

令和 5 年 5 月 16 日現在

機関番号：32663

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K12150

研究課題名(和文)放射性ガスを用いた大気-土壌間における反応性窒素の放出・拡散・沈着過程の解析

研究課題名(英文) Analysis of emission, diffusion and deposition processes of reactive nitrogen between soil and atmosphere using radioactive gases

研究代表者

反町 篤行 (Sorimachi, Atsuyuki)

東洋大学・理工学部・教授

研究者番号：60466050

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、ラドンを用いて大気-土壌(林床)間における反応性窒素(アンモニア、一酸化窒素)の放出・拡散・沈着過程を解明することを目的とした。スギ・コナラ混合林に設置された観測鉄塔において鉛直濃度分布観測が実施された。アンモニアの1週間観測結果から、着葉期と落葉期ともに林床からの放出現象が確認されたが、森林樹冠からの放出には影響しないことが示唆された。一酸化窒素の昼夜別の結果では、着葉期と落葉期ともにほとんど林床付近からの放出傾向であった。ラドンの観測結果から、林床付近の物質移動が森林-林床間の物質交換の律速となる傾向が確認され、林床付近で濃度が高くなる要因に寄与している可能性が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では、森林における反応性窒素(アンモニア、一酸化窒素)の動態を理解するため、鉛直濃度分布観測を行い、林床付近の高濃度化や森林樹冠への林床付近の反応性窒素の影響について見出した。反応性窒素は生態系において過剰窒素に伴う富栄養化に影響するとともに、粒子生成にも寄与するため大気汚染や気候変動にも影響する可能性がある。そのため、本研究結果は学術的意義や社会的意義は高い。

研究成果の概要(英文)：The purpose of this study was to elucidate the release, diffusion and deposition processes of reactive nitrogen (ammonia and nitric oxide) between air and soil (forest floor) using radon. Vertical distribution observation was carried out at an observation tower installed in a Japanese cedar-conara mixed forest. Ammonia release from the forest floor was observed during both leaf-set and defoliation periods, but it was suggested that ammonia release from the forest canopy was not affected. The day and night results for nitric oxide showed that most of the nitrogen monoxide was released from the forest floor during both the leaf-set and leaf-shed periods. Observation results of radon confirmed that radon near the forest floor tends to be rate-limiting for material exchange between the forest and the forest floor, suggesting the possibility that it contributes to the factors that increase radon concentrations near the forest floor.

研究分野：大気環境科学

キーワード：ラドン

### 1. 研究開始当初の背景

大気環境への反応性窒素(窒素(N<sub>2</sub>)を除く反応性の窒素化合物の総称)の主な供給源は人間活動に伴う化石燃料燃焼、家畜廃棄物、土壌からの放出である。反応性窒素は生態系において過剰窒素に伴う富栄養化に影響するとともに、粒子生成にも寄与するため大気汚染(PM<sub>2.5</sub>など)や気候変動(太陽放射の散乱、吸収による直接効果、雲凝結核としての作用による間接効果)にも影響する可能性がある。大気環境へ放出された反応性窒素は最終的には地表面へ沈着、吸収されるが、湿性沈着および乾性沈着が主な経路である。特に、わが国では国土の約7割を占める森林への沈着・吸収過程が重要であるが、森林における反応性窒素の沈着・吸収メカニズムが科学的に立証された例はほとんどない。

申請者らは、東京西部郊外に位置する東京農工大学研究林施設フィールドミュージアム多摩丘陵(FM多摩丘陵)における粒子成分の鉛直濃度分布観測から、半揮発性である硝酸アンモニウム粒子が不揮発性の硫酸アンモニウム粒子に比べて沈着速度が大きいことを発見し、それは樹冠および林床の沈着面直近でガス化することに起因する可能性がある(山崎ら、大気環境学会誌、2015)。また、エアロゾル粒子の乾性沈着フラックスを定量的に直接測定が可能な手法(緩和渦集積(REA)法)の開発に成功した(Matsuda et al., Atmos. Environ., 2015; 坂本ら、大気環境学会誌、2018)。このシステムを用いて、アンモニアガスの双方向交換フラックスを発見したが、観測値と欧米で開発されたモデルによる推定値とは乖離があった。そのため、林床付近での反応性窒素の大気環境動態を解明する必要がある、未開拓の研究領域である、土壌からの反応性窒素のフラックスおよび大気-土壌(林床)の移動速度、樹冠におけるフラックスを測定し、これまでに得た成果と有機的につなげる。

### 2. 研究の目的

本研究課題の目的は大気-森林における反応性窒素の沈着・吸収メカニズムを科学的に立証するため、大気-土壌(林床)間における反応性窒素の放出・拡散・沈着過程を解明することとした。しかし、反応性窒素は反応性が高く、大気中での移動過程においてガス-粒子変換反応や酸化反応、沈着面への吸収・吸着反応などが起こるため、定量的な物質移動に関する評価は難しい。そこで、化学的に不活性である放射性ガスであるラドンを用いることにより定量的な評価を行った。

### 3. 研究の方法

本研究では、全球的な窒素沈着量への寄与が大きい反応性窒素であるアンモニア(NH<sub>3</sub>)と一酸化窒素(NO)を対象とし、これらの物質が日本の陸域の代表的な沈着面である森林における放出・拡散・沈着過程に着目する。本研究は東京西部郊外に位置する東京農工大学FM多摩丘陵のスギ・コナラ混合林(樹冠高度:約20m)に設置された観測鉄塔において実施された(図1)。

#### (1) ラドンをを用いた移動速度測定

観測は2020年8~9月(着葉期)に実施された。ガス交換速度 $k$ ( $\text{cm s}^{-1}$ )は大気中ラドン濃度( $\text{Bq m}^{-3}$ )の鉛直分布と土壌からのラドン散逸率( $\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ )から算出された(Trumbore et al., J. Geophys. Res. 1990; Ussler et al., J. Geophys. Res. 1994)。大気中ラドンの鉛直濃度分布は、6高度(0.1、1、6、10、20、30m)10分間隔でサンプリング流路を切り替えて測定された(図2a)。大気中ラドン濃度は電離箱法により1分間隔で測定された。一方、土壌からのラドン散逸率はチャンパー法により測定された(図2b)。チャンパー法ではラドン濃度は静電捕集型シリコン半導体検出器により10分間隔で測定された。土壌から散逸したラドン濃度の評価として、2020年および2021年8~9月において



図1. 観測で用いた観測鉄塔.

ポンプを用いるアクティブ型測定器(静電捕集型シリコン半導体検出器)とポンプを用いないパッシブ型測定器(Si半導体検出器)から得られた濃度を比較し、濃度および経時変化が同様であることを確認した。森林での表面抵抗 $R_c$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )は次式から算出された: $k = 1/R = 1/(R_a + R_b + R_c)$ 。ここで、 $R$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )は全抵抗で、 $R_a$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )と $R_b$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )はそれぞれ空気力学抵抗と準層流抵抗であり、気象データなどから算出された。林床における輸送抵抗 $R_s$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )は、林床から高度0.1mと1mの大気中ラドンの濃度差と土壌からのラドン散逸率から林床におけるガス交換速度 $k'$ ( $\text{cm s}^{-1}$ )を算出し、次式から算出された: $k' = 1/R_s$ 。

(a)



(b)



図2. (a)ラドン鉛直濃度分布測定システムと(b)土壌からのラドン散逸率測定チャンバー.

### (2) NH<sub>3</sub>鉛直濃度分布測定

観測は2020年9月~2021年7月に原則1週間ごとの連続サンプリングを行った。大気中のNH<sub>3</sub>に関しては、樹冠上(30m)および林床(2mと0.2m)の3高度で鉛直濃度分布の測定を行った。NH<sub>3</sub>はアーティファクトが少ない、リン酸水溶液を塗布したデニューダを用いたデニューダ・フィルターパック法を用いて捕集された(図3)。捕集後、NH<sub>3</sub>濃度はデニューダを超純水で抽出し、抽出液をイオンクロマトグラフィーにより定量された。

### (3) NOおよびオゾン(O<sub>3</sub>)鉛直濃度分布測定

2021年9月(着葉期)および2022年3月~4月(落葉期)にNOとO<sub>3</sub>の鉛直濃度プロファイル測定を行った。測定高度は、30、20、10、6、1、0.1mの6高度である(図4)。バルブを用いて測定高度を切り替え、1高度10分間、1サイクル60分の条件で測定した。NOおよびO<sub>3</sub>濃度は、それぞれ化学発光法による窒素酸化物測定装置および紫外吸収法によるオゾン測定装置を用いて測定された。



図3. 大気中NH<sub>3</sub>捕集用デニューダ・フィルターパックシステム(右側).

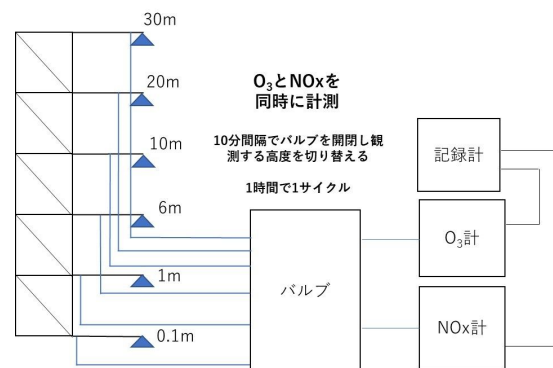


図4. 観測鉄塔におけるNOとO<sub>3</sub>の鉛直濃度分布測定システム(田野岡ら, 日本気象学会2022年全国大会講演要旨集, 2020).

## 4. 研究成果

### (1) ラドンをを用いた移動速度測定

大気中ラドン濃度の鉛直分布では、ラドンの発生源である地表面(土壌)付近(0.1m)で最も高くなった(反町ら, 第62回大気環境学会年会講演要旨集, 2021; 2022)。平均的な傾向として、ラドン濃度は高度0.1mから3mまでに指数関数的に減少し、高度3mから30mまではほとんど濃度変化は観測されなかった。森林におけるガス交換速度kの平均値は(±標準偏差)は、 $0.20 \pm 0.26 \text{ cm s}^{-1}$ であり、文献値(Ussler et al., J. Geophys. Res., 1994)と同様なレベルであった(表1)。

Rcは観測期間において大きな変動を示した。表面抵抗Rcの算出では、化学的に不活性であるラドンをを用いている。そのため、Rcに寄与する過程は主に森林下部における輸送抵抗Racであることが推察された( $Rc = Rac$ )。本研究で観測されたRcの値( $8.0 \pm 7.6 \text{ s cm}^{-1}$ )は、これまで乾性沈着のパラメータ化で使用されているRacの値(Wesely, Atmos. Environ., 2007)と同様なレベルであった。一方、林床におけるRsの値は、 $22 \pm 13 \text{ s cm}^{-1}$ であった。RcとRsの値は、夜間において大きくなり、日中に低くなる傾向を示した(表1)。RcとRsの値から、森林下部から林床における輸送過程では、林床付近の物質移動が律速となる可能性が示唆された。

表 1. 観測期間における交換速度および各抵抗の測定値 (6 時間平均値) (反町ら, 第 62 回大気環境学会年会講演要旨集, 2021) .

対象期間 <sup>1</sup>	交換速度 $k$ ( $\text{cm m}^{-1}$ )	$R_a + R_b$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )	$R_{ac}$ ( $\text{s cm}^{-1}$ )	$R_s$ ( $\text{s m}^{-1}$ )
昼間	0.17 (0.13)	0.44 (0.29)	9.2 (7.1)	19 (13)
夜間	0.23 (0.33)	0.28 (0.22)	9.5 (8.3)	25 (13)

平均値 (標準偏差). <sup>1</sup>昼間: 6:00-18:00, 夜間: 18:00-6:00.

### (2) NH<sub>3</sub>鉛直濃度分布測定

観測期間における平均 NH<sub>3</sub>濃度は、30 m、0.2 m、2 m の順で低くなった (松本ら, 第 62 回大気環境学会年会講演要旨集, 2021)。ほとんどの期間で、30 m の NH<sub>3</sub>濃度が林床に比べて高くなっていた。林床付近の 2 高度の勾配から、0.2 m の濃度が高くなり、NH<sub>3</sub>が放出している期間が確認された。放出現象は、落葉期に比較的多く現れていた。落葉期は土壌温度が低く、微生物活動の有機分解による NH<sub>3</sub>放出の可能性は低いと考えられる。そのため、観測された放出現象は沈着した NH<sub>3</sub>の再揮散や半揮発性物質である硝酸アンモニウム (NH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>) 粒子の揮発による可能性が示唆される。特に落葉期は湿度が低く、また林床に直接日射が当たることで林床温度が林上より高くなる傾向であるため上述した NH<sub>3</sub>の再揮散や半揮発性粒子の揮発は起こりやすい条件であった。また、林床付近での移動速度も寄与している可能性も考えられた。

このような林床付近の放出は 30 m の濃度が 2 m の濃度より高いことから、森林からの放出に寄与する可能性は低いことが推察される。同地点での林上におけるフラックス測定で、着葉期において NH<sub>3</sub>の放出が確認されているため (森岡ら, 第 61 回大気環境学会年会講演要旨集, 2020) その原因は樹冠部分からの発生および観測地点以外からの移流である可能性が示唆された。

### (3) NO および O<sub>3</sub>鉛直濃度分布測定

観測期間における着葉期と落葉期での昼間 (12:00) と夜間 (0:00) の NO との鉛直濃度分布をそれぞれ図 5a と b に示す (田野岡ら, 日本気象学会 2022 年全国大会講演要旨集, 2020)。

NO の鉛直濃度分布に関して、着葉期と落葉期ともに昼間の 30 m の NO 濃度は他の高度に比べて最も高かった。NO 濃度は高度の低下とともに林床付近まで減少し、0.1 m で濃度が増加した。夜間の NO 濃度は 30 m において最も低い値を示し、高度の低下にしたがって濃度が指数関数的に上昇し、0.1 m において最も高い濃度を示した。したがって、昼夜ともに土壌から NO が放出していることと、林床付近での移動速度が遅いため拡散による濃度の低下が起こりにくいことが示唆された。

O<sub>3</sub> の鉛直濃度分布に関して、着葉期と落葉期にかかわらず昼間と夜間ともに O<sub>3</sub> 濃度は 30 m で最も高く、高度が下がるにつれて指数関数的に低くなった。また、着葉期と落葉期とも昼間での O<sub>3</sub> 濃度は夜間よりも高く、昼間の光化学生成の寄与が影響している可能性がある。

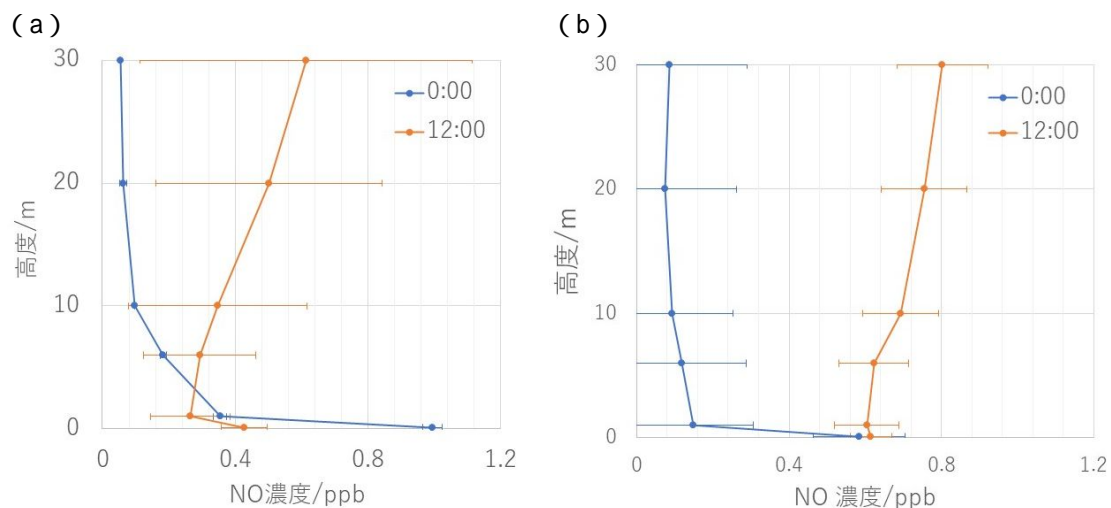


図 5. (a) 着葉期と (b) 落葉期における NO の鉛直濃度分布 (田野岡ら, 日本気象学会 2022 年全国大会講演要旨集, 2020) .

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計7件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 反町篤行, 松本涼太, 松田和秀, 高木健太郎
2. 発表標題 ラドンを用いた森林における大気 - 植生 - 土壌間のガス輸送観測
3. 学会等名 第28回大気環境学会北海道東北支部学術集会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 反町篤行, 松本涼太, 松田和秀
2. 発表標題 ラドンを用いた都市郊外の森林における大気 - 植生 - 土壌間のガス交換測定
3. 学会等名 第62回大気環境学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松本涼太, 武照杰, 徐懋, 佐瀬裕之, 反町篤行, 高木健太郎, 松田和秀
2. 発表標題 大気-森林間のNH3交換: 林上および林床における濃度勾配観測
3. 学会等名 第62回大気環境学会年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 反町篤行, 松本響子, 松田和秀
2. 発表標題 大気観測で用いるサンプリングチューブでのエアロゾル粒子の損失
3. 学会等名 第61回大気環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 反町篤行, 松田和秀, 高木健太郎
2. 発表標題 ラドンを用いた冷温帯林におけるガス交換速度の測定
3. 学会等名 第61回大気環境学会年会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 反町篤行, 松本涼太, 松田和秀, 高木健太郎
2. 発表標題 ラドンを用いた森林におけるガス交換測定
3. 学会等名 第63回大気環境学会年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松本涼太, 徐懋, 佐瀬裕之, 反町篤行, 松田和秀
2. 発表標題 大気 - 森林間におけるアンモニア交換: 林上および林床における濃度勾配観測(2)
3. 学会等名 第63回大気環境学会年会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担 者	松田 和秀  (Matsuda Kazuhide)  (50409520)	東京農工大学・農学部・教授    (12605)	

6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	和田 龍一  (Wada Ryuichi)  (90566803)	帝京科学大学・生命環境学部・教授     (33501)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関