

9. 冬季の東アジアー西太平洋域における酸性物質の長距離輸送一沈着モデル、排出源分布に対する沈着量の感度解析一

MODELING STUDY OF THE LONG RANGE TRANSPORT OF ACIDIC POLLUTANTS OVER EAST ASIA AND THE WESTERN PACIFIC OCEAN

北田敏廣* ・ 西沢匡人*

Toshihiro KITADA, Masato NISHIZAWA

ABSTRACT; Long range transport/transformation/deposition of various trace chemical species has been simulated over east- and southeast-Asia and the west Pacific ocean during February and March, 1994. Emission sources considered in the simulation include natural sources of NO_x due to lightning, soil micro-biological activity and biomass-burning, and of SO_x from volcano as well as anthropogenic sources of NO_x, SO_x and hydrocarbons; the anthropogenic NO_x sources also include aircraft emissions. Comparison of calculated concentrations with PEM-West-B (Pacific Exploratory Mission-West, Phase B) campaign data showed good agreement for O₃, SO₂ and hydrocarbons such as C₂H₄, C₂H₆ and C₃H₈, and acceptable for NO_x, HNO₃ and PAN. Furthermore, dry and wet depositions of both S and N compounds were calculated and the results are evaluated by comparing with observation in Japan area. Sensitivity analysis of deposition to the scavenging coefficients and source strength is presented. Relative contribution of emission sources in East Asia to the acidic deposition over Japan are also estimated.

KEYWORDS; Semi-global-scale model, long range transport, acid deposition, East Asia

1. はじめに

東アジア諸国における増加する化石燃料使用に対する懸念から、当該規模の広域環境管理に関する関心が高まっている。例えば、エネルギー源として石炭の比重がさらに高まれば、排出されたSO₂から酸化生成するSO₄²⁻の広域にわたる沈着の影響が懸念される。さらに、NO_x排出量の増加もHNO₃の生成および対流圏O₃濃度やOH濃度の増加をもたらし、大気の酸化能力の増大が予測される。NO_x排出には、対流圏下層での人為排出ばかりでなく、航空機による上層排出さらには土壌、バイオマス燃焼、雷放電などの自然起源の排出源も考えられ、特に、東南アジア等では、このようなソースの影響も考慮した総合的な広域環境予測と管理が必要と考えられる。

広域環境管理の方法は、排出源の制御・計画であるが、適切な制御・計画のためには、酸性物質の沈着量分布や濃度場に、排出源の位置・規模がどう影響するかを表現できる微量化学物質の輸送／反応／沈着モデルが必要となる。本報告は、筆者らのモデルについて簡単に述べ、さらにモデルによる計算結果結果の例を示すものである。

酸性物質を含む多くの微量大気化学物質について、1994年2～3月を対象に東アジアー西太平洋域に対して

* 豊橋技術科学大学工学部エコロジー工学系

Dept. of Ecological Engineering, Toyohashi University of Technology, Toyohashi 441, JAPAN

輸送・反応・沈着のシミュレーションを行った。排出源としてNO_x, SO_x の人為燃焼起源ばかりでなく、NO_x については雷放電、土壌からのNO_x、バイオマス燃焼、航空機NO_xを、またSO_xについては火山（桜島）の自然および上層排出源も含めた。対象期間中に行われたPEM-West (B) の観測データを用いて計算値を評価した。多くの化学種で良好な一致を見た。さらに、酸性物質の沈着量について日本を対象に観測値との比較を行った。さらに、日本域の酸性物質沈着量に対する大陸起源の酸性物質の割合についてもその空間分布を推定した。また、乾性沈着、湿性沈着のモデリングおよび排出源強度分布の違いに対する沈着量の感度解析を行い、推定沈着量の変動幅を調べた。

2. モデルの概要^{1), 2)}

モデルは、非定常空間3次元（球座標；鉛直方向 σ 座標）で化学反応と湿性および乾性沈着過程を含む移流・拡散方程式系を数値的に解くことからなる。他にモデルで考慮されている過程は、(1)上述の各種の自然NO_x排出源および航空機NO_x排出源、(2)積雲対流によるサブグリッドスケールの鉛直物質輸送である。モデル中の輸送化学種は、NO, NO₂, HNO₃, PAN, SO₂, SO₄²⁻, O₃, H₂O₂および主要な炭化水素等25種、定常状態仮定の化学種は、OH, HO₂等13種である。化学反応モデルは、90の反応から成る（Lurmann, Lloyed, and Atkinson, 1986³⁾）を修整）。さらに、乾性と湿性の沈着過程（Kitada et al. 1997²⁾；北田、1994⁴⁾）も含む。以下に、硫酸および硝酸エアロゾル粒子に対する雨滴(式(1))と雪粒子(式(2))による除去速度係数（s⁻¹）を示す。

$$\Lambda_{p, \text{rain}} = 6 \times 10^{-4} \eta_r P^{0.75} \quad (1)$$

$$\Lambda_{p, \text{snow}} = \frac{\rho_w g \eta_s (3.6 \times 10^{-6} P)}{\rho_a V_t^2} \quad (2)$$

ここに、 η_r は雨滴によるエアロゾルの捕集効率、 η_s は雪粒子による同様の効率、 P は降水量（mm hr⁻¹）、 ρ_w は水の密度、 ρ_a は空気（1 kg m⁻³程度）の密度、 g は重力加速度（9.8 m s⁻²）、 V_t は雪粒子の落下速度（m s⁻¹）： $V_t = (102 + 51 \log_{10} d_c)/100$ （Knutson et al., 1976⁵⁾）、 d_c は雪粒子の直径（500 μ m）と仮定。また、気体に対する雨滴による除去係数（s⁻¹）は、例えば、SO₂に対して式(3)で与えた：

$$\Lambda_{\text{SO}_2} = \frac{\alpha P}{3.6 H} \quad (3)$$

$$\alpha = 10^{-6} R T H_{\text{eff}}$$

ここに、 H は雲頂高度(m)、 R は普遍気体定数（=0.082 l atm K⁻¹mol⁻¹）、 T は気温（K）、 H_{eff} は有効Henry定数（mol l⁻¹ atm⁻¹：pH=5.5、 $T=273$ K のとき、 $\alpha=0.527$ ）である。

Fig. 1 a, bにアジア地域の人為SO_x, NO_x排出源（Akimoto and Narita, 1994⁶⁾より作成）を、またFig. 2に土壌からのNO_x排出（Yienger and Levy, 1995⁷⁾より作成）を示す。Fig. 1, 2の領域内の各種NO_x排出源強度の文献に基づく推定値をTable 1に示す。人為NO_xは年間値を12等分して月間値とした。また、その他のソースはそれぞれ年度は違うもののほぼ3月に対応する月間値を表す（表の数値はもとより多くの不確定性を含み推定の第1ステップと考えるべきもの）。SO₂の自然源として、桜島からの排出量も含んでいる。さらに、非メタン炭化水素の排出源は、人為NO_x源に一定の比率で連動する形で与えた。

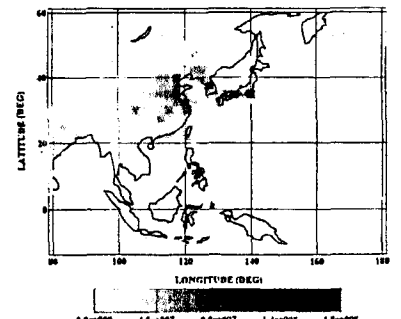


Fig. 1a. NO_x emission by fuel combustion for 1987 in kg-N m⁻² yr⁻¹ (Akimoto and Narita, 1994).

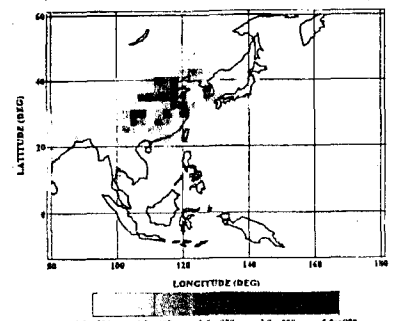


Fig. 1b. SO₂ emission by fuel combustion for 1987 in kg-S m⁻² yr⁻¹ (Akimoto and Narita, 1994).

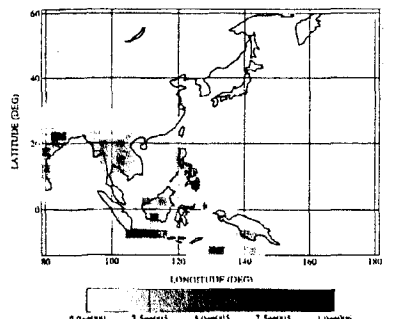


Fig. 2. NO_x emission by soil micro-biological activity for March, 1990 in kg-N m⁻² month⁻¹ (Yienger and Levy, 1995).

3. モデルシミュレーション

冬から春の期間に対する例として、1994年2月21日00GMT～3月15日00GMTにわたってFig. 1の領域を対象に物質の輸送・反応・沈着シミュレーションを行った。Fig. 3に計算に用いた降水場の例（3月の月間値）を示す。この期間を選んだ理由は、PEM-WEST(B)と

Table1 NOx emissions in calculation domain

Source type	Emission strength(kg-N/month)	Relative strength
Fuel Combustion	3.59×10^8	1
Aircraft	6.92×10^6	0.019
Lightning	3.40×10^7	0.097
Soil	3.87×10^7	0.108
Biomass Burning*	3.87×10^7	0.108

* Assumed

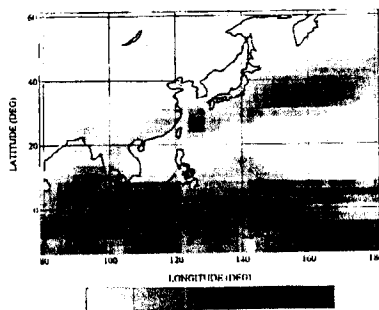
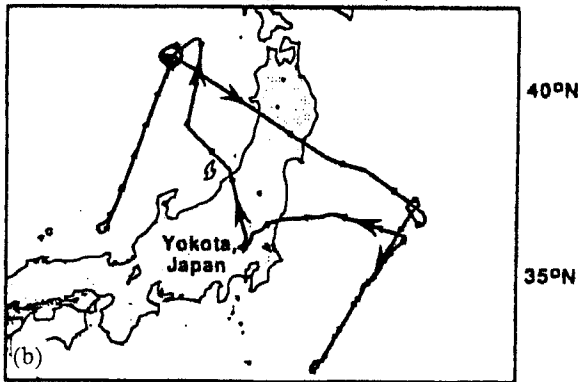
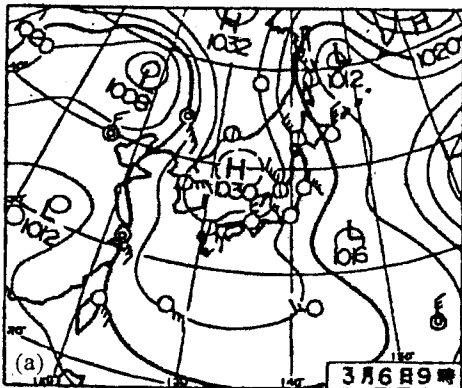


Fig. 3. Monthly precipitation for March, 1994 in mm month⁻¹ (Xie and Arkin, 1995).

Fig. 4a. Weather map for East Asia at 00GMT on 6 March, 1994.

Fig. 4b. Flight route for Mission 15 on 6 March, 1994 (PEM-WEST(B)).



呼ばれる大規模な航空機観測が行われ、得られた各種化学種濃度がモデル検証のデータとして使えることにある。計算領域は高さ方向に10hPa(約30km)である。格子長は高さ方向に変動格子の17層であり、水平方向に2.5° x 2.5° の均一格子である。その他、タイムステップは輸送過程に対して1800秒、化学反応過程に対して12秒である。流れ、気温等の気象場は、ECMWFの全球場（1日2回）を用いた。

4. 結果および考察

4. 1 シミュレーションケース

(a)式(1), (2), (3)で示した scavenging coefficient（雨滴によるエアロゾル粒子の捕集、雪によるエアロゾル粒子の捕集、雨滴によるガス吸収）、(b)雨か雪かの判定のための地上気温、(c)2.5° x2.5° の格子内での雨域の割合、(d)Sの人為排出源強度、等をパラメータとして、主として日本への酸性物質沈着量の変動を調べた。

4. 2 PEM-West(B) 観測値との比較

Base case(Case 1: 通常の排出源、降水有り; $\Lambda_{p, rain}=3.0 \times 10^{-4} P^{0.75}$; $\Lambda_{p, snow}=5.6 \times 10^{-4} P$; $\Lambda_{SO_2}=0.525 P/(3.6 H)$; $\Lambda_{HNO_3}=0.5 \times 10^6 P/(3.6 H)$), Case 2(通常の排出源、降水なし)について。PEM-WEST(B)は2ヶ月間に19回のFlightを行い、日本付近ではそのうちFlight 14～17が該当する。Fig. 4はFlight 15が行われた3月6日の天気図とそのコースを示す。Flightは、境界層から高さ10kmの下部成層圏まで大きく高度と水平方向に位置を変えながらの観測でシミュレーションの比較検証にはかなりむづかしい条件である(Fig. 5中のフライト高度変化参照)。Fig. 5a, b, c, d, e, fが、Flightコースに沿っての観測値と計算値(Case 1)の比較であり、順にNO, HNO₃, C₂H₄, O₃, SO₂, SO₄²⁻を示す。図中、丸印(○)は Case 1 を、四角(□)は Case 2 を表す。NO, HNO₃等のピーク濃度の時間にズレ(計算値: 26時、観測値: 26時30分頃)があるが、計算の格子長が2.5° x2.5° とかなり粗いことを考慮するとほぼ満足すべき結果と考えられる。NO, HNO₃, C₂H₄, SO₂, SO₄²⁻など地表面近くで排出される物質(およびそれに起源を持つ物質)は、26時と29時付近に明瞭なピークを示す。それぞれ、日本海上と太平洋上(Fig. 4参照)で観測機が低空飛行をした時に対応する。当日、シベリア高気圧

上空で安定な成層をしている。大陸諸国および日本で排出された汚染物質が、この安定成層のゆえに上空に拡散することなく、プルーム状に海上に流出したことを示している。なお、 HNO_3 、 SO_2 、 SO_4^{2-} など、水溶性の物質については、Case 1(○)の降水による除去過程を含めた計算の方がより観測値に近い結果を示している。

4.3 酸性物質沈着量分布

PEM-West(B)での観測によれば遠隔地の太平洋上でも50pptv程度の HNO_3 は常に存在している。この濃度をシミュレーションにおいてもバックグラウンド値として用いた。Fig. 6aはバックグラウンドを含むN-化合物の総沈着量分布(3月1日GMTから15日00 GMTまでの14日間; Case 1)を、Fig. 7aはバックグラウンド濃度に基づく沈着を差し引いた沈着量分布を示す。低緯度では降水量が多く、このバックグラウンド的(領域外からの流入; 上空 NO_x ソース)な沈着がかなりの量を占める可能性を示している。ただし、南方のスコールの雨(一時期に大量に降る雨)による沈着は雨量の割には、効果的

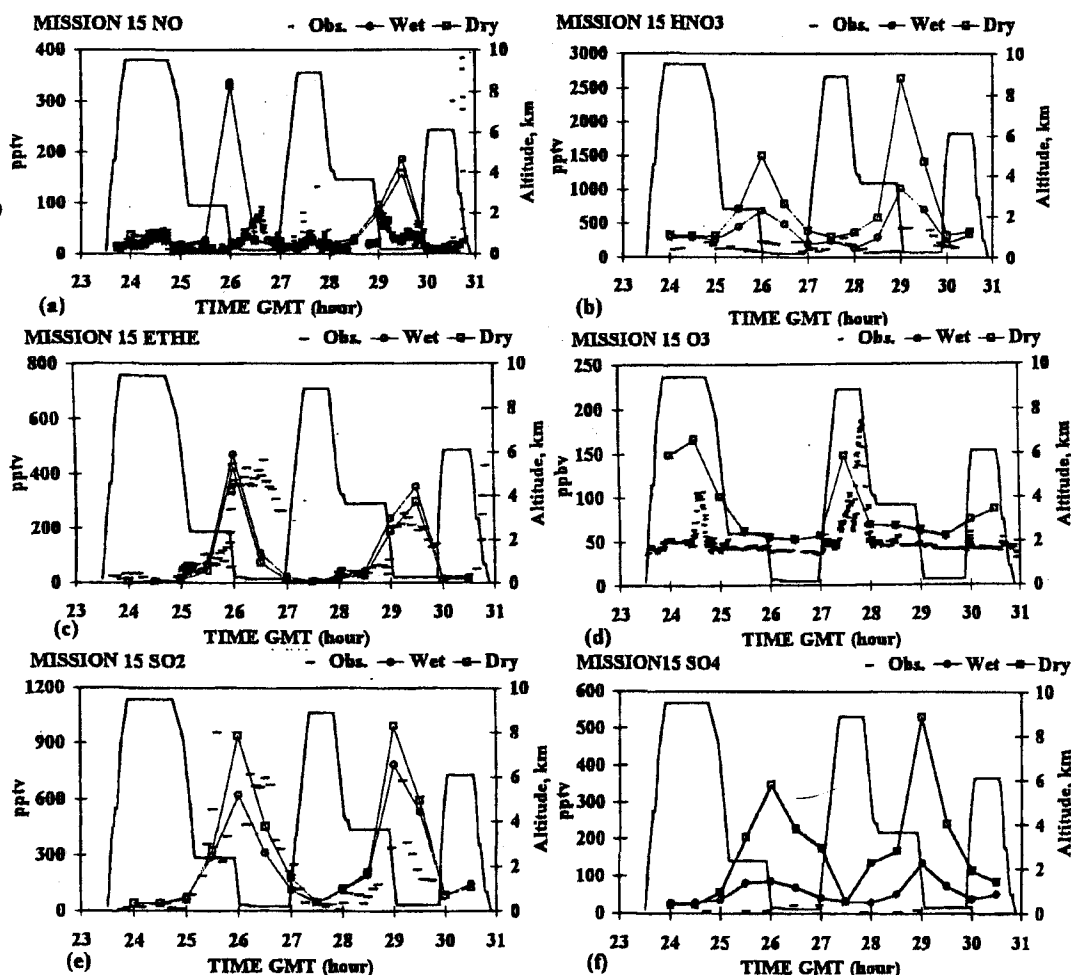


Fig. 5. Comparison of the calculated concentration with the observed along Mission 15
Flight route: (a) NO , (b) HNO_3 , (c) C_2H_4 , (d) O_3 , (e) SO_2 , (f) SO_4^{2-}

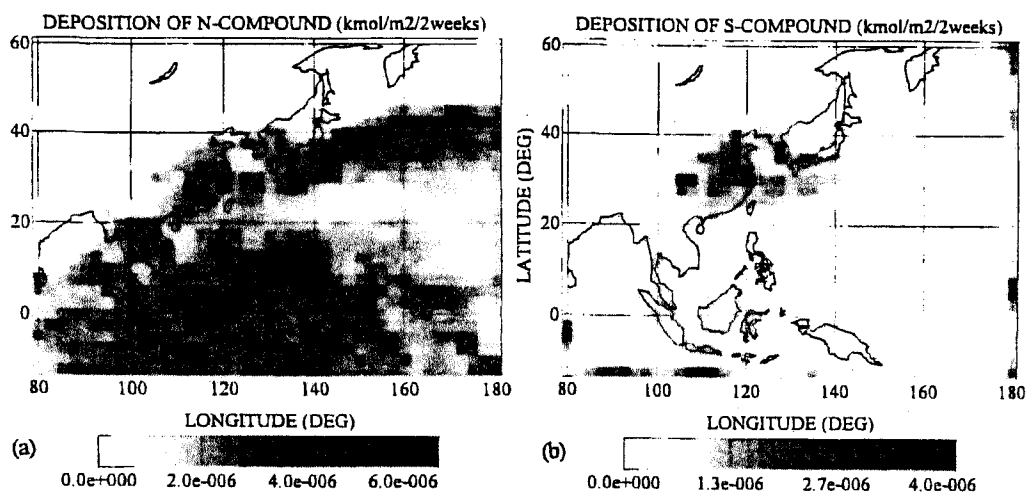


Fig. 6. Calculated dry + wet deposition of total (a) N- and (b) S-compounds in kmol m^{-2} (14days)⁻¹; deposition due to background HNO_3 , SO_2 , and SO_4^{2-} are included.

でないと考えられ、さらに実データ等との比較検討が必要である。一方、Fig. 6b, 7bは、S-化合物に対する同様の図を示す。硫黄化合物の場合は、バックグラウンド的な沈着は少なく、従って、Fig. 6bと7bはほとん

ど変わらない。

4.4 日本への酸性物質沈着量

Fig. 8は、日本における1994年3月のS-沈着量(湿性+乾性)の観測値⁹⁾と計算値(Case 1)であり、Fig. 9は同様にN-沈着量に関する比較である。

観測降水量と計算に用いた降水量では場

所によりかなりの違いがあるが、補正を施さずそのまま比べたものである(3月1日00GMT～15日00GMTまで14日間；単位、 $\text{kmol m}^{-2} \text{14day}^{-1}$)。計算は、 $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ の格子で行われたが、観測点はこの格子内に複数点含まれ、それらの点の間で観測値は大きな変動を示している。局地的に強い

排出源が分布する地域では、少しの距離を隔てるだけでも大きな沈着量の差を示しており(例えば、東京と筑波、名古屋と犬山など)、計算値と観測値の高度の一致を見るためには、バックグラウンド的な長距離輸送を見積もるための広範囲のシミュレーション(比較的粗い格子長)に精細な格子長(例えば、数km)を持つ小領域のシミュレーション(むろん、排出源情報も、また難しいが降水情報もそれに見合った解像度が必要である)をネスティングする必要性を示唆している。

4.5 S分沈着量の感度解析

湿性沈着速度に係わる各種の係数および排出源強度を変えた場合の日本へのS分湿性沈着量の感度解析を行った。降水量で除した降水1mm当たりの観測沈着量と計算沈着量を比較した。ただし、比較は同一計算格子内($2.5^\circ \times 2.5^\circ$)に存在するいくつかの観測値については平均して一つの値とした。Figure 11aは式(3)の SO_2 の雨滴による除去係数中の α を変化させた場合である。 α は温度および液滴内の水素イオン濃度でかなり大きく変わりうる。図中、丸印はCase 1(Base case； $\alpha=0.525$ 、すなわちpH5.5、温度273Kのとき)をあらわし、四角印は $\alpha=0.089$ (pH5、温度273Kに対応)の場合を示す。降水が雪であれば(地上気温で判定)式(3)が適用されないモデル構造となっているためどの地点でも同じ影響を受ける訳ではないが、沈着量には大きな差が出ることを示す。Figure 10bは、降水が雨である場合、 $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ の格子内で雨域の面積比率を0.7(Δ)と仮定した場合と格子内全域が降雨とした場合(Case 1； $\circ$ 、すなわち比率が1)の比較を示す。むろん、雨域を小さく仮定した場合、沈着量の減少が見られる。Fig. 10cは、式(2)における雪粒子による捕集効率を η 、 $=0.001$ ($\diamond$)、 0.002 (Δ ；Case 1も同じ。ただし、本ケースの場合、Case 1と異なり雨域の面積比率0.7を採用、Fig. 10b参照)、 0.003 ($\times$)の各場合を示す。図より、今の場合、雪粒子による沈着効率の増大は、あまり大き

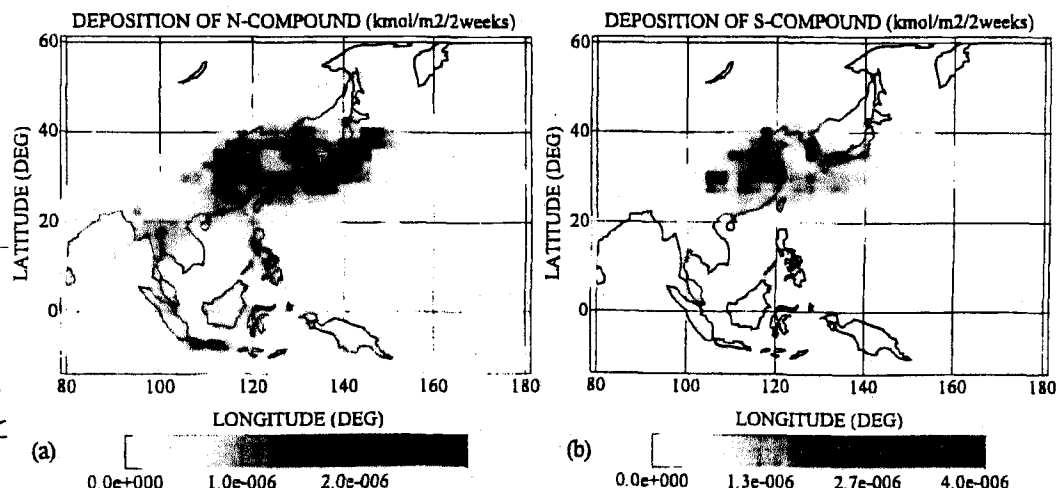


Fig. 7. Same as in Fig. 6. But without depositions due to background concentrations.

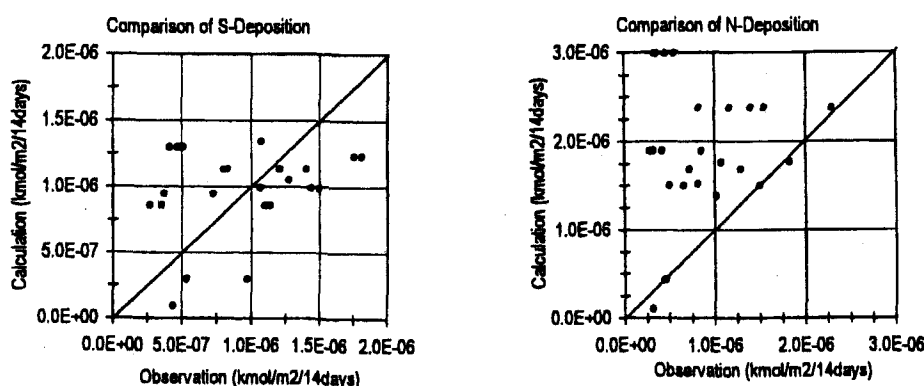


Fig. 8. Comparison of calculated vs. Observed depositions of S-compounds.

Fig. 9. Same as in Fig. 8. But for N-compounds.

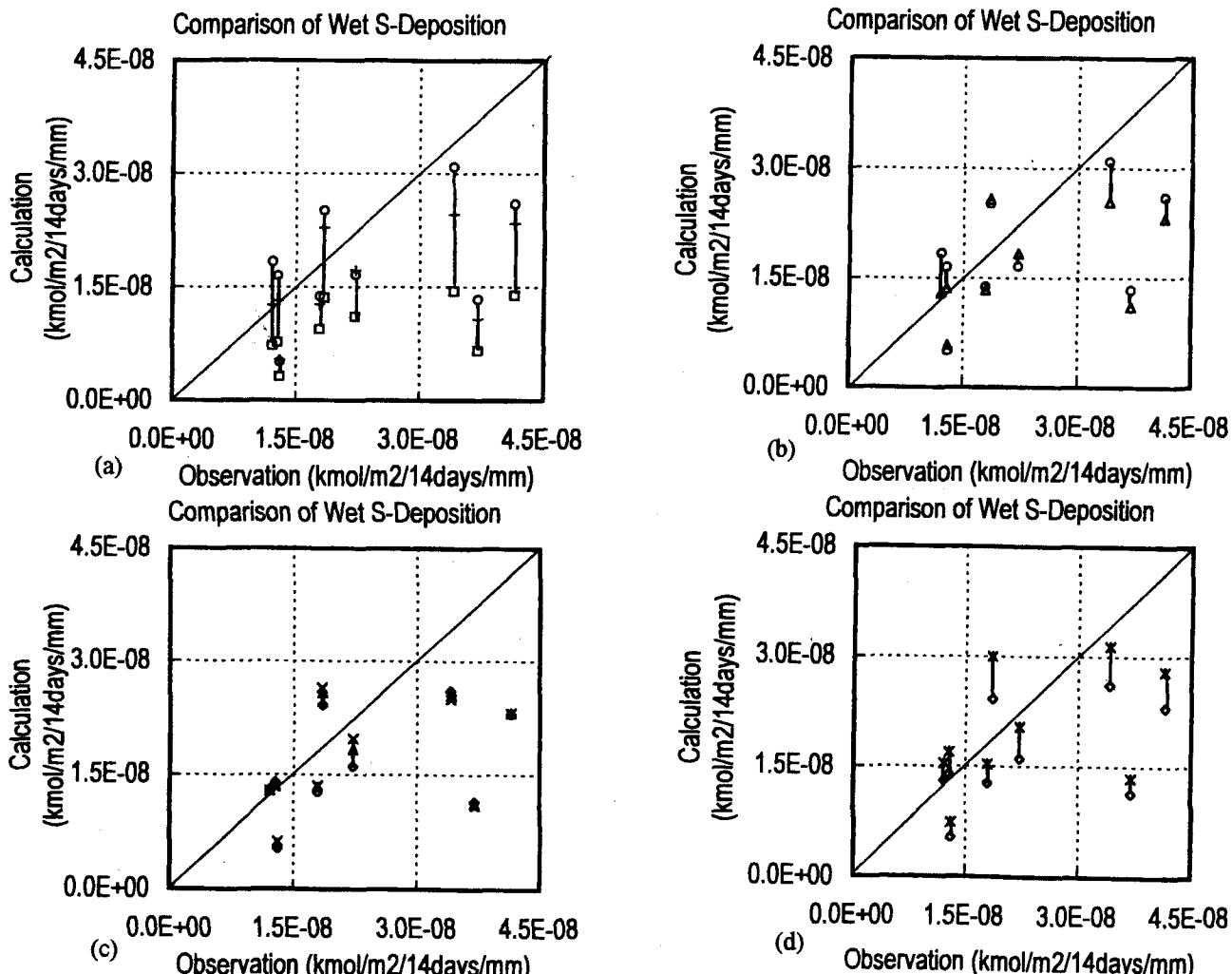


Fig.10 Sensitivity of S-wet deposition at sites in Japan to (a)SO₂ scavenging coeff. by rain, α in Eq. (3); ○, Case 1 ($\alpha=0.525$) and □, ($\alpha=0.089$), (b)ratio of rainy area to one grid cell area; ○, the ratio 1 and △, 0.7, (c)aerosol scavenging coeff. by snow, η_s in Eq. (2); ◇, $\eta_s=0.001$, △, 0.002, and X, 0.003, and (d)SO₂ emission strength; ◇, normal case, and * 1.2 times emission strength at latitudes $\geq 30^\circ$ N and 1.5 times those at latitudes $\geq 40^\circ$ N. な意味を持たないことを示す。最後に、Fig. 10dは、SO₂の排出源強度を、30° N以北で1.2倍、40° N以北で1.5倍とした結果(*)と通常の排出強度の場合(◇)を示す。冬季には燃料の使用量増大が考えられ、排出強度分布の違いに対する感度解析も必要と考えられる。

4. 6 日本の酸性物質沈着量に対する大陸の寄与率分布

日本への沈着量に対する大陸排出源の寄与率を推定するために、日本の排出源を除いたケースも実行した(その他の条件は、Case 1と同じ)。Fig. 11a, bは、全排出源を用いたケースと日本の排出源のみを除いたケースに比較により推定した沈着量に対する大陸排出源の寄与率を表す(Fig. 11a: S成分、Fig. 11b: N成分)。Fig. 11a (S成分)は、(1)東京、大阪、北九州などの日本の局地的な排出源の大きな場所で大陸排出源の寄与率が60%程度で相対的に低いこと、同じく、(2)北海道等日本の北部で低いこと、また、(3)能登半島などで高い(80%程度)ことを示している。一方、N成分(Fig. 11b)の場合もS成分と同様の傾向を示すが、大陸排出源の寄与率が低いことが示唆されている(例えば、東京付近で35~40%程度)。

5. おわりに

PEM-West(B)観測が行われた1994年2月~3月に合わせて、東アジアから西太平洋にまたがる領域で輸送・反応・沈着の数値シミュレーションを行った。航空機観測の結果と比べて多くの化学種で良好な一致を見た。当該期間に日本で取得されていた観測沈着量と計算沈着量の比較を試みた。大領域を扱うのに伴う空間解像

度の粗さを考慮すれば、アクセプタブルな一致と評価している。ただ、沈着量を左右する多くの原因があり、次のことが、さらに必要と考えている。

(1) 広範な感度解析を通じて各過程の適正さを検討すること、さらに、(2) 従

来、比較の対象として日本における沈着量のみを取り上げているのが多かったが、日本での沈着量についてモデルによる計算値と観測値がよい精度で一致したとしても、当該沈着量に対する日本の国内排出源の寄与と越境大気汚染による寄与率に関して様々な答えが得られうる。不確定性を除くため、日本での沈着量と同時にアジア大陸でのそれを再現できるかどうかを指針に検証すること、(3) 自然および航空機NO_x等の影響も含めて検討すること、さらに、(4) 一例計算的に、観測値と計算値の表面的な一致（あるいは、一致させるパラメーターのチューニング）をもって研究を閉じるのではなく、得られた結果に含まれる誤差の範囲を明らかにできるように、モデルに含まれるあらゆるプロセスを感度解析の対象とし、特に、排出源分布、乾性沈着、湿性沈着のモデルの適否、信頼性、変動の範囲をさらに追求することが必要である。

参考文献

- 1) Kitada, T., S. Isogawa, and Y. Kondo (1996) Long range transport of NO_x, SO_x and O₃ over East Asia and the northern Pacific ocean caused by typhoons. *Air Pollution Modelling and Its Application XI*, Plenum Pub., 191-201.
- 2) Kitada, T., M. Nishizawa, and Y. Kondo (1996) Long range transport of NO_x, NO_y, O₃ and SO_x over East Asia and the western Pacific ocean in winter season -A numerical analysis-, *Air Pollution Modeling and Its Application XII*, Plenum Pub., to appear.
- 3) Lurmann, F.W., A.C. Lloyd and R. Atkinson (1986) A chemical mechanism for use in long-range transport/acid deposition computer modeling. *J. Geophys. Res.*, Vol. 91, 10, 905-10, 936.
- 4) 北田敏廣(1994) 酸性降水の輸送・反応・沈着モデル. 気象研究ノート, 日本気象学会, No.182, 95-118.
- 5) Knutson, E.O., and J.D. Stockham (1976) Aerosol collection by snow and ice crystals. *Atmos. Environ.*, Vol. 10, 395.
- 6) Akimoto, H., and H. Narita (1994) Distribution of SO₂, NO_x and CO₂ emissions from fuel combustion and industrial activities in Asia with 1° x 1° resolution. *Atmos. Environ.*, Vol. 28, 213-225.
- 7) Yienger, J.J., and H. Levy II (1995) Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions. *J. Geophys. Res.*, Vol. 100, 11, 447-11, 464.
- 8) Xie, P., and P.A. Arkin (1995) An intercomparison of gauge observations and satellite estimates of monthly precipitation. *J. Appl. Meteor.*, Vol. 34, 1143-1160.
- 9) (株)数理計画 (1997) 平成5年度酸性雨実態把握調査及び総合パイロットモニタリング調査の解析、平成6年度環境庁委託業務結果報告書、366頁。

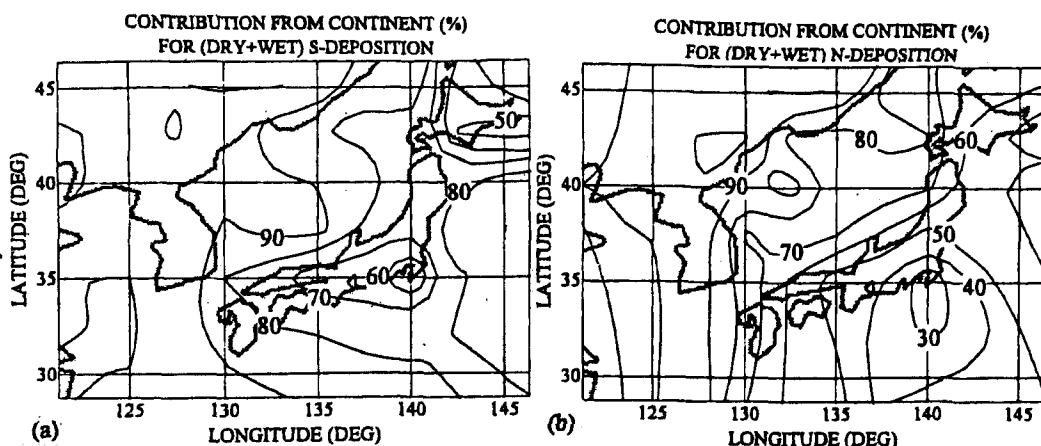


Fig. 11. Contribution of the emission sources over the East Asia continent to (a) S- and (b) N-depositions, unit : %.