大気と森の相互作用：
里山の大気浄化能と奥山の健康診断

ガイア（生きている地球）を診断・治療する

早稲田大学創造理工学部
環境資源工学科
大気・水圏環境化学研究室
大河内　博

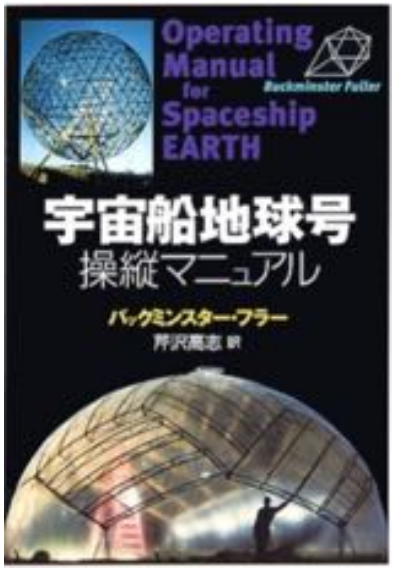
本日の内容

1. なぜ大気と森林の研究をするのか？
2. 里山の大気浄化能
   - 従来法：乾性沈着
     欧米モデルの適用でよいの？
     森林の大気浄化能を評価できるの？
   - 新規法：森林フィルター効果の評価
3. 奥山の健康診断
   渓流水質から森の健康状態を読み解く

地球観をもとう！ 宇宙船地球号

- 提唱者：
  バックミンスター・フラー
  米国人・工学者
- 提唱年：1962年
- 考え方
  地球：宇宙船
  人類：操縦者
- 地球を包括的にとらえ，資源エネルギーの有限性を指摘

環境問題：
人間が操縦を誤った結果？
機械のように修理できる？



地球観をもとう！ ガイア理論

- 提唱者：
  ジェームス・ラブロック
  英国人・大気化学者
- 考え方
  地球：自浄作用をもつ生命体
  人類：寄生者
- 地球と地球に住む生物が相互に影響しあい，環境を形成（産業革命以前）
  → 地球と人類との共生

環境問題：
人間の影響が大きくなりすぎた結果
地球生理学，地球システム科学へ発展

地球観をもとう！地球医学

地球科学者。
地球水環境学の創始。
地球化学、海洋学の国際組織の発展に尽力。

Ken Sugawara
菅原 健 1899-1982

たまゆら　　続たまゆら

地球科学の役割

- 地球医学における基礎医学
- 地球における物質とエネルギー利用に対する知識を与える.

1958年　日本学士院賞「水による物質移動循環機構の地球化学的研究
- 湖沼における物質変化や物質移動の定量化
- 「Lake Metabolism」(湖沼代謝)概念の確立
- 海水、河川水、岩礁水などを対象とする「地球にとっての水」研究

森林は全生物量の9割を占める

生態系のタイプ	面積 10^6 km²	1年間当たりの1次生産量 10^9 トン/年	単位面積当たりの平均生物量 kg/m²	全生物量 10^9 トン
熱帯多雨林	17.0	37.4	45	765
熱帯季節林	7.5	12.0	35	260
温帯常緑樹林	5.0	6.5	35	175
温帯落葉樹林	7.0	8.4	30	210
北方針葉樹林	12.0	9.6	20	240
疎林と低木林	8.5	6.0	6	50
サバナ	15.0	13.5	4	60
温帯イネ科草原	9.0	5.4	1.6	14
ツンドラと高山荒原	8.0	1.1	0.6	5
砂漠と半砂漠	18.0	1.6	0.7	13
岩質および砂質砂漠と氷原	24.0	0.07	0.02	0.5
耕地	14.0	9.1	1	14
沼沢と湿地	2.0	4.0	15	30
湖沼と河川	2.0	0.5	0.02	0.05
陸地合計	149.	115	12.3	1837
外洋	332.0	41.5	0.003	1.0
湧昇流海域	0.4	0.2	0.02	0.008
大陸棚	26.6	9.6	0.01	0.27
藻場とサンゴ礁	0.6	1.6	2	1.2
入江	1.4	2.1	1	1.4
海洋合計	361	55.0	0.01	3.9
地球合計	510	170	3.6	1841

- 表面積
  海洋：71 %
  森林：10 %
- 全生物量
  海洋：　0.2 %
  森林：92 %

森林生態系サービス

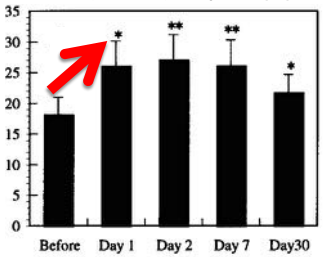
森林の機能	評価額(年)
土壌浸食防止	282,565億円
水質浄化	146,361億円
水資源貯留	87,407億円
表面崩壊防止	84,421億円
洪水緩和	64,686億円
保健・レクレーション	22,546億円
二酸化炭素吸収	12,391億円
化石燃料代替	2,261億円
合計	702,638億円

日本の森林の価値：年間７０兆円（日本学術会議）

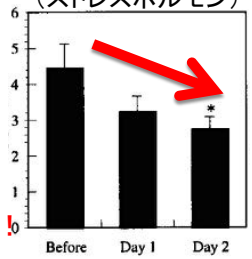
森はヒトを癒やす：森林浴効果

森林セラピーの基地　篠栗

ナチュラルキラー細胞活性



尿中アドレナリン
（ストレスホルモン）



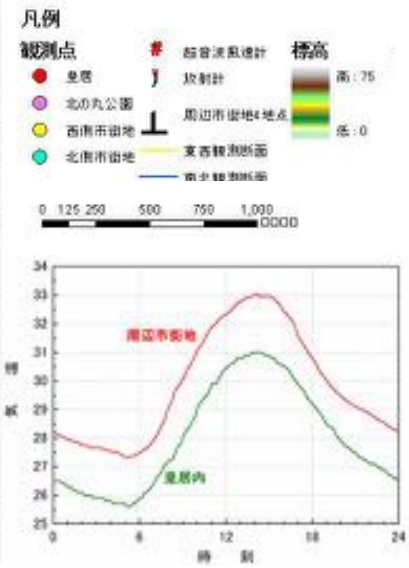
フィトンチッド（phytoncide）：樹木の放出物質(BVOC)
「Phyto」：植物，「cide」：殺す

・アドレナリン：減少 → ストレス：軽減
・ナチュラルキラー細胞活性：増加
→ 免疫力：増加

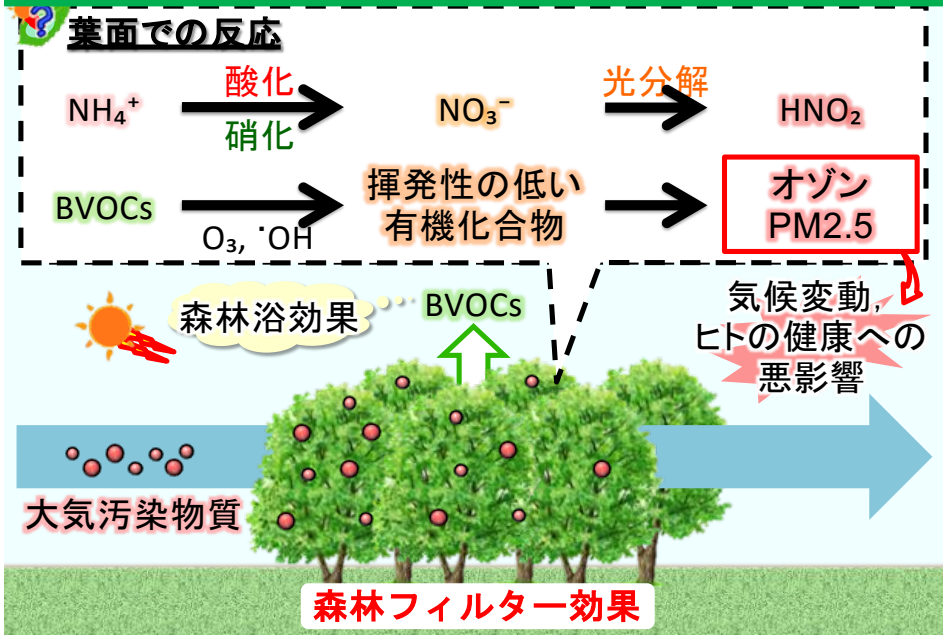
がんに対する抵抗力：増強！

森は気温を下げる：冷温効果

皇居・周辺市街地の観測位置図



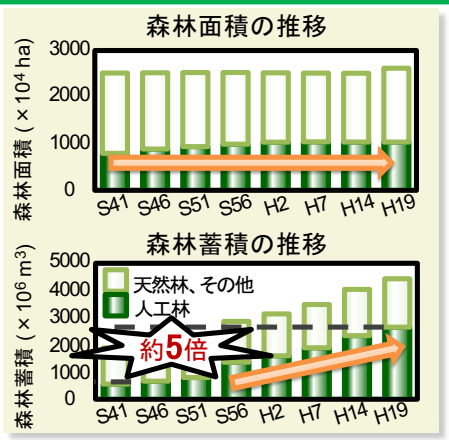
森は空気を綺麗にする：大気浄化効果



日本：森林の現況と機能

森林−大気相互作用

森林の多面的機能
□地球環境保全 □水源涵養・防災
□生物多様性保全 □資源供給　等



出展　林野庁「平成21年 森林白書」

日本の国土面積割合

人工林　:26 %
天然林　:40 %
海洋・他:32 %

出展　林野庁「平成21年 森林・林業白書」

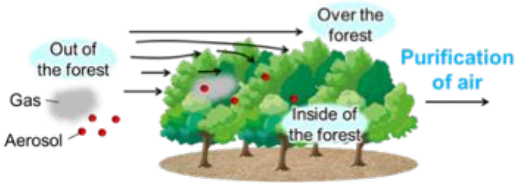
人工林の地球環境保全機能

- □ 森林蓄積(=樹冠)が多い
- □ 周辺の人為的な影響を受け易い

日本の森林：奥山 vs. 里山

森林フィルター効果

樹冠による大気汚染物質の捕捉

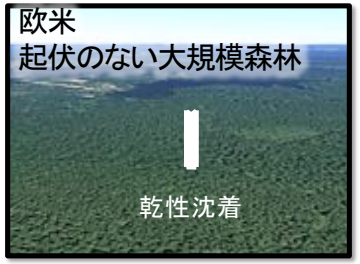


排出源からの距離

奥山より近い

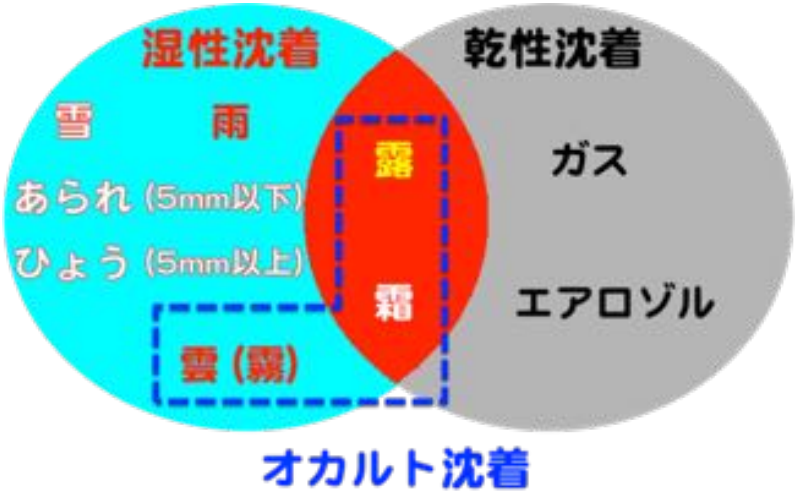
→大気浄化能の評価

森林への乾性沈着研究



日本における森林の割合

森林への大気沈着過程



乾性沈着：森林フィルター効果は評価できる？

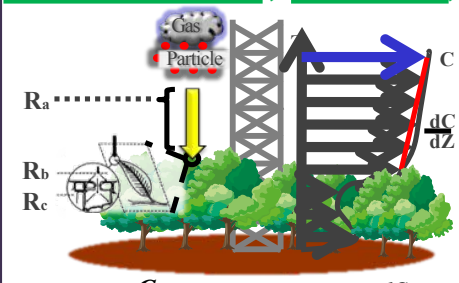
本日の内容

1. なぜ大気と森林の研究をするのか？
2. 里山の大気浄化能
   - 従来法：乾性沈着
     - 欧米モデルの適用でよいの？
     - 森林の大気浄化能を評価できるの？
   - 新規法：森林フィルター効果の評価
3. 奥山の健康診断
   - 渓流水質から森の健康状態を読み解く

森林への乾性沈着量の推計法

微気象学的手法

インファレンシャル法　濃度勾配法



$$F = \frac{C}{R_a + R_b + R_C} \qquad F = -K_d \frac{dC}{dZ}$$

R_a：空気力学的抵抗　R_b：準表層抵抗
R_c：表面抵抗　K_d：渦拡散係数

- ■ 大規模で特殊な施設が必要
- ■ 小規模で起伏に富んだ日本の森林には適用が困難

沈着物測定法(直接法)

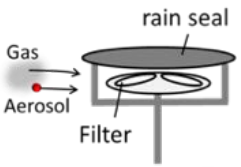
正味林内雨法

林内雨・林外雨の成分差

→樹冠への沈着

代理表面法

フィルターやシャーレへの乾性沈着



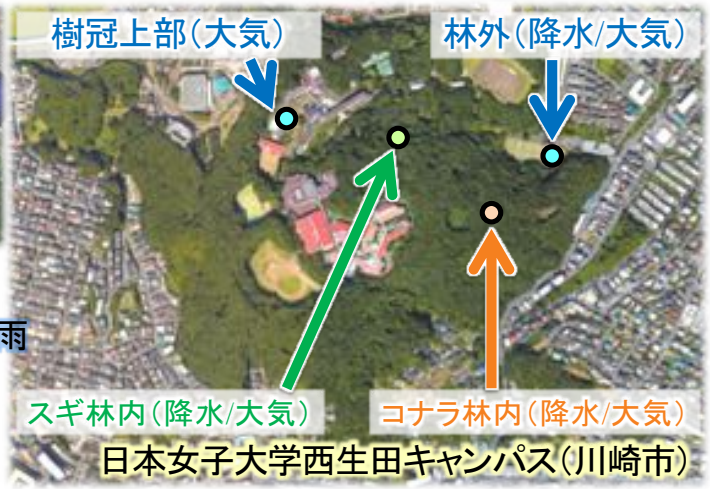
葉面洗浄法

森林全体で観測

⇒ 起伏の影響を調査

生田の森

生田の森



定期観測

・林内雨/林外雨

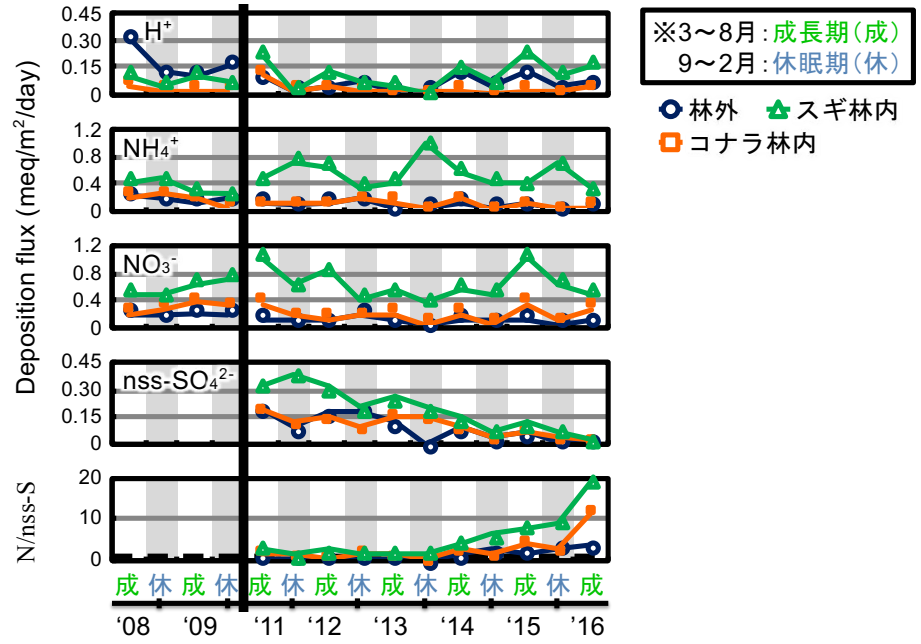
集中観測

・大気(VOCs)
・酸性ガス
・エアロゾル

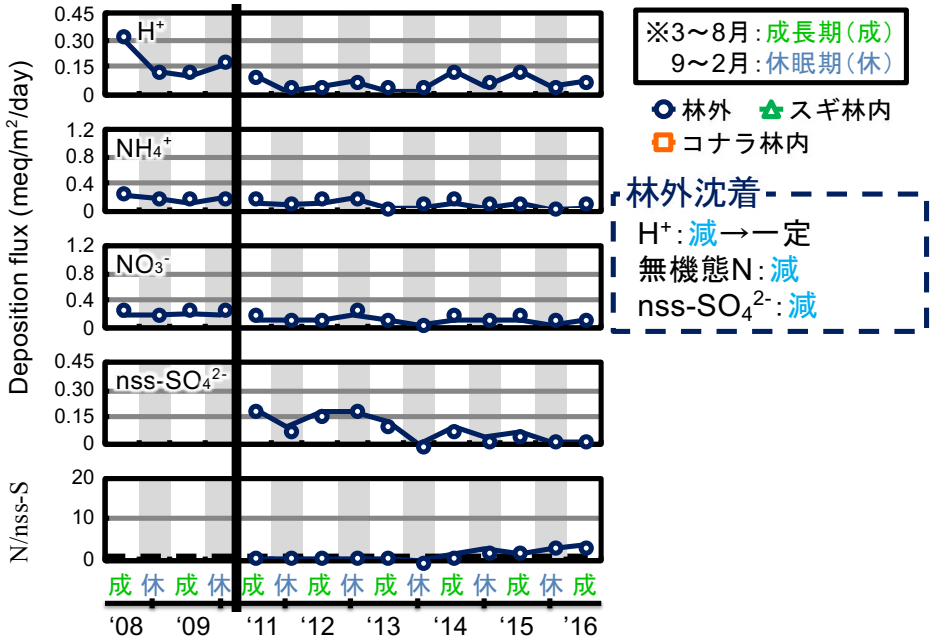
植生(森林面積:18 ha)

広葉樹(約9割):コナラ (*Quercus serrate*)
針葉樹: 主にスギ (*Cryptomeria japonica*)

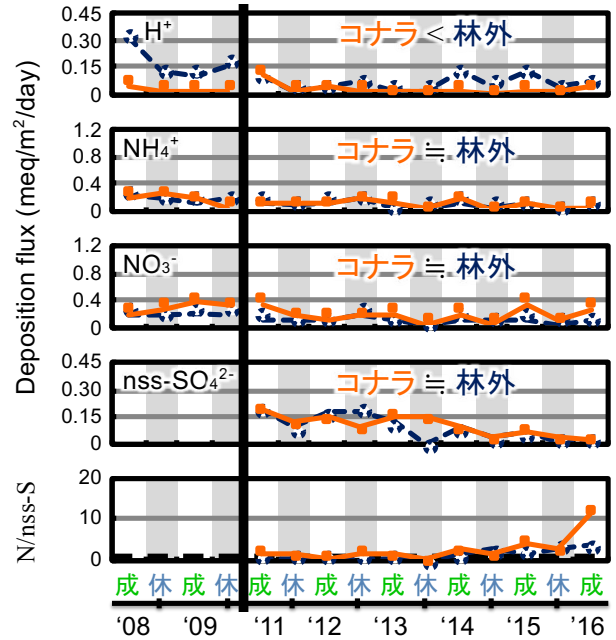
生田：林外＆林内沈着量



生田：林外＆林内沈着量



生田：林外＆林内沈着量



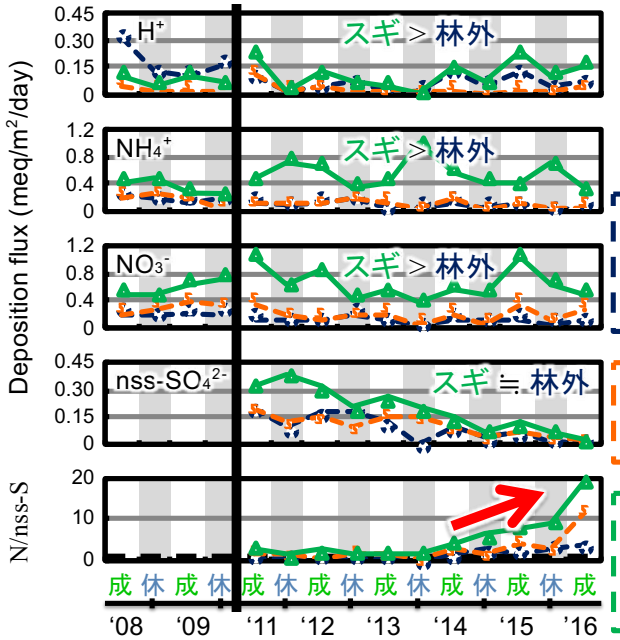
※3～8月：成長期（成）
9～2月：休眠期（休）

林外　スギ林内
コナラ林内

林外沈着
- H^+：減→一定
- 無機態N：一定
- nss-SO_4^{2-}：減

コナラ林内沈着
- ガス・粒子捕捉能：低
- 酸緩衝能：高

生田：林外＆林内沈着量



※3～8月：成長期（成）
9～2月：休眠期（休）

林外　スギ林内
コナラ林内

林外沈着
- H^+：減→一定
- 無機態N：一定
- nss-SO_4^{2-}：減

コナラ林内沈着
- ガス・粒子捕捉能：低
- 酸緩衝能：高

スギ林内沈着
- ガス・粒子捕捉能：高
  - ⇒ 比表面積：大
- 酸緩衝能：低

乾性沈着量の推計：正味林内雨法

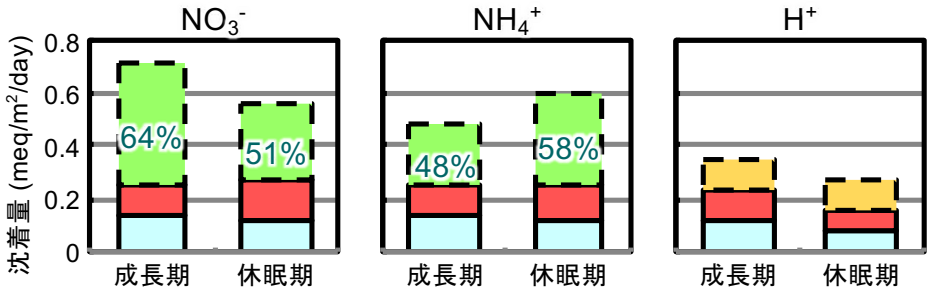
《仮定1》 SO_4^{2-}：溶脱・吸収なし ⇒ 基準
《仮定2》 組成：WD＝DD

乾性沈着量 ： $DD_x = \left(\frac{TF_x}{WD_{SO_4^{2-}}} - 1\right) \times WD_x$

過剰分（DD，WD以外） ： $E_x = TF_x - \frac{WD_x}{WD_{SO_4^{2-}}} \times TF_{SO_4^{2-}}$

x: H^+, NH_4^+, NO_3^-

スギ樹冠：無機態N＆H^+の内訳



乾性沈着量　不足分（TF < WD + DD）
湿性沈着量　過剰分（TF > WD + DD）

NO_3^-, NH_4^+ ：TF >> **WD** + **DD**

⇒ 過剰分大

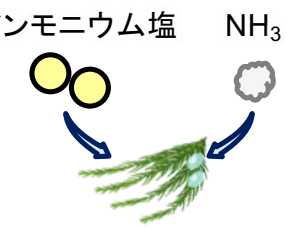
H^+ ：TF < **WD** + **DD**

N：制限要素 ＆ 溶脱の報告例無 ⇒ 過剰分：溶脱 ×

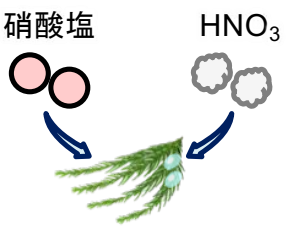
NO_3^-，NH_4^+の過剰分は何か？

(1)乾性沈着量の過小評価

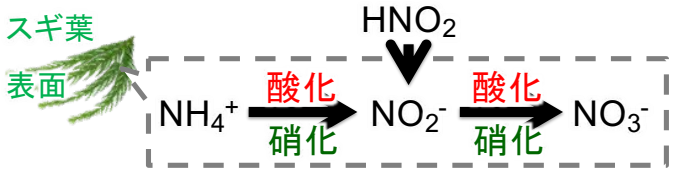
《NH_4^+乾性沈着》



《NO_3^-の乾性沈着》



(2)葉面でのNO_3^-生成反応



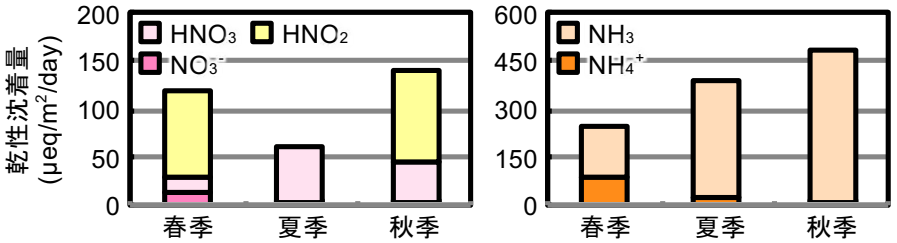
乾性沈着量の推計：インファレンシャル法

乾性沈着量 ＝ 大気中濃度 × 乾性沈着速度

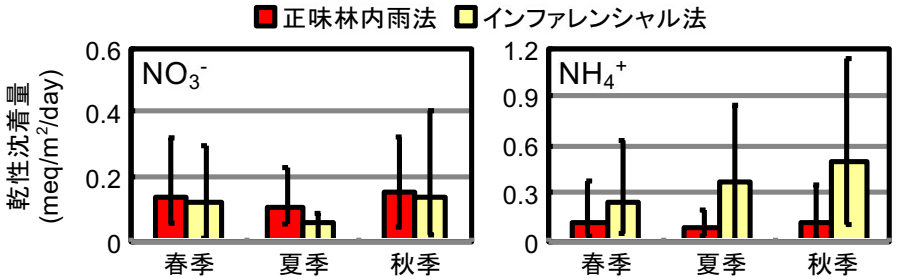
樹冠上部で観測　　文献値※

	大気中濃度(nmol/m³)			乾性沈着速度
	春季	夏季	秋季	(cm/s)
NH_3	51.0	111	148	0.84
NH_4^+	72.7	19.4	2.81	1.3
HNO_3	5.25	18.3	13.3	3.5
HNO_2	29.7	0	32.6	3.5
NO_3^-	17.8	5.81	4.58	3.8

※NH_4^+，NO_3^-：高橋と若松（2004）/ HNO_3:高橋ら(1998) / NH_3：松田（2008）



正味林内雨法 vs. インファレンシャル法



NO_3^-乾性沈着量：正味林内雨法≒インファレンシャル法
NH_4^+乾性沈着量：正味林内雨法< インファレンシャル法

NO_3^-の過剰分（WD，DD以外）

- ~~溶脱~~
- 乾性沈~~着量の過小~~評価分
- 葉面での生成反応

過剰分＝NO_3^-生成（硝化：微生物反応，酸化：化学反応）

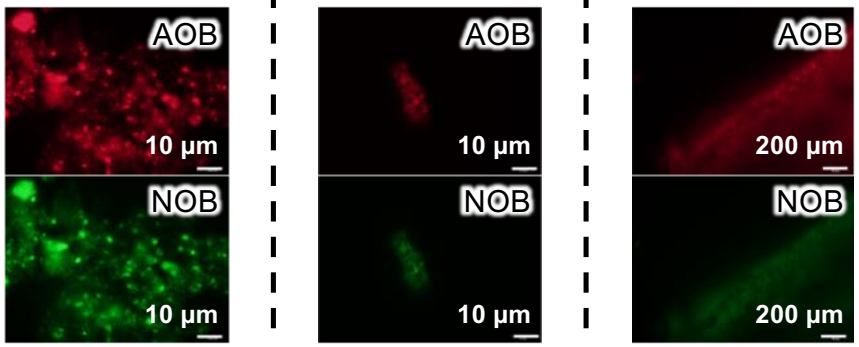
硝化細菌の検出（FISH法）

対象：アンモニア酸化細菌（AOB），亜硝酸酸化細菌（NOB）

土壌（比較用：陽性）
⇒ 検出

葉面洗浄液
⇒ 検出不可

葉表面（葉を直接処理）
⇒ 検出不可



SEMによる葉表面の観察
微生物学的アプローチ（スタンプ法 etc.）
} 検出方法の再検討が必要

葉面洗浄法による乾性沈着量の測定

サンプリング地点

採取日

2015.10.27 (非降雨期間：12日)
2016.10.25 (8日)
2017.5.19 (1日)

分析手順

葉 (4~6枚) × 2試料
・地上からの高さ約5 m

↓

抽出
・超純水 40 mL, 400 rpm
・採取から24時間以内

↓

ろ過 (0.45 μm MF)

↓

イオンクロマトグラフ
Na^+, NH_4^+, K^+, Mg^{2+}, Ca^{2+}, Cl^-, NO_3^-, SO_4^{2-}

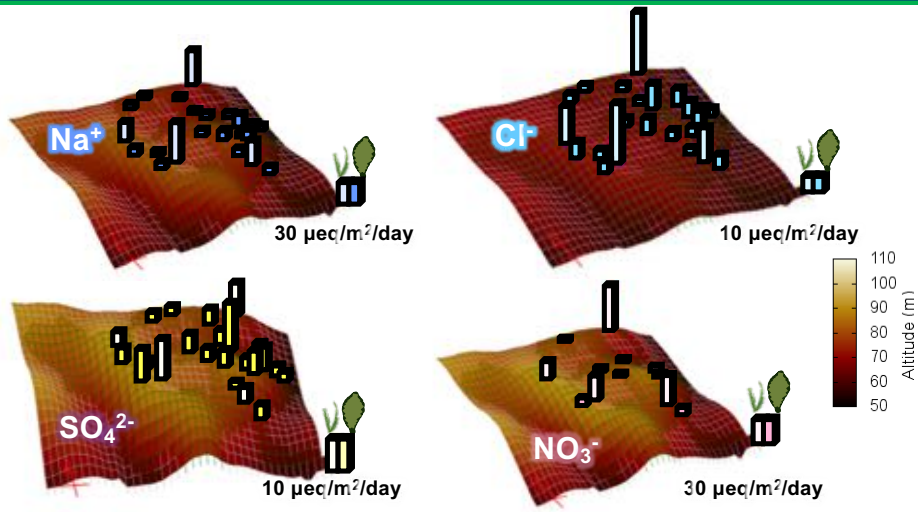
3D乾性沈着マップの作成

・地形データ：Googleマップ高度
・グラフ作成ソフト：Gnuplot

葉面積の測定

植生画像情報解析プログラム(LIA32)

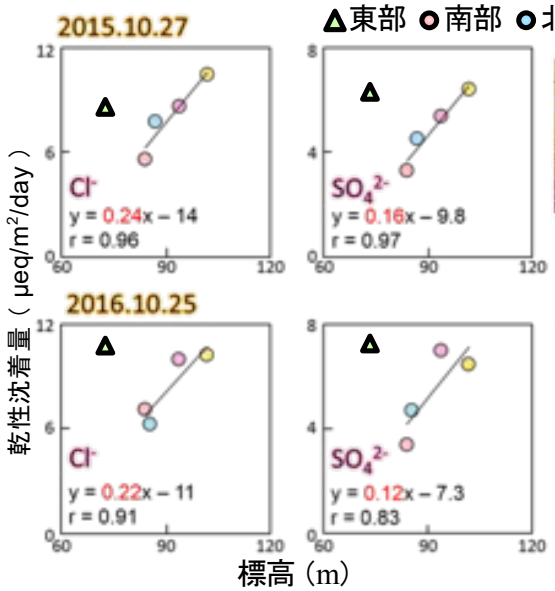
葉面洗浄法による乾性沈着量の測定



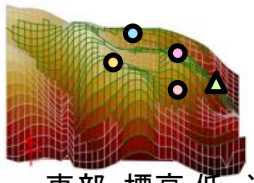
乾性沈着量：針葉樹 > 広葉樹

・Na^+, Cl^-：概ね類似
・SO_4^{2-}：樹種間差 小
・NO_3^-：樹種間差 大

葉面洗浄法による乾性沈着量の測定



▲東部 ●南部 ●北部 ●中央部 ●西部



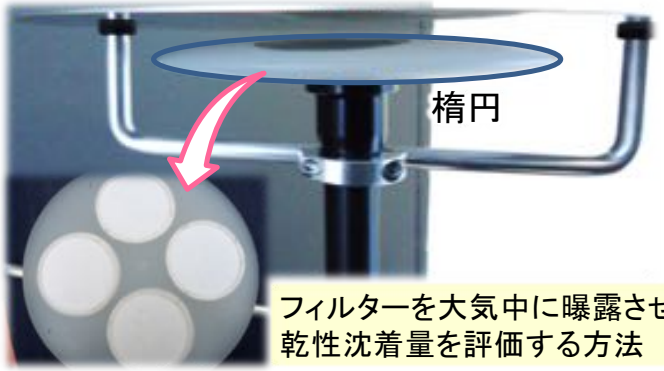
東部：標高 低，道路 近

→ エッジ効果 大

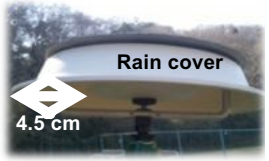
【Cl^-, SO_4^{2-}】
標高∝乾性沈着量
傾きの値も類似
⇒ 標高の影響 大

【NO_3^-】相関 ×
⇒ 排出源との距離を反映

代理表面法による乾性沈着量の測定



フィルターを大気中に曝露させて乾性沈着量を評価する方法



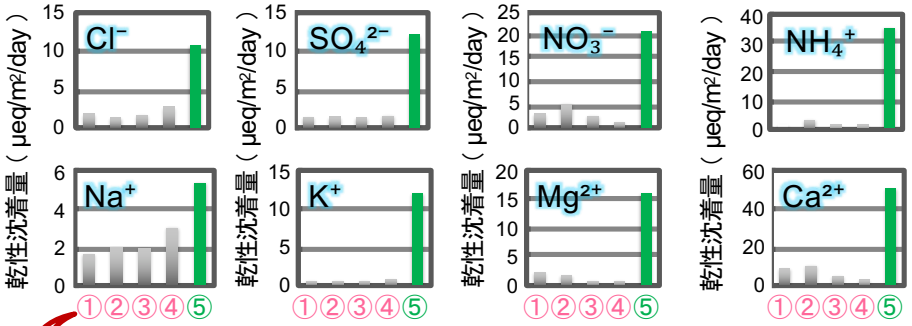
特徴

■ 葉面からの溶脱・吸収の影響を受けない
■ 降雨がある期間でも乾性沈着フラックスの測定が可

問題点

□ 表面状態は葉面とは異なる

代理表面法による乾性沈着量の測定



代理表面法 (PTFE)
① 2016/1/13~25（12 days）
② 2016/1/13~2/3（21 days）
③ 2016/1/13~2/25（43 days）
④ 2016/1/13~3/16（62 days）
葉面洗浄法
⑤ 2016/3/14~16
（採取までの非降雨期間）

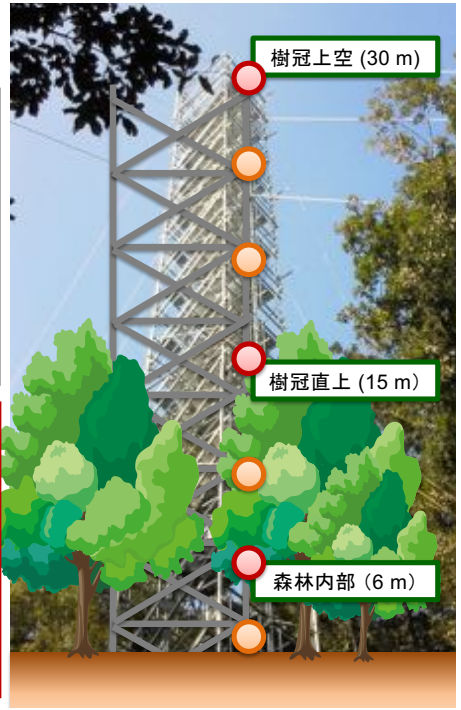
乾性沈着量：葉面洗浄法 ＞ 代理表面法

- PTFE: エアロゾル，ガス成分×
  Cl^-, SO_4^{2-}, NH_4^+ ⇒ 過小評価
- 葉面洗浄法：溶脱・吸収の影響
- 葉面洗浄法：葉は捕捉しやすい表面

本日の内容

1. なぜ大気と森林の研究をするのか？
2. 里山の大気浄化能
   - 従来法：乾性沈着
     欧米モデルの適用でよいの？
     森林の大気浄化能を評価できるの？
   - **新規法：森林フィルター効果の評価**
3. 奥山の健康診断
   渓流水質から森の健康状態を読み解く

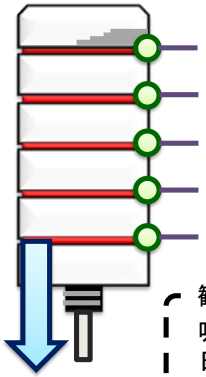
多摩の森



多摩：ガス&エアロゾルの採取

フィルターパック (FP)

ガス・エアロゾルの分離・捕集

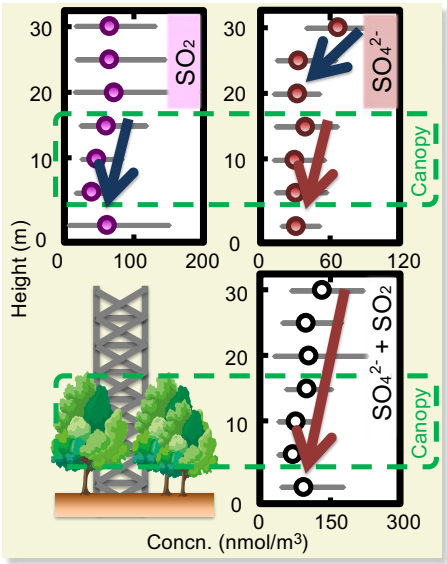


観測条件
吸引流量：20 L / min
日中 (6:00~18:00)
→ 3 (4) 時間毎
夜間 (18:00~翌6:00)
→ 12時間毎

分析方法

捕集済みフィルター
↓
抽出 (振とう機)
(超純水 or 0.05 %H_2O_2)
↓
吸引ろ過
(0.45 μmMF)
↓
Ion Chromatography
(定量・定性)

多摩：ガス&エアロゾルの鉛直分布



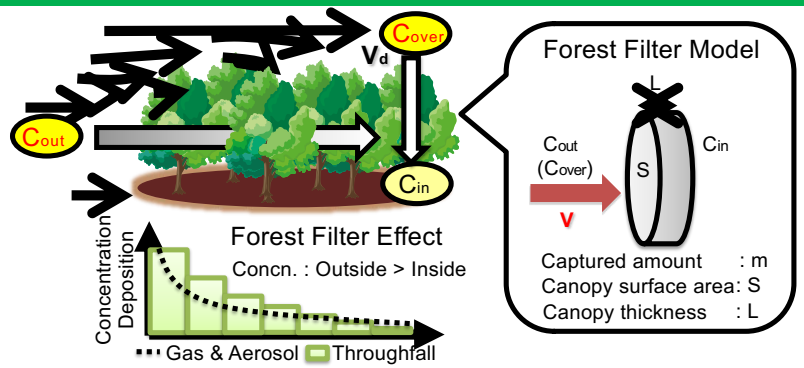
SO_2
樹冠内部 15 ~ 6 m :顕著な減少

SO_4^{2-}
樹冠上空 30 ~ 25 m :顕著な減少
樹冠内部 15 ~ 6 m :緩やかな減少

$SO_4^{2-} + SO_2$
大気中濃度の緩やかな減少
樹冠上空 30 m ~ 森林内部 6 m

樹冠による捕捉
→ 森林フィルター効果

森林フィルターモデル



森林への沈着フラックス

$F = V_d \times C_{over}$ ①

濃度勾配の方向を限定しない時

$F = V \times C_{out}$ ②

時間T内の樹冠への沈着量

$M = F \times S \times T$ ③

時間T内の樹冠の捕捉量

$m = \Delta C \times S \times L$ ④

*ΔC；林外と林内、樹冠上空と森林下部の濃度差

森林樹冠がシンクの場合、M = mとなり
③と④式から次式が成立

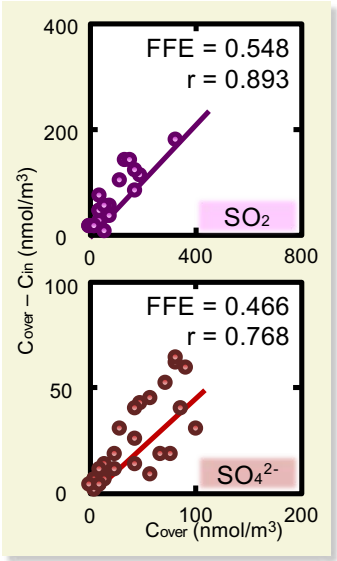
$$(C_{out} - C_{in}) = FFE \times C_{out}$$

$V = FFE \times (L/T)$

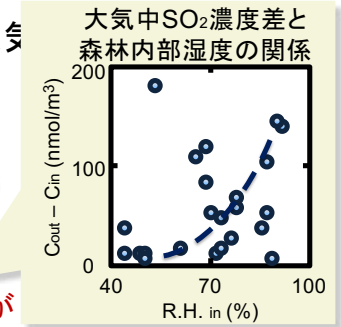
FFE：樹冠捕捉率
L/T：樹冠平均通過風速

樹冠捕捉能の推計 I

◇森林上空(C_{out})と森林内部(C_{in})の大気
鉛直方向の樹冠捕捉率を推計



SO_2
高い正の相関あり
55 % が捕捉



樹冠内部の湿度が
高いほど樹冠の捕捉：大

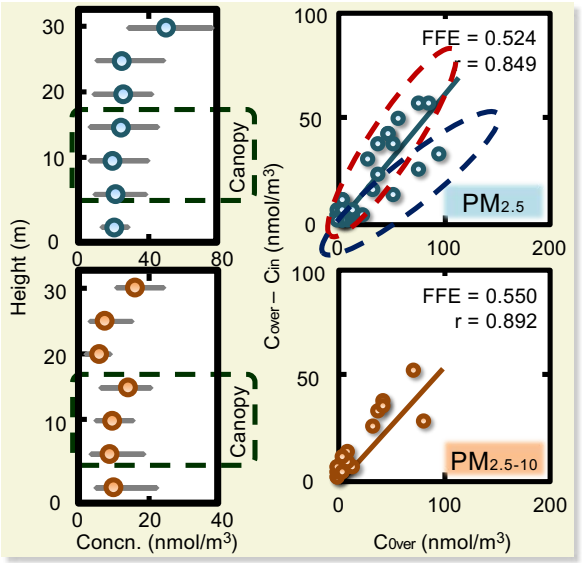
SO_4^{2-}
正の相関あり
47 % が捕捉
濃度差にバラつきあり

気象因子との
関係は見られず

・ガス：SO_2 で適用可能
・粒子：粒径別でみると…

多摩：粒径別エアロゾルの鉛直分布

硫酸塩：粒径別 ($PM_{2.5}$, $PM_{2.5-10}$) に鉛直分布と樹冠捕捉率



$PM_{2.5}$

高い正の相関
52 % が捕捉

大気中濃度差：
2 つの傾向
気象因子に関係？

$PM_{2.5-10}$

高い正の相関
55 % が捕捉
樹冠上部で不連続

$PM_{2.5}$ 適用条件の検討

多摩の里山：酸性物質の捕捉能

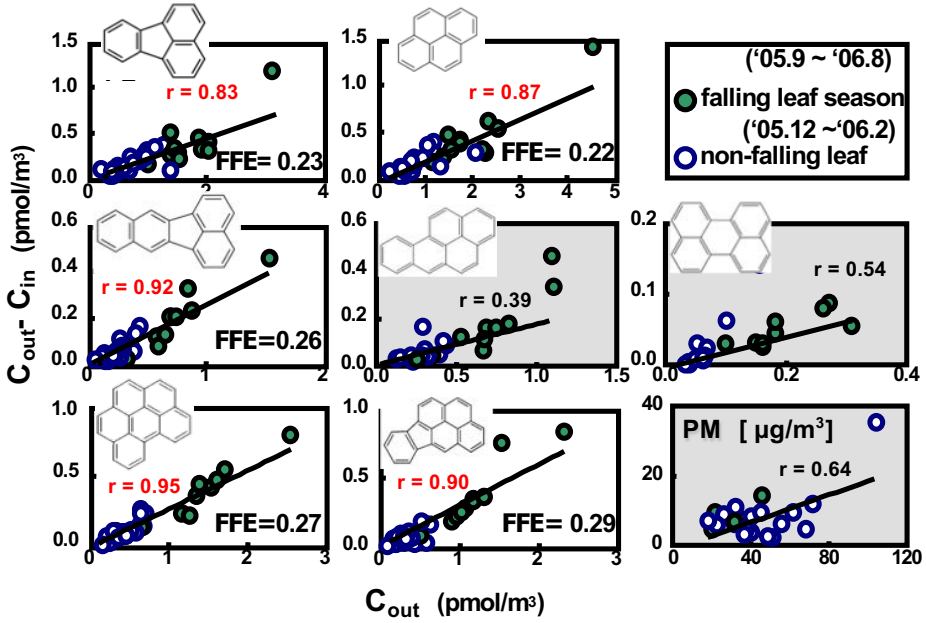
□ 大気中濃度鉛直分布：SO_2, SO_4^{2-} ($PM_{2.5}$)
高度低下に伴う大気中濃度の減少
⇒樹冠フィルター効果を確認
エアロゾル：粒径で鉛直分布が異なる

□ 樹冠捕捉率 (FFE)
SO_2およびSO_4^{2-}の
52~55 %を捕捉

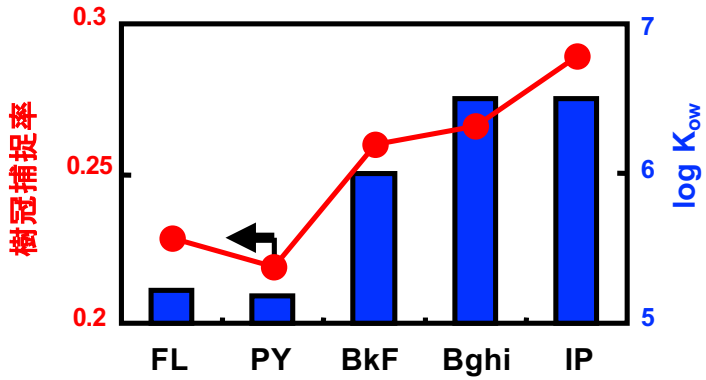
成分	樹冠捕捉率 (%)
SO_2	55
SO_4^{2-} ($PM_{2.5}$)	52
SO_4^{2-} ($PM_{2.5-10}$)	55

□ 森林フィルターモデルの適用条件
1) 酸性ガスおよびエアロゾル：適用可
2) 空気塊の入れ替わりがない/小さい
3) 樹冠捕捉率：風向 に依存　南風＞北風

多摩：PAHsの森林樹冠よる捕捉



多摩：PAHsの森林樹冠よる捕捉

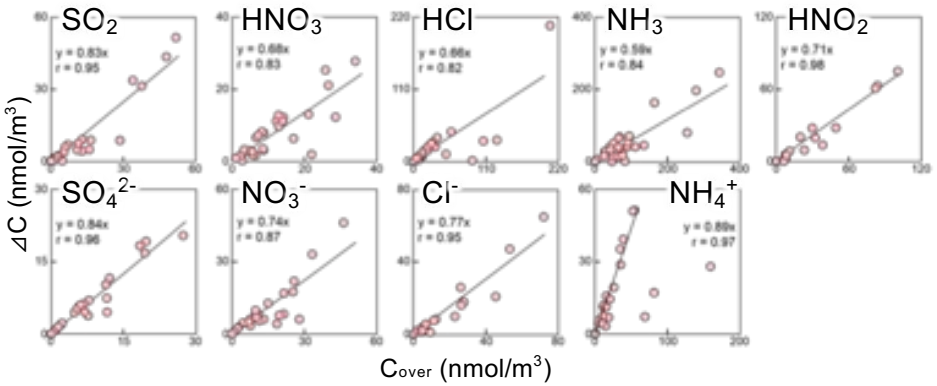


疎水性：高　→　森林樹冠捕捉：高

クチクラワックスへの吸着？

森林樹冠捕捉能：酸性ガス&エアロゾル ＞ PAHs

生田：森林による捕捉率



	HNO_3	SO_2	NO_3^-	SO_4^{2-}
捕捉率	0.68	0.83	0.74	0.84
相関係数 (r)	0.83	0.95	0.87	0.96

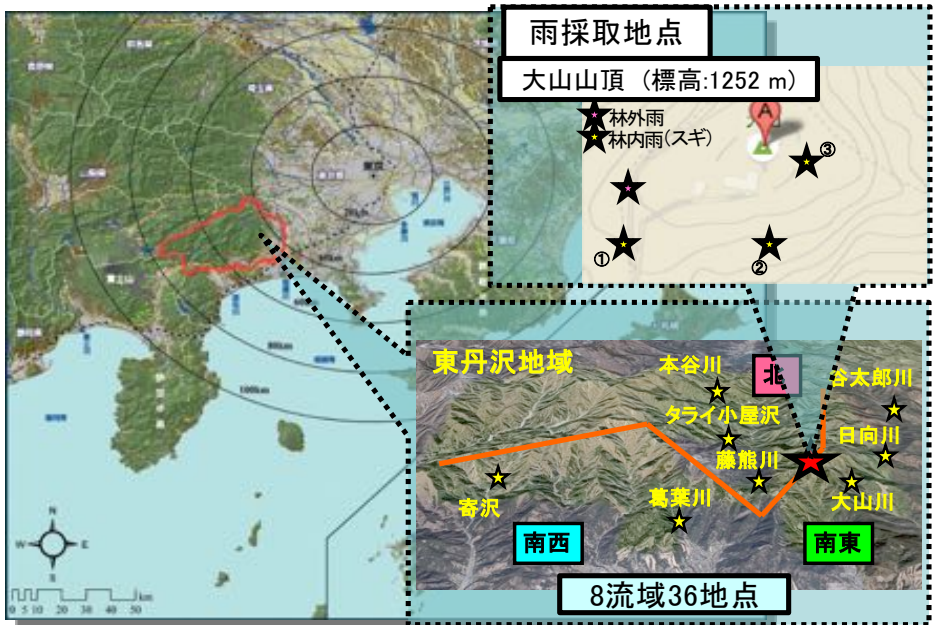
★捕捉率: ガス < エアロゾル

本日の内容

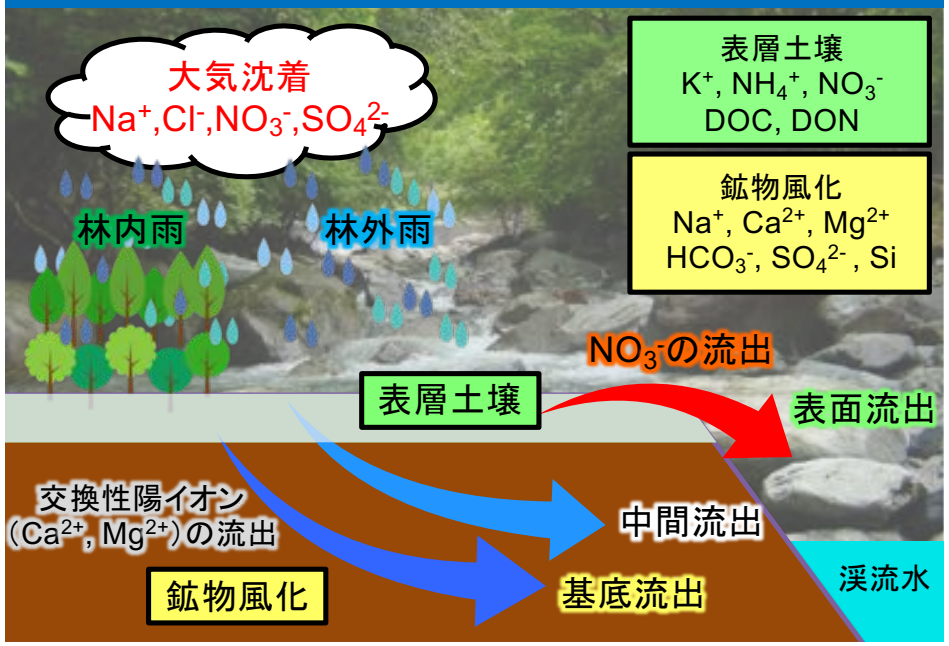
1. なぜ大気と森林の研究をするのか？
2. 里山の大気浄化能
   - 従来法：乾性沈着
     欧米モデルの適用でよいの？
     森林の大気浄化能を評価できるの？
   - 新規法：森林フィルター効果の評価
3. 奥山の健康診断
   渓流水質から森の健康状態を読み解く

丹沢の森

採取地点



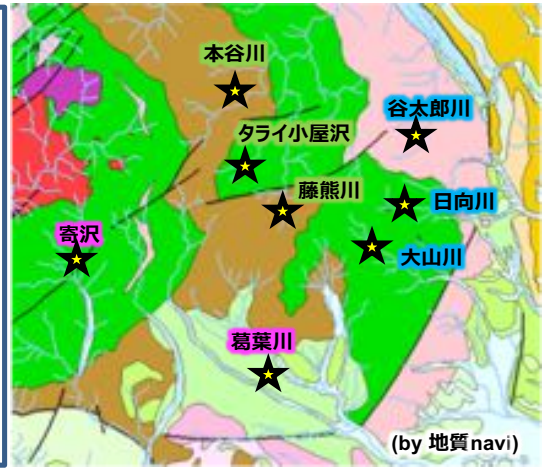
渓流水質：森林生態系の健康診断



採取地点における地殻中主要岩石

主要岩石

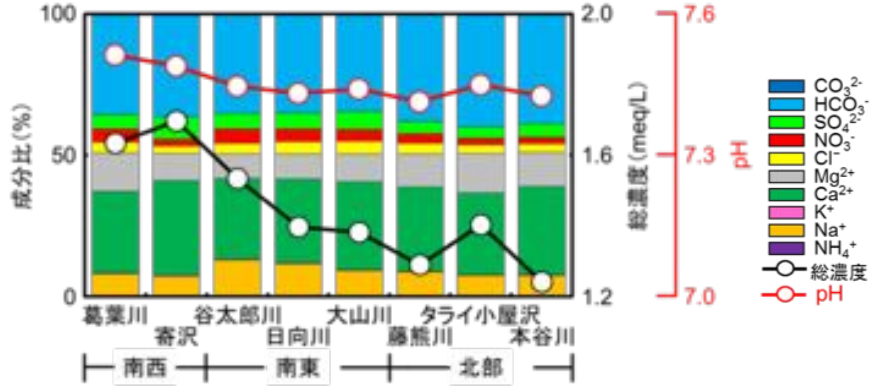
- 寄　沢:玄武岩
- 葛葉川:段丘堆積物
- 大山川:玄武岩
- 日向川:玄武岩
- 谷太郎川:デイサイト・流紋岩
- 藤熊川:安山岩
- タライ小屋沢:玄武岩
- 本谷川:安山岩



※　玄武岩：SiO_2 45～52%　　安山岩：SiO_2 52～63%

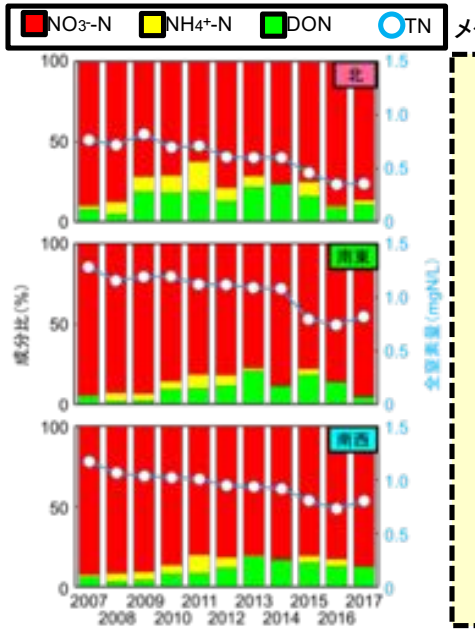
デイサイト：SiO_2 63～69%　　流紋岩：SiO_2 >69%

地理的分布：2007年～2017年



- ❑pH　：南西＞南東≒北
- ❑総濃度　：南西＞南東＞北
- ❑NO_3^-の割合：南東＞南西＞北
- ❑主成分：Ca^{2+}, HCO_3^- ⇒ 鉱物風化

森の健康診断：窒素流出はメタボ

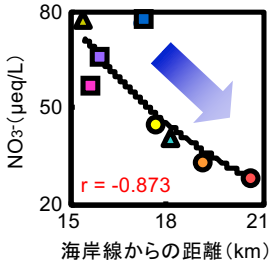


メタボリックシンドローム：代謝異常症候群

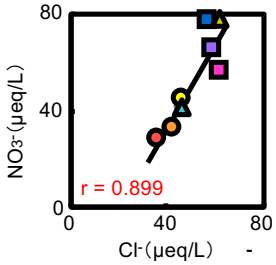
- ❑全窒素(TN)
  - ・南東＞南西＞北
  - ・南西，南東，北：減少
- ❑NO_3^--N
  - ・南西，南東＞北
  - ・南西，南東，北：減少
- ❑DON
  - ・北＞南東，南西
  - ・南西，南東，北：増加

窒素飽和：回復傾向？

渓流水中NO_3^- vs. 海岸線からの距離



【NO_3^-】
海から遠い
⇒濃度：低

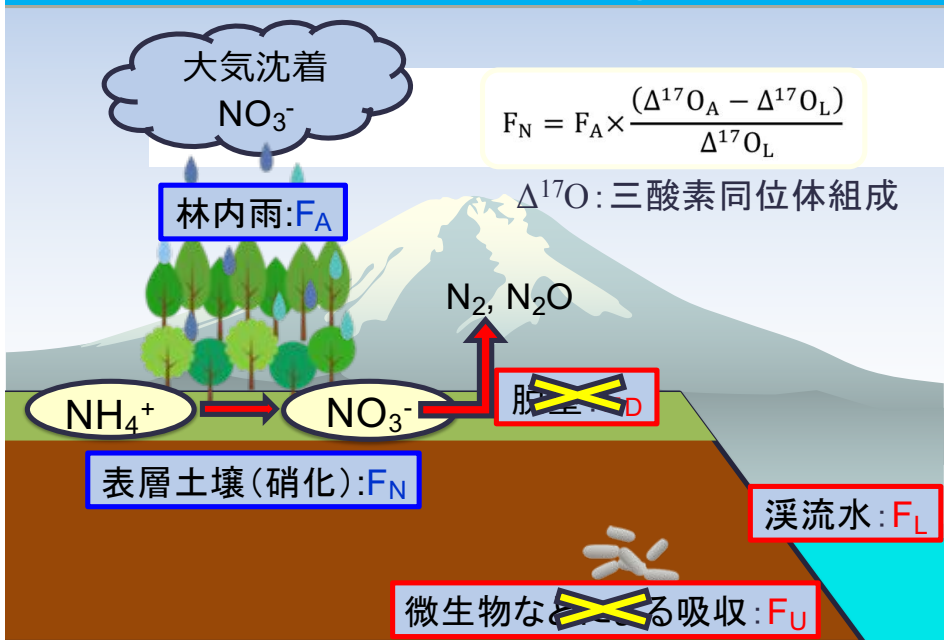


【Cl^-】
強溶脱性
（大気由来）

⇩

【NO_3^-】
大気沈着の
影響：大

安定同位体比を用いたNO_3^-の起源解析

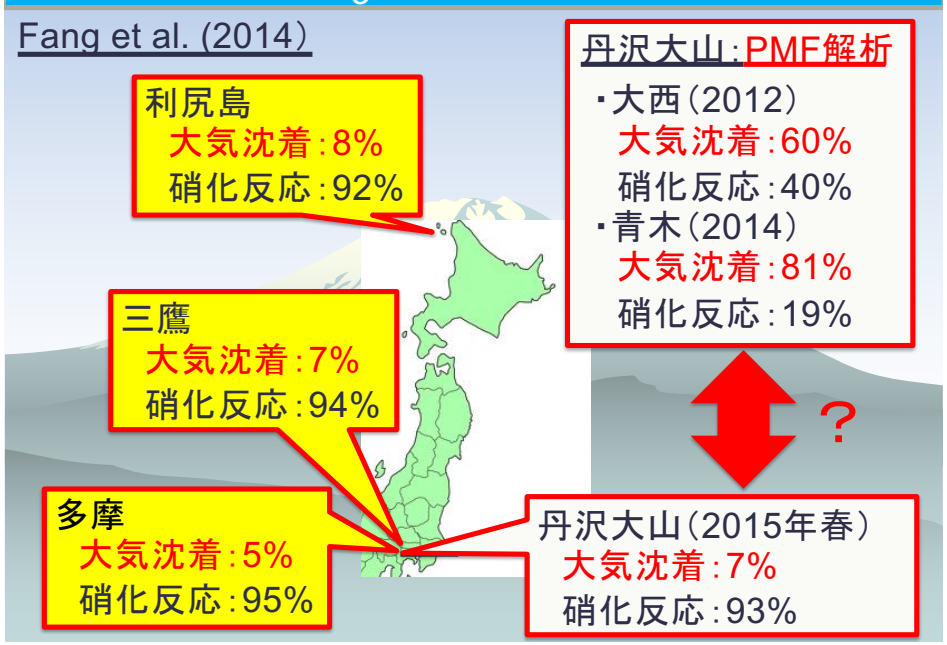


$$F_N = F_A \times \frac{(\Delta^{17}O_A - \Delta^{17}O_L)}{\Delta^{17}O_L}$$

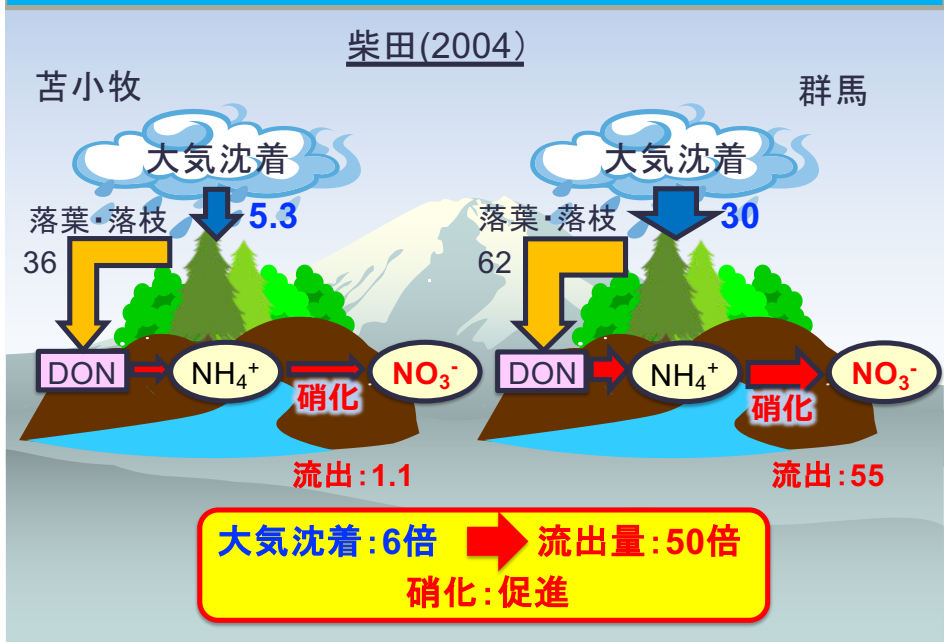
$\Delta^{17}O$：三酸素同位体組成

渓流水中NO_3^-：大気沈着の影響評価

Fang et al. (2014)

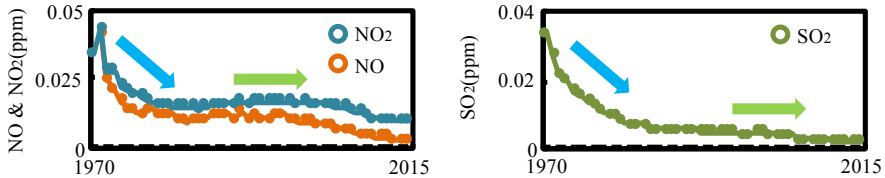


大気沈着による硝化反応の促進



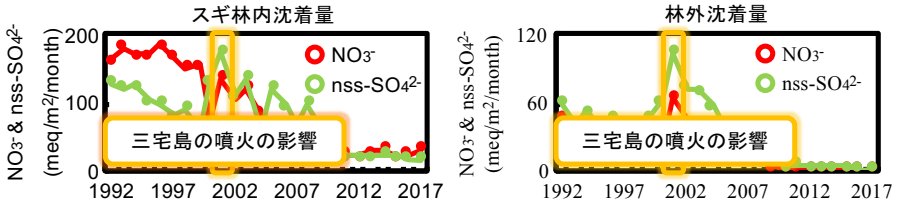
丹沢大山：酸性沈着の経年変化

【東京都】NO_X & SO_2濃度（1970年～2015年）



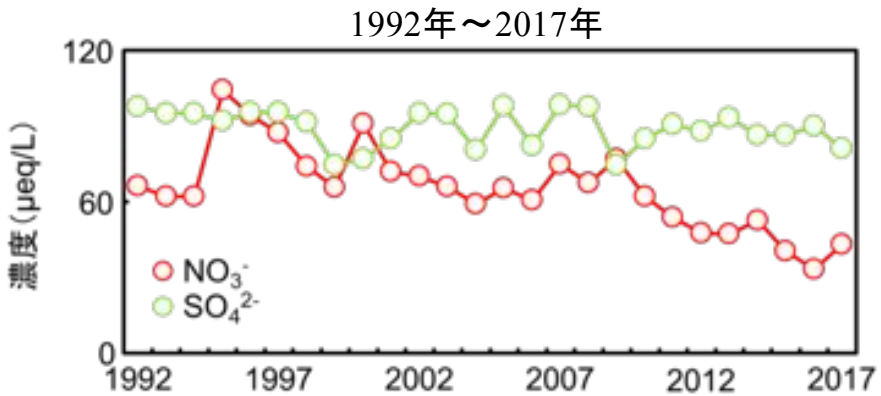
1970年代に急激に減少、近年は微減

【丹沢大山山頂】スギ林内・林外沈着量（1992年～2017年）



2000年代減少、近年は変動小

丹沢大山：渓流水質の経年変化



- ❑SO_4^{2-}：一定 ⇒ 沈着量減少の影響なし
  大気沈着の影響：小　主に鉱物風化？
- ❑NO_3^-：減少 ⇒ 沈着量減少を反映
  大気沈着の影響：大

窒素飽和の評価方法

☆正味流出量　★ $[X]_{net} = [X]_{out} - [X]_{in}$

Input　$[X]_{in}$　林内沈着量

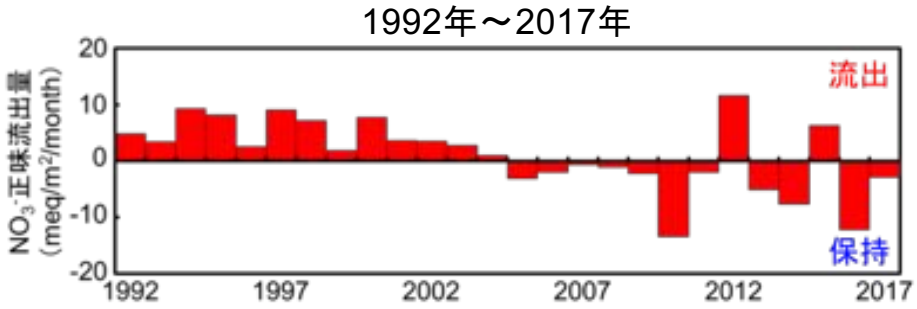
Output　$[X]_{out}$　渓流水中の流出量

Cl^- 法

$$[X]_{out} = [X]_s \times [Cl^-]_{in} / [Cl^-]_s$$

$[X]_s$：ある化学成分Xの渓流水中濃度
$[Cl^-]_{in}$：Cl^-の林内沈着量
$[Cl^-]_s$：Cl^-の渓流水中濃度

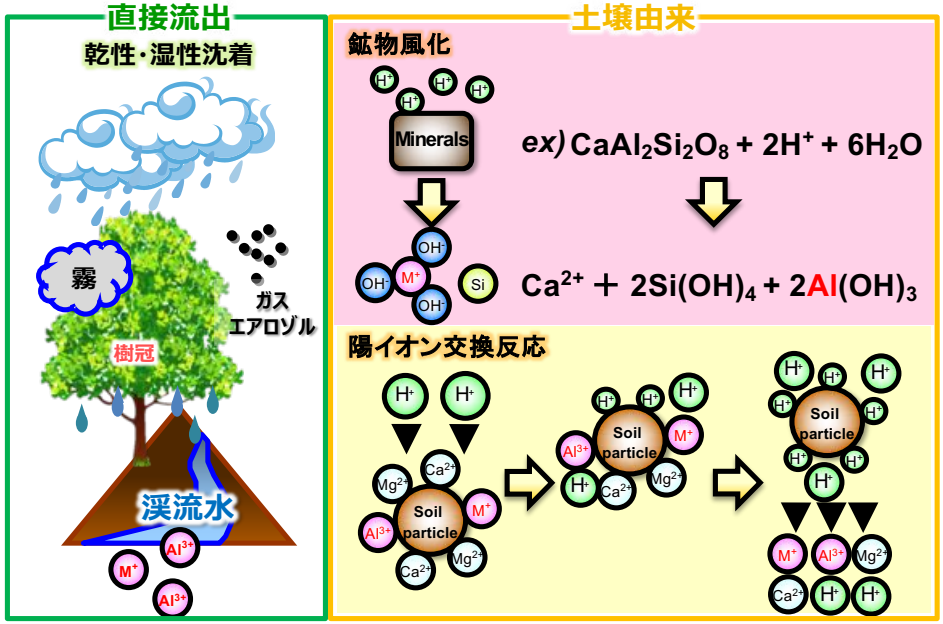
丹沢大山：NO_3^-正味流出量の変化



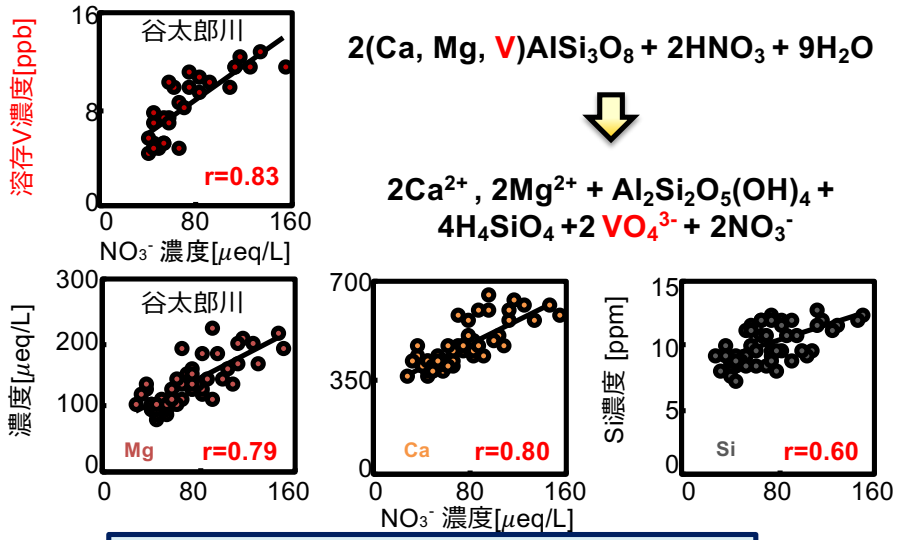
❑NO_3^-正味流出量の経年変化
1992年～2004年：流出傾向
2005年～2017年：保持傾向
⇒ 約25年間で窒素飽和は回復

渓流水中微量金属から診断する

渓流水中金属元素の流出機構



南東部：国内大気汚染の影響評価



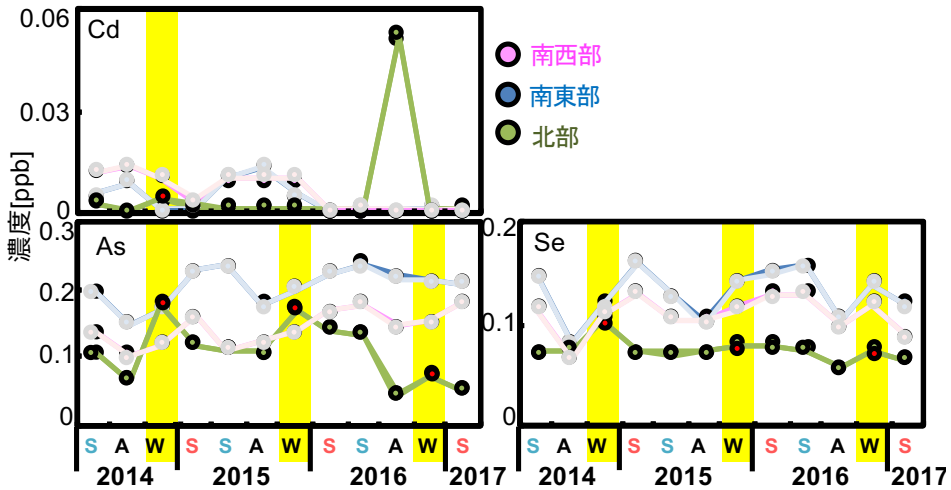
$$2(Ca, Mg, V)AlSi_3O_8 + 2HNO_3 + 9H_2O$$

⇩

$$2Ca^{2+}, 2Mg^{2+} + Al_2Si_2O_5(OH)_4 + 4H_4SiO_4 + 2VO_4^{3-} + 2NO_3^-$$

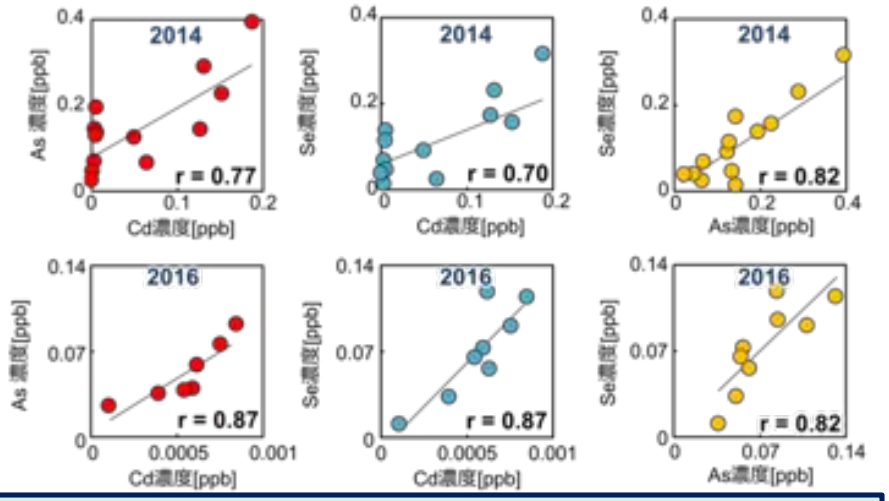
南東部：首都圏に近い
酸性物質により鉱物風化の促進 → Vが流出

北部：越境大気汚染の影響評価



Cd(2014年), As, Se：北部において冬に高濃度

北部：渓流水中Cd, As, Seの相関（冬季）



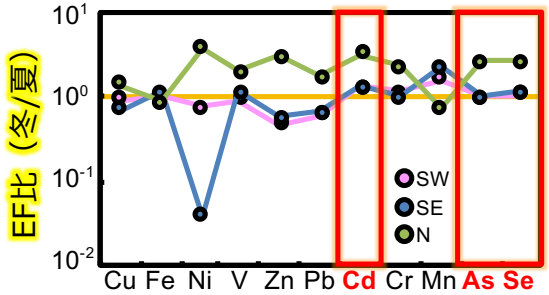
Cd, As, Se: 冬季にのみ相関
同様の排出源である可能性大

濃縮係数（Enrichment Factor）：冬/夏

仮定：渓流水中のAlはすべて地殻由来

$$EF = \frac{[X]_{stream}/[Al]_{stream}}{[X]_{sediments}/[Al]_{sediments}}$$

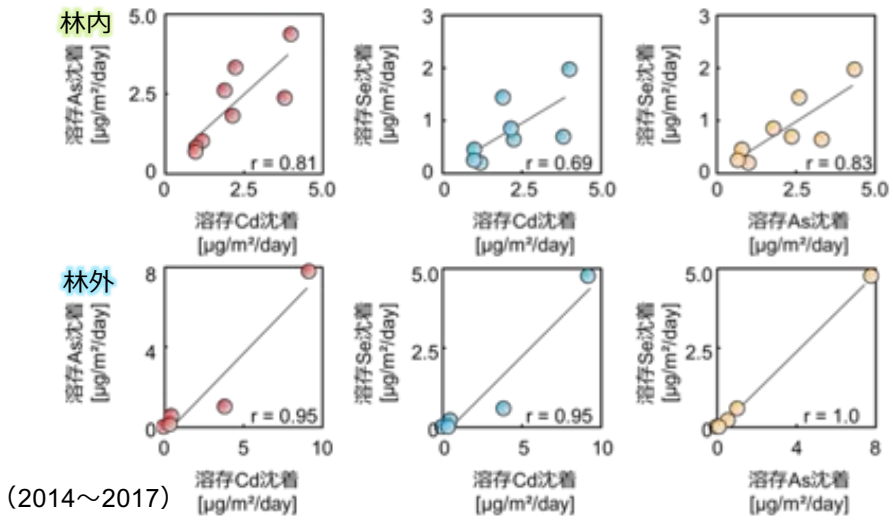
$[X]_{sediments}$：堆積物中金属元素濃度
$[Al]_{sediments}$：堆積物中Al濃度
$[X]_{stream}$：渓流水中金属元素濃度
$[Al]_{stream}$：渓流水中Al濃度



✓ 北部：Cu, Fe, Mn以外
冬季：EF 大
→ 大気沈着？

✓ Cd, As, Seの起源
石炭燃焼

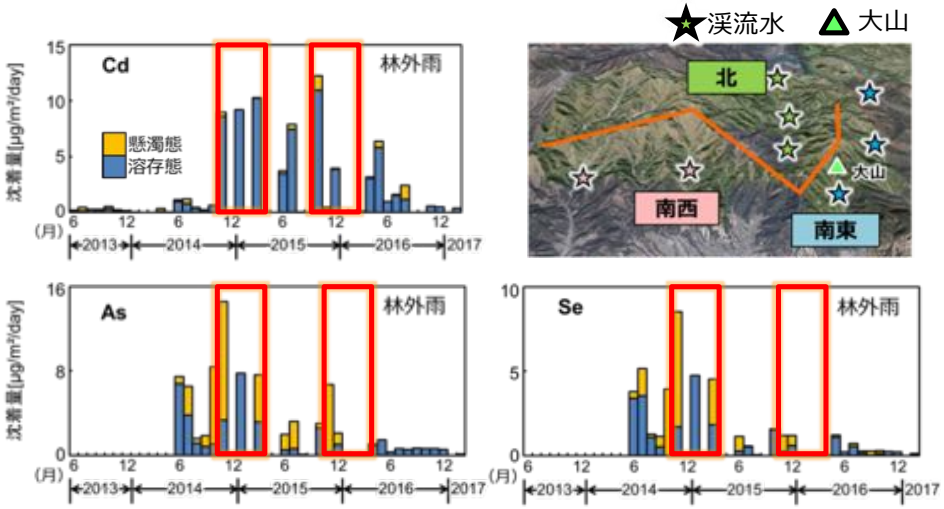
大気沈着：Cd, As, Seの相関（冬季）



（2014～2017）

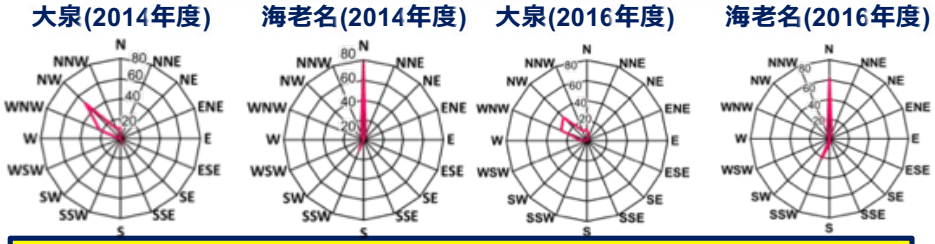
Cd, As, Se: 石炭燃焼由来の指標 ➡ **冬季に輸送量増大？**

林外雨沈着量：Cd, As, Se



Cd, As, Se: 冬季に林外沈着量上昇

冬季：丹沢地域周辺の気象



主風向：北西，北 ➡ **越境大気汚染の可能性大**
モデルによる補完が必要

「木を見て森を見ず」というけれど…

「木をみて森を見ず」
小さなことにとらわれ，
対局がみれない．

「森を見て木を見ず」
理想ばかり追い求め，
細部をおろそかにする．

「木を見て森も見る」
未来と現在をみつめ，理想を実現するために
いま何をなすべきか考えて行動を起こす．

実際には，**「木も森も見てない」人が多い**

まとめにかえて…

環境問題の解決 ⇨ 正解はない！

では，どうするか？

1）現状（現象）を正確に分析する．

2）その原因について確からしい仮説を立てる．

3）調査・実験を繰り返して実証する．

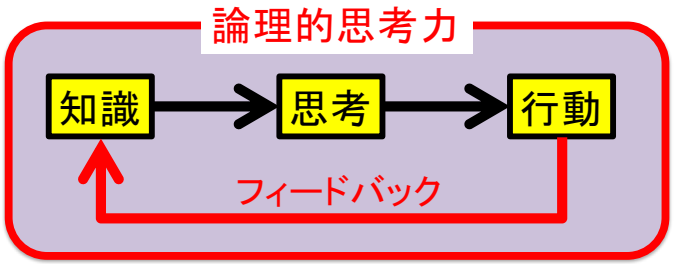
そのためには…

正しい知識が必要！

だから，皆さんは学んでいる

まとめにかえて…

この手法は，環境問題の解決に限らない．



大学で学ぶ意義

知識を得ることはだけではない！

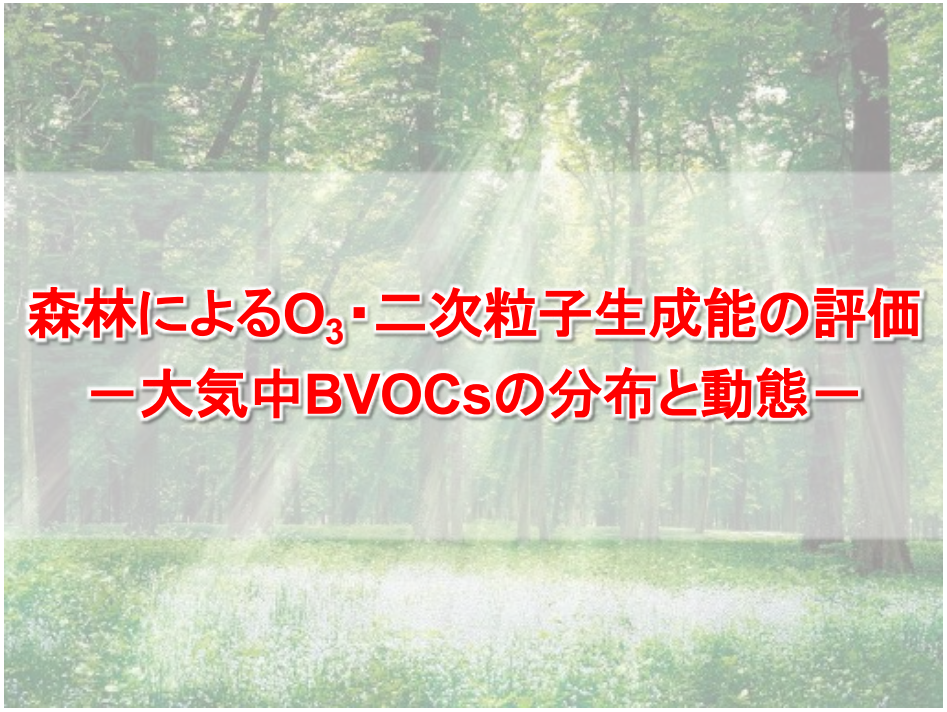
⇨ 論理的思考力を身につける

まとめ：大学で何を学ぶべきか？

どこまで知識を得ればいいのか，どこまで考えればいいのか，誰も教えてくれない．失敗を繰り返しながら，自分で身につけるしかない．

根拠のない自信を持っている諸君，自信をもてない諸君もいるでしょう．根拠のある自信を持つには様々な失敗を繰り返し，反省し，原因分析して，必要であれば知識を得ること．

みなさんの潜在力は無限大です．
大学時代に経験をたくさん積もう！



森林によるO_3・二次粒子生成能の評価
ー大気中BVOCsの分布と動態ー

分析対象VOCs（一部抜粋）

AVOCs（人為起源VOCs）

Chlorinated hydrocarbons (CHs)

Alkane

Dichloromethane	: C_1Cl_2
Carbon Tetrachloride	: C_1Cl_4
1,2-Dichloroethane	: C_2Cl_2
1,2-Dichloropropane	: C_3Cl_2

Alkene

Trichloroethylene	: $C_{2D}Cl_3$
Tetrachloroethylene	: $C_{2D}Cl_4$

etc.(total: 17 compounds)

Monocyclic aromatic hydrocarbons (MAHs)

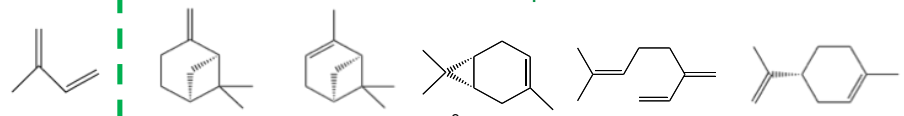
Benzene	: C_{6A}
Toluene	: $C_{6A}C_1$
Xylene(o- / m,p-)	: $C_{6A}C_2$
p-Dichlorobenzene	: $C_{6A}Cl_2$

Dicyclic aromatic hydrocarbons (DAHs)

Naphthalene	: C_{10A}
1-Methylnaphthalene	: $C_{10A}C_{1-1}$
2-Methylnaphthalene	: $C_{10A}C_{1-2}$

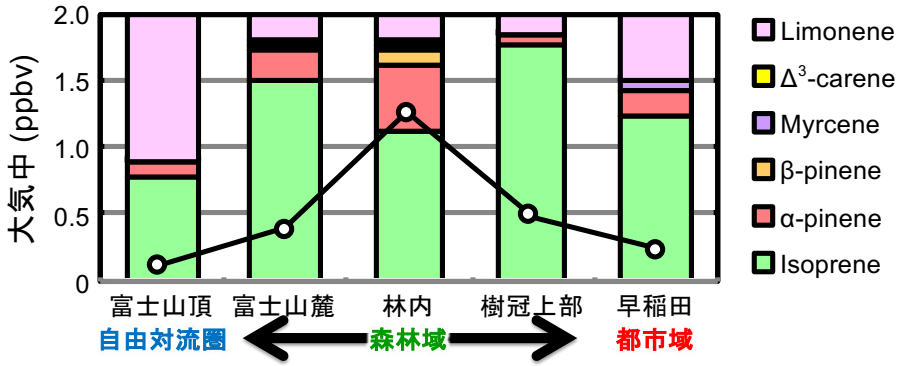
BVOCs（生物起源VOCs）

Monoterpenes



Isoprene　α- Pinene　β- Pinene　Δ^3- Caren　Myrcene　Limonene

BVOCs：夏季における地域比較



BVOCs濃度：

林内 > 樹冠上部 > 富士山麓 > 早稲田 > 富士山頂

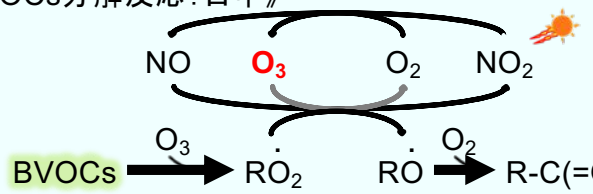
放出源 → 遠

高 → 低

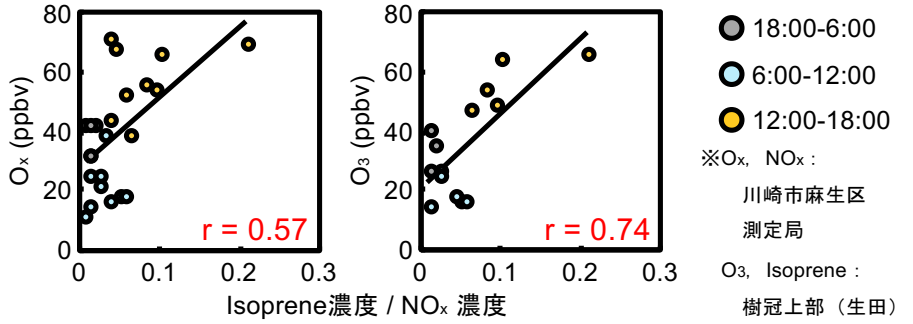
モノテルペン類：林内での検出高

BVOCs：オゾン生成への寄与

《BVOCs分解反応：日中》

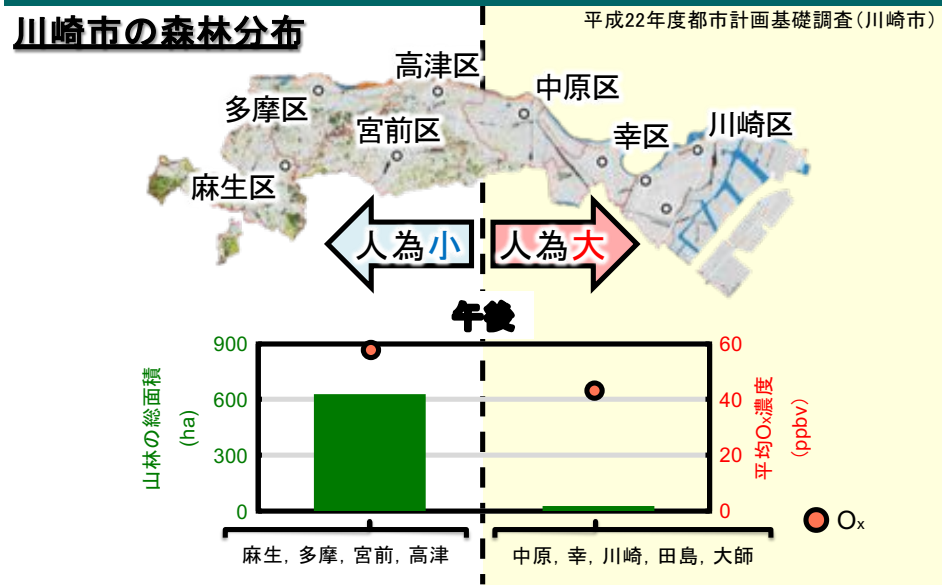


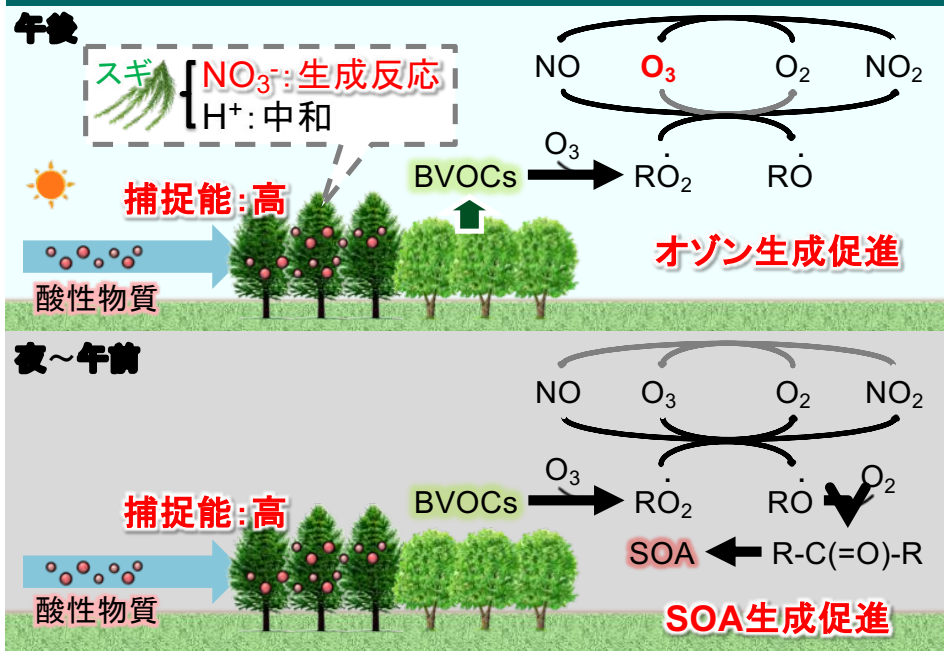
VOCs/NO_x増 ⇒O_3生成



午後：Isoprene分解→O_3生成が促進

周辺大気への影響：オゾン生成



BVOCs分解によるオゾン生成：周辺大気に影響？

生田の森