

TECHNICAL REPORTS OF THE METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE No.34

**The Long-range Transport Model of Sulfur Oxides
and Its Application to the East Asian Region**

BY

Applied Meteorology Research Department

気象研究所技術報告

第34号

硫黄酸化物の長距離輸送モデルと東アジア地域への適用

応用気象研究部

気 象 研 究 所

METEOROLOGICAL RESEARCH INSTITUTE, JAPAN

JUNE 1995

Meteorological Research Institute

Established in 1946

Director-General : Dr. Yonejiro Yamagishi

Forecast Research Department	Director : Mr. Harushige Koga
Climate Research Department	Director : Mr. Hikomaro Muraki
Typhoon Research Department	Director : Mr. Shin Ohtsuka
Physical Meteorology Research Department	Director : Mr. Takenori Noumi
Applied Meteorology Research Department	Director : Dr. Tatsuo Hanafusa
Meteorological Satellite and Observation System Research Department	Director : Mr. Toyoaki Tanaka
Seismology and Volcanology Research Department	Director : Mr. Eiji Mochizuki
Oceanographical Research Department	Director : Mr. Kenzo Shuto
Geochemical Research Department	Director : Dr. Katsuhiko Fushimi

1-1 Nagamine, Tsukuba, Ibaraki, 305 Japan

Technical Reports of the Meteorological Research Institute

Editor-in-chief : Harushige Koga

Editors : Masakatsu Kato Akihiro Uchiyama Kenji Akaeda
 Hakaru Mizuno Izuru Takayabu Michio Hirota
 Kenji Kanjo Masafumi Kamachi Hidekazu Matsueda

Managing Editors : Shigeki Matsubayashi, Hisato Nishii

The *Technical Reports of the Meteorological Research Institute* has been issued at irregular intervals by the Meteorological Research Institute since 1978 as a medium for the publication of survey articles, technical reports, data reports and review articles on meteorology, oceanography, seismology and related geosciences, contributed by the members of the Meteorological Research Institute.

The Editing Committee reserves the right of decision on acceptability of manuscripts and is responsible for the final editing.

©1995 by the Meteorological Research Institute.

The copyright of articles in this journal belongs to Meteorological Research Institute (MRI). Permission is granted to use figures, tables and short quotes from articles in this journal, provided that the source is acknowledged. Republication, reproduction, translation, and other uses of any extent of articles in this journal, that are not for personal use in research, study, or teaching, require permission from the MRI.

序

当研究部では、昭和63年度より特定研究「東アジア地域における酸性雨に関連する汚染質の輸送に関する研究」を5年計画で実施し、さらに平成5年度から3年計画でその第Ⅱ期の研究を行ってきた。本報告はⅠ期における研究成果をまとめたものである。

酸性雨が「国境を越えた大気汚染」として本格的に取り扱われたのはヨーロッパにおいて1970年代のことである。日本においては1968年に大気汚染防止法が制定され、SO₂などの排出は量的に厳しく規制されるようになり、わが国においては広域にわたる酸性雨の被害は顕在化しないものと考えられていた。ところが、1985年に関東地方でスギの衰退が発見され、酸性雨の問題が大きくクローズアップされるようになってきた。

一方、東アジア地域の諸国では近年の急激な人口増加、工業化の進展などにより、著しいエネルギーが消費されるようになり、種々の大気汚染物が大気中に放出されるようになってきた。特に硫酸化物の東アジアにおける排出量は1987年には約2千3百万トン/年と見積もられ、年々増加の傾向にある。その内の約85%が中国によって占められていることは注目に値する。

このようなことから、東アジア地域においても近い将来ヨーロッパや北アメリカのような酸性雨等の酸性降下物による被害に見舞われることが懸念されている。このために、当研究部で開発した「長距離輸送モデル」を利用して東アジア地域における酸性・酸化性物質の動態を把握し、影響の程度を予測する手法を開発するとともに、その制御方法の検討に資するために本研究が実施されたものである。

実測された湿性沈着量は比較的近傍の排出源からの寄与が大きく、冬季の北九州では乾性及び湿性沈着量とも韓国からの寄与が圧倒的に多いこと、また、夏季では中国の上海や南京等の寄与が顕著であることなどが結果として得られた。

モデルに取り入れた乾性及び湿性沈着過程は計算の制約上可能な限り簡素化し、in cloud scavenging の過程がモデルに含まれていないなどの不十分な点は今後の研究課程において徐々に改善されていくものと期待している。

本研究は気象庁数値予報課、気象研究所予報部、科学技術庁政策研究所を始め多くの人たちのご協力を頂いた。それらの方々から感謝する。

平成7年5月

応用気象研究部長 花房龍男

The Long-range Transport Model
of Sulfur Oxides and
Its Application to the East Asian Region*

by

Applied Meteorology Research Department
Meteorological Research Institute

硫黄酸化物の長距離輸送モデルと
東アジア地域への適用**

気象研究所応用気象研究部

*Junji Sato, Takehiko Satomura, Hidetaka Sasaki : Meteorological Research Institute,
and Yoshitaka Muraji : Energy Sharing Co., Ltd.

**佐藤純次, 里村雄彦, 佐々木秀孝 : 気象研究所応用気象研究部
村治能孝 : 株式会社エナジシェアリング

目 次

序

概要	1
Abstract	3
1. はじめに	5
1.1 バックグラウンド	7
1.2 研究の目的	8
2. 長距離輸送モデル	11
2.1 長距離輸送モデルの概要	13
2.2 気象予測モデル	15
2.2.1 力学的気象予測モデルの支配方程式系	15
2.2.2 モデル領域と格子構造	18
2.2.3 境界層の物理過程と降水過程	18
2.2.4 気象予測計算	22
2.3 降水の検証	22
2.3.1 降水量・降水域の領域別統計	23
2.3.2 降水のしきい値の設定	25
2.4 拡散モデル	28
2.4.1 ランダムウォークモデル	28
2.4.2 汚染質の変質	29
2.4.3 乾性沈着	30
2.4.4 湿性沈着	33
2.4.4.1 雲下における沈着過程	33
2.4.4.2 降水沈着のトレーサー実験	35
2.4.4.3 雲中における沈着過程	37
3. 長距離輸送モデルの検証	43
3.1 検証データ	45
3.1.1 排出源データ	45
3.1.2 沈着量データ	48
3.2 モデル検証の計算	49

4. 東アジア地域におけるシミュレーション	51
4.1 排出源と排出量	53
4.2 シミュレーションと結果	53
5. まとめ	63
6. おわりに	67
謝辞	69
Appendix I	71
Appendix II	73
Appendix III	79
参考文献	99

1. はじめに

1.1 バックグランド

近年になって塩素系化合物に起因する成層圏オゾンの減少や微量成分気体の温室効果による地球温暖化等、人類が排出した物質による地球規模の環境に対する悪影響が注目され始めてきた。降水の酸性化も広域的な現象の故に地球環境問題として取り扱われるようになった。イギリスでは、1872年に既に都市を中心とした地域における二酸化硫黄を主成分とする酸性雨に関する文献があるように、ヨーロッパでは古くから酸性雨による被害が存在していたと思われる。酸性雨の原因物質の大気中における長距離輸送は1972年ストックホルムで開催された第1回国連環境会議の議題に「国境を越えた大気汚染」として取り上げられ、広域的な現象としてばかりでなく国際的な問題として注目されるようになった。大気に国境はないと言われているように、酸性雨原因物質は大気中に排出されてから長距離輸送され、排出源より遙か離れた地域に被害をもたらす。酸性雨にはこのような特色があるため、一国だけの汚染物質の排出規制や制御によってその被害を軽減することは不可能である。ヨーロッパでは1978年、酸性雨原因物質の動態を調べるために経済協力開発機構（OECD：Organization of Economic Co-operation and Development）が長距離輸送モデルを開発し、また国連ヨーロッパ経済委員会（ECE：United Nations Economic Commission for Europe）によってヨーロッパにおける大気汚染物質の越境長距離輸送についての評価及び防止の戦略的な計画を目的としたRAINS（Regional Acidification Information and Simulation）Modelが作成され、更にアジア地域の評価のためにRAINS Asiaが計画、実行され始めた。一方、アメリカにおいては1982年より「国家酸性雨アセスメント計画（NAPAP：National Acid Precipitation Assessment Program）」がNOAA及びEPAを中心とした12の省庁機関が参画して10年計画で実施し、さらに期間が延長されている。ヨーロッパやアメリカなどで確認されている酸性降下物による主たる被害は、湖沼の酸性化による魚の激減、土壌からの交換性アルミニウム等の金属の溶出による森林成長の衰退、建造物等文化的遺産の損傷の加速化などである。

東アジア地域の諸国では近年の急激な人口増加、工業化の進展等により著しいエネルギーが消費されており、その結果、生態系にとって有害であるばかりでなく、地球環境に影響を及ぼすと考えられている大気汚染物質が大気中に大量に排出されている。特に硫黄酸化物の東アジア地域における排出量は1975年では中国、日本、韓国、北朝鮮、台湾だけでも約1千5百万トン／年であったのが、1987年では65%増の2千3百万トン／年を越え、特に1985年以降は急速な増加傾向を示していることは図1.1からも容易に知ることができる。東アジア地域の排出量のおよそ85%が中国によって占められており、この割合は年々増加していくものと思われる。

一方、わが国では1975年、大気汚染防止法の一部改正による硫黄酸化物の総量規制が実施され、それ以来、硫黄酸化物の排出量は僅かながら減少の傾向をたどっているものの、東アジア地域全体

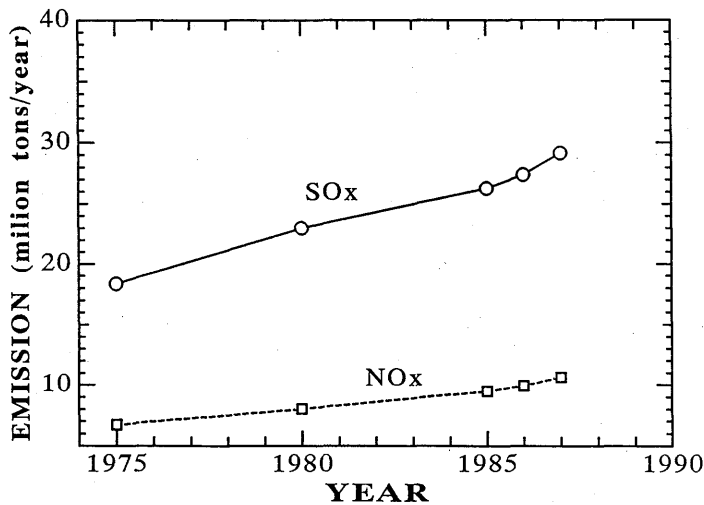


Fig. 1.1 Growing anthropogenic emissions of SO_x and NO_x from five countries in east Asia. (China, Korea, Japan, Taiwan, and North Korea).

としての排出量は増加し続けている。このようなことから、東アジア地域においても近い将来ヨーロッパや北アメリカのような酸性雨等の酸性降下物による被害が現れることが懸念されている。そのために東アジア地域における酸性・酸化性物質の動態を解明し、影響の程度を予測する手法を開発すると共に、制御対策が緊急に必要とされている。

1.2 研究の目的

このような東アジア地域における状況から、国際的には国際学術連合 (ICSU : International Council of Scientific Union) によって1990年から地球圏・生物圏国際協同研究計画 (IGBP : International Geosphere-Biosphere Programme) を実施しており、IGBPのコア研究計画の一つである地球大気化学国際協同研究計画 (IGAC : International Global Atmospheric Chemistry) では東アジア/北西太平洋地域における大気汚染物質の人為的発生源の把握及び汚染物質の輸送、化学的変質のアセスメントを行うことが重要な柱となっている (APARE : East Asian/North Pacific Regional Study)。これらの研究計画を実行するには、地上及び航空機による汚染物質の測定、排出源の見積り、長距離輸送モデルの開発等がなされなければならない。実際、既に米国 NASA では地球対流圏実験 (GTE : Global Tropospheric Experiment) の一環として西太平洋探究ミッション (PEM-WEST : Pacific Exploratory Mission-West) が1991年より実施されており、これに呼応するように、わが国においては東アジア大陸気団による太平洋対流圏の化学的変動研究計画 (PEACAMPOT : Perturbation by the East Asian Continental Air Mass for the Pacific Ocean Troposphere) が環境庁の

後援の下で実施されており、本研究もその一環として位置づけられている。

本研究の主たる目的は、東アジアにおける酸性雨の主要原因物質である硫黄酸化物の長距離輸送過程の解明及び乾性、湿性沈着量の見積りを行うためのモデルを開発すると共に、このモデルによって酸性沈着による影響の程度を推測することである。

2. 長距離輸送モデル

2.1 長距離輸送モデルの概要

大気汚染質の長距離輸送モデルはラグランジュ型とオイラー型に分類される。前者は流跡線モデル (McNaughton et al., 1981, Eliassen et al., 1982, Gislason et al., 1983など) やパフ (Liu et al., 1982) または粒子モデル (Kimura et al., 1988) などから構成され、一方、後者は拡散方程式の解を格子点毎に数値的に得る格子モデル (Carmichael, 1984など) である。また、それぞれが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ような長期モデルに分類することができる。酸性雨による被害は酸性物質の沈着が継続的に累積することから発生するために、酸性雨原因物質の輸送モデルでは殆どの場合、長期モデルが用いられている。本研究では短期モデルを1年間長時間積分することにより長期モデルとしての性格を持たせるようにした。

酸性雨を対象とした輸送モデルでは、図2.1に模式的に示されているように汚染質の輸送過程において光化学反応による二次汚染質の生成、乾性沈着、降水による汚染質の湿性沈着等が関与している。特に降水域や降水量のデータが必要不可欠であるが、東アジアの領域の多くは海洋によって占められているために、緻密な気象観測データに乏しく、観測データを直接モデルに用いることができない。そこで本研究では、輸送モデルのための気象変数は数値モデルによって予測する。すなわち、長距離輸送モデルは図2.2に示されるように気象予測モデルと移流・拡散モデルとから構成される。

気象予測モデルとしては気象庁のアジア領域数値予報モデルである旧 FLM (Fine-mesh

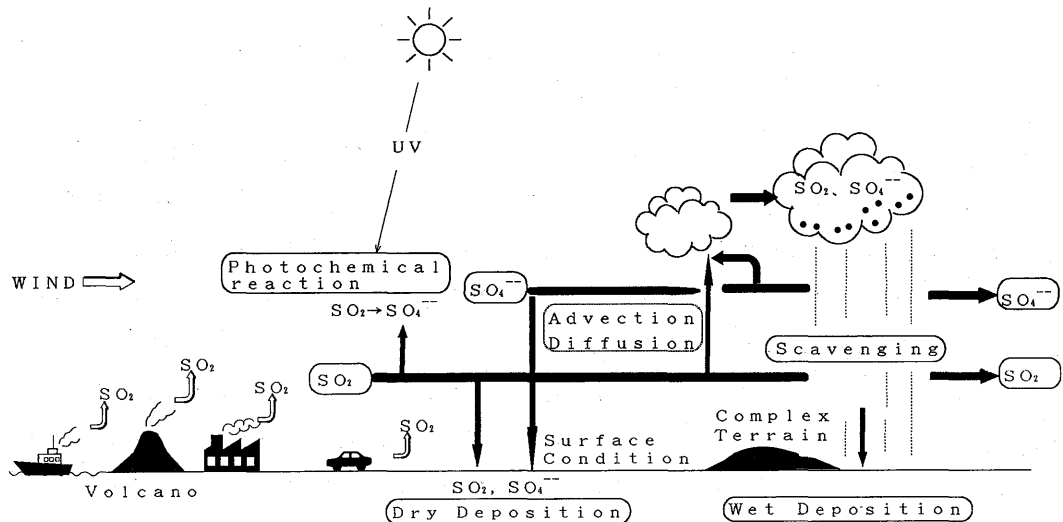


Fig. 2.1 Schema of the long-range transport process of sulfur oxides.

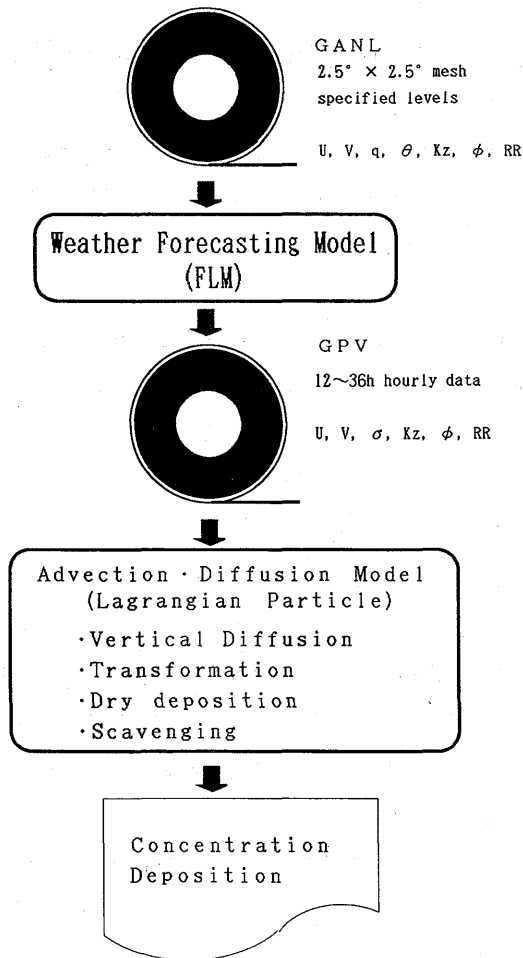


Fig. 2.2 Schematic flowchart of the MRI long range transport model.

Limited-area Model) を用い、これを拡散計算に適合するように改良した。気象予測モデル及び改良点については次の章で詳しく述べるが、主な改良点は鉛直方向の気層の数を増やすとともに拡散計算に都合が良いように下層を密にしたこと、また境界層における物理過程を換えたことであり、さらに気象庁において格子間隔が $2.5^\circ \times 2.5^\circ$ の全球客観解析 (GANL) が整備され、容易に使用可能となったため、初期値及び境界値には GANL を用いる。

一方、拡散モデルでは、汚染質の移流は気象モデルによる風に依存し、拡散は鉛直方向だけを考慮した。鉛直拡散係数は気象モデルによって算出されるものを用いる。1次汚染質である二氧化硫の酸化反応によって生成される2次汚染質としては硫酸イオン (サルフェート) を考慮し $\text{SO}_2 \rightarrow \text{SO}_4^{2-}$ の変質過程を拡散モデルに含ませた。さらに、地表面近傍では汚染質の地表面への乾性沈着を考慮し、湿性沈着については、降水域では降水洗浄による汚染質の湿性沈着は SO_2 と SO_4^{2-} とで

それぞれ異なった割合で沈着すると仮定した。一方、雲中における湿性沈着については重要な過程であるが、現モデルには含まれていない。これをモデル化するには非常に難しい問題が残されている。雲の生成機構や汚染質の雲中における化学反応、また雲核と汚染質との相互関係等が複雑に絡み合っている。しかし、最近の係留気球による観測（鶴田等，1988）によれば、この効果は非常に大きいので、将来には輸送モデルに付加する必要がある。

2.2 気象予測モデル

往來、移流・拡散モデルのための気象変数は風と温度場を各格子点毎に与えるだけで良かった。従って、これまでは MASCON モデル（Dickerson, 1978, Sherman, 1978）のように実測データを変分法によって内挿して格子点に配分する方法などが用いられていた。しかし、酸性雨に関連する長距離輸送を考慮する場合は、降水による湿性沈着量を評価する必要があるため、雨域や雨量を表現できるモデルでなければならない。すなわち、モデルによって降水等の気象状態を再現する力学的気象予測モデルが必要とされる。本研究では東アジア地域の長距離輸送モデルのための気象予測モデルとして、アジア域を予報領域とした気象庁旧数値予報モデルである FLM の物理過程を改良したものと拡散モデルを結合することによって降水を考慮した長距離輸送モデルの開発を行った。FLM については巽（1983）によって詳細に述べられているので、この章では FLM を基本とした力学的気象予測モデルについて概略的に述べておくことにする。

2.2.1 力学的気象予測モデルの支配方程式系

力学的気象予測モデルである FLM の鉛直方向には地表面とモデルの上端における気圧で標準化したシグマ (σ) 座標系が用いられており、支配方程式系はフラックス形式で表現する。モデル領域は 60°N におけるポーラステレオ投影面上に取られており、地球表面の曲率を考慮したマップスケールファクターが導入されている。緯度を Φ とすると、マップスケールファクター m は

$$m = \frac{1 + \sin 60^{\circ}}{1 + \sin \Phi}$$

で表される。

ここで以下に記述する FLM の方程式系に用いられている主な記号を示しておく。

π : 地表面気圧 (P_s) とモデル大気の上限における気圧 (P_{top}) の差

σ : $P - P_{\text{top}} / \pi$

u, v : x 及び y 方向の速度成分

$\dot{\sigma}$: σ 座標における鉛直速度成分 ($= d\sigma / dt$)

q : 比湿

P_0 : 温位 (θ) を定義する基準気圧 (1000hPa)

C_p : 乾燥空気の定圧比熱 ($1004.6\text{m}^2 \cdot \text{sec}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$)

R : 乾燥空気の気体定数 ($287.04\text{m}^2 \cdot \text{sec}^{-2} \cdot \text{K}^{-1}$)

κ : R/C_p

g : 重力の加速度 ($9.8\text{m}/\text{sec}^2$)

ϕ : 重力ポテンシャル

θ : 温位

τ : 風の鉛直シヤーによるレイノルズ応力

f : コリオリパラメーター

運動方程式は以下のように移流, 渦度, 気圧傾度力, サブグリッドスケールの水平及び鉛直拡散項によって表される。

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{u^*}{m} \right) = & -\frac{\partial}{\partial x} (u^*u) - \frac{\partial}{\partial y} (v^*u) - \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{u^* \dot{\sigma}}{m} \right) \\ & + \frac{V^*}{m} \left\{ f - v \frac{\partial m}{\partial x} + u \frac{\partial m}{\partial y} \right\} - \frac{\pi}{m} \frac{\partial \phi}{\partial x} - C_p \frac{\pi \theta}{m} \frac{\partial}{\partial x} \left(\frac{P}{P_0} \right)^{\kappa} + F_u - \frac{g}{m^2} \frac{\partial \tau_x}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (2.1)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{v^*}{m} \right) = & -\frac{\partial}{\partial x} (u^*v) - \frac{\partial}{\partial y} (v^*v) - \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{v^* \dot{\sigma}}{m} \right) \\ & + \frac{v^*}{m} \left\{ f - v \frac{\partial m}{\partial x} + u \frac{\partial m}{\partial y} \right\} - \frac{\pi}{m} \frac{\partial \phi}{\partial y} - C_p \frac{\pi \theta}{m} \frac{\partial}{\partial y} \left(\frac{P}{P_0} \right)^{\kappa} + F_v - \frac{g}{m^2} \frac{\partial \tau_y}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (2.2)$$

なお, ここで $u^* = \pi u/m$, $v^* = \pi v/m$ である。

熱力学第1法則は

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\pi \theta}{m^2} \right) = & -\frac{\partial}{\partial x} (u^* \theta) - \frac{\partial}{\partial y} (v^* \theta) - \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{\pi \dot{\sigma}}{m^2} \right) \\ & + F_T + \frac{\pi Q}{m^2} + \frac{g}{C_p} \frac{1}{m^2 \left(\frac{P}{P_0} \right)^{\kappa}} \frac{\partial H}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (2.3)$$

水蒸気収支の式は

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\pi q}{m^2} \right) = -\frac{\partial}{\partial x} (u^* q) - \frac{\partial}{\partial y} (v^* q) - \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{\pi \dot{\sigma} q}{m^2} \right) + F_q + \frac{\pi M}{m^2} + \frac{g}{m^2} \frac{\partial E}{\partial \sigma} \quad (2.4)$$

として表され、運動方程式における τ 、熱力学第1法則における H 、及び水蒸気収支における E はそれぞれ格子間隔より小さい（サブグリッド）スケールの渦による運動量、熱、及び水蒸気の鉛直フラックスであり、 F_u 、 F_v 、 F_q はそれぞれ運動量、熱及び水蒸気の水平拡散効果である。 Q は単位質量当たりの非断熱加熱または冷却、 M は水蒸気の凝結または蒸発による増減を示している。

連続の式は

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\pi}{m^2} \right) = -\frac{\partial u^*}{\partial x} - \frac{\partial v^*}{\partial y} - \frac{\partial}{\partial \sigma} \left(\frac{\pi \dot{\sigma}}{m^2} \right) \quad (2.5)$$

上の式を $\sigma=0$ から $\sigma=1$ まで積分し、モデルの上限と地表面で鉛直速度がゼロであるという境界条件を用いれば、地表面における気圧の時間変化を示す次式が得られる。

$$\frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\pi}{m^2} \right) = - \int_0^1 \left(-\frac{\partial u^*}{\partial x} + \frac{\partial v^*}{\partial y} \right) d\sigma \quad (2.6)$$

(2.5)式を $\sigma=\sigma$ から $\sigma=\sigma+\delta\sigma$ まで積分すればモデル大気のある1層における鉛直速度が以下の式で得られる。

$$\left(\frac{\pi \dot{\sigma}}{m^2} \right)_\sigma = \left(\frac{\pi \dot{\sigma}}{m^2} \right)_{\sigma+\delta\sigma} + \int_0^{\sigma+\delta\sigma} \left\{ \frac{\partial}{\partial t} \left(\frac{\pi}{m^2} \right) + \frac{\partial u^*}{\partial x} + \frac{\partial v^*}{\partial y} \right\} d\sigma \quad (2.7)$$

静力学平衡の式は

$$\frac{\partial \phi}{\partial \sigma} = -C_p \theta \frac{\partial}{\partial \sigma} \left\{ \left(\frac{P}{P_0} \right)^k \right\} \quad (2.8)$$

$$\frac{\partial \phi \sigma}{\partial \sigma} = \phi - \sigma \pi \alpha \quad (2.9)$$

α は比容であり、気体の状態方程式は温度を T とすると次のように表される。

$$\alpha = \frac{RT}{P} = \frac{RT}{\pi \sigma + P_{\text{top}}} \quad (2.10)$$

ここで、 θ 、 σ 、 π はそれぞれ以下のように定義される。

$$T = \left(\frac{P}{P_0}\right)^k \theta \quad \text{または} \quad \theta = \left(\frac{P_0}{P}\right)^k T \quad (2.11)$$

$$\sigma = \frac{P - P_{top}}{\pi} \quad (2.12)$$

$$\pi = P_s - P_{top} \quad (2.13)$$

P_s は地表面での気圧、 P_{top} はモデルの上部境界における気圧であり、空気がこの面を通過しないように次のような境界条件を与える。

$$P = P_s \text{ 及び } P = P_{top} \text{ において } \dot{\sigma} = 0$$

$\dot{\sigma}$ は σ 座標系での鉛直速度で (2.7) 式から診断的に求められる。

2.2.2 モデル領域と格子構造

FLM の予報領域は東アジア地域であり、この領域を北緯60度で地球を切るポーラステレオ投影図上で東西方向73格子、南北方向55格子で覆っている。鉛直方向の気層の数はルーチンモデルとしてのFLMは12層であったが、今回使用した研究用FLMでは境界層の表現を向上させるために下層を密に16層に増設されている。水平格子間隔は60°Nで $\delta x = 127\text{km}$ 、30°Nでは δx は約100kmである。図2.3はモデル領域とこれに組み込まれた地形を示している。地形の高度は格子毎で平均されているため、ヒマラヤ山系や本邦の山岳等は実際の高さよりかなり低くなっている。

水平格子上的物理量の配置は図2.4に示されているように、スカラー量 π 、 θ 、 q 、 ϕ と $\dot{\sigma}$ は格子点上で、水平風は格子の中心点において定義される。鉛直方向の気層は図2.5に示されるように、シグマ座標上でエネルギー保存スキームに便利な層構造でなされており、モデルの上部境界は約100hPaで前述のように下層を密にしてある。物理量の配置は各気層において u 、 v 、 ϕ 、 θ 、 q は層の中央で、 $\dot{\sigma}$ は層の境界面で定義される。

2.2.3 境界層の物理過程と降水過程

接地境界層は地表面と大気の間で運動量や熱、水蒸気を交換するところであり、気象予測モデルにとっては重要なところであるばかりでなく、後述する汚染質の乾性沈着過程に対しても重要な気層である。しかしながら、接地境界層における運動量や熱、水蒸気等の物理量の鉛直輸送は、気象予測モデルでは表現できない大気の小さな乱れによって行われている。これを格子点上の値など

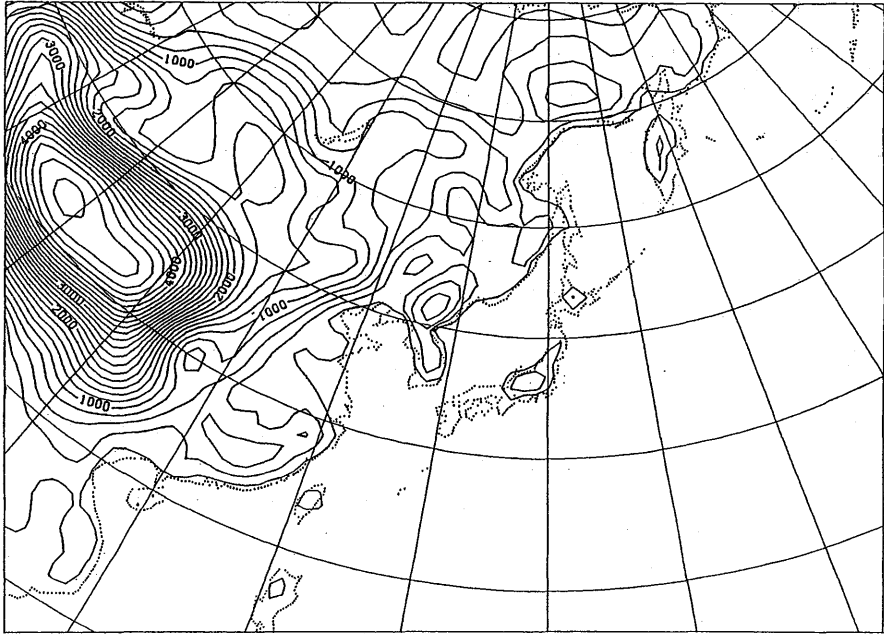


Fig. 2.3 The model domain and topography of the FLM.

← 127 km →

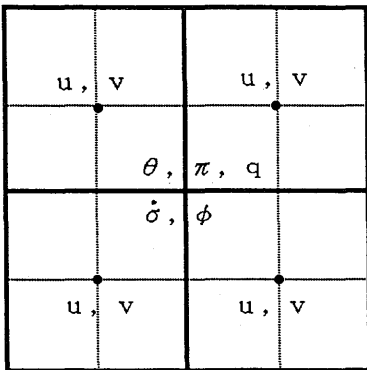


Fig. 2.4 Horizontal grid of the model and predictable variables.

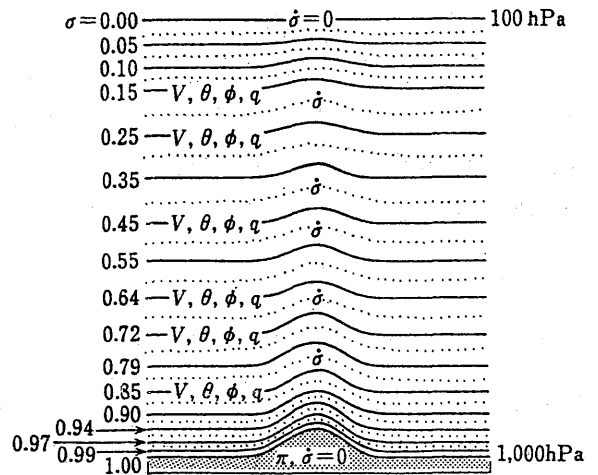


Fig. 2.5 Vertical structure of the model and predictable variables. Solid and dashed lines are center and boundary of the layer, respectively.

のモデルで取り扱えるようなスケールの物理量によって表現するために、パラメタライズしなければならない。旧ルーチンFLMでは支配方程式系(2.1)～(2.4)の右辺の最後の鉛直拡散に伴う運動量、熱及び水蒸気の鉛直フラックス τ, H, E はバルク係数を用いて与えられる地表面フラッ

クスからバルク法によって計算されていた。この研究で使用した FLM では接地境界層における運動量，熱，水蒸気の乱流による鉛直拡散は相似則によって表現した。

一方，今回使用したモデルの基礎となった旧ルーチン FLM では接地境界層より上層の大気境界層では渦拡散法 (K 理論) によって約 800hPa の高さまで計算されていた。K 理論は物理量の鉛直フラックスをその量の鉛直傾度と比例定数である一定の拡散係数で以下のように表現する。

$$\begin{aligned} \tau &= -\frac{\rho^2 g}{\pi} K_M \frac{\partial V}{\partial \sigma} \\ H &= \frac{C_p \rho^2 g}{\pi} K_H \frac{\partial \theta}{\partial \sigma} \\ E &= \frac{\rho^2 g}{\pi} K_E \frac{\partial q}{\partial \sigma} \end{aligned} \quad (2.14)$$

ここで K_M , K_H , K_E はそれぞれ運動量，熱，水蒸気の鉛直拡散係数である。

$$\Psi = \sqrt{\frac{\rho g}{\pi} \left| \frac{\rho g}{\pi} \left(\frac{\partial V}{\partial \sigma} \right)^2 + \frac{g}{\theta} \frac{\partial \theta}{\partial \sigma} \right|} \quad (2.15)$$

使用した FLM では，これらは乱流クロージャーモデルのレベル 2 (Mellor and Yamada, 1974) によって表現するように改良されている。レベル 2 のモデルでは大気安定度の効果としてリチャードソン数を加味し，

$$K = \ell^2 \left| \frac{\partial V}{\partial z} \right| F(\text{Ri}) \quad (2.16)$$

の形式になっている。この形式で問題は混合距離 ℓ をどう決めるかであるが，使用した FLM では Mellor and Yamada (1974) にならい，Blackadar (1962) の次の式を採用している。

$$\ell = \frac{\kappa z}{\ell + \kappa z / \ell_0} \quad (2.17)$$

ℓ_0 は乱流エネルギー q_t の 0 次モーメント，すなわち高度分布の重心の高さの 0.1 倍の長さが用いられている。

$$l_o = 0.1 \frac{\int_0^{\infty} q_t dz}{\int_0^{\infty} q_t dz} \quad (2.18)$$

乱流エネルギーは

$$q_t = \frac{1}{2} (\overline{u^2} + \overline{v^2} + \overline{w^2}) \quad (2.19)$$

である。

FLMの主たる改良点は表2.1に示すとおりである。表左側のFLMの諸元は数値予報モデルとして運用されていた当時のオリジナルのものである。また、海面温度はオリジナルなFLMと同じにそれぞれ気候値を用いている。

対流の効果と水蒸気の凝固過程は雲物理及び雲力学と深く関わっているが、この気象予測モデルではこれらの過程を直接取り扱うことはできない。したがって、これらはパラメタライズしなければならない。FLMの降水過程については以下のような取扱いがなされている。モデル大気は水蒸気の過飽和を許さないため、過飽和になれば相対湿度が100%になるように気温と水蒸気量をエネルギーが保存するように調節し、過剰な水蒸気は雨として落とす(大規模凝結過程)。さらに気温減率が相対湿度の関数として予め設定しておいた値を越えると、設定した減率に戻すように気温と水蒸気量の鉛直分布を調節する(湿潤対流調節)。しかし、相対湿度が50%以下の場合は気温だけを調節する(乾燥対流調節)ようになっている。

Table 2.1 Components of the meteorological prediction model.

	FLM	Improved FLM
Scheme	Differential	Differential
Grid size	127 km	127 km
Number of grids	73 x 55	73 x 55
Vertical level	12-layers	16-layers
Initial values	Asia analysis(ANAL)	Global analysis(GANL)
Initialization	No	No
Boundary condition	Northern hemisphere spectral model	Global analysis(GANL)
(Physical process)		
Surface boundary layer	Bulk method	Similarity theory
Planetary boundary layer	K-theory	Closure (level-2) model
Sea surface temperature	Climatology	Climatology
Precipitation	Large-scale condensation	Large-scale condensation
Adjustment	Moist, dry convective	Moist, dry convective

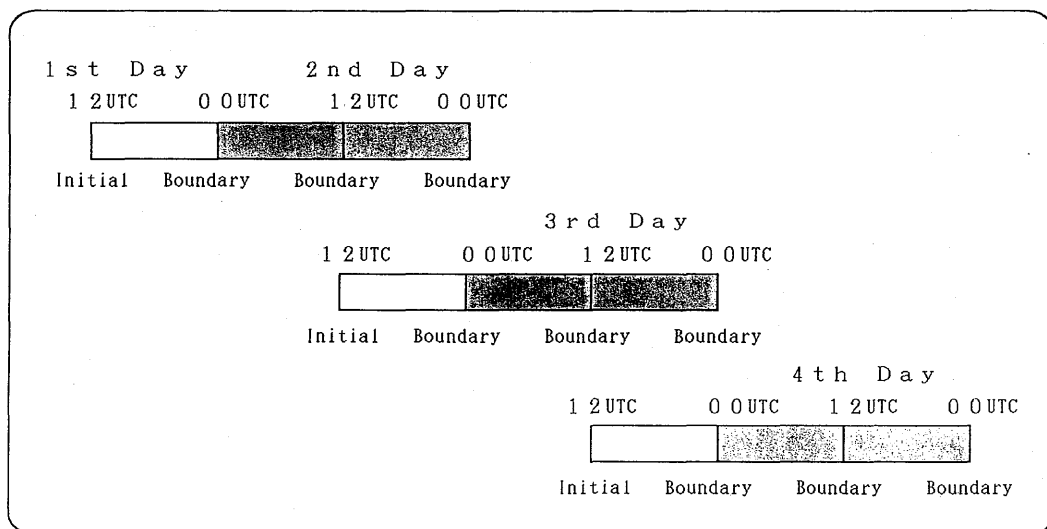


Fig. 2.6 Time integration of the meteorological model.

2.2.4 気象予測計算

上述した気象予測モデルによって気象変数の予測計算を行い、図2.2に示されているように移流・拡散モデルのための格子点データを蓄積する。初期値及び境界値には気象庁のGANLを用いた。GANLは今回対象とした1985年については全球 $2.5^{\circ} \times 2.5^{\circ}$ 間隔の格子点で12時間毎に提供されている。水平風や気圧等の気象要素の予測精度は予測時間が短いほど高いので、12時間毎に新しい初期値から計算を開始すれば良いのであるが、気象予測モデルはスピニアップの特性によりFLMの場合、計算を開始してから概ね12時間くらいは降水量がかなり過小に見積もられる傾向があるので、初期値より12時間までの雨量は利用できない。そこで長期間の気象変数の予測値を得るには図2.6に示すような運用方法を用いた。すなわち、12時(UTC)を初期値として積分を行い、36時間先までの1時間毎の予測値を得る。但し、境界値は12時間毎にGANLによる新しい解析値を与える。但し、計算結果のうち、始めの12時間についての予測値は利用しない。さらに翌日の12時(UTC)のGANLデータを初期値として更新し、また36時間の積分を行う。これを繰り返すことにより長期間の気象予測データを蓄積することができる。

2.3 降水の検証

酸性雨に関連する汚染質の湿性沈着量をモデルによって評価するためには、気象予測モデルによる降水域、降水量の再現性が重要な役割を占める。本輸送モデルでも降水による汚染質の沈着は、降水域において一定の割合で確率的に沈着するようになっている。そこで、モデルによる降水量と降水域の再現性を統計的に調べた。また、モデルによる降水の有無を判別するための最小降水量、

いわゆる「しきい値」を幾らに設定するかが重要であり、これらを調べるため、日本域において、気象予測モデルによる計算結果をアメダスデータを用いて検証を行った。

2.3.1 降水量・降水域の領域別統計

積算降水量の広域空間平均によるモデル降水量の検証には、まず、アメダスデータをモデルの格子点に内挿し、次にアメダスデータ及びモデルの降水量それぞれについて基本格子点毎の3時間降水量のファイルを作成し、これを基本として空間平均による統計計算を行った。降水量の空間平均は、基本データとして実測のデータのある格子点について集計を行い、時間平均は3時間値を基本とし、6時間、12時間降水量データを作成した。さらに以下のような空間領域で平均した：空間領域は大関（1985）や萬納寺（1988）と同じように日本域を1から6まで順に北海道、東北、関東・中部、近畿・中国・四国、九州、沖縄の領域に分割し、それぞれの領域における空間平均降水量に対して検証を行った。この領域はおおよそ500kmのスケールで検証を行っていることになる。図2.7は1985年6月について、アメダスとモデル結果の各領域平均による6時間降水量の時系列を比較したものであり、実線が計算値であり、破線は観測値である。領域3の関東・中部から領域5の九州までは雨の降り始め、降り終わりともかなり良く再現しているが、降水量は計算値の方がやや多い。領域1の北海道では降水日数が少なく、再現性があまり良くない。同様に図2.8は11月につ

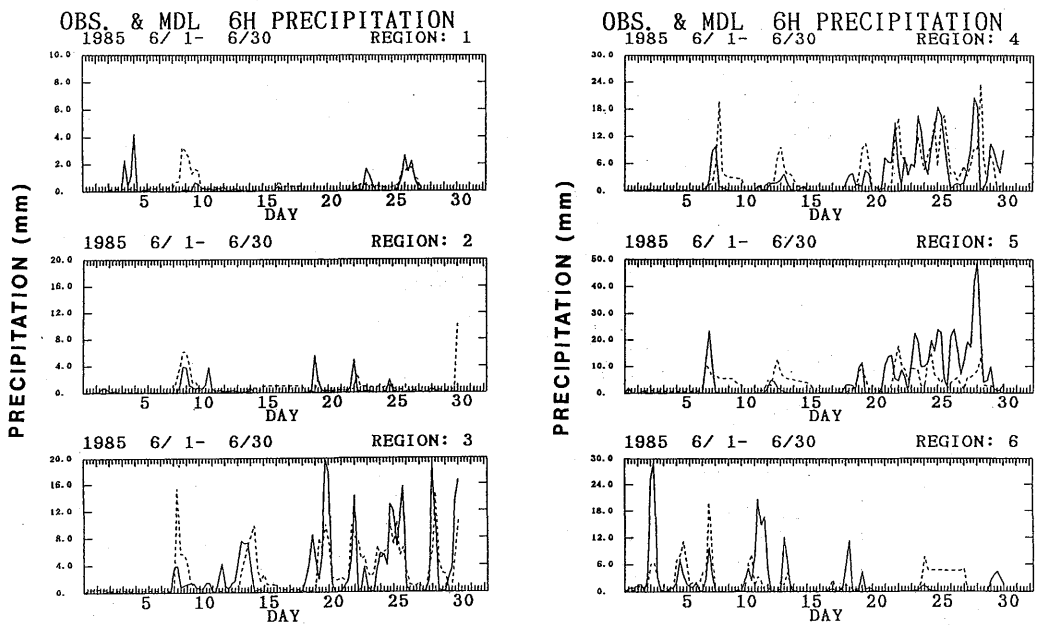


Fig. 2.7 The comparison of the time series between observed and calculated amount of 6-hour precipitation for each region on June 1985. Solid and dashed lines are model and observed precipitation, respectively.

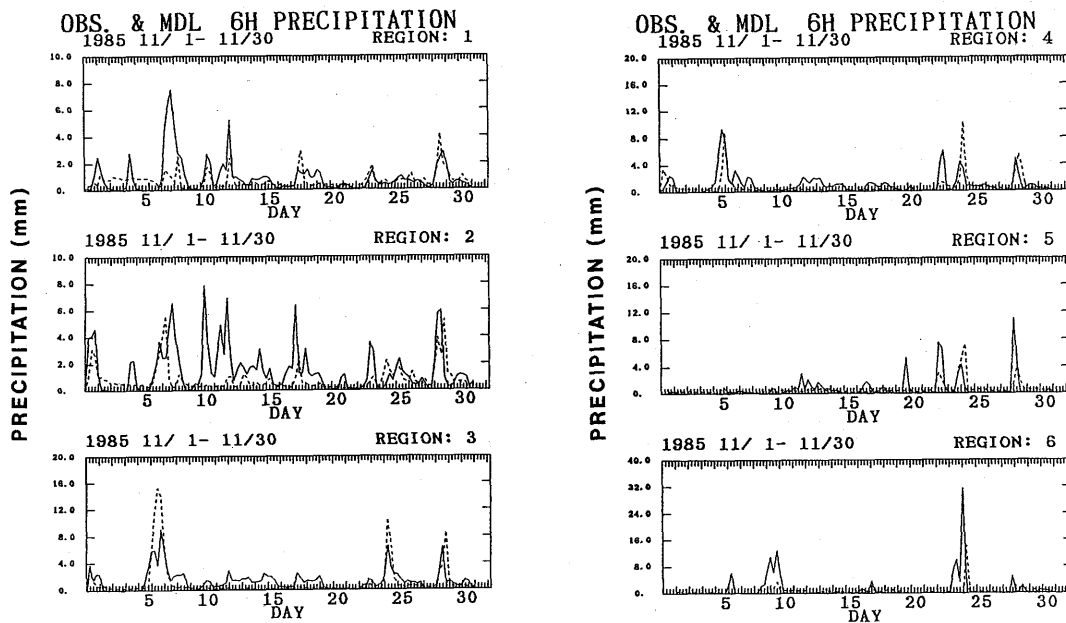


Fig. 2.8 Same as Fig. 2.7, but for November 1985.

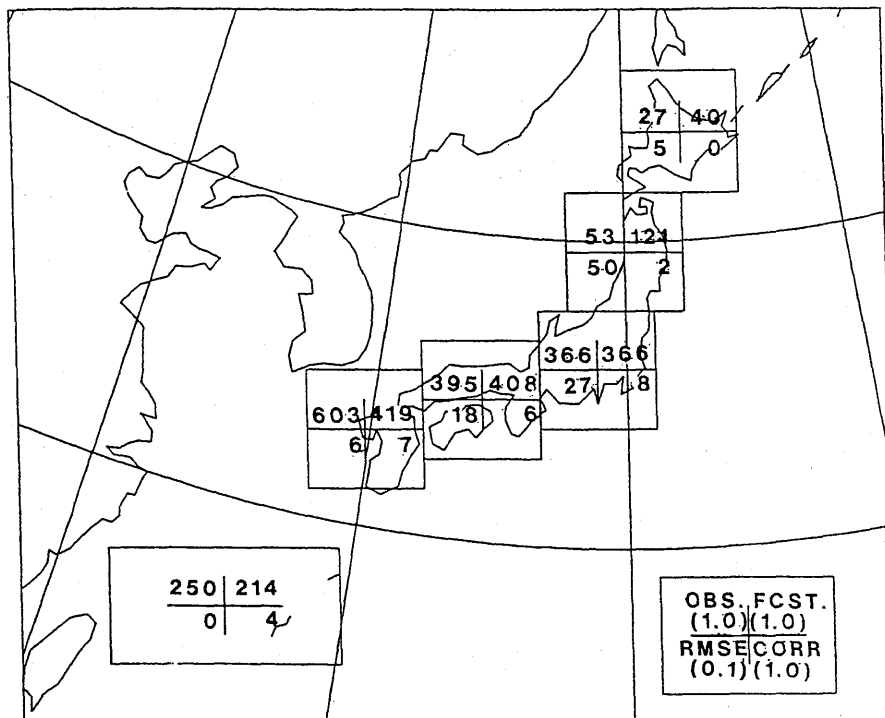


Fig. 2.9 The statistics of precipitation in each region for June, 1985.

いて比較したものである。11月では北海道が6月より良く再現されている。

一方、図2.9は例として1985年6月の降水量の領域別統計値の分布を示したものである。左上の数値は観測降水量，右上は予測降水量であり，左下はRMS誤差，右下は予測と観測との相関係数である。統計値は時系列の比較と同様に関東・中部から九州までは比較的相関が良い。

2.3.2 降水のしきい値の設定

降水による湿性沈着を加味した大気汚染質の長距離輸送モデルでは，降水域において汚染質が湿性沈着するので，降水域を精度良く見積もることが重要である。ここでは，まず降水量は無視し，降水の有無についてモデルの予測値の検証を行うことにした。すなわち，モデルが降水を予測していても，アメダスデータに降水が観測されているかどうか，またその逆を判定する。その際どれだけ降ったら降水と見なすかを判定する最小降水量，すなわち，「しきい値」を設定し，しきい値以上の領域を降水域とする。これらを設定，判別するためにスコア計算による方法を用いた。はじめにスコア計算に先だって毎時の予測値及び観測値を表2.2に示した4つのカテゴリーに分類し，スコアはこのカテゴリーによって計算した。表に示された4つのカテゴリーは「予測にも観測にも降水があった (F・O)」，「予測したが降水が観測されなかった (F・NO)」，「予測しなかったけれども降水が観測された (NF・O)」，「予測も観測もされなかった (NF・NO)」であり，順に降水予測的中，空振り，見逃し，無降水の予測的の中を表している。これらのカテゴリーを用いたスコアとその計算法は以下の通りである。

- ① Accuracy [= (FO+NF・NO) / (FO+F・NO+NF・O+NF・NO)] : 全観測に対して予測と観測が一致した割合，すなわち予測的中率を表す。
- ② Threat [= F・O / (F・O+F・NO+NF・O)] : 降水が予測も観測もされなかった場合 (NF・NO) を除いた的中率を表す。
- ③ Bias [= (F・O+F・NO) / (F・O+NF・O)] : 予測した地点の数を観測した地点の数で割ったものであり，予測の平均的雨域の広さが適切であるかの目安になる。

これらの各スコアについて降水量を0～2 mm/hまで計算し，極値を持つ①～③の3つのスコ

Table 2.2 Categories for score calculation.

	Event	
	Observed	Not observed
Predict event	F・O	F・NO
Predicted no event	NF・O	NF・NO

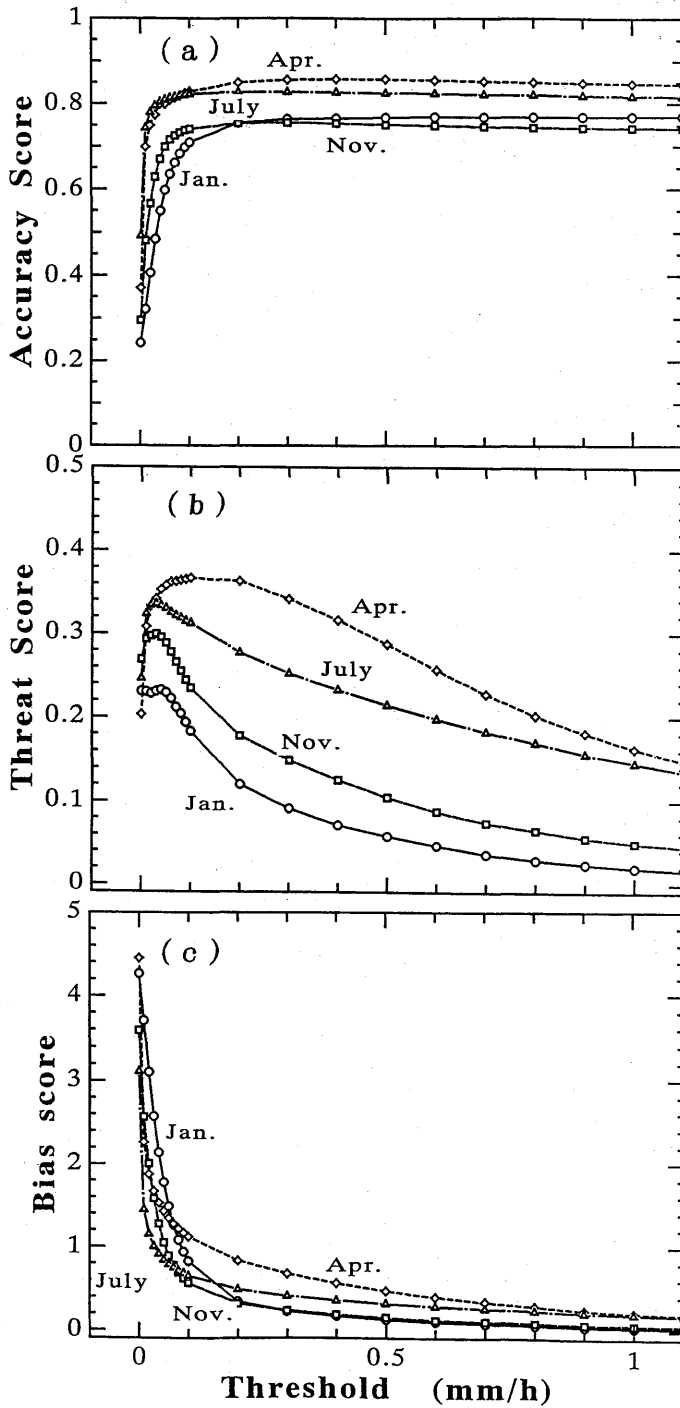


Fig. 2.10 The scores with various amount of precipitation, (a) Accuracy, (b) Threat, and (c) Bias score.

アに着目して1985年1月, 4月, 7月, 11月のデータによって四季を代表させて解析を行った。図2.10はいろいろな降水量に対する各スコアを示したものである。(a)のAccuracyスコアは予測が完全であれば1になるが, しかし予測と観測が対応するのはF・Oばかりでなく, 降水が予測も観測もされないNF・NOの場合も含まれている。そこでNF・NOの場合を除いた降水だけの的中率を表すThreatスコアを(b)に示した。このThreatスコアでは各月とも0.1mm/h以下で最大値を示している。Biasスコアは予測が完全であれば1になるが, 見逃しと空振りが同数であればスコアはやはり1になる。すなわち, 降水を予測した面積と降水を実際に観測した面積とが等しければその降水領域が重なっていないなくてもスコアは1である。スコアが1より大きければ降水を予測した面積が実際に降水を観測した面積より広く, 1より小さければ降水を予測した面積が降水を観測した面積より狭いことになる。(c)は前述した四季を代表する4つの月についてのBiasスコアを示したものであるが, 降水量が0.1mm/h近辺がほぼスコアが1であり, 降水量がこれより少なくなると急激に降水予測面積が広がってしまい, 0.1mm/hより多くなるにつれて降水を予測した面積が降水を観測した面積より次第に狭くなってゆく。

スコアによる解析結果をまとめたのが表2.3であり, 表はAccuracy及びThreatスコアを最大にし, Biasスコアを1にする降水量のしきい値を表したものである。降水のしきい値を1mm/hとした場合では, 降水は観測されているが予測では現れず, 見逃すことがある。0.3mm/hではまとまった降水がある場合には比較的予測されている。0.03mm/hでは予測される場合が多くなるが, 同時に観測されていない場合でも予測に現れ, 空振りが多くなる。以上を総合して, 降水のしきい値の年間値として0.03~0.1mm/hの間で設定するのが妥当と思われるが, 0.05mm/hで硫酸化物の沈着を試算した結果では, 降水による沈着量が過大に評価され, 後述する輸送モデルの検証のための北アメリカに対する試算では0.5mm/hで設定し, 結果は過小評価であった。これらのことを考慮して最終的には降水のしきい値を0.1mm/hに設定した。

Table 2.3 The amounts of precipitation to make accuracy and threat scores maximum, and to make bias score unity.

Score	Jan.	Apr.	July	Nov.
Accuracy	1.00	0.40	0.30	0.30
Threat	0.04	0.10	0.03	0.03
Bias	0.10	0.10	0.03	0.05

2.4 拡散モデル

2.4.1 ランダムウォークモデル

モデルによって予測された気象変数に従って大気汚染質は移流・拡散、乾性沈着及び降水による湿性沈着する。従来は移流・拡散モデルにはオイラー型が多用されてきたが、この方法には計算機能力から生じる格子間隔の制限等によって十分な空間分解能が得られないことや、計算スキームから発生する疑似拡散等の問題が含まれている。そこで本研究ではラグランジュ法による粒子モデルを用いることとした。この方法は各粒子毎に属性を付けることができるので、どの排出源で排出された粒子であるかを同定することが可能である。

排出源から汚染質の排出強度に応じた数で大気中に排出された粒子は、水平には気象予測モデルによって与えられる風の成分、 u , v によって移流するだけであり、水平拡散は無視した。

一度に多量の粒子を考え、一つ一つの粒子の鉛直方向の運動には鉛直流、 $\dot{\sigma}$ による粒子の動きに加えて拡散係数に対応したランダムな動きを与え、粒子の座標上の位置を求める。

$$\begin{aligned}\frac{dX}{dt} &= u, \\ \frac{dY}{dt} &= v,\end{aligned}\tag{2.20}$$

$$\frac{d\dot{\sigma}}{dt} = \dot{\sigma} + R$$

ここに、 R はランダム変数であり、以下のように定義される。

$$R = \pm \sqrt{2 K_z \delta t}\tag{2.21}$$

K_z は鉛直拡散係数であり、式中の複号はどの時間ステップにおいても全ての粒子についてランダムに正負いずれかを取る (Diehl et al., (1982))。例えば、時刻 t において高度 z にあった粒子の δt 時間後の高度は

$$z(t + \delta t) = z(t) + \dot{\sigma} \delta t \pm \sqrt{2 \delta t K_z}\tag{2.22}$$

のように移流項と拡散項の和で計算される。この手法を用いて Kimura et al. (1988) はチェリノブイリ原子力発電所の事故による放射性物質の拡散計算を行っている。 K_z が一定のとき、粒子の数が十分に多く、また時間ステップ数を十分に多く取れば、粒子の密度は拡散方程式の解析解に一致する。拡散項は拡散方程式の解析解と同じ形をとっており、ガウス型プルームモデルにおけるプルームの濃度分布の標準偏差 σ_z に対応するものである。

混合層内では鉛直拡散係数が高さ方向に変化するため、濃度の傾度がなくても鉛直フラックスを生じる等の誤差が発生する。この誤差を避けるため、(2.22) に補正項を付加するかまたは時間積分を以下のように2段階で計算して平滑化を行う二つの方法があるが今回は後者のオイラーバックワード法を用いた。まず、 $t + \delta t$ における粒子の位置 z^* を次の式によって計算しておく。

$$z^* = z(t) + \dot{\sigma} \delta t \pm \sqrt{2 \delta t K_z(z)} \quad (2.23)$$

次に z^* を用いて $t + \sigma t$ における粒子の位置を以下によって計算する：

$$z(t + \delta t) = z(t) + \dot{\sigma} \delta t \pm \sqrt{2 \delta t K_z(z^*)} \quad (2.24)$$

このスキームを用いて、 δt を十分に小さく（ほぼ2分間位）取ることによって誤差を少なく抑えることができる。これらの計算を全粒子について行い、時々刻々の位置を求めて対象地域内の粒子数から濃度を換算する。水平移流の場合の計算時間ステップは $\delta t = 10$ 分で実行されている。

気象予測モデルで Mellor and Yamada (1974) によるレベル2のクロージャーモデルを用いて運動量、熱及び水蒸気についての鉛直拡散係数を計算しているため、粒子の鉛直拡散係数もこれに等しいとすれば ($K_z = K_M = K_H = K_E$)、鉛直拡散係数は気象予測モデルにおいて与えられている。

2.4.2 汚染質の変質

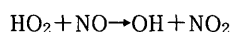
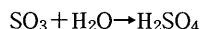
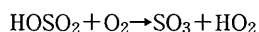
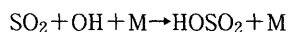
酸性雨の要因物質としての主要な汚染質は、排出量の大きさ等からみても硫酸化合物であると考えられる。汚染質の移流・拡散の他に長距離輸送モデルでは根本的な考え方として大気中における硫酸の質量保存が考慮されている。大気中に排出される二酸化硫黄及びサルフェートを Q_{SO_2} 及び $Q_{SO_4^{2-}}$ 、大気中における濃度を C_{aSO_2} 、 $C_{aSO_4^{2-}}$ とすれば、それぞれの濃度変化は

$$\frac{dC_{aSO_2}}{dt} = Q_{SO_2} - (\tau + D_d + D_w) C_{aSO_2} \quad (2.25)$$

$$\frac{dC_{aSO_4^{2-}}}{dt} = Q_{SO_4^{2-}} + \tau C_{aSO_2} - (D_d' + D_w') C_{aSO_4^{2-}} \quad (2.26)$$

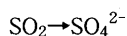
として表され、 τ は二酸化硫黄の酸化によるサルフェートの生成率であり、 D_d' と D_w' は二酸化硫黄の D_d' と D_w' はサルフェートの乾性沈着率及び湿性沈着率である。すなわち、大気中の二酸化硫黄の量は酸化によるサルフェートへの変質と乾性及び湿性沈着によって減少するだけである。一方、大気中のサルフェート量は二酸化硫黄の酸化による増加と乾性、湿性沈着による減少である。それぞれの過程については以下に順次述べて行くことにする。

硫黄酸化物の人為的な排出の多くは SO_2 であり、 SO_2 の大気中における酸化反応では酸化性ラジカルによる気相反応と雲中における H_2O_2 が介在する液相反応が主たるものであるが、ここでは気相反応による汚染質の変質のみを考慮し、輸送モデルに取り入れることにした。 NO_x が存在する汚染大気中では OH ラジカルによる下記のような連鎖反応による硫酸の生成が支配的である(畠山, 1986)。



M は N_2 , O_2 等の第3体を表す。また OH ラジカルは光化学反応による亜硝酸やアルデヒド等の分解によっても生成される。このように気相反応で生成された硫酸は全て粒子化されると考えてよい。生成された粒子はかなり純粋な硫酸水溶液であり、大気中の炭化水素と NO_x の役割は SO_2 を硫酸に酸化させることであり、それらが粒子化することはない(泉, 1988)。

このように大気中における気相反応によって SO_2 から粒子が生成される輸送モデルでは粒子は硫酸イオン(サルフェート: SO_4^{2-})であると仮定し、(2.25), (2.26) 式の右辺の第二項には



の変質を反応速度に相当するサルフェートの生成率 τ を時間の関数として $0.01/\text{h}$ を用いた。すなわち、1時間に1%の割合で SO_2 が変質し、サルフェートが生成されていくことになるが、全ての SO_2 がサルフェートに変質することは非現実的であるので、変質の上限を設定した。人為的発生源の影響が少ない大気バックグラウンド濃度の $\text{SO}_2/\text{SO}_4^{2-}$ の比率が約 $0.08 \sim 0.11$ であること(Cuong et al., 1974) から90%を変換の上限値とした。

2.4.3 乾性沈着

二酸化硫黄 (SO_2) から化学反応により生成されるサルフェート (SO_4^{2-}) は粒径がサブミクロン

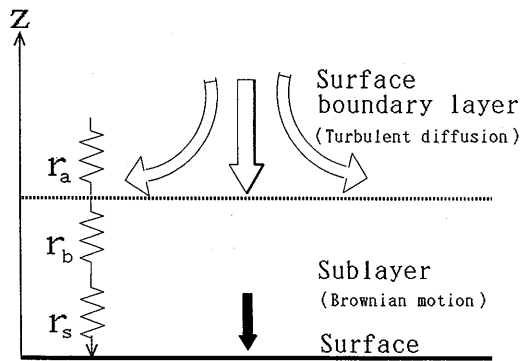


Fig. 2.11 Schema of the dry deposition process.

の微粒子であるため、重力落下は無視することができるが、地表面における沈着を考慮する必要がある。図2.11は乾性沈着過程を模式的に示したものであるが、長距離輸送モデルでは地表面付近における汚染質濃度の鉛直分布の勾配は殆ど無いので、乾性沈着は地表面に非常に近い気層における気体または微粒子の下向きフラックスを F_c とすると、次のように定義される沈着速度、 v_d 、という速度の次元を持った概念で評価される。

$$F_c \doteq v_d C \tag{2.27}$$

また、 v_d は図2.11で示されたそれぞれの気層における抵抗の和の逆数として次のように求められる。

$$v_d = \frac{1}{r_a + r_b + r_s} \tag{2.28}$$

ここで r_a 、 r_b 、 r_s はそれぞれ接地境界層における空気力学抵抗、粗度長 z_0 の下層における副気層抵抗、および地表面抵抗である。 r_a は接地境界層の風速鉛直分布式を解くことによって得られる。従って、大気安定度に依存する。Businger (1973), Wyngaard (1973) に従えば、 r_a は次のように表される。

$$r_a = \frac{\ln \left(\frac{z}{z_0} \right) - \Psi_h}{\kappa u_*} \tag{2.29}$$

ここに、 κ はカルマン定数、 u_* は摩擦速度、 Ψ_h は安定度を表すパラメータである。

Wesely et al. (1977), Padro (1991), Padro et al., (1991) によれば Ψ_h について不安定条件 ($0 > z/L > -1$) では

$$\Psi_h = \exp \left\{ 0.598 + 0.39 \ln \left(-\frac{z}{L} \right) - 0.09 \left[\ln \left(-\frac{z}{L} \right) \right]^2 \right\}, \quad (2.30)$$

安定条件 ($0 < z/L < 1$) では

$$\Psi_h = -5 \frac{z}{L} \quad (2.31)$$

である。

一方, r_b については以下のように表される。

$$r_b = \frac{2}{\kappa u_*} \left[\frac{K_t}{D_m} \right]^{2/3} \quad (2.32)$$

ここに, K_t は空気の熱拡散係数であり, D_m は汚染質の分子拡散係数である。汚染質の種類によって沈着速度が異なるのは D_m が物質により異なるからである。 $r_a \geq r_b > r_s$ であるので, Waleck et al. (1986) は r_s について r_b と関連させた地表面沈着速度 v_{ds} で表現し, 安定度 (Monin-Obukhov 長さ) の関数としてパラメタライズしている。

$$(r_b + r_s) = v_{ds}^{-1} \quad (2.33)$$

沈着速度には地表面状態に依存するパラメーターが含まれ, そのために輸送モデルでは一般的には, 土地利用形態に応じて格子毎に重みを考慮して次のように与えることが考えられる。

$$V_d = \sum f_i v_{di} \quad (2.34)$$

Waleck et al. (1986) は気象データを用い, この方法によって土地利用形態別のサルフェートの季節毎の沈着速度を計算し, 北米における沈着速度マップを作成した。サルフェートの代表的な土地利用形態別, 季節別毎の最大沈着速度は表2.4に示す通りである。一方, Wesely (1989) は各種気体の乾性沈着を地域モデルのために考察している。また, 乾性沈着の効果が海陸風循環内における大気汚染濃度分布に与える影響を調べるために Kitada et al. (1986) は陸域においては (2.29) 及び (2.32) 式を用いる一方, 海面における乾性沈着速度も同様の方法で導いて数値実験を行っている。

本研究ではモデル領域が広く, 従って, 格子間隔も大きいため詳細な土地利用形態は無視して, 各格子を水域 (海, 湖) と陸域の2通りに分類し, そしてそれぞれの領域毎及び汚染質毎に異なった沈着速度を与えた。乾性沈着は σ 座標で $H_{dep} = 0.99$ より低い高度における粒子について評価され, それぞれの粒子と時間ステップ毎にランダムに与えられる数値が以下に定義される P_{ddep} より

Table 2.4 Maximum sulfate deposition velocities in cm/sec. (From Waleck et al., 1986)

Land type	Season			
	Spring	Summer	Autum	Winter
Urban	0.1	0.1	0.1	0.1
Agriculture	1.0	1.0	1.0	1.0
Range	1.0	1.0	1.0	1.0
Deciduous forest	1.0	1.0	0.1	0.1
Coniferous forest	1.0	1.0	0.8	0.8
Forest/Swamp	1.0	1.0	0.4	0.4
Water	1.0	1.0	1.0	1.0
Swamp	1.0	1.0	1.0	1.0
Agriculture/Range	1.0	1.0	1.0	1.0

Table 2.5 Dry deposition velocity in m/sec for SO₂ and SO₄²⁻ over land and water surface employed in present model.

Species	Land	Water
	SO ₂	0.51
SO ₄ ²⁻	0.21	0.02

小さければ乾性沈着する。

$$P_{ddep} = \frac{v_d \Delta t}{H_{dep}} \tag{2.35}$$

沈着速度は試算を繰り返したうえ、最終的に表2.5に示した値を用いた。ただし、(2.35) 式の P_{ddep} の計算においては $\sigma = 0.99$ は高度にしてほぼ100m であることから、 $H_{dep} = 100m$ とした。

2.4.4 湿性沈着

大気汚染質の湿性沈着過程には Scavenging と呼ばれ、雲底下 (below cloud scavenging または Washout) と雲の中 (in-cloud scavenging または Rainout) の2つの過程に分類される。前者の過程は汚染質と雨滴の衝突・吸着によって汚染質が雨滴と共に地表面に運ばれるものである。一方、後者の過程は汚染質が雲核として働き (Nucleation Scavenging)、雲粒を生成するかまたは雲粒との液相反応、併合等の化学的、物理的諸過程を経て雲粒に汚染質が包含される過程であり、最終的に汚染質が雨によって地表面に運ばれる現象である。

2.4.4.1 雲下における沈着過程

降水による汚染質の洗浄効果は粒子状汚染質と雨粒とが衝突する確率過程であるので、粒子の粒径分布、その大気中濃度、降水強度や雨滴の粒径分布に依存する。この確率過程は雨滴の捕捉率に包含されている。すなわち、捕捉率には衝突の確率と衝突後粒子状汚染質を雨滴に取り込む確率の両方が含まれている。雨域では水平方向に均一であるとする、雨が降り出して t 時間後の粒径 D_{sod} のサルフェート粒子の大気中濃度は

$$n(t, D_{so4}) = n_0(D_{so4}) \exp[-\Lambda(D_{so4})t] \quad (2.36)$$

であり、ここに、 $n_0(D_{so4})$ は雨の降る前の粒径 D_{so4} のサルフェート粒子濃度、 $\Lambda(D_{so4})t$ は降水による沈着率である。それぞれの雨粒が互いに独立であるとすれば、ある粒径のサルフェートに対する降水沈着率は

$$\Lambda(D_{so4}) = \int_0^\infty \left[N(D_r) \frac{\pi}{4} D_r^2 \varepsilon(D_r, D_{so4}) v(D_r) \right] dD_r \quad (2.37)$$

で表され、ここで、 N は単位体積当たりの雨粒数、 $N(D_r)$ は基準化した雨粒の粒径分布で対数正規分布またはマーシャル・パーマー分布 (Marshall and Palmer, 1948) で近似される。 $\varepsilon(D_r, D_{so4})$ は直径 D_r の雨粒が D_{so4} のサルフェート粒子を捕捉する効率、 $v(D_r)$ は D_r の雨滴の落下速度である。

いま、1個の雨粒が落下する間に粒子を捕捉することによって増加する質量は

$$\frac{\delta M'}{\delta t} = \int_0^\infty \frac{\pi}{4} (D_r + D_{so4})^2 \varepsilon(D_r, D_{so4}) |v(D_r) - v(D_{so4})| x \langle D_{so4} \rangle dD_r \quad (2.38)$$

ここで、 $x \langle D_{so4} \rangle$ は捕捉された直径 D_{so4} のサルフェート粒子の質量濃度である。降水によって捕捉される総質量濃度は全てのサイズの雨粒について積分することによって得られる。すなわち、

$$\frac{dM'}{dt} = \int_0^\infty \frac{\delta M'}{\delta t} N(D_r) dD_r \quad (2.39)$$

雨粒の粒径は0.5 ~ 数 mm である一方、サルフェートの粒径は1 μ m 以下 (サブミクロン) であり、雨粒の方が遥かに大きい。従って、(2.39) 式は次のようになる。

$$\frac{dM'}{dt} = \int_0^\infty \int_0^\infty \frac{\pi}{4} D_r^2 \varepsilon v N(D_r) dD_r x \langle D_{so4} \rangle dD_r \quad (2.40)$$

上式を積分するには雨粒の落下速度及び雨粒の粒径分布を与える必要がある。雨粒の落下速度は Kessler (1969) によれば、

$$v_r = 130 \gamma D_r^{1/2} \quad (2.41)$$

であり、 γ は雨粒で1.0、氷粒で0.7である。一方、雨粒の粒径分布はマーシャル・パーマー分布

$$N_r \langle D_r \rangle dD_r = N_0 \exp(-\lambda_r D_r) dD_r \quad (2.42)$$

で近似する。ここで、 λ_r は分布曲線の傾きであり、雨粒の粒径分布については以下のように与え

られる。

$$\lambda_r = 42.2 N_{Or}^{1/4} M^{-1/4} \quad (2.43)$$

M は雨粒の混合比 (g/m^3), N_{Or} は Merceret (1975) によれば 10^7 (m^{-4}) である。ここで (2.41) ~ (2.38) 式を (2.35) 式に代入し、積分すると全ての粒径の雨粒が汚染粒子を捕捉する割合が次のように得られる。

$$\frac{dM'}{dt} = C_1 \eta m M^{0.875} \quad (2.44)$$

m は捕捉された汚染粒子の質量濃度 (g/m^3) であり, C_1 は定数で, Scott (1978) によれば水滴では 5.2×10^{-3} , 氷粒では 3.7×10^{-3} である。

本輸送モデルでは前述したように雨量の「しきい値」を設定し, しきい値以上の雨量では一定の沈着率でサルフェートの微粒子が雲底下において以下に示す確率によって湿性沈着するものとした。

$$P_{wdep} = C_{dep} \cdot \Delta t \cdot RR \quad (2.45)$$

ここで, C_{dep} は降水による沈着率, dt は湿性沈着の評価時間 (1時間) で RR は降水ファクターであり, 以下のように定義される。

- ・格子点にある粒子については気象モデルによって予測された降水量がしきい値である $0.1mm/h$ より大きければ $RR=1$ でそれ以外は $RR=0$ である。
- ・格子点の間にある粒子については粒子の周囲の RR を用いて RR を内挿する。

降水による沈着率については今までいろいろな値が提唱されているが, これらを参照し, 試算を繰り返した結果, 本輸送モデルでは気象モデルの予測するしきい値以上の降水がある雨域において用いた降水による沈着率は, SO_4^{2-} に対しては 3×10^{-5} (1/sec) であり, SO_2 に対しては 1×10^{-5} (1/sec) である。

2.4.4.2 降水沈着のトレーサー実験

微粒子状物質の降水による沈着率を見積もるために, 降水中において気体状と微粒子状の2種類のエア・トレーサーによる拡散実験を実施した。気体状物質は粒子状物質と比較して降水による沈着率は小さいと考えられるので, 両者のトレーサーを同時に降水時の大気中に地上2.5mから散布し, それぞれの大気中濃度及び微粒子状物質の雨水中の濃度を検出し, 比較することによって沈着率を見積もる。トレーサーは気体状のトレーサーとして六沸化硫黄 (SF_6) 及び微粒子状トレーサーとして希土類元素であるディスプレイシウム (Dy) の塩化合物 ($DyCl_3$) を用いた。Dy トレーサーは可

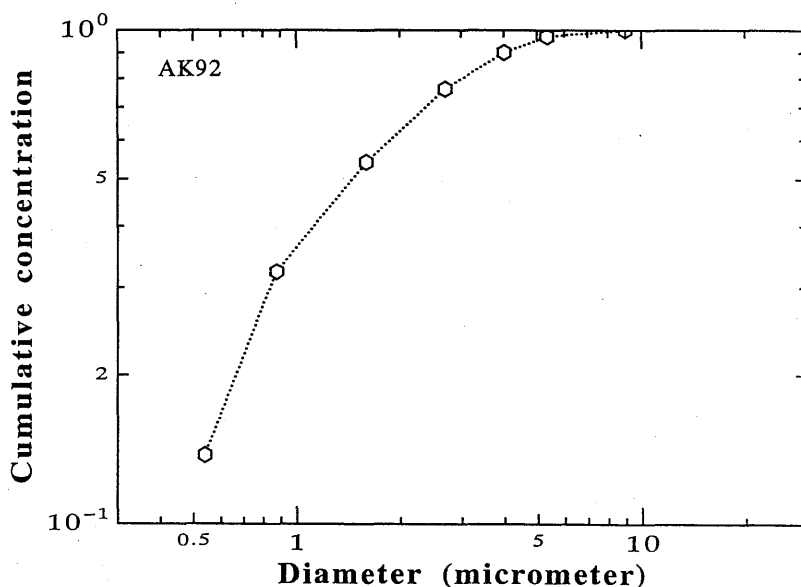


Fig. 2.12 Cumulative distribution of the dysprosium particle diameter in the atmosphere. Particles were generated by the combustion of the methyl alcohol solution.

能な限り粒径を小さくして大気中に放出するために D_y をメタノールに溶解し、この溶液をバーナーで燃焼させることによって微粒子を発生させた。大気中における D_y の粒径分布はアンダーセンサンプラーによって粒径別にフィルター上に捕集した各粒径毎の濃度から求めた。図2.12に示されているように、直径が $2 \mu\text{m}$ 以下の粒子が全体の50%以上を占めており、 $9 \mu\text{m}$ より大きな粒子はない。 D_y の大気中濃度はフィルター上に捕集したサンプルを放射化分析により求めた。放射化分析は原子炉内で捕集したサンプルに中性子を照射して放射化し、 D_y から放射される γ 線のスペクトルと波高分析によって濃度を求める方法で、分析精度が非常に高い。実験中に容器に採取した雨水も濃縮した上で放射化分析を行い、雨水中に含まれる D_y の量を求めた。容器に溜まった雨水の量から実験領域における降水量の分布が得られる。一方、 SF_6 の捕集はポリエステルの袋に空気を引き込み、これを電子吸着検出器のガスクロマトグラフィーによって濃度を検出した。雨滴の粒径分布の計測は粒子映像化装置を用いて行った。図2.13はトレーサーブルームの軸に沿った SF_6 と D_y の大気中規準化濃度と降水による D_y の規準化した沈着量の例を示したものである。濃度はトレーサーの放出率と風速で、沈着量は放出率、風速、降水量で規準化してある。 SF_6 の降水による沈着量が非常に小さく無視できると仮定すれば、 SF_6 濃度と D_y 濃度との差が降水によって沈着したことになる。図に示した例の場合、トレーサーの放出率を1とすると実験領域内における 1 m^2 当たりの1時間沈着量は平均的には約 8×10^{-5} である。降水強度は 1 mm/h で、それぞれの測定点における降水沈着率は $9 \times 10^{-5} \sim 1 \times 10^{-6}$ の範囲にあり、平均的には $2.3 \times 10^{-5} / \text{sec}$ 程度である。

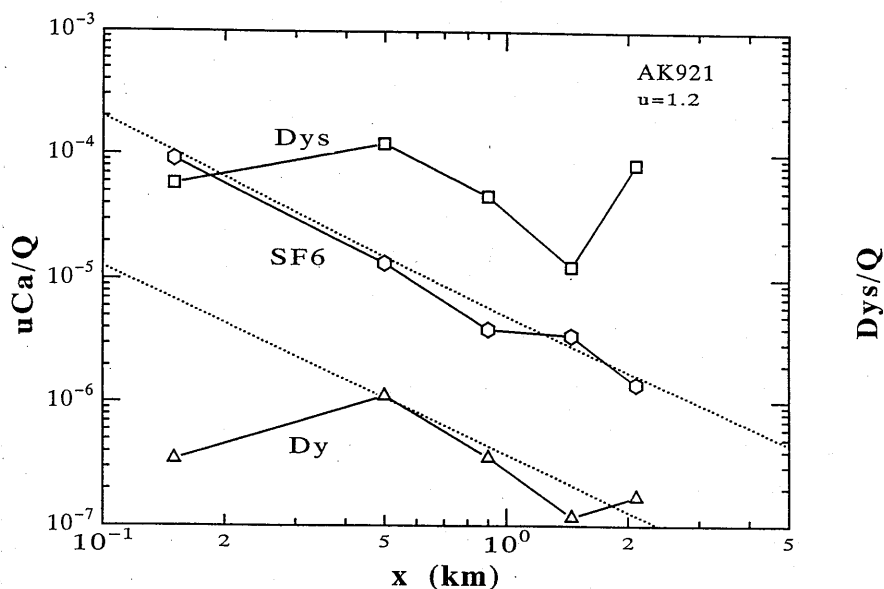


Fig. 2.13 The axial concentration of the sulfur hexafluoride and dysprosium tracers, and deposition of dysprosium tracer due to precipitation with distance downwind.

降水沈着率は降水強度に依存するものと考えられ、この実験の場合は降水強度が1 mm/hと比較的弱いので 10^{-5} のオーダーになったものと思われる。他の例では0.6mm/hの降水強度で 1.8×10^{-5} であった。

2.4.4.3 雲中における沈着過程

輸送モデルの気象予測モデルでは雲物理過程が陽に含まれていないので、雲を陽に表現することができない。従って、in-cloud scavenging過程は考慮されていないが、少しふれておくことにする。

雲中における沈着過程 (in-cloud scavenging) は酸性雨にとって非常に重要な過程であることが指摘されており (鶴田等, 1988), 雲と共に汚染質が長距離輸送されることから輸送の面でも重要な過程である。しかしながら, in cloud scavenging過程を取り扱い, これを長距離輸送モデルに組み込んだ例はほとんど皆無である。本輸送モデルでもこの過程は含まれていないが, 近い将来, この過程をモデル化して長距離輸送モデルに付加することが考えられるので, in cloud scavenging過程について概略的に少し触れておくことにする。すなわち, モデル化を前提とするため, 雲の消長に係わる微物理的考察及び汚染質の雲中における詳細な液相化学反応等は可能な限り省略し, 硫黄酸化物の雲中における変遷や濃度の収支だけを考慮する。

いま大気中に存在する気体状の SO_2 と微粒子状のサルフェートが雲に遭遇した場合を想定し, 雲中における諸過程を経て降水粒子中のサルフェートとして湿性沈着するとすれば, 図2.14に示す

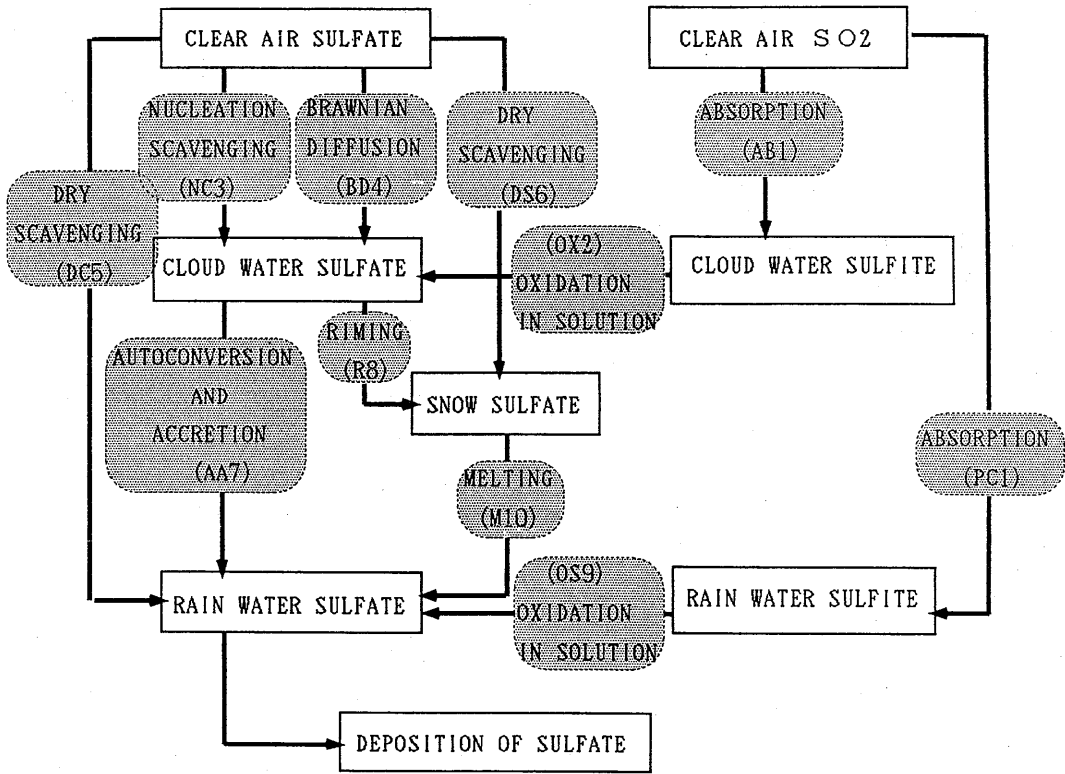


Fig. 2.14 Removal of sulfur oxides in cloud.

ような雲中における諸過程が考えられる。そしてそれぞれの諸過程において SO_2 及びサルフェートの変遷及び濃度の収支を求めればよい。すなわち、

- ①大気中の SO_2
- ②大気中のサルフェート
- ③雲水中のサルフェート
- ④雪中サルフェート
- ⑤雨水中のサルフェート

の濃度収支を計算する。

先ず①の大気中の SO_2 の濃度収支では、大気中 SO_2 の濃度（重量混合比）の変化率は SO_2 の雲水と雨水への吸着によるサルファイト (HSO_3^-) 生成（この過程を $AB1$ で表す）、さらにこの雲水及び雨水におけるサルファイトが液相酸化によってサルフェート (SO_4^{2-}) を生成する過程 ($OX2$) 等、それぞれの過程を経た汚染質の変質、移行によって決まる。すなわち、大気中の SO_2 濃度は吸着と液相酸化によって減少するので、

$$\frac{dC_{so2}}{dt} = - (AB1 + OX2 + OS10) \quad (2.46)$$

として表される。SO₂の雲水と雨水への吸着過程 (AB1) は, Hegg 等 (1984) によれば以下のよう
に表される。

$$AB1 = 10^3 c_1 C_{so2} \gamma_{cond} \quad (2.47)$$

ここに C_{so2} は SO₂ の大気中における重量混合比 (g/g_{air}), γ_{cond} は凝結率, c₁ は

$$c_1 = 1.75 \times 10^{-14} \exp \{5.19 \times 10^3 / T\} / [H^+] \quad (2.48)$$

であり, ここに T は温度 (°K), [H⁺] は水素イオン濃度である。この過程で生成されたサルファイト
の液相酸化 (OX2) は

$$OX2 = 10^3 c_2 C_{so2} q_c \quad (2.49)$$

q_c は雲水量で c₂ は Penkett 等 (1979) の過酸化水素 (H₂O₂) による酸化では,

$$c_2 = 1.09 \times 10^{-8} \exp \{2.41 \times 10^3 / T\} / [H^+]^{0.27} \quad (2.50)$$

また, Hegg と Hobbs (1982) による野外観測では

$$c_2 = 5.37 \times 10^{-19} \exp \{6.778 \times 10^3 / T\} / [H^+] \quad (2.51)$$

である。

一方, 雨水に吸着した SO₂ の液相酸化過程 (OS9) は

$$OS9 = 10^3 c^2 C_{so2} q_r \quad (2.52)$$

ここに, q_r は雨水の混合比である。

②の大気中のサルフェート濃度収支は次の4つの取り込み過程を通じて減少していくことが考え
られる。サルフェート粒子の雲核化による雲粒への取り込み (NC3), ブラウン拡散による雲水へ
の取り込み (BD4), 降水粒子との慣性衝突による捕捉 (DC5), 雪片との慣性衝突による捕捉であ
る。すなわち, 大気中のサルフェートは

$$\frac{dC_{so4}}{dt} = - (NC3 + BD4 + DC5 + DS6) \quad (2.53)$$

によって減少していく。

雲核化による大気中サルフェートの減少は

$$NC3 = F_a \frac{C_{so4}}{\delta t} \quad (2.54)$$

δt は単位時間, F_a は雲核化率で Hegg 等 (1984) の観測によれば, 雲の種類によって多少の違いはあるものの, 直径 $0.1 \sim 1 \mu\text{m}$ のサルフェートに対しては平均的に $F_a = 0.7 \pm 0.2$ である。これはサルフェートの70%が雲核化することを意味している。鶴田等 (1988) は雲底部における雲粒, 雨粒及び大気中のエアロゾル及び SO_2 濃度を調べ, 大気中の濃度が非常に低いこと, 同じ高度の雨粒中よりも雲粒中の濃度が高かったことから, 雲粒の汚染質の全体的な捕捉率は100%に近いと推測している。

サルフェート粒子のブラウン拡散による雲水への取り組み (BD4) は

$$BD4 = 1.68 \times 10^{-8} \frac{C_{so4} K_{bd} q_c}{\bar{d}^2} \quad (2.55)$$

で表され, K_{bd} は粒子のブラウン拡散係数であり, ほぼ $2 \times 10^{-4} \text{cm}^2/\text{sec}$ 程度, \bar{d} は雲水の平均直径で大体 $2 \times 10^{-3} \text{cm}$ 程度である。

雲中における雨粒との慣性衝突によるサルフェート粒子の沈着 (DC5) は雲中の雨粒の大きさに比べてサルフェートの粒径は非常に小さく無視できるので, 雲底下における衝突と全く同様に考えることができる。雲中における雨粒との慣性衝突によるサルフェート粒子の沈着率は (2.47) で与えられている。さらにサルフェートと雪片との慣性衝突 (DS6) は雨粒との衝突と基本的には同じと考えられるが, 粒径分布, 落下速度, 捕捉率が異なる。落下速度や捕捉率は粒径だけでなく, 雪片の結晶型によっても異なる。Gunn と Marshall (1958) によれば, 雪片の落下速度, v_s (cm/sec) は融解したときの直径を D_s (cm) とすると

$$v_s = k D_s^{0.31} \quad (2.56)$$

として表され, k は樹枝状結晶では160, 角板結晶と角柱状結晶では234である。雪片の粒径分布は雨粒と同じマーシャル・パーマー分布で表されるが (Gunn and Marshall, 1958), 分布曲線の傾き λ_r , N_{or} が雨粒と異なり, λ_r は Rutledge と Hobbs (1983) によれば,

$$\lambda_r = \left(\frac{\pi \rho_s N_{or}}{\rho q_s} \right)^{0.25} \quad (2.57)$$

であり, ρ_s は雪片の密度, q_s は雪片の混合比である。Gunn と Marshall (1958) は観測から $\lambda_r = 25.5R^{-0.48} (\text{cm}^{-1})$, $N_{or} = 3.8 \times 10^3 R^{-0.87} (\text{m}^{-3} \text{mm}^{-1})$, $D_r = 0.144R^{0.48} (\text{cm})$ のように全て降雪強度

Rに依存することを示している。

次に③の雲水中のサルフェートの収支は以下のような過程が考えられる。

$$\frac{dSO_4}{dt} = \frac{3}{2}OX2 + NC3 + BD4 - AA4 - R8 \quad (2.58)$$

雲水に入ってくるサルフェートは、雲水中におけるSO₂の液相酸化によるサルフェートの生成(OX2)、サルフェート粒子の雲核化(NC3)、サルフェートのブラウン拡散による雲水への侵入(BD4)である。一方、雲水から出ていくサルフェートはサルフェートを含んだ雲水の雨粒及び雪片による捕捉(AA7及びR8)である。雨粒と雪片による雲水の捕捉は過程は同じであるがそれぞれの捕捉率が異なるだけであると仮定する。すなわち、単位雲水量当たりに含まれるサルフェートの量に雨粒、雪片の捕捉率を掛けたものが出ていくサルフェートである。

④の雪片に含まれるサルフェートの収支は

$$\frac{dCso_4^{2-}}{dt} = DS6 + R8 - M10 \quad (2.59)$$

であり、雪片に入ってくるサルフェートとしては雪片とサルフェートの慣性衝突によるもの(DS6)と雪片がサルフェートを含んだ雲水を捕捉するもの(R8)であり、出ていくサルフェートは雪片の融解による雨水への相変化に伴って雨水中サルフェートに移行するもの(M10)である。

最後の⑤の雨水中におけるサルフェートの収支は

$$\frac{dCso_4^{2-}}{dt} = DC5 + AA7 + \frac{3}{2}OS9 + M10 \quad (2.60)$$

であり、雲の中における雨水ではサルフェートは入って来るだけで出ていくものはない。雨粒に含まれるサルフェートは雨粒とサルフェートの慣性衝突(DC5)、サルフェートを含んだ雲水の雨粒による捕捉(AA7)、雨粒に含まれているSO₂の液相酸化によるサルフェートの生成(OS9)、雪片の融解による雨粒への移行(M10)によるものである。

3. 長距離輸送モデルの検証

3.1 検証データ

東アジア地域における硫黄酸化物の長距離輸送過程の計算を行う前に、長距離輸送モデルの検証をしておくことが必要である。すなわち、東アジア地域では硫黄酸化物の沈着に関する測定データが殆ど無いので、モデルによる再現性に関してどの程度信頼できるかを確かめた上で計算を実施し、東アジア地域における酸性沈着の見積もりを行うのが順当な方法である。従って、モデル検証に用いるデータも信頼性のある実測データが望ましい。

アメリカではNAPAP「酸性雨アセスメント国家計画 (National Acid Precipitation Assessment Program)」が1982年から実施されており、この計画では硫黄酸化物の排出源データ及び乾性・湿性沈着の測定データが整備されており、特にモデル開発のためのデータセットも用意されている。そこで本研究によって開発した長距離輸送モデルの検証はこのNAPAPのデータを用いて北アメリカを対象にして硫黄酸化物の輸送、沈着過程のシミュレーションを実施してモデルの再現性を評価すると共に、計算結果を考察することによってモデルのパラメーター等の見直しを行った。モデル検証に用いたデータは、硫黄酸化物の発生源データに関しては「The NAPAP Emission Inventory (Version 2)」, 沈着量に関する実測データは「NADP/NTN* Annual Data Summary (Precipitation Chemistry in the United States 1985)」であり、これらのデータは全てアメリカ環境保護庁 (EPA) から提供を受けたものである。

3.1.1 排出源データ

北アメリカの1985年における人為的な硫黄酸化物の年間排出量は、3,100万トンであり、そのうちアメリカで2,700万トン、カナダで400万トン大気中に排出されている。EPAより提供された硫黄酸化物の排出源データは各州別にまとめられており、これを格子点に振り分けるために都市や工業地域を考慮しアメリカで120点、カナダで17点設定した。またこれらの設定にはアメリカ及びカナダの発生源資料から統計して作成した519点の排出源分布を示した Venkatram 等 (1983) による排出源分布図も参照した。アラスカ州及びハワイ州を除いた全アメリカの硫黄酸化物排出量の50%を上位8州が占め、また上位16州で77%を占める。硫黄酸化物の最も排出量の多いオハイオ州は全アメリカの排出量の11%を占めており、一方、最も少ないワシントンDCで0.03%、バーモント州では0.04%にすぎない。全アメリカの硫黄酸化物排出量の77%を占めているそれぞれの16州のSO₂, SO₄²⁻の排出量、及び代表的排出源である70地点とその緯度、経度を表3.1に示した。モデル検証計算にはこの16州の排出源だけを用いた。表からも分かるように大排出源はアメリカ東部でミシガ

*National Atmospheric Deposition Program/National Trends Network

Table 3.1 Annual emission of sulfur dioxide and sulfate for 16 states of U. S. in ton/year. (From 1985 NAPAP emission inventory, annual U. S. point and area source emission by state).

Cities	States	Lat.	Long.	SO ₂	SO ₄ ²⁻
Akron	Ohio	41.04	81.31		
Cincinnati	Ohio	39.09	84.27		
Cleveland	Ohio	41.29	81.41		
Toledo	Ohio	41.39	83.33		
Youngstown	Ohio	41.05	80.38		
Dayton	Ohio	39.45	84.11	2,560,946	28,806
Indianapolis	Ind.	39.46	86.09		
Evansville	Ind.	37.58	87.33		
Gary	Ind.	41.35	87.20	1,938,272	27,698
Austin	Tex.	30.16	97.44		
San Antonio	Tex.	29.25	98.29		
Corpus Christi	Tex.	27.48	97.23		
Houston	Tex.	29.45	95.21		
Beaumont	Tex.	30.05	94.06		
Dallas	Tex.	32.46	96.47		
Odessa	Tex.	31.50	102.22		
Fort Worth	Tex.	32.43	97.19		
Texarkana	Tex.	33.25	94.02	1,505,228	12,341
Erie	Pa.	42.07	80.05		
Pittsburg	Pa.	40.26	79.59		
Philadelphia	Pa.	39.57	75.09		
Allentown	Pa.	40.36	75.28	1,428,589	35,084
Chicago	Ill.	41.51	87.39		
Decatur	Ill.	39.50	88.57		
Springfield	Ill.	39.48	89.38		
Peora	Ill.	40.41	39.85	1,390,970	23,845
St. Louis	Mo.	38.37	90.11		
Columbia	Mo.	38.57	92.20		
Independence	Mo.	39.05	94.24		
Kansas City	Mo.	39.05	94.34		
St. Joseph	Mo.	39.46	94.50		
Cape Girardeau	Mo.	37.18	89.31		
New Madrid	Mo.	36.35	89.31		
Hannibal	Mo.	39.42	91.21	1,178,043	15,431
Atlanta	Ga.	33.44	84.23		
Savannah	Ga.	32.05	81.06	1,112,711	13,793
Charleston	W. Va.	38.20	81.37	1,058,435	12,329

Table 3.1 (Contd.)

Cities	States	Lat.	Long.	SO ₂	SO ₄ ²⁻
Nashville	Tenn.	36.09	86.47		
Knoxville	Tenn.	35.57	83.55		
Memphis	Tenn.	35.08	90.02	977,398	13,982
Louisville	Ky.	38.15	85.45		
Lexington	Ky.	38.02	84.30		
Hopkinsville	Ky.	36.51	87.29		
Paducah	Ky.	37.05	88.36	878,008	15,894
Huntsville	Ala.	34.43	86.35		
Decatur	Ala.	34.36	86.59		
Birmingham	Ala.	33.31	86.48		
Mobile	Ala.	30.41	88.02	724,644	12,258
Tucson	Ariz.	32.13	110.55		
Phoenix	Ariz.	33.26	112.24		
Safford	Ariz.	32.50	109.42		
Tec Nos Pos	Ariz.	36.56	109.42	717,755	4,525
Buffalo	N.Y.	42.53	78.52		
Rochester	N.Y.	43.09	77.36		
Syracuse	N.Y.	43.02	76.08		
Binghamton	N.Y.	42.05	75.55		
Albany	N.Y.	42.39	73.45		
New York	N.Y.	40.43	74.01	665,332	22,647
Tampa	Fla.	27.56	82.27		
St. Petersburg	Fla.	27.46	82.40		
Miami	Fla.	25.46	80.11		
Jacksonville	Fla.	30.19	81.39		
Pensacola	Fla.	30.25	87.13	659,662	14,802
Detroit	Mich.	42.20	83.03		
Bay City	Mich.	43.35	83.53		
Grand Rapids	Mich.	42.58	85.40		
Iron Mountain	Mich.	45.49	88.03		
Iron Wood	Mich.	46.27	90.10	551,068	12,523
Milwaukee	Wis.	43.02	87.54		
Madison	Wis.	43.04	89.24	514,461	13,913
Total emission of 16 states				17,861,522	279,881
Total emission of all U.S.A.*				23,146,211	490,415

*Except Alaska and Hawaii.

ン湖及びエリー湖の南部に位置するオハイオ、インディアナ、ペンシルベニア、イリノイ州などの工業地域である。

排出源高度は全ての排出源に対して $\sigma = 0.98$ (約200mに相当する)より汚染質が大気中に排出されるものとした。そしてそれぞれの排出源強度に対応した個数の粒子を Δt (=10分)毎に大気中に放出した。

3.1.2 沈着量データ

湿性沈着観測ステーションはアラスカ、ハワイ州を含む全アメリカで148地点あり、図3.1は1985年における湿性沈着観測地点と1984年12月4日から1985年3月5日迄の冬季94日間に実測された SO_4^{2-} の積算湿性沈着量を示したものであり、等値線の単位は g/m^2 である。湿性沈着はフロリダ州を除く東部に集中しており、特に沈着量が多いのはインディアナ、オハイオ、ケンタッキー、テネシー州等である。これらの州は全て硫黄酸化物の大排出源またはその近隣の州である。このようにアメリカ東部地域に高い湿性沈着量が集中的に観測されているので、モデル検証計算結果の比較には図3.2で示した観測ステーションのうち、アメリカ東部地域の63地点の観測データを用いた。

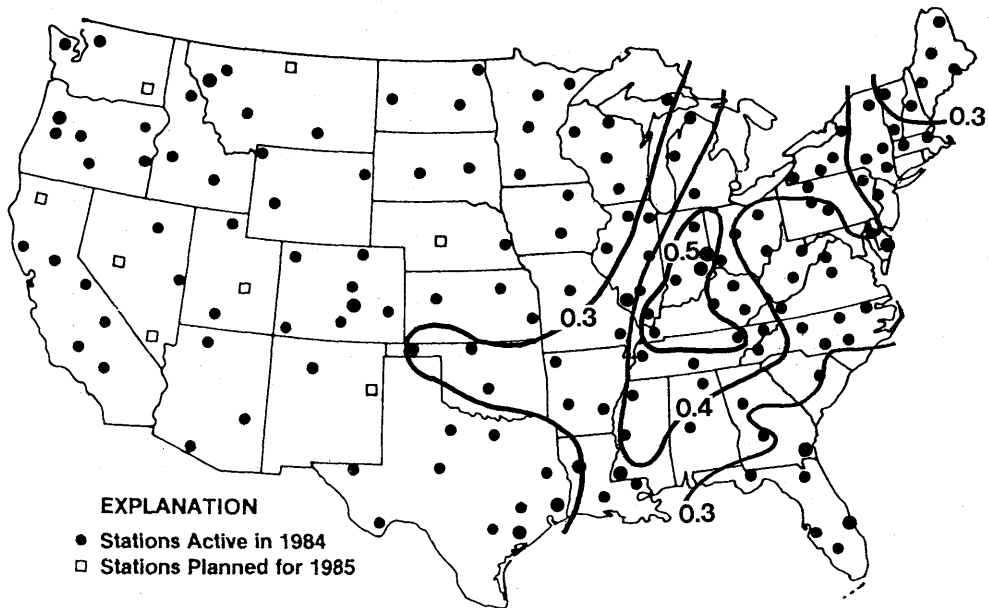


Fig. 3.1 The locations of NADP/NTN stations and contour of observed SO_4^{2-} wet deposition of in g/m^2 for winter quarter on 1985.

3.2 モデル検証の計算

気象予測モデル (FLM) を北アメリカに適用するために地形データを FLM の格子間隔に合わせた上、2.2.4節で述べたように GANL を初期値及び境界値として1984年12月4日から1985年3月5日迄の94日間について1時間毎の気象変数の予測データを計算し、気象変数の格子点データを磁気テープに蓄積した。

図3.2は94日間の計算による湿性沈着量の分布を示したものである。図3.2の実測による沈着量分

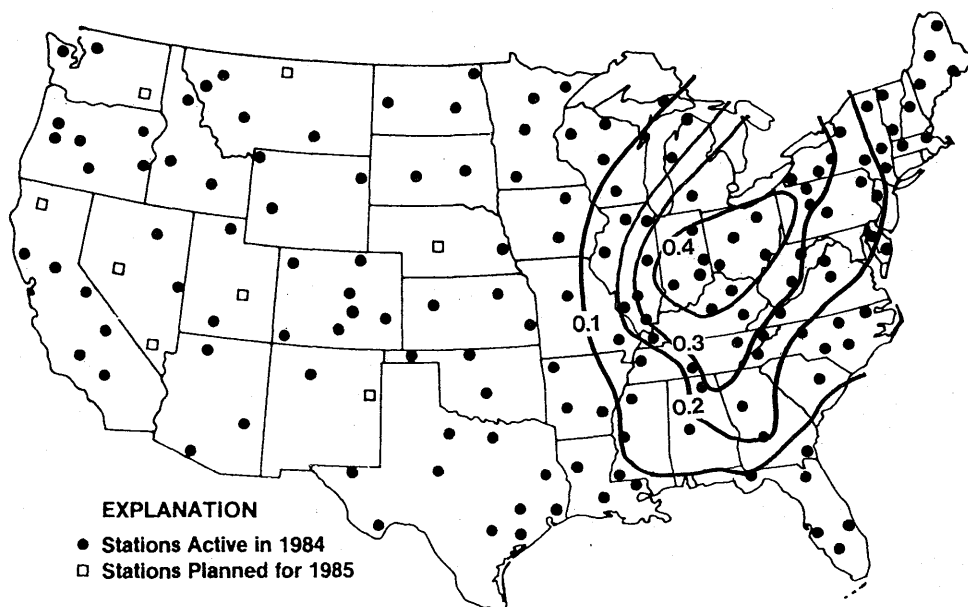


Fig. 3.2 The same as Fig. 3.1, but for calculated wet deposition.

布図と比較してみると分布の形は僅かに違うが、最大沈着量の出現している地域は再現されている。しかし、実測ではテキサス州北部からオクラホマ州にかけて湿性沈着が見られるのに対して、計算ではこれが再現されていない。この地域では局地的なシビア・ストームによる降水が頻発するが、この現象は格子間隔が127kmのモデルでは表現されていないので、このことが湿性沈着の差となった可能性がある。このことを除外すれば沈着量は計算値が少しばかり過小評価されているが、計算による湿性沈着量分布の形はある程度再現されていると言える。さらに量的に計算値と実測値とを比較してみると計算値は全体的に過小評価をしており、実測値の70%程度しか表現していないことが図3.3からも知ることができる。この全体的な過小評価の理由の一つはこの検証計算の場合には降水のしきい値を0.5mm/hと大きめに取ったために降水を抑制する方向に働いたこと、すなわち、

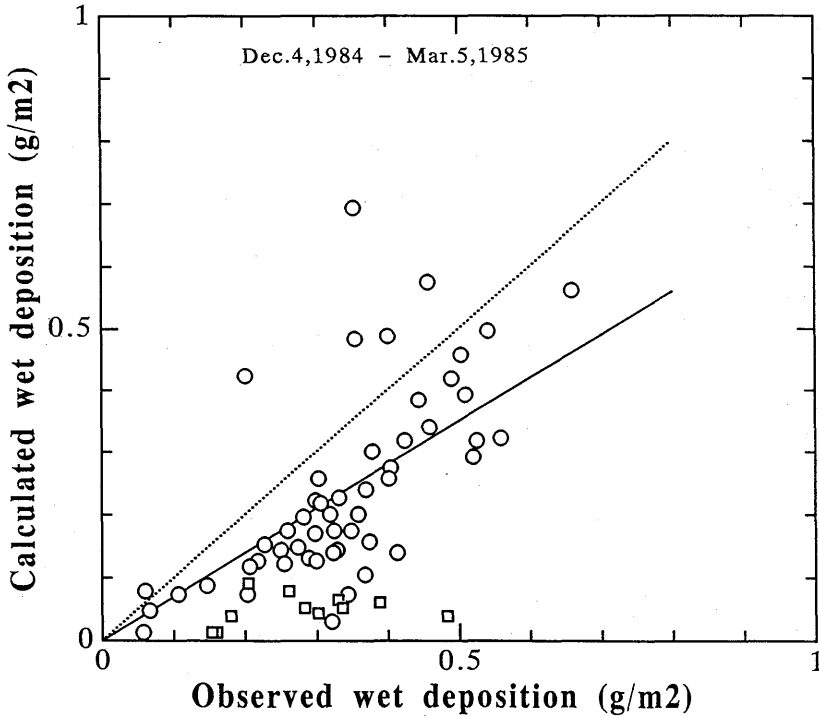


Fig. 3.3 Comparison between calculated and observed sulfate wet deposition at each stations. The symbol of square shows the data at Okulahoma, and Texas. (Observed data from "NADP/NTN Precipitation Chemistry").

降水を抑制した分だけ降水による沈着が少なくなったものと考えられる。また、雲による汚染質の取り込み過程 (in cloud scavenging) を考慮していないことも計算値が過小に見積もってしまう原因であることは確かなようである。しかし、湿性沈着に対する in cloud scavenging の確実な寄与率は把握されているわけではなく、例えば、航空機による雲中における SO_4^{2-} の生成率の観測結果 (Hegg and Hobbs, 1982) 及び雲による SO_4^{2-} の沈着率の観測結果 (Hegg et al., 1984) でもそれぞれが広範な値のデータを示している。雲と汚染質との相互間の関係は、2.4節で述べたような過程がモデル的に考えられるが、しかし、この過程は実験や観測による裏付けやパラメーターの決定等がなされなければならない、今後の調査・研究成果の蓄積を待つほかはないように思われる。さらに上述したように中西部地域の降水がよく再現できないことも過小評価の原因と考えられる。図3.3で示した□印は中西部地域の観測地点のデータであり、この地域の全ての計算値が極端な過小評価を示しており、これらのデータは計算値全体を統計的に過小評価側へシフトさせるのにも寄与している。

4. 東アジア地域におけるシミュレーション

長距離輸送モデルの検証計算を実施した結果、湿性沈着に対してある程度の良好な結果を得ることができた。また、モデルの特徴や長・短所を知ることができ、その結果、モデルのパラメータのチューニングや降水量のしきい値の見直し等も行った。そして排出源データを調査、整理した後、東アジア地域における硫黄酸化物の輸送・沈着過程のシミュレーションを実施した。

4.1 排出源と排出量

アジア地域の硫黄酸化物の排出量は加藤他(1991)及びKato and Akimoto(1992)による調査結果を利用した。この調査はアフガニスタン、パキスタン以東のアジア全域の25ヵ国におけるエネルギー消費構造から硫黄酸化物、窒素酸化物および二酸化炭素の排出量を1975年から1987年まで求めたものである。しかしながら、この調査にはロシア極東域は含まれていないので「最新ソ連極東総覧(エンタプライズ)」を基に極東地域の工業都市をわが国との地理的關係を考慮して選定し、追加した。

排出量はインド、中国については州または省毎に、その他は国毎に算出されているため、これらをモデルの格子に合わせて排出源の位置と排出量を配分する必要がある。排出源の位置と配分については都市、工業地域を考慮し、排出量については都市の人口、工業地域の規模により加重配分をした。このようにして先ず、東アジア地域の計算領域における各々の排出源からの排出量、地点名及びその位置を緯度・経度で地点を拾い上げ、排出量の少ない地点や近傍の排出源については併合し、最終的には80地点の排出源を決定した。表4.1には東アジアの各国及びその地域の排出量と選出した80地点についての緯度・経度及び加重配分した硫黄酸化物の排出量を示した。インドの排出量については計算領域外であるが、排出量が多いので東部の工業地域のアッサムとビハールの排出源だけを考慮し、計算領域内に排出源を仮定して設定した。

4.2 シミュレーションと結果

東アジア地域における硫黄酸化物の沈着量を評価するためのシミュレーションは、1985年の1年間について日本の国内の排出源を除いて行った。すなわち、近隣諸国の排出源からわが国にどれだけの硫黄酸化物が年間を通して輸送されて沈着するかを調べ、わが国における沈着量に対する寄与率を求めた。モデル計算による沈着量の評価は格子間隔の4分の1の面積(約31.8×31.8km)でなされている。わが国における沈着量評価地点は代表的な地域の排出源地点と同じ場所とした。すなわち、北九州、延岡、徳山、倉敷、大阪、名古屋、清水、東京、新潟、苫小牧の10地域である。これらの計算による沈着量評価地域及び後述する実測による湿性沈着量の測定地点を図4.1に示した。計算値の評価地域の中に実測地点が含まれる地域は大阪、名古屋、東京、札幌(苫小牧)の4ヵ

Table 4.1 Annual emissions of sulfur oxides in east Asia in 10³ tons/year.

Countries	Provinces	No.	Cities	Emission	Lat.	Long.	
China	Beijin	1	Beijin	401.0	39.90	116.40	
	Tianjin	2	Tianjin	280.0	39.15	117.22	
	Hebei	3	Shijiazhuang	963.0	38.02	114.50	
	Shanxi	4	Taiyuan	367.0	37.90	112.55	
		5	Datong	367.0	40.10	113.28	
	Niemenggu	6	Baotou	530.0	40.50	109.50	
	Liaoning	8	Dalian	188.4	38.85	121.55	
		9	Anshan	753.6	41.10	122.95	
		12	Changchun	198.6	43.90	122.25	
	Jirin	13	Jirin	132.4	43.85	126.50	
		Heilongjiang	14	Harbin	257.0	45.75	126.55
			15	Qiqihar	51.4	47.30	123.95
	Shanghai	16	Daqing	154.2	46.60	124.95	
		17	Jiamusi	51.4	46.75	130.35	
		18	Shanghai	584.0	31.20	121.45	
		Jiangsu	19	Nanking	834.6	32.05	118.75
	20		Maanshan	139.1	31.70	118.45	
	21		Wuxi	417.3	31.60	120.25	
	Zhejiang	22	Hangzhou	354.0	30.22	120.04	
	Anhui	23	Hefei	264.0	31.85	117.25	
		24	Huainan	176.0	32.61	116.95	
	Fujian	25	Fuzhou	81.2	20.06	119.30	
		26	Amoy	60.9	24.41	118.12	
		27	Sanming	60.9	26.20	117.60	
	Jiangxi	28	Nanchang	187.5	28.68	115.90	
		29	Ganzhou	187.5	25.83	114.88	
	Shandong	30	Jinan	1,110.9	36.62	117.00	
		31	Quingdao	476.1	36.08	120.25	
	Henan	32	Zhengzhou	623.0	34.75	113.70	
		33	Luoyang	267.0	34.70	112.40	
	Hubei	34	Wuhan	499.0	30.56	114.25	
	Hunan	35	Changsha	522.0	28.20	113.00	
	Guangdong	36	Guangzhou	341.6	23.20	113.25	
		37	Swatow	85.4	23.70	117.38	
	Guangxi	38	Nanning	172.0	22.80	108.28	
		39	Liuzhou	172.0	24.30	109.12	
	Sichuan	40	Chengdu	898.8	30.70	104.05	
		41	Chongqin	898.8	29.55	106.50	
		42	Luzhou	449.4	28.85	105.30	
	Chuizhou	43	Guiyang	591.0	26.60	106.70	
	Yunnan	44	Kunming	437.5	25.05	102.70	
		45	Gejiu	187.5	23.35	103.15	
	Xizang	46	Lhasa	2.0	29.85	91.15	

Table 4.1 (Contd.)

Countries	Provinces	No.	Cities	Emission	Lat.	Long.
China	Shanxi	47	Xian	680.0	34.26	108.90
		48	Yanan	170.0	36.59	109.40
	Gansu	49	Yumen	24.5	39.35	97.45
		50	Lanzhou	220.5	36.00	103.85
		51	Xining	47.0	36.50	101.65
	Ningxia	52	Yinchuan	139.0	38.48	106.27
	Xinjiang	53	Urumuqi	203.0	43.85	87.55
Korea	Kyonggi	54	Seoul	341.5	37.55	127.00
	Kyongsangnam	55	Pusan	341.5	35.10	129.00
	Kyongsangnam	56	Taegu	341.5	35.85	128.55
	Chungchongnam	57	Taejon	341.5	36.33	127.40
Taiwan	Northern	58	Taipei	346.5	25.05	121.48
	Southern	59	Gaoxiong	346.5	22.60	120.25
Hongkong	Hongkong	60	Hongkong	144.0	22.35	114.20
India	Asam	61	Nongpo	121.0	26.20	91.80
	Bihar	62	Kishanganji	514.0	26.30	88.00
Thailand.	Kohlat	63	Uttaradit	507.0	17.00	102.00
Philippine	Luzon Island	64	Manila	351.0	14.50	121.00
North Korea	Western	65	Pyongyang	346.5	39.00	125.50
	Eastern	66	Hamhung	346.5	39.50	127.50
Japan	Kita-kyushu	67	Kita-Kyushu		33.86	130.80
	Minami-Kyushu	68	Nobeoka		32.58	131.50
	Chugoku-1	69	Tokuyama		34.07	131.80
	Chugoku-2	70	Kurashoki		34.57	133.80
	Hanshin	71	Osaka		34.67	135.52
	Chubu	72	Nagoya		35.17	137.00
	Tokai	73	Shimizu		35.03	138.52
	Keihin	74	Tokyo		35.67	139.72
	Joetsu	75	Niigata		37.90	139.04
Hokkaido	76	Tomakomai		42.67	141.65	
Russia	Fareast	77	Vladivostok		43.00	132.00
		78	Chavarovsk		18.00	135.00
		79	Komsomol'sk		50.50	136.80
		80	Juzino-Sachalinsk		47.13	142.60

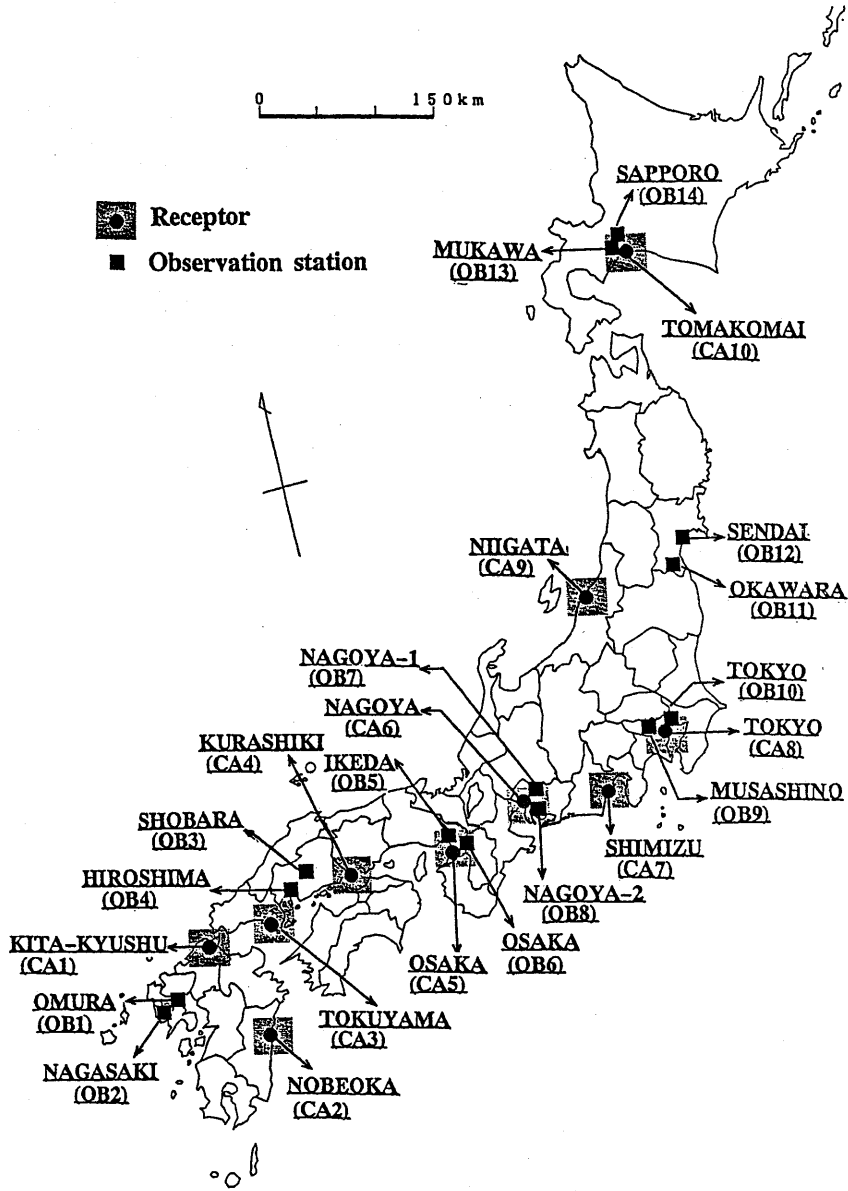


Fig. 4.1 The location of observation stations of wet deposition and receptors to evaluate the calculated depositions.

所である。

計算による各地域における硫黄酸化物 ($\text{SO}_2 + \text{SO}_4^{2-}$) の年間沈着量を乾性沈着と湿性沈着量及び両者の和を総沈着量として図4.2に示した。計算値は硫黄酸化物の沈着量を硫黄の量に換算して表わしているが、モデルでは1時間に1%の割合で SO_2 から SO_4^{2-} への変質を考慮しており、汚染質のトラベルタイムが長いこと、降水による SO_4^{2-} の沈着率は SO_2 のそれに対して3倍ほど大きいこ

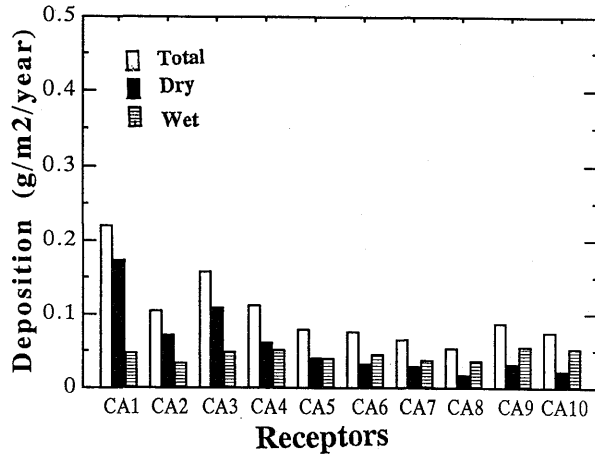


Fig. 4.2 Calculated annual deposition of sulfur oxides reduced into sulfur element in various area of Japan.

となどから湿性沈着の殆どは SO_4^{2-} である。図からも分かるように乾性沈着量は北九州が最も多く、東へ行くに従い小さくなっている。しかし、新潟では東京、清水よりは僅かに多い。一方、湿性沈着量は地域による差は殆ど見られず、乾性沈着量と湿性沈着量との比率は東に行くに従い小さくなり、大阪で同等となり、それ以东ではこの比率は逆転している。

この計算値に対応する実測による非海塩起源の SO_4^{2-} の湿性沈着量は図4.3に示されており、これも硫黄の量に換算した値である。実測データは環境庁によって1983年から5年間実施された「第1次酸性雨対策調査」によるものである。調査地点は、長崎県（長崎市、大村市）、広島県（広島市、

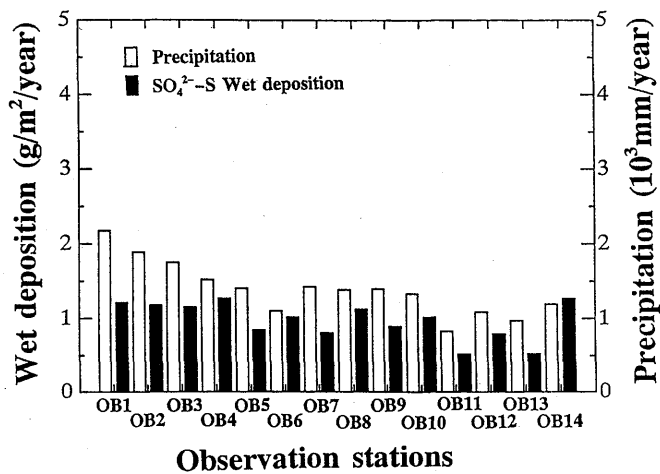


Fig. 4.3 Observed wet deposition of sulfate reduced into sulfur element at various area of Japan.

庄原市、大阪府（大阪市、池田市）、名古屋市（南区、名東区）、東京都（江東区、武蔵野市）、宮城県（仙台市、大川原町）、北海道（札幌市、鶴川町）であり、長崎から北海道迄の7都道府県で都市域と田園域の2カ所ずつの計14地点で、モデル計算を行った地点と異なるところも含まれている。ここで引用しているデータは1985年4月から1986年3月迄の1年間の湿性沈着測定値であり、図はこの期間の総沈着量と降水量である。測定値は都市域と田園域とに差の見られる地点が幾つかあるが、都市域では局地的な沈着、すなわち、都市域にある排出源からの寄与があることが考えられる。全国的にみると降水量は西から東に行くに従い少なくなっている傾向がみられるが、しかし、湿性沈着量には地域的な差は見られない。これは計算結果にも見られることである。沈着量の評価期間に3ヵ月のずれはあるが、計算と実測による湿性沈着量を比較してみると、平均的には計算値は実測値より約1桁小さい。都市域とそれに隣接した郊外において沈着量の差があるなどから、測定点近傍の排出源の影響も考えられるので、長距離輸送による広域にわたる沈着量の評価には調査地点の代表性に留意する必要がある。

一方、上記の10地点におけるモデル計算による1985年の硫黄酸化物の乾性沈着、湿性沈着及び両者の和を総沈着量としてそれぞれの月変化を硫黄の量に換算して図4.4に示した。乾性沈着量は総体的に西から東の地域へ順次少なくなっており、このことは汚染質が平均的に見て西から東に輸送

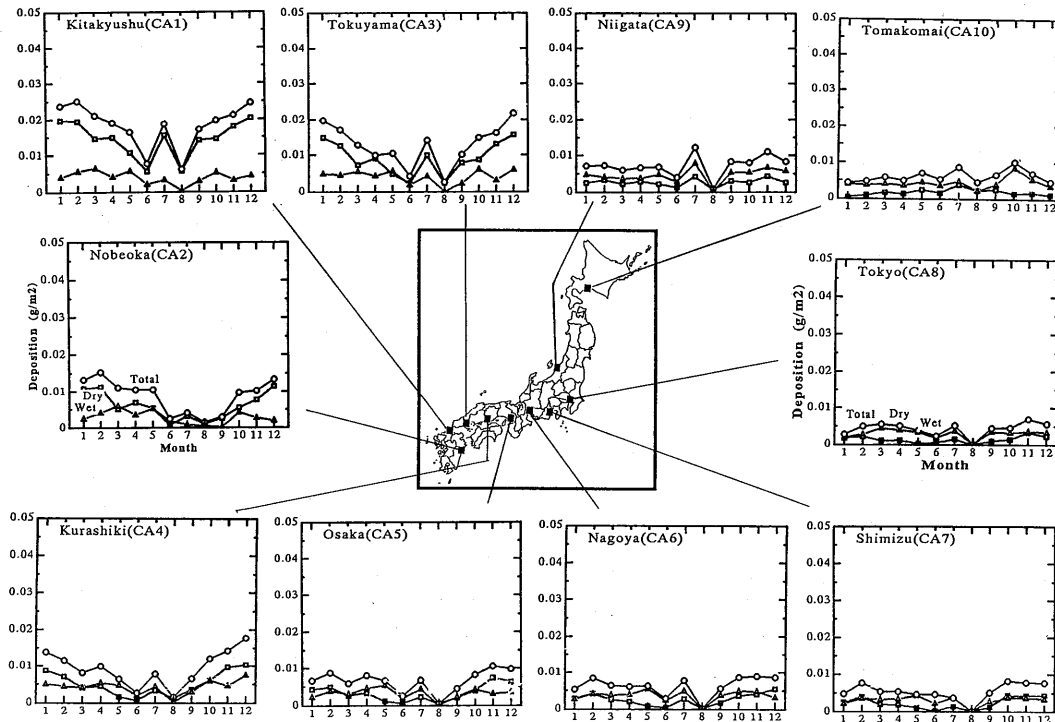


Fig. 4.4 Calculated monthly depositions of sulfur oxides at various area of Japan.

されていることを示唆している。特に西の地域では冬季に高く、夏季に低い値を示しているが、この傾向は東に向かうに従い薄れて行き、東京、新潟、苫小牧では月変化は殆ど見られず、年間を通じてほぼ一定に近い。また総沈着量に対する湿性沈着量の割合は西の地域ほど小さい。西の地域では乾性沈着量が多く、湿性沈着量と同等であるが、これに対して東の地域では乾性沈着量が少なく、総沈着量の殆どは湿性によるものである。この傾向は日本国内の排出源を入れた計算では、沈着量評価地点近傍の排出源の寄与によって異なってくると考えられる。しかし、本研究の対象とした年ではないが、島根県衛生公害研究所によって1988年6月から1990年5月までの2年間に測定された非海塩起源の SO_4^{2-} の湿性沈着量のデータ (山口, 1991) の中で日本海に面した測定点として隠岐島西郷, 日御碕, 江津における2年間平均の月別降水量 (a) と沈着量 (b) を参考データとして図4.5に示した。沈着量の月別変化を見るとどの地点も1月が最も多い。特に隠岐島西郷では1月の最大値から最低値を示している6月まで次第に減少している。9月はその測定点でも湿性沈着量が僅かに多くなっているが、この月は前後の月に比べて降水量も圧倒的に多い。

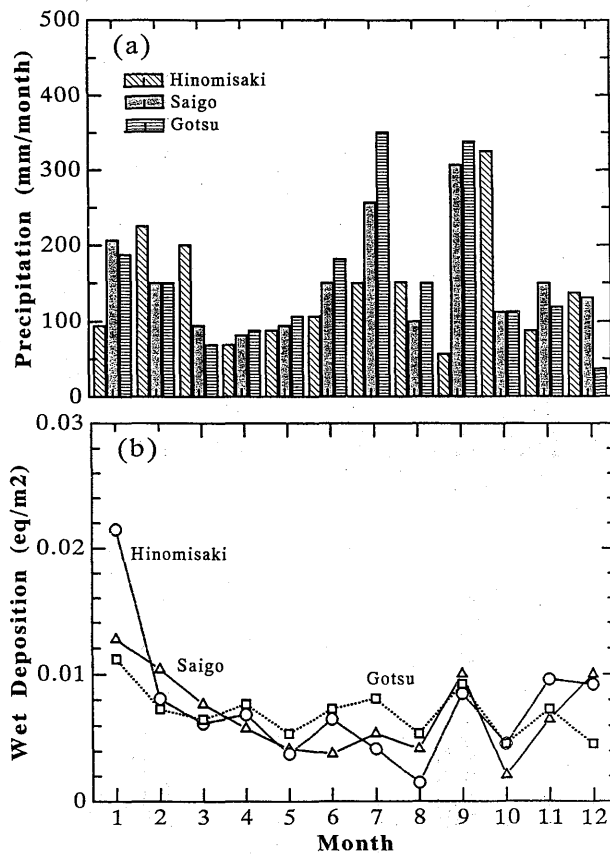


Fig. 4.5 Observed monthly precipitation (a) and wet deposition of sulfate (b) at Saigoh, Hinomisaki, and Gotsu, Shimane Prefecture. (From Yamaguchi, 1991).

前にも述べたように本輸送モデルの移流・拡散にはラグランジュ粒子法を適用しており、リセプターオリエンテッドモデルの性格も併せ持っている。従って、ある地域の沈着量に寄与している排出源を辿って行くことが可能である。ここでは10地域の中で沈着量が最も多かった北九州地域に及ぼしている排出源を冬季（1月）と夏季（7月）に分け、それぞれの季節における乾性沈着及び湿性沈着について調べた。図4.6は北九州地域の乾性沈着に寄与している各排出源の寄与率を示したものである。(a)は冬季であり、(b)は夏季についてのものである。横軸の数値は排出源番号を示しており、これは表4.1の番号に対応しているが、顕著な寄与を示している排出源には地域名を記した。冬季では京城（Seoul, 韓国）の寄与が圧倒的に大きく30%強を占めている。次いで鞍山（Anshan, 中国）、平壤（Pyongyang）、咸興（Hamhung, 北朝鮮）等の寄与が見られる。これらの排出源は北九州地域から見ると冬季の季節風の風上に位置している。夏季では上海（Shanghai）、南京（Nanking）、無錫（Wuxi, 中国）、京城（Seoul）、大田（Taejon, 韓国）、台北（Taipei, 台湾）

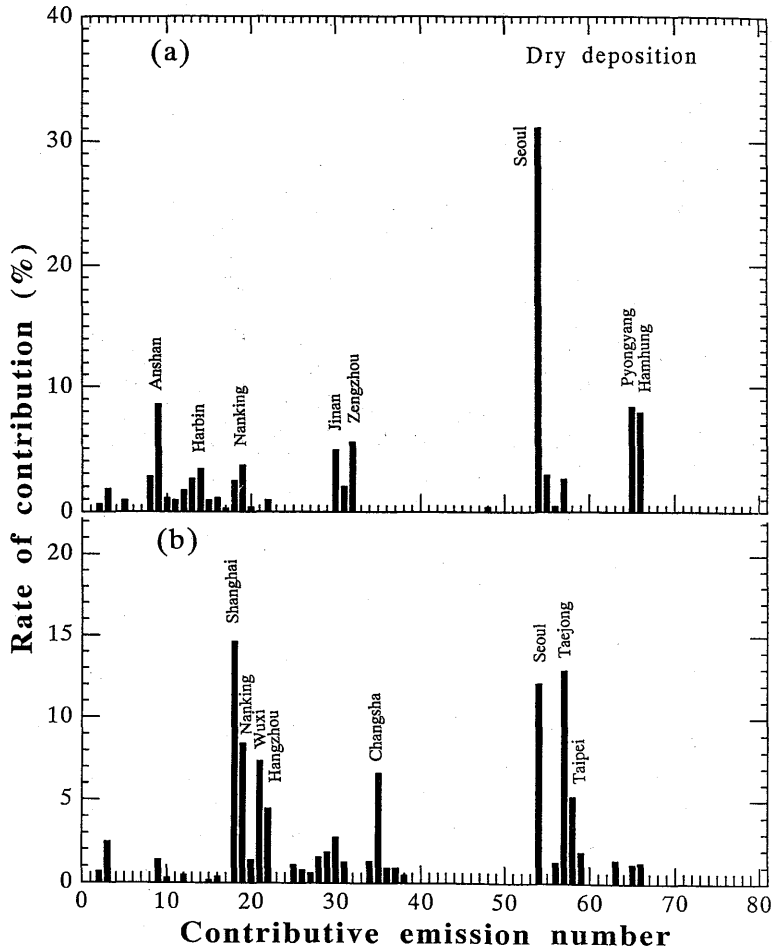


Fig. 4.6 Contribution rate to dry deposition at Kita-kyushu area originated from foreign emissions.

等からの寄与が見られる。夏季では南西方向に位置する排出源からの寄与が現れてくる。7月の上旬は夏季の典型的な太平洋高気圧が出現しており、これらの排出源からの寄与は汚染質が高気圧の縁を輸送されて来たものであろう。一方、7月の下旬には台風7号が本邦の南海上を迷走しており、韓国からの寄与は台風の影響によるものと思われる。

湿性沈着については図4.7に示されているように寄与率は小さいが、多数の排出源からの寄与がある。夏季では釜山 (Pusan), 大邱 (Taegu), 大田 (Taejon, 韓国), 石家荘 (Shijiazhuang), 武漢 (Wuhan), 貴陽 (Guiyang), 西安 (Xian, 中国) 等で、冬季では上海, 南京, 韓国の各都市からの寄与がある。湿性沈着の場合は移流・拡散の他に降水が関与し、降水域においてのみ大気中の汚染質が沈着するために輸送・沈着過程が乾性沈着の場合より複雑である。

これらの寄与率は1985年の冬季と夏季のそれぞれ1ヵ月について考察したものであり、平均的な冬季及び夏季におけるものを代表しているものではない。

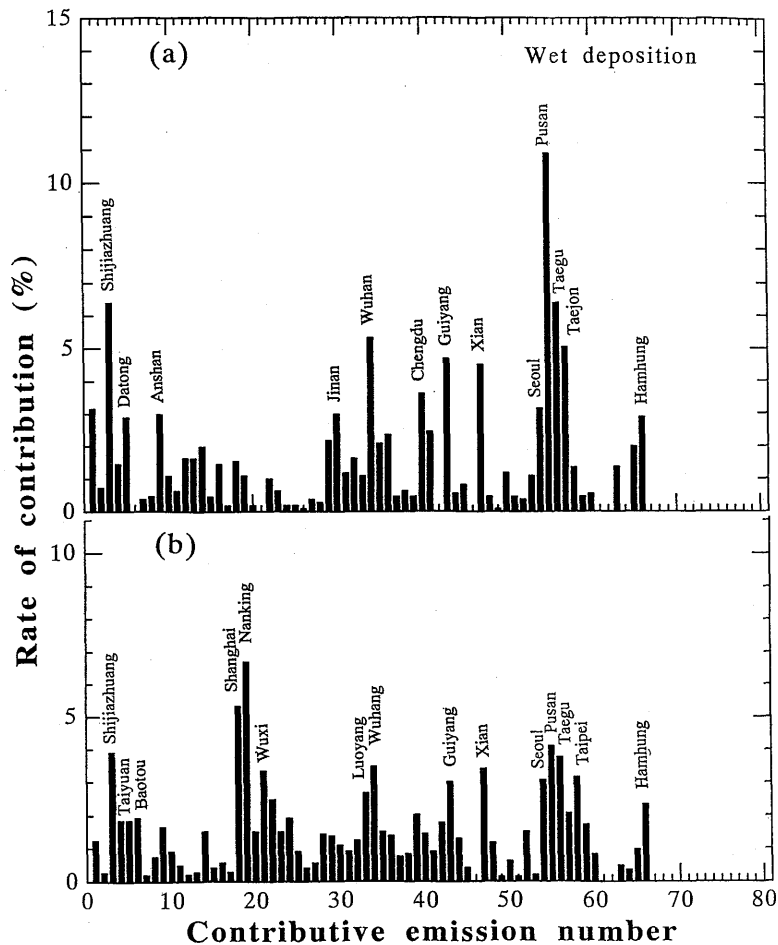


Fig. 4.7 Same as Fig. 4.4, but for wet deposition.

5. まとめ

東アジア地域における酸性沈着を評価するために、酸性沈着の主要な汚染物質である硫黄酸化物の乾性・湿性沈着及び変質過程を考慮した長距離輸送モデルの開発を行った。東アジア地域では輸送モデルに利用出来るような気象観測データが無いので、気象は数値モデルによって予測することにした。即ち、気象予測モデルと移流・拡散モデルの二つのモジュールから輸送モデルを構成した。気象予測モデルは気象庁の現業用数値予報モデルであったFLMを少し改良して用いた。移流・拡散モデルにはラグランジュ粒子を採用し、ランダムウォーク法による鉛直拡散だけを考慮した。湿性沈着にとって重要な役割を果たす降水の予測についてアメダスデータにより気象予測モデルを検証し、モデルで降水を定義するための最小降水量であるしきい値を定めた。

NAPAPの排出源データ、NADP/NTNの沈着測定データを用いて SO_4^{2-} の湿性沈着について長距離輸送モデルの検証を実施し、モデルの再現能力を確かめた。モデルによる計算結果は約70%の過小評価であったため、降水量のしきい値や降水沈着率等のパラメーターのチューニングをした。

東アジア地域における硫黄酸化物の排出源データを整理し、乾性及び湿性沈着量を推定するためのシミュレーションを1985年の1年間について実施した。計算はわが国近隣諸国の排出源による影響を調べるためにわが国の排出源を除いて行った。実測された湿性沈着量と比較すると計算による結果は1桁小さかった。即ち、実測された湿性沈着量には比較的近傍の排出源からの寄与があることが示唆された。また、北九州地域における乾性及び湿性沈着量に対する諸外国の各排出源の寄与率を冬季と夏季について調べた。冬季では乾性及び湿性沈着量とも韓国からの寄与率が圧倒的に大きいことが分かった。夏季では中国の上海や南京等の寄与が顕著であり、韓国からの寄与も見られた。

6. おわりに

東アジア地域における大気汚染物質の輸送過程を推定し、酸性沈着を評価するために応用気象研究部で開発を行っている長距離輸送モデルについて、モデルの構成や計算結果など、研究計画の第1期が終了したので、ここでいままで実施したことについて整理し、中間的な報告として記述した。モデルに取り入れた乾性及び湿性沈着過程はモデルの格子間隔や鉛直構造の分解能とも関連するので可能な限り簡略化した。大気汚染質の沈着過程に重要な役割を占める in cloud scavenging の過程がモデルには含まれていないので、これを取り入れることによってモデルを完成させる必要がある。この過程は SO₂ の雲中における過酸化水素 (H₂O₂) が介在する酸化反応だけでなく、化学反応の結果生成されたサルフェート等の微粒子が雲核として働くなど、雲物理過程と汚染質の相互作用も含まれているために非常に複雑な過程である。この過程をモデルに取り入れる必要があるため雲中における硫黄酸化物の変遷について詳細な化学反応は考慮していないがここで多少触れておいた。さらに in cloud scavenging の過程をモデルに取り入れるには、気象予測モデルに雲を表現できる雲物理過程が含まれていなければならないが、東アジア地域のような広い計算領域を必要とするモデルでは格子間隔もそれなりに粗くなり、雲物理過程は格子間隔より遥かに小さい現象となってしまう、モデルには取り入れられない。このように格子間隔が約127km の FLM では雲物理過程が含まれていないので、第1期の研究計画では湿性沈着過程は降水による沈着だけを考慮した。しかし、日本領域スペクトルモデル (JSM) では水平格子間隔が約40km、鉛直構造は23層で構成されており、300hPa の高度まで各気層毎に雲量が求められるようになっている。大気汚染質と雲の相互作用を輸送モデルに取り入れるために、先ず JSM で認識される雲に対して粒子が取り込まれるプロセスをパラメタリゼーションすることが考えられている。このパラメタリゼーションには確率過程を考慮する。しかし、JSM では計算領域が狭いので計算領域が広く東アジア地域をカバーするスペクトル FLM に JSM をネスティングすることにより、広い計算領域と高い空間分解能を得ることができる。外側のモデルと内側のモデルがスムーズに連結するようにネスティングにはスペクトル結合による方法が取られている。

謝 辞

モデルの検証を行うための硫黄酸化物の排出量及び沈着量に関する NAPAP, NADP/NTN のデータを提供して頂いた United States Environmental Protection Agency, Atmospheric Research and Exposure Assessment Laboratory の Terry L. Clark 博士に感謝の意を表す。長距離輸送モデルの中で気象予測モデルとして用いた FLM の使用の承諾、提供して頂いた気象庁予報部数値予報課、改良した FLM を提供して頂いた予報研究部の永田雅博士（現在、気象庁数値予報課）拡散モデルの基礎を作って頂いた応用気象研究部の木村富士男博士（現在、筑波大学）、またアジア地域における大気汚染質の排出源データを提供して頂いた科学技術庁政策研究所の加藤信夫氏に感謝する。

この研究は環境庁の「東アジアにおける酸性・酸化性汚染質の動態解明に関する研究」の一部として地球環境研究総合推進費によって行われた「東アジア地域における酸性雨に関連する大気汚染質の輸送に関する研究」である。

計算は気象研究所のHITAC M-280/S810によって行った。

Appendix I

本文中に気象予測モデルと拡散モデルに用いた主な記号をモデル別に分類してそのリストを示す。

A 1) 気象予測モデルにおける主な記号

m	: マップスケールファクター
u, v	: それぞれ x, y 方向の風速成分
V	: 風速ベクトル
f	: コリオリパラメーター
Φ	: 重力ポテンシャル
T	: 気温
θ	: 温位
g	: 重力による加速度
π	: 地上とモデル大気の上限の気圧差
σ	: π で基準化した気圧
$\dot{\sigma}$: 鉛直速度 ($=d\sigma/dt$)
F_u, F_v	: x, y 方向の運動量の水平拡散項
F_h, F_q	: 熱, 及び水蒸気の水平拡散項
C_p	: 乾燥空気の定圧比熱
q	: 比湿
R	: 乾燥空気の気体定数
P	: 気圧
P_s	: 地表面気圧
P_t	: モデル大気上面の気圧
P_0	: 温位を定義する基準気圧 (1000hPa)
α	: 比容
Q	: 単位質量当たりの非断熱加熱または冷却による熱の増減量
M	: 凝結, 降水または蒸発による水蒸気の単位質量当たりの増減量
q_t	: 乱流エネルギー
$\tau_{H,E}$: サブグリッドスケールの渦による運動量, 熱, 及び水蒸気の鉛直フラックス
ρ	: 空気密度
K_M, K_H, K_E	: それぞれ運動量, 熱, 水蒸気の鉛直拡散係数

R_i : リチャードソン数

A 2) 拡散モデルにおける主な記号

K_z : 粒子の鉛直拡散係数

u_* : 摩擦速度

k : カルマン定数

Ψ_h : 風のシヤーと大気安定度を表す関数

v_d : 乾性沈着速度

τ : サルフェート生成率

v_{ds} : 地表面沈着速度

r_a, r_b, r_s : 空気力学抵抗, 副気層抵抗, 地表面抵抗

D_m : 汚染質の分子拡散

H_{dep} : 乾性沈着を評価する σ 座標上の高度

$v(D_r)$: 雨滴の落下速度

$n_o(D_{so4})$: 降水前におけるサルフェート大気中濃度

$n(t, D_{so4})$: 降水開始より t 時間後の粒径 D_{so4} のサルフェートの大気中濃度

$\Lambda(D_{so4})$: サルフェートの降水沈着率

$N(D_r)$: 雨粒の基準化粒径分布 (マーシャル・パーマー分布で近似)

λ_r : 雨粒の粒径分布曲線の傾き

$\varepsilon(D_r, D_{so4})$: 粒径 D_r の雨滴が粒径 D_{so4} のサルフェートを捕捉する効率

C_{so2} : SO_2 の大気中における重量混合比

γ_{cond} : 凝結率

K_{bd} : ブラウン拡散係数

F_a : 雲核化率

q_c : 雲水量

ρ_s : 雪片の密度

q_s : 雲片の混合比

Appendix II

ここでは長距離輸送モデルによる硫黄酸化物の輸送、沈着シミュレーションを実行する手順やそのために作成したファイル等の技術的な事柄について捕捉的に述べると共に、最後に未整理ではあるが、ランダムウォークモデルを含んだ移流・拡散モデルのプログラムリストを付けた (Appendix III)。そのためにリスト中に使用されている変数名の説明を文中に適時入れておいた。

A 2 長期移流・拡散計算

長期移流・拡散計算プログラムの作成に当たっては以下の点を考慮して設計された。

- ①広域拡散計算の1ランがスーパーコンピュータ (HITAC-S810) の最小ジョブクラス内 (Q ジョブ) で終了すること。
- ②ディスク容量を一度に大きく占有しないこと。
- ③計算が再スタートできること。
- ④1ランで可能な限り多くの結果を算出し、これを保存しておくことが可能なこと。
- ⑤使用するファイル数が多いのでエラーチェック機能を持つ。
- ⑥排出源はマルチプルソースとするが、煙源はグループにわけ、1シリーズの長期計算結果をさらに重合する。

これらの条件を満足するように設計した計算システムの流れを図A.1に示した。

A 2.1 1ランの計算

移流・拡散計算の最小ランは前もって計算されている気象予測データの磁気テープ1巻に収録されるデータ量に合わせた。この結果、原則としてQジョブでの計算を最小計算期間とし、このループを図A.1で1ランとして示してある。1ランでは約9日間分移流拡散計算を実行する。即ち、気象予測データは1巻のMTに9日分収録されており、これをディスクにおとすと160MB占有する。また、複数のランから目的とする期間の計算を実行する処理を1シリーズとして示してある。

計算の入力ファイルは

- 1) 排出源ファイル (SDATA, SDATA 2)
- 2) FLMによる気象予測結果のデータファイル (@VELDATA. DATE)
- 3) 前のランの続きの大気中粒子濃度ファイル (@RWM. OLD*)

であり、このほかJCLで与える制御データである。一方、出力としては

- 1) 計算確認用リスト
- 2) 大気中粒子濃度ファイル

- 3) 粒子の沈着ファイル
- 4) 計算領域外粒子ファイル
- 5) 次のランの入力とする最終大気中粒子濃度ファイル

ここで、最終大気中粒子濃度のファイルを作成した理由はラン毎の再スタート時にディスク上に必要な領域を抑えるためであり、大気中粒子濃度ファイルの最後の時間のデータを読み込むことと同じである。

A 2.2 排出源ファイル及び粒子の発生

1ランで使用する汚染質の排出源ファイルでは表 A.1に示すパラメーターが含まれており、読み込まれた排出源データを基に粒子を発生させる手順は以下の通りである。

- ①各排出源毎の排出量から計算領域全体の総排出量 (TTL) を求める。
- ②単位時間 (DELT=10分) に発生させる全粒子数 (NQDT) を各排出源の排出強度に応じて配分する。
- ③1個の粒子が負荷する汚染質量 (トン/粒子) を決定する係数 (QINIT) を計算。(QINIT = TTL/NQDT * DELT / 3600)
- ④配分された粒子数を緯度・経度で表現された排出源の地点から $\sigma = 0.98$ の高度から発生させる。粒子には水平、鉛直方向に初期拡散幅を与える。

Table A.1 Contents of emission file.

RECORD	PARAMETERS	DESCRIPTION	REMARKS
①	SCASE MAXP QINT	EMISSION CASE NUMBER OF EMISSION EMISSION RATE LOADED TO A PARTICLE	TONS/PARTICLE
②	NO NSP PNAME BLAT BLON QH	SERIAL NUMBER EMISSION NUMBER NAME OF PARTICLE LATITUDE LONGITUDE EMISSION INTENSITY	PUT MINUS FOR WEST TONS/YEAR

A 2.3 気象予測データファイル

気象予測データファイルは前もってFLMによって1時間毎に予測した u , v , σ , ϕ , K_z , RR の格子点データを磁気テープに収録してあり、これを移流・拡散計算を実行する際にディスクに読み込む。1巻の磁気テープ (6,250bpi/2,400ft) には約9日分収録されている。ファイル名 “@VELDATA. DATE” のDATEには例として“U41231”のように書かれるが、これはアメリカを対象とした1984年12月31日を意味している。

A 2.4 計算結果出力ファイル

大気中、沈着、領域外の粒子の各ファイルとも同じ形式で出力する。表 A.2に出力ファイルの内容を示しておく。

Table A.2 Contents of the output file.

RECORD	CONTENTS
1	[HEADER] AREA CASE CSEG PLI PLJ STDAY NCALST NCALED INTDAY NVOL
2	[GIVEN PARAMETERS] SIGH SIGV VDEP WDEP
3	[SOURCE EMISSION (1)] MAXP QINT
4	[SOURCE EMISSION (2)] NSP(1) BLAT(1) BLON(1) ZZQ(1) QH(1) KOS(1), I=1, MAXP
5	[DATA ON NUMBER OF PARTICLES] NNP N1DEP NOUT
6 ~	[POSITION, EMISSION NUMBER, ATTRIBUTE OF PARTICLES] P(1,N) P(2,N) P(3,N) IFEP(N) IDEP(N)

レコード1はヘッダーであり、変数名は以下の通りである。

AREA : 計算値域の認識であり, [USA], [ASIA] など

CASE : 計算ケースの認識, [WS01ST01], WINTER SEASON CASE-01 SOURCE TYPE-01

CDEG : 計算領域パラメーター, USA では-80

PLI : 同上 46

PLJ : 同上 -14

NSTDAY : 計算開始月日

NCALST : 1 ラン毎の最終計算開始月日

NCALED : 1 ラン毎の最終計算終了月日

INTDAY : 計算積分日数

NVOL : 最終ファイルの通し番号 $NVOL = (NCALED - NCALST) / INTDAY$

レコード2は計算に与えたパラメーター情報を示している。

SIGH : 初期水平拡散幅

SIGV : 初期鉛直拡散幅

VDEP : 乾性沈着速度

WDEP : 降水による湿性沈着率

レコード3は排出源情報を示す。

MAXP : 排出源の地点数

QINT : 粒子1個が負荷する排出強度

レコード4も排出源情報である。

NSP(I) : 排出源番号, 1~80

BLAT(I) : 排出源の位置を示す緯度

BLON(I) : 排出源の位置を示す経度

ZZQ(I) : 排出源の高度を σ 座標系で表している

QH(I) : 汚染質の排出強度 (トン/年)

レコード5は粒子の個数データである。

NNP : 計算領域の大气中で移流拡散している粒子数

N1DEP : 沈着した粒子数

NOUT : 計算領域の外に出た粒子数

レコード6以降はそれぞれの粒子の位置, 排出源番号, 粒子の属性等を示す。

P(1,N), P(2,N), P(3,N) : 粒子の座標位置

IFEP(N) : 排出源番号

IDEP(I) : 粒子の属性 (大气中, 湿性沈着, 乾性沈着, 領域外)

Appendix III

DISPERSION MODEL (VER.4) CODE LISTINGS

The copyright of this model belongs to the Meteorological Research Institute.

```

C *****
*PROCESS DCOM, COMARY                                00000100
C RWMODV4 FOR ACID RAIN SIMULATION IN NORTH AMERICA 00000121
C   RESTART                                           21
   PARAMETER(IM=73, JM=55, KM=16, DELXY=127. E3)      00000100
CCC  PARAMETER (NM=30000, PAI=3. 1416, DELT=600, NQDT=20) 00000128
CC   PARAMETER (NM=40000, PAI=3. 1416, DELT=600, NQDT=35) 00000130
   PARAMETER (NM=40000, PAI=3. 1416, DELT=600, NQDT=29) 00000130
C   NQDT:PARTICLE RELEASED IN DELT                    00
C   IF NQDT=20, THEN NUMBER OF PARTICLE IS 28800 IN 10 DAYS 00
C   IF NQDT=35, THEN NUMBER OF PARTICLE IS 50400 IN 10 DAYS 28
C   ITT: MAX INTEGRATION DAY                          00
C RWMGCM1                                             00000100
C *****
C * RANDOM WALK MODEL BASED ON S. R. DIEHL(1982) J. A. M. 69-83. * 00000100
C *   FINMESH 1                                     JUNE 13, 1986 * 00000100
C *****
C * FOR ACID RAIN ARRANGE (IMOC/YM) * 00
C *   1990. 6. 28 SOURCE POINT IS VARIABLE * 00
C *   1990. 11. 19 SIGV=(1. 0-ZQ)*0. 5 * 00
C *   1992. 03. 24 SO2->SO4 , VD IS VARIVALE OF SURFACE CONDITION* 53
C *   NEW VAR. >> REGION, LAND, RCRT, CKT, VD(N), WD(N), DSO2, DSO4 * 53
C *   WSO2, WSO4, PSO2, PSO4, DSO2L, DOS2W, DSO4L, DSO4W * 53
C *   WSO2L, WSO2W, WSO4L, WSO4W * 53
C *****
C   INTEGER*2 IDA1(IM, JM), IDA2(IM, JM), IDA3(IM, JM), 00000100
   1 IDA4(IM, JM) 00000200
C   1 IDA4(IM, JM), IDA5(IM, JM) 00000200
   COMMON/A/ PS(IM, JM), PSD(IM, JM) 00000200
   COMMON/B/ U(IM, JM, KM), V(IM, JM, KM), SIGD(IM, JM, KM), 00000200
   * DIFK(IM, JM, KM), WK1(IM, JM, KM), AMAP(IM, JM) 00000200
   COMMON/A/ RC(IM, JM), RL(IM, JM) 00000200
   DIMENSION IA(IM, JM), ID(5), IDST(3), JD(5) 00000202
C   ID 1=YEAR 2=MON 3=DAY 4=HOUR 5=DAY OF WEEK 00
C   IDST:SIMULATION START DATE SAME AS ID(1-3) 00
   COMMON/D/ WORK1(IM, JM), WORK2(IM, JM), WORK3(IM, JM), XXX(NM) 00000200
   DIMENSION SIGM(KM), SIGMK(KM+1), ZZQ(NQDT), XXQ(NQDT) 00000200
   * , BLON(NQDT), BLAT(NQDT), NSP(NQDT), YYQ(NQDT) 00
   * , BLON2(NQDT), BLAT2(NQDT), NSP2(NQDT), ZZQ2(NQDT) 00
   CHARACTER*80 COMENT 00000200
   CHARACTER AREA*3, CASE*8, ARE2*3, CAS2*8 00
   COMMON/P/ P(3, NM), PP(3, NM), DP(3, NM), NC(100), INFP(NM), IDEP(NM) 00000200
C   : POSITION VECTOR UNIT: METER 00000200
   DIMENSION X(NM) 00000303

```

```

C          VELOCITY COMPONENT OR VERTICAL DK OF THE PARTICLES          00000300
C----- 1992.2                                                         53
          DIMENSION LAND(IM, JM), DSO2(2), DSO4(2), WSO2(2), WSO4(2)    53
          *          , VD(NM), WD(NM)                                     53
C----- 1992.2                                                         53
          INTEGER*4 NRAN(NM+20)                                         00000300
C          RANDOM VARIABLE 1 OR -1                                       00000300
C          MONTH FOR 1984-1985                                           00
C          +++ SIGMK: VERTICAL LEVEL ON THE SIGMA COORDINATE+++++++
          DATA SIGMK/                                                  00000300
          * 1.000, 0.990, 0.970, 0.940, 0.900, 0.850, 0.790, 0.720,    00000300
          * 0.640, 0.550, 0.450, 0.350, 0.250, 0.150, 0.100, 0.050,    00000300
          * 0./                                                         00000300
C          CKT CONVERSION RATE OF SO4 FORM SO2( /SEC)                   53
          DATA LAND/IJM*1/                                             53
          RG=6.371E6                                                     00000300
C *****INITIALIZATION*****                                          00000300
          READ(5,11) AREA, CASE                                         00
          11 FORMAT(A3,1X,A8)                                           00
          WRITE(6,600) 'ACID RAIN SIMULATION INPUT PARAMETER LIST'     00
          600 FORMAT(1H,'-----',A45,'-----')                       00
          WRITE(6,610) AREA, CASE                                       00
          610 FORMAT(1H,/, ' AREA: ',A3, ' CASE:',A8)                   15
          READ(5,*) CDEG, PLI, PLJ, INTDAY                               00000400
          WRITE(6,620) CDEG, PLI, PLJ, INTDAY                           00000400
          620 FORMAT(1H, ' CDEG=',F8.2, ' PLI=',F8.2, ' PLJ=',F8.2, ' INTDAY=',I3) 00
          READ(5,*) SIGH, SIGV, CKT, RCRT, INTOUT, IDKOUT              00000454
          WRITE(6,630) SIGH, SIGV, CKT, RCRT, INTOUT, IDKOUT          53
          630 FORMAT(1H, ' SIGH=',F10.2, ' SIGV=',F8.2,                35
          * ' SO2-SO4=',E12.5, ' RAIN=',F12.6, ' OUTPUT LST=',I3, ' DSK=',I3) 57
C          READ(5,*) SIGH, SIGV, VDEP, WDEP, INTOUT, IDKOUT           00000421
C          WRITE(6,630) SIGH, SIGV, VDEP, WDEP, INTOUT, IDKOUT        21
C          630 FORMAT(1H, ' SIGH=',F10.2, ' SIGV=',F8.2,              21
C          * ' VDEP=',F12.5, ' WDEP=',E12.5, ' OUTPUT LST=',I3, ' DSK=',I3) 21
          READ(5,*) (IDST(I), I=1,3), NVOL                             00
          WRITE(6,640) IDST, NVOL                                       00
          640 FORMAT(1H, ' SIMULATION START DATE:',I5,I3, '/',I2, ' FILE NO=',I2) 00
          NSTDAY=10000*IDST(1)+100*IDST(2)+IDST(3)                    00
C          SIGV IS DEFINED LATER                                         00
C          READ(5,*) ALON, ALAT, SIGQ                                    00000400
C          WRITE(6,*) ALON, ALAT, SIGQ                                  00000400
C          READ(5,*) IHQS, IHQE, MQ, VDEP, WDEP                        00000400
C          WRITE(6,*) IHQS, IHQE, MQ, VDEP, WDEP                       00000400
          READ(5,*,END=21) MTOLD                                        00000400
          GO TO 22                                                       00000400
C***** MTOLD IS ATM. FILE BEFORE THIS PERIOD *****                00
          21 MTOLD=0                                                    00000400
          22 CONTINUE                                                  00000500
C-----                                                                00

```

```

C ***** READ LAND USE FILE 1992.2 *****
      READ(2,380) REGION
      WRITE(6,*) REGION
380 FORMAT(A20)
      ++++++
C   DSO2L, DSO2W: DRY DEPOSITION VELOCITY OF SO2 OVER LAND AND WATER (CM/SEC)
C   WSO2L, WSO2W: WET DEPOSITION RATE OF SO2 OVER LAND AND WATER
C   WSONL=WSO2W=3.0E-5(1/SEC)
C   ++++++
      READ(2,381) DSO2L,DSO2W,DSO4L,DSO4W,WSO2L,WSO2W,WSO4L,WSO4W
381 FORMAT(8F9.5)
      READ(2,383) ((LAND(I,J),I=1,73),J=1,55)
383 FORMAT(2X,73I1)
C
      WRITE(6,481) DSO2L,DSO2W,DSO4L,DSO4W,WSO2L,WSO2W,WSO4L,WSO4W
481 FORMAT(1H,8F9.5)
      WRITE(6,483) ((LAND(I,J),I=1,73),J=1,55)
483 FORMAT(1H,2X,73I1)
C
      DSO2(1)=DSO2L
      DSO2(2)=DSO2W
      DSO4(1)=DSO4L
      DSO4(2)=DSO4W
C
      WSO2(1)=WSO2L
      WSO2(2)=WSO2W
      WSO4(1)=WSO4L
      WSO4(2)=WSO4W
C
      CALL QMAKE(NSP,NQDT,BLAT,BLON,ZZQ,QINT,DELT)
      WRITE(6,167)
167 FORMAT(1H1)
C   1990.11/26 ADD BELOW
C   SOURCE POSITION
      DO 33 J=1,NQDT
      ALON=BLON(J)
      ALAT=BLAT(J)
      RAMD=AMOD(ALON+630.-CDEG,360.)*PAI/180.
      PHAI=ALAT*PAI/180.
      AMAPS=(1+SIN(PAI/3))/(1+SIN(PHAI))
      AMS=RG*AMAPS*COS(PHAI)
      XQ=AMS*COS(RAMD)
      YQ=AMS*SIN(RAMD)
      XXQ(J)=XQ+(PLI-1.)*DELXY-DELXY/2.
      YYQ(J)=-YQ-(1-PLJ)*DELXY-DELXY/2.
33 CONTINUE
C -----
C   VDEP: DEPOSITION VELOCITY IN M/SEC
C   IF(ALON.LT.0.) ALON=ALON+360.
C   AAA=0.

```



```

DO 30 K=1, KM                                00000500
30 SIGM(K)=0.5*(SIGMK(K)+SIGMK(K+1))          00000500
C                                               00000515
  NREL=0                                        00000515
C   : NUMBER OF RELEASE PARTICLES              00000515
  NP=0                                         00000500
C   : NUMBER OF ACTIVE PARTICLES              00000500
  NDEP=0                                       00000500
  NSOUT=0                                      00000500
C   : NUMBER OF DEPOSITED PARTICLES           00000600
  SEC=0.                                       00000600
C*****RESTART*****                          00000600
  IF(NVOL.LE.1) GO TO 34                        00
C   IF START, SKIP READING FILE                00
  READ(MTOLD) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
  READ(MTOLD) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2        00
  READ(MTOLD) MAXP2, QINT2                      00
  READ(MTOLD) (NSP2(1), BLAT2(1), BLON2(1), ZZQ2(1), I=1, NQD2) 00
  WRITE(6,*) '----- INPUT DATA CHECK -----' 06
  WRITE(6,450) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
450 FORMAT(1H, 'ARE2=', A3, 'CAS2=', A8, 'CDE2=', F6.1, 00
*   'PLI2=', F6.1, 'PLJ2=', F6.1, 'NSTDA2=', I4, 'INTDA2=', I4, 05
*   'NVO2=', I4, 'NQD2=', I2) 05
  WRITE(6,452) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2        00
452 FORMAT(1H, 'SIGH2=', F8.1, 'SIGV2=', F8.1, 'VDEP2=', F10.5 00
*   ', 'WDEP2=', F10.5) 00
  WRITE(6,454) MAXP2, QINT2                      00
454 FORMAT(1H, 'MAXP2=', I5, 'QINT2=', F15.5) 00
  WRITE(6,456) (NSP2(1), BLAT2(1), BLON2(1), ZZQ2(1), I=1, NQD2) 00
456 FORMAT(1H, I10, 3F10.2) 06
C   CHECK HEADER                                00
  IERR=0                                         00
  IF(AREA.NE.ARE2) IERR=IERR+1                 00
  IF(CASE.NE.CAS2) IERR=IERR+1                 00
  IF(CDEG.NE.CDE2) IERR=IERR+1                 00
  IF(PLI.NE.PLI2) IERR=IERR+1                  00
  IF(PLJ.NE.PLJ2) IERR=IERR+1                  00
  IF(NSTDAY.NE.NSTDA2) IERR=IERR+1             00
  IF(NQDT.NE.NQD2) IERR=IERR+1                 00
  IF(QINT.NE.QINT2) IERR=IERR+1                27
  IF(IERR.GE.1) THEN                             00
    WRITE(6,*) 'FILE DOES NOT MATCH THIS CALCULATION ERR=', IERR 00
    STOP                                          00
  END IF                                         00
C   WRITE HEADER INFORMATION IN EACH FILE       00
  WRITE(60) SIGH, SIGV, CKT, RCRT                54
*   , DSO2L, DSO2W, DSO4L, DSO4W, WSO2L, WSO2W, WSO4L, WSO4W 54
  WRITE(60) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
  WRITE(60) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2          00
  WRITE(60) MAXP2, QINT2                        00

```

```

WRITE(60) (NSP2(I), BLAT2(I), BLON2(I), ZZQ2(I), I=1, NQD2) 00
WRITE(61) SIGH, SIGV, CKT, RCRT 54
*, DSO2L, DSO2W, DSO4L, DSO4W, WSO2L, WSO2W, WSO4L, WSO4W 54
WRITE(61) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
C WRITE(61) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2 00
WRITE(61) MAXP2, QINT2 00
WRITE(61) (NSP2(I), BLAT2(I), BLON2(I), ZZQ2(I), I=1, NQD2) 00
WRITE(62) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
WRITE(62) SIGH, SIGV, CKT, RCRT 54
*, DSO2L, DSO2W, DSO4L, DSO4W, WSO2L, WSO2W, WSO4L, WSO4W 54
C WRITE(62) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2 00
WRITE(62) MAXP2, QINT2 00
WRITE(62) (NSP2(I), BLAT2(I), BLON2(I), ZZQ2(I), I=1, NQD2) 00
IF(MTOLD.NE. 0) THEN 00000600
24 READ(MTOLD, END=26) (JD(I), I=1, 4), AKT, NP 00000602
READ(MTOLD) NP, NSOUT, NDEP, NWDEPT, NREL, JTTL 00000621
WRITE(6, *) ' NP=', NP, ' NSOUT=', NSOUT, ' NDEP=', NDEP, 00000716
* ' NREL=', NREL, ' NWDEPT=', NWDEPT, ' JTTL=', JTTL 21
KLM=0 17
DO 1810 N=1, NP 00000700
KLM=KLM+1 07
C WRITE(6, *) ' KLM=', KLM 21
1810 READ(MTOLD) P(1, N), P(2, N), P(3, N), INFP(N), IDEP(N) 00000700
DO 1820 N=1, NP 00000726
IF(N.LT. 60) 26
*WRITE(6, 1888) N, P(1, N), P(2, N), P(3, N), INFP(N), IDEP(N) 00000726
1820 CONTINUE 00000826
1888 FORMAT(1H , I5, 3F12. 3, 2I10) 00000809
C SEC=SEC+24. *3600. 00000800
WRITE(6, *) ' KLM=', KLM 07
CCC GO TO 24 00000808
26 CONTINUE 00000800
KKT=NINT(AKT) 00000802
WRITE(6, 2299) (JD(I), I=1, 4), KKT, NP 00000802
2299 FORMAT(' RESTART AT', I4, 3I3, ' KT=', I3, ' NP=', I5) 00000800
END IF 00000800
34 CONTINUE 00
C***** 00000802
CALL TRNDAT(KKT, JD, NEN, MON, NIC, JIK) 02
WRITE(6, 8011) NEN, MON, NIC, JIK 02
8011 FORMAT(1H , /, ' INPUT PARTICLE LOCATION DATE:', I4, I3, ' /', I2, 09
* I3) 02
WRITE(6, *) ' INPUT DATA CHECK' 02
CALL PRRSLT(NM, NP, NDEP, NSOUT, DELXY, P, INFP) 04
C***** 00000800
ISEND=3600./DELT+. 01 00000900
C UNIT=M**2/S 00000900
C 00000900
C ===== 00001000
C 00001000

```

```

* 00001000
* METEOROLOGICAL DATA WAS MADE AT AKT, BUT WE ASSUMED IT 00001000
* WAS MADE AT KT 00001000
* 00001000
  KKKT=KKT+1 11
  CALL TRNDAT(KKKT, JD, NEN, MON, NIC, JIK) 11
  WRITE(6, 8012) NEN, MON, NIC, JIK 09
8012 FORMAT(1H ,/, ' INPUT PARTICLE LOCATION DATE+1:', I4, I3, '/', I2, 09
* 13) 09
  MK=20 00001000
2 READ(MK) ID, AKT, AMAP, RC, RL 00001000
  KT=NINT(AKT) 00001000
C WRITE(6, *) '=====>', ID, ' KT=', KT 16
  CALL TRNDAT(KT, ID, NEN2, MON2, NIC2, JIK2) 10
C WRITE(6, *) 'NEN2=', NEN2, ' MON2=', MON2, ' NIC2=', NIC2, ' JIK2=', JIK2 14
  IF(MTOLD.EQ.0) GO TO 18 02
  IF(NEN.NE.NEN2) STOP 10
  IF(MON.NE.MON2) STOP 10
  IF(NIC.NE.NIC2) STOP 10
  IF(JIK.NE.JIK2) STOP 10
  MTOLD=0 02
18 CONTINUE 02
  IF(KT.LT.12) THEN 00001000
  DO 19 K=1, KM 00001000
  READ (MK) 00001000
19 CONTINUE 00001000
  GOTO 2 00001000
  END IF 00001000
1 DO 20 K=1, KM 00001100
  READ(MK) BASE1, AMP1, ((IDA1(I, J), I=1, IM), J=1, JM), 00001100
2 BASE2, AMP2, ((IDA2(I, J), I=1, IM), J=1, JM), 00001100
3 BASE3, AMP3, ((IDA3(I, J), I=1, IM), J=1, JM), 00001100
4 BASE4, AMP4, ((IDA4(I, J), I=1, IM), J=1, JM) 00001100
* 5 BASE5, AMP5, ((IDA5(I, J), I=1, IM), J=1, JM) 00001100
  DO 20 I=1, IM 00001100
  DO 20 J=1, JM 00001100
    U (I, J, K)=AMP1*IDA1(I, J)+BASE1 00001100
    V (I, J, K)=AMP2*IDA2(I, J)+BASE2 00001100
    SIGD(I, J, K)=AMP3*IDA3(I, J)+BASE3 00001200
    DIFK(I, J, K)=AMP4*IDA4(I, J)+BASE4 00001200
* PHAI(I, J, K)=AMP5*IDA5(I, J)+BASE5 00001200
20 CONTINUE 00001200
C ++++++ 00001200
C BASE1:
  IF(KT.GE.35) MK=MK+1 00001200
C*****CONVERT FROM U, V TO UMAP, VMAP ***** 00001300
  DO 200 J=1, JM-1 00001300
  DO 200 I=1, IM-1 00001300
  WORK1(I, J)=(AMAP(I, J)+AMAP(I+1, J)+AMAP(I, J+1)+AMAP(I+1, J+1))/4. 00001300

```

```

200 CONTINUE                                00001400
DO 250 K=1, KM                              00001400
DO 220 J=1, JM-1                            00001400
DO 220 I=1, IM-1                            00001400
WORK2(I, J)=(SIGD(I, J, K)+SIGD(I+1, J, K)
1      +SIGD(I, J+1, K)+SIGD(I+1, J+1, K))/4. 00001400
WORK3(I, J)=(DIFK(I, J, K)+DIFK(I+1, J, K)
1      +DIFK(I, J+1, K)+DIFK(I+1, J+1, K))/4. 00001400
220 CONTINUE                                00001400
DO 250 J=1, JM-1                            00001400
DO 250 I=1, IM-1                            00001500
U(I, J, K)=U(I, J, K)*WORK1(I, J)          00001500
V(I, J, K)=V(I, J, K)*WORK1(I, J)          00001500
SIGD(I, J, K)=WORK2(I, J)                  00001500
DIFK(I, J, K)=WORK3(I, J)                  00001500
250 CONTINUE                                00001500
DO 260 J=1, JM                              00001500
DO 260 I=1, IM                              00001500
RC(I, J)=RC(I, J)+RL(I, J)                 00001500
IF(RC(I, J).GE.RCRT) THEN                   00001554
CC IF(RC(I, J).GE.0.5) THEN RCRT=0.5 FOR USA CALCULATION 00001554
CCC IF(RC(I, J).GE.1.) THEN                 00001549
CCC IF(RC(I, J).GE.0.05) THEN              00001550
      RC(I, J)=1.                           00001500
      ELSE                                    00001500
      RC(I, J)=0.                           00001500
      END IF                                 00001500
260 CONTINUE                                00001500
C *****                                00001500
C ***** DIFFUSION MODEL *****          00001500
C *****                                00001500
C +++++ MAIN LOOP +++++                   00001500
      JTTL=JTTL+1                            00001621
      DO 5000 ISTEP=1, ISEND                 00001600
      SEC=SEC+DELT                           00001600
      SF1=SIGH*AMAPS                          00001700
C ----- NEW PARTICLE -----              00
C      DO 1010 N=1, NQ+NNN                   00001700
      DO 1010 N=1, NQDT                       00001700
      NREL=NREL+1                             15
      NP=NP+1                                 00001700
1015 RAN1=RANDG(SF1)                          00001700
      RAN2=RANDG(SF1)                          00001700
      SRAN=(RAN1/SF1)**2+(RAN2/SF1)**2        00001700
      IF(SRAN.GT.4.) GOTO 1015                00001800
      XQ=XXQ(N)                               00
      YQ=YYQ(N)                               00
      ZQ=ZZQ(N)                               00
      SIGV=(1.0-ZQ)*0.5                       00
      P(1, NP)=XQ+RAN1                        00001800

```

```

P(2, NP)=YQ+RAN2                                00001800
P(3, NP)=ZQ+RANDG(SIGV*(1.-ZQ))                 00001800
CCC UNIFORM BETWEEN 0-ZQ                          00
CCC CALL RANDU(BB, 1)                             00
CCC P(3, NP)=1.0-(1.0-ZQ)*BB(1)                 00001800
* IDEP(NP)=0                                       00001800
  IF(P(3, NP).GT.1.) P(3, NP)=2.-P(3, NP)        00001800
C WRITE(41, 1009) N, P(3, NP), ID(2), ID(3), KT  00001800
C IDEP(NP)=1                                       00001800
C 1992.2 SAVE SOURCE NO.&RELEASE TIME              53
  IDEP(NP)=NSP(N)*1000                            00001859
  INFP(NP)=INT(SEC/DELT)                          00001853
C INFP:SOURCE NUMBER                              00
C INFP(NP)=NSP(N)                                00001853
C INFP(NP)=INT(SEC)                              00001800
C INFP:SOURCE NUMBER                              00
C INFP(NP)=NSP(N)                                00001800
1009 FORMAT(I6, F6.3, 3I2)                       00001800
1010 CONTINUE                                     00001900
1900 CONTINUE                                     00001900
C ----- 00
C ****ADVECTION 1***** 2000-2999                00001900
C REPRACE                                         00001900
  DO 2100 L=1, 3                                  00001900
  DO 2100 N=1, NP                                  00001900
2100 PP(L, N)=P(L, N)                             00001900
C ADVECTION                                       00001900
  CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, U, SIGM, DELXY) 00001900
  DO 2200 N=1, NP                                  00001900
  DP(1, N)=X(N)*DELT                              00002000
2200 P(1, N)=PP(1, N)+DP(1, N)                   00002000
  CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, V, SIGM, DELXY) 00002000
  DO 2210 N=1, NP                                  00002000
  DP(2, N)=-X(N)*DELT                             00002000
2210 P(2, N)=PP(2, N)+DP(2, N)                   00002000
  DO 2201 N=1, NP                                  00002000
C ARRANGE 1992.2                                  53
  IF(P(1, N).GT.DELXY*(IM-1)) IDEP(N)=-9000000-IDEP(N) 00002059
  IF(P(1, N).LT.0.) IDEP(N)=-9000000-IDEP(N)      00002059
  IF(P(2, N).GT.DELXY*(JM-1)) IDEP(N)=-9000000-IDEP(N) 00002059
  IF(P(2, N).LT.0.) IDEP(N)=-9000000-IDEP(N)      00002159
C IF(P(1, N).GT.DELXY*(IM-1)) IDEP(N)=-9         00002000
C IF(P(1, N).LT.0.) IDEP(N)=-9                   00002000
C IF(P(2, N).GT.DELXY*(JM-1)) IDEP(N)=-9         00002000
C IF(P(2, N).LT.0.) IDEP(N)=-9                   00002100
2201 CONTINUE                                     00002100
  CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, SIGD, SIGMK, DELXY) 00002100
  DO 2220 N=1, NP                                  00002100
  DP(3, N)=X(N)*DELT                              00002100
2220 P(3, N)=PP(3, N)+DP(3, N)                   00002100

```

```

C
C ****ADVECTION 2***** 3000-3999
C SIMPLIFIED RUNGE KUTTA METHOD
CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, U, SIGM, DELXY)
DO 3200 N=1, NP
3200 P(1, N)=PP(1, N)+0.5*( DP(1, N)+X(N)*DELT )
CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, V, SIGM, DELXY)
DO 3210 N=1, NP
3210 P(2, N)=PP(2, N)+0.5*( DP(2, N)-X(N)*DELT )
CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, SIGD, SIGMK, DELXY)
DO 3220 N=1, NP
3220 P(3, N)=PP(3, N)+0.5*( DP(3, N)+X(N)*DELT )
DO 2202 N=1, NP
C ARRANGE 1992. 2
IF(P(1, N).GT.DELXY*(IM-1)) IDEP(N)=-9000000-IDEP(1)
IF(P(1, N).LT.0. ) IDEP(N)=-9000000-IDEP(1)
IF(P(2, N).GT.DELXY*(JM-1)) IDEP(N)=-9000000-IDEP(1)
IF(P(2, N).LT.0. ) IDEP(N)=-9000000-IDEP(1)
C IF(P(1, N).GT.DELXY*(IM-1)) IDEP(N)=-9
C IF(P(1, N).LT.0. ) IDEP(N)=-9
C IF(P(2, N).GT.DELXY*(JM-1)) IDEP(N)=-9
C IF(P(2, N).LT.0. ) IDEP(N)=-9
2202 CONTINUE
C ****DIFFUSION***** 4000-4999
C HORIZONTAL DIFFUSION
C CALL RANDA(NRAN, NP)
C DO 4100 N=1, NP
C4100 P(1, N)=P(1, N)+NRAN(N)*SQRT(2.*DELT*DH)
C CALL RANDA(NRAN, NP)
C DO 4200 N=1, NP
C4200 P(2, N)=P(2, N)+NRAN(N)*SQRT(2.*DELT*DH)
C DEPOSITTED PARTICLE
DO 4350 N=1, NP
IF(IDEP(N).GE.1) GO TO 4350
P(1, N)=PP(1, N)
P(2, N)=PP(2, N)
P(3, N)=PP(3, N)
4350 CONTINUE
C VERTICAL DIFFUSION
DO 5000 KKK=1, 5
DDD=DELT/5.
CALL RANDA(NRAN, NP)
CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, DIFK, SIGMK, DELXY)
DO 4300 N=1, NP
PP(3, N)=P(3, N)
P(3, N)=P(3, N)+NRAN(N)*SQRT(2.*DDD*X(N) )
4300 IF(P(3, N).GT.1. ) P(3, N)=2.-P(3, N)
CALL INTAPO(X, P, NP, IM, JM, KM, DIFK, SIGMK, DELXY)
DO 4301 N=1, NP
P(3, N)=PP(3, N)+NRAN(N)*SQRT(2.*DDD*X(N) )

```

```

4301 IF(P(3,N).GT.1.) P(3,N)=2.-P(3,N) 00002600
C   DEPOSITED PARTICLE 00002600
    DO 4360 N=1,NP 00002600
      IF(IDEP(N).LT.1) P(3,N)=PP(3,N) 00002600
4360 CONTINUE 00002600
C *****DEPOSITION***** 00002600
    HDEP=100. 00002600
C   PDEP=VDEP/HDEP*DDD 00002653
    CALL RANDU(XXX,NP) 00002600
C ***** DRY DEPOSITION COEFFICIENT SETTING ***** 53
    DO 4390 N=1,NP 53
      PS04=(SEC-FLOAT(INFP(N))*DELTA)*CKT 53
      IF(PS04.GT.0.9) PS04=0.9 70
      PS02=1.0-PS04 53
C 53
      IN= P(1,N)/DELXY+0.5+1 53
      JN= P(2,N)/DELXY+0.5+1 53
      IF(IN.LE.0.OR.IN.GT.IM.OR.JN.LE.0.OR.JN.GT.JM) THEN 53
        VD(N)=PS02*DSO2(2)+PS04*DSO4(2) 53
      ELSE 53
        VD(N)=PS02*DSO2(LAND(IN,JN))+PS04*DSO4(LAND(IN,JN)) 53
      END IF 53
C   IF(MOD(N,500).EQ.1) WRITE(6,*) 'DRY:',N,PS04*100,IDEP(N) 69
      IF(IDEP(N).GT.0) 67
      *IDEP(N)=INT(IDEP(N)/1000)*1000+INT(PS04*100.0) 67
C   IDEP(N)=INT(IDEP(N)/1000)*1000 64
4390 CONTINUE 53
    DO 4400 N=1,NP 00002700
      PDEP=VD(N)/HDEP*DDD 00002653
      IF(P(3,N).LT.0.99) GO TO 4400 00002700
      IF(IDEP(N).GE.1.AND.XXX(N).LT.PDEP) IDEP(N)=-1000000-IDEP(N) 00002759
4400 CONTINUE 00002700
5000 CONTINUE 00002700
C *****WET DEPOSITION***** 00002700
C   PDEP=WDEP*DELTA 00002853
    CALL INTAPO2(X,P,NP,IM,JM,RC,DELXY) 00002800
    CALL RANDU(XXX,NP) 00002800
C ***** WET DEPOSITION COEFFICIENT SETTING ***** 53
    DO 5050 N=1,NP 53
      PS04=(SEC-FLOAT(INFP(N))*DELTA)*CKT 53
      IF(PS04.GT.0.9) PS04=0.9 70
      PS02=1.0-PS04 53
C 53
      IN= P(1,N)/DELXY+0.5+1 53
      JN= P(2,N)/DELXY+0.5+1 53
      IF(IN.LE.0.OR.IN.GT.IM.OR.JN.LE.0.OR.JN.GT.JM) THEN 53
        WD(N)=PS02*WSO2(2)+PS04*WSO4(2) 53
      ELSE 53
        WD(N)=PS02*WSO2(LAND(IN,JN))+PS04*WSO4(LAND(IN,JN)) 53
      END IF 53

```

```

C      IF(MOD(N,2000).EQ.1) WRITE(6,*) 'WET:',N,PSO4*100,IDEP(N)          69
      IF(IDEP(N).GT.0)                                                    66
      *IDEP(N)=INT(IDEP(N)/1000)*1000+INT(PSO4*100.0)                    66
5050 CONTINUE                                                            53
      DO 5100 N=1,NP                                                       00002800
      PDEP=WD(N)*DELTA                                                    00002853
      IF(IDEP(N).GE.1.AND.XXX(N).LT.PDEP*X(N)) IDEP(N)=-2000000-IDEP(N) 00002859
5100 CONTINUE                                                            00002800
5002 CONTINUE                                                            00002900
C ====END OF MAIN LOOP =====+ 00002900
C ***OUTPUT***** 6000-6999                                             00002900
C      WRITE(6,*) 'AKT=',AKT,' KT=',KT,' ZQ=',                          00
C      * ZQ,' SIGV=',SIGV,' SIGH=',SIGH,' ALAT=',ALAT                  00
C      * , ' ALON=',ALON                                                 00
C      IF( NP.NE.0 .AND. MOD(NINT(AKT),INTOUT).EQ.0) THEN                00002921
      LFLAG=0                                                              21
      IF( NP.NE.0 .AND. MOD(NINT(AKT+1.),IDKOUT).EQ.0) LFLAG=1           00002921
      IF( NP.NE.0 .AND. MOD(NINT(AKT+1.),INTOUT).EQ.0) LFLAG=2           00002921
      IF(LFLAG.GE.1) THEN                                                23
      NDDEP=0                                                              00002900
      NWDEP=0                                                              00002900
      NOUT=0                                                                00002900
      DO 4401 N=1,NP                                                       00002900
C      IF(IDEP(N).EQ.-1) NDDEP=NDDEP+1                                    00002900
C      IF(IDEP(N).EQ.-2) NWDEP=NWDEP+1                                    00002900
C      IF(IDEP(N).EQ.-9) NOUT=NOUT+1                                       00002900
      IF(INT(IDEP(N)/1000000).EQ.-1) NDDEP=NDDEP+1                       00002959
      IF(INT(IDEP(N)/1000000).EQ.-2) NWDEP=NWDEP+1                       00002959
      IF(INT(IDEP(N)/1000000).EQ.-9) NOUT=NOUT+1                         00002959
4401 CONTINUE                                                            00002900
      N1DEP=NDDEP+NWDEP                                                    00002900
      NWDEPT=NWDEPT+NWDEP                                                  21
      NDEP=NDEP+N1DEP                                                      00002900
      NSOUT=NSOUT+NOUT                                                      00002900
      NNP=NP-N1DEP-NOUT                                                    00002900
      WRITE(60) (ID(I),I=1,4),AKT,NP                                       00002900
      WRITE(60) NNP                                                         00002900
      WRITE(61) (ID(I),I=1,4),AKT,NP                                       00002900
      WRITE(61) N1DEP                                                       00002900
      WRITE(62) (ID(I),I=1,4),AKT,NP                                       00002900
      WRITE(62) NOUT                                                         00002900
      DO 6060 N=1,NP                                                       00002900
      IF(IDEP(N).GE.1)                                                      00002900
      *WRITE(60) P(1,N),P(2,N),P(3,N),INFP(N),IDEP(N)                    00002900
C      IF(IDEP(N).LE.-1.AND. IDEP(N).NE.-9)                                00003000
      IF(IDEP(N).LE.-1000000.AND. IDEP(N).GE.-9000000) THEN             00003059
      *WRITE(61) P(1,N),P(2,N),P(3,N),INFP(N),IDEP(N)                    00003000
      IF(IDEP(N).LT.-9000000)                                              00003059
C      IF(IDEP(N).EQ.-9)                                                  00003000
      *WRITE(62) P(1,N),P(2,N),P(3,N),INFP(N),IDEP(N)                    00003000

```



```

6060 CONTINUE                                00003000
C   CALL COND (NP, P, INFP, IDEP, NM)        00003021
C   END IF                                    00003021
C   WRITE(6, *) ID, ' KT=', KT              21
C                                             00003000
C   IF(MOD(KT, 24).NE.0) GO TO 9999          00003021
C   WRITE(6, *) 'MOD(KT, 24).NE.0>', ID, ' KT=', KT 16
C   CALL TRNDAT(KT, ID, NEN, MON, NIC, JIK)  02
C   IF(LFLAG.EQ.2) WRITE(6, 8017) NEN, MON, NIC, JIK+1 21
8017 FORMAT(1H1, /, ' EXAMPLE OF PARTICLE LOCATION  DATE:', I4, I3, ' / ', I2, 00
      * I3)                                    00
C   WRITE(6, 8018) JTTL, NREL                21
8018 FORMAT(1H , ' INTEG. HOUR=', I6, ' NO. OF RELEASE PARTICLE=', I6) 22
C   WRITE(6, 8019) NP, NDEP, NWDEPT, NSOUT  00003021
C   WRITE(6, 8021) NNP, N1DEP, NOUT         21
8021 FORMAT(1H , ' THIS PERIOD      NNP=', I6, ' N1DEP=', I6, ' NOUT=', I6) 00003121
8019 FORMAT(1H , ' TILL NOW NP(AIR+DEP)=' I6, ' NDEP=', I6 00003121
      * , ' (WET=', I6, ')', ' NSOUT=', I6) 21
C   IF(LFLAG.EQ.2) THEN                      21
C   CALL PRRSLT(NM, NP, NDEP, NSOUT, DELXY, P, INFP) 21
C   WRITE(6, 8022) 'NUMBER OF PARTICLE IN EACH ATMOSPHERIC LAYER' 00
8022 FORMAT(1H , ///, '-----', A50, '-----') 03
C-----                                     02
C   COMENT=' ACID RAIN SIMULATION BY M. R. I' 00003200
C   KT=NINT(AKT)                             00003200
C   CALL OUTPC(P, IM, JM, NP, ID, DELXY, KT, COMENT, IA) 00003200
C *****ENDING***** 8000-8999             00003300
C   END IF                                    21
C   CALL COND (NP, P, INFP, IDEP, NM)        00003021
C   END IF                                    00003121
9999 CONTINUE                                00003300
C   IF(MK.EQ.20+INTDAY.AND.KT.EQ.35) STOP  00003300
C   IF(MK.EQ.20+INTDAY) GO TO 999           00003300
C =====                                  00003300
C   GOTO 2                                    00003300
999 CONTINUE                                00
C   LAST PARTICLES IN ATMOSPHERE            00
C   WRITE(6, 8017) NEN, MON, NIC, JIK+1     21
C   WRITE(6, 8018) JTTL, NREL               21
C   WRITE(6, 8019) NP, NDEP, NWDEPT, NSOUT 00003021
C   WRITE(6, 8021) NNP, N1DEP, NOUT         21
C   WRITE(63) ARE2, CAS2, CDE2, PLI2, PLJ2, NSTDA2, INTDA2, NVO2, NQD2 00
C   WRITE(63) SIGH2, SIGV2, VDEP2, WDEP2    00
C   WRITE(63) MAXP2, QINT2                   00
C   WRITE(63) (NSP2(I), BLAT2(I), BLON2(I), ZZQ2(I), I=1, NQD2) 00
C   WRITE(63) (ID(I), I=1, 4), AKT, NP      00002900
C   WRITE(63) NNP, NSOUT, NDEP, NWDEPT, NREL, JTTL 00003321
C   LL=0                                     21
C   DO 9090 N=1, NP                          00002900
C   IF(IDEP(N).GE.1) THEN                    00003222

```

```

WRITE(63) P(1, N), P(2, N), P(3, N), INFP(N), IDEP(N)
LL=LL+1
IF(LL.LT. 60)
*WRITE(6, 1888) N, P(1, N), P(2, N), P(3, N), INFP(N), IDEP(N)
END IF
9090 CONTINUE
WRITE(6, *) 'NORMAL END'
STOP
END
FUNCTION RANDG (SIG)
DIMENSION N(420)
A=0.
1 CALL RANDA(N, 400)
DO 100 I=1, 400
100 A=A+N(I)
RANDG=A/20.*SIG
RETURN
END
C
SUBROUTINE
* PRRSLT(NM, NP, NDEP, NSOUT, DELXY, P, INFP)
C PRINT RESULT
DIMENSION P(3, NM), NC(100), INFP(NM)
DO 6100 N=1, NP, (NP+20)/20
6100 WRITE(6, 8010) N, AINT(P(1, N)/DELXY+1. 5),
* AINT(P(2, N)/DELXY+1. 5), P(3, N), INFP(N)
8010 FORMAT(2X, I8, 2F8. 2, F8. 3, I9)
C
C ****ANALYSIS***** 7000-7999
DO 8100 K=1, 21
8100 NC(K)=0.
DDZ=0. 05
DO 8200 N=1, NP
K=(1. -P(3, N))/DDZ+1. 5
IF(K. GT. 21) K=21
8200 NC(K)=NC(K)+1
WRITE(6, 8022) 'NUMBER OF PARTICLE IN EACH ATMOSPHERIC LAYER'
8022 FORMAT(1H , ///, '-----', A50, '-----')
DO 8300 K=20, 1, -1
8300 WRITE(6, *) 1. -(K-1)*DDZ, NC(K)
RETURN
END
C
SUBROUTINE TRNDAT(KT, ID, NEN, MON, NIC, JIK)
C PRESENT TIME + KT -> NEN, MON, NOC, JIK
DIMENSION ID(5), MONTH(12)
DATA MONTH/31, 28, 31, 30, 31, 30, 31, 31, 30, 31, 30, 31/
JIK=KT+ID(4)
NIC=ID(3)
MON=ID(2)

```

```

NEN=ID(1) 01
10 CONTINUE 12
  IF(JIK.GE.24) THEN 01
    JIK=JIK-24 01
    NIC=NIC+1 01
  END IF 01
  IF(NIC.GT.MONTH(ID(2))) THEN 01
    NIC=1 01
    MON=MON+1 31
  END IF 01
  IF(MON.GT.12) THEN 01
    MON=1 01
    NEN=NEN+1 01
  END IF 01
  IF(JIK.GE.24) GO TO 10 12
C WRITE(6,8016) (ID(I),I=1,4) 14
C WRITE(6,8017) NEN,MON,NIC,JIK 14
C8016 FORMAT(1H ,/, ' INPUT OF TRAN-DATE:', I4, I3, '/', I2, I3) 14
C8017 FORMAT(1H ,/, ' RESULT OF TRAN-DATE:', I4, I3, '/', I2, I3) 14
  RETURN 01
  END 01
C 01
  SUBROUTINE QMAKE(NP, NNQ, BLAT, BLON, ZZQ, QINT, DELT) 02 27
C MAKE MULTI SOURCE FOR RONDON WALK MODEL 00015100
  PARAMETER(MMP=50) 00015200
  DIMENSION QP(MMP), KOS(MMP), IDNT(MMP), XLAT(MMP), XLON(MMP) 00016000
  DIMENSION NP(NNQ), BLAT(NNQ), BLON(NNQ), ZZQ(NNQ), ZQ(MMP) 00016100
  CHARACTER*8 SCASE, NAME(MMP) 00016200
C READ SOURCE DATA FROM FILE 00016300
  READ(3,200) MAXP, SCASE 00017000
  READ(3,210) 00018000
  * (IDNT(I), NAME(I), XLAT(I), XLON(I), ZQ(I), QP(I), I=1, MAXP) 00018100
200 FORMAT(6X, I4, 5X, A8) 00018200
210 FORMAT(I8, A8, 3F8.2, F10.1) 00018300
C 00019000
  NQ1H=NNQ 00020000
  Q1H=NNQ 00030000
C 00091000
  TTL=0.0 00092000
  DO 10 I=1, MAXP 00100000
    TTL=TTL+QP(I) 00110000
10 CONTINUE 00120000
  WRITE(6,*) ' TTL=', TTL 00121000
  DO 20 I=1, MAXP 00130000
    KOS(I)=INT(QP(I)/TTL*Q1H+0.5) 00140000
    IF(KOS(I).LE.0) KOS(I)=1 00141000
20 CONTINUE 00150000
  DO 25 I=1, MAXP 00151000
    WRITE(6,100) I, KOS(I), QP(I) 00152000
25 CONTINUE 00153000

```

KOST=0	00160000
DO 30 I=1, MAXP	00170000
KOST=KOST+KOS(I)	00180000
30 CONTINUE	00190000
IMAX=1	00190100
KOSMAX=0	00190200
DO 35 I=1, MAXP	00191000
IF(KOS(I).GT.KOSMAX) THEN	00192000
KOSMAX=KOS(I)	00192100
IMAX=I	00192200
END IF	00192300
35 CONTINUE	00193000
WRITE(6,*)	00200000
* 'KOST=',KOST,' NQ1H=',NQ1H,' Q1H=',Q1H,' IMAX=',IMAX	00201000
KK=0	00210000
31 CONTINUE	00220000
IREP=0	00230000
IF(KOST.GT.NQ1H) THEN	00240000
KOS(IMAX)=KOS(IMAX)-1	00250000
IREP=1	00260000
KK=KK+1	00270000
IF(KK.GT.10) GO TO 40	00280000
END IF	00290000
IF(KOST.LT.NQ1H) THEN	00290100
KOS(IMAX)=KOS(IMAX)+1	00290200
IREP=1	00290300
KK=KK+1	00290400
IF(KK.GT.10) GO TO 40	00290500
END IF	00290600
KOST=0	00291000
DO 37 I=1, MAXP	00292000
KOST=KOST+KOS(I)	00293000
37 CONTINUE	00294000
WRITE(6,*) 'KK=',KK,' KOS(IMAX)=' ,KOS(IMAX),	00295000
* 'KOST=',KOST,' NQ1H=',NQ1H	00296000
IF(IREP.NE.0) GO TO 31	00300000
40 DO 50 I=1, MAXP	00310000
WRITE(6,100) I, KOS(I), QP(I)	00320000
50 CONTINUE	00330000
100 FORMAT(1H , I3, ' KOS=', I3, ' QP=', F10.2)	00340000
J=1	00341000
II=0	00341100
III=0	00341200
60 II=II+1	00342000
III=III+1	00342100
IF(II.GT.KOS(J)) THEN	00343000
J=J+1	00343100
II=1	00343200
END IF	00343300
NP(III)=IDNT(J)	00344000

```

BLAT(III)=XLAT(J)                                00344100
BLON(III)=XLON(J)                                00344200
ZZQ(III)=ZQ(J)                                   00344300
IF(III.GE.NQ1H) GO TO 70                          00344400
IF(J.LE.MAXP) GO TO 60                            00345000
70 CONTINUE                                        00346000
WRITE(6,300)                                       00346100
300 FORMAT(1H1,/,20X,'=====LIST OF SO2 SOURCE =====') 00346200
WRITE(6,310) SCASE,MAXP,TTL                        00346300
310 FORMAT(1H,' CASE:',A8,' NUMBER OF SOURCE:',I3,  00346627
*' TOTAL EMISSION(T/YEAR)=' ,F12.1,/)           00346727
TTLH=TTL/8760.                                    00346827
TTLDT=TTLH*DELT/3600                              00346927
QINT=TTLDT/Q1H                                     00347027
WRITE(6,311) TTLH,TTLDT,QINT                      00347127
311 FORMAT(1H,' TOTAL EMISSION(T/HOUR)=' ,F8.1,' (T/DELT)=' 00347227
*,F7.1,' QINT(TON/KOS)=' ,F7.1)                 00347327
WRITE(6,315) 'NO.', 'IDENT', 'NAME', 'LAT.', 'LON.', 'EMISSION' 00347400
315 FORMAT(1H ,A4,3X,A6,A10,2X,2A10,A12)         00347527
WRITE(6,320) (I, IDNT(I), NAME(I), XLAT(I), XLON(I), QP(I), I=1, MAXP) 00347600
320 FORMAT(1H ,I4,1X,I8,2X,' (',A8,')',2F10.2,F12.1) 00347727
WRITE(6,330)                                       00347800
330 FORMAT(1H ,/,',----SOURCE POINT OF EACH PARTICLE----',/,  00347900
* 1H , ' NO.',2X, ' IDNT', ' LAT.', ' LON. ')    00348000
WRITE(6,340) (I, NP(I), BLAT(I), BLON(I), I=1, NQ1H) 00348100
340 FORMAT(1H ,I4,2X,I8,2F10.2)                  00349000
RETURN                                             00350000
END                                               00360000
SUBROUTINE RANDU(A,N)                             00003400
C GIVES RANDOM VALUE BETWEEN 0 TO F WITH UNIFORM PROBABILITY 00003400
DIMENSION A(*)                                    00003400
DATA IX /1/                                       00003400
DO 100 I=1,N                                       00003400
IX=IX*48828125                                     00003500
IF(IX.GE.0) GO TO 20                              00003500
10 IX=(IX+2147483647)+1                           00003500
20 CONTINUE                                        00003500
A(I)=ABS(MOD(IX,100000)/100000.)                 00003500
100 CONTINUE                                       00003500
RETURN                                             00003500
END                                               00003500
SUBROUTINE INTAPO(X,P,NP,IM,JM,KM,XX,SIG,DELXY)  00003500
DIMENSION P(3,NP),X(NP),AK(40000),KN(40000)    00003528
DIMENSION XX(IM,JM,KM),SIG(KM)                 00003600
DELXYI=1./DELXY                                  00003600
C ---IF NORMAL COORDINATE-----                00003600
C                                               <-- A --> 00003600
C GRID      1 ..... I          F(X)          I+1 00003600
C COORDIN   0 ..... (I-1)*DX      X          I*DX 00003600
C                                               F(X)=A*F(I+1)+(1-A)*F(I) 00003600

```

```

C          I-1 = IFIX(X/D)                                00003600
C          A = X-(I-1)                                    00003600
C  EXCEPTION      I>IM      OUT OF RANGE                00003600
C                I<0       OUT OF RANGE                00003700
C  ---IF NON-NORMAL COORDINATE-----                    00003700
C                <-- A -->                              00003700
C  GRID          1 ..... I          F(X)          I+1    00003700
C  COORDIN      ...G(1)..... G(I)          X          G(I+1) 00003700
C                F(X)=A*F(I+1)+(1-A)*F(I)              00003700
C                I AT (X-G(I))*(G(I+1)-X)<0            (1) 00003700
C                A=(X-G(I))/(G(I+1)-G(I))              00003700
C  EXCEPTION      I EQ. (1) WAS NOT FINED              00003700
C                IF      (X-GG)*(G(1)-X)<0             00003700
C                I=1, A=0.                              00003800
C                ELSE   OUT OF RANGE                   00003800
C
C
C
C
C  DO 10 N=1, NP                                         00003800
C    IF( (P(3, N)-SIG(1)) * (SIG(KM)-SIG(1)) .LT. 0.) THEN 00003800
C      AK(N)=0.                                          00003800
C      KN(N)=1                                          00003800
C    END IF                                             00003800
C    IF( (P(3, N)-SIG(KM)) * (SIG(1)-SIG(KM)) .LT. 0.) THEN 00003800
C      AK(N)=1.                                          00003800
C      KN(N)=KM-1                                       00003800
C    END IF                                             00003800
10 CONTINUE                                           00
C  DO 50 K=1, KM-1                                       00003800
C  DO 20 N=1, NP                                         00
C    IF( (SIG(K+1)-P(3, N))*(SIG(K)-P(3, N)).LT. 0.) THEN 00003900
C      AK(N)=(P(3, N)-SIG(K))/(SIG(K+1)-SIG(K))        00003900
C      KN(N)=K                                          00003900
C    END IF                                             00003900
C    IF( (SIG(K)-P(3, N)).EQ. 0.) THEN                 00003800
C      AK(N)=0                                          00003900
C      KN(N)=K                                          00003900
C    END IF                                             00003900
20 CONTINUE                                           00
50 CONTINUE                                           00003900
C  DO 100 N=1, NP                                        00004000
C  IN =IFIX(P(1, N)*DELXYI) +1                          00004000
C  JN =IFIX(P(2, N)*DELXYI) +1                          00004000
C  AI =P(1, N)*DELXYI-(IN-1)                            00004000
C  AJ =P(2, N)*DELXYI-(JN-1)                            00004000
C  IN1=IN+1                                              00004100
C  X(N)=  AI *    AJ *    AK(N) *XX(IN1, JN+1, KN(N)+1) 00004100
C  *      +(1.-AI)*  AJ *    AK(N) *XX(IN , JN+1, KN(N)+1) 00004100
C  *      +    AI *(1.-AJ)* AK(N) *XX(IN1, JN , KN(N)+1) 00004100
C  *      +    AI *    AJ *(1.-AK(N))*XX(IN1, JN+1, KN(N) ) 00004100
C  *      +(1.-AI)*(1.-AJ)* AK(N) *XX(IN , JN , KN(N)+1) 00004100
C  *      +(1.-AI)*    AJ *(1.-AK(N))*XX(IN , JN+1, KN(N) ) 00004100

```

```

*      +   AI *(1.-AJ)*(1.-AK(N))*XX(IN1, JN , KN(N) )           00004100
*      +(1.-AI)*(1.-AJ)*(1.-AK(N))*XX(IN , JN , KN(N) )           00004100
100 CONTINUE                                                         00004100
   RETURN                                                             00004200
   END                                                                 00004200
*****                                                                00004200
SUBROUTINE INTAPO2(X, P, NP, IM, JM, XX, DELXY)                       00004200
DIMENSION P(3, NP), X(NP)                                           00004200
DIMENSION XX(IM, JM)                                                 00004200
DELXYI=1./DELXY                                                       00004200
DO 100 N=1, NP                                                         00004200
  IN =IFIX(P(1, N)*DELXYI) +1                                         00004200
  JN =IFIX(P(2, N)*DELXYI) +1                                         00004200
  AI =P(1, N)*DELXYI-(IN-1)                                           00004200
  AJ =P(2, N)*DELXYI-(JN-1)                                           00004200
  X(N)=  AI *   AJ *XX(IN+1, JN+1)                                     00004200
*      +(1.-AI)*   AJ *XX(IN , JN+1)                                 00004200
*      +   AI *(1.-AJ)*XX(IN+1, JN )                                00004200
*      +(1.-AI)*(1.-AJ)*XX(IN , JN )                                00004200
100 CONTINUE                                                         00004200
   RETURN                                                             00004200
   END                                                                 00004200
C
SUBROUTINE PRINT(A, IA, IM, JM)                                       00004200
DIMENSION IA(IM, JM)                                                 00004200
WRITE(*, 1) A, ((I-1)/10, I=1, IM)                                   00004200
1  FORMAT(' 1' /A4, 73I1)                                           00004200
DO 10 J=1, JM                                                         00004200
10 WRITE(*, 2) (J,                                                  00004200
* (IA(I, J), I=1, IM))                                             00004200
2  FORMAT(1X, I2, 1X, 73I1.0)                                       00004300
   RETURN                                                             00004300
   END                                                                 00004300
C
SUBROUTINE OUTPC(P, IM, JM, NP, ID, DELXY, KT, COMENT, IA)           00004300
DIMENSION P(3, NP), IA(IM, JM), ID(5), Y(32)                       00004300
CHARACTER*80 COMENT                                                  00004300
DO 99 I=1, IM                                                         00004300
DO 99 J=1, JM                                                         00004300
  IA(I, J)=0                                                           00004300
99 CONTINUE                                                           00004400
DO 100 N=1, NP                                                         00004400
  IN= P(1, N)/DELXY+0.5+1                                             00004400
  JN= P(2, N)/DELXY+0.5+1                                             00004400
  IA(IN, JN)=IA(IN, JN)+1                                             00004400
100 CONTINUE                                                         00004400
DO 110 I=1, IM                                                         00004400
DO 110 J=1, JM                                                         00004400
  II=IA(I, J)                                                         00004400
  IF(II.GE.1) IA(I, J)=1                                             00004400

```

```

IF(II.GE.2) IA(I,J)=2      00004500
IF(II.GE.4) IA(I,J)=3      00004500
IF(II.GE.8) IA(I,J)=4      00004500
IF(II.GE.16) IA(I,J)=5     00004500
IF(II.GE.32) IA(I,J)=6     00004500
IF(II.GE.64) IA(I,J)=7     00004500
IF(II.GE.128) IA(I,J)=8    00004500
IF(II.GE.256) IA(I,J)=12   00004500
110 CONTINUE                00004500
CALL PRINT(' PC ', IA, IM, JM) 00004500
WRITE(*,2) (I,I=0,8)         00004600
2 FORMAT(/20X,' I=',9I10)    00004600
WRITE(*,3) 0,(2**I,I=0,7)    00004600
3 FORMAT(' PARTICLE COUNT COUNT/GRID =',9I10) 00004600
WRITE(*,1) ID,KT,COMENT      00004600
1 FORMAT(/' ID=',5I5,' KT=',I3/1X,A80) 00004600
RETURN                        00004600
END                            00004600
SUBROUTINE RANDA(N,IM)        00004600
DATA IX/1/                    00004600
INTEGER*4 N(*)                00004700
JM=IM/13.+0.999              00004700
DO 100 J=1, JM                00004700
IX=IX*48828125                00004700
IF(IX) 10,20,20               00004700
10 IX=(IX+2147483647)+1       00004700
20 CONTINUE                    00004700
DO 100 I=1,13                 00004700
NNN=1                          00004700
IF(BTEST(IX,I+11)) NNN=-1     00004700
N((J-1)*13+I)=NNN            00004800
100 CONTINUE                    00004800
RETURN                          00004800
END                            00004800
SUBROUTINE COND (NP,P,INO,IDEP,NM) 00004800
DIMENSION P(3,NM),INO(NM),IDEP(NM) 00004800
NN=0                            00004800
DO 100 N=1,NP                  00004800
IF(IDEP(N).GE.1) THEN          00004800
  NN=NN+1                       00004800
  P(1,NN)=P(1,N)                00004900
  P(2,NN)=P(2,N)                00004900
  P(3,NN)=P(3,N)                00004900
  INO(NN)=INO(N)                00004900
  IDEP(NN)=IDEP(N)              00004900
END IF                          00004900
100 CONTINUE                    00004900
NP=NN                          00004900
RETURN                          00
END                              00

```


参 考 文 献

- Blackadar, A. K., 1962 : Vertical distribution of wind and turbulent exchange in a neutral atmosphere. *J. Geophys. Res.*, **67**, 3095-3102.
- Businger, J. A., J. C. Wyngaard, Y. Izumi and E. F. Bradley, 1971 : Flux-profile relationships in the atmospheric surface layer. *J. Atmos. Sci.*, **28**, 181-189.
- Businger, J. A., 1973 : Turbulent transfer in the atmospheric surface layer. Workshop on micrometeorology. D. A. Haugen, Ed., 67-100. Published by the American Meteorological Society.
- Carmichael, G. R. and L. K. Peters, 1984 : An Eulerian transport/transformation/removal model for SO₂ and sulfate- I. Model development. *Atmos. Environ.*, **18**, 937-951.
- Cuong, N. B., B. Bonsang and G. Lambert, 1974 : The atmospheric concentration of sulfur dioxide and sulfate aerosols over antarctic, subantarctic areas and oceans. *Tellus*, **26**, 241-249.
- Dickerson, M. H., 1978 : MASCON-A mass consistent atmospheric flux model for regions with complex terrain. *J. Appl. Met.*, **17**, 241-253.
- Diehl, S. R., D. T. Smith and M. Sydor, 1982 : Random-Walk simulation of gradient-transfer process applied to dispersion of stack emission from coal-fired power plants. *J. Appl. Met.*, **21**, 69-83.
- Eliassen A., Φ . Hov, I. S. A. Isaksen, J. Saltbones and F. Stordal, 1982 : A Lagrangian long range transport model with atmospheric boundary layer chemistry. *J. Appl. Met.*, **21**, 1645-1661.
- Gislason, K. B. and L. P. Prahm, 1983 : Sensitivity study of air trajectory long-range transport modeling. *Atmos. Environ.*, **7**, 997-1101.
- Gunn, K. L. S. and J. S. Marshall, 1958 : The distribution with size of aggregate snowflakes. *J. Meteor.*, **15**, 452-461.
- 畠山史郎, 1986 : 硫黄化合物の放出と大気中での酸化反応。国立公害研究所研究報告, 第102号, 215-231.
- Hegg, D. A. and P. V. Hobbs, 1982 : Measurements of sulfate production in natural cloud. *Atmos. Environ.*, **16**, 2663-2668.
- 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.
- Hegg, D. A., P. V. Hobbs and L. F. Radke, 1984 : Measurement of the scavenging of sulfate and nitrate in clouds. *Atmos. Environ.*, **18**, 1939-1946.
- 泉 克幸, 1986 : 対流圏の有機エアロゾル。国立公害研究所研究報告, 第102号, 133-148.
- 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_x, NO_x, CO₂) 排出量の動態分析。NISTEP REPORT No. 21 科学技術庁, 科学技術政策研究所。
- Kato, N. and H. Akimoto, 1992 : Anthropogenic emissions of SO₂ and NO_x in Asia : Emission inventories. *Atmos. Environ.*, **26A**, 2997-3017.
- Kessler, E., 1969 : On the distribution and continuity of water substance in atmospheric circulation. *Met. Monogr.*, No. 32, 84pp.

- Kimura, F. and T. Yoshikawa, 1988 : Numerical simulation of global scale dispersion of radioactive pollutants from the accident at the Chernobyl nuclear power station. *J. Met. Soc. Japan*, **66**, 489-495.
- Kitada, T., G. R. Carmichael, and L. K. Peters, 1986 : Effects of dry deposition on the concentration-distributions of atmospheric pollutants within land-and sea-breeze circulations. *Atmos. Environ.*, **10**, 1999-2010.
- Liu, M. K. and D. A. Stewart, 1982 : A mathematical model for the analysis of acid deposition. *J. Appl. Met.*, **21**, 859-873.
- Louis, J. F., 1979 : A parametric model of vertical eddy fluxes in the atmosphere. *Boundary-Layer Met.*, **17**, 187-202.
- 萬納寺信崇, 1988 : JSM の統計的検証。昭和63年数値予報研修テキスト, 気象庁予報部, 67-76。
- Marshall, J. S., 1953 : Precipitation trajectories and patterns. *J. Meteor.*, **10**, 25-29.
- Marshall, J. S. and W. M. Palmer, 1948 : The distribution of raindrops with size. *J. Meteor.*, **5**, 165-166.
- McNaughton, D. J., C. M. Berkowitz and R. C. Williams, 1981 : A diagnostic analysis of a long-term regional air pollutant transport model. *J. Appl. Met.*, **20**, 795-801.
- Mellor, G. L. and T. Yamada, 1974 : A hierarchy of turbulence closure models for planetary boundary layer. *J. Atmos. Sci.*, **31**, 1791-1806.
- Merceret, F. J., 1975 : Relating rainfall rate to the slope of raindrop size spectra. *J. Appl. Met.*, **14**, 259-260.
- 大関 誠, 1985 : VFM の降水量予報の統計的な検証。昭和60年度数値予報研修テキスト, 気象庁予報部, 90-94。
- Pardo, J., G. D. Hartog and H. H. Neumann, 1991 : An investigation of the ADOM dry deposition module using summertime O₃ measurements above a deciduous forest. *Atmos. Environ.*, **25 A**, 1689-1704.
- Pardo, J., 1991 : Seasonal contrasts in modeling and observed dry deposition velocities of O₃ and NO₂ over three surfaces. *Atmos. Environ.*, **27 A**, 807-814.
- Pardo, J. and G. C. Edwards, 1991 : Sensitivity of ADOM dry deposition velocities to input parameters : A comparison with measurements for SO₂ and O₃ over three land use types. *Atmos. Ocean*, **29**, 667-685.
- Penkett, S. A., B. M. Jones. A. Brice and A. E. Eggleton, 1979 : The importance of atmospheric ozone and hydrogen peroxide in oxidizing sulfur dioxide in cloud and rainwater. *Atmos. Environ.*, **13**, 123-127.
- Rutledge, S. A. and P. W. Hobbs, 1983 : The mesoscale and microscale structure and organization of clouds and precipitation in midlatitude cyclons; VII : A model for the "Seeder-Feeder" process in warm front rainbands. *J. Atmos. Sci.*, **40**, 1185-1206.
- Scott, 1978 : Parameterization of sulfate removal by precipitation. *J. Appl. Met.*, **17**, 1375-1389.
- Sherman, C. A., 1978 : A mass-consistent model for wind fields over complex terrain. *J. Appl. Met.*, **17**, 312-319.
- 巽 保夫, 1983 : 10層アジア地区ファインメッシュモデル (10L FLM)。気象庁電子計算室報告・別刷29号 45-93。
- 鶴田治雄, 草野 一, 渡辺善徳, 太田正雄, 平野耕一郎, 1988 : 大気汚染質の雲粒・雨滴によるとりこみ機構と酸化反応 (第1報)。横浜市公害研究報第12号, 37-56。

- 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.
- Waleck, C. J., R. A. Brost., J. S. Chang and M. L. Wesely, 1986 : SO₂, sulfate and HNO₃ deposition velocities computed using regional land use and meteorological data. *Atmos. Environ.*, **20**, 949-964.
- Wesely, M. L., and B. B. Hicks : 1977 : Some factors that affect the deposition rates of sulfur dioxide and similar gases on vegetation. *J. Air Polu. Cont. Associ.*, **27**, 1110-1116.
- Wesely, M. L., 1989 : Parameterization of surface resistances to gaseous dry deposition in regional-scale numerical models. *Atmos. Environ.*, **23**, 1293-1304.
- Wyngaard, J. C., 1973 : On surface layer turbulence. Workshop on micrometeorology. D. A. Haugen, Ed., 101-149. Published by the American Meteorological Society.
- 山口 幸裕, 1991 : 鳥根県における大気降下物に関する研究。鳥根県衛生公害研究所特別研究成果報告書。

気象研究所技術報告一覧表

- 第1号 バックグラウンド大気汚染の測定法の開発 (地球規模大気汚染特別研究班, 1978)
Development of Monitoring Techniques for Global Background Air Pollution (MRI Special Research Group on Global Atmospheric Pollution, 1978)
- 第2号 主要活火山の地殻変動並びに地熱状態の調査研究 (地震火山研究部, 1979)
Investigation of Ground Movement and Geothermal State of Main Active Volcanoes in Japan (Seismology and Volcanology Research Division, 1979)
- 第3号 筑波研究学園都市に新設された気象観測用鉄塔施設 (花房龍男・藤谷徳之助・伴野 登・魚津 博, 1979)
On the Meteorological Tower and Its Observational System at Tsukuba Science City (T. Hanafusa, T. Fujitani, N. Banno and H. Uozu, 1979)
- 第4号 海底地震常時観測システムの開発 (地震火山研究部, 1980)
Permannt Ocean-Bottom Seismograph Observation System (Seismology and Volcanology Research Division, 1980)
- 第5号 本州南方海域水温図——400m (又は500m) 深と1000m 深—— (1934-1943年及び1954-1980年) (海洋研究部, 1981)
Horizontal Distribution of Temperature in 400m (or 500m) and 1000m Depth in Sea South of Honshu, Japan and Western-North Pacific Ocean from 1934 to 1943 and from 1954 to 1980 (Oceanographical Research, 1981)
- 第6号 成層圏オゾンの破壊につながる大気成分および紫外日射の観測 (高層物理研究部, 1982)
Observations of the Atmospheric Constituents Related to the Stratospheric Ozone Depletion and the Ultraviolet Radiation (Upper Atmosphere Physics Research Division, 1982)
- 第7号 83型強震計の開発 (地震火山研究部, 1983)
Strong-Motion Seismograph Model 83 for the Japan Meteorological Agency Network (Seismology and Volcanology Research Division, 1983)
- 第8号 大気中における雪片の融解現象に関する研究 (物理気象研究部, 1984)
The Study of Melting of Snowflakes in the Atmosphere (Physical Meteorology Research Division, 1984)
- 第9号 御前崎南方沖における海底水圧観測 (地震火山研究部・海洋研究部, 1984)
Bottom Pressure Observation South off Omaezaki, Central Honshu (Seismology and

Volcanology Research Division and Oceanographical Research Division, 1984)

第10号 日本付近の低気圧の統計 (予報研究部, 1984)

Statistics on Cyclones around Japan (Forecast Research Division, 1984)

第11号 局地風と大気汚染物質の輸送に関する研究 (応用気象研究部, 1984)

Observations and Numerical Experiments on Local Circulation and Medium-Range Transport of Air Pollutions (Applied Meteorology Research Division, 1984)

第12号 火山活動監視法に関する研究 (地震火山研究部, 1984)

Investigation on the Techniques for Volcanic Activity Surveillance (Seismology and Volcanology Research Division, 1984)

第13号 気象研究大気大循環モデル I (MRI・GCM-I) (予報研究部, 1984)

A Description of the MRI Atmospheric General Circulation Model (The MRI・GCM-I) (Forecast Research Division, 1984)

第14号 台風の構造の変化と移動に関する研究——台風7916の一生—— (台風研究部, 1985)

A Study on the Changes of Three Dimensional Structure and the Movement Speed of the Typhoon through Its Life Time (Typhoon Research Division, 1985)

第15号 波浪推算モデル MRI と MRI-II の相互比較研究——計算結果図集—— (海洋研究部, 1985)

An Intercomparison Study between the Wave Models MRI and MRI-II —— A Compilation of Results —— (Oceanographical Research Division, 1985)

第16号 地震予知に関する実験的及び理論的研究 (地震火山研究部, 1985)

Study on Earthquake Prediction by Geophysical Method (Seismology and Volcanology Research Division, 1985)

第17号 北半球地上月平均気温偏差図 (予報研究部, 1986)

Maps of Monthly Mean Surface Temperature Anomalies over the Northern Hemisphere for 1891-1981 (Forecast Research Division, 1986)

第18号 中層大気の研究 (高層物理研究部・気象衛星研究部・予報研究部・地磁気観測所, 1986)

Studies of the Middle Atmosphere (Upper Atmosphere Physics Research Division, Meteorological Satellite Research Division, Forecast Research Division, MRI and the Magnetic Observatory, 1986)

第19号 ドップラーレーダによる気象・海象の研究 (気象衛星研究部・台風研究部・予報研究部・応用気象研究部・海洋研究部, 1986)

Studies on Meteorological and Sea Surface Phenomena by Doppler Radar (Meteorological Satellite Research Division, Typhoon Research Division, Forecast Research Division, Applied Meteorology Research Division and Oceanographical Research

- Division, 1986)
- 第20号 気象研究所対流圏大気大循環モデル (MRI・GCM-I) による12年間の積分 (予報研究部, 1986)
- Mean Statistics of the Tropospheric MRI・GCM-I based on 12-year Integration (Forecast Research Division, 1986)
- 第21号 宇宙線中間子強度1983-1986 (高層物理研究部, 1987)
- Multi-Directional Cosmic Ray Meson Intensity 1983-1986 (Upper Atmosphere Physics Research Division, 1987)
- 第22号 静止気象衛星「ひまわり」画像の噴火噴煙データにもとづく噴火活動の解析に関する研究 (地震火山研究部, 1987)
- Study on Analyses of Volcanic Eruptions based on Eruption Cloud Image Data obtained by the Geostationary Meteorological Satellite (GMS) (Seismology and Volcanology Research Division, 1987)
- 第23号 オホーツク海海洋気候図 (篠原吉雄・四竈信行, 1988)
- Marine Climatological Atlas of the Sea of Okhotsk (Y. Shinohara and N. Shikama, 1988)
- 第24号 海洋大循環モデルを用いた風の応力異常に対する太平洋の応答実験 (海洋研究部, 1989)
- Response Experiment of Pacific Ocean to Anomalous Wind Stress with Ocean General Circulation Model (Oceanographical Research Division, 1989)
- 第25号 太平洋における海洋諸要素の季節平均分布 (海洋研究部, 1989)
- Seasonal Mean Distribution of Sea Properties in the Pacific (Oceanographical Research Division, 1989)
- 第26号 地震前兆現象のデータベース (地震火山研究部, 1990)
- Database of Earthquake Precursors (Seismology and Volcanology Research Division, 1990)
- 第27号 沖縄地方における梅雨期の降水システムの特性 (台風研究部, 1991)
- Characteristics of Precipitation Systems during the Baiu Season in the Okinawa Area (Typhoon Research Division, 1991)
- 第28号 気象研究所・予報研究部で開発された非静水圧モデル (猪川元興・斉藤和雄, 1991)
- Description of a Nonhydrostatic Model Developed at the Forecast Research Department of the MRI (M. Ikawa and K. Saito, 1991)
- 第29号 雲の放射過程に関する総合的研究 (気象研究部・物理気象研究部・応用気象研究部・気象衛星・観測システム研究部・台風研究部, 1992)
- A Synthetic Study on Cloud-Radiation Processes (Climate Research Department,

Physical Meteorology Research Department, Applied Meteorology Research Department, Meteorological Satellite and Observation System Research Department and Typhoon Research Department, 1992)

第30号 大気と海洋・地表とのエネルギー交換過程に関する研究 (三上正男・遠藤昌宏・新野宏・山崎孝治, 1992)

Studies of Energy Exchange Processes between the Ocean-Ground Surface and Atmosphere (M. Mikami, M. Endoh, H. Niino and K. Yamazaki, 1992)

第31号 降水日の出現頻度からみた日本の季節推移——30年間の日降水量資料に基づく統計—— (秋山孝子, 1993)

Seasonal Transition in Japan, as Revealed by Appearance Frequency of Precipitating-Days——Statistics of Daily Precipitation Data During 30 Years—— (T. Akiyama, 1993)

第32号 直下型地震予知に関する観測的研究 (地震火山研究部, 1994)

Observational Study on the Prediction of Disastrous Intraplate Earthquakes (Seismology and Volcanology Research Department, 1994)

第33号 各種気象観測機器による比較観測 (気象衛星・観測システム研究部, 1994)

Intercomparisons of Meteorological Observation Instruments (Meteorological Satellite and Observation system Research Department, 1994)

気 象 研 究 所

1946 (昭和21) 年 設立

所 長 : 理 博 山 岸 米 二 郎

予 報 研 究 部	部 長 :	古 賀 晴 成
気 候 研 究 部	部 長 :	村 木 彦 磨
台 風 研 究 部	部 長 :	大 塚 伸
物 理 気 象 研 究 部	部 長 :	能 美 武 功
応 用 気 象 研 究 部	部 長 : 理 博	花 房 龍 男
気 象 衛 星 ・ 観 測		
シ ス テ ム 研 究 部	部 長 :	田 中 豊 顯
地 震 火 山 研 究 部	部 長 :	望 月 英 志
海 洋 研 究 部	部 長 :	周 東 健 三
地 球 化 学 研 究 部	部 長 : 理 博	伏 見 克 彦

気 象 研 究 所 技 術 報 告

編 集 委 員 長 : 古 賀 晴 成

編 集 委 員 : 加 藤 政 勝 内 山 明 博 赤 枝 健 治
水 野 量 高 薺 出 廣 田 道 夫
神 定 健 二 蒲 地 政 文 松 枝 秀 和
事 務 局 : 松 林 繁 樹 西 井 久 人

気象研究所技術報告は、1978 (昭和53) 年の初刊以来、気象研究所が必要の都度発行する刊行物であり、気象学、海洋学、地震学その他関連の地球科学の分野において気象研究所職員が得た研究成果に関し、技術報告、資料報告および総合報告を掲載する。

気象研究所技術報告の編集は、編集委員会が行う。編集委員会は原稿の掲載の可否を判定する。

本誌に掲載された論文の著作権は気象研究所に帰属する。本誌に掲載された論文を引用する場合は、出所を明示すれば気象研究所の許諾を必要としない。本誌に掲載された論文の全部又は一部を複製、転載、翻訳、あるいはその他に利用する場合は、個人が研究、学習、教育に使用する場合を除き、気象研究所の許諾を得なければならない。

気象研究所技術報告 ISSN 0386-4049

第 34 号

平成 7 年 6 月 25 日 発行

編 集 兼
発 行 者

気 象 研 究 所

〒305 茨城県つくば市長峰1-1

TEL.(0298)53-8535

印 刷 所

朝 日 印 刷 株 式 会 社

〒308 茨城県下館市中館186