

高解像度大気環境同化データセットの構築

課題責任者

滝川 雅之 海洋研究開発機構 ビッグデータ活用予測プロジェクトチーム

著者

関谷 高志^{*1}, 宮崎 和幸^{*2}, 大越智 幸司^{*1}, 滝川 雅之^{*1,3}

*1 海洋研究開発機構 ビッグデータ活用予測プロジェクトチーム, *2 海洋研究開発機構 地球環境観測研究開発センター, *3 海洋研究開発機構 北極環境変動総合研究センター

海洋研究開発機構において開発されている LETKF (Local Ensemble Transform Kalman Filter: 局所アンサンブル変換カルマンフィルタ) を用いた大気環境データ同化システムは、これまで多成分同時同化など手法面での高度化を中心に開発を進めてきており、水平解像度としては約 2.8° (300 km) と気候影響評価を対象とした全球化学輸送モデルの典型的な解像度を採用していた。しかしながら、大気汚染物質、特に NO₂ は大都市近傍などにおいて非常に大きな空間分布変動を示すことが知られている。本研究ではフォワードモデルの高解像度化の影響評価を行うとともに試験的な高解像度データ同化を試みた。その結果、全球対流圏 NO₂ シミュレーションにおける水平分解能の重要性およびメガシティ・スケールの濃度・排出量の推定の可能性が示唆された。

キーワード：データ同化, 化学輸送モデル, 全球, 大気汚染, メガシティ

1. 研究の目的と意義

対流圏における二酸化窒素 (NO₂) は、ローカル・スケールの大気汚染から全球スケールの気候変動といったような、様々な空間スケールの大気環境問題において重要な物質である。NO₂ は光化学反応を介して、光化学スモッグの主原因であるオゾン (O₃)、PM2.5 の主成分のひとつである硝酸塩エアロゾルを生成する。これらの物質は、人体に有害であると同時に、地球の放射収支に影響し気候変動に寄与すると考えられている (IPCC, 2013 [1])。NO₂ や O₃、硝酸塩エアロゾルといった大気汚染物質についても、化学輸送モデルを用いた予報・予測が数多く行われてきており、その結果は社会においても活用されている。しかしながら、排出量データを含む、化学輸送モデルの不確実性は依然として大きいのが現状である。そこで近年、アンサンブルカルマンフィルタや 4 次元変分法などの高度なデータ同化技術を用いて、観測情報を化学輸送モデルに取り込み、大気汚染物質の濃度分布や排出量を推定する取り組みが行われつつある (e.g., Inness et al. [2], 2015; Miyazaki et al., 2015 [3])。

海洋研究開発機構において開発されている大気環境データ同化システムは、複数の衛星観測測器からの多種類の大気汚染物質の観測を同時に同化しており、全球の対流圏光化学システムを最適化することで、濃度分布、排出量の高精度な推定を可能としている (Miyazaki et al., 2015, 2017 [4])。その一方で、データ同化システムの水平分解能は、約 300 km と全球化学輸送モデルの典型的な分解能を採用している。しかしながら、大気汚染物質、特に NO₂ は非常に大きな空間分布変動を示すことが知られている。そこで、データ同化システムを高分解能化することで、(1) 衛星観測とモデル計算の空間代表性の差異の

低減、(2) 小スケールの化学・輸送プロセス表現の改善を通じて、データ同化システムのさらなる改善が期待される。そこで、本年度は、まず、データ同化システムで使用されている予報モデル (CHASER; Sudo et al., 2002 [5]) を約 56 km にまで高分解能化し、衛星観測との比較により再現性を検証した。次に、データ同化システムの高分解能化にも着手し、NASA により航空機キャンペーン観測が実施された期間 (2016 年 5 ~ 6 月) の試験的なデータ同化計算を実施した。

2. 研究成果

データ同化システムで使用されている予報モデルである、全球化学輸送モデル CHASER を従来の T42 (2.8°、約 300 km) から、T106 (1.1°、約 120 km)、T213 (0.56°、約 56 km) と高水平分解能化し、対流圏 NO₂ カラム量の衛星観測との比較により、各分解能のモデル再現性能を検証した。鉛直方向については、いずれの水平分解能においても、地表から高度約 40 km までを 32 層で表現している。また、CHASER では、詳細な成層圏・対流圏化学 (93 化学種、263 化学反応) を考慮している。モデル数値実験は、2008 年を対象として行った。2008 年の気象場は、HadISST データ (Rayler et al., 2003 [6]) の海表面温度、海水濃度を与え、計算された気温、水平風を ERA-Interim 再解析データ (Dee et al., 2011) に緩和することで再現した。また、NO_x を含む大気汚染物質の排出量データは、人為起源については HTAP_v2.2 (Jassens-Maenhout et al., 2015 [7])、森林火災起源については Global Fire Emission Database (GFED) ver. 4.1 (Giglio et al., 2013 [8])、土壌起源については Global Emission Initiative (GEIA) (Yienger and Levy, 1995 [9]) を用いた。雷から生成される NO に

については、モデル内の積雲対流パラメタリゼーション中で計算される。モデル再現性能の検証のために、Ozone Monitoring Instrument (OMI) による対流圏 NO₂ カラム量の衛星観測データとの比較を行った。OMI のピクセルサイズは、24 × 13 km² である。本研究では、DOMINO ver. 2.0 プロダクトを使用した (Beersma et al., 2011 [10])。

図 1 に、夏季 (6 ~ 8 月) の東アジア域における、OMI により観測された対流圏 NO₂ カラム量分布、2.8°、1.1°、0.56° の各水平分解能のモデルにおける対流圏 NO₂ カラム量の OMI に対する平均バイアス分布を示す。OMI では、メガシティや大規模な発電所が位置する華北平原、長江デルタ、揚子江デルタ、東京、ソウルなどにおいて、高濃度の NO₂ が観測されている。一方、2.8° 分解能のモデルでは、高濃度の NO₂ を過小評価する一方、大都市周辺の領域、沿岸部の海上において過大評価であった。1.1°、0.56° 分解能のモデルでは、高濃度 NO₂ の過小評価、都市周辺や沿岸部における過大評価が改善した。特に、北京 (49-91%)、上海 (18-79%)、東京 (11-62%)、ソウル (20-47%) などメガシティにおける過小評価の改善は顕著であった。

また、東アジア以外の領域においても、高分解能化によって、対流圏 NO₂ カラム量の空間分布が改善した。特に、アメリカ西部 (20-40%)、メキシコ (17-38%)、南アフリカ (45-56%) において、OMI に対する平均二乗誤差 (RMSE) が大きく改善した。南アメリカなどの森林火災領域においても、平均バイアス、RMSE のわずかな改善が見られた。

各水平分解能のモデル検証の結果、高分解能化によって人為的な汚染、森林火災領域の対流圏 NO₂ の再現性向上が確認され、全球対流圏 NO₂ シミュレーションにおける水平分解能の重要性が示された。全球高分解能モデルの NO₂ 分布を衛星観測リトリバル、データ同化におい

て先験情報 (a priori) として使用することで、それぞれのプロダクトの精度向上が期待される。

データ同化システムについても、予報モデルと同様、従来の 2.8° から 1.1° までの高分解能化を行い、2016 年 5 ~ 6 月を対象とした試験的な同化計算を実施した。本データ同化システムは、局所アンサンブル変換カルマンフィルタをベースしており、複数の衛星観測器からの多種類の物質の観測を統合し、大気汚染物質の濃度、排出量の推定が可能である (Miyazaki et al., 2017 [4])。同化した衛星観測データは、OMI、Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) の対流圏 NO₂ カラム量 (Beersma et al., 2011 [10])、Measurements Of Pollution In The Troposphere (MOPITT) の一酸化炭素 (CO) カラム量 (Deeter et al., 2013 [11])、Microwave Limb Sounder (MLS) の O₃、硝酸 (HNO₃) の鉛直プロファイル (Livesey et al., 2011 [12]) である。また、排出量の a priori には、HTAP_v2.2 (2010 年)、GFED ver. 4.1 (2005 ~ 2014 年平均)、GEIA を使用している。

2016 年 5 月の OMI により観測された対流圏 NO₂ カラム量分布、2.8°、1.1° 分解能それぞれのモデル計算、同化計算結果の OMI に対する平均バイアスを比較したところ、いずれの分解能においても、同化によってモデル計算のバイアスが減少しており、データ同化システムは概ね正常に動作していることが確認された。2.8°、1.1° 分解能の同化計算の結果を比較すると、ソウルにおいて、高分解能化により平均バイアスが改善していた。

また、NO_x 排出量の推定結果 (Posteriori) について、図 2 に示す。2.8°、1.1° のいずれの分解能においても、データ同化によって、中国東部では a priori と比べて減少 (18%)、日本・韓国では増加 (11%) を示した。A priori 排出量として人為起源は 2010 年のデータを使用しているため、こ

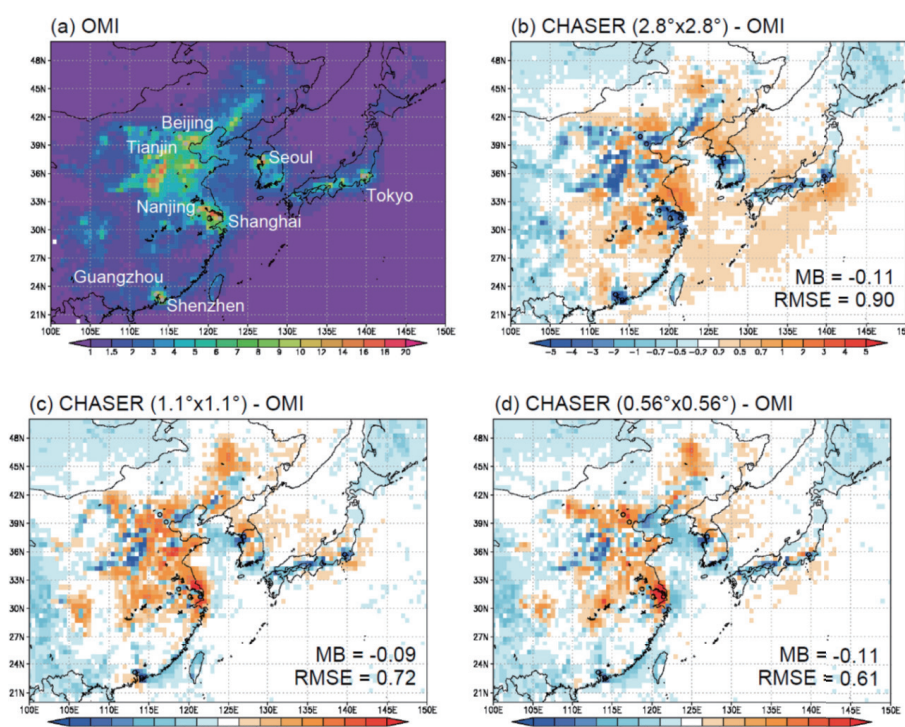


図 1 夏季 (6 ~ 8 月) の東アジア域における対流圏 NO₂ カラム量分布 ($\times 10^{15}$ molecules cm⁻²)。 (a) OMI による衛星観測、(b, c, d) 2.8°、1.1°、0.56° 分解能の CHASER の OMI に対するバイアス。

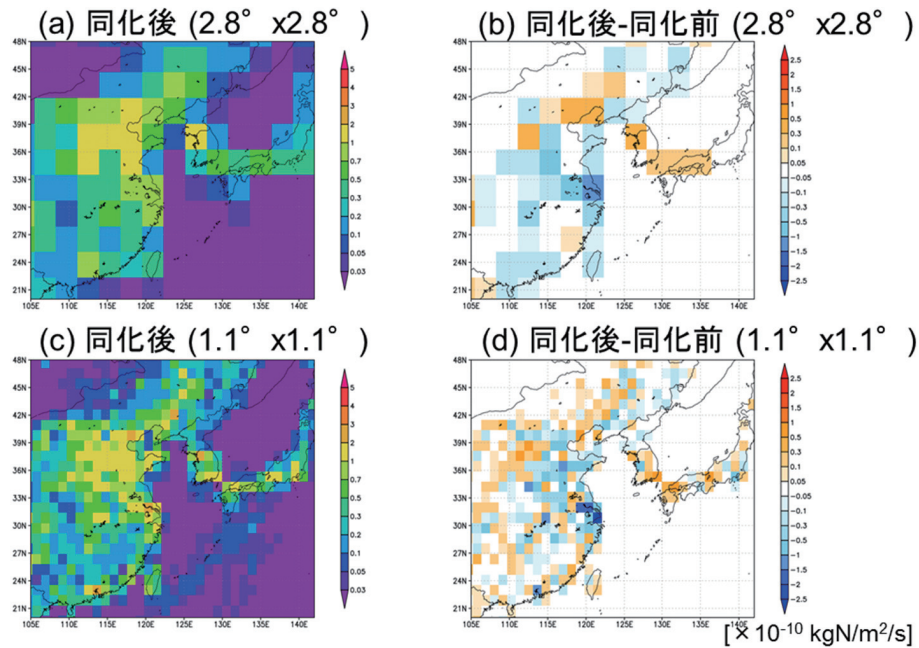


図2 (a, c) 2.8°、1.1°分解能のデータ同化システムによる2016年5月のNO_x排出量の推定値 ($\times 10^{-10} \text{ kg N m}^{-2} \text{ s}^{-1}$)、(b, d) データ同化システムによるNO_x排出量の修正量。

これらの結果は中国における2011年以降の環境政策、日本における東日本大震災以降の火力発電所の電力供給比率の増加などを反映していると考えられる。さらに、1.1°分解能では、2.8°分解能と比較して、長江デルタ、関東平野などにおいて、詳細な排出量分布の変化が推定されており、データ同化システムの高分解能化による、メガシティ・スケールの排出量推定の可能性が示唆された。

3. まとめおよび今後の課題

本研究により、全球対流圏NO₂シミュレーションにおける水平分解能の重要性が示された。また、試験的ではあるが、データ同化システムの高分解能化にも着手し、メガシティ・スケールの濃度・排出量の推定の可能性が示唆された。今後は、高分解能のデータ同化システムの開発を継続し、メガシティ・スケールの濃度・排出量のグローバルでの推定を試みる。また、今後計画されている、低軌道衛星搭載の測器 (e.g., TROPOMI)、静止軌道衛星搭載の測器 (e.g., Sentinel-4, TEMPO, GEMS) による高分解能の大気環境“観測ビッグデータ”を最大限活用できるシステムを構築していくことが重要であると考えられる。

謝辞

本研究の一部は文部科学省フラグシップ2020 (ポスト「京」) 重点課題4「観測ビッグデータを活用した気象と地球環境の予測の高度化」の支援を受けた。実験は海洋研究開発機構の地球シミュレータ特別推進課題で実施した。実験の実施には上原均氏、池田美紀子氏からご助力をいただいた。

文献

- [1] IPCC, *The physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J. Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley, eds., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi:10.1017/CBO9781107415324, 2013.
- [2] Inness et al. Inness, A., Blechschmidt, A.-M., Bouarar, I., Chabrillat, S., Crepulja, M., Engelen, R. J., Eskes, H., Flemming, J., Gaudel, A., Hendrick, F., Huijnen, V., Jones, L., Kapsomenakis, J., Katragkou, E., Keppens, A., Langerock, B., de Mazière, M., Melas, D., Parrington, M., Peuch, V. H., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Suttie, M., Thouret, V., Vrekoussis, M., Wagner, A., and Zerefos, C., “Data assimilation of satellite-retrieved ozone, carbon monoxide and nitrogen dioxide with ECMWF’s Composition-IFS”, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 5275–5303, doi:10.5194/acp-15-5275-2015, 2015.
- [3] Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K., “A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data”, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, doi:10.5194/acp-15-8315-2015, 2015.
- [4] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya, Y., “Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation”, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807–837, doi:10.5194/acp-17-807-2017, 2017.

- [5] Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., and Akimoto, H., “CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”, *J. Geophys. Res.*, 107, ACH 7–1–ACH 7–20, doi:10.1029/2001JD001113, 2002.
- [6] Rayner, N. A., Parker, D. E., Horton, E. B., Folland, C. K., Alexander, L. V., Rowell, D. P., Kent, E. C., and Kaplan, A., “Global analyses of sea surface temperature, sea ice, and night marine air temperature since the late nineteenth century”, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002670, 2003.
- [7] Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier van der Gon, H., Kuenen, J. J. P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., and Li, M.: HTAP_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11 411–11 432, doi:10.5194/acp-15-11411-2015, 2015.
- [8] Giglio, L., Randerson, J. T., and van der Werf, G. R.: Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global 25 fire emissions database (GFED4), *J. Geophys. Res.*, 118, 317–328, doi:10.1002/jgrg.20042, 2013.
- [9] Yienger, J. J. and Levy, H.: Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, 100, 11 447–11 464, doi:10.1029/95JD00370, 1995.
- [10] Boersma, K. F., Vinken, G. C. M., and Eskes, H. J., “Representativeness errors in comparing chemistry transport and chemistry climate models with satellite UV–Vis tropospheric column retrievals”, *Geosci. Model Dev.*, 9, 875–898, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-875-2016>, 2016.
- [11] Deeter, M. N., Martinez-Alonso, S., Edwards, D. P., Emmons, L. K., Gille, J. C., Worden, H. M., Pittman, J. V., Daube, B. C., and Wofsy, S. C.: Validation of MOPITT Version 5 thermalinfrared, near-infrared, and multispectral carbon monoxide profile retrievals for 2000–2011, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 6710–6725, doi:10.1002/jgrd.50272, 2013.
- [12] Livesey, N. J., Read, W. G., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Jiang, J. H., Knosp, B. W., Stek, P. C., Wagner, P. A., and Wu, D. L.: Aura Microwave Limb Sounder (MLS), Version 3.3 Level 2 data quality and description document, Tech. Rep. JPL D-33509, Jet Propul. Lab., Pasadena, CA, 2011.

Construction of a 1.1°-Resolution Assimilation Dataset for the Tropospheric Chemical Reanalysis

Project Representative

Masayuki Takigawa Project Team for HPC Advanced Predictions utilizing Big Data, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

Authors

Takashi Sekiya^{*1}, Kazuyuki Miyazaki^{*2}, Koji Ogochi^{*1} and Masayuki Takigawa^{*1,3}

*1 Project Team for HPC Advanced Predictions utilizing Big Data, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, *2 Research and Development Center for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology, *3 Institute of Arctic Climate and Environment Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

The atmospheric environment data assimilation system using LETKF (Local Ensemble Transform Kalman Filter) developed in JAMSTEC has been adopted using a horizontal resolution of 2.8° (300 km) as horizontal resolution. However, it is known that atmospheric pollutants, especially NO₂, show very large spatial distribution fluctuations around megacities. In this study, a global high-resolution simulations of tropospheric NO₂ column was evaluated using satellite tropospheric NO₂ retrievals from the Ozone Monitoring Instrument (OMI). A trial of a global high-resolution data assimilation was also conducted. As a result, it was found that the large impact of horizontal resolution on the horizontal distribution of tropospheric NO₂.

Keywords: data assimilation, chemical transport model, global scale, air pollution, megacities

1. Objective of this study

Nitrogen oxides (NO_x ~ NO + NO₂) play a key role in air quality, tropospheric chemistry, ecosystem, and climate change. NO_x is one of the main precursors of tropospheric ozone, a major pollutant and greenhouse gas (IPCC, 2013[1]). Oxidation products from NO_x, including nitric acid (HNO₃), alkyl nitrates (RONO₂), and peroxy nitrates (RO₂NO₂), are partitioned to particulate nitrates, which cause respiratory problems, degrade visibility, and affect the radiative budget by scattering solar radiation. The wet and dry deposition of nitrogen compounds affects the productivities and diversities of terrestrial and marine ecosystems on a global scale (e.g., Gruber and Galloway, 2008; Duce et al., 2008). Increasing NO_x also reduces quantities of long-lived greenhouse gases, such as methane, due to chemical destruction via hydroxyl radicals (OH) through O₃-HO_x-NO_x chemistry. Chemical transport models (CTMs) are commonly used for the estimation of global distribution of pollutants and their social impacts. However, the uncertainty of the model estimation is quite large because of the large uncertainty of emissions, chemical reactions, removal processes etc. Global chemical data assimilation (e.g., Inness et al., 2015 [2]; Miyazaki et al., 2015 [3]) would be beneficial for the improvement of estimated global distribution of atmospheric concentration and emissions, because it can include observational data. Miyazaki et al. (2015 [3]; 2017[4]) has established a state-of-the-art data assimilation system which can include multi-species multi-device satellite retrievals for the assimilation of the tropospheric

chemical constituents. A high-resolution data assimilation requires large amount of computer resources, and the horizontal resolution of the most of global application of data assimilation for pollutants is around 300 km. However, it is known that the

atmospheric pollutants, especially NO₂, show very large spatial distribution fluctuations around source regions such as megacities. It can be expected that (1) closer spatial representativeness between simulations and observations and (2) better representation of large-scale concentration fields through the consideration of small-scale processes when we conduct a higher-resolution simulations. In this study, the improvement of tropospheric NO₂ column in our CTM named as CHASER (Sudo et al., 2002 [5]) has been evaluated when a higher horizontal resolution was applied up to 56 km. A short-range global high-resolution assimilation was also conducted during the observational campaign of NASA in Korea in 2016 spring.

2. Results

We evaluated the performance of high-resolution global NO₂ simulations using CHASER based on comparisons against tropospheric NO₂ column retrievals from OMI. Three different horizontal resolutions at 0.56°, 1.1°, and 2.8° were evaluated. 32 vertical layers from the surface to approximately 40 km were used across the three simulations. CHASER calculates gaseous, aqueous, and heterogeneous chemical reactions (93 species and 263 reactions), including the O₃-HO_x-NO_x-CH₄-CO system with the oxidation of non-methane volatile organic compounds

(NMVOCs). We evaluated 1-year global simulations for tropospheric NO_2 in 2008 with a 1-year spin-up calculation. Sea-surface temperatures (SSTs) and sea-ice concentrations (SICs) were prescribed by HadISST for the corresponding year (Rayner et al., 2003 [6]). Simulated air temperature and horizontal wind were nudged to 12-hourly ERA-Interim reanalysis data (Dee et al., 2011 [7]). NO_x emissions from anthropogenic, biomass burning, lightning, and soil sources were considered. Anthropogenic emissions from the HTAP_v2.2 inventory for the year 2008 (Janssens-Maenhout et al., 2015 [8]) were employed for the simulations, with these originally having $0.1^\circ \times 0.1^\circ$ resolution. Biomass burning emissions were taken from the Global Fire Emissions Database (GFED) version 4.1 (Giglio et al., 2013 [9]). Soil emissions were obtained from the Global Emission Initiative (GEIA) database (Yienger and Levy, 1995 [10]). Lightning NO_x sources were calculated as a function of cloud top height in the cumulus convection parameterization (prognostic Arakawa–Schubert scheme) at each time step of CHASER.

The model performance was evaluated using the model-retrieval comparison of tropospheric column NO_2 . OMI, onboard the Aura satellite, was used as the reference. We used the DOMINO version 2.0 data product (Boersma et al., 2011 [11]) obtained from the TEMIS website (<http://www.temis.nl/>). The ground pixel size of OMI ranges from $13 \times 24 \text{ km}^2$ to $26 \times 128 \text{ km}^2$ depending on the satellite viewing angle.

Figure 1 compares the detailed spatial distribution of the tropospheric NO_2 column in summer, as represented by OMI measurements and model simulations over East Asia. High concentrations were observed over the North China Plain, the Yangtze River Delta, the Pearl River Delta, Seoul, and Tokyo,

which could mainly be attributed to emissions from traffic and large coal-fired power plants in the North China Plain. The 2.8° simulation underestimated these high concentrations and overestimated low concentrations over surrounding areas, probably associated with artificial mixing at coarse model resolution. The 1.1° and 0.56° simulations reduced negative biases over central eastern China, the Pearl River Delta, Seoul, Tokyo, and the western part of Japan. Over the Yellow Sea, the East China Sea, and off the Pacific coast of Japan, the positive biases at 2.8° resolution were mostly removed at 1.1° and 0.56° resolutions. Consequently, regional RMSE was 32 % lower at 0.56° resolution. In contrast, high-resolution simulations led to overestimation over Beijing and the Yangtze River Delta. Large negative biases were reduced at 0.56° resolution by 67% over Beijing, by 73 % over Tianjin, by 18 % Shanghai, by 90 % over Nanjing, by 62 % over Guangzhou, by 48 % over Shenzhen, by 47 % over Seoul, and by 62 % over Tokyo (compared to 2.8° resolution). Root mean square errors (RMSE) was improved at other regions such as the western United States (20-40%), Mexico (17-38%), and South Africa (45-56%). Over biomass burning regions, model performance also improved with increasing model resolution from 2.8° to 1.1° and 0.56° . For instance, RMSE was reduced by 15 % at 1.1° resolution (compared to 2.8° resolution) over South America. This results encourages us to combine with future high-resolution satellite observations, providing valuable information on the atmospheric environment and related long-term changes on the megacity scale.

We are also developing a high-resolution global chemical data assimilation system based on an ensemble Kalman filter data assimilation technique (Miyazaki et al., 2017 [4]) and the

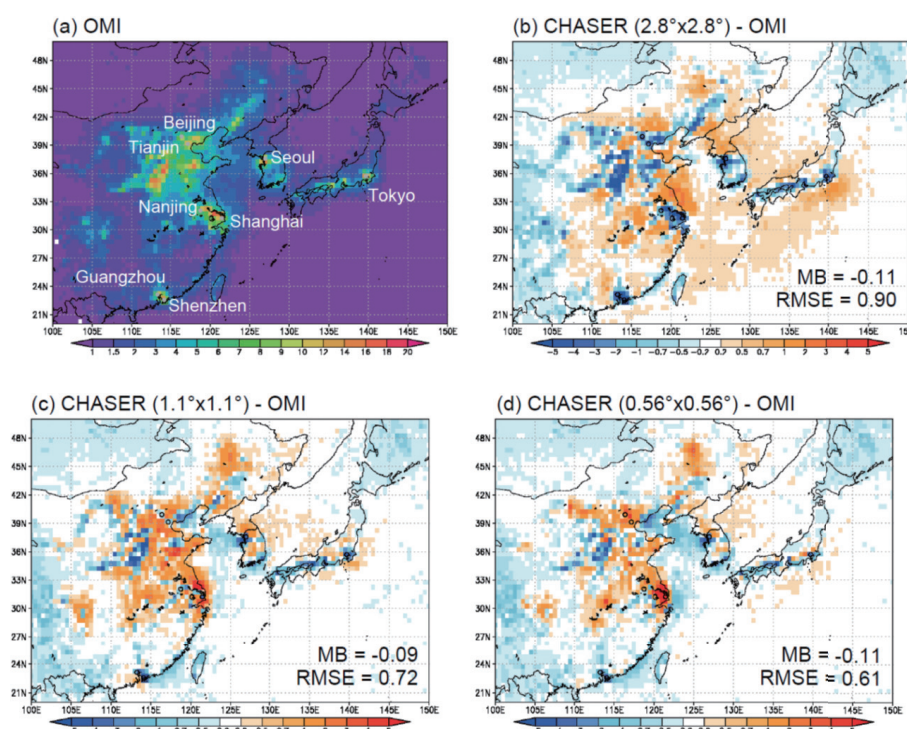


Fig. 1 Tropospheric column NO_2 from OMI retrievals ($\times 10^{15} \text{ molecules cm}^{-2}$) (a) and differences between the model simulation at 2.8° (b), 1.1° (c), and 0.56° (d) resolutions and OMI retrievals over East Asia during JJA 2008.

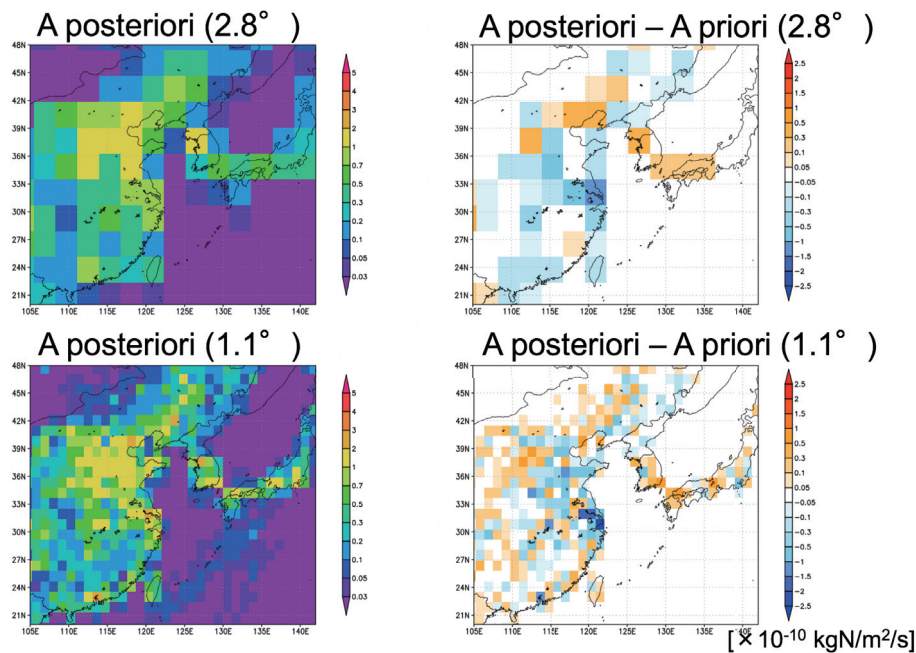


Fig. 2 (a) estimated horizontal distribution of NO_x emission using a 2.8°-resolution global data assimilation ($\times 10^{-10}$ kg N m⁻² s⁻¹). (b) difference between a priori and a posteriori. (c), (d) same as (a) and (b), but for a 1.1°-resolution global data assimilation.

developed high-resolution CTM. As a trial, we have conducted a 1.1°-resolution global data assimilation from May to June 2016. Satellite retrievals of tropospheric NO₂ column from OMI and Global Ozone Monitoring Experiment-2 (GOME-2) (Boersma et al., 2011 [10]), tropospheric CO column from Measurements Of Pollution In The Troposphere (MOPITT) (Deeter et al., 2013 [11]), vertical profiles of ozone and nitric acid (HNO₃) from Microwave Limb Sounder (MLS), (Livesey et al., 2011 [12]). A priori emissions are taken from HTAP_v2.2 for 2010 for the anthropogenic emission, averaged value from 2005 to 2014 of GFED ver. 4.1 for biomass burning, and GEIA for soil emission, respectively. Tropospheric NO₂ in May 2016 was evaluated using the satellite retrievals of OMI. The bias of 1.1°-resolution assimilation was reduced from that of 2.8°-resolution assimilation, and it was evaluated that our data assimilation system can be applied for a high-resolution calculation.

Figure 2 denotes the horizontal distribution of NO_x emissions using 2.8°- and 1.1°- resolution global assimilation. The difference between a priori and a posteriori are also shown. A clear decrease in NO_x emission over the eastern China (18%) and increase over Korea and Japan (11%) can be seen in both of 2.8° and 1.1° resolution assimilation. In this study, we have used anthropogenic emission for 2010, and these difference can be explained by the change of environmental policy in China and the increase of emissions from thermal power plant in Japan after the earthquake in 2011. A remarkable difference can be also seen in 1.1°-resolution assimilation over Yangtze River delta and Kanto Plain comparing to that of 2.8°-resolution assimilation. This result suggests the capability of emission estimations around megacities using a high-resolution data assimilation system.

3. Summary and future works

Agreement against satellite retrievals improved greatly at 1.1° and 0.56° resolutions compared to that of 2.8° resolution over polluted and biomass burning regions. In conclusion, the 1.1° simulation generally captures the regional distribution of the tropospheric NO₂ column well, but the 0.56° resolution is essential for the simulation of high NO₂ concentrations on a megacity scale. We have also conducted short-term high-resolution data assimilation for pollutants. The result suggests the capability of emission estimations around megacities using a high-resolution data assimilation system, and it encourages us to conduct further studies using the high-resolution global chemical data assimilation system and satellite observations from a new constellation of low Earth orbit sounders (e.g., IASI, AIRS, CrIS, TROPOMI, and Sentinel-5) and geostationary satellites (e.g., Sentinel-4, GEMS, and TEMPO).

Acknowledgements

This work was supported by the post-K computer project Priority Issue 4 (the advancement of meteorological and global environmental predictions utilizing observational Big Data). The Earth Simulator was used for simulations as a “Strategic Project with Special Support” of the Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology. The authors would like to thank Ms. Ikeda and Mr. Uehara for their cooperation in performing the simulations.

References

- [1] IPCC, *The physical Science Basis, Contribution of Working Group I to the Fifth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, Stocker, T.F., D. Qin, G.-K. Plattner, M. Tignor, S.K. Allen, J.

- Boschung, A. Nauels, Y. Xia, V. Bex and P.M. Midgley, eds., Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA, doi:10.1017/CBO9781107415324, 2013.
- [2] Inness et al. Inness, A., Blechschmidt, A.-M., Bouarar, I., Chabrillat, S., Crepulja, M., Engelen, R. J., Eskes, H., Flemming, J., Gaudel, A., Hendrick, F., Huijnen, V., Jones, L., Kapsomenakis, J., Katragkou, E., Keppens, A., Langerock, B., de Mazière, M., Melas, D., Parrington, M., Peuch, V. H., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Suttie, M., Thouret, V., Vrekoussis, M., Wagner, A., and Zerefos, C., “Data assimilation of satellite-retrieved ozone, carbon monoxide and nitrogen dioxide with ECMWF’s Composition-IFS”, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 5275–5303, doi:10.5194/acp-15-5275-2015, 2015.
- [3] Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K., “A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data”, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, doi:10.5194/acp-15-8315-2015, 2015.
- [4] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya, Y., “Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation”, *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807–837, doi:10.5194/acp-17-807-2017, 2017.
- [5] Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., and Akimoto, H., “CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description”, *J. Geophys. Res.*, 107, ACH 7–1–ACH 7–20, doi:10.1029/2001JD001113, 2002.
- [6] Rayner, N. A., Parker, D. E., Horton, E. B., Folland, C. K., Alexander, L. V., Rowell, D. P., Kent, E. C., and Kaplan, A., “Global analyses of sea surface temperature, sea ice, and night marine air temperature since the late nineteenth century”, *J. Geophys. Res.*, 108, doi:10.1029/2002JD002670, 2003.
- [7] Dee, D. P., Uppala, S. M., Simmons, A. J., Berrisford, P., Poli, P., Kobayashi, S., Andrae, U., Balmaseda, M. A., Balsamo, G., Bauer, P., Bechtold, P., Beljaars, A. C. M., van de Berg, L., Bidlot, J., Bormann, N., Delsol, C., Dragani, R., Fuentes, M., Geer, A. J., Haimberger, L., Healy, S. B., Hersbach, H., Hólm, E. V., Isaksen, I., Kållberg, P., Köhler, M., Matricardi, M., McNally, A. P., Monge-Sanz, B. M., Morcrette, J.-J., Park, B.-K., Peubey, C., de Rosnay, P., Tavolato, C., Thépaut, J.-N., and Vitart, F.: The ERA-Interim reanalysis: configuration and performance of the data assimilation system, *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 137, 553–597, doi:10.1002/qj.828, 2011. Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier van der Gon, H., Kuenen, J. J. P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., and Li, M.: HTAP_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution, *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11 411–11 432, doi:10.5194/acp-15-11411-2015, 2015.
- [8] Giglio, L., Randerson, J. T., and van der Werf, G. R.: Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global 25 fire emissions database (GFED4), *J. Geophys. Res.*, 118, 317–328, doi:10.1002/jgrg.20042, 2013.
- [9] Yienger, J. J. and Levy, H.: Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions, *J. Geophys. Res.*, 100, 11 447–11 464, doi:10.1029/95JD00370, 1995.
- [10] Boersma, K. F., Vinken, G. C. M., and Eskes, H. J., “Representativeness errors in comparing chemistry transport and chemistry climate models with satellite UV–Vis tropospheric column retrievals”, *Geosci. Model Dev.*, 9, 875–898, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-875-2016>, 2016.
- [11] Deeter, M. N., Martinez-Alonso, S., Edwards, D. P., Emmons, L. K., Gille, J. C., Worden, H. M., Pittman, J. V., Daube, B. C., and Wofsy, S. C.: Validation of MOPITT Version 5 thermalinfrared, near-infrared, and multispectral carbon monoxide profile retrievals for 2000–2011, *J. Geophys. Res.-Atmos.*, 118, 6710–6725, doi:10.1002/jgrd.50272, 2013.
- [12] Livesey, N. J., Read, W. G., Froidevaux, L., Lambert, A., Manney, G. L., Pumphrey, H. C., Santee, M. L., Schwartz, M. J., Wang, S., Cofield, R. E., Cuddy, D. T., Fuller, R. A., Jarnot, R. F., Jiang, J. H., Knosp, B. W., Stek, P. C., Wagner, P. A., and Wu, D. L.: Aura Microwave Limb Sounder (MLS), Version 3.3 Level 2 data quality and description document, Tech. Rep. JPL D-33509, Jet Propul. Lab., Pasadena, CA, 2011.