

## 詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪予測モデルの開発

大石 哲\*・松井 光弘\*\*・池淵 周一

\* 山梨大学工学部

\*\* 京都大学大学院工学研究科

### 要 旨

近年、酸性雨問題は地球規模の環境問題として大きな関心を集めている。多くの酸性雨予測モデルが提案されているが、多くは雲物理過程としてバルク法を用いたモデルである。しかし、酸性物質の移動については粒径分布が本質的に重要であり、そのためには雲物理過程として bin 法を用いて計算を行う必要がある。したがって、本研究では bin 法を用いた詳細な雲物理過程をもつ雲物理モデルを用いて酸性雨・酸性雪の予測モデルの開発を行い、それにより、雲の中における酸性物質の挙動とそのメカニズムの解明を目指す。

キーワード：酸性雨・酸性雪、雲物理モデル、bin 法、地形、対流性・層状性

### 1. 序論

近年、酸性雨の問題は、温暖化やオゾン層の破壊などととも地球規模の環境問題として非常に大きな関心を集めている。それは、1973年にストックホルムにおいて第一回世界環境会議が開催されて以来、欧州各国間、北米の社会・政治問題となり、いまや地球規模の環境問題に位置付けられるようになった。

酸性雨問題は社会・政治問題から環境問題まで多岐にわたる問題であるので、酸性雨に対する科学的取り組みは様々な方面からアプローチがなされている。測定機器の開発、化学反応の解明、土壌への浸透と反応と流出、陸水への影響等様々な問題が挙げられる。その中でも本研究が採りあげるのは酸性物質の降水に伴う地上への降下予測である。すなわち、本研究では、大石(1997)らによって開発されてきた降水粒子の分布を陽に表現した2次元雲解像モデルを用いて酸性雨・酸性雪問題に取り組む。

大気中には、様々な大気物質が浮遊している。霧・

雲が生成することによって気体や微小粒子として存在していた微量化学物質が、水滴等の液相にとりこまれる。一部の雲粒子は成長して雨や雪となり地上に降下するが、降下する過程で大気中の化学物質をさらに捕集する。この研究では、雲の中における酸性物質の挙動とそのメカニズムのうち、雲の層状性・対流性の違いや地形の効果が酸性雨に与える影響の解明を目指すものである。

### 2. 本研究で用いたモデルの概要

### 3. 雲物理モデル

本研究で使用する大石(1997)らによって開発されてきた雲解像モデルの概略を説明する。

このモデルの力学的特徴は、非静水力学モデル、AE系(非弾性系)であること、加えて、テンソル解析を用いた座標変換により地形の表現が可能なことであり、物理的特徴は bin 法を用いた降水粒子の発達過程を表現していることである。

### 3.1 微物理過程について

このモデルは bin 法と呼ばれる詳細な微物理過程を表現している。bin 法とは各降水粒子を径で区分けしてその数密度を予報変数とする方法である。一方、雲粒子をいくつかのカテゴリに分けて、例えばカテゴリの質量混合比で雲物理過程を表現しようとする方法はバルク法という。bin 法では降水粒子の粒径分布が予報変数であるのに対し、バルク法ではそれはあらかじめ与えておく。したがって bin 法であれば降水粒子の粒径分布が時間変化する様子を表現できる。このことは酸性物質を降水粒子内部に取り込む速度が降水粒子の半径の関数であることから重要である。また、本モデルでは雹や霰といった固相の水も表現しているため、暖かい雨だけでなく冷たい雨の表現が可能である。

微物理過程とは、降水粒子生成における水の三相間での複雑な相変化のことで、個々の積雲や積乱雲による降雨のようなメソ  $\beta$  スケール以下の現象では無視することはできない過程である。本モデルで考慮している微物理過程は、凝結過程、衝突併合過程、凍結・着氷過程、融解過程の 4 つであり、降水粒子の分裂は考慮していない。次に、降水粒子のクラス分けを概説する。モデル内で用いる微物理過程については大石 (1997) を参照されたい。

#### (1) 降水粒子

降水粒子は、相と密度によって水滴 (液体;  $\rho_w = 1.0 \text{ [gcm}^{-3}\text{]}$ )、雹 (固体;  $\rho_h = 0.9 \text{ [gcm}^{-3}\text{]}$ )、霰 (固体;  $\rho_g = 0.3 \text{ [gcm}^{-3}\text{]}$ )、氷晶 (固体;  $\rho_i = 0.1 \text{ [gcm}^{-3}\text{]}$ ) に大きくクラス分けされ、さらに半径によって細かくクラス分けされる。水滴、雹、霰はその大きさによらず、球形であると仮定し、半径によって  $2 \text{ [}\mu\text{m]}$  から  $5.19 \text{ [cm]}$  まで 45 のクラスに細分する。

自然界での氷晶の形は気温と湿度によって様々であるが、本モデルでは円盤型を仮定し、半径により  $20 \text{ [}\mu\text{m]}$  から  $2.05 \text{ [}\mu\text{m]}$  まで 21 クラスに、厚みにより 5 クラスに細分化する。

#### (2) 凝結過程 (Nucleation, Vapor Diffusion)

凝結過程は大気中の水蒸気が拡散過程によって降水粒子に運ばれたり、逆に降水粒子から放出される過程であり、降水粒子を作る過程と降水粒子を凝結によって成長させる過程、すなわち凝結核と氷晶核の活性化 (nucleation)、水滴と氷粒 (氷晶・霰・雹) の凝結 (vapor diffusion) による成長に細分化される。

**凝結核の活性化 (Nucleation):** 本モデルの初期凝結核濃度は大陸性の雲であることを仮定し  $500 \text{ [cm}^{-3}\text{]}$  とした。凝結核が活性化して雲粒をつくる過

程の計算にはそれだけで膨大な時間を要するので、Takahashi (1976) が計算した雲底付近の粒径分布をもつ雲粒が瞬時に生じると仮定する。また気塊が不飽和の場合には雲粒は蒸発し凝結核が放出される。

また、氷晶核に加えて、半径が  $20 \text{ [}\mu\text{m]}$  より小さい霰・雹や 2 次氷晶芽と呼ばれるものが氷晶核として振る舞う。これを 2 次氷晶芽と呼ぶ。本モデルでは 2 次氷晶芽も取り扱っている。

**凝結による成長 (Vapor Diffusion):** 球形の降水粒子である水滴、雹、霰の凝結過程は、球形の周囲の水蒸気分布および熱分布を表現するラプラスの式より導出した。また、氷晶が凝結成長する方程式は、物体が静電気を帯びる電荷帯電現象と同様に扱うことで導出した。導出した凝結成長の方程式を用いて、質量保存則を満たしながら凝結成長を計算する。その際、降水粒子は離散的にクラス分けされているので、凝結により降水粒子が成長した時には成長量に応じて水滴の数と質量を保存した上でクラスを変える必要が生じる。これを Kovetz and Olund (1969) のスキームで行う。

#### (3) 衝突併合過程 (Coalescence, Aggregation)

衝突は水滴同志の衝突による成長 (coalescence) と氷晶同志の衝突による成長 (aggregation) の他に、水滴が微粒子に接触するときに凍結する場合 (contact nucleation) も同じ衝突の式を用いる。水滴同志あるいは氷晶同志の衝突による成長は、前述した凝結過程が粒径の小さな降水粒子に対して支配的成長要因であるのに対し、粒径の大きな降水粒子に対して支配的に作用する。

水滴と同様、着氷していない氷晶、すなわち最も薄いクラスの氷晶は衝突併合過程によって径方向に成長する。氷晶の衝突併合の計算では、衝突因子は氷晶のゆらぎによる付着を考慮している。

#### (4) 凍結・着氷過程 (Freezing, Riming)

凍結過程とは、凝結核が活性化してできた水滴が凍る場合 (condensation nucleation) と水滴が微粒子に接触するときに凍結する場合 (contact nucleation) のことであり、着氷過程とは大気中の氷晶、霰および雹が小さな水滴と衝突した時にその水滴を取り込んで成長することである。モデル中では水滴の落下速度が氷の落下速度より早いときには contact nucleation が起こり、その逆の時には着氷が起こるとしている。

**凍結過程 (Freezing):** Condensation nucleation は Vali (1968) が実験的に求めた凍結確率によって表現している。これは氷点下の水滴が凍結す

る割合が気温に関する指数関数であるとしたものである。モデルでは、この過程で凍結した水滴は同じ半径をもつ雹となるとした。

Contact nucleation は大きな過冷却水滴と小さな氷晶との衝突によっておこる。氷晶と水滴の衝突の計算は衝突係数の値の他は (3) で述べた水滴同士の衝突併合の計算と同様に行う。凍結水滴のうち半径が 20 [ $\mu\text{m}$ ] を越える大きなものは、凍結したときの落下速度と表面の温度の関数である密度によって雹か霰にクラス分けされる。

**着氷過程 (Riming):** 小さな水滴と大きな氷晶の衝突あるいは水滴と雹、霰の衝突により氷晶、雹、霰は水滴を取り込み成長する。この過程を着氷過程 (riming) と呼ぶ。着氷に関する衝突の計算は凍結過程 (freezing) の contact nucleation の時と全く同じである。

氷晶は着氷過程により厚さを増し、Cotton (1972) にしたがって、厚さが径に等しくなれば霰のクラスに入れる。霰が着氷過程により成長し密度を変えて  $0.7[\text{g cm}^{-3}]$  より大きくなった場合には雹のクラスに入れる。

### (5) 融解過程 (Melting)

落下する雹、霰、氷晶は  $0^\circ\text{C}$  層を横切る瞬間から融解を始める。融解を始めた降水粒子が完全に融けきるまでに要する時間と落下距離は粒子の大きさにより計算される。この落下距離を経過時間で割ったものは限界落下速度と呼ばれ、粒子の大きさと周りの気温により求められるものである。 $0^\circ\text{C}$  層以下のある高度における粒子の落下速度とその気温における限界落下速度を比較して、粒子の落下速度が限界落下速度より大きければ粒子は融解しておらず、粒子の落下速度が限界落下速度と一致したところで完全に融解したものとす。

## 3.2 化学過程

### 3.3 化学物質収支モデル

取り扱う酸性物質としては硫酸エアロゾル (硫酸アンモニウム),  $\text{SO}_2(\text{gas})$ , 硝酸エアロゾル,  $\text{HNO}_3(\text{gas})$ , アンモニウムイオン (硫酸アンモニウム), 酸化剤としてはたらく  $\text{H}_2\text{O}_2$  である。それぞれの物質は大気中を移流し、降水粒子に溶け込んだ後は降水粒子とともに大気中を移流する。本研究で用いている雲解像モデルでは降水粒子の分布を陽に表現しているが、酸性物質が溶け込む降水粒子として水滴を雲水と雨粒に、氷晶を雲氷と雪に、雹、霰を 1 つのクラスとして種類を分けた。大別して降水粒子に溶け込む過程としては、1) 固体のエアロゾル

粒子が凝結核として雲水に取り込まれる過程。2) 凝結による成長の際に気体が降水粒子に溶け込む過程。3) 雨粒、雪、雹、霰が落下する際に下にある酸性物質を捕集する過程である。また、上記の降水粒子の相変化の際に各相間の酸性物質は他の相に移動する。以下に詳しくその過程を述べる。

### 3.4 凝結核として取り込まれる過程

(2) で述べた過程で消費される凝結核の割合で示してある。このとき取り込まれるのは硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオンである。

#### (1) 降水粒子が凝結成長する際に気体を取り込む過程

降水粒子が凝結成長する際にヘンリーの法則に従い周囲の気体が溶け込んでくる。Rutledge et al. (1986) により以下のようにした。

#### ・硫酸イオン

硫酸イオンは降水粒子に溶け込んだ  $\text{SO}_2$  が酸化して生じる。以下に  $\text{SO}_2$  の降水粒子への溶解、その後の酸化反応の式を Valdez and Dawson をもとに以下に示す。ただし、以下に述べる PC は各過程での物質の移動量であり単位は  $[\text{g}(\text{物質})/\text{g}(\text{air}) \text{sec}]$  とする。

$$PC = 10^3 C_{1i} Q_{\text{SO}_2} q_{\text{cnd},i}, \dots \dots \dots (1)$$

$$C_{1i} = \frac{1.75 \times 10^{-14}}{[\text{H}_i]} \exp\left(\frac{5.19 \times 10^3}{T}\right),$$

ただし、 $q_{\text{cnd},i}$  は降水粒子の凝結成長量であり、 $i$  は降水粒子の種類 (雲粒、雨粒) である。 $Q_{\text{SO}_2}$  は  $\text{SO}_2$  の混合比 (g/g),  $[\text{H}_i]$  は  $i$  の水素イオン濃度、 $T$  は気温である。次に溶け込んだ  $\text{SO}_2$  が酸化され硫酸イオンが生成される量を示す。

$$PC = 10^3 C_{2i} Q_{\text{SO}_2} Q_i, \dots \dots \dots (2)$$

$$C_{2i} = \frac{5.37 \times 10^{-19}}{([\text{H}_i])^{0.9}} \exp\left(\frac{6.778 \times 10^3}{T}\right) + (Q_{\text{H}_2\text{O}_2,i}/Q_i) \frac{2.67 \times 10^{-2}}{([\text{H}_i])^{0.27}} \exp\left(\frac{2.41 \times 10^3}{T}\right),$$

ただし、 $Q_{\text{H}_2\text{O}_2,i}$  は降水粒子中  $i$  の  $\text{H}_2\text{O}_2$  の混合比、また氷晶、霰、雹の場合は気温の  $T = 273[\text{K}]$  とする。

#### ・ $\text{HNO}_3(\text{gas})$

$\text{HNO}_3(\text{gas})$  は水に対する溶解度が高いために凝結成長している際にはすべて溶解するものとする。もし、雲水と雨粒が両方凝結成長している場合は雲粒に吸収されるものとする。また、雲水、雨粒に吸収されなかった  $\text{HNO}_3(\text{gas})$  は氷晶、霰、雹に吸収

される。

$$PG = Q_{\text{HNO}_3} \sum_{r_{\text{max}}} 2\pi \times 0.75 \times K_D r_i (0.65 + 0.44 Sc^{1/3} Re^{1/2}) N(r), \quad (3)$$

$$Sc^{1/3} Re^{1/2} = \left(\frac{\nu}{D_i}\right) \left(\frac{V_i(r_i) 2D_i}{\nu}\right),$$

ただし、 $PG$  は  $\text{HNO}_3$  (気体) が降水粒子に溶け込む量で単位は  $[\text{g}(\text{HNO}_3)/\text{g}(\text{air}) \text{ sec}]$  である。  $K_D$  は  $\text{HNO}_3(\text{gas})$  の洗浄係数であり、  $1.1 \times 10^{-10} [\text{m}^2/\text{s}]$  とする。  $Q_{\text{HNO}_3}$  は  $\text{HNO}_3(\text{gas})$  の混合比、  $r_i$  は降水粒子の粒径で  $i$  は雪、霰、雹のいずれかを表す。  $Sc$  はシュミット数、  $Re$  はレイノルズ数、  $\nu$  は大気の動粘性係数であり  $1.34 \times 10^{-9} [\text{cm}^2/\text{s}]$  を用いた。  $D_i$  は降水粒子  $i$  の半径、  $V_i$  は降水粒子  $i$  の落下速度である。

・  $\text{H}_2\text{O}_2$

$\text{H}_2\text{O}_2$  は雲水、雨の中に溶け込み、その量は以下の式であらわされる。

$$H1C = (28.97 \times 10^{-3}) \cdot (3.99 \times 10^{-6}) \cdot \exp\left(\frac{7.03 \times 10^3}{T}\right) \cdot q_{\text{cond},i} Q_{\text{H}_2\text{O}_2}, \quad \dots (4)$$

また  $\text{SO}_2$  が酸化する際に酸化剤としてはたらくのでその際にも消費される。

$$H2C = 10^3 \delta c_2' Q_{\text{SO}_2} Q_i \dots (5)$$

$$c_2' = \frac{Q_{hi}}{Q_i [\text{H}_i]^{0.27}} (2.67 \times 10^{-2}),$$

$Q_{\text{H}_2\text{O}_2}$  は  $\text{H}_2\text{O}_2$  の混合比、  $H1C$  は  $\text{H}_2\text{O}_2$  が降水粒子に溶け込む量で単位は  $[\text{g}(\text{H}_2\text{O}_2)/\text{g}(\text{air}) \text{ sec}]$  であり、  $H2C$  は  $\text{H}_2\text{O}_2$  が降水粒子中で  $\text{SO}_2$  の酸化の際に消費される量で単位は  $[\text{g}(\text{H}_2\text{O}_2) / \text{g}(\text{air}) \text{ sec}]$  である。  $\delta$  は  $\text{H}_2\text{O}_2$  と  $\text{SO}_2$  の質量数の比 =  $34/36$  である。

・ PAN (Peroxyacetyl Nitrate)

PAN はモデル上では生成も消失もされず、気体に溶解するだけである。 PAN は硝酸化合物であるので降水粒子に溶解すると硝酸イオンを生じる。

$$PON = 2.3 \times 10^{-5} Q_{\text{PAN}} Q_i, \quad \dots (6)$$

ただし、  $Q_{\text{PAN}}$  は PAN の混合比 (g/g)、  $PON$  は PAN の降水粒子への移動量であり単位は  $[\text{g}(\text{PAN})/\text{g}(\text{air}) \text{ sec}]$  である。

### 3.5 降水粒子が落下する際に酸性物質を捕集する過程・ブラウン運動による捕集する過程

降水粒子と酸性物質の衝突による取り込みには降水粒子が落下する際にその下にある酸性物質を捕集

する過程と、小さな降水粒子がブラウン運動する際に周囲の酸性物質を取り込む過程がある。

落下時に下にある酸性物質を捕集する過程は

$$PC = \sum_r \frac{\pi}{4} D_i V_i(r) Q_j E_{ji} X_i(r), \quad \dots (7)$$

であらわされる。ただし、  $E_{ji}$  は降水粒子  $i$  による化学物質  $j$  の捕集率、  $X_i(r)$  は降水粒子  $i$  の数密度である。

次に、ブラウン運動により周囲の酸性物質を取り込む過程を示す。

$$PC = 1.68 \times 10^6 D Q_i Q_j / \bar{D}^2, \quad \dots (8)$$

ただし、  $D$  は洗浄係数、  $\bar{D}$  は平均粒径である。

### 3.6 相変化に即して各状態間を移動する場合

降水粒子が微物理過程により変化するのに伴い酸性物質も移動する。

$$PC = \frac{Q_{ji}}{Q_i} \times X_{C,i,k}, \quad \dots (9)$$

ただし  $X_{C,i,k}$  は降水粒子  $i$  から降水粒子  $k$  への変化量で単位は  $[\text{g}(\text{water})/\text{g}(\text{air}) \text{ sec}]$  である。

硫酸イオン、硝酸イオンが各相間の移動と雲物理過程の関係を Fig. 1, Fig. 2 に図示した。

## 4. 適用と考察

ここでは酸性物質の大気状態の違いによる挙動変化、また山岳地形の有無による酸性物質の局地性や降水量の変化、導入している雲物理モデルのタイプ(暖かい雨、冷たい雨)が雲生成機構を通して酸性物質挙動に与える影響を評価するために、ここまでに解説した酸性雨、酸性雪予測モデルを2次元で数値計算を行なうことにより酸性雨、酸性雪のメカニズムの解明を目指す。

### 4.1 化学物質の入力条件

化学物質は Rutledge, Hegg and Hobbs (1986) の入力条件に基づいて鉛直方向に指数関数 Eq.(10) で与えた。ここに、  $Q_i(h)$  は高度  $h$  における物質  $i$  の混合比 [g/g]、  $Q_i(0)$  は地表における物質  $i$  の混合比 [g/g]、  $H_i$  は物質  $i$  に固有の値である。

$$Q_i(h) = Q_i(0) \exp(-h/H_i). \quad \dots (10)$$

Table 4.1 に各化学物質の地表濃度、  $H_i$  を示す。気体の物質に関しては単位を ppb に換算して示してある。

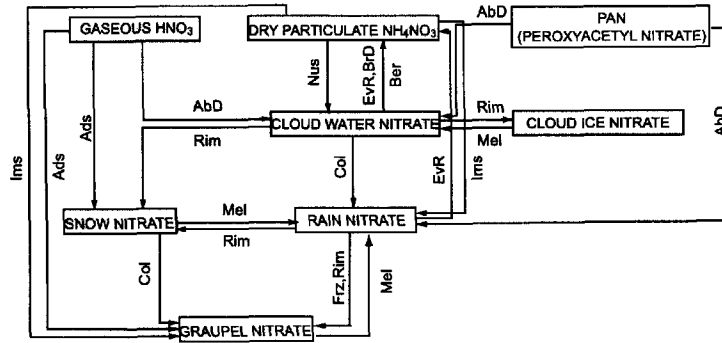


Fig. 1 Chart of  $\text{NO}_3^-$  between each hydrometeor-phases.

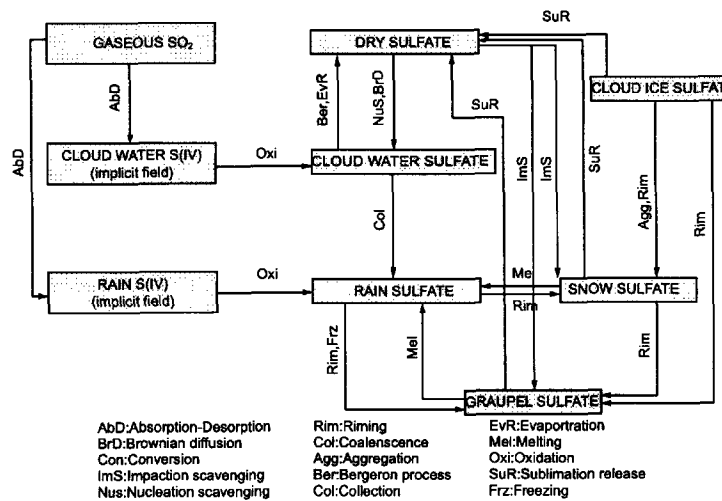


Fig. 2 Chart of  $\text{SO}_4^{2-}$  between each hydrometeor-phases.

Table 1 Initial condition of chemical species,

chemical substances	$Q_i(0)$ [g/g]	$Q_i(0)$ [ppb]	$H_i$ [km]
$\text{SO}_2$	$4.3 \times 10^{-9}$	1.95	2.0
$\text{SO}_4^{2-}$	$3.1 \times 10^{-9}$	-	3.5
$\text{NH}_4^-$	$1.6 \times 10^{-8}$	-	3.5
$\text{H}_2\text{O}_2$	$5.9 \times 10^{-10}$	0.506	$\infty$
$\text{NO}_3^-$	$7.7 \times 10^{-10}$	-	3.5
$\text{HNO}_3$	$1.7 \times 10^{-9}$	0.780	2.0
PAN	$4.2 \times 10^{-9}$	0.014	$\infty$

#### 4.2 大気の状態

降雨現象は大気の状態により様々な場合がある。大きく分けると、対流性降雨、層状性降雨である。また雪の際に酸性物質の挙動を考察することも重要

である。そこで、それぞれの大気の状態を仮定してシミュレーションを行った。まず、モデルの計算結果を実測結果と比較評価した上で、それぞれの大気状態における結果の考察を行い、最後に各降雨形態についての比較を行う。

地形を導入しない場合の初期の刺激として、初期の推進力となる高温の飽和した空気塊を計算領域の下層に与えた。気塊の温度の増分  $\delta\theta'(x, z)$  [K] は次式で与えられる楕円体状に与えた。

$$\delta\theta' = 0.3 \times \left[ \sin\left(\pi \cdot \frac{z}{1.2}\right) \right]^2 \left[ \cos\left(\pi \cdot \frac{x - x_h}{2.0}\right) \right]^2. \quad (11)$$

気塊の昇温位は最大で 0.3[K]、範囲は高度 0[km] から 1.2[km] の間、幅は 2.4[km] である。 $x_h$  は気塊の中心の  $x$  座標であり、 $x_h = 5.2$  [km] とした。

地形を与える場合には、仮想的な山岳地形として Fig. 3 に示すような標高 1,600 [m] のベル型の地形を与えた。

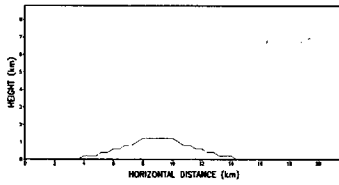


Fig. 3 The bell shaped mountain.

### 4.3 実測データとの比較によるモデルの検証

まず、本研究で開発した数値モデルの検証を行うために、実測データと比較した。比較に用いたデータは環境庁が平成5年度～平成9年度の5年間に実施した第3次酸性雨対策調査において収集したデータのうち大気の状態に関するものである。比較する地点として、冬季の酸性雨、酸性雪が問題となる日本海岸からは新潟、都市地域として大阪、田園地域として大阪に近接する京都八幡を選択した。測定値として降雨量によって重みをつけた月平均の値を用い、その平均値と最大値・最小値およびそれが観測された月を示した。

数値モデルは対流性降雨の場合8事例、層状性降雨の場合2事例、雪の場合1事例の計11事例を計算し、得られた硫酸イオン、硝酸イオン濃度に降雨量の重みをつけた領域平均値を算出し、さらにその11事例での平均値および最大値・最小値とその時の降雨タイプを示した。

Table 2 に硫酸イオン濃度の観測平均値、Table 3 に硝酸イオン濃度の観測平均値を示した。表の数値の単位はいずれも  $[\mu\text{eq}/\ell]$  (マイクロ当量/リットル) であり、1 eq は一価の酸または塩基を中和するのに必要な量である。降雨タイプに snow とあるのは雪の計算事例、c.c とあるのは対流性 (convective) の冷たい雨の計算事例である。

観測値で特徴的なのはまず、降水量が少ない時期にイオン濃度が高くなっていることである。モデルにおいても、降水量が少ない事例でイオンの濃度は高く計算された。このことは降水量が増えることによって線形的に物質の降下量が増えるわけではないことを示している。

観測値の大気中の化学物質の量が特定できないので一概には言えないが硫酸イオン濃度においてモデルの計算値は観測値のオーダーと一致している。また、実際の観測値とモデルの計算値を比較してみると、硫酸イオンに関して大阪、京都八幡においても冬季に濃度が高くなっている。冬季と夏季において汚染物質の大気中の量に大きな差がないのでモデル

においてうまく再現できていると言える。

一方、より定量的に見ると、モデルでは硝酸イオンは観測値と比較して同様な値を算出しているが、硫酸イオンは観測値と比較して過小な値を算出している。橋本 (1997) によれば、数値計算によって硫酸イオンは過小に計算され、硝酸イオンは過大に計算される傾向があり、その原因は今のところ良く分かっていないという。一方、芝ら (2001) によれば、硫酸の液相酸化反応を考慮すると理想条件の数値計算において解離平衡のみの場合と比較して水素イオン濃度で 1.6 倍ほどの酸化反応が起こり、その時間スケールは 100 秒にも及ぶという。本研究で用いた Eq.(3) がこの過程を正確に表現できていないことが、硫酸イオンを過小に評価している原因として十分に考えられる。

以上の議論をふまえた上で、実際の酸性雨の主要因が硫酸イオンであることから以下の各考察では主として硫酸イオンを対象に議論を行う。ただし、各計算例において硫酸イオンと硝酸イオンは定性的に同様の挙動を示しているため、本研究の硫酸イオンの議論はほとんどそのまま硝酸イオンのメカニズムを述べているといえる。

### 4.4 対流性降雨

対流性の降雨として、Table 4 に示すように、初期風速、地形、暖かい雨・冷たい雨のそれぞれをかえた 8 事例について計算を実行した。対流性降雨の気温プロファイルとしては Fig. 4 に示すように Eq.(12) で表されるプラントバイサラ振動数が  $10^{-4}$  になるように与えた、また、地表気温を 300[K] とした。また、水蒸気プロファイルとしては Fig. 5 に示すように水蒸気混合比は地表の相対湿度が 0.87% とし地表 1200[m] で 0.99% となるように与えた。

$$N = \left( \frac{g}{\bar{\theta}} \frac{d\bar{\theta}}{dz} \right)^{1/2}, \dots\dots\dots (12)$$

ただし、 $\bar{\theta}$  は水平方向に平均した温位 [K]、 $g$  は重力加速度  $[\text{m}/\text{sec}^2]$ 、 $z$  は高さ [m] である。

### 4.5 暖かい雨と冷たい雨の違いについて

CASE1 と CASE3、CASE6 と CASE8 を比較することで用いた雲物理モデルのタイプ (暖かい雨と冷たい雨) の影響を見ることができる。

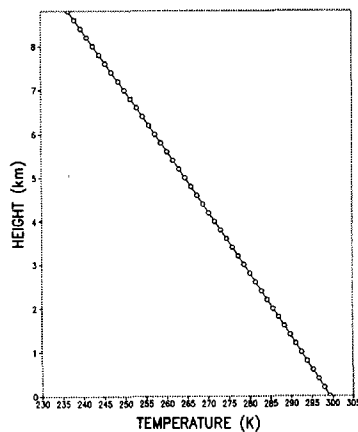
CASE6 (上段) と CASE8 (下段) の雲中の降水粒子の混合比分布を示した Fig. 6 を見ると、雲中の降水粒子の混合比は冷たい雨 (CASE8) の方が多いが、硫酸イオンの量の分布を同様に示した Fig. 7

**Table 2** Observed and calculated data of concentration of sulfate ion [ $\mu\text{eq}/\ell$ ],

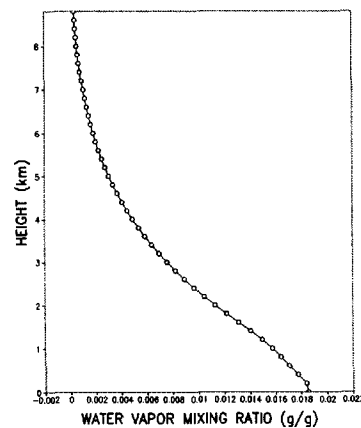
	Observed			Calculated
	Niigata	Osaka	Yawata	Model
average	57.6	30.0	32.3	18.3
max. (month)	139 (Apr)	47.7 (Dec)	56.0 (Dec)	30.0 (snow)
min. (month)	14.9 (Jul)	17.4 (Sep)	19.7 (May)	10.2 (c.c)

**Table 3** Observed and calculated data of concentration of nitrate ion [ $\mu\text{eq}/\ell$ ],

	Observed			Calculated
	Niigata	Osaka	Yawata	Model
average	15.3	12.3	19.1	13.7
max. (month)	39.9 (Apr)	20.7 (Dec)	27.9 (Nov)	22.5 (snow)
min. (month)	4.91 (Sep)	6.13 (Oct)	10.2 (Jan)	7.7 (c.c)



**Fig. 4** Initial  $T$  for convective rainfall [K].



**Fig. 5** Initial  $Q_v$  for convective rainfall [g/g].

を見ると暖かい雨 (CASE6) と冷たい雨 (CASE8) にはそれほど大きな変化がない。このことは、CASE1 と CASE3 の比較でも言えた。この理由としては、凝結核として取り込まれた硫酸イオンが雲の成長とともに物質が輸送されるわけであるが、雲の成長過程で水滴の凝結成長の際に取り込まれる量は凝結核として取り込まれる量と比較すると少量であること、雲が発達している部分では硫酸エアロゾルはもう消費されているので新たに供給される量は少量であることなどが挙げられる。

したがって、対流性降雨からの酸性雨を考察する場合には暖かい雨の計算であってもよいと言える。

#### 4.6 対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下について与える影響

CASE3 と CASE4 の計算結果を比較することで、山岳地形の有無についての総降水量と硫酸イオンの総降下量について考察をする。Fig. 8 は CASE3 (地形なし, 上段) と CASE4 (地形あり, 下段) の雲中の降水粒子の混合比分布を示した。Fig. 9, Fig. 10 は CASE3, CASE4 の降雨強度の時系列変化を示した。Fig. 11, Fig. 12 は同様に硫酸イオン降下量の時系列変化を示した。Fig. 13, Fig. 14 は CASE3, CASE4 の総降水量と硫酸イオンの総降下量を波線が CASE3, 実線が CASE4 で示したものである。

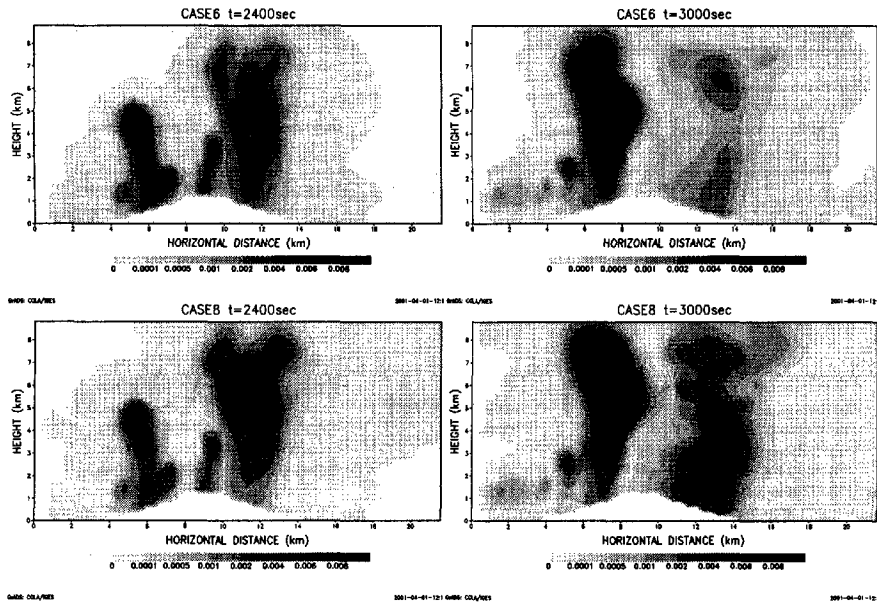


Fig. 6 Cross section distribution of water mixing ratio of CASE6,8 [g/g].

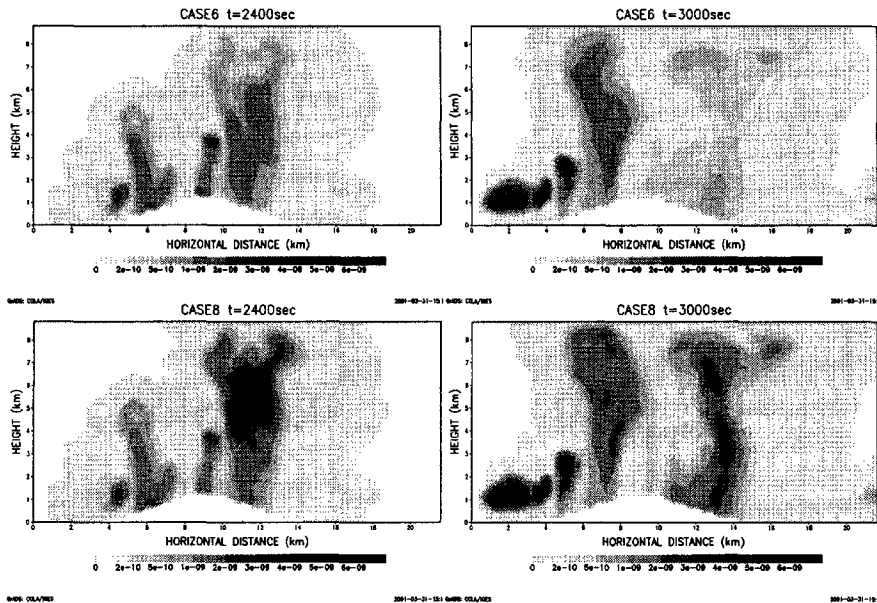


Fig. 7 Cross section distribution of sulfate ion mixing ratio of CASE6,8 [g/g].

まず、CASE3、CASE4 の総降雨量と比較する。Fig. 13 をみると CASE3 では 15[km] 地点付近をピークとする緩やかな降水分布となっているが、CASE4 では 10[km] 地点に局地的に大きな降水量のピークがある。Fig. 8、Fig. 9、Fig. 10 より CASE 3、CASE 4 とともに降雨量の多くは 40 分過ぎからの霰、雹などの氷粒子が融解することによる雨によりもたらされたものと考えられる。一方、Fig. 14 から地形のない CASE3 において硫酸イオンが最大の降下量を示すのは 10[km] 付近であり、これは雨が降り始めた場所と一致している。また、山岳

地形を導入した CASE4 では硫酸イオンの降下量が最大となる地点は 10[km] 地点付近であり、6-8[km] 地点でも硫酸イオンの降下量が多い。このように、硫酸イオンが地形の影響を受けている理由については以下のように考えられる。

地形を導入していない CASE3 では、Fig. 8 の上段に示されるように、最初にできた対流性雲が十分に発達してから雨を一度に降らせて、その後は雨を降らせて衰弱しながら風により移流している。対流性雲が十分に発達してから雨が降る際に硫酸イオンも上空に蓄えられたものが一度に降下するので



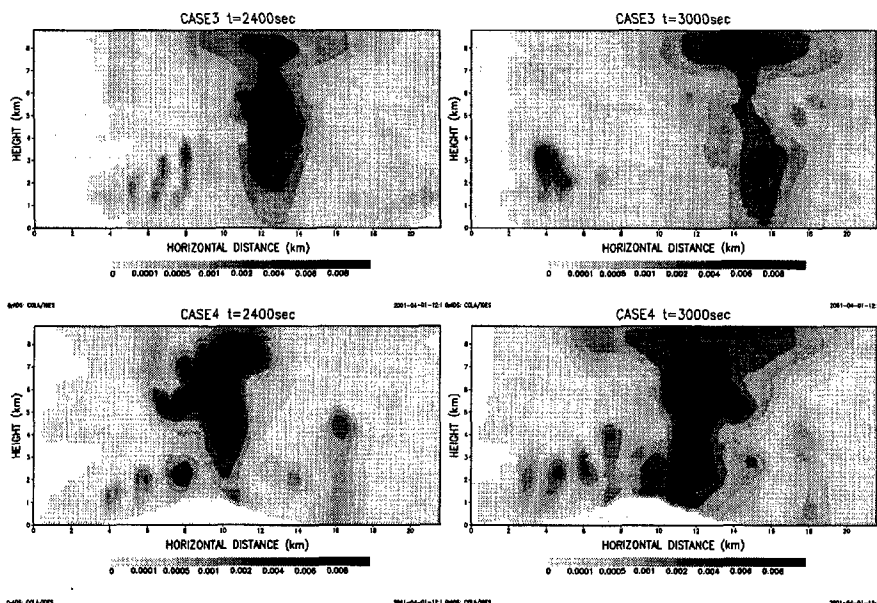


Fig. 8 Cross section distribution of water mixing ratio of CASE3,4 [g/g].

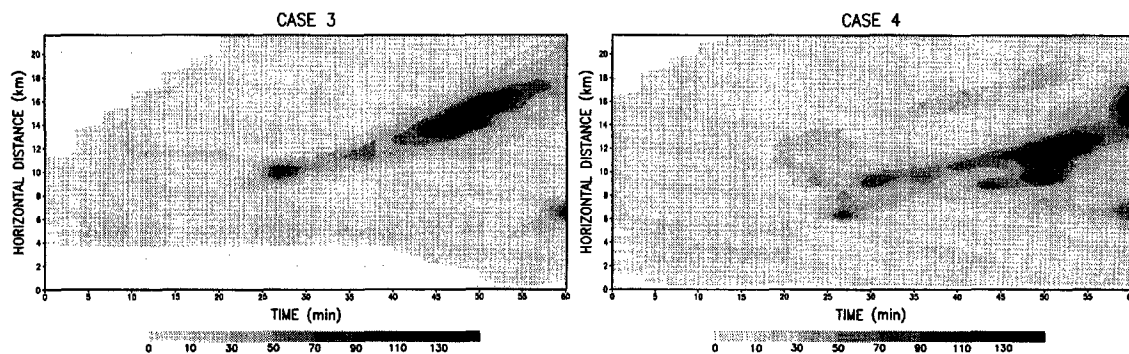


Fig. 9 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of rainfall intensity of CASE3 [mm/hr].

Fig. 10 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of rainfall intensity of CASE4 [mm/hr].

Fig. 11 に見られるように降雨初期の 10[km] 地点での降雨は大量の硫酸イオンを含んでいる。それが Fig. 14 の波線 (CASE3) の最大値をもたらしている。その後はほぼ等しい濃度の硫酸イオンが含まれるので、Fig. 14 の波線 (CASE3) を見ると降雨量が多い 15[km] 地点付近に小さなピークがある。

地形を導入した CASE4 では、Fig. 8 の下段に示されるように、発達した雲は山の風下斜面 (10[km] 地点付近) で雨を降らせ、さらに新しく風上斜面で生じた雲が加わって同一箇所に雨を降らせていることが分かる。風下斜面においては 40 分過ぎから強い降雨が生起しているので、その影響で硫酸イオンはその場所に大量に降る。それが Fig. 14 の実線 (CASE4) の最大値をもたらしている。さらに、山

岳地形があることによって雲は風上斜面 (6-8[km] 地点) で発達している最中にも弱い雨を降らせている。弱い雨の中にも硫酸イオンは含まれているので全硫酸イオン量としては第 2 のピークを形成し、その程度は降雨量における第 1 ピーク (10[km] 地点付近) に対する第 2 ピーク (6-8[km] 地点) の比よりは大きくなる。

以上より、対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下に与える影響は大きく、それは地形が降雨量に与える影響より大きな影響を総硫酸イオン量に与えているという結果が得られた。

#### 4.7 層状性降雨

層状性の大気プロファイルとしては 1998 年に長崎県雲仙地方で取得されたラジオゾンデのプロファ

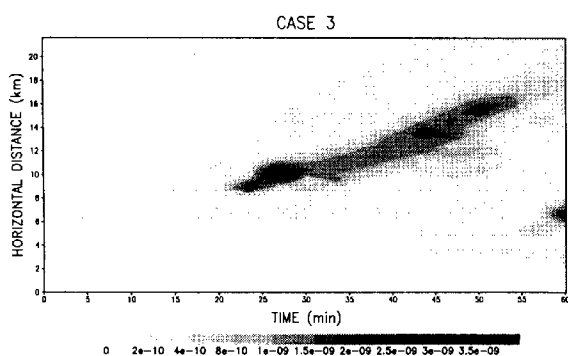


Fig. 11 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of sulfate ion fall intensity of CASE3 [ $\text{g}/\text{cm}^2\text{s}$ ].

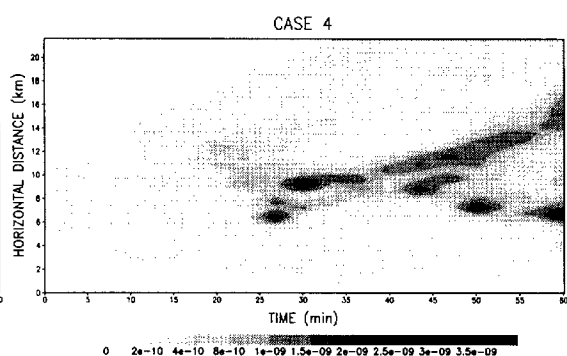


Fig. 12 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of sulfate ion fall intensity of CASE4 [ $\text{g}/\text{cm}^2\text{s}$ ].

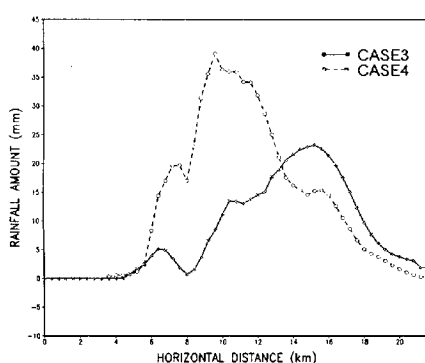


Fig. 13 Horizontal distribution of total rainfall amount of CASE3,4 [mm].

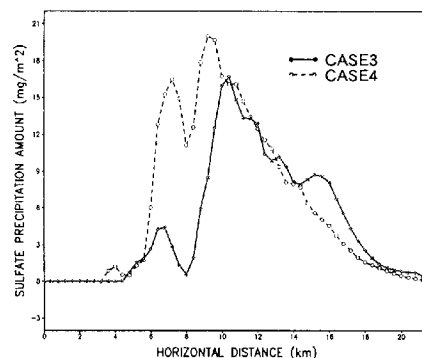


Fig. 14 Horizontal distribution of total sulfate ion amount of CASE3,4 [ $\text{mg}/\text{m}^2$ ].

Table 4 Condition for calculation of convective rainfall,

CASE	type of microphysics	wind [m/s]	mountain
1	warm rain	4.0	No
2	warm rain	4.0	Bell
3	cold rain	4.0	No
4	cold rain	4.0	Bell
5	warm rain	2.0	No
6	warm rain	2.0	Bell
7	cold rain	2.0	No
8	cold rain	2.0	Bell

イルを用いた。Fig. 15 にその気温プロファイルを、Fig. 16 にその水蒸気混合比プロファイルを示す。

また、山岳地形を導入した際に 1 時間では降雨を

降らせるほど雲が発達しなかったため層状性の降雨の計算時間は 2 時間とし、山岳の有無の 2 ケースについてシミュレーションを行い、地形のないものを CASE9、地形を導入したものを CASE10 とした。

#### 4.8 層状性降雨の際の特徴

層状性降雨の特徴を述べるため、CASE9（地形なし）と CASE10（地形あり）の雲中の降水粒子の混合比分布を Fig. 17, Fig. 18 に示した。地形のない場合は雲が生成し上昇気流が生じるが上空まで到達することができず高度 3 km 程度の雲頂高度までしかならず、雲の幅も 2 km 程度で雨域も小さい。構成粒子も雲粒や雨粒が大半を占めている。したがって対流性降雨と比較すると主たる雲物理過程は暖かい雨とみなすことができる。雲が成長しても凝結した水滴が大粒径水滴にならず雨は多くは降ることではない。また、Fig. 19 の左に CASE9（地形なし）、右に CASE10（地形あり）の降雨強度の時間分布を、Fig. 20 に同様に硫酸イオン降下量の

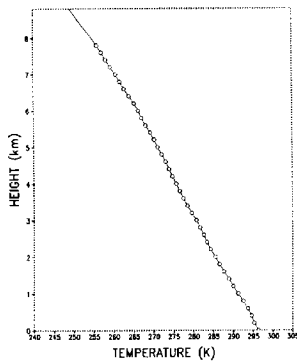


Fig. 15 Initial  $T$  for stratiform rainfall [K].

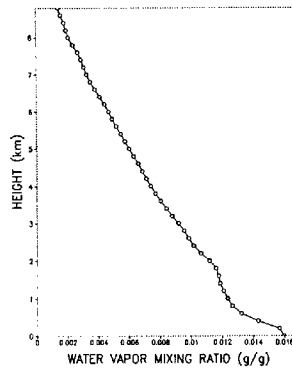


Fig. 16 Initial  $Q_v$  for stratiform rainfall [g/g].

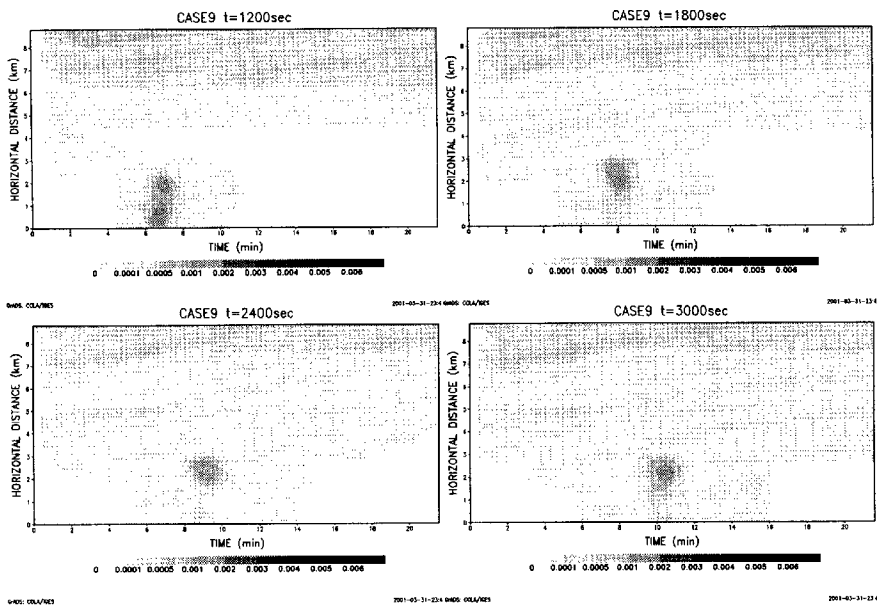


Fig. 17 Cross section distribution of water mixing ratio of CASE9 [g/g].

時間分布を示した。Fig. 20 に総降雨量を、Fig. 22 にイオン降下量を CASE9（地形なし）を実線で、CASE10（地形あり）を波線で示している。

#### 4.9 層状性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下について与える影響

地形を導入しない計算 (CASE9) では降雨強度は 20 mm/hr までであり、降雨の最初に強い降雨強度が得られた後は水平風により雨域が移動している。この時の全降水粒子の鉛直断面を Fig. 17 に示している。Fig. 20 の酸性物質の降下量を見ると降雨初期に多くの量の酸性物質が降下しているのがわかる。これは、雲の生成の際に凝結核として硫酸エ

アロゾルを取り込んだ結果であり、初期の高濃度の雲が地上に降下しながらさらに落下中にその下のエアロゾルを捕集したと考えられる。経時変化をみると雲の部分の硫酸イオンの量は初期の状態から緩やかに減少していることがみてとれる。初期に降水粒子中に混入した硫酸イオンが雲粒中に存在し、その雲粒の中で凝結や衝突をへて成長したのから落下していくものと考えられる。

地形のある場合にはない場合に比較すると降雨域が地形の影響により移動せずに山頂付近から少し風上側に停滞していることが Fig. 19 からわかる。CASE10 では雲底高度が山頂よりも低いために山頂を越える際に雨を降らせ、この時、風上側から水

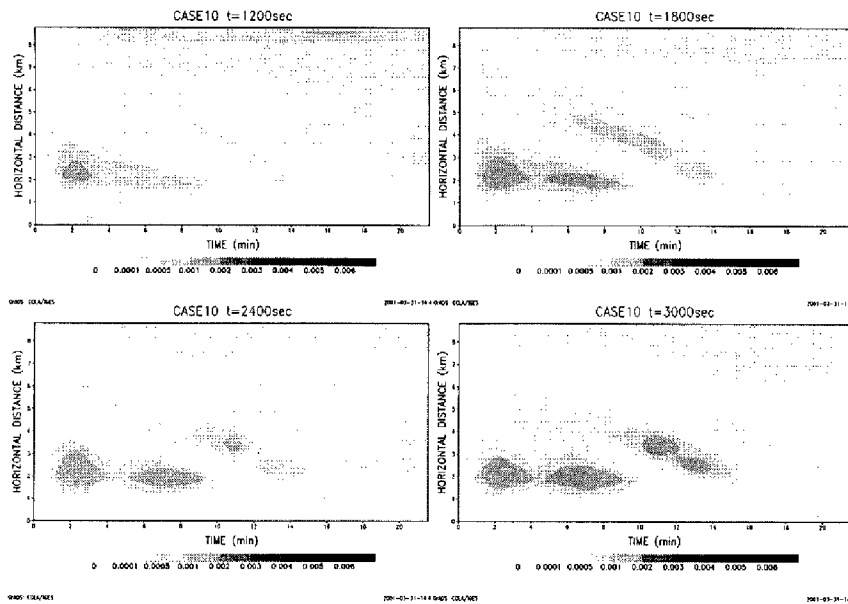


Fig. 18 Cross section distribution of water mixing ratio of CASE10 [g/g].

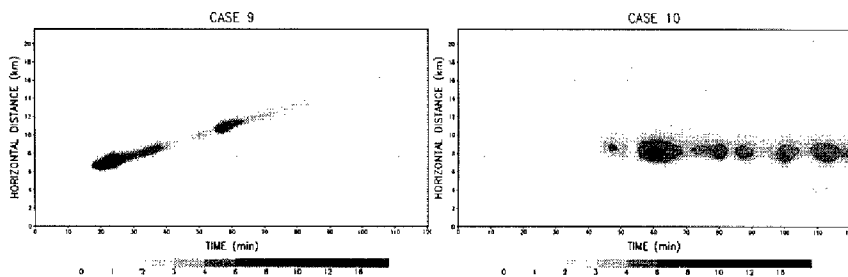


Fig. 19 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of rainfall intensity of CASE9,10 [mm/hr].

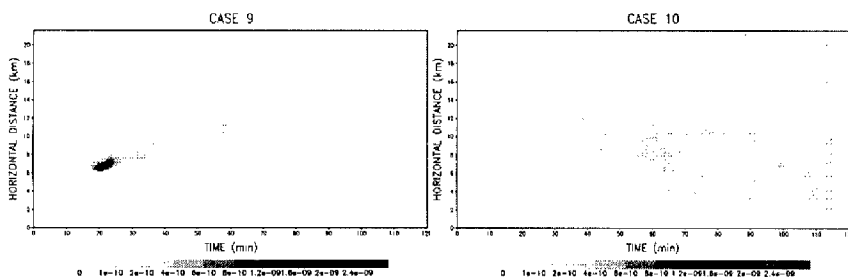


Fig. 20 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of sulfate fall intensity of CASE9,10 [g/cm<sup>2</sup>s].

蒸気が供給されているために連続して雲が発生し降雨をもたらせていることが、Fig. 18 からわかる。同様に酸性物質の取り込みに関してエアロゾルが凝結核として取り込まれる過程が多くを占めており、雲の発生高度が山頂と同程度であるために地形により地上への降下の領域が限定されて狭い範囲で長時間硫酸イオンの地表への降下が認められる。つまり、

この場合には山岳が存在することにより酸性物質の降下量に大きな局地性が生じている。そのことは、Fig. 21, Fig. 22 を見ると良く分かる。Fig. 22 において、CASE9 の 6-8 [km] 地点における硫酸イオンの降下量のピークは地形の影響ではないが、CASE10 の 9 [km] 地点におけるピークは地形の影響によって生じたものである。また、地形がない

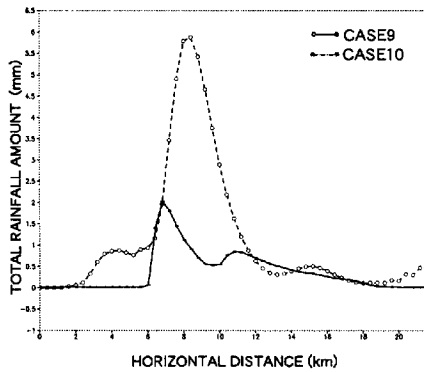


Fig. 21 Horizontal distribution of total rainfall amount of CASE9,10 [mm].

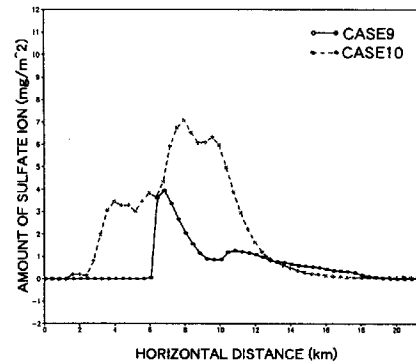


Fig. 22 Horizontal distribution of total sulfate ion amount of CASE9,10 [mg/m<sup>2</sup>].

場合 (CASE9) には硫酸イオンの降下量の空間分布は総降雨量とほぼ同じであるのに対し、地形がある場合には弱い降雨が生起している風上斜面にも多くの硫酸イオンを降下させていることが理解できる。

#### 4.10 降雪

酸性雪の特徴を見るために地表気温を低くして雲解像モデルのシミュレーションを行った。地表気温を 276[K] とし、気温減率を 4.4 の時と同様にプラントバイサラ数を  $10^{-4}$  とした。水蒸気の鉛直プロファイルは Fig. 24 に示す。初期の擾乱としては飽和水蒸気を与えた範囲は Fig. 4.4 と同じ領域であるが、気温の増加分最大値を +0.6 K と大きくした。この大気状態のプロファイルを CASE11 とした。このように地表気温を低くしてシミュレーションを行った際には雪と雨の混じる降水となった。地上における降雪と降雨をあわせた降水強度を Fig. 25 に示す。Fig. 25 より降雪は 2 度にわたっていることを見ることができる。

#### 4.11 雪中での硫酸イオン、硝酸イオンについて

地上への硫酸イオンの降下量を Fig. 26 に示す。降雪の事例が、他の降雨事例と比較して大きく異なる点は硫酸イオンの降下量が初期の降雪から 5 分程度の時間遅れを伴ってピークをむかえている点である。Fig. 27 に表されているように、降水粒子は 1200[s] 経過後には地上に達しているが、Fig. 28 に示されているように、硫酸イオンが大量にある部分は 1200[s] では上空にあり、1800[s] でようやく地上に達する。この時間遅れが降雪量が多い場所と硫酸イオン降下量が多い場所の違いを生んでいる。

この違いを生むメカニズムについては、水滴と氷

晶の硫酸イオンの取り込み過程の違いや、気温が低いことによる影響など様々な原因が考えられるが、ここまでの研究では説明できず、今後の研究課題とする。

## 5. 結論

本研究では詳細な雲物理過程を含む酸性雨・酸性雪予測モデルの開発とその適用を試み、酸性物質降下についての以下の結果が得られた。

1. bin 法を用いて降水粒子の粒径分布を計算できる雲解像モデルに、硫酸イオンや硝酸イオンなどの化学物質の取り込みや輸送過程を導入したモデルを完成させたこと。そのモデルは、硫酸イオンについてはやや過小評価であり、硝酸イオンについては適当な値を算出していること。
2. 暖かい雨のみで計算した硫酸イオン降下量は冷たい雨まで考慮した場合とほぼ同じとなり、酸性雨モデルとしての計算を行う場合には暖かい雨のみでも良い可能性を示した。
3. 対流性降雨において山岳地形が硫酸イオンの降下に与える影響は大きく、それは地形が降雨量に与える影響より大きな影響を総硫酸イオン量に与えているという結果が得られた。
4. 層状性降雨の場合には山岳が存在することにより酸性物質の降下量に大きな局地性が生じている。また、地形がない場合には硫酸イオンの降下量の空間分布は総降雨量とほぼ同じであるのに対し、地形がある場合には弱い降雨が生起している風上斜面にも多くの硫酸イオンを降下させていることが理解できる。
5. 降雪の場合には、降雨の場合と違って硫酸イオ

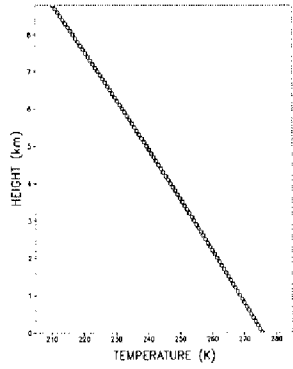


Fig. 23 initial  $T$  of for snow [K].

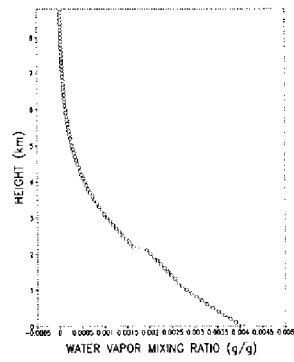


Fig. 24 initial  $Q_v$  for snow [g/g].

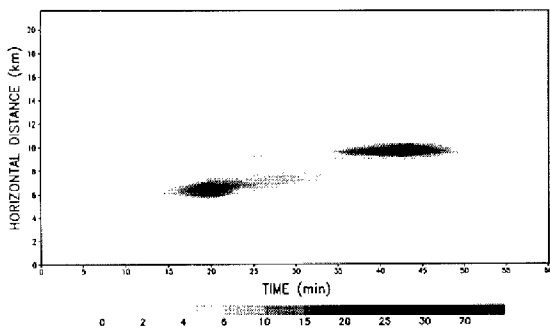


Fig. 25 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of precipitation (rain + snow) intensity of CASE11 [mm/hr].

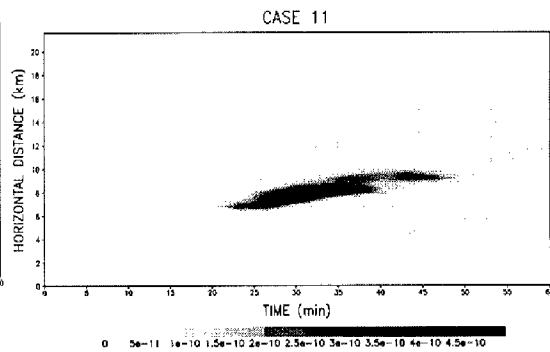


Fig. 26 Time series variation (x-axis) and spatial distribution (y-axis) of sulfate ion fall intensity of CASE11 [g/cm<sup>2</sup>s].

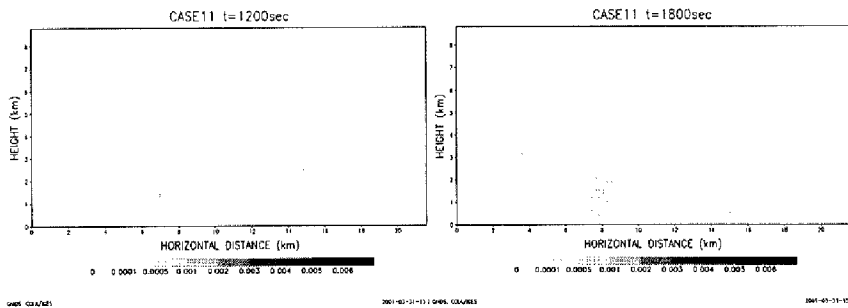


Fig. 27 Cross section distribution of water mixing ratio of CASE11 [g/g].

ンの降水量が初期の降雪から 5 分程度の時間遅れを伴ってピークをとり、また降雨量が多い地点と硫酸イオン降水量が多い地点が異なることがあり得ることが示された。

最後に、本研究で開発したモデルと大気中に酸性物質の観測データ、検証データの蓄積とあいまって酸性雨、酸性雪のメカニズム解明の一助となることを願い、本研究の結論とする。

#### 参考文献

- 阿波田康裕 (1993) : 雲の微物理過程に関する詳細な定式化を用いた 2 次元積雲モデルの数値実験, 京都大学修士論文.
- 大石哲 (1997) : 積雲の雲物理構造解析を基礎にした洪水制御支援環境の開発に関する研究, 京都大学学位論文.

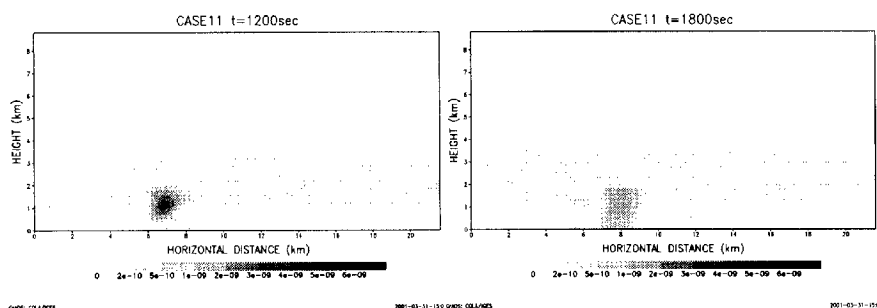


Fig. 28 Cross section distribution of sulfate ion mixing ratio of CASE11 [mg/ℓ].

芝定孝・平田雄志・八木俊策 (2001) : 凝結成長期における雲粒の酸性化におよぼす酸化反応の影響, 水工学論文集, 第45巻, pp.277-282.

Asai, T. (1965) : A Numerical Study of the Air-mass Transformation over the Japan Sea in Winter, *J. Meteor. Soc. Jpn.*, 43, pp.1-15.

Cotton, W.R. (1972) : Numerical simulation of precipitation development in super-cooled nuclei Part 2, *Mon. Wea. Rev.*, 100, pp.764-784.

Fletcher, N.H. (1962) : The physics of Rain-clouds, Cambridge University Press, p.386.

Hallet, J. and S.C. Mossop (1974) : Production of Secondary Ice Particles During the Riming Process, *Nature*, 249, pp.26-28.

Kovetz, A. and B. Olund (1969) : The Effect of Coalescence and Condensation on Rain Formation in a Cloud of Finite Vertical Extent, *J. Atmos. Sci.*, 26, pp.1060-1065.

Rutledge, S.A., D.A. Hegg and P.V. Hobs (1986) : A Numerical Model for Sulfur and Nitrogen Scavenging in narrow Cold-Frontal Rainbands, 1. Model Description and Discussion of Microphysical Fields, *J. of Geophysical Res.*, Vol. 91, No. D13, pp.14385-14402.

Takahashi, T. (1976) : Warm Rain, giant nuclei and chemical balance, *J. Atmos. Sci.*, 33, pp.269-286.

Valdez, M.P. and Dawson, G.A. (1989) : Sulfur Dioxide Incorporation into Ice Deposition from the Vapor, *J. of Geophysical Res.*, Vol. 94, No. D1, pp.1095-1103.

Vali, G. (1968) : Ice Nuclei Relative to Formation of Hail, *Sci. Rept. MW-58*, Stormy Weather Group, McGill University Montreal Canada, p.51.

## Development of the prediction model for acid rain and snow considering the detailed cloud microphysical processes

Satoru OISHI\*, Mitsuhiro MATSUI\*\*, and Shuichi IKEBUCHI

\* Faculty of Engineering, Yamanashi University

\*\* Graduate School of Engineering, Kyoto University

### Synopsis

Recently the issue of acid rain and acid snow is deeply concerned as the one of the global environmental problems. Many prediction models for predicting precipitation of acid rain have been developed. However most of them are using the parameterized cloud microphysical processes so called bulk method. The size distribution of cloud droplets is important for considering the transportation and transformation of acidic species among each water phases. The size distribution of cloud droplets is calculated by detailed microphysical processes so called bin method. Therefore in this study we developed the prediction model for acid rain and acid snow by using the detailed microphysical processes. Moreover we also investigated the mechanism of acid rain and snow by using the developed model.

**Keywords :** acid rain and acid snow, cloud microphysics model, bin method, topography, convective and stratiform cloud