

臨海地域에 있어서의 流場과  
옥시단트 濃度의豫測<sup>1)</sup>

Silmulations of Flow Field and Photochemical Oxidant  
Concentration in Bay Area

山口克人<sup>2)</sup>, 近藤 明<sup>2)</sup>

ABSTRACT

Photochemical oxidants is one of the most remarkable pollutions today in Japan, and high oxidants concentration which exceeds twice as high as the environmental standard is often observed in the big urban areas. In this study, we developed a comprehensive prediction model for atmospheric pollutants concentration including O<sub>3</sub>, NO, NO<sub>2</sub> and other pollutants. This model is consisted of two major parts. One is prediction model for meteorological fields such as wind velocity, turbulent diffusivity, potential temperature, specific humidity and another is that for pollutants concentration based on the predicted meteorological fields. The latter model includes transport/diffusion, dry deposition and photochemical reactions. Emission data for NO<sub>x</sub> and H C was estimated as exactly as possible. We made simulations to reproduce O<sub>3</sub>, NO and N O<sub>2</sub> concentration on 4 Aug 1990 when higher oxidant concentration was observed at several observing stations in Hyogo Pref. Diurnal variations of simulation results were similar to observations, but peak value of O<sub>3</sub> could not reproduce perfectly. However simulation results are generally good agreement with observations and we can use this model effectively to predict atmospheric pollutants concentration.

*Keyword:* photochemical oxidants, dry deposition, photochemical reactions, emission, NO<sub>x</sub>

1. 序論」

요즘 이산화탄소를 주로 하는 溫室效果 가스에 의한 地球溫暖化나 후론에 의한 오존 층 파괴, 또한 산성우등 地球環境問題가 세기에 향한 인류의 과제로 되고 있다. 그러나 한편 日本에서는 종래 부터의 국지적 대기오염이 당연히 큰 문제가 되고 있다. 현재 환경기준이 설정되고 있는 오염물질중, 이산화황(SO<sub>2</sub>)과 일산화탄소(CO)는 환경기준 이하로 거의 문제가 해결되고 있지만 이산화질소(NO<sub>2</sub>)와 부유입자상물질(SPM) 및 옥시단트는 아직 환경기준을 만족하고 있지 않다. NO<sub>2</sub>는 최급한 과제로서 1992년 「자동차 NO<sub>x</sub>削減特別措置法」이 東京, 神奈川, 阪神地域에 제정되어 자동차 배출량의 총량을 삭감했다. 동시에 전기자동차 등의 저공해차의 적극적 도입에 의한 2000년에는 환경기준을 만족하는 계획이 현재 진행 중이다.

광화학 옥시단트는 1995년에 주의보 발령일(環境基準에 2배의 농도가 관측되어 그 상태가 계속한다고 판단되는 날)이 139일<sup>(1)</sup>로서 환경기준 달성을 아주 먼 상태에 있으므로 그 개선이 NO<sub>2</sub>對策에 따른 과제로 되어 있다. 이 광화학 옥시단트는 공장이나 자동차에서 배출된 질소산화물과 자동차, 도장공정, 식물 등에서 배출되는 탄화수소류를 중심으로 하는 일차 오염물질이 대기중에서 태양 광선에 쪼여서 복잡한 광화학 반응

을 일으켜 이차생성물질로서 生成된 오존, PAN등의 강한 산화력을 갖는 물질로서 광화학 스모그의 원인이 되어 사람이나 식물에 악영향을 미치는 것외에 요즘에 와서 문제가 되고 있는 溫室效果 가스이다.

본 연구에서는 이 광화학 옥시단트의 오염상태의 개선을 목적으로 광화학 반응을 포함한 대기오염 농도 예측모델을 작성하여 배출원이 집중된 沿岸地域을 대상으로 시뮬레이션을 하여 실측치와 비교하여 모델의 精度의 檢證과 모델의 精度向上을 위한 제과제를 검토하였다.

## 2. 시뮬레이션 모델의 概要

本研究에 使用한 시뮬레이션모델은 「OASIS」(Osaka university Atmospheric Simulation System)라 칭하는 종합적 대기환경 시뮬레이션이다. 대별하여 氣象場 諦測 모델과 거기에서 예측된 流場(흐름의 장, flow field)을 기초로 전성침착·광화학 반응을 포함한 대기오염물질 농도 예측모델로 구성된다.

### 2.1 기상장 예측모델

농도 계산을 할 때 필요한 기상장의 예측을 사용하여 기초방정식은 운동방정식, 온위방정식, 比濕方程式, 連續의 式, 靜水力學方程式로서 그 해석법은 近藤等<sup>2)</sup>이 설명한바 있으며 여기서는 생략한다. 사용한 기초 방정식을 (Table-1)에 提示했다. 以下の 농도 계산에 사용한 풍속 및 垂直方向擴散係數는 계산 시간 절약을 위해 24時間分을 계산하여, 이 가운데서 1시간 매 자<sup>2</sup>를 ディスク레이스로 기억시킨 것에서 線型內<sup>2</sup>로 하여 사용하였다.

### 2.2 大氣汚染物質濃度 諦測 모델

#### 2.2.1 移流擴散 方程式

대기중의 오염물질 농도를 예산할 때 중심이 되는 이류확산 방정식은 본 구에서는 Z\* 좌표계를 사용하였다.

수식은 다음 식으로 탁냈다

(Table-1) 흐름의 基礎方程式

#### 運動方程式

$$\frac{Du}{Dt} = f_x - C_p \theta \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + g \frac{\bar{z} - z}{s} \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left( K_H \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H \frac{\partial \bar{U}}{\partial y} \right) + \frac{s}{s - z_s} \frac{\partial}{\partial z} \left( - \bar{w}' w' \right) \quad (1)$$

$$\frac{Dv}{Dt} = -f_y - C_p \theta \frac{\partial \bar{V}}{\partial y} + g \frac{\bar{z} - z}{s} \frac{\partial \bar{V}}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left( K_H \frac{\partial \bar{V}}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H \frac{\partial \bar{V}}{\partial y} \right) + \frac{s}{s - z_s} \frac{\partial}{\partial z} \left( - \bar{v}' w' \right) \quad (2)$$

#### 運動方程式

$$\frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + \frac{\partial \bar{V}}{\partial y} + \frac{\partial \bar{w}}{\partial z} - \frac{1}{s - z_s} \left( \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + v \frac{\partial \bar{U}}{\partial y} \right) = 0 \quad (3)$$

ここで、

$$w' = \frac{s}{s - z_s} w + \frac{\bar{z} - z}{s - z_s} \left( u \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} + v \frac{\partial \bar{U}}{\partial y} \right) \quad (4)$$

#### 運動方程式

$$\frac{Dg}{Dt} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K_H \frac{\partial \bar{q}_r}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H \frac{\partial \bar{q}_r}{\partial y} \right) + \frac{s}{s - z_s} \frac{\partial}{\partial z} \left( - \bar{w}' \theta' \right) \quad (5)$$

#### 比重方程式

$$\frac{D\bar{q}_r}{Dt} = \frac{\partial}{\partial z} \left( K_H \frac{\partial \bar{q}_r}{\partial z} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H \frac{\partial \bar{q}_r}{\partial y} \right) + \frac{s}{s - z_s} \frac{\partial}{\partial z} \left( - \bar{w}' \theta' \right) \quad (6)$$

#### 靜水圧方程式

$$\frac{\partial \bar{P}}{\partial z} = \frac{\bar{z} - z_s}{s} \frac{g}{C_p \theta} \quad (7)$$

#### 亂流 에너지 方程式

$$\begin{aligned} \frac{D(\sigma')}{Dt} &= \frac{\partial}{\partial z} \left[ K_H \frac{\partial(\sigma')}{\partial z} \right] + \frac{\partial}{\partial y} \left[ K_H \frac{\partial(\sigma')}{\partial y} \right] \\ &+ \left( \frac{s}{s - z_s} \right)^2 \frac{\partial}{\partial z} \left[ \sigma' \bar{U} \frac{\partial(\sigma')}{\partial z} \right] \\ &+ \frac{s}{s - z_s} \left( - \bar{w}' \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} - \bar{v}' w' \frac{\partial \bar{U}}{\partial z} \right) + \theta' \bar{w}' \theta' \\ &- \frac{a^3}{B_f} \end{aligned} \quad (8)$$

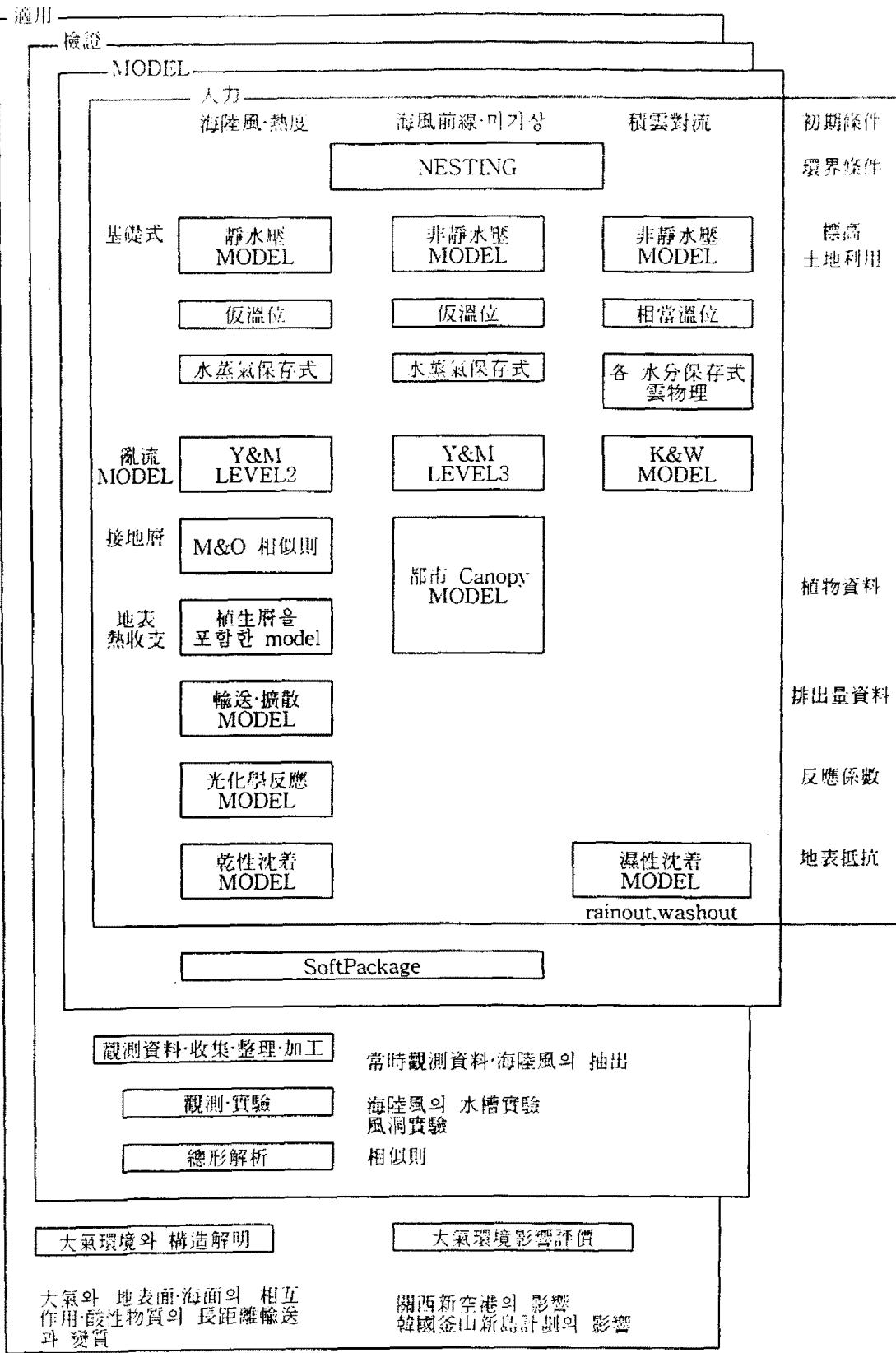
#### 亂流 질이의 눈금 方程式

$$I_1 = \frac{\bar{z} - z_s}{1 - \left( \frac{\bar{z} - z_s}{L_2} \right)}, \quad I_2 = 0.2 \frac{\int_{z_s}^{\bar{z}} \frac{dz}{\sigma'} dz}{\int_{z_s}^{\bar{z}} \sigma' dz} \quad (9)$$

#### 上式中の 亂流 flux

$$\begin{aligned} (\bar{w}' w', \bar{v}' w') &= -q \Sigma_{xy} \frac{s}{s - z_s} \left( \frac{\partial \bar{U}}{\partial z}, \frac{\partial \bar{U}}{\partial y} \right) \\ (\bar{w}' \theta', \bar{w}' q_r') &= -q \Sigma_{yq} \frac{s}{s - z_s} \left( \frac{\partial \bar{U}}{\partial z}, \frac{\partial \bar{q}_r}{\partial y} \right) \end{aligned} \quad (10)$$

$S_{xy}, S_{yq}$  : flux Richardson數의 関数



<Fig-0> 地域大氣環境시뮬레이터(OASIS)

$$\frac{\partial c_i}{\partial t} = -u \frac{\partial c_i}{\partial x} - v \frac{\partial c_i}{\partial y} - w \cdot \frac{\partial c_i}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} \left( K_H^{(i)} \frac{\partial c_i}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( K_H^{(i)} \frac{\partial c_i}{\partial y} \right) \quad (11)$$

$$+ \frac{s}{s-z_g} \frac{\partial}{\partial z} \left( -w c_i \right) + R_i + Q_i \quad (12)$$

$$-w c_i = -Q_i C_B \left( \frac{s}{s-z_g} \right) \frac{\partial c_i}{\partial z} \quad (12)$$

移流擴散方程式中의  $i$ 는 汚染物質의 種類,  $c$ 는 오염물질의 농도,  $s$ 는 計算領域上端의 고도,  $z_g$ 는 표고,  $K_H^{(i)}$ 는 오염물질의 水平方向擴散係數,  $-w c_i$ 는 수직 방향의 亂流擴散係數의 flux이다. 또한  $R_i$ 는 광화학 반응에 있어서의 生成消滅率,  $Q_i$ 는 高所배출원에 의한 排出率이다. 식(11)의 移流項에는 反復風上差分法을<sup>3)</sup> 사용하여 수평 방향의 확산계수 flux는 식(12)의  $q$ ,  $l$ ,  $S_H$ 를 Yamada 2.5 model<sup>4)</sup>에서 구하였다.

### 2.2.2 乾性沈着 모델

오염물질의 乾性沈着은 沈着速度  $v_g$ 를 식(13)과 같이 정의하여 이것을 사용하여 지표면에서의 flux  $F$ 를 식(14)와 같이 설정했다.

$$v_g = \frac{l}{\gamma_t} = \frac{l}{\gamma_a + \gamma_b + \gamma_c} \quad (13)$$

$$F = -v_g \cdot c + 2g \quad (14)$$

으로 구하여 이것을 사용하여 지표면에서의 flux  $F$ 를 수식과 같이 설정하였다. 여기에서  $Q_{st}$ 는 지상 배출원에서의 flux이다.

### 2.2.3 光化學反應 모델

본 연구에서는 광화학 반응 모델로서 Gery et. al6)에 의한 CBM-IV를 사용했다. CBM-IV는 현재 대기오염물질 농도 예측으로서 일반적으로 잘 사용되고 있는 모델의 하나로서 33종류의 반응성분 종류와 81개의 반응식에서 구해진다. 이 모델은 광화학 반응으로서 중요한 역할을 하는 반응 탄화수소를 一重結合이나 二重結合이 되고 있는 탄소간의 결합에 의하여 몇 개의 공통된 그룹으로 분류된다. 탄소결합법(Carbon bond mechanism, CBH)을 사용한 것에 의하여 모델화 된 것이다. 이 탄화수소의 분류의 구별은 환경 중에서의 중요성과 특수한 반응을 하는 것에 의하여 특별히 취급하는 폼 알데히드(Form), ETH, ISOP, 와 일중결합의 PAR, 이중결합의 OLE, 카보닐기를 갖는 ALD2, 7개의 탄소를 갖는 방향족 톨루엔(TOL), 8개의 탄소를 갖는 방향족 키실렌(XYL)의 8종류이다.

## 3. 排出量의 選定

옥시단트 농도의 예측을 할 때에는 배출량의 과학은 대단히 중요하다. 여기에서는 본 연구에서는 발생 오염 물질로서, 질소산화물과 탄화수소를 대상으로 배출량의 산정을 하였다. 배출원과 질소산화물에 대하여서는 공장·사무소, 자동차, 선박, 군소발생원, 항공기의 5 종류, 탄화수소에 대하여서는 貯藏, 出荷, 給油, 製造, 塗裝, 建築塗裝, 印刷, 金屬 등 表面處理, 크리닉, 接着劑, 기타의 溶剤使用過程 등 매연 배출시설, 자동차의 12종류의 인공발생량과 식물에서의 자연 발생원의 계 13종류가 있다. 여기에서 그 算定結果로서는 <Fig-1>의 질소산화물, <Fig-2> 人工 배출원에서의 탄화수소, <Fig-3>자연 발생원에서 탄화수소의 총 배출량의 지도를 제시했다.

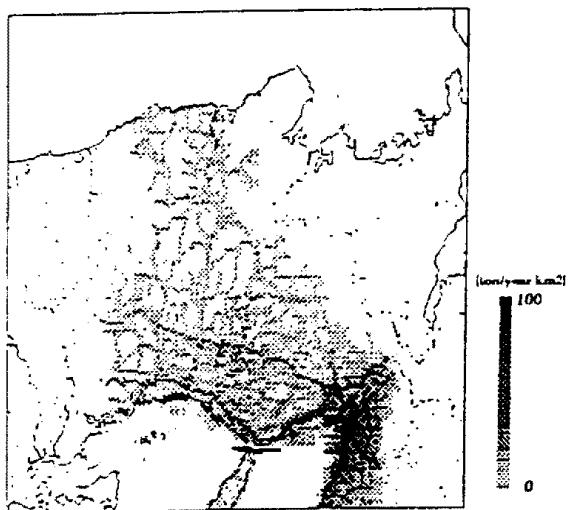
또한 실제 시뮬레이션을 할 때 이것들을 계산하여 메뉴에 配分하였다. 이때 각각의 배출원에서 경시 변동을 사용한 시간에 따라 배출량을 산정하여 공장, 선박의 배출에

대하여서도 유효 굴뚝 높이를 산출하여, 고도별의 배출로서 분류하였다. 또한, 오염물질의 조성으로서 질소산화물은 일산화질소와 이산화질소를 9:1로 하여 탄화수소는 각 배출원에 따라 종류별 구성비를 사용하여 일반화학 종류에 배분하였다. 이것을 또한 2.2.3에 설명한 CBM-IV에 사용 화학종에 배분하였다.

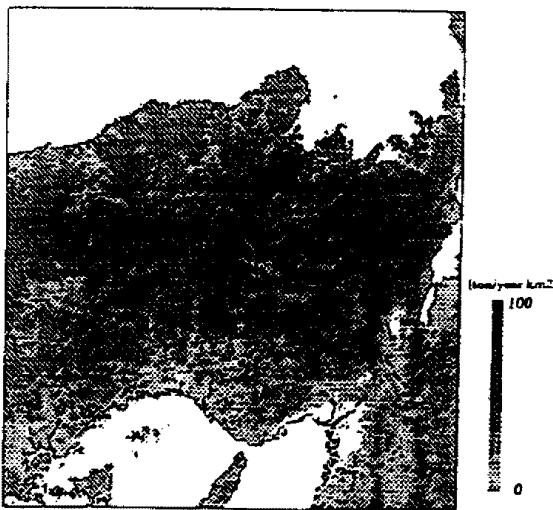
#### 4. 計算 條件

##### 4.1 計算 領域

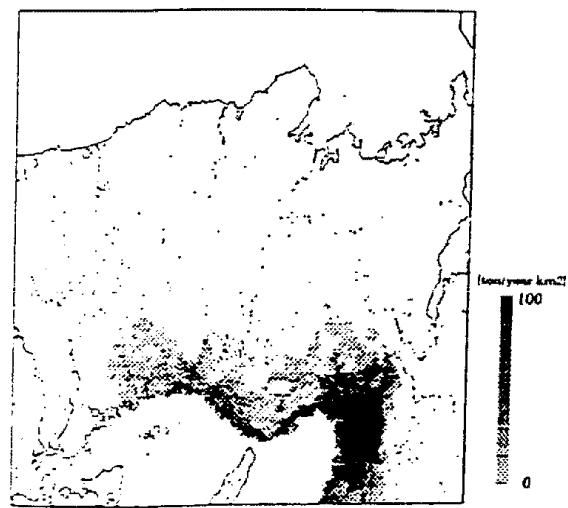
본연구의 계산 영역은 <Fig-4>에 제시한 동경  $133^{\circ} 48' \sim 136^{\circ} 04'$ , 북위  $34^{\circ} 26' \sim 35^{\circ} 56'$  범위내의 지역으로서 동서 180km, 남북 180km(1매슈 약 6km의 30매슈  $\times$  30매슈)의 영역이다. 수직 방향은 계산 영역의 상면의 고도를 5000m(식(11)에 의한 s)로 지표면 부근에서 매슈 간격을 세분하는 15층의 불균등 매슈를 사용하였다.



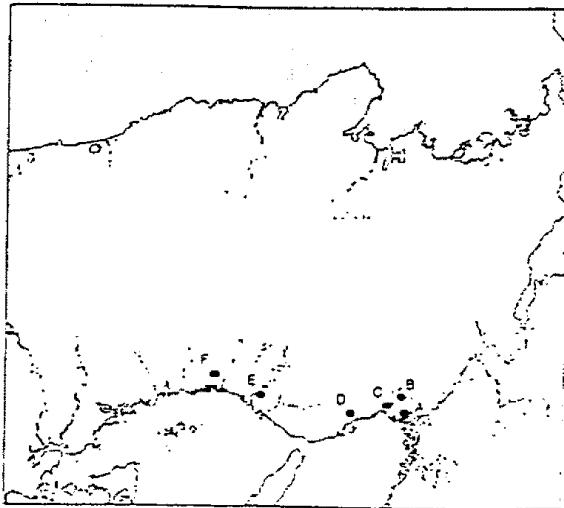
<Fig-1> 窒素酸化物 排出量 地圖



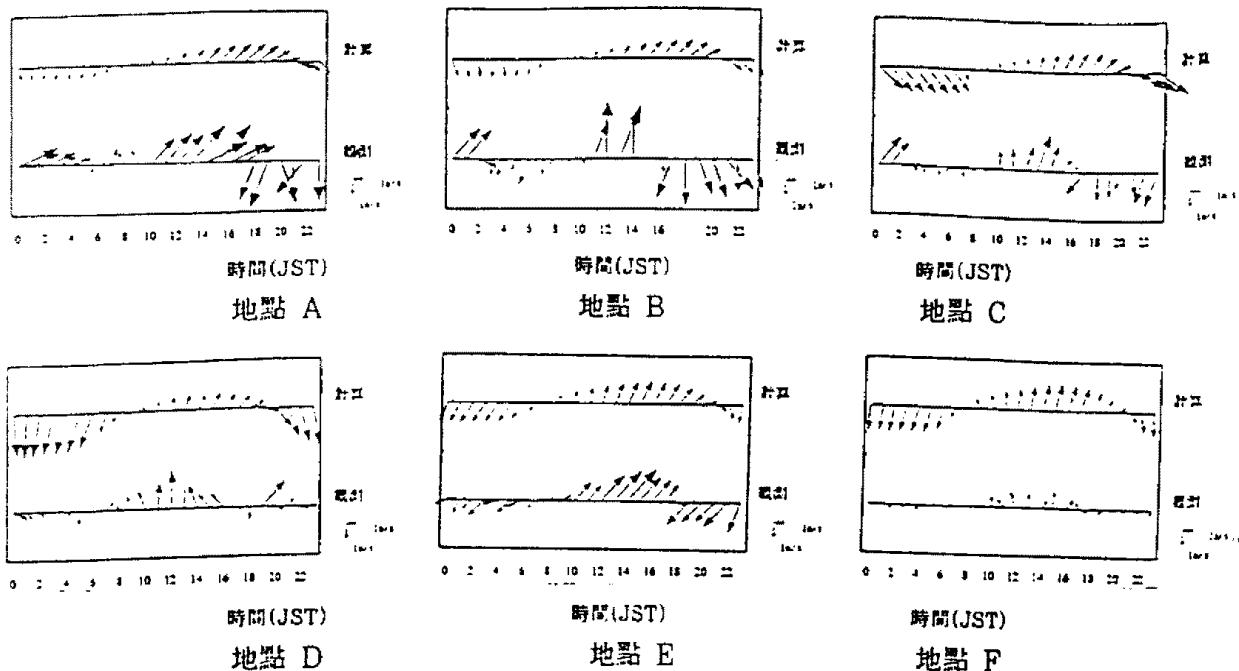
<Fig-2> 自然發生源에서의 炭化水素  
排出量 地圖



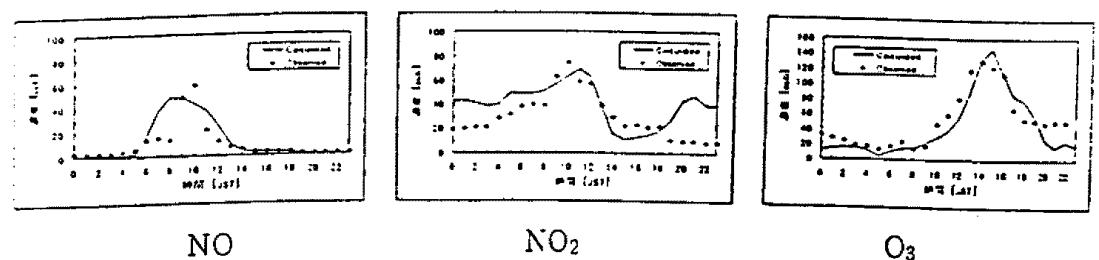
<Fig-1> 人工發生源에서의 炭化水素  
排出量 地圖



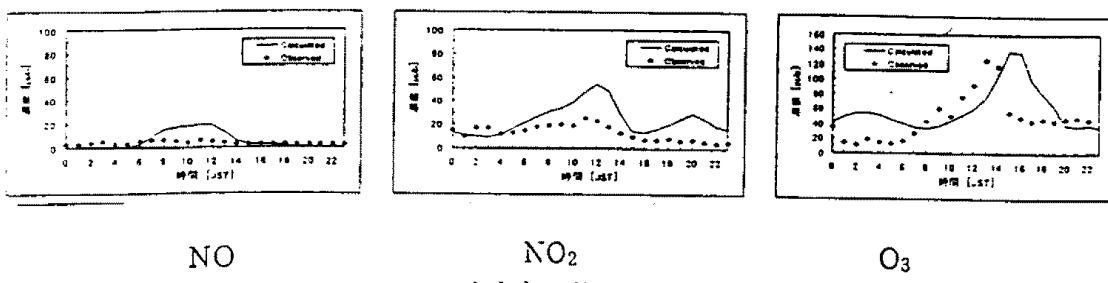
<Fig-2> 計算領域 및 觀測點



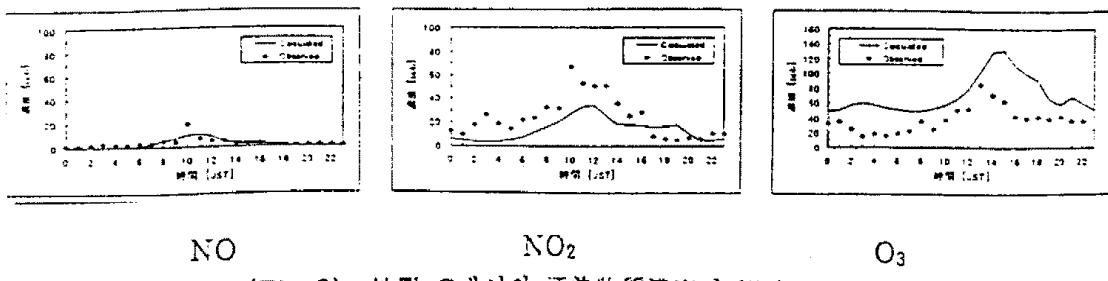
〈Fig-5〉 각 地點에서의 風速의 經時 變化



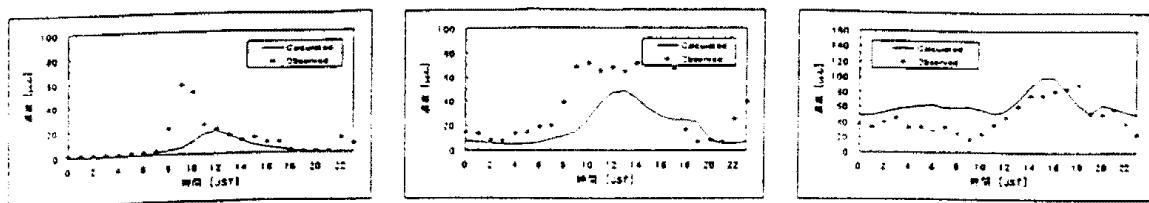
〈Fig-6〉 地點 A에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



〈Fig-7〉 地點 B에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



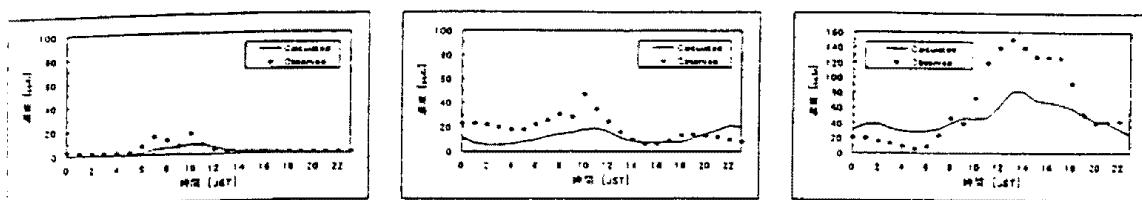
〈Fig-8〉 地點 C에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



NO

NO<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

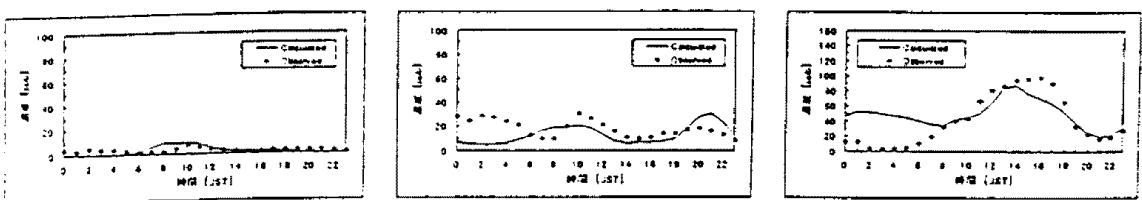
〈Fig-9〉 地點 D에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



NO

NO<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

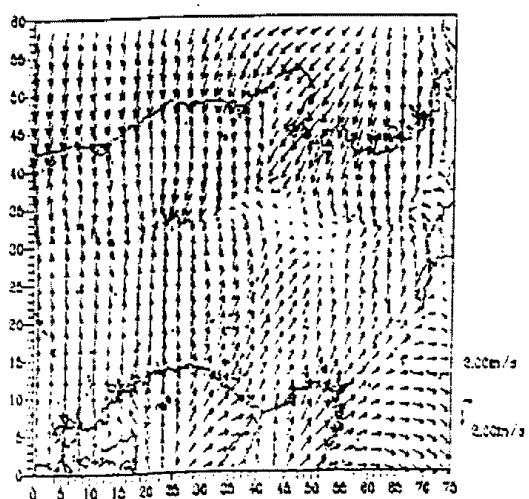
〈Fig-10〉 地點 E에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



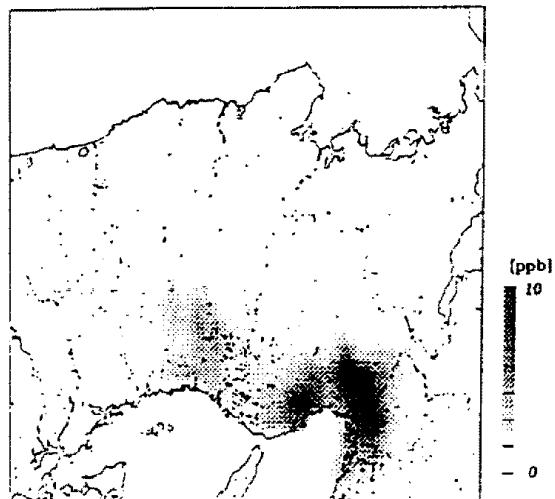
NO

NO<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

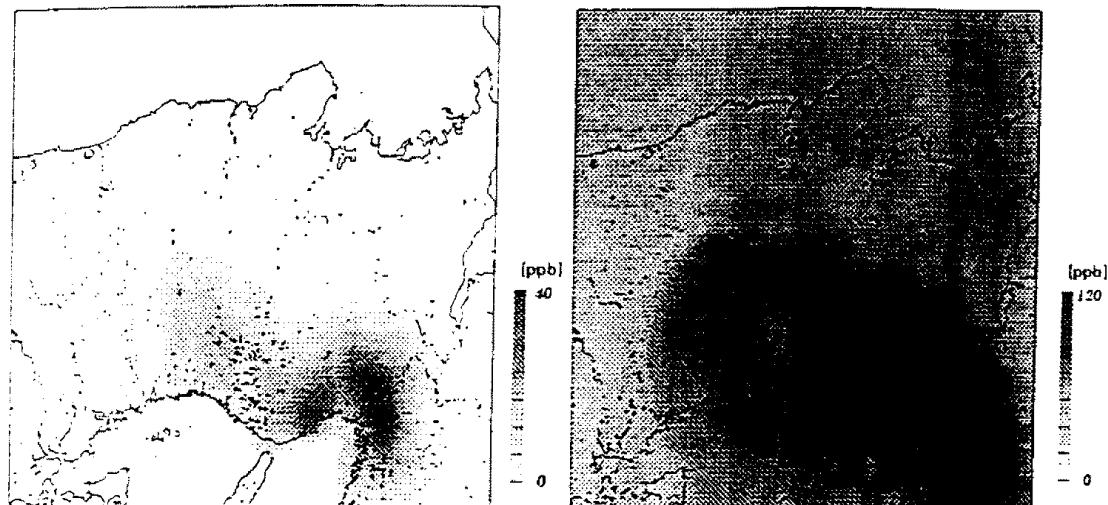
〈Fig-11〉 地點 F에서의 汚染物質濃度의 經時 變化



〈Fig-12〉 14:00의 風系(風向系統圖)



〈Fig-13〉 14:00의 NO空間分布



〈Fig-14〉 14:00의 NO<sub>2</sub> 空間分布

〈Fig-15〉 14:00의 O<sub>3</sub> 空間分布

#### 4.2 計算 日時

이번 계산 대상 일시는 1992년 8월 2일 10시에서 72시간 하였으며, 예측 대상 일시를 1992년 8월 4일 0시에 24시간으로 하였다. 이날은 남쪽에서 해양성 고기압이 확장되었고, 해육풍이 발달하여 아주 맑은 날로서 고농도의 옥시단트가 발생하기 쉬운 조건이 비교적 갖추어져 있었다고 생각된다. 이 날의 광화학 옥시단트 농도도 광역적으로 높게 되었으리라는 이유로 선정되었다.

#### 5. 計算 結果

〈Fig-4〉 제시한 6개지점에 있어서의 관측치와 계산치와의 풍속의 비교를 〈Fig-5〉에, 그리고 농도 비교를 〈Fig-6 ~ Fig-11〉에 제시하였다. 또한 하루중 가장 높은 옥시단트 농도가 관측된 14시의 風系와 각 오염 물질의 농도의 공간 분포를 〈Fig-12~Fig-15〉에 합쳐서 제시하였다.

#### 6. 結論

옥시단트의 경시 변화에 대하여 개략적으로 일치되어 있으며, 이번 사용한 모델에서 는 옥시단트 농도를 예측 할 수 있었다.

그러나 피크치의 재현성에 대해서는 모든 점에서 일치한다고 얘기하기는 어렵다. 그 이유로서는 이번 계산 지역에 지형 구조의 복잡성에 비하여 매슈 거칠고, 흐름의 장의 재현성이 완전하지 않았다는 점, 또한 매슈가 거칠기 때문에 배출량 데이터가 균일화되었다고 생각된다. 따라서 관측치 자체가 지역 대표성 여부를 종합하여 앞으로 더 연구 할 필요가 있다.

## 參 考 文 獻

- 1) 環境總論：環境白書・總說，平成8年度版，大藏省印刷局，383-386(1997)
- 2) Akira Kondo, Katsuhito Yamaguchi and Hee Kwan Ahn: Simulation of Climatic Effects by Construction of Reclaimed Island in Pusan, Korea, *Atmos. Environ.*, Vol 30, No 13, 2437-2448(1996)
- 3) Piotr K. Smolarkiewicz: A Simple Positive Definite Advection Scheme with Small Implicit Diffusion, *Mon. Wea. Rev.*, Vol. 111, 479-486(1983)
- 4) T. Yamada: Simulation of Nocturnal Drainge Flows by a Turbulence Closure Model, *J. Atmos. Sci.* 40, 91-106(1983)
- 5) 吉川, 山口, 近藤, 辻, 寸田: 大氣汚染乾性沈着, 空氣調和・衛生工學會近畿地府學術研究發表會論文集, 67-70(1991)
- 6) Michael W. Gery, Gary Z. Whittenm, James P. Killus and Marcia C. Dodge: A Photochemical Kinetics Mechanism for Urban and Regional Scale Computer Modeling, *J. Geophys. Res.*, Vol. 94, No. D10, 12.925-12.956(1989)