

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} 鷗野 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 $\mu\text{g}/\text{m}^3$) 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: PM_{2.5}, 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 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であり、かつ、1 日平均値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 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 PM_{2.5} 環境基準を超過し、さらに高濃度の大气汚染が 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 PM_{2.5} 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、16km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⁾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

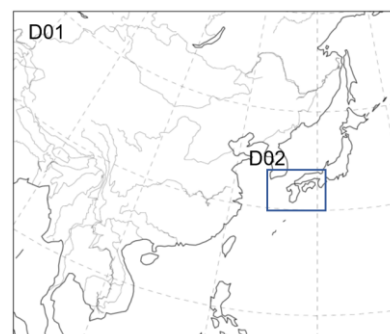


Fig.1 Calculation area for WRF/CMAQ

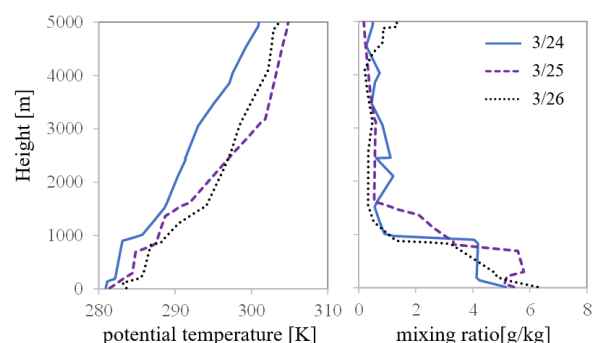


Fig. 2 Potential temperature and water vapor mixing ratio at Fukuoka District Meteorological Observatory

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に福岡管区气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。

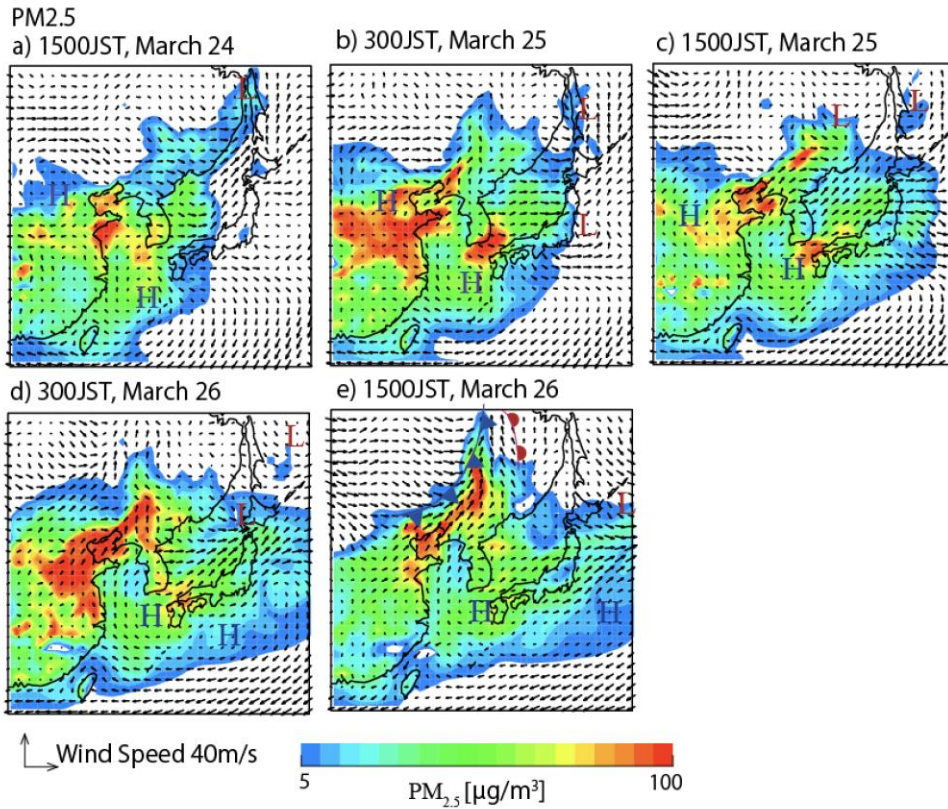


Fig.3 Modeled PM_{2.5} concentration for Domain D01.

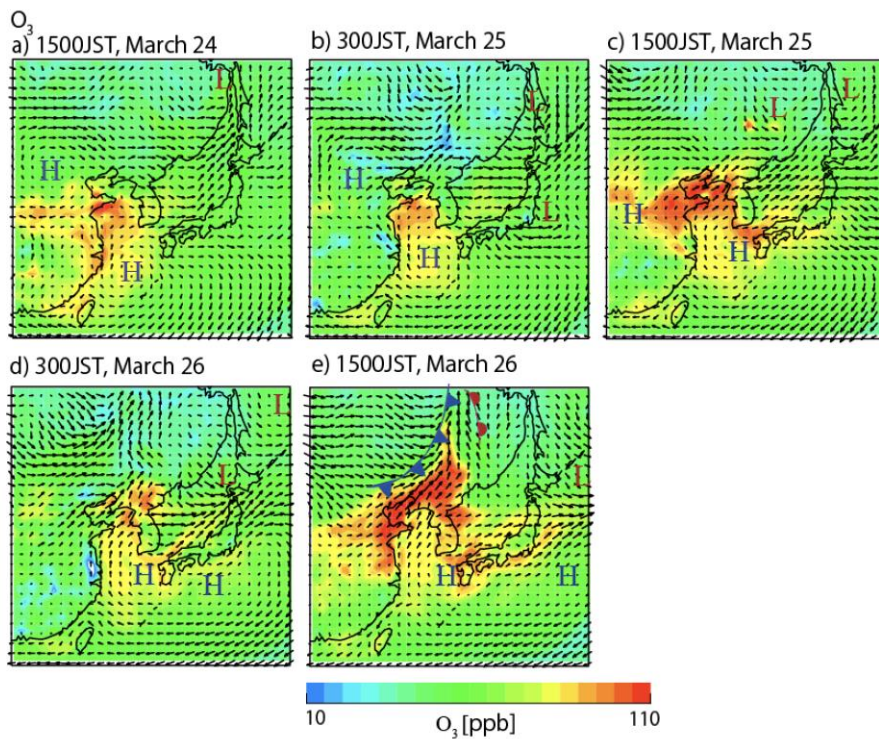


Fig.4 Modeled O₃ concentration for Domain D01.

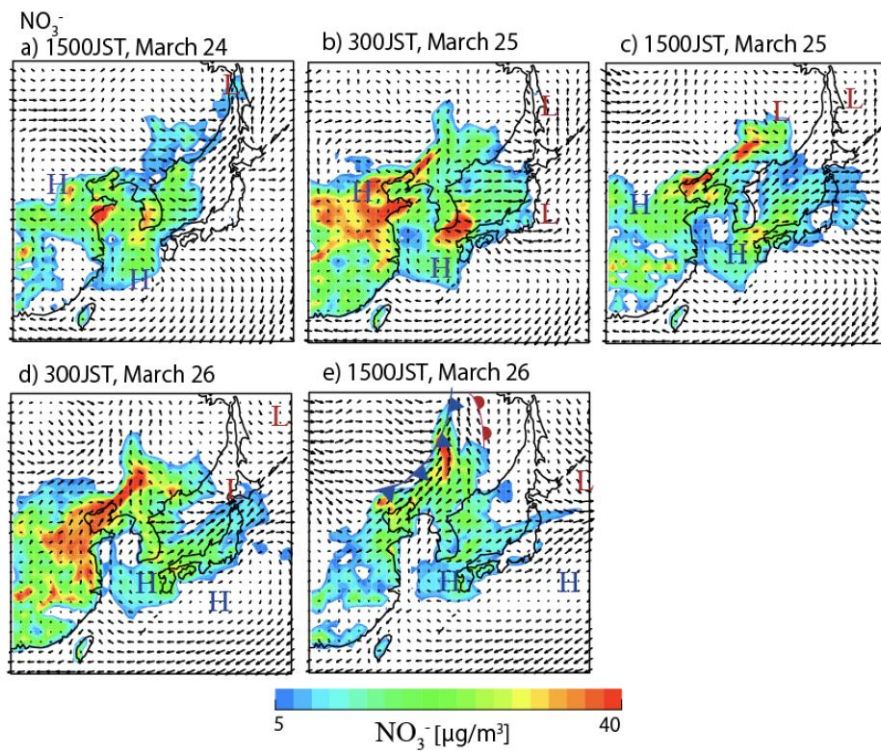


Fig.5 Modeled NO₃⁻ concentration for Domain D01.

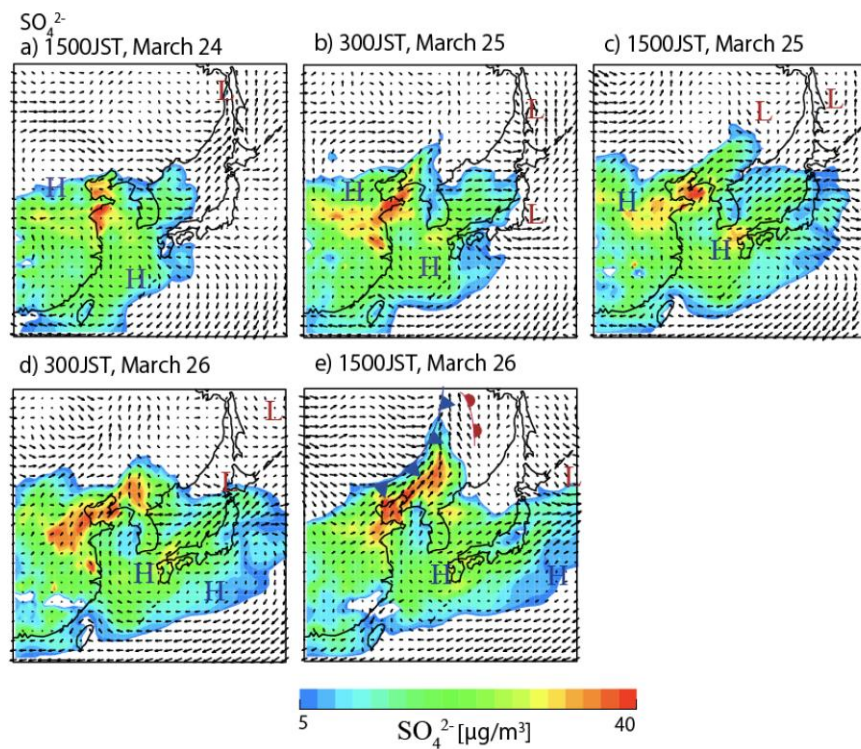


Fig.6 Modeled SO₄²⁻ concentration for Domain D01.

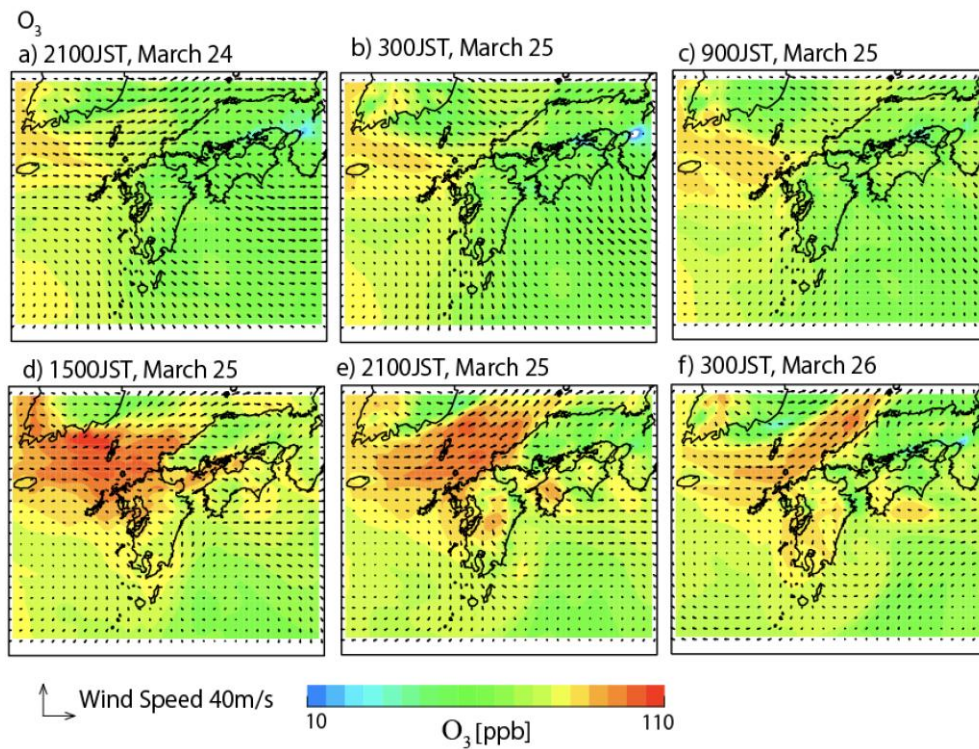


Fig.7 Modeled O_3 concentration for Domain D02.

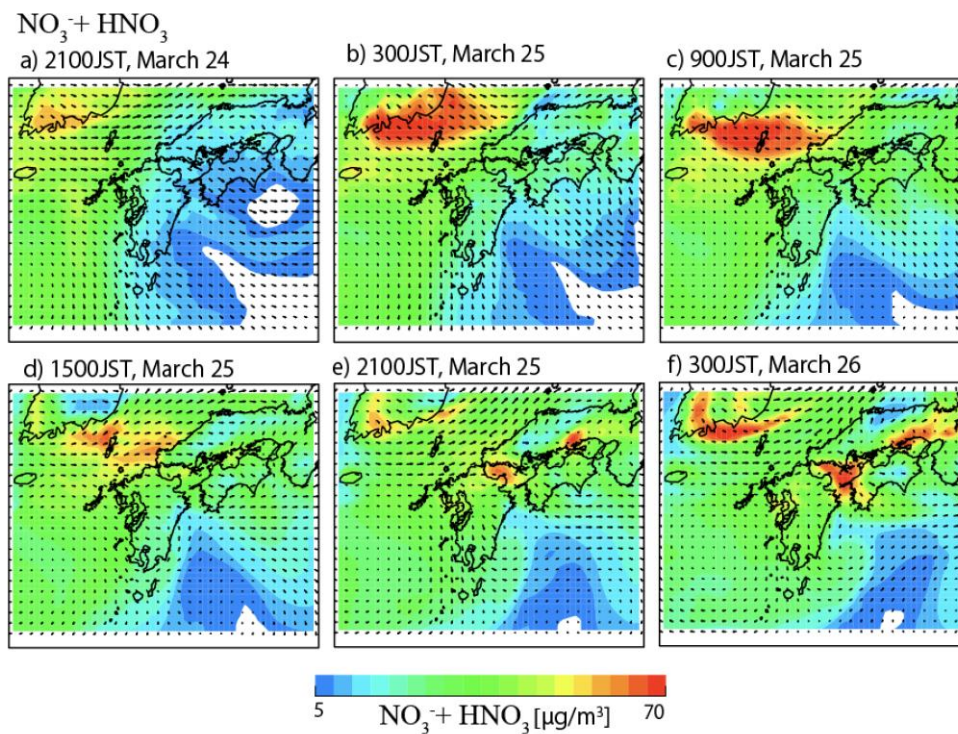


Fig.8 Modeled $NO_3^- + HNO_3$ concentration for Domain D02.

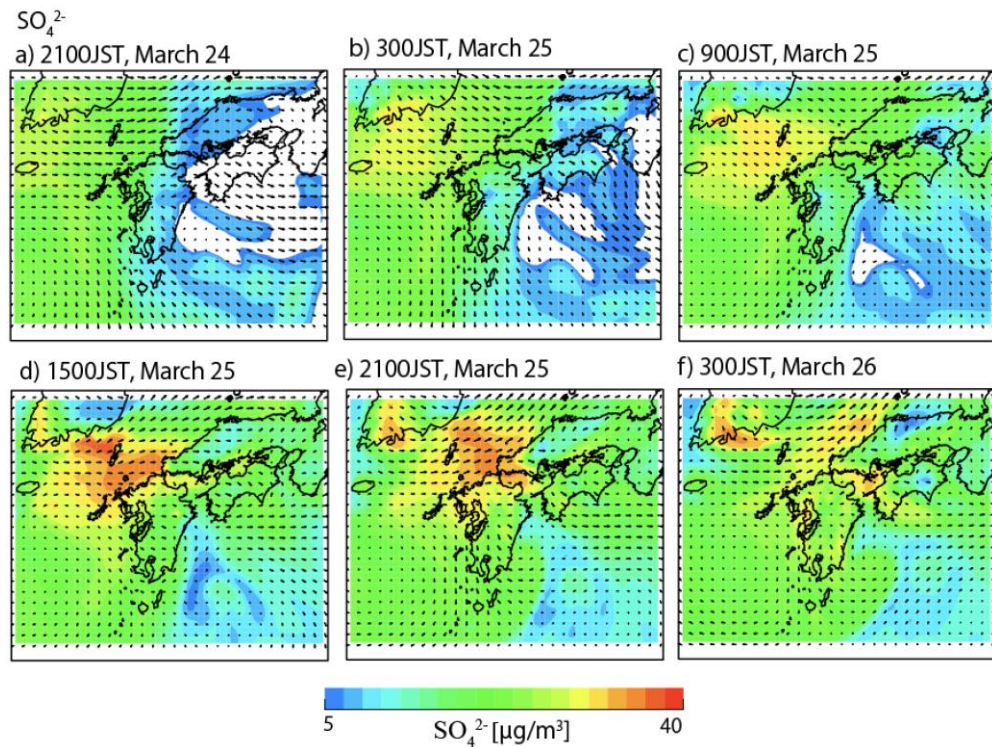
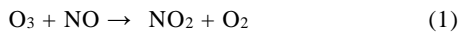


Fig.9 Modeled SO₄²⁻ concentration for Domain D02.

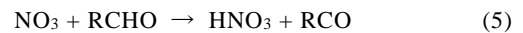
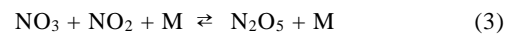
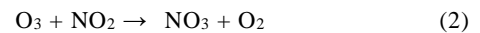
O₃については、24日15:00に中国大陸で高濃度となり、25日夜間3:00はNOによる分解の影響が少ない海上で高濃度を維持し、25日15:00には中国大陸で再び高濃度となり、海上に残っていたO₃と共に、朝鮮半島、日本へ流入した。この時、NOの一次排出源付近では、



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、D02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。



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

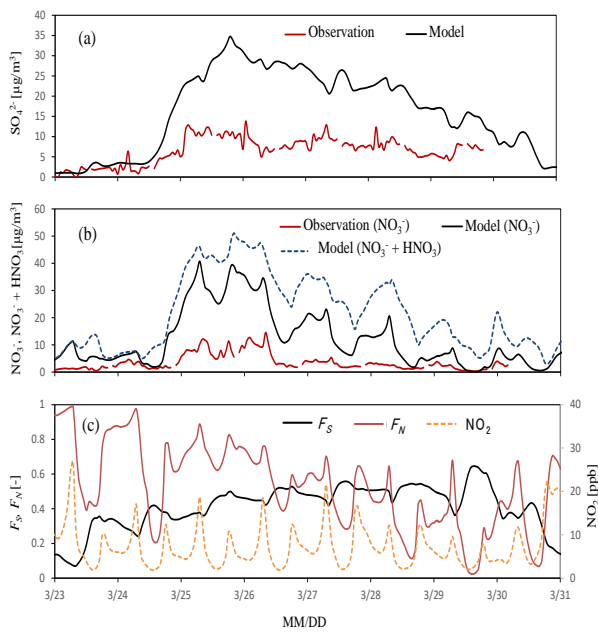


Fig.10 Observed and modeled concentration of (a) SO_4^{2-} , (b) NO_3^- , $NO_3^- + HNO_3$, (c) modeled F_S , F_N and NO_2 concentration

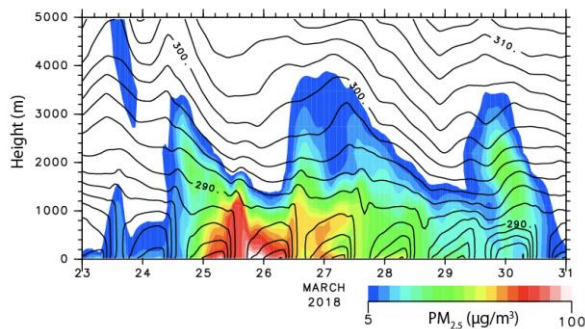


Fig. 11 Modeled $PM_{2.5}$ concentration and potential temperature profile at Dazaifu

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、 NO_3^- 濃度が大きく減少していた。一方、 SO_4^{2-} 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 NO_2 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 SO_2 の粒子化が、 F_N は NO_2 の粒子化が進むほど値は大きくなる。

$$F_S = \frac{[SO_4^{2-}]}{[SO_2] + [SO_4^{2-}]} \quad (6)$$

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

F_S 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 SO_2 が減少し、さらにそれまでに蓄積されていた SO_2 も、時間の経過と共に酸化され、 SO_4^{2-} を生成したためと考えられる。 F_N 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 NO_3^- 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 F_N , NO_2 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 NO_2 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 $PM_{2.5}$ 濃度および温度の鉛直分布を 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、 SO_4^{2-} については $(NH_4)_2 SO_4$ 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 NO_3^- は SO_4^{2-} と異なり、 NH_4NO_3 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、 SO_4^{2-} 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。

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

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

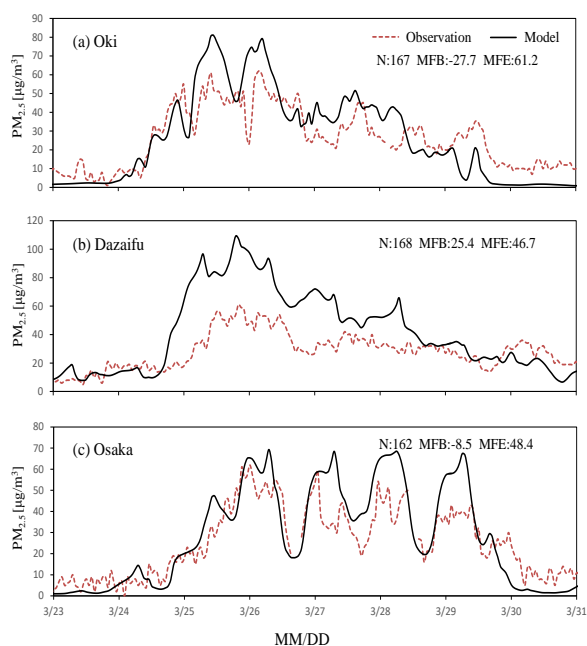


Fig. 12 Observed and modeled PM_{2.5} concentration for (a) Oki, (b) Dazaifu, (c) Osaka

ここで、 i は時間、 M_i は i 時におけるモデルの計算値、 O_i 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 $-200\% \sim +200\%$ 、MFE は $0\% \sim +200\%$ 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 $\leq +50\%$) と、それらへの適用が妥当とみなせる performance criteria (MFB $\leq \pm 60\%$ 、MFE $\leq +75\%$) 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PM_{2.5}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ベ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。

PM_{2.5}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PM_{2.5}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

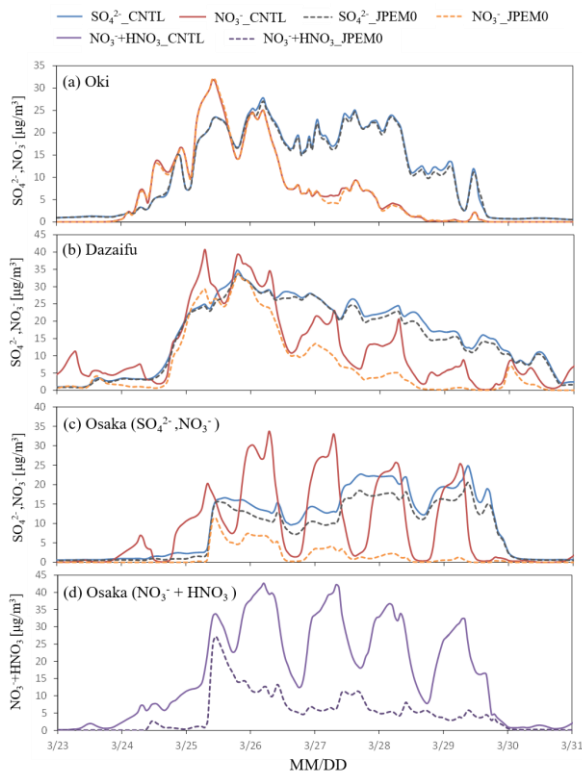


Fig. 13 Modeled concentration of SO_4^{2-} , NO_3^- for (a) Oki, (b) Dazaifu, (c) Osaka, and $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$ for (d) Osaka

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。

SO_4^{2-} 、 NO_3^- 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。 SO_4^{2-} は中国からの影響が大きく、 NO_3^- は韓国からの影響も大きかった。

O_3 と $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$ の濃度分布は、夜間から朝にかけては $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$ が高濃度となった領域で O_3 濃度は低くなり、日中は、 $\text{NO}_3^- + \text{HNO}_3$ と O_3 の高濃度領域がほぼ一致していた。このことから、 NO 、 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、 SO_4^{2-} と NO_3^- 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。 SO_4^{2-} 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 NO_3^- 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

- 1) Fu, X., Wang, S., Xing, J., Zhang, X., Wang, T., Gao, J.: Increasing ammonia concentrations reduce the effectiveness of particle pollution control achieved via SO_2 and NO_x emissions reduction in East China, *Environ. Sci. Tech. Lett.*, doi:10.1021/acs.estlett.7b00143, 2017.
- 2) 鶴野 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: PM_{2.5}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.
- 4) 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).
- 6) Byun D, Ching J: Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system. EPA/600/R-99/030, 1999.
- 7) 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.
- 8) 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.
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) (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.
- 12) 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.
- 13) 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/STOCK/monthly_v-act_doc/monthly_vact.php(2018.7.30アクセス).
- 16) 鶴野 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NO_x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.