領域化学輸送モデルによる大気中 PM_{2.5} シミュレーション*

Numerical Simulation of PM_{2.5} in the Atmosphere by Regional Chemical Transport Model

嶋 寺 光**
SHIMADERA Hikari

Abstract A chemical transport model (CTM) is a type of numerical model that represents atmospheric behavior of various trace substances. This article describes a regional CTM and its application to numerical simulations of particulate matter with a diameter of 2.5 μm or less (PM_{2.5}). A regional CTM is driven by meteorological fields produced by a meteorological model with emission data derived from various emission inventories and boundary concentrations calculated by a global CTM. Two sets of PM_{2.5} simulations are presented: one is an application of a regional CTM with a tracer method to an estimate of the contribution of long-range transport (LRT) from the Asian Continent to PM_{2.5} concentration in Japan, and the other is an application of an online-type regional CTM with meteorology-chemistry feedbacks to an evaluation of the impacts of the aerosol direct effect on simulated PM_{2.5} fields in East Asia.

Keywords: Aerosol particle, Particulate matter, Atmospheric transport, Meteorology-chemistry feedback, Air quality simulation

1. 緒 言

化学輸送モデルは、多種・多様な大気中微量物質の排出・輸送・反応・沈着に関わる諸物理・化学過程を考慮し、3次元空間において時々刻々と変化する各物質の挙動を表現するための数値モデルである。化学輸送モデルは、地球全体を対象とする全球化学輸送モデル[1-3]と、東アジア・日本などの任意の領域を対象とする領域化学輸送モデル[4-6]に大別される。一般的に、領域化学輸送モデルの方がより高い空間解像度での適用が可能である。本稿では、領域化学輸送モデルによる3次元大気質シミュレーションの概要と、微小粒子状物質 (PM_{2.5}) に関する解析への適用事例について述べる。

化学輸送モデルが計算対象とする大気圏は、温度の鉛直分布に基づいていくつかの層に区分される。地表 (気圧約 1000 hPa) から高度約 8 km (極域) ~16 km (赤道域) (気圧約 200 hPa) までは対流圏、対流圏上端から高度約 50 km (気圧

約 1 hPa) までは成層圏、成層圏上端から高度約 80 km (気圧約 0.01 hPa) までは中間圏、その上は熱圏と区分される。対流圏では、高度の上昇とともに約 6.5 K km⁻¹ の割合で温度が低下する。対流圏の主な熱源は太陽放射を吸収する地・海表面であり、そこに接する空気が暖められると、大気の鉛直混合が促進される。また、対流圏の中でも、地・海表面による摩擦や熱的影響を直接的に受ける表面から高度約 1~2 km までは大気境界層、それより上は自由大気と区分される。成層圏では、太陽放射に含まれる紫外線を吸収するオゾン層が熱源となり、高度とともに温度が上昇する。化学輸送モデルによる大気質シミュレーションでは、通常、対流圏全体と成層圏の一部を考慮する。

大気の主成分は窒素、酸素、アルゴン、二酸化炭素、水蒸気であるが、その中には 0.01~100 μm 程度の大きさの様々な液体または固体の粒子 (大気エアロゾル粒子) が浮遊している。PM_{2.5} は、大気汚染の観点から、粒径 2.5 μm 以下の大気エア

* 2018.7.31 受付

** 大阪大学大学院工学研究科 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

TEL: (06)6879-7668 FAX: (06)6879-7668 E-mail: shimadera@see.eng.osaka-u.ac.jp

ロゾル粒子を総称したものである。PM_{2.5} 濃度測定の際には、空気動力学径 2.5 μm の粒子を 50% 除去する分級装置を通過した粒子状物質 (PM) の質量が測定されている。PM_{2.5} には、元素状炭素 (EC)、有機粒子 (OA)、硫酸塩、硝酸塩、アンモニウム塩の主要 5 成分に加え、様々な水溶性イオン成分や重金属成分などが含まれ、成分ごとに発生源や濃度制御要因が大きく異なる。主要 5 成分については、EC は燃焼発生源から大気に直接排出される一次粒子であるが、その他の成分は多様な前駆物質の大気中での反応によって生成される二次粒子が主である。PM_{2.5} の動態解析には、それらの複雑な大気中挙動を表現できる化学輸送モデルが必要となる。

PM_{2.5} は、粒径が小さいため呼吸器系の奥深くまで侵入しやすく、呼吸・循環器系の非感染性疾患の原因となる。世界保健機構 (WHO) による推計[7]によると、世界人口の 91% が WHO による指針値 (質量濃度の年平均値が 10 $\mu\text{g m}^{-3}$) を超える濃度の PM_{2.5} に曝露されており、大気汚染は世界全体で年間 420 万人もの早期死亡の原因となっている。アジア、アフリカの中・低所得国では、特に健康被害が深刻であると推計されており、大気汚染対策は喫緊の課題である。化学輸送モデルは、任意の発生源からの大気汚染物質の排出量と大気中濃度の関係 (発生源寄与) を定量的に評価できるため、効果的な大気汚染対策を立案するために有用である。

2. 領域化学輸送モデル

2.1 概要

領域化学輸送モデルによる大気質シミュレーションの流れを Fig. 1 に示す。先述の通り、領域

化学輸送モデルは、任意の対象領域における大気中微量物質の挙動を表現するための数値モデルである。その主な入力データとして、気象データ、排出量データ、対象領域境界での濃度データが必要となる。

気象データの作成には、領域気象モデルを用いるのが一般的であり、NCAR (National Center for Atmospheric Research) が開発を主導する WRF (Weather Research and Forecasting model) [8] が広く用いられている。気象モデルは、気温・湿度、風向・風速、雲・降水、太陽放射・赤外放射などの気象要素の時々刻々の変化を計算するものであり、日々の天気予報にも用いられている。気象モデルの主な入力データは、地形・土地利用などの地理データと規則的な格子状に気象要素を配置した客観解析データである。客観解析データは、気象観測データを基に種々のデータ同化手法によって作成されるものであり、気象モデルの初期・境界条件として用いられる。

化学輸送モデルの中で、気象データを独立した入力データとして用いるものをオフライン型モデル[4,5]、気象と化学輸送を同時に計算することでそれらの相互作用を考慮できるものをオンライン型モデル[6,9]と呼ぶ。気象と化学輸送の相互作用の代表的なものとして、大気エアロゾル粒子の直接効果と間接効果がある。直接効果は、エアロゾル粒子が太陽放射を散乱・吸収することによって地球の放射収支を変化させるものである。間接効果は、エアロゾル粒子が雲核となり、生成される雲の特性に影響を与えるものである。これらの効果を考慮したオンライン型モデルでは、エアロゾル粒子の存在が大気中の熱輸送を変化させ、流れ場に影響を及ぼす。

Fig. 1 Procedure of air quality simulation by regional chemical transport model.

排出量データの作成には、発生源部門・時間・空間別に排出量を整備したデータセットである排出インベントリを組み合わせ用いる。排出インベントリには様々なものがあり、全球やアジア全域といった広域の人為起源排出[10-12]、日本域の詳細な人為起源排出[13,14]、船舶[15]、野焼き・森林火災などの屋外バイオマス燃焼[16,17]、火山[18]などを対象としたものが公開されている。排出インベントリに含まれる大気汚染物質は、硫酸化合物 (SO_x)、窒素化合物 (NO_x)、一酸化炭素 (CO)、アンモニア (NH₃)、揮発性有機化合物 (VOC)、PM などである。一般的に、VOC や PM は、化学組成別ではなく総量として提供されることが多いため、発生源毎の燃料種別などを基に組成分解した上で、化学輸送モデルの入力として用いる必要がある。また、植生起源 VOC のように排出量が気象条件に強く影響される場合は、気象モデルの出力データを利用する推計モデル[19]を用いることもある。

境界濃度データの作成には、全球化学輸送モデル[1-3]の出力データを利用することが多い。また、低空間解像度の広領域から高空間解像度の狭領域へとネスティングをかけて計算を行う場合には、広領域の出力データを狭領域の境界濃度データとして用いる。領域化学輸送モデルによる大気質シミュレーションの水平方向の空間解像度は、計算資源および入力データ解像度などの制約から、大陸スケールを対象とする場合には数十 km 四方程度、関東・近畿地方といったスケールを対象とする場合には数 km 四方程度に設定することが多い。

大気中には無数の微量化学物質が存在するが、その全てを明示的に表現することは非現実的である。そこで、化学輸送モデルでは、特性の類似した物質を集約する化学反応メカニズム[20-22]に基づいて、数十～数百の物質を同時に扱う。化学輸送モデルにおける、ある化学物質 i の大気中濃度 C_i の各計算格子における時間変化は次式で表される。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} = -\nabla \cdot J_i + R_i + E_i + S_i \quad (1)$$

ここで、右辺の第 1 項から第 4 項はそれぞれ化学種 i の輸送、反応、沈着、排出を表す。輸送項は、平均風による移流と乱流混合による拡散によって生じる水平・鉛直方向の物質輸送を表している。

対流圏内の大気は常に運動し乱れた状態であるが、とりわけ大気境界層内では乱流拡散の影響が大きい。反応項は、光化学反応をはじめとする気相均一反応、雲中の液相反応、粒子の生成・成長、異相間（主に粒子表面）の不均一反応などによる物質の生成・消滅を表している。反応速度は、反応に関わる物質の濃度、気温・湿度、紫外線量などに影響される。沈着項は、乾性沈着と湿性沈着による大気中からの除去を表している。乾性沈着は、ガスおよびエアロゾル粒子が地物に直接付着することで大気中から除去される現象である。湿性沈着は、降水現象に伴って物質が大気から地表面へと沈着する現象であり、雲粒の成長過程で物質が取り込まれる雲内洗浄と、雲底下で降水粒子に物質が取り込まれる雲底下洗浄に区別される。排出項は、自動車・工場等の人為起源や植生・火山等の自然起源からの大気中への物質の排出を表している。排出量の大部分は大気境界層内に与えられる。また、入力する排出量データに加えて、土壌性ダストの巻き上げや海塩粒子の発生などの自然起源排出、大規模点源からの煙の上昇軌跡などを化学輸送モデル内で計算する場合もある。

2.2 粒子過程

著者が主に使用している化学輸送モデルであり、EPA (United States Environmental Protection Agency) が開発を主導する CMAQ (Community Multiscale Air Quality modeling system) [4]における粒子過程の概要を Fig. 2 に示す。大気中には大きさ・形状・化学組成が様々なエアロゾル粒子が存在するが、そのひとつひとつを明示的に表現することは非現実的である。CMAQ では、エアロゾル粒子の粒径分布を Aitken モード、Accumulation モード、Coarse モードの 3 つの対数正規分布の重ねあわせ[23]で表現している。Aitken モードおよび Accumulation モードは、粒子個数濃度が粒径 0.01～0.1 μm および 0.1～1.0 μm の範囲で極大値を取り、概ね PM_{2.5} に相当する。Coarse モードはそれよりも大きい粒子を表現する。Aitken モードは個数濃度への寄与は大きいが粒径が小さいため、質量濃度に寄与するのは主に Accumulation モードと Coarse モードである。

エアロゾル粒子の生成・成長について、Aitken モードの粒子は、ディーゼル排気中の EC などの燃焼源からの一次排出や、ガス態の前駆物質からの核生成（新粒子生成）によって発生する。それ

Fig. 2 Schematic of aerosol processes in CMAQ.

らの粒子の凝集や、粒子へのガス態の前駆物質の凝縮による粒子の成長によって、Accumulationモードの粒子が増加する。その中で、硝酸アンモニウムをはじめとする無機の半揮発性成分のガス・粒子平衡[24]、半揮発性 VOC (SVOC) のガス・粒子平衡[25]、五酸化二窒素の粒子表面での加水分解をはじめとする不均一反応[26]などが考慮されている。また、Coarse モードの粒子の主な発生過程として、土壌性ダストの巻き上げ[27]や海塩粒子の発生[28]などが組み込まれている。

3. PM_{2.5} シミュレーションの事例

3.1 長距離輸送の影響評価

日本列島は、アジア大陸の風下に位置しており、大陸からの長距離輸送による広域大気汚染の影響を受けやすい。大陸から日本への長距離輸送は高低気圧や前線の動きと密接に関わっており、典型パターンとしては、寒冷前線後面での北西風によって帯状に輸送されるパターンや移動性高気圧の東進とともに輸送されるパターンがある[29]。また、太平洋高気圧による南風が支配的となるため大陸からの影響が比較的小さい夏季においても、東シナ海付近の高気圧に伴う西寄りの風や台風の旋回流による越境輸送パターンが確認されている[30]。

ここでは、Shimadera et al.[31]による、日本の PM_{2.5} 濃度に対する、国外からの長距離輸送の寄与の推計結果の一部を紹介する。発生源寄与推計には、オフライン型 CMAQ に実装された ISAM (Integrated Source Apportionment Method) [32]を用いた。ISAM は、対象発生源から大気中へ排出される物質にタグ情報を付与し、それを輸送・反応・沈着過程で追跡することで発生源寄与を推計するトレーサー法の一つである。本手法では、複数の発生源からの寄与の同時推計も可能である。計算期間は 2010 年 4 月～2011 年 3 月の 1 年間、計算領域は水平方向に東アジア領域 (格子数 76×76、格子解像度 64 km 四方) と日本領域 (格子数 92×104、格子解像度 16 km 四方)、鉛直方向に地表～上空約 16 km (層数 30、地表に接する第 1 層厚さ約 50 m) とした。入力データとして、気象データには気象モデル WRF、排出量データには各種排出インベントリ [10,13-16,18,19]、東アジア域の境界濃度データには全球化学輸送モデル MOZART-4 (Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4)[1]を用いた。

Fig. 3 に、一般環境大気測定局における平均 PM_{2.5} 濃度の観測値 (Obs.) と計算値 (Sim.)、国外からの長距離輸送の寄与推計値 (LRT) を地域別に示す。Fig. 4 に、日本域における平均 PM_{2.5} 濃度の計算値、国外からの長距離輸送の寄与推計値の空間分布を示す。PM_{2.5} 濃度は、計算で全体的に過小評価されているものの、西側から東側に

Fig. 3 Observed and simulated regional mean ground-level PM_{2.5} concentrations, and contribution of long-range transport (LRT) to the simulated PM_{2.5}.

Fig. 4 Spatial distributions of (a) simulated mean ground-level $PM_{2.5}$ concentration and (b) contribution of long-range transport to the simulated $PM_{2.5}$.

かけて濃度が減少するという空間変動の傾向は概ね再現された。この空間変動は、長距離輸送の寄与が大陸に近い西日本で大きいことによるものである。 $PM_{2.5}$ 濃度に対する長距離輸送の平均寄与率は、九州で 64%、中国・四国で 58%、近畿で 49%、中部で 52%、関東で 33%、東北・北海道で 49% となった。

東京、大阪などの大都市部では国内発生源の影響も強い。国外からの長距離輸送だけでなく、国内の各発生源の寄与を示すことで、大気汚染対策の優先順位の検討に有用な情報を提供できる。

3.2 エアロゾル直接効果の影響評価

大気汚染物質排出量が世界最大のアジア地域 [10] では、 $PM_{2.5}$ という言葉が日本で広く知られるきっかけにもなった 2013 年 1 月の中国における大気汚染 [33] をはじめ、深刻な大気汚染が顕在化している。したがって、高濃度で存在するエアロ

ゾル粒子が気象および化学輸送過程に大きく影響していると考えられる。しかし、アジア地域における大気質シミュレーションの多くはオフライン型モデルを用いたものであり、オンライン結合型モデルの適用効果は十分には示されていない。

ここでは、Sekiguchi et al. [34] による、東アジアにおける $PM_{2.5}$ シミュレーションに対するエアロゾル直接効果の影響評価について、その一部を紹介する。化学輸送モデルとして、気象モデル WRF と結合されたオンライン型 CMAQ [9] を用いた。WRF から CMAQ への単一方向のみの計算を行う 1-way と、CMAQ により得られたエアロゾル濃度場を WRF の放射計算にフィードバックする 2-way で計算を実施し、それらの結果を比較することでエアロゾル直接効果による影響を評価した。計算期間は 2014 年 1 月～3 月の 3 か月間、計算領域は水平方向に東アジア領域 (格子数 130×110 、格子解像度 45 km 四方)、鉛直方向に地表～上空約 16 km (層数 30、地表に接する第 1 層厚さ約 50 m) とした。入力データとして、排出量データには各種排出インベントリ [12-16, 18, 19]、境界濃度データには全球化学輸送モデル MOZART-4 を用いた。

Fig. 5 に、中国の 5 都市 (呼和浩特、武漢、北京、上海、哈爾濱) と日本の 5 都市 (福岡、大阪、名古屋、東京、仙台) における平均 $PM_{2.5}$ 濃度の、観測値と 1-way および 2-way での計算値を示す。Fig. 6 に、2-way における平均 $PM_{2.5}$ 濃度と、エアロゾル直接効果による平均 $PM_{2.5}$ 濃度変化率の空

Fig. 5 Observed and simulated mean ground-level $PM_{2.5}$ concentrations.

Fig. 6 Spatial distributions of (a) simulated mean ground-level PM_{2.5} concentration (2-way) and (b) the impact of the aerosol direct effect on the simulated PM_{2.5}.

間分布を示す。PM_{2.5} 濃度は、計算でやや過小あるいは過大評価されている都市はあるものの、空間変動の傾向は良好に再現された。中国では、エアロゾル直接効果を考慮した 2-way の方が、考慮しない 1-way よりも概ね PM_{2.5} 濃度が高くなり、その傾向は高濃度地域でより顕著となった。大気汚染物質の発生源が集中する中国中央～東部では、エアロゾル直接効果によって、PM_{2.5} 濃度のシミュレーション結果が 20% 程度上昇する地域も見られた。これらの地域では、高濃度のエアロゾル粒子による散乱によって地表面に到達する太陽放射が減少し、地表面温度が低下した。それに伴い、地上気温が低下し、地上大気が安定な状態となり、大気汚染物質が地表付近に滞留することで、より PM_{2.5} 濃度が上昇した。一方、日本においては、2-way で平均 PM_{2.5} 濃度が低下する場合も多かった。これは、風上の高濃度地域で PM_{2.5} とその前駆物質が滞留して沈着し、日本へと長距

離輸送される PM_{2.5} が減少したためである。

4. 結 言

本稿では、領域化学輸送モデルによる PM_{2.5} シミュレーションについて紹介した。化学輸送モデルは、オフライン型モデルでは PM_{2.5} の流れ場への影響を考慮せず、オンライン型モデルでもその影響を限定的に扱っているに過ぎない。混相流という観点からも、化学輸送モデルは発展途上である。現在も、世界中の研究者によって、大気汚染対策の検討への活用をはじめ、大気環境の改善に資する化学輸送モデルを確立するために、モデル間相互比較研究[35-37]などを通して、継続的に改良が重ねられている。

参考文献

- [1] Emmons, L.K., Walters, S., Hess, P.G., Lamarque, J.-F., Pfister, G.G., Fillmore, D., Granier, C., Guenther, A., Kinnison, D., Laepple, T., Orlando, J., Tie, X., Tyndall, G., Wiedinmyer, C., Baughcum, S. L., Kloster, S., Description and evaluation of the Model for Ozone and Related chemical Tracers, version 4 (MOZART-4), *Geosci. Model Dev.*, Vol. 3, 43-67 (2010).
- [2] Bey, I., Jacob, D.J., Yantosca, R.M., Logan, J.A., Field, B.D., Fiore, A.M., Li, Q., Liu, H.Y., Mickley, L.J. and Schultz, M.G., Global modeling of tropospheric chemistry with assimilated meteorology: Model description and evaluation, *J. Geophys. Res.*, Vol. 106(D19), pp. 23073-23095 (2001).
- [3] Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J. and Akimoto, H., CHASER: A global chemical model of the troposphere - 1. Model description, *J. Geophys. Res.*, Vol. 107(D17), 4339 (2002).
- [4] Byun, D. and Schere, K.L., Review of the governing equations, computational algorithms, and other components of the models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system., *Appl. Mech. Rev.*, Vol. 59, 51-77 (2006).
- [5] Ramboll Environment and Health, User's guide comprehensive air quality model with extensions version 6.50 (2018).
- [6] Grell, G.A., Peckham, S.E., Schmitz, R., McKeen, S.A., Frost, G., Skamarock, W.C. and Eder, B., Fully coupled "online" chemistry within the WRF model, *Atmos. Environ.*, Vol. 39, 6957-6975 (2005).
- [7] WHO, Ambient air pollution - a major threat to health and climate (2018) (<http://www.who.int/airpollution/ambient/en/>, July 29, 2018)
- [8] Skamarock, W.C. and Klemp, J.B., A time-split nonhydrostatic atmospheric model for weather

- research and forecasting applications, *J. Comput. Phys.*, Vol. 227, 3465-3485 (2008).
- [9] Wong, D.C., Pleim, J., Mathur, R., Binkowski, F., Otte, T., Gilliam, R., Pouliot, G., Xiu, A., Young, J.O. and Kang, D., WRF-CMAQ two-way coupled system with aerosol feedback: Software development and preliminary results, *Geosci. Model Dev.*, Vol. 5, 299-312 (2012).
  - [10] 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.*, Vol. 15, 11411-11432 (2015).
  - [11] Kurokawa, J., Ohara, T., Morikawa, T., Hanayama, S., Janssens-Maenhout, G., Fukui, T., Kawashima, K. and Akimoto, H., Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000-2008: Regional Emission inventory in ASia (REAS) version 2, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 13, 11019-11058 (2013).
  - [12] Zhang, Q., Streets, D.G., Carmichael, G.R., He, K.B., Huo, H., Kannari, A., Klimont, Z., Park, I.S., Reddy, S., Fu, J.S., Chen, D., Duan, L., Lei, Y., Wang, L.T. and Yao, Z.L., Asian emissions in 2006 for the NASA INTEX-B mission, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 9, 5131-5153 (2009).
  - [13] Fukui, T., Kokuryo, K., Baba, T. and Kannari, A., Updating EAGrid2000-Japan emissions inventory based on the recent emission trends, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, Vol. 49, 117-125 (2014).
  - [14] Japan Petroleum Energy Center, Technical report of the Japan Auto-Oil Program: Emission inventory of road transport in Japan (in Japanese), Rep. JPEC-2011AQ-02-06 (2012).
  - [15] Ocean Policy Research Foundation, Report for comprehensive study for environmental impact lead by the establishment of emission control area in Japan (in Japanese), Report ISBN978-4-88404-282-0 (2012).
  - [16] Wiedinmyer, C., Akagi, S.K., Yokelson, R.J., Emmons, L.K., Al-Saadi, J.A., Orlando, J.J. and Soja, A.J., The Fire INventory from NCAR (FINN): a high resolution global model to estimate the emissions from open burning, *Geosci. Model Dev.*, Vol. 4, 625-641 (2011).
  - [17] Giglio, L., Randerson, J.T. and Van Der Werf, G.R., Analysis of daily, monthly, and annual burned area using the fourth-generation global fire emissions database (GFED4), *J. Geophys. Res. Biogeosci.*, Vol. 118, 317-328 (2013).
  - [18] Diehl, T., Heil, A., Chin, M., Pan, X., Streets, D., Schultz, M. and Kinne, S., Anthropogenic, biomass burning, and volcanic emissions of black carbon, organic carbon, and SO₂ from 1980 to 2010 for hindcast model experiments, *Atmos. Chem. Phys. Discuss.*, Vol. 12, 24895-24954 (2012).
  - [19] Guenther, A., Karl, T., Harley, P., Wiedinmyer, C., Palmer, P.I. and Geron, C., Estimates of global terrestrial isoprene emissions using MEGAN (Model of Emissions of Gases and Aerosols from Nature), *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 6, 3181-3210 (2006).
  - [20] Carter, W.P.L., Development of the SAPRC-07 chemical mechanism, *Atmos. Environ.*, Vol. 44, 5324-5335 (2010).
  - [21] Whitten, G.Z., Heo, G., Kimura, Y., McDonald, E.B., Allen, D.T., Carter, W.P.L. and Yarwood, G., A new condensed toluene mechanism for Carbon Bond: CB05-TU, *Atmos. Environ.*, Vol. 44, 5346-5355 (2010).
  - [22] Stockwell, W.R., Middleton, P., Chang, J.S. and Tang, X., The second generation regional acid deposition model chemical mechanism for regional air quality modeling, *J. Geophys. Res.*, Vol. 95(D10), 16343-16367 (1990).
  - [23] Binkowski, F. S. and Shankar, U., The Regional Particulate Model, I: Model Description and Preliminary Results, *J. Geophys. Res.*, Vol. 100(D12), 26191-26209 (1995).
  - [24] Fountoukis, C. and Nenes, A., ISORROPIA II: a computationally efficient thermodynamic equilibrium model for K⁺-Ca²⁺-Mg²⁺-NH⁴⁺-Na⁺-SO₄²⁻-NO₃⁻-Cl⁻-H₂O aerosols, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 7, 4639-4659 (2007).
  - [25] Simon, H. and Bhavé, P.V., Simulating the degree of oxidation in atmospheric organic particles, *Environ. Sci. Technol.*, Vol. 46, 331-339 (2012).
  - [26] Sarwar, G., Simon, H., Bhavé, P. and Yarwood, G., Examining the impact of heterogeneous nitryl chloride production on air quality across the United States, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 12, 6455-6473 (2012).
  - [27] Foroutan, H., Young, J., Napelenok, S., Ran, L., Appel, K.W., Gilliam, R.C. and Pleim, J.E., Development and evaluation of a physics-based windblown dust emission scheme implemented in the CMAQ modeling system, *J. Adv. Model. Earth Sy.*, Vol. 9, 585-608 (2017).
  - [28] Kelly, J.T., Bhavé, P.V., Nolte, C.G., Shankar, U. and Foley, K.M., Simulating emission and chemical evolution of coarse sea-salt particles in the Community Multiscale Air Quality (CMAQ) model, *Geosci. Model Dev.*, Vol. 3, 257-273 (2010).
  - [29] Kaneyasu, N., Takami, A., Sato, K., Hatakeyama, S., Hayashi, M., Hara, K., Kawamoto, K. and Yamamoto, S., Year-round Behavior of PM_{2.5} in a Remote Island and Urban Sites in the Northern Kyushu Area, Japan, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*

- Vol. 46, 111-118 (2011).
- [30] Shimadera, H., Hayami, H., Morino, Y., Ohara, T., Chatani, S., Hasegawa, S. and Kaneyasu, N., Analysis of summertime atmospheric transport of fine particulate matter in Northeast Asia, *Asia-Pacific J. Atmos. Sci.*, Vol. 49, pp. 347-360 (2013).
  - [31] Shimadera, H., Matsuo, T. and Kondo, A., Estimation of Ship Emissions Contribution to Air Pollution in Japan by Using Air Quality Model, *Marine Engineering*, Vol. 2, 177-182 (2018)
  - [32] Kwok, R.H.F., Napelenok, S.L. and Baker, K.R., Implementation and evaluation of PM_{2.5} source contribution analysis in a photochemical model, *Atmos. Environ.*, Vol. 80, 398-407 (2013).
  - [33] Shimadera, H., Hayami, H., Ohara, T., Morino, Y., Takami, A. and Irei, S., Numerical simulation of extreme air pollution by fine particulate matter in China in winter 2013, *Asian J. Atmos. Environ.*, Vol. 8, 25-34 (2013).
  - [34] Sekiguchi, A., Shimadera, H. and Kondo, A., Impact of aerosol direct effect on wintertime PM_{2.5} simulated by an online coupled meteorology-air quality model over East Asia, *Aerosol Air Qual. Res.*, Vol. 18, 1068-1079 (2018).
  - [35] Galmarini, S., Koffi, B., Solazzo, E., Keating, T., Hogrefe, C., Schulz, M., Benedictow, A., Griesfeller, J. J., Janssens-Maenhout, G., Carmichael, G., Fu, J., and Dentener, F., Technical note: Coordination and harmonization of the multi-scale, multi-model activities HTAP2, AQMEII3, and MICS-Asia3: simulations, emission inventories, boundary conditions, and model output formats, *Atmos. Chem. Phys.*, Vol. 17, 1543-1555 (2017).
  - [36] Shimadera, H., Hayami, H., Chatani, S., Morikawa, T., Morino, Y., Mori, Y., Yamaji, K., Nakatsuka, S. and Ohara, T., Urban air quality model inter-comparison study (UMICS) for improvement of PM_{2.5} simulation in greater Tokyo Area of Japan, *Asian J. Atmos. Environ.*, Vol. 12, 139-152 (2018).
  - [37] Chatani, S., Yamaji, K., Sakurai, T., Itahashi, S., Shimadera, H., Kitayama, K. and Hayami, H., Overview of model inter-comparison in Japan's study for reference air quality modeling (J-STREAM), *Atmosphere*, Vol. 9, 19 (2018).
-