

RF-0903 日本の落葉広葉樹林におけるメタンおよび全炭化水素フラックスの高精度推定

(1) 日本の落葉広葉樹林におけるメタンおよび全炭化水素フラックスの高精度推定

(独) 森林総合研究所

関西支所 森林環境研究グループ

深山貴文

平成21～22年度累計予算額：18,506千円（うち、平成22年度予算額：8,766千円）

予算額は、間接経費を含む。

[要旨] メタンは直接的な温室効果ガスとして、非メタン炭化水素は二次有機エアロゾルの前駆体やオゾンの生成源としてフラックスの定量化が求められている。そして、これらのフラックスの高精度評価に必要な野外連続観測システムの開発が必要とされている。そこで本研究では近年開発された高速分析機器を応用することとし、可変波長ダイオードレーザー分光法による高速メタン計でメタンフラックスを、陽イオン移動反応質量分析計 (PTR-MS) を用いた炭化水素計で非メタン炭化水素フラックスを連続観測可能にするシステムの開発を行った。また本研究では群落フラックス形成における内部動態を明らかにし相互検証を行うため、群落フラックスの観測に簡易渦集積法 (REA法) と呼ばれる微気象学的手法を、葉面や土壌面フラックスの観測にクロズドチャンバー法を用い、両手法による並行観測を実現する観測システムの開発を行った。本研究で開発された観測システムを用いて京都府南部の落葉広葉樹林で観測を行った結果、試験地の林床土壌面で弱いメタン吸収が観測された一方、溪流沿いの嫌氣的な土壌面では夏期に一時的なメタン放出を観測し、その放出量には降雨に伴う大きな経時変動特性があることが分かった。一方、群落レベルでのメタンフラックスは非常に小さく、その変動傾向も不明瞭で、これは嫌氣的な土壌が森林に占める割合が非常に小さいためと考えられた。一方、非メタン炭化水素フラックスとして土壌とコナラ葉群からのイソプレン ( $C_5H_8$ ) 放出が日中に観測された。これと並行観測された群落イソプレンフラックスとを比較した結果、日中に放出されたイソプレンは急速に酸化しエアロゾル化している可能性が示唆された。土壌チャンバーでは降雨後にアセトアルデヒドなどの放出が観測され、土壌含水率の変化に伴った急激な代謝量の変化が観測された可能性が考えられた。これらの一連の観測によって、森林における複雑な炭化水素フラックスの変動特性の評価と連続観測によるフラックスの高精度評価に本研究で開発された連続観測システムが有効と考えられた。

[キーワード] メタンフラックス、森林起源炭化水素フラックス、チャンバー法、微気象学的手法、地球温暖化

## 1. はじめに

メタンは京都議定書で温室効果ガスとして定義されており、そのモニタリングと排出源対策が必要とされている。しかし、メタン濃度の広域モニタリングに関しては人工衛星による観測が開始されている一方、地上部におけるメタンフラックス観測手法は十分に開発されていないため、

その早急な確立が望まれている。また、森林のメタン交換量に関する従来の研究では土壌のメタンの吸収特性に注目した研究<sup>1),2),3)</sup>が多く、メタンの放出特性に注目した研究が多点・連続観測の困難性によって少ないため、特にその実態解明が必要とされている。

これまでに報告されたメタンの放出特性としては、湿潤条件下にある森林土壌からの放出<sup>4)</sup>、地下水水位までの土壌深が少ない森林土壌からの放出<sup>5)</sup>などがある。伊藤らの報告<sup>4)</sup>では、湿地近傍に位置する体積含水率の高い森林土壌で夏期に還元的環境が強まり、メタン放出源となった例が報告されている。強い還元的環境は通気性の悪い土壌に森林内の新鮮な有機物が供給されることによって形成されると考えられる。また、溪流には燃料革命以降、かつて燃料や堆肥の原料として持ち出されていた大量のリターが堆積し、夏期にメタンが多量に発生している可能性が懸念されており、実際の森林でのメタンフラックス観測が必要と考えられてきた。

これまで、炭化水素の分析にはガスクロマトグラフ（GC）を主に用いてきたため長時間を要することが野外連続観測の実現における最大の障壁となってきた。しかし近年、炭化水素を高速分析できる測器が開発され、炭化水素の発生要因の解明、発生量の定量化など、森林における炭化水素発生過程の実態解明に向けて取り組むための環境が整ってきた。また近年、森林から放出される非メタン炭化水素については二次有機エアロゾルの前駆物質やオゾンの生成源として注目されてきている<sup>6)</sup>。エアロゾルは直接的に太陽光を反射する他、雲凝結核となって雲を形成し、温室効果ガスの効果を大きく打ち消す寒冷効果があるとされる。中でも森林起源の非メタン炭化水素の放出量は人為起源を凌ぐと推定されて重要視されてきたが<sup>7)</sup>、未だそのフラックスの野外観測例は少なく、実態把握のための安定した連続観測手法の開発が強く求められている。以上のことから炭化水素フラックスの連続観測手法の開発は、森林が炭化水素の交換において地球温暖化防止に果たしている役割を定量的に評価し、森林管理手法と地球温暖化の関係性について検討する上で、強く必要とされている。

## 2. 研究目的

本研究の目的は、高速分析機器による炭化水素フラックス観測と分析における自動化を通じ、多点観測、連続観測、微気象学的手法とチャンバー法の並行観測を可能とする炭化水素フラックス観測手法を開発し、森林における実測によってその有効性を検証することである。そして、森林における炭化水素の発生要因と内部動態を解明し、必要な場合には森林施業におけるメタンの排出源対策を検討することである。

本研究では森林群落におけるメタンの放出源と放出要因を明らかにするため、メタン濃度プロファイル、日変化、各種有機物からのメタン発生量とその変動特性の評価を行う。また、群落メタンフラックスを高精度推定するため、溪流面積の測量と有機物堆積量の調査、自動連続分析システム、自動土壌メタンフラックス観測システム、多点メタンフラックス観測システム、渦集積法による群落メタンフラックス観測システムなどを開発し、連続的および多点でのデータの取得を可能にする。非メタン炭化水素についても森林内における現地リアルタイム分析を実現し、放出されている微量ガス成分の実態解明を行う。特に本研究ではコナラ葉から大量に放出される非メタン炭化水素のイソプレンに注目し、葉面から放出されて酸化し、大気-森林間での交換に至るまでの過程を多点同時観測で捕捉し、イソプレンから二次有機エアロゾルが形成されている可能性についての検討を行うことを目的とする。

本研究ではGCに代わる新たな分析手法として、近年開発された高速測器の炭化水素フラックス観測への応用を行う。メタンなどの炭化水素フラックス観測システムとしては、大きく分けて超音波風速計を用いた微気象学的観測手法と、密閉容器中の濃度変化を用いたクローズドチャンバー法がある。本研究では初めに両手法に応用する高速測器の性能評価を行った後、これを用いた連続観測システムを開発し、両手法間の観測結果の比較、内部動態の解明を行う。そして得られた一連の研究成果からメタンを初めとした炭化水素の発生要因や発生量の変動傾向を考慮した観測システムの活用方法を環境政策面から検討する。

### 3. 研究方法

#### (1) 測器概要

本研究では、これまで十分に実態解明されていない森林内での炭化水素フラックスの動態と発生源を明らかにするため、最新の高速測器を用いて連続的な炭化水素フラックス観測手法を開発し、微気象学的手法やチャンバー法による現地観測と実験的手法による研究を行った。本研究で野外運用の実現可能性について検討した高速測器は高速メタン計と陽子移動反応質量分析計(PTR-MS)である。以下に両測器についての概要を記す。

高速メタン計(図 - 1、図 - 2)は米国のLos Gatos Research社が開発した可変波長半導体レーザーを利用したレーザー分光法による測器である。2枚の高反射率(99.99%)のミラーを向かい合わせた中でレーザーを多重反射させ数kmの長い光路を確保し、その強度の減衰量や減衰時間を測定する。このようなレーザーを用いた手法では、従来ミラーや光源のアラインメント調整が必要とされ、その煩雑性が野外観測における大きな課題となっていた。しかし、本測器はレンズを用いた光学的な工夫などによってこの問題を解消している。一方で本測器はセルの容量が408ccと大きく、測定時に真空ポンプによってセル内部を104torrの低圧に維持する必要があるため、構造上、セルの内部空気の入れ替えにやや時間を要す特徴を持つ。分析精度は0.1%と非常に安定した性能を持つ。

PTR-MS(図 - 3、図 - 4)はオーストリアのIonicon Analytik社が開発したソフトイオン化法質量分析計である。これはプラズマ放電によってイオン化した純水の蒸気を微量ガスに加えて陽子移動反応を生じさせ、 $H^+$ の付加された微量ガスイオンを質量数別にカウントする測器である。質量分析の前にカラムなどで成分の分離を行わない手法上、同じ分子量の成分は分離できない。このため、一般にガスクロマトグラフ質量分析計(GC-MS)で干渉成分の有無を確認しながら用いられる。プロトンとの親和性が水よりも小さいアルカン、エチレン、プロピレン、アセチレンや、無機ガス(硫化水素を除く)以外のガスの検出が可能である(表 - 1)。大気導入時における成分の濃縮などの前処理が不要で、定量分析においてはGC-MSよりも測定誤差が少なく、非常に高精度かつ連続的に分析が可能な特徴を持つ。また本測器は、数秒間隔で同時に複数の微量ガスの定量が可能である特徴を持つ。本研究ではこの高い時間応答性は微気象学的なフラックスの観測手法に適していることからフラックスの観測システムに組み入れることとした(図 - 5)。

#### (2) 測定手法

次に本研究で微気象学的なフラックス観測手法として用いたREA法(図 - 6、図 - 7)について述べる。REA法において、微量気体の鉛直フラックス( $F_c$ )は次のように示される。

$$F_c = b \cdot \sigma_w \cdot \Delta \rho_c \quad (1)$$

ここで、 $\Delta \rho_c$ は一定時間内に各貯蔵器に集積された大気微量気体の平均密度の差、 $\sigma_w$ は鉛直風速  $w$  の標準偏差、 $b$  は実験的に求められる係数である。係数  $b$  は、渦相関法で測定可能な顕熱フラックスから求める。対象とする微量気体フラックスの  $b$  を顕熱フラックスの  $b$  と等しいと仮定した場合、顕熱輸送量は次の式で示される。

$$\overline{w'T'} = b\sigma_w(T^+ + T^-) \quad (2)$$

左辺は渦相関法で求めた顕熱輸送量、右辺はREA法で求めた顕熱輸送量である。 $T^+$ と $T^-$ は、それぞれ  $w$  が正の場合と負の場合の各平均温度である。これを  $b$  について解くと下記の通りとなる。

$$b = \frac{\overline{w'T'}}{\sigma_w(T^+ - T^-)} \quad (3)$$

REA法によるフラックス観測システムは主に超音波風速計 (SAT)、電磁弁、ポンプ、マスフローコントローラー、貯蔵器、Campbell製のCR-1000やCR-3000などのプログラム可能な記録装置などからなる。SATの近くにおいて、ポンプによって取り込まれたサンプル空気は、電磁弁の高速の動作によって  $w$  が正の時、負の時で分離されて貯蔵器に集積された。電磁弁の制御にはCR-3000が風速と温度を記録すると共に  $w$  の移動平均値と比較して  $w$  の正負を判定する目的で用いられた。制御に用いたCR-3000用のCR-BASICプログラムの基本部分は大府立大学生命環境科学部生命環境科学研究科の鱧谷憲先生よりご提供頂いた。 $w$  の平均化時間は長周期の風速の変動の影響を受けないよう本研究では7.5分に設定した。本研究ではSATのデータを10Hzで記録したため、判定の0.1秒前までの4500データの移動平均値と比較して  $w$  の正負の判定を行った。REA法ではデータロガーや風速計の最小分解能を下回るような微風速時の影響を除去する目的で閾値を設けて、閾値以下の風速のときに微量ガス成分を貯蔵せず放出する帯域 (デットバンド) を設定する場合がある。本研究では無風の容器内にSATを入れて観測された値の標準偏差を閾値として用いた。

炭化水素はそれぞれ吸着性の強さや、沸点、大気中寿命などの点で異なる特徴を持っているため、目的とするガスそれぞれの特徴と分析手法上の必要性に合わせてREA法のシステムを専用に構成する必要がある。本研究では貯蔵容器としてメタンの場合には大型アルミバッグを、非メタン炭化水素の場合にはPTFE製の大型のテドラーバッグを用いた。測定システムの構成では、大気採取口になるべく近い位置で流量を一定に保ちつつ、高い応答性をもってサンプル空気を分離すること、流路における吸着やオゾンなどによる分解の影響を極力抑えて貯蔵するなど、良好な分析結果を得るための工夫を施した。具体的には流路や貯蔵容器における紫外線の遮蔽、貯蔵容器の前段へのオゾンスクラバーの設置、流路へのPTFE製素材の使用などを行った。

一方、葉面や土壌面におけるフラックス観測には、チャンバー法（図 - 8）を用いた。チャンバー(chamber)とは空気室を意味し、一般にアクリル、塩化ビニル樹脂などで作られる密閉可能な容器のことである。例えばチャンバー内に嫌気的な土壌面を入れた場合にはメタン菌によってチャンバー内部のメタン濃度が増加する。乾燥土壌を入れた場合はメタン酸化菌の活動によってメタン濃度が減少する。非メタン炭化水素のイソプレンについてもエミッターであるコナラ葉群を日中に透明なチャンバー内に封入した場合、葉面からの放出によって内部のイソプレン濃度が上昇する。このような濃度変化の速度を高速メタン計やPTR-MSで連続的に測定することでフラックスを測定する手法である。フラックスを算出する式は下記の通りである。

$$F_f = \rho V/A \Delta c / \Delta t \quad (4)$$

ここで  $\rho$  は空気密度、 $V$ は体積、 $A$ は放出面積、 $\Delta t$ は閉鎖時間、 $\Delta c$ は $\Delta t$ 内にチャンバー内で生じた測定対象とするガスの濃度差である。チャンバー閉鎖からチャンバー中のサンプル空気が測器に達するのに約20秒かかるため、 $\Delta t$ は閉鎖後30秒から330秒までの5分間とした。葉群チャンバー（図 - 9）は内径36×50×30(cm)の透明アクリル製の直方体、土壌チャンバー（図 - 10）は内径20cm、高さ15cmの塩化ビニル製円筒を用いた。

チャンバー法は、密閉状態のままでは内部環境が変化し続けるため、定期的に外気を導入する必要がある。本研究では、多点観測には手動で蓋を開閉する開閉する手動チャンバーを、定点での連続観測には一定時間ごとに自動で短時間の密閉動作を行い、連続測定を行う自動チャンバーを用いた。この時のチャンバーの自動制御にはプログラマブルリレー(ZEN, OMRON, 日本)を用いた。

一方、PTR-MSを用いた微気象観測では傾度法（図 - 11）も用いた。これは、大気の安定度が中立に近い条件での対数法則を適用するもので、高さZ1、Z2での平均風速と微量ガスの傾度から微量ガスフラックスを推定する手法である。本研究では、各微量ガスフラックスの日変動の有無を評価することのみを目的としたため、高さZ1を36m、Z2を10mに設定し、無次元化されたフラックスの指標として求めた。

### （3）試験地

一連の研究を行った試験地は、京都府木津川市北谷国有林に位置する山城試験地（34° 47' N135° 51' E、標高180m～250m）である（図 - 12、表 - 2）。本試験地は淀川水系木津川の支流である不動川の源流で尾根に挟まれた小流域からなり、流域面積は約1.6haである。植生はコナラ、ソヨゴなどの50樹種以上が混交する暖帯落葉広葉樹二次林であり、この試験地は西日本に広く分布する同様の森林を代表するものである。この試験地において1999年に行われた毎木調査によると、DBH3cm以上の立木バイオマスは51 MgC ha<sup>-1</sup>であった<sup>8)</sup>。この値は2009年の毎木調査の時点で63 MgC ha<sup>-1</sup>に増加している。本試験地の年平均気温は15.5℃、暖かさの指数は125.6℃・month、平均年降水量は1,627.0mmである。土壌は風化花崗岩を母材とする砂質の未熟土で、層位の分化は不十分で土層は全体的に薄い。

#### (4) 研究項目

本研究において実施した主な研究項目は下記の通りである。

##### 1) メタン濃度の時系列及び空間変動特性に関する研究

本研究では、はじめにメタン濃度の鉛直分布、日変動、季節変動の観測を行い、森林におけるその変動特性と変動要因についての検討を行った。鉛直分布の評価としては尾根タワーにおいて定期観測を行った。メタンフラックスの空間変動特性の評価としては、乾燥した森林内の土壌フラックスとコナラ葉面フラックスのチャンバー法による定期観測を行った。

定期観測は4月から10月までの間の晴れた日の正午頃に週1回の頻度で行った。メタン濃度の鉛直分布調査における空気のサンプリングは手動で尾根タワー（高さ26m）の基部から先端まで2m間隔で行った。サンプルはテドラーバッグ内（5L）に2分間、ポンプ（2L min<sup>-1</sup>）を接続して集めた。これを実験室でGC分析するため、40mLをブチルゴム栓で封をされ真空にされたガラス瓶（30mL、<10 Pa）に注入して輸送した。このサンプルは2日以内に分析を行った。

土壌面と葉面におけるメタンフラックスの測定には、土壌チャンバー（直径20cm、高さ15cm、塩化ビニル製、円筒形）と葉群チャンバー（内径36×50×30cm、透明アクリル樹脂製、直方体）を用いた。メタンフラックスの測定時にはアクリル製の蓋を用いて閉鎖した。これらのチャンバーは、チャンバー内の圧力補正を行うため、圧力補正用テドラーバッグに接続した。チャンバー内の空気は観測開始から0、15、30分後にエアタイトシリンジによって採取し、濃度変化の速度からフラックスを求めた。

分析には実験室の水素炎イオン検出方式のガスクロマトグラフ（GC-FID、GC15A、島津製作所製、表 - 3）を使用した。GC-FIDのパックドカラムはMolecular Sieve 5A（信和化工製、60/80、SUS 2 mm × 3 mm i. d.）とした。分析条件としてはカラム温度 100 °C；キャリアガス N<sub>2</sub>、50 mL min<sup>-1</sup>；検出器温度 130 °C；注入量 2 mLの条件を用いた。校正ガスとしては3種類のメタン濃度のガスを用いた（0.995、2.988、9.140ppm、35°C、住友精化、播磨、日本）。10回の校正ガスの繰り返し分析における相対標準偏差は0.5%であった。

##### 2) ルートリターからのメタンの発生特性に関する研究

本研究では森林におけるメタン発生のメカニズムの解明において、嫌氣的空間に存在する地中有機物としての溪畔域のルートリターに特に注目した。ルートリターのメタン発生源としての潜在性を明らかにすると共に、メタン発生量の変動特性を明らかにするため、ルートリターの量や直径と、そこからのメタン発生量の関係性についての研究をクローズドチャンバー法による定期調査で行った。本研究では溪畔域のルートリターが高水位時に地下水位以下に存在する環境をモデル的に再現することを目的として試験地の溪流内に人工的な調査プロットを作成した（図 - 13、図 - 14）。嫌氣的環境はフラスコ内などの実験室的環境でも容易に得ることができるが、メタン生成菌やメタン酸化菌の生物相や発酵時の温度環境は自然環境下と大きく異なると考えられる。そのため、そこで得られた結果についての解釈は困難となることから本研究では特に森林内の温度環境、実際に生息しているメタン生成菌やメタン酸化菌の生物相の影響を反映できるよう、森林内に調査プロットを設け、ルートリターを入れたリターバックを設置することとした。

プロットの作成においては、溪流（川幅約 50cm）の中央部に長さ約 5m にわたって土嚢を縦列

に積み、片側の下流の末端部に堰を設け、年間を通じ概ね一定高の水面を維持できるようにした。このプロット内に塩化ビニル製土壌チャンバー7基を縦列に並べ、基部から5cmを周辺で採取して有機物を取り除いた風化花崗岩マサ土で埋設し、固定した。7基のチャンバー内には試料として用意したルートリター入りのリターバッグ計7個を1個ずつ、9月24日に水面下に投入した。本研究では研究の初期段階であるため統計解析を目的とする繰り返し実験は行なわなかった。メタンフラックスの観測日は9月24日、10月4日、10月14日、11月3日、12月19日とした。開始日を9月24日に、観測間隔を初期に短く設定したのは、落葉広葉樹林では光合成産物の供給量が減少する秋期に枯死根が特に多いこと<sup>9)</sup>、分解速度の初期勾配が大きいこと<sup>10)</sup>を考慮した。水温の計測にはサーミスタ温度計(HI 98509、Hanna Instruments)を用い、フラックス観測の直後にチャンバー内の水面付近での計測を行った。

ルートリターの試料としては山城試験地内で採取したコナラの根系を用いた。コナラは山城試験地の地上部現存量の約3割を占める優占樹種で<sup>8)</sup>、根系の分布量が最も多いことから選定した。リターバッグを用いた根の分解試験としては、生根を乾燥させたものをルートリターとみなす例<sup>11)</sup>が多く、本研究でもこの手法を用いることとした。試験地内で採取したコナラの根系は直径に応じて太根(平均直径1cm以上)、中根(同5mm以上1cm未満)、細根(同5mm未満)の三段階に分けた。さらに80℃で24時間乾燥させて秤量し、太さ別に15g、30g、45g(各1袋、45gは細根のみ)をリターバッグ(一辺17cm、網目1mm、ナイロン製、計7袋)に封入した。この試料の作成において、山城試験地では直径2cm以下の根系がこのリターバッグ1個と同じ地表面積中に平均で23g存在していること、特に細根が表層に局所的に分布していること<sup>9)</sup>を参考とした。

### 3) 溪流におけるメタン発生箇所に関する研究

急峻な山地溪流内の多くの箇所は流水による攪乱の影響でメタン菌の滞留時間が短いため、その菌相の形成環境として一般的に適していないと考えられる。しかし、溪流には落葉のリターに覆われた砂州や岸があり、ここではメタン菌も比較的長い滞留時間を有し、潜在的なメタン放出源となっている可能性が考えられる。そこで、本研究ではこのようなメタン発生箇所の空間変動特性に注目し、多点観測用土壌チャンバー(図-15)を用いた評価を行うこととした。この多点チャンバー法の特徴としては、これまでバイアル瓶とエアタイトシリンジを用いたサンプリングであったところを、バッテリーを備えた電動ポンプとテドラーバッグを多数のチャンバーに組み込んだことである。これによりスイッチ1つで同時にサンプリングできるようになり、採取と分析を省力化して多くの実測データを取得できるようになった。本研究では特に砂州や岸周辺の空間変動特性を評価するため、試験地内の溪流沿いに5m間隔で38個の土壌チャンバーを挿入し、6月に1回、メタンフラックスの空間変動特性を調査した(図-16上段)。一方、溪流の砂州や岸周辺を横断する形で溪畔域プロットを設け、8個のチャンバーを挿入し、4月から12月にかけて週1回の頻度でメタンフラックスの定期観測を行った(図-16中段、20cm間隔でW1(溪流内)からW8(斜面上部)まで直線上にチャンバーを挿入)。また実験的にリターによる被覆がメタン発生量に及ぼす効果を評価するため、20g及び40gのコナラの落葉、木材組織、堅果を調査プロットのチャンバー内に入れ、同じ頻度でメタン放出量を定期観測した(図-16下段)。林内鞍部においても嫌氣的箇所が発生する可能性が考えられたため、これを評価するための鞍部プロットを設け、同じ頻度でメタン放出量を定期観測した(図-17、20cm間隔でC1(斜面上部)からC8(鞍部底部)まで

直線上にチャンバーを挿入)。これらの観測によって大量に得られたサンプルは自動連続分析装置を自作し、自動でGC分析を行った(図 - 18)。また、これらの定期調査と並行し、尾根部と谷部におけるメタンフラックスの季節変動特性の評価を目的として尾根と谷(溪流内汀線部)に自動土壌チャンバーを設置した(図 - 19)。これは、毎日、チャンバー閉鎖前の午前2時とチャンバー閉鎖から15分後の午前2時15分のチャンバー内空気をテドラーバッグ内に採取し、その間のメタン濃度の変化からフラックスを求める装置である(図 - 20)。得られたサンプルにおけるメタン濃度の分析条件は表 - 3に示した。温度の計測にはサーミスタ温度計(HI 98509, Hnna Instruments)を用いた。

#### 4) 高速測器を用いた連続観測手法の開発と野外观測

本研究でははじめに自動連続観測に向けての高速メタン計、PTR-MSの性能評価を行った。そして、これらの新測器を組み込んだ、メタンおよび非メタン炭化水素フラックス観測用のREA法とチャンバー法の並行観測を目的とした炭化水素フラックス連続観測システムの開発を行った。本システムでは、データの記録とシステム全体の中央制御をプログラマブルロガーであるCampbell社のCR3000で行った。一方、これと信号線で接続されたプログラマブルリレー群(オムロン社製、ZEN)で葉群チャンバー、湿地域土壌チャンバー、森林内土壌チャンバーの開閉動作と炭化水素濃度の分析動作、REA法における貯蔵容器の分析動作と排気動作などを制御した。

この観測システムの有効性を検証するため、山城試験地において2009年の3月から1年間、炭化水素フラックスの観測を実施した。観測システムの制御部と分析部は谷タワーの観測小屋内に設置し、自動土壌チャンバーは観測小屋付近の溪流内と森林内、葉群チャンバーはコナラの樹冠付近の陽葉に各1基、設置した。REA法と乱流変動法の吸入口は尾根タワー上に設置した。

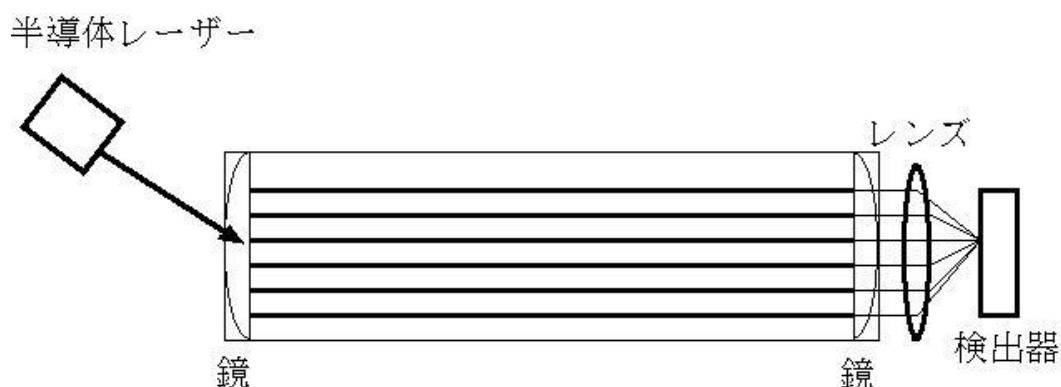


図 - 1 高速メタン計の内部構造





図 - 2 高速メタン計 (DLT-100, Los Gatos Research)

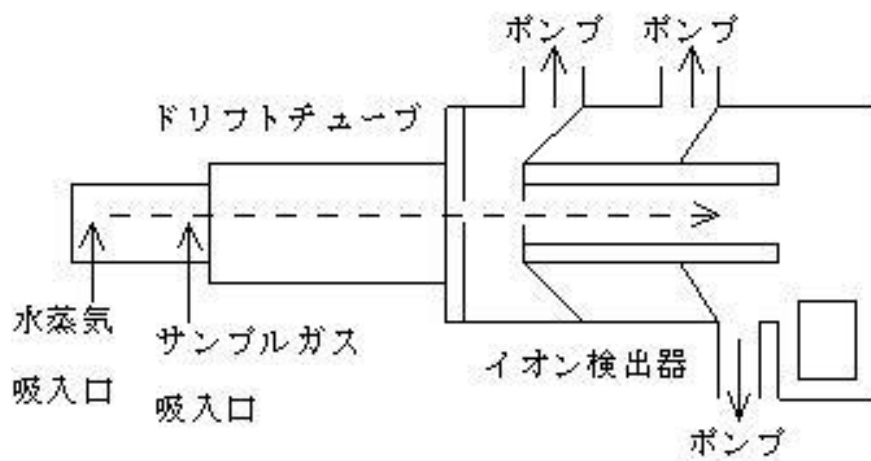


図 - 3 PTR-MSの内部構造

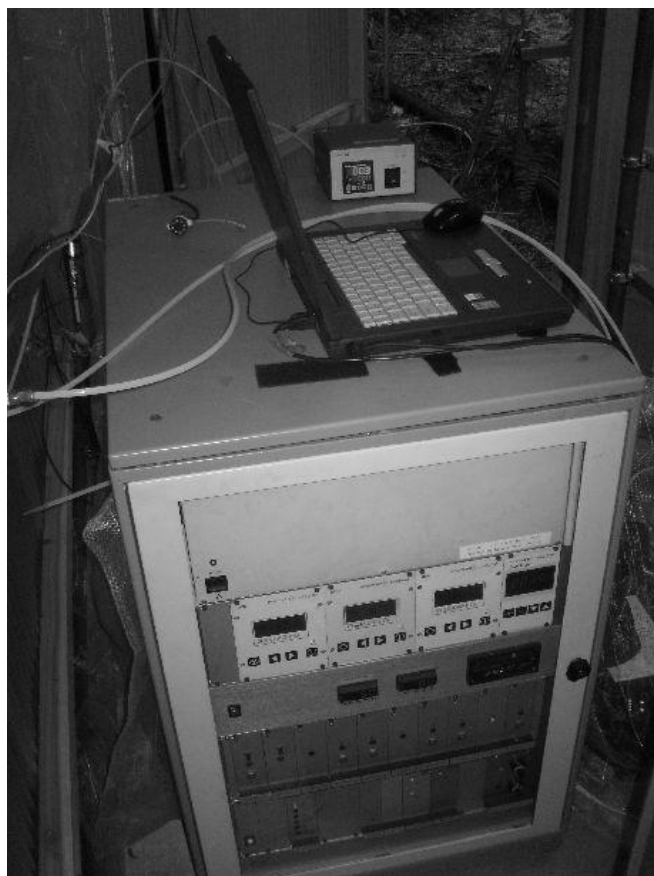


図 - 4 野外観測中のPTR-MS

表 - 1 プロトン親和力 (kcal mol<sup>-1</sup>)

物質名	分子式	質量数	プロトン親和力
ヘリウム	He	4	42.5
硫化水素	H <sub>2</sub> S <sub>3</sub>	41	68.5
アルゴン	Ar	40	88.2
水素	H <sub>2</sub>	2	100.9
フッ化水素	HF	20	115.7
窒素	N <sub>2</sub>	28	118
二酸化炭素	CO <sub>2</sub>	44	129.2
メタン	CH <sub>4</sub>	16	129.9
エタン	C <sub>2</sub> H <sub>6</sub>	30	142.5
プロパン	C <sub>3</sub> H <sub>8</sub>	44	149.5
硫化カルボニル	COS	60	150.2
塩化メチル	CH <sub>3</sub> Cl	50.5	154.7
isoブタン	C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	58	162
水	H <sub>2</sub> O	18	165.2
ヨウ化メチル	CH <sub>3</sub> I	142	165.3
塩化エチル	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> Cl	64.5	165.7

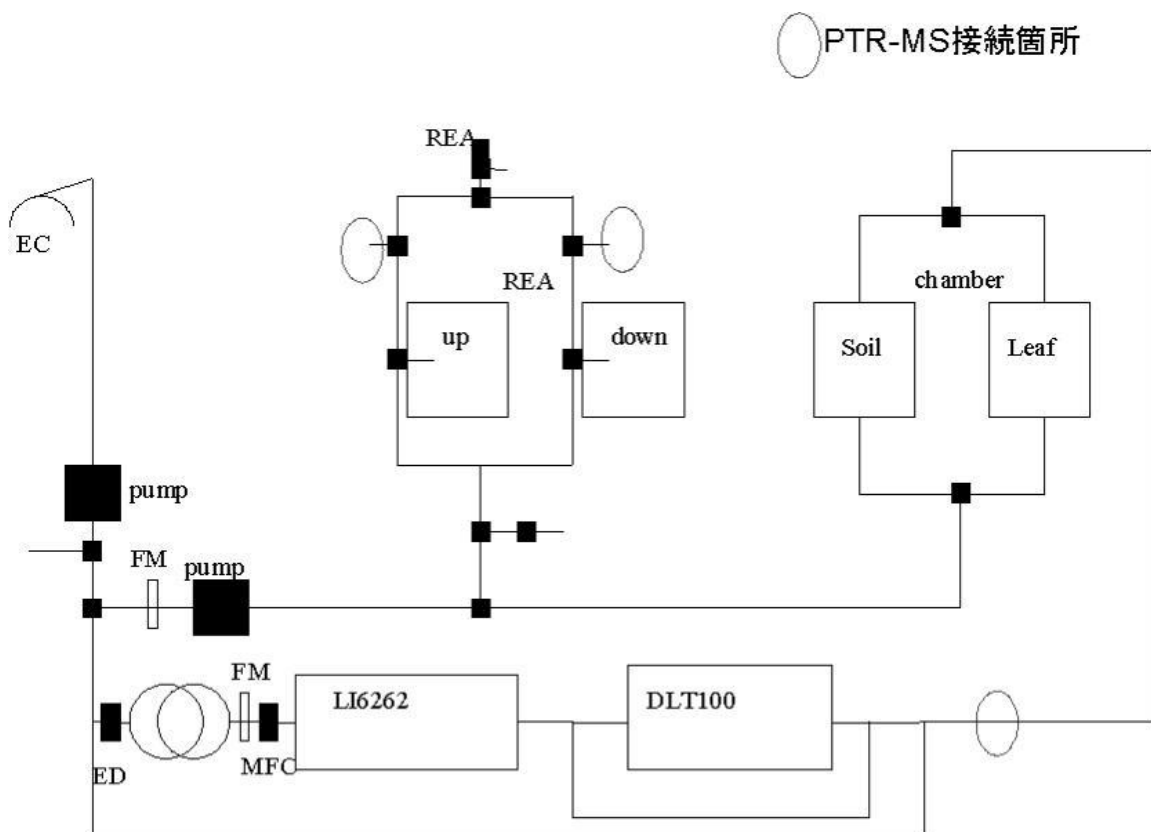


図 - 5 観測システムの全体構成図とPTR-MSの接続箇所

EC:乱流変動法用吸引口、REA:REA法用吸引口、FM:流量計、ED:電子乾燥器、MFC:マスフローコントローラー、LI6262:二酸化炭素分析計、DLT100:メタン分析計、■:電磁弁

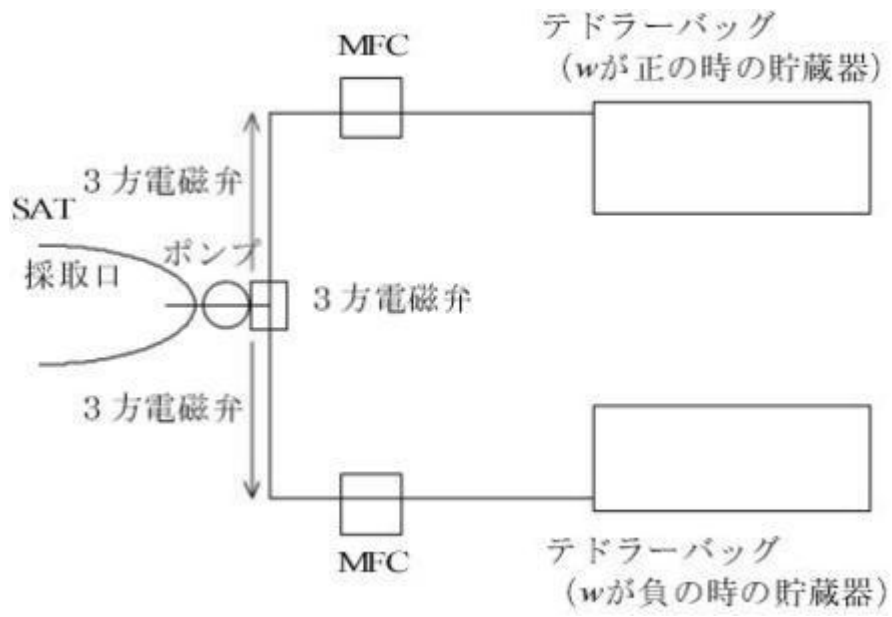


図 - 6 REA法の模式図



図 - 7 REA法フラックス観測システムの中央制御ユニット

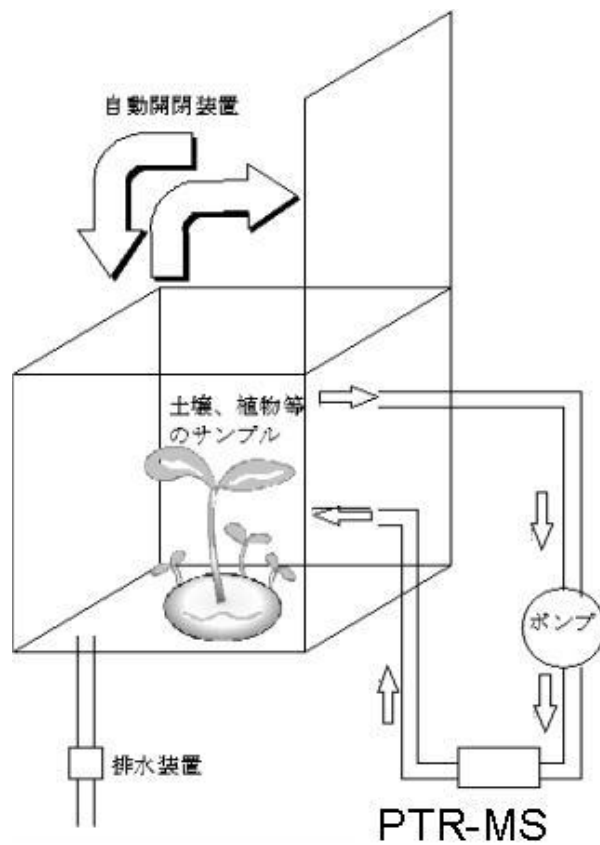


図 - 8 自動チャンバー法の模式図



図 - 9 自動葉群チャンバー



図 - 10 自動土壌チャンバー

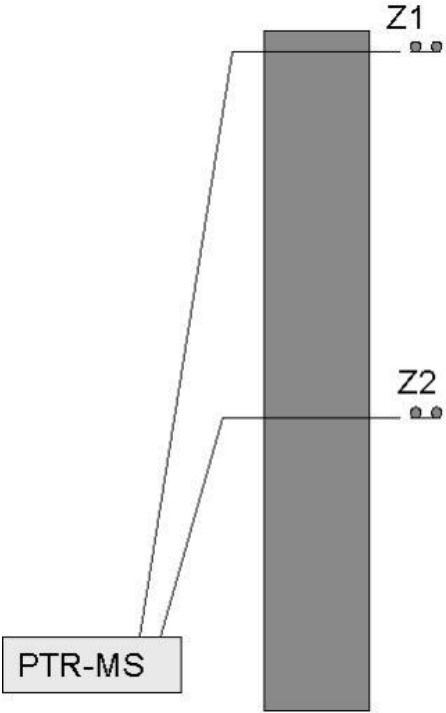


図 - 11 傾度法の概念図

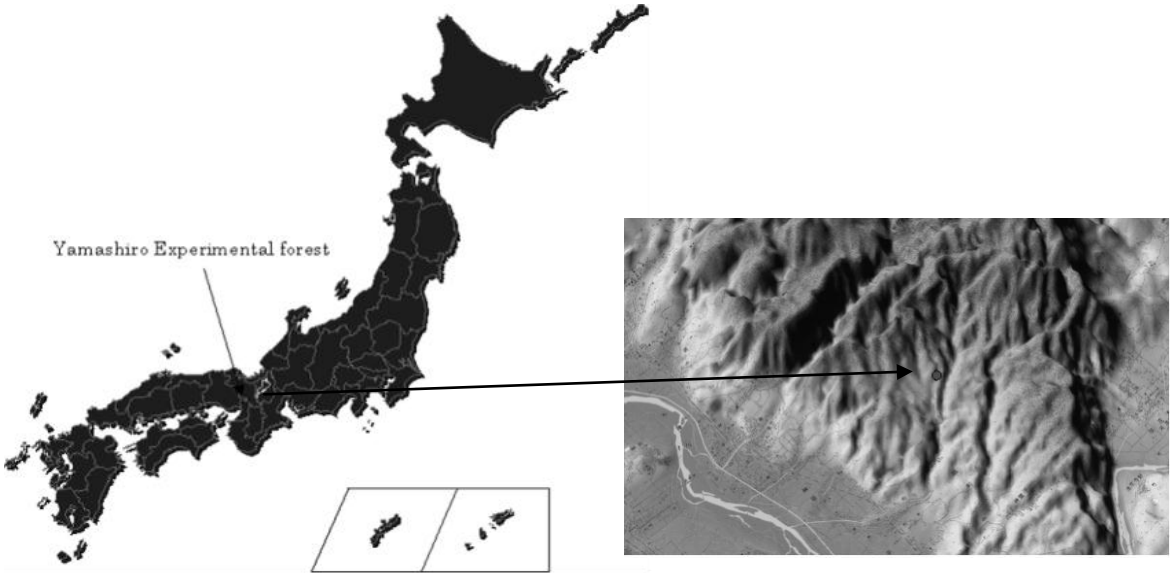


図 - 12 山城試験地

表 - 2 山城試験地の概要

場所	京都府木津川市	
	NL 34° 47', EL 135° 51'	
標高	220m	
主要樹種	落葉樹	コナラ <i>Quercus serrata</i> , <i>Lyonia neziki</i>
	常緑樹	ソヨゴ <i>Ilex pedunculosa</i> , <i>Eurya japonica</i>
平均樹高	12m	
土壌型	未熟土	
チャンパー用タワー高	10m	
平均気温	15.8°C	
平均湿度	74.6%	
年間降水量	1627.0mm	

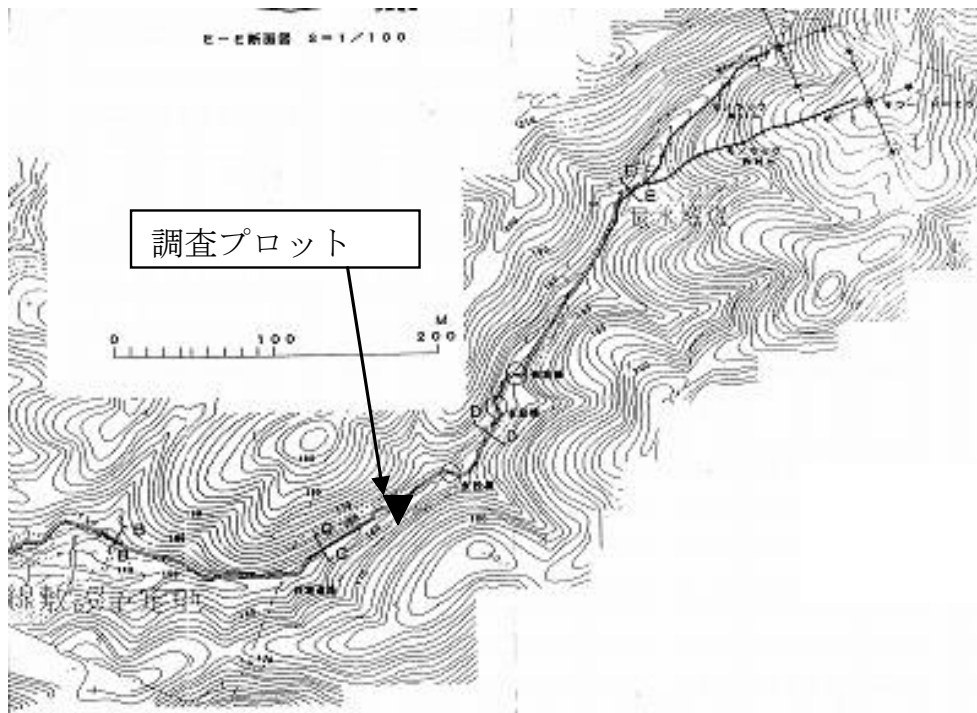


図 - 13 ルートリターの調査プロットの位置

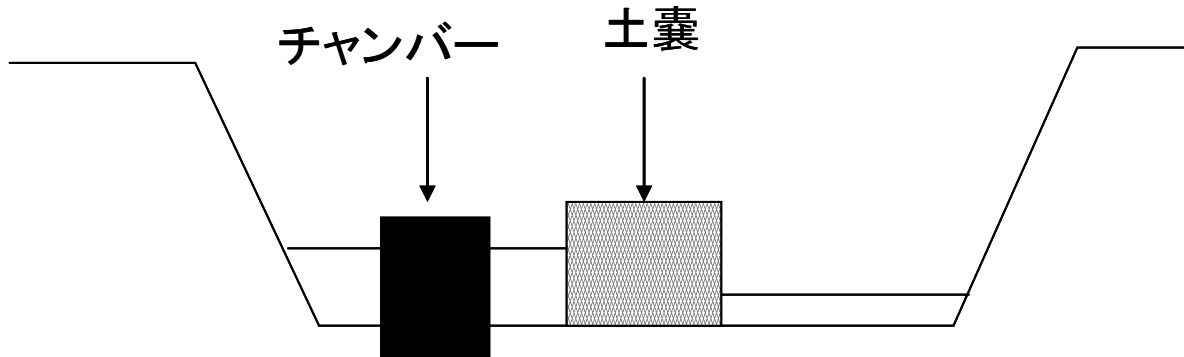


図 - 14 調査プロットの断面図

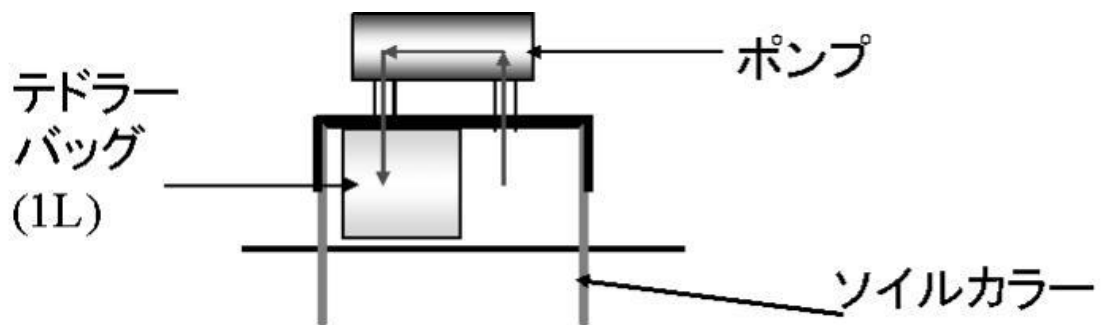


図 - 15 多点土壌チャンバーの模式図



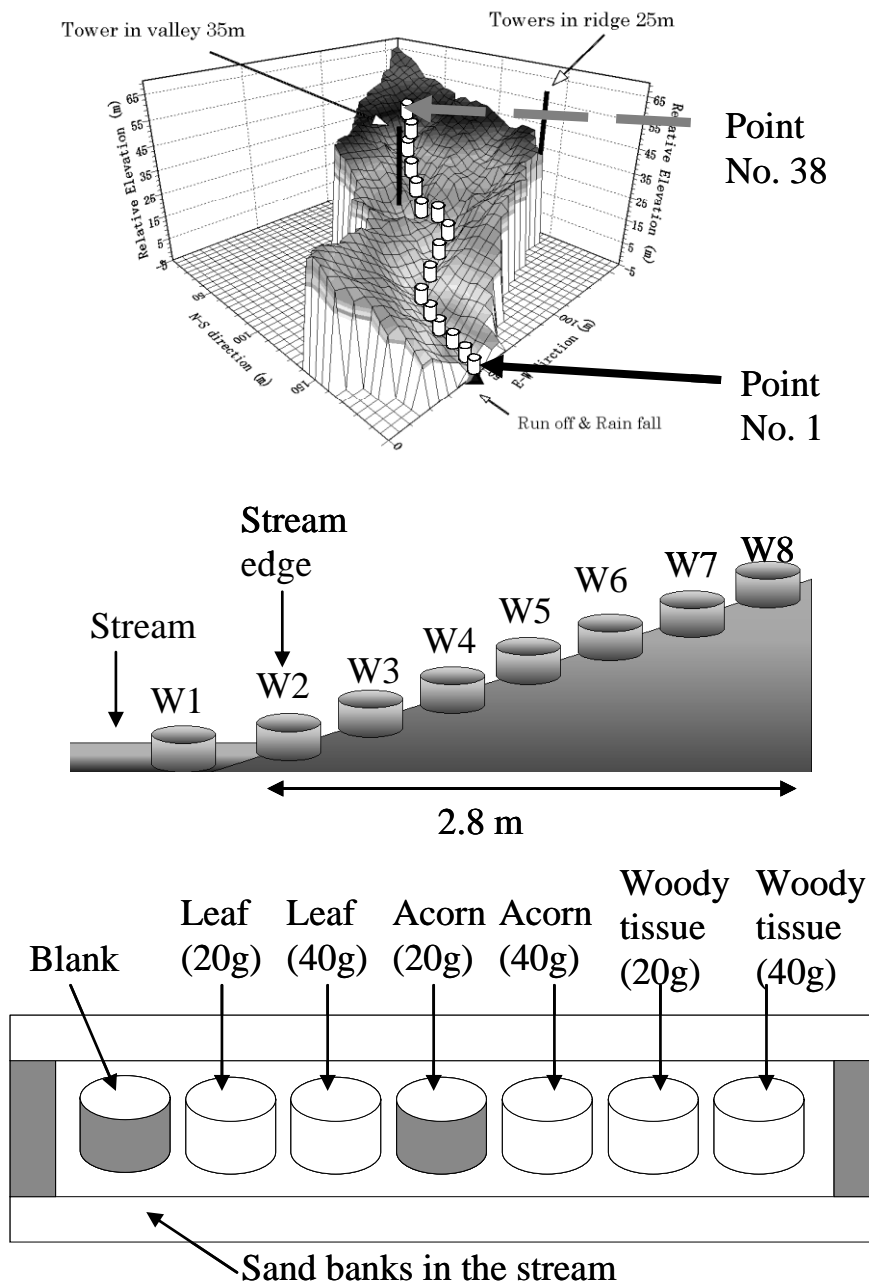


図 - 16 クローズドチャンバー法を用いたメタンフラックスの空間変動特性と有機物被覆によるメタンフラックス変動特性の調査の模式図

上段：溪流内縦断調査

中段：溪畔域プロットにおける溪流内横断調査

下段：有機物の被覆影響調査

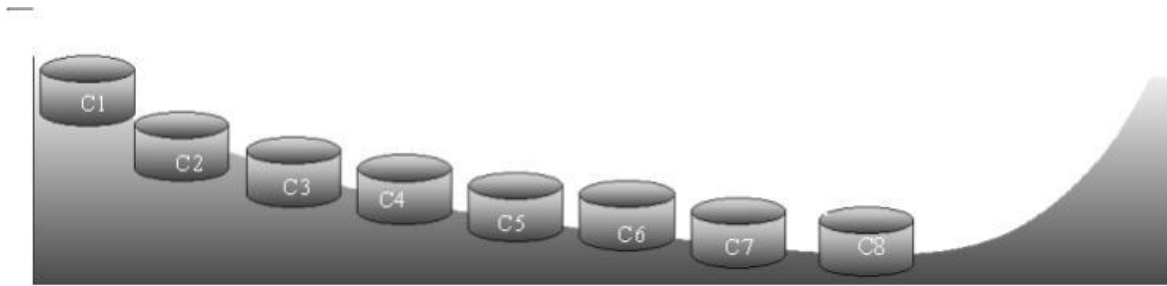


図 - 17 鞍部プロットにおけるメタンフラックスの空間変動調査の模式図

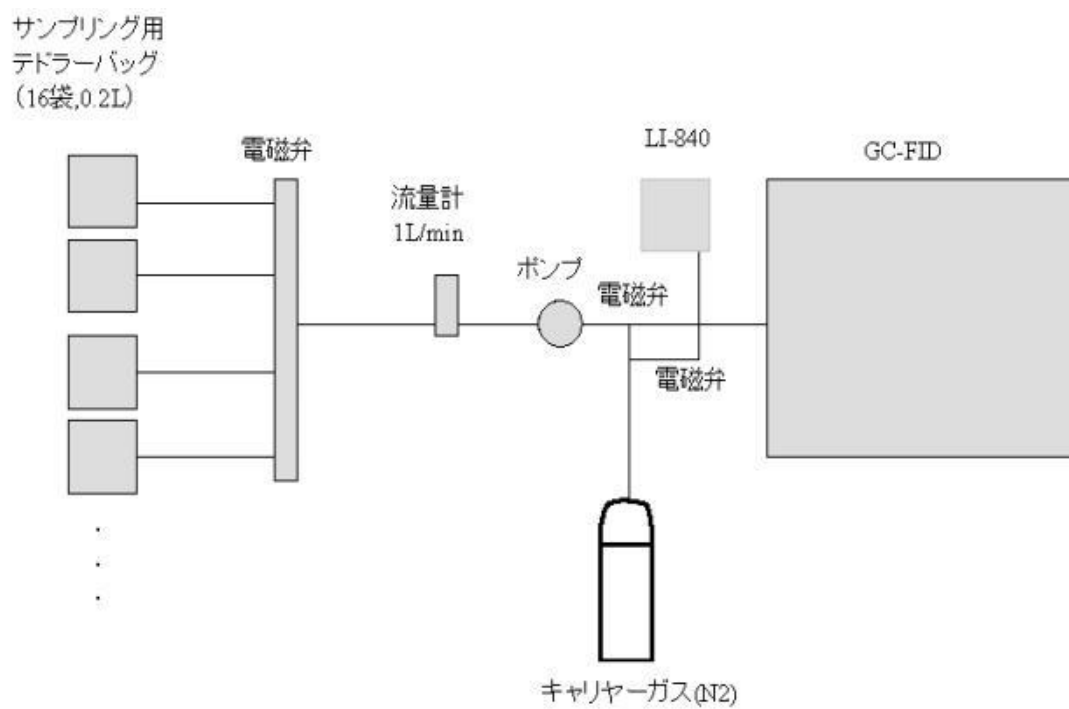


図 - 18 自動連続分析装置の模式図

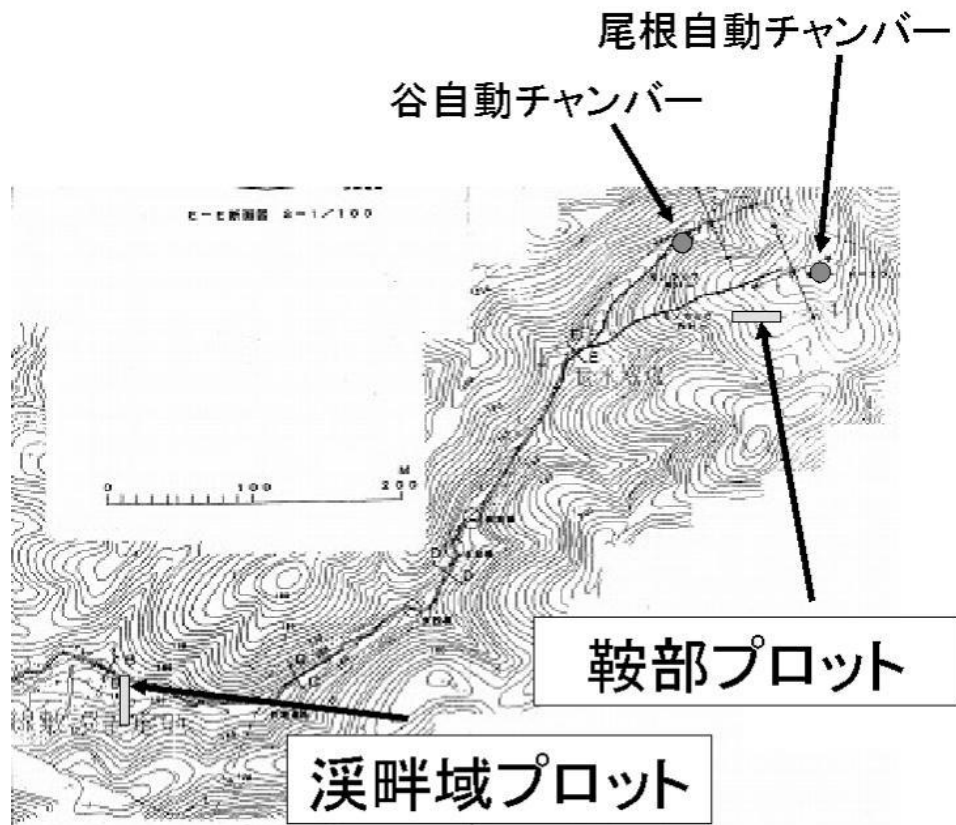


図 - 19 プロットと自動チャンバーの配置図

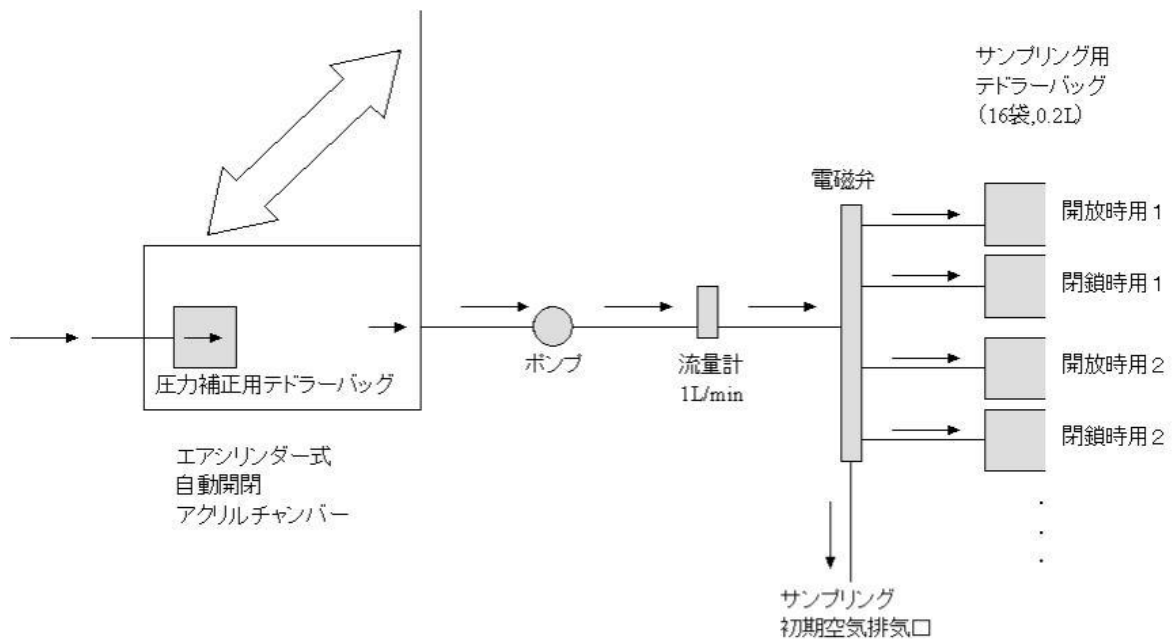


図 - 20 ガスクロマトグラフ分析用自動メタンチャンバーの模式図

表 - 3 ガスクロマトグラフの分析条件

分析器	GC-FID (GC-15A、島津製作所製)
使用カラム	活性炭(シノカーボン ST、信和化工)2m
分析条件	COL:70°C、INJ,DET:130°C
キャリア流量	60ml/min
注入サンプル量	2ml
分析誤差	0.5%未満
分析時間	約5分

#### 4. 結果・考察

##### (1) メタン濃度の時系列及び空間変動特性に関する研究

メタン濃度の日変動特性としては降雨時にやや高く、季節変動特性として8月に低くなる傾向が認められた。メタンフラックスはコナラ陽葉に設置した葉群チャンバーでは検出限界以下であったが、森林内に設置した土壌チャンバーでは吸収フラックスが観測された。プロファイル観測では摩擦速度 $u^* < 0.3 \text{ m s}^{-1}$ の条件下において樹冠高付近でメタン濃度が僅かに高まる傾向が観測された(表 - 4、図 - 21)。またこの傾向は尾根タワーと谷タワーで共通して認められた(図 - 22)。メタン濃度の分散は夏期、地上部及び樹冠高付近で大きくなる傾向が認められた(図 - 23)。これらの結果から、地上部と樹冠高付近に何らかのメタン濃度の変動要因が存在している可能性が示唆された。

##### (2) ルートリターからのメタンの発生特性に関する研究

###### 1) 乾燥重量の異なるルートリターからのメタン発生量の比較

乾燥重量の異なるコナラ細根(15、30、45g)をリターバッグに入れ、嫌気的な調査プロットに設置した場合のメタン放出量の経時変化を図 - 24に示した。

観測開始日(0日目)には全てのチャンバーにおいてメタン放出がほとんど観測されなかった。このことから、観測開始時点での3つのチャンバーの初期条件は概ね等しかつたと考えられた。これは試料からメタンが発生していなかったこと、リターバッグを含まない状態のチャンバーに顕著なメタン発生要因が存在していなかったことも示すと考えられる。

なお、この時期の山城試験地の乾燥土壌は $0.81 \sim 2.75 \text{ mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ の範囲でメタンを吸収していた<sup>12)</sup>。この吸収速度の範囲は他の研究者らによって山城試験地で観測された結果ともほぼ一致していた<sup>13)</sup>。

一方、嫌気的環境下にリターバックを投入してから 10 日後には、細根が密集する 45g 区のチャンバーでメタンの放出が観測された。しかし、この時点では他の区ではほとんど放出が認められなかった。この違いが生じた理由としては、嫌気的環境下において密集した細根の存在がメタン生成菌や有機酸などの基質の流出阻止の上で有利に働き、効率的な増殖と発酵の環境が形成された可能性が考えられる。今後、水位上昇時における早い段階でのメタン発生メカニズムを解明する上で、特に高いルートリター密度条件下での実験的研究が重要と考えられた。

調査プロットの水温は調査期間中、一貫して低下傾向にあった。一般に生物の活性は高温時に高いが、調査期間中のメタン放出量は全てのチャンバーにおいて増加傾向にあった。このことから、森林においては夏期以外にも注目したメタン発生量の観測が重要と考えられた。

残念ながら 40 日後の 45g 区のチャンバーにおけるメタン放出量は分析上のトラブルにより欠測となった。しかし、これ以外の区において特に 20 日後から 40 日後にかけてのメタン放出量が急増していた。このことからルートリター起源のメタン発生特性と発生量を解明するには、特に嫌気的環境におかれてから 20 日目以降についての集中的な連続的観測が重要と考えられた。

観測最終日の 86 日後には全てのチャンバーにおいて  $100\text{mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  以上の放出量が観測された。一方、最終日における放出量の順位は 30g 区、45g 区、15g 区の順で、30g 区の放出量が 45g 区での放出量をやや上回っていた。このメタン放出量の違いの有意性については、今後より多くの繰り返し実験を含めたメタン放出量の連続的な観測を行った上で、統計的な解析を加えて考察していくことが望ましいと考えられた。

## 2) 直径の異なるルートリターからのメタン発生量の比較

図 - 25 には太根(平均直径 1cm 以上)、中根(同 5mm 以上 1cm 未満)、細根(同 5mm 未満)のルートリターについて、15g (乾燥重量) をリターバックに入れ、調査プロットに設置した場合のメタン放出量の経時変化を示した。

残念ながら太根については分析上のトラブルによって 40 日後のメタン放出量は欠測となったが、その他の区では 20 日後から 40 日後にかけてメタン放出量が急増していた。太根 15g 区についても 86 日後に  $163\text{mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  もの高いメタン放出量が観測された。これらの結果から、直径の違いに関わらずルートリターは嫌気的環境に置かれてから 20 日目以降にメタンの発生源となりうる可能性が示唆された。

一方、太根 30g 区においては 86 日後に  $24\text{mg CH}_4 \text{ m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  の低い放出量が観測された。また中根においては、15g 区、30g 区共に 40 日後をメタン放出量のピークとして 86 日後にかけて放出量が低下していた。また 15g 区と 30g 区からのメタン放出量については概ね 30g 区の方が大きかった。これらの現象の有意性については、繰り返し実験を含めたさらなる検討が必要と考えられる。

メタン生成菌の生息環境としては、土壤水分の飽和状態、新鮮な有機物の堆積、pH6~7 の微酸性土壌の存在、10~30℃の温度環境などが理想とされ、還元状態の進行には鉄の含量が影響するなど、その生息環境の維持に関わる要因は非常に多様で複雑である<sup>3)</sup>。一方で絶対嫌気菌であるメタン生成菌は分離が困難であり、その内容とそれぞれの自然環境下における実際の生態についての研究は十分に進んでいない。ルートリターについても地中での連続観測や生死の判定の困難性により、その地中への供給量の定量化が今後の課題となっている。しかし、本研究によってルートリターからのメタン放出量について乾燥土壌のメタン吸収量と比較した場合に、その数百倍

以上のメタン発生量をもたらす潜在性が示された。このことから今後、自然環境下におけるメタン発生メカニズムの解明の上で、森林内の滞水土層内に存在するルートリターに注目し、水位変動によるメタン発生メカニズムを明らかにしていく必要性が示唆された。

### (3) 溪流におけるメタン発生箇所に関する研究

夏期に溪流内におけるメタン発生量の空間変動特性を調査した結果、比較的平坦な砂州上にある落葉の堆積地においてメタン放出量が高い場合があることが認められた(図 - 26)。そこで堆積有機物量とメタン放出量の関係性を検討するため、異なる量の落葉、落枝、堅果をプロット内のチャンバーに実験的に投入し、4月から12月まで週1回チャンバー法でメタン放出量を観測した。その結果、約 $640\text{g m}^{-2}$  (1チャンバーあたり20g)以上の有機物を投入したチャンバーでは地温が $15^{\circ}\text{C}$ 以上になった条件下でメタン放出が観測された(図 - 27)。同量を木片と堅果をチャンバーに投入した結果を図 - 28と図 - 29に示した。両者は水温上昇時にも顕著なメタン放出がなかった。有機物を約 $1270\text{g m}^{-2}$  (1チャンバーあたり40g)投入した試験区について投入物の種別で比較すると、落葉区でのみメタン放出量が非常に高かった( $> 84.48\ \mu\text{g CH}_4\ \text{m}^{-2}\ \text{s}^{-1}$ , 図 - 30)。チャンバー表層水のORPについて比較すると、いずれも夏期には低下しており顕著な違いは認められなかった(図 - 31)。水温とORPの関係を見ると、種類にかかわらず有機物の投入されたチャンバー内では夏期の水温の上昇によって還元的な環境になる傾向にあったものの(図 - 32)、観測期間中の平均メタン発生量については堆積量の多い落葉からの放出が突出して多かった(図 - 33)。これはメタン菌の生息環境として表面積の大きい落葉が流水による菌相の流亡の影響を妨げ、落葉下においてメタンの発生環境を形成した可能性があると考えられた。これらの結果から溪畔域では大量の落葉の堆積箇所では夏期にメタン発生量が高まっている可能性があると考えられた。

山城試験地の尾根付近にある鞍部プロットで週1回の頻度で観測された土壌メタンフラックスの季節変化を図 - 34に示した。夏期にプロット内の多くのチャンバーでメタン吸収量が減少する傾向にあり、特に鞍部の底部にあたるC6チャンバーでは7月の一時期、吸収量と同等の小さい値の放出のメタンフラックスも観測された。図 - 35にはこの鞍部プロットで観測された土壌含水率の季節変化を示した。夏期は乾燥傾向にあったが、7月は梅雨の影響で土壌含水率が一時的に高まっていた。図 - 36には鞍部プロットにおける観測期間中のメタンフラックスの平均値と標準偏差を示した。C6チャンバーでの標準偏差は大きく、平均メタン吸収量も他のチャンバーに比べて若干少なかったが、概ね森林内に設置したチャンバーにおけるメタン吸収量の季節変動と空間変動は一定の範囲にあった。以上の結果から、森林土壌は梅雨期の短期間、土壌含水率の増加によってメタン酸化菌の活動が抑制され、鞍部の底面などの非常に限られた地下水位面の高い土壌では水位上昇によって嫌气的環境が形成されメタン菌によるメタン発酵が生じている可能性もあるものの、ほとんどの季節の森林土壌は概ね一定の範囲の速度でメタンの吸収を行っていると考えられた。

一方同時に定期観測を行った溪畔域プロットでは6月下旬から8月上旬にかけて溪流の汀線部にあたるW2チャンバーでメタンの放出が観測された(図 - 37)。最大値は $30.70\ \mu\text{g m}^{-2}\ \text{s}^{-1}$ であった。図 - 38には観測期間中のメタンフラックスの平均値と標準偏差を示した。溪畔域のメタン放出量の時系列変動は大きい、ピーク地点W2からの距離に従った年平均放出量の減少傾向は明瞭であった。特に大きなメタンの放出は汀線上のW2だけでなく、その斜面上方にあたるW3、W4でも観測

された。これは降雨後に水位がピークとなった時期に汀線上からの $\text{CH}_4$ 放出が抑制され、やや上部での放出が増えてメタン放出のピーク地点となり、その翌週に水位の低下と共に岸上でのメタン放出量が回復して、放出のピーク地点も汀線上に戻るといった空間変動が観測された可能性が考えられた。この結果からはメタン放出量の推定における水位評価の重要性が示唆された。

W1は溪流の水面下の土壌であったがほとんどメタンを放出していなかった。図 - 39にはW2チャンバーにおける表層水のORPの季節変動を示した。汀線上では夏期にORPが低下して還元的な環境を形成していたが、このような季節変動は溪流内の流水では認められなかった。このことから、溪流水の移動によってW1では水中の溶存酸素が供給され、嫌気的環境が維持されなかったため顕著な放出源とならなかった可能性が考えられた。表 - 5には環境要因とフラックスの相関を示した。溪畔域では気温とメタン放出量の間、鞍部では気温、土壌含水率と二酸化炭素放出量の間、に正の相関がある場合が多かった。メタン放出量の評価には温度環境の連続的な観測が特に重要と考えられた。

図 - 40と図 - 41には尾根と谷の自動チャンバーで観測されたメタンフラックスの季節変化をそれぞれ同じ縦軸のスケールで示した。尾根におけるメタン吸収量が概ね一定であったのに対し、谷の汀線部に設置したチャンバーでは大きなメタンの放出量の季節変動が観測された。この季節変動は概ね気温の季節変動と一致したが（図 - 42）、気温のピーク付近では突発的に高いメタン放出量が観測された。一方、観測期間中の平均値と標準偏差についてみると、谷部において経時変動の幅は大きかったものの、平均放出量は平均吸収量と同程度であった（図 - 43）。これは谷部においてメタン放出が観測された期間が19%に過ぎなかったためと考えられる。これらの結果から、溪畔域におけるメタン放出量は複雑な時系列および空間変動特性を持つものの、限られた放出面積と放出期間の範囲の中で限定されて放出されている可能性が高いと考えられた。

#### （４）高速測器を用いた多点連続観測手法の開発と野外観測

##### １）高速メタン計

電磁弁やプログラマブルロガー、プログラマブルリレー、クローズドチャンバー法、REA法（渦集積法）を用いた自動炭化水素フラックス観測システムの開発を行った。はじめに、高速メタン計の性能評価を目的として標準ガスを用いてGC-FIDとの比較を行った。その結果、高速メタン計がGC-FIDと同等の高い分析精度を持つことが確認された（図 - 44）。また、夏期に嫌気的土壌に設置したチャンバー法によるメタンフラックスを高速メタン計とGC-FIDで観測したところ、両者の観測値が一致することも確認された。

次に高速メタン計の安定性と応答性を検証するため濃度の異なる2つの校正ガスを定期的に切り替えて高速メタン計に導入したところ、高速メタン計は安定性が高いもののセル容量が大きいため濃度変動に対する応答速度は低く、REA法とチャンバー法への応用が適していることが分かった（図 - 45）。また、このレーザーを用いた高速メタン計は従来の赤外線吸光方式の二酸化炭素濃度計とは異なり、圧力コントローラーでセル内の圧力を一定の低圧に保つ構造を持っていた。このため、吸引口付近から分岐するバイパス流路を設け、測器が可変的に吸入量をコントロールしてサンプリングするための流路の設計が必要になったことが分かった。また、サンプル空気の水蒸気による圧力変動の影響を抑えると共にセル内部で急激に減圧されることによる凝結を防ぐため、電子除湿器とパーマピュアドライヤーを通過させて除湿することが安定した連続分析に重要であ

ることが分かった。

これらの特性を考慮して高速メタン計を野外に設置し、タワー上に吸引口を設けて二酸化炭素濃度と並行してメタン濃度の日変化の観測を行った（図 - 46）。二酸化炭素については光合成に伴って日中と夜間の間で周期的で明瞭な濃度変化が観測された。しかし、メタンに関しては夜間と早朝に二酸化炭素に類似した変動傾向を示すこともあったものの、比較的、周期的な日変動は不明瞭であった。この変動は森林外部からの高濃度メタンの移流によって生じていた可能性も考えられ、森林外部がもたらす変動要因についても検討する必要があると考えられた。

森林土壌表面と群落上でメタンフラックスの連続観測を行った結果、土壌メタンフラックスについては、概ね一定の弱いメタンの吸収が通年で観測された（年平均吸収量： $-54.90 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ）。このメタン吸収量（ $F$ ,  $\mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ）と地温（ $T_{\text{soil}}$ ,  $^{\circ}\text{C}$ ）の間には顕著な相関は認められなかった（ $F = -0.4955T_{\text{soil}} - 42.03515$ ,  $r = -0.26$ ,  $P = 0.29$ ）。

一方、溪畔域の嫌氣的土壌においては顕著な土壌メタンフラックスの経時変動があることが、新測器で実現した連続観測によって確認された（図 - 47）。このメタン放出において大きな経時変動が生じた要因としては、降雨による溪畔域における嫌氣的環境の攪乱の可能性が挙げられる。水温が約 $15^{\circ}\text{C}$ を越えるとメタン放出量が増加していた。これは、メタン菌の増殖が活発化し、菌相を形成したことによると考えられる。しかし、降雨開始と共にその放出量は急減し、降雨停止後、概ね1日から2日以内に速やかにメタン放出量が回復していた。この変動からは、渓流水の増加によって菌相全体が流亡することはないが、渓流水中に含まれる溶存酸素の影響でメタン菌の活動の一部が停止した可能性が高いと考えられる。

メタン放出量の季節変動としては、降水量が少なく水温の高まる7月に放出量が特に高まる傾向が観測された（図 - 48）。気温との関係性としては、5月においても僅かながらメタンが放出を開始しており、弱いメタン放出量についても水温の変動に追従する傾向が認められた（図 - 49）。連続的なデータについて気温とメタン放出量の関係をプロットすると、メタン放出量は $18^{\circ}\text{C}$ を越える時期から急速に高い値が観測され、渓流水の攪乱の影響を受けて変動幅も非常に大きくなっていった（図 - 50）。今後、溪流からのメタン放出量をモデル化していく上で、フラックスの自動連続観測と土壌の嫌氣的環境のモニタリングが温度環境と共に重要と考えられた。

高速メタン計を用いてREA法（微気象学的手法）による群落レベルのフラックス観測も行った。定数 $b$ を実験的に求めた例として図 - 51を示す。 $b$ 値はこれまで山城試験地で観測されてきた値とほぼ一致していた。また、図 - 52にはREA法で観測された二酸化炭素とメタンのフラックスの観測例を示した。二酸化炭素フラックスについては光合成に伴った明瞭な日変化が観測され、この値は乱流変動法の値とほぼ一致することが確認された。このことから、製作したREA法の観測システムによる貯蔵容器内への分離貯蔵は良好に行われていると考えられた。一方、このREA法によって求められたメタンフラックスは日変化のパターンが不明瞭だった。得られた平均メタンフラックス（ $-3.45 \pm 38.79 \text{ nmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ）はKepplerらが好氣的環境下で植生からメタンが放出されていると仮定した値<sup>14)</sup>（ $220 \text{ nmol m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ ）より大幅に小さく、森林がこの規模のメタンの放出源でない可能性が高いことを示していると考えられる。しかし、現在の微気象学的手法における観測精度では標準偏差が大きく、弱い森林のメタン吸収量を定量化するには自動チャンバー法を多点で運用するか、量子カスケードレーザーなどを用いた次世代測器の応用についての検討を行っていく必要があると考えられた。



自動土壌チャンバー法の観測結果から群落フラックスを推定するために測量を行った結果、山城試験地全体に占める溪流面積は0.6%であった。また、多点チャンバー法による観測では顕著なメタン放出は溪流内の汀線か砂州上からしか観測されず、コナラ葉面からのメタン放出量は検出限界以下であった。さらに、連続観測における年平均メタン放出量は $72.49 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ であり、年平均吸収量 ( $-54.90 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ ) と同オーダーであった。このことから、実質的にこの試験地におけるメタンフラックスは森林土壌の平均吸収量にほぼ等しい $-54.14 \mu\text{g m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 程度と推定され、この試験地はメタンの吸収源となっていると考えられた。このチャンバー法による推定結果は微気象学的手法で非常に弱いフラックスしか観測されなかった結果を支持するものと考えられる。またこの結果から、現時点でこの森林についてのメタン排出源対策は必要ないものと判断された。

## 2) PTR-MS

PTR-MSを山城試験地において炭化水素フラックス自動観測システムに接続し、フラックスの日変化を観測した。図 - 53に森林土壌上に設置した土壌チャンバーに接続し、スキャン分析を行って得られたマススペクトルの例を示す。C1とC10は1カウント目と10カウント目の計測結果を示す。このような土壌チャンバー法による観測によって森林内の好気的な土壌において質量電化比である $m/e$ が41, 43, 57, 59, 69, 71, 73, 87, 91のアセトン、テルペン類とその酸化物およびフラグメントと考えられる成分が放出されており、降雨後にはこれらの成分の放出は停止している様子が観測された(図 - 54、図 - 55)。一方、メタノールとアセトアルデヒドと考えられる $m/e$ 33, 45の2成分も放出されていたが、これらについては逆に降雨後によって放出量が増加する特徴があった(図 - 56、図 - 57、図 - 58)。図 - 59には観測期間中の平均放出速度を示した。アセトアルデヒドは降雨による急激な放出の影響で特に値が大きかった。これらの観測結果は降雨による土壌中微生物の代謝量の急激な変化を反映している可能性があり、森林生態系において炭素循環に深く関わる微生物活動をリアルタイムでモニタリングし、短期的な変動を評価する上でこのような観測システムが非常に有効である可能性が示唆された。

次にPTR-MSを用いて大気中の微量ガスについての観測を行った。タワー上でサンプリングされた大気中成分をスキャン分析して得られたマススペクトルの例を図 - 60図 - 60に示した。9月にPTR-MSを用いて群落レベルのフラックスを傾度法で観測した結果、メチルブテンオールフラグメント、グリコールアルデヒドフラグメント、エタノール、アセトン、酢酸、イソプレン、イソプレン同位体と考えられる $m/e$ 41, 43, 47, 59, 61, 69, 70について日中を放出量のピークとする日変化が観測された(図 - 61、図 - 62、図 - 63、図 - 64、図 - 65、図 - 66、図 - 67)。酢酸についてはコナラ葉を封入したチャンバー法ではその葉面からの放出が確認できなかったが、これらの炭化水素は主に植生から放出されている可能性が高いと考えられた。特にイソプレンの日変化は鋭敏な波形を示しており、コナラは強力なイソプレンエミッターであることからREA法を用いた群落フラックスの連続観測ではイソプレンを測定対象とすることとした。

REA法による群落イソプレンフラックスの観測では、はじめに従来型手法のGC-MSと今回新たに連続観測用に採用したPTR-MSの観測結果の比較を行い、両手法によるフラックスの日変化の観測結果が概ね一致することを確認した(図 - 68)。REA法は分析を後から行うため、貯蔵容器に貯蔵する時間を利用し、チャンバー法によるフラックス観測を同時並行的に行うことが可能という特徴を持つ。本研究ではこの特徴を活かして群落、葉面、土壌からのイソプレンフラックスの同

時並行観測を試みた。その結果、明瞭な日変動が同時に観測され、これまで知られていたコナラ葉面からの放出以外にも乾燥した森林土壌からイソプレンが日中に放出されている現象が観測された（図 - 69）。これは土壌中の菌類などの活動による可能性が考えられるが、その詳細な発生メカニズムについては今後の検討が必要である。一方、同時に観測されたイソプレンの葉面フラックスと群落フラックスの関係を求めたところ、葉面から高い放出量がある時間帯に群落フラックスに頭打ちの現象が生じている可能性が考えられた（図 - 70）。

図 - 71 G93モデルとREA法の観測結果の比較、図 - 72 G93モデルと葉群チャンバー法の観測結果の比較を示した。G93モデルは1993年にGuentherが提唱した温度と光環境を変数としたイソプレンの放出モデル<sup>15)</sup>であり、世界的に広く葉面からのイソプレン放出量の推定に使われている。葉群チャンバーについてはこのモデルによる推定値と観測値の結果が概ね一致していたが、群落レベルでのフラックスに関しては観測値の方のばらつきが大きかった。これは大気条件の影響に加え、葉面から放出されたイソプレンが酸化してから群落レベルでの放出に至るため、直接的に葉面でのイソプレン放出量が群落フラックスに反映されないことによる可能性が考えられる。

葉群から放出されたイソプレンは大気中で酸化しエアロゾルの前駆体となっている可能性が高く、実際にこの森林では有機エアロゾルの日中の急激な増加が観測されている。この現象をフラックスの連続観測の積み重ねによって詳細に検討していくことで、森林が地球上の二次有機エアロゾル形成に果たしている役割の解明に繋げていくことが重要と考えられた。

表 - 4 メタンプロファイル観測時の環境

Measurement number	Date	$u_*$ ( $m s^{-1}$ )	Soil temperature ( $^{\circ}C$ )	Air temperature ( $^{\circ}C$ )	Relative humidity (%)	Previous day's Precipitation (mm)
No. 1	25-Apr	0.78	15.1	16.7	58.5	10.0
No. 2	1-May	0.68	19.0	20.9	46.0	0.5
No. 3	9-May	0.53	16.9	18.9	22.1	0.0
No. 4	14-May	-	16.6	18.1	38.0	14.5
No. 5	22-May	0.45	19.5	22.6	41.1	0.0
No. 6	28-May	0.76	20.7	22.6	32.6	0.0
No. 7	4-Jun	0.93	19.2	21.8	56.0	28.0
No. 8	10-Jun	0.30	18.5	26.2	38.6	0.0
No. 9	10-Jul	0.26	27.7	29.7	52.6	0.0
No. 10	17-Jul	0.24	26.3	30.0	51.4	0.0
No. 11	24-Jul	0.41	28.1	33.0	40.8	0.0
No. 12	30-Jul	0.69	26.4	30.3	36.4	2.0
No. 13	8-Aug	0.48	27.9	27.7	65.2	0.0
No. 14	22-Aug	0.42	26.0	28.0	71.3	0.0
No. 15	4-Sep	0.53	26.2	28.6	77.2	0.5
No. 16	2-Oct	0.57	17.3	19.7	70.7	3.0

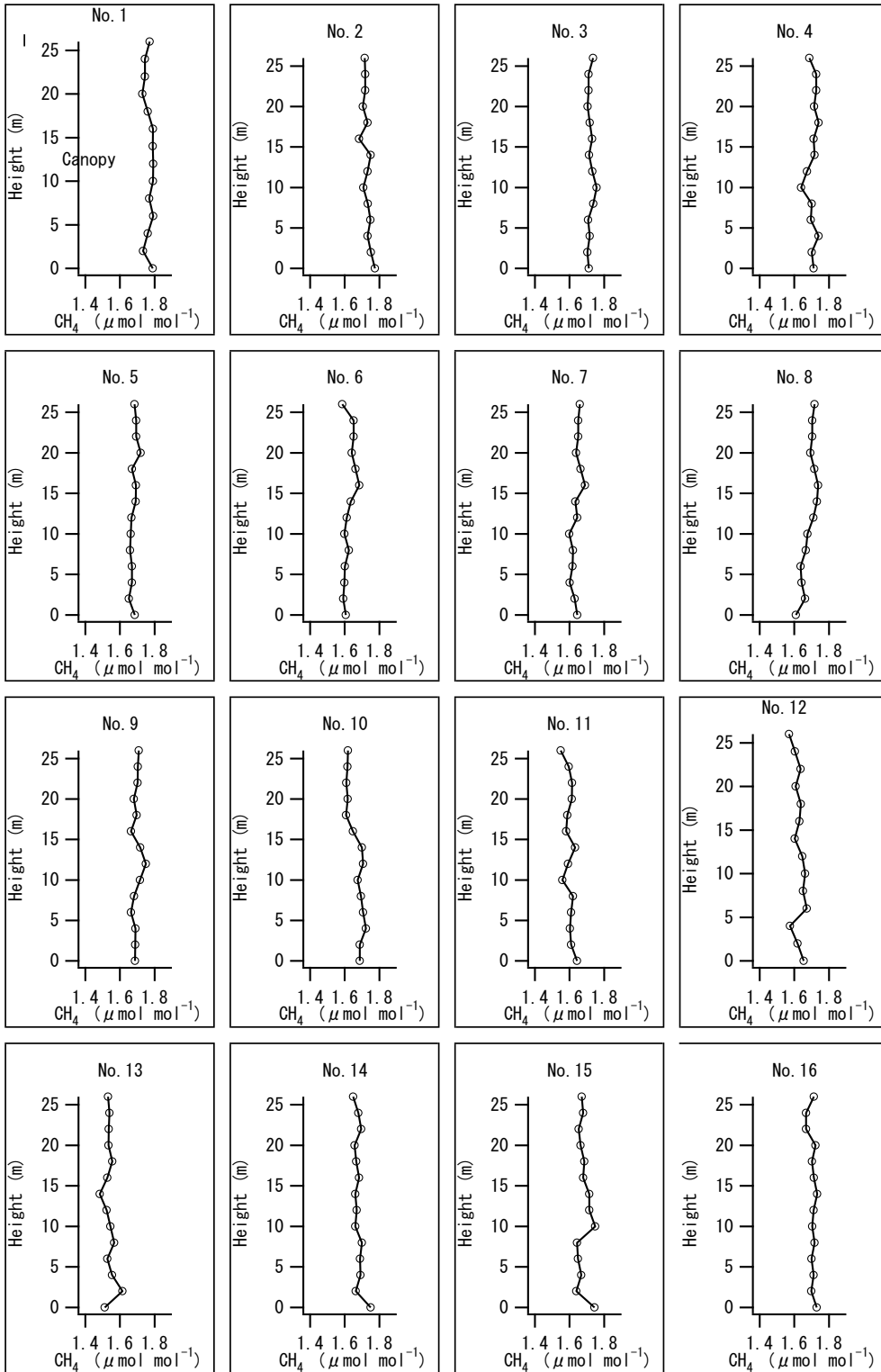


図 - 21 メタンプロファイル

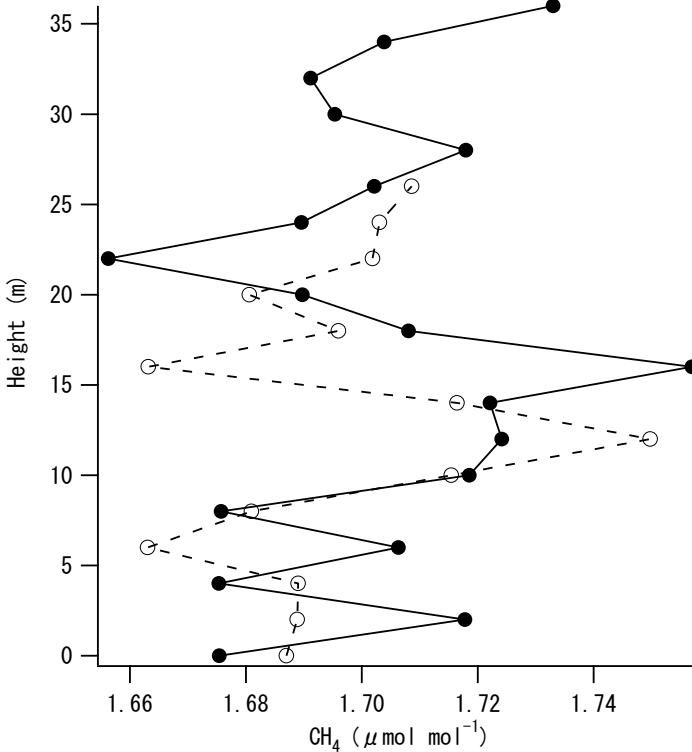


図 - 22 尾根部（黒丸）と谷部（白丸）におけるメタンプロファイルの比較

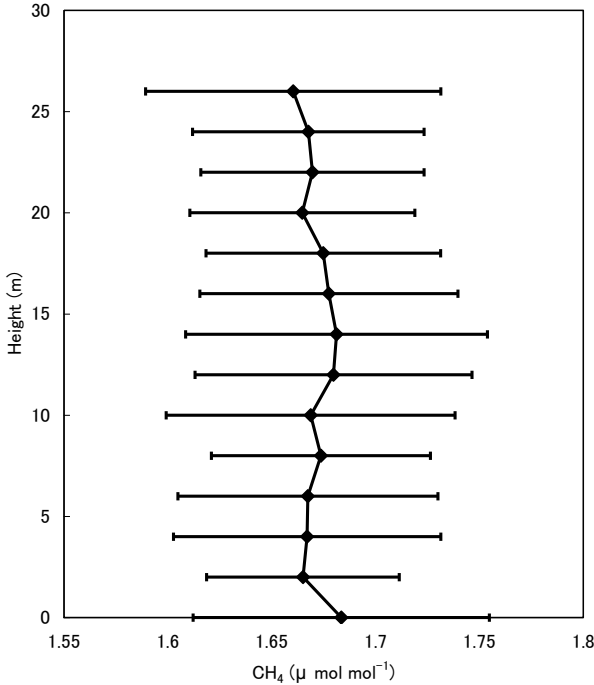


図 - 23 平均メタン濃度と標準偏差

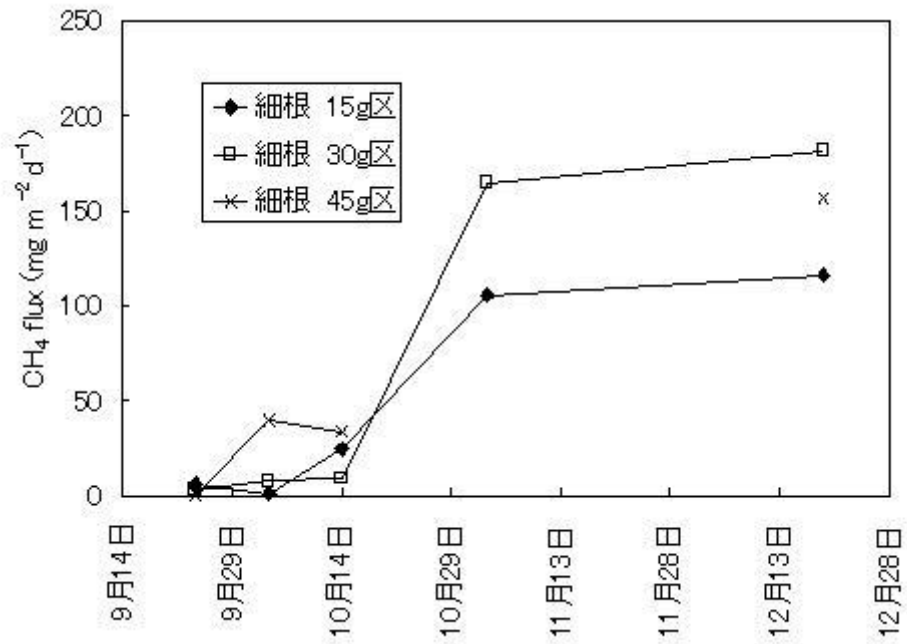


図 - 24 乾燥重量の異なるルートリターからのメタン放出量の経時変化

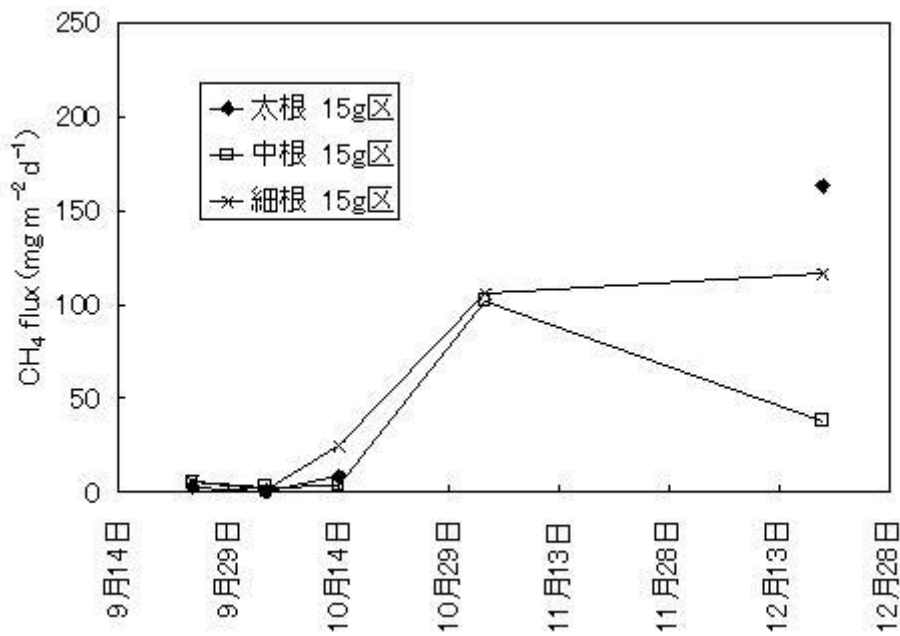


図 - 25 直径の異なるルートリター(乾燥重量: 15g)からのメタン発生量の経時変化

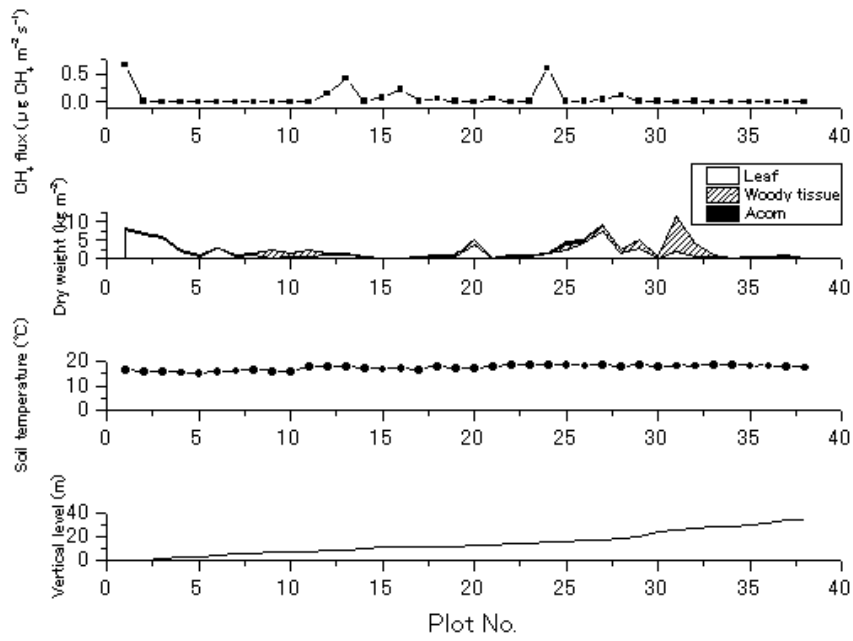


図 - 26 溪流におけるメタンフラックス、リター堆積量、地温の空間変動特性

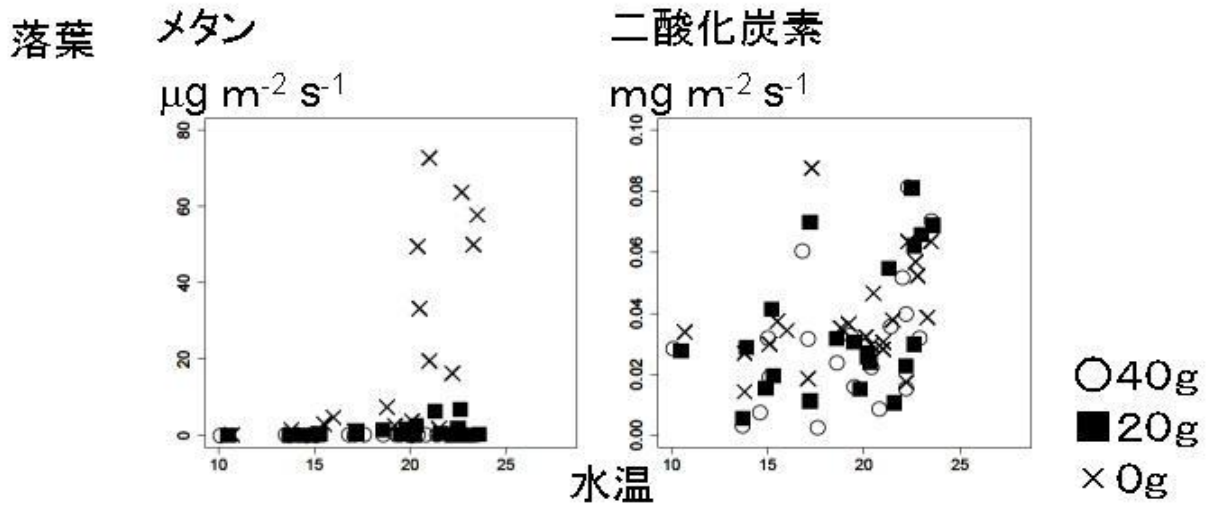


図 - 27 水温と落葉からの放出量の関係

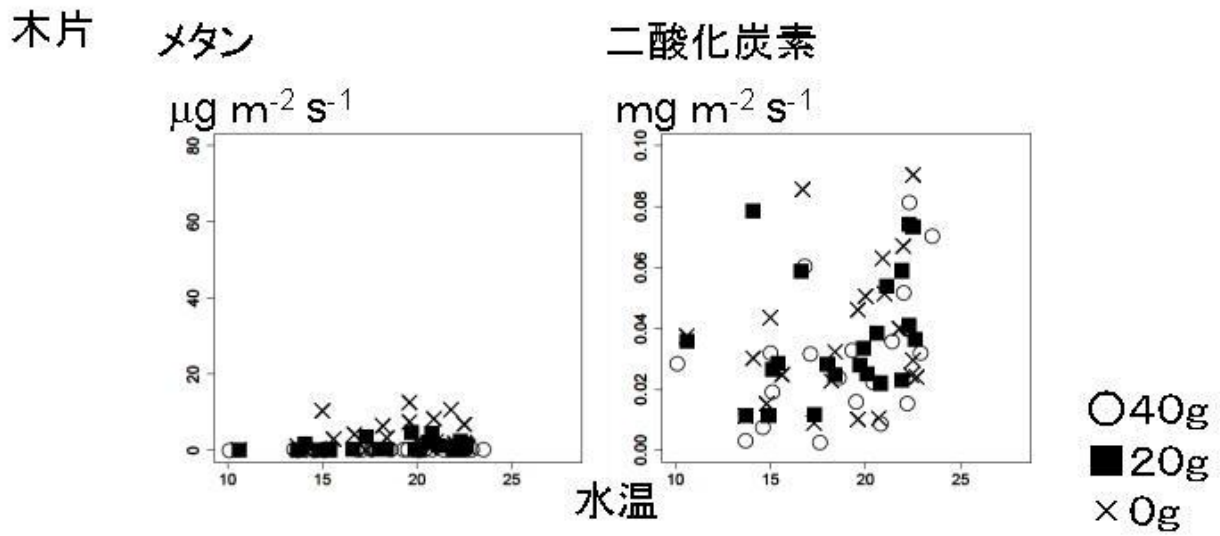


図 - 28 水温と木片からの放出量の関係

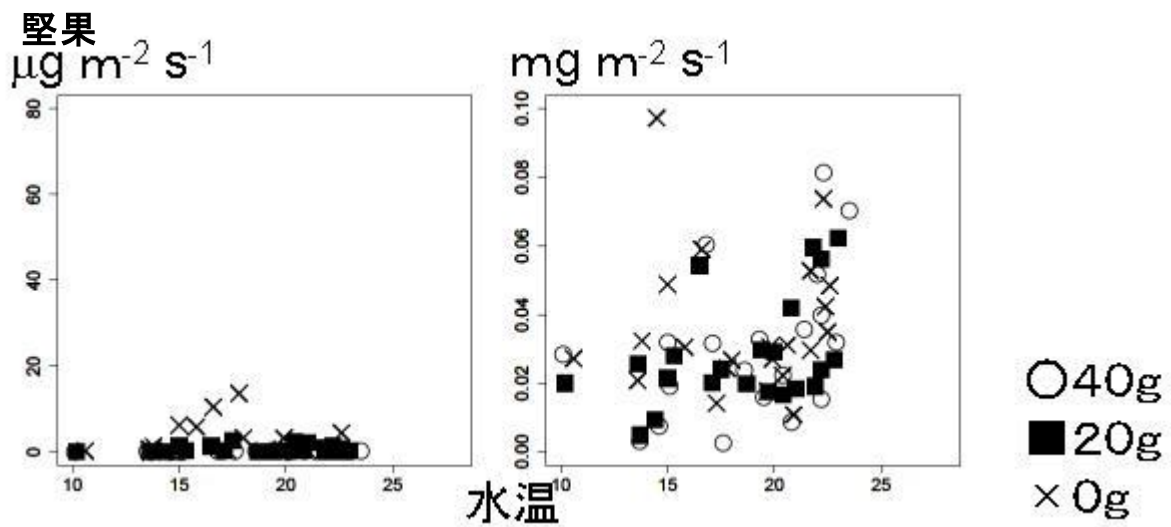


図 - 29 水温と堅果からの放出量の関係

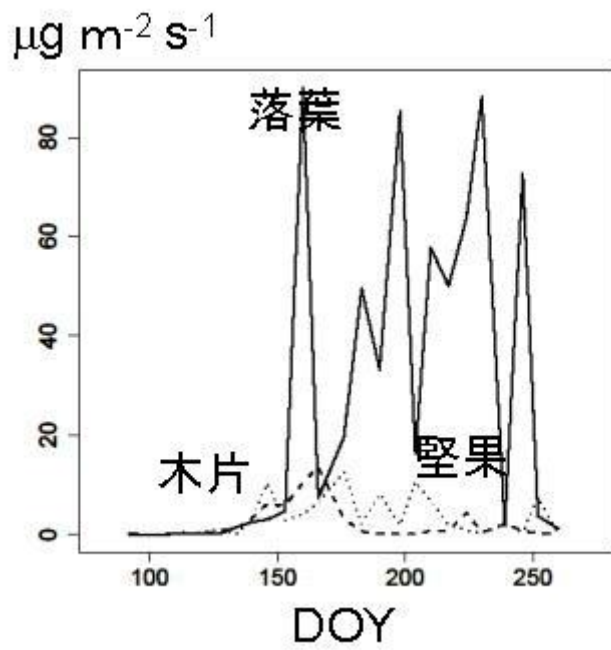


図 - 30 40g投入した有機物からの放出量

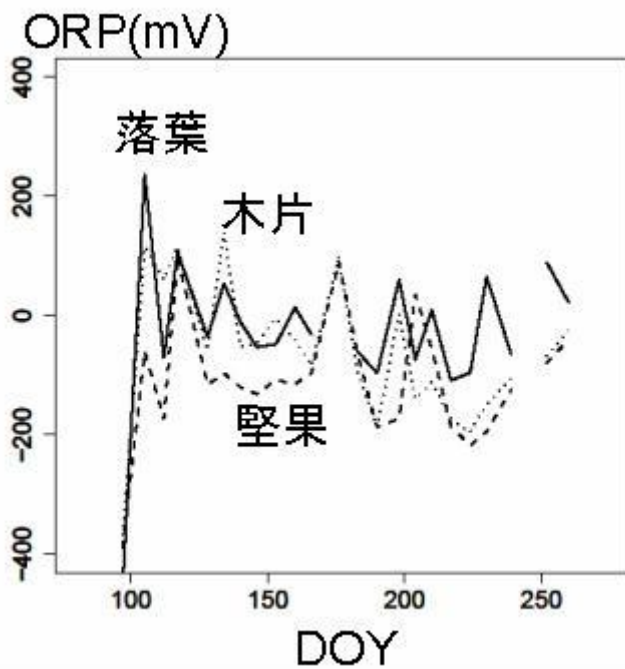


図 - 31 ORPの比較



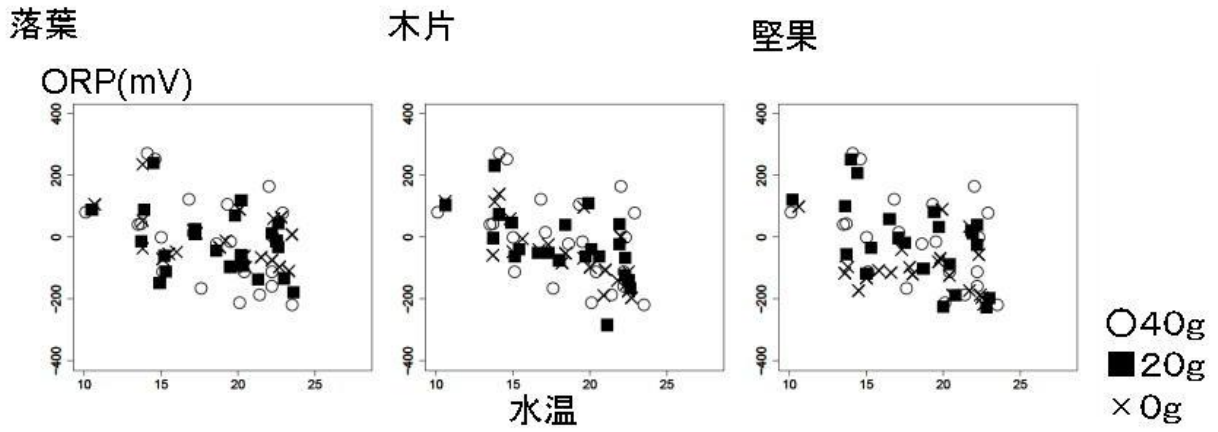


図 - 32 水温とORPの関係

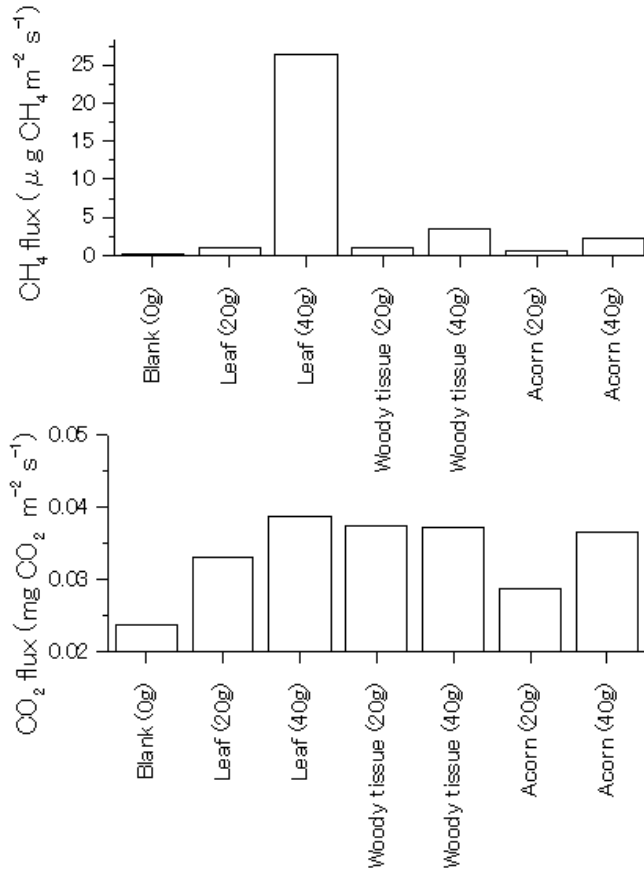


図 - 33 異なる有機物からのメタン放出量の比較

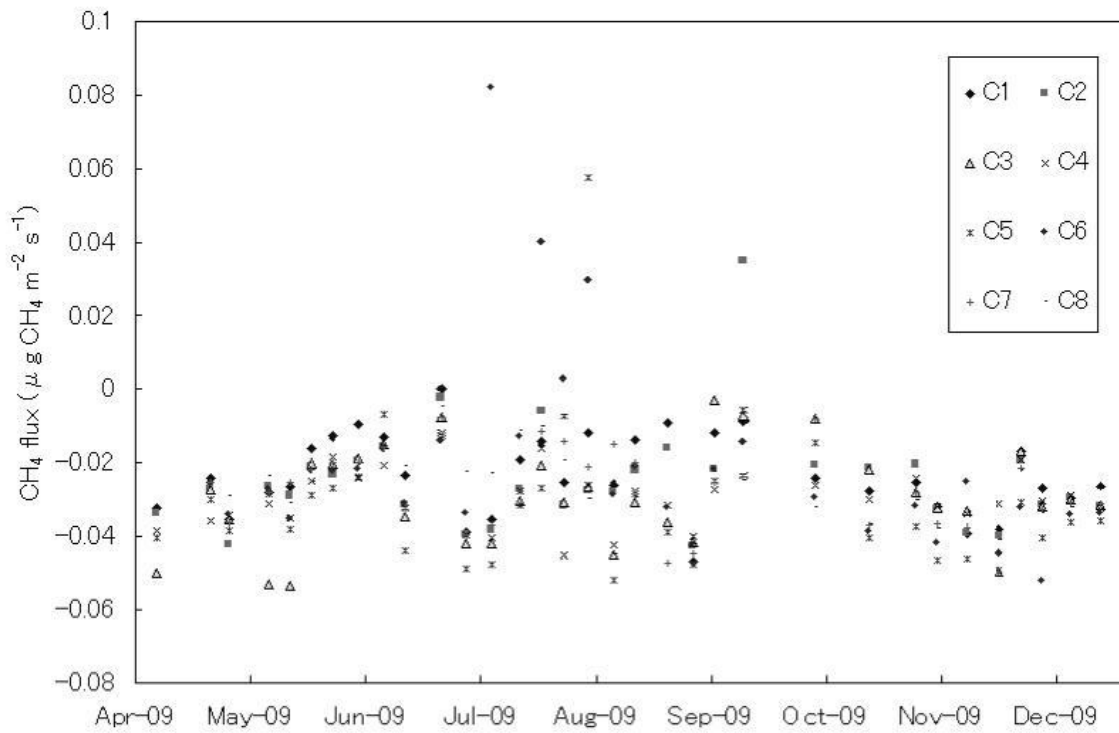


図 - 34 鞍部におけるメタンフラックス

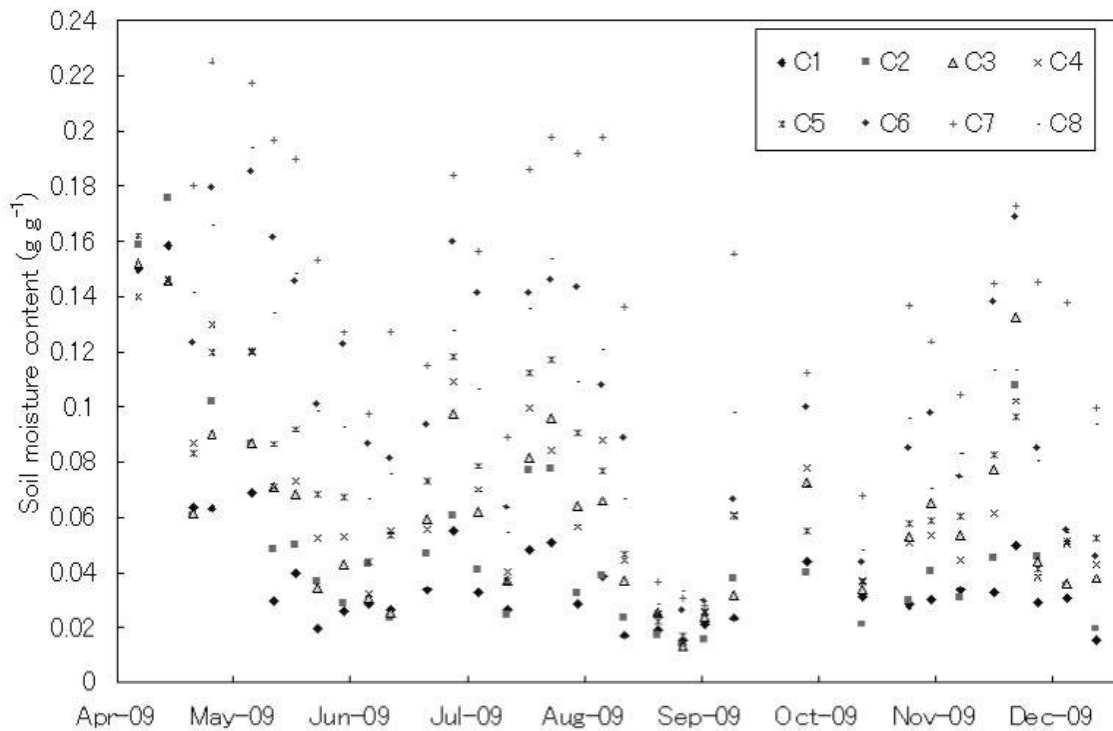


図 - 35 鞍部における土壌含水率

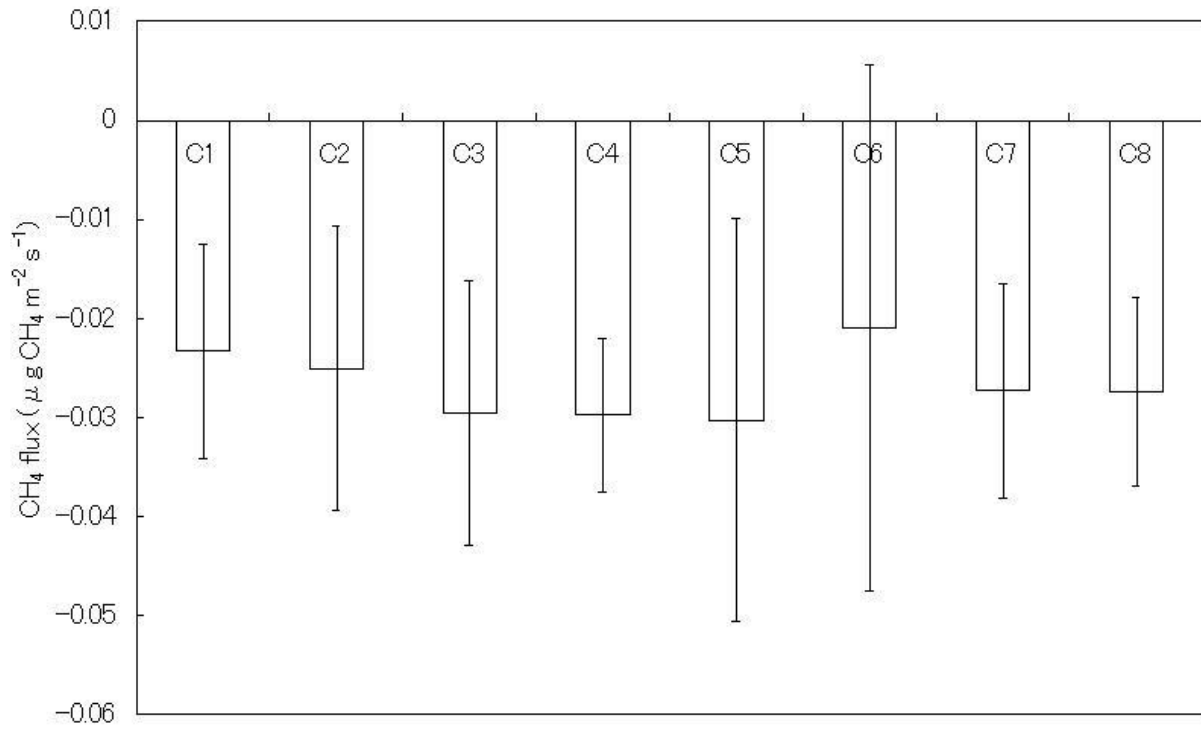


図 - 36 鞍部におけるメタンフラックスの平均値と標準偏差

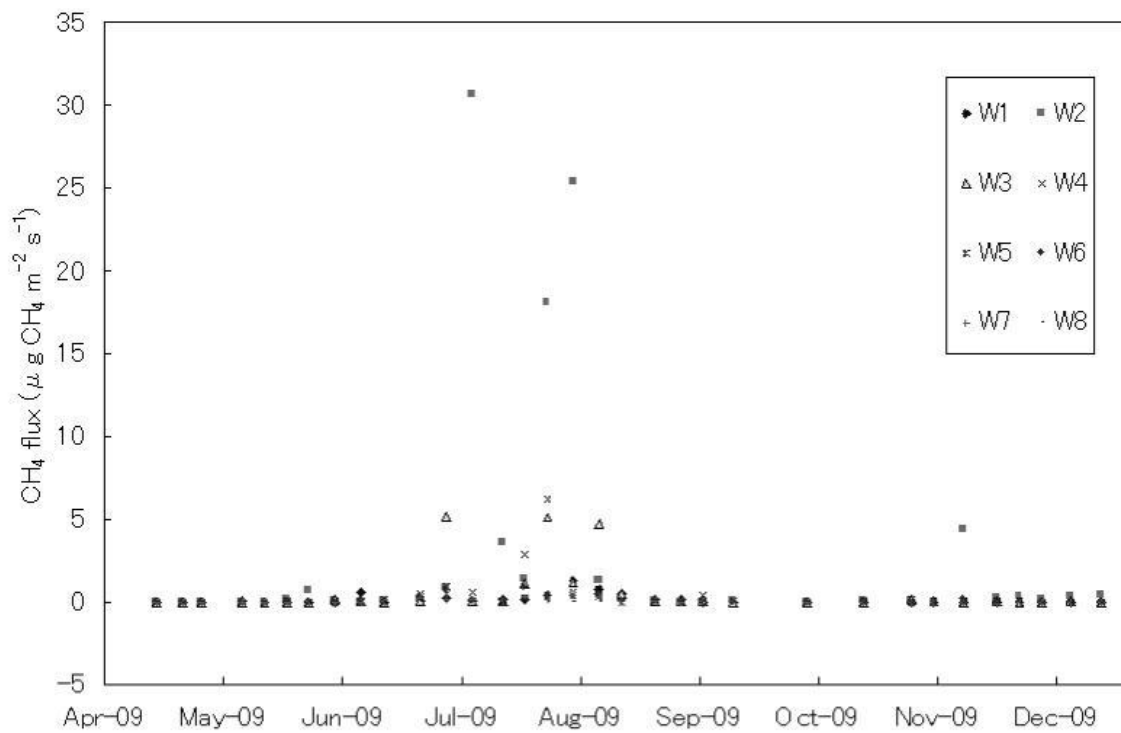


図 - 37 溪畔域におけるメタンフラックス

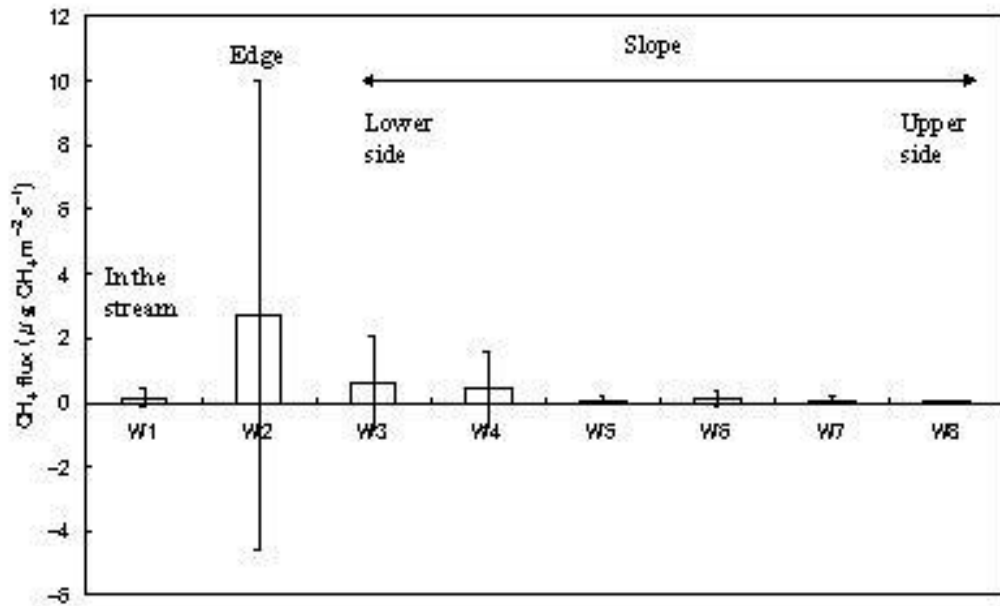


図 - 38 土壌メタンフラックスの溪流横断調査におけるプロット別の平均値（エラーバーは標準偏差）

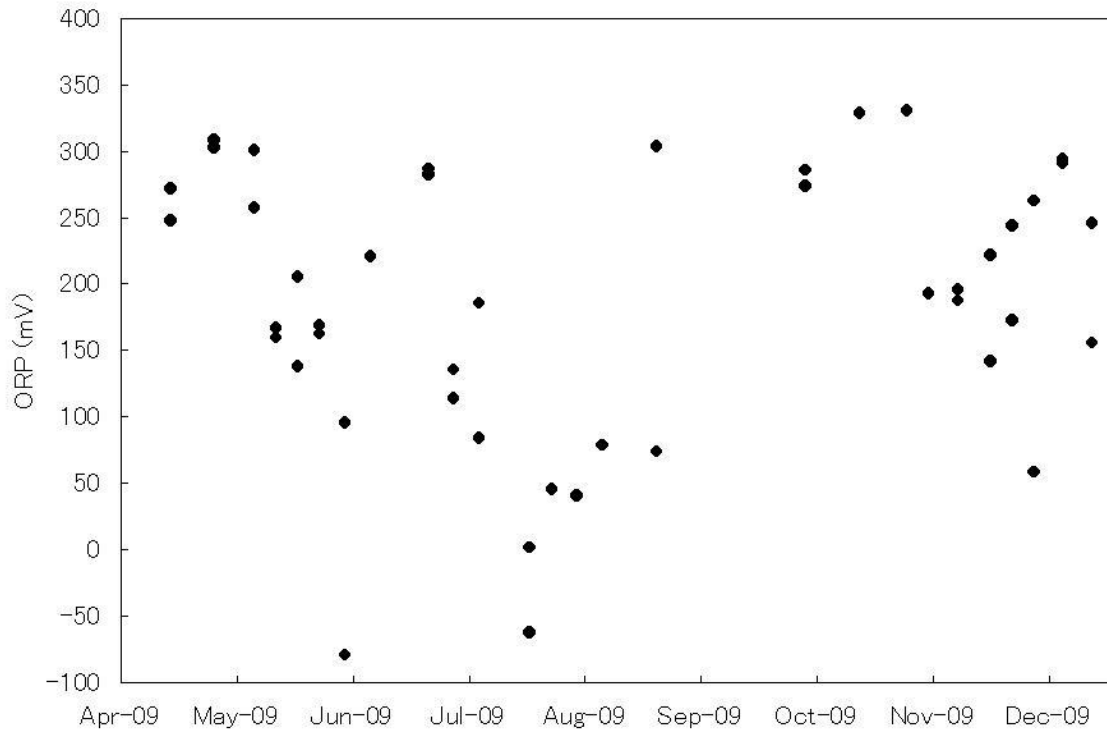


図 - 39 溪畔域プロットW2水面付近におけるORP

表 - 5 環境要因とフラックスの相関

FCH <sub>4</sub>	気温	土壌含水率	ORP	FCO <sub>2</sub>	気温	土壌含水率	ORP
W1	0.52 *	-0.88	-0.39	W1	0.69	-0.02	-0.72
W2	0.54 *	-0.50	-0.16	W2	0.77 **	-0.65	-0.27
W3	0.45	0.00	-0.14	W3	0.49	-0.69	-0.97
W4	0.51 *	0.11	-0.67	W4	0.59	-0.55	-0.92
W5	0.67 **	0.34	-0.93	W5	0.39	-0.67	1.00
W6	0.58 *	0.46		W6	0.53	0.41	
W7	0.76 **	0.66 *		W7	0.72 *	0.34	
W8	0.41	-0.18		W8	0.95 **	0.53	
C1	0.20	-0.07		C1	0.29	0.01	
C2	0.14	0.46		C2	0.84 **	0.84 *	
C3	0.53 *	0.26		C3	0.88 **	0.62	
C4	0.30	0.22		C4	0.79 **	0.65 *	
C5	-0.21	0.07		C5	0.59	0.74 *	
C6	0.25	-0.08		C6	0.81 **	0.79 **	
C7	0.06	0.30		C7	0.46	0.43	
C8	0.09	-0.21		C8	0.05	0.99 **	

環境要因とメタンフラックス(FCH<sub>4</sub>)および二酸化炭素フラックス(FCO<sub>2</sub>)の関係における相関係数 \*:p<0.05, \*\*:p<0.01

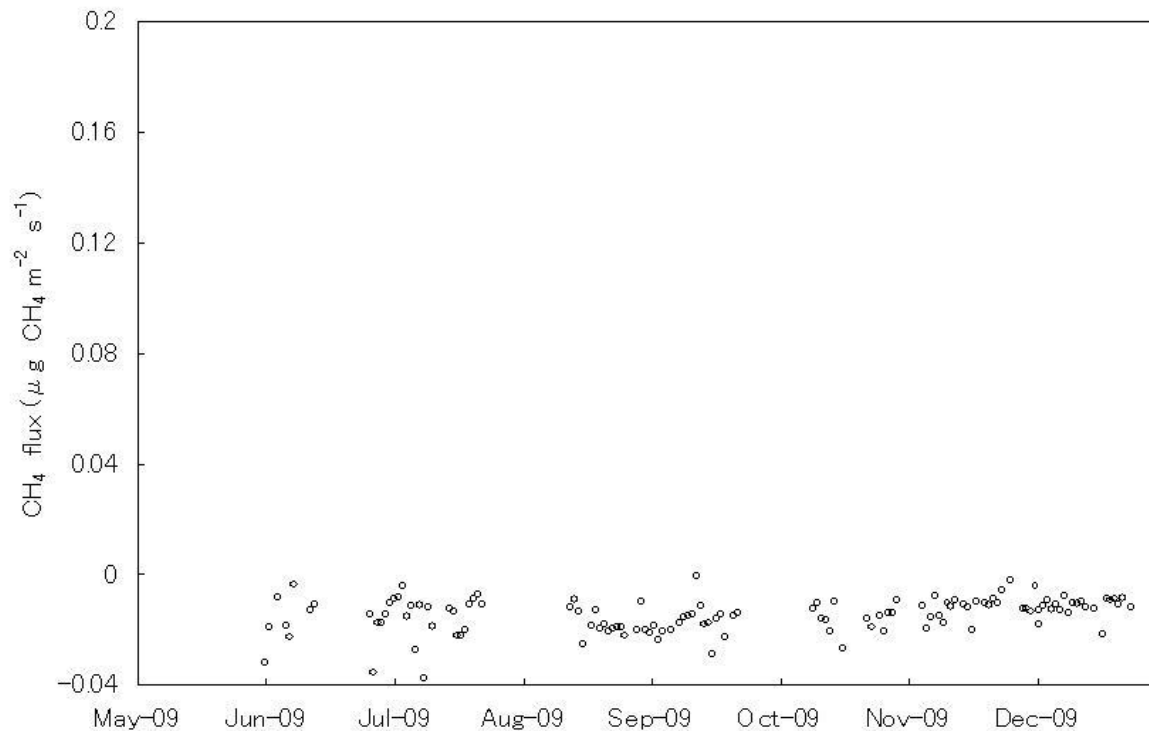


図 - 40 尾根自動チャンバーの観測結果

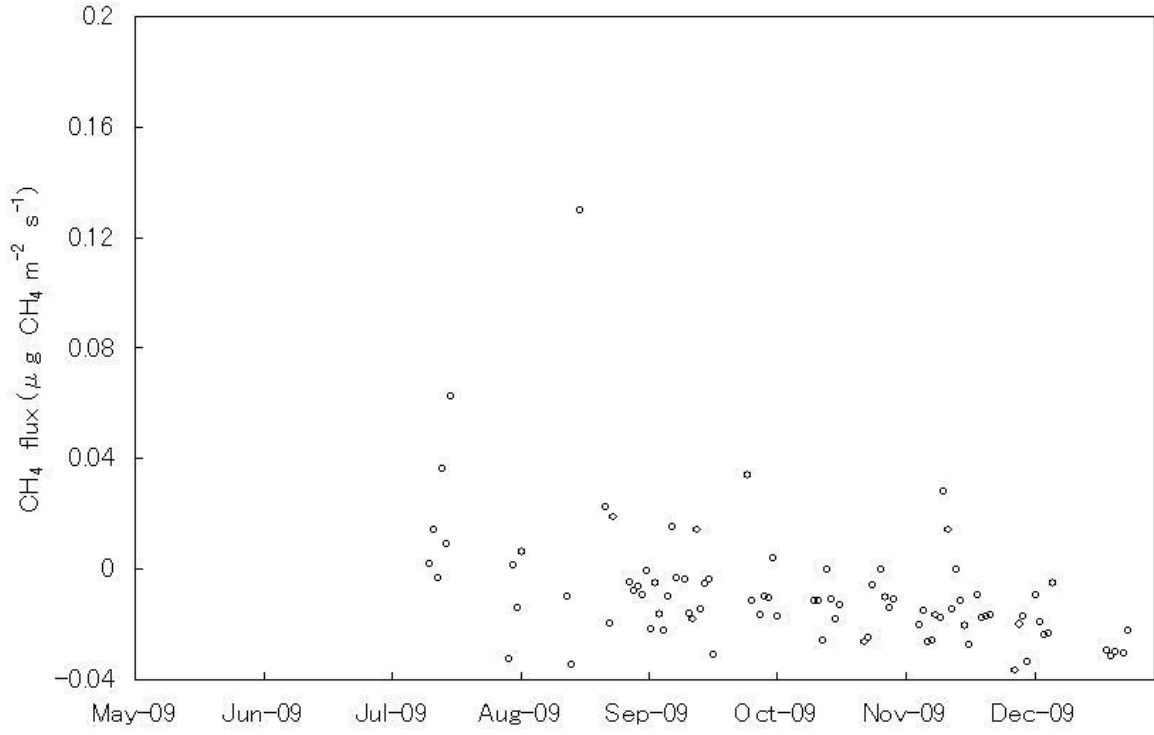


図 - 41 谷自動チャンバーの観測結果

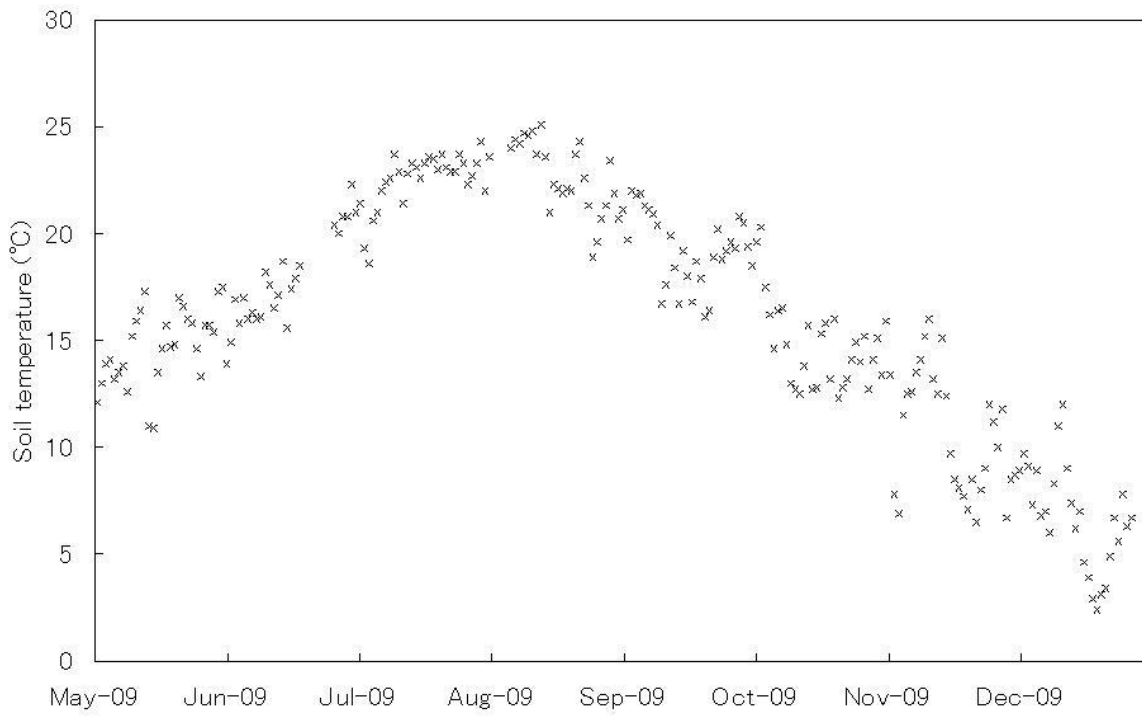


図 - 42 地温の季節変化

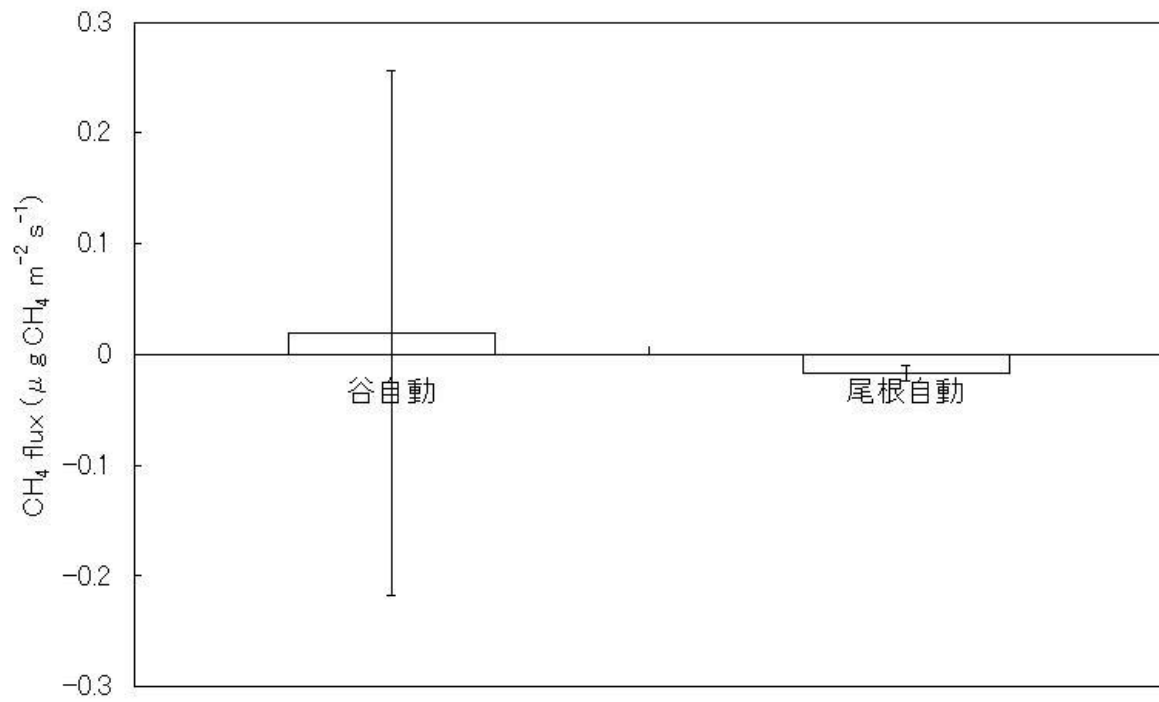


図 - 43 自動チャンバーによる年平均値と標準偏差

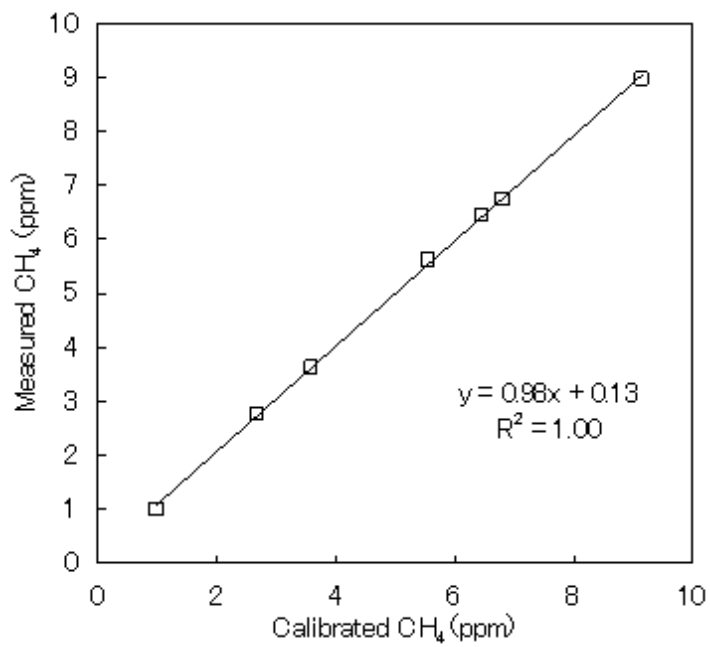


図 - 44 GC-FIDによる校正値と高速メタン計による計測値の関係

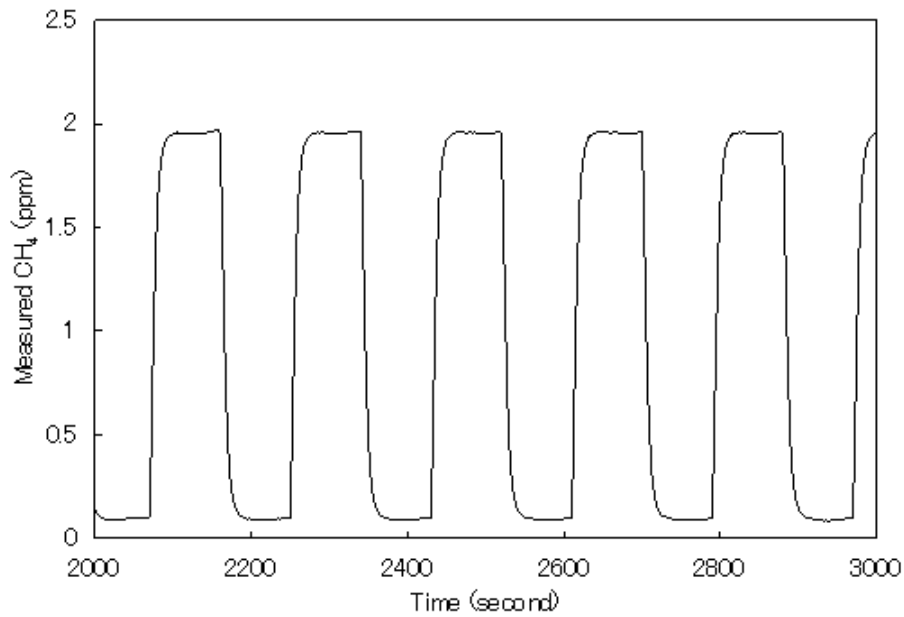


図 - 45 流路を切り替えた場合の高速メタン計の応答性と安定性

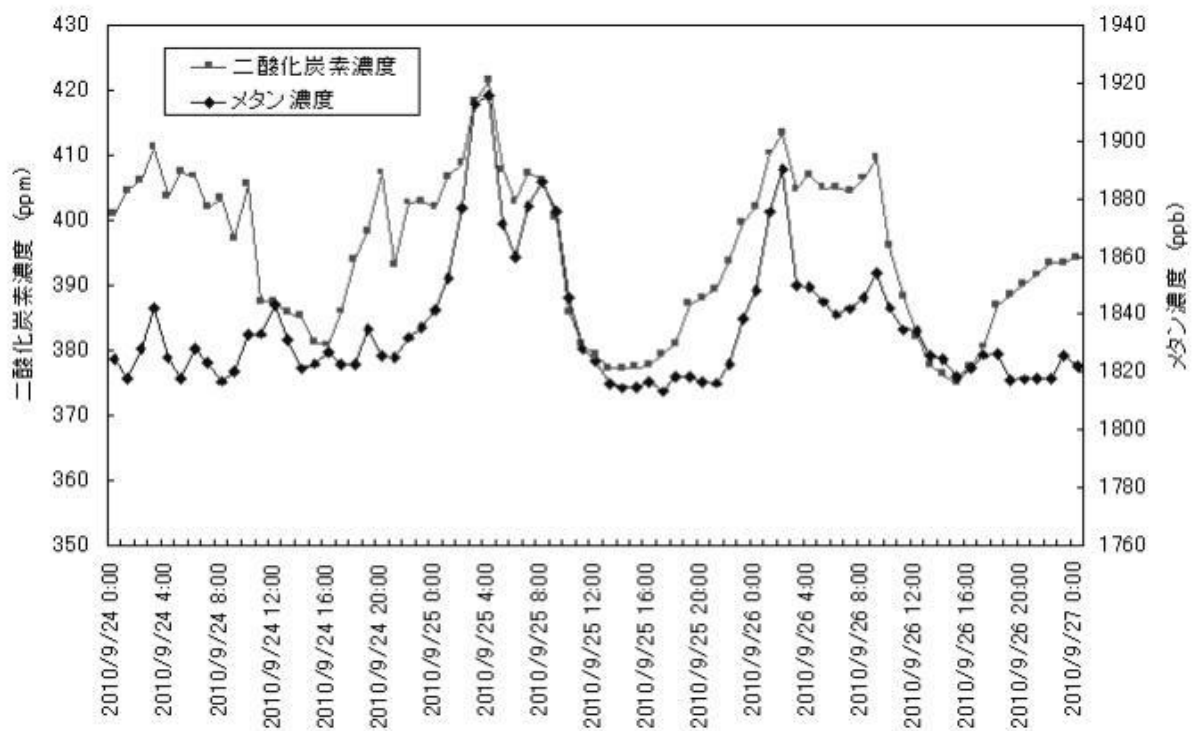


図 - 46 二酸化炭素とメタン濃度の日変化の比較



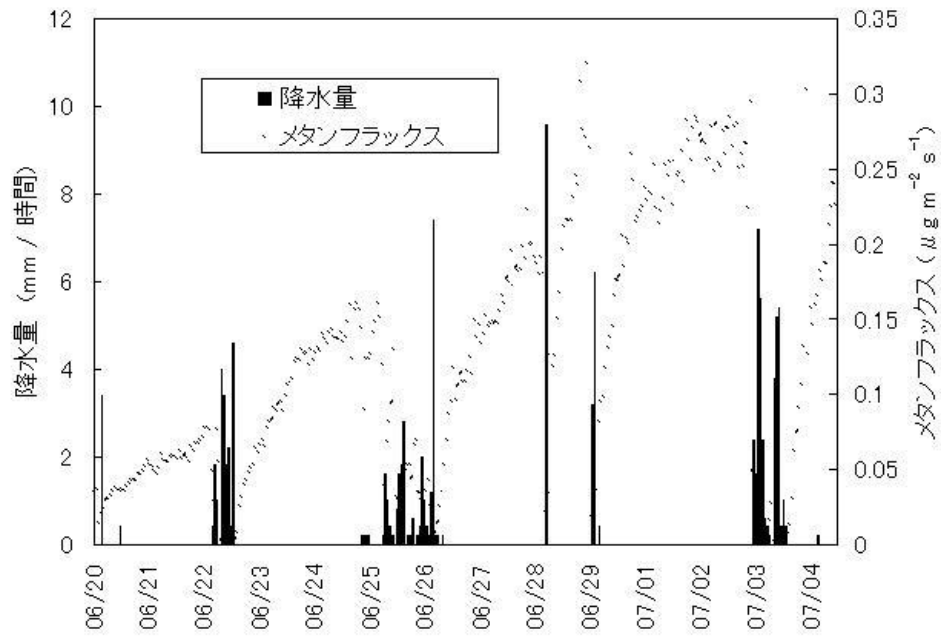


図 - 47 嫌氣的土壤における降水量とメタンフラックスの関係

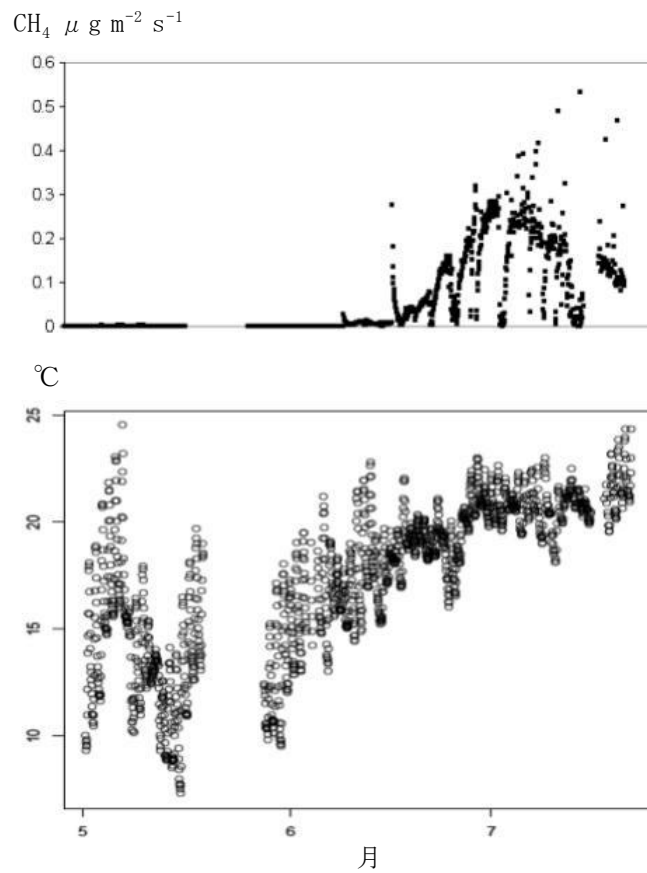


図 - 48 メタンフラックス（上）と水温（下）の季節変化

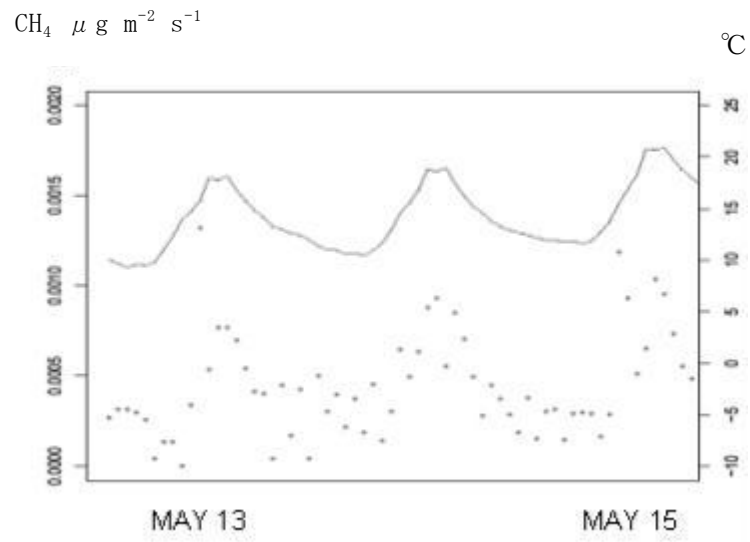


図 - 49 5月における水温とメタン放出量の経時変化

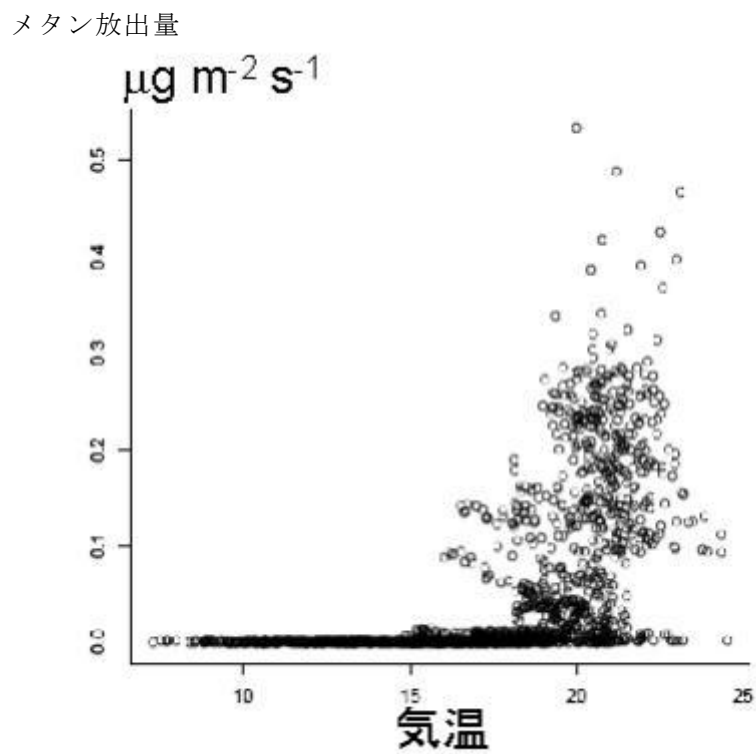


図 - 50 気温とメタン放出量の関係

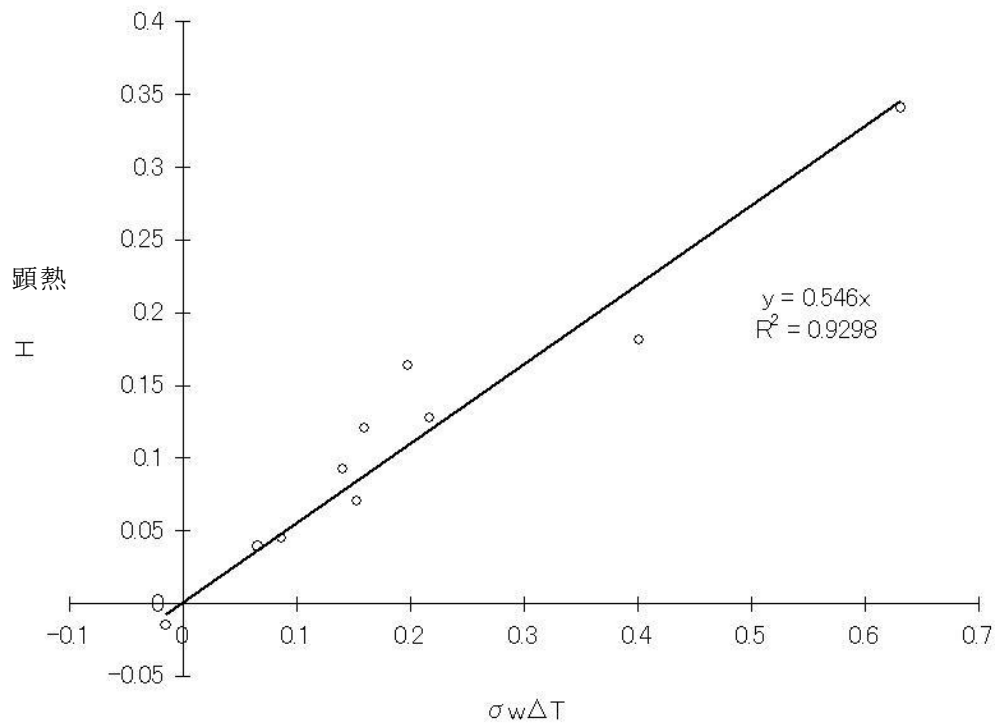


図 - 51 REA法におけるb値(傾きがbを示す)

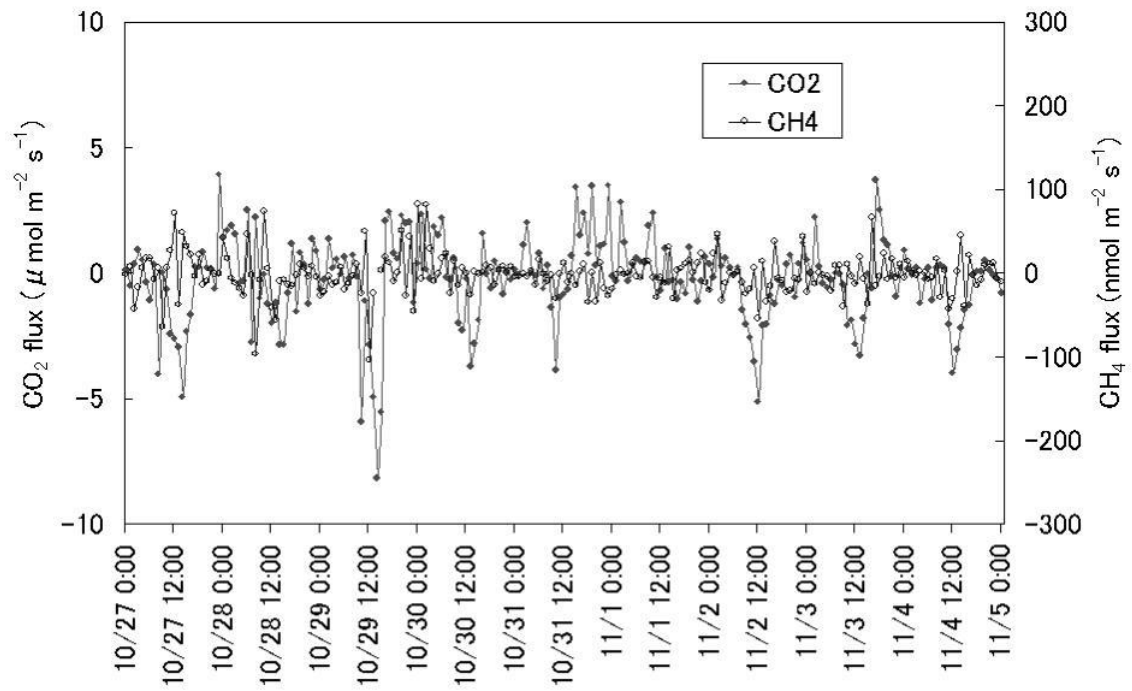


図 - 52 群落レベルのメタンフラックスと二酸化炭素フラックス

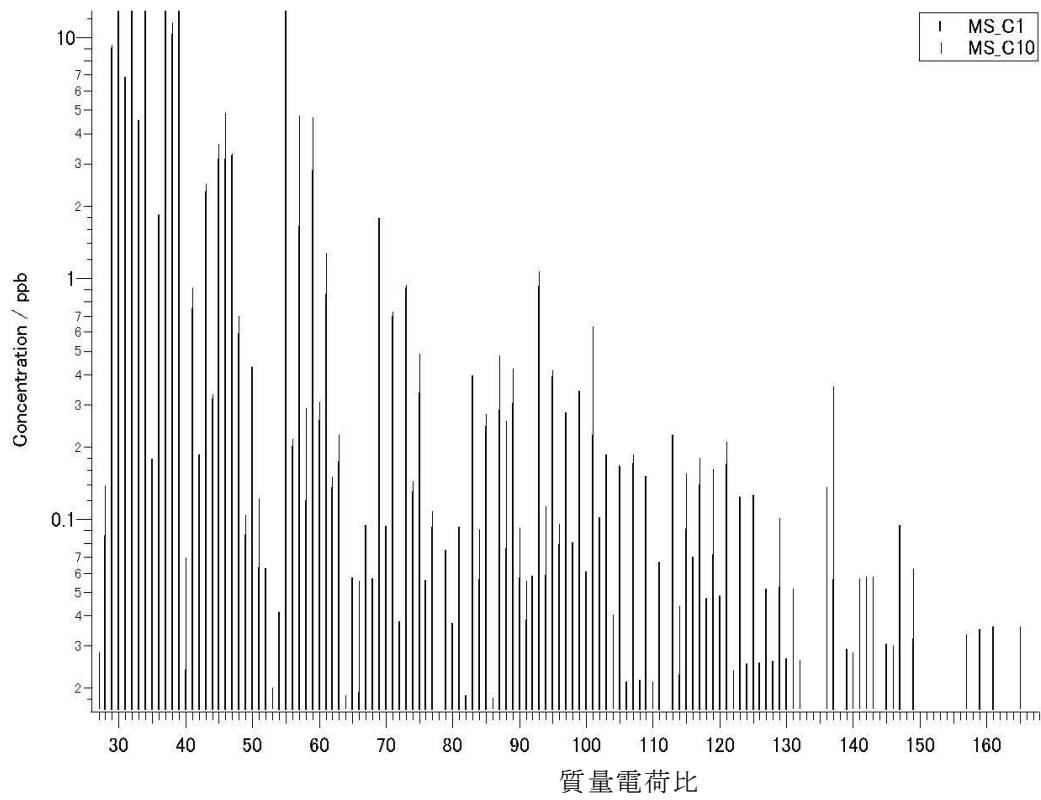


図 - 53 PTR-MSによる土壌におけるスキャン分析の例

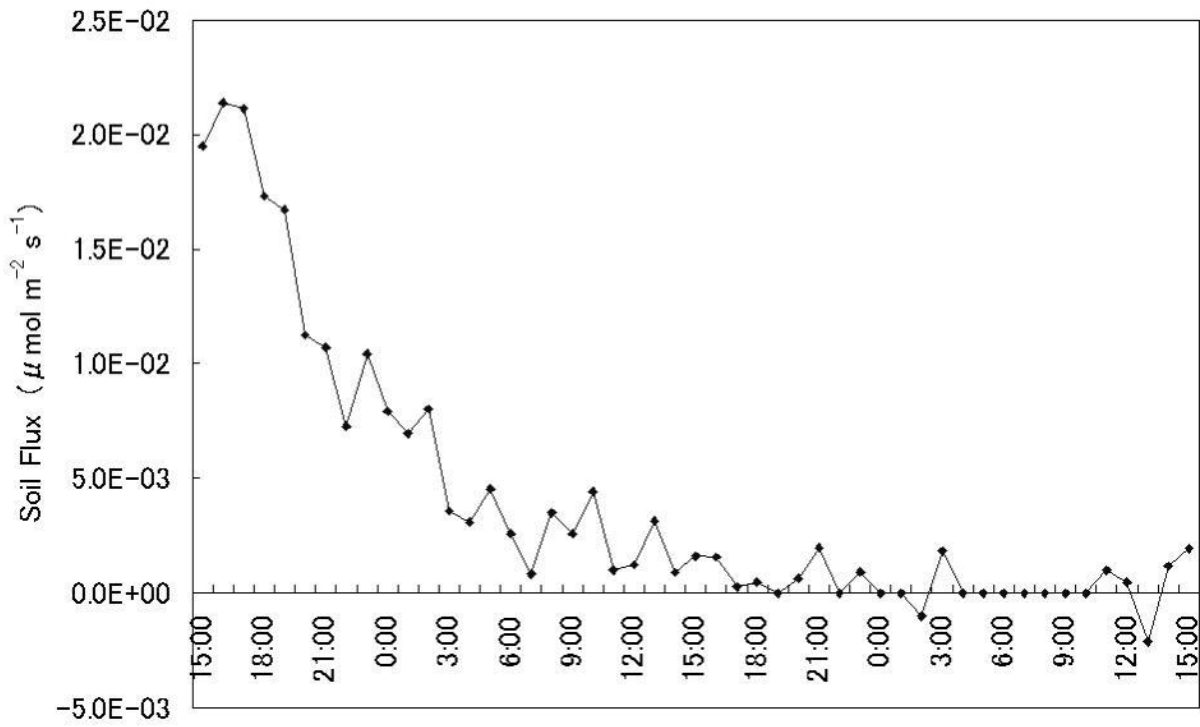


図 - 54 降雨後に土壌チャンバーで観測されたモノテルペンフラグメント ( $\text{m/e}57$ )

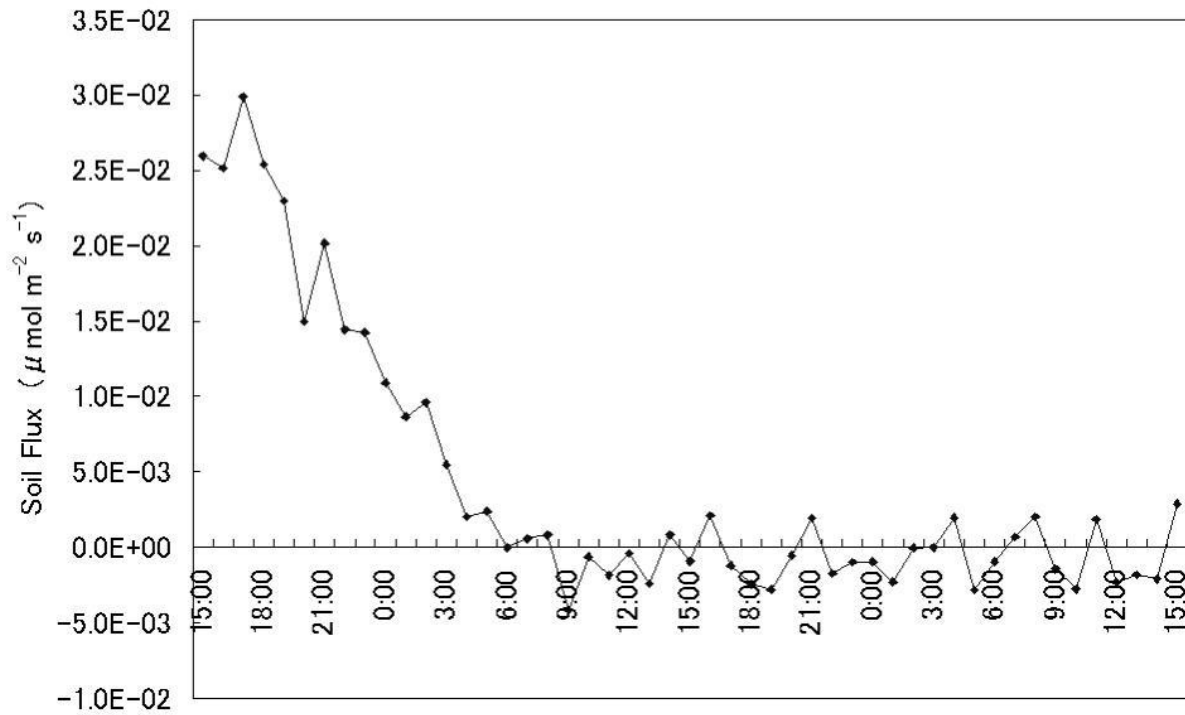


図 - 55 降雨後に土壌チャンバーで観測されたアセトン (m/e59)

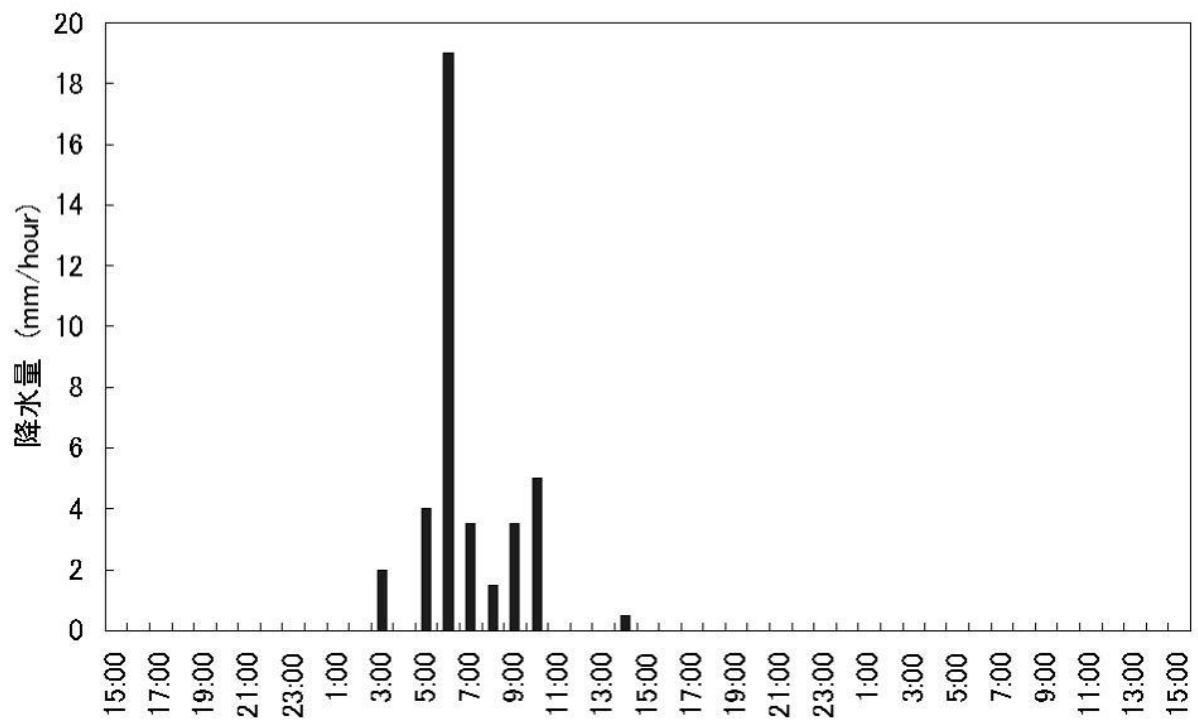


図 - 56 降水量の経時変化

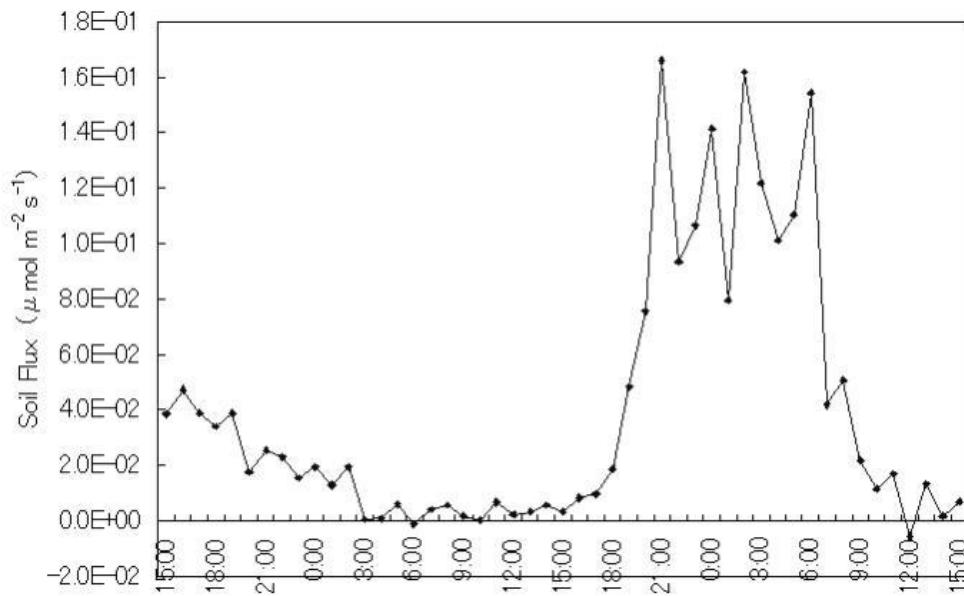


図 - 57 降雨後に土壌チャンバーで観測されたアセトアルデヒドフラックス (m/e45)

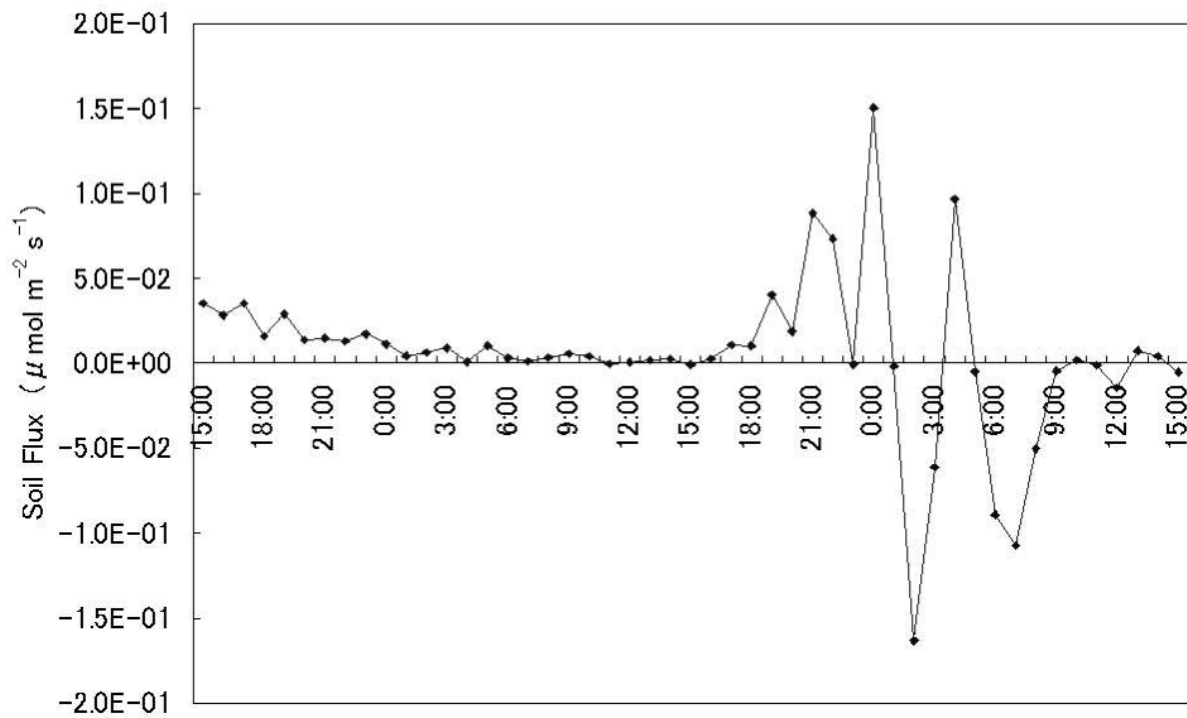


図 - 58 降雨後に土壌チャンバーで観測されたメタノール (m/e33)

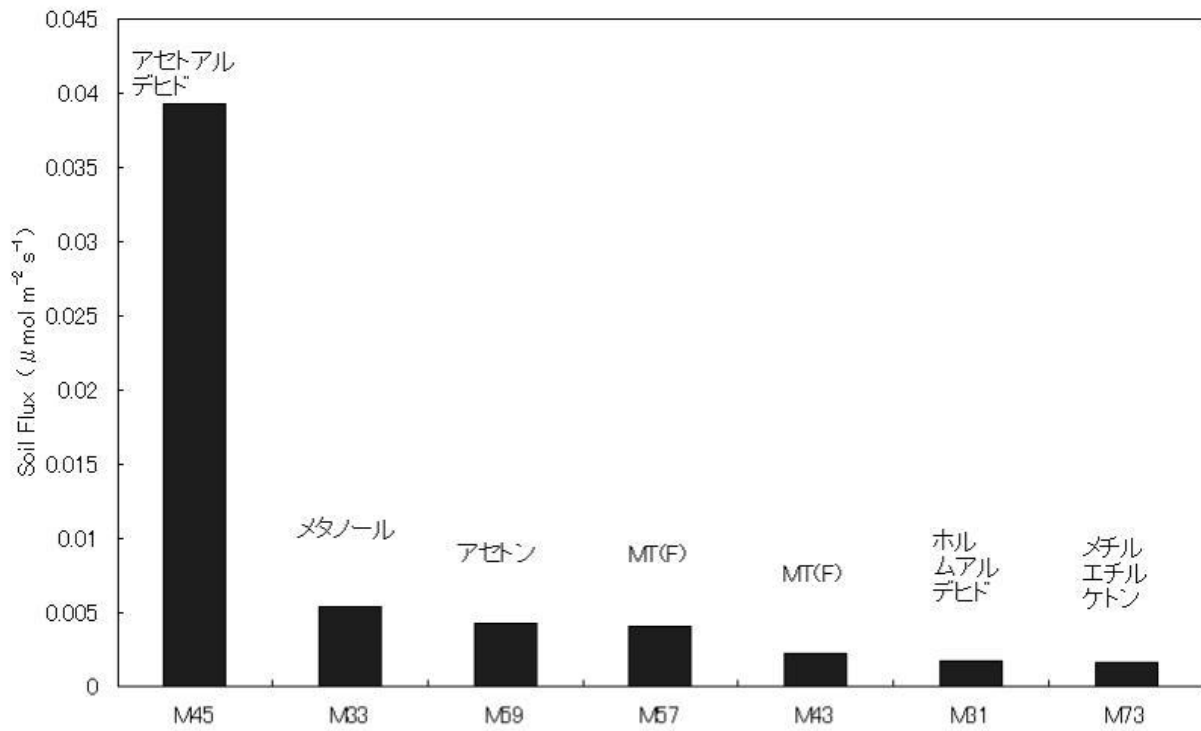


図 - 59 観測期間中の平均放出フラックスの比較

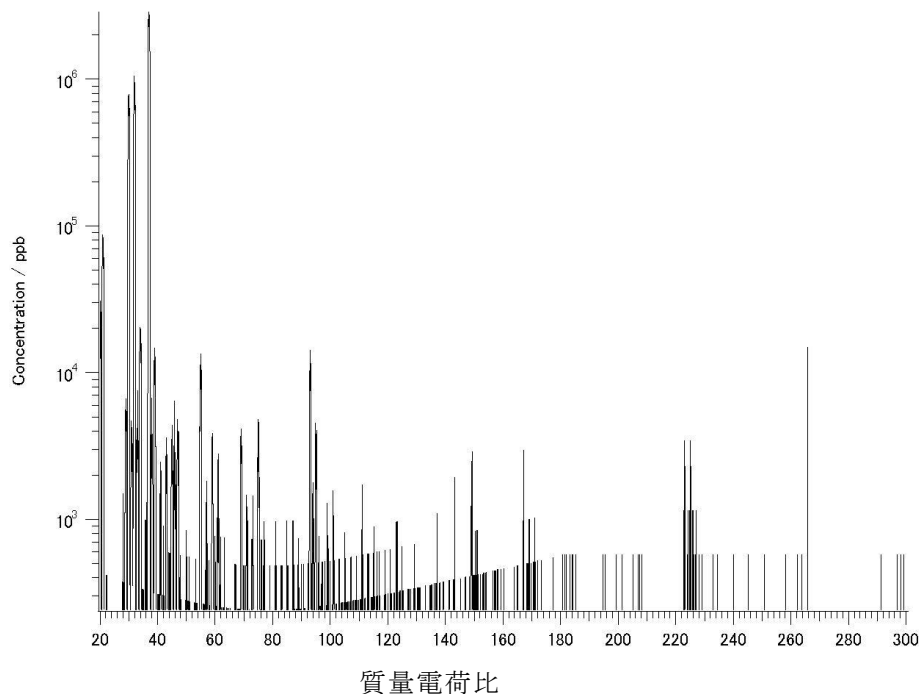


図 - 60 PTR-MSによる大気中微量ガスのスキャン分析の例

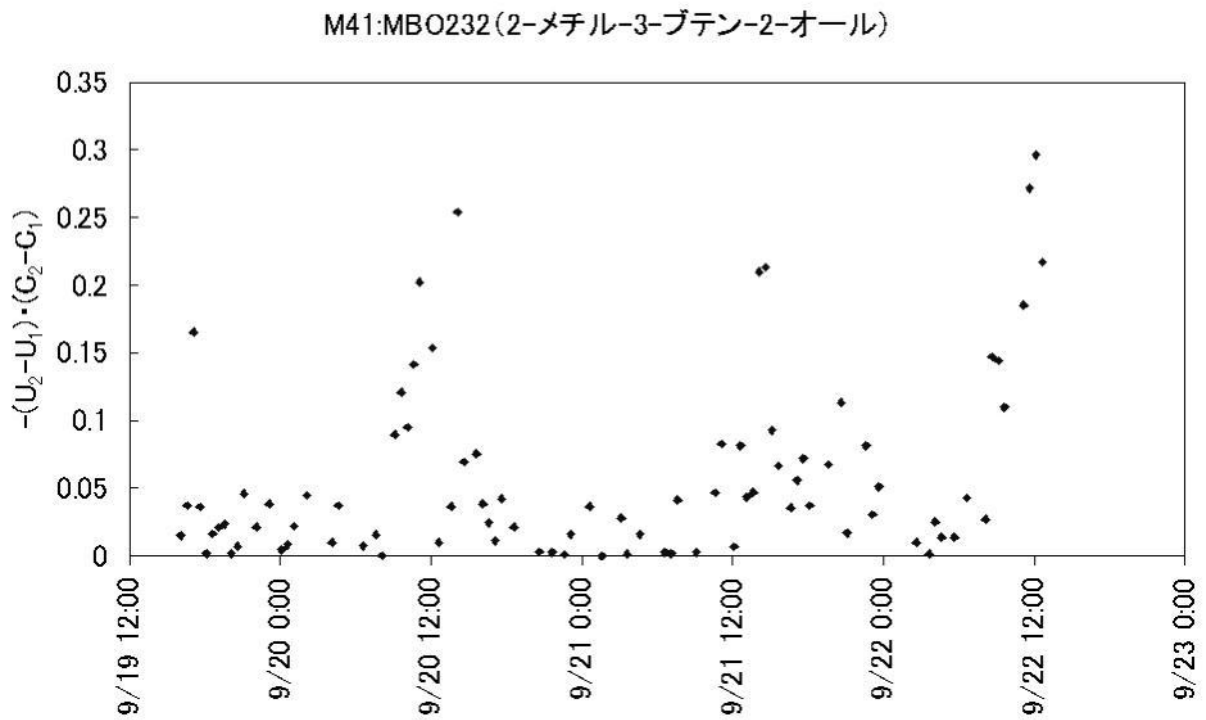


図 - 61 M41フラックスの日変化

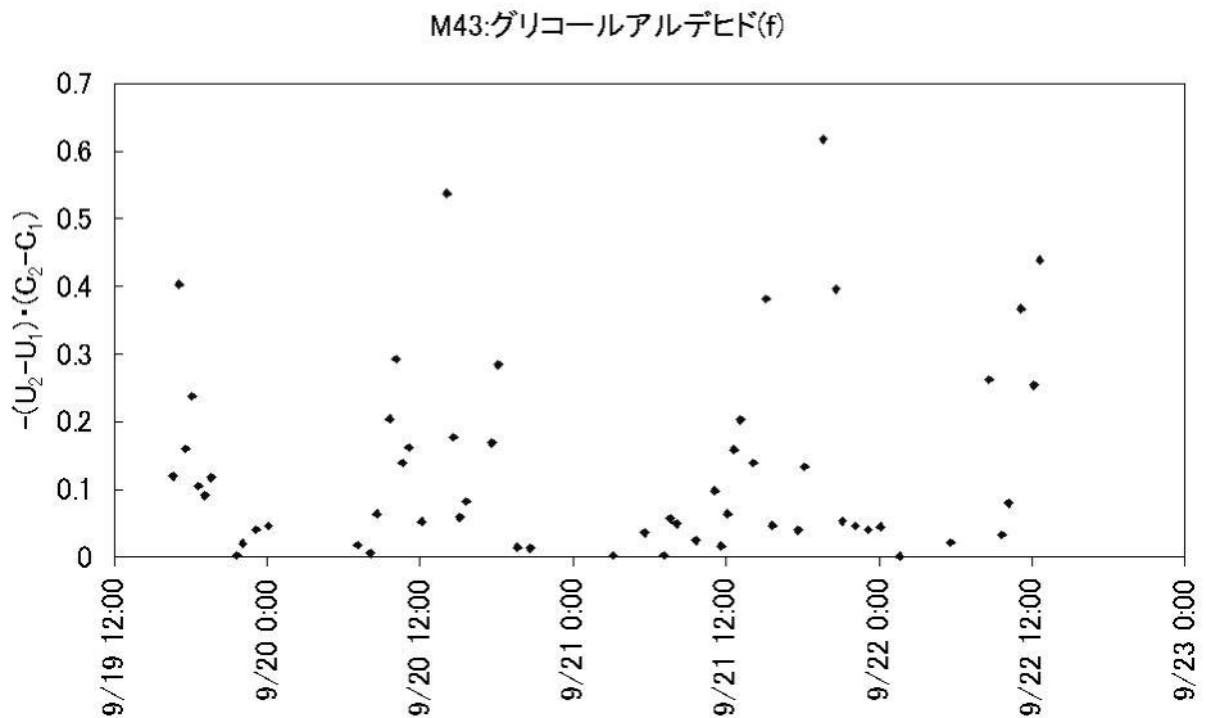


図 - 62 M43フラックスの日変化



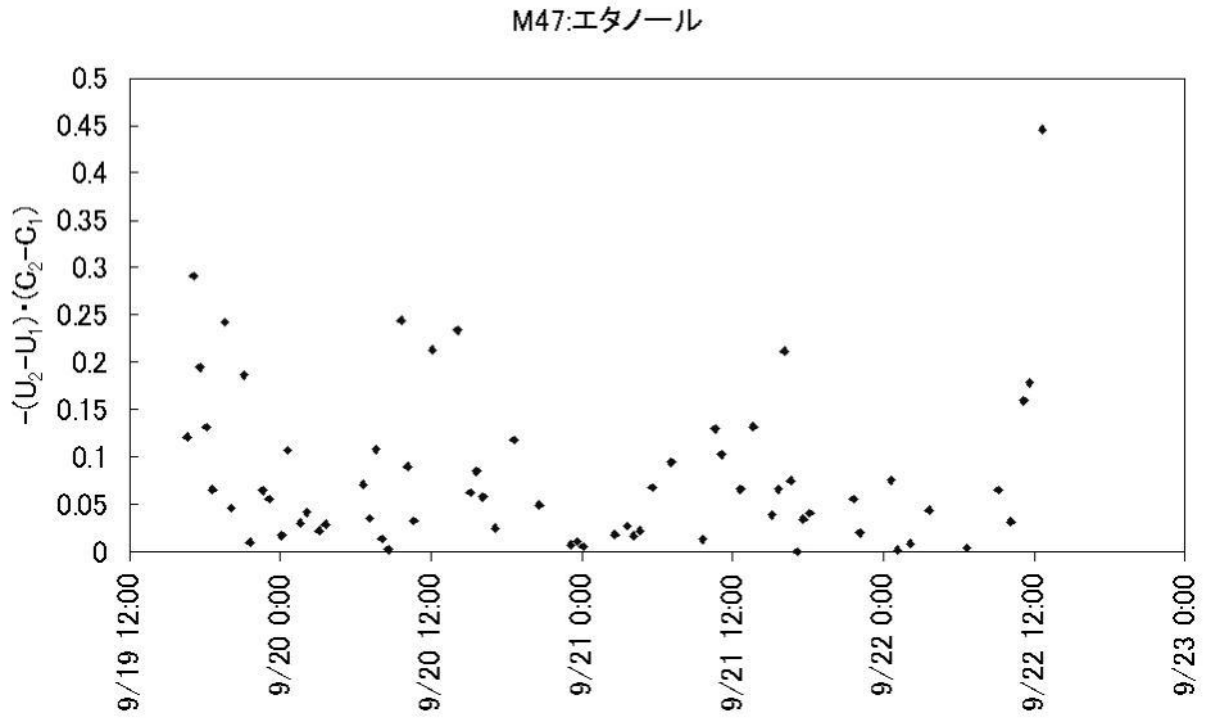


図 - 63 M47フラックスの日変化

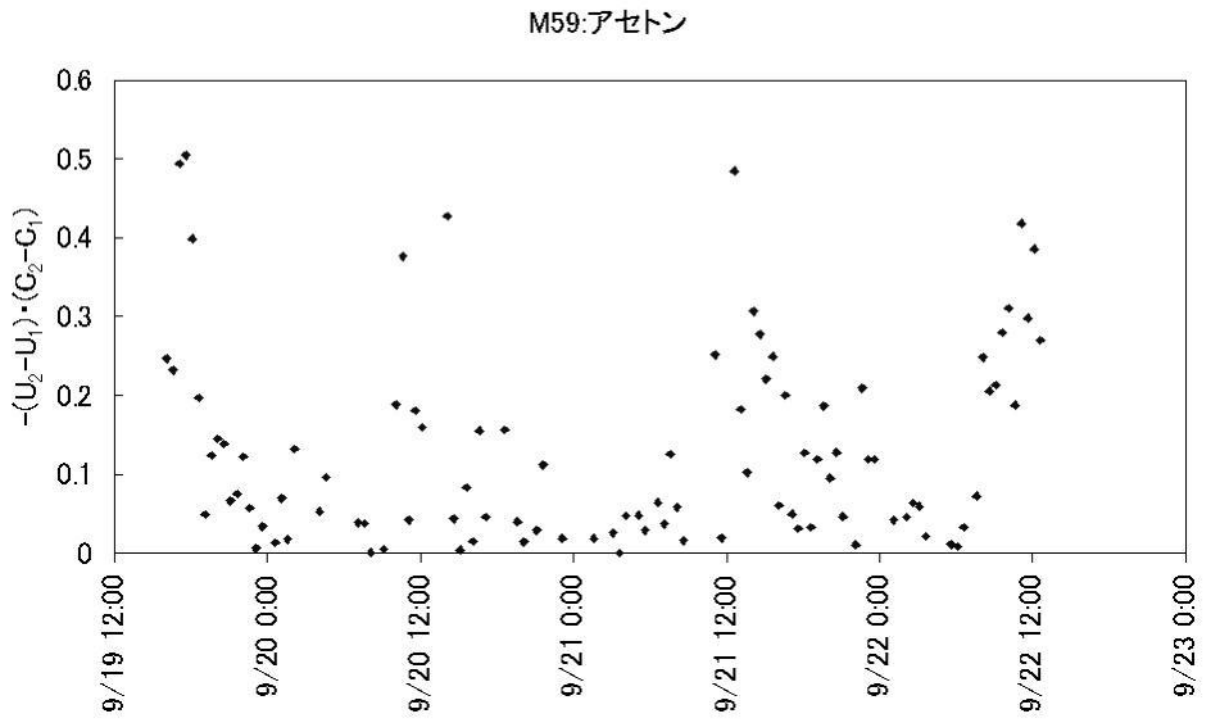


図 - 64 M59フラックスの日変化

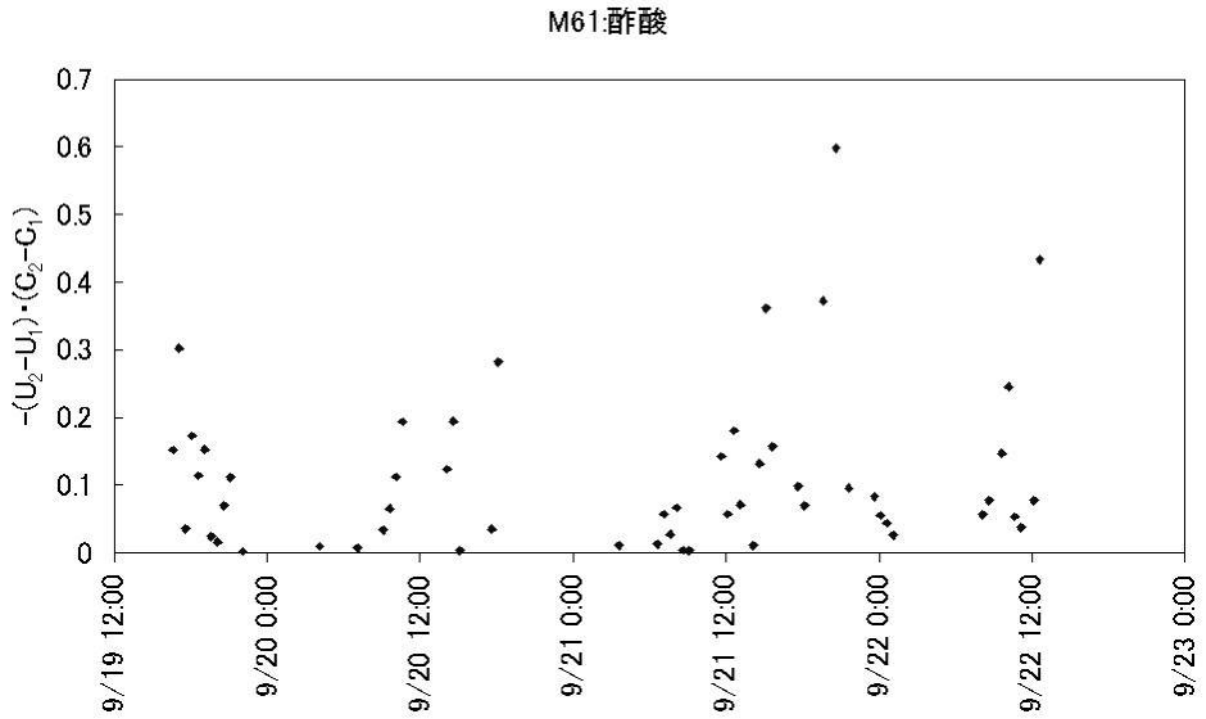


図 - 65 M61フラックスの日変化

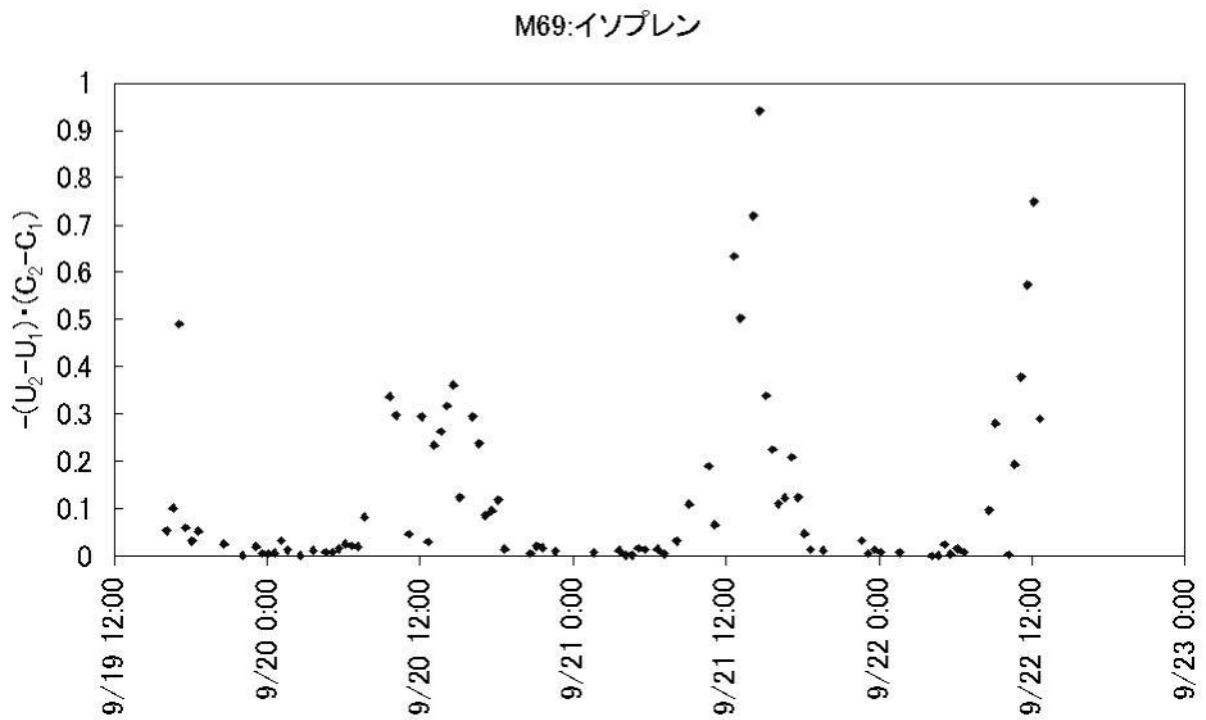


図 - 66 M69フラックスの日変化

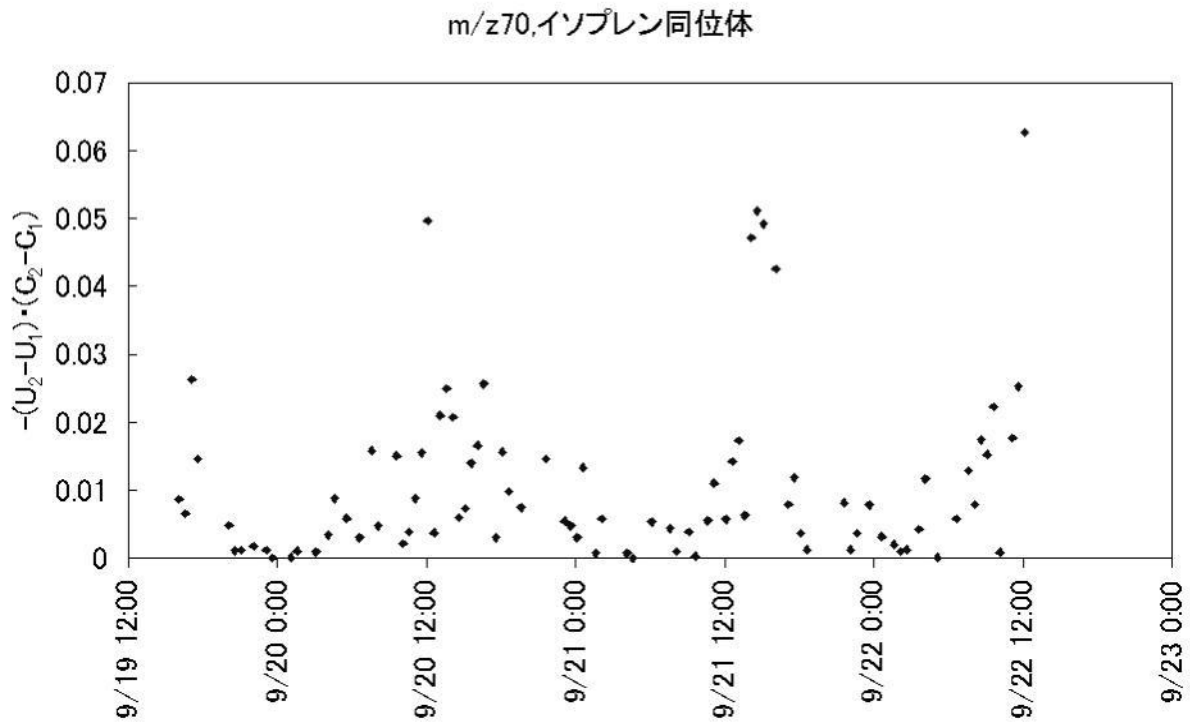


図 - 67 M70フラックスの日変化

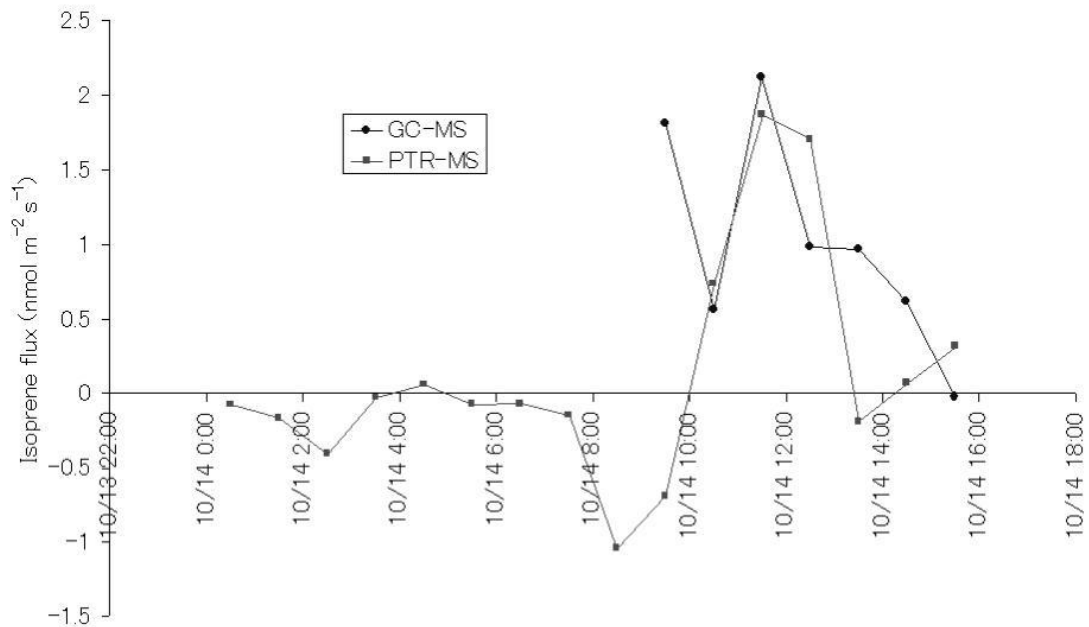


図 - 68 群落イソプレンフラックスのGC-MSとPTR-MSの観測結果の比較

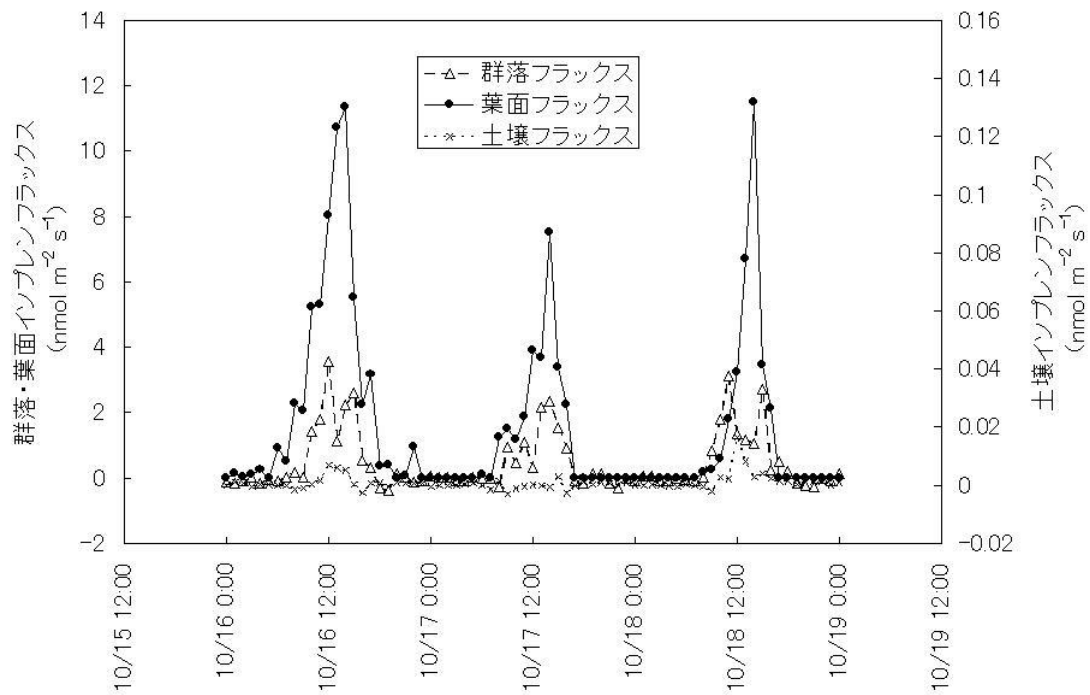


図 - 69 PTR-MSで同時多点連続観測されたイソプレンフラックス

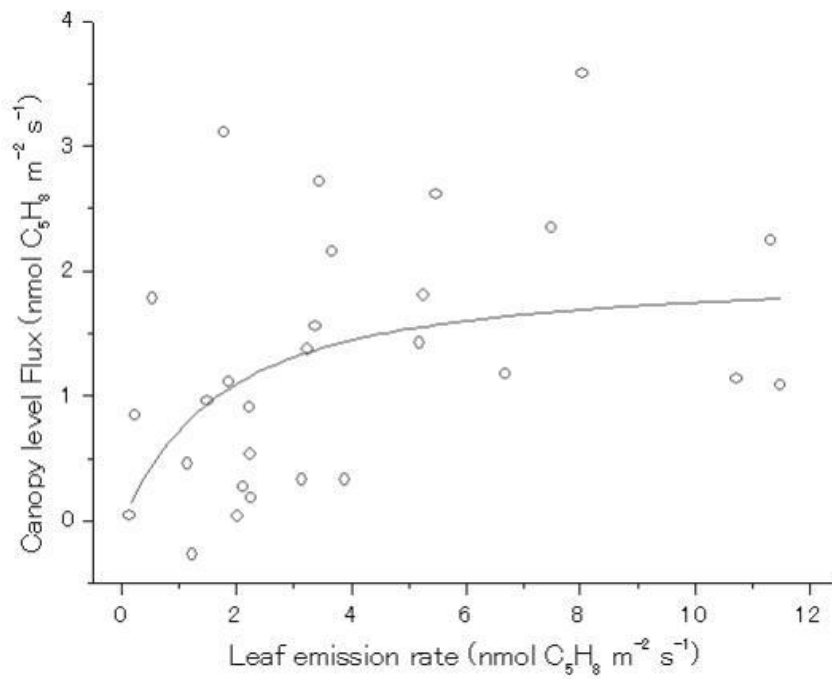


図 - 70 葉群と群落におけるイソプレンフラックスの関係

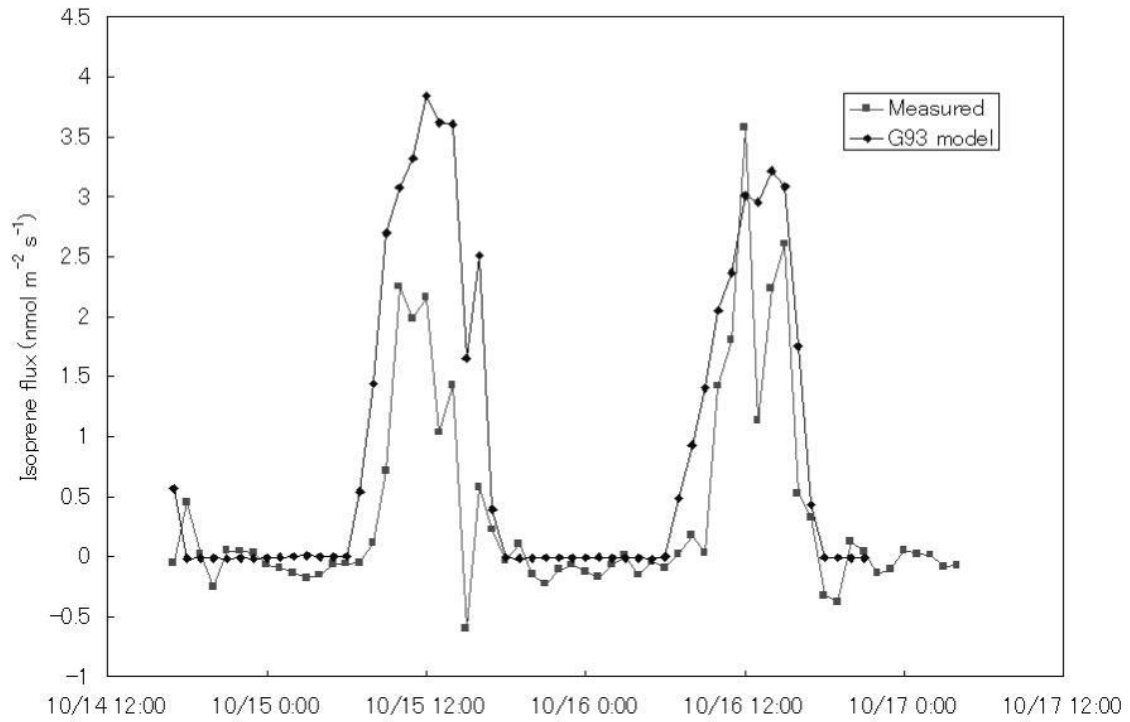


図 - 71 G93モデルとREA法の観測結果の比較

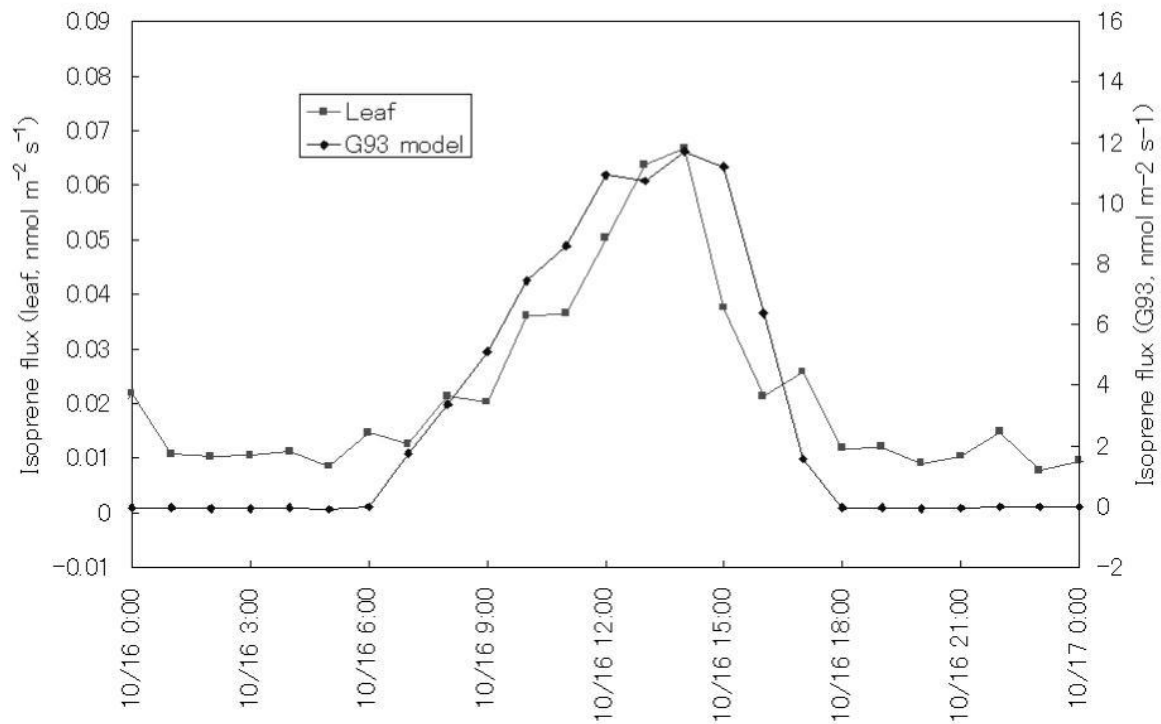


図 - 72 G93モデルと葉群チャンバー法の観測結果の比較

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

可変波長ダイオードレーザー分光法や陽イオン移動反応質量分析といった従来のGCに代わる新たな高速分析手法を野外観測に導入して炭化水素フラックス観測における実測を行うことにより、新測器のフラックス連続観測における有効性を明らかにすることができた。一方、吸収に比べて研究例の少なかった森林内におけるメタンの発生過程について、その発生源の存在箇所、発生時期、発生量などを、自動分析システム、多点チャンバー法、チャンバー法とREA法の並行観測システムといった新手法の開発を通じて明らかにした。これにより、特に汀線や砂州における細根や落葉といった表面積の大きい有機物の高温期のメタン放出に注目した研究の重要性が示された。また、メタン放出は一時的で水位変動による時系列変動が激しかったことから、群落レベルでのメタンフラックス観測における連続観測の重要性が明らかになり、本研究によって開発された連続観測システムによるフラックスの連続的データの取得の有効性が示された。非メタン炭化水素については、葉面、土壌面と群落レベルでの放出量の同時比較観測が可能になり、その酸化過程、降雨時の代謝量の変化による影響などを連続的に評価することが可能になった。

### (2) 環境政策への貢献

現在、二酸化炭素フラックスに関しては世界的な観測ネットワークが構築され、人工衛星による広域的な観測と比較しながらその活用が行われており、本研究で開発された炭化水素フラックス観測手法は、メタンや非メタン炭化水素についても二酸化炭素同様の観測ネットワークの構築を実現する環境政策のために技術面に貢献する。本研究によって開発された手法や情報は環境省地球環境保全試験研究プロジェクト「アジア陸域炭素循環観測のための長期生態系モニタリングとデータのネットワーク化促進に関する研究」においてタワーフラックス観測マニュアル和文版、英文版に収録され、森林総合研究所のホームページ上で公開されている他、近く冊子体で出版され関係研究者らに配布される。

一方、日本学術振興会の日中韓フォーサイト事業「東アジア陸域生態系における炭素動態の定量化のための日中韓研究ネットワークの構築」では、広大な水田面積を持つアジア地域の特徴としてメタンフラックス観測手法の情報提供についてのニーズが非常に強かった。また、アジアの熱帯域では森林破壊と共にプランテーション農業が拡大しており、そこでの窒素施肥によるNO<sub>x</sub>濃度上昇、イソプレネエミッターとしてのアブラヤシの植栽による炭化水素濃度上昇、これらの相互作用によるオゾン濃度の上昇が問題となり、非メタン炭化水素フラックスの観測手法も必要とされていた。本研究の成果はこの事業における会議、共同観測、セミナーなどを通じて日本側が行う情報提供の面で貢献すると共に、将来的に微量ガス影響を含めたより高精度の地球温暖化予測や、人為的な環境破壊の抑制のための環境政策の実現に貢献する。

## 6. 引用文献

- 1) Arnold, K. V., Nilsson, M., Hanell, B., Weslen, P. and Klemedtsson, L. "Fluxes of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and N<sub>2</sub>O from drained organic soils in deciduous forests", *Soil Biolo. and Biochem.* 37:1059-1071, (2005)

- 2) Kagotani, Y., Kanzaki, M. and Yoda, K., “Seasonal Variation of methane absorption rates of temperate forest soil in central Japan”, *Environ. Sci.*, 12, 9-16, (1999)
- 3) 波多野隆介, “農耕地からの亜酸化窒素, メタン放出のモニタリング”, *生物の科学 遺伝 別冊* 17, 69-77, (2003)
- 4) 伊藤雅之, 大手信人, 勝山正則, 木庭啓介, 川崎雅俊, 谷誠, “温帯森林流域におけるメタンフラックスの時空間変動”, *水文・水資源学会誌*, 18, 244-256, (2005)
- 5) 山本吾一, 永田修, 田中夕美子, 波多野隆介, “森林-湿地境界域の土壌におけるメタンフラックスと土壌中メタン濃度分布”, *土肥誌*, 72, 673-675, (2001)
- 6) Karl M., Tsigaridis K., Vignati E. and Dentener F., “Formation of secondary organic aerosol from isoprene oxidation over Europe”, *Atmos. Chem. Phys.*, 9, 7003- 7030, (2009)
- 7) Guenther A., “A global model of natural volatile organic compound emissions”, *Geophys. Res.* 100: 8873-8892, (2005)
- 8) 後藤義明, 小南裕志, 深山貴文, 玉井幸治, 金澤洋一, “京都府南部地方における広葉樹二次林の地上部現在量及び純生産量”, *森林総研研報* 387: 115-147, (2003)
- 9) Dannoura, M., Kominami, Y., Tamai, K., Jomura, M., Miyama, T., Goto, Y. and Kanazawa, Y. “Development of an automatic chamber system for long-term measurements of CO<sub>2</sub> flux from roots”, *Tellus* 58B, 502-512, (2006)
- 10) Ostertag, R. and Hobbie, S.E., “Early stages of root and leaf decomposition in Hawaiian forests: effects of nutrient availability”, *Oecologia* 121, 564- 573, (1999)
- 11) Eissenstat, D. M. and Yanai, R. “Ecology of Root Lifespan”, *Advances in. Ecol. Res.*, 27: 1-62, (1997)
- 12) Miyama, T., Hashimoto, T., Kominami, Y., Nakagawa, K., Okumura, M. and Tohno, S., “Temporal and spatial variations in CH<sub>4</sub> concentrations in a Japanese warm-temperate mixed forest”, *J. Agric. Meteorol.* 66(1), 1-9, (2010)
- 13) Morishita, T., Sakata, T., Takahashi, M., Ishizuka, S., Mizoguchi, T., Inagaki, Y., Terazawa, K., Sawata, S., Igarashi, M., Yasuda, H., Koyama, Y., Suzuki, H., Toyota, N., Muro, M., Kinjo, M., Yamamoto, H., Ashiya, D., Kanazawa, Y., Hashimoto, T. and Umata, T., “Methane uptake and nitrous oxide emission in Japanese forest soils and their relations to soil and vegetation types”, *Soil Sci. and Plant Nutr.*, 53, 678-691, (2007)
- 14) Keppler, F., Hamilton, J.T., Brass, M., and Röckmann, T., “Methane emissions from terrestrial plants under aerobic conditions”, *Nature*, 439, 187-191, (2006)
- 15) Guenther, A., Zimmerman, P. R., and Harley, P. C., “Isoprene and 15 monoterpene emission rate variability: model evaluations and sensitivity analysis”, *J. Geophys. Res.*, 98, D7, 12609-12617, (1993)

## 7. 国際共同研究等の状況

国際共同研究計画名：日本とフランスの森林におけるメタンフラックスの比較

協力案件名：日本とフランスの森林におけるメタンフラックスの比較

カウンターパート氏名：Daniel Epron 教授

所属：National Institute for Agricultural Research (INRA)

国名：フランス

連携状況：INRAに所属するDaniel Epron 教授との共同研究が開始され、フランスからJade Salleles 研究員が山城試験地に派遣された。同氏の助言と実験への協力によって山城試験地では高速メタン計を用いた春期および夏期におけるメタンフラックスの観測が実現した。INRAに所属するPascale Maillard、Caroline Plain、Stephane Ponton、Bernard Longdoz研究員らとDaniel Epron 教授も山城試験地を訪れ、現地にて専門的な立場からの森林のメタンフラックス観測手法に関する助言を得た。今後も、さらに意見交換を重ねながら観測手法の改良と比較観測を進めていく予定である。

## 8. 研究成果の発表状況

## (1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- 1) Takafumi Miyama, Taro Hashimoto, Yuji Kominami, Kenta Nakagawa, Motonori Okumura and Susumu Tohno, “Seasonal variation of the methane concentration profile in a warm-temperate mixed forest”, J. Agric. Meteorol., 66, 1, 1-9, (2010)
- 2) Takafumi Miyama, Kenichi Yoshimura, Yuji Kominami, Motonori Okumura, Mioko Ataka, Naoki Makita and Jade Salleles, “CH<sub>4</sub> emissions from litter-covered sandbars and the edges of a mountain stream in a secondary deciduous broadleaf forest”, J. Agric. Meteorol., 67, 1, 43-51, (2011)
- 3) 橋本太郎, 深山貴文, 小南裕志, 吉村謙一, 牧田直樹, 金澤洋一, “落葉広葉樹二次林におけるルートリターからのメタンの発生特性について”, 森林応用研究, 19, 2, 35-39, (2011)

<査読付論文に準ずる成果発表>

該当せず。

<その他誌上発表（査読なし）>

- 1) 深山貴文, 小南裕志, 森林における二酸化炭素, “メタンおよび非メタン炭化水素の測定方法”, 研究情報, 93:2, 2, (2009)
- 2) 深山貴文, 小南裕志, “メタン濃度プロファイルの尾根および谷タワー間比較”, 森林総合研究所関西支所年報, 50:51, 2, (2009)
- 3) 深山貴文, “森林のメタンフラックス連続測定を可能に”, 森林総合研究所第2期研究成果選集, 38-39, (2011)



## (2) 口頭発表 (学会)

- 1) Takafumi Miyama, Yuji Kominami, Kenichi Yoshimura, Motonori Okumura, Mioko Ataka, Naoki Makita and Susumu Tohno, "Spatial variation of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> flux in riparian zone of warm-temperate broadleaf forest in Japan, Proceedings of AsiaFlux Workshop 2009, 114 (2009)
- 2) 深山貴文, 小南裕志, 吉村謙一, 奥村智憲, 安宅未央子, "湿潤域におけるCO<sub>2</sub>およびCH<sub>4</sub>フラックスの変動特性について", 日本森林学会関西支部・日本森林技術協会関西・四国支部連合会合同大会研究発表要旨集 (第60回), 37, 2, 6, (2009)
- 3) Motonori Okumura, Kenta Nakagawa, Yuji Kominai, Takafumi Miyama, Kazuhiro Kinoshita, Susumu Tohno, Akira Tani and Minoru Yoneda, "Isoprene flux measurement using relaxed eddy accumulation method un warm-temperate mixed forest in Japan", Proceedings of AsiaFlux Workshop 2009, 134, 1, 7, (2009)
- 4) 奥村智憲, 中川健太, 小南裕志, 深山貴文, 木下数博, 東野達, 米田稔, "REA法を用いたコナラ林におけるイソプレンフラックスの測定", 日本森林学会関西支部・日本森林技術協会関西・四国支部連合会合同大会研究発表要旨集 (第60回), 40, 1 (2009)
- 5) 吉村謙一, 深山貴文, 小南裕志, 奥村智憲, 安宅未央子, "溪流内のメタン及び二酸化炭素の発生源についての検討", 日本森林学会関西支部・日本森林技術協会関西・四国支部連合会合同大会研究発表要旨集 (第60回), 38, 1, (2009)
- 6) Yuji Kominami, Mayuko Jomura, Masako Dnnoura, Takafumi Miyama, Koji Tamai, Mioko Ataka, Naoki Makita, Akira Matsumoto and Yoshiaki Goto, "Longterm estimation of carbon balance for a warm temperate mixed forest in Japan", International Carbon Dioxide Conference Abstracts, 8th (ICDC8), T2-028, (2009)
- 7) Takafumi Miyama, Yuji Kominami, Kenichi Yoshimura, Motonori Okumura, Masako Dannnoura, Mayuko Jomura and Koji Tamai, "Environmental control factors of CO<sub>2</sub> and CH<sub>4</sub> flux on riparian zone of warm-temperate broad-leaved forest in Japan", International Carbon Dioxide Conference Abstracts, 8th (ICDC8), T2-047, (2009)
- 8) 深山貴文, 小南裕志, 奥村智憲, 吉村謙一, 安宅未央子, 牧田直樹, 檀浦正子, "山城試験地におけるCO<sub>2</sub> および微量ガスフラックス観測と今後の取り組み", 日本農業気象学会2010年度全国大会講演要旨集, 165, (2009)
- 9) Takafumi Miyama, Kenichi Yoshimura, Yuji Kominami and Motonori Okumura, "Characteristics of CH<sub>4</sub> emission from mountain stream in broad leaved deciduous forest", International Symposium on Agricultural Meteorology (ISAM2010) Proceedings, 134, (2009)
- 10) 深山貴文, 小南裕志, 吉村謙一, 奥村智憲, 安宅未央子, Jade SALLELES, "PTR-MSを用いた暖帯落葉広葉樹林における微量ガスフラックス観測", 第61回日本森林学会関西支部大会要旨集, 58, (2010)
- 11) 吉村謙一, 深山貴文, 小南裕志, 奥村智憲, 安宅未央子, Jade SALLELES, "高速メタン計を用いた溪流内のメタン発生特性についての検討", 第61回日本森林学会関西支部大会要旨集, 59, (2010)

- 12) 木下数博, 奥村智憲, 中川健太, 東野達, 小南裕志, 深山貴文, 米田稔, 鱧谷憲, 谷晃, “REA法を用いた温帯混合林におけるイソプレンフラックスの測定”, 生物起源微量ガスワークショップ2010講演要旨集, 3, (2010)
- 13) 奥村智憲, 川本純平, 東野達, 小南裕志, 深山貴文, “森林域におけるイソプレン由来有機エアロゾルの観測”, 生物起源微量ガスワークショップ2010講演要旨集, 7, (2010)
- 14) 深山貴文, 小南裕志, 吉村謙一, 奥村智憲, 安宅未央子, 谷晃, “山城試験地におけるPTR-MS観測について”, 生物起源微量ガスワークショップ2010講演要旨集, 10, (2010)
- 15) 小南裕志, 深山貴文, 吉村謙一, 奥村智憲, “山城試験地における炭素循環プロセス研究の概要”, 生物起源微量ガスワークショップ2010講演要旨集, 14-15, (2010)
- 16) Kenichi Yoshimura, Takafumi Miyama, Yuji Kominami, Mioko Ataka, Motonori Okumura, “METHANE EMISSION FROM WET AREA IN THE TEMPERATE FOREST -CONTRIBUTION OF WATER AND TEMPERATURE TO METHANE EFFLUX-”, Asiaflux workshop 2010 Proceedings, 65, (2010)
- 17) Takafumi Miyama, Kenichi Yoshimura, Yuji Kominami, Mioko Ataka, Motonori Okumura, Akira Tani, “DEVELOPMENT OF CH<sub>4</sub> AND BVOC FLUX MEASUREMENT SYSTEM IN A DECIDUOUS BROAD LEAVED FOREST”, Asiaflux workshop 2010 Proceedings, 62, (2010)
- 18) Motonori Okumura, Kenta Nakagawa, Yuji Kominami, Takafumi Miyama, Kazuhiro Kinoshita, Susumu Tohno, Ken Hamotani, Minoru Yoneda, Akira Tani, “LONG-TERM MEASUREMENTS OF ISOPRENE FLUXES ABOVE WARM-TEMPERATE MIXED FOREST IN JAPAN”, Asiaflux workshop 2010 Proceedings, 117, (2010)
- 19) 奥村智憲, 川本純平, 東野 達, 小南裕志, 深山貴文, “森林域におけるイソプレン由来有機エアロゾルの観測”, 第27回エアロゾル科学・技術研究討論会講演要旨集, A03, 5-6, (2010)
- 20) 奥村智憲, 東野 達, 小南裕志, 深山貴文, 谷晃, 山本浩平, “近畿地方における森林植生からの揮発性有機化合物放出量の推定”, 第51回大気環境学会年会要旨集, 2D1000, (2010)
- 21) Motonori Okumura, Kenta Nakagawa, Yuji Kominami, Takafumi Miyama, Kazuhiro Kinoshita, Ken Hamotani, Susumu Tohno, Minoru Yoneda, Akira Tani, “Isoprene flux measurement using relaxed eddy accumulation method in warm-temperate mixed forest in Japan”, Earth observation for land-atmosphere interaction science Abstract book, 47, (2010)
- 22) Takafumi Miyama, Kenichi Yoshimura, Yuji Kominami, Mioko Ataka, Motonori Okumura, Akira Tani, “BVOCs observation in a warm-temperate deciduous broad leaved forest”, 5th International PTR-MS Conference 2011 Contributions, 233, (2011)
- 23) Takafumi Miyama, Kenichi Yoshimura, Yuji Kominami, Mioko Ataka, Motonori Okumura, Akira Tani, “Time series variations of CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub> and BVOC flux in a broad leaved deciduous forest”, Proceedings of ISAM 2011, 159, (2011)
- 24) Kenta Nakagawa, Motonori Okumura, Yuji Kominami, Takafumi Miyama, Susumu Tohno, Ken Hamotani, Akira Tani, “Isoprene Flux Measurement using Relaxed Eddy Accumulation Method in Warm-temperate Mixed Forest in Japan”, Proceedings of ISAM 2011, 156, (2011)

(3) 出願特許

特に記載すべき事項はない。

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

特に記載すべき事項はない。

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。