

移流拡散モデルを用いた東日本における 酸性降下物の輸送過程に関する研究

TRANSPORTATION PROCESS OF ACIDIC OXIDE USING
ADVECTION AND DISPERSION MODEL IN THE EASTERN JAPAN

宮本 浩樹¹・鈴木 善晴²・長谷部 正彦³・松田 慎介⁴

Hiroki MIYAMOTO, Yoshiharu SUZUKI, Masahiko HASEBE and Shinsuke MATSUDA

¹学生会員 宇都宮大学 工学研究科 エネルギー環境科学専攻 前期課程 2 年 (〒 321-8585 宇都宮市陽東 7-1-2)

²正会員 工博 宇都宮大学助教 工学部建設学科建設工学講座 (〒 321-8585 宇都宮市陽東 7-1-2)

³正会員 工博 宇都宮大学教授 工学部建設学科建設工学講座 (〒 321-8585 宇都宮市陽東 7-1-2)

⁴非会員 宇都宮大学 工学部 建設学科建設工学コース 4 年 (〒 321-8585 宇都宮市陽東 7-1-2)

The source area of acidic oxide in Japan is likely to differ with the season. It is considered that acidic oxide in the East Japan is mainly brought by advection from the East-Asia continent in winter. In summer, it may be brought by advection from Yokkaichi seaside industrial area in the central part of Japan. In this study, transportation process of the acidic oxide in the East Japan was investigated by an advection and dispersion model (HYSPLIT4). The advection process of acidic oxide in each season also was investigated through trajectory analysis and through numerical transport simulations. The acidity of precipitation tends to be higher as a whole in summer than in winter in the East Japan, while the concentration of acid ion increases in winter in part of the northern Kanto region. The results of the trajectory analysis and transport simulations shows that the source area of sulfur dioxide transported to the East Japan in winter is likely to be the northern part of China.

Key Words : *acidic oxide, acid rain, sulfur dioxide, advection process, trajectory analysis, advection dispersion model*

1. はじめに

欧米における近年の酸性雨による被害は極めて深刻である。ヨーロッパの多くの国ではその森林面積の半分が被害を受けたと言われている¹⁾。特に旧西ドイツのシュバルツバルトの「黒い森」と呼ばれる森林では、その 50 % 以上が酸性雨による被害を受けた。スウェーデンやノルウェーといった北欧の国々では、大気汚染が問題化していないにもかかわらず、他国からの汚染物質が輸送されて酸性雨等の環境問題を引き起こした。アメリカ合衆国では、大工業地帯として有名な五大湖周辺において 1960 年代から酸性雨の被害が目立ち始め、近年は各地で森林の枯死、湖沼の酸性化による魚の死滅などの被害が報告されている。

我が国でも、現在全国各地で酸性雨が観測されており、地域によっては pH4 程度の非常に高い酸性度を持つ降水が観測されている²⁾。さらに、近年急速な工業化が進む中国では、毎年大量の硫酸酸化物が排出されており、それらが大気の流れとともに日本へ輸送されている。中国では今なお大気汚染に対する対策が十分に行われていない状況を見ると、今後我が国において、酸性雨あるいは酸性降下物の影響が顕在化し、深刻な社会問題となることが懸念される。

近年は、複数の研究機関において、数値モデルをベースとした硫酸酸化物の輸送プロセスに関する解析が行われ、その沈着量の定量的評価などが試みられている。例えば、市川ら³⁾は、ハイブリッド型輸送モデルを用いて、東アジアにおける硫酸酸化物の沈着量評価を行っている。同モデルは、気塊を追跡して濃度を計算するトラジェクトリー型の長距離輸送モデルで、沈着量の長期的評価に用いられている。また、久保田ら⁴⁾は、3 次元オイラー型モデルを用いて、地球規模で酸性物質の沈着量分布を計算するとともに、土壌酸性化による影響がより顕著な地域を明らかにするための環境影響評価を行っている。

本研究では、中国における急速な近代化や地球温暖化の進展などの今日の状況を考慮したローカルなスケールでの環境影響評価を目指して、酸性降下物の輸送過程について解析を行う。数値モデル METEX (第 2 章にて詳述) を用いたトラジェクトリー解析を行うとともに、移流拡散モデル HYSPLIT4 (第 3 章にて詳述) を用いた物質輸送シミュレーションにより、二酸化硫黄の放出・移流・拡散・沈着の一連の輸送過程について検討する。また、観測データとの比較により、東日本まで移流や拡散によって運ばれてくる二酸化硫黄の発生源やその寄与率について調査を行う。

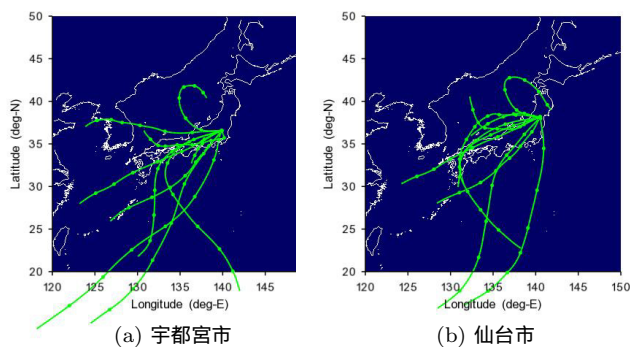


図-1 2002 年 7 月のトラジェクトリー

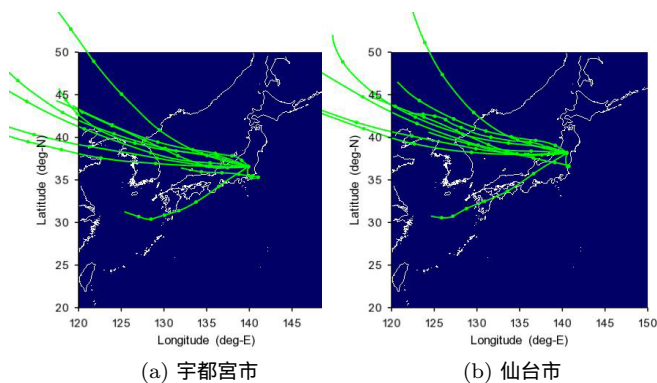


図-3 2002 年 11 月のトラジェクトリー

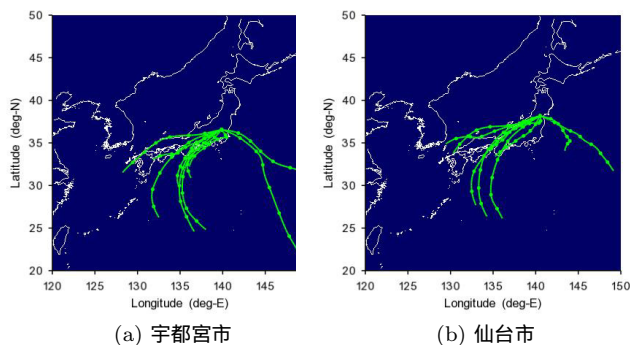


図-2 2002 年 8 月のトラジェクトリー

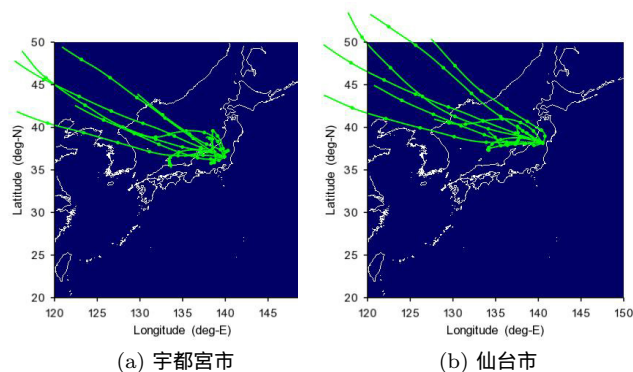


図-4 2003 年 2 月のトラジェクトリー

2. METEX によるトラジェクトリー解析

はじめに、東日本へ輸送される酸性物質の移流経路や移流の規模を明らかにするため、数値モデル METEX (Meteorological Data Explorer)⁵⁾を用いたトラジェクトリー解析を行う。METEX は、地球環境センター CGER (Center for Global Environmental Research) によって開発された気象データの解析プログラムで、米国の環境予測センター NCEP (National Centers for Environmental Prediction) のデータを使用したトラジェクトリー解析を行うことができる。同モデルについては、例えば Zeng ら⁶⁾によってその計算結果に関する検証が行われている。

(1) トラジェクトリーの算出方法

METEX では、任意の場所と時刻における気象値を、時間的・空間的な補間により求める。気象データセットの格子点の数値から任意の位置での気象値を空間補間で求めるにあたっては、まず垂直方向の補間を行い、次に水平方向の補間を行う。垂直方向のデータ補間の際、気象データは高度に対して線形であると仮定している。したがって、格子の軸上の任意の高度に対する値は、その格子の上下の 2 頂点のデータの線形補間から得られる。さらに大気塊を質点とみなし、その移動先を時間積分により求める手順を踏む。METEX では時間積分に Petterssen 法を用いている⁷⁾。

また、METEX では、トラジェクトリーの算出の際に 3 次元法と等温位法の 2 種類の算出方法を選択できるが、本解析では 3 次元法を用いて算出を行う。3 次元

法では、空気塊は周囲の風によってのみ移動すると仮定し、気象データセット中の風速の東西・南北及び垂直成分の全てを用いてトラジェクトリーを算出する。

(2) 東日本を起点とする後方トラジェクトリー解析

気象データは、NCEP の $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ 全球時間値データを用い、解析対象地点として東日本の仙台市および宇都宮市を選定した。解析期間は 2002 年 4 月～2003 年 3 月とし、各月 10 日の 0:00 から 19 日の 12:00 まで、24 時間ごとに後方トラジェクトリーの算出を行う。トラジェクトリーの算出時間は 48 時間とし、例えば、2002 年 7 月 15 日 AM 12:00 の宇都宮上空を起点とした算出では、7 月 13 日 AM 12:00 まで遡ってトラジェクトリーが算出される。

図-1、図-2 に 2002 年夏季の 7 月、8 月、図-3、図-4 に 2002 年冬季の 11 月、2003 年 2 月の宇都宮市及び仙台市上空 1000m を起点とした 48 時間後方トラジェクトリーを示す。年間のトラジェクトリーを算出した結果、両都市に到達するトラジェクトリーは、季節ごとにくつつかのパターンに分類されることがわかった。図-1、図-2 から、7 月～8 月にわたる夏季では大気が主に南方方向から移流し、さらに、図-3、図-4 から、11 月～2 月にわたる冬季では主に西方向から移流・拡散していることがわかる。

次に流跡線の長さに関して見てみると冬季における西方向からの流跡線は長いものが多く、夏季における流跡線は短い傾向がある。流跡線の長さは、全て算出時間が一定であるため、その長さが長いほど風速が大きいことを意味しており、夏季は風速が小さく、冬季は

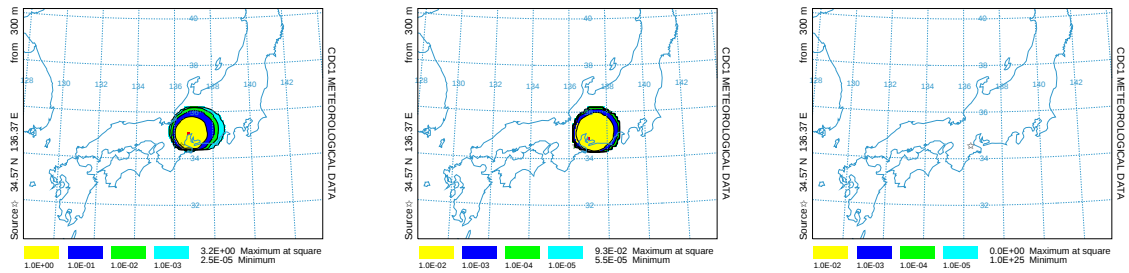


図-5 四日市から放出された二酸化硫黄の 12 時間後の濃度分布 (0-250 m 層, 500-750 m 層, 1000-2000 m 層)

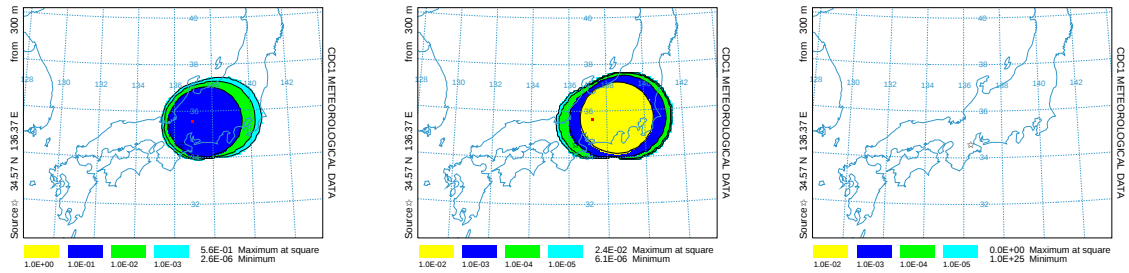


図-6 四日市から放出された二酸化硫黄の 24 時間後の濃度分布 (0-250 m 層, 500-750 m 層, 1000-2000 m 層)

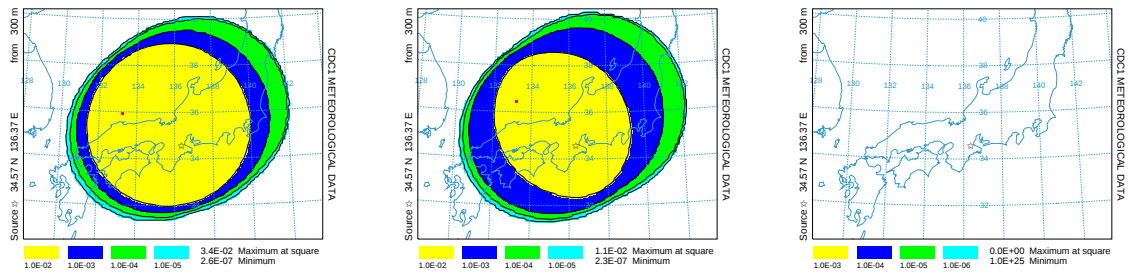


図-7 四日市から放出された二酸化硫黄の 48 時間後の濃度分布 (0-250 m 層, 500-750 m 層, 1000-2000 m 層)

風速が大きいことが分かる。また、夏季の流跡線は広い範囲から東日本に到達しているのに対して、冬季は特定の地域（中国北部）を起点とするものが多いことから、夏季における酸性物質輸送は拡散型であり、冬季のそれは移流型であると考えられる。

以上より、東日本に輸送される酸性物質の発生源として、夏季は西日本や南関東、冬季は中国北部を中心とした東アジア地域であると推測された。そこで、次節の輸送シミュレーションでは、二酸化硫黄の主要発生源を、夏季は西日本の四日市市、冬季は中国北東部の 3 省（河北省、遼寧省、山東省）と仮定し、両地域からの二酸化硫黄の移流拡散について解析を行う。

3. HYSPLIT4 による輸送シミュレーション

本研究では、数値モデル HYSPLIT4 (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory Ver.4) を用いたエアマス粒子の移流拡散シミュレーションを行う。同モデルは、1982 年から 2004 年にかけて、Draxler ら^{8),9),10)}により開発されたプログラムで、パフあるいは粒子（または、両者の混在したもの）を追跡しながら、移流 (advection)、拡散 (dispersion)、沈着 (deposition) の各プロセスが順次計算される。モデルの初期条件に用いる気象データは、NOAA による $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ の再

解析データを使用し、前節のトラジェクトリー解析から酸性物質の主要発生源であると考えられた地域を放生源として、酸性物質の濃度や沈着量の算出を行う。

酸性雨に含まれる代表的な酸性物質として、主に二酸化硫黄及び窒素酸化物があげられる。この 2 種類の物質に関して、大気中での反応や移流による輸送過程での大きな特徴を述べる。二酸化硫黄は、輸送過程でオゾンなどによって酸化されることで徐々に硫酸に変わる。硫酸は非常に揮発性が低いため、大気中で生成するとすぐに細かい粒子となる。この粒子が雲核となり雲を形成して雨を降らせたり、あるいは降雨に溶け込んだりすることで酸性雨となる。

一方、窒素酸化物は輸送過程で徐々に反応するわけではなく、発生源近くで酸化されることで硝酸となる。その酸化反応は二酸化硫黄と比べて非常に複雑であり、数値モデル化が非常に困難である。また、揮発性が高いため、かなりの量がガスとしても存在し、水にも溶けやすく雲や雨に溶け込んで地上に沈着する。そのため、硝酸は細かい粒子に溶け込んだ場合を除いて長距離輸送されないことが多い。二酸化硫黄のエアマス粒子は、長距離輸送されやすく、窒素酸化物と比較して輸送過程での反応が単純であるため高精度のシミュレーション結果が期待できる。

本研究の計算で用いる二酸化硫黄のパラメータは、拡

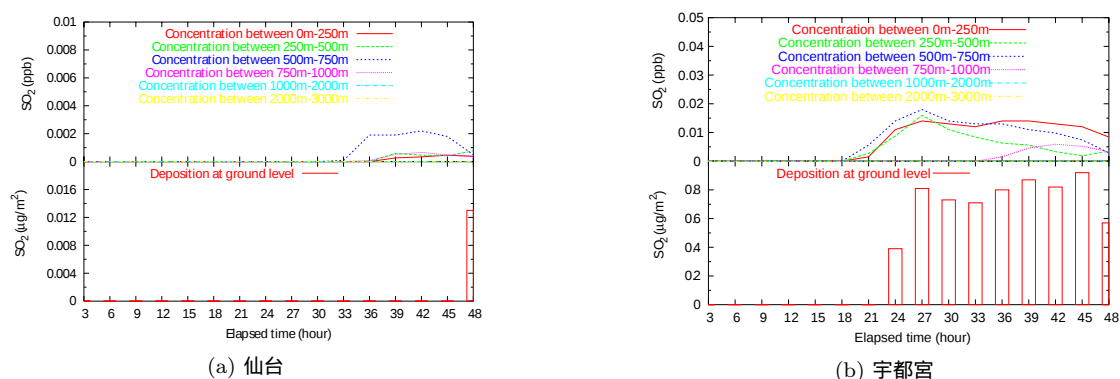


図-8 四日市を発生源とする二酸化硫黄の大気中濃度と沈着量の時系列変動（2002年8月15日）

散比 1.9, モル重量 64.00 (g/mol) を使用した。また, 沈着速度に関しては, 市川らの研究報告³⁾や, Andreas Stohl *et al.* の粒子拡散モデル FLEXPART¹¹⁾ を参考に, 0.002m/s と設定した。二酸化硫黄の放出高度は 300 m (放出源: 四日市) または 150 m (放出源: 中国北東部) とし, モデルの鉛直層は, 0-250 m, 250-500 m, 500-750 m, 750-1000 m, 1000-2000 m, 2000-3000 m の 6 層 (四日市), または 0-1000 m, 1000-3000 m, 3000-5000 m, 5000-10000 m の 4 層 (中国) に設定した。

4. 東日本における酸性物質輸送の影響

(1) 四日市を発生源とする酸性物質輸送

夏季における東日本への二酸化硫黄の輸送を想定し, 四日市からの輸送シミュレーションを行う。解析期間は 2002 年 7 月と同年 8 月の各 15 日, エアマスの放出開始時刻はそれぞれ 1 日, 10 日, 15 日, 25 日, 30 日の AM12:00 とし, 放出開始から 48 時間後まで, 3 時間ごとにエアマスの濃度分布と沈着量分布を算出する。放出率は, 林¹²⁾を参考に 15.4 t/h, 放出時間は 3 時間とした。

図-5, 図-6 及び図-7 に 8 月 15 日 12:00 の放出から 12 時間後, 24 時間後及び 48 時間後の 0m-250m 層, 500m-750m 層と 1000m-2000m 層での濃度分布を示す。これらの図より, 250m-500m 層に関しては, 四日市市から放出されたエアマスが時間の経過に伴い, 水平方向へ均一的に移流・拡散していく様子が確認できる。また, 鉛直方向への移流・拡散に関しては, ここでは省略してあるが, 2000m-3000m 層で濃度分布はほとんど見られず, エアマスが比較的低い層に集中していることが確認できた。

次に, 図-8 に 2002 年 7 月 15 日における仙台と宇都宮での二酸化硫黄濃度と沈着量の時系列変動を示す。同図より, 仙台においては 0m-250m 層, 250m-500m 層の低い層より, 500m 以上の高い高度の層において高い濃度が示されている。仙台には約 30 時間後から濃度分布に現れ始めていることから, 放出から時間が経過してからエアマスが到達しているため, 高い高度まで拡散しているためと考えられ, 沈着量に関しても, エアマスが高い高度に浮遊しているため沈着しづらく, あ

まり現れなかったと考えられる。

宇都宮においては, 仙台とは反対に 0m-750m までの比較的低い層で多くの濃度が示されている。宇都宮では約 12 時間後から濃度が示され始め 24 時間後から全体的に一定の濃度で出ている。33 時間後から 750m 以下の低位層では若干減少し始め, 逆に 750m-1000m 層では上昇していることから, 鉛直方向への拡散が始まっていると考えられる。沈着量に関しては, 0m-250m 層の濃度とほぼ同様の傾向で現れ始めているため, この層のエアマスが沈着していると考えられる。

更に, 宇都宮と仙台を比較すると, 仙台において濃度分布が 1/10, 地表面での沈着量が 1/100 のオーダーを示していることから, エアマスは広く拡散されており, 移流・拡散による影響は小さいことが示唆された。

(2) 中国北東部を発生源とする酸性物質輸送

次に, 冬季に影響を及ぼすと考えられる中国北東部を発生源として, 二酸化硫黄の長距離輸送シミュレーションを行う。解析期間はトラジェクトリー解析の結果より, 2002 年 10 月から 2003 年 2 月とし, 各月 15 日の 12:00 から 18:00 までの 6 時間について二酸化硫黄の放出を行う。放出開始 120 時間後の 20 日 12:00 まで 6 時間ごとに濃度分布と沈着量分布を算出する。放出源は, トラジェクトリー解析の結果を考慮して中国北東部の 3 省 (河北省, 遼寧省, 山東省) とし, 科学技術政策研究所から公表されている各省の 2000 年における二酸化硫黄排出量データから平均放出率を計算した (それぞれ, 70.88 t/h, 124.89 t/h, 221.69 t/h)。

図-9, 図-10 及び図-11 に 11 月 15 日 12:00 の放出から 6 時間後, 24 時間後及び 72 時間後の, 0-1000 m 層, 1000-3000 m 層と 3000m-5000 m 層での濃度分布を示す。これらの図より, 遼寧から放出されたエアマスが東方向に移流することで日本に到達していることが確認できる。移流・拡散の過程においては, 10 月から 12 月は放出から 72 時間前後でエアマスが日本上空に到達し, その後一気に分布が日本全体を覆うように広がり太平洋に到達するという傾向が見て取れた。

図-12 に 2002 年 7 月 15 日における仙台と宇都宮での二酸化硫黄濃度と沈着量の時系列変動を示す。また, 観測データが得られた新潟市およびつくば市における

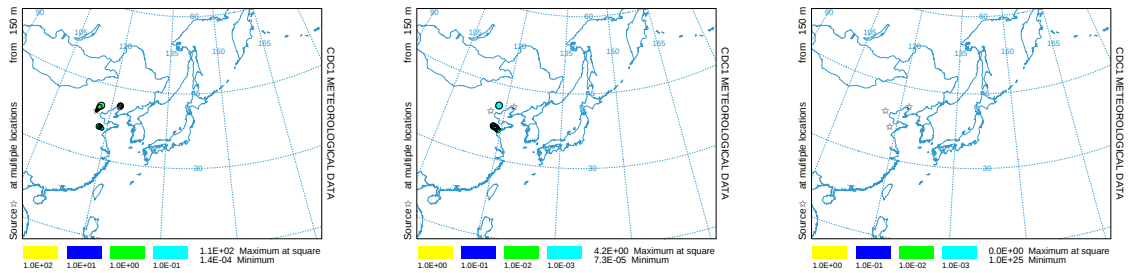


図-9 中国北東部から放出された二酸化硫黄の6時間後の濃度分布（0-1000 m 層，1000-3000 m 層，3000-5000 m 層）

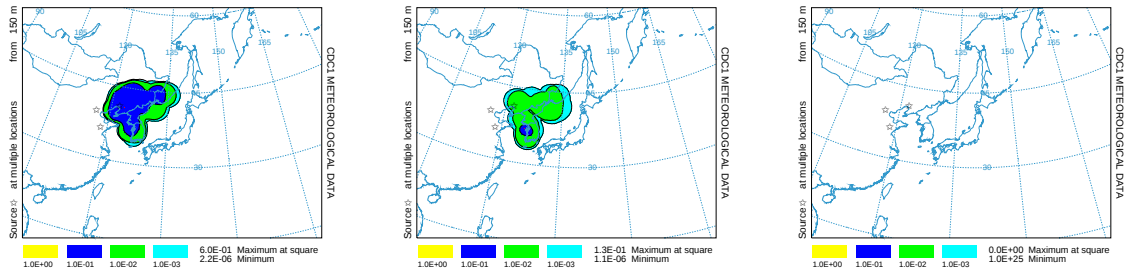


図-10 中国北東部から放出された二酸化硫黄の24時間後の濃度分布（0-1000 m 層，1000-3000 m 層，3000-5000 m 層）

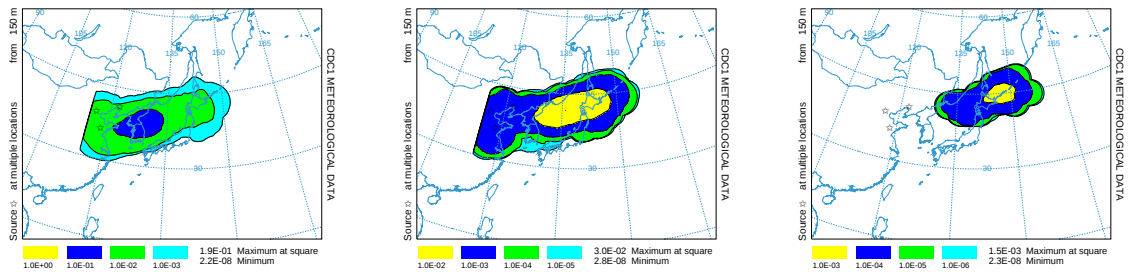


図-11 中国北東部から放出された二酸化硫黄の72時間後の濃度分布（0-1000 m 層，1000-3000 m 層，3000-5000 m 層）

グラフも同図に示す．同図より，濃度が各層でほぼ同じ値が現れていることから鉛直方向に均等に拡散されて広がっていると考えられ，沈着量においても濃度と同じ傾向で現れている．1000m 以上の上空における濃度は現れた直後には沈着量にあまり影響してないと考えられるが，時間の経過とともに重力により徐々に沈着すると考えられる．

(3) 中国を発生源とする二酸化硫黄の寄与率

ここで，新潟市およびつくば市において観測データとシミュレーション結果の比較を行う．まず，図-12からは，新潟市の 0-1000 m 層における二酸化硫黄の平均濃度が約 0.097 ppb と算定される．一方，科学技術政策研究所によれば，2000 年に中国北東部 3 省から排出された人為起源の二酸化硫黄が 409 万 t，同年の中国全土からの排出量が 1998 万 t と見積もられており，後者は前者の約 4.9（＝1998/409）倍となっている．したがって，この比率から推定すると，上記の 0.097 ppb を 4.9 倍した値 0.475 ppb が，中国全土から新潟市へ輸送される二酸化硫黄の推定濃度となる．さらに，国立環境研究所の「環境数値データベース」によれば，図-12 と同時期に新潟市で観測された二酸化硫黄の平均濃度は 0.894 ppb であることから，中国全土から新潟市へ輸送される二酸化硫黄の寄与率は， $0.475/0.894=0.531$

より，約 53% と推定される．市川ら¹³⁾の解析によれば，新潟市の二酸化硫黄濃度における中国大陆からの輸送量の寄与率は，夏季（6 月）が約 43%，冬季（11 月）が約 63% となっており，これらの値と比較すると，上記の推定結果はほぼ妥当なものとなっている．

また，つくば市においても同様な計算を行ったところ，中国大陆からの輸送量の寄与率は 0.239（約 24%）と推定された．市川らの解析では，つくば市における同寄与率が約 33% から 35% となっており，解析手法の違いを考慮すれば，本研究の推定値は妥当なものと考えられる．以上より，中国を発生源とする二酸化硫黄の寄与率を計算することで，本研究の輸送シミュレーションの妥当性を確認することができた．また，上記の推定値が示すように，中国からの酸性物質の輸送は，我が国の日本海側だけでなく太平洋側の地域にも広く影響を及ぼしており，ローカルなスケールでの詳細な環境影響評価を実施することで，近年の中国における急速な近代化の影響を考慮した環境対策の策定が求められる．

5. まとめ

本稿では，数値モデル METEX を用いたトラジェクトリー解析を行うとともに，HYSPLIT4 を用いた輸送

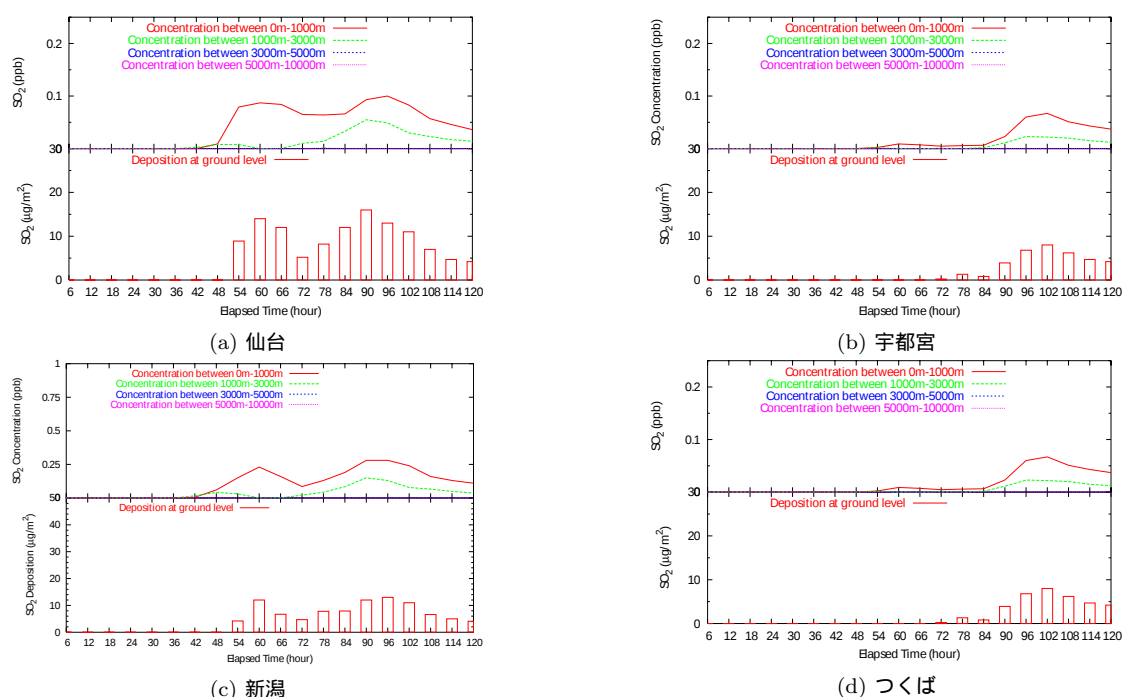


図-12 中国北東部を発生源とする二酸化硫黄の大気中濃度と沈着量の時系列変動 (2002 年 11 月 15 日)

シミュレーションにより東日本に影響を与える発生源からの酸性物質の放出・移流・拡散・沈着の一連の輸送過程について検討した。

トラジェクトリー解析の結果からは、東日本における特徴として、夏季には主に南西方面である西日本から大気が移流してくること、冬季には北西方面である中国からの移流により酸性物質が長距離輸送されていることがわかった。また移流拡散モデル HYSPLIT4 により解析を行った結果、夏季における四日市からの輸送から 7 月には東北北部まで、8 月には四日市付近を中心に濃度分布が円形に広がり拡散され、沈着されていることがわかった。冬季における中国からの長距離輸送から 10 月から 12 月にかけては 72 時間前後でエアマスが日本上空に到達し、分布が日本全体を覆うように広がり太平洋に到達している。また、流跡線の長さから考えて、夏季の西日本からの酸性物質の輸送過程は、大部分が拡散型であり、冬季の中国大陸遼寧省からのそれは移流型であると考えられる。

今後は、さらにシミュレーションの精度向上を図るとともに、中国における急速な近代化や地球温暖化の進展などの今日の状況を考慮したローカルなスケールでの環境影響評価を行う予定である。

参考文献

- 1) 「酸性雨」編集委員会：酸性雨 - 複合作用と生態系に与える影響 - , 博友社, pp.18-26, pp.51-69, 1996.
- 2) 太田雅人, 長谷部正彦, 鈴木善晴：関東地方における酸性降水物の分布特性の解析, 水文・水資源学会 2004 年研究発表会要旨集, pp.220-221, 2004.
- 3) 市川陽一, 速水洋：東アジアを対象とした硫酸化物の長距離輸送モデルの評価, 電力中央研究所研究報告 T96044,

電力中央研究所, 1997.

- 4) 久保田馨, 松岡謙, 藤原健史：酸性降水物による地球規模の環境影響に関する研究, 第 59 回年次学術講演会講演概要集, 2004.
- 5) CGER : Data Analysis and Graphic Display System for Atmospheric Research Using PC, 2003.
- 6) J. Zeng, Y. Tohjima, Y. Fujinuma, H. Mukai and M. Katsumoto : A study of trajectory quality using methane measurements from Hateruma Island, Atmospheric Environment, 37, pp.1911-1919, 2003.
- 7) Petterssen : Weather Analysis and Forecasting, McGraw-Hill Book Company, New York, pp.221-223, 1954.
- 8) R. R. Draxler and A. D. Taylor : Horizontal dispersion parameters for long-range transport modeling, J. Appl. Meteorol., 21, pp.367-372, 1982.
- 9) Draxler, R. R. : Hybrid single-particle Lagrangian integrated trajectories (HY-SPLIT) Version 3.0 User's guide and model description, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-195, 1992.
- 10) Draxler, R. R. and G. D. Hess : Description of the HYSPLIT4 MODELING SYSTEM, NOAA Technical Memorandum ERL ARL-224, 2004.
- 11) Andreas Stohl *et al.* : The FLEXPART Particle Dispersion Model, 2002.
- 12) 林幸司：環境政策論, <http://www1.tcu.ac.jp/home1/hayashi/env03/env0606.pdf>
- 13) 市川陽一, 藤田慎一：わが国の硫酸イオンの湿性沈着量におよぼす東アジア各国の寄与評価, 電力中央研究所報告, T93012, 1994.

(2007. 9. 30 受付)