つくだ せい げん 名 **佃 誠 玄** 

学位(専攻分野) 博 士 (農 学)

学位記番号 農 博 第1479号

学位授与の日付 平成17年3月23日

学位授与の要件 学位規則第4条第1項該当

研究科·専攻 農学研究科森林科学専攻

学位論文題目 A Study on Amount and Sources of Atmospheric Phosphorus

Deposition for Estimation of Net Atmospheric Phosphorus Input to

Terrestrial Ecosystems

(大気から陸上生態系への正味のリン流入量を推定するための大気降下物に

含まれるリンの量および起源に関する研究)

(主 査)

論文調查委員 教授竹内典之 教授小﨑 隆 助教授杉山雅人

## 論文内容の要旨

本論文では、大気に由来する陸上生態系へのリンの流入量を把握することを目的とし、大気降下物に含まれるリンの量および起源について、定性的・定量的な研究を行った。研究対象地は、京都府北部に位置する芦生研究林とした。

第2章では、大気降下物試料の採取についての方法論的検討を行った。林内の露場中央に、水平方向および垂直方向に試料採取装置を展開し、大気降下物の反復採取を行い、リン、ナトリウム、マグネシウムの含量を測定した。各元素の降下量について、微視的異方性を評価した結果、ナトリウム、マグネシウムに比べ、リンの降下量が極めて高い微視的異方性を持つことが分かった。降下量と混入物や気温との関係、フィルタ試料の観察等の結果から、リン降下量の異方性は、昆虫や花粉等の生物活動に由来するものであることが示唆された。生物活動はほとんどが周辺環境に由来し、集水域や森林の正味の養分収支には寄与しない。すなわち、陸上生態系を対象としたリンの収支を考える上で、生物活動は試料の汚染要因と考えなければならない。よって、リンの大気流入量測定にあたっては、試料汚染を可能な限り軽減することが必要となる。本研究の結果からは、大気から陸上生態系への正味のリン流入量を推定するためには、1)タワー上で試料を採取し、2)試料を多数同時反復採取し、3)異物混入試料を除外し、4)最もリン含量の少ない試料を採用すること、が望ましい方法論であると結論された。

第3章および第4章では、大気降下物に含まれる溶存態リンおよび全リンの量および起源について検討した。約3年間に亘り、第2章で得られた方法論に基づいて大気降下物を反復採取した。得られた試料について、リンを化学形態別(溶存態/粒子態・無機態/有機態)に定量した。また、指標元素(アルミニウム、鉄、モリブデン、硫黄等)についても定量した。さらに、降下量の季節変動や元素間の相関の解析、フィルタ試料の電子顕微鏡による観察、大気のトラジェクトリ解析、標準試料(中国黄土、芦生土壌、芦生花粉)を用いた抽出実験を行った。その結果、黄砂に由来するリンは2月から3月に降下量のピークを持ち、アルミニウムを指標として推定できた。また、化石燃料の燃焼に由来するリンは、12月から3月に降下量のピークを持ち、モリブデン・硫酸イオンを指標として推定できた。その他のリンの降下量は、4月にピークをもち、春から夏にかけて高く、大部分が花粉等、集水域内部の生物活動に由来すると推定された。3年間の平均による全リン年間降下量は783μmol/m2であって、その約15%は黄砂に、約39%は化石燃料に、約47%は生物活動(試料汚染)に由来すると推定された。すなわち、第2章で得られた方法論を用いても、試料汚染を完全には排除できないが、その他の情報を加味することにより、試料汚染を定量的に評価できることが明らかとなった。また、トラジェクトリ解析および石油と石炭の組成の違いから、化石燃料の燃焼に由来すると推察された。

第5章では、リンの大気降下量とその起源に関する先行研究における議論、大気が陸上生態系のリン収支に果たす役割、および今後の課題を検討した。本研究で得られた全リン降下量は、先行研究と比較して低いレベルとなっていた。これは、

本研究では先行研究に比べ試料汚染が軽減されているためと考えられた。リンの大気降下量に関する文献値を、陸上生態系へのリン流入量として利用する場合には、試料汚染の影響を慎重に検討する必要があると結論された。また、文献値によれば、陸上生態系から河川水により流出するリンの量は、本研究で得られた大気由来の流入量とほぼ同レベルであり、大気が陸上生態系に対する重要なリン供給源となっている可能性が示唆された。

リンの大気降下量に関する研究の歴史は長いものの、降下物の起源に関する議論はほとんどされてこなかった。本研究の 方法論によれば、試料汚染を軽減した上で、大気降下物に含まれるリンを起源毎に定量的に評価できる。今後、同様な方法 論により、世界各地でリンの大気降下量の実測がなされれば、リンの生物地球化学的循環に占める大気の役割についての理 解が飛躍的に深まることが期待される。

## 論文審査の結果の要旨

リンは、生態学的、環境科学的に極めて重要な元素であり、生態系におけるリンの循環や養分収支に関する歴史も長い。 しかし、リンは常温常圧で気体として安定な分子種が存在しないこともあり、リンの生物地球化学的循環に占める大気の役割については、十分な理解がされてきたとは言えない状況にあった。

大気からのリン流入量の測定にあたっては、大気降下物試料の採取および分析が基本的な方法論となる。しかし、リンの 大気降下量レベルは極めて低く、昆虫や植物片など、生物活動に由来する物質が試料に混入すれば、データを大きく乱す。 かかる試料汚染の問題は、従来から検討課題として挙げられてきたにも関わらず、抜本的な解決手法は未だ得られていなか ったのが実情である。大気降下物は、河川水や湖沼水、海水、土壌、岩石等の一般的な地球化学的試料と異なり、試料採取 にあたっての時間的・空間的制約が極めて厳しい。このことは、リンの大気流入量測定における試料汚染問題の解決が困難 であった一因と言えよう。

本論文は、かかる課題を解決することを試みたものであり、その評価すべき主要な点は以下のとおりである。

- 1. 陸上生態系のリン収支を把握するという目的において、生物活動に由来する物質は試料汚染に相当する、という理論的枠組みを明瞭に示したこと。
- 2. タワーを用いた試料の反復採取と分析を基本とする方法論によれば、試料汚染を有効に軽減できることを示したこと。
- 3. 降下量の季節変動、リンの分画定量、各起源物質の組成評価、他の成分との相関、トラジェクトリ解析等を利用すれば、大気降下物に含まれるリンを起源毎に評価できること、すなわち、試料汚染に由来するリンの量を定量的に評価できることを明らかにしたこと。
- 4. 先行研究の方法論的検討から、これまで得られたリン降下量のデータは、周辺生物の活動の影響を強く受けている可能性があり、陸上生態系へのリン流入量と考えると、過大評価となりうることを示したこと。
- 5. 試料汚染を除外しても、リンの大気流入量は、河川からの流出量とほぼ同レベルにあり、大気が陸上生態系に対する重要なリン供給源となりうることを示したこと。

以上のように本論文は、リンの生物地球化学的循環について、極めて重要な知見を提供するものであり、生態学、地球化学、環境科学に対し貢献するところが大きい。

よって、本論文は博士(農学)の学位論文として価値あるものと認める。

なお、平成17年2月17日、論文並びにそれに関連する分野にわたり試問した結果、博士(農学)の学位を授与される学力が十分あるものと認めた。