

令和元年6月11日現在

機関番号：33501

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16K00520

研究課題名(和文) 渦相関法を用いたオゾンとNOxのフラックス計測手法の開発と森林観測への応用

研究課題名(英文) Development of analytical methods for the measurements of ozone and NOx fluxes and applications at a forest site

研究代表者

和田 龍一 (Wada, Ryuichi)

帝京科学大学・生命環境学部・准教授

研究者番号：90566803

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：2016年秋季に10日間、2018年夏季に12日間、レーザー分光計測装置を用いて、富士山麓森林にて渦相関法によるNO₂フラックスの計測を実施した。夜間の放出・吸収量はほぼゼロであった。一方晴天であった昼間にNO₂は、森林からの放出を示した。一般にNO₂は植物の気孔から吸収され、また葉に沈着することから森林には沈着すると考えられているが、本研究では異なる結果が得られた。今後データを積み重ねることから森林生態系からNO₂が放出される新たなプロセスが見出される可能性がある。

研究成果の学術的意義や社会的意義

大気環境に影響を及ぼす反応性窒素ガスの発生・沈着の時間変動とその要因の解明が遅れている。森林生態系は反応性窒素ガスの発生・沈着の時間変動の要因の一つと考えられるものの森林内部空間における窒素酸化物の動態に関する研究は少ない。これは森林生態系における反応性窒素ガスの濃度を高い時間分解能で正確に計測できる分析装置がほとんどないことが一因である。いままで難しかった渦相関法による窒素酸化物フラックス計測手法を確立したことで、森林内部の窒素酸化物の放出・吸収量の日変化・季節変化を、定量的に解明し、その変動要因を明らかにすることが期待できる。

研究成果の概要(英文)：We developed a direct measurement technique for NO₂ using a laser-based instrument. We then used the instrument to observe NO₂ flux in a forest at the foot of Mt. Fuji for 10 days during autumn 2016, and for 12 days during summer 2018. The NO₂ flux during the nighttime was close to zero; however the NO₂ flux during the daytime showed emissions from the forest. Generally, forest is thought to be NO₂ sinks, because NO₂ is absorbed by plants through their stomata and deposits on plant leaves. Our results indicate that it may be possible that there is another mechanism for NO₂ emissions from a forest.

研究分野：大気環境科学

キーワード：窒素酸化物 レーザー分光 森林 フラックス

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 窒素酸化物は、それ自身が大気汚染物質であり光化学スモッグなど大気環境に大きく影響を与える。また、大気中における主要な酸化剤の1つであるオゾン生成に関与し、大気酸化能に影響する。今後のさらなる大気環境の改善のためには、森林や都市といった様々な環境における NO_x や O_3 の発生・沈着量や吸収・化学反応による生成・消失過程に関してより正確な知見が必要である。森林には、水源の涵養、木材や食べ物などの生産機能など多様な役割があるとともに、温室効果気体である二酸化炭素 (CO_2) をはじめとして、様々な微量気体の放出源、吸収源でもある。日本の国土の70%を占める森林において窒素酸化物とオゾンの放出・吸収量を定量的に明らかにし、その変動要因と変動メカニズムの解明を行うことは、地球規模での窒素酸化物 (NO_x) とオゾン (O_3) の放出吸収源の理解、および国内での大気環境・森林環境の保全に必要である。

(2) しかしながら森林生態系における O_3 や NO_x といった微量気体の発生・沈着量の時間変動とその要因に関する知見は、非常に限られている。これは森林生態系における O_3 と NO_x の濃度は CO_2 濃度に比べて10,000分の1から1,000,000分の1と小さく、市販の分析装置では正確な計測が難しいことがその一因として挙げられる。

2. 研究の目的

(1) 市販の分析装置に比べて高時間分解、高感度という特徴を合わせ持つレーザー分光計測装置を用いて窒素酸化物のフラックス計測手法を開発する。開発した分析装置を用いて富士山麓森林にて二酸化窒素 (NO_2) のフラックス (放出吸収量) 計測を実施し、森林生態系からの NO_2 フラックスを明らかにする。

(2) 森林内部空間における O_3 と NO_x の高度毎の濃度 (濃度プロファイル) と生物学的仮定を含まないインバースモデルを用いることで、森林内部空間における高度毎の O_3 と NO_x の放出吸収量を定量的に解明し、知見の少なかった森林生態系内部空間の O_3 と NO_x の動態に関する知見を得る。

3. 研究の方法

(1) 2016年秋季に10日間、2018年夏季に12日間レーザー分光計測装置を用いて、富士山麓に位置する富士吉田アカマツ林微気象観測タワー (森林総合研究所/山梨県富士山科学研究所) にて渦相関法による NO_2 フラックス計測を実施した。

(2) 渦相関法による NO のフラックス計測が可能で、レーザー分光法の原理を用いた計測装置を検討し、2019年1月10日から28日の期間、帝京科学大学東京西キャンパスにて実証試験を行った。本装置は2台の NO_2 レーザー分光計測装置を用い、1台のレーザー分光計測装置の大気試料にオゾンを追加することで、 NO を NO_2 へと酸化し、 NO_x ($\text{NO} + \text{NO}_2$) として測定を行うものである。もう1台のレーザー分光計測装置で NO_2 濃度を測定し、 NO_x 濃度から NO_2 濃度を差し引くことで NO 濃度を得た。

(3) 2012年に取得した O_3 と NO の濃度プロファイルと微気象データを用いて、富士山麓森林の内部空間における O_3 と NO の高度毎の放出吸収量の推定をモデル計算により実施した。

4. 研究成果

(1) 富士山麓森林における NO_2 放出吸収量 (フラックス) の観測結果を図1に示す。 NO_2 の夜間の放出吸収量はほぼゼロであったが、 NO_2 は晴天の昼間放出を示した。日射量が少なく、雨が降っている昼間は、 NO_2 放出は認められなかった。同時に計測した NO_2 濃度は、昼間、樹冠上に比べて樹冠内で高く、 NO_2 の森林内部から森林外への放出を支持した。一般に NO_2 は植物の気孔から吸収され、また葉に沈着することから森林生態系はシンクと考えられているが、本研究では異なる結果が得られ

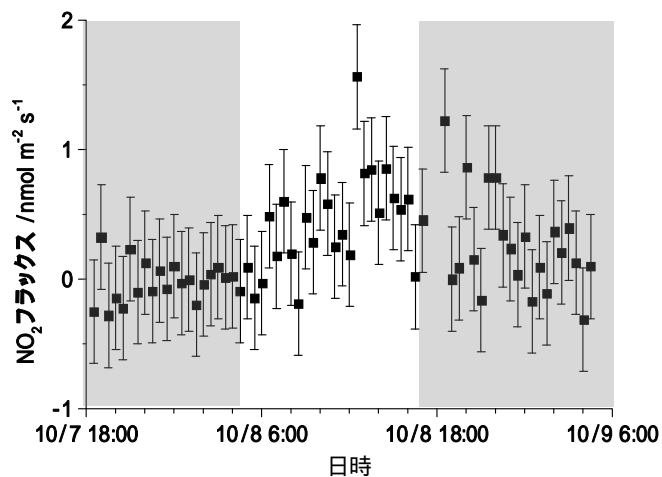


図1. 2016年に富士山麓森林 (アカマツ林) にて観測した NO_2 フラックス (放出吸収量)。夜間はほぼゼロだが NO_2 は昼間森林からの放出を示した。

た．今後観測データを積み重ねることで森林生態系から NO_2 が放出される新たなプロセスが見出される可能性がある．

(2) 2 台の NO_2 レーザー分光計を用いた新たな NO 計測手法を検討した．2 台の NO_2 レーザー分光計測装置を用いて測定した NO_2 濃度の相関プロットの近似直線の傾きは 1.09, 切片は -0.01 ppb, 相関係数は 0.96 を示した．2 台のレーザー分光計測装置による NO_2 濃度計測値は, よく一致することを確認した．新たに開発した装置を用いて大気中の NO 濃度測定を行った．計測を開始した 2019 年 1 月 26 日 17:00 から 1 月 27 日 17:00 ごろまで NO 濃度は市販の分析装置とよく一致したが, 1 月 27 日 17:00 以降, レーザー分光計測装置による NO 濃度は, 市販の分析装置とずれが生じた．これは 2 台のレーザー分光計測装置が別々に用いているレーザー光の, 微妙な出力や波長が変化したために生じた可能性が考えられた．単一のレーザー光を共通光源として用いることで正確な NO 濃度を得られると考えられる．今後 NO , NO_2 フラックスの同時計測装置を開発し, 開発した装置を用いて森林生態系における NO と NO_2 のフラックス計測を実施する．

(3) 富士山麓森林にて 2012 年夏季に取得した高度毎の O_3 濃度, NO_x 濃度と微気象データを用いてモデル計算を実施し, 森林内部空間の特徴的な部位(樹冠部, 枝下部, 林床部)における放出吸収量を推定した．特徴的な部位の放出吸収量と合わせて, 28 m(樹冠上), 16 m(樹冠), 10 m(枝下), 2 m(林床)における昼間の O_3 濃度と NO 濃度を図 2 に示す． O_3 濃度および NO 濃度はともに樹冠上で高く, 森林内部で高度が下がるにつれて濃度が低くなるプロファイルを示した． O_3 濃度は 10 m から 2 m にかけて大きく減少したのに対して, NO 濃度は 28 m から 16 m にて大きく減少した．これらの違いは O_3 と NO の森林内の異なる部位における沈着放出特性の違いに起因していると考えられる． O_3 は林床部と樹冠部に沈着した．林床部は樹冠部に比べて約 2 倍の O_3 が沈着しており, 森林生態系において O_3 の動態を理解するのに, 林床が重要な役割を果たしていることが分かった．一方 NO は O_3 と異なる放出吸収の様子を示し, 枝下部にて大きな沈着を示すことが明らかとなった．

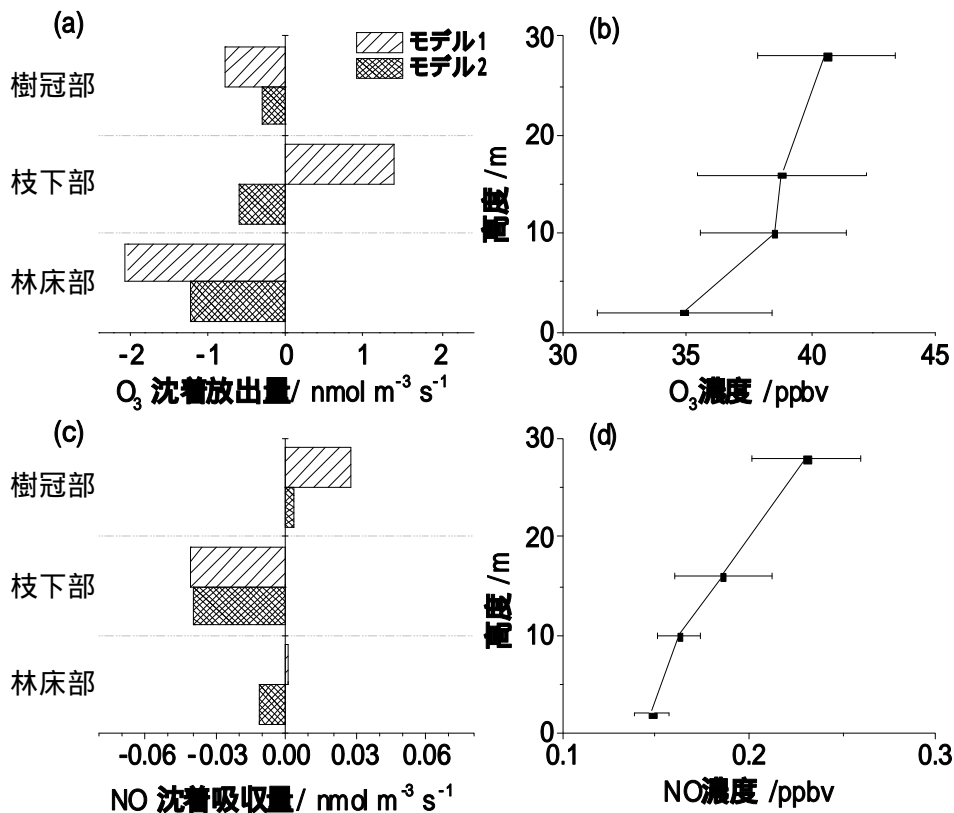


図 2. (a) O_3 と (c) NO の樹冠部, 枝下部, 林床部からの放出吸収量のモデル計算結果, および (b) O_3 と (d) NO の高度毎の濃度．ここで 2 m, 10 m, 16 m, 28 m はそれぞれ林床部, 枝支部, 樹冠部, 樹冠上の高さに対応する．

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

R. Wada, Y. Sadanaga, S. Kato, N. Katsumi, H. Okochi, Y. Iwamoto, K. Miura, H. Kobayashi, M. Kamogawa, J. Matsumoto, S. Yonemura, Y. Matsumi, M. Kajino, S. Hatakeyama, 2019.

Ground-based observation of lightning-induced nitrogen oxides at a mountaintop in free troposphere, *Journal of Atmospheric Chemistry*, **76**, 133-150. doi:10.1007/s10874-019-09391-4.

和田龍一, 定永靖宗, 加藤俊吾, 勝見尚也, 大河内博, 岩本洋子, 三浦和彦, 小林拓, 鴨川仁, 松本淳, 米村正一郎, 松見豊, 梶野瑞王, 畠山史郎, 2018. NO_x 酸化物質(NO₂) 計測手法の開発と山岳地域における実大気への応用, *分析化学*, **67**, 333-340 .

R. Wada, Y. Matsumi, T. Nakayama, T. Hiyama, Y. Fujiyoshi, N. Kurita, K. Muramoto, S. Takanashi, N. Kodama, 2017. Continuous measurements of stable isotopes of carbon dioxide and water vapour in an urban atmosphere: isotopic variations associated with meteorological conditions, *Isot. Environ. Health Stud.* **53**, 646-659.

和田龍一, 神林 学, 高梨 聡, 深山貴文, 中野隆志, 谷 晃, 米村正一郎, 松見 豊, 2016, 山岳道路車両規制が与える大気汚染物質-濃度への影響と近隣森林内大気への影響の解明, *富士山研究*, **10**, 1-7.

〔学会発表〕(計 18 件)

R. Wada, M. Ueyama, A. Tani, T. Mochizuki, Y. Miyazaki, K. Kawamura, Y. Takahashi, N. Saigusa, S. Takanashi, T. Miyama, T. Nakano, S. Yonemura, Y. Matsumi, G. Katata, Observation of vertical profiles of NO_x, O₃, and VOCs to estimate their sources and sinks by inverse modelling in a Japanese larch forest. International Symposium on Agricultural Meteorology. 2019. 3. 27-29. Shizuoka, Japan.

常木 大樹, 和田 龍一, 米村 正一郎 富士山土壌から放出される CO₂およびNO の測定. 第 20 回富士山セミナー, 2018 年 12 月 9 日, 富士吉田市(山梨県富士山科学研究所)p12.

奥野佳司, 和田龍一, 松見豊, 高梨聡, 深山貴文, 望月智貴, 谷 晃, 米村正一郎, 植山雅仁, 高木健太郎, 堅田元喜, 中野隆志, 反町篤行 レーザー誘起蛍光法を用いた森林生態系における NO₂フラックスの計測 日本農業気象学会北陸支部関東支部 2018 年度合同例会, 2018 年 11 月 9 日, 松本市 (信州大学), p14.

和田龍一 光を用いた森林における窒素酸化物計測技術の研究. 農業・工業原材料生産と光技術研究会 2018 年 10 月 16 日, 浜松市 (ホテルクラウンパレス浜松)

和田龍一, 松見豊, 高梨聡, 深山貴文, 望月智貴, 谷 晃, 米村正一郎, 植山雅仁, 高木健太郎, 宮崎雄三, 堅田元喜, 中野隆志, 反町篤行 オゾンと二酸化窒素のフラックス計測手法の開発と森林生態系における応用. 第 59 回大気環境学会年会, 2018 年 9 月 12 日-2018 年 9 月 14 日, 春日市 (九州大学), p273.

Ryuichi Wada, Yasuhiro Sadanaga, Shungo Kato, Naoya Katsumi, Hiroshi Okochi, Yoko Iwamoto, Kazuhiko Miura, Hiroshi Kobayashi, Masashi Kamogawa, Jun Matsumoto, Seiichiro Yonemura, Yutaka Matsumi, Mizuo Kajino, Shiro Hatakeyama, Direct ground-based observation of lightning-induced nitrogen oxides in the free troposphere, 2018 joint 14th iCACGP Quadrennial Symposium and 15th IGAC Science Conference. 2018. 9. 25-29. Takamatsu, Japan.

- 伊藤淳平, 和田龍一, 高梨聡, 深山貴文, 岡野通明, 中野隆志, 望月智貴, 谷 晃, 米村正一郎, 高木健太郎, 松見豊, 植山雅仁, 宮崎雄三 富士山麓森林におけるオゾンフラックスの通年観測. 日本地球惑星科学連合 連合大会 2018, 2018年5月23日, 幕張市(幕張メッセ)
- 丸山拓哉, 和田龍一, 中野隆志 富士スバルライン沿道における毎木調査. 第19回富士山セミナー, 2017年12月2日, 富士吉田市(山梨県富士山科学研究所) p9.
- 和田龍一, 松見豊, 高梨聡, 深山貴文, 谷 晃, 米村正一郎, 植山雅仁 富士山麓森林における二酸化窒素のフラックス算出に関する検討. 2017生物地球化学研究会現地セッション, 2017年11月10日-12日, 富士河口湖 p16.
- Ryuichi Wada, Yasuhiro Sadanaga, Shungo Kato, Naoya Katsumi, Hiroshi Okochi, Yoko Iwamoto, Kazuhiko Miura, Hiroshi Kobayashi, Hitoshi Kamogawa, Jun Matsumoto, Seiichiro Yonemura. NO_y measurements at the top of Mt. Fuji. 2017 Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites (ACPM 2017). 2017.11.7-10, Tokinosumika, Gotemba, Japan.
- 和田龍一, 定永靖宗, 加藤俊吾, 勝見尚也, 大河内博, 岩本洋子, 三浦和彦, 小林拓, 鴨川仁, 松本淳, 米村正一郎, 松見豊 富士山頂における窒素酸化物濃度の変動とその要因の解明. 第23回大気化学討論会, 2017年10月2日-4日, 高松(サンポートホール高松) p79.
- 和田龍一, 松見豊, 中山智喜, 米村正一郎, 谷 晃, 中野隆志, 加藤俊吾 山岳道路沿道における窒素酸化物濃度と変動要因の解明. 第58回大気環境学会年会, 2017年9月6日-2017年9月8日, 神戸市(兵庫医療大学), p485.
- 杉山薫, 和田龍一, 高梨聡, 深山貴文, 中野隆志, 望月智貴, 谷 晃, 米村正一郎, 高木健太郎, 松見豊, 植山雅仁, 宮崎雄三 富士山麓森林におけるオゾンフラックスの通年観測. 日本地球惑星科学連合 連合大会 2017, 2017年5月24日, 幕張市(幕張メッセ)
- 吉田清重, 滝沢麻緒, 和田龍一, 車裕輝, 中山智喜, 鶴丸央, 坂本陽介, 梶井克純, 定永靖宗, 中嶋吉弘, 松田和秀, 加藤俊吾, 松見豊 レーザー誘起蛍光法を用いたNO計測手法検討と野外計測への適用. 平成28年度日本化学会関東支部群馬地区研究交流発表会, 2016年12月13日, 高崎市(量子科学技術研究開発機構 高崎量子応用研究所) p84.
- 丸山拓哉, 谷口正浩, 鈴木聖人, 和田龍一 富士山頂におけるNO_yの計測. 第18回富士山セミナー, 2016年12月10日, 富士吉田市(山梨県富士山科学研究所) p13.
- 和田龍一, 松見豊, 高梨聡, 深山貴文, 中野隆志, 望月智貴, 谷 晃, 米村正一郎, 植山雅仁, 宮崎雄三 富士山麓森林におけるオゾンと窒素酸化物フラックス計測の検討. 第22回大気化学討論会, 2016年10月12日-2016年10月14日, 札幌市(北海道大学) p3.
- 和田龍一, 定永靖宗, 加藤俊吾, 勝見尚也, 大河内博, 岩本洋子, 三浦和彦, 小林拓, 鴨川仁, 松本淳, 米村正一郎, 富士山頂におけるNO_y濃度の変動とその要因の解明. 第57回大気環境学会年会, 2016年9月7日-2016年9月9日, 札幌市(北海道大学), p391.
- 熊谷凌太, 和田龍一, 高梨聡, 深山貴文, 中野隆志, 谷 晃, 米村正一郎, 富士山麓アカマツ林におけるオゾンフラックス. 日本地球惑星科学連合 連合大会 2016, 2016年5月

22 日, 幕張市 (幕張メッセ)

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.ntu.ac.jp/research/kyoin/seimei/kankyo/wada.html>

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：松見豊

ローマ字氏名：(MATSUMI, yutaka)

所属研究機関名：名古屋大学

部局名：宇宙地球環境研究所

職名：教授

研究者番号 (8 桁)：30209605

(2)研究協力者

研究協力者氏名：高梨聡

ローマ字氏名：(TAKANASHI, satoru)

研究協力者氏名：深山貴文

ローマ字氏名：(MIYAMA, takafumi)

研究協力者氏名：谷 晃

ローマ字氏名：(TANI, akira)

研究協力者氏名：米村正一郎

ローマ字氏名：(YONEMURA, seiichiro)

研究協力者氏名：植山雅仁

ローマ字氏名：(UEYAMA, masahito)