

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 24 日現在

機関番号：23803

研究種目：基盤研究 B

研究期間：2009～2012

課題番号：21310026

研究課題名（和文）オゾンと CO₂ が日本の主要樹木のテルペン類放出に及ぼす影響研究課題名（英文）Effect of ozone and CO₂ on terpene emission of major tree species in Japan

研究代表者

谷 晃 (TANI AKIRA)

静岡県立大学環境科学研究所・准教授

研究者番号：50240958

研究成果の概要（和文）：本研究では、二酸化炭素とオゾンの濃度上昇に対する日本の主要広葉樹および針葉樹のテルペン類放出速度の変化をオープントップチャンバー実験にて明らかにした。針葉樹、広葉樹とも、二酸化炭素濃度上昇によってイソプレンおよびモノテルペンの放出速度は高まった。オゾン濃度上昇に対しては、これらの放出速度は低下した。また、インベントリーモデルを用いて、これら物質の濃度上昇が、近畿地方のテルペン類年間放出量におよぼす影響を定量的に解析した。

研究成果の概要（英文）：In the present study, effects of increases in CO₂ and ozone on isoprene and monoterpene emissions from major broad-leaved and coniferous trees in Japan were addressed using open-top chambers. Emission rates of isoprene and monoterpenes of both broad-leaved and coniferous trees were increased by the increase in CO₂ concentration. The emission rates were decreased by higher concentration of ozone. Using an inventory model, annual emissions of isoprene and monoterpenes in Kinki region were quantitatively estimated.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	8,600,000	2,580,000	11,180,000
2010 年度	1,700,000	510,000	2,210,000
2011 年度	1,900,000	570,000	2,470,000
2012 年度	2,200,000	660,000	2,860,000
年度			
総計	14,400,000	4,320,000	18,720,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境影響評価・環境政策

キーワード：モノテルペン、イソプレン、オゾン、二酸化炭素、樹木

1. 研究開始当初の背景

植物が生産し放出する非メタン系揮発性炭化水素（Biogenic Volatile Organic Compounds, 以下 BVOC とする）の主成分はイソプレンとモノテルペンからなるテルペン類である。テルペン類は反応性が極めて高いため、人体に有害な対流圏オゾンや放射収支に影響する有機エアロゾルの生成に関

係する。濃度が上昇傾向にあるオゾン生成へのテルペン類の寄与はいまだ不明な部分が多いが、その寄与が相当量あることを定量化した研究もある（佐々木・坂本, 2007）。最近では、森林の炭素収支を検討する際、森林からテルペンとして放出される炭素量を加味する必要性が指摘され始めている（Guenther, 2002）。

これら BVOC の年間放出量の推定値は、人間活動由来の非メタン系揮発性炭化水素の年間排出量より高いと示されてきた (IPCC レポート, 2001). これまでの研究で、モノテルペン放出には温度が、イソプレン放出には温度と光強度が影響することがわかっており、それぞれ説明変数とした放出モデル (Guenther et al., 1993) が使用されている. このモデルに基づくと、葉の温度が 25°C から 30°C に高まると、イソプレンの放出は 2 倍、モノテルペンの放出は 1.5~2.5 倍になる. 他方、オゾンや CO₂ 濃度に関する影響評価の知見は極めて少ない (Vuorinen et al., 2003). 我々が H19 年度に実施したオゾン単独暴露実験では、コナラのイソプレン放出が有意に低下し、対照区の 1/2 になった (大野, 谷, 2008). この低下は暴露した 4 ヶ月間継続した. オゾン濃度が増加し続けている現状を考えると、今後のテルペン類放出速度を予測するには、温度と光を環境変数とする既存の放出モデル単独では不十分であると思われる.

2. 研究の目的

本研究の目的は、CO₂ とオゾンが植物のテルペン類放出におよぼす長期影響を明らかにし、気候変動にともなう植物からのテルペン類放出量の推定モデルの構築に必要なデータを取得することである. 具体的には以下のようなになる.

- (1) オープントップチェンバーを用いたオゾンと CO₂ の複合暴露システムの開発
- (2) オープントップチェンバーを用いたオゾンと CO₂ の複合暴露実験 (コナラ属樹木、ヒノキ)
- (3) CO₂ とオゾンの濃度変動に伴う日本の主要樹木からのテルペン類放出量変化の予測

3. 研究の方法

- (1) オープントップチェンバーを用いたオゾンと CO₂ の複合暴露システムの開発

オープントップチャンバー (OTC) の処理区は 6 処理区設置した. CO₂ 濃度は大気濃度と 800ppm の 2 段階とし、O₃ 濃度は活性炭フィルタで O₃ を除去したフィルタ区、大気濃度、大気濃度+40ppbv の 3 段階とし、CO₂ と O₃ を複合暴露した (表 1). 性能試験として、植物への曝露流量制御、O₃ 曝露時のチャンバー内での O₃ 濃度分布を測定した.

表 1 オープントップチャンバーの処理区

	O ₃ フィルタ	大気 O ₃ 濃度	大気+40ppbv
大気CO ₂ 濃度	2基	2基	2基
CO ₂ 800ppm	2基	2基	2基

- (2) オープントップチェンバーを用いたオゾンと CO₂ の複合暴露実験

2010 年の曝露実験には、イソプレン放出種であり日本の主要な広葉樹種である、ミズナラ (*Quercus crispula*) の樹高 70 cm の苗を用いた. ミズナラの苗は、2010 年 3 月 15 日に定植した. OTC の処理区は 6 処理区とし各処理区 2 台、計 12 台の OTC を使用した. 処理区の設定は、二酸化炭素濃度が大気濃度区と 800 ppm の高濃度区の 2 段階とした. オゾン濃度は活性炭フィルタでオゾン除去したフィルタ区、大気濃度区と大気濃度+40 ppb の高濃度区の 3 段階とした. イソプレン放出速度と光合成速度の測定には、可搬型光合成蒸散測定装置を使用した. 曝露開始前の 5 月と、曝露中の 7 月、9 月、10 月の計 4 回測定した.

2011 年の曝露実験にはスギ (*Cryptomeria japonica*) の実生苗を、2012 年の実験にはスギクローン苗を用いた. 今回の曝露実験では、オゾン濃度はフィルタ区と大気区で差異がなかったため、両方を同一処理区 (大気濃度区) とみなした.

スギの実生苗は 2011 年 4 月 28 日に定植し、同年 6 月 20 日より曝露を開始し、同年 12 月 19 日に実験を終了した.

スギクローン苗は 2012 年 4 月 6 日に定植し同年 5 月 15 日より曝露を開始し、同年 12 月 11 日に実験を終了した.

テルペン類の評価に際して、新たにテルペン類含有量の測定法と非接触によるモノテルペン放出速度の測定法を検討し、評価に用いた. テルペン類の同定、定量には GC-MS を用いた.

- (3) CO₂ とオゾンの濃度変動に伴う近畿地方の主要樹木からのテルペン類放出量変化の予測

曝露実験により得られた結果からイソプレンとモノテルペンの広域放出量に CO₂ およびオゾンの濃度変動が与える影響を推定した. 計算対象領域は近畿地方とし各 1km メッシュの時間別放出量を推定した. 本研究で行った放出量推定過程を図 1 に示す. 対象期間は 2000 年度 (2000 年 4 月~2001 年 3 月) とした. 森林の植生分布は環境省自然保護局が第 5 回自然環境保全基礎調査としてまとめた植生調査データ、また各樹種の基礎放出速度とバイオマスデータ、気象データとしてアメダスデータより推定した時刻別気温・日射量を用いた. CO₂ およびオゾンの濃度が現在の濃度よりも増加した場合の年間放出量の変動を推定した.

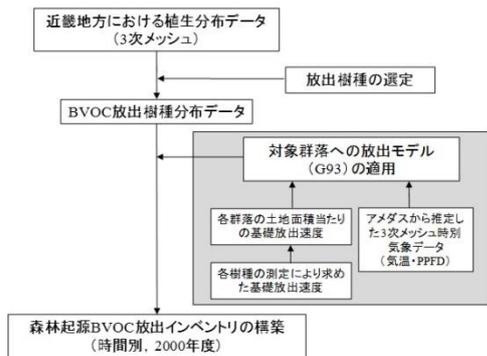


図1 植物起源放出インベントリの構築過程

4. 研究成果

(1) オープントップチェンバーを用いたオゾンとCO₂の複合暴露システムの開発

チェンバーへの曝露流量は、可変抵抗器を使用してファン回転速度を調整し制御した。AC50~100V まで無段階で調整することによって、流量を0.89~3.20 m³ min⁻¹まで制御できた。曝露流量の制御結果から、装置全体でのO₃とCO₂必要量、チェンバー内での鉛直風速を求めた(表2)。また、O₃の必要量からオゾン発生器を選定し、CO₂の必要量からCO₂供給装置を設計した。

O₃濃度は、当初ファン出口付近でばらつきがあった。これは、O₃を前室壁面の1箇所から注入していたためである。前室壁面の注入

表2 装置全体でのO₃とCO₂必要量、チェンバー内での鉛直風速

流量 (m ³ /min)	純オゾン必要量 (ml/min)	CO ₂ 必要量 (L/min)	鉛直風速 (cm/s)
1	0.16	2.4	4.6
2	0.32	4.8	9.3
3	0.48	7.2	13.9

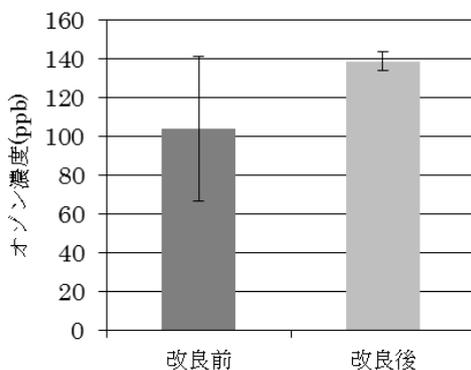


図2 チェンバー内でのオゾン濃度のばらつき

口に、20個の小孔(φ0.3mm)をあけたO₃注入用チューブを取り付け、前室内でチューブから横方向に均一に噴出させる改良を加えた結果、濃度差は±5ppbv以内に減少した(図2)。

(2) オープントップチェンバーを用いたオゾンとCO₂の複合暴露実験

5月、7月、9月、10月のミズナラのイソプレン放出速度は、大気CO₂濃度の3処理区では、オゾンフィルタ区と大気オゾン区ではほぼ横ばいとなり、10月に大きく減少した(図3)。オゾン曝露区では対照区に比べ、イソプレン放出速度は低く推移した。また、高濃度CO₂濃度の3処理区では、イソプレン放出速度が5月以降そのまま低下する傾向が見られた(図4)。オゾンフィルタ区において、2つのCO₂処理区間でイソプレン放出速度に大きな差異が認められた。この結果から、ミズナラへのオゾンあるいは二酸化炭素の単独曝露は、イソプレン放出を減少させると考えられた。しかし、単独曝露に対する複合曝露の相加的および相乗的な効果は認められなかった。

スギ実生苗のモノテルペン含有量は、大気

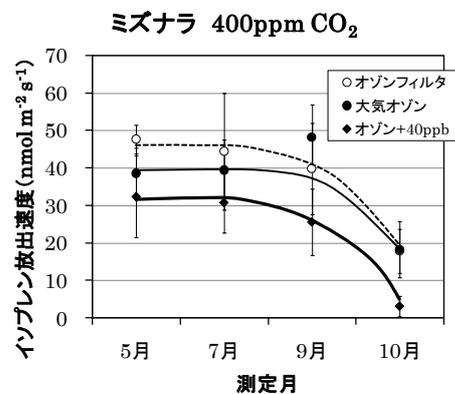


図3 大気CO₂下でのミズナラのイソプレン放出速度の変化

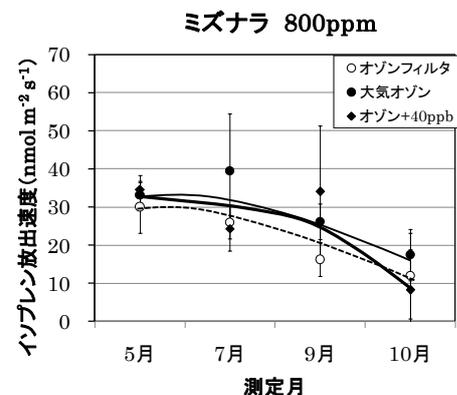


図4 高濃度CO₂下でのミズナラのイソプレン放出速度の変化

濃度のオゾンに暴露した2処理区間で比較すると、大気オゾン大気CO₂区で15.4 mg/100 g、大気オゾン高CO₂区で17.9 mg/100 gと、高CO₂区で高い傾向にあった(有意差なし)。高濃度のオゾンに暴露した2処理区間で比較しても、高オゾン大気CO₂区で8.4 mg/100 g、高オゾン高CO₂区で15.9 mg/100 gと高CO₂濃度区でモノテルペン含有量が高い傾向にあった(有意差なし)。

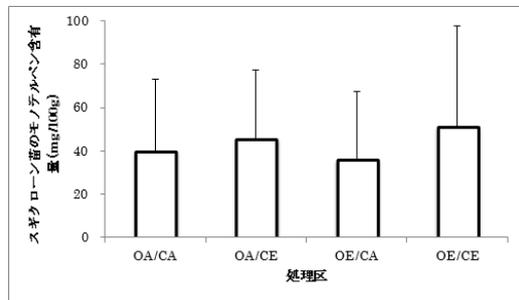


図5 スギクローン苗のモノテルペン含有量

スギクローン苗のモノテルペン含有量も、大気オゾン大気CO₂区で39.6 mg/100 g、大気オゾン高CO₂濃度区で45.2 mg/100 gと高CO₂濃度区でモノテルペン含有が高い傾向にあった(図5、有意差なし)。高オゾンに暴露した2処理区間で比較しても、同様の傾向が認められた(有意差なし)。

以上のように、スギの苗を用いた2度の実験で、処理区間に有意差は見られなかったが類似の傾向が認められた。高濃度の二酸化炭素によってスギのモノテルペン含有量が高まると判断してよいと思われる。

スギ実生苗のセスキテルペン含有量は、実生苗、クローン苗ともに処理区間で有意差は認められず、また両方で一貫した傾向も見られなかった。

(3) CO₂とオゾンの濃度変動に伴う日本の主要樹木からのテルペン類放出量変化の予測

近畿地方の年間モノテルペン放出量は、大気のCO₂濃度が現在の390 ppmからその2倍になった場合、6.8×10⁴トンから7.8×10⁴トンへ増加した(図6上)。他方、年間イソプレン放出量は5.5×10⁴トンから3.8×10⁴トンへ減少した。

他方、オゾン濃度が現在濃度から+40 ppbv増加した場合、年間モノテルペン放出量およびイソプレン放出量は、それぞれ6.8から6.0×10⁴トン、および5.5から4.4×10⁴トンへ低下した(図6下)。

このように二酸化炭素はモノテルペンの放出量を増加させ、イソプレンの放出量を低

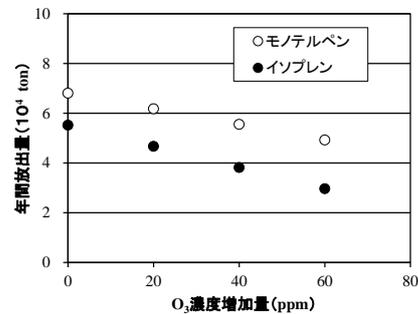
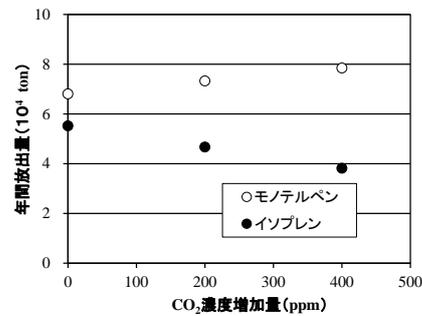


図6 近畿地方の年間テルペン類放出量のCO₂(上図)およびオゾン(下図)の濃度上昇への感度

下させた。オゾンは両物質の放出量を低下させた。複合影響の解析では、現在大気と比べてCO₂濃度が倍、オゾン濃度が40 ppbv高まった場合、モノテルペンの年間放出量は94%、イソプレンのそれは50%と低くなった。

以上のように、本研究では、二酸化炭素とオゾンの濃度上昇に対する日本の主要広葉樹および針葉樹のテルペン類放出速度の変化をチャンバー実験にて明らかにした。また、インベントリーモデルを用いて、これら物質の濃度上昇が、近畿地方のテルペン類年間放出量におよぼす影響を定量的に解析した。

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8件)

Tani A: 2013. Fragmentation and reaction rate constants of terpenoids determined by proton transfer reaction-mass spectrometry. Environ. Control Biol. 51, 23-29.

Tani, A., Bobe, S., Shimizu, S., 2013. Leaf uptake of methyl ethyl ketone and croton aldehyde by *Castanopsis sieboldii* and *Viburnum odoratissimum* saplings. Atmospheric Environment, 70, 300-306.

Tani A, Nozoe S., 2012. Workplace concentrations and exposure assessment of monoterpenes in rosemary- and lavender-growing greenhouses. J.

Occupational health 54, 459-468. 2012
Yasuda, T., Yonemura, S., Tani, A., 2012. Comparison of the Characteristics of Small Commercial NDIR CO₂ Sensor Models and Development of a Portable CO₂ Measurement Device. *Sensors*, 12, 3641-3655.
Tani A., Tozaki D, Okumura M, Nozoe S, Hirano T., 2011. Effect of drought stress on isoprene emission from two major *Quercus* species native to East Asia. *Atmos. Environ.* 45(34), 6261-6266.
Mochizuki T, Endo Y, Matsunaga S, Chang J, Ge Y, Haung C, Tani A., 2011. Factors affecting monoterpene emission from *Chamaecyparis obtuse*. *Geochemical Journal* 45, pp. e15 to e22.
谷 晃, 2011. 光化学オキシダント生成物質である炭化水素ガスの植物による放出と吸収. *遺伝* 65 (2), 72-77.
谷 晃. 2010. 植物によるイソプレンとモノテルペンの放出. *低温科学* 68, 35-39.

[学会発表] (計 15 件)
谷 晃 : Factors affecting isoprene and monoterpene fluxes measured above Japanese forests. EAFES5 International Congress, 2012 年 3 月. (招待講演)
谷 晃 : 森の香りフィトンチッドと気候変動. 大気環境学会植物分科会 2012 年度全国講演会. 2012 年 6 月. (招待講演)
平井豪, 望月智貴, 谷 晃 : オゾンと二酸化炭素の長期曝露が常緑針葉樹に及ぼす影響, 大気環境学会植物分科会講演会, p.28, 2012 年 6 月
平井豪, 望月智貴, 塩澤竜志, 谷 晃 : オゾンと二酸化炭素の長期曝露が常緑針葉樹のテルペン類生成に及ぼす影響 富士山麓アカデミック&サイエンスフェア p.117, 2012 年 12 月
谷 晃, 齋藤亮, 伊藤創平, 酒井坦 : 高濃度オゾンと二酸化炭素の長期曝露がミズナラのイソプレン放出におよぼす影響, 日本農業気象学会 2011 年全国大会, 2011 年 3 月.
Tani A., Saito T: Effects of atmospheric ozone and CO₂ on isoprene emission from *Quercus* trees, Asia Flux Workshop 2011 (Malaysia), p. 50, 2011 年 11 月.
谷 晃 : 陸域生態系から放出される揮発性有機化合物, 2011 年度日本地球化学会第 58 回年会. 2011 年 9 月. (招待講演)
谷 晃 : VOC の植物による放出と吸収. 2011 年度大気化学討論会. 2011 年 10 月. (招待講演)
平井豪, 望月智貴, 塩澤竜志, 雨谷敬史, 谷 晃 : オゾンと二酸化炭素の長期曝露が常緑針葉樹のテルペン類生成と放出に及ぼす

影響, 富士山麓アカデミック&サイエンスフェア, p. 119, 2011 年 12 月.
齋藤 亮, 谷 晃 : オープントップチャンバーを用いた樹木苗へのオゾン・二酸化炭素曝露システムの製作と性能評価, 2010 年度日本農業気象学会全国大会, p. 121, 2010 年 3 月.
齋藤 亮, 伊藤 創平, 酒井 坦, 塩澤 竜志, 谷 晃 : オゾンと CO₂ の長期曝露がコナラとミズナラのイソプレン放出におよぼす影響を調べる OTC 実験, 生物起源微量ガスワークショップ 2010 要旨集, p. 22, 2010 年 11 月
谷 晃, 齋藤 亮, 大野 卓夫, 伊藤 創平, 酒井 坦 : オゾンと CO₂ の長期曝露がコナラのイソプレン放出に及ぼす影響, 農業気象学会東海支部・近畿支部合同大会, p. 36-37, 12 月 11 日
齋藤 亮, 伊藤 創平, 酒井 坦, 谷 晃 : イソプレンを放出するミズナラとコナラへのオゾン・二酸化炭素曝露実験, 富士山麓アカデミック&サイエンスフェア, p. 161, 2010 年 12 月
齋藤 亮, 谷 晃 : オープントップチャンバーを用いたオゾンと CO₂ 影響試験の概要, オゾンの植物影響に関する研究集会, 2010 年 3 月
谷 晃 : 第 158 回京都大学生存圏シンポジウム 視覚と化学物質による植物の相互作用: 発信と受容のメカニズム』“テルペン類の放出と大気環境におけるフラックス”, 2010 年 11 月. (招待講演)

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)
○取得状況 (計 0 件)

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

谷 晃 (TANI AKIRA)

静岡県立大学・環境科学研究所・准教授
研究者番号: 50240958

(2) 研究分担者

東野 達 (TOHNO SUSUMU)

京都大学・エネルギー科学研究科・教授
研究者番号: 80135607

東野 達 (TOHNO SUSUMU)

京都大学・エネルギー科学研究科・教授
研究者番号: 80135607

酒井 坦 (SAKAI HIROSHI)

静岡県立大学・食品栄養科学部・教授

研究者番号：10092214

伊藤 創平 (ITOU SOUHEI)

静岡県立大学・食品栄養科学部・准教授

研究者番号：70372836

(3)連携研究者

三輪 誠 (MIWA MAKOTO)

埼玉県環境科学国際センター・自然環境担

当・専門研究員

研究者番号：30375589

米倉 哲志 (YONEKURA TETSUSHI)

埼玉県環境科学国際センター・大気環境担

当・主任

研究者番号：40425658