

デニューダ・緩和渦集積法を用いた乾性沈着直接測定による
森林におけるガス状および粒子状反応性窒素の沈着速度

16536006 坂本 泰一
(指導教員: 松田 和秀)

【はじめに】

大気中の反応性窒素が地表へ過剰に沈着することで、生態系に様々な影響を与える可能性があり、その影響を評価するために沈着量の正確な把握が求められている。しかしながら、反応性窒素成分の乾性沈着量を推定するための沈着速度抵抗モデルの予測精度は、特に森林表面において不確実性が大きく、乾性沈着直接測定による沈着速度の知見の蓄積が求められている。先行研究（本庄ら, 2016）において、緩和渦集積（REA: relaxed eddy accumulation）法による PM_{2.5} 成分の乾性沈着直接測定の結果、森林において、SO₄²⁻より NO₃⁻の沈着速度の方が大きい傾向があり、樹冠上部における気温の上昇に伴って NH₄NO₃ 粒子が沈着面近傍で HNO₃ にガス化し、効率よく沈着する沈着促進メカニズムが存在し得ることを示唆した。しかしながら、当該先行研究において、NO₃⁻沈着速度の測定精度の向上と、HNO₃ の沈着速度を同時測定する必要性があるという課題を残した。本研究は、本庄ら（2016）より高い精度で PM_{2.5} 成分の沈着速度を得ることに加えて、乾性沈着への寄与が大きい他の反応性窒素（HNO₃、NH₃ および PM_{2.5} 中の NH₄⁺）の沈着速度の知見を得ることを目的とし、REA 法にもとづく乾性沈着直接測定を実施した。

【方法】

REA 法は鉛直風の上下別に対象物質を分けて捕集・集積し、その濃度差から鉛直方向フラックスを決定する直接測定法である。REA 測定システムの捕集部に HNO₃ 捕集用のデニューダ管を導入することにより、フィルター上での NH₄NO₃ の揮発誤差を排除して測定精度を向上させるとともに、HNO₃ のフラックス測定を可能にした。当該システムを FM 多摩丘陵の森林に設置された観測鉄塔の 30m に設置し、2016 年 10~12 月（観測①）および 2017 年 9~11 月（観測②）に、サンプリング時間 1 週間の連続サンプリングを実施した。対象成分は、PM_{2.5} 中の SO₄²⁻、NO₃⁻、NH₄⁺ およびガス状の HNO₃、NH₃ とした。観測①

では、**REA** 法による測定と並行して林上から林内にかけて、対象成分の濃度勾配を測定した。また、同地点で観測された気象要素を入力データとして、抵抗モデルより沈着速度の理論値を求めた。さらに、対照地点として、2017年の夏季に北海道大学の天塩研究林に設置された観測鉄塔において、同様な濃度勾配測定を行った。

【結果と考察】

FM 多摩丘陵における観測から得られた沈着速度および林上 (30m) から林内 (8m) にかけての濃度減衰率を図に示す。本庄ら (2016) に比べて NO_3^- の沈着速度のばらつきが大幅に小さくなり、デニューダ法の導入により NO_3^- において沈着速度の測定誤差を大きく軽減できたと考えられた。 SO_4^{2-} より NO_3^- の沈着速度の方が大きい傾向があり、上記の NO_3^- の沈着促進メカニズムが働いていることを高精度の測定にもとづいて実証できた。一方、 HNO_3 の濃度減衰率が極めて大きいことが明らかとなり (図)、林内においては、気温が低く NH_4NO_3 粒子の揮発が抑制されることによる HNO_3 の供給低下と沈着による除去の両者の影響を受けた結果と考えられた。沈着速度の観測値とモデル計算値との比較を行った結果、 HNO_3 、 NO_3^- 、 NH_3 で観測値と理論値の顕著な差がみられた。これは抵抗モデルにおいて、上記の NO_3^- の沈着促進メカニズムと NH_3 の放出メカニズムが考慮されていないことによると考えられた。

冷温帯若齢林という条件の異なる天塩研究林での観測においても、FM 多摩丘陵で見出した高温の沈着面での NO_3^- の沈着促進メカニズム、および、低温、高湿度環境での当該メカニズムの抑制効果は整合し、これらは、森林における一般的な現象である可能性が示唆された。

【文献】本庄，高橋，松田：大気環境学会誌，51，257-265 (2016)

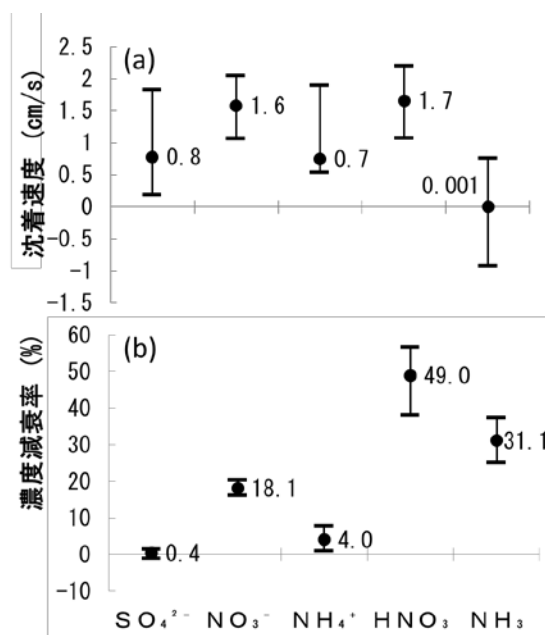


図 FM 多摩丘陵における(a)沈着速度および(b)濃度減衰率の分布 (中央値および 25~75 パーセンタイル区間)