

## 森林が光化学大気汚染に及ぼす影響

～熱および汚染物質収支の同時計測～

The influence of forest on the photochemical atmospheric pollution

神田 学\*、森脇 亮\*\*、岡南 強\*\*\*、小林 規矩夫\*\*\*\*

By Manabu KANDA, Ryo MORIWAKI, Tsuyoshi OKANAMI and Kikuo KOBAYASHI

The photochemical atmospheric pollution is a serious problem. Recently, it is said that biogenic hydrocarbons emitted from forests make some effects on the photochemical reactions, but it has not been confirmed because of the difficulty of measurement. We performed a field observation to estimate the balance of biogenic hydrocarbons, ozone and heat at a forest. The following results are obtained. 1)Ozone concentration over the forest is higher than that under the forest. 2)Biogenic hydrocarbons seems to be closely related to the ozone concentration through photochemical process 3)The forest acts as a sink of ozone as a whole, but its magnitude is smaller than the ground surface

### KEYWORDS:

Photochemical reaction, Biogenic hydrocarbon, ozone, forest, energy balance

## 1. はじめに

### 1. 1 森林は汚染物質のシンクかソースか？

自然環境に対する意識が高まると共に、森林などの植生が環境に与える影響が注目されている。森林は大気の熱・水循環に大きな影響を及ぼし気候緩和に役立つだけでなく、汚染物質を吸着する大気浄化作用があるとも言われている。また、森林が放出する非メタン系炭化水素（NMHC、いわゆるフィトンチッド）は強力な殺菌作用を有し、森林浴効果の原因物質であると考えられている。ところが近年、都心よりもむしろ郊外において高濃度の光化学スモッグが検出される“広域大気汚染”が問題化しており、このフィトンチッドが原因になっているのではないかと考えられている。光化学オキシダント（特にオゾン）は、窒素酸化物NO<sub>x</sub>と炭化水素により生成される<sup>1)</sup>。郊外でのオゾンの検出は、都市域で発生したNO<sub>x</sub>が長距離輸送され、森林域より放散されたフィトンチッドと光化学反応を起こすためではないかという疑いがある。森林は汚染物質のシンクになるどころか、光化学スモッグのソースになっているのではないだろうか？

### 1. 2 既存の研究と本研究の目的

森林内部での汚染物質濃度の測定例<sup>2)</sup>はいくつかある。フィトンチッドは微量なためその検出は難しいが

\* 正会員 工博 東京工業大学助教授 工学部開発システム工学科 (〒152 東京都目黒区大岡山2-12-1)

\*\* 学生会員 東京工業大学 工学部土木工学科

\*\*\* 学生会員 山梨大学 工学部環境工学科第2講座 (〒400 山梨県甲府市武田4-3-11)

\*\*\*\* 山梨県衛生公害研究所 (〒400 山梨県甲府市富士見1-7-31)

Yokouchiら<sup>3)</sup>はGC-MS法を用いた最新の化学分析により、各種フィトンチッド濃度の定性・定量に成功している。しかしながら、いずれの研究も森林内部での濃度測定に留まっており、森林一大気間のフラックスや物質収支について計測された例はない。本研究では、植生域における各種物質濃度の鉛直分布と放射収支・温湿度・風速を同時測定し、従来の水文気象学的なフラックス算定手法を応用して熱と同時にオゾンの収支を明らかにする事を目的とする。

## 2. 観測概要

### 2. 1 観測場所・日時

山梨県富士吉田市にあるブナ林において、温度・湿度・風速・日射・CO<sub>2</sub>濃度・O<sub>3</sub>濃度・NMHC濃度を1995年7月31日から8月1日にかけて24時間測定した。CO<sub>2</sub>計は赤外線方式のもの、O<sub>3</sub>計は半導体薄膜センサー方式のものを用いた。NMHCはポンプにより捕集管に吸着させ、GC-MS法(Gas Chromatographic - Mass Spectrometric Analysis)を用いて分析を行った。

### 2. 2 観測方法

ブナ林(樹高6m)の中に高さ9mの鉄塔を起てて観測を行った。図-1のように、日射量(上向きと下向き)・長波放射量(上向きと下向き)は7m、地中熱流量は森林下の地面、温度・湿度・風速は9mと7mと5m、CO<sub>2</sub>濃度・O<sub>3</sub>濃度・NMHC濃度は9mと6mと3mの高度で測定した。

## 3. 解析手法

### 3. 1 热収支

熱収支(式1)よりボーエン比法を用いて、顕熱と潜熱のフラックスを求めた(式2,3)。ここで、Rn:正味放射量、H:顕熱、IE:潜熱、G:地中熱流量、Q:  
森林内部に貯まる熱量、Bo:ボーエン比、c<sub>p</sub>:空気の定圧比熱、1:水の気化の潜熱、T<sub>1</sub>とT<sub>2</sub>は高度9mと7mの点の温位、q<sub>1</sub>とq<sub>2</sub>は温位と同様に二点の絶対湿度である。顕熱と潜熱を求める際に、樹木に貯えられる熱と森林内部の空気を温める熱を併せると一般的には正味放射量の1割程度<sup>4)</sup>(近藤)であるので、ここでは無視した(Q=0)。

### 3. 2 オゾンの収支の算定法

オゾンについては、顕熱と潜熱のフラックスより摩擦速度や地表面の粗度などが求められていて、式4~8よりフラックス(上向きを正とする)を求めた。  
ここで、F:オゾンの鉛直フラックス、ρ<sub>s</sub>:物質の濃度、U:風速、ρ<sub>s\*</sub>、u<sub>\*</sub>:摩擦濃度および摩擦速度、z:地表面からの高さ、d:ゼロ面変位、k:カルマン定数、φ<sub>M</sub>、φ<sub>E</sub>、φ<sub>S</sub>:普遍関数、ζ:無次元高度、L:モニン-オブコフ長さを表す。オゾンは植物の葉の表面にある気孔を介しての物質交換が重要であると考えられるので、普遍関数は比湿の普遍関数の値を用いる。希薄物質のフラックスを求める場合、顕熱や潜熱による密度効果の補正として<sup>5)</sup>いわゆるWebbの補正(式9)が必要である。この式の右辺の第2項は潜熱による補正項、第3項は顕熱による補正項であり、ρ<sub>a</sub>:物質の濃度、ρ<sub>a</sub>:乾燥空気の密度、μ:乾燥空気の分子量の水蒸気の分子量に対する比、σ:比湿、ρ:湿潤空気の密度、をそれぞれ表す。またオゾンについては、フラックスの時間積分値と植生内部の濃度の樹高方向の積分値を比べることにより、森林がオゾンのsource(発生源)またはsink(吸収源)になっている

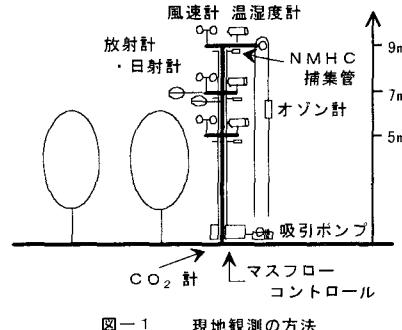


図-1 現地観測の方法

$$Rn = H + IE + G + Q \quad \dots \dots \dots (1)$$

$$Bo = \frac{H}{IE} = \frac{c_p(T_1 - T_2)}{l(q_1 - q_2)} \quad \dots \dots \dots (2)$$

$$E = \frac{Rn - G}{l(Bo + 1)}, H = Bo \times IE \quad \dots \dots \dots (3)$$

$$F = -u * \rho_s * \quad \dots \dots \dots (4)$$

$$u_* = \frac{k(z-d)}{\phi_M} \times \frac{dU}{dz}, \rho_s * = \frac{k(z-d)}{\phi_S} \times \frac{d\rho_s}{dz} \quad \dots \dots \dots (5)$$

$$\text{unstable condition } (-1 < \zeta < 0) \quad \phi_S = \phi_E = \phi_M^{-2} = (1 - 16\zeta)^{-1/2} \quad \dots \dots \dots (6)$$

$$\text{stable condition } (0 \leq \zeta < 5/7) \quad \phi_S = \phi_E = \phi_M = 1 + 7\zeta \quad \dots \dots \dots (7)$$

$$\zeta = \frac{z}{L}, L = \frac{u_*^2}{k(g/T)T_*} \quad \dots \dots \dots (8)$$

$$F' = F + (\rho_s / \rho_a) [\mu / (1 + \mu\sigma)] E + (\rho_s / \rho) H / c_p T \quad \dots \dots \dots (9)$$

かを知ることができる(式10)。

$$S = \frac{\partial}{\partial t} (\rho_s) \times h + (F - F_0) \quad \dots \dots \quad (10)$$

ここで、 $S$ :森林  $1\text{m}^2$ あたりの

発生量、 $h$ :森林の高さ、 $F_0$ は地表面オゾンフラックスで森林内部での乱流量はきわめて小さいのでゼロとした。NMHCは精度上の問題より濃度の鉛直分布に信頼が持てないためフラックスの算定は行わなかった。

#### 4. 結果と考察

##### 4. 1 热収支

(a) 热収支の日変化 热収支(図-2)を見てみると、正味放射量から地熱量を引いたもののうちほとんどが潜熱に変わっており、顯熱は最大で約 $100\text{W/m}^2$ である。朝方に潜熱が正味放射量を上回り顯熱が負になる現象が認められる。

(b) 結露蒸発量の見積もり 朝方に潜熱が正味放射量を上回り顯熱が負になるという冷源現象が起きたのは夜間植物の葉についた露が日射を浴びて大量に蒸発するためであると思われる。そこで結露量を次のように計算した。夜間、空気が飽和し且つ空気中の水蒸気量が減少している時に露がつくとすると、樹木につく露の量は潜熱フラックスの時間積分値と森林内部の飽和水蒸気量の減少分との和である。図-3より午後7時から午前5時まで露がつくとして計算した結果、森林の葉面積指数を5とすると一枚の葉につく露の厚さは $0.05\text{mm}$ となる。この値は完全湿潤状態にある樹木の平均的な保水量の厚さ $0.14\sim 0.18\text{mm}$ <sup>6)</sup>の約 $1/3$ 程度に当たり妥当な值だといえる。またこの露が朝方に2時間で全て蒸発すると、潜熱フラックスにして約 $85\text{W/m}^2$ であった。全体の潜熱から露の蒸発による潜熱を引くと正味放射量を下回った。残りの潜熱が葉の蒸散によるものであると思われる。

##### 4. 2 フィトンチッド濃度(β-ピネンを例に)

鉛直方向の濃度変化に特徴は見られないが、全体的な傾向としては16時頃に最大になり2時頃に最小になっている。Yokouchiによると、β-ピネンを含むテルペンの放出量は温度と日射量に依存する<sup>3)</sup>が、ここにおいてもその傾向がみられる。しかし最小値が早朝でなく深夜の2時に起きているのは何故だろうか。図-3を見ると2時頃から風速がさらに弱くなり温度も急激に下がっているので、大気はかなり安定な状態となる。このため、大気拡散による希釈作用が弱まり濃度が上昇していると推測される。また8~12時にはオゾン濃度の急増に対してNMHC濃度は減少、18~20時頃には逆にオゾンの急減に対してNMHC濃度は上昇しており、逆相関となっている。これは日射による光化学反応を反映していると考えられる。

##### 4. 3 オゾン

(a) 濃度の日変化 オゾン濃度の高度方向の分布を見ると、常に森林の上空ほど濃度が高くなっている。濃度の時間変化では、濃度は日の出と共に急激に上昇しており、その後頭打ちとなるが12時を境に再び増加している。午後に曇ったため一時的に低下してはいるが徐々に増え続け17時にピークが見られる。オゾンが朝方に急増しているのは、日射の供給による光化学反応と、大気の混合により上空の残留オゾンが供給されることによる。図-3より12時頃に海陸風の進入が認められる。この時風向が南東に変わっており御殿場方面から汚染物質(オゾンやその原料となるNOx)が輸送されると思われる。12時頃に濃度が再度上昇するのはこの海陸風によるものだと考えられるが、詳細な過程は今後数値計算で明らかにする必要がある。

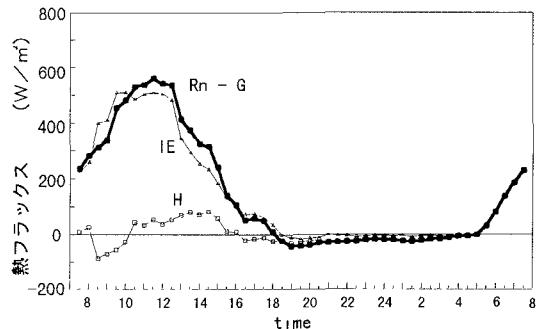


図-2 森林における熱収支

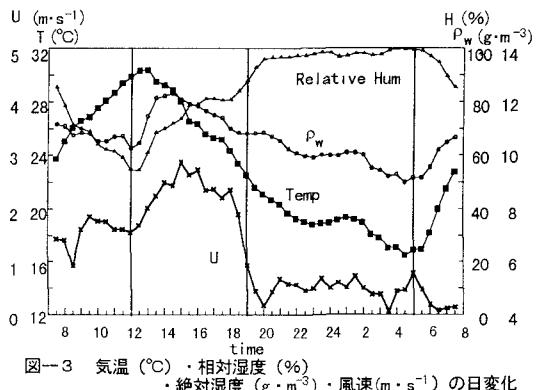


図-3 気温(°C)・相対湿度(%)・絶対湿度(g·m⁻³)・風速(m·s⁻¹)の日変化

一方、夜間は濃度が低くなつてはいるもののゼロにはならず森林上空で0.04ppm程度のオゾンが残留している。しかし、これも2時を境に減少し朝方にはほとんどゼロになる。気温が下がり結露が盛んに起こつてゐるこの時間帯にオゾンが急減してゐるのは興味深い。

(b) 森林によるオゾン吸着量 オゾンのフラックスは14時と16時頃にピークがあり、森林方向へ物質の移動が起きてゐる。オゾンの收支を求めたところ濃度の非定常項が小さくフラックスとほぼ同じ形となつた(図-5)。これは森林がオゾンのシンクとなつてゐることを示す。しかし、濃度が急増する8~9時にはオゾンのソースになつてゐる。

フラックスと濃度の比より物質の吸着速度が求められるが、今回の観測では一般的な地表面に対する吸着速度( $0.3 \sim 0.8 \text{ cm/s}$ )に比べると<sup>7)</sup>一桁程小さい値となつた。光化学反応を考慮しなければ、森林は植物の葉による吸着も考えられるので、裸地面に比べて吸着が大きくなると考えられる。しかし結果は逆で、森林でのオゾンの吸着は地表面よりも小さいことが判つた。森林は全体としてはオゾンの吸着源となりながらも、光化学反応に関わるフィトンチッドを放出することにより同時に発生源にもなつてゐると言える。

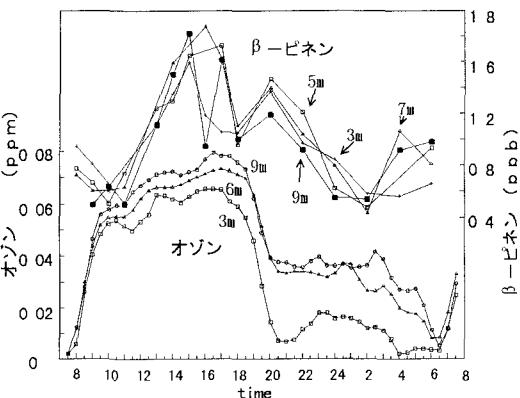


図-4 オゾンとフィトンチッドの濃度分布

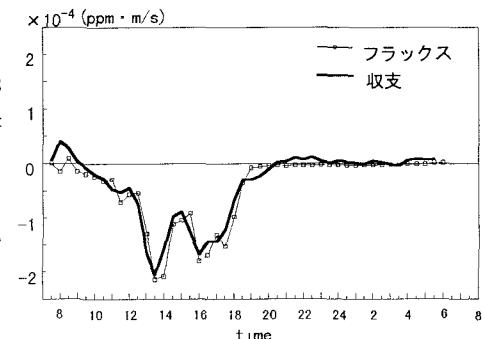


図-5 オゾンのフラックスと収支

## 5. 結論

今回の現地観測で森林におけるオゾンの收支を求めた結果、次のことがわかつた。1) オゾンの濃度は森林の内部よりも森林の上空でより高い。2) フィトンチッドはオゾンの生成に関与している。3) 森林はオゾンの吸収源ではあるが、正味の吸着速度は地表面よりも少なく、光化学反応により発生源にもなつてゐると推測される。今後は、今回の観測結果をもとに光化学反応を取り込んだ鉛直一次元モデルを開発し、フィトンチッドやオゾンの生成過程を明らかにする予定である。

**謝辞** 本研究は、平成7年度河川環境管理財団河川美化・緑化調査研究助成研究および文部省科学研修費一般C-07650594の援助を受けました。また観測においては、山梨大学竹内研究室の学生諸氏および東京工業大学土木工学科の学生諸氏に手伝つて頂きました。ここに厚く謝意を表します。

## 参考文献

- 1) 木村富士男：局地風モデルを利用した光化学大気汚染の数値シミュレーション、気象研究所技術報告、第11号、1984
- 2) 井上徹雄、蜂屋欣二：森林の大気保全機能、森林の公益機能解説シリーズ3、社団法人日本治山治水協会
- 3) Yokouchi et al : Diurnal Variations of Atmospheric Isoprene and Monoterpene Hydrocarbons in an Agricultural Area in Summertime Journal of geophysical Research, vol 93, No D4, Pages 3751-3759, April 20, 1988
- 4) 近藤純正ら：森林の樹体の貯熱量の計算、天氣、vol. 38、No. 2、1991
- 5) E K Webb et al : Correction of flux measurements for density effects due to heat and water vapor transfer . Quaterly Journal of the Royal Meteorological Society vol 106 : 85-100 , 1980
- 6) 近藤純正ら：森林における降雨の遮断蒸発のモデル計算、vol. 39、No. 3、1992
- 7) Garland, J.A and R G Derwent : Destruction at the ground and the diurnal cycle of ozone and other gases , Quaterly Journal of Royal Meteorological Society vol 105 : 169-183, 1980