

<地域汚染>

四日市地域における光化学反応拡散シミュレーション

—気象分類と風系推定モデル*

田村 穂積**・新家 淳治**・内藤 良三**
高塚 美和**・前川 徳昭**

1. はじめに

四日市地域における硫黄酸化物及び窒素酸化物の環境濃度は総量規制の実施と諸対策の推進により環境基準を達成しているが、光化学オキシダントについては、依然として各観測地点とも環境基準を満足していない現状にあり¹⁾、当地域の光化学オキシダントに係る環境基準達成は環境政策のうえでも重要課題となっている。

四日市地域を中心とした光化学オキシダントの生成と動態は地域の気象条件、一次汚染質及び二次汚染質等の諸因子が複雑に作用しているため十分に解明されておらず効果的なオキシダント低減対策の方途等を含めた対策が急がれている。

本研究は四日市地域の気象条件、NO_x および HC 等の一次汚染質排出量調査および O_x、NO_x、HC 等の環境濃度の実態調査結果を基に実用的な光化学モデルを開発した。

光化学モデルは次の3つのサブモデルから達成されている。

- ① O₃、NO、NO₂、HC 等の主要反応物質および代表的な生成物質から成る反応モデル
- ② 三次元拡散モデル
- ③ 地上風、上層風等の気象条件から O_x 高濃度型、中濃度型、低濃度型の3つの気象タイプに分類した風系推定モデル

この光化学モデルを用いて、四日市地域に適用し対象地域内のオキシダント濃度を予測したところ実測値と比較して満足し得る再現性が得られたので、上記サブモデルの1つである気象分類と風系推定モデルを中心として以下に報告する。

2. 計算対象

2・1 対象地域

計算対象地域は、四日市市を中心として伊勢湾から鈴鹿山脈に至る東西30 km、鈴鹿市から員弁郡に至る南北44 kmの図1に示す三重県北勢地域（以下四日市地域と呼ぶ）とした。この領域の上空1,500 mまでの空間を三次元の格子により合計480個の単位ボックスに分割して地形データとした。東西方向は $\Delta x = 3.0$ km、南北方向は $\Delta y = 3.7$ km の長方形に分割したが、鉛直方向は、下層は細かく上層は粗く (Δz : 0~200 m, 200~600 m, 600~1,000 m, 1,000~1,500 m) 4層に分割した(図2)。

2・2 対象期間

対象期間は、オキシダント高濃度の出現しやすい時期を中心とした4月から8月(昭和56年)の5カ月間とした。

3. 風系推定モデル

非定常モデルにより大気拡散シミュレーションを実施する場合には、各ボックス毎の風向・風速データが必要である。しかし、実際の測定局は全ボックスに設置されているわけではなく、それらの風向・風速の測定値より何らかの方法で全ボックスの風向・風速(地域の風系)を推定せざるを得ない。

そこで、水平風 (u : x 方向の風速, v : y 方向の風速) については、いくつかの測定局の実測値から距離重み関数法を用いて推定する。また、鉛直風 (w : z 方向の風速) については、連続方程式を満足するように設定した。

3・1 測定局の存在するボックスの水平風

ボックス内に測定局が存在する場合には、気象タイプ別時刻別の最多出現風向時のデータをそのボックスの代表風とする。風向・風速ベクトルを次式により x 方向と y 方向の成分 (u , v) に分解し、ボックス内に複数の測定局が存在する場合には (u , v) の平均値を求めた。

* Simulation of Photochemical Reaction in Yokkaichi Area and Diffusion—Meterological Class and Model of Estimating Wind—

** Hozumi TAMURA, Junji NIINOMI, Ryozeu NAITOH, Yoshikazu TAKATSUKA, Tokuaki MAEGAWA (三重県環境科学センター) Mie Environmental Science Institute

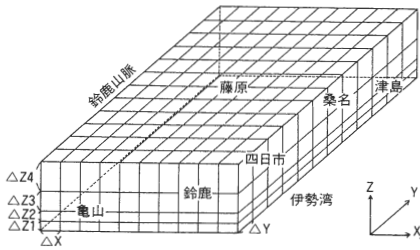


図2 計算対象範囲の格子網

$$u = -[wv] \sin \theta$$

$$v = -[wv] \cos \theta \dots \dots \dots (1)$$

ここで u : x 方向の風速 (m/s)
 v : y 方向の風速 (m/s)
 wv : 測定風速 (m/s)
 θ : 北を0とした時計回りの角度

3・2 距離関数法による水平風の補間

測定局の存在しないボックスについては、次式の距離関数法により水平風を推定した¹⁰⁾。

$$f(x, y) = \sum_{k=1}^n f_k w(r_k) / \sum_{k=1}^n w(r_k) \dots \dots \dots (2)$$

ここで n : 測定局数
 f_k : k 局の風速
 $w(r_k)$: 重み関数 ($1/r_k^2$ とする)
 $f(x, y)$: 水平風の推定値

3・3 連続方程式による鉛直風の推定

鉛直風については、すでに求まっている水平風を使って次の連続方程式を満すように設定する。

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial z} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \dots \dots \dots (3)$$

上式を中央差分法により差分化し、初期条件として閉境界(陸地・山地など)に接する最下層下面の鉛直風 $w_{i,j,k-1/2} = 0$ として順次上層の鉛直風を求めた。

単位ボックス (i, j, k) に記憶させておく風向・風速データは図3に示すとおり x 方向は左側の壁面の風速

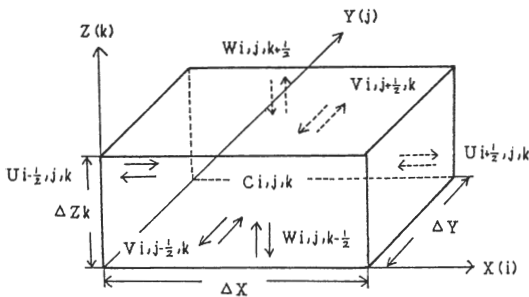


図3 ボックスの変数構成図(立体図)
 (実線矢印が (i, j, k) ボックスに記憶されている風速)

$u_{i-1/2,j,k}$, y 方向は手前の壁面の風速 $v_{i,j-1/2,k}$, また z 方向はボックス下面での風速 $w_{i,j,k-1/2}$ とする。

4. 気象分類

4・1 地上風測定局

地上風向・風速データは、図1に示すとおり四日市地域を中心としたテレメータ測定局11局の測定データを使用した。

4・2 上層風測定局

上層風は、表1に示すとおり対象地域内では四日市測候所、御在所山頂、周辺地域では潮岬气象台、浜松气象台で観測されている。これらの観測値の昭和56年6月から8月の全データの揃っている9時のデータについて各測定局の相関係数を算出した結果(表2)、四日市上空の風向・風速はいずれの測定局とも高い相関関係が認められ、御在所山頂、浜松上空、潮岬上空の順に相関が高かった。

この結果、対象地域の上層風として御在所山頂での測定値を採用した。

4・3 気象タイプ

日射量などの気象条件と地上風・上層風の動態から、図4に示すフローに従ってOx高濃度の出現しやすい気象タイプ(1)、中濃度型(タイプ(2))および低濃度型(タイプ(3))の3つの気象タイプに分類した。

Ox上昇の基本条件は、海陸風の交代があること、降雨がなく、7時から15時までの積算日射量が200 cal/cm²以上であることとし、この条件を1つでも満たない場合は、低濃度型に分類した。また、上層風が日中陸風系かどうかで、高濃度型と中濃度型に分類した。

上記の方法により気象分類した結果、対象地域内の測定局でOx濃度80 ppb以上が出現した日は、Ox高濃度型気象タイプで76%、Ox中濃度型56%、Ox低濃度型3%であった。

表1 上層風の測定局

地点	測定機器	測定項目	測定時刻
四日市	パイバル	風向風速	9時
御在所山頂	風向風速計	〃	毎時
潮岬	ゾンデ	風向風速・温度湿度	3時, 9時 15時, 21時
浜松	〃	〃	9時, 21時

表2 測定局間の上層風相関係数

	四日市	御在所	潮岬	浜松
四日市(1000 m)	1	0.901	0.809	0.843
御在所(1200 m)	0.901	1	0.794	0.788
潮岬(900 mb)	0.809	0.794	1	0.882
浜松(900 mb)	0.843	0.788	0.882	1

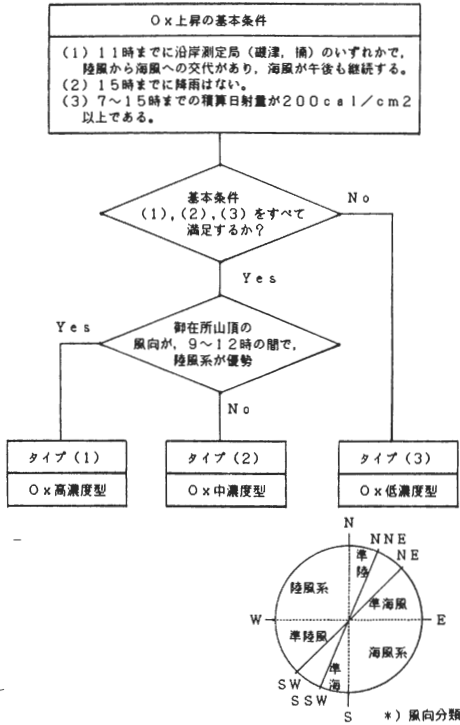


図4 気象分類フローチャート

4・3・1 Ox高濃度型気象タイプ(1)

夜間から早朝までは全域(上層風, 下層風ともに)NW系の陸風が吹いている状態が続き, 8時に南部沿岸部(楠・鈴鹿方面)から海風が侵入し始める。この後, 時計回りに海風が内陸部まで侵入し, 日中の下層風は全域海風系の風となる。16時頃には北部山間部(員弁郡)から陸風が変わり始める。20時になると海岸部まで陸風が侵入して伊勢湾上の取東域を除いて全域陸風となる(図5)。気象タイプ(1)の地上平均風は2.0m/sであり, 3つの気象タイプ中最も風速が弱い。

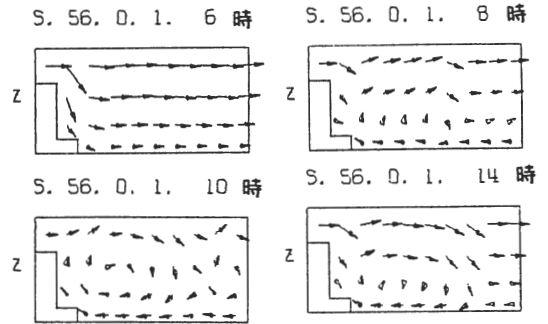


図6 風向風速断面図(気象タイプ1)
(横軸: 御在所山—北高—川越)

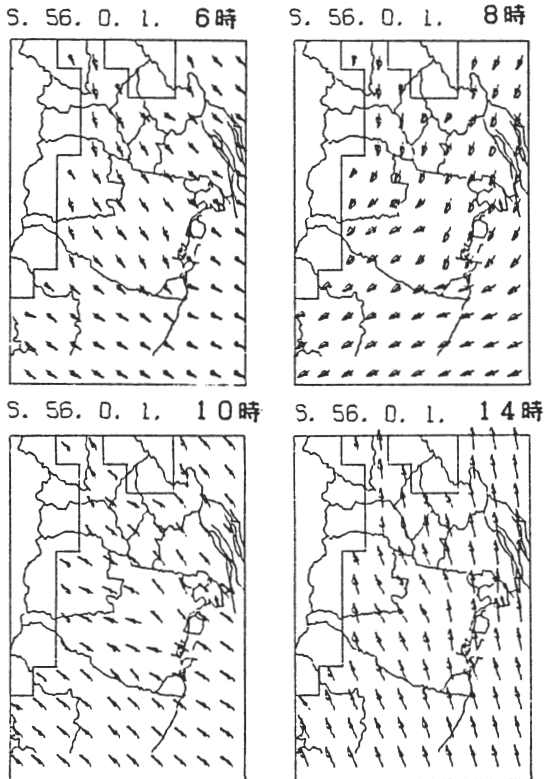


図5 第1層風向風速図(気象タイプ1)

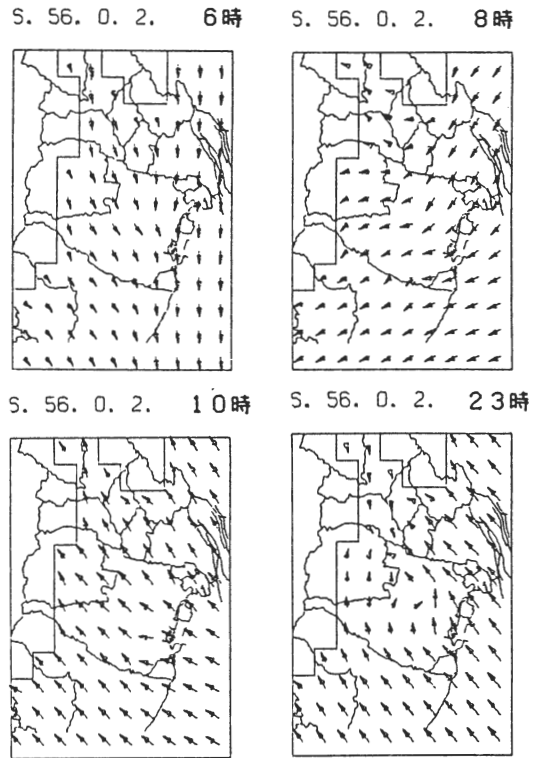


図7 第1層風向風速図(気象タイプ2)

しかし、海拔1,200 mの御在所山頂の上層風は、終日NW~NNWの強い陸風(平均風速6.5 m/s)が吹いている状態が続いている。このため日中下層に侵入した海風が鈴鹿山脈で上層の反流にのり、伊勢湾上の下降流により再び下層にもどってくる閉鎖系の循環流が起こる(図6)。このため汚染質のリサイクル現象が生じ、混合層高度も下層に限定され高濃度の生じやすい気象タイプといえる¹⁵⁾。

4・3・2 O_x 中濃度型気象タイプ(2)

気象タイプ(1)と大きく異なる点は、上層風が終日海風

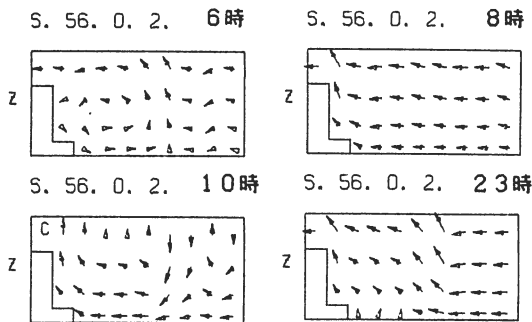


図8 風向風速断面図(気象タイプ2)
(横軸:御在所山—北高一川越)

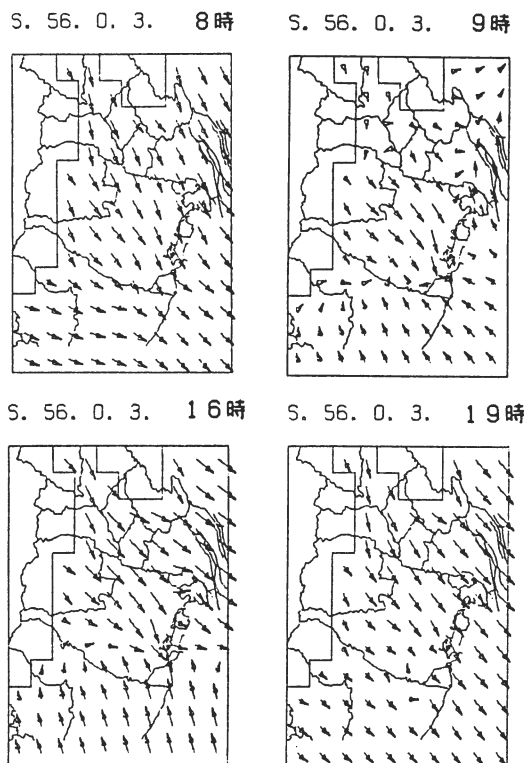


図9 第1層風向風速図(気象タイプ3)

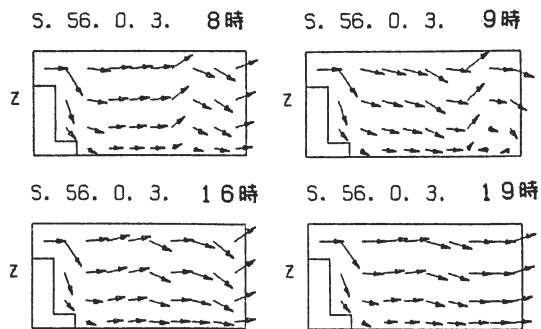


図10 風向風速断面図(気象タイプ3)
(横軸:御在所山—北高一川越)

系の弱い風(平均風速2.6 m/s)が吹き続けるため、下層風が概ね海風系の風が優勢であり、夜間陸風が侵入するものの侵入時間・範囲ともに少ない(図7)。また、下層風の平均風速は2.5 m/sであり気象タイプ(1)よりもやや強い。

したがって、海風侵入時には、下層風・上層風ともに海風系であるため、汚染質は鈴鹿山脈を越えて拡散されるものと思われ、より大きなスケールでの混合拡散が起こる(図8)。

4・3・3 O_x 低濃度型気象タイプ(3)

上層風は終日NNWの強い陸風系の風が吹き、平均風速12.1 m/sで気象3タイプ中最も強い。このため地上では9時に沿岸部の一部に海風が侵入しかけるが内陸部に達することができず、全般的には上層・下層とも終日陸風系の強い風(地上平均風速は3.2 m/s)が吹き続ける(図9~10)。このため濃度の上昇しにくい気象タイプである。

これら3つの気象タイプのモデル図を図11に示す。

4・4 気象タイプ別日射量

気象タイプ別に日射量(実測値)の日変動の平均値を算出したところ、いずれも12時から13時頃にピークをもつ正規分布型の変動を示した(図12)。気象タイプ(1)>(2)>(3)の順に日射量が多く、ピーク時の日射量は、各々53.8, 52.0, 41.6 cal/cm²・hであった。この日射量変動のパターンは、反応モデルのNO₂光分解速度定数推定のための基礎データとした。

4・5 気象タイプ別環境濃度

気象タイプ別測定項目別の日変動パターンを、沿岸部(磯津)・市内部(四商)・山間部(大安)の測定局について図13~図17に示す(ただし、NMHCについては磯津、大安局では測定されていないので近接する測定局楠、北高のデータを図示した)。

ピーク濃度、日平均濃度を比較すると、気象タイプ(1)>(2)>(3)の順に濃度が高くなる傾向がみられ、気象分類

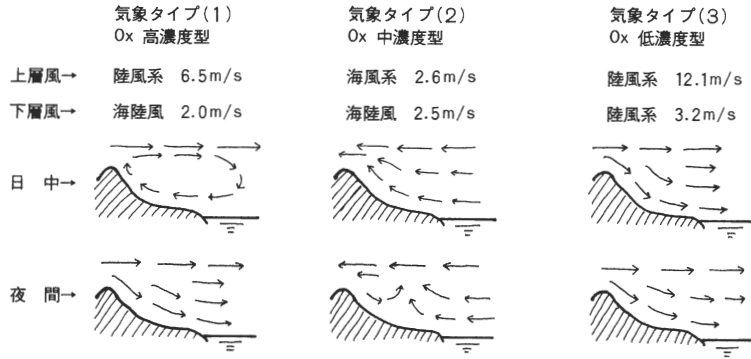


図11 気象分類モデル

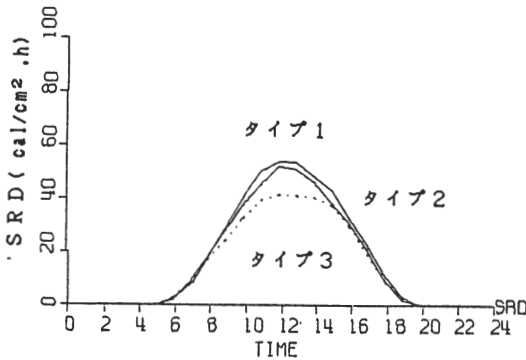


図12 気象タイプ別日射量時刻変動

の妥当性が認められた。

4・6 光化学オキシダント予報発令日の事例

昭和56年5月9日に四日市地域に光化学スモッグ予報が発令された。そこでその日の事例について若干の解析を行ったので以下に述べる。

4・6・1 天気概況

前日(5月8日)の天気は、寒気が東へ抜け前々日の雨天から一転して陽気の良い夏日となった。

5月9日も南高型の高圧配置で昨日来の陽気が続き、日中は薄曇であったものの最高気温は25℃に達した。

4・6・2 気象タイプ

5月9日の気象条件は、Ox 高濃度気象タイプに分類され、上層風は終日N~Wの風で5~10 m/sの強い風が吹いていた。そのため日中、海風は下層に入り込んだ状態が続いた。

4・6・3 環境濃度

5月7日から5月9日までのOx, NOx, NMHC濃度の時刻変動を図18に示した。Ox濃度は日ごとに高くなり、高濃度型気象タイプが2日続いた5月9日のOx濃度は100 ppbを越える高濃度が出現し、はっきりとした一山型のOx濃度変動を示した。このとき、前日の夜間から早朝にかけてNMHC, NOxの濃度が高くなる特

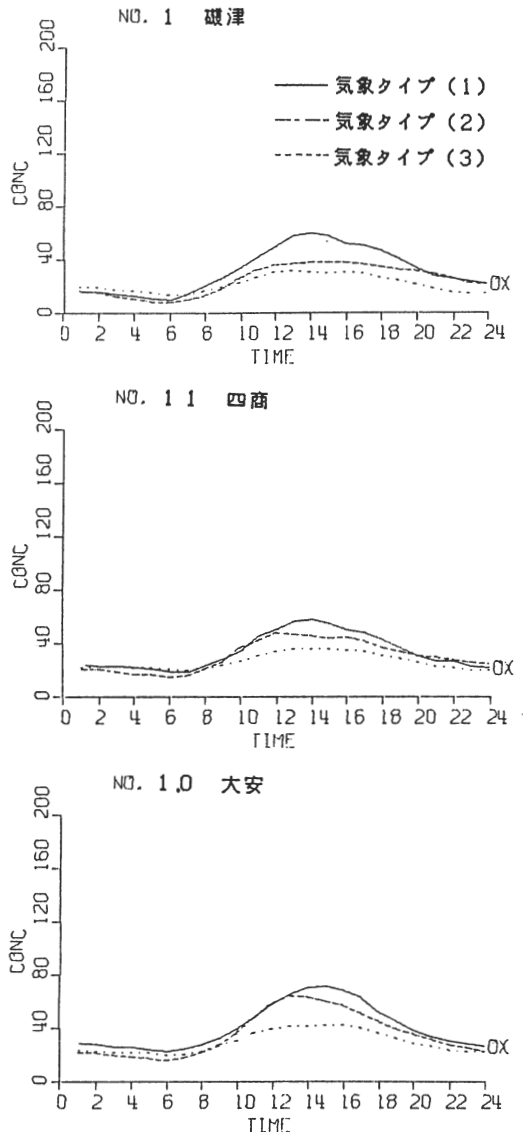


図13 気象タイプ別時刻平均濃度(昭56. 4~8月, 実測値) Ox (ppb)

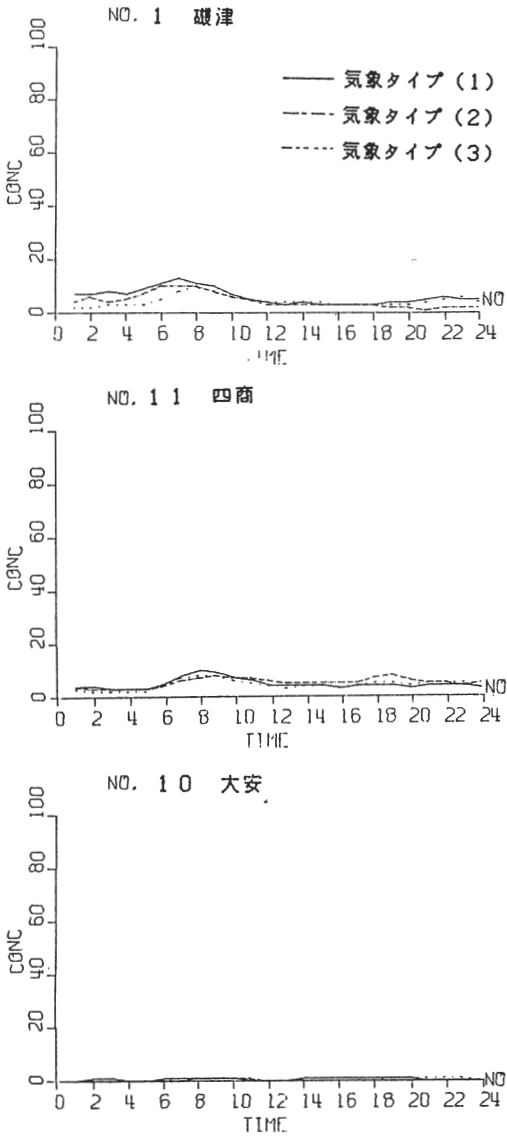


図14 気象タイプ別時刻平均濃度(昭56. 4～8月, 実測値) NO (ppb)

微が見られ Ox 高濃度生成の一因として NMHC, NOx の初期濃度が寄与していることが示唆された。

5. 反応モデルおよび拡散モデル

光化学シミュレーションモデルは、反応モデル・拡散モデル・風系推定モデルの3つのサブモデルより構成し、これらを有機的に組合せて四日市地域のオキシダント濃度予測を試みた。以下に反応モデルおよび拡散モデルの概要を記す。

5.1 反応モデル

主要反応関与物質 O₃, NO, NO₂, HC と代表的反応

生成物より成る表3の HC-NO_x 混合系簡略化光化学反応モデル(反応式12, 化学種15)を適用した⁴⁾。

光化学反応モデル式をオイラー法により差分化し、時刻毎(タイムステップ2秒), 単位ボックス毎に数値計算した。ただし中間生成物質は擬定常状態法により解析解を求めた¹⁷⁾。

また、反応式1の NO₂ 光分解速度定数 k_1 は、日射量の日変動に従って変動させ、気象タイプ(1)の k_1 の最大値は 0.384 min⁻¹ に設定した。

5.2 拡散モデル

汚染質のリサイクル現象を再現するために Fick の拡

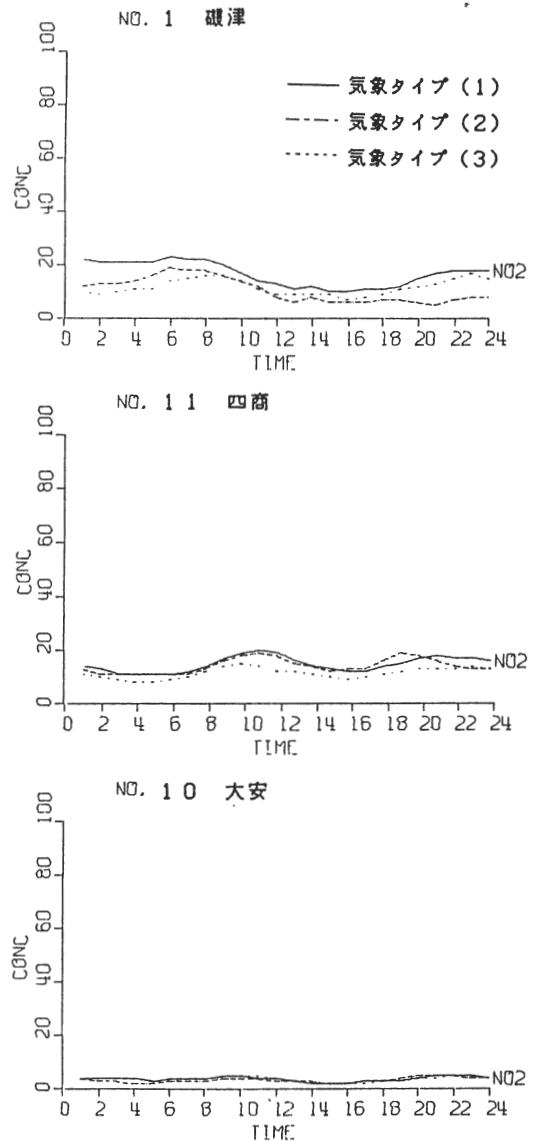


図15 気象タイプ別時刻平均濃度(昭56. 4～8月, 実測値) NO₂ (ppb)

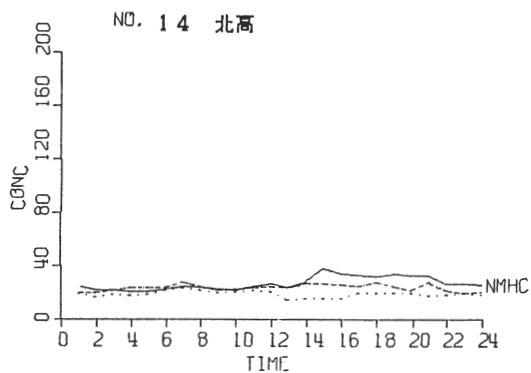
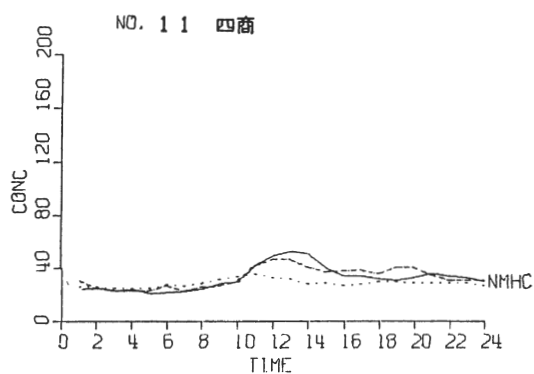
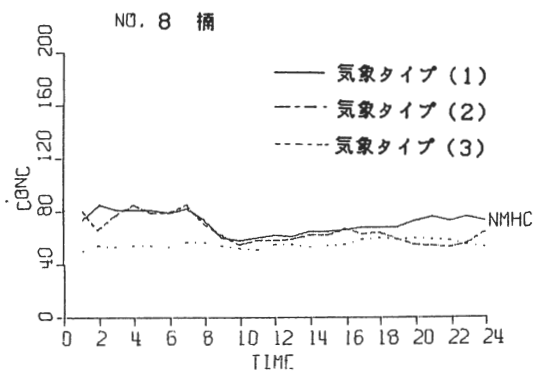


図16 気象タイプ別時刻平均濃度 (昭56. 4～8月, 実測値) NMHC (ppb)

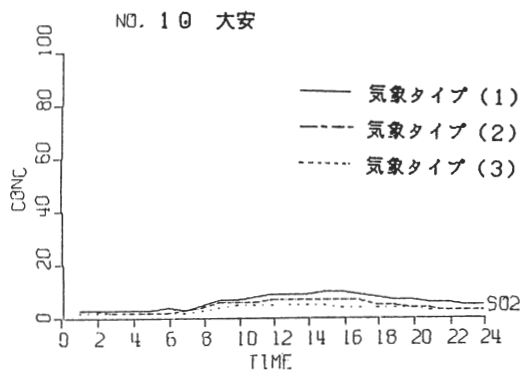
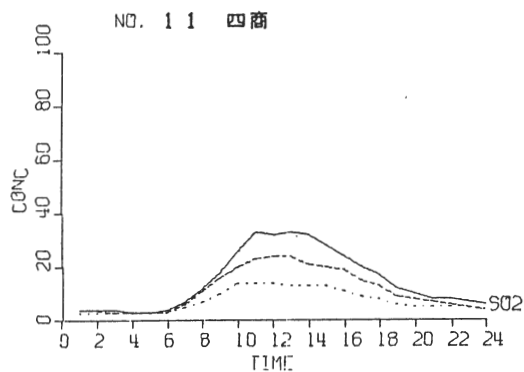
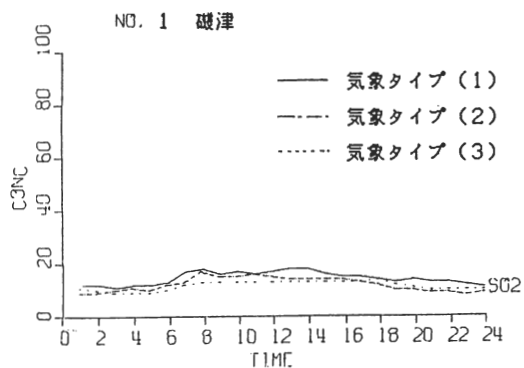


図17 気象タイプ別時刻平均濃度 (昭56. 4～8月, 実測値) SO₂ (ppb)

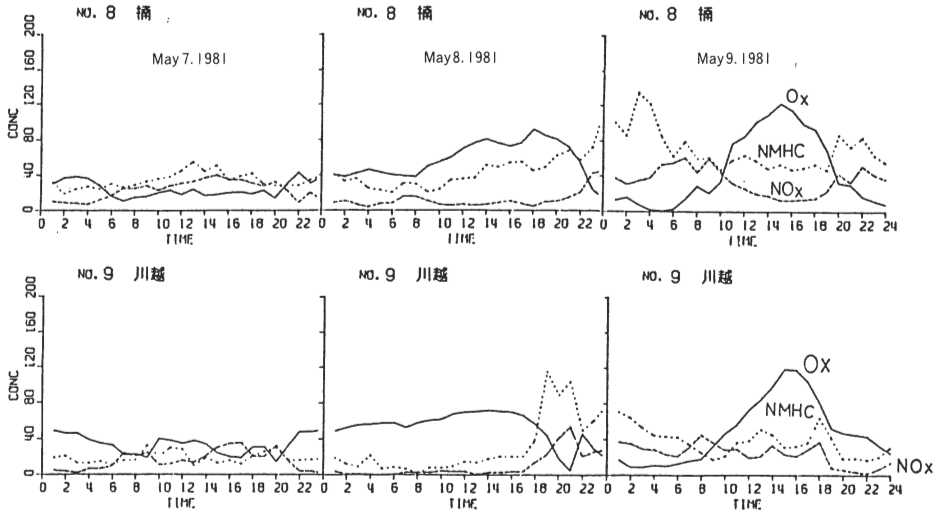


図18 Ox, NOx, NMHC の濃度変化 (実測値) 昭56. 5. 7~9
 --Ox (ppb), ---NOx (ppb),NMHC (ppb)

表3 HC-NOx 混合系の簡略化光化学反応モデル

反 応 式	反応速度定数
1. $\text{NO}_2 + h\nu \rightarrow \text{NO} + \text{O}$	k_1 (光の強弱で変化)
2. $\text{O} + \text{O}_2 + \text{M} \rightarrow \text{O}_3 + \text{M}$	$k_2 = 2.2 \times 10^{-5} \text{ ppm}^{-2} \text{ min}^{-1}$
3. $\text{O}_3 + \text{NO} \rightarrow \text{NO}_2 + \text{O}_2$	$k_3 = 2.7 \times 10^4 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
4. $\text{O} + \text{HC} \rightarrow \text{RO}_2 + \text{OH} + \text{CH}_2\text{O}$	$k_4 = 5.1 \times 10^3 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
5. $\text{O}_3 + \text{HC} \rightarrow \text{RO}_2\text{OH} + \text{CH}_2\text{O}$	$k_5 = 1.2 \times 10^{-2} \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
6. $\text{OH} + \text{HC} \rightarrow \text{RO}_2$	$k_6 = 2.5 \times 10^4 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
7. $\text{HO}_2 + \text{NO} \rightarrow \text{OH} + \text{NO}_2$	$k_7 = 3.0 \times 10^2 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
8. $\text{RO}_2 + \text{NO} \rightarrow \text{HO}_2 + \text{R}'\text{CHO} + \text{NO}_2$	$k_8 = 3.0 \times 10^2 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
9. $\text{OH} + \text{NO} \rightarrow \text{HONO}$	$k_9 = 3.0 \times 10^3 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
10. $\text{OH} + \text{NO}_2 \rightarrow \text{HONO}_2$	$k_{10} = 5.0 \times 10^3 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
11. $\text{HO}_2 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{HONO} + \text{O}_2$	$k_{11} = 3.0 \times 10^0 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$
12. $\text{RO}_2 + \text{NO}_2 \rightarrow \text{PAN}$ など	$k_{12} = 1.0 \times 10 \text{ ppm}^{-1} \text{ min}^{-1}$

散偏微分方程式をオイラー法により差分化した非定常三次元拡散モデルを適用し、 O_3 , NO , NO_2 , HC , PAN の移流拡散濃度を数値計算した。

$$\frac{\partial c}{\partial t} + u \frac{\partial c}{\partial x} + v \frac{\partial c}{\partial y} + w \frac{\partial c}{\partial z} = \frac{\partial}{\partial x} \left(k_x \frac{\partial c}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left(k_y \frac{\partial c}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left(k_z \frac{\partial c}{\partial z} \right) + R(x, y, z, t) + Q(x, y, z, t) \dots \dots \dots (4)$$

ここで c : 濃度
 u, v, w : 風速
 k_x, k_y, k_z : 拡散係数
 R : 反応モデルによる生成量
 Q : 汚染質排出量

拡散係数は、 SO_2 濃度を指標として数回のトライアルを実施し、実測濃度によく一致する値を設定した ($k_x = 2.4$, $k_y = 2.4$, $k_z = 0.6 \text{ m}^2/\text{s}$)。また、タイムステッ

プは120秒に設定し、各ボックスの中央での濃度を求めた。

6. 予測結果

6・1 濃度の再現性

Ox 高濃度型の気象条件下 (気象タイプ(1)) での光化学反応拡散シミュレーションを実施し、実測値と比較照合した。

図19は、海岸線から山間部までのライン上に並ぶ自動測定局、磯津 (臨海部)、四商 (市内部)、大安 (山間部) での実測値と計算値の Ox 濃度日変動を比較したものである。

また、図20には、全測定局 (9局) の Ox 実測濃度と計算濃度を示した。サンプル数 (時間値) 216で相関係数は0.728であり、有意な相関が認められた。

これらの結果、実測値と計算値の整合性は比較的良好な一致が見られ、この光化学反応拡散モデルによる Ox 濃度の推定が可能であると考えられる。

6・2 NOx 排出量を削減した場合

Ox 濃度型気象タイプ(1)と同一の計算条件で、NOx 汚染質排出量だけを現状排出量 (ケース1) から2割削減 (ケース2) および5割削減 (ケース3) した場合の3つのケースについて予測した。

その結果は図21に示すとおり NOx 排出量の2割削減の場合、Ox 濃度下降の効果は認められなかった。

7. まとめ

(1) 気象分類と風系推定モデルについて

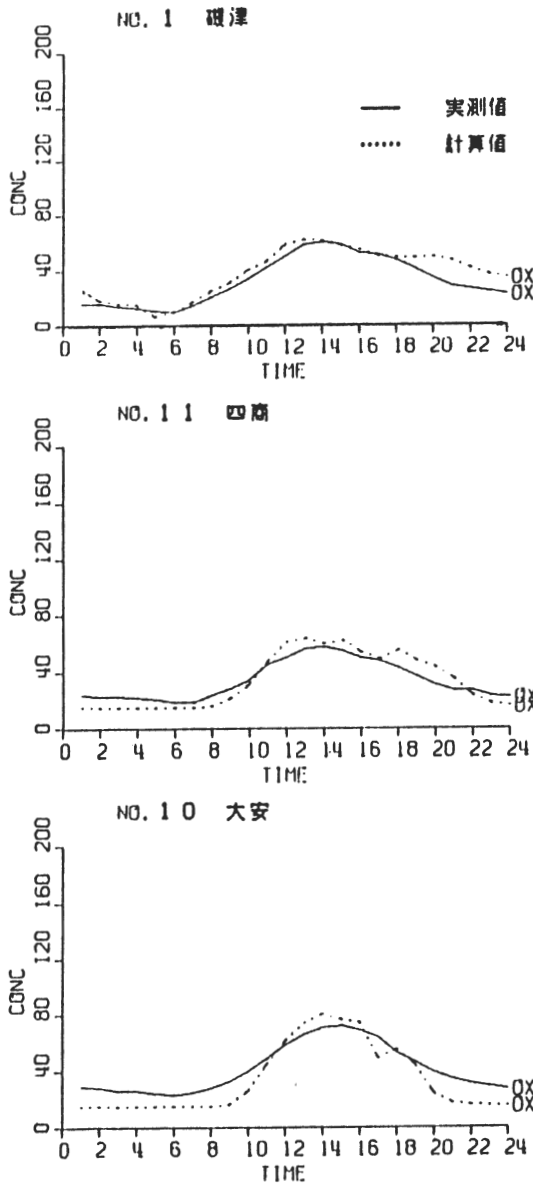


図19 気象タイプ(1)光化学反応拡散モデル計算値 Ox (ppb)

上層風および地上風の海陸風の動態と日射量などの気象条件から、Ox 高濃度型、中濃度型、低濃度型の3つの気象タイプに分類した後、風系推定モデルにより各気象タイプ毎の拡散場を設定した。

① Ox 高濃度型気象タイプ(1)

下層風は海陸風の交代が起こるが、上層風は終日陸風系の風が吹いているため、伊勢湾から鈴鹿山脈の間で汚染質のリサイクル現象が起こるとともに、混合層高度も下層に限定されるものと思われる。このため高

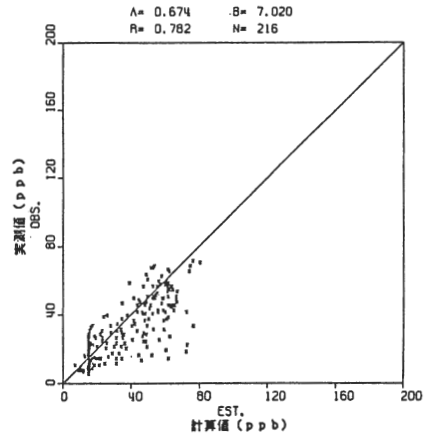


図20 気象タイプ(1)Ox 濃度 (時間値) 計算値と実測値の相関図

濃度の出現しやすい気象タイプである。

② Ox 中濃度型気象タイプ(2)

下層で海陸風の交代が起こるのは気象タイプ(1)と同様であるが、異なる点は上層風が終日海風系の風が吹き続けることである。このため汚染質は鈴鹿山脈を越えて拡散され、より大きなスケールでの混合拡散が起こるものと思われる。

③ Ox 低濃度型気象タイプ(3)

上層風、下層風とも終日陸風系の強い風のため、汚染質は海上に吹き込む形となり濃度は上昇しない。

上記気象タイプ別に環境濃度を整理したところ気象タイプ(1)>(2)>(3)の順に濃度が高くなる傾向が見られ、とくに気象タイプ(1)は高濃度の出現しやすい気象条件であることが認められた。

また、光化学オキシダント予報発令日の事例について検討したところ、気象タイプはOx 高濃度型に分類された。さらに前日の夜間から当日の早朝にかけてのNMHC、NOx の濃度が高く、Ox 高濃度生成の一因としてこれらの初期濃度が寄与していることが示唆された。

(2) 光化学モデルによる予測結果について

Ox 高濃度型気象条件下での光化学反応拡散シミュレーションを実施し、実測値との比較検討した結果、比較的良好な一致が見られこの光化学モデルによる濃度推定が可能であると考えられる。

また、上記と同一条件でNOx 排出量を削減した場合のOx 濃度に与える効果を予測したところ、2割削減の場合にはその効果が認められなかった。

NOx 削減効果についてはモデルケースとして実施したものであり、さらに追跡調査を行うとともに、HCの発生源別削減効果についても、さらに検討を加える予定

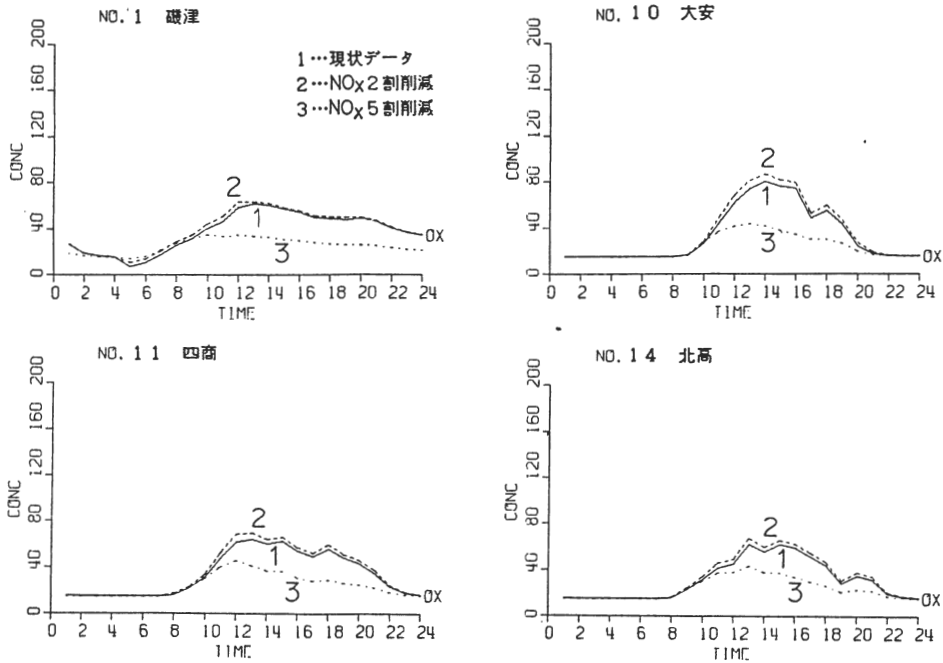


図21 NOxを削減した場合のO₃濃度変動，気象タイプ(1)

である。

なお、本研究にあたり京大・池田有光先生，国公研・秋元肇，若松伸司両先生に御指導賜わり深謝いたします。

—引用文献—

- 1) 三重県：昭和57年度版環境白書，p. 13 (1982)
- 2) 三重県：伊勢湾光化学オキシダント広域解析結果報告書 (1978)
- 3) 三重県：伊勢湾光化学スモッグ発生機構実態解明調査報告書 (1980)
- 4) 近藤次郎編：大気汚染，p. 268，コロナ社 (1975)
- 5) 市村禎二郎他：光化学大気汚染の計算機シミュレーション，大気汚染研究，Vol. 8, No. 3, p. 566 (1973)
- 6) 池田有光他：大気汚染光化学反応機構のモデル化—炭化水素，窒素酸化物系—，大気汚染研究，Vol. 11, No. 6, p. 19 (1977)
- 7) 池田有光：環境アセスメントにおける光化学大気汚染の予測，公害と対策，Vol. 19, No. 9, p. 24 (1983)
- 8) 塩沢清茂他：光化学大気汚染モデル(1)～(2)，産業公害，Vol. 16, p. 241, p. 677 (1980)
- 9) 若松伸司他：低層大気中における光化学反応モデル評価，大気汚染学会誌，Vol. 18, No. 2, p. 164 (1983)
- 10) 数理計画，光化学大気汚染予測システム設定調査報告書 (1978)
- 11) 堀江 毅：沿岸海域の水の流れと物質の拡散に関する水理学的研究，港湾技研資料，No. 360 (1980)
- 12) 磯田和男他：数値計算ハンドブック，オーム社 (1971)
- 13) 戸川隼人：微分方程式の数値計算，オーム社 (1973)
- 14) 山口克人他：大気拡散シミュレーションのための風系推定法，大気汚染学会誌，Vol. 18, No. 3, p. 210 (1983)
- 15) 河村 武編：都市の大気環境，p. 75，東京大学出版会，1979
- 16) 新家淳治他：四日市地域における大気成層特性と地上オキシダント濃度との関係，三重県環境科学センター研究報告，No. 5, p. 43 (1984)
- 17) 田村穂積他：HC-NOx混合系の簡略化光化学反応モデルの適用，三重県環境科学センター研究報告，No. 5, p. 53 (1984)