

27. アジア地域における硫黄酸化物の化学反応と輸送過程の解析

Analysis of transport and chemical transformation processes of sulfur oxides in Asia

足立 進吾^{*}、藤原 健史[†]、松岡 譲[†]

Shingo ADACHI^{*}, Takeshi FUJIWARA[†] and Yuzuru MATSUOKA[†]

Abstract: In this study, we simulated the transport and chemical transformation of air pollutants with a focus on sulfur oxides in the three domains of Asia on different scales, by using the nesting technique of the chemical transport model.

The coarsest, middle and finest domains cover the most part of Asia in 80 km grid, the most part of China in 20 km grid, and Beijing and surroundings in 5 km grids, respectively.

The result of calculating pollutant concentration was compared with the observation by EANET and ACE-Asia.

By the method of process analysis which calculates the contribution of transport and transformation processes, it has showed that most of SO₂ is transformed to SO₄²⁻ throughout the seasons in southwestern area of China (inland), and that little part of SO₂ emitted from this area is transported out. On the other hand, transformation of SO₂ to SO₄²⁻ is active in the summer period in eastern area of China (coastal), and most of sulfur oxides are deposited in the area in the summer period, while greater part of sulfur oxides is transported out in the form of SO₂ in the winter period.

From the result of finest domain, the background SO₂ mixing ratio in Beijing transported from the outside of the domain is 5ppb in annual average, and reaches about 30ppb as the maximum of daily averages. In the case of the maximum value it is likely that the background concentration makes achievement of the Chinese environmental standard of SO₂ concentration difficult.

Keywords: sulfur oxides, process analysis, background concentration, chemical transport model

1. はじめに

アジア地域では、中国をはじめとする国々で急速な経済発展に伴い大気中に排出される汚染物質の量が増加している。汚染物質は排出源の集中する都市部で都市型の大気汚染を引き起こす一方で、化学反応を伴って輸送され、2次汚染物質の生成や越境大気汚染も重要な問題となっている。汚染物質の長距離輸送への有効な対策には、大気汚染物質の輸送・変化過程の把握が重要となる。一方、長距離輸送された大気汚染物質が、都市やその周辺部に与える影響の定量化も必要と考えられる。

本研究の目的は、硫黄酸化物を中心に、アジア地域、特に中国において、排出源近傍での濃度と長距離輸送による沈着量を同時に明らかにすることである。このためアジア全域にわたる領域から、1都市とその周辺を含む小規模な領域までの複数の空間的スケールにおいて、大気汚染物質の化学反応と輸送を統一された枠組みにより計算した。そして汚染物質の化学変化・輸送の過程を解析し、汚染物質の輸送や沈着の季節及び地域変動を考察した。また、他の都市から輸送された汚染物質が、都市およびその周辺に与える影響を明らかにするため、都市周辺での濃度変動を解析した。

^{*} 京都大学大学院情報学研究科数理工学専攻, Department of Applied Mathematics and Physics, Graduate School of Informatics, Kyoto University

[†] 京都大学大学院工学研究科都市環境工学専攻, Department of Urban Environmental Engineering, Graduate School of Engineering, Kyoto University

2. 方法

気象場の再現には PSU/NCAR のメソスケール気象モデル MM5 Version 3.7、化学輸送モデルには、米国環境保護庁の Models-3/CMAQ Version 4.5 を利用した。CMAQ の実行領域を図 1 に示す。実行領域は経度 107°、緯度 22°を中心とした Lambert 等角円錐座標系(標準緯度 10°、30°)上に設定した。以降、図 1 に示した記号を用いて、3 つの実行領域を D1、D2、D3 と呼ぶ。領域 D1 はアジア地域のほぼ全体を収めるように設定し、領域 D2 は中国で主要な汚染物質発生源のある内陸、沿岸部を含むように設定した。領域 D3 は北京を中心に設定した。格子サイズは D1 を 80km、D2 を 20km とし、D3 を 5km とした。CMAQ の実行領域の格子数は領域 D1 で 97×79、領域 D2 で 102×110、領域 D3 が 42×42 (いずれも東西×南北)である。鉛直方向には、全ての領域において最上層の気圧を 50hPa に設定し、下の 10 層を MM5 の鉛直グリッドと一致させ 14 層のグリッドを設定して計算した。

領域 D1 の気象場の初期条件と境界条件は 2001 年の ECMWF 客観解析データ、NOAA による海表面温度解析データ Optimum Interpolation Sea Surface Temperature Version 2 (OISST2) (Reynolds ら, 2002)を利用した。

大気中への人為起源汚染物質の排出量インベントリには、(1) 神成ら(2005)の推計による東アジア大気汚染物質排出量グリッドデータベース(EAGrid2000)、(2) Streets ら(2003)の推計によるグリッドデータ、(3) Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) 3.2 Fast Track 2000 (Oliver ら, 2005)によるグリッドデータを使用した。いずれも 2000 年を対象に推計を行っているインベントリである。領域 D1 ではこのデータを補間し、領域 D2、D3 では部門ごとに(1) Landscan2003 (米国オークリッジ国立研究所)、(2) 中国全土土地利用図(中国科学院資源環境数据中心)、(3) VMAP(米国画像地図庁) Level 0 道路データを用いて 2'グリッドに再配分したデータを用いた。

三宅島からの SO₂ 放出量には、気象庁の発表している三宅島の SO₂ 放出量日量測定値より、月別に放出量を設定した。三宅島を除く火山からの SO₂ 放出量には、Streets らのグリッドデータとともにアイオワ大学が提供する推計値を用いた。その他の自然起源の排出量には、GEIA の取りまとめたインベントリを使用した。EAGrid2000 の推計を使用した領域において、SO₂、NO_x、NMVOC、CO、NH₃ については、Streets ら(2003)の推計を参考に月別の排出量変動を設定した。人為起源の化石燃料燃焼による排出量には、昼夜別の排出変動を設定した。

D1 の計算結果は、EANET の観測データと比較し、計算結果の検討を行った。D2 の計算結果は、硫黄酸化物(SO₂、SO₄²⁻エアロゾル)に対するプロセス解析により化学反応と輸送過程を解析した。また、領域 D3 では、通常の条件での計算に加えて、領域内の SO₂ 排出量をゼロとした条件でも計算を行った。領域内での排出量をゼロとした条件により計算される SO₂ 濃度を領域外から SO₂ の輸送により流入したバックグラウンド濃度と解釈し、別の都市から流入した SO₂ の都市周辺領域への影響を考察した。

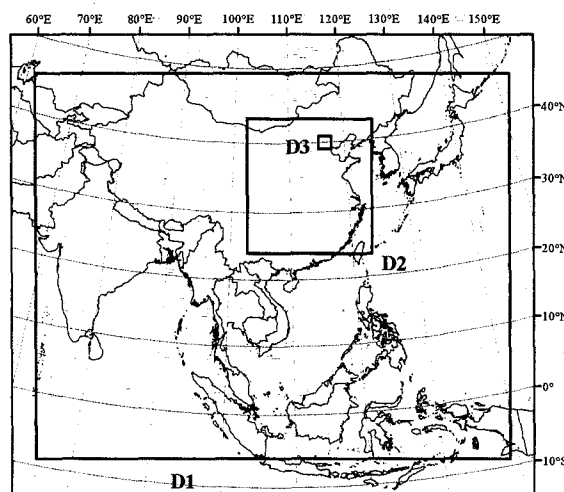


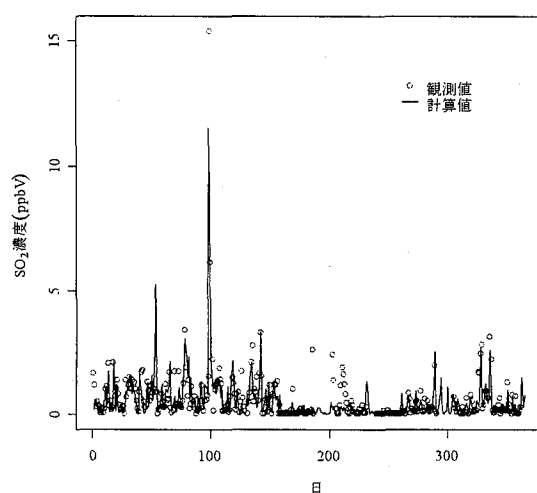
図 1 実行領域

3. 結果と考察

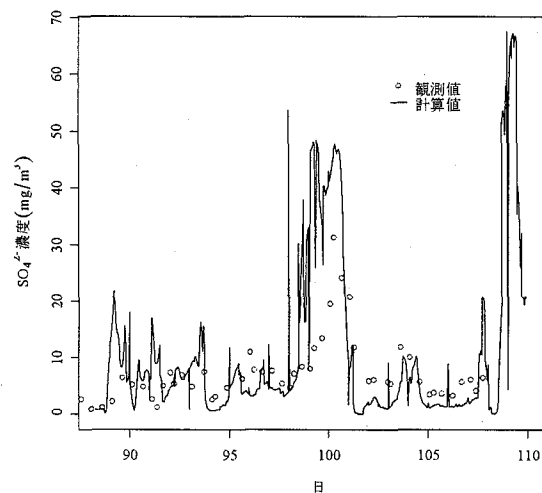
3.1. 観測データとの比較

図 2 (a)に EANET 隠岐観測点における SO_2 の日平均値の時系列を示す。観測値に見られる主要なピークを計算値は良く再現している。しかし観測値にあつて計算値に見られない一部のピークや、逆に計算値にあつて観測値に見られないピークが見られる。再現性の向上には、人為起源排出量の季節変動や火山起源排出量の変動、排出高度等の調整が必要と考えられる。

図 2 (b)に ACE-Asia 観測期間中の観測船 Ronald Brown による SO_4^{2-} エアロゾル(海塩起源を除く)の観測値と計算値の時系列を示す。 SO_4^{2-} エアロゾルは、低い観測濃度を低めに、高い観測濃度を高めに予測する傾向があるものの、ピークの位置はよく再現している。



(a) 隠岐観測点における SO_2 濃度の日平均値



(b) Ronald Brown 航路上の非海塩 SO_4^{2-} エアロゾル濃度

図 2 硫黄酸化物濃度の観測値と計算値の比較

3.2. プロセス解析

領域 D2 内での化学反応と輸送過程の地域的・季節的な傾向を見るために、領域 D2 を図に示す 4 つの小領域に等分し、それぞれについてプロセス解析を行った。ここでプロセス解析とは、移流・拡散や気相化学反応、湿・乾性沈着等の物理・化学プロセスそれぞれについて物質濃度変化への寄与を定量化する手法である。

重慶を含む左下部(図中小領域 A2)と、北京を含む右上部(図中小領域 B1)の SO_2 のプロセス解析の結果を図 3 に示す。正と負の値はそれぞれのプロセスによる物質の大気中での増加量と減少量(月ごとの日平均値で S 分の物質質量単位)を表す。図 3 (b)より、小領域 B1 では雲混合・液相反応による SO_2 の減少量が 6~9 月に大きく、この傾向は領域 D2 全体においても見られた。また、小領域 B2 においても雲混合・液相反応による減少量が 6~9 月に多いという同様の傾向がみられた。

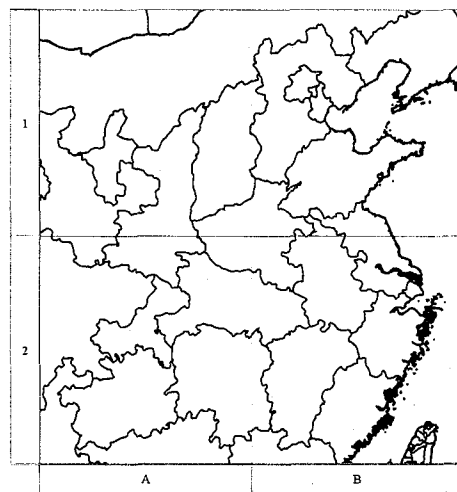


図 3 プロセス解析を行った小領域

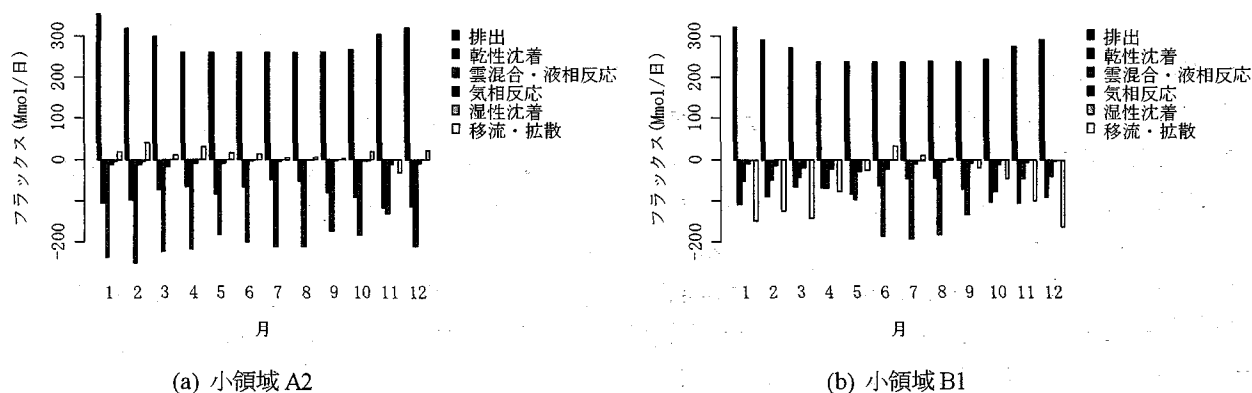


図 3 領域 D2 の小領域 A2 と B1 における SO_2 のプロセス別フラックス

一方、図 3 (a)より、小領域 A2 では各プロセスによるフラックスに季節による大きな変動は見られない。図 4 に小領域 B1、A2 のそれぞれについて SO_2 と SO_4^{2-} エアロゾルの双方を合わせた硫黄酸化物の沈着量を示す。小領域 B1 では 6~9 月に SO_4^{2-} の沈着量が増加し、同時に硫黄酸化物全体の沈着量も増加しており、この傾向は領域 D2 全体でも見られた。しかし小領域 A2 では沈着量には季節による大きな変動は見られず、沈着量に占める SO_4^{2-} の割合についても季節変動は見られない。小領域 A2 では硫黄酸化物全体の沈着量は年平均で排出量の 71%に達しており、小領域 A2 から排出された硫黄酸化物の多くが年間を通じて小領域 A2 に沈着していると考えられる。

図 3、図 4 より、硫黄酸化物の沈着量の季節変動は SO_4^{2-} の沈着量の変動に大きく影響されていることがわかる。これより、小領域 A2 における沈着量の季節変動が少ない傾向は、小領域 A2 で年間を通して液相反応による SO_2 から SO_4^{2-} エアロゾルへの変化が多いことで説明できると考えられる。

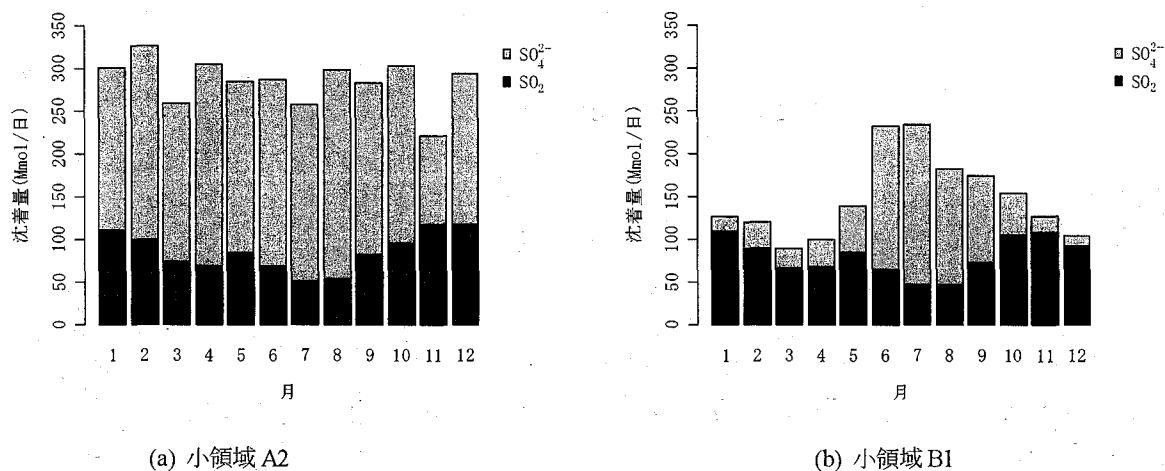


図 4 領域 D2 の小領域 A2 と B1 における硫黄酸化物の総沈着量の月変化

以上より、小領域 A2 では年間を通して SO_2 の多くが液相反応により SO_4^{2-} エアロゾルへと変化し、小領域 A2 に沈着すると考えられる。また、小領域 B1、B2 の沿岸部では、冬季の SO_2 から SO_4^{2-} エアロゾルへの変化は少なく SO_2 の輸送による流出量が大きくなる。一方、夏季には SO_2 の多くが SO_4^{2-} エアロゾルに変化し、小領域 B1、B2 に沈着する傾向があると考えられる。

3.3. 都市周辺領域における濃度変動

考察の対象とする点を人口分布(Landscan2003)とともに図5に示す。環境基準との比較を行う理由から人口の多い地域に設定した比較点で主に比較検討を行った。領域D3内のバックグラウンドSO₂濃度は、比較点において年平均値が5~7ppb、日平均値の最大値は50ppbとなった。境界に近い高碑店、天津の比較点では領域中央の北京に比べてバックグラウンド濃度が高く、境界からの距離が影響していると考えられる。北京においては、バックグラウンドSO₂濃度は年平均5ppb、日平均値の最大は32ppbとなった。領域の東に東唐山、西南に石家荘といったSO₂排出量の大きい都市が境界付近にあることが影響していると考えられる。この32ppb(約85µg/m³)は中国の2級環境基準値150µg/m³の57%に相当するため、領域外からのSO₂の流入が領域内のSO₂環境基準値超過に影響する場合があると考えられる。

また、図7に北京の比較点での最下層SO₂日平均濃度およびそのうちのバックグラウンド濃度の寄与を示す。バックグラウンドの年平均濃度は5ppb程度と大きくないものの、領域内からのSO₂排出量にバックグラウンド濃度が加わり高濃度となったピークが冬季において何度か見られる。したがって、日平均値により都市の濃度変動を考察する際には、バックグラウンド濃度を十分考慮することが必要と考えられる。

4. 結論

本研究では、メソスケール気象モデルMM5と化学輸送モデルCMAQを用い、アジア全域にわたる領域と中国の主要部を対象とした領域、北京とその周辺を含む領域まで、3段階の空間的スケールで統一的枠組みにより大気汚染物質の化学輸送計算を行った。以下に結果のまとめを示す。

- プロセス解析により、中国内陸部から排出された硫黄酸化物は大部分が内陸部に直接沈着すること、沿岸部から排出された硫黄酸化物は夏季には沿岸部に沈着するが、冬季には主にSO₂として流出することが明らかとなった。この傾向には、SO₂からSO₄²⁻エアロゾルへの変化量の季節変動が寄与していると考えられる。
- 北京において、都市およびその周辺への、他の都市から流入したSO₂のバックグラウンド濃度は、年平均値で2~7ppb、最大日平均値で約30ppbとなり、環境基準の達成に影響を与えうる濃度であることがわかった。

最後に、東アジア大気汚染物質排出量グリッドデータベースを提供いただいた神成 陽容 先生、村野 健太郎 先生に感謝申し上げます。

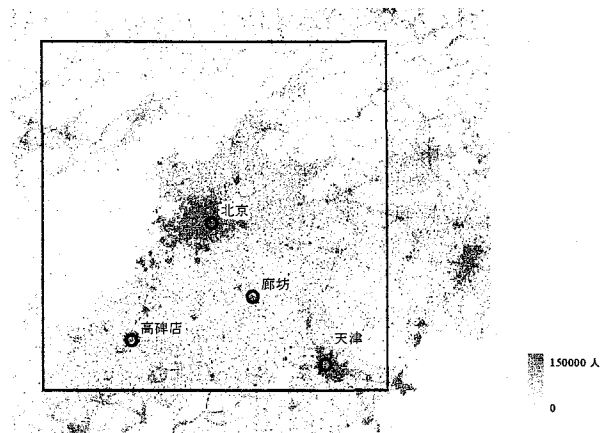


図5 領域D3での考察の対象点と人口分布

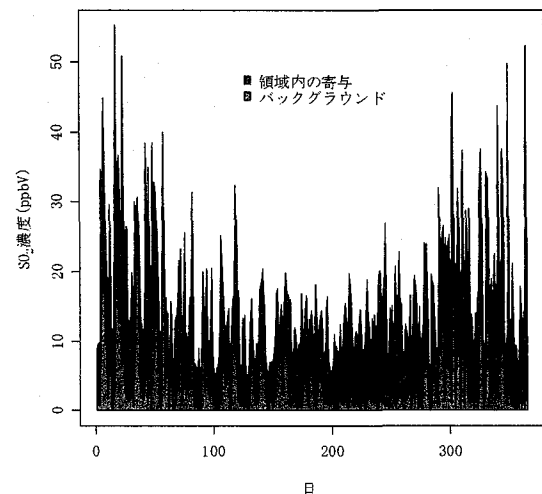


図6 北京でのSO₂濃度変化

参考文献

- 神成 陽容, 外岡 豊, 村野 健太郎 (2005): EAGrid2000 (東アジア大気汚染物質排出量グリッドデータベース)の概要.
気象庁: 三宅島の二酸化硫黄放出量,
http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/320_Miyakejima/so2_2000_2002.htm.
- Network Center for EANET: EANET Data Sets on the Acid Deposition in the East Asian Region.
- Olivier, J.G.J., J.A. vanAardenne, F. Dentener, L. Ganzeveld and J.A.H.W. Peters (2005): Recent Trends in Global Greenhouse Gas Emissions: Regional Trends and Spatial Distribution of key Sources, Non-CO₂ Greenhouse Gases NCGG-4, Millpress, 325–330.
- Reynolds, R.W., N.A. Rayner, T.M. Smith, D.C. Stokes and W. Wang (2002): An Improved In Situ and Satellite SST Analysis for Climate, *Journal of Climate*, **15**(13), 1609–1625.
- 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, *Journal of Geophysical Research*, **108**(D21), 8809.
- Zhang, M., I. Uno, Y. Yoshida, Y. Xu, Z. Wang, H. Akimoto, T.S. Bates, T. Quinn, A.R. Bandy and B. Blomquist (2004): Transport and Transformation of Sulfur Compounds Over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia Campaigns, *Atmospheric Environment*, **38**(40), 6947–6959.