

## [研究報告]

## 酸性物質の乾性沈着量推計のための沈着速度抵抗モデルの開発

Development of a resistance model for estimating dry deposition amount of acidic substances

松田 和 秀\*

Kazuhide MATSUDA

【要 約】国内における乾性沈着量推計のための汎用性の高い沈着速度計算方法を構築した。構築された沈着速度抵抗モデルは、気象庁の地上気象観測資料を用いて、SO<sub>2</sub>及びHNO<sub>3</sub>の森林（針葉樹、広葉樹）、農地、水面に対する沈着速度を算出することができる。新潟気象観測所の気象データを用い、年間を通した沈着速度を計算したところ、SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>共に、これまでの知見から判断して、概ね妥当な結果が得られた。モデル計算結果より、植生面に対するSO<sub>2</sub>沈着速度に関しては、表面抵抗の設定（季節カテゴリー分類、濡れ面へのクチクラ抵抗の設定等）をより国内の気候、植生に適したものに改良していく必要があると考えられた。また、乾性沈着量推計の事例として、丹沢山地周辺域を対象に、SO<sub>2</sub>乾性沈着量を推計したところ、三宅島雄山の噴火が始まった8月以降、火山ガスの移流が、当該地域への硫黄の乾性沈着量を大きく増加させたことが示唆された。

キーワード：酸性雨、乾性沈着、沈着速度、抵抗モデル

## 1. はじめに

酸性雨の地表面への沈着過程には、湿性沈着と呼ばれる降水による沈着過程だけでなく、ガスや粒子が直接沈着する乾性沈着という過程があり、乾性沈着量は湿性沈着量に匹敵するとも言われている<sup>1)</sup>。これまで、日本を含む東アジアにおける酸性雨調査は湿性沈着を中心に進められてきたため、当該地域における乾性沈着に関しては未知な部分が多く、酸性雨の状況把握に大きな弊害となっていた。

乾性沈着量の直接測定法には、微気象観測に基づく渦相関法、渦集積法、熱収支法、勾配法等がある。いずれの手法も特殊な装置や設備を必要とし、観測対象とする沈着面は、広い範囲で均一で、対象物質が測定可能な濃度レベルであることが要求される。このような制約から、これらの直接測定法をルーチンの観測網に適用することは困難を伴う。

欧米においては、大気中成分濃度とその成分の沈着速度の積から乾性沈着量を推計する方法が多く用いられている。この方法は、間接測定手法の一つでインファレンシャル法<sup>2)</sup>とも呼ばれており、一旦、手法を構築すれば、実用性が高くルーチンモニタリングに適したものとなり得る。沈着速度は気象要素

などのパラメータから計算されるもので、欧米においていくつかのモデルが開発されている<sup>3,4,5)</sup>。しかしながら、これらの沈着速度計算モデルは汎用性が高くはなく、他地域へ応用された例は少ない<sup>6,7)</sup>。

本研究では、これまでの知見を基に、国内における乾性沈着量推計のための汎用性の高い沈着速度計算方法を構築し、その計算事例の検討を行った。

## 2. 沈着速度抵抗モデルの構築

インファレンシャル法では、目的成分の大気濃度と沈着速度の積により乾性沈着量を算出する。沈着速度を計算するモデルは、一般的に、大気から沈着面までの物質の移動を電気回路のように見立て、沈着速度を以下に示す3つの直列抵抗のコンダクタンスと考える。ガス状物質に対する基本式<sup>2,8)</sup>は以下の通り。

$$V_d = (r_a + r_b + r_c)^{-1} \quad (1)$$

ここで、 $V_d$ ：沈着速度、 $r_a$ ：空気力学的抵抗、 $r_b$ ：準薄層抵抗、 $r_c$ ：表面抵抗である。

モデルの構築にあたって、沈着面として、森林、

\* (財) 日本環境衛生センター・酸性雨研究センター  
Acid Deposition and Oxidant Research Center, JESC

農地、水面を対象にした。また、森林に関しては、さらに、針葉樹と落葉樹の2種を取り扱った。対象成分は、二酸化硫黄 (SO<sub>2</sub>) 及び硝酸ガス (HNO<sub>3</sub>) としたが、ガス状物質全般に応用できるようにモデルを構築した。

### 2.1 空気力学的抵抗

空気力学的抵抗の基本式には、大気安定度の補正項を含む Wesely & Hicks<sup>3)</sup> の式を用いた。

$$r_a = (ku^*)^{-1} [\ln(z/z_0) - \Psi] \quad (2)$$

0 < z/L < 1 の場合

$$\Psi = -5z/L$$

z/L < 0 の場合

$$\Psi = \exp[0.032 + 0.448 \ln(-z/L) - 0.132(\ln(-z/L))^2]$$

ここで、k: カルマン定数、u\*: 摩擦速度、z: 計算高度、z<sub>0</sub>: 空気力学的粗度、Ψ: 大気安定度の補正項、L: モニンオブコフ長である。z<sub>0</sub>は、森林1m、農地0.1m、水面0.0001mに設定した。また、計算高度は10mに設定し、藤田ら<sup>9)</sup>の方法により摩擦速度を計算した。計算式は以下の通り。

$$u^* = ku_{10} / \ln(z/z_0) \quad (3)$$

$$u_{10} = u(10/z^*)^{0.25}$$

ここで、u<sub>10</sub>: 高度10mに補正された風速、z\*: 風速の観測高度である。大気安定度のパラメータの算出には、一般的に、風速や気温の鉛直分布、風向の標準偏差等の特殊な観測データを必要とするが、ここでは、汎用性の高い計算方法を構築するため、日射量、風速、雲量より推定される Pasquill の安定度分類法を適用し、Golder<sup>10)</sup>の提示した安定度分類別の z<sub>0</sub> と 1/L との関係性を参考にして、表-1のように 1/L 値を設定した。

表-1 モニンオブコフ長の設定値

安定度 分類	1/L (m <sup>-1</sup> )		
	森林	農地	水面
A	-0.1	-0.14	-0.26
B	-0.04	-0.06	-0.16
C	-0.01	-0.02	-0.09
D	0	0	0
E	0.01	0.02	0.12
F	0.04	0.06	0.22

### 2.2 準薄層抵抗

準薄層抵抗の計算式<sup>2)</sup>を以下に示す。

$$r_b = 5 Sc^{2/3} / u^* \quad (4)$$

ここで、Sc: Schmidt数であり、SO<sub>2</sub>及びHNO<sub>3</sub>のSc数はHicks et al.<sup>5)</sup>より引用した。

### 2.3 表面抵抗

表面抵抗の計算は、基本的にWesely<sup>3)</sup>のパラメタリゼーションに従った。基本式は以下の通り。

$$r_c = [(r_{st} + r_m)^{-1} + (r_{cut})^{-1} + (r_{lc})^{-1} + (r_{gr})^{-1}]^{-1} \quad (5)$$

ここで、r<sub>st</sub>: 気孔抵抗、r<sub>m</sub>: 葉肉抵抗、r<sub>cut</sub>: クチクラ抵抗、r<sub>lc</sub>: 下層キャノピー抵抗、r<sub>gr</sub>: 地表抵抗である。さらに、目的成分iの植生面(森林、農地)に対する各抵抗は以下のようにパラメタライズされる。

$$r_{st}^i + r_m^i = r_{st} (D_{H_2O} / D_i) + 1 / (3.3 \times 10^{-4} H_i^* + 100 f_i^0) \quad (6)$$

$$r_{st} = r_j [1 + (200 / (G + 0.1))^2 (400 / T_s (40 - T_s))] ]$$

$$r_{cut}^i = r_{lu} / (10^{-5} H_i^* + f_i^0) \quad (7)$$

$$r_{lc}^i = 100 (1 + 1000 / (G + 10)) / (1 + 1000 \theta + (10^{-5} H_i^* / r_{cls} + f_i^0 / r_{clo})^{-1}) \quad (8)$$

$$r_{gr}^i = r_{ac} + (10^{-5} H_i^* / r_{gss} + f_i^0 / r_{gso})^{-1} \quad (9)$$

ここで、D: 分子拡散係数、H: ヘンリー一定数、f<sub>0</sub>: 規格化反応ファクター、G: 日射量、T<sub>s</sub>: 地表気温、θ: 地表面斜度である。また、r<sub>j</sub>, r<sub>lu</sub>, r<sub>cls</sub>, r<sub>clo</sub>, r<sub>ac</sub>, r<sub>gss</sub>, r<sub>gso</sub>らはインプット抵抗値として、5つの季節分類別に11種の沈着面に対して設定されている<sup>3)</sup>。本研究では、針葉樹、落葉樹、農地のインプット抵抗値データセットを用いた。一方、植生が露や降雨により濡れた場合、クチクラ抵抗の式を変える必要性が指摘されている<sup>3,4)</sup>。本研究では、高橋ら<sup>11)</sup>の観測結果を参考にして、相対湿度85%以上の時に植生が濡れた状態になると仮定し、その状態の時には、Wesely<sup>3)</sup>が露に覆われた表面に対する抵抗値として提唱した値 (r<sub>cut</sub> = 1 s/cm) を計算に適用した。

水面に対する表面抵抗は、以下の式<sup>2)</sup>から算出した。

$$r_c^i = 2.54 \times 10^4 / H_i^* T_s u^* \quad (10)$$

インプット抵抗値の季節カテゴリーは、日本の季節を考慮して、表-2のように月単位で設定した。

表-2 インプット抵抗値の季節カテゴリーの設定

季節カテゴリー <sup>12)</sup>	月
Midsummer with lush vegetation	6, 7, 8
Autumn with unharvested cropland	9
Late autumn after frost, no snow	10, 11
Winter, snow on ground and subfreezing	12, 1, 2
Transitional spring	3, 4, 5

### 3. 沈着速度抵抗モデルによる計算事例

構築された抵抗モデルを用いて、沈着速度の算出を行った。気象データは、気象庁の地上気象観測資料から引用し、計算には全て時間値データ（風速、気温、湿度、日射量、雲量）を使用した。また、気象観測所において、雲量観測は毎時ではないため、時間値に補完して適用した。

#### 3.1 沈着速度の計算例

新潟気象観測所における2000年1月～12月の観測データを用い、SO<sub>2</sub>及びHNO<sub>3</sub>の沈着速度を4つの表面別に計算した。表-3に、推計された沈着速度の年平均値を示す。

表-3 抵抗モデルにより推計された沈着速度の年平均値（新潟気象観測所，2000年1月～12月）

単位：cm/s	SO <sub>2</sub>	HNO <sub>3</sub>
針葉樹	0.41	4.94
落葉樹	0.39	4.94
農地	0.54	1.63
水面	0.33	0.33

Erismann and Baldocchi<sup>12)</sup> は、針葉樹、落葉樹、低木林、農地、草地、水面、土壌に対する実測に基づいた沈着速度研究をレビューし、SO<sub>2</sub>の沈着速度は、0.1～2 cm/sの範囲内に報告されていることを示した。表-3から、本研究で推計された沈着速度の年平均値は、いずれもこの範囲内にあることが分かる。一方、HNO<sub>3</sub>に関しては、実測が難しく、これまでに十分な知見が得られていないが、SO<sub>2</sub>に比べ、反応性が強く水へ溶けやすい性質を持つことから沈着速度が大きくなることが予想される。Eriamanら<sup>13)</sup> は、通常、HNO<sub>3</sub>は効率よく沈着し、

いかなる沈着面に対してもr<sub>c</sub>が無視できる程度に小さいと述べている。新潟での推計において、HNO<sub>3</sub>のr<sub>c</sub>はSO<sub>2</sub>に比べ、10<sup>-9</sup>～10<sup>-10</sup>倍に推計されており、Eriamanら<sup>13)</sup> を支持する結果となった。

図-1に(a) SO<sub>2</sub>, (b) HNO<sub>3</sub>の沈着速度月平均値の変動を示す。

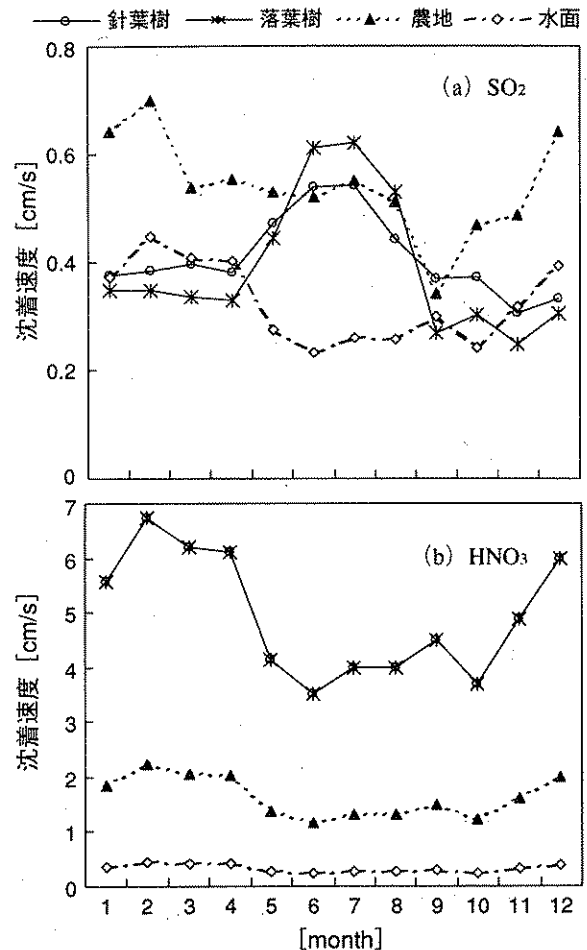


図-1 推計された沈着速度の月平均値の変動 (a) SO<sub>2</sub>, (b) HNO<sub>3</sub>

SO<sub>2</sub>沈着速度に関し、針葉樹及び落葉樹に対する値は、湿度が高く、繁茂期のパラメタリゼーションを利用している6～8月に増加しており、1/r<sub>c</sub>の変動特徴を良く反映していた。他方、水面の変動は、1/r<sub>c</sub>の変動特徴を良く反映したものであった。農地の場合、植生に覆われている暖候期と収穫後土壌面となる寒候期に分けて考えられ、前者は森林、後者は水面の変動特徴に似ていた。これらの結果より、抵抗モデルはSO<sub>2</sub>沈着速度は沈着面に植生がある場合、r<sub>c</sub>の影響を強く受ける傾向があると言える。HNO<sub>3</sub>沈着速度に関しては、前述の通り、r<sub>c</sub>が極めて小さいため、その沈着速度の変動特徴は、r<sub>a</sub>

や $r_b$ の影響を受けたものになる。4つの沈着面共に変動特徴は似ており、 $1/r_a$ の変動特徴を良く反映したものであった。各沈着面に対する沈着速度レベルの差は、設定された $z_0$ の差に起因するものと考えられる。

図-2に (a)  $SO_2$ 、(b)  $HNO_3$ の沈着速度の日内変動を示す。各値は、1年間の時刻別平均値である。

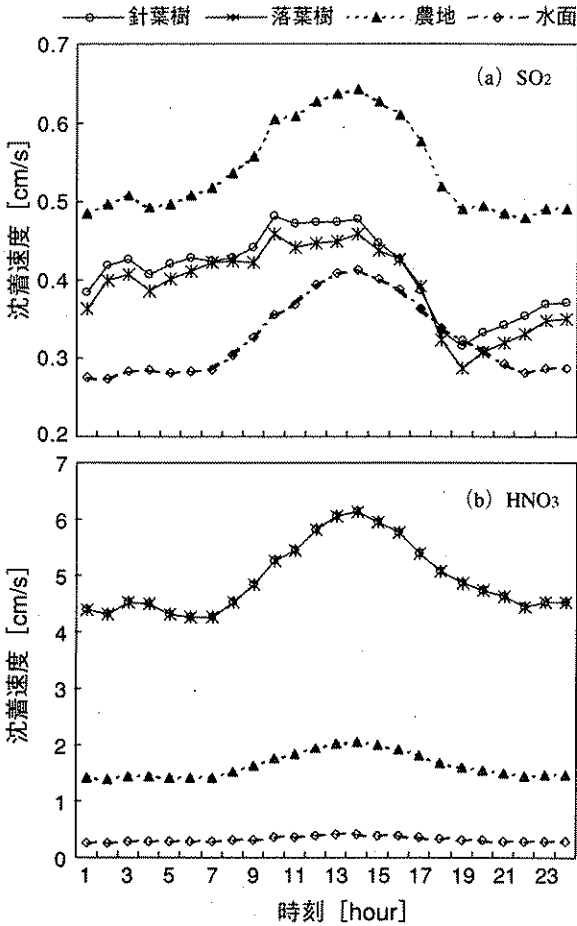


図-2 推計された沈着速度の時刻別平均値の変動  
(a)  $SO_2$ 、(b)  $HNO_3$

いずれの沈着速度も日中に高くなる傾向を示していた。植生面に対する $SO_2$ の沈着速度に関しては、日中、気温と日射量が増加すると共に $r_{st}$ が小さくなることによると考えられる。 $HNO_3$ 及び植生面以外の $SO_2$ の沈着速度に関しては、 $r_a$ の影響を比較的強く受けるため、日中の風速の増加に伴い $r_a$ が減少することを反映した結果であると考えられる。Felicianoら<sup>14)</sup>は、ポルトガルの短い植生面に対する乾性沈着の長期観測及び短期集中観測の結果を集計し、 $SO_2$ の沈着速度は夜間により日中の方が高かったことを報告している。構築された抵抗モデルの推計結果は、Felicianoら<sup>14)</sup>の報告を支持する

ものとなっていた。国内における乾性沈着実測事例は極めて少ないが、Matsuda et al.<sup>15)</sup>は、長野県のアカマツ林における観測結果から、秋季の日中12:00~14:00の $SO_2$ 沈着速度を0.9 cm/s程度と報告している。今回推計された針葉樹に対する日中の $SO_2$ 沈着速度は0.5 cm/s程度であり、Matsuda et al.<sup>15)</sup>が報告した値よりも小さめであった。今後、推計手法の検証のためにも、国内における乾性沈着実測データの集積が望まれる。

### 3. 2 乾性沈着量の計算例

構築された沈着速度抵抗モデルの応用として、神奈川県西部に位置する丹沢山地周辺域を対象に、 $SO_2$ の乾性沈着量の推計を行った。この地域は、2000年8月に噴火した三宅島雄山からの火山ガスの移流により、噴火後に $SO_2$ 濃度が著しく増加した。

乾性沈着量は、国設丹沢測定局の自動計測器で測定された時間毎 $SO_2$ 濃度と、丹沢局近傍の気象観測所3地点(河口湖、三島、網代)において、それぞれ推計された針葉樹に対する $SO_2$ 沈着速度の積により求めた。3つの観測所は丹沢局より30km程度離れたところに位置する。なお、これら3つの気象観測所では日射量の観測が行われていないため、日射量のデータには、丹沢測定局から50km程度離れた甲府気象観測所のデータを用いた。対象期間は、2000年4月~2001年3月とした。

推計された沈着速度の年平均値は、河口湖0.36 cm/s、三島0.33 cm/s、網代0.34 cm/sであり、3地点間でさほど差はなかった。図-3に推計された $SO_2$ 乾性沈着量の変動を示す。

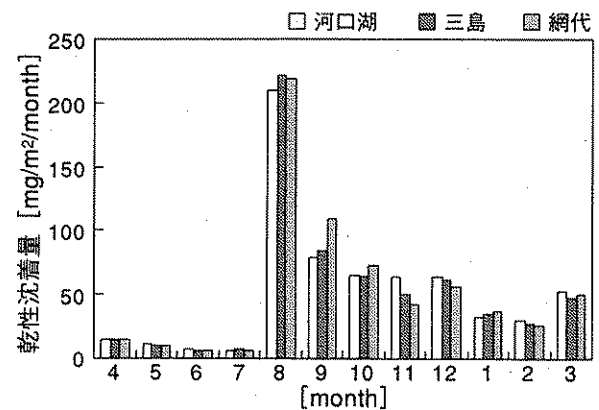


図-3 丹沢山地周辺域における $SO_2$ 乾性沈着量の変動(2000年4月~2001年3月)

3地点間での差は顕著ではなく、概ね、この地域を代表した推計値であることを示唆している。一方、

乾性沈着量は、三宅島雄山の噴火が始まった8月から急増しており、火山ガスが、当該地域への硫黄の乾性沈着量を大きく増加させたことを示している。丹沢のケースとは異なり、SO<sub>2</sub>が低濃度である地域においては、粒子状硫酸塩の乾性沈着量が重要になってくる。フィルターパック法やデニューダ法は、SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>等のガス状物質と粒子状硫酸塩、硝酸塩等の粒子状物質を同時に測定することができることから、乾性沈着量推計のための大気濃度測定手法として有効である。国内において、これらの測定手法を乾性沈着量の推計に適用した例として、Matsuda et al.<sup>6)</sup>、高橋ら<sup>7)</sup>がある。

#### 4. まとめ

国内における乾性沈着量推計のための汎用性の高い沈着速度計算方法を構築した。構築された沈着速度抵抗モデルは、気象庁の地上気象観測資料を用いて、SO<sub>2</sub>及びHNO<sub>3</sub>の森林(針葉樹、広葉樹)、農地、水面に対する沈着速度を算出することができる。新潟気象観測所の気象データを用い、2000年1月～12月の間の沈着速度を計算したところ、SO<sub>2</sub>、HNO<sub>3</sub>共に、これまでの知見から判断して、概ね妥当な結果が得られた。他方、さらなる精緻化のためには、国内における乾性沈着実測データの集積が望まれる。また、乾性沈着量推計の応用として、丹沢山地周辺域を対象に、2000年4月～2001年3月の間のSO<sub>2</sub>乾性沈着量を推計した。SO<sub>2</sub>乾性沈着量は、三宅島雄山の噴火が始まった8月から急増しており、火山ガスの移流が、当該地域への硫黄の乾性沈着量を大きく増加させたことが示唆された。

モデルの構築において、 $r_c$ のパラメタリゼーションに適用したWesely<sup>3)</sup>の方法は、北米を対象として開発されたものである。計算例において、 $r_c$ の影響を強く受けていた植生面に対するSO<sub>2</sub>沈着速度に関しては、 $r_c$ の設定(季節カテゴリー分類、濡れ面へのクチクラ抵抗の設定等)をより国内の気候、植生に適したものに改良していく必要があると考えられる。

#### 5. 参考文献

- 1) 藤田慎一 (1996) : 日本列島における硫黄化合物の収支. 環境科学会誌, 9 (2), pp185-199
- 2) Sienfeld J.H. and Pandis S.N. (1996) : Atmospheric Chemistry and Physics, A Wiley Interscience Publication, pp. 958-996
- 3) Wesely M.L. (1989) : Parameterization of surface resistance to gaseous dry deposition in regional scale, numerical models. *Atmos. Environ.*, 23, pp1293-1304
- 4) Elisman J.W. (1994) : Evaluation of a surface resistance parameterization of sulphur dioxide. *Atmos. Environ.*, 28, pp2583-2594
- 5) Hicks B.B. et al. (1987) : A preliminary multiple resistance routine for deriving dry deposition velocities from measured quantities. *Water, Air, and Soil Pollution*, 36, pp311-330
- 6) Matsuda K. (2001) : A case study on estimation of dry deposition of sulfur and nitrogen compounds by inferential method. *Water Air Soil Pollutl.*, 130, pp553-558
- 7) 高橋章ら (2002) : スギ林における酸の乾性沈着量の時間的変動. 大気環境学会誌, 37 (3), pp206-215
- 8) Wesely M.L. and Hicks B. B. (1977) : Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Pollut. Control Assoc.*, 27, pp1110-1116.
- 9) 藤田慎一ら (1990) : わが国における硫黄化合物の乾性沈着量に関する検討. 大気汚染学会誌, 25 (5), pp343-353
- 10) Golder D. (1972) : Relations among stability parameters in the surface layer. *Boundary-Layer Meteorology*, 3, pp47-58
- 11) 高橋章ら (1999) : インフェレンシャル法による森林への硫黄化合物の乾性沈着量の推定—SO<sub>2</sub>の乾性沈着に及ぼす葉面のぬれの効果—. 電力中央研究所報告, T9902
- 12) Erisman J.W. and Baldocchi D. (1994) : Modelling dry deposition of SO<sub>2</sub>. *Tellus*, 46B, pp 159-171
- 13) Erisman J.W. et al. (1994) : Parameterization of surface resistance for the quantification of atmospheric deposition of acidifying pollutants and ozone. *Atmos. Environ.*, 28, pp2595-2607
- 14) Feliciano M.S. et al. (2001) : Evaluation of SO<sub>2</sub> dry deposition over short vegetation in Portugal. *Atmos. Environ.*, 35, pp3633-3643
- 15) Matsuda K. et al. (2002) : Dry Deposition Velocity of Sulfur Dioxides on a red pine forest in Nagano, Japan. 大気環境学会誌, 37 (6), 印刷中