

地球表層における物質循環モデルの開発研究

課題責任者

宮崎 和幸

海洋研究開発機構地球環境観測研究開発センター/米国ジェット推進研究所

著者

関谷 高志^{*1}, 宮崎 和幸^{*2,*3}, 大越智 幸司^{*1}, 須藤 健悟^{*4,*2}, 滝川 雅之^{*5,*1},
Henk Eskes^{*6}, K. Folkert Boersma^{*6}

*1 海洋研究開発機構ビッグデータ活用予測プロジェクトチーム

*2 海洋研究開発機構地球環境観測研究開発センター

*3 米国ジェット推進研究所

*4 名古屋大学 大学院環境学研究科・地球環境科学専攻

*5 北極環境変動総合研究センター

*6 オランダ王立気象研究所

昨年度に引き続き、海洋機構で開発している LETKF (Local Ensemble Transform Kalman Filter: 局所アンサンブル変換カルマンフィルタ) を用いた、複数成分の化学種を対象とした大気環境データ同化システムの改良を行った。本課題は昨年度行った大都市域を解像可能となる 0.56° への高解像度化の検証として、地上観測およびオゾンゾンデ等との比較を実施した。地上観測との比較から、低解像度の場合に比較して NO_2 およびオゾンの推定誤差がそれぞれ 33-75%, 15-18% 程度改善されることを明らかにした。高解像度データ同化によって得られた全球およびメガシティスケールでの大気微量成分の高精度推定を用いることにより、大気環境およびその健康影響等の影響評価の精緻化に貢献しうるものと期待される。

キーワード: データ同化, 大気汚染, 化学輸送モデル

1. 研究の目的と意義

対流圏において二酸化窒素 (NO_2) は光化学反応を介して、光化学スモッグの主原因であるオゾン (O_3)、および $\text{PM}_{2.5}$ の主成分のひとつである硝酸塩エアロゾルを生成する。これらの物質は、人体に有害であると同時に、地球の放射収支に影響し気候変動に寄与すると考えられている。これらの大気汚染物質について、化学輸送モデルを用いた予報・予測が数多く行われてきており、その結果は社会においても活用されている。しかしながら、排出量データを含む、化学輸送モデルのシミュレーション結果の不確実性は依然として大きいのが現状である。そこで近年、LETKF や 4 次元変分法などの高度なデータ同化技術を用いて、観測情報を化学輸送モデルに取り込み、大気汚染物質の濃度分布や排出量を推定する取り組みが行われつつある (e. g., Inness et al., 2015 [1]; Miyazaki et al., 2015 [2])。海洋研究開発機構において開発されている LETKF を用いた大気環境データ同化システムは、複数の衛星測器からの多種類の大気汚染物質の観測を同時に同化しており、全球の対流圏光化学システムを最適化することで、濃度分布、排出量の高精度な推定を可能としている (Miyazaki et al., 2015 [2], 2017 [3])。その一方で、データ同化システムの水平解像度は約 2.8° (300 km) と気候影響評価を対象と

した全球化学輸送モデルの典型的な解像度を採用している。しかしながら、大気汚染物質、特に NO_2 は大都市近傍などにおいて非常に大きな空間分布変動を示すことが知られている。そこで、本課題では、昨年度に性能評価を行った高解像度バージョンの全球化学輸送モデル CHASER (Sudo et al., 2002 [4]; Watanabe et al., 2011 [5]; Sekiya et al., 2018 [6]) を用いた、水平 0.56° 解像度による大気環境データ同化システムの同化プロダクトについて、地表観測網およびオゾンゾンデ等を用いた検証を行った。

2. 実験設定

大気微量成分同化システムにおいて、予報モデルとして MIROC-AGCM をベースとした CHASER V4.0 を使用した。水平解像度としては T42 (およそ 2.8°), T106 (およそ 1.1°)、および T213 (およそ 0.56°) を使用した。鉛直層数は 32 層で、モデル上端はおよそ高度 40km である。化学種として 92 種類、化学反応として 262 種類考慮している。上部境界条件として、成層圏化学輸送モデル (Akiyoshi et al, 2009 [7], 2016 [8]) の結果を用いている。CHASER V4.0 はオンラインモデルであり、各タイムステップ (T42 では 5-20 分, T106 では 2-8 分, T106 では 1-4 分) での気象場を計算しているが、観測結果と

の比較にあたり、当該観測期間におけるERA-Interimの6時間毎の再解析気象場へのナッジングを行っている。ナッジングの特定数は、気温については5日、水平風について0.7日とした。また積雲対流スキームについては解像度ごとに最適化を実施した。地表放出量の先験情報として、人為起源エミッションとしてHTAP_v2.2 (Janssens-Maenhout et al., 2015 [9])を、森林火災エミッションとしてGFED version 4.1s (van der Werf et al., 2017[10])を、土壌エミッションとしてGEIA (Yienger and Levy, 1995 [11])をそれぞれ使用した。またエミッションの対象年としては2008年としている。NOxの地表エミッションについては日変化も考慮している (cf. Miyazaki et al., 2012 [12])。雷NOxエミッションについてはモデル内でタイムステップごとに計算される対流性雲の雲頂高度から推定している (cf. Price and Rind, 1992 [13])。

多成分データ同化手法については局所アンサンブルカルマンフィルタ (Hunt et al., 2007 [14])を元に行っている。同化に用いる観測データとして、OMI, GOME-2, SCIAMACHYによるNO2鉛直カラム量、TESによる対流圏オゾン分布、MLSによるオゾンおよびHNO3分布、MOPITT version 7 level2によるCO鉛直カラム量、OMIによるSO2接地境界層カラム量 (OMSO2 version 3)を使用した。また検証のための独立データとして、ヨーロッパ、アメリカ、東アジアなどでの地表観測ネットワークの観測データを利用した。対象とする観測サイトはヨーロッパ118点、アメリカ70点、東アジア11点、その他地域21点の合計220点である。また鉛直分布等の検証には、SHADOZによる北米9地点、その他地域2地点でのオゾン濃度観測データなどを利用した。

大気微量成分の同化計算において、水平解像度の影響などを評価するため、地球シミュレータを用いて以下の2つの実験を行った。(1)2018年4月1日から7日、および4月23日から5月2日を対象とした、水平解像度0.56度での同化計算の最適化に向けた感度計算。(2)2008年4月1-30日および6月22-7月21日の各30日を対象とした、気象場および光化学的な条件の異なる環境下での0.56度での検証実験。

3. 結果

高解像度での同化実験を行うにあたり、同化の対象とする観測データの取り扱いやアンサンブル数などに関する感度実験を行った。表1にOMIによる対流圏カラムNO2量を用いた2008年春季を対象とした水平解像度0.56度での感度実験における相関係数および平均二乗誤差を示す。個々のOMI衛星データを同化した場合でも、スーパーオブザベーション手法(Boersma et al., 2016 [15])を用いて生成した0.56度格子を代表する観測データを同化した場合と概ね精度を維持していることがわかる。これはOMIの空間解像度はおよそ13x24kmであり、高解像度データ同化での水平解像度0.56度と大きな違いがないためであると考えられる。またスーパー

オブザベーションにより観測データ数が1/10に減少したことにより、計算コストはおよそ10%程度減少した。今後更に高解像度なTROPOMIや静止衛星 (<7km)を同化対象とした場合、スーパーオブザベーション手法の重要性はさらに増すこと見込まれる。

No.	Descriptions of sensitivity calculation	Correlation	RMS innovation
1	Assimilation of OMI with super-observation	0.85	0.42
2	Assimilation of OMI without super-observation	0.85	0.42
3	Standard setting (N = 64, L = 1314)	0.85	0.41
4	Smaller ensemble size (N = 32, L = 1314)	0.83	0.46
5	Larger ensemble size (N = 96, L = 1314)	0.86	0.40
6	Shorter cut-off length (N = 64, L = 262)	0.87	0.40
7	Shorter cut-off length (N = 64, L = 736)	0.86	0.40
8	Longer cut-off length (N = 64, L = 1971)	0.83	0.45

表1: 2008年4月23日から5月3日にかけてのOMIによるNO2対流圏カラム量との相関係数および誤差2乗平均。

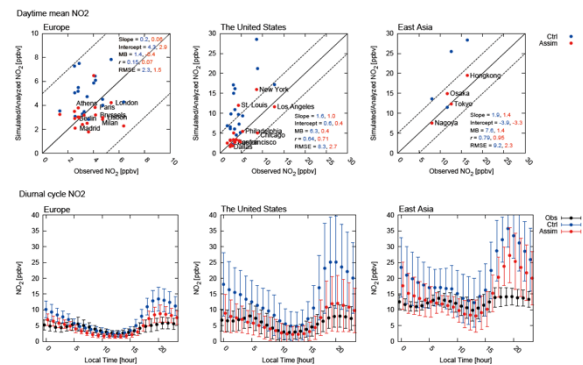


図1: (上段) ヨーロッパ、米国、東アジアの大都市における地上NO2濃度(ppbv)の観測値(X軸)と計算値(Y軸)との比較。観測値は、ヨーロッパのAirBase、米国のAQ5、日本の常時監視測定局、香港のEPDより取得した。また、青色がモデルシミュレーション、赤色がデータ同化による計算値である。(下段) 大都市における地上NO2濃度の平均日変化。黒色が観測値、青色がモデルシミュレーション、赤色がデータ同化を示す。エラーバーは各都市間のばらつきを標準偏差で示している。

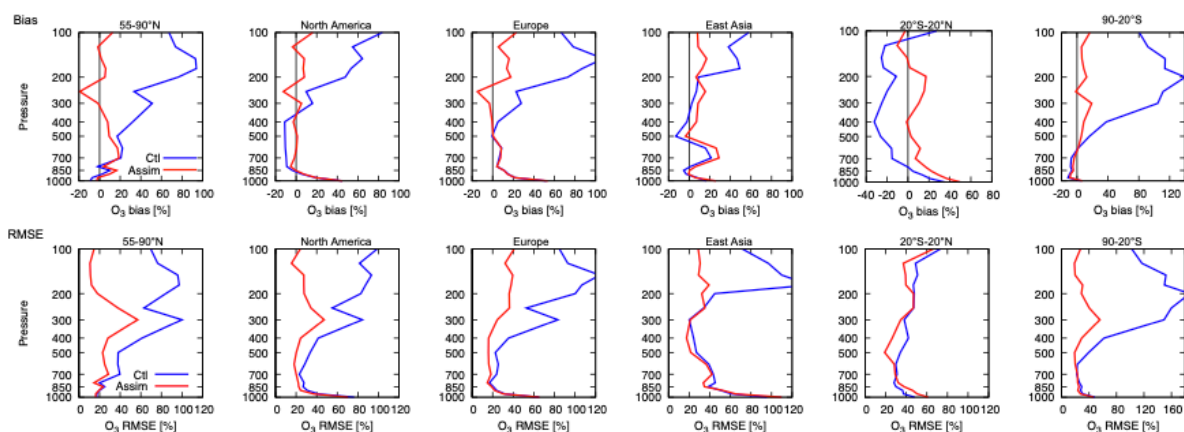


図2: オゾンゾンデによる観測結果と比較した際のオゾン濃度鉛直分布のバイアス(上段)および平均二乗誤差(下段)。青線は標準実験、赤線は同化実験をそれぞれ示す。

次に、 NO_2 発生源の多い大都市において、独立した地上観測により検証を行った。ヨーロッパおよびアメリカの人口150万以上の38都市および東アジアの香港、東京、大阪、名古屋での検証を行った結果を図1に示す。データ同化によりモデルの地上 NO_2 濃度の過大評価が大きく改善され、二乗平均誤差(RMSE)はヨーロッパにおいて33%、米国において67%、東アジアにおいて75%減少した。また、日変化についても、その振幅の過大評価がヨーロッパにおいて49%、米国において69%、東アジアにおいて22%改善された。これらのデータ同化による地上 NO_2 濃度の改善は、排出量逆推定の効果が大いと考えられる。また水酸基ラジカルについてもその日変化の振幅が7%から29%程度、データ同化によって改善しており、 NO_2 濃度の日変化改善に無視できない影響を及ぼすことが示唆された。

オゾン濃度の鉛直分布について、オゾンゾンデを用いた観測結果との比較を行った。図2にその結果を示す。対流圏オゾン濃度については鉛直混合、光化学反応、乾性沈着など様々な影響が考えられる。対流圏においては、臭素などのハロゲン化学種によるオゾン破壊反応の影響について最大で2倍程度、モデルが過大評価する可能性があることが指摘されている(Akiyoshi et al., 2009 [7], 2016 [8])。データ同化を行うことにより、オゾンゾンデ観測による観測結果の再現性が大幅に向上していることがわかる。高度200hPaにおいてモデルの過大評価傾向が顕著に改善されており、バイアスの減少幅はそれぞれ北半球高緯度(図2左列)では93%、北米で84%、ヨーロッパで75%、東アジアで25%、南半球注意度で91%となっている。一方熱帯域では積雲対流など他地域と異なる環境にあるためかモデルの過小評価傾向が過大評価傾向に転じており、大きな改善は見られなかった。高度500hPaでは南北半球高緯度でみられた過大評価傾向がそれぞれ45%および65%改善された。また北米、東アジア、熱帯での過小評価傾向はそれぞれ89%、72%、88%改善された。RMSEについては高度200hPaにおいて、北半球高緯度域で78%、北米で66%、ヨーロッパ

で63%、東アジアで27%、熱帯で1%、南半球中高緯度で84%それぞれ改善された。

4. まとめ

高解像度(0.56度)での大気環境同化実験を実施し、各種の独立観測データを用いた検証を行った。その結果、本手法による顕著な精度向上を確認した。とくに地表付近においては大都市近傍での NO_2 濃度の推定精度を大きく向上させ、33%から75%程度、誤差を減少させることを確かめた。今後は地表放出量などについても検証をすすめるとともに、TROPOMIをはじめとする高解像度周回衛星や先日打ち上げられたGEMSなどの静止衛星などの先進的な観測データを活用し、より高精度な観測-モデル統融合を進めていく予定である。

謝辞

本研究は文部科学省フラグシップ2020(ポスト「京」)重点課題4「観測ビッグデータを活用した気象と地球環境の予測の高度化」の支援を受けた。また本研究の成果の一部はジェット研究所において実施された。OMI, GOME-2, SCHIAMACHYによる NO_2 カラム量についてはQA4ECVプロジェクトの成果に基づく。また地表 NO_2 観測値についてはAirBase, AQS, 香港EPD, 日本の各地方自治体による測定に基づく。オゾンゾンデデータについてはWOUDCおよびNOAA ESRL GMDによる。

文献

- [1] Inness, A., Blechschmidt, A.-M., Bouarar, I., Chabrillat, S., Crepulja, M., Engelen, R. J., Eskes, H., Flemming, J., Gaudel, A., Hendrick, F., Huijnen, V., Jones, L., Kapsomenakis, J., Katragkou, E., Keppens, A., Langerock, B., de Mazière, M., Melas, D., Parrington, M., Peuch, V. H., Razinger, M., Richter, A., Schultz, M. G., Suttie, M., Thouret, V., Vrekoussis, M., Wagner, A., and Zerefos, C., "Data

- assimilation of satellite-retrieved ozone, carbon monoxide and nitrogen dioxide with ECMWF's Composition-IFS", *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 5275-5303, 2015.
- [2] Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K., "A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005-2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data", *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315-8348, doi:10.5194/acp-15-8315-2015, 2015.
- [3] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya, Y., "Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation", *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807-837, doi:10.5194/acp-17-807-2017, 2017.
- [4] Sudo, K., Takahashi, M., Kurokawa, J., and Akimoto, H., "CHASER: A global chemical model of the troposphere 1. Model description", *J. Geophys. Res.*, 107, ACH 7-1-ACH 7-20, 2002.
- [5] Watanabe, S., Hajima, T., Sudo, K., Nagashima, T., Takemura, T., Okajima, H., Nozawa, T., Kawase, H., Abe, M., Yokohata, T., Ise, T., Sato, H., Kato, E., Takata, K., Emori, S., and Kawamiya, M., "MIROC-ESM 2010: model description and basic results of CMIP5-20c3m experiments", *Geosci. Model Dev.*, 4, 845-872, 2011.
- [6] Sekiya, T., Miyazaki, K., Ogochi, K., Sudo, K., and Takigawa, M., "Global high-resolution simulations of tropospheric nitrogen dioxide using CHASER V4.0", *Geoscientific Model Development*, 11, 959-988, 2018.
- [7] Akiyoshi, H., Zhou, L. B., Yamashita, Y., Sakamoto, K., Yoshiki, M., Nagashima, T., Takahashi, M., Kurokawa, J., Takigawa, M., and Imamura, T., "A CCM simulation of the breakup of the Antarctic polar vortex in the years 1980-2004 under the CCMVal scenarios", *J. Geophys. Res.*, 114, 2009.
- [8] Akiyoshi, H., Nakamura, T., Miyasaka, T., Shiotani, M., and Suzuki, M., "A nudged chemistry-climate model simulation of chemical constituent distribution at northern high-latitude stratosphere observed by SMILES and MLS during the 2009/2010 stratospheric sudden warming", *J. Geophys. Res.*, 121, 1361-1380, 2015JD023334, 2016.
- [9] Janssens-Maenhout, G., Crippa, M., Guizzardi, D., Dentener, F., Muntean, M., Pouliot, G., Keating, T., Zhang, Q., Kurokawa, J., Wankmüller, R., Denier van der Gon, H., Kuenen, J. J. P., Klimont, Z., Frost, G., Darras, S., Koffi, B., and Li, M., "HTAP_v2.2: a mosaic of regional and global emission grid maps for 2008 and 2010 to study hemispheric transport of air pollution", *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 11 411-11 432, 2015.
- [10] van der Werf, G. R., Randerson, J. T., Giglio, L., van Leeuwen, T. T., Chen, Y., Rogers, B. M., Mu, M., van Marle, M. J. E., Morton, D. C., Collatz, G. J., Yokelson, R. J., and Kasibhatla, P. S., "Global fire emissions estimates during 1997-2016", *Earth Syst. Sci. Data*, 9, 697-720, 2017.
- [11] Yienger, J. J. and Levy, H., "Empirical model of global soil-biogenic NO_x emissions", *J. Geophys. Res.*, 100, 11 447-11 464, 1995.
- [12] Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K., "Global NO_x emission estimates derived from an assimilation of OMI tropospheric NO₂ columns", *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2263-2288, 2012.
- [13] Price, C. and Rind, D., "A simple lightning parameterization for calculating global lightning distributions", *J. Geophys. Res.*, 97, 9919-9933, 1992.
- [14] Hunt, B. R., Kostelich, E. J., and Szunyogh, I., "Efficient data assimilation for spatiotemporal chaos: A local ensemble transform Kalman filter", *Physica D*, 230, 112-126, 2007.
- [15] Boersma, K. F., Vinken, G. C. M., and Eskes, H. J., "Representativeness errors in comparing chemistry transport and chemistry climate models with satellite UV-Vis tropospheric column retrievals", *Geosci. Model Dev.*, 9, 875-898, <https://doi.org/10.5194/gmd-9-875-2016>, 2016.

Environmental Geochemical Cycle Modelling Research

Project Representative

Kazuyuki Miyazaki Research and Development Center for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology / Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology

Authors

Takashi Sekiya*¹, Kazuyuki Miyazaki*^{2,3}, Koji Ogochi*¹, Kengo Sudo*^{4,2}, Masayuki Takigawa*^{5,1}, Henk Eskes*⁶, Folkert Boersma*⁶

*¹ Project team for HPC Advanced Predictions utilizing Big Data, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

*² Research and Development Center for Global Change, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

*³ Jet Propulsion Laboratory, California Institute of Technology

*⁴ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University

*⁵ Institute of Arctic Climate and Environment Research, Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology

*⁶ Royal Netherlands Meteorological Institute,

Global chemical data assimilation at 0.56° resolution for multi-constituent satellite retrievals of O₃, NO₂, CO, HNO₃, and SO₂ from OMI, GOME-2, SCIAMACHY, TES, MOPITT, and MLS using an ensemble Kalman filter technique was applied to simultaneously optimize ozone precursor emissions and concentrations of various species. The assimilated fields were compared with independent in-situ, ozonesonde, and aircraft measurements, while the impact of increasing model resolution on chemical data assimilation was investigated. These results demonstrate the unique capability of high-resolution global data assimilation for providing global consistent analysis of the emissions and concentrations on a megacity scale, which benefit studies on air quality and its impact on human health at various spatial scales over different regions of the world.

Keywords : Data assimilation, air pollution, chemical transport model

1. Introduction

Nitrogen oxides (NO_x) are a main precursor of tropospheric ozone and nitrate aerosols, which are important for air quality and climate change. Wet and dry deposition of nitrogen compounds affects the productivity and diversity of terrestrial and marine ecosystems on a global scale. NO_x also affects oxidizing capacities through O₃-HO_x-NO_x chemistry, which determines the lifetime of air pollutants and long-lived greenhouse gases, such as methane. The major anthropogenic sources of NO_x are ground transportation and power generation, which account for more than half of the total global anthropogenic emissions. NO_x is also emitted from natural sources including biomass burning, microbial activity in soil, and lightning. However, bottom-up inventories of anthropogenic and natural emissions of NO_x contain large uncertainties, reflecting inaccurate emission factors and activity rates, e.g., traffic rush hours and winter building heating, and incomplete knowledge of biomass burning emission factors for various situations.

Significant energy use and other intensive human activities lead to high emissions of air pollutants including NO_x in large cities such as megacities (i.e., cities with a population of more than 10 million). The United Nation reported that the number of megacities is expected to rise in developing regions such as South and Southeast Asia, Africa, and Latin America. Thus, it is important to provide information on global consistent

emissions on a megacity scale. Sekiya et al. (2018) demonstrated that a global chemical transport model (CTM) with a resolution of 0.56° (approximately 3,200 km² at 35°N) can capture high concentrations of tropospheric NO₂ over megacities. This resolution is almost comparable with the total metropolitan areas of major mega cities such as New York (9,882 km²), Paris (12,089 km²), Beijing (16,410 km²), and the Indian National Capital Region (53,817 km²).

Top-down emission estimates have been conducted at various spatial scales using data assimilation and emission inversion techniques. Global NO_x emission estimates were obtained at relatively low resolutions (1–4°), while reducing model errors unrelated to emissions (e.g., the NO₂ chemical loss rate) in our multi-constituent data assimilation framework (e.g., Miyazaki et al., 2015, 2017). Emission inversions based on high-resolution regional models have been used to provide NO_x emissions from major cities at 1–50 km, mainly focusing on selected major polluted regions such as Europe, the United States, and East Asia. The application of the global CTM with 0.56° resolution to multi-constituent data assimilation system has the unique capability to provide improved and consistent global analyses of several ozone precursor emissions and concentrations of air pollutants on a megacity scale. Using such high-resolution in global modeling is also essential to capturing episodic deep intrusions from the stratosphere and their influence on near-surface O₃, which could also influence

emission estimates.

In this study, we present the results of global data assimilation for multi-constituent satellite retrievals (O_3 , NO_2 , CO , HNO_3 , and SO_2) from multiple sensors (OMI, GOME-2, SCIAMACHY, TES, MOPITT, and MLS) at a resolution of 0.56° using an ensemble Kalman filter (EnKF) approach and a high-resolution global CTM. Data assimilation results at three horizontal resolutions (0.56 , 1.1 , and 2.8°) are compared to demonstrate the impacts of horizontal resolution on chemical data assimilation.

2. Methodology

The data assimilation system used CHASER V4.0 as the forecast model. We employed a horizontal resolution of T42 (i.e., 2.8°), T106 (i.e., 1.1°), and T213 (i.e., 0.56°) with 32 vertical layers from the surface to an altitude of approximately 40 km. CHASER simulates spatial and temporal variations in chemical species in the troposphere and stratosphere, by calculating tracer transport (advection, cumulus convection, and vertical diffusion), emissions, dry and wet deposition, and chemical processes (92 species, 262 reactions) including the O_3 - HO_x - NO_x - CH_4 - CO system with non-methane volatile organic compounds oxidation. Stratospheric chemistry (i.e., halogen chemistry) was also incorporated based on the Center for Climate System Research (CCSR)/National Institute for Environmental Studies (NIES) chemistry climate model.

The meteorological fields were calculated using the MIROC-AGCM atmospheric general circulation model. at every time step (i.e., 1–4 min at 0.56° , 2–8 min at 1.1° , and 5–20 min at 2.8° resolution). To reproduce past meteorological fields and calculate short-term variability, the simulated temperature and horizontal wind fields were nudged to the 6-hourly ERA-Interim reanalysis data with a relaxation time of 5 days for temperature and 0.7 days for horizontal winds. The reanalysis data (at a resolution of 0.75°) were linearly interpolated to each model grid. We used an optimized setting for the cumulus convection parameterization (prognostic Arakawa–Schubert scheme) at each resolution based on sensitivity calculations.

We used the multi-constituent data assimilation system. The data assimilation technique employed is a local ensemble transform Kalman filter. To calculate chemical data assimilation at a high resolution, we tuned the data assimilation code (e.g., vectorization) with increasing computational file input/output efficiency (in total, 4.6 times faster than our system without tuning for our supercomputer system).

3. Results

A super-observation approach was employed to generate observation data representative of the area of the model grid cells. To assess the impact of the super-observation approach,

we performed 11-days assimilation calculations using OMI NO_2 retrievals. As summarized in Table 1, the global correlation coefficient and RMS innovation with and without the application of the super-observation approach to the OMI retrievals were comparable at 0.56° resolution, while the RMS innovation was improved by up to a few percent over major polluted regions. The spatial and temporal variations in analysis increments became slightly smoother using super-observation (i.e., the standard deviation of analysis increments was smaller by up to 1.5% over polluted regions). In general, the impact of the super-observation is smaller at 0.56° resolution than at 2.8° resolution, because the data assimilation resolution (approximately 56 km) is closer to the pixel size of OMI retrievals (13×24 km). Nevertheless, the number of observations was reduced by a factor of approximately 10 using super-observation, which reduced the total computational cost of data assimilation by 10%. With higher resolution (< 7 km) measurements such as TROPOMI and geostationary satellites, the super-observation approach would be even more important at 0.56° resolution.

No.	Descriptions of sensitivity calculation	Correlation	RMS innovation
1	Assimilation of OMI with super-observation	0.85	0.42
2	Assimilation of OMI without super-observation	0.85	0.42
3	Standard setting (N = 64, L = 1314)	0.85	0.41
4	Smaller ensemble size (N = 32, L = 1314)	0.83	0.46
5	Larger ensemble size (N = 96, L = 1314)	0.86	0.40
6	Shorter cut-off length (N = 64, L = 262)	0.87	0.40
7	Shorter cut-off length (N = 64, L = 736)	0.86	0.40
8	Longer cut-off length (N = 64, L = 1971)	0.83	0.45

Table 1: Correlation coefficients and root mean square (RMS) innovations of observation-minus-forecast (OmF) for tropospheric NO_2 column derived from OMI during April 23 to May 3, 2008.

References

- [1] Miyazaki, K., Eskes, H. J., and Sudo, K., "A tropospheric chemistry reanalysis for the years 2005–2012 based on an assimilation of OMI, MLS, TES, and MOPITT satellite data", *Atmos. Chem. Phys.*, 15, 8315–8348, 2015.
- [2] Miyazaki, K., Eskes, H., Sudo, K., Boersma, K. F., Bowman, K., and Kanaya, Y., "Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation", *Atmos. Chem. Phys.*, 17, 807–837, 2017.
- [3] Sekiya, T., Miyazaki, K., Ogochi, K., Sudo, K., and Takigawa, M., "Global high-resolution simulations of tropospheric nitrogen dioxide using CHASER V4.0", *Geoscientific Model Development*, 11, 959–988, 2018.