

場合 pH 3 以下で顕在化するが、霧は雨よりも10倍以上の濃度で汚染物質を含んでおり、酸性度も高いことから、酸性霧の植物への直接的影響は酸性雨よりもかなり大きいと考えられる。また、山岳部では霧水が樹冠に付着して降下する林内雨（樹雨）という形での降水量が霧の発生頻度に比例して大きくなる（Vong *et al.*, 1991）ため、酸性度の高い霧水の土壌への影響も考慮する必要がある。

わが国において最近、被害の指摘を受ける森林地帯は次第に広がっている。しかし、その原因については諸説あり、自然条件に起因するという見方が根強い。埜田（1993）は森林衰退の被害原因を特定するための条件として、1. 被害と有害物質の存否が（空間的、時間的に）一致する、2. 有害物質が被害を引き起こすメカニズムが説明できる、3. 被害をもたらす可能性のある他の有力な原因が存在しない、4. 現地での反応（症状・強弱の種間差）と実験結果が一致する、5. 環境汚染による被害が実験的に再現できる（現地栽培、空気浄化試験）、6. 相当量の有害成分が植物体内から検出される、といった6点を挙げている。これらの点の解明を早急に進める中で、被害の拡大を防がねばならない。

#### 参 考 文 献

Hosono, T., H. Okochi and M. Igawa, 1994 :

Fogwater chemistry at a mountainside in Japan, *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **67**, 368-374.

井川 学, 補伽栄一, 細野哲也, 岩瀬光司, 長嶋 律, 1991: 酸性霧の化学組成と洗浄効果, *日本化学会誌*, 698-704.

Jacob, D. J. and M. R. Hoffmann, 1983: A dynamic model for the production of  $H^+$ ,  $NO_3^-$ , and  $SO_4^{2-}$  in urban fog, *J. Geophys. Res.*, **88**, 6611-6621.

Mengel K., A. M. Hogrebe and A. Esch, 1989: Effect of acidic fog on needle surface and water relations of *Picea abies*, *Physiologia Plantarum*, **75**, 201-207.

村野健太郎, 1991: 酸性霧汚染の実態, *公害と対策*, **27**, 229-234.

Okita, T., 1968: Concentration of sulfate and other inorganic materials in fog-and cloud-water and in aerosol, *J. Meteor. Soc. Jap.*, **46**, 120-127.

Schulze, E.-D., R. Oren and O. L. Lange, 1989: Forest decline and air pollution, Springer-Verlag, 459-468.

埜田 宏, 1993: わが国の現状「森林衰退—酸性雨は問題になるか—」, *林業科学技術振興所*, 28-40.

Vong, R. J., J. T. Sigmon and S. F. Mueller, 1991: Cloud water deposition to Appalachian Forests, *Environ. Sci. Technol.*, **25**, 1014-1021.

Waldman, J. M., J. W. Munger, D. J. Jacob, R. C. Flagan, J. J. Morgan and M. R. Hoffmann, 1982: Chemical composition of acid fog, *Science*, **218**, 677-680.

402 (酸性沈着; 輸送モデル)

## 4. 酸性雨と輸送モデル\*

佐藤 純 次\*\*

### 1. はじめに

酸性雨はその原因となる汚染質が雲の関与などにより長距離輸送されることから国境を越える大気汚染と言われている。光化学大気汚染質の場合は、時間的には数日間、距離的には~200km程度の輸送過程における現象であるのに対して、酸性雨は数1000kmにも及ぶ汚染質の長距離輸送を考慮する必要がある。したがってこのようなスケールで大気汚染質が輸送される

領域には前線、低気圧など様々な現象が出現する。酸性雨に関連する汚染質の長距離輸送モデルではこれらの現象による降水等も考慮しなければならないので、輸送モデルにおいても気象が重要な役割を占める。適当に配置された観測点における連続的な気象観測データが利用できない場合は JMA や NMC, ECMWF 等によって提供される解析値を用いるかまたは気象モデルに依存する。しかし解析値は格子間隔が大きいこと、また解析の時間間隔が長いので輸送モデルに用いる場合は時間及び空間的内挿などの処理が必要であるばかりでなく、雲や降水の取り扱いに問題が生じる。従って長距離輸送モデルは気象を表現するモデルと汚染質

\* Acid Rain and Transport Model.

\*\* Junji Sato, 気象研究所応用気象研究部.

© 1995 日本気象学会

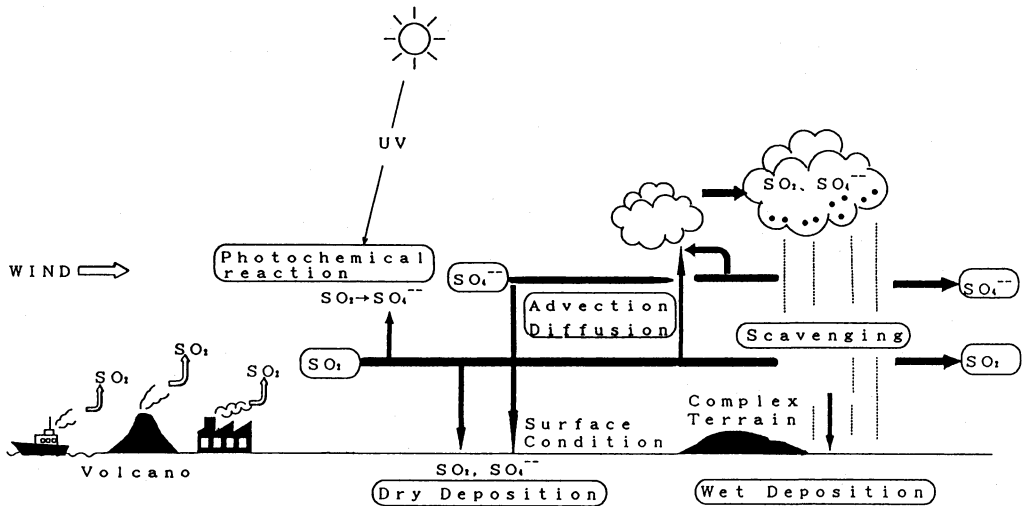


図1図 硫黄酸化物の輸送過程の模式図.

の変質や沈着を含んだ移流・拡散を表現するモデルによって構成される場合が多い。ここでは沈着過程を含んだ長距離輸送モデルについて概略的に述べるとともに、気象研究所において作成されているモデルと計算結果を紹介する。

## 2. 長距離輸送モデル

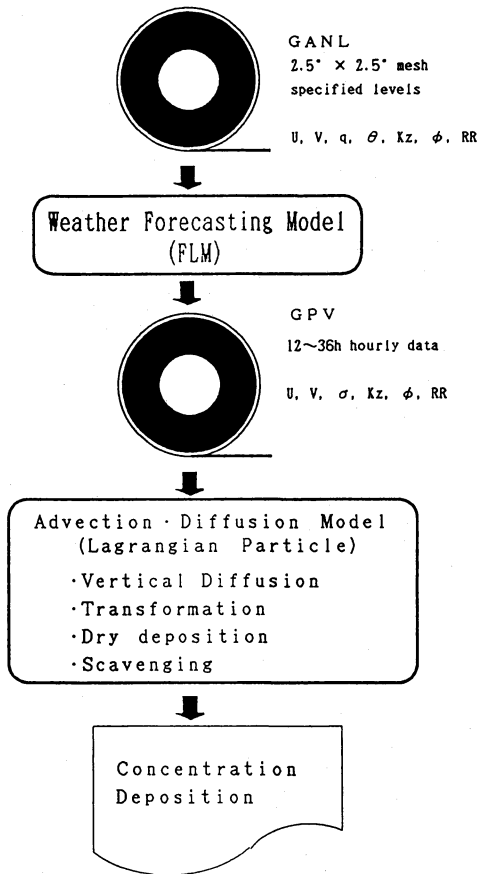
酸性雨に関連する汚染質の輸送モデルは第1図に模式的に示すように、排出源から汚染質が大気中に排出されてから地表面に沈着するまでの過程を表現しなければならない。ここには移流・拡散、化学反応による汚染質の変質、乾性沈着、雲や降水による湿性沈着が含まれる。

大気汚染質の輸送モデルはラグランジュとオイラー型に分類され、前者に属するモデルとしては流跡線モデル (Eliassen *et al.*, 1982) やパフモデル (Ellenton *et al.*, 1985) 及び粒子モデル (Kimura *et al.*, 1988) などである。後者に属するモデルは格子モデル (Zlatev *et al.*, 1992) が挙げられる。またそれぞれ光化学大気汚染の場合のように時間毎や日々の濃度変化を評価するような短期モデルと季節や年平均または積算濃度を評価する長期モデルに分類することができる。酸性沈着による影響は酸性物質が長期間にわたって継続的に沈着することによって現れるといわれており、酸性沈着を評価するための輸送モデルには長期モデルを用いるのが通常である。長期モデルにおける気象データは観測値 (Venkatram *et al.*, 1990) や解析値 (Shin and

Carmichael, 1992), またはこれらを統計した値を用いたりする。しかし空間的、時間的に十分な気象データを得ようとすれば、数値モデルに頼らざるを得ないわけであるが、数値モデルの場合は解析値を初期値や境界値として用いるので時間・空間分解能が良くなるという利点がある。数値モデルの場合も予測値の長期間平均値などの統計量を使用したり (Rolph *et al.*, 1993) また、モデルによる予測値をそのまま長期間にわたって用いる場合もある。

酸性雨の原因物質の主要なものは硫黄酸化物 ( $\text{SO}_x$ ) であり、排出量も窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) と比較しても圧倒的に多い。モデルによる計算例では汚染質として  $\text{SO}_x$  を対象にし、化学反応のモジュールを含んだモデルもあるが、 $\text{SO}_2$  からサルフェートへの変質だけを考慮し、時間に依存した変換係数を用いたものが多い。

移流・拡散過程において地表面に接した汚染質の一部は乾性沈着によって地表面に留まる。乾性沈着は沈着速度によって評価されるが、沈着速度は地表面状態、汚染質の種類によって異なる。一方、湿性沈着は汚染質が雲中において液相反応、凝結核化などを経た後、降水により地表面に沈着するもの (in-cloud scavenging) と降水だけによる沈着 (below-cloud scavenging) があり、前者の場合は雲の生成機構に関わる物理過程等が含まれた複雑な問題であり、雲中における汚染質の振舞についての研究はなされているが (Hegg *et al.*, 1984; Flossmann, 1991 等)、この過程はまだ



第2図 気象研究所長距離輸送モデルの構成及び計算フロー。

長距離輸送モデルには取り入れられていない。また長距離輸送モデルは計算領域を広く取ることから必然的に格子間隔も大きくなるのでこのようなモデルでは雲の取り扱いが難しいこともある。降水だけによる沈着は降水域において一定の割合で汚染質を沈着させたり、また降水強度に比例した割合で沈着させている例もある (Ellenton *et al.*, 1985)。

### 3. モデルによる酸性沈着の計算

気象研究所では東アジア地域における酸性沈着の程度を評価するため、長距離輸送モデルを開発している。モデルは第2図に示されているように気象予測モデルと変質、沈着過程を含んだ移流・拡散モデルから構成されており、以下にそのモデルの概略と計算結果を紹介する。

#### 3.1 気象予測モデル

長距離輸送モデルのための気象変数を予測するモデルとしては気象庁の旧 FLM を使い、初期値及び境界値には気象庁で12時間毎に作成されている全球解析値 (GANL) を用いている。FLM については巽 (1983) によって述べられているのでここでは詳細な記述は省略するが、計算領域は北緯60度におけるポーラステレオ投影図上に東西方向に73、南北方向に55個の格子を設けてあり、格子間隔は北緯60度において約127 km である。鉛直方向には16層を設け、境界層の表現を向上させるとともに境界層から排出される大気汚染質の挙動の表現の精度の向上のために下層を密にしてある。

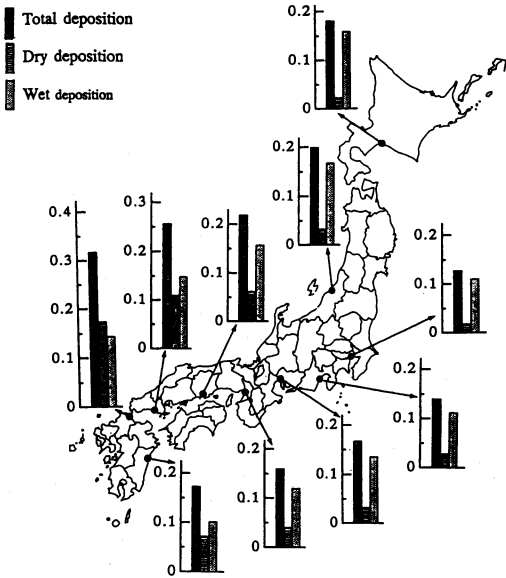
気象変数の予測精度は予測時間が短いほど高いが、気象予測モデルは境界値を12時間毎に更新して36時間の予測を行うが、スピンアップの特性があるために最初の12時間のデータは利用しない。これを繰り返すことにより、移流・拡散モデルのための長期間の気象データを蓄積する。

#### 3.2 移流・拡散モデル

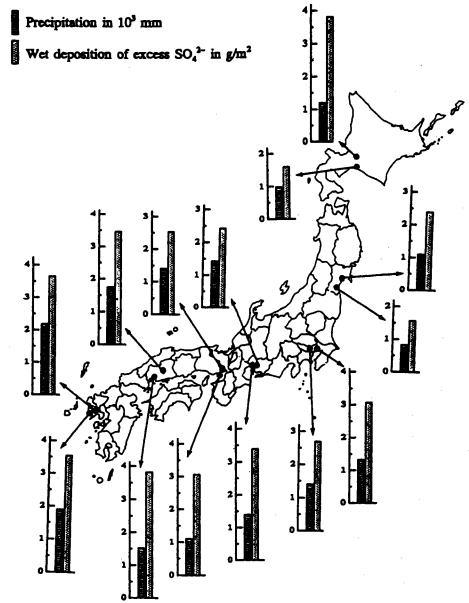
移流・拡散モデルにはラグランジュ粒子法を採用した。汚染質の排出強度に比例した粒子数を大気中に排出し、それぞれの粒子は気象予測モデルによって与えられた気象条件に従って挙動する。拡散項は鉛直方向だけを考慮したランダム・ウォーク法を用いており、各粒子に対するランダム・フォースは気象予測モデルによって計算される拡散係数に依存して与えられる。酸性雨の原因物質の主要なものは硫酸酸化物 ( $\text{SO}_x$ ) であり、排出量も窒素酸化物 ( $\text{NO}_x$ ) と比較しても圧倒的に多い。このモデルによる計算では汚染質として  $\text{SO}_x$  を対象にしている。化学反応のモジュールは含んでいないが、 $\text{SO}_2$  からサルフェートへの変質を考慮している。乾性沈着速度は地表面を陸域と水域に分類し、さらに汚染質ごとに異なった値を与えている。湿性沈着は降水による沈着だけを考慮し、「しきい値」以上の降水域において一定の割合で湿性沈着させている。降水のしきい値は予測降水量とアメダスデータとのスコア計算から決めた。

#### 3.3 輸送モデルによる計算

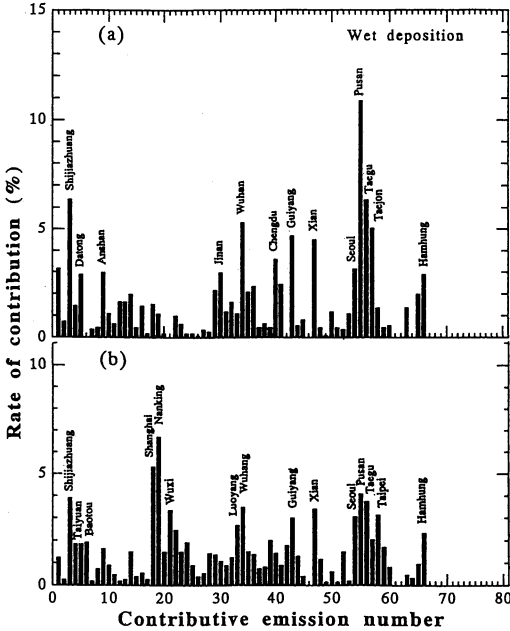
どのような数値モデルでもモデル検証によって信頼性を確かめる必要がある。米国における「国家酸性雨評価計画 (NAPAP)」では汚染質の排出源及び沈着データが整備されており、これらのデータを用いてモデル検証のための計算を実施した。モデル計算が測定値の約70%程度でやや過小評価をしていた。この結果



第3図 国外の排出源に起因するわが国における硫酸化物の沈着量 (1985年1月~12月までの計算結果).



第4図 測定による非海塩起源の  $SO_4^{2-}$  の湿性沈着量 (1985年4月~1986年3月; 環境庁による).



第5図 モデル計算による北九州地域における硫酸化物の湿性沈着量に寄与している排出源とその寄与率。(a)は1985年1月,(b)は同年7月を示す。

はモデルの手直しのためにフィードバックされている。

東アジア地域における硫酸化物の輸送過程の計算を1985年について1年間行った。汚染質の排出源データは加藤他(1991)による調査結果を利用した。この計算は外国の排出源によるわが国への寄与率を見積もるために国内の排出源は除いた。第3図は計算によるわが国の諸都市における硫酸化物の1年間積算した乾性及び湿性沈着量を示したものである。これに対して環境庁によって1985年3月から翌年4月まで測定された非海塩起源の  $SO_4^{2-}$  の湿性沈着量は第4図に示してある。また、モデルでは各粒子毎に属性が付されており、どの排出源から来たものであるかが分かるので、排出源毎の寄与率を見積もることも可能である。例えば、第5図は北九州市地域において降水によって湿性沈着した硫酸化物がどの地域の排出源から来たものであるか、またこの沈着量に対するそれぞれの排出源の寄与率を示したものである。冬季及び夏季を表す例としてそれぞれ1月(a)と7月(b)の1か月の積算沈着量を示した。

4. おわりに

酸性沈着を評価するための輸送モデルでは降水等の

気象が重要な役割を占める。そのためには雲物理過程を考慮する必要があり、広い計算領域を有する酸性沈着モデルの中で気象学的な雲物理過程と大気汚染質の雲における振舞との相互関係をどう取り入れて行くかが今後の問題として残されている。

### 参 考 文 献

- Eliassen, A., Ø. Hov, I. S. A. Isaksen, J. Saltbones and S. Stordal, 1982: A Lagrangian long-range transport model with atmospheric boundary layer chemistry, *J. Appl. Met.*, **21**, 1645-1661.
- Ellenton, G., B. Ley and P. K. Misra, 1985: A trajectory puff model of sulfur transport for Eastern North America, *Atmos. Environ.*, **19**, 727-737.
- Flossmann, A. I., 1991: The scavenging of two different types of marine aerosol particles calculated using a two-dimensional detailed cloud model, *Tellus*, **43B**, 301-321.
- Hegg, D. A., S. A. Rutledge and P. V. Hobbs, 1984: A numerical model for sulfur chemistry in warm-frontal rainbands, *J. Geophys. Res.*, **89**, D 5, 7133-7147.
- 加藤信夫, 小川芳樹, 小池俊也, 坂本保, 坂本進, 1991:

アジア地域のエネルギー消費構造と地球環境影響物質 (SO<sub>x</sub>, NO<sub>x</sub>, CO<sub>2</sub>) 排出量の動態分析, NISTEP REPORT No. 21.

- Kimura, F. and T. Yoshikawa, 1988: Numerical simulation of global scale dispersion of radioactive pollutants from the accident at the Chernobyl nuclear power plant, *J. Met. Soc. Japan*, **66**, 489-495.
- Rolph, G. D., R. R. Draxler and R. G. de Pena, 1993: The use of model-derived and observed precipitation in long term sulfur concentration and deposition modeling, *Atmos. Environ.*, **27A**, 2017-2037.
- Shin, Woo-Chul and G. R. Carmichael, 1992: Analysis of wet deposition in the eastern United States, *Atmos. Environ.*, **26A**, 465-584.
- 巽 保夫, 1983: 10層アジア地区ファインメッシュモデル, 気象庁電子計算室報告 No. 29, 45-93.
- Venkatram, A., B. E. Lay and S. W. Wong, 1982: A statistical model to estimate long term concentration of pollutants associated with long-range transport, *Atmos. Environ.*, **16**, 249-257.
- Zlatev, Z., J. Christensen and Ø. Hov, 1992: A Eulerian air pollution model for Europe with nonlinear chemistry, *J. Atmos. Chem.*, **15**, 1-37.

## 討 論

各演者に対する質問と総合討論を事務局でとりまとめました。

### 1. 原氏に対して

木村 (東北大学理学部):

酸性雨に乾性沈着まで含めなければならないのはどうしてか。乾性沈着は気象学的には降水とは関係ない。広域大気汚染という用語があるのだから、「酸性雨」に色々な現象を含める必要はないのでは?

原:

現在「酸性雨」という言葉で語られている現象を説明していくと、「雨」だけでは不十分になる。むしろ、「大気の酸性化」と呼びたい。

佐橋 (岡山大学教育学部):

酸性雨の定義について、原氏はより広い意味に取ろうとしておられるが、それはアカデミックな意味からというよりは、社会問題と

して酸性雨が取り上げられる場合に問題の矮小化を避けるためか?例えば、湿性沈着だけを酸性雨と言うと、どこが困るのか?

原:

雨が酸性化することと「酸性雨」は、少し違うことを申し上げたい。環境問題を考えると、どうしても影響を考えなくてはならない。その意味で「酸性雨」は象徴的に使われている言葉であると理解する。そうだとすると、しかし、「雨」だけでは抜け落とす部分が大きすぎると考える。

岡本 (東洋学園大学文学部):

この問題には化学的な立場だけでなく社会的・倫理的な立場が入ってくると思う。即ち、pH 5.6 は自然量なので、それを悪化させる人間活動の部分が問題で、それは人間が責任を負うべきだということ、やはり pH 5.6 で切るべきではないか?