

氏 名	金 秀 珍
学位の種類	博士 (農 学)
学位記番号	農 博 第 1373 号
学位授与の日付	平成 15 年 11 月 25 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	農学研究科地域環境科学専攻
学位論文題目	Hydro-Biogeochemical Study on the Sulfur Dynamics in a Temperate Forest Catchment (温帯森林流域における硫黄の動態に関する水文生物地球化学的研究)
論文調査委員	(主 査) 教授 谷 誠 教授 武田博清 教授 東 順 一

論 文 内 容 の 要 旨

山地森林流域の物質循環過程において、硫黄は植物の成長にとって必須元素である。また、硫酸イオン (SO_4^{2-}) は、相対イオンとして土壤溶液内の H^+ 、 Al^{3+} 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ などと反応することによって、強酸性アニオン及び塩基性カチオンのフラックスに影響をあたえる。このように、硫黄は生物地球化学的に最も重要な元素のひとつである。さらに近年、酸性降下物による森林への過剰な硫黄供給が目立つようになっており、これによって硫黄のみならず塩基やその他の物質のフラックスが大きくなる結果、溪流の水質に大きな影響が生じることが指摘されている。

本研究は、滋賀県桐生水文試験地における観測に基づき、森林環境の攪乱による森林土壌内の硫黄分布の変化、硫黄流出メカニズムおよび他の物質との関係、水流出にともなう硫黄フラックスを水文・生物地球化学的観点から解析し、温帯森林流域内の硫黄の循環過程を明らかにしたものである。

マツ枯れによる攪乱を受けた小流域上部における土壌内硫黄の分布状態は、全硫黄 (Total S)、エステル系硫黄 (Ester sulfate-S)、炭素結合硫黄 (C-bonded S)、吸着態 SO_4^{2-} 、可溶性 SO_4^{2-} が小流域内の他の場所より低いレベルで検出された。また、それぞれの場所での硫黄の鉛直分布は、表層土壌で C-bonded S の占める割合が大きかったのに対し、深部で Ester sulfate-S の占める割合が大きかった。それに伴って、深部土壌では無機態硫黄である吸着態 SO_4^{2-} の濃度が表層より増加していたが、可溶性 SO_4^{2-} の濃度はその逆の傾向を示した。これは、C-O-S の分子構造になっている Ester sulfate-S は分解し難く、アミノ酸が中心になっている C-bonded S が表層土壌での微生物の活動によって分解されるのにもとない、無機態 SO_4^{2-} が多く生成されて深部へ浸透し続け、土壌コロイドに吸着されることを示すものと考えられる。また、表層土壌では有機硫黄の分解などによる無機化が主な反応であり、深部では無機化された硫黄の吸着・溶脱反応がそのフラックスに大きな役割をもつことが示唆された。

無機態硫黄の吸着特性を調べるために調査地域の森林土壌を用いて行った室内実験により、 SO_4^{2-} は pH の変化によって土壌コロイドへ吸着と溶脱を繰り返していることが明らかにされ、pH4 の付近で吸着が最大となることが示された。また、攪乱を受けた小流域上部の森林土壌は、流域中部の土壌に比べ、自然条件の pH では反応が可能である SO_4^{2-} のプールが高いレベルであった。

マツ枯れによる攪乱を受けた小流域上部における溶存イオンの季節変化を調べたところ、表層の土壌溶液内の硝酸イオン (NO_3^-) が夏季から秋季にかけて高濃度を示すところ、同時に測定した SO_4^{2-} 濃度と NO_3^- 濃度との間に負の相関が見られること、これらの濃度のピークはタイムラグを伴いながら浸透し、100cm の深さでも季節変化が見られることがわかった。この結果は、マツ枯れによって土壌に供給された多量の有機態窒素が、微生物の活動が活発になる夏季から秋季にかけて植物の分解とともに無機化され、この硝化過程で NO_3^- とともに生じた H^+ によって pH が低下したため、 SO_4^{2-} が土壌に吸着されたことを示すと考えられる。以上の結果より森林流域内の硫黄は有機態窒素の硝化過程で生じた NO_3^- の影響を大きく受けながら溪流に流出していることが明らかになった。

また、1994年頃までのマツ枯れ発生の後、渓流水では高濃度の NO_3^- が観測されたが、1997年以降は低下する傾向を示した。一方、 SO_4^{2-} 濃度は、マツ枯れの発生後 NO_3^- と負の相関を示したが、1997年以降はその濃度が安定していた。このような渓流水での SO_4^{2-} 濃度と NO_3^- 濃度との間に見られた負の相関から、 SO_4^{2-} と NO_3^- の流出に関して、地下水位の変動という水文学的要因を考慮した概念図を提案した。

さらに、以上の結果を基にして、小流域内の各場所における水流出過程を踏まえた SO_4^{2-} のフラックスを推定評価した。この結果、マツ枯れによる錯乱を受けた小流域上部の森林土壌では SO_4^{2-} のフラックスが小流域中部より大きな数値を示した。この結果から流域上部の森林土壌では攪乱によって SO_4^{2-} の流出量が大きくなっていることが明らかになった。また、調査地での大気からの硫黄の降下量は $11.4\text{kg-S ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ であり、溪流への流出は $11.6\text{kg-S ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ であると推定された。これを欧米での研究結果と比べてみると、本研究の対象流域の硫黄流入・流出は過去に酸性降下物の被害が深刻であったヨーロッパよりは低い、アメリカの西沿岸部よりは高い数値であることがわかった。

論文審査の結果の要旨

山地森林流域における渓流水質形成過程を評価するためには、それにかかわる、生物学的、地球化学的、水文学的な多様なプロセスを明らかにしなければならない。ここで採り上げる硫黄に関しても、それは植物にとって必須の元素であり、土壌内の他のイオン輸送にも影響を及ぼすため、各プロセスに関する調査に基づく総合的な研究が必要である。また、硫黄は酸性降下物による供給過剰の影響という点で水質改善保全の面でも注目される元素である。しかし、硫黄内部の循環過程についての研究実績は乏しい状況であった。本研究は、山地森林小流域において長期にわたる土壌水・渓流水の水質等の観測を行って、硫黄の循環過程を森林の攪乱の影響も考慮しつつ解明したものであり、評価できる点は以下のとおりである。

1. 小流域内部における土壌内硫黄の空間分布を調べた結果、Ester sulfate-Sは分解し難いが、C-bonded Sは表層土壌での微生物の活動によって分解され、無機態 SO_4^{2-} が多く生成されて深部へ浸透し続け、土壌コロイドに吸着されること、表層土壌では有機硫黄の分解などによる無機化が主な反応であり、深部では無機化された硫黄の吸着・溶脱反応がそのフラックスに大きな役割をもつことが明らかになった。
2. 無機態硫黄の吸着特性に関する室内実験を行い、 SO_4^{2-} はpHの変化によって土壌コロイドへ吸着と溶脱を繰り返していること、pH4の付近で吸着が最大となること、攪乱を受けた小流域上部の土壌は反応が可能である SO_4^{2-} のプールがより高いレベルであることなどが明らかになり、森林土壌における SO_4^{2-} の吸着溶脱がpHの変動によって制御されているメカニズムが明らかになった。
3. 土壌溶液の SO_4^{2-} 濃度に及ぼすマツ枯れの影響に関して検討し、 SO_4^{2-} 濃度と NO_3^- の濃度の季節変化に逆相関がある観測結果と、2で述べたpHによる SO_4^{2-} の制御機構の説明について、マツ枯れで多量に土壌に供給された有機態窒素の無機化によって生じた NO_3^- がpHを低下させ、このことが SO_4^{2-} の土壌吸着の原因になることを、初めて明らかにした。
4. 渓流水質の長期観測結果から、 SO_4^{2-} 濃度と NO_3^- 濃度との間に見られた負の相関を説明できる、地下水位の変動という水文学的要因を考慮した概念図を提案した。
5. 小流域内の各場所における水移動を踏まえた SO_4^{2-} のフラックスを推定し、マツ枯れによる攪乱を受けた小流域上部森林土壌では SO_4^{2-} のフラックスが大きくなっていることが明らかになった。
6. 本研究の対象流域の硫黄流入・流出量から明らかにされ、過去に酸性降下物の被害が深刻であったヨーロッパよりは低い、アメリカの西沿岸部はより高い数値であることがわかった。

以上のように、本研究は、硫黄の動態における、水文学的要因及び生物地球化学的要因の役割を定量的に評価したものであり、森林水文学、森林生態学の成果として高く評価されるとともに、河川の水質評価予測に対して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15年9月11日、論文並びにそれに関連した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。