

多波長ライダーによるエアロゾル濃度変動の検出と解析

高橋, 卓己
九州大学大学院総合理工学府大気海洋環境システム学専攻

<https://hdl.handle.net/2324/4372180>

出版情報：九州大学, 2020, 修士, 修士
バージョン：
権利関係：



令和 2 年度
九州大学大学院総合理工学府
大気海洋環境システム学専攻修士論文

多波長ライダーによるエアロゾル濃度変動
の検出と解析

氏 名 高橋 卓己

指導教員名 鵜野 伊津志 教授

—目次—

第 1 章	序論	・ ・ ・ 1
1.1	PM _{2.5} とは	・ ・ ・ 1
1.2	大気汚染物質排出量と越境大気汚染	・ ・ ・ 2
1.3	大気汚染物質環境基準と達成率の変化	・ ・ ・ 3
1.4	既往の研究	・ ・ ・ 6
1.5	COVID-19 による排出規制の影響	・ ・ ・ 7
1.6	本研究の目的と論文の構成	・ ・ ・ 8
第 2 章	観測機器及び方法とエアロゾルの特性	・ ・ ・ 9
2.1	ミー散乱ライダー	・ ・ ・ 9
2.1.1	ライダーの測定原理	・ ・ ・ 10
2.1.2	消散係数	・ ・ ・ 11
2.2	他の地上観測機器と数値モデル	・ ・ ・ 12
2.2.1	ACSA-14	・ ・ ・ 12
2.2.2	URG9000D	・ ・ ・ 13
2.2.3	化学輸送モデル	・ ・ ・ 14
2.3	大気エアロゾル	・ ・ ・ 15
2.3.1	散乱性エアロゾル	・ ・ ・ 17
2.3.2	黄砂	・ ・ ・ 19
2.3.3	黒色炭素(Black Carbon)	・ ・ ・ 20
2.4	2 章まとめ	・ ・ ・ 20
第 3 章	結果と議論	・ ・ ・ 21
3.1	観測条件	・ ・ ・ 21
3.2	福岡と福江島の比較	・ ・ ・ 21
3.3	高濃度時のエアロゾル組成とライダー消散係数	・ ・ ・ 25
3.3.1	2019 年と 2020 年のライダー観測	・ ・ ・ 25
3.3.2	2019 年と 2020 年の ACSA 観測	・ ・ ・ 27
3.4	ミーライダーと ACSA 観測の比較	・ ・ ・ 28
3.5	高濃度時の組成解析	・ ・ ・ 30
3.6	モデルとの比較と検討	・ ・ ・ 34

第4章 結言	・・・37
4.1 全体の総括	・・・37
4.2 今後の展望	・・・37
参考文献	・・・39
謝辞	・・・40

第1章 序論

本章ではPM2.5や越境大気汚染物質の基本的な性質や環境基準、中国で起きたCOVID-19による排出規制による影響を述べる。最後に本研究の目的とその構成を示す。

1.1 PM2.5とは

大気中を浮遊している粒子状物質(PM)の粒径は、多くが $0.001\sim 100\mu\text{m}$ の範囲内にある。そのうち、 $2.5\mu\text{m}$ 以下の微小粒子状物質のことをPM2.5という。PM2.5は、髪の毛の太さの約30分の1程度、スギ花粉の約12分の1程度と比べても非常に小さな粒子である。

PM2.5には様々な発生源があるため硫酸塩、硝酸塩などの塩類、ディーゼル排煙中のススのような黒色炭素、数千種類にも及ぶ有機化合物、金属成分など様々なものが含まれている。このうちPM2.5の主要な成分についての発生源と発生メカニズムについては2.3節の大気エアロゾルで詳しく述べる。

PM2.5は重力による沈降の影響もあまり受けなため、雨が降る場合を除いては大気中で数日から数週間にわたって滞留する。そのため高濃度汚染を引き起こしたり、長距離越境輸送(1.2節)の原因になっている。

PM2.5が我々の生活に及ぼす影響としては視程の悪化や交通障害、日射の遮蔽などの物理的な影響のほかに、前述したように非常に粒径が小さく、肺胞の奥まで入りやすいため、呼吸器系疾患や循環器系疾患のリスクを上昇させるなど健康への影響も挙げられる。そのため日本ではPM2.5と主要な成分について環境基準を定め継続的な観測が行われている。

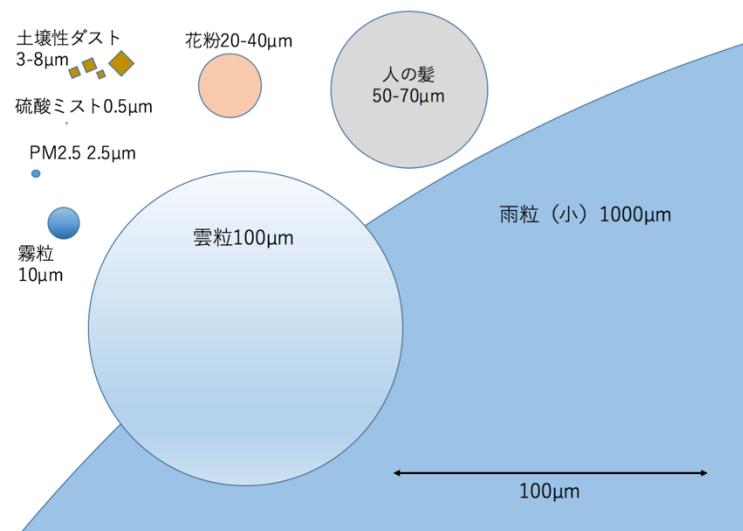


Fig1.1 PM2.5の大きさ比較

1.2 大気汚染物質排出量と越境大気汚染

越境大気汚染とは、大気汚染の原因物質が数百、数千 km の遠く離れた発生源から気流に乗って運ばれ国境を超えて飛来することである。ヨーロッパや北アメリカで 20 世紀中頃に越境大気汚染問題として硫黄酸化物(SO_x)や窒素酸化物(NO_x)が原因の酸性雨が大きな問題になった。イギリスやドイツの工業地帯から発生した汚染物質がスウェーデンやノルウェーに輸送されたことで多くの河川、湖沼で酸性化が進み水生生物に被害が現れた。同様のことはカナダと北アメリカでも起こり、五大湖周辺の工業地域から発生した汚染物質が問題になった。現在は汚染物質の排出量削減に関する協約が結ばれ、酸性雨のモニタリング、長距離輸送の解析、評価を行うことで改善されつつある。

アジア地域の国々は世界の 3 分の 1 強の人口を擁し、近年のめざましい経済活動に伴って大規模な工場地帯による硫黄酸化物(SO_x)と急速なモータリゼーションによる窒素酸化物(NO_x)の排出量がこの 60 年間で大幅に増加した。特に日本に飛来する越境大気汚染の主な発生源である中国に関して、アジアの排出量に対する中国の排出量は最大であるが近年は減少しており改善されていることが分かる。しかし、九州などの西日本で大気汚染物質濃度が比較的高い状況が続いていることから中国からの越境輸送は現在も起こっている。さらにタクラマカン砂漠やゴビ砂漠から発生する黄砂は偏西風によって日本にも飛来し、近隣国や発生源周辺の地域の農業生産や生活環境にしばしば重大な被害を与えている。

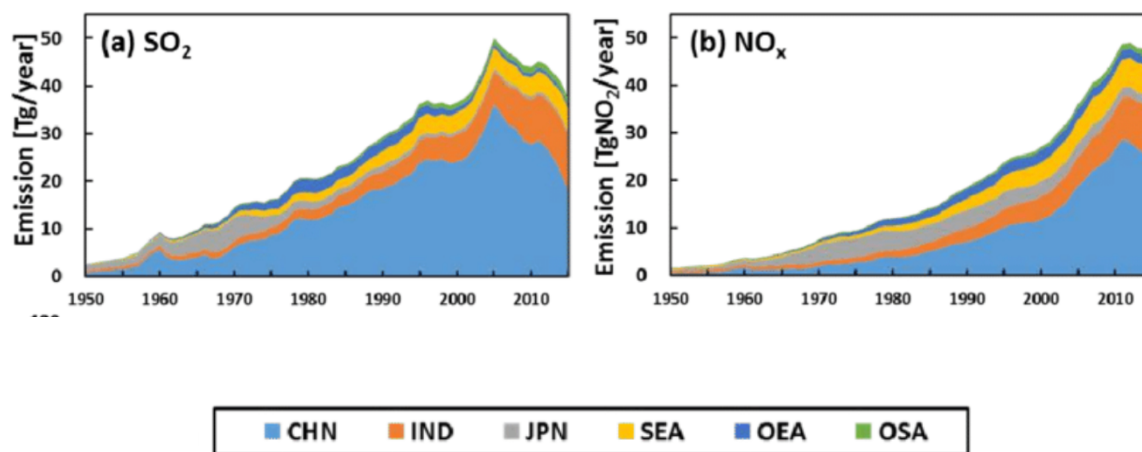


Fig1.2 1950 年～2015 年のアジア地域別(a) SO_2 (b) NO_x 排出量の年変化
(Kurokawa and Ohara 2019)

CHN = 中国, IND = インド, JPN = 日本, SEA = 東南アジア,
OEA = 中国と日本以外の東アジア, OSA = インド以外の南アジア

1.3 大気汚染物質環境基準と達成率の変化

前節までに述べたように大気汚染物質には様々なものがあり,人の健康に影響を及ぼす代表的な大気汚染物質に関して環境省が環境基準を定め,それらの濃度が環境中で環境基準値を超過しないように常時監視されている.

環境基準とは,環境基本法に基づき設定される,人の健康を保護し,及び生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準であり,Table 1.1 のように設定されている.

Table 1.1 大気汚染物質の環境基準

項目	環境基準
二酸化硫黄 (SO_2)	1 時間値の 1 日平均値が 0.04ppm 以下であり,かつ,1 時間値が 0.1ppm 以下であること.
一酸化炭素 (CO)	1 時間値の 1 日平均値が 10ppm 以下であり,かつ,1 時間値の 8 時間平均値が 20ppm 以下であること.
浮遊粒子状物質 (SPM)	1 時間値の 1 日平均値が $0.10\text{mg}/\text{m}^3$ 以下であり,かつ,1 時間値が $0.20\text{mg}/\text{m}^3$ 以下であること.
二酸化窒素 (NO_2)	1 時間値の 1 日平均値が 0.04ppm から 0.06ppm までのゾーン内又はそれ以下であること.
光化学オキシダント (Ox)	1 時間値が 0.06ppm 以下であること .
微小粒子状物質 ($\text{PM}_{2.5}$)	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.

また,これらの大気汚染物質は日本起源だけでなく,越境大気汚染物質として国境を越えて飛来するため近隣国の大気環境が日本に影響を及ぼしている.特に $\text{PM}_{2.5}$ の年平均濃度について,Fig.1.3 中に示すように,中国における SO_x , NO_x 等の排出量削減に伴う $\text{PM}_{2.5}$ 濃度減少に伴い,Table 1.2 より平成 25 年度以降,国内濃度も緩やかな低下傾向にある.環境基準達成率も急激に上昇し,平成 30 年度には一般局・自排局共に 90%を超えている.しかし,Fig.1.4 に示す平成 30 年度の全国における $\text{PM}_{2.5}$ 環境基準達成状況(環境省, 2018(a)) から,九州北部・瀬戸内・関東を中心に,環境基準非達成局が集中していることが判る.なお,環境基準は,短期基準は 1 日平均値が $35\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であること,長期基準は 1 年平均値が $15\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下であることと定められている.このことから引き続き環境基準の達成・維持に向けて,工場からの排出抑制対策,自動車排出ガス対策,低公害車の普及等を推進していく必要がある.

Table 1.2 環境基準達成率 [%] ((環境省, 2018(a)) をもとに作成)

		H19	H20	H21	H22	H23	H24	H25	H26	H27	H28	H29	H30
SO ₂	一般局	99.8	99.8	99.6	99.7	99.6	99.7	99.7	99.6	99.9	100	99.8	99.9
	自排局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
CO	一般局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	自排局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
SPM	一般局	89.5	99.6	98.8	93.0	69.2	99.7	97.3	99.7	99.6	100	99.8	99.8
	自排局	88.6	99.3	99.5	93.0	72.9	99.7	94.7	100	99.7	100	100	100
NO ₂	一般局	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	自排局	94.4	95.5	95.7	97.8	99.5	99.3	99.0	99.5	99.8	99.7	99.7	99.7
Ox	一般局	0.1	0.1	0.1	0	0.5	0.3	0.3	0	0	0.1	0	0.1
	自排局	3.3	0	0	0	0	0	0	3.6	0	0	0	0
PM _{2.5}	一般局				32.4	27.6	43.3	16.1	37.8	74.5	88.7	89.9	93.5
	自排局				8.3	29.4	33.3	13.3	25.8	58.4	88.3	86.2	93.1

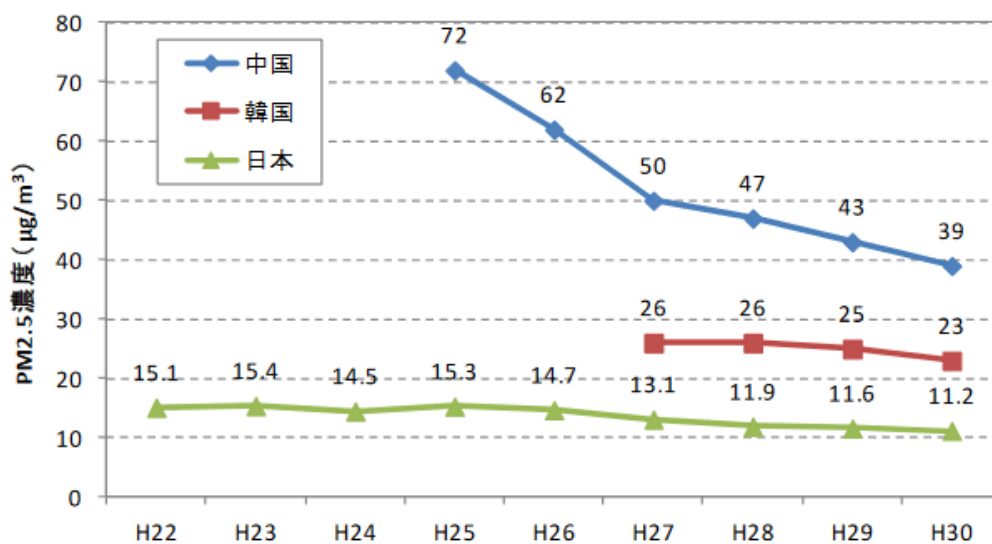


Fig.1.3 日中間の PM2.5 濃度の年平均値の推移 (環境省, 2018(a))

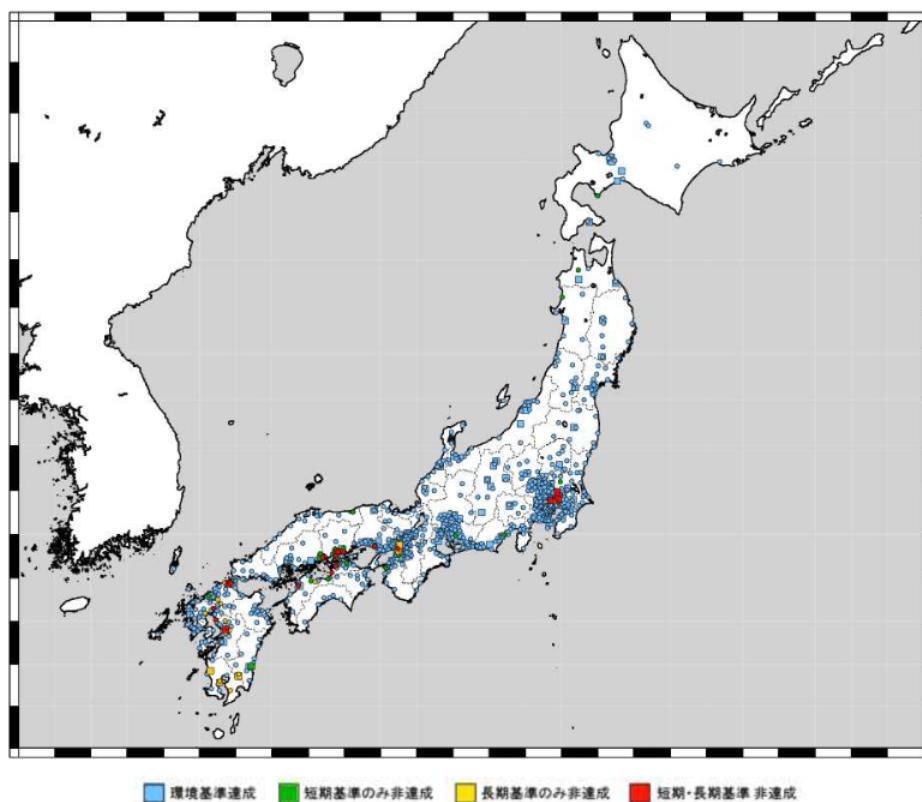


Fig.1.4 平成 30 年度の全国における PM2.5 環境基準達成状況
 (○：一般局,□：自排局) (環境省, 2018(a))

1.4 既往の研究

PM2.5 は様々な物質の混合体として存在しており,含有成分の中でも割合の高い成分としては, SO_4^{2-} と NO_3^- が挙げられる. SO_4^{2-} については,茶谷ら(2008) が,排出量を 50%増減させた感度解析の結果から,首都圏における 2000 年度の発生源寄与を推計している.その結果, SO_4^{2-} 濃度への越境汚染の寄与は年平均値の 58%,冬季は 80%近くにまで達していたことを示した.また,Aikawa et al. (2010) は 2003~2005 年度の日本全国 32 地点における観測結果を解析し,日本の SO_4^{2-} 濃度は中国からの越境汚染に起因して西から東に向けて減少する傾向にあることを示すとともに,ゼロアウト法を用いて,国外からの越境汚染の影響を算出し,越境汚染の日本の大気環境濃度への寄与は少なくとも 40%以上であることを示している.

一方, NO_3^- は,冬季~春季に高く,夏季に低い傾向がある.これは, NH_4NO_3 が常温で $\text{NH}_4\text{NO}_3 \rightleftharpoons \text{HNO}_3 + \text{NH}_3$ の平衡状態にあり,気温が上がると反応が右へ進み,粒子状 NO_3^- の濃度が低くなるためである.速水と藤田(2004) は,首都圏(東京都狛江市)における長期観測結果から, HNO_3 のガス-エアロゾル分配は明瞭な季節変化を示し,気相濃度は暖候期に 40~50%に達し,冬季は 5%以下となることを示している.また,粒子状 NO_3^- は地域汚染による影響が大きいと考えられてきたが,Itahashi et al. (2017)により,冬季の NO_3^- が越境汚染に起因していたことも報告されている.

1.5 COVID-19 による排出規制の影響

2019 年 12 月に中国の武漢で中国湖北省武漢市を発端とした COVID-19 の蔓延に対して、中国ではロックダウン(都市封鎖)や工場の操業停止という手段がとられ、移動交通手段は厳しく制限されることとなった。ロックダウンは 2020 年 1 月 23 日に湖北省武漢市周辺において開始され、25 日には全省で実施された。3 月上旬まで中国における経済活動は停滞したと考えられ、2020 年第一四半期の実質 GDP 成長率は 1992 年の統計公表後、初めてマイナスを示した(キャノングローバル戦略研究所,2020)。この間、人為起源大気汚染物質排出量は減少し、そのことに起因した大気質の改善事例が中国で報告され始めている。

越境大気汚染として影響を受ける日本の大気質(例えば,Uno et al.,2020) に対して,COVID-19 による中国における今までに類のない規模の排出量変化は大きく関わってくるものと考えられる。Fig1.5 は 2020 年 1 月 1 日から 20 日(ロックダウン前)および 2 月 10 日から 25 日(ロックダウン中)の中国全体の自動車、発電所、産業施設から排出される対流圏カラム中の NO_2 濃度を示している。データは,ESA の Sentinel-5 衛星の対流圏監視装置(TROPOMI)によって観測された。

このように大幅な排出量減少に伴って中国からの越境大気汚染物質の影響を受ける日本の大気環境は大きく変わることが予想されている。

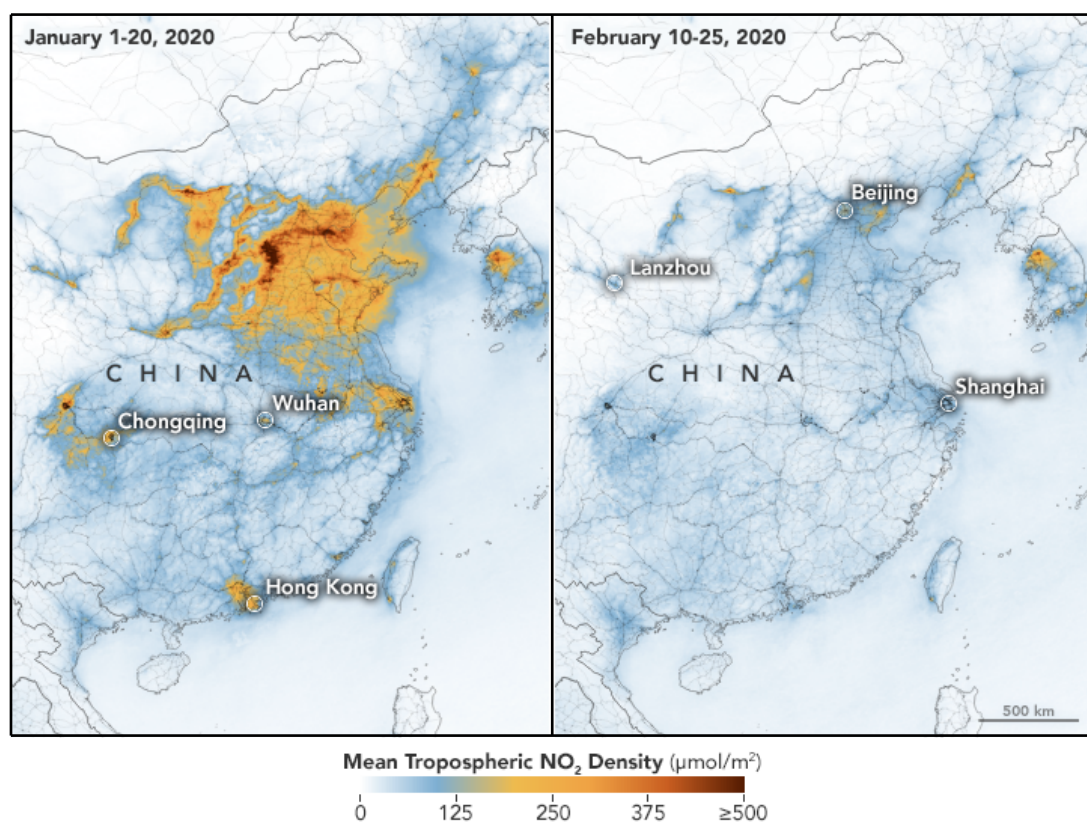


Fig1.5 ロックダウン前(左)とロックダウン後(右)の中国の NO_2 濃度変化(NASA HP)

1.6 本研究の目的と論文の構成

前節まで述べたように大気エアロゾルは気候変動、人体の健康に影響を与えており、エアロゾルは大気中で複雑に共存していることから成分ごとの鉛直分布の継続的な観測は重要となっている。そして 2020 年から現在まで蔓延している COVID-19 によって中国をはじめ世界中の大気環境は変わっている。

特に中国の大気汚染物質の越境輸送の影響を受けて福岡におけるエアロゾル濃度、組成は変化したと考えられる。そこで本研究では 2019 年と 2020 年のエアロゾル濃度、組成の変化を明らかにするとともに九州大学と福江島に設置したライダー観測によるエアロゾル種検出の妥当性も検証する。

本論文の構成について以下に示す。

第 2 章では、本研究で使用した観測機器及びエアロゾルの特性について、その測定原理やパラメータ特性、発生源や化学反応過程について述べる。

第 3 章では、観測データを利用して本研究の目的である 2019 年と 2020 年のエアロゾル濃度、組成を解析し、その結果について議論する。

第 4 章では、結果を総括し、本研究の結言とする。

第2章 観測機器及び方法とエアロゾルの特性

本章では本研究で使用した観測機器及び方法とエアロゾルの特性について、その測定原理やパラメータ特性、発生源や化学反応過程について述べる。

2.1 ミー散乱ライダー

ミー散乱ライダー(Light Detection and Ranging : LIDAR)は最も基本的なライダー手法である。パルスレーザーを送信し、後方散乱信号を受信する。測定されるのは後方散乱信号で、エアロゾル粒子によってミー散乱されたレーザー光が受信される。ここでミー散乱とは入射する電磁波の波長と粒子の半径が同程度の大きさであるときの散乱である。パルスレーザー送信から受信までの時間遅れから距離が特定され、その時間の信号強度からその高度の散乱強度の情報が得られ、エアロゾルの鉛直分布を観測することが可能である。

本研究では波長 532nm のレーザー光を送信し、地上で受信したミー散乱から 532nm の後方散乱係数と偏光解消度、消散係数を求めることが可能である。ライダーから得られるデータは高度ごとに抽出可能で分解能は 30m である。測定間隔は 15 分であり、5 分間の測定と 10 分間のインターバルを 24 時間繰り返している。

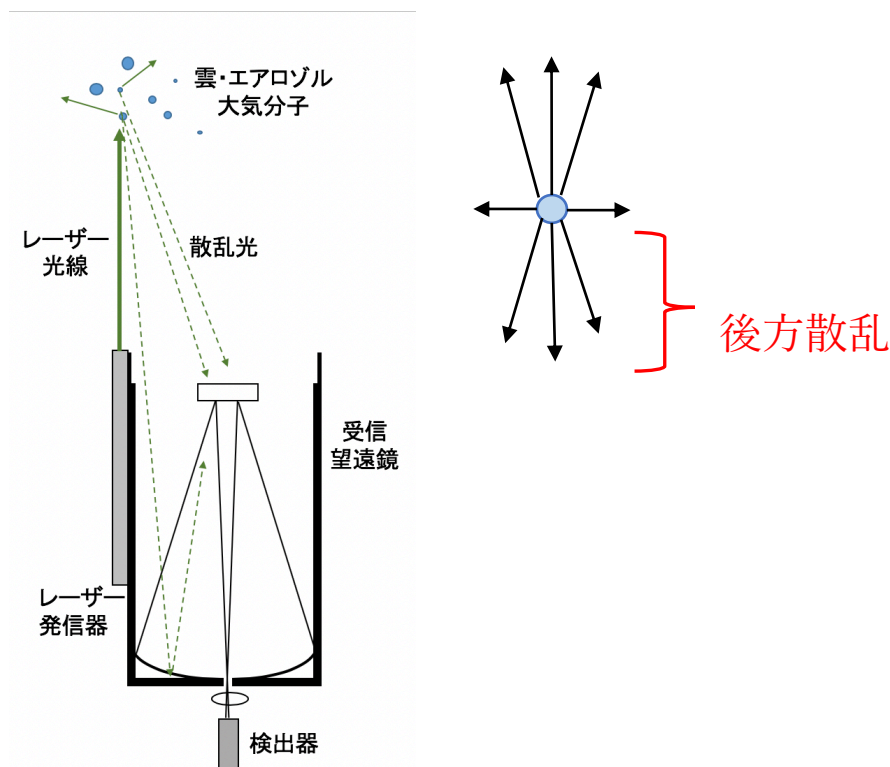


Fig2.1 ライダー装置の概略(環境儀 No.8,2003;5.5001)

2.1.1 ライダーの測定原理

受信した散乱強度から後方散乱係数や消散係数のパラメーターに変換するためにはライダー方程式 (2.1) を解く必要がある。

$$P(r) = CY(r) \frac{\beta(r)}{r^2} \exp\left(-2 \int_0^r \alpha(r') dr'\right) \quad (2.1)$$

ここで P は信号強度 (単位は W) , r はライダーから粒子までの距離 (m) , C は送信レーザー強度や受信望遠鏡の面積などを含むシステム定数である。 $Y(r)$ は幾何光学的効率因子 (単位なし) で送受信の視野の重なりなどによって送受信の光学的な距離が近距離で小さいことを示す。 $\beta(m^{-1}sr^{-1})$ で示される後方散乱係数は粒子の密度と粒径分布を推定するのに用いられ、粒子にぶつかった入射光がどれだけ跳ね返ってくるかを表す指標となっている。例えば後方散乱係数が大きければ粒子が多く存在することになり、1つの光路に存在する粒子の数は限られるため比較的小さい粒子が存在していると推測できる。 $\alpha(m^{-1})$ は消散係数を示し、散乱を受けるまでのレーザー光の減衰を示す。本研究では消散係数について着目しているため詳しい説明は次節で述べる。

ライダー方程式 (2.1) は後方散乱係数 β と消散係数 α の2つの未知数を含むので、 β と α の間に関係を仮定しなければこれを厳密に解くことができない。通常、 α は β に比例すると考え比例係数であるライダー比 ($S = \alpha / \beta$) の値を経験的に仮定して、 β と α を求める。

また、受信した散乱強度から得られる他のパラメータに偏光解消度がある。ライダーから送信されるレーザー光は完全に直線偏光しており、球形粒子にレーザー光が当たり散乱される光は偏光状態が保存されるが、粒子が非球形粒子の場合は偏光状態が保存されない。このように粒子にぶつかり散乱されることで偏光状態が保存されなくなることを変更が解消されるといい、その度合いを偏光解消度という。この偏光解消度からレーザー光に当たった粒子が黄砂などの非球形粒子や硫酸塩、硝酸塩などの球形粒子を分類している (Shimizu et al., 2004)。

本研究では波長 532nm のレーザー光から散乱強度を受信し、532nm の後方散乱係数、偏光解消度、消散係数のパラメーターが得られ、特に 532nm の消散係数に着目し、大気エアロゾルの検出と解析を行う。

2.1.2 消散係数

消散係数とはレーザー光が気体分子やエアロゾルなどの粒子にぶつかった際にレーザー光は吸収および散乱を受けて距離とともに減衰する,この吸収と散乱を合わせたトータルの減衰のパラメータである.エアロゾルの特性調査について非常に重要な役割を持っている.

また,ライダー方程式 (2.1) を解く際の未知変数となっているパラメータであり,消散係数を積分して求まる光学的厚さ(aerosol optical thickness; AOT)は衛星観測や地上におけるサンフォトメーター等による太陽直達光観測によって測定することができ,エアロゾルの分布や長期の変動の観測に用いられている.

Fig.2.2 は 2019 年 1 月の球形粒子の消散係数の鉛直分布を示しています.消散係数の値は図を見やすくするために常用対数をとっている.地上から 1km 付近の間では消散係数が高くエアロゾルが存在していることがわかる

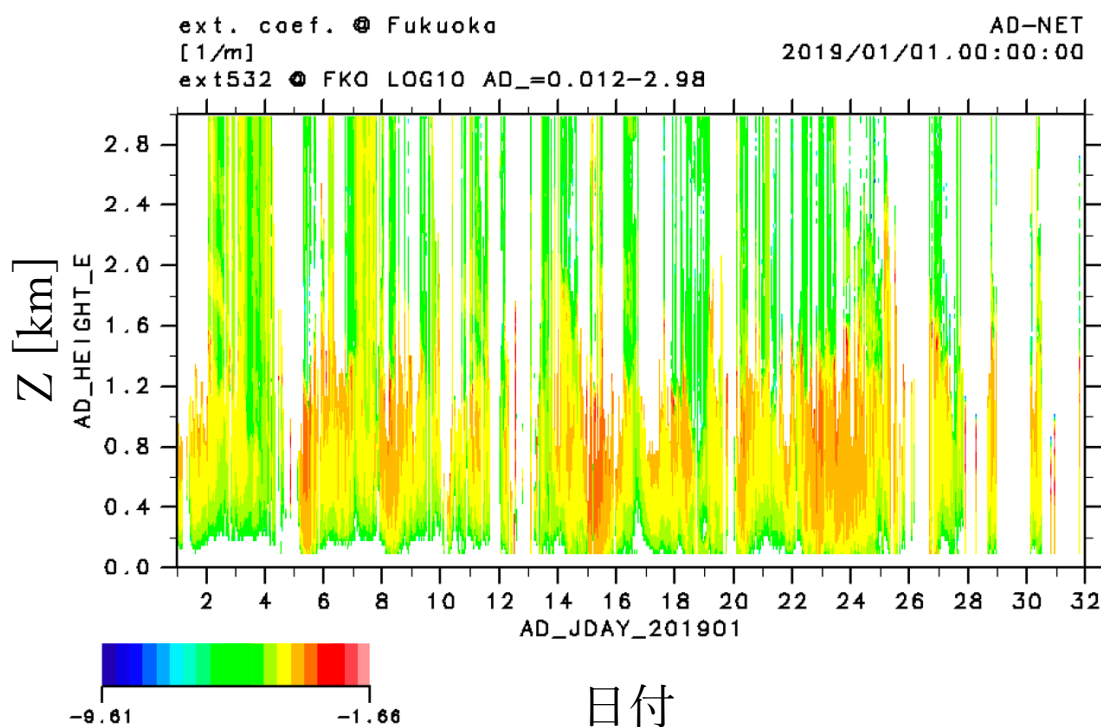


Fig.2.2 2019 年 1 月の球形粒子の消散係数鉛直分布

2.2 他の地上観測機器と数値モデル

多波長ミー・ラマン散乱ライダーのエアロゾル観測の妥当性と検出したエアロゾルの組成についてライダーの他にいくつかの測定機器や化学輸送モデルを用いて、各種エアロゾルの濃度変動の解析を行った。

2.2.1 ACSA-14

地上における PM2.5 や硫酸塩 (SO_4^{2-}), 硝酸塩 (NO_3^-) 濃度を測定するために福岡大学に設置されている ACSA(Aerosol Chemical Speciation Analyzer)-14 という大気エアロゾル化学成分自動分析装置を用いた.ACSA-14 では環境大気を PM10 インレットから捕集し,1 時間毎に PMf ($<2.5 \mu\text{m}$), PMc ($10\sim 2.5 \mu\text{m}$) をバーチャルインパクトで分粒した後, 1m^3 の大気中のエアロゾルをそれぞれフッ素樹脂フィルターに捕集している.硫酸塩は硫酸バリウムを生成させ散乱光を比濁法で, 硝酸塩と WSOC は紫外吸光光度法で計測している。



Fig2.3 ACSA-14 (福岡大学)(紀本電子工業株式会社)

2.2.2 URG9000D

URG 9000D(自動イオンクロマトグラフ装置)を用いて ACSA では計測できない NH_4 粒子を計測し,大気エアロゾルの組成を解析した.

URG 9000D では拡散デニューダを通し粒子状成分とガス状成分に分けて,イオンクロマトグラフにより各成分を分離し測定する.

デニューダとは,管の内側に酸やアルカリ等の気体を捕集する試薬を塗布し,その管の中に大気を通気して,ガス成分を捕集するものである.拡散しやすいガス成分は管内を通過中に内壁面に衝突するが,拡散しにくい粒子状成分は内壁面にほとんど衝突することなく通過する.ガス成分を効率よく捕集し,粒子状成分は 管の内壁にできるだけ衝突することがないように,デニューダの構造や通気量が設計されている.捕集したイオン成分を水溶液中に溶出し,イオンクロマトグラフによって計測する.



Fig2.4 URG9000D (URG Corporation)

2.2.3 化学輸送モデル

本研究では化学輸送モデルとして GEOS Chem ver.9.2 を使用した。モデル計算は、NASA GEOS FP 同化気象解析データを用いて、NO_x O_x VOC HO_x CO の詳細な化学反応過程を含む全球 2°×2.5°格子の計算結果を境界条件にし、アジア域を 0.5°×0.667°格子で一方向ネストにより計算した（計算領域は 70-150°E, 11°S-55°N）。モデルの計算領域の設定と基本計算条件は Uno et al. に報告したものと同一である。人為起源エアロゾルの粒径範囲は、1つの微小モードのみを扱っている。一方、黄砂は GEOS Chem では 4 ビン（有効半径は 0.73, 1.4, 2.4, 4.5 μm）の計算が可能である。モデルでは海塩（2 ビン）の発生と輸送も扱われている。

モデル計算は、REAS2.1（Regional Emission inventory in Asia）の排出量推計を用いた。REAS インベントリは 2008 年までしかないので、2009 年以降は MEIC 排出量推計 (<http://www.meicmodel.org>) と 2010 年までのエネルギー統計を利用して外挿した結果を用いた。一方、NH₄ の排出量は冬季に少なく、夏季に多い季節の変化を示す。このような季節変化を含む Huang et al. に一致するように REAS の補正した計算と Xu et al. の結果をもとに、さらにその 12 月から 2 月の中国の NH₃ 排出量を 2/3 に減少させた計算を行った。火山については気象庁の火山活動解説資料が利用できる場合はそれに基づき SO₂ 排出量を設定した (Uno et al., 2020)。

2.3 大気エアロゾル

大気エアロゾルとは、大気中に浮遊している固体または液体の個々の粒子を指すことが多いが、複数の粒子が混合して浮遊している状態にも用いる場合もある。Fig2.5 には地上から大気中に放出されるエアロゾル粒子、大気中で気体分子から生成するエアロゾル粒子の生成過程を模式的に示している。

エアロゾルはその生成機構に応じて一次粒子と二次粒子に分類される。一次粒子は発生源から大気中に直接放出されたもので、一次粒子の自然起源のエアロゾルには海上の波しぶきから生成される海塩粒子、強風により巻き上げられる粉塵や黄砂、森林火災からの粒子や花粉、火山噴煙中の粒子などが含まれる。人為起源ではディーゼル排ガス中の黒色炭素粒子や工場、自動車などからのスス、粉塵のように直接排出されるものがある。これに対して、二次粒子は地上から大気中に放出された気体が凝縮や化学反応などによって新たに生成されたものである。主に自然界や化石燃料の燃焼によって大気中に放出された硫黄酸化物や窒素酸化物、揮発性有機化合物などの気体成分が化学反応によって粒子化し二次粒子である硫酸塩や硝酸塩を形成する。

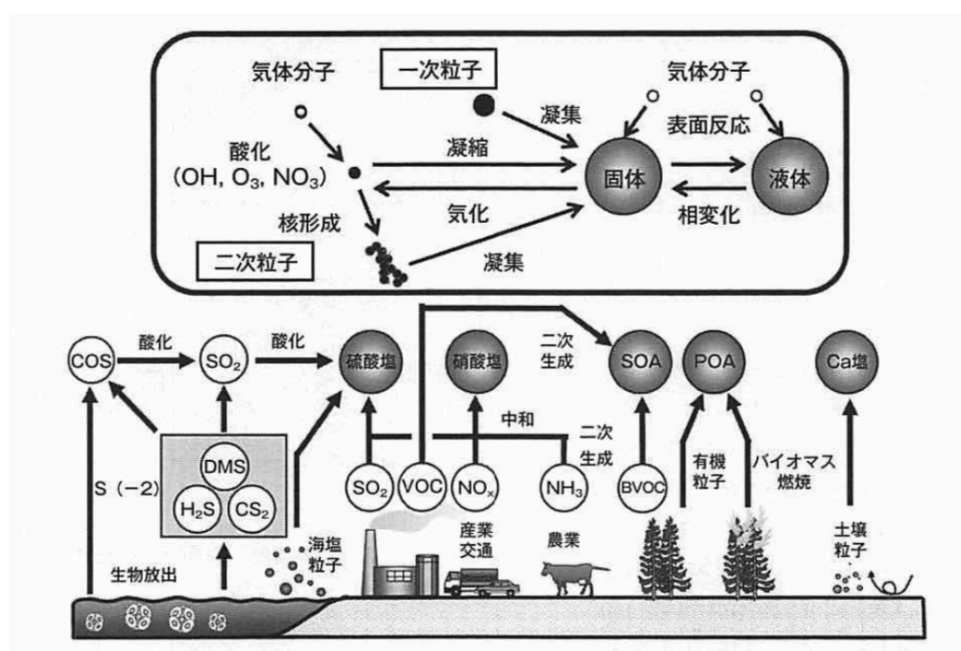


Fig2.5 主なエアロゾル粒子の発生源と生成過程(越境大気汚染の物理と化学 2017)

エアロゾルは大きさや形状も多様であり、大きさによって以下の3つのグループに分けられる。

- ・ エイトケン粒子もしくは核形成モード($0.001\sim0.08\mu\text{m}$)
- ・ 累積モード($0.08\sim2\mu\text{m}$)
- ・ 粗大モード($2\mu\text{m}$ 以上)

大きさに関して、粒径が大きいと粒子は風によって上空に輸送されにくく、沈降速度が大きいため大気中での寿命は短いなど、拡散や輸送においてエアロゾルの粒径は重要な要因となっている。エアロゾルの影響としては視程の悪化や交通障害、日射の遮蔽などの物理的な影響のほかに、粒径が小さく、肺胞の奥まで入りやすいため、呼吸器系疾患や循環器系疾患のリスクを上昇させるなど健康への影響も挙げられる。

また形状に関して、生成過程や含有物、相対湿度にも依存しており黄砂を除いて球形の形状をもつものが多い。

エアロゾルはさまざまな物理特性、化学特性を有するが重要な役割の1つに雲形成がある。硫酸塩、硝酸塩、海塩などの水溶性エアロゾルは液体の雲粒を生成(雲核形成)する雲凝結核(CCN ; Cloud Condensation Nuclei)として働き、黄砂などの鉱物粒子に代表される疎水性エアロゾルは固体の氷晶を生成(氷晶核形成)する氷晶核(IN ; Ice Nuclei)として働いている。また、このCCNが水雲に及ぼす影響について多くの研究がなされており、CCN数濃度の増加により雲が太陽放射をより強く散乱(反射)するアルベド効果をもたらしている。このようにエアロゾルは間接的に地球の気候変動に影響を及ぼしている。

一般的に日本で観測される主なエアロゾル成分は、硫酸塩、硝酸塩、黄砂、黒色炭素などである。このそれぞれの特性について次節で述べる。

2.3.1 散乱性エアロゾル

散乱性エアロゾルは太陽放射や赤外放射を散乱し大気系を冷却する効果をもち、大気汚染以外にも気候変動に影響を及ぼしている。本研究で主に着目した硫酸塩と硝酸塩は散乱性エアロゾルについて説明する。

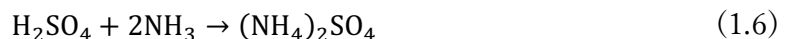
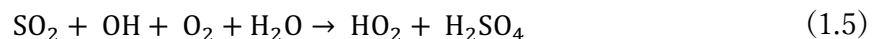
硫酸塩の生成について、石油や石炭などの硫黄分が含まれる化石燃料の燃焼によって二酸化硫黄(SO_2)が発生する((1.1)式)。気相では SO_2 が OHラジカルと反応し硫酸(H_2SO_4)が生成される((1.1-1.5)式)。さらに H_2SO_4 は大気中で NH_3 と反応し、硫酸アンモニウム塩(NH_4) $_2\text{SO}_4$ となって大気中に存在し長距離輸送される((1.6)式)。



気相でのOHラジカルとの反応が次のように起こる。



以上をまとめると



となる。

硝酸塩の生成について、自動車、なかでもディーゼル自動車から多く排出される窒素酸化物が大気中の O_3 や RO_2 ラジカルと反応して二酸化窒素(NO_2)になる。 NO_2 がOHラジカルと反応して硝酸(HNO_3)が生成される((1.7)式)。 NH_3 や海塩、鉱物粒子などと反応し硝酸アンモニウム塩(NH_4NO_3)などの粒子が生成される((1.8)式)。

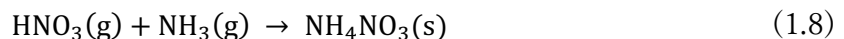


Fig2.6 に示すように硫酸塩と硝酸塩は先述でもあったように吸湿性があり雲形成の凝結核として働いており、水蒸気を多く含んでいるため丸みを帯びた形で大気中に存在している。

海洋大気中で計測される典型的なエアロゾルの質量濃度の粒径分布・成分分布は Fig2.7 の通りで2山型の分布を取り、その成分も粒径によって異なる。

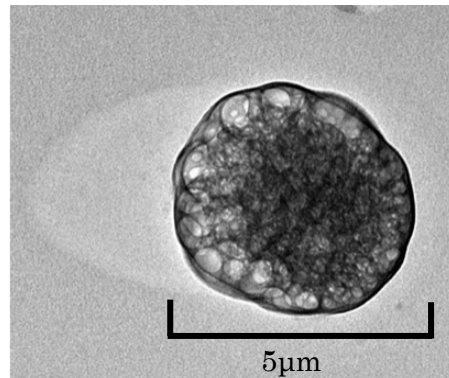


Fig2.6 硫酸塩(気象庁気象研究所)

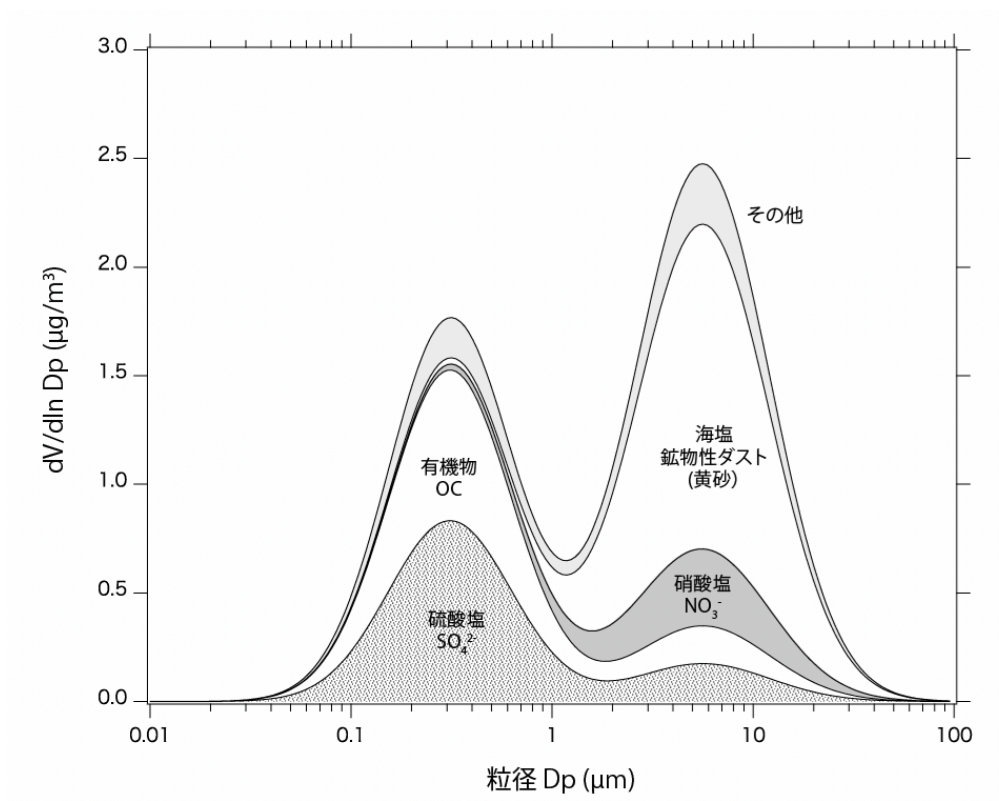


Fig2.7 典型的なエアロゾルの粒径分布と組成分布(Saltzman, 2009=4.1001 を改変)

2.3.2 黄砂

黄砂現象は乾燥地帯や黄土地帯から強風によって大気中に舞い上がった鉱物粒子が上空の風によって運ばれ浮遊しつつ落下する現象である。黄砂現象の発生やその程度は粒子の運動や地表面の状態(粒径, 土壌水分量, 積雪面など)や風の強さ, 上空の風の状態の影響が大きい。Fig2.8のように砂漠では大小様々な大きさの粒子で構成され, その形も尖ったものや平板状のものなど様々である。また, 発生した黄砂のうち粒径の大きなものは発生源近くで沈着し, 大気中から除去され, 日本に到達する黄砂の平均粒径は $4\text{ }\mu\text{m}$ 程度である。

黄砂は発生源周辺または日本などの近隣国の農業生産や生活環境, 人体的被害を与えることもある。また黄砂は長距離輸送することで水蒸気, 海塩, エアロゾル粒子, 化学物質(SO_x , NO_x), 酸性・アルカリ性ガスなどと混合し, 物理的性質(形状や粒径, 光特性)変化と化学的性質変化を引き起こす。

黄砂には炭酸カルシウムが含まれているため黄砂と雨が混合すると中和するので雨を中性またはアルカリ性に変化させ, 酸性雨の被害を軽減している。黄砂は氷形成の核となるので雲を形成し, 地球の雲の分布を左右することもあり, 森林や海上では太陽からの熱放射を遮蔽する冷却効果や氷河上では氷河からの熱放射を吸収し大気を温める温室効果がある。

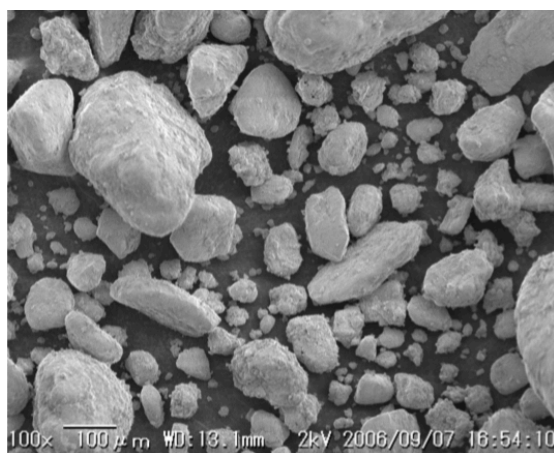


Fig2.8 砂漠で採取された土壌の電子顕微鏡写真(石塚正秀博士提供)

2.3.3 黒色炭素(Black Carbon)

Black Carbon(BC)はススや熱光学分析の際には EC(Elemental Carbon)と呼ばれており、炭化水素の不完全燃焼に伴い出てくる黒色炭素で、人為起源(ディーゼル自動車の排ガスや石炭燃焼など)および自然起源(森林火災などのバイオマス燃焼や焼畑など)から生成される。2000 年以前はバイオマス燃焼の割合が大きいアフリカや先進国のヨーロッパ、アメリカの排出量が多かったが、2000 年以降はアジアの排出量が増加しており特に中国とインドが排出の大きな割合を占めている。BC は数 10nm の多孔性の微粒子であり、PM2.5 サイズのため長距離輸送されやすく、呼吸器系などの健康への影響が懸念される。また BC は硫酸塩や硝酸塩などの散乱性エアロゾルとは異なり、光吸収性が高いため大気中で正の放射強制力を持ち、地球温暖化に影響を与えると考えられる(細長 2016)。

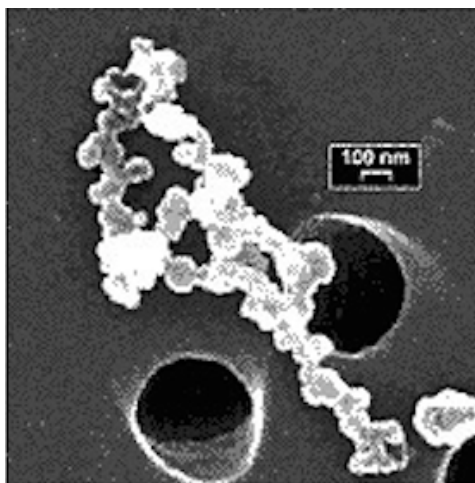


Fig2.9 スス粒子 (Hansler, 2005)

2.4 2 章まとめ

本研究で使用したミー散乱ライダーの概要と測定方法を述べ、受信した散乱強度から 532nm の消散係数のパラメータへの変換方法とその特性について説明した、他の観測機器として ACSA-14 と URG9000D、化学輸送モデルの測定原理や計算方法について述べた。また日本で観測される主なエアロゾル成分の発生源や特性について述べた、

第3章 結果と議論

本章ではライダーと ACSA から得られた観測データを利用して本研究の目的である 2019 年と 2020 年のエアロゾル濃度, 組成の変化について述べる.

3.1 観測条件

ライダー観測から得られた粒子の消散係数 [1/km] は望遠鏡の焦点距離を考慮して地上 150m~1000m の範囲で観測し, 30m ごとの層の平均値を対象期間内でさらに日平均した数値である. また本研究の対象物質であるエアロゾルは硝酸塩と硫酸塩である. これらは球形粒子であるため球形粒子の消散係数をライダーで観測した. また, 消散係数が $1.0[\text{1/km}]$ 以上の時は欠損値とした. これは雲の検出データを取り除くためである.

ACSA 観測では 1 時間あたりの各エアロゾル濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] を日平均した数値である.

観測対象期間は 2019 年 1 月 1 日~3 月 31 日, 2020 年 1 月 1 日~3 月 31 日である. また中国のロックダウン(2020 年 1 月 25 日実施)の影響を確認するために 1 月 1 日~3 月 31 日の前半と後半の各年の変動について着目した.

観測地点についてライダー観測は福岡 (九州大学) また五島 (福江島) である. エアロゾル濃度観測は福岡 (福岡大学) また五島 (福江島) である.

3.2 福岡と福江島の比較

本研究の中心である福岡での 2019 年と 2020 年の変動を解析する前に各年の変動が中国の影響ではなく福岡での人為起源の排出物が観測に影響を与えている可能性がある. そのため人為起源排出量が少なく福岡に近い観測地点である福江島と比較することで, 福岡でのエアロゾル濃度変動の原因が福岡起源のものなのか中国起源であるかを明らかにする.

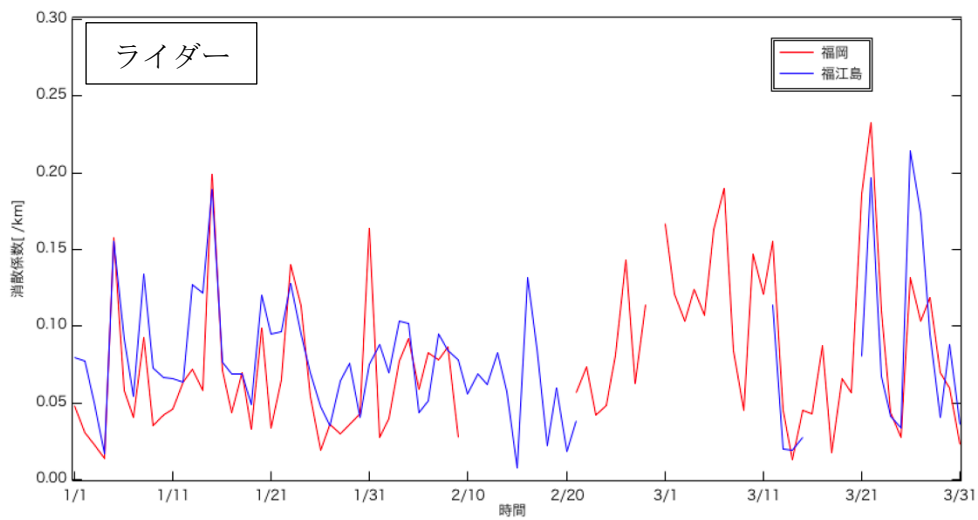


Fig3.1 2019 年福岡と福江島の球形粒子の消散係数日平均値

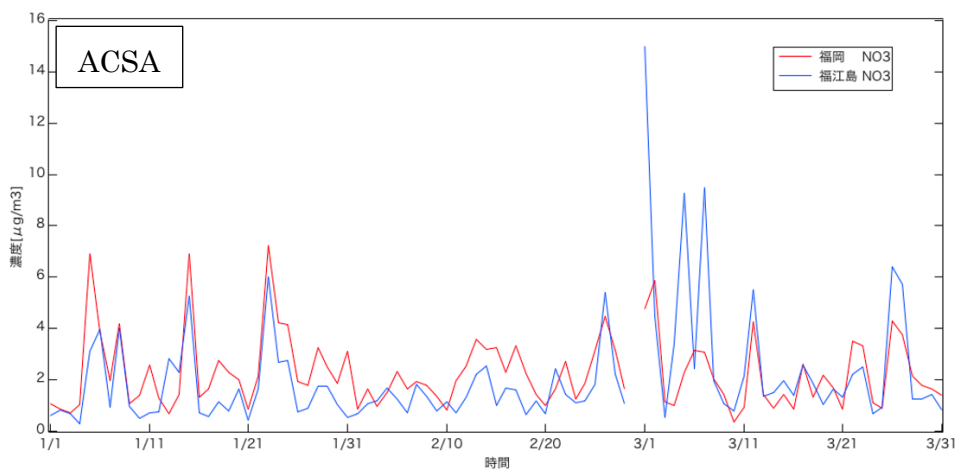


Fig3.2 2019 年福岡と福江島の NO_3^- 濃度 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 日平均値

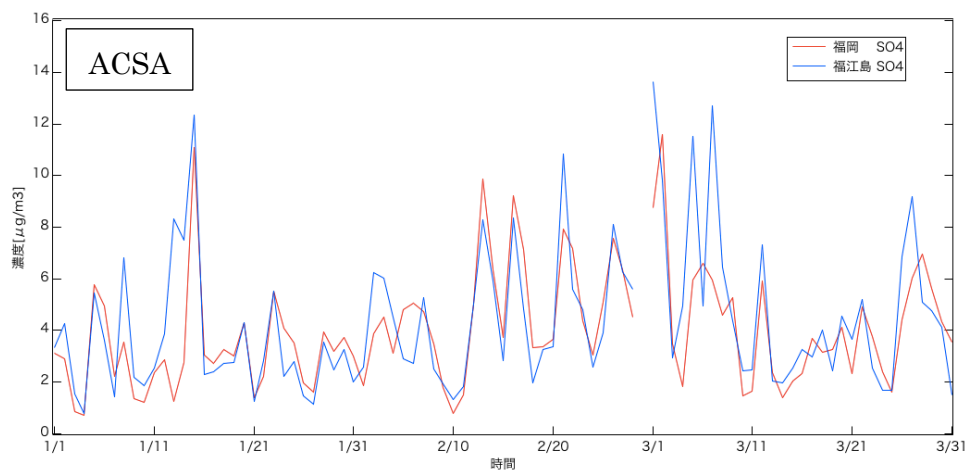


Fig3.3 2019 年福岡と福江島の SO_4^{2-} 濃度 $[\mu\text{g}/\text{m}^3]$ 日平均値

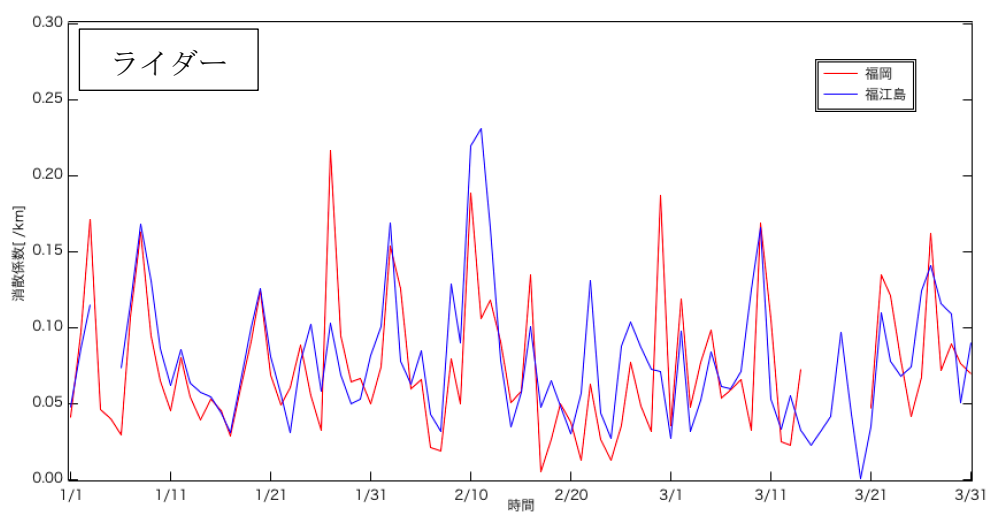


Fig3.4 2020 年福岡と福江島の球形粒子の消散係数[/km]日平均値

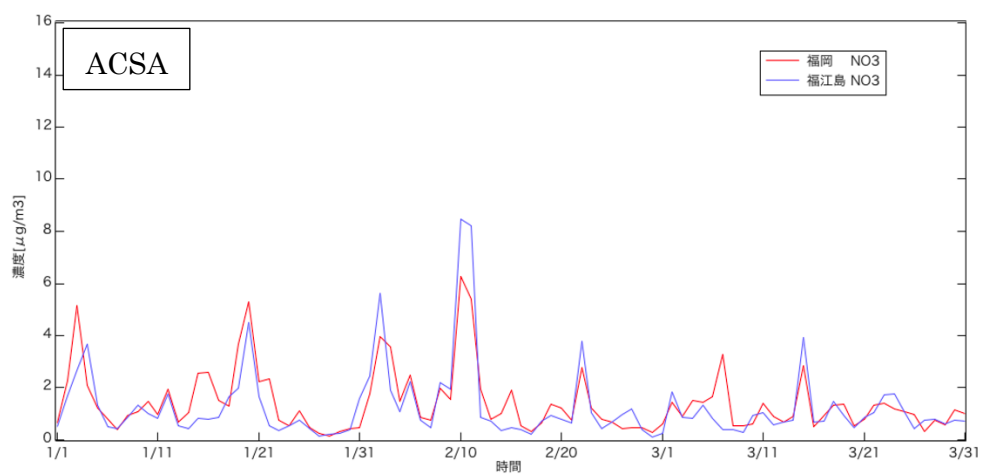


Fig3.5 2020 年福岡と福江島の NO₃⁻濃度[μ g/m³]日平均値

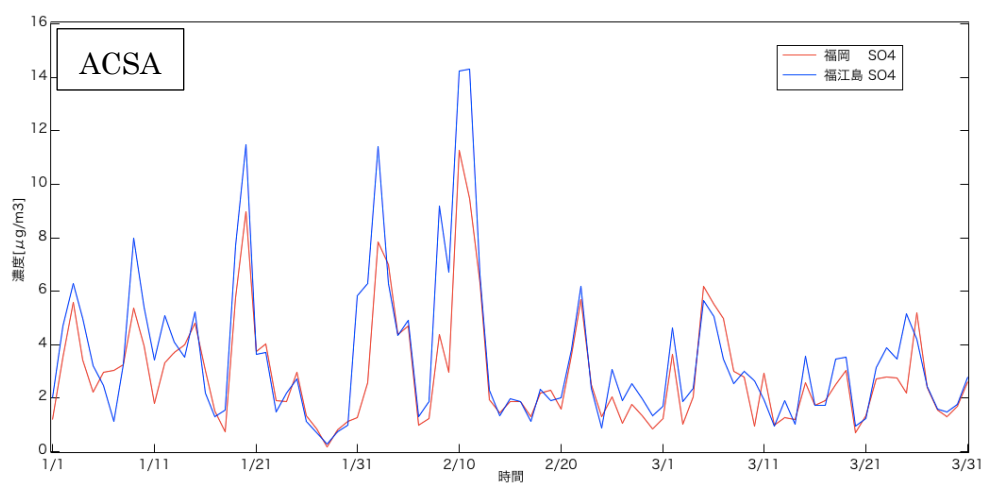


Fig3.6 2020 年福岡と福江島の SO₄²⁻濃度[μ g/m³]日平均値

Fig3.1 と Fig3.4 のライダー観測では福岡と福江島では消散係数は大きな差はない.2019 年の相関係数は 0.71,2020 年の相関係数は 0.65 であることから福岡と福江島では球形粒子の濃度変動は同期していると言える.

Fig3.2 と Fig3.5 の NO_3^- 濃度は全体的に福江島より福岡の方が少し高く,濃度変動は同期している.福岡での自動車や工場の NO_x の排出量が影響していると考えられる.Fig3.3 と Fig3.6 の SO_4^{2-} 濃度は全体的に少し福岡より福江島の方が高く,濃度変動は同期している.福江島は中国に福岡より近いので中国の排出量の影響を受けていると考えられる.

この結果から福岡と福江島で観測値の変動は同期しており,ACSA 観測で得られた NO_3^- 濃度と SO_4^{2-} 濃度も大きな差がないことから福岡で 2019 年と 2020 年の観測値に大きな変動があった場合,それは中国起源の人為的排出物の影響を受けることになる.

3.3 高濃度時のエアロゾル組成とライダー消散係数

2019 年と 2020 年の福岡のライダーと ACSA の時系列からロックダウン前後で消散係数や濃度にどのような変化があったのかを調べ、大気汚染粒子である硫酸塩、硝酸塩が飛来したと思われる高濃度時の値を検出する。この高濃度時の組成を URG を用いて解析する。

3.3.1 2019 年と 2020 年のライダー観測

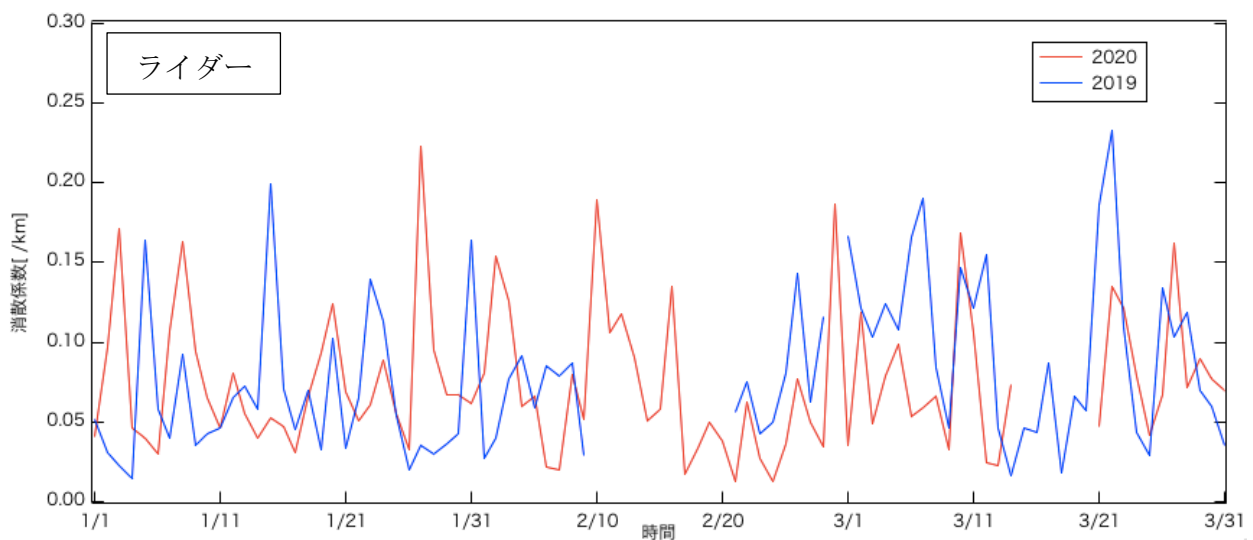


Fig3.7 2019 年と 2020 年 球形粒子の消散係数の日平均値推移

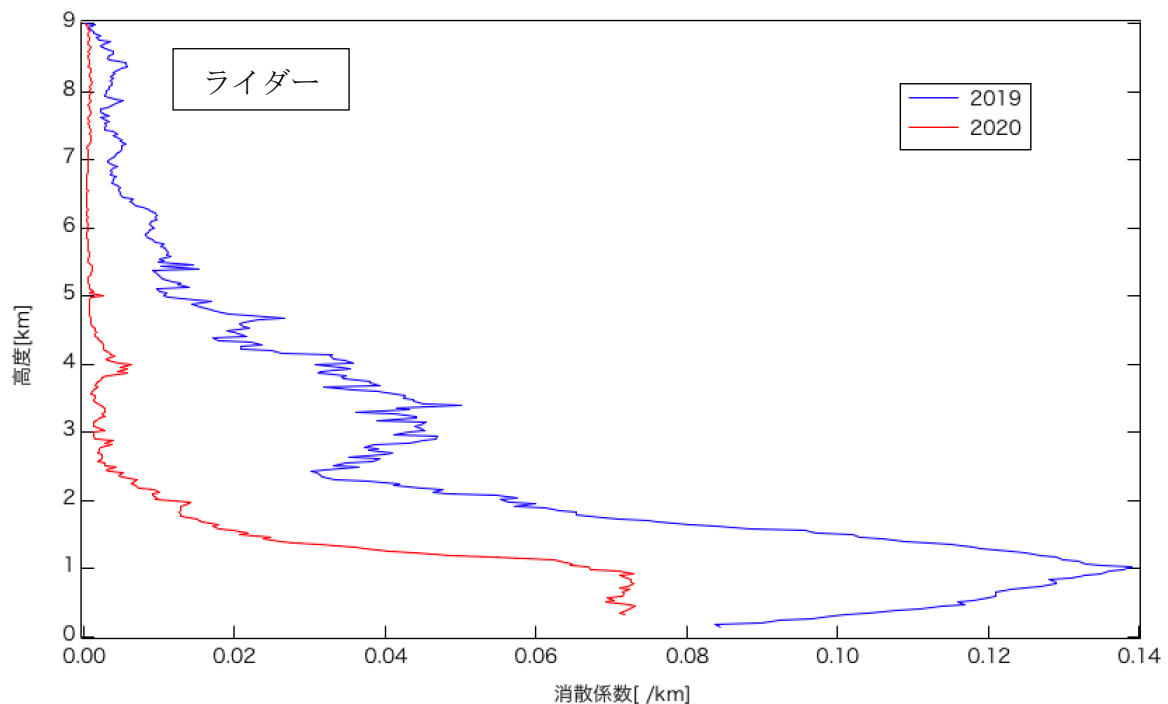


Fig3.8 2019 年 3 月と 2020 年 3 月 球形粒子の消散係数の鉛直分布

Fig3.7 についてロックダウンの影響をあまり受けていない 2 月 10 日以前は 2019 年と 2020 年で値の大きさに差が見られない。しかしロックダウンの影響を受けたと思われる 2 月 20 日以降はほとんどの日で 2020 年が 2019 年を下回っている。このことから特にロックダウンによる日本の大気環境に変化があったと思われる 2019 年と 2020 年の 3 月の消散係数の鉛直分布を Fig3.8 に示す。観測した全ての高度で 2020 年が 2019 年を下回っている。また本研究で検出した高度 0.15~1.0km について消散係数が大きい。特に 1.0km 付近で最も消散係数が大きくエアロゾルが最も存在しており、1.0km 付近では 2020 年が 2019 年の約半分になっていることが分かる。

これらのライダー観測の結果から 2020 年は中国のロックダウンによる大気汚染物質排出量減少の影響を受けて日本の大気環境では硫酸塩や硝酸塩などの球形粒子エアロゾル濃度は低くなったことが明らかになった。

3.3.2 2019 年と 2020 年の ACSA 観測

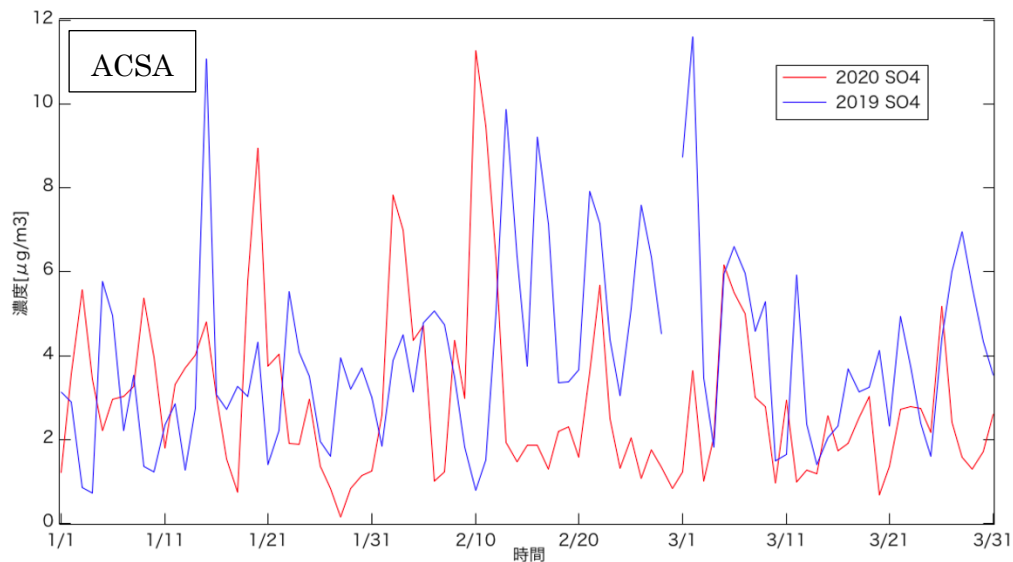


Fig3.9 2019 年と 2020 年 SO_4^{2-} 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値推移

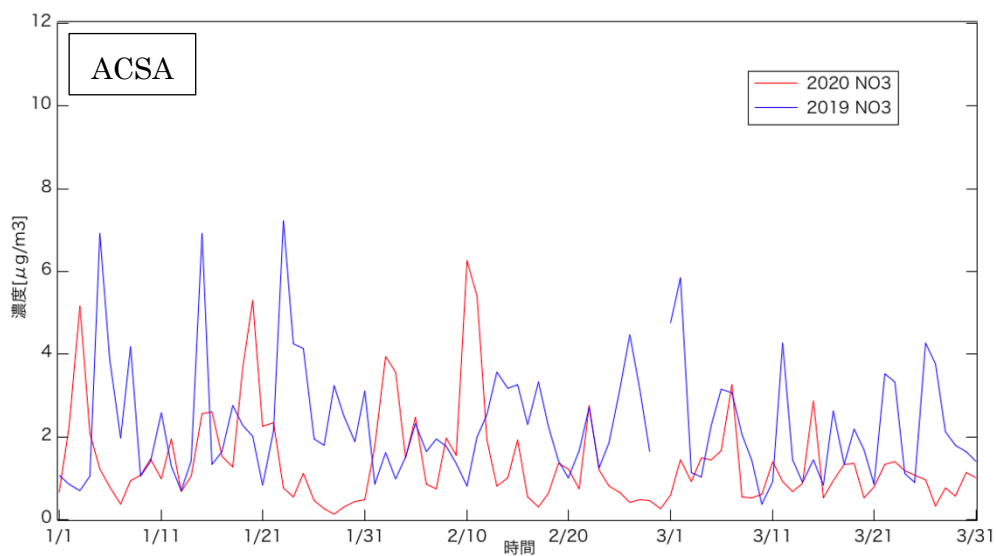


Fig3.10 2019 年と 2020 年 NO_3^- 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値推移

Fig3.9 と Fig3.10 について SO_4^{2-} と NO_3^- とともにライダーと同じく後半で 2020 年が 2019 年を下回り、ロックダウンの影響を受けていることが分かる.特に NO_3^- では 2020 年の後半では高濃度の回数が前半と比べて少なく濃度の値が $4\mu\text{g}/\text{m}^3$ を超える日はなかった.また SO_4^{2-} について 2020 年の 2/10~2/11 はロックダウン後も関わらず濃度が高い.これは越境によるものではなく日本の火山の影響が大きいと考えられる.

3.4 ミーライダーと ACSA 観測の比較

ライダーと ACSA の相関を調べ、ライダーによるエアロゾル種検出の妥当性を検証するとともにその相関が 2019 年と 2020 年、また観測期間の前半(1/1~2/14)と後半(2/15~3/31)にどのような変化があったかを明らかにする。

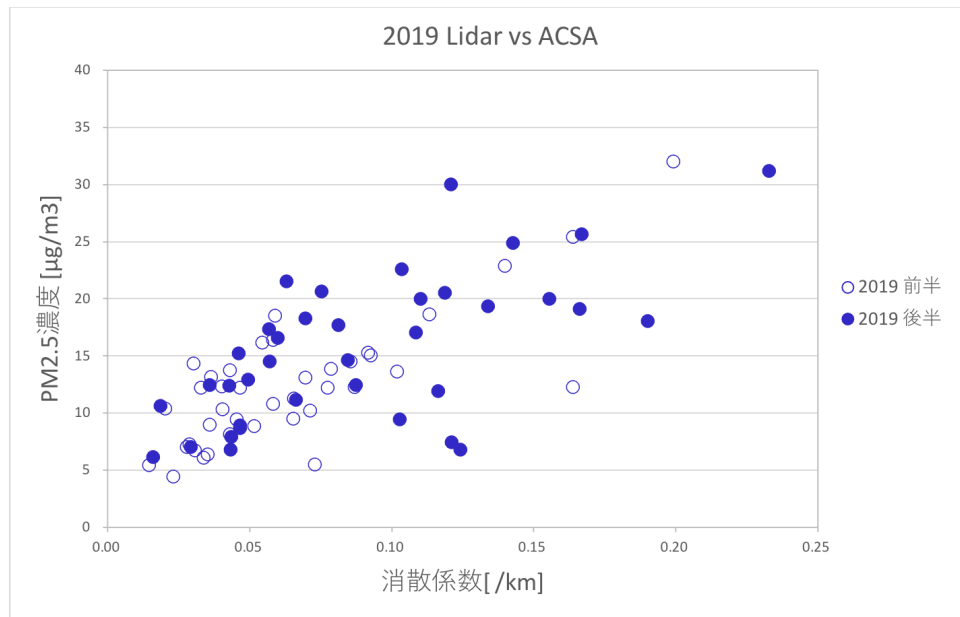


Fig3.11 2019 年の消散係数と PM2.5 の散布図

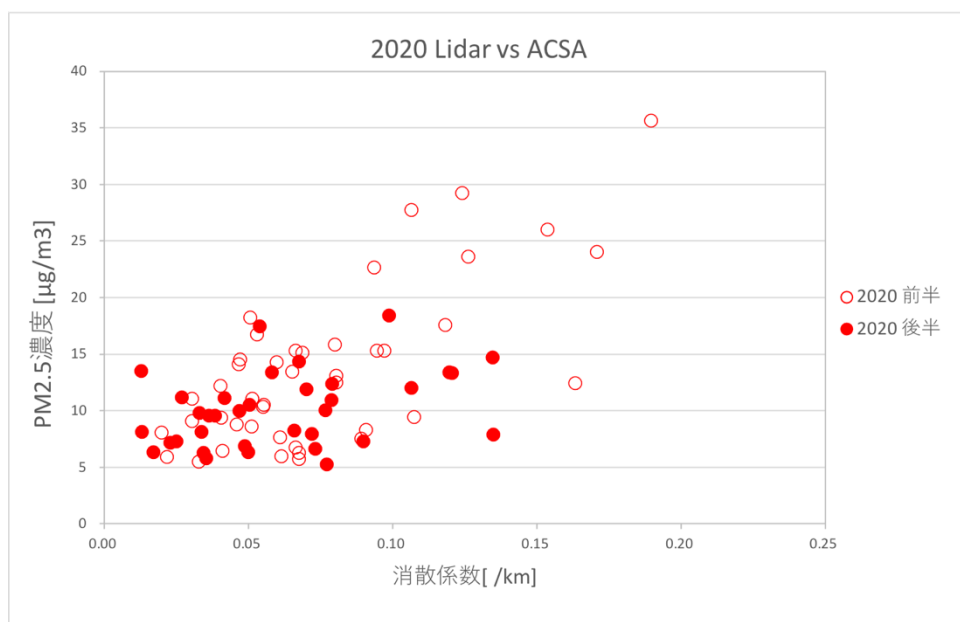


Fig3.12 2020 年の消散係数と PM2.5 の散布図

2019 年と 2020 年の相関係数は 0.72 と 0.63 であった.相関係数は下がったが概ね相関がありライダーと ACSA の PM2.5 には高い相関がありライダーによるエアロゾル種検出は妥当であると言える.

2019 年と 2020 年では散布図に違いが見られ 2019 年はばらつきがあるのに対して 2020 年の後半の値が左下に寄っている.2020 年後半の散布図の変化と相関係数が 0.72 から 0.63 に下がったことについて 3.1.1.のライダーや 3.2.2 の ACSA 観測結果からも分かるようにライダーと ACSA で観測した粒子が 2020 年後半に減少したことが原因であり,また大気環境の濃度低下したためと考えられる.

3.5 高濃度時の組成解析

ACSA の SO_4^{2-} 濃度が $5.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上の日を高濃度日と定め、2019 年と 2020 年でロックダウンによって越境大気汚染物質の組成変化を明らかにする

Fig. 3.13 に中国の旧正月(春節)時の地上の NO_2 濃度 (約 1500 局) の 2015~2019 年の平均値とロックダウンの影響を受けた 2020 年の平均値の比較を示す(Wang et al, 2021). 春節による NO_2 濃度の低下は例年 2 週間程度である (図中の点線) が, 2020 年は 50 日以上 (3 月末まで) に及び (図中の実線), 春節前と比較した濃度の減少率は 2015~2019 年の平均値に比較して最大で 40% 減少になっている.

ロックダウン前後の 2 期間を設定する. また今年はロックダウンにより春節の時期が異なる (2019 年春節 2/5~2/10, 2020 年春節 1/25~1/30). Fig3.13 より春節時の NO_3^- と SO_4^{2-} の排出量減少を考慮して春節間とその前後 5 日間を除いた.

設定したロックダウン前後の期間

- ・前半 2019/1/1~1/25 2020/1/1~1/19
- ・後半 2019/2/16~3/31 2020/2/5~3/31

設定した各期間の高濃度時の SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+ 粒子の濃度を URG で測定し各期間で平均し, URG で測定した粒子 (SO_4^{2-} , NO_3^- , NH_4^+) 中の各粒子の割合を Fig3.14 と Fig3.15 の円グラフにまとめた. また ACSA で観測した SO_4^{2-} が高濃度時 ($5.0 \mu\text{g}/\text{m}^3$ 以上) の日数とその時の SO_4^{2-} と NO_3^- の平均値を Table3.1 と Table3.2 に示す.

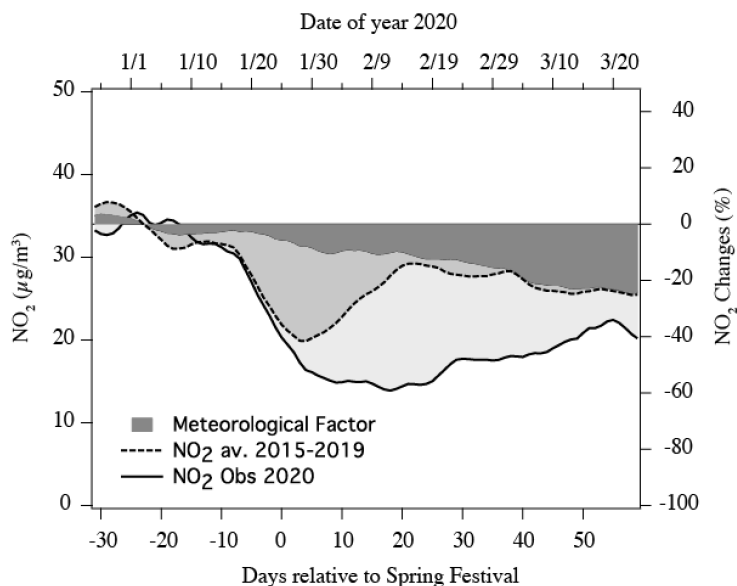


Fig3.13 2020 年の NO_2 濃度と 2015~2019 の NO_2 平均濃度

2020 年の表面 NO_2 濃度と 2015~2019 年の平均濃度(11 日移動平均; $\mu\text{g}/\text{m}^3$)で, X 軸は各年の旧正月の日を基準としています. 図中の気象要因とは, 気象要因による濃度の変化を指す.

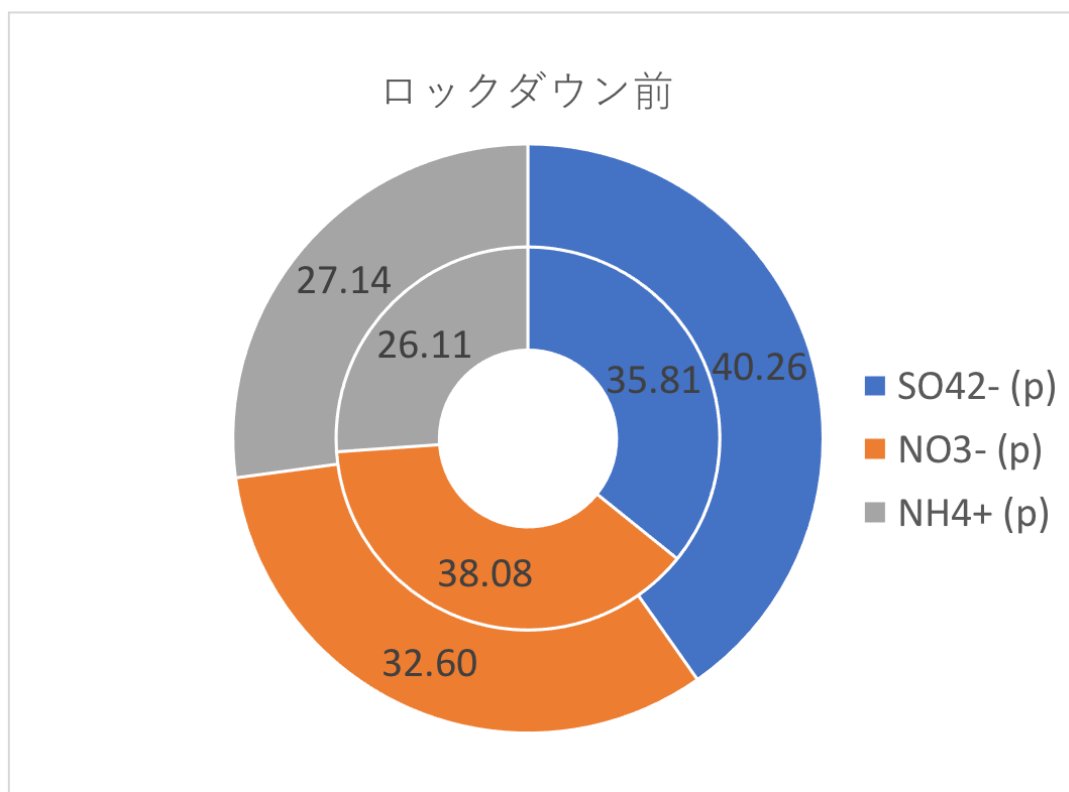


Fig3.14 ロックダウン前の 2019 年と 2020 年のエアロゾルの組成割合 (内円 2019 年 外円 2020 年)

Tabale3.1 ロックダウン前の ACSA SO₄²⁻高濃度時の日数とその時の SO₄²⁻と NO₃⁻の平均値

ロックダウン前	高濃度日数	ACSA	
		SO ₄ ²⁻ [μg/m3]	NO ₃ ⁻ [μg/m3]
2019	3 回	7.46	7.02
2020	3 回	5.58	3.31

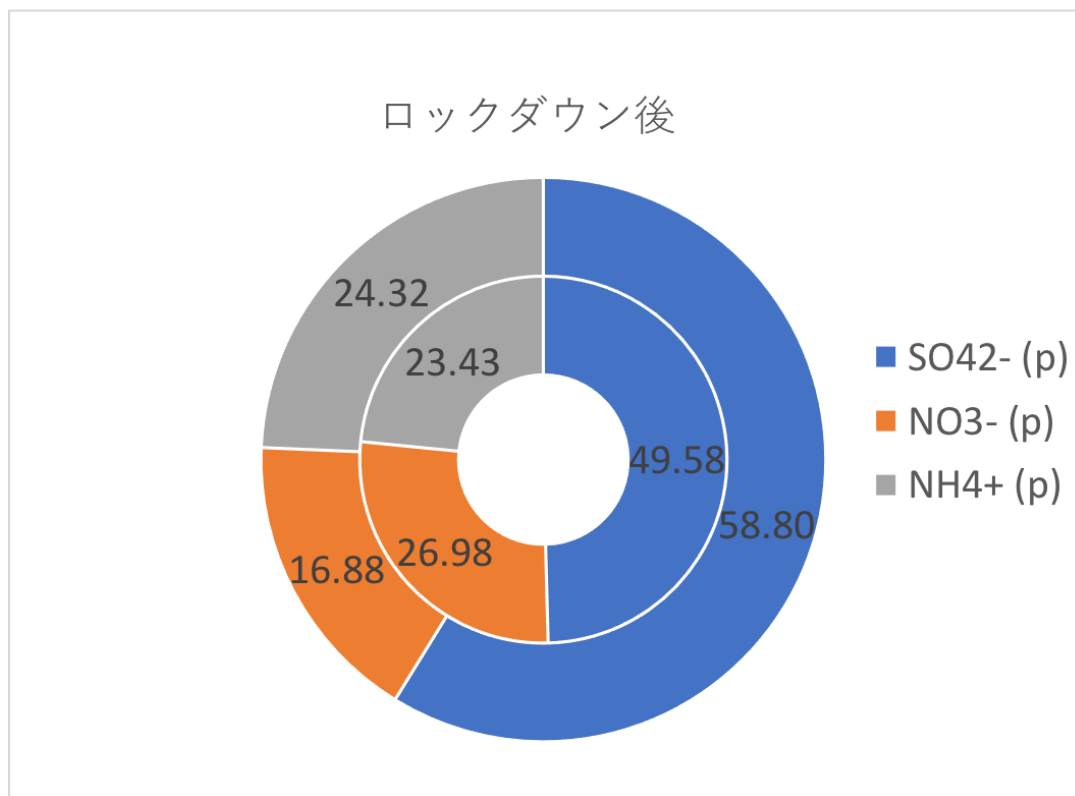


Fig3.15 ロックダウン後の2019年と2020年のエアロゾルの組成割合（内円2019年 外円2020年）

Tabale3.2 ロックダウン後のACSA SO₄²⁻高濃度時の日数とその時のSO₄²⁻とNO₃⁻の平均値

ロックダウン後	高濃度日数	ACSA	
		SO ₄ ²⁻ [μg/m ³]	NO ₃ ⁻ [μg/m ³]
2019	17回	7.01	3.13
2020	4回	5.80	1.50

2019 年と 2020 年についてロックダウン前は各成分の組成割合にあまり変化がなかったが、ロックダウン後では SO_4^{2-} の割合が 9.22%増加し、 NO_3^- の割合が 10.1%減少した。

ロックダウン前後について 2020 年は 2019 年より大きく変化し、2020 年の SO_4^{2-} の割合が 18.54%増加し、 NO_3^- が 15.72%減少した。

また検出した高濃度日数に関しても 2020 年は 2019 年と比べて少なくなっている。

これらよりロックダウンによって 2019 年と比べて大気組成比は SO_4^{2-} が高くなり、 NO_3^- が低くなったことが分かった。また NH_4^+ は変わらなかった。これらは中国の NO_x 発生源である自動車の使用減少の影響が大きく、 SO_x 発生源である工場よりも使用が減少したのではないかと考えられる。

3.6 モデルとの比較と検討

ACSA 観測された NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度とモデルの結果を比較し、ロックダウンによる中国の NO_x と SO_x の排出量変化についてモデルが正しく排出量を推計できているかを検討する。

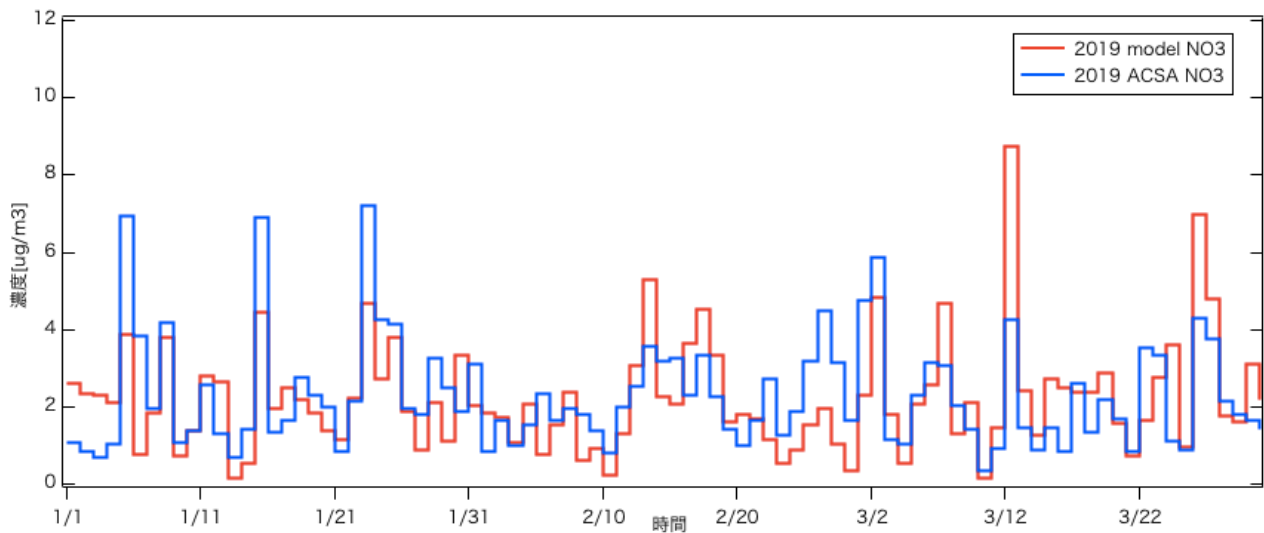


Fig3.16 2019 年モデルと ACSA の NO_3^- 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値

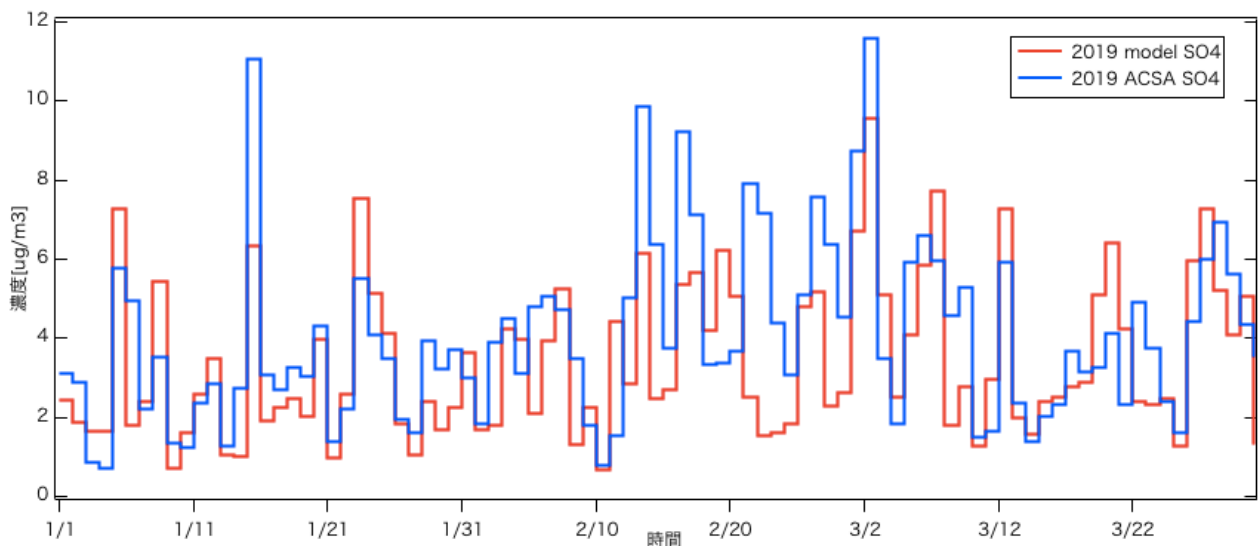


Fig3.17 2019 年モデルと ACSA の SO_4^{2-} 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値

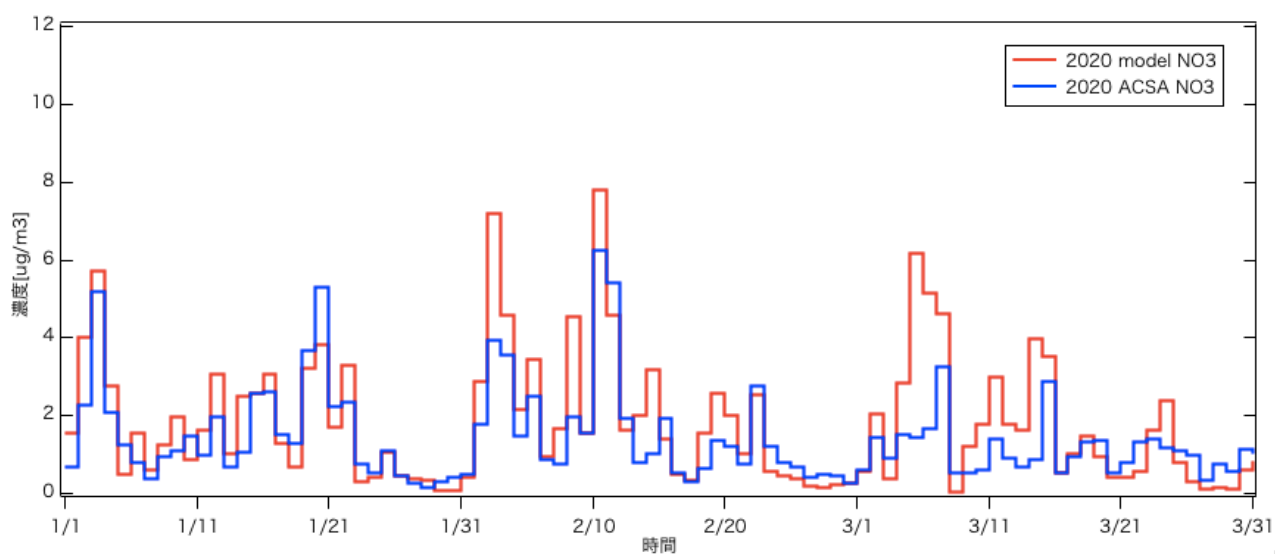


Fig3.18 2020 年モデルと ACSA の NO_3^- 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値

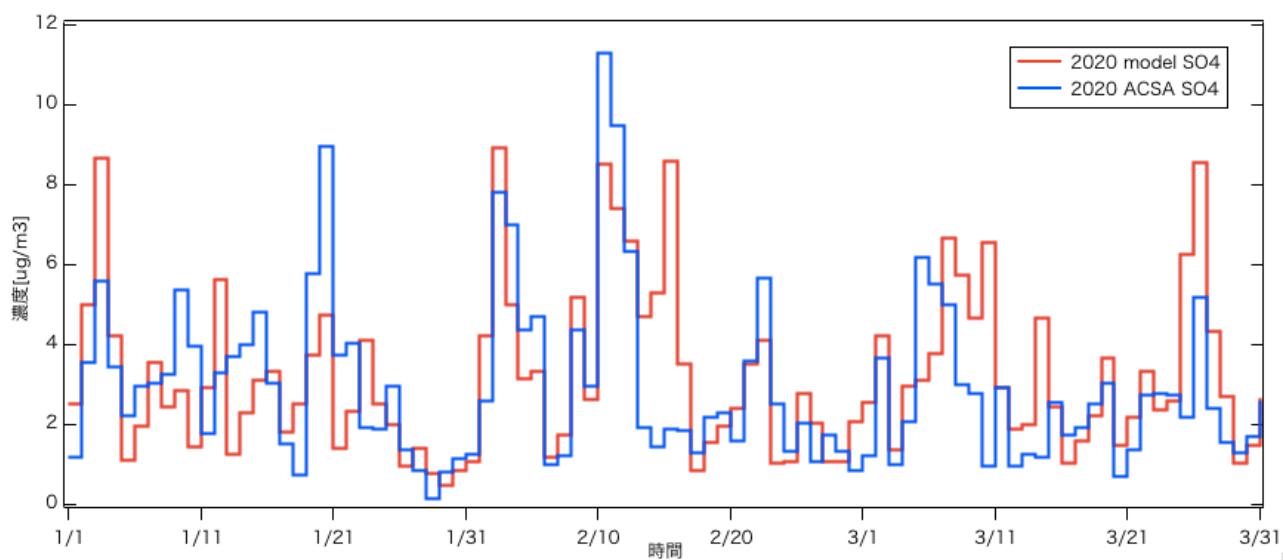


Fig3.19 2020 年モデルと ACSA の SO_4^{2-} 濃度 [$\mu\text{g}/\text{m}^3$] 日平均値

2020 年の SO_4^{2-} 濃度はモデルと ACSA でイベントピーク日やその値も同期しているのに対して NO_3^- 濃度はロックダウン後半でモデルが ACSA よりも大きい値をとっている。これは 3.3 から分かるように大気の組成は NO_3^- の割合が低下しているため、モデルの NO_3^- 発生源の排出量を SO_4^{2-} などに比べて少なくする必要があることを示す。

しかし、 NO_3^- 濃度の変動は ACSA の観測値と同期しており、 SO_4^{2-} 濃度に関しては濃度の大きさや変動も 2019 年と 2020 年で変わらず同期している。 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 濃度は中国の排出量の影響が大きいため、今年のように濃度が大きく変動したにも関わらずモデルが観測と同期しているのでモデルの中国の排出量の地域分布がほぼ等しいことが分かった。

第4章 結言

4.1 全体の総括

本研究では COVID-19 による中国の排出規制が日本の大気環境に影響を与え、エアロゾル濃度と組成がどのように変化したのかを明らかにするためにミーライダーや他の観測機器を用いて 2019 年と 2020 年のエアロゾル濃度変動の検出と解析を行った。またライダーによるエアロゾル検出の妥当性と GEOS Chem モデルの再現性についても議論した。

大気汚染物質の発生起源を調べるために福岡と福江島で観測値を比較した結果、変動や濃度に大きな差がなかった。このことから福岡の大気環境は福岡市自体の大気汚染物質排出量による影響が小さく中国の排出量に依存していると考えられる。

球形粒子の消散係数は全ての高度で 2020 年が 2019 年を下回っており、高度 1.0km 付近で最も消散係数が大きく 2020 年は 2019 年の約半分になっている。またライダーと ACSA の観測値時系列から 2020 年はロックダウン後から SO_4^{2-} 、 NO_3^- 濃度が減少しており高濃度時の日数も減少したことが明らかにされた。

高濃度時のエアロゾル組成を URG 自動イオンクロマトグラフの観測値を用いて解析した結果、2020 年は 2019 年と比較して組成が大きく変化し、2020 年はロックダウン前後で SO_4^{2-} 濃度の割合が 18.54% 増加し、 NO_3^- は 15.72% 減少した。

また、ライダーと ACSA の観測には高い相関がありライダーによるエアロゾル種検出は妥当であり、モデルは ACSA との比較結果から再現性が高く中国の排出量分布が正しいことが分かった。

以上のことから日本の大気環境は中国の大気汚染物質排出量に依存しており、COVID-19 に伴い 2020 年 1 月に実施された中国の排出規制によって日本に越境した大気汚染物質は減少し、特に大気組成比は SO_4^{2-} が増加し、 NO_3^- は減少した。このことから中国の NO_x 発生源である自動車などの使用減少の影響が大きく、 SO_x 発生源である工場よりも使用が減少したと考えられる。

4.2 今後の展望

ミーライダーでは観測した粒子の種類が球形か非球形の判別のみだったが、ラマンライダーを用いれば硫酸塩と硝酸塩などの塩類と BC、海塩粒子、黄砂の判別が可能であるためより詳細な大気組成が分かる。しかし現状ラマンライダーは非常に微弱な散乱光を受信するため測定は夜間に限定される。また成分が低濃度の場合には有意な判別を行うに際して S/N 比の問題があった。今後は、装置やアルゴリズムの改善が必要である。

化学輸送モデルの結果は NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の両方とも再現性が高いという結果になったので、今後は BC や海塩粒子などの他の成分についても野外観測の結果と比較・検討が必要である。

参考文献

Kurokawa and Ohara: Long-term historical trends in air pollutant emissions in Asia: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 3.1 (2019)

環境省: 大気汚染に係る環境基準(2020), <http://www.env.go.jp/kijun/taiki.html>

環境省, 2018(a), 平成 30 年度大気汚染の状況 (2018),
<http://www.env.go.jp/air/osen/matH30taikiosenjokyofull.pdf>

環境省: 環境省大気汚染物質広域監視システム(そらまめ君)(2018a),
<http://soramame.taiki.go.jp/>

速水洋, 藤田慎一: デニューダ・フィルタバック法により測定した半揮発性無機イオン成分の濃度の実態とガス・粒子分配, 大気環境学会誌(2004).

Itahashi S., Uno I., Osada K., Kamiguchi K., Yamamoto S., Tamura K., Wang Z., Kurosaki Y., Kanaya Y.: Nitrate transboundary heavy pollution over East Asia in winter, Atmospheric Chemistry and Physics, 17(6), 3823-3843 (2017)

Syuichi Itahashi, Zhe Wang, Keiya Yumimoto, Itsushi Uno: Drastic Changes of PM_{2.5} Transboundary Pollution over Japan Due to COVID-19 Lockdown in China(2020)

NASA HP : <https://earthobservatory.nasa.gov/images/146362/airborne-nitrogen-dioxide-plummets-over-china>

Shimizu Atsushi Shimizu Nobuo Sugimoto Ichiro Matsui Kimio Arao Itsushi Uno Toshiyuki Murayama Naoki Kagawa Kazuma Aoki Akihiro Uchiyama Akihiro Yamazaki: Continuous observations of Asian dust and other aerosols by polarization lidars in China and Japan during ACE - Asia(2004)

<https://agupubs.onlinelibrary.wiley.com/doi/full/10.1029/2002JD003253>

気象庁気象研究所: 雲と微物理過程の研究

https://www.mri-jma.go.jp/Dep/typ/araki/cloud_microphysics.html

紀本電子工業株式会社

<https://www.kimoto-electric.co.jp/product/air/ACSA14.html#lineup>

URG9000D

<https://www.env.go.jp/air/osen/pm/ca/manual/manual-8.pdf>

細長:大気ブラックカーボン及びその役割を知る(2016)

Hansler:DRECK MACHT IN MASSEN MACHT MEHR REGEN, GEOMAX edition 10,
(2005)

鵜野伊津志,弓本桂也,板橋秀一:大気環境モデリング,森北出版(2021),

藤田慎一,三浦和彦,大河内博,速水洋,松田和秀,櫻井達也,:越境大気汚染の物理と化学改訂増
補版,成山堂書店(2017)

D.J ジェイコブ:大気科学入門,東京大学出版会(2002)

謝辞

本研究を行うにあたりご指導して下さった鵜野伊津志教授に心より感謝申し上げます.幅広い知見から研究に関する姿勢や考え方を学び,的確かつ丁寧に指導して頂きました.先生のお力添えあって修士論文を完成させることができました.

弓本桂也准教授には日頃から些細な疑問に関して助言を頂き,研究にお力添えして頂きました.心より感謝申し上げます.

原由香里助教と王哲助教にはゼミなどでたくさんの教えや助言を頂き.誠にありがとうございました.

大学院生活を共に過ごした藤田瞭紀さんと居倉慎太郎さんには研究活動だけでなく多くの場面でお世話になり,ありがとうございます.

最後に,大学修士課程まで経済的にも精神的にも支えて頂き,何不自由ない環境を与えてくれた両親を始めとする家族にこの場を借りて感謝申し上げます.

2021 年 2 月 高橋 卓己