

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成25年 6月 6日現在

機関番号：12605

研究種目：新学術領域研究

研究期間：2008～2012

課題番号：20120012

研究課題名（和文） 東アジアの森林生態系におけるエアロゾルの沈着量と動態の評価

研究課題名（英文） Evaluation of deposition amount and dynamics of aerosol in East Asian forest ecosystems

研究代表者

松田 和秀 (MATSUDA KAZUHIDE)

東京農工大学・農学部・准教授

研究者番号：50409520

研究成果の概要（和文）：東アジアの森林において初めてとなる総合的なエアロゾルの乾性沈着観測を行い、沈着のしやすさを表す沈着速度の知見を得た。エアロゾル沈着量は、日本の遠隔域で二酸化硫黄に対する硫酸塩粒子の沈着比が大きいこと、熱帯林への元素状炭素の沈着は乾性沈着が湿性沈着を大きく上回ること等が明らかになった。森林内において、エアロゾルは森林の上方ほど多く沈着し、森林全体への沈着量に対し葉へ沈着している量は概ね半分程度であることが明らかになった。

研究成果の概要（英文）： From the observations of aerosol deposition at forests in East Asia, the knowledge on deposition velocities was obtained. In Japanese remote area, the ratio of sulfate deposition to sulfur dioxide deposition was higher than other areas. The majority of elemental carbon deposition onto tropical forests in Southeast Asia is possibly due to the dry disposition process. On forest leaves, there were more deposited aerosols in the upper part than in the lower part and approximately a half of total aerosol deposition onto forests could deposit.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2008年度	13,500,000	4,050,000	17,550,000
2009年度	16,400,000	4,920,000	21,320,000
2010年度	18,000,000	5,400,000	23,400,000
2011年度	18,000,000	5,400,000	23,400,000
2012年度	18,000,000	5,400,000	23,400,000
総計	83,900,000	25,170,000	109,070,000

研究分野：大気環境科学

科研費の分科・細目：環境解析学・環境影響評価

キーワード：乾性沈着、沈着速度、フラックス、大気沈着、PM2.5、硫酸塩粒子、ブラックカーボン、熱帯林

1. 研究開始当初の背景

東アジアにおいて、エアロゾルの森林への乾性沈着観測の事例はほとんどなく、当該地域の乾性沈着の推計は、欧米での観測で得られた沈着速度（Deposition Velocity, V_d ）に関する知見を検証なしにそのまま適用してい

る状況であった。また、東南アジアの熱帯林におけるエアロゾル沈着量の実態はほとんど未知であった。さらに、大気から森林への乾性沈着フラックスに関する知見に比べ、森林の内部での沈着の実態に関する知見は少なく、植物への影響を評価する際に十分な知

見が得られていなかった。

2. 研究の目的

東アジアにおけるエアロゾルの森林影響を評価するために不可欠となる森林へのエアロゾルの沈着メカニズムの解明と沈着量の把握を行うことを目的としてフィールド観測にもとづく研究を行った。東アジアで初めてエアロゾル沈着の総合的なフィールド観測を実施し、 V_d に関する知見を得て、当該地域における沈着量の把握を行った。さらに、森林への影響を評価する際に不可欠である林内におけるエアロゾルの沈着について調査を実施した。

3. 研究の方法

エアロゾル成分は、主にサブミクロンサイズの硫酸塩と元素状炭素を対象とした。これらは、東アジアの越境大気汚染物質として代表的な成分であり、当該新学術領域での樹木への暴露実験に使用されたことを踏まえて、植物影響の総合評価に資するべく主な対象とした。

東アジアの熱帯、温帯、寒帯にそれぞれ属したサケラート（タイ）、北佐久（長野）、天塩（北海道）の森林を主な調査地点とし、各地点に設置された大気観測鉄塔を利用してエアロゾルの乾性沈着観測を行った。

乾性沈着フラックス直接測定は濃度勾配法に基づいた。エアロゾルは、インパクター付のローボリュームエアサンプラーを用いて、PM_{2.5}を分級してフィルター上に捕集した。無機イオンは、超純水へ抽出した後、イオンクロマトグラフによる分析を行った。また、元素状炭素（Elemental Carbon, EC）は熱・光学的分析装置による分析を行った。乾性沈着量の推計は、Inferential法および大気化学輸送モデル（Comprehensive Air Model with extensions, CAMx）を用いて行った。

葉面層へのエアロゾル沈着量を把握するために、葉面に付着したエアロゾル中のECを直接測定した。葉は純水で洗浄した後、葉面を風乾し、クロロホルムで15-30秒間葉面を洗浄してクチクラ表層ワックスを溶解させ、その表面に強固に付着していた粒子状物質を抽出した。抽出された粒子状物質は、石英フィルター上に捕集し、その中のEC量を、熱・光学的分析装置により、ECとして定量した（Yamaguchi et al., 2012）。

4. 研究成果

(1) 森林におけるエアロゾルの沈着速度

① 集中観測

北佐久の落葉広葉樹林において2009年の夏季（7月2日～8日）に集中観測を実施した。調査地点は、平坦な緩傾斜地に地上約16～

18mの均一な混合林が形成されている。調査地点に設置されている観測鉄塔（28m）を使って、濃度勾配法に基づいて、硫酸塩粒子のフラックスを観測した。地上から21m、24m、27mの3高度にエアロゾルサンプラーを設置し、日中4時間サンプリングを3回（6～10時、10～14時、14～18時）、夜間12時間サンプリングを1回（18～6時）実施した。

得られた V_d は、日中0.9、夜間0.3 cm s^{-1} であり、従来の理論値より大きく、欧米におけるこれまでの観測値に近い値を示した。 V_d の変化は空気力学的な影響を強く受けており、摩擦速度（ u^* ）が大きいほど、また、大気が不安定なほど増加した。

次に、欧米で開発された二つのパラメタリゼーションと本観測で得られた V_d の測定結果との比較を行った（図1）（Matsuda et al., 2010）。測定値と比べると、森林を対象としたRuijgrok97のパラメタリゼーションの方が、草地を対象としたWesely85のパラメタリゼーションよりも整合性が良いと考えられた。北佐久の森林に合わせて空気力学的設定を同じにして推計したが、二つの推計値に大きな差が生じ、森林における沈着メカニズムは草地とは大きく異なることを示唆する結果となった。さらに、Ruijgrok97は、高湿度下におけるエアロゾルの粒径成長と湿潤表面における捕集効率の増加（はね返りの減少）を考慮しており、硫酸塩粒子等、吸湿性のあるサブミクロンサイズのエアロゾルの沈着への湿度影響の重要性が示唆される。

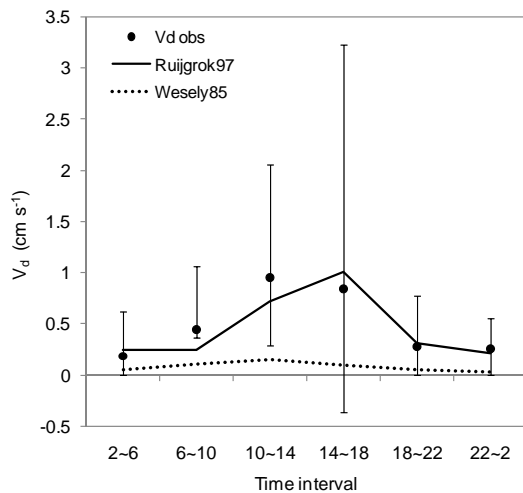


図1 硫酸塩粒子の沈着速度—観測値と推定値の比較（ V_d obs：測定値，Ruijgrok97 & Wesely85：推定値）（Matsuda et al., 2010）

② 長期観測

天塩のカラマツ林において複数年にわたる長期観測を実施した。当該カラマツ林の約14 haの中央に位置する30mの鉄塔を使って、

濃度勾配法に基づいて、PM2.5 無機イオン成分のフラックスを観測した。地上から 30m、10m の 2 高度にフィルターパックを設置し、3 週間サイクルのサンプリングを実施した。

2010 年から 2011 年に得られた V_d は、北佐久の集中観測と同レベルで、従来の理論値より大きい値を得た。さらに、2010 年と 2011 年を比較すると、年平均値の年差は 10% 以下と小さく、季節変化によるバラツキにも大きな差は見られなかった。粒子状硫酸イオンの年平均濃度の年差は V_d の年差よりもさらに小さく、当該地点における硫酸塩粒子の乾性沈着量の年差は 10% 以下と見積もられた。

(2) 森林へのエアロゾル沈着量

① 熱帯林における EC 沈着量

サケラートの乾燥落葉林 (DDF) に設置した観測鉄塔 (36m) において長期間連続してエアロゾル成分の濃度および微気象を測定し、2010 年および 2011 年のデータセットを得た。Inferential 法によるエアロゾルフラックス間接測定および林内・林外における降水成分測定を実施した。 V_d は、(1) で PM2.5 のエアロゾル成分に適用可能と考えられた Ruijgrok et al. (1997) のパラメタリゼーションを用いて微気象要素等から推定した。大気エアロゾルのサンプリングは、1 ヶ月毎に連続して行った。EC の湿性沈着に関しては、降水中的エアロゾルを直接石英フィルター上にろ過採取し、上記の熱・光学的分析装置により定量した (Matsuda et al., 2012)。

EC 濃度および V_d の 2 年間の変動について、両者ともに 2 年間で概ね同様な季節変化を示しているが、2 月～4 月の期間で 2011 年に比べて 2010 年の V_d が高くなっていた。2010 年のこの期間は例年より風速が大きくなっており、このような気象現象の違いに起因するものと考えられた。この影響で V_d の年平均値は、2010 年で 0.41 cm s^{-1} 、2011 年で 0.34 cm s^{-1} と 20% 程度の差が生じた。図 2 に、EC 乾性沈着量の 2 年間の比較を EC 湿性沈着量とともに示す。両年ともに、乾性沈着量が湿性沈着量を大きく上回っていた。降水量の年差はほとんど見られなかったが、2011 年の方が 2010 年よりも湿性沈着量が多く、大気中濃度も高かった。2011 年は、乾性沈着による大気からの除去が 2010 年に比べて小さく、湿性沈着による除去が促進された可能性が示唆された。

② EANET データから推定した硫酸化物の森林への沈着量分布

東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) の測定局における粒子状 SO_4^{2-} および SO_2 濃度モニタリングデータを使って、森林表面への硫酸化物の乾性沈着を推定した。 V_d の推計に当たっては、入手可能な限

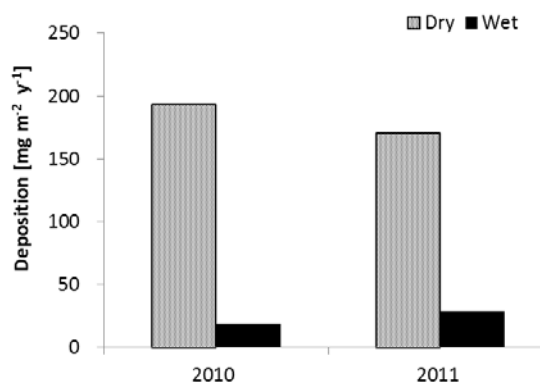


図 2 サケラートにおける 2010 年および 2011 年の年間 EC 沈着量 (乾性および湿性) の比較 (2010 年は Matsuda et al., 2012)

られた気象データから推計できる簡易的な方法の検討を行い、それを適用して乾性沈着を推計した。 V_d 推計のパラメタリゼーションは、粒子状 SO_4^{2-} は Ruijgrok et al. (1997)、 SO_2 は松田 (2008) に基づいた。東アジア全域で平均的に硫酸化物の乾性沈着中 3 割程度が硫酸塩粒子 (nss-SO_4^{2-}) によることが分かった。一方、日本の遠隔地域では、二酸化硫黄が低濃度であるのに対し硫酸塩粒子が高濃度であるため、この割合は 5 割程度まで増加した (藤村ら, 2011)。

③ 数値モデルによる森林へのエアロゾル沈着量シミュレーション

東アジア地域における森林への EC 沈着量を評価するために大気化学輸送モデル (CAMx) を用いてシミュレーションを行った。当該モデルではブラックカーボン (BC) として計算しているが、ここでは EC と同等と考える。森林におけるエアロゾルの V_d の計算には、北佐久および天塩での直接測定結果と整合性のあるモデルを使用した。

サケラートにおける EC 濃度について、測定値と数値モデルによる計算値を比較したところ妥当な結果を得た。東アジア全域で計算された森林への乾性沈着量分布を図 3 に示す。乾性沈着量は、東南アジア北部 (北緯 20 度付近) で特に多くなっていた。

(3) 葉面層へのエアロゾル沈着量

① 葉面へ付着した EC

葉面層へのエアロゾル沈着量を把握するために、天塩およびサケラートにおいて、葉面に付着したエアロゾル中の EC を直接測定した。天塩ではカラマツ林および林床植生を構成するササ、サケラートでは乾燥常緑林 (DEF) および乾燥落葉林 (DDF) において、枝の高さ、季節・葉齢等を考慮しながら採取した。常緑樹種については、葉齢別に採取し、

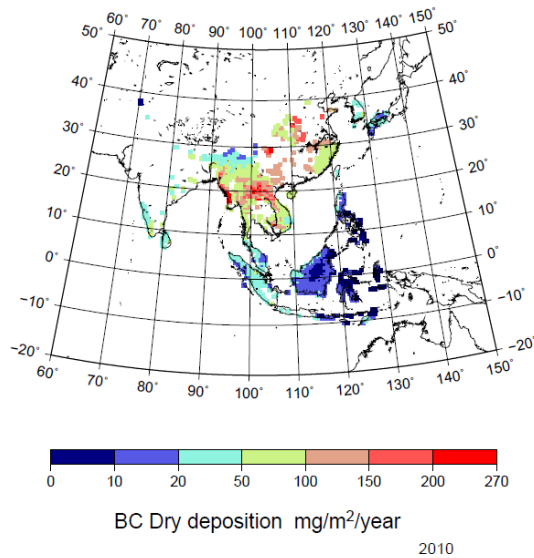


図3 大気化学輸送モデルによる森林へのBC乾性沈着量の計算結果

地域比較のためには展開からほぼ1年近く経った葉を特に分取した。

天塩のカラマツは幼木であるが、明確に下部の葉(1.5 m)より上部の葉(3 m)に、多くのECが付着していた。また、カラマツの林床を構成するササの葉面付着EC量は、同時期のカラマツ下部よりさらに低く、高度による差が明確に見られた(Fukazawa et al., 2012)。エアロゾルは、森林の上部ほど多く沈着することが示唆された。

サケラートにおいて、林内雨・林外雨のEC沈着量差および葉面付着EC量から葉面層へのEC沈着量を見積もった。林内雨・林外雨において、(2)①で推計した乾性沈着量に匹敵するような沈着量の差は見られず、降水で洗浄されない葉面に付着したECが乾性沈着の多くを占めると考えられた。落葉直前に採取した葉面のEC付着量を年間積算付着量と考え、葉の乾重量当たりのEC付着量を求め、年間落葉量から葉面層へのEC乾性沈着量を推計した(図4)。森林全体への年間乾性沈着量(図2)と比較すると、葉面層への沈着量は50%以下であると考えられる。一方、落葉期である1~3月頃に多くの乾性沈着量が見られることから、DDFでは着葉期における葉面層への沈着量は上記の比より大きい可能性がある。

(4) まとめ

エアロゾルの森林への V_d は、東アジアにおいても理論値より大きいことが示され、高湿度における粒子成長を考慮した V_d のパラメタリゼーションが観測値と比較的よい一致を示した。 V_d の年々差は10~20%程度であった。得られた知見に基づきエアロゾル沈着の

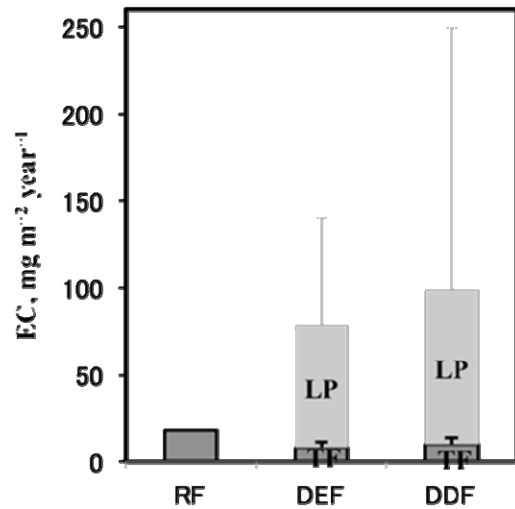


図4 サケラートにおけるEC沈着量の推定
RF: 林外雨沈着量、TF: 林内沈着量、LP: 葉面層沈着量 (Sase et al., 2012)

推計を実施した結果、①熱帯林へのEC沈着は乾性沈着が湿性沈着を大きく上回った。②日本の遠隔域では、 SO_2 に対する硫酸塩粒子の沈着比が他地域より大きかった。③数値モデルにより計算されたEC乾性沈着量は、東南アジア北部(北緯20度付近)で特に多くなっていた。葉面層へのエアロゾル沈着は、①森林の上方ほど多く沈着していた。②森林全体への沈着量に対し葉面層へ沈着している量は概ね半分程度であると考えられた。

以上の結果は、東アジアにおけるエアロゾルの森林影響を広域で評価する際に極めて重要な知見であると考えられる。

参考文献

- 1) 藤村ら(2011) エアロゾル研究 26, 286-295.
- 2) Fukazawa et al. (2012) Asian Journal of Atmospheric Environment 6, 281-287.
- 3) 松田(2008) 大気環境学会誌 43, 332-339.
- 4) Matsuda et al. (2010) Atmospheric Environment 44, 4582-4587.
- 5) Matsuda et al. (2012) Atmospheric Environment 54, 282-287.
- 6) Sase et al. (2012) Asian Journal of Atmospheric Environment 6, 246-258
- 7) Yamaguchi et al. (2012) Asian Journal of Atmospheric Environment 6, 268-274.

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 11 件)

- ① Matsuda, K., Sase, H., Murao, N., Fukazawa, T., Khoomsub, K., Chanonmuang, P., Khummongkol, P., 2012, Dry and wet deposition of elemental carbon above a tropical forest in Thailand, *Atmospheric Environment*, 査読有, 54, 282-287
- ② Sase, H., Matsuda, K., Visaratana, T, Garivait, H, Yamashita, N, Kietvuttinon, B, Hongthong, B, Luangjame, J, Khummongkol, P, Shindo, J, Endo, T, Sato, K, Uchiyama, S, Miyazawa, M, Nakata, M, and Lenggoro, I. W., 2012, Deposition process of sulfate and elemental carbon in Japanese and Thai forests. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, 6, 246-258.
- ③ Fukazawa, T., Murao, N., Sato, H., Takahashi, M., Akiyama, M., Yamaguchi T., Noguchi, I., Takahashi, H., Akahashi, H., Kozuka, C., Sakai, R., Takagi K., Fujinuma, Y., Saigusa, N. and Matsuda, K., 2012, Deposition of aerosols on leaves in a cool-temperate larch forest in Northern Hokkaido, Japan. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, 6, 281-287.
- ④ Yamaguchi, M., Takeda, K., Otani, Y., Murao, N., Sase, H., Lenggoro, I. W., Yazaki, K., Noguchi, K., Ishida, A. and Izuta, T., 2012, Optical method for measuring deposition amount of black carbon particles on foliar surface. *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, 6, 268-274.
- ⑤ Hayashi, K., Ono, K., Tokida, T., Takimoto, T., Mano, M., Miyata, A., Matsuda, K., 2012, Atmosphere-rice paddy exchanges of inorganic particles and relevant gases during a week in winter and a week in summer. *Journal of Agricultural Meteorology*, 査読有, 68, 55-68
- ⑥ Hayashi, K., Matsuda, K., Takahashi, A. and Nakaya, K., 2011, Atmosphere-forest exchanges of ammonia and particulate ammonium in a cool-temperate deciduous forest in central Japan during a summer week, *Asian Journal of Atmospheric Environment*, 査読有, 5, 134-143
- ⑦ 藤村佳史, 松田和秀, 佐藤啓市, 大泉毅, 2011, 東アジアにおける森林への硫黄酸化物の乾性沈着推計ー沈着速度簡易推計法の検討ー, *エアロゾル研究*, 査読有, 26, 286-295
- ⑧ Matsuda, K., Fujimura, Y., Hayashi, K., Takahashi, A., Nakaya, K., 2010, Deposition velocity of PM2.5 sulfate in the summer above a deciduous forest in central Japan. *Atmospheric Environment* 44, 査読有, 4582-4587

[学会発表] (計 50 件)

- ① Matsuda, K., Sase, H., Noguchi, I., Murao, N., Fukazawa, T., Hayashi, K., Takahashi, A., Takagi, K., Yamaguchi, T., Khummongkol, P., DRY DEPOSITION OF SULFATE AEROSOLS ABOVE FORESTS IN EAST ASIA, Abstract book of International Symposium on Aerosols in East Asia and Their Impacts on Plants and Human Health, 2012年11月29日, 東京農工大学
- ② 松田和秀, 佐瀬裕之, 村尾直人, 野口 泉, 深澤達矢, 高木健太郎, 山口高志, 林 健太郎, 高橋 章, 東アジアの森林生態系におけるエアロゾルの沈着量と動態の評価, 第53回大気環境学会年会, 2012年9月13日, 神奈川大学
- ③ 野口泉, 山口高志, 秋山雅行, 川村美穂, 高木健太郎, 松田和秀, フィルターパック法を用いた大気中ガス・エアロゾル成分濃度の日内変動(2), 第53回大気環境学会, 2012年9月13日, 神奈川大学
- ④ 松田和秀, 佐瀬裕之, 村尾直人, 深澤達矢, タイ国サケラートの熱帯林における元素状炭素の葉面への乾性沈着, 第29回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2012年9月1日, 北九州学術研究都市会議場
- ⑤ 佐瀬裕之, 松田和秀, 宮澤雅光, 佐藤啓市, 東アジア森林生態系へのブラックカーボン沈着の季節変化, 第52回大気環境学会年会, 2011年9月15日, 長崎大学
- ⑥ 野口泉, 川村美穂, 秋山雅行, 酒井茂克, 山口高志, 高木健太郎, 山形定, 松田和秀, フィルターパック法を用いた大気中ガス・エアロゾル成分濃度の日内変動, 第52回大気環境学会, 2011年9月15日, 長崎大学
- ⑦ 松田和秀, 三宅貴史, 村尾直人, 深澤達矢, 佐瀬裕之, タイ国サケラートにおける熱帯林への粒子状炭素の乾性沈着, 第28回エアロゾル科学・技術討論会, 2011年8月27日, 大阪府立大学
- ⑧ Matsuda, K., Sase, H., Murao, N., Fukazawa, T., Khoomsub, K., and Khummongkol, P., 2011, Dry deposition

of black carbon above a tropical forest in Thailand, The 8th International conference on Acid Deposition, 2011年6月16日, Beijing, China

- ⑨ Sase, H., Matsuda, K., Visaratana, T., Garivait, H., Yamashita, N., Kietvuttinon, B., Hongthong, B., Kobayashi, R., Luangjame, J., Khummongkol, P., Shindo, J., Endo, T. and Sato, K., 2011, Deposition process of black carbon in East Asian forests, The 8th International conference on Acid Deposition, 2011年6月16日, Beijing, China
- ⑩ 松田和秀, 林健太郎, 高橋章, 村尾直人, 野口泉, 佐瀬裕之, 東アジアの森林におけるエアロゾルの乾性沈着観測, 第51回大気環境学会年会, 2010年9月8日, 大阪大学
- ⑪ 藤村佳史, 松田和秀, 桜井達也, 佐藤啓市, 東アジアの森林における硫酸化物の大気沈着推計, 第51回大気環境学会年会, 2010年9月8日, 大阪大学
- ⑫ 松田和秀, 三宅貴史, 林健太郎, 高橋章, 北佐久における温帯落葉林への硫酸塩エアロゾルの沈着速度. 第27回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2010年8月3日, 名古屋大学
- ⑬ 佐瀬裕之, ジェサダ・ルアンジャム, 山下尚之, 小林亮, ハタイラタナ・ガリヴァイト, ボピット・キエトヴティノン, ティティ・ヴィサラタナ, 新藤純子, 林健太郎, 松田和秀, 東アジア森林地域へのブラックカーボンの沈着動態, 第27回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2010年8月3日, 名古屋大学
- ⑭ 松田和秀, 藤村佳史, 林健太郎, 高橋章, 伊豆田猛, 畠山史郎, フィルターパックを用いた乾性沈着直接測定法の検討, 第50回大気環境学会年会, 2009年9月16日, 慶應義塾大学
- ⑮ 野口泉, 山口高志, 酒井茂克, 松田和秀, フィルターパック法による短時間サンプリングのための対応策, 第50回大気環境学会年会, 2009年9月16日, 慶應義塾大学
- ⑯ 松田和秀, 藤村佳史, 林健太郎, 高橋章, 伊豆田猛, 畠山史郎, 大気エアロゾル成分の植生への沈着観測, 第26回エアロゾル科学・技術研究討論会, 2009年8月20日, 岡山大学

[その他]

領域ホームページ

<http://www.tuat.ac.jp/~aerosol/>

計画研究ホームページ

<http://www.tuat.ac.jp/~drydep/research.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松田 和秀 (MATSUDA KAZUHIDE)

東京農工大学・農学部・准教授

研究者番号: 50409520

(2) 研究分担者

佐瀬 裕之 (SASE HIROYUKI)

一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター・生態影響研究部・部長

研究者番号: 20450801

村尾 直人 (MURAO NAOTO)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号: 00190869

野口 泉 (NOGUCHI IZUMI)

地方独立行政法人北海道立総合研究機構・環境・地質研究本部・研究主幹

研究者番号: 10442617

林 健太郎 (HAYASHI KENTARO)

独立行政法人農業環境技術研究所・物質循環研究領域・主任研究員

研究者番号: 70370294 (2011-2012年度は連携研究者)

(3) 連携研究者

高橋 章 (TAKAHASHI AKIRA)

一般財団法人電力中央研究所・環境科学研究所・上席研究員

研究者番号: 50419024

高木 健太郎 (TAKAGI KENTARO)

北海道大学・北方生物圏フィールド科学センター・准教授

研究者番号: 20322844

深澤 達矢 (FUKAZAWA TATSUYA)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号: 80292051

山口 高志 (YAMAGUCHI TAKASHI)

地方独立行政法人北海道立総合研究機構・環境科学研究センター・研究主任

研究者番号: 90462316