

氏名(本籍)	高橋純子(東京都)
学位の種類	博士(環境学)
学位記番号	博甲第6535号
学位授与年月日	平成25年3月25日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	生命環境科学研究科
学位論文題目	日本海側森林土壌における硫酸イオンの現存量と起源

主査	筑波大学教授	農学博士	東照雄
副査	筑波大学教授	理学博士	濱健夫
副査	筑波大学教授	農学博士	田村憲司
副査	筑波大学准教授	博士(農学)	上條隆志

論文の内容の要旨

本論文は、現在、東アジア圏で発生する硫黄酸化物等の越境大気汚染によるわが国の森林生態系を含む環境への影響が大きく懸念されているにも関わらず、これまで全く調査・研究が行われて来なかった日本海側森林土壌における硫酸イオンについて、その現存量と起源を明らかにすることを目的とした。

第2章では、越境大気汚染による硫黄負荷が懸念される北陸地方の土壌型を異にする森林土壌11断面について、硫酸イオンの現存量と断面分布およびそれを決定する土壌化学性等を調べた。その結果、硫酸イオンの断面分布は、同じ土壌型であれば類似しており、その現存量は、赤黄色土で最も高く、次いでアロフェン質黒ぼく土と黄褐色森林土で高く、非アロフェン質黒ぼく土、普通褐色森林土およびポドゾルでは低かったが、いずれも、これまでに欧米で報告された土壌中の硫酸イオン量と同じか、10倍以上高い傾向にあった。硫酸イオンの主要な吸着母体は、黒ぼく土では、短周期型粘土鉱物 $[(Al_i-Al_p) + (Fe_o-Fe_p)]$ であり、その他の土壌では、結晶型粘土鉱物 $[(Al_i-Al_p) + (Fe_o-Fe_p)]$ であることが明らかにされた。そして、硫酸イオンの付加的吸着量 (S-retention) は、これらの粘土鉱物の種類に関わらず、吸着母体となる (Al+Fe) 量との間に極めて高い相関を示した。さらに、硫酸イオン現存量と吸着母体となる (Al+Fe) 量との間には、土壌の年代によって異なる関係が認められ、古い土壌ほど硫酸イオン現存量が高い傾向が示された。土壌に特異的に吸着された硫酸イオンは溶出しにくく、時間をかけて徐々に蓄積した可能性が考えられ、硫酸イオンの現存量は、その土壌の吸着能 (吸着母体量) や現在の硫黄沈着量だけでは決定されないことが明らかとなった。

第3章では、越境大気汚染による硫黄負荷の影響を調べるために、東日本の森林植生下の黒ぼく土を中心に、硫酸イオン現存量とその化学性について日本海側と対照地 (内陸部および尻尻島) との比較を行った。その結果、硫酸イオン吸着能の高い黒ぼく土では、吸着母体となる Al と Fe 量については地域間に有意な差は認められないにも関わらず、硫酸イオン現存量は、日本海側で対照地よりも有意に高く、硫酸イオンが蓄積していることが示された。一方、硫酸イオンが吸着しにくいと考えられる褐色森林土では、硫酸イオン現存量に地域間の差は認められなかった。また、日本海側の黒ぼく土で、対照地よりも有意に土壌 pH が低く、交換性 Al 量が多い傾向が認められ、とくにニッ森 I の表層では、生物に有害なレベルの水溶性 Al が存在し

ているものと考えられた。現段階で Al 溶出の影響が系外に及んでいる土壤は確認されなかったものの、Al に富む黒ぼく土は、一端酸による Al の溶脱がはじまると多量の Al が系外に流出する可能性が高く、さらに硫酸イオンが蓄積した土壤は、酸性化の回復に時間がかかることが予想されることから、その被害は欧米よりも広範に、そして長期間に及ぶ可能性が示唆された。

第4章では、硫黄安定同位体分析を用いて土壤中に蓄積している硫酸イオンの起源を特定するとともに、その起源の寄与率の推定を行った。その結果、土壤中の蓄積硫酸イオンの硫黄安定同位体比 $\delta^{34}\text{S}$ (‰) は、利尻島・北海道沿岸部を含む日本海側で +4.7 ~ +16.6‰ (平均 +11.5‰)、内陸部で +2.5 ~ +7.2‰ (平均 +4.9‰) となり、明確に異なる傾向が示された。内陸部の $\delta^{34}\text{S}$ は、日本で用いられている石油の $\delta^{34}\text{S}$ (-0.9‰) と陸上生物起源硫化水素の $\delta^{34}\text{S}$ (+6.0‰) の中間の値となり、これらの混合物が起源であると考えられた。一方、日本海側の $\delta^{34}\text{S}$ は、海塩性硫酸イオン (+20.99‰) の影響を受け、高い値を示した。そこで、既存の降水モニタリングデータから各調査地点の海塩寄与率を推定し、非海塩性硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ を算出したところ、日本海側と内陸部で有意な差が認められ、海塩性硫酸イオンの影響を除いても日本海側で高い $\delta^{34}\text{S}$ となった。とくに、日本海側の黒ぼく土の非海塩性硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ は +3.2 ~ +12.6‰ (平均 +6.6‰) と算出され、内陸部の土壤の $\delta^{34}\text{S}$ と中国起源硫黄酸化物の $\delta^{34}\text{S}$ (+7.8‰) の中間の値となり、越境大気汚染物質が混入している可能性が示された。内陸部と日本海側の硫酸イオンの現存量と $\delta^{34}\text{S}$ の差が全て海塩性硫酸イオンと中国起源の硫黄酸化物に起因すると仮定して、黒ぼく土について土壤中の硫酸イオンの起源の寄与率を算出したところ、中国起源の硫黄酸化物の寄与率は、利尻島で 6 ~ 10% と少なく、東北地方・新潟県で 4 ~ 52%、北陸地方で 26 ~ 78% となり、日本海側の南地域ほど越境大気汚染の影響が強いことが示された。

以上のことから、第5章で示したように、日本海側森林土壤における硫酸イオンは、越境大気汚染の影響を如実に反映し、その量と質（硫黄安定同位体比）が変化すると結論付けられた。これまで、日本では酸性雨や越境大気汚染の影響を評価する上で、土壤中の硫酸イオン現存量については全く関心が持たれていなかったが、酸性雨や越境大気汚染の影響評価と将来予測のために、土壤中の硫酸イオンについても継続的なモニタリング調査を行うことが重要であることも言及された。

審査の結果の要旨

本研究は、東アジア圏で発生する硫黄酸化物等の越境大気汚染によるわが国の森林生態系を含む環境への影響が懸念されているにも関わらず、これまでに全く調査・研究が行われて来なかった日本海側森林土壤の硫酸イオンについて、その現存量と起源を明らかにすることを目的として行われたが、上記の論文の要旨に記載したような国内外で初めて得られた研究成果を上げたことは高く評価される。とくに、本研究により、日本海側森林土壤における硫酸イオンの現存量の実態が明らかにされ、硫酸イオンの現存量は、東日本・北海道の内陸部と比較すると、日本海側森林土壤において、量的に有意に多く、硫酸イオンの硫黄の安定同位体比の測定から、東アジア圏からの越境汚染の影響が日本海側の南部地域ほど強いことが端的に明らかにされた本研究成果は、今後のわが国における森林土壤・生態系の保全を考える上で、貴重な基礎的な知見であると高く評価された。

平成 25 年 1 月 17 日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士（環境学）の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。