

令和 5 年 5 月 10 日現在

機関番号：82105

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2020～2022

課題番号：20K06131

研究課題名(和文) 差分で解明する2高度フラックス観測による森林上空のイソプレン酸化過程

研究課題名(英文) Evaluation of isoprene oxidation processes above forests using two-layer flux observations

研究代表者

深山 貴文 (Miyama, Takafumi)

国立研究開発法人森林研究・整備機構・森林総合研究所・主任研究員 等

研究者番号：40353875

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：イソプレン(C<sub>5</sub>H<sub>8</sub>)はオゾンの原因物質として動態解明が必要とされている。本研究ではコナラ葉面の光合成に伴うイソプレンの放出および酸化消失特性の評価を行った。加熱脱着化学発光方式のイソプレン計、簡易渦集積法、コナラ林内の微気象観測タワーを用い、イソプレンとオゾンの濃度、大気-森林間のイソプレンフラックスの連続観測を実現した。また観測の結果、イソプレンフラックスが午前中の貯留変化と午後のオゾン生成の影響を受けている可能性があることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

イソプレンは森林が最も多く放出している生物起源の揮発性有機化合物(VOC)であり、人為起源のVOC排出量を排ガス規制によって削減を進めてきたにも関わらず、対流圏オゾンの濃度が低下しにくい原因物質として注目されている。本研究は森林内で大気-森林間イソプレンフラックスを野外連続観測できる観測システムを開発し、実用化した。また観測結果からコナラ林が想定以上に午前中にイソプレンを多く放出しており、日中のオゾン生成にも寄与している可能性を示した。

研究成果の概要(英文)：Isoprene (C<sub>5</sub>H<sub>8</sub>) is a precursor of ozone and its dynamics needs to be clarified. In this study, the emission and oxidation characteristics of isoprene during photosynthesis in *Quercus serrata* leaves were evaluated. Continuous field observations of isoprene, ozone concentrations, and atmosphere-forest isoprene fluxes, were conducted using a thermal desorption chemiluminescence isoprene analyzer, a relaxed eddy accumulation method, and a micrometeorological observation tower in a *Q. serrata* forest. The observations revealed that isoprene fluxes may be influenced by storage changes in the morning and ozone formation in the afternoon.

研究分野：森林科学

キーワード：森林 イソプレン コナラ 化学発光法 フラックス オゾン 超音波風速計 簡易渦集積法(REA法)

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

地球上で排出される揮発性有機化合物(VOC)の約 50%以上は生物起源(BVOC)であり、その 90%以上が森林起源のイソプレン( $C_5H_8$ )と推定されている(Guenther et al., 1995)。イソプレンはコナラ葉面から光合成に伴って大量に放出される揮発性有機化合物(VOC)であり、このイソプレンが日中に都市起源の $NO_x$ と混合して紫外線を受けると森林でオゾンが生成される可能性がある。近年、都市中心部ではなく森林の多い郊外の広い範囲で光化学スモッグ注意報が発令され、高濃度オゾンが観測されるようになってきている。この現象の原因としては、大陸や都市からの汚染大気と森林起源のイソプレンが光化学反応で急速に酸化し、酸化物とオゾンを生じやすくなってきている可能性が考えられているが、森林内での実態把握は行われていない。コナラ林は萌芽更新しやすいことから燃料革命以前に薪炭林として盛んに利用されてきた歴史を持ち、特に都市近郊に非常に多く分布する特徴があり、コナラ林におけるイソプレンの放出特性と酸化過程の評価は重要である。一方、森林大気中のイソプレンは数 ppb と非常に低濃度であるため、一般にその分析には VOC 吸着材を内蔵した採取管と加熱脱着装置付きガスクロマトグラフ質量分析計が使われてきた。しかし、そのサンプリングと分析にはそれぞれ 30 分から 1 時間以上といった長時間を要し、分析装置も大型で野外での連続観測が難しいため、新手法による野外連続観測の実現が必要とされていた。

### 2. 研究の目的

本研究では汎用的なイソプレン計を野外観測用に改良し、森林内におけるイソプレン濃度の連続観測を実現することを目的とした。これによりこれまでになかった低コストで長期連続観測可能な群落イソプレンフラックス観測システムの開発を行った。さらに京都府南部のコナラ林に設置された微気象観測タワーにおいてイソプレンの濃度とフラックス、オゾン濃度の野外観測を行い、イソプレンの放出特性とそのオゾン生成との関係性の評価を行うことを研究の目的とした。またタワーの上部と下部で同時観測を実施し、イソプレンの放出と酸化消失が森林空間の中でどのような日変化をしているのかを明らかにすることを目指した。

### 3. 研究の方法

イソプレン濃度の観測には、加熱脱着システムを備えた化学発光法イソプレン計(ジェイ・サイエンス製、TD-X01、図-1)を用いた。加熱脱着システムとは、VOC 吸着材を封入したステンレス管の中にイソプレンを含む森林大気を常温で 4 分間通気してシリカゲルにイソプレンを吸着させた後、このステンレス管をニクロム線で急速加熱することで低濃度のイソプレンを濃縮する前処理装置である。また化学発光法イソプレン計とは、イソプレンをオゾン発生器で生成したオゾンを発光セルの中で混合することで発光させ、その発光強度を光電子増倍管で計測してイソプレン濃度を求める測器である(図-2)。



図-1 イソプレン計 (J Science 製)

- ・ 重さ：約 20kg
- ・ 分析時間：10 分
- ・ 脱着温度：150

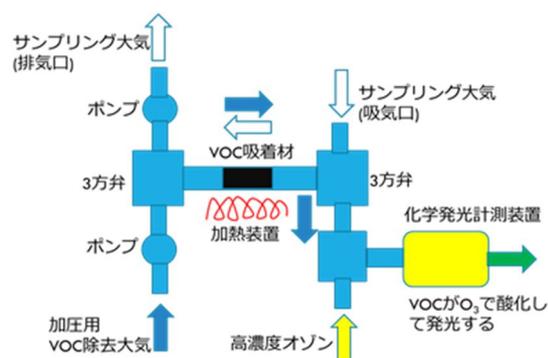


図-2 イソプレン分析の流路図

- 白矢印：大気吸着時の流路
- 青矢印：加熱脱離分析時の流路
- 黄矢印：分析用オゾンガスの流路
- 緑矢印：分析排気ガスの流路

試験地としては京都府南部の木津川市に位置する森林総合研究所が管理する山城試験地(34 deg 47.687 min N、135 deg 50.770 min E)のコナラ林を用いた。山城試験地の標高は180～255m、最大傾斜角は35°、土壌は風化花崗岩を母材とした未熟土で、平均樹高は約12mである。本研究ではイソプレンを野外観測に最適化した後、これを用いて2高度におけるイソペンおよびオゾン濃度の日変動(図-3)、簡易渦集積(REA)法によるフラックス(図-4)の観測を行った。

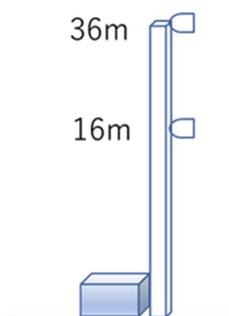


図-3 タワー観測の概要

- ・ 上部吸引高：36m
- ・ 下部吸引高：16m
- ・ 観測頻度：1時間

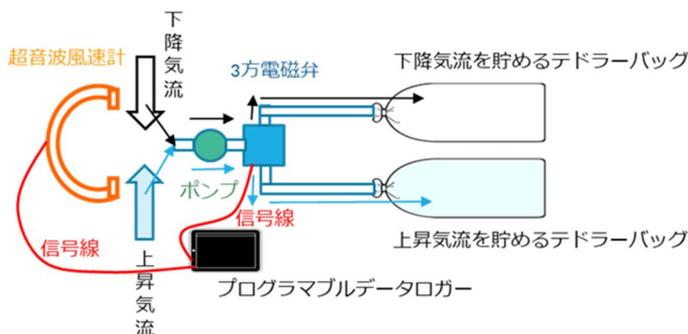


図-4 簡易渦集積法 (REA 法) の構造図

- ・ 超音波風速計：CYG-81000 (Young)
- ・ データロガー：CR1000X (Campbell)
- ・ ポンプ：CM-50-12 (E.M.P.)

#### 4. 研究成果

TD-X01 は工場出荷時に吸着材として吸着性が高い Shincarbon-ST (50/80 mesh、信和化工) が装着されていた。この吸着材は脱着に9分間、分析と冷却に約30分を要した。多サンプルの野外分析を実現するためには分析間隔の短縮が必余だったため、本研究では戸田ら(2011)の先行研究を参考に吸着材を短時間での脱着に適した Davidson Silica Gel Grade 12 (60/80 mesh、Supelco) に交換した。またピーク形状を改善するため、吸着時の流路と脱着時の流路を逆転させるバックフラッシュ法を採用した。さらにガラス製の吸着管と反応管を移動観測実現のために割れないステンレス製に交換した。また連続運転中にステンレス製の配管以外の箇所からオゾンガスの漏れが発生したため、一部を耐蝕性のテフロン製部材に交換した。これらの改良と約2週間の空焼き運転の後、野外において10分間隔での安定した連続イソペン分析が可能となった。希釈したイソペンの校正ガスを用いて TD-X01 の検量線を作成した結果、直線回帰され ( $R^2=0.998$ )、検出限界は  $0.17\text{ppbv}$  ( $S/N=3$ ) であった。

改良したイソペン計を用いてコナラ林内のイソペン濃度を2高度で観測した結果、明瞭な日変動が観測された。濃度ピークは14時に観測され、朝のイソペン濃度の上昇速度は樹冠下部の方が樹冠上部よりも早く、その濃度差は9時に最大であった。一方、イソペンフラックスについては放出ピークが9時から11時頃に観測され、これは  $\text{CO}_2$  吸収量のピークの正午よりも早かった。また、イソペンの貯留変化量はイソペンの放出ピークの時刻を境に減少に転じており、貯留されたイソペンが放出ピークの要因となっている可能性が考えられた。一方、イソペンフラックスについては晴れた日の午後に吸収を示す負の値を示す観測結果が得られ、この同じ時間にはオゾン濃度が上昇していたことから、森林においてイソペンの酸化消失過程でオゾンが生成されている可能性が示唆された。

本研究によって、イソペンの野外連続観測には加熱脱着方式の化学発光法が有効であることが示された。また、イソペンの放出には樹冠内の貯留が影響している一方、森林の樹冠付近におけるイソペンの酸化消失がオゾン生成に寄与している可能性があることも示され、群落スケールの野外観測の重要性が明らかになった。今後、オゾンやエアロゾル、 $\text{NO}_x$  についてもプロファイルも含めた並行観測を行っていくことで、さらに詳細に森林起源のイソペンが大気科学において果たしている役割が明らかになっていくと考えられる。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Miyama Takafumi, Morishita Tomoaki, Kominami Yuji, Noguchi Hironori, Yasuda Yukio, Yoshifuji Natsuko, Okano Michiaki, Yamanoi Katsumi, Mizoguchi Yasuko, Takanashi Satoru, Kitamura Kenzo, Matsumoto Kazuho	4. 巻 11
2. 論文標題 Increases in Biogenic Volatile Organic Compound Concentrations Observed after Rains at Six Forest Sites in Non-Summer Periods	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Atmosphere	6. 最初と最後の頁 1381 ~ 1381
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/atmos11121381	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

〔学会発表〕 計8件（うち招待講演 0件/うち国際学会 2件）

1. 発表者名 MIYAMA Takafumi, TAKANASHI Satoru, KOMINAMI Yuji, YOSHIFUJI Natsuko
2. 発表標題 Field Observation of Isoprene Flux above a Quercus serrata Forest Using the Thermal Desorption Chemiluminescence Isoprene Analyzer
3. 学会等名 AsiaFlux 2022 Book of Abstracts, 187（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 小南裕志, 平田晶子, 勝島隆史, 北村兼三, 松井哲哉, 深山貴文, 溝口康子, 森下智陽, 清水貴範, 高梨聡, 安田幸生, 吉藤奈津子, 平田竜一, 高橋善幸, 石戸谷重之, 前田高尚, 村山昌平, 齋藤拓, 深澤遊, 高木正博, 鈴木智之, 竹本周平
2. 発表標題 New scheme for estimation of spatio-temporal forest Carbon budget in Japan
3. 学会等名 AsiaFlux 2022 Book of Abstracts, 76（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 深山貴文, 高梨聡, 小南裕志, 吉藤奈津子
2. 発表標題 コナラ林におけるイソプレンの貯留特性
3. 学会等名 日本森林学会大会学術講演集, 134:P-306
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 深山貴文, 高梨聡, 小南裕志, 吉藤奈津子
2. 発表標題 コナラ林におけるイソプレンの酸化消失過程
3. 学会等名 日本農業気象学会全国大会講演要旨集(2023), P-39
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 深山貴文, 高梨聡, 小南裕志, 吉藤奈津子, 岡野通明
2. 発表標題 化学発光法を用いた低コストなイソプレNFLラックス連続観測手法の開発
3. 学会等名 第133回日本森林学会大会, 133:P-336
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 深山貴文, 高梨聡, 小南裕志, 吉藤奈津子, 岡野通明
2. 発表標題 コナラ林における夏季のイソプレNFLラックスの日変動特性
3. 学会等名 日本農業気象学会2022年度全国大会, JP-26
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 深山貴文, 山野井克己, 溝口康子, 安田幸生, 森下智陽, 野口宏典, 岡野通明, 小南裕志, 吉藤奈津子, 高梨聡, 北村兼三, 松本一穂
2. 発表標題 低温期における森林の揮発性有機化合物濃度の上昇要因
3. 学会等名 第132回日本森林学会大会, 132:P-284
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 深山貴文、山野井克己、溝口康子、森下智陽、野口宏典、安田幸生、岡野通明、小南裕志、吉藤奈津子、高梨聡、北村兼三、松本一穂
2. 発表標題 森林内の揮発性有機化合物濃度の季節変動特性と気象要因の関係性
3. 学会等名 2021年日本農業気象学会全国大会, FP01
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	高梨 聡  (Takanashi Satoru)		
研究協力者	小南 裕志  (Kominami Yuji)		
研究協力者	吉藤 奈津子  (Yoshifuji Natsuko)		
研究協力者	和田 龍一  (Wada Ryuichi)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------