

C-1 東アジアの環境酸性化物質収支解明のための大気・土壌総合化モデルと国際共同観測に関する研究

(1) アジアスケールの環境酸性化物質の総合化モデルの開発に関する研究

④ 環境酸性化物質の輸送・変質モデルに関する研究

研究代表者 気象研究所環境・応用気象研究部 佐藤純次
運輸省気象庁気象研究所
環境・応用気象研究部 第3研究室 佐々木秀孝

平成8年度～平成9年度合計予算額 11,710千円
(平成10年度予算額 3,759千円)

〔要旨〕東アジア地域の大陸における発生源からの沈着に及ぼす影響を見積もるために気象予測モデルとラグランジュ粒子法を用いた移流・拡散モデルで構成される輸送モデルを作成した。広いモデル領域と高空間分解能を得るために、ネスティングモデルにより液相酸化過程等の機能を持たせた。気象衛星、アメダスデータ等を用いて気象予測モデルを、またチェルノブイリからの放射性汚染の観測値を用いて移流・拡散モデルの検証をそれぞれ実施した。

東アジアにおけるエミッションインベントリが整理されている1985年について硫酸化物の年間輸送シミュレーションを実施した。大陸の発生源による沈着に及ぼす影響評価を行うために、各発生源からの寄与率を解析した。その結果、わが国の西に位置するリセプターでは乾性沈着に対する大陸の影響は大きい、東に位置するリセプターほどこの影響は小さくなる。乾性沈着では国内の発生源による寄与が大きかった。一方、湿性沈着では国内の発生源の他に地域によっては中国の発生源による影響も見られた。

〔キーワード〕東アジア、硫酸化物、輸送、沈着、数値モデル

1. はじめに

東アジア地域では人為的起源による硫酸化物の発生が増加しており、その量は1987年の時点において年間に2,900万トンを超え、この内の約70%は中国における発生源に起因している¹⁾。このように大陸において大量の硫酸化物が大気中に排出されていることから、東アジア地域では酸性沈着による影響が懸念されており、これらの実態を測定によって把握し、動態を監視するために「東アジア酸性沈着モニタリングネットワーク (EANET)」が1998年から試行運用され、2000年から正式稼働する。東アジアにおける越境汚染の実態については気象研究所において開発された長距離輸送モデル (MRI-LTM) によってわが国の沈着量に与える大陸の発生源の寄与率が評価されている²⁾。しかし、大気汚染物質の長距離輸送では湿性沈着過程における雲の関与が重要であり、MRI-LTM では雲を表現する機能が組み込まれていなかったために、湿性沈着過程には雲に関する考慮がなされていなかった。本研究では MRI-LTM に雲の効果を取り入れた改

良を行い、数値シミュレーションにより東アジアにおける越境汚染の実態を把握すると共に、大陸の発生源がわが国の湿性沈着に与えるインパクトを解明することを目的としている。東アジアを領域とするモデルに雲を表現する機能を取り入れるためには、広い領域を保持し、且つ雲の表現が可能な空間分解能の高いモデルが必要である。しかし、広い領域を狭い格子間隔で覆うには計算機資源の問題があり、これを満足するためにモデルのネスティング手法を採用した。以下に改良したMRI-LTMの概略について述べる。

2. 長距離輸送モデルの概略

MRI-LTMは気象予測モデルと輸送モデルがオフライン結合したもので構成されており、気象予測モデルは輸送モデルに必要な気象変数の予測を行い、輸送モデルは移流・拡散、乾性沈着、降水による湿性沈着、硫酸化物の化学的変質過程を含んでいる。

2.1. 気象予測モデル

MRI-LTMに採用している気象予測モデル（FLM）の空間分解能は約127 kmであり、対流性の雲を表現することができない。そこで対流性の雲の表現がある程度可能な空間分解能の高いスペクトルモデル（JSM）をFLMの中にネスティングした。図1はFLMのモデル領域と地形及びFLMの中にネスティングしたJSMのモデル領域とモデルで表現された地形を示したものである。外側の気象モデルであるFLMの詳細については既に述べられているので^{2), 3)}、ここでは概略のみを記述する。FLMは北緯60度におけるポーラステレオグラフィック投影図上で東アジア地域を73×55の格子点で覆い、その格子間隔は北緯60度で約127 km、北緯30度で約100 kmである。このように投影図上では緯度によって格子間隔が異なるため、方程式系には地図拡大因数（マップファクター）が取り入れられており、格子間隔の歪みを補正している。モデル大気の厚さは地上から約100 hPaの高さまで含んでおり、この間を16層に分割している。鉛直座標系は地形に沿った σ -座標を採用している。接地境界層における物理過程は相似則を用いており、地表面からの物理量の鉛直フラックスを表現している。大気境界層では乱流クロージュア・モデ

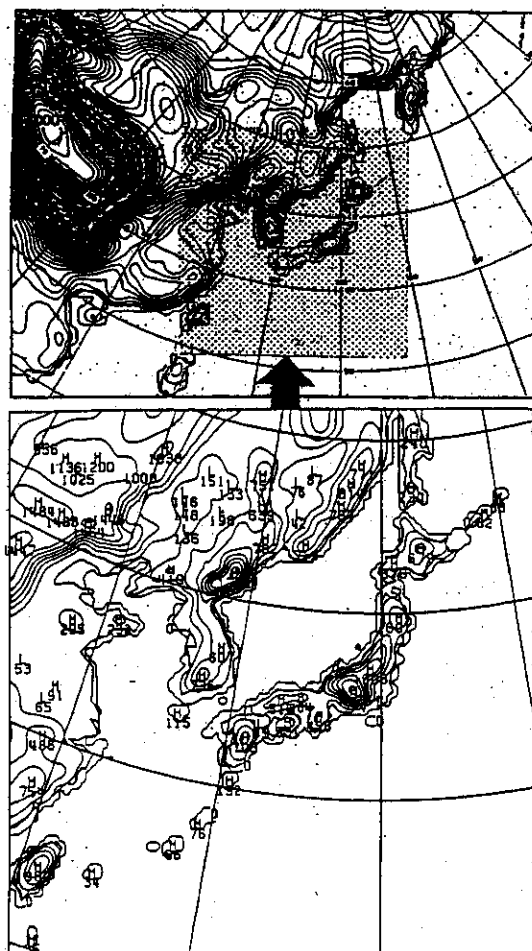


図1 FLMのモデル領域と地形及びその中にネスティングしたJSMのモデル領域と地形

ル⁴⁾が用いられ、物理量の乱流拡散を表現している。ここで得られる鉛直方向の乱流拡散係数は硫酸化物の鉛直拡散の計算にも利用する。また、降水系には水蒸気の大規模凝結と対流調節という2つのパラメタリゼーションが行われている。前者は層雲を表現しており、モデルは水蒸気の過飽和を許さないで過飽和分の水蒸気はその気層から降水として落とす。後者は気温の乾燥・湿潤減率を保持するように対流調節を行い、対流性の雲による降水を表現している。FLMの初期値及び境界値には気象庁で作成されている全球客観解析値(GANL)を用いた。

FLMの内側にネスティングしたJSMはモデル領域、空間分解能、及び幾つかの物理過程を除いては基本的にFLMと同じであるが、モデルはスペクトルで表現されている。スペクトル表現については他に述べられており⁵⁾、ここでは省略する。JSMがFLMと最も異なる点はJSMには雲を含む放射過程が入れられていること、降水の蒸発を考慮していることである。JSMは水平方向に格子間隔を40kmとした97×97の変換格子で、モデル大気は鉛直方向に σ -座標によって19層に分割されている。雲は各気層毎に相対湿度によって定義した。ネスティングした気象モデルの検証は、以下のようにして実施した。すなわち、モデルで表現された雲についてのパフォーマンスを気象衛星の雲画像データと比較し、海面気圧の分布パターンについては天気図と比較、降水についてはアメダス降水データと比較し、統計的なスコア計算することによって実施した。アメダスの降水データは地域特性があるために日本を5つの領域に分け、それぞれの領域で面平均し、モデルにより予測された降水も同じ領域で平均したものを比較に用いた。図2は関西地域と九州地域におけるアメダスとモデルによる1994年3月6日から16日までの10日間における日降水量の時系列の例を示したものである。降水の位相は良く一致しているが、降水量はモデルが少し過小評価している。この研究においては、モデルで予測した降水量の観測値との差異はあまり問題にしていない。輸送モデルにおける湿性沈着過程では降水の有無が重要であり、降水の有無の時系列における位相が適切に表現されていれば良い。すなわち、輸送モデルの降水による沈着過程は降水強度に依存しておらず、降水の有無だけで決定される設定となっている。この理由の詳細については後述する湿性沈着において説明する。

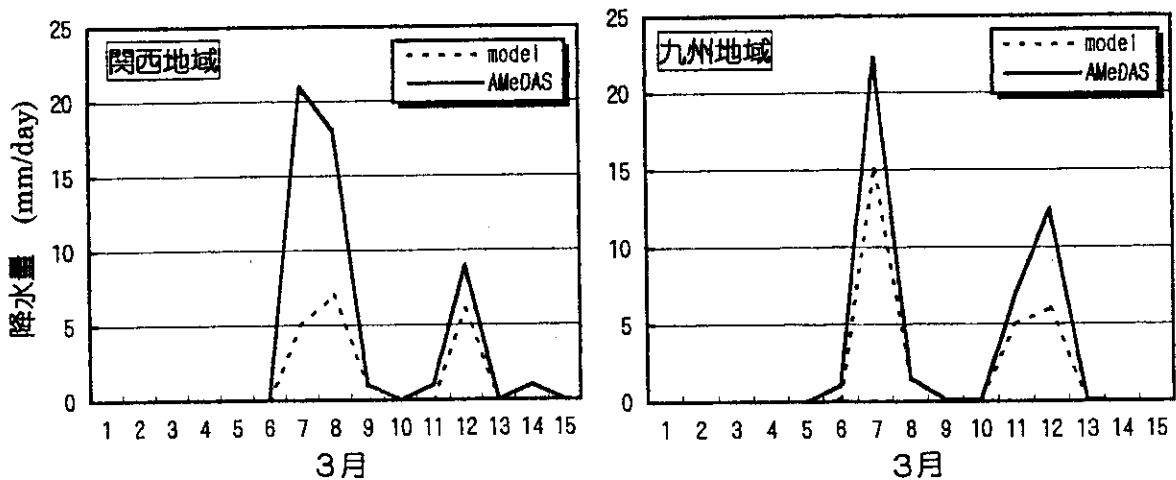


図2 モデルによって予測された降水とアメダスによる日降水量の時系列の比較例

2.2. 輸送モデル

硫黄酸化物の輸送モデルは大気中に放出された硫黄の質量保存則を基本としている。大気中に放出された硫黄酸化物はラグランジュ粒子に置き換えられ、粒子の大気中における振る舞いは移流・拡散、乾性/湿性沈着、変質過程によって表現され、以下にそれぞれの過程について順次概説する。

1) 移流・拡散

大気中における粒子の3次元的な動きは水平方向には移流だけで乱流拡散は考慮しない。鉛直方向にのみ移流と乱流拡散を考慮すれば個別の粒子の変位は次の式で表現される：

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

ここに、 X , Y , および σ はそれぞれの座標上における粒子の位置であり、 R は鉛直乱流拡散に関する項でランダムウォーク法によって決定される。ランダム変数 R は鉛直乱流拡散係数と関連して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過程の計算における時間ステップであり、粒子の鉛直乱流拡散係数 K_z は運動量の鉛直拡散係数 K_m と等しいと仮定し、気象モデルに含まれている乱流クロージャーモデルから計算される K_m を用いた。

2) 乾性沈着

乾性沈着過程では沈着速度の概念を用い、次の二つの条件を満足した粒子だけが乾性沈着するものとした。地表面に近い粒子が沈着するので、最初の条件は予め σ -座標上で定義してある臨界高度 $h_c=0.99$ より下層にある粒子を乾性沈着の対象とする。2番目の条件は確率過程であり、各時間ステップにおいて個々の粒子に対して乱数によりランダムに与えられる数値が次のように定義されている P_d の数値より小さい数値を持つ粒子だけが沈着する。

$$P_d = \frac{V_d \delta t}{H_d} \quad (3)$$

ここに、 V_d は乾性沈着速度である。乾性沈着速度は地表面条件、及び化学物質によって異なる値を持つことが知られている⁶⁾。この研究では乾性沈着速度について単純な仮定をした。すなわち、 SO_2 と SO_4^{2-} のそれぞれの乾性沈着速度は水面と陸面の二つの地表面条件だけによって変化するものとし、それぞれの地表

表1 モデルで用いた乾性沈着速度

物質	V_d (cm/sec)	
	陸面	水面
SO_2	0.51	0.32
SO_4^{2-}	0.21	0.02

面に応じて表 1 に示したような乾性沈着速度を採用した。

3) 湿性沈着

一方、湿性沈着は降水領域において最大凝結高度より下層の粒子が降水によって次のような確率で沈着する。

$$P_w = D_w \delta t \cdot RR \quad (4)$$

ここに、 D_w は降水洗浄係数、 δt は湿性沈着を評価する時間ステップ、 RR は降水インデックスであり、次のように定義する。モデルの格子点上にある粒子に対しては、モデルによって予測した降水量が予め設定しておいた降水量しきい値 (0.1 mm/h) を越えた場合は $RR=1$ とし、しきい値を越えない場合は $RR=0$ とする。モデルの格子点の間にある粒子に対しては、 RR は粒子の周辺にある格子点上の RR から内挿して決定する。すなわち、 0.1 mm/h 以上の降水があれば、粒子は降水強度に依存せず D_w の割合で沈着する。このことは前述したように本研究の気象モデルで予測した降水量が実測値と比較して過小評価していても降水の時系列の位相が実測値と一致していれば良いということになる。しかし本研究の降水による沈着過程は改良の余地がある。すなわち、気象モデルの降水過程の改良によって降水量の予測精度向上を図り、降水強度に依存した降水沈着過程にすることが必要である。

4) 変質過程

ラグランジュ粒子モデルでは詳細な化学反応を取り入れることに困難があるため、本モデルでは時間に依存した変換係数による SO_2 から SO_4^{2-} への変質過程を採用した。この方法は広く用いられており、 SO_2 と NO_x 及び炭化水素が混在した都市域のプルーム中における SO_2 の光化学反応による気相酸化及び O_3 やオレフィンが介入した熱的酸化の率は $0.01 \sim 0.1/\text{hour}$ であると推測されている⁷⁾。また約 $0.007/\text{hour}$ の率も採用されている⁸⁾。航空機観測による濃度データからは $0.1 \sim 0.12/\text{hour}$ という率が求められている⁹⁾。 SO_2 の酸化率の季節変化もまとめられており¹⁰⁾、冬季では $0.0015/\text{hour}$ 、夏季では $0.013/\text{hour}$ である。

この研究では液相酸化を考慮するために気象モデルで雲を表現するようになっている。そこで気相と液相におけるの二つの変質過程を考慮した。 SO_2 が雲に遭遇した時に液相酸化によって SO_4^{2-} へ変質する。この研究では SO_2 から SO_4^{2-} への変換率は、気相では $0.01/\text{hour}$ 、液相では $0.07/\text{hour}$ を用いた¹¹⁾。

3. 移流・拡散モデルのネスティングの検証

輸送過程における雲の役割をモデルに取り入れるために、気象モデルのネスティングによって高い空間分解能を得て雲を表現した。気象モデルのネスティングの検証は気象衛星、天気図及びアメダス等による観測データを用いて行い、良好な結果を得た。気象モデルのネスティングに伴って移

流・拡散モデルもネスティングを行う必要がある。粒子の移流・拡散に対するネスティング効果の検証を行った。ここでは主として外側のモデルと内側のモデルの間で粒子の移流・拡散が円滑に行われているかどうかを検証した。モデル検証のテストシミュレーションはチェルノブイリ原子力発電所事故によって大気中に放出された放射性物質である沃素-131の移流・拡散に対して実施した。検証データは国際原子力機関 (IAEA)、世界気象機関 (WMO) 等によって実施された大気輸送モデル評価研究 (ATMES) による沃素-131の濃度の測定データを用いた。

FLMの初期値、境界値には全球客観解析値を利用し、JSMをFLMにネスティングした。時間積分を行う際に外側のモデルと滑らかにつながるように、スペクトル境界結合法^{1,2)}を用

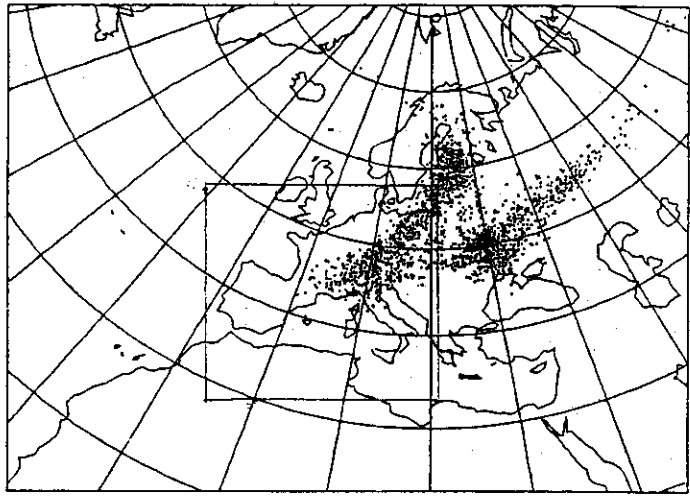


図3 ネスティングによる沃素-131の大気中濃度分布 (中枠はJSMの領域)

いて連続積分を行った。発生源をJSMの領域の外側に置き、JSMの境界を通過して粒子が円滑に流出、流入しているかをテストした。沃素-131濃度の測定時間が観測点毎に異なるため、時間間隔が24時間以内のデータだけを利用し、12時間毎の24時間移動平均を求めた。シミュレーション計算結果も観測点を中心とする濃度評価域内の粒子数を数え、濃度に変換した。図3は1986年5月1日00UTCにおける沃素-131に見立てた粒子の大気中濃度分布である。JSMの境界付近でも粒子が円滑に輸送されているのが分かる。一方、JSMをFLMにネスティングした場合とネスティングしないFLMだけの2つのケースについて、濃度評価域の面積を変えて濃

表2 モデル毎及び濃度評価域の面積毎のスコア

Case	RMSE	的中数	見逃数	空振数
FLM-254	0.994	348	129	4
FLM-80	0.874	277	203	1
JSM-254	0.905	397	76	8
JSM-80	0.818	314	165	2

の予測精度のテストを行った。濃度評価地域の面積は2つのケースともそれぞれ254 km×254 km、及び80 km×80 kmである。表2は2つのケースについてモデルによる予測値と測定値のRSME、濃度の有無の的中数を表したものである。的中数はモデルと観測による濃度の有無が一致した場合の回数であり、見逃数は

濃度が観測されているが、モデルでは予測しなかった場合の回数であり、空振数は濃度が観測されていないのにモデルが濃度を予測した回数を意味している。RSME及び的中数共にJSMでネスティングした方がFLMだけよりスコアが良い。濃度の評価域が254 kmと80 kmの場合を比較すると、RSMEは80 kmの方が良くなっているが、的中率は254 kmの方が良い。これは評価域が狭い方が地域性を良く表現し、濃度計算がより正確に行われるが、その分見逃しも多くなる。ネ

表3 設定した発生源の番号、都市名とその緯度及び経度

発生源番号	コード	都市名	緯度	経度
1	C1-1	BEIJING	39.9	116.4
2	C2-1	TIANJIN	39.15	117.22
3	C3-1	SHIJIAZHUANG	38.02	114.5
4	C4-1	TAIYUAN	37.9	112.55
5	C4-2	DATONG	40.1	113.28
6	C5-1	BAOTOU	40.5	109.5
7	C5-2	HUHEHOTO	40.75	111.7
8	C6-1	DALIAN	38.85	121.55
9	C6-2	ANSHAN	41.1	122.95
10	C6-3	SHANYANG	41.75	123.4
11	C6-4	FUSHONG	41.8	123.85
12	C7-1	CHANGCHUN	43.9	122.25
13	C7-2	JIRIN	43.85	126.5
14	C8-1	HARBIN	45.75	126.55
15	C8-2	QIQIHAR	47.3	123.95
16	C8-3	DAQING	46.6	124.95
17	C8-4	JIANGSI	46.75	130.35
18	C9-1	SHANGHAI	31.2	121.45
19	C10-1	NANKING	32.05	118.75
20	C10-2	MAANSHAN	31.7	118.45
21	C10-3	WUXI	31.6	120.25
22	C11-1	HANGZHOU	30.22	120.04
23	C12-1	HEFUI	31.85	117.25
24	C12-2	HUAINAN	32.61	116.95
25	C13-1	FUZHOU	26.06	119.3
26	C13-2	AMOY	24.41	118.12
27	C13-3	SANMING	26.2	117.6
28	C14-1	NANCHANG	28.68	115.9
29	C14-2	GANZHOU	25.83	114.88
30	C15-1	JINAN	36.62	117
31	C15-2	QIJINGDAU	36.08	120.25
32	C16-1	ZHENGZHOU	34.75	113.7
33	C16-2	LUOYANG	34.7	112.4
34	C17-1	WUFAN	30.56	114.25
35	C18-1	CHANGSHA	28.2	113
36	C19-1	GUANGZHOU	23.2	113.25
37	C19-2	SWATOWU	23.7	117.38
38	C20-1	NANNING	22.8	108.28
39	C20-2	LIUZHOU	24.3	109.12
40	C21-1	CHENGDU	30.7	104.05
41	C21-2	CHONGQING	29.55	106.5
42	C21-3	LUZHOU	28.85	105.3
43	C22-1	QIJIANG	26.6	106.7
44	C23-1	KUNMING	25.05	102.7
45	C23-2	GEJU	23.35	103.15
46	C24-1	LHASA	29.85	91.15
47	C25-1	XIAN	34.26	108.9
48	C25-2	YAMAN	36.59	109.4
49	C26-1	YUMEN	39.85	97.45
50	C26-2	LANZHOU	36	103.85
51	C27-1	XINING	36.5	101.65
52	C28-1	YINCHUAN	38.48	106.27
53	C29-1	URUMUQI	43.85	87.55
54	SK-1	SEOUL	37.55	127
55	SK-2	PUSAN	35.1	129
56	SK-3	TAEJU	35.85	128.55
57	SK-4	TAEJON	36.33	127.4
58	T-1	TAIPEI	25.05	121.48
59	T-2	GAOXING	22.6	120.25
60	H-1	HONG KONG	22.35	114.2
61	I-1	NONGPO	26.2	91.8
62	I-2	KINSHANGANJJI	26.3	90.5
63	TL	UTTARADIT	17	102
64	NK-1	PYONGYANG	39	125.5
65	NK-2	HANHUNG	40	127.5
66	R-1	VLADIVOSTOK	43	132
67	R-2	CHAVAROVSK	48	135
68	R-3	COMSOMOLSK	50.5	136.8
69	R-4	JUZNO SACHALINSK	47.13	142.6
70	R-5	PETROPAVLOVSK	50.29	158.57
71	J-1	KITAKYUSHU	33.86	130.8
72	J-2	NOBEOKA	32.58	131.6
73	J-3	TOKUYAMA	34.07	131.8
74	J-4	KURASHIKI	34.57	133.8
75	J-5	OSAKA	34.67	135.52
76	J-6	MAGOYA	35.17	137
77	J-7	SHIMIZU	35.03	138.52
78	J-8	TOKYO	35.67	139.72
79	J-9	NIIGATA	37.9	139.04
80	J-10	TOMAKOMA I	42.67	141.65

スティングすることにより輸送モデルの濃度予測精度が向上することが確かめられた。

4. 東アジアにおける輸送シミュレーション

ネスティングした輸送モデルを用いて東アジア地域における硫黄酸化物の輸送シミュレーションを実施した。このシミュレーションの目的は東アジアにおける酸性物質の越境輸送と酸性沈着の状況評価及び大陸にある発生源によるわが国のインパクトを評価することである。そのためにために二つのケースを設定したシミュレーションを行った。すなわち、わが国における発生源を入れた場合と除いた場合である。

4.1. 発生源データ

アジアにおける硫黄酸化物の発生源データはアフガニスタン及びパキスタン以東の25カ国におけるエネルギー消費から1975年、1980年、1985年及び1987年について国毎に計算されている¹⁾。さらにインドと中国に関しては州、省毎に発生量が算出されている。この1985年の発生源データを基に、東アジア地域において日本と極東ロシアを除いた66地点の発生源と発生量を設定した²⁾。発生源の位置は各国の代表的な都市、工業地域とし、発生量は都市の人口、工業地域の活性度等を考慮した重みを付けて配分した。本研究では、大陸の発生源から越境輸送によってわが国に与えるインパクトを解明し、東アジア地域における沈着を把握するために、極東ロシア及び日本における排出源を加えて80地点の発生源を設定した。発生源番号は表3に示すとおり、1～53が中国における発生源であり、54～57が韓国、58～59が台湾、60が香港、61～62はインド63はタイ、64～65は北朝鮮、66～70は極東ロシア、71から80は日本の発生源である。また、発生源の都市名、その緯度及び経度も表3に示してある。

4.2. シミュレーション結果

硫黄酸化物の輸送シミュレーションは1985年について1年間実施した。図4は長距離輸送モデルによる1年間積算した SO_4^{2-} の乾性沈着量(a)と降水による湿性沈着量(b)の水平分

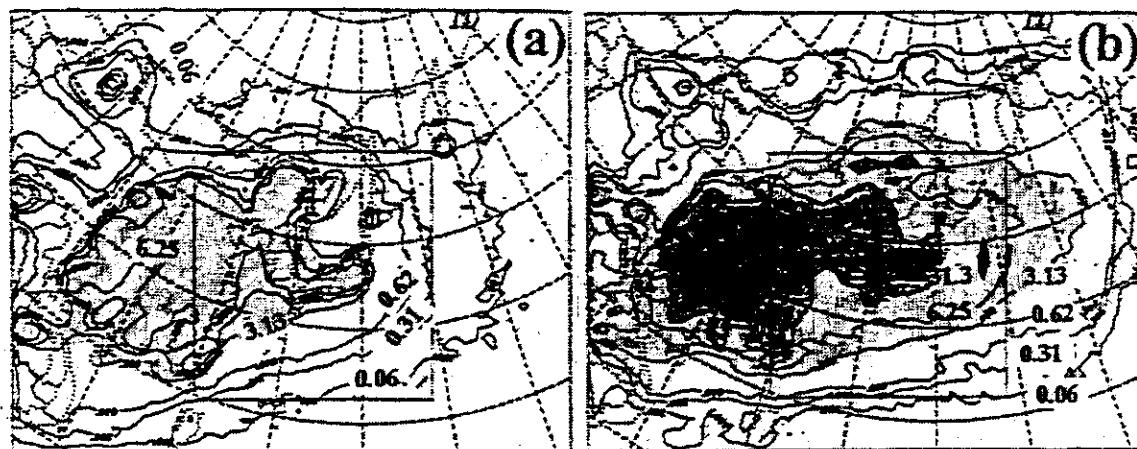


図4 1年間(1985年)積算した乾性沈着量分布(a)と降水による湿性沈着量分布(b)、等値線の単位は $\text{meq/m}^2/\text{year}$

布を示したものであり、単位は硫黄換算した $\text{meq/m}^2/\text{year}$ である。図からも分かるように乾性沈着量は湿性沈着量と比較して少ない。図の等値線から大まかに見て、シミュレーション結果はわが国における湿性沈着量が約 $31 \text{ meq/m}^2/\text{year}$ 以上であることを示している。

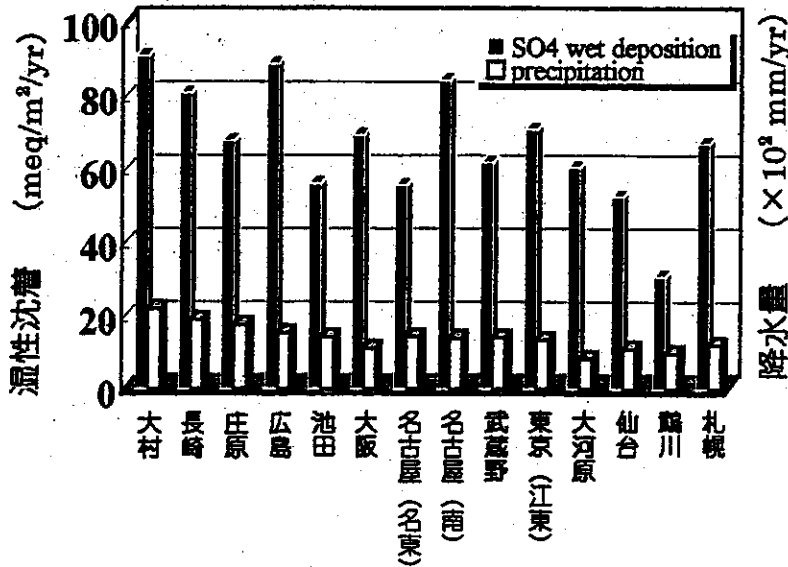


図5 環境庁によって実施された第1次酸性雨調査期間中である1985年における14測定点の nss-SO_4^{2-} の年間湿性沈着量と降水量

1985年は環境庁によって第1次酸性雨調査が行われていた期間であり、わが国でも7地域において市街地域と郊外を組み合わせた14地点で湿性沈着の測定がバルク法(濾過式水溶性)で実施されている。それぞれの測定点は、①大村、②長崎、③庄原、④広島、⑤池田、⑥大阪、⑦名古屋(名東区)、⑧名古屋(南区)、⑨東京(武蔵野市)、⑩東京(江東区)、⑪大河原、⑫仙台、⑬鶴川、⑭札幌である。各測定点における硫黄換算した nss-SO_4^{2-} の年間の湿性沈着量の測定値は年間降水量と共に図5に示した。14地点における nss-SO_4^{2-} の年間湿性沈

着量の平均値は約 $60 \text{ meq/m}^2/\text{year}$ である。14地点のバルクの他に長崎、庄原、池田、名古屋南区、東京江東区、大河原、鶴川の7地点で自動式による湿性沈着量が測定されているが、バルク法は自動式と比較して湿性沈着量を過大評価するといわれている。自動式による1985年の年間を通じて連続したデータは庄原、池田、名古屋南区の3地点しかない。

わが国は世界でも有数の火山国であり、わが国には67の活火山が点在しており¹³⁾、その中で気象庁では常時観測火山として17の火山を指定している。わが国の火山から排出される硫黄酸化物の量は人為的発生量に匹敵するとも言われている¹⁴⁾。図5の測定値には当然のことながら火山起源による硫黄酸化物の影響が含まれていると

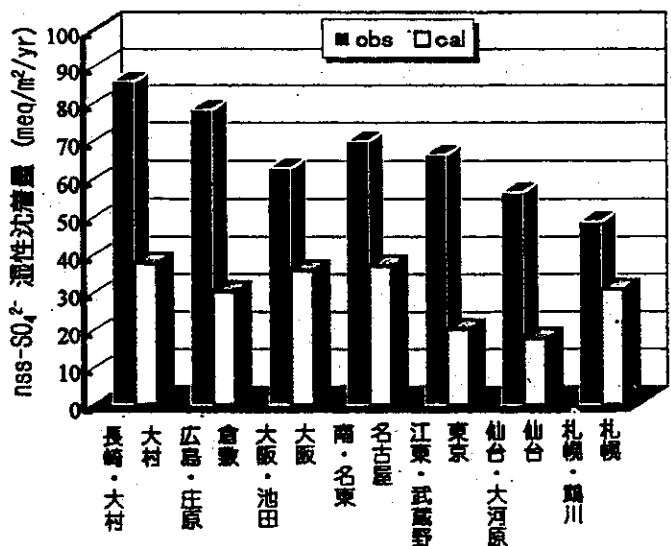


図6 実測の2地点平均の nss-SO_4^{2-} の湿性沈着量と $80 \text{ km} \times 80 \text{ km}$ で平均した計算結果の比較

考えられる。一方、シミュレーションには火山の起源の硫酸化物は含まれていない。図 6 では対になっている都市部と郊外の測定値を平均した 7 地点における測定値とリセプターを中心とした 80 km×80 km の面積で評価したシミュレーション結果による湿性沈着量を示した。図 6 からわかるように、モデル結果による湿性沈着量は実測値の約半分に留まっている。しかし、測定値はバルク法で測定されたものであり、前述したように、この方法は湿性沈着量を過大評価する傾向があるといわれている。また、火山起源による硫酸化物の発生源を考慮すれば、輸送シミュレーション結果による nss-SO_4^{2-} の年間湿性沈着量は妥当な値を示していると考えられる。すなわち、火山起源に由来する硫酸化物の発生量を加えることにより、長距離輸送シミュレーション結果はもっと測定値に近くなると思われる。

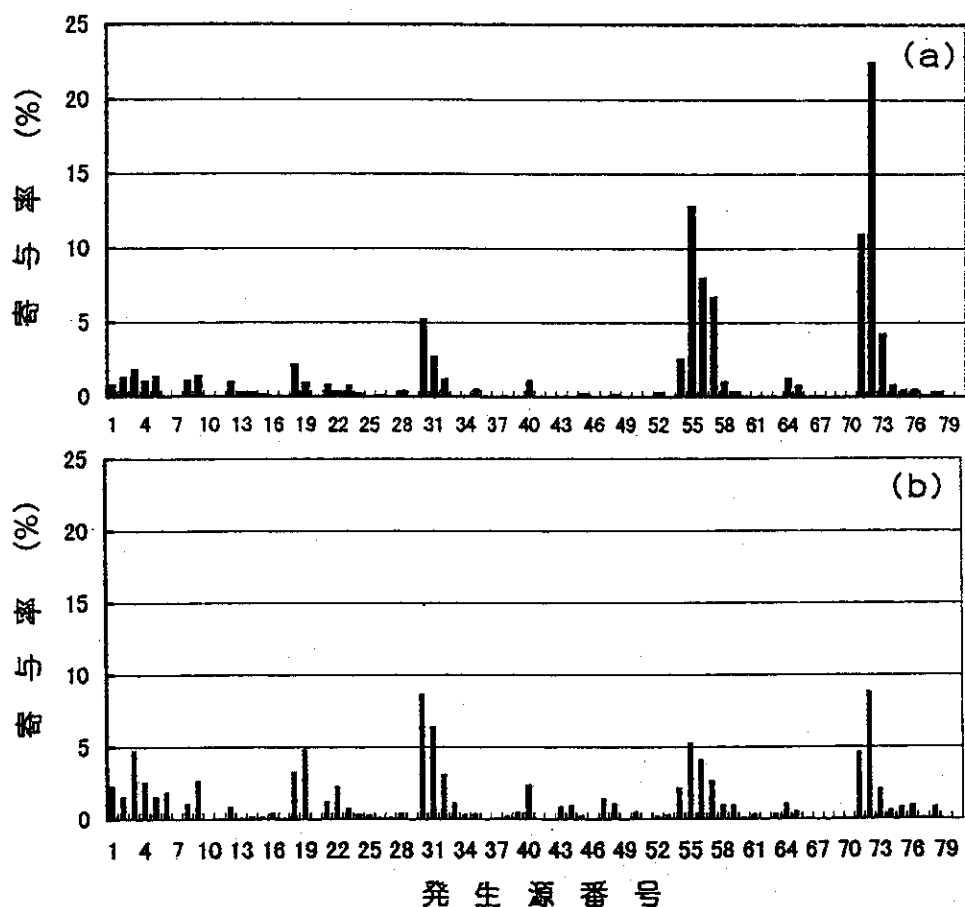


図 7 モデル計算による大村における各発生源からの沈着量に対する寄与率。
(a) は乾性沈着、(b) は湿性沈着である。

今、EANET が稼働しようとしているが、越境輸送による発生源からの寄与率の解明は輸送モデルに依存するところが大きい。すなわち、発生源とリセプターの関係を知るにはラグランジュ粒子モデルが適しており、ラグランジュ粒子法による輸送モデルではある測定点で測定された、またはモデルで計算された沈着量がどこの発生源に由来しているかを知ることができる。ここでは予め設定したわが国のリセプターにおける各発生源からの寄与率の解析を行った。先ず最も西側に位置

する観測点であり、またモデルでもリセプターに設定してある大村における沈着量に対する発生源寄与率を調べた。図7はモデルによって計算した大村において沈着した nss-SO_4^{2-} の発生源毎の寄与率を示したものである。発生源番号は表3に示した通りであり、乾性沈着に対する寄与率は国内の延岡、北九州の発生源と韓国からの寄与が大きい。乾性沈着では延岡の影響が約23%を占めているが、湿性沈着に対しては延岡の影響は約9%程度である。これは中国の山東省済南と同程度であり、湿性沈着による寄与率は乾性沈着の場合よりも遠方の発生源が影響する。従って、図7にも見られるとおり、北九州と韓国とのプサン、テグ、テジョンからの影響は大きいが、中国の発生源も寄与していることが分かる。

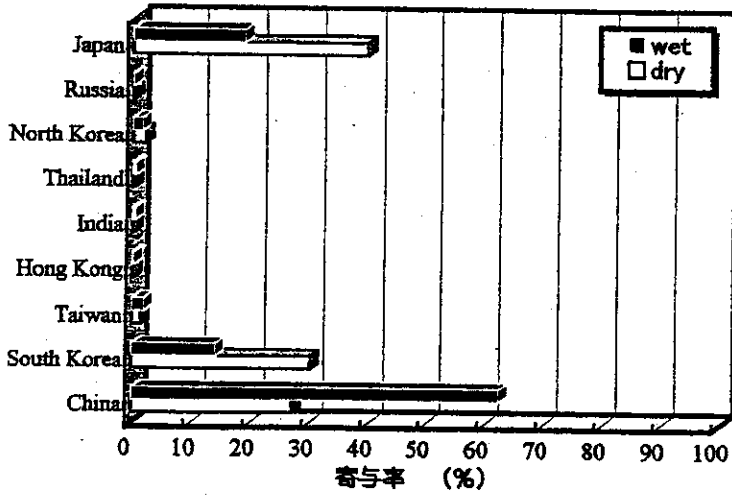


図8 大村における沈着に対する各国毎の発生源の寄与率

国内の延岡、北九州の発生源と韓国からの寄与が大きい。乾性沈着では延岡の影響が約23%を占めているが、湿性沈着に対しては延岡の影響は約9%程度である。これは中国の山東省済南と同程度であり、湿性沈着による寄与率は乾性沈着の場合よりも遠方の発生源が影響する。従って、図7にも見られるとおり、北九州と韓国とのプサン、テグ、テジョンからの影響は大きいが、中国の発生源も寄与していることが分かる。

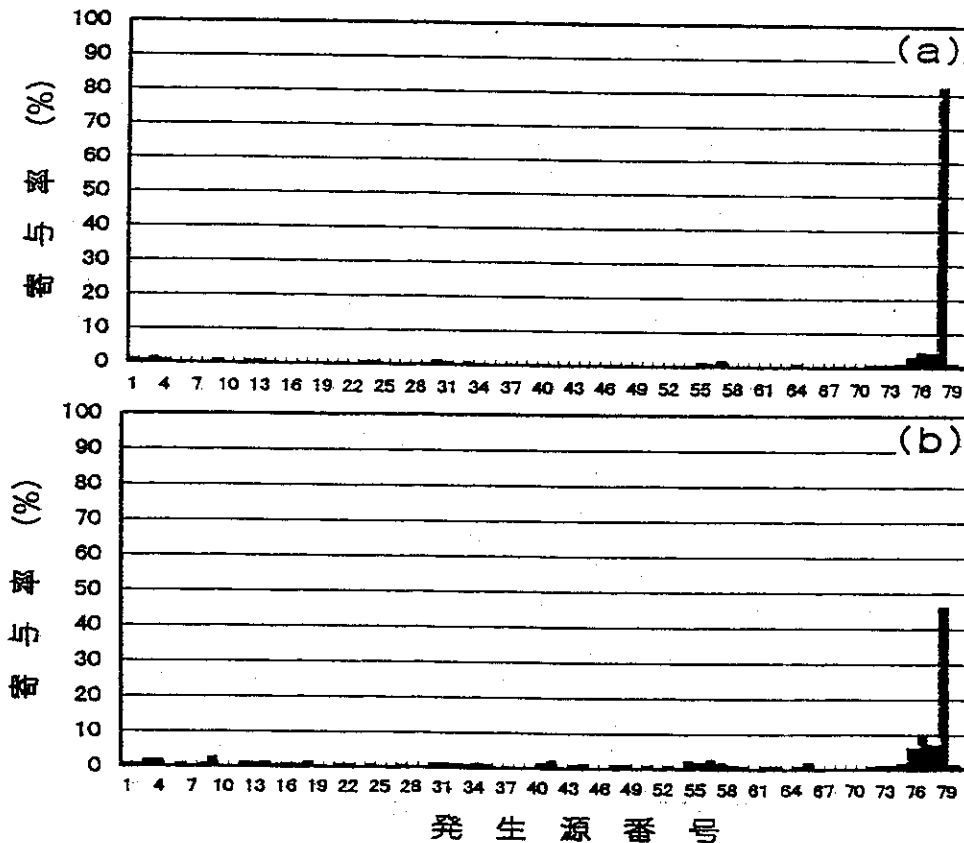


図9 モデル計算による東京における各発生源からの沈着量に対する寄与率。(a)は乾性沈着、(b)は湿性沈着である。

これらの寄与率を国毎に表示したものを図8に示した。国別に見ると、大村における乾性沈着量に最も寄与しているのは国内の発生源であり、次に韓国、中国の順である。乾性沈着は比較的近くの発生源からの影響を受け易い。すなわち、乾性沈着は地表面近傍に達した汚染物質が地表面に沈着する過程であるので、移流、拡散が支配的であり、発生源近傍において比較的高い沈着量が見られる。一方、湿性沈着は大気中に分布している

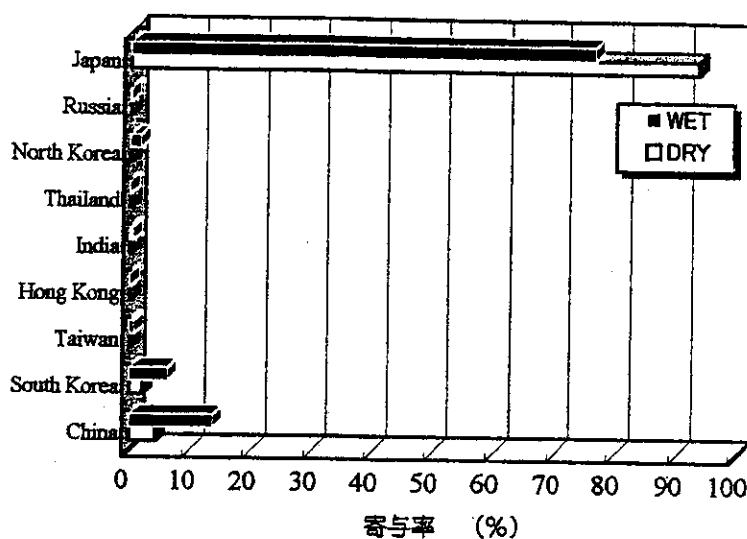


図10 東京における沈着に対する各国毎の発生源の寄与率

る汚染物質が降水によって捕捉され、降水粒子と共に地上に達する。湿性沈着では中国の発生源からの寄与が非常に大きく、国内、韓国の順であるが、国内の発生源の寄与と韓国の発生源の寄与との差は小さい。

本邦中央部で太平洋側に位置するリセプターである東京における沈着に対する各発生源の寄与率を図9に示す。乾性沈着と湿性沈着共に国外の発生源による影響は非常に小さい。乾性沈着の場合は80%以上、湿性沈着の場合は約47%が東京の発生源による寄与である。図10では図9の寄与率を国別に分類したものを示した。

東京と同様に本邦中央部であるが、日本海側にある新潟における発生源の寄与率を図11に示す。新潟でも乾性沈着に関しては新潟の発生源による寄与が最も大きく、ほぼ40%を占めている。次に東京の発生源による影響が約27%である。この2つの地域の発生源が突出した影響を与えていることが分かる。他には名古屋、大阪と並んで韓国の発生源の影響が5%未満である。一方湿性沈着では新潟における発生源よりも東京の発生源の影響が大きく、約18%を占めている。

図12には図11の寄与率を国別に分類してまとめたものを示した。乾性沈着では国内寄与率が圧倒的に大きく、約75%を占めている。国外では中国の発生源が約9%、韓国が約8%で、他には北朝鮮の発生源による寄与が1.5%程度ある。湿性沈着に及ぼす寄与については、国内の発生源による寄与が約46%、次いで中国の発生源による寄与が33%程度であり、韓国が約10%を占めている。新潟では東京における沈着よりも中国、韓国の発生源による影響がより強く現れている。

札幌における各国の寄与率は新潟とほぼ同じであるが、新潟と異なる点は新潟では約8%程度あった韓国の発生源に起因する乾性沈着が殆ど無い。中国の発生源による乾性沈着の影響も新潟では約9%あったのが、札幌ではより小さく、約4%程度である。しかし、北朝鮮の発生源による乾性沈着に対する寄与が新潟よりは僅かに多い。

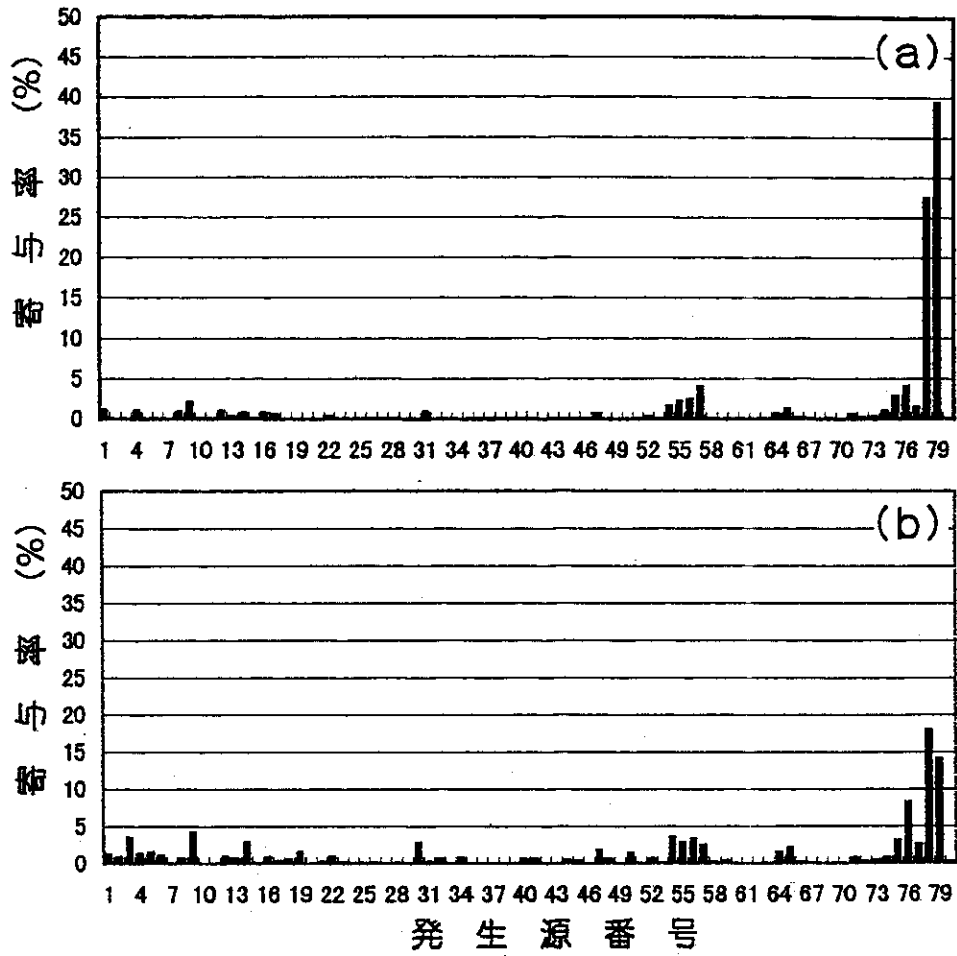


図 1 1 モデル計算による新潟における各発生源からの沈着量に対する寄与率。
 (a) は乾性沈着、(b) は湿性沈着である。

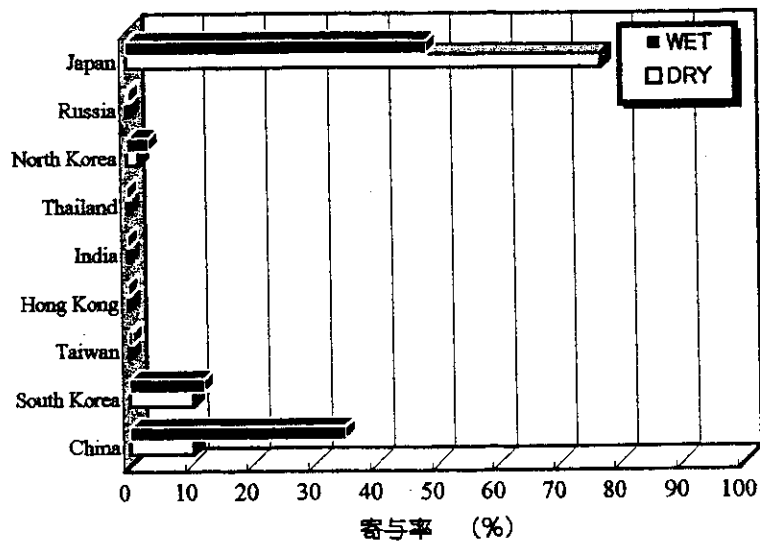


図 1 2 新潟における沈着に対する各国毎の発生源の寄与率

5. まとめ

大陸における発生源の影響を調べるために、東アジア地域における硫黄酸化物の輸送モデルを開発した。さらに輸送モデルの変質過程に液相酸化を取り入れ、また湿性沈着過程では最大凝結層より下層において降水沈着するように改良した。そのために気象予測モデルの空間分解能の向上を図り雲を表現する機能を付加した。東アジア地域の広い領域をカバーするモデル領域を保持し、且つモデルの高い空間分解能を確保する必要がある、このために2つのモデルをネスティングすることによってこの問題の解決を図った。ネスティングした気象予測モデルのパフォーマンスは気象衛星やアメダスデータ等によって検証した。また、移流・拡散モデルのネスティングは効果の検証はチェルノブイリ原子力発電所事故時に放出された放射性汚染物質（I-131）の輸送過程を観測値と比較することによって行った。

東アジア地域における硫黄酸化物の発生源インベントリーに関するデータが既に整理されている1985年について1年間の輸送シミュレーションを実施した。その結果わが国における年間の nss-SO_4^{2-} の湿性沈着量は硫黄換算でおおよそ $30 \text{ meq/m}^2/\text{年}$ 程度であった。一方、測定値は $60 \text{ meq/m}^2/\text{年}$ であり、シミュレーション結果は測定値の50%の過小評価をしているように見える。しかし、わが国では火山による SO_2 の発生量は人為的発生量と同等であるという報告もある。シミュレーションでは火山による発生量は含まれていないので、このことを考慮するとモデルは妥当な結果を算出しているものと考えることが出来る。

輸送シミュレーション結果から大村、東京、新潟及び札幌における乾性、湿性沈着に対する各国の発生源寄与率の解析を行った。大村では中国の発生源に起因した湿性沈着に対する寄与率が国内の発生源より大きかったが、その他のリセプターでは国内の発生源の寄与が大きかった。

6. 参考文献

- 1) Kato, N. and H. Akimoto, 1992: Anthropogenic emission of SO_2 and NO_x in Asia: Emission inventories. *Atmos. Environ.*, **26A**, 2297-3017.
- 2) 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.
- 3) Satomura, T., F. Kimura, 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.
- 4) Mellor, G. L. and T. Yamada, 1974: A hierarchy of turbulence closure model for planetary boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1791-1806.
- 5) Tatsumi, Y., 1986: A spectral limited area model with time-dependent lateral boundary condition and its application to a multi-level primitive equation model. *J. Met. Soc. Japan*, **64**, 637-663.
- 6) Waleck, C. J., R. A. Brost and J. S. Chang, 1986: SO_2 , sulfate and HNO_3 deposition velocities computed using regional landuse and meteorological data. *Atmos. Environ.*, **20**, 949-964.

- 7) Cox, R.A., 1974: Particle formation from homogeneous reaction of sulfur dioxide and nitrogen dioxide. *Tellus*, **XXVI**, 235-240.
- 8) Eliassen, A. and J. Saltbones, 1975: Decay and transformation of SO₂ as estimated from emission data, trajectory and measured air concentrations. *Atmos. Environ.*, **9**, 425-429.
- 9) Alkenzweeny, A. J. and D. C. Powell, 1977: Estimation of transformation rate of SO₂ to SO₄²⁻ from atmospheric concentration data. *Atmos. Environ.*, **11**, 179-182.
- 10) Meagher, J. F. and E. M. Bailey, 1983: The seasonal variation of the atmospheric SO₂ to SO₄²⁻ conversion rate. *J. Geophys. Res.*, **88**, 1525-1527.
- 11) Möller, D., 1980: Kinetic model of ambient SO₄²⁻ oxidation based on published data. *Atmos. Environ.*, **14**, 1067-1076.
- 12) Sasaki, H., H. Kida, T. Koide and M. Chiba, 1995: The performance of long term integration of a Limited Area Model with a spectral boundary coupling method. *J. Met Soc. Japan*, **73**, 165-181.
- 13) 気象庁, 1985: 火山報告.
- 14) 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**, 336-343.

[研究成果等の発表状況]

(1) 口頭発表

- ① 倉持智一、甲斐憲次、佐藤純次 (1997): 長距離輸送モデルを用いた東アジア起源SO_xの動態分析. 1997年度気象学会春季大会 (つくば)、同会予稿集、306pp.
- ② 佐藤純次、佐々木秀孝、村治能孝 (1997): 雲を考慮した長距離輸送モデル. 1997年度気象学会春季大会 (つくば)、同会予稿集、280pp.
- ③ Junji Sato, Hidetaka Sasaki and Kazuyo Adachi, (1997): Numerical simulation of tracer dispersion and statistical evaluation of its performance. *Proceedings of the 3rd International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere*. Nov. 4-7, 45-52, 1997.
- ④ Junji Sato, Hidetaka Sasaki and Yoshitaka Muraji (1998): Transport of sulfur oxides in the east Asian region simulated by the nested model. *Proceedings of 14th International Clean Air and Environment Conference (Melbourne, Australia)*, 523-528.
- ⑤ Chun, Y. S., S. U. Park, J Sato and H. Sasaki, 1997: Long range transport of yellow sand with special emphasis on the dust rise conditions in the source regions. *Proceedings of the 3rd International Joint Seminar on the Regional Deposition Processes in the Atmosphere*. Nov. 4-7, 22-27, 1997.
- ⑥ 佐藤純次、佐々木秀孝、村治能孝 (1999): ネスティングモデルによる東アジアの硫黄酸化物の輸送. 1999年度気象学会春季大会 (東京)、同会予稿集 305pp.