

C-1 東アジア地域の大気汚染物質発生・沈着マトリックス作成と国際共同観測に関する研究

(3) 東アジア地域の大気汚染物質の発生、輸送、変質、沈着モデル開発に関する研究

① 東アジア地域のEMEP型大気汚染物質発生・沈着マトリックス作成に関する研究

独立行政法人国立環境研究所

大気圏環境研究領域

村野健太郎

大気圏環境研究領域大気物理研究室

菅田誠治

京都大学防災研究所

植田洋匡

静岡大学工学部

大原利真

(研究協力機関) 山梨大学工学部

片谷教孝

平成11-13年度合計予算額 50,881千円

(平成13年度予算額 16,162千円)

〔要旨〕東アジア地域の酸性物質の排出、移流、沈着について、地域気象モデルと物質輸送モデルを組み合わせ、モデルの基礎データの精度を上げることで、より実測に即したシミュレーションモデルの改良を行った。1999年1月後半～2月前半、九州西部において航空機観測を含む集中観測が実施され高濃度サルフェイトが観測された。この期間は日本列島において最も沈着量が多い季節でもある。本研究は最初に、地域気象モデルRAMSと物質輸送モデルHYPACTを結合したモデルを構築し同期間を対象としたシミュレーションの結果、RAMSによって気象要素の基本的特徴が再現され、その結果を用いたHYPACTによって地上と上空で観測された硫黄酸化物の時空間変動が再現できたことを述べた。次に結合モデルを用いた数値解析によって、高濃度イベント時の発生源地域別寄与及び1ヶ月間に日本列島に沈着した硫黄酸化物の発生源地域別寄与を明らかにした。最後に、1995年の夏季7月と冬季12月を対象に、日本列島を中心とした東アジア地域におけるソース・リセプター関係を定量化しソースリセプター・マトリックスを作成した。その結果によると日本への硫黄酸化物沈着量の発源地域別寄与率は、7月には火山34%、日本30%、中国15%、朝鮮半島12%、12月には中国57%、朝鮮半島18%、日本13%、火山7%であり季節によって大きく変化する。この季節による違いは、気候(風と降水)の季節変動に対応している。1995年のシミュレーション結果をもとに、夏期と冬期における日本列島の硫黄酸化物の物質収支を比較すると、夏期には火山と国内の寄与が高く、これらの寄与率が64%にも達するのに対して、冬期には火山と国内を併せた寄与率は20%と低下し中国の寄与率が60%近くに増加する。このように7月と12月において発生源別寄与割合が大きく異なる原因は風系パターンの違いによって説明できた。

〔キーワード〕酸性雨、長距離輸送モデル、サルフェート、ナイトレート、ソース・リセプター解析

1. はじめに

東アジアにおける大気汚染物質の人為排出量の増加は著しく、地球環境及び地域環境に与える影響が懸念されて久しい。とりわけ中国などの発展途上国から排出される人為汚染物質の1980年代後半からの増加（例えば、Streets et al., 2000）は、アジア大陸スケールで酸性雨問題、エアロゾルや対流圏オゾンの増加など深刻な環境問題を引き起こしている。東アジアの東端に位置する日本列島は越境大気汚染の影響を強く受ける。このため、東アジアにおける越境大気汚染の動態、とりわけ日本にとっては汚染の発生源寄与を把握することが急務となっている。

また、東アジア地域においては越境大気汚染問題への国際的な取り組みとして、環境省が主導してきた「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)」があり、2001年1月から本格稼働を始めている。このモニタリングネットワークを支える研究として、大気汚染物質の発生源インベントリーとソース・リセプター関係の構築がある。

東アジアにおける硫黄化合物を対象としたモデル研究は多数あり、長期間シミュレーションによってソース・リセプター関係の把握を目的とした研究と高濃度エピソードの汚染発生メカニズム解明を目的とした研究(Uno et al. (1997), Ohara et al.(2001), Song and Carmichael(2001))に分類される。このうち前者の発生源地域別寄与に関するモデル計算結果は研究者によって大きく異なり、例えば、日本列島全域の年間沈着量に対する中国の寄与率はIchikawa et al.(2001)が30%程度であるのに対して、Ardnt et al.(1998)は15%（火山は対象外）、Huang et al.(1995)は3.5%といった結果を報告している。このような背景のもとで本研究は、地域気象モデルRAMS(Regional Atmospheric Modeling System)と物質輸送モデルHYPACT(Hybrid Particle And Concentration Transport Model)を結合した精緻なモデルを構築し、航空機観測結果を含む豊富な観測データによって検証した後、この数値解析手法を使って発生源地域寄与を解明し、信頼性の高いソースリセプター・マトリックスを作成することを目的とする。

1999年1月後半～2月前半、九州西部において航空機観測を含む集中観測が実施され高濃度サルフェイトが観測された。この期間は日本列島において最も沈着量が多い季節（Fujita et al., 2000）でもある。本研究は最初に、地域気象モデルRAMSと物質輸送モデルHYPACTを結合したモデルを構築し同期間を対象としたシミュレーションの結果、RAMSによって気象要素の基本的特徴が再現され、その結果を用いたHYPACTによって地上と上空で観測された硫黄酸化物の時空間変動が再現できたことを述べる。次に結合モデルを用いた数値解析によって、高濃度イベント時の発生源地域別寄与及び1ヶ月間に日本列島に沈着した硫黄酸化物の発生源地域別寄与を明らかにする。最後に、1995年の夏季7月と冬季12月を対象に、日本列島を中心とした東アジア地域におけるソース・リセプター関係を定量化しソースリセプター・マトリックスを作成する。

2. 研究手法

本研究では、地域気象モデルRAMS Ver.4.3 (Pielke et al., 1992)と物質輸送モデルHYPACT Ver.1.1.0 (Walko et al., 1995)を用いた。本研究におけるシミュレーション手順を図1に示す。

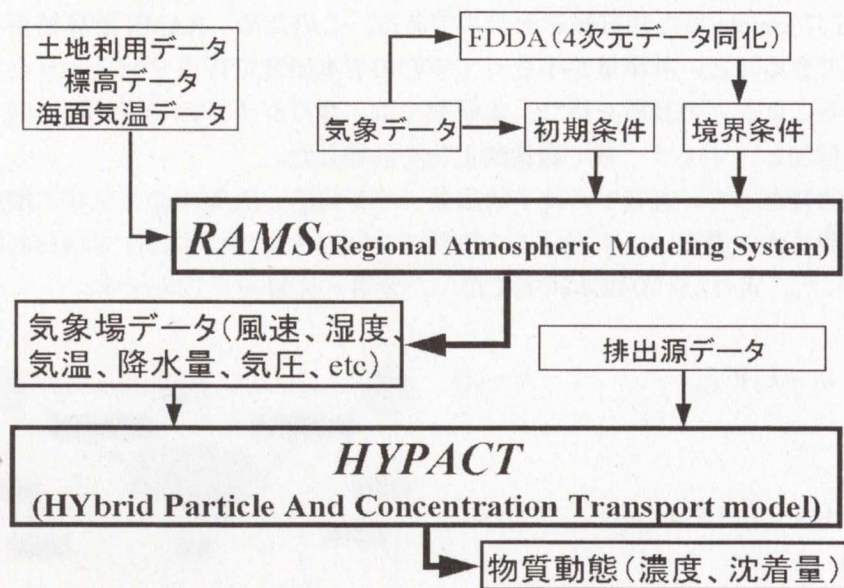


図1 本研究のシミュレーション・フロー

地域気象モデル RAMS は地域スケールの気象現象を計算する数値モデルである。RAMS の計算パラメータを表1に示す。計算領域は北緯 31°、東経 121° を中心とするポーラステレオ座標系 (グリッド間隔 80km) で 60×55 グリッドの範囲 (東西 4,800km×南北 4,400km) であり、鉛直 23 層で上空 20km までを計算対象とした。また、シミュレーション期間は、①九州西部で高濃度エアロゾルが観測された 1999 年 1 月 15 日～2 月 15 日、②1995 年 7 月、12 月の各 1 ヶ月間とした。ヨーロッパ中期予報センター ECMWF の全球客観解析データ (経緯度 2.5 度、12 時間間隔) を用いた RAMS による気象計算の結果、日本各地で測定された降水量、気温、気圧、風速などの気象要素が妥当に再現されることを確認した後、物質輸送モデル HYPACT を用いて硫黄酸化物の濃度・沈着量を計算した。

表1 RAMS の計算パラメータ

対象領域	東アジア (図2 参照)
領域中心点	北緯 31、東経 121
座標系	ポーラステレオ
FDDA 用気象データ	2.5[°]×2.5[°]
標高データ	1[km]×1[km]
土地利用データ	1[km]×1[km]
海面気温データ	1[°]×1[°]
東西方向グリッド	59
南北方向グリッド	54
東西方向グリッド間隔	80[km]
南北方向グリッド間隔	80[km]
地上鉛直グリッド数	23
地中鉛直グリッド数	8
側面境界ナッシング時間	600[s]
上面境界ナッシング時間	600[s]
内部ナッシング時間	10000[s]
計算ステップ	90[s]

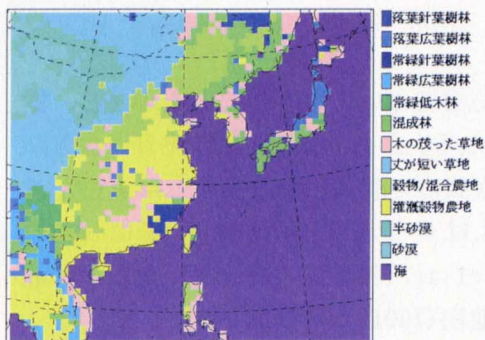


図1 計算領域と地表面分布

HYPACT は RAMS に couple した物質輸送モデルである。このため、RAMS 計算結果を直接取り込むことができること、計算量が小さくてすむので本研究で行うソース・リセプター解析に適していることなどの長所を持つ。本研究では、オリジナルの HYPACT に図 2 の反応・沈着過程を付加し、オイラー系で硫黄酸化物を計算した。

硫黄酸化物の反応物質として、大気中の粒子状硫酸イオン SO_4^{2-} 、大気中のガス状二酸化硫黄 SO_2 、雲水中の硫酸イオン濃度 $cloud-SO_4^{2-}$ の 3 物質について考え、湿性沈着には washout and rainout を考慮した。式 (1)～(3) は本研究で用いた変質・沈着モデルを示す。

$$\frac{dC_{SO_2}}{dt} = -(k_1 + k_2 + k_3 + k_4)C_{SO_2} \quad \dots (1)$$

$$\frac{dC_{SO_4^{2-}}}{dt} = \frac{3}{2}k_1C_{SO_2} - (k'_2 + k'_3 + k'_4)C_{SO_4^{2-}} \quad \dots (2)$$

$$\frac{dC_{cloud-SO_4^{2-}}}{dt} = \frac{3}{2}k_4C_{SO_2} - k'_4C_{SO_4^{2-}} - k_5C_{cloud-SO_4^{2-}} \quad \dots (3)$$

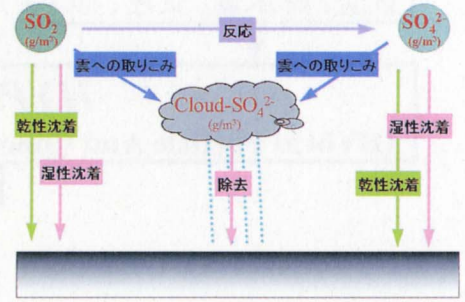


図 2 反応・沈着モデルの概要

C_{SO_2} : 大気中の SO_2 ガス濃度、 $C_{SO_4^{2-}}$: 大気中の粒子状 SO_4^{2-} 濃度、

$C_{cloud-SO_4^{2-}}$: 雲水中の SO_4^{2-} 濃度、 t : 時間、 k_1 : SO_2 の粒子状 SO_4^{2-} への反応速度定数、

k_2 : SO_2 の湿性沈着速度定数、 k'_2 : 粒子状 SO_4^{2-} の湿性沈着速度定数、

k_3 : SO_2 の乾性沈着速度定数、 k'_3 : 粒子状 SO_4^{2-} の乾性沈着速度定数、

k_4 : SO_2 の雲に取り込まれる速度定数、 k'_4 : 粒子状 SO_4^{2-} の雲に取り込まれる速度定数、

k_5 : 雲水中の SO_4^{2-} の除去速度定数

ここで SO_2 と SO_4^{2-} の雲への取り込みは雲が存在する層においてのみ起こるものとし、雲がなくなれば雲水中の SO_4^{2-} は大気中の粒子状 SO_4^{2-} となるとした。また、湿性沈着は水分が存在する鉛直層から地上に沈着するとし、沈着量を次式にて評価した。表 2 には HYPACT で使用したモデルパラメータを示す。 k_2 、 k'_2 はモデル相互比較研究 (A Model Inter-Comparison Study (MICS-Asia); Carmichael et al. (2001)) の値を用いた。その他のパラメータ値は既存モデル (市川と藤田 (1994)、池田 (2001)) に準拠した。

$$\frac{dD_{dry}}{dt} = \frac{3}{2}C_{SO_2}^1V_d(SO_2) + C_{SO_4^{2-}}^1V_d(SO_4^{2-}) \quad \dots (4)$$

$$\frac{dD_{wet}}{dt} = \sum_i^N \left(\frac{3}{2}C_{SO_2}^i k_2 + C_{SO_4^{2-}}^i k'_2 + C_{cloud-SO_4^{2-}}^i k_5 \right) \Delta h_i \quad \dots (5)$$

D_{dry} : 硫黄酸化物乾性沈着量、 $V_d(SO_2)$: (SO_2) の乾性沈着速度、

$V_d(SO_4^{2-})$: SO_4^{2-} の乾性沈着速度、

D_{wet} : 硫黄酸化物湿性沈着量、 $C_{SO_2}^i$: 鉛直 i 層目の SO_2 ガス濃度、

$C_{SO_4^{2-}}^i$: 鉛直 i 層目の粒子状 SO_4^{2-} 濃度、 $C_{cloud-SO_4^{2-}}^i$: 鉛直 i 層目の雲水中の SO_4^{2-} 濃度、

N : 鉛直層総数、 Δh_i : 鉛直 i 層目の層の厚さ

乾性沈着速度 V_d は RAMS で計算された気象データ（摩擦速度、モーニン長ほか）を使って Wesely (1988) に従って算出し、降水量 P は RAMS 計算結果を使用した。

HYPACT のモデル領域とグリッド間隔は RAMS の場合と同じでグリッド数 $58(x) \times 53(y) \times 21(z)$ で高度 18km までを計算対象とした。 SO_2 排出量は Carmichael (2001) による人為起源（大規模点源、地上面源）及び火山起源の 2000 年値を用いた。また、ソース・リセプター解析においては図 3 に示す 50 地域に分割し各地域の発生量と沈着量を評価した。

表 2 HYPACT で使用した反応・沈着パラメータ

表記	意味	値[1/h]
k_1	SO_2 の粒子状 SO_4^{2-} への反応速度定数	0.03(夏) 0.01(冬)
k_2	SO_2 の湿性沈着速度定数	0.072P
k_2'	粒子状 SO_4^{2-} の湿性沈着速度定数	$0.18P^{0.83}$
k_3	SO_2 の乾性沈着速度定数	$\frac{V_d(SO_2)}{104.99}$
k_3'	粒子状 SO_4^{2-} の乾性沈着速度定数	$\frac{V_d(SO_4^{2-})}{104.99}$
k_4	SO_2 の雲に取り込まれる速度定数	0.02
k_4'	粒子状 SO_4^{2-} の雲に取り込まれる速度定数	0.02
k_5	雲水中の SO_4^{2-} の除去速度定数	0.1P

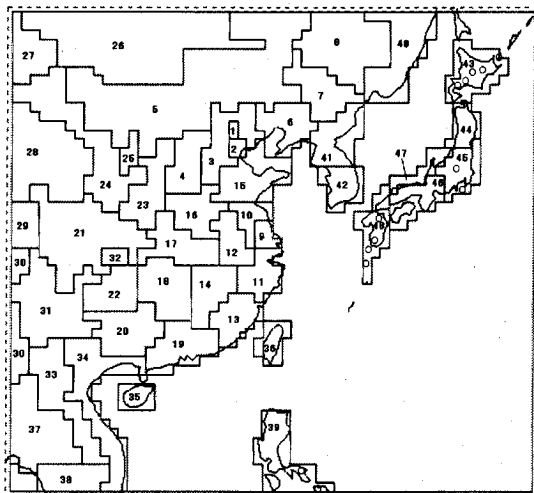


図 3 HYPACT の計算領域とソース・リセプター解析用地域区分

3. 研究結果

3.1 1999 年冬季の結果

3.1.1 モデル再現性

RAMS による地域気象計算結果を実測と比較した。図 4 は 1999 年 1 月 15 日～2 月 15 日の那覇における日平均の気温と風速の比較結果を示す。モデルは実測の時間変動を良く再現しており、那覇以外の日本国内 5 地点においても同様な再現性が得られた。図 5 は対象期間の国内 151 地点で測定された月間降水量について実測とモデルを比較したものである。モデルは全体的に過小傾向にあるがモデルと実測の相関性は比較的良好である。全体的にモデルの降水量が過小になった大きな原因は水平グリッド間隔が 80km と大きいとサブグリッドスケールの降水をモデルは表現できなかったためと考えられる。

図 6 は五島と大宰府の地上で測定された SO_2 と非海塩サルフェイトの日平均濃度と HYPACT の時系列比較図を示す。大宰府は都市域に、五島はリモートな離島にあるため SO_2 実測濃度は大宰府で高く五島で低いという傾向にあるがサルフェイト濃度は極めて近く、 SO_2 がローカル発生源の影響を強く受けているのに対してサルフェイトは両地点間の距離 200km 以上の水平スケールを持つ大きなスケールの汚染であると考えられる。モデルの水平グリッド間隔は 80km と大きいと両地点は同一メッシュ内に入ってしまうので SO_2 は過小であるがサルフェイトに対するモデルの再現性は高い。

図 7 は、1999 年 2 月 6 日に東シナ海上で得られた SO_2 とサルフェイトの航空機観測と HYPACT を比較した結果である。 SO_2 とサルフェイトは下層で高濃度、高度 2500m で低濃度となる大きな鉛直変化がモデルで良く再現されている。

図 8 は環境省が測定した日本国内のリモート 3 地点における SO_2 濃度の比較結果を示す。八方尾根と隠岐においてやや過大となっているが、3 地点ともに実測された濃度変動がモデルで良

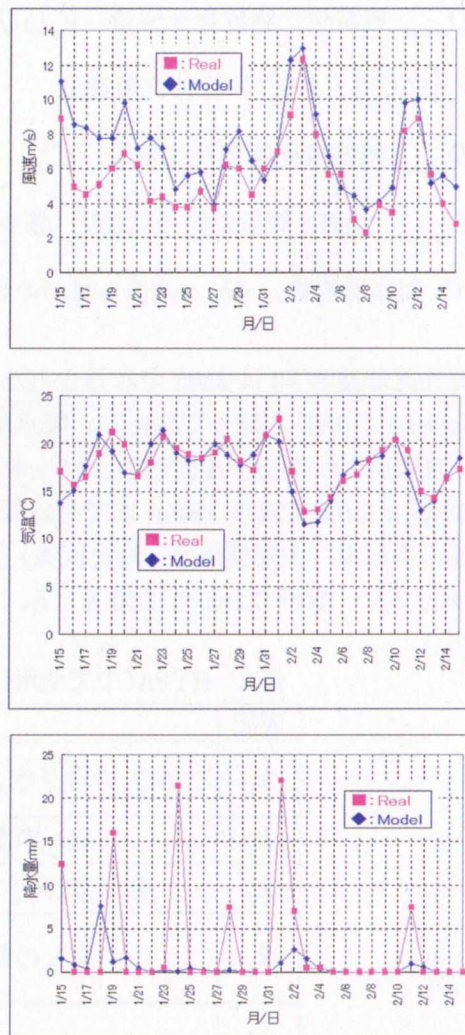


図 4 那覇における気象要素の実測とモデルの比較

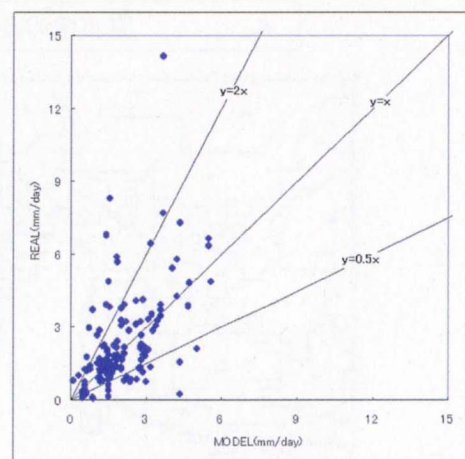


図 5 日本国内における積算降水量の実測とモデルの比較

く再現されている。また、同期間に観測された SO_2 とサルフェイトの期間平均濃度も図 9 で示すようにモデルと実測は良く一致している。さらに、図 10 は同じく環境省が日本全国のリモート 6 地点で観測した非海塩サルフェイト湿性沈着量の時間変動に対するモデル再現性を示す。モデルは各地点の時間変動を極めて良く再現している。沈着量は竜飛と隠岐において過大傾向にあるがその他の地点ではほぼ一致している。

以上示したように、九州西部地域のみでなく日本列島全体において、モデルは SO_2 及びサルフェイトの濃度と湿性沈着量を再現している。

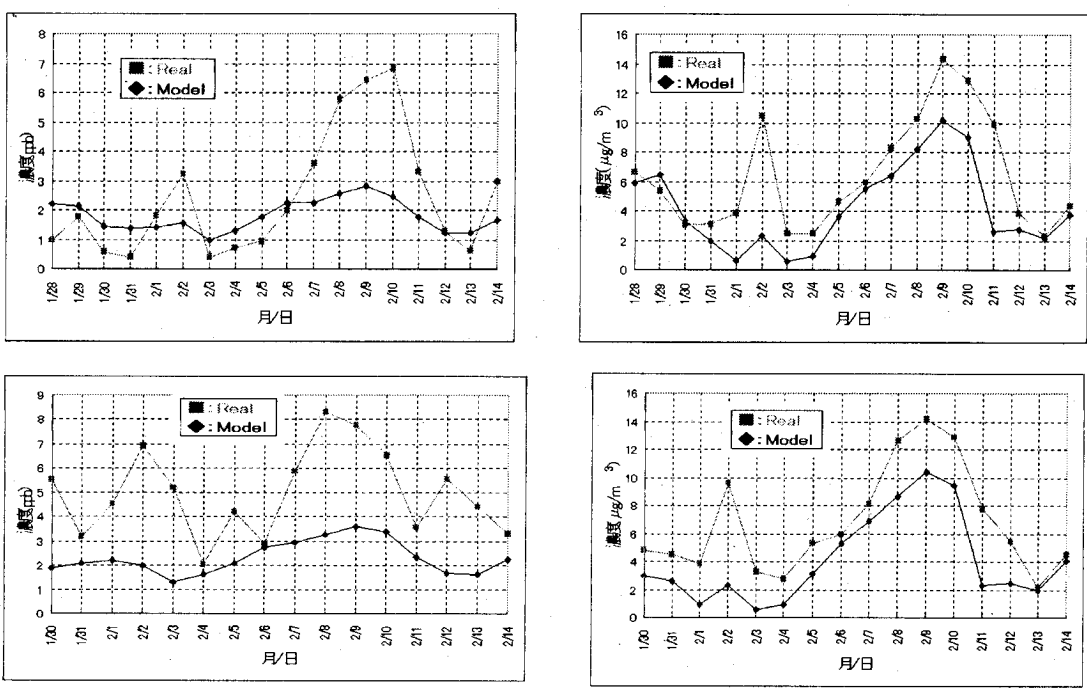


図 6 五島と大宰府における SO_2 と SO_4^{2-} の地上濃度の実測とモデルの比較結果
(上段左) 五島 SO_2 、(上段右) 五島 SO_4^{2-} 、(下段左) 太宰府 SO_2 、(下段右) 太宰府 SO_4^{2-}

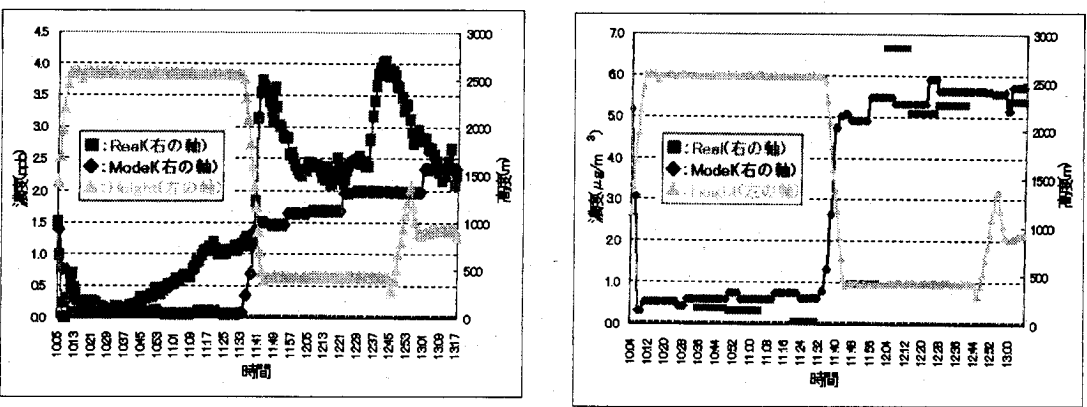


図 7 SO_2 と SO_4^{2-} の九州西方海域における航空機観測結果とモデルの比較結果
(左) SO_2 、(右) SO_4^{2-}

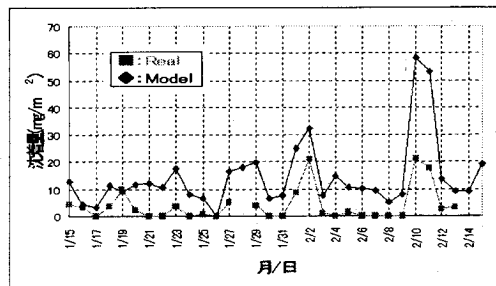
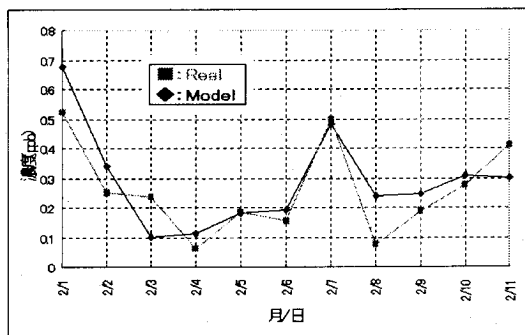
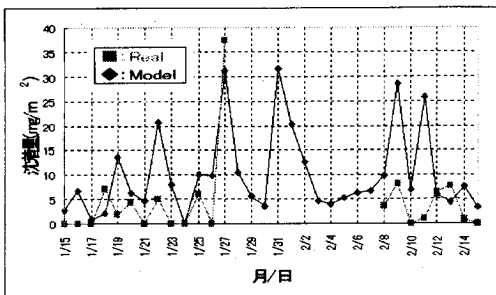
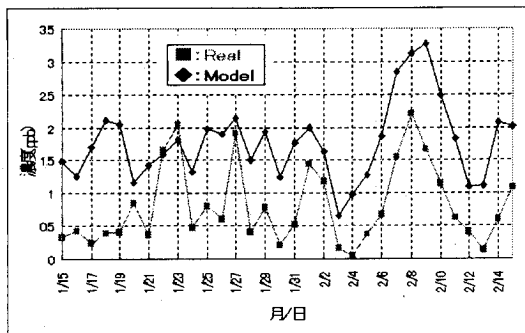
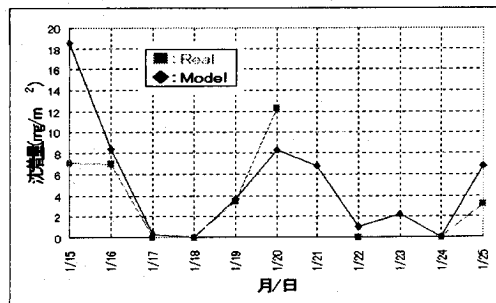
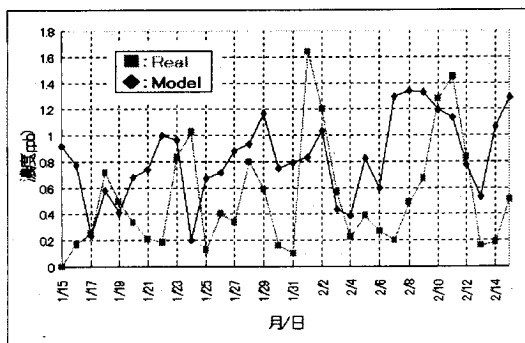


図8 SO₂濃度のモデルと実測の比較
(上) 八方尾根、(中) 隠岐、(下) 利尻

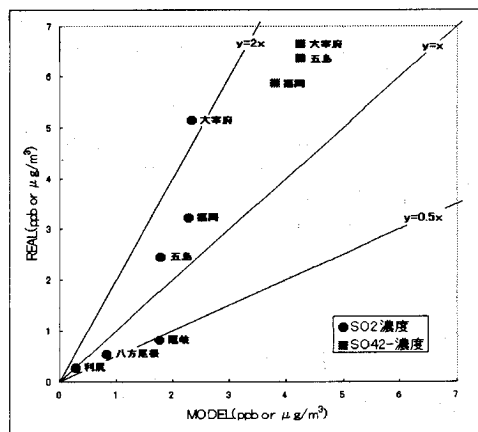
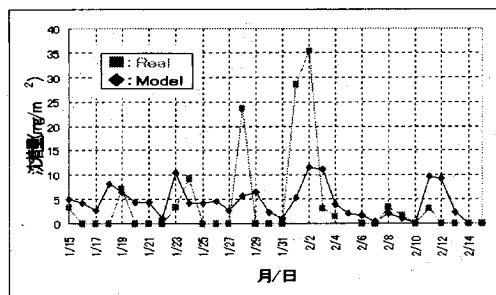
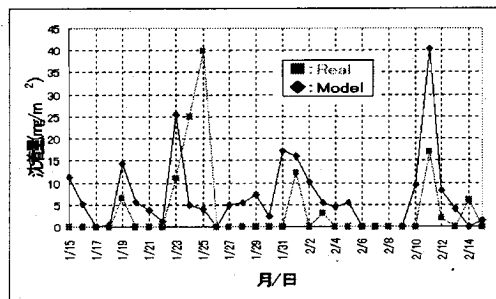


図9 SO₂、SO₄²⁻の期間平均濃度のモデルと実測の比較

図10 硫酸化物湿性沈着量のモデルと実測の比較。上から、八方尾根、竜飛、隠岐、足摺、沖縄国頭

3.1.2 ソース・リセプター関係

これらの高濃度イベントの発生源寄与を定量的に把握するために、モデル領域を図3に示す50地域に区分して各地域起源の濃度を計算した。図11は五島における発源地域別濃度を示す。ここで発生源は中国、朝鮮半島、東南アジア、台湾、日本、その他の6地域からの人為発生源及び火山の計7種類に分類されている。SO₂ 期間平均濃度の発生源別寄与率は中国48%、朝鮮半島24%、日本15%、火山8%となっており日本以外の人為起源が77%も占める。また、最も高濃度となった2月9日12時における発生源別寄与率もほぼ同様であり、高濃度イベント時と対象とした一ヶ月間での違いはほとんど無い。一方、サルフェイト濃度については中国からの寄与が極めて高く、その期間平均寄与率は81%であり以下、朝鮮半島9%、火山4%、日本3%と続く。最も高濃度になった2月9日12時における発生源別寄与率もほぼ同じである。このように、サルフェイトの中国からの寄与率は非常に高く、SO₂の1.7倍である。以上示したように、対象期間中に観測された高濃度サルフェイトのほとんどは中国からの越境輸送によるものであり、SO₂については中国とともに朝鮮半島からの寄与も大きいことがわかり、SO₂とサルフェイトのこの違いはSO₂からサルフェイトへの転換時間とソース・リセプター間の距離の関係によって説明付けられる。

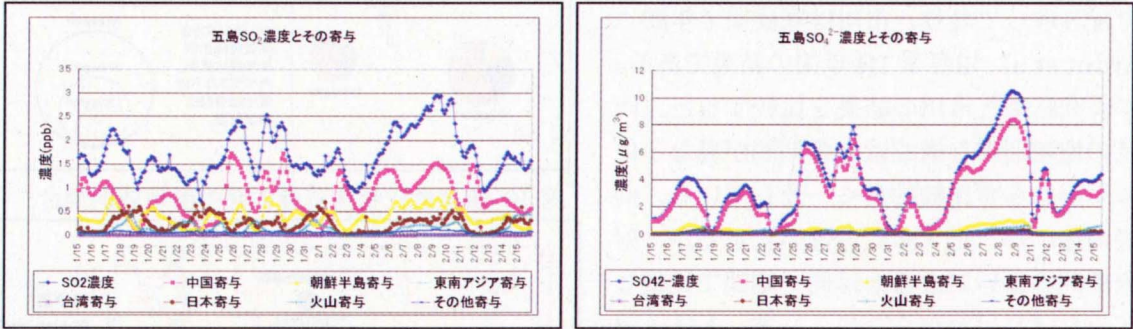


図11 五島におけるSO₂とSO₄₂₋の発源地域別濃度計算結果

1999年1月15日～2月15日における日本列島における発源地域別寄与を定量化することを目的に、モデル領域を50地域に区分して各地域起源の濃度を計算した結果を整理した。図12は日本列島の沈着量に関する発源地域別寄与率を示す。日本列島の沈着量のうち中国人為発生源からの寄与は62%にもなるのに対して国内人為発生源寄与は16%である。また、北朝鮮と韓国の人為発生源からの寄与も11%と大きい。火山寄与は7%である。中国内を地域別に見ると華北24%や華東10%などの日本列島に近く、且つ発生量の多い地域からの寄与が大きい。また、日本列島から

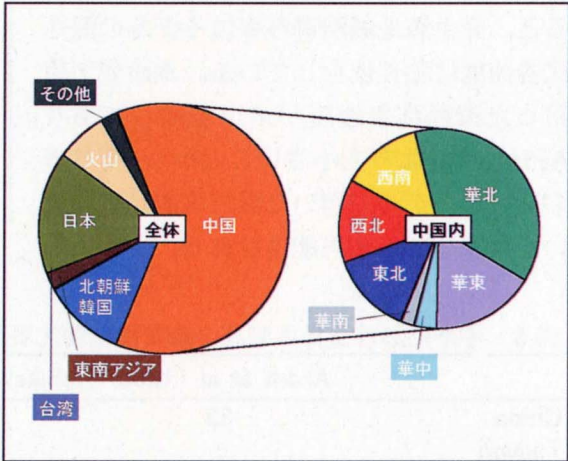


図12 日本列島における硫黄酸化物沈着量

最も遠い中国（西北部+西南部）からの寄与は国内寄与と同じ 16%にも達することから、このような遠く離れた地域からも長距離輸送されていることがわかる。図 13 に示す日本国内地域別の発生源地域別寄与の特徴は、桜島（SO₂ 放出量 650kt/年）を含む九州地域で火山寄与が 13%と大きいこと、降水量の多い日本海側・東北・北海道で中国や朝鮮半島の寄与が大きく 80%程度になることである。一方、source oriented の視点から、中国、朝鮮半島及び日本の人為発生源排出量の沈着地域別寄与率を図 14 に示す。これによると、中国の人為排出量のうち、日本に沈着するのは 5%にすぎず 60%が自国に沈着する。また、日本の人為排出量のうち 33%が日本に沈着し 66%は海上に沈着して海外諸国に与える寄与はほとんどない。これに対して、朝鮮半島の人為排出量のうち 19%は同地域に 62%は海上に沈着するが、15%ほどが日本に沈着する。このように本研究の対象期間においては、中国・朝鮮半島から日本への一方的な越境大気汚染が発生していたと考えられる。

日本列島全体の沈着量の発生源地域別寄与率について、既往研究との比較結果を表 3 に示す。ここで、市川（1997）及び Ardnt et al.（1998）の結果は各論文の図から目で読み取っており、市川は寒候期半年間、Ardnt et al. は冬季 1/4 年間の結果である。本研究結果と市川の結果を比較すると、両者の地域別寄与構成は対象期間が異なるにもかかわらず比較的良く一致している。両者の違いが、モデルにお違いによるか、対象期間の違いによるかは同一期間で比較してみなければわからない。一方、Ardnt et al.(1998)の結果は、中国からの寄与が低く日本の寄与が高い。Ardnt et al.(1998)によると、発生源地域別寄与率はモデルの湿性沈着速度に強く依存している。本研究で使用した湿性沈着速度が市川と同じであり Ardnt et al よりも小さいことから、寄与率の違いがモデルで用いた湿性沈着速度の違いを反映している可能性はある。

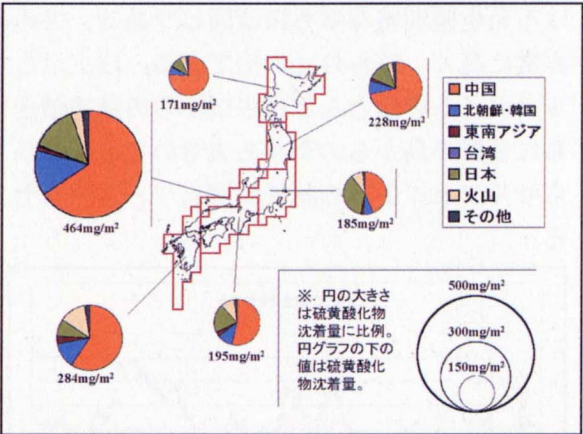


図 13 硫黄酸化物沈着量の発源地域別割合

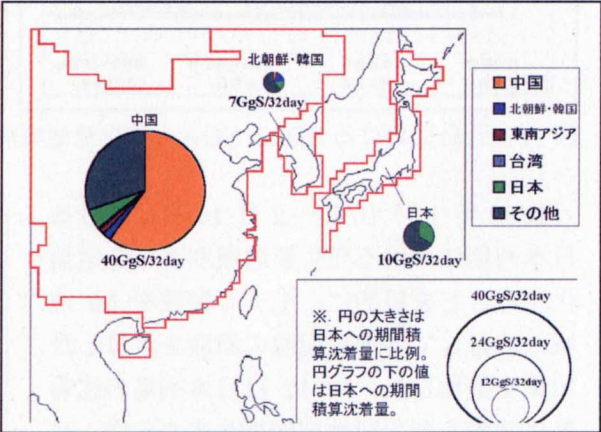


図 14 中国、朝鮮半島、日本から発生した硫黄酸化物の地域別沈着量割合

表 3 冬季における日本列島の硫黄酸化物沈着量の発源地域別構成比較結果

	Ardnt et al. (1998)	Ichikawa (1997)	This study
China	32	50	62
Taiwan	—	0	0
North Korea	—	16	4
South Korea	28	—	7
Japan	52	21	16
Others	—	—	4
Volcano	—	13	7

(Unit: %)

3.2 1995 年夏季と冬季の結果

次に、夏季と冬季におけるソース・リセプター関係を把握するために、3.1 節で述べた RAMS/HYPACT を用いて 1995 年 7 月と 12 月における発生・沈着マトリックスを作成した。使用した発生源データは、Klimont et al.(2001)による 1995 年の人為起源排出量と藤田ほか(1992)による火山起源排出量である。図 15 は各一ヶ月間における硫黄酸化物湿性沈着量分布を示す。夏季には沈着量が大陸の大発源地域で多いのに対して、冬季には中国内陸域や日本海地域で沈着量が多いのが特徴的である。

3.2.1 モデル再現性

環境省の酸性雨 3 次調査と福岡県保健環境研究所による硫黄酸化物湿性沈着量データとモデル結果について月積算量で比較した結果を図 16 に示す。モデルはほぼ実測を再現している。

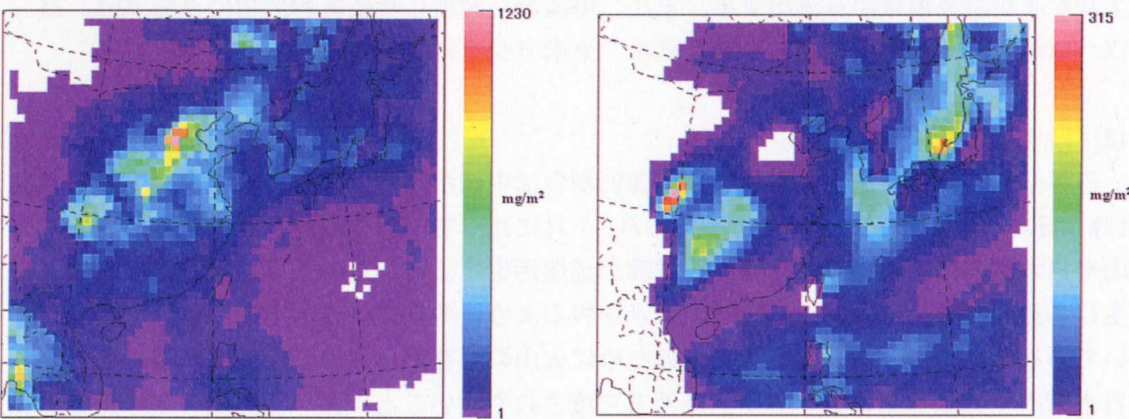


図 15 硫黄酸化物湿性沈着量分布 (左) 1995 年 7 月、(右) 1995 年 12 月

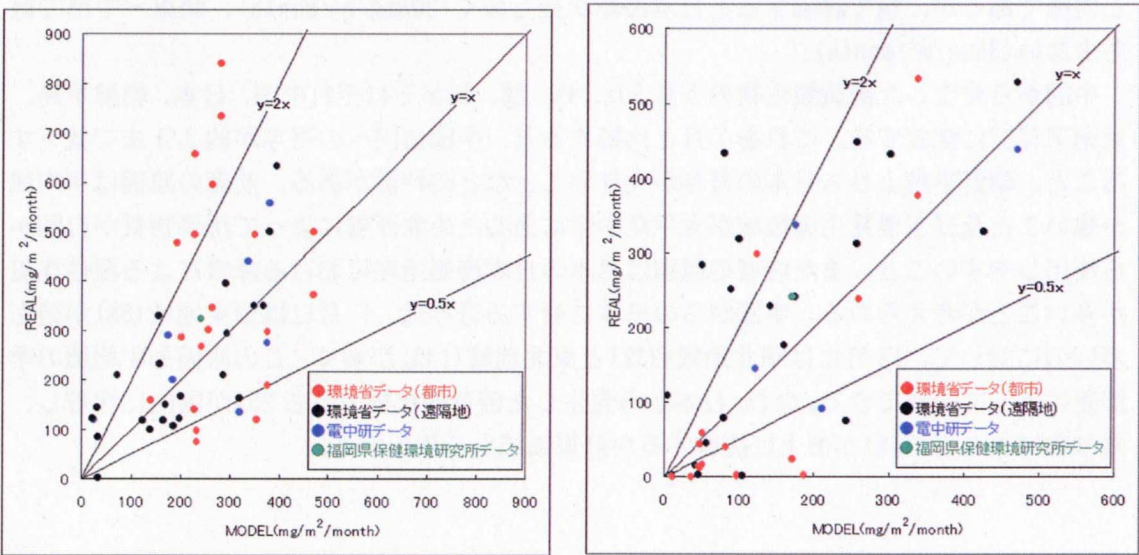


図 16 硫黄酸化物湿性沈着量の実測とモデルの比較 (左) 1995 年 7 月、(右) 1995 年 12 月

3.2.2 発生沈着マトリックス

対象領域を50区分してソース・リセプター解析を行なった結果を図17、表4～7に示す。

(1) 7月

日本全国の硫黄酸化物沈着量の発生源別割合は、火山が34%と最も多く、次いで日本30%、中国15%、朝鮮半島12%の順となっており、12月に比べて火山や日本国内による寄与が大きい。これは、図19(後出)で示されるように日本上空において南西風が吹いているため特に西日本地域では桜島に代表される九州の火山の影響を強く受けること(中国・四国・近畿と九州での火山寄与率は共に48%)、夏期は冬期よりも風が弱いことから日本国内で発生した硫黄酸化物が日本列島外まで流れていかないことが原因と考えられる。国内6地域別の中国からの寄与率は13～25%であり、中部・関東で最も低く北海道で最も高いが、量で評価すると日本海側が最も多く(69mg/m²/month)、東北で最も少ない(27mg/m²/month)。

日本から発生した硫黄酸化物のうち48%が国内に沈着し、残りのほとんど(50%)が海上に沈着するか計算領域から流出する。また、中国から発生した硫黄酸化物のうち86%、2%、1%、1%がそれぞれ中国、朝鮮半島、日本、東南アジアに沈着する。

(2) 12月

日本全国の硫黄酸化物沈着量の発生源別割合は中国が57%と最も多く、次いで朝鮮半島18%、日本13%、火山7%の順となっており、7月に比べて中国や朝鮮半島の寄与が大きく火山や日本国内による寄与が小さく約80%が越境汚染による。このような季節による差異が生じる最大の原因は、図19(後出)で示されるように冬期には日本上空に強い北西風が吹いているためである。即ち、北西風のために火山の影響が小さいこと、風が強いことから日本国内で発生した物質が日本列島外まで流されやすいこと、強い北西風のため日本の風上になる中国や朝鮮半島からの寄与が大きくなること等の要因が考えられる。国内6地域別の中国からの寄与率は37～76%であり中部・関東で最も低く北海道で最も高い点は7月と同様であるが、量で評価すると日本海側が最も多く(208mg/m²/month)、関東・中部で最も少ない(38mg/m²/month)。

中国から発生した硫黄酸化物のうち59%、4%、2%、2%がそれぞれ中国、日本、朝鮮半島、東南アジアに沈着する。これを7月と比較すると、中国自国への寄与が約2/3まで低下すること、朝鮮半島よりも日本の寄与が大きいことなどの特徴がある。前者の原因は平均風が強いこと及び主要発源地域が太平洋沿岸にあるため北西風によって汚染物質が自国から流出しやすいこと、また後者の原因は日本の日本海側地域における降雪による湿性沈着が多いことが考えられる。中国からの日本に対する寄与は、7月には華東地域(6%)が最も多いのに対して、12月には華北地域(23%)と東北地域(14%)が多く、この原因も平均風の季節差によって説明できる。なお、日本から発生した硫黄酸化物のうち25%が国内に沈着し、残りのほとんど(74%)が海上に沈着するか計算領域から流出する。

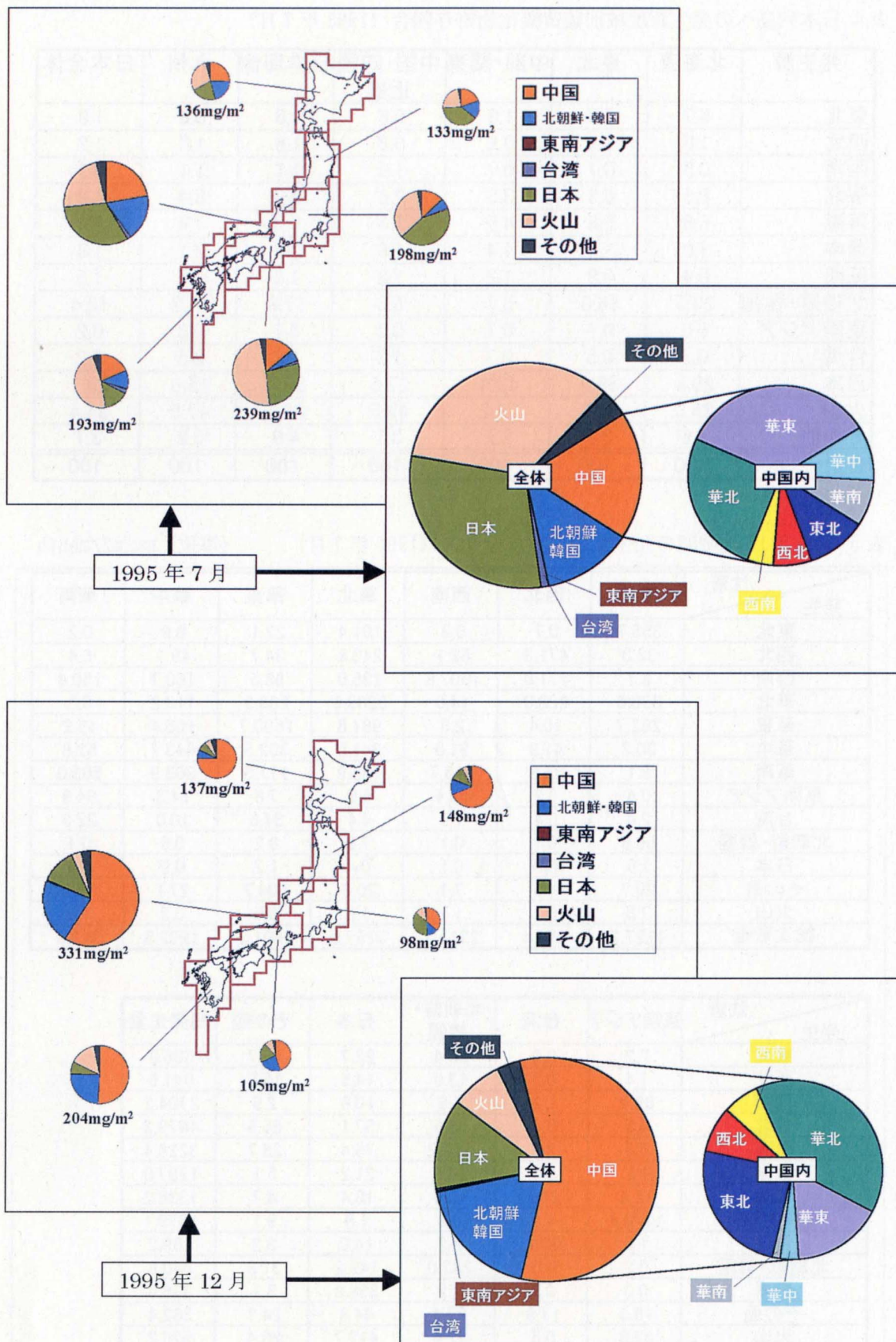


図 17 硫黄酸化物沈着量の発生源地域別寄与率 (1995 年 7 月と 12 月の結果)

表 4 日本列島への発生源地域別硫黄酸化物寄与割合 (1995 年 7 月)

発生源	北海道	東北	中部・関東	中国・四国 近畿	日本海側	九州	日本全体
東北	6.7	2.8	1.0	0.6	1.6	0.8	1.9
西北	1.6	1.4	0.9	0.8	1.6	1.0	1.2
西南	0.5	0.7	0.7	1.0	1.1	1.1	0.9
華北	8.5	6.3	3.5	2.6	5.8	3.4	4.8
華東	6.6	5.8	4.5	5.3	8.0	7.4	6.4
華中	1.0	1.4	1.4	1.8	2.2	2.1	1.8
華南	0.4	0.9	1.2	1.8	1.8	2.5	1.5
北朝鮮・韓国	20.5	16.0	5.7	5.6	17.8	11.3	12.4
東南アジア	0.0	0.1	0.1	0.2	0.1	0.3	0.2
台湾	0.2	0.5	0.7	1.3	1.2	2.5	1.2
日本	20.8	38.3	43.4	27.5	32.0	15.0	29.7
火山	28.6	22.8	34.2	48.5	22.7	47.5	34.4
その他	4.6	3.1	2.7	3.1	4.0	5.2	3.7
合計	100	100	100	100	100	100	100

表 5 アジア 12 地域間の発生沈着マトリックス (1995 年 7 月) (単位) mg/m²/month

発生 \ 沈着	東北	西北	西南	華北	華東	華中	華南
東北	355.7	0.7	0.6	101.4	22.1	0.9	0.2
西北	32.3	471.3	62.1	240.8	34.7	49.1	6.4
西南	8.7	171.0	1907.8	135.0	58.5	160.7	150.4
華北	336.6	228.0	14.0	3289.6	288.3	113.2	8.3
華東	262.7	10.4	2.3	981.8	1560.7	165.4	15.2
華中	30.2	41.9	31.6	341.0	302.5	443.7	52.8
華南	8.1	25.8	115.7	135.9	171.5	303.9	503.0
東南アジア	0.4	3.2	66.4	6.9	7.8	14.3	84.9
台湾	2.4	0.4	1.7	4.4	34.6	10.0	22.3
北朝鮮・韓国	59.6	0.1	0.1	7.8	9.2	0.6	0.1
日本	1.9	0.0	0.1	0.4	1.2	0.2	0.4
その他	20.7	1.5	7.1	20.8	104.7	27.1	67.9
火山	7.8	0.1	1.7	1.8	5.5	3.3	7.0
総沈着量	1127.2	954.4	2211.1	5267.6	2601.2	1292.5	918.8

発生 \ 沈着	東南アジア	台湾	北朝鮮・韓国	日本	その他	総発生量
東北	2.2	0.0	33.4	22.7	48.7	588.8
西北	1.4	0.3	13.0	14.5	15.8	941.6
西南	88.4	1.2	8.9	10.6	2.9	2704.2
華北	8.5	0.3	68.5	57.1	66.9	4479.2
華東	5.5	2.2	117.2	76.4	28.7	3228.4
華中	1.2	2.0	23.9	21.2	5.1	1297.0
華南	12.4	21.2	15.5	18.4	4.7	1336.2
東南アジア	1379.4	4.1	0.8	1.8	9.1	1579.1
台湾	1.0	87.1	8.2	14.0	3.2	189.2
北朝鮮・韓国	0.2	0.0	282.0	149.2	31.8	540.6
日本	0.0	0.2	7.2	356.8	8.1	376.6
その他	18.3	17.9	27.4	44.8	24.2	382.4
火山	87.8	5.5	22.6	412.7	20.4	576.2
総沈着量	1606.1	142.0	628.7	1200.3	269.7	-

表 6 日本列島への発生源地域別硫酸化物寄与割合（1995 年 12 月）

発生源	北海道	東北	中部・関東	中国・四国 近畿	日本海側	九州	日本全体
東北	25.1	18.7	10.4	8.6	15.3	6.7	14.2
西北	7.2	6.4	2.7	3.5	4.6	3.5	4.7
西南	4.5	6.1	3.2	3.2	4.1	2.3	3.9
華北	30.2	26.8	13.3	17.8	23.1	20.4	22.6
華東	5.6	7.5	5.2	9.7	9.4	14.9	9.3
華中	1.7	2.0	1.0	1.6	1.7	2.3	1.8
華南	0.8	1.1	0.6	0.7	0.9	0.7	0.9
北朝鮮・韓国	6.7	11.9	12.7	22.3	21.7	24.2	18.0
東南アジア	0.5	0.7	0.5	0.5	0.5	0.3	0.5
台湾	0.0	0.1	0.0	0.1	0.1	0.1	0.1
日本	7.3	11.0	36.2	20.0	11.7	6.7	13.2
火山	5.1	4.3	11.3	8.8	3.6	14.5	7.3
その他	5.2	3.4	2.9	3.2	3.2	3.4	3.5
合計	100	100	100	100	100	100	100

表 7 アジア 12 地域間の発生沈着マトリックス（1995 年 12 月）（単位）mg/m²/month

発生 \ 沈着	東北	西北	西南	華北	華東	華中	華南
東北	196.6	0.1	0.8	13.3	25.1	3.3	2.0
西北	15.3	186.8	43.0	98.2	25.1	36.8	17.1
西南	8.4	47.6	833.8	30.5	19.1	50.6	92.8
華北	164.0	68.3	42.3	1115.5	399.7	190.2	58.0
華東	60.8	6.0	27.0	201.3	1112.5	223.5	78.2
華中	6.1	13.3	55.7	59.2	132.4	271.3	107.1
華南	2.3	9.6	129.4	13.7	17.6	70.8	324.5
東南アジア	0.8	2.6	63.5	2.3	2.3	7.6	23.9
台湾	0.1	0.3	3.3	0.5	2.9	3.8	14.4
北朝鮮・韓国	10.4	0.1	1.3	1.3	10.5	3.2	3.0
日本	0.2	0.0	0.2	0.1	0.8	0.4	0.6
その他	4.0	0.7	7.4	3.5	39.6	12.3	34.1
火山	0.3	0.2	3.0	0.5	3.4	2.6	4.2
総沈着量	469.4	335.6	1210.9	1540.0	1791.0	876.4	759.8

発生 \ 沈着	東南アジア	台湾	北朝鮮・韓国	日本	その他	総発生量
東北	1.7	1.5	48.9	145.9	41.7	480.9
西北	3.8	3.5	9.5	48.2	13.0	500.4
西南	48.2	4.4	4.9	40.2	9.0	1189.4
華北	14.0	15.9	78.5	231.4	50.8	2428.4
華東	12.7	34.9	55.4	95.4	23.7	1931.4
華中	8.6	8.1	6.5	18.3	5.1	691.8
華南	34.9	10.2	1.8	8.7	6.5	630.1
東南アジア	162.5	1.2	0.6	5.1	4.2	276.3
台湾	3.9	54.8	0.1	0.6	2.6	87.2
北朝鮮・韓国	3.1	3.1	113.7	184.0	17.5	351.1
日本	1.1	0.7	1.0	135.1	6.5	146.8
その他	11.4	13.4	5.5	36.1	14.7	182.9
火山	52.3	4.2	1.4	75.0	13.6	160.7
総沈着量	358.0	155.7	327.8	1024.0	208.9	-

3.2.3 沈着過程別割合

硫黄酸化物の沈着プロセスの季節による違いを図 18 に示す。日本全体で見ると、7 月には SO_4^{2-} 湿性沈着 (57%) が最も多く、以下、 SO_2 湿性沈着 (29%)、 SO_2 乾性沈着 (11%)、 SO_4^{2-} 乾性沈着 (4%) である。一方、12 月にも SO_4^{2-} 湿性沈着 (47%) が最も多いが、 SO_2 については乾性沈着 (32%) の方が湿性沈着 (18%) よりも多く、 SO_4^{2-} 乾性沈着 (4%) は 7 月と同様に少ない。地域別に見みると、太平洋側地域では 7 月は 12 月に比べ SO_2 乾性沈着が少なく SO_2 湿性沈着が多いという日本全体の季節変化がより強く見られる。これは、12 月において降水は日本海側で主に起こり、太平洋側では降水が少ないためである。



図 18 硫黄酸化物の沈着過程別割合 (左図) 7 月、(右図) 12 月

3.2.4 物質収支

1995 年 7 月と 12 月の日本における硫黄酸化物収支を図 19 に示す。7 月と 12 月を比較すると、硫黄酸化物沈着量の差は 20%程度と小さいのに対して、その発生源別寄与率は大きく異なる。即ち、7 月には火山と国内の寄与が高く、これらの寄与率が 64%にも達するのに対して、12 月には火山と国内を併せた寄与率は 20%と低下し中国の寄与率が 60%近くに増加する。このように 7 月と 12 月において発生源別寄与率が大きく異なる原因は、3.2.2 で示したように風系パターンの違いによって説明できる。以上のように、RAMS/HYPACT を用いたシミュレーションによって、東アジアにおける硫黄酸化物の越境大気汚染の定量的把握が可能となった。

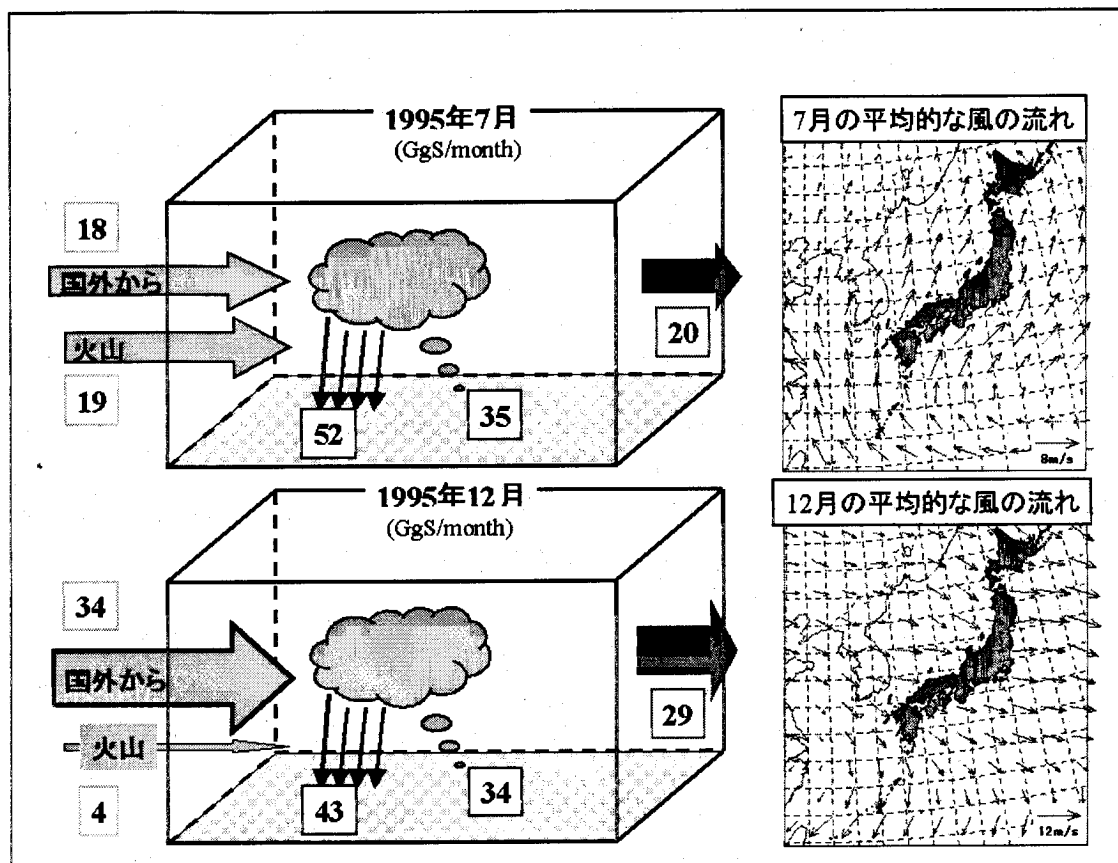


図 19 1995 年 7 月と 12 月における日本列島の硫黄酸化物収支

4. まとめ

①モデル再現性

地域気象モデル RAMS により気象・水象を良く再現することができる。この結果を用いた化学物質輸送モデル (HYPACT 改良版) によって、1999 年 1~2 月に九州西部で観測された高濃度イベント、同期間と 1995 年 7 月と 12 月に国内各地で観測された SO_2 濃度とサルフェイト (SO_4^{2-}) 濃度、 SO_4^{2-} 湿性沈着量を良好に再現する。このように、本研究で構築した地域気象モデル (RAMS) と物質輸送モデル (HYPACT) を結合した数値解析手法により日本周辺域の硫黄酸化物の動態が再現できる。

②発生沈着マトリックス

RAMS/HYPACT を使い、東アジアを 50 地域に区分して 1995 年 7 月と 12 月における発生沈着マトリックスを作成した。日本への硫黄酸化物沈着量の発生地域別寄与率は、7 月には火山 34%、日本 30%、中国 15%、朝鮮半島 12%、12 月には中国 57%、朝鮮半島 18%、日本 13%、火山 7%であり季節によって大きく変化する。この季節による違いは、気候 (風と降水) の季節変動に対応している。

③硫黄酸化物の収支

1995 年のシミュレーション結果をもとに、夏期と冬期における日本列島の硫黄酸化物の物質収支を比較すると、夏期には火山と国内の寄与が高く、これらの寄与率が 64%にも達するのに対して、冬期には火山と国内を併せた寄与率は 20%と低下し中国の寄与率が 60%近くに増加する。このように 7 月と 12 月において発生源別寄与割合が大きく異なる原因は風系パターンの違いによって説明できる。

以上示したように、RAMS/HYPACT を用いたシミュレーションによって、東アジアにおける硫黄酸化物の越境大気汚染の定量的把握が可能となった。今後の課題としては、本研究で開発したモデルを用いて、通年の発生沈着マトリックスを計算することや将来予測を行うことがあげられる。また、窒素酸化物を対象とした発生沈着マトリックスの作成、環太平洋地域やユーラシア大陸など大陸間での汚染物質輸送を含むソース・リセプター解析なども重要な課題である。

文献

- Ardnt, R. L., G. R. Carmichael and J. M. Roorda, Seasonal source-receptor relationships in Asia, *Atmospheric Environment*, 32, 8, 1397-1406, 1998.
- Carmichael, G. R., Ace-Asia and TRACE-P Modeling and Emission Support System (http://www.cgrer.uiowa.edu/people/carmichael/ACCESS/Emissiondata_main.html), 2001.
- Carmichael G. R., H. Hayami, G. Calori, I. Ino, S. Y. Cho, M. Engardt, S. B. Kim, Y. Ichikawa, Y. Ikeda, H. Ueda and M. Amann; Model intercomparison study of long range transport and sulfur deposition in east Asia (MICS-ASIA), *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 51-62, 2001.
- 藤田慎一、外岡豊、太田一也：わが国における火山起源の二酸化硫黄の放出量の推計、大気汚染学会誌、27、6、336-343、1992.
- Fujita S., A. Takahashi, J. H. Weng, L. F. Huang, H. K. Kim, C. K. Li, F. T. C. Huang and F. T. Jeng, Precipitation chemistry in east Asia, *Atmospheric Environment*, 34, 525-537, 2000.
- Huang, M., Z. Wang, D. He, H. Xu and L. Zhou, Modeling studies on sulfur deposition and transport in east Asia, *Water, Air, & Soil Pollution*, 85, 1921-1926, 1995.
- 市川陽一：東アジアにおける酸性物質の広域輸送 -酸性雨はどこからやってくるか-、公開セミナー 酸性物質の広域輸送と環境影響 -酸性雨のより良い理解のために- 講演要旨集、6-10、財団法人電力中央研究所、1997.
- Ichikawa, Y., H. Hayami, T. Sugiyama, M. Amann and W. Schopp; Forecast sulfur deposition in Japan for various energy supply and emission control scenarios, *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 301-306, 2001.
- 池田有光：東アジア全域を対象とした総合的な大気汚染物質排出制御方策の確立、平成9年度～平成12年度 科学研究費補助金(基盤研究(B)(1))研究成果報告書、2001.
- Klimont, Z., J. Cofala, W. Schoepp, M. Amann, D. G. Streets, Y. Ichikawa and S. Fujita, Projections of SO₂, NO_x, NH₃ and VOC Emissions in East Asia up the 2030, *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 193-198, 2001.
- Ohara, T., I. Uno, S. Wakamatsu, and K. Murano, Numerical simulation of the springtime trans-boundary air pollution in East Asia, *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 289-294, 2001.
- Pielke, R.A., Cotton, W.R., Walko, R.L., Tremback, C.J., Lyons, W.A., Grasso, L.D.,

- Nicholls, M.E., Moran, W.A., Wesley, D.A., Lee, T.J. and Copeland, J.H., A comprehensive meteorological modeling system – RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, **49**, 69-91, 1992.
- Song, C. H. and G. R. Carmichael, A three-dimensional modeling investigation of the evolution processes of dust and sea-salt particles in east Asia, *J. Geophys. Res.*, **106**, 18,131-18,154, 2001.
- Streets D. G., N. Y. Tsai, H. Akimoto and K. Oka: Sulfur dioxide emission in Asia in the period 1985-1997, *Atmospheric Environment*, **34**, 4413-4424, 2000.
- Uno I., T.Ohara and K.Murano: Simulated acidic aerosol long-range transport and deposition over the east Asia · Role of synoptic scale weather systems, *Air · Pollution Modeling and Its Application XII* (ed. S.E. Gryning and N.Chaumerliac), Plenum Pub. Co., **22**, 185-194, 1997.
- Walko, R. L., C. J. Tremback and M. J. Bell, The hybrid particle and concentration transport model Version 1.0, User's guide, 1995.
- Wesely, M. L., Improved parameterizations for surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, EAP/600/3-88/025, 1988.

[国際共同研究等の状況]

国際ワークショップ(The 5 th, 6th, 7th International WS on the Comparison of Trans-boundary Air Pollution Model and Harmonization of the Methodology of Emission Inventories of Air Pollutants in East Asia) を平成 11、12、13 年度に開催した。

[研究成果の発表状況]

(1) 誌上発表

- ① K. Murano, H. Mukai, S. Hatakeyama, E.-S. Jang and I. Uno:
Atmos. Environ., **34**, 5139-5149(2000)
“Trans-boundary Air Pollution over Remote Islands in Japan: Observed Data and Estimates from a Numerical Model”
- ② I. Uno, E.-S. Jang, T. Shimohara, O. Oishi, A. Utsunomiya, S. Hatakeyama, X. Tang, Y-P. Kim, K. Murano: Global Environmental Research, **4**, 3-12(2000)
“Wintertime Intermittent Trans-boundary Air Pollution over East Asia Simulated by a Long-range Transport Model”
- ③ 鶴野伊津志、村野健太郎、：地球環境、**5**, 73-85(2000)
「アジア大陸からの越境大気汚染に対する大気汚染物質輸送・変質・沈着モデルの適用例」
- ④ T. Shimohara, O. Oishi, A. Utsunomiya, H. Mukai, S. Hatakeyama, E.-S. Jang I. Uno, K. Murano: Atmos. Environ., **35**, 667-681(2001)
“Characterization of Atmospheric Air Pollutants at Two Sites in Northern Kyushu, Japan -Chemical Form and Chemical Reaction-“
- ⑤ T. Ohara, I. Uno, S. Wakamatsu, K. Murano: Water Air and Soil Pollution, **130**, 295-300(2001)

“Numerical Simulation of the Spring Time Trans-boundary Air Pollution in East Asia”

(2) 口頭発表

- ① T. Ohara, I. Uno and K. Murano: 5 th International Workshop on the Comparison of Trans-boundary Air Pollution Model and Harmonization of the Methodology of Emission Inventories of Air Pollutants in East Asia, Tsukuba, Japan, 2000
“The long range transport of pollutants in the springtime in East Asia”
- ② K. Murano, O. Oishi, T. Shimohara, T. Kamaya, H. Mukai, S. Hatakeyama and I. Uno :First International Conference Trans-Pacific Transport of Atmospheric Contaminants Seattle, U.S.A. 2000
“Trans-boundary Air Pollution Observed in the Remote Island in East China Sea in Japan”
- ③ 大原利眞、鵜野伊津志、若松伸司：第41回大気環境学会年会（2000）
「関西地域の春季高濃度汚染に及ぼす越境大気汚染の影響－東アジアスケールにおける長距離輸送シミュレーション－」
- ④ K. Murano, T. Kamaya and I. Uno: 6th International Conference on Acidic Deposition Tsukuba, Japan, 2000
“Air Pollutants Observation in the Remote Island Faced to the Asian Continent”
- ⑤ T. Ohara, I. Uno, S. Wakamatsu and K. Murano : 6th International Conference on Acidic Deposition, Tsukuba, Japan, 2000
“Numerical Simulation of the Springtime Trans-Boundary Air Pollution in East Asia”
- ⑥ K. Murano: 6th International Workshop on the Comparison of Trans-boundary Air Pollution Model and Harmonization of the Methodology of Emission Inventories of Air Pollutants in East Asia, Tsukuba, Japan, 2001
“Long and short range transport of air pollutants from Asian continent and active volcano”
- ⑦ 片山 学、大原利眞、鵜野伊津志、村野健太郎：第42回大気環境学会（2001）
「RAMS/HYPACTによる東アジア域におけるソース・リセプター解析」
- ⑧ 松七五三健士、大原利眞、菅田誠治、村野健太郎：第42回大気環境学会（2001）
「物質輸送モデルCMAQを用いた列島スケールにおける汚染物質の収支解析」

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし