



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	数値シミュレーションによる局地循環と高濃度大気汚染の解析
Author(s)	鵜野, 伊津志; 若松, 伸司
Description	第1回衛生工学シンポジウム (平成5年11月17日 (水) -18日 (木) 北海道大学学術交流会館) . 2 モデル解析 . 2-7
Citation	衛生工学シンポジウム論文集, 1, 65-69
Issue Date	1993-11-01
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/7423
Type	departmental bulletin paper
File Information	1-2-7_p65-69.pdf



2-7

数値シミュレーションによる局地循環と高濃度大気汚染の解析

鶴野伊津志、若松伸司 (環境庁国立環境研究所)

1. 緒言

窒素酸化物による大気汚染が依然として重要な環境問題となっている。窒素酸化物による高濃度汚染は冬期に多く出現し、冬期に典型的な気象条件や地域的な局地気象と大気汚染物質濃度の挙動を同時に解析することが重要である。都市域における冬期の NO₂ 汚染の特徴は、鶴野ら¹⁻³、木村・相川⁴)により明かにされつつある。これらの結果、都市大気中の NO₂ 濃度は発生源からの一次排出の寄与よりも大気中の反応による NO から NO₂ の酸化の効果が支配的であることが判明しつつある。

一方、数値モデルによる局地循環と大気汚染濃度の関係の研究は、夏期の光化学オキシダントがその中心である⁵⁻⁷)。しかし、冬期に対するシミュレーションは十分に行われていない。このため、NO₂ 濃度の生成・維持機構、環境濃度削減のための発生源規制の方向性についての十分な研究はなされていない。本研究では、局地気象数値モデルと光化学反応を含む汚染質の輸送シミュレーションモデルを2段階に組み合わせて、冬期の高濃度汚染の基本的な動態解明を行う。

2. 数値モデルの構成と計算条件

本研究では、コロラド州立大学メソスケールモデル (Colorado State University Meso-scale Model; CSUMM) を用いて気流の計算を行った。モデルの詳細は Ulrickson and Mass⁸)と Kessler⁹)に詳しい。CSUMMによる計算結果をもとに、汚染物質の輸送・反応の計算を行う。汚染物質の保存式は、

$$\frac{DC_i}{Dt} = \left(\frac{\bar{s}}{\bar{s} - z_g} \right)^2 \frac{\partial}{\partial z_*} \left(K_h \frac{\partial C_i}{\partial z_*} \right) + R_i + S_i \quad (1)$$

ここで、 C_i は成分濃度 ($i=1, \dots, N$; N は成分数)、 R_i は反応変質項、 S_i は発生活滅項である (\bar{s} はモデルの上端の高さ、 z_g は標高、 K_h は乱流拡散係数)。化学反応モデルは最新のモデルである CBM-4¹⁰)を利用した。本報では、冬期の典型的な気象条件のもとでの高濃度 NO₂ 汚染のシミュレーションを主な目的としており、計算は、左右対称の2次元の簡易地形を用いた (即ち、東側の海岸部に 30 km の都市域を置き、その背後に比較的低い山地を設定した)。図1には都市域周辺の地形を示す。

粗度の地域分布として陸上は $z_0 = 15$ cm で、海水面気温は 286 K で一定とした。初期の風速の鉛直プロファイルは無風とし、温位の鉛直プロファイルは $\Theta = \Theta_0 + 0.004 z$ (m) ($\Theta_0 = 283$ K) として、相対湿度 65% に対応する比湿を与えた。初期濃度はバックグラウンド濃度を持つ O₃ (=35 ppb) 以外はゼロとした。窒素酸化物と炭化水素の発生源は東京中心部の平均的な排出強度を用い、発生源の時間変化と高度分布もデータ解析から与えた。発生源強度は想定した都市域 ($x=300 \sim 330$ km) に均一に与えた。計算は 12月1日から 3.5日行い、3日目以降の結果を解析の対象とした。

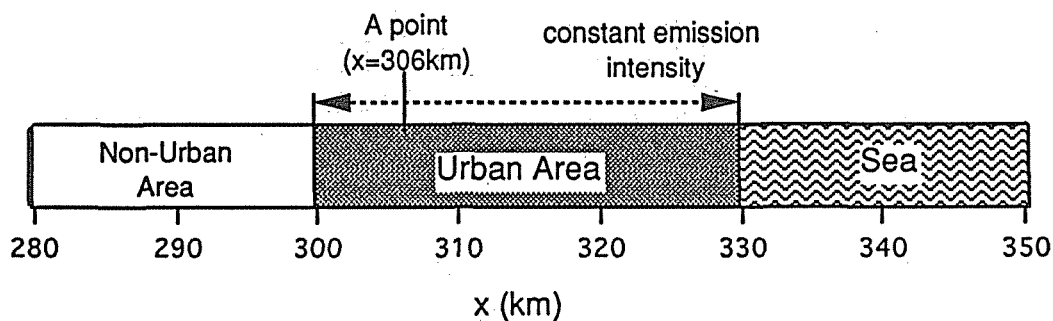


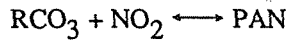
図1 数値計算に用いた都市域周辺の配置 (非都市域、都市域と発生源、海域)
計算領域 $x = 0 \sim 450$ km ($\Delta x = 3$ km) で $x = 225$ km に標高 500 m の山を置いている。

3. 結果

図2には、A地点（図1参照）での NO_2 , O_3 , PAN (peroxyacetylnitrate), 温位 θ の3日目の時空間変化を示す。A地点は海岸線から24 kmの所であり、図2（d）に示したように深夜から朝にかけては陸風・斜面下降流の影響が、夕刻には海風（左向きのベクトル）のそのれが大きい。図中には混合層高度 Z_i （安定層高度）の時間変化も示した。これらから、

- 1) NO_2 の日中の10～18時の変化は $\text{NO}_2 = 30 \sim 40$ ppb レベルが混合層内部とよく対応しており、同時間帯の混合層下部では NO_2 の鉛直勾配はほぼ存在しない。 NO_2 の最高濃度は上空で18時には60 ppbに達し、この濃度域は夜間安定層上部に維持される。濃度は3日目の0時と24時を比較すると24時の方が高濃度化しており、海陸風交替の中で汚染質が蓄積していく、
- 2) NO_2 の10 ppbの範囲は上空1200 mにまで達している。従って、冬期でも乱流拡散による上空まで高濃度化する、
- 3) O_3 濃度はバックグラウンド濃度とした35 ppbを上回る光化学反応による生成は見られない。最高レベルとしては、地上で23 ppbであった。また、18時から24時では日中の混合層中のゼロ濃度域が上空に残っている、

ことが判る。一方、化学反応の生成物であるPANは、日中には4～6 ppbに達する。PANは、



の反応で生成し、ここで、 RCO_3 はperoxyacetyl radicalである。この反応は温度に依存し、低温では平衡は右側にシフトし日中と夜間の気温の差により、PANは NO_2 と RCO_3 の一時的なreservoirとして作用することがある。しかし、夜間のPANの濃度は2 ppb程度であり、この濃度レベルでは NO_2

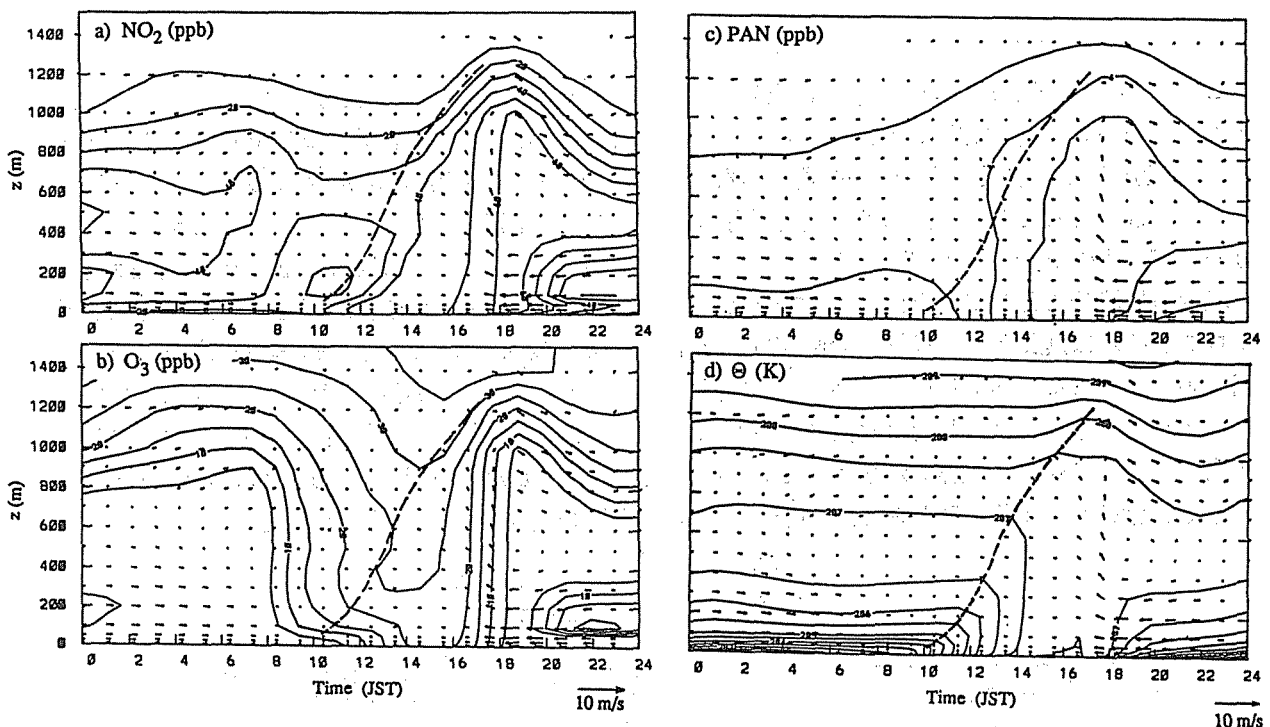


図2 A地点での汚染物質濃度 (NO_2 , O_3 , PAN) と温位の時間空間変化(計算開始3日目)。図中の破線は混合層高度の変化を示し、左向きのベクトルは海風を意味する（上昇流 w は風速の水平スケールの30倍でプロットされている）。

の環境濃度に対する寄与はそれ程大きくはない（詳細な収支に対する評価は4で示す）。一方、Los Angelesでの午後遅くと早朝のPANのピークは5~10 ppbであるから¹¹⁾、ここでの冬期の計算結果はそれに匹敵するものである。

4. NO₂濃度の時間変化（収支）の解析

NO₂の濃度変化の特異性を正確に捕らえるには、その移流・拡散・発生源の寄与と化学反応による寄与を定量的に解析する必要がある。NO₂濃度の時間変化は、

$$\underbrace{\frac{\partial[NO_2]}{\partial t}}_{\text{Overall}} = \underbrace{-u \frac{\partial[NO_2]}{\partial x}}_{\text{ADVX}} - \underbrace{w_* \frac{\partial[NO_2]}{\partial z_*}}_{\text{ADVZ}} + \underbrace{\left(\frac{\bar{s}}{\bar{s} - z_g}\right)^2 \frac{\partial}{\partial z_*} \left(K_z \frac{\partial[NO_2]}{\partial z_*} \right)}_{\text{DIFF(+DEPO)}} + \underbrace{S_{NO_2}}_{\text{SOURCE}} + \underbrace{R_{NO_2}}_{\text{REACT}} \quad (2)$$

と書ける。ここで、右辺のADVX, ADVZはそれぞれx、z方向の移流による変化、DIFF(+DEPO)は鉛直拡散（ただし、鉛直第1層は乾性沈着を含む）による変化、SOURCEは発生源による変化、REACTは化学反応による変化を示す。また、左辺のOverallは全ての総和を意味し、これらはいずれもppb/minの単位を持つ。一方、様々な化学反応による変化の和であるREACTは、

$$R_{NO_2} = -k_1[NO_2] + k_3[NO][O_3] + R_{[HO_2]} + R_{[RO_2]} + R_{[RCO_3]} + R_{[PAN]} + R_{[NO_3]} + R_{[HNO_3]} + R_{[Others]} \quad (3)$$

により構成される。ここで、右辺第1項はNO₂の光分解による減少率、第2項はNO + O₃ → NO₂の生成率である。また、これらの2項の和(=Net-Photo),

$$\text{Net-Photo} = -k_1[NO_2] + k_3[NO][O_3] \quad (4)$$

は光解離サイクルのネットの収支となる。式(3)の右辺第3項以降のR_[A]は化学成分Aとの反応によるNO₂の生成・減少率を示し、最後のOthersはそれら以外の反応によるものを意味する。ここで、RO₂, RCO₃は過酸化ラジカルで、それぞれ、peroxyalkyl radicals, peroxyacetyl radicals 意味している。

図3には、A地点のz = 10 mでの上式の各項の時間変化を示す。まず、図3(a)は気象要素と発生源による変化を示している。図においてMet.-totalはADVX+ADVZ+DIFF+SOURCEを示す。この図より、SOURCEは6時頃から増加し、8~18時までにはほぼ一定の+0.2 ppb/minを取る。おおまかに言ってADVXとADVZはその変化が逆でオーダー的にバランスしている。一方、DIFFは0~6時に-0.05 ppb/minで小さな値を取るが、10~16時は混合層が発達し大気が不安定となることから、-0.45 ppb/min程度の大きな値をとる。これらの和として、Met.-totalは0~8時頃まではゼロに近く、10~18時半までは約-0.2 ppb/minのオーダーをとる。Met.-totalは7時前後に正の値を取るが、それ以外は全ての時間で負の値を取る。従って、化学反応がない場合には、NO₂濃度の増加はなく、特に日中10~18時には発生源を含めても拡散のために-0.2 ppb/minの速さで減少することがわかる。

図3(b)には、Met.-Total、REACT、OverallとNO₂濃度の時間変化を示す。REACT項は常に正の値を取り、特に10時半と16時半にピークをもつ二山型の変化を示す。このピークはMet.-totalによる減少率を上回り結果としてOverallの変化は同様な二山型となる。その形状は8~13時と15~17時に大きな山を取る。このOverallの変化は図中に示したNO₂の時間変化(特にNO₂濃度の上昇)とよく合致している。また、日中のNO₂濃度が定常状態を示すのは、Met.-totalとREACTが釣り合うためである。

図3(c)には、REACTの各項の時間変化を示す。図中には、光解離サイクルのネットの収支となるNet-Photo(= -k₁[NO₂] + k₃[NO][O₃])も同時にプロットしてある。図より、午前中はR_[HO₂](即ち、HO₂+NO → NO₂)によるNO₂の生成が支配的であり、また、13時半頃まではNO₂の光分解の方が大きいためNet-Photoは負を示す。一方、14時以降は冬期であるため日射量が減少しNO₂の光分

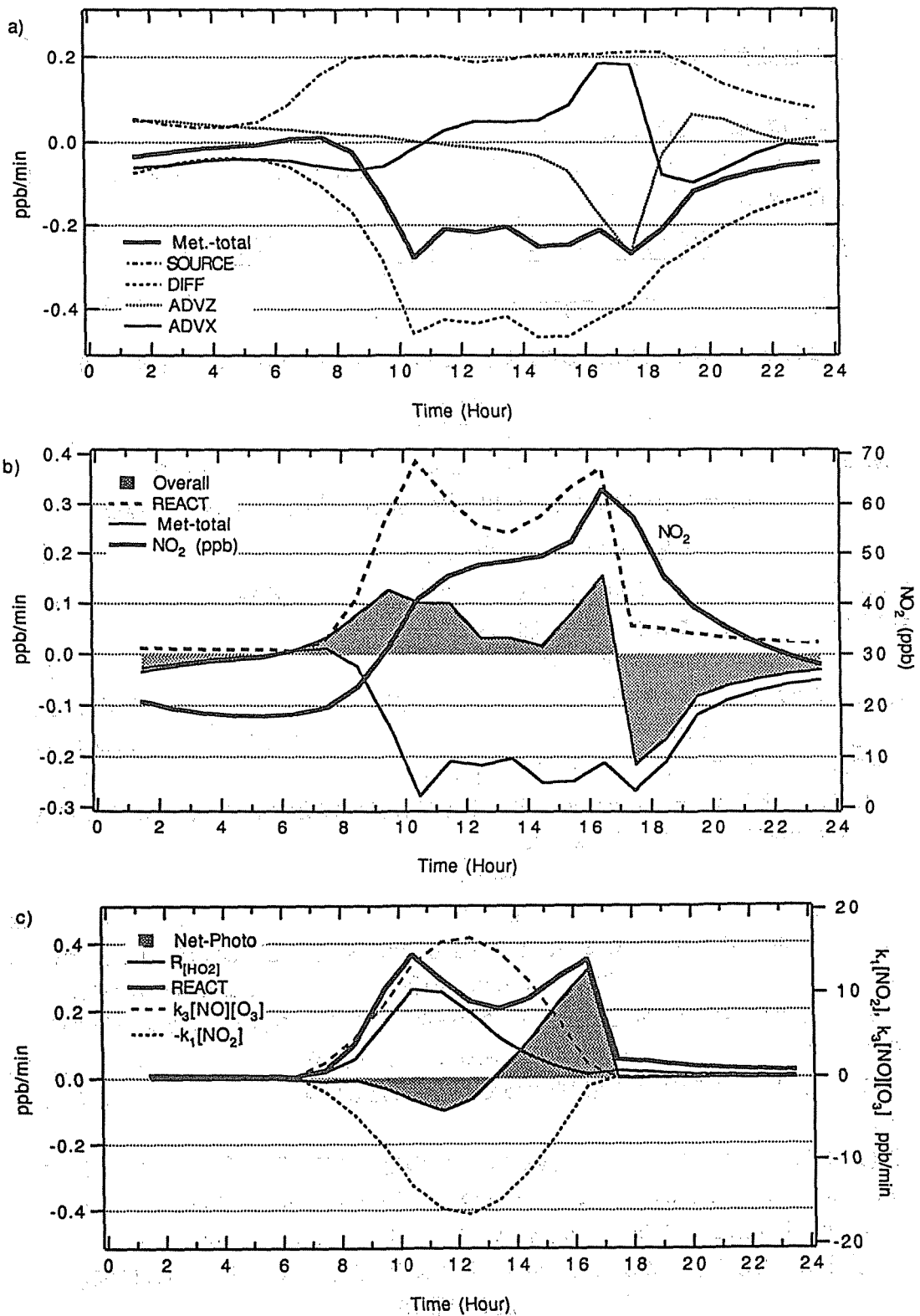


図3 A地点の $z=10\text{ m}$ での NO_2 の収支式(2)の各項の時間変化。(a)気象要素の変化、(b)気象要素の和、反応項、 NO_2 濃度、(c)式(2)の反応項中の主要な成分の変化

解も少なくなるため、 HO_2 濃度は急激に減少し、 $\text{NO} + \text{O}_3 \rightarrow \text{NO}_2$ の反応が支配的になる。特に、16 時前後をピークとする NO_2 濃度の上昇はほぼ全てが $\text{NO} + \text{O}_3$ の反応により生じている。

5. まとめ

冬期の高濃度 NO_2 汚染をメソスケール局地循環モデルと光化学反応を含む移流・拡散モデルを用いた数値シミュレーションにより解析した。数値モデルは、コロラド州立大学メソスケールモデル (CSUMM) と、光化学反応スキームに CBM-4 を用い独自に開発したオイラー系のモデルである。これらのモデルを用いて、2次元の地形を用いた冬期の海陸風の条件下での冬期の気流をシミュレートし、さらに、東京都心部での平均的な発生源強度を与えた移流・拡散計算を行い、そこでの汚染物質の基本的な動態を示した。更に、 NO_2 濃度の収支式における気象要素と反応項の定量的な評価を行い、冬季の NO_2 汚染の特徴を議論し、冬季であっても、海陸風等の局地循環と光化学反応プロセスが重要な因子として作用していることを示した。

文 献

- 1) 鵜野伊津志・植田洋匡・若松伸司：夜間の都市域における NO_2 の高濃度発現メカニズム。大気汚染学会誌、24、130-143 (1989)
- 2) 鵜野伊津志・若松伸司：冬期の高濃度 NO_2 汚染の光化学ボックスモデルによる解析、大気汚染学会誌、27、246-257 (1992)
- 3) 鵜野伊津志・若松伸司：冬期の高濃度 NO_2 汚染の数値シミュレーションによる解析、大気汚染学会誌 (投稿中)
- 4) 木村富士男・相川光明：寒候期の大都市域における NO_2 の生成要因。天気、38、315-323 (1991)
- 5) Kimura, F.: A numerical simulation of local winds and photochemical air pollution (I): Two-dimensional land and sea breeze, *J. Meteorol. Soc. Japan*, 61, 862-873 (1983)
- 6) Wakamatsu, S., I. Uno and K.L. Schere: Application of a three-dimensional photochemical smog formation model to the Tokyo metropolitan area. *Air Pollution Modeling and its Application VI* (ed. H. van Dop), 259-270, Plenum Pub. Co. (1988).
- 7) Kitada, T. and E. Kitagawa: Numerical analysis of the role of sea breeze fronts on air quality in coastal and inland polluted area, *Atmos. Environ.*, 24A, 1545-1559 (1990)
- 8) Ulrickson, B.L. and Mass, C.F.: Numerical investigation of mesoscale circulations over the Los Angeles basin. Part I A verification study, *Mon. Wea. Rev.*, 118, 2138-2161. (1990)
- 9) Kessler, R.C.: User's guide System's Applications Inc. version of the Colorado State University Mesoscale Model (version 2.0), System Application Inc. (1989)
- 10) Gery, M.W., Whitten, G.Z., Killus, J.P. and Dodge, M.C.: A photochemical kinetics mechanism for urban and regional scale computer modeling. *J. Geophysical Res.*, 94, 12925-12956. (1989)
- 11) Seinfeld, J.H.: Urban air pollution: state of the science, *Science*, 243, 745-752. (1989)