

# アジア大陸から日本への越境大気汚染と同位体比測定

## Trans-boundary Air Pollution from Asian Continent to Japan and Isotope Ratio Measurement

村野健太郎\*

Kentaro Murano

### はじめに

東アジア地域は、近年の急速な経済発展（産業開発）により膨大な大気汚染物質が大気中に排出されており、今後も大気汚染物質の発生量が増大し続けると予測され、世界でも注目を集めている地域である。このようなことから越境大気汚染・酸性雨による環境酸性化物質の沈着の影響が懸念され、環境省のリーダーシップの下に2001年から「東アジア酸性雨モニタリングネットワーク（EANET）」の本格稼働が開始され、湿性沈着に関しては生データが公開されている<sup>1)</sup>。今後の酸性雨・越境大気汚染問題に対する研究、対策の進展が期待されている。

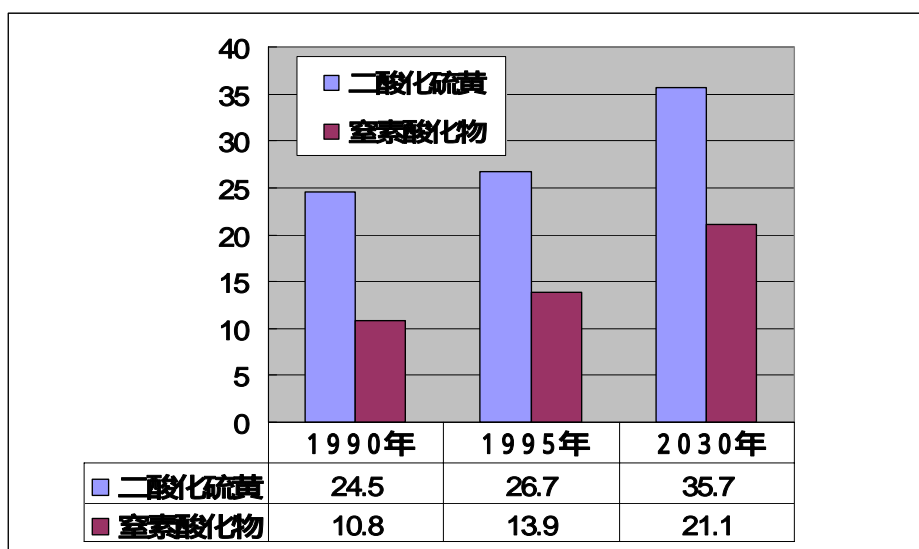
欧州がかってそうであったように、東アジア地域における越境大気汚染、酸性雨研究は三位一体の研究が必要であると考えられる。酸性雨や大気汚染物質の観測、モニタリング、酸性雨長距離輸送モデル、大気汚染物質の発生源インベントリーがこれである。酸性雨長距離輸送モデルは越境大気汚染を可視化することに有効であり、このモデルに真実を語らさなければならぬ。しかしながらこの酸性雨長距離輸送モデルが正確な結果を出すためには、気象情報や大気汚染物質の発生源インベントリーという入力情報が正確であることが必要である。気象情報に関してはヨーロッパ中期天候予報センター（European Centre for Medium-Range Weather Forecasts, ECMWF）等のデータが使用できるようになってい

るが、大気汚染物質の発生源インベントリーに関しては、その正確さの評価はなされていない。発生源インベントリーが不正確であれば酸性雨長距離輸送モデルによる結果も不正確になる。あつてはならないことだが自国の発生源インベントリーを少ない方に改変することによって、他国への越境大気汚染を少なく見せるようなことも可能である。

### 東アジア地域における大気汚染物質発生量の将来予測

中国では、エネルギーの70%以上を石炭に頼っている。中国北東部で採れる石炭は、硫黄含有量が低いのでまだしも、重慶などの内陸部では硫黄含有量が3%に達するものもあり、この石炭を工場、発電所、民生用として大量に使用する為に、硫黄酸化物（SO<sub>x</sub>）の排出量は非常に大きい。今後も中国では経済発展が続いていくと予測されているため、アジア太平洋地域のSO<sub>x</sub>発生量は、ここ当分の間は、大きくなることが予測されている。また中国の工場は、保守整備体制の不十分な部分が多く、途中で大気汚染物質が外界に放出されており、密閉系であれば、大気汚染対策の取りようもあるのに対策を難しくしている。

今後の経済発展、エネルギー使用量の変化、大気汚染物質削減対策のとられ様を考慮に入れて、二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)の発生量予測が東



第 1 図 東アジア地域における大気汚染物質発生量の将来予測

Z. Klimont et al., Water Air and Soil Pollution, 130, 193-198(2001)

アジア地域(中国、日本、北朝鮮、韓国、モンゴル、台湾)においてなされた(第 1 図) 2)。1995 年に 26.7Mt (メガトン)であった SO<sub>2</sub>の発生量は 2030 年には 35.7Mt と 35 年間で 34%増加することが予想されている。NO<sub>x</sub> に関しても 13.9Mt から 21.1Mt と非常に大きく増加(52%)する。東アジア地域においては 1995 年の SO<sub>2</sub> 発生量の 89%以上を中国が占めており、中国の経済発展が東アジア地域の大気汚染物質発生量を大きく増加させることになる。中国は 2005 年には国内総生産(GDP)約 10%の増加を示し、すでに米国、日本、ドイツに次ぐ世界第 4 位の GDP を示す国になっている。

### 越境大気汚染研究

このため当研究所では地球環境研究総合推進費により、アジア大陸から日本への越境大気汚染の定量化の研究を推進してきた 3)。そのために大気汚染物質(SO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>、アンモニア(NH<sub>3</sub>)、非メタン揮発性炭化水素(NMVOC)の発生量マップの作成を行っている。また、降水、雲物理過程を含む大気汚染物質の発生、輸送、変質、沈着モデル(酸性雨長距

離輸送モデル)の開発と同時に、このモデルを国、または地域別の発生源・受領地関係(ソース・リセプターマトリックス)にすることが、定量的に越境大気汚染を記述することになる。このマトリックスが作成されることにより、越境大気汚染による生態系影響を把握することが出来る。また、越境大気汚染を防止する対策の探索を行い。その評価により、ソース・リセプターマトリックスと組み合わせ、越境大気汚染の防止対策の実施をどの地域から優先して行うかが決められる。

このような取り組みは酸性雨問題の克服のために既に欧州では行われてきた。すなわち欧州は湖の魚が死滅するという酸性雨被害を受けて、酸性雨問題の重要さの認識、酸性雨問題の現象解明、欧州全体における酸性雨共同観測、国際的な情報収集作業の確立を行った。さらに、度重なる研究や行政対応の国際会議を行いながら、法律を主とする対策を確立し、酸性雨問題に科学的に挑戦してきた。欧州においては、各国の大気汚染物質発生量が年々更新されることによって、該当する年の気象データと組み合わせ大気汚染物質のソース・リセプターマトリックスが毎年更新されていて、「ブレイムマトリックス」と呼ばれてきた 4)。1996 年の結果によると第 1

表に示したように<sup>5)</sup>、スウェーデンはS(SO<sub>2</sub>)発生量は31,300トン(62,600トン)であるが、自国へのS(硫酸塩)沈着量は127,500トン(382,500トン)であり、スウェーデンへの沈着量へ最も寄与しているのはドイツの17,500トン(52,500トン)、ポーランドの13,000トン(39,000トン)、続いて自国の8,300トン(24,900トン)となる。しかしこのマトリックスが単独で存在したのでは無く、このマトリックスに科学的裏付けを与えるものとして、SO<sub>x</sub>、NO<sub>x</sub>、NH<sub>3</sub>等の発生源インベントリーとモデリング作業の精緻化があった。さらに、湿性沈着、乾性沈着のマップ化や大気汚染物質の観測が、このマトリックスを支えて、欧州全域でのSO<sub>x</sub>を主とする大気汚染物質削減対策が進められてきた。

### 東アジア地域における大気汚染物質発生源インベントリー(EAGrid2000)の構築

酸性雨長距離輸送モデルによる数値シミュレーションに用いる正確な大気汚染物質発生量の入力データを提供するために構築した( )<sup>6)</sup> 発生源インベントリー(EAGrid2000)の諸元は、対象地域：中国・台湾・韓国・北朝鮮・モンゴルおよび日本、対象年度：2000年、対象物質：二酸化硫黄(SO<sub>2</sub>)、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)、非メタン揮発性炭化水素

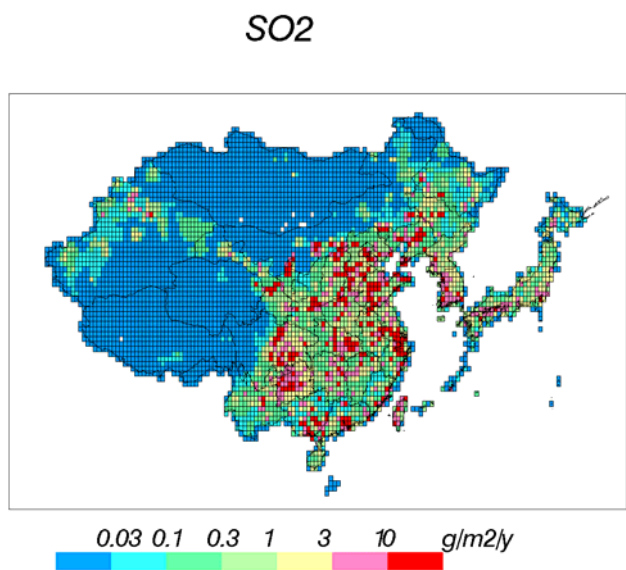
(NMVOC)、アンモニア(NH<sub>3</sub>)、対象発生源：人為起源および自然起源(植物起源 NMVOC)、空間分解能：経緯0.5度グリッドである。

中国域発生源インベントリーは詳細に推計を行った。基本としているのは、省別エネルギー需給マトリックス表(生産消費部門×エネルギー種類)であるが、薪、農業廃棄物、メタンガスの3種のバイオマス燃料、火力、水力発電量を別表から補足した。工業部門、非金属鉱物製品業(セメント、ガラス、窯業)、交通部門についても推計を行った。

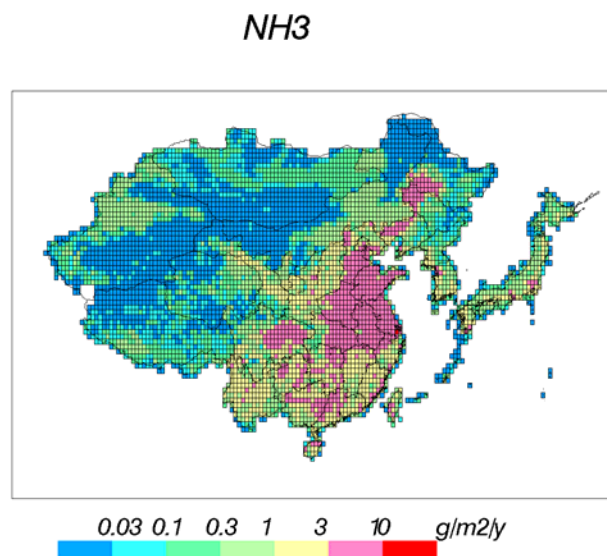
SO<sub>2</sub>については燃料中S分%想定が基礎になるが、石炭については省別(消費地として)に見直して再設定した。また、灰分への残存率はボイラ規模別に設定した。セメント焼成炉での排出は大型炉、乾式ロータリーキルンでは85%が製品脱硫され、中小型炉、シャフトキルンでは75%が製品脱硫されるものと想定した。SO<sub>2</sub>排出はエネルギー転換(火力発電)および製造業における石炭燃焼が主たる発生源である。NO<sub>x</sub>については排出係数(大規模ボイラ、小規模固定発生源、自動車)を全面的に見直した。バイオマス燃料からのNO<sub>x</sub>排出量も推計した。NMVOCについてはNO<sub>x</sub>と同様に排出係数を見直した。特に小規模固定発生源についてEUの新しい排出係数を参考にした。そこで示されたEUにおける小規模炉の排出係数例より中国の実態は高めであると想定して燃焼系NMVOC排出係数を設定した。中国農村

第1表 EMEP型大気汚染物質ソース-リセプター関係(1996年), 100トン硫黄換算

	オーストリア	ドイツ	オランダ	ノルウェー	ロシア	ポーランド	スウェーデン	イギリス	沈着合計
オーストリア	54	183	1	0	2	73	0	6	1075
ドイツ	26	3811	67	1	10	483	6	216	7089
オランダ	1	226	50	0	0	28	0	85	648
ノルウェー	0	83	4	32	54	35	18	81	808
ロシア	5	229	4	5	5985	488	24	35	15976
ポーランド	16	1132	7	1	50	3026	7	38	6489
スウェーデン	1	175	6	17	72	130	83	63	1275
イギリス	2	196	25	1	4	53	2	2048	3066
発生合計	253	11188	492	124	8294	8312	313	9057	



第2図 東アジア地域のSO<sub>2</sub>発生量マップ(2000年)



第3図 東アジア地域のNH<sub>3</sub>発生量マップ(2000年)

部の伝統かまどは煉瓦、壁土など熱容量の大きい素材でできており、火力の低いバイオマス燃料を焚いても炉の壁体温度はさほど上昇しないと考えられ、その結果炉内温度が低く、また雨天の日やその直後など十分乾燥していない燃料を投入する場合もあると想定すると炉内温度低下の要因ともなると想像される。これらよりEUの暖炉や家庭用小規模ボイラ、ストーブに比べて炉内は低温であり、従ってNMVOCが発生しやすい状況があると考えた。NOxと同様、自動車について地域による対策車導入状況の違いを考慮して排出係数に省別に地域格差をつけた。NMVOCについては、農村部におけるバイオマス燃焼に伴う排出がきわめて多い結果となった。

NH<sub>3</sub>を除く大気汚染物質の台湾・韓国・北朝鮮・モンゴルにおける排出量に関しては、簡略的な扱いとした。以上の推計手順による2000年排出量データベース(EAGrid2000)による年間排出フラックスのグリッド分布を第2図、第3図に示す。

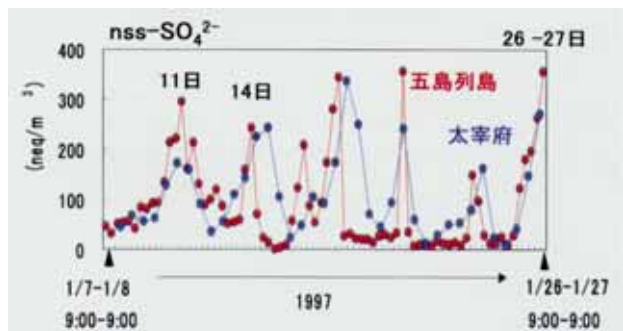
(共同研究者：神成陽容(フリー：元計量計画研究所)、外岡 豊(埼玉大学))

### 地上観測

地上観測には長期間の大気汚染物質の濃度変動が得られる、複数地点における観測により汚染気塊の大きさが推定できる、さらに、酸性雨長距離輸送モデルの検証データとなるという特徴がある。このようなことから、これまで佐渡島、隠岐島、対馬、五島列島、屋久島、沖縄本島で地上観測を実施してきた。

アジア大陸からの大気の吹き出しがある時の、ガス状、粒子状物質の挙動を明らかにする、三次元の大気汚染物質、発生、輸送、変質モデルにより、大気中のガス状、粒子状物質の輸送経路を調べる時の酸性雨長距離輸送モデルの検証データを提供するのが、地上観測の研究目的である。

地上観測は、長崎市から約100km離れた東シナ海の離島で五島列島ある五島列島の南西端の国設五島酸性雨測定所とそこから190km離れた都市近郊の太宰府市で行われた。五島列島の観測地点の近傍は人間活動に乏しく、冬季に北西風が卓越したときには、局地的な影響が非常に少なくアジア大陸からの吹き出しを直接捕えられる場所である。大気汚染



第4図 五島列島と太宰府における非海塩硫酸塩の濃度変動

物質の濃度測定はフィルターパック法により大気汚染物質を捕集して、化学分析して行った。観測は1997年1月7日～1月27日まで行った。この期間の2地点の非海塩硫酸塩 ( $nss-SO_4^{2-}$ ) 濃度変動を第4図に示した。五島列島と太宰府の  $nss-SO_4^{2-}$  濃度の変動はほぼ一致しており1月11～12日、14～15日、17～18日、20～21日、25日～27日に高濃度が観測された。五島列島では  $nss-SO_4^{2-}$  濃度が極端に低い期間もあった。1月11日に五島列島で観測された  $nss-SO_4^{2-}$  高濃度時に後方流跡線 (バックトラジェクトリー) 解析を行うと、1月8日には、空気塊は中国山東半島南部の海岸近郊を通過していた。この空気塊はその後、大気汚染物質の多量な発生地帯を通過していないことにより、1月11日の  $nss-SO_4^{2-}$  高濃度は中国大陸で発生したものであることが推定された。五島列島と太宰府の両地点で  $nss-SO_4^{2-}$  濃度変動が一致していることから、大陸からの吹き出しがある時には、北部九州においては200kmを越す範囲が同一の汚染気塊である  $nss-SO_4^{2-}$  の高濃度に覆われていた。

### 酸性雨長距離輸送モデル

この研究で開発されたのは発生、化学反応、輸送、沈着を含む3次元総合モデル (オイラーモデル) であり、特徴として、越境大気汚染の輸送経路、広がり理解できる。対象化学種は、二酸化硫黄 ( $SO_2$ )、

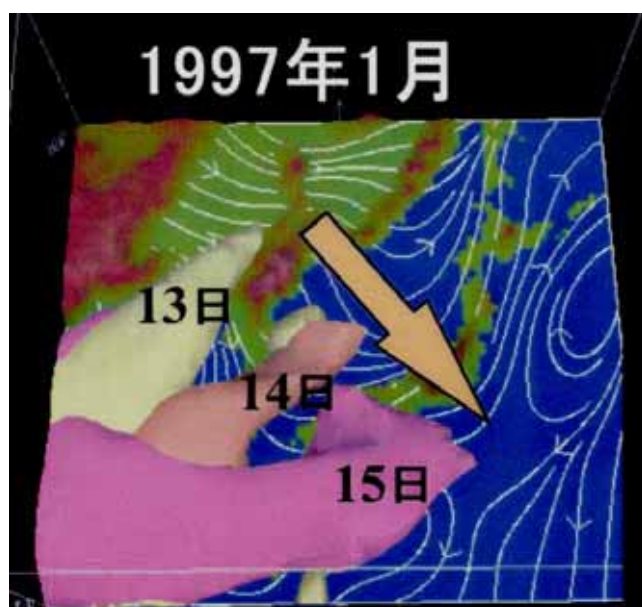
硫酸塩 ( $SO_4^{2-}$ )、窒素酸化物 ( $NO_x$ )、硝酸塩 ( $NO_3^-$ )、アンモニア ( $NH_3$ )、アンモニウム塩 ( $NH_4^+$ ) である。

大気汚染物質の輸送経路、形態としては、気圧配置の特徴により「つの」型、「巨大パフ」型がある。

- (1) 「つの」型: 「角」の形をした大気汚染物質が移動する。1月14日の  $nss-SO_4^{2-}$  高濃度のケース
- (2) 「巨大パフ」型: 1000 km を越す巨大な大気汚染物質の塊の移動。1月26日 - 27日の  $nss-SO_4^{2-}$  高濃度のケース

酸性雨長距離輸送モデルを適用して、2観測地点の大気汚染物質 ( $nss-SO_4^{2-}$ ) の濃度変動を解明した。「つの」型の  $SO_4^{2-}$  の吹き出しは1月13～15日に観測された。第5図に示したように、1月13日に山東半島を含む中国大陸にあった  $SO_4^{2-}$  高濃度の汚染気塊は14日には朝鮮半島に移動してきて、五島列島、太宰府を通過して、15日には中国地方、四国地方、九州の上空に存在していた。このように、「つの」型をした  $SO_4^{2-}$  の塊が北西から南東方向に移動して行った。

巨大パフ型の輸送は、1月26日～27日に観測された。1月25日に中国大陸の上空にあった高濃度の  $SO_4^{2-}$  は1月26日には北東方向へ進み、先端部が朝鮮半島にかかり一部が五島列島に接近してきている。



第5図 「つの」型による大気汚染物質 (硫酸塩) の北西から南東方向への移動

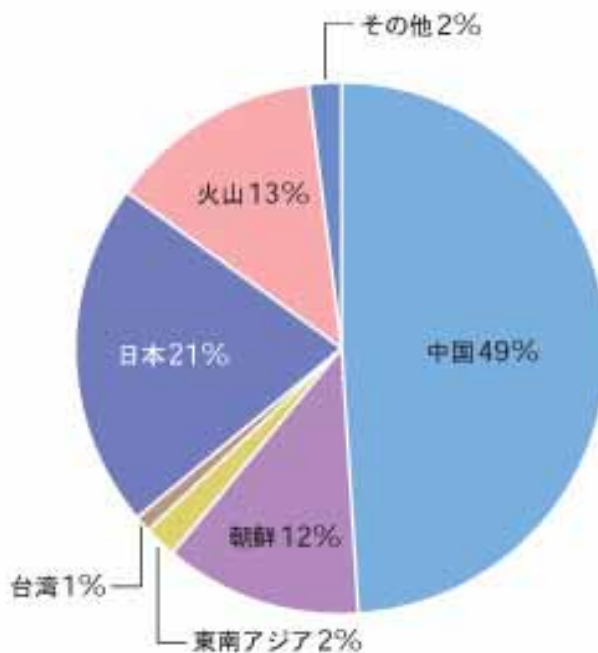
1月27日には、この汚染気塊は東進して日本の西半分を覆い尽くしていた。このように1000kmを越すようなSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の塊が日本の西半分を覆っていたことになる。また、五島列島、太宰府でのSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度変動の観測結果と数値モデル計算結果を比較すると、数値計算結果は観測値を十分によく再現しており、酸性雨長距離輸送モデルの精度は高いことが証明された。

(共同研究者: 鶴野伊津志(九州大応用力学研究所))

**大気汚染物質、酸性物質沈着量のソース・リセプター解析(マトリックス)**

ある地域の大気汚染物質が遠く離れたある地域にどの程度大気汚染物質、酸性物質として沈着するかを酸性雨長距離輸送モデルを用いて計算するのが、ソース・リセプター解析である。大気汚染物質の削減対策を行うにはどの大気汚染物質がどこから来て、どこに影響を及ぼすかを把握する必要がある。

硫黄酸化物(SO<sub>x</sub>)の年間ソース・リセプター解析によると(第6図)49%が中国からであり、以下日本、火山、朝鮮(韓国、北朝鮮)がそれぞれ21%、13%、12%である<sup>9)</sup>。ではこのようなソース・リセプターマトリックスが得られれば日本は中国に大気汚染物質削減対策をとることを迫れるのだろうか。



第6図 1995年の日本への硫黄酸化物の総沈着量に占める各国と火山の寄与率

第2表には各国の研究者の出したソース・リセプターマトリックスが示されているが、日本へ降ってくるSO<sub>x</sub>の中国からの寄与を見ると我々の研究結果の49%が最高であり、続いて日本人研究者の24から32%がある。それより低い寄与として米国人研究者が10%の寄与を出している。最も低い値は中国人研究者の出した3%である。このように酸性雨長距離輸送モデルによるソース・リセプターマトリックスは大きく異なっている。日本側が大きな値に基づ

第2表 硫黄酸化物の総沈着量に占める各国と火山の寄与率の差異

研究者	基準年	日本の硫黄酸化物沈着への寄与 (%)				
		日本	火山	中国	朝鮮	その他
市川ら(1998)	1988-1989	40	18	25	16	1
市川ら(2001)	1990	27-30	25-31	24-27	17-19	1-2
	1995	26-29	24-32	29-32	12-13	1-2
池田、東野(1997)	1988	37	28	25	10	0
Carmichael, Arndt(1995)	1990	38	45	10	7	0
Huang et al.(1995)	1989		94	3	2	1
井上、大原、片山、村野(2005)	1995	21	13	49	12	5

く中国からの越境大気汚染を指摘しても中国側は中国人研究者の3%という値を出して、越境大気汚染を否定するであろう。このような状況の下では各研究者の開発した(使用している)モデルの差異を見るための研究が必要であるか、東アジア各国の研究者が参加して一つのモデルを作ることが必要である。このような観点からモデルの相互比較研究が行われている。発生源インベントリーと気象場を同じにして、2001年3月の地表オゾン濃度が計算されたが7個のモデルは大きく異なった計算結果を与えている。どのような理由によってこのことが生じているか今後検討されなければならない。モデルの相互比較研究には多数の研究機関が参加しているが残念ながら中国の研究機関は参加していない。

(共同研究者:片山 学、大原利眞(国立環境研究所))

### 八方尾根における降水中鉛同位体比の挙動と越境大気汚染

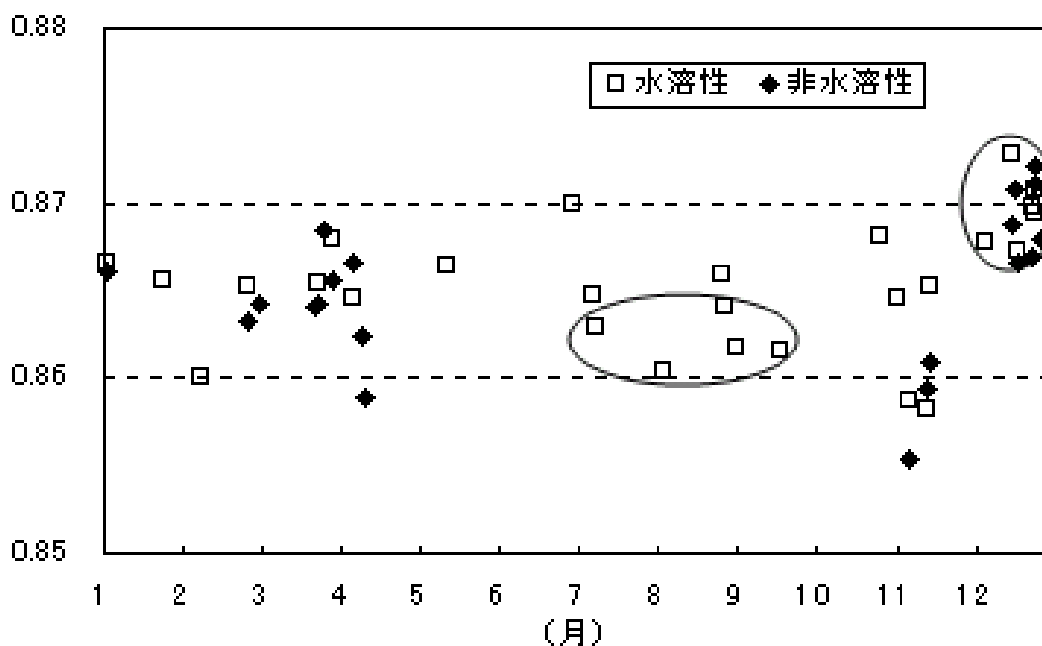
最近の研究により大気汚染物質の鉛同位体( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ 等)からも、その大

気汚染物質の発生源推定が可能になってきた。北アルプス八方尾根(標高1850m)の国設酸性雨測定所において、2003年1月から12月まで降水試料自動採取装置を用いて1日単位で採取された試料を測定に用いた。これら水溶性成分測定用試料及び非水溶性成分測定用試料の鉛同位体比( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ ,  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ )はICP-MS法で測定した。

2003年1月から12月の鉛同位体比の測定結果( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ )を第7図に示す。この図から水溶性及び非水溶性成分の鉛同位体比がよく一致しているのがわかる。また7月から9月にかけての夏期は鉛同位体比がやや低く、一方12月の冬期は鉛同位体比は向井らが報告している国内又は上海における体比がやや高い値を示した。夏期の低鉛同位体

大気粉塵の鉛同位体比に近く<sup>10)</sup>、一方冬期の高鉛同位体比は北京又はハルビンにおける鉛同位体比に近い値であった。

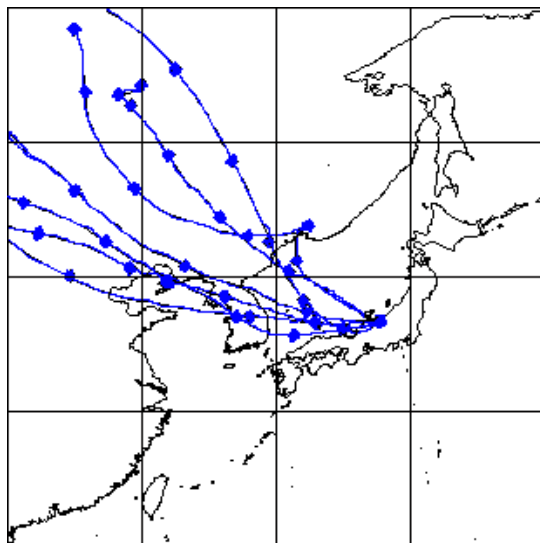
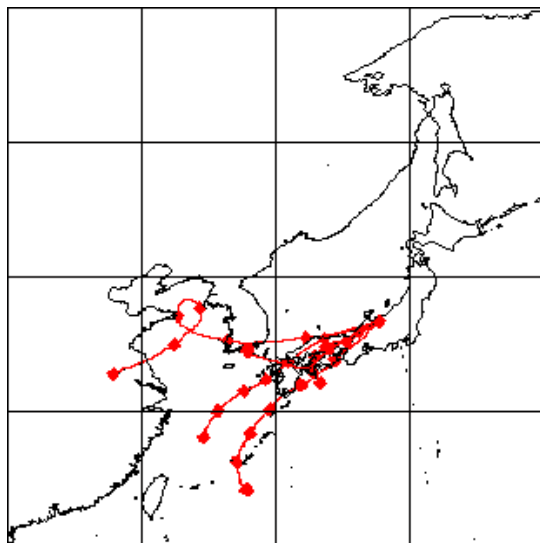
八方尾根に到達する気塊の経路を知るためにバックトラジェクトリー計算を行った。バックトラジェクトリーの計算は、ECMWF気象データを利用し、Hayashida et al.11)の方法で八方尾根の上空2000m高度から等温位面に沿って行い求めた。これら夏



第7図 八方尾根の降水中の鉛同位体比( $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$ )の変化

期及び冬期の降水試料採取時のバックトラジェクト

E. 酸性雨長距離輸送モデルによる東アジア地域の



第8図 夏期(左)及び冬期(右)のバックトラジェクトリー計算結果

リー計算結果を第8図に示す。この図から夏期の低鉛同位体比試料は国内又は上海方面を発生源としており、一方冬期の高鉛同位体比試料是北京又はハルビン等を発生源としていることが明らかになった。(共同研究者：中込和徳、鹿角孝男(長野県環境保全研究所) 向井人史(国立環境研究所))

大気汚染物質のソース・リセプターマトリックスは大きく異なっている。日本への中国からの寄与は日本人研究者で24-49%であるが、中国人研究者は3%という値を出している。

F. 八方尾根の降水中の鉛同位体比の変化とバックトラジェクトリー計算結果により発生源による差が明らかとなった。

### まとめ

- A. 東アジア地域においては、大気汚染物質の発生量が急増することが予測されている。
- B. アジア大陸から日本への越境大気汚染が地上観測により明らかとなった。
- C. 酸性雨長距離輸送モデルは、大気汚染物質の輸送ルート、輸送形態を明らかにした。
- D. 大気化学反応過程を組み込んだ酸性雨長距離輸送モデルに入力することを目的として東アジア地域の中国・台湾・日本・韓国・北朝鮮・モンゴルを対象として、2000年における硫黄酸化物(SO<sub>2</sub>)、窒素酸化物(NO<sub>x</sub>)、アンモニア(NH<sub>3</sub>)、非メタン揮発性炭化水素(NMVOC)のグリッド別大気排出量を推定したデータベースであるEAGrid2000が作成された。

### 謝辞

記載内容の中、研究は環境省の地球環境研究総合推進費「酸性雨 C-1」により行われた。トラジェクトリーの計算には、国立環境研究所 地球環境研究センターの「対流圏モニタリングデータ評価のための支援システム CGER-GMET」を利用した。

### 引用文献

- 1) 佐野 敦：酸性雨対策調査総合取りまとめ、資源環境対策、40(14)、90-96(2004)
- 2) Z. Klimont, J. Cofala, W. Schopp, M. Amann, D.G. Streets, Y. Ichikawa, S. Fujita:



- Projections of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> and VOC Emissions in East Asia up to 2030, *Water Air and Soil Pollution*, 130, 193-198(2001)
- 3) 環境庁:平成 14 年度地球環境研究計画 地球環境研究総合推進費による研究計画 (2002)
- 4) P. Grennfelt: Acidifying Pollution in Europe - Recent Political Achievements and Scientific Experiences, To be presented at the seminar on acidification in Tokyo, 22 May (1997)
- 5) Meteorological Synthesizing Centre - West the Norwegian Meteorological Institute、Norway:  
Transboundary Air Pollution in Europe, MSC-W Status Report 1997、Part 2、Numerical Addendum、to Emissions, dispersion and trends of acidifying and eutrophying agents.(1997)
- 6) 神成陽容、外岡 豊、村野健太郎: 東アジア地域における大気汚染物質発生源インベントリー (2000 年版) の開発、投稿準備中  
EAGrid1995: 神成陽容、外岡 豊、村野健太郎: 東アジア地域における大気汚染物質発生源インベントリーの開発、*環境研究*、129、35-46(2003)
- 7) T. Shimohara, O. Oishi, A. Utsunomiya, H. Mukai, S. Hatakeyama, E-S Jang, I. Uno, and K. Murano: Characterization of Atmospheric Air Pollutants at Two Sites in Northern Kyushu, Japan- Chemical Form, and Chemical Reaction -, *Atmos. Environ.*, 35, 667-681(2001)
- 8) I. Uno, Eun-Suk Jang, T. Shimohara, O. Oishi, A. Utsunomiya, S. Hatakeyama, Xiaoyan Tang, Yong Pyo Kim and K. Murano: Wintertime Intermittent Transboundary Air Pollution over East Asia Simulated by a Long-range Transport Model, *Global Environment Research*, 4, 3-12(2000)
- 9) 井上雅路、大原利眞、片山 学、村野健太郎: 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, 33-344(2005)
- 10) Mukai, H., A. Tanaka, T. Fujii, Y. Zeng, Y. Hong, J. Tang, S. Guo, H. Xue, Z. Sun, J. Zhou, D. Xue, J. Zhao, G. Zhai, J. Gu and P. Zhai: Regional characteristics of sulfur and lead isotope ratios in the atmosphere at several Chinese urban sites. *Environ. Sci. Technol.*, 35, 1064-1071 (2001)
- 11) Hayashida-Amano S., Sasano Y. and Iikura Y. Volcanic disturbances in the stratospheric aerosol layer over Tsukuba, Japan, observed by the National Institute for Environmental Studies Lidar from 1982 through 1986. *J. Geophys. Res.*, 96, 15,469 -15,478(1991)