

報告番号	※	第	号
------	---	---	---

主 論 文 の 要 旨

論文題目 人為起源イオウの沈着が森林生態系における
イオウ動態へ与える影響

氏 名 * 申請者氏名 石田 卓也

論 文 内 容 の 要 旨

イオウ (S) は、地球上の生命活動や物質循環において重要な役割を果たしている元素であり、さらに人間活動の影響を受けている代表的な元素の一つである。産業革命以降、化石燃料の使用による人為起源 S の排出が世界中で続いており、その規模は自然起源 S 発生量に匹敵すると見積られている。森林生態系の物質循環においても人為起源 S の影響を無視することはできない。大気から沈着した S は森林生態系内を循環し、徐々に土壌に蓄積される。土壌中の S は有機態、無機態、両方の形態で存在している。硫酸イオンは好氣的な森林土壌中での主要な無機態 S であり、自由水とともに移動し、粘土鉱物と吸脱着を繰り返しながら、最終的に森林生態系から流出する。このような森林生態系における S の動態を明らかにすることは、森林生態系システムの理解と、それに対する人間活動の影響を解明することに繋がる。日本の森林土壌は、広く火山灰の影響を受けており、硫酸イオン吸着量が欧米（多くが 3 mmol kg^{-1} 以下）と比較して多い ($\sim 47 \text{ mmol kg}^{-1}$) という特徴がある。しかし、日本の森林生態系において S 動態を研究した例は非常に少ない。また日本において、大気中 S の観測は 1960 年代半ばから一部の地域で始まったが、それ以前の期間において利用できる大気 S に関するデータはほとんど存在しない。S 沈着に関するデータの欠陥は、S 動態研究を進める上で一つの障壁となっていた。そこで本研究は、森林生態系への S 沈着履歴を復元すること、および過去の多量の人為起源 S 沈着が森林土壌における硫酸イオン動態へ与える影響を明らかにすることを目的とした。

本研究では、まず環境復元試料（樹木年輪）を用いて、データが存在しない期間や地域において S 沈着の復元を試みた。樹木は、環境中で、主に土壌中の物質を取り込みながら年輪を形成する。そのため、年輪中 S によって S 沈着履歴を評価できる可能性が指摘されている。また、人為起源 S の沈着が森林土壌中の硫酸イオン動態へ与える影響や痕跡を見出すため、土壌、林内雨、渓流水中の理化学性を分析し、さらに、

土壌への硫酸イオンの吸着平衡の状態を調べた。調査は、S 沈着履歴が異なると考えられる中部地域の 2 か所の森林、人為起源 S が多量に沈着したと考えられる三重県の四日市サイト (YOK) と都市部から離れた愛知県の稲武サイト (INA) を対象地として行った。本研究により、森林生態系における S の動態に関して、以下の知見を得た。

1) INA において、生木から採取した年輪試料と切り株 (5 年間林内に放置) から採取した試料の分析により、生木-切り株試料間で、同年代に形成された年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値に有意な差は認められなかったことから、切り株試料が、 $\delta^{34}\text{S}$ 分析に利用できることを証明した。この成果は、今後のイオウに関する環境復元研究の可能性を広げるものである。

2) スギ年輪中の $\delta^{34}\text{S}$ 値は、大気汚染の歴史と起源中の $\delta^{34}\text{S}$ 値を反映していることが明らかとなった。年輪中の $\delta^{34}\text{S}$ 値は、両サイトともに 1950 年代から 1970 年代にかけて低い値を示し、1970 年前後に形成された年輪で最低値を示した。その値は YOK (-7.0%) の方が INA (-0.3%) よりも低い値であった。日本で使用されている石油などの人為起源 S の $\delta^{34}\text{S}$ 値は低い (-0.6 ~ -4.0%) ため、YOK では多量の人為起源 S が沈着したと考えられた。一方、スギ年輪中の S 濃度は、材-辺材の違いによって明らかに異なっており、S 沈着の指標として適さないことが明らかとなった。

3) 1830 年代までの年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ の長期変動から、人為的影響のない時代の土壌中の $\delta^{34}\text{S}$ 値を推定することができた。170 年生のスギ切り株から長期の $\delta^{34}\text{S}$ 分布を分析した結果、1830 年代から 1940 年代前半までの $\delta^{34}\text{S}$ 値はほとんど変化しておらず (+4.3 ~ +6.1%)、特に 1830 年代から 1880 年まではほぼ一定の $\delta^{34}\text{S}$ 値 (+5.4 ~ +6.1%) をとっていた。この 1940 年以前に形成された年輪は、自然起源 S の指標となることを示した。

4) 年輪中の $\delta^{34}\text{S}$ 値への影響要因について検討した結果、年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値は同位体効果の影響を受けていることが示唆された。YOK の年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値の最低値 (-7.0%) は、日本で報告されている人為起源 S 沈着 (-0.6 ~ -4.0%) や自然起源 S 沈着 (+12.3 ~ +14.0%) 中の $\delta^{34}\text{S}$ 値よりも低い値であり、年輪へ S 固定されるまでの過程において同位体効果を受けたことが示唆された。一方、心材-辺材の違いによる $\delta^{34}\text{S}$ 値の変化は認められなかった。

5) 年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値から、S 沈着履歴の定量的な復元法を提案することができた。同位体効果を組み込んだ Mixing model を作成し S 沈着量を推定した結果、YOK では欧米における観測値の最大 (525 mmol m⁻² yr⁻¹) に匹敵する、非常に多量の S (489 mmol m⁻² yr⁻¹) が沈着していたことが示唆された。今後、更なる検証やモデルの改良が必要であるが、年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値を用いた S 沈着量の復元手法は、過去の大気汚染データの補完に役立てることが期待できる。

6) 現在の土壌中の硫酸イオン吸着量は、主に Al 酸化物量と有機物量によって決定されており、過去のイオウ沈着の影響は不明瞭であることが明らかとなった。また、土壌中の $\delta^{34}\text{S}$ 値に対する人為起源 S 沈着の影響も不明瞭であった。

7) 林内雨、渓流水の硫酸イオン濃度から、YOK では生態系からの S 流出が示唆され

た。様々な要因が影響しているものの、過去における多量の S 沈着時に生態系に蓄積された S が、現在流出している可能性を見出した。

8) 土壌に存在する硫酸イオン吸着サイト量に対する実際の吸着量（飽和度）を求め、過去に多量 S 沈着の硫酸イオン吸着に対する影響を評価することができた。吸着容量にサイト間で差はなかったものの、飽和度は YOK (1.00 ± 0.05) の方が INA (0.74 ± 0.09) よりも高く、これは過去の多量の人為 S 沈着によって上昇した結果であると推察された。この結果より、土壌においては硫酸イオンの飽和度が、S 沈着の影響を示す指標として有用であることが示された。

本研究によって過去の多量の人為 S 沈着は、年輪中 $\delta^{34}\text{S}$ 値にその痕跡を残し、森林土壌中において飽和度の上昇やそれに基づくと考えられる生態系からの S 流出など、現在の硫酸イオン動態を変化させていることが明らかとなった。また本研究で提案した、S 沈着と硫酸イオン動態を評価するための指標や方法は、森林生態系における S 動態研究を進める上で非常に有用である。本研究で得られた知見に基づき、継続的な調査を行うことで森林生態系システムの理解と、それに対する人間活動の影響の解明につながることを期待できる。