

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)	審査の要旨
Type(English)	Exam Summary

論文審査の要旨及び審査員

報告番号	甲第	号	学位申請者氏名	藤縄 環	
論文審査 審査員		氏名	職名		
	主査	吉田 尚弘	教授	豊田 栄	准教授
	審査員	本倉 健	准教授	笠井 康子	学外審査員
		山田 桂太	准教授		
		神田 学	教授		

論文審査の要旨 (2000 字程度)

本論文は Satellite observation of nitrogen dioxide and acetonitrile from boundary layer to upper troposphere and lower stratosphere (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) と題し、英文で書かれ、4 章よりなっている。

第 1 章 "General introduction" では産業革命以降、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られている。局所から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り、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(NM VOC)と窒素酸化物(NO と NO₂ からなる NO_x)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いるため、衛星観測により局所から全球的な観測がなされることが期待されているとしている。

第 2 章 "Feasibility study for km spatial resolved NO₂ observations" では大気汚染の最も重要な分子としての二酸化窒素(NO₂)について、衛星観測による大気観測の 1 km² 程度のグリッドでの誤差解析を行なった結果が述べられている。全球的な NO₂ 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、NO₂ 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 km-数十 km 程度であり都市内部に存在する NO₂ 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 NO₂ 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 3.0×10^{15} molecule 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、実現可能性の検討を行なっている。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、長距離差分吸収分光法(DOAS 法)を用いて NO₂ の傾斜カラム量(SCD)を導出し、その平均値および標準偏差から誤差解析を行なっている。現実的な NO₂ 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ることを明らかにし、1000 程度の SNR で 3% のランダム誤差であると見積もっている。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 0.88×10^{15} molecule cm⁻² となり、従来の衛星観測の結果($0.2-1.4 \times 10^{15}$ molecule cm⁻²)と同程度の測定誤差で 1 km×1 km の高水平分解能の観測が可能であることを明らかにしている。

第 3 章 "Validation analysis of SMILES acetonitrile (CH₃CN) observation comparing with Aura/MLS observation" では NM VOC として重要なアセトニトリル(CH₃CN)について衛星観測の誤差解析を行なっている。CH₃CN はその大気中寿命が約 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。CH₃CN 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)から欧州の衛星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衛星測器である 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 CH₃CN の存在量である 50-150 ppt と比較して、それらの誤差が大きくデータの信頼性に欠けるとしている。一方で 2009 年 10 月から 2010 年 4 月まで観測が行なわれた超伝導サブミリ波リム放射サウンダ(SMILES)は、従来の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、従来の観測では物理量導出が困難であった上部成層圏までの CH₃CN の存在量導出も期待されるとしている。また、これまでの衛星観測の CH₃CN 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

CH₃CN 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ている。さらに CH₃CN 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 SMILES の CH₃CN 観測データのトレーサビリティを調査した結果が述べられている。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に対して誤差解析を行なった結果、全ての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 CH₃CN 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見出している。Aura/MLS の HCN と SMILES の CH₃CN は 8.6 hPa より高高度では相関係数は 0.66~0.92 となり高い相関を見出している。また、GFED の炭素排出量データと SMILES の CH₃CN 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 CH₃CN の存在量が高く、バイオマス燃焼のトレーサーとしての CH₃CN の有用性を衛星観測データから初めて明らかにしている。

第4章 ”Conclusions and future perspectives”では、NO₂および CH₃CN の衛星観測における誤差解析について得られた結果をまとめている。NO₂ の現在から将来における排出量推定における高水平分解能観測の位置付けと NO₂ 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 CH₃CN の有用性について考察し結論としている。

以上要するに、本論文は、大気汚染物質である NO₂ およびバイオマス燃焼のトレーサーで VOC の一種でもある CH₃CN に着目し、大気化学上重要な 2 種の化学種の衛星観測において、新たな視点で独自に誤差解析を行い、これらの大気汚染化学種の振る舞いを明らかにしたもので、理学上貢献するところが大きい。よって本論文は博士（理学）の学位論文として十分な価値があるものと認められる。

注意：「論文審査の要旨及び審査員」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。