

森林における対流圏オゾン濃度の推定

小松雅史・吉村謙一（森林総研）・藤井佐織（横国大）・矢崎健一・溝口康子・
深山貴文・小南裕志・安田幸生・山野井克己・北尾光俊（森林総研）

要旨：日本国内の対流圏オゾン濃度は近年上昇傾向にある。都市部の大気観測局では、オゾン濃度を含む大気データが長年観測され、公開されているが、森林において継続的にオゾン観測を行った例はほとんどない。そこで、2011年10月より、森林総合研究所の札幌、安比、山城のタワーにオゾン濃度計を設置し、フラックスタワー上でオゾン濃度を測定し、気象データや周辺都市部の大気データと比較を行うことで、過去の森林のオゾン濃度の推定を試みた。得られたオゾン濃度値と周辺都市部の大気観測局で測定されたオゾン濃度値は正の相関を示したが、夜間から明け方にかけて都市部ではオゾン濃度が低下するのに対し、森林ではオゾン濃度の低下が起らず濃度差を生じた。森林と都市部のオゾン濃度差は二地点の気温差や大気観測局の二酸化窒素濃度と相関を示し、夜間の大気の安定性や、都市部の窒素酸化物によるオゾンの分解が影響していると考えられた。これらの説明変数を用い、森林のオゾン濃度を応答変数とした重回帰分析を行い、得られたパラメータを用いて過去の森林のオゾン濃度の推定を行った結果、森林のオゾン濃度は、周辺都市部よりも高くなると推定された。

キーワード：大気測定局、気温差、窒素酸化物、AOT40

Abstract: Tropospheric ozone concentrations have been increasing above Japan. At air pollution monitoring stations in urban areas, atmospheric data including ozone has been monitored for long periods and released. However, few ozone data were continuously monitored above forests. Therefore, forest ozone concentrations were monitored on three flux tower sites of Forestry and Forest Research Institute (FFPRI) in Sapporo, Appi and Yamashiro, from October, 2011 and past ozone concentrations above forests were estimated from comparisons of atmospheric and meteorological data between forests and neighboring urban areas. Obtained forest ozone concentrations were positively correlated with urban ozone concentration. However, ozone concentrations differed from night to morning, because ozone decreased in urban area while not decreased in forests. Differences in ozone concentrations between forests and urban area correlated with difference in air temperature and with urban NO₂ concentrations, and such differences were explained by nocturnal atmospheric stability and ozone decomposition by NO in urban. Multiple regression analysis for forest ozone estimation was conducted using these atmospheric and meteorological data as explanatory variables. As a result, ozone concentrations above forests were estimated to be higher than in neighboring urban area.

Keywords: Air pollution monitoring station, Difference in Air temperature, NOx, AOT40

I はじめに

日本国内の対流圏オゾン濃度は近年上昇傾向にあり、都市部だけでなく、山岳地域においても年々増加している。オゾンは気孔を介して樹木の葉に取り込まれ、気孔コンダクタンスや光合成速度の低下、葉の老化の促進などを引き起こすため、樹木の成長に負の影響を及ぼすと考えられている。そのため、気孔コンダクタンスを考慮し、オゾンの吸収量に基づいた影響評価を行うことは重要である。

森林総合研究所ではタワーサイトにおいてフラックス観測を行い、2000年以降データベース化を進めている。このようなデータを用いることで、過去に遡って森林の

森林レベルのコンダクタンスを得られる。一方で、オゾン観測については、各都道府県の都市部に設置された、大気汚染常時監視測定局において、オゾンを含む大気汚染物質の常時観測が行われており、webサイトでの速報値の公開(<http://www.soramame.taiki.go.jp>)や、各自治体による過去の確定値の提供が行われている。しかし、森林におけるオゾン観測はほとんど行われていない。そこで、タワー上でオゾン濃度を測定し、気象データや周辺都市部の大気測定局のデータと比較を行うことで、森林と都市部のオゾン濃度の差異を生じる要因を解析するとともに、過去の森林のオゾン濃度の推定を試みた。

Masabumi Komatsu, Kenichi Yoshimura (FFPRI, 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki, 305-8687, Japan), Saori Fujii (Yokohama National University), Kenichi Yazaki, Yasuko Mizoguchi, Takafumi Miyama, Yuji Kominami, Yukio Yasuda, Katsumi Yamanoi, Mitsutoshi Kitao (FFPRI) Estimation of tropospheric ozone concentration above forests

II 調査地と方法

オゾン濃度の観測は、森林総合研究所の札幌森林気象試験地 (42°59'N, 141°23'E, 標高 182m), 安比森林気象試験地 (40°00'N, 140°56'E, 標高 825m), 山城水文試験地 (34°47'N, 135°51'E, 標高 255m) の3カ所のタワーサイトでを行った (図-1)。2011年10月より、各サイトのタワー上にオゾン濃度計 (model 205, 2B technologies) を設置し、2秒間隔でオゾン濃度の測定を行い、1時間平均値を得た。また、タワー上のオゾン観測高度での気温の1時間値を得た。得られたオゾン濃度値と比較を行うため、周辺都市部に設置された、センター (札幌市, 札幌試験地より北北西に8.7km), 津志田 (盛岡市, 安比試験地より南南東に43km), 京田辺 (京田辺市, 山城試験地より西北西に7.7km) の3カ所の大気観測局よりオゾン濃度と二酸化窒素濃度の1時間値を得た。測定局の気温として、同じ市内の气象台やアメダスで観測された気温の1時間値を用いた。

タワーのオゾン濃度の推定を行うため、2012年4月から10月の間 (山城のみ2012年4~6月) に得られた大気・気温データを説明変数とした線形重回帰モデルを作成した。説明変数の組み合わせごとにAIC (赤池情報量基準) を計算し、最もAICが低くなるモデルを採用した。説明変数の係数は、mcmc (マルコフ連鎖モンテカルロ) 法によって推定した。mcmc法の計算にはWinBUGSを用い、説明変数の係数は無情報事前分布からサンプリングした。chain数は3とし、最初の10000回分の計算は廃



図-1. オゾン観測を行ったタワー (▲, 実線) と比較を行った大気観測局 (●, 破線) の位置

棄 (burn in) し、次の10000回分の計算のうち、3回毎の推定結果をサンプリングすることで、10000個の係数の組み合わせを得た。2000年以降に得られた大気・気温データ1時間値と上記mcmc法により求められた係数を用いて、タワーの過去におけるオゾン濃度1時間値を推定した。

III 結果と考察

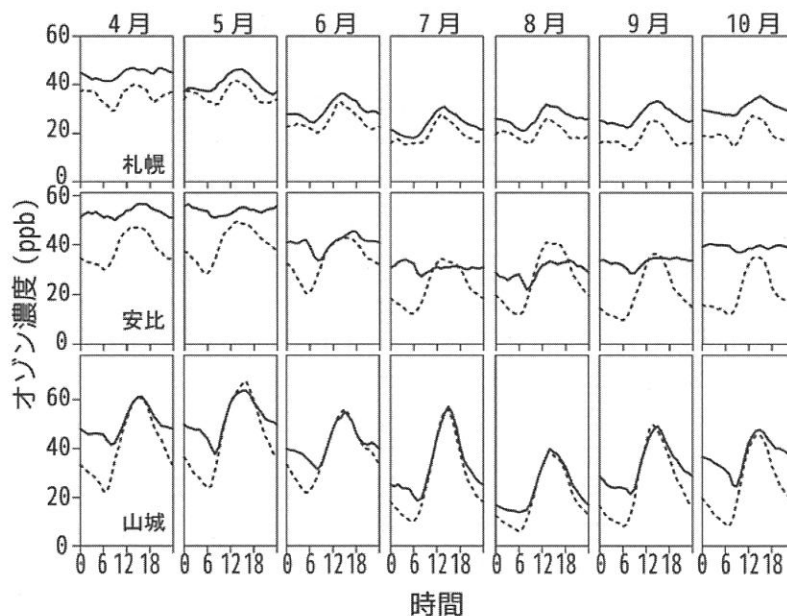


図-2. 2012年4月から10月までのタワー (実線) と周辺大気観測局 (破線) のオゾン濃度の日変化 (上段: 札幌, 中段: 安比, 下段: 山城). 月ごとの平均値を示した。

Fig. 2 Diurnal change of ozone concentrations monitored at flux towers (solid lines) from April to October 2012.

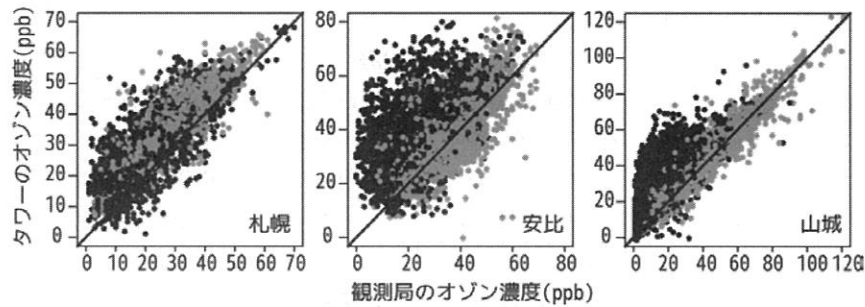


図-3. タワーと観測局のオゾン濃度1時間値の比較. 灰色：昼(8:00-18:00), 黒：夜間～朝(18:00-8:00)
 Fig. 3 Comparisons of hourly ozone concentrations between flux towers and air pollution monitoring stations. Values monitored at day time (8:00-18:00) and night to morning (18:00-8:00) were indicated with gray and black points, respectively.

2012年4月から10月までに観測された、タワーと大気観測局のオゾン濃度値の日変化について、月ごとに示した(図-2)。札幌では、観測局のオゾン濃度がタワーの濃度より常に10ppb程高いものの、日変化のパターンが類似していた。一方、安比や山城では、昼間のオゾン濃度は同程度だったが、夜間から朝にかけて大気観測局のオゾン濃度が低下し、濃度差を生じた。タワーと観測局のオゾン濃度1時間値を両軸とした散布図をプロットしたところ(図-3)、各サイトで昼間(8:00-18:00)のオゾン濃度値は正の相関を示すのに対し、安比や山城では、夜間(18:00-8:00)の相関関係は低かった。

夜間の濃度差を生じる要因を調べたところ、タワーと観測局の気温差と正の相関を示した(図-4a, 山城)。都市部のオゾンは夜間になると一酸化窒素存在化で分解するが、窒素酸化物濃度が低い森林では、夜間のオゾンの分解は起こりにくい。さらに、都市部は夜間、放射冷却により大気が安定し、上層との空気の攪拌が起こりにくくなる(4)。このため、タワーと観測局の気温差は大気の安定性を示し、大気が安定するほど夜間のオゾン濃度差を生じたと考えられた。夜間のオゾン濃度差は、標高差が大きい2地点間ほど大きいため(1)、タワーと観測局の

標高差が小さい札幌では、夜間のオゾン濃度差を生じなかったと考えられた。

また、観測局の二酸化窒素濃度とオゾン濃度差にも正の相関が認められた(図-4b, 札幌)。オゾンは、主に紫外線下で酸素と二酸化窒素が可逆的に反応することで生じる。その一方で、過剰に発生する一酸化窒素はオゾンを分解し、オゾン濃度を低下させる。そのため、バックグラウンドの濃度値として、二酸化窒素とオゾン濃度の和をポテンシャルオゾン(PO)として評価する場合もある(2)。一方、森林では窒素酸化物が少ないためオゾンの分解が起こらず、結果として観測局の窒素酸化物濃度とタワーと観測局のオゾン濃度差の間に相関を示したと考えられた。

タワーのオゾン濃度を応答変数とした重回帰モデルについて、AICに基づくモデル選択を行った結果、札幌と安比ではフルモデル($Ox_{city} + NO_{2_city} + Ta_{tower} + Ta_{city}$)がAIC最小となったのに対し、山城では、気温について差のみを考慮したモデル($Ox_{city} + NO_{2_city} + \Delta Ta$)でAIC最小となった。

AICが最小になったモデルについて、mcmc法によるパラメータ推定を行ったところ、Rhat値はすべて1.001

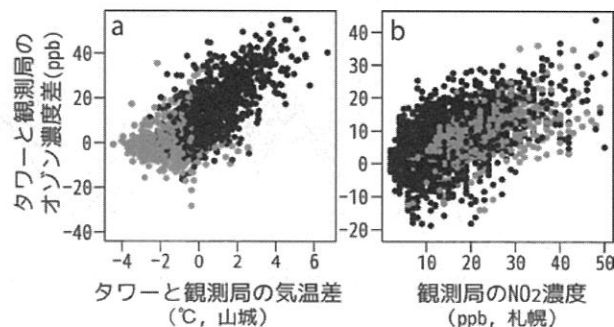


図-4. タワーと観測局のオゾン濃度差と大気・気象データの比較. a: オゾン濃度差と気温差の比較(山城), b: オゾン濃度差と観測局のNO₂濃度の比較(札幌, 凡例は図-3と同じ)

Fig. 4 Comparisons of differences in ozone concentrations between flux towers and air pollution monitoring stations with atmospheric or meteorological data. a: comparisons with differences in air temperature between flux towers and air pollution monitoring station (Yamashiro). comparisons with NO₂ concentrations at air pollution monitoring station (Sapporo). Legend color is similar to Fig. 3.

以下となり、また推定平均値は最小二乗法で求められた重回帰モデルのパラメータとほぼ同じであったので、収束していたと判断し、過去のオゾン濃度値の推定を行った。図-5 に各タワーサイトの 2000 年以降のオゾン濃度推定結果を示した。推定結果として、昼間のオゾンの年（4～10 月）平均濃度と AOT40（昼間のオゾン濃度値から 40ppb を引いた値のうち、正になる値のみを積算した値）を示した。各サイトにおいて、平均値、AOT40 共に、観測局での実測値よりタワーでの推定値のほうが高い値を示した。これは、明け方のオゾン濃度の差や都市部での窒素酸化物によるオゾンの分解が評価されたためと考えられた。また、AOT40 は対流圏オゾン濃度のオゾン影響評価の指標となり、暴露実験により AOT40 が 16ppm・hour 以上で感受性のブナやアカマツに対し 10% の成長低下を生じさせることが示されている(3)。安比試験地はブナ林であり、また推定 AOT40 の中央値が 16ppm・hour を超えている年があることから、調査地によっては感受性樹種の成長に影響を与えうるレベルになっていることが推測された。

IV おわりに

今回の推定は、2012 年に得られたデータのみを用いて行われた。今後、得られたパラメータが年に依らず妥当であるかについて、2013 年以降に得られるデータを用いて検証する必要がある。

謝辞

本研究は、環境省の環境研究総合推進費（5B-1105）により実施された。また解析にあたり、札幌市、盛岡市、京都府より大気汚染常時監視測定局の 1 時間値を頂いた。この場を借りて感謝申し上げる。

引用文献

- (1) ANEJA, VP., ARYA, SP., LI, Y., MURRAY, GC. and MANUSZAK, TL. (2000) Climatology of diurnal trends and vertical distribution of ozone in the atmospheric boundary layer in rban North Carolina. *Journal of the Air & Waste Management Association*: **50**(1), pp.54-64
- (2) 板野泰之 (2006) 都市大気における光化学オキシダント問題の新展開. *生活衛生* : **50**(3), pp.115-122
- (3) 河野吉久 (2006) C-7 東アジアにおける酸性・酸化性物質の植生影響評価とクリティカルベル構築に関する研究. H15-17 年度環境省地球環境研究総合推進費終了研究成果報告書
- (4) ZHANG, J. and TNIVIKRAMA, R. (1999) The role of vertical mixing in the temporal evolution of ground level ozone concentrations. *Journal of applied meteorology* : **38**, pp.1674-1691

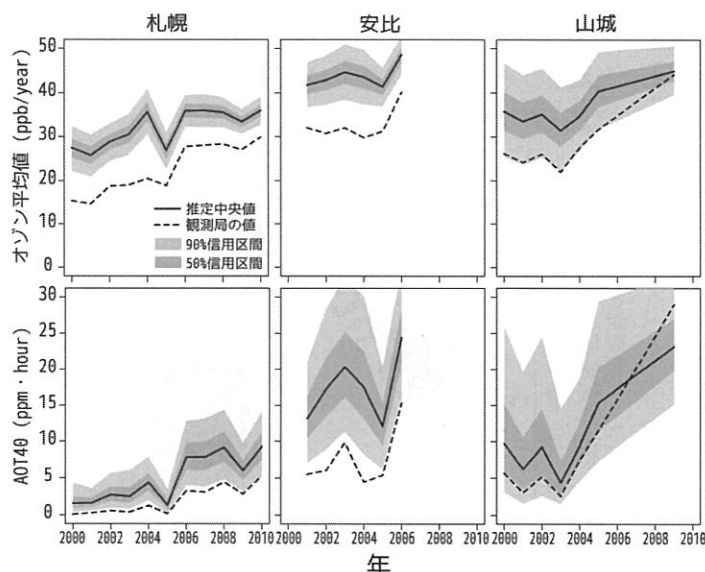


図-5. 2000 年以降の各タワーサイトのオゾン濃度値の推定結果 各年 4 月から 10 月までの昼間（6 時～18 時）の値について、平均値（上段）と AOT40 を示した。推定値の中央値は実線で、観測局の実測値を破線で示した。さらに推定値の 90, 50% の信用区間について濃淡の異なる範囲で示した。

Fig. 5 Results of estimation of ozone concentration at flux tower sites from 2000 to 2010. Annual day time (6:00~18:00) average (Upper plots) and AOT40 (Lower plots) from April to October were shown; estimated median: solid lines, observed values at air pollution monitoring stations: broken lines, 90% credible interval: dark gray areas, 50% credible intervals: light gray areas.