含まれるということは大気中の物質が除去・沈着される過程であるのでその沈着量は大気中の酸性降下物の濃度を C_a 、洗浄比を H として

$$D = C_a \cdot H \cdot R \quad (15)$$

で表される。ここで、洗浄比 H は

$$H = C_w / C_a \quad (16)$$

である。もし気中の C_a が高さによらず一定とすると洗浄係数 k は、

$$k = pH/h \quad (17)$$

となる。ここで、 p は降雨強度、 h は地表からの大気中の高さである。図6に取り込み過程の模式図を示す。

したがって、この洗浄比や洗浄係数を検討することは、降雨による除去過程を解明するためには重要なこととなる。これらのメカニズムはイオン相互の関係などが複雑であるため難しい問題であるが、これらの値を推定できれば今後の現象解明に有用なこととなると思われる。

4. 2 結果と考察

図7に実際の観測データから等濃度図を描いて外挿した結果を示す。 SO_x と共にイオンの SO_4^{2-} も洗浄されるが、今回観測データがなかったため、洗浄比の推定は以下の式を用いた⁽¹⁴⁾。

$$H = R \cdot 0.365$$

宇都宮大学工学部建設棟屋上で採取された雨水データから洗浄比を求め沈着量と共に表1に示す。大気濃度による洗浄比の推定は、大気濃度の平均値を用い、気柱の高さを100mと仮定した。また、濃度束の係数Bをいくつか与えたときの沈着量と測定値との比較を図8と図9に示す。観測結果と推定値とは異なっている。この原因として、移流による影響や解析対象エリア境界での整合性、メッシュ間隔が計算負荷を考慮したために1kmと広すぎるなどと考えられる。湿性沈着量については、

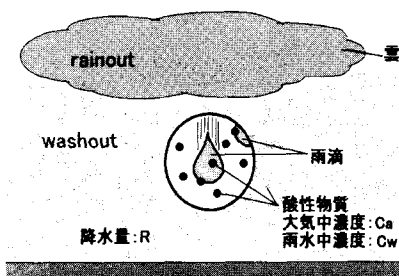


図6 酸性物質の降雨への取り込み過程の模式図

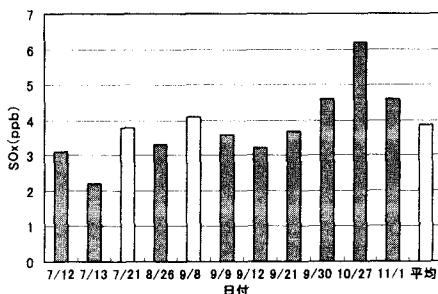


図7 外挿した大気中の SO_x 濃度

表1 洗浄比の推定

	7月21日	9月8日
降水濃度 (mg/l)	2.5	2.5
大気中 SO_2 濃度 (mg/m^3)	3.8	4.1
降水による洗浄比	0.41	0.34
大気濃度による洗浄比	0.08	0.11
降水高 (mm)	11.9	45.5

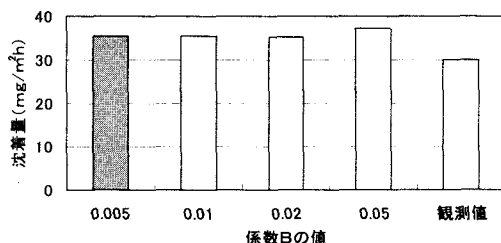


図8 湿性沈着量の推定（7月21日）

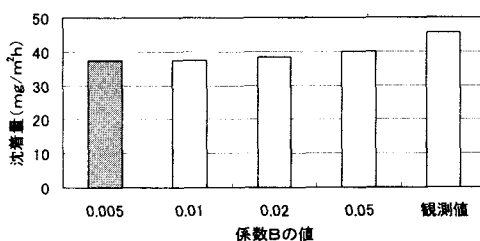


図9 湿性沈着量の推定（9月8日）

7月21日は $B=0.02$ 、9月8日は $B=0.05$ のとき近い値を示している。

4. 3 降雨による除去過程について

大気場の風速・温度・湿度等をシミュレーションにより求め、この条件下での SO_x 濃度を推定し、この結果、沈着量として硫酸イオン量を求めた。大気中では硫酸イオンは雲中で取り込まれる量と雲低下で取り込まれる過程があるが、特に、今回の計算では、地表から雲底までについて行った。大気濃度から求めた洗浄比は、降水から求めたものに比べ小さいが、これは、雲低下でのもので、雲中での除去については検討していない。また、沈着量に差がでているが、沈着量は降水量に比例しているためにこの効果の方が大きいのではないと思われる。

濃度束の係数 B はその地点での取り込み率を表すと推定される。この値が大きいと多くの SO_x が雨滴に取り込まれる可能性が高い。今回の計算では、9月8日の解析結果の方が7月21日に比べて大きかった。風速の初期値はほぼ同じであることから、こうした微妙な差の影響が大きくなるのか、日射等による影響によるものかその他に起因するものか今後さらに検討する必要があると思われる。したがって、雨滴による除去過程は、そう簡単ではないことが推測される。

5 まとめ

今回の研究は、大気濃度場を大気モデルにより推定し、その推定値から大気中の硫酸イオン濃度を求めた。その結果、観測された結果と推定されたイオン濃度における取り込みについて比較した。地表における濃度分布は形が異なり、推定法にまだ問題があることがわかった。しかし、洗浄比が推定でき、雨滴への取り込み量を求めることが可能であることが示された。このことは、今後酸性雨の原因物質の移動を追う際に役立つと考えられる。

参考文献

- (1) 大森智史、稲村康明、藤野誠、桑川高德：栃木県内における酸性雨降雨の地域特性と起源の推定について、土木学会関東支部栃木会発表要旨集、pp13-22、2000.2
- (2) 北田敏廣：酸性降水の輸送・反応・沈着モデル、気象研究ノート 第182号、日本気象学会、1994
- (3) 福崎紀夫・大泉毅：湿性沈着の降水依存性からみた除去過程、環境科学会誌、pp425-430、1995
- (4) 堀大才・山口康予：概論、酸性雨－複合作用と生態系に与える影響－、「酸性雨」編集委員会、ゴルフアの緑化促進協力会編、博友社、1996
- (5) 桑川高德・石村貴広・藤野誠：酸性降下物の降雨による除去過程について、水文・水資源研究発表会要旨集、pp220-221、2000.8
- (6) 多賀光彦・那須淑子：地球の化学と環境（第2版）、三共出版、1998.3
- (7) 神田学・日野幹雄：大気－土壌系の相互作用に着目した対流性雲の発生・発達に関する3次元LESモデルによる検討、水工学論文集 第35巻 1991
- (8) 林敏夫・谷口信行・戴毅：乱流モデル(Ⅲ) Large Eddy Simulation, 乱流解析第4章、数値流体力学編集委員会編、東京大学出版会、1995
- (9) 日野幹雄：流体力学、朝倉書店、1992
- (10) 松梨順三郎：環境流体輸送、日刊工業新聞社、1991
- (11) 平岡正勝・田中幹也：移動現象論、朝倉書店 1996
- (12) 中村育雄：乱流現象、朝倉書店、1992
- (13) 佐藤浩：乱流、共立出版、1982
- (14) 大喜多敏一：酸性降下物の発生源と酸性雨の発生メカニズム、新版酸性雨 第2章、博友社、1996