

対流圏水溶性エアロゾルの挙動 - 数値モデルと三宅島噴火の事例解析 -

梶野瑞王・植田洋匡・An Junling*・薩摩林光**

* 中国大気物理研究所

** 長野県衛生公害研究所

要旨

気象モデルと連結したエアロゾルモデルシステム (MSSP:Regional Eulerian Model System for Soluble Particles) を構築した。MSSP は酸性雨, 雲物理, 領域的寒冷化などに大きく寄与する水溶性エアロゾルをターゲットに発展したモデルであり, ガス・エアロゾルの発生, 光化学反応, 輸送, 沈着, 揮発性物質のガス - エアロゾル平衡, 光学的特性までを予報する。また, MSSP を用いて近年類希なる二酸化硫黄を放出している三宅島火山の環境への影響を計算した。2000年7月における噴火開始から約1年に渡って, 領域的な酸性化, 放射収支への影響などを解析した。

キーワード: 領域エアロゾル輸送モデル MSSP, 三宅島噴火, 火山性硫酸エアロゾル, 酸性化, 光学的厚さ

1. はじめに

対流圏のエアロゾルは様々な時空間スケールで環境や生体に大きな影響を与えている。たとえば硫酸塩や硝酸塩などは環境の酸性化を促す。また微小粒子は呼吸で直接摂取することにより生体に影響を及ぼす。最近になってエアロゾルによる地球寒冷化効果も大きく取り上げられており, その不確定要素の多さから活発な研究が行われている。また, 特に東～東南アジア領域においては, 経済発展がめざましく, 増加する各種汚染物質は様々な面で環境に影響を与えている。また, アメリカ大陸まで到達するほど大規模な土壌粒子(いわゆる黄砂)の飛散もあり, 特に東アジア域の対流圏エアロゾルの動態は複雑であり, その全容の把握は困難である。

現在エアロゾルの研究は, ライダー網の整備, 衛星からのエアロゾル分布測定, 数値モデルによるシミュレーション, 各種サンプラーやオプティカルカウンタ, ネフェロメーターなど各種測器を用いた地上, エアロゾルゾンデ, 航空機などによる直接観

測など, 様々な手法を用いて, またそれらを相互的に関連させる(互いの欠点を補い, 総合的な長所を増やす)事により, 進められている。

ライダーに関しては, 黄砂の飛散を観測する為に, 東アジアの各地点や海洋船舶上などにライダーを設置して春季の黄砂イベントを狙って国立環境研究所のグループを中心に, 大規模な集中観測を展開している。衛星では黄砂の検出(鹿児島大グループなど)や, またエアロゾルの大まかな成分分類(国立環境研究所)もできるようになってきた。

数値モデルでは全球的な放射収支への影響を見ようとする全球輸送モデル(国立環境研究所, 東大気候システム研究センター)や, 領域を絞って細かい物理的・化学的機構に重点を置く領域モデル(京都大学防災研究所, 九州大学応用力学研究所など)などが数多く存在する。また, さらにマイクロスケールな素過程まで見る, 1次元モデルや box モデルなども存在する。

これまで, 我々は化学輸送モデルを用いて, 台湾

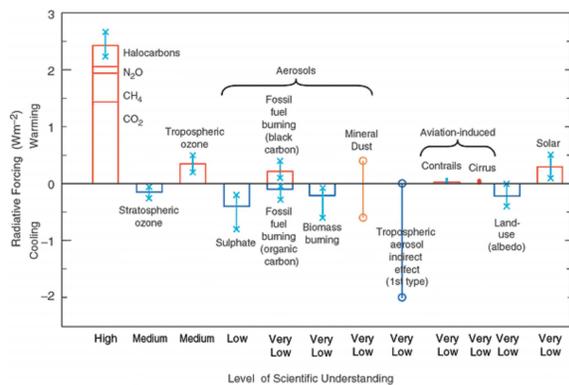


Fig. 1 : Global, annual-mean radiative forcings (Wm^{-2}) due to a number of agents for the period from pre-industrial (1750) to present (late 1990s; about 2000) same as fig. 9 in IPCC report, Climate Change 2001 : Working Group 1.

北部におけるオゾンイベント (Wang et al., 2000), 黄砂による酸性雨の中和 (Ueda et al., 2000; Terada et al., 2002), 東アジアにおける降水中の硝酸イオンの領域的予測 (An et al., 2002) などの業績を挙げた。本研究では An et al.(2002) における化学輸送モデル RAQM (Regional Air Quality Model) を中心に, 気象モデルと連結した, 東アジアにおけるガス, エアロゾルの発生, 光化学反応による二次生成, 輸送, 沈着, 揮発性物質のガス - エアロゾル間の熱力学的平衡, エアロゾルの光学特性を予測するモデルシステム MSSP (regional Eulerian Model System for Soluble Particles) を構築した。

MSSP は, 酸性雨, 地球寒冷化, 雲物理に影響を大きく与える水溶性エアロゾルの動態とその領域的分布に注目した領域輸送モデルである。酸性雨に関しては, これまで数多くの研究がなされてきたが, 気候への影響は不確定要素が大きく, 現在様々な研究が行われている。エアロゾルの気候への影響としてよく引用されるのは, 2001 年 IPCC (気候変動に関する政府間パネル) における図である (fig.1) (http://www.grida.no/climate/ipcc_tar/wg1/index.htm 参照)。

Tropospheric aerosol indirect forcing はエアロゾルによる雲物理を通じた間接的放射強制力の項であり, これはエアロゾルの増加により, 雲の形状 (より小さな粒子が増える) や寿命 (伸びる) を変化させる事で, 寒冷化に働くと言われている (Twomey, 1977; Albrecht, 1989 など)。その値に関する不確定パーは大きく, ゼロとも言われているし, 主要温暖化物質 (二酸化炭素, メタン) による温暖化を相殺するレベルとまで言われている。また土壌粒子に

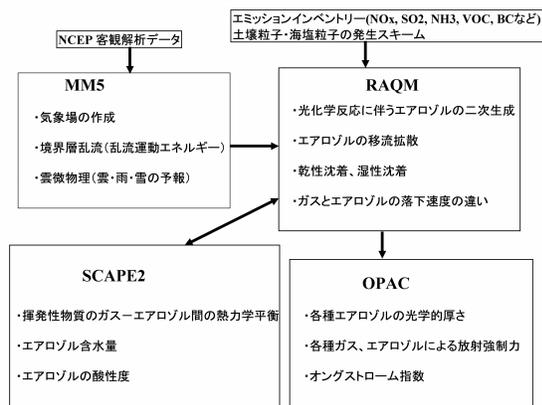


Fig. 2 : A brief description of the MSSP model.

関する放射強制力も定量的には不確定であり, 温暖化に寄与すると, 寒冷化に寄与するとも言われている。こうした動きの中で, まずは数値モデルによる各種エアロゾルの領域的分布をより正確に再現する必要があり, その次のステップとして雲物理を細かく取り入れたモデルへと発展していく予定である。

以下, 第 2 章では現在まで発展してきた MSSP に関する簡単な紹介を行う。第 3 章では近年類希なる二酸化硫黄を放出してきた三宅島火山の噴火について MSSP を適用した事例解析について言及する。

2. モデル概要

次にモデルの概要を説明する。

2.1 outline

MSSP の簡単な流れ図を fig.2 に示す。気象モデル MM5 (5th generation PSU/NCAR Mesoscale Model; Dudhia, 1993.) により気象場, 雲粒, 氷晶, 雨滴, 雪などの hydrometeor 物質, 乱流運動エネルギーなどを予報し, 領域大気質モデル RAQM (Regional Air Quality Model; An et al., 2002) によりガス, エアロゾルの排出, 光化学反応による二次生成, 輸送, 沈着などを計算, また熱力学平衡モデル SCAPE2 (Simulating Compositions of Atmospheric Particles at Equilibrium; Meng et al., 1995) により揮発性無機物質のガス - エアロゾル間

の平衡状態やエアロゾル含水量とその pH などを計算, OPAC (Optical Properties of Aerosol and Cloud; Hess et al., 1994) を用いてエアロゾルの光学的厚さなどを計算する。

2.2 MM5

MM5 は非静力学平衡領域メソスケールモデルであり, 本研究では NCEP (National Center for Environmental Prediction) の客観解析データ (Final Analysis = 水平 1 度間隔, 6 時間間隔) の, 気圧, 温度, 風向風速, 湿度, ジオポテンシャル高度を初期値及び境界値として, Grell (1993) の積雲対流パラメタリゼーション, Reisner (1998) の雲微物理モデル (水蒸気, 雲粒, 氷晶, 雨滴, 雪の 5 変数の混合比を予報), Gayno-Seaman の境界層乱流スキーム (乱流運動エネルギー, 境界層高さなどを予報) を用いて, 4 次元同化させながら長期間走らせた。ドメインは水平ランベルト正積円錐図法で 50km 間隔, 鉛直方向は地表から 100hPa までを地形準拠座標で 23 層 (格子間隔は境界層内を小さく, 自由大気中は大きく) に分割している。

2.3 RAQM

RAQM はオイラー型化学輸送モデルであり, 東アジアを含む水平は東経 74 度から 156 度, 北緯 15 度から 60 度までの 1 度間隔 (緯度経度座標) である。鉛直は地表から対流圏界面 (11km とする) までの鉛直 23 層 (格子間隔は境界層内を小さく, 自由大気中を大きく)。以下に各スキームについて説明する。

2.3.1 ガス・エアロゾルの排出

人為起源の窒素酸化物 (NO_x), 二酸化硫黄 (SO_2), アンモニア (NH_3), 揮発性有機化合物 (VOC) などのエミッションインベントリには Streets et al. (2002) を用いている。その他, 火山起源の二酸化硫黄, 人為及び自然起源のブラックカーボンの排出には GEIA (Global Emissions Inventory Activity)-IGAC (International Global Atmospheric Chemistry) を用いている。

土壌粒子の発生モジュールは粒径を 9bin に分類し, 最下層風速, 摩擦速度, 相対湿度, 植生などを用いた Wang and Ueda (1999) を使用, 海塩粒子の飛散プロセスは五島列島のアンダーセンサンプ

ラー観測結果から求めたものを使用している。

2.3.2 光化学反応

光化学反応による二次生成には, 32 の化合物と 52 の気相化学反応を含む Condensed Carbon Bond IV スキーム (An et al., 2002) を用いている。液相における化学反応は, 長距離輸送には大きな影響を与えない (An et al., 2002) として省略している。

2.3.3 輸送

物質の輸送過程は風による移流と乱流による拡散とに分類される。移流には Walcek and Aleksic (1998) の移流アルゴリズム MPMAA (Mass-conservative, Peak-preserving, Mixing-ratio-bounded Advection Algorithm) を用いている。

輸送物質の乱流拡散係数については, MM5 で予報した TKE (turbulent kinetic energy) から乱流運動エネルギーに基づいた 1.5 次のクロージャースキーム (Xue et al., 1995) を通して以下のように計算する。

$$K_{mh} = 0.1E^{\frac{1}{2}}l_h \quad (1)$$

$$K_{mv} = 0.1E^{\frac{1}{2}}l_v \quad (2)$$

K_{mh}, K_{mv} はそれぞれ, 水平と鉛直の運動量の乱流拡散係数である。 E は乱流運動エネルギー (TKE)。 l_h and l_v は, 水平と鉛直の代表的スケールを表す。

$$l_h = (\Delta x \times \Delta y)^{-\frac{1}{2}} \quad (3)$$

$$l_v = \Delta z \quad (4)$$

$$= \min \left(\Delta z, 0.76E^{-\frac{1}{2}} \left| \frac{g}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial z} \right|^{-\frac{1}{2}} \right) \quad (5)$$

4 式は成層が不安定及び中立状態 ($1/L \leq 10^{-5}$) の場合であり, 5 式は安定成層状態 ($1/L \geq 10^{-5}$) の場合である。 L はモニン・オブコフ長さである。物質及び熱の乱流拡散係数 K_H は乱流プラントル数 Pr を用いて

$$K_H = \frac{K_m}{Pr} = \left(1 + \frac{2l_v}{\Delta z} \right) K_m \quad (6)$$

と表せる。

2.3.4 沈着

輸送物質の沈着は乾性沈着 (重力降下, 植生などへの取り込み) と湿性沈着 (hydrometeor 物質への

溶解，衝突併合され落下)に分類される。乾性沈着には，Walmsley and Wesely (1996) のスキームを用いている。

湿性沈着速度は，MM5 で予報した hydrometeor 物質の混合比と，エアロゾルと hydrometeor 物質の捕集効率を用いて計算する。

$$\frac{\Delta X}{\Delta t} = S \times V \times Et \times C \quad (7)$$

X は湿性沈着量である。 C は輸送物質濃度， S は hydrometeor 物質の総面積， V はエアロゾルと hydrometeor 物質の相対落下速度， Et は捕集効率である。

$$Et = E \times Ec \quad (8)$$

ここで E は衝突効率， Ec 併合効率である。 Ec は hydrometeor 物質の直径 Dp とエアロゾルの直径 dp を用いて，

$$Ec = \frac{Dp^2}{(Dp + dp)^2} \quad (9)$$

と表せる。一方，衝突効率 E は

$$E = \frac{y^2}{(Dp + dp)^2} = \frac{Ev + EpRef/60}{(1 + Ref/60)} \quad (10)$$

$$Ep = \left(\frac{Stk}{Stk + 0.5} \right)^2 \quad (11)$$

$$Ev = \left[1 + \left(\frac{0.75 \ln(2Stk)}{Stk - 1.214} \right)^2 \right] \quad (12)$$

y は衝突臨界半径， Ep はポテンシャル流れにおける衝突効率， Ev 粘性流における衝突効率である。 Ref はレイノルズ数で

$$Ref = \frac{2u_0 a_f}{\nu} \quad (13)$$

と定義される。ここで u_0 と a_f はそれぞれ終端落下速度及び hydrometeor 物質の半径であり， ν は動粘性係数である。

$$Stk = \frac{\tau u_0}{a_f} \quad (14)$$

$$\tau = \frac{m_p Cc}{3\pi\mu Dp} \quad (15)$$

τ は緩和時間， m_p は hydrometeor 物質の質量， Cc カニングガムの補正項， μ は空気の粘性係数である。これらの気象パラメータは代表的な値を用い，エアロゾルと hydrometeor 物質は全て球形を仮定している。

2.4 SCAPE2

SCAPE2 は内部混合状態における 10 種の主要無機物質， SO_4^{2-} ， NO_3^{2-} ， Cl^- ， CO_3^{2-} ， NH_3^+ ， K^+ ， Ca^{2+} ， Na^+ ， Mg^{2+} ， H_2O の平衡状態を計算する。化学平衡状態では以下の式が成り立つ。

$$\sum v_{ij} \mu_i = 0 \quad (16)$$

ここで v_{ij} は物質 i の反応式 j における量論係数である。物質 i の化学ポテンシャル μ_i は以下のように定義する。

$$\mu_i = \mu_i^0 + RT \ln a_i \quad (17)$$

μ_i^0 は標準状態での物質 i の化学ポテンシャル， a_i はその活量である。反応式 j の平衡定数 K_j は

$$K_j = \Pi a_i^{v_{ij}} = \exp \left[-\frac{1}{RT} \sum v_{ij} \mu_i^0 \right] \quad (18)$$

潮解湿度以下ではエアロゾルは固相に存在し，標準状態の化学ポテンシャル μ_i^0 は，1 モル当たりの標準生成 Gibbs 自由エネルギー ΔG^0 ，1 モル当たりの標準生成エンタルピー ΔH^0 ，標準定圧モル熱容量 C_p を用いて，以下の熱力学関係から表せる。

$$\begin{aligned} \frac{\mu_i^0}{RT} &= \frac{\Delta G_i^0}{R T_0} + \frac{\Delta H_i^0}{R T_0} \left(\frac{T_0}{T} - 1 \right) \\ &\quad - \frac{C_p^0}{R} \left(1 + \ln \left(\frac{T_0}{T} \right) - \frac{T_0}{T} \right) \end{aligned} \quad (19)$$

空気塊の相対湿度が潮解湿度を超えると，エアロゾルは液滴として存在する。このとき反応式 j の平衡定数 K_j は，

$$K_j = \Pi a_i v_{ij} = \Pi (\gamma_i m_i) v_{ij} \quad (20)$$

ここで γ_i は活量係数， m_i は重量モル濃度である。

このモデルの本質的な点は，如何に活量 a_i を決定するか，つまり如何に重量モル濃度 m_i ，活量係数 γ_i を決定するかということである。重量モル濃度を決定する為に，エアロゾルに含まれる水分量をまず決定する。含水量は ZSR 関係を用いる。大気と平衡状態にあるエアロゾル内の水の活量 a_w が，大気の相対湿度 RH と等しいと仮定すれば，エアロゾル含水量 W (g(water)/m³(air)) は，

$$W = \frac{\sum M_i}{\sum m_{i0}(a_w)} \quad (21)$$

となり，ここで M_i は大気 1 m³ あたりの液相内の塩 i の物質質量， m_{i0} は水の活量が a_w (=RH/100) であったときの塩 i の重量モル濃度である。多成分系高濃度溶液における活量係数 γ_i は Pitzer 法により決定する。

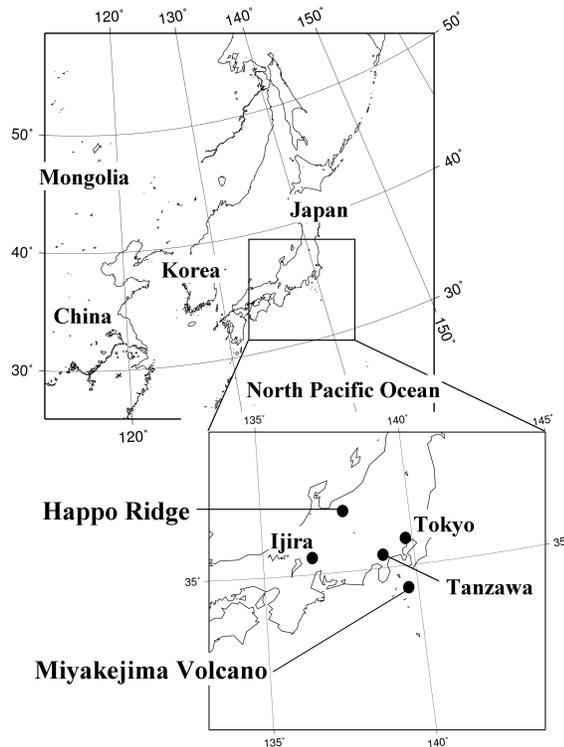


Fig. 3 : A depiction of Far East Asia, Happo Ridge, Miyakejima Volcano and other locations mentioned in this paper.

2.5 OPAC

OPACは大気中の粒子状物質（6の水雲，3の氷晶雲，10種のエアロゾル）の微物理パラメータと光学特性をストアしたソフトウェアパッケージである。光学特性とは消散係数，散乱係数，吸収係数，単一散乱アルベド，アシンメトリパラメータ，位相関数である。これらは，エアロゾルと雲粒は球形，氷晶は六方晶系という仮定の上での粒径分布や屈折率を基にして， $0.25 \sim 40 \mu\text{m}$ までの61の波長と，また水溶性のエアロゾルに関しては湿度依存性を8段階に評価して，与えられている。各種エアロゾルの光学的厚さ τ は簡単に，

$$\tau = \sum_j \sigma_{e,j}^1 \int_{H_{j,min}}^{H_{j,max}} N_j dh \quad (22)$$

で導出できる。 $\sigma_{e,j}^1$ はj層での粒子1個あたりの消散係数， N_j はj層での粒子の数密度である。

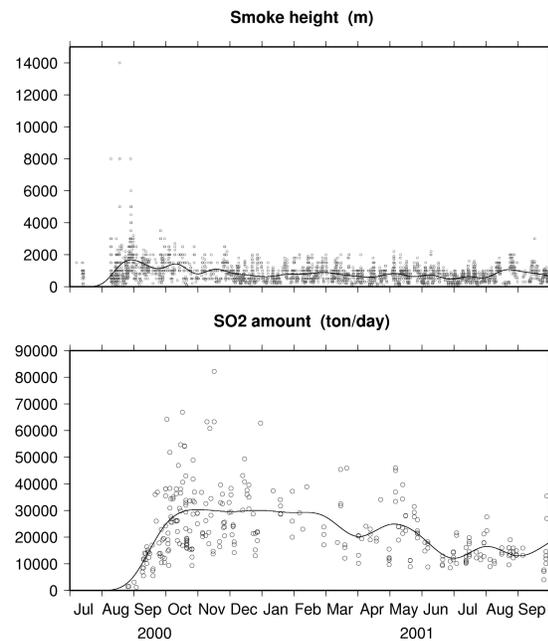


Fig. 4 : Temporal variations of the smoke height and the sulfur dioxide amount emitted from Miyakejima Volcano. The circles are the observational values of the COSPEC by JMA and they are smoothed by the spline function in the solid line for the numerical simulation.

3. 三宅島火山の事例解析

第3章ではMSSPを用いた三宅島火山の事例解析結果を紹介する。

3.1 序論

北西太平洋上，東京の約200km南に位置する三宅島は2000年7月依頼，近年類希なる二酸化硫黄をその火山活動により放出している。気象庁地震火山部は，現在に至るまでその放出量と噴煙高度を連続的に観測しているが，その結果によると，2000年9月から2001年8月までの1年間でおおよそ900万tonの放出量である。これは中国全土の人為起源排出量のおおよそ半分，日本全国のそれの10倍にも匹敵する量である。観測値の最大値は，放出量が9万ton/day，噴煙高度は14kmにも達する。日本の各国設常時監視局においては二酸化硫黄濃度が100ppbを越す高濃度を示し，また各地で異臭騒ぎが持ち上がった。三宅島火山が放出した二酸化硫黄や，それが大気中で酸化され生じた硫酸工

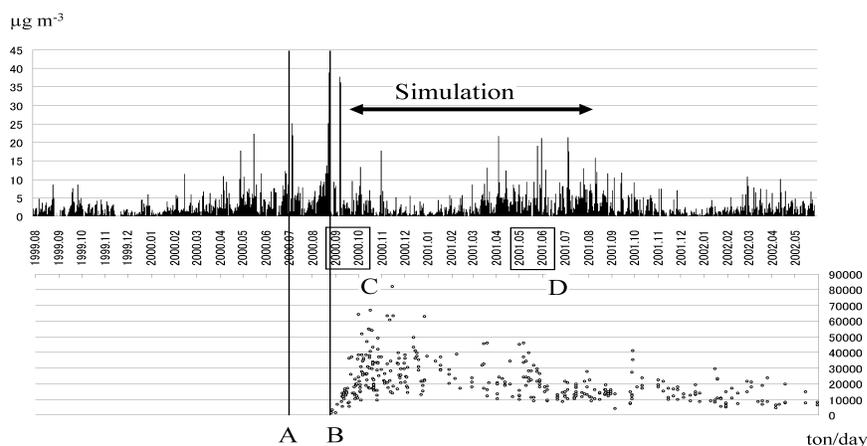


Fig. 5 : Temporal variations of the observed sulfate concentration at Happo and the sulfur dioxide amount erupted from the volcano. Characters in the figure are important dates, A is the beginning of the eruption on 8 July, B is the beginning of the observation by JMA and C and D are intensive observation periods at Happo.

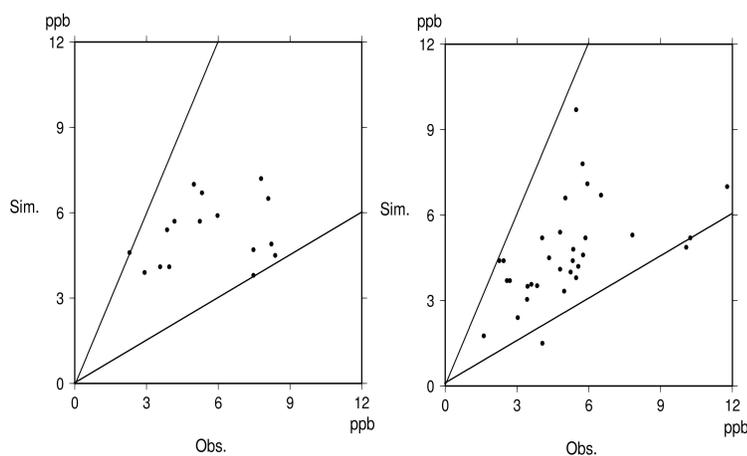


Fig. 6 : Comparisons of monthly mean sulfur dioxide concentrations calculated by the MASP model with those observed in various Japanese monitoring sites (a) before the eruption and (b) after the eruption.

アロゾルに関して、数々の報告例や研究例が存在する(茅野ら, 2001; 宮崎ら, 2001; 鹿野ら, 2002; Satsumabayashi et al., 2003 など)。

本章の主要参考文献である Satsumabayashi et al. (2003) (以下 S-03 と記入) は、中部山岳地帯八方尾根(標高 1850m)におけるエアロゾルと降水の酸化について解析を行った。この火山性の硫酸エアロゾルに関しては、領域的に環境の酸性化や放射収支に大きく影響を与えていると考えられているが、数値計算を用いた研究例はまだ無い。本章では S-03 による観測結果についての数値モデルを用いた追加的解析および領域的な環境への影響の解析を行う。本章で言及される各地点を fig.3 に示した。

3.2 手法

3.2.1 計算手法

用いたモデルは本論文で紹介した MASP である。三宅島起源の二酸化硫黄に関しては、気象庁地震火山部による COSPEC(correlation spectrometer) によるトラバース観測のデータ(風早ら, 2001) をスプライン関数で平滑化してモデルに入力した (fig.4)。また、火口から噴煙高度まで線形の濃度勾配をもたせた。海洋起源のジメチル硫黄や、他の火山起源の二酸化硫黄などは、考慮していない。

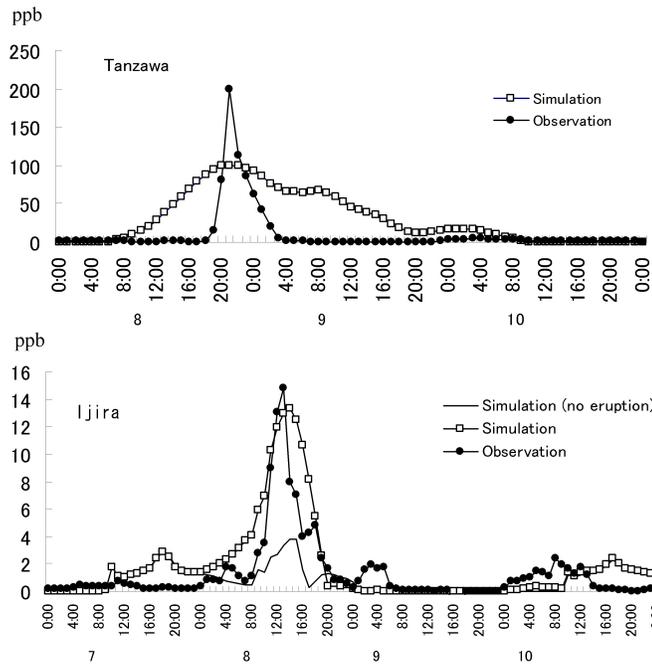


Fig. 7 : Comparisons of hourly mean sulfur dioxide concentrations simulated with observed at two sites (Tanzawa and Ijira) of EANET in October 2000.

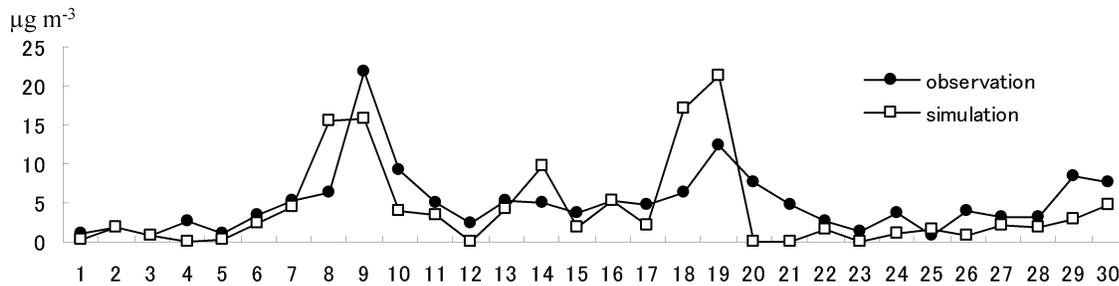


Fig. 8 : Comparison of daily sulfate concentrations simulated with observed at Happo in April 2001.

3.2.1 観測手法と解析期間

S-03 はミドルボリュウムエアサンプラーによりエアロゾルの地上フィルタリング採取を八方尾根において行っている。サンプルはイオンクロマトグラフィで分析され、水溶性成分濃度を測定する（詳細は S-03 を参照のこと）。我々は 1999 年の 9 月から 1 日 1 回 12 時から 15 時までの 3 時間の観測を行っており、特に 2000 年 9 月から 10 月、2001 年 5 月 6 月にかけての約 1ヶ月を強化観測期間として設け、1 日 6 回 4 時間後との連続サンプリングを行ってきた。Fig.5 はそれぞれ八方尾根で観測された硫酸エアロゾル濃度（上）と気象庁が観測した二酸化硫黄放出量（下）の時系列である。図中の文字 (A) ~ (D) は重要な期間を表している。(A) は三宅島の噴火開始（2000 年 7 月 8 日）(B) は気象庁による観測開始（2000 年 8 月 26 日）(C)、(D) はそ

れぞれ 2000 年 9 月から 10 月、2001 年 5 月から 6 月の強化観測期間を示す。期間 (C) では、数値モデル結果が観測を大きく下回り、これは噴火開始直後は噴煙が巨大であったため COSPEC の紫外線が透過せず、観測値が大幅に過小評価されている可能性 (Kazehaya, 2001) によると考えられる。そこで次節以降は、期間 (D) における解析を中心に行う。

3.3 計算結果

3.3.1 バリデーション

Carmichael et al. (2002) は種々の主要モデル間相互比較の結果から、硫黄化合物の動態は化学輸送モデルにおいて、おおそ良く計算できると結論づけている。しかし、火山起源を含めた硫黄化合物が MSSP において正確に再現できているか、バリ

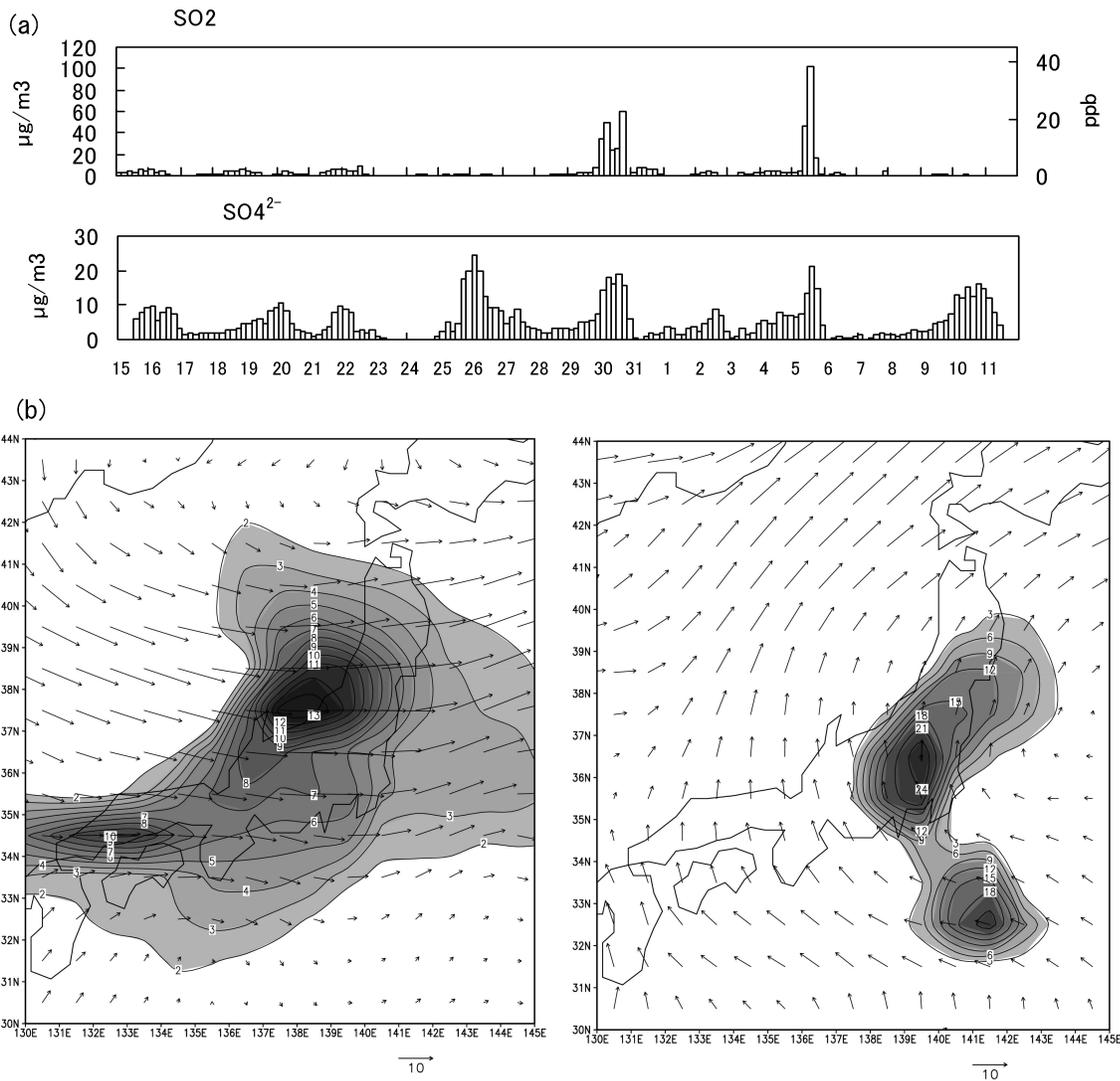


Fig. 9 : (a) Temporal variations of observed concentrations of sulfur dioxide (the above) and sulfate (the below) from 15 May to June in 2001. (b) Simulated concentration of anthropogenic sulfate on 26 May (the left) and that of the volcanic sulfate on 30 May (the right). The arrows are wind fields around Japan at about 1500m MSL.

レーションの必要がある。

Fig.6 は二酸化硫黄の月平均の比較である。Fig.6(a) は 2000 年 5 月および 6 月（噴火前），Fig.6(b) は 2000 年 10 月および 11 月（噴火後）において，国設常時監視局が 50 以上含まれる 8~10 のグリッドにおいて比較している。これらはおおよそ 2 のファクターで一致している。

Fig.7 は東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の国内サイト，丹沢および伊自良における二酸化硫黄の時系列の比較図である。2000 年 10 月 8 日前後に南東風により三宅島起源の二酸化硫黄が運ばれて日本各地に高濃度イベントをもたらした。当時，丹沢（三宅島から北西に約 100km）においては観測値は 200ppb を超えたが，モデルの

ピークはその半分 100ppb であり，ピークもなめらかになっている。三宅島の放出した二酸化硫黄はモデル内では瞬時に 1 度 1 度間隔で拡散されるので，三宅島に近いグリッドでは，ピークはなめらかになってしまう。そして丹沢よりはるかに遠い伊自良においては，モデルは火山性プリュームを定量的にも傾向的にも大変良く再現している。

Fig.8 は 2001 年 4 月の八方尾根における硫酸エアロゾル濃度の日間値との比較である。硫酸エアロゾルの月平均値は 2001 年 4 月で最も高かった。モデルは傾向的にも定量的にも良く再現している。

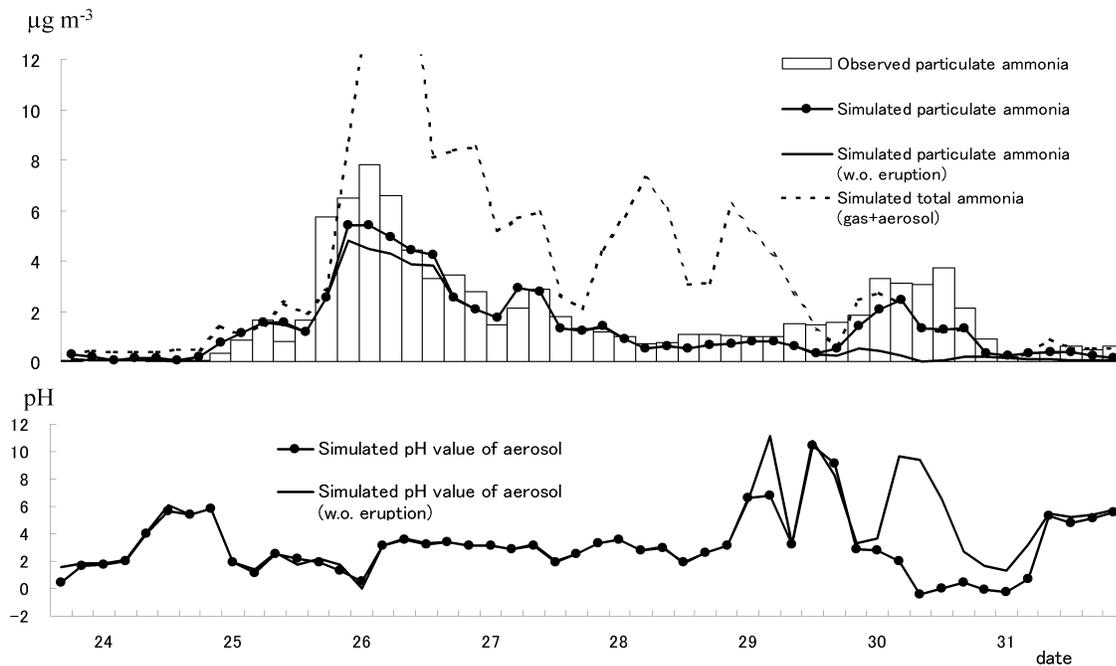


Fig. 10 : Temporal variations of ammonia concentrations and the pH values of aerosol at Happo. The boxes are observed particulate ammonia, the solid line with circles is simulated particulate ammonia and the solid line is simulated particulate ammonia in case of no volcanic sulfate. The dash line is simulated total (gas + aerosol) ammonia.

3.3.2 計算結果

まず 2001 年 5 月から 6 月にかけての強化観測期間における八方尾根での二酸化硫黄と硫酸エアロゾル濃度の観測値を時系列で示す (Fig.9(a))。5 月 26 日付近と 30 日付近に硫酸エアロゾルのピークがみられる。Fig.9(b) は、それぞれのピーク時での計算結果を示しているが、左は 26 日における人為起源硫酸エアロゾルであり、硫酸全体 (人為起源 + 三宅島起源) の約 80% を占めていた。右は 30 日における三宅島起源硫酸エアロゾルであり、全体の約 90% を占めていた。つまり、最初のピークは大陸性人為起源、二番目のピークは三宅島起源と、分類された。

Ueda et al.(2000) は SCAPE2 (2.4 節参照) を関東平野のガス - エアロゾル平衡に適用し、アンモニアに関してハイスコア ($R=0.98$) を得ている。Fig.10 は前述二つのピークにおけるアンモニア濃度 (ガス相及びエアロゾル相) とエアロゾルの pH の時系列である。棒グラフは観測されたエアロゾル相アンモニア、丸付き実線は MSSP で計算したエアロゾル相アンモニアである。実線は計算されたエアロゾル相アンモニアであるが、三宅島火山による放出が無い場合、つまり硫酸エアロゾルが少ない状

態での粒子状アンモニアである。アンモニアは通常ガス状で存在するが、硫酸と結合し、硫酸アンモニウムとして粒子相に固定される。火山による放出が無い計算では、硫酸エアロゾルが少ないので、固定された粒子状アンモニアも少なくなっている。なお、破線は計算されたトータル (ガス + エアロゾル) のアンモニアである。三宅島火山による放出が無い場合で、観測と計算の相関係数は 0.802、火山性硫酸エアロゾルを考慮すると、0.908 まで上昇した。アンモニアの長距離輸送と熱力学平衡は MSSP によって良く再現された。30 日の火山性プリュームでは、硫酸エアロゾルが過剰に存在し、全てのアンモニアはエアロゾル相に固定され、エアロゾルの pH は 0 またはそれ以下であった。三宅島起源硫酸によりアンモニアは火山の放出が無い場合に比べて、10 倍以上固定され、pH は平均で 4.5 程度降下した。

Fig.11(a) は 30 日の火山性プリューム通過直後の降水の成分構成である。ほとんどが硫酸エアロゾルであり、この時の降水の pH は 2.3 と強く酸化されていた。Fig.11(b) は人為起源硫酸に対する三宅島起源硫酸の湿性沈着量の比であるが、三宅島起源の硫酸は人為起源硫酸のおよそ 5~6 倍降水により沈着している。従って三宅島噴火によってこの降水は

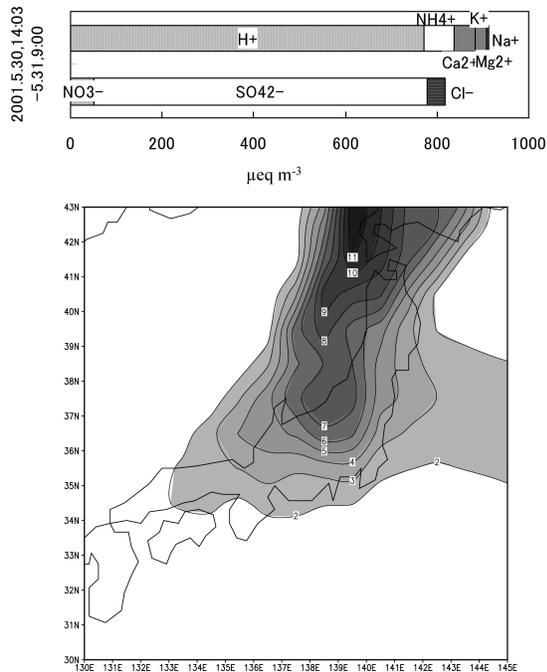


Fig. 11 : Compositions of precipitation observed at Happo after the volcanic peak on 30 May (the above) and simulated ratio of wet deposition of the volcanic sulfate to anthropogenic at that period (the below).

pH3.3 から pH2.3 まで酸化されていた。

次に二酸化硫黄から硫酸への酸化速度であるが、通常東アジアの対流圏においては、1.5~3.5%/hr とされている。鶴野ら (1997) と S-03 はそれぞれ、桜島火山から九州地方へ、三宅島から八方尾根への気塊の酸化速度について、各サイトにおける硫酸及び二酸化硫黄の濃度観測値と、後方流跡線解析からこの速度を見積もり、鶴野ら (1997) は 2.5%/hr、S-03 は 1%/hr (昼間は夜間のおよそ 2 倍) とした。S-03 は三宅島から八方尾根の移流は、主に光化学オキシダントの少ない対流圏中層を通過してきた為、酸化速度が低いと結論した。Fig.12 は八方尾根を含むグリッド (36.5N, 137.5E を中心とする) における 2000 年 5 月の月平均鉛直プロファイルであるが、(a) は酸化速度、(b) は境界層内の酸化速度、(c) は OH ラジカル、(d) は硫酸の生成速度 ($\mu\text{g}/\text{m}^3/\text{sec}$) である。実線は全時間の平均、破線は 12~15 時の

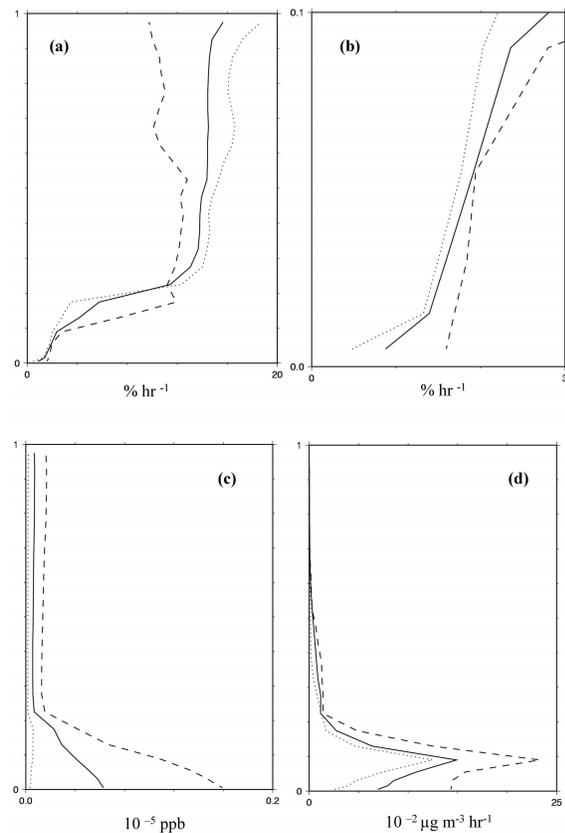


Fig. 12 : (a) Simulated vertical profile of the oxidation rate from sulfur to sulfate near Happo averaged in May 2000. The solid line is that of night (0 to 3 LST) same in fig 10. (b) Same as (a) but within about 1km above ground level.(c) Simulated vertical profile of OH radical concentration. (d) Simulated vertical profile of the generation rate of sulfate.

平均、点線は 0 時から 3 時の平均値である。計算された酸化速度は境界層内で 1~4%/hr であり、観測と同程度であった。また昼間は夜間のおよそ 2.05 倍であった。対流圏中上層での酸化速度は極端に大きくなっているが、これは硫酸濃度が極端に低くなる為である (硫酸エアロゾルの生成速度のピークはおよそ高度 1km にある)。MSSP で用いている光化学反応スキーム (Condensed Carbon Bond IV) では二酸化硫黄は、ほぼ OH ラジカルと反応するとなっている。OH ラジカル濃度の低い夜間で硫酸エアロゾルの生成速度は遅く、昼間では速い。

境界層における三宅島起源硫酸エアロゾル濃度の月平均値を Fig.13 に示す。(a) は 2000 年 10 月、(b) は 2001 年 1 月、(c) は 2001 年 4 月、(d) は 2001 年 7 月である。冬季は季節風により硫酸エアロゾルは太平洋へと移流し、日本付近には少なかった。また、酸化速度も遅く、1 月のコンターは $3\mu\text{g}/\text{m}^3$

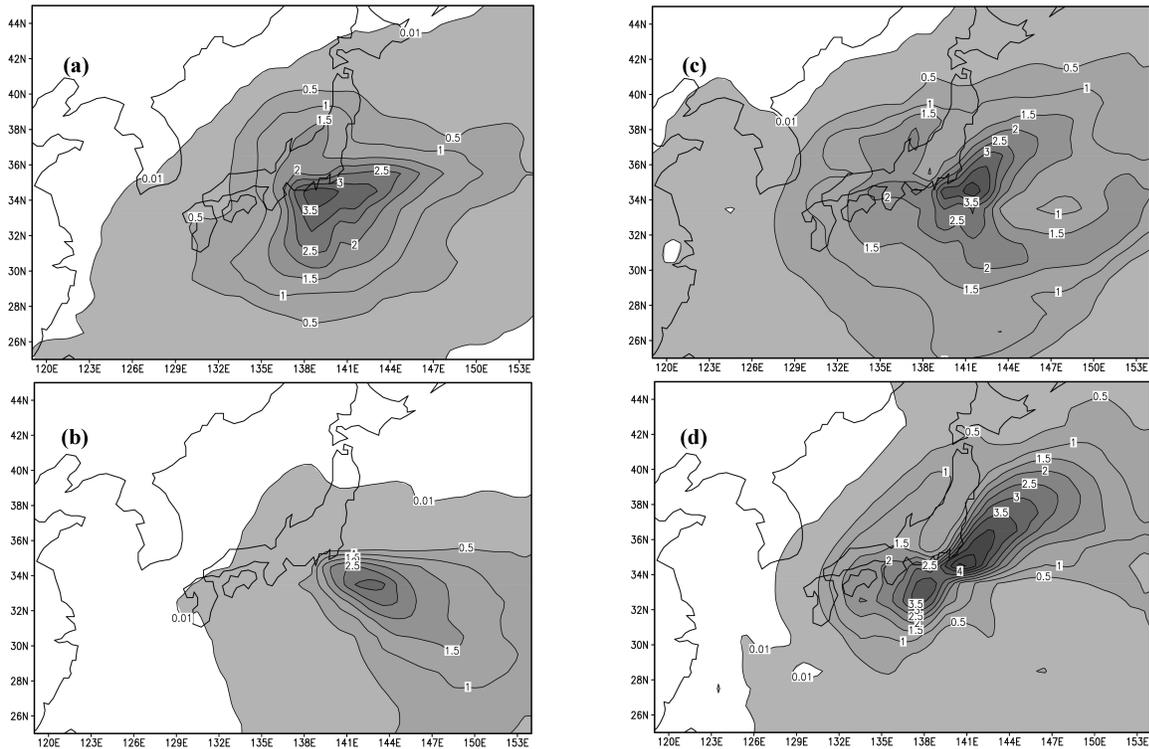


Fig. 13 : Seasonal variations of the volcanic sulfate concentration within PBL in (a) October 2000 and (b) January 2001.

Same as the left figure but in (c) April 2001 and (d) July 2001.

が最高値である。春から夏にかけて、太平洋の高気圧システムにより日本付近にも三宅島起源硫酸エアロゾルは移流し、さらに酸化速度も速くなり、三宅島の二酸化硫黄放出量は時間が経つにつれて減少したにもかかわらず (fig.4)、硫酸濃度は高くなった (7月のコンターの最高値は $4.5\mu\text{g}/\text{m}^3$)。

Fig.14 は 2001 年 5 月の 550nm における硫酸エアロゾルによる光学的厚さの平均値を示す。(a)~(d) はそれぞれ、トータル(人為起源+三宅島起源)硫酸エアロゾル, 人為起源, 三宅島起源, 三宅島起源硫酸エアロゾルの割合を示す。2001 年 5 月においては人為起源硫酸と三宅島起源硫酸はほぼ同程度存在した。冬季は三宅島起源硫酸の割合が高く、日本東海上で高いところでは 90%程度が三宅島起源であった。Takemura et al.(2002) は太平洋上における硫酸エアロゾルと炭素性エアロゾルの光学的厚さの寄与の重要性を示しているが、特に冬季において三宅島火山による硫酸エアロゾルの寄与の重要性もまた示唆される。

3.4 結論

極東アジア域の三宅島噴火による二酸化硫黄と硫酸エアロゾルの動態が、MSSP モデルにより再現された。

2001 年 5 月における硫酸エアロゾルの 2 度のピークは、大陸性人為起源と三宅島起源に分類された。

アンモニアの輸送とガス - エアロゾル間の熱力学平衡は MSSP で良く再現された ($R=0.908$)。火山性プリューム内では硫酸エアロゾルが過剰に存在し、全てのアンモニアはエアロゾル相に存在した (噴火が無い場合の計算の 10 倍以上)。その時のエアロゾルの pH は 0 かそれ以下であった。プリュームの通過直後の降水は三宅島起源硫酸エアロゾルにより pH3.3 から 2.3 に極端に酸化されていた。

計算された境界層における二酸化硫黄から硫酸への酸化速度は 5 月平均で $1\sim 4\%/hr$ であり、観測と同程度であった。昼間は夜間に比べて 2.05 倍であった。硫酸エアロゾルの生成速度のピークは高度約 1km であった。

冬季は季節風により三宅島起源硫酸は日本付近で少なく、また酸化速度が遅い為、濃度ピークも $3\mu\text{g}/\text{m}^3$ 程度であった。夏季は太平洋高気圧システムにより日本付近に三宅島起源硫酸が移流し、また

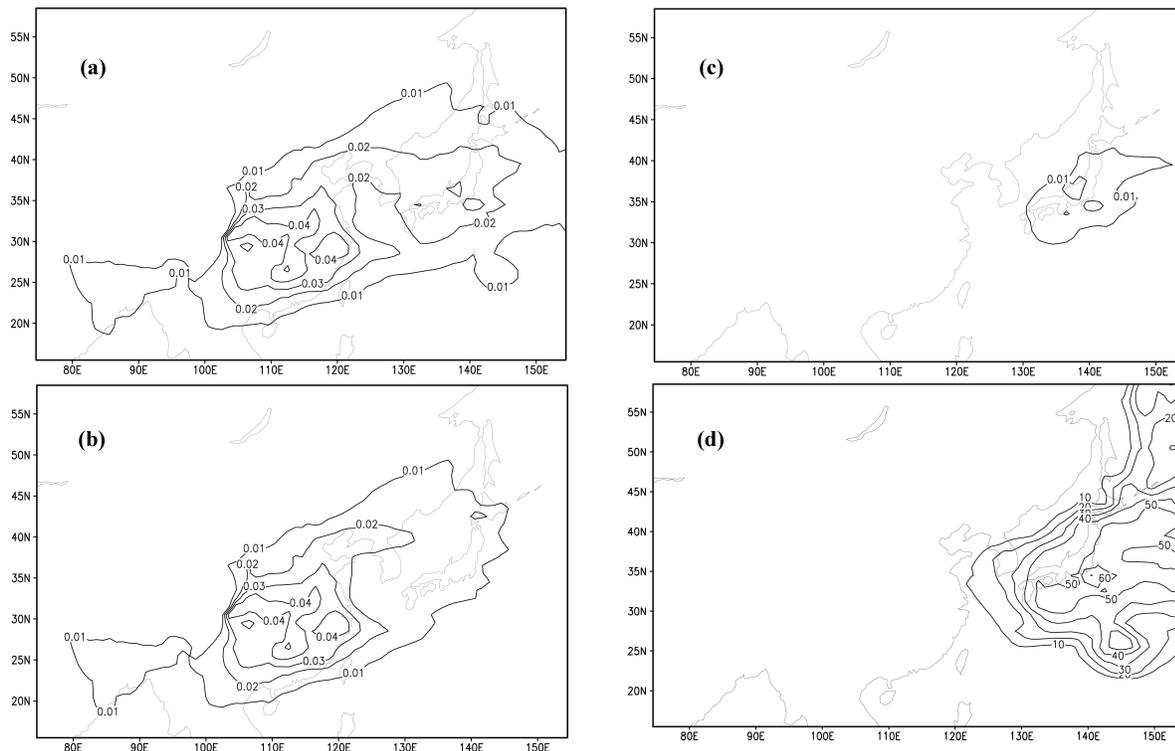


Fig. 14 : Monthly mean optical thickness in May 2000, (a) total and (b) anthropogenic.

Same as the left figure but (c) the volcanic and (d) ratio of the volcanic to total.

酸化速度も速い為、三宅島の放出する二酸化硫黄は時間と共に減少したにもかかわらず、濃度ピークは最も高くなった ($4.5\mu\text{g}/\text{m}^3$)。

太平洋における三宅島起源の硫酸エアロゾルの光学的厚さへの寄与の重要性も示唆された。

謝辞

気象庁地震火山部の菅野智之様には三宅島の貴重な観測データを提供して頂きました。酸性雨研究センターの松田和秀博士には東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) のデータを頂きました。アルゴンヌ国立研究所の David Streets 博士には、2000 年のエミッションインベントリのデータを頂きました。以上の方々には厚く御礼申し上げます。

参考文献

茅野政道 (2001): 三宅島噴火とガスのシミュレーション, 三宅島噴火と広域大気汚染, 大気環境特別講演会, pp.27-36.
 鹿野孝男・川村實・薩摩林光・西沢宏・村野健太郎 (2002): 長野県北部で観測された火山ガスにより生成した高濃度硫酸エアロゾル, 大気環境学会誌, 第 37 巻, 1 号, pp.75-80.

風早康平 (2001): 三宅島噴火における火山性ガスの噴出量, 三宅島噴火と広域大気汚染, 大気環境特別講演会, pp.17-26.

宮崎務 (2001): 三宅島噴火の経緯と現状, 三宅島噴火と広域大気汚染, 大気環境学会特別講演会, pp.1-6.

鶴野伊津志・若松伸司・植田洋匡・村野健太郎・酒巻史郎・栗田秀實・薩摩林光・寶来俊一 (1997): 春季の移動性高気圧通過時の九州地域での二次汚染物質と火山性 SO_2 の挙動, 大気環境学会誌, 第 32 巻, 6 号, pp.404-424.

Albrecht, A. B. (1989): Aerosols, cloud microphysics, and fractional cloudiness, *Science*, Vol. 245, pp.1227-1230.

An, J., Ueda, H., Wang, Z., Matsuda, K., Kajino, M. and Cheng, X. (2002): Simulations of Monthly mean nitrate concentrations in precipitation over East Asia, *Atmospheric Environment*, Vol. 36, pp.4159-4171.

Carmichael, G.R., Calori, G., Hayami, H., Uno, I., Cho, S.Y., Engardt, M. and Kim, S.B., Ichikawa, Y., Ikeda, Y., Woo, J.H., Ueda, H., Amann, M. (2002): The MICS-Asia study: model intercomparison of long-range transport and sulfur deposition in East Asia, *Atmospheric Environment*, Vol. 36, pp.175-199.

Dudhia, J. (1993): A nonhydrostatic version of the Penn State / NCAR mesoscale model: Validation tests and simulation of an Atlantic cyclone and cold front, *Monthly Weather Review*, Vol. 121, pp.1493-1513.

Grell, G. A. (1993): Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations, *Monthly Weather Review*, Vol. 121, pp.764-787.

- Hess, M., Koepke, P. and Shult, I. (1998): Optical Properties of Aerosols and Clouds: The software package OPAC, Bulletin of American Meteorological Society, Vol. 79, pp.831-844.
- Meng, Z., Seinfeld J.H., Saxena, P. and Kim, Y.P. (1995): Atmospheric gas-aerosol equilibrium IV. Thermodynamics of carbonates, Aerosol Science and Technology, Vol. 23, pp.131-154.
- Reisner, J., Rasmussen, R.J. and Bruinjes, R.T. (1998): Explicit forecasting of supercooled liquid water in winter storms using the MM5 mesoscale model, Quart. J. Roy. Meteor. Soc. Vol. 124B, pp.1071-1107.
- Satsumabayashi, H., Kawamura, M., Katsuno, T., Futaki, K., Murano, K., Kajino, M. and Ueda, H. (2003): Change of aerosol and precipitation in the mid troposphere over Central Japan caused by the eruption of Miyakejima Volcano, Journal of Geophysical Research, in review.
- Streets, D.G., Bond, T.C., Carmichael, G.R., Fernandes, S., Fu, Q., He, D., Klimont, Z., Nelson, S.M., Tsai, N.Y., Wang, M.Q., Woo J.H. and Yarber K.F. (2002): A year-2000 inventory of gaseous and primary aerosol emissions in Asia to support TRACE-P modeling and analysis, in preparation for the Journal of Geophysical Research special TRACE-P issue.
- Takemura, T., Uno, I., Nakajima, T., Higurashi, A. and Sano, I. (2002): Modeling study of long-range transport of Asian dust and anthropogenic aerosols from East Asia, Geophysical Research Letters, Vol. 29, No. 24, 2158, doi:10.1029/2002GL016251.
- Terada, H., Ueda, H. and Wang, Z. (2002): Trend of acid rain and neutralization by yellow sand in East Asia - a numerical study, Atmospheric Environment, Vol. 36, pp.503-509.
- Twomey, S. (1977): Influence of pollution on the short-wave albedo of clouds, J. Atmos. Sci., Vol. 34, pp.1149-1152.
- Ueda, H., Takemoto, T., Kim, Y.P. and Sha, W. (2000): Behaviors of volatile inorganic components in urban aerosols, Atmospheric Environment, Vol. 34, pp.353-361.
- Ueda, H., Wang, Z. and Terada, H. (2000): A numerical study on acid rain and neutralization by yellow sand in East Asia, In: Longhurst, J.W.S., Brebbia, C.A., Power, H. (Eds.), Air Pollution VIII. WIT press, Southampton, Boston, pp. 119-128.
- Walcek, C. L. and Aleksic, N. (1998): A simple but accurate mass conservative peak-preserving mixing ratio bounded advection algorithm with Fortran code, Atmospheric Environment, Vol. 32, pp.3863-3880.
- Wang, Z., Sha, W. and Ueda, H. (2000): Numerical modeling of pollutant transport and chemistry during a high ozone event in Northern Taiwan. Tellus Vol. 52B, pp.1189-1205.
- Wang, Z., and Ueda, H. (1999); Modeling of long-range transport of yellow-sand and muddy rain in East Asia, 京都大学防災研究所年報, 第 42 号, B-1, pp.301-319.
- Walmsley, J. L. and Wesely, M. L. (1996): Modification of coded parameterizations of surface resistances to gaseous dry deposition, Atmospheric Environment, Vol. 30, pp. 1181-1188.
- Xue, M., Droegemeier, K.K., Wong, V., Shapiro, A. and Brewster, K. (1995): ARPS Version 4.0 User's Guide, CAPS, University of Oklahoma, 380pp. [Available from CAPS, University of Oklahoma, Norman OK 73019, USA]

Behaviors of Tropospheric Water-soluble Particles

- model description and simulation of the eruption of Miyakejima -

Mizuo KAJINO, Hiromasa UEDA, Junling AN and Hikaru SATSUMABAYASHI

Synopsis

Developed in this study is a regional-scale aerosol transport model coupled with a meteorological model (MSSP: regional Eulerian Model System for Soluble Particles). The target of the MSSP model is the behaviors of water-soluble particles that affect environmental acidification, cloud microphysics and regional cooling. It calculates emissions of gas and aerosol, photochemical reactions, transport, deposition, gas-aerosol equilibrium of volatile components and aerosol optical properties. Moreover a one-year numerical simulation is provided on the environmental changes, that is regional acidification and change on radiation budget, caused by the eruption of Miyakejima Volcano which has emitted rarely huge amount of sulfur dioxide since July 2000.

Keywords : Regional Eulerian Model System for Soluble Particles (MSSP); Miyakejima Volcano; sulfate; environmental acidification; optical thickness