第三期 IIAE 定期セミナー

第 10 回
『大気化学輸送モデル（CTM）の解析事例』

愛媛大学 農学部 客員研究員
斎藤正彦

2021 年 9 月 7 日（火）

13：30～15：00　オンライン開催

一般財団法人大気環境総合センター

〒112-0004　東京都文京区後楽 1 丁目 2-8 後楽 1 丁目ビル 6F
TEL：03-6801-6082　FAX：03-6801-6083
https://iiae.or.jp

大気環境総合センター　第3期定期セミナー

大気化学輸送モデル（CTM）の解析事例

(時間配分：60分講演、10分休息、20分質疑)

2021年9月7日（火）　13：30～15:00

斎藤正彦

愛媛大学　客員研究員
msaito@agr.ehime-u.ac.jp

目次

1. 代表的な大気化学輸送モデル について

2. 気象モデル(WRF)と大気化学輸送モデル（CMAQ, CAMx）の再現性

3. Probing Toolsによる解析事例　　厳密に調べるツール
(1) Process Analysis (PA)　　プロセス解析
　　Integrated Processes Rate (IPR)　　プロセスの累積変化率（プロセス：移流、拡散、反応、発生、沈着など）
　　Integrated Reaction Rate (IRR)　　化学反応の累積変化率（例えばO_3の生成・消滅・正味の変化を調べる）
(2) Source Apportionment（SA）　　測定地点における発生源の寄与
(3) Decoupled Direct Method（DDM）　　O_3の感度係数（O_3濃度変化/排出量変化）などを調べる

4. データ可視化ソフト*ParaView*による3D描画

5. 質疑応答

CTM: **C**hemical **T**ransport **M**odel
CMAQ: **C**ommunity **M**ultiscale **A**ir **Q**uality
WRF: **W**eather **R**esearch and **F**orecasting
CAMx: **C**omprehensive **A**ir Quality **M**odel with E**x**tensions

1. 代表的な大気化学輸送モデル について

＜代表的な(領域)大気化学輸送モデル＞

・CMAQ	v5.3.3 (2021年8月)	US EPA（公的機関）	https://www.epa.gov/cmaq
・CAMx	v7.10 (2021年1月)	RAMBOLL（民間）	https://www.camx.com/download/
・WRF-Chem	v4.3 (2021年5月)	NCAR/UCAR（公的機関）	http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get_sources_new.php

＜気象モデル＞

・WRF	v4.3 (2021年5月)	NCAR/UCAR（公的機関）	http://www2.mmm.ucar.edu/wrf/users/download/get_sources_new.php

＜公開：排出量データ＞

・領域大気質モデル間相互比較プロジェクト J-STREAM			https://www.nies.go.jp/chiiki/jstream.html
・Regional Emission inventory in ASia (REAS)		REASv3.2	https://www.nies.go.jp/REAS/
・PM2.5等大気汚染物質排出インベントリ（環境省）			http://www.env.go.jp/air/osen/pm/info.html

デスクトップPC： OS ：ubuntu 16 LTS CPU : Intel Core i7-8700K @3.7 GHz x *12* memory : 31.1GB HDD : 4TB

US EPA：米国環境保護庁 NCAR：米国国立大気研究センター UCAR：米国大気研究大学連合
CMAQ： The **C**ommunity **M**ultiscale **A**ir **Q**uality Modeling System CAMx：**C**omprehensive **A**ir Quality **M**odel with E*x*tensions
WRF：**W**eather **R**esearch and **F**orecasting
RAMBOLL(ランボール)：デンマークの環境コンサル ENVIRON（米国）は、2014年12月RAMBOLLに買収

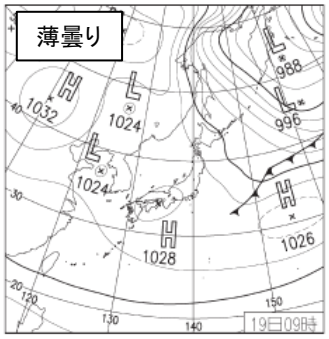
気象要素（風向・風速、気温・混合比）のモデル再現性

2016年12月15日～24日

関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
（環境基準：1日平均値 35μg/m³ 以下）

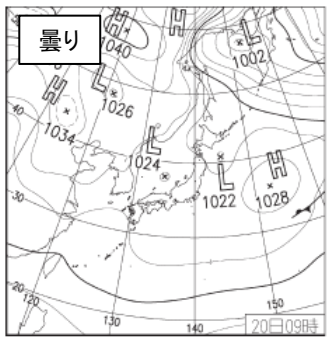
寒冷前線の通過

12/19(月)



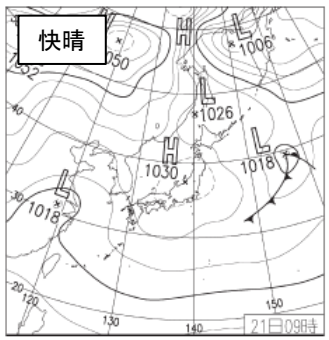
19日（月）11月並の陽気
高気圧に覆われ西～北日本は太平洋側中心に概ね晴れ．沖縄・奄美は湿った空気の影響で曇りで所々で雨．最低気温は平年並の所多く，最高気温は各地で11月並．徳島で初霜．

12/20 (火)



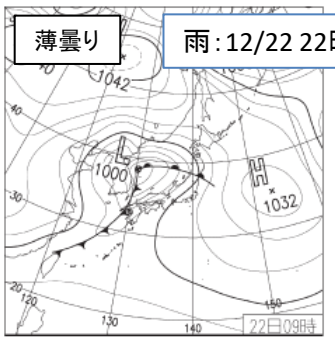
20日（火）沖縄～九州は暖かい朝
気圧の谷が通過し東～北日本太平洋側の一部を除き曇りまたは雨や雪．高松市で平年より31日早くウメが開花し，今季全国最早．阿蘇山噴火警戒レベルを３から２へ引下げ．

12/21 (水)



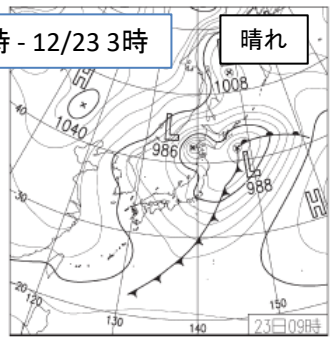
21日（水）暖かな冬至
移動性高気圧に覆われ，全国的に晴れて気温高い．九州を中心に最高・最低気温が平年より８℃以上高い地点も．西日本～東北の所々で濃霧が発生し，交通障害となった所も．

12/22 (木)



22日（木）新潟県糸魚川で大火災
日本海で低気圧発達．寒冷前線が西日本を東進，近傍で非常に激しい雨．高知・和歌山県で突風．平年より気温高く10月並の所も．九州～北陸など最高気温12月の１位．台風第26号発生．

12/23 (金)



23日（金）札幌50年ぶりの大雪
前線伴う発達した低気圧通過で最大瞬間風速は北海道えりも岬34.6 m/s，東京都羽田29.3 m/s．北日本に低気圧残り北海道で大雪．札幌の積雪96 cmは12月として1966年以来の大雪．

引用：日々の天気図・今月のひまわり画像、天気（2017）64巻2号　p104　日本気象学会　https://www.metsoc.jp/tenki/index_tenki.php

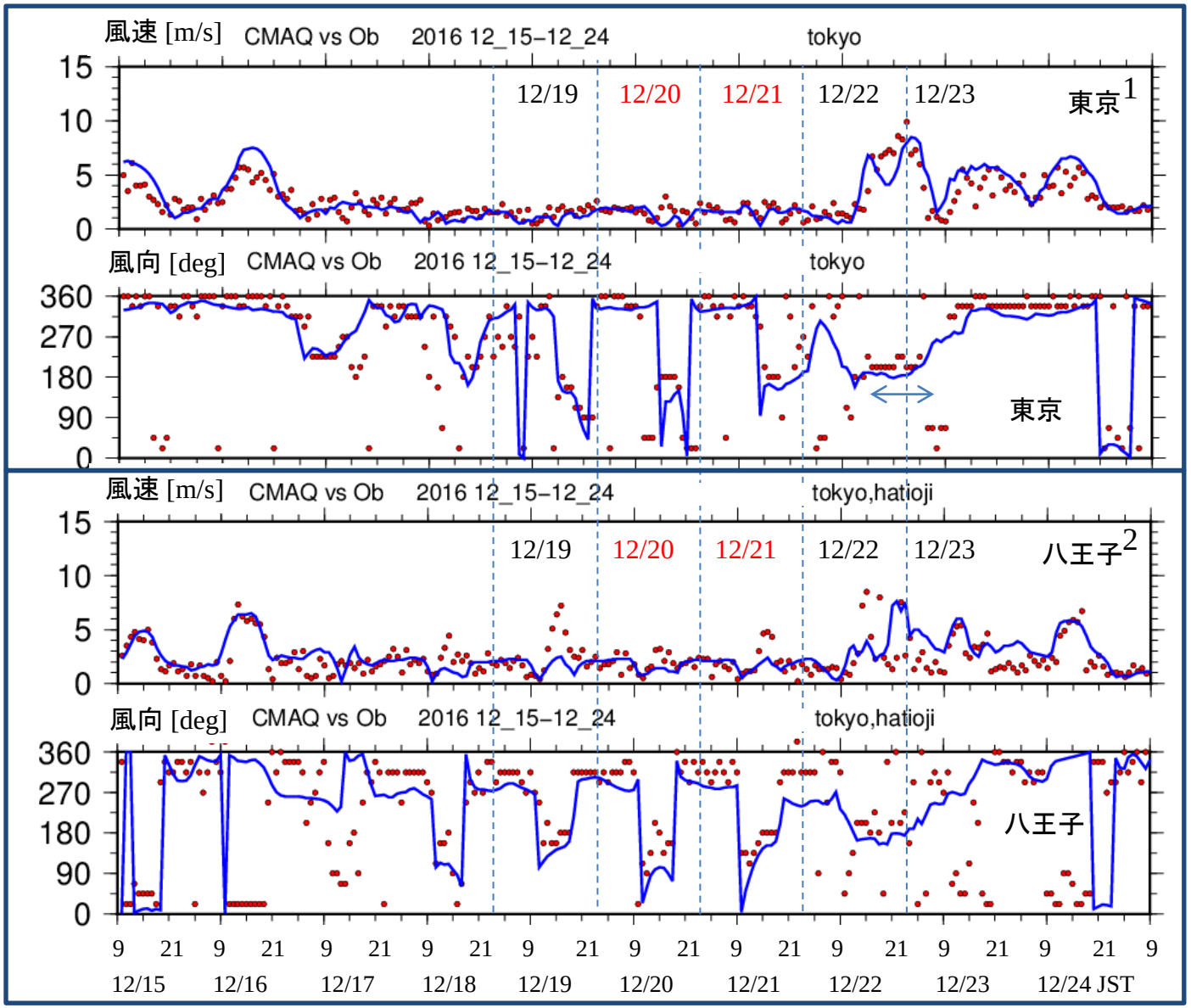
風向・風速、気温・相対湿度の観測値は、気象庁のサイト「過去の気象データ・ダウンロード」を利用した。http://www.data.jma.go.jp/gmd/risk/obsdl/index.php

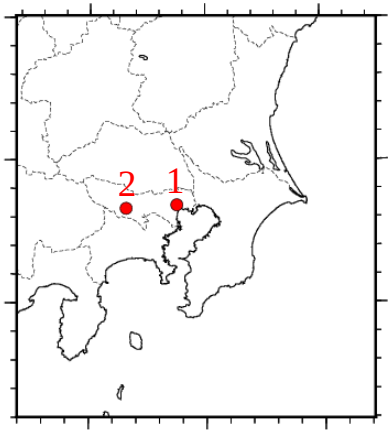
混合比：乾燥空気に対する水蒸気の質量の比 [kg/kg]　　比　湿　：湿潤空気（水蒸気を含む空気）に対する水蒸気の質量の比 [kg/kg]

東京都

風向・風速の比較

2016/12/15～12/24　10日間





風向：0度と360度は同じ
風向の観測：16方位(22.5°きざみ)

弱風時は、観測値の風向に信頼性は低い

寒冷前線通過時（22日から23日）
北風から西風（270°）

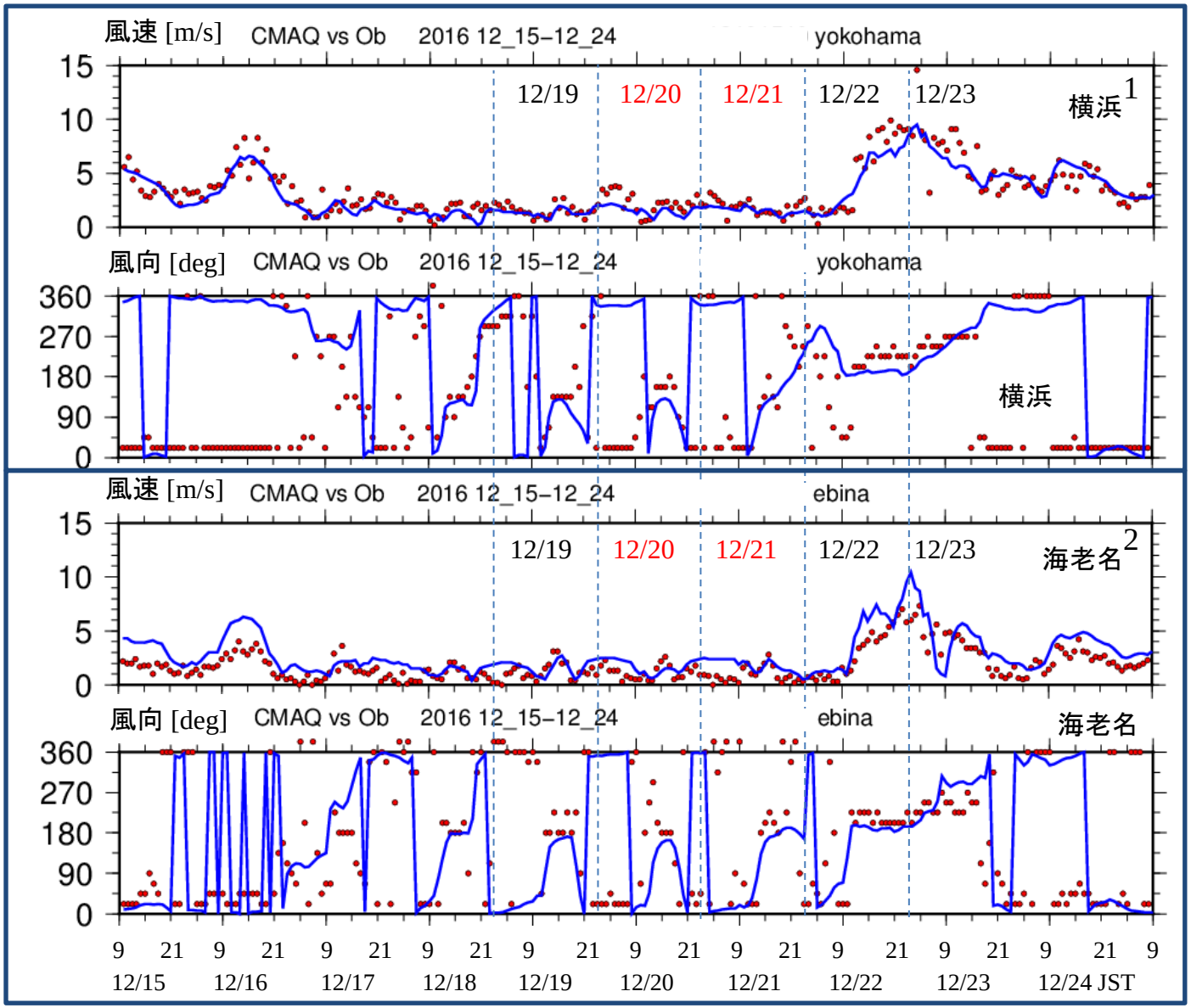
日中：南風
夜間：北風

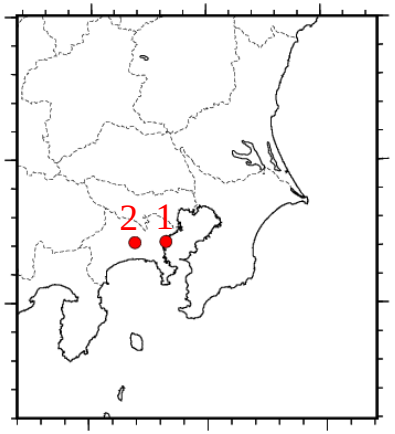
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

神奈川県

風向・風速の比較

2016/12/15～12/24　10日間



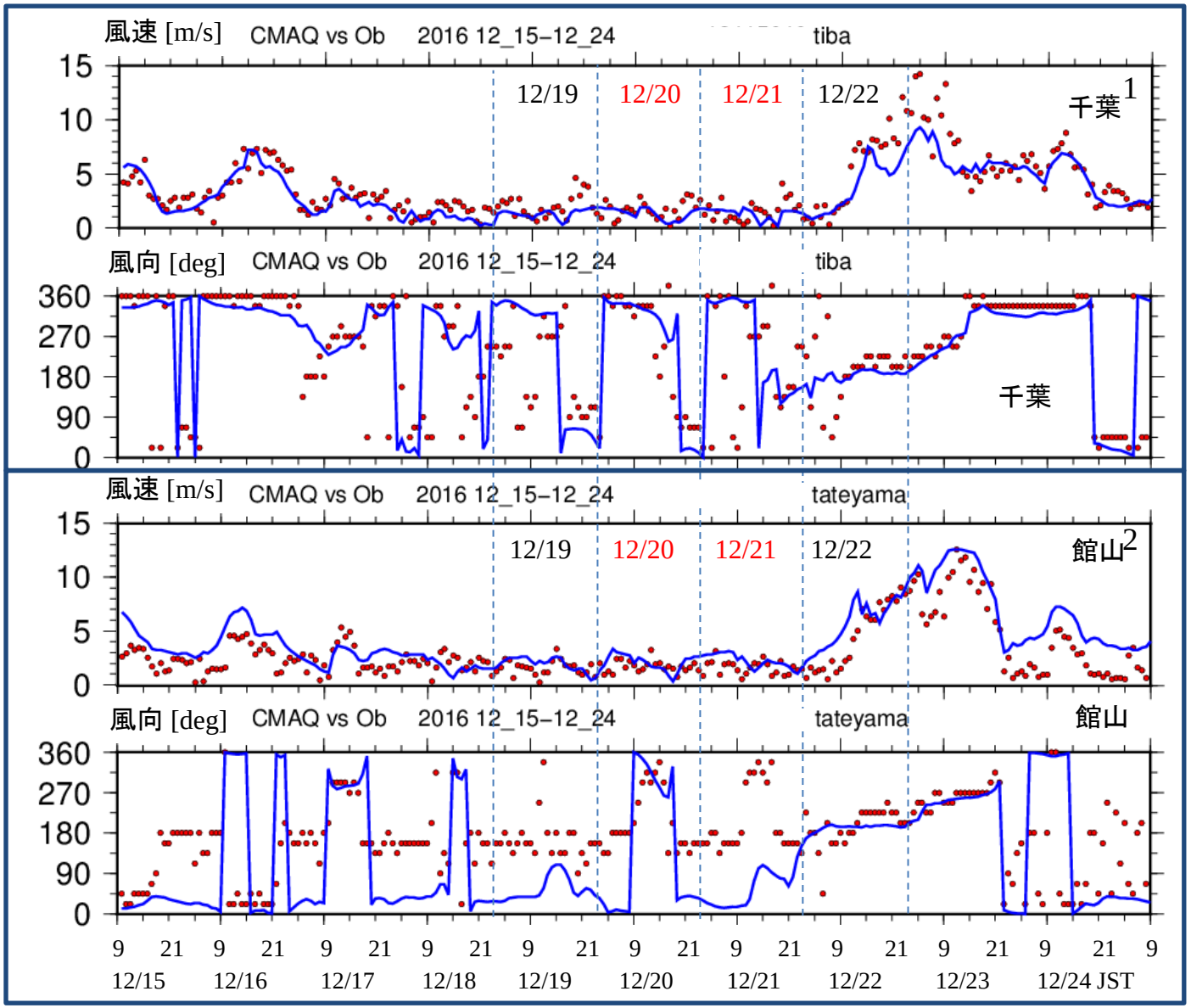


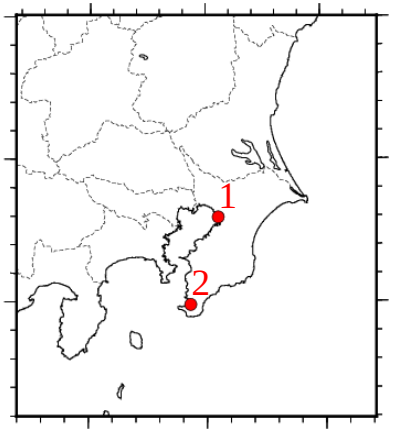
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

千葉県

風向・風速の比較

2016/12/15～12/24　10日間

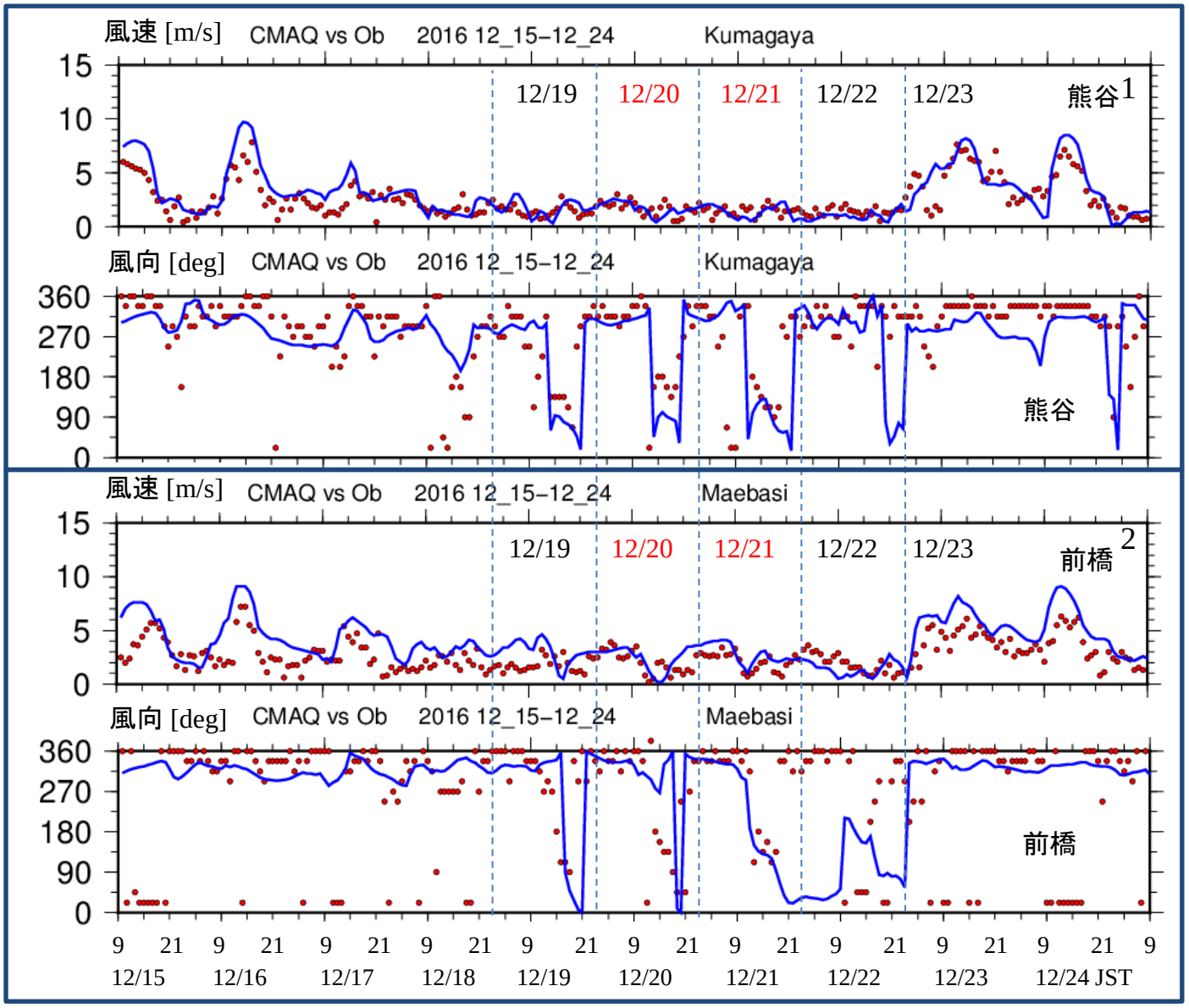


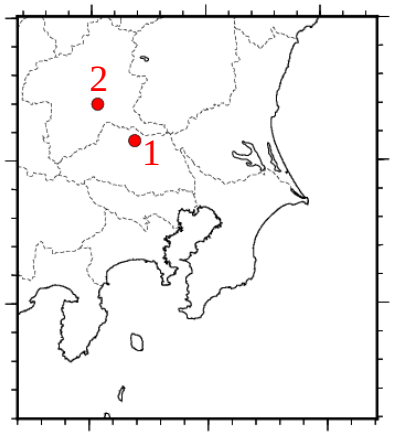


関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

埼玉県・群馬県　風向・風速の比較

2016/12/15～12/24　10日間



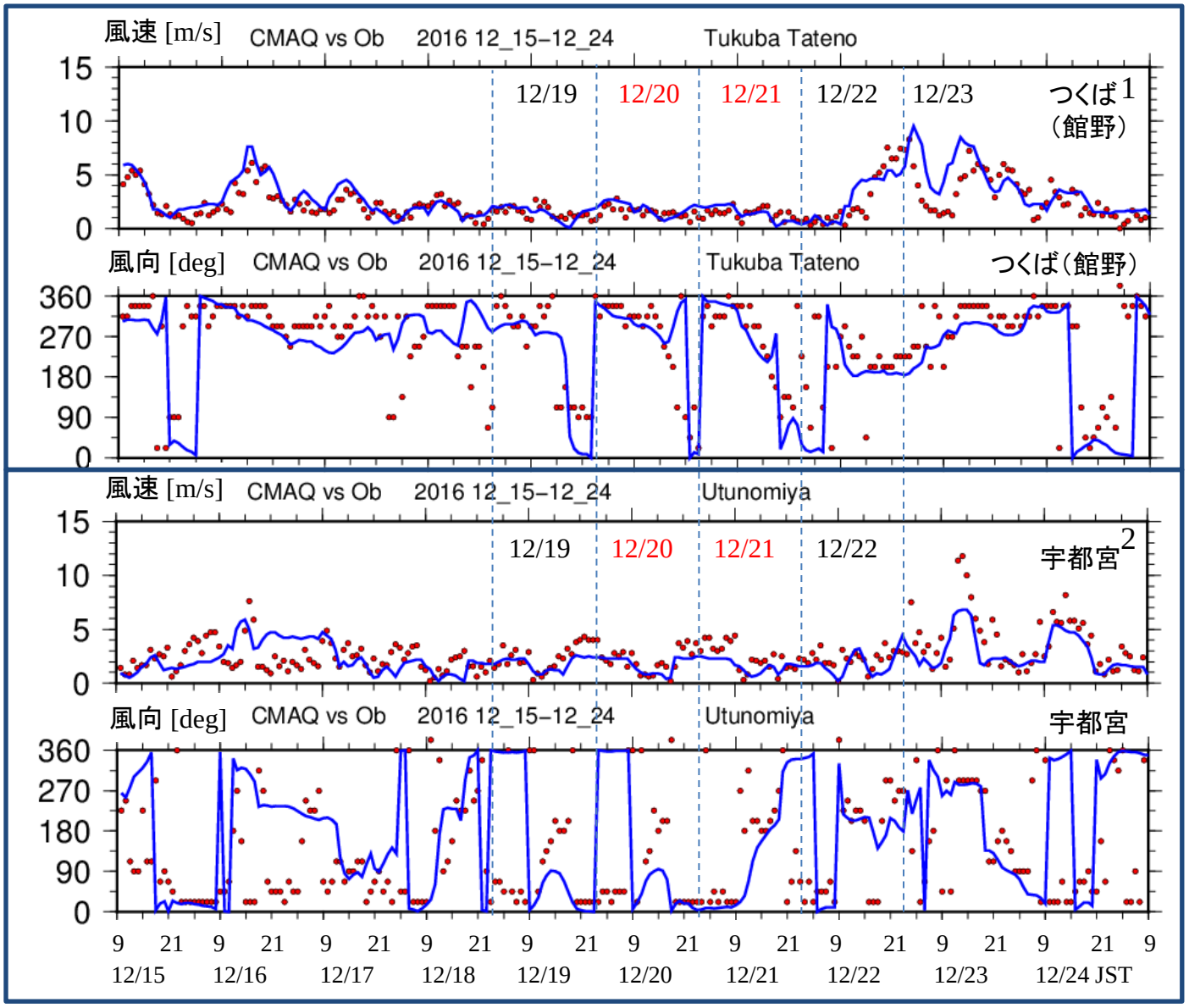


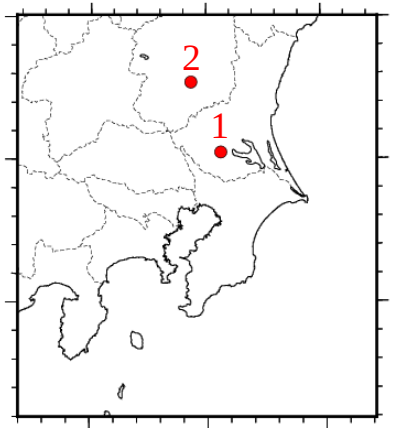
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

茨城県・栃木県

風向・風速の比較

2016/12/15～12/24　10日間



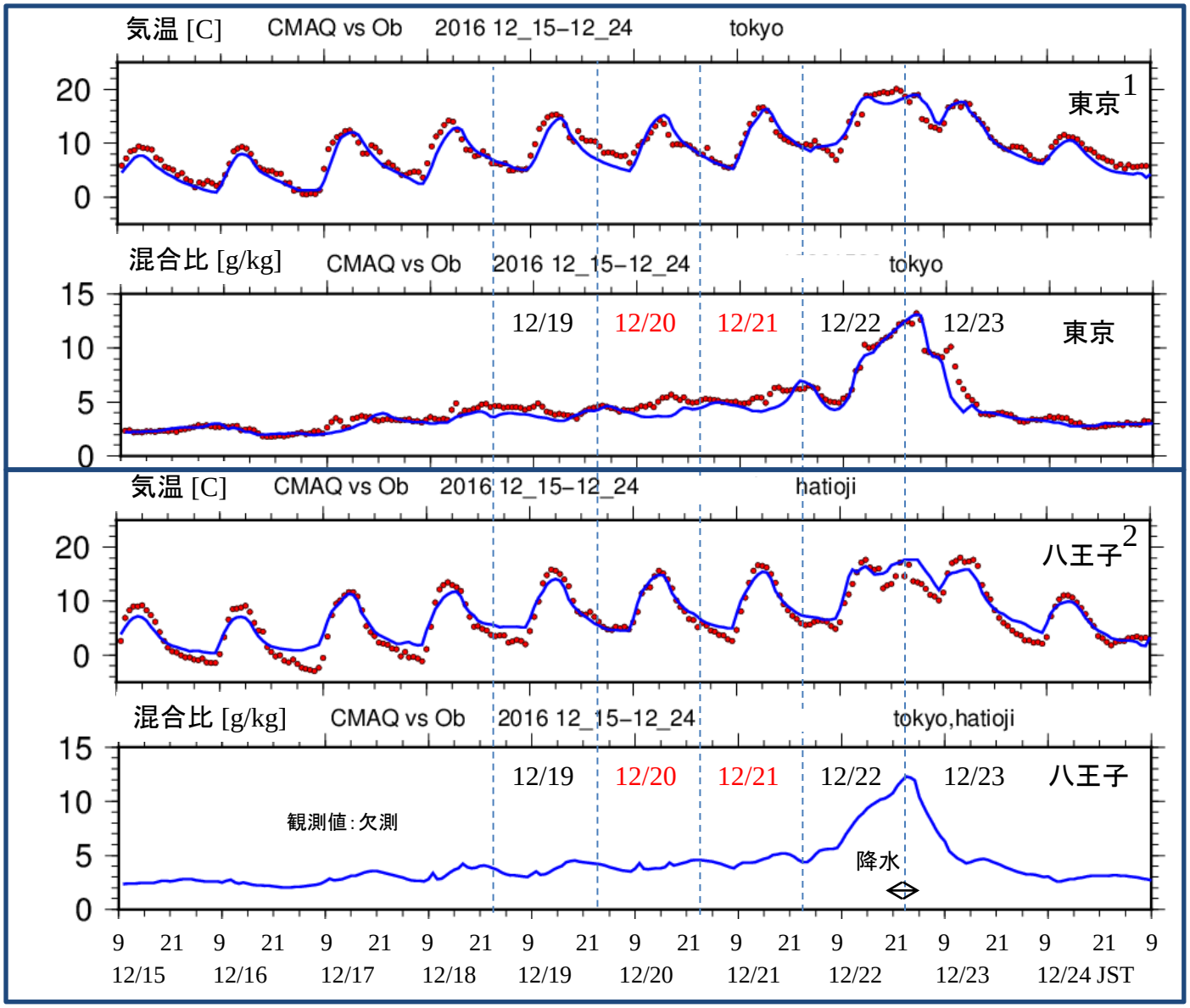


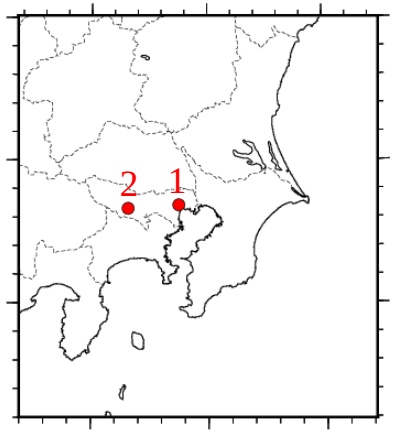
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

東京都

気温・混合比の比較

2016/12/15～12/24　10日間





気温は日変化をしている

寒冷前線の前面では、
暖気が入り気温が上昇している

降水あり、混合比も上昇している
（WRFの降水量の再現性に課題）

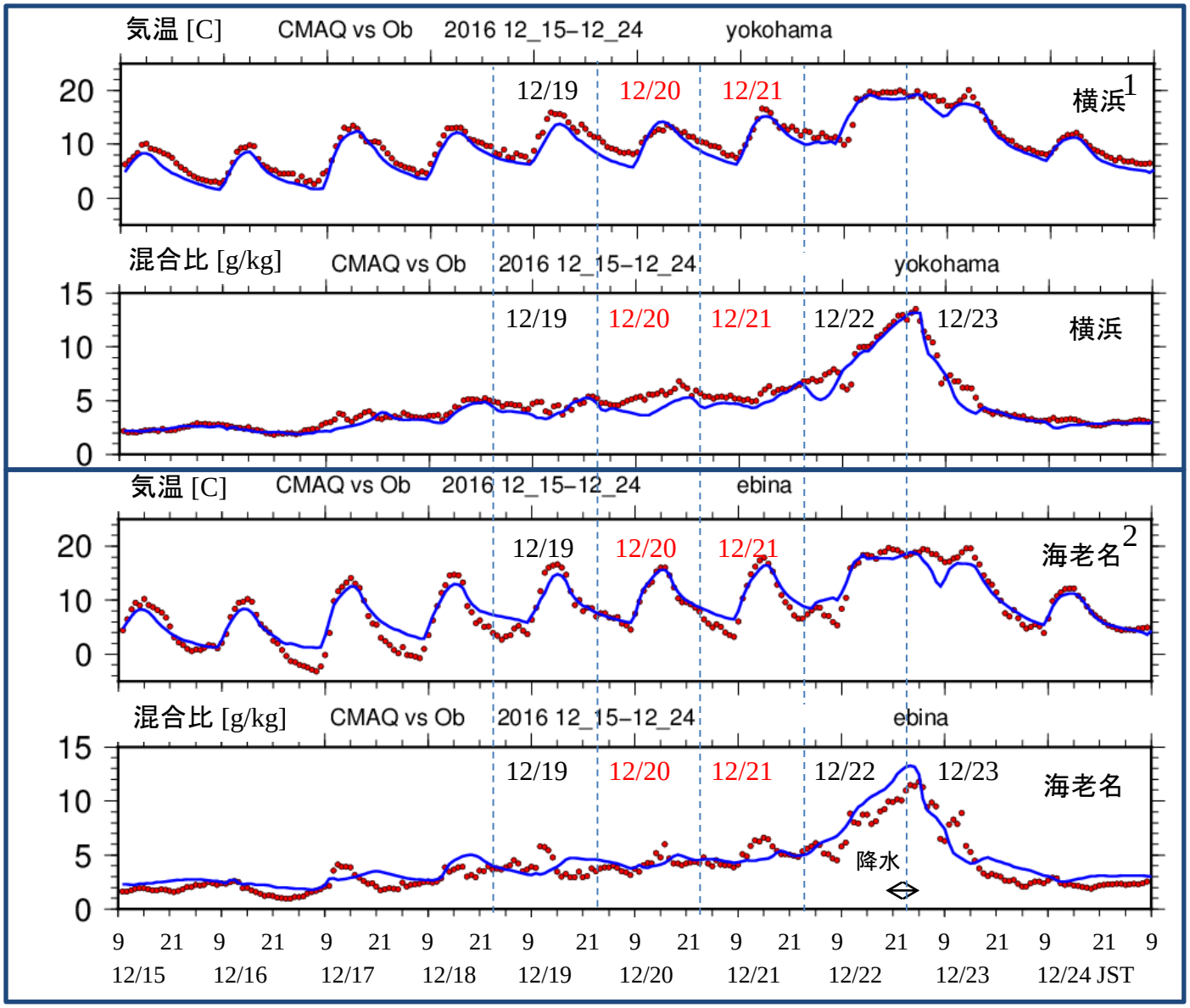
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

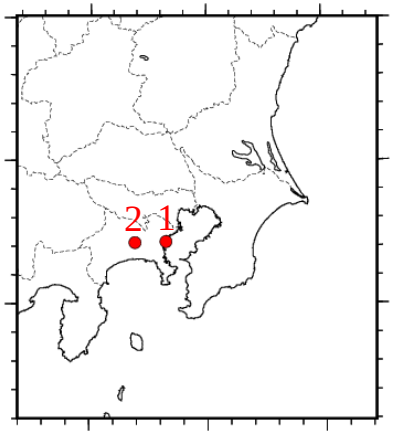
降水：12/22 22:00 - 12/23 3:00

神奈川県

気温・混合比の比較

2016/12/15～12/24　10日間



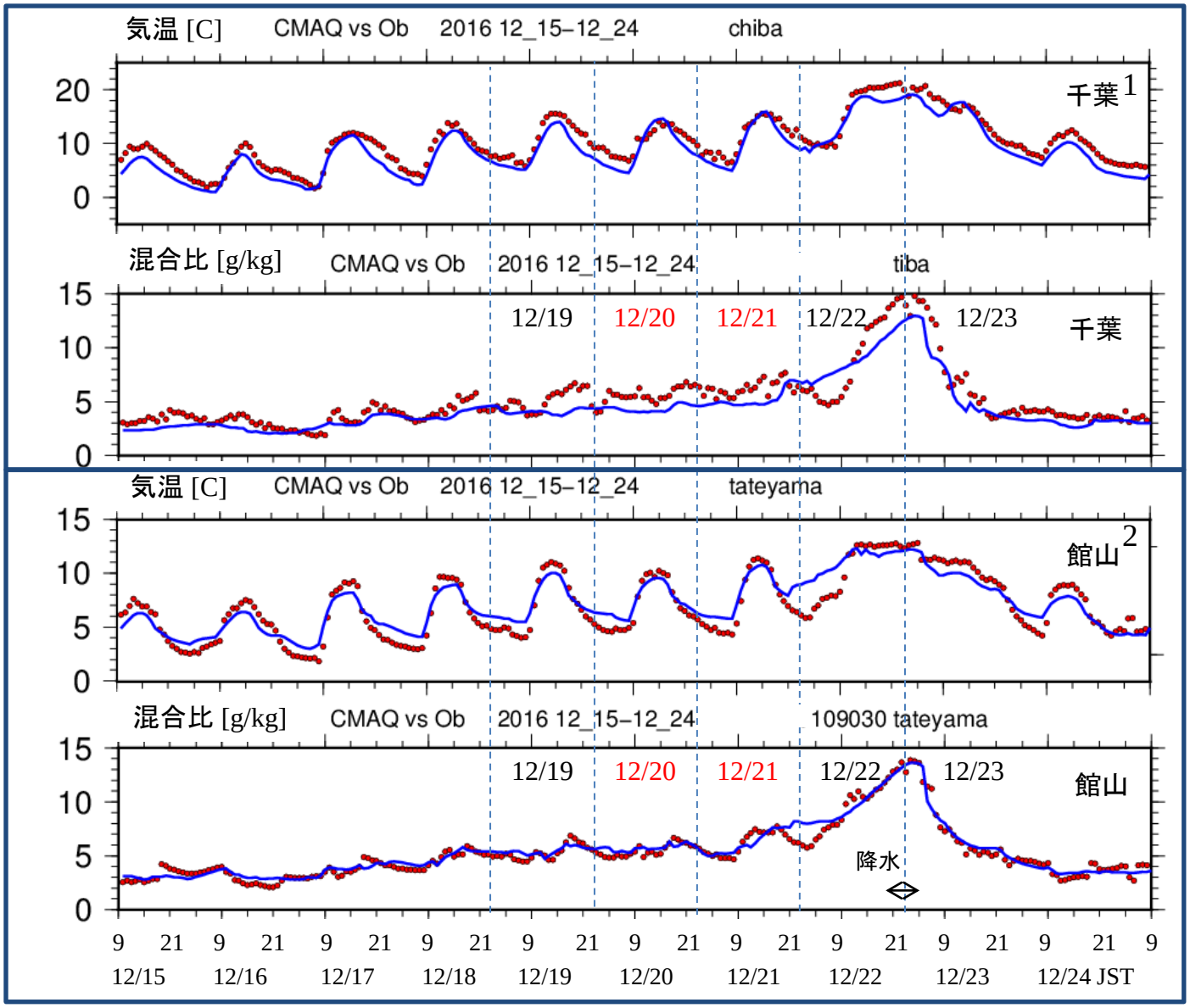


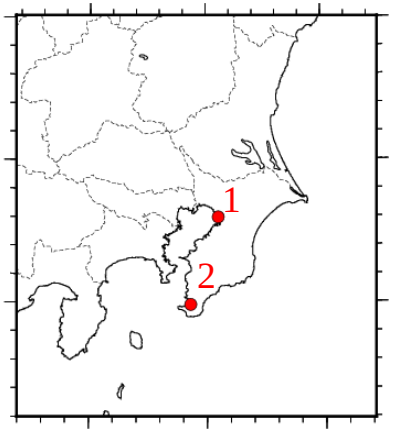
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

千葉県

気温・混合比の比較

2016/12/15～12/24　10日間

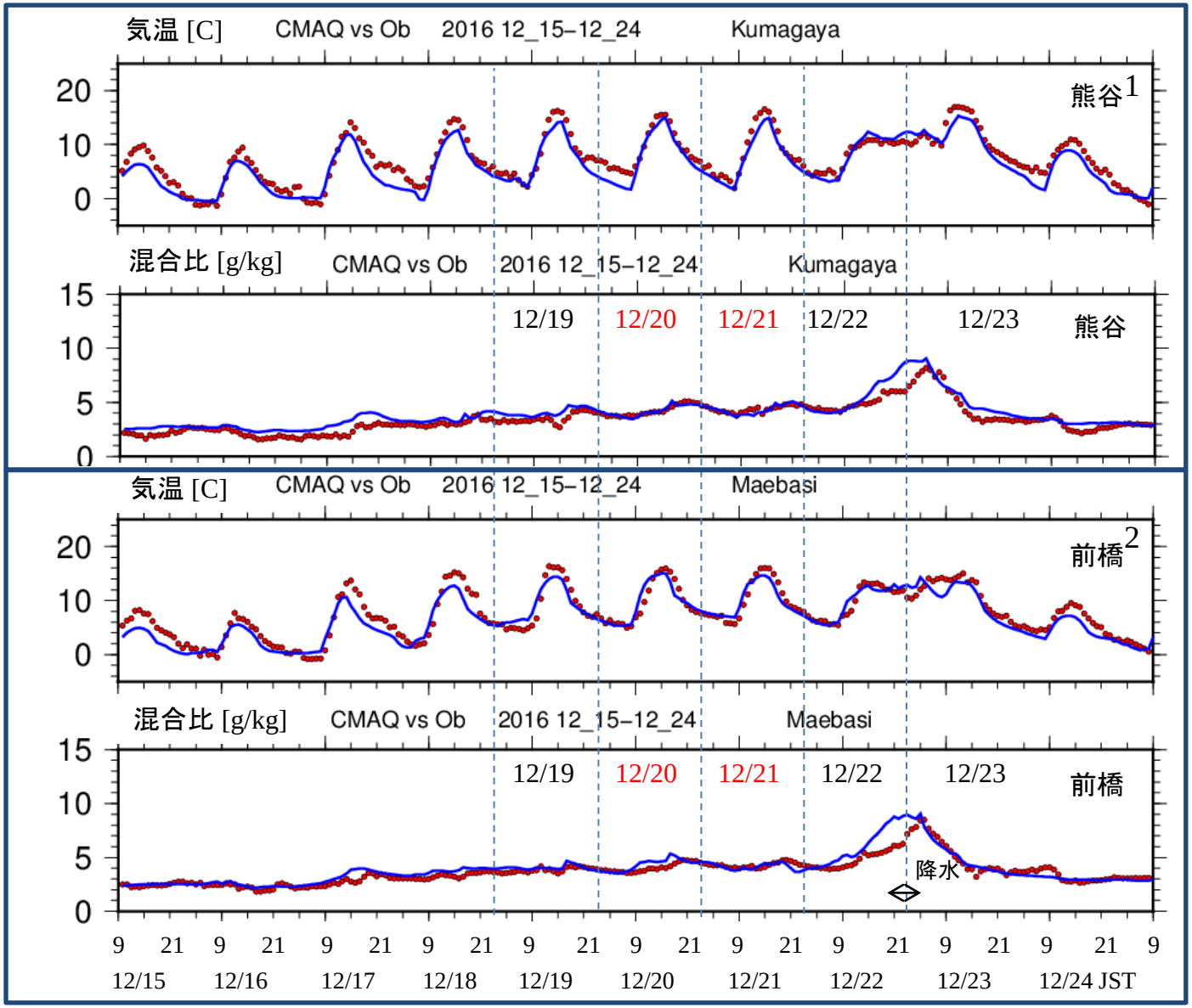


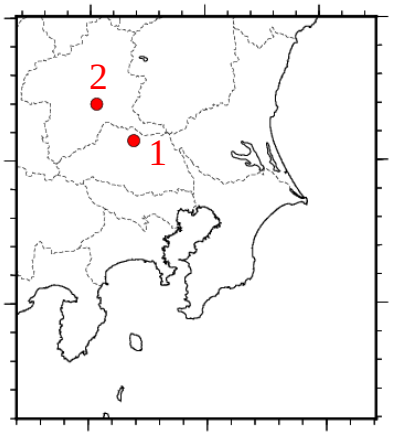


関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

埼玉県・群馬県　気温・混合比の比較

2016/12/15～12/24　10日間



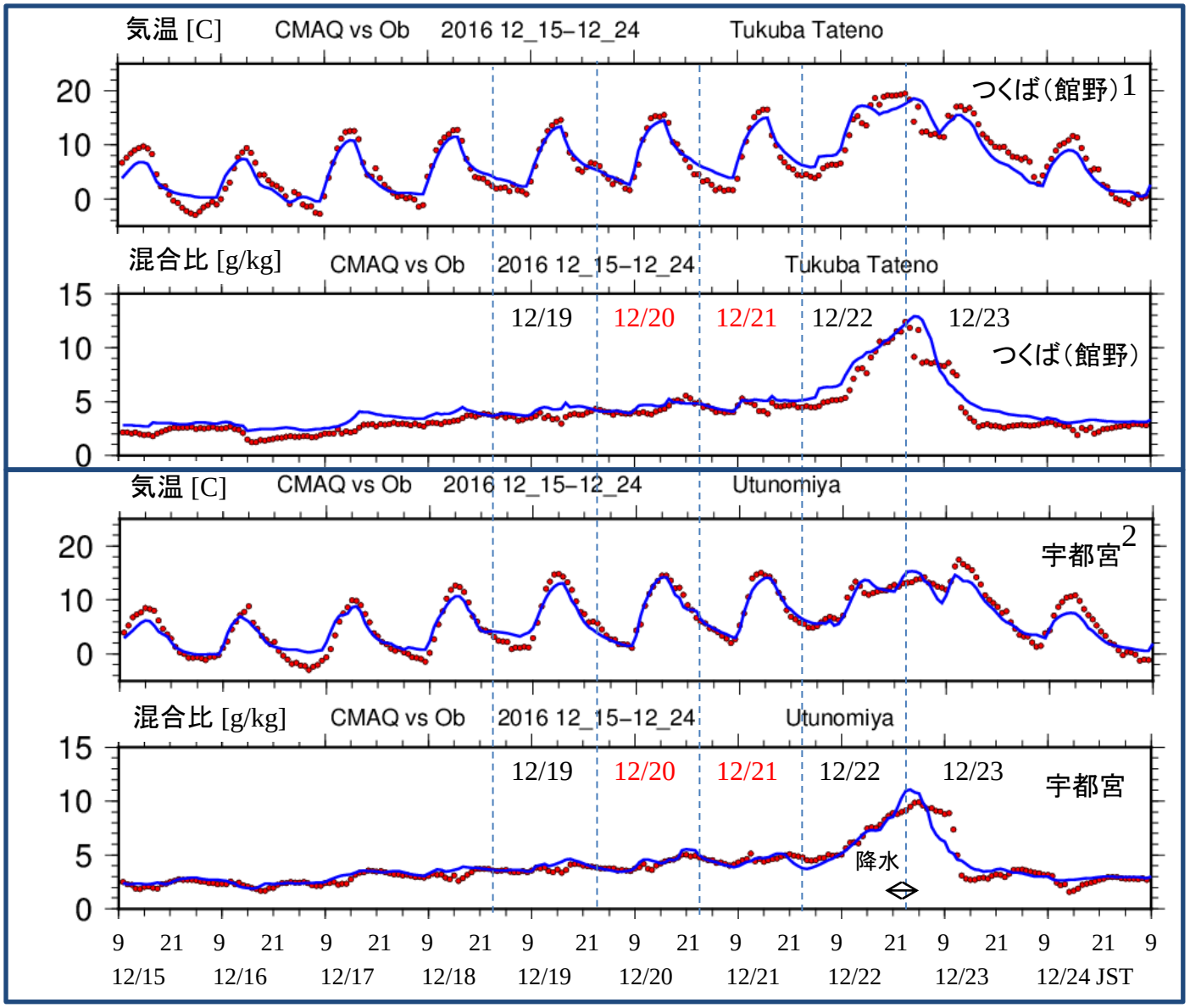


関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

茨城県・栃木県

気温・混合比の比較

2016/12/15～12/24　10日間



関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

2. 気象モデル(WRF)と大気化学輸送モデル（CMAQ, CAMx）の再現性

大気質濃度（NO_2, NO, $PM_{2.5}$）のモデル再現性　2016年12月15日～24日

東京・埼玉　　関東：1都6県

・CAMx ：気相化学反応　CB05, SAPRC07　　エアロゾル過程：CF　　（無機：ISORROPIA　有機：SOAP ）

・CMAQ ：気相化学反応　SAPRC07　　エアロゾル過程：AERO6（無機：ISORROPIA　有機：AERO6 ）

＜気相化学反応：化学メカニズム＞
都市大気の化学反応を考える場合、数千の有機化合物の反応を考慮しないといけない。
しかし、実際シミュレーションを行う場合、とても不便である。そこで、簡素化が行われた。

① Carbon-bond lumped method (Whitten, 1980)　例：CB4、CB05、CB6
炭素原子の結合状態によってグループ化した方法である。
butane (ブタン)　（4 carbon, 単結合）
cyclopentane (シクロペンタン)　（5 carbon, 単結合）
} PAR(paraffin: C_nH_{2n+2})
二重結合　OLE（Olefin=アルケン）

② Lumped-species method (Carter, 1990)　例：SAPRC99、SAPRC07
類似した反応性を持つ化学種をグループ化した方法で、反応速度定数は、
モル割合で反応速度定数を平均化した値を用いる。

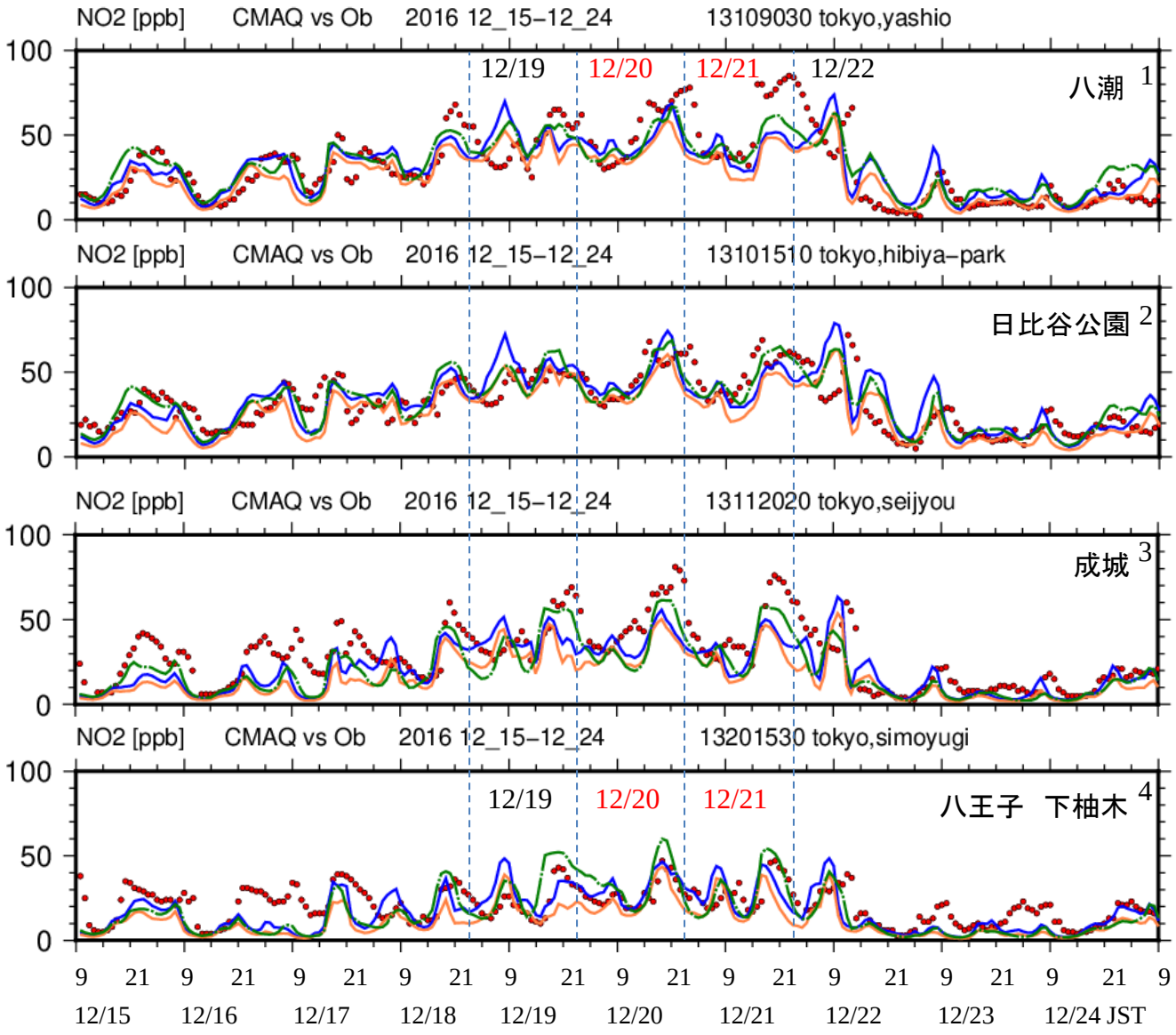
＜大気質濃度の実測データ＞
環境省大気汚染物質広域監視システム「そらまめ君」を利用した。　http://soramame.taiki.go.jp/

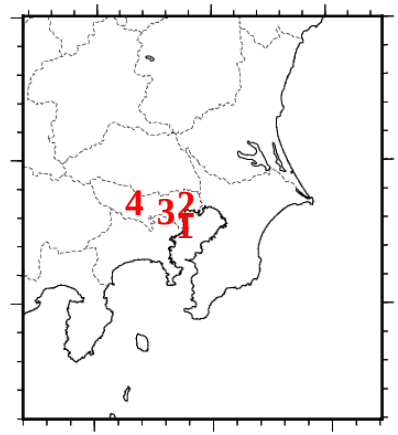
参考：Jimenez et al. (2003) Comparison of photochemical mechanisms for air quality modeling, *Atmospheric Environment* **37**, 4179-4194
Jacobson M. Z. (2005) Fundamentals of atmospheric modeling, CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS, 813pp

東京都

NO_2時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05

CAMx saprc07

CMAQ saprc07

測定値

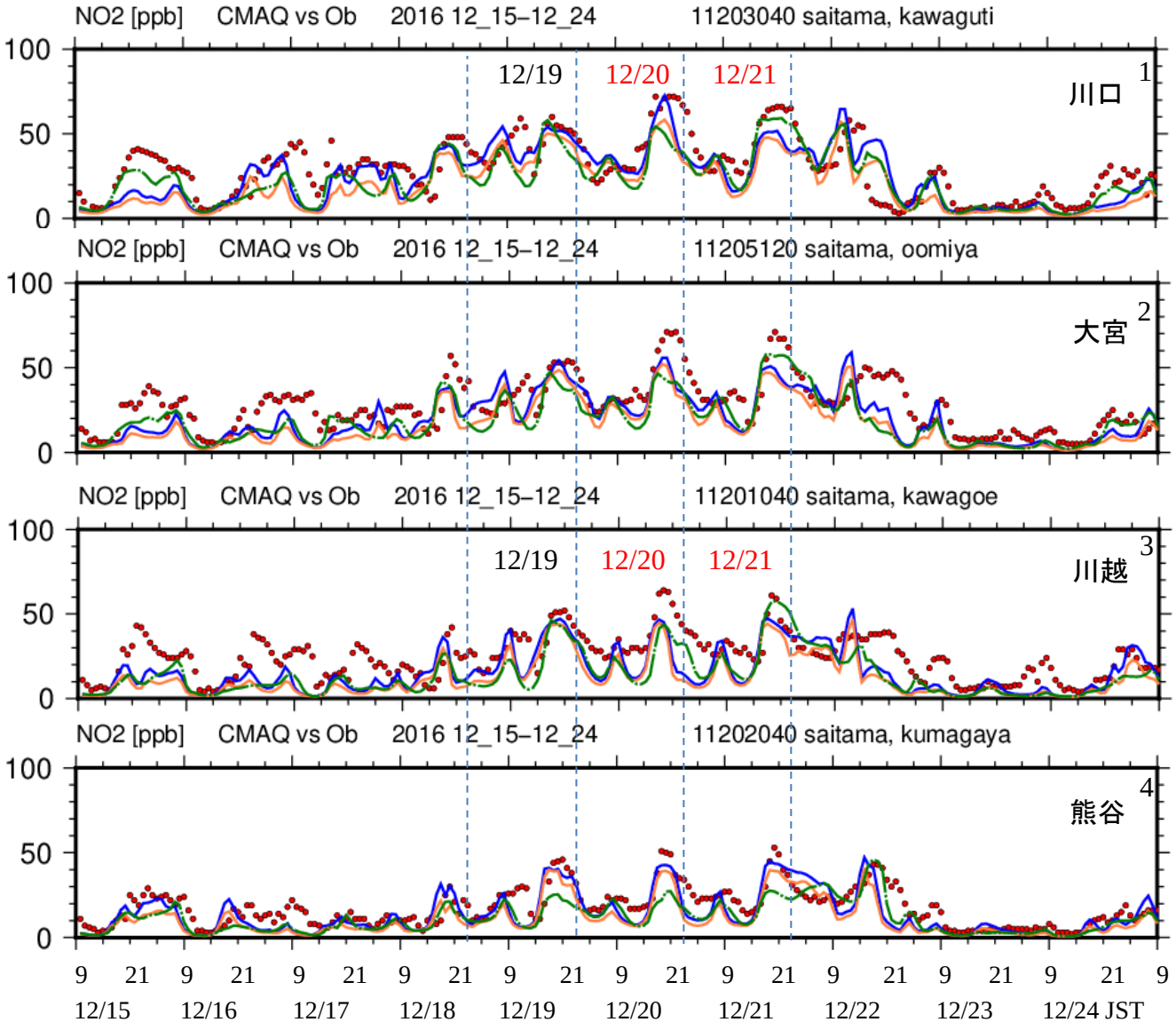
再現性は良好
モデル間の違いは小さい

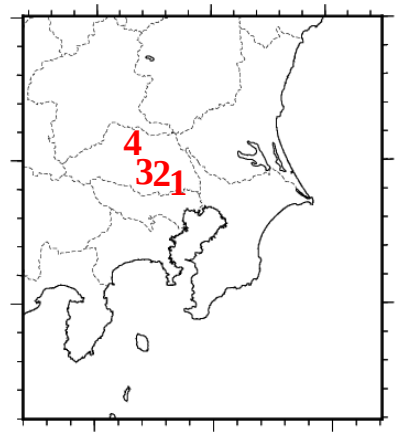
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

埼玉県

NO_2時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05

CAMx saprc07

CMAQ saprc07

測定値

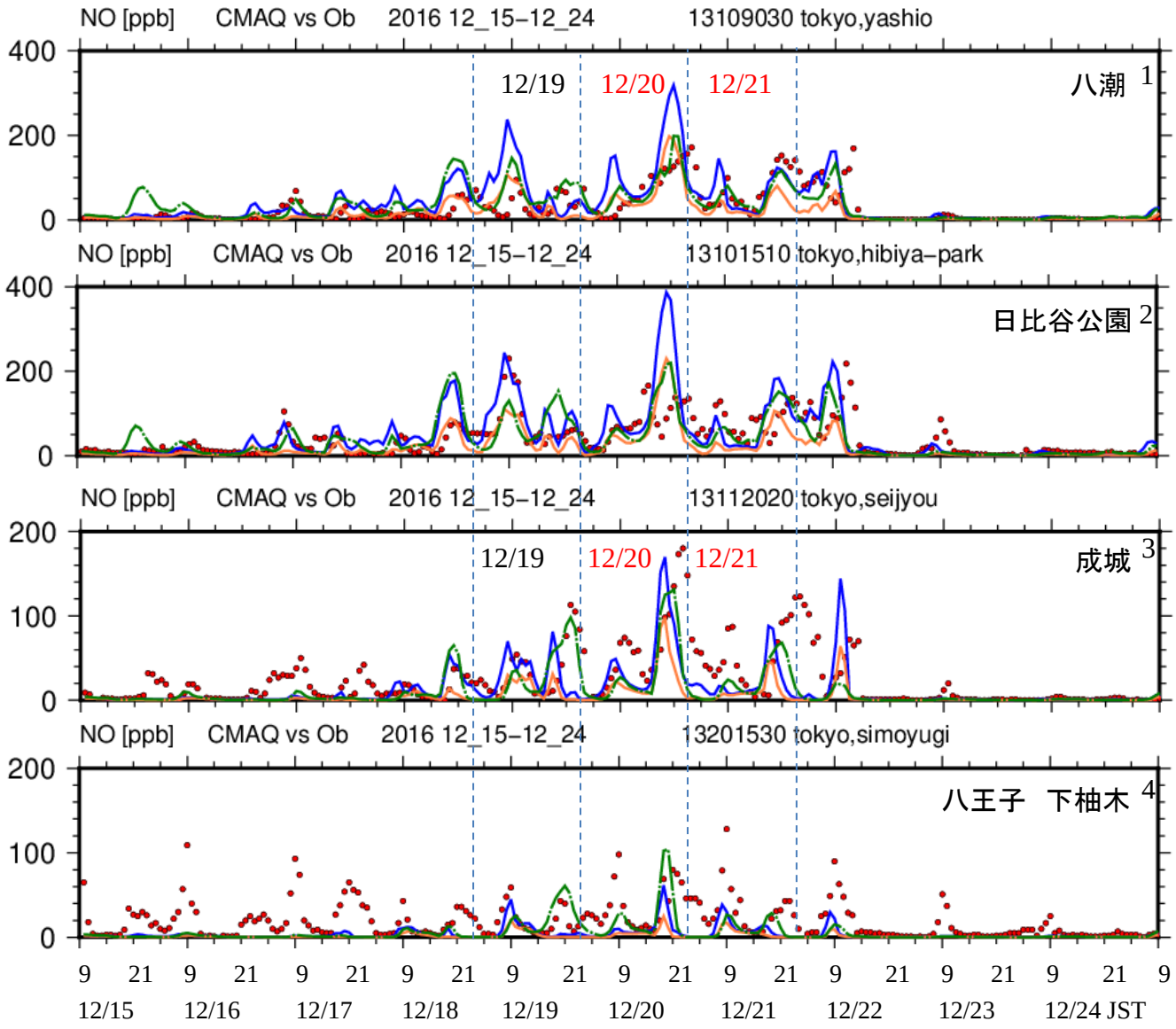
全体として、モデルは変化の傾向を捉えている

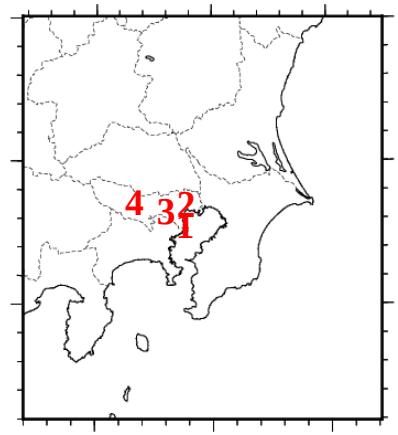
濃度の高い12/20夜間、モデルは過小評価している

関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

東京都　NO時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05

CAMx saprc07

CMAQ saprc07

測定値

NO_2に比べ、ばらつきが多い
モデル間の差も目立つ

cb05 > saprc07の傾向にある

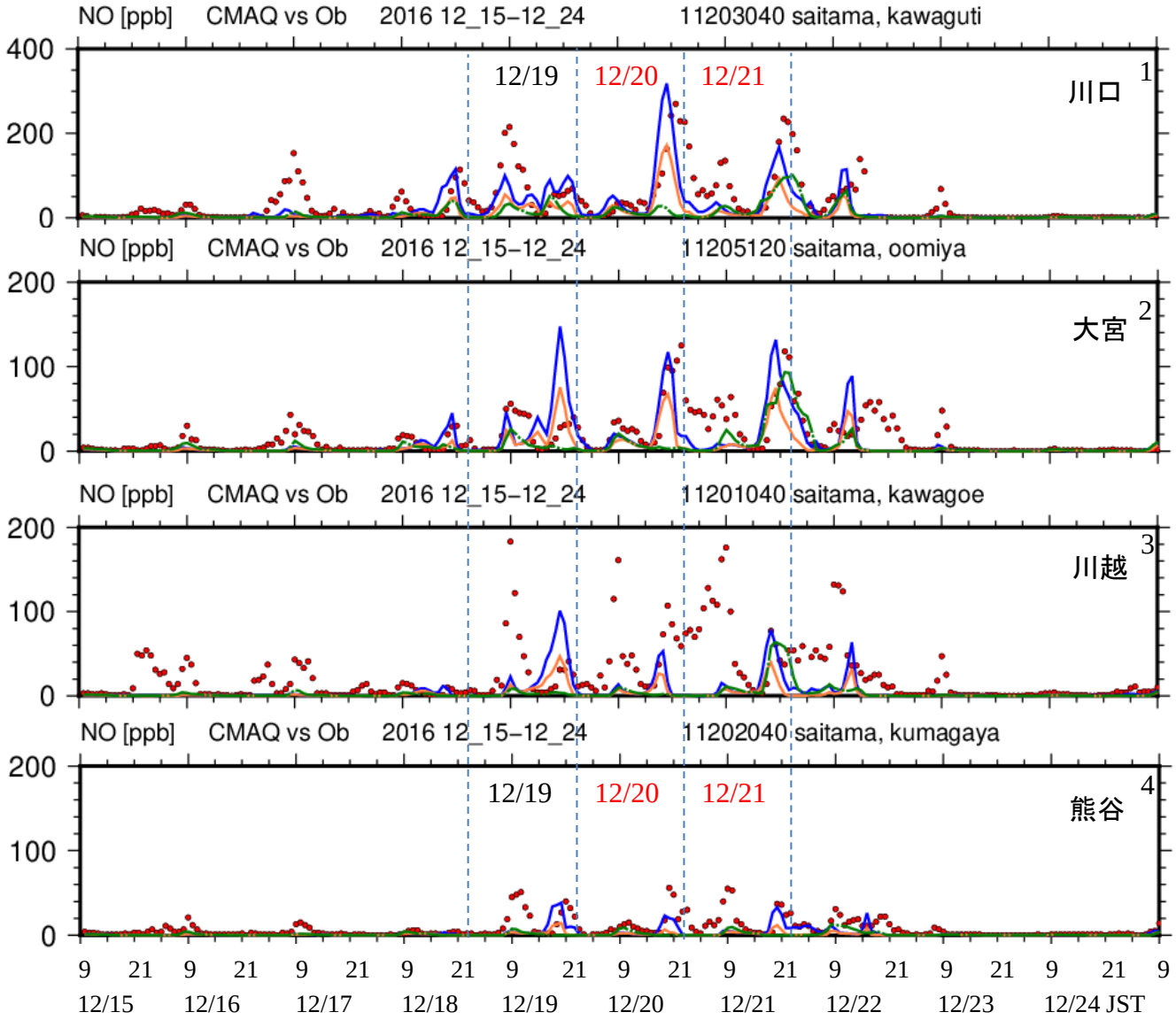
八王子では、モデルは過小評価している

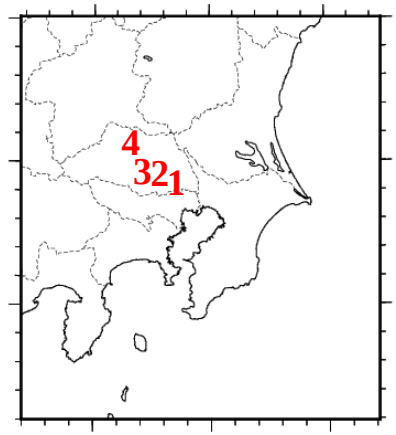
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

埼玉県

NO時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05

CAMx saprc07

CMAQ saprc07

測定値

モデルが過小評価している

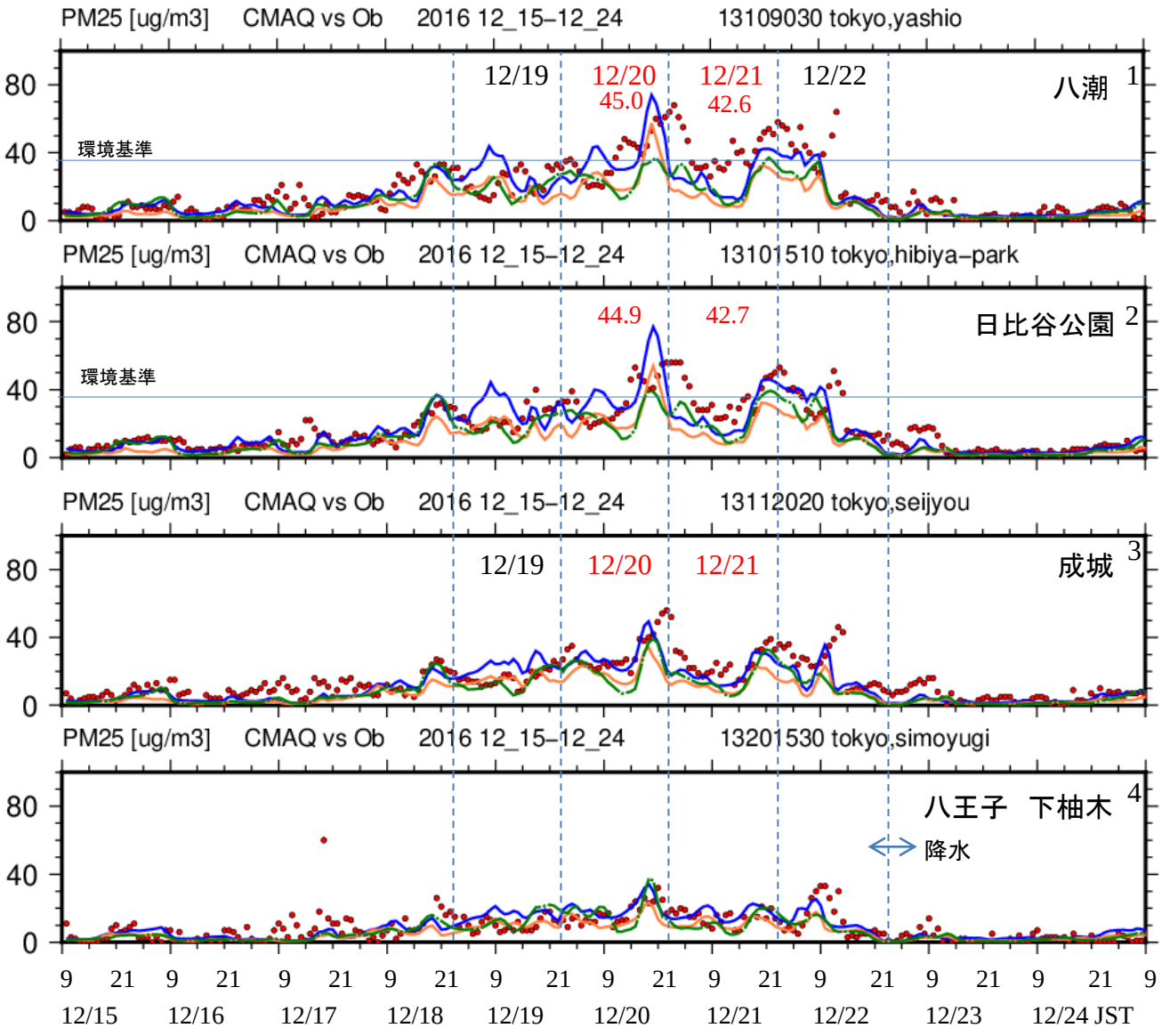
cb05 > saprc07の傾向にある

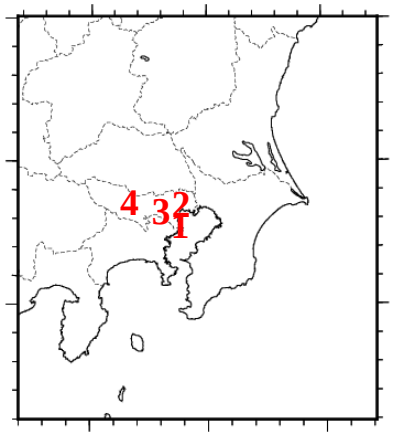
関東地方で$PM_{2.5}$の環境基準を超えている日
：12/20（火）、12/21（水）

東京都

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

測定値

モデルは変化傾向を捉えている
cb05/CF > saprc07/AE6

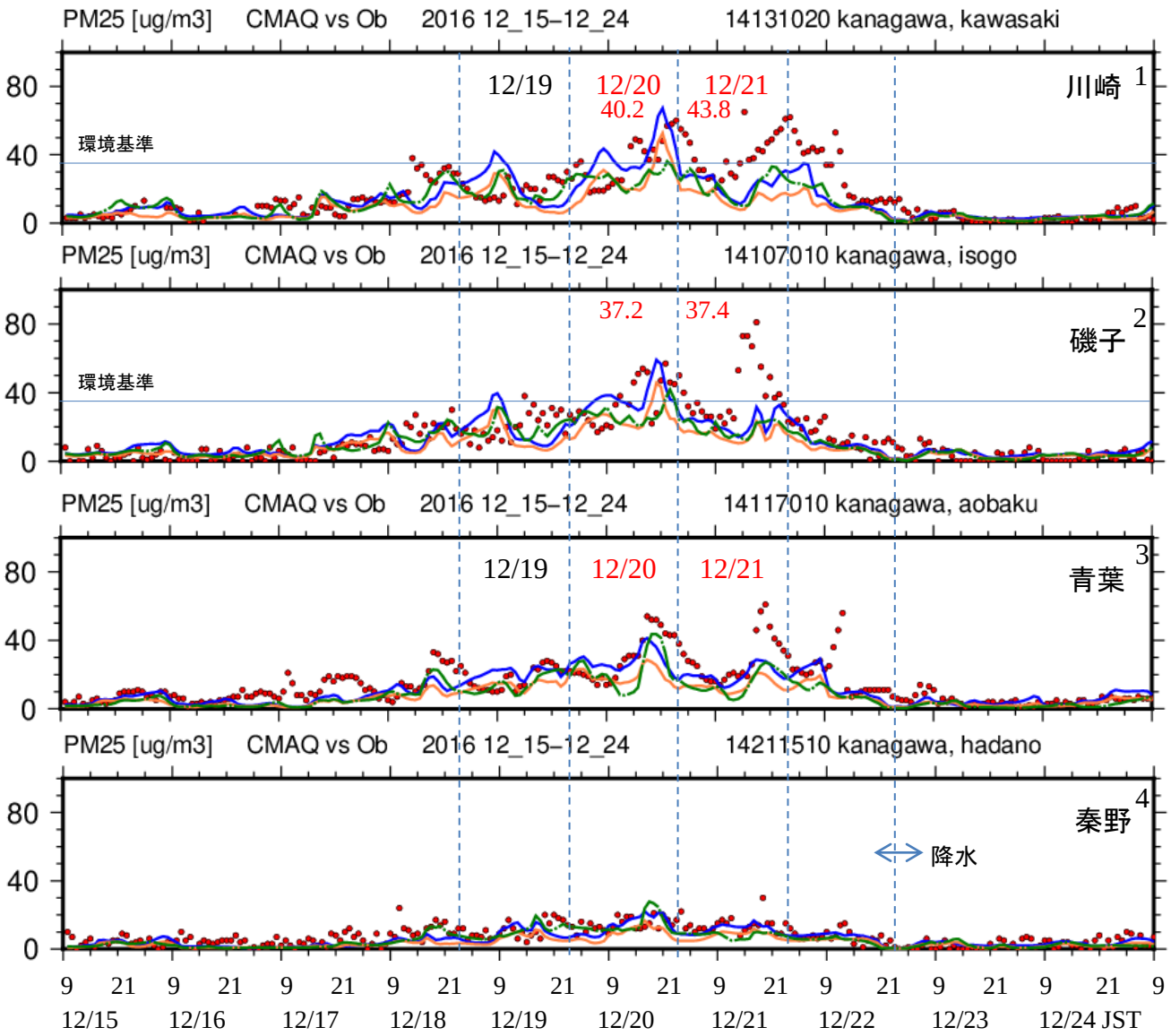
＜PM2.5の環境基準＞
1年平均値 15μg/m³ 以下 かつ
1日平均値 35μg/m³ 以下

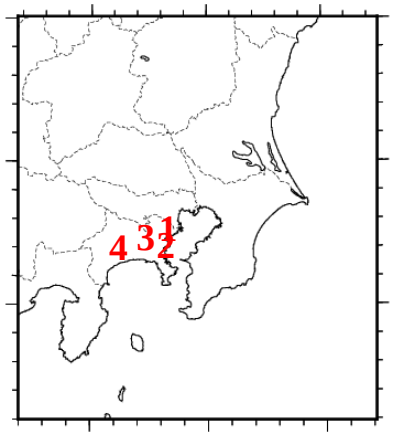
図中の赤字の数値は、環境基準の日平均値を超えた日の$PM_{2.5}$濃度を示す

神奈川県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

測定値

低濃度時では、モデルは変化傾向を捉えている

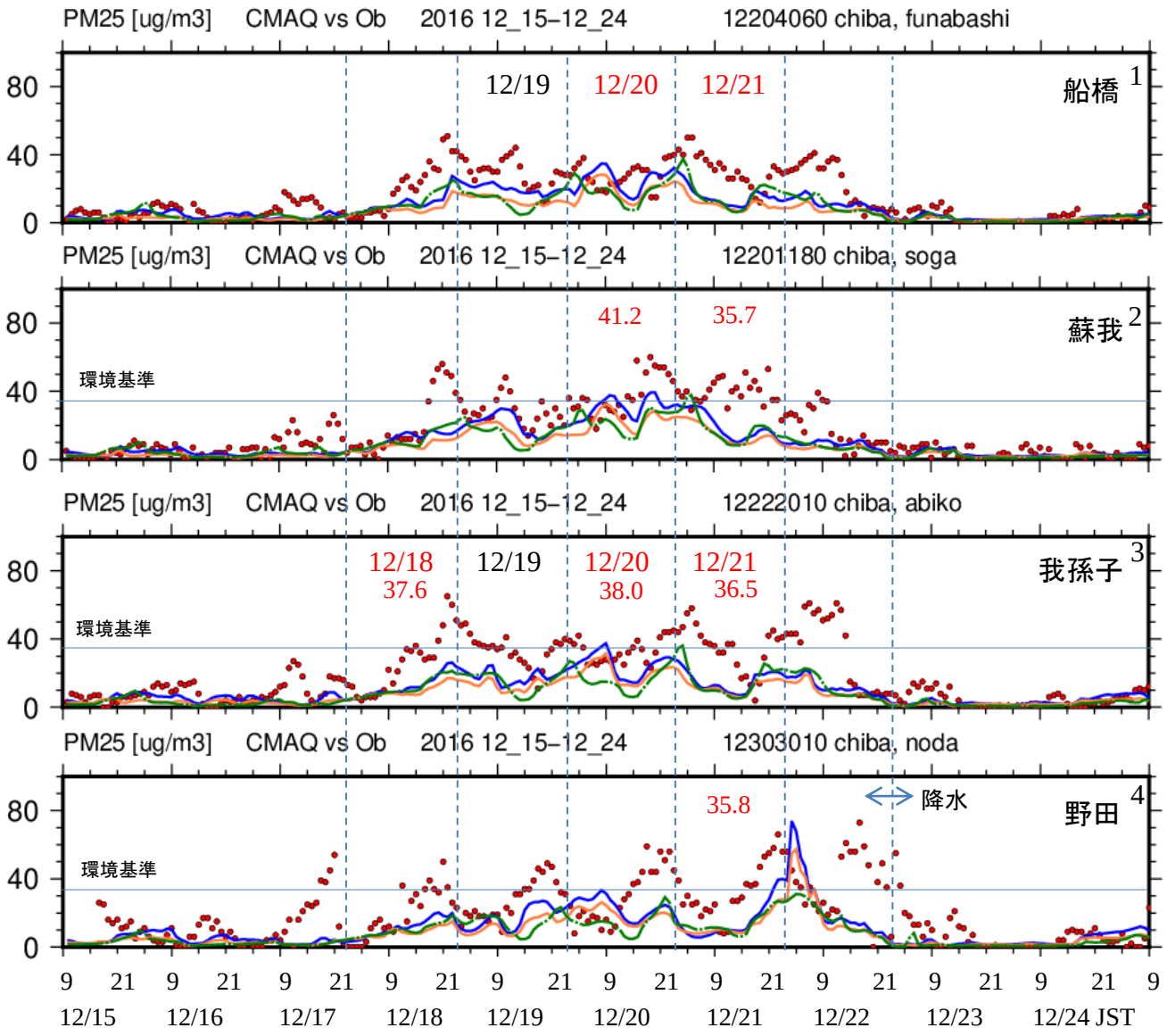
川崎、磯子の濃度が高い時（21日）モデルは過小評価している

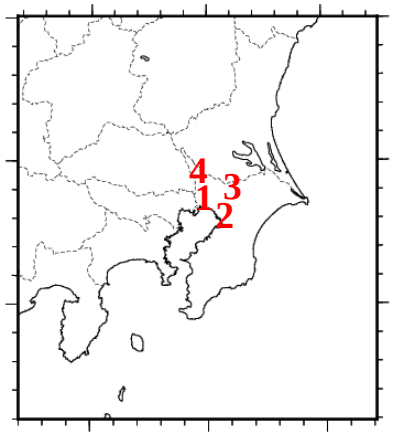
cb05/CF > saprc07/AE6

千葉県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

測定値

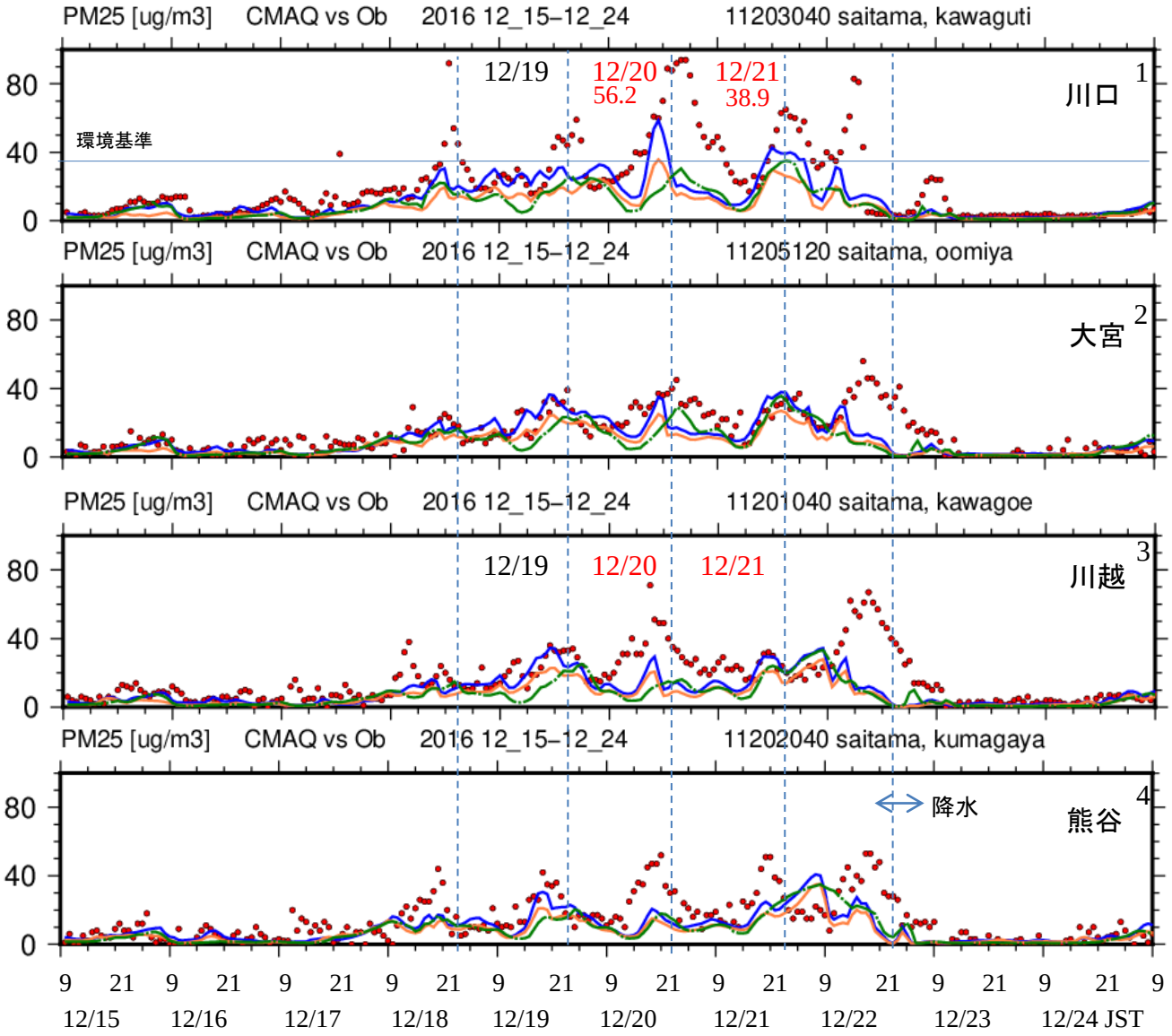
モデルは過小評価の傾向

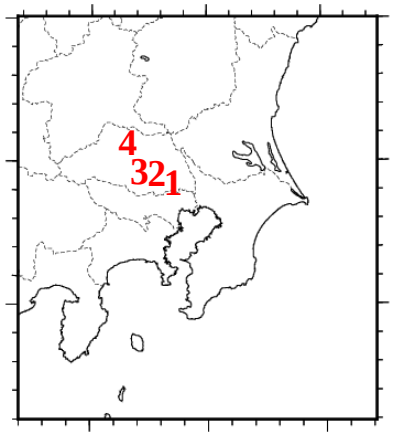
前線通過時
東京・神奈川　:測定値＝モデル値
千葉・埼玉など:測定値＞モデル値
・降水の再現性の確認

埼玉県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

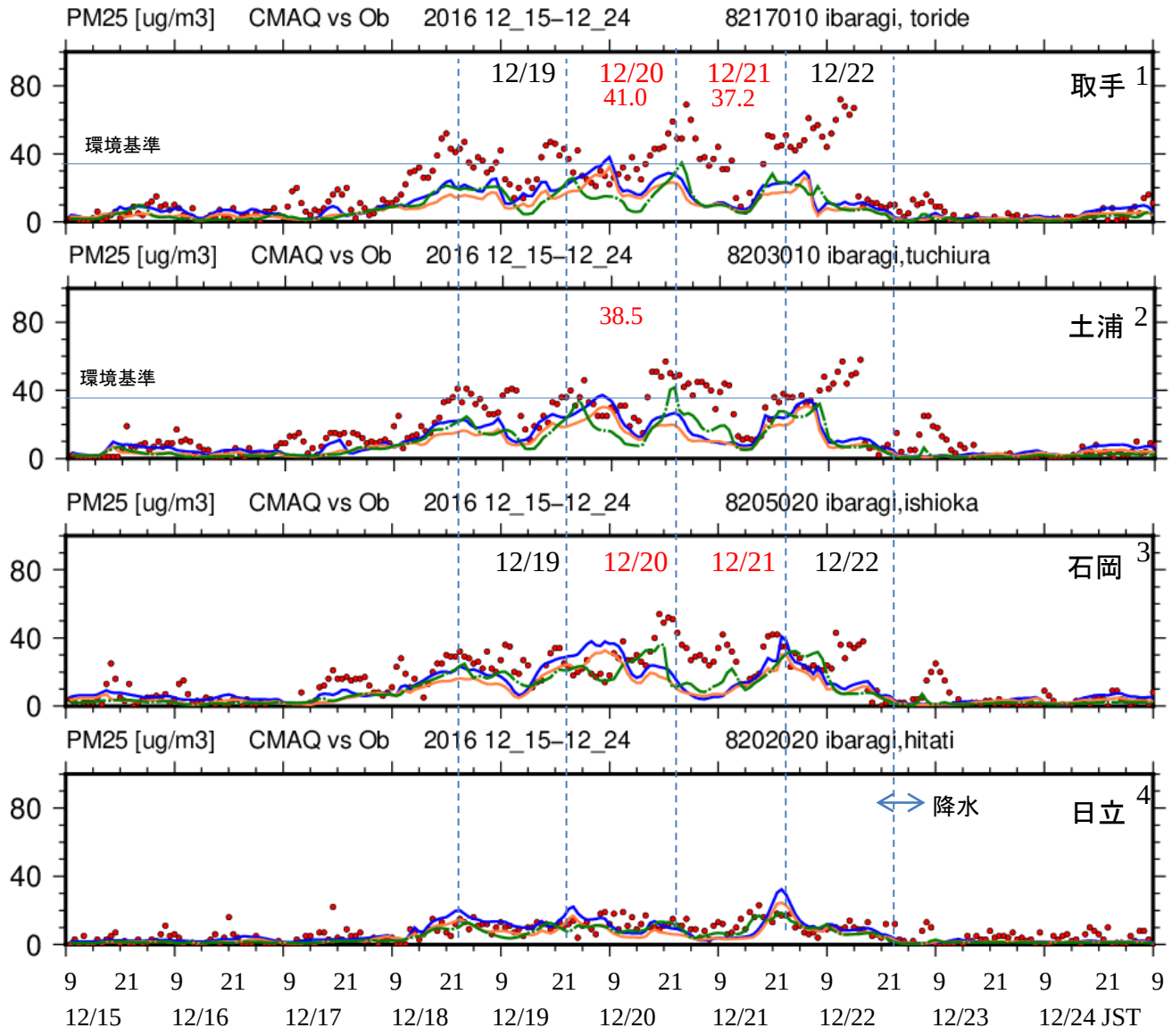
測定値

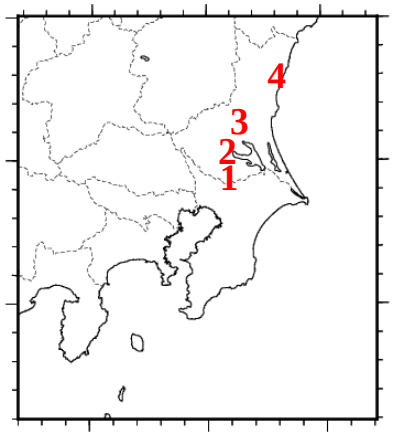
モデルは大きく過小評価している

茨城県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

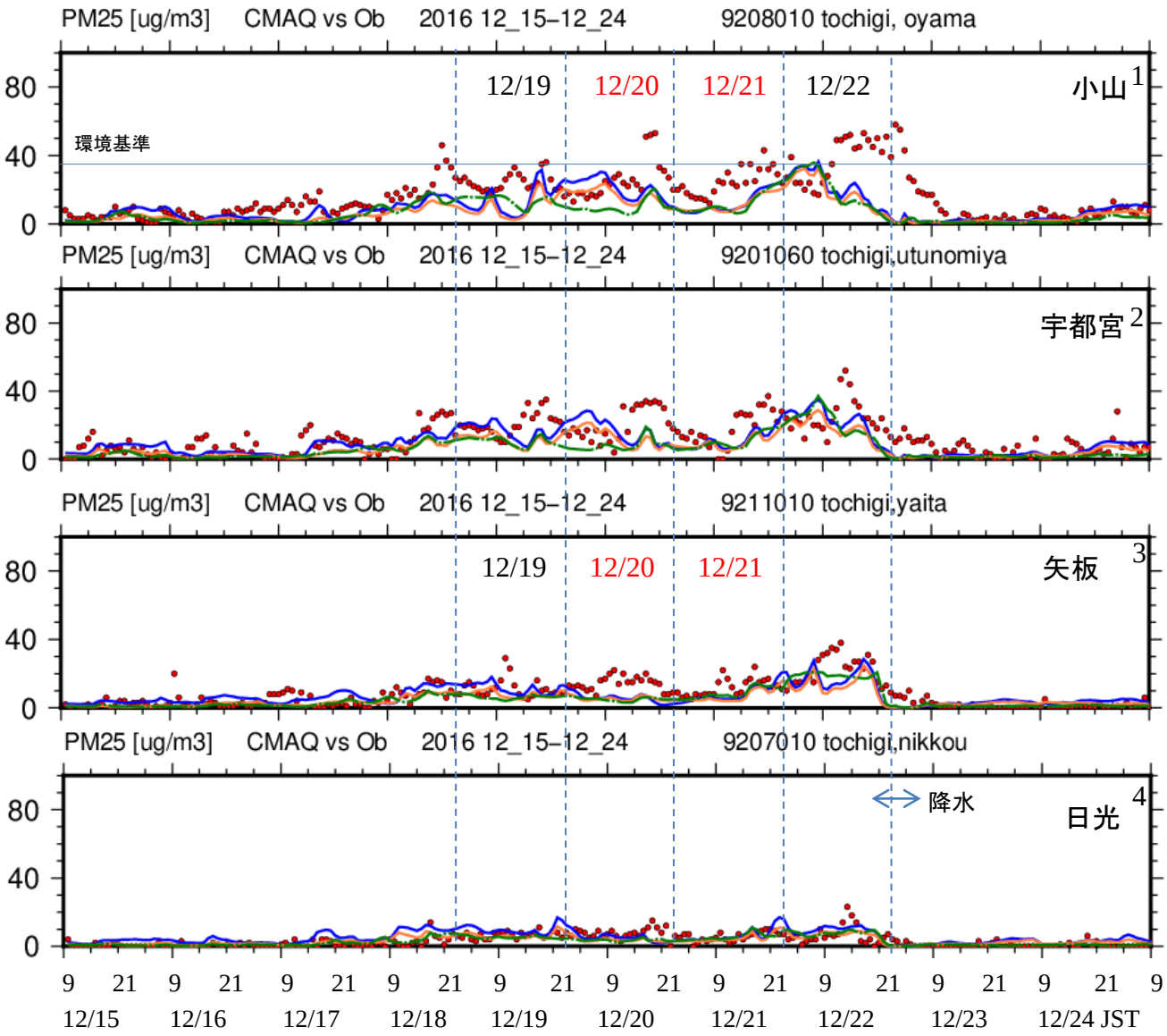
測定値

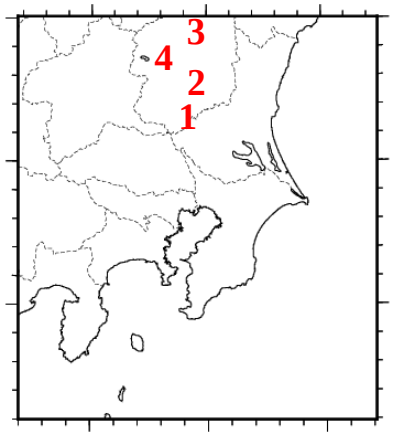
取手など（12/22）：モデルは大きく過小評価している

栃木県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

測定値

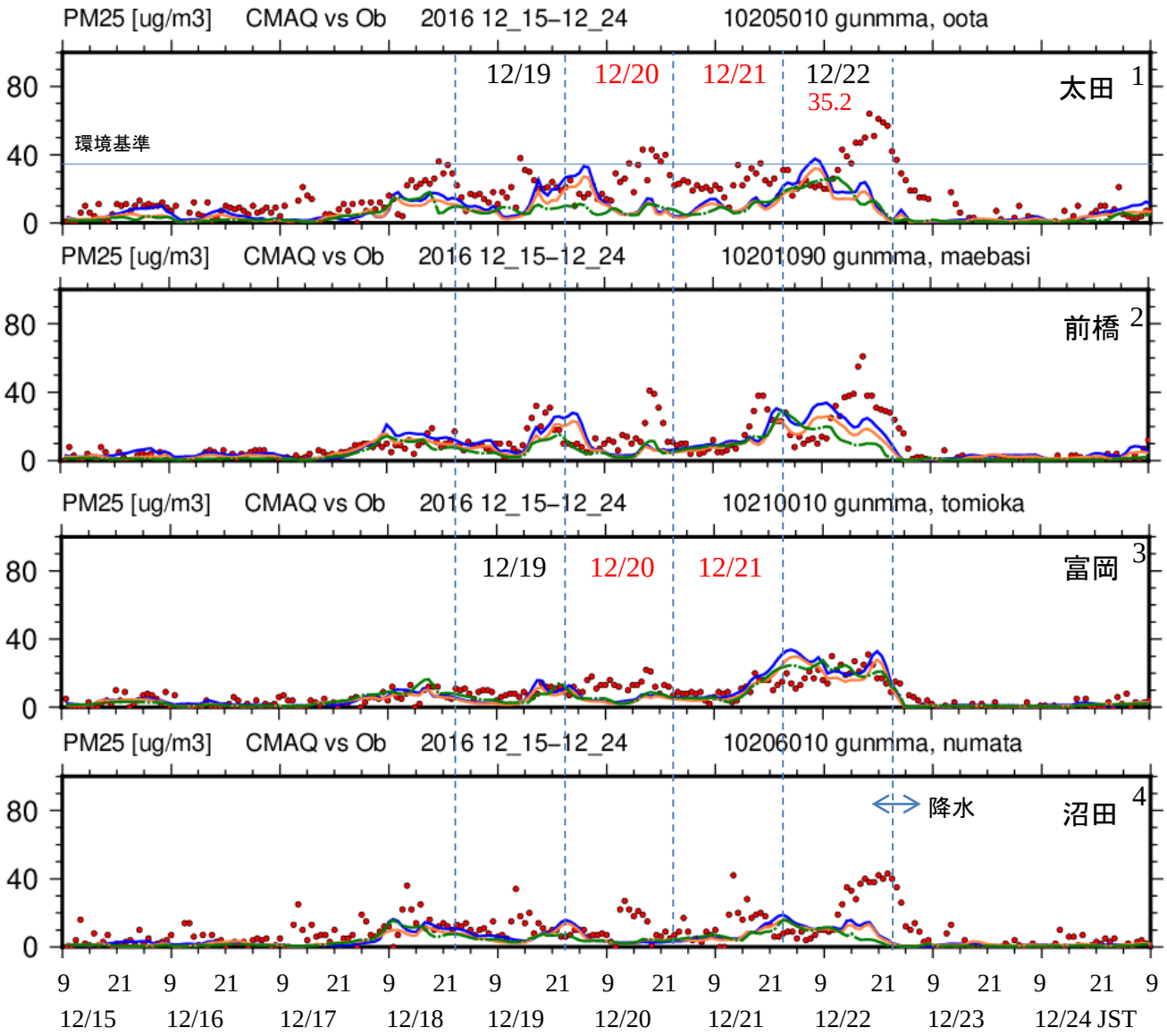
小山（12/22）：モデルは大きく過小評価している

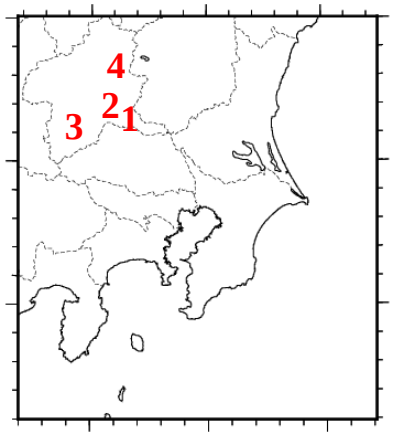
1　3

群馬県

$PM_{2.5}$時間値の比較

2016/12/15～12/24　10日間





CAMx cb05/CF

CAMx saprc07/CF

CMAQ saprc07 /AE6

測定値

太田、前橋、沼田：夜間のピーク（20日～22日）を再現していない

富岡は良く再現している

まとめ

(1)気象要素のモデル再現性（風向・風速、気温・混合比）
- 風向風速、気温、混合比のモデルの再現性は良好であった
- 汚染質の再現性の低さは、「気象の再現性が低いから」と説明できない

(2)大気質濃度（NO_2 , NO, $PM_{2.5}$）のモデル再現性
- NO_2のモデルの再現性は良好であった
- NOは、NO_2に比べて、再現性は落ちていた
  都市域でのモデル間の違いは、cb05/CF ＞ saprc07/AE6の傾向であった
- $PM_{2.5}$は、実測が高い時、モデルは過小評価していた
  モデル間の違いは、cb05/CF ＞ saprc07/AE6の傾向であった
  実測が低い時、モデルの再現性は良好であった

（ $PM_{2.5}$の実測により、元素状炭素**EC**や有機エアロゾル**OA**がモデルの過小評価の原因と考えられている。茶谷ら,2011）

3. Probing Toolsによる解析事例

・モデルの計算結果と実測値とを比較する　(NO_2,NO,$PM_{2.5}$　2016年12月)

・解析ツール（ Probing Tools ）を活用する

(1) Process Analysis (PA)　プロセス解析

Integrated Processes Rate (IPR) analysis　($PM_{2.5}$　2016年12月: CMAQ v5.2.1)

Integrated Reaction Rate (IRR) analysis　(O_3 2013年8月: CMAQ v5.2.1)

(2) Source Apportionment（SA）　(O_3 2013年8月: CAMx v4.6)

(3) Decoupled Direct Method（DDM）　(O_3 2013年8月: CAMx v4.6)

(1) $PM_{2.5}$のプロセス解析（PA/IPR：プロセスの累積変化率）

CMAQ v5.2.1

濃度変化は、移流、拡散、反応、発生、沈着などの変化で構成されている。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = -U\frac{\partial C}{\partial x} - V\frac{\partial C}{\partial y} - W\frac{\partial C}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x}\left(K_H\frac{\partial C}{\partial x}\right) + \frac{\partial}{\partial y}\left(K_H\frac{\partial C}{\partial y}\right) + \frac{\partial}{\partial z}\left(K_z\frac{\partial C}{\partial z}\right) + R + S + Dep + CLDS$$

濃度時間変化項（全体）

HADV（水平）　ZADV（鉛直）　移流項（平均風速）

HDIF（水平）　VDIF（鉛直）　拡散項（風の乱れ）

Chem AERO 反応項

EMIS 発生源項

DDEP 沈着項

CLDS 雲の項

・雲による光分解の減衰、
・対流・非対流性混合と除去（scavenging）、
・aqueous-phaseの化学、・湿性沈着

C: 濃度（$PM_{2.5}$）　t：時間　U,V,W：xyzの平均風速　K_H, K_z: 拡散係数

$PM_{2.5}$の時刻変化例　2016/12/20　鶴見区潮田交流プラザ

時刻	PM2.5 [ug/m^3]
18	29.62
19	41.63

差 12.02 [ug/m^3/h]

$$\Delta PM_{2.5} = \sum_{j=1}^{68}\sum_{i=1}^{8}\Delta PM_{2.5_{i,j}}$$

i：PAのプロセスの数（移流・拡散・反応など）
j：PM2.5を構成するエアロゾル変数の数（AERO6）

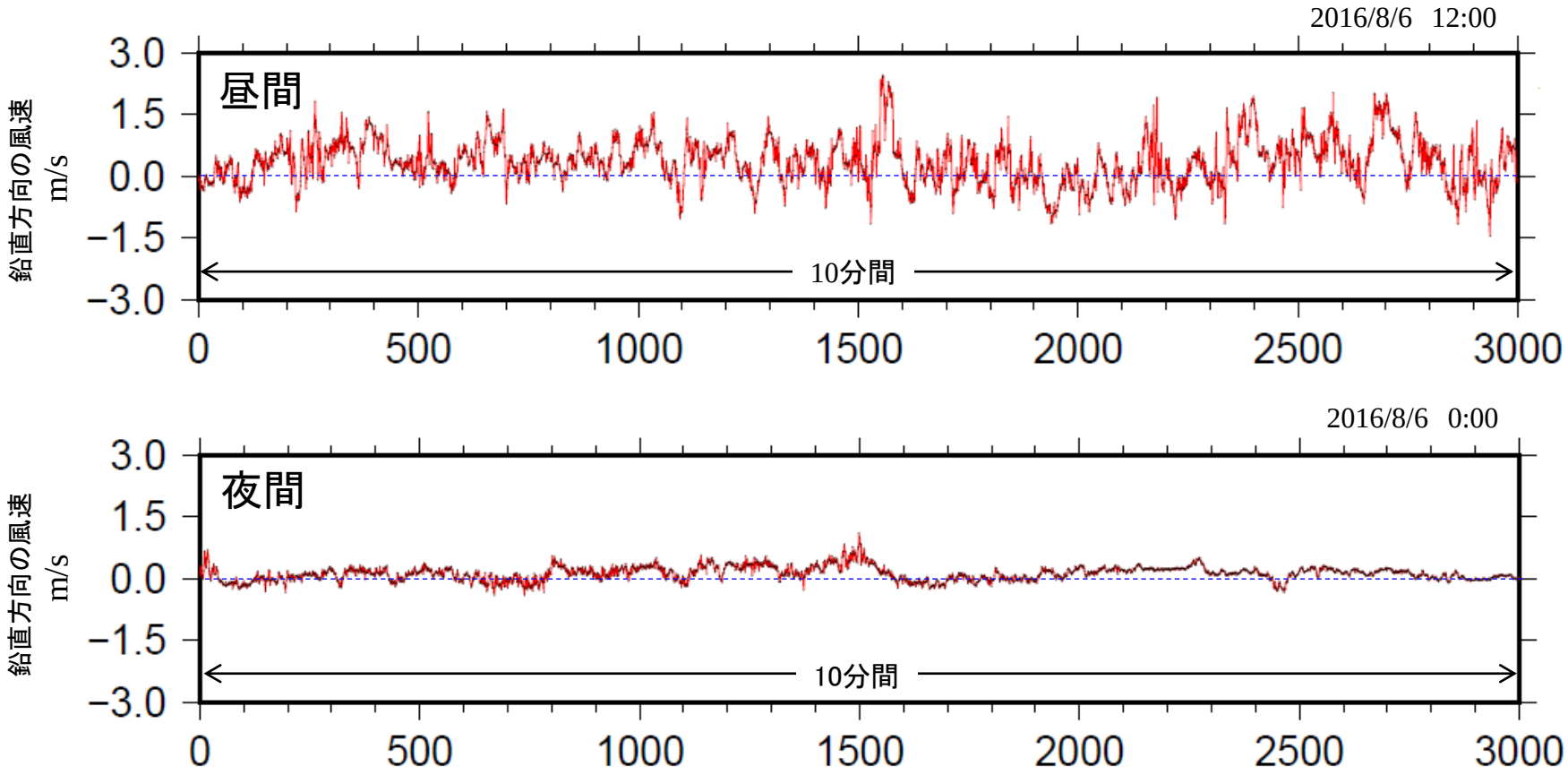
プロセス解析結果例　[ug/m^3/h]

HADV	ZADV	HDIF	VDIF	AERO	EMIS	DDEP	CLDS	ΔPM2.5
-8.79	5.32	0.02	-26.21	38.37	3.61	-0.31	0.00	12.02

注）CMAQ v5.2.1のプロセス解析では、AOTHRIとAOTHRJは扱えない。 解析期間のAOTHRIとAOTHRJの濃度は、数ug/m^{3}程度であった。
注）プロセス解析には、IPR (integrated process rate) とIRR (integrated reaction rate analysis) がある。IRR は、Chemの項内で計算している化学反応の物質変化を調べるもの。

大気の乱れ(乱流)

鉛直方向の超音波風速計の実測記録

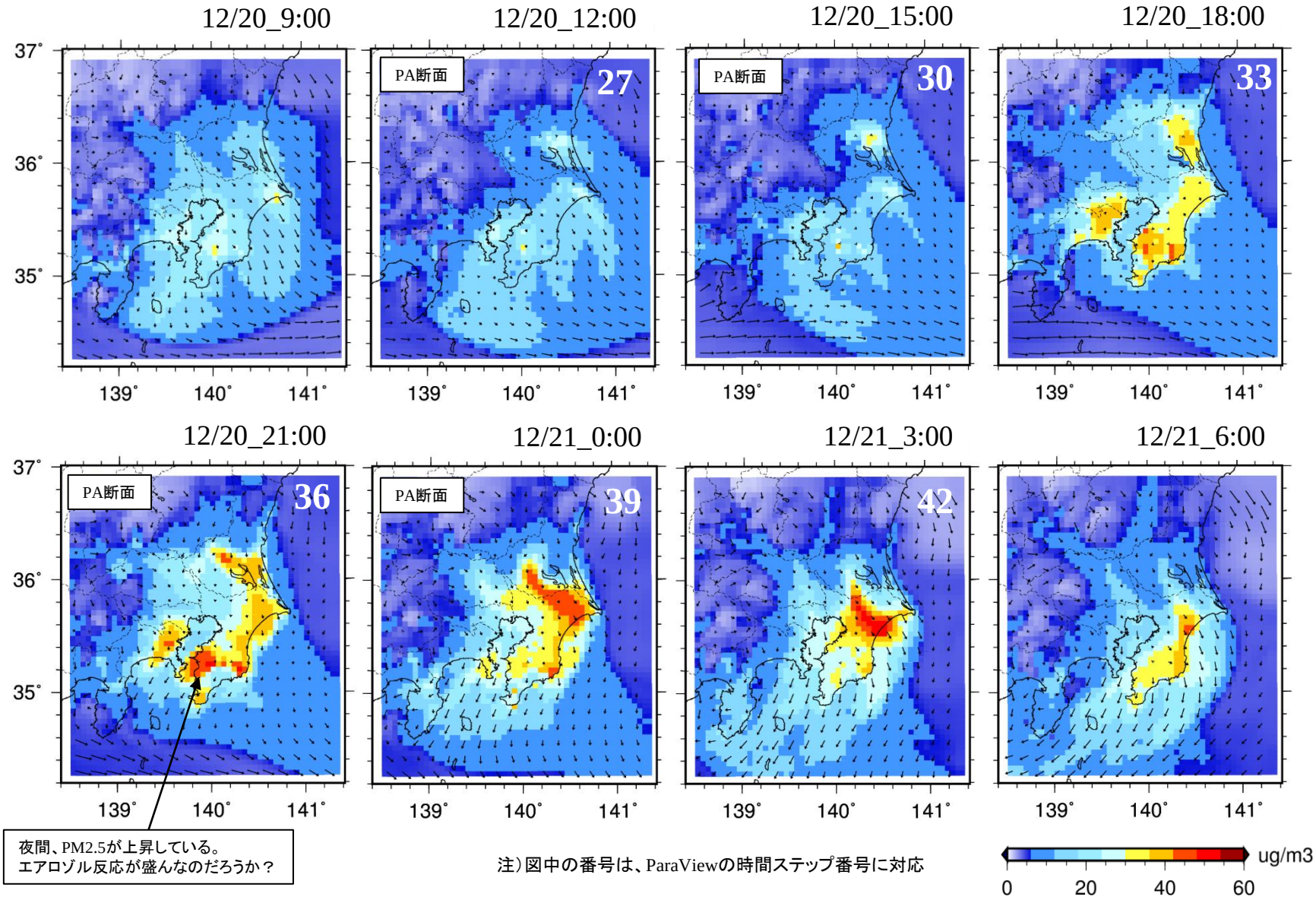


観測地　：岐阜県高山市　フラックス観測サイト
測定高さ：地上25 m
風速　　：超音波風速計の鉛直成分 [m/s]
　　サンプリング間隔：5 Hz (0.2sec毎)

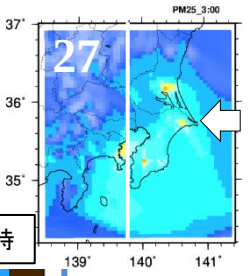
観測実施：産業技術総合研究所　村山昌平博士

$PM_{2.5}$の地上濃度の水平分布(2016　12/20)

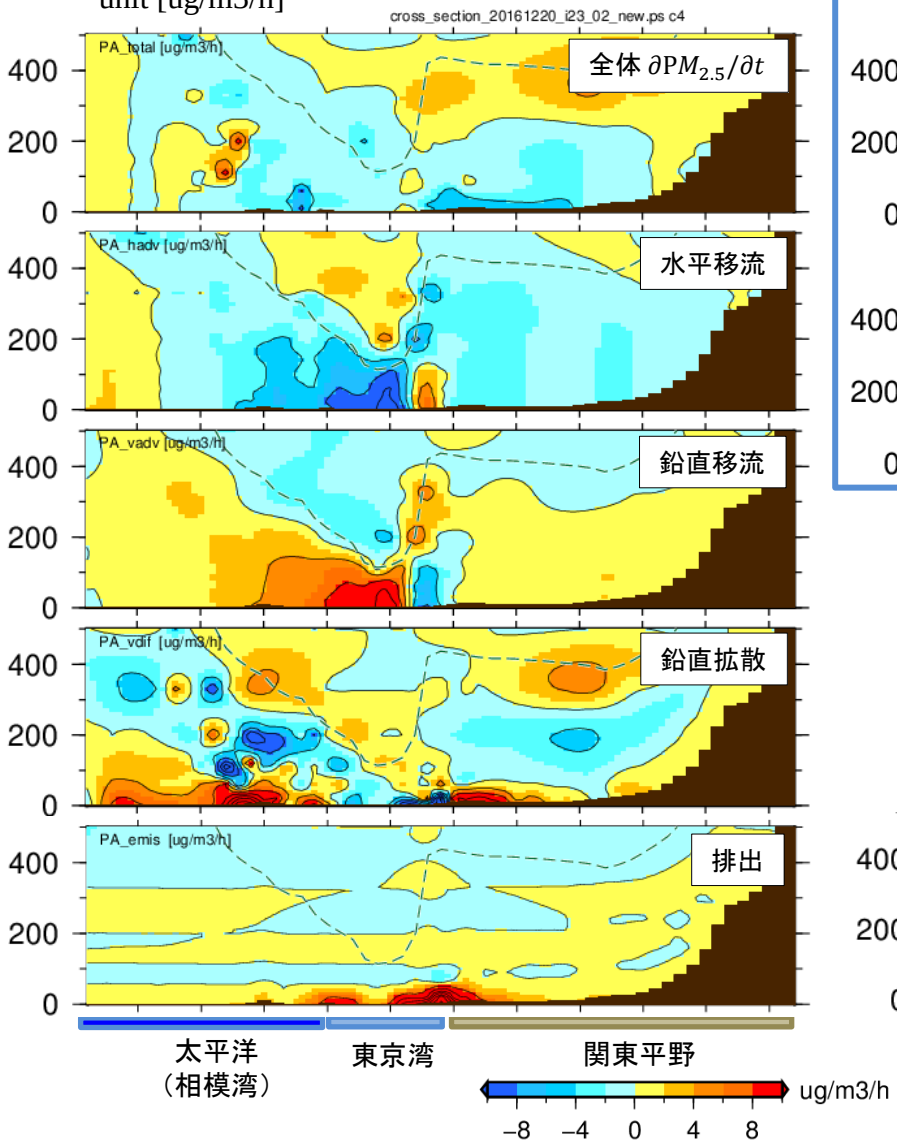
CMAQ v5.2.1

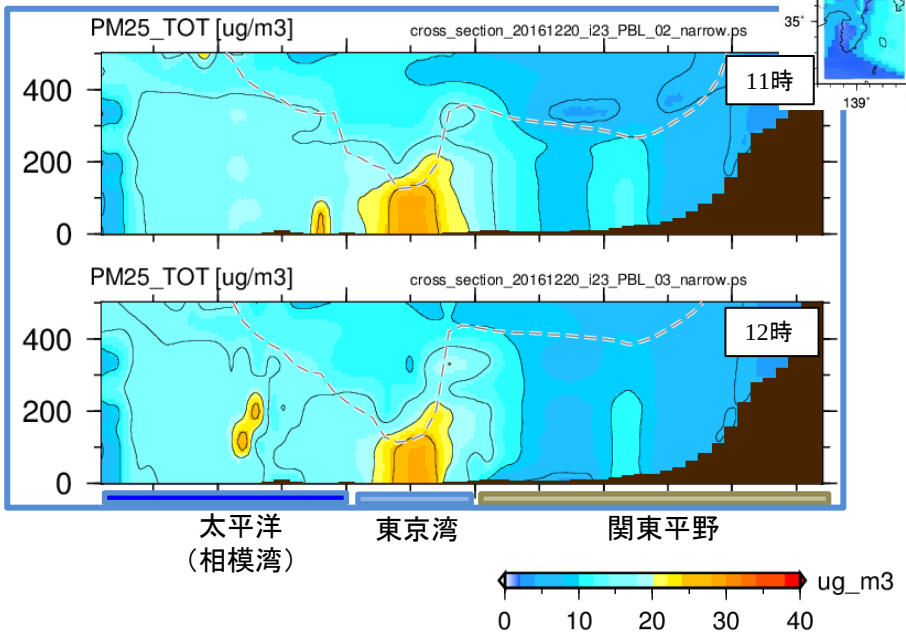


$PM_{2.5}$のPA鉛直断面 CMAQ v5.2.1 2016/12/20 12時JST



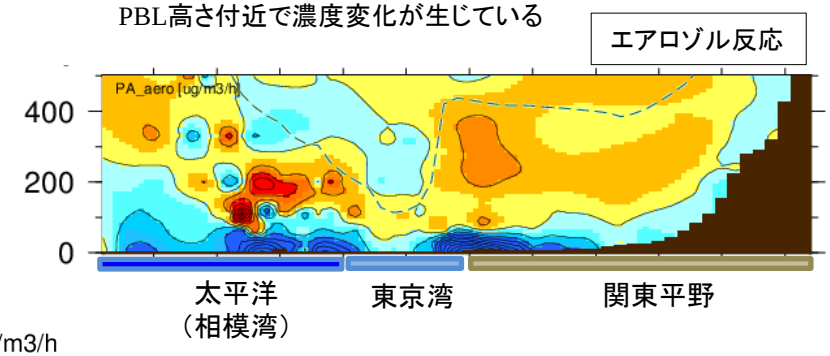
unit [ug/m3/h]



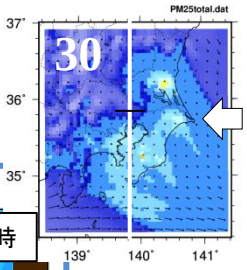


PBL（大気境界層）の高さ

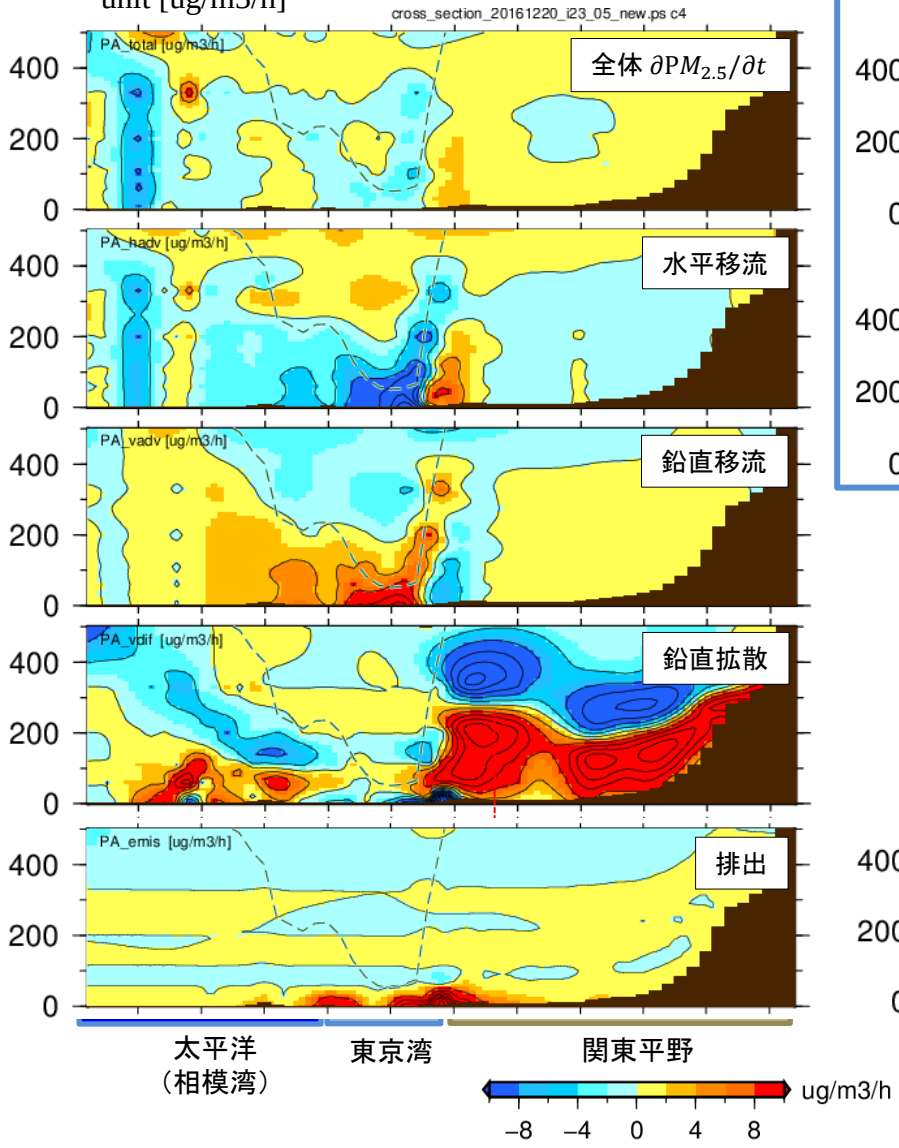
PBLはLid（ふた）の役割がある
PBL高さ付近で濃度変化が生じている

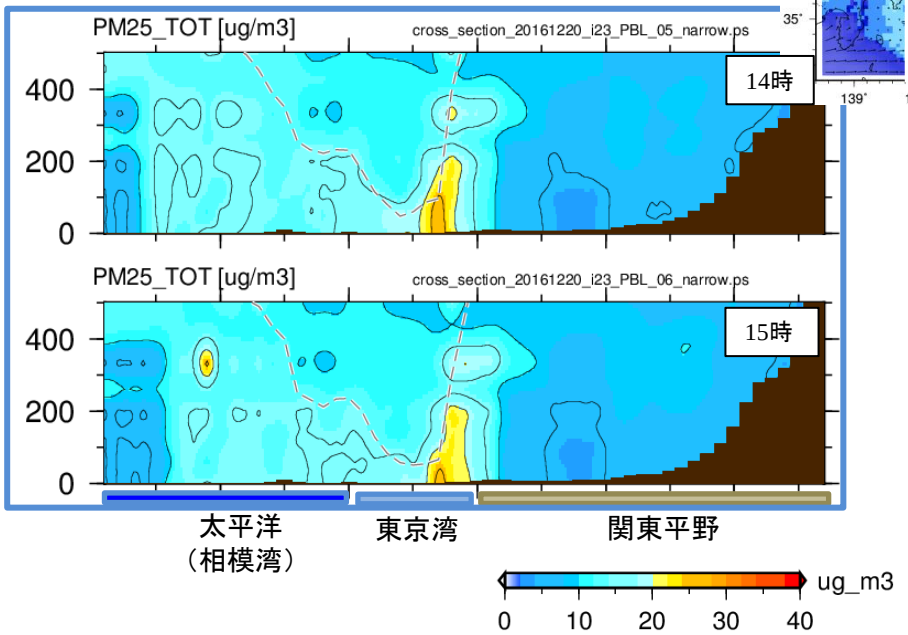


$PM_{2.5}$のPA鉛直断面 CMAQ v5.2.1 2016/12/20 15時JST

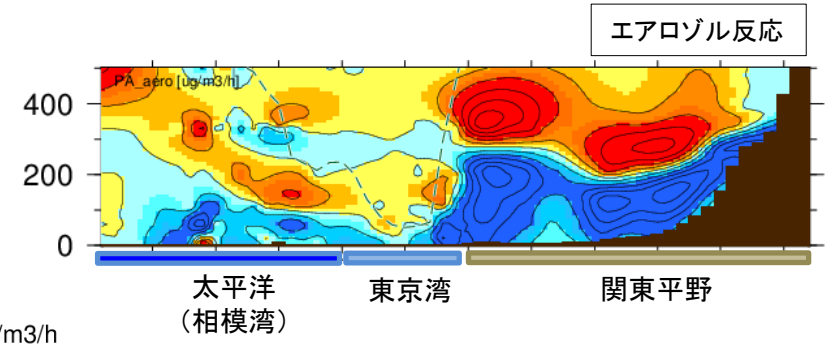


unit [ug/m3/h]

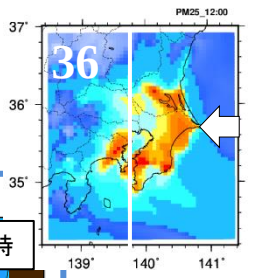


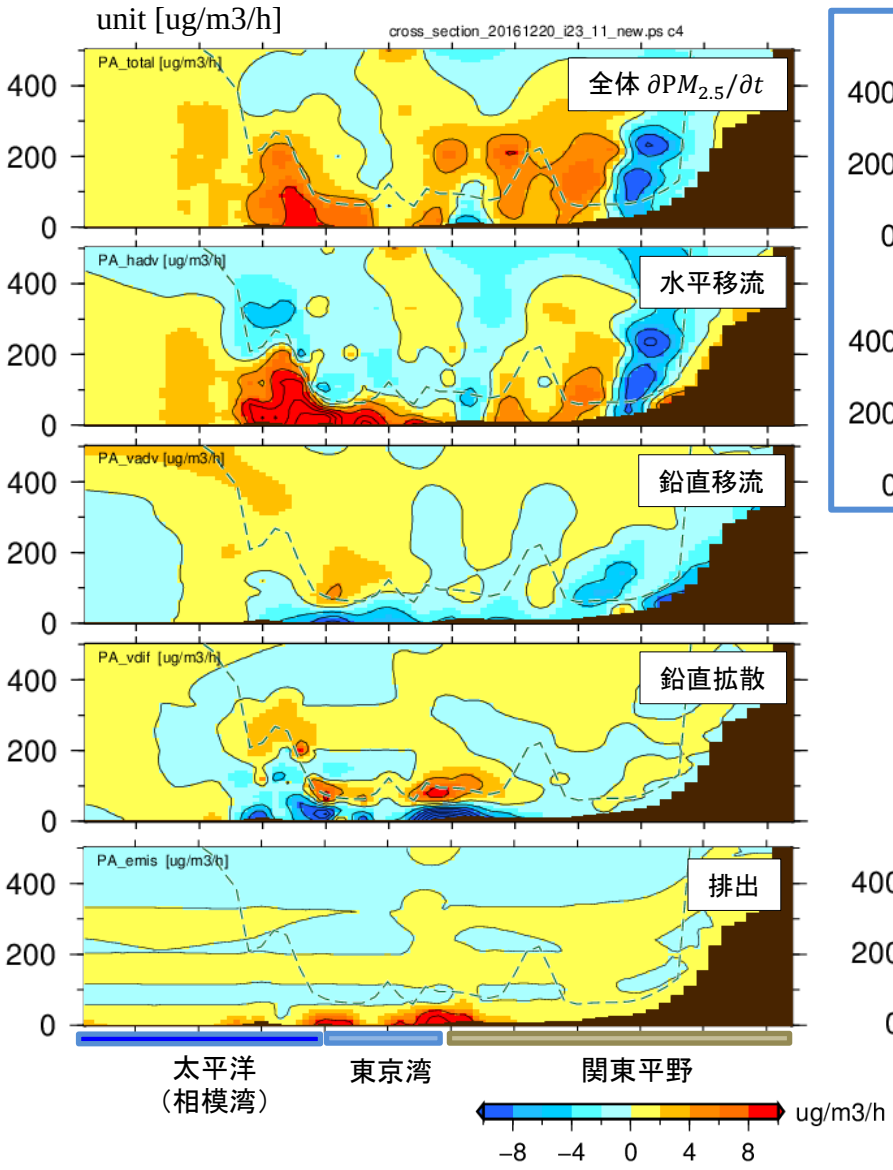


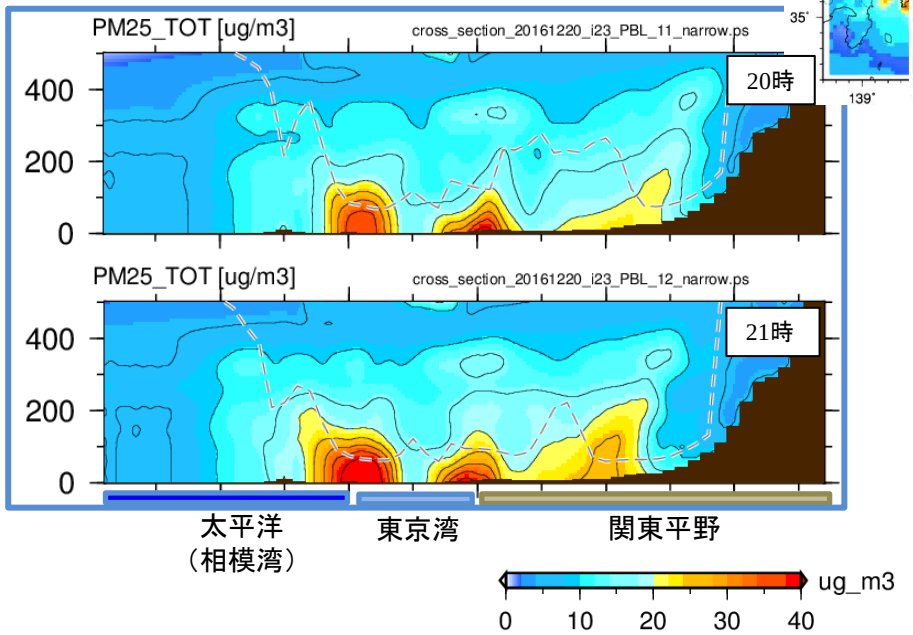
PBL（大気境界層）の高さ



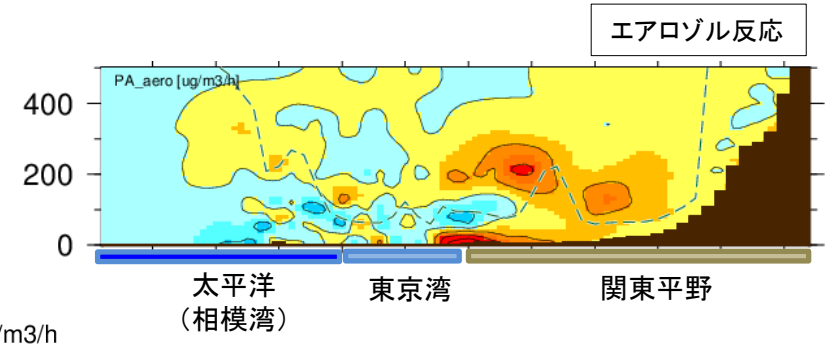
$PM_{2.5}$のPA鉛直断面 CMAQ v5.2.1　2016/12/20　21時JST







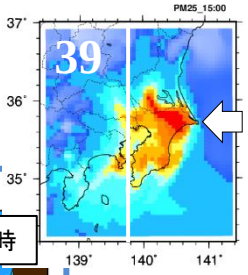
PBL（大気境界層）の高さ



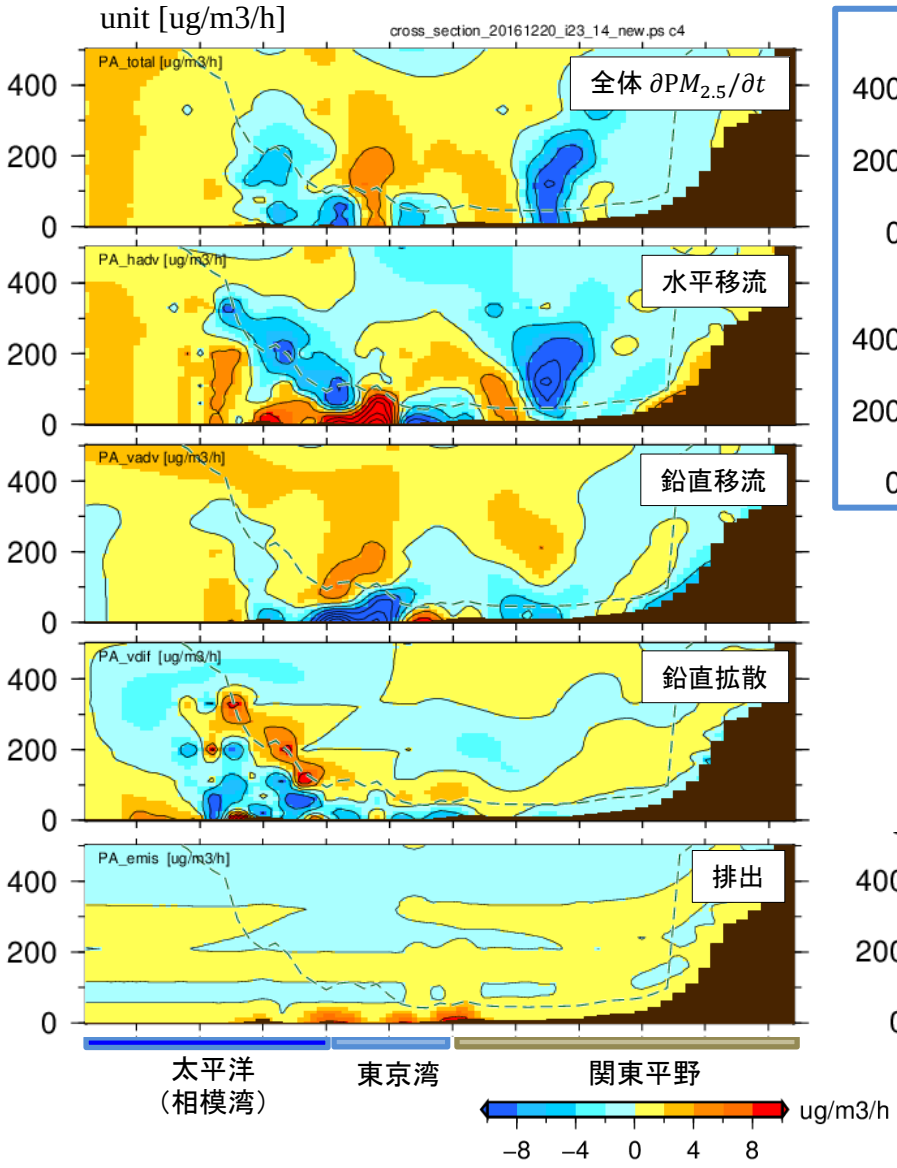
エアロゾル反応は
日中に盛んで、
夜間は弱まる

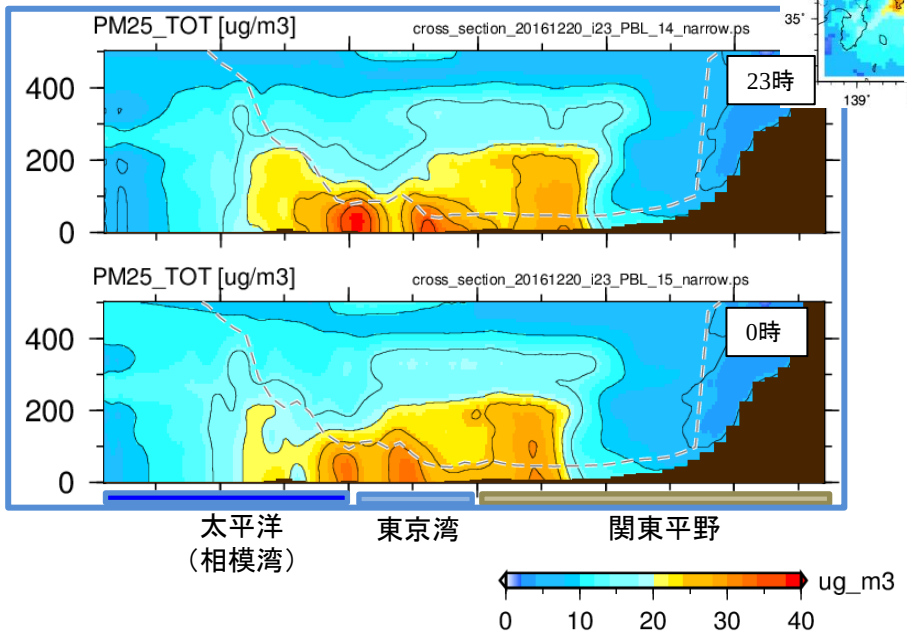
$PM_{2.5}$のPA鉛直断面

CMAQ v5.2.1　2016/12/21　0時JST



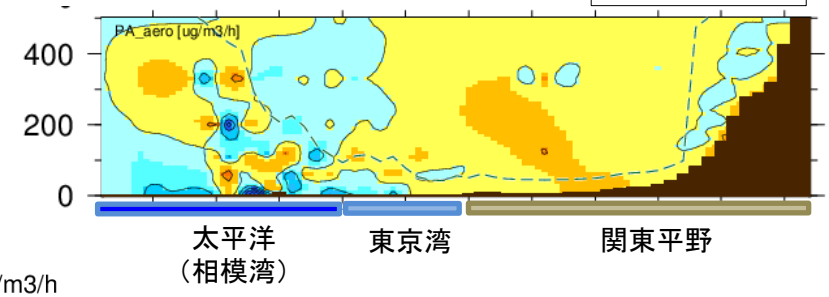
unit [ug/m3/h]





PBL（大気境界層）の高さ

エアロゾル反応



3. Probing Toolsによる解析事例
(1) Process Analysis (PA/IPR)

まとめ

2016年12月20日の関東を対象にプロセス解析を実施した結果は次の通り。

(a) エアロゾル反応以外のプロセルも大きく影響している
(b) エアロゾル反応は、夜間より日中に強い
(c) 日中、鉛直拡散とエアロゾル反応が支配的であった
(d) 夜間（21時）では、水平移流とエアロゾル反応が支配的であった
(e) 夜間（0時）では、水平移流と鉛直移流が支配的であった

(2) Source Apportionment（SA解析）

SA解析を行うと、発生源別のO_3濃度を教えてくれる。

ここでは、CAMxのSAの解析事例を紹介する。
CAMxのSAをOSAT(**O**zone **S**ource **A**pportionment **T**echnology)と呼んでいる。

O_3の等値線図によるNO_x/ VOC-limited -sensitive

<状態①>
NO_x排出量を低減→O_3濃度は下がる
VOCs排出量を低減→ O_3濃度は変わらない

VOCsに対して独立

NO_xによる律速（NO_x-limited、NO_x-sensitive）
郊　外：VOCリッチ

<状態②>
VOCs排出量を低減→ O_3濃度は下がる
NOx排出量を低減→ O_3濃度は若干上がる

VOCによる律速（VOC-limited、VOC-sensitive）
都市域：NO_xリッチ

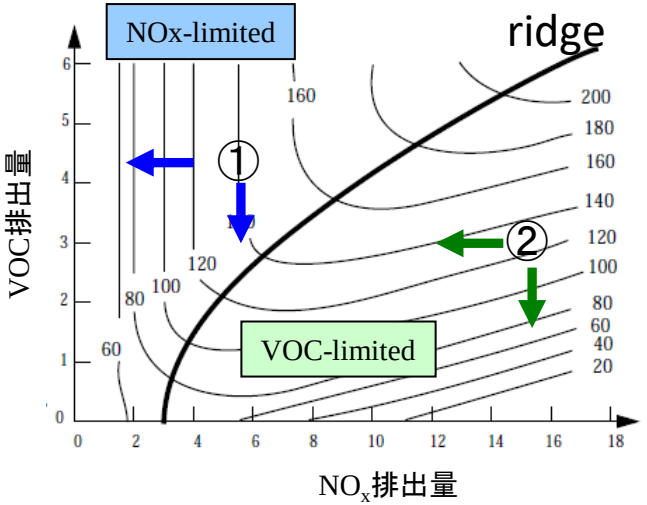
$$\frac{d[O_3]}{dt} = 2k_7\left(\frac{P_{HO_x}}{2k_8}\right)^{1/2}[NO] \quad : NO_x\text{-limited}$$
NO_x濃度が低い

$$\frac{d[O_3]}{dt} = \frac{2k_4 P_{HO_x}[RH]}{k_9[NO_2][M]} \quad : \text{VOC-limited}$$
NO_x濃度が高い

[RH]：炭化水素類の濃度　P_{HO_x}～0.1ppt/s

ジェイコブ(2002)大気化学入門、東京大学出版会、278pp

O_3の等値線図



Sillman S. et al., J.Geophys. Res., 95, 1837-1852, 1990

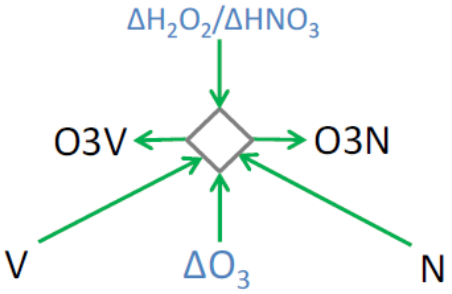
Source Apportionment　トレーサの追跡

CAMx v6.40

＜方法：トレーサの追跡＞
・O_3の前駆物質が放出された地点（発生源）からモデルの領域内を移動するトレーサを考える
・O_3は生成された地点でO_3のトレーサが作られ、それを追跡する

・発生源エリアをソースグループに分ける
・ソースグループ1つ当たりに4つのトレーサを考える
　Ni　：ソースグループiからのNO_xのトレーサ（前駆物質の輸送）
　Vi　：ソースグループiからのVOCsのトレーサ（前駆物質の輸送）
　O3Ni：ソースグループiからNO_xにより生成されたO_3
　O3Vi：ソースグループiからVOCsにより生成されたO_3

・さらに、O_3濃度の消滅（-ΔO3）を考慮する。（OSAT2）
・また、Nのリサイクルを考慮する。（OSAT3）

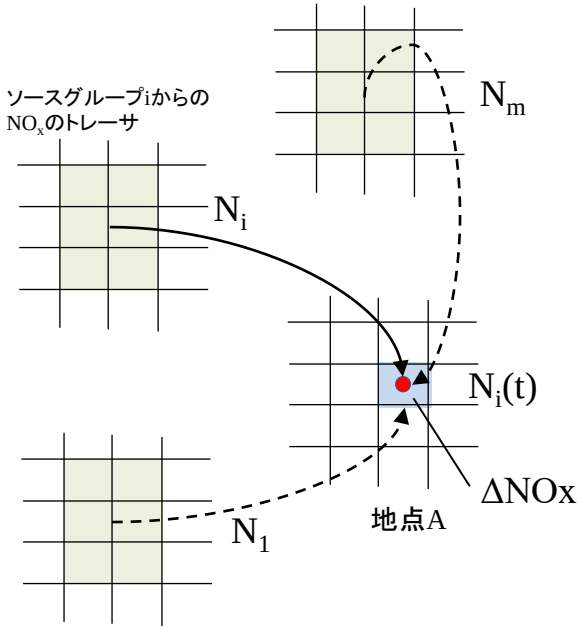


OSATのプロトタイプのイメージ

参考：Dunker, A. M.; Yarwood, G.; Ortmann, J. P.; Wilson, G. M. Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model. Environ. Sci.Technol. 2002, 36, 2953-2964.

Source Apportionment　化学種の計算

CAMx v6.40



ソースグループ　i = 1, 2,・・・,m

①ソースグループNiから地点Aへ到達するまで様々な反応を経験して
Ni(t)になっている。
② ある時刻の地点Aでは、全てのソースグループの合計Ni(t)は、
その場のNOとNO_2の和である。

$$\sum_{i=1}^{m} N_i = NO + NO_2$$

③地点AのNOxは、化学反応でΔNOxだけ変化した。(モデル結果を参照)
④地点AでのΔt後のNi(t+ Δt)は、「時刻tでのNi(t)」と
「Δt間に化学反応したΔNOx」の合計である。
ただし、i番目のソースグループからの寄与を見たいので、
Ni(t)/全体のNi(t)で重み付けする。

$$N_i(t+\Delta t) = N_i(t) + \Delta NO_x \times N_i(t) / \sum_{i=1}^{m} N_i(t)$$

⑤地点Aがこの時刻にNOx-sensitiveであり、正味のO_3生成が正の数
(ΔO3 >0)であった場合、O3Ni(t+Δt)は、上記と同様にO3Ni(t)、ΔO3、
Niの重み付けから求める。

$$O3N_i(t+\Delta t) = O3N_i(t) + \Delta O3 \times N_i(t) / \sum_{i=1}^{m} N_i(t)$$

⑥ Vi(t+ Δt)やO3Vi(t+Δt)も同様に計算する。ただし、O3Vi(t+Δt) は、
VOC-sensitive の条件下とする。

⑦NOx/VOC-sensitiveは、次の式で決める

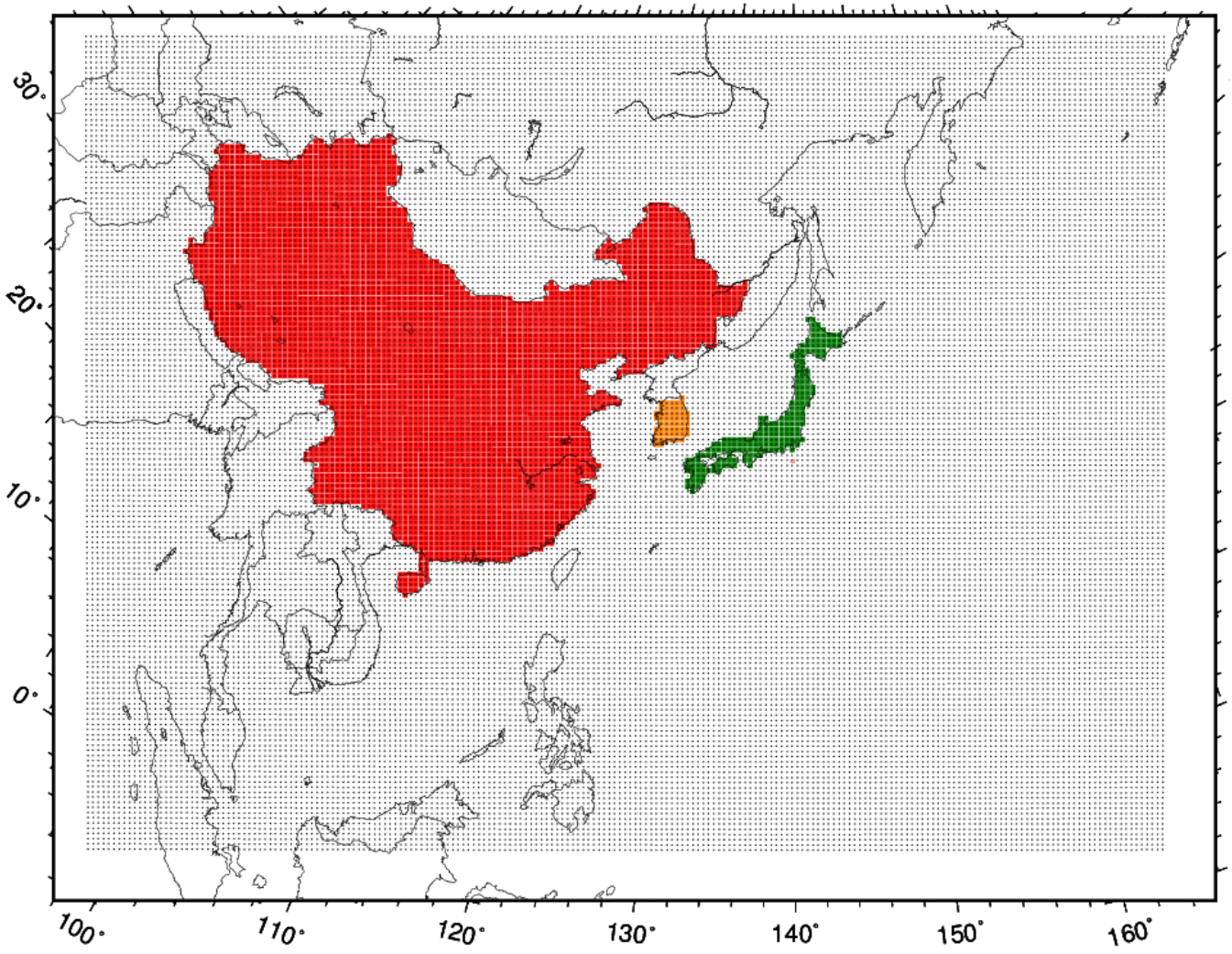
$P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ < 0.35　VOC-limited

$P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ > 0.35　NOx-limited

過酸化水素/硝酸の生成量

参考：Dunker, A. M.; Yarwood, G.; Ortmann, J. P.; Wilson, G. M. Comparison of source apportionment and source sensitivity of ozone in a three-dimensional air quality model. Environ. Sci.Technol. 2002, 36, 2953-2964.

エリア区分　-アジア域-

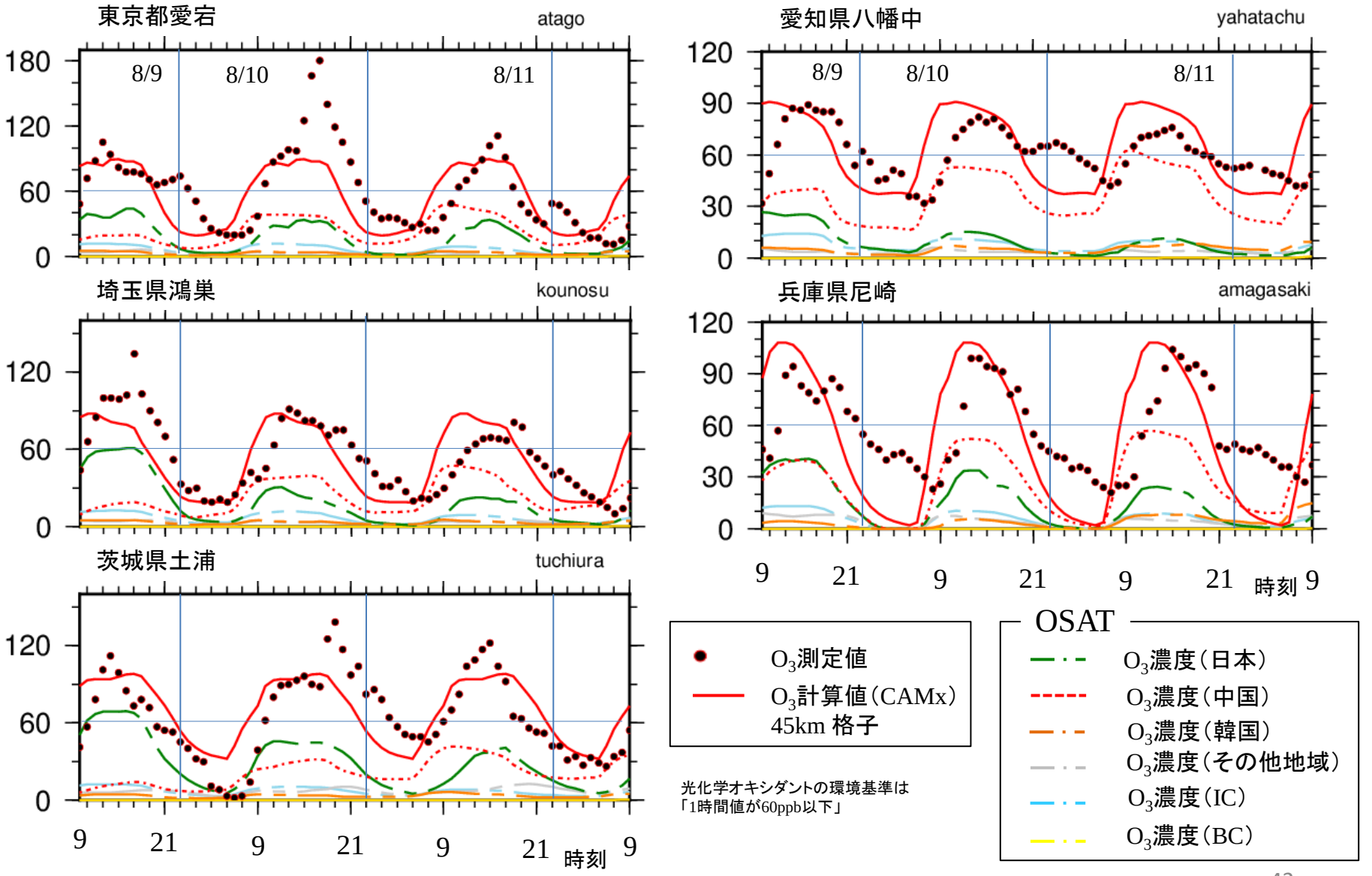


4区分
中国
韓国
日本
その他

モデル　　:CAMx v6.40
汚染質　　:O_3
対象時期　:2013年8月

エリア別O_3寄与濃度-アジア域- (2013/8/9～8/12)

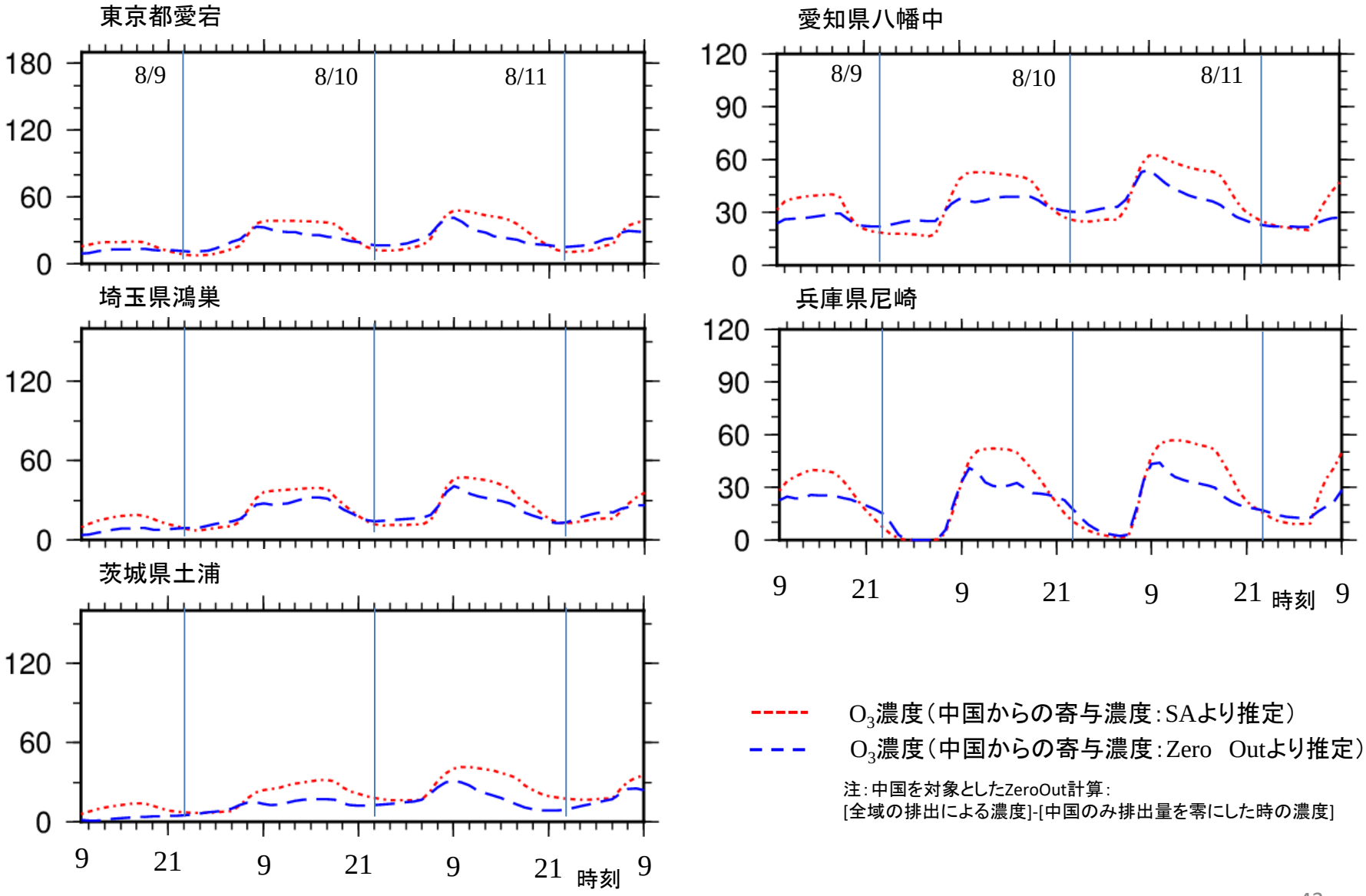
CAMx v6.40



光化学オキシダントの環境基準は
「1時間値が60ppb以下」

中国からのO_3寄与濃度 (2013/8/9～8/12)

CAMx v6.40



注：中国を対象としたZeroOut計算：
[全域の排出による濃度]-[中国のみ排出量を零にした時の濃度]

(3) Decoupled Direct Method（DDM解析）

Decoupled Direct Method：排出量と測定局濃度との関係を感度係数で表す
source - receptor

$$\frac{\partial C}{\partial E} = \frac{\Delta濃度}{\Delta排出量}$$

・Chemical regime（レイジーム）（対象地域がO_3に対してNO_x/VOC-sensitiveかを調べる注））
・O_3の等値線図（横軸：NO_x排出量、縦軸：VOC排出量）

注）SA解析では、過酸化水素/硝酸の生成量でNO_x/VOC-sensitiveを決めた

$P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ < 0.35　VOC-limited

$P_{H_2O_2}/P_{HNO_3}$ > 0.35　NOx-limited

DDM/HDDMとBrute Forceについて

カずく

	DDM/HDDM 直接法	Brute Force（有限差分） 間接法
DDM 一次感度係数 一階微分	$S_{i,j}^{(1)} = \frac{\partial C_i}{\partial \varepsilon_j}$	$S_{i,j}^{(1)} \approx \frac{C_i^{+\Delta\varepsilon_j} - C_i^{-\Delta\varepsilon_j}}{2\Delta\varepsilon_j}$
HDDM 二次感度係数 二階微分	$S_{i,\{j,k\}}^{(2)} = \frac{\partial^2 C_i}{\partial \varepsilon_j \partial \varepsilon_k}$	$S_{i,j}^{(2)} \approx \frac{C_i^{+\Delta\varepsilon_j} - 2C_i + C_i^{-\Delta\varepsilon_j}}{(\Delta\varepsilon_j)^2}$

ε_j、ε_k：スケーリング変数(排出量)

$C_i^{+\Delta\varepsilon_j}$：排出量$j$を$\Delta\varepsilon_j$だけ増加させたときの濃度$C_i$

$C_i^{-\Delta\varepsilon_j}$：排出量$j$を$\Delta\varepsilon_j$だけ減少させたときの濃度$C_i$

・Decoupled DM
　濃度計算とは別に感度方程式を独立して解く方法
・Coupled DM
　濃度計算の一部を使って感度を求める方法 （計算不安定が生じる）

・直接法(Direct method)
　感度方程式を直接解いて一次・二次感度係数を求める方法
・間接法(Indirct method):
　一次・二次感度係数を差分で表す方法

O_3の等値線の式

テーラー展開　　関数$C_i(P_j, P_k)$の点$\Delta\varepsilon_j$と$\Delta\varepsilon_k$の周りでテーラー級数を求める

$$C_i(p_j, p_k) = C_i(P_j, P_k) + S_{i,j}^{(1)}\Delta\varepsilon_j + S_{i,k}^{(1)}\Delta\varepsilon_k + \frac{1}{2!}S_{i,j}^{(2)}\Delta\varepsilon_j^2 + \frac{1}{2!}S_{i,k}^{(2)}\Delta\varepsilon_k^2 + S_{i,\{j,k\}}^{(2)}\Delta\varepsilon_j\Delta\varepsilon_k + \cdots$$

i : O_3 濃度　　j : NO_x排出量　　k : VOCs排出量

$$C_{O_3} = C_{base_case} + S_{NOx}^{(1)}\Delta\varepsilon_{NOx} + S_{VOC}^{(1)}\Delta\varepsilon_{VOC} \quad \text{線形}$$

$$+ \frac{1}{2!}S_{NOx}^{(2)}\Delta\varepsilon_{NOx}^2 + \frac{1}{2!}S_{VOC}^{(2)}\Delta\varepsilon_{VOC}^2 + S_{NOx,VOC}^{(2)}\Delta\varepsilon_{NOx}\Delta\varepsilon_{VOC} \quad \text{非線形}$$

この式から、O_3の等値線図を作成する

C_{base_case} : 現状の濃度

C_{O_3} : 排出量削減後の濃度(削減割合 : $\Delta\varepsilon_{NOx}$と$\Delta\varepsilon_{VOC}$)

$S_{i,j}^{(1)}$、$S_{i,k}^{(1)}$、$S_{i,j}^{(2)}$、$S_{i,k}^{(2)}$、$S_{i,\{j,k\}}^{(2)}$が分かれば、ε_j、ε_kであるスケーリング変数(NO_xやVOCsの排出量)を変えただけで濃度計算ができる。環境対策シナリオを作成時に役立つ。

出典 : Cohan et al. (2005) Nonlinear Response of Ozone to Emissions: Source Apportionment and Sensitivity Analysis, *Environ. Sci. Technol*. **39**, 6739-6748.

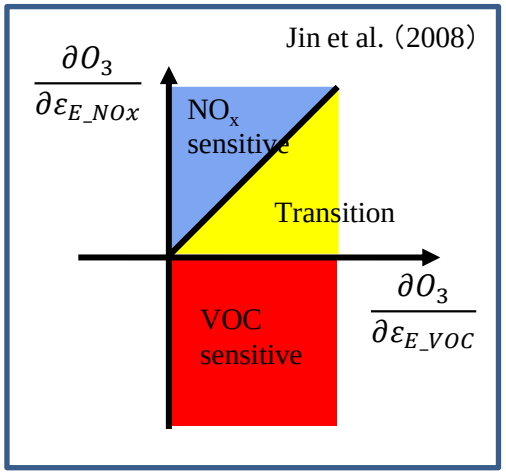
Chemical regimeの判定

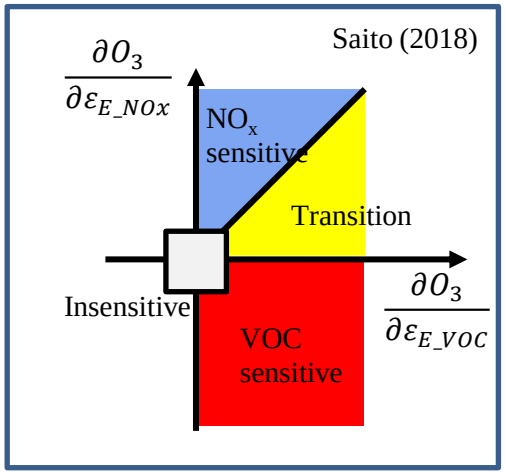
Jin et al.（2008）

$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} < 0$: VOC sensitive

$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} > \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}} > 0$: NO_x sensitive

$0 < \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} < \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}}$: Transition
（遷移） ridge line付近



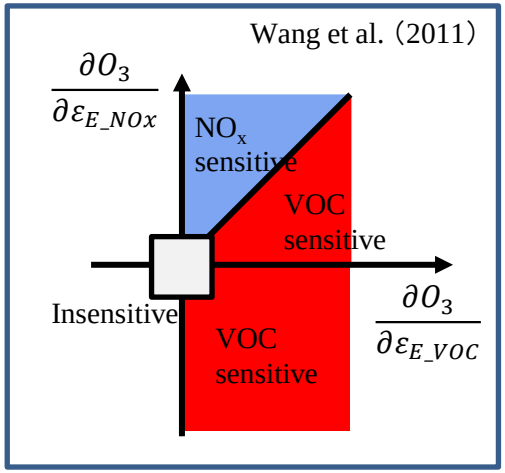


Wang et al.（2011）

$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}} > \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}}$, $\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}} > 5$ [ppb] : VOC sensitive

$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} > \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}}$, $\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} > 5$ [ppb] : NO_x sensitive

-5 [ppb] $< \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}} < 5$ [ppb] , -5 [ppb] $< \frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}} < 5$ [ppb] : Insensitive
（感度なし）

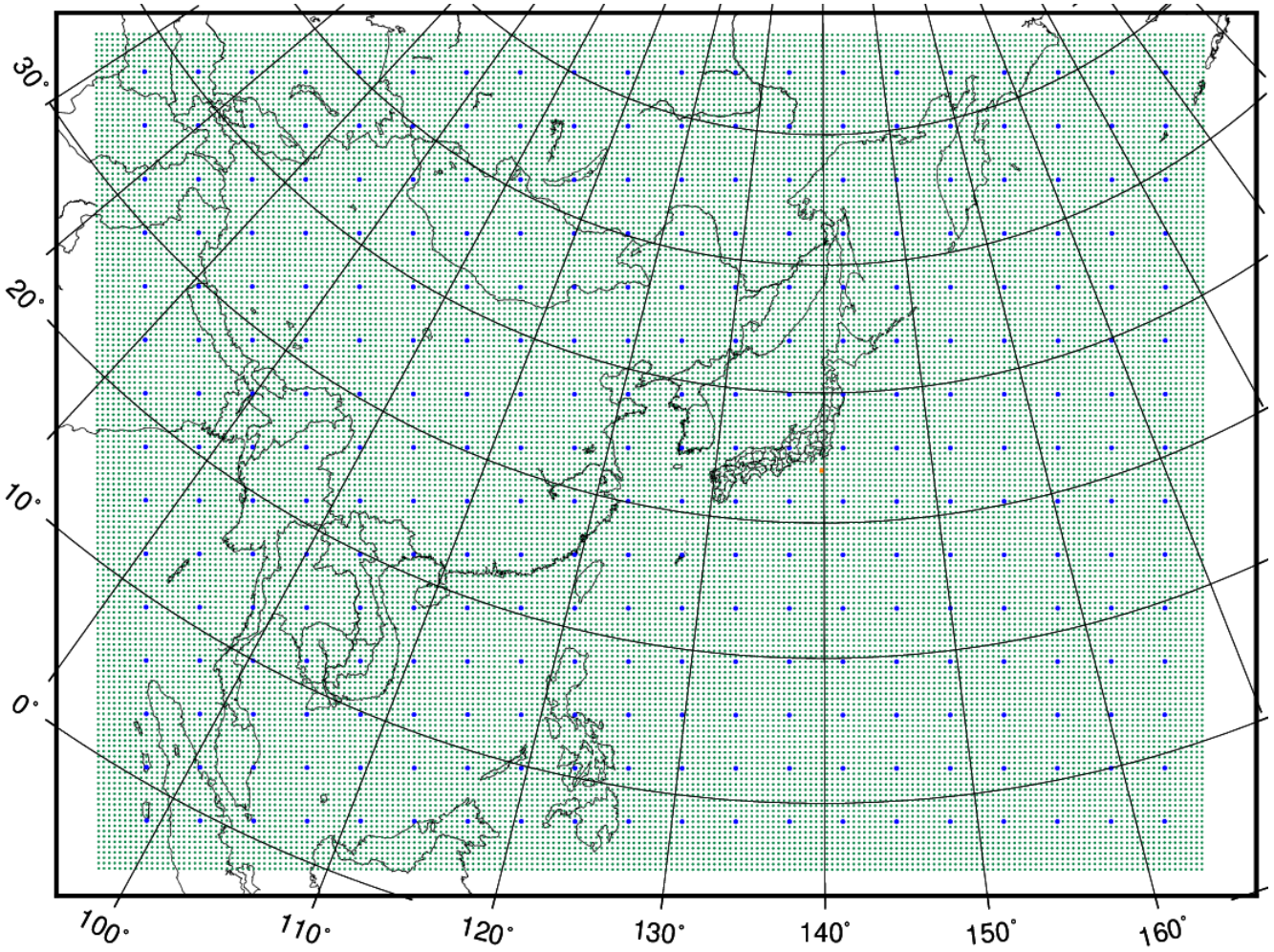


Jin et al. (2008) Sensitivity analysis of ozone formation and trasport for a central California air pollution episode, *Environ. Sci. Technol*. **42**, 3683-3689

Wang et al. (2011) Decoupled direct sensitivity analysis of regional ozone pollution over the Pearl River Delta during the PRIDE-PRD2004 campaign, *Atmospheric Environment* 45,4941-4949

HDDMの解析（東アジア域）

東アジア域の計算領域

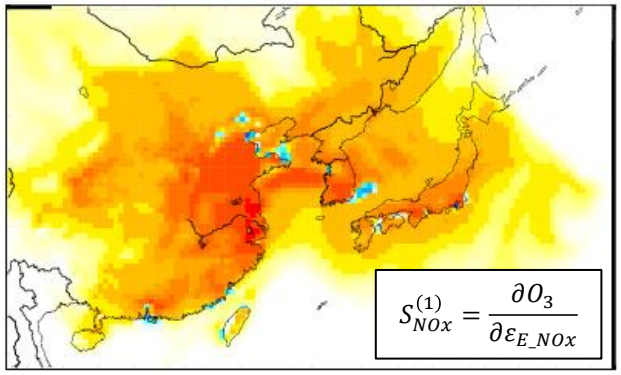


CAMx v6.40
HDDM
207 x 157
45km x 45km
emis: J-stream (d01)

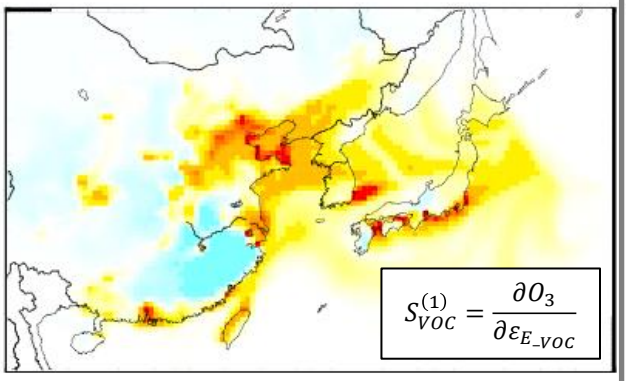
感度係数の水平分布 (2013/8/10 12:00)

CAMx v6.40

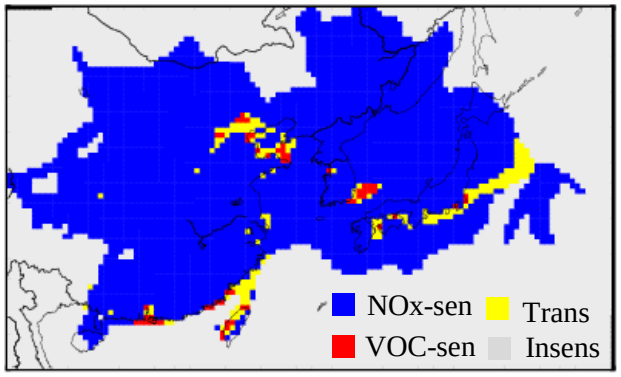
NO_xの一次感度



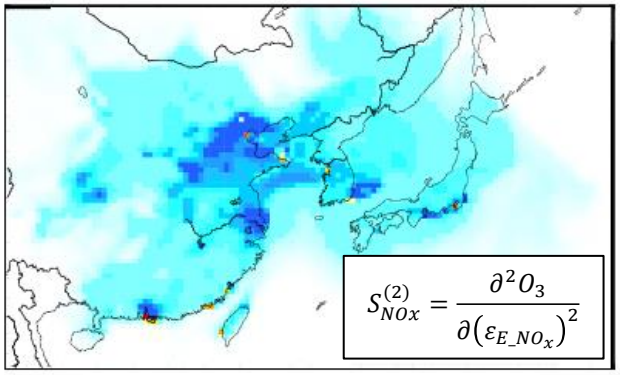
VOCsの一次感度



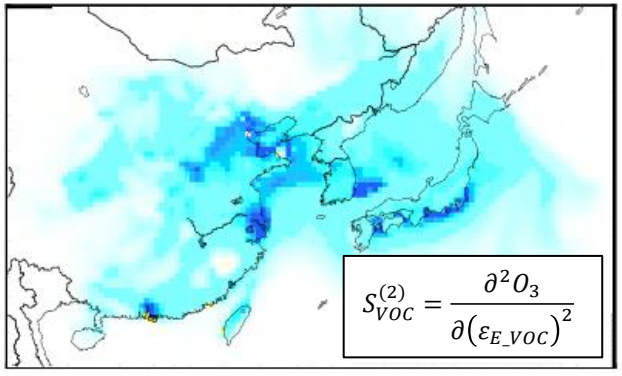
Chemical regime



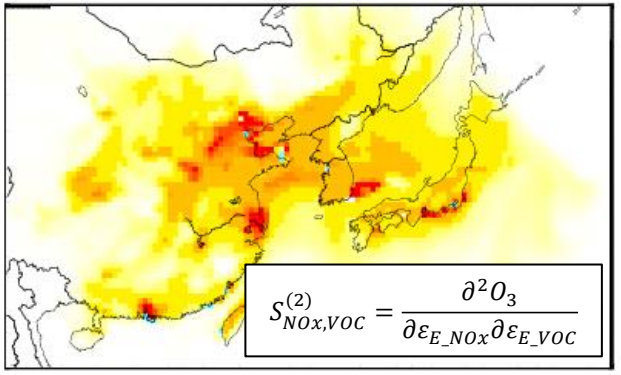
NOxの二次感度 self-sensitivity

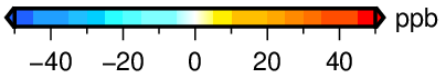


VOCsの二次感度 self-sensitivity



NO_x・VOCsの二次感度 cross-sensitivity





[NO_xの一次感度] > [VOCsの一次感度] > 0
NO_x/VOCsの排出を削減するとO3濃度も下がる

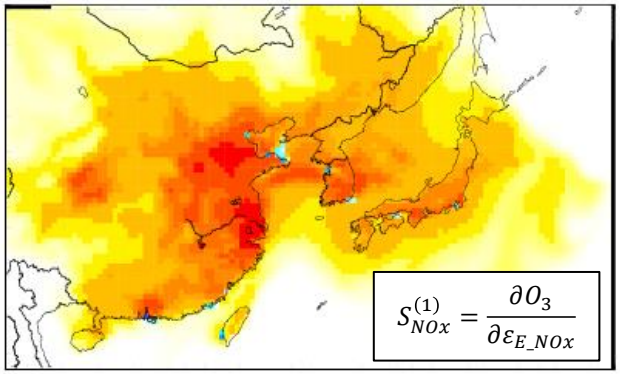
Chemical regime：都市域でVOC-senになっているが
ほとんどの地域でNOx-senになっている

[NO_xの二次感度] > [VOCsの二次感度]
二次感度が強いと、NO_x/VOCsの排出とO3濃度の非線形性が強くなる

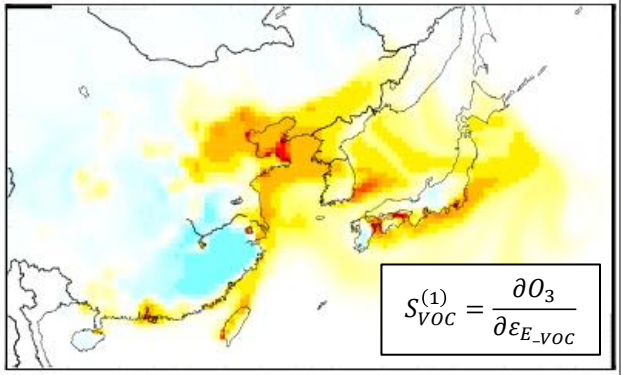
感度係数の水平分布 (2013/8/10 15:00)

CAMx v6.40

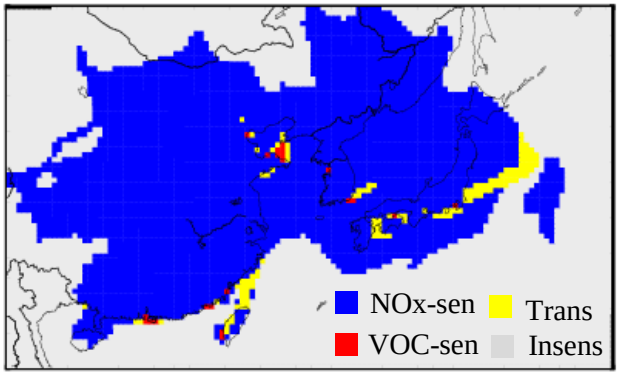
NO$_x$の一次感度



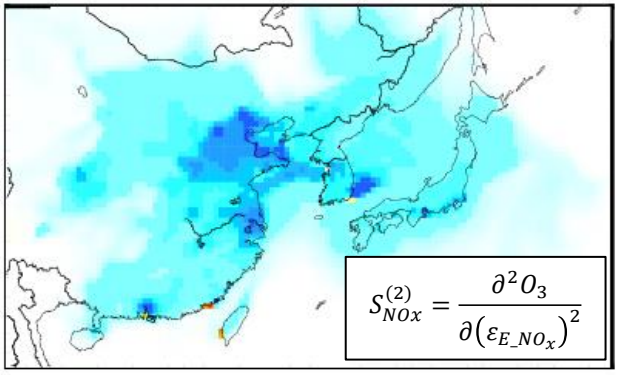
VOCsの一次感度



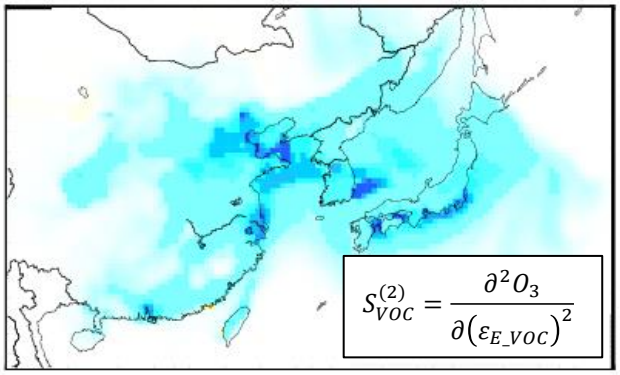
Chemical regime



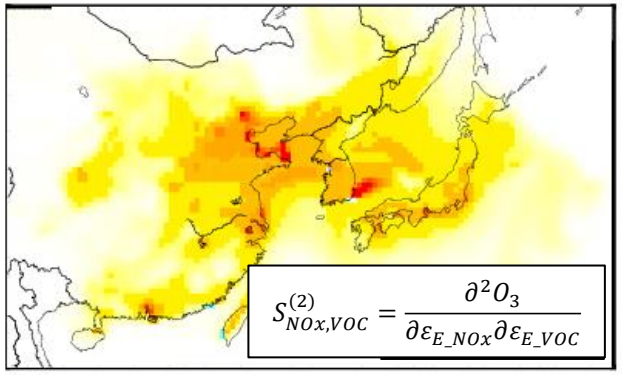
NO$_x$の二次感度 self-sensitivity

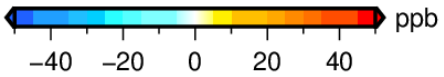


VOCsの二次感度 self-sensitivity



NO$_x$・VOCsの二次感度 cross-sensitivity





$$C_{O_3} = C_{base_case} + S^{(1)}_{NOx}\Delta\varepsilon_{NOx} + S^{(1)}_{VOC}\Delta\varepsilon_{VOC}$$

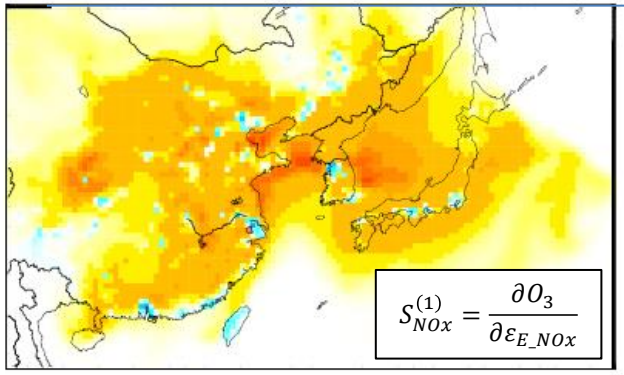
$$+ \frac{1}{2!}S^{(2)}_{NOx}\Delta\varepsilon^2_{NOx} + \frac{1}{2!}S^{(2)}_{VOC}\Delta\varepsilon^2_{VOC} + S^{(2)}_{NOx,VOC}\Delta\varepsilon_{NOx}\Delta\varepsilon_{VOC}$$

$\Delta\varepsilon_{NOx}$=0.1のとき、 $\Delta\varepsilon^2_{NOx}$ =0.01

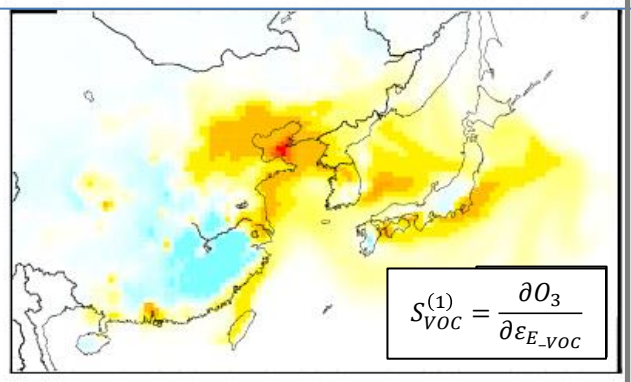
感度係数の水平分布 (2013/8/10 21:00)

CAMx v6.40

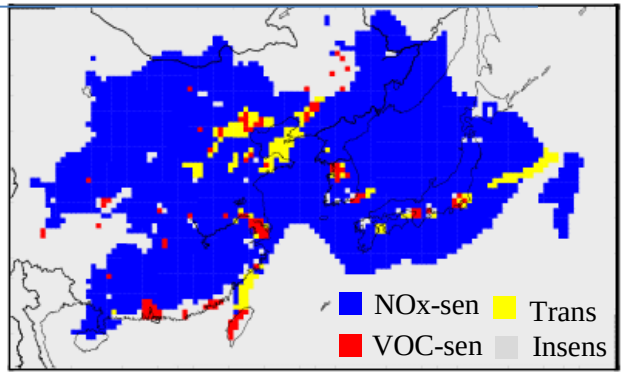
NO_xの一次感度



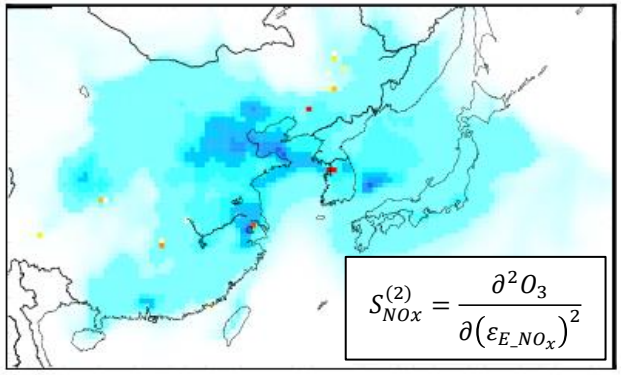
VOCsの一次感度



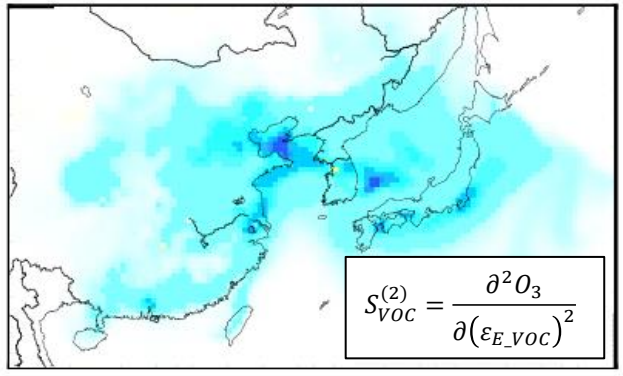
Chemical regime



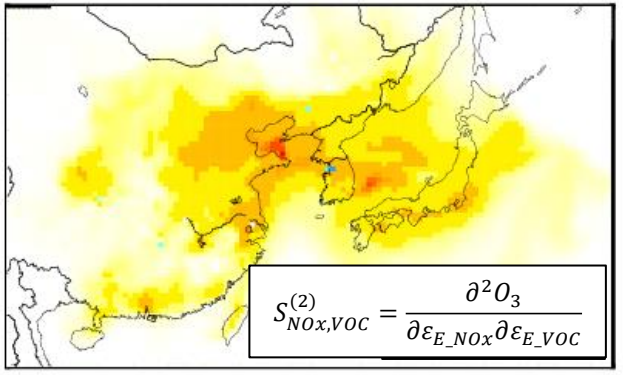
NO_xの二次感度 self-sensitivity

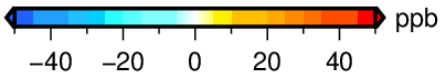


VOCsの二次感度 self-sensitivity



NO_x・VOCsの二次感度 cross-sensitivity





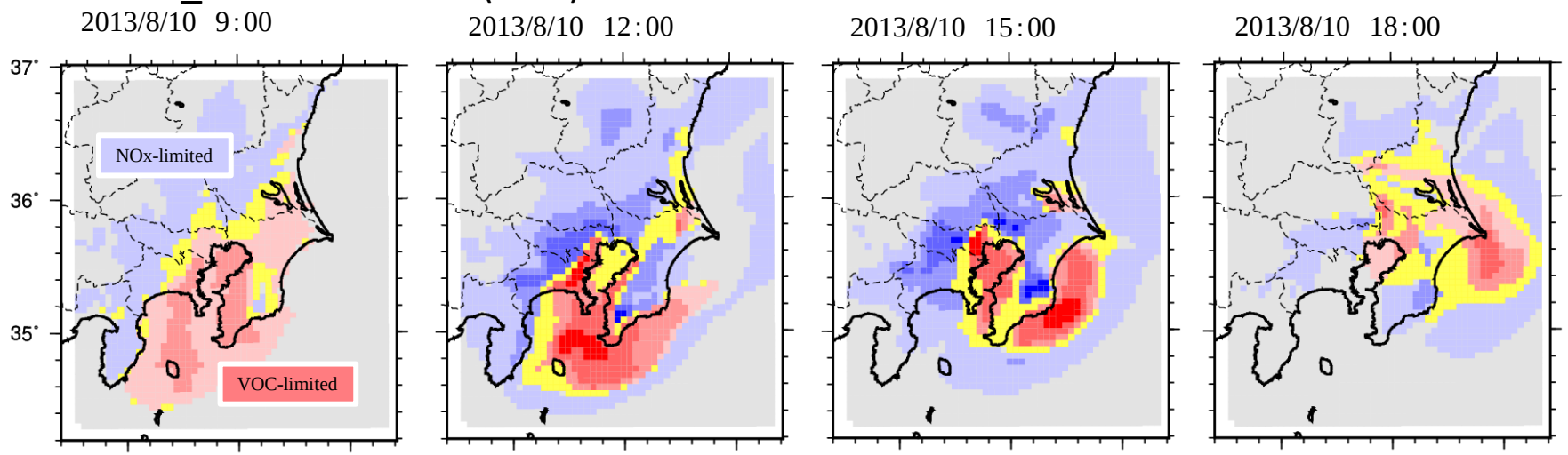
Chemical regime：夜間の都市域では、TransやVOC-senのエリアが広がっている。
感度係数の分布で見ると、NO_xの一次感度の時刻変化（1時と21時）が大きく弱まっている。
これは、夜間、日射がない状況でNOのtitrationによりNO_xの一次感度が弱まったと解釈される。
(Cohan et al., 2005)

VOCsの一次感度の時刻変化は小さい。

Chemical regime の水平分布（d04：2013/8/10）

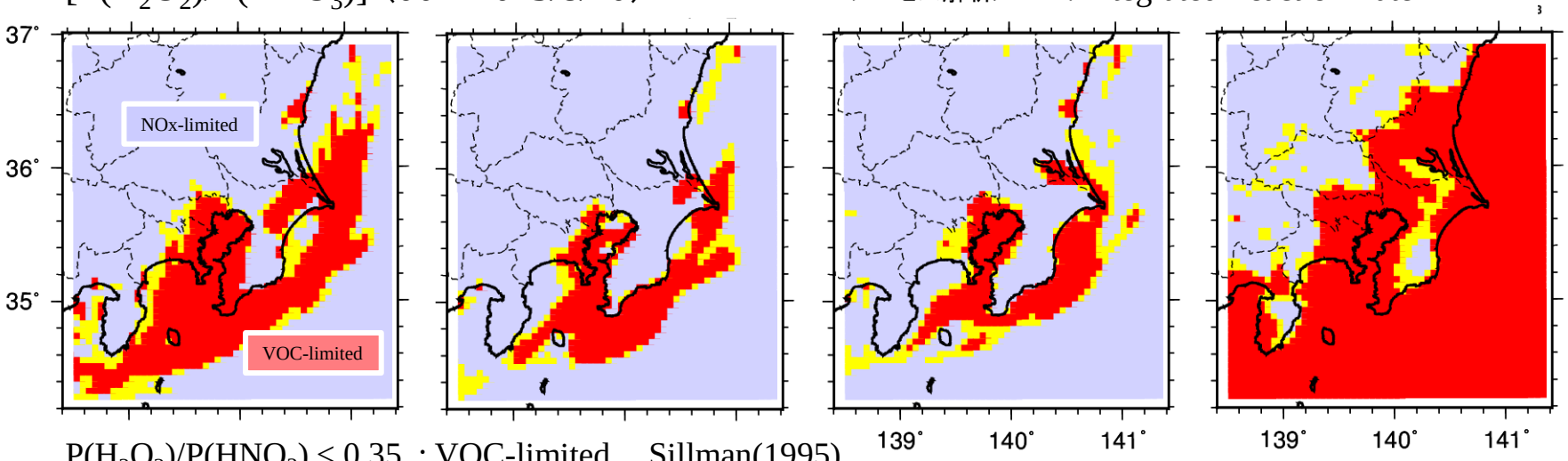
CMAQ v5.2.1

CMAQ_HDDM v5.2.1 (5km)



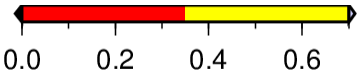
[$P(H_2O_2)/P(HNO_3)$]（d04：2013/8/10）

プロセス解析/IRR：Integrated Reaction Rate



$P(H_2O_2)/P(HNO_3) < 0.35$ ：VOC-limited　Sillman(1995)

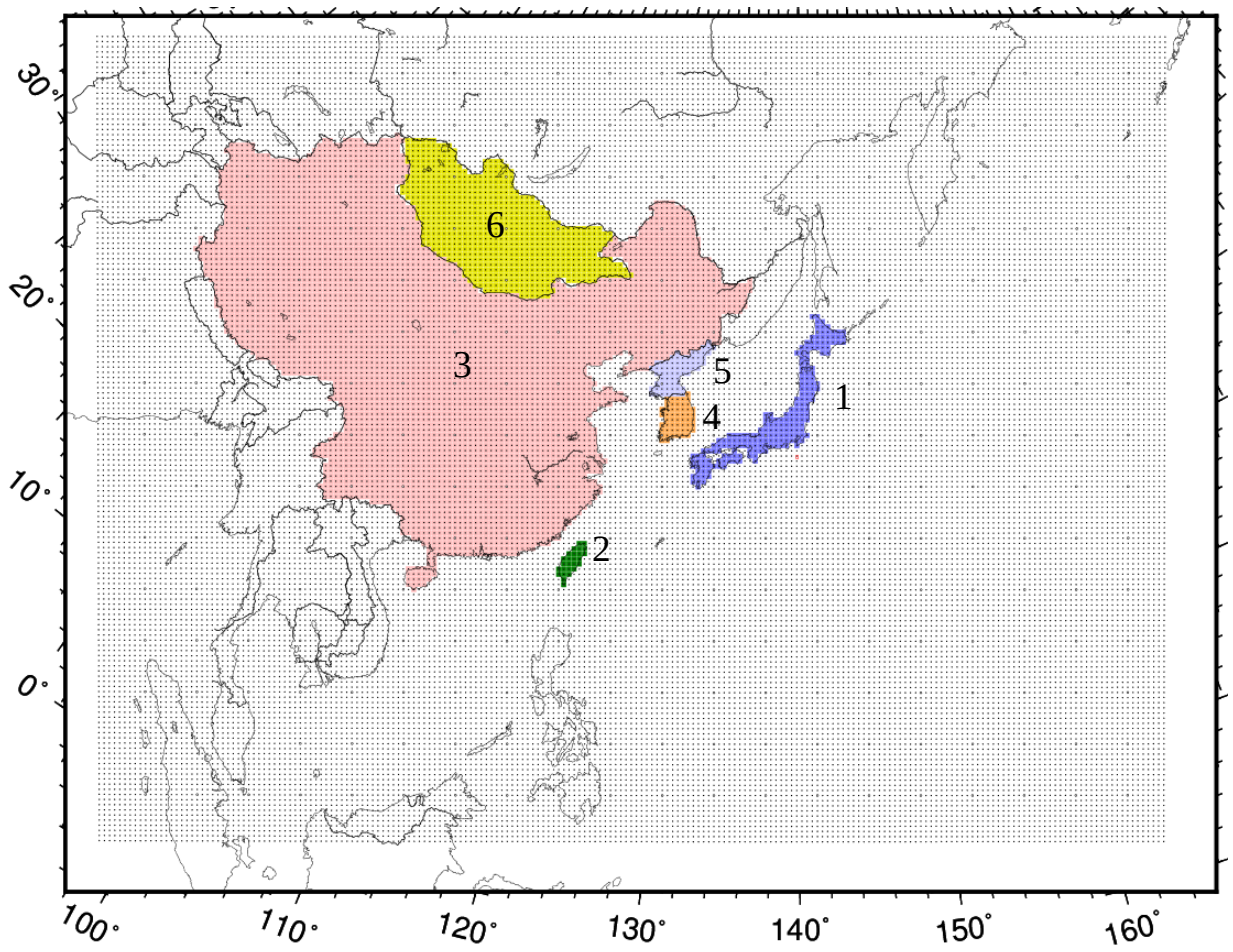
過酸化水素/硝酸の生成量



都市域：NO_xリッチ、VOCが律速

郊　外：VOCリッチ、NO_xが律速

感度係数の解析で用いた領域（エリア別）

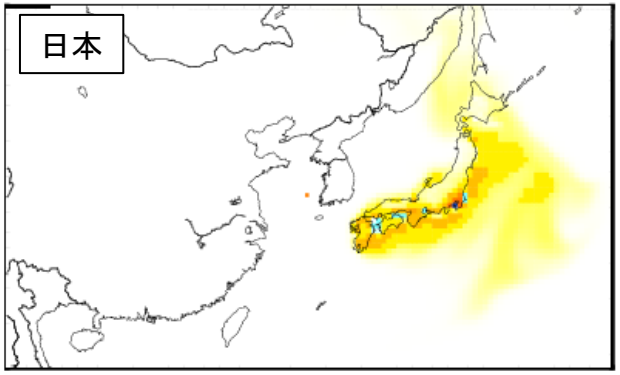


1: 日本
2: 台湾
3: 中国
4: 韓国
5: 北朝鮮
6: モンゴル

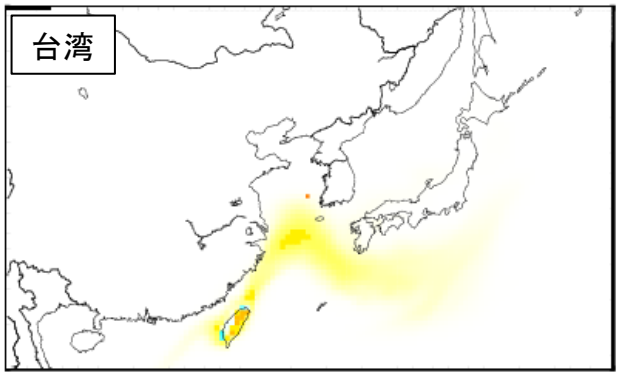
エリア別のNO_xの一次感度の水平分布（12:00） CAMx v6.40

$$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_NOx}}$$

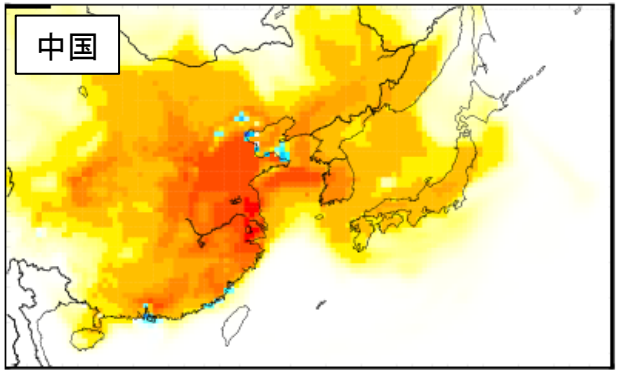
ddm_20130810_0380101NOX_r6.csv _12



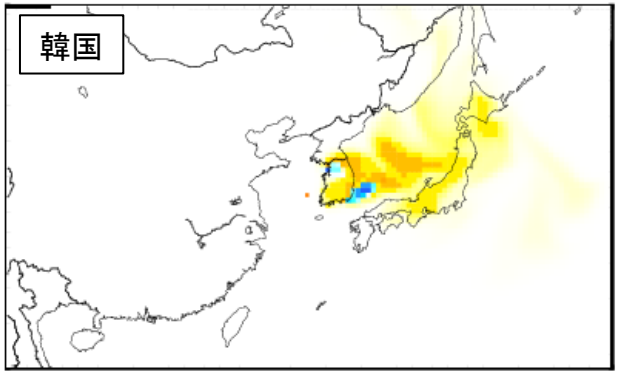
ddm_20130810_0380102NOX_r6.csv _12



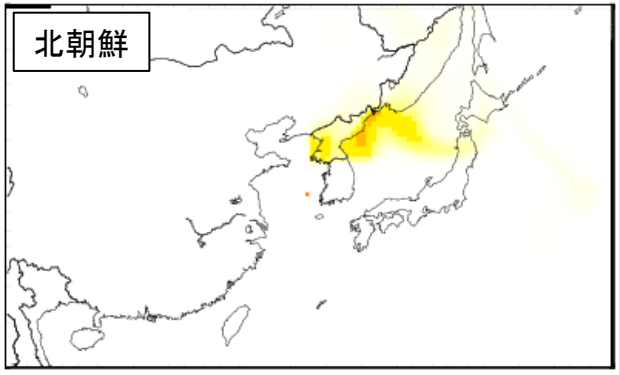
ddm_20130810_0380103NOX_r6.csv _12



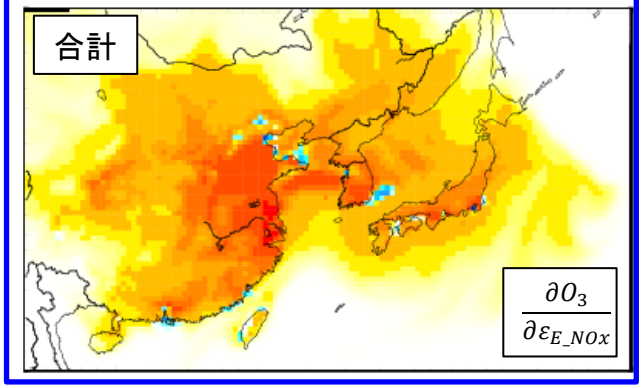
ddm_20130810_0380104NOX_r6.csv _12

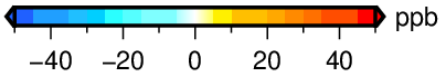


ddm_20130810_0380105NOX_r6.csv _12



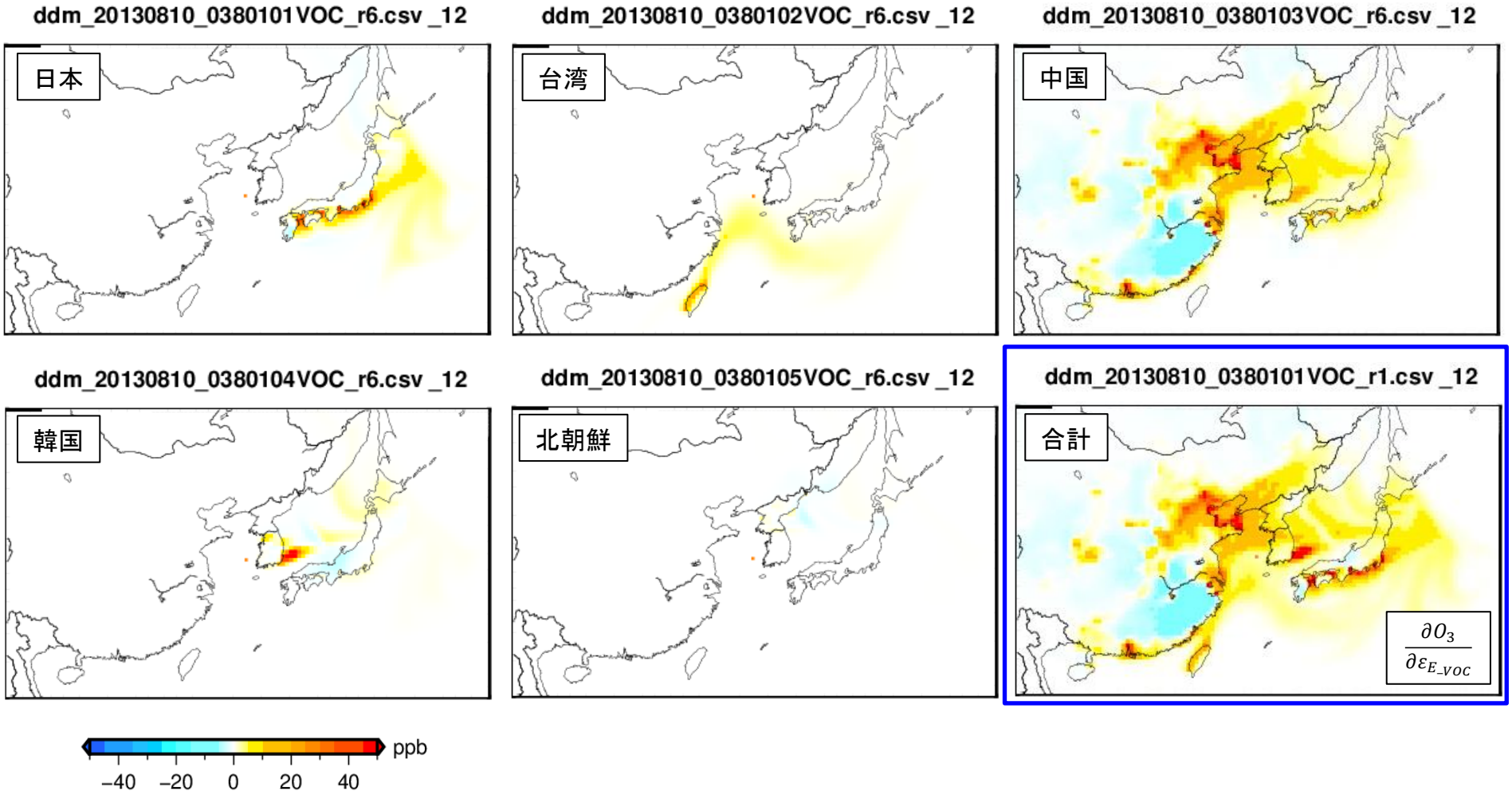
ddm_20130810_0380101NOX_r1.csv _12





エリア別のVOCsの一次感度の水平分布（12:00） CAMx v6.40

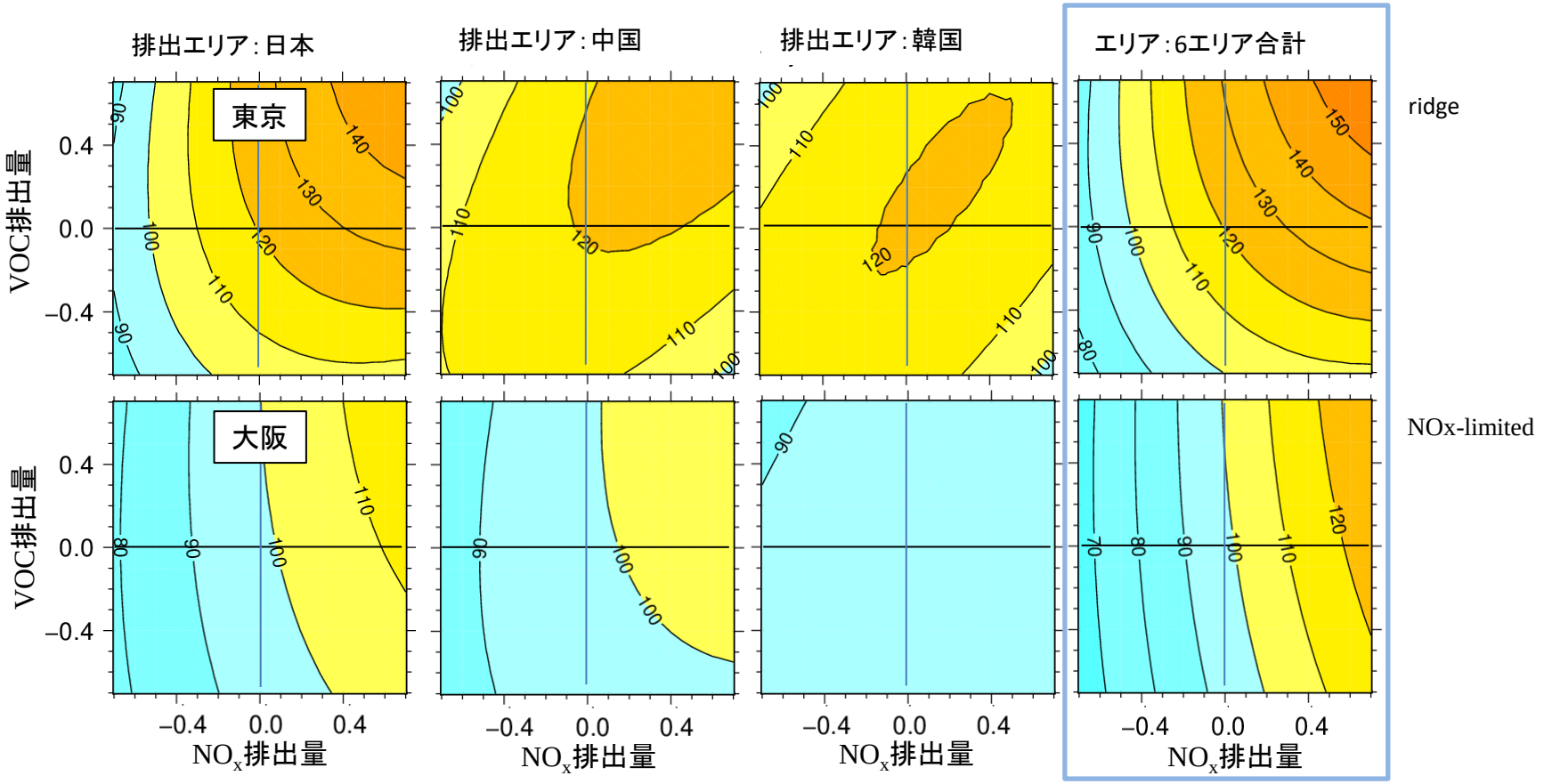
$$\frac{\partial O_3}{\partial \varepsilon_{E_VOC}}$$



エリア別O_3の等値線図 (日本)

2013/8/10 12:00

CAMx v6.40



$$C_{O_3} = C_{base_case} + S^{(1)}_{NOx}\Delta\varepsilon_{NOx} + S^{(1)}_{VOC}\Delta\varepsilon_{VOC}$$

$$+ \frac{1}{2!}S^{(2)}_{NOx}\Delta\varepsilon^2_{NOx} + \frac{1}{2!}S^{(2)}_{VOC}\Delta\varepsilon^2_{VOC} + S^{(2)}_{NOx,VOC}\Delta\varepsilon_{NOx}\Delta\varepsilon_{VOC}$$

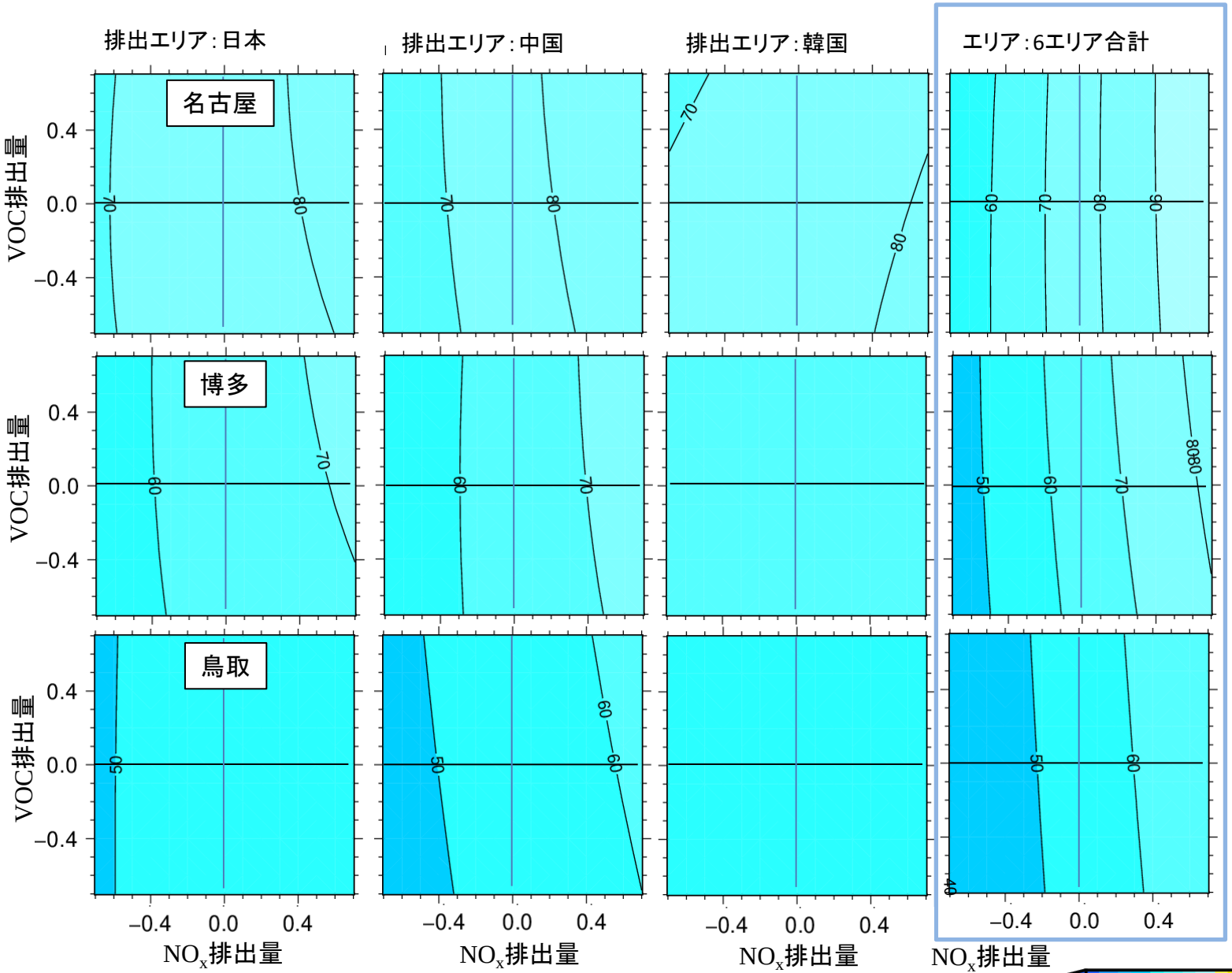
C_{base_case} :現状の濃度

C_{O_3} :環境対策後の濃度(削減割合:$\Delta\varepsilon_{NOx}$と$\Delta\varepsilon_{VOC}$)

エリア別O_3の等値線図 (日本)

2013/8/10 12:00

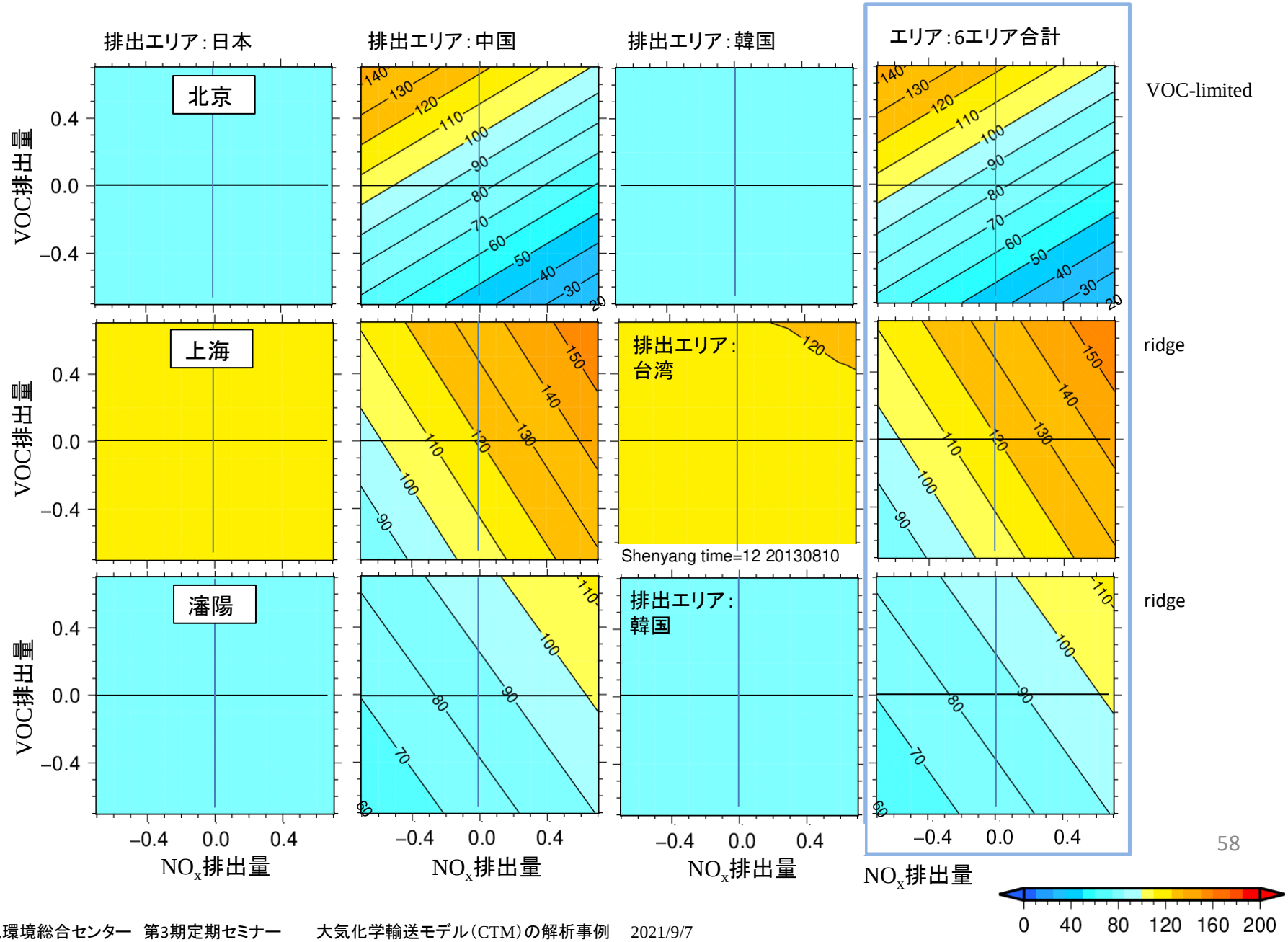
CAMx v6.40



エリア別O_3の等値線図 (中国)

2013/8/10 12:00

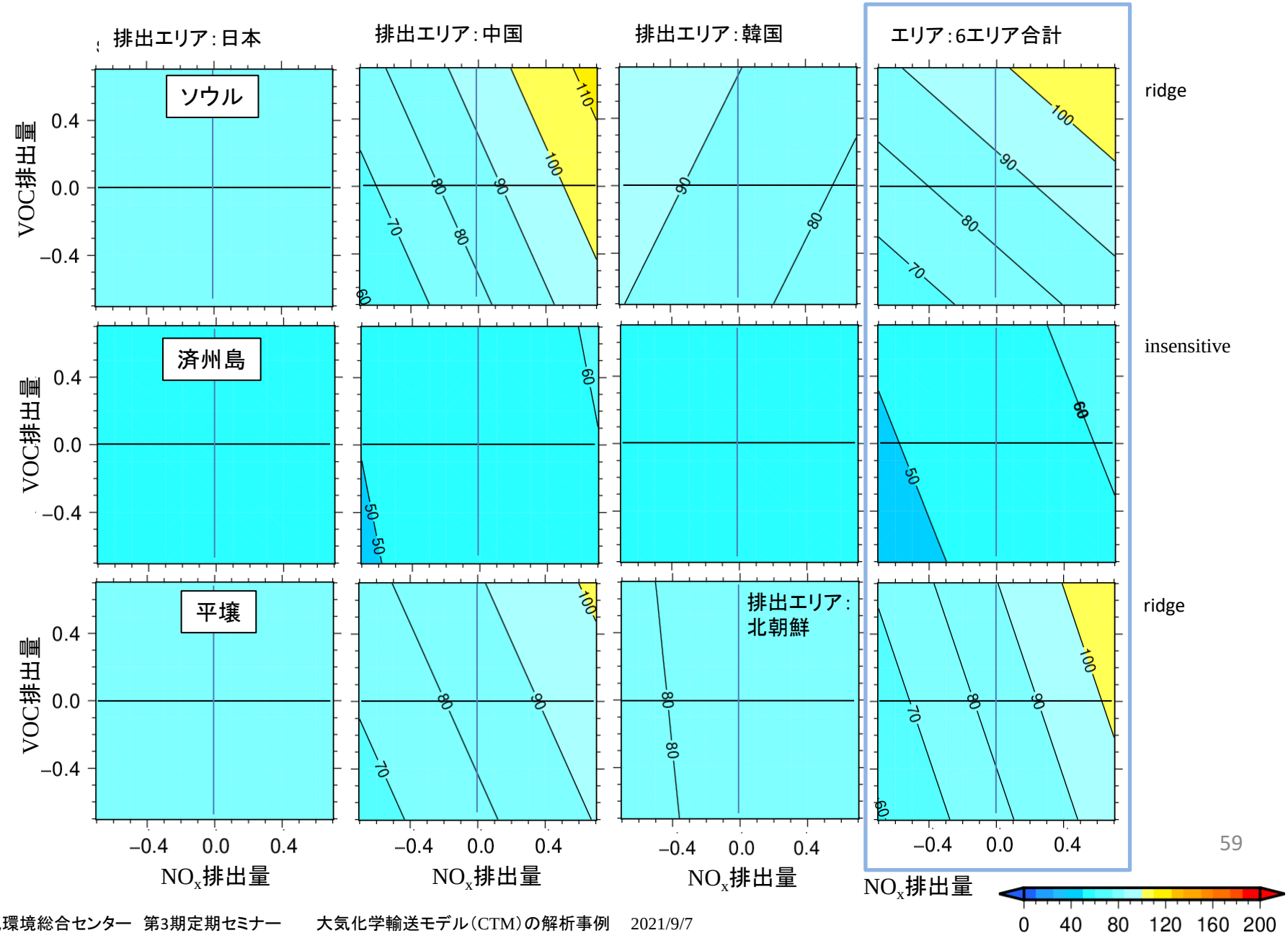
CAMx v6.40



エリア別O_3の等値線図 (朝鮮半島)

2013/8/10 12:00

CAMx v6.40



まとめ

(1) Process Analysis (プロセス解析)
・移流、拡散、反応などのプロセスを知ることができる。

(2) Source Apportionment (SA)
・エリア別の発生源からのO_3濃度を知ることができる。

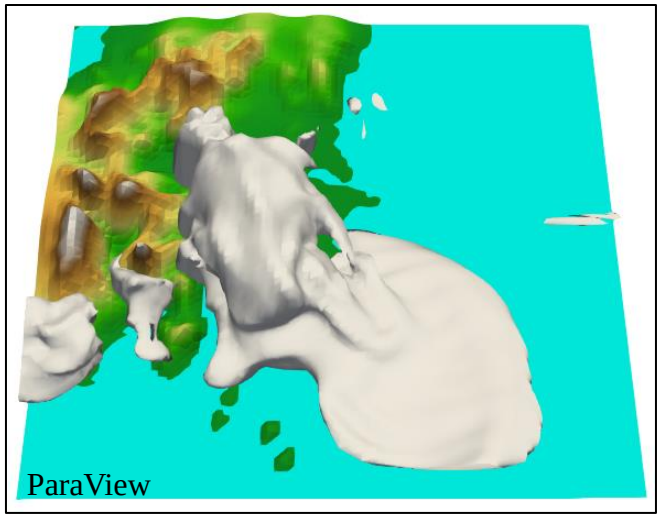
(3) Decoupled Direct Method (DDM)
・DDMのO_3の感度係数からChemical regime (NO_x/VOC-sensitive) を知ることができる。
・O_3の等値線図(横軸 : NO_x排出量、縦軸 : VOCs排出量)は、環境対策に有効である。
・「SAのエリア別のO_3寄与濃度」と「DDMのエリア別のO_3の等値線図」により、共通して大陸の影響が示唆された。

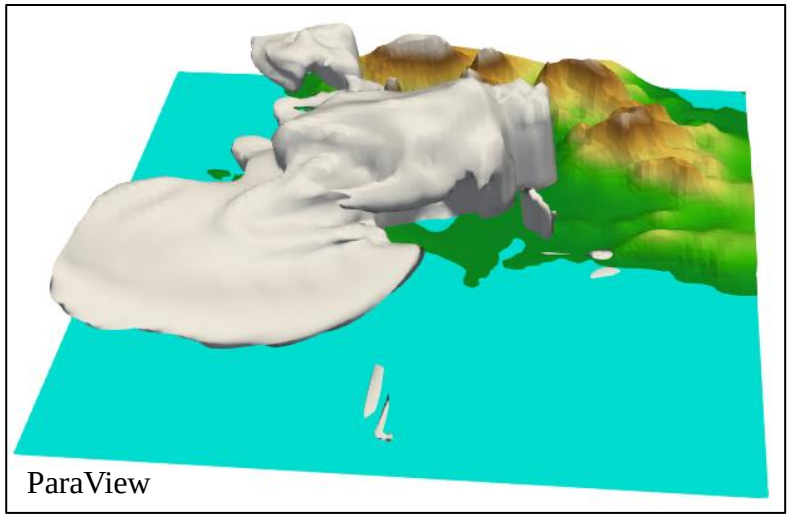
これらの解析ツールは、有効な手段である。
使い勝手という観点からすると、CAMxの利用も選択肢の一つと思われる。

4. データ可視化ソフト*ParaView*による3D描画

主な作図ソフト

Verdi	https://www.cmascenter.org/verdi
GMT	http://gmt.soest.hawaii.edu/projects/gmt/wiki/Installing
Panoply	https://www.giss.nasa.gov/tools/panoply/
IDV	https://www.unidata.ucar.edu/downloads/idv/current/index.jsp
NCL	https://www.ncl.ucar.edu/
ParaView	https://www.paraview.org/

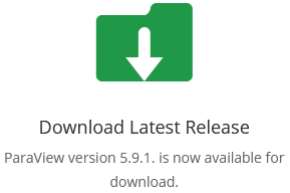




ParaViewによる作図(ダウンロード・インストール・実行)

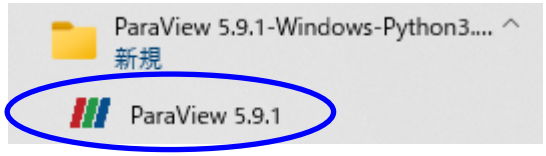
ParaViewのダウンロード

① https://www.paraview.org/
② ParaView-5.9.1-Windows-Python3.8-msvc2017-64bit.exe ダウンロード
③ ParaViewTutorial-5.9.1.pdf マニュアル

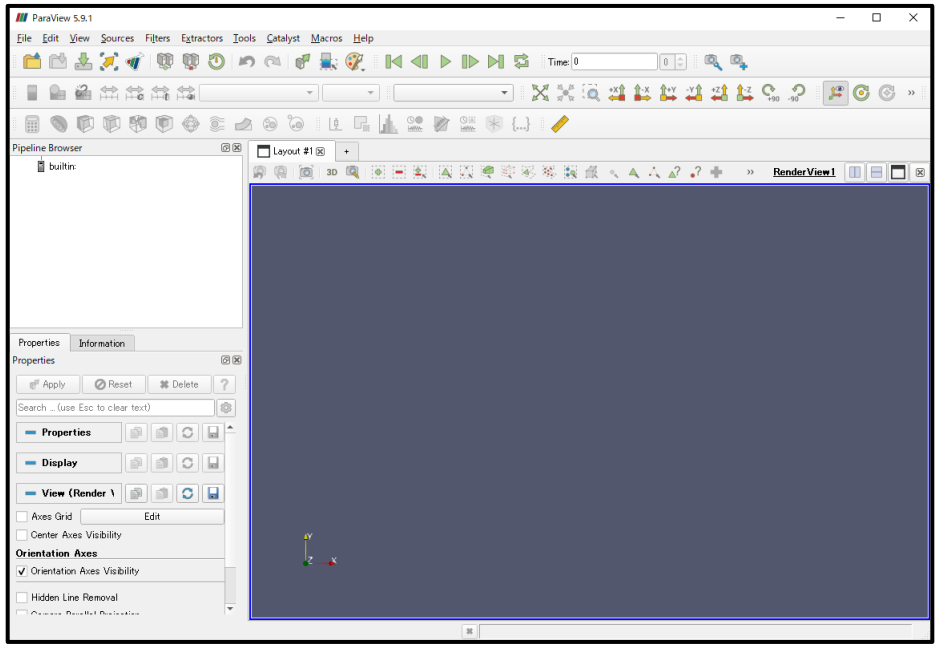


ParaViewのインストール・実行

④ParaView-5.9.1-Windows-Python3.8-msvc2017-64bit.exe をダブルクリックしてインストールを行う
⑤インストール後、[スタート]-[ParaView-5.9.1-Windows- Python3.8-msvc2017-64bit]-[ParaView 5.9.1]を選択してParaViewを起動する

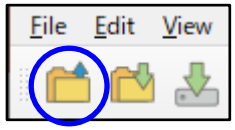


ParaViewの起動時の画面

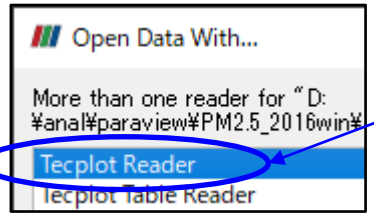


サンプルデータ(Mexico City の O_3)をIIAEのHP上にアップしています。
ファイルは、data1.zi_, data2.zi_, data3.zi_, data4.zi_ の4つです。
拡張子zi_をzipに変えて解凍してください。(パスワード:ushi)

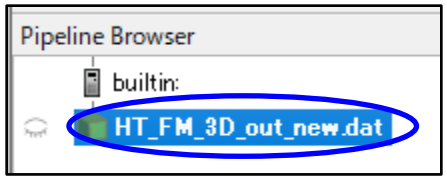
ParaViewによる作図(標高の表示：標高データの読み込み)

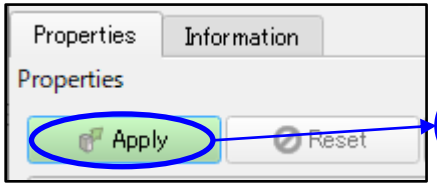


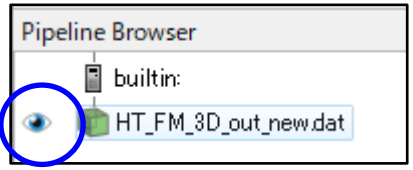
①[File]-[open]で標高データファイルHT_FM_3D_out_new.datを選択する



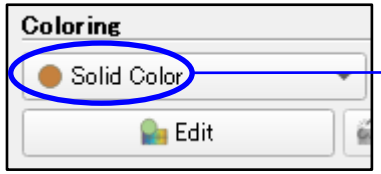
②[Open Data With…]では、[Tecplot Reader]を選択する （全てのデータはこれを選択する）

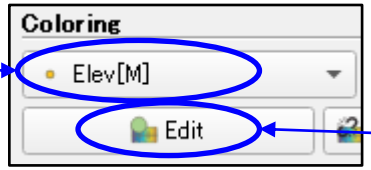






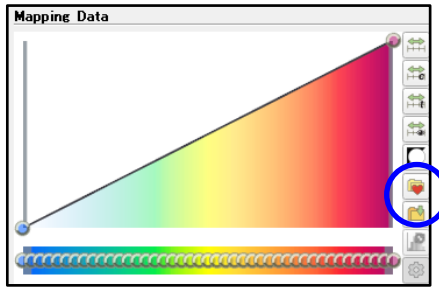
③[Properties]-[Apply]を押すと[HT_FM_3D_out_new.dat]に目のアイコンが表示される





④[Solid Color]から[Elev[M]]を選択する

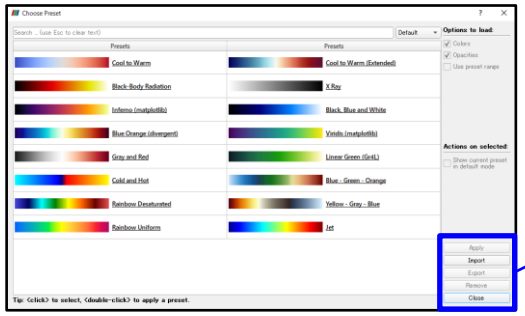
⑤[Edit]を押すと、画面左側にColor Map Editorが現れる



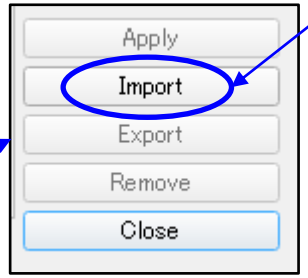
⑥「フォルダにハートマーク」アイコンをクリック

ParaViewによる作図(標高の表示：地形らしい色をつける)

画面中央に[Choose Preset]が現れる

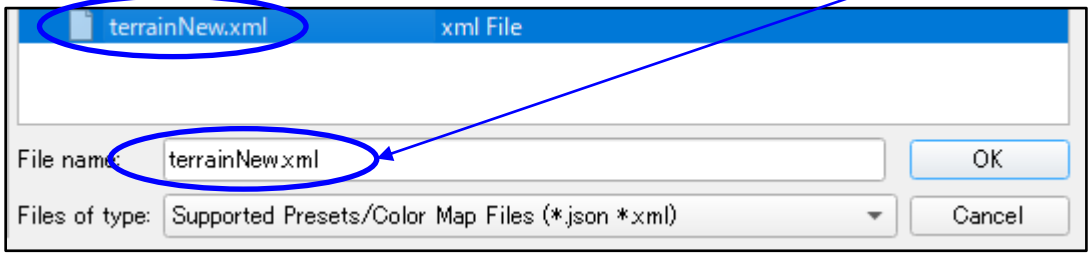


拡大

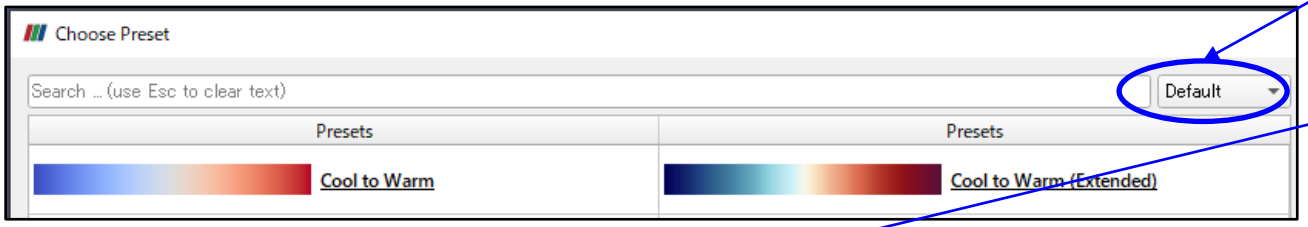


⑦ [Import]をクリックする

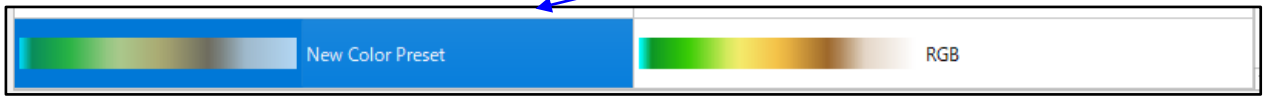
⑧ファイルの中からterrainNew.xmlを選択する



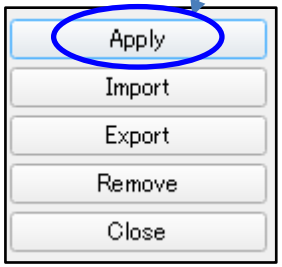
⑨[Default]から[All]を選択する



[All]を選択すると、最下段に今読み込んだデータが表示される



⑩[New Color Preset]を選択して、[Apply]をクリックする



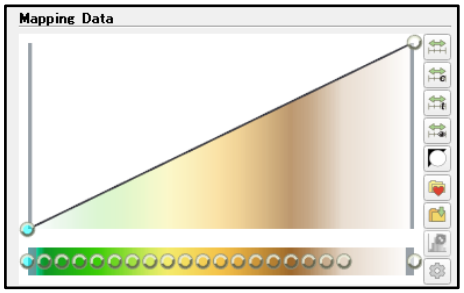
ParaViewによる作図(標高の表示：標高データのレンジの変更)

Transforming

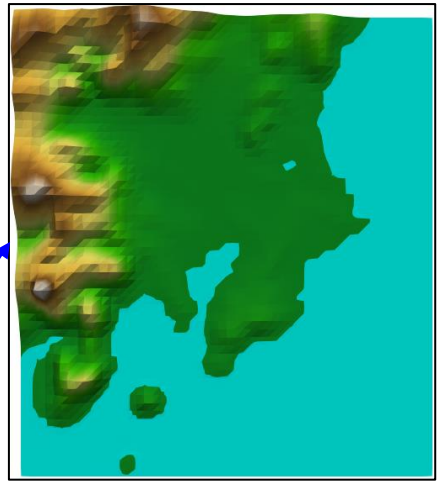
Translation	0	0	0
Scale	1	1	0.005
Orientation	0	0	0
Origin	0	0	0

④[Transforming] –[Scale]　で3つめ（z方向）の箱に0.005と入力する

画面上部にあるアイコン[Set view direction to -Z]をクリックすると図（標高）は拡大する



表示が気に入らない場合は、標高データの表示するレンジを変更する

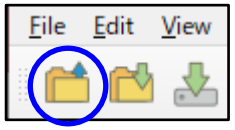


Color transfer function values

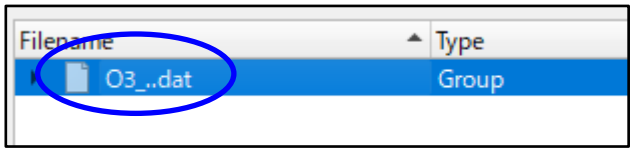
	Value	R	G	B
1	0	0	1	1
2	93.9398	0.0509957	0.588006	0.149004
3	192.824	0.106004	0.663005	0.0979934

⑪[93.9398] を[0.1]に変更する

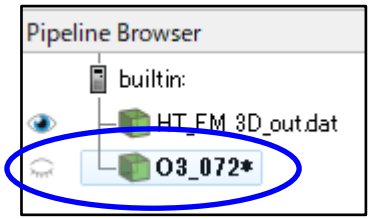
ParaViewによる作図(濃度データの表示)

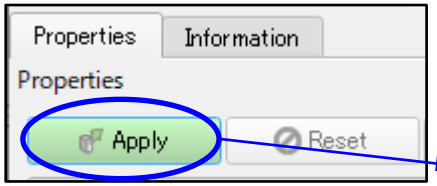


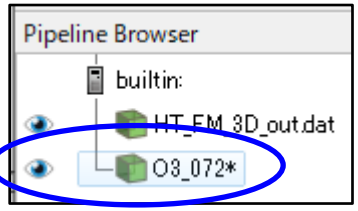
①[File]-[open]で濃度データファイルO3_..datを選択する



O3_072010.datからO3_072224.datまでの33個を一括して指定できる

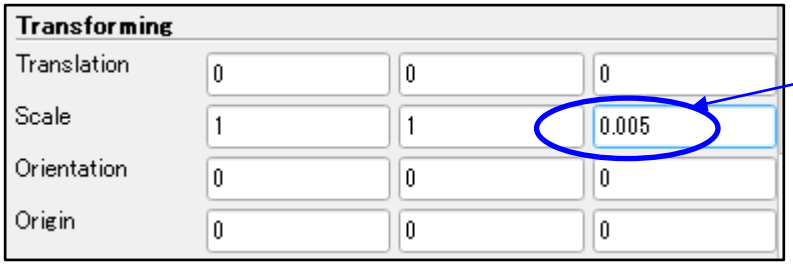






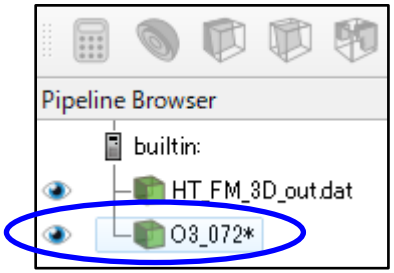
②[Properties]-[Apply]を押すと、[O3_072*]に目のアイコンが表示される

③[Solid Color]から[Ozone[ppb]_O3]を選択する

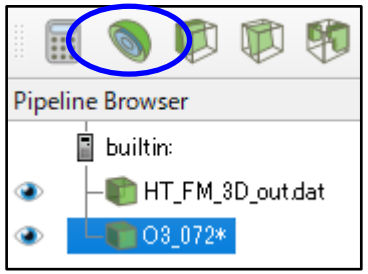


④[Transforming] –[Scale]　で3つめ(z方向)の箱に0.005と入力する

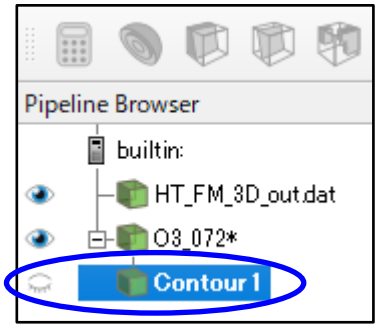
ParaViewによる作図(濃度データの表示:コンター)



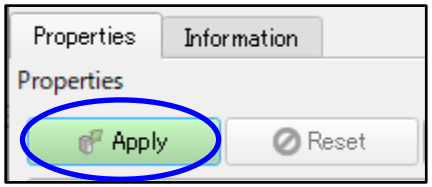
[O3_072*]をクリック



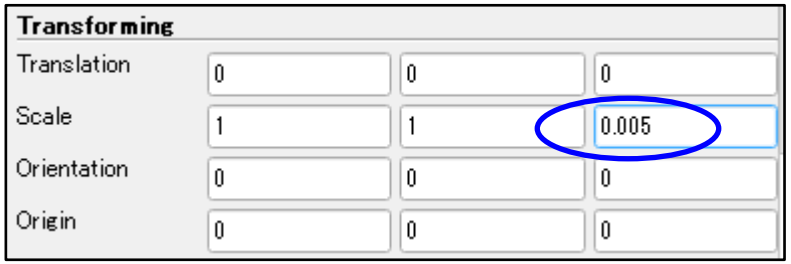
半球アイコンがアクティブになる



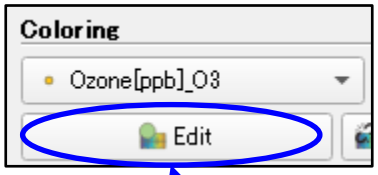
① [O3_072*]をクリックすると半球アイコン(コンタ)がアクティブになる
②[Contour1]が表示される



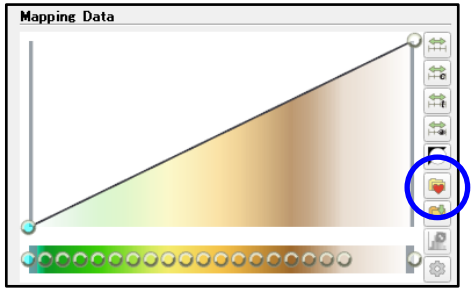
③[Apply]をクリック



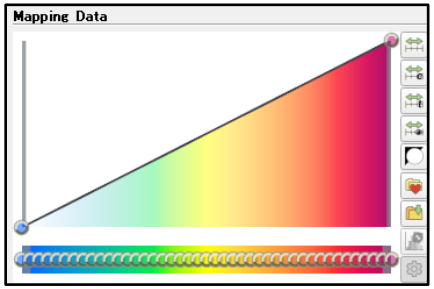
④[Transforming] –[Scale] で3つめ(z方向)の箱に0.005と入力する



⑤[Coloring]-[Edit]を選択

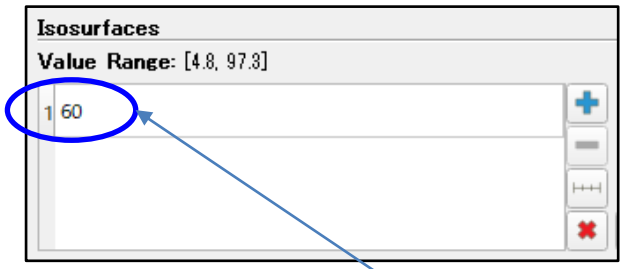


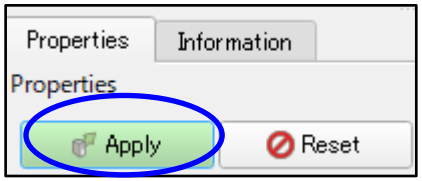
⑥ アイコンをクリック



⑦[Choose preset]から[Rainbow Uniform]を選択する
[Apply]をクリックし、[close]する

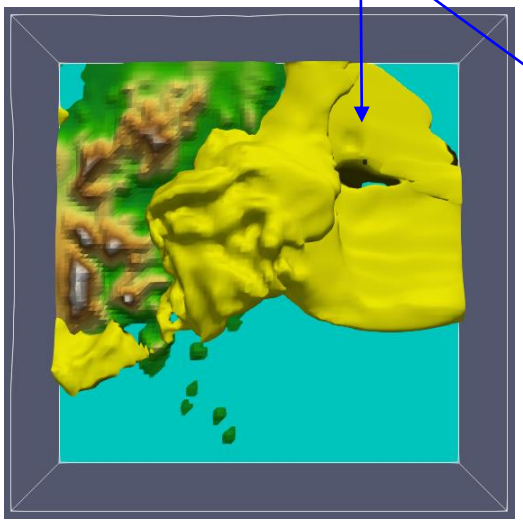
ParaViewによる作図(濃度データの表示/方向軸の表示)

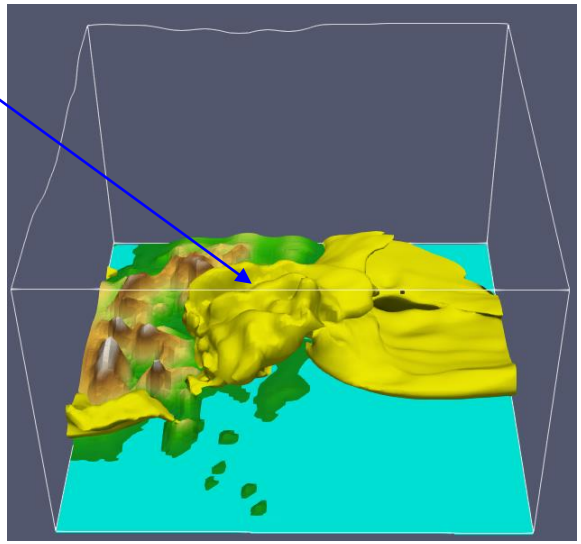




[Apply]をクリックして、濃度値をアクティブにする

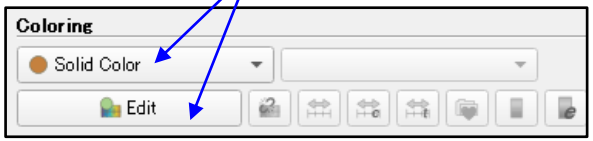
濃度のクラウド(雲)の濃度値[60ppb]を指定する

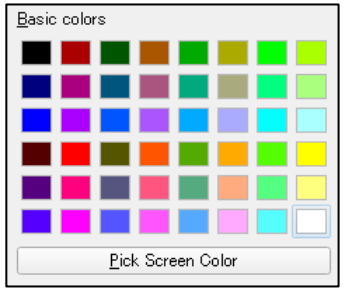




色を直接指定する方法

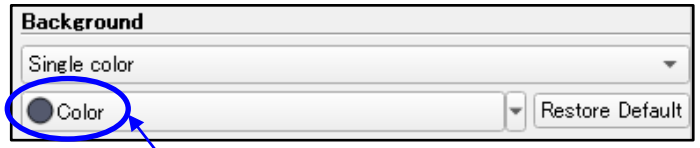
濃度のクラウド(雲)の色は、
[Solid Color]にして、[Edit]をクリックして、カラーパレットから選ぶ



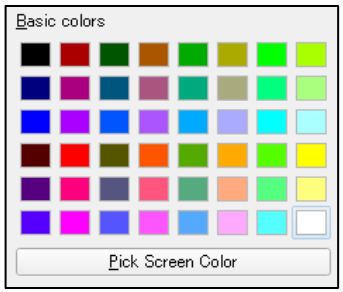


ParaViewによる作図(背景の色、スケールの非表示、動画、外枠の非表示)

背景の色変更



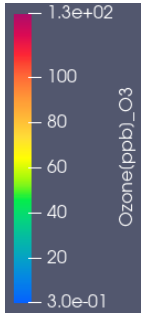
[Color]をクリックする



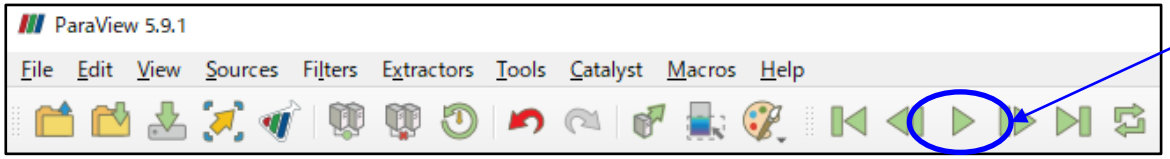
[Select Color]の画面が現れるので、背景の色を指定する

スケールの表示有無

[Show/hide color legend]をクリックするとスケールが表示/非表示する



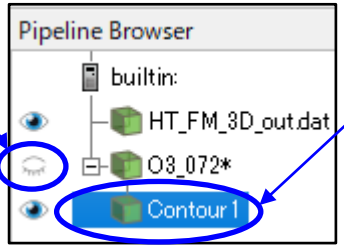
動画の再生



[play]で動画を描写する

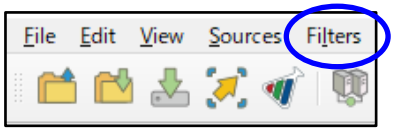
外枠の非表示

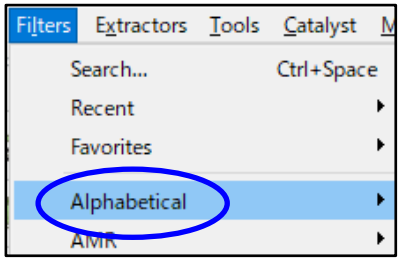
目のアイコンをクリックすると図の外枠が消える



表示したいデータをクリックしてアクティブにする

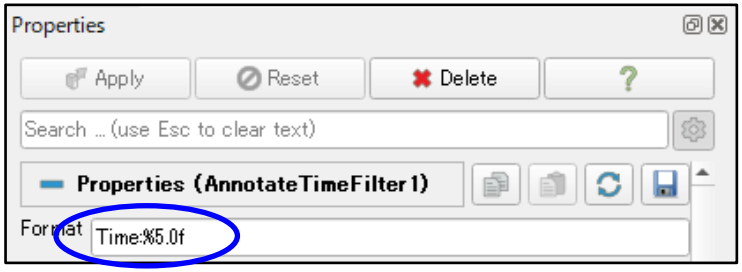
ParaViewによる作図(時間ステップの表示)





①[Filters]-[Alphabetical]-[Annotate Time Filter]を選ぶ

②[Properties]-[Apply]をクリックすると画面に時間ステップが表示

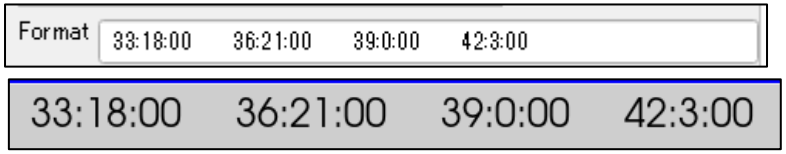


③[Format]-[Time:%5.0f]とする

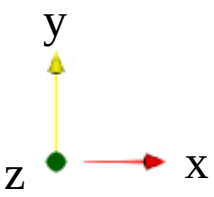
時間ステップの表示

④時間ステップの表示位置を指定する

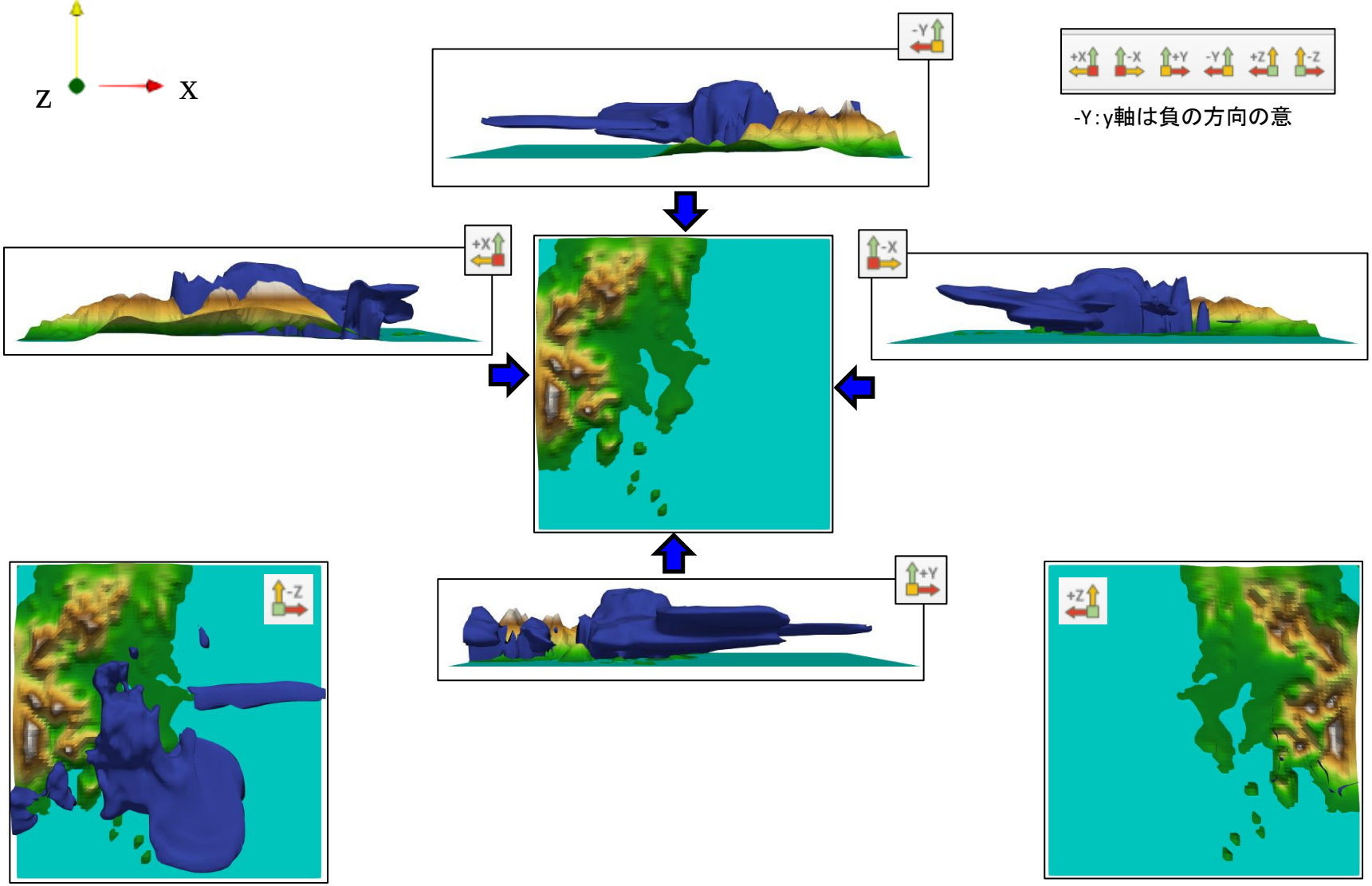
メモのようにも使える



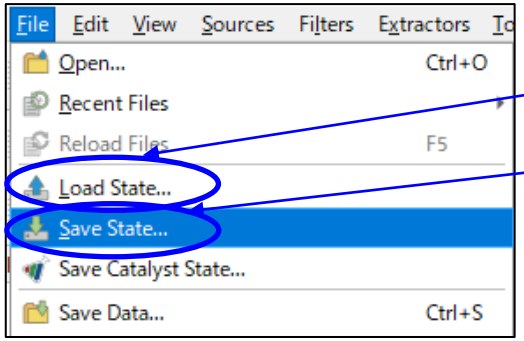
ParaViewによる作図(view directionの指定)



-Y：y軸は負の方向の意

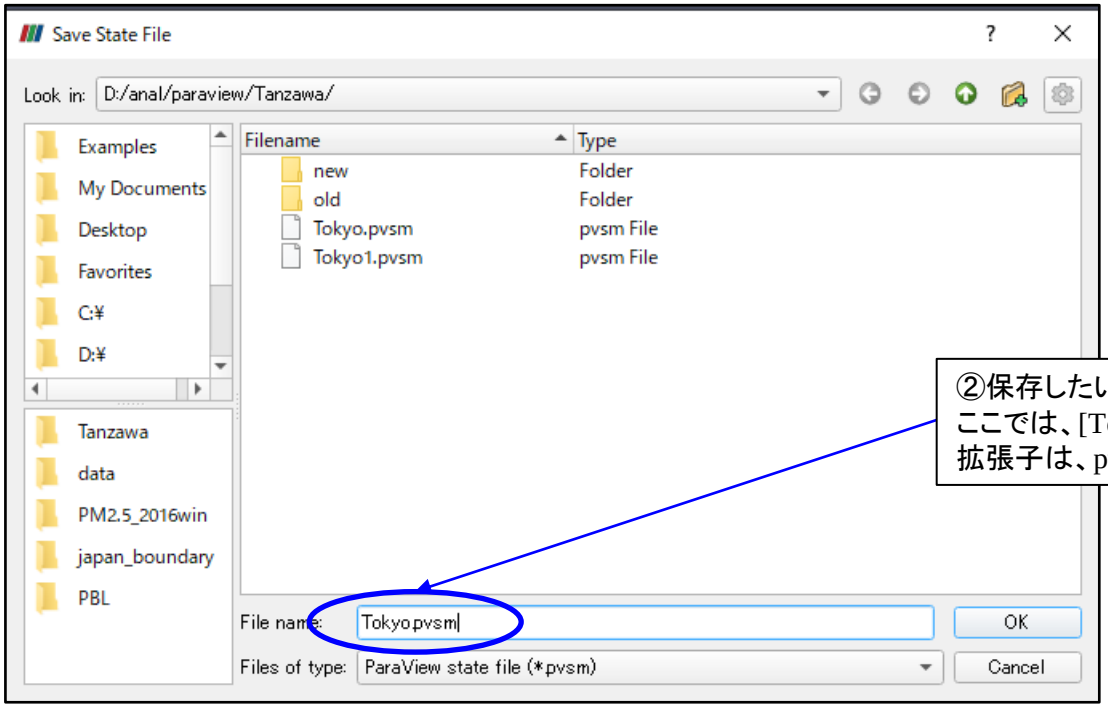


ParaViewによる作図(現在の状態を保存する)



[File]-[Load State…]で保存した状態を読み込み

①[File]-[Save State…]を選択する



②保存したいファイル名を入力する
ここでは、[Tokyo]と入力する
拡張子は、pvsmとなる

ParaViewによる作図(入力データ:テキストファイルのフォーマット)

〈標高データ〉

```
TITLE     = "Terrain"
VARIABLES = "X(M)" "Y(M)" "Z(M)" "Elev(M)"
ZONE T="Terrain" I=87, J=87, K=1, F=POINT
(1行改行)
    1,    1,      0.00,      0.00,
    2,    1,      0.00,      0.00,
    3,    1,      0.00,      0.00,
    4,    1,      0.00,      0.00,
    …
   85,   87,      0.00,      0.00,
   86,   87,      0.00,      0.00,
   87,   87,      0.00,      0.00,
```

タイトル
変数の名前
格子数
1行改行
x, y, z, Elevの値(87x87行)
(z = Elevとする)

〈濃度データ:ここでは、1時間毎に作成している〉

```
TITLE     = "O3"
 VARIABLES = "X(M)" "Y(M)" "Z(M)" "Ozone(ppb)_O3"
 ZONE T="O3_z" I=87, J=87, K=20, F=POINT
(1行改行)
    1,    1,    72.7,    24.7,
    2,    1,    72.7,    24.6,
    3,    1,    72.7,    24.6,
    4,    1,    72.7,    24.6,
    …
   85,   87, 11345.6,    59.3,
   86,   87, 11345.6,    58.8,
   87,   87, 11345.6,    58.4,
```

タイトル
変数の名前
格子数
1行改行
x, y, z, O_3の値(87x87x20行)

[Open Data With…]で
[Tecplot Reader]を選択する

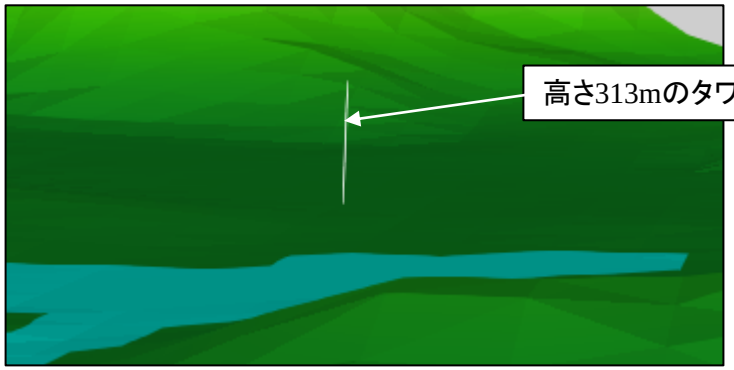
ParaViewによる作図(タワーを建てる)

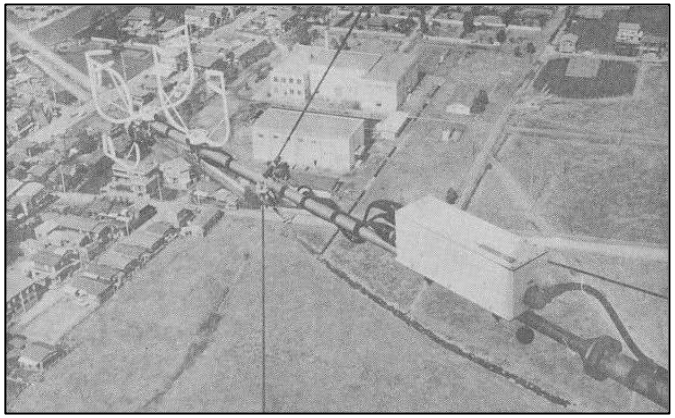
タワーを建てると、①位置が分かる、②3D濃度分布の高さが分かる
以下のようにKawaguch313m_23_34.datファイルを作り、読み込む。濃度の描画と同じ操作(コンター)をする。

Kawaguch313m_23_34.dat

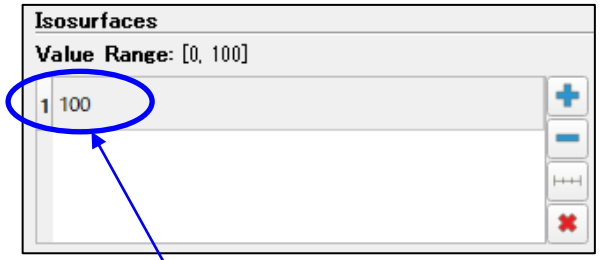
```
TITLE     = "Kawaguchi"
VARIABLES = "X(M)" "Y(M)" "Z(M)" "Point"
ZONE T="Terrain" I=21, J=21, K=1, F=POINT

  23,   34,      0.00,      100.0,
  23,   34,     50.00,      100.0,
  23,   34,    100.00,      100.0,
  23,   34,    150.00,      100.0,
  23,   34,    200.00,      100.0,
  23,   34,    250.00,      100.0,
  23,   34,    300.00,      100.0,
  23,   34,    313.00,      100.0,
```





埼玉県川口市内のNHKの放送塔(公害資源研究所)
高さ:313m,180m,45m,20m



データを100にしたので、ここでも100と指定する

5. 質疑応答

IIAE定期セミナー
ご参加ありがとうございました

ushi

広告

Webセミナー「CMAQ の使い方」

＜目標＞
化学輸送モデル（CMAQv5.2.1）で濃度計算ができるようになろう！　というのがこのセミナーの目標です

＜想定している参加者＞
モデルビギナーの方
　その後、ご自分の好きなテーマ（高濃度解析、越境大気汚染、化学反応、境界層内の挙動、PMの沈着など）を理論（論文や教科書）やモデルのソースコードを見て、さらに研究を進めてください。（モデル研究）
　測定を行っている方も、濃度計算ができれば、測定点の配置や時間帯などの測定準備や解析に活用できると思います。（測定計画）

組織に依存せず独立して研究をするために、フリーソフトを使おう！

第１回　CMAQのコンパイル
第２回　モデル領域の設定
第３回　CMAQの実行
第４回　CMAQのnesting計算とWRFのコンパイル・実行　（各回約2時間）

費用　　1,000円/回 （参加費、教材資料pdf版を含む）
参加方法　ZoomによるWebinar（顔出しなし）

主催　一般財団法人　大気環境総合センター（IIAE）　https://iiae.or.jp/ 「お問い合わせ」
　　〒112-0004　東京都文京区後楽1丁目2-8 後楽1丁目ビル　TEL：03-6801-6082 / FAX：03-6801-6083

広告

Webセミナー「CMAQ の使い方」の内容

第1回　CMAQのコンパイル
- CMAQのダウンロード
- CMAQのファイル構造
- ライブラリの作成（netCDF, I/O API, OpenMP）(gfortran, PGI)
- bcon, icon, mcip, cctmのコンパイル
- bcon, iconの実行
- 作図ソフト（Verdi）の使い方
- Fortranについて
- 質疑応答

第2回　モデル領域の設定
- netCDFファイルの扱い
- 緯度経度とxy座標（Lambert）の関係（gfortran）
- モデル領域の設定（水平方向の格子配置）
- mcipの実行
- 作図ソフト（GMT）の使い方
- QGISによる都道府県の境界線(shape file)の作成
- 質疑応答

第3回　CMAQの実行
- 排出量データ（REAS）について
- 排出量データ（OCEAN）について
- 排出量データの編集(I/O API)
- cctm の実行
- PM2.5の計算（Combineのコンパイル/実行、gfortran）
- 作図ソフト（Panoply、IDV）の使い方
- 質疑応答

第4回　CMAQのnesting計算とWRFのコンパイル・実行
- mcipのコンパイル/実行
- bcon/iconのコンパイル/実行
- CMAQv5.3 のコンパイル/実行(benchmark case)
- WRFのコンパイル/実行
- FNL・SSTデータのダウンロード
- 質疑応答

CMAQv5.2.1 Operational Guidance Document
https://github.com/USEPA/CMAQ/blob/5.2.1/DOCS/User_Manual/README.md

令和 3 年 IIAE 大気環境総合センター定期セミナー

『大気化学輸送モデル（CTM）の解析事例』

主催：一般財団法人大気環境総合センター

本誌の無断転載を禁じます