

神奈川県丹沢地域における大気中オゾンの動態

大森成晃*・神田 勲*・相原敬次**・齋藤央嗣**・岡崎友紀代*・若松伸司*

Behavior of atmospheric ozone in the Tanzawa region of Kanagawa prefecture

Naruaki OMORI*, Isao KANDA*, Keiji AIHARA**, Hiroshi SAITO**,
Yukiyo OKAZAKI* and Shinji WAKAMATSU*

要 旨

大森成晃・神田 勲・相原敬次・齋藤央嗣・岡崎友紀代・若松伸司：神奈川県丹沢地域における大気中オゾンの動態 神奈川県自環保セ報告 14 : 13-25, 2016 丹沢山地のブナ林衰退の原因の1つと推測されているオゾンについて、2012年3月より4箇所の山頂付近において連続測定を実施した。また小型オゾン計を用いた山道の徒歩移動観測を実施し、従来研究よりも高標高域における高密度なデータを収集した。連続測定では、従来研究と同様な日変動、季節変動が確認され、4箇所の山頂付近におけるオゾン濃度変動は多くの場合で類似していた。なお、丹沢山地では夏季の夜間に濃度ピークが頻繁に観測され、西丹沢の菰釣山では東丹沢の丹沢山よりも濃度ピークが数時間程度遅れて起こっていた。徒歩移動観測では、午前中に檜洞丸の山頂付近の尾根線を西から東に交差する際に、オゾン濃度上昇、温位上昇、相対湿度下降が同期して起こることが複数回確認された。

キーワード：オゾン、植物影響、AOT40、移動観測、山岳地域

I 背景

1 オゾン研究の目的

オゾン (O_3) は、主として大気中で生成される気体である (オゾンの一般的な性質については Seinfeld & Pandis, 2006 や酸性雨研究センター, 2005 を参照)。対流圏中では、燃焼過程で排出される一酸化窒素 (NO) が酸化されてできる二酸化窒素 (NO_2) の紫外線による光分解に始まる一連の化学反応が主な生成プロセスである。オゾンは大気中化学反応や固体壁における分解反応によって消滅するが、揮発性有機化合物 (VOC) が反応過程に加わると化学反応によるオゾンの消滅速度を抑制する方向に働き、オゾン濃度が上昇する。オゾンの地表付近

の大気中における典型的な一時間平均濃度は数から百数十ppbである。大気中寿命は1週間から1ヶ月のオーダーであり、夏季に短く冬季に長い。

オゾンは酸化性が強く、多くの大気中化学反応において重要な役割を果たす。例えば、二酸化硫黄 (SO_2) や NO_2 は、オゾン生成に伴う OH ラジカルなどにより酸化され、硫酸や硝酸になり、さらに大気中の主要塩基性ガスであるアンモニアと結合して、硫酸塩、硝酸塩といった微小粒子になる。この過程には2つの側面がある。 SO_2 や NO_2 は人間の呼吸器に悪影響を及ぼすが、オゾンはそれらを除去する働きをしている。一方、微小粒子は沈降速度が小さいため大気中に長時間滞在し、視程障害を起こしたり、毒性物質のキャリアとなったりする。

* 愛媛大学農学部大気環境科学研究室 (〒790-8566 愛媛県松山市榊味 3-5-7)

** 神奈川県自然環境保全センター研究企画部研究連携課 (〒243-0121 厚木市七沢 657)

オゾン自身は様々な形で私達の生活に影響を及ぼすことが知られている。人間に対しては、眼や咽喉などの粘膜に刺激を与えるため、高濃度時には涙が出たり喉が痛くなったりする。また、多量のオゾンが植物の気孔から取り込まれると、オゾンの強い酸化力により組織が傷められたり、光合成速度が低下したりする。また、オゾンは波長約 $10\mu\text{m}$ の赤外線を強く吸収し、温室効果を示す。オゾンの温室効果能は二酸化炭素、メタンについて3番目である。

産業革命前と比べると、非都市域におけるオゾンの背景濃度は36%上昇している (IPCC, 2001)。先進国の都市域においては、1960年から1980年ころに高いオゾン濃度が記録されたが、その後、窒素酸化物 ($\text{NO}_x = \text{NO} + \text{NO}_2$) やVOCの排出量削減が進み、都市域のオゾン濃度は大幅に減少した。ところが、近年、主に北半球において対流圏のオゾン濃度 (都市域、非都市域を含む年平均値) が徐々に増加している。原因として気温の上昇や発展途上国における大気汚染物質排出量の急増が挙げられている。このような平均的なオゾン濃度の増加は、植物の成長阻害や地球温暖化のような慢性影響において深刻な問題である。

2 森林影響に関する従来研究

オゾンの樹木に対する影響は、苗木を対象とした制御実験において良く理解されている。例えば、日本のアカマツ、ストロブマツ、ブナ、トウカエデ、トネリコの場合、6ヶ月間にオゾン濃度が40ppbを超過した時間に超過分を掛けたものを積算した値AOT40 (Accumulated Ozone exposure over a Threshold of 40ppb) が、12-21ppmhであると固体乾重量が10%低下する (伊豆田・松村 1997)。

また、オゾンは間接的に樹木に悪影響を及ぼすことが知られている。酸性霧は樹木の成長を阻害する要因の1つであるが、酸性霧の原因である硫酸や硝酸はオゾンが介在して SO_2 や NO_2 が酸化されてできたものである (Shigihara *et al.*, 2008, 2009; 井川・大河内 2009)。これは大気汚染物質の発生源に比較的近い場所での関与であるが、森林地帯へ輸送されたオゾンが関わる間接影響もある。オゾンはオレフィン系炭化水素と反応して過酸化水素 (H_2O_2) を生成する。過酸化水素は植物に対して強い毒性を示し、樹木はオレフィンであるテルペン類を多く排出する。実際、奥日光における観測では、オゾン濃

度と過酸化水素水濃度の間に高い相関があった (岡山 2003)。

ヨーロッパや北米では1970年代後半から森林衰退が観察され、多くのケースにおいてオゾンの関与が指摘されている (河野 2004; Karnosky *et al.*, 2007; Matyssek and Innes, 1999; Bytnerowicz *et al.*, 2004; Paoletti, 2006)。これらの研究の背景には、高濃度の場合に植物に悪影響を及ぼす SO_2 や NO_2 の濃度が大幅に減少している一方で、対流圏オゾン濃度が停滞または増加していることがある。なお、森林の盛衰には多様かつ複雑な要因が関係しており (Bytnerowicz *et al.*, 2007)、樹種や地域ごとの環境によって要因の影響度が異なるため、欧米における知見がそのまま日本に当てはまるとは限らない。

日本においては、例えば奥日光におけるダケカンバ (伊豆田 2004)、奥秩父におけるシラビソ (伊豆田 2004)、丹沢山地におけるモミやブナの衰退 (相原 2004) が知られている。これら森林地帯においては、オゾン濃度が樹木に悪影響を及ぼし得るほど高く、オゾンの影響が示唆されている。

本研究で対象としている丹沢山地では、1960-1970年ころに大山のモミが急速に枯損し、1970-1980年ころに丹沢山、蛭ヶ岳、檜洞丸の山頂付近を中心にブナが枯損し始め、現在も進行中である (越地ら, 1996)。衰弱の原因として、オゾン、気象条件、樹木の老齢化、水ストレス、風ストレス、酸性霧、ブナハバチやシカによる食害などが検討されてきた (Suto *et al.*, 2008; 神奈川県環境部 1997; 平岡環境科学研究所 2007; 神奈川県自然環境保全センター 2012)。現在では、これらの要因の複合影響による衰弱と見るのが一般的であるが、本稿ではオゾンに焦点を当てて行った研究を報告する。

3 愛媛大学グループによる従来研究

著者らの属する愛媛大学農学部大気環境科学研究室では、丹沢山地および周辺におけるオゾンの動態を中心とした調査・研究を行ってきた (斎藤ら, 2012)。その概要を以下に列挙する。

・丹沢山地周辺のアメダス局における1978-2007年の気温を解析した結果、2-3月および9-10月の気温上昇率が他の月よりも高いことがわかった。これは、夏が長く、冬が短くなっていることを示している。夏が長くなると着葉期も長くなり、オゾンへの

曝露量が多くなる。

・ブナの着葉期である4-9月のAOT40は、西丹沢犬越路局（以下、犬越路局）において、2004-2010年の間、30ppmhを越えており、ブナの成長阻害が示唆された。

・後方流跡線解析により、犬越路局においてオゾン濃度が100ppb以上となる日は、空気塊の起源が東京周辺にあることが多かった。

・オゾンゾンデによるオゾン濃度の鉛直分布測定を2009年8月（足柄上地域県政総合センター）、2010年3月、2010年7月、2011年10月（いずれも神奈川県自然環境保全センター）に実施した。2009年8月と2010年7月の観測では、海拔1000mあたりにオゾン濃度の極大が見られることがあり、東京周辺からの海風による輸送が示唆された。

・自動車にオゾン計を積載し、丹沢山地内の林道沿いでオゾン濃度分布を測定した（岡崎ら，2010）。その結果、山地内の南側が北側よりも濃度が高い場合が多かった。

・大気化学輸送モデル（MM5 + CMAQ）によってオゾンの生成、輸送、消滅過程を調べた（斎藤ら，2012b）。平地測定局および犬越路局における濃度変動、及び、2010年7月のオゾンゾンデ測定結果と良好な一致を得た。また、犬越路局におけるオゾン濃度の日較差が小さい原因として、日中生成量が小さいこと、日中の乾性沈着が大きいこと、夕方に海上起源の低オゾン気塊の侵入が弱いことが挙げられた。

・大気化学輸送モデル（WRF-Chem）と拡散モデル（FLEXPART）によって、丹沢山地で日中高濃度となる場合の空気塊の起源を調べた（松隈ら，2012）。その結果、都市部から排出され相模湾に流入したNO_xやVOCが光化学反応によりオゾンを生成し、オゾン濃度の高くなった気塊が海風によって丹沢山地に運ばれることがわかった。関東地方を覆うような大規模な海風の場合は、丹沢山地の南方から輸送され、相模湾からの小規模な海風の場合は、南東方向から輸送される傾向があった。

・大気化学輸送モデル（MM5 + CMAQ）によって、2010年4-10月の7ヶ月間のシミュレーションを行い、丹沢山地および周辺の積算オゾン暴露量の分布を求めた（斎藤ら，2013）。積算オゾン暴露量としてAOT40とPOD1（accumulated Phytotoxic Ozone Dose with a threshold $y=1$ ）を比較し、POD1が気

孔開閉の温湿度依存性を考慮していることなどから、より有用な指標であることを示した。

II 定点観測データ解析

1 意義・目的

丹沢山地におけるブナ衰退は標高1000m以上において顕著に見られる。したがって、オゾンの影響を評価するためには、標高1000m以上における測定データが必要である。丹沢山地においては、山地中央部の犬越路局においてオゾンを含む大気中微量物質の濃度が2004年からほぼ連続的に観測されてきたが、犬越路局の標高は935mであり、周辺のブナの枯損はあまり顕著ではない。

そこで本研究では、山頂付近の気象要素とオゾン濃度から、オゾンの動態を把握した。

2 方法

神奈川県では、2012年3月より、丹沢山、檜洞丸、鍋割山、菰釣山の山頂付近に測定局を設置・運用してきた（図2-1）。太陽電池による電源供給システムにより稼動し、月1回程度のメンテナンス（測器交換、校正など）を行っている。測定項目は、気象要素（風速、風向、気温、湿度、雨量、日射量、地温）、および、オゾン濃度である。オゾン濃度は、丹沢山、檜洞丸の2地点では、Dylec社1150オゾン計による測定が行われてきたが、菰釣山と鍋割山では、2014年夏、2015年秋の短期間のみ、小型オゾン計（2B technologies社Model202、または、106）を用いた測定を試みた。この小型オゾン計は、DC12Vで稼動するため低容量の電源システムでも運用可能であり、また、軽量であるためメンテナンスのための運搬が容易である。すでに米国の山岳地帯における観測が報告されている（Burley and Ray, 2007; Burley and Bytnerowicz, 2011; Burley *et al.*, 2014）。測定データは、局設置当初からのデータは10分間の平均値（10分値）として連続的に記録されており、小型オゾン計を使用した2014年夏データは10秒値、2015年秋データは5分値として記録された。なお、表2-1に示すように2015年秋の小型オゾン計による観測データについては有効測定データ期間が短かったため、本稿では詳細な結果の記載を省いた。



図 2-1 丹沢山地測定局と周辺常時監視測定局
(左下枠囲みは、中央付近の鳥瞰図)

3 連続測定データ

山地の連続測定には、落雷、豪雨等に起因する測定機器の故障により、欠測期間が生じている。表 2-1 にオゾン濃度の有効データ期間を示した。なお、Dylec1150 のデータは一日に 1 時間値 (1 時間平均値；1 時データ = 0:00 ~ 1:00 の平均値) が 20 個以上得られた日を有効測定日として、有効データ期間を求めた。小型オゾン計による短期観測は設置日から撤去日までを示した。

図 2-2 に丹沢山、檜洞丸、犬越路の 3 地点において 2012 年度に観測されたオゾン濃度一時間値を示した。丹沢山、檜洞丸の濃度変動は振幅、タイミングともにほぼ同じであった。標高の低い犬越路でも山頂 2 地点の変動に同期していることが多かったが、異なる変動も散見され、特に夜間に数 ppb 程度犬越路のほうが濃度が低くなっていることが多かった (図 2-4 参照)。図 2-2 から①の 4 ~ 6 月後半までは 20ppb を下回ることがなく、春に濃度レベルが高いことが分かる。②の 7 月中旬から 9 月上旬にかけては頻繁に 20ppb を下回ることがあり、平均的な濃度は低い変動が激しく、最大値は濃度レベルの高い 5 月と同じく 100ppb 程度であった。③、④の 10 ~ 2 月ではほとんどが 20 ~ 60ppb の間に収まっており、夜に低く昼に高い日変化はしているが、他月と比較すると濃度変動が小さかった。また、④の 1 月途中からは緩やかに濃度レベルが上昇し、3 月からは徐々に濃度変動が大きくなっていった。

図 2-3 に、菰釣山で連続測定を行った 2014 年 8 月 1 日から 9 月 5 日までのオゾン濃度を示す。菰釣山、丹沢山、檜洞丸の 3 地点は 10 分値、近隣一般局データは一時間値である。これまで檜洞丸と丹沢

山におけるオゾン濃度は、ほぼ同じ値で推移することがわかっているが、今回の観測から菰釣山についても、檜洞丸、丹沢山とほぼ同じ変動を示すことがわかった。しかし、オゾン濃度が 60ppb 以上の濃度に注目すると、平地の一般局で 60ppb を超過したのは 13 日に対し、山地で 60ppb を超過したのは 8 日であったが、菰釣山において、オゾン濃度が 60ppb 以上となったのは 9 月 3 日を除き夜間に起こっており、昼間は小さなピークしか観測されなかった。また、丹沢山と菰釣山の 10 分値を比較すると、8 月 2 日、8 月 8 日のピークなど、菰釣山の濃度変動が丹沢山から数時間程度遅れて生じている場合もあった。これらの挙動は、人口密集地域において朝から昼すぎに地上付近で生成され、1-2km 厚の対流混合層に広がったオゾンのうち、消滅速度が小さい上空空間を西 ~ 北方向に輸送されたものが山地に到達するという機構と整合している。

4 日変動

丹沢山地および周辺地域におけるオゾン濃度の日変動については、過去の研究においてすでに解析されている。河野ら (2007) は、檜洞丸において 2004 年 8 月から 2006 年 7 月の 2 年間にわたり連続測定を実施し、犬越路局、伊勢原市役所局におけるデータとの比較を行った。その結果、オゾン濃度の最大値は平地の方が高いが、年平均値では丹沢山地の 2 地点が平地の約 2 倍であった。また、季節別にオゾン濃度の日変動を調べた結果、年間を通して、標高が高い地点ほど日変動の振幅が小さくなり、最も標高の高い檜洞丸では冬季に日変動がほとんどみられなかった。なお、いずれの地点においても春の濃度が最も高かった。斎藤ら (2012) も、犬越路局でのオゾン濃度の日変動が平地の測定局と比較し小さく、日中にオゾン濃度が上がらず、夜間にオゾン濃度が下がる特徴があると指摘している。斎藤ら (2012) は、大気化学輸送モデル CMAQ のプロセス解析機能を用いて、その原因を解析している。

図 2-4 は丹沢山、檜洞丸、犬越路の丹沢山地 3 地点と神奈川県常時監視測定局のうち一般局 (59 局) の 2012 年度の年平均オゾン濃度の日変動である。

以前の研究で示されていたのと同様に、濃度変動はどの地点においても朝に最小、昼すぎに最大となっており、標高の高い地点ほど日較差が小さくなっていった。今回の調査で、丹沢山と檜洞丸の 2 地

表 2-1 丹沢山地測定局のオゾン有効データ期間とオゾン測定器機種

地点	オゾン有効データ期間	備考
丹沢山	2012年 4/1~4/7、4/9~6/19、6/22、6/25~7/16、7/21~9/10、9/12~11/4、11/6~12/31	Dylec1150
	2013年 1/1~1/23、1/25~3/26、3/28~8/10、11/6~11/12、11/14~12/3、12/5~12/31	Dylec1150
	2014年 1/1~3/15、3/18~4/28、4/30~5/19、6/5~10/24、10/31~11/2、11/6、11/12~12/3、12/5~12/31	Dylec1150
	2015年 1/1~6/11、6/14~7/19、7/21~8/16、8/19~11/30	Dylec1150
檜洞丸	2012年 4/20~6/19、6/22~7/16、7/21~8/5、8/8~11/4、11/6~12/31	Dylec1150
	2013年 1/1~2/11、2/14~3/5、3/8~3/26、3/29~8/14、8/17~10/31、11/2~11/4、11/6~12/2	Dylec1150
	2014年 5/31~7/31、8/21~11/3、11/5~11/30、12/2~12/3、12/5~12/31	Dylec1150
	2015年 1/1~3/2、3/31~7/25、7/27~8/1、8/4~8/6、8/8~9/4、11/12~11/30	Dylec1150
鍋割山	2015年 10/1~11/17	2B202
菰釣山	2014年 8/1~9/5	2B202
	2015年 9/2~9/3	2B106

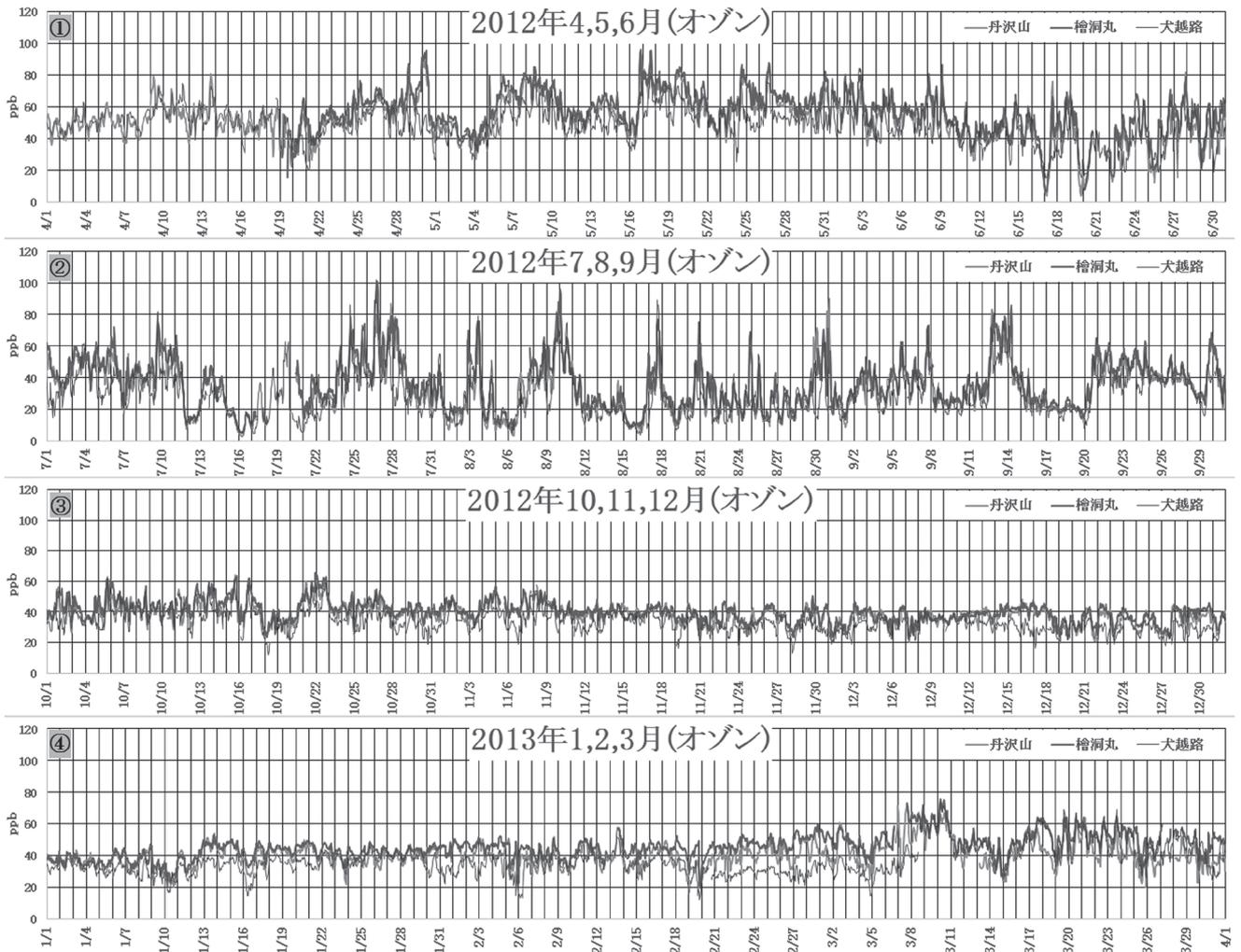


図 2-2 2012 年度丹沢山地のオゾン濃度 1 時間値

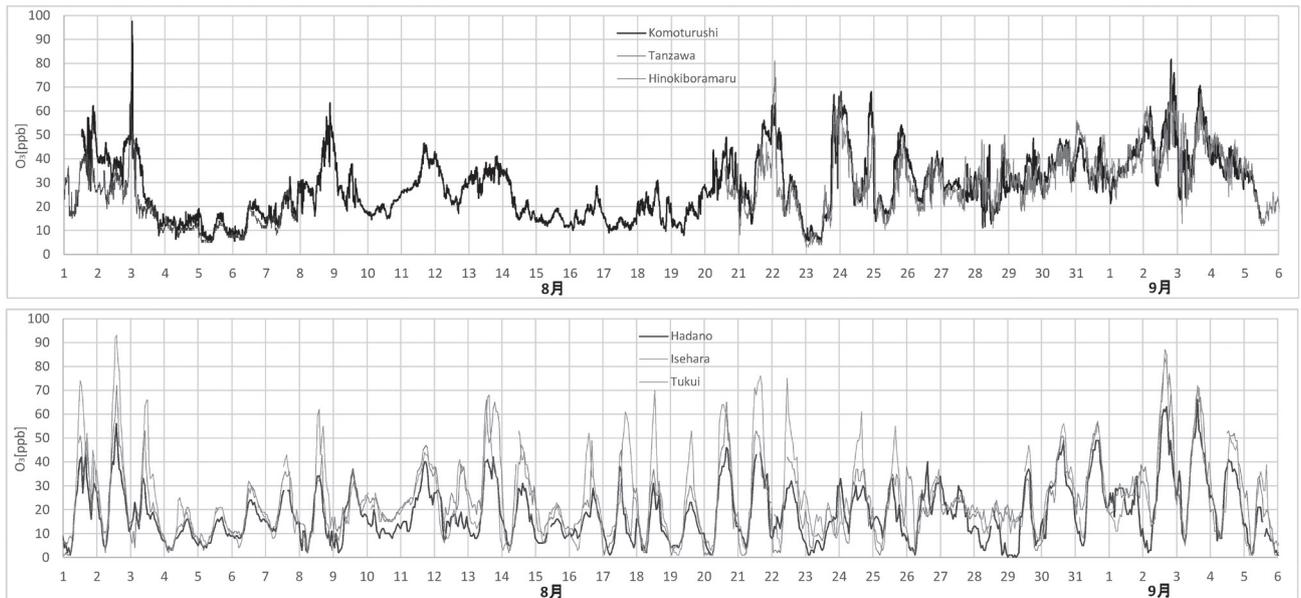


図2-3 2014年8月1日から9月5日の丹沢山地オゾン濃度（菟釣山、丹沢山、檜洞丸=10分値、上）と周辺一般局（秦野、伊勢原、津久井=1時間値、下）におけるオゾン濃度

点では年間平均日変動はほぼ同じとなっていることが分かった。また、日内の最大、最小となる時刻が神奈川県一般局、犬越路、丹沢山・檜洞丸の順になっており、山地のオゾンは平野部からの移流の影響を受けて変動していることが示唆された。

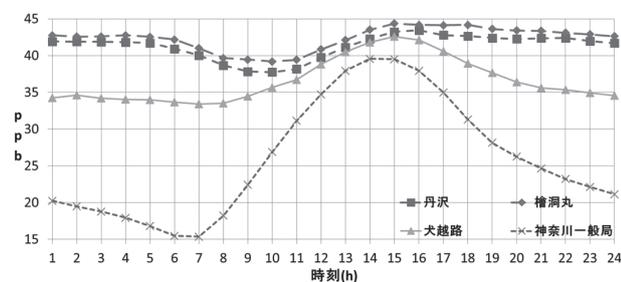


図2-4 2012年度丹沢山地と神奈川県常時監視測定局の年平均オゾン日変動

5 月変化

季節変化については、河野ら(2007)の他に、2004年および2005年の4月から9月まで拡散型パッシブサンプラーを用いた調査結果が過去に報告されている(阿相ら, 2007)。この研究では、丹沢山地では周辺一般局と同様にオゾン濃度は春に高く、夏にかけて低くなると報告されている。

図2-5に、2009年4月から2015年3月の月平均オゾン濃度を示す。月変化は毎年ほとんど同じ形となっていることが分かる。山のオゾン濃度が最大になるのは平野部と同様に5月頃であるが、最小は地上が12月であるのに対して山は7,8,9月の夏に最

小となるため、地上との濃度の差が6,7月頃の初夏に小さくなり、12月に差が大きくなっている。

6 他の国設酸性雨局などとの比較

これまでの研究では丹沢山地内または丹沢山地周辺の常時監視測定局との比較しか行われてこなかった。ここでは、国設酸性雨局との比較を行い、丹沢山地における特徴を明らかにする。なお、国設酸性雨局は都市域には3地点ほどであり、丹沢山地と同じく汚染物質の発生源が少ないと考えられる岬や山、島などの遠隔地に多く設置されており、比較的高標高に位置する測定局が多い。また、国設酸性雨局は都市、田園、遠隔の3つに分類される。

図2-6に丹沢山と国設酸性雨局の各カテゴリから選抜した地点の2012年度の平均日変化を示す。丹沢山や赤城と尼崎を比較すると、山では最小・最大となる時刻は都市部より1~3時間程度遅いことが分かる。これは山のオゾン濃度は近くの都市域からの移流を受けて変化しているためであると考えられる。小笠原のような周囲からの人為的影響がほとんどないような場所では日変化はなくほぼ一定の濃度を保っていることが確認された。山や遠隔地などで都市域と比較して夜間の濃度減少が小さくオゾンの日変化量が小さい理由としてNOの排出量が少ないことが考えられる。

図2-7に、2012年度の丹沢山地の3地点と国設酸性雨局の高標高3地点(標高750m以上)のオゾ

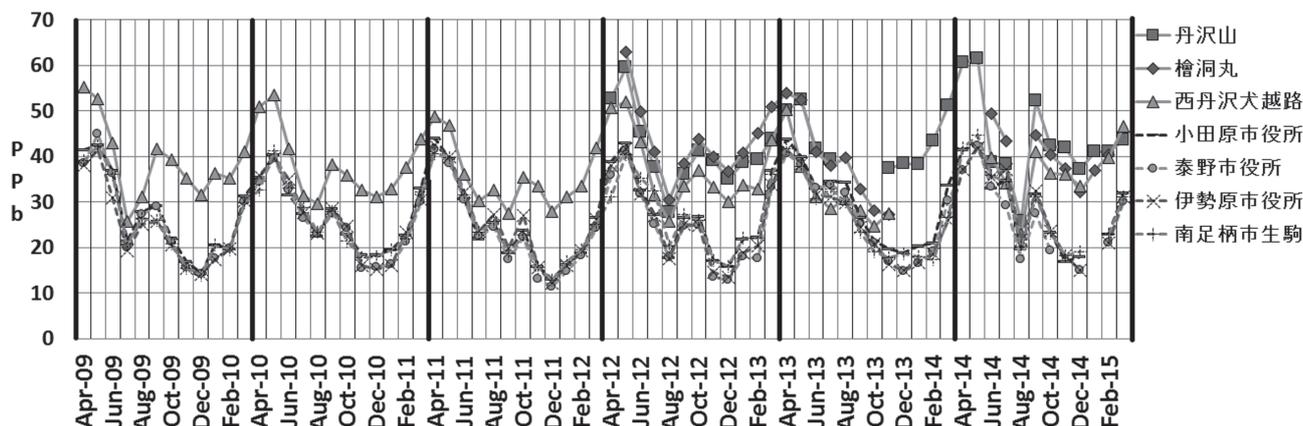


図 2-5 丹沢山地と周辺常時監視測定局の月平均オゾン濃度変動

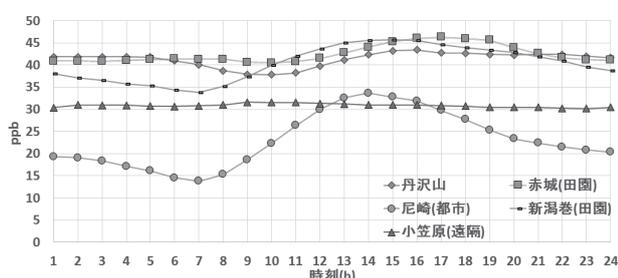


図 2-6 丹沢山と国設酸性雨局の2012年度平均日変化

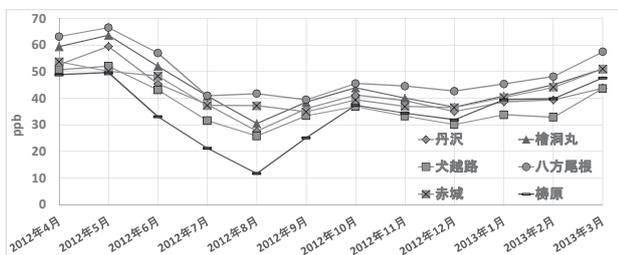


図 2-7 丹沢山地と国設酸性雨局の2012年度月平均値

ン濃度月平均値の変動を示す。全地点でオゾン濃度は春に最大、夏に最小となっている。また、八方尾根と赤城の2地点は丹沢山地の3地点と比較すると、春から夏にかけてのオゾン濃度の減少幅が小さく、逆に梶原では大きいことが分かる。夏の濃度低下の違いは、太平洋上からの低濃度オゾン気塊移流の影響度の違いを反映しているものと考えられる。

図 2-8 に、丹沢山地と国設酸性雨局（標高 700m 以上）の 4-9 月の AOT40（有効測定データが 80% 以上）の経年変化を示した。全体的な傾向としては 2009 年頃以前よりも、以後の方が AOT40 値が低い。高標高に位置する赤城、八方尾根では AOT40 の値が特に大きく一時は 100ppmh 前後と非常に大きな値となっていたが、2012 年には赤城は 40ppmh、八方尾

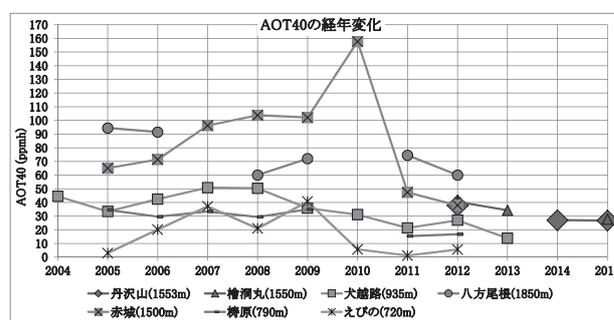


図 2-8 丹沢山地と国設酸性雨局の AOT40 の経年変化

根は 60ppmh まで減少している。丹沢山、檜洞丸については、2012 年に、同程度の標高に位置し首都圏周辺の山地局である赤城と近い値となっていること、および、犬越路の経年変化から、この 2 地点でも 2008 年頃には 80ppmh に近い値をとっていたのではないかと推測できる。丹沢山地の AOT40 は、近年、20-30ppmh の範囲で緩やかに変化しているが、4-9 月の AOT40 が 10-21ppmh でブナ苗木の固体乾重量が 10% 低下するという報告があり（伊豆田・松村, 1997）、より低い曝露量になるよう改善する必要がある。

7 風向依存性とオゾン濃度の関係

2012 年度の丹沢山、檜洞丸、犬越路の 3 地点について月ごとに風向別平均オゾン濃度を求めた。図 2-9 に結果を示す。丹沢山では、5 月に濃度が高く、西風のときわずかに高い傾向があった。7～9 月の夏季では、北よりの風のときは 40ppb 以上であるのに対し、南よりの風のときは 20ppb 未満となっていた。北よりの風のときにオゾン濃度が高くなる傾向は、6 月頃から現れている。夏以外の期間はオゾン濃度の風向依存性は小さかった。檜洞丸においても、

夏は北よりの風のとき濃度が高くなっており、その他の期間では風向による濃度差は小さかった。丹沢山と檜洞丸では、夏季の強い海風によって関東内陸部に生じた高濃度オゾン気塊が、夜間に陸風によって南に向かって輸送されるために、北風が吹くときにオゾン濃度が高くなったと考えられる。

犬越路でも6～9月の夏以外の期間では他地点と同様にオゾン濃度の風向との関係は小さかった。夏は、丹沢山・檜洞丸と異なり、南よりの風のとき濃度が高かった。犬越路では、他地点よりも標高が低く、昼間に南風、夜に北風が吹くという傾向がはっきりしているため、南側に位置する平野部のオゾン日変化を反映したものと考えられる。

山地の風向風速計はプロペラ式のものが地上5mの高さに設置されている。山頂または稜線では、山

肌を登る風が複数方向から集まる場所であり、風速風向の時間空間変動は極めて激しい。実際、近傍の樹々に吹く風と風向風速計に当たっている風が全く異なっていることが頻繁に目視で確認されている。山岳地において信頼性と代表性の高い風向風速の観測は、今後の課題である。

Ⅲ 徒歩移動観測

1 意義、目的

丹沢山、檜洞丸の2地点におけるオゾンの連続測定によって、山頂付近のオゾンの挙動の理解が進んでいる。しかし、ブナ枯れの分布は一様ではなく、オゾンの影響評価を精度よく行うためには、より高密度に丹沢山地全体のオゾン濃度分布を把握する必

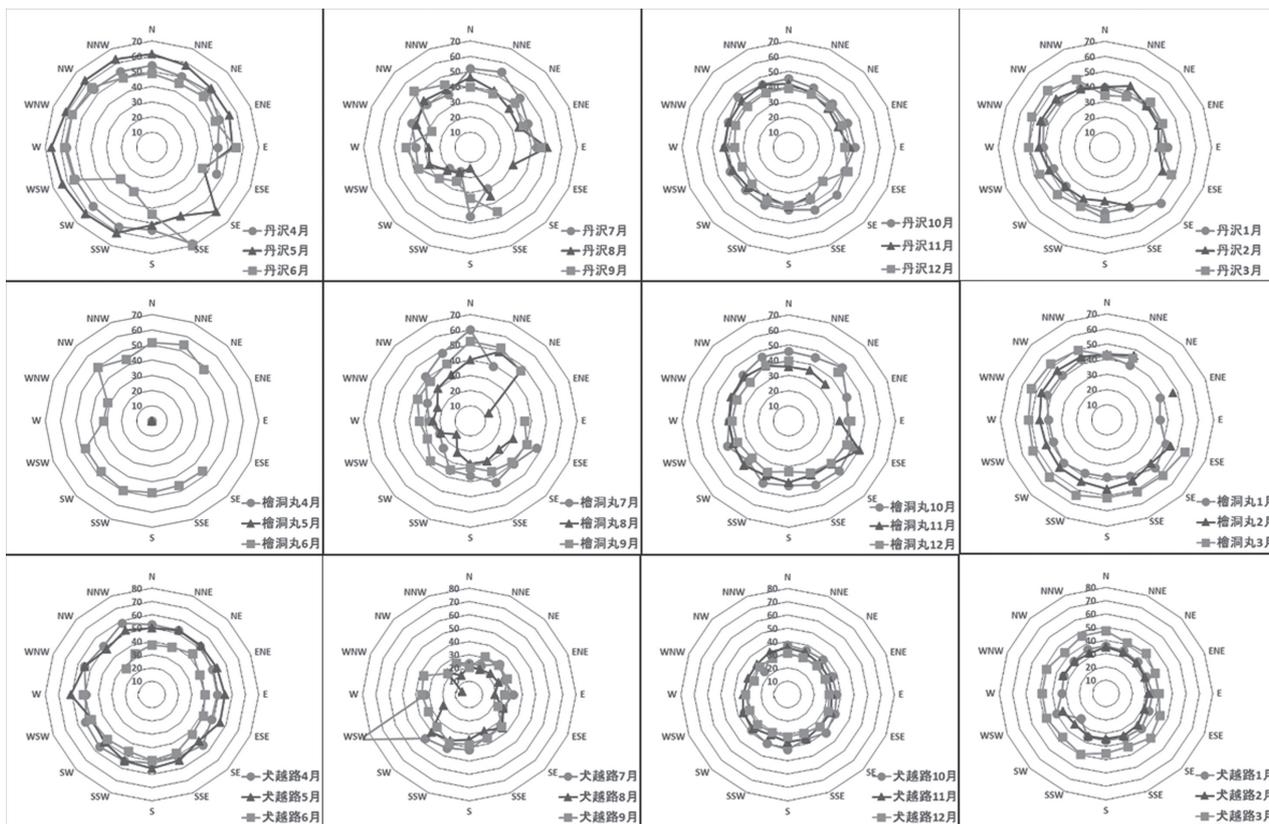


図 2-9 2012 年度丹沢山地測定局の風向別平均オゾン濃度

表 3-1 徒歩移動観測実測日

年月日	主な経由山頂	天候	備考
2014年5月30日	檜洞丸	快晴	
2014年8月1日	菰釣山	晴れ	2B202の設置のため、登山時のみの観測
2014年9月5日	菰釣山	雨→晴れ	2B202の回収のため、下山時のみの観測
2014年9月29日	菰釣山	晴れ	
2014年10月3日	塔の岳、丹沢山、蛭ヶ岳、檜洞丸	晴れ	風が強かった
2015年6月24日	檜洞丸	晴れ、時々曇り	
2015年9月2日	菰釣山、城ヶ尾山、畦ヶ丸	雨→曇り、時々霧	本観測から背負子を使用
2015年10月1日	鍋割山	雨	爆弾低気圧による大荒れの天候で風も強かった。
2015年10月21日	檜洞丸	曇り、時々霧	

要がある。解決策として、オゾン連続測定局を多くの地点に設置することが考えられるが、設置やメンテナンスのコストを考慮すると現実的ではない。そこで、代替法として、山地内を移動しながらの観測を行った。この方法では、時間的には特定断面になるが、高密度に広い範囲の濃度分布を把握することができるため、地形影響などを推測する上で貴重な情報が得られる。これまで、林道を利用した自動車移動観測を複数回実施してきたが（岡崎ら，2010）、山頂に近い高標高域の情報が得られていなかった。そこで、小型オゾン計を携帯して登山道を移動観測することにより、麓から山頂までの詳細な濃度分布を測定した。

2 観測方法

以下の測定機器を図3-1のように背負子に取り付け、登山道を歩行することにより観測を行った。

- ・小型オゾン計（2BTechnologies社 Model202）
- ・充電電池
- ・気温・気圧計（T&D社 TR-73U；サーミスタセンサーを強制換気遮光二重通風筒に挿入）
- ・湿度計（T&D社 TR-77Ui；静電容量式センサーを遮光通風箱に挿入）
- ・GPS ロガー（iblue747pro）



図3-1 移動観測機器一式

3 観測結果

表3-1に丹沢山地において実施された徒歩移動観測の実施日と主な経由山頂を示す。全9回のうち、特徴的な結果が得られた観測結果を紹介する。

(1) 檜洞丸移動観測

檜洞丸を主な目的地とした移動観測は2014年5月30日、2015年6月24日、2015年10月21日の

3回実施された。

図3-2、図3-3に2014年5月30日の観測結果を示す。本観測では相対湿度と山頂滞在時のオゾンデータが欠測となっている。神奈川県自然環境保全センターから登山口の区間（A）、登山口から尾根線までの区間（B）、尾根線と山頂の間の区間（C）、尾根線から登山口までの区間（D）、登山口から神奈川県自然環境保全センターまでの区間（E）に分類した。区間A、Eは、自動車で移動中であるが、助手席の窓からオゾン計の吸気口を出して車載観測を実施した。区間B、Dともに600m以上の標高差の中を観測しているが、濃度レベルに大きな変動はなかった。区間Bの10時55分頃（図3-2の尾根線付近）でオゾン濃度と温位（Potential Temperature）の大幅な上昇が観測された。区間Dでは途中のオゾン濃度の記録が欠損しているが、測器の表示を目視確認した値は山頂と同程度であった。下山時は、尾根線付近においてオゾン濃度の変動は観測されなかったが、温位の急激な減少は観測された。

図3-4に2015年6月24日の観測結果を示す。本観測においても11時50分頃の尾根線通過時にオゾン濃度と温位の急激な増加が観測された。また、2014年5月30日の観測では欠測となっていた相対湿度は尾根線通過時に大きく減少していた。下山時については2014年5月30日の観測と同様に、尾根線付近（14:41～14:56）でオゾン濃度の大きな変化はなかったが、温位は大きく減少、相対湿度は増加していた。2015年10月21日の観測においても、登山時に尾根線付近でオゾン濃度の上昇、温位の上昇、相対湿度の減少が観測され、下山時には尾根線付近で温位の減少が観測された（図示なし）。なお、この日は曇りで霧も時々観測され、霧発生時には湿度の増加とオゾン濃度の減少が観測された。

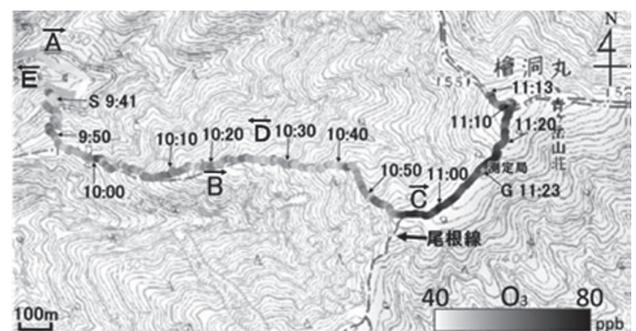


図3-2 2014年5月30日檜洞丸移動観測登坂時の経路とオゾン濃度分布

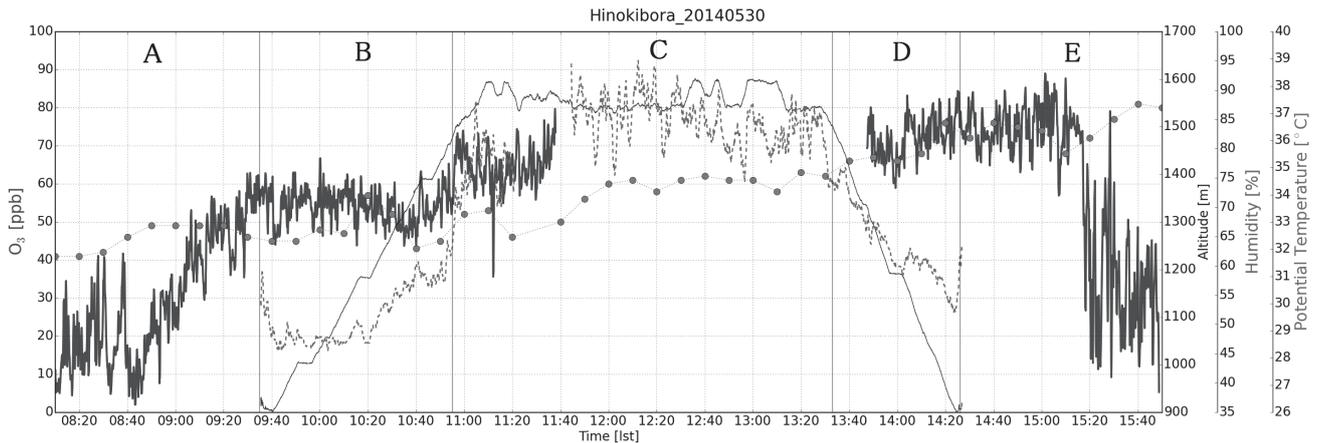


図 3-3 2014 年 5 月 30 日檜洞丸移動観測結果 (太実線:2B202 オゾン、破線:温位、丸:檜洞丸オゾン 10 分値、細実線:標高)

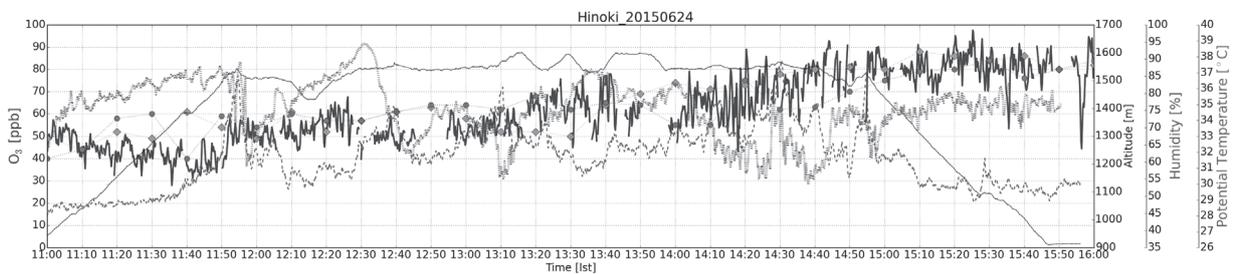


図 3-4 2015 年 6 月 24 日檜洞丸移動観測結果 (太実線:2B202 オゾン、破線:温位、点線:相対湿度、菱形:丹沢山 10 分値、丸:檜洞丸 10 分値、細実線:標高)

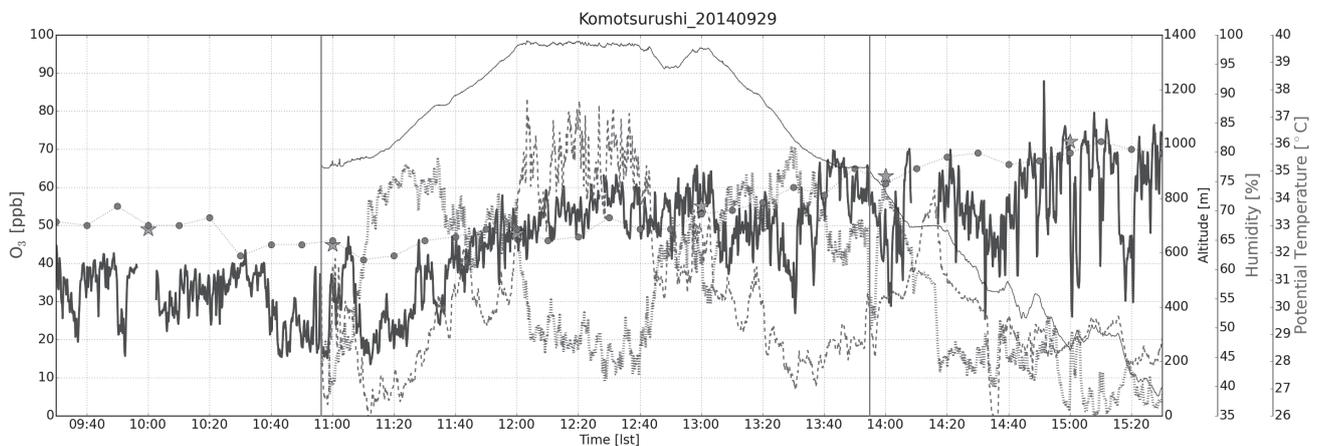


図 3-5 2014 年 9 月 29 日菰釣山移動観測結果 (太実線:2B202 オゾン、破線:温位、点線:相対湿度、丸:檜洞丸 10 分値、星:犬越路オゾン 1 時間値、細実線:標高)

(2) 菰釣山における移動観測結果

図 3-5 に 2014 年 9 月 29 日の観測結果を示す。菰釣山では、山梨県道志村にある登山口から尾根線まで沢沿いを登り、尾根線伝いに西へ山頂を目指す経路で観測した。菰釣山では、檜洞丸におけるようなオゾン濃度急変地点はなかった。この観測では、オゾン濃度増加時に相対湿度が減少し、オゾン濃度減少時に相対湿度が増加する変動が数箇所を確認された。同様の変動は全移動観測を通して複数回確認さ

れているが、オゾン濃度の増減時に必ずしも相対湿度が変動するというわけではない。

(3) 丹沢山地稜線縦走観測

より広い範囲のオゾン濃度分布を把握するために、2014 年 10 月 3 日に丹沢山地を縦走する移動観測を実施した。図 3-6 の登山口から下山口が徒歩による移動観測区間である。塔の岳 - 丹沢山間で濃度変動・濃度レベル共に大きくなった区間を除くと、

オゾン濃度は約 30ppb でほぼ一定であった。檜洞丸南西の尾根線を通過したのは 15 時過ぎであり、オゾン濃度に顕著な変化はなかった。なお、2B202 によるオゾン濃度は、丹沢山・檜洞丸の測定局を通過した時の Dylec1150 による測定値とよく一致していた。



図 3-6 2014 年 10 月 3 日移動観測経路とオゾン濃度分布

IV まとめ

本研究では、丹沢山地のオゾン濃度データの解析、および、小型オゾン計による登山道移動観測を実施した。

これまで山地では平地よりも日変動が小さく、特に夜間のオゾン濃度が高いことが知られていたが、今回の結果からも、その傾向が確認された。丹沢山と檜洞丸では、濃度レベルも変動のタイミングもほぼ同じであり、常に同じ気塊の影響下にあったと考えられる。一方、2014 年夏の菰釣山における観測では、ほとんどの濃度極大は平地で昼間に高濃度が起きた後の夜間に起きており、多くの場合、丹沢山と檜洞丸における極大と同期していた。ただし、幾つかの事例においては、菰釣山の濃度極大が、丹沢山・檜洞丸よりも数時間遅れることがあった。

月ごとの平均値を 2012 年度において比較した結果、丹沢山と檜洞丸では 5 月に最大、8 月に最小となり、高標高の国設酸性雨局における挙動と類似していた。ただし、8 月の他月と比較した相対濃度は、八方尾根、赤城 > 檜洞丸、丹沢山、犬越路 > 梶原の関係にあり、太平洋上の低オゾン濃度気塊の影響が大きいほど 8 月の濃度が相対的に低くなっていると考えられた。

2012 年度平均の日内変動は、朝に最小、昼過ぎに最大となるパターンは同じであるが、その振幅は

標高が高いほど小さくなっていた。特に朝の最小値が起きるデータ時刻は、神奈川県一般局平均が 6-7 時であるのに対し、犬越路は 7-8 時、丹沢山・檜洞丸は 9-10 時と大きな差があった。一方、昼過ぎの最大は、神奈川県一般局平均が 14-15 時、犬越路が 15 時、丹沢山・檜洞丸が 15-16 時と比較的差は小さかった。濃度レベルはどの時刻においても、丹沢山・檜洞丸 > 犬越路 > 神奈川県一般局平均 となっており、標高による濃度差は日中に小さく、夜間に大きくなっていた。

樹木へのオゾン暴露量を 4-9 月の AOT40 で評価した結果、国設酸性雨局や犬越路において 2000 年台半ばから AOT40 が経年的に減少する傾向にあることがわかった。丹沢山・檜洞丸における近年の AOT40 を他局トレンドに合わせて過去へ外挿すると、2008 年ころには 80ppmh 程度の比較的高い値であったことが推定された。

風向別のオゾン濃度を評価した結果、夏季を除くと明瞭な風向依存性はなかった。夏季は、丹沢山・檜洞丸においては、北風時に高濃度、南風時に低濃度であったが、犬越路において、北風時に低濃度、南風時に高濃度であった。丹沢山・檜洞丸は、昼間に高濃度となった関東平野内陸部の気塊の夕方以降の陸風による移流、一方、犬越路は、昼間に高濃度となった丹沢山地の南から南東側の平野部の気塊の夕方までの海風による移流が強く影響していると考えられる。

詳細な空間分布を把握するために、日中に登山道を通る移動観測を行った。その結果、檜洞丸山頂の南西に位置する尾根線を横切る際に、午前中（西から東に移動）はオゾン濃度が急増するが、午後（東から西へ移動）は変化しないことがわかった。なお、午前、午後ともに、気温（温位）は西側で低く東側で高く、相対湿度は西側で高く東側で低くなっていた。気温と相対湿度の差は地形と日射の関係で決まっているが、オゾン濃度は平地からの移流の進行によって午前と午後の差が生じたと考えられる。

なお、オゾン濃度は気温と正相関、相対湿度と逆相関することが多く、山岳地形内での気塊の挙動を理解するヒントとなると思われる。

同様の移動観測は、松山市淡路ヶ峠（標高 273m）などでも実施されており、多くの地点でオゾン濃度の急変が観測されている（Kanda, 2015）。

V 引用文献

- 相原敬次 (2004) 森林衰退の現状と取り組み (II) 神奈川県の丹沢山地における樹木衰退現象. 大気環境学会誌 39: A29-A39
- 阿相敏明・内山佳美・山根正伸・越地 正・相原敬次 (2007) III 丹沢山地のブナ着葉期におけるオゾン濃度分布. 丹沢大山総合調査学術報告書 P396-399
- Burley, J.D. and Bytnerowicz, A. (2011) Surface ozone in the White Mountains of California. *Atmos. Environ.* 45: 4591-4602
- Burley, J.D., Bytnerowicz, A., Ray, J.D., Schilling, S. and Allen, E.B. (2014) Surface ozone in Joshua Tree National Park. *Atmos. Environ.* 87: 95-107
- Burley, J.D. and Ray, J.D. (2007) Surface ozone in Yosemite National Park. *Atmos. Environ.* 41: 6048-6062
- Bytnerowicz, A., Musselman, R. and Szaro, R. (2004) Effects of air pollution on the Central and Eastern European mountain forests. *Environ. Pollut.* 130: 1-3
- Bytnerowicz, A., Omasa, K. and Paoletti, E. (2007) Integrated effects of air pollution and climate change on forests: A northern hemisphere perspective. *Environ. Pollut.* 147: 438-445
- 畠山史郎 (2003) 酸性雨—誰が森林をいためているのか?. 209pp, 日本評論社, 東京
- 井川 学・大河内 博 (2009) 丹沢大山における大気化学観測と酸性沈着が森林生態系に及ぼす影響. *エアロゾル研究* 24: 97-104
- 平岡環境科学研究所 (2007) 丹沢大山総合調査学術報告書
- 伊豆田 猛・小川和雄 (2004) 森林衰退の現状と取り組み (III) 奥日光前白根山周辺のダケカンバ衰退と奥秩父亜高山帯のシラビソ立ち枯れ. *大気環境学会誌* 39: A65-A77
- 神奈川県環境部 (1997) 丹沢大山自然環境総合調査報告書
- 神奈川県自然環境保全センター (2012) 神奈川県自然環境保全センター報告
- Kanda, I. (2015) Measurement of Ozone Concentration on the Elevation Gradient of a Low Hill by a Semiconductor-Based Portable Monitor. *Atmosphere* 6: 928-941
- Karnosky, D.F., Skelly, J.M., Percy, K.E. and Chappelka, A.H. (2007) Perspectives regarding 50 years of research on effects of tropospheric ozone air pollution on US forests. *Environ. Pollut.* 147: 489-506
- 河野吉久 (2004) 森林衰退の現状と取り組み (I) 欧米における樹木衰退の現状と研究の動向. *大気環境学会誌* 39: A1-A8
- 河野吉久・須藤 仁・石井 孝・相原敬次・内山佳美 (2007) II 丹沢山地周辺のおゾン濃度の実態とブナに対する影響. 丹沢大山総合学術報告書 P383-395
- 越地 正・鈴木 清・須賀一夫 (1996) 丹沢山地における森林衰退の調査報告 (1) ブナ、モミ等の枯損実態. 神奈川県森林研究所研究報告 22: 7-18
- 松隈大亮・板橋秀一・鶴野伊津志・若松伸司 (2012) 丹沢山地における高濃度オゾンの広域移流現象の数値解析. *大気環境学会誌* 47: 173-178
- Matyssek, R. and Innes, J.L. (1999) Ozone - A risk factor for trees and forests in Europe? *Water Air Soil Pollut.* 116: 199-226
- 岡崎友紀代・相原敬次・阿相敏明・福永明子・高見雄佑・國元浩平・山下真生・武智勝哉・堀越信治・酒井 隆・山根正伸・若松伸司 (2010) 神奈川県丹沢地域における2009年夏季のオキシダント濃度分布観測. *愛媛大学農学部紀要* 55: 7-23
- Paoletti, E. (2006) Impact of ozone on Mediterranean forests: A review. *Environ. Pollut.* 144: 463-474
- 斎藤正彦・若松伸司・相原敬次 (2013) 丹沢山地における樹木のオゾン取込み量の推定. *大気環境学会誌* 48: 251-259
- 斎藤正彦・若松伸司・岡崎友紀代・堀越信治・山根正伸・相原敬次 (2012) 数値モデルを用いた丹沢山地のオゾンの挙動解析. *大気環境学会誌* 47: 217-230
- 酸性雨研究センター (2005) 増え続ける対流圏オゾンの脅威

- Seinfeld, J.H. and Pandis, S.N. (2006) Atmospheric Chemistry and Physics. 1225pp, John Wiley & Sons, New Jersey
- Shigihara, A., Matsumoto, K., Sakurai, N. and Igawa, M. (2008) Growth and physiological responses of beech seedlings to long-term exposure of acid fog. *Sci. Total Environ.* 391: 124-131
- Shigihara, A., Matsumura, Y., Kashiwagi, M., Matsumoto, K. and Igawa, M. (2009) Effects of acid fog and ozone on the growth and physiological functions of *Fagus crenata* saplings. *J. For. Res.* 14: 394-399
- Suto, H., Hattori, Y., Tanaka, N. and Kohno, Y. (2008) Effects of Strong Wind and Ozone on Localized Tree Decline in the Tanzawa Mountains of Japan. *Asian J. Atmos. Environ.* 2: 81-89