

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 15 日現在

機関番号：82105

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2015～2016

課題番号：15K21686

研究課題名(和文) 東アジアの陸域生態系を対象とした大気汚染リスク評価の広域マッピング

研究課題名(英文) Regional risk assessment of sulfur and nitrogen deposition for terrestrial ecosystems in East and Southeast Asia

研究代表者

山下 尚之(Yamashita, Naoyuki)

国立研究開発法人森林総合研究所・立地環境研究領域・主任研究員

研究者番号：30537345

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,500,000円

研究成果の概要(和文)：東アジアの陸域生態系における酸性化と富栄養化(窒素飽和)の臨界負荷量を推定し、1980-2013年の硫黄・窒素沈着分布と比較することによって大気汚染リスクが高い国・地域を明らかにした。本推定によれば、近年の硫黄・窒素沈着分布は酸性化のリスクを広範にもたらすほどではないが、多くの国で富栄養化のリスクを生じさせるレベルであった。中国や東南アジアにおける富栄養化のリスクは1980年代以降の30年間で明瞭に上昇していた。

研究成果の概要(英文)：Spatial variations in S and N deposition have changed during past several decades in East and Southeast Asia. To assess the future eutrophication and acidification risks, risk map using critical loads should be updated by considering bedrock, soil type, climate and land-use change in this area where these environmental factors are largely different from Europe and North America. To assess the spatial-temporal change of critical loads exceedance, annual S and N depositions were simulated by CMAQ atmospheric chemical transport model with 80km (1981 - 2005) and 45km (2013) grids. As a result, the range of S and N deposition in 2000s did not exceeded critical loads of acidification except China. Meanwhile N deposition exceeded critical loads of eutrophication in China and a part of southeast Asia. This suggested that eutrophication risk was much higher than acidification risk in the area.

研究分野：生物地球化学と広域評価

キーワード：広域リスク評価 越境大気汚染 酸性雨 窒素沈着 臨界負荷量 窒素飽和

1. 研究開始当初の背景

我が国における硫黄 (S)・窒素 (N) 排出は減少を続けているが、中国・東南アジア各国ではいまだ増加傾向か、減少が始まった状況にある。東アジアにおける大気汚染分布は空間的な複雑さを増しており、生態影響リスクのより詳細な空間評価 (可視化) の必要性が高まっている。

「**臨界負荷量**」は定常マスバランスモデルに基づいた生態系リスクの定量評価手法の一つであり、森林生態系衰退等の原因としての土壌や水の酸性化を一つの閾値を持った指標で評価する。臨界負荷量はこの指標が限界値を超えない範囲での酸性物質の最大負荷量と定義されており、森林における N 溶脱増加の問題 (富栄養化) を含め、酸性化を生じるか富栄養化をもたらすかの限界量としての S 及び N の臨界負荷量が欧州を中心に広く受け入れられている。

しかし、東アジアにおいては、大気沈着による土壌・植物への影響が大規模には顕在化しておらず、これは東アジアほぼ全域での土壌酸性化を予測する 90 年代後半の臨界負荷量の評価と一致しない。2000 年代以降、東アジアでは生物地球化学分野の研究の発展や長期モニタリング体制の整備が進み、高空間解像度を持つ地理空間情報の整備も進んできた。これらを活用することにより、東アジアの臨界負荷量マップを実態に沿った形で更新する必要がある。

2. 研究の目的

S 及び N 沈着による酸性化と富栄養化のリスクを臨界負荷量の概念を取り入れて評価し、東アジア全域での広域マッピングによって要監視地域 (ホットスポット) を明らかにする。臨界負荷量モデルのパラメータを東アジアでの実態に合うよう修正する。

3. 研究の方法

(1) 臨界負荷量の計算

欧州経済委員会 (UNECE) の ICP Modeling and Mapping が策定したマニュアル<sup>引用1)</sup>にしたがい、①土壌 (土壌水) の酸性化の臨界負荷量と、②陸水の富栄養化の臨界負荷量を求めた。計算は 20km グリッドで実施し、各グリッドで算出された臨界負荷量に対する N 沈着と S 沈着の超過の有無によって酸性化と富栄養化のリスクを評価した。「ある地域において実際の沈着量が臨界負荷量より多く超過」していれば、生態影響リスクはより高いと判断できる。臨界負荷量と超過量は以下の定常マスバランスモデルの仮定の下に算出した。

① 酸性化の臨界負荷量と超過量

$$CL(S) + CL(N) = BC_{dep} - CL_{dep} + BC_w - BC_u - ANC_{le, crit} + N_i + N_u + N_{de} - ANC_{le, crit}$$

CL: 土壌酸性化の臨界負荷量、BC: 塩基類、

dep: 沈着、w: 化学風化、i: 不動態  
u: 伐採による持ち出し、 $ANC_{le, crit}$ : 酸中和能溶脱の最大値 (= 閾値) de: 脱窒

ここで、土壌酸性化の臨界負荷量に対する N および S 沈着の超過量  $Ex(S)$  および  $Ex(N)$  は、以下の 3 つの数量で定義される臨界負荷量関数 (CLF) で求められる (図 1)。

$$CL_{max}(S) = BC_{dep} - CL_{dep} + BC_w - BC_u - ANC_{le, crit}$$

$$CL_{max}(N) = CL_{min}(N) + CL_{max}(S) / (1-fde)$$

$$CL_{min}(N) = N_i + N_u$$

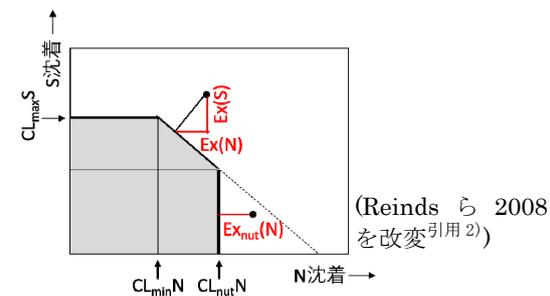


図 1 臨界負荷量の関数と超過量の算出 (S・N 沈着のペアが灰色部分にあるときは、臨界負荷量は閾値の範囲内にある)

② 富栄養化の臨界負荷量と超過量

$$CL_{nut}(N) = N_i + N_u + N_{de} + N_{ie, acc}$$

$$Ex_{nut}(N) = N_{dep} - CL_{nut}(N)$$

$CL_{nut}$ : 富栄養化の臨界負荷量、 $Ex_{nut}$ : 富栄養化の臨界負荷量に対する N 沈着の超過量  
i: 不動態、u: 伐採による持ち出し、de: 脱窒、 $N_{ie, acc}$ : 許容できる N 溶脱 (= 閾値)

③ 閾値の感度分析

臨界負荷量は経験的な閾値 ( $ANC_{le, crit}$  と  $N_{ie, acc}$ ) によって決定される。この値を変化させることにより、実態に近い値を探索的に決定した。

- 1)  $ANC_{le, crit} = -Q([H] + [Al]) : [H] + [Al]$  を土壌水の BC/Al 比 (10、1..)、pH (3、4..)、アルミニウム濃度等によって定義した
  - 2)  $N_{ie, acc} = Q[N]_{acc}$  : 許容できる陸水中の N 濃度 (0.3、1 mg/L..) 等を定義した
- この定義により、例えば土壌水中の  $Ca^{2+}$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $K^+$  と Al の比 (BC/Al) が 1 以下となるのに必要な N と S の負荷量や、土壌からの流出水中の無機態 N 濃度が 0.3 mg/L 以上となるのに必要な N 負荷量等を算出できる。

(2) 入力データの整備

$BC_{dep}$  は東アジア酸性雨モニタリングネットワーク (EANET) のサイト (54 地点) における月湿性沈着量と、降水量 (WorldClim1.4)、標高 (ASTER-GDEM)、土地利用形態 (Global Map data archives) 等の関係を用いてランダムフォレスト法により空間的な補間を行ったものを用いた。 $BC_w$  は土壌 (Harmonized

world soil database 1.2)と表層地質(産総研「東・東南アジアの数値地質図」)の酸感受性、土壌の粒形組成(SoilGrids 1km)および年平均気温を用いて推定した。BC<sub>u</sub>及びN<sub>u</sub>は植林等による塩基類や窒素の持ち出し量を、各国の植林地分布図(Global Forest Watch)と樹種別の伐期、バイオマス(IPCC)、樹体中の塩基類・窒素濃度より推定した。系外への水流出量Qは、過去50年の月別平均気温データと各グリッドの緯度から推定された可能蒸発散量と年間降水量の差から算出した。N<sub>de</sub>を算出するための脱窒ファクターf<sub>de</sub>は、土性による透水性の違いを用いてマニュアルに従って入力した。N<sub>i</sub>は文献値を参考に定数を用いた。

### (3)S・N沈着量の計算

超過量の計算に必要な東アジアにおけるS及びN沈着の空間分布は、化学輸送モデルCMAQによる以下の2つの計算設定で推定した。概要は以下の通り。

#### ① 1980～2005年の沈着量<sup>引用3), 4), 5)</sup>

モデル：RAMS/CMAQ4.4、解像度：80 km、南北領域：中国東北部からタイ南部、排出インベントリ：REASE 1.1

#### ② 2013年の沈着量

モデル：WRF3.51/CMAQ5.02 空間解像度：45 km、南北領域：中国東北部からインドネシア、排出インベントリ：MIX、GFED、MEGANモデル、茶谷ら<sup>引用6)</sup>

出力されたS・Nを含む湿性・乾性沈着の化学種について、全てがSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>およびNO<sub>3</sub><sup>-</sup>として土壌水に溶出し、生態系内に流入したと仮定した。なお、NH<sub>3</sub>・NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は硝化を経てNO<sub>3</sub><sup>-</sup>として流入・流出する(内部のプロトン収支は考慮されない)。

沈着量計算を除く全ての計算および入力データの整備等にはR言語 ver3以降(パッケージsp等)とArcGIS ver10.1を用いた。

## 4. 研究成果

### (1)感度分析による閾値の設定

感度分析と既往文献を参考にして閾値ANC<sub>le,crit</sub>を土壌水pH 4、N<sub>le,acc</sub>を流出水N濃度0.3 mg/Lに設定した。この閾値を用いた場合、酸性化の臨界負荷量は土壌水のpHが4を下回るのに必要なS・N沈着を、富栄養化の臨界負荷量は流出水N濃度が0.3mg/Lを超えるのに必要なN沈着を示している。これまで欧州では、植物根への害を想定した指標として土壌水のBC/Al=1という閾値が広く用いられてきた。しかし、東アジアでこの閾値を用いた場合、S沈着が臨界負荷量を超過する地域はほとんど見られなかった。この結果は、本地域で土壌酸性化事例が欧米に比べ少ないという既存研究の傾向と一致していたものの、欧州に比べ流出水量が非常に多い東アジアの実態

に必ずしも沿っていない可能性があった。そこでpHを新たな閾値に設定したところ、中国東北部や内陸の都市部周辺にのみS沈着が臨界負荷量を超過する地域があった。これらの地域では酸性化に関する報告もあり、東アジアにおける実態をある程度反映していると考えられた。流出水N濃度0.3 mg/L(硝酸として1.3 mg/L)は、欧州の森林におけるN循環不均衡(imbalance)の基準である。東アジアでこの閾値を用いた場合、中国からインドネシアまでの幅広い範囲でN沈着が臨界負荷量を超過していた。これは特に中国や日本における森林からのN流出の増大(窒素飽和)に関する多くの報告例の結果と矛盾しないと考えられた。実際に日本で富栄養化(窒素飽和)していると考えられる森林流域の硝酸濃度も考慮し、欧州の基準である0.3 mg/Lを富栄養化の閾値として採用した。

### (2)酸性化と富栄養化の臨界負荷量

これらの閾値を用いた酸性化と富栄養化の臨界負荷量マップを図2に示した。このマップは臨界負荷量が低いほど赤く、少ないS・N沈着によって影響が顕在化しやすいことを示す。酸性化の臨界負荷量は中国東北部や日本を含む地域で低く、熱帯地域で高かったが、これは中高緯度で低温なほど表層地質由来の風化速度が遅く、酸に対する許容量が低下したためと考えられた。中国東北部では流出水量が少ないため、流入した酸が系から流出しづらいことも一因と考えられた。本マップによれば、土壌水のpHを4以下に低下させるのに必要なS沈着(臨界負荷量)の平均は4330 eq/ha(Sとして約70 kg/ha)、N沈着の平均は10817 eq/ha(Nとして約150 kg/ha)と、一般的な沈着量の実態と比較して著しく高い値であった。一方、富栄養化の臨界負荷量は、中国および熱帯モンスーン地帯で低く、日本の南部や熱帯雨林地帯で高かった。熱帯では流出水量の多さ、短伐期植林による多量のNの持

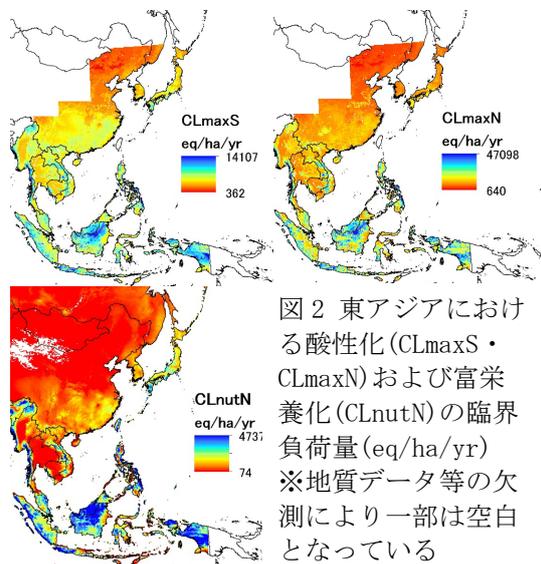


図2 東アジアにおける酸性化(CLmaxS・CLmaxN)および富栄養化(CLnutN)の臨界負荷量(eq/ha/yr)  
※地質データ等の欠測により一部は空白となっている

ち出し、高い脱窒速度を持つ泥炭土の幅広い分布といった要因によって臨界負荷量が相対的に高かった。この結果によれば、流出水中のN濃度を0.3 mg/L以下にするために必要なN沈着は平均で307eq/ha(Nとして4.3kg/ha)と、本地域の沈着量の実態に照らして現実的な値であった。

### (3) 臨界負荷量超過の経時変化

酸性化と富栄養化の臨界負荷量に対する1980～2013年の沈着量の超過を算出し、生態影響リスクが高い地域を抽出した(図3、図4)。このマップは黄色の部分(超過量が0(沈着量が設定した閾値を超えない))であることを示し、赤が濃いほど超過量が多く、酸性化や富栄養化のリスクがより高まっていることを示す。酸性の臨界負荷量超過(Ex(S))は大部分の地域で生じないが、2000年以降は中国の東北部で広範に認められ、2013年までその範囲は拡大していた。ただし、中国を除く国々における酸性化リスクは非常に低いと考えられた。Ex(N)はEx(S)に比べ超過量が少なかったが、空間分布はほぼ同様であった。一方、富栄養化の臨界負荷量超過(Ex<sub>nut</sub>(N))は80年代に既に幅広い地域で生じており、特に中国の内陸部で高い値を示した。2013年には中国全土で高い値を示しており、さらに東南アジアの幅広い範囲で超過がみられることが明らかとなった。

### (4) 不確実性評価

本手法はシンプルなマスバランスモデルを用いており、50～100年に及ぶ長期影響の結果を想定している。特に比較的短い時間スケールで生じる生態系内部循環における生物地球化学プロセスを全く考慮していない。例えば、土地利用変化等に伴い地上部バイオマスのNが短期間に流出したり、持ち出されたりした場合、その量は臨界負荷量の大きな正負の誤差要因となる。こうした誤差は、森林地帯の多くで臨界負荷量の10倍～100倍に達すると試算された。バイオマスが大きく富栄養化の臨界負荷量が高い熱帯モンスーン地域では、この誤差(不確実性)が特に大きかった。臨界負荷量の利用にはこうした不確実性を考慮した慎重な運用が求められる。

### (5) まとめ

本研究のリスク評価によれば、東・東南アジアにおける近年の硫黄・窒素沈着量は酸性化の広範なリスク(臨界負荷量超過)をもたらすほどでないが、多くの国で富栄養化のリスクをもたらすレベルであった。また、1980年代以降も高リスク地域が面積的に拡大していることが明らかとなった。特に東南アジアの一部における高い富栄養化リスクの存在はこれまでに報告がなく、更なる実態とメカニズムの解明が必要と考え

られる。今後、本研究で得られた知見を用い、例えば臨界負荷量超過をゼロにするための定量的な排出規制等を、国際的な枠組みの中で進めていくことが期待される。

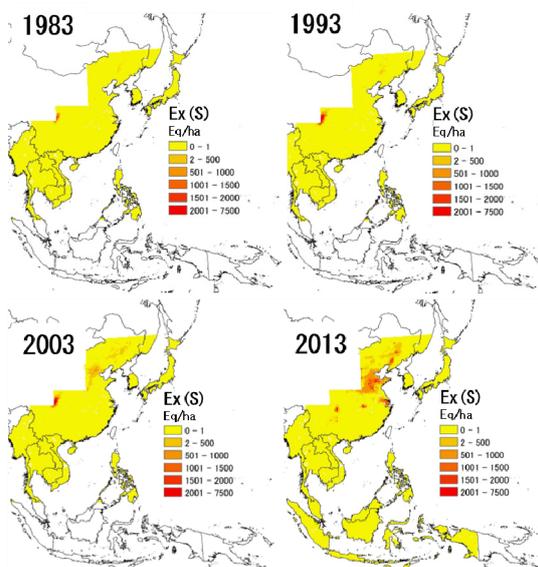


図3 酸性化の臨界負荷量超過(Ex(S))の経時変化

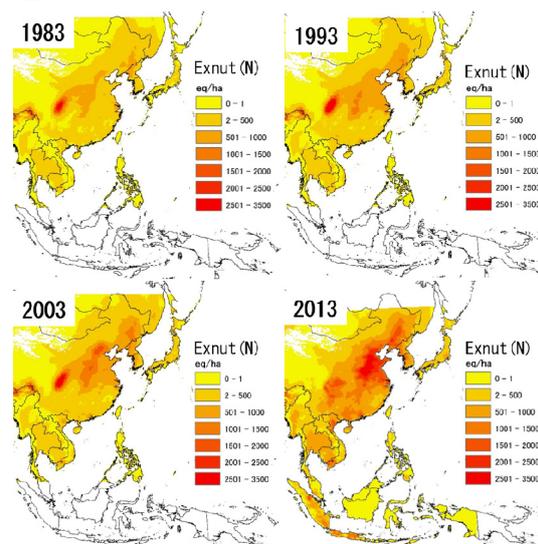


図4 富栄養化の臨界負荷量超過(Ex<sub>nut</sub>(N))の経時変化

### 〈引用文献〉

- 1) UBA 2004 Manual on methodologies and criteria for Modelling and Mapping Critical Loads & Levels and Air Pollution Effects, Risks and Trends.
- 2) Reinds G. J. et al. 2008 Critical Loads of Sulphur and Nitrogen for Terrestrial Ecosystems in Europe and Northern Asia Using Different Soil Chemical Criteria. Water, Air, Soil Pollut. 193, 269-287.
- 3) Kurokawa J. et al. 2009 Influence of meteorological variability on inter annual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during

1981 - 2005. Atmos. Chem. Phys. 9, 6287-6304.

- 4) Morino, Y. et al. 2011 Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008. J. Geophys. Res. 116, D06307.
- 5) Kuribayashi M. et al. 2012 Long-term trends of sulfur deposition in East Asia during 1981-2005. Atmos. Environ. 59, 461-475.
- 6) 茶谷ら 2011 三次元大気シミュレーションによる2005年度日本三大都市圏PM<sub>2.5</sub>濃度に対する国内発生源・越境輸送の感度解析 大気環境学会誌 46 101-108

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計1件)

- ① Yamashita Naoyuki, Sase Hiroyuki, OHIZUMI Tsuyoshi, Kurokawa Junichi, Ohara Toshimasa, Morino Yu, Kuribayashi Masatoshi, Ohta Seiichi, Kaneko Shinji, Hayashi Kentaro, Fukuhara Haruo, Hakamata Tomoyuki, Mapping the relative risk of surface water acidification based on cumulative acid deposition over the past 25 years in Japan, Journal of Forest Research, 査読有, vol. 21, 2016, DOI:10.1007/s10310-016-0523-8

〔学会発表〕(計3件)

- ① 山下尚之、佐瀬裕之、黒川純一、森野悠、栗林正俊、大原利眞、東アジアの陸域生態系における硫黄・窒素の臨界負荷量マップ、第57回大気環境学会年会、2016年9月7日～9日、北海道大学工学部(北海道札幌市)
- ② 山下尚之、佐瀬裕之、黒川純一、森野悠、栗林正俊、大原利眞、硫黄・窒素沈着による森林生態系影響の全国評価ー臨界負荷量を用いた推定ー 第127回日本森林学会大会、2016年3月27日～30日、日本大学生物資源科学部(神奈川県藤沢市)
- ③ Yamashita Naoyuki, Sase Hiroyuki, Kurokawa Junichi, Morino Yu, Kuribayashi Masatoshi, Ohara Toshimasa, Critical loads exceedance and relative risk maps based on the simulated S and N depositions over the past 25 years in Japan, Acid rain 2015 国際学会、2015年10月19日～23日、ニューヨーク州ロチェスター(アメリカ合衆国)

〔図書〕(計2件)

- ① Wilfredo M. Carandang, Sase Hiroyuki, Elizabeth Philip, Shindo Junko, Yamashita Naoyuki, Saito Tatsuyoshi,

Network center of EANET, The Third Periodic Report on the State of Acid Deposition in East Asia, p174-p205

- ② 山下尚之、国立研究開発法人森林総合研究所、大気から森林の渓流水への汚染リスクを評価するー越境大気汚染を考慮した広域評価ー、季刊森林総研 36、p20-p21

〔その他〕

ホームページ等

<https://www.ffpri.affrc.go.jp/research/saizensen/2016/20160607-03.html>

国際会合での研究紹介

Yamashita Naoyuki, Identification of the areas susceptible to acid deposition, EANET(東アジア酸性雨モニタリングネットワーク)科学者諮問会合、2016年10月23日～27日、バンコク(タイ王国)

ワークショップ等

- ① 山下尚之、佐瀬裕之、黒川純一、森野悠、栗林正俊、大原利眞、東アジアの陸域生態系を対象とした大気汚染リスク評価の広域マッピング、森林生態系の生物・環境モニタリング第11回ワークショップ、2017年3月15日、銀座ビジネスセンター(東京都中央区)
- ② 永島達也、清水英幸、青野光子、山下尚之、森野悠、谷本浩志、高見昭憲、観測とモデルの連携による東アジア越境大気汚染の総合的研究、日本学術会議 公開シンポジウム「越境大気汚染と酸性雨ー現場から将来予測までー」2016年11月8日、日本学術会議講堂(東京都港区)
- ③ 山下尚之、佐瀬裕之、黒川純一、森野悠、栗林正俊、大原利眞、オゾン・酸性沈着・N沈着による森林への複合影響を考慮した要監視地域抽出の試み 山地森林域の生物・環境モニタリング第10回ワークショップ、2016年3月14日～15日、新潟市万代市民会館(新潟市中央区)
- ④ 永島達也、清水英幸、青野光子、山下尚之、森野悠、谷本浩志、高見昭憲、観測とモデルの連携による東アジア越境大気汚染の総合的研究、山地森林域の生物・環境モニタリング第10回ワークショップ、2016年3月14日～15日、新潟市万代市民会館(新潟市中央区)

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

山下 尚之 (Yamashita, Naoyuki)

国立研究開発法人森林総合研究所・立地環境研究領域・主任研究員

研究者番号：30537345