

冬季ユーラシア上空における 硫黄酸化物の長距離輸送について (2)

新添多聞・木田秀次*

*京都大学大学院理学研究科

要 旨

対流圏硫黄化合物の 3 次元化学輸送モデルを用いて、乾性沈着速度、湿性沈着率、液相酸化反応率を降水活動の活発な北太平洋上空に相当する条件を一様に与えたときの欧州起源の人為的硫酸濃度の応答を調べた。数値シミュレーションの結果に見られた、冬季における欧州から東方への $SO_x (= SO_2 + SO_4)$ の大規模な流出は、ユーラシア内陸での降水が活発でないこと、低温のため SO_2 の雨水による吸収が小さいこと、更に雪氷面での SO_2 の乾性沈着が小さいことが主な原因であると考えられる。

キーワード：対流圏硫黄循環, 化学輸送モデル, 大気化学

1. はじめに

対流圏硫酸粒子は酸性雨の主要な原因物質として古くから認識されてきたが、近年は負の放射強制力をもって温室効果ガスによる地球温暖化を抑制しているとして注目されている。硫酸粒子は太陽光を直接散乱し、地表に達する入射量を減少させるが [Bolin and Charlson, 1976], 吸湿性が高く粒径が $1\mu\text{m}$ 以下と小さいため、その散乱効率は粗大粒子より 1 桁大きく、また対流圏での相対湿度下では乾燥粒子のおよそ 2 倍程と考えられている [Charlson et al., 1992]。また硫酸粒子は雲の凝結核として作用し、雲粒の粒径や寿命を変えることでアルベドに間接的に影響を及ぼす [Charlson et al., 1987]。これらの効果による負の放射強制力は特に間接的影響について不明な点が多いが、温室効果ガスによる正の強制力に匹敵する可能性があるが、硫酸粒子は大気中の寿命が数日と温室効果ガスより遥かに短いため時間的、空間的変動が大きい点が特徴である [Charlson

et al., 1992]。

対流圏硫酸粒子は大気中で SO_2 ガスが酸化されることにより生成されるが、 SO_2 は大半が化石燃料の燃焼により地表から放出されるため SO_2 , SO_4 とともに経済活動が盛んな地域を中心に分布する。全球規模での硫酸粒子の影響を考える上で、周辺領域での硫酸濃度は放出起源からの SO_2 もしくは SO_4 の流入が重要となるため、 SO_2 が生成起源から大気中に放出され、風によって流されながら SO_4 に酸化され、遂には除去されるまでの動態を明らかにする必要がある。

筆者らは新添・木田 (2003) で数値モデルを用いて北米、欧州、アジアを起源とする人為的硫黄酸化物の動態を調べ、冬季において欧州から東方へ延びる SO_x の極めて強い流れが東アジアまで達しており、アジア起源の影響が強いはずの日本においても、北日本上空では 25% 以上が欧州起源であることを指摘した。本研究では、北米やアジア起源の SO_x には見られないような大規模な流出の原因が放出源

| k | height(km) | SO_2 | SO_4 | $SO_2 \rightarrow SO_4$ |
|----|------------|----------|----------|-------------------------|
| 10 | 15 | ∞ | ∞ | ∞ |
| 9 | 12 | 2e6 | 3e4 | 1e6 |
| 8 | 9 | 2e4 | 400 | 3e3 |
| 7 | 7 | 340 | 17 | 68 |
| 6 | 5 | 85 | 5 | 19 |
| 5 | 4 | 53 | 1.6 | 7.2 |
| 4 | 3 | 34 | 0.93 | 5.9 |
| 3 | 1.5 | 19 | 1.5 | 5.1 |
| 2 | 0.7 | 17 | 5.3 | 6.5 |
| 1 | 0.2 | 10 | 6.1 | ∞ |

Table 1 The life time of SO_2 against wet deposition and oxidation process and that of SO_4 against wet deposition applied to each model layer in the sensitivity tests.

の風下における化学過程, 除去過程の違いにあるという観点から, 液相酸化過程による SO_4 生成率, 乾性沈着速度および湿性沈着過程による SO_x 除去率を降水活動の活発な北太平洋上空に相当する条件で一樣に与えてモデルの応答を調べた。

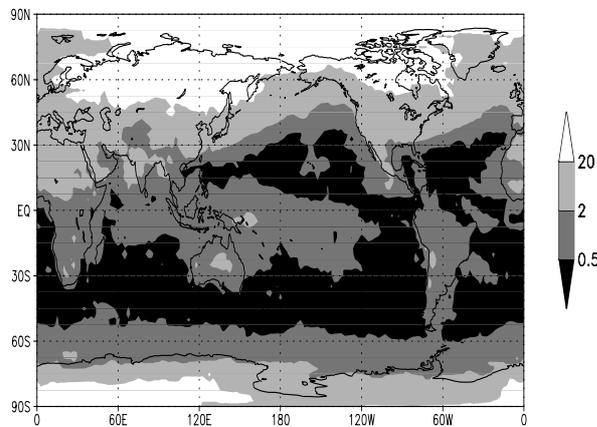


Fig. 1 Seasonally averaged life time (days) of SO_2 against oxidation process at a height of about 1.5 km in winter.

2. モデルの概要

実験に用いたモデルは新添・木田 (2002) の硫黄及びアンモニア循環をシミュレートする全球オイラー形式 3 次元化学輸送モデルで, 解像度は水平 $2.5^\circ \times 2.5^\circ$, 鉛直は σ 座標で地表 ~ 100hPa までの 10 層。予報する化学種は SO_2 , SO_4 , DMS, NH_3 ,

NH_4 である。気象場として the National Center for Environmental Prediction (NCEP)/National Center for Atmospheric Research (NCAR) Reanalysis 4times daily dataset [Kalnay et al., 1996] を用いた。放出量データとして, 人為起源 SO_x に EDGAR Ver.2 [Olivier et al., 1996], 自然起源 DMS および biomass burning による SO_2 に Spiro et al.(1992), 火山からの定常的 SO_2 に Andres and Kasgnoc (1998), アンモニアに Bouwman et al. (1997) を用いた。

雲の分布は International Satellite Cloud Climatology Project (ISCCP) Stage D1 dataset [Rossow et al., 1996] より日平均量として 3 次元的に評価した。雲粒は気温 $T > 273K$ のとき全て水, $T < 273K$ で全て氷, $273K < T < 273K$ のときは水と氷の混合体で, その割合は線形とした。 SO_2 の酸化反応は OH ラジカルによる気相反応, H_2O_2 及び O_3 による液相反応を考慮する。雲水内の物質の濃度は気液平衡を仮定して求め, 雲水の酸性度はイオンの電気的バランスから陽に計算する。酸化剤濃度は Harvard/GISS-II-PRIME GCM [Mickley et al., 1999] より月平均値として与える。Fig. 1 は SO_2 の液相酸化過程の最も盛んな高度約 1.5 km での気相, 液相両酸化過程に対する SO_2 の寿命の冬季における季節平均値である。酸化剤である H_2O_2 および OH の濃度の高い低緯度と夏半球中緯度で短く, 特に下層雲が多く分布する領域で短い。冬半球では緯度が高くなるほど寿命が長くなるが, 北大西洋および北太平洋では全線帯に沿うように比較的寿命の短い領域が広がっている。極域およびユーラシア大陸北緯 50 度以北では酸化剤, 水雲共に極めて少ないために極端に長くなる。

湿性沈着過程は雨雲内部での除去過程 (incloud scavenging) と落下する雨粒による除去過程 (sub-cloud scavenging) を考慮する。DMS 以外のガスの incloud scavenging は雲水内の濃度と降水生成率から見積もる [Giorgi and Chameides, 1985]。粒子の incloud scavenging は雲水量と降水生成率から見積もる [Junge and Gustafson, 1957]。ただし雲の内部では粒子は全て雲粒内にあるとした。ガスの sub-cloud scavenging も incloud scavenging と同様に見積もる。降水の濃度の見積もりは Scott(1978) に従った。また気温が 273K より低ければ降水は雪または氷とみなし, ガスの subcloud scavenging は起こらないとする。Fig. 2 は SO_2 および SO_4 の湿性沈着が最も大きい高度での湿性沈着に対する寿命の冬季における季節平均値である。 SO_2 は subcloud

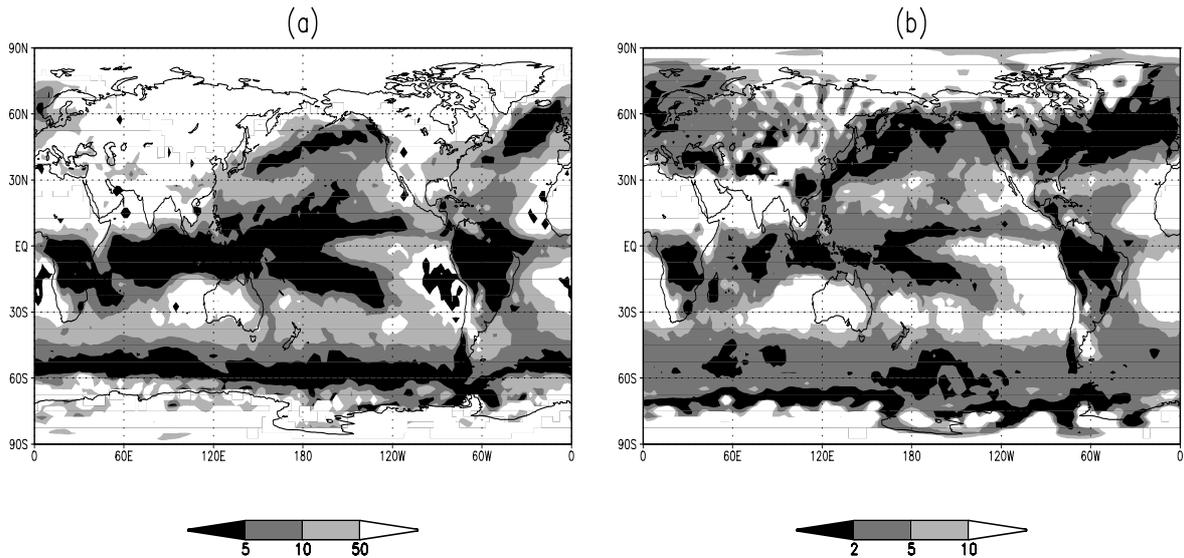


Fig. 2 Seasonally averaged life time (days) against wet deposition process in winter. (a) SO_2 at a height of about 0.2km. (b) SO_4 at about 1.5km.

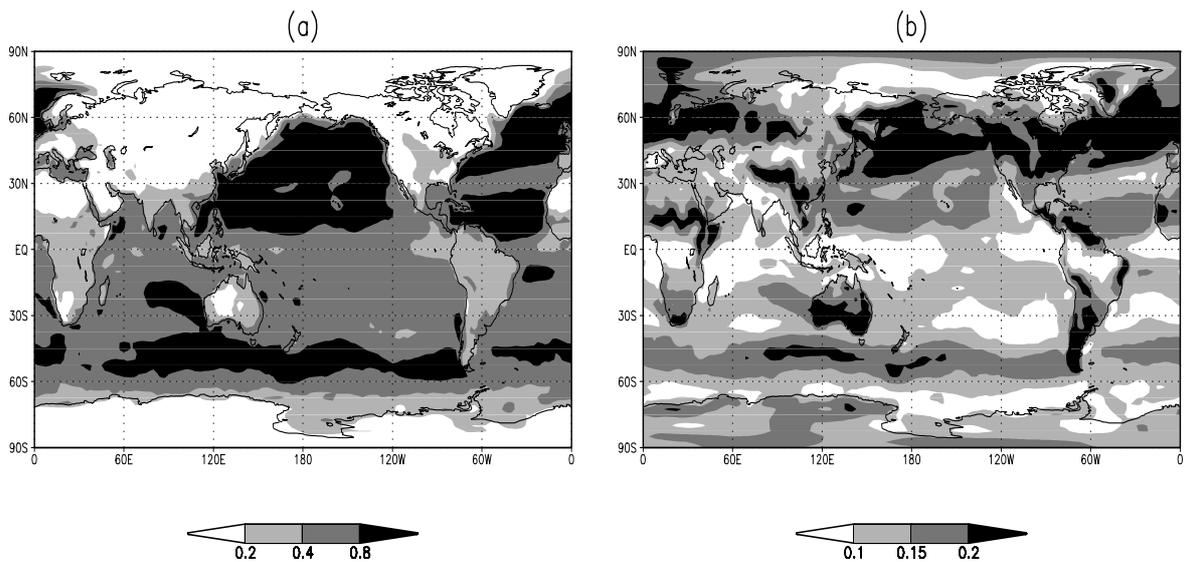


Fig. 3 Seasonally averaged dry deposition velocity at the center of the lowest layer in winter (cm/s). (a) SO_2 , (b) SO_4

scavenging が卓越するためモデルの最下層, SO_4 は incloud scavenging が卓越するため高度約 1.5km で湿性沈着が最も大きくなる。 SO_2 , SO_4 とともに降水の分布を反映して熱帯, 夏半球中緯度, および北半球全線帯で寿命が短くなるが, SO_4 は雲量の分布をより多く反映して北半球全線帯での寿命の短さが特徴的である。逆にユーラシア内陸を始めとする降水,

雲量共に乏しい領域では寿命は長くなる。またガスの subcloud scavenging は気温が低い領域では起こらないため, SO_2 の湿性沈着に対する寿命は極端に長くなる。

モデルの最下層における DMS 以外のガスと粒子の乾性沈着は最下層中央部 (高度約 200m) での乾性沈着速度によって評価される。乾性沈着速度は空

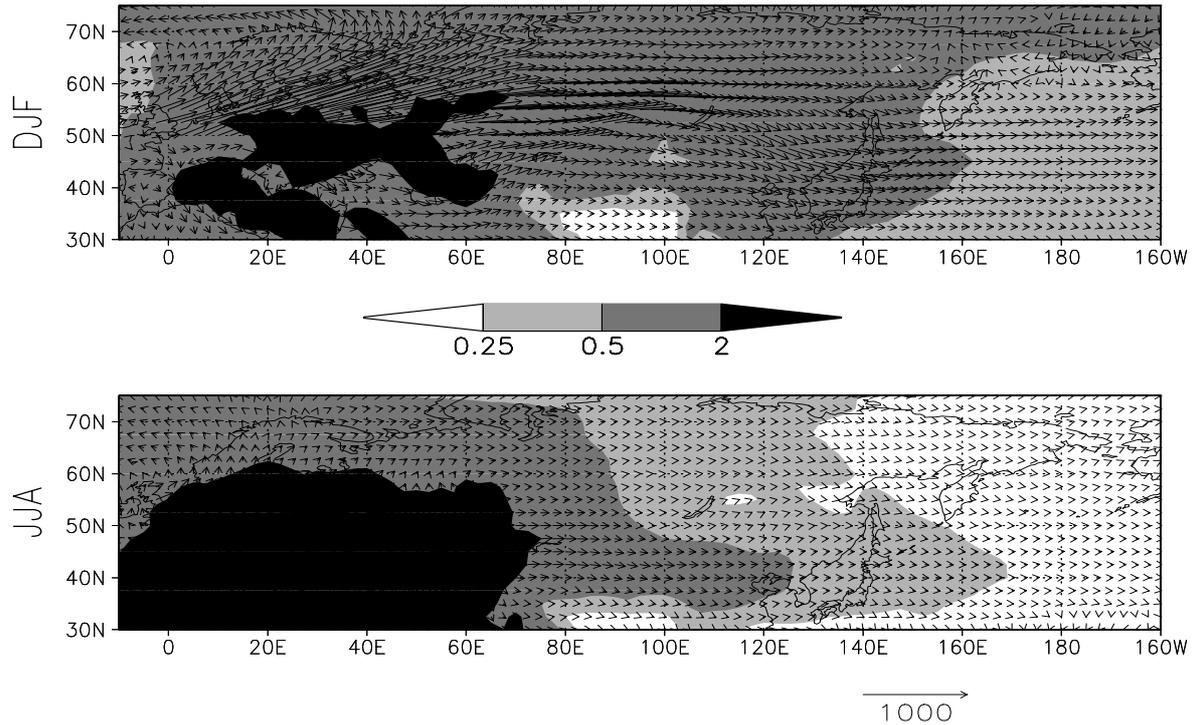


Fig. 4 Seasonally averaged column burden (mgS/m^2) of SO_4 and vertically integrated horizontal flux (GgS/mon) of SO_x for Europe component in winter, simulated by the control run.

気力学抵抗, 副気層抵抗, 地表面抵抗の和の逆数として表現される。粒子については地表面抵抗は0とし, また沈降速度も無視する [Seinfeld and Pandis, 1998]。地表面抵抗は Wesely(1989) に従い, 地表の植生と粗度長のデータは Olson et al. (1985) を用いた。なお雪氷面で地表面抵抗が増大する効果については地表面気温からパラメライズする。Fig. 3 は SO_2 および SO_4 の冬季における乾性沈着速度の季節平均値である。 SO_2 の乾性沈着速度は地表面抵抗が小さい海上で大きく, 中でも風が強い冬半球が特に大きい。大気安定度に依存する空気力学抵抗が陸上では昼間小さく, 夜間大きくなるため, 日変化が大きく, 夜間 0.1cm/s, 昼間 0.5cm/s ほどとなる。雪氷に覆われる極域やユーラシア大陸の大部分は地表面抵抗が大きいため沈着速度は小さく, 日変化もない。また北アフリカやオーストラリア中部など砂漠地帯は年中地表面抵抗が大きいため沈着速度は小さくなる。 SO_2 の場合, 地表面抵抗は0であるから陸と海の明確な違いは無く, 風の強い冬半球上で大きい。ただし副気層抵抗が SO_2 より大きいため沈着速度は SO_2 より小さくなる。

3. 数値実験

北半球を経度 65 度, 170 度, 315 度を境界として北米圏 (NA), 欧州圏 (EU), アジア圏 (AS) の3つの領域に分割し, SO_2 , SO_4 に対し, それぞれの領域を起源とする人為的成分とそれ以外の成分 (自然起源 + 南半球の人為起源) の4種の成分を別々の物質として各グリッドにおける濃度の時間発展を計算する。ただし化学過程の評価に必要な SO_2 , SO_4 濃度には各成分の総和を用いる。1989年10月から15ヵ月間行い, 最後の12ヵ月の結果を解析する。

中高緯度では偏西風に乗って, 北米圏起源の SO_x は主に北太平洋に, 欧州圏起源の SO_x はユーラシア大陸へ, アジア圏起源の SO_x は北太平洋へと流れていく。Section 2. で述べたように, 欧州圏の風下であるユーラシア大陸 SO_x の除去過程には冬季において北太平洋や北太平洋と比べて以下のような特徴がある。

- 降水が少ない。
→ SO_2 , SO_4 の湿性沈着が少ない。
- 気温が低い。
→ SO_2 の雨水への吸収による沈着が少ない。
- 地表面が雪氷に覆われる。

→ SO_2 の乾性沈着が少ない。

これらの条件のいずれもが SO_x の寿命を延ばし、長距離輸送を強める効果を持つはずである。そこで湿性沈着過程による SO_2 , SO_4 の除去率と乾性沈着速度を、降水活動の活発な北太平洋上空に相当する条件で全球で一様に与えたときのモデルの応答を調べた。ただし、降水活動が活発ならば雨雲が存在し、その内部では SO_2 の液相酸化過程が生じるはずであるから、湿性沈着過程による SO_2 , SO_4 の除去率を一定とするときは、液相酸化過程による反応率も一定とした。

- run1: 乾性沈着速度一定。地表が海であることを想定する。
- run2: 湿性沈着率、液相酸化応率一定。降水活動の活発な雲が豊富に存在することを想定する。
- run3: 乾性沈着速度、湿性沈着率、液相酸化応率一定。

湿性沈着率と液相酸化応率を一定とする際に、モデルの各層に与える条件は Table 1 の通り。ただしここでは各過程に対する寿命の形で記述し、各層のおおよその高度も載せた。また一定とする際の乾性沈着速度はそれぞれ 0.6cm/s (SO_2), 0.2cm/s (SO_4)。

4. 結果と考察

Fig. 4 は control run において、欧州圏を起源に持つ人為的硫酸粒子の鉛直総量分布と対流圏全体で鉛直積分した SO_x の水平輸送量を冬季と夏季と比較したものである。旧東欧を中心とする放出源から SO_x が東方へ流れていく。欧州の放出源近辺の硫酸総量は主に SO_2 の酸化剤である H_2O_2 濃度の季節変化を反映し、夏季に極大、冬季に極小となっている。一方、東方へ流出した硫酸総量の季節変化は欧州付近のそれとは逆に冬季に大きくなっており、 0.5mgS/m^2 を越える領域が日本よりさらに東方へと延び、 0.25mgS/m^2 を越える領域が北太平洋全域を覆っている。水平輸送量は冬季は北緯 50 度付近を中心に東向き、高緯度で極向き、北緯 40 度以南で南東へと、それぞれの緯度帯で特徴的な流れが見られ、その大きさは南東へ向かう流れ以外は夏季より圧倒的に大きい。これほどまで大規模な季節変化は、北米圏およびアジア圏起源の硫酸には見られなかった。

各気柱内での SO_4 の平均濃度 c の時間変化は、単位時間あたりの生成量 P 、消滅量 L 、側面の輸送フ

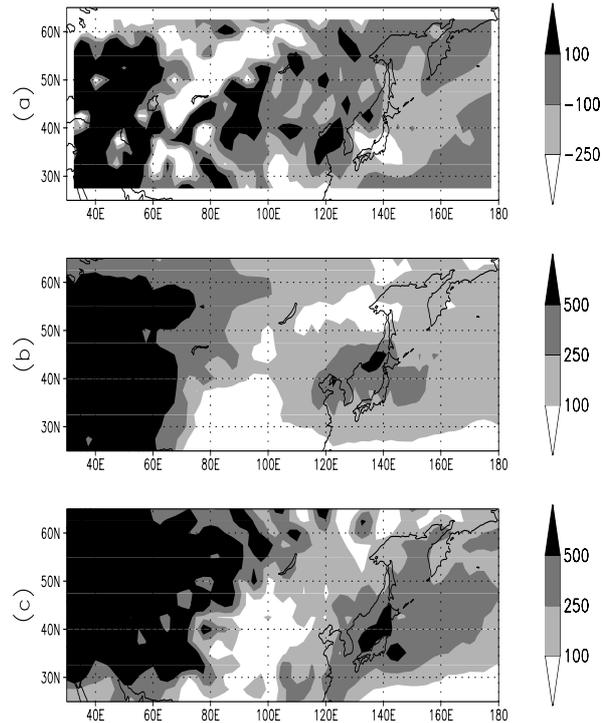


Fig. 5 Seasonally vertically averaged fields of SO_4 mass flux ($gS/m^3/month$) for Europe component. (a)Divergence, (b)Production, (c)Loss.

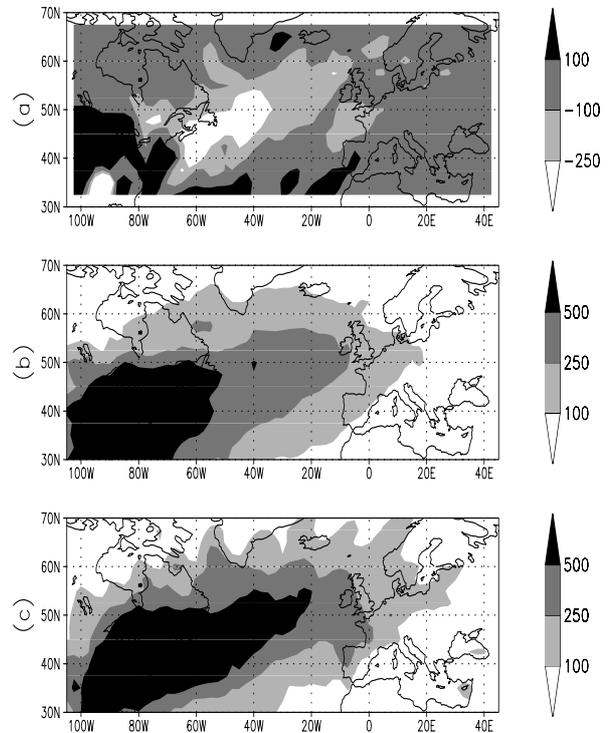


Fig. 6 Same as Fig. 5 but for North America component

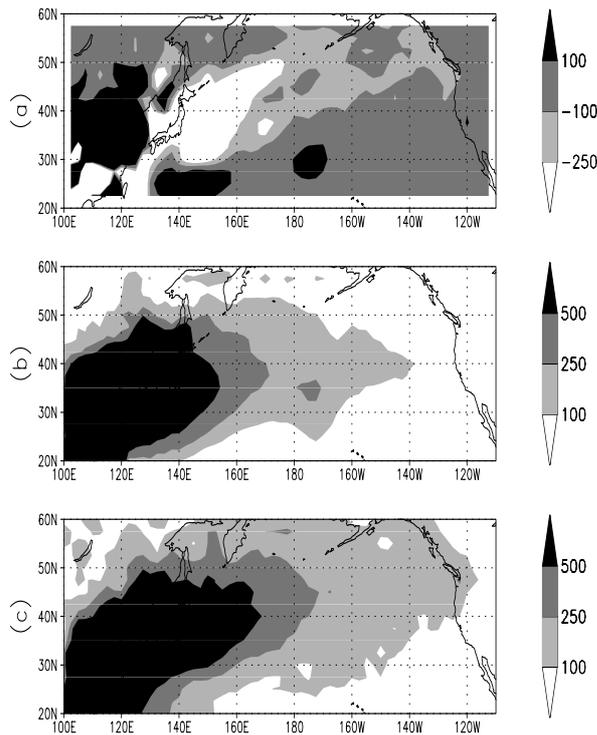


Fig. 7 Same as Fig. 5 but for Asia component

ラックス F を用いて以下のように表現される。

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot F + P - L$$

大気中の寿命が数日程度の硫酸は、季節平均を考えれば濃度 c は定常であると仮定して良いから左辺は 0 となり、濃度 c は右辺の各項のバランスによって決まる。このうち $\nabla \cdot F$ の値が正であるか、負であってもその絶対値が P に対して小さければ右辺第 1 項、即ち SO_4 の輸送は SO_4 の濃度を増大させるのに寄与していないことになる。そこで control run の SO_4 の冬季における欧州、北米、アジア成分について、右辺各項の大きさを比較した (Fig. 5~7)。北米、アジア成分では輸送フラックスは放出起源の風下、即ち前線帯に沿って強い収束を持ち、その大きさは放出起源の近傍を除けば生成量に匹敵する。これは SO_4 の輸送が風下領域の濃度を増大させるのに大きく寄与していることを示す。一方、欧州成分については風下となるモンゴル西部から黄海にかけて輸送フラックスは強い発散を示す領域が見られ、また収束している所でもその値は小さい所が多い。即ちこの領域では SO_4 濃度の増大に SO_4 の輸送は貢献しておらず、ローカルでの SO_2 の酸化過程による SO_4 生成が卓越する。さらに欧州起源の SO_4 生成量を見ると、内陸よりも沿岸部での生

成量が多いことから、北太平洋上に広がる SO_4 は SO_2 が大陸沿岸もしくは海上に出てから酸化されたものが多いと考えられる。従って東アジア、北太平洋上の欧州起源の SO_4 濃度が冬季に高いのは大量の SO_2 が供給されるからであると考えられる。

冬季における欧州圏、北米圏、アジア圏を起源とする人為的 SO_x の東方への流出を比較するために、それぞれの東側に東経 65 度、西経 70 度、東経 130 度を始点とし、北緯 40 ~ 60 度、35 ~ 55 度、30 ~ 50 度の南北 20 度の幅の領域をとり、始点からの距離に対する子午面を通過する東向き輸送フラックスを比較した (Fig. 8)。Control run では始点におけるフラックスは欧州成分、北米成分、アジア成分共に $9gS/m^2/mon$ 前後でほぼ同じ程度である。しかし始点からの距離に対する輸送フラックスの減少の割合は、北米成分とアジア成分がほぼ同じであるのに対して、欧州成分はそれより明らかに緩やかであり、始点から 4000km 以遠において他の成分の倍以上の値を持つ。地表が海であることを想定して乾性沈着速度を一定にした run1 では、放出源近傍で除去される SO_2 の量が増加するために輸送量は全体的に減少するが始点からの距離に対する減少の割合は control run 同様、欧州成分は緩やかであり、特徴は変わらない。降水活動の活発な雲が豊富に存在することを想定して液相酸化反応率および湿性沈着率を一定にした run2 では欧州成分の輸送フラックスは始点における値が減少するとともに、始点からの距離に対する減少の勾配が大きく増大してアジア成分の輸送フラックスを示す曲線とほぼ一致し、欧州成分の持つ特徴はほとんど解消された。さらに液相酸化反応率、湿性沈着率、乾性沈着速度を全て一定とした run3 では欧州成分の輸送フラックスは北米成分、アジア成分よりむしろ小さくなっており、西風自体の物質を東方へ輸送するポテンシャルは欧州は北米、アジアより必ずしも高くないことが分かる。

SO_x の東向きフラックスの減少が実際に濃度場を与える影響を見るため、run3 による冬季における欧州圏起源の人為的 SO_4 の鉛直総量を control run の結果と比較した (Fig. 9)。run3 で与えた液相酸化反応率、湿性沈着率、乾性沈着速度は中、高緯度陸上では control run より遥かに大きいため、 SO_x の除去率が増大して SO_4 が減少する効果を持つ半面、 SO_2 の酸化反応率が増大するため SO_4 を増加させる効果も持つ。 SO_x の放出起源から近いほど、緯度が高いほど SO_4 を増加させる効果が大きいため run3 の control run に対する減少率は小さくなり、放出起源から離れるほど減少率は大きくなる。

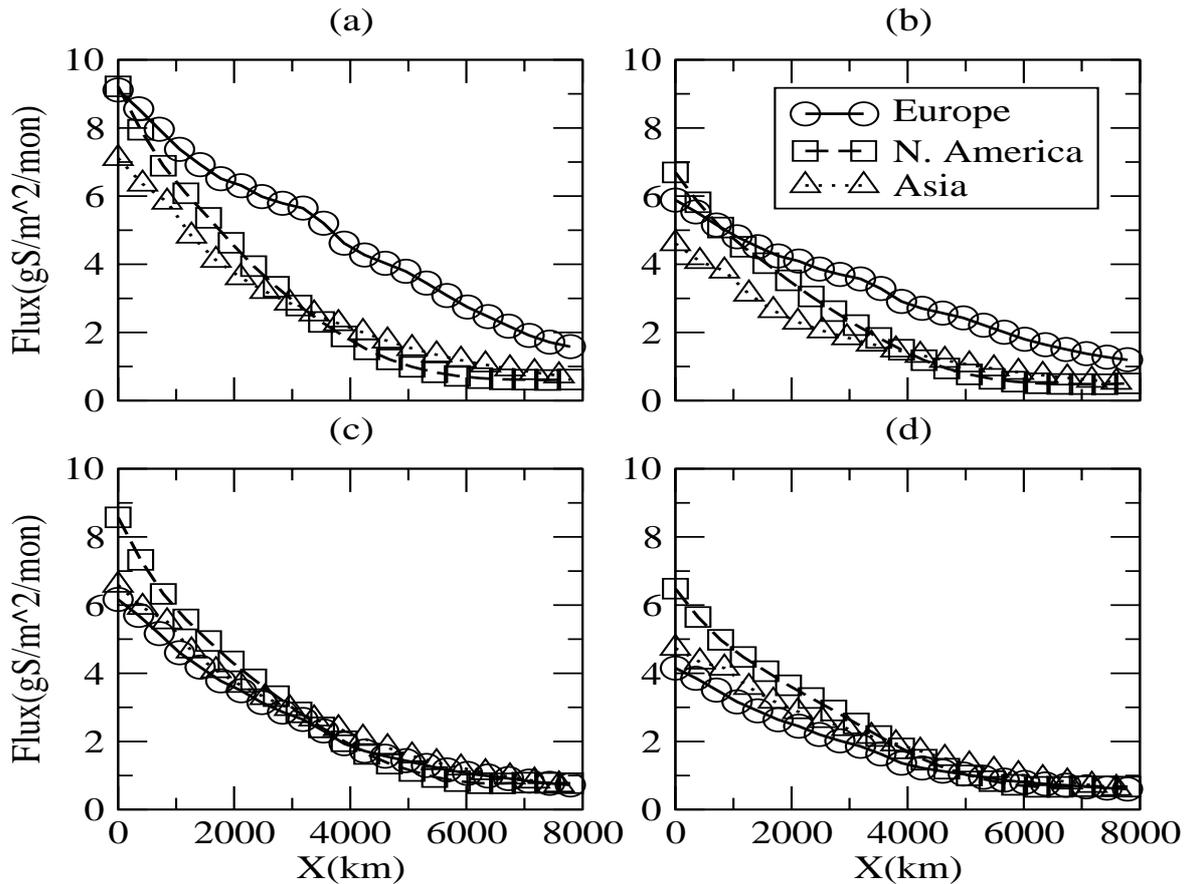


Fig. 8 Seasonally averaged anthropogenic SO_x fluxes transported eastward ($mgS/m^2/mon$) of Europe, North America, and Asia component in winter, as functions of the distance (km) from the west ends of the analyzed areas. (a) control run, (b) run1, (c) run2, (d) run3

ただし中国南部では control run の湿性沈着率は北太平洋の条件を上回っていたため、run3 では湿性沈着が減少し、 SO_4 濃度が増大している。Control run で欧州圏起源の人為的 SO_4 鉛直総量の高い領域が覆っていた北太平洋では run3 では大きく減少して半分以下となった。

5. まとめ

本研究では3次元化学輸送モデルを用いた数値実験により、冬季において欧州から東方への大規模な硫酸化物の流出の要因を調べ以下の知見を得た。

- 冬季における東アジア、北太平洋上空において欧州起源の人為的硫酸が高濃度となるのは、中国大陸沿岸部、もしくは北太平洋上に欧州から大量の SO_2 が流入するのが原因である。
- この大規模な流入はユーラシア内陸で降水が活発でないこと、低温のため SO_2 の雨水による吸収が小さいことが主な原因と考えられる。

- さらにユーラシア内陸が雪氷で覆われるため、 SO_2 の乾性沈着が小さいことも影響している。

参考文献

- Andres, R. J., and A. D. Kasgnoc, A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions, *J. Geophys. Res.*, 103, 25,251-25,261, 1998.
- Bolin, B., and R. J. Charlson, On the role of the tropospheric sulfur cycle in the shortwave radiative climate of the earth, *Ambio*, 5, 47-54, 1976.
- Bouwman, A. F., D. S. Lee, W. A. H. Asman, F. J. Dentener, K. W. Van Der Hoek and J. G. J. Olivier, A global high-resolution emission inventory for ammonia, *Global Biogeochem. Cycles*, 11, 561-587, 1997.
- Charlson, R. J., J. E. Lovelock, M. O. Andreae, and S. G. Warren, Oceanic phytoplankton, at-

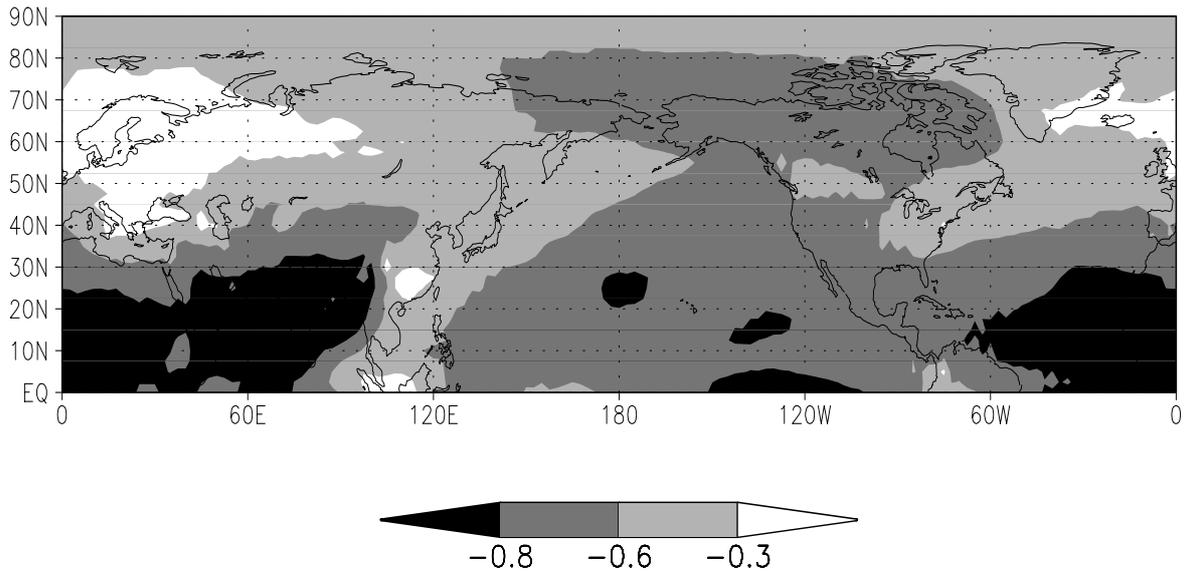


Fig. 9 Seasonally averaged difference of column burden of sulfate component of run3 and control run in winter (%).

- ospheric sulfur, cloud albedo and climate, *Nature*, *326*, 655-661, 1987.
- Charlson, R. J., S. E. Schwartz, J. M. Hales, R. D. Cess, J. A. Coakley Jr., J. E. Hansen, and D. J. Hofmann, Climate forcing by anthropogenic aerosols, *Science*, *255*, 423-430, 1992.
- Giorgi, F., and W. L. Chameides, The Rainout Parameterization in a Photochemical Model, *J. Geophys. Res.*, *90*, 7872-7880, 1985.
- Kalnay, E., M. Kanamitsu, R. Kistler, W. Collins, D. Deaven, L. Gandin, M. Iredell, S. Saha, G. White, J. Woollen, Y. Zhu, M. Chelliah, W. Ebisuzaki, W. Higgins, J. Janowiak, K. C. Mo, C. Ropelewski, J. Wang, A. Leetmaa, R. Reynolds, R. Jenne, and D. Joseph, The NCEP/NCAR 40-year reanalysis project, *Bull. Amer. Meteor. Soc.*, *77*, 437-471, 1996
- Mickley L. J., P. P. Murti, D. J. Jacob, J. A. Logan, D. M. Koch, and D. Rind, Radiative forcing from tropospheric ozone calculated with a unified chemistry-climate model, *J. Geophys. Res.*, *104*, 30153-30172, 1999.
- Olivier, J. G. J., A. F. Bouwman, C. W. M. Van der Maas, J. J. M. Berdowski, C. Veldt, J. P. J. Bloss, A. J. H. Vesschedijk, P. Y. J. Zandveld, and J. L. Haverlag, Description of EDGAR Version 2.0: A set of global emission inventories of greenhouse gases and ozone-depleting substances for all anthropogenic and most natural sources on a per country basis and on $1^\circ \times 1^\circ$ grid, *RIVM report no. 771060 002 / TNO-MEP report no. R96/119*, National Insitute of Public Health and the Environment, Bilthoven, Netherlands, 1996.
- Rossov, B. R., A. W. Walker, D. E. Beuschel, and M. D. Roiter, International Satellite Cloud Climatology Project (ISCCP) Documentation of New Cloud Datasets, *WMO/TD-No.737*, 115 pp., World Meteorological Organization, 1996
- Scott, B. C., Parameterization of sulfate removal by precipitation, *J. Appl. Meteor.*, *17*, 1375-1389, 1978.
- Seinfeld, J. H., and S. N. Pandis, *Atmospheric Chemistry and Physics*, John Wiley, New York, 1998.
- Spiro, P. A., D. J. Jacob, and J. A. Logan, Global inventory of sulfur emissions with $1^\circ \times 1^\circ$ resolution, *J. Geophys. Res.*, *97*, 1992.
- Wesely, M. L., Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models, *Atmos. Environ.*, *23*, 1293-1304, 1989.
- 新添多聞, 木田秀次, 3次元化学輸送モデルを用い

た硫酸濃度に対するアンモニアの影響について,
京都大学防災研究所年報, 第 45 号, B, 289-300,
2002

新添多聞, 木田秀次, 期ユーラシア上空における硫
黄酸化物の長距離輸送について, 京都大学防災研
究所年報, 第 46 号, B, 373-381, 2003

Longrange transport of sulfur over the Eurasian Continent in winter(2)

Tamon NIISOE and Hideji KIDA*

*Graduate School of Science, Kyoto University

Synopsis

Anthropogenic sulfate originated in Europe is simulated by a three-dimensional chemistry transport model. A quite strong flow of $SO_x (= SO_2 + SO_4)$ is found over the Eurasian Continent from Europe to East Asia in winter. Several model runs are carried out in the condition of dry deposition velocity, wet deposition rate, and aqueous oxidation rate of SO_2 corresponding to the North Pacific Ocean with rich precipitation. The sensitivity test shows the sulfur flow is enhanced mainly by the condition of scarce precipitation, subcloud scavenging of SO_2 because of low temperature, and slower SO_2 dry deposition velocity over snow and ice over the Eurasian inland.

Keywords : *Tropospheric sulfur cycle, Chemistry transport model, Atmospheric chemistry*