OUKA
The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	霧水沈着を考慮した近畿圏における酸性物質沈着量の数値モデルによる評価
Author(s)	嶋寺, 光
Citation	大阪大学, 2011, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/2254
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

霧水沈着を考慮した近畿圏における
酸性物質沈着量の数値モデルによる評価

2011 年 3 月

嶋寺　光

目次

第 1 章　序論

1.1　酸性沈着問題 ---------- 1

1.2　霧による酸性沈着 ---------- 4

1.3　本研究の目的と本論文の構成 ---------- 7

第 2 章　気象/大気質モデル

2.1　気象モデル WRF ---------- 10

2.1.1　WRF の概要 ---------- 10

2.1.2　物理過程 ---------- 11

2.2　大気質モデル CMAQ ---------- 14

2.2.1　CMAQ の概要 ---------- 14

2.2.2　化学輸送モデル ---------- 16

第 3 章　気象/大気質予測における計算条件

3.1　計算領域 ---------- 20

3.2　気象モデル WRF の計算条件 ---------- 22

3.3　大気質モデル CMAQ の計算条件 ---------- 24

3.4　排出量データ ---------- 25

第 4 章　気象/大気質予測結果

4.1　気象予測結果 ---------- 33

4.1.1　地上気象予測 ---------- 33

4.1.2　高層気象予測 ---------- 40

4.1.3　六甲山における霧の予測 ---------- 44

4.2　大気質予測結果 ---------- 46

4.2.1　O_3・NO_X・SO_2・PM10 濃度予測 ---------- 46

4.2.2　ガス・粒子・降水中濃度予測 ---------- 52

4.2.3　六甲山における霧水中濃度の予測 ---------- 56

4.2.4　濃度の空間分布と越境汚染の寄与 ---------- 57

第 5 章　霧沈着モデル

5.1　霧沈着モデルの概要 ---------- 64

5.1.1　風速場 ---------- 64

5.1.2　霧水沈着 ---------- 67

5.2　霧沈着モデルの感度解析 ---------- 72

5.3　霧沈着モデルの検証 ---------- 76

第 6 章　酸性物質沈着量の評価

6.1　霧水沈着量 ---------- 81

6.1.1　森林データ ---------- 81

6.1.2　霧発生頻度および霧水量 ---------- 82

6.1.3　霧水沈着量 ---------- 83

6.2　酸性物質沈着量 ---------- 86

第 7 章　結論 ---------- 93

謝辞 ---------- 96

参考文献 ---------- 97

第 1 章　序論

1.1　酸性沈着問題

主に人間活動により排出された二酸化硫黄（SO_2）や窒素酸化物（NO_x）などの大気汚染物質が，大気中や雲中で酸化されて硫酸（H_2SO_4）や硝酸（HNO_3）に変化し，雨や雪などの降水とともに，あるいはガスやエアロゾルのまま地上に達して，生態系等に被害をもたらす現象，すなわち酸性雨をはじめとする酸性沈着問題は，地球環境問題のひとつとしてこれまでに多くの国際的な関心を集めてきた。

欧米諸国では大気汚染の進行に伴い，1950 年代以降，酸性雨による影響と疑われる湖沼・森林生態系への被害が多く報告されるようになった。スカンジナビア半島では，1950 年代に山間部の湖沼で酸性化により魚類，水生生物が生息できなくなった場所が増加していることが明らかとなった。また，1970 年代には旧西ドイツ南西部のシュバルツバルトに代表される森林で枯損症状が顕在化し，以降さらに被害が深刻化していった。

これらの問題に対処するため，1970 年代以降，本格的な取り組みが行われてきた。1979 年には，国連欧州経済委員会によって越境大気汚染に関する初の国際条約である「長距離越境大気汚染条約」が採択され，1983 年に発効された。この条約には、欧米諸国をはじめとする 49 ヶ国の加盟国に対し，越境大気汚染の防止対策を義務づけ，酸性雨等の被害影響の状況の監視・評価，原因物質の排出削減対策，国際協力の実施，モニタリングの実施，情報交換の推進などを定めた。この条約に基づき，1985 年には「ヘルシンキ議定書」で硫黄酸化物の排出量の削減，1988 年には「ソフィア議定書」で窒素酸化物の排出量の凍結が宣言された。さらに 1994 年には，硫黄酸化物の排出量の国別の削減目標が「オスロ議定書」によって規定されるなど，現在に至るまで様々な取り組みが行われてきた。

また近年，アジアでは，中国をはじめとする発展途上国における経済発展に伴い，大気汚染物質の排出量が急激に増加している。Ohara et al.（2007）による推計結果では，アジアにおいて 1980～2003 年の間に，エネルギー消費量は倍以上に増加し，大気汚染物質の人為起源排出量は SO_2 で 119 %，NO_X で 179 %，一酸化炭素（CO）で 64 %，非メタン揮発性有機化合物（NMVOC: Non-Methane Volatile Organic Compounds）で 108 %増加している。Richter et al.（2005）は衛星による観測から，中国の工業地域において二酸化窒素（NO_2）濃度が 1996～2004 年の間に約 50 %増加したと報告しており，この期間における NO_X 排出量の急増を示唆している。Zhang et al.（2009）による推計結果では，2001～2006 年の間に中国における大気汚染物質の人為起源排出量は，SO_2 で 36 %，NO_X で 55 %，CO で 18 %，VOC で 29 %，粒子状物質（PM: Particulate Matter）で 13 %増加している。このような大気汚染物質排出量の増加は，局所大気汚染だけでなく広域大気汚染にもつながる。また，現在の酸性沈着問題は主に化石燃料の燃焼に起因するため，気候変動とも関連しており，経済発展が著しい

東アジアにおける酸性沈着問題は世界的にみても重要であり，政治的な面からも国際的な関心が強まっている。こうした背景から，1992 年に東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET: Acid Deposition Monitoring Network in East Asia）（http://www.eanet.cc/index.html）が提唱された。EANET は，日本主導の下で 2001 年 1 月に本格稼動となり，ヨーロッパにおける欧州監視評価計画（EMEP: European Monitoring and Evaluation Programme）（http://www.emep.int/），アメリカおける国家大気沈着計画（NADP: National Atmospheric Deposition Program）（http://nadp.sws.uiuc.edu/）に続く，第 3 の大陸規模ネットワークとして活動が進められている（原, 2005）。

日本における酸性沈着問題への取り組みは，1970 年代に関東地方の住民により，梅雨の時期に目や皮膚の痛みを訴える届け出があり，旧環境庁がその原因について調査したことが始まりである。調査の結果，被害はホルムアルデヒトや過酸化水素など大気中の刺激性物質と，降雨中の酸性物質との相互作用によるものと考えられた。日本国内における全国規模の酸性沈着のモニタリングは 1983 年に開始された。当時，旧環境庁は酸性雨による被害の未然防止のためには，その実態および影響を明らかにする必要があるとし，大気汚染，陸水，土壌・植生等の専門家や自治体の研究者等からなる酸性雨対策検討会を設置し，5 年計画で第 1 次酸性雨対策調査に着手した。酸性雨対策調査は第 4 次まで行われ，現在は環境省によって酸性雨長期モニタリング計画に基づく酸性雨モニタリング（http://www.env.go.jp/earth/acidrain/index.html）が行われている。20 年以上にわたる酸性雨モニタリングの結果については，環境省（2004; 2009）によって取りまとめられており，その概要は以下のようになっている：

1) 酸性沈着の状況
   - 植物に対して急性被害が懸念される pH3 未満の雨は観測されていないものの，依然として平均 pH4.4～5.0 程度の酸性雨が観測されており，全体の約 5 %が pH4 未満の強い酸性雨となっている。
   - 酸性沈着量は観測期間全体を通してほぼ横ばいの状態である。
   - 日本海側や西日本地域では，晩秋から春季にかけて湿性沈着量や大気中 SO_2 濃度が上昇しており，越境汚染の影響が示唆された。特に春季は，黄砂の影響やオゾン（O_3）の高濃度傾向など，大陸からの長距離輸送の影響が顕著である。
   - 中国などと比較して降水中の酸性物質濃度は低濃度であるが，降水量が多いため湿性沈着量は多い。
2) 生態系への影響
   - 植生調査地点の半数以上で衰退木の存在が確認されたが，酸性沈着や土壌酸性化が主な原因と断定できるものはない。
   - 土壌調査・陸水調査地点では，全体的には大きな変化はなく，明確な酸性沈着の影響は確認されていない。
   - 岐阜県伊自良湖集水域の流入河川や周辺土壌では，pH の低下など酸性沈着の影響が

疑われる変化が認められており，重点的に調査が実施された。その結果，酸性沈着により土壌に蓄積した硫黄や窒素が渓流に流出し，集水域を継続的に酸化していると考えられた。直ちに人の健康や生態系に影響を及ぼす状況にないものの，将来的な影響の発現や，同様な条件の他地域において酸性化が懸念される。

3) 今後の課題

・酸性沈着による影響は，長期継続的なモニタリング結果により明らかになるものであり，また生態系に一定量以上の負荷がかかった段階で急激に発現する可能性があることなどから、長期モニタリングを着実に実施していく。

・東アジア地域全体で大気環境管理を推進するために，EANET を通じて，国際的な協力関係を構築する。

・越境大気汚染問題への取り組みとして，酸性沈着だけでなく，O_3 やエアロゾルなども統合してモニタリングを行っていく。

・酸性沈着による生態系への影響把握のために，土壌・植生・陸水の感受性指標の検討，酸性化リスクの高いホットスポット抽出，生態系シミュレーションモデルの開発などを推進する。

このように，日本国内においては酸性沈着による深刻な被害は顕在化していない状況であるが，今後とも調査研究を行っていく必要があるとされている。

以上のように，酸性沈着の観測網はかなり整備されてきているが，観測は比較的アクセスが良い限られた数の地点で行わざるを得ない。酸性沈着について，沈着量の時空間的な分布の把握，変動要因の抽出，ソース・レセプター関係の定量的評価など，総合的な解析評価を行うためには，数値モデルの活用が不可欠である。これまでに，数値モデルを用いた解析によって，特に長距離輸送や越境大気汚染に関して多くの知見が得られている。井上ら（2005）は，東アジアにおける 1995 年を対象として硫黄化合物のソース・レセプター解析を行い，日本への硫黄沈着量の発生源別寄与率を，中国 49 %，日本 21 %，韓国 12 %，火山 13 %と推定した。また，北海道や東北では中国の寄与率が高いこと，発生源の多い関東や近畿では日本の寄与が高いこと，火山の影響を強く受ける九州などでは火山の寄与も高いことなど地域別の傾向も示された。片山ら（2004）は，同じ手法で特に 7 月と 12 月を対象としており，夏季に比べて冬季に日本の沈着量に対する越境汚染の寄与が大きいなど，季節によって発生源別寄与率が大きく異なるが，これは主に風況の違いによって説明できるとした。片山ら（2008）は，1995 年から 2003 年を対象に日本の硫黄沈着量の経年変動をシミュレーションし，その変動要因を解析した。その結果，日本における硫黄沈着量は，東アジアの年ごとの気象の変化によって大きく影響されること，2001 年には三宅島火山の影響が非常に大きいこと，2000 年以降は中国から SO_2 排出量増加に伴い越境汚染の寄与が大きくなっていることなどが示された。同様の研究はこれまでに多く行われており（e.g., Arndt et al., 1998; Ichikawa et al., 2001; Holloway et al., 2002; Lin et al., 2008b），研究によって発生源寄与率や沈着量が大きく異なる場合もあるが，1990～2000 年前後の日本における酸性

沈着への越境汚染の寄与は，非海塩性（nss: non sea salt）の SO_4^{2-}で約 32～66 %，NO_3^-で約 35～61 %と推定されている（環境省, 2009）。研究間で結果に幅が生じる原因として，数値モデルの基本構造，気象場，反応・沈着モデル，大気汚染物質排出量の違いなど，様々な点が考えられる。このような研究間の不整合は，越境大気汚染に関する国際合意形成の妨げにもなり得るため，その原因解明やモデルによる予測精度向上を目指し，東アジアにおける長距離輸送モデルの比較研究（MICS-Asia: Model-InterComparison Study of long-range transport and sulfur deposition in East Asia）（Carmichael et al., 2002; 2008）が行われている。数値モデルによる予測精度が向上することで，より信頼性の高い酸性沈着の将来予測も可能となる。

1.2 霧による酸性沈着

1.1 節で述べた酸性沈着のモニタリングや数値モデルによる予測では，主に降雨・降雪に伴う湿性沈着やガス・エアロゾルの乾性沈着が対象とされているが，霧が植生等に付着することによって生じる酸性物質の沈着も地域によっては重要な沈着過程となる。霧による酸性物質の沈着は，水の関与という点から湿性沈着に含まれるが，沈着過程は粒子状物質の乾性沈着におけるものに近い。本論文では，霧による酸性沈着は湿性沈着から独立したものとして扱う。

霧は地表面近くに浮遊する微小水滴群で，物理的には雲と同じものである。霧は湿った空気の温度が露点まで下がるか，空気が飽和するまで水蒸気が加えられた場合に発生する。また凝結核が多く存在する環境では，より霧が発生しやすくなる。霧はその発生原因によって分類でき，代表的なものとして次のものが挙げられる（小倉, 1999）：

1) 放射霧（radiation fog）
   夜間に地表面が長波放射によって冷え，それに接した空気の温度が下がることで発生し，風が弱く雲のない明け方に発生しやすい。
2) 移流霧（advection fog）
   暖かい空気が温度の低い地表面の上に移動し，冷やされることで発生し，寒流と暖流の境界付近で発生する海霧などがある。
3) 蒸気霧（steam fog）
   暖かく湿った空気が周囲の冷たい空気と混合して飽和に達した場合に発生する。冬に息が白くなることと同じ原理である。
4) 前線霧（frontal fog）
   温暖前線で降雨があり湿度が上昇したところに，上空の暖気から落下してきた比較的高温の雨粒が蒸発し，空気が過飽和になることで発生する。
5) 上昇霧（upslope fog）

山腹に沿って空気が上昇し，断熱膨張によってその空気の温度が下がり，露点以下になった場合に発生する。

実際の霧の発生には，ここに挙げたような原因のうちの一つだけではなく，複数が絡むことが多い（Fu et al., 2006）。山地では，上昇霧と，低層雲が移流されて山腹に接触することが主な霧の発生原因となり（Klemm et al., 2005），標高が高くなるにつれて霧の発生頻度も高くなる（Lange et al., 2003）。

霧は，上空に比べて大気汚染物質濃度が高い地表付近で発生し，雨に比べて粒径が小さいため単位体積当たりの表面積が大きく滞留時間が長い。したがって，霧は大気汚染物質を取り込みやすく，雨に比べて酸性物質濃度がはるかに高くなる。そのため，酸性霧の暴露による植生の急性被害も懸念される。霧水の化学組成を知るためには霧水の採集を行う必要がある。霧水の採集には，強制的に空気を吸引するアクティブ法あるいは自然風を利用するパッシブ法の違いはあるが，細線式のスクリーンを備えた装置が用いられる。

霧水の化学組成の報告例は多数あり，日本国内では，六甲山（Aikawa et al., 2001; 2005; 2006; 2007），丹沢大山（Igawa et al., 1998; 2002），富士山（Watanabe et al., 2006），赤城山・榛名山（Tago et al., 2006），立山（渡辺ら, 2005），弥彦山（福崎ら, 2005），乗鞍岳（渡辺, 2005）など，霧が頻繁に発生する山地において測定が行われている。Aikawa et al.（2001; 2005）は，六甲山における霧は，主要無機イオン濃度が雨に比べて約 7 倍高く，$[NO_3^-]/[SO_4^{2-}]$も雨よりも大きいことを示した。Aikawa et al.（2006）は，六甲山と粟鹿山で霧や雨の化学成分を測定し，大気汚染物質排出量の多い都市部に近い六甲山の方が都市部から遠い粟賀山よりもイオン濃度が高く，その濃度比（六甲山/粟賀山）は霧の方が雨よりも大きいことを示した。Igawa et al.（1998）は丹沢大山において，霧水の酸性度は，霧水量，持ち上げ凝結高度，山麓の酸性ガス濃度と関連しており，霧水中の主要無機イオン濃度は雨に比べて 3～50 倍高いことを示した。Watanabe et al.（2006）は，富士山頂では山腹に比べ，霧の酸性化において SO_4^{2-}の寄与率が高く，越境汚染の影響が大きい可能性を示唆した。渡辺ら（2005）は，立山において観測された強い酸性霧が，越境汚染の影響によるものである可能性を示唆した。福崎ら（2005）は弥彦山において，霧水中の主要無機イオン濃度は雨に比べて高いが，その濃度比（霧/雨）は丹沢大山に比べて小さいこと，霧水中と雨水中の濃度にはあまり相関がみられないこと，霧は雨に比べて$[NO_3^-]/[SO_4^{2-}]$が大きく HNO_3 による酸性化の寄与が大きいことなどを示した。霧水中のイオン濃度は，地表付近の大気環境によって決まるため，雨に比べると近傍の発生源の影響を受けやすく地域差が大きい。その一方で，日本における霧の酸性化には越境汚染による影響も重要となっている。

霧水の地表面への沈着は主に，霧粒子が大きな表面積を有する森林植生に付着することによって生じる。霧が頻繁に発生する地域では，霧水沈着量が降雨量に匹敵する場合もある（Vong et al., 1991）。霧水沈着量の定量化には，渦相関法，樹冠水収支法，あるいは数値モデルが用いられることが多い。

渦相関法では，樹冠上の鉛直風速と霧水量の乱流による変動を高時間分解能で測定し，

霧水沈着フラックス（F_{fog}）を次式によって求める。

$$F_{fog} = \overline{LWC' \cdot w'} \tag{1.1}$$

ここで，LWC'は霧水量の変動成分，w'は鉛直風速 w の変動成分である。この方法は，樹冠上の一点に装置を設置することで高精度な直接測定を行うことができるが，測定システムが高価であり，日本国内において霧水沈着の測定に用いられた例はない。渦相関法によって霧水沈着量を測定した例としては，アメリカ西海岸の Cheeka Peak のモミ林において霧発生日に 2 mm day^{-1}（Kowalski and Vong, 1999），ドイツの Fichtel 山地のトウヒ林において 117 mm year^{-1}（Klemm and Wrzesinsky, 2007），プエルトリコの Luquillo 山脈の雲霧林において 1 mm day^{-1}（Holwerda et al., 2006），台湾北部の Yuan Yuang Lake 自然保護区のヒノキ林において 0.4 mm day^{-1}（Beiderwieden et al., 2007）などの報告がある。

樹冠水収支法は，林外雨と林内雨を測定することで，次式によって霧水沈着量を推定する方法である。

$$F_{fog} = W_S + W_T + W_I - W_P \tag{1.2}$$

ここで，W_Sは樹幹流下量，W_Tは林内雨量，W_Iは樹冠遮断量，W_Pは林外雨量である。樹幹流下量は測定されずに，林内雨量に比べて小さいため無視されたり（e.g., Lange et al., 2003），林内雨量との比率によって推定されたりする（e.g., Kobayashi et al., 2001）場合もある。樹冠遮断量は，霧が発生していない期間の測定結果から推定することができる。この方法は，比較的簡易な測定装置によって行うことができるが，林内雨量の空間的なばらつき，樹幹流下量や樹冠遮断量の推定精度の問題などによって，霧水沈着量の誤差が大きくなりやすい。この方法によって霧水沈着量を推定した例としては，六甲山の針葉樹・広葉樹林において 20～2860 mm year^{-1}（小林と中川, 2001a; 2001b; Kobayashi et al., 2001），アメリカの Great Smoky 山脈国立公園のトウヒ林において 400～700 mm year^{-1}（Shubzda et al., 1995），ドイツの Erz 山地東部の針葉樹林において 190 mm year^{-1}（Lange et al., 2003），グアテマラの Minas 山脈生物圏保護区の雲霧林において 0.5～1 mm day^{-1}（Holder, 2004）などの報告がある。

数値モデルには，Lovett（1984）によって開発された 1 次元霧沈着モデルが多く用いられている。このモデルは，樹冠内を鉛直方向にいくつかの層に分け，霧粒子の重力沈降と慣性衝突による沈着フラックスを抵抗モデルで表現しており，樹冠上の風速・霧水量の観測値，霧の粒径分布，植生パラメータなどの入力データをもとに霧水沈着量の計算を行う。このモデルをもとにした霧沈着モデルによる推定例としては，アメリカの Whiteface 山のトウヒ林において 69～769 mm year^{-1}（Miller et al., 1993），アメリカ東部の各山地において最大 960～2290 mm year^{-1}（Baumgardner et al., 2003），ドイツの Kleiner Feldberg のトウヒ林において 2.7 mm day^{-1}（Pahl et al., 1994），フランスの Vosges 山脈のトウヒ林において 56 mm year^{-1}（Herckes et al., 2002），ブラジル大西洋岸の Serra do Mar の熱帯林において 75 mm year^{-1}（Vautz et al., 2003）などの報告がある。また Katata et al.（2008）は，大気・土壌・植生過

程を詳細に考慮し，霧沈着過程も組み込んだ 1 次元多層モデルを開発し，ドイツの Fichtel 山地における渦相関法による観測結果（Burkard et al., 2002）との比較によってモデルの検証を行った。その結果，開発したモデルが Lovett（1984）のモデルよりも精度良く霧水沈着量を予測できることを示した。

霧水の化学組成の測定と，霧水沈着量の定量化を同時に行うことで，霧によってもたらされる酸性物質沈着量を評価することができる。霧による酸性沈着への寄与は，研究によって大きく異なる。Beiderwieden et al.（2007）による結果では霧による寄与は湿性沈着に対して 1 割以下となっており，霧が頻繁に発生する地域でも霧による寄与はそれほど大きくはないと見積もられている場合もある。その一方で，Herckes et al.（2002）による結果では，霧による寄与は湿性沈着に対して 3〜4 割程度となっており，Miller et al.（1993）や Klemm and Wrzesinsky（2007）による結果では，霧による寄与は湿性沈着に匹敵している。さらに，Kobayashi et al.（2001）や Baumgardner et al.（2003）は，霧による酸性物質の沈着量が湿性沈着量の 10 倍以上にもなる場合があるという結果を示している。

1.3 本研究の目的と本論文の構成

1.1 節で述べたように，1980 年代以降，日本において酸性沈着問題は改善されておらず，調査研究を継続していく必要がある。1.2 に述べたように，霧が頻繁に発生する山地における酸性沈着では，霧による森林植生への沈着が，通常のモニタリングやモデル予測において扱われる乾性沈着や湿性沈着と同様に重要となる可能性がある。しかし，既往研究における霧による酸性沈着の定量化は特定の観測地点あるいは山岳のみを対象としたものに限られており，日本国内においてはそのような研究例もほとんどない。また，日本は国土の三分の二が森林に覆われており，それらの多くは山地に存在するため，他の地域に比べて霧による影響が重要となる可能性もある。そのため，日本における酸性沈着を評価する上では，霧による酸性沈着への寄与も明らかにしていく必要がある。そこで本研究は，数値モデルを用いた霧水沈着による酸性物質沈着量の空間分布予測手法を開発し，霧による寄与も考慮して近畿圏における酸性物質沈着量の評価を行うことを目的とした。

霧を対象とした数値シミュレーションには，1960 年代以降，霧の発生・消滅に関わる物理過程を解析するために 1 次元モデルが用いられてきた（e.g., Zdunkowski and Nielsen, 1969; Brown, 1980; Musson-Genon, 1987）。しかし，実際の霧の発生を予測するためには 3 次元で気象場を予測する必要がある。3 次元気象モデルによって霧の再現を試みた最初の例は，Ballard et al.（1991）によるスコットランド北東部沿岸における海霧の予測である。近年は，，計算機の発展や，アメリカ国立大気研究センター（NCAR: National Center for Atmospheric Research）とペンシルバニア州立大学によって共同開発された Fifth-generation Mesoscale Model（MM5）（Grell et al., 1995），コロラド州立大学によって開発された Regional Atmospheric

Modeling System（RAMS）（Pielke et al., 1992）などの著名な気象モデルの普及に伴い，3 次元気象モデルが霧のシミュレーションにも多く用いられるようになってきている（e.g., Stoelinga and Warner, 1999; Kong, 2002; Pagowski et al., 2004; Koračin et al., 2005; Fu et al., 2006）。Pagowski et al.（2004）は，カナダのオンタリオで 1999 年 9 月 3 日早朝に発生した濃霧を対象に MM5 を用いて解析し，湖陸風が重要な役割を果たしており，湖岸で形成された湿った空気塊が移流過程で地表面によって冷却されたことで濃霧が発生したことを示唆した。Koračin et al.（2005）は，アメリカの西海岸で 1999 年 4 月 14～16 日に発生した海霧を対象に MM5 を用いて解析し，局地循環の発達と高気圧の移動などの総観規模の気象の複雑な相互作用が海霧の発生・消滅に影響しているとした。Fu et al.（2006）は，黄海で 2004 年 4 月 11 日に発生した濃霧を対象に RAMS を用いて解析し，暖かく湿った空気塊が移流過程で海面によって冷却されることが主要な霧の発生原因であるとした。

以上に示したように，既往の気象モデルによる霧シミュレーションの多くは特定の霧イベントを対象としたものである。しかし，霧による酸性沈着を評価するためには，気象モデルによって長期的に霧を予測する必要がある。そこで Shimadera et al.（2008）は，気象モデル MM5 を 2005 年 1～3 月および 7 月の近畿圏に適用し，MM5 が霧の発生の長期的な傾向を概ね再現できることを示した。また Shimadera et al.（2009）は，MM5 とアメリカの環境保護庁（EPA: Environmental Protection Agency）により開発された大気質モデル Community Multiscale Air Quality modeling system（CMAQ）（Byun and Ching, 1999; Byun and Schere, 2006）を 2005 年 3 月の東アジア～近畿圏に適用し，近畿圏における霧水中の酸性物質濃度が，エアロゾルや降水中の場合と同様にアジア大陸からの越境大気汚染の影響を強く受けていることを示した。これらの研究によって，霧の発生や霧水中の酸性物質濃度の空間分布を予測することが可能となった。MM5/CMAQ では霧の沈着過程が考慮されていないため，Shimadera et al.（2010）は，森林植生への霧水沈着を予測する数値モデルを開発し，そのモデルを MM5/CMAQ とともに用いることで，霧による酸性物質沈着量の空間分布予測を可能とした。

本研究では，以上の研究成果の取りまとめとして，気象モデルに MM5 の次世代モデルと位置付けられる Weather Research and Forecasting model（WRF）（Skamarock and Klemp, 2008; Skamarock et al., 2008），大気質モデルに CMAQ を用いて 2004 年 4 月～2005 年 3 月のアジア～近畿圏を対象に気象/大気質予測を行い，その結果と霧沈着モデルによって，近畿圏を対象に霧による寄与も含めた酸性物質沈着量の評価を行った。

本論文は，Fig. 1.1 に示すように第 1 章から第 7 章で構成されている。

第 1 章では，本研究の背景と目的について述べた。

第 2 章では，本研究で使用した広域数値気象/大気質モデル WRF/CMAQ の概要と，モデル内の物理・化学過程について簡単に述べる。

第 3 章では，本研究の対象領域，WRF/CMAQ の計算条件，および大気汚染物質の排出データについて述べる。

第 4 章では，WRF/CMAQ による気象/大気質予測結果，およびその精度の評価を示す。

第 5 章では，本研究で開発した霧沈着モデルの概要，およびモデルの妥当性の検証について示す。

第 6 章では，WRF/CMAQ と霧沈着モデルによる，近畿圏における乾性・湿性・霧水沈着による酸性物質沈着量の予測結果を示す。

第 7 章では，本研究で得られた成果を総括し，今後の展望と課題について述べる。

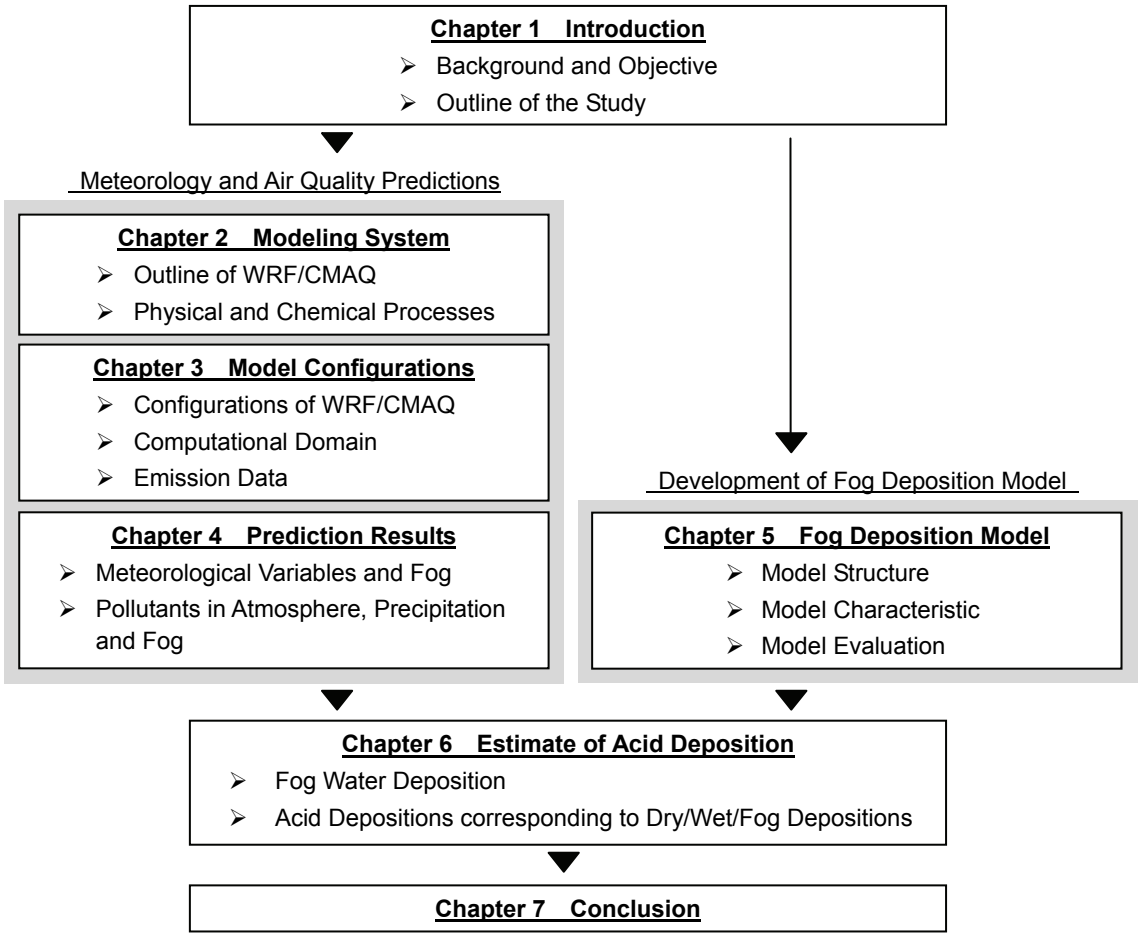


Fig. 1.1 Outline of this paper.

第 2 章　気象/大気質モデル

2.1　気象モデル WRF

2.1.1　WRF の概要

気象予測には，NCAR の Mesoscale and Microscale Meteorology Division（MMM）によって管理・サポートされている WRF，すなわち Advanced Research WRF（WRF-ARW）のバージョン 3.2.1 を使用した。WRF-ARW は，非静水圧・完全圧縮性の 3 次元メソスケールモデルであり，その特徴として以下の点が挙げられる：

1) Linux などの UNIX 系 OS 上で運用可能な, Fortran 90 で記述されたオープンソースの数値モデルであり，並列計算も可能である。
2) 入出力ファイル形式は，大気・海洋科学の分野で広く用いられる network Common Data Form（netCDF）（https://www.unidata.ucar.edu/software/netcdf/）形式が採用されている。
3) MM5 の次世代気象モデルとして多くの研究機関によって開発が進められている。
4) 1 ウェイおよび 2 ウェイネスティング機能によって，広域から局所スケールまでの気象予測が可能であり，また全球を対象とした予測も可能となっている。
5) 目的に応じた複数のオプションからの物理スキームの選択，観測あるいは解析データの同化手法の利用が可能である。
6) 実際の気象場のシミュレーションだけでなく，理想化した条件設定の下での数値実験も可能である。
7) 気象と大気質のシミュレーションをオンラインで行うことができる WRF model coupled with Chemistry（WRF-Chem）（Grell et al., 2005）も開発されている。
8) コミュニティモデルとしてユーザーや開発者の間で情報交換が活発に行われており，MMM によるユーザーページ（http://www.mmm.ucar.edu/wrf/users/）において，バグ情報，モデル更新情報などの様々な情報が公開されている。

WRF は世界中で広く使用されており，その適用例は，都市部のヒートアイランド現象の解析（e.g., Lin et al., 2008; 北尾ら, 2010），集中豪雨の解析（e.g., Chang et al., 2009; Wang et al., 2009），地域スケールでの高解像度気候モデルとしての活用（e.g., Evans et al., 2010; Qian Yet al., 2010），大気質モデル運用のための気象場の作成（e.g., Gonçalves et al., 2009; Lin et al., 2010）など多岐にわたる。

Fig.2.1 に示すように WRF による実際の気象場のシミュレーションは，WRF Preprocessing System（WPS）によって作成される入力データをもとに行う。

WPS は，geogrid，ungrib，metgrid の 3 つのプログラムで構成される。geogrid は，水平計算領域・格子解像度を設定し，地形・土地利用データをもとに各計算格子の緯度・経度，

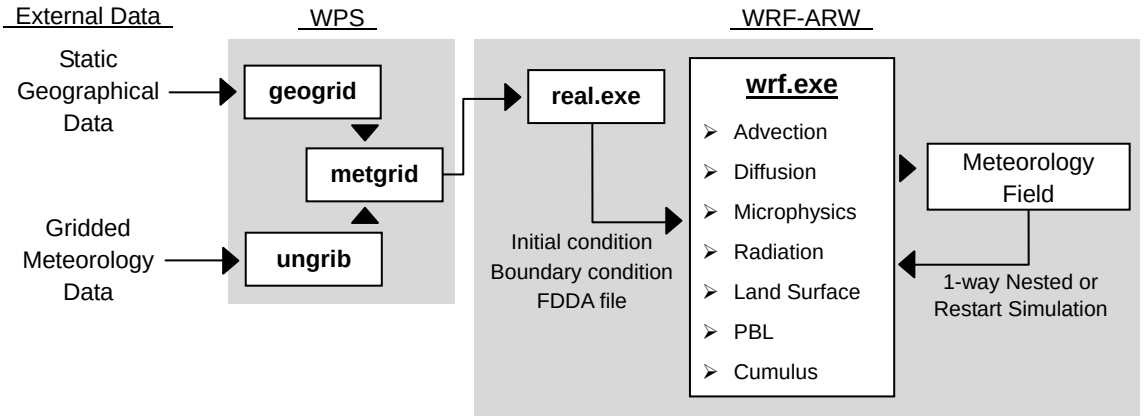


Fig. 2.1 WRF-ARW modeling system flowchart for real-data simulations.

地表面高度，土地被覆などの水平方向の空間情報を含むファイルを作成する。通常，地形・土地利用・土壌区分データには，アメリカ地質調査所（USGS: U.S. Geological Survey）により作成された全球データセットが使用される。ungrib は，他の地域あるいは全球スケールの気象モデルなどをもとに作成された格子状の客観解析データを含む GRIdded Binary（GRIB）（http://www.wmo.int/pages/prog/www/WDM/Guides/Guide-binary-2.html）形式のファイルを読み込み，metgrid で利用可能な中間ファイルを作成する。metgrid は，ungrib によって作成された中間ファイルに含まれる気象データに水平内挿をかけ，geogrid により作成された水平計算格子にあわせて気象場を作成する。

WRF では，real.exe によって metgrid の出力ファイルをもとに初期条件，底面・側面境界条件，および 4 次元データ同化（FDDA: Four-Dimensional Data Assimilation）用ファイルを作成し，それらのファイルをもとにメインプログラムである wrf.exe によって移流・拡散・雲微物理・放射・地表面・大気境界層（PBL: Planetary Boundary Layer）・積雲過程などについて計算が行われる。

2.1.2　物理過程

WRF ではフラックス形式のオイラー方程式を，次式で表される地形準拠の静水圧座標系（質量座標系）（Laprise, 1992）において解くことによって大気運動の計算を行う。

$$\eta = \frac{p_h - p_{ht}}{\mu} \tag{2.1}$$

$$\mu = p_{hs} - p_{ht} \tag{2.2}$$

ここで，p_h は圧力の静水圧成分，p_{hs} および p_{ht} は地表面および計算領域上端の圧力を表す。η は地表面の 1 から計算領域上端の 0 の範囲の値をとり（Fig. 2.2），時間によって変化する。この鉛直座標系によって，方程式系は以下のように記述できる。

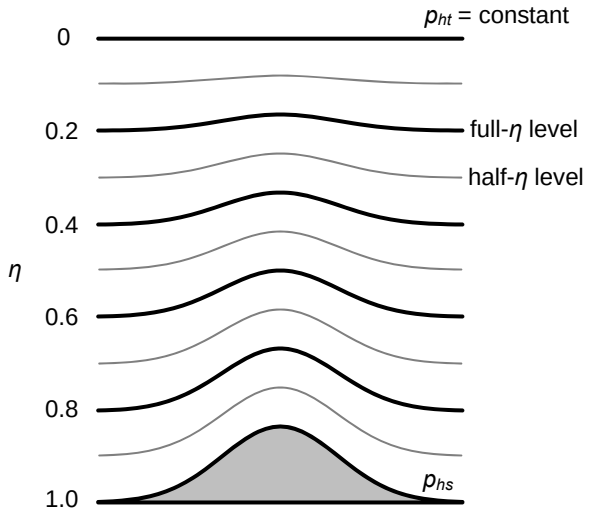


Fig. 2.2 Schematic of WRF vertical coordinate.

$$U_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}u) + \mathbf{P}_x(p,\phi) = F_U \tag{2.3}$$

$$V_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}v) + \mathbf{P}_y(p,\phi) = F_V \tag{2.4}$$

$$W_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}w) + \mathbf{P}_\eta(p,\mu) = F_W \tag{2.5}$$

$$\Theta_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}\theta) = F_\Theta \tag{2.6}$$

$$\mu_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}) = 0 \tag{2.7}$$

$$\phi_t + \mu^{-1}[(\mathbf{V} \cdot \nabla\phi) - gW] = 0 \tag{2.8}$$

$$(Q_m)_t + (\nabla \cdot \mathbf{V}Q_m) = F_{Q_m} \tag{2.9}$$

$\mu(x, y)$は座標(x, y)における単位面積当たりの乾燥空気の質量を表すため，各変数は$U = \mu u / m$，$V = \mu v / m$，$W = \mu w / m$，$\Omega = \mu\omega / m$，$\Theta = \mu\theta$，$Q_m = \mu q_m$と定義される。ここで，$\mathbf{v}$（$= (u, v, w)$）は水平 2 方向および鉛直方向の速度成分，ω（$=\dot{\eta}$）は反変鉛直速度成分，θ は温位，q_m（$= q_v, q_c, q_r, \ldots$）は水蒸気，雲，雨などの混合比，m はマップスケールファクターを表す。また，ϕ（$= gz$）はジオポテンシャル，g は重力加速度，下付きの x，y，η，t はそれぞれの偏微分，式(2.3)～(2.5)の左辺第 3 項は気圧傾度項，式(2.3)～(2.6)および(2.9)の右辺は物理過程，乱流混合，球面の投影，地球の自転から生じる強制項を表す。より詳細には，Skamarock and Klemp（2008）や Skamarock et al.（2008）で述べられている。

WRF では，物理過程が以下のように大別される：

1) 雲微物理過程

水蒸気，雲水，雨，雲氷，雪，雹，あるいは混合状態など，大気中水分についてそれぞれの混合比や個数濃度を計算し，それらの相互作用が扱われる。相変化，それ

に伴う大気との熱交換，雲粒・雨粒の生成・発達過程などが考慮され，水平計算格子で解像されるモデルグリッドスケールの雲による降水が計算される。

2)　積雲過程

水平計算格子で解像されないサブグリッドスケールの対流雲の影響が扱われる。サブグリッドスケールの上昇・下降流および雲の周囲の補償流が表現され，それに伴う対流性の降水が計算される。用意されている積雲スキームは，概ね格子サイズが 5～10 km 以上の場合を想定している。

3)　PBL 過程

地表面過程からの熱・水分フラックスをもとに，乱流輸送によるサブグリッドスケールの鉛直フラックスを扱う。PBL スキームは，安定・不安定層における地表面からのフラックスのプロファイル，大気中の温度・水分・水平方向の運動量の鉛直勾配を決定する。また，接地境界層過程において接地層の大気の状態を決定する。

4)　地表面過程

土壌中の状態量，土地利用ごとの性質，および接地層の大気の状態，下向き放射，雲微物理・積雲過程からの降水などの他の過程からの入力をもとに，地表・海・氷面における熱・水分フラックスを計算する。水平格子間の相互作用については考慮されていない。

5)　放射過程

上向き放射は，地表面過程において，長波放射については土地利用と表面温度，短波放射については地表面アルベドによる反射で決まる。それをもとに，長波放射について水蒸気，二酸化炭素（CO_2）などのガスや雲による赤外放射の吸収・放出過程，短波放射について太陽放射の大気における吸収・反射・散乱過程を扱い，大気加熱量や地表面熱収支を解くための下向き放射量を決める。

以上の雲微物理・積雲・PBL・地表面・放射過程には，それぞれに複数のオプションが用意されており，Fig. 2.3 に示すように，各物理過程は他の物理過程と相互に影響し合っている。

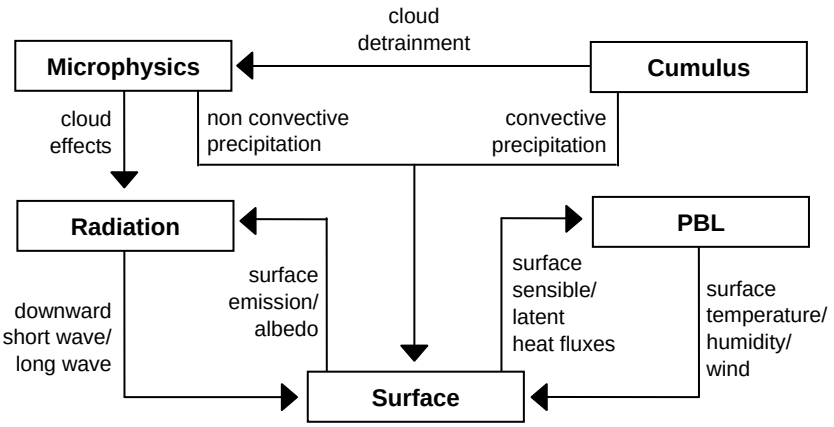


Fig. 2.3 Interactions of WRF physical processes.

FDDA，あるいはナッジングは，時空間内挿した解析値あるいは観測値とモデル予測値の誤差に係数をかけた外力項を方程式に付加して，モデル予測値を解析値あるいは観測値に近づけるための手法である。

$$\frac{\partial \theta_\alpha}{\partial t} = F(\theta_\alpha) + G_{\theta_\alpha} W_{\theta_\alpha} \left(\hat{\theta}_{\alpha 0} - \theta_\alpha \right) \tag{2.10}$$

ここで，$F(\theta_\alpha)$は通常のモデル予測による変数 θ_α の時間変化，G_{θ_α} はナッジング係数（s^{-1}），W_{θ_α} はさらなるナッジング制限のための重み，$\hat{\theta}_{\alpha 0}$ は時空間内挿した解析値あるいは観測値である。WRF のバージョン 3 では，風速の東西・南北成分，温位，水蒸気混合比に対して FDDA が適用できる。FDDA には，モデル予測値や観測値をもとにした格子状の解析データを用いる解析値ナッジングと，観測値を直接用いる観測値ナッジングがある。解析値ナッジングは通常の初期・側面境界の作成のために用意している解析データを用いるため，より容易に行うことができる。

2.2 大気質モデル CMAQ

2.2.1 CMAQ の概要

大気質予測には CMAQ のバージョン 4.7.1 を使用した。CMAQ はオイラー型の 3 次元大気質シミュレーションモデルであり，その特徴として以下の点が挙げられる：

1) Linux などの UNIX 系 OS 上で運用可能な，主に Fortran 90 で記述されたオープンソースの数値モデルであり，並列計算も可能である。
2) 入出力ファイルは，netCDF 形式に基づいた Input/Output Applications Programming Interface（I/O API）（http://www.baronams.com/products/ioapi/）形式に統一されている。
3) 様々な大気汚染物質およびその前駆物質を同時に扱うことができる。
4) 1 ウェイネスティング機能により，様々なスケールに対応しており，大陸から都市スケールまでの大気環境を同時に扱うことができる。
5) 気象モデルとして，MM5 あるいは WRF の使用を前提として設計されている。
6) 目的に応じて複数のオプションから化学反応，数値計算スキームなどを選択することができ，ユーザーによるスキームの追加も考慮して設計されている。
7) 移流，反応，沈着などのプロセス別濃度変化を解析できる。
8) Community Modeling and Analysis System（CMAS）センター（http://www.cmascenter.org）のサポートのもとでトレーニングプログラムが利用でき，コミュニティモデルとしてユーザー間の情報交換なども活発に行われ，バグ情報やモデル更新情報が迅速に公開される。

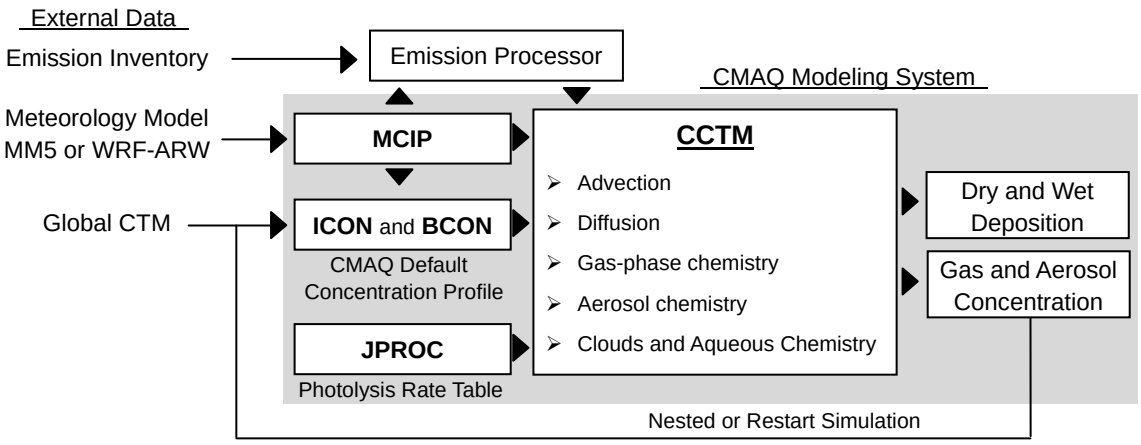


Fig. 2.4 CMAQ modeling system flowchart.

CMAQ は世界中で広く使用されており，その適用例は，高濃度の光化学オキシダントのエピソードの解析（e.g., Zhang et al., 2006; 黒川ら, 2008; Nghiem and Oanh, 2008; Xu et al., 2008），大気中微小粒子などの長距離輸送による影響の解析（e.g., Zhang et al., 2004; In et al., 2007; Chuang et al., 2008），日本における硫黄沈着量および発生源別寄与の経年変動の解析（片山ら, 2008），東アジアの各地域間おける酸性物質沈着量のソース・レセプター解析（Lin et al., 2008b）など多岐にわたる。

Fig. 2.4 に示すように CMAQ では，発生源プロセッサー，気象化学インターフェースプロセッサー（MCIP: Meteorology-Chemistry Interface Processor），初期および境界条件プロセッサー（ICON and BCON: Initial and Boundary CONdition processors），晴天時光解離反応定数プロセッサー（JPROC: Clear-sky photolysis rate calculator）からの入力データをもとに CMAQ 化学輸送モデル（CCTM: CMAQ Chemical Transport Model）によって大気質シミュレーションを行う。

発生源プロセッサーとして，アメリカでは通常 Sparse Matrix Operator Kernel Emissions modeling system（SMOKE）（http://www.smoke-model.org/index.cfm）が利用されるが，SMOKE 用に発生源部門別に集計された排出インベントリが必要であり，直接日本に適用することはできない（鵜野ら, 2005）。本研究では，SMOKE をもとに計算格子への排出量配分プログラムを作成し，EAGrid2000-JAPAN（Kannari et al., 2007）などの複数のデータを組み合わせて用いた。

MCIP は，気象モデルの出力から必要なデータを抽出し，CCTM 用の気象場を含む I/O API 形式ファイルを作成する。その際，空間情報についても気象モデルの出力をもとに再設定を行う。水平計算領域については，格子解像度はそのままで気象モデルの計算領域の境界付近を削除するため，気象モデルの計算領域よりも小さくなる。鉛直層については，気象モデルの解像度よりも粗く設定して層数を減らすことができる。この空間情報は，発生源プロセッサー，ICON・BCON の処理にも必要となる。また MCIP では，ガス状物質の乾性沈着速度を Pleim et al.（2001）の手法によって計算できる。ガス状物質の乾性沈着速度は，

接地境界層過程における空気力学的抵抗，準層流層過程における抵抗，沈着面相互作用過程における表面抵抗の 3 つの抵抗和の逆数として定義される。CMAQ のバージョン 4.7 からは，この計算を CCTM によってオンラインで行うオプションが追加されており，将来は完全に移行される予定であるため，本研究ではそのオプションを用いた。

ICON および BCON は, 大気汚染物質およびその前駆物質の濃度の初期条件および側面境界条件を作成する。広領域の初期・境界条件の作成には，清浄大気を想定した CMAQ デフォルトの時間変化のない濃度プロファイルを用いる。また広領域の境界条件の一部には，航空機による観測値，あるいは Model for OZone And Related chemical Tracers（MOZART）（Brasseur et al., 1998），Chemical transport model driven by observations from the Goddard Earth Observing System（GEOS-Chem）（Bey et al., 2001）といった全球化学輸送モデルによる計算値が用いられる場合もある（e.g., 鵜野ら, 2005; Tesche et al., 2006; Lin et al., 2008a）。広領域から狭領域へのネスティング計算を行う場合には，広領域における CCTM の出力をもとに BCON によって狭領域の境界条件を作成する。

JPROC は，緯度（10 度間隔）・高度（0，1，2，3，4，5，8，10，15，20 km）・時角（1 時間間隔）別の，雲が全く存在しない晴天時における光解離反応定数について日別に参照テーブルを作成する。光解離反応定数は，CMAQ デフォルトの宇宙からの放射量，O_3 濃度・エアロゾル濃度・気温・気圧の季節別鉛直プロファイル，吸収断面積・量子収量などのデータをもとに計算される。O_3 については，Total Ozone Mapping Spectrometer（TOMS）（http://jwocky.gsfc.nasa.gov/）のデータを使用することもできる。

CCTM は，上記のプリプロセッサーによる入力データをもとに，様々な大気汚染物質およびその前駆物質について排出・移流・拡散・反応・沈着過程を計算し，それらの濃度分布，湿性・乾性沈着量などを出力する。さらに本研究では，雲・液相反応系において計算される霧, すなわち地表に接する第 1 層における雲中のイオン濃度を出力するように CCTM に変更を加えた。

2.2.2 化学輸送モデル

CMAQ で計算される各格子における物質 c の濃度 C_c は次式で表される。

$$\frac{\partial C_c}{\partial t} = \mathrm{Adv} + \mathrm{Diff} + R_c + E_c - S_c \tag{2.11}$$

ここで，Adv は移流，Diff は拡散，R_c，E_c，S_c はそれぞれ物質 c の化学変化，排出，消滅（湿性・乾性沈着）を表す。移流および排出は，それぞれ MCIP および発生源プロセッサーからの入力データによってほぼ決定する。拡散，化学変化，消滅は入力データをもとに CCTM 内部で計算される。より詳細には，Byun and Ching（1999）や Byun and Schere（2006）で述べられている。

気相過程における太陽光による化学物質の光解離反応は，大気中で生じる大気汚染物質およびその前駆物質に関連する化学反応の多くに関わっており，それを正確に予測することが大気質シミュレーションにおいて非常に重要となる。CCTM では光化学反応モデルとして，Carbon Bond mechanism version 2005（CB05）（Yarwood et al., 2005），あるいは Statewide Air Pollution Research Center mechanism version 1999（SAPRC-99）（Carter, 2000a; 2000b）が選択できる。これらの反応モデルの解法として，Rosenbrock（Sandu et al., 1997），Euler Backward Iterative（EBI）（Hertel et al., 1999），Sparse Matrix Vectorized GEAR（SMVGEAR）（Jacobson and Turco, 1994）の 3 種類が用意されている。EBI は CB05 および SAPRC-99 にそれぞれ最適化されたものが用意されているため，反応モデルに変更を加える場合は，Rosenbrock あるいは SMVGEAR を使用する必要がある。光化学反応の予測において重要となる光解離反応定数の計算は，JPROC からの緯度・高度・時角・日別の晴天時光解離反応定数をもとに，CCTM においてシミュレーション時の雲の影響を考慮して計算格子ごとに行われる。CMAQ のバージョン 4.7 では，JPROC からの入力データを用いず，CCTM によってオンラインでエアロゾル濃度の変化なども考慮して光解離反応定数を計算する手法（Binkowski et al., 2007）が追加されているが，まだ試作段階であり，本研究では使用していない。

大気中のエアロゾル過程には，1 次粒子の排出，反応・凝縮による 2 次粒子の生成，粒子の凝集，乾性沈着などが含まれる。CCTM のエアロゾルモジュールには，大気エアロゾルの挙動を表現するために Regional Particle Model（RPM）（Binkowski and Shankar, 1995）が組み込まれている。RPM における粒径分布は，Aitken モード，accumulation モード，coarse モードの 3 つの対数正規分布の重ねあわせで表現される。Aitken モードおよび accumulation モードは，粒径の極大値がそれぞれ 0.01～0.1 μm および 0.1～1.0 μm の範囲にあり，PM のうち空気力学径 2.5μm 以下の PM2.5 に相当する。また，coarse モードは粒径 2.5～10 μm のエアロゾルを表現し，3 つの粒径モード全てに含まれる粒子の和が，空気力学径 10 μm 以下の PM10 に相当する。2 次無機粒子の生成については，ISORROPIA（Nenes et al., 1998）のバージョン 1.7 をもとに，H_2SO_4，HNO_3，アンモニア（NH_3），塩化水素（HCl），ナトリウム（Na）についてガス/粒子の分配が計算される。2 次有機粒子（SOA: Secondary Organic Aerosol）の生成については，Secondary ORGanic Aerosol Model（SORGAM）（Schell et al., 2001）をもとに，粒子組成，温度依存性などを考慮し，低揮発性有機成分のガス/粒子の分配が計算される。乾性沈着については，3 つの粒径モード別に，Venkatram and Pleim（1999）をもとに，慣性衝突も考慮に入れて沈着速度が計算される。また，Gong（2003）および Zhang et al.（2005）に従い，accumulation モードおよび coarse モードの海塩粒子の排出量が風速および相対湿度の関数として計算される。

雲過程は，液相反応，大気汚染物質の鉛直混合，湿性沈着による大気汚染物質の除去などにおいて重要な役割を果たしている。CCTM では 3 種類の雲，すなわちモデルグリッドスケールの雲，サブグリッドスケールの降水性および非降水性の対流雲が考慮されている。モデルグリッドスケールの雲は，MCIP からの入力データに含まれている。サブグリッドス

ケールの対流雲モデルは，Asymmetric Convective Method（ACM）（Pleim and Chang, 1992）が用いられており，水平格子が 8 km よりも大きい場合にのみ考慮される。MCIP からの入力データに対流性雲による降雨が存在するかどうかで，降水性および非降水性の対流雲が区別される。液相反応および湿性沈着過程は, Regional Acid Deposition Model（RADM）（Chang et al., 1987）をもとにしている。雨，雲などの液相中の物質濃度は，ガス成分については，液相中成分との間の気液平衡が計算される。エアロゾルについては，accumulation および coarse モードの粒子は雲核として取り込まれ，Aitken モードの粒子は徐々に洗浄される。さらに，液相での物質のイオン解離，酸化が計算される。以上の過程によって決まる液相中物質濃度と降水強度の積によって湿性沈着量が計算される。

CCTM で考慮されている非常に多くの化学反応の中で，酸性沈着と深く関係する化学反応について簡単にまとめる。光化学反応によって種々の経路から生成するヒドロキシルラジカル（OH）は，対流圏の大気化学において最も重要な酸化性ラジカルである（Kley et al., 1999）。気相反応において SO_2 は，主に OH によって酸化され，以下のように H_2SO_4 を生成する。

$$SO_2 + OH \rightarrow HSO_3 \quad \text{(R2.1)}$$

$$HSO_3 + O_2 \rightarrow SO_3 + HO_2 \quad \text{(R2.2)}$$

$$SO_3 + H_2O \rightarrow H_2SO_4 \quad \text{(R2.3)}$$

また，SO_2 の酸化には液相反応も重要な役割を果たす。水に溶解した SO_2 は，以下のように解離していく。

$$SO_2 + H_2O \rightarrow SO_2 \cdot H_2O \rightarrow HSO_3^- + H^+ \rightarrow SO_3^{2-} + 2H^+ \quad \text{(R2.4)}$$

水に溶解した S(IV)は，種々の酸化剤によって S(VI)の SO_4^{2-} に酸化される。酸化剤として，SO_2 とともに溶け込んだ過酸化水素（H_2O_2）や O_3，また液滴中の Mn(II)，Fe(III)を触媒とした溶存酸素などが考慮されている。

NO_X の酸化過程は，光化学オキシダントの主成分である O_3 との関わりが強い。一酸化窒素（NO）は以下の反応により O_3 によって NO_2 へと酸化される。

$$NO + O_3 \rightarrow NO_2 + O_2 \quad \text{(R2.5)}$$

一方で，NO_2 は紫外線（$h\nu$）によって分解され，以下のように O_3 を生成する。

$$NO_2 + h\nu \rightarrow NO + O \quad \text{(R2.6)}$$

$$O + O_2 + M \rightarrow O_3 + M \quad \text{(R2.7)}$$

ここで，M は第 3 体で，窒素分子（N_2）または酸素分子（O_2）である。主に VOC や CO の OH などによる酸化過程で生じる，アルキルペルオキシラジカル（RO_2）やヒドロペルオキ

シラジカル（HO_2）は，以下のように NO を酸化して NO_2 を生成する。

$$RO_2 + NO \rightarrow RO + NO_2 \quad \text{(R2.8)}$$

$$HO_2 + NO \rightarrow OH + NO_2 \quad \text{(R2.9)}$$

このようにして生成された NO_2 から，反応式(R2.6～7)によって O_3 が生成されることで，日中の O_3 が上昇する。さらに NO_2 は, 以下のように OH によって酸化され HNO_3 を生成する。

$$NO_2 + OH \rightarrow HNO_3 \quad \text{(R2.10)}$$

この反応は，25°C，大気圧条件下で OH と SO_2 の反応に比べて約 10 倍速いため，NO_2 からの HNO_3 の生成は SO_2 からの H_2SO_4 の生成に比べて発生源に近いところで完結すると考えられる（溝口, 1994）。また夜間には，NO_2 と O_3 の反応によって生成する硝酸ラジカル（NO_3）が，HNO_3 の生成において重要となる。

$$NO_2 + O_3 \rightarrow NO_3 + O_2 \quad \text{(R2.11)}$$

NO_3 は VOC の反応によって HNO_3 を生成し，また NO_3 と NO_2 から生成する五酸化二窒素（N_2O_5）の，水滴や粒子表面における不均一反応によって HNO_3 が生成する。

$$NO_3 + RH \rightarrow HNO_3 + R \quad \text{(R2.12)}$$

$$NO_3 + NO_2 \rightarrow N_2O_5 \quad \text{(R2.13)}$$

$$N_2O_5 + H_2O \rightarrow 2HNO_3 \quad \text{(R2.14)}$$

SO_2 および NO_X の酸化によって生成された H_2SO_4 および HNO_3 は，アンモニア（NH_3）によって中和され，粒子化する。

$$2NH_3 + H_2SO_4 \rightarrow (NH_4)_2SO_4 \quad \text{(R2.15)}$$

$$NH_3 + HNO_3 \rightarrow NH_4NO_3 \quad \text{(R2.16)}$$

これらの中和反応では，硫酸アンモニウム（$(NH_4)_2SO_4$）の生成が優先され，NH_3 が余っていれば硝酸アンモニウム（NH_4NO_3）粒子が生成される。これらの粒子の多くは accumulation モードに含まれる微小粒子であるため，大気中に長く滞留し長距離輸送されやすい。このように NH_3 は大気中では酸性物質を中和する塩基性成分であるが，好気性条件下の土壌では硝化細菌によって硝酸へと変えられるため，土壌への沈着後は酸としても扱われる。

また, 海塩成分が多量に存在する場合は，それが HNO_3 と反応し硝酸ナトリウム（$NaNO_3$）粒子を生成する。この粒子はおよび coarse モードに含まれる粗大粒子であり，重力沈降速度が大きく大気中の寿命は比較的短い。

$$HNO_3 + NaCl \rightarrow NaNO_3 + HCl \quad \text{(R2.17)}$$

第 3 章　気象/大気質予測における計算条件

3.1.　計算領域

Fig. 3.1 に CMAQ の計算領域と計算結果の評価に用いた観測地点を，Table 3.1 に WRF および CMAQ の設定条件を示す。計算期間は 2004 年 3 月～2005 年 3 月とし，2004 年 3 月を助走計算期間，六甲山における霧観測データが得られた 2004 年 4 月～2005 年 3 月を評価対象期間とした。水平計算領域は，北緯 32.5 度，東経 122.5 度を中心としたランベルト正角円錐図法で表される，アジアの広域を対象とする 81 km 格子領域（D1）から，27 km 格子領域（D2），9 km 格子領域（D3），および近畿圏を対象とする 3 km 格子領域（D4）までの

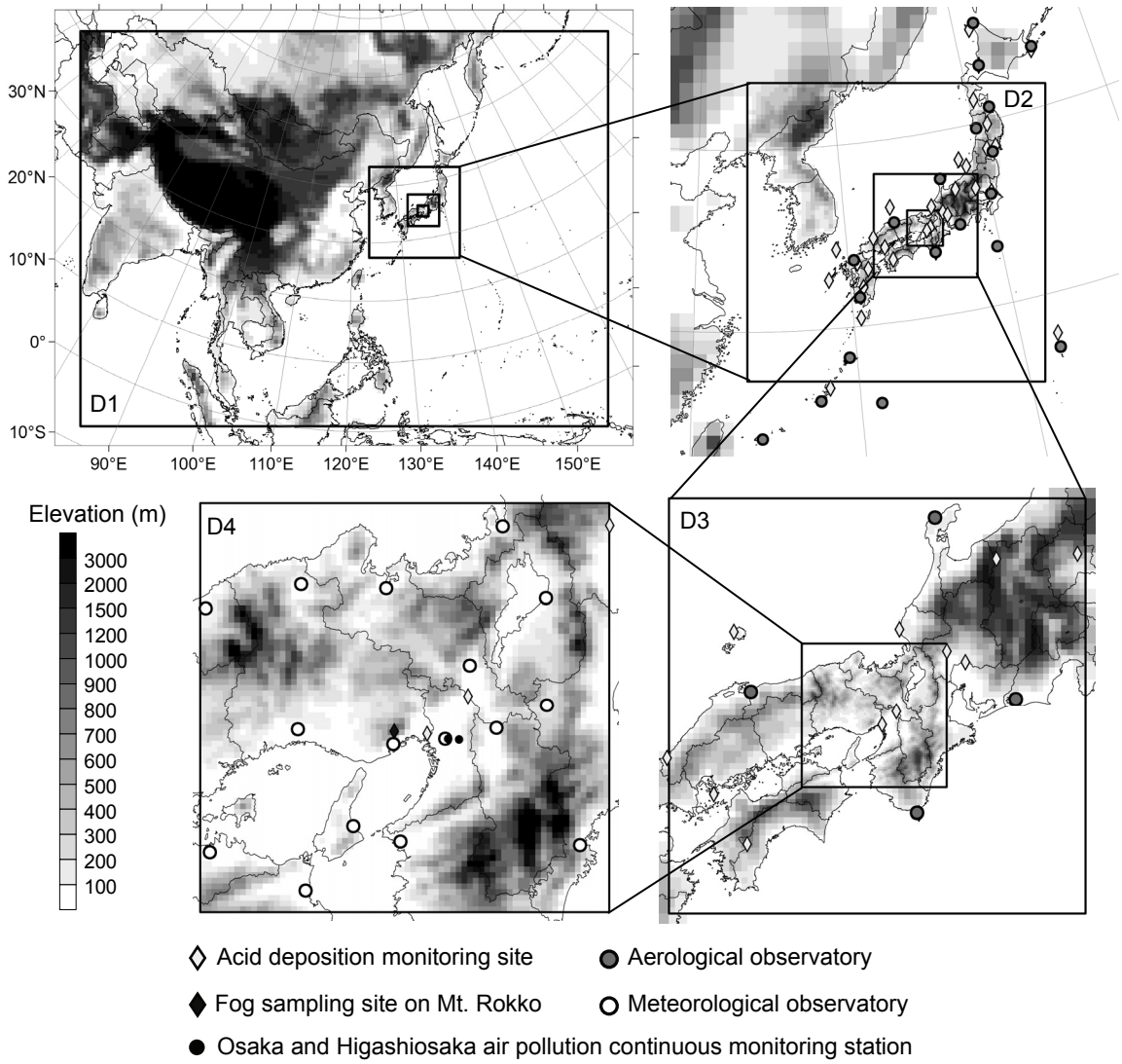


Fig. 3.1 Modeling domains for CMAQ prediction and locations of observation sites.

Table 3.1 WRF and CMAQ configurations

	Parameter	Setting
	Spin-up period	March 2004
	Simulation period	April 2004 - March 2005
	Output interval	1 hour
	Map projection	Lambert conformal conic
	Central point	32.5° N, 122.5° E
	Horizontal grid spacing	81, 27, 9 and 3 km
	Vertical domain	Ground surface - 100 hPa
WRF	Version	ARW 3.2.1
	Horizontal grid number	156 × 108, 78 × 78, 81 × 81and 84 × 84
	Vertical grid (half-η)	0.998, 0.993, 0.985, 0.97, 0.945, 0.91, 0.87, 0.825, 0.775, 0.725, 0.675, 0.625, 0.575, 0.525, 0.475, 0.425, 0.375, 0.325, 0.275, 0.225, 0.175, 0.125, 0.075, 0.025
	Initial and boundary	NCEP.FNL and GPV-MSM
	Analysis nudging	Wind ($G_{uv} = 3.0^{-5}$ s^{-1}) in D1 and D2
	Explicit moisture	WSM3
	Cumulus	Kain-Fritsch
	PBL and surface layer	YSU PBL and MM5 similarity
	Surface	Noah LSM
	Radiation	RRTM and Dudhia
CMAQ	Version	4.7.1
	MCIP	Version 3.6
	Horizontal grid number	128 × 96, 66× 66, 69 × 69 and 72 × 72
	Vertical grid (half-η)	0.998, 0.993, 0.985, 0.97, 0.945, 0.91, 0.87, 0.825, 0.77, 0.70, 0.62, 0.54, 0.45, 0.35, 0.225, 0.075
	Initial and boundary	CMAQ default concentration profile
	Advection	Yamartino scheme
	Horizontal diffusion	Multiscale
	Vertical diffusion	ACM 2
	Photolysis calculation	JPROC table
	Gas phase chemistry	SAPRC-99
	Chemistry solver	EBI
	Aerosol	AERO5
	Cloud and aqueous chemistry	On

4 領域とした。既往の酸性沈着のモデル予測においては，水平計算格子サイズは 100 km 程度と粗い場合が多い（e.g., Arndt et al., 1998; Ichikawa et al., 2001; Holloway et al., 2002; Lin et al., 2008b）。しかし，本研究では霧を対象としており，霧の発生においては地形の起伏が重要となるため，D4 の水平計算格子サイズを 3 km とした。MCIP では，WRF の気象予測において境界値の影響を強く受けている境界付近の格子を削除するため，CMAQ では WRF よりも水平格子数が少なくなっている。鉛直層は，WRF では地表面から上空 100 hPa までを 24 層に分割し，CMAQ では計算負荷・出力ファイルサイズ縮小のために，計算結果への影響が小さいと考えられる上空の層数を減らして 16 層とした。地表付近の鉛直層の中心高さは，標高に依存するため格子ごとに異なり，また時間変化もするが，第 1 層が約 15 m，第 2 層が約 50 m，第 3 層が約 110 m である。WRF/CMAQ による気象/大気質予測の精度評価には，Fig. 3.1 に示した六甲山における霧採集地点，気象官署，高層気象官署，環境省による酸性沈着モニタリング地点，大阪府大気汚染常時監視局における観測値を用いた。

3.2 気象モデル WRF の計算条件

WRF の初期条件および底面・側面境界条件の作成に用いた客観解析データは，National Centers for Environmental Prediction（NCEP）による全球最終解析データ（NCEP FNL: NCEP FiNaL operational global analysis data）（http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2/），および気象庁のメソ数値予報モデルによる客観解析値（GPV MSM: Grid Point Value derived from MesoScale Model）（http://www.jmbsc.or.jp/hp/online/f-online0c.html）である。

NCEP FNL は，全球を対象に 6 時間間隔，水平解像度 1° × 1°で整備されている。計算期間における NCEP FNL は，地中データ（0～10，10～200 cm）には，土壌温度および土壌含水率，地表データには，表面温度，陸域割合，氷河割合，積雪量などが含まれる。地上データには，海面更生気圧，地上気圧，風速東西・南北成分，気温，相対湿度，比湿，降水量，雲量，PBL 高度，対流抑制，対流有効位置エネルギーなどが含まれる。気圧面（1000，975，925，900，850，800，700，650，600，550，500，450，400，350，300，250，200，150，100，70，50，30，20，10 hPa）におけるデータには，ジオポテンシャル高度，風速，風速東西・南北成分，気温，上昇流，相対湿度，O_3 混合比，雲水混合比などが含まれる。

GPV MSM は，北緯 22.4～47.6 度，東経 120～150 度の日本および周辺域を対象としている。計算期間における GPV-MSM データは，1 日 4 回 6 時間間隔で配信されており，各データに初期値と初期値から 18 時間後までの予報値（地上データ 1 時間間隔，気圧面データ 3 時間間隔）が含まれ，水平解像度は地上データで 0.1° × 0.125°，気圧面データで 0.2° × 0.25° となっている。地上データには，海面更生気圧，地上気圧，風速東西・南北成分，気温，相対湿度，降水量，雲量が含まれる。気圧面（1000，975，950，925，900，850，800，700，600，500，400，300，250，200，150，100 hPa）におけるデータには，ジオポテンシャル高

度，風速東西・南北成分，気温，上昇流，相対湿度が含まれる。

客観解析値に含まれるデータの中で，WRF への入力データとして使用されるのは，土壌温度，土壌含水率，表面温度，陸域割合，氷河割合，積雪量，海面更生気圧，地上気圧，気温，相対湿度，風速東西・南北成分である。

WRF の計算は，D1 と D2～D4 は独立で行った。D1 の初期・境界値には NCEP FNL を使用し，D2 の初期・境界値には側面は GPV MSM，底面は NCEP FNL を使用した。これらの境界値の更新頻度は 6 時間間隔とした。D2～D4 は 2 ウェイネスティングで計算を行ったため，D2 と D3，D3 と D4 の計算は双方向に影響している。

FDDA については，上記の NCEP FNL および GPV MSM を用いた解析値ナッジングを，D1 および D2 における風速の東西・南北成分に対してナッジング係数 G_{uv} = 3.0^{-5} s^{-1} で行った。特に D1 は広域を対象としており，台風が領域内で発生するなどの理由から，側面・底面境界値のみから領域内の気象予測を正確に行うことは困難であるため，解析値ナッジングが必要であると考えられる。

雲微物理過程には，WRF Single-Moment 3-class（WSM3）スキーム（Hong et al., 2004; Hong and Lim, 2006）を用いた。WSM3 スキームは，水蒸気，雲水/雲氷，雨/雪の区分で大気中水分の予測を行い，落下過程における凝固・融解過程に伴う大気との熱交換などが考慮されている。また Dudhia（1989）に従い，0 °C を境に水と氷を区別しており，simple-ice スキームとも呼ばれる。

積雲過程には，Kain and Fritsch（1990; 1993）からエントレインメント率，非降水性の浅い積雲，下降流の扱いなどが改良された Kain-Fritsch スキーム（Kain, 2004）を用いた。Kain-Fritsch スキームでは，エントレインメント，デトレインメント，雲微物理の影響を考慮した，比較的簡易な雲モデルによって水分の上昇・下降流が表現される。なお，CMAQ では水平格子サイズが 8 km 未満の場合はサブグリッドスケールの対流雲の影響が考慮されないため，D4 には積雲スキームを用いていない。

PBL 過程には，MM5 でも使用された Medium Range Forecast model（MRF）PBL スキーム（Hong and Pan, 1996）を改良した，YonSei University（YSU）PBL スキーム（Hong et al., 2006）を用いた。YSU スキームにおける PBL 高さは，臨界バルクリチャードソン数が 0 となる高度と定義されている。YSU スキームは，Noh et al.（2003）をもとに PBL 上の移行層を考慮している。また WRF のバージョン 3 では，Hong（2007）をもとに安定境界層における拡散アルゴリズムが改良されている。接地境界層過程には，Monin-Obukhov の相似則（Monin and Obukhov, 1954）をもとにした，MM5 の MRF スキームで用いられていたスキームを用いた。このスキームでは，Paulson（1970），Dyer and Hicks（1970），Webb（1970）の大気安定度関数によって接地層における熱，水分，運動量の交換係数が予測される。

地表面過程には，NCEP と NCAR によって共同開発された Noah Land-Surface Model（Noah LSM; Chen and Dudhia, 2001）を用いた。Noah LSM では，土壌は深さ 0～10，10～40，40～100，100～200 cm の 4 層に分割される。植生区分・割合，根域を考慮し，表面流出，蒸発

散，土壌排水などの予測をもとに，土壌温度・含水率の予測を行う。また，積雪の状態，樹冠内の水分などの予測も行う。

長波放射スキームには，Rapid Radiative Transfer Model（RRTM）（Mlawer et al., 1997）を用いた。RRTM スキームでは，長波放射スペクトルを 16 に分割し，水蒸気，O_3，CO_2 などのガスおよび雲の光学的深さが詳細に扱われる。短波放射スキームには，Dudhia（1989）スキームを用いた。このスキームでは，太陽放射の晴天時の散乱，水蒸気による吸収（Lacis and Hansen, 1974），雲による反射・吸収（Stephens, 1978）を考慮し，簡易的に下向き短波放射フラックスが予測される。

3.3 大気質モデル CMAQ の計算条件

CMAQ の D1 における大気汚染物質およびその前駆物質濃度の初期条件および側面境界条件には, 清浄大気を想定した CMAQ デフォルトの濃度プロファイルを使用した。D2, D3, D4 の側面境界条件は，それぞれ D1，D2，D3 における大気中ガス・粒子濃度の 1 時間間隔の計算結果から作成される。

気相反応過程には，SAPRC-99 を使用した。VOC は成分ごとに反応性が大きく異なるため, 化学反応モデルに排出量を与える際には VOC の組成分解を行う必要がある。SAPRC-99 スキームでは，反応が類似している VOC 成分をまとめ，代表的な組成名で表現するという手法が採用されている。CMAQ バージョン 4.7.1 の SAPRC-99 スキームの排出過程における VOC 組成は，ホルムアルデヒド（HCHO），メタノール（MEOH），ケトン類 2 種（MEK, PROD2），酢酸（CCO_OH），アセトアルデヒド（CCHO），その他有機酸（RCO_OH），アセトン（ACET），フェノール（PHEN），ギ酸（HCOOH），その他アルデヒド類（RCHO），グリオキサール（GLY），メチルグリオキサール（MGLY），ジアセチル（BACL），クレゾール（CRES），芳香族アルデヒド類（BALD），メタクロレイン（MACR），メチルビニルケトン（MVK），その他不飽和アルデヒド類（IPROD），エチレン（ETHENE），イソプレン（ISOPRENE），モノテルペン（TRP1），パラフィン類 5 種（ALK1～ALK5），ベンゼン（BENZENE), その他芳香族類 2 種（ARO1NBZ, ARO2), オレフィン類 2 種（OLE1, OLE2），セスキテルペン（SESQ）の合計 33 種となっている。

エアロゾル過程には，CMAQ バージョン 4.7 で追加された Fifth-generation modal CMAQ aerosol model（AERO5）を使用した。AERO5 では，Edney et al.（2007）および Carlton et al.（2008）に従い，SOA の生成過程が改良されており，イソプレン，セスキテルペン，ベンゼン，グリオキサール，メチルグリオキサールからの粒子生成が追加されている。他にも，海浜域における海塩粒子排出量の改良，HNO_3 と NaCl の反応をはじめとする無機成分のガスと coarse モード海塩粒子の反応の追加（Kelly et al., 2010），N_2O_5 の粒子表面における不均一反応の改良（Davis et al., 2008）も行われている。

3.4　排出量データ

CMAQ には，SO_2，NO_X，CO，NH_3，PM10，PM2.5，VOC の排出量を与えた。NO_X，PM2.5，VOC については，組成分解したものを CMAQ に入力する必要がある。本研究では，大気改善のための自動車・燃料技術開発（JCAP: Japan Clean Air Program）（http://www.pecj.or.jp/japanese/jcap/index_j.asp）における成果，日本における燃料成分別の VOC 組成データ（環境情報科学センター, 2003），SMOKE における組成データ，VOC・PM の組成分解プログラム SPECIATE（http://www.epa.gov/ttnchie1/software/speciate/index.html）などをもとにした森川 (2005) による組成分解を参考とした。Fig. 3.2 に本研究における NO_X，PM2.5，VOC の部門別組成を質量比で示す。NO_X は，主に一酸化窒素（NO）として排出され，残りの大部分は二酸化窒素（NO_2）として排出される。CMAQ バージョン 4.7 では，PM 表面や地表面における不均一反応など，亜硝酸（HONO）に関する反応が改良されている。そのため移動発生源については，Sarwar et al.（2008）に従い，NO，NO_2，HONO の排出比率をそれぞれ 90, 9.2, 0.8%とした。PM2.5 については, 硝酸成分 (PNO3), 硫酸成分 (PSO4)，無機炭素成分（PEC），有機炭素成分（POC），その他（PMFINE）として排出される。VOC については，SAPRC-99 スキームに含まれる 30 種に分類した。植生起源 VOC として，主にイソプレンと，複数のイソプレンユニットからなるテルペン類が排出される。CMAQ バージョン 4.7 では, テルペン類として, イソプレンユニット 2 つからなるモノテルペンに加え，イソプレンユニット 3 つからなるセスキテルペンが追加されている。セスキテルペンは，イソプレンやモノテルペンと同様に反応性が高く，また 2 次有機粒子の生成にも重要である（Atkinson and Arey, 2003）。本研究では，森川（2005）がイソプレン・モノテルペン以外の植生起源 VOC 排出の中でテルペン類に分類していた部分を，セスキテルペンとした。

日本域における人為起源排出量および植生起源 VOC 排出量には，EAGrid2000-JAPAN を用いた。EAGrid2000-JAPAN は，基準年を 2000 年とし，月別および平日・休日別に 24 時間変動が考慮され，日本全国を対象に標準地域メッシュの 3 次メッシュ，すなわち緯度 30″ × 経度 45″（約 1km × 1km）ごとに整備されたデータである。発生源は，大規模燃焼発生源として発電所，廃棄物焼却，その他の 3 部門について排出高度を各 3 高度，小規模燃焼発生源として小規模燃焼，小規模廃棄物焼却，野焼きの 3 部門，移動発生源として自動車（排気管，VOC 蒸発，タイヤ・ブレーキ摩耗），船舶，航空機，オフロード自動車（建設・産業・農業機械）の 4 部門，VOC 蒸発発生源として塗装，印刷，燃料蒸発，その他の 4 部門，NH_3 発生源として農業，人・ペット，その他の 3 部門，植生起源 VOC 発生源としてイソプレン，モノテルペン，その他の 3 部門に分かれている。Fig. 3.3 に EAGrid2000-JAPAN における排出強度の月変化を年平均に対する比率で示す。CO と NO_X については，冬季に自動車のコールドスタート割合の上昇や暖房のための燃焼量増加により排出量が増加している。SO_2 は季節変動が最も小さい。NH_3 については，春季から夏季に施肥や気温上昇に伴う家畜からの排出増加によって排出量が増加し，季節変動が最も大きい。PM10 については，秋季に作物収

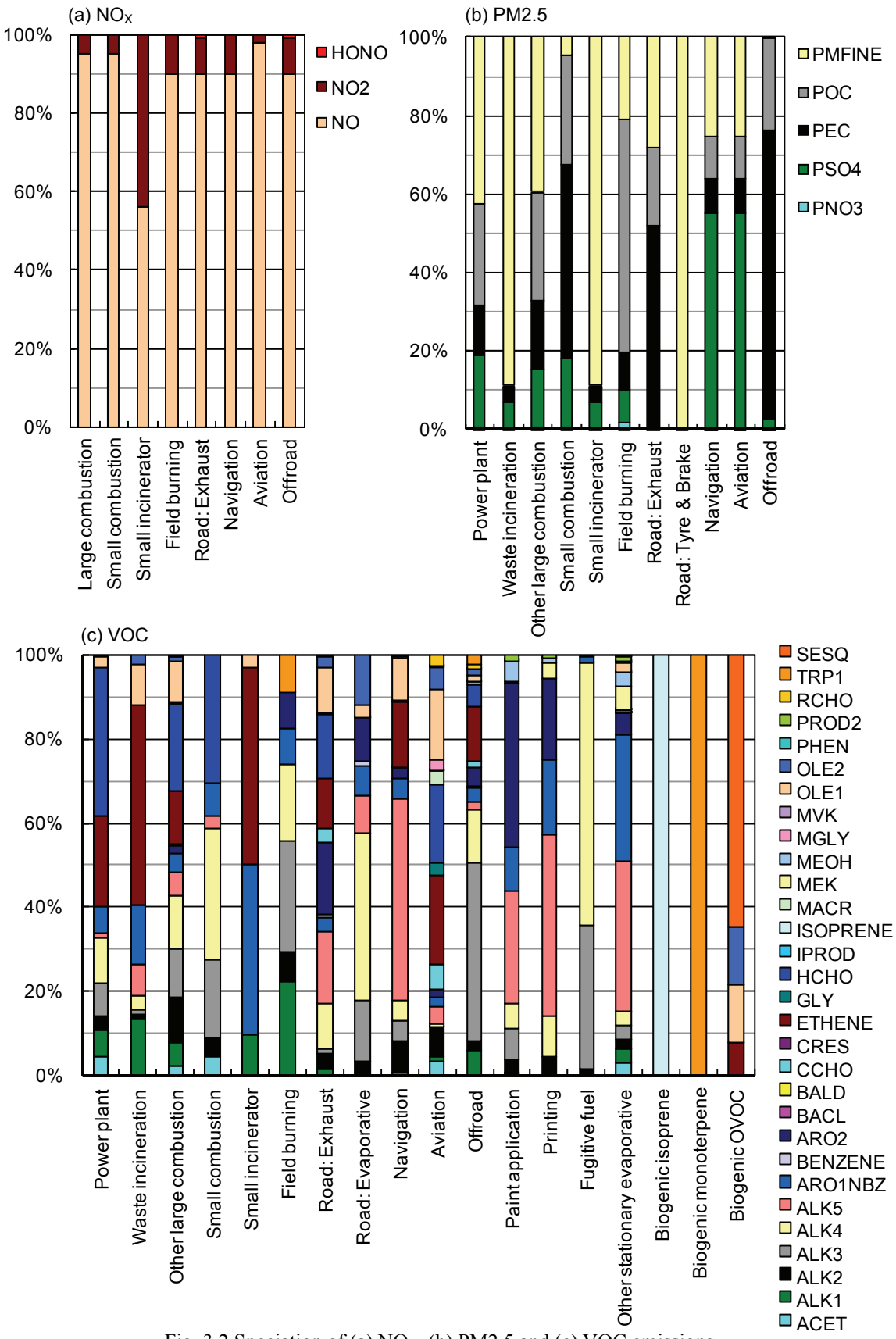


Fig. 3.2 Speciation of (a) NO_X, (b) PM2.5 and (c) VOC emissions.

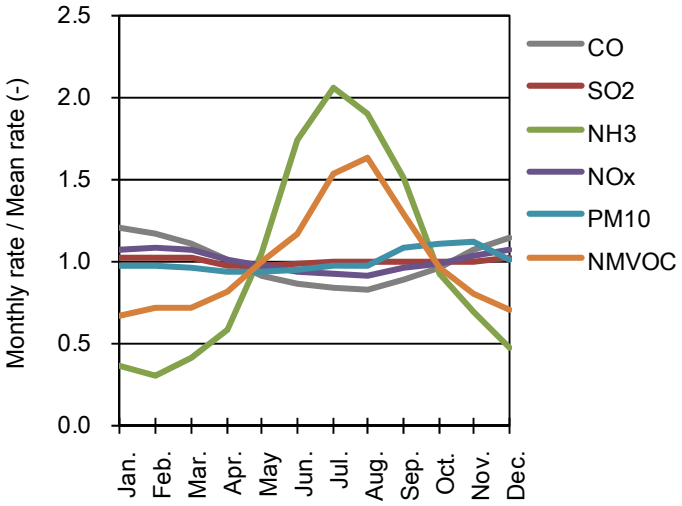


Fig. 3.3 Ratios of monthly emission rate against mean emission rate in Japan.

穫後の野焼きによって排出量が増加している。VOC については，夏季に気温上昇と日射量増加によって植生起源と蒸発発生源からの排出量が増加している。

日本では，自動車から排出される窒素酸化物および粒子状物質の特定地域における総量の削減等に関する特別措置法（自動車 NO_X・PM 法）に代表される排出対策によって 2000 年以降も自動車からの排出量が減少している。Table 3.2 に兵庫県下の自動車排ガス測定局における SO_2，NO_X，CO，非メタン炭化水素（NMHC: Non-Methane hydrocarbons; NMVOC と同義として扱う），浮遊粒子状物質（SPM: Suspended Particulate Matter）の年平均濃度を示す。本研究では，自動車からの排出量減少を反映するために，Table 3.2 に示した年平均濃度の 2000 年からの減少率を EAGrid2000-JAPAN における自動車からの排出量に乗じて補正した。

日本以外のアジアの陸域における人為起源の SO_2，NO_X，CO，VOC および PM の排出量には，Zhang et al.（2009）によって Intercontinental Chemical Transport Experiment-Phase B（INTEX-B）（http://www-air.larc.nasa.gov/missions/intex-b/intexb.html）のために用意された排出データを使用した。INTEX-B 排出データは，基準年を 2006 年とし，水平解像度 0.5° × 0.5° で整備されている。発生源は発電所，産業，家庭，移動発生源の 4 部門となっており，NO_X，

Table 3.2 Annual mean pollutant concentrations observed at the roadside monitoring stations in Hyogo

	2000	2001	2002	2003	2004	2005
SO_2 (ppb)	6.3	6.7	4.9	4.1	4.3	3.6
NO_X (ppb)	78	77	74	72	68	63
CO (ppm)	0.79	0.74	0.71	0.65	0.60	0.57
NMHC (ppmC)	0.27	0.24	0.22	0.23	0.23	0.21
SPM (μg m^{-3})	40	38	35	34	33	34

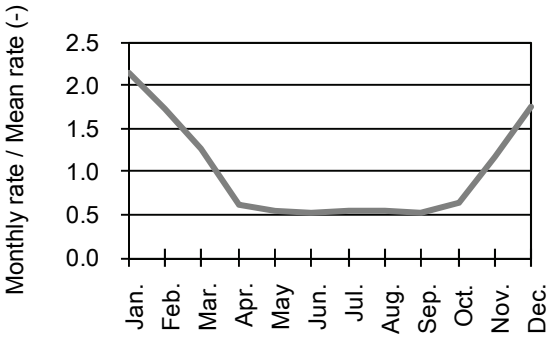


Fig. 3.4 Ratios of monthly emission rate against mean emission rate from residential sector in China.

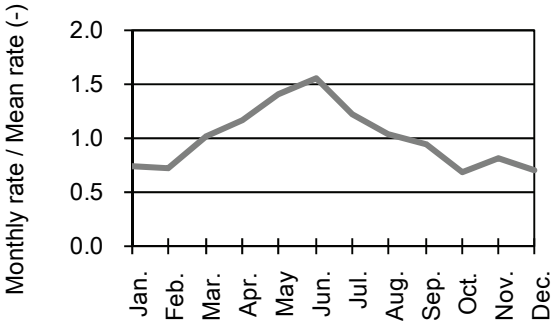


Fig. 3.5 Ratios of monthly NH_3 emission rate against mean emission rate in China.

PM2.5，VOC の組成分解には，それぞれ Fig. 3.2 に示した発電所，その他大規模燃焼，小規模燃焼，自動車部門の値を用いた。また家庭部門については，中国の省別に季節変動が推定されている。中国の家庭部門では，冬季において暖房のための燃焼量増加により排出量が増加している（Fig. 3.4）。

日本以外のアジアの陸域における NH_3 排出量には Regional Emission inventory in ASia（REAS）（Ohara et al., 2007）の 2004 および 2005 年予測値を用いた。NH_3 排出量は，日本における排出量と同様に季節変動が非常に大きいと考えられる。排出量が特に多い中国に対しては，Streets et al.（2003）によって季節変動が推定されており（Fig. 3.5），本研究ではその季節変動を REAS に適用した。

日本以外における植生起源 VOC 排出量には，EAGrid2000（Murano, 2006）および Guenther（1995）を用いた。EAGrid2000 および Guenther（1995）は，それぞれ東アジア域および全球を対象に，植生起源イソプレン，モノテルペン，その他 VOC について季節変動が考慮され，水平解像度 0.5° × 0.5°および 1° × 1°で整備されている。Fig. 3.6 に全植生起源 VOC 排出強度の月変化を年平均に対する比率で示す。植生起源 VOC の排出量は気温上昇および日射の増加に伴い増加するが，Guenther（1995）では熱帯地域が含まれるため，EAGrid2000 に比べて季節変動が小さくなっている。

アジア域におけるバイオマス燃焼起源の排出量には，Streets et al.（2003）を用いた。屋外におけるバイオマス燃焼が考慮されており，森林火災および野焼きが主な発生源となって

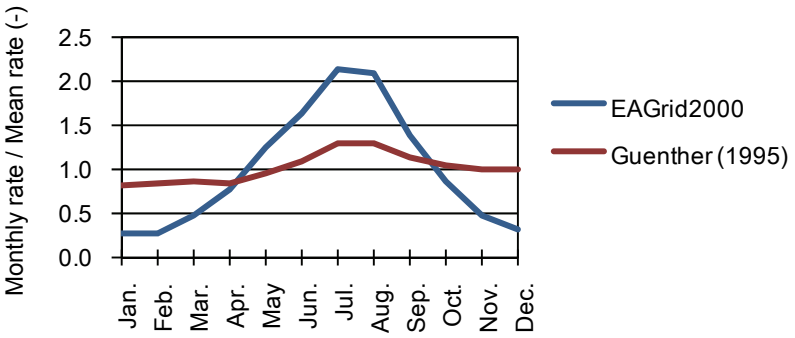


Fig. 3.6 Ratios of monthly biogenic VOC emission rate against mean emission rate.

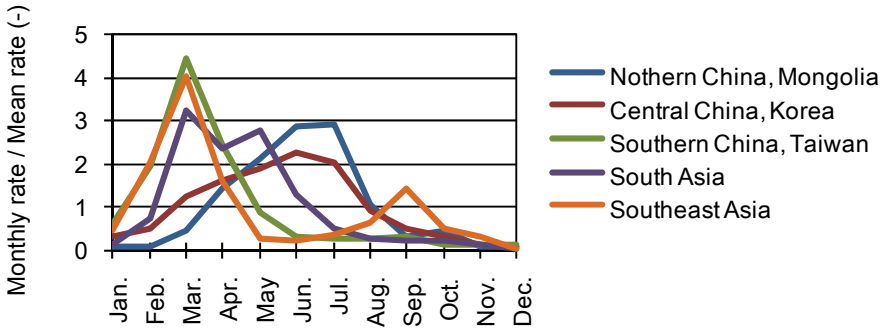


Fig. 3.7 Ratios of monthly CO emission rate against mean emission rate from biomass burning in Asia.

いる。季節変動については，アジア域を 5 つに分け，それぞれについて CO 排出量の月変化が推定されている（Fig. 3.7）。本研究では，この月変化を他の物質にも適用した。

Wang et al.（2008）は，International Comprehensive Ocean-Atmosphere Data Set（ICOADS）（http://icoads.noaa.gov/）および Automated Mutual-Assistance Vessel Rescue System（AMVER）（http://www.amver.com/）による国際航海船舶の位置データをもとに，全球の 0.1° × 0.1°の水平格子に対して，全球船舶排出量に対する各格子からの船舶排出量の比率を表す Ship Emissions Allocation Factor（SEAF）を設定した。本研究では，国際船舶からの排出量は，Corbett and Koehler（2003; 2004）により推定された全球排出量を，SEAF を用いて 0.1° × 0.1°の格子に割り当てて使用した。

ここまでに述べた排出データに含まれていないロシアなどにおける人為起源およびバイオマス燃焼起源排出量には，Arctic Research of the Composition of the Troposphere from Aircraft and Satellites（ARCTAS）（http://www.espo.nasa.gov/arctas/）のために用意された排出データ（http://mic.greenresource.cn/arctas_premission）を用いた。ARCTAS 排出データは，INTEX-B 排出データなどの複数の大陸から全球規模の排出データを組み合わせたもので，水平解像度 1° × 1°で整備されている。

火山起源の SO_2 排出量には，Andres and Kasgnoc（1998）および気象庁による三宅島の SO_2 排出量の観測値（http://www.seisvol.kishou.go.jp/tokyo/320_Miyakejima/320_So2emission.htm）を使用した。Andres and Kasgnoc（1998）は，25 年間継続的に SO_2 を排出している火山につ

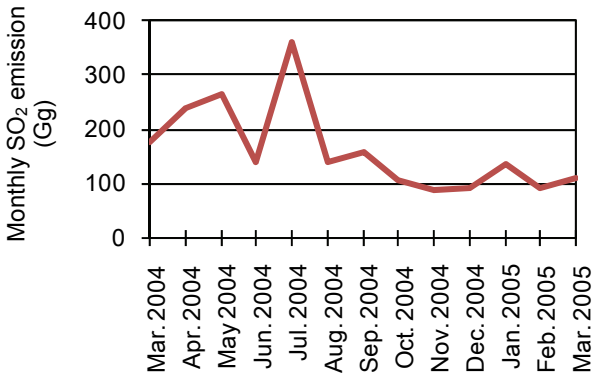


Fig. 3.8 Monthly SO_2 emission from Miyakejima.

いて平均 SO_2 排出量を推定しており，日本の火山では，桜島，薩摩硫黄島，浅間山，三原山，九重山，雲仙岳，阿蘇山，有珠山が含まれている。三宅島の雄山は 2000 年の噴火後，大量に SO_2 を排出し続けている。Fig. 3.8 に三宅島における観測値をもとにした，計算期間における月間 SO_2 排出量を示す。三宅島からの 2004 年 4 月から 2005 年 3 月までの 1 年間の SO_2 排出量は 1.9 Tg であり，これは日本における人為起源排出量の約 2 倍である。

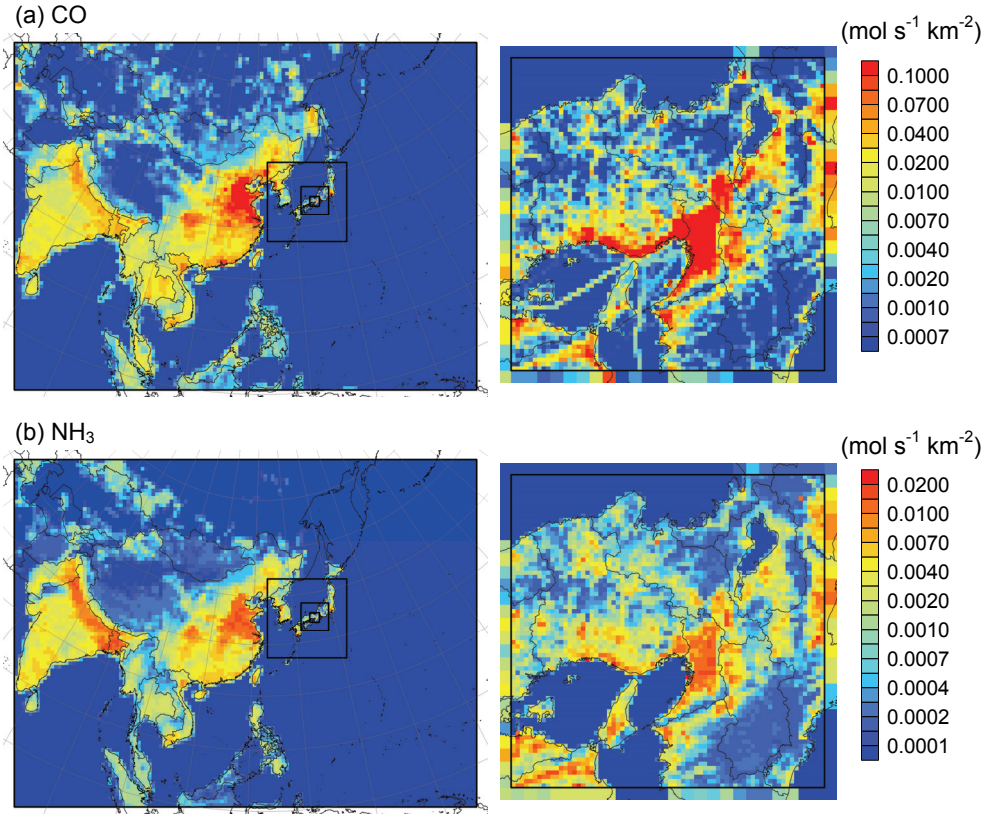


Fig. 3.9 Spatial distributions of annual mean pollutant emission rates for EB.

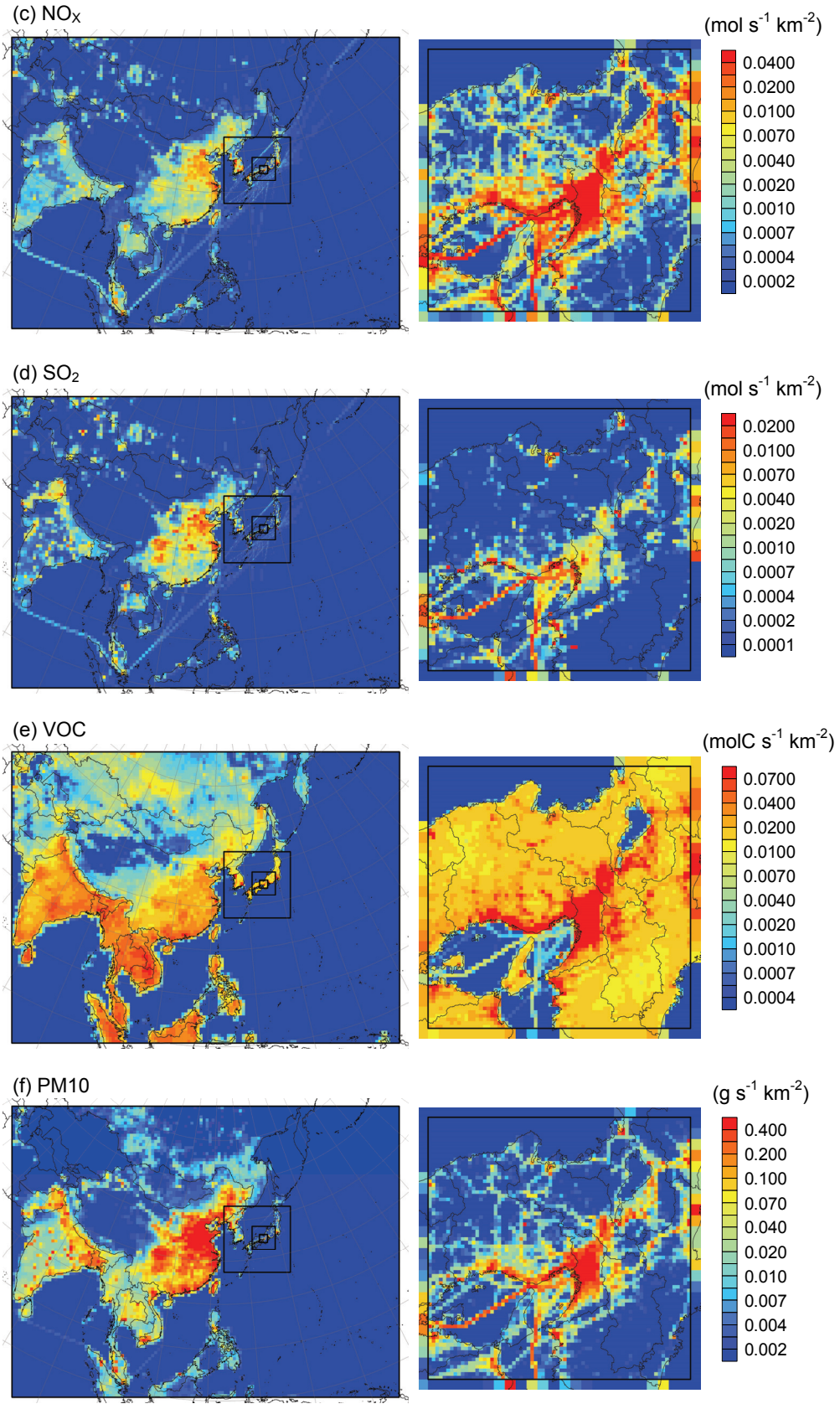


Fig. 3.9 (*continued*).

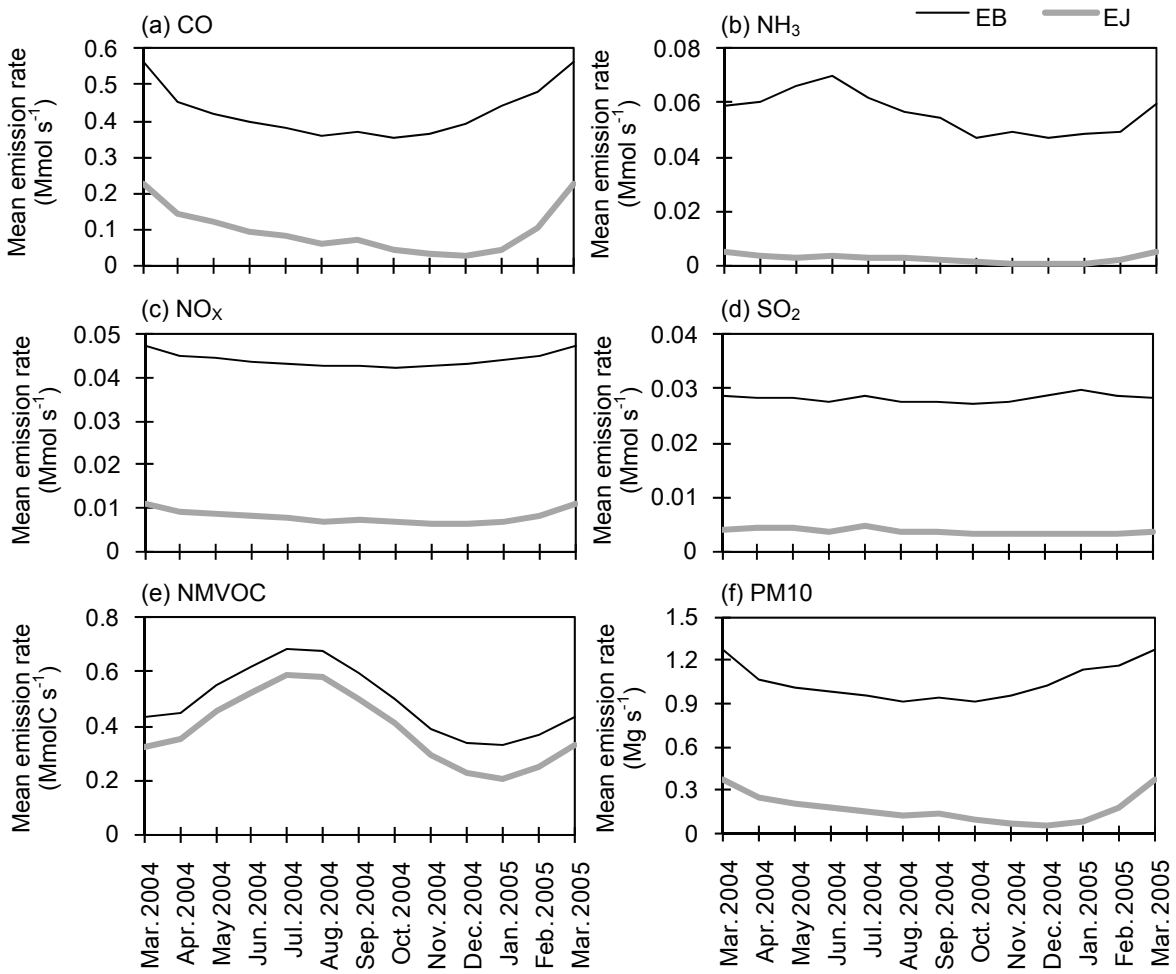


Fig. 3.10 Monthly mean pollutant emission rates in D1 for EB and EJ.

CMAQ による大気質予測は，越境汚染による影響を評価するために，以上の排出量を全て考慮した基本排出ケース（EB）と日本以外の陸域における人為起源排出をなしとした排出ケース（EJ）で行った。Fig. 3.9 に CMAQ の計算格子に配分した排出量の EB における年平均値の空間分布，Fig. 3.10 に EB および EJ の D1 における各物質の排出強度の月変化を示す。VOC は，南アジアから東南アジアにかけての植生起源排出量が多いため，EB と EJ の差は比較的小さい。他の物質については，日本以外の陸域における人為起源排出が大部分を占めており，EB と EJ の差がかなり大きくなっている。

第 4 章　気象/大気質予測結果

4.1　気象予測結果

4.1.1　地上気象予測

WRF による地表付近の気象予測結果との比較には，D4 内の気象官署 16 地点（敦賀，上野，尾鷲，鳥取，豊岡，舞鶴，京都，彦根，姫路，神戸，大阪，洲本，和歌山，奈良，高松，徳島）における観測値を用いた。計算値は，気温および湿度は地上 2 m，風速は地上 10 m の結果を用いた。

予測精度の評価には，統計指標として相関係数（R）（式(4.1)），Mean Bias Error（MBE）（式(4.2)），Mean Absolute Error（MAE）（式(4.3)），Root Mean Square Error（RMSE）（式(4.4)），Index of Agreement（IA）（式(4.5)）を用いた。

$$\mathrm{R} = \frac{\sum_{i=1}^{N}\left(M_i - \overline{M}\right)\left(O_i - \overline{O}\right)}{\sqrt{\left\{\sum_{i=1}^{N}\left(M_i - \overline{M}\right)^2 \sum_{i=1}^{N}\left(O_i - \overline{O}\right)^2\right\}}} \tag{4.1}$$

$$\mathrm{MBE} = \overline{M} - \overline{O} \tag{4.2}$$

$$\mathrm{MAE} = \frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left|M_i - O_i\right| \tag{4.3}$$

$$\mathrm{RMSE} = \left\{\frac{1}{N}\sum_{i=1}^{N}\left(M_i - O_i\right)^2\right\}^{\frac{1}{2}} \tag{4.4}$$

$$\mathrm{IA} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^{N}\left(M_i - O_i\right)^2}{\sum_{i=1}^{N}\left(\left|M_i - \overline{O}\right| + \left|O_i - \overline{O}\right|\right)^2} \tag{4.5}$$

ここで，$\overline{M}$ および $\overline{O}$ は計算値と観測値の平均値，M_i および O_i はある観測地点・時間 i における計算値と観測値，N はサンプル数である。IA は Willmott（1981）により考案された指標で，0 から 1 の値をとり，1 に近いほど計算値と観測値の差が小さいことを示している。Emery et al.（2001）は，気象モデルによる予測精度評価のために MBE，MAE，RMSE，IA についてベンチマークを設定しており，気温については MBE ≤ ±0.5 °C, MAE ≤ 2 °C, IA ≥ 0.8, 湿度については MBE ≤ ±1 g kg^{-1}, MAE ≤ 2 g kg^{-1}, IA ≥ 0.6, 風速については MBE ≤ ±0.5 m s^{-1}, RMSE ≤ 2 m s^{-1}，IA ≥ 0.6 となっている。

Fig. 4.1 に D4 内の各気象官署における気温，湿度，風速，降水量の月間値について，観測値と WRF 計算値の比較を散布図で示す。また，Table 4.1 に D4 内の気象官署における気温，湿度，風速，風速東西・南北成分，降水量について，観測値および WRF 計算値の季節別および年間値を示す。本論文では，春季は 2004 年 4，5 月および 2005 年 3 月，夏季は 2004 年 6 月から 8 月，秋季は 2004 年 9 月から 11 月，冬季は 2004 年 12 月から 2005 年 2 月とする。気温および湿度については，各気象官署において観測結果と計算結果の月平均値が良く一致しており，計算で季節変化を良く再現できている。風速については，年間を通して全体的に計算で過大評価となっている。Table 4.1 では各気象官署の個別の値は示していないが，都市域が広がっている大阪では，年平均風速が観測で 2.6 m s^{-1}，計算で 2.7 m s^{-1} と良く一致した。そのため，計算で都市域における風速の減衰は概ね再現できており，WRF に

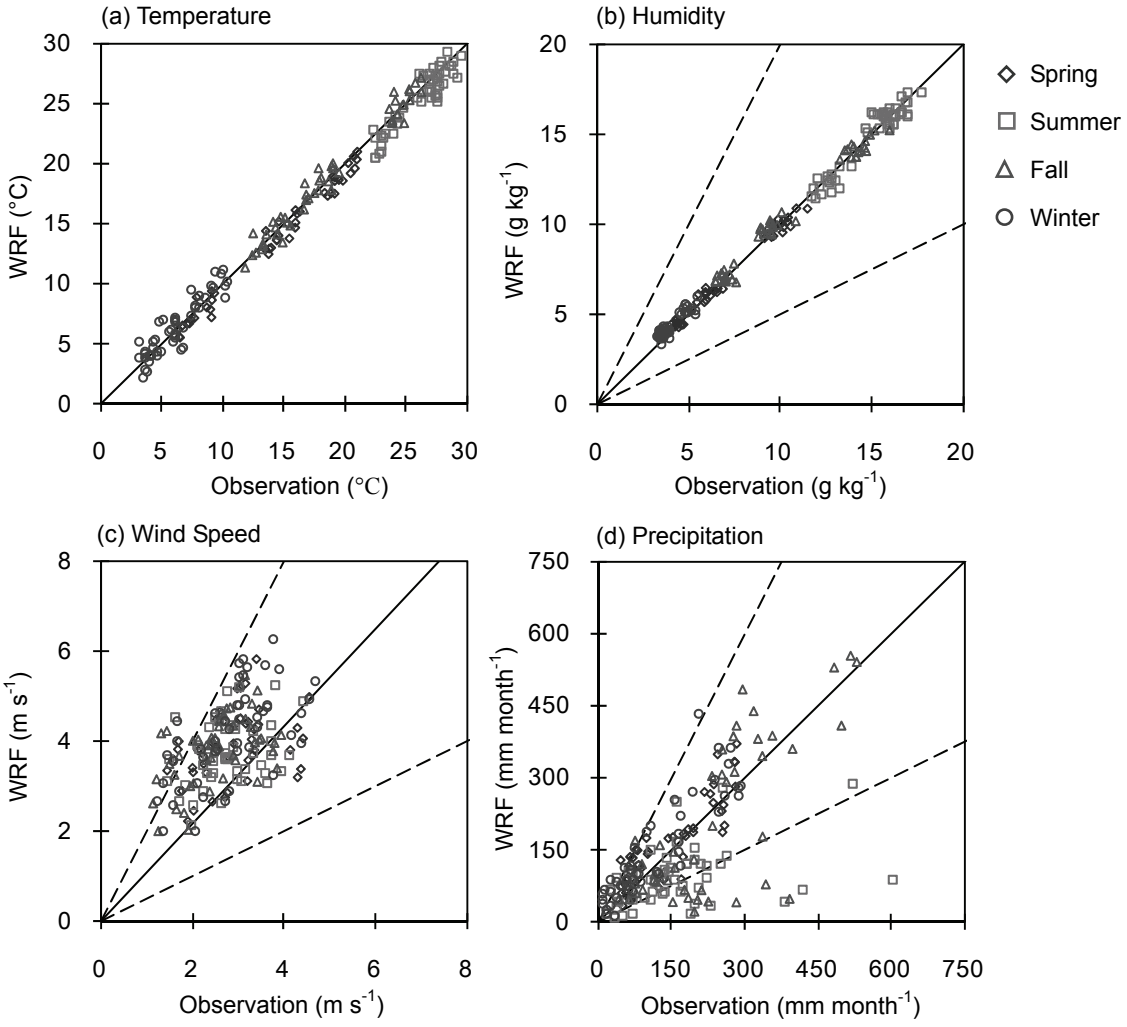


Fig. 4.1 Scatter plots of the observed versus WRF-predicted monthly meteorological variables at the meteorological observatories in D4 from April 2004 to March 2005. 2:1, 1:2 and 1:1 reference lines are provided.

Table 4.1 Observed and WRF-predicted seasonal and annual mean meteorological variables at the meteorological observatories in D4

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
Mean temperature (°C)	Obs.	14.1	26.2	18.8	6.2	16.4
	WRF	13.5	25.5	19.1	6.4	16.2
Mean humidity (g kg^{-1})	Obs.	6.9	14.9	10.2	4.1	9.0
	WRF	6.9	14.8	10.4	4.4	9.1
Mean wind speed (m s^{-1})	Obs.	2.9	2.8	2.6	2.9	2.8
	WRF	3.9	3.7	3.8	4.2	3.9
Mean wind U-component (m s^{-1})	Obs.	0.5	-0.2	0.1	1.1	0.4
	WRF	1.2	-0.4	0.0	1.9	0.7
Mean wind V-component (m s^{-1})	Obs.	-0.1	0.2	-0.4	-0.7	-0.3
	WRF	0.2	0.7	-0.8	-1.0	-0.2
Mean Precipitation (mm)	Obs.	435	558	798	344	2135
	WRF	482	282	690	439	1893

おける土地利用が都市の場合の粗度長（80 cm）は妥当であると考えられる。しかし，盆地である奈良では，年平均風速が観測で 1.5 m s^{-1}，計算で 3.6 m s^{-1} と特に計算による過大評価の傾向が強かった。これは，水平格子サイズが 3 km であるため地形が実際よりも滑らかになり地形の起伏による風速の減衰が過小評価されているためと考えられる。また，日本の陸域では森林地域が大半を占めるが, WRF における土地利用が森林地域の場合の粗度長（50 cm）が日本の密な森林に対する値としては小さく，陸域における地表付近の風速が全体的に過大評価されている可能性がある。観測値についても，気象官署は各地域における中心都市に設置されているため人工構造物の影響を受けやすく，風速の観測値が気象官署周辺の平均的な風速よりも小さくなっている可能性もある。風向については，春季にはアジア大陸方向からの西寄りの風，夏季には太平洋高気圧の発達による南東寄りの風，冬季には日本海からの北西寄りの季節風がそれぞれ卓越しており，観測と計算で概ね傾向が一致している。降水量については，全体的には概ね月間降水量を再現できているが，8 月および 9 月において特に太平洋側で過小評価されていた。D4 の水平格子サイズは 3 km であり，CMAQ では水平格子サイズが 8 km 未満の場合はサブグリッドスケールの対流雲の影響が考慮されないため，本研究では D4 には積雲スキームを用いていない。ここでは示していないが，D4 に積雲スキームを用いた場合には 8 月および 9 月における降水量の過小評価が見られなかったため，この過小評価は対流性の雲による降水の再現性が不十分であるために生じていると考えられる。再現性向上のためには，降水過程に深く関係する雲微物理過程スキームについても検討する必要がある。

Table 4.2 に D4 内の気象官署における気温，湿度，風速，風速東西・南北成分について，

Table 4.2 Statistical measures for hourly WRF predictions at the meteorological observatories in D4

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
Temperature	Sample number	35294	35272	34815	34442	139823
	R	0.95	0.87	0.95	0.86	0.97
	MBE (°C)	-0.6	-0.7	0.3	0.2	-0.2
	MAE (°C)	1.6	1.7	1.5	1.7	1.6
	IA	0.97	0.92	0.97	0.93	0.99
Humidity	Sample number	35327	35271	34813	34559	139970
	R	0.94	0.87	0.94	0.86	0.97
	MBE (g kg^{r-1})	0.0	-0.1	0.1	0.3	0.1
	MAE (g kg^{r-1})	0.8	1.2	0.9	0.6	0.9
	IA	0.97	0.93	0.97	0.91	0.98
Wind speed	Sample number	34993	35051	34526	34298	138868
	R	0.54	0.62	0.59	0.57	0.58
	MBE (m s^{-1})	1.1	0.9	1.3	1.3	1.1
	RMSE (m s^{-1})	2.5	2.5	2.6	2.6	2.5
	IA	0.69	0.73	0.70	0.68	0.70
Wind U-component	Sample number	34993	35051	34526	34298	138868
	R	0.61	0.66	0.59	0.62	0.64
	MBE (m s^{-1})	0.7	-0.2	0.0	0.8	0.3
	RMSE (m s^{-1})	2.6	2.4	2.4	2.8	2.5
	IA	0.75	0.79	0.74	0.74	0.77
Wind V-component	Sample number	34993	35051	34526	34298	138868
	R	0.64	0.67	0.64	0.57	0.64
	MBE (m s^{-1})	0.4	0.5	-0.4	-0.3	0.0
	RMSE (m s^{-1})	2.6	2.6	2.8	2.5	2.6
	IA	0.78	0.79	0.76	0.73	0.78

WRF による 1 時間値の予測精度評価を季節別および年間で示す。気温については，MBE は秋季・冬季・年間，MAE および IA については計算期間全体を通して Emery et al.（2001）によるベンチマークを満たしている。湿度については，MBE，MAE，IA の三項目とも計算期間全体を通してベンチマークを満たしている。また，気温と湿度は相関係数も高く，観測値と計算値の変動の傾向が良く一致していることを示している。風速については，すでに述べたように計算で過大評価となっているため，IA のベンチマークについては計算期間全体を通して満たしているものの，MBE については夏季のみであり，RMSE については計

算期間全体を通してベンチマークを満たしていない。また，気温や湿度に比べると風速では統計指標による評価が悪くなっている。

既往研究において IA を用いて気象モデルの予測精度を評価した例として，Gilliam et al.（2006）は，2001 年のアメリカ東部を対象とした MM5 による予測結果を評価しており，IA は気温で 0.9，風速で 0.5～0.7 程度となっている。Lee et al.（2007）は，2001 年 8 月 24～27 日の韓国南部の沿岸を対象とした MM5 による予測結果を評価しており，IA は気温で 0.67～0.93，風速で 0.43～0.66 となっている。Borge et al.（2008）は，2005 年 2 月 19～27 日および 6 月 18～26 日のイベリア半島を対象に, WRF によって物理過程オプションを変更して様々な計算条件で予測を行った結果を評価しており，IA は気温で 0.8～0.9，風速で 0.6～0.7 程度となっている。Wu et al.（2008）は，2002 年 8 月および 12 月のノースカロライナ州を対象とした MM5 による予測結果を評価しており，IA は気温で 0.9，湿度で 0.7～0.8，風速で 0.6～0.7 であり，また風速は計算で 0.8～0.9 m s^{-1} 程度過大評価されていた。これらの報告から，本研究における WRF による地上気象の予測は，既往研究における地上気象の予測と同等以上の精度があること，現在の広域気象モデルによって観測地点における地表付近の風速を気温と同等の精度で再現することは困難であることがわかる。

D4 内の気象官署 16 地点における平均の観測値および計算値について，Fig. 4.2 に気温，湿度，風速，風速東西・南北成分，降水量の 2004 年 4 月～2005 年 3 月の日変化，Fig. 4.3 に季節別の気温，湿度，風速の平均 24 時間変化を示す。日平均の気温および湿度については，観測値と計算値が良く一致しており，計算で計算期間を通しての変動パターンを良く再現できている。気温と湿度が急激に上昇し下降するまでの期間では降水が見られる場合が多く，温帯低気圧とそれに伴う温暖・寒冷前線の通過や台風の通過などの総観規模の気象を概ね再現できていると考えられる。また，気温の 24 時間変化についても，春季と夏季には計算値の方がやや低く，秋季と冬季には計算値の方がやや高くなっているものの，計算で良く再現できている。一方，湿度の 24 時間変化については，気温に比べると明確な変化は示しておらず日較差は小さい。そのため，湿度の変化には低気圧の通過などの比較的大きなスケールでの気象による影響が強いといえる。日平均の風向風速については，低風速の期間と高風速ピークが現れる日を良く再現し，風速東西・南北成分の変動パターンについても概ね再現しているが，すでに述べたように計算期間を通して計算で風速が過大評価されている。6 月 21 日，7 月末など，夏季から秋季にかけて見られる特に顕著な高風速ピークは台風の影響によるものである。2004 年は日本への台風の上陸が史上最多の 10 個であり（気象庁, 2005a），夏季には 6 月に 2 個，7 月末に 1 個，8 月に 3 個上陸し，秋季には 9～10 月に日本付近に 6 個の台風が接近し，そのうち 4 個が上陸した。また，冬季には 12 月下旬から 1 月にかけて冬型の気圧配置が強まったことで北西寄りの季節風が日本海から吹き込み，風速が大きくなっている。風速の 24 時間変化については，気象官署が沿岸に近い所に設置されていることが多い（Fig. 3.1）ことから，日中に海風が吹き込むことで風速が大きくなっていると考えられ，日較差は春季と夏季に大きく，冬季に小さくなっている。

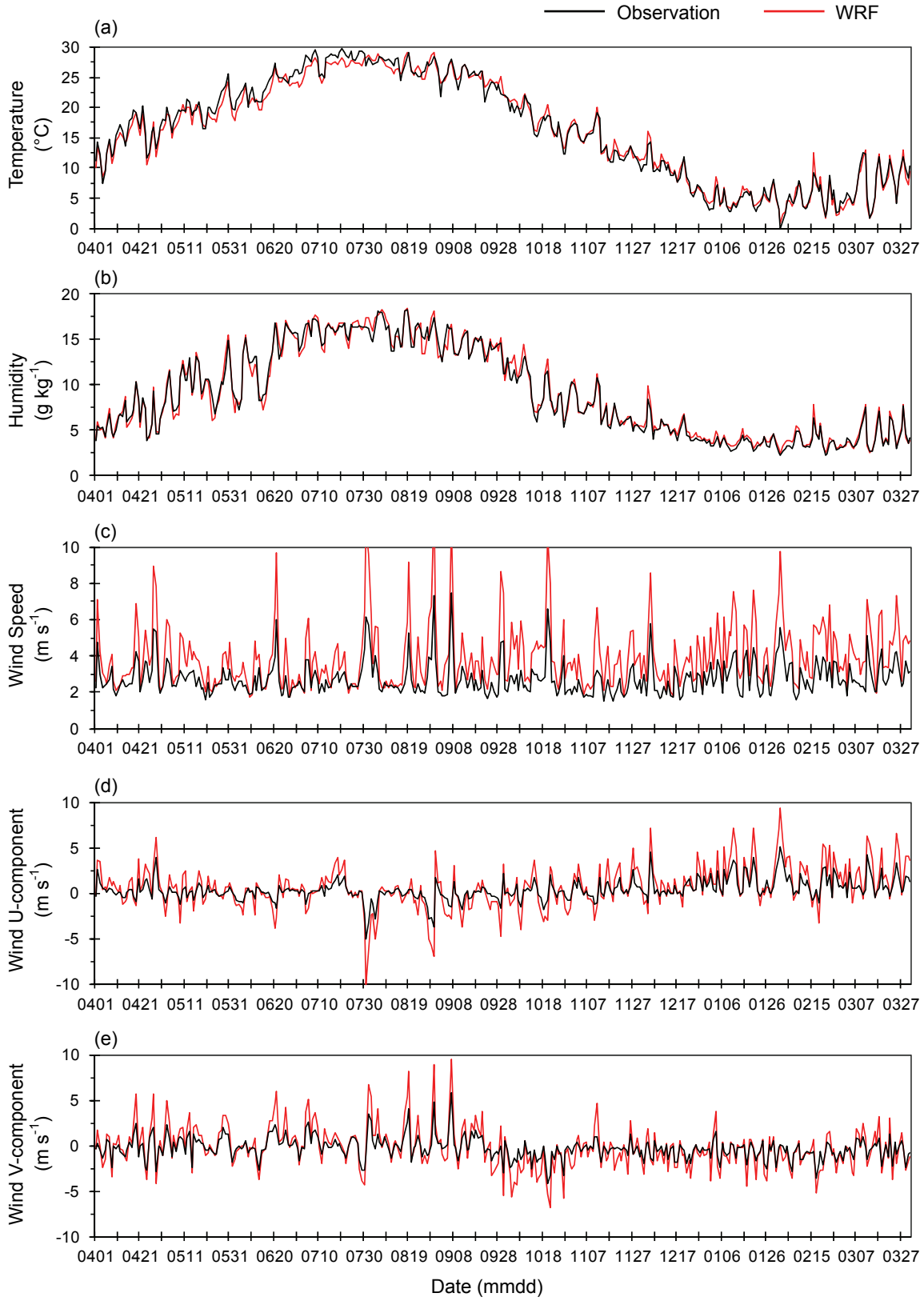


Fig. 4.2 Time series of observed and WRF-predicted daily mean meteorological variables at the meteorological observatories in D4 from April 2004 to March 2005.

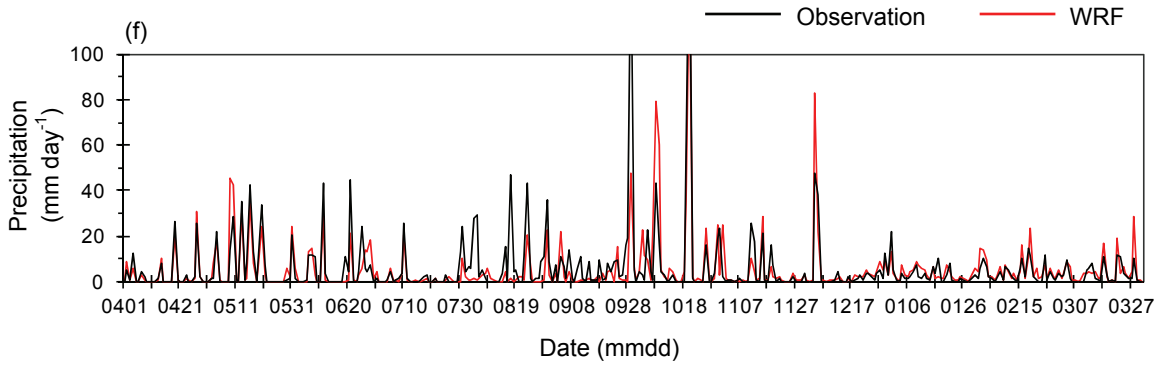


Fig. 4.2 (*continued*).

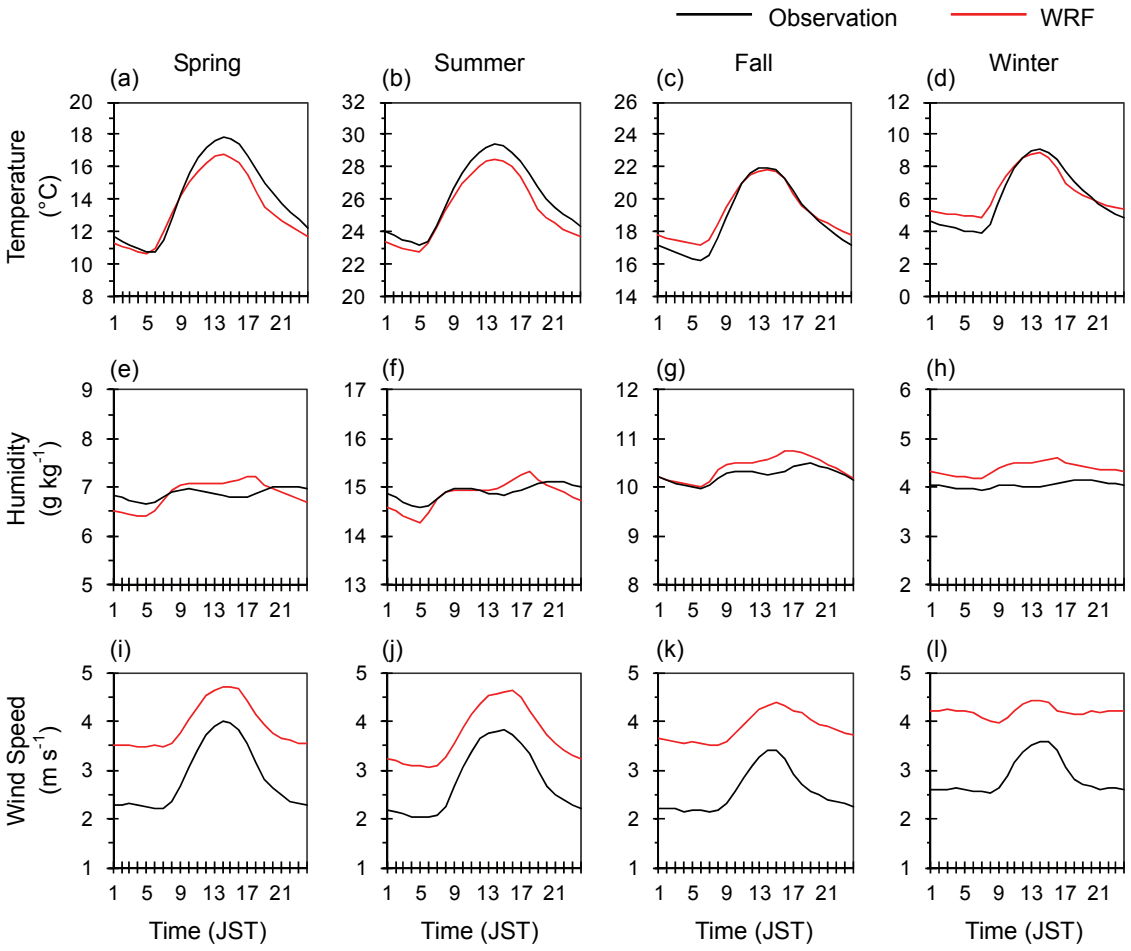


Fig. 4.3 Time series of observed and WRF-predicted seasonal mean diurnal variations of meteorological variables at the meteorological observatories in D4 from April 2004 to March 2005.

計算期間における近畿圏の降水量は，夏季には 2004 年の 6～7 月の梅雨前線による降雨が少なかったため，7 月末以降に台風によって豪雨がもたらされたものの全体では平年を下回っていた（気象庁, 2004b）。その他の季節では，全体的に平年に比べて降水量が多く，特に秋季は台風の影響によって近畿圏では平年比で 1.5 倍以上の降雨量となった（気象庁, 2004a;

2004c; 2005b)。日降水量の時系列変化で見ると，5 月にやや多雨となっており，6～7 月前半には少雨，8 月～10 月にかけて台風による豪雨が見られる。計算では，すでに述べたように 8 月および 9 月に降水量が過小評価されているなど各降水イベントにおける降水量については誤差があるものの，温帯低気圧や前線，台風の通過を概ね再現できていると考えられ，降水イベントの出現は良く再現できている。

4.1.2 高層気象予測

大気汚染物質の長距離輸送を予測するためには，上空の気象場の再現性も重要である。WRF による上空の気象予測結果との比較には，日本全国の高層気象官署 20 地点（稚内，札幌，根室，三沢，秋田，仙台，輪島，館野，八丈島，浜松，米子，潮岬，福岡，鹿児島，

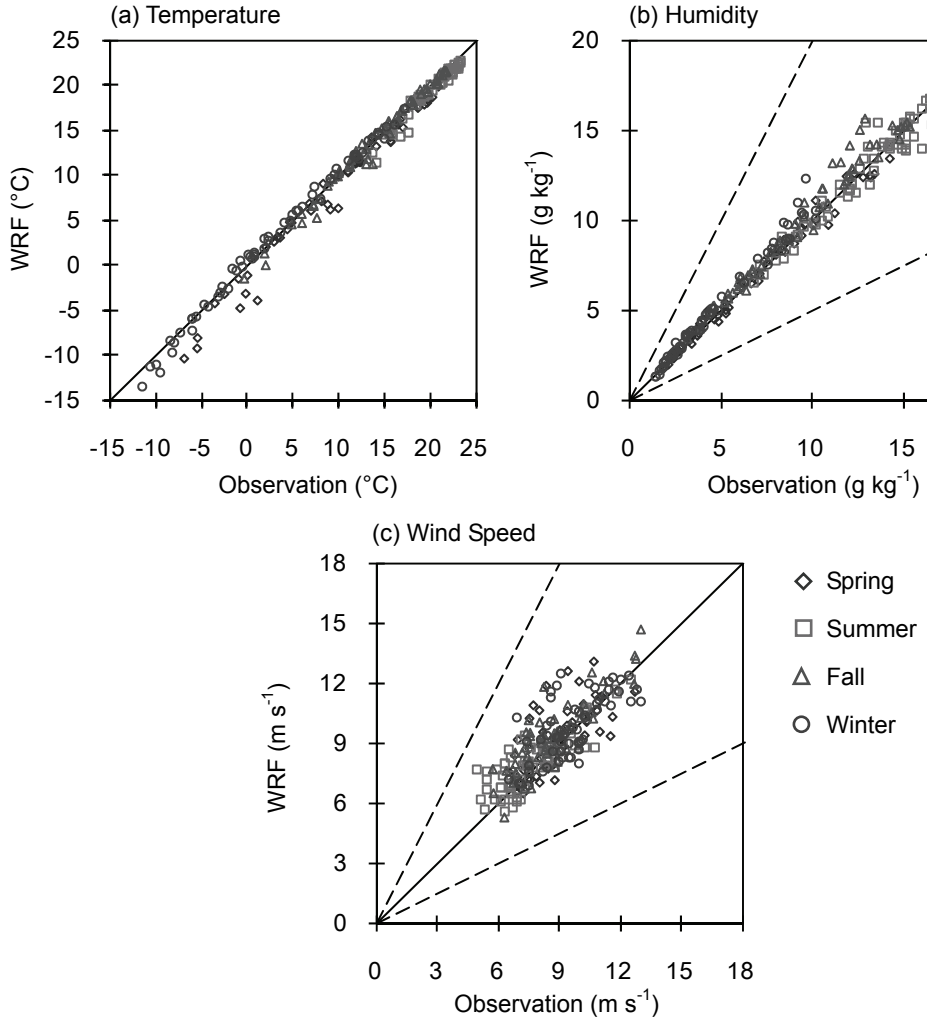


Fig. 4.4 Scatter plots of the observed versus WRF-predicted monthly meteorological variables at 925 hPa above the aerological observatories from April 2004 to March 2005. 2:1, 1:2 and 1:1 reference lines are provided.

名瀬，石垣島，那覇，南大東島，父島，南鳥島）の上空 925 hPa における観測値を用いた。高層気象観測は毎日 9 時および 21 時の 2 回行われている。

Fig. 4.4 に高層気象官署の上空 925 hPa における気温，湿度，風速の月平均値について，観測値と WRF 計算値の比較を散布図で示す。また，Table 4.3 に高層気象官署の上空 925 hPa における気温，湿度，風速，風速東西・南北成分の月平均値について，観測値および WRF 計算値の季節別および年間値を示す。気温および湿度については，地上気象の場合と同様に各気象官署において観測結果と計算結果の月平均値が良く一致しており，日本域において計算で季節変化を良く再現できている。上空では地表付近に比べて気温が低く，それに伴い湿度も低くなっている。風速については，上空 925 hPa は地上 700～800 m 程度であり，地表面の影響が小さくなり，地表付近に比べて風速が大きくなる。地表付近では年間を通して全体的に計算で過大評価となっていたが，上空 925 hPa では観測結果と計算結果の月平均値が概ね一致している。風向については，上空 925 hPa はエクマン層内であり，地表付近における風向からはやや変化しているが，概ね地表付近と同様の傾向となっており，観測と計算でも良く傾向が一致している。

Table 4.4 に高層気象官署の上空 925 hPa における気温，湿度，風速，風速東西・南北成分について，WRF による 1 時間値の予測精度評価を季節別および年間で示す。気温および湿度については，地表付近の場合と同様に相関係数と IA の値が 1 に近く，計算による再現性が高いことがわかる。風速および風速東西・南北成分については，地表付近に比べて風速が大きくなっているため，RMSE も大きくなっているが，相関係数，MBE，IA については地表付近の場合よりも明らかに良い値となっている。そのため，大気汚染物質の長距離輸送において重要となる上空の風向風速は，計算で良く再現できているといえる。

Table 4.3 Observed and WRF-predicted seasonal and annual mean meteorological variables at 925 hPa above the aerological observatories

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
Mean temperature (°C)	Obs.	9.7	20.1	14.2	3.0	11.8
	WRF	8.6	19.3	14.0	3.2	11.3
Mean humidity (g kg^{r-1})	Obs.	6.7	12.7	9.3	4.7	8.4
	WRF	6.7	12.7	9.8	5.1	8.6
Mean wind speed (m s^{-1})	Obs.	8.8	7.6	8.7	9.6	8.6
	WRF	9.1	7.9	9.3	9.8	9.0
Mean wind U-component (m s^{-1})	Obs.	3.2	0.6	-0.4	3.5	1.7
	WRF	3.2	0.3	-0.6	3.7	1.6
Mean wind V-component (m s^{-1})	Obs.	1.1	2.0	-0.1	-2.5	0.1
	WRF	0.9	1.9	-0.8	-2.6	-0.2

Table 4.4 Statistical measures for hourly WRF predictions at 925 hPa above the aerological observatories

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
Temperature	Sample number	3668	3676	3638	3598	14580
	R	0.97	0.93	0.98	0.99	0.99
	MBE (°C)	-1.0	-0.7	-0.2	0.2	-0.5
	MAE (°C)	1.6	1.2	1.0	1.1	1.2
	IA	0.98	0.96	0.99	0.99	0.99
Humidity	Sample number	3664	3675	3637	3598	14574
	R	0.94	0.86	0.94	0.96	0.95
	MBE (g kg^{r-1})	0.0	-0.1	0.5	0.4	0.2
	MAE (g kg^{r-1})	1.0	1.4	1.2	0.7	1.1
	IA	0.97	0.93	0.96	0.97	0.98
Wind speed	Sample number	3655	3652	3631	3588	14526
	R	0.78	0.85	0.84	0.78	0.82
	MBE (m s^{-1})	0.3	0.4	0.7	0.2	0.4
	RMSE (m s^{-1})	3.3	3.0	3.2	3.2	3.2
	IA	0.88	0.92	0.91	0.88	0.90
Wind U-component	Sample number	3655	3652	3631	3588	14526
	R	0.88	0.91	0.91	0.90	0.90
	MBE (m s^{-1})	0.0	-0.3	-0.2	0.2	-0.1
	RMSE (m s^{-1})	3.5	3.0	3.3	3.5	3.3
	IA	0.93	0.95	0.95	0.95	0.95
Wind V-component	Sample number	3655	3652	3631	3588	14526
	R	0.87	0.87	0.89	0.85	0.88
	MBE (m s^{-1})	-0.2	-0.2	-0.7	-0.1	-0.3
	RMSE (m s^{-1})	3.5	3.1	3.5	3.5	3.4
	IA	0.93	0.93	0.94	0.92	0.93

Fig. 4.5 に日本全国の高層気象官署 20 地点の上空 925 hPa における平均の観測値および計算値について，気温，湿度，風速，風速東西・南北成分の 2004 年 4 月～2005 年 3 月の日変化を示す。日平均の気温および湿度については，地表付近の場合と同様に観測値と計算値が良く一致しており，計算で計算期間を通しての変動パターンを良く再現できている。日平均の風向風速については，地表付近の場合よりも高風速ピークの強さ，風速東西・南北成分の変動パターンを良く再現している。気温，湿度，風速の急激な日変化は，地表付近と同様に温帯低気圧や前線，台風の通過によって生じている。

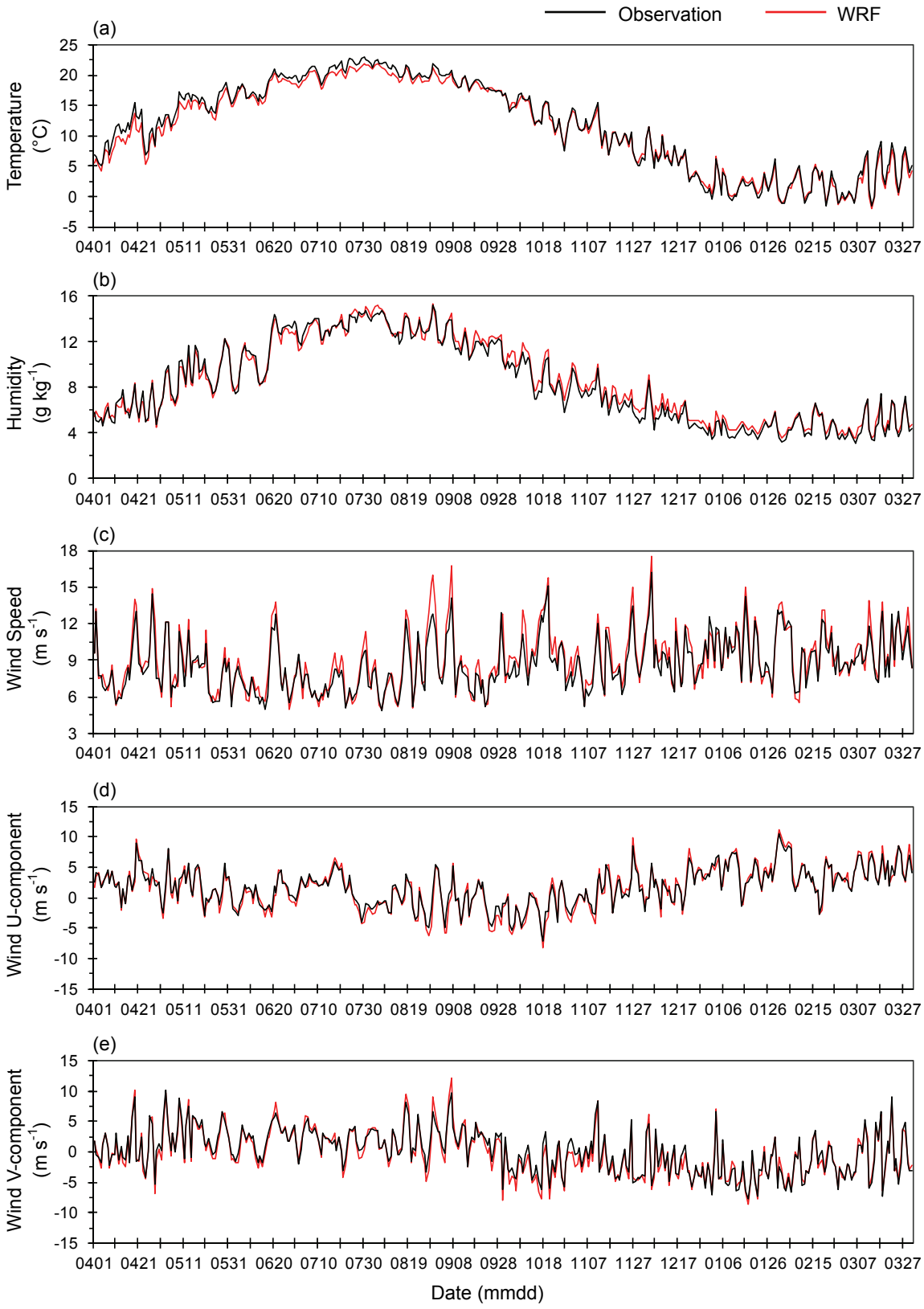


Fig. 4.5 Time series of observed and WRF-predicted daily mean meteorological variables at 925 hPa above the aerological observatories from April 2004 to March 2005.

4.1.3 六甲山における霧の予測

WRF による霧の予測精度評価には, 六甲山における霧採集データを用いた。六甲山では, 尾根部の標高 800 m 地点（北緯 34.757 度，東経 135.229 度）にある兵庫県立六甲山自然保護センター敷地内において霧の採集が行われてきた（Aikawa et al., 2001; 2005; 2006; 2007）。使用された装置はテフロン細線スクリーンを 2 段に張った霧水自動採集装置（臼井工業製）である。装置では，霧センサーが霧を感知するとファンが稼動して，周囲の空気を吸引する仕組みとなっている。吸引された空気に含まれる霧がテフロン細線に捕集され，サンプリングボトルに導かれる。サンプリングボトルは，霧イベント，あるいは霧水 60 ml ごとに別のものに切り替わる。霧水サンプルの解析は，兵庫県立健康環境科学研究センターにおいて行われた。観測における霧水量（*LWC*: Liquid Water Content of fog）（g m^{-3}）は，ファンの吸引速度を 3.5 m^3 min^{-1}，2 段のスクリーンによる霧の捕集効率を 80 %とし，霧水採集量と装置の稼働時間から推定した。計算値については，地表に接する第 1 層における雲を，霧とみなしている。

霧の発生の判定には，Stoelinga and Warner（1999）および Kunkel（1984）による霧出現時の水平視程の推定式を用いた。

$$x_{Vis} = -1000 \times \frac{\ln(0.02)}{\beta_{ext}} \tag{4.6}$$

$$\beta_{ext} = 144.7 LWC^{0.88} \tag{4.7}$$

ここで x_{Vis} は水平視程 (m)，β_{ext} は光の減衰係数である。本研究では，上式で水平視程が 1000 m 未満となる霧水量が 0.017 g m^{-3} 以上の場合に霧が発生したとみなし，霧発生頻度および霧発生時平均霧水量を算出した。また，水平視程が 200 m 未満となる霧水量が 0.10 g m^{-3} 以上の場合を濃霧とした。

Fig. 4.6 に六甲山の霧採集地点における 1 日当たりの霧発生時間について，観測値および計算値の 2004 年 4 月～2005 年 3 月の時系列変化を示す。六甲山における霧の発生期間は，計算で 1 月と 2 月には過大評価，その他の月にはやや過小評価となっているが，年間を通して概ね再現できている。また霧の発生期間は，D4 全体で湿度が高くなっている期間と一致しており（Fig. 4.2b），低気圧や前線が通過する際に，低層雲の山腹への移流や上昇霧によって霧が発生していると考えられる。

Fig. 4.7 に六甲山の霧採集地点における時間割合での霧発生頻度と霧発生時の平均霧水量について，観測値および計算値の 2004 年 4 月～2005 年 3 月の月間値を，霧水量 0.017 g m^{-3} 以上の霧と，霧水量 0.10 g m^{-3} 以上の濃霧の場合について示す。霧水量については 4～6 月に計算で過大評価，霧発生頻度については 1～2 月に計算で過大評価となっているが，霧，濃霧の場合とも，月変化の傾向を計算で概ね再現できている。また年間値については，霧水量 0.017 g m^{-3} 以上の霧では，発生頻度は計算で 16.9 %，観測で 18.8 %，平均霧水量は計

算で 0.21 g m^{-3}，観測で 0.15g m^{-3} となり，霧水量 0.10 g m^{-3} 以上の濃霧では，発生頻度は計算で 11.0 %，観測で 10.0 %，平均霧水量は計算で 0.28 g m^{-3}，観測で 0.23 g m^{-3} となっており，計算値と観測値は良く一致している。

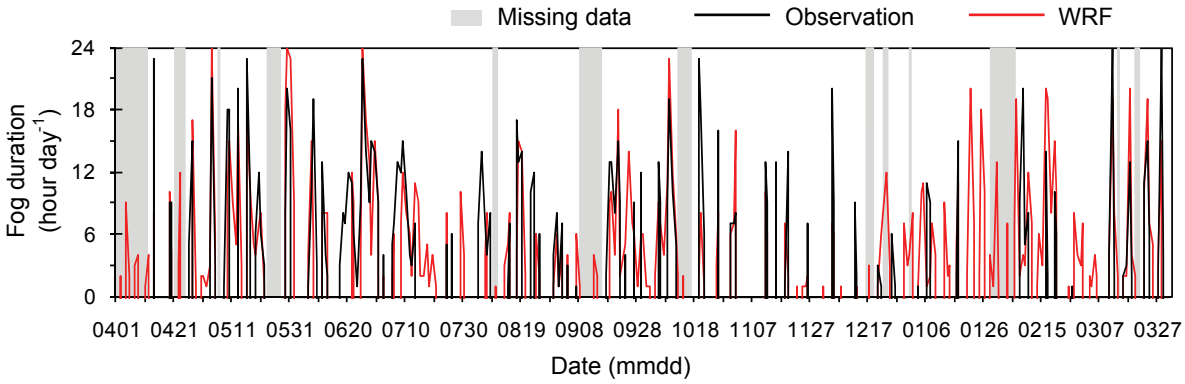


Fig. 4.6 Time series of observed and WRF-predicted daily fog duration at the Mt. Rokko fog sampling site from April 2004 to March 2005.

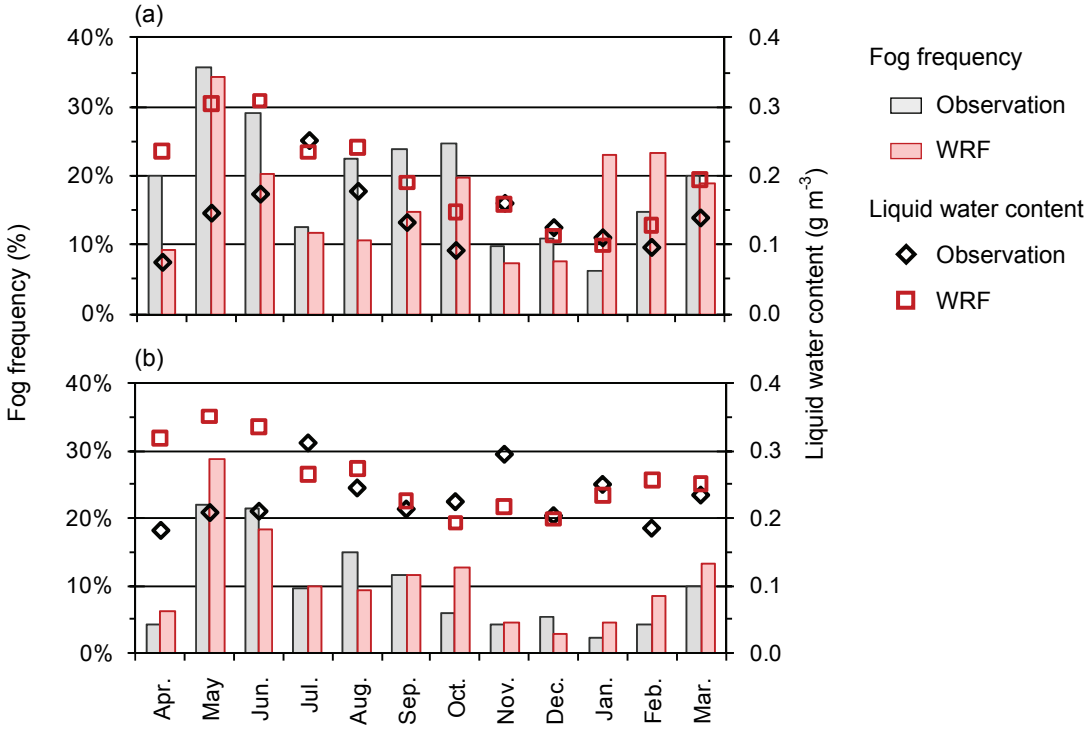


Fig. 4.7 Observed and WRF-predicted monthly fog frequency and mean liquid water content for (a) fog with liquid water content > 0.017 g m^{-3} and (b) dense fog with liquid water content > 0.10 g m^{-3} at the Mt. Rokko fog sampling site from April 2004 to March 2005.

4.2 大気質予測結果

4.2.1 O_3・NO_X・SO_2・PM10 濃度予測

CMAQ による大気質予測の精度評価には, Fig. 3.1 に示した, 六甲山における霧採集地点, 環境省による酸性沈着モニタリング地点 30 地点（利尻，札幌，落石岬，竜飛岬，八幡平，筧岳，尾花沢，筑波，赤城，小笠原，佐渡関岬，新潟巻，越前岬，八方尾根，伊自良湖，犬山，京都八幡，尼崎，潮岬，隠岐，蟠竜湖，倉橋島，檮原，筑後小郡，対馬，五島，大分久住，えびの，屋久島，辺戸岬），大阪府域の大気汚染常時監視局のうち PM 組成の測定も行われた大阪府環境情報センター（大阪），東大阪市環境衛生検査センター（東大阪）における観測値を用いた。CMAQ の計算値は，全ての排出量を考慮した EB と日本以外の人為起源排出量をゼロとした EJ について第 1 層における結果を示す。

まず，自動測定機による観測結果の 1 時間値を用いて，O_3・NO_X・SO_2・PM10 濃度の予測精度を評価した。自動測定機による観測は，利尻，落石岬，竜飛岬，小笠原，佐渡関岬，八方尾根，越前岬，八方尾根，伊自良湖，隠岐，蟠竜湖，檮原，辺戸岬，大阪，東大阪では O_3・NO_X・SO_2・PM10（大阪，東大阪では SPM），えびのでは O_3・SO_2，筧岳，筑波，赤城，新潟巻，犬山，京都八幡，倉橋島，筑後小郡，対馬では O_3 について行われた。これらの観測地点について, Table 4.5 に観測値および CMAQ 計算値の季節別および年間値を, Table 4.6 に CMAQ による 1 時間値の予測精度評価を季節別および年間で示す。O_3 については,

Table 4.5 Observed and CMAQ-predicted seasonal and annual mean O_3, NO_X, SO_2 and PM10 concentrations at the monitoring site with automatic monitoring system

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
O_3 (ppb)	Obs.	47.1	32.9	32.9	33.7	36.7
	EB	48.0	43.1	40.0	35.7	41.8
	EJ	36.6	31.2	33.7	35.2	34.1
NO_X (ppb)	Obs.	11.2	8.3	11.8	14.1	11.3
	EB	10.9	7.3	10.5	16.9	11.4
	EJ	11.7	7.6	11.3	16.4	11.7
SO_2 (ppb)	Obs.	2.3	2.0	1.8	1.6	1.9
	EB	1.8	1.5	1.2	1.0	1.4
	EJ	1.4	1.4	1.1	0.9	1.2
PM10 (μg m^{-3})	Obs.	29.9	23.4	23.3	20.0	24.2
	EB	15.0	13.5	11.9	8.7	12.3
	EJ	8.6	10.2	8.6	6.7	8.5

Table 4.6 Statistical measures for hourly CMAQ predictions of O_3, NO_X, SO_2 and PM10

		Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
O_3	Sample number	45834	45501	45754	42440	179529
EB	R	0.59	0.64	0.65	0.66	0.64
	MBE (ppb)	0.9	10.2	7.2	2.0	5.1
	MAE (ppb)	12.7	16.1	11.8	9.1	12.5
	IA	0.76	0.75	0.77	0.80	0.78
EJ	R	0.56	0.61	0.62	0.66	0.60
	MBE (ppb)	-10.5	-1.7	0.9	1.5	-2.5
	MAE (ppb)	15.4	13.1	10.3	8.7	12.0
	IA	0.67	0.76	0.78	0.81	0.75
NO_X	Sample number	22278	22429	22221	21815	88743
EB	R	0.78	0.75	0.74	0.71	0.73
	MBE (ppb)	-0.3	-1.0	-1.3	2.7	0.0
	MAE (ppb)	6.1	4.6	6.6	10.2	6.8
	IA	0.87	0.85	0.85	0.82	0.84
EJ	R	0.76	0.74	0.74	0.73	0.74
	MBE (ppb)	0.5	-0.7	-0.5	2.3	0.4
	MAE (ppb)	6.6	4.7	7.0	10.0	7.0
	IA	0.86	0.85	0.85	0.84	0.85
SO_2	Sample number	20427	16832	18422	20835	76516
EB	R	0.45	0.44	0.51	0.53	0.47
	MBE (ppb)	-0.5	-0.5	-0.6	-0.6	-0.5
	MAE (ppb)	1.7	1.5	1.2	1.1	1.4
	IA	0.64	0.64	0.67	0.69	0.65
EJ	R	0.40	0.39	0.49	0.51	0.43
	MBE (ppb)	-0.8	-0.6	-0.7	-0.8	-0.7
	MAE (ppb)	1.8	1.5	1.3	1.1	1.4
	IA	0.59	0.60	0.65	0.67	0.62
PM10	Sample number	24418	23581	22878	23065	93942
EB	R	0.50	0.41	0.48	0.49	0.49
	MBE (μg m^{-3})	-14.9	-9.9	-11.4	-11.3	-11.9
	MAE (μg m^{-3})	17.1	13.3	13.2	12.6	14.1
	IA	0.60	0.57	0.58	0.56	0.59
EJ	R	0.31	0.27	0.35	0.41	0.32
	MBE (μg m^{-3})	-21.3	-13.2	-14.7	-13.3	-15.7
	MAE (μg m^{-3})	22.1	15.4	15.7	14.1	16.9
	IA	0.47	0.49	0.50	0.51	0.48

春季には，EB の方が EJ よりも観測値の再現性が高く，EJ では明らかに過小評価となっているため，日本域の濃度を予測するためには越境汚染の影響を考慮する必要があることがわかる。夏季および秋季には，EB で過大評価となっており，計算で越境汚染の影響が過大評価されている。そのため，EB の方が EJ よりも相関係数についてはやや向上したが，IA ついては向上していない。冬季には，気温が低く日射量も少ないため光化学反応が生じにくく，越境汚染の影響が小さい。NO_X については，EB と EJ で濃度の再現性に大きな差はない。春季，夏季，秋季には，EB の方が EJ よりも濃度が低くなっており，越境汚染の影響については，大陸からの移流による NO_X 濃度の上昇よりも，大陸からの移流されてきた O_3 によって日本域で排出された NO の NO_2 への酸化（反応式(R2.5)）が促進され，さらに NO_2 が反応して HNO_3 などの他の物質に変化すること（反応式(R2.10～14)）による NO_X 濃度の低下の方が影響が大きくなっていると考えられる。冬季には，光化学反応が生じにくく大陸からの O_3 の移流が少ないため，大陸からの NO_X の移流の影響の方が大きくなり，EB の方が NO_X 濃度がやや高くなっている。SO_2 については，越境汚染の影響は春季に比較的大きく，他の季節には影響は小さいものの EB の方が EJ よりもやや濃度が高くなった。また，計算期間を通して EB の方がやや観測値の再現性が良くなっている。PM10 については，越境汚染の影響は春季に大きく，計算期間を通して影響が見られ，EB の方が EJ よりも観測値の再現性は向上している。しかし，EB においても計算期間を通して 10 μg m^{-3} 以上過小評価されている。

既往研究において IA を用いて大気質モデルの予測精度を評価した例として，Sokhi et al.（2006）による 2002 年 7 月 13～17 日および 8 月 14～18 日のロンドンを対象とした CMAQ の予測では，IA は O_3 で 0.69～0.70 となっている。Appel et al.（2007）による 2001 年 6～8 月のアメリカ東部を対象とした CMAQ の予測では，IA は O_3 で 0.83 となっている。Geng et al.（2007）による 2005 年 11 月 15～26 日の上海を対象とした WRF-Chem の予測では，IA は O_3 で 0.58 となっている。Lee et al.（2007）による 2001 年 8 月 24～27 日の韓国南部の沿岸を対象とした Variable grid Urban Airshed Model（UAM-V）（Systems Application International, 1999）の予測では，IA は O_3 で 0.73～0.84 となっている。Tie et al.（2007）による 2003 年 5 月 7～11 日のメキシコシティを対象とした WRF-Chem の予測では，IA は O_3 で 0.40～0.90，NO_X で 0.43～0.76 となっている。Yu et al.（2008）による 2001 年 6 月 24～28 日のイギリス南東部を対象とした CMAQ の予測では，IA は O_3 で 0.79，NO_2 で 0.75 となっている。Beckx et al.（2009）による 2005 年 3～11 月のオランダを対象とした Air quality modeling in Urban Regions using an Optimal Resolution Approach（AURORA）（Mensink et al., 2001）の予測では，IA は O_3 で 0.75，NO_2 で 0.64，PM10 で 0.57 となっている。Borge et al.（2010）による 2005 年 2 月 19～27 日および 6 月 18～26 日のイベリア半島を対象とした CMAQ による予測では，IA は O_3 で 0.67，NO_2 で 0.68，PM10 で 0.41 となっている。これらの報告から，本研究における CMAQ による O_3・NO_X・PM10 濃度の予測は，既往研究における予測と同等以上の精度があることがわかる。

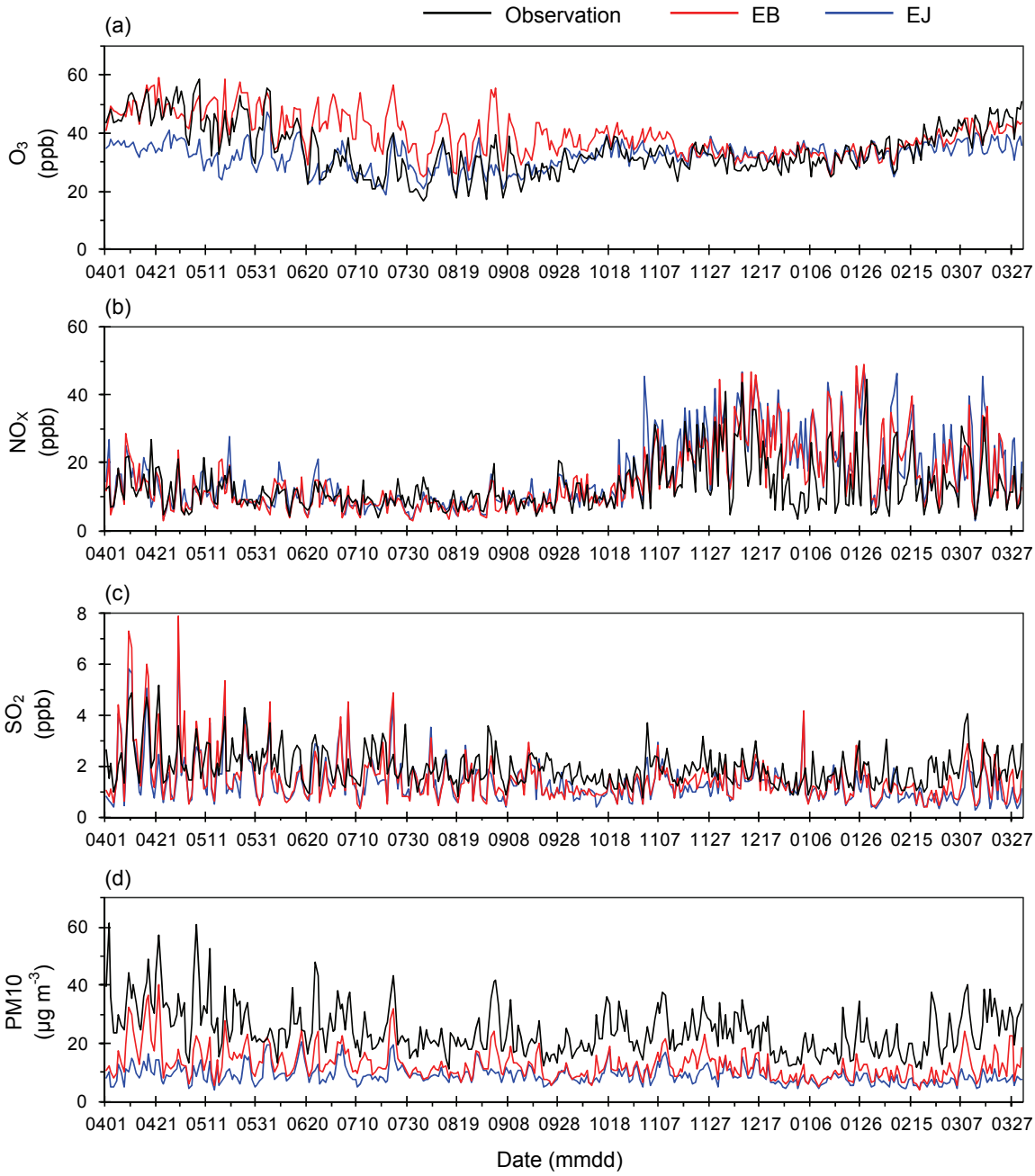


Fig. 4.8 Time series of observed and CMAQ-predicted daily mean concentrations of atmospheric pollutants at the monitoring stations with automatic monitoring system from April 2004 to March 2005.

Fig. 4.8 に自動測定機設置地点における平均の O_3・NO_X・SO_2・PM10 濃度について，2004 年 4 月～2005 年 3 月における観測値および計算値の日変化を示す。O_3 については，EB の結果は春季および冬季において観測値とよく一致している。しかし，6 月下旬から 9 月にかけては過大評価されており，この期間においてアジア大陸における O_3 生成が過大評価されていると考えられる。NO_X については，冬季には日本域における NO_X 排出量の増加（Fig. 3.3）

などによって濃度が上昇しており，計算で濃度の季節変化を概ね再現できている。冬季以外は，大陸から移流されてきた O_3 によって NO_X の酸化が促進されるため，EB の方が EJ よりも NO_X 濃度がやや低下している。SO_2 については，計算で高濃度ピークの出現を概ね再現できている。春季以外は EB と EJ の差は小さいが，計算期間を通して EB の方がやや濃度が高くなっており，大陸からの SO_2 の移流の影響を受けている。PM10 については，すでに述べたように計算期間を通して過小評価となっている。また，濃度変動パターンは SO_2 の場合と比較的似ているが，EB と EJ の差はより大きくなっている。EB では，EJ において見られなかった高濃度ピークの出現が再現できている場合が多く，計算で大陸からの粒子状物質の長距離輸送を概ね再現できているといえる。このことは，4.1.2 項において述べた日本域だけでなく，計算で東アジア域において上空の風向風速を良好に再現できていることを示している。

大気中の NO_X と VOC の濃度比率が変化すると O_3 の生成機構も変化するなど，光化学反応は非常に複雑である（Kley et al., 1999; Jenkin and Clemitshaw, 2000）。そのため，発生源が多い都市部と発生源が少ない遠隔地では大気環境の状況は大きく異なっている。都市部では地域的な反応・移流による影響が比較的大きく，遠隔地では長距離輸送による影響が大きいと考えられる。

Fig. 4.9 に都市部を代表して大阪における O_3 および NO_X 濃度の季節別平均 24 時間変化を示す。O_3 については，日の出から昼過ぎまでは NO_2 による O_3 生成反応（反応式(R2.6～9)）が優勢となり濃度が上昇し，その後は NO による O_3 消滅反応（反応式(R2.5)）が優勢となり濃度が減少するため，濃度の日較差が大きい。NO_X については，一日の中で通勤時間帯における濃度が最大となっているが，この時間帯において，計算で NO_X 濃度を過大評価しており，それが O_3 濃度の過小評価につながっていると考えられる。しかし，観測と計算で NO_X 濃度が一致している夏季および秋季の夕方から夜間においては，計算で O_3 濃度が過大評価されている。そのため，NO による O_3 消滅反応速度は，計算でやや過小評価されていると考えられる。夏季には，気温の上昇や日射量の増加によって光化学反応速度が上昇し，さらに VOC 排出量が大きい（Fig. 3.10e）ことから日中の O_3 生成が増加すると考えられ，O_3 濃度の日較差は年間で最も大きくなっている。春季，夏季，秋季には計算で大陸からの O_3 の移流の影響も大きくなっており，近傍で排出された NO_X の酸化が促進されるため，EB の方が EJ よりも NO_X 濃度が低下している。計算期間を通して観測と EB における日中の最大 O_3 濃度は良く一致しており，大阪における計算期間全体の EB についての IA は，O_3 濃度で 0.86 と再現性は良好である。また，NO_X 濃度についての IA は 0.68 となっている。

Fig. 4.10 に遠隔地を代表して隠岐における O_3 および NO_X 濃度の季節別平均 24 時間変化を示す。隠岐では，大阪に比べて近傍の発生源が少なく，O_3 の前駆物質となる NO_X の濃度が非常に低いため，地域的な O_3 生成量は少ないと考えられ，O_3 濃度の日較差は小さい。また，隠岐における平均 O_3 濃度は大阪よりもかなり高くなっているが，地域的な O_3 生成量が少ないため，O_3 濃度が 120 ppb 以上となり光化学オキシダント注意報が発令されるような

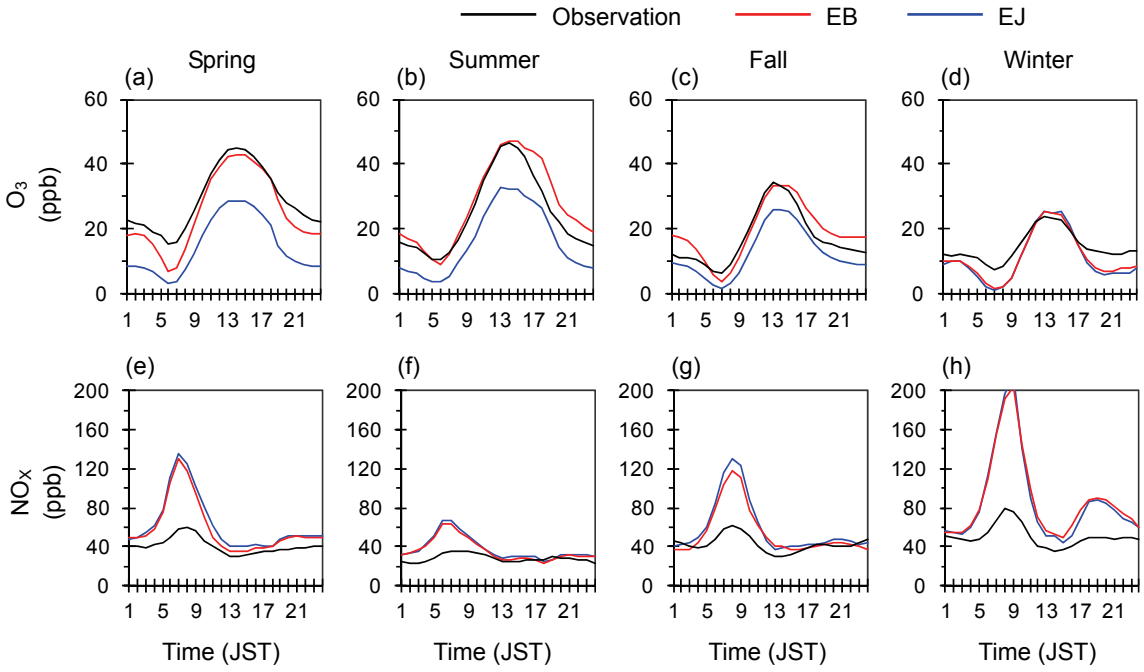


Fig. 4.9 Seasonal mean diurnal variations of observed and CMAQ-predicted O_3 and NO_X at Osaka monitoring stations from April 2004 to March 2005.

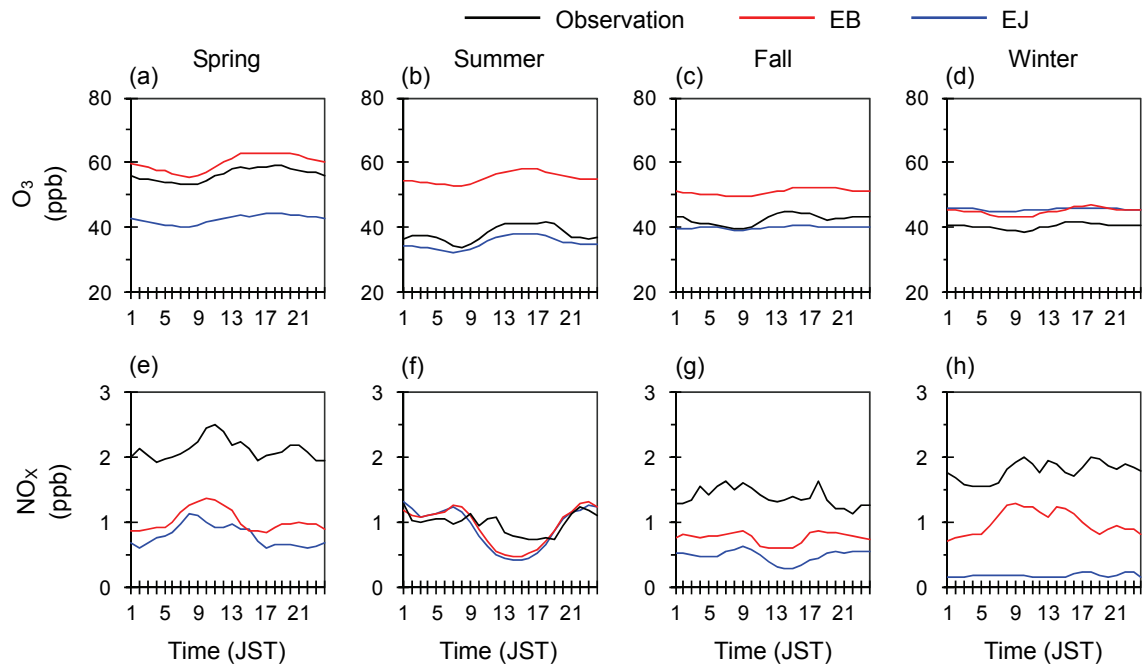


Fig. 4.10 Seasonal mean diurnal variations of observed and CMAQ-predicted O_3 and NO_X at Oki monitoring stations from April 2004 to March 2005.

レベルの高濃度は出現しにくいと考えられる。夏季および秋季には，EB で O_3 濃度を大きく過大評価しており，これは大陸からの O_3 の移流を過大評価していることを示している。冬季だけでなく，計算で大陸からの O_3 の移流の影響が大きい他の季節においても，EB の方が EJ よりも NO_X 濃度が上昇している。隠岐などの遠隔地では，O_3 や NO_X だけでなく，他の物質を含めて，大気中濃度は主に遠方からの移流によって変化すると考えられる。隠岐における計算期間全体の EB の結果についての IA は，O_3 で 0.72，NO_X で 0.59 となった。NO_X については，観測地点間の濃度差が大きいために全観測地点をまとめて評価した場合の IA（Table 4.6）は，各観測地点において評価した場合よりも高い値となっている。

隠岐における比較結果は，計算における大陸からの O_3 の移流による影響の過大評価を示唆しており，その原因として O_3 の長距離輸送過程における大気中寿命の過大評価が考えられる。大陸から日本への移流過程では排出源が少ない海域を通過するため，NO とは別の物質との反応による O_3 の分解や海面への乾性沈着による大気中からの除去が過小評価されていると考えられる。大阪における比較結果は，計算における NO による O_3 消滅反応速度の過小評価を示唆しているが，大陸から移流されてくる O_3 が減少した場合，現在のモデルでは大阪において日中の O_3 濃度が過小評価されることになる。したがって，排出量が多い地域では光化学反応による O_3 生成量および NO による O_3 消滅量がともに過小評価されている可能性がある。

4.2.2 ガス・粒子・降水中濃度予測

Table 4.7 に CMAQ による季節平均濃度予測について，観測値との相関係数，Normalized Mean Bias（NMB）（式(4.8)），および計算値が観測値のファクター2（0.5～2 倍）以内に入っている割合（F2R）を示す。

$$\mathrm{NMB} = \frac{\overline{M}}{\overline{O}} - 1 \tag{4.8}$$

また，Fig. 4.11 に環境省による酸性沈着モニタリング地点，および大阪と東大阪における季節平均のガス・粒子・降水中濃度の観測値と CMAQ 計算値の比較を示す。O_3，NO_X，SO_2，PM10 ついては，4.2.1 項で述べた傾向と同様である。HNO_3 については，EB において明らかに過大評価となっている。Chuang et al.（2008）は CMAQ バージョン 4.4 によってアジア大陸から台湾へのエアロゾルの長距離輸送を予測し，CMAQ バージョン 4.4 では海塩成分と HNO_3 の反応が考慮されていないために, HNO_3 が過大評価されている可能性を示唆した。本研究で使用した CMAQ バージョン 4.7 では HNO_3 は海塩成分と反応し，粗大粒子を形成する $NaNO_3$ を生成する（反応式(R2.17)）ため，CMAQ バージョン 4.4 に比べると HNO_3 の大気中寿命が短くなっている。しかし，本研究においても HNO_3 は過大評価されており，反応式(R2.17)による海域における HNO_3 の除去が過小評価されていると考えられる。また，

Table 4.7 Statistical measures for CMAQ predictions of seasonal mean pollutant concentrations

	R		NMB		F2R (%)	
	EB	EJ	EB	EJ	EB	EJ
O_3	0.71	0.68	0.13	-0.07	98	100
NO_X	0.92	0.93	0.00	0.03	71	63
HNO_3	0.35	0.62	1.98	0.42	23	70
NH_3	0.50	0.49	-0.50	-0.50	15	15
SO_2	0.74	0.72	-0.24	-0.35	70	46
PM10	0.77	0.52	-0.48	-0.64	54	17
Aerosol SO_4^{2-}	0.70	0.54	-0.17	-0.58	68	20
Aerosol NO_3^-	0.52	0.43	0.38	-0.38	53	43
Aerosol NH_4^+	0.72	0.70	0.13	-0.55	75	38
SO_4^{2-} in rain	0.05	-0.08	-0.26	-0.51	70	48
NO_3^+ in rain	0.61	0.54	0.35	-0.34	83	60
NH_4^+ in rain	0.56	0.30	0.04	-0.57	81	34

EJ においてもやや過大評価となっていることから，反応式(R2.10～14)による HNO_3 生成量についても計算で過大評価されていると考えられる。NH_3 については，計算で過小評価となっている。その原因として，NH_3 の排出は施肥や生物活動によるものが主であり，排出係数の不確実性が大きい（Kannari et al., 2007）ため，排出量の推定が困難であることが挙げられる。また，NH_3 は HNO_3 と反応して NH_4NO_3 を生成する（反応式(R2.16)）ため，EB の方が EJ よりも濃度が低くなっており，HNO_3 の過大評価も NH_3 の過小評価の原因になっていると考えられる。粒子状 SO_4^{2-}については，EJ では明らかに過小評価となっており，EB でも計算で冬季に過小評価の傾向が強く他の季節もやや過小評価となっている場合が多いが，概ね観測値のファクター2 の範囲に収まっており，計算で越境汚染の影響を良く再現できているといえる。粒子状 NO_3^-についても越境汚染の影響を強く受けているが，EB では過大評価となっている場合が多く，これは HNO_3 の過大評価によるものであると考えられる。粒子状 NH_4^+については，主成分が$(NH_4)_2SO_4$ や NH_4NO_3 であるため，NMB の値は粒子状 SO_4^{2-}と粒子状 NO_3^-の結果の中間的なものとなっている。PM10 の主要成分のうち粒子状 SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+の EB における合計の濃度レベルは観測値とほぼ同等であるため，PM10 の過小評価は，炭素成分や土壌粒子成分などの他の成分の過小評価によるものであると考えられる。また観測値についても，潮解性を有する物質は水分を取り込むため質量が過大評価されやすく，実際の PM10 濃度よりも高くなっている可能性もある。降水中濃度についても，EJ では明らかに過小評価となっているが，EB では EJ よりも濃度が上昇し，F2R の値が高くなっている。全体として，日本を対象とする大気質予測において越境汚染の影響を考慮することは不可欠であり，計算で越境汚染の影響を概ね再現できているといえる。

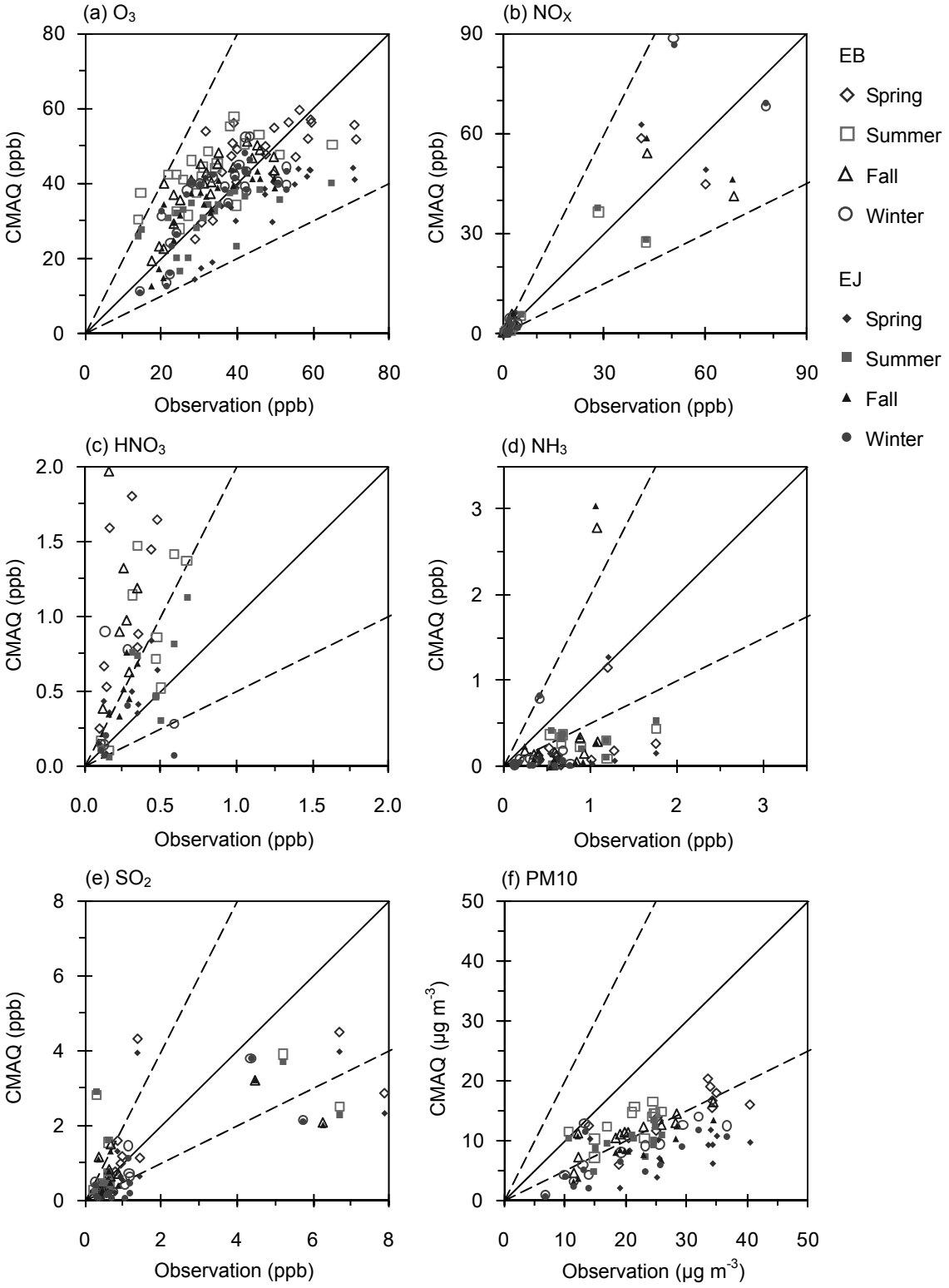


Fig. 4.11 Scatter plots of the observed versus CMAQ-predicted seasonal mean concentrations of pollutants at the acid deposition monitoring stations, and Osaka and Higashiosaka stations from April 2004 to March 2005. 2:1, 1:2 and 1:1 reference lines are provided.

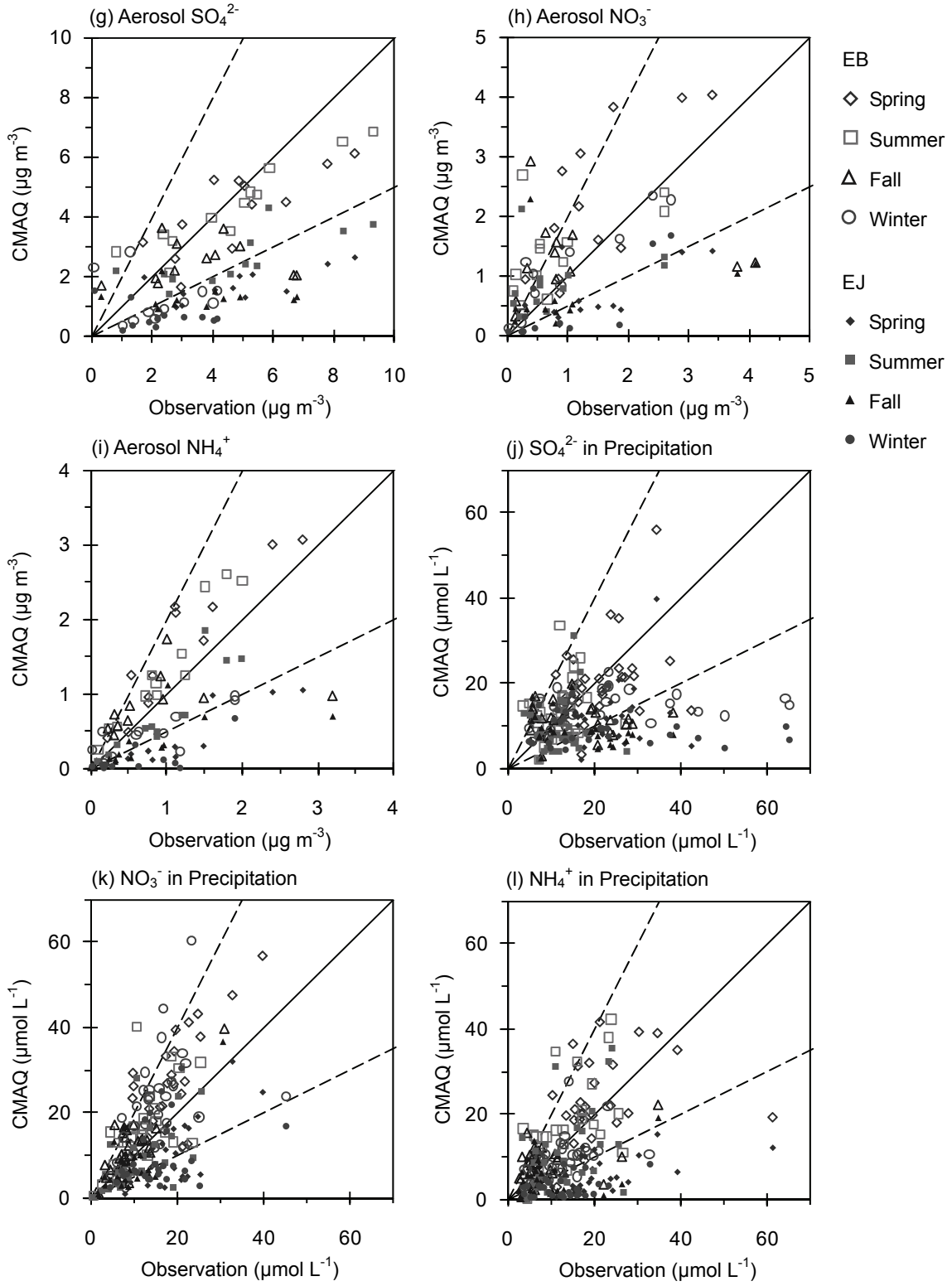


Fig. 4.11 (*continued*).

4.2.3 六甲山における霧水中濃度の予測

Fig. 4.12 に六甲山の霧採集地点における霧水中 SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+濃度について，2004 年 4 月～2005 年 3 月における観測値および計算値の月間値を示す。1～2 月には計算で霧水中濃度の過小評価の傾向が強いが，他の月では濃度の月変化の傾向を概ね再現できている。NH_4^+については全ての月で過小評価となっているが，粒子状 NH_4^+については概ね計算値と観測値は一致している（Fig. 4.11i）ため，その原因として NH_3 濃度の過小評価（Fig. 4.11d）が考えられる。冬季には，計算で粒子状 SO_4^{2-}・NH_4^+濃度が過小評価されており（Fig. 4.11g, i），それが霧水中濃度の過小評価にもつながっていると考えられる。しかし，HNO_3 および粒子状 NO_3^-濃度は冬季においても過小評価されていないにもかかわらず，霧水中 NO_3^-濃度も過小評価となっている。1～2 月には計算で霧の発生を過大評価されているが観測では霧

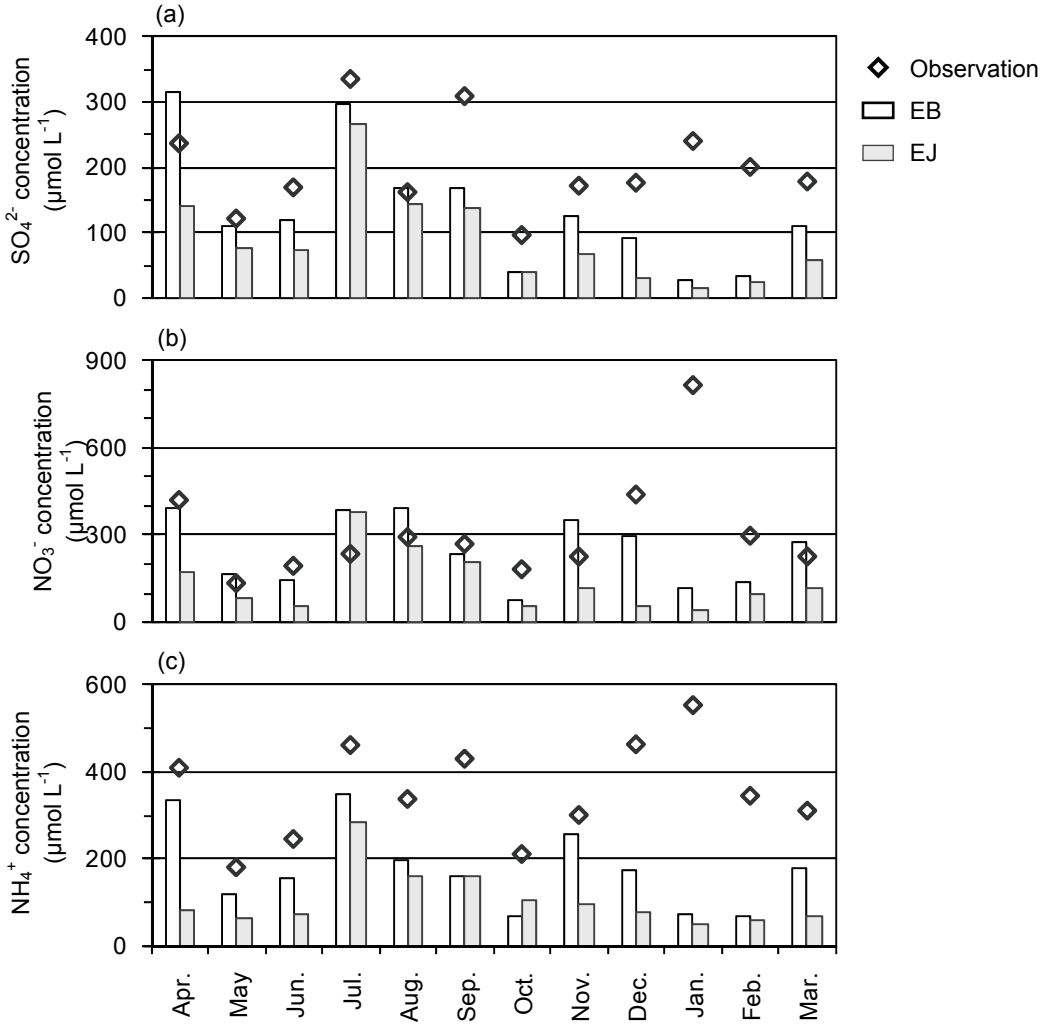


Fig. 4.12 Observed and CMAQ-predicted monthly (a) SO_4^{2-}, (b) NO_3^- and (c) NH_4^+ concentrations in fog water at the Mt. Rokko fog sampling site from April 2004 to March 2005.

の発生頻度は低い（Fig. 4.7）ため，六甲山において実際に霧が発生していた期間に特に大気中のガス・粒子濃度が高くなっていた可能性もある。1～2 月を除けば，EB の結果は観測結果のファクター2 の範囲にほぼ収まっており，計算で霧水中の SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+濃度を降水中濃度の場合と同程度の精度で予測できているといえる。

4.2.4　濃度の空間分布と越境汚染の寄与

Table 4.8 に EB の D4 の陸域における季節別および年間の平均ガス・粒子・降水中・霧水中濃度，およびそれらに対する越境汚染の寄与を示す。越境汚染の寄与率 CR_{TAP}（%）は EB における計算結果 M_{EB} と EJ における計算結果 M_{EJ} から求めた。

$$CR_{TAP} = \frac{M_{EB} - M_{EJ}}{M_{EB}} \times 100 \tag{4.9}$$

また，Fig. 4.13 に CMAQ による 2004 年 4 月～2005 年 3 月の年平均ガス・粒子・降水中・霧水中濃度の計算結果について，EB の D1～D4，EB の D4，および EJ の D4 における空間分布を示す。

Table 4.8 CMAQ-predicted seasonal and annual mean pollutant concentrations and contribution rates of transboundary air pollution in land area in EB_D4

	Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
O_3 (ppb)	50.0 (29)	44.2 (33)	41.1 (23)	36.7 (1)	43.0 (23)
NO_X (ppb)	8.1 (-13)	5.9 (-13)	7.4 (-6)	9.7 (2)	7.8 (-6)
HNO_3 (ppb)	1.9 (49)	1.6 (33)	1.1 (31)	0.5 (24)	1.3 (38)
NH_3 (ppb)	0.6 (-17)	1.7 (-15)	1.0 (-18)	0.4 (-11)	0.9 (-16)
SO_2 (ppb)	1.7 (30)	1.1 (0)	1.1 (18)	0.8 (19)	1.2 (18)
PM10 (μg m^{-3})	12.9 (54)	12.4 (32)	9.3 (40)	4.5 (36)	9.8 (42)
Aerosol SO_4^{2-} (μg m^{-3})	4.5 (63)	4.5 (38)	2.8 (50)	0.8 (48)	3.1 (50)
Aerosol NO_3^- (μg m^{-3})	2.3 (63)	1.7 (34)	1.7 (46)	1.1 (41)	1.7 (48)
Aerosol NH_4^+ (μg m^{-3})	1.9 (71)	1.6 (40)	1.2 (51)	0.5 (44)	1.3 (54)
SO_4^{2-} in precipitation (μmol L^{-1})	20.5 (48)	19.6 (28)	12.6 (8)	12.9 (41)	16.0 (32)
NO_3^+ in precipitation (μmol L^{-1})	26.6 (56)	23.6 (32)	13.8 (31)	26.3 (51)	21.7 (45)
NH_4^+ in precipitation (μmol L^{-1})	20.7 (75)	19.6 (29)	8.1 (34)	10.4 (67)	13.9 (52)
SO_4^{2-} in fog (μmol L^{-1})	125 (46)	127 (36)	83.6 (31)	30.2 (27)	93.9 (37)
NO_3^+ in fog (μmol L^{-1})	223 (50)	174 (38)	154 (40)	113 (9)	169 (36)
NH_4^+ in fog (μmol L^{-1})	177 (60)	201 (35)	122 (35)	69.1 (15)	147 (39)

Parenthetical values are contribution rates of transboundary air pollution (%).

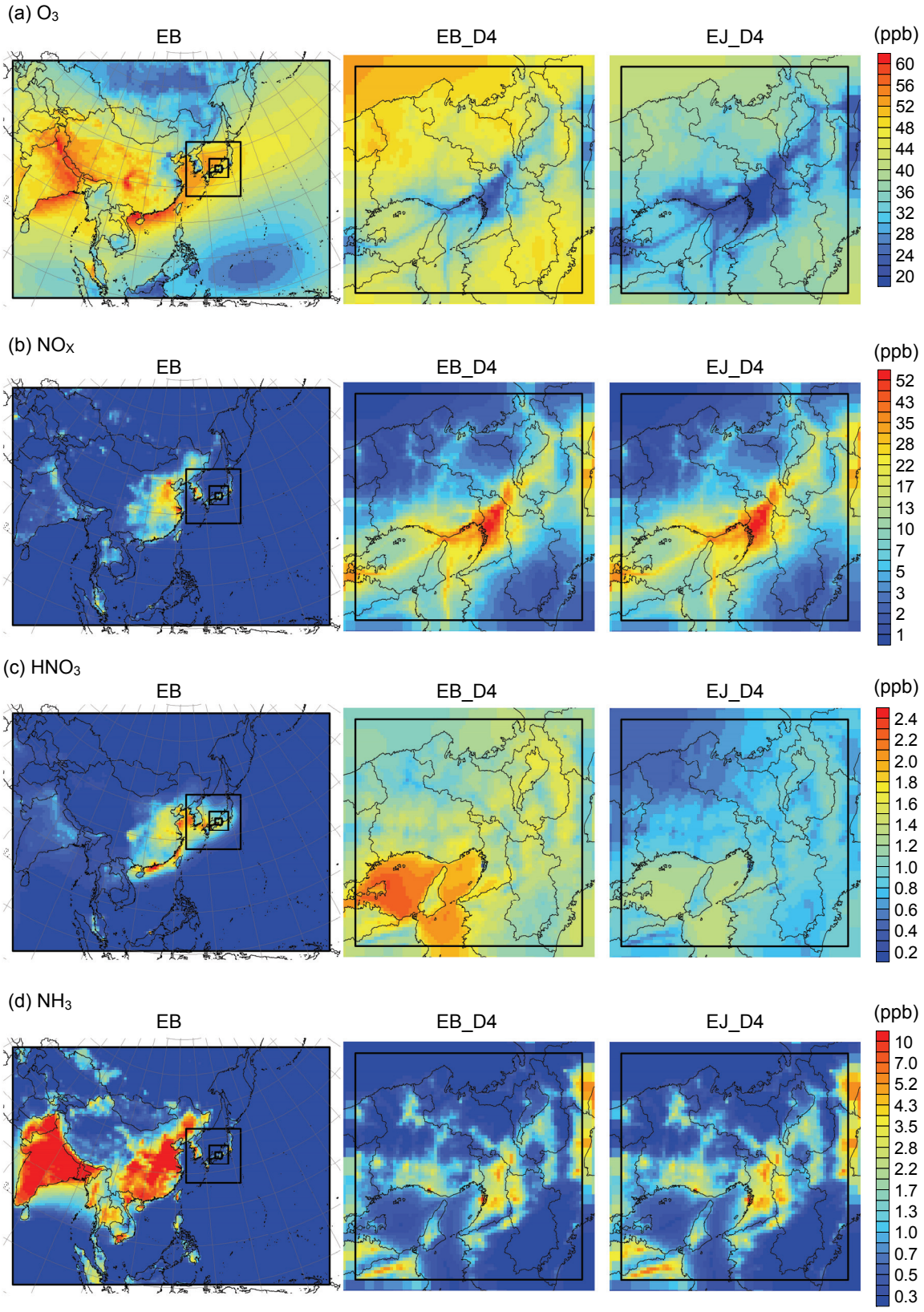


Fig. 4.13 Spatial distributions of CMAQ-predicted annual mean concentrations of pollutants in gaseous, aerosol and liquid phases from April 2004 to March 2005.

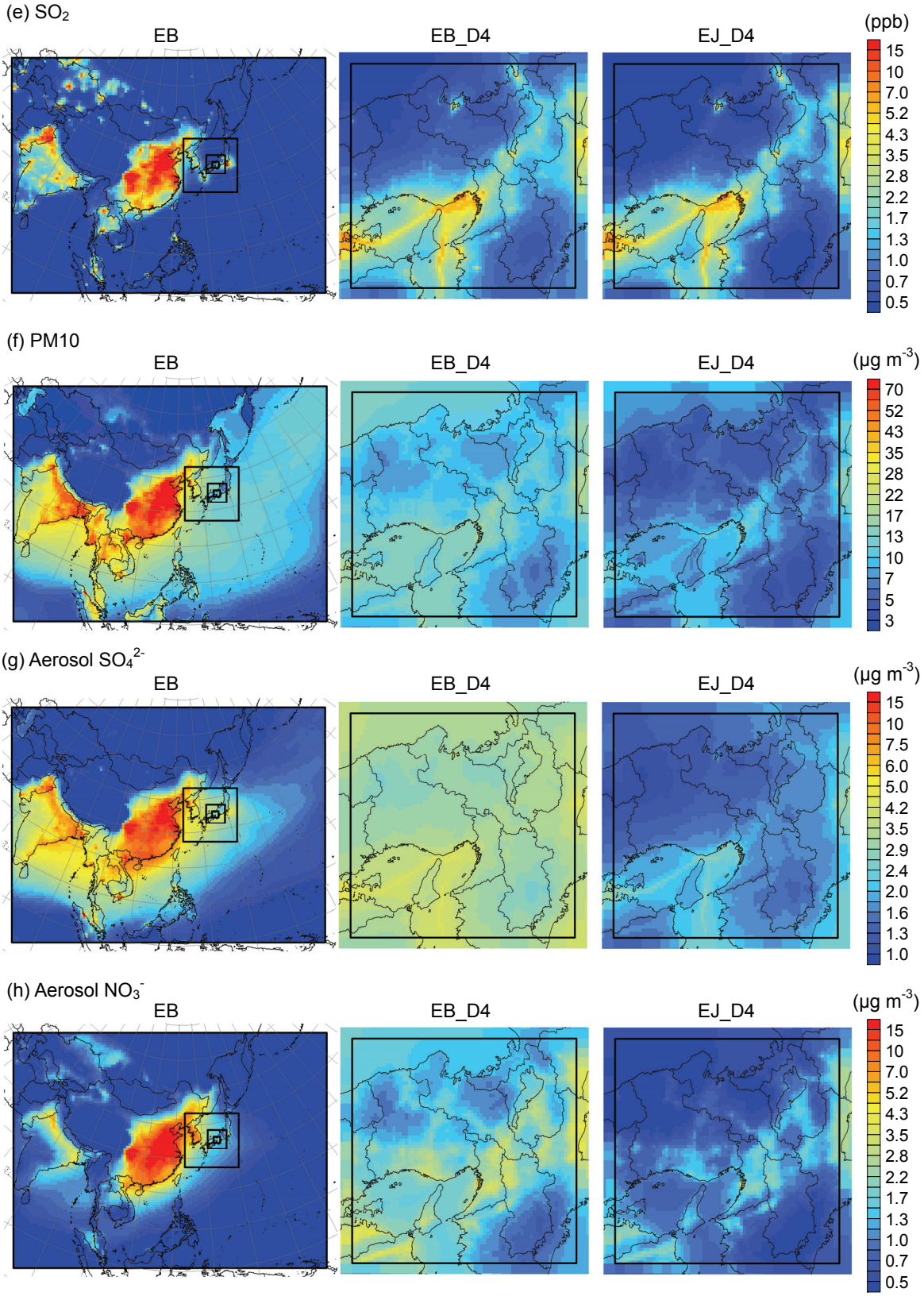


Fig. 4.13 (*continued*).

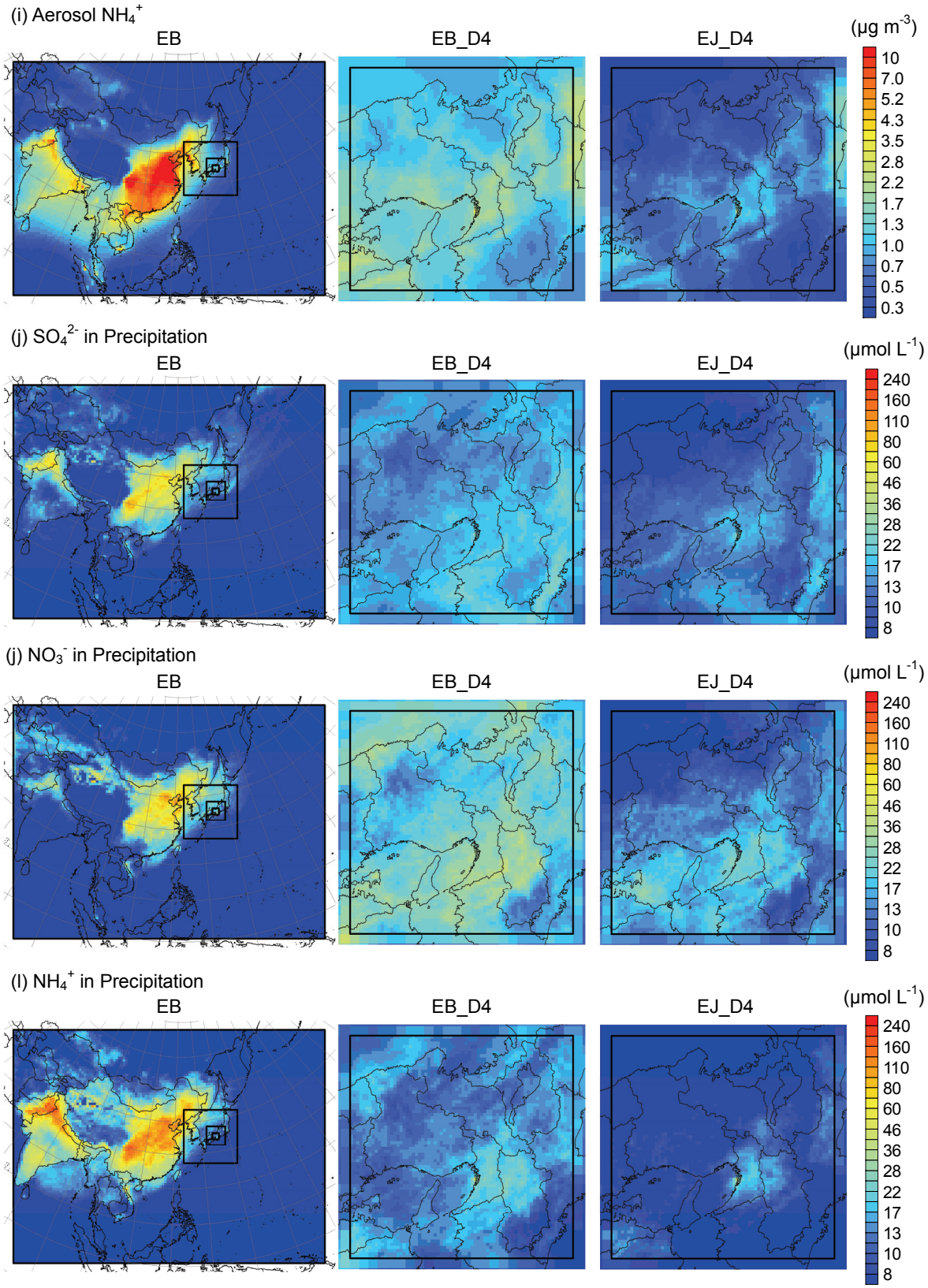


Fig. 4.13 (*continued*).

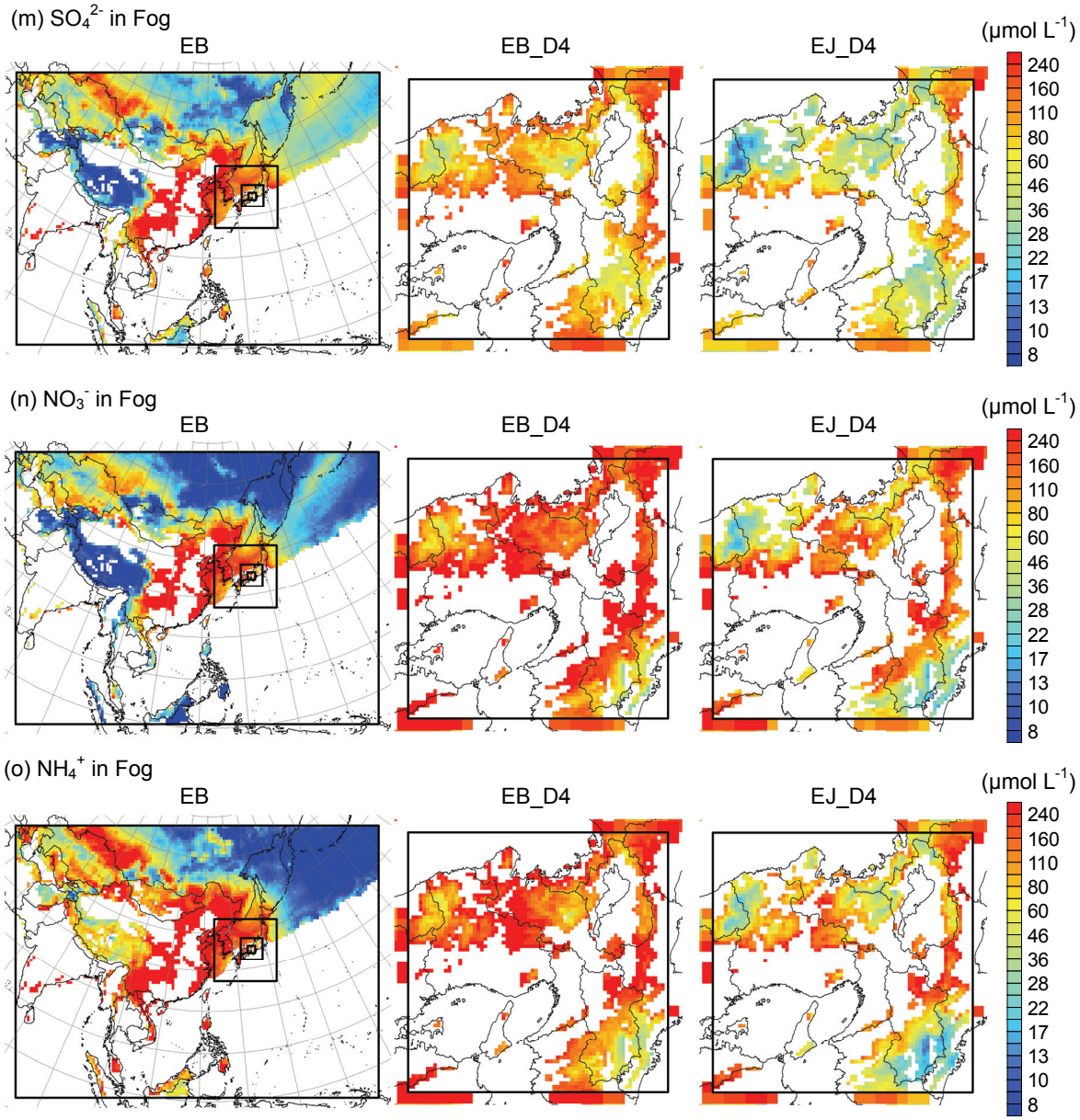


Fig. 4.13 (*continued*).

O_3 の濃度分布については，NO_X 排出量が多い地域では夜間に NO による分解（反応式(R2.5)）によって濃度が低下するため，陸域における平均濃度の分布は NO_X 濃度分布と対称的となっている。また，O_3 濃度は海域の方が陸域よりも高くなっており，4.2.1 項で述べたように遠隔地において長距離輸送の影響が過大評価となっていることから，海域における大気中からの除去が過小評価されている可能性がある。夏季には光化学反応による O_3 生成量が増加するが，日本域では，夏季には南寄りの風が卓越するため，西寄りの風が卓越する春季に比べ，大陸からの長距離輸送の影響を受ける頻度は少なくなると考えられる。しかし，D4 における O_3 濃度に対する越境汚染の寄与は夏季の方が大きくなっている。4.2.1

項で述べたように計算において排出量が多い地域では光化学反応による O_3 生成量および NO による O_3 消滅量がともに過小評価されている可能性があるが，日本と比べて相対的にはアジア大陸における O_3 生成量を特に夏季において過大評価している可能性もある。植生起源 VOC は反応性が高く，O_3 生成において重要となるが，排出量推計における不確実性は大きい（Guenther et al., 2006）。植生起源 VOC 排出量は気温上昇と日射量増加によって特に夏季に大きくなる（Fig. 3.3，3.6）が，本研究では日本域と他地域で異なる排出インベントリを使用しており，日本と比べて相対的にアジア大陸における植生起源 VOC 排出量が過大評価となっていれば O_3 生成量も過大評価となる。また，アジア大陸の排出量が非常に多い地域では PM10 濃度も非常に高いため, エアロゾルによって日射が減衰されやすく光化学反応が抑制されると考えられる。そのため，試作段階であるため本研究では使用していないが，CMAQ バージョン 4.7 で追加されたエアロゾル濃度の変化を考慮して光解離反応定数を計算する手法を用いれば，日本域に比べて PM10 濃度が高いアジア大陸において，特に日射量が大きい夏季の光化学 O_3 生成量が減少すると考えられる。また，光化学反応が抑制されることで反応式(R2.10)による日中の HNO_3 生成量も減少し，HNO_3 の過大評価が改善される可能性もある。HNO_3 の濃度分布については，海域において濃度が高くなっており，アジア大陸で生成された HNO_3 が海域で大気中から除去されずに, 日本域まで移流されていることがわかる。そのため，日本域における HNO_3 濃度が大きく過大評価となっており，反応式（R2.17）や海面への乾性沈着による HNO_3 の大気中からの除去が過小評価されていると考えられる。NO_X，NH_3，SO_2 については，一次排出ガスであるため，これらの平均濃度分布は排出量分布（Fig. 3.9）に近いものになっている。NO_X については，濃度レベルが中国と日本で同等であり, また大陸から移流されてきた O_3 によって近傍で排出された NO_X の酸化が促進されるため，越境汚染によって濃度が上昇しにくく，D4 では年間で EB の方が EJ よりもやや濃度が低くなっている。SO_2 については，関東や九州では火山の影響によって比較的濃度が高いが，近畿と中国を比較すると中国の方がはるかに濃度が高く，春季，秋季，冬季には越境汚染によって濃度が上昇している。しかし，夏季には南寄りの風が卓越するため越境汚染の影響を受けにくくなり, 7 月には三宅島からの SO_2 排出量が増加しているため（Fig. 3.8），越境汚染による濃度上昇はほとんどない。NH_3 については，D4 の陸域おいて HNO_3 と対称的な濃度分布となっており，反応式（R2.16）による NH_4NO_3 の生成を示している。また，HNO_3 の過大評価によって EB の方が EJ よりもやや濃度が低下している。

PM10，粒子状 SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+については，日本に比べて中国における濃度がはるかに高く，越境汚染による寄与も大きい。越境汚染による寄与は春季に最も大きく，夏季にやや小さくなっており, D4 における濃度に対する寄与は年間で約 50 %となっている。また，EJ において濃度が低い日本海側において越境汚染の寄与が大きくなっている。粒子状 SO_4^{2-} については，広い範囲で濃度が均一となっており，長距離輸送による影響が大きいことがわかる。粒子状 NO_3^-については，粒子状 SO_4^{2-}に比べて発生源が多い都市部と他の地域で差が大きく，この結果は地域的な生成量も比較的多いことを示している。粒子状 NH_4^+につい

ては，主成分が$(NH_4)_2SO_4$やNH_4NO_3であるため，粒子状SO_4^{2-}と粒子状NO_3^-の濃度分布の中間的な分布となっている。

降水中SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+濃度については，上空のガス・粒子濃度や降水量に依存するため，濃度分布パターンはやや地表付近のガス・粒子濃度分布と異なる。日本に比べて中国における濃度がはるかに高く，越境汚染による寄与が大きい点については，粒子状SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+濃度の場合と同様である。冬季においても春季と同様に越境汚染の寄与が大きくなっているが，これは冬季の北西寄りの季節風により，大陸由来の粒子状SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+が移流され，日本海側においてそれらを取り込んだ雲による降水がもたらされるためであると考えられる。

霧水中SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+の濃度分布については，霧発生頻度が時間割合で 2 %以上の格子のみ結果を示している。霧水中濃度は降水中濃度よりもはるかに高く，10 倍以上になっている地域も見られる。D4 の陸域における平均霧水中濃度は，EB において降水中濃度に対してSO_4^{2-}で約 6 倍, NO_3^-で約 8 倍, NH_4^+で約 11 倍となっている。Aikawa et al.（2001; 2005）は，六甲山における霧は，主要無機イオン濃度が雨に比べて約 7 倍高く，$[NO_3^-]/[SO_4^{2-}]$も雨よりも大きいことを示したが，D4 の陸域における予測結果はそれと同様の傾向を示している。霧の化学組成は周囲の大気環境の状況によって決まるが，日本ではアジア大陸からの長距離輸送によって多量の大気汚染物質がもたらされている。そのため，D4 における霧の化学組成は越境汚染の影響を強く受けており，粒子・降水中濃度の場合と同様に，越境汚染の影響によって大きく濃度が上昇している。

本研究における結果では，O_3やHNO_3が海域で高濃度となっており，それが日本域における観測値と計算値の相違の原因の一つとなっていると考えられる。海域では観測データが限られており，モデルによる大気質予測の検証を行うことが陸域に比べて困難である。そのため，海域における大気質予測は陸域に比べて不確実性が大きいと考えられる。CMAQ はアメリカの EPA によって開発されたモデルであり，モデルの開発・更新の際の検証は主にアメリカ本土を対象に行われるため（e.g., Davis et al., 2008; Sarwar et al., 2008; Foley et al., 2010），海域における大気質予測精度の重要性が低い。しかし，日本における大気質予測の際には，アジア大陸からの越境汚染の影響が重要となるため，日本と大陸の間の海域における大気質予測精度の重要性が高く，予測精度向上のためには海域におけるモデル検証も必要である。

第 5 章　霧沈着モデル

5.1　霧沈着モデル

5.1.1　風速場

本研究で開発した霧沈着モデルでは，森林樹冠内外における 2 次元の定常風速場を予測し，その風速場をもとに森林植生への霧の沈着過程について定常計算を行う。なお，水平風向は一定と仮定しており，大気・植生間での熱交換は考慮していない。

風速場の計算に用いた運動方程式および乱流エネルギー方程式は，Yamada（1982）をもとにした。平均風速の水平成分 U（m s^{-1}）は次式で表される。

$$\frac{\partial U}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(-\overline{u'w'}\right) - C_D A_S U|U| \tag{5.1}$$

ここで，$\overline{u'w'}$ はレイノルズ応力（m^2 s^{-2}），C_D（= 0.2）は森林植生についての抵抗係数，A_S は片側植生面積密度（m^2 m^{-3}）である。右辺第 2 項は森林植生による風速の減衰を表している。乱流エネルギー方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial\left(q^2/2\right)}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(qlS_q \frac{\partial\left(q^2/2\right)}{\partial z}\right) - \overline{u'w'}\frac{\partial U}{\partial z} + \beta g\overline{w'\theta'} - \frac{q^3}{B_1 l} + C_d A_S |U|^3 \tag{5.2}$$

ここで，q は乱流エネルギー（m s^{-1}），l は乱流長さスケール（m），β は大気の膨張率（K^{-1}），S_q（= 0.2）および B_1（= 16.6）は実験定数である。右辺第 2 項，第 3 項および第 5 項は風速勾配，浮力および森林植生による乱流エネルギーの生成，右辺第 4 項は乱流エネルギーの散逸を表している。乱流長さスケールは次式によって求めた。

$$l = l_0 \frac{\kappa z}{\kappa z + l_0} \tag{5.3}$$

$$l_0 = 0.1\frac{\int_0^\infty zq dz}{\int_0^\infty q dz} \tag{5.4}$$

ここで，κ（= 0.4）はカルマン定数である。また，

$$-\overline{u'w'} = K_M \frac{\partial U}{\partial z} \tag{5.5}$$

$$-\overline{w'\theta'} = K_H \frac{\partial \Theta}{\partial z} \tag{5.6}$$

であり, K_M および K_H は運動量および熱の乱流拡散係数 ($m^2\ s^{-1}$) で, Mellor and Yamada (1982) の方法によって求めることができる。

植生面積密度の鉛直分布は，次に示す Kondo and Akashi（1976）によって提案された関数を用いて決定した。

$$A_S = A_{SM} \cdot \hat{A}(Z) \quad \text{ただし} \quad 0 \le Z \le 1 \tag{5.7}$$

$$A_{SM} = \frac{LAI + NLAI}{H_{FC}} \tag{5.8}$$

$$Z = z / H_{FC} \tag{5.9}$$

$$\hat{A}(Z) = a_m \frac{1-Z}{1-Z_m} \exp\left\{ \frac{1}{2}(Z_m - \lambda)^2 - \frac{1}{2}(Z - \lambda)^2 \right\} \tag{5.10}$$

$$Z_m = \frac{\lambda + 1 - \sqrt{(\lambda - 1)^2 + 4}}{2} \quad \text{ただし} \quad \lambda \ge 1 \tag{5.11}$$

ここで，A_{SM} は平均植生面積密度（$m^2\ m^{-3}$），LAI は片側葉面積指数（$m^2\ m^{-2}$），$NLAI$ は枝・幹など葉以外の植生面積指数（$m^2\ m^{-2}$），H_{FC} は樹冠高さ（m），λ はパラメーター，Z_m は $\hat{A}(Z)$ が最大となる高さ，a_m は次式を満たすように設定する定数である。

$$\int_0^1 \hat{A}(Z)\mathrm{d}Z = 1 \tag{5.12}$$

初期・境界条件は，Monin-Obukhov の相似則をもとに設定した。接地層において Monin-Obukhov の相似則が成立すれば, 平均風速および平均温位の鉛直勾配は以下のように表される。

$$\frac{\partial U}{\partial z} = \frac{u_*}{\kappa z} \phi_m(\zeta) \tag{5.13}$$

$$\frac{\partial \Theta}{\partial z} = \frac{T_*}{\kappa z} \phi_h(\zeta) \tag{5.14}$$

$$\zeta = z / L \tag{5.15}$$

ここで，ϕ_m および ϕ_h は平均風速および平均温位についての普遍関数，u_* は摩擦速度 ($m\ s^{-1}$)，T_* は摩擦温度（K），L は Monin-Obukhov 長であり，

$$u_* \equiv \left(-\overline{u'w'} \right)^{1/2} \tag{5.16}$$

$$T_* \equiv -\overline{w'\theta'} / u_* \tag{5.17}$$

$$L \equiv -\frac{u_*^3 \overline{\theta}}{\kappa g \overline{w'\theta'}} \tag{5.18}$$

と定義される。Monin-Obukhov の相似則では，ζ を大気安定度パラメーターとして用い，ζ は不安定で負，中立でゼロ，安定で正となる。普遍関数は，屋外実測によって求まるものであり，本研究では，以下に示すカルマン定数 $\kappa = 0.4$ の場合の Businger et al.（1971）による提案式を用いた。

$$\left.\begin{aligned} \phi_m(\zeta) &= 1.14(1-13.1\zeta)^{-1/4} \\ \phi_h(\zeta) &= 0.84(1-7.9\zeta)^{-1/2} \end{aligned}\right\} \quad \text{ただし} \quad \zeta \le 0 \tag{5.19}$$

$$\left.\begin{aligned} \phi_m(\zeta) &= 1.14(1+4.1\zeta) \\ \phi_h(\zeta) &= 1.14(0.74+4.1\zeta) \end{aligned}\right\} \quad \text{ただし} \quad \zeta > 0 \tag{5.20}$$

平均風速の鉛直プロファイルは式(5.13)を z 方向に積分することで求められる。

$$U(z) = \frac{u_*}{\kappa}\int_{\zeta_0}^{\zeta} \frac{\phi(\zeta)}{\zeta} \mathrm{d}\zeta \tag{5.21}$$

$$\zeta_0 = z_0 / L \tag{5.22}$$

ここで，z_0 は粗度高さ（m）である。また，地表面近傍における乱流エネルギーは，生成と散逸が釣り合うと仮定すると次式で表される。

$$q^2 = B_1^{2/3} u_*^2 \left(\phi_m(\zeta) - \zeta\right)^{2/3} \tag{5.23}$$

Fig. 5.1 に霧沈着モデルの計算領域を示す。下付きの *IC* および *BC* は初期および境界条件，*Δx* および *Δz* は水平および鉛直格子サイズ，*nx* および *nz* は水平および鉛直格子数を表す。水平方向の計算領域は，助走計算領域は 1.8 km（非森林地域 900 m，森林地域 900 m），評価対象領域は気象/大気質予測における D4 の水平計算格子サイズにあわせて 3 km とした。評価対象領域では，森林割合をもとに領域の端から森林を配置し，中央部は非森林地域となる。

Fig. 5.2 に霧沈着モデルにおける森林樹冠内の植生面積密度と水平風速の鉛直分布の例を示す。植生面積密度の鉛直分布については，パラメーター λ の値が大きくなるほど樹冠内上部で密度が大きくなる。水平風速の鉛直分布については，植生が樹冠上部に集中するほど，そこでの風速の減衰が大きくなる。λ が 2 および 3 の場合は樹冠高さから地面にかけて風速が単調減少しているのに対し，λ が 4 および 5 の場合は植生が低密度な樹冠下部において助走計算領域から侵入した風があまり減衰しないため，樹冠上部から下部にかけて風速が上昇する部分もある。

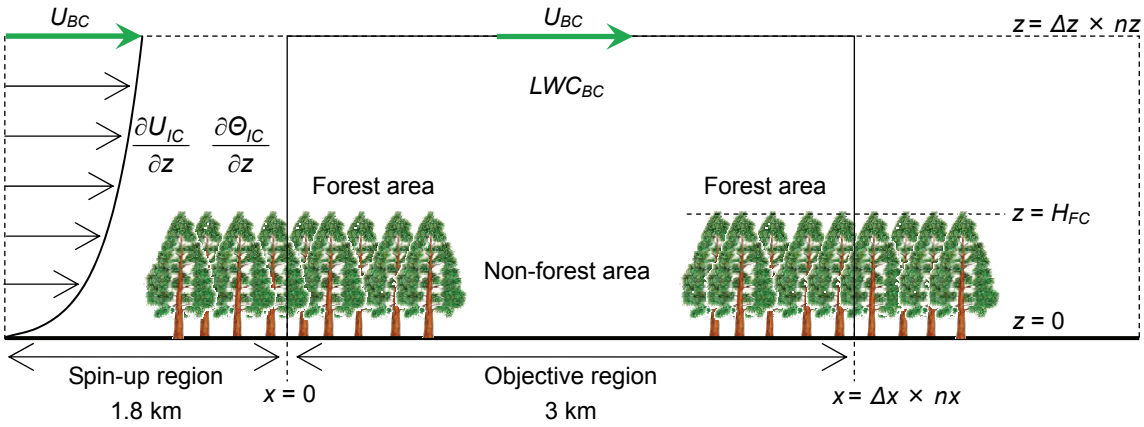


Fig. 5.1 Modeling domain for 2-dimentional fog deposition model.

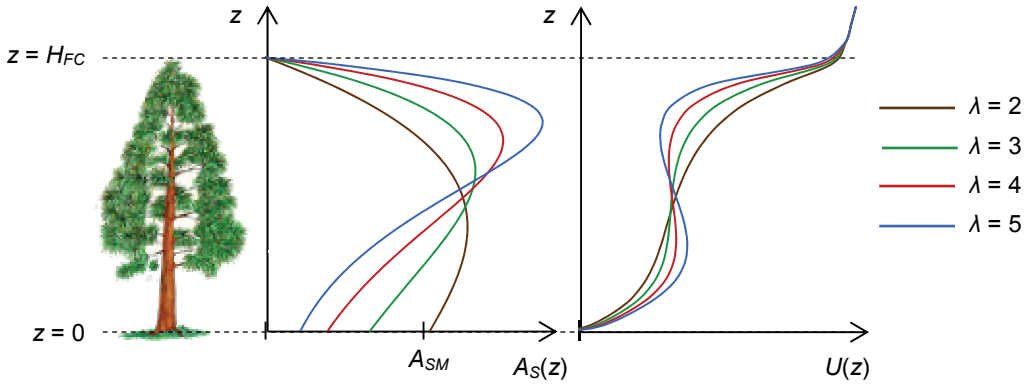


Fig. 5.2 Example of vertical distributions of surface area density and horizontal wind speed.

5.1.2　霧水沈着

霧水沈着は，霧粒子が植生に付着することによって生じる。植生への粒子の主な沈着過程として以下のものがある（Petroff et al., 2008a）：

1)　ブラウン拡散による沈着

粒子が大気中でのブラウン運動によって拡散し，障害物に向かって移動して障害物表面に沈着することで生じる。粒径 0.1 μm 以下のような微粒子の沈着において寄与が大きい。

2)　さえぎりによる沈着

粒子が流線に沿って移動し障害物近傍を通過しようとする際に，流線と障害物の距離が粒子半径よりも小さい場合，粒子はそのまま障害物に捕集される。粒径が小さい粒子や流速が小さい場合など粒子に働く慣性が小さい場合に寄与が大きい。

3)　慣性衝突による沈着

粒子が慣性によって，障害物近傍で急激に変化する流線に沿って移動することができずに障害物に衝突することで生じる。粒径が大きい粒子や流速が大きい場合など粒子に働く慣性が大きい場合に寄与が大きい。

4) 重力沈降による沈着

粒子が重力の影響によって下向きに移動し植生に沈着することで生じる。粒径が大きくなるにつれて寄与が大きくなる。

多くの観測結果において霧粒子の平均粒径は数 μm 以上となっており（e.g., Mueller, 1991; Pahl et al., 1994; Eugster et al., 2006; Elias et al., 2009），このような粒径をもつ霧粒子の沈着過程において支配的となるのは慣性衝突による沈着であり，風速が小さい場合には重力沈降による沈着の影響も相対的に大きくなる（Lovett, 1984）。また，粒子の沈着においては障害物に捕集された粒子が跳ね返る過程もあるが，表面張力が大きい霧粒子の沈着においては無視できると考えられる。

霧の移流拡散方程式は次式で表される。

$$\frac{\partial LWC}{\partial t} = -U\frac{\partial LWC}{\partial x} - W\frac{\partial LWC}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z}\left(K_{LWC}\frac{\partial LWC}{\partial z} + v_S LWC\right) - S_{IM} - S_S \qquad (5.24)$$

ここで，W は平均風速の鉛直成分（m s^{-1}），K_{LWC}（= K_H）は霧の乱流拡散係数（m^2 s^{-1}），v_S は霧粒子の重力沈降速度（m s^{-1}），S_{IM} および S_{GS} は霧粒子の葉面への慣性衝突および重力沈降による霧沈着項である。霧粒子の重力沈降速度は次式で表される。

$$v_S = \frac{g d_p^2 (\rho_W - \rho_A)}{18\mu_A} \qquad (5.25)$$

ここで，d_p は霧粒子の粒径（m），ρ_W および ρ_A は水および空気の密度（kg m^{-3}），μ_A は空気の粘性係数（kg m^{-1} s^{-1}）である。霧粒子の葉面への慣性衝突による霧沈着項は次式で表される。

$$S_{IM} = A_L k_x \varepsilon_{IM} |U| LWC \qquad (5.26)$$

ここで，A_L は片側葉面積密度（m^2 m^{-3}），k_x は葉面への慣性衝突における有効面積率，ε_{IM} は慣性衝突による粒子の捕集効率である。霧粒子の葉面への重力沈降による霧沈着項は次式で表される。

$$S_S = A_L k_z v_S LWC \qquad (5.27)$$

ここで，k_z は葉面への重力沈降における有効面積率である。霧水沈着フラックス F_{FW}（g m^{-2} s^{-1}）は次式で表される。

$$F_{FW} = \int_0^{H_{FC}} (S_{IM} + S_S)\mathrm{d}z - F_{SG} \qquad (5.28)$$

ここで，F_{SG}は林外における霧の地表面への重力沈降フラックス（g m^{-2} s^{-1}）で，地表面近傍における霧水量と重力沈降速度の積によって求められる。これは雨として観測されるものであるため，本研究では霧水沈着フラックスから差し引いている。また，霧沈着速度 V_{DF}（m s^{-1}）は次式で表される。

$$V_{DF} = F_{FW} / LWC_{BC} \tag{5.29}$$

ここで，LWC_{BC}は樹冠上の霧水量（g m^{-3}）である。

慣性衝突および重力沈降における葉の有効面積率は，片側葉面積に対する水平方向および鉛直方向の葉の投影面積の比率とし，Petroff et al.（2008b; 2009）をもとに次式を用いた。

$$k_x = \int_{\theta_L=0}^{2/\pi} \int_{\phi_L=0}^{2\pi} \varphi_{\theta_L} \varphi_{\phi_L} \sin\theta_L \left|\cos\phi_L\right| \mathrm{d}\theta_L \mathrm{d}\phi_L \tag{5.30}$$

$$k_z = \int_{\theta_L=0}^{2/\pi} \varphi_{\theta_L} \cos\theta_L \mathrm{d}\theta_L \tag{5.31}$$

ここで，θ_Lは鉛直方向についての葉の傾斜角（rad），ϕ_Lは水平方向についての葉の方位角（rad），φ_{θ_L}およびφ_{ϕ_L}はそれぞれθ_Lおよびϕ_Lについての密度関数である。以下のように，φ_{ϕ_L}については一様であると仮定し，φ_{θ_L}については Strebel et al.（1985）をもとにベータ関数によって表される。

$$\varphi_{\phi_L}(\alpha_L) = \frac{1}{2\pi} \quad \text{ただし} \quad 0 \le \alpha_L \le 2\pi \tag{5.32}$$

$$\varphi_{\theta_L}(\alpha_L) = \frac{2}{\pi} \frac{\Gamma(\mu_L + \nu_L)}{\Gamma(\mu_L)\Gamma(\nu_L)} \left(1 - \frac{2\alpha_L}{\pi}\right)^{\mu_L - 1} \left(\frac{2\alpha_L}{\pi}\right)^{\nu_L - 1} \quad \text{ただし} \quad 0 \le \alpha_L \le \frac{\pi}{2} \tag{5.33}$$

ここで，Γはガンマ関数，μ_Lおよびν_Lは葉の傾斜角の分布傾向によって決まる定数である。Table 5.1 に代表的な葉の傾斜角の分布傾向とμ_Lおよびν_Lの値，それに対応するk_xおよびk_z

Table 5.1 Parameters on leaf inclination distribution function

Distribution	$\bar{\theta}_L$ (rad)	μ_L	ν_L	k_x	k_z
Planophile	0.47	2.770	1.172	0.27	0.85
Plagiophile	π/4	3.326	3.326	0.43	0.68
Erectophile	1.10	1.172	2.770	0.54	0.42
Extremophile	π/4	0.433	0.433	0.39	0.59
Uniform	π/4	1	1	$4/\pi^2$	$2/\pi$

Planophile: horizontal leaves are most frequent, plagiophile: oblique leaves are most frequent, erectophile: vertical leaves are most frequent, extremophile: oblique leaves least frequent, uniform: all orientations are equi-probable.

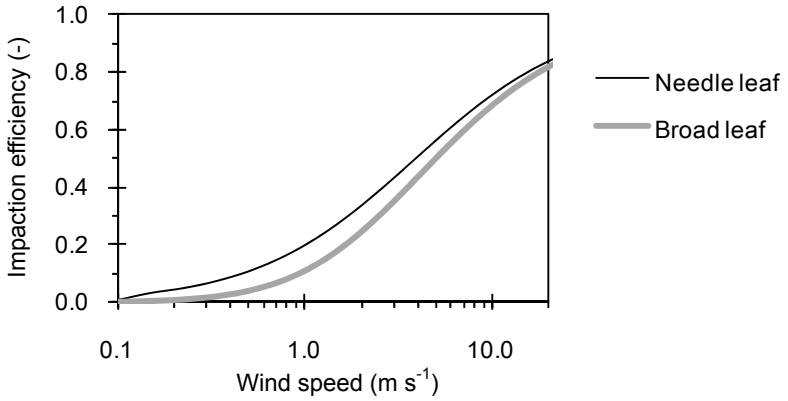


Fig. 5.3 Collection efficiency by impaction of particle (d_p = 15 μm) with needle leaf (d_L = 1 mm) and broad leaf (30 mm) plotted against horizontal wind speed.

を示す。本研究では，葉の傾斜角は平均的にどの角度にも分布していると仮定し，$\mu_L = 1$，$v_L = 1$，$k_x = 4/\pi^2$，$k_z = 2/\pi$ とした。

慣性衝突による粒子の捕集効率は，次式のようにストークス数 St の関数として表すことができる（e.g., Peters and Eiden, 1992; Katata et al., 2008; Petroff et al., 2008b）。

$$\varepsilon_{IM} = \left(\frac{\gamma St}{\gamma St + \alpha} \right)^{\beta} \tag{5.34}$$

$$St = \frac{\rho_W d_p^2 |U|}{9 \mu_A d_L} \tag{5.35}$$

ここで，α，β，γ はパラメーター，d_L は葉の代表長さ（m）である。Katata et al.（2008）は，円筒状の針葉について Thorne et al.（1982）の結果をもとに葉の代表長さ d_L = 1 mm に対してパラメーターα = 5，β = 1.05，γ = 1，平板状の広葉について Belot and Gauthier（1975）の結果をもとに葉の代表長さ d_L = 30 mm に対してパラメーターα = 0.5，β = 1.9，γ = 5 を得ており，本研究でもこれらの値を用いた。Fig. 5.3 に，粒径 d_p = 15 μm の粒子について，これらのパラメーター用いて求めた慣性衝突による捕集効率を示す。風速 1 m s^{-1} では針葉の捕集効率は広葉の倍程度となっており，風速（ストークス数）が小さいと針葉と広葉の差は大きいが，風速（ストークス数）が大きくなるにつれて両者の差は小さくなる。

霧粒子の粒径には，体積加重平均粒径を用いた。体積加重平均粒径は霧水量に依存すると仮定し，スイスにおける Burkard et al.（2003）の観測結果およびプエルトリコにおける Eugster et al.（2006）の観測結果をもとに，それぞれ式(5.36)および式(5.37)を得た。

$$d_p = \left(11.6 LWC^{0.305} + 15.8 LWC + 4.0\right) \times 10^{-6} \tag{5.36}$$

$$d_p = \left(23.8 LWC^{0.342} + 20.4 LWC + 2.7\right) \times 10^{-6} \tag{5.37}$$

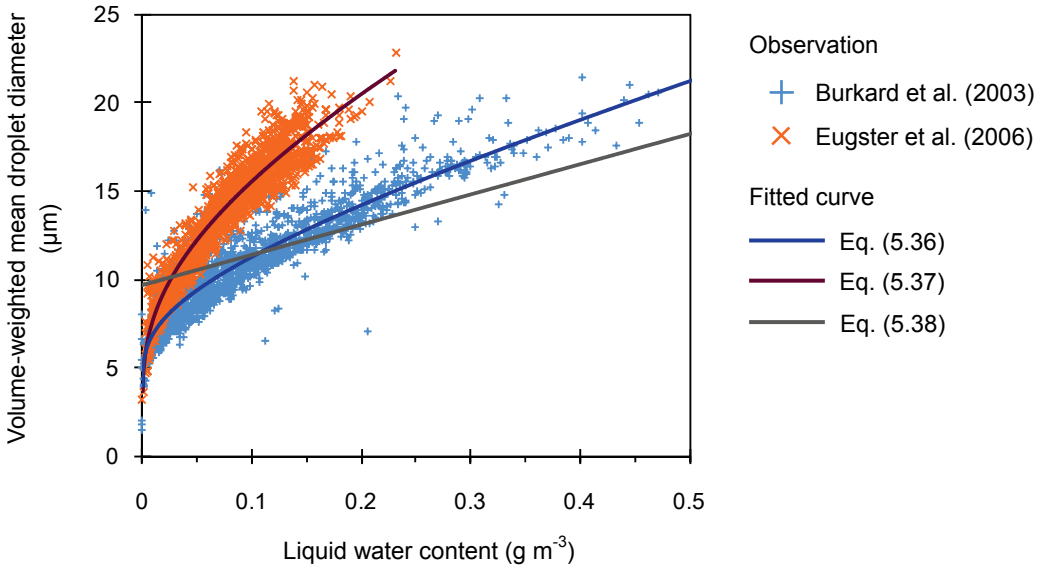


Fig. 5.4 Volume-weighted mean diameter of fog droplet plotted against liquid water content of fog for observation in Switzerland (Burkard et al., 2003) and corresponding fitted curve (Eq. (5.36)), observation in Puerto Rico (Eugster et al., 2006) and corresponding fitted curve (Eq. (5.37)), and fitted curve by Katata et al. (2008) (Eq. (5.38)).

また，Katata et al.（2008）はドイツにおける観測結果（Burkard et al., 2002; Klemm and Wrzesinsky, 2007）をもとに次式を得ている。

$$d_p = \left(17.0LWC + 9.7\right) \times 10^{-6} \tag{5.38}$$

Fig. 5.4 に霧水量と体積加重平均粒径の関係を示す。霧粒子の体積加重平均粒径は，霧水量の増加に伴って大きくなっている。Burkard et al.（2003）の観測結果と式(5.36)は相関係数 R = 0.91，Eugster et al.（2006）の観測結果と式(5.37)は相関係数 R = 0.94 であった。プエルトリコ（式(5.37)）はスイス（式(5.36)）に比べて同じ霧水量に対して粒径が大きく，スイスとドイツ（式(5.38)）は比較的近い粒径となっている。このように，霧の粒径分布は気候などの要因によって地域ごとに異なると考えられるため，日本における霧水沈着の予測には日本における観測結果をもとにした霧の粒径分布を用いることが望ましい。しかし日本における観測結果は得られていないため，本研究での近畿圏における霧水沈着の予測には霧の粒径分布として，プエルトリコに比べると日本に気候が近いスイスの観測結果をもとにした式(5.36)を用いた。

評価対象領域における平均霧水沈着フラックス F_{FWT}（g m^{-2} s^{-1}）は次式によって求めた。

$$F_{FWT} = FR_N F_{FWN} + FR_B F_{FWB} \tag{5.39}$$

ここで，FR_N および FR_B は森林に占める針葉樹および広葉樹の割合，F_{FWN} および F_{FWB} は

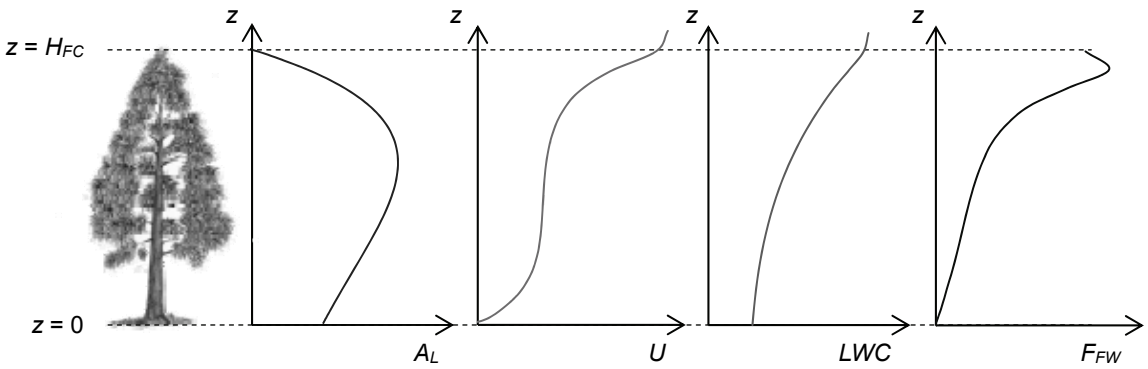


Fig. 5.5 Example of vertical distributions of leaf area density, horizontal wind speed, liquid water content of fog and fog water deposition flux.

森林が全て針葉樹および広葉樹の場合の評価対象領域における平均霧水沈着フラックス（g m^{-2} s^{-1}）である。また，霧による化学物質の沈着フラックス F_{FC}（mol m^{-2} s^{-1}）は，次式のように霧水中の化学物質濃度 C_{FW}（mol g^{-1}）と霧水沈着フラックスの積によって求めた。

$$F_{FC} = C_{FW} F_{FWT} \tag{5.40}$$

Fig. 5.5 に霧沈着モデルにおける森林樹冠内の葉面積密度，水平風速，霧水量，霧水沈着フラックスの鉛直分布の例を示す。霧が葉面へと沈着することで，樹冠高さから地面にかけて霧水量が減少している。霧水沈着フラックスは，風速が大きい樹冠上部において大きく，樹冠高さ近傍における沈着が重要となることがわかる。

5.2 霧沈着モデルの感度解析

Table 5.2 に示す計算条件によって，霧沈着モデルの感度解析を行った。大気安定度は中立として風速の鉛直分布を与え，樹冠上の霧水量は 0.2 g m^{-3}，葉以外の植生面積指数は 0.5 m^2 m^{-2} として計算を行った。森林割合 96 %，λ = 3，針葉樹 100 %，霧の粒径に式(5.36)を用いた場合を基本ケースとし，特に明記がない場合は葉面積密度 11 パターン，樹冠高さ 8 パターンの計算結果を平均した結果を示す。

Fig. 5.6 に基本ケースにおける葉面積密度の変化による霧沈着速度の変化を示す。霧沈着モデルでは，風速が上昇するにつれて霧沈着速度が上昇する。葉面積密度が大きくなると，霧粒子の捕集面積が増加する一方で，植生による抵抗が大きくなり樹冠内の風速が小さくなる。葉面積密度が小さい場合には，霧粒子の捕集面積の増加による影響が大きく，葉面積密度の増加に伴い霧沈着速度が上昇する。葉面積密度が大きい場合には，植生による風速の減衰の影響が大きく，葉面積密度の増加に伴い霧沈着速度が低下する場合もある。

Table 5.2 Configurations of fog deposition model for sensitivity analysis

Parameter	Setting
Horizontal grid	Δx = 60 m, nx = 50
Simulation period	Δz = 1 m, nz = 45
Atmospheric stability	neutral
U_{BC} (m s^{-1})	0.5 - 12
LWC_{BC} (g m^{-3})	0.2
A_L (m^2 m^{-3})	0.01, 0.02, 0.03, 0.05, 0.07, 0.1, 0.2, 0.3, 0.5, 0.7, 1
$NLAI$ (m^2 m^{-2})	0.5
H_{FC} (m)	3, 6, 9, 12, 15, 18, 21, 24
Fraction of forest area (%)	24, 36, 60, 96
λ	2, 3, 4
Needle-leaved trees : Broad-leaved trees	1:0, 0:1
d_p	Eq.(5.36), Eq.(5.37)

Fig. 5.7 に基本ケースにおける樹冠高さの変化による霧沈着速度の変化を示す。霧沈着モデルでは，樹冠高さ近傍における沈着が重要となっている（Fig. 5.5）。樹冠高さが高くなるほど，樹冠高さ近傍における風速が大きくなるため，霧沈着速度が上昇している。

Fig. 5.8 に森林割合を変化させた場合の霧沈着速度の変化を示す。霧沈着は森林植生への沈着によって生じているため，森林割合が小さくなるほど計算領域平均での霧沈着速度は減少する。基本ケースの森林割合 96 %の場合に比べ，森林割合 24 %の場合では，平均霧沈着速度は 62 %小さくなった。

Fig. 5.9 に植生面積の鉛直分布を決めるためのパラメーターλ を変化させた場合の霧沈着速度の変化を示す。λ の値が大きくなるほど樹冠内上部で植生面積が大きくなる（Fig. 5.6）。λ = 2～4 の範囲では霧沈着速度の変化はあまり大きくなく，基本ケースの λ = 3 の場合に比べて，λ = 2 の場合では霧沈着速度は 5 %小さくなり，λ = 4 の場合では霧沈着速度は 4 %大きくなった。植生の鉛直分布に関するデータは限られているため，本論文では以降，λ = 3 を用いる。

Fig. 5.10 に針葉樹 100 %と広葉樹 100 %の場合の霧沈着速度を示す。平板状の広葉は円筒状の針葉に比べて慣性衝突による霧粒子の捕集効率が小さいため（Fig. 5.3），霧沈着速度は小さくなる。基本ケースの針葉樹 100 %の場合に比べて，広葉樹 100 %の場合は霧沈着速度が 23 %小さくなった。

Fig. 5.11 に霧の粒径に式(5.36)を用いた場合と式(5.37)を用いた場合の霧沈着速度を示す。式(5.37)では式(5.36)よりも霧の粒径が大きくなるため（Fig. 5.4），ストークス数が大きくなり，霧粒子の捕集効率が上昇する。そのため，霧沈着速度も大きくなり，基本ケースの式(5.36)を用いた場合に比べて，式(5.37)を用いた場合は霧沈着速度が 31 %大きくなった。

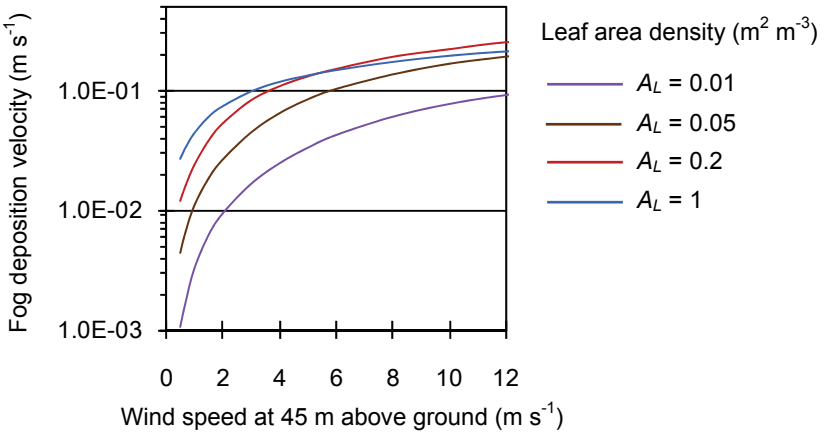


Fig. 5.6 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variations of fog deposition velocity due to variations of leaf area density in the base case.

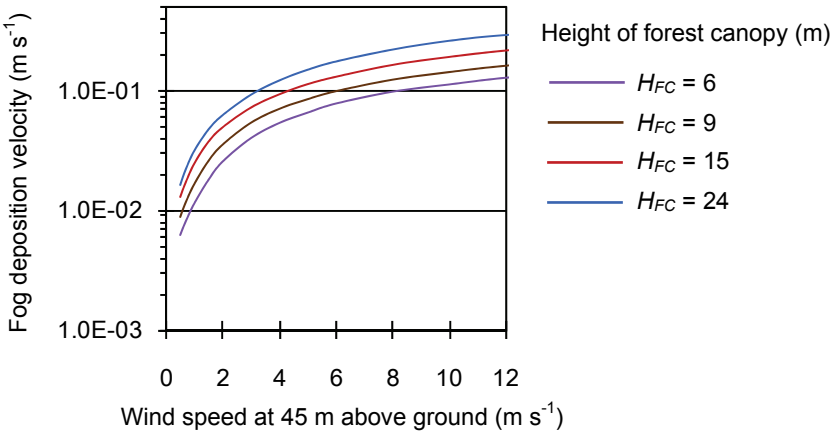


Fig. 5.7 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variations of fog deposition velocity due to variations of height of forest canopy in the base case.

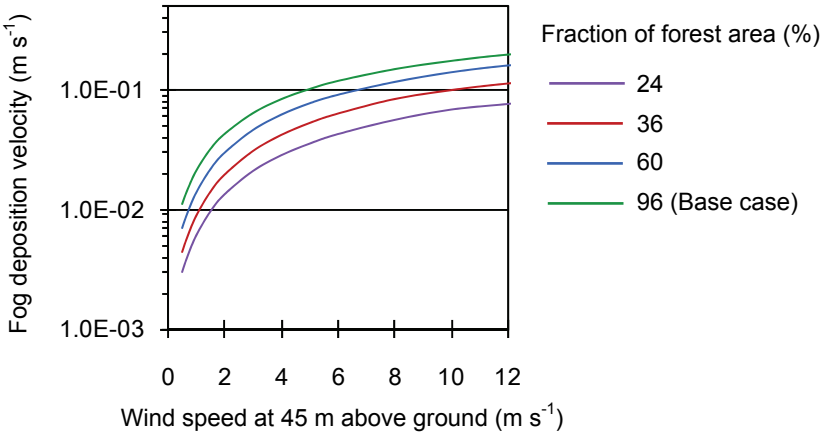


Fig. 5.8 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variations of fog deposition velocity due to variations of fraction of forest area.

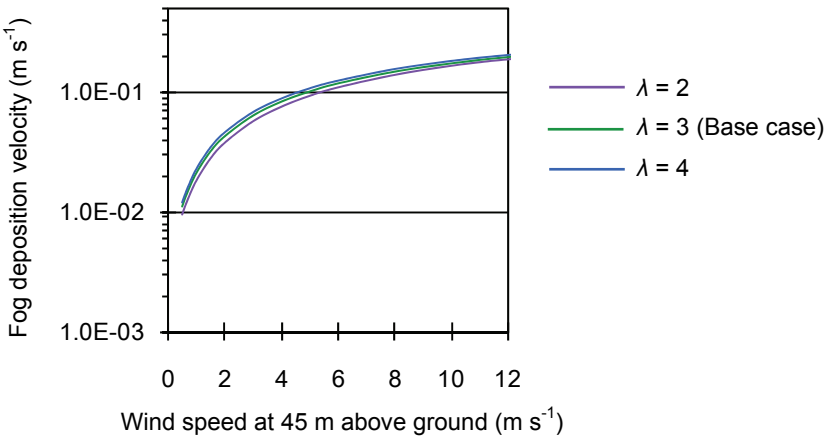


Fig. 5.9 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variations of fog deposition velocity due to variations of parameter on vertical distribution of vegetation surface, λ.

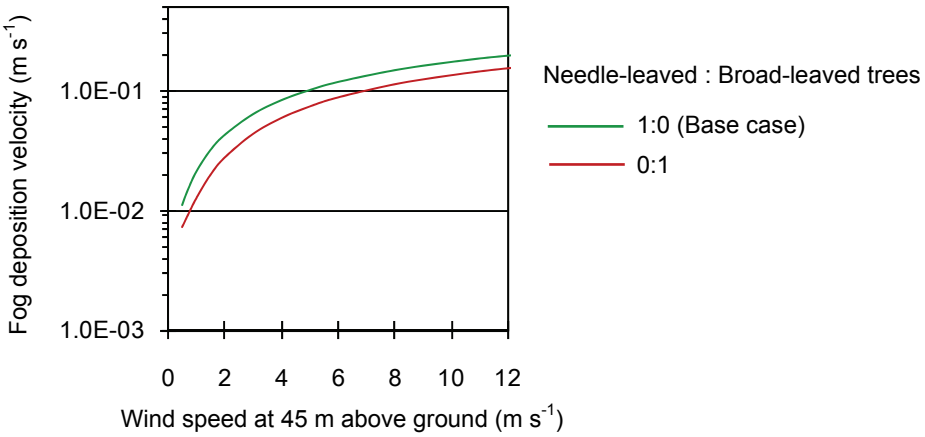


Fig. 5.10 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variation of fog deposition velocity due to variation of tree species.

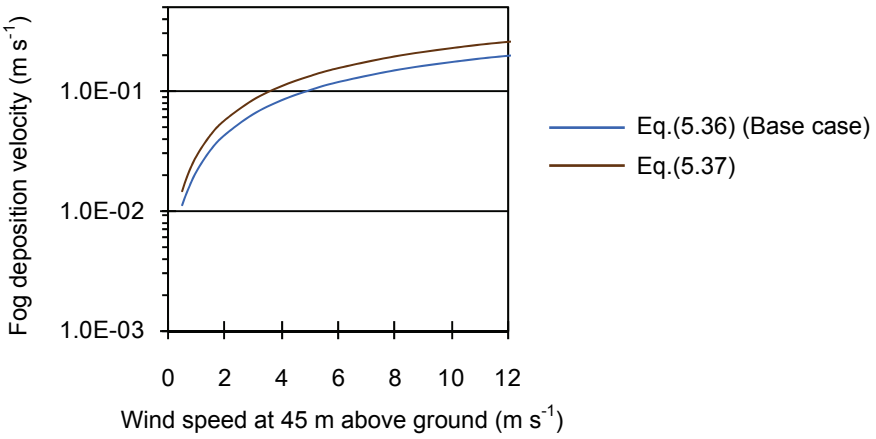


Fig. 5.11 Mean fog deposition velocity in the computational area plotted against horizontal wind speed at the upper boundary. Variation of fog deposition velocity due to variation of fog droplet size.

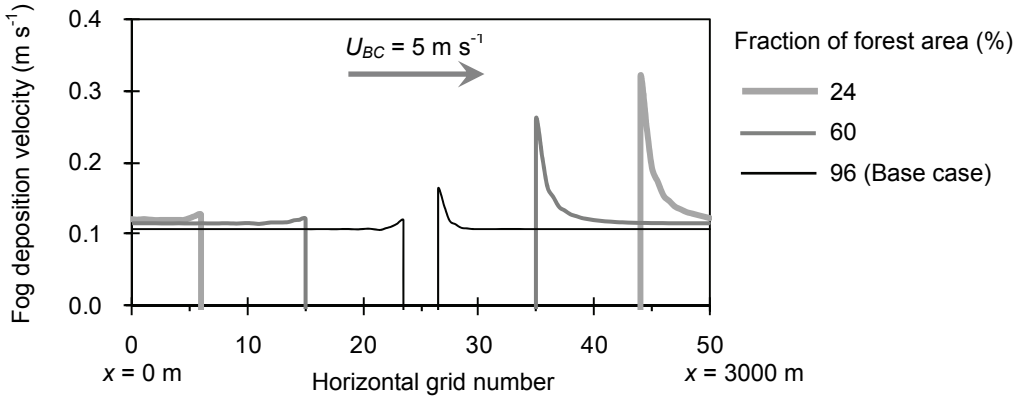


Fig. 5.12 Horizontal distributions of fog deposition velocity in the computational area when upper boundary wind speed is 5 m s^{-1} in the base case and cases of forest fraction being 24 and 60 %.

Fig. 5.12 に基本ケースおよび森林割合を 24，60 %としたケースの，上端境界風速 5 m s^{-1} の場合における霧沈着速度の水平分布を示す。霧沈着速度は森林縁部において最大となっており，森林内部の霧沈着速度に比べ，森林割合 24 %の場合で 3.0 倍，60 %の場合で 2.4 倍，96 %の場合で 1.5 倍となっている。乾性沈着の観測によって，林縁における乾性沈着量が林内に比べてはるかに多く，数倍にもなる場合があることが示されている（e.g., Draaijers et al., 1994; De Schrijver et al., 1998）。この現象はエッジ効果と呼ばれ，森林縁部において，樹木の側面が外部大気にさらされているため吹き込んでくる風の影響を受けやすいこと，乱流拡散が増幅されることが原因として挙げられる（De Jong and Klaassen, 1997; De Ridder et al., 2004）。また，Kobayashi et al.（2001）は霧の沈着においてもエッジ効果が影響していることを示している。Draaijers et al.（1994）は林縁から林内へ 100 m, De Schrijver et al.（1998）は林縁から林内へ 180 m の範囲でエッジ効果の影響を確認している。霧沈着モデルの結果は，これらの報告と同様の傾向を示している。また，林内でも周囲と比べて樹高が高くなっているところがある場合，そこでは樹木が林縁部と同様に外部大気にさらされているため，霧の沈着が促進されると考えられる。

5.3 霧沈着モデルの検証

霧沈着モデルの検証には，Burkard et al.（2003）および Eugster et al.（2006）によって行われた渦相関法による霧沈着フラックスの測定結果を用いた。渦相関法では重力沈降の寄与は直接は測定されていないため，霧沈着モデルにおける慣性衝突による沈着フラックスとの比較を行った。

Burkard et al.（2003）は，スイスの Lägeren 山の標高 690 m 地点（北緯 47.48 度，東経 8.35 度）において渦相関法による霧の乱流沈着フラックスの測定を行った。霧沈着フラックス

Table 5.3 Configurations of fog deposition model for the model validations

	Setting	
Parameter	Lägeren Mountain	Luquillo Mountains
Horizontal grid	Δx = 60 m, nx = 50	Δx = 60 m, nx = 50
Vertical grid	Δz = 1 m, nz = 45	Δz = 0.2 m, nz = 36
Meteorology input	Burkard et al. (2003)	Eugster et al. (2006)
LAI (m^2 m^{-2})	0.7 - 1.7	2.1
$NLAI$ (m^2 m^{-2})	0.5	0.5
H_{FC} (m)	30	3
Fraction of forest area (%)	100	100
λ	3	3
Needle-leaved trees : Broad-leaved trees	0.5:0.5	0:1
d_p	Eq.(5.36)	Eq.(5.37)

は，観測塔の地上 45 m（樹冠上 15 m）に設置された装置によって測定された。観測地点周辺の植生は，ブナとトウヒが優占種の混成林となっている。霧沈着モデルの検証には 2001 年 9 月～2002 年 3 月の 30 分間隔の観測値を用いた。この期間中では，全観測日のうち約半数において 30 分以上の霧の発生が観測されている。Lägeren 山における霧は主に，夜間から早朝にかけての放射霧と，大気が不安定な場合に前線通過や雷雨に伴う雨の蒸発や上昇流によって発生する霧の 2 種類に区分される。

Eugster et al.（2006）は，プエルトリコの Luquillo 山脈の標高 1015 m 地点（北緯 18.27 度，西経 65.76 度）において渦相関法による霧の乱流沈着フラックスの測定を行った。霧沈着フラックスは，観測塔の地上 7.25 m に設置された装置によって測定された。観測地点周辺の植生は，低木広葉樹から成る雲霧林であり，樹高は平均 2.5～3 m，最大 5.25 m となっている。Holwerda et al.（2006）によって光学的手法を用いて推定された葉面積指数は 2.1 ± 0.7 m^2 m^{-2} であり，Weaver et al.（1986）によって破壊的手法を用いて直接測定された 2.0 m^2 m^{-2} と近い。霧沈着モデルの検証には 2002 年 6 月 26 日～8 月 7 日の 30 分間隔の観測値を用いた。この観測地点周辺では，貿易風の影響によって大西洋から湿った空気が定常的に吹き込んでおり，上昇霧が非常に頻繁に発生する。この期間中の霧発生頻度は，時間割合で 85 %であった。

Table 5.3 に示す計算条件によって，霧沈着モデル検証のためにスイスの Lägeren 山およびプエルトリコの Luquillo 山脈における霧沈着フラックス観測地点を対象に計算を行った。樹冠上の風速, 霧水量などの気象条件にはそれぞれの地点における観測結果を用いた。Lägeren 山における葉面積指数の測定値は得られなかったため，人工衛星に搭載された光学センサーの MODerate resolution Imaging Spectroradiometer（MODIS）による観測をもとに作成された葉面積指数データ（http://cliveg.bu.edu/modismisr/index.html）を用いた。MODIS の葉面積

指数データは，全球を対象としており，水平解像度約 1 km × 1 km のデータは月別で整備されている。2001 年 9 月～2002 年 3 月の Lägeren 山における葉面積指数は 0.7～1.7 m^2 m^{-2} であった。葉以外の植生面積指数は 0.5 m^2 m^{-2}，植生面積の鉛直分布を決めるためのパラメーターは $\lambda = 3$ と仮定した。霧の粒径はそれぞれの地点における観測結果をもとにした式(5.36), (5.37)を用いた。

スイスの Lägeren 山およびプエルトリコの Luquillo 山脈における霧沈着フラックス観測地点における観測結果と霧沈着モデルによる計算結果の比較として, Fig. 5.13 に霧沈着速度と樹冠上の風速の関係，Fig. 5.14 に霧沈着フラックスの比較，Fig. 5.15 に積算霧水沈着量の比較を示す。5.2 節でも述べたように霧沈着モデルでは，風速が大きくなるにつれて霧沈着速度が大きくなる。

スイスの Lägeren 山における観測結果では，全体的に風が弱く，樹冠上の風速と霧沈着速度の間に相関がみられず, 風速が小さい場合にも比較的霧沈着速度が大きくなっている (Fig. 5.13a)。そのため，Lägeren 山における霧沈着フラックスの計算結果は，観測結果からのばらつきが非常に大きい（Fig. 5.14a)。また，2001 年 9 月～2002 年 3 月における合計霧水沈着量は観測で 7.4 mm，計算で 7.7 mm と概ね一致したものの，積算霧水沈着量の変化パターンは計算で再現できていない（Fig. 5.15a)。Burkard et al.（2003）は，この観測地点・期間における霧の沈着は風が弱い放射霧発生時におけるものが支配的であったとしている。他の霧沈着モデル（Lovett, 1984; Katata et al., 2008）においても，霧の沈着は乱流中を輸送される霧粒子と森林植生の慣性衝突による沈着が支配的となっており，霧の沈着速度は水平風速に依存する。そのため，現在の霧沈着モデルでは，この観測地点における霧沈着を精度良く再現することは困難であると考えられる。

プエルトリコの Luquillo 山脈における観測結果では, 霧の発生のほとんどは上昇霧によるものであるため全体的に風が強く，霧沈着モデルと同様に樹冠上の風速が大きくなるにつれて霧沈着速度が大きくなっている（Fig. 5.13b)。そのため，Luquillo 山脈における霧沈着フラックスの計算結果は，観測結果と良く一致しており相関係数は R = 0.85 と高く，ほぼ観測結果のファクター2 の範囲に収まっている（Fig. 5.14b)。また，2002 年 6 月 26 日～8 月 7 日における合計霧水沈着量は観測で 41.7 mm，計算で 37.6 mm とやや過小評価となったが，積算霧水沈着量の変化パターンは良好に再現できている（Fig. 5.15b)。樹冠上の風速が 10 m s^{-1} の場合の霧沈着速度は，計算では 20 cm s^{-1} 前後に集中しているが，観測では 10 cm s^{-1} 程度から 50 cm s^{-1} 以上にもなっている（Fig. 5.13b)。霧沈着モデルでは水平風向は一定とし，地形の起伏は考慮しておらず，森林植生構造も一様であると仮定している。しかし，実際には地形の起伏や植生構造の不均一性によって風向のわずかな変化によっても霧の移流・拡散の様子が変化すると考えられる。そのため計算において，観測よりも霧沈着速度のばらつきが小さく，霧沈着速度 50 cm s^{-1} 以上のように非常に霧沈着速度が大きくなる状況を再現できず，合計の霧水沈着量がやや過小評価されたと考えられる。

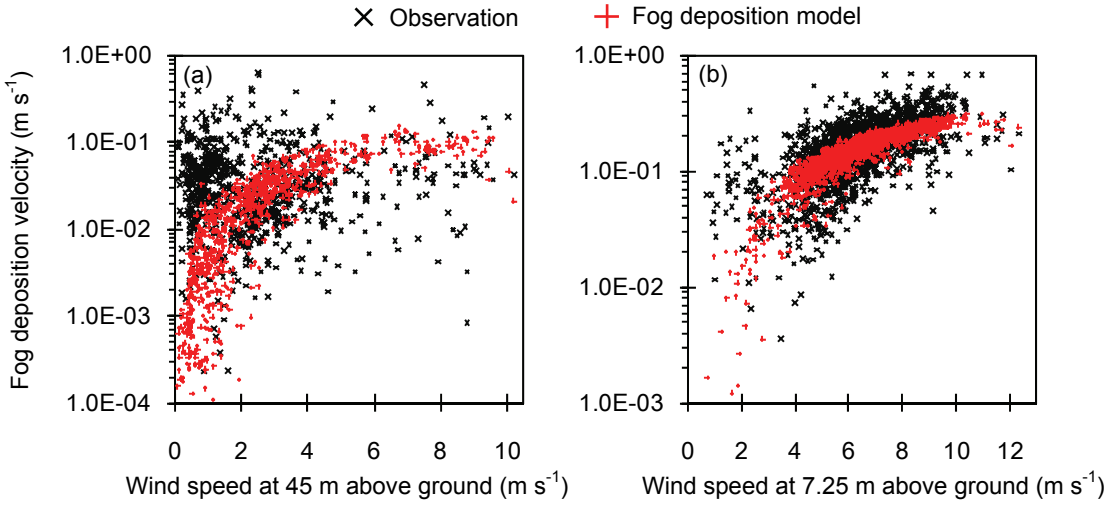


Fig. 5.13 Comparisons of observed and model-predicted fog deposition velocity at the observation sites in (a) the Lägeren Mountain in Switzerland and (b) the Luquillo Mountains in Puerto Rico.

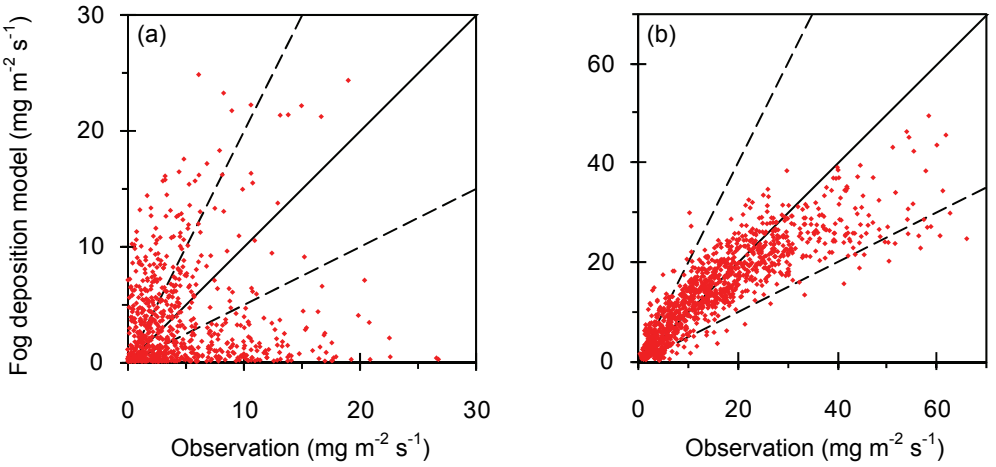


Fig. 5.14 Comparisons of observed and model-predicted fog deposition flux at the observation sites in (a) the Lägeren Mountain in Switzerland and (b) the Luquillo Mountains in Puerto Rico. 2:1, 1:2 and 1:1 reference lines are provided

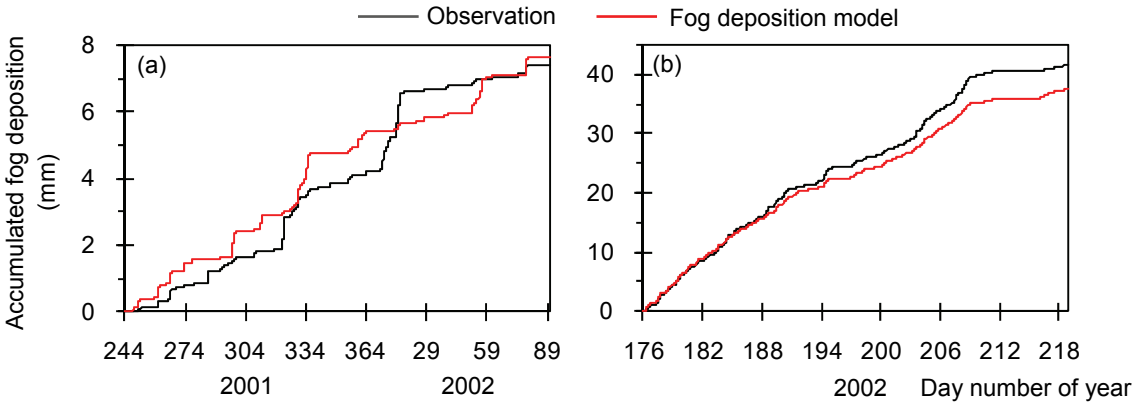


Fig. 5.15 Comparisons of observed and model-predicted accumulated fog deposition at the observation sites in (a) the Lägeren Mountain in Switzerland and (b) the Luquillo Mountains in Puerto Rico.

山地において発生する典型的な霧は，上昇霧および低層雲の山腹への移流によって発生する霧であり（Klemm et al., 2005），このような霧は発生時に比較的風が強く乱流が発達しやすいため，霧水沈着における寄与が大きいと考えられる。Katata et al.（2008）は，霧沈着過程を組み込んだ 1 次元多層モデルを開発し，そのモデルがドイツの Fichtel 山地における渦相関法による霧沈着フラックスの観測結果（Burkard et al., 2002）を良く再現することを示し，また計算と観測の両方で霧沈着速度と樹冠上の風速との相関が高いことを示した。この報告は, 本研究における霧沈着モデルとプエルトリコの Luquillo 山脈における観測結果との比較における傾向と一致している。風が弱い放射霧発生時における沈着が支配的であったスイスの Lägeren 山では，霧水沈着の変動パターンを霧沈着モデルによって再現することは困難であったが，合計の霧水沈着量は 7 ヶ月間で 7.4 mm と少なかった。一方で，風が強い上昇霧の沈着発生時における沈着が支配的であったプエルトリコの Luquillo 山脈においては，霧沈着モデルの計算結果と観測結果の間には高い相関があった。以上の点から，通常は，放射霧よりも上昇霧および低層雲の山腹への移流によって発生する霧の方が霧水沈着における寄与が大きいと考えられるため，上昇霧の沈着を概ね再現した霧沈着モデルは近畿圏における霧水沈着の予測に適用可能であると判断した。

第 6 章　酸性物質沈着量の評価

6.1　霧水沈着量

6.1.1　森林データ

5.2 節で示したように,霧沈着モデルによる予測は森林植生に関する入力データに大きく影響される。ここでは近畿圏を対象とする D4 に霧沈着モデルを適用するために使用した森林植生に関するデータを示す。

森林割合については，国土数値情報（http://nlftp.mlit.go.jp/ksj/）の平成 18 年度の土地利用細分メッシュデータを使用した。土地利用細分メッシュデータでは，全国の土地利用の状況について，約 100 m メッシュごとに各利用区分（田，畑，果樹園，森林，荒地，建物用地，幹線交通用地，湖沼，河川など）が整備されている。Fig. 6.1 に土地利用細分メッシュデータをもとに作成した D4 の各 3 km 格子における森林割合の分布を示す。D4 の陸域における森林割合は 69 %，各格子の標高（Fig. 3.1）が 500 m 以上の山地は水平計算格子 5184 格子中 788 格子であり，森林割合は 95 %となっている。

樹種については，平成 6～10 年度に行われた第 5 回自然環境保全基礎調査（http://www.biodic.go.jp/kiso/vg/vg_kiso.html）の植生メッシュデータを使用した。植生メッシュデータでは，3 次メッシュごとに優占植生群落，植生自然度などが整備されている。Fig. 6.2 に植生メッシュデータをもとに作成した D4 の各格子における優占樹種の分布を示す。優占樹種は，D4 の北部では落葉広葉樹，その他の地域では常緑針葉樹が支配的となっている。また D4 の森林面積のうち，常緑針葉樹は 69 %，落葉広葉樹は 24 %，常緑広葉樹は 7 %となっている。

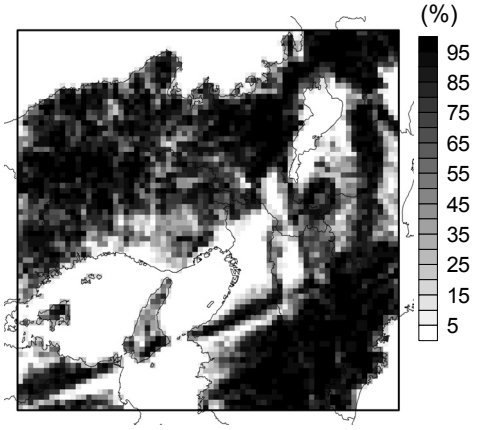


Fig. 6.1 Spatial distribution of fraction of forest area in D4.

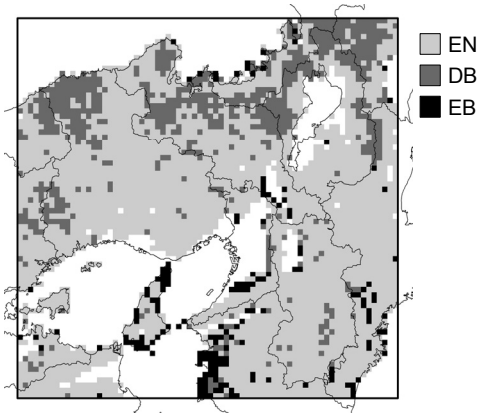


Fig. 6.2 Spatial distribution of dominant tree species in D4. EN, DB and EB refer to evergreen needle- leaved, deciduous broad-leaved and evergreen broad-leaved forest.

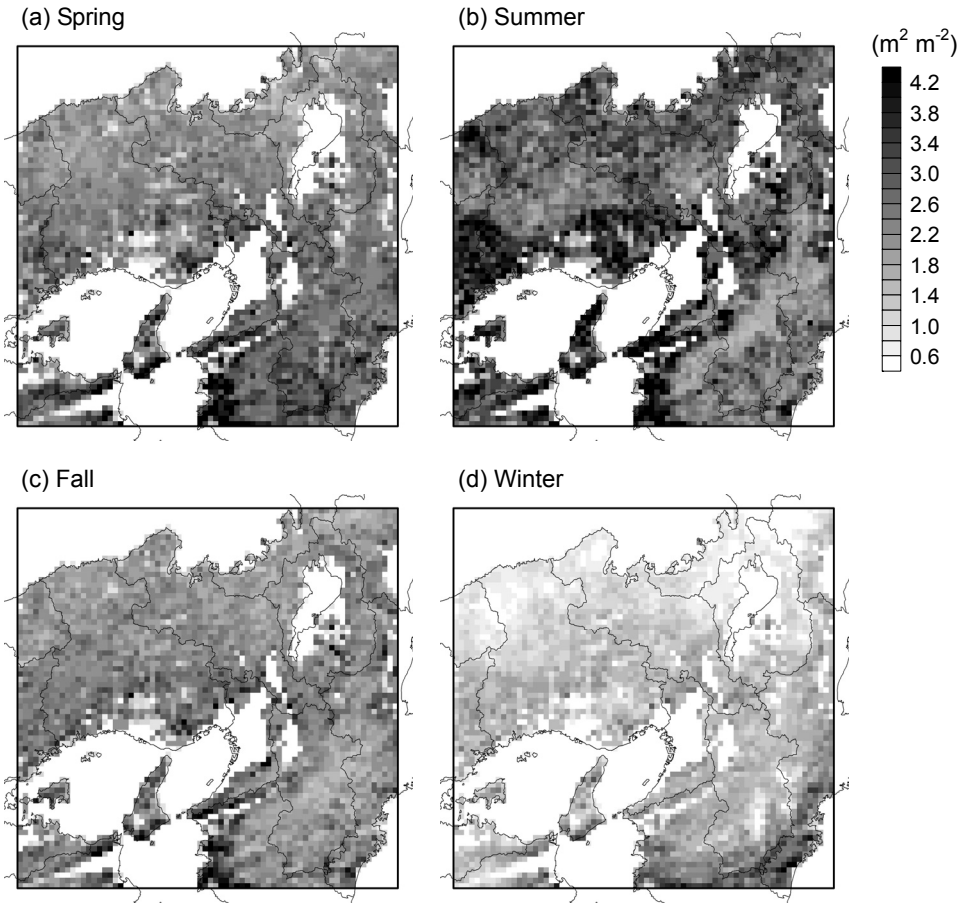


Fig. 6.3 Spatial distributions of seasonal leaf area index in D4 from April 2004 to March 2005.

葉面積指数については，解像度約 1 km × 1 km，月別の MODIS の葉面積指数データを用いた。Fig. 6.3 に MODIS の葉面積指数データをもとに作成した D4 の各格子における葉面積指数の分布を，計算期間である 2004 年 4 月～2005 年 3 月の季節別で示す。葉面積指数は，大きい順に夏季，春季，秋季，冬季となっており，冬季は特に落葉広葉樹が優占となっているところで小さくなっている。

6.1.2 霧発生頻度および霧水量

霧発生頻度および霧水量は霧水沈着量に直接影響する。Fig. 6.4 に 2004 年 4 月～2005 年 3 月の季節別で D4 における時間割合での霧発生頻度と霧発生時の平均霧水量の WRF による空間分布予測結果を示す。霧は標高が高い山地において頻繁に発生しており，六甲山と同等以上に発生しているところも多く見られる。春季および夏季には霧の発生頻度が高く，全体的に霧水量が大きく濃い霧となっている。特に夏季は，気温が高く大気中の水蒸気量が多いため，霧水量が最も大きくなっている。それに比べて秋季は，全体的に霧発生頻度が低く，霧水量もやや小さくなっている。冬季には，霧発生頻度の高い地域が広くなって

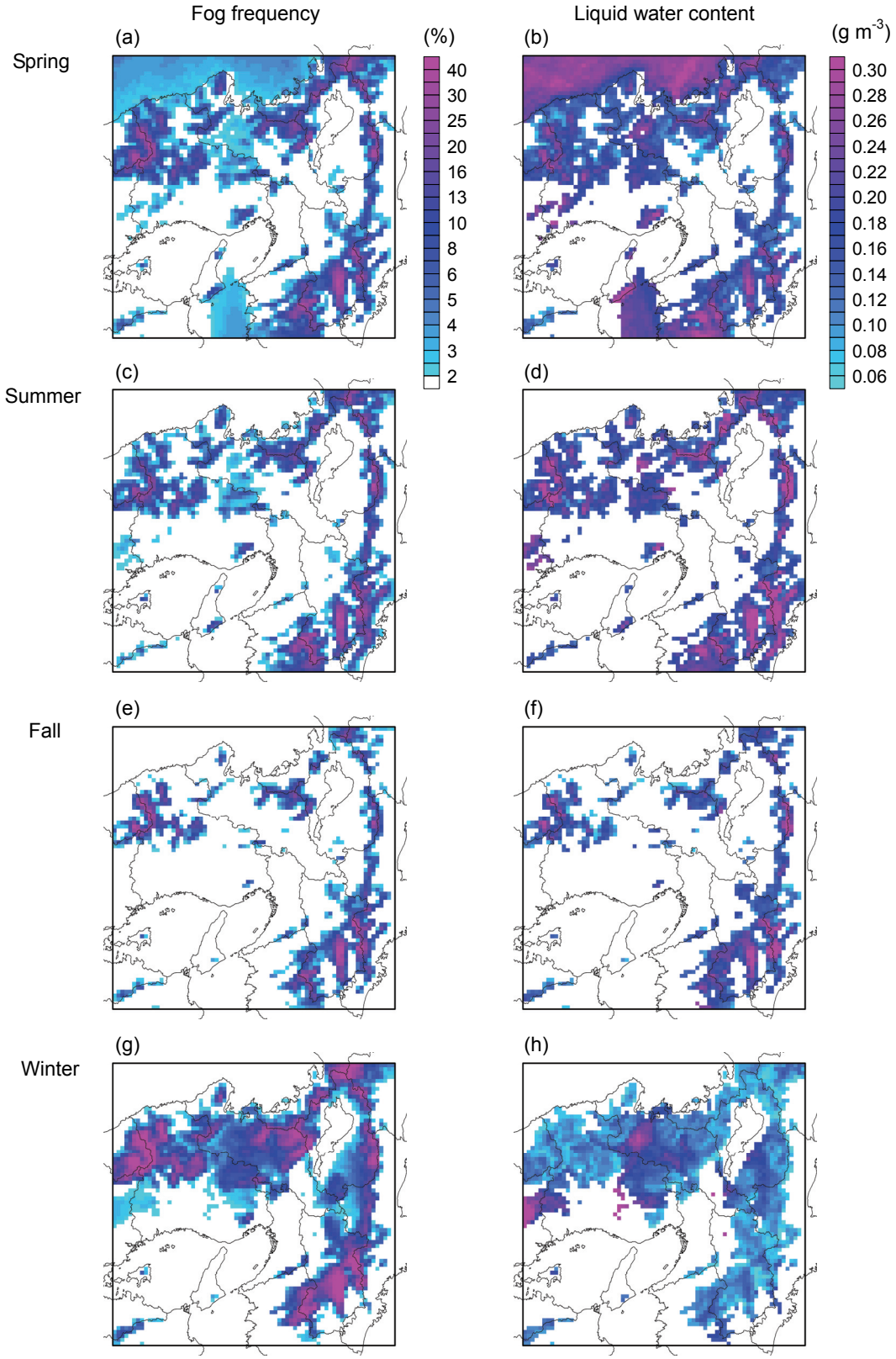


Fig. 6.4 Spatial distributions of WRF-predicted seasonal fog frequency and liquid water content of fog in D4 from April 2004 to March 2005.

いるが，気温が低く大気中の水蒸気量が少ないため，霧水量は最も小さくなっている。ただし，冬季における霧発生頻度は六甲山の場合（Fig. 4.7）と同様に，計算で過大評価されている可能性がある。標高 500 m 以上の山地における平均の霧発生頻度および霧水量は，春季で 11.2 %および 0.19 g m^{-3}，夏季で 10.6 %および 0.24 g m^{-3}，秋季で 7.9 %および 0.19 g m^{-3}，冬季で 17.1 %および 0.095 g m^{-3}，年間では 11.7 %および 0.17 g m^{-3} となった。また，主な山地における年間霧発生頻度は, 紀伊山地では最大 51.5 %, 中国山地では最大 49.1 %, 鈴鹿山脈では最大 42.9 %となった。

6.1.3 霧水沈着量

Table 6.1 に示す条件によって，D4 における霧水沈着量の予測を行った。樹冠上の風速，霧水量などの気象条件には WRF による気象予測結果を用いた。森林植生に関するデータは，主に 6.1.1 項で示したものを用いた。樹高の分布データは得られなかったため，樹冠高さについては 15 m と仮定した。また，葉以外の植生面積指数および植生面積の鉛直分布を決めるためのパラメーターは，5.3 節における霧沈着モデルの検証と同様に，それぞれ

Table 6.1 Configurations of fog deposition model for predictions in D4

Parameter	Setting
Horizontal grid	Δx = 60 m, nx = 50
Vertical grid	Δz = 1 m, nz = 45
Meteorology input	WRF predictions at the first and second lowest layers
LAI (m^2 m^{-2})	MODIS LAI product
$NLAI$ (m^2 m^{-2})	0.5
H_{FC} (m)	15
Fraction of forest area	Digital National Land Information
λ	3
Needle-leaved trees : Broad-leaved trees	5th National Survey on the Natural Environment
d_p	Eq.(5.36)

Table 6.2 Model-predicted seasonal and annual fog water deposition and precipitation in land area in D4

	Elevation	Spring	Summer	Fall	Winter	Annual
Fog water deposition (mm)	0 - 500 m	3	3	1	1	8
	≥ 500 m	35	50	29	16	129
Precipitation (mm)	0 - 500 m	522	386	723	482	2113
	≥ 500 m	784	833	1085	832	3533

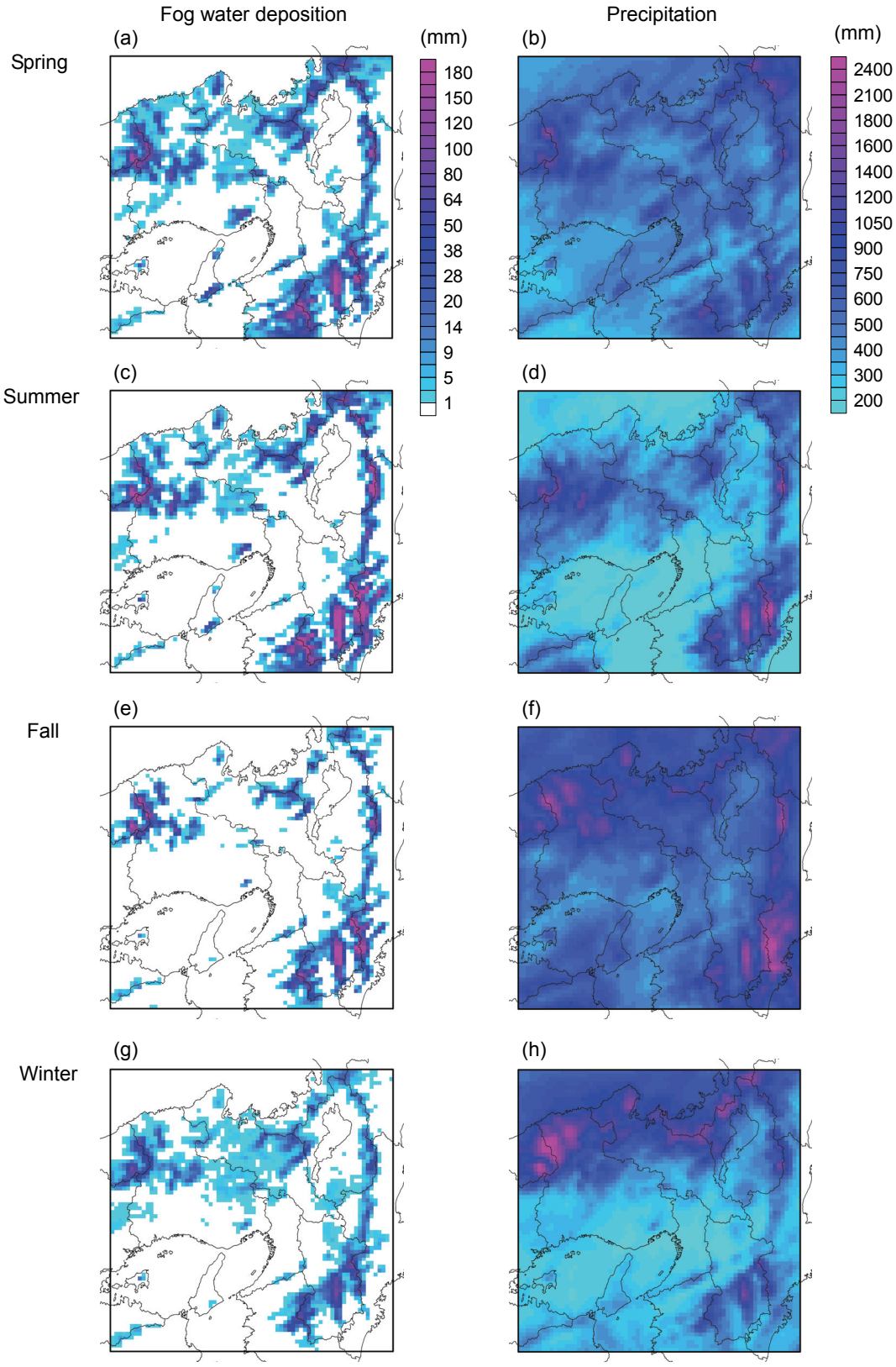


Fig. 6.5 Spatial distributions of model-predicted seasonal fog water deposition and precipitation in D4 from April 2004 to March 2005.

0.5 m^2 m^{-2} および $\lambda = 3$ と仮定した。霧の粒径はスイスにおける Burkard et al.（2003）による観測結果をもとにした式(5.36)を用いた。

Table 6.2 に D4 の標高 500 m 未満の陸域および標高 500 m 以上の山地について，2004 年 4 月～2005 年 3 月の季節別および年間での平均の霧水沈着量と降水（降雨・降雪）量の予測結果を示す。また，Fig. 6.5 に 2004 年 4 月～2005 年 3 月の季節別で D4 における霧水沈着量と降水量の空間分布の予測結果を示す。計算で霧は主に標高が高い山地において発生している（Fig. 6.4）ため，標高 500 m 未満の陸域では霧水沈着量が少ないが，標高 500 m 以上の山地では標高 500 m 未満の陸域に比べて 17 倍にもなっている。降水量についても標高が高くなるほど増加しているが，標高 500 m 以上の山地では標高 500 m 未満の陸域に比べて 1.7 倍であり，増加率は霧水沈着量に比べると小さい。季節別では，霧水沈着量については，春季および夏季には霧発生頻度が高く霧水量が大きいために多く，秋季には霧発生頻度がやや低いためにやや少なく，冬季には霧水量が小さく植生が薄いために最も少なくなっている。冬季における霧水沈着量は，特に落葉広葉樹が優占となっているところが多い日本海側で少なくなっている。標高 500 m 以上の山地における平均霧沈着速度は，春季で 13.8 cm s^{-1}，夏季で 15.5 cm s^{-1}，秋季で 13.9 cm s^{-1}，冬季で 8.4 cm s^{-1}，年間では 13.5 cm s^{-1} となった。降水量については，秋季には台風の影響によって全体的に多く，冬季には日本海からの季節風の影響によって日本海側で多くなっている。年間での平均の霧水沈着量と降水量の比率（霧水沈着量/降水量）は，標高 500 m 未満の陸域では 0.4 %，標高 500 m 以上の山地では 3.7 %となり，また D4 全体では 1.1 %となった。主な山地における年間の霧水沈着量と降水量の比率の最大値とその計算格子での霧水沈着量は, 六甲山では 6.0 %および 175 mm, 紀伊山地では 15.8 %および 1083 mm, 中国山地では 10.1 %および 573 mm, 鈴鹿山脈では 10.5 %および 544 mm となった。以上のように，霧水沈着量と降水量の比率は地域によって大きく変化する。

六甲山における樹冠水収支法による推定結果では，霧水沈着量は 20～2860 mm $year^{-1}$ となっている（小林と中川, 2001a; 2001b; Kobayashi et al., 2001）。特に Kobayashi et al.（2001）による霧採集地点周辺のスギ林における結果では，平均の霧水沈着量は 2140 mm $year^{-1}$，霧水沈着量と降水量の比率は 122 %と推定されている。対象期間は異なるものの，この結果は本研究における予測結果の 10 倍以上であり，平均の霧沈着速度は 2 m s^{-1} 近くなっていると考えられる。これは，粒径 0.5 mm の雨滴の落下速度と同等であり，森林全体でこのような霧の沈着が生じているとは考えにくい。Kobayashi et al.（2001）による林内雨測定では，装置の設置地点が森林縁部や周囲と比べて樹高が高くなっているところであるため霧水沈着が促進されていると考えられ，さらに林内雨量の空間的なばらつきによって霧水沈着量の推定結果が過大評価されている可能性がある。その他の既往研究については，Lovett（1984）はニューイングランド地方のバルサムモミ林に適用するために開発した 1 次元霧沈着モデルでは，霧沈着速度が 1～80 cm s^{-1} の範囲となることを示した。Miller et al.（1993）によるアメリカのホワイトフェイス山のトウヒ林における Lovett（1984）のモデ

ルを用いた予測結果では，霧水沈着量と降水量の比率は 22 %となっている。Shubzda et al.（1995）によるアメリカのグレート・スモーキー山脈国立公園のトウヒ林における樹冠水収支法による推定結果では，霧水沈着量と降水量の比率は 13～25 %となっている。Vermeulen et al.（1997）によるオランダの低地の針葉樹林における渦相関法による観測結果では，霧沈着速度は 0～10 cm s^{-1} 程度となっている。Dawson（1998）はカリフォルニア沿岸のセコイア林における観測から，霧水沈着量は 447 mm $year^{-1}$，霧水沈着量と降水量の比率は 34 %と推定している。Herckes et al.（2002）によるフランスのヴォージュ山脈のトウヒ林における Lovett（1984）のモデルを用いた予測結果では，霧水沈着量と降水量の比率は 4 %となっている。Klemm and Wrzesinsky（2007）によるドイツのフィヒテル山地のトウヒ林における渦相関法による観測結果では，霧沈着速度は 0～30 cm s^{-1} 程度，霧水沈着量と降水量の比率は 9 %となっている。Chang（2006）による台湾北部の Yuan Yuang Lake 自然保護区のヒノキ林における予測結果では，霧水沈着量は 328 mm $year^{-1}$，霧水沈着量と降水量の比率は 11 %となっている。これらの結果については，本研究における予測結果と大きく異なるものではない。

6.2　酸性物質沈着量

霧による酸性物質沈着量は,霧水沈着量の予測結果と CMAQ による霧水中濃度の予測結果によって求めた。Table 6.3 に D4 の標高 500 m 未満の陸域および標高 500 m 以上の山地について，2004 年 4 月～2005 年 3 月の季節別および年間での平均の霧水・湿性・乾性沈着および合計での硫黄，反応性窒素，アンモニア性窒素の沈着量と，それらに対する越境汚染の寄与の予測結果を示す。また，Fig. 6.6 に 2004 年 4 月～2005 年 3 月の D4 における霧水・湿性・乾性沈着の合計での硫黄・反応性窒素（NO_Y-N = NO + NO_2 + NO_3 + N_2O_5 + HNO_3 +HONO + 粒子状 NO_3^-）・アンモニア性窒素（NH_3-N）沈着量の空間分布と，それらに対する越境汚染の寄与の空間分布の予測結果を示す。Fig. 6.7 には 2004 年 4 月～2005 年 3 月の D4 における霧水・湿性・乾性沈着による硫黄・反応性窒素・アンモニア性窒素沈着量の空間分布の予測結果を示す。

3 つの沈着過程による酸性物質の総沈着量については，霧水・湿性沈着の寄与が大きい山地と，乾性沈着の寄与が大きい都市部で沈着量が多い。日本海側地域では，比較的近傍に発生源が少なく,冬季には北西寄りの季節風によって越境汚染の影響を受けやすいため,越境汚染の寄与が大きくなっている。一方，大阪湾・瀬戸内海沿岸地域では，近傍に発生源が多いため，越境汚染の寄与が小さくなっている。D4 の陸域における年間での越境汚染の寄与は硫黄で 24.4 %，反応性窒素で 39.0 %，アンモニア性窒素で 37.9 %となった。多くの既往研究において日本における酸性沈着への越境汚染の寄与が推定されており，1990～2000 年前後では nss-SO_4^{2-}で約 32～66 %, NO_3^-で約 35～61 %となっている（環境省, 2009）。

Table 6.3 Model-predicted seasonal and annual acid depositions corresponding to fog, wet and dry depositions and contribution rates of transboundary air pollution in land area in EB_D4

			Seasonal or annual deposition (mmol m^{-2})			
		Elevation	Fog	Wet	Dry	Total
Spring	Sulfur	0 - 500 m	0.5 (42)	10.7 (37)	5.5 (21)	16.6 (32)
		≥ 500 m	4.2 (41)	16.8 (42)	6.1 (28)	27.0 (39)
	NO_Y-N	0 - 500 m	0.8 (57)	13.6 (54)	17.2 (43)	31.6 (48)
		≥ 500 m	5.5 (48)	21.8 (62)	17.1 (48)	44.4 (54)
	NH_3-N	0 - 500 m	0.7 (57)	10.6 (73)	3.8 (20)	15.0 (59)
		≥ 500 m	4.3 (68)	17.2 (82)	2.4 (52)	23.9 (77)
Summer	Sulfur	0 - 500 m	0.5 (34)	7.7 (16)	4.1 (1)	12.3 (12)
		≥ 500 m	4.7 (26)	15.9 (16)	3.6 (-2)	24.2 (15)
	NO_Y-N	0 - 500 m	0.6 (38)	10.1 (28)	16.2 (19)	27.0 (23)
		≥ 500 m	5.4 (32)	16.0 (29)	12.8 (24)	34.2 (28)
	NH_3-N	0 - 500 m	0.8 (36)	8.4 (27)	9.2 (-4)	18.4 (12)
		≥ 500 m	5.3 (33)	13.1 (30)	4.1 (-3)	22.5 (25)
Fall	Sulfur	0 - 500 m	0.1 (28)	9.2 (20)	3.8 (10)	13.1 (17)
		≥ 500 m	2.3 (29)	14.0 (20)	4.4 (13)	20.6 (19)
	NO_Y-N	0 - 500 m	0.1 (25)	10.5 (33)	10.6 (27)	21.2 (30)
		≥ 500 m	3.7 (31)	13.2 (35)	10.7 (33)	27.6 (34)
	NH_3-N	0 - 500 m	0.1 (23)	6.2 (46)	5.3 (-4)	11.7 (23)
		≥ 500 m	2.5 (40)	7.5 (52)	2.2 (7)	12.3 (41)
Winter	Sulfur	0 - 500 m	0.0 (26)	6.3 (35)	3.9 (23)	10.3 (31)
		≥ 500 m	0.4 (38)	11.0 (39)	3.3 (29)	14.8 (36)
	NO_Y-N	0 - 500 m	0.2 (22)	12.6 (55)	5.0 (39)	17.9 (50)
		≥ 500 m	1.6 (30)	22.0 (59)	5.4 (38)	29.2 (53)
	NH_3-N	0 - 500 m	0.1 (16)	4.9 (69)	2.3 (3)	7.3 (47)
		≥ 500 m	0.6 (46)	9.1 (74)	0.7 (21)	10.5 (69)
Annual	Sulfur	0 - 500 m	1.1 (37)	33.9 (27)	17.3 (14)	52.3 (23)
		≥ 500 m	11.6 (32)	57.6 (29)	17.3 (18)	86.5 (27)
	NO_Y-N	0 - 500 m	1.7 (44)	46.9 (44)	49.1 (31)	97.6 (37)
		≥ 500 m	16.3 (37)	73.0 (49)	45.9 (37)	135.1 (43)
	NH_3-N	0 - 500 m	1.7 (42)	30.1 (54)	20.7 (1)	52.4 (33)
		≥ 500 m	12.7 (47)	46.9 (61)	9.4 (15)	69.1 (52)

Parenthetical values are contribution rates of transboundary air pollution (%).

本研究は 2004 年 4 月～2005 年 3 月を対象としており，近年は中国をはじめとするアジアの発展途上国において大気汚染物質の排出量が急激に増加している（Ohara et al., 2007; Zhang et al., 2009）にも関わらず，本研究における越境汚染の寄与率の予測結果は既往研究と比べてやや小さい。その原因としては，大阪や瀬戸内海を含む近畿圏を対象としているために近傍の発生源が比較的多いことや，対象年の違いによる気象条件の違いなどが考えられる。また，既往研究では水平計算格子サイズは 100 km 程度と粗い場合が多い（e.g., Arndt et al., 1998; Ichikawa et al., 2001; Holloway et al., 2002; Lin et al., 2008b）が，本研究では水平

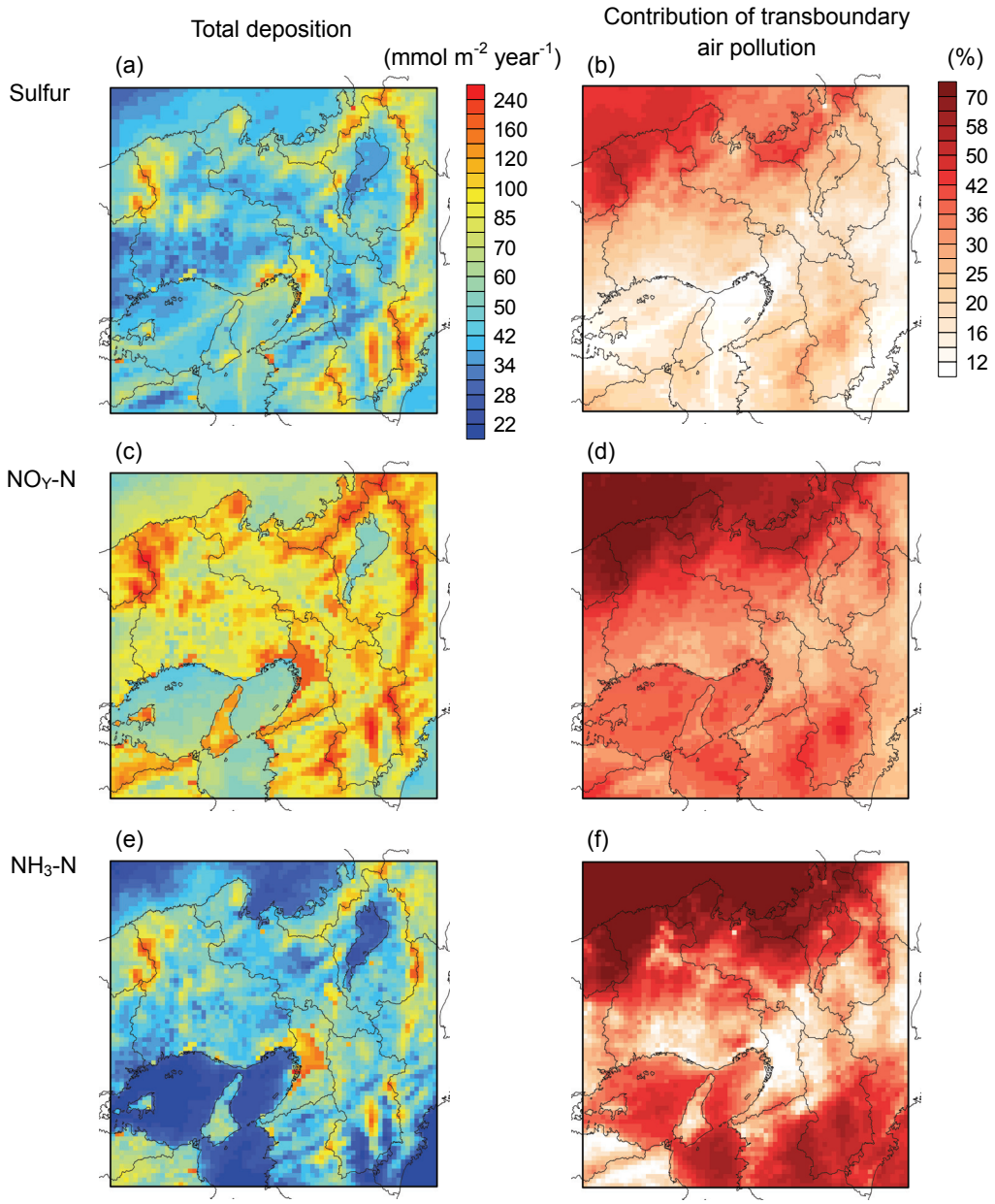


Fig. 6.6 Spatial distributions of model-predicted total acid depositions and contribution rates of transboundary air pollution in EB_D4 from April 2004 to March 2005.

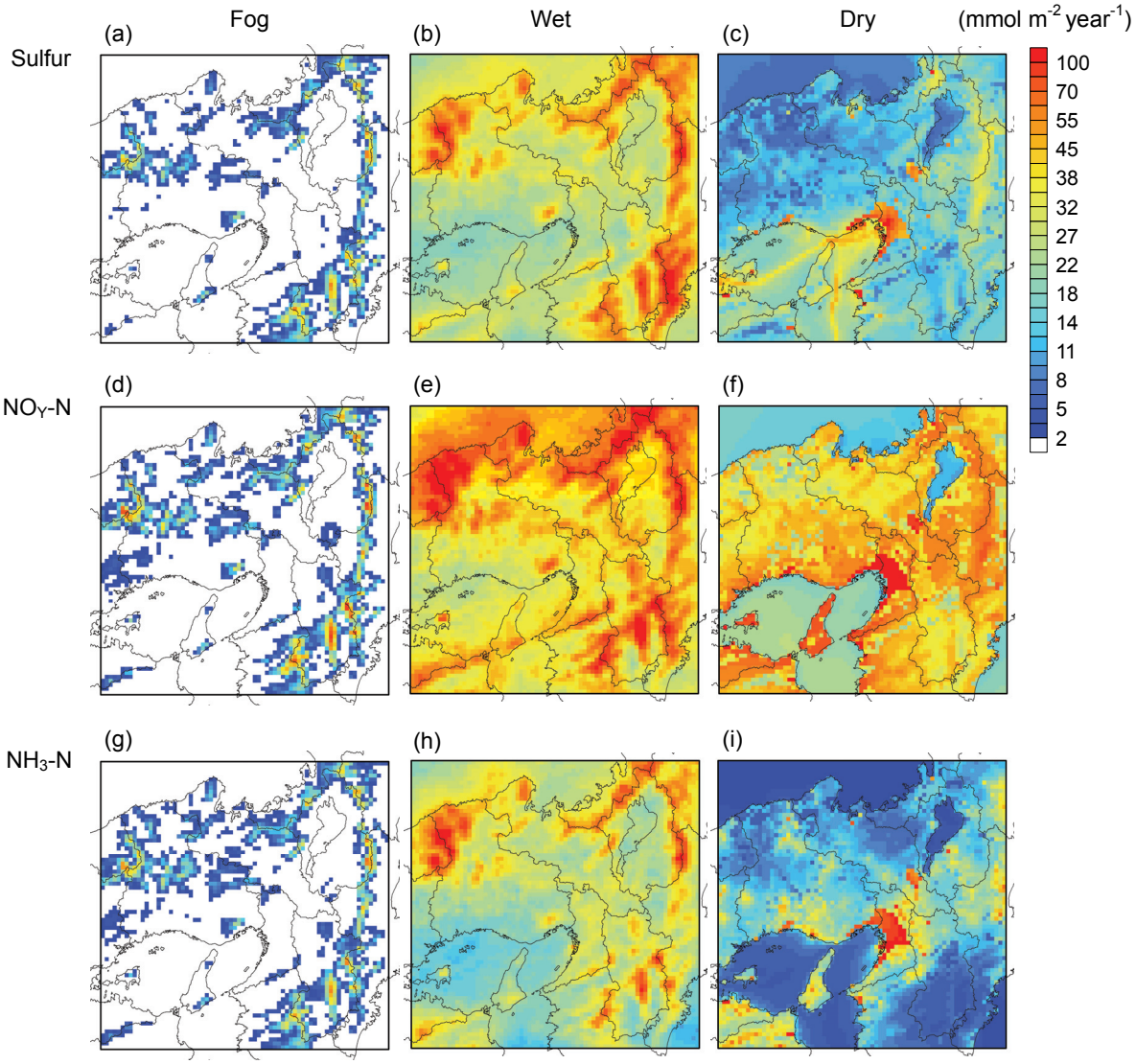


Fig. 6.7 Spatial distributions of model-predicted annual acid depositions corresponding to fog, wet and dry depositions in EB_D4 from April 2004 to March 2005.

計算格子サイズは 3 km であり，より細かいスケールの現象まで考慮できている。そのため，既往研究では 4 格子程度で表される D4 においても，越境汚染の寄与率は幅広い値をとっており，陸域では硫黄で 6.0～57.2 %，反応性窒素で 19.6～79.5 %，アンモニア性窒素で 4.6～84.1 %となっている。

湿性沈着については，越境汚染による寄与は，降水中 SO_4^{2-}・NO_3^-・NH_4^+濃度の場合（Table 4.8）と概ね同様の傾向が見られ，春季と冬季に寄与が大きくなっている。沈着量分布については，降水中濃度の地域差（Fig. 4.13i～l）に比べて降水量の地域差（Fig. 6.5b，d，f，h）が大きいため，降水量が多い山地において沈着量が多い。湿性沈着は，硫黄，反応性窒素，アンモニア性窒素のいずれについても，広範囲において 3 つの沈着過程の中で最も D4 に

おける総沈着量に対する寄与が大きくなっている。

乾性沈着については，地表面粗度が大きい都市域では鉛直方向の乱流輸送が促進され，近傍に発生源が多くガス濃度が高いために沈着量が多く，湿性沈着量を上回っているが，地表面粗度が小さい海域では沈着量が少なくなっている。計算で海域における粗度は約 0.1 mm となっているが，波が強い場合には海面の起伏が大きくなるため，実際の粗度はこの値よりも大きく，4.2 節でも述べたように計算で海域における乾性沈着量が過小評価されている可能性がある。乾性沈着量に対する寄与はエアロゾルよりもガスの方が大きく，D4 の陸域における乾性沈着による硫黄沈着量に対する SO_2 の寄与は 75.2 %，反応性窒素沈着量に対する HNO_3 および NO_X の寄与はそれぞれ 64.2 %および 9.4 %，アンモニア性窒素沈着量に対する NH_3 の寄与は 69.2 %となった。大気中濃度は HNO_3 よりも NO_X の方がはるかに高い（Fig. 4.13b～c）が，HNO_3 は非常に水に溶解しやすいため地表面に吸収されやすく，乾性沈着量が多くなっている。そのため，陸域における乾性沈着による硫黄・反応性窒素・アンモニア性窒素沈着量の分布はそれぞれ SO_2・HNO_3・NH_3 濃度の分布（Fig. 4.13b～e）に近くなっている。越境汚染による寄与については，SO_2・NH_3 濃度における越境汚染の寄与が比較的小さい（Table 4.8）ため，硫黄・アンモニア性窒素沈着において寄与が小さくなっている。既往の乾性沈着速度の測定結果（e.g., Tohno et al., 2001; 高橋ら, 2002a; 2002b; 下原と植田, 2004）において，SO_2 や HNO_3 の沈着速度は粒子状 SO_4^{2-}や粒子状 NO_3^- の沈着速度よりも大きくなっており，本研究における予測結果は妥当であると考えられる。

霧による酸性物質の沈着については，越境汚染による寄与は湿性沈着と同様に大きく，また霧水沈着量（Fig. 6.5a，c，e，g）の場合と同様に沈着量の地域差も大きい。低地では霧による沈着はほとんどないが，霧水沈着量が多い山地では，沈着量が湿性沈着に匹敵しているところも見られ，広範囲で乾性沈着を上回っている。季節別では，霧水中濃度が高く（Table 4.8），霧水沈着量が多い春季と夏季における沈着量が多く，冬季には沈着量が少なくなっている。年間での各計算格子における硫黄，反応性窒素，アンモニア性窒素の総沈着量に対する霧による沈着の寄与の平均値は，標高 500 m 未満の陸域ではそれぞれ 2.1 %，1.7 %，3.2 %と小さかったが，標高 500 m 以上の山地ではそれぞれ 13.4 %，12.0 %，18.5 %となり，主な山地における霧による沈着の寄与の最大値は，六甲山ではそれぞれ 23.5 %，19.9 %，28.4 %，紀伊山地ではそれぞれ 35.7 %，31.0 %，39.7 %，中国山地ではそれぞれ 31.2 %，30.5 %，36.7 %，鈴鹿山脈ではそれぞれ 30.5 %，31.4 %，38.4 %となった。この結果は，近畿圏の山地において霧による酸性物質の沈着が，乾性沈着や湿性沈着と同様に重要な沈着過程であることを示している。また，主な山地における年間での硫黄，反応性窒素，アンモニア性窒素の霧による沈着量と湿性沈着量の比率の最大値は，六甲山ではそれぞれ 46.1 %，47.3 %，54.1 %，紀伊山地ではそれぞれ 71.2 %，65.8 %，77.5 %，中国山地ではそれぞれ 54.1%，58.8 %，64.1 %，鈴鹿山脈ではそれぞれ 60.1 %，72.9 %，74.5 %となった。このように，3 km 格子での予測としては，霧による酸性物質の沈着は最大でも湿性沈着よりもやや小さいという結果となった。しかし，5.2 節でも述べたように森林縁部では霧

水沈着量が林内の数倍にもなる場合があるなど，霧水沈着は降水に比べて空間的なばらつきが大きいため，上記の山地においては局所的には霧による酸性物質の沈着が湿性沈着を大きく上回る可能性もある。既往研究における SO_4^{2-}，NO_3^-，NH_4^+の霧による沈着量と湿性沈着量の比率は，Miller et al.（1993）による予測結果ではそれぞれ 71 %，57 %，110 %，Herckes et al.（2002）による予測結果ではそれぞれ 39 %，32 %，38 %，Klemm and Wrzesinsky（2007）による観測結果ではそれぞれ 104 %，129 %，146 %となっている。これらの結果については，本研究での D4 内の主な山地における予測結果と比較的近いが，Baumgardner et al.（2003）にように霧による酸性物質の沈着は湿性沈着の 10 倍以上にもなるという報告もあり，対象地域や推定手法などの違いによって研究ごとに酸性沈着における霧の寄与は大きく異なる。本研究における予測結果は，近畿圏における霧の発生頻度が高い山地の森林では，霧水沈着によって，湿性沈着に近く，乾性沈着を上回るレベルの酸性沈着がもたらされる可能性を示している。

第 7 章　結論

酸性沈着は，地球環境問題のひとつとしてこれまでに多くの国際的な関心を集めてきた。酸性沈着のモニタリングや数値シミュレーションでは，主に湿性沈着と乾性沈着が対象とされている。しかし，霧水中の酸性物質濃度は雨に比べてはるかに高く，霧が頻繁に発生する山地などの森林地域では多量の霧水沈着がもたらされるため，霧による酸性物質の沈着も重要な沈着過程となる。本研究では，広域気象/大気質モデルの WRF/CMAQ と開発した霧沈着モデルによって，2004 年 4 月～2005 年 3 月の近畿圏を対象とし，霧水・湿性・乾性沈着による酸性物質沈着量の分布の予測を行った。

以下に本論文における各章の要約を述べる。

第 1 章では，本論文の序論として研究背景について述べた。まず，これまでに行われてきた酸性沈着問題への国際的な取り組みと，日本国内における取り組みと酸性沈着の現状について示した。つづいて，酸性霧の化学組成の測定と霧水沈着量の定量化に関する既往研究を提示し，霧による酸性沈着の重要性を示した。

第 2～4 章では，本研究における気象/大気質予測について述べた。

第 2 章では，本研究で使用した広域数値気象/大気質モデルの WRF/CMAQ について述べた。まず，気象モデル WRF の概要および WRF において計算される各物理過程について述べた。つづいて，大気質モデル CMAQ の概要および CMAQ において計算される各相における化学過程について述べた。その中で，酸性沈着と深く関係する化学反応についても簡単にまとめた。

第 3 章では, 本研究での WRF/CMAQ による気象/大気質予測における計算条件を示した。まず，アジア域～近畿圏を対象とする本研究における計算領域を示した。つづいて，本研究における WRF/CMAQ の初期・境界条件と物理・化学過程スキームを示した。さらに，大気質予測において気象場と同様に重要な入力条件である大気汚染物質の排出量について述べた。

第 4 章では，WRF/CMAQ による気象/大気質予測結果を示した。まず，WRF による気象予測精度を観測値との比較によって評価した。地上気象予測については，風速の過大評価や降水量の過小評価などの問題があるものの，温帯低気圧とそれに伴う温暖・寒冷前線の通過や台風の通過などの総観規模の気象を概ね再現できていることを示した。また，本研究における WRF による気象予測の精度は，既往研究における気象予測と同等以上であることを示した。高層気象予測については，大気汚染物質の長距離輸送において重要となる上空の風向風速を良好に再現できていることを示した。六甲山における霧の予測については，霧発生頻度および霧水量の月変化の傾向と年間値を概ね再現できていることを示した。つづいて，CMAQ による大気質予測精度を観測値との比較によって評価した。O_3・NO_X・PM10 濃度の予測については，本研究において既往研究における予測と同等以上の精度があるこ

とを示した。粒子・降水中濃度については，季節平均濃度の計算値は観測値のファクター2以内かそれに近い値となっている場合が多く，計算で概ね再現されていることを示した。六甲山における霧水中濃度については，やや過小評価となっているが，降水中濃度の場合と同程度の精度で予測できていることを示した。越境汚染の影響については，O_3・HNO_3 濃度予測における寄与の過大評価などの問題があるものの，粒子・降水中・霧水中濃度において寄与が大きく，計算で概ね再現できていることを示した。また，近畿圏における霧水中濃度は，降水中濃度に比べてはるかに高く，平均では降水中濃度に比べて SO_4^{2-} で 6 倍，NO_3^- で 8 倍，NH_4^+ で 11 倍という予測結果となった。

第 5 章では，本研究で開発した 2 次元霧沈着モデルについて述べた。まず，霧沈着モデルにおける森林樹冠内外の風速場および森林植生への霧水沈着の計算手法を示した。つづいて，霧沈着モデルの感度解析を行い，霧沈着速度は，風速や霧の粒径が大きくなるほど慣性衝突効率が上昇するため大きくなること，森林植生に関するパラメータの変化によっても大きく変化することを示した。また，森林縁部においては，樹木の側面が外部大気にさらされているため，森林内部に比べて霧沈着速度が数倍にもなることを示した。さらに，渦相関法による霧沈着フラックスの測定結果との比較によって霧沈着モデルの検証を行った。その結果，風が弱い放射霧発生時における沈着が支配的となる場合には，霧沈着モデルによる予測が困難であったが，風が強い上昇霧発生時における沈着が支配的となる場合には，霧沈着モデルと観測の両方で霧沈着速度と樹冠上風速に相関が見られ，霧沈着モデルは良好に霧沈着フラックスを再現した。山地において発生する霧は，主に上昇霧および低層雲の山腹への移流によって発生する霧であり，通常はこのような霧の沈着が支配的となると考えられる。そのため，霧沈着モデルが近畿圏における霧水沈着の予測に適用可能であると判断した。

第 6 章では，WRF/CMAQ と霧沈着モデルによる，近畿圏における酸性物質沈着量の分布の予測結果を示した。まず，近畿圏における霧水沈着量の予測結果について述べた。低地では霧水沈着はほとんど見られなかったが，霧発生頻度が高い山地では霧水沈着量が多く，標高 500 m 以上の山地では標高 500 m 未満の陸域に比べて 17 倍の霧水沈着がもたらされた。霧水沈着量の降水量に対する比率は，標高 500 m 以上の山地では 4 %となり，紀伊山地，中国山地，鈴鹿山脈などでは 10 %を上回るところもあった。つづいて，近畿圏における霧水・湿性・乾性沈着による酸性物質沈着量の予測結果について述べた。総沈着量については，霧水・湿性沈着の寄与が大きい山地と，乾性沈着の寄与が大きい都市部で沈着量が多くなった。越境汚染の影響については，日本海側で特に大きく，総沈着量への寄与が 50 %以上となっているところもあった。湿性沈着については，3 つの沈着過程の中で最も総沈着量に対する寄与が大きかった。乾性沈着については，ガスの沈着が支配的であるため越境汚染の寄与が比較的小さかった。霧による酸性物質の沈着については，低地ではほとんど見られないが，紀伊山地，中国山地，鈴鹿山脈などの霧水沈着量が多い山地では，沈着量が湿性沈着に匹敵しているところも見られ，広範囲で乾性沈着を上回った。この結果から，近

畿圏の山地において霧による酸性物質の沈着が，乾性沈着や湿性沈着と同様に重要な沈着過程であることが示された。

既往研究における霧による酸性沈着の定量化は特定の観測地点あるいは山岳のみを対象としたものであったが，本研究では広域気象/大気質モデルと霧沈着モデルを用いることで，近畿圏を対象に霧水沈着を考慮した酸性物質沈着量の空間分布の予測を試み，近畿圏における霧による酸性沈着の重要性を示した。しかし，現在の数値モデルによる再現性は，酸性物質の大気中濃度や湿性沈着量の計算値が観測値のファクター2 以内に収まっていれば良好というレベルであり，問題点も多い。さらに，乾性沈着や霧水沈着については，観測が困難であるため，数値モデルの検証が限られており，また地表面被覆による影響を強く受けるため，モデル予測における不確実性は湿性沈着以上に大きいと考えられる。そのため，本研究の成果を応用していくためには，まず数値モデルによる予測精度の向上が求められる。気象/大気質予測については，第 4 章で述べた問題点について検討を行い，沈着量予測については，乾性沈着や霧水沈着に関する観測データを収集し，さらなる数値モデルの検証を進めていく必要がある。それによって数値モデルの予測精度が向上すれば，酸性沈着対策の検討において重要となる将来予測の信頼性も向上する。さらに，沈着量の予測結果を土壌酸性化予測モデルなどに適用し，酸性沈着による生態系への影響評価を行うことも可能となる。また，本研究では長期的な酸性物質の沈着を対象としているが，霧はその酸性度の高さから植生への暴露による急性被害も懸念される。その点についても，数値モデルの精度が向上することで評価が可能となると考えられる。

謝辞

本研究の過程および本論文の作成において，終始懇切な御指導を賜りました大阪大学大学院工学研究科准教授の近藤明先生に心より感謝いたします。昨年度まで本研究の過程において懇切な御指導を賜り，本論文をまとめるにあたり，有益な御助言を賜りました大阪大学大学院工学研究科名誉教授の加賀昭和先生に深甚なる感謝の意を表します。また，本研究の過程を通じて数々の御助言を賜りました大阪大学大学院工学研究科助教の井上義雄先生に厚く感謝いたします。

大阪大学大学院工学研究科教授の池道彦先生，東海明宏先生には，本論文をまとめるにあたり，御専門の立場からの御教示を賜りました。ここに深く感謝の意を表します。

日本学術振興会外国人特別研究員の Kundan Lal Shrestha 様には，気象/大気質モデル WRF/CMAQ の運用にあたり御指導を賜りました。事務補佐の荻野礼加様をはじめ，大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻の共生環境評価領域の皆様には様々な形でお世話になりました。ここに心より感謝の意を表します。

日本自動車研究所の森川多津子様，豊田中央研究所の茶谷聡様，石油産業活性化センターの中塚誠次様より，大気質モデル CMAQ の運用に関する御助言を賜りました。神成陽容様からは日本域の排出データ EAGrid2000-JAPAN を提供して頂きました。ここに深く謝意を表します。

兵庫県環境研究センターの平木隆年様より，六甲山における霧や酸性沈着に関する御助言を賜りました。日本原子力研究開発機構の堅田元喜様より，霧沈着過程のモデル化に関する御助言を賜りました。ここに厚く謝意を表します。

兵庫県庁より六甲山における霧の観測データ，チューリヒ工科大学の Werner Eugster 様よりスイスおよびプエルトリコにおける霧水沈着の観測データ，環境省より酸性沈着モニタリング地点における観測データを提供して頂きました。ここに厚く御礼申し上げます。

参考文献

Aikawa M., Hiraki T., Shoga M., Tamaki M. (2001) Fog and precipitation chemistry at Mt. Rokko in Kobe, April 1997-March 1998. Water, Air, and Soil Pollution, 130(1-4), 1517-1522.

Aikawa M., Hiraki T., Shoga M., Tamaki M. (2005) Chemistry of fog water collected in the Mt. Rokko area (Kobe City, Japan) between April 1997 and March 2001. Water, Air, and Soil Pollution, 160(1-4), 373-393.

Aikawa M., Hiraki T., Tamaki M. (2006) Comparative field study on precipitation, throughfall, stemflow, fog water, and atmospheric aerosol and gases at urban and rural sites in Japan. Science of the Total Environment, 366(1), 275-285.

Aikawa M., Hiraki T., Shoga M., Tamaki M., Sumitomo S. (2007) Seven-year trend and the time and seasonal dependence of fog water collected near an industrialized area in Japan. Atmospheric Research, 83(1), 1-9.

Andres R.J., Kasgnoc A.D. (1998) A time-averaged inventory of subaerial volcanic sulfur emissions. Journal of Geophysical Research , 103(D19), 25251-25261.

Arndt R.L., Carmichael G.R., Roorda J.M. (1998) Seasonal source-receptor relationships in Asia. Atmospheric Environment, 32(8), 1397-1406.

Appel K.W., Gilliland A.B., Sarwar G., Gilliam R.C. (2007) Evaluation of the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model version 4.5: Sensitivities impacting model performance. Part I-Ozone. Atmospheric Environment, 41(40), 9603-9615.

Atkinson R., Arey J. (2003) Gas-phase tropospheric chemistry of biogenic volatile organic compounds: a review. Atmospheric Environment, 37(2), 197-219.

Ballard S.P., Golding B.W., Smith R.N.B. (1991) Mesoscale model experimental forecasts of the haar of northeast Scotland. Monthly Weather Review, 119, 2107-2123.

Baumgardner R.E., Isil S.S., Lavery T.F., Rogers C.M., Mohnen V.A. (2003) Estimates of cloud water deposition at mountain acid deposition program sites in the Appalachian Mountains. Journal of the Air and Waste Management Association, 53(3), 291-308.

Beckx C., Int Panis L., Van De Vel K., Arentze T., Lefebvre W., Janssens D., Wets G. (2009) The contribution of activity-based transport models to air quality modelling: A validation of the ALBATROSS-AURORA model chain. Science of the Total Environment, 407(12), 3814-3822.

Beiderwieden E., Schmidt A., Hsia Y.-J., Chang S.-C., Wrzesinsky T., Klemm O. (2007) Nutrient input through occult and wet deposition into a subtropical montane cloud forest. Water, Air, and Soil Pollution, 186(1-4), 273-288.

Belot Y., Gauthier D. (1975) Transport of micronic particles from atmosphere to foliar surfaces. In: de Vries D.A,. Afgan N.H. (Eds.), Heat and Mass Transfer in the Biosphere, John Wiley and Sons, 583–591.

Bey I., Jacob D.J., Yantosca R.M., Logan J.A., Field B.D., Fiore A.M., Li Q., Liu H.Y., Mickley L.J., Schultz M.G. (2001) Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation. Journal of Geophysical Research, 106(D19), 23073-23095.

Binkowski F.S., Shankar U. (1995) The Regional Particulate Matter Model. 1. Model description and preliminary results. Journal of Geophysical Research, 100(D12), 26191-26209.

Binkowski F.S., Arunachalam S., Adelman Z., Pinto J. (2007) Examining photolysis rates with a prototype on-line photolysis module in CMAQ. Journal of Applied Meteorology and Climatology,

46, 1252-1256.

Borge R., Alexandrov V., José del Vas, J., Lumbreras J., Rodríguez E. (2008) A comprehensive sensitivity analysis of the WRF model for air quality applications over the Iberian Peninsula. Atmospheric Environment, 42(37), 8560-8574.

Borge R., López J., Lumbreras J., Narros A., Rodríguez E. (2010) Influence of boundary conditions on CMAQ simulations over the Iberian Peninsula. Atmospheric Environment, 44(23), 2681-2695.

Brasseur G.P., Hauglustaine D.A., Walters S., Rasch P.J., Müller J.-F., Granier C., Tie X.X. (1998) MOZART, a global chemical transport model for ozone and related chemical tracers 1. Model description. Journal of Geophysical Research, 103(D21), 28265-28289.

Burkard R., Eugster W., Wrzesinsky T., Klemm O. (2002) Vertical divergence of fogwater fluxes above a spruce forest. Atmospheric Research, 64(1-4), 133-145.

Burkard R., Butzberger P., Eugster W. (2003) Vertical fogwater flux measurements above an elevated forest canopy at the Lägeren research site, Switzerland. Atmospheric Environment, 37(21), 2979-2990.

Businger J.A., Wyngaard J.C., Izumi Y., Bradley E.F. (1971) Flux- profile relationships in the atmospheric surface layer. Journal of the Atmospheric Sciences, 28(2), 181-189.

Byun D, Ching J (1999) Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. EPA/600/R-99/030.

Byun D, Schere KL (2006) Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. Applied Mechanics Reviews, 59(1-6), 51-76.

Carlton A.G., Turpin B.J., Altieri K.E., Seitzinger S.P., Mathur R., Roselle S.J., Weber R.J. (2008) CMAQ model performance enhanced when in-cloud secondary organic aerosol is included: Comparisons of organic carbon predictions with measurements. Environmental Science and Technology, 42(23), 8798-8802.

Carmichael G.R., Calori G., Hayami H., Uno I., Cho S.Y., Engardt M., Kim S.-B., Ichikawa Y., Ikeda Y., Woo J.-H., Ueda H., Amann M. (2002) The MICS-Asia study: Model intercomparison of long-range transport and sulfur deposition in East Asia. Atmospheric Environment, 36(2), 175-199.

Carmichael G.R., Sakurai T., Streets D., Hozumi Y., Ueda H., Park S.U., Fung C., Han Z., Kajino M., Engardt M., Bennet C., Hayami H., Sartelet K., Holloway T., Wang Z., Kannari A., Fu J., Matsuda K., Thongboonchoo N., Amann M. (2008) MICS-Asia II: The model intercomparison study for Asia Phase II methodology and overview of findings. Atmospheric Environment, 42(15), 3468-3490.

Carter W.P.L. (2000a) Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment. Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, and (in part) 95-308.

Carter W.P.L. (2000b) Implementation of the SAPRC-99 chemical mechanism into the models-3 framework. Report to the United States Environmental Protection Agency.

Chen F., Dudhia J. (2001) Coupling an advanced land-surface/ hydrology model with the Penn State/NCAR MM5 modeling system - Part I: Model implementation and sensitivity. Monthly Weather Review, 129(4), 569-585.

Chang J.S., Brost R.A., Isaksen I.S.A., Madronich S., Middleton P., Stockwell W.R., Walcek C.J. (1987) A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation. Journal of Geophysical Research, 92(D12), 14681-14700.

Chang S.-C., Yeh C.-F., Wu M.-J., Hsia Y.-J., Wu J.-T. (2006) Quantifying fog water deposition by in situ exposure experiments in a mountainous coniferous forest in Taiwan. Forest Ecology and

Management 224(1-2), 11-18.
Chang H.-I., Kumar A., Niyogi D., Mohanty U.C., Chen F., Dudhia J. (2009) The role of land surface processes on the mesoscale simulation of the July 26, 2005 heavy rain event over Mumbai, India. Global and Planetary Change, 67(1-2), 87-103.
Chuang M.-T., Fu J.S., Jang C.J., Chan C.-C., Ni P.-C., Lee C.-Te. (2008) Simulation of long-range transport aerosols from the Asian Continent to Taiwan by a Southward Asian high-pressure system. Science of the Total Environment, 406(1-2), 168-179.
Corbett J.J., Koehler H.W. (2003) Updated emissions from ocean shipping, Journal of Geophysical Research, 108(D20), 4650.
Corbett J.J., Koehler H.W. (2004) Considering alternative input parameters in an activity-based ship fuel consumption and emissions model: Reply to comment by Øyvind Endresen et al. on "Updated emissions from ocean shipping". Journal of Geophysical Research, 109(D23), 1-8.
Davis J.M., Bhave P.V., Foley K.M. (2008) Parameterization of N_2O_5 reaction probabilities on the surface of particles containing ammonium, sulfate, and nitrate. Atmospheric Chemistry and Physics, 8(17), 5295-5311.
Dawson T.E., (1998) Fog in the California redwood forest: Ecosystem inputs and use by plants. Oecologia, 117(4), 476-485.
De Jong J.J.M., Klaassen W. (1997) Simulated dry deposition of nitric acid near forest edges. Atmospheric Environment, 31(22), 3681-3691.
De Ridder K., Neirynck J., Mensink C. (2004) Parameterising forest edge deposition using effective roughness length. Agricultural and Forest Meteorology, 123(1-2), 1-11.
De Schrijver A., Nachtergale L., Roskams P., De Keersmaeker L., Mussche S., Lust N. (1998) Soil acidification along an ammonium deposition gradient in a Corsican Pine stand in northern Belgium. Environmental Pollution, 102(SUPPL.1), 427-431.
Draaijers G.P.J., Van Ek R., Bleuten W. (1994) Atmospheric deposition in complex forest landscapes. Boundary-Layer Meteorology, 69(4), 343-366.
Dudhia J. (1989) Numerical study of convection observed during the Winter Monsoon Experiment using a mesoscale two-dimensional model. Journal of the Atmospheric Sciences. 46(20), 3077-3107.
Dyer A.J., Hicks B.B. (1970) Flux-gradient relationships in the constant flux layer. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 96, 715–721.
Edney E.O., Kleindienst T.E., Lewandowski M., Offenberg J.H. (2007) Updated SOA chemical mechanism for the Community Multi-Scale Air Quality model. EPA 600/X-07/025, U.S. EPA, Research Triangle Park, NC.
Elias T., Haeffelin M., Drobinski P., Gomes L., Rangognio J., Bergot T., Chazette P., Raut J.C., Colomb, M. (2009) Particulate contribution to extinction of visible radiation: Pollution, haze, and fog. Atmospheric Research, 92(4), 443-454.
Emery C, Tai E, Yarwood G (2001) Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two texas ozone episodes. Prepared for The Texas Natural Resource Conservation Commission 12118 Park 35 Circle Austin, Texas 78753.
Eugster W., Burkard R., Holwerda F., Scatena F.N., Bruijnzeel L.A. (2006) Characteristics of fog and fogwater fluxes in a Puerto Rican elfin cloud forest. Agricultural and Forest Meteorology, 139(3-4), 288-306.
Evans J.P., McCabe M.F. (2010) Regional climate simulation over Australia's Murray-Darling basin: A multitemporal assessment. Journal of Geophysical Research, 115(D14), art. no. D14114.
Foley K.M., Roselle S.J., Appel K.W., Bhave P.V., Pleim J.E., Otte T.L., Mathur R., Sarwar G., Young

J.O., Gilliam R.C., Nolte C.G., Kelly J. T., Gilliland A.B., Bash J.O. (2010) Incremental testing of the community multiscale air quality (CMAQ) modeling system version 4.7. Geoscientific Model Development, 3, 205–226.

Fu G, Guo J, Xie S-P, Duan Y, Zhang M (2006) Analysis and high-resolution modeling of a dense sea fog event over the yellow sea. Atmospheric Research, 81(4), 293-303.

福崎紀夫, 近藤聡美, 戸塚績 (2005) 弥彦山頂における霧水及び降水中の主要化学成分の濃度変動とその関連性. 環境技術, 34(7), 504-512.

Geng F., Zhao C., Tang X., Lu G., Tie X. (2007) Analysis of ozone and VOCs measured in Shanghai: A case study. Atmospheric Environment, 41(5), 989-1001.

Gilliam R.C., Hogrefe C., Rao S.T. (2006) New methods for evaluating meteorological models used in air quality applications. Atmospheric Environment, 40(26), 5073-5086.

Gonçalves M., Jiménez-Guerrero P., Baldasano J.M. (2009) Contribution of atmospheric processes affecting the dynamics of air pollution in South-Western Europe during a typical summertime photochemical episode. Atmospheric Chemistry and Physics, 9(3), 849-864.

Gong S.L. (2003) A parameterization of sea-salt aerosol source function for sub- and super-micron particles. Global Biogeochemical Cycles, 17(4), 8/1-8/7.

Grell GA, Dudhia J, Stauffer D.R (1995) A description of the fifth generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5). NCAR Technical Note NCAR/TN-398+STR.

Grell G.A., Peckham S.E., Schmitz R., McKeen S.A., Frost G., Skamarock W.C., Eder B. (2005) Fully coupled "online" chemistry within the WRF model. Atmospheric Environment, 39(37), 6957-6975.

Guenther A. (1995) A global model of natural volatile organic compound emissions. Journal of Geophysical Research, 100(D5), 8873-8892.

Guenther A., Karl T., Harley P., Wiedinmyer C., Palmer P.I., Geron C. (2006) Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature). Atmospheric Chemistry and Physics, 6(11), 3181-3210.

原宏 (2005) 東アジア酸性雨モニタリングネットワーク. 大気環境学会誌, 40(19), A1-A15.

Herckes P., Mirabel P., Wortham H. (2002) Cloud water deposition at a high-elevation site in the Vosges Mountains (France). Science of the Total Environment, 296(1-3), 59-75.

Hertel O., Berkowicz R., Christensen,J., Hov O. (1993) Test of two numerical schemes for use in atmospheric transport-chemistry models. Atmospheric Environment, 27(A16), 2591-2611.

Holder C.D. (2004) Rainfall interception and fog precipitation in a tropical montane cloud forest of Guatemala. Forest Ecology and Management, 190(2-3), 373-384.

Holloway T., Levy II H., Carmichael G. (2002) Transfer of reactive nitrogen in Asia: Development and evaluation of a source-receptor model. Atmospheric Environment, 36(26), 4251-4264.

Holwerda F., Burkard R., Eugster W., Scatena F.N., Meesters A.G.C.A., Bruijnzeel L.A. (2006) Estimating fog deposition at a Puerto Rican elfin cloud forest site: Comparison of the water budget and eddy covariance methods. Hydrological Processes, 20(13), 2669-2692.

Hong S.-Y., Pan H.L. (1996) Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a medium-range forecast model. Monthly Weather Review, 124, 2322-2339.

Hong S.-Y., Dudhia J., Chen S.-H. (2004) A revised approach to ice microphysical processes for the bulk parameterization of clouds and precipitation. Monthly Weather Review, 132, 103-120.

Hong S.-Y., Lim J.-O.J. (2006) The WRF Single-Moment 6-Class Microphysics Scheme (WSM6). Journal of Korean Meteorological Society, 42, 129–151.

Hong S.-Y., Noh Y., Dudhia J. (2006) A new vertical diffusion package with an explicit treatment of entrainment processes. Monthly Weather Review, 134, 2318–2341.

Hong S.-Y. (2007) Stable Boundary Layer Mixing in a Vertical Diffusion Scheme. The Korean Meteorological Society, Fall conference, Seoul, Korea, Oct. 25-26.

Ichikawa Y., Hayami H., Sugiyama T., Amann M., Schöpp W. (2001) Forecast of Sulfur Deposition in Japan for Various Energy Supply and Emission Control Scenarios. Water, Air, and Soil Pollution, 130(1-4), 301-306.

Igawa M, Tsutsumi Y, Mori T, Okochi H (1998) Fogwater chemistry at a mountainside forest and the estimation of the air pollutant deposition via fog droplets based on the atmospheric quality at the mountain base. Environmental Science and Technology, 32(11), 1566-1572.

Igawa M, Matsumura K, Okochi H (2002): High frequency and large deposition of acid fog on high elevation forest. Environmental Science and Technology, 36 (1), 1-6.

In H.-J., Byun D.W., Park R.J., Moon N.-K., Kim S., Zhong S. (2007) Impact of trans-boundary transport of carbonaceous aerosols on the regional air quality in the United States: A case study of the South American wildland fire of May 1998. Journal of Geophysical Research, 112 (D7), art. no. D07201.

井上雅路, 大原利眞, 片山学, 村野 健太郎 (2005) 数値シミュレーションモデル RAMS/HYPACT による東アジアにおける硫黄化合物の年間ソース・リセプター解析. エアロゾル研究, 20(4), 333-344.

Jacobson M.Z., Turco R.P. (1994) SMVGEAR: A sparse-matrix, vectorized Gear code for atmospheric models. Atmospheric Environment, 28 (2), 273-284.

Jenkin M.E., Clemitshaw K.C. (2000) Ozone and other secondary photochemical pollutants: Chemical processes governing their formation in the planetary boundary layer. Atmospheric Environment, 34(16), 2499-2527.

Kain J.S., Fritsch J.M. (1990) A one-dimensional entraining/detraining plume model and its application in convective parameterization. Journal of the Atmospheric Sciences, 47(23), 2784-2802.

Kain J.S., Fritsch J.M. (1993) Convective parameterization for mesoscale models: The Kain-Fritcsh scheme. The representation of cumulus convection in numerical models, K. A. Emanuel and D.J. Raymond, Eds., American Meteor Society., 246 pp.

Kain J.S. (2004) The Kain - Fritsch convective parameterization: An update. Journal of Applied Meteorology, 43(1), 170-181.

環境省 (2004) 酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書.

環境省 (2009) 酸性雨長期モニタリング報告書（平成 15～19 年度）.

環境情報科学センター (2003) 平成 14 年度揮発性有機化合物(VOC)排出に関する調査報告書～VOC 排出インベントリ～.

Kannari A., Tonooka Y., Baba T., Murano K. (2007) Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan. Atmospheric Environment, 41(16), 3428-3439.

Katata G., Nagai H., Wrzesinsky T., Klemm O., Eugster W., Burkard R. (2008) Development of a land surface model including cloud water deposition on vegetation. Journal of Applied Meteorology and Climatology, 47(8), 2129-2146.

片山学, 大原利眞, 村野健太郎 (2004) 東アジアにおける硫黄化合物のソース・リセプター解析: 地域気象モデルと結合した物質輸送モデルによるシミュレーション. 大気環境学会誌, 39(4), 200-217.

片山学, 大原利眞, 鵜野伊津志, 原宏 (2008) 日本の SO_4^{2-}沈着量における経年変動のモデル解析. 大気環境学会誌, 43(3), 136-146.

Kelly J.T., Bhave P.V., Nolte C.G., Shankar U., Foley K.M. (2010) Simulating emission and chemical evolution of coarse sea-salt particles in the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model.

Geoscientific Model Development, 3, 257-273.
気象庁 (2004a) 春（3～5 月）の天候. 平成 16 年 6 月 1 日報道発表資料.
気象庁 (2004b) 夏（6～8 月）の天候. 平成 16 年 9 月 1 日報道発表資料.
気象庁 (2004c) 秋（9～11 月）の天候. 平成 16 年 12 月 1 日報道発表資料.
気象庁 (2005a) 2004 年(平成 16 年)の天候. 平成 17 年 1 月 4 日報道発表資料.
気象庁 (2005b) 冬（12 月～2 月）の天候. 平成 17 年 3 月 1 日報道発表資料.
北尾菜々子, 森山 正和, 田中 貴宏, 竹林 英樹 (2010) メソ気象モデル WRF を用いた大阪地域のヒートアイランド現象に関する研究--潜在自然植生の概念を用いた都市化の影響評価. 日本建築学会環境系論文集, 75(651), 465-471.
Klemm O., Wrzesinsky T., Cheer C. (2005) Fog water flux at a canopy top: Direct measurement versus one-dimensional model. Atmospheric Environment, 39(29), 5375-5386.
Klemm O., Wrzesinsky T. (2007) Fog deposition fluxes of water and ions to a mountainous site in Central Europe. Tellus B, 59(4), 705-714.
Kley D., Kleinmann M., Sanderman H., Krupa S. (1999) Photochemical oxidants: State of the science. Environmental Pollution, 100(1-3), 19-42.
小林禧樹, 中川吉弘 (2001a) 六甲山における樹冠への霧水沈着量及び酸性沈着量の樹種（常緑針葉樹 6 種, 夏緑広葉樹 3 種）間比較. 兵庫県立公害研究所研究報告. 32, 41-51.
小林禧樹, 中川吉弘 (2001b) 六甲山尾根部におけるスギ樹冠への霧水沈着及び酸性沈着量の分布.兵庫県立公害研究所研究報告, 32, 73-78.
Kobayashi T, Nakagawa Y, Tamaki M, Hiraki T, Aikawa M (2001) Cloud water deposition to forest canopies of Cryptomeria japonica at Mt. Rokko, Kobe, Japan, Water, Air, and Soil Pollution, 130, 601-606.
Kondo J., Akashi S. (1976) Numerical studies on the two-dimensional flow in horizontally homogeneous canopy layers. Boundary-Layer Meteorology, 10(3), 255-272.
Kong F. (2002) An experimental simulation of a coastal fog-stratus case using COAMPS(tm) model. Atmospheric Resaerch, 64(1-4), 205-215.
Koračin D., Businger J.A., Dorman C.E., Lewis J.M. (2005) Formation, evolution, and dissipation of coastal sea fog. Boundary-Layer Meteorology, 117(3), 447-478.
Kowalski A.S., Vong R.J. (1999) Near-surface fluxes of cloud water evolve vertically. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society 125 (559), 2663-2684.
黒川純一, 大原利眞, 早崎将光, 鵜野伊津志 (2008) ネスト版 RAMS/CMAQ 連携モデルによる 2007 年 5 月 8,9 日に発生した広域的な光化学オゾン汚染の解析. 大気環境学会誌, 43(4), 209-224.
Lange C.A., Matschullat J., Zimmermann F., Sterzik G., Wienhaus O. (2003) Fog frequency and chemical composition of fog water - A relevant contribution to atmospheric deposition in the eastern Erzgebirge, Germany. Atmospheric Environment, 37(26), 3731-3739.
Laprise R. (1992) The Euler equations of motion with hydrostatic pressure as an independent variable. Monthly Weather Review, 120(1), 197-207.
Lee S.-H., Kim Y.-K., Kim H.-S., Lee H.-W. (2007) Influence of dense surface meteorological data assimilation on the prediction accuracy of ozone pollution in the southeastern coastal area of the Korean Peninsula. Atmospheric Environment, 41(21), 4451-4465.
Lin C.-Y., Chen F., Huang J.C., Chen W.-C., Liou Y.-A., Chen W.-N., Liu S.-C. (2008) Urban heat island effect and its impact on boundary layer development and land-sea circulation over northern Taiwan. Atmospheric Environment, 42(22), 5635-5649.
Lin M., Oki T., Holloway T., Streets D.G., Bengtsson M., Kanae S. (2008a) Long-range transport of

acidifying substances in East Asia-Part I. Model evaluation and sensitivity studies. Atmospheric Environment, 42(24), 5939-5955.

Lin M., Oki T., Bengtsson M., Kanae S., Holloway T., Streets D.G. (2008b) Long-range transport of acidifying substances in East Asia-Part II. Source-receptor relationships. Atmospheric Environment 42 (24), 5956-5967.

Lin M, Holloway T., Carmichael G.R., Fiore A.M. (2010) Quantifying pollution inflow and outflow over East Asia through coupling regional and global models. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 10(1), 109-152.

Mellor G.L., Yamada T. (1982) Development of a turbulence closure model for geophysical fluid problems. Reviews of Geophysics & Space Physics, 20(4), 851-875.

Mensink C., De Ridder K., Lewyckyj N., Delobbe L., Janssen L., Van Haver Ph. (2001) Computational Aspects of Air Quality Modelling in Urban Regions Using an Optimal Resolution Approach (AURORA). Lecture Notes in Computer Science, 2179, 299-308.

Miller E.K., Panek J.A., Friedland A.J., Kadlecek J., Mohnen V.A. (1993) Atmospheric deposition to a high-elevation forest at Whiteface Mountain, New York, USA. Tellus, 45B (3), 209-227.

溝口次夫編 (1994) 酸性雨の科学と対策, 日本環境測定分析協会.

Mlawer E.J., Taubman S.J., Brown P.D., Iacono M.J., Clough S.A. (1997) Radiative transfer for inhomogeneous atmospheres: RRTM, a validated correlated-k model for the longwave. Journal of Geophysical Research, 102 (D14), 16663-16682.

Monin A.S., Obukhov A.M. (1954) Basic laws of turbulent mixing in the surface layer of the atmosphere. Contrib. Geophys. Inst. Acad. Sci., USSR, (151), 163-187.

森川多津子 (2005) CMAQ を用いた広域大気汚染解析技術の構築. JCAP 技術報告書, PEC-2004AQ-09.

Mueller S.F. (1991) Estimating cloud water deposition to subalpine spruce-fir forests - I. Modifications to an existing model. Atmospheric Environment, 25A(5-6), 1093-1104.

Murano K. (2006) International Co-operative Survey to Clarify the Trans-boundary Air Pollution across the Northern Hemisphere (Abstract of the Final Report). Summary Report of Research Results under the GERF (Global Environment Research Fund) in FY2004, 237-243, Research and Information Office, Global Environment Bureau, Ministry of the Environment, Government of Japan.

Nghiem L.H., Oanh N.T.K. (2008) Evaluation of the Mesoscale Meteorological Model (MM5)-Community Multi-Scale Air Quality Model (CMAQ) performance in hindcast and forecast of ground-level ozone. Journal of the Air and Waste Management Association, 58(10), 1341-1350.

Nenes A., Pandis S.N., Pilinis C. (1998) ISORROPIA: A new thermodynamic equilibrium model for multiphase multicomponent inorganic aerosols. Aquatic Geochemistry, 4(1), 123-152.

Noh Y., Cheon W.G., Hong S.-Y., Raasch S. (2003) Improvement of the K-profile model for the planetary boundary layer based on large eddy simulation data. Boundary Layer Meteorology, 107, 401–427.

小倉義光(1999) 一般気象学(第 2 版), 東京大学出版会.

Ohara T., Akimoto H., Kurokawa J., Horii N., Yamaji K., Yan X., Hayasaka T. (2007) An Asian emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980-2020. Atmospheric Chemistry and Physics, 7(16), 4419-4444.

Pagowski M., Gultepe I., King P. (2004) Analysis and modeling of an extremely dense fog event in southern Ontario. Journal of Applied Meteorology, 43(1), 3-16.

Pahl S., Winkler P., Schneider T., Arends B., Schell D., Maser R., Wobrock W. (1994): Deposition of trace substances via cloud interception on a coniferous forest at Kleiner Feldberg. Journal of Atmospheric Chemistry, 19(1-2), 231-352.

Paulson C.A. (1970) The mathematical representation of wind speed and temperature profiles in the unstable atmospheric surface layer. Journal of Applied Meteorology, 9, 857-861.

Peters K., Eiden R. (1992) Modelling the dry deposition velocity of aerosol particles to a spruce forest. Atmospheric Environment, 26A(14), 2555-2564.

Petroff A., Mailliat A., Amielh M., Anselmet F. (2008a) Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part I: Review of present knowledge. Atmospheric Environment, 42(16), 3625-3653.

Petroff A., Mailliat A., Amielh M., Anselmet F. (2008b) Aerosol dry deposition on vegetative canopies. Part II: A new modelling approach and applications. Atmospheric Environment, 42(16), 3654-3683.

Petroff A., Zhang L., Pryor S.C., Belot Y. (2009) An extended dry deposition model for aerosols onto broadleaf canopies. Journal of Aerosol Science, 40(3), 218-240.

Pielke R.A., Cotton W.R., Walko R.L., Tremback C.J., Lyons W.A., Grasso L.D., Nicholls M.E., Moran M.D., Wesley D.A., Lee T.J., Copeland J.H. (1992) A comprehensive meteorological modeling system—RAMS. Meteorology and Atmospheric Physics, 49, 69-91.

Pleim J.E., Chang J.S. (1992) A non-local closure model for vertical mixing in the convective boundary layer. Atmospheric Environment, 26A(6), 965-981.

Pleim J.E., Xiu A, Finkelstein P.L., Otte T.L. (2001) A coupled land-surface and dry deposition model and comparison to field measurements of surface heat, moisture, and ozone fluxes. Water, Air, and Soil Pollution: Focus, 1, 243-252.

Qian Y., Ghan S.J., Leung L.R. (2010) Downscaling hydroclimatic changes over the western US based on CAM subgrid scheme and WRF regional climate simulations. International Journal of Climatology, 30(5), 675-693.

Richter A., Burrows J.P., Nüß H., Granier C., Niemeier U., 2005. Increase in tropospheric nitrogen dioxide over China observed from space. Nature, 437(7055), 129-132.

Sandu A., Verwer J.G., Blom J.G., Spee E.J., Carmichael G.R., Potra F.A. (1997) Benchmarking stiff ODE solvers for atmospheric chemistry problems II: Rosenbrock solvers. Atmospheric Environment, 31(20), 3459-3472.

Sarwar G., Roselle S.J., Mathur R., Appel W., Dennis R.L., Vogel B. (2008) A comparison of CMAQ HONO predictions with observations from the Northeast Oxidant and Particle Study, Atmospheric Environment, 42(23), 5760-5770.

Schell B., Ackermann I.J., Hass H., Binkowski F.S., Ebel A. (2001) Modeling the formation of secondary organic aerosol within a comprehensive air quality model system. Journal of Geophysical Research, 106(D22), 28275-28293.

Shimadera H., Shrestha K.L., Kondo A., Kaga A., Inoue Y. (2008) Fog simulation using a mesoscale model in and around the Yodo River Basin, Japan. Journal of Environmental Sciences, 20(7), 838-845.

Shimadera H., Kondo A., Kaga A., Shrestha K.L., Inoue Y. (2009) Contribution of transboundary air pollution to ionic concentrations in fog in the Kinki Region of Japan. Atmospheric Environment, 43(37), 5894-5907.

Shimadera H., Kondo A., Kaga A., Shrestha K.L., Inoue Y. (2010) Numerical predictions of sulfur and nitrogen depositions through fog in forest areas. 大気環境学会誌, 45(6), 247-255.

下原隆章, 植田洋匡 (2004) 代理表面を用いた乾性沈着機構の研究: II. 酸性およびアルカリ性水面, 水面, 乾き面によるガス状および粒子状物質の沈着過程の分画. 大気環境学会誌, 39(4), 171-187.

Shubzda J., Lindberg S.E., Garten C.T., Nodvin S.C. (1995) Elevational trends in the fluxes of sulphur and nitrogen in throughfall in the Southern Appalachian Mountains: Some suprising results. Water,

Air, and Soil Pollution, 85(4), 2265-2270.
Skamarock W.C., Klemp J.B. (2008) A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather research and forecasting applications. Journal of Computational Physics, 227(7), 3465-3485.
Skamarock W.C., Klemp J.B., Dudhia J., Gill D.O., Baker, D.M., Duda, M.G., Huang, X.-Y., Wang, W., Powers, J.G. (2008) A description of the advanced research WRF version 3. NCAR Technical Note, NCAR/TN-475+STR.
Sokhi R.S., San José R., Kitwiroon N., Fragkou E., Pérez J.L., Middleton D.R. (2006) Prediction of ozone levels in London using the MM5-CMAQ modelling system. Environmental Modelling and Software, 21(4), 566-576.
Stoelinga M.T., Warner T.T. (1999) Nonhydrostatic, Mesobeta-Scale Model Simulations of Cloud Ceiling and Visibility for an East Coast Winter Precipitation Event. Journal of Applied Meteorology, 38(4), 385-404.
Strebel D.E., Goel N.S., Ranson K.J., (1985) Two-dimensional leaf orientation distributions. IEEE Transactions on Geoscience and Remote Sensing, GE-23(5), 640-647.
Streets D.G., Yarber K.F., Woo J.-H., Carmichael G.R. (2003) Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. Global Biogeochemical Cycles, 17(4), 10/1-10/20.
Systems Applications International (1999) USER'S GUIDE TO THE VARIABLE-GRID URBAN AIRSHED MODEL (UAM-V).
Tago H, Kimura H, Kozawa K, Fujie K (2006) Long-term observation of fogwater composition at two mountainous sites in Gunma Prefecture, Japan. Water, Air, and Soil Pollution, 175(1-4), 375-391.
高橋章, 佐藤一男, 若松孝志, 藤田慎一, 吉川邦夫 (2002a) インフェレンシャル法による森林への硫黄化合物の乾性沈着量の推定: SO_2 の乾性沈着に及ぼす葉面のぬれの影響. 大気環境学会誌, 37(3), 192-205.
高橋章, 佐藤一男, 若松孝志, 吉川邦夫 (2002b) スギ林における酸の乾性沈着量の時間的変動: インフェレンシャル法による沈着量の年変化と季節変化の評価. 大気環境学会誌, 37(3), 206-215.
Tesche T.W., Morris R., Tonnesen G., McNally D., Boylan J., Brewer P. (2006) CMAQ/CAMx annual 2002 performance evaluation over the eastern US. Atmospheric Environment, 40(26), 4906-4919.
Thorne P.G., Lovett G.M., Reiners W.A. (1982) mental determination of droplet impaction on canopy components of balsam fir. Journal of Applied Meteorology, 21(10), 1413-1416.
Tohno S., Takano T., Kasahara M. (2001) Simultaneous determination of gas and particle dry deposition onto conditioned surrogate surfaces. Water, Air, and Soil Pollution, 130(1-4 II), 535-540.
Tie X., Madronich S., Li G., Ying Z., Zhang R., Garcia A.R., Lee-Taylor J., Liu Y. (2007) Characterizations of chemical oxidants in Mexico City: A regional chemical dynamical model (WRF-Chem) study. Atmospheric Environment, 41(9), 1989-2008.
鵜野伊津志, 大原利眞, 菅田誠治, 黒川純一, 古橋規尊, 山地一代, 谷本直隆, 弓本桂也, 植松光夫 (2005) RAMS/CMAQ の連携システムによるアジア域の物質輸送シミュレーションシステムの構築. 大気環境学会誌, 40(4), 148-164.
Vautz W., Pahl S., Pilger H., Schilling M., Klockow D. (2003) Deposition of trace substances via cloud droplets in the Atlantic Rain Forest of the Serra Do Mar, São Paulo State, SE Brazil. Atmospheric Environment, 37(23), 3277-3287.
Venkatram A., Pleim J. (1999) The electrical analogy does not apply to modeling dry deposition of particles. Atmospheric Environment, 33(18), 3075-3076.
Vermeulen A.T., Wyers G.P., Römer F.G., Van Leeuwen N.F.M., Draaijers G.P.J., Erisman J.W. (1997) Fog deposition on a coniferous forest in the Netherlands. Atmospheric Environment, 31(3), 375-386.

Vong R.J., Sigmon J.T., Mueller S.F. (1991) Cloud water deposition to appalachian forests. Environmental Science and Technology, 25(6), 1014-1021.

Xu J., Zhang Y., Fu J.S., Zheng S., Wang W. (2008) Process analysis of typical summertime ozone episodes over the Beijing area. Science of the Total Environment, 399(1-3), 147-157.

Wang C., Corbett J.J., Firestone J. (2008) Improving spatial representation of global ship emissions inventories. Environmental Science and Technology, 42(1), 193-199.

Wang Y., Wang Y., Fudeyasu H. (2009) The role of Typhoon Songda (2004) in producing distantly located heavy rainfall in Japan. Monthly Weather Review, 137(11), 3699-3716.

渡辺幸一 (2005) 山岳域における霧水中の化学成分にみられた夏期のバックグラウンド黄砂の影響. 天気, 52(7), 533-538.

渡辺幸一, 名取千晶, 朴木英治 (2005) 立山における霧水の化学成分. 大気環境学会誌, 40(3), 122-128.

Watanabe K., Takebe Y., Sode N., Igarashi Y., Takahashi H., Dokiya Y. (2006) Fog and rain water chemistry at Mt. Fuji: A case study during the September 2002 campaign. Atmospheric Research, 82(3-4), 652-662.

Weaver P.L., Medina E., Pool D., Dugger K., Gonzales-Liboy J., Cuevas E. (1986) Ecological observations in the dwarf cloud forest of the Luquillo Mountains in Puerto Rico. Biotropica, 18(1), 79-85.

Webb E.K. (1970) Profile relationships: The log-linear range, and extension to strong stability. Quarterly Journal of the Royal Meteorological Society, 96, 67-90.

Willmott C.J. (1981) On the validation of models. Physical Geography, 2(2), 184-194.

Wu S.-Y., Krishnan S., Zhang Y., Aneja V. (2008) Modeling atmospheric transport and fate of ammonia in North Carolina-Part I: Evaluation of meteorological and chemical predictions. Atmospheric Environment, 42(14), 3419-3436.

Yamada T. (1982) A Numerical Model Study of Turbulent Airflow in and above a Forest Canopy. Journal of the Meteorological Society of Japan, 60, 439-454.

Yarwood G., Rao S., Yocke M., Whitten G.Z. (2005) Updates to the Carbon Bond chemical mechanism: CB05. Final Report to the US EPA, RT-0400675.

Yu Y., Sokhi R.S., Kitwiroon N., Middleton D.R., Fisher B. (2008) Performance characteristics of MM5-SMOKE-CMAQ for a summer photochemical episode in southeast England, United Kingdom. Atmospheric Environment, 42 (20), 4870-4883.

Zhang K.M., Knipping E.M., Wexler A.S., Bhave P.V., Tonnesen G.S. (2005) Size distribution of sea-salt emissions as a function of relative humidity. Atmospheric Environment, 39(18), 3373-3379.

Zhang M., Uno I., Yoshida,Y., Xu Y., Wang Z., Akimoto H., Bates T., Quinn T., Bandy A., Blomquist B. (2004) Transport and transformation of sulfur compounds over East Asia during the TRACE-P and ACE-Asia campaigns. Atmospheric Environment, 38(40), 6947-6959.

Zhang Q., Streets D.G., Carmichael G.R., He K., Huo H., Kannari A., Klimont Z., Park I., Reddy S., Fu J.S., Chen D., Duan L., Lei Y., Wang L., Yao Z. (2009) Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission. Atmospheric Chemistry and Physics Discussions, 9(1), 4081-4139.

Zhang Y., Liu P., Queen A., Misenis C., Pun B., Seigneur C., Wu S.-Y. (2006) comprehensive performance evaluation of MM5-CMAQ for the summer 1999 southern oxidants study episode, Part II: Gas and aerosol predictions. Atmospheric Environment, 40(26), 4839-4855.