



大気汚染の長距離輸送モデル*

岡本 眞一** 片谷 教孝***

酸性雨や2次粒子による汚染が注目を集めるようになって、これらの汚染現象を形成する輸送、変換、除去等の過程について、多くの報告がなされている。ここでは、これらのうち、汚染物質の長距離輸送のモデル化に関する近年の報文を紹介し、最近の研究動向について述べることにしたい。

1. まえがき

酸性雨や2次粒子の生成などの問題が取り上げられるようになり、その原因となるSO_xやNO_xなど1次汚染物質の排出量と環境濃度との因果関係を明らかにすることが要求されている。

SO₄²⁻などの2次生成粒子や酸性降下物は、発生源の近傍のみならず数10 km～数1000 kmの範囲にまで高濃度が及ぶこともある。このため、これらの現象の解析には、数1000 kmのスケールでの汚染物質の輸送、拡散、反応(気体から粒子状物質への変換)、沈着の過程を表現できる数式モデルが必要である。このような数式モデルを、大気汚染の長距離輸送モデル [Long-Range Transport (LRT) Model] と呼んでいる。

汚染気塊の数百 km 以上の移動についての研究は、1970年代以降に主として北アメリカおよびヨーロッパにおいて実施されてきた。これらの研究の多くは2次生成粒子および酸性降下物を対象としたものであるが、原子

力発電所からの放射性物質の移流(Heffter et al., 1975)やオキシダント等の光化学スモッグ(Lamb, 1982)などを扱ったものもある。

火力発電所からの煙流中でのSO₂からSO₄²⁻への変質も含めて、10 km から 100 km 程度までの煙流観測は、1970年代の中頃にアメリカにおいて多数行われた。これらの観測としては、MISTT (Midwest Interstate Sulfur Transport and Transformation) プロジェクト(Gillani et al., 1978)、STATE (Sulfur Transport and Transformation in the Environment) プロジェクト(Schiermeier et al., 1979)などが著名である。これらのプロジェクトについては鶴田(1981)などが紹介している。

Carras and Williams (1981) はオーストラリア中央部の砂漠地域にある Mt. Isa 精錬所からの排煙を風下距離約1000 km まで航空機を使用して観測し、煙の拡散幅について検討している。この他に、火山の噴煙や大規模森林火災の煙をトレーサーとして、ユーロゾルの長距離輸送について解析している報告もある。

エアートレーサーを用いた長距離輸送の実験としては、1983年に実施されたCAPTEX計画(Cross-Appalachian Tracer Experiment)が有名である。この実験では米国オハイオ州とカナダのSudburyからC₇F₁₄(過フッ化-1-メチルシクロヘキサン)を噴霧し、アメリカ北東部を中心に300～1100 kmの範囲に測定網を展開している。この実験の詳細はFerber et al. (1986) が紹介している。

この長距離輸送モデル及び酸性沈着についての単行本

* Long range transport model for air pollution.

** Shin'ichi Okamoto, 東京情報大学経営情報学部.

*** Noritaka Katatani, 富士通エフ・アイ・ビー(株) 技術開発部.

としては Martin (1982), Georgii and Pankrath (1981), Beilve and Elshout (1982), Bubenick (1984) などがある。また、これらについての総説としては、鶴田 (1981), 笠原 (1983), Bass (1980), Eliassen (1980), Johnson (1984) などがある。

ここでは、主として、2次生成粒子と酸性降下物を対象とした長距離輸送モデルについて、最近までの研究の動向について紹介する。

2. 長距離輸送のモデル化

汚染物質の移流と拡散を表現する数式モデルは、長距離輸送を表現する場合も、従来から多く扱われている数 km から数 10km 程度の都市スケールの場合でも基本的には同一である。しかし、長距離輸送モデルでは、対象とするスケールの拡大とともに移流時間が長くなり、したがって汚染物質の沈着過程が無視できなくなる。このため、ガス状物質及び粒子状物質の地表面への吸着などの乾性沈着及び雲粒の生成過程での吸収や雨滴による洗浄効果によって地表へ落下する湿性沈着のプロセスのモデル化が必要である。これらの長距離輸送・沈着過程の概念を模式的に示したものが第1図である。

都市スケールでの SO₂, NO_x などの拡散モデルでは、煙突の高さや大気安定度が重要な要素となる。しかし、長距離輸送モデルで対象とする数百 km 以遠では、一般的に汚染物質は地表から混合層 (あるいは上層の底

面) の高度までの間でほぼ均一に分布すると考えられているので、有効煙突高度などの変化は2次生成粒子濃度や酸性沈着物の量にはあまり影響を及ぼさない。また、汚染物質の輸送距離が長くなると、移流期間中に気象条件が変化しないことはほとんど考えられない。したがって、発生源からリセプター (濃度計算地点) までの間で、直線的に風下方向を決めることは困難である。

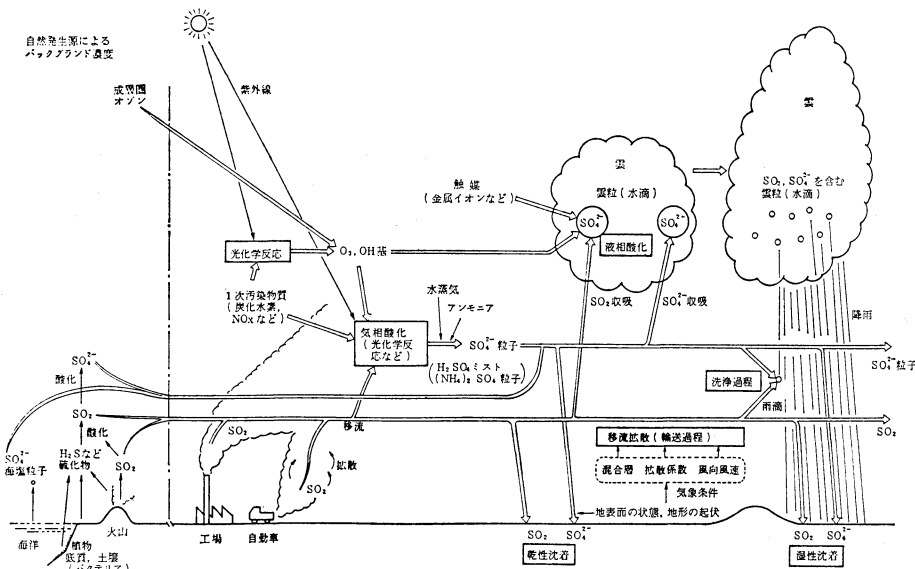
このように、2次生成粒子などの拡散モデルと、従来の都市スケールでの拡散モデルでは、移流拡散の基本式は同じであっても、無視できる要素と考慮すべき要素に相違がある。したがって、そのモデル化に関しても、従来のモデルとは異なる工夫が要求されている。

3. 長距離輸送モデルの分類

大気中の粒子状 SO₄²⁻ 濃度及びその沈着量を計算するための長距離輸送モデルは、大別して、毎日の濃度変化や沈着量を求める短期モデルと、月平均や年平均での濃度や沈着量を計算する長期モデルがある。このうち、長期モデルに関しては、短期モデル計算値を所定の期間にわたって加算して平均値を求める方法と、条件別濃度計算値にその出現頻度を乗じて直接に長期平均値を求める方法がある。

これらの拡散モデルの分類を第1表、代表的なモデルの特徴を第2表に示す。

1時間から1日程度の平均化時間における大気中



第1図 SO₂ を中心として長距離輸送・沈着過程の模式図

第1表 汚染物質の長距離輸送モデルの分類

・短期モデル（毎日の濃度変化を計算するもの）	
(1) 格子（オイラー）モデル	
・差分モデル	Durrant et al. (1979), Lavery et al. (1980)
・モーメント法	Egan (1976)
・擬似スペクトラル法	Murphy (1981), Van Dop and de Haan (1983)
・粒子モデル（PIC法など）	Cass (1981)
(2) 流跡線（ラグランジュ）モデル	
・リセプター・オリエンテッド	Ottar (1978), Reisinger and Crawford (1981)
・発生源オリエンテッド	Johnson et al. (1978), McNaughton et al. (1981)
(3) 混合モデル	Liu and Stewart (1982), Stewart et al. (1983)
・長期モデル（月平均、季節平均、年平均の濃度を計算するもの）	
(1) 統計的流跡線モデル	Shannon (1981), Venkatram et al. (1982)
(2) 短期モデル計算値の平均を求める方法	McNaughton (1980), Kleinman (1983)

SO₄²⁻濃度などを求めるシミュレーションモデルはほぼ光化学大気汚染モデルと同様のモデル構成となっており、大きくは格子（オイラー）モデルと流跡線（ラグランジュ）モデルに分類される。

都市スケールの光化学大気汚染モデルでは、格子間隔（差分間隔など）は1km～数km程度であることが多い。しかし、長距離輸送モデルでは、煙源から1000km以上の風下までの汚染物質の挙動を解析するため、一般に格子間隔は10km～100km程度となる。このため、孤立点発生源からの煙が短時間のうちに格子内に均一に分布するという仮定は採用し難い。したがって、煙源から排出された初期の煙はパフモデルで扱い、十分に拡散幅が大きくなった後に、そのパフに該当する煙の量に相当する濃度増加分を格子モデルの発生源項に加算する方法が提案されている。このようなモデルを混合モデルと呼んでいる。

格子モデルの中には、その解法により、差分モデル、モーメント法、擬似スペクトラル法、粒子モデルなどが含まれる。差分モデルは微分方程式を差分で置換し、微小時間先の濃度を順次計算する方法である。差分モデルには、時間差分と空間差分の取り方、陰解法と陽解法など多くの種類があるが、差分の取り方によって、擬似拡散（数値計算上の誤差、離散化による誤差などによって、物理量の拡散が生ずる現象）が大きくなることもある。モーメント法、擬似スペクトラル法では擬似拡散の発生を防ぐことができるが、計算方法はやや複雑になる。これらの計算方法については近藤（1985）などが紹介している。

流跡線モデルには、リセプター・オリエンテッドモデルと発生源オリエンテッドモデルがある。前者は、特定のリセプター（濃度計算地点）を基点として、一定時間間隔ごとにリセプターへ到着する気塊の位置を求め、その気塊中での1次汚染物質（SO₂など）と2次汚染物質（SO₄²⁻など）の収支を計算するものである。したがって、このモデルでは、リセプターを基点として、時間を逆上って、逆向きに流跡線の位置を計算してゆく。一方、発生源オリエンテッドモデルでは、発生源を基点として、時間の経過とともに変化する気塊の位置を前進的に求めてゆく方法である。特定のリセプターのみにおける濃度計算では、リセプター・オリエンテッドモデルのほうが計算量は少なくなる。しかし、後に発生源別の寄与濃度を求める場合（ただし、反応系が線型モデルの場合のみ）には、発生源オリエンテッドモデルの方が有利である。

以上のような格子モデルと流跡線モデルの比較をまとめた結果を、第3表に示す。

SO₂からSO₄²⁻への変換過程を含む長距離輸送モデルでは、SO₂-NO_x-HC（炭化水素）系の化学反応モデルを用いているものもある。このモデルでは、いくつかの物質については、紫外線による光分解も考慮されている。しかし、大部分のモデルでは、SO₂からSO₄²⁻への変換は指数近似的な方法であり、その酸化速度は、一定値であるとするもの、季節や時間帯によって変化させるもの、O₃濃度などの関数とするもの、などである。

次に、長期間の平均濃度あるいは沈着量を求めるモデルとしては、短期モデルの計算値を平均して求める方法

第2表(a) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Nordφ (1973)	Heffter et al. (1975)	McMahon et al. (1976)	Egan et al. (1976)	Sheih (1977)	Mendell et al. (1977)	Prahm et al. (1977)
モデル分類	短期モデル 格子モデル (Sector法: 数値解法)	短期・長期モデル 流れ線アルームモデル	短期・長期モデル ボックスモデル	短期モデル 3次元格子モデル (3層モデル, モーメント法)	STRAP 長期モデル 統計の流れ線モデル (縦道方向は差分モデル)	流れ線モデル (縦道方向は正規型アルーム式で分布を考慮)	擬似スペクトラルモデル
計算対象	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	流れ線モデルでは指定なし(放射性物質)	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ の全沈着量と湿性沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, S沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, それぞれの乾性・湿性の沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度
対象地域及び期間	ヨーロッパ北西部 1972年3月3-3日	アメリカ東部 (具体的に明示せず)	北米五大湖周辺 1973年	アメリカ北東部 1974年10月3日(2-5日)	アメリカ北東部 1972年4月1-20日	アメリカ北東部 1974年4月2-30日	ヨーロッパ 1974年8月
気象条件・風系		300m混合層上層までの平均風を使用, 空間補間は1/4 ² を使用	卓越気団と季節風別に混合層高度と安定度を設定	1000ftでの風(12時間間隔)より補間して3層に与える。	風はNIIAAのデータを(3h/5days)	100-1000mの平均風(12時間間隔)より補間して求める。	地表・850mb面での風より計算
流れ線の計算間隔と考慮時間		(放射性粒子について)					30分毎
主なパラメータ							
初期SO ₂ ²⁻ 比率							
SO ₂ 酸化速度	SO ₂ の減少 $k_a C + k_i C^2$ $k_a = 10^{-6} s^{-1}$ $k_i = 0.25 \times 10^{-6} m^3 s^{-1} \mu g^{-1}$			0.01-0.02h ⁻¹	SO ₂ 減少速度 10 ⁻² s ⁻¹ (0.036h ⁻¹)	0.02h ⁻¹	0.35h ⁻¹
SO ₂ 乾性沈着		Vd=0.3cm/s	1.5cm/s	1.3cm/s	1.0cm/s	0.1cm/s	0.015h ⁻¹
SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	SO ₄ ²⁻ の減少 3×10 ⁻⁶ s ⁻¹		0.2cm/s	0.1cm/s	0.1cm/s	0.1cm/s	0.06h ⁻¹
SO ₂ 湿性沈着			6×10 ⁻⁵ R s ⁻¹			$\lambda = 30m^{-1}$ (R=1mm/hとして 8.3×10 ⁻⁶ s ⁻¹)	
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着			3×10 ⁻⁵ R s ⁻¹			$\lambda \leq 250m^{-1}$ (縦径により変化) (ともにRに比例する)	
測定値と比較評価	定性的な検討	実測値との比較なし	SO ₂ ²⁻ 年間沈着量との地域分布などを比較	AIRMAPシステムによるSO ₂ とSO ₄ ²⁻ の測定値との比較	定性的な検討	相関係数は0.3程度(縦径により変化) (ともにRに比例する) (対象点源は全排出量の40%程度)	OECD LRTAPの実測値との比較あり SO ₂ , SO ₄ ²⁻ それぞれの場台の相関係数 0.7, 0.8

第2表(b) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Eliassen(1978)	Ottar(1978)	Fisher(1978)	Johnson et al.(1978)	Mills et al.(1978)	Durrant et al.(1979)	Shannon(1979)
モデル分類	長期・短期モデル 流れ線モデルは差分式、 短期モデルではその級 数解を使用) (詳細な検討は長期モデル において)	長期モデル Eliassen(1978)の流れ線 モデル	長期モデル (軸直並進と水平移流は 独立として、条件程度 で加重平均をとる)	EURMAP-1 長期・短期モデル 流れ線パフモデル	短期モデル 2次元格子モデル (類似スベクトラル法)	短期モデル 2次元1層・差分モデル (差分法: SHASTA法)	ASTRAP 長期モデル 統計の流れ線モデル (軸直方向は差分モデル ; 20層)
計算対象	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, Sおよび SO ₄ ²⁻ の乾性, 湿性沈 着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, SO ₄ ²⁻ 湿性沈着量と全Sの全沈 着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, 全沈着 量と湿性沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度 全Sの乾性と湿性の沈着 量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度 全Sの乾性および湿性沈 着量
対象地域及び期間	ヨーロッパ 1974年	ヨーロッパ 1974年	ヨーロッパ	ヨーロッパ 1973年1, 4, 7, 10月 1974年8月26日	アメリカ東部 1974年8月27日 (25日-28日)	アメリカ中西部 代表的な3ケース 1976年1月27-31日 1976年4月4-7日 1976年7月9-11日 1976年8月5-7日	アメリカ東部
気象条件・風系	Lは1000mで一定	地上風および650mbの風 を使用	U, L, K _z は1まともで合 計6通りに分類	850mbの風U, Vより混 合層内の風U, Vを推定 ($\bar{U} = 0.75 \times U$, $\bar{V} = 0.15 \times V$) (3h)パフが対象地域内に ある全期間)	高度600mでの風の測定値 (2回/日)より補間	高度2000mまでの風の測 定値より補間	高度2000mまでの風の測 定値より補間
流れ線の計算間隔 と考慮時間	5%		10%	0.01h ⁻¹	0.01h ⁻¹	0.003-0.03h ⁻¹	0.002-0.03h ⁻¹
主なパラメータ							
初期SO ₂ ²⁻ 比率							
SO ₂ 酸化速度	3.5 × 10 ⁻⁶ s ⁻¹ (0.0126h ⁻¹)		10 ⁻⁶ s ⁻¹ (0.0036h ⁻¹)	0.01h ⁻¹	0.01h ⁻¹	0.003-0.03h ⁻¹	0.002-0.03h ⁻¹
SO ₂ 乾性沈着	0.8cm/s		0.5cm/s	(減衰率 0.057h ⁻¹)	1.6cm/s		0.08-0.85cm/s
SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	0.2cm/s		0	(減衰率 0.013h ⁻¹)	0.8cm/s		0.06-0.81cm/s
SO ₂ 湿性沈着	4 × 10 ⁻⁵ s ⁻¹		10 ⁻⁴ s ⁻¹				
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着	4 × 10 ⁻⁶ s ⁻¹ (減衰率) (全体: Wet + Dry)		10 ⁻⁴ s ⁻¹				
測定値と比較評価	・地域分布の検討 ・統計的評価	実測値との比較あり、長 期平均値での相関係数は 0.9程度	定性的な検討	SO ₂ ²⁻ の相関係数は0.61	実測値との比較あり、統 計的評価はなし	実測値との比較なし	測定値による評価なし パラメータの感度解析あ り
							Sの質量比率 (降水中心大気中) min (0.5, (R/4) ^{1/2})

第2表(c) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Lloyd et al. (1979)	Powell et al. (1979)	Weisman (1980)	Saansson (1980)	Lavery et al. (1980)	McNaughton et al. (1980, 1981)	Hemmi (1980)
モデル分類	ELSTAR 短期モデル 流れ線モデル	(PML) 短期モデル 流れ線ボックスモデル (鉛直方向は正風速濃度分布)	MEP 流れ線モデル	ACID 短期モデル 流れ線モデル (4層x100m)	短期モデル 3次元格子モデル (5層) (移流項はSHASTA法、鉛直方向は陰解法)	RAPT(PNL) 短期モデル 流れ線モデル (Porell (1979)のモデルと同じ)	短期モデル 流れ線モデル (合形アルムセグメントモデル) 地上から上まで一様濃度分布、水平方向は σ_y に対応する範囲で一様濃度分布 SO_2, SO_3^2 -濃度 それらの湿性沈着量
計算対象	光化学反応による生成物 臭素、 NO_3 の収支	SO_2, SO_3^2 -濃度と沈着量	SO_2, SO_3^2 -濃度 乾性・湿性沈着量	SO_2, SO_3^2 -	SO_2, SO_3^2 -濃度	SO_2, SO_3^2 -およびそれらの乾性・湿性の沈着量	SO_2, SO_3^2 -濃度 それらの湿性および乾性沈着量
対象地域及び期間	アメリカ北東部 1974年4月	アメリカ北東部 1974年4月	アメリカ北部	アメリカ東部 72時間(3時間毎)	アメリカ北東部 モデル検討4日間、検証3日間 (1977~78年)	アメリカ北東部 1977年8, 10月	アメリカ東部 1974年5月11日 (日平均値)
気象条件・風系	Lは平均的日周変化 σ_y は簡化式で計算 風の分布はMendellの解 折法により推定 (1h ⁻¹)	Lは平均的日周変化 σ_y は簡化式で計算 風の分布はMendellの解 折法により推定 (1h ⁻¹)	地衡風より推定		風の分布は差分法により推定(時間に関して線形補助) K_x は境界層内のモデル式により推定	100~1000m 層の平均風により流れ線を計算 平均的 σ_y と大気安定度の日周変化を設定	流れ線の計算はNOAA-ARL モデルを使用 (~74h)
流れ線の計算間隔と考慮時間	1h	1h					
主なパラメータ							
初期 SO_4^2 比率	0.02h ⁻¹	0.02h ⁻¹	2.0%, 8.0%		VO_2, SO_2, NH_4C の初期値より計算された値 (0.002~0.01h ⁻¹)	0.0025h ⁻¹ , 0.02h ⁻¹	0.1 h ⁻¹ (昼) 0.01 h ⁻¹ (夜)
SO_2 酸化速度	1.0cm/s	1.0cm/s	1.0cm/s 0.5cm/s	0.125~0.975cm/s (時間変化)	$Vd=ku, [ln(Z/Z_0) + 2.6 + 0.7ku_x]^{-1}$ $Vd=0.1Vd$	1.0cm/s	2cm/s
SO_2 乾性沈着	0.1cm/s	0.1cm/s	0.4cm/s 0.4cm/s	0.0375 ~ 0.42cm/s		0.1cm/s	0.4cm/s
SO_4^2 乾性沈着	0.005R h ⁻¹ ($1.39 \times 10^{-6} \times R \text{ s}^{-1}$)	0.250R h ⁻¹ ($6.9 \times 10^{-7} \times R \text{ s}^{-1}$)		50P h ⁻¹		0.005R h ⁻¹	洗浄速度 $V_g=5 \times 10^3 R$
SO_2 湿性沈着				235P _{0.655} h ⁻¹		0.232R _{0.655} h ⁻¹	洗浄速度 $V_g=5 \times 10^3 R$
SO_4^2 湿性沈着							
測定値の比較評価	地域分布および統計的評価 $r=0.43$ (濃度) パラメータの感度解析あり	地域分布および統計的評価 $r=0.67$ (SO_2) $r=0.23$ - 0.90 (SO_4^2) 日平均値			地域分布および統計的評価 $r=0.02$ - 0.67 (SO_2) $r=0.23$ - 0.90 (SO_4^2) 日平均値	SO_4^2 の相関係数 0.51~0.65	地域分布および散布図なし $r=0.635$ (SO_2) $r=0.487$ (SO_4^2)

第2表(d) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Heffter (1980)	Niemann et al. (1980)	Patterson et al. (1981)	Dabberdt et al. (1981)	Weisman (1981)	Bhumalkar et al. (1981)
モデル分類	ARL-ATAD 短期・長期モデル 流れ線モデル(鉛直方向 一様分布、水平方向正規 分布型アルームモデル)	短期モデル 1層2次元格子モデル (類似スベクトラル法)	長期モデル 定常解析モデル (風向、風速、拡散係数、 除去率、酸化速度は空間 的に一定値)	ENMAP-1, VISMAP 短期モデル 流れ線パフモデル	TRANS 短期・長期モデル 流れ線パフモデル 混合層内濃度一様分布	EURMAP-2B 短期モデル 流れ線パフモデル (2方向:差分モデル、 0座標系3層モデル)
計算対象	特に指定なし	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度、視程 の消散係数	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , NO _x , NO ₂ , 濃度とSO ₄ ²⁻ , 全S, NO _x , 全Nの乾性および湿性の 沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度
対象地域及び期間	---	アメリカ東部 1974年7月10日など5ヶ ース(5日)	同 左 1975年(他の年度につい ても検討)	アメリカ東部 1977年 8月	アメリカ東部 1978年	ヨーロッパ 1974年8月25~28日
気象条件・風系	混合層内の中心高度での 風より地形補間 LとK _s の日周変化を考 慮 (3h/5days)	300mあるいは600m高度で の風を補間法により推定	600m高度での年平均合成 風向風速を使用 L=1000m (一定)	風向風速は混合層内の濃 度平均値、Lは1450mの 一定値	風は氮化合物より推定 混合層内代表風速は回帰 式により推定 Lの日周変化を考慮 (3h/5days)	風速は地表と1450m (850m間)との間で対数 分布を仮定 k _s の時間変化を考慮
流れ線の計算間隔 と考慮時間	---	---	---	---	---	---
主なパラメータ	対象物層指定なし Vd=1cm/s Vs=4.2×10 ⁸ R (R=3.2×10 ⁻⁶ m/s ;年平均降雨強度)	---	---	---	---	---
初期SO ₄ ²⁻ 比率	---	0.007~0.01h ⁻¹	0.00375~0.06h ⁻¹	0.01h ⁻¹	0.02	0.03~0.08h ⁻¹ (日射量の関数)
SO ₂ 酸化速度	---	---	---	---	0.8	---
SO ₂ 乾性沈着	---	1cm/s	全減衰量 3.125×10 ⁻⁶ ~ 5×10 ⁻⁵ s ⁻¹ 乾性および湿性沈着量 1.56×10 ⁻⁶ ~ 2.5×10 ⁻⁵ s ⁻¹	(0.037h ⁻¹) 減衰率	---	---
SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	---	0.1cm/s	---	(0.007h ⁻¹) 減衰率	0.1	---
SO ₂ 湿性沈着	---	---	---	0.28h ⁻¹ (7.8×10 ⁻⁵ s ⁻¹)	---	---
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着	---	---	---	0.07R h ⁻¹ (1.9×10 ⁻⁵ s ⁻¹)	0.3 (8.3×10 ⁻⁵ s ⁻¹)	---
測定値と比較評価	実測値との比較なし	地域分布など定性的な検 討	地域分布など定性的な検 討、感度解析あり	SURE の実測値との比較 あり	地域分布の検討 Sの湿性沈着量(年間) r=0.80(n=11)	実測値との比較なし 感度解析のみ Dabberdt (1981)と同じ

第2表(e) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Murphy (1981)	Van Egmond et al (1981)	Shannon (1981)	Cass (1981)	McNaughton (1982)	Reisinger et al. (1982)	Venkatram et al. (1982)
モデル分類	PHENIX 短期モデル 2次元格子モデル (類似スベクトラル法; 1層モデル)	GRID 短期格子 1層格子 モデル(類似 スベクトラ ル法)	ASRTAP (ANL) 長期モデル 統計的流れ線モデル (輸送方向は差分モデル ; 11層)	短期・長期モデル 1層2次元モデル (格子モデル)	RAPT 短期・長期モデル 流れ線モデル McNaughton (1980)と同じ	短期モデル リセプター-メトリエンテッ ド流れ線モデル	長期モデル 統計的流れ線モデル (複合層内濃度一様分布)
計算対象	とくに指定なし (1次物質, 2次物質)	SO ₂ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , 全Sの乾性 および湿性の沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, 湿性お よび全沈着量, 降水のPH	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ それぞれの乾 性と湿性の沈着量
対象地域及び期間	アメリカ中部	オランダ 1979年11月23日	アメリカ東部 1977年 7-8月 (気象データは1974, 75 を使用)	カリフォルニア 1972-74年	アメリカ東部 1977年10月	アメリカ東部 (TVA) (ノバスコシア) 1976年8月13-14日 1979年10月21日	アメリカ東部 (発生源は1977年)
気象条件・風系	距離の2乗の逆数と風向 角度を重みとする加重平 均法で風速を補間	両者とも計算上1層モデル (同一気象データを使用) Lの日周変化を考慮 して3層に分けて考え る。	夏は1800m 冬は1000m ま での風を1/d ² の加重平均 法により推定 (6h/5days)	風は代表地点での観測値 のみを使用, Lは観測値 に基づいて平均的日周変 化を考慮	Lの日周変化あり (昼1500m, 夜間安定層は 200m)	複合層高度一定 (1500m) 風系はNOAAの境界層モデ ルにより推定	平均複合層高度 1000m 輸送風速10m/s, σ _z =10m/s σ _y =60m/sと設定
流れ線の計算間隔 と考慮時間			約2h				
主なパラメータ							
初期SO ₂ ²⁻ 比率							2%
SO ₂ 酸化速度	厳密な設定なし	$Sc = (c_1 + c_2 R_0) C$ 0.01h ⁻¹ (夜) 0.025h ⁻¹ (昼)	夏冬別平均日周変化ファク ター 0.0001-0.03h ⁻¹	0.005-0.08h ⁻¹	(昼 0.02h ⁻¹ (夜 0.0025h ⁻¹ の追従補間 降雨期間は 0.05h ⁻¹ 1.0cm/s)	0.01h ⁻¹	0.01h ⁻¹
SO ₂ 乾性沈着	"	$Vg = (r_a + r_s + r_c)^{-1}$ $r_a = (ku_a)^{-1}$ (ln(z/z_0) φ)	0.1-0.35cm/s	0.7cm/s		1.0cm/s	0.5cm/s
SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	"	$r_s = 2.6 (ku_s)^{-1}$ $r_c = 70s/m$	"	0.03cm/s		0.1cm/s	0.05cm/s
SO ₂ 湿性沈着	"	Sの沈着比率 Ratio=(1-L)(R/4) ^{1/2} R<4mm/6h		(注) カリフォルニアで はSの湿性沈着量 は2程度で概観で きる	0.005h ⁻¹		3×10 ⁻⁵ s ⁻¹
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着	"	Ratio=(1-L):R>4mm/6h			0.232R ^{0.655} h ⁻¹		1×10 ⁻⁴ s ⁻¹
測定値の比較評価	実測値との比較なし 流れ線モデルとの比較あり	実測値との比較あり PUFF, GRIDとも毎時の地 点間関係数は0.7程度	SURE測定値との比較あり (統計的評価なし)	月平均SO ₂ 濃度の相関 係数は各年ごとに0.70~ 0.89 (n=106-128)	実測値との比較なし 感度解析のみ	流れ線終点 (3地点) で の比較あり (統計的評価なし)	SO ₂ の相関係数0.71 (4局別除)

第2表(f) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Liu et al. (1982)	Olson et al. (1982)	Ellenton et al. (1982)	Eliassen et al. (1982)	Hov (1982)	Bhumalkar et al (1982)	U. S./Canada (1982)
モデル分類	短期モデル 混合モデル (パフモデル 格子モデル) (初期パフ拡散時のみ妨 直拡散を考慮、格子モ デルは2次元一層モ デル)	LRTAP 短期・長期モデル 流跡線モデル (1層セル モデル; 混合層内濃度一 様分布)	長期モデル 流跡線 (単一セル) モデ ル	短期モデル 流跡線 (単一セル) モデ ル	短期モデル 単一ボックスモデル	ENMAP-2S 短期モデル 流跡線パフモデル (鉛直方向; 差分モデル)	CAPITA 短期モデル モンテカルロ法
計算対象	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, それぞ れの乾性・湿性の沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, 全S沈着量 降水巾SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度 降水巾SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , NO, NO ₂ , NO _x , PAN, O ₃ , O ₃ , NH ₃ などの濃 度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , NO _x , HNO ₃ およ び各種HC	ENMAP-2S では, SO ₂ , SO ₄ ²⁻ の濃度とその沈着 量, E-2NではNO, NO ₂ , NO _x , HNO ₃ , PANの5種類 アメリカ東部 1977年1月	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度 SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 乾性沈着量 全Sの沈着量
対象地域及び期間	アメリカ中西部 1978年3月16~18日	カナダ東部 1978年	北アメリカ北東部 1979年7月	ヨーロッパ (流跡線の終 点はノルウェー南部)	イギリスおよび近海海上	α座標系3層モデル K _z は風速シアー, 安定 度, Lより計算 (3h/2-3days)	
気象条件・風系	地衝風モデルにより風の 分布を推定	風系は4層客観解析モデ ルにより推定 (流跡線の 距離は9250mb高度より開 始) (6h/4days)	地表気圧配置より摩擦と 安定度を考慮して風を計 算する L=1000mの一定値を使用	150kmメッシュでの風を 850mbで推定 (風速は90% 風向15% 変更率も検討) Lはノンズ観測による1 日1回推定 (2h/96h)	取定の定常状態(7日間) (~7days)		
流跡線の計算間隔 と考慮時間							
主なパラメータ							
初期SO ₂ ²⁻ 比率	(仮) 0.001~0.005h ⁻¹	0.01h ⁻¹	20%	NO, NO ₂ , SO ₂ , CO, 30種の HCを含む反応モデル		0.01~0.04h ⁻¹ (日明量の関数)	0.6h ⁻¹ 1.2h ⁻¹ (冬) (夏)
SO ₂ 酸化速度		1.0cm/s	0.02h ⁻¹ (夏季)	0.8cm/s		0.05~0.85cm/s (地表の状態, 気象条件 の関数)	0.31cm/s 1.20cm/s (冬) (夏)
SO ₂ 乾性沈着		0.1cm/s	1.0cm/s	0.1cm/s (H ₂ SO ₄ ミスト)	(Eliassen (1982) 参照)	0.25~0.95cm/s (地表の状態, 気象条件 の関数)	0.07cm/s 0.15cm/s (冬) (夏)
SO ₂ 湿性沈着		5×10 ³ ×P	10 ⁻⁵ s ⁻¹ 程度	10 ⁻⁴ s ⁻¹ (湿度90%以上で降水あ りと仮定)		0.03~0.17h ⁻¹ (5mm/hの場合の減衰率)	0.6 pp 11.7 pp (冬) (夏)
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着		8.5×10 ³ ×P (P: 24h別日降水量)	10 ⁻⁴ s ⁻¹ 程度			0.06~0.43h ⁻¹ (5mm/hの場合の減衰率) (降雨状態と強度の関数)	5.0 pp 29.0 pp pp: 6時間当りの降 雨確率
測定値と比較評価	測定値との比較なし	実測値との比較なし Sのアメリカ, カナダで の収支を計算	MAPS/RAINの測定デー タ(大気中および降水巾 SO ₄ ²⁻ 濃度)との比較あ り	0 ₂ , SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度につ いて比較検討あり	実測値との比較なし パラメータの感度解析と S, Nの物質収支の検討 なし	地域分布での比較あり SO ₂ , SO ₄ ²⁻ の相関係数は 0.2~0.7の範囲 NO _x に ついては実測値との比較 なし	

第2表(2) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	U. S./Canada (1982)	U. S./Canada (1982)	U. S./Canada (1982)	U. S./Canada (1982)	U. S./Canada (1982)	Stewart et al. (1983)	VanDop et al. (1983)
モデル分類	MDE 長期モデル 統計モデル	RCM3 短期モデル 解析モデル	UMACID 流跡線パフモデル	ABS 短期モデル ボックスモデル	RTM-II (SMI) 短期モデル 混合モデル (初期パフ拡散時のみ始直航線を考慮、移流項はSHASTA法)	短期モデル 3次元数値モデル (水平移流項は擬似スベクトラル法; 12層)	
計算対象	S 濃度 S 乾性、湿性沈着量	S 濃度 S 乾性、湿性沈着量	S 濃度 S 乾性、湿性沈着量	S ₂ , SO ₂ 濃度, S 乾性、湿性沈着量	S ₂ , SO ₂ 濃度	S ₂ , SO ₂ 濃度	
対象地域及び期間							オランダ 1978年5月29日
気象条件、風系							
流跡線の計算間隔と考慮時間							
主なパラメータ							
初期SO ₂ 比率	1.0% ⁻¹ (平均) (季節・日別に変化)	1.0% ⁻¹	1.4% ⁻¹ (春) 0.1% ⁻¹ (夜) 冬 2.8% ⁻¹ (夜) 夏 0.2% ⁻¹ (夜) 夏 0.1~0.55cm/s (冬) 0.1~0.82cm/s (夏)	1.0% ⁻¹	大部分について3%以下 0.001~0.02h ⁻¹ (日平均0.0078)	0.01h ⁻¹	
SO ₂ 酸化速度	0.75cm/s	0.5cm/s	0.5cm/s	0.5cm/s	0.14~1.5cm/s (地表面の形態により 7分類)	0.14~1.5cm/s (地表面の形態により 7分類)	$Vd = \left[0.74 / \sqrt{u_{10}} \right] \left[\ln z - \phi_2(z/L) \right]^{-1} \cdot \phi_2(z/L)$ + $v_{g, s}^{-1}$
SO ₂ 乾性沈着	0.25cm/s	0.05cm/s	0.05cm/s	0.05cm/s	0.1cm/s	0.1cm/s	
SO ₂ 湿性沈着	pHと気温に依存	10.8% ⁻¹	5 × 10 ⁻⁶ P/L (% ⁻¹)	3 × 10 ⁻⁶ P/L	3 × 10 ⁻⁶ P/L		雨量に比例
測定値の比較評価	30 × P ^{0.5}	36.0% ⁻¹	2.32 10 ⁻⁶ P ^{0.55} /L (% ⁻¹)	85 × 10 ⁻⁶ P/L	(Liu (1982) に同じ)		感度分析などが中心、実測値との比較評価なし

第2表(b) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Eliassen et al. (1983)	Gjasiason et al. (1983)	Ashbaugh (1983)	Ramsdell et al. (1983)	Kleinman (1983)	Brozinsky et al. (1984)	Bottenheim (1984)
モデル分類	長期モデル リセプター-オリエンテッド 流跡線モデル (1層, 単一セル)	短期モデル 流跡線モデル (1層単一 セルおよび多層セル)	長期モデル 流跡線モデル (ARL-ATAD モデル)	MESSilver, 2.0 短期モデル 流跡線パフォーマモデル 源減衰モデル	AIRSOX (BNL) 長期モデル (短期モデルとして使用 可能) 流跡線モデル (斜直拡散 を考慮; 11~18層)	ENMAP-2N 短期モデル 長期モデル	ABS 短期モデル 流跡線モデル (version 1, 2)
計算対象	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, それぞ れの乾性・湿性の沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ およびそれぞ れの乾性・湿性の沈着量	流跡線と気塊の滞在時間 の分布	特に指定なし (放射性物質)	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度, それぞ れの乾性・湿性の沈着量	NO, NO ₂ , HNO ₃ , PAN	NO ₂ , PAN, ALD
対象地域及び期間	ヨーロッパ 1979年2月6日	ヨーロッパ 1972年2月, 7月	アメリカ西部 (グラランドキャニオン)	—	アメリカ東部 1978年7月	アメリカ北東部 1977年1, 8月	カナダ
気象条件・風系	850mbでの風により流跡 線を求める L=1000m (1層)	850mbでの風を使用 L=月平均あるいは 1000m (1層)	Heffter (1980) の ARL-ATADモデルを使用 (6h/3days)	地表風と上層風測定値あ るいは気圧高度より計算 された地層風を用いて有 効層高度でのパフ移流 を計算する	地表-1500mまでの平均風 速によりパフ移流を計算 K _z およびLの日周変化 を考慮 (3h/最大5days)	—	—
流跡線の計算問題 と考慮時間	(1日4本/96h)	(3h/-)	—	—	—	—	24時間(6時間毎)
主なパラメータ	初期SO ₄ ²⁻ 比率 SO ₂ 酸化速度	5% 2×10 ⁻⁶ s ⁻¹ (0.0072h ⁻¹)	—	物質の特定なし	2% 0-0.031h ⁻¹ (日平均0.02)	NO ₂ 10%, 2% NO _x 0.1 h ⁻¹ (昼) 0.02h ⁻¹ (夜)	—
SO ₂ 乾性沈着	0.8cm/s	1.0cm/s	—	Vd=0.01cm/s	0.2-1.5cm/s (日平均1.0)	乾性沈着 (version 1) NO ₂ 0.2 cm/s nitrate 1.0 cm/s PAN 0.25-0.07cm/s NO ₃ - 0.6cm/s	乾性沈着 (version 1) NO ₂ 0.2 cm/s nitrate 1.0 cm/s PAN 0.2 cm/s
SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	0.2cm/s	0.2cm/s	—	—	0.1cm/s	—	—
SO ₂ 湿性沈着	3×10 ⁻⁵ s ⁻¹	3×10 ⁻⁵ s ⁻¹	—	—	0.07R h ⁻¹ (1.9×10 ⁻⁵ s ⁻¹)	湿性沈着 (version 1) NO, NO ₂ 0.25k wet (s02) HNO ₃ 0.50k wet (n2504) PAN 0.50k wet (s04) NO ₃ - 1.0k wet (n2504) k _{wet} ;	湿性沈着 (version 1) nitrate 5x10 ³ NO ₂ ----
SO ₄ ²⁻ 湿性沈着	4×10 ⁻⁶ s ⁻¹ (粒子状SO ₄ ²⁻ の 全減衰係数)	2×10 ⁻⁶ s ⁻¹ (6時間, 1mm以上)	—	—	0.105R h ⁻¹	—	—
測定値と比較評価	測定値との比較あり SO ₄ ²⁻ の相関係数0.85 (n=48, 2年平均)	感度分析が中心, 実測値 との比較評価なし	実測値との比較なし	実測値との比較なし	SURE, MAPSS測定値との比 較あり SO ₄ ²⁻ の相関係数 0.62 (n=53)	—	—

第2表(i) 汚染物質の長距離輸送モデルの比較

モデル名称	Fisher (1984)	Carmichael et al (1984)	Endlich et al. (1984)	Wright et al. (1984)	Schere et al. (1985)	Remner et al. (1985)	Ellenton et al. (1985)
モデル分類	長期モデル (統計的流れ線モデル)	短期モデル 3次元数値解モデル (の感度係: 11層) Crank-Nicolson-Galerkin法 (Time-Splitting法)	短期モデル ENMAP-2S	長期モデル (Fisherの統計的流れ線モデル)	ROM 短期モデル 3次元格子モデル (4層)	流れ線/パフモデル 多層モデル	長期モデル 流れ線/パフモデル
計算対象	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , NO _x , NO ₃ ⁻ , NH ₃ , NH ₄ ⁺ の濃度と沈着量 同上降水中の濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ の濃度と沈着量	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ , NO _x , NO ₃ ⁻ の濃度, 湿度および乾性の沈着量	O ₃ 濃度など	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度	SO ₂ , SO ₄ ²⁻ 濃度
対象地域及び期間	ヨーロッパ (1978年の非出量, 気象条件は特定せず)	アメリカ東部 1974年7月4日	アメリカ北東部 1977年1, 8月	北アメリカ大陸北東部 (カナダを含む) 1980年	アメリカ北東部 1979年8月3-5日	アメリカ東部 1977年8月	アメリカ北部 1979年
気象条件・風系	出現頻度の高い最小の組合せを設定する ・U, Vz, Tの組合せは合計で6区分 ・風向は8区分	風速は1/d*の加重平均法により推定し, 連続的式より解を推定 K _z は境界層モデルより推定	3レベル	出現頻度の高い, 最少の組合せを設定する, 16個向区分, その他の気象条件は年間を8区分して, その比率を求める	上部3層の風は補間法により推定	72時間(6時間毎)	地衡風 48時間(6時間毎)
流れ線の計算間隔と考慮時間	10%	SO ₂ , NO _x を含む光化学反応モデル (27式)	5.0%h ⁻¹	10%	光化学反応モデル (CBM III)	5.0%h ⁻¹ (年平均) 季節変化あり	5.0%h ⁻¹ (年平均) 季節変化あり
主なパラメータ	初期SO ₄ ²⁻ 比率	地表面の状態と気象条件の関数 (平均0.44cm/s)	0.05~0.95cm/s	0.0025h ⁻¹ (=7×10 ⁻³ s ⁻¹)	モデル中にSは含まず, 湿度および乾性の除去機構を考慮	0.08~0.65cm/s	1.0cm/s (年平均) 季節変化あり
	SO ₂ 酸化速度	地表面の状態と気象条件の関数 (平均0.26cm/s)	0.25~0.95cm/s	0.5cm/s		0.08~0.1cm/s	0.1cm/s (年平均) 季節変化あり
	SO ₂ 乾性沈着	—	0.0278~0.1698 h ⁻¹ (5mm/h)	0.0cm/s			3×10 ⁻⁵ R (S ⁻¹)
	SO ₄ ²⁻ 乾性沈着	—	0.0648~0.4295 h ⁻¹ (5mm/h)	3×10 ⁻⁴ s ⁻¹ (R=1mm/hと仮定)			3×10 ⁻⁴ R (S ⁻¹)
	SO ₂ 湿度沈着	—	—	3×10 ⁻⁴ s ⁻¹			3×10 ⁻⁴ R (S ⁻¹)
測定値との比較評価	定性的な検討	定性的な検討	定性的な検討	定性的な検討	定性的な検討		

第2表における記号の説明		
L	: 混合層高度	(m)
K_z	: 拡散係数	(m^2/s)
U	: 風速	(m/s)
V_d	: 沈着速度	(cm/s)
λ	: 洗浄係数	(m^{-1})
R	: 降水(雨)強度	(mm/s)
p	: 降水(雨)量	(mm)
d	: 距離(風の測定地点と推定地点との距離)	(m, km)
w	: 風速の鉛直成分	(m/s)
Z_0	: 地面粗度	(m)
k	: カルマン定数	(m)
U_0	: 摩擦速度	(m/s)
r	: 相関係数	(-)
n	: データ数	

と、統計的流跡線モデルと呼ばれる方法がある。この方法は、総量規制モデルのように、風向・風速・大気安定度別などの条件別濃度計算値に該当する条件の出現頻度の割合を乗じて、平均値を求めるものである。すなわち、このモデルは、水平方向の移流・拡散を、他の鉛直拡散、粒子生成過程、沈着過程等と切り離して独立にモデル化し、最後に総合的に解析するものである。具体的な計算手順は次のとおりである。初めに、発生源を起点として、数時間間隔で出発する空気塊の軌跡を数日間にわたって求め、その分布(リセプターにおける各発生源が風上となる空気塊の存在確率)を計算する。次に、流跡線に沿って移動する空気塊中における SO_2 から SO_4^{2-} への変換と、両者の除去率(沈着量)等を計算する。そして、流跡線上の SO_2 と SO_4^{2-} 濃度に、発生源からの移流時間ごとの空気塊の存在確率を乗ずることによって、リセプターにおける2次粒子の濃度との沈着量を求めることができる。

第3表 流跡線モデルと格子モデルの比較

	流跡線モデル	格子モデル
長所	<ul style="list-style-type: none"> 特定地点での濃度計算では計算量が少ない。 特定の流跡線のみ計算では複雑な化学反応モデルを採用することができる。 	<ul style="list-style-type: none"> メッシュ状の格子点での濃度計算では、流跡線よりも計算量が少なくなることもある。 3次元の分布をもつ風向風速、拡散係数などのパラメーターを考慮できる。
短所	<ul style="list-style-type: none"> 流跡線の近接地域及び境界上の発生源の扱いが難しい。 地表近くと上層での風向風速が異なると流跡線の計算が困難になる。 水平方向の拡散は一般に考慮できない。 	<ul style="list-style-type: none"> 差分法によっては数値計算上の擬似拡散を生ずることがある。 一般に計算量が多い。 格子間隔より小さいスケールの濃度変化を表現できない。

第4表 長距離輸送モデルの比較例

モデル	開発機関	モデル分類	計算結果(イオウ収支)		
			湿性沈着	乾性沈着	水平流出
Atmospheric Impact of Residual Sulfur Oxide (AIRSOX) model	Brookhaven 国立研究所 (BNL)	個別の流跡線モデル	27%	63%	10%
Regional Air Pollution Transport (RAPT) model	Battelle 研究所 (PNL)	同上	43%	27%	30%
Advanced Statistical Trajectory Regional Air Pollution (ASTRAP) model	Argonne 国立研究所 (ANL)	アンサンブル平均の流跡線モデル(統計的流跡線モデル)	(合計 54%)		46%

4. 酸性雨モデル及び長距離輸送モデルの比較評価

酸性雨のモデルと関連して、汚染物質の長距離輸送モデルが欧米において多数提案されている。しかし、雨水中及び全降下物中の SO_4^{2-} については、かならずしもモデルの検証に必要な十分な質と量のデータがないので、大気中の粒子状 SO_4^{2-} 濃度による比較評価例が多い。

Shannon et al. (1984) はアメリカエネルギー省の Multistate Atmospheric Power Production Pollution Study (MAP3S) の研究の一環として開発された3種類の長距離輸送モデルの比較を行っている。ここで取り上げられたモデルは、第4表に示す3種類である。

Weber et al. (1982) は、17種の長距離輸送モデルの比較評価を行っている。ここでは風向別など気象条件別出現頻度分布を乗じて長期平均濃度のみを求めるモデル(統計的モデルと呼ぶ)6種、流跡線ブルームモデル7種、3次元モデル4種の合計17種のモデルを用いて、Savannah River Plant 周辺の Kr^{85} 濃度を計算している。

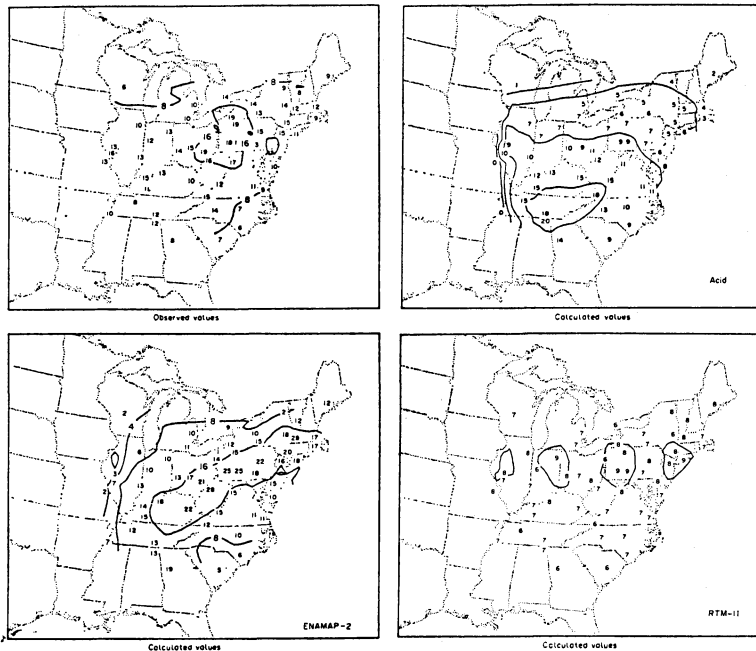
ここで、各モデルにより計算された予測値間及び実測値との相関係数などを求め、各種モデル間の関係などに

についても考察を加えている。そして、これらの比較検討結果より、以下の結論を述べている。

- (1) 年平均値の予測に関しては、個々のモデルについても、全体として扱っても、ほぼ良好であると判断できる。
- (2) 2時間平均値の予測に関しては、どのモデルもあまり良い整合性は得られなかった。
- (3) 統計的な評価尺度を確立することにより、気象学、大気拡散の専門家以外の人とモデルの性能について議論することが容易になる。
- (4) 短期平均値での予測モデルの性能の低下は、主に風系推定上の誤差に起因していると思われる。

米国電力研究所 (EPRI) では、酸性雨及び2次生成粒子を対象とした広域大気汚染モデル(汚染物質の長距離輸送モデル)の評価も行っている。Ruff et al. (1985) では、42種類のモデルを文献調査により予備選定し、これらのモデル構成、理論的背景などを考慮して、最終的に下記の3種のモデルを選定して、評価を行っている。

- (1) RTM-II: 格子モデル(煙源近傍はラグランジュ的に扱う)
- (2) ACID: リセプターを基点とした流跡線モデル



第2図 SO_4^{2-} 濃度の実測値と計算値の比較(7月, 単位: $\mu\text{g}/\text{m}^3$)
(Ruff, 1985より引用)

第5表 SURE のクラス I 観測局における月平均濃度についての統計量を用いたモデルの比較 (Ruff, 1985 より引用)

月	モデル	SO ₂			SO ₄ ²⁻		
		Bias (μgm^{-3})	r.m.s.e (μgm^{-3})	R	Bias (μgm^{-3})	r.m.s.e (μgm^{-3})	R
1月	ACID	17.0	28.8	0.03	4.0	2.2	0.60
	EANAMAP-2	15.4	17.0	0.66	0.1	2.7	0.39
	RTM-II	27.2	19.3	0.59	4.1	2.3	0.54
7月	ACID	4.6	19.1	-0.12	4.0	5.3	0.18
	EANAMAP-2	1.7	13.2	0.48	-0.5	4.7	0.59
	RTM-II	8.0	13.5	0.50	5.3	3.0	0.69

(3) ENAMAP-2: 発生源を基点とした流跡線モデル (格子点ごと, 各局ごとの風系推定値を用いる)

この EPRI のモデル評価プロジェクトはスタンフォード研究所 (SRI) に委託されたものであるが, 上記3種のモデルのうちの1つ, ENAMAP-2 は SRI 自身が開発したものである。このため, 評価の公平を保つために, プログラムコードの確認, 修正などの作業は Argonne 国立研究所 (ANL) へ再委託された。

ここでは, 米国電力研究所 (EPRI) による SURE (Sulfate Regional Experiment) 計画により得られたデータに基づいて, 各モデルの評価を行っている。なお, この検討では, 国立気候センター (National Climate Center) の気象データ及び MAP3S (Multistate Atmospheric Power Production Pollution Study) による降水中化学成分のデータベースも利用されている。

上記の3種のモデルにより, 1978年1, 4, 7, 10月の SO₂ 及び SO₄²⁻ 濃度を計算している。平均化時間は3時間~1カ月間である。実混値と計算値との比較検討では, 散布図などの比較の他に, 平均値の差 (bias), 平均二乗誤差の平方根 (r.m.s.e.) 及び相関係数 (R) を求めている。ここでは, 各モデルによる月平均 SO₄²⁻ 濃度計算値ら実測値との比較例を第2図に示す。また, 月平均濃度についての各統計量の値を第5表に示す。

この結果, 各モデルともに, 24時間以下の短時間平均濃度についての性能は不十分であった。しかし, 月平均値については, 第5表に示すように, 短時間値の場合よりは高い評価が得られている。この Ruff et al. (1985) の論文での結論としては, 計算値と実測値の不一致の原因の一部は入力パラメータの誤差に起因するものであり, ある部分是不適切な測定値によるものであることを

明らかにしている。しかし, これらの問題をより明確にするためには, SURE 及び MAP3S プロジェクトのデータベースでも不十分であり, より多くの実測調査が必要であることも指摘している。

5. まとめ

アメリカおよびヨーロッパでは, 非常に多数の長距離輸送モデルが提案されている。また最近では, これらの各モデルの比較および性能評価についての報文もいくつか発表されている。最近の傾向としては, 光化学大気汚染モデルの場合と同様に, より現象を忠実に記述できる格子 (オイラー系) モデルの重要性が認識されるようになってきているが, 計算費用や測定データとの整合性の問題なども残されるように思われる。

文献

- Ashbaugh, L.L., 1983: A statistical trajectory technique for determining air pollution source regions. *J. Air Poll. Control Assoc.*, **33**, 11, 1096-1097.
- Bass, A., 1980: Modeling long range transport and diffusion. Second Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor., 193-215.
- Beike, S. and Elshout, A.J., 1982: Acid deposition. D. Reidel Publishing Co.
- Bhumralker, C.M., Johnson, W.B., Mancuso, R.L., Thuillier, R.A., Wolf, D.E. and Nitz, K.C., 1980: Interregional exchanges of airborne sulfur pollution and deposition in eastern North America. Second Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor., 225-231.
- Bhumralker, C.M., Endlich, R.M., Nitz, K.C., Brodzinsky, R., Martinez, J.R. and Johnson,

- W.B., 1981: Refined air pollution model for calculating daily regional patterns and trans-frontier exchanges of airborne sulfur in central and western Europe. *Air Pollution Modeling and Its Application II*, 265-275.
- Bhumralkar, C.M., Endlich, R.M., Nitz, K.C., Brodzinsky, R. and Mayerhofer, P., 1982: Lagrangian long range air pollution model for eastern North America. *Air Pollution Modeling and Its Application III*, 35-57.
- Bottenheim, J.W., 1984: Discussion of a Lagrangian trajectory model describing long-range transport of oxides of nitrogen, the incorporation of PAN in the chemical mechanism, and supporting measurements of PAN and nitrate species at rural sites in Ontario Canada. *Atmos. Environ.*, **18**, 2609-2619.
- Brodzinsky, R. et al., 1984: A long-range air pollution transport model for eastern North America-II. *ibid*, **18**, 2361-2366.
- Bubenica, D.V., 1984: Acid rain information book, Second Edition. Noyes Publication.
- Carmichael, G.R. and Peters, L.K., 1984: An Eulerian transport/transformation/removal model for SO₂ and sulfate-I. model development. *ibid*, **18**, 937-951.
- Carmichael, G.R. and Peters, L.K., 1984: An Eulerian transport/transformation/removal model for SO₂ and sulfate-II. *ibid*, **18**, 953-967.
- Carras, J.N. and Williams, D.J., 1981: The long-range dispersion of a plume from an isolated point source. *ibid*, **15**, 2205-2217.
- Cass, G.R., 1981: Sulfate air quality control strategy design. *ibid*, **15**: 1227-1249.
- Dabberdt, W.F. and Eigsti, S.L., 1981: Regional visibility modeling for the eastern United States. *ibid*, **15**, 2055-2061.
- Durran, D.R., Meldgin, M.J., Liu, M.K., Thoen, T. and Henderson, D., 1979: A study of long range air pollution problems related to coal development in the northern Great Plains. *ibid*, **13**, 1021-1037.
- Egan, B.A., Rao, K.S. and Bass, A., 1976: A three-dimensional advective-diffusive model for long range sulfate transport and transformation. *Proc. 7th NATO/CCMS. Int. Tech. Meeting Air Poll. Modeling and Its Application*, 697-714.
- Eilassen, A., 1978: The OECD study of long range transport of air pollutants: long range transport modeling. *Atmos. Environ.*, **12**, 479-488.
- Eilassen, A., 1980: A review of long-range transport modeling. *J. Appl. Meteor.*, **19**, 231-240.
- Eilassen, A., Hov, Ø., Isaksen, I.S.A., Saltbones, J. and Stordal, F., 1982: A Lagrangian long range transport model with atmospheric boundary layer chemistry. *ibid*, **21**, 1645-1661.
- , —, and Saltbones, J., 1983: Modelling of long-range transport of sulphur over Europe. *Atmos. Environ.*, **17**, 1457-1473.
- Ellenton, G., Ley, B., Misra, P., Polvarapu, S., 1982: Monthly sulphate and sulphur dioxide simulations by a trajectory puff model with spatially and temporally varying loss parameters. *Third Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor.*, 275-279.
- Ellenton, G. et al., 1985: A trajectory puff model of sulfur transport for eastern North America. *Atmos. Environ.*, **19**, 727-737.
- Endlich, R.M. et al., 1984: A long-range air pollution transport model for eastern North America-I. Sulfur oxides. *ibid*, **18**, 2345-2360.
- Ferber, G.J., Wilson, W.E., Pooler, F., Ching, J.K.S. and Clarke, J.F., 1986: Cross-Appalachian-tracer experiment (CAPTEX '83) final report. NOAA Tech. Memo, ERL ARL-142.
- Fisher, B.E., 1978: The calculation of long term sulphur deposition in Europe. *Atmos. Environ.*, **12**, 489-501.
- , —, 1983: A review of processes and models of long-range transport of air pollutants. *ibid*, **17**, 1865-1880.
- , —, 1984: The long-range transport of air pollutants-some thoughts on the state of modelling. *ibid*, **18**, 553-562.
- Georgii, H.W. and Pankrath J., 1981: Deposition of atmospheric pollutants. D. Reidel Publishing Co.
- Gillani, N.V. et al., 1978: Project MISTT: Kinetics of particulate sulfur formulation in a power plant plume out to 300 km. *Atmos. Environ.*, **12**, 589-598.
- Gislason, K.B. and Prahm, L.P., 1983: Sensitivity study of air trajectory long-range transport modelling. *ibid*, **17**, 2463-2472.
- Hales, J.M. and Sutter, S.L., 1973: Solubility of sulfur dioxide in water at low concentrations. *ibid*, **7**, 997-1011.
- Heffter, J.L., Taylor, A.D. and Ferber, G.J., 1975: A regional-continental scale transport, diffusion, and deposition model. NOAA Tech. Memo. ERL ARL-50.
- , —, 1980: Air Resources Laboratories atmospheric transport and dispersion model (ARL-ATRD). NOAA Tech. Memo. ERL ARL-81.

- Henmi, T., 1980: Long-range transport model of SO₂ and sulfate and its application to the eastern United States. *J. Geophys. Res.*, **85**, C8, 4436-4442.
- Hov, Ø., 1982: Model calculations of the effect of SO₂, NO_x or HC emission changes on regional scale sulphate and nitrate production. *Acid Deposition* (ed. Beilve, S. et al.) 204-217.
- Johnson, W.B., Bhumralkar, C.M., Mancuso, R.L. and Wolf, D.E., 1978: The European regional model of air pollution (EURMAP) and its application to short term episodes. *Proc. 9th NATO/CCMS Int. Tech. Meeting Air Poll. Modeling and Its Application*, 363-385.
- Johnson, W.B., 1984: Interregional exchanges of air pollution: model types and applications. *J. Air Poll. Control Assoc.*, **33**, 563-574.
- 笠原三紀夫, 1983: 大気汚染物質の乾性・湿性沈着. *環境技術*, **12**, 813-821.
- Kleinman, L.I., 1983: A regional scale modeling study of the sulfur oxides with a comparison to ambient and wet deposition monitoring data. *Atmos. Environ.*, **17**, 1107-1121.
- 近藤裕昭, 1985: 長距離輸送と複雑地形を対象とした大気拡散シミュレーションモデルについて—基本方程式を直接解くモデルを中心として—. *公害*, **20**, 59-73.
- Lamb, R.G., 1982: A regional scale (1000 km) model of photochemical air pollution part 1. theoretical formation. *EPA*.
- Lavery, T.F., Baskett, R.L., Thrasher, J.W., Lordi, N.J., Lloyd, A.C. and Hidy, G.M., 1980: Development and validation of a regional model to simulate atmospheric concentrations of sulfur dioxide and sulfate. *Second Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor.*, 236-247.
- Liu, M.K. and Stewart, D.A., 1982: A mathematical model for the analysis of acid deposition. *J. Appl. Meteor.*, **21**, 859-873.
- Lloyd, A.C. et al., 1979: Development of the ELSTAR photochemical air quality simulation model and its evaluation relative to the LARPP data base. *NTIS PB-188-139*.
- Martin, H.C., 1982: Long-range transport of airborne pollution. *D. Reidel Publishing Co.*
- McMahon, T.A., Denison, P.J. and Fleming, R., 1976: A long-distance air pollution transportation model incorporating washout and dry deposition components. *Atmos. Environ.*, **10**, 751-756.
- McNaughton, D.J., 1980: Initial comparison of SURE/MAP3S sulfur oxide observations with long-term regional model predictions. *Atmos. Environ.*, **14**, 55-63.
- McNaughton, D.J., Berkowitz, C.M. and Williams, R.C., 1981: A diagnostic analysis of a long-term regional air pollutant transport model. *J. Appl. Meteor.*, **20**, 795-801.
- McNaughton, D.J., 1982: Modeling of first plume encounter with precipitation. *Water Air Soil poll.*, **18**, 129-137.
- Mills, M.T. and Hirata, A.A., 1978: A multi-scale dispersion model for local and regional sulfur dioxide/sulfate concentrations: formulation and initial evaluation. *Pro. 9th NATO/CCMS Int Tech. Meeting Air Poll. Modeling and Its Application*, 397-406.
- Murphy, B.D., 1981: Phenix- A pseudo-spectral model of long-range atmospheric transport. *Oak Ridge National Laboratory ORNL-5761*.
- Murphy, B.D., 1981: The pseudo-spectral technique in the computation of seasonal average concentrations and its comparison with the trajectory technique. *Air Pollution Modeling and Its Application II*, 285-300.
- Niemann, B.L., Hirata, A.A., Holl, B.R., Mills, M.T. and Mayerhofer, P.M., 1980: Initial evaluation of regional transport and subregional dispersion models for sulfur dioxide and fine particulates. *Second Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor.*, 216-244.
- Nord, F.J., 1973: Meso-scale and large-scale transport of air pollutants. *Proc. 3rd Int. Clean Air Cong.*, B105-B108.
- Oden, S., 1976: The acidity problem- an outline of concepts. *Water Air Soil Poll.*, **6**, 137-166.
- Olson, M.P., Voldner, E.C. and Oikawa, K.K., 1982: A computed sulphur budget for the eastern Canadian provinces. *ibid* **18**, 139-155.
- Ottar, B., 1978: An assessment of the OECD study on long range transport of air pollutants (LRTAP). *Atos. Environ.*, **12**, 445-454.
- Patterson, D.E. et al., 1981: Monte Carlo simulation of daily regional sulfur distribution: comparison with SURE sulfate data and visual range observation during August 1977. *J. Appl. Meteor.*, **20**, 404-420.
- Powell, D.C., McNaughton, D.J., Wendell, L.L. and Drake, R.L., 1979: A variable trajectory model for regional assessments of air pollution from sulfur compounds. *Pacific Northwest Laboratory, PNL-2734*.
- Prahm, L.P. and Christensen, O., 1977: Long-range transmission of pollutants simulated by a two-dimensional pseudospectral dispersion model. *J. Appl. Meteor.*, **16**, 896-910.

- Ramsdell, J.V., Athey, G.F. and Glantz, C.S., 1983: MESOI version 2.0: An interactive mesoscale lagrangian puff dispersion model with deposition and decay. NUREG/CR-3344. PNL-4753.
- Reisinger, L.M. and Crawford, T.L., 1982: Interregional transport: case studies of measurements versus model predictions. *J. Air Poll. Control Assoc.*, **32**, 629-633.
- Renner, E. et al., 1985: A Lagrangian multi-level model of transport, transmission, transformation and deposition of atmospheric sulfur dioxide and sulfate. *Atmos. Environ.*, **19**, 1351-1359.
- Ruff, R.E., Nitz, K.C., Ludwig, F.L., Bhumralker, C.M., Shannon, J.D., Sheih, C.M., Lee, I.Y., Kumar, R. and McNaughton, D.J., 1985: Evaluation of three regional air quality models. *ibid.* **19**, 1103-1115.
- Samson, P.J., 1980: Trajectory analysis of summertime sulfate concentrations in the northeastern United States. *J. Appl. Meteor.*, **19**, 1382-1394.
- Schere, K.L. and Novak, J.H., 1985: Regional oxidant modeling of the Northeast U.S. Preprint 15th NATO/CCMS Int. Tech. Meeting Air Poll. Modeling and Its Application, paper I. 7.
- Schiermeier, F.A. et al., 1979: Sulfur transport and transformation in the environment. (STATE) A major EPA research program. *Bull. Am. Met., Soc.*, **60**, 1303-1312.
- Scott, B.C., 1978: Parameterization of sulfate removal by precipitation. *J. Appl. Meteor.*, **17**, 1375-1389.
- Shannon, J.D., 1979: The advanced statistical trajectory regional air pollution model. Argonne National Laboratory, ANL/RER-79-1.
- Shannon, J.D., 1980: Examination of surface removal and horizontal transport of atmospheric sulfur on a regional scale. Second Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor., 232-235.
- Shannon, J.D., 1981: A model of regional long-term average sulfur atmospheric pollution, surface removal, and net horizontal flux. *Atmos. Environ.*, **15**, 689-701.
- Shannon, J.D., Kleinman, L. and Weber, J.H., 1984: Intercomparison of MAP3S models of long range transport and deposition. Third Joint Conf. Appl. Air Meteor., 83-86.
- Sheih, C.M., 1977: Application of a statistical trajectory model of the simulation of sulfur pollution over northeastern United States. *Atmos. Environ.*, **11**, 173-178.
- Stewart, D.A., Morris, R.E., Liu, M.K. and Henderson, D., 1983: Evaluation an episodic regional transport model for a multi-day sulfate episode. *Atmos. Environ.* **17**, 1225-1252.
- 鶴田治雄, 1981: 大気汚染物質の長距離輸送, 変質および除去過程. *天気*, **28**, 3-22.
- U.S./Canada Work Group 2, 1982: Atmospheric sciences and analysis final report.
- Van Dop, H. and de Haan B.J., 1983: Mesoscale air pollution dispersion modelling. *Atmos. Environ.*, **17**, 1449-1456.
- Van Egmond, N.D. and Kesseboom, H., 1981: Comparison of an eulerian with a lagrangian type numerical air pollution dispersion model. *Air Pollution Modeling and Its Application II*. 335-347.
- Venkatram, A, Ley, B.E. and Wong, S.Y., 1982: A statistical model to estimate long-term concentrations of pollutants associated with long-range transport. *Atmos. Environ.*, **16**, 249-257.
- Weber, A.H., Buckner, M.R. and Weber, J.H., 1982: Statistical performance of several mesoscale atmospheric dispersion models. *J. Appl. Meteor.*, **21**, 1633-1644.
- Weisman, B., 1980: The 73rd Annual Meeting Air Poll. Control Assoc., Montreal, Quebec, 22-27.
- Weisman, B., 1981: Application of trajectory model to regional characterization. Proc. 12th NATO/CCMS Int. Tech. Meeting Air Poll. Modelig and Its Application, 245-264.
- Wendell, L.L., Powell, D.C. and McNaughton, D.J., 1977: A multi-source comparison of the effects of real time versus time averaged precipitation data on SO₂ and sulfate particulate removal in a regional assessment model. *Joint Conf. Appl. Air Poll. Meteor.*, 372-379.
- Wright, S.C., Grabenstetter, J.E. and Holdsworth, J.D., 1984: Ontario Hydro's application of Fisher's statistical long-range transport model. 77th Annual Meeting Air Poll. Control Assoc., 84-107.