

機関番号：82101

研究種目：若手研究 (B)

研究期間：2009～2010

課題番号：21710020

研究課題名 (和文) 熱帯・亜熱帯林生態系による自然起源オゾン破壊物質のガス交換過程の解明

研究課題名 (英文) Gas exchange process of ozone depleting substances in subtropical and tropical forest ecosystems

研究代表者

斉藤 拓也 (SAITO TAKUYA)

独立行政法人国立環境研究所・化学環境研究領域・研究員

研究者番号：40414370

研究成果の概要 (和文)：亜熱帯及び熱帯植物の葉群によるハロゲン化メチルのガス交換速度を安定同位体トレーサー法を用いて測定した。その結果、大半の葉群試料はハロゲン化メチルを正味で放出していたが、それらのほとんどはハロゲン化メチルを単に放出するだけでなく、同時に吸収していることが明らかとなった。また、塩化メチルと臭化メチルの吸収速度には相関が見られ、これらのハロゲン化メチルが同様なメカニズムによって吸収されていることが強く示唆された。

研究成果の概要 (英文)：We measured gross production and consumption rates of methyl chloride and methyl bromide for subtropical and tropical plant branches, and found that the uptake rates of methyl chloride and methyl bromide correlated with each other, suggesting that they might be consumed by a similar mechanism in or on the leafing branches.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009年度	1,800,000	540,000	2,340,000
2010年度	1,500,000	450,000	1,950,000
年度			
年度			
年度			
総計	3,300,000	990,000	4,290,000

研究分野：地球化学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：塩化メチル、臭化メチル、葉圏微生物、安定同位体

## 1. 研究開始当初の背景

塩化メチルと臭化メチルは、それぞれ大気中で最も存在量の多い揮発性有機塩素化合物と揮発性有機臭素化合物であり、大気中では主要な成層圏オゾン破壊物質として働く。これらは主に自然生態系から大気へ放出されると考えられているが、それらのグローバルな収支には大きな不確実性がある。

近年の研究によって一部の熱帯・亜熱帯植物が、塩化メチルと臭化メチルを大量に放出していることが明らかとなり、熱帯林・亜熱帯林生態系は少なくとも塩化メチルの主要

な発生源域であると考えられるようになった。しかし、これまで研究代表者らが進めてきた研究の過程で、熱帯植物による塩化メチル放出速度には、同一の種であっても個々の葉ごとに大きな違いがあり、中には放出とは逆に正味で塩化メチルを吸収する葉も存在することが示唆された。この吸収しているものの実態は不明であるが、熱帯・亜熱帯植物からの塩化メチルの放出速度が、放出速度と吸収速度のバランスの上に成り立っているとすれば、塩化メチルの正味の放出速度を総放出速度と総吸収速度に分離して評価する

必要がある。

## 2. 研究の目的

本研究は、自然起源のオゾン破壊物質である塩化メチルと臭化メチルの熱帯・亜熱帯植物による「放出速度」と「吸収速度」を、安定同位体トレーサー法を用いて個別に見積もることにより、熱帯林・亜熱帯林生態系におけるハロゲン化メチルのガス交換過程を明らかにすることを目的とする。

## 3. 研究の方法

熱帯・亜熱帯植物によるハロゲン化メチルのガス交換速度の観測は、それぞれ半島マレーシアとボルネオ島の熱帯雨林（低地フタバガキ林）であるパソ森林保護区（2010年8月、2011年2月）とランビル国立公園（2011年1月）、そして西表島の亜熱帯林（2010年6月、2010年10月、2011年1月）で行った。観測は林床の下層植生に加え、パソ森林保護区ではタワーやキャノピーウォークウェイ、ランビル国立公園ではタワーとゴンドラを利用して高さ30m程度の高木についても行った。

ハロゲン化メチルのガス交換速度の観測には、『放出』と『吸収』を分離するための安定同位体トレーサー法を用いた。この手法では、まず、植物の葉群をテフロン製バッグ（容積：約20L）で覆い、バッグ内に安定同位体トレーサー（ $^{13}\text{CH}_3\text{Cl}$ 、 $^{13}\text{CH}_3\text{Br}$ ）をCFC-113と共に導入する。その後、バッグ内のヘッドスペース空気を一定時間間隔（3分、13分、23分、33分）でバイアル瓶（容積100ml）に採取し、実験室にてそれらの空気試料に含まれるラベルなし（ $^{12}\text{CH}_3\text{Cl}$ 、 $^{12}\text{CH}_3\text{Br}$ ）および安定同位体のラベル付き（ $^{13}\text{CH}_3\text{Cl}$ 、 $^{13}\text{CH}_3\text{Br}$ ）の塩化メチルと臭化メチルの測定を行う。ハロゲン化メチルの測定には大気濃縮／ガスクロマトグラフ／質量分析計を用いた。

ハロゲン化メチルの放出速度と吸収速度定数は、 $^{12}\text{C}$ 体と $^{13}\text{C}$ 体のハロゲン化メチルの時系列データに、非線形最適化法

（Nelder-Mead downhill simplex 法）を適用することで推定した。吸収速度は、得られた吸収速度定数に塩化メチルおよび臭化メチルの大気中バックグラウンド濃度を乗じることで得た。なお、バッグ内に添加した安定同位体トレーサーがバッグと枝の隙間などからバッグ外へ漏れる効果については、CFC-113トレーサーの減少率を用いて補正した。ハロゲン化メチルの放出速度と吸収速度は、葉の乾燥重量1g当たり、1時間当たりのハロゲン化メチル重量で表す。

## 4. 研究成果

安定同位体トレーサー法による測定例を

図1に示す。この例では、フタバガキ科樹木（*Dipterocarpus sublamelatus*）からの放出によりバッグ内の塩化メチル濃度が時間と共に上昇する傾向が示されると共に、バッグ内に添加した $^{13}\text{CH}_3\text{Cl}$ トレーサーが逆に吸収により減少する様子が捉えられている。

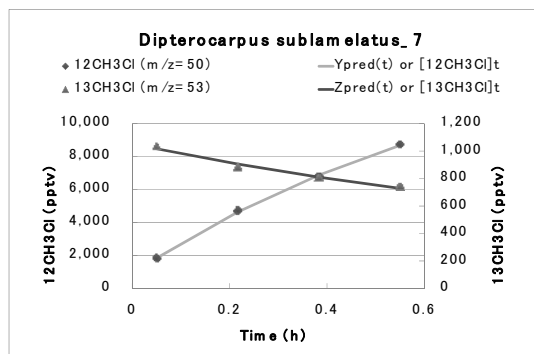


図1 安定同位体トレーサー法によるバッグ内塩化メチル濃度の経時変化

亜熱帯植物2種、熱帯植物17種における観測結果を図2に示す。

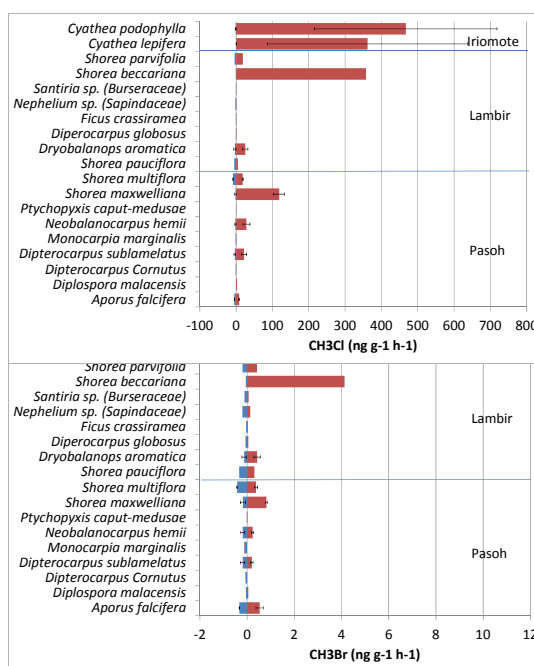


図2 亜熱帯・熱帯植物による塩化メチル（上）と臭化メチル（下）の放出速度と吸収速度

放出速度は、塩化メチル、臭化メチル共に、西表島の木性シダ（*Cyathea podophylla*、*Cyathea lepifera*）が最も大きく、塩化メチルでは約  $400 \text{ ng g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ 、臭化メチルで約  $6 \text{ ng g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ であった。熱帯林では、*Shorea* 属のフタバガキ科樹木にハロゲン化メチルを大量に放出する種が多く見られ、ランビル国立公園の *Shorea beccariana*（塩化メチル： $350 \text{ ng g}^{-1} \text{ h}^{-1}$ ）

$\text{g}^{-1} \text{h}^{-1}$ 、臭化メチル： $4 \text{ ng g}^{-1} \text{h}^{-1}$ ) が最大のハロゲン化メチル放出速度を示し、*Shorea maxwelliana* (塩化メチル： $120 \text{ ng g}^{-1} \text{h}^{-1}$ 、臭化メチル： $1 \text{ ng g}^{-1} \text{h}^{-1}$ ) がこれに続いた。

吸収速度について見ると、塩化メチルでは概ね放出速度に対する割合は小さく、正味の放出速度は総放出速度とほとんど等しいことがわかった。一方、臭化メチルでは放出速度と同程度の大きさの吸収速度が観測されるなど、正味のガス交換量を考える上で吸収過程が重要であることが明らかとなった。

塩化メチルと臭化メチルにおける正味のガス交換速度、総放出速度、総吸収速度の関係を図3に示す。大半の植物種は、正味で塩化メチルと臭化メチルを放出しており、両者の間には正の相関が見られた。同様な傾向は総放出速度においても認められ、これらのガスが同様なメカニズムによって生成・放出されていることが示された。

塩化メチルと臭化メチルの相関は、総吸収速度にも見られ、総吸収速度のモル比 ( $\text{CH}_3\text{Cl}:\text{CH}_3\text{Br}$ ) は34:1と見積もられた。研究方法で述べたようにこの吸収速度は、北半球のバックグラウンド大気濃度 (モル比52:1) で規格化されており、ハロゲン化メチルの吸収速度定数は塩化メチルより臭化メチルにおいてやや大きい結果が示された。この違いは、塩化メチルが生物学的過程によってのみ分解されるのに対し、臭化メチルの吸収・分解過程には生物学的過程に加えて化学的過程が関与することや、C-Br結合がC-Cl結合より弱いことなどが関係している可能性がある。

今回得られた吸収速度のモル比は、これまでに報告されている温帯や寒帯の陸上生態系における吸収速度のモル比 ( $\text{CH}_3\text{Cl}:\text{CH}_3\text{Br}=38\sim 50:1$ ) と同程度であった (例えば、Rhew et al., 2007)。こうした陸上生態系におけるハロゲン化メチルの吸収は主に土壤中の微生物によって担われていると考えられているため、吸収速度比に見られた既報値との比較的良好一致は、熱帯・亜熱帯植物の葉群におけるハロゲン化メチルの吸収が何らかの微生物活動に関係していることを示唆している。また、ハロゲン化メチルの吸収速度は、平均すると高木より低木で高い傾向が認められた (図4)。一般に微生物の活性は湿度に大きく依存するため、高木の林冠部より、高湿度な林床の低木において、微生物の活性が高いと考えられる。このため、この結果も微生物活動によるハロゲン化メチルの吸収説を支持すると考えられる。

本研究により、熱帯林・亜熱帯林生態系におけるハロゲン化メチルのガス交換過程では、植物による放出だけでなく、吸収が起こっていることが明らかとなり、この吸収過程には微生物の活動が関与していることが示

唆された。植物の葉上には、葉圏微生物と呼ばれる多種多様な微生物が生息していることがわかっており、熱帯林生態系におけるハロゲンの循環の一端を担っている可能性がある。今後、陸域生態系におけるハロゲン化メチルの放出・吸収過程を詳細に理解するために、葉圏を含めた微生物による吸収実態を把握する必要がある。

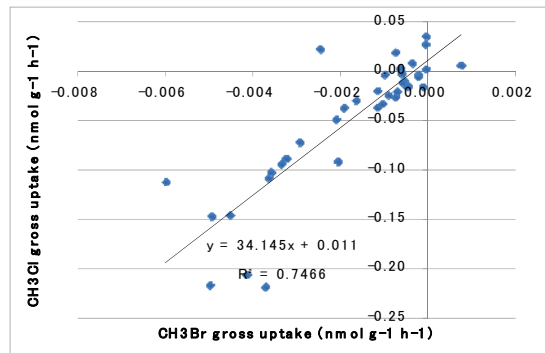
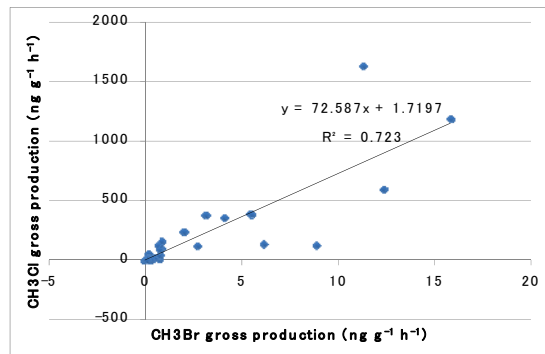
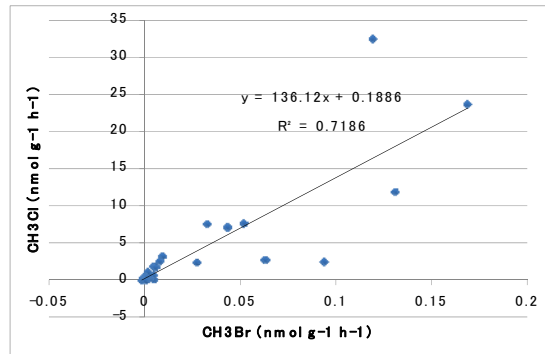


図3 塩化メチルと臭化メチルの正味のガス交換速度 (上)、総放出速度 (中)、総吸収速度 (下)

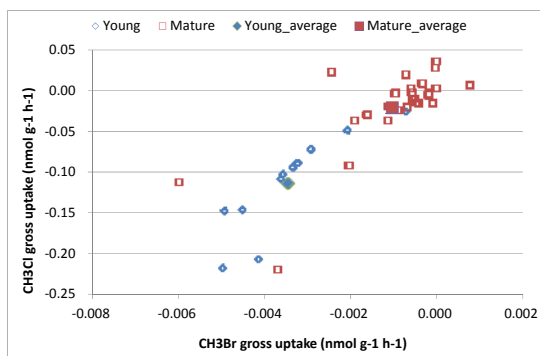


図4 高木と低木の葉群試料におけるハロゲン化メチルの吸収速度

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

- ① Saito T., Yokouchi Y., Okuda T., Philip E. (2011) A preliminary study of production and consumption of methyl halides by tropical plant samples. In: Okuda T., Yamada T., Hosaka T., Sakai S., and Funato K., Progress report of NIES/FRIM/UPM Joint Research Project on Tropical Ecology & Biodiversity 2010, Organizing Committee of the NIES/FRIM/UPM Projected, 59-64. 査読無し

[学会発表] (計5件)

- ① 斉藤拓也、熱帯植物によるハロゲン化メチルの放出と微生物?による吸収. ワークショップ「C1化合物を媒介とした植物と微生物の相互作用」、倉敷市、2010年12月17日
- ② 斉藤拓也、揮発性有機化合物の放出・輸送・変質に関する研究. 第16回大気化学討論会、八王子市、2010年11月18日
- ③ 斉藤拓也、横内陽子、熱帯林・亜熱帯林生態系における塩化メチルの放出と吸収. 生物起源微量ガスワークショップ、京都市、2010年11月15日
- ④ 斉藤拓也、横内陽子、亜熱帯林生態系における塩化メチルの放出と吸収. 日本地球化学会第56回年会、東広島市、2009年9月16日
- ⑤ 斉藤拓也、横内陽子、熱帯林から放出される塩化メチル. 北海道大学低温科学研究所研究集会「大気圏と生物圏の相互作用:大気化学を中心として」、札幌市、2009年7月9日

## 6. 研究組織

(1) 研究代表者

斉藤 拓也 (SAITO TAKUYA)  
独立行政法人国立環境研究所・  
化学環境研究領域・研究員  
研究者番号：40414370

(2) 研究分担者  
該当なし

(3) 連携研究者  
該当なし