

C-1 東アジアにおける酸性、酸化性物質の動態解明に関する研究

(3) 大陸からの大気汚染物質の移流解明のための、酸性、酸化性物質の発生、移流、変質、沈着モデルの作成

① 東アジアにおける酸性・酸化性物質の発生、移流、変質、沈着モデルの作成

研究代表者 国立環境研究所 村野健太郎

運輸省気象庁気象研究所

応用気象研究部 第1研究室 佐々木 秀孝, 里村 雄彦
第2研究室 岡田 菊夫
第3研究室 佐藤 純次

環境庁国立環境研究所

地球環境研究グループ 村野健太郎, 畠山史郎
大気圏環境部 鶴野伊津志

平成5年度～平成7年度合計予算額 46,069千円
(平成7年度予算額 14,821千円)

[要旨]

長距離輸送モデルに汚染質と雲との相互作用過程を付加するために、雲を表現できるように従来の気象モデルに空間分解能の高いモデルをネスティングした。改良した気象モデルを検証するためにモデル出力の海面気圧場、降水域を地上天気図、GMS雲画像と比較した。更に改良した気象モデルと移流・拡散モデルを結合し、アウターモデルとネスティングしたインナーモデル間で汚染質の移流・拡散が円滑に引き継がれているかをチェルノブイリから排出された放射性沃素の実測データを利用して検証した。

雲と汚染質の相互作用を考慮できるように精密化した長距離輸送モデルによって東アジア地域における硫黄酸化物の輸送過程を1985年について年間を通したシミュレーションを実施した。

物質輸送モデルにより東アジアスケールの物質輸送プロセスについて解析した。モデルは1日～数日の濃度変動や沈着を細かな時間変化を含めて扱い、ガス、エアロゾル濃度、乾性・湿性沈着量の詳細な時間変化が得られる。このような詳細な化学反応プロセスを含む長距離物質輸送モデルの適用はわが国で初めてである。反応として気相反応のみを考慮したモデルから、東アジアスケールの長距離物質輸送プロセスがかなりの部分まで再現できた。特に、梅雨前線と高低気圧の移動が大陸からの長距離物質輸送に重要な役割を果たすことが明らかにされた。

[キーワード] 数値モデル、酸性雨、ネスティング、スキャベンジング、化学反応モデル

1. 序

東アジア地域では年間に2400万トンを超える硫黄酸化物が大気中に排出されており、このうちの約70%に近い量が中国によって占められている¹⁾。このように大陸において大量に排出された硫黄酸化物の越境汚染による影響が危惧されている。東シナ海、黄海、日本海上空において各種汚染質の空間分布が航空機観測により断片的に把握されてはいるものの¹⁾、酸性沈着モニタリング・ネットワークが展開されていない現状では大陸起源の大気汚染質の長距離輸送過程を推測する手法は数値モデルに頼らざるを得ない。佐藤等²⁾はラグランジュ粒子を用いたMRI長距離輸送モデルによって大陸起源による硫黄酸化物のわが国への沈着量とこれに対する各発生源の寄与率を推測した。しかしながら、MRI長距離輸送モデルには降水による湿性沈着過程は含まれているものの、最近重要視されてきた雲による沈着過程は含まれていない。これはMRI長距離輸送モデルを構成する気象モデルは空間分解能が127kmもあり、雲を予測し、表現する機能が備わっていないためである。そこで雲を定義できるようにし、硫黄酸化物と雲との関わり合いを表現できるようにするために気象モデルの空間分解能の向上、雲を定義して雲水量を出力することができるように改良した。しかし、東アジアのような広い地域を計算領域とし、且つ格子間隔を狭くすることは困難であるので、従来のMRI長距離輸送モデルに用いられている気象モデルに上述した機能を有する気象モデルをネスティングすることによって気象モデルの性能の向上を図った。

2. 研究の目的

大気汚染質の変質、乾性・湿性沈着過程を含んだ空間分解能の高い長距離輸送モデルを開発する。湿性沈着過程には降水による沈着の他に雲によるSO₂の液相酸化等、汚染質に対する雲の効果を加味する。このモデルにより東アジア地域における汚染質の長距離輸送過程を把握し、酸性沈着の程度を評価する。

3. 研究結果（気象研究所分担部分）

MRI長距離輸送モデルは二つのサブモデルで構成されており、気象を予測する気象モデルと乾性・湿性沈着、SO₂からSO₄²⁻への変質過程を含んだ移流・拡散モデルである。

3. 1 気象モデル

空間分解能の向上を図るために二つの気象モデルを結合した。すなわち、外側のモデル（アウターモデル）としてMRI長距離輸送モデルに従来組み込まれていた東アジアを予測領域とするFLMを用い、その中にネスティングするインナーモデルとして日本領域スペクトルモデル（JSM）を採用した。図2はアウターモデルの領域と地形を示し、内側のフレームはネスティングするインナーモデルの領域を示している。手法はスペクトル結合法³⁾を用いた。

a) アウターモデル

アウターモデルとして用いたFLMは鉛直方向には地上から約100hPaの高度までシグマ座標系を用いた16層で分割され、この層の厚さは移流・拡散を精度良く表現するために下層に従い密になっている。大気境界層の乱流はレベル2のクロージャーモデル⁴⁾によって表現され、モデルの最下層である接地気層における地表面フラックスは相似則によって決定される。支配方程式系は運動量、質量、水蒸気量、温位のフラックス形式を用いたプリミティブ方程式であり、

以下の気象変数を予測する。

$$u, v, \theta, q, \pi$$

ここで、 u と v はそれぞれ x 及び y 方向の風の成分、 θ と q はそれぞれ温位と比湿、 π は地上気圧である。風の鉛直成分は診断的に求める。モデルの初期値と境界値は気象庁の全球客観解析値(GANL)によって与える。モデルの計算領域は約 $9300 \times 7000 \text{ km}^2$ で東西方向に73、南北方向に55の格子で分割され、水平方向の分解能は約127 kmである。

降水については2種類のパラメタリゼーションがなされ、一つは大規模凝結、即ちモデル大気は水蒸気の過飽和を許さないため相対湿度が100%以上になった分の水蒸気は降水として落とす。もう一つのパラメタリゼーションは湿潤対流調節であり、モデル大気の気温減率を乾燥断熱減率と湿潤断熱減率の間に保っておく。その他のアウターモデルの詳細はSatomura et. al.⁵⁾及び佐藤ほか¹⁰⁾によって述べられているのでここでは以上のアウトラインの説明をしておくだけに留めておく。

b) インナーモデル

内側にネスティングするインナーモデルとしてはJSMを用いた。JSMは計算領域、空間分解能及び放射過程などの幾つかの物理過程以外は基本的にはFLMと同じであるが、スペクトルモデルであり、プリミティブ方程式系のスペクトル表示はTatsumi⁶⁾と同様である。モデルは鉛直方向には19層に分割され、やはり下層に従い密になっている。水平方向には 97×97 の変換格子を持ち、水平分解能は40 kmである。雲量は各気層毎の相対湿度から経験式⁷⁾により決定される。雲を形成するための物理量は移流するが、実際には雲自体は格子毎に定義されるので移流しない。この性質は後述する雲による湿性沈着に大きく影響する。また100%以上の相対湿度、すなわち過飽和分の水蒸気を各気層から降水として落とすという格子毎の凝結過程を考慮する大規模凝結という凝結過程のパラメタリゼーションがなされている。雨滴の蒸発は汚染質の降水による湿性沈着とも関わり、非常に複雑になるので考慮しない。しかし湿性沈着過程の精密化を図るために各高度毎に雲と雨滴の3次元分布の情報を出力するようにした。雲は相対湿度と高度による経験式⁷⁾によって定義される。またインナーモデルは長期間の時間積分が可能であるが、汚染質の移流・拡散にとって重要な気層である混合層の性質を決める地表面温度を長期間積分による予測をしないで、5日間毎に気候値を入れ替える方法を取った。

3. 2 移流・拡散モデル

移流・拡散モデルは基本的には大気中に排出された硫黄酸化物の質量保存を前提としており、汚染質濃度は排出強度に見合った数のラグランジュ粒子に置き換えられて気象モデルと同じ座標

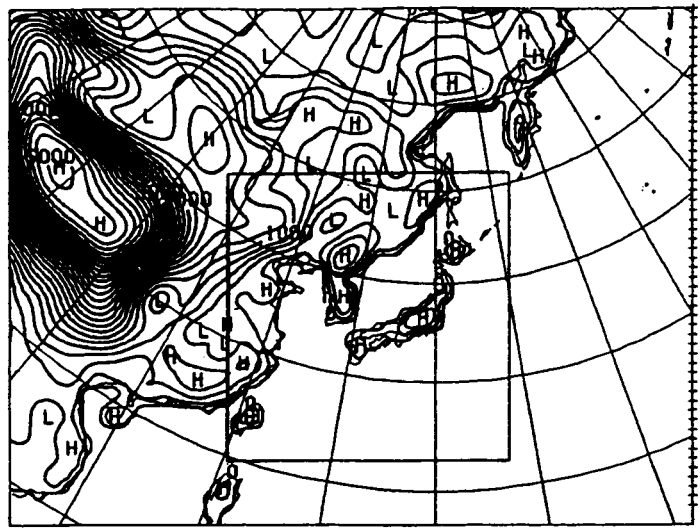


図1 アウターモデルの計算領域と地形。中のフレームはネスティングするインナーモデルの領域を示す。

系で水平及び鉛直の3方向の風の成分によって移流する。すなわちラグランジュ粒子1個毎にある量の硫酸化物の濃度を背負っている。粒子の動きは気象要素の時間・空間内挿により気象モデルよりは高い分解能で計算される。乱流拡散は移流の他に粒子に対してランダムな動きを与える。

a) 移流と拡散

粒子の移流と拡散による3次元的な挙動は以下の式により計算する。

$$\frac{dX}{dt} = u \quad \frac{dY}{dt} = v \quad \frac{d\sigma}{dt} = \sigma + R \quad (1)$$

ここに、 X 、 Y 及び σ は3次元座標系における粒子の位置であり、乱流拡散に相当する粒子のランダムな動きは以下のように定義する：

$$R = \pm \sqrt{2K_z \delta t} \quad (2)$$

ここに、 δt はランダムウォークモデルにおける時間ステップであり、正と負の符号はランダにとる。 K_z は鉛直乱流拡散係数で気象モデルから以下のように計算される。

$$K_z = l^2 \left| \frac{\partial V}{\partial z} \right| F(R_i) \quad (3)$$

K_z が急激に変化するようなときにおける疑似拡散を避ける為の方法は(2)式の計算において δt を十分に小さくすることの他に松野スキームを使用することである。 δt を小さくすることによる疑似拡散を回避するために δt は OUTERモデル領域では $\delta t = 10$ 分、INNERモデルでは $\delta t = 2$ 分にとった。

b) 沈着過程

粒子の位置する高度が σ 座標系においてあらかじめ定義しておいた高度 $H_d = 0.99$ より低いところあるラグランジュ粒子は以下の条件を満足すれば乾性沈着するとした。すなわちそれぞれの粒子と時間ステップにおいてランダムに与えられる値が以下に定義する値 P_d より小さければ、その粒子は沈着する。

$$P_d = \frac{V_d \delta t}{H_d} \quad (4)$$

ここで、 V_d は乾性沈着速度である。乾性沈着速度は汚染質毎及び気象条件、地表面条件により異なり、Waleck et al.⁸⁾は幾つかの地表面条件についての乾性沈着速度を計算し、Wesely⁹⁾は数値モデルにおいて乾性沈着を計算するために地表面抵抗のパラメタリゼーションを行っているが、本モデルでは SO_2 と SO_4^{2-} のそれぞれに対して年間を通じて一定の値を与えた。但し本モデル

の東アジア地域を対象とする計算領域では海面の占める面積が大きいこと、地表面状態が陸面と水面で異なった乾性沈着速度を与えた。一方、湿性沈着過程は降水と雲による沈着を考慮し、アウターモデルでは1時間毎に降水による沈着のみを、またインナーモデルでは40分毎に降水と雲を評価する。モデルの単純化のために降水による沈着率は降水強度に依らず、降水があれば一定の割合で沈着するものとした。従って降水の有無の判別と降水領域がこのモデルの降水による湿性沈着に重要な役割を果たす。降水による湿性沈着は以下に示すような確立で粒子が雨滴に捕捉され捕捉されて沈着するものとした。

$$P_{wd} = D_{wd} dt \cdot RR \quad (5)$$

ここに、 D_{wd} は降水による沈着率、 dt は沈着の評価時間でアウターモデルでは1時間、インナーモデルでは40分である。 RR は降水の有無を表す指標で閾値以上の降水があれば $RR = 1$ 、降水が無ければ $RR = 0$ である。降水は前述したように気象モデルにおいて過飽和の水蒸気は降水としたが、一定の降水沈着率を考慮すると、モデルにおいて降水の有無を判定するための閾値が非常に重要となってくる。そこで降水の閾値は気象モデルの計算降水量とアメダスの降水量データとのスコア解析により決定した。一方、雲による湿性沈着は、一旦形成された雲は移流しないという気象モデルの性質のため、もし雲に汚染質が取り込まれたとしても汚染質だけが移流し、雲は移流しないでそこで留まってしまう。しかし汚染質が雲に遭遇すればそこでは後述する液相化学反応に相当する汚染質の変質が考慮されており、汚染質が雲とともに格子内に留まっても雲を評価する40分間に相対湿度が100%を越えると変質した汚染質の種類に応じて湿性沈着するものとした。

c) 変質過程

汚染質の化学反応過程をラグランジュ粒子法による移流・拡散モデルに取り入れることは非常に困難であり、従ってこのモデルでは SO_2 から SO_4^{2-} への変質だけを考慮した。ここでは2種類の変質過程を考慮した。一つは気相反応を考慮した変質でありアウターモデルの領域ではこの過程だけしか考慮されていないが、インナーモデル領域では気相における変質の他に雲の中における液相反応を念頭に置いた変質も考慮した。

3. 3 モデルの検証

気象モデルの予測精度を確認するために、試算結果から海面気圧及び雨量の分布図を作成し、地上天気図、静止気象衛星(GMS)の雲画像と照合し、予測結果の妥当性を評価した。このような検証計算の結果、低気圧の移動は観測とよく合っており、中心気圧も概ね一致していた。降水領域は静止気象衛星の雲画像部分と一致しているが、ときには画像では雲の薄い地域でも降水を予測している場合もあるが、これは雲の種類と降水の閾値(この場合の閾値は5mm/hに設定)によるものと思われる。

一方、アウターモデルとそこにスペクトル結合によりネスティングしたインナーモデルの間でラグランジュ粒子の移流・拡散が円滑に行われているかどうかの検証のため、チェルノブイリ原子力発電所の事故による放射性汚染素(I^{131})の輸送過程シミュレーションを実施し、計算結果を観測データと比較した。特にアウターモデルとインナーモデル間の境界を通じた粒子の挙動を調

べるために発生源であるチェルノブイリはインナーモデルの外側になるようにインナーモデルを配置した。図2は1986年5月1日00UTCにおける大気中の I^{131} の分布を示したものであるが、外側の領域からネスティングした境界を通して内側の領域へ粒子が円滑に移流し、再度外側の領域へ出て行っているのが見られる。

次にネスティングしたモデルの予測精度を調べるために以下の4つのケースについて統計的に比較した。

ケース1；アウターモデルだけの場合。

濃度の評価域は 254×254 km。

ケース2；アウターモデルだけの場合。

濃度の評価域は 80×80 km。

ケース3；ネスティングした場合。濃度の評価域は 254×254 km。

ケース4；ネスティングした場合。濃度の評価域は 80×80 km。

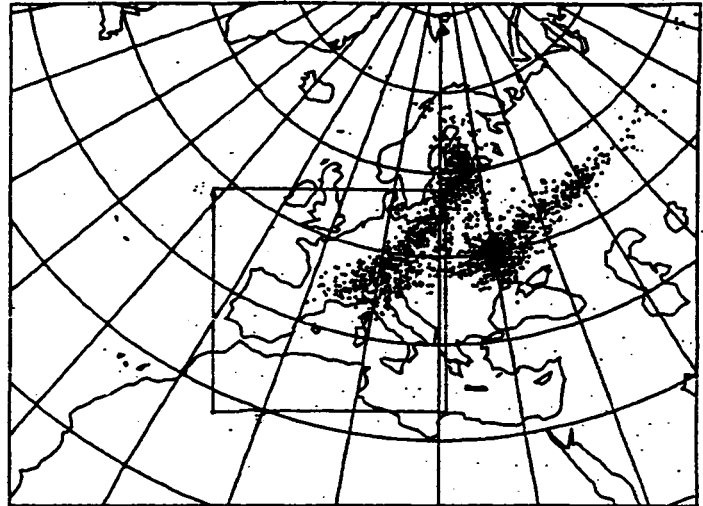


図2 モデル検証のために計算された I^{131} の1986年5月1日、00UTCにおける分布。内側のフレームはネスティングしたインナーモデルの領域。

濃度は24時間移動平均をとった。表2は観測データとのRMSE、汚染物質の有無の的中率を表したものである。表中の的中率とはモデルと観測共に濃度有り、もしくは無しの場合。見逃しは観測では濃度が観測されているが、モデルでは予測されなかった場合、空振り

は観測では濃度が無いのにモデルで予測した場合である。RMSE、的中率ともにネスティングした方がスコアが良くなっている。濃度評価域が25 kmと80 kmを比較するとRMSEでは80 kmの方が良くなっているが、的中率は254 kmの方がよい。これは評価域が狭い方が地域性が出て濃度計算がより精度よく行われるが、その分見逃しも多くなる。以上のことからインナーモデル

表2 各ケース毎のスコア

ケース	RMSE	的中	見逃し	空振り
1	0.99	348	129	4
2	0.87	277	203	1
3	0.91	397	76	8
4	0.82	314	165	2

であるJSMをアウターモデルであるFLMにネスティングすることによってアウターモデルだけで長距離輸送を計算するよりも精度が良いことが確かめられた。

3.4 シミュレーション結果

ネスティングした長距離輸送モデルによる東アジア地域におけるいおう酸化物の輸送・変質・沈着シミュレーションを1985年について年間を通じて実施した。先ず気象の格子点データセットを作成するために初期値、境界値には気象庁のGANLを用いてアウターモデルを駆動

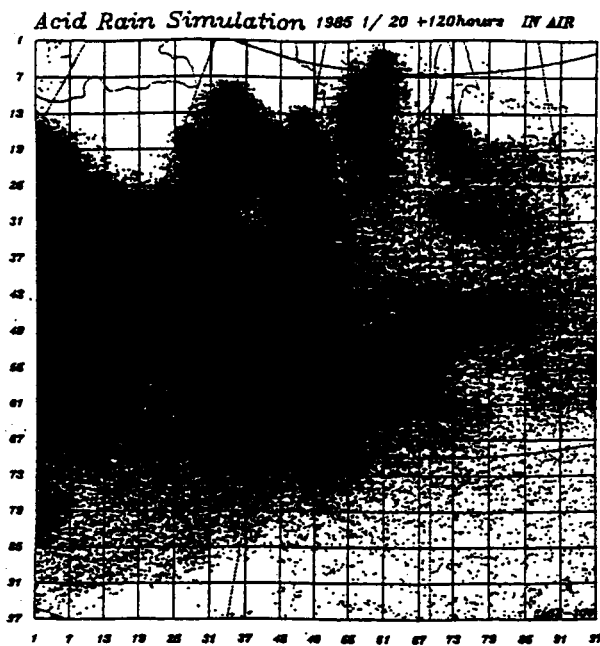


図3 1985年1月20日～24日迄の5日間の東アジアにおける大気中に存在するいおう酸化物の水平分布。

し、その中にインナーモデルをネスティングして気象のシミュレーションを実施した。この計算の出力は各格子点毎の3次元の気流、雲水量、降水、拡散係数、ジオポテンシャルである。この計算には長い計算時間を必要とした。例えば120時間分の気象変数の格子点データを作成するのに国立環境研究所のSX-3/14システムを用いて約2時間のCPUを要した。アジア地域におけるいおう酸化物の人為的発生源はアフガニスタン及びパキスタン以東の25カ国についてのエネルギー消費量から加藤ほか⁹⁾により計算されており、このデータを基礎として、1985年について東アジア地域の都市の人口、工業地域の大小及び活性度を考慮し、極東ロシアも含めた80地点の点源に再配分した発生源データ¹⁰⁾を用いた。

図3は1985年1月20日から24日迄の5日間に各発生源から排出され、大気中に存在するいおう酸化物を鉛直方向に積分し、その水平分布を示したものである。汚染質は5日間で東アジア全域に分布していることが分かる。さらにこの期間における乾性沈着の分布は図4(a)に示されているとおりであり、比較的発生源の近くにおける乾性沈着が顕著である。

一方、この期間の湿性沈着分布の水平分布は図4(b)に示されているが、図からも見られるとおり湿性沈着は広く分布しており、図3で示されたように東アジア全域に広がった大気中のいおう酸化物が降水域において湿性沈着するためである。乾性沈着では中国内陸の発生源近傍で見

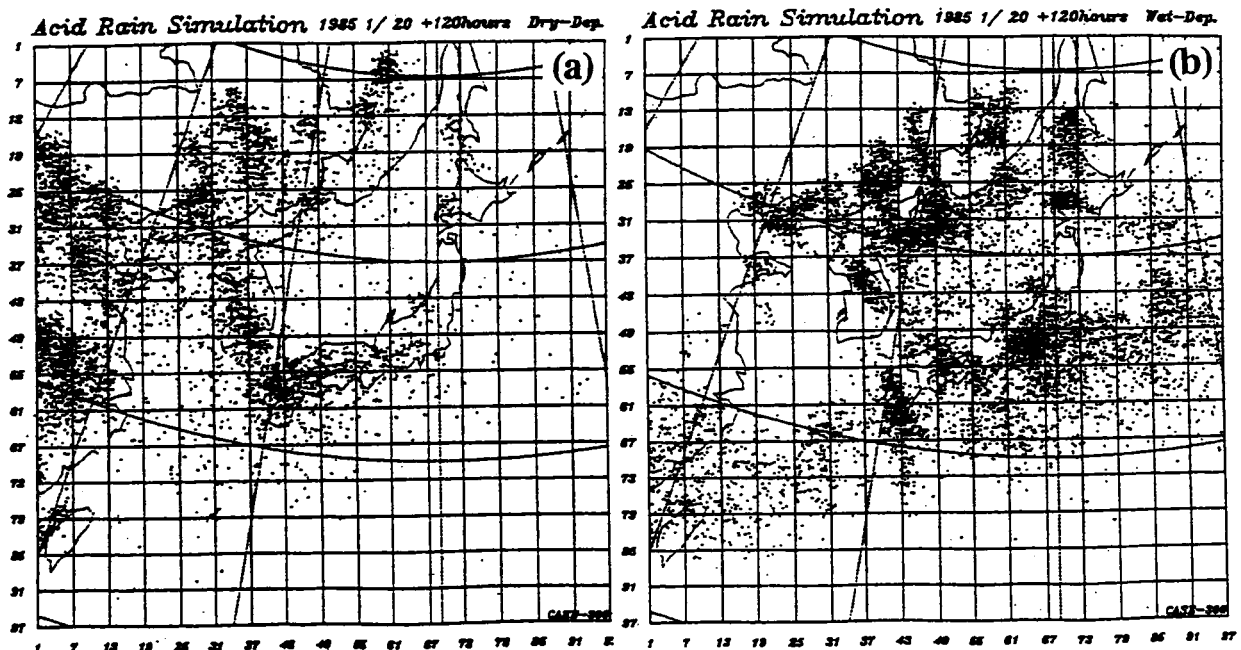


図4 1985年1月20日から5日間の乾性沈着分布(a)と湿性沈着分布(b)。

られたのが、湿性沈着では殆ど見られない。発生源から風下方向に輸送されながら湿性沈着していることが分かる。湿性沈着の場合は乾性沈着のように系統的な沈着分布はなく、降水域に大きく依存する。従って長距離輸送モデルでは降水域を十分に評価することが必要であり、本研究課題ではこのために気象モデルに力点をおいて輸送モデルの開発を行ってきた。また、気象モデルの雲・降水に関するパフォーマンスも気象衛星（GMS）やアメダスデータによる検証も十分に実施した。

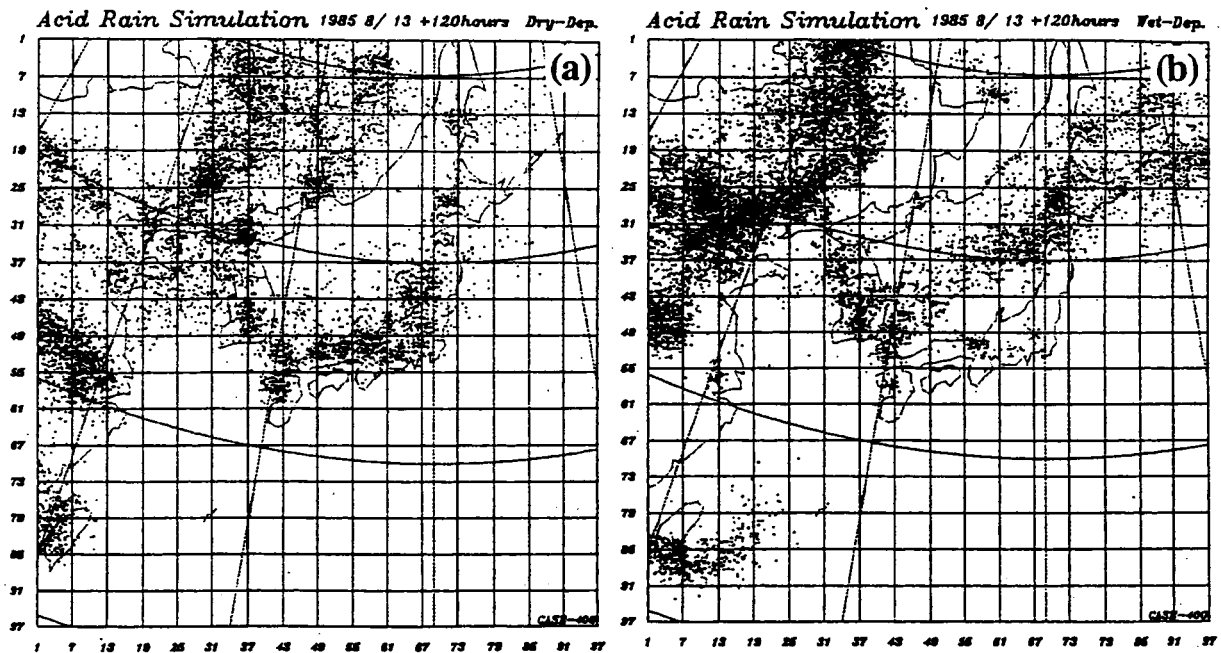


図5 1985年8月13日から5日間の乾性沈着分布（a）と湿性沈着分布（b）。

一方、夏季の南風が卓越している8月13日から17日までの5日間における乾性沈着は図5に示されているように、やはり発生源近傍が顕著である。この期間では卓越している南風は比較的弱いので、わが国の発生源からのいおう酸化物の乾性沈着はおおかた日本領域内に留まっている。発生源近傍の乾性沈着は韓国、中国でも同様であり、冬季の場合とは卓越風向が逆であるため、乾性沈着して行く方向も全く逆である。これに対してわが国の発生源に起因すると見られる降水による湿性沈着の殆どは日本海の中央部からオホーツク海に及んでいる（図6）。気象モデルによって表現された850hPaの気層を見ると本邦では南風であったのが、日本海上では南西風になっており、これはオホーツク海上に位置する低気圧による影響によると見られる。

このように1年間のシミュレーションの断片的な一部を抜き出したが、冬季と夏季では気圧配置の相違により汚染質の輸送、沈着パターンが異なる。従って大陸からの影響を見積もるためには年間を通じたシミュレーションによって総合的にそれぞれの国の発生源からの沈着に与えるインパクトを評価する必要がある。

4 研究結果（国立環境研究所分担部分）

わが国の東アジアスケールの長距離輸送のモデルは大多数がラグランジェ型（トラジェクトリー型）の長期平均モデルである。モデルの検証は月単位の乾性・湿性沈着量に対して行われている。また、わが国で行われた数ケースの数値シミュレーション研究は、年度、期間がまちまちでモデル間の相互比較は全くなされいない。また、沈着係数、混合層の取り扱い、洗浄係数もまちまちである。本研究では、精密な化学反応スキームを用いた物質輸送モデルとトラジェクトリー解析を数千キロスケールの東アジア地域に適用し、同時に観測データとの定量的な比較を目指すものである。

4.1 物質輸送モデル

物質輸送モデルは、米国アイオワ大学で開発されたSTEM (Sulfur Transport Eulerian Model¹²⁾)を用いた。このモデルは、気相・固相・液相反応過程や乾性・湿性沈着過程を含むリージョナルないしはメソスケールの物質輸送・変質過程をシミュレートすることが可能な3次元のオイラー型モデルであり、輸送、反応及び沈着の3種類のサブモデルによって構成される。モデルの基礎式は、

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x_j} (V_j C_i) = \frac{\partial}{\partial x_j} \left(K_{ij} \frac{\partial C_i}{\partial x_j} \right) + R_i + E_i$$

ここで、 C_i はガス成分濃度、 V_j は j 方向の風速、 K_{ij} は乱流拡散係数、 R_i は化学反応による変換率、 E_i は発生源強度を示す。STEM モデルは、以上の他に液相成分についての物質輸送・変換過程の方程式を連立している。

今回は気相反応のみを考慮し、固相・液相反応や湿性沈着モジュールは利用していない。気相反応スキームは53個の化学成分と112本の化学反応式を含む Lurmann *et al.*¹³⁾ を用いている。ガス状成分としては、 NO 、 NO_2 、 O_3 、 SO_2 、 HNO_3 、炭化水素類やラジカル類などであり、粒子状のサルフェート (SO_4^{2-}) を含んでいる。

わが国への輸送を解析するために、中国・朝鮮半島・日本列島を含む東経110度から150度、北緯20度から50度を計算領域とし、経緯度1度メッシュ（グリッド数：東西方向41、南北方向31）に分割した。モデルは鉛直方向に10レベルをとり、各グリッド点の高度は、200, 400, 700, 1000, 2000, 3000, 4000, 5000, 7000, 10000mである。図6には、計算領域を示す。

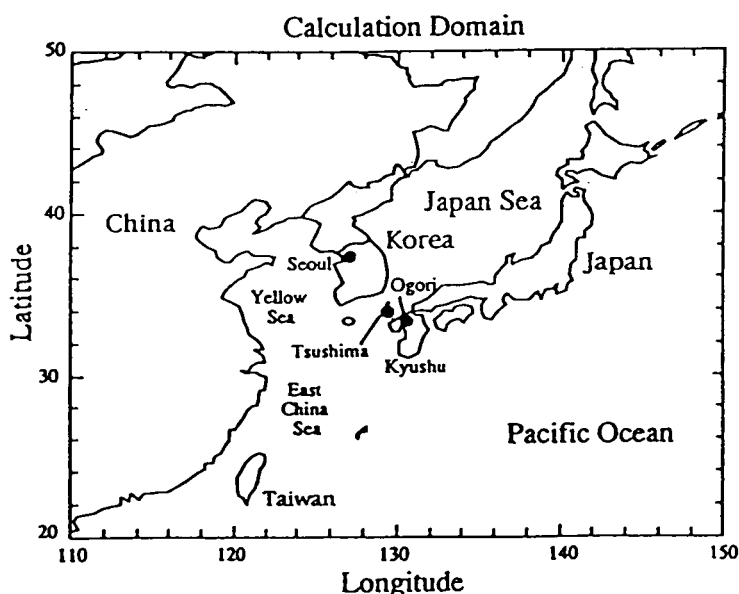


図6 物質輸送モデルの計算領域

東アジア地域におけるSO₂とNO_x排出量はAkimoto and Narita¹⁴⁾による経緯度1度メッシュデータファイルを用いた。また、NMHC排出量は、Piccot *et al.*¹⁵⁾による国別成分別排出量を経緯度1/3度メッシュの人口データによって分解し、再度、経緯度1度メッシュデータに統合した。なお、今回は排出量に季節変化と時間変化を与えていない。モデルグリッド内への排出量は、200～700 m（第1層に40%、第2層に40%、第3層に20%）の高度に与えた。

気象データは、気象庁の全球客観解析データ（12時間毎、1.875度格子）の風速、温度、露点温度、等圧面高度を距離・時間補間して、計算領域内のメッシュ点データ化した。また、沈着過程で重要な乾性沈着速度は、海・平野・山岳別に、Wesely¹⁶⁾の乾性沈着モデルによって、主要な物質のメッシュ点毎に乾性沈着速度を与えた。STEMによる計算は日本時間9時に初期濃度ゼロ（ただし、O₃は35 ppb）として開始した。乱流拡散係数には、O'Breinのスキームを用いた。図7には、モデル計算のフローを示す。

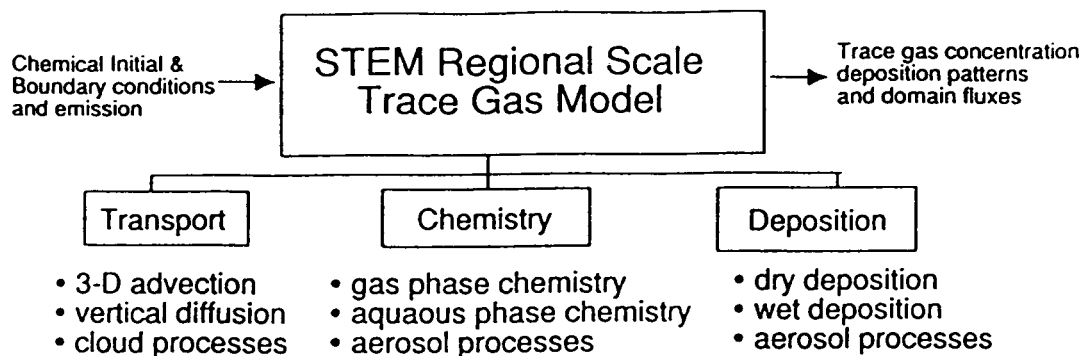


図7 物質輸送モデル計算の概念フロー図

4.2. 物質輸送モデルによるSO₄²⁻高濃度エピソードの再現性の検討

Wakamatsu *et al.*¹⁷⁾による国設対馬酸性雨離島局（以下対馬 M₁、E129° 17'、N34° 14'、海拔380m）と国設筑後小郡環境大気観測所（以下小郡 M₂、E130° 34'、N33° 24'、海拔20m）でのエアロゾル測定結果を比較の対象としてモデル計算を行った。

エアロゾルの測定は1990年10月～1992年2月の間に季節変化および経時変化を把握するため、2カ月毎に測定されている。小郡では各観測月中旬の1週間を基本観測期間として、4時間間隔で試料採取を実施した。対馬では原則として各月の12日～26日に測定を行ったものである。ただし1991年4月以降は8時間間隔で採取し、1990年10月、1991年10月は測定を行っていない。なお、対馬と九州（福岡）までは壱岐島経由で147km、対馬島北端から大韓民国の釜山までは53kmである。観測地点は厳原港からおおむね北方向4.5km（直線距離）の公園内に位置する。小郡は、博多湾沿岸（福岡市）から南東方向28kmの筑後平野北部沖積低地の田園地域に位置し、調査地点の北部は三郡山地、西部は背振山地に囲まれている。調査地点の近傍に大規模な大気汚染物質発生源はない。

(1) 1991年6月に観測されたエピソードの解析

計算は1991年6月10日9時から開始し、6月26日まで行った。図8にはSTEMモデルで計算された粒子状 SO_4^{2-} ($\mu\text{g m}^{-3}$) の1991年6月22日9時における等濃度線 ($z^*=200\text{m}$) を示している。図には6月21～22日の梅雨前線と主要な高低気圧の位置、更に $z^*=1000\text{m}$ での風向、風速を示している。梅雨前線に向かって南西風が見られるが、前線の北側では比較的風速が弱く、北よりの気流が卓越し、前線付近に収束帯が見られる。また図中の○と×でマークした実線はそれぞれ6月22日と6月21日の対馬と小郡のバックトラジェクトリー (900JST、高度1500mを出発し、等温位面に沿った計算結果。マーカーは6時間毎) を示している。

図のなかでは中国の北緯 30° から 38° 、東経 115° から 123° の経緯線で囲まれた付近を中心に特に SO_4^{2-} 濃度の高い地域がみられる。また大韓民国の南東付近を中心に比較的濃度の高い地域がみられ、これを中心とする高濃度域は対馬海峡を流れて流れて、日本の西部に影響を与えている。6月21、22日におけるバックトラジェクトリーの計算結果では、明瞭な北～北西からの移流を示している。

図9には、対馬と小郡での観測¹⁷⁾とモデルの比較を示す。図中の矢印はモデル計算に用いた $z^*=1000\text{m}$ の風向・風速を示す。モデルと観測の SO_4^{2-} の濃度レベルと時間変化パターンは比較的よく一致している。小郡の NO_3^- では、観測値と計算値に時間変化はよく一致しているが、対馬では一致していない。これは、観測された NO_3^- は粒子状のものであるが、計算値はガス状硝酸のためである。6月は暖候季にあたり、硝酸の反応平衡はガス状硝酸側に偏っていると考えられる。加えて対馬は小郡に比べ NH_3 濃度が低いことから、ガス状硝酸の粒子化が進まないと考えられる。このため、対馬における NO_3^- の観測値はモデルに比べ低いが、小郡では粒子化に十分な NH_3 があるため両者がよく一致すると考えられる。

(2) 1992年2月に観測されたエピソードの解析

1992年2月はおおむね冬型の気圧配置条件で推移した。すなわち、日本の東海上の発達した低気圧と大陸北部の高気圧の影響下にあった。この観測期間の特徴は、10～11日、12～13日、及び22～24日には、北緯 25° ～ 30° 付近の日本南岸沖を台湾近海で発生した低気圧が発達しながら東進し、その後に黄海付近から九州に向かって小型の高気圧がゆっくり接近したことがあげられる。そのため、この前面あたる九州北部では北西風を観測している。対馬での降水は15日と23日にみられ、総降水量は22mmであった。

図10には対馬で高濃度を観測した2月24日の前線と主要な高低気圧の位置、及び、 $z^*=1000\text{m}$ での風速・風向、対馬・小郡から計算されたバックトラジェクトリー (×は前日9時、○は当日9時に各地点の1500m高度から等温位面に沿って計算され、マーカーは6時間毎)、STEMモデルで計算された粒子状 SO_4^{2-} の等濃度線 ($z^*=200\text{m}$) を示す。STEMモデルの SO_4^{2-} の高濃度域は、中国大陸東部とそれより濃度は低いが朝鮮半島南部から山口県北部沖にもみられる。13日には、前線を伴う低気圧が日本の南岸を東に遠ざかったあと、中国南東部の高気圧より前線に向かって西よりの北風が吹き下ろしている。これらの風上には中国大陸東部の汚染地帯があり、バックトラジェクトリーでも明らかのように、対馬と小郡で観測された汚染物質の起源は中国東部の汚染物質であると推定される。23～24日も同様に日本の南岸を低気圧が通過したあと、中国東部に高気圧が進んでいる。トラジェクトリー解析では23日は中国東部の影響を受けたと考えられるが、24日には前線に向かって13日と比して強い北西風の流れ込みがみられ、トラジェクトリーは朝鮮半島を經由して観測地点にもたらされたこ

June 22, 1991 0900 JST at $z^*=200$ m
 SO_4^{2-} concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)

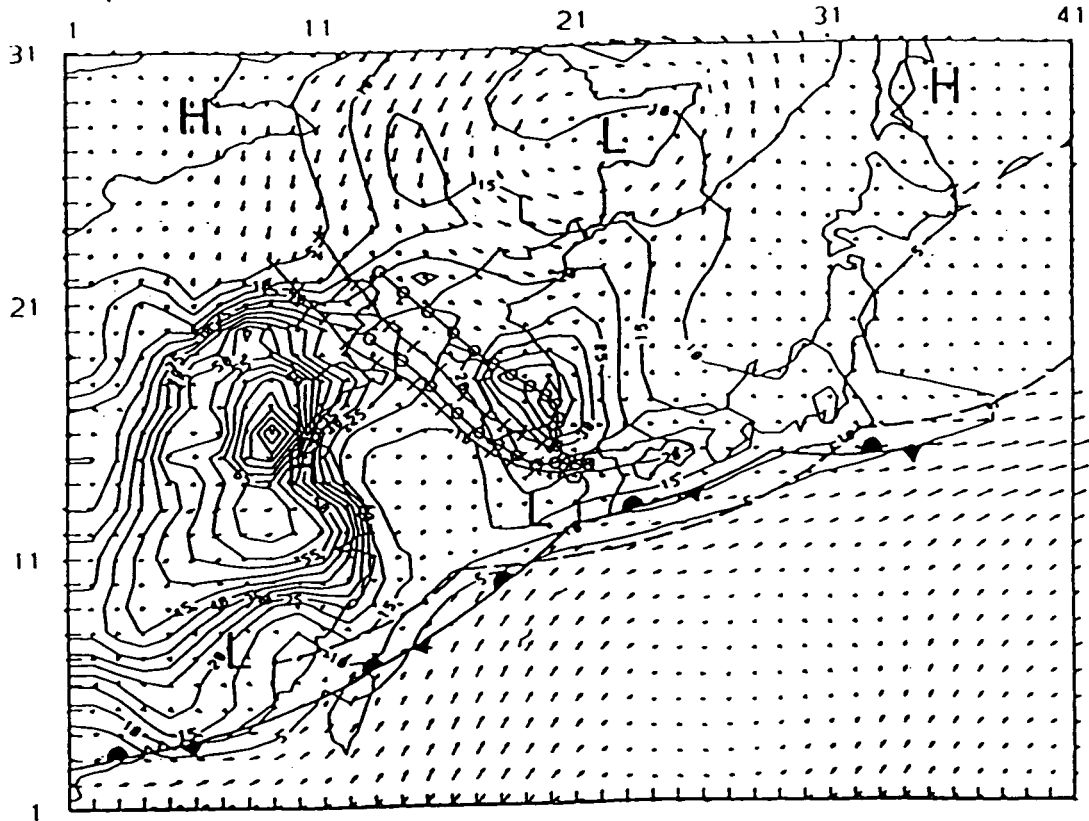


図8 1991年6月22日9時のモデルの $z^*=200$ mでのサルフェート濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、21日~22日の梅雨前線と主要な高低気圧の位置 (点線21日、実線22日)、高度1000mでの風速・風向。対馬、福岡からのパケットジェットリー (○21日、×22日出発)

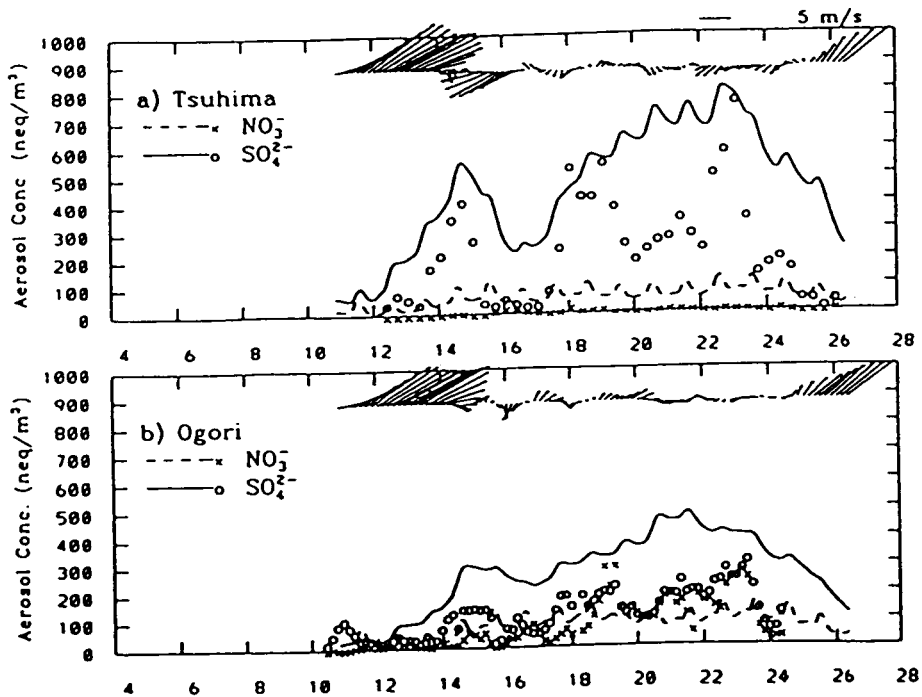


図9 1991年6月の(a)対馬 (b)福岡小郡でのエアロゾル中の NO_3^- 、 nssSO_4^{2-} 濃度の観測値 (×、○)とモデル計算値。図中の矢印はモデル計算 ($z^*=1000\text{m}$) に用いた風向・風速。

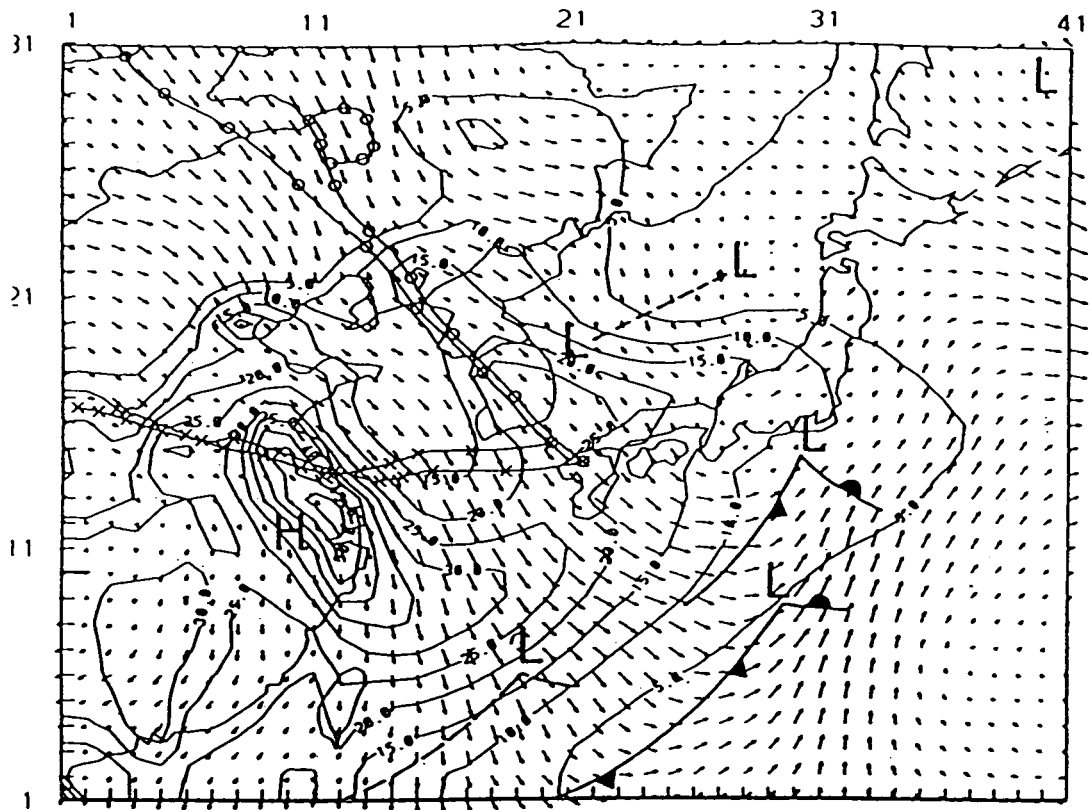


図10 1992年2月24日9時のモデルの $z^*=200$ mでのサルフェート濃度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)、23日~24日の前線と主要な高低気圧の位置 (点線23日、実線24日)、高度1000mでの風速・風向。対馬、福岡からのバックトレジャクトリー (○23日、×24日出発)

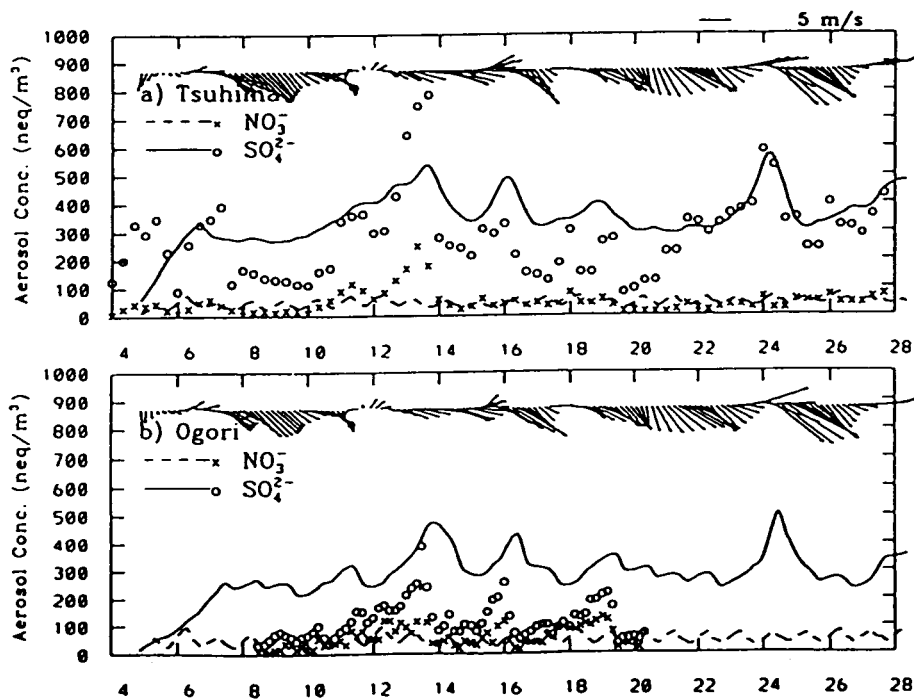


図11 1992年2月の(a)対馬 (b)福岡小郡でのエアロゾル中の NO_3^- 、 SO_4^{2-} 濃度の観測値 (×、○) とモデル計算値。図中の矢印はモデル計算 ($z^*=1000\text{m}$) に用いた風向・風速。

とを示している。

このように1992年2月に観測された SO_4^{2-} と NO_3^- の高濃度現象は低気圧の通過後の西高東低の気圧配置になる前の、大陸からの北西風の吹き出しによる汚染物質の輸送を示している。即ち、大陸の高気圧支配下で形成された高濃度汚染物質が、日本域を低気圧が通過した後の北西気流に乗り輸送され、エアロゾル濃度の上昇が引き起こされている。

図11には図9と同様な対馬と小郡での観測とモデルの比較を示す。モデルによる SO_4^{2-} の計算結果は、観測値の濃度変動をよく再現しており、特に高濃度のピークは非常によく一致している。特に対馬での高濃度出現時の濃度レベルはよく一致している（なお、モデルの計算は初期濃度をゼロで行っているため、4日～6日は濃度の比較はできない）。これに対して小郡ではモデルは観測値に比べて全般に高めに推移していた。これに対して、 NO_3^- は観測値のオーダーとよく一致している（ただし、対馬での13日のピーク値は再現しない）。この一致は、モデルではガス状硝酸(HNO_3)を計算しているが、2月は気温が低いいためガス状硝酸(HNO_3)のかなりの部分が粒子化しているためと考えられる。

5. まとめ

湿性沈着過程をより良く表現するため、気流、雲・降水等を予測する気象予測モデルの精度向上を図った。東アジア地域という広い計算領域を確保し、且つ空間分解能を上げるために2つのモデルをスペクトル結合によるネスティング手法を用い、雲や降水に対するモデルのパフォーマンスを検証すると共に、移流・拡散モデルと結合してこの手法の長距離輸送への有用性を検証した。東アジア地域について1985年の1年間のいおう酸化物の輸送、変質、沈着のシミュレーションを実施した。移流・拡散モデルにはラグランジュ粒子法を用いているので、沈着に対するそれぞれの発生源による寄与率を調べることが可能であり、大陸の発生源からのインパクトを調べるのに有用なモデルである。

上記の研究と平行して、精密な化学反応を含む物質輸送モデルの計算とトラジェクトリー解析より東アジアスケールの物質輸送プロセスについて解析した。野外観測から1991年6月と1992年2月に両地点で SO_4^{2-} を中心に高濃度現象がみられ、数値モデルによる再現性をこの観測期間をターゲットとして行った。その結果、1) 朝鮮半島付近で発生した汚染物質が、日本の南岸にかかる梅雨前線の北部に停滞し、よどんだ状態で反応、変質しつつ九州北部にもたらされ、梅雨前線の位置の重要性が明らかにされた。冬季、北西季節風によって汚染物質が輸送されることについての報告は多いが、観測データと物質輸送モデルを組み合わせた解析によって、梅雨期に特徴的な気象条件下において半島から汚染物質が輸送されることが明らかとなった。2) 1992年2月に観測された SO_4^{2-} などの高濃度現象は、西高東低の典型的な気圧配置下において北西季節風によって大陸東部よりもたらされたと考えられた。

今後は、雲・降水プロセスを含む数値モデルの研究を進展させ、乾性・湿性沈着プロセスを解明する必要がある。

6. 本研究により得られた成果

当初の目的である東アジア地域における酸性物質の変質及び沈着を含む輸送モデルを作成し、このモデルを用いたシミュレーションにより、気圧配置の相違による卓越風が全く異なる冬季と夏季における輸送過程、乾性及び湿性沈着分布パターンや各発生源による沈着に及ぼすインパクトを把握することができた。

7. 参考文献

1. Hatakeyama S., K. Murano, H. Bandow, F. Sakamaki, M. Yamato, S. Tanaka and H. Akimoto, 1995: The 1991 PEACAMPOT aircraft observation of ozone, NO_x, and SO₂ over the East China Sea, the Yellow Sea, and the Sea of Japan. *J. Geophys. Res.*, 100, D11, 23, 143-23,151.
2. Sato, J., T. Satomura, H. Sasaki and Y. Muraji, 1995: The long-range transport model with deposition and transformation components, and application to the East Asian region. *Proceedings of the 1st International Seminar on Regional Deposition Processes in the Atmosphere*, 158-172. Nov 20-24, Seoul, Korea.
3. Sasaki H., H. Kida, T. Koide and M. Chiba, 1995: The performance of long-term integration of a Limited Area Model with the spectral boundary coupling method. *J. Met. Soc. Japan*, 73, 165-181.
4. Mellor, G. L. and T. Yamada, 1974: A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, 31, 1791-1806.
5. Satomura, T., F. Kimura, H. Sasaki, T. Yoshikawa and Y. Muraji, 1994: Numerical simulation of regional scale dispersion of radioactive pollutants from the accident at the Chernobyl nuclear power plant. *Pap. Met. Geophys.*, 45, 51-63.
6. Tatsumi Y., 1986: A spectral limited-area model with time-dependent lateral boundary conditions and its application to a multi-level primitive equation model. *J. Met. Soc. Japan*, 64, 637-663.
7. 大野久雄, 伊佐真好, 1984: GMS観測に基づく総観スケール雲量と相対湿度の統計的關係. *天気*, 31, 493-495.
8. Waleck, C. J. R., A. Brost, J. S. Chang and M. L. Wesely, 1986: SO₂, sulfate and HNO₃ deposition velocities computed using regional land use and meteorological data. *Atmos. Environ.*, 20, 949-964.
9. Wesely, M. L., 1989: Parametarization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional scale numerical models. *Atmos. Environ.*, 23, 1293-1304.
10. 加藤信夫, 小川芳樹, 小池俊也, 坂本保, 坂本進, 1991: アジア地域のエネルギー消費構造と地球環境影響物質 (SO_x, NO_x, CO₂) 排出量の動態分析. NISTEP REPORT No.21, 科学技術庁科学技術政策研究所.
11. 佐藤純次, 里村雄彦, 佐々木秀孝, 村治能孝, 1995: 硫黄酸化物の長距離輸送モデルと東アジア地域への適用. *気象研究所技術報告*, 第34号, 1-101.
12. Carmichael, G.R.; Peters, L.K.; Kitada, T.: A second generation model for regional-scale transport/chemistry/deposition, *Atmos. Environ.*, 20, 173-188(1986).
13. Lurmann, F.W.; Lloyd, A.C.; Atkinson, R.: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling, *J. Geophys. Res.*, 91, 10905-10936 (1986).
14. Akimoto, H.; Narita, H.: Distribution of SO₂, NO_x and CO₂ emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with 1° x 1° resolution, *Atmos. Environ.*, 28, 213-225(1994).
15. Piccot, S.; Watson, S.D.; Jones, J.W.: A global inventory of volatile organic compound emissions from anthropogenic sources, *J. Geophys. Res.*, 97, D9, 9897-9912(1992).
16. Wesely, M.L.: Improved parametrizations for surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale model, EPA/6003-86/037 (PB86-218104) (1988).
17. Wakamatsu, S.; A. Utsunomiya; J.-K. Han; A. Mori; I. Uno; K. Uehara: Seasonal variation in atmospheric aerosol concentration covering northern Kyushu, Japan and Seoul, Korea, *Atmos. Environ.* (in press) (1996).