

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 20 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2012～2015

課題番号：24310016

研究課題名(和文) 東南アジア熱帯雨林における群落スケールのハロゲン化メチル放出量と変動要因の解明

研究課題名(英文) A study on canopy-scale methyl halide flux measurements in the southeastern tropical rainforest

研究代表者

斉藤 拓也 (Saito, Takuya)

国立研究開発法人国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：40414370

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、自然起源の成層圏オゾン破壊物質である塩化メチルについて、東南アジア熱帯雨林からの放出量を推定することを目的とした。フラックス計測法として、新進群落上の上昇・下降気流における微量ガスの濃度差等からフラックスを推定する簡易渦集積法を用い、これに基づく大気採取、分析システムを構築した。半島マレーシア・パソ森林保護区においてフラックス観測を実施し、塩化メチルが概ね正のフラックス(～microgram/m²/h)を示すこと、日中にフラックスがやや高くなることなどを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Methyl chloride (CH₃Cl) is the most abundant long-lived volatile organochlorine compound in the atmosphere and thus acts as the major carrier of ozone-destroying chlorine to the stratosphere. To determine CH₃Cl flux in tropical forest ecosystems, we developed a canopy-scale flux measurement system based on the relaxed eddy accumulation (REA) technique which has not been applied to the measurement of CH₃Cl flux. We conducted the canopy-scale flux measurements of CH₃Cl above a tropical rainforest in Malaysia using the REA technique. The measurements showed a positive flux at the level of microgram/m²/h, indicating emissions of CH₃Cl from the forests to atmosphere.

研究分野：大気化学

キーワード：塩化メチル 簡易渦集積法 フタバガキ オゾン破壊

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臭素化合物として、大気中の全塩素の1/6と全臭素の半分を担っている。これらのハロゲン化メチルは主に自然発生源から大気へと放出されると、対流圏で比較的安定に存在するため、その大部分が成層圏へと運ばれ、そこで光分解して活性なハロゲン原子を放出することで成層圏オゾンの触媒的な破壊を引き起こしている。これらのハロゲン化メチルによる成層圏オゾン破壊への寄与は大きく、全体の1/4にも相当するが、成層圏オゾン破壊物質の大勢を占めるフロン類などの人為起源ハロカーボンの生産・排出がモントリオール議定書によって禁止されたため、その寄与は今後更に大きくなると予測されている。このため、成層圏オゾンの今後の回復傾向を予測する上で、自然発生源からのハロゲン化メチルの発存量とその変動要因を正確に把握し、気候変動などに伴ってその発存量がどのように変化しうるのがかを予測することが求められている。

このような地球化学的・環境科学的な重要性にも関わらず、塩化メチルの主要な発生源については、長くミッシングソース問題として議論されてきた。しかし、近年になって熱帯植物の葉から大量の塩化メチルが放出されていることが明らかとなり (Yokouchi et al., 2002)、更に、枯葉や落ち葉に含まれるペクチンのメチル化による塩化メチル生成が熱帯・亜熱帯域の主要な発生源であると提唱されるなど (Hamilton et al., 2003)、塩化メチルの主要な発生源域としての熱帯林の役割が注目されてきていた。

こうした状況の中で申請者らは、熱帯林や亜熱帯林におけるフィールド観測を実施し、多くの熱帯・亜熱帯植物から大量の塩化メチルが放出されていることを明らかにしてきた (Yokouchi et al., 2007; Saito et al., 2008)。また、熱帯植物以外にも様々な発生源 (枯葉・落ち葉、木材腐朽菌、菌根菌、ハキリアリ) 及び吸収源 (土壌微生物) が存在する熱帯雨林において生態系全体からの塩化メチル放出量を推定するため、群落スケールのフラックス観測手法を塩化メチルに初めて適用し、東南アジア熱帯林サイトにおける塩化メチル放出量を明らかにした。更に、この観測結

果を全球の熱帯林に外挿し、熱帯林による塩化メチルの年間放出量を約130万トンと試算した (Saito et al., 2008)。これは、熱帯林生態系が塩化メチルの全放出量の約3割を占める重要な発生源であることを示唆したものである。しかしながら、全球収支計算の基礎となるフラックスデータはわずか数日間に得られた極めて限られたものであり、更にそのフラックスデータ自身も推定誤差の大きい傾度法によることから、こうした推定結果の不確実性は高いと言わざるを得ない。このため、次のステップとして、より信頼性の高いフラックス観測手法を用いて、雨季と乾季を含むより長期間にわたってフラックス観測を行うことで、熱帯雨林生態系における塩化メチルフラックスを正確に把握し、その変動を支配する環境要因を明らかにする必要がある。

一方、臭化メチルのグローバルな収支はシンクに比べてソースが2割強程度不足しており、そのミッシングソース分を低緯度の陸域生態系が担っている可能性が指摘されている。これは、熱帯植物による臭化メチルの放出という観測結果 (申請者未発表データ、Blei et al., 2010) とも整合的である。しかしながら、予想されているように熱帯林生態系が臭化メチルの発生源となっているのか、あるいは吸収源として働いているのかは明らかにされていない。その主な原因は、熱帯林における観測例が皆無に等しいことに加え、熱帯植物がソース、森林土壌が強いシンクとしてそれぞれ働くといった複雑さが、個々の発生源と吸収源を積み上げるボトムアップ的な手法による臭化メチルフラックスの算出を困難にしていることによる。このため、塩化メチルだけでなく、臭化メチルについても熱帯雨林における群落スケールのフラックス観測が必要とされている。

2. 研究の目的

本研究では、上記のような最先端の成果と課題を踏まえて、従来の傾度法より信頼性の高い簡易渦集積法を用いて、熱帯雨林生態系全体から大気への塩化メチルフラックスを明らかにすると共に、塩化メチルフラックスの日内・日々・季節変動の観測から、フラックスの変動を支配する環境要因を明らかにすることを目的とする。なお、予算の減額に

対応するため、ハロゲン化メチルとして塩化メチルのみを対象成分とした。

3. 研究の方法

本研究では、熱帯雨林生態系から大気への塩化メチル放出量を明らかにするという目的を達成するため、以下の2つのサブテーマを設定する。

サブテーマ1

簡易渦集積(REA)法による塩化メチルフラックス観測システムの構築：メタンのフラックス観測用に開発・実用化されているREA装置に種々の改良を施し、塩化メチルのフラックス観測システムを構築する。

サブテーマ2

熱帯雨林における塩化メチルのフラックス観測：開発したフラックス観測システムを用いて、東南アジア熱帯雨林におけるハロゲン化メチルのタワーフラックス観測を実施する。これにより、群落スケールにおける塩化メチルフラックスの定量を行うと共にフラックスの変動要因を明らかにする。

4. 研究成果

まず、メタンのフラックス観測用に開発・実用化されているREAシステムをベースに種々の改良を施し、塩化メチル用REA装置を構築した。本システムは、上昇・下降気流を切り分けるためのバルブ、バルブ制御用のリレーとデータロガー、バッグやポンプなどからなる。メタン用システムからの大きな変更点として、高速でポンプのON/OFFを繰り返す方式から、ポンプを常時稼働させて、採取した空気をバルブのON/OFFで上向き・下向きの空気用の大型バッグに振り分ける方式を採用した。これは、ハロゲン化メチルの損失・汚染のないポンプで、REA法で要求される高速応答性を持つものがないためである。また、塩化メチルの現場測定が困難なため、一旦テドラーバッグに採取した空気試料をステンレス製キャニスターに移充填した後に、ラボで分析する方式とした。なお、メタン用に用いられてきた電磁弁については塩化メチルのコンタミネーションが見られたため、より不活性なテフロン製の接ガス部を持つものを採用した。

REA装置を滋賀県・桐生水文試験地に持ち込み、フィールドサイトにおける動作の検証を行った。国内の森林サイトでは塩化メチルを放出する種は多くないと考えられるため、二酸化炭素を測定対象とした。その結果、REAシステムによりテドラーバッグに採取された空気中の二酸化炭素濃度は比較的安定しており、また、REA法で測定された二酸化炭素フラックスが渦相関法で測定された結果と概ね一致していることから、バッグへの空気の振り分けが正常に行われていることが

示された。

続いて、REAシステムを半島マレーシア・パソ森林保護区に持ち込み、熱帯林におけるREAシステムの検証を行うと共に、塩化メチルのフラックス観測を実施した。観測は、2014年9月、2015年1月、2015年9月、2016年1月の計4回実施した。二酸化炭素フラックスをREA法と渦相関法で比較したところ、REA法が過小見積もりとなる傾向が見られた。乱流データを用いたシミュレーション等から、この原因として試料採取系における上昇流・下降流の混合が考えられたが、問題の解決には至っていない。

塩化メチルのフラックス測定用としてキャニスターに採取された大気試料は国立環境研究所(茨城県つくば市)に輸送され、実験室において低温濃縮大気濃縮装置/ガスクロマトグラフ/質量分析計(GC/MS)を用いて分析された。塩化メチルは選択的イオンモニタリングモードの $m/z=50$ のイオンを用いて測定され、濃度の定量は重量充填法によって作製された標準ガスとの比較により行った。

熱帯林群落上(約50m高)における塩化メチルは、概ね700-1000pptの濃度レベルで観測された(バックグラウンド濃度の1.4~2倍)。一方、2015年9月の観測では最大で2000pptに達する高濃度の塩化メチルが観測された。VOC組成やバックトラジェクトリー解析から推定された空気階の輸送経路から、スマトラ島の大規模泥炭林火災の影響を強く受けた可能性が示された。

塩化メチルのフラックスは概ね正の値が観測され、塩化メチル放出種であるフタバガキが優占する熱帯林から大気へ塩化メチルが放出されていることが示された。また、夜間より日中にフラックスがやや高くなる傾向が見られた。フラックスの定量結果は大きなバラツキを示したが、中央値は約 $10 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ であり、微気象学的傾度法(修正ポーエン比法)によって当該森林サイトで推定されたフラックスと整合的であることがわかった。

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2件)

高林純示, 矢崎一史, 斉藤拓也, 金谷重彦 (2014) 植物アロマのメタ代謝科学~生態学、大気科学、植物科学の融合~. AROMA RESEARCH, 15 (1), 61-67 (査読無)

Saito, T., Y. Yokouchi, E. Phillip, and T. Okuda (2013), Bidirectional exchange of methyl halides between tropical plants and the atmosphere, *Geophys. Res. Lett.*, 40(19), 2013GL055373, doi: 10.1002/grl.50997. (査読有)

〔学会発表〕(計8件)

斉藤拓也、熱帯植物による揮発性有機化合物の放出：環境変動との関係、シンポジウム「環境変動と生物」、国立環境研究所(茨城県つくば市)、2015年12月11日

斉藤拓也、熱帯雨林におけるオゾン破壊物質の動きを測る技術、第13回環境研究シンポジウム2015、一橋大学講堂(東京都千代田区)、2015年11月10日

斉藤拓也(2014)熱帯植物が作り出す超微量ガス成分—そのユニークなはたらき—。琉球大学公開シンポジウム「熱帯・亜熱帯の森のはたらきに迫る—炭素循環研究の最前線—」、琉球大学(沖縄県・中頭郡西原町)、2014年12月6日

斉藤拓也、植物によるハロゲン化合物の双方向交換。第28回気象環境研究会、つくば国際会議場(茨城県つくば市)、2014年11月19日

Saito T., Methyl halide emissions from tropical plants in Southeast Asia. Centre for Atmospheric Science seminars, University of Cambridge (UK), 2014/5/28.

Saito T., Yokouchi Y., Okuda T. (2012) Production and consumption of methyl halides in Southeast Asian tropical forest. International Symposium on Southeast Asian Tropical Rain Forest Research related with Climate Change and Biodiversity, キャンパス・イノベーション東京(東京都港区)、2012年9月25日

斉藤拓也、横内陽子(2012)ハロゲン化メチルと硫化カルボニル：森林生態系と成層圏化学をつなぐC1化合物。第216回生存圏シンポジウム「植物と微生物：大気中のC1化合物を介した気候変動との関わりの理解に向けて」、京都大学生

存圏研究所(京都市宇治市)、2012年12月14日

〔図書〕(計1件)

斉藤拓也(2014)2.4ハロカーボン。国立環境研究所地球環境研究センター、地球温暖化の事典、丸善出版株式会社、71-78

6. 研究組織

(1) 研究代表者

斉藤 拓也(Takuya Saito)

国立研究開発法人・国立環境研究所・環境計測研究センター・主任研究員

研究者番号：40414370

(2) 研究分担者

小杉 緑子(Kosugi Yoshiko)

京都大学・(連合)農学研究科(研究院)・助教

研究者番号：90293919

高梨 聡(Takanashi Satoru)

国立研究開発法人・森林総合研究所・気象環境研究領域・主任研究員

研究者番号：90423011