

C-1 北半球における越境大気汚染の解明に関する国際共同研究

(2) 次世代型ソース・リセプターマトリックスの精緻化と検証に関する研究

独立行政法人国立環境研究所

大気圏環境研究領域

PM2.5・DEP研究プロジェクト

京都大学防災研究所

財団法人 計量計画研究所

株式会社 トーニチコンサルタント

埼玉大学

静岡大学

村野健太郎

大原利眞

植田洋匡

神成陽容

片山 学

外岡 豊

大原利眞

平成 14～16 年度合計予算額

41, 805 千円

(うち、平成 16 年度予算額

12, 526 千円)

[要旨]

中国・韓国・日本間の越境大気汚染のために、次世代型ソース(発生)・リセプター(沈着)マトリックスの作成を進めた。このモデルの入力データとして、対象国・地域が中国、台湾、韓国、北朝鮮、モンゴル、日本、対象汚染物質がSO₂, NO_x, NMVOC, NH₃、空間分解能が緯度経度0.5度である東アジア排出インベントリー(EAgrid)を2000年時点に更新した。既往の推計結果と比較した本推計結果の最も大きな特徴は、中国におけるSO₂排出量およびNMVOC排出量が従来の推計値に比べて多いことである。特にNMVOCは顕著であり、その評価は今後大気過程のシミュレーションと測定結果の対照により確認することが必要であることが明らかとなった。ソース・リセプター解析のために、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)を使って東アジア域における硫黄化合物と窒素化合物のソース・リセプター解析を行った。日本領域における年間沈着量は、硫黄化合物0.84 TgS (1.03 gS/m²)、窒素化合物0.62 TgN (0.79 gN/m²)である。また、発生源地域別寄与率は、硫黄については中国49%、日本21%、朝鮮半島12%、火山13%、その他5%、窒素について日本39%、中国34%、朝鮮半島18%、その他9%となり、いずれの物質も中国からの寄与が非常に多いことが示された。三宅島起源の硫酸エアロゾルは冬季は北西季節風により大部分が太平洋に輸送されたが、その他の季節には日本列島に輸送された。噴火により降水のpHは年間で日本列島の日本海側で0.1-0.3、太平洋側で0.3-1.0程度減少し、黄砂による降水の中和作用を相殺した。非火山性の硝酸や塩酸が二次的な環境酸性化を促した(噴火による間接的な環境酸性化効果)。数値計算結果によると、この間接効果による酸性沈着増加量は、噴火による硫酸沈着増加量(直接的環境酸性化効果)と同程度(0.07-2.1倍)であった。

[キーワード] 酸性雨、東アジア、発生源インベントリー、長距離輸送モデル、ソース・リセプター解析

1. はじめに

東アジアにおける人為起源から排出される大気汚染物質排出量は 1980 年代後半から著しく増加しており（例えば、Streets et al.¹⁾）、東アジアスケールで酸性雨、エアロゾルや対流圏オゾンの増加などの環境問題を引き起こしている。アジア大陸の風下に位置する日本列島においてもその影響を強く受けており、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。そのためには、前段階として、大気汚染物質発生源インベントリー（特に揮発性炭化水素、アンモニア、重金属）の改訂、新規作成が不可欠である。EAGrid1995 は、中国・台湾・日本・韓国・北朝鮮・モンゴルを対象として、1995 年における SO₂, NO_x, NMVOC, NH₃ のグリッド別大気排出量を推定したデータベースである。このデータベースは、サルフェート、ナイトレート生成・輸送・除去といった各過程の解明のための大気化学反応過程を組み込んだ長距離大気輸送モデルに入力することを目的として 2001 年度までの地球環境研究総合推進費研究課題として開発された。その後、大気過程研究のための基礎データベースを、中国における経済発展等の変化をふまえて改訂する必要が生じており、また、他の大気汚染物質に関するデータベースの開発も求められつつある。

東アジアにおける硫黄化合物を対象とし長期シミュレーションによってソース・リセプター関係（発生地域と沈着地域の関係）を推計した研究はこれまで多数ある。しかしながら、これらのモデル研究によって推計されたソース・リセプター関係は研究者によって大きく異なり（市川²⁾）、例えば、1990 年前後における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.³⁾ が 25 % であるのに対して、Carmichael and Arndt⁴⁾ は 10 %、Huang et al.⁵⁾ は 3.5 % といった結果を報告している。このような違いが生じる原因は必ずしも明確ではないが、不確定性を生じる要因のひとつとして物質輸送計算時の気象水象パラメータ設定の問題が考えられる。即ち、これらの研究では気象庁やヨーロッパ中期気象予報センター ECMWF などの気象機関が提供する気象解析データを用いているが、これらの解析データに含まれるのは風速、気温、湿度、気圧のみで、鉛直拡散係数、湿性沈着過程に重要な雨水量・雲水量の時空間分布、乾性沈着過程に重要な接地気層パラメータなどは含まれていない。一方、Carmichael et al.⁶⁾ はモデル相互比較研究(MICS-ASIA)の結果をもとに、モデル計算結果に違いが生じる大きな原因としてモデル構造の違いを指摘している。これらのことから、東アジアにおける硫黄化合物の動態を高精度で計算するためには、物質輸送計算に必要な各種の気象水象パラメータをきめ細かく計算できる地域気象モデルと構造的に結合した物質輸送モデルを用いて計算することが重要と考えられる。一方、アジアにおける窒素化合物を対象としたソース・リセプター研究は、池田・東野⁷⁾、Holloway et al.⁸⁾ だけであり、硫黄化合物に比べ非常に少ない。

2000 年 7 月以来、三宅島火山は大量の二酸化硫黄をその噴火活動により放出している。その量は、観測開始から 1 年間で二酸化硫黄放出量は 9 Tg であった。これは、世界の他の火山からの定常的な二酸化硫黄放出量の約 70%に相当し、中国全土からの人為起源放出量 20.4 Tg yr⁻¹ の約半分に匹敵する。火山からの二酸化硫黄放出量の連続測定結果、および酸性雨測定局における硫酸エアロゾル濃度の長期的な連続観測結果を用いる事により、大気環境の時間的、季節的な変化を詳細に解析する事が可能となった。また本事例そのものも科学的に特徴的である。つまり、人為起源の汚染物質の拡散と比べて、本事例は海洋上の島という隔離され固定された点源からの拡散現象であり、その放出量も直接測定されている。これらの条件により、二酸化硫黄による様々

な環境影響プロセス（硫酸エアロゾルによる環境酸性化、短波散乱、雲凝結核としての働きなど）をより高確度で定量評価する事ができると考えられる。

2. 研究目的

東アジア地域の越境大気汚染の解明のために次世代型ソース・リセプターマトリックスの作成を行うことを目的として研究を行う。このモデルの入力基礎データとして、信頼性の高い発生源インベントリーを得る必要がある。EAGrid1995の対象物質に加えて、長距離輸送過程のトレーサーとして重要なCO、健康影響の観点から今後重要となる粒子状物質（ここではPM₁₀）、重金属のなかでも地球規模の汚染が重要で特に中国の排出が顕著とみられる水銀(Hg)を対象物質としてとりいれた2000年大気汚染物質排出インベントリーの開発を行う。地域気象モデルと物質輸送モデルを結合することによりRAMSで計算される気象水象パラメータを活用して物質輸送を計算できるモデリングシステムを構築し、この数値モデルを用いて東アジア地域における硫黄化合物と窒素化合物の年間ソース・リセプター関係を定量化する。中部山岳地帯八方尾根における地上観測によって明らかになった、三宅島火山噴火によるエアロゾル及び降水の変化と、エアロゾル輸送モデルを用いた噴火の大気環境への領域規模の影響に関する数値計算結果について解析を行う。2001年から本格稼働が始まった「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)」に対して研究面から支援する。

3. 研究手法

(1) 大気汚染物質の排出源インベントリー開発

① エネルギー統計と基礎活動量

ここで主に用いたエネルギー消費量データは2004年3月付けで出版された中国エネルギー統計2000-2002年版をベースとしている。基本としているのは、省別エネルギー需給マトリックス表（生産消費部門×エネルギー種類）であるが、薪、農業廃棄物、メタンガスの3種のバイオマス燃料、火力、水力発電量を別表から補足し、工業部門の業種別内訳構成を全中国・燃料種類別消費量と当該業種・省別生産額或いは生産量から推計し、特に非金属鉱物製品業についてはセメント、ガラス、その他窯業について再区分し、交通部門についても機関別に再区分推計を行って詳細な省別エネルギー・マトリックス表を作成して排出量推計の基礎活動量データとして用いた。なお寧夏自治区、チベット、香港についての補足推計も行った。全国表に比べ省別表はより実態に近い消費実績を示していると考えられる。SO₂については工業系生産工程からの排出について環境年鑑報告値をもとに推計し、NMVOCについては石油、石油化学、有機溶剤からの蒸発発生源について、基礎活動量として中国工業経済統計年鑑などに掲載されている生産量、取扱量から推計加算した。

② 推計方法と排出係数

ア. SO₂

SO₂については燃料中S分%想定が基礎になるが、石炭については新しい情報源が得られたことからそれらを参考に省別（消費地として）に見直して再設定した。⁹⁾ また、灰分への残存率はボイラ規模別に設定した。セメント焼成炉での排出は大型炉、乾式ロータリーキルンでは85%が製品脱硫され、中小型炉、シャフトキルンでは75%が製品脱硫されるものと想定した。

排煙脱硫処理装置は石炭焚・大規模ボイラに設置されているものと想定し、S 分%想定値から推計した発生量から中国環境年鑑¹⁰⁾に報告されている除去量を差し引いて排出量を求めた。ここでは省別・業種別脱硫後排出量を推計するため、燃焼系発生源からの排煙脱硫量を省別・業種別マトリックスとして用意する必要があり環境年鑑¹⁰⁾の燃焼系 SO₂ 除去量について業種別表と省別表をフレーター法によりマトリックス推計して排煙脱硫除去量とした。フレーター法推計の初期値としては省別・業種別原炭消費量比を与えた。排煙脱硫は石炭ボイラ（燃料として原炭）に設置されているものとして排出量を計算した。

生産工程系の排出量と除去量は環境年鑑に業種別と省別に報告値が集計されている。生産工程系の SO₂ 排出量を独自に推計するための基礎活動量の統計値が得られないため、環境年鑑の発生量をこの推計に直接取り込むこととした。排煙脱硫除去量と同様フレーター法により省別・業種別排出量マトリックスを推計している。

以上の潜在的発生量・脱硫量・生産工程系排出量より最終的な大気排出量を求めた。

イ. NO_x

排出係数を全面的に見直した。大規模ボイラについては中国火力発電所での実測例をボイラ規模別に整理し発電ボイラ規模構成で加重平均した。また小規模固定発生源については EU の新しい排出係数¹¹⁾を参考にした。自動車については、地域による対策車導入状況の違いを考慮して NO_x 排出係数に省別の地域格差をつけた。1995 年値推計ではバイオマス燃料からの NO_x 排出量を計上していなかったが、今回推計では取り込んでいる。

ウ. NMVOC

NO_x と同様に排出係数を見直した。特に小規模固定発生源について EU の新しい排出係数¹¹⁾を参考にした。そこで示された EU における小規模炉の排出係数例より中国の実態は高めであると想定して燃焼系 NMVOC 排出係数を設定した。その結果バイオマス燃料について従来設定値よりかなり大きな排出係数を与えることになった。EU でのバイオマス燃焼 NMVOC 排出係数設定例最大値は 1700g/GJ(36g/kg)である。中国農村部の伝統かまどは煉瓦、壁土など熱容量の重い素材でできており、火力の低いバイオマス燃料を焚いても炉の壁体温度はさほど上昇しないと考えられ、その結果炉内温度が低く、また雨天の日やその直後など十分乾燥していない燃料を投入する場合もあると想定すると蒸発潜熱で炉内温度低下の要因ともなると想像される。これらを考慮すると EU の暖炉や家庭用小規模ボイラ、ストーブに比べて炉内は低温であり、従って NMVOC が発生しやすい状況があると考え、EU の排出係数より高めの農村部家庭用・薪 50g/kg、農業廃棄物 60g/kg とした。なお北京の能源研究所により、これらの統計値が乾燥重量表示であり水分補正が不要であることを確認したので、排出量推計にあたり水分補正は行っていない。

NO_x と同様、自動車について地域による対策車導入状況の違いを考慮して排出係数に省別に地域格差をつけた。

エ. PM₁₀

PM₁₀ の排出係数については大規模固定発生源は中国での発電所ボイラ実測事例や日本の平均値等から中国での集塵処理状況を考慮し、小規模固定発生源に関しては EU の最新の排出係数¹¹⁾等から中国の排出係数は EU より高めであろうと想定、移動発生源についても EU の排出係数を参考に規制対策車の普及状況などを考慮して設定した。

オ. Hg

中国は Hg 含有率の高い石炭の大消費地であり、今後も増加傾向が予想されるため、石炭燃焼に伴う Hg 排出量を推計している。中国産の石炭の地域別 Hg 含有率および燃焼に伴う大気放出率については、最近 Wang¹²⁾ による報告があるので、省別の平均 Hg 含有率を推定し(0.03～0.34mg/kg)、大気放出率を燃焼施設種類に応じて 64～78%と仮定した。

(2) シミュレーションモデルと計算条件

数値シミュレーションモデルとして、地域気象モデル RAMS (Regional Atmospheric Modeling System) Ver.4.3 (Pielke et al. ¹³⁾)と物質輸送モデル HYPACT (Hybrid Particle And Concentration Transport Model) Ver.1.2.0 (Walko et al. ¹⁴⁾)を組み合わせたモデリングシステムを用いた(片山ら ¹⁵⁾)。本研究におけるシミュレーション手順は以下のとおりである。

まず、地域気象モデル RAMS によって地域スケールの気象を計算する。RAMS のモデル領域を図 1 に示す。水平グリッド間隔は 80 km、水平グリッド数は 60(x) × 55(y)であり、高度 20 km までを鉛直 23 層に分割した。

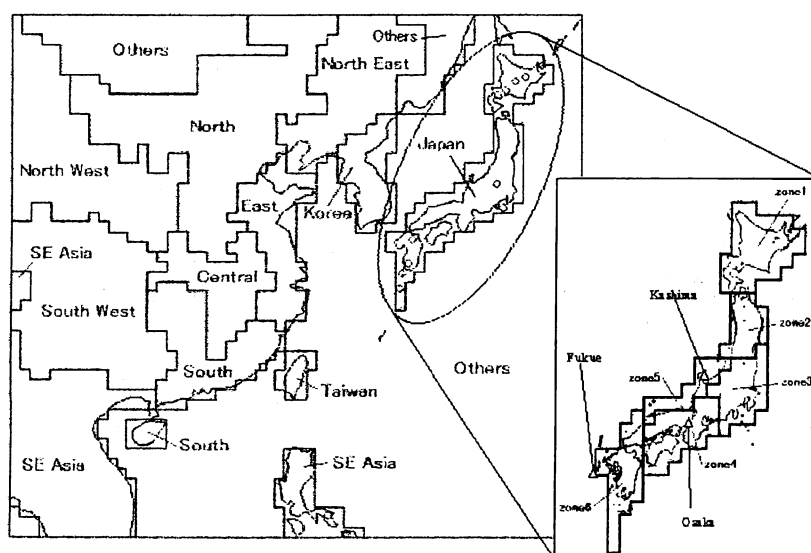


図 1 計算対象領域とソース・リセプター解析の地域区分

シミュレーション期間は 1995 年の 1 月から 12 月の 1 年間であり、本シミュレーションでは、ヨーロッパ中期気象予報センター ECMWF の全球客観解析データ(経緯度 2.5 度、12 時間間隔)を用いて側面・上部境界条件を設定した。RAMS によって計算された風速、鉛直拡散係数、雲水量、気温、降水量、接地気層パラメータ(摩擦速度、日射量、モーニン・オブコフ長など)などの気象要素が物質輸送モデル HYPACT に使用される。

次に、RAMS で計算される各種の気象水象パラメータと発生源データをもとに、物質輸送モデル HYPACT によって硫黄化合物と窒素化合物の大気中濃度と乾性・湿性沈着量を計算する。HYPACT は RAMS と同一の座標系と計算スキームを使用した物質輸送モデルであるが、オリジナルの HYPACT には反応・沈着過程が含まれていないため、硫黄化合物については Ichikawa et al. ³⁾ と Carmichael et al. ⁶⁾、窒素化合物については Brodzinsky et al. ¹⁶⁾ の反応・沈着モデルを付加した。但し、本研究では乾性沈着と湿性沈着の計算に RAMS の結果を活用し、乾性沈着速度

は RAMS で計算された接地気層パラメータをもとに、ガスについては Wesely¹⁷⁾、エアロゾルについては Zhang et al.¹⁸⁾ に従って算出し、湿性沈着速度は RAMS による雲水量・降水量を使って計算した。HYFRACT の計算領域は外側 1 グリッドを除いた RAMS 計算領域と同じであり、58(x) × 53(y) × 21(z) のグリッドを計算対象とした。

SO₂、NO_x 排出量は、中国、日本、南北朝鮮、台湾、モンゴルの人為起源排出量については Klimont et al.¹⁹⁾ による 1995 年推計結果、その他の国と海上の人為起源排出量は EDGAR 3.2²⁰⁾ による 1995 年推計結果を使用し、火山起源排出量は藤田ら²¹⁾ の結果をもとに設定した。人為発生源の排出量は鉛直 1~3 層目（高度 0~400m）に均等に割り付け、火山については各火山の海拔高度を放出高度とした。なお、ソース・リセプター解析においては発生源を 50 区分（49 地域と火山）に分割して各区分毎の発生量と沈着量の関係をきめ細かく推計し、その結果を 13 区分（図 1 に示した 12 地域と火山。更に、日本国内については 6 地域に細区分した）に集約して評価した。

（3） 八方尾根における地上大気質観測結果

国設八方尾根酸性雨測定所は中部山岳地帯に位置する（長野県北安曇郡白馬村、36.69° N、137.80° E、標高 1850m）。三宅島火山の北およそ 330km に位置し、東京首都圏や名古屋市などの大商工業都市からは 200km 離れている remote site である。それと併せて標高が高いことから、八方尾根では境界層より上の対流圏中層の大気質をとらえることができ、また、大陸からの長距離輸送イベントを顕著に捕らえる事ができる。ガス・エアロゾル・降水の採取は三宅島火山噴火開始の約 2 年前、1998 年 5 月から現在に至るまで連続的に実施してきた。エアロゾルに関しては、捕集積算時間を 3~4 時間とする短時間サンプリングを実施した。それにより揮発性エアロゾルである NO₃、Cl、NH₄⁺などをより正確に測定できる。降水に関しては世界標準時間 0:00（日本時間で 9:00 から）から 1 日毎に積算して捕集した。また、SO₂、NO、NO₂、O₃、PM₁₀ の 1 時間間隔のモニタリングも実施している。エアロゾルはテープエアサンプラー（紀本電子工業、model 195A）によって、150 L min⁻¹ の吸引速度で polyflon フィルター（Sumitomo、type WP-500-50、100mm 巾、10m 長）上に捕集した。そして、水溶性陰イオンに関しては、陰イオン交換樹脂カラム（Dionex、AS12A）を用いて、水溶性陽イオンは、陽イオン樹脂カラム（Dionex、CS12A）を用いて、それぞれイオンクロマトグラフィ（Dionex、DX-120）で濃度を測定した。

（4） エアロゾル輸送モデル

使用したモデルは我々が開発した MSSP (regional-scale Eulerian Model System for Soluble Particles) である。MSSP モデルは主に 3 つのサブモデルから成る、気象モデル、化学輸送モデル、熱力学平衡モデルである。領域は 15-60° N、75-155° E で、水平解像度 1 度の緯度経度座標、鉛直は地表面から対流圏界面までの地形準拠座標で 23 層である。1 度間隔の NCEP (National Center for Environmental Research) 客観解析データ (Final Analysis) を MM5 の初期・境界条件とし、ANL(Argonne National Laboratory)の SO₂、NO_x、NH₃、CO、NMVOC (non-methane volatile organic compounds)、BC (black carbon) のエミッションインベントリを使用した。また自然起源エアロゾルである土壌粒子及び海塩粒子の発生モジュールを使用した。塩酸に関し

ては、排出データが整備されていない為、人為起源を考慮せず、海塩粒子からの不均質反応のみから生じるとした。三宅島火山からの二酸化硫黄の放出には気象庁地震火山部による直接測定データを使用した。計測された生データは、3 次スプライン関数により平滑化してモデルに入力した。数値計算は気象庁の観測開始から 1 年間、2000 年 9 月から 2001 年 8 月まで行った。

4. 結果と考察

(1) 排出インベントリーの開発

表 1 に NH₃ を除く発生源の大半を占める燃料の燃焼に伴う大気排出量を要約した。SO₂ 排出はエネルギー転換（火力発電）および製造業における石炭燃焼が主たる発生源である。NMVOC については、農村部におけるバイオマス燃焼に伴う排出がきわめて多い結果となった。Hg 排出量は 185Mg/y と推計された。これは、Pacyna and Pacyna²²⁾ によるヨーロッパの 1995 年における固定燃焼 Hg 排出量に匹敵する。

表 1 中国における部門別の燃焼系大気汚染物質排出量（2000）

（単位：Gg/y, Hgは Mg/y）

	SO ₂	NO _x	NMVOC	PM ₁₀	CO	Hg
総計（一次エネルギー総供給）	28,355	11,849	45,547	16,763	111,084	185
エネルギー転換	11,185	3,929	2,070	2,920	3,047	96
最終消費	17,171	7,921	43,477	13,843	108,036	90
1. 農林水産牧畜業	590	656	1,047	308	1,421	3
2. 工業	11,712	3,705	9,673	6,683	8,949	66
(1)採掘業	1,033	432	1,145	611	1,298	7
(2)製造業	10,356	2,974	8,189	5,772	7,207	52
(3).電気、ガス及水の生産と供給	324	299	339	300	444	7
3. 建築業	1,558	160	344	114	697	1
4. 交通輸送、郵便、通信業	558	1,997	1,849	428	6,527	2
交通計(都市内除)	327	1,650	1,052	183	4,034	0
(1)鉄道客運	7	20	12	5	21	0
(2)鉄道貨運	20	57	37	15	63	0
(3)道路客運	23	155	135	17	555	0
(4)道路貨運	92	674	716	97	3,117	0
(5)国内船舶運輸	102	579	76	29	198	0
(6)国内航空	84	165	76	20	79	0
郵便、通信業	231	347	797	245	2,493	1
5. 貿易業、商業、サービス業	214	207	558	200	1,318	1
6. 国民生活	2,256	916	29,014	5,769	86,579	15
都市部	582	176	1,751	396	5,705	6
農村部	1,674	739	27,262	5,372	80,873	9
7. その他の消費	283	279	992	342	2,545	2

注) SO₂ 排出量には、生産工程系排出量を含む。

(2) 日本域排出インベントリーの精緻化

① 推計の概要

東アジア地域から我が国へ到来する越境大気汚染のシミュレーションにおいては、国内の局所寄与を明らかにするため、ネスティングによる精密化を行うことが望ましい。このため、今回の

インベントリーでは EAGrid1995 における推計手法に対して以下のような改良・精緻化を行った。

- ・時空間分解能の改善 推計作業上の最小空間分解能を 1km とし、時間分解能を月別時刻別とした。
- ・対象発生源の拡大 農業廃棄物の野外焼却、建設・産業・農業機械をあらたに対象発生源に加えた。
- ・対象大気汚染物質の拡張 PM₁₀、CO、水銀を加えた。
- ・推計手法の改善 自動車排出量推計において気温湿度の影響を考慮し、コールドスタート排出を新たに推計した。

② 主要分野別推計方法

ア.自動車

従来、日本で行われてきた自動車排出量推計は、暖機後の排気管排出をベースとしてきたが、最近の JCAP(Japan Clean Air Program)の研究活動により精緻化が可能になりつつある。今回の推計では、JCAP の成果を取り入れて、□エンジンスタート頻度・ソーク時間分布等の自動車利用実態を考慮したコールドスタート排出量の推計、□ガソリントank内の呼吸作用による DBL(Diurnal Breathing Loss)排出等の蒸発系 NMVOC 排出量の推計、□絶対湿度の変化による排出量変化(NO_x)、気温の変化によるガソリンエンジン車の排出量変化(NO_x、CO、NMVOC)を考慮した季節別・地域別推計計算等の新たな手法をとり入れた。以上の結果、総排出量では前回の 1995 年時点推計に比較して NMVOC で 0.39Tg/y から 0.47Tg/y へと大幅に増加し、また季節変化・地域変化に富む変動が示された。

イ.農業廃棄物の野焼き

前回の推計では、不確定要素が大きいことから対象外としたが、今回は PM を対象物質として加えることとしたため、その寄与が大きいことが予想される農業廃棄物野焼きをあえて対象に加えた。基本的には、作物別の収穫量から残渣量・野焼き量を推定し、排出係数を乗じるものである。稲わらについては焼却量の実態調査が農水省により行われているが、その他の作物に関しては情報不足であるため焼却量・排出係数とも IPCC ガイドライン等の設定を踏襲した。

ウ.船舶

推計モデルは前回と同様であるが、東京湾・伊勢湾・大阪湾・瀬戸内海といった内海における船舶排出が近隣都市に及ぼす影響が大きいことから、推計に加えた。

エ. Hg の推計

日本における水銀排出の実態については、Yokoyama et al.²³⁾、Takaoka et al.²⁴⁾、による石炭燃焼施設・廃棄物焼却施設を対象とした調査があり、それらから、平均 Hg 含有率・大気放出率を推定した。Hg 排出量は両者をあわせても 9.5Mg/y と中国に比べて非常に低い水準である。

③ 推計結果

推計結果のなかで最も大きな特徴である排出量の時間的変動状況を図 2 に要約して示す。これらの図は、時間排出量の全国計を月別の日周変化として示したものであり、汚染物質により異なる変動特性が推定されている。これらの変動には、自動車排出におけるコールドスタートの影響・秋季の野焼きの影響・NH₃ 排出における季節影響等が反映している。

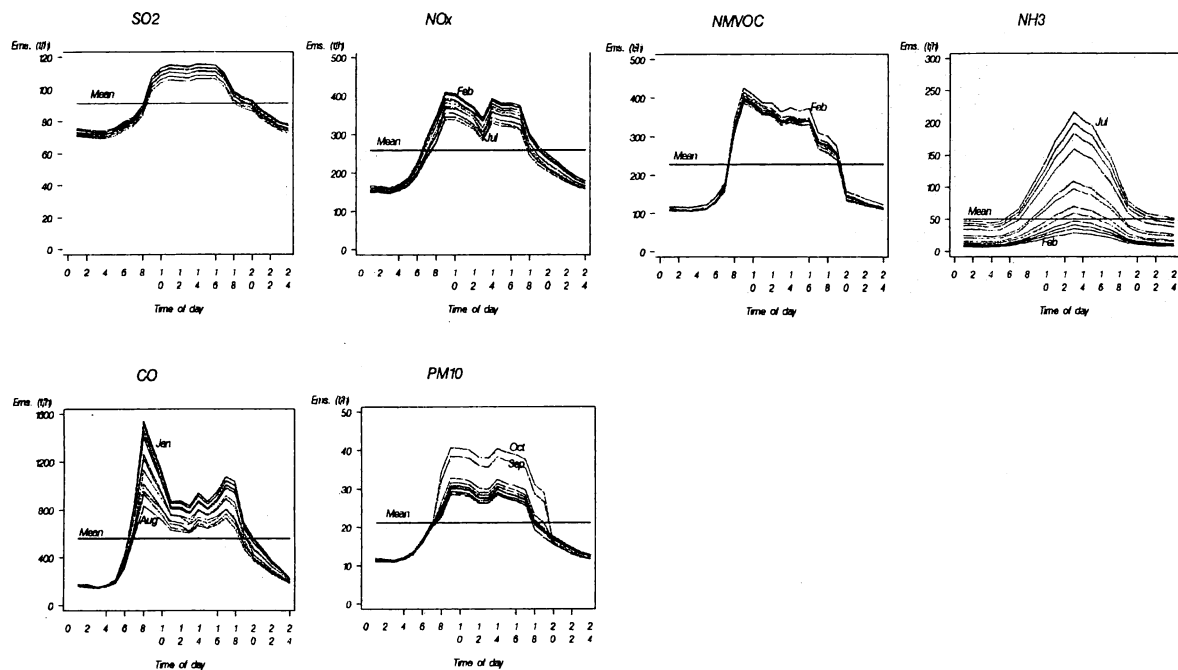


図2 日本の全国排出量の月別日周変動状況

(3) 周辺国の排出

NH₃、CO を除く大気汚染物質の台湾・韓国・北朝鮮・モンゴルにおける排出量に関しては、以下のような簡略的な扱いとした。

- a. 台湾 台湾政府による排出量推計値は信頼性があると考えられるので、公表値を採用した。²⁵⁾
- b. 韓国 韓国環境科学研究院の Dr. Park Il Soo ¹⁶⁾ から 2000 年度の排出量推計結果の提供を受けた。また、PM₁₀、CO については日中韓 3 カ国の LTP 共同研究に提供された推計値を利用した。
- c. 北朝鮮・モンゴル 両国とも排出寄与が小さいことから簡略的な取り扱いとして、SO₂、NO_x、NMVOC については 1995 年に対するエネルギー消費量の比で年次補正した(北朝鮮 0.81, モンゴル 0.95)。

NH₃ 排出量は、FAO の家畜統計・肥料消費統計を利用して、EAGrid1995 と同様の推計方法で推計した。Hg については石炭燃焼に伴う排出量を標準的な EF を想定して推計した。

(4) EAGrid2000

以上の推計手順による 2000 年排出量データベース(EAGrid2000)による年間排出フラックスのグリッド分布を図 3 に示す。同じく 2000 年を対象とする Streets ²⁷⁾ らの推計等との国別排出量比較を表 2 にまとめた。

本推計結果の最も大きな特徴は、中国における SO₂ 排出量および NMVOC 排出量が従来の推計値に比べて多いことである。特に NMVOC は顕著であり、その評価は今後大気過程のシミュレーションと測定結果の対照により確認することが必要である。

表 2 EAGrid2000 と既往推計との比較

(単位:Gg/y, Hg はMg/y)

	SO ₂	NO _x	NMVOC	NH ₃	PM ₁₀	CO	Hg
China	28,355	11,826	47,243	12,167	16,962	111,084	185
	20,385	11,347	17,432	13,570	10,838	115,749	-
Taiwan	403	515	894	133	356	2,135	5
	376	521	510	152	52	2,127	-
Japan	872	2,371	2,006	443	192	5,016	9
	801	2,198	1,920	352	271	6,806	-
ROK	531	1,004	665	166	71	834	7
	829	1,322	1,161	172	142	2,824	-
DPRK	288	214	290	50	-	-	9
	227	273	234	98	312	3,556	-
Mongolia	70	24	8	87	-	-	1
	84	39	25	117	71	368	-
China, Taiwan, Japan and ROK	30,161	15,715	50,808	12,909	17,580	119,069	206
	22,391	15,388	21,023	14,246	11,302	127,506	-

注1) 上段:本推計、下段:Streets et al.(2003) ただし PM₁₀ は Iowa Univ.による。

2) ROK 推計値は I. S. Park(韓国環境科学研究院)による。

3) Taiwan 推計値は、台湾行政院環境保護署「空気品質保護 25 年紀実」による。

4) DPRK, Mongolia 推計値は、1995 年本推計値のエネルギー消費動向による年次補正值である。PM₁₀,CO は未推計。

5) NH₃,Hg 推計値はすべて本作業による。

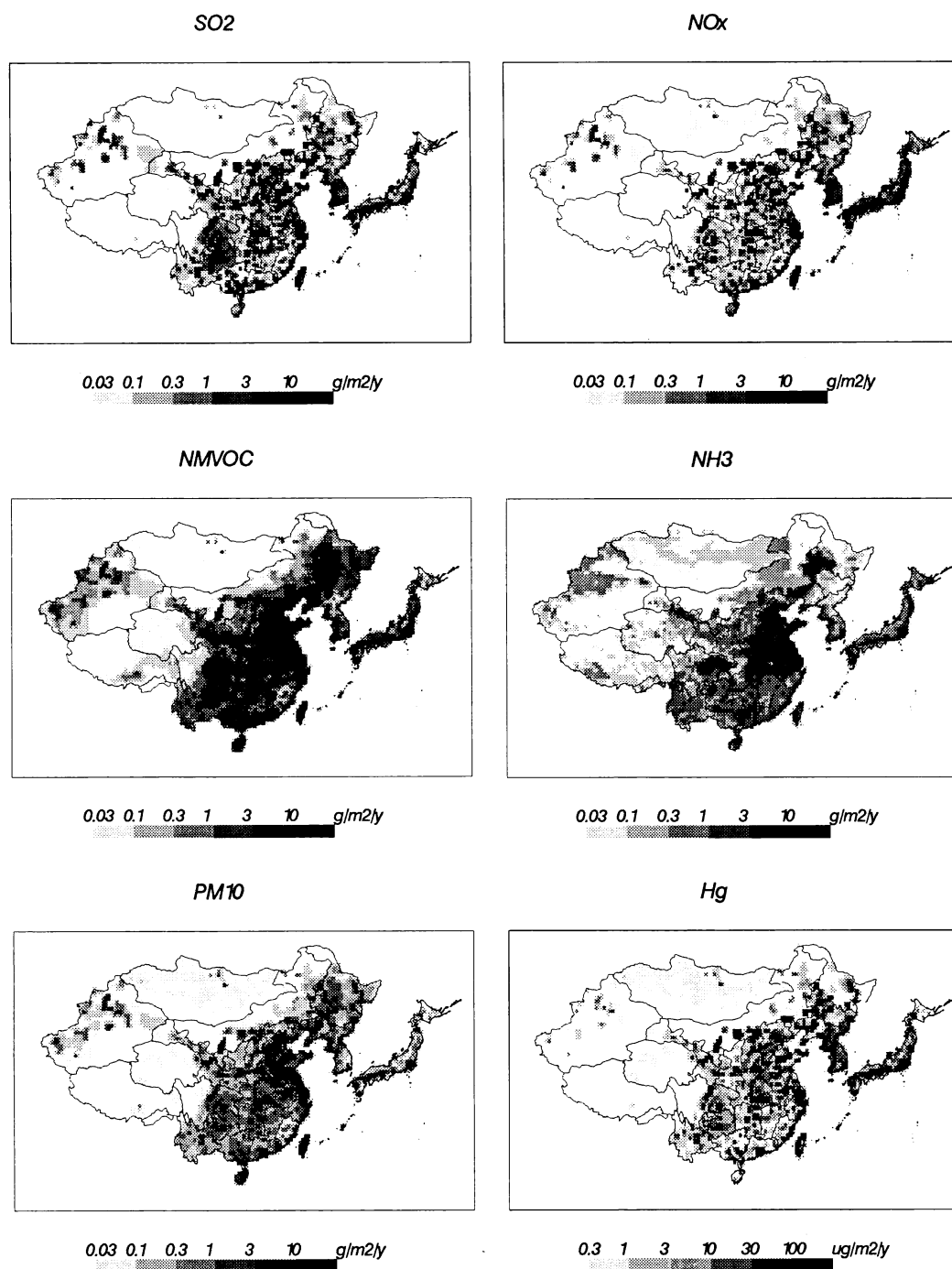


図3 EAGrid2000による諸物質の年間排出量分布

(5) 大気汚染物質のソースリセプターマトリックス解析

① モデル再現性

ア. 気象

最初に、全国の気象庁気象官署で測定された地上気象観測データと比較することによって地域気象モデル RAMS による気象再現性について検証する。ここで対象とした気象官署は札幌、仙台、東京、大阪、福岡、那覇の6地点である。これらの地点のうち那覇における日平均風速、日平均気温および日降水量の RAMS と実測の比較結果を図4に示す。那覇において RAMS は地上で測定された風速と気温の時間変動を妥当に再現する。他の5地点における再現結果も那覇と同様である。一方、降水量に関しては、実測された日降水量が 20 mm 以上となるような大雨の場合には RAMS 計算結果が過小となるケースが多い。図5は日本全国の気象官署 152 局で測定された年間降水量と RAMS 計算値との比較結果を地域別（図1で示した6地域別）に示す。但し、実測された日降水量が 20 mm 以上となる大雨の日を除いている。図5で示されるように、大雨時を除くと RAMS と実測の降水量はほぼ一致する。なお、RAMS の水平分解能を上げるとある程度、大雨時の過小傾向が改善されることから、過小原因のひとつとして RAMS の水平分解能が 80 km と粗いために雲・雨構造を十分に表現できていないことが考えられる。

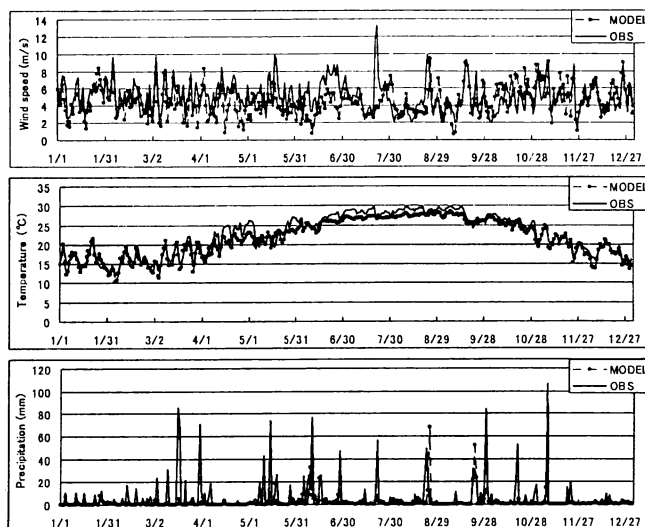


図4 那覇における地上気象要素の実測とモデルの比較

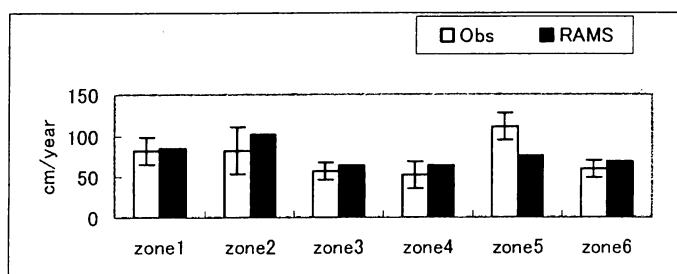


図5 地域別年間降水量の実測とモデルの比較
(実測日降水量が 20mm 以上のデータを除く)

イ. 硫黄化合物

図 6 は、溝畑²⁸⁾によって大阪府堺市で測定された粒子状 SO_4^{2-} 日平均濃度の時間変動と HYPACT 計算濃度の比較結果を示す。計算結果はほぼ全期間において過小ではあるが、夏季 7、8 月を除くと実測された時間変動を比較的良く再現している。このように計算結果が全体的に過小となる原因としては、モデル水平分解能が 80 km と粗いため都市域の高濃度汚染を適切に表現できないこと、本モデルでは不均一生成過程を考慮していないこと等が考えられる。なお、夏季の過小傾向が他の季節よりも大きい原因は明らかでないが、夏季における鉛直拡散係数などの気象再現性の問題や設定した SO_2 の粒子状 SO_4^{2-} への反応速度定数が過小なことなどが考えられる。

図 7 は、電力中央研究所 (Fujita et al.²⁹⁾) によって鹿島 (石川県) と福江で測定された SO_4^{2-} 湿性沈着量と HYPACT による計算結果の比較を示す。両地点で測定された湿性沈着量は明瞭な季節変動を示し、鹿島では夏季に少なく冬季に多いのに対して、福江では梅雨季に多い。このように両地点における季節変動は異なるが、HYPACT はこれらの特徴を再現している。さらに、環境庁第 3 次酸性雨対策調査 (環境庁³⁰⁾) と電力中央研究所 (Fujita et al.²⁹⁾) による全国の SO_4^{2-} の年間湿性沈着量とモデル計算値の比較結果を図 8 に示す。ここで対象とした測定データは、年間を通して有効な実測データが得られている 24 地点である。実測値(y)とモデル計算値(x)の間には直線回帰式 $y = 0.87x + 1.0$ (単位は $\text{g}/\text{m}^2/\text{year}$)、相関係数 0.53 の関係が成立し、また 70% の地点でファクター 2 以内に収まっていることから、実測値の地域代表性とモデルの水平分解能を考慮するとほぼ妥当な再現性が得られていると考えられる。

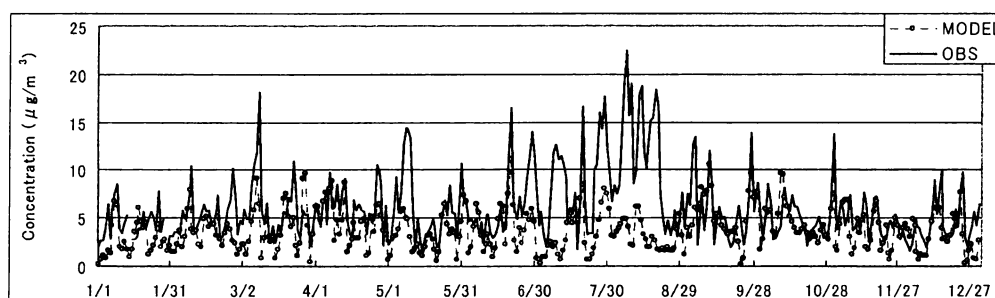


図 6 大阪・堺における粒子状 SO_4^{2-} 日平均濃度の実測とモデルの比較

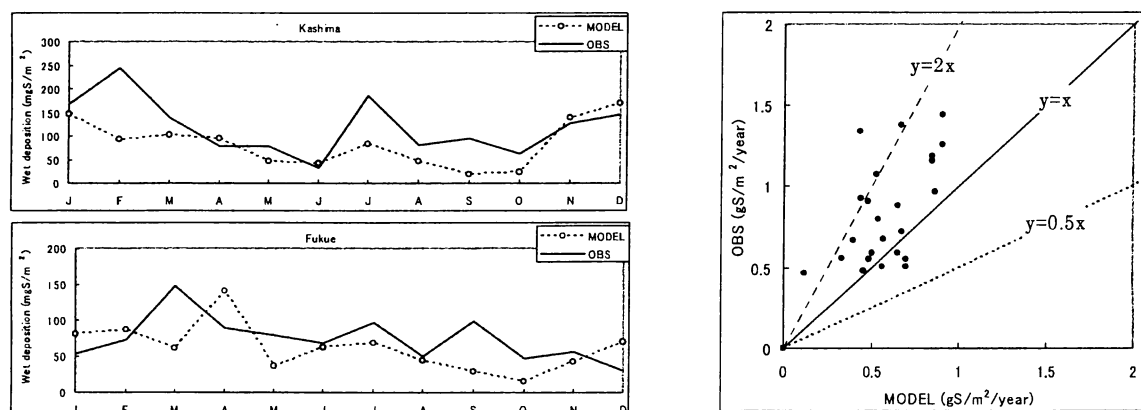


図 7 鹿島(上)と福江(下)における SO_4^{2-} 湿性沈着量の比較 図 8 全国の SO_4^{2-} 年間湿性沈着量の比較

ウ. 窒素化合物

大阪で観測された粒子状 NO_3^- 濃度（溝畑²⁸⁾）とモデルの比較結果を図9に示す。モデルは実測された高濃度を再現できないがベースの時間変動を比較的良く再現している。モデルの水平分解能は80kmであるため、都市域の高濃度を再現するのは難しい。

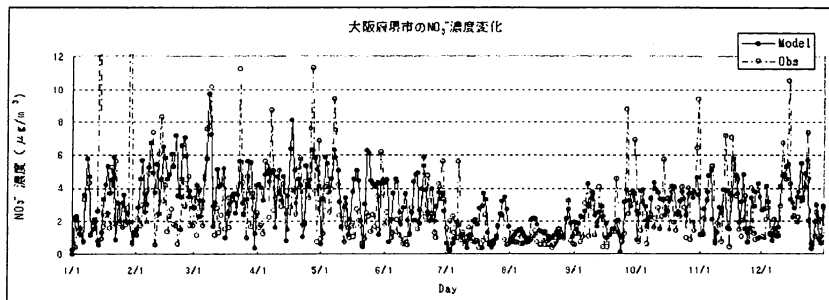


図9 大阪・堺における粒子状 NO_3^- 日平均濃度の実測とモデルの比較

図10は、電力中央研究所（Fujita et al.²⁹⁾）によって鹿島と福江で測定された NO_3^- 湿性沈着量とモデル計算結果の比較を示す。モデルは月変動パターンを良く再現する。図11は環境庁第3次酸性雨対策調査（環境庁³⁰⁾）によって実測された年間 NO_3^- 湿性沈着量とモデルの比較結果を示す。モデルはほぼファクター2の範囲内で実測と整合し、相関係数も0.45と高い。このように、 NO_3^- のモデル再現性は比較的高いと考えられる。

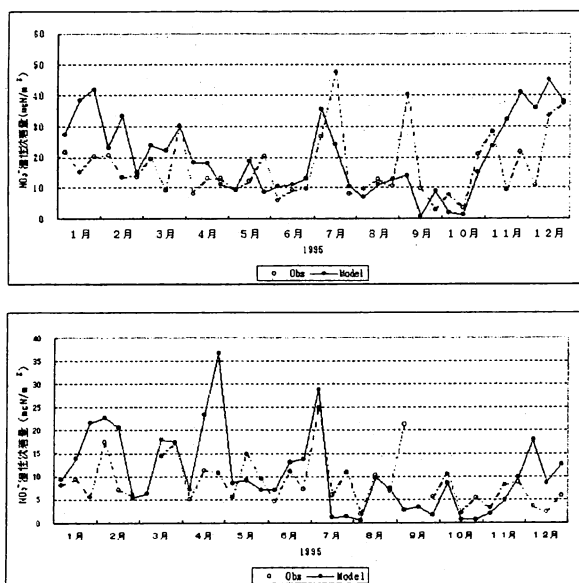


図10 鹿島(上)と福江(下)における NO_3^- 湿性沈着量の比較

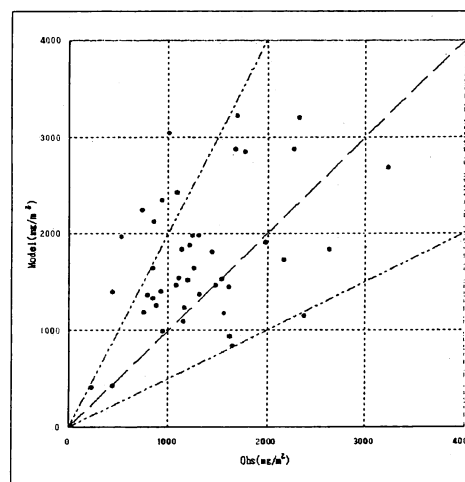


図11 全国の NO_3^- 年間湿性沈着量の比較

② 沈着量分布

図12は、硫黄の年間の湿性沈着量分布(a)、乾性沈着量分布(b)、全沈着量分布(c)、全沈着量中の湿性沈着量の割合(d)を示す。湿性沈着量分布（図12(a)）は降水量分布に強く依存するため、地上における SO_2 や粒子状 SO_4^{2-} 濃度分布と異なり、アジアスケールでは中国大陸内部の発生源地域に比較的近い多雨地域において湿性沈着量が多い。また、日本周辺では日本海地域および九

州西部地域等において湿性沈着量が多い。これは冬季の北西季節風によって中国大陆で大量に排出された SO_2 が長距離輸送され、降雪によって日本列島の日本海側に沈着するためと考えられる。一方、乾性沈着量分布（図 12(b)）は SO_2 や粒子状 SO_4^{2-} の地上濃度分布と良く似た分布を示し、発生源地域で多く、それから離れるに従って減少する。

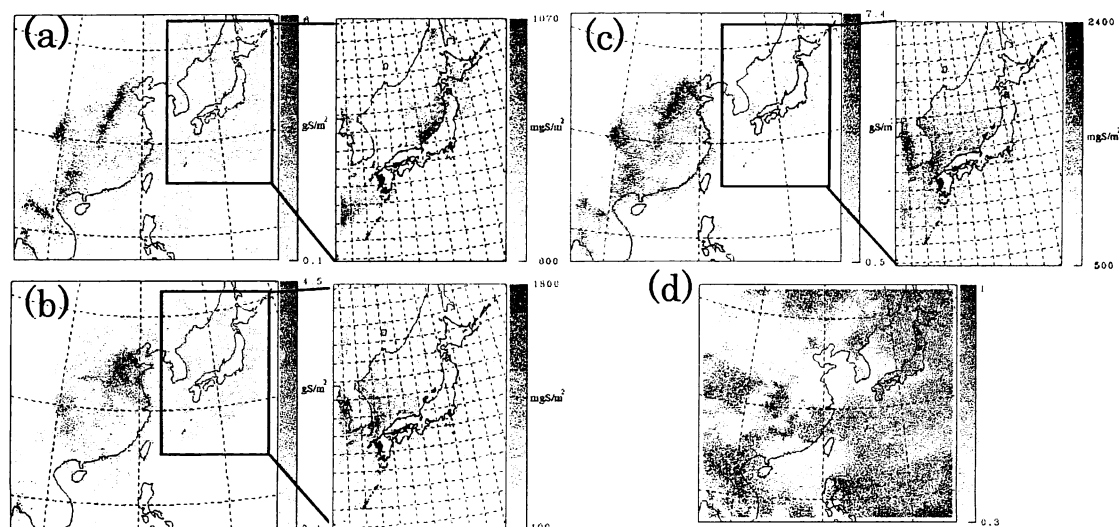


図 12 硫黄の年間湿性沈着量(a)、乾性沈着量(b)、全沈着量(c)、全沈着量中の湿性沈着量の割合(d)

なお、図には示さないが SO_2 と粒子状 SO_4^{2-} の乾性沈着量分布は各々の地上濃度分布の違いを反映して異なり、 SO_2 の乾性沈着量が発源地域周辺で多いのに対して粒子状 SO_4^{2-} 乾性沈着量の多い地域はより広範囲に及んでいる。さらに、総沈着量分布（図 12(c)）は湿性沈着量分布に類似していること、中国の発生源近傍地域や内陸の SO_4^{2-} 乾性沈着速度が大きな地域では乾性沈着が湿性沈着よりも卓越するが日本付近では湿性沈着の割合が 50~70% であり乾性沈着よりも湿性沈着がやや多いこと（図 12(d)）などが認められる。

計算領域全体と日本周辺域における窒素の年間沈着量分布を図 13 に示す。窒素の年間沈着量は、アジア域では中国内陸で最も多いが、これは主として中国内陸の発生源に近い多雨地域において湿性沈着量が多いことによる。また、日本周辺では、北海道と中部山岳域を除くほぼ日本全域で 1gN/m^2 以上の窒素化合物が沈着している。また、図には示さないが、湿性沈着量が日本海地域と東北太平洋岸地域で多いのに対し、乾性沈着量は発源地域とともに西日本一帯で多い地域が広がっている。

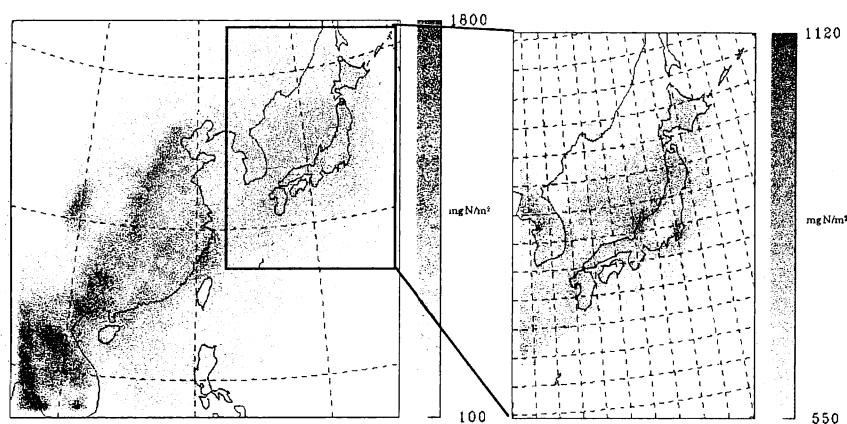


図 13 窒素の年間沈着量（乾性沈着量＋湿性沈着量）

③ ソース・リセプター解析

図 14 は、日本の硫黄沈着量の発生源別割合を示す。全国の沈着量の発源地域別割合は、中国が 49 % と最も多く、次いで日本 21 %、火山 13 %、朝鮮半島 12 % の順となっている。このように、日本における沈着量のうち半分は中国からの寄与であり、中でも中国華北の寄与が 20 % と非常に高い。また、日本と同様に、朝鮮半島においても中国からの寄与が 52 % と高い。次に、日本国内を地域別に見ると、北海道(zone 1)や東北(zone 2)では中国からの寄与率がそれぞれ 63 %、54 % と高く半分以上の寄与を占める。また、大発源地域を含む中部・関東(zone 3)や中国・四国・近畿 (zone 4) では自国の寄与が高く、その寄与率は 36 % と 28 % である。一方、九州(zone 6) や中国・四国・近畿 (zone 4) では桜島等の九州の活火山の影響を受けるため火山の寄与が高く、その寄与率は 21 % と 18 % である。

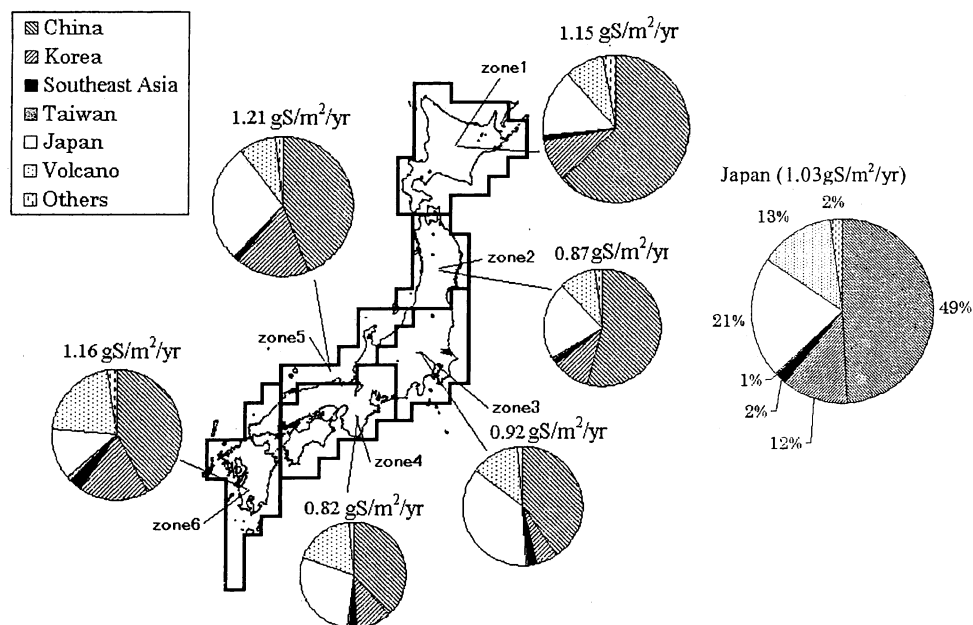


図 14 年間硫黄沈着量の発源地域別割合

ソース・リセプター解析に基づく日本列島の硫黄沈着量の国別寄与率を既往研究結果と比較して表 3 に示す。本研究結果の国別寄与率は、既往結果に較べて中国の寄与が大きく国内人為排出量の寄与が小さい点に特徴がある。しかし、表 3 で示されるように、本研究と既往モデル研究による沈着量の違いは極めて大きい。これまで、既往研究間の国別寄与率の違いについてしばしば議論されてきたが、ベースとなる沈着総量が異なるため寄与率だけを単純に比較することには注意を要する。一方、本研究結果は対象年が 1995 年であるのに対し、既往モデル研究の対象年が 1990 年頃であることも考慮する必要がある。Streets et al.¹⁾ によれば、1990 年から 1995 年の 5 年間に中国の排出量は 14%増加したのに対し日本の排出量は約 10%減少しており、これに伴って中国の寄与率が増加した可能性がある。

表 3 日本列島における年間硫黄沈着量の発生源地域別割合の比較

Authors	Base year	Model type	Contribution of sulfur deposition (%)					Deposition		Emission (TgS/yr)
			Japan	Volcano	China	Korea	Others	(TgS/yr)	(gS/m ² /yr)	
Ichikawa et al. (1998)	1988-1989	Hybrid	40	18	25	16	1	0.43	1.21	13.3
Ichikawa et al. (2001)	1990	Trajectory	27-30	25-31	24-27	17-19	1-2	0.23-0.25	0.64-0.71	11.3-11.6
	1995		26-29	24-32	29-32	12-13	1-2	0.22-0.25	0.62-0.69	12.6-12.8
Ikeda & Higashino (1997)	1990	Eulerian	37	28	25	10	0	0.61	0.75	10.9
Carmichael & Arndt (1995)	1990	Trajectory	38	45	10	7	0	0.40	-	11.8 ^{a)}
Huang et al. (1995)	1989	Eulerian	94		3	2	1	-	-	-
This study	1995	Eulerian	21	13	49	12	5	0.84	1.03	13.9
Fujita (1996)	1987-1990	Observation	-	-	-	-	-	1.04	1.44	-

a) Anthropogenic emission in East Asia from Arndt et al. (1997).

次に、日本列島の窒素沈着量の発生源地域別寄与率を既往研究結果と比較して表 4 に示す。本研究結果の寄与率は、日本 39%、中国 34%、朝鮮半島 18%、その他 9%であり、既往結果（池田・東野⁷⁾；Holloway et al.⁸⁾）に較べ中国の寄与が大きい。

表 4 日本列島における年間窒素沈着量の発生源地域別割合の比較

研究者（発表年）	基準年	寄与率 (%)			
		日本	中国	朝鮮半島	その他
池田・東野 (1997)	1990	76	13	11	1
Holloway et al. (2002)	1990	65	18	15	2
本研究	1995	39	34	18	9

（6）三宅島火山噴火による大気質変化と環境酸性化

① 八方尾根における大気質の変化：観測結果

ア．ガス・エアロゾル・降水の変化

表 5 は八方尾根における噴火前と噴火後の年平均（上段）及び二ヶ月平均（下段）のガス、エアロゾル、降水の成分濃度を示す。年平均で、ガスでは二酸化硫黄濃度がおよそ 4 倍、エアロゾルでは PM10 濃度が 2 倍、硫酸エアロゾル濃度が 1.5 倍、アンモニア濃度が 1.3 倍、降水では硫酸

イオン濃度が 1.7 倍、アンモニウムイオン濃度が 1.3 倍に増加し、降水の酸性度は 4.87 から 4.81 に、0.06 降下した。これらは三宅島火山の噴火による影響と考えられる。硫黄化合物の増加は、三宅島火山の噴火に伴う二酸化硫黄の放出の影響、PM10 の増加は、火山灰などの影響である。アンモニアの増加は、三宅島の噴火に伴う火山性アンモニアの放出と、過剰な火山性硫酸エアロゾルによりガス状アンモニアがエアロゾルに取り込まれる、という gas-to-particle 反応が進んだ為と考えられる。さらに、火山からはほとんど放出されていないはずの、硝酸イオン及び塩化物イオンが降水中で増加している。噴火開始直後の 2000 年 8 月及び 9 月の 2 ヶ月平均と、その 1 年前である 1999 年 8 月及び 9 月の 2 ヶ月平均を比較すれば、噴火の影響はさらに顕著に見える。硫黄化合物・アンモニアの濃度がより大きく上昇し、降水中の硝酸イオンや塩化物イオンは、それぞれ 2.7 倍、2 倍近く増加し、降水の酸性度は 5.11 から 4.50 まで、0.61 降下していた。

表 5 八方尾根における噴火前と噴火後の年平均、2 ヶ月平均のガス・エアロゾル・降水の成分濃度

	Gas (ppb)		Aerosol ($\mu\text{g m}^{-3}$)					Precipitation (mg L^{-1}) ^{a)}				
	SO ₂	O ₃	PM10 ^{f)}	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	pH	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺
Annual mean												
Before eruption ^{b)}	0.4	52	8	2.5	0.32	0.05	0.85	4.87	0.81	0.63	0.28	0.14
After eruption ^{c)}	1.5	53	15	3.8	0.33	0.03	1.12	4.81	1.36	0.66	0.36	0.18
2 months mean; from August to September												
Before eruption ^{d)}	0.2	38	14	2.2	0.2	0.02	0.75	5.11	0.25	0.31	0.09	0.06
After eruption ^{e)}	3.3	46	17	6.5	0.24	0.03	1.56	4.50	1.70	0.83	0.17	0.33

a) except pH, b) from Jul. 1999 to Jun. 2000, c) from Aug. 2000 to Jul. 2001,

d) 1999, e) 2000 f) aerosol less than 10 μm in diameter

イ. 揮発性成分のガスーエアロゾル分配の変化と間接的環境酸性化効果

表 6 は八方尾根における観測データを後方流跡線解析により噴火前 1999 年 9 月の大陸性汚染気塊と噴火後 2000 年 9 月の三宅島の火山性気塊に分類した、双方の空気塊における硫酸濃度、エアロゾル酸性度、無機揮発性成分のガスーエアロゾル分配、及び硫酸イオンー硫酸水素イオンバランスを表している。硝酸・塩酸のガスーエアロゾル分配に関して、1999 年 9 月の大陸からの汚染気塊における分配はエアロゾル側に寄り、それぞれ粒子相に 62%、58%、気相に 38%、42%であった。このとき揮発性塩基性物質であるアンモニアのガスーエアロゾル分配もまたエアロゾル側に寄り、粒子相に 75%、気相に 25%であった。2000 年 9 月、三宅島の噴火開始から 2 ヶ月後では、三宅島からの気塊において分配は、ほぼ気体側に寄っており、硝酸・塩酸共に粒子相に 4%、気相に 96%であった。一方アンモニアに関しては、SCAPE モデルによる計算結果では 100% 粒子相であり、観測結果でも粒子相に 85%と多くがエアロゾルとして存在していた。これは過剰な硫酸が、アンモニアガスをエアロゾル相に固定し、硝酸塩、塩酸塩を気相に追い出す Nitrate deficit/Chloride deficit が生じた事が原因である。つまり三宅島火山の噴火によって、硝酸ガス・塩酸ガス濃度は増加し、一方で硝酸塩・塩酸塩の濃度が減少した。エアロゾル中の硝酸塩や塩酸塩の沈着速度は、気体の硝酸ガスや塩酸ガスに比べて非常に小さい。たとえば、エアロゾルに取り込まれた硝酸や塩酸の重力沈降による沈着速度はおおよそ 10^{-2} から 10^{-4} (cm s^{-1}) のオーダーであるのに対して、硝酸ガスや塩酸ガスの乾性沈着速度はおおよそ 4 cm s^{-1} 程度である。また、ガス

の溶解平衡定数であるヘンリー定数もまた、硝酸ガス・塩酸ガスはそれぞれ 2.1×10^5 、 $727 \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$ と、二酸化硫黄や二酸化窒素などのそれ (1.23 、 $0.01 \text{ mol L}^{-1} \text{ atm}^{-1}$) と比べて非常に大きい。以上のプロセスから、硝酸や塩酸の沈着量が増加することになる。これが表 5 で降水中の硝酸イオン、塩化物イオンが増加した原因と考えられ、これを噴火による間接的環境酸性化効果と名付けた。

表 6 八方尾根における観測データを後方流跡線解析により噴火前 1999 年 9 月の大陸性気塊と噴火後 2000 年 9 月の三宅島の火山性気塊に分類した、双方の空気塊における硫酸濃度、エアロゾル酸性度、無機揮発性成分のガスーエアロゾル分配、及び硫酸イオンー硫酸水素イオンバランス

	SO_4^{2-} ^a $\mu\text{g m}^{-3}$	pH ^b	particle-phase fraction		$[\text{SO}_4^{2-}] /$ $([\text{SO}_4^{2-}] + [\text{HSO}_4^-])^b$	particle- phase fraction			
			ammonium			nitrate		chloride	
			observed	predict		observed	predict	observed	predict
Air mass in continental outflows before the eruption (1999).									
13 Sep. 12:00-15:00	12.3	1.98	0.78	0.87	1	0.6	0.82	0.43	0.73
13 Sep. 15:00-18:00	12.1	2.13	0.77	0.88	1	0.61	0.92	0.61	0.87
13 Sep. 18:00-21:00	8.8	2.04	0.76	0.85	1	0.57	0.82	0.58	0.73
13 Sep. 21:00-24:00	8.1	2.79	0.72	0.5	1	0.82	0.45	0.86	0.3
14 Sep. 00:00-03:00	10.7	1.47	0.74	0.96	1	0.5	0.54	0.43	0.41
average	10.4	2.08	0.75	0.81	1	0.62	0.71	0.58	0.61
Air mass under direct volcanic influence (2000).									
15 Sep. 12:00-18:00	32	0.06	0.96	1	0.27	0	0.09	0	0.06
15 Sep. 18:00-24:00	20.3	0.05	0.94	1	0.23	0	0.04	0	0.02
16 Sep. 00:00-06:00	11	-0.15	0.76	1	0.16	0.17	0.07	0.16	0
16 Sep. 06:00-12:00	6.4	0.04	0.75	1	0.23	0	0.01	0	0.01
average	17.4	0	0.85	1	0.22	0.04	0.05	0.04	0.02

^a Observed values. ^b Predict from the model.

ウ. 強酸性エアロゾルにおける $\text{SO}_4\text{-HSO}_4$ の分配

また、SCAPE モデルを用いれば実際には測定できないが、潮解湿度を超えたエアロゾルを高濃度溶液として扱う事によりエアロゾルの酸性度を計算できる。それによるとエアロゾルの酸性度は、大陸性汚染気塊では平均で 2.08 であったのに対して、三宅島からの気塊では平均で 0.00 であり、マイナスを示す事もあった。このように、極端に酸性化したエアロゾルにおいては、硫酸水素イオン (HSO_4^-) が存在する。大陸性気塊においては、硫酸水素イオンは存在しなかったが、三宅島からの気塊では SO_4 イオンのうち約 8 割弱が硫酸水素イオンであった。

② 噴火による極東アジア域の環境変化：数値モデル結果

ア. 硫酸エアロゾルの分布

図 15 は日本付近における対流圏下層（およそ 2000m MSL まで）での、火山起源硫酸エアロゾル濃度（上段）、火山起源硫酸エアロゾル濃度のトータル硫酸エアロゾル濃度に対する割合（下段）であり、2000 年 10 月から 2001 年 8 月まで 2 ヶ月毎に左から右へ描かれている。2000 年 10 月では噴火活動は依然活発であり、東京が位置する関東領域では硫酸エアロゾル濃度は $5 \mu\text{g m}^{-3}$

を超え（割合は 30-50%）、日本付近の環境を広域にわたって酸性化した。冬になれば日本列島上では北西季節風が卓越し、火山性硫酸は太平洋上、南東方向へ移流した。日本列島上での硫酸濃度増加はほぼ $0 \mu\text{g m}^{-3}$ であり、全ドメインでの最大濃度も $3\text{-}4 \mu\text{g m}^{-3}$ 程度と小さい値であった。しかし、他の月と比べると冬季の太平洋上での他の火山性硫酸のトータルに対する寄与は比較的大きかった（広範囲で 50%を超える）。従って冬季太平洋海上において三宅島起源の硫酸エアロゾルによる雲性状変化過程がもっとも顕著であったと考えられる。春になれば日本列島への高気圧・低気圧システムが通過して、日本列島上で火山性硫酸濃度が増加した ($1.0\text{-}2.5 \mu\text{g m}^{-3}$) 6月初めから7月中旬にかけては、大陸から日本列島にかけて梅雨前線が形成される。対流圏下層の前線付近では西風が卓越して収束域が形成され、大陸から人為起源の硫酸エアロゾルが移流し、三宅島起源の硫酸エアロゾル濃度の分布は図 15 のように西から東へ狭く長くのびている。夏になれば、亜熱帯性高気圧システム（小笠原気団）が太平洋上で卓越する。火山性の硫酸エアロゾルは西から南西方向に輸送され、韓国や沖縄方面まで到達した。三宅島起源硫酸エアロゾル濃度は、韓国で $1 \mu\text{g m}^{-3}$ 以上、台湾で $2 \mu\text{g m}^{-3}$ 程度であり、その寄与は 20-30%程度であった。三宅島火山噴火による二酸化硫黄の放出量は時間と共に減少したにもかかわらず、夏には火山性硫酸エアロゾル濃度は再び大きくなった。また三宅島火山の噴火による降水酸性度の低下を MSSP モデルにより計算した。降水の pH は年平均で、日本海側で 0.1-0.3、太平洋側で 0.3-1.0 程度低下した。これは、日本における黄砂による降水の中和作用を相殺する量である。

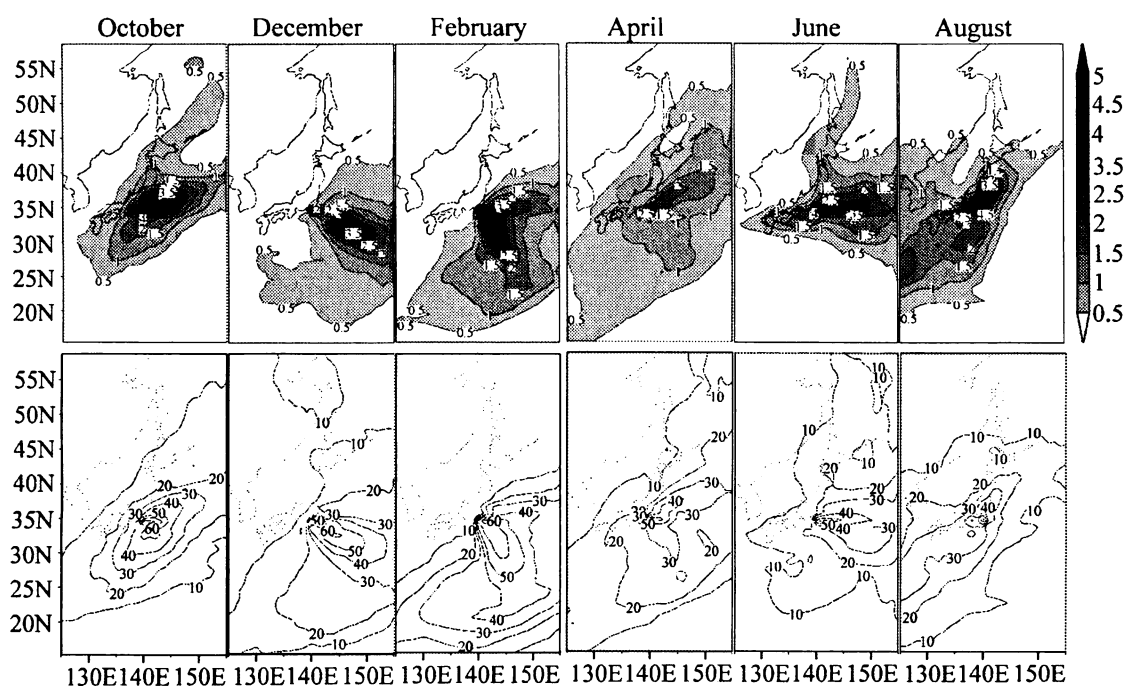


図 15 下層大気（2000mMSL まで）における（上）三宅島火山の噴火による月平均硫酸エアロゾル濃度増加分と、（下）全硫酸エアロゾル（三宅島起源＋人為起源）に対する三宅島起源硫酸エアロゾルの割合（%）。左から右へ 2000 年 10 月から 2001 年 8 月まで 2 ヶ月毎

イ. 間接的環境酸性化効果

図 16 に間接的環境酸性化効果の一例を示す。図 16 は 2000 年 10 月 (秋)、2001 年 1 月 (冬)、4 月 (春)、7 月 (夏) における、間接効果による月平均の硝酸の乾性沈着増加量 ($\text{mg m}^{-2}\text{d}^{-1}$) の数値計算結果である。硝酸の乾性沈着量は、2001 年 1 月を除く他の月で日本列島本州の東北地方を除くほぼ全域で 0.2 から 0.6 $\text{mg m}^{-2}\text{d}^{-1}$ 程度増加した。2001 年 1 月は冬季に卓越する北西季節風の影響で火山性硫酸エアロゾルが太平洋に多く流されたことにより、火山性硫酸エアロゾル濃度のピークとほぼ同じ場所でピークを示し、沈着増加量は 0.8 $\text{mg m}^{-2}\text{d}^{-1}$ を超えた。硝酸の乾性沈着量に対する三宅島火山噴火の寄与率もまた 2001 年 1 月に最も大きく、太平洋海上では 80% を超えた。従って、この領域で硝酸の乾性沈着量は噴火の無い場合と比べておよそ 5 倍以上であったことになる。2000 年 10 月、2001 年 4 月、2001 年 7 月においては、沈着量増加は同程度であったにもかかわらず、寄与率は日本列島で 25 から 30% 程度であった 2000 年 10 月、2001 年 4 月に比べて 2001 年 7 月ではせいぜい 10% 以下程度しかない。これは、夏季は気温が高く人為起源の硫酸エアロゾル濃度も高いために、そもそも硝酸のガス-エアロゾル分配はガス側に寄っていたので、火山性硫酸によって引き起こされた nitrate deficit による硝酸ガスの増加率があまり高くなかったと考えられる。直接効果と間接効果を定量的に比較した結果、間接効果は全体的に直接効果に比べて小さいが、直接効果を大きく上回る場合もあり、そして小さい場合でも無視することはできない程度の量であった (0.07-2.1 倍)。よって、三宅島火山の噴火は、さらにこの間接効果を通して極東アジア域の環境を酸性化していたといえる。

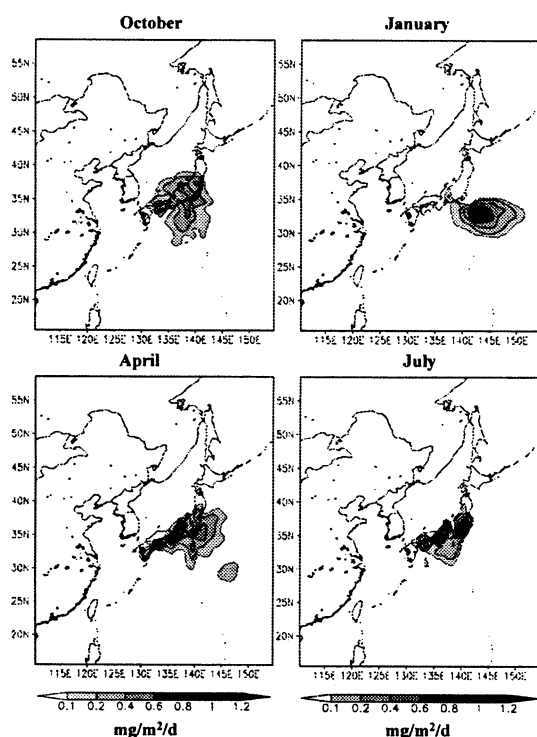


図 16 2000 年 10 月、2001 年 1 月、4 月、7 月の月平均の硝酸乾性沈着増加量 ($\text{mg m}^{-2}\text{d}^{-1}$)

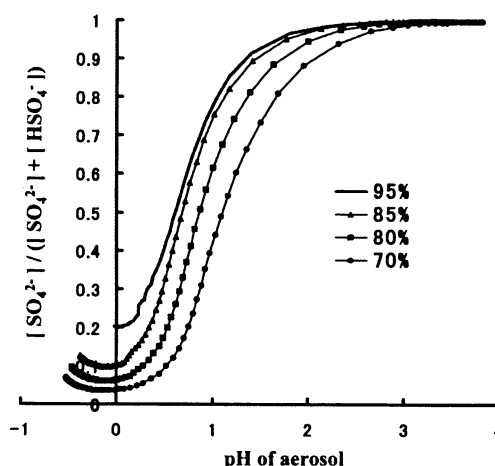


図 17 様々な相対湿度に対する $\text{NH}_4^+\text{SO}_4\cdot\text{H}_2\text{O}$ 系の高濃度溶液としての強酸性エアロゾルにおけるエアロゾル酸性度と硫酸イオン-硫酸水素イオンバランスの関係

ウ. $\text{NH}_4\text{-SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ 系理想エアロゾル

図 17 に、 $\text{NH}_4\text{-SO}_4\text{-H}_2\text{O}$ 系エアロゾルにおける熱力学平衡の計算結果を示す。ここでは気温は 20°C 、大気中のアンモニア（気相＋エアロゾル相）は $2\ \mu\text{mol m}^{-3}$ で一定としている。硫酸濃度が $0.05\text{-}5\ \mu\text{mol m}^{-3}$ まで変化した時のエアロゾルにおけるエアロゾル酸性度と、硫酸イオン－硫酸水素イオンのバランスの関係を示した。太い実線は相対湿度 95%、三角付き、四角付き、丸付きの実線はそれぞれ。相対湿度 85%、80%、70% の場合である。硫酸水素イオン濃度の割合は、pH が 3 より小さくなれば徐々に増し、pH が 1 から 2 の間で急上昇して、pH が 0 のあたりで最大となる。相対湿度が低ければ、水分の取り込み量も少ないので、その分 pH は低くなり、相対湿度が 90% 以下では pH 値はゼロ以下にもなる（三宅島起源の空気塊に相当）。

5. 本研究により得られた成果

アジア地域における越境大気汚染問題の定量化に関しては、対象国・地域が中国、台湾、韓国、北朝鮮、モンゴル、日本、対象汚染物質が SO_2 , NO_x , NMVOC, NH_3 、空間分解能が緯度経度 0.5° である東アジア排出インベントリー(EAgrid)を2000年時点に更新した。既往の推計結果と比較した本推計結果の最も大きな特徴は、中国における SO_2 排出量および NMVOC 排出量が従来の推計値に比べて多いことである。特に NMVOC は顕著であり、その評価は今後大気過程のシミュレーションと測定結果の対照により確認することが必要である。

地域気象モデル RAMS と結合した物質輸送モデル HYPACT を用いて東アジアにおける硫黄化合物と窒素化合物の動態をシミュレートし、1995 年の年間のソース・リセプター関係を定量化することにより、日本列島への沈着量の発生源地域別構成を解析した。モデルを使って計算された日本領域における年間沈着量は、硫黄化合物 $0.84\ \text{TgS}$ ($1.03\ \text{gS/m}^2$)、窒素化合物 $0.62\ \text{TgN}$ ($0.79\ \text{gN/m}^2$) である。また、発源地域別寄与率は、硫黄については中国 49%、日本 21%、朝鮮半島 12%、火山 13%、その他 5%、窒素について日本 39%、中国 34%、朝鮮半島 18%、その他 9% となり、いずれの物質も中国からの寄与が非常に多いことを示した。本研究による中国の寄与率は、硫黄化合物、窒素化合物ともに既往研究結果に比べて最も高く、今後、この原因を明らかにする必要がある。更に、シミュレーションモデルの改良（変質・沈着過程の詳細モデル化、山岳部における複雑な降水量の空間変動や露・霧等の影響の取り込み、水平分解能の向上など）、酸性雨の将来動向の予測、東アジア地域外からの大気汚染物質の流入を考慮したモデル解析なども今後の課題としてあげられる。

三宅島起源の硫酸エアロゾルは冬季は北西季節風により大部分が太平洋に輸送されたが、その他の季節には日本列島に輸送された。噴火により降水の pH は年間で日本列島の日本海側で 0.1-0.3、太平洋側で 0.3-1.0 程度減少し、黄砂による降水の中和作用を相殺した。非火山性の硝酸や塩酸が二次的な環境酸性化を促した（噴火による間接的な環境酸性化効果）。数値計算結果によると、この間接効果による酸性沈着増加量は、噴火による硫酸沈着増加量（直接的環境酸性化効果）と同程度（0.07-2.1 倍）であった。

6. 引用文献

(1) Streets D. G., N. Y. Tsai, H. Akimoto and K. Oka (2000) Sulfur dioxide emission in Asia in

- the period 1985-1997, *Atmospheric Environment*, 34, 4413-4424.
- (2)市川陽一 (1998) 酸性物質の長距離輸送、大気環境学会誌、33、 2、A9-A18.
- (3)Ichikawa, Y., H. Hayami, and S. Fujita (1998) A long-range transport model for East Asia to estimate sulfur deposition in Japan, *J. Applied Meteorology*, 37, 1364-1374.
- (4)Carmichael G. R. and R. L. Arndt (1995) Chapter 5, ATMOS module, Long range transport and deposition of sulfur in Asia (Rains-Asia: An assessment model for air pollution in Asia, Foell, W. et al., Report on the World Bank Sponsored Project “Acid Rain and Emission Reductions in Asia”), V51-V58.
- (5)Huang, M., Z. Wang, D. He, H. Xu and L. Zhou (1995) Modeling studies on sulfur deposition and transport in east Asia, *Water, Air, & Soil Pollution*, 85, 1921-1926.
- (6)Carmichael G. R., H. Hayami, G. Calori, I. Uno, S. Y. Cho, M. Engardt, S. B. Kim, Y. Ichikawa, Y. Ikeda, H. Ueda and M. Amann (2001) Model intercomparison study of long range transport and sulfur deposition in east Asia (MICS-ASIA), *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 51-62.
- (7)池田有光、東野晴行 (1997) 東アジア地域を対象とした酸性降下物の沈着量測定 (Ⅱ) —発生源寄与を中心とした検討—、大気環境学会誌、32、 3、175-186.
- (8)Holloway et al. (2002), Transfer of reactive nitrogen in Asia: development and evaluation of a source-receptor model, *Atmos. Environ.*, 36, 4251-4264.
- (9)中国潔淨煤技術網,<http://www.cct.org.cn/>
- (10)中国環境年鑑編輯委員会編、中国環境年鑑、中国環境年鑑社
- (11)EEA(2003) EMEP/CORINAIR Emission Inventory Guidebook, <http://reports.eea.eu.int/EMEPCORINAIR4/>, およびその追加予定草稿 EEA(2004) Emission Inventory Guidebook, Small Combustion Installations,draft
- (12)Wang, Q. et al.(2000), Estimation of Mercury Emission from Coal Combustion in China, *Environ. Sci. Technol.*, 34, 2711-2713
- (13)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. (1992) A comprehensive meteorological modeling system – RAMS, *Meteorol. Atmos. Phys.*, 49, 69-91.
- (14)Walko, R. L., C. J. Tremback and M. J. Bell (1995) The hybrid particle and concentration transport model Version 1.0, User's guide.
- (15)片山学、大原利眞、村野健太郎 (2004) 東アジアにおける硫黄化合物のソース・リセプター解析 — 地域気象モデルと結合した物質輸送モデルによるシミュレーション —、大気環境学会誌、39、 4、200-217.
- (16)Brodzinsky R., B. K. Cantrell, R. M. Endlich and C. M. Bhumrankar (1984) A long-range air pollution transport model for Eastern North America - II. Nitrogen oxides, *Atmos. Environ.*, 18, 2361-2366.
- (17)Wesely, M. L. (1988) Improved parameterizations for surface resistance to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, EAP/600/3-88/025.

- (18)Zhang, L. et al. (2001)A size-segregated particle dry deposition scheme for an atmospheric aerosol module, *Atmospheric Environment*, 35, 549-560.
- (19)Klimont, Z., J. Cofala, W. Schoepp, M. Amann, D. G. Streets, Y. Ichikawa and S. Fujita (2001) Projections of SO₂, NO_x, NH₃ and VOC Emissions in East Asia up to 2030, *Water, Air, & Soil Pollution*, 130, 193-198.
- (20)National Institute of Public health and the Environment (2003), Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) 3.2, <http://arch.rivm.nl/env/int/coredata/edgar/>.
- (21)藤田慎一、外岡豊、太田一也 (1992) 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.
- (22)Pacyna, E. G. and J. M. Pacyna(2001), Global emission of mercury from anthropogenic sources in 1995
- (23)Yokoyama, T. et al.(2000), Mercury emissions from a coal-fired power plant in Japan, *The Science of the Total Environment* 259, 97-103
- (24)Takaoka, M. et al.(2002), Control of mercury emissions from a municipal solid waste incinerator in Japan, *J. Air & Waste Manade. Assoc.*, 52, 931-940
- (25)台湾行政院環境保護署 (中華民國 89 年)、空気品質保護 25 年紀実
- (26)The Secretariat of LTP Project(2004), The 7th Expert Meeting for the Long-range Transboundary Air Pollutants in Northeast Asia, October 28-30, 2004
- (27)Streets D.G., T.C. Bond, G.R. Carmichael, S.D. Fernandes, Q. Fu, D. He, Z. Klimont, S.M. Nelson, N.Y. Tsai, M.Q. Wang, J.-H. Woo, and K.F. Yarber(2003), An inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia in the year 2000, *J. Geophys. Res.*, 108(D22), 8856
- (28)溝畑朗 (2004) 私信.
- (29)Fujita S., A. Takahashi, J. H. Weng, L. F. Huang, H. K. Kim, C. K. Li, F. T. C. Huang and F. T. Jeng (2000) Precipitation chemistry in east Asia, *Atmospheric Environment*, 34, 525-537.
- (30)環境庁 (1999) 環境庁第 3 次酸性雨対策調査 大気系、
http://www.adorc.gr.jp/jpn/docjp_f.html.

7. 国際共同研究等の状況

中国環境科学院と中国域の排出インベントリー改良に向けての研究協力を行うこととした。

排出インベントリー相互比較研究が欧米の研究機関 (IIASA等) との間で、MICS-Asiaの一環として開始された。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

〈学術誌 (査読あり)〉

- ①An, J., Ueda, H., Matsuda, K., Hasome, H. and Iwata, H.: Simulated impacts of SO₂ emissions from

the Miyake Volcano on concentration and deposition of sulfur oxides in September and October of 2000. *Atmospheric Environment*, Vol.37, pp.3039-3046, 2003.

- ②G. R. Carmichael, M. Ferm, N. Thongboonchoo, Jung-Hun Woo, L.Y. Chan, K. Murano, Pham Hung Viet, C. Mossberg, R. Bala, J. Boonjawat, P Upatum, M. Mohan, S. P. Adhikary, A. B. Shrestha, J.J. Pienaar, E. B. Brunke, T. Chen, T. Jie, D. Guoan, L. C. Peng, S. Dhiharto, H. Harjanto, A. M. Jose, W. Kimani, A. Kirouane, Jean-Pierre Lacaux, S. Richard, O. Barturen, J. C. Cerda, A. Athayde, T. Tavares, J. S. Cotrina, E. Bilici,
Measurements of sulfur dioxide, ozone and ammonia concentrations in Asia, Africa, and South America using passive samplers, *Atmos. Environ.*, 37, 1293-1308(2003)
- ③鹿角孝男、川村 実、塩澤憲一、岩附正明、向井人史、村野健太郎
八方尾根における降水中の微量金属成分、*環境科学会誌*、17, 129-134(2004)
- ④片山学、大原利眞、村野健太郎
東アジアにおける硫黄酸化物のソース・リセプター解析 ―地域気象モデルと結合した物質輸送モデルによるシミュレーション、*大気環境学会誌*、39, 200-217(2004)
- ⑤H. Satsumabayashi, M. Kawamura, T. Katsuno, K. Futaki, K. Murano, G. R. Carmichael, M. Kajino, M. Horiguchi, H. Ueda
Effects of Miyake Volcanic Effluents on Airborne Particles and Precipitation in Central Japan
J. Geophys. Res., Vol. 109, D19, pp. 19202-19218 (2004)
- ⑥神成陽容、馬場剛、植田洋匡、外岡豊、松田和秀：日本における大気汚染物質排出グリッドデータベースの開発、*大気環境学会誌*、39, 257-271(2004)
- ⑦H. Ueda, M. Kajino and H. Satsumabayashi : Change of aerosol and precipitation in the mid troposphere over central Japan caused by Miyake volcano effluents, *Air Pollution XII* , WIT press. ISBN 1-85312-722-1, pp. 141-150 (2004)
- ⑧M. Kajino, H. Ueda, H. Satsumabayashi and J. An : Impacts of the eruption of Miyakejima Volcano on air quality over far east Asia, *Journal of Geophysical Research*, Vol. 109, D21, pp. 21204-21214(2004)

〈学術誌（査読なし）〉

- ①神成陽容、外岡 豊、村野健太郎、東アジア地域における大気汚染物質発生源インベントリ一の開発、*環境研究*、129、35-46(2003)
- ②村野健太郎、欧米での酸性雨問題の動向とアンモニア研究の進展、*資源環境対策*、39、No. 13、47-52(2003)
- ③村野健太郎、酸性雨研究における乾性沈着量評価の重要性、*環境技術*、32、883-889 (2003)

〈書籍〉

- ①村野健太郎、酸性雨、理科年表－環境編（丸善）23-35(2003)

〈報告書類等〉

- ①植田洋匡 2003: 気象災害の研究の最前線、*学術月報*、vol.56, No.7, pp.29-32.

- ②Ueda,H., Satsumabayashi,H. and Kajino,M.: Effects of Miyakejima volcanic effluents on airborne particles and precipitation in central Japan. 防災研究所年報、No45B、pp.360-378, 2003
- ③吉野 純・石川裕彦・植田洋匡 2003: Piecewise potential vorticity inversionを用いた中緯度のおける台風9918号の衰弱・再発達過程に関する診断的解析、京都大学防災研究所年報、46B、423-442.
- ④梶野瑞王、植田洋匡：三宅島起源硫酸エアロゾルによる環境変化、防災研究所年報、No45B、pp.379-395, 2003
- ⑤穂積 祐、植田洋匡、余 偉明：大規模山岳における低気圧性渦の剥離、京都大学防災研究所年報、No.46B, pp.347-359. 2003.
- ⑥畠山史郎、村野健太郎、「東アジアの広域大気汚染 国境を越える酸性雨」、環境儀、No. 12、pp. 14、2004.
- ⑦外岡豊、中国の住宅におけるエネルギー消費と居住環境問題特別研究委員会報告、日本建築学会中国の住宅におけるエネルギー消費と居住環境問題特別研究委員会(2005)

(2) 口頭発表

- ①Tanimoto, N., Ohara, T., Sugata, S., and Uno, I. (2003).
A three dimensional model analysis of aerosol dynamics in East Asia during spring 2001.
8th International Conference on Atmospheric Sciences and application to air quality, Tsukuba, Japan.
- ②Hozumi, Y., Ueda, H. and Sha, W. 2003: Numerical simulations for cyclone generated around large mountain. IGU Congress, pp.356-362.
- ③K.Murano、A.Mori、T.Kamaya、T.Ohara、N.Sugimoto、H.Mukai、Daily Concentration Variations of Air Pollutants Collected Onshore Area Faced to Asian Continent 、The ninth International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere(2003)
- ④M.Inoue、T.Ohara、K.Murano、Budget and Source- Receptor Relationships of Sulfur in East Asia using a Transport Model Coupled with RAMS 、The ninth International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere(2003)
- ⑤Y. Tonooka, A. Kannari, K. Murano, Emission Inventory Intercomparison -China Case-
6th Workshop on the Transport of Air Pollutants in Asia (Model Intercomparison Study -MICS-Asia) (2004)
- ⑥A. Kannari, Y. Tonooka, K. Murano, Emission Inventory Intercomparison -Japan Case-
6th Workshop on the Transport of Air Pollutants in Asia (Model Intercomparison Study -MICS-Asia) (2004)
- ⑦谷本直隆、大原利眞、梶野伊津志、菅田誠治、東アジアにおける炭素粒子動態のモデル解析、第14回大気化学討論会、豊川、2004.
- ⑧梶野瑞王、植田洋匡、薩摩林光、An Jnnling、三宅島噴火による極東アジア域への環境影響、第44回大気環境学会年会(2003)
- ⑨井上雅路、大原利眞、村野健太郎、R A M S / H Y P A C Tを用いた東アジア域における硫酸化物の年間解析、第44回大気環境学会年会(2003)

- ⑩外岡豊、神成陽容、村野健太郎、穆海林、東野晴行、東アジア地域を対象とした大気汚染物質排出量推計ーその9 エアロゾルの現況排出実態推計ー、第44回大気環境学会年会(2003)
- ⑪薩摩林光、川村實、鹿角孝男、二木克巳、村野健太郎、三宅島火山によるエアロゾルおよび降水への影響、第44回大気環境学会年会(2003)
- ⑫寧亜東、外岡 豊、穆海林、近藤康彦、周瑋生中国の家庭部門におけるエネルギー消費構造と環境負荷物質の排出動向に関する分析及び対策効果の予測、中国科学院山西煤炭化学研究所、2004年10月29日、中国、太原(招待講演)(2004)
- ⑬寧亜東、外岡 豊、深澤大樹、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国における大気汚染物質と温室効果ガス排出量の将来動向と対策効果予測モデル分析ーその6 中国都市部家庭部門エネルギー消費構造分析と大気汚染物質及び温室効果ガス排出量の推計、エネルギー資源学会、第20回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス講演論文集、pp577-580(2004)
- ⑭寧亜東、外岡 豊、深澤大樹、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国における大気汚染物質と温室効果ガス排出量の将来動向と対策効果予測モデル分析ーその7 中国農村部家庭部門エネルギー消費構造分析と大気汚染物質及び温室効果ガス排出量の推計、エネルギー資源学会、第20回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス講演論文集、pp581-584(2004)
- ⑮寧亜東、外岡 豊、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国における大気汚染物質と温室効果ガス排出量の将来動向と対策効果予測モデル分析ーその8 中国都市部家庭部門エネルギー消費構造の予測及び大気汚染物質、温室効果ガス排出量の推計、エネルギー資源学会、第21回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス講演論文集、pp391-394(2005)
- ⑯寧亜東、外岡 豊、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国における大気汚染物質と温室効果ガス排出量の将来動向と対策効果予測モデル分析ーその9 中国農村部家庭部門エネルギー消費構造分析と大気汚染物質及び温室効果ガス排出量の推計、エネルギー資源学会、第21回エネルギーシステム・経済・環境コンファレンス講演論文集、pp395-398(2005)
- ⑰寧亜東、外岡 豊、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国交通部門における輸送需要の推移及びエネルギー消費構造に関する研究、第13回日本エネルギー学会大会講演要旨集、pp336-337(2004)
- ⑱外岡 豊、寧亜東、東野晴行、田中恭子、深澤大樹、東アジアにおける温室効果ガス排出削減対策ー中国住宅バイオマス・エネルギー消費とエアロゾル排出抑制、第24回エネルギー・資源学会研究発表会講演論文集(2005)
- ⑲寧亜東、外岡豊、穆海林、近藤康彦、周瑋生、中国における大気汚染物質と温室効果ガス排出量の将来動向と対策効果予測モデル分析ーその10 中国交通部門輸送需要構造の推移とエネルギー消費構造に関する分析と推計析、第24回エネルギー・資源学会研究発表会講演論文集(2005)
- ⑳村野健太郎、酸性雨と酸性霧、長崎県衛生公害研究所酸性雨・酸性霧講演会(長崎市)(2004年7月)
- ㉑ Kentaro MURANO, Atsuko MORI, Takeshi KAMAYA, Toshimasa OHARA, Nobuo SUGIMOTO Hitoshi MUKAI, Daily Concentration Variations of Air Pollutants Collected Onshore Area Faced to Asian Continent, The 6th International Symposium on Plant Responses to Air Pollution and Global Changes, (Tsukuba) (2004年10月)

- 22 藍川昌秀、平木隆年、玉置元則、村野健太郎、太平洋側都市域(神戸市)と日本海側郊外地域(豊岡市)の大気中ガス・エアロゾル濃度の一4段ろ紙法による濃度調査結果から一、第45回大気環境学会年会(秋田市)(2004年10月)
- 23 谷本直隆、大原利真、鶴野伊津志、植松光夫、菅田誠治; 東アジアにおける炭素粒子年間シミュレーション、第45回大気環境学会年会(秋田市)(2004年10月)
- 24 松下洋平、谷本直隆、大原利真、菅田誠治; RAMS/CMAQ高分解モデルによる梅雨期の酸性沈着シミュレーション、第45回大気環境学会年会(秋田市)(2004年10月)
- 25 村野健太郎、欧米での酸性雨問題の動向とアンモニア研究の進展、第21回酸性雨問題研究会シンポジウム(横浜市)(2004年10月)
- 26 村野健太郎、酸性雨研究20年ーこれからの展望ー、第74回ひょうごエコプラザ・ミニフォーラム(神戸市)(2004年12月)
- 27 T. Kamaya, A. Mori, K. Arao, T. Ohara, N. Sugimoto, H. Mukai, K. Murano, Continual Investigation on gas and aerosol in the Nagasaki suburbs- Ion composition at the time of yellow sand coming flying-, Fourth ADEC Workshop Aeolian Dust Experiment on Climate Impact (長崎市)(2005年1月)
- 28 A. Kannari, Y. Tonooka, K. Murano. An Emission Inventory in Japan-Comparison With The Standard Emissions- 7th MICS-Asia Workshop, IIASA, Laxenburg, Austria(ウィーン)(2005年2月)
- 29 Y. Tonooka, A. Kannari, K. Murano, Emission Inventory Comparison: China Case in 2002, 7th MICS-Asia Workshop, IIASA, Laxenburg, Austria (ウィーン)(2005年2月)
- 30 大原利真、村野健太郎、東アジアにおける大気汚染物質のソース・リセプター解析、第17回酸性雨東京講演会(東京都)(2005年3月)
- 31 藍川昌秀、平木隆年、玉置元則、向井人史、村野健太郎、太平洋側都市域(神戸市)と日本海側郊外地域(豊岡市)の中ガス・エアロゾル濃度の比較ー4段ろ紙法による濃度調査結果から一、ミニシンポジウムー越境大気汚染研究ー(つくば市)(2005年3月)
- 32 T. Ohara, M. Inoue, M. Katayama, K. Murano, Annual Source-receptor Relationships of Sulfur and Nitrogen Oxides in East Asia Using a Regional Transport Modeling System Coupled With a Meteorological Model, 7th International Conference on Acid Deposition, Prague, Czech (プラハ)(2005年6月)
- 33 A. Kannari, Y. Tonooka, K. Murano, Development of Multiple Species Inventory Japan, 7th International Conference on Acid Deposition, Prague, Czech (プラハ)(2005年6月)

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

資源エネルギー庁が第162国会(常会)に提出した「平成16年度エネルギーに関する年次報告」に、この課題の前身課題の研究結果(硫酸化物沈着量とその発源地域別割合)が

取り上げられた。(p 67)

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)」に貢献している。