（ 続紙 １ ）

京都大学	博士（　人間・環境学　）	氏名	細田　耕
論文題目	フブスグルーウスチイリムスク水系における物質の化学動態		

（論文内容の要旨）

水圏における物質の分布・存在形態ならびにそれらの変動を明らかにすることによって、水域の生物地球化学過程や物質循環機構の理解が可能となる。もちろん、これらの十全な理解には､その水域の流域に関する知見が重要となることは言を俟たない。流域の地質・地形・気候・植生・人為活動等の環境要因が物質の分布・存在形態に大きく影響するからである。長大な河川水系を研究する際には、この点に、特に注意が必要である。上流から下流への流下に伴い、環境要因が徐々にあるいは急激に変化しうるからである。このことは、逆に、物質の分布・存在形態の解明により、流域の環境要因の変化を議論できることにも繋がる。このために、世界各地で超長大な水系が研究されてきた。

本論文では、こうした観点のもとに、モンゴルからロシアに流れるフブスグルーウスチイリムスク水系を対象として、生物地球化学過程・物質循環機構と流域の環境要因との関連を議論している。この水系は全長が約2300 kmの長大な水系であって、モンゴル北部のフブスグル湖に端を発し、エギンゴル川－セレンガ川－バイカル湖－アンガラ川と連なるものである。フブスグル湖・バイカル湖という自然湖に加え、アンガラ川に位置する巨大ダム湖、イルクーツク湖・ブラーツク湖・ウスチイリムスク湖を含んでいる。このため流下過程で、地質・地形・気候・植生が多様な遷移を見せ、人為活動の程度も地域によって異なることから、流域の環境変化に伴うさまざまな生物地球化学過程・物質循環の変化が観測できると期待される。

第１章では、長大河川水系における物質の分布・化学動態と流域環境との相互関係について概説している。流域の地質・地形・気候・植生・人為活動等が河川水質に及ぼす影響を先行研究を引用しながら例示し、物質の供給や反応の機構について論じている。特に、流域の地質の違い、主要構成岩石の違いによって、溶存態主要成分濃度が変化することを述べている。また、地形が河川から湖に遷移して、水が流動から停滞へと物理的動きを変えることが、水温の上昇、水塊の清澄性・光透過度の増大をもたらし、植物プランクトンの増殖を誘導して水質変動を招く可能性を論じている。そして、これらの知見を基に、水質分析に立脚して、流域の生物地球化学過程・物質循環とそれを駆動する環境要因の解析を目指す本研究の水圏化学的意義を示している。また、このための研究対象としてのフブスグルーウスチイリムスク水系の好適性、水圏化学研究における本水系の重要性について述べている。

第２章では、フブスグルーウスチイリムスク水系の陸水学・水圏化学的特徴について解説している。長大な河川水系の中に２つの自然湖と３つのダム湖が連なり、水の流動と停滞が繰り返されることに焦点が当てられている。これらの湖の諸元を琵琶湖のそれと比較することにより、本水系での停滞水域の大きさを分かりやすく示すとともに、本水系が日本では決して求められない特異な陸水学研究の対象であることを実

感させている。現地調査の方法に加え、多種多様な化学成分を溶存態と懸濁態に分けて、高感度・高精度に定量する化学分析法の原理と特徴を簡明に説明している。

第３章では、現場観測と室内化学分析によって得られた膨大な測定結果を、各水域に分け、数値を記した表と、水平・鉛直分布を描いた図として、詳細に提示している。これらは、本研究が綿密な実地調査と丁寧で信頼性の高い室内実験に基づいていることを示している。各水域での溶存態と懸濁態の主要成分・微量成分・栄養塩の濃度変化が適確に捉えられている。

エギンゴル川では流下とともに溶存態Ca濃度が増加、懸濁態Ca濃度が減少した。Baの懸濁態濃度は、他のアルカリ土類元素の懸濁態濃度の挙動とは全く異なる傾向を示した。エギンゴル川にセレンガ川が合流すると、溶存態のCa、Mg、HCO_3+2CO_3濃度は減少したが、Na、Cl濃度は増加した。ロシア国内のセレンガ川では支流の流入が、溶存態微量元素濃度を大きく変化させた。アンガラ川では、水域が河川から湖へと遷移すると栄養塩の溶存態濃度は急減し、懸濁態濃度は急増した。このように、河川の流下に伴う水質の明瞭な変動が、各所で確認された。流域の移行に伴う環境要因の変化が、水質に大きな影響を与えていることが、明確に示されている。

第４章では第３章で示されたそれぞれの水質変動について、多面的な考察を加え、それぞれを律している生物地球化学過程・物質循環機構とそれに関与している流域の環境要因を解明している。

エギンゴル川での溶存態・懸濁態Ca濃度の変動は、pHの低いウールヌール川の合流と河川の流下に伴う標高の減少による大気中二酸化炭素分圧の増加の双方によってもたらされる、河川水pHの低下が$CaCO_3$懸濁粒子の溶解を引き起こしたためである。懸濁態Ba濃度の特異的挙動は、水中で生成するMn酸化物粒子へのBaイオンの吸着に支配されている。エギンゴル川とセレンガ川の合流による主要成分濃度の変動は、両河川の流域地質の違いによっている。エギンゴル川は炭酸塩岩の、セレンガ川は火山岩の影響を強く受けているためである。ロシア国内でのセレンガ川ではAlやFeの溶存態濃度が増加した。これは、支流のチコイ川等から腐植物質を高濃度に含む河川水が流入し、AlやFeとの溶存性有機錯体が生成したためである。河川/湖境界域で溶存態・懸濁態の栄養塩濃度が急変したのは、この境界域で水が流動から停滞に転じ、水塊の温度上昇、光透過度の増加を呼んで植物プランクトンの増殖が起こったためである。同じ地点で観測されたクロロフィル*a*濃度とpHの上昇も、このことと符合している。本水系の水質を世界主要河川と比較すると、セレンガ川は他河川に比べCaとSiを高濃度に含み、風化指標（Chemical Denudation Rate）は世界主要河川の平均値の約50%、最も高い風化指標を示すブラマプトラ川の1/15程度である。これは流域が炭酸塩岩とケイ酸塩鉱物に富むこと、地形の傾斜が緩く降水量が少ないことに起因している。

第５章では、本研究での結論を纏めている。水系の流下に伴う地質・地形・気候・植生・人為活動等の環境要因の変化により、さまざまな水質変動が引き起こされていること、しかしながら全体を通しては、本水系は炭酸塩岩とケイ酸塩鉱物を起源とする主要成分組成にあり、降水量が少ないために風化指標は世界平均に比べ小さいこと等を、結論付けている。

（続紙　２　）

（論文審査の結果の要旨）

水圏における物質の分布・存在形態とそれらの変動には、その水域はもちろん、その水域の背後にある流域の物理・化学・生物にわたる環境変化が反映される。このために、水域における生物地球化学過程の把握や物質循環機構の理解に向けて、物質の分布や動態が詳しく研究されてきた。特に長大な河川水系においては、上流から下流への流下に伴い、地質・地形・気候・植生・人為活動等の環境が徐々にあるいは急激に変化しうるために、それを反映して水域での物質の分布や動態が目まぐるしく、かつ大きく変動する場合がある。また、このことから、逆に、水域での物質分布・動態の解明により、流域の環境変化を議論することもできる。これらの理由から、世界各地で超長大な水系が活発に研究されてきた。

本論文では、こうした背景をもとに、モンゴルからロシアに流れ、全長が約2300 kmに及ぶ長大水系であるフブスグルーウスチイリムスク水系での生物地球化学過程・物質循環機構と流域環境との関連を議論している。日本で最も長い流程をもつ信濃川の全長が約370 kmであることを考えれば、この水系が日本国内では決して求められない研究対象であることが如実に分かる。このことからだけでも、陸水学・水圏化学における本研究の特異性、重要性は高い。

第１章は、長大河川水系での物質分布・化学動態と流域環境との相互関係についての概説である。流域環境が互いに異なる水系についての先行研究を引用しながら、長大水系に関する地球化学・水圏化学を体系的に解説している。特に、溶存主要成分組成を決定する流域の地質と物理・化学風化過程の関連について、その反応機構を示しながら詳述している点は、研究課題に対して申請者が深い知識を有していることを示している。また、河川から湖への地形の遷移が、水域の物理特性・生物環境の変化をもたらし水質の変動を呼ぶ過程を、本研究での展望につなげて議論している点は、申請者の研究に対する高い構想力を窺わせる。この機構への着目は、陸水学・海洋学において、近年大きな注目を集めている、河川水系へのダム湖などの中途停滞水域の出現による沿岸海域への物質輸送機構の変化、沿岸海域生物生産過程の変化の研究とも密接に関連するものであり、本研究の重要性を明確に論じたものとなっている。

第２章は、フブスグルーウスチイリムスク水系の陸水学・水圏化学的重要性についての説明である。長大な河川水系の中に２つの自然湖と３つのダム湖が連なり、水の流動と停滞が繰り返される本水系の特徴を、日本最大の湖である琵琶湖と比較することにより、分かりやすく解説している。申請者が比較陸水学研究にも興味を持ち、それを念頭に長大水系の研究を、フブスグルーウスチイリムスク水系を最初の対象として計画・立案し展開しようとしていることが分かる。また、現地調査の方法、多種の化学成分を溶存態と懸濁態に分けて高感度・高精度に定量する化学分析法の原理と特徴についても簡明に説明している。申請者の水圏分析化学に関する知識の蓄積が知れる。

第３章では、現場観測と室内化学分析によって得られた膨大な測定結果を、簡潔な説明を付して提示している。第４章で、各水域での生物地球化学過程・物質循環機構について緻密な考察を展開するための前章として、それぞれの水域での水質の特色の把握を目指したものである。綿密な実地調査と、試料を日本に持ち帰っての丁寧で信

頼性の高い化学分析に基づいて、各水域での溶存態と懸濁態の主要成分・微量成分・栄養塩の濃度変化が適確に捉えられている。水圏分析化学者として、申請者が高度な専門知識と優れた技能を有していることが分かる。

フブスグルーウスチイリムスク水系での注目すべき水質の特色として、次のような事項が挙げられている。エギンゴル川では流下とともに溶存態Ca濃度が増加、懸濁態Ca濃度が減少した。Baの懸濁態濃度は、他のアルカリ土類元素の懸濁態濃度の挙動とは全く異なる傾向を示した。エギンゴル川にセレンガ川が合流すると、溶存態のCa、Mg、HCO_3+$2CO_3$濃度は減少したが、Na、Cl濃度は増加した。ロシア国内のセレンガ川では支流の流入が、溶存態微量元素濃度を大きく変化させた。アンガラ川では、水域が河川から湖に遷移すると栄養塩の溶存態濃度は急減し、懸濁態濃度は急増した。

第４章は、フブスグルーウスチイリムスク水系の特徴的生物地球化学過程・物質循環機構、それらに関与している流域の環境要因を論じたものである。

エギンゴル川での溶存態・懸濁態Ca濃度の変動には支流の合流と河川の流下に伴う大気中二酸化炭素分圧の増加の双方によるpH低下が関与していること、特異的な懸濁態Ba濃度の挙動は水域の酸化還元環境の変化によるMn酸化物粒子の生成が影響していること、エギンゴル川とセレンガ川の合流による主要成分濃度の変動は両河川流域の主要構成岩石の違いによること、セレンガ川下流域でのAlやFeの溶存態濃度の増加には腐植物質に富む支流の合流が影響していること、河川/湖境界域での溶存態・懸濁態の栄養塩濃度の急変には中途停滞水域の出現による水塊の温度上昇、光透過度の増加が植物プランクトンの増殖を呼んだためであることなど、河川の流下に伴う流域の環境変化に基づく長大水系の特徴ある生物地球化学過程と物質循環機構を数多く明らかにしたことは、陸水学的・水圏化学的にまさに注目すべきものである。また、本水系の水質を世界主要河川と比較して、他河川に比べCaとSiを高濃度に含むが、風化指標（Chemical Denudation Rate）は世界主要河川の平均値の約50%であり、これには流域が炭酸塩岩とケイ酸塩鉱物に富むこと、地形の傾斜が緩く降水量が少ないことが関係しているとする知見は、比較陸水学研究の成果として極めて重要性が高い。

第５章では、本研究での結論を纏めている。第４章での考察から、長大河川フブスグルーウスチイリムスク水系の生物地球化学過程・物質循環機構の陸水学的・水圏化学的特徴を結論している。また、長大河川についての水圏化学を比較陸水学の観点に立って、見事に総括している。

以上のように、本論文は長大河川での物質の分布と化学動態、生物地球化学過程と物質循環機構を、綿密な実地調査と信頼性の高い化学分析に基づいて、詳細に解明したものであり、これらの成果は水圏化学的にも陸水学的にもまさに優れたものである。したがって、本論文は地域・地球規模の環境変動と自然環境の動的関係を考究する相関環境学専攻自然環境動態論講座にふさわしい内容を備えたものと言える。

よって、本論文は博士（人間・環境学）の学位論文として価値あるものと認める。また、令和４年２月２４日、論文内容とそれに関連した事項について試問を行った結果、合格と認めた。

なお、本論文は、京都大学学位規程第１４条第２項に該当するものと判断し、公表に際しては、当該論文の全文に代えてその内容を要約したものとすることを認める。

要旨公表可能日：　令和　　年　　月　　日以降