

## 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) 東アジアの大気汚染物質発生・輸送・変質・沈着モデル開発に関する研究

#### ② 東アジア地域の広域輸送モデル開発に関する研究

国土交通省気象庁気象研究所

環境・応用気象研究部 第2研究室

佐藤純次 千葉 長

環境・応用気象研究部 第3研究室

佐々木秀孝

平成11年度～平成13年度合計予算額 18,341千円

(うち、平成13年度予算額 5,495千円)

#### [要旨]

EANETが展開されている広い領域をカバーした硫黄酸化物の輸送モデルを開発した。輸送モデルは気象場を予測する気象モデルとこれによって駆動される移流・拡散モデルの二つの部分によって構成されている。気象モデルには領域スペクトルモデル（RSM）を水平分解能40kmとして適用し、移流・拡散モデルにはラグランジュ粒子法を採用した。この方法は大気汚染物質の化学反応を表現するには難点があるが、発生源からの寄与率を得るには便利な手法である。輸送モデルにはSO<sub>2</sub>の気相及び雲による液相酸化課程を含め、これらはSO<sub>2</sub>からSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>への変換係数で表現した。また乾性沈着と降水による湿性沈着課程も入れた。この輸送モデルを用いてEANET領域の2000年におけるSO<sub>2</sub>及びSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の輸送・沈着シミュレーションを1月と7月について実施した。そのためにSO<sub>2</sub>の人為的及び火山起源の発生源データを作成し、それを120地点及び20地点の点源に配置した。シミュレーション結果から、EANET領域においては中国、韓国及び我が国の間の輸送が主で、インドネシア等の低緯度の発生源からの輸送は中緯度にまで及んでいないことが分かった。また、輸送シミュレーションによって再現されたSO<sub>2</sub>の大気中濃度とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の湿性沈着量を我が国における測定値と比較した。1月及び7月については、SO<sub>2</sub>大気中濃度は観測値と比較的よく一致したが、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の湿性沈着量は1月及び7月ともに過小評価の結果であった。例として隠岐における湿性沈着量に対する1月の発生源寄与率を見ると、韓国の発生源からの寄与が大きく、桜島や大阪からの寄与も見られた。

[キーワード] シミュレーション、二酸化硫黄、発生源分布、沈着、2000年

#### 1. はじめに

主要な環境酸性化物質である硫黄酸化物の人為的な発生量は年々増加しており、特に東アジア地域における発生量の70%強を占めている大陸では、1995年で年間約2,570万トンが排出されており (Sugiyama, 1998)、さらに Streets et al., (2000)によれば1997年では1995年よりも多少減少しているものの、約2,500万トンもの硫黄酸化物が大気中に排出されている。そのため酸性沈着による環境酸性化が懸念されており、大陸からの大気汚染物質の越境輸送による影響を評価するために、数値モデルによる調査がIchikawa他(1995)やSato他(1999)によって実施されている。さらに、東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)が設立され、1

1998年より測定データの蓄積が暫定的に行われ、2001年1月から正式に稼働した。しかしながら、この地域における大気汚染物質の発生と沈着の収支及び発生源と測定データの関係をモニタリングデータだけで把握することは困難であり、数値モデルによって輸送過程を調べ、これを評価することが必要である。

## 2. 研究目的

EANETが展開されている東アジア及び東南アジアを含む広域な領域をカバーする大気汚染物質の輸送モデルの開発を行うと共に、この領域における硫黄酸化物の輸送に関するモデルシミュレーションのために、EANETのデータ蓄積開始以降の硫黄酸化物の発生源データセットを作成する。世界気象機関（WMO）の全球大気監視計画（GAW）及びEANET測定値を用いて広域輸送モデルの検証を行う。この地域における硫黄酸化物の沈着量分布の把握とそれぞれの測定点における発生源寄与率の見積りを数値シミュレーションによって行うことにより、発生源・沈着量の関係を明らかにする。

## 3. 研究方法

広域輸送モデルは気象モデルと移流・拡散モデルの2つのサブモデルで構成する。図1にモデルの構成を示す。

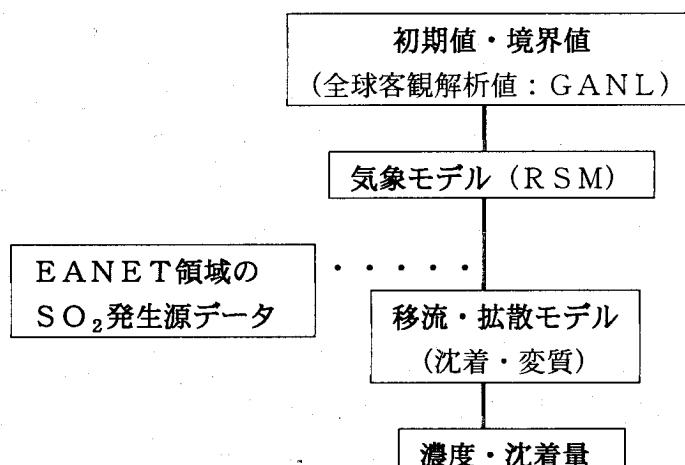


図1 広域輸送モデルの構成

移流・拡散モデルには大気汚染物質の発生、沈着の収支が容易に評価できるラグランジュ粒子法を採用し、これに乾性及び湿性沈着、気相及び雲による液相酸化過程を取り入れた。初年度には移流・拡散モデルを駆動するための気象モデルの構築を行った。気象モデルは気象庁において現在現業用数値予報モデルとして用いられている領域スペクトルモデル（RSM）をEANETの領域に拡張し、格子間隔を40kmに設定して217x217の格子点を配置した。表1には本研究で使用した気象モデルの特性を以前に使用した日本域スペクトルモデル（JSM）と比較して示した。EANET領域は赤道・熱帯域を含んでいるために、対流による降水が湿性沈着に重要な役割を占める。そこで本研究では熱帯域の降水にも予測精度が良いといわれているArakawa-Schubertの積雲対流スキームを含んだRSMを気象モデルとして採用した。JSMもRSMもスペクトルモデルであり、格子点は変換格子点で表現する。

表1 気象モデルの特徴

特 性	J S M	R S M
<b>座標系</b>	ポーラーステレオ	ランバート
地形の投影方式	21層	36層
鉛直気層の数	$\sigma$	$\eta$ ( $\sigma$ -Pハイブリット)
鉛直座標系		
<b>分解能</b>	40 km	40 km
水平空間分解能	97 × 97	217 × 217
変換格子点数		
<b>物理課程</b>	湿潤対流調節	Arakawa-Schubert
積雲対流	乱流クロージャーモデル	乱流クロージャーモデル
乱流		

この地域における硫黄酸化物の発生源の調査を行い、120地点の人為的発生源と22地点の火山発生源及び船舶の主要な航路上に船舶からの発生源を数点設定し、それぞれの発生源からの発生量を得た。湿性沈着過程及び液相変質過程を考慮するために、雲と降水を表現することが可能な気象モデルを構築した。第2年度に気象モデルと結合する移流・拡散モデルの開発及び輸送シミュレーションのための発生源インベトリーのデータセットを作成する。第3年度に輸送シミュレーションを実施することにより発生源・測定点の関係を得る。

#### 4. 研究結果

E A N E Tは東アジアばかりでなく東南アジア、シベリア南部からインドネシアまでの南半球の一部を含んだ広い領域に展開されている。気象予測モデルと大気汚染物質の移流・拡散モデルを結合してこの広域なE A N E Tの領域をカバーする輸送モデルを作成した。

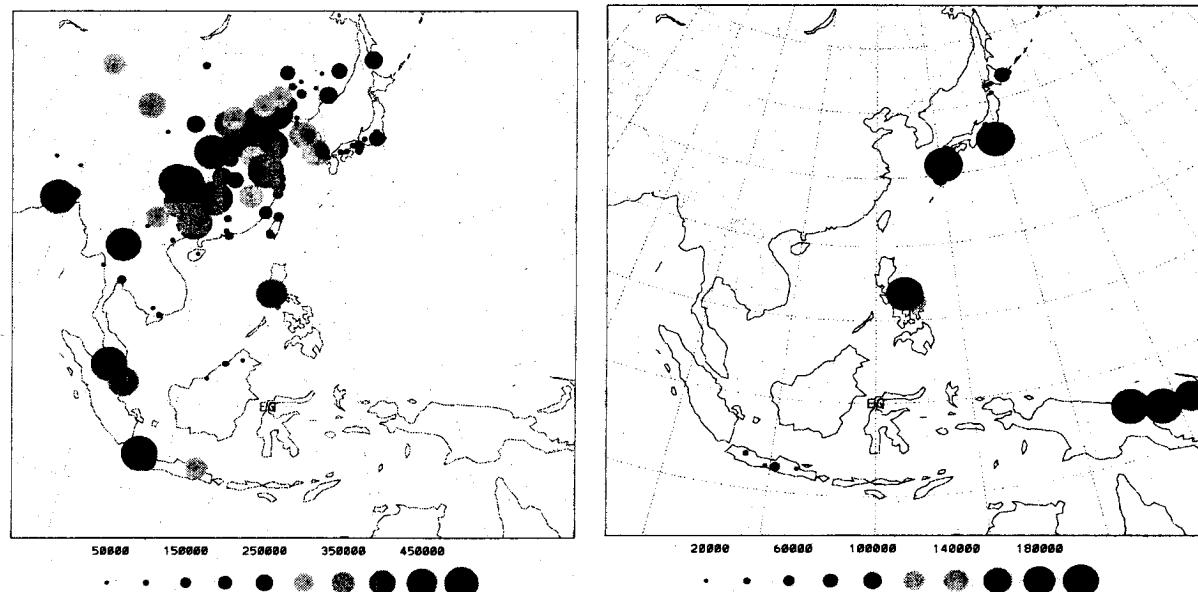


図2 2000年のSO<sub>2</sub>発の人為的（左）及び火山（右）発生源及び発生量分布

一方、東アジアにおける硫黄酸化物の最新の発生源データは2000年について1度×1度のメッシュで作成されたものがあるが<sup>3)</sup>、データセットを取得し、昨年度に作成した1993年ベースのものと比較した後、都市の人口、工業地域の規模に基づき点源に加重再配分した。しかし、このデータセットはE A N E T領域を全てカバーしているものではないので、この領域をカバーするために、ロシア極東部における発生源を付加する必要がある。そこでロシア極東部のエネルギー消費に関する資料の収集・調査を行い、排出係数を用いて硫黄酸化物の発生量を換算した。また火山からの排出量も考慮した。Streets他.(2000)によれば、東アジアにおける硫黄酸化物の排出量は1996年をピークとして、それ以降は年々減少傾向にある。図2の左はシミュレーションのために作成した2000年における人為的な硫黄酸化物の排出量分布を重みを付けて120地点に配分した結果を示している。この他に同様な火山による発生量分布も作成した(図2の右)。

まず、広域移流・拡散モデルを駆動する気象場のシミュレーションを2000年1月について実施した。図3の左の図は気象予測モデルによる積分81時間後(1月4日09時)の地上風の場を示したものであり、風向・風速を示す矢印は3格子間隔毎に書いてある。北半球中緯度では西風で低緯度では貿易風と呼ばれる東風、赤道付近では西風になっており、全球スケールの大気の循環の特徴を良く表現している。一方、本邦付近を詳細に見ると三陸沖に低気圧があり、この低気圧に向かって風が吹き込んでいるのが分かる。日本海側では強い西風っている。図3の右の図は1月4日09時のアジア域の地上天気図を示したものである。気象予測モデルの結果と比較して見るとモデルは低気圧の位置、風の場を良く表現していることが分かる。

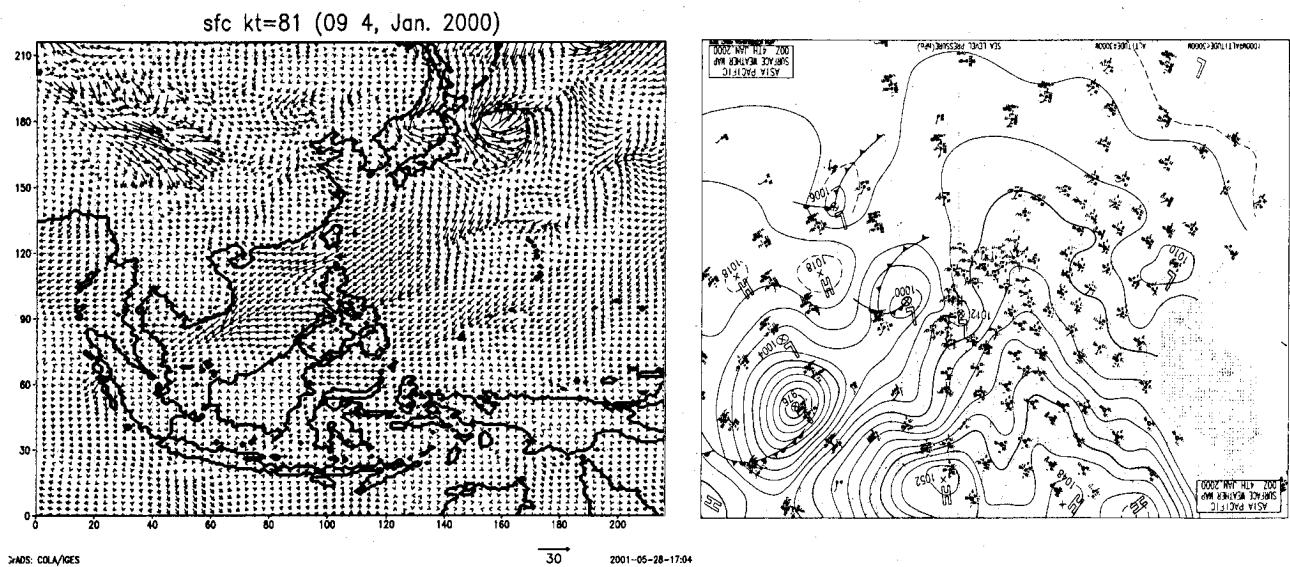


図3: R S Mによって再現されたE A N E T領域内の地上風（左）とこれに対応した天気図（右）

気象モデルのシミュレーションから作成される気象場を用いて移流・拡散モデルによるSO<sub>2</sub>の輸送・沈着シミュレーションを2000年1月と7月について実施した。輸送シミュレーションでは各発生源から硫黄酸化物の発生量に比例した数の粒子を時間ステップ毎にモデル大気に放出し、風や大気乱流によって輸送されるそれぞれの粒子の挙動を計算する。地表面に接近した粒子はそれぞれ化学物質特有の乾性沈着速度に従い、モンテカルロ法により確率的に地表面に沈着する。また、大気中を浮遊するSO<sub>2</sub>に見立てた粒子は時間と共に気相酸化反応によってSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>に変換される。

$\text{SO}_2$ は雲に遭遇した時には液相酸化反応によって $\text{SO}_4^{2-}$ に変換される。 $\text{SO}_2$ から $\text{SO}_4^{2-}$ への変換速度は気相におけるよりも液相における方が早いと言われており (Alkezweeney and Powell, 1977; Meagher and Bailey, 1983)、雲において多くの $\text{SO}_4^{2-}$ が生成される。降水による湿性沈着は降水域において水蒸気の最大凝結高度より下層に存在する粒子が降水洗浄率に従って湿性沈着する。図4は2000年1月における1ヶ月積算の乾性沈着(左上)、大気中濃度(左下)、湿性沈着(右上)と降水量分布(右下)を表したものである。大気中濃度及び乾性沈着の分布は類似したパターンを示しており、発生源近傍で高濃度、高い乾性沈着量を示しながら、中国大陸から東に輸送されているのが見られる。乾性沈着は移流・拡散によって地表面近くに達した粒子が $\text{SO}_4^{2-}$ が地表面に沈着するために地表面近くの大気中濃度に依存する。これに対して湿性沈着は上層に存在する $\text{SO}_4^{2-}$ も降水によって地上にもたらされるために、地表面付近の大気中濃度よりはむしろ降水量分布に依存する。従って図からも分かるように降水分布と湿性沈着は類似したパターンを示している。

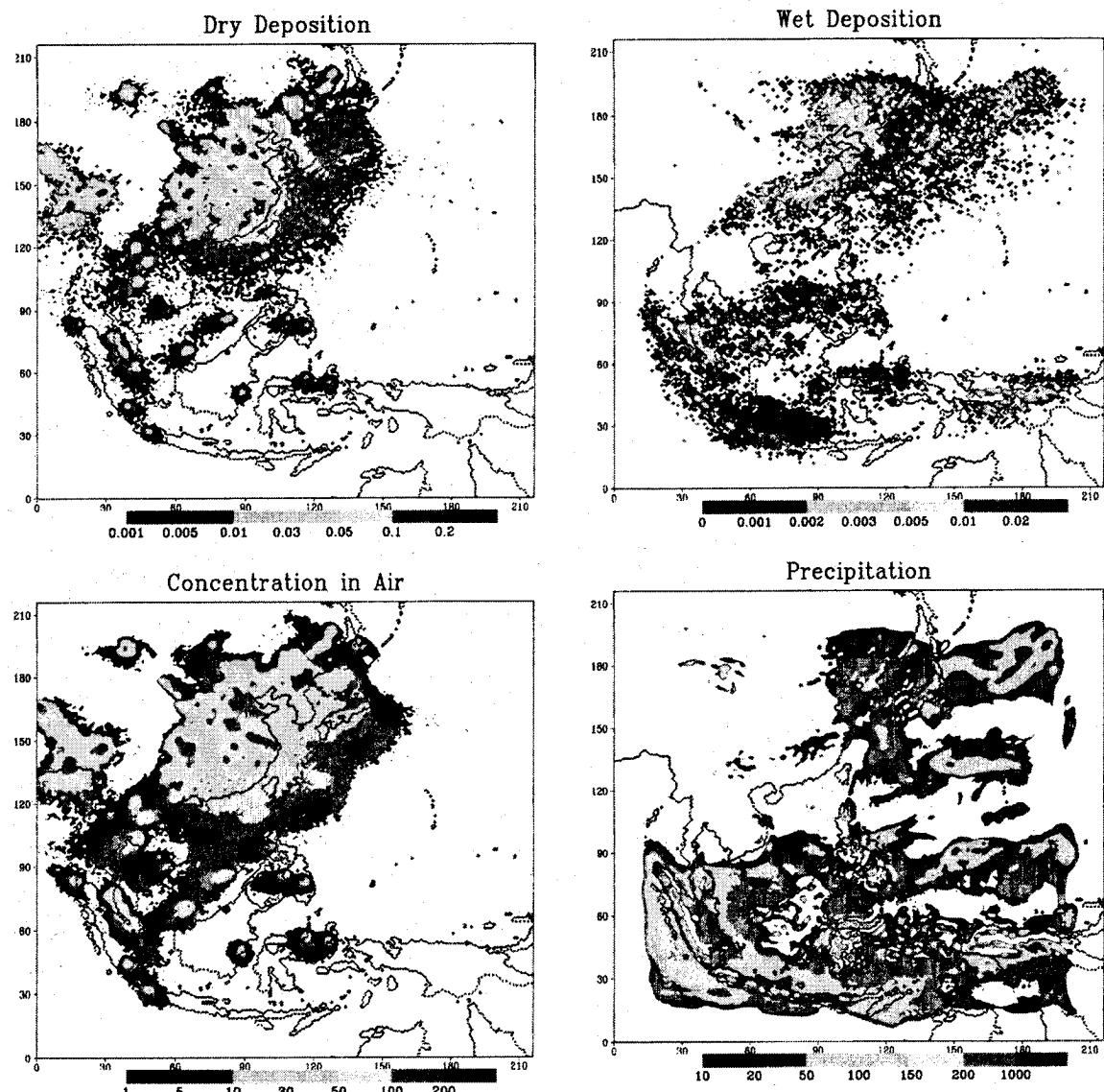


図4 2000年1月における乾性沈着(左上) 大気中濃度(左下) 湿性沈着(右上) 及び  
降水量分布

図5は図4と同様であるが、但し7月についてのものである。濃度及び沈着を1月と比較して見ると中国から韓国、日本を通じて濃度及び乾性沈着が東進しているが、沖縄近傍ではこれらの東進がブロックされているように見られる。しかし、降水は広く分布しており、これに伴って湿性沈着も広く分布している。また、7月には三宅島の火山活動が開始し、1日あたり3万トンものSO<sub>2</sub>が大気中に排出されていることが観測され、気象庁地震火山部によってテンポラリーではあるが、日々の観測結果が公表されている。この量は我が國の人為的発生量の数倍に匹敵し、無視することは出来ないのでこれによるSO<sub>2</sub>の発生量も考慮した。その他の活動的な火山からの発生量も考慮した。

我が国でもEANET観測点が設置され、SO<sub>2</sub>の濃度やSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の湿性沈着量が測定されている。これらの測定点は近傍の都市の影響を避けるため、都市から離れた場所に設置されている。

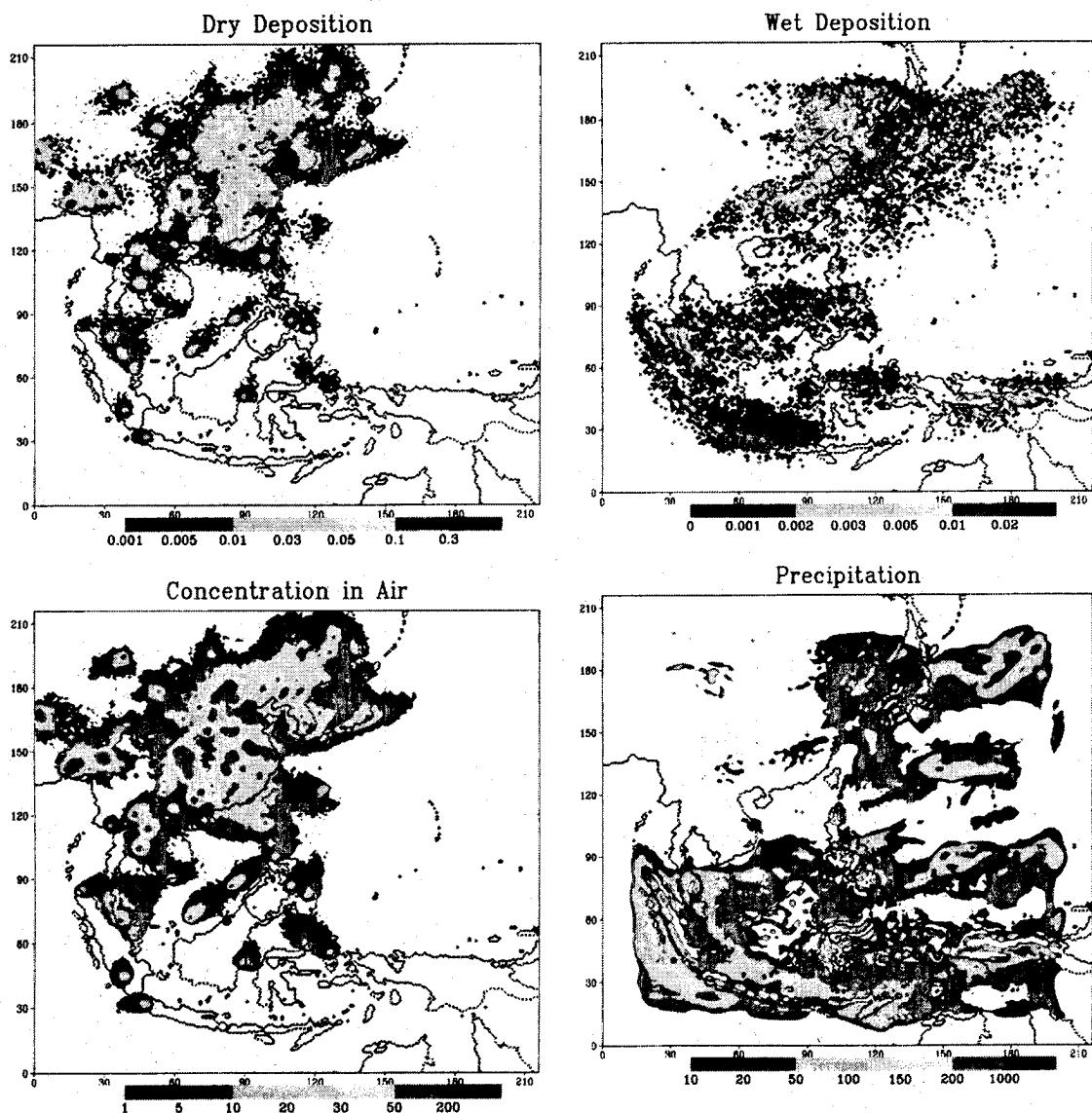


図5 2000年7月における乾性沈着（左上） 大気中濃度（左下） 湿性沈着（右上） 及び  
降水量分布

図6は1月（左）と7月（右）について我が国のE A N E T観測点である利尻、竜飛、小笠原、佐渡・関、八方、隠岐、安原、辺戸、伊自良湖、蟠竜湖の10地点における $\text{SO}_2$ の地上濃度の測定値と計算値を比較したものである。1月の比較には蟠竜湖の測定点におけるデータが少なかったため除外した。地上濃度は1月、7月ともモデルによる計算値が僅かな過大評価を示している。湿性沈着についての測定値との比較は概ね1桁ほど過小評価の結果であった。降水による洗浄率（Scavenging Rate）を降水強度に依存しないで一定の $1 \times 10^{-4}$ /秒（Sato et al., 1999）を採用し、0.1 mm/時を閾値とし、これ以上の降水があった場合に降水洗浄が起こると設定したために過小評価の結果となったものと推定される。すなわち、降水洗浄率が小さかったか、降水の閾値が大きかったかの両方に過小評価の結果が起因していると考えられる。

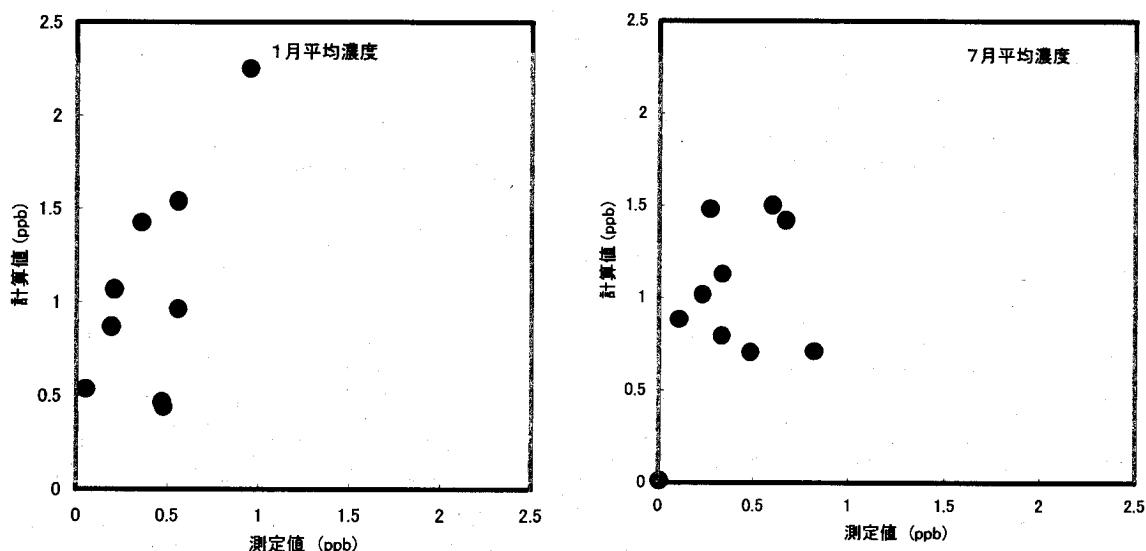


図6 我が国のE A N E T観測点における2000年1月（左）と7月（右）の $\text{SO}_2$ の1ヶ月平均地上濃度の測定値と計算値の比較

発生源寄与率を評価するために、粒子には発生場所を示す識別子が付けられており、どの発生源から放出されたものかが分るようになっている。図7は大陸及び朝鮮半島の発生源からの影響が大きいと予想される隠岐における輸送モデルで計算された2000年1月の $\text{SO}_4^{2-}$ の地上付近の濃度（上）と湿性沈着（下）に対する各発生源の寄与率を示したものである。横軸は火山も含んだ142点の発生源を示している。地上濃度と湿性沈着では寄与する発生源が異なっていることが分かる。すなわち、地上付近の大気中濃度は移流・拡散課程によって硫黄酸化物が地表付近に運ばれてきたものであるが、湿性沈着の場合は地表付近に至らない上層に存在している硫黄酸化物が降水によって地表面に沈着する。モデルでは最大凝結高度の下層で降水が起こるとしており、この厚い気層中にはいろいろな発生源から輸送してきた硫黄酸化物が存在していると考えられ、これらの硫黄酸化物が湿性沈着の対象となるわけである。このようなことから、湿性沈着に対しては寄与率の違いはあっても、いろいろな発生源からの寄与が見られる。図7にも見られるように、寄与率は大きくないが中国の多くの発生源が関与していることがわかる。しかし、各個の発生源の寄与率はあまり大きくないが、中国の発生源は数が多いために、国毎の発生源寄与率を積算すると中国の発生

源の影響は大きい。

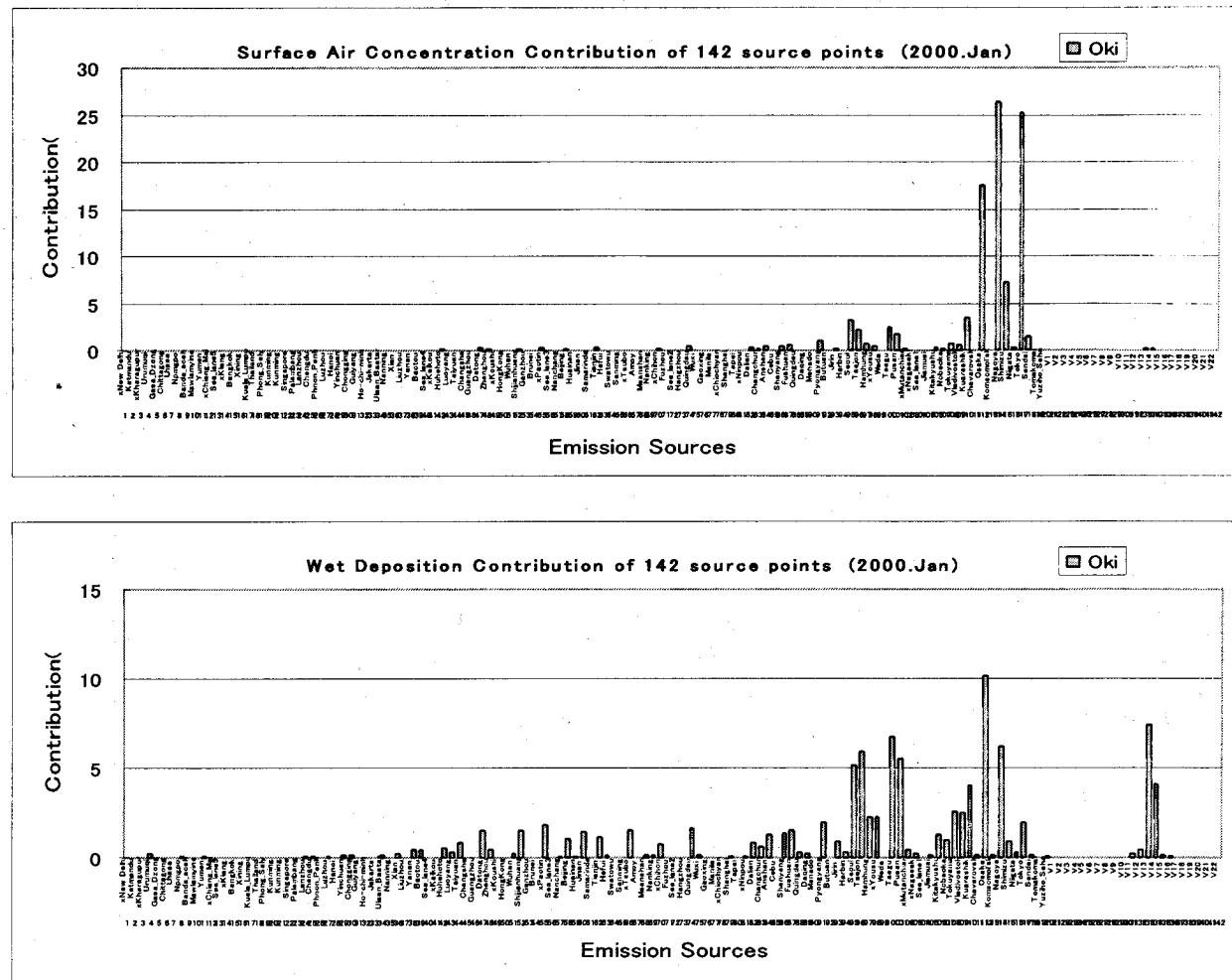


図7 隠岐における2000年1月の地表付近の $\text{SO}_4^{2-}$ の大気中濃度（上）と湿性沈着量（下）に対する各発生源の寄与率

実際に観測された $\text{SO}_2$ 月平均濃度を見てみると隠岐は1月は比較的高い濃度を示しているが、7月はそれほど高くない。図8はE A N E Tの我が国における観測点において観測された2000年1月と7月の $\text{SO}_2$ 濃度の平均値を示したものである。1月、7月共に安原における濃度が高いことが分かる。安原は別として、1月は利尻、竜飛、八方、隠岐などの平均濃度が比較的高く、一方7月では辺戸、伊自良湖、蟠竜湖における平均濃度が高い。すなわち1月と7月では平均濃度が高くなる地域が2分されているように見られる。これは恐らく季節的な気圧配置の違いによる輸送課程の相違によるものと考えられる。そこで1月及び7月共に濃度が高い安原における濃度に対する発生源寄与率を図9に示した。図9(a)の上の図は1月の濃度に対する発生源寄与率で下の図は湿性沈着に対する発生源寄与率である。濃度では1月は朝鮮半島からの寄与率が多く、また我が国の寄与もあることが分かる。7月は我が国の発生源の寄与率が多い。湿性沈着では我が国及び朝鮮半島、中国からの目立った寄与がある。図9(b)は7月についての発生源寄与率を示している。大気中濃度に対する寄与の多くは我が国の発生源に起因するものであるが、一方、湿性沈着に対して寄与している発生源は火山に起因するものが多いが、中国の1発生源からの寄与も目立っている。

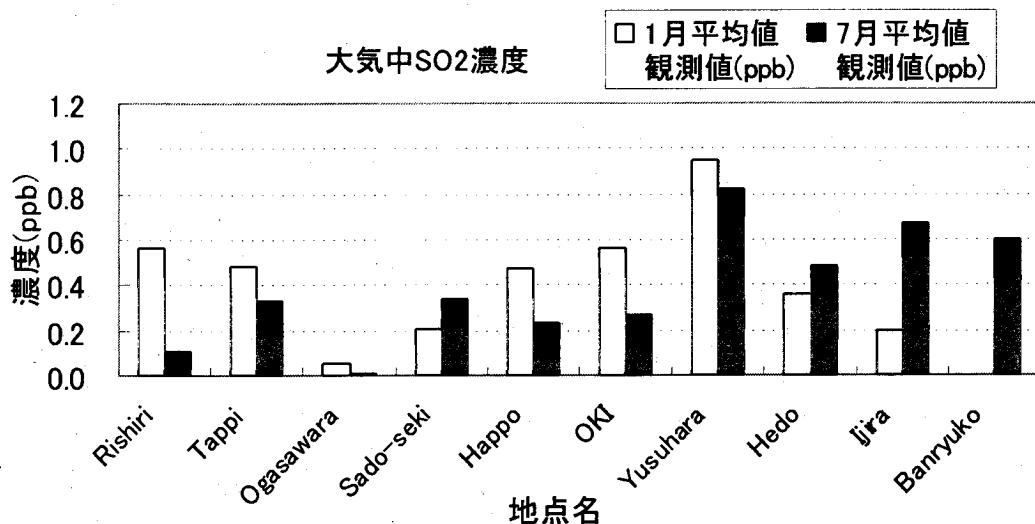


図8 我が国のEANET観測点における1月と7月のSO<sub>2</sub>月平均濃度

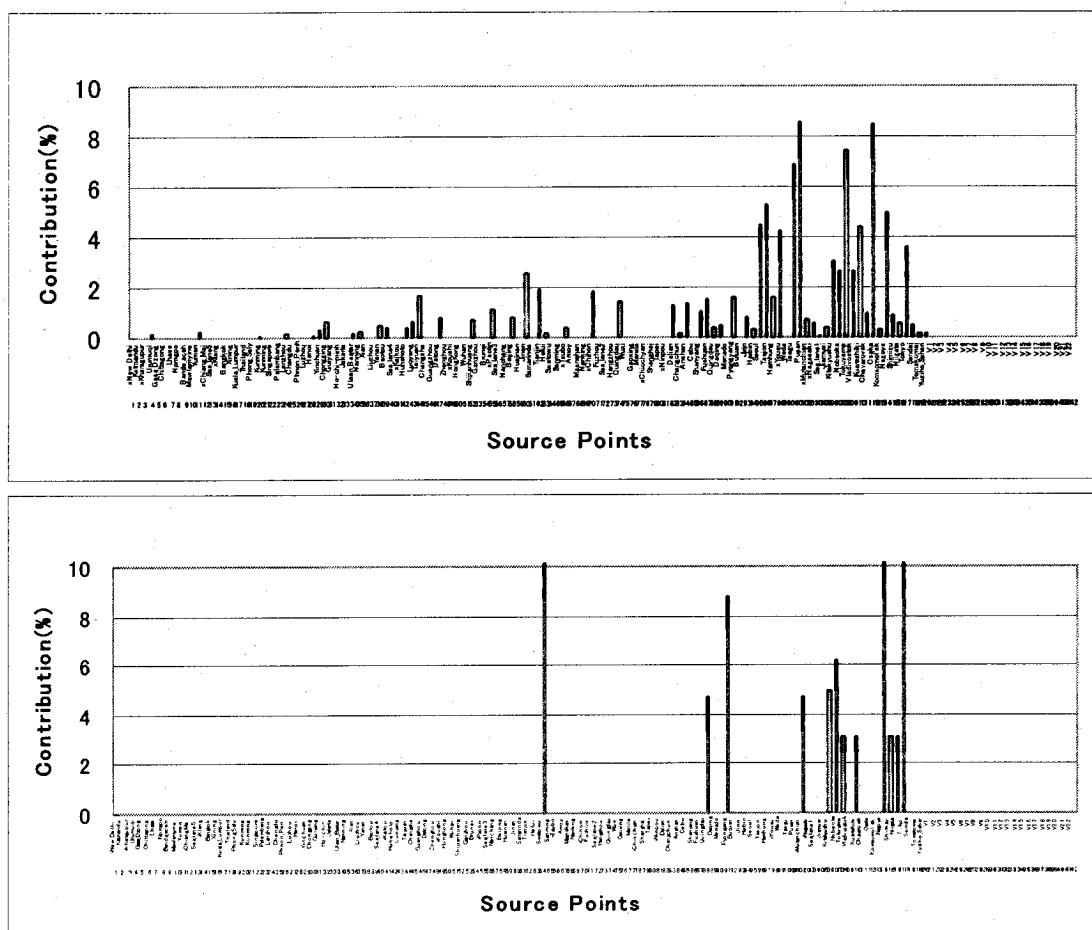


図9 (a) モデルによって計算された安原における1月の大気中SO<sub>2</sub>濃度に対する発生源寄与率  
(上) とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の湿性沈着に対する発生源寄与率。

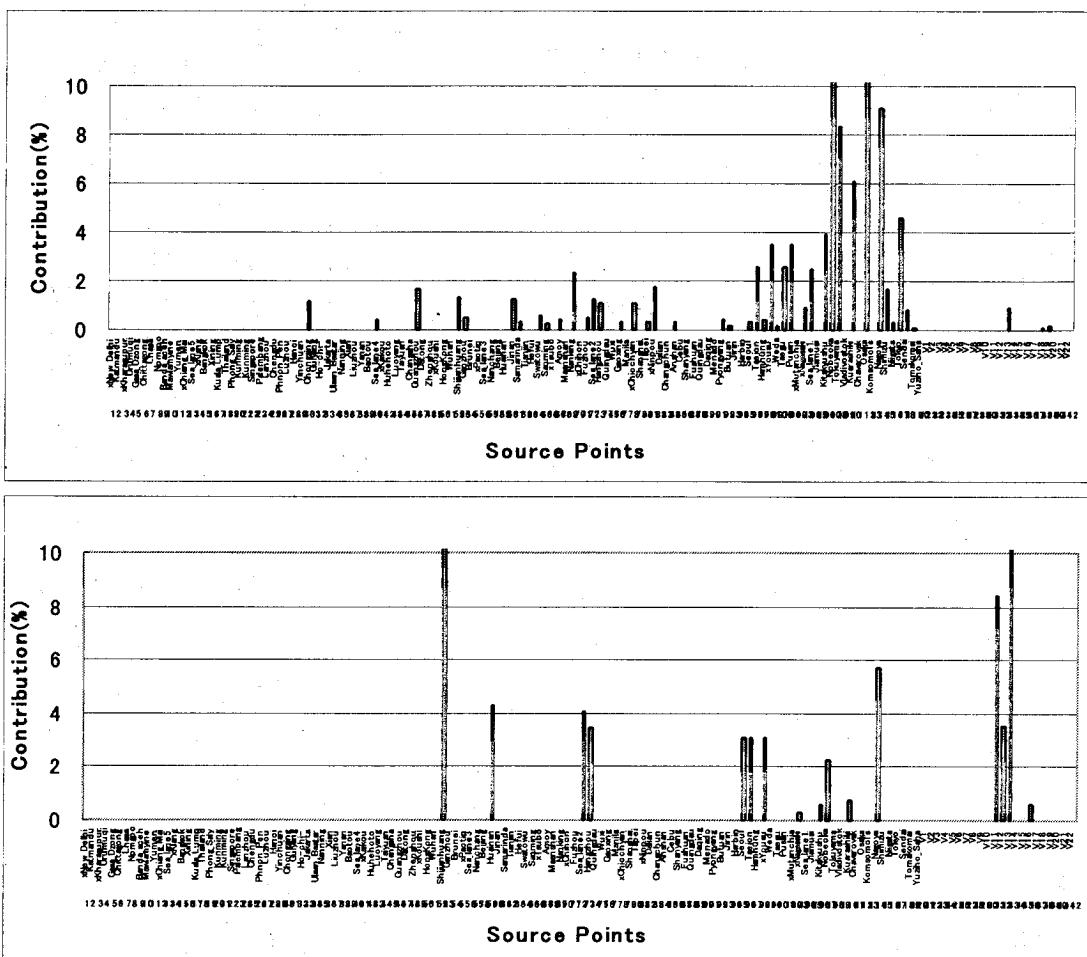


図9(b) モデルによって計算された安原における7月の大気中 $\text{SO}_2$ 濃度に対する発生源寄与率(上)と $\text{SO}_4^{2-}$ の湿性沈着に対する発生源寄与率。

図10には北端の観測地点である利尻における濃度に対する発生源寄与率を示した。上から順に1月における $\text{SO}_2$ 濃度に対する発生源寄与率、 $\text{SO}_4^{2-}$ 湿性沈着に対する発生源寄与率、7月における $\text{SO}_2$ 濃度に対する発生源寄与率、 $\text{SO}_4^{2-}$ 湿性沈着に対する発生源寄与率を示している。濃度は1月、7月ともリセプターの比較的近傍である我が国の発生源の影響を強く受けているが、湿性沈着の場合は1月では我が国の発生源の影響の他に2~3の中国の発生源の影響を、7月は中国の1発生源の影響を強く受けているのが見られる。中国全体として数多くの発生源を設定したが、隠岐の場合にも述べたように、中国の全ての発生源からの寄与率を合計すれば我が国の各測定点で測定された濃度や湿性沈着に対してかなりの影響を与えていた。

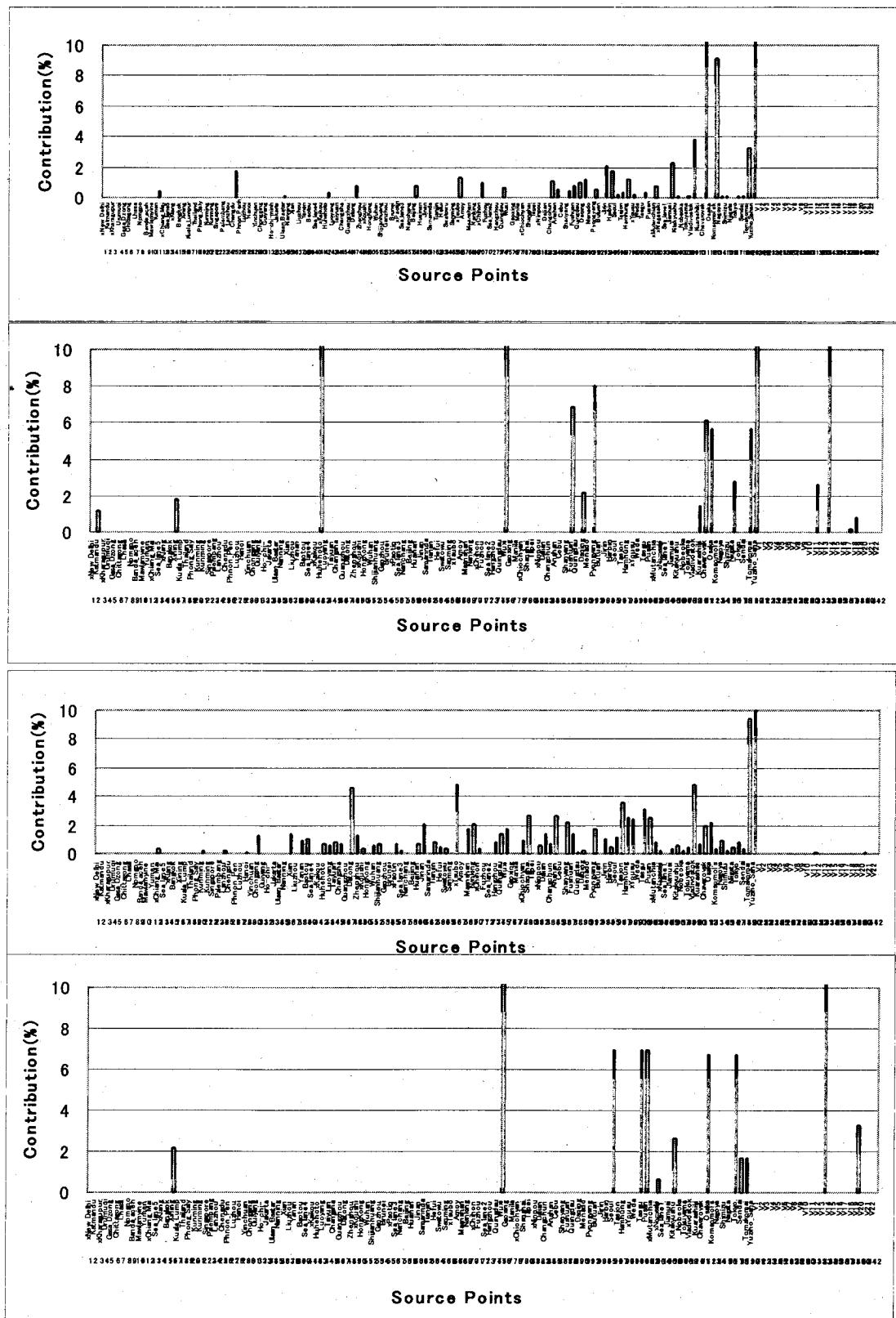


図10 モデル計算による利尻における1月のSO<sub>2</sub>濃度に対する発生源寄与率（上）、1月の湿性沈着に対する発生源寄与率（上から2番目）、7月のSO<sub>2</sub>濃度に対する発生源寄与率（下から2番目）及び7月の湿性沈着に対する発生源寄与率（下）

## 5. 本研究によって得られた成果

E A N E Tが展開されている広い領域をカバーした硫黄酸化物の輸送モデルを開発した。輸送モデルは気象モデルとこれによって駆動される移流・拡散モデルの二つの部分によって構成されている。気象モデルにはR S Mを水平分解能40 kmとして適用し、移流・拡散モデルにはラグランジュ粒子法を採用した。この方法は大気汚染物質の化学反応を表現するには難点があるが、発生源をつきとめ、そこからの寄与率を得るには便利な手法である。

モデル計算によって推測された我が国E A N E T測定点におけるSO<sub>2</sub>の地上濃度は測定値と比較して僅かに過大評価であったが、オーダーは同じで比較的一致したと見なしてよい。一方、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の湿性沈着については1オーダー低い見積もりの結果となった。この過小評価は降水による洗浄率と降水の閾値の設定に起因していると推察される。これらを再設定することにより良好な結果が見込めると思われる。

E A N E T領域の中で輸送される硫黄酸化物の濃度、乾性、湿性沈着分布には中国、韓国及び我が国における発生源の寄与に注目すべきであり、特に冬季には大陸の膨大な発生源に起因する湿性沈着による環境に対する影響を考える必要がある。

## 4. 引用文献

- 1) Sugiyama, T.: Building China provincial energy and emission model. *Proceeding of the Workshop on Transboundary of Air Pollutants in Asia.* IIASA Contact No. 99-124, 1999.
- 2) Streets, D., N. Y. Tsai, H. Akimoto and K. Oka: Sulfur dioxide emission in Asia in the period 1985-1997. *Atmos. Environ.*, **34**, 4413-4424, 2000.
- 3) Ichikawa, Y. and S. Fujita: An analysis of wet deposition of sulfate using a trajectory model for East Asia. *Water Ai, Soil Pollution*, **85**, 1921-1926, 1995.
- 4) Sato, J., H. Sasaki and T. Satomura: Transport of sulfur oxides over the East Asian region by the off-line meteorology and transport model. *Pap. Met. Geophys.*, **50**, 97-111, 1999.
- 5) On web site: [http://www.cgrer.uiowa.edu/people/gcalori/model\\_intercomp.htm](http://www.cgrer.uiowa.edu/people/gcalori/model_intercomp.htm)

### [国際共同研究等の状況]

なし

### [研究成果の発表状況]

#### (1) 誌上発表

- ① J. Sato, H. Sasaki and T. Satimura: *Pap. Met. Geophys.* **50**, 97-111 (1999)  
“Transport of sulfur dioxide over the East Asian region by a coupled meteorological and transport model”
- ② H. Sasaki, N. Seino, J. Sato and M. Chiba: *J. Met Soc. Japan*, (2002). (in press).  
“Development of dispersion model for volcanic gas over Miyake Island”
- ③ J. Sato and H. Sasaki: *J. Met Soc. Japan* (in submit)  
“Source-receptor relationships of sulfur oxides in east Asian region simulated by the nested transport model”
- ④ 佐藤純次: 気象, 43. (1999). 「輸送モデルと欧州トレーサー実験」
- ⑤ N. Seino, H. Yoshikado, F. Kobayashi, J. Sato and Members of Tsukuba Area Precipitation Studies: “Vertical structure of local fronts observed in Kanto” *Japan. J. Met. Soc. Japan*, ,(2001) (in press)

(2) 口頭発表

- ① J. Sato and H. Sasaki: The 5<sup>th</sup> International Workshop on the Comparison of Trans-boundary Transport Model, 2001  
“Source-receptor relationships of sulfur oxides in east Asian region simulated by the nested transport model”
- ② 佐藤純次、佐々木秀孝、清野直子、千葉 長：日本気象学会平成13年度秋季大会, 2001.  
「三宅島火山ガスの移流・拡散シミュレーション」
- ③ J. Sato, H. Sasaki, N. Seino and M. Chiba: The 7<sup>th</sup> International Joint Seminar on Regional Deposition Processes in the Atmosphere, 2001.  
“The multi-nested high-resolution model for the dispersion of volcanic SO<sub>2</sub> over the Miyake Island”

(3) 受賞等

なし

(4) 一般への公表・報道等

なし