

# 福井の酸性降下物に占める人工硫黄酸化物の推定

井 上 賴 輝\*

Portion of Man-Made Sulfur among the Acid Deposition at Fukui

Yoriteru Inoue

Fukui Prefecture faces Japan Sea and receives air pollution from China Mainland. China shows nearly 10% per year of high economic growth and uses coals with high sulfur as main resources of energy. It is afraid that Fukui would receive severe damage by acid rain in the future. Amount of sulfur from Japan, Korea, North Korea, China, Taiwan and Russia to Fukui has been calculated. Fukui faces Japan Sea so that large portion of SO<sub>2</sub> comes from China mainland. When air(trajectory) passes above or by the Chosen Peninsula, amount of SO<sub>2</sub> generated from Korea and North Korea cannot be neglected. In summer, when air comes from Pacific Ocean, almost all SO<sub>2</sub> arrivesg to Fukui is generated in Japan.

## 1. はじめに

わが国、ことに日本海側の空気は春先の黄砂を見てもわかるように、主として中国大陸より飛来する。中国はここ数年来年率 10%近い盛んな経済成長をしていること、硫黄を多く含む低品位の石炭を主なエネルギー源としていること、福井は日本海に近く、中国大陸の影響を受けやすい位置にあることなどから、現在こそ酸性雨の被害は見られないが、将来は欧米や中国重慶地区のような深刻な被害を受けることが心配される。そこで前報<sup>1)</sup>では福井に到達する空気の由来を逆 Trajectory 解析により 1993 年の月ごとに推定した。結果を要約すると 10 月から翌年 5 月までの 8 ヶ月間は中国大陸から気団が福井に到達する。この間は大陸高気圧が優勢で、大陸では高気圧のため風は弱く、沿岸に近づくにつれて次第に速度を増し、日本海上は等圧線が混むために風速は大となる。夏の 7、8 月は太平洋高気圧が発達し、空気は太平洋上より到達する。5、9 月は夏と冬の季節の変わり目で、空気はほぼ全方位からやってくる。夏は台風が多く、このときは trajectory がその影響を受けて複雑な動きをするなどである。この結果を用いてわが国に飛来する人工硫黄酸化物のうち、日本、朝鮮半島、中国、台湾等に由来するものの割合を求める。これにより、これら各地域の今後の経済発展に従って福井に降下する酸性降下物原因物質がどのように変化するかを推定できるようになる。

## 2. 大気汚染物質の長距離輸送

硫黄酸化物の多くは SO<sub>2</sub>の形で大気に放出され、大気中で移流拡散を受けながら酸化されて酸

\* 建設工学科 土木工学専攻

性降下物原因物質の硫酸になる。また沈降により物理的にも大気中より除去される。 $\text{SO}_2$ が $\text{SO}_4$ に酸化されるのは半減期2~3日の非常に遅い反応である。この間に気団はおおまかに言って西から東に一日あたり数百km移動する。長距離輸送の対象となるスケールはおよそ100km以上2000kmまでである。このような輸送に対して多くのモデルが提案されているが、その中から現象に忠実で合理性を持つばかりでなく、全体の精度とのバランスが良いEllenton et al<sup>2)</sup>の米国での移流拡散について提案したモデルを採用する。彼らは汚染物質の物理的、化学的変化がなかった時、汚染物質が風下のある点に到達する確率 $X_i$ を次式で与えている。原点は汚染物質発生点にとり、水平風下方向にX軸、これと垂直水平方向にY軸をとる。

$$X_i = \frac{Q_i}{H u \sqrt{2\pi} \sigma_y} \exp\left(-\frac{Y^2}{2\sigma_y^2}\right) \quad (1)$$

$$\sigma_y^2 = \sigma_{y0}^2 + (\alpha X_L^\beta)^2 \quad (2)$$

ここに

- $Q_i$  :  $\text{SO}_2$ の負荷発生量 (t/日)
- $H$  : 混合層の厚さ (km)
- $U$  : X軸方向の平均風速 (km/日)
- $X_L$  : 発生源と福井との距離 (km)
- $\sigma_y$  : Y方向の拡散幅 (km)
- $\sigma_{y0}$  : Y方向の初期拡散幅 (km)
- $\alpha$ 、 $\beta$  : 拡散に関する常数

鉛直方向の拡散については混合層内で完全混合すると仮定し、Ellenton等の研究や、その他の研究から混合層の厚さ  $H=1\text{ km}$ 、Y方向の初期拡散幅  $\sigma_{y0}=34\text{ km}$ 、拡散に関する常数  $\alpha=0.06$ 、 $\beta=0.838$ とした。

発生した $\text{SO}_2$ は前報<sup>1)</sup>で求めたTrajectoryに沿って拡散・希釈を受けながら福井に到達するが、同時に $\text{SO}_4$ への酸化と、沈着により変質・除去される。その過程は

$$\frac{d(\text{SO}_2)}{dt} = - (k_t + k_w) (\text{SO}_2) = - k_A (\text{SO}_2) \quad (3)$$

$$\frac{d(\text{SO}_4)}{dt} = 1.5 k_t (\text{SO}_2) - k_B (\text{SO}_4) \quad (4)$$

で示せる。ここに

$(\text{SO}_2)$ :  $\text{SO}_2$ 濃度 (t/km<sup>3</sup>=mg/m<sup>3</sup>)

$(\text{SO}_4)$ :  $\text{SO}_4$ 濃度 (t/km<sup>3</sup>=mg/m<sup>3</sup>)

また Parameter は Eliassen<sup>3)</sup> の与えた数値とともに示す。

$k_t$  : 気体状  $\text{SO}_2$  から粒子状  $\text{SO}_4$  への化学変化速度常数 ( $2 \times 10^{-6}$  1/秒)

$k_w$  :  $\text{SO}_2$  の沈着速度係数 =

$v_d$  :  $\text{SO}_2$  の沈着速度 ( $8 \times 10^{-3}$  m/秒)

$k_A = k_t + k_w$  :  $\text{SO}_2$  の減衰速度係数

$k_B$  :  $\text{SO}_4$  の減衰速度係数 ( $4 \times 10^{-6}$  1/秒)

1.5 は  $\text{SO}_2$  と  $\text{SO}_4$  の分子量の差を補正したものである。これを解くと

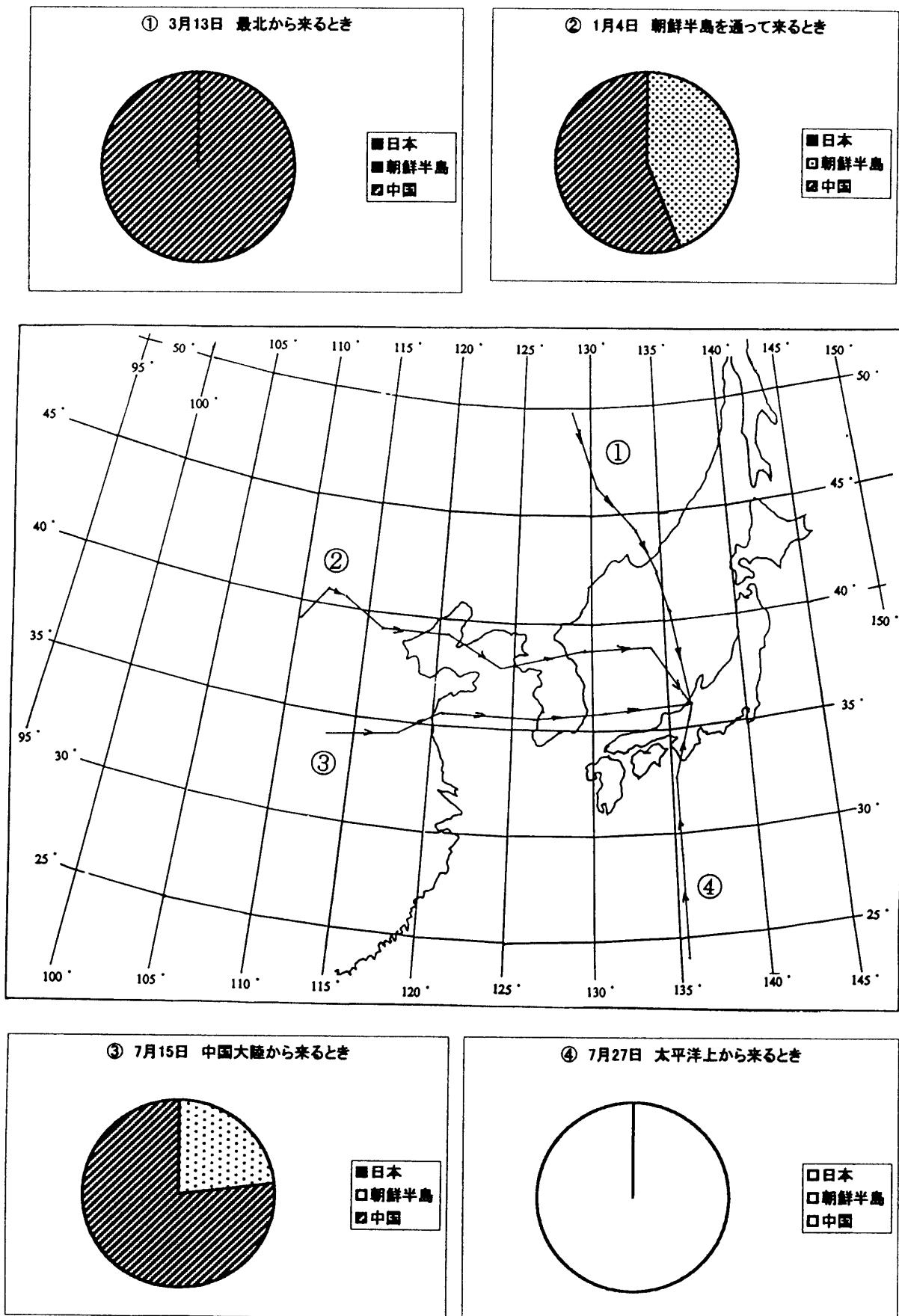
$$(\text{SO}_2) = (\text{SO}_2)_0 \exp(-k_A t) \quad (5)$$

$$(\text{SO}_4) = (\text{SO}_4)_0 \exp(-k_B t) + \{ \exp(-k_B t) - \exp(-k_A t) \} \dots \dots (6)$$

ここに  $(\text{SO}_2)_0$ 、 $(\text{SO}_4)_0$  は初期値である。(5)式(6)式で得られた  $\text{SO}_2$ 、 $\text{SO}_4$  濃度に trajectory に沿って飛来する  $\text{SO}_2$  の確率を乗じることにより、移流・拡散と変質・除去を考慮した  $\text{SO}_4$  の濃度が求められる。なお初期には  $\text{SO}_4$  は存在しなかったとする。

### 3. 人工硫黄酸化物の負荷発生量

硫黄は地球上に広く分布し、天然および人工の種々の原因によって大気中に放出される。P. Brinblecombe<sup>4)</sup> は全地球の硫黄化合物発生量は  $3.2 \times 10^{14}$  gS/年程度であり、そのうち天然起源が占める割合は約 80% の  $2.45 \times 10^{14}$  gS/年、人為起源の占めるのは約 20% の  $7.5 \times 10^{13}$  gS/年としている。これらの硫黄はいろんな化学形で放出されるが、酸性降下物に最も重要な意味を持つのは硫黄酸化物ことに  $\text{SO}_2$  である。このため  $\text{SO}_2$  発生量の推定が多くの地域で試みられてきた。Moeller<sup>5)</sup> によれば全地球の人為起源の  $\text{SO}_2$  のうち約 50% が石炭の燃焼、32% が石油起源、そして約 8% が鉱石の精錬と硫酸の製造によるもので、燃料、ことに石炭燃焼に伴って放出されるものが大部分を占める。福井の酸性降下物に関係する  $\text{SO}_2$  は主として東アジアより発生するものである。これについては藤田等<sup>6)</sup>、秋元等<sup>7)</sup>、東野等<sup>8)</sup> らの推計がある。藤田等は日本、中国、韓国、朝鮮民主主義人民共和国（北朝鮮）、台湾の 5 国について 1986 年の  $\text{SO}_2$  発生量を求めており、秋元等はこれより広い北緯  $10^\circ$  -  $55^\circ$ 、東経  $60^\circ$  -  $150^\circ$  を  $1^\circ \times 1^\circ$  の grid に切り、1970、1980、1987 年の 3 カ年について  $\text{SO}_2$ 、 $\text{NO}_x$ 、 $\text{CO}_2$  の発生量を求めており、東野等も中国について藤田等、秋元等の方法を改良し、省別のデータも入れて  $80 \text{ km} \times 80 \text{ km}$  の mesh および  $1^\circ \times 1^\circ$  の grid につき推計している。東野等の推計によると中国では石炭燃焼が  $\text{SO}_2$  排出量の実に 9 割を占め、四川、山東、江蘇 3 省の負荷が頭抜けて高い。どの推計も北朝鮮のデータが他の地域に比べて乏しく、精度は落ちるようである。なお全世界につき Spiro et al<sup>9)</sup>、松岡<sup>10)</sup> などが同様の推計をしている。東アジアにつき推計した藤田等、秋元等、東野等の結果を比較すると、燃料中硫黄含有率、燃焼による  $\text{SO}_2$  排出係数の取り方などに差があるために少し



図一1 福井における酸性降下物への各国の寄与

ずつ数値は違っているが、本研究の目的とする福井の酸性降下物に占める人工硫黄酸化物量の推定にはどれを取っても結果に大きな差は出ない。そこで本報では秋元等の推計を用いた。

#### 4. 計算と結果

前報<sup>1)</sup>で求めた1993年のTrajectoryのうち、① 3月13日 最北から気団が福井に到達する場合 ② 1月4日 朝鮮半島を通って来る場合 ③ 7月15日 中国大陸から来るとき ④ 7月27日 太平洋上より来るとき の4caseにつき計算を行った。Trajectoryを図-1に示す。秋元等の推計で東アジアのSO<sub>2</sub>発生量を知り、その長距離輸送を2節の方法で計算して求めた。結果を図-1にTrajectoryとあわせて示す。福井は日本海に近く、日本海上を通って直接福井に到達する気団が多いため、日本の寄与は比較的少なく、中国の寄与が半分以上を占めること、朝鮮半島の上や近くをTrajectoryが通った時は朝鮮半島の影響もかなり受けること、夏季は気団が太平洋上から到達するためにわが国で発生したSO<sub>2</sub>の影響しか受けないことを知った。

#### 5. まとめと今後の課題

秋元等の推定した東アジアの硫黄酸化物負荷発生量を用いて、発生した負荷が移流・拡散と変質・除去を受けながら福井へ長距離輸送される過程を計算し、

1. 福井における酸性降下物原因物質に占める中国の割合は大きい。
2. 気団が朝鮮半島の上を通って来るとときは朝鮮半島の寄与も大きくなる。
3. 福井は海に近く、気団が日本海上から直接到達することが多いために、日本の寄与は4.の場合を除いて大きくないが、気団が瀬戸内海などの西日本を通るときは無視できない。
4. 夏は気団が太平洋上よりるために、日本の寄与がほぼ100%になる。
5. 各国の寄与の割合は、その日のTrajectoryによって大きく変化する。

ことを知った。今回の研究は人工の硫黄酸化物を取り上げたが、わが国は火山国で桜島、阿蘇、諏訪之瀬島などが人工と同程度のSO<sub>2</sub>を空中に放出しているから、来年度は天然の硫黄酸化物の影響を明らかにしたい。

#### 参考文献

- 1) 井上 賴輝：“福井に到達する空気の逆Trajectory解析”福井工業大学研究紀要 28 第1部 191-197 (1998)。
- 2) G. Ellenton, B. Ley and P. K. Misra : “A Trajectory Puff model of Sulfur Transport for Eastern North America” Atmospheric Environment 19, 727-737 (1985).
- 3) Anton Eliassen : ”The OECD Study of Long Range Transport of Air Pollutants: Long Range Transport Modeling” Atmospheric Environment 12 479-487 (1978).
- 4) P. Brinblecombe : “Air Composition and Chemistry”, Cambridge Univ. Press, 224 (1986)
- 5) D. Moeller : “Estimation of the Global Man-made Sulphur Emission”, Atmospheric Environment 18, 19-26 (1985).
- 6) S. Fujita Y. Ichikawa R. K. Kawaratani and Y. Tonooka : “Preliminary Inventory of Sulfur Dioxide Emission

- in East Asia", Atmospheric Environment 25, 1409-1411 (1991).
- 7) H. Akimoto and H. Narita : "Distribution of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub> and CO<sub>2</sub> Emission from Fuel Combustion and Industrial Activities in Asia with 1x1 Resolution", Atmospheric Environment 28, 213-225 (1994).
- 8) 東野 晴行、外岡 豊、柳沢 幸雄、池田 有光、: “東アジア地域を対象とした大気汚染物質の排出量推計-中国における硫黄酸化物の人為起源排出量推計-” 大気汚染学会誌 30, 374-390 (1995).
- 9) P. A. Spiro, D. J. Jacob and J. A. Logan : "Global Inventory of Sulfur Emissions with 1° x 1° Resolution" Jour. Geophysical Research 97, 6023-6036 (1992).
- 10) 松岡 讓: “人為起源硫黄酸化物による地球規模的な環境影響について” 環境システム研究 20, 142-151 (1992).

(平成10年12月10日受理)