

課題名	R F - 0 6 2 陸域生態系CO <sub>2</sub> フラックスの分離評価を目的とした同位体・微量ガス観測手法の開発		
課題代表者名	高橋善幸（独立行政法人国立環境研究所地球環境研究センター炭素循環研究室）		
研究期間	平成18－19年度	合計予算額	19,304千円（うち19年度 9,307千円） ※上記の合計予算額には、間接経費4,454千円を含む
研究体制	<p>陸域生態系CO<sub>2</sub>フラックスの分離評価を目的とした同位体・微量ガス観測手法の開発 （独立行政法人国立環境研究所）</p>		
研究概要	<p>1. 序（研究背景等）</p> <p>現在の陸域生態系のCO<sub>2</sub>収支（フラックス）観測は、主に炭素吸収量の現状把握の高精度化に重点をおいて実施されている。しかしながら、気候変動による温度や降水量といった環境因子の変動のもたらし陸域生態系の炭素吸収量の変化を予測するためには、陸域生態系の正味のCO<sub>2</sub>フラックスを構成成分毎に分離した上で、それぞれの環境因子に対する応答特性の違いを評価する必要がある。今回の研究では、正味のCO<sub>2</sub>フラックスを呼吸（ここでは生態系呼吸量）と光合成（ここでは総一次生産量）に分離評価することを目的とする。</p> <p>一般的に呼吸・光合成分離は、渦相関法と呼ばれる微気象的な手法により観測した生態系の正味のフラックスの観測値をプールし、夜間の光合成作用の起こらない時間帯の正味のフラックスを基に生態系呼吸量を経験的な温度近似式で表し、この近似式からの差を光合成とみなすことにより行われる。この経験的な温度近似式を用いた手法にはその適用条件に関して多くの制約があり、解析の高度化の障害となっている。特に、温度以外の環境因子、例えば水分条件や対する応答やフェノロジーに関連した呼吸・光合成量の季節性などを正確に評価することが困難である。</p> <p>本研究では、この経験的な温度近似式による手法と異なる手法を導入することで、陸域生態系のCO<sub>2</sub>フラックスの環境因子に対する応答特性の解析を高度化し、気候変動に対する陸域生態系の炭素吸収量の将来的推移の推定精度の向上に貢献することを目指す。具体的には、生態系の光合成・呼吸でのCO<sub>2</sub>交換に直接的な関連性のある吸収・放出プロセスを持つ成分を化学的指標（トレーサー）とみなし、そのフラックスを観測することでCO<sub>2</sub>収支に関して新たな独立変数を導入することで、呼吸・光合成の分離評価を行うことを最終的な目標とする。</p> <p>今回の研究では化学トレーサーとしてCO<sub>2</sub>の炭素安定同位体比と硫化カルボニルを対象とする。これらのガス成分については現時点で渦相関法などによる現場でのフラックス連続観測技術が確立しておらず、これらのフラックスを高精度で定量する手法を開発する。</p>		

## 2. 研究目的

今回の研究においては特にCO<sub>2</sub>の安定同位体フラックスを用いた呼吸・光合成分離評価と硫化カルボニル(COS)のフラックスを指標とした光合成量の変動評価を主たる目標とする。このためには、群落スケールでのCO<sub>2</sub>の安定同位体とCOSのフラックスの観測技術が確立される必要がある。通常、CO<sub>2</sub>やH<sub>2</sub>Oのフラックス観測には渦相関法が用いられるが、現時点ではCO<sub>2</sub>安定同位体比やCOSなどの微量ガスのフラックスの定量については、測定機器の応答速度の不足により渦相関法を適用することは極めて困難である。そこで、測定機器に高い応答性を要求しない渦集積法と呼ばれる手法を応用して上下それぞれの風向成分を分離してガラスフラスコに個別捕集し、高精度なラボ分析により決定した濃度差からフラックスを評価することを目指す。渦集積法を応用したこれらの化学トレーサのフラックス定量手法を確立するために以下に挙げる技術的開発を行い、実際の観測からこの手法の有効性を検証することを目的として設定する。

- 1) 微少な濃度差の検出技術の開発：採取したサンプル大気中のCO<sub>2</sub>同位体比およびCOS濃度の高精度な分析。特に、大気中のCOSは約500pptとCO<sub>2</sub>のおよそ100万分の1であり、これを小容量の大気試料から高精度に測定する技術が必要。
- 2) 計測アーティファクトの最小化：サンプル大気の採取や保存、輸送に際して、サンプルの化学的変質を最小限に抑えること。CO<sub>2</sub>安定同位体比に対する分別作用や、金属表面へのCOSの吸着の影響を可能な限り抑制するための技術的知見の集積
- 3) 渦集積法の最適条件の導出：観測を行う場所の乱流拡散特性に対して適切なサンプリング条件を実際のデータを用いたシミュレーションにより導出する。この作業においてはCO<sub>2</sub>同位体比および硫化カルボニルの推定濃度差を最大化することにプライオリティをおく。

### 3. 研究の方法及び結果

#### 陸域生態系CO<sub>2</sub>フラックスの分離評価を目的とした同位体・微量ガス観測手法の開発

今回の研究では、渦集積法を応用して群落スケールでのCO<sub>2</sub>安定同位体比と硫化カルボニルのフラックスを測定し、これを化学トレーサー（指標物質）として用いることで、従来とは異なる方法で、CO<sub>2</sub>の正味のフラックスを呼吸と光合成に分離することを目指して、総合的な観測システムの開発を行うとともに技術的知見を集積し、最終的には実際の森林においてその手法の妥当性を検証することを目指した。

具体的に実施した内容は以下の通り。

- 1) 実際に森林群落上で観察された微気象データ(10Hzでの風速、温度、湿度、CO<sub>2</sub>などの変動)をもとに、いくつかの異なる制御パラメータで渦集積法のサンプリングをシミュレートし、これをもとに森林群落上での渦集積法によるサンプリングの妥当性を評価すると共に最適な設定を導出した。
- 2) 少量の大気試料(約100CC程度の消費を想定)を用いて大気中に微量に含まれる硫化カルボニルを高精度に測定するための、分析システムを開発・作成し、性能評価を行った。
- 3) 渦集積法を応用して、森林の群落上で、上下の風速成分を個別の中間貯留容器に採取し、これを保存性に優れたガラスフラスコに自動的に移充填するサンプリングシステムを開発・作成し、複数の異なる素材を用いた中間貯留容器をもちいて容器内での試料大気の保存性について比較検証を行った。

その結果として以下のことが分かった。

森林上空では時間空間スケールの大きな渦が物質の輸送の上で卓越しており、渦集積法を用いる場合は10Hzで装置を応答制御しても1Hzで応答制御しても得られる結果に変わりがないことが分かった。

渦集積法により群落スケールでのフラックスを定量するためにはCO<sub>2</sub>の安定同位体および硫化カルボニルについて非常に高精度の分析を用いる必要があることが分かった。

硫黄化学発光検出器を装備したガスクロマトグラフと自作の前処理装置により大気中の硫化カルボニルを測定する場合、4回の測定でおよそ10pptの精度で濃度を決定することが出来るようになった。これに要する時間は約30分、試料量は150ml程度である。これは従来の研究例に比べて著しく小さな容量の試料を用いた測定が可能となったことを示す。

現時点で硫化カルボニルの測定精度へ大きな影響を与えているのは検出器のベースラインノイズである。実験データの集積によりベースラインノイズの挙動に関する知見が増えており、この影響を適切に排除できれば、測定精度の大幅な向上が期待できる。

渦集積法において用いる中間貯留容器としてはEvalというガスバリアフィルムを用いたバルーンが優れた性能をもっており、これを用いることで、信頼性の高い観測を行うことができると判断された。一方、比較的良く使用されるアルミニウム薄膜をポリエチレン樹脂でラミネートしたバッグについては、CO<sub>2</sub>の安定同位体比についての保存性が著しく悪いため、本研究での使用に資しないと判断された。

#### 4. 考察

本研究の初期の計画では、課題が継続している期間内で作成したシステムを用いて野外観測を行うことを目標としていた。しかしながら、結果として、少量の大気試料を用いて硫化カルボニルの高精度測定を行う技術の開発の遅れがボトルネックとなり、野外観測の実施には至らなかった。本研究の結果として、群落スケールの硫化カルボニルフラックスを定量するためにもっとも重要な技術的な要件は、分析精度の向上にあることが分かった。硫化カルボニル濃度の高精度測定手法の確立に関しては、現時点で、ハードウェアの開発は一段落しており、精度向上を目指す上でもっとも大きな課題はSCDに特有のベースラインノイズに影響されないクロマト処理の方法を確立することである。SCDのベースラインノイズの挙動の特徴については、本研究期間内に、既に多くの知見を得ており、この問題を解決する糸口が見え始めた段階にある。希望的観測ではあるが、近い将来に大気中の硫化カルボニルを1%以内の精度で測定することが可能となる見込みである。

本研究で硫化カルボニルの測定に用いたSCD(硫黄化学発光検出器)は極めて高感度であることに加え、導入される硫黄の数に対してリニアな出力が得られるという特徴がある。この特徴を利用して、長期間にわたり硫化カルボニルの測定精度を効率的に管理する手順を考案した。

また、渦集積法によるCO<sub>2</sub>安定同位体のフラックスの定量手法の確立を目的として、中間貯留容器の比較を行ったが、Evalガスバリアフィルムを用いたバルーンが大気CO<sub>2</sub>の安定同位体比に対して極めて高い保存性を持つことが確認できた。従来の先行研究例で渦集積法によるCO<sub>2</sub>の同位体フラックスの観測に関する試みが成功してこなかった一つの原因は、サンプリングから測定までの間のサンプル大気の変質をコントロール出来なかったことにあると考えている。Evalを用いたバッグを中間貯留容器として用いることで、サンプリングから測定までの間のサンプル大気の変質を高レベルで抑制できると考えられるので、渦集積法によるCO<sub>2</sub>の同位体フラックスの定量が実現に近づくことと期待できる。また、Evalは多くのガス成分について、他の樹脂フィルムに比較して著しくガス透過性が低いため、CO<sub>2</sub>やその安定同位体比以外のガス成分の観測にも流用が容易であると予想できる。

今回、開発した観測システムはガラスボトルによる観測現場から実験ラボへのサンプルの輸送を前提としているため、長期的・連続的な観測には不向きであるが、現場で連続的に稼働できる測定装置が入手できれば、これをボトルサンプル移充填ユニットと置き換えることで、渦集積法による長期的連続的な観測システムに容易に移行できる構造となっている。

渦集積法は渦相関法に比較して、フラックスの計測に際して、用いる分析計に高い時間応答性を要求しないため、組み合わせることの出来る分析計が渦相関法に比べて多いので、広い範囲での応用が期待できる。そのため、今後、大気・陸域生態系間の様々なガス交換の研究において重要な観測技術となっていくものと予想している。

#### 5. 本研究により得られた成果

##### (1) 科学的意義

大気中の硫化カルボニルを少量のサンプルから高精度に測定するために必要な技術的知見を集積し、今後、炭素循環研究の重要なツールとして硫化カルボニルを利用していくための基盤を整備した。

本研究で得られた技術的知見を発展させていくことで、従来とは異なる視点から大気・陸域生態系間のCO<sub>2</sub>交換を解析することが可能となると期待される。特に、温度以外の環境因子の変動に対する呼吸・光合成フラックスの応答の違いについて、今後、これまでにない重要な知見が得られるようになる可能性がある。

##### (2) 地球環境政策への貢献

本研究の結果、陸域生態系のCO<sub>2</sub>吸収量の環境因子の変動に対する応答特性を従来に比べてより正確に評価するアプローチが確立する。この手法を用いた観測を展開することにより集積されるデータは生態系炭素循環モデル計算の重要なインプットデータとなると考えられる。CO<sub>2</sub>観測に連動した多項目の分析データの集積が、気候変動による影響を指向した炭素循環研究の高度化に極めて有効であることが研究コミュニティにおいて理解されれば、世界的なフラックスネットワークで同様の観測が実施されるようになり、より広いスケールで多様な陸域生態系の特徴を反映したデータが集積されることになると期待できる。

## 6. 研究者略歴

課題代表者：高橋善幸

1967年生まれ、名古屋大学理学部卒業、理学博士、  
現在、独立行政法人国立環境研究所 研究員、

主要参画研究者

1) 高橋善幸 (同上)

2) 平田竜一 1976生まれ、北海道大学大学院農学研究科博士課程満了、農学博士、  
現在、独立行政法人農業環境技術研究所 ポスドクフェロー

## 7. 成果発表状況（本研究課題に係る論文発表状況。）

(1) 査読付き論文

なし

(2) 査読付論文に準ずる成果発表（社会科学系の課題のみ記載可）

なし