

論文 / 著書情報  
Article / Book Information

題目(和文)	境界層～上部対流圏/下部成層圏における二酸化窒素とアセトニトリルの衛星観測
Title(English)	Satellite observation of nitrogen dioxide and acetonitrile from boundary layer to upper troposphere and lower stratosphere
著者(和文)	藤縄環
Author(English)	Tamaki Fujinawa
出典(和文)	学位:博士(理学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第11219号, 授与年月日:2019年6月30日, 学位の種別:課程博士, 審査員:吉田 尚弘,本倉 健,山田 桂太,神田 学,豊田 栄,笠井 康子
Citation(English)	Degree:Doctor (Science), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第11219号, Conferred date:2019/6/30, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	論文要旨
Type(English)	Summary

(博士課程)

Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻： Department of	化学環境学	専攻	申請学位（専攻分野）： Academic Degree Requested	博士 Doctor of	（理学）
学生氏名： Student's Name	藤縄環		指導教員（主）： Academic Supervisor(main)	吉田尚弘	
			指導教員（副）： Academic Supervisor(sub)		

### 要旨（和文 2000 字程度）

Thesis Summary (approx.2000 Japanese Characters)

1 章ではまず産業革命以降、国際問題として顕在化している大気汚染と汚染物質の重要性について述べる。局所～全球的な大気汚染は、国際社会において解決すべき重大な課題である。WHO の報告によれば、世界で年間約 420 万人が屋外大気汚染により死亡しており、世界の 8 大死因のひとつとされている。主な大気汚染物質のひとつとして対流圏オゾンがあり、非メタン揮発性有機化合物 (NMVOC) と窒素酸化物 ( $\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$ ) を前駆物質として生成・消滅される。これらの前駆物質は対流圏光化学反応系において重要な役割を担っており、特に二酸化窒素 ( $\text{NO}_2$ ) は大気汚染のトレーサーとして注目されている。 $\text{NO}_2$  は、工場や自動車の排ガスなど化石燃料由来の燃焼ガスから排出され、場所により 50～90% 程度寄与しているとされる。一方で、バイオマス燃焼などの自然起源も最大 18% ほど寄与しており、場所や植生などの違いによりその生成源は多岐にわたる。 $\text{NO}_2$  の全球的な排出起源特定は、 $\text{NO}_2$  が短寿命であることや局所的に複数の排出源が混在しうることから困難である。アセトニトリル ( $\text{CH}_3\text{CN}$ ) はバイオマス燃焼のトレーサーとしての有用性が示唆されており、また NMVOC のひとつでもある。 $\text{CH}_3\text{CN}$  に着目し、2 種の衛星観測における誤差解析を行った。

2 章では、大気汚染の主な原因物質である二酸化窒素 ( $\text{NO}_2$ ) について、1  $\text{km}^2$  水平分解能での衛星観測の誤差解析結果について述べる。全球的な  $\text{NO}_2$  排出量の将来予測に用いられる化学輸送モデルでは統計学的な排出インベントリが使用されているが、それらの排出インベントリは未把握の排出源の影響により現状を捉えきれていない。また、 $\text{NO}_2$  の観測は 1995 年以降、欧州の複数の衛星測器により継続的な監視が行われている一方で、感度の問題からその水平分解能は数～数十 km 程度であり都市内部に存在する  $\text{NO}_2$  の点源の分離計測は困難であった。そこで、1 km の水平分解能における  $\text{NO}_2$  衛星観測誤差の科学要求を汚染域において対流圏カラム量  $3.0 \times 10^{15} \text{ molec cm}^{-2}$  (5%) 未満と仮定し、これを満たす最適な衛星高度およびフィッティング波長域の選定を目的として、実現可能性検討を行なった。具体的には、放射伝達計算モデルを使用して地球放射スペクトルを計算し、現実的な測器パラメータから導出したシグナル・ノイズ比 (SNR) に相当したランダム誤差を付加することで 1000 本の異なる合成スペクトルを得た後、DOAS 法を用いて  $\text{NO}_2$  の傾斜カラム量 (SCD) を導出しその平均値および標準偏差 ( $1\sigma$ ) から誤差解析を行なった。現実的な  $\text{NO}_2$  存在量の高度プロファイルや表面反射率、エアロゾルなどを考慮した結果、衛星高度 300 km および 425–497 nm の波長域の組み合わせが最適であり、1000 程度の SNR で 3% のランダム誤差が見積もられた。またエアマスファクターの計算の際の誤差および成層圏の誤差についてもあわせて考察した結果、最終的な誤差は対流圏カラム量で  $0.88 \times 10^{15} \text{ molec cm}^{-2}$  となり、従来の衛星観測の結果 ( $0.2 \sim 1.4 \times 10^{15} \text{ molec cm}^{-2}$ ) と比較して同程度での測定誤差で 1 km × 1 km の高水平分解能の実現可能であることが示唆された。

3 章では、NMVOC の一種であるアセトニトリル ( $\text{CH}_3\text{CN}$ ) について超電導サブミリ波リム放射サウンダ (SMILES) による観測の誤差解析を行った。 $\text{CH}_3\text{CN}$  は、大気中寿命が約 6 ヶ月と長く、90–95% がバイオマス燃焼由来とされているため、そのトレーサーとしての有用性が示唆されている。 $\text{CH}_3\text{CN}$  の成層圏における全球での衛星観測は 2000 年代初期の UARS (Upper Atmosphere Research Satellite) /MLS (Microwave Limb Sounder) に始まり、欧州の後継測器によって現在も行われている。しかし、それらの衛星観測のうち直近の測器である Aura/MLS のランダム誤差が 50–100 ppt、系統誤差が 100–200% とされ、典型的な  $\text{CH}_3\text{CN}$  の存在量である 50–150 ppt と比較して誤差が大きくデータの信頼性に欠ける。一方で 2009 年 10 月～2010 年 4 月まで観測が行なわれた SMILES は、従来観測と比較してシステム雑音は 1/10 程度であり精度向上が期待され、従来観測では物理量導出が困難であった上部成層圏までの  $\text{CH}_3\text{CN}$  の存在量導出も期待される。またこれらの衛星観測における  $\text{CH}_3\text{CN}$  データについて、バイオマス燃焼のトレーサーとしての有用性は検証されていない。そこで SMILES の  $\text{CH}_3\text{CN}$  観測データについて、誤差解析と Aura/MLS との比較を行いデータの検証を行った。さらに  $\text{CH}_3\text{CN}$  の季節変動について、Aura/MLS のシアン化水素 (HCN) データとの比較および GFED (Global Fire Emissions Database) との比較を行い、バイオマス燃焼について SMLIES の  $\text{CH}_3\text{CN}$  観測データのトレーサビリティを調査した。11 月 4 日の熱帯域におけるシングルスキャンスペクトルから導出した存在量高度分布の誤差解析の結果、全高度でランダム誤差が優勢となっており、15.7 hPa (28 km) より高高度では導出された  $\text{CH}_3\text{CN}$  のランダム誤差が 20 ppt 以下となり Aura/MLS と比較して 1/2 以下の誤差でより高い精度を示した。また Aura/MLS の HCN と SMILES の  $\text{CH}_3\text{CN}$  は 8.6 hPa より高高度では相関係数は 0.66～0.92 となり高い相関を示した。GFED の炭素排出量データと SMILES の  $\text{CH}_3\text{CN}$  の比較により、バイオマス燃焼が増加している地域において  $\text{CH}_3\text{CN}$  の存在量が高く、バイオマス燃焼のトレーサーとして  $\text{CH}_3\text{CN}$  の有用性が衛星観測データから初めて示唆された。

4 章では、 $\text{NO}_2$  の現在～将来における排出量推定における本論で提示した高水平分解能観測の位置付けと  $\text{NO}_2$  排出源の同定のためのバイオマス燃焼トレーサーとしての  $\text{CH}_3\text{CN}$  の有用性について考察し結論とした。また、今後の展望として 300 km 以下の超低高度における小型衛星観測の新たな可能性と  $\text{CH}_3\text{CN}$  の輸送に関する定量的評価の必要性について述べた。

備考：論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note: Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1 copy of 800 Words (English).

注意：論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ (T2R2) にインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。

Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).

(博士課程)  
Doctoral Program

## 論文要旨

THESIS SUMMARY

専攻 : Department of	化学環境学	専攻	申請学位 (専攻分野) : Academic Degree Requested	博士 Doctor of	( 理学 )
学生氏名 : Student's Name	藤縄環		指導教員 (主) : Academic Supervisor(main)	吉田尚弘	
			指導教員 (副) : Academic Supervisor(sub)		

要旨 (英文 300 語程度)

Thesis Summary (approx.300 English Words )

Chapter 1 describes that general introduction about air quality in the troposphere. Global air quality is a societal concern in the whole world. The tropospheric ozone ( $O_3$ ) is a major air pollutant. Non-Methane Volatile Organic Compounds (NMVOC) enhances the  $O_3$  formation accelerating the  $NO_x$  ( $=NO+NO_2$ ) cycle. Nitrogen dioxide ( $NO_2$ ) is dominantly emitted from anthropogenic sources such as fossil fuel power plants, ships and vehicles (50-90%) while it is also emitted from natural sources such as biomass burning (~18%). To identify the  $NO_2$  sources, I focused on acetonitrile ( $CH_3CN$ ) which is predominantly emitted from biomass burning (90-95%). The purpose of this thesis is to link  $NO_2$  with  $CH_3CN$  using satellite observation to identify the air pollutant source.

Chapter 2 describes feasibility study results for the tropospheric  $NO_2$  satellite observations with 1-km order spatial resolution. Based on a comprehensive analysis considering realistic atmospheric scenarios, a combination of a fit window of 425–497 nm and a satellite altitude of 300 km is likely to be the optimal combination for the satellite instrument considered in this thesis.

Chapter 3 describes validation results of stratospheric  $CH_3CN$  satellite observation of SMILES and qualitative results an analysis for vertical convection of biomass burning using SMILES data and OMI data comparing with GFED v4 data. The systematic error and the relative difference to MLS were ~5% and ~36% in the altitude range between 8.6 and 4.8 hPa (32-36 km). There is a strong correlation coefficient between lower stratosphere and upper stratosphere (~0.92). The results of comparisons with the GFED data qualitatively show good agreement between an enhancement of biomass burning event and SMILES  $CH_3CN$  VMRs at 28 km.

Chapter 4 concludes a feasibility of  $NO_2$  satellite observation and a traceability of  $CH_3CN$  for biomass burning to identify  $NO_2$  sources.

備考 : 論文要旨は、和文 2000 字と英文 300 語を 1 部ずつ提出するか、もしくは英文 800 語を 1 部提出してください。

Note : Thesis Summary should be submitted in either a copy of 2000 Japanese Characters and 300 Words (English) or 1copy of 800 Words (English).

注意 : 論文要旨は、東工大リサーチリポジトリ(T2R2)にてインターネット公表されますので、公表可能な範囲の内容で作成してください。  
Attention: Thesis Summary will be published on Tokyo Tech Research Repository Website (T2R2).