

温帯落葉広葉樹林から放出された バイオエアロゾルの輸送過程の数値解析

南 光太郎¹・堅田 元喜^{2,3*}・北 和之¹・反町 篤行⁴・保坂健太郎⁵・五十嵐康人^{1,6}

Numerical Analyses of Transport Processes of Bioaerosol Released from a Temperate Deciduous Broad-Leaved Forest

Kotaro MINAMI¹, Genki KATATA^{2,3*}, Kazuyuki KITA¹, Atsuyuki SORIMACHI⁴,
Kentaro HOSAKA⁵ and Yasuhito IGARASHI^{1,6}

Received 29 January 2020

Accepted 4 June 2020

Abstract Following the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, it has been recognized that bioaerosols with radioactive cesium may have released from radiologically contaminated forest into the atmosphere. In order to evaluate the above process, the emission rate of bioaerosol was inversely estimated using a numerical model named SOLVEG that includes the processes of emission, deposition, and turbulent transport of aerosols. For the inverse estimation, micrometeorological variables and bioaerosol number concentration and flux were observed at a Japanese temperate broad-leaved forest in summer. By tuning modelled emission rate of bioaerosols from forest floor, its best estimate was obtained at the agreement between calculated and observed concentrations below the canopy. General trends of calculated momentum, heat, and bioaerosol fluxes above the canopy were also reproduced in the simulation. In the numerical experiment without bioaerosol input at the top of atmosphere above the canopy, a certain amount (59%) of bioaerosol flux at the floor released above the canopy top, while the rest of the flux deposited onto both canopy and soil. This potential flux above the canopy top was $2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$, which may correspond to the re-emission rate proposed previously by the chemical transport model.

Keywords : Bioaerosol, Broad-Leaved Forest, Fungal Spore, Emission, Deposition, Flux, ¹³⁷Cs, Resuspension.

¹ 茨城大学大学院 理工学研究科

(〒 310-0056 茨城県水戸市文京 2-1)

¹ Graduate School of Science and Engineering, Ibaraki University

Bunkyo 2-1, Mito, Ibaraki 310-0056, Japan

² 茨城大学 地球・地域環境共創機構

(〒 310-0056 茨城県水戸市文京 2-1)

² Global and Local Environment Co-creation Institute, Ibaraki University

Bunkyo 2-1, Mito, Ibaraki 310-0056, Japan

³ キヤノングローバル戦略研究所

(〒 100-6511 東京都千代田区丸の内 1-5-1 新丸ビル 11F)

³ The Canon Institute for Global Studies

11th Floor, ShinMarunouchi Building, 5-1 Marunouchi 1-chome, Chiyoda-ku, Tokyo 100-6511, Japan

⁴ 福島県立医科大学 総合科学教育研究センター

(〒 960-1295 福島県福島市光が丘 1)

⁴ Integrated Center for Science and Humanities, Fukushima Medical University

Hikariga-oka 1, Fukushima, Fukushima 960-1295, Japan

⁵ 国立科学博物館 植物研究部

(〒 305-0005 茨城県つくば市天久保 4-1-1)

⁵ Department of Botany, National Museum of Nature and Science

Amakubo 4-1-1, Tsukuba, Ibaraki 305-0005, Japan

⁶ 京都大学 複合原子力科学研究所

(〒 590-0490 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2)

⁶ Institute for Integrated Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

Asashironishi 2, Kumatori, Sennan, Osaka 590-0490, Japan

* Corresponding Author.

E-mail: genki.katata.mirai@vc.ibaraki.ac.jp (G. Katata)

1. 緒 言

大気中に浮遊する生物由来の有機エアロゾル（バイオエアロゾル）は、呼吸器官などを経路しアレルギー反応を引き起こすなどにより、ヒトの健康に影響を及ぼす（Baxi *et al.*, 2016; Pringle, 2013）。また、地球科学的には雲核や氷晶核の形成にも重要な役割を果たしていると考えられており、学術的な関心が高まっている（Ariya *et al.*, 2009; Fröhlich-Nowoisky *et al.*, 2016）。

大気中のバイオエアロゾルは、放射線被ばくを引き起こす放射性セシウムの輸送担体としての重要性も示唆されている。2011年3月11日に起きた東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故（以下、福島第一原発事故）により、大気中に多量の放射性物質が放出された（Chino *et al.*, 2011）。大気中に放出された放射性物質は風とともに拡散し、乱流によって運ばれて直接地表面に沈着するか（乾性沈着）、雨や雪に取り込まれ地表面に沈着する（湿性沈着）。沈着した放射性物質は、風や人為的な活動による汚染土壌の巻き上げや森林火災などにより再び大気中に放出（再飛散）して、低汚染地帯への飛散や除染後の再汚染を引き起こす可能性がある（Igarashi, 2009; Mihăilă and Cuculeanu, 1994）。2013年から2014年の福島県浪江町における地上の大気の放射性セシウム（ ^{137}Cs ）濃度の観測によると、冬季に比べて夏季に6倍高く再飛散の影響が指摘されている（Kinase *et al.*, 2018; Igarashi *et al.*, 2019）。また、夏季には冬季よりも多くのバイオエアロゾルが大気中に存在しており、その個数濃度と大気中の ^{137}Cs 濃度の間には正の相関がみられた（Igarashi *et al.*, 2019）。これらの事実は、バイオエアロゾルが夏季における大気中 ^{137}Cs 濃度の増加に寄与している可能性を強く示唆している。

森林の林床は、バイオエアロゾルの主要な大気への放出源の一つである。福島第一原発事故による汚染を受けた福島県の総面積の71%は森林で覆われており、そのうち44%が大気からの ^{137}Cs の沈着による汚染を受けた（Yoshihara *et al.*, 2014）。事故から3年が経過した後でも、福島県の森林に沈着した ^{137}Cs のうち90%が林床の落葉層（リター層）と表層土壌に蓄積されているといわれている（Imamura *et al.*, 2017）。汚染された落葉や土壌に生息する担子菌類は、栄養素の一つであるカリウムの類似体として ^{137}Cs を吸収し、その体内に蓄積するため（Duff and Ramsey, 2008; Yoshida and Muramatsu, 1994）、真菌胞子にも ^{137}Cs が蓄積されていると考えられる（Yamaguchi *et al.*, 2015; Igarashi *et al.*, 2019）。過去の研究によると、2015年夏季に福島県浪江町で観測されたバイオエアロゾルのうち、2/3が真菌胞子であった（Igarashi *et al.*, 2019）。残りの1/3を占める真菌胞子以外の影響を考慮しても、特に真菌胞子の林床からの放出が ^{137}Cs の大気再飛散に影響している可能性があり、そのフラックスを明らかにすることは重要である。

しかしながら、国内ではバイオエアロゾルの観察法や検出法の研究開発は大きく進みつつあるものの（たとえば、Hasegawa, 2019 および Maki *et al.*, 2020）、バイオエアロゾル（おもに真菌胞子）の森林の林床から上空大気へと輸送される量の評価は行われていない。欧米では、森林内部でのバイオエアロゾルの個数濃度の観測データに基づいて針葉樹林・広葉樹林・混交林内からのバイオエアロゾルのフラックスが推計されているが、その値は 3×10^2 から 4×10^3 (個 $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) と1オーダーの幅がある（Sesartic and Dallafior, 2011）。この結果は、放出率が季節や森林の種類、そしてそこに生息する真菌類の種類などにより異なる可能性を示唆している。また、林床から林内に再放出された後、バイオエアロゾルは乱流拡散や乾性沈着などの影響を受けながら上空大気へと達する。これらのプロセスには微気象条件や樹木葉による空気抵抗、さらにはバイオエアロゾルの粒径分布などが作用すると考えられるが、これらによる放出プロセスへの影響は不明である。福島第一原発事故後の大気輸送シミュレーションでは、夏季の ^{137}Cs の地上大気中の濃度は、汚染された森林からの ^{137}Cs を含むバイオエアロゾル（特に、真菌胞子；Igarashi *et al.*, 2019）の放出を考慮することにより説明できる可能性が示唆されているが（Kajino *et al.*, 2016）、この仮説を明らかにするための知見は十分とはいえない。

本研究では、国内の温帯落葉広葉樹林を対象に、バイオエアロゾル（主に、真菌胞子）の森林の林床から上空大気へと輸送される過程と量を明らかにするために、森林におけるエアロゾルの乱流拡散や沈着・放出過程を考慮できる多層大気-植生-土壌モデルを用いた数値解析を行った。モデルの計算と放出率の推定に必要なバイオエアロゾルの個数濃度は、野外観測と顕微鏡観察によって取得した。得られた濃度の観測結果とモデル計算結果の比較から、バイオエアロゾルの林床からの放出率を逆推定するとともに、大気と森林の間のバイオエアロゾルの輸送プロセスを明らかにすることを目的とした。

2. 方 法

2.1 野外観測

2.1.1 観測地域

観測は、茨城県つくば市の国立科学博物館筑波実験植物園（140.1116°E, 36.1020°N）の落葉広葉樹林（暖温帯落葉広葉樹林区画）で行った。観測地域の植生は、クヌギ・コナラ・オオヤマザクラ・ウメモドキ・リョウブなどの樹木とカタクリ・ニリンソウなどの草本により構成されている。2018年8月16日にレーザー距離計（TRU PULSE 360R, Laser Technology）と葉面積計（LAI-2000, Li-cor）を用いて観測した高木層の平均樹高と葉面積指数（LAI）は、それぞれ $15.0 \pm 2.5 \text{ m}$ ($n=8$)

および $5 \pm 0.04 \text{ m}^2 \text{ m}^{-2}$ ($n=3$) であった。2018年6月6日から7月24日において、林床にはハラタケ目、ベニタケ目、アンズタケ目などの担子菌類（きのこ類）の子実体発生が確認された。本研究では、風散布を生存戦略の一つとしているこれらの担子菌類（Yamashita, 2013）をバイオエアロゾルの発生源と仮定した。なお、胞子の効果的な分散における主要な散布様式（風散布や昆虫による動物散布）はいまだ不明であり（Tuno, 1999）、今後、林床における担子胞子の発生源の分布に関する調査が必要である。

この調査地は、本研究の仮説のベースとなる Igarashi *et al.* (2019) における調査地の植生種（おもにコナラやブナなどの落葉広葉樹林）とも近く、同時に担子菌類の子実体発生個数の季節変動傾向が捉えられていることから（Igarashi *et al.*, 2019）、バイオエアロゾルのサンプリングを行う上で適している。

2.1.2 野外観測の概要

観測期間は、2018年6月25日から7月4日である。モデル計算に必要な観測データとして、森林上空（高さ20 m）の風速・風向・気温・相対湿度・下向き短波放射量・摩擦速度（運動量フラックス）・顕熱フラックスの1時間平均値をそれぞれ超音波風速計（CYG-81000RE, Young）・通風乾湿計（CVS-HMP155A, Vaisala）・日射計（CHF-SR20, Hukseflux）を用いて測定した。森林上空での観測は、下記のバイオエアロゾルサンプリングおよびそのフラックス測定も含め、筑波実験植物園の落葉広葉樹林の北方向に隣接する建物の屋上に装置を設置し実施した。大気中のバイオエアロゾルは、森林上空（高さ19 m）と森林内部（高さ1.5 m）の2高度においてマスフローコントローラ（C1005, Fcon）とポンプ（DAP-6D, Ulvac）を用い自作したローボリュームエアサンプラにより $1 \mu\text{m}$ 孔径のメンブレンフィルタ（Omnipore, Merck）上に捕集した（Fig. 1）。サンプリン

グ流量は約 2.6 L min^{-1} である。またバイオエアロゾルのフラックスは気象条件で変化し、特に昼夜では日射や風速の違いによる大気安定度の違いにより大きく値が異なる可能性があるため、日中（9:00–17:00, 7月3日のみ9:00–21:00）と夜間（20:00–4:00, 7月3日のみ21:00–9:00）に分けてサンプリングを実施した。なお、森林上空の観測機材を設置した建物への立ち入り制限により、6月29日から7月2日にかけて夜間のサンプリングは実施できなかった。

大気中のバイオエアロゾルの粒径別の個数および質量濃度の基本的な算出手順は、Liu *et al.* (2019) に従った。ここで、国内の放射能汚染を受けた森林由来のバイオエアロゾルの大部分が真菌胞子であることから（Igarashi *et al.*, 2019）、インパクターや顕微鏡観察による既往の研究（Boekhout, 1991; Lin and Li, 1996; Golubev, 1999; Takashima and Nakase, 2001; Ingold, 2001; Bai *et al.*, 2002; Burge, 2002; Zhao *et al.*, 2003; Wu *et al.*, 2004）に基づいた真菌胞子の典型的な粒径範囲（2–10 μm ）を、エアロゾルの算出対象とした。まず、上記サンプリングにより回収したすべてのフィルタ上の粒子にDNAの蛍光染色処理を行い（Maki, 2013）、各フィルタ上でランダムに選定した20か所の視野（ 0.1 mm^2 ）を蛍光顕微鏡（BX53, Olympus）により撮像した。オープンソースの画像解析ソフトウェア Image J を用いてそれぞれの画像に対して、面積 $1 \mu\text{m}^2$ 刻みの個数のヒストグラムを作成した。次に、粒子は完全球体であると仮定してそれぞれの面積を粒径（ μm ）に変換し、粒径2–10 μm の範囲に対して画像面積（ 0.1 mm^2 ）で割ることで、全画像の単位面積（ 1 mm^2 ）あたりの粒径別平均個数を算出した。得られた粒径別個数にフィルタの総面積（ 133 mm^2 ）を掛けて積算流量で割り、大気中の粒径別個数濃度を求め、粒径方向に積算して全個数濃度（ 個 m^{-3} ）を算出した。粒径別質量濃度（ $\mu\text{g m}^{-3}$ ）は、有機エアロゾルの典型的な密度（ 1 g cm^{-3} ）を用いて粒径別個数濃度から換算した（Sesartic and Dallafior, 2011; Matthias-Maser and Jaenicke, 2000; Chow *et al.*, 2015）。観察で得られた森林内部における粒径別質量濃度を、モデルで設定した粒径ビンに合わせ積算した分布を Fig. 2 に示す。

シミュレーション結果の検証のために、観測期間中の日中（9:00–17:00）および夜間（17:00–9:00）において森林上空（高さ20 m）におけるバイオエアロゾルのフラックスの測定を行った。フラックスの測定には、Honjo *et al.* (2016), Matsuda *et al.* (2015), Sakamoto *et al.* (2018) を参考にして、緩和渦集積法（Relaxed Eddy Accumulation Method, REA 法）を用いた。REA 法は、風が上向きの時と下向きの時に分けて対象物質をサンプリングし、それぞれの濃度差からフラックスを算出する手法である。本研究では、森林上空の高さ20 m に設置した超音波風速計（CYG-81000RE, Young）により

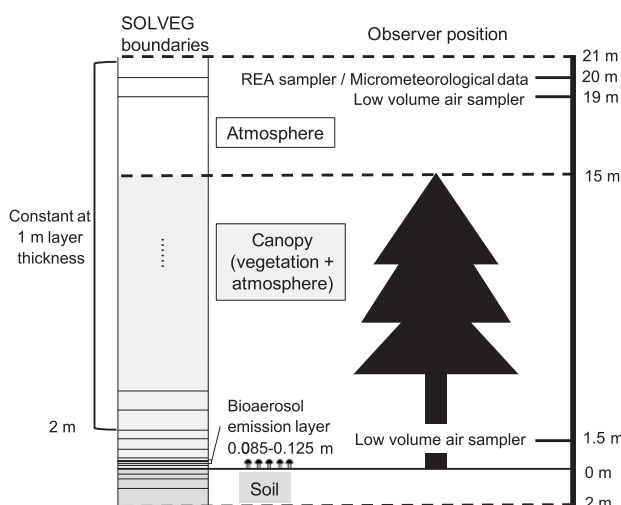


Fig. 1 Schematic illustrations of model boundaries of SOLVEG and observation equipment.

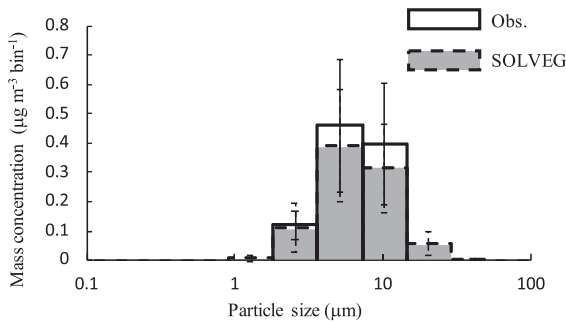


Fig. 2 Mean aerosol size distribution of observed (open boxes with solid lines) and calculated mass concentration (grey shaded boxes broken line) within the canopy (1.5 m) from June 26 to July 5 in 2018. Error bars represent the standard deviation.

鉛直風速を時間分解能 0.1 s で計測し (Fig. 1), 超音波風速計のセンサ直近に設置した吸引口から, 鉛直風速測定と同期して 0.1 s ごとに風が上向き・下向き・中立のときに分けて, それぞれバイオエアロゾルを 1 μm 孔径のメンブレンフィルタ (Omnipore, Merck) に, 高速マスフローコントローラ (MCR-50SLPM-D, Alicat) を用いて 5 L min⁻¹ の一定流量で捕集した。本観測地点周辺は均一な地表面でなく, 鉛直風速の平均値がゼロにはならない可能性があるため, Honjo *et al.* (2016), Matsuda *et al.* (2015), Sakamoto *et al.* (2018) と同様に鉛直風速の 10 分平均値を次の 10 分間の基準 (ゼロ点) として鉛直風の上下方向を判定した。この基準は 10 分ごとに更新した。ここで超音波風速計により測定した風向から, 各サンプリング期間における主風向はバイオエアロゾルの主な放出源となる森林であり, その割合は 83–94% であった。バイオエアロゾルのフラックス F (m² s⁻¹) は以下の式で算出した:

$$F = \beta \sigma_w (C_u - C_d) \quad (1)$$

ここで, β は渦相関法で同時に測定した顕熱フラックスから求めた実験係数, σ_w は鉛直風速の標準偏差, C_u および C_d はそれぞれ鉛直風が上向き時および下向き時の濃度を示す。本観測では, C_u と C_d の差を明確に検出するために鉛直風速の閾値を設けた。閾値は上記した鉛直風速の 10 分平均値 w_0 とその標準偏差 $\sigma(w_0)$ から算出した ($\pm [w_0 + 0.5\sigma(w_0)]$)。観測期間における各サンプリングでの鉛直風速が上向き時, 下向き時, 閾値内の時の平均サンプリング時間の割合はそれぞれ 33, 30, 38% であり, それぞれの変動は 2% 以下であった。 β は各サンプリングにおいて以下の式から求めた (Honjo *et al.*, 2016; Matsuda *et al.*, 2015; Sakamoto *et al.*, 2018)。

$$\beta = F_h / [\sigma_w (T_u - T_d)] \quad (2)$$

ここで F_h は顕熱フラックス ($F_h = -\overline{w'T'}$: w' および T' はそれぞれ鉛直風速と気温の変動成分を表す), T_u

と T_d はそれぞれ鉛直風速が上向き時および下向き時の気温であり, いずれも超音波風速計により測定した 3 次元風速および音仮温度より求めた。各要素の 10 分平均値から β を算出した。各サンプリングにおける β 値は 0.38–0.40 であり, 既報とほぼ同様な値 (0.39) (Gaman *et al.*, 2004) であった。

2.2 数値モデル

2.2.1 モデルの概要

森林におけるバイオエアロゾルの濃度とフラックスの計算には, 森林内部の乱流拡散・沈着過程に基づいてエアロゾルの質量濃度の鉛直分布の時間変化を計算できる多層大気-植生-土壌モデル SOLVEG (multi-layer atmosphere-SOIL-VEGETATION model; Katata *et al.*, 2014, 2020) を用いた。モデルの詳細は Nagai (2004), Katata (2009) および Katata and Ota (2017) に記されているため, ここでは本研究に関連するプロセスのみを記述する。

SOLVEG は, 大気・土壌・植生のサブモデルにより構成される。大気サブモデルでは, 水平風速, 温位, 比湿, 雲水量, 乱流運動エネルギーおよび乱流長さスケール, そして成分別のガスとエアロゾルの質量濃度を変数として, 一次元拡散方程式を数値的に解くことにより鉛直分布を計算する。それぞれの変数を ϕ とすると, 一次元拡散方程式は以下ようになる:

$$\frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} K_z \frac{\partial \phi}{\partial z} + F_\phi \quad (3)$$

ここで, t は時間, z は高度, K_z は乱流クロージャーモデル (Yamada, 1982) によって計算される鉛直拡散係数である。計算期間中の鉛直乱流拡散係数の値は, 日中には森林上空および内部でそれぞれ 10–20 および 0.2–0.6 m² s⁻¹, 夜間には 5–9 および 0.2–0.6 m² s⁻¹ の範囲にあった。 F_ϕ は外力項であり, 植生キャノピー層における大気間における交換を含めた各変数の生成および消失の量を表す。また, 本研究では逆推定した林床からの真菌胞子の放出率を, フラックスとして放出高度の外力項 F_ϕ に加える。上部境界には観測データを入力する。土壌表面との境界は大気最下層の風速, 温位, 比湿と土壌サブモデルによって決定される土壌表面温度と, 比湿のバルク移動方程式によって計算された運動量, 熱, 水蒸気フラックスが与えられる。土壌サブモデルでは熱伝導および土壌中液体水・水蒸気の拡散を表す方程式を解き, 土壌温度, 土壌体積含水率, 土壌空気中の比湿を計算する。土壌モデルの初期条件として, 地表面には水ストレスを受けない適度な体積含水率 (0.17 m³ m⁻³) と気温に等しい地表面温度 (16°C) を設定し, 土壌最下層には地下水を想定し飽和体積含水率と土壌温度をそれぞれ 0.41 m³ m⁻³ および 10°C を与えて, 深度方向に線形内挿した。土壌中比湿の初期条件には, 土壌温度に対する飽和比湿を設定した。植

生サブモデルでは、植生キャノピーを葉と周辺の大気を含む植生層を多数重ねたものとして表現し、各層での光合成過程・相変化に伴う潜熱・放射過程を含めた水および熱収支を計算する。

本研究で対象とする大気中のバイオエアロゾルの質量濃度の鉛直分布は、式 (3) を用いて計算される。それぞれの植生キャノピー層では、外力項として以下の式で表されるエアロゾルの沈着および放出による体積変化率 F_p ($\mu\text{g m}^{-3} \text{s}^{-1}$) を考慮する (Katata *et al.*, 2014) :

$$F_p = aE_p + \frac{F_b}{\Delta z} \quad (4)$$

$$E_p = \varepsilon F_f |u| c_p \quad (5)$$

ここで、 a はキャノピー層における葉面積密度 ($\text{m}^2 \text{m}^{-3}$)、 E_p は単位葉面積あたりのエアロゾルの沈着量 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$)、 F_b は単位面積あたりのエアロゾルの放出率 ($\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$)、 Δz はキャノピー層の層厚 (m)、 F_f は水平方向におけるエアロゾルの遮蔽係数、 $|u|$ は水平風速 (m s^{-1})、 c_p はエアロゾルの質量濃度 ($\mu\text{g m}^{-3}$) である。水平風速の絶対値 $|u|$ は、大気サブモデルの式 (3) で計算された大気層別の値を用いる。 ε はエアロゾルの捕集効率であり、モデルで設定した粒径ビンごとに求めた慣性衝突・重力沈降・ブラウン拡散およびさえぎりによる葉面への捕集効率から計算する (Katata *et al.*, 2011)。式 (4) の F_b は観測地域で確認された担子菌類の典型的な傘の高さを想定して、高さ 0.085–0.125 m の大気第 3 層 ($\Delta z = 0.04$ m) に対してのみ与える。

式 (5) の妥当性は、欧米や国内のいくつかの森林で観測されたエアロゾルの粒径別の個数濃度やフラックスのデータを用いた詳細な検証がなされている (Katata *et al.*, 2011, 2014)。また、バイオエアロゾルの化学的特性の情報は得られていないため、本研究では Katata *et al.* (2014) で導入されたエアロゾルの吸湿・蒸発過程は考慮していない。

2.2.2 計算条件と検証データ

SOLVEG の入力パラメータと計算条件を **Table 1** に

示す。シミュレーション期間は、2.1.2 節で示した観測期間と同様である。上部境界条件には、森林上空で観測された風速・風向・気温・相対湿度・下向き短波放射量 (2.1.2 節) とつくば市館野の高層気象台 (気象庁、観測地域から南南東へ 5.2 km に位置) における地上気圧および下向き長波放射量の 1 時間値、森林上空で観測されたバイオエアロゾルの質量濃度の 9 時間平均値のデータを与えた。また、バイオエアロゾルの質量濃度データが得られていない日はモデルの上部境界に質量濃度を与えず、バイオエアロゾルのフラックスの計算と放出率の推定の対象外とした。モデル計算でのバイオエアロゾルの粒径分布は、観測された粒径別のバイオエアロゾル質量濃度に対数正規分布をフィッティングすることで与えている。Fig. 2 に計算期間中の森林内部におけるバイオエアロゾルの粒径分布の平均値を示す。観測値の幾何平均粒径は 4.6 μm 、標準偏差は 1.7 μm となった。計算上は、真菌胞子としては大きすぎる粒径 10 μm 以上のビンに対しても、対数正規分布に従ってわずかに質量濃度を分配されており、その寄与は小さいが沈着速度 (フラックス) を過大評価する可能性がある。これらのパラメータを使って得られた計算期間中の森林内部におけるバイオエアロゾルの粒径分布の平均値は Fig. 2 の通りである。大気と森林の間のバイオエアロゾルの輸送過程の検証には、森林上空における摩擦速度・顕熱フラックスおよび質量濃度フラックスの観測データを使用した。

2.2.3 バイオエアロゾルの放出率推定と計算シナリオ

多層陸面モデルを用いてバイオエアロゾルの森林から上空大気へのフラックスを計算するためには、林床における放出率 F_b (式 (4)) を考慮する必要がある。しかしながら、本研究の観測では林床からのバイオエアロゾルの放出率は得られておらず、何らかの方法で推定する必要がある。そこで、森林内部 (高さ 1.5 m) で観測されたバイオエアロゾルの質量濃度を用いて、これとモデルによる同一高度におけるキャノピー層のエアロゾルの質量濃度 c_p (式 (5)) の計算値が一致するように林床からの放出率を逆推定した。具体的には、

Table 1 Simulation setting of the multi-layer atmosphere-soil-vegetation model, SOLVEG

Items	Values
Simulation periods	From 18:00 on 25 June to 10:00 on 4 July 2018
Time step	12 s
Numbers of layers	28, 7, and 23 for atmosphere, soil, and vegetation, respectively
Soil layer boundaries	0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1.0, and 2.0 m depth
Vegetation layers boundaries	0.05, 0.07, 0.1, 0.15, 0.25, 0.45, 0.7, 1.0, 1.45, and 2.0–15.0 m height with increment of 1 m
Atmospheric layers boundaries	Vegetation layers and 15.0–21.0 m height with increment of 1 m
Soil texture	Sandy loam (Katata, 2009)
Leaf area index	undergrowth (0–1 m): $1 \text{ m}^2 \text{m}^{-2}$, trunk (1–5 m): $0.7 \text{ m}^2 \text{m}^{-2}$, canopy (5–15 m): $3.3 \text{ m}^2 \text{m}^{-2}$
Vegetation species	Deciduous broad-leaved tree
Number of particle size bins	6 bins from 0.64–40.98 μm in diameter
Other parameters	Given by Katata <i>et al.</i> (2014)

放出率をゼロから $0.001 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ 刻みで $0.1 \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ まで増加させる計算を行い、サンプリング期間ごとに質量濃度の観測値と計算値の差の絶対値が最小になる放出率を探索した。最終的に、この方法で得られた放出率をモデルに与えて再度計算し、2.2.1 節の REA 法による森林上空で観測されたバイオエアロゾルのフラックスと比較することで、森林上空のバイオエアロゾルの乱流輸送過程の再現性を検証した。

バイオエアロゾルの放出過程と乱流拡散・植生への沈着との関係を明らかにするために、林床放出なし (No emission), 林床放出あり (Emission), そして上部境界条件の濃度ゼロ・林床放出あり (Potential emission) の3つの計算シナリオを設定した。No emission シナリオではバイオエアロゾルの林床からの放出を与えないため、森林へのバイオエアロゾルの供給源は大気からの乱流輸送のみである。Emission シナリオでは、大気から森林への乱流輸送に加えて林床からの放出が加味される。Potential emission シナリオでは、モデルの上部境界条件の濃度をゼロとすることによって、大気から森林へのバイオエアロゾルの流入のない環境を想定し、林床起源のバイオエアロゾルが森林上空へと到達するフラックスを計算する。Potential emission シナリオで計算されるバイオエアロゾルの(放出)フラックスは、林床から上空大気へと放出される最大見積もりのフラックスであると考えられる。この結果を化学輸送シミュレーションによる福島第一原発事故後の夏季における森林からの ^{137}Cs 放出フラックスの計算結果 (Kajino *et al.*, 2016) から推定したバイオエアロゾルのフラックスと比較した。

3. 結 果

3.1 観測結果

森林上空の微気象要素とバイオエアロゾルの個数濃度フラックスと森林内部および森林上空のバイオエアロゾルの個数濃度の観測結果を Fig. 3 に示す。2018年6月25日から7月4日における森林上空の風速・気温および相対湿度の期間平均値はそれぞれ 2.4 m s^{-1} , 28°C および 69% であった。観測期間中、近隣のアメダス地点(つくば)において降水は観測されなかった。森林内部と森林上空の両方のデータが得られた日の平均個数濃度はそれぞれ 1.9×10^4 および 1.5×10^4 (個 m^{-3}) であり、夏季のイギリスの落葉広葉樹林で観測された真菌胞子の個数濃度の最大である 10^4 (個 m^{-3}) (Adams *et al.*, 1968) と同じオーダーであった。他方、福島県浪江町における真菌胞子の個数濃度の水準は 10^5 (個 m^{-3}) のオーダー (Igarashi *et al.*, 2019) であったことから、地域差もあると考えられる。

それぞれの日の森林内部と森林上空の個数濃度に対して t 検定により有意差検定を行った結果、これらのうち6月27日の夜間と6月28日の日中には、森林上

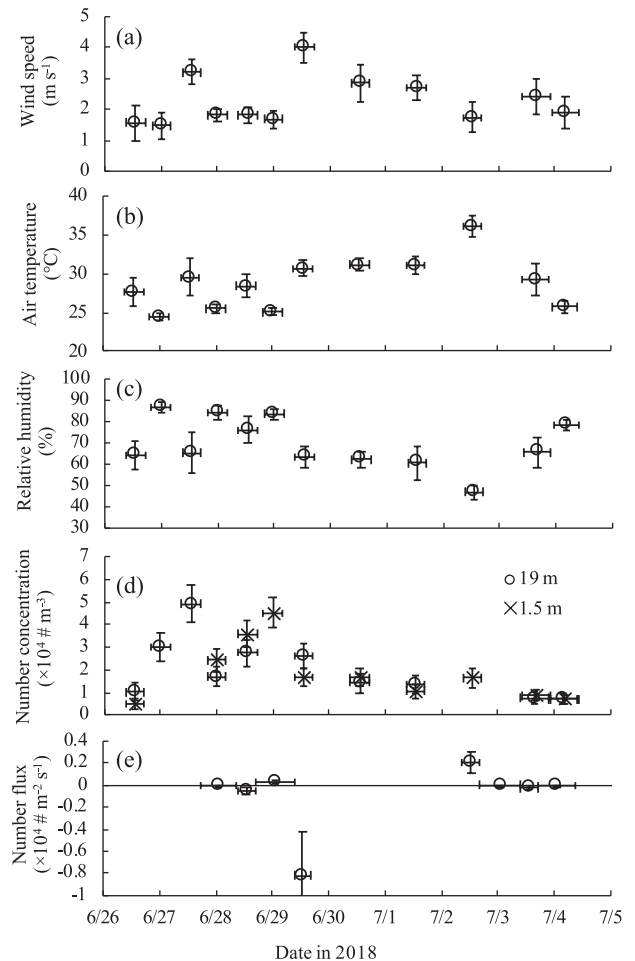


Fig. 3 Temporal changes in observed (a) wind speed, (b) air temperature, (c) relative humidity above the canopy (20 m), (d) bioaerosol number concentrations above (19 m) and within the canopy (1.5 m), and (e) number flux above the canopy from June 26 to July 5, 2018. Vertical and horizontal error bars in each figure are the standard deviation and each sampling period, respectively.

空に比べ森林内部の個数濃度が大きく、6月29日の日中にはその逆の関係がみられた ($p < 0.05$)。REA 法によるバイオエアロゾルのフラックスは、6月28日の夜間と7月2日の昼間にそれぞれ $0.3 \pm 0.1 \times 10^3$ および $2.0 \pm 1.0 \times 10^3$ (個 $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) の森林から上空へ輸送される正のフラックスを示したが、それら以外の日時には -0.1×10^3 から -8.2×10^3 (個 $\text{m}^{-2} \text{s}^{-1}$) の負のフラックスを示した (Fig. 3e)。

観測期間中に得られた森林上空のバイオエアロゾルの質量濃度と風速・気温・相対湿度との関係を Table 2 に示す。いずれの気象要素も、個数濃度との間に相関関係は見られなかった。

3.2 シミュレーション結果

Fig. 4 は大気層上端 (21 m) における森林上空の摩擦速度 (運動量フラックス) と顕熱フラックスの観測値および計算値の経時変化である。モデルは夜間における顕熱フラックスの観測結果を過小評価する傾向に

Table 2 Pearson's correlation coefficient (R) and its statistical significance of observed bioaerosol mass concentration and estimated emission rate from the forest floor against wind speed, air temperature and relative humidity above the canopy from June 26 through July 5, 2018 ($n = 7$)

Items	Mass concentration		Emission rate	
	Correlation coefficient (R)	p-values	Correlation coefficient (R)	p-values
Wind speed	-0.05	0.89	-0.08	0.85
Air temperature	-0.04	0.91	0.18	0.67
Relative humidity	0.46	0.21	0.11	0.80

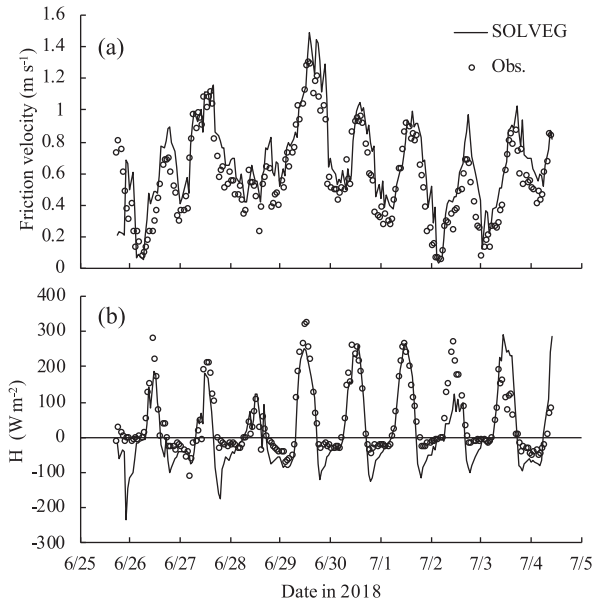


Fig. 4 Time series for calculated (solid lines) and observed (open circles) (a) friction velocity and (b) sensible heat flux above the canopy from June 26 to July 5, 2018.

あったが、両者の日中の値は一致しており (Fig. 4b)、摩擦速度の再現性も良好であった (Fig. 4a)。

Fig. 5a は、観測データとモデルを用いて逆推定した林床からのバイオエアロゾルの放出率の経時変化であり、観測期間中における放出率の平均値は $3.3 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であった。また、Fig. 5b は森林内部におけるバイオエアロゾルの質量濃度の計算値と観測値である。No emission シナリオで算出された森林内部における質量濃度は観測値を下回ったが、Emission シナリオでは林床からのバイオエアロゾルの放出率を調整することで両者の質量濃度を一致させることに成功した。Fig. 5c および d は、それぞれ森林上空におけるバイオエアロゾルの質量フラックスの Emission シナリオと Potential emission シナリオの計算結果および観測結果である。Emission シナリオでは、すべての日で大気から樹冠への沈着傾向を示し、その負の値は 6 月 29 日の日中に最大となった。これらの傾向は計算と比較可能な日時における観測結果とも一致した。Potential emission シナリオで計算された質量フラックスの平均値は $2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であった。

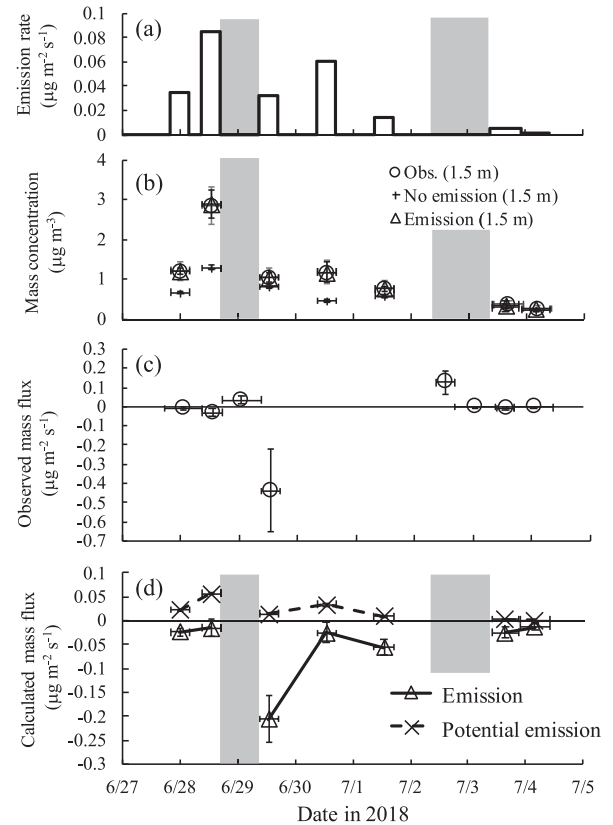


Fig. 5 (a) Time series for estimated emission rates of bioaerosol from forest floor (0.085–0.125 m in height), (b) bioaerosol mass concentration at 1.5 m height in observations (open circles) and calculations with 'No emission' (pluses) and 'Emission' scenarios (open triangles), and bioaerosol mass flux at 20 m height in (c) observations (open circles) and (d) calculations with 'Emission' (thick lines with open triangles) and 'Potential emission' scenarios (broken lines with crosses) from June 26 through July 5, 2018. Grey shaded bars in (a), (b), and (d) represent observed flux, except for the period with lack of bioaerosol mass concentration data either within or above the canopy. Vertical error bars in (b), (c), and (d) are the standard deviation for each sampling period represented as horizontal error bars.

Fig. 6 は Emission シナリオと Potential emission シナリオで計算されたバイオエアロゾル質量濃度の期間平均値の鉛直プロファイルである。Potential emission シナリオにおける樹冠上端 (15 m) の質量濃度は林床の

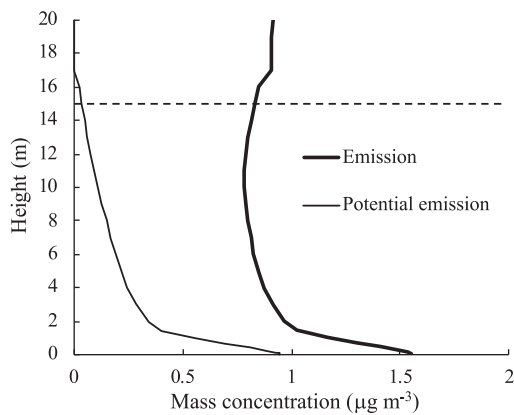


Fig. 6 Vertical profiles of bioaerosol mass concentrations calculated by ‘Emission’ (thick solid line) and ‘Potential emission’ scenarios (thin solid line) averaged from June 26 to July 5 in 2018. The broken line shows the height of the canopy (15 m).

4%まで減少し、Emission シナリオにおける森林上空の質量濃度を大きく下回った。

Table 2 には、サンプリング期間ごとの放出率の推定値と微気象要素の観測値との関係も含めてあるが、林床の質量濃度と同じく (3.1 節)、いずれの組み合わせにも相関はみられなかった。

Table 3 は、逆推定した林床からの放出率と Emission および Potential emission シナリオにおける全植生キャノピー層と土壌への沈着量と森林上空の正味のフラックスの平均値である。Emission シナリオにおける森林上空の正味のフラックスの平均値は $-5.2 \pm 6.3 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ の沈着傾向であった。Potential emission シナリオでは、林床から放出されたバイオエアロゾルの 59% が下草と森林樹冠に沈着されることなく大気上空へと輸送されていた。また、森林上空の正味のフラックスの平均値は $2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であり、欧米の温帯森林で推計されている範囲の最大値 ($1.3 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$; Sesartic and Dallafior, 2011) に近かった。

4. 考 察

4.1 バイオエアロゾルの放出率の変動要因

SOLVEG によって逆推定された林床からのバイオエアロゾルの放出率は、日中・夜間もしくは日単位で大きく変動した (Fig. 5a)。Igarashi *et al.* (2019) や Huffman

et al. (2013) によると、降水時や降水後において大気中の真菌孢子の濃度の増加が確認されている。しかし、本研究での観測期間に降水日は含まれておらず (3.1 節)、推定された放出率の変動の原因ではない。そのほかの要因として風速・気温・相対湿度の時間的変動が考えられるが、本研究では放出率とこれらの微気象要素との間に相関は見られなかった (Table 2)。米国における野外観測によれば、さまざまな担子菌類について相対湿度と孢子の放出数に正の相関があることが報告されている (Haard and Kramer, 1970)。しかしながら、これらの結果は 1 時間間隔の観測から得られたものであり、本研究のバイオエアロゾルのサンプリング間隔 (半日~1 日) に比べて短い。実際、ニュージーランドの温帯森林では、本研究と同じく日単位で観測された担子菌類である霊芝 (*Ganoderma*) の孢子の放出数と相対湿度の間に相関は見られず、その原因としてサンプリング間隔の違いが指摘されている (Kadowaki *et al.*, 2010)。このことから、林床におけるバイオエアロゾルの放出への気象要因が及ぼす影響を明らかにするには、日内変動を解像できる観測が必要と考えられる。

4.2 バイオエアロゾルの森林から上空大気への放出の可能性

本研究の Emission シナリオでは、計算期間を通じて森林上空のフラックスは沈着傾向を示した (Fig. 5d)。特に、6 月 29 日の日中は最大の沈着を示した。これは森林上空のバイオエアロゾルの個数濃度が森林内部に比べて高かったことに加えて (Fig. 3d)、期間中の風速と摩擦速度が最大で乱流輸送が活発であったためと考えられる (Fig. 3a および 4a)。一方、そのほかの日については、森林内部と森林上空での個数濃度の大小関係から森林上空のフラックスの向き (沈着もしくは放出) は説明できない。たとえば、6 月 28 日の日中は、森林内部 (1.5 m) のバイオエアロゾルの個数濃度が森林上空に比べて高く (Fig. 3d)、林床からの放出率も計算期間中で最大値 ($8.0 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$) を示したが、森林上空のフラックスは沈着傾向を示した (Fig. 5a)。このフラックスの向きと濃度の大小関係の不一致は、樹冠を經由して林床から樹冠上端へと輸送されたバイオエアロゾルの濃度を森林上空の濃度が上回っていたということにより説明できる。実際、Emission シナリオで計算された質量濃度の期間平均値の鉛直プロファ

Table 3 Mean values and standard deviations of emissions, depositions onto canopy and soil, and net above-canopy fluxes of bioaerosols and these ratios to emission flux calculated in ‘Emission’ and ‘Potential emission’ scenario from June 26 to July 5, 2018

Items (height or layer thickness)	Emission		Potential emission	
	Flux ($\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	Ratio to emission rate (%)	Flux ($\mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$)	Ratio to emission rate (%)
Emission rate (0.085–0.15 m)	$3.3 \pm 2.8 \times 10^{-2}$	100	$3.3 \pm 2.8 \times 10^{-2}$	100
Deposition flux onto canopy (0–15 m)	$8.2 \pm 6.6 \times 10^{-2}$	248	$1.1 \pm 0.8 \times 10^{-2}$	32
Net above-canopy flux (20 m)	$-5.2 \pm 6.3 \times 10^{-2}$	158	$2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2}$	59
Residual (mainly deposition flux onto soil)	$0.4 \pm 0.2 \times 10^{-2}$	12	$0.3 \pm 0.2 \times 10^{-2}$	9

イルを見ると、森林上空で樹冠上端の質量濃度を上回っていた (Fig. 6)。一方、森林内部の鉛直プロファイルは林床から樹冠へと放出傾向を示したものの、樹冠上端の濃度の増加にはほとんど寄与していなかったと考えられる。このことは、大気上端の濃度をゼロと仮定した Potential emission シナリオにおいて、林床から放出されたバイオエアロゾルが林内での沈着と乱流拡散による希釈の影響を受けて樹冠上端にほとんど到達しなかったことから裏付けられる (Fig. 6)。

REA 法による森林上空のフラックスは6月28日の夜間と7月2日の昼間および夜間にそれぞれ 3×10^{-2} , 2×10^{-1} , $4 \times 10^{-4} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ となり、バイオエアロゾルが森林から大気へと放出している可能性が示唆された (Fig. 5c)。しかしながら、両日のモデル計算はモデルへの入力データであるバイオエアロゾルの質量濃度が得られていないため、この可能性を検証することはできない。降雨時も含めたさらなるデータを取得し、この可能性を検証する必要がある。

4.3 森林から上空大気へのバイオエアロゾルの放出フラックス

Potential emission シナリオによると、夏季における国内の温帯落葉広葉樹林から上空大気へのバイオエアロゾルのフラックスの潜在的な最大値は $2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ と推定された (Table 3)。この値は、過去の欧米の温帯森林からのフラックスの推計結果 ($0.3\text{--}1.3 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$; Sesartic and Dallafior, 2011) と同じオーダーであった。ただし、両研究のフラックスの推定手法は下記の点で異なっている。Sesartic and Dallafior (2011) は、高さ 10 m で観測されたと仮定したバイオエアロゾル (おもに真菌孢子) の個数濃度のデータと一定を仮定した乱流拡散速度のタイムスケールから推定している。これに対して、本研究の Potential emission シナリオでは、バイオエアロゾルの放出・乱流拡散・沈着過程を多層モデルで計算し、観測値から逆推定している。仮に、Sesartic and Dallafior (2011) の同じ手法を本研究に適用し、森林内部での質量濃度の観測値からバイオエアロゾルのフラックスを推定すると $2.1 \pm 1.6 \times 10^{-1} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であり、Potential emission シナリオで得られたフラックス ($2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$) よりも 1 オーダー大きい値であった。このことは、本研究のモデルに考慮されている乱流拡散や沈着のプロセスが森林から上空大気へのバイオエアロゾルのフラックスの推定に大きく影響しうることを示唆している。Potential emission シナリオで示されたバイオエアロゾルの大気上空へのフラックス (潜在的な最大値) のオーダーは、1 章で述べた夏季の森林からの ^{137}Cs の再飛散にバイオエアロゾルが関与しているという仮説を支持している。この仮説を提示した Kajino *et al.* (2016) は、2013 年の夏季に福島県浪江町で観測された ^{137}Cs の地上濃度を説明するためには、少なくとも $22 \text{ mBq m}^{-2} \text{h}^{-1}$ という速

度で森林から ^{137}Cs が放出される必要があることを大気化学輸送シミュレーションにより示している。この値をバイオエアロゾル (おもに真菌孢子) の個数ベースのフラックスに換算すると、 $2.2 \times 10^1\text{--}2.4 \times 10^3 \text{ m}^{-2} \text{s}^{-1}$ に相当する (Igarashi *et al.*, 2019)。本研究で用いた幾何平均粒径 ($4.6 \mu\text{m}$; 2.2.2 節) と典型的な粒子密度 1 g cm^{-3} を用いてこの値を質量ベースに変換すると $0.1\text{--}12 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ となる。Potential emission シナリオで得られたフラックス ($2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$) はこの範囲に含まれ、バイオエアロゾルが夏季の森林における放射性物質の再飛散に寄与している可能性があらためて示唆された。

5. 結 論

本研究では、 ^{137}Cs 再飛散の担体となりうるバイオエアロゾルの林床から上空大気へのフラックスを推定し、その輸送プロセスを明らかにするために、茨城県の筑波実験植物園の落葉広葉樹林を対象に多層大気-植生-土壌モデルを用いた数値解析を行った。森林内部および森林上空のバイオエアロゾルの濃度とフラックスを観測し、それらの結果と多層陸面モデルを組み合わせることで林床からのバイオエアロゾルの放出率を逆推定した。林床からの放出と樹冠への沈着影響を明らかにするために、「林床放出なし」、「林床放出あり」、そして「上部境界条件の濃度ゼロ・林床放出あり」の3つの計算シナリオで数値実験を行った。モデルにより逆推定した林床からのバイオエアロゾルの放出率の期間平均値と標準偏差は $3.3 \pm 2.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ であった。過去の研究で示唆されている放出率の時間変動と気象要因 (風速・気温・相対湿度) との間に相関は見られず、その原因として半日単位の観測では放出率の時間変動をとらえられない可能性が示唆された。森林上空で観測されたバイオエアロゾルのフラックスの沈着傾向は「林床放出あり」の計算により再現され、多くの期間で林床からの大気への放出フラックスよりも大気から樹冠への沈着フラックスが上回っていたことがわかった。この沈着の影響を除いた「上部境界条件の濃度ゼロ・林床放出あり」の計算から、計算期間中における森林からのバイオエアロゾルの潜在的な放出フラックスは $2.0 \pm 1.8 \times 10^{-2} \mu\text{g m}^{-2} \text{s}^{-1}$ と推計された。この結果は、過去の大気化学輸送シミュレーションで示された値の範囲内であり、夏季の森林からバイオエアロゾルの放出が放射性セシウムの再飛散に寄与していた可能性が示唆された。さらなる現象解明には気象条件 (特に、降水の有無や大気湿度の大小) や放射能による汚染度、さらには生息する植生種や菌類の違いなどを総合的に検討する必要がある、それに向けた気象・エアロゾル・環境放射能・森林生態分野を包括した野外観測が望まれる。

謝 辞

調査地の葉面積指数の測定のために使用したプラントキャノピーアナライザー LAI-2000 の使用に際しては、茨城大学の及川真平氏に助力いただいた。同大学の中村麻子氏には、バイオエアロゾルの個数濃度算出のために蛍光顕微鏡の補助をいただいた。研究の一部は、日本学術振興会科学技術人材育成費補助金（卓越研究員事業）ならびに科研費補助金基盤研究（B）（一般）（17H01873）および、基盤研究（A）（一般）（17H01478）の助成を受けて実施した。

References

- Adams, K. F., Hyde, H. A. and Williams, D. A.: Woodlands as a Source of Allergens with Special Reference to Basidiospores, *Acta Allergologica*, **23**, 265–281 (1968)
- Ariya, P., Sun, J., Eltouny, N., Hudson, E., Hayes, C. and Kos, G.: Physical and Chemical Characterization of Bioaerosols-Implications for Nucleation Processes, *Int. Rev. Phys. Chem.*, **28**, 1–32 (2009)
- Baxi, S. N. and Portnoy, J. M., Larenas-Linnemann, D. and Phipatanakul, W.: Exposure and Health Effects of Fungi on Humans, *J. Allergy Clin. Immunol. Pract.*, **4**, 396–404 (2016)
- Bai, F. Y., Takashima, M., Jia, J. H. and Nakase, T.: *Dioszegia zsoitii* sp. nov., a New Ballistoconidium-Forming Yeast Species with Two Varieties, *J. General Appl. Microbiol.*, **48**, 17–23 (2002)
- Boekhout, T.: A Revision of Ballistoconidia-Forming Yeasts and Fungi, *Stud. Mycol.*, **33**, 1–194 (1991)
- Burge, H. A.: An Update on Pollen and Fungal Spore Aerobiology, *J. Allergy Clin. Immunol.*, **110**, 544–552 (2002)
- Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., Terada, H., Katata, G. and Yamazawa, H.: Preliminary Estimation of Release Amounts of ¹³¹I and ¹³⁷Cs Accidentally Discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the Atmosphere, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1129–1134 (2011)
- Chow, J. C., Yang, X. F., Wang, X. L., Kohl, S. D., Hurbain, P. R., Chen, L. W. A. and Watson, J. G.: Characterization of Ambient PM₁₀ Bioaerosols in a California Agricultural Town, *Aerosol Air Qual. Res.*, **15**, 1433–1447 (2015)
- Duff, M. C. and Ramsey, M. L.: Accumulation of Radiocesium by Fruit Bodies in the Environment: A Literature Review, *J. Environ. Radioact.*, **99**, 912–932 (2008)
- Fröhlich-Nowoisky, J., Kampf, C. J., Weber, B., Huffman, J. A., Pöhlker, C., Andreae, M. O., Lang-Yona, N., Burrows, S. M., Gunthe, S. S., Elbert, W., Su, H., Hoor, P., Thines, E., Hoffmann, T., Després, V. R. and Pöschl, U.: Bioaerosols in the Earth System: Climate, Health, and Ecosystem Interactions, *Atmos. Res.*, **182**, 346–376 (2016)
- Gaman, A., Rannik, U., Aalto, P., Pohja, T., Siivola, E., Kulkala, M. and Vesala, T.: Relaxed Eddy Accumulation System for Size-Resolved Aerosol Particle Flux Measurements, *J. Atmos. Oceanic Technol.*, **21**, 933–943 (2004)
- Golubev, W. I.: *Mastigobasidium*, a New Teleomorphic Genus for the Perfect State of Ballistosporeous Yeast *Bensingtonia Intermedia*, *Int. J. Syst. Bacteriol.*, **49**, 1301–1305 (1999)
- Haard, R. T. and Kramer, C. L.: Periodicity of Spore Discharge in the Hymenomycetes, *Mycologia*, **62**, 1145–1169 (1970)
- Hasegawa, N.: Preparation and Aerosolization of Test Microbes for Microbial Challenge Test, *Earozeru Kenkyu*, **34**, 197–203 (2019) (in Japanese)
- Honjo, T., Takahashi, A. and Matsuda, K.: Deposition Velocity of Sulfate and Nitrate in PM_{2.5} above a Forest in Suburban Tokyo Using Relaxed Eddy Accumulation, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **51**, 257–265 (2016) (in Japanese)
- Huffman, J. A., Prenni, A. J., DeMott, P. J., Pöhlker, C., Mason, R. H., Robinson, N. H., Fröhlich-Nowoisky, J., Tobo, Y., Després, V. R., Garcia, E., Gochis, D. J., Harris, E., Müller-Germann, I., Ruzene, C., Schmer, B., Sinha, B., Day, D. A., Andreae, M. O., Jimenez, J. L., Gallagher, M., Kreidenweis, S. M., Bertram, A. K. and Pöschl, U.: High Concentrations of Biological Aerosol Particles and Ice Nuclei during and after Rain, *Atmos. Chem. Phys.*, **13**, 6151–6164 (2013)
- Igarashi, Y.: Anthropogenic Radioactivity in Aerosol, *Jpn. Health Phys.*, **44**, 313–323 (2009)
- Igarashi, Y., Kita, K., Maki, T., Kinase, T., Hayashi, N., Hosaka, K., Adachi, K., Kajino, M., Ishizuka, M., Sekiyama, T. T., Zaizen, Y., Takenaka, C., Ninomiya, K., Okochi, H. and Sorimachi, A.: Fungal Spore Involvement in the Resuspension of Radiocaesium in Summer, *Sci. Rep.*, **9**, 1954 (2019)
- Imamura, N., Komatsu, M., Ohashi, S., Hashimoto, S., Kajimoto, T., Kaneko, S. and Takano, T.: Temporal Changes in the Radiocesium Distribution in Forests over the Five Years after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, *Sci. Rep.*, **7**, 8179 (2017)
- Ingold, C. T.: Range in Size and Form of Basidiospores and Ascospores, *Mycologist*, **15**, 165–166 (2001)
- Kadowaki, K., Leschen, R. A. B. and Beggs, J. R.: Periodicity of Spore Release from Individual Ganoderma Fruiting Bodies in a Natural Forest, Australasian, *Mycologist*, **29**, 17–23 (2010)
- Kajino, M., Ishizuka, M., Igarashi, Y., Kita, K., Yoshikawa, C. and Inatsu, M.: Long-Term Assessment of Airborne Radiocesium after the Fukushima Nuclear Accident: Re-Suspension from Bare Soil and Forest Ecosystems, *Atmos. Chem. Phys.*, **16**, 13149–13172 (2016)
- Katata, G.: Improvement of a Land Surface Model for Accurate Prediction of Surface Energy and Water Balances, JAEA-Data/Code 2008–033, p.64, Japan Atomic Energy Agency (2009)
- Katata, G., Nagai, H., Zhang, L., Held, A., Serça, D. and Klemm, O.: Development of an Atmosphere-Soil-Vegetation Model for Investigation of Radioactive Materials Transport in the Terrestrial Biosphere, *P. Nucl. Sci. Technol.*, **2**, 530–537 (2011)
- Katata, G., Kajino, M., Matsuda, K., Takahashi, A. and Nakaya, K.: A Numerical Study of the Effects of Aerosol Hygroscopic Properties to Dry Deposition on a Broad-leaved Forest, *Atmos. Environ.*, **97**, 501–510 (2014)
- Katata, G. and Ota, M.: A Terrestrial Ecosystem Model (SOLVEG) Coupled with Atmospheric Gas and Aerosol Exchange Processes,

- JAEA-Data/Code 2016-014, p.35, Japan Atomic Energy Agency (2017)
- Katata, G., Matsuda, K., Sorimachi, A., Kajino, M. and Takagi, K.: Effects of Aerosol Dynamics and Gas-particle Conversion on Dry Deposition of Inorganic Reactive Nitrogen in a Temperate Forest, *Atmos. Chem. Phys.*, **20**, 4933–4949 (2020)
- Kinase, T., Kita, K., Igarashi, Y., Adachi, K., Ninomiya, K., Shinohara, A., Okochi, H., Ogata, H., Ishizuka, M., Toyoda, S., Yamada, K., Yoshida, N., Zaizen, Y., Mikami, M., Demizu, H. and Onda, Y.: The Seasonal Variations of Atmospheric ^{134,137}Cs Activity and Possible Host Particles for Their Resuspension in the Contaminated Areas of Tsushima and Yamakiya, Fukushima, Japan, *Prog. Earth Planet. Sci.*, **5**, 12 (2018)
- Lin, W. H. and Li, C. S.: Size Characteristics of Fungus Allergens in the Subtropical Climate, *Aerosol Sci. Technol.*, **25**, 93–100 (1996)
- Liu, T., Chen, A. L.-W., Zhang, M., Watson, J., Chow, J., Cao, J., Chen, H., Wang, W., Zhang, J. and Zhan, C.: Bioaerosol Concentrations and Size Distributions during the Autumn and Winter Seasons in an Industrial City of Central China, *Aerosol Air Qual. Res.*, **19**, 1095–1104 (2019)
- Maki, T.: Epifluorescent Microscopic Observation of Aerosol, *Eaorozoru Kenkyu*, **28**, 201–207 (2013) (in Japanese)
- Maki, T., Kobayashi, F. and Iwasaka, Y.: Characteristics of Bioaerosols Transported for Long Distance by Kosa Events, *Eaorozoru Kenkyu*, **35**, 20–26 (2020) (in Japanese)
- Matsuda, K., Watanabe, I., Mizukami, K., Ban, S. and Takahashi, A.: Dry Deposition of PM_{2.5} Sulfate above a Hilly Forest Using Relaxed Eddy Accumulation, *Atmos. Environ.*, **107**, 255–261 (2015)
- Matthias-Maser, S. and Jaenicke, R.: The Size Distribution of Primary Biological Aerosol Particles in the Multiphase Atmosphere, *Aerobiologia*, **16**, 207–221 (2000)
- Mihăilă, B. and Cuculeanu, V.: Time Dependence of the ¹³⁷Cs Resuspension Factor on the Romanian Territory after the Chernobyl Accident, *Health Phys.*, **67**, 170–175 (1994)
- Nagai, H.: Atmosphere-Soil-Vegetation Model Including CO₂ Exchange Processes: SOLVEG2, JAEA-Data/Code 2004-014, p.92, Japan Atomic Energy Agency (2004)
- Pringle, A.: Asthma and the Diversity of Fungal Spores in Air, *PLoS Pathog.*, **9**, e1003371 (2013)
- Sakamoto, T., Nakahara, A., Takahashi, A., Sorimachi, A., Katada, G. and Matsuda, K.: Deposition Velocity of PM_{2.5} Nitrate and Gaseous Nitric Acid above a Forest in Suburban Tokyo Using Relaxed Eddy Accumulation with Denuder Sampling Technique, *J. Jpn. Soc. Atmos. Environ.*, **53**, 136–143 (2018) (in Japanese)
- Sesartic, A. and Dallafior, T. N.: Global Fungal Spore Emissions, Review and Synthesis of Literature Data, *Biogeosciences*, **8**, 1181–1192 (2011)
- Takashima, M. and Nakase, T.: *Tilletiopsis Deroxii*, *Tilletiopsis Oryzicola* and *Tilletiopsis Penniseti*, Three New Species of the Ustilaginomycetous Anamorphic Genus *Tilletiopsis* Isolated from Leaves in Thailand, *Anton. Leeuw.*, **80**, 43–56 (2001)
- Tuno, N.: Insect Feeding on Spores of a Bracket Fungus, *Elfvigia applanata* (Pers.) Karst. (Ganodermataceae, Aphyllophorales), *Ecol. Res.*, **14**, 97–103 (1999)
- Wu, P. C., Tsai, J. C., Li, F. C., Lung, S. C., and Su, H. J.: Increased Levels of Ambient Fungal Spores in Taiwan are Associated with Dust Events from China, *Atmos. Environ.*, **38**, 4879–4886 (2004)
- Yamada, T.: A Numerical Model Study of Turbulent Airflow in and above a Forest Canopy, *J. Meteorol. Soc.*, **60**, 439–454 (1982)
- Yamaguchi, T., Ishii, K., Arai, H., Onuma, T., Matsuyama, S. and Terakawa, A.: Autoradiography of the Fruiting Body and Spore Print of Wood-Cultivated Shiitake Mushroom (*Lentinula edodes*) from a Restricted Habitation Area, *Mushroom Sci. Biotechnol.*, **23**, 125–129 (2015)
- Yamashita, S.: Ecological Interaction between Wood-Decaying Basidiomycetes and Mycophagous Insects: Role of Insects on Fungal Spore Dispersal, *Jap. J. Ecol.*, **63**, 327–340 (2013) (in Japanese)
- Yoshida, S. and Muramatsu, Y.: Concentrations of Radiocesium and Potassium in Japanese Mushrooms, *Environ. Sci.*, **7**, 63–70 (1994)
- Yoshihara, T., Matsumura, H., Tsuzaki, M., Wakamatsu, T., Kobayashi, T., Hashida, S., Nagaoka, T. and Goto, F.: Changes in Radiocesium Contamination from Fukushima in Foliar Parts of 10 Common Tree Species in Japan between 2011 and 2013, *J. Environ. Radioact.*, **138**, 220–226 (2014)
- Zhao, J. H., Bai, F. Y., Wang, Q. M., and Jia, J. H.: *Sporobolomyces Bannaensis*, a Novel Ballistoconidium-forming Yeast Species in the *Sporidiobolus* Lineage, *Int. J. Syst. Evol. Microbiol.*, **53**, 2091–2093 (2003)