九州大学学術情報リポジトリ Kyushu University Institutional Repository

2018年3月下旬に国内広域で観測された高濃度PM_2.5 の化学輸送モデルを用いた解析

山村, 由貴 福岡県保険環境研究所

鵜野,伊津志 九州大学応用力学研究所

王, 哲 九州大学応用力学研究所

新谷, 俊二 福岡県保険環境研究所

他

https://doi.org/10.15017/1957533

出版情報:九州大学応用力学研究所所報.155, pp.1-10, 2018-09. Research Institute for Applied Mechanics, Kyushu University バージョン: 権利関係:

2018 年 3 月下旬に国内広域で観測された高濃度 PM_{2.5}の 化学輸送モデルを用いた解析

山村 由貴^{*1,2} 鵜野 伊津志^{*3} 王 哲^{*3} 新谷 俊二^{*1} 力 寿雄^{*1} 中川 修平^{*1} (2018年8月10日受理)

Analysis of the High Concentration of PM_{2.5} Observed in the Wide area of Japan in Late March 2018 by Using Chemical Transport Model

Yuki YAMAMURA, Itsushi UNO, Zhe WANG, Shunji NIIYA, Hisao CHIKARA, Syuhei NAKAGAWA

E-mail of corresponding author: yamamura@fihes.pref.fukuoka.jp

Abstract

High PM_{2.5} concentration exceeding Japanese ambient criteria (daily mean $35\mu g/m^3$) were observed in late March 2018 over the wide area of Japan, and high PM_{2.5} concentration lasted for about a week. Aerosol observations and simulation by Chemical Transport Model illustrated the cause of this episode. In this episode, blocked high pressure existed over Japan, and it made subsidence inversion layer. Subsidence inversion layer suppressed the vertical diffusion, so pollutions were accumulated under this layer. Both particle SO₄²⁻ and NO₃⁻ are transported from outside of Japan, but SO₄²⁻ was mainly transported from China and NO₃⁻ was also from Korea. Simulated concentrations of PM_{2.5} well explained the time and space variation of observation data. But when effect of transboundary air pollution became high, simulated concentrations of PM_{2.5} tended to be larger than observation, because anthropogenic emission data used was 2008 year base (REAS2008) and did not reflect recently decrease of Chinese emission. The model sensitivity analysis showed that SO₄²⁻ was mainly transported from outside of Japan. NO₃⁻ concentration is effected by both the transboundary air pollution and local emission. For rural site like Oki, NO₃⁻ is mainly controlled by the transboundary air pollution, while for urban site like Osaka, local emission is more important than transboundary air pollution.

Keywords: PM2.5, chemical transport model, transboundary air pollution, local pollution, sulfate, nitrate

1. はじめに

微小粒子状物質 (PM_{2.5}) は、健康影響が懸念さ れることから、2009 年に大気環境基準(1年平均値 が 15µg/m³以下であり、かつ、1日平均値が 35µg/m³ 以下であること) が設定された。近年、中国におけ る大気汚染物質の排出量の減少¹⁾に伴い、日本国内 の PM_{2.5} 濃度も減少している。一般大気環境測定局 の環境基準達成率は、2014 年から 2016 年にかけて、 関東は 34.6% から 97.4%、東海は 25.9% から 98.7%、 近畿は 61.1% から 95.3%、中国は 14.0% から 75.8%、 四国は 31.0% から 66.7%、九州は 6.8% から 61.5% となり、いずれの地域でも改善がみられた²⁾。しか し、2018年3月下旬に、国内広域で PM2.5 環境基準 を超過し、さらに高濃度の大気汚染が1週間程度継 続する現象が観測された。また、この事例では SO4²⁻ のみでなく、NO3⁻も高濃度となっていたことが特徴 的であった。本論文では、この広域・長期間におけ る高濃度大気汚染現象について、エアロゾル化学成 分連続自動分析装置による PM2.5 粒子成分分析結果、 および化学輸送モデルによるシミュレーション結 果から、その原因を明らかにした。

2. **方法**

2.1 PM_{2.5}成分濃度測定

観測データには、九州大学応用力学研究所屋上に 設置した、エアロゾル化学成分連続自動分析装置 (Continuous Dichotomous Aerosol Chemical Speciation

^{*1} 福岡県保健環境研究所

^{*2} 九州大学大学院総合理工学府

^{*3} 九州大学応用力学研究所

Analyzer, ACSA-12;紀本電子工業製)で測定された 1 時間毎の硫酸塩(SO4²⁻)濃度、硝酸塩(NO3⁻)濃度およ び太宰府局(福岡県)、国設大阪(大阪府)、国設隠岐 (島根県)に設置された常時監視局 PM_{2.5} 濃度の速報 値を使用した。ACSA-12 の測定は紀本ら ³⁾に準じて行 われた。

2.2 化学輸送モデル

気象場の計算には、領域気象モデル Weather Research and Forecasting model (WRF) version 3.9.1.1⁴⁾を使用した。WRF の初期条件および境界条件 には、米国環境予報センター (NCEP) の全球客観解 析データ (FNL)⁵⁾を使用した。計算領域 は、東アジア 域 (D01、64km 格子) および西日本域 (D02、16 km 格子) の二重格子とした。鉛直層は、地表面から上空 100hPaまでを29 層に分割した。地形データセットには、 United States Geological Survey (USGS) の全球数値 標高データを用いた。

汚染物質濃度の計算には、化学輸送モデル CMAQ version 5.0.2⁶⁾⁷⁾を使用した。大気中の汚染物質および その前駆物質の反応過程として、気相化学反応に SAPRC07、エアロゾル過程に AERO6 を使用した。排出 量データには、東アジア域における人為起源排出量は Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2⁸⁾を、中国のNH3排出量についてStreets et al.⁹⁾に基づ き排出量の季節変動を補正して使用した。船舶起源排 出量は海洋政策研究財団 (OPRF) が作成した船舶排 出インベントリ 10)を使用した。日本域における人為起源 排出源のうち、自動車起源のものは JATOP Emission Inventory-Data Base 2011 Automobile Source (JEI-DB2011-AS)¹¹⁾、自動車・船舶以外の人為起源排 出源は、EAGrid2010-Japan¹²⁾を使用した。植生起源排 出量は Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature (MEGAN)¹³⁾ version2.04 により推計した。火山 起源の SO₂ 排出量は Aerosol Comparisons between Observations and Models (AeroCom) によって作成され たデータ14)を使用し、国内の浅間山、御嶽山、三宅島、 阿蘇山、桜島、口之永良部島については気象庁の火 山活動解説資料¹⁵⁾のSO2排出量を使用した。

WRF/CMAQ の計算領域を Fig.1 に示す。
WRF/CMAQの計算期間は3月1日から4月10日とし、
3月23日から31日を解析対象期間とした。

3. 結果と議論

3.1 PM_{2.5} 濃度と気象状況



Fig.1 Calculation area for WRF/CMAQ



Fig. 2 Potential temperature and water vapor mixing ratio at Fukuoka District Meteorological Observatory

3月24日から30日は、日本東岸でジェット気流が蛇行・ 収束しため、高気圧の東進が妨げられ、長期間西日本、 東日本が広く帯状の高気圧に覆われていた¹⁶⁾。24日か ら26日9:00に福岡管区気象台で観測された温位およ び水蒸気混合比のエマグラムをFig.2に示す。Fig.2か ら、24日は1000m、25日は800m、1500m、26日は 200m、800m付近に逆転層が確認できた。混合比は逆 転層底部から上部にかけて急激に低下し、逆転層より 上層で低くなっていた。これより、高気圧性の下降気流 による沈降性逆転層が生成していたと考えられる。

24 日から 26 日のモデル(D01)による PM_{2.5} 濃度の 12 時間毎の水平分布を Fig.3 に示す。PM_{2.5} について は、24 日 15:00 には九州の西に位置する高気圧の影響 により、中国北東部の高濃度汚染気塊が東へ移流し、 日本にも流入していた。25 日 3:00、15:00 には、西日本 を中心に韓国からも汚染気塊が流入した。26 日 3:00 に は、北海道の西に位置する低気圧の影響が強まり、日 本への汚染気塊の流入が減少した。

24 日から 26 日のモデル (D01)による O₃ および微小 粒子状 SO₄²⁻、NO₃-濃度の 12 時間毎の水平分布をそれ ぞれ Figs.4、5、6 に示す。SO₄²⁻、NO₃-共に西よりの風に よって国外から輸送されているが、SO₄²⁻は中国からの影 響が大きく、NO₃-は韓国からの影響も大きいことが判っ た。



Fig.3 Modeled PM_{2.5} concentration for Domain D01.



Fig.4 Modeled O₃ concentration for Domain D01.



Fig.5 Modeled NO₃⁻ concentration for Domain D01.



Fig.6 Modeled SO₄²⁻ concentration for Domain D01.



Fig.7 Modeled O₃ concentration for Domain D02.



Fig.8 Modeled NO₃⁻ + HNO₃ concentration for Domain D02.



Fig.9 Modeled SO₄²⁻ concentration for Domain D02.

O3については、24日15:00に中国大陸で高濃度とな り、25日夜間3:00はNOによる分解の影響が少ない海 上で高濃度を維持し、25日15:00には中国大陸で再び 高濃度となり、海上に残っていたO3と共に、朝鮮半島、 日本へ流入した。この時、NOの一次排出源付近では、

$$O_3 + NO \rightarrow NO_2 + O_2$$
 (1)

によって O₃が消費されるため、韓国等の陸上では O₃ 濃 度が低くなっていたと考えられる。それぞれの成分の濃 度分布について、DO2 での水平分布を用いて、詳細に 比較する。

24 日から 25 日のモデル (D02)による O₃、微小粒子 状 NO₃ と HNO₃ 濃度の和 (NO₃⁺ HNO₃)、微小粒子 状 SO₄²⁻濃度の6時間毎の水平分布をそれぞれ Figs.7、 8、9 に示す。O₃の高濃度領域と NO₃⁺ HNO₃の高濃度 領域を比較すると、夜間から朝にかけて (3:00, 21:00, 9:00)は、NO₃⁺ HNO₃ が高濃度となった領域で O₃ 濃度 は低くなり、日中 (15:00)は、NO₃⁺ HNO₃ とO₃の高濃度 領域がほぼ一致していた。夜間においては、以下のよう な O₃ による酸化が NO₃⁻ HNO₃ の生成に大きく寄与し た ¹⁷⁾、すなわち O₃ の生成が盛んな日中と異なり、夜間 は O₃ が NO、NO₂ の酸化に使用されることで減少し、 NO₃⁻ HNO₃ は酸化により生成するため、NO₃⁻ HNO₃ が 高濃度となった領域で O₃ 濃度が低くなったと考えられ る。

$$O_3 + NO_2 \rightarrow NO_3 + O_2 \tag{2}$$

$$NO_3 + NO_2 + M \rightleftharpoons N_2O_5 + M \tag{3}$$

$$N_2O_5 + H_2O \rightarrow 2HNO_3$$
 (4)

$$NO_3 + RCHO \rightarrow HNO_3 + RCO$$
 (5)

一方、15:00のNO3⁻+HNO3の高濃度領域は、それま でに比べ減少していた。HNO3の海面への沈着により、 濃度が減少した可能性も考えられる。

一方、SO4²-は昼夜共にO3高濃度領域で高濃度となっており、さらに海上を吹走中に濃度が増加していた。

3.2 福岡における PM_{2.5} 濃度上昇要因の解析

ACSA による SO4²⁻、NO3⁻濃度の時間変化とモデルに よる計算結果を合わせて Fig.10(a)、(b)に示す。濃度の 増減傾向は ACSA とモデルで類似しており、ACSA、モ デル共に、24 日から 26 日にかけて SO4²⁻、NO3⁻濃度が 高まっていた。しかし、濃度の値は ACSA に比べ、モデ ルが大きく、越境汚染の影響の大きかった 24 日から 30 日にかけて特に過大評価となっていた。これはモデルで



Fig.10 Observed and modeled concentration of (a) SO_4^{2-} , (b) NO_3^{-} , NO_3^{-} + HNO₃, (c) modeled *Fs*, *F_N* and NO₂ concentration



Fig. 11 Modeled PM_{2.5} concentration and potential temperature profile at Dazaifu

は中国の排出量データに REAS2008 を使用しており、 近年の中国の大幅な排出量削減を反映できていないこ とが原因と考えられた。また、ACSA、モデル共に、国外 からの高濃度汚染気塊の流入が減少した 26 日から、 NO3⁻濃度が大きく減少していた。一方、SO4²⁻濃度は 26 日以降緩やかに減少しているが、30 日付近まで高濃度 が継続していた。

ここで、以下で定義される F_S 、 F_N および NO₂ 濃度の 太宰府における時間変化を Fig.10(c)に示す。

 F_s 、 F_N は0から1の値を取り、 F_s はSO₂の粒子化が、 F_N はNO₂の粒子化が進むほど値は大きくなる。

$$F_{s} = \frac{[SO_{4}^{2-}]}{[SO_{2}] + [SO_{4}^{2-}]} \tag{6}$$

$$F_N = \frac{[NO_3^-]}{[HNO_3] + [NO_3^-]}$$
(7)

Fsは26日付近から、緩やかに増加している。越境汚染により流入するSO2が減少し、さらにそれまでに蓄積されていたSO2も、時間の経過と共に酸化され、SO4²⁻を生成したためと考えられる。FNは、26日付近から減少傾向がみられた。これは、26日付近から越境汚染により粒子として流入するNO3が減少したためと考えられる。なお、いずれの日においても7:00、18:00付近でFN、NO2が極大となっていた。7:00、18:00は通勤時間帯であることから、近傍の道路交通量の増加によるNO2排出量の増加を反映したためと考えられる。

太宰府市(福岡)の CMAQ での PM_{2.5} 濃度および温 位の鉛直分布を Fig.11 に示す。Fig.11 から、高気圧性 の下降気流により断熱昇温が起きていることが確認でき た。また、特に高濃度となった 25、26 日は、どちらも Fig.2 のエマグラム中の逆転層位置である高度約 800m 以下の濃度が上昇していた。これは沈降性逆転層によ って鉛直方向の拡散が抑制されたことで、逆転層より下 層に汚染が蓄積したと考えられる。

以上から、国外からの汚染気塊の流入が減少した26 日以降は、SO4²⁻については(NH4)2 SO4 等の硫酸塩粒 子として滞留し続けたため、長期間高濃度が持続したと 考えられる。一方 NO3⁻は SO4²⁻と異なり、NH4NO3 として 流入しても、温度の上昇に伴いガスへ分解されるため、 SO4²⁻のように長期間滞留することができず、国外からの 流入の減少と共に、濃度が急激に減少したと考えられ る。

3.3 各地域の PM_{2.5} 濃度変化とモデルの再現性

太宰府市(福岡)、隠岐の島町(島根)、大阪市(大阪) におけるモデルと常時監視局の PM_{2.5} 濃度時間変化を Fig.12 に示す。図中には、データ数(N)、Mean Fractional Bias (MFB) と Mean Fractional Error (MFE) を示している。MFBとMFEは、以下の計算式に より求めた。

$$MFB = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{(M_i - O_i)}{(M_i + O_i)} \times 100$$
(8)

$$MFE = \frac{2}{N} \sum_{i=1}^{N} \frac{|M_i - O_i|}{(M_i + O_i)} \times 100$$
(9)



Fig. 12 Observed and modeled PM_{2.5} concentration for (a) Oki, (b) Dazaifu, (c) Osaka

ここで、i は時間、Mi は i 時におけるモデルの計算値、 Oi は i 時における実測値、N はデータ数を示す。この定 義により MFB は-200%~+200%, MFE は 0%~+200% の範囲の値をとる。MFB と MFE は、モデルを科学的知 見の拡充や規制対策などに十分適用可能な performance goal (MFB $\leq\pm$ 30%, MFE $\leq\pm$ +50%) と、そ れらへの適用が妥当とみなせる performance criteria (MFB $\leq\pm$ 60%, MFE $\leq\pm$ +75%) が提唱されている¹⁸⁾。

24 日から 30 日の太宰府、大阪の MFB はそれぞれ 25.4%、-8.5%、MFE はそれぞれ 46.7%、48.4%であり、 performance goal を満たしていた。また、隠岐の MFB、 MFE は-27.7%、61.2%であり、performance criteria を満 たしていた。隠岐、太宰府において、越境汚染の影響 が特に大きいと考えられる24 日から29 日に過大評価傾 向が見られたが、これは 3.2 の ACSA との比較で述べた REAS2008 の影響と考えられる。

Fig.12 では、いずれの地域においても、モデル・観測 共に PM2.5 濃度は 24 日から 30 日付近で高まっている が、太宰府・隠岐がベースの高い幅の広いピーク形状 であるのに対し、大阪では日中濃度が低下し夜間に上 昇する日内変動による鋭いピークが顕著であった。この 原因について、感度解析を用いて次節で検証する。

3.4 国内汚染寄与率の地域変化

全ての排出量を含む設定(CNTL)と国内の人為起 源排出量を100%削減した設定(JPEM0)で計算を行い、 地域的な発生源の感度解析を行った。

太宰府市(福岡)、隠岐の島町(島根)、大阪市(大阪)のSO4²⁻、NO3-濃度のCNTLおよびJPEM0をFig.13 に示す。太宰府、大阪は共に都市部であるが、太宰府 はより越境汚染の影響を受けやすく、大阪はより地域発 生源からの排出量が多い特徴を持つ。一方、隠岐は地 域発生源の少ない地域である。SO4²⁻については、 CNTL、JPEM0 共にいずれの地域も幅の広いピーク形 状をしていた。また、いずれの地域においても CNTL と JPEM0 の濃度差は小さく、越境汚染の影響が大きいこ とが示唆された。

NO3-は、太宰府、大阪においては、CNTL は日内変 動による鋭いピークが見られ、日中と夜間の濃度差は太 宰府に比較して、大阪で大きくなっていた。JPEM0 は、 隠岐では CNTL との差は無く、ほぼ越境汚染の影響で あることが示された。太宰府では24日夕方から26日夜 間までは CNTL との濃度差は小さく、越境汚染の影響 が大きいことが示された。また、越境汚染によって粒子 状の NO3 が流入することから、この期間は特に日中もべ ースが高くなる傾向が確認された。一方、大阪では、太 宰府・隠岐に比べて CNTL と JPEM0 の濃度差が大きく、 地域汚染の影響が大きいことが示された。さらに、隠岐、 太宰府に比べて日中と夜間の濃度差が顕著であった。 NO₃⁻+HNO₃で評価すると、日中の濃度は NO₃のみに 比べて増加していることから、温度上昇により、NH4NO3 の平衡が気相側にシフトし、HNO3 が増加したことが示 唆された。しかし、NO3+HNO3 においても、夜間に比べ ると日中の濃度は大きく減少しており、HNO3の沈着等 が起きた可能性が考えられた。

PM2.5 中の NO3 濃度は SO4²⁻と同様に高いため、 NO3 濃度の日内変動を反映し、Fig.12(c)で示された大 阪の PM2.5 濃度の鋭いピークができたと考えられた。 SO4²⁻がいずれの地域においても越境汚染の影響が大 きいのに対し、NO3⁻は地域の特徴によって寄与率が異 なり、都心部では地域汚染の寄与率が高く、さらに九州 から西日本の地域のほうが越境汚染の影響が大きくな る傾向が確認された。

4. まとめ

2018 年 3 月下旬に、国内広域で PM_{2.5} 環境基準を 超過し、高濃度の大気汚染が1週間程度継続する現象 が観測された。本論文では、エアロゾル化学成分連続 自動分析装置および化学輸送モデルを用いて、その原 因を考察した。

高濃度となった3月24日から30日は、日本東岸で ジェット気流が蛇行・収束したことで高気圧の東進が妨 げられ、長期間西日本、東日本が広く帯状の高気圧に



Fig. 13 Fig.13 Modeled concentration of SO_4^{2-} , NO_3^{-1} for (a) Oki, (b) Dazaifu, (c) Osaka, and NO_3^{-1} + HNO₃ for (d) Osaka

覆われていた。高気圧により沈降性逆転層が発生し、 鉛直方向の拡散が抑制されたことで、逆転層より下層に 汚染が蓄積しやすい状態となっていた。

SO4²⁻、NO3⁻共に西よりの風によって国外から輸送されており、越境の影響が強かった24日から26日にかけて、特に濃度が高くなっていた。SO4²は中国からの影響が大きく、NO3⁻は韓国からの影響も大きかった。

 $O_3 \ge NO_3^- + HNO_3$ の濃度分布は、夜間から朝にかけ ては $NO_3^- + HNO_3$ が高濃度となった領域で O_3 濃度は低 くなり、日中は、 $NO_3^- + HNO_3 \ge O_3$ の高濃度領域がほぼ 一致していた。このことから、 NO_2 の酸化には、夜 間は O_3 、日中は OH 等他の物質が主に寄与しているこ とが示唆された。一方 SO_4^2 -は、昼夜共に O_3 高濃度領 域で高濃度となっており、さらに海上を吹走中に濃度が 増加していた。

太宰府、隠岐、大阪において、全ての排出量を含む 設定と国内の人為起源排出量を 100%削減した設定で 感度解析を行った。その結果、SO4²⁻と NO3⁻の主な発生 源が、地域の特徴によって異なることが判った。SO4²⁻に ついてはいずれの地域においても越境汚染の影響が大 きいことが示唆された。一方 NO3⁻は、太宰府・隠岐では 24日夕方から26日夜間まで越境汚染の影響が大きく、 大阪では、太宰府・隠岐に比べて地域汚染の影響が大 きいことが示唆された。

謝辞

排出量データの作成は、大阪大学大学院工学研究 科嶋寺光助教からプログラムをご提供いただきました。 また、電力中央研究所の板橋秀一主任研究員には、 CMAQ の感度解析のサポートを受けました。ここに記し て謝意を表します。

参考文献

- Fu, X., Wang, S., Xing, J., Zhang, X., Wang, T., Gao, J.: Increasing ammonia concentrations reduce the effectiveness of particle pollution control achieved via SO2 and NOX emissions reduction in East China, Environ. Sci. Tech. Lett., doi:10.1021/acs.estlett.7b00143, 2017.
- 鵜野 伊津志,王 哲,弓本 桂也,板橋 秀一,長 田 和雄,入江 仁士,山本 重一,早崎 将光,菅 田 誠治:PM2.5越境問題は終焉に向かっているの か?,大気環境学会誌,52,177-184,2017.
- 3) 紀本英志、植田明子、辻本賢太、三谷洋一、戸 矢崎保雄、紀本岳志:大気エアロゾル化学成分 連続自動分析装置の開発,クリーンテクノロジ ー,23,49-52,2013.
- Skamarock, W.C., Klemp, J.B., Dudhia, J., Gill, D. D., Barker, D. M., Duda, M. G., Huang, X.-Y., Wang, W., Powers, J. G.: A Description of the Advanced Research WRF Version 3, NCAR Tech. Note, NCAR/TN-475+STR, 113 pp., Natl. Cent. for Atmos. Res., Boulder, Colorado, USA, 2008.
- 5) CISL: Research Data Archive, http://rda.ucar.edu/datasets/ds083.2/ (2018.7.11 ア クセス).
- Byun D, Ching J: Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. EPA/600/R-99/030,1999.
- Byun D, Schere KL: 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. ,2006.
- Ohara, T., Akimoto, H., Kurokawa, J., Horii, N., Yamaji, K., Yan, X., and Hayasaka, T : An Asian

emission inventory of anthropogenic emission sources for the period 1980–2020.Atmos. Chem. Phys., 7, 4419-4444, 2007.

- Streets D.G., Yarber K.F., Woo J.-H., Carmichael G.R. Biomass burning in Asia: Annual and seasonal estimates and atmospheric emissions. Global Biogeochemical Cycles, 17(4), 10/1-10/20, 2003.
- 海洋政策研究財団:平成22年度 排出規制海域 設定による大気環境改善効果の算定事業報告書, ISBN978-4-88404-265-3,2010.
- (一財)石油エネルギー技術センター: JATOP技術 報告書「自動車排出量推計」, JPEC-2011AQ-02-06, 2012.
- 福井 哲央, 國領 和夫, 馬場 剛, 神成 陽容: 大 気 汚 染 物 質 排 出 イ ン ベ ン ト リ ー EAGrid2000-Japanの年次更新, 大気環境学会誌, 49, 117-125, 2014.
- Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P. I., Geron, C.: Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from

Nature), Atmos. Chem. Phys., 6, 3181-3210, 2006.

- 14) Diehl T., Heil A., Chin M., Pan X., Streets D., Schultz, M., Kinne, S.: Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO2 from 1980 to 2010 for hindcast model experiments, Atmos. Chem. Phys. Discuss., 12, 24895–24954, 2012.
- 15) 気象庁:火山解説資料(2018), https://www.data.jma.go.jp/svd/vois/data/tokyo/ST OCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact.php(2018.7. 30アクセス).
- 16) 鵜野 伊津志、山村 由貴、王 哲: 越境大気汚染の理解のための気象学、大気環境学会誌,53, A1-A9,2018.
- 17) 福山 力:大気中でのSO₂およびNOxの酸化過程, 環境技術, 12, 806-812, 1983.
- 18) Boylan, J. W., and Russel A. G. : PM and light extinction model performance metrics, goals, and criteria for three-dimensional air quality models, Atmos. Environ., 40, 4946-4959, 2006.