

酸性霧生成過程の数値シミュレーション A numerical simulation of acid fog by using MM5-CMAQ

嶋寺 光, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, shimadera@ea.see.eng.osaka-u.ac.jp
近藤 明, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kondo@see.eng.osaka-u.ac.jp
加賀 昭和, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kaga@see.eng.osaka-u.ac.jp
シュレスタ クンダン ラル, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, kundan@ea.see.eng.osaka-u.ac.jp
井上 義雄, 阪大院工, 〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1, inoue@see.eng.osaka-u.ac.jp
Hikari Shimadera, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Akira Kondo, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Akikazu Kaga, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Kundan Lal Shrestha, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871
Yoshio Inoue, Graduate School of Engineering, Osaka University, Yamadaoka 2-1, Suita, Osaka, 565-0871

A numerical simulation of acid fog was conducted using the Fifth-generation PSU/NCAR Mesoscale Model and the EPA models-3 Community Multiscale Air Quality modeling system. The simulation was performed for March 2005 with four computational domains from D1 covering the East Asian region to D4 covering the Kinki region. In the simulation, while concentrations of SO₂ gas, SO₄ aerosol and SO₄ ion in rain water were well reproduced, concentration of HNO₃ gas was overestimated, which lead to overestimations of concentrations of NO₃ aerosol and NO₃ ion in rain water. The results of simulation indicated that the dry deposition velocity of HNO₃ gas should be improved. Also, the simulation underestimated ion concentrations in fog water. However, given the overestimation of liquid water content of fog in the simulation, it is showed that the process of removal of pollutant by fog water from the atmosphere was generally reproduced.

1. はじめに

酸性沈着問題を扱う場合, 通常はガス状・粒子状物質の乾性沈着や降雨・降雪に伴う湿性沈着のみが考慮されることが多い。しかし, 霧の森林植生等への付着, すなわち霧水沈着によって生じる酸性物質の沈着も地域によっては非常に重要となる。霧は地表付近で発生し, 粒径が雨に比べ小さいため単位体積当たりの表面積が大きく滞留時間が長い。したがって汚染物質を取り込みやすく, 長時間植生と接触するため, 生態系に対する影響が大きいと考えられる。霧水の化学組成は, 国内ではこれまでに六甲山⁽¹⁾, 丹沢大山⁽²⁾などで測定されており, 霧水中の酸性物質濃度は雨水中の数倍から数十倍にもなることが示されている。さらに, 六甲山の森林では, 降雨量に匹敵する量の霧水沈着がもたらされているとの報告⁽³⁾もある。以上の理由から, 霧が頻繁に発生する山地の森林などでは, 酸性沈着による生態系への影響を評価する上で酸性霧を無視することはできない。しかし, 酸性霧の観測地点は非常に限られており, 近畿圏において長期間定常的に酸性霧の観測が行われてきたのは六甲山における観測地点のみである。したがって, 広域を対象として酸性霧の影響を評価するためには, 数値シミュレーションの活用が不可欠である。

霧を対象とした数値シミュレーションには, 1960年代以降, 霧のメカニズムを解析するために1次元モデルが適用されてきた⁽⁴⁾⁽⁵⁾。そして1990年代以降, 計算機の発展に伴い, メソスケールモデルを用いた広域の霧シミュレーションが行われるようになってきた⁽⁶⁾⁽⁸⁾。それらの広域を対象とした霧シミュレーションは, 特定の霧イベントを対象としており, モデルによる長期間の霧の再現性能は明らかではなかった。そのため, 著者らは米国国立大気研究センター(NCAR)とペンシルバニア州立大学(PSU)により開発された the Fifth-generation PSU/NCAR Mesoscale Model (MM5)⁽⁹⁾を用いて2005年1~3月および7月を対象としたシミュレーションを行い, MM5によって霧の発生が概ね再現できることを示した⁽¹⁰⁾。そして, 本研究ではMM5と, 米国環境保護庁

(EPA)により開発された the EPA models-3 Community Multiscale Air Quality modeling system (CMAQ)⁽¹¹⁾を用いて霧による酸性物質の取り込みをシミュレーションし, 数値モデルによる酸性霧の再現性能を評価した。

2. 計算手法

2.1 数値計算モデルの概要

本研究で使用した数値モデルは PSU と NCAR により開発されたメソスケール気象モデル MM5 の version 3.7 と, EPA により開発された大気質モデル CMAQ の version 4.4 である。

MM5 は非静力学平衡・圧縮性のメソスケールモデルであり, 主な特徴としては, ネスティング手法による計算領域の高解像度化が可能である, 4次元データ同化(FDDA)が可能である, 雲微物理過程, 大気境界層(PBL)過程, 放射過程などの各物理過程において複数のオプションを有しているなどの点が挙げられる。また, MM5 は鉛直座標系に, 式(1)で表される気圧準拠の座標系を採用している。

$$\sigma = \frac{p - p_t}{p_s - p_t} \quad (1)$$

ここで, p は圧力, 添え字 s, t はそれぞれ計算領域における地表面, 最上面を表している。

CMAQ は, 気象モデルとして MM5, あるいはその次世代モデルである the Weather Research and Forecasting model (WRF)⁽¹²⁾の使用を前提として設計されており, これらのモデルから得られた気象場, さらに発生源などその他の入力条件をもとに様々な大気汚染物質濃度の分布, 湿性・乾性沈着量を計算し出力を行う。さらに本研究では, CMAQ の液相反応系において計算される霧水中の物質濃度も出力されるようにモデルに変更を加えた。

2.2 計算条件

Fig. 1 に本研究における計算領域を示す。計算領域は, ランベ

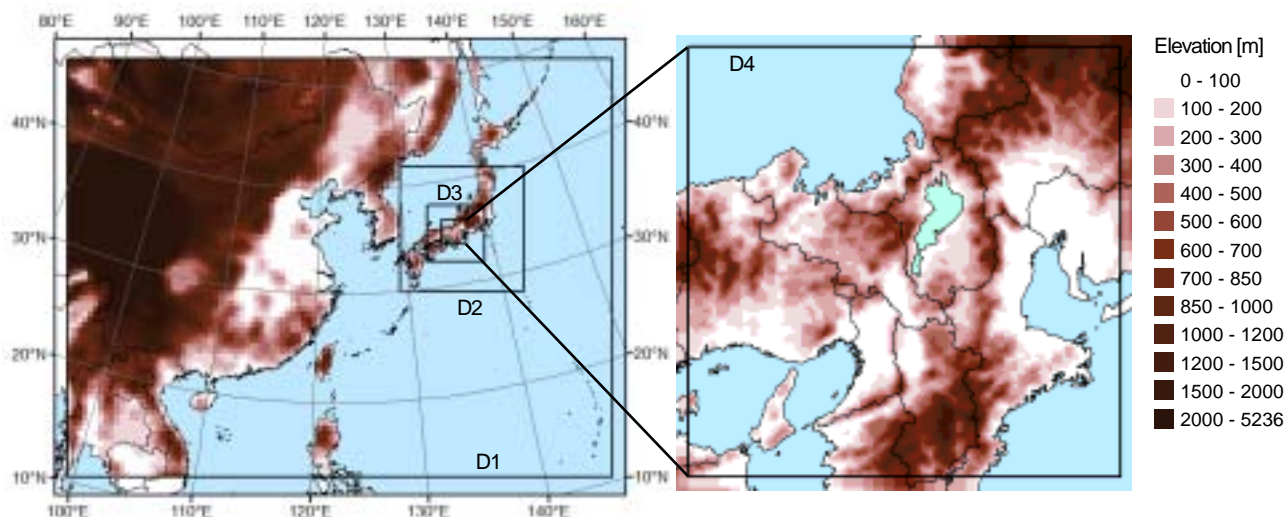


Fig. 1 Modeling domains with 54-km (D1), 18-km (D2), 6-km (D3) and 2-km (D4) horizontal resolution

ルト正角円錐図法で表される 32.50° N , 122.50° E を中心とする東アジア域である。ネスティング手法を用いて、格子数 105×81 の 54km 格子領域 (D1), 格子数 72×72 の 18km 格子領域 (D2), 格子数 99×99 の 6km 格子領域 (D3), 格子数 126×126 の 2km 格子領域 (D4) の 4 領域で計算を行った。鉛直方向には、地表面から上空 100hPa までを 24 層に分割し、地表面に接する層の中心高さは ≈ 0.998 (地上約 15 m) とした。計算期間は、2005 年 2 月 24 日 ~ 3 月 31 日とし 2 月 24 ~ 28 日を大陸からの長距離輸送を考慮するための助走計算期間、3 月を計算結果の評価期間とした。

MM5 の初期・境界条件は、D1 には水平解像度 $1^{\circ} \times 1^{\circ}$ の全球データである米国環境予測センターの最終解析データ (NCEP-FNL) ⁽¹²⁾ を用いた。D2 には日本域で利用できる高解像度 (地上データは $0.1^{\circ} \times 0.125^{\circ}$, 各圧力平面のデータは $0.2^{\circ} \times 0.25^{\circ}$) の気象庁メソ数値予報モデルの客観解析値 (GPV-MSM) ⁽¹³⁾ を用い、GPV-MSM に含まれていない地表・海面データのみ NCEP-FNL を用いた。D3 および D4 は、それぞれ D2 および D3 の計算結果から境界条件を作成した。

MM5 の各物理過程には、積雲過程に Grell ⁽¹⁴⁾, 雲微物理過程には Simple ice ⁽¹⁵⁾, PBL 過程に Medium range forecast PBL ⁽¹⁶⁾, 放射過程に Cloud-radiation ⁽¹⁵⁾, 地表面過程に Noah land-surface model ⁽¹⁷⁾ を使用した。

CMAQ の初期・境界条件は、D1 には CMAQ の初期設定値を用いた。D2, D3 および D4 は、それぞれ D1, D2 および D3 の計算結果から境界条件を作成した。

CMAQ の排出量データは、日本域には EAGrid2000-JAPAN ⁽¹⁸⁾ を用いた。EAGrid2000-JAPAN は、基準年の 2000 年について月別および平日・休日別に 24 時間変動を考慮し、日本全国を対象に水平解像度約 $1\text{km} \times 1\text{km}$ で整備されたデータである。日本以外のアジア各国の排出量データについては、 SO_2 , NO_x , CO , 人為起源 VOC, PM_{10} , $\text{PM}_{2.5}$ 排出量には、アジア域について解像度 $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$ で整備された 2006 Asia Emissions for INTEX-B ⁽¹⁹⁾ を使用した。 NH_3 および植生起源 VOC 排出量には、東アジア域について解像度 $0.5^{\circ} \times 0.5^{\circ}$ で整備された EAGrid2000 ⁽²⁰⁾ を使用した。

また CMAQ の化学反応系には、気相反応系に Statewide Air Pollution Research Center version 99 ⁽²¹⁾, エアロゾル反応系に AERO3, 液相反応系に Regional Acid Deposition Model ⁽²²⁾ を用いた。

3. 計算結果と考察

3.1 気象モデル MM5 の計算結果

MM5 の計算結果は、六甲山尾根部の標高 800m 地点 ($34^{\circ}45'24''$

N , $135^{\circ}13'45'' \text{ E}$) における霧観測地点および D4 内の気象官署 19 地点 (福井, 敦賀, 岐阜, 名古屋, 上野, 津, 伊良湖, 尾鷲, 四日市, 豊岡, 舞鶴, 京都, 彦根, 姫路, 神戸, 大阪, 洲本, 和歌山, 奈良) における観測結果と比較を行った。

3.1.1 時系列変化比較

Fig. 2 に六甲山の霧観測地点から約 10km 南に位置する神戸海洋気象台における 2005 年 3 月の気温および比湿の時系列変化を示す。

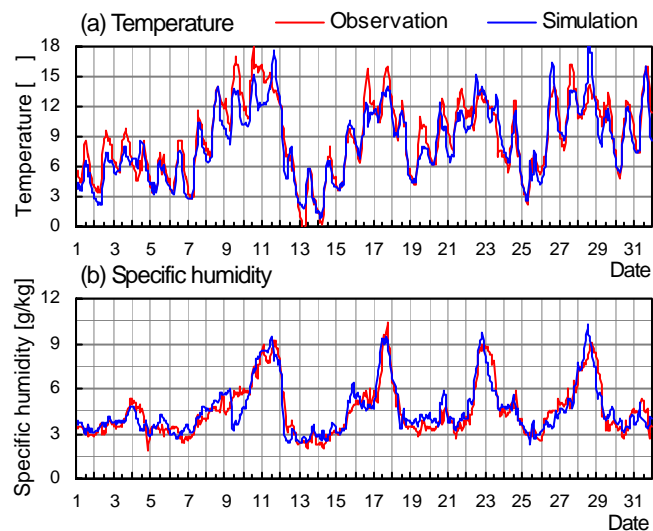


Fig. 2 Time series of observed and simulated hourly temperature and specific humidity at Kobe Marine Observatory in March 2005

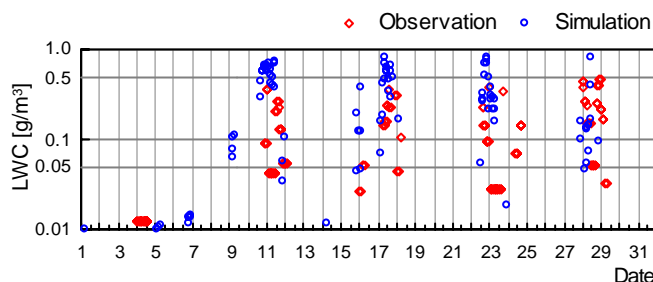


Fig. 3 Time series of observed and simulated hourly LWC at Mt. Rokko fog sampling site in March 2005

気温については、全体的にやや計算値の方が低くなっているが、計算で気温の変動を非常によく再現できている。比湿についても、10~11日、15~17日、22~23日、27~28日における増加など、変動の傾向が計算でよく再現できている。Fig. 3に2005年3月の六甲山霧観測地点における霧水量の時系列変化を示す。霧の発生期間は、Fig. 2(b)で比湿が高くなっている期間とほぼ一致しており、計算で霧の発生を概ね再現できている。月間の霧発生頻度は、時間割合で観測値 15.0%、計算値 11.0%となった。霧水量については、計算で過大評価となっている場合が多く、月間での霧発生時平均霧水量は、観測値 0.14g/m^3 、計算値 0.36g/m^3 となった。

3.1.2 統計指標による評価

気温、比湿および風速の計算精度を Emery et al.⁽²³⁾の手法により評価した。用いた統計指標は、以下に示す Mean Bias Error (MBE,

Table 1 Mean temperature, specific humidity and wind speed, and monthly rainfall at the meteorological observatories in D4 in March 2005

	Observation	D1	D2	D3	D4
Temperature [°C]	7.63	5.02	6.65	7.23	8.02
Specific humidity [g/kg]	4.34	4.36	4.50	4.50	4.54
Wind speed [m/s]	2.98	4.96	4.77	4.39	4.04
Rainfall [mm/month]	108	184	130	127	116

Table 2 Performance statistics for predictions by MM5 at the meteorological observatories in D4 in March 2005

	D1	D2	D3	D4	Benchmarks
Temperature					
R	0.73	0.85	0.87	0.89	
MBE [°C]	-2.61	-0.97	-0.40	0.39	<±0.5
MAE [°C]	3.19	1.97	1.76	1.63	<2
IA	0.78	0.90	0.93	0.94	>0.8
Specific humidity					
R	0.81	0.88	0.89	0.89	
MBE [g/kg]	0.02	0.16	0.16	0.20	<±1
MAE [g/kg]	0.74	0.62	0.60	0.62	<2
IA	0.89	0.94	0.94	0.94	>0.6
Wind speed					
R	0.29	0.45	0.54	0.54	
MBE [m/s]	1.97	1.78	1.40	1.06	<±0.5
RMSE [m/s]	2.70	2.47	2.13	1.95	<2
IA	0.51	0.60	0.67	0.69	>0.6
U-component of wind speed					
R	0.37	0.50	0.55	0.56	
MBE [m/s]	1.49	1.60	1.11	0.85	
RMSE [m/s]	3.46	3.40	2.97	2.77	
IA	0.58	0.64	0.70	0.72	
V-component of wind speed					
R	0.28	0.55	0.59	0.59	
MBE [m/s]	-0.02	0.16	0.16	0.20	
RMSE [m/s]	3.76	2.75	2.61	2.54	
IA	0.53	0.72	0.75	0.75	

式(2)), Mean Absolute Error (MAE, 式(3)), Root Mean Square Error (RMSE, 式(4)) および Index of Agreement (IA, 式(5)) である。

$$\text{MBE} = \overline{M} - \overline{O} \quad (2)$$

$$\text{MAE} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N |M_i - O_i| \quad (3)$$

$$\text{RMSE} = \left[\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2 \right]^{1/2} \quad (4)$$

$$\text{IA} = 1 - \frac{\sum_{i=1}^N (M_i - O_i)^2}{\sum_{i=1}^N (|M_i - \overline{O}| + |O_i - \overline{O}|)^2} \quad (5)$$

ここで、 \overline{M} および \overline{O} はそれぞれ計算値と観測値の平均値、 M_i および O_i はそれぞれ時間 i における計算値と観測値、 N はサンプル数である。

D4内の気象官署における2005年3月の気温、比湿、風速、降水量について、Table 1に観測値および計算値の月間値を、Table 2に観測値と計算値間の相関係数(R)、MBE、MAE、RMSE、IAを示す。平均風速については計算値が観測値に比べて大きくなっているが、平均気温、平均比湿、月間降水量については、D3やD4の計算値は観測値に近い値となっている。統計指標による評価については、概ね格子サイズが細くなるほどよい結果となっている。気温および比湿についてはD3およびD4の計算結果で、MBE、MAE、IAともベンチマークよりよい値を示している。また、Rについても0.9に近い値となっており、計算で気温と比湿を非常によく再現できていることがわかる。風速については、気温や比湿に比べると、計算による再現性は悪くなっている。しかし、D3およびD4でIAがベンチマークよりよい値を示しており、計算で概ね風速を再現できているといえる。

3.2 大気質モデルCMAQの計算結果

CMAQの計算結果は、六甲山霧観測地点、環境省による平成16年度酸性雨調査⁽²⁴⁾が行われた30地点、および平成16年度大阪府浮遊粒子状物質調査⁽²⁵⁾が行われた8地点における観測結果と比較を行った。

3.2.1 ガス濃度

SO₂、HNO₃およびNH₃ガスの2005年3月の月平均濃度について、Fig. 4に計算値の空間分布を、Fig. 5に計算値と観測値の比較を示す。まずSO₂の計算結果については、中国東部における濃度が日本周辺よりもはるかに高く、大陸から西日本地域へ流入していることが確認できる。計算値と観測値が概ね一致していることから、計算でSO₂の越境汚染を良好に再現できているといえる。HNO₃とNH₃の計算結果では陸域のNH₃濃度が高い地域でHNO₃濃度が低くなっており、これらの地域ではHNO₃とNH₃の反応によりNH₄NO₃エアロゾルが生成していると考えられる。計算値と観測値の比較では、HNO₃濃度は計算で明らかに過大、NH₃濃度は明らかに過小となっている。Fig. 4(b)からわかるように、計算においてHNO₃ガスは海域で濃度が高く、大陸沿岸から日本域への輸送されており、主にこのことがHNO₃濃度の過大評価の原因となっていると考えられる。そして、NH₃濃度が計算で過小となるのは、HNO₃濃度が過大であるために実際よりも多くのNH₃がHNO₃との反応により消費されるためであると考えられる。以上のことから、計算においてHNO₃の海面への乾性沈着速度が実際よりも小さくなっていることが示唆されており、HNO₃の乾性沈着速度を見直すことで、計算による再現性の向上が期待できる。

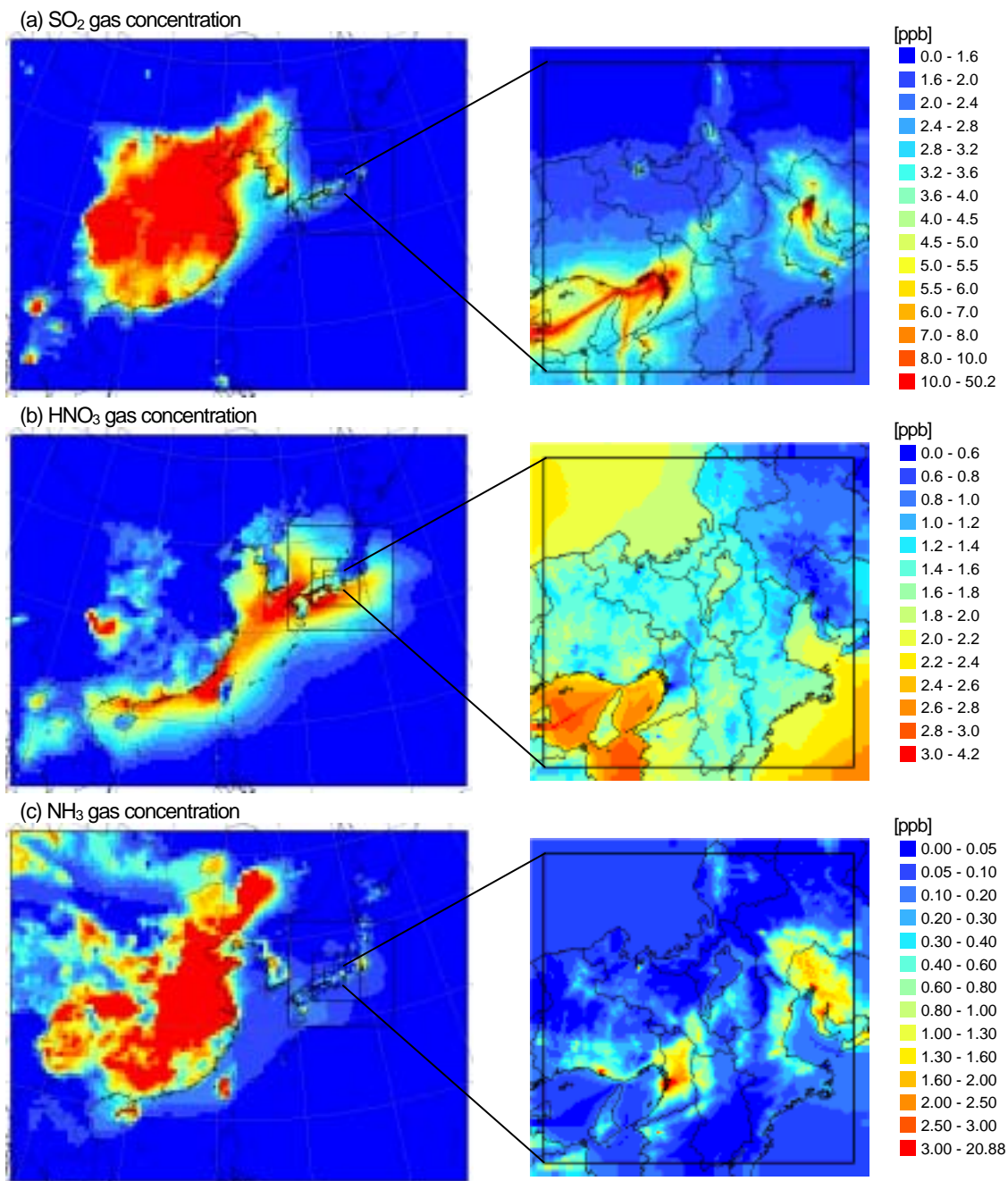


Fig. 4 Spatial distributions of simulated monthly mean SO₂, HNO₃ and NH₃ gas concentrations in March 2005

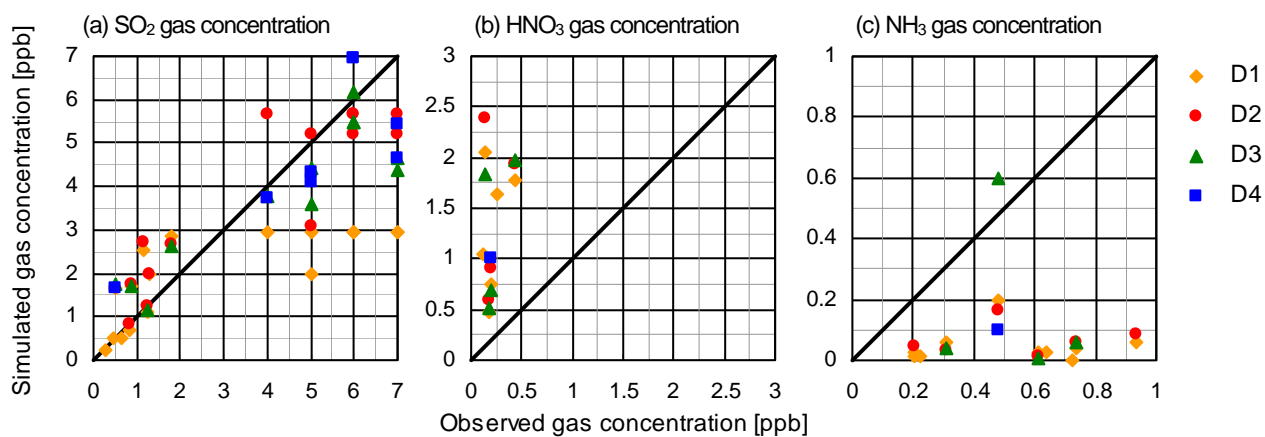


Fig. 5 Comparisons of observed and simulated monthly mean SO₂, HNO₃ and NH₃ gas concentrations in March 2005

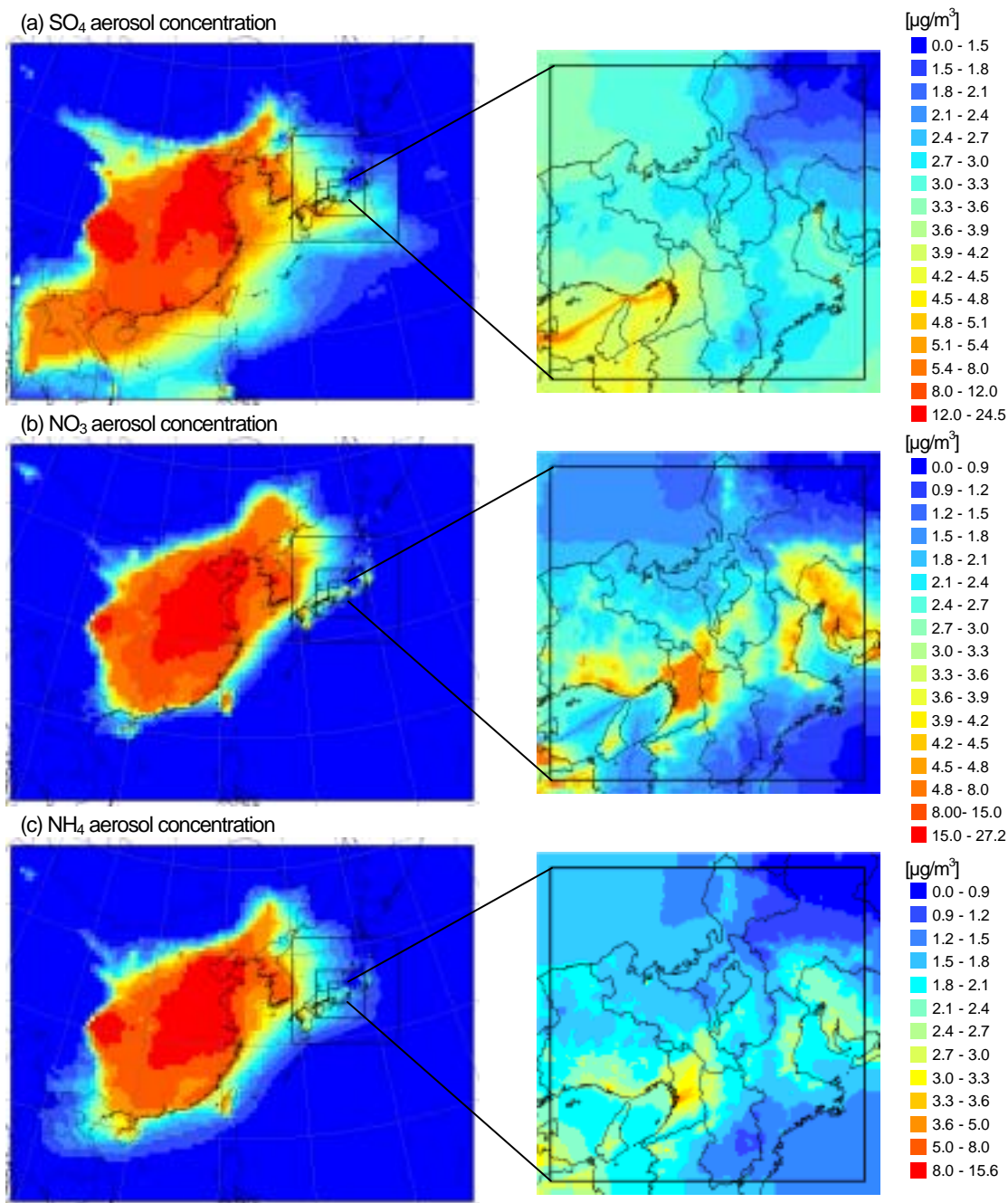


Fig. 6 Spatial distributions of simulated monthly mean SO_4 , NO_3 and NH_4 aerosol concentrations in March 2005

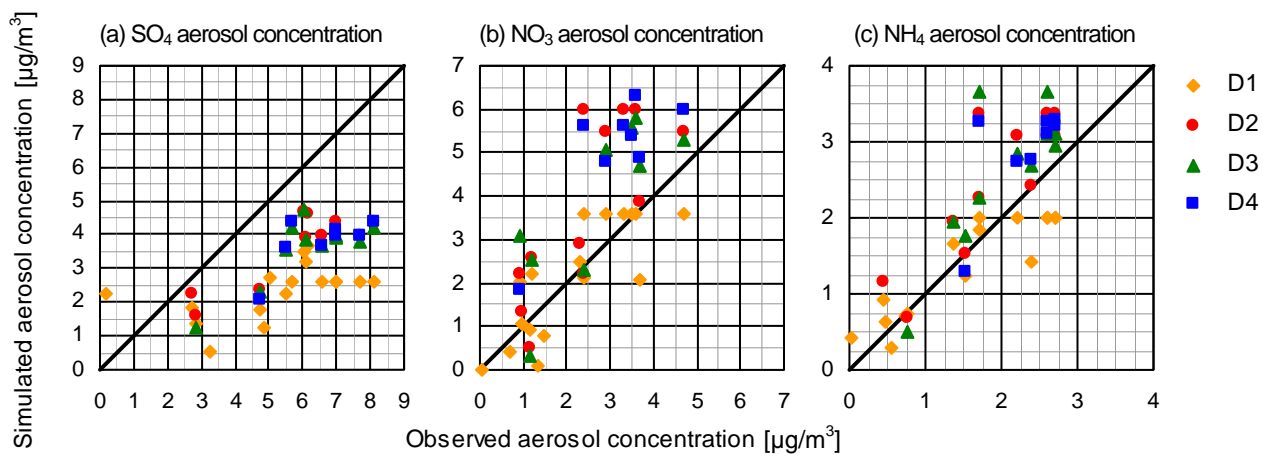


Fig. 7 Comparisons of observed and simulated monthly mean SO_4 , NO_3 and NH_4 aerosol concentrations in March 2005

3.2.2 エアロゾル濃度

SO₄, NO₃ および NH₄ エアロゾルの 2005 年 3 月の月平均濃度について, Fig. 6 に計算値の空間分布を, Fig. 7 に計算値と観測値の比較を示す. 濃度の空間分布では, SO₄, NO₃ および NH₄ エアロゾルのいずれにおいても大陸から日本域への流入が見られる. SO₄ と NO₃ の空間分布を比較すると, SO₄ の方がより遠方へと輸送されており, NO₃ は比較的近くの発生源による寄与が大きいことがわかる. NH₄ エアロゾルには (NH₄)₂SO₄ や NH₄NO₃ が主要な構成要素として含まれているため, NH₄ の空間分布は SO₄ と NO₃ の空間分布の中間的なものとなっている. 計算値と観測値の比較では, 計算で SO₄ がやや過小, NO₃ と NH₄ がやや過大となっているが, ほぼ観測値の半分から倍程度に収まっており, 各エアロゾル濃度を概ね再現できている. 計算による NO₃ エアロゾル濃度の過大評価は, 3.2.1 で述べた HNO₃ ガス濃度の過大評価によるものであると考えられる.

3.2.3 液中イオン濃度

Fig. 8 に SO₄, NO₃ および NH₄ イオンの 2005 年 3 月の月平均雨水中および霧水中濃度の D4 における計算値の空間分布を示す. 霧水中濃度については霧発生頻度が 1%以上の地域のみ示している. 雨水中濃度はある程度の広さでほぼ同等となっているが, 霧水中濃度は地域差が非常に大きい. 霧水中濃度と雨水中濃度を比較すると D4 の西側では霧水中濃度が雨水中に比べてはるかに高くなっている一方で, 北東側では霧水中濃度の方が低くなっている地域も多い. 霧水中濃度の分布は, 概ねエアロゾル濃度の分布と一致しており, 計算において地表付近で発生した霧によりエアロゾルが取り込まれていることがわかる. Fig. 6 からわかるように, 日本域のエアロゾル濃度は越境汚染の影響を強く受けている. そして, 霧水中のイオン濃度は地表付近のエアロゾル濃度の影響を強く受けるため, 霧水中濃度を計算する上でも大陸の発生源を考慮することは重要であるといえる.

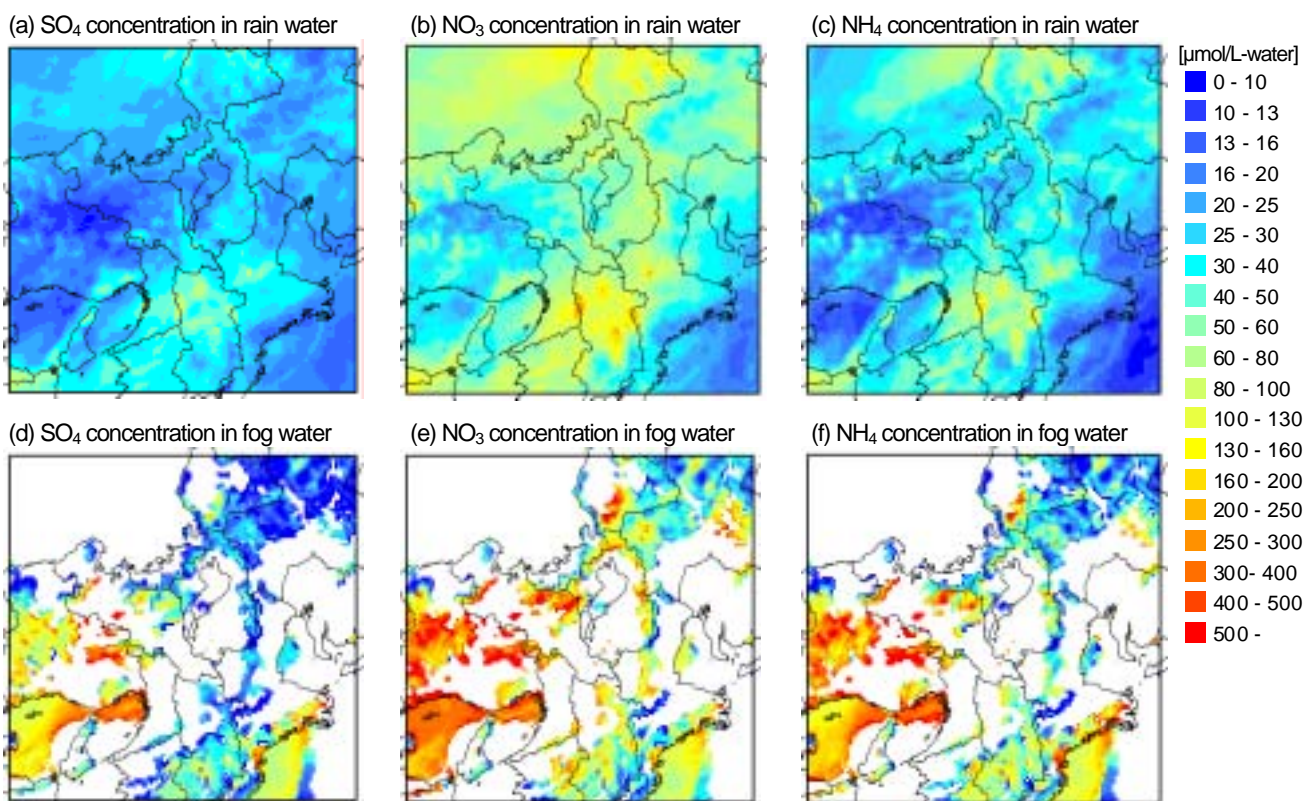


Fig. 8 Spatial distributions of simulated monthly mean SO₄, NO₃ and NH₄ concentrations in rain and fog water in March 2005

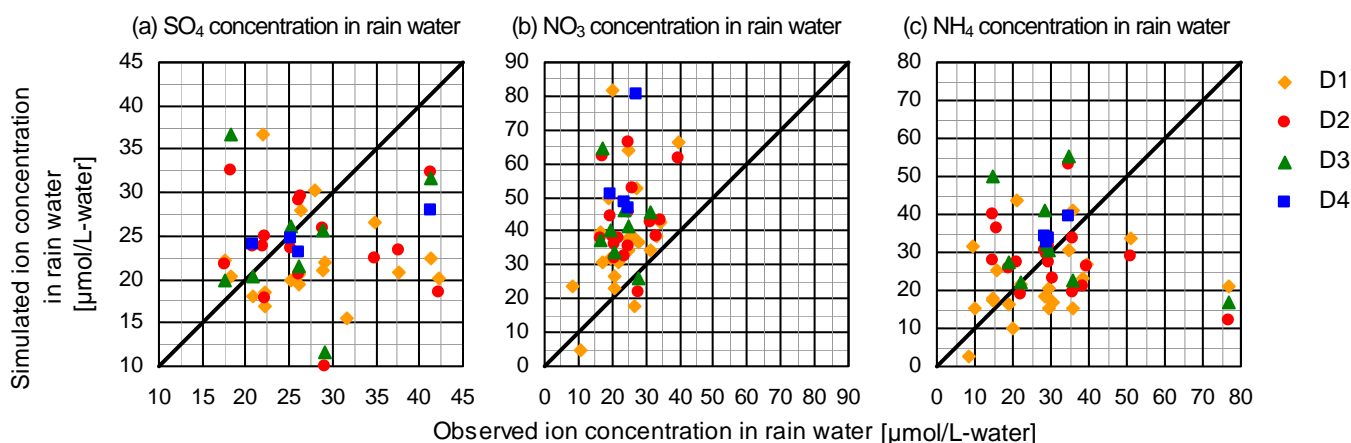


Fig. 9 Comparisons of observed and simulated monthly mean SO₄, NO₃ and NH₄ concentrations in rain water in March 2005

Fig. 9 に月平均雨水中イオン濃度の計算値と観測値の比較を示す。SO₄およびNH₄イオン濃度については、地点ごとにばらつきはあるものの概ね計算結果と観測結果で近い値に集まっている。一方、NO₃イオン濃度については、明らかに計算による過大評価の傾向が見られる。3.1.2 で述べたように月間降水量は計算で概ね再現されているため、雨水中NO₃イオン濃度の過大評価は、HNO₃ガスおよびNO₃エアロゾル濃度の過大評価によるものと考えられる。

Fig. 10 に 2005 年 3 月の六甲山霧観測地点における霧水中SO₄、NO₃およびNH₄イオン濃度の時系列変化を示す。SO₄、NO₃、NH₄いずれにおいても、観測値と計算値がほぼ同等となっている時間もあるが、全体としては計算値の方が低くなっている。月平均濃度では、SO₄は観測値 198μmol/L-water、計算値 55μmol/L-water、NO₃は観測値 264μmol/L-water、計算値 128μmol/L-water、NH₄は観測値 349μmol/L-water、計算値 219μmol/L-water となった。HNO₃ガス、NO₃エアロゾルおよび雨水中NO₃イオン濃度が計算で過大となっているにもかかわらず、霧水中NO₃イオン濃度は過小となっている。これは、3.1.1 で述べたように計算で霧水量が過大となっており、それによって霧水中のイオン濃度が薄まってしまったためと考えられ、その点を考慮すれば霧水中イオン濃度の計算結果は妥当であるといえる。

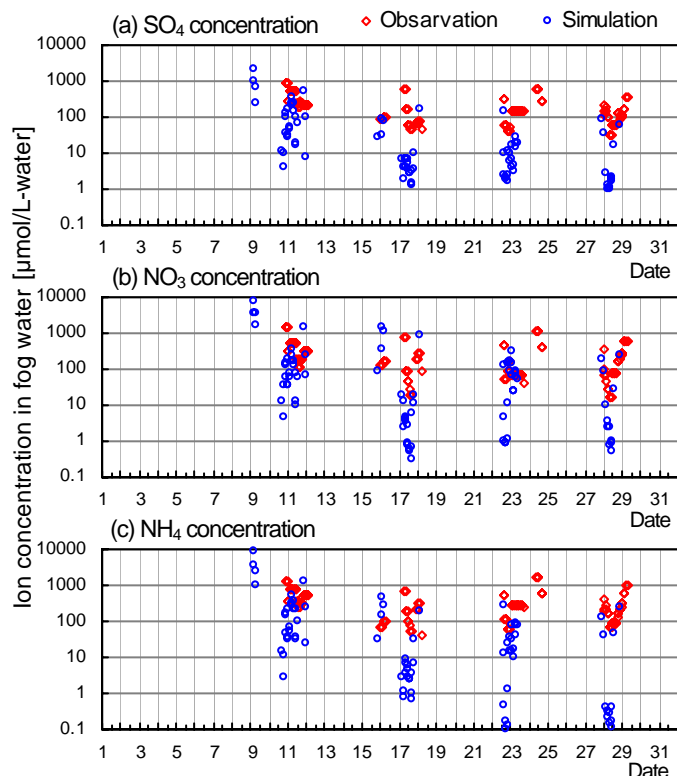


Fig. 10 Time series of observed and simulated hourly SO₄, NO₃ and NH₄ concentrations in fog water at Mt. Rokko fog sampling site in March 2005

4. 結論

気象モデル MM5 と大気質モデル CMAQ を用いて、六甲山における霧観測データが得られた 2005 年 3 月を対象に酸性霧のシミュレーションを行った。大気汚染物質の排出量データには、日本域は EAGrid2000-JAPAN、日本以外のアジア各国については、2006 Asia Emissions for INTEX-B'および EAGrid2000 を使用し、東アジア域を含む D1 から主に近畿地方を含む D4 までの 4 領域で計算を行った。それらの計算結果と、六甲山における霧観測データをはじめとする観測結果を比較し、計算によるガス濃度、エアロゾル

濃度、雨水中および霧水中イオン濃度の再現性能を評価した。

硫黄成分については、SO₂ ガス、SO₄ エアロゾル、雨水中 SO₄ イオンの月平均濃度の計算値は、ほぼ観測値の半分から倍程度に収まっており、越境汚染を含め、大気中の挙動をよく再現できていたといえる。窒素成分については、計算で大陸沿岸から日本域へ HNO₃ ガスが流入しており、それに伴い HNO₃ ガス濃度、NO₃ エアロゾル濃度、雨水中 NO₃ イオン濃度が過大評価となった。HNO₃ ガスの海面への乾性沈着速度を見直すことで、計算精度が向上する可能性がある。

霧水中のイオン濃度については、地表面付近のエアロゾル濃度の影響を強く受け、エアロゾルは越境汚染によって多量にもたらされるため、霧水中濃度を計算する上でも大陸の発生源を考慮することは重要であることが示唆された。六甲山における観測値との比較では、月平均霧水中イオン濃度の計算値は観測値の 1/4 ~ 2/3 程度となった。月平均霧水量の計算値が観測値の 2.5 倍程度であり、それによって計算における霧水中イオン濃度が薄くなっていることを考慮すれば、霧水中イオン濃度の計算結果は妥当であると考えられる。

本研究では、MM5 と CMAQ によって酸性霧の生成が概ね再現可能であることを示すことができた。今後は、モデルを修正し汚染物質濃度の再現性を向上させること、そして霧水沈着モデルを開発し MM5 および CMAQ に組み込むことで、霧による寄与を含めた酸性物質沈着量の評価を可能にすることを目指す。

謝辞

気象官署における観測データは、気象庁より提供を受けた。また、六甲山における霧の観測データは、兵庫県庁より提供を受けた。ここに深く感謝の意を表す。

参考文献

- (1) Aikawa, M., Hiraki, T., Tamaki, M., "Comparative field study on precipitation, throughfall, stemflow, fog water, and atmospheric aerosol and gases at urban and rural sites in Japan", *Sci Total Environ*, 366(1) (2006), pp. 275-285
- (2) Igawa, M., Tsutsumi, Y., Mori, T., Okochi, H., "Fogwater chemistry at a mountainside forest and the estimation of the air pollutant deposition via fog droplets based on the atmospheric quality at the mountain base", *Environ Sci Technol*, 32(11) (1998), pp. 1566-1572
- (3) Kobayashi, T., Nakagawa, Y., Tamaki, M., Hiraki, T., Aikawa, M., "Cloud water deposition to forest canopies of *Cryptomeria japonica* at Mt. Rokko, Kobe, Japan", *Water Air Soil Pollut*, 130 (2001), pp. 601-606
- (4) Zdunkowski, W.G and Nielsen, B.C., "A preliminary prediction analysis of radiation fog", *Pure Appl Geophys*, 75(1) (1969), pp. 278-299
- (5) Musson-Genon, L., "Numerical simulation of a fog event with a one-dimensional boundary layer model", *Mon Wea Rev*, 115(2) (1987), pp. 592-607
- (6) Ballard, S.P., Golding, B.W., Smith, R.N.B., "Mesoscale model experimental forecasts of the haar of northeast Scotland", *Mon Wea Rev*, 119 (1991), pp. 2107-2123
- (7) Pagowski, M., Gultepe, I., King, P., "Analysis and modeling of an extremely dense fog event in southern Ontario", *J Appl Meteor*, 43(1) (2004), pp. 3-16
- (8) Fu, G., Guo, J., Xie, S-P., Duan, Y., Zhang, M., "Analysis and high-resolution modeling of a dense sea fog event over the yellow sea", *Atmos Res*, 81(4) (2006), pp.293-303
- (9) Grell, G.A., Dudhia, J., Stauffer, D.R., "A description of the fifth

- generation Penn State/NCAR mesoscale model (MM5)", NCAR Technical Note NCAR/TN-398+STR, National Center for Atmospheric Research, Boulder, CO (1995)
- (10) Shimadera, H., Shrestha, K.L., Kondo, A., Kaga, A., Inoue, Y., "Fog simulation using a mesoscale model in and around the Yodo River Basin, Japan", *J Environ Sci*, 20 (2008), pp. 838-845
 - (11) Byun, D. and Ching, J., "Science algorithms of the EPA Models-3 Community Multiscale Air Quality (CMAQ) modeling system", EPA/600/R-99/030 (1999)
 - (12) CISL RESEARCH DATA ARCHIVE, ds083.2 Online Data File List, <http://dss.ucar.edu/datasets/ds083.2/data/>
 - (13) 気象業務支援センター, メソ数値予報モデル GPV (MSM), <http://www.jmbc.or.jp/hp/online/f-online0c.html>
 - (14) Grell, G.A., Kuo, Y-H., Pasch, R., "Prognostic evaluation of assumptions used by cumulus parameterizations", *Mon Wea Rev*, 121 (1993), pp. 764-787
 - (15) Dudhia, J., "Numerical study of convection observed during the winter monsoon experiment using a mesoscale two-dimensional model", *J Atmos Sci*, 46 (1989), pp. 3077-3107
 - (16) Hong, S-Y. and Pan, H-L., "Nonlocal boundary layer vertical diffusion in a medium-range forecast model", *Mon Wea Rev*, 124, (1996), pp. 2322-2339
 - (17) Chen, F., and Dudhia, J., "Coupling an advanced land-surface/hydrology model with the Penn State/NCAR MM5 modeling system. Part I: Model implementation and sensitivity.", *Mon Wea Rev*, 129 (2001), pp. 569-585
 - (18) Kannari, A., Tonooka, Y., Baba, T., Murano, K., "Development of multiple-species 1 km × 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan", *Atmos Environ*, 41(16) (2007), pp. 3428-3439
 - (19) Center for Global and Regional Environmental Research, Emission Data, http://www.cgrer.uiowa.edu/EMISSION_DATA_new/index_16.html
 - (20) 地球環境研究センター, 東アジア大気汚染物質排出量グリッドデータベース, http://www.cger.nies.go.jp/cger-j/db/enterprise/eagrid/eagrid_index_j.html
 - (21) Carter, W.P.L., "Documentation of the SAPRC-99 chemical mechanism for VOC reactivity assessment", Final Report to California Air Resources Board Contract No. 92-329, and (in part) 95-308 (2000)
 - (22) Chang, J.S., Brost, R.A., Isaksen, I.S.A., Madronich, S., Middleton, P., Stockwell, W.R., Walcek, C.J., "A three-dimensional Eulerian acid deposition model: Physical concepts and formulation", *Journal of Geophysical Research*, 92(D12) (1987), pp. 14681-14700
 - (23) Emery, C., Tai, E., Yarwood, G., "Enhanced meteorological modeling and performance evaluation for two Texas ozone episodes", Prepared for The Texas Natural Resource Conservation Commission 12118 Park 35 Circle Austin, Texas 78753 (2001)
 - (24) 平成 16 年度酸性雨調査結果について, <http://www.env.go.jp/earth/acidrain/monitoring/h16/index.html>
 - (25) 平成 16 年度大阪府浮遊粒子状物質調査結果報告書, http://www.epcc.pref.osaka.jp/center_etc/spm/h16/index.html