

大規模な降水現象に伴う大陸起源物質の長距離輸送と湿性沈着—観測とモデル—

LONG RANGE TRANSPORT AND WET DEPOSITION OF AIR POLLUTANTS OVER EAST ASIA
UNDER SYNOPTIC-SCALE PRECIPITATION EVENT - OBSERVATION AND MODELING -

北田 敏廣*

Toshihiro KITADA

ABSTRACT; Current status of the modeling studies, in the research community of the global environment under the Environmental and Sanitary Engineering Committee, of long-range transport/transformation of air pollutants is described. Two kinds of acid deposition models are being developed. One includes detailed cloud microphysics and thus allows transport and transformation of hydrometeor phases' chemical species. The model is suitable for investigating the mechanism of acid rain formation. The other has simplified and empirical wet deposition processes and should be effective in estimating rough distribution of wet deposition over larger area. The simplified wet deposition model is applied to the pollutants transport caused by a series of typhoon events over East Asia and the Northern Pacific.

KEYWORDS; Acid rain, long-range-transport, typhoon, sulfate, air pollution, East Asia

1. はじめに

温帯低気圧や台風などの降水を伴う大規模な気象現象によって、酸性物質の海を渡る長距離輸送や地表への沈着がしばしば起こる。さらに、このような現象に伴う人為起源物質（ NO_x , SO_x , 炭水化物等）の輸送は、酸性物質の地上への負荷のみならず、遠隔地对流圏の CH_4 などの温暖化物質に対する直接の負荷変動や化学反応を通じて他の温暖化物質 O_3 の生成にも影響を与える。気象現象そのものはともかく、人為起源物質が大気中でどのように挙動し、環境にどう影響するかを予測できるモデルの研究は排出源制御と関連して工学の役割だと考えられる。筆者が所属する衛生工学委員会地球環境問題研究小委員会（以下、衛生地球委と略）の中にもこういった問題を取りあげるメンバーが増えてきつつある。本報は、この方面の研究の若干のリビューを行い、さらに、1991年9月に本邦付近を通過した台風9119による、東アジアの人為起源物質の水平、鉛直方向輸送特性及び降水が物質輸送に及ぼした影響を、主として SO_2 - SO_4^{2-} 系について検討した我々の結果を紹介するものである。

2. 酸性雨等に至る大気汚染物質の動態とその予測モデル

図1に示すように気相および粒子状物質として大気中に放出された化学物質は、やがて雲物理過程に伴い大気水象相に移動して降水とともに地上に落下する。酸性雨と呼ばれるように水分相の水素イオン濃度が自然の状態よりも高いこと（すなわち、pH が低いこと、概略 pH 5.0~5.3 以下）が問題とされる。この低いpH

* 豊橋技術科学大学工学部エコロジー工学系 Department of Ecological Engineering,
Toyohashi University of Technology

にもっとも寄与する人為起源物質が、硫酸イオン(SO_4^{2-})と硝酸イオン(NO_3^-)である。降水中の pH 値は、これらのイオンの他に Cl^- , Ca^{2+} , NH_4^+ , Na^+ などの多くのアニオン、カチオンのイオンバランスから決まるため pH を予測しようとするれば、これらすべての化学種の大気中での挙動を知ることが必要となる。しかし、土壌や生態系への酸性雨の長期的な影響を見る指標としては SO_4^{2-} や NO_3^- の湿性沈着量を予測できれば良いという考え方も成り立つ。酸性雨の予測モデルは、上記の目的に沿って大気水象(雲, 雨, 雪等)中の各種汚染質の輸送・反応をも考慮した詳細なモデルから降水量とそのときの大気中での汚染質濃度を用いて、湿性沈着量のみを予測する簡便モデルまでさまざまな段階が考えられる。衛生地球委のメンバーでも、村尾、太田^{1, 2)}、池田ら³⁾、松岡⁴⁾、北田ら^{5, 6)}が簡便モデルを、また北田ら^{7, 8, 9, 10, 11)}が詳細モデルについて研究を行っている。以下、筆者らの研究を中心に紹介する。

2.1 酸性雨輸送の詳細モデル：大気水象相物質の輸送も考慮

酸性雨の主な原因物質である SO_4^{2-} , NO_3^- は、主として大気中に放出された SO_2 , NO_x (一次汚染質)が、気相ないし液相で酸化されて生成したものである。したがって、排出源から出た一次汚染質がどこまでの程度の酸性雨をもたらすのかを知るためには、排出源の分布情報や気象情報(流れ、気温、水蒸気、雲水、雨、雪などの時空間分布および日射量)のほかに、気相物質の輸送・反応モデルと大気水象相物質の輸送・反応モデルが必要になる。これらのモデルは、次の数式で表せる。気相物質 (NO_x , HNO_3 , NO_3^- , SO_2 , SO_4^{2-} , O_3 , H_2O_2 , 炭化水素類, NH_3 等) に対して式(1)、大気水象相物質 [SO_4^{2-} , $\text{S(IV)} = \text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O} + \text{HSO}_3^- + \text{SO}_3^{2-}$, NO_3^- ,

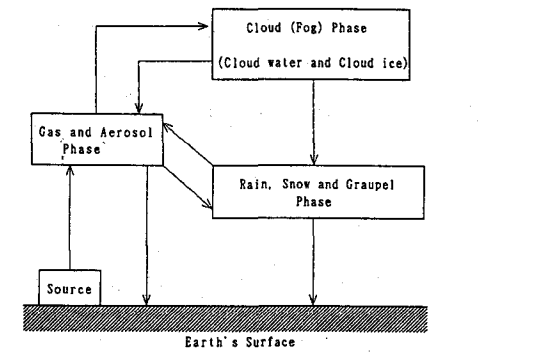


Fig. 1. Schematic of the interphasal transport of air pollutant in the atmosphere.

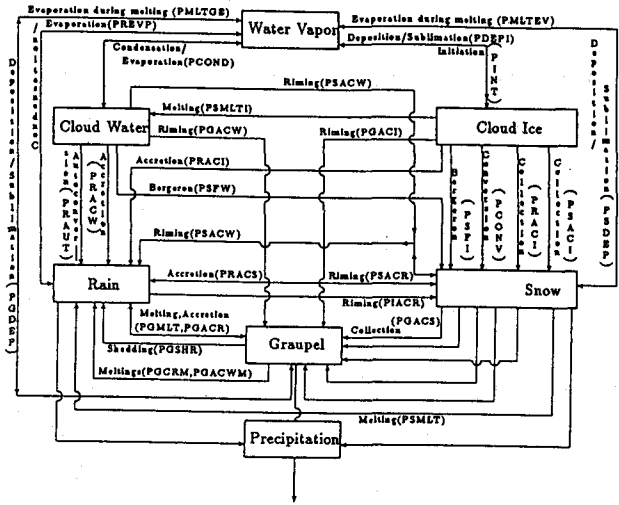
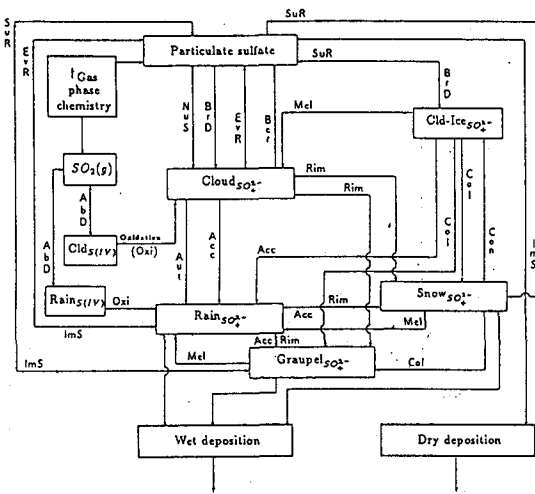


Fig. 2. Acronym diagram of inter-hydrometeor-transfers of water substance of the cloud microphysics model (Kitada et al., 1993; adapted from that in Rutledge and Hobbs, 1984).



- | | |
|-------------------------------------|---------------------------------------|
| AbD : Absorption-Desorption (吸収と放散) | Acc : Accretion (併合) |
| Aut : Autoconversion | Ber : Bergeron process |
| BrD : Brownian diffusion (ブラウン運動) | Col : Collection (捕集) |
| Con : Conversion | EvR : Evaporation (蒸発) |
| ImS : Impaction scavenging | Mel : Melting |
| NuS : Nucleation scavenging | Oxi : Oxidation |
| Rim : Riming | SuR : Sublimational release (昇華に伴う放出) |

Fig. 3. Diagram of the interphasal-transfer processes of SO_2 and SO_4^{2-} associated with cloud microphysics (after Kitada et al., 1993; an adaptation from Rutledge et al., 1986).

NH_4^+ , H_2O_2 , O_3 等] に対して式(2)である。

$$\rho \frac{\partial C_i}{\partial t} + \rho \vec{V} \cdot \nabla C_i = \delta \cdot \rho \vec{K} \cdot \nabla C_i + R_i + S_i - G_i \quad (1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial C_i^j}{\partial t} + u \frac{\partial C_i^j}{\partial x} + v \frac{\partial C_i^j}{\partial y} + W_j \frac{\partial C_i^j}{\partial z} - \frac{q_j \partial \rho V_i}{\rho \partial z} C_i^j \\ = \frac{(R_i^j + k T_i^j + G_i^j)}{\rho} \end{aligned} \quad (2)$$

ここに、 C_i は、第 i 化学種の濃度(無次元)、 S_i は一次汚染質の排出項、 R_i は気相化学反応項、 ρ は空気の密度を表わす。また、 C_i^j は第 i 化学種の第 j 水象相(雲水、雲氷、雨、雪、あられ)中の濃度、 q_j は第 j 水象相の大気中濃度、 R_i^j は水象相での化学反応項である。また、式(1)、(2)の G_i^j は、気相と水象相間の物質移動を、さらに式(2)の $k T_i^j$ は水象相間の物質移動を表わす項である。これらの諸項は、図2に示す雲物理の諸過程¹⁰⁾と密接に関係している。式(2)の物質濃度は、雲水、雨などの大気中での量をバルクで捕らえたときの平均濃度を表わす。雨や雪の落下速度 V_j は、あらかじめ仮定した粒径分布を考慮した重み付き平均の速度を表す。図3は、上記の G_i^j 、 $k T_i^j$ に含まれる諸過程を、硫酸イオン(SO_4^{2-})について例示したものである^{9, 10, 11)}。本図は、Rutledge et al. (1986)を基に、新たに雪の昇華(sublimation)に伴う SO_4^{2-} の放出項を付加したものである。さらに、筆者らのモデルでは、水蒸気の沈着によって雪粒子が成長するときに気相から SO_2 , NH_3 が取り込まれる効果、雪粒子と衝突した雲粒の riming の際の SO_2 の放出、および雪粒子に対する HNO_3 , H_2O_2 の沈着等が考慮されている^{10, 11)}。図3にもどって、例えば、雲水相の SO_4^{2-} (Cloud- SO_4^{2-}) が形成される過程は、大気中の粒子状 SO_4^{2-} の nucleation による取り込み、ガス吸収によって雲水相に移動した SO_2 の酸化反応が主たるものである。一方、この Cloud- SO_4^{2-} は、riming, accretion 等の過程による雪や雨粒子への移動や、Bergeron 過程を含む雲粒子の蒸発によるエアロゾル相への移動によって失われる。さらに、雨、雪粒子中の SO_4^{2-} は、上記の諸過程により雲水相から供給されるとともに、雨や雪が地表に降下するまでの間に impaction scavenging により大気中の粒子状 SO_4^{2-} を捕集、あるいはガス吸収によって気体の SO_2 を取り込み、引き続き液相酸化によって SO_4^{2-} を生成することを通じて増加する。また、上述のように、落下中の粒子が、蒸発ないし昇華することにより逆にこれらの水粒子中の SO_4^{2-} が大気中の粒子状物質にもどる過程もある。筆者らが行った冬季に日本海上で生成する雪雲とそれに伴う大陸汚染気塊の変質に関する酸性雪シミュレーション^{10, 11)}の数値モデルは、図2のプロセスを含むものであるが、湿性沈着予測の簡単モデルでは、降水強度のみを雲物理に関連した唯一の変数として、これらの諸過程すべてを一つのパラメータに含めて、大気中の成分の降水による除去を表現する。

2.2 湿性沈着の簡便モデル^{6, 12)}

雲底あるいは雲頂高度 (H m) と降雨強度 (P mmh⁻¹) が与えられたとき、地表と雲底間に存在する大気中のエアロゾル粒子、気相物質の除去速度、湿性沈着速度について半経験的なモデル化が可能である。

(A) エアロゾル粒子 (例えば、 SO_4^{2-})

簡単のために、(a) エアロゾル粒子は、半径 R の均一粒径とする；(b) 雨ないし雪粒子(半径 a)の落下コースに入って来るエアロゾル粒子が捕集の対象となる、と仮定すると、大気中に分布する雨水相に含まれる SO_4^{2-} の気中濃度変化は次式で表わせる。

$$\frac{d(\text{SO}_4^{2-})_r}{dt} = - \frac{d(\text{SO}_4^{2-})_g}{dt} = \Lambda (\text{SO}_4^{2-})_g \quad (3)$$

$$\Lambda = \pi \int_0^{\infty} a^2 V(a) \eta(a, R) N(a) da \quad (4)$$

ここに、 $(SO_4^{2-})_r$: 雨水相- SO_4^{2-} の気中濃度 ($\mu g m^{-3}$ -air)、 $(SO_4^{2-})_g$: エアロゾル- SO_4^{2-} の気中濃度 ($\mu g m^{-3}$ -air)、 Λ : 洗浄速度係数(s^{-1})、 a : 雨滴の半径、 $V(a)$: 半径 a の雨滴の落下速度 ($m s^{-1}$)、 $N(a)$: 雨滴の粒径分布の密度関数、 $\eta(a, R)$: 半径 a の雨滴による半径 R のエアロゾル粒子の捕集効率である。式(4)の捕集効率 $\eta(a, R)$ については、Slinn(1977) による半経験式とそのグラフによる表現が提案されている。この式を用いて、半径 $0.1 \sim 3 \mu m$ のエアロゾル粒子に対する η の値をいくつかリストすると、半径 $1 mm$ の雨粒子の場合 $\eta = 2 \times 10^{-4} \sim 3 \times 10^{-1}$; 代表長 $1000 \mu m$ の雪粒子の場合 $\eta = 10^{-4} \sim 5 \times 10^{-4}$ 、となる。いま、雨滴の容積平均した半径 a_m と捕集効率 $\eta(a_m, R)$ および降水強度 P を用いて式(4)は、次式

$$\Lambda = C \frac{P \eta(a_m, R)}{a_m} \quad (5) \quad \text{ただし、} C = 3/4 \text{。また、雨滴の平均半径 } a_m(mm)$$

と降水強度 $P(mm h^{-1})$ の間の次の経験的な関係 $a_m \approx 0.35 P^{0.25}$ (Mason, 1971) を用いれば、式(5)は、

$$\Lambda = \frac{C}{0.35} \eta P^{0.75} (h^{-1}) \quad (6) \quad \text{となる。ここで、上記の } \eta \text{ 値を参考にして例えば } \eta = 0.0$$

5、 $C=0.75$ として、時間の単位を秒に変えると $\Lambda = 3 \times 10^{-5} P^{0.75} (s^{-1})$ (7) となる。さらに、式(3)より湿性沈着量を求めることを考える。式(3)が、雨水が雲底より地表に向かって落下して行く間に、大気中の SO_4^{2-} を捕集し、蓄積して行く速度を表わすものと考えて、この雨水が地表に到達したときの雨水中の SO_4^{2-} 量を求める。雨滴の平均の落下速度を $V(a_m)$ とすると、雲底(高さ H)から地表に到達するまでの時間は、 $H/V(a_m)$ となる。したがって、式(4)の両辺を $t: 0 \sim H/V(a_m)$ の代わりに、 $z: H \sim 0$ まで積分すると、高さ H での濃度を $(SO_4^{2-})_r^H$ 、地表でのそれを $(SO_4^{2-})_r^0$ として、 $dt = -dz/V(a_m)$ を考慮すれば、

$$V(a_m) \{ (SO_4^{2-})_r^0 - (SO_4^{2-})_r^H \} = \int_0^H \Lambda (SO_4^{2-})_g dz \quad (8)$$

を得る。いま、雨が雲底を離れた時の雨水には SO_4^{2-} が含まれていないと仮定すると、 $(SO_4^{2-})_r^H=0$ 。また、 $V(a_m) \cdot (SO_4^{2-})_r^0$ は湿性沈着のフラックス F_w (単位は、 $\mu g m^{-2} s^{-1}$) を意味するから、結局、式(8)より、

$$F_w = V(a_m) (SO_4^{2-})_r^0 = \int_0^H \Lambda (SO_4^{2-})_g dz \quad (9)$$

が得られる。先述のように、 $(SO_4^{2-})_g$ は大気中での粒子状 SO_4^{2-} の濃度であるから、この濃度の雲底下での鉛直分布ないし鉛直カラム内の SO_4^{2-} 量と降雨強度がわかれば、いわゆる "below-cloud-scavenging" に基づく湿性沈着フラックスが推定できることになる。また、雲底を離れるときの濃度 $(SO_4^{2-})_r^H$ を 0 とせず適当な値を与えることによって、雲層内での取り込みも近似的に表現できる。

(B) 水溶性気体の場合 (例えば、 SO_2)

気体の場合は、落下する雨水中の濃度が気相濃度と平衡に達しているかどうかで気相から液相への物質移動の速度が変わる。すなわち、先に述べた大気中の粒子を捕集する場合と違って、気体の場合は液相(雨水相)での濃度が物質移動に影響するため、式(3)あるいは式(9)のように雨水中の当該物質の濃度や湿性沈着量を単純に気相濃度のみの関数として表わせない。そこで、例えば地表に到達した雨水中の当該物質の濃度が、雲底から地表までの平均気相濃度と平衡状態にあると仮定して湿性沈着量を求めると次のようになる¹²⁾。雨滴の平均落下速度を $V(a_m)$ ($m s^{-1}$)とすると、湿性沈着速度 $F_{w,1}(\mu g-SO_2 m^{-2} s^{-1})$ は、

$$F_{wet} = V(a_m) (SO_2)_r^0 = \frac{\alpha V(a_m) q_r}{H} \int_0^H (SO_2)_g dz \quad (10)$$

となる。ただし、 $(SO_2)_r^0$ は、地上での降水中の SO_2 濃度 ($\mu g\ g^{-1}\text{-water}$)、 α は SO_2 溶解の平衡定数

で、 $\alpha = 7.14 \times 10^{-5}\ m^3\text{-air}\ g^{-1}\text{-water}$ ($T=273\ K$) である。 $(SO_2)_r^0 = \frac{\alpha q_r}{H} \int_0^H (SO_2)_g dz$ また

と仮定している。ここで、降雨量 $V(a_m) \cdot q_r$ ($g\text{-water}\ m^{-2}\ s^{-1}$) は降雨強度 $P\ mm\ h^{-1}$ によって、 $V(a_m) q_r =$

$P/3.6\ (g\text{-water}\ m^{-2}\ s^{-1})$ と表わせるから、式(10)は、さらに $F_{wet} = \frac{\alpha P}{3.6H} \int_0^H (SO_2)_g dz$ となる。

もし、雲底高度 $H=1600\ m$ 、 $\alpha = 7.14 \times 10^{-5}$ とすると、

$$F_{wet} \cong 1.25 \times 10^{-8} P \int_0^H (SO_2)_g dz \quad (\mu g\text{-}SO_2\ m^{-2}\ s^{-1}) \quad (11)$$

となる。 SO_2 の水滴への吸収は、先述のように水滴内の SO_2 濃度、pH、液相化学反応の有無などで変化するから話はそれ程簡単ではないが、式(11)による推定は、 SO_2 湿性沈着量の第一近似を与えるものであろう。

3. モデルの適用：台風 9119 (Typhoon Mereille) による物質輸送¹³⁾

3.1 NASA/PEM-WEST

1991 年 9 月初めから 10 月終わりにかけて、北太平洋域を対象に大気中の微量化学物質組成に関する大規模な観測 (NASA/GTE, Global Tropospheric Experiment の一環、PEM-WEST (A), Pacific Exploratory Mission-West) が行われた。本章は、特に、9 月 27 日に日本付近で行われた第 9 ミッション (Mission 9) の結果を対象に、台風 9119 (Typhoon Mereille) がもたらした微量化学物質の対流圏再分布を 2 章で述べたモデルを用いての計算結果と合わせて考察したものである。特に、湿性沈着には 2.2 の簡便モデルの考え方をを用いた。

3.2 輸送・反応モデル

モデルは空間 3 次元の非定常移流・拡散・反応方程式系であり、 σ 座標を用いた部分球モデルである。

$$C \frac{\partial X_i}{\partial t} + CU \frac{\partial X_i}{\partial x} + CV \frac{\partial X_i}{\partial y} + C \frac{\partial X_i}{\partial \sigma} = \frac{\partial}{\partial x} (CE_\phi \frac{\partial X_i}{\partial x}) + \\ + \frac{1}{\cos \theta} \frac{\partial}{\partial y} (C \cos \theta E_\theta \frac{\partial X_i}{\partial y}) + \frac{Cg^2}{\pi^2 r^2} \frac{\partial}{\partial \sigma} (C^2 r^2 E_\sigma \frac{\partial X_i}{\partial \sigma}) + R_i$$

ここに、 $dx = r \cos \theta d\phi$ 、 $dy = r d\theta$ 、 $\sigma = (P - P_T)/\pi$ 、 $\pi = P_s - P_T$ 、 $\sigma = \{(\partial z / \partial t)_\sigma + \vec{V} \cdot \vec{\nabla}_\sigma z - W\} Cg/\pi$ また、 X_i ：第 i 化学種の無次元濃度、 C ：空気の密度、 θ ：緯度、 ϕ ：経度、 r ：地球の中心からの距離 (= 地球の半径で近似)、 P_s ：地表気圧、 P_T ：上部境界の気圧 (= 55 hPa)、 z ：等 σ 面高度、 U , V ：水平流速 (V : U , V を成分とするベクトル)、 W ：実鉛直流速、 g ：重力加速度、 E_ϕ 、 E_θ ：水平方向拡散係数、 E_σ ：鉛直方向拡散係数、 R_i ：第 i 化学種の化学反応項を表す。 $E_\phi = E_\theta = 0.02 (r \Delta \theta)^2 \sqrt{D_T^2 + D_s^2}$ 、 $D_T = \{\partial U / \partial \phi - \partial (V \cos \theta) / \partial \theta\} / (r \cos \theta)$ 、 $D_s = \{\partial V / \partial \phi + \partial (U \cos \theta) / \partial \theta\} / (r \cos \theta)$ を用いた。さらに、境界層内の E_σ の変化を補間するために、 $k-\epsilon$ モデルの出力¹⁴⁾を用いている。化学反応項 R_i を構成するものは、22 の輸送化学種 (NO , NO_2 , HNO_3 , PAN , SO_2 , $SO_4^=$, O_3 , H_2O_2 , 炭化水素類等) と 15 の定常状態近似化学種 (OH , OH_2 等) を含む 86 の化学反応

モデル（LLA モデル¹⁵⁾を改変）であるが、ここでは SO₂, SO₄⁻ の2成分系の結果のみを用いる。この2成分系について設定した諸元は以下のである。SO₂ → SO₄⁻ 酸化：1次反応速度係数 k = 0.01 h⁻¹、乾性沈着速度：SO₂（陸地、0.5 cm/s；海面、0.1 cm/s）、SO₄⁻（陸地、海面、0.1 cm/s）。さらに、湿性沈着速度には 2.2 で述べた定式化を用いている。

3.3 流れ場、排出源、計算諸元

流れ場、気温、気圧は、気象庁の全球解析値（緯度、経度方向に 1.875 度、12 時間毎）を用いた。また、降水量、雲頂・雲底高度には、一部分新日本域モデル（JSM），Japan Spectral Model からの情報を用いている。考慮した SO₂ 排出源強度分布は、中国、朝鮮半島、台湾から年間 1800 万トン、日本から 110 万トン、また日本の火山から 70 万トンである。計算領域は、経度 99.375° E~120° W、緯度 0° ~80.625° N であり、格子サイズは 1.875度、鉛直方向には変動格子長の 16 点、タイムステップは 30 分である。計算は、9 月 15 日 00 GMT から、10 月 1 日 00GMT まで行った。初期濃度は、到る所 0 で始めた。

3.4 Mission 9 の観測データ

図 4に、Mission 9 の Flight route を示す。観測された物質は、NO_x, HNO₃, PAN, O₃, 各種炭化水素などほとんどの重要な化学種を含む。その一部を表 1 に示す。データが取得された 03~06 GMT（以下、GMT を Z と略記）における観測航空機の位置を図 5 a, b の流れ場（9月27日00Z）に○印等で示す。表 1 および図 5 から分かるように、03Z には台風の東側で圏外の下層濃度を、また 04Z では同上層濃度をモニターしており、さらに、05, 06Z には高度 11000 m 程度で台風の中心付近から ENE 方向に縁を横切って観測したことに相当する（05Z の方がより中心に近い位置にある）。表 1 より 05, 06Z、特に、05Z における SO₂,

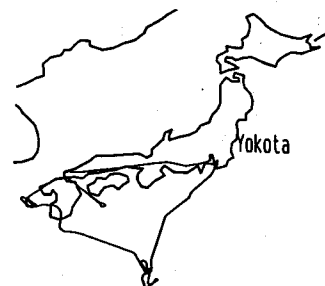
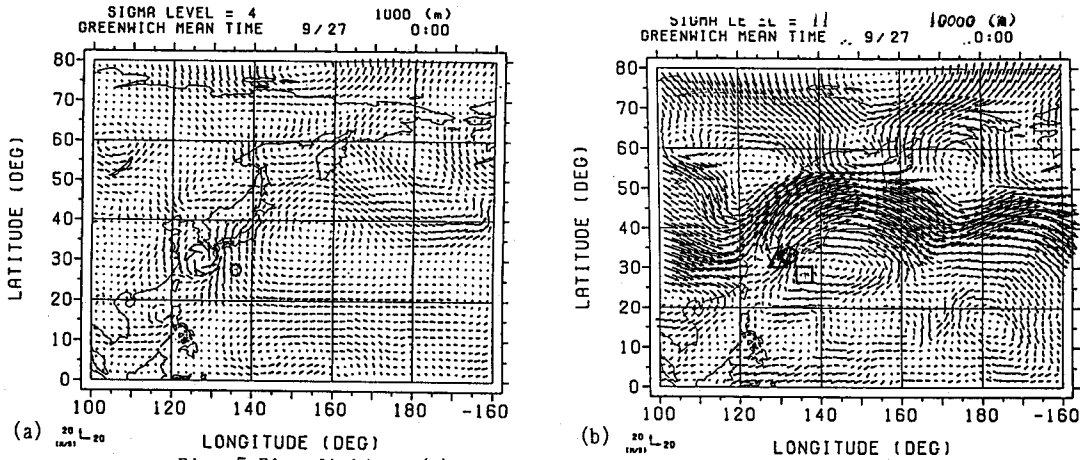


Fig. 4 Flight route for Mission 9.

GMT	SO ₂	SO ₄ ⁻	DMS	Ethane	CH ₄	(Latitude, Longitude, Altitude)		
2	210 (0.09)	21 (0.04)	6	600	1.7	31° N	137° E	6600 m
3	75 (0.20)	110 (0.44)	93	350	1.65	27	136	300
4	200 (0.26)	25 (0.05)	5	700	1.7	28	136	7300
5	180 (0.14)	66 (0.08)	80	760	1.7	32	129	11100
6	105 (0.09)	15 (0.02)	30	760	1.7	33	132	11700

(1) SO₄⁻ by Talbot, SO₂ and DMS by Thornton, Ethane by Rowland, CH₄ by Sakamaki.
(2) Concentrations are in pptv except for () in μg/m³ and CH₄ in ppmv.



DMS、濃度が高く、台風の中心付近で下層から上層への強力な物質輸送の存在を示唆する。特に、明らかに海面に源を有する DMS 濃度の高いことが、これを支持する。

3.5 結果と考察

(A) SO_4^{2-} 濃度場

図 6 a, b に 9 月 27 日 3 GMT における高度 400 m および 8000 m での SO_4^{2-} 濃度場を、同じく図 6 c, d に同日 6 GMT における高度 1700 m および 10000 m での濃度場を示す。いずれも降水の影響を考慮したケースである。ただし、降水の効果は 9 月 25 日 00 GMT より計算に含まれている。図中に台風の中心位置と表 1 の各時刻に対応する観測位置を記す。図 6 a のように、3 GMT での観測位置は、台風の中心から東方に離れた位置にあり、本来、海洋起源の大気の影響を受けていると考えられる。表 1 中の SO_2 やエタン濃度が低いことがこれを示唆する。しかし、海洋起源の DMS 濃度は高く、 SO_4^{2-} 値も大きい。図 6 a の計算結果では、 SO_4^{2-} が $0.1 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下となっており、観測値 ($0.44 \mu\text{g}/\text{m}^3$) と開きがある。計算では、人為起源の SO_4^{2-} のみが考慮されているので、この違いは DMS から生成する SO_4^{2-} にあることが推測できる。さらに、図 7 の降水分布より知られるように、この地点は降水がなく、そのことも影響していよう。図 6 b の地点は、表 1 の 4 GMT に対応する。台風によって運び出された大陸の汚染気塊と海洋大気が接して濃度が急変する位置にあるが、観測、計算ともに、ほぼ $0.05 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と同じ値を示す。図 6 d には、表 1 の時刻 5, 6 GMT に対応する観測点が示されている。図より、この高度 (10000 m) では台風の中心に近い方が高濃度であることが示唆されているが、表 1 の観測も 5 GMT で $0.08 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 、6 GMT で $0.02 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と同様の傾向を示し、両者は定性的に一致する。興味深いのは、図 6 c に見られるように中層 (高度 1700 m) では、台風の中心付近で相対的にかなり低濃度であることであり、中心が周辺からやや孤立した状態にあることを示す。流れ場の水平解像度は $1.875^\circ \times 1.875^\circ$ で台風の中心付近を精度良く表すには粗いかも知れないが、極く中心を除いてほぼ上昇流域であり、下層での集束により供給された汚染質が上方に輸送され、台風の頂上付近では、相対的高濃度域を形成する (図 6 d) ことを示す。

(B) 台風中心付近での SO_4^{2-} 濃度鉛直分布と降雨の効果

図 8 a, b は時刻 5, 6 GMT における観測位置での SO_4^{2-} の鉛直分布である。降雨効果の有無が、全排出源の場合と日本のみの排出源の場合についてどう影響するかが示されている。降水が、大気中の SO_4^{2-} 濃度をほぼ 3 分の 1 に減らすこと、また、濃度分布の上端に近い所ではあるが、降水効果を考慮した方が、より良く観測値に合うことがわかる。さらに、この台風の中の SO_4^{2-} がほとんど大陸起源であり、日本の排出源の寄与は極めて少ないことも示されている。ただし、 SO_2 の場合には、事情が異なり、特に高度 1 km 以下の低層では、50 % 以上が日本の寄与であった。

(C) 周期的に通過する台風による対流圏上部への物質輸送

先述のように、上層では、台風の中心付近での高濃度が際だっており、台風にもなう上昇流による下層から上層 (対流圏上部) への物質輸送を明確に示している。すなわち、図 6 d に見える、太平洋を横断する帯状の高濃度帯 (20N~40N) と、さらにその帯の中に見える高濃度のスポットは、台風生成のイベントごとに物質が下層から対流圏上部に運ばれ、それが地球規模流れの中で輸送されて行くことを示す。春季の移動性高、低気圧による物質輸送が、同様に間欠的に生じてはいるが、主として 40N 以北で起こり、鉛直輸送も 6 km 程度までであることと⁵⁾ 好対照である。

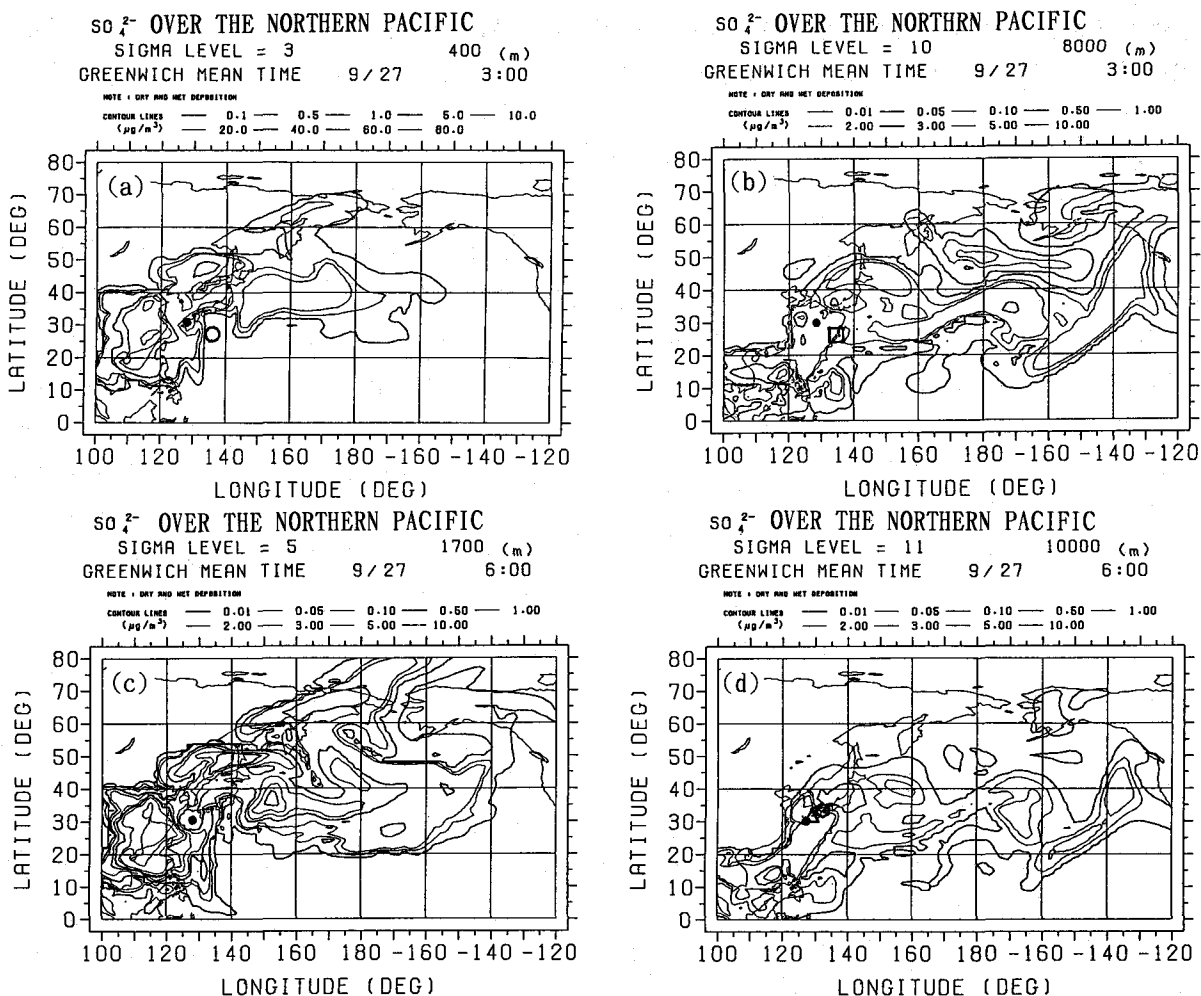


Fig. 6. Calculated SO₄²⁻ distributions at the altitudes of (a) 400 m at 3 GMT, (b) 8000 m at 3 GMT, (c) 1700 m at 6 GMT, and (d) 10000 m at 6 GMT on 27 September, 1991. Solid circle denotes the eye of Typhoon Mereille, and other symbols are for the observation points listed in Table 1.

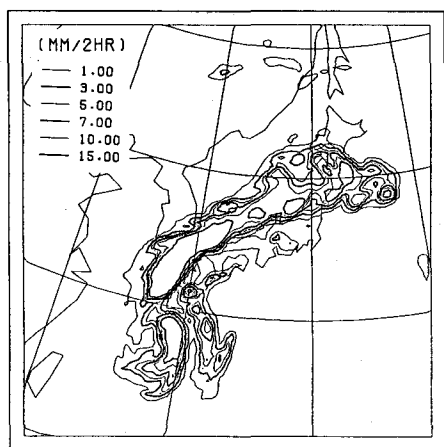


Fig. 7. Rain fall intensity (mm/2 hr) by JSM at 00 GMT on 27 Sept., 1991.

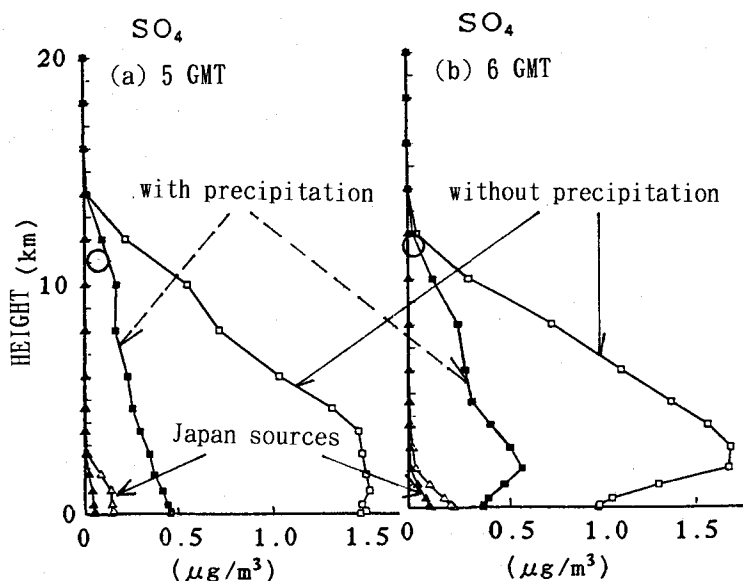


Fig. 8. Calculated vertical profiles of SO₄²⁻ at the locations corresponding to the time of (a) 5 GMT and (b) 6 GMT in Table 1. Open circle shows observation.

4. おわりに

降水生成の効果をも考慮した大気汚染物質長距離輸送モデルに関する我々の研究の現状を述べた。PEM-WEST のような大規模な観測結果を参照して研究を進めることにより、相互に作用する多数の化学物質に関する大循環モデルとも言うべきものが実用に近づくと考えている。

参考文献

- 1) 村尾直人、太田幸雄ら：東アジア地域を対象とした酸性降下物モデルの感度解析。日本気象学会春季大会講演予稿集、274 (1991)。
- 2) Katatani, N., N. Murao et al. : A modeling study on acid deposition and secondary aerosols in Eastern Asia. Proc. 9th World Clean Air Congress, 5, paper No. IU-16B.11 (1992)。
- 3) 池田有光、平岡正勝ら：硫黄酸化物の長距離輸送。京都大学環境衛生工学研究会シンポジウム論文集、11、77-82 (1989)。
- 4) 松岡譲：人為起源の硫黄酸化物による地球規模的な環境影響について。環境システム研究、20, 142-151 (1992)。
- 5) Kitada, T. and K. Tanaka : Simulated semi-global scale transport of SO_2 and SO_4^{2-} from East Asia to the northern Pacific in spring season: The role of low and high pressure systems. Air Pollution Modeling and Its Application IX, Plenum Press, 445-454 (1992)。
- 6) 北田敏廣、田中一浩：東アジアにおける人為起源硫酸塩の乾性沈着と湿性沈着。日本気象学会秋季大会予稿集、219 (1992)。
- 7) P.C.S. Lee, 北田敏廣、植田洋匡：冬季日本海上で生成する雪雲が酸性物質の生成・輸送に及ぼす影響—数値モデルによる研究—, 土木学会第 47 回年次学術講演会講演概要集, II-441 (1992)。
- 8) Kitada, T., P.C.S. Lee, E. Kitagawa and H. Ueda : Numerical study of the formation of acidic species in the convective-cloud streets over the Japan Sea in winter, Air Pollution Modeling and Its Application VIII, Plenum Press, 521-529 (1991)。
- 9) Kitada, T., P.C.S. Lee and H. Ueda : The role of snow-precipitating clouds in the LRT/transformation/ deposition of acidic species over the Japan sea in winter. Proc. 9th World Clean Air Congress, 4, IU-1A. 07/ 1-12 (1992)。
- 10) Kitada, T., P.C.S. Lee and H. Ueda : Numerical modeling of long range transport of acidic species in association with meso- β -convective clouds across the Japan sea. Part I: Model description and qualitative verifications, Atmospheric Environment, 27A, No.9(1993) in press.
- 11) Kitada, T. and P.C.S. Lee : ibid. Part II: Results and discussion, Atmospheric Environment, 27A, No. 9 (1993) in press.
- 12) 北田敏廣：酸性雨、酸性雪の予測モデル。環境と測定技術、20 (1993) 印刷中。
- 13) Kitada, T. : An Eulerian simulation of the transport/chemistry of trace chemical species associated with the typhoon Mereille. Presented at 2nd PEM-WEST Workshop, NASA-Langley, Virginia, March 22-26, 1993.
- 14) Kitada, T. : Turbulence structure of sea breeze front and its implication in air pollution transport -Application of k- ϵ turbulence model Bound.-Layer Met., 41, 217-239 (1987)。
- 15) Lurmann, F.W., A.C. Lloyd and R. Atkinson: A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling, J. Geophys. Res., 91, 10905-10936 (1986)。