

冬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

新添多聞・木田秀次*

*京都大学大学院理学研究科

要 旨

3次元化学輸送モデルを用いて、北米、欧州、アジアを起源とする人為的硫黄酸化物の全球規模の流出の動態とその季節的特徴を調べた。その結果、冬季ユーラシア大陸上に欧州から東方への硫黄酸化物の非常に強い流出が見られ、東アジアまで達していた。この流出は冬季の強い西風によりもたらされるものであるが、更にユーラシア内陸で降水が少なく、地表が雪氷で覆われるため、硫黄酸化物の沈着が小さくなることが要因として考えられる。

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

大気中 CO_2 濃度の産業革命以降の急激な増加による温暖化が懸念されるようになって久しいが、大気中に浮遊する微小粒子、即ちエアロゾルはこの温暖化を抑制していると考えられている。中でも対流圏に多量に存在する硫酸エアロゾルは粒径が $1\mu m$ 以下と小さく、また吸湿性が高いため、太陽光を直接散乱し地表への入射を減衰させる効果が粗大粒子や乾燥粒子より遥かに大きい。更に容易に雲の凝結核として作用するため雲の粒径や寿命に影響し、アルベドを増大させる効果を持つ。これら硫酸エアロゾルの放射強制力はいまだ不明な点が多いが、温室効果ガスによる放射強制力に匹敵する程の大きさを持つと考えられており [IPCC, 2001]、気候変動の予測のためには硫酸エアロゾルの動態の解明が急務である。

対流圏硫酸エアロゾルはその大半が北半球の産業化の進んだ地域における化石燃料燃焼により放出された SO_2 ガスが大気中で酸化されることによって生成されるが、エアロゾルとしては寿命が長い

にその影響は SO_2 放出起源周辺のみならず広範囲に及ぶと考えられる。一方、その寿命は温室効果ガスなどに比べると遥かに短いため、動態や分布の時間的、空間的変動が大きいことが特徴である。その実態を解明する上で、実際に高密度の観測網が整備されることが理想であるが、極めて不十分な現状においては数値モデルは極めて有効な手段である。高密度の時間、空間分解能をもって3次元分布の予測、再現が可能である上に、生成起源や化学反応経路などの解析も可能である。

Langner and Rodhe,[1991] 以降、対流圏硫黄循環に関して数多くの数値モデルを用いた研究が行われてきたが、硫酸の濃度や動態の季節変化に着目した研究は意外と少ない。Chin and Jacob,[1996]、Kasibhatla et al.,[1997]、Rasch et al., [2000] 等は人為放出起源付近からの硫黄酸化物の流出が放出起源付近の濃度とその季節変化に与える影響に言及しているが、周辺領域における硫酸濃度やその影響の及ぶ範囲とその季節変化などに関してはほとんど考慮されていない。本研究では3次元化学輸送モデル

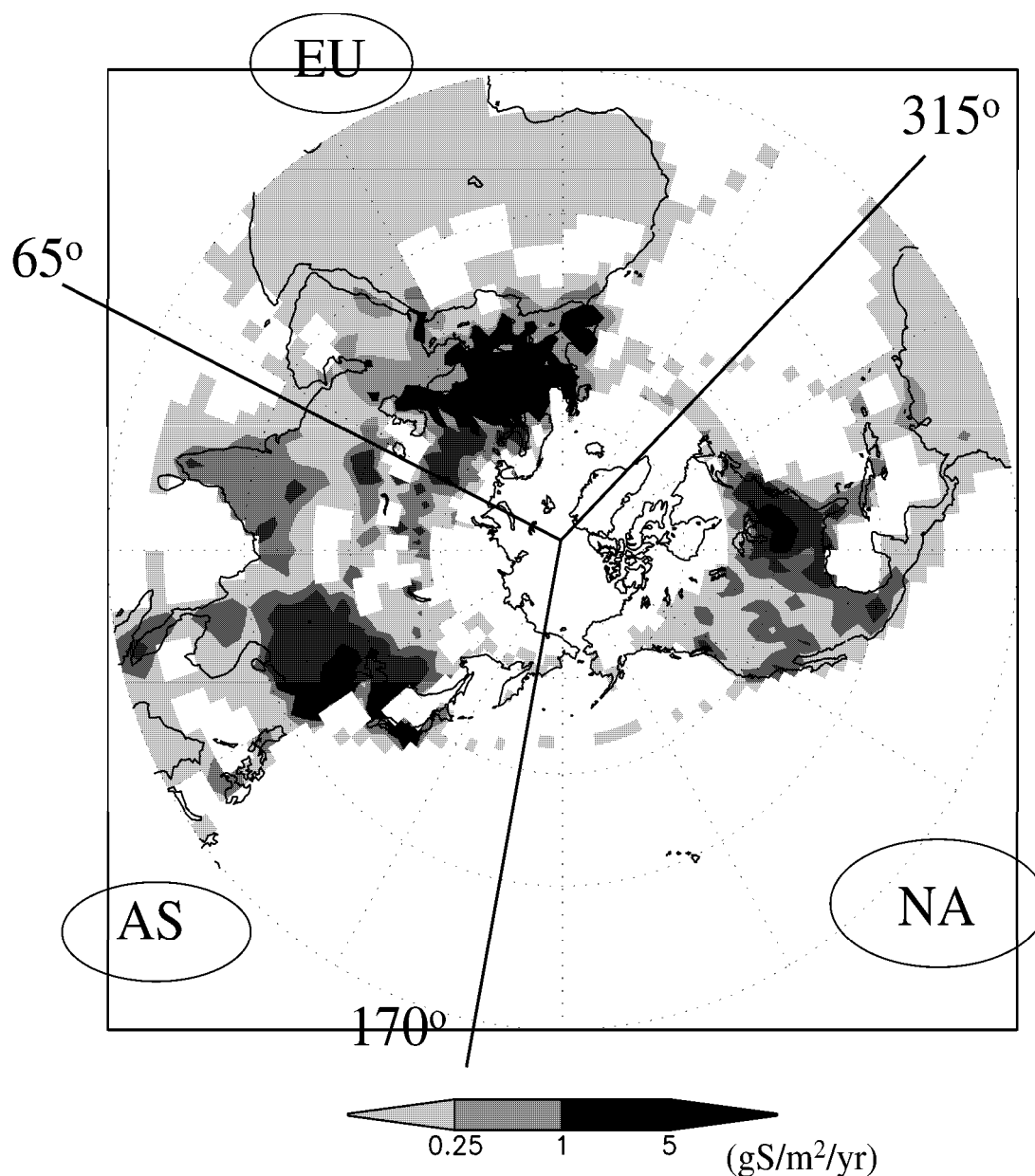


Fig. 1 Annually averaged anthropogenic SO_x emission in the Northern Hemisphere and the boundaries of three regions (North America, Europe, and Asia) used in the numerical experiment.

を用いた数値実験によって、人為的 SO_2 放出起源からの硫黄酸化物の全球規模の流出の振舞とその季節的特徴を明らかにすることを目的とする。

2. 実験方法

Fig. 1 は Emission Database for Global Atmospheric Research (EDGAR) による北半球の人為起

源 $SO_x (= SO_2 + SO_4)$ の年間放出量である [Olivier *et al.*, 1996]。これを経度 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、それぞれを起源とする硫酸の分布の様子を調べた。人為起源 SO_x の内 9 割以上が北半球から放出されるが、その内訳はおおよそ北米 2 割、欧州 4 割、アジア 3 割となっている。実験に用いたモデルは新添・木田 [2002] の硫黄及びアン

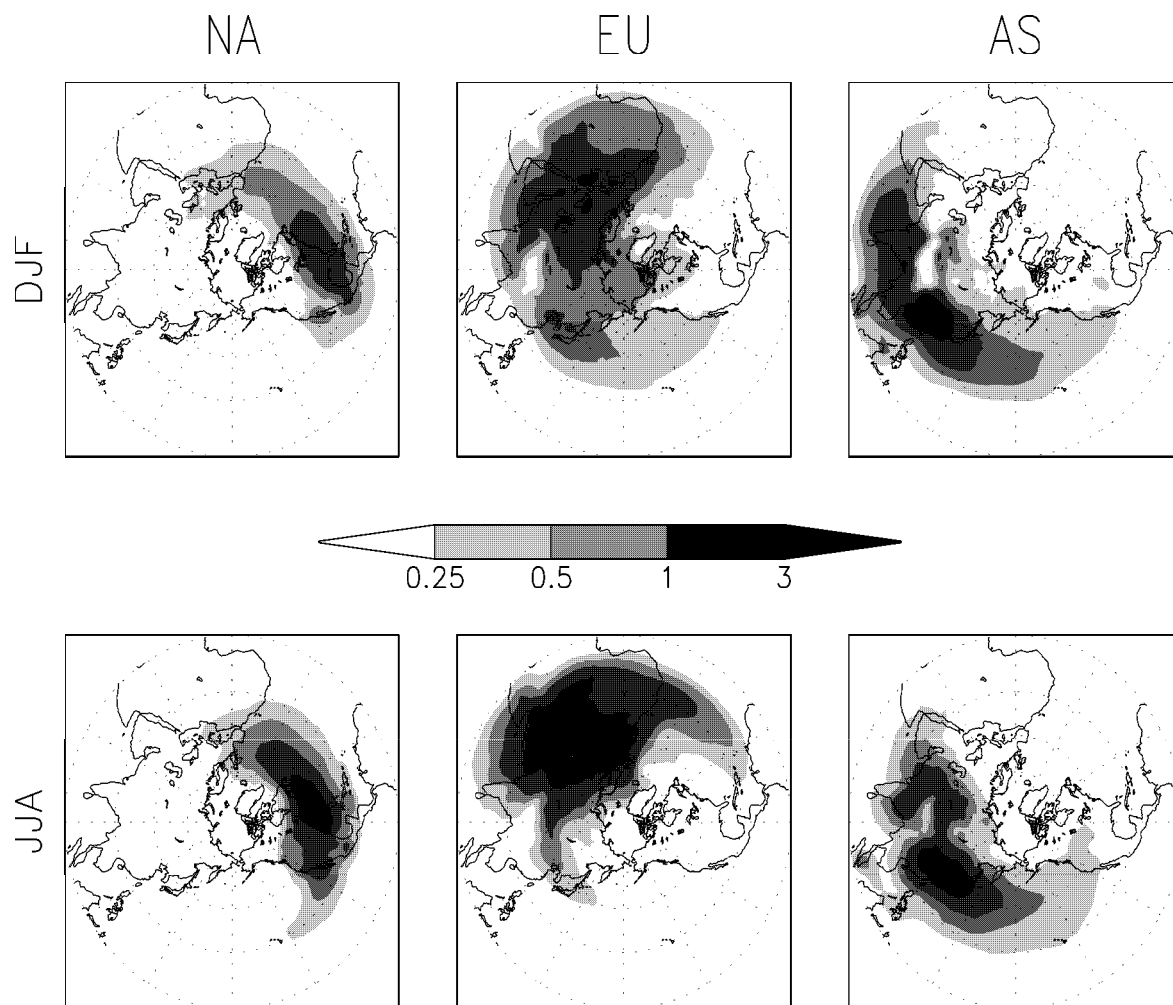


Fig. 2 Seasonally averaged column burdens of the three emission components of sulfate in the Northern Hemisphere. Unit is mgS/m^2 .

モニタリング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。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。 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氣的バランスから計算する。実験は1990年

の1年間を対象とし、モデル中の SO_2 及び SO_4 はRasch et al.[2000]と同様の“tag”を用いる手法により、放出起源と生成経路が判別できるようにした。

3. 結果

Fig. 2は北米圏、欧州圏、アジア圏を起源に持つ硫酸粒子の北半球における鉛直総量分布を冬季と夏季で比較したものである。北米東部、旧東欧、東アジアといった強い SO_x 放出源から中、高緯度では東へ、低緯度では西へ硫酸が流出する様子が見てとれる。強い放出源付近の硫酸濃度の季節変化に着目すると、北米、欧州では夏季に極大、冬季に極小となり、2倍を超える強い季節変化が見られる。これは SO_2 の酸化剤である H_2O_2 の季節変化を反映している。東アジアではこのような強い季節変化は

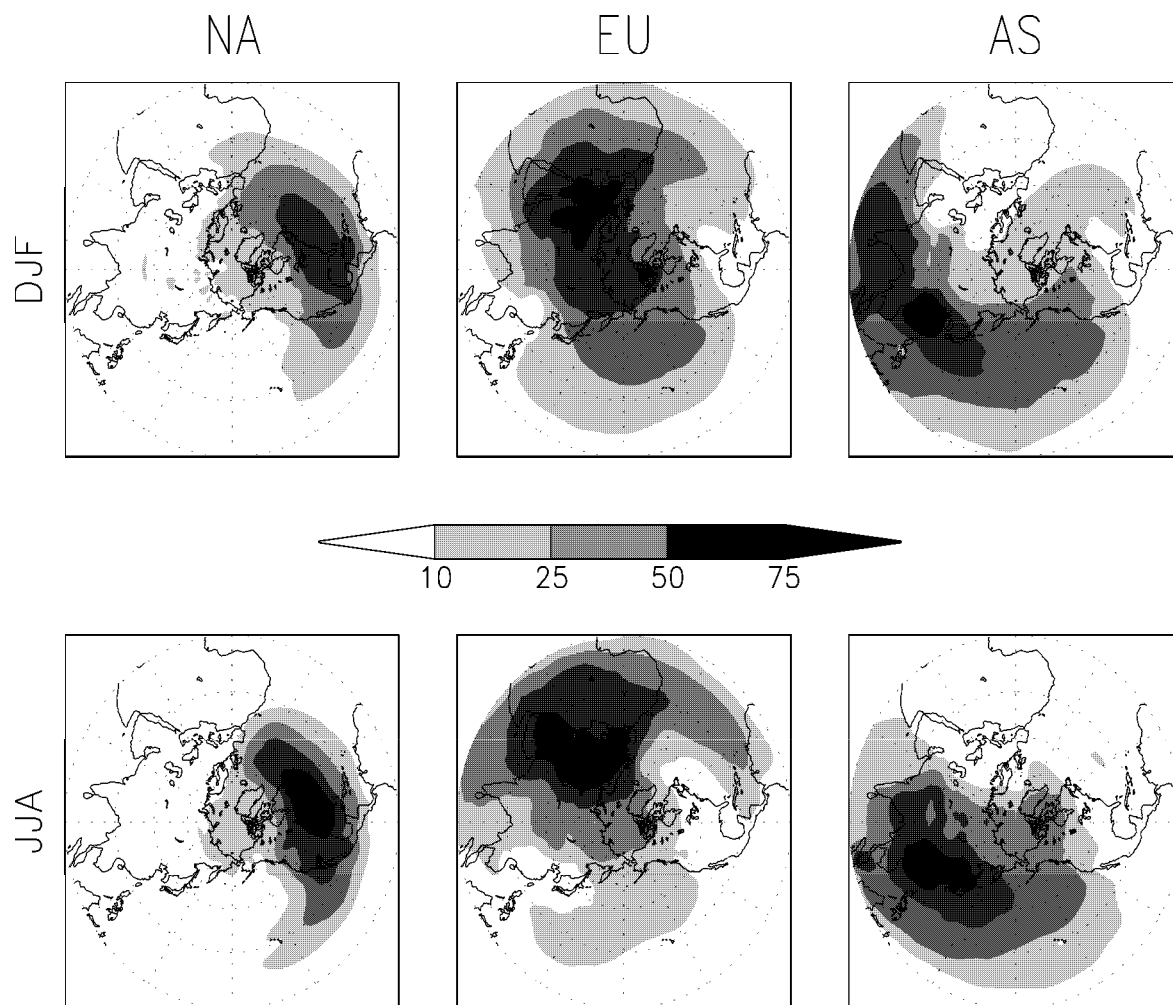


Fig. 3 Same as Fig. 2 but for relative contributions of each components to the total. Unit is %.

見られない。これは、東アジアはアンモニアの強い放出源でもあり、大気中にもアンモニアが多量に存在するため雲水中の硫酸を中和する効果が強く働くため、 H_2O_2 濃度の減少する冬季においては O_3 による酸化過程が卓越し、硫酸濃度の減少が抑制されるためである [新添・木田, 2002]。さらに東アジアでは夏季に降水が多く、硫酸化物の沈着過程が盛んになることも硫酸濃度の季節変化を小さくしている。次に放出源の周辺に目を向けると、北米東部から北大西洋及び南太平洋への流出の季節変化は、放出源付近の季節変化を反映している。特に夏季はハワイの近くまで硫酸の帯が臨んでいるのが見える。東アジアから北太平洋への流出も放出源付近の季節変化同様、目立った特徴はない。西アジア周辺は東アジアからの流入よりはインド周辺起源の硫酸が卓越する。夏季において極端に低濃度となるのはモン

スーンによる強い降水のためである。欧州から南大西洋への流出も放出源付近の季節変化同様、夏季に大きくなっている。その一方、東方への流出は非常に特徴的で、放出源付近の季節変化に反して明らかに冬季に大きくなっており、 $0.5mgS/m^2$ を超える範囲が東アジアを越え東経 180 度付近にまで達している。

Fig. 3 は北半球における硫酸の全鉛直総量に対する各成分の占める割合を表している。Fig. 2 同様、人為放出起源からの流出の様子と季節的特徴が見てとれる。ここでも冬季において欧州起源の硫酸が大きく東方へ延びているのが特徴的である。北極圏からシベリアまで欧州起源の成分が 50% を越える領域が広がっており、25% を越える領域にいたっては北太平洋に広く及んでいる。日本では通常アジア、特に中国起源の硫酸の影響を強く受けていると

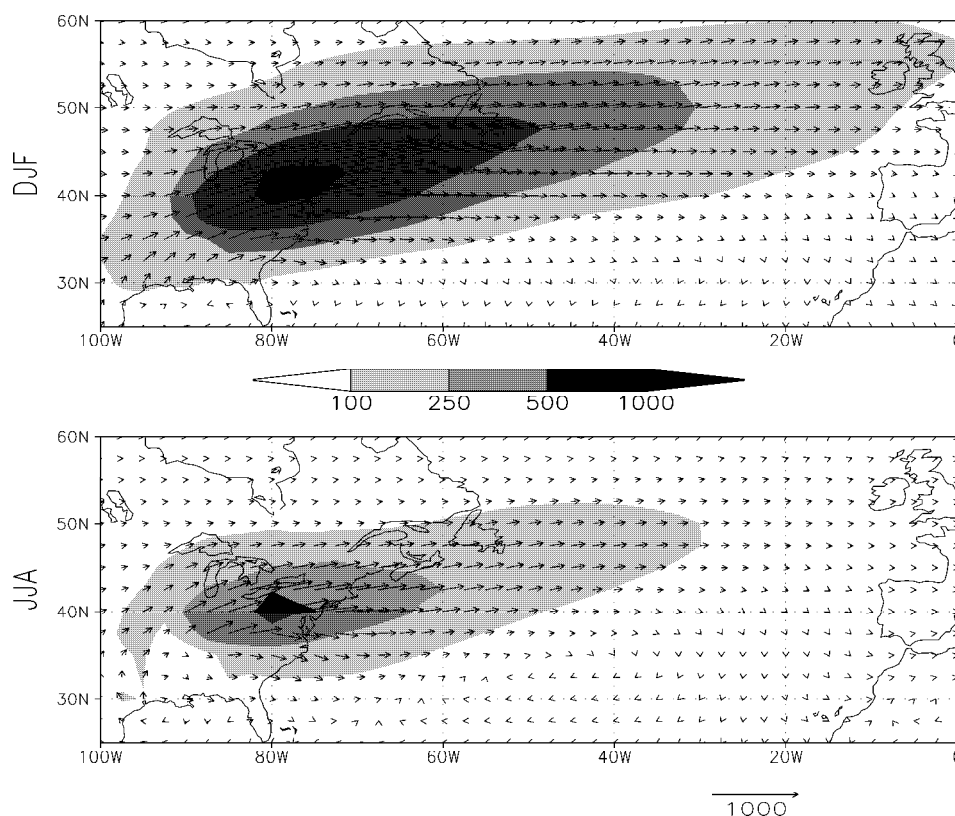


Fig. 4 Seasonally averaged and vertically integrated horizontal SO_x flux of North America component in winter. Unit is GgS/mon. Shade represents magnitude of the arrows.

考えられ、実際本研究でも夏季においては日本上空の75%以上はアジア起源となっているが、冬季においては北日本では上空の硫酸の25%以上が欧州起源であることは大変興味深い。北大西洋における北米起源の硫酸成分、北太平洋におけるアジア起源の硫酸成分ともに50%を越える領域が大陸の東岸からおよそ2000km程の沿岸まで延びているのが分かる。その一方、放出起源付近でもその成分の占める割合が8割程度に留まるのは、上部対流圏では自然起源の硫酸が卓越しているからである。

4. 考察

Fig. 4 ~ Fig. 6 はそれぞれ北米、欧州、アジア起源の SO_x の水平輸送量を対流圏全体で積分したものである。まず流出する方向に着目すると、北米からの北大西洋への流出は冬季、夏季とも偏西風に乗って大陸上で北西へ、洋上ではほぼ真東へ流れている。アジアから北太平洋への流出も洋上ではほぼ真

東であるが、大陸沿岸部では季節風を反映して冬季は南東へ、夏季は北東へ流れていく。欧州からの流出は、冬季は北緯50度付近を中心に東方、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非常に特徴的な流れが見られる。一方で夏季は東方、極向きの目立った流れは見られなくなるが、南東への流出は依然強く、地中海を経て中東や北アフリカへ及んでいる。

次に輸送量の大きさを夏季と冬季で比較すると、北米、欧州、アジアともに強い西風のために夏季より冬季の方が輸送量が大きい。ただし SO_2 の中には SO_4 に酸化されずに SO_2 として除去されるものも多いため、 SO_x としての輸送量が大きいからといって必ずしも高濃度の硫酸が広範囲に及んでいるというわけではないことはFig. 2、3で見た通りである。しかし欧州では冬季の輸送量が極端に大きく、500GgS/monを越える領域が東経100度付近まで、250GgS/monを越える領域にいたっては大陸を横断し、日本を越えてさらに東方へ延びている。

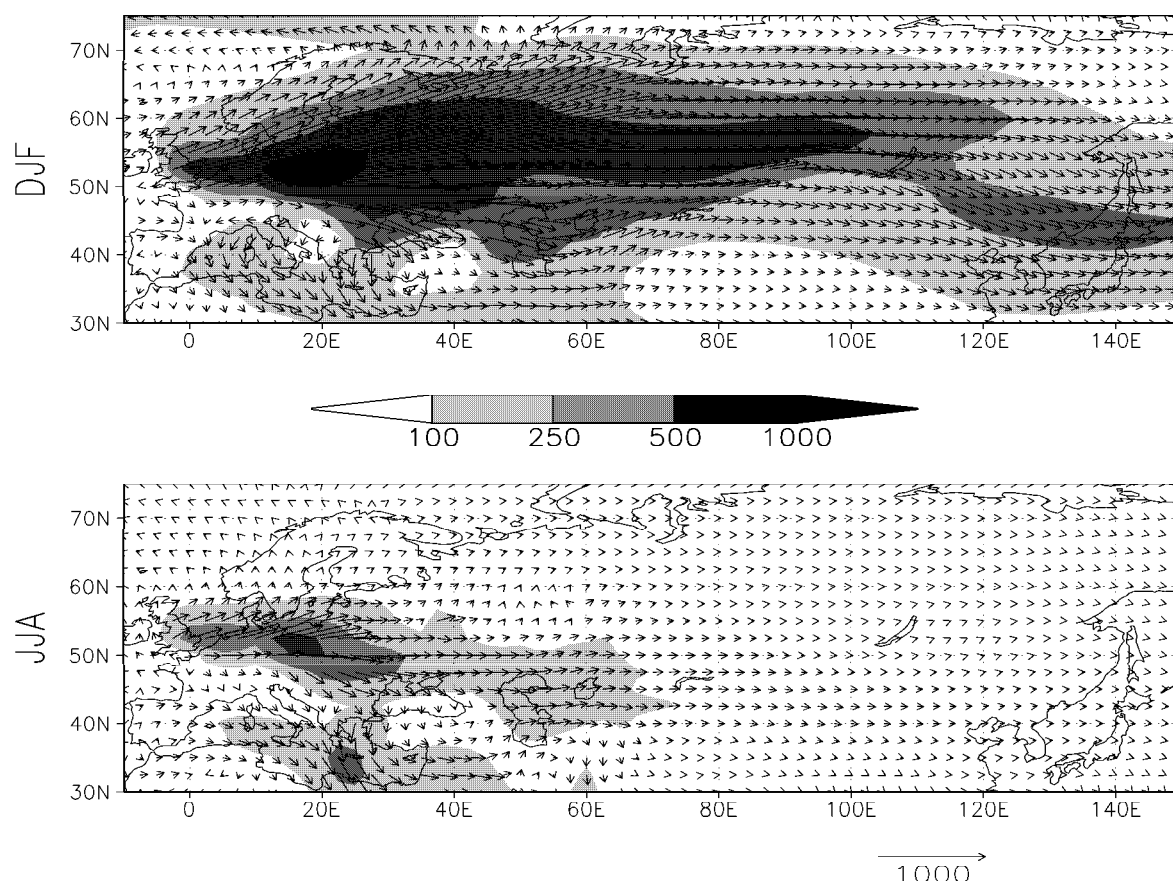


Fig. 5 Same as Fig.4 but for Europe component.

Fig. 7 は Fig. 5 で見られた冬季ユーラシア大陸における SO_x の水平輸送フラックスの東西成分の高度-経度断面を北緯 40 度から 60 度まで緯度方向に平均したものである。東欧に相当する東経 20 度付近から東方へ流れていく様子が分かる。その中心は 900hPa 付近にあるが、これは放出源である地表に近く、地表付近より風速が高く、さらに地表での乾性沈着が働かないためであると考えられる。

冬季欧州で見られたような大きな流出は北米やアジアには見られないため、この強い流れを形成する特別な要因が欧州の風下にあるはずである。その要因を明らかにするため、次のような解析を行った。北米、欧州、アジアのそれぞれを起源とする SO_x の内、Fig. 8 に示した領域について、各子午面を通過した SO_x の輸送フラックスと、各子午面の西側で除去された沈着フラックスを、それぞれの始点からの距離の関数として表す (Fig. 9)。これによれば、始点における輸送フラックスは北米、欧州、アジアともに 400GgS/mon で、ほぼ同じレベルにある。始点からの距離 X に対して輸送フラックスの減

少の割合は北米とアジアがほぼ同じであるのに対して、欧州は明らかに緩やかである。X=4000km の点では欧州における輸送フラックスは北米、アジアのほぼ倍。X=8000km の点では遥かに大きいことが分かる。一方、沈着フラックスの増加の割合を比較すると、これも欧州では明らかに北米、アジアよりも緩やかであることが分かる。

各解析領域の内側での放出量と南北境界を通過する輸送量を無視すれば、始点からの距離 X に対する輸送フラックスの減少量は沈着フラックスの増加量に等しくなるはずである。Fig. 4～6 で見たように、各領域内の輸送フラックスはほぼ真東を向いていたため、南北境界の輸送量はほぼ無視できると思われる。また領域内での放出については、欧州は放出領域と解析領域が全く重ならないため問題は無い。北米は重なる部分はほぼ海上であるためこれも問題は無い。アジアに関しては日本における放出を考える必要があるが、アジアからの放出量全体から見ればあまり問題は無いと思われる (Fig 9 において北米とアジアで輸送フラックスの減少の割合がほぼ同じ

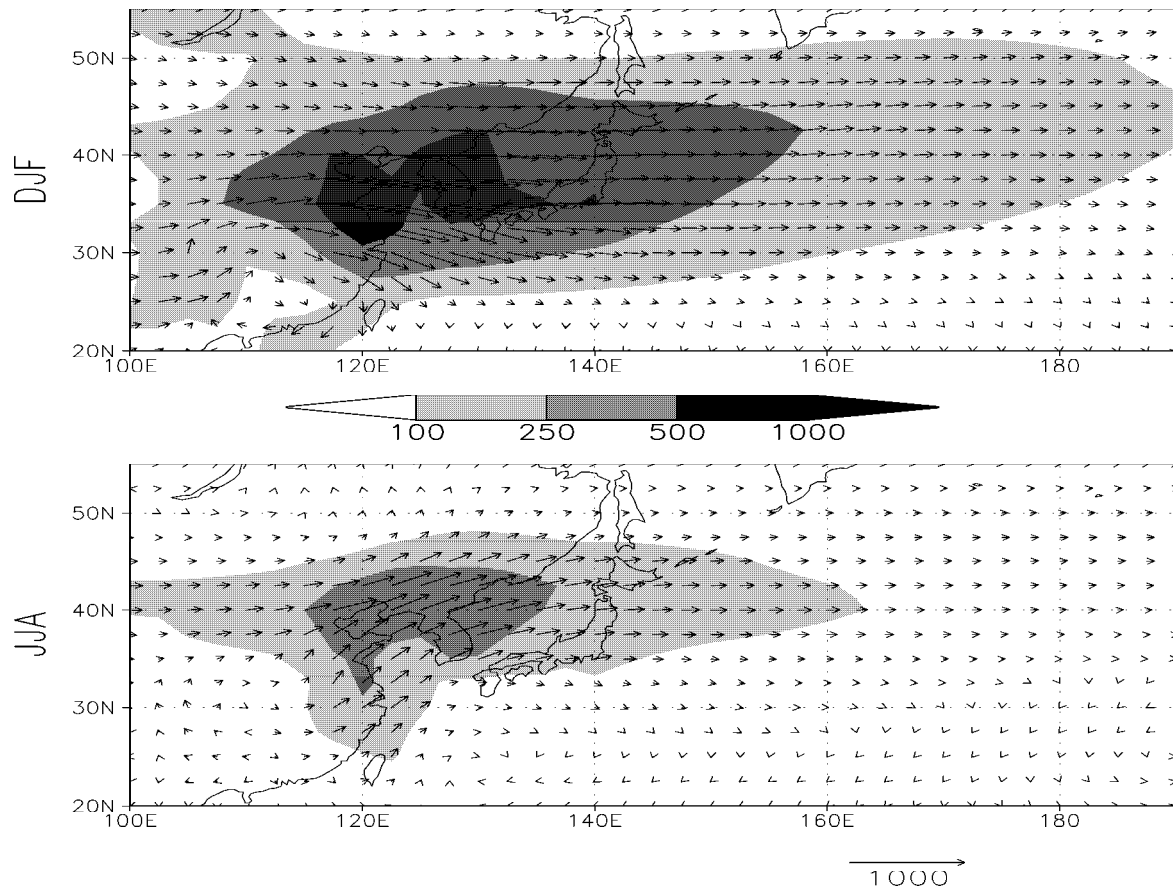


Fig. 6 Same as Fig.4 but for Asia component.

であるにも関わらず、沈着フラックスの増加の度合に差があるのは日本からの放出が原因であると思われる)。従って、上で述べた前提はほぼ成り立つと考えられる。即ち、冬季において北米やアジアに見られないような欧州からの SO_x の強い流出の原因は沈着過程にあると結論づけられる。ユーラシア内陸部で SO_x の沈着量が小さい原因としてはまず降水量の小ささがあげられる。更に、冬季ユーラシア内陸部は雪氷に覆われるため、 SO_2 の乾性沈着速度が小さくなることも原因として挙げられる。逆に、北米やアジアは風下が海であるため、冬季においても降水活動が活発であり、また乾性沈着も小さくなることはない。

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、北米、欧州、アジアの各領域を起源とする人為的硫黄酸化物の全球規模の流出の動態とその季節的特徴を調べ、以下の知見を得た。

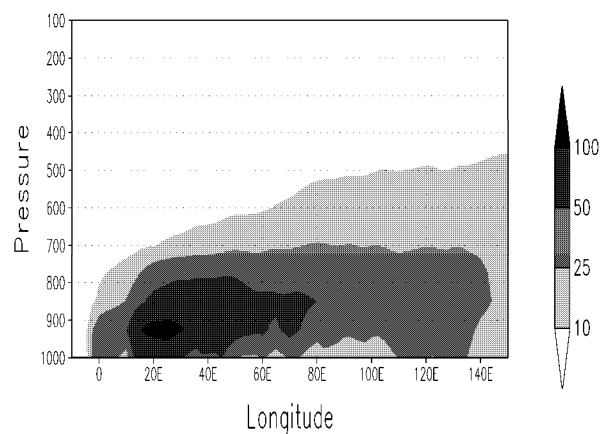


Fig. 7 Seasonally averaged cross section of the zonal component of horizontal flux over the Eurasian Continent in winter meridionally averaged between 40N and 60N. Unit is $gS/m^2/mon$.

- 北米、アジアの放出起源から流出する硫酸の季節変化は、その放出起源周辺の硫酸濃度の季節

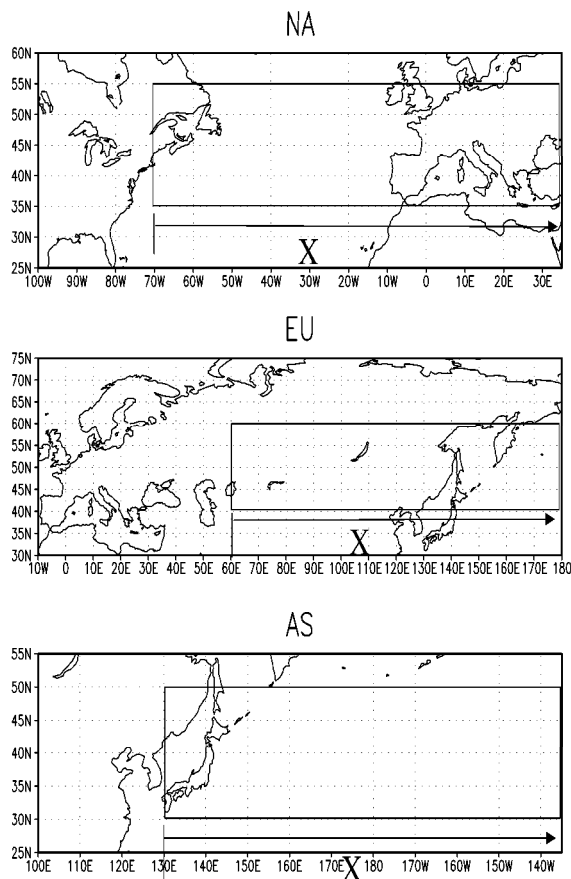


Fig. 8 Regions used in the analysis. The start lines are set at 70W for North America, 60E for Europe, and 130E for Asia, respectively. Each distance between the start lines and the end lines are about 8000km.

変化を反映するが、欧州から東方へ流出する硫酸は放出起源周辺の硫酸濃度の季節変化に反して冬季に増大する。

- 硫黄酸化物の輸送フラックスを調べたところ、冬季において、北緯 50 度付近の下層に欧州から東方への SO_x の極めて強い流出が見られ、東アジアまで達している。
- 一般的に中緯度における SO_x の輸送量は西風の強い冬季の方が夏季より大きい。
- 冬季における欧州からの極端に大きな流出は、ユーラシア内陸で降水が少なく、さらに地表が雪氷で覆われるため、 SO_x の沈着が小さいことが要因として考えられる。

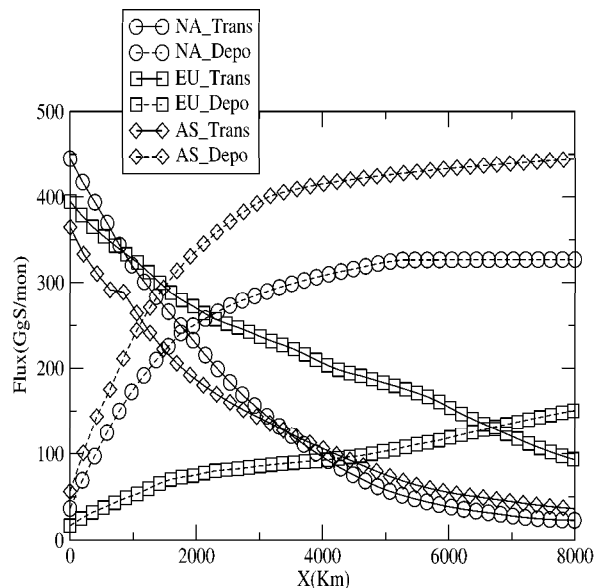


Fig. 9 Seasonally averaged SO_x fluxes of transport through each meridional planes (solid) and deposition in the west side (dashed) in winter. Circles, squares, and daiamonds represent North America (NA), Europe (EU), Asia (AS), respectively. The fluxes are function of the distant from the start point in Fig. 8.

謝辞

本研究は京都大学電波科学計算機実験装置を用いて行われました。関係各位に深く感謝します。

参考文献

- Chin, M., and D. J. Jacob, Anthropogenic and natural contributions to tropospheric sulfate: A global model analysis, *J. Geophys. Res.*, **101**, 18,691-18699, 1996
- Intergovernmental Panel on Climate Change (IPCC), Climate Change 2001, edited by Houghton, J.T., Y. Ding, D.J. Griggs, M. Noguer, P.J. van der Linden and D. Xiaosu, Cambridge University Press, UK., 2001
- 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

- Kasibhatla, P., W. L. Chameides, and J. S. John, A three-dimensional global model investigation of seasonal variations in the atmospheric burden of anthropogenic sulfate aerosols, *J. Geophys. Res.*, *102*, 3737-3760, 1997
- Langner, J., and H. Rodhe, A global three-dimensional model of the tropospheric sulfur cycle, *J. Atmos. Chem.*, *13*, 225-263, 1991.
- Rasch, P.J., M.C. Barth, J.T. Kiehl, S.E. Schwartz and C.M. Benkovitz, A description of the global sulfur cycle and its controlling processes in the National Center for Atmospheric Research Community Climate Model, Version 3, *J. Geophys. Res.*, *105*, 1367-1385, 2000
- Rossow, B. R., A. W. Walker, D. E. Beusichel, 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
- 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

Longrange transport of sulfur over the Eurasian Continent in winter

Tamon NIISOE and Hideji KIDA*

*Graduate School of Science, Kyoto University

Synopsis

A three-dimensional chemistry transport model is used to investigate the longrange transport of anthropogenic sulfur originated in three major source regions of North America, Europe, and Asia. A quite strong flow of sulfur is found over the Eurasian Continent from Europe up to East Asia in winter. This flow is driven by the strong westerly wind field and enhanced by slower SO_2 dry deposition velocity over snow and ice and scarce precipitation at the Eurasian inland.

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