

## 学 位 論 文 要 旨

### Mechanism of air-vegetated surface exchange of gaseous and particulate reactive nitrogen by flux measurements in a forest and an agricultural field

森林および農地におけるフラックス観測による  
ガス状および粒子状反応性窒素の大気-植生表面交換メカニズム

環境資源共生科学専攻 環境保全学大講座

徐 懋

18世紀中頃に始まった産業革命、その後20世紀初頭に確立されたハーバー・ボッシュ法を契機とする産業活動の拡大により、環境中に過剰な量の反応性窒素(Nr)が投入されてきた。これらのNrは、大気中でその形態を変化させながら広域に輸送され、最終的に地球表面へ沈着して環境の酸性化、富栄養化を引き起こし、窒素循環の攪乱により生態系にも深刻な影響を及ぼす。日本を含む東アジアは、世界のなかでも特に窒素沈着影響のリスクが高い地域であり、当該地域における窒素沈着量の正確な推計・評価が喫緊の課題である。沈着現象は主に乾性および湿性沈着の二つの過程があり、乾性沈着量の推計は湿性沈着量の推計よりもはるかに難しい。乾性沈着量を推計する簡易的な手法として乾性沈着推定法が広く用いられている。この手法は、理論的な数値モデル(抵抗モデル)から推計した沈着速度(物質の沈着のしやすさを表す指標)と実測した大気汚染物質の濃度の積から乾性沈着量を求めるものである。しかし、Nrの乾性沈着に大きく寄与するガス状の $\text{HNO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ および粒子状の $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ の沈着速度の推計は未だに不確実性が大きい。20世紀後半から欧米を中心に、これらNr成分の乾性沈着メカニズムの解明に向けて、様々な植生面における交換フラックス観測が行われてきたが、 $\text{NH}_4\text{NO}_3$ 、 $\text{NH}_3$ 、 $\text{HNO}_3$ は大気中で相互に作用しており、それが乾性沈着へ複雑な影響を及ぼすため、未解明な部分が多く残されている。特に $\text{NH}_3$ は大気から地表面へ沈着するだけでなく、植物の気孔や土壌を通して大気中に放出されるという双方向交換性を有しており、その動態は極めて複雑である。さらに、日本を含む東アジア地域における当該メカニズム解明のための観測およびモデル研究は欧米と比べ極めて少なく、窒素沈着

量の推計・評価の大きな妨げとなっている。以上の背景から、本研究では、当該地域における窒素沈着影響評価の精度向上に資することを目的として、日本の森林および農地において行ったフラックス観測をもとに、大気-植生表面交換メカニズムの研究を実施した。

FM 多摩丘陵（東京都八王子市）の森林で、着葉期（夏季・秋季）および落葉期（冬季）に、集中的に鉛直濃度プロファイル観測を実施した。その結果、PM<sub>2.5</sub>成分のなかで、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の森林内における濃度減衰率は季節・昼夜間にかかわらずSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>よりも大きいことが明らかとなった。この成分間差は特に着葉期において顕著であり、同期間ではNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度減衰率が比較的沈着しやすいガス状の二酸化硫黄に匹敵するケースもあった。同じ森林で長期的に行ったデニューダ・緩和渦集積法（REA法）を用いた交換フラックス観測においても、着葉期と落葉期にかかわらず、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の沈着速度は、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>よりも大きいだけでなく、反応性が高く沈着しやすいHNO<sub>3</sub>と同程度であった。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の大きな濃度減衰率および沈着速度は、半揮発性であるNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>粒子が、沈着面付近においてNH<sub>3</sub>とHNO<sub>3</sub>へガス化する平衡移動によって引き起こされた可能性が高いことが示唆された（粒子状SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は不揮発性）。日中では日射によって着葉期は樹冠付近、落葉期は林床付近で気温が最も高くなるため、これらの沈着面付近ではNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>粒子が揮発し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>がHNO<sub>3</sub>へガス化して急速に沈着することで、その沈着が促進されたと考えられた。さらに、HNO<sub>3</sub>の急速な除去は沈着面付近でHNO<sub>3</sub>濃度の急激な低下を引き起こし、昼夜間ともに上記のガスへの平衡移動を促進したと考えられた。同REA観測ではHNO<sub>3</sub>の森林からの放出が観測され、沈着速度は抵抗モデルによる理論値より小さかった。これらのHNO<sub>3</sub>の沈着の抑制および放出は、沈着面付近でのNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>の揮発により生成した一部のHNO<sub>3</sub>が完全には除去されず、乱流によって上向きへ移動したことが原因であると考えられた。

NH<sub>3</sub>は森林と農地において異なる挙動を示した。FM 多摩丘陵の森林における鉛直濃度プロファイル観測では、NH<sub>3</sub>は日中（夏季・冬季）に放出、夜間（夏季・秋季・冬季）に沈着傾向を示し、双方向交換に季節・日内変動が見られた。一方、FM 府中（東京都府中市）の農地で行ったREA法を用いた交換フラックス観測では、ダイズ成長期および休閑期にかかわらず、ほとんどの期間でNH<sub>3</sub>は沈着を示した。欧米で開発されたNH<sub>3</sub>双方向交換モデルを用いた推計では、森林・農地に関わらず、日中に大きな放出、夜間にわずかな放出・沈着を示し、観測結果をほとんど再現できなかった。モデル内のパラメーターや計算式、特にクチクラ抵抗の変更によって、観測結果とモデルの不一致はある程度改善され、日本の森林および農地において当該モデルを適用する際の示唆を得ることができた。

沈着過程におけるNH<sub>4</sub>NO<sub>3</sub>-NH<sub>3</sub>-HNO<sub>3</sub>の相互作用は、現在のモデルでは扱われていないため、より正確な窒素沈着量の推計・評価のためには、これらの現象の定量化・モデリングに焦点を当てた研究が今後必要となる。また、以上の結果に基づき、日本を含む東アジア地域独自のモデルを開発することで、当該地域におけるNr沈着に対する理解をより深められると考えられる。