

## 瀬戸内海沿岸部における大気汚染物質の動態と森林衰退に関する研究\*

苗村 晶彦\*\*

広島大学大学院生物圏科学研究科環境計画科学専攻

### Air Pollution and Forest Decline in the Seto Inland Sea District, Japan

Akihiko NAEMURA

Graduate School of Biosphere Sciences, Hiroshima University,  
Higashihiroshima 739 Japan

#### 第1章 序論

1960年代中頃から、酸性雨や、酸性霧・露などを含む大気汚染と森林衰退の関係が、近年、欧州・北米で多く報告されてきた。我が国では、関東、関西一帯のスギ衰退はオキシダントの影響ではないかと指摘されている。北海道苫小牧においては、寒さに強いストロブマツ林が現在激減しており、この異常落葉は酸性霧被害であると結論づけ、さらに下層草本類にも異常落葉が発生していると指摘している。神奈川県丹沢山系ではモミの高齢樹の立ち枯れやブナ林の衰退が報告されており、そこで採取された大山の霧水の pH 範囲は2.6~7.0であり、高い酸性度の霧水が頻繁に観測され、硝酸の蓄積が生じている。福岡県の宝満山においても、モミの木の立ち枯れが多数見いだされ、そのすぐ近くの三郡山において pH が3.4~4.3の酸性霧が観測されている。また、瀬戸内では、人工衛星ランドサットのデータを用いて解析した結果、松枯れ被害度と大気汚染や乱開発との間に有意な相関があることを指摘している。

しかしながら、森林域で多点的にガス状物質測定や樹木活力度の調査を行った例は極めて稀少である。そこで、本研究では、瀬戸内海沿岸部において激増するマツ枯れやヤマザクラなどの枯死に注目し、現地にて大気汚染と森林衰退の関係を詳細に調べ、両者の因果関係を考察することを目的とした。

#### 第2章 調査地の概要

簡易測定法の検討を行った調査地は、NO<sub>2</sub>濃度の比較的高いと推測される広島市街地域の中心に位置する広島市中区国泰寺交差点 (国道2号線沿い)、中区東千田町広島大学千田町キャンパス、広島市南区皆実町皆実小学校 (大気測定局)、及びNO<sub>2</sub>濃度の比較的低いと思われる広島市の西に隣接する広島県廿日市市四郎峠、広島県佐伯郡佐伯町埴 (タオ) である。また、O<sub>3</sub>に関しては東広島市広島大学西条キャンパスで行った。

大気汚染物質の動態と樹木への影響についての調査を行ったのは主に広島県極楽寺山である。また、短期暴露NO<sub>2</sub>濃度測定については広島県呉婆々宇山でも調査を行った。極楽寺山は広島県南西部、広島市の北西部に位置し、呉婆々宇山は広島県南西部、広島市北東部に位置する。極楽寺山は、

広島大学総合科学部紀要Ⅳ理系編、第23巻 (1997)

\* 広島大学審査学位論文

口頭発表日: 1997年2月3日、学位取得日 1997年3月25日

\*\* 現在の所属: 関西総合環境センター (広島大学総合科学部受託研究員)

南側（瀬戸内海側）斜面は広島市市街地に面するが、北側（内陸側）斜面はほとんど開発されていない西中国山地に連なる森林地帯である。また、南側斜面の標高2～5mには国道2号線、標高20～40mには国道2号バイパス線、標高130～210mには山陽自動車道が貫通している。

### 第3章 ガス状汚染物質濃度簡易測定法と精度の検討

NO<sub>2</sub>濃度の短期暴露測定法については、大気中のNO<sub>2</sub>濃度が比較的低い場合（<7ppb）、同一地点に設置された5つのNO<sub>2</sub>捕集管の測定値の変動係数は大きくばらついたが、NO<sub>2</sub>濃度が7ppb以上では変動係数は13%以下に収まった。また、暴露時間を通常の24時間以上にした場合、暴露時間の長さに反比例して、捕集管の捕集効率の低下がみられ、変動係数も増大した。大気測定局と同一地点で実施された24時間の簡易測定によるNO<sub>2</sub>濃度値（x）は、大気測定局の値（y）と良い相関（ $r=0.82$ ）を示し、両者には $y=0.73x+0.14$ という関係がみられた。しかし、気象条件によっては、この簡易測定によるNO<sub>2</sub>濃度の捕集効率が低下する場合もみられた。

長期暴露NO<sub>2</sub>、NO、SO<sub>2</sub>濃度測定法に関して、大気測定局との関係は、それぞれ両者には $y=0.85x+0.11$ （ $r=0.91$ ）、 $y=1.20x-3.96$ （ $r=0.85$ ）、 $y=0.56x+1.38$ （ $r=0.75$ ）という関係が見られ、また、長期暴露O<sub>3</sub>濃度測定法に関して、オゾンモニターとの関係は、 $y=0.75x+3.06$ （ $r=0.85$ ）という関係が見られ、それぞれ有意な相関であったがSO<sub>2</sub>に関しては若干精度が落ちた。

### 第4章 森林域におけるNO<sub>2</sub>濃度の標高別分布と海陸風の影響

我が国における大気汚染の現状は、NO<sub>2</sub>や浮遊粒子状物質による汚染は全国的に悪化している。また、NO<sub>2</sub>は一次汚染物質であると同時に、二次汚染物質を誘因する開始剤を生成させる物質でもあり、植物に対して毒性の強いPAN（peroxyacetyl nitrate）の生成にも深く関与している。そこで、広島県西部に位置する極楽寺山を対象とし、大気汚染が進行していると推測される南側斜面と、比較的汚染されていないと思われる北側斜面に分け、それぞれ標高差別にNO<sub>2</sub>濃度を、1992年10月から1994年5月まで、短期暴露（24時間測定）・長期暴露（30日間測定）の2つの方法を用い測定した。また、南側斜面の麓の低地部に位置する廿日市市消防署における風向頻度を調べた。

極楽寺山で測定されたNO<sub>2</sub>濃度短期暴露測定では気象条件によって変動が見られたが、南側斜面では標高50～150mで最も高く（平均14.8～17.3ppb）、これが標高の上昇と共に低下し、北側斜面では標高の低下にかかわらず、さらにNO<sub>2</sub>濃度の相対的な低下が観測された。NO<sub>2</sub>濃度長期暴露測定においても南側斜面では標高100～150mにおいて最も高く（平均約17ppb）、短期暴露測定と同様に標高の上昇と共に低下し、北側斜面では標高低下にかかわらず、濃度低下が観測された。

月別では、南側斜面150mにおいて、1994年3～4月に最高21.7ppbとなり、1993年11～12月に最低13.5ppbとなった。また、廿日市市消防署における風向頻度では、11～12月は、海風が9.5%、陸風が58.8%となり主に排出源のない山の北側からの風が卓越した。3～4月は、海風が39.5%、陸風が38.8%となった。従って、3～4月には市街地等の汚染源から吹く海風によってNO<sub>2</sub>が高濃度になると推測される。また、NO<sub>2</sub>濃度の傾向は常に維持されているものの、海陸風の影響を受けて、季節変化することもわかった。

### 第5章 森林域におけるガス状汚染物質濃度測定

我が国において森林衰退と大気汚染、酸性雨・霧・露等との関係が注目されているが、瀬戸内海沿岸地域に限らず、森林域におけるガス状汚染物質の長期にわたる測定を現地で多点的にとらえた研究例は稀少である。第4章のNO<sub>2</sub>濃度測定に続いて、極楽寺山の南側斜面と北側斜面において、それぞれ標高差別にNO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>濃度を分子拡散サンプラーを用いて30日間測定（長期暴露）を1995年1月から1996年1月まで測定した。

極楽寺山で測定されたNO<sub>2</sub>濃度は第4章と同様に南側斜面の標高100～150mで最も高く（平均

約20ppb)、これが標高の上昇と共に低下し、北側斜面では標高の低下にかかわらず、濃度の低下が見られた。NO濃度は標高差に拘わらずほぼ一定した。これは、NO<sub>2</sub>への酸化に因る影響が示唆される。

一方、SO<sub>2</sub>濃度の測定値は数ppb～15ppbの範囲にあったが、南側斜面(平均値9.7ppb)、北側斜面(平均値6.8ppb)となり有意に南側斜面で高かった。濃度傾向としては、南側斜面の標高の低いところで高濃度となり、標高の上昇に伴ってSO<sub>2</sub>濃度はある程度減少し、北側斜面ではSO<sub>2</sub>は低濃度ではほぼ一定となった。NO<sub>2</sub>に比べ、SO<sub>2</sub>がそれ程濃度が高くないことは、硫酸化物を取り除く脱硫や低硫黄石油・天然ガスへの燃料転換が進んだ結果であると思われる。

O<sub>3</sub>濃度測定の結果では、南側斜面の標高150mで平均18.8ppb、頂上で平均28.9ppbとなり、頂上近辺で高濃度となり、標高の低下と共に濃度は低下した。月別では、頂上において、4～5月に最高32.8ppbとなり、11～12月に最低24.5ppbとなった。これよりO<sub>3</sub>濃度は春季に高く、冬季に低いと、季節による日射量の変化がO<sub>3</sub>濃度に影響を与えることが示唆された。

NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>濃度の同時測定では、NO<sub>2</sub>に比べ、SO<sub>2</sub>がそれ程濃度較差が少なく、濃度が高くないことは、1970年頃から脱硫などのSO<sub>2</sub>対策が取られてきたことと関連していると推測され、現況ではNO<sub>2</sub>を中心とした汚染物質が主要因と思われる。また、南側斜面の標高の低いところでO<sub>3</sub>濃度が低く、O<sub>3</sub>濃度は標高依存性という傾向であった。地上付近のO<sub>3</sub>は、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>等の汚染物とは異なり、自然起源による比率、つまり、成層圏あるいは対流圏上部から沈降する量が多いことや標高の高いところでは紫外線の量が多くO<sub>3</sub>が生成しやすいと推測される。

#### 第6章 森林域における樹木活力度とガス状汚染物質濃度の関係

森林衰退の現状把握には、地域ごとの損傷状況の違い、背景となる環境要因の違いがあり、それぞれの地域での汚染・衰退度の現地調査が必要である。従って、大気汚染物質、酸性降下物質を調査すると同時に、現地にて森林の衰退状況を調べることが重要である。

山陽地方の瀬戸内海沿岸部や山陰地方の沿岸部は依然として激しいマツ枯れが進行している。広島県においては、約23万haのアカマツ林の内、61,000haのアカマツ林が被害を受けているのが現状である。そこで、瀬戸内海沿岸部に位置する広島市近郊の極楽寺山とその周辺を調査地とし、アカマツ(*Pinus densiflora*)、また、マツ以外にも、落葉広葉樹のヤマザクラ(*Prunus jamasakura*)・カスミザクラ(*Prunus leveilleana*)、常緑広葉樹のヒサカキ(*Eurya japonica*)を調査対象木として、天然指標生物法、葉の損失評価法を用い、マツの枯死率、サクラ類の枯死率及び出葉率、ヒサカキの着葉率といった樹木活力度を調査し、NO<sub>2</sub>濃度との相関関係を求め、現地での実態解明を試みた。アカマツでは南側斜面の標高150mでは、枯死率98.9%とほぼ全滅の状態であった。南側斜面の標高600mでは、枯死率9.1%であった。傾向としては、標高が上がるに連れ、枯死率も低下した。南側斜面と北側斜面でのマツ枯れの差異は歴然としていた。サクラ類では南側斜面の標高150mでは、枯死率44.8%で半数近くが枯死していた。北側斜面では枯死率は0～2%以下であった。サクラ類の出葉率も南側斜面と北側斜面とでは活力度の違いが明白であった。ヒサカキにおいては、南側斜面の標高150mでは、平均着葉率を計算すると42.2%であった。南側斜面の標高600mでは89.0%であった。以上の樹木活力度の調査結果と、現地でのガス状汚染物質の主要因と考えられるNO<sub>2</sub>濃度との標高毎の相関を求めてみると、アカマツの枯死率との相関係数( $r$ )は0.960( $p < 0.01$ )と高く、さらにヒサカキの着葉率とは0.949( $p < 0.01$ )と高い負の相関関係にあり、針葉樹だけでなく、針葉樹林帯の中・低木層の常緑広葉樹にも樹木衰退が確かめられた。サクラ類の枯死率及び出葉率とはそれぞれ、0.694( $p < 0.01$ )と0.479( $p < 0.05$ )といった相関の結果であったが、南側斜面と北側斜面を比較すると、枯死率では28.8%と1.1%といった歴然たる差異が見られた。以上より、現地

では NO<sub>2</sub> と SO<sub>2</sub> が相対的に高いところで、マツ林を中心とする樹木衰退が顕著に見られた。

#### 第7章 森林衰退域における逆転層と NO<sub>2</sub>濃度

瀬戸内海沿岸部の山間域の都市側斜面の標高100~150mで、大気中の NO<sub>2</sub>濃度が際だって高く、ここで森林衰退が特に激しい。そこで、極楽寺山の南側斜面標高140mに位置する宮島サービスエリアにおいて、夏季と冬季に、係留気球による気温勾配の観測と、短期暴露測定法による NO<sub>2</sub>濃度測定を行い、森林衰退地域の斜面上における逆転層と大気汚染の関係について調査した。

調査の結果、夏季・冬季ともに夜間から早朝にかけて高度20m(標高160m)に接地逆転層が形成されていることがわかった。NO<sub>2</sub>濃度の夜間12時間測定では、夏季に標高150mで32.2(±2.4)ppb、300mで10.7(±1.3)ppb、冬季に150mで27.2(±1.4)ppb、300mで4.3(±1.0)ppbとなり、標高150mと300mの間における NO<sub>2</sub>濃度の落差は冬季に際立った。これは、逆転層内では大気汚染物質が拡散されにくく、夜間標高160m以下に滞留することに因ると考察される。

従って、標高100~150m近辺では、夜間 NO<sub>2</sub>を起因としたさまざまな複合連鎖反応(例えば PAN 等の生成)が進むと推測され、こうしたメカニズムのもとで森林衰退を助長している可能性が示唆される。

#### 第8章 アカマツ葉・枝上の酸性降下物質

樹木衰退をもたらす一つの要因としての酸性降下物質は、乾性降下物と湿性降下物とに大別されるが、排出源近くでは特に乾性降下物の影響が多大であると考えられる。そこで、極楽寺山の南側斜面150mと北側斜面550mにおいて、若木のアカマツの葉・枝上に付着する酸性降下物を測定した。現地の若木をそれぞれ3本ずつ選定し、一回毎に50mlの蒸留水を吹きかけ採取した。この実験を春季から秋季にかけて毎週19回にわたり行った。

調査の結果、一回毎の20g当たりの平均当量値は、南側斜面150mで、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が3.22(±3.37)μeq/20g D. W.、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が1.73(±0.94)μeq/20g D. W.となり、硝酸イオンが特に高いことがわかった。また、北側斜面550mで、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が0.51(±0.55)μeq/20g D. W.、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が0.54(±0.38)μeq/20g D. W.となり、南側斜面と比較して歴然たる差異がみられた。特に、南側と北側との硝酸イオン量の相対的な比較では、南側が6.3倍となり、これは NO<sub>2</sub>濃度の4.3(=17.0ppb/4.0ppb)倍と比較してもさらに高くなり、ガス状汚染物質および葉・枝に付着する酸性降下物質では、特に、硝酸も含めた窒素酸化物が南側斜面で高く、これが南側斜面の樹木の衰退に多大な影響を及ぼしていることが推察される。

#### 第9章 総括

近年、酸性雨や、酸性霧・露などを含む大気汚染と森林衰退の関係が、欧州・北米、我が国においても多く報告されてきた。本研究では、瀬戸内海沿岸部に激増するマツ枯れに着目し、大気汚染と森林衰退に関する研究を行ってきた。

大気汚染に関しては、ガス状汚染物質の測定に先立ち、簡易測定法の精度を検討したところ、野外測定でも充分通用することがわかり、精密機械では行えない多点測定が実施できる。しかし、SO<sub>2</sub>に関しては若干精度が落ちた。

大気汚染の主要なガス汚染物質の動態について調べるため、NO<sub>x</sub>、SO<sub>2</sub>、O<sub>3</sub>濃度の同時測定を極楽寺山にて実施したところ、NO<sub>2</sub>濃度は前述した通りの結果となり、NO濃度は、標高差に拘わらずほぼ一定した濃度であった。SO<sub>2</sub>濃度に関しては、市街地に面する南側斜面の標高の低いところでは、濃度はやや高く、NO<sub>2</sub>、SO<sub>2</sub>などは、人為的発生源に近いところで複合汚染化していることがわかり、現況では NO<sub>2</sub>を中心とした汚染物質が主要因であると推測される。O<sub>3</sub>濃度については、南側斜面の標高の低いところで濃度が低く、標高依存性があった。

樹木に関しては、ガス状物質濃度測定を実施した極楽寺山においてアカマツの枯死率、サクラ類の出葉率・枯死率、およびヒサカキの着葉率といった樹木活力度を現地調査したところ、南側斜面の標高100~150mにかけて、マツなどの針葉樹のみならず、ヒサカキなどの常緑広葉樹の活力度が著しく低下し、また、サクラ類の落葉広葉高木の活力度の低下も明らかであった。樹木衰退が顕著のところでは、NO<sub>2</sub>濃度やSO<sub>2</sub>濃度が高く、これによる複合汚染が森林衰退に関わっていることが推測される。

また、NO<sub>2</sub>濃度は海陸風によって季節変動し、南側斜面においては、標高160m(高度20m)に気温の逆転が確かめられ、これに伴って標高160mの上下で夜間NO<sub>2</sub>濃度差異が極めて大きかった。これは、夜間に形成される逆転層によってNO<sub>2</sub>が拡散されず、境界層によって滞留するために極めて高濃度になったと推測される。この結果、夜間逆転層内では大気中NO<sub>2</sub>による連鎖反応(例えば、NO<sub>2</sub>+CH<sub>3</sub>CO-O<sub>2</sub>•→CH<sub>3</sub>CO-O<sub>2</sub>-NO<sub>2</sub>)が進み、こうして生成された有機窒素系の過酸化物は植物に非常に有毒なため、こうした物質が標高100~150mでの森林衰退を助長している可能性があると思われる。

大気汚染物質が樹木にどれくらいの影響を与えるかについては、直接的にマツの若木を用い測定を行った。葉・枝の生重量20g当たりの付着物質当量(19回分)では、南側斜面標高150mでNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が61.12μeq/20g D. W. となり陽イオン4種、陰イオン3種の内、最も高い結果となった。北側斜面標高550mとの比較上6.3倍であったため極めて大きな差異が生じた。Ca<sup>2+</sup>についても南側斜面150m、北側斜面550mとの比較上4.5倍であった。これらの大きな差は湿性降下物質では考えられず、乾性降下物質による樹木への沈着が大きいと推測される。

総じて、瀬戸内海沿岸部における大気汚染はNO<sub>2</sub>が主要因と推測される。自動車の排ガスや利用エネルギーの増大により、NO<sub>2</sub>に起因する慢性的な複合汚染や連鎖反応が、森林生態系に影響を与えていることが考えられる。