

C-1 東アジアにおける環境酸性化物質の物質収支解明のための大気・土壌総合化モデルと国際共同観測に関する研究

(3) 東アジア地域の乾性沈着量測定に関する研究

② 森林生態系における乾性沈着量測定手法の開発及び湿性沈着物の動態に関する研究

研究代表者 国立環境研究所 佐竹研一・高松武次郎

環境庁 国立環境研究所

地球環境研究グループ	酸性雨研究チーム	佐竹研一
土壌圏環境部	土壌環境研究室	高松武次郎
化学環境部	動態化学研究室	瀬山春彦・田中敦
(委託先)	兵庫県立公害研究所	玉置元則
	富山大学理学部	小島寛
	宇都宮大学農学部	深見元弘
	筑波大学地球科学系	中野孝教
	弘前大学理学部	鶴見実

平成8-10年度合計予算額 28,890千円

(平成10年度予算額 9,495千円)

本テーマには、大別して、(A)酸性汚染物質の森林生態系への乾性沈着量を測定するための方法を開発・研究する課題と、(B)湿性(乾性を含む)沈着によって負荷された酸性汚染物質が森林生態系内でどの様に挙動し、かつ影響を与えるかを研究する課題とが含まれる。以下に、それぞれで得られた成果を報告する。

A. 森林生態系における乾性沈着量測定手法の開発に関する研究

〔要旨〕全国から、200余りの針葉樹(主にスギ)の葉試料を集め、その葉面に沈着しているエアロゾルの元素組成を分析した。葉面に沈着したエアロゾルは、クロロホルムでエピクチクラワックスを溶解して捕集し、中性子放射化分析によって29元素を分析した。エアロゾルの葉面沈着は、5月頃の当年葉の出現と同時に始まり、経時的にその量を増して、冬季に最大量に達した後はほぼ一定となる。この沈着量は樹種に特有で、広葉樹に比べ針葉樹で多く、特にスギ、ヒマラヤスギなどで多い。沈着エアロゾルには、化石燃料の燃焼で発生した元素と土壌粒子に含まれた元素の他、海塩や火山ガスに由来する元素などが含まれるが、Au、Ag、Sb、Cl、Se及びIでは90%以上が、Br、Zn及びAsでは80~90%が、Cr、Cs、Co及びVでは40~60%が、そしてFeとNaでは約30%が人為起源もしくは海塩・火山ガス由来であると推定された。一方、Th、Hf、Rb、Ta、Ti、Mn、Al及び希土類元素は全て地殻物質起源であった。地殻物質の影響が最も少なかった元素の中、Sbはほぼ全量が人為起源と考えられ、エアロゾ

ルへの濃縮係数も大きい（100倍以上、対地殻）。この元素は、植生や土壌中の賦存量が低く、かつ、一度環境に負荷されると容易に滞留・蓄積するので、大気を経由した汚染の良い指標となる。事実、汚染の激しい埼玉県では、スギの1年葉に、Sbがエアロゾル成分として100 ng/g-新鮮葉以上沈着していた（cf. 屋久島では、ca.10 ng/g-新鮮葉）。Sbは大気輸送・沈着過程が硫黄・窒素酸化物と類似している可能性があり、酸性物質の沈着をモニターするための指標元素として有効と考えられる。

[キーワード] エアロゾル、乾性沈着、スギ (*Cryptomeria japonica*)、元素組成、Sb、中性子放射化分析

A-1. はじめに

大気に放出された酸性汚染物質は、植生や土壌表面への沈着を通して、最終的には水圏に負荷され環境を酸性化する。沈着には、酸性物質が雨、雪、霧などに溶けて起こる湿性過程と植生や土壌が酸性ガスあるいは浮遊粒子を直接吸着・吸収して起こる乾性過程とがある。このうち後者は、多くの因子、例えば植生への沈着では植物相や微気象など、土壌への沈着では土壌の種類とその物理・化学的条件や水分条件などに支配される。そのため非常に複雑で、乾性沈着の定量的把握は、湿性沈着の場合に比べて著しく遅れている。

樹木、特に森林に対する乾性沈着は、これまで主に林内雨と林外雨の成分の違いから評価されてきた。しかし、林内雨には乾性沈着物以外に植物自身が排泄（浴出）した物質も含まれるため沈着量の正確な把握は難しい。また、植物は乾性沈着物中の硝酸イオンを養分として葉面から吸収する場合もあるので（Takamatsu et al., 1997）、林内雨成分の解析は一層複雑である。

ここでは、酸性汚染物質と起源や大気過程が類似していて、かつ、生物的に不活性な物質（植物が排泄も吸収もしない元素）を指標にして、酸性汚染物質の沈着量を間接的に評価するために、以下の検討を行った。すなわち、日本各地の樹木、特にスギの葉面に沈着しているエアロゾルを分離し、中性子放射化で分析して、その元素組成の特徴を明らかにするとともに、含有元素の大気汚染指標としての有効性や沈着エアロゾルの植物影響などについて検討した（Takamatsu et al., 1992; 高松ら, 1996, 1997, 1999; Sase et al., 1998b）。

A-2. 方法

図A-1は本研究に関連した実験操作の概略を示したものである。一連の研究では、中性子放射化分析、酸分解/ICP-AES、CN分析、酸化分解/IC分析などを用いて、葉面沈着エアロゾルに含まれる40種以上の元素を分析するとともに、エアロゾルなどの大気汚染物質が葉面ワックスの量、構造、及び質（C・O含量など）に与える影響についても調べている。

A-2-1. 葉試料の採取と沈着エアロゾルの分離・捕集

関東、東北、屋久島などの地域において、樹齢約30年以上の樹木（主にスギ）の2～5 m

の高さから200余りの葉試料を、約30cmの枝と共に採取した。また、樹高の影響を調べるための試料は、樹木の頂点と着葉最下部を含む3層から採取した。葉（スギの場合は約5cmの細枝共）は葉齢別に切り取った後、図1の操作に従って、葉に沈着していたエアロゾルを石英ウール上に捕集し、分析試料とした（Sase et al., 1998a, 1998b）。

A-2-2. 中性子放射化分析（Koyama and Matsushita, 1980; Takamatsu et al., 1982）

中・長寿命核種の分析： 捕集したエアロゾルを石英ウールごと高密度ポリエチレン袋に二重に融封した。試料15個を標準（ミリポアに添着した30 μ gのCo）と共にカプセルに詰め、京都大学原子炉実験所（KUR）の圧気輸送管（Pn-2）を用いて50分間照射した。放射化した試料は4～5日間冷却した後、外袋を替え、 γ 線スペクトルを8,000秒間測定した。スペクトルは解析プログラムで処理し、中寿命核種を定量した。試料は約1ヶ月後に再び100,000秒間測定して、長寿命核種を定量した。

短寿命核種の分析： 上と同様に調製した試料2～3個と標準（10 μ gのMn）をカプセルに詰め、KURのPn-3で20秒間照射した。放射化した試料は直ちに外袋を替え、100～200秒間 γ 線スペクトルを測定して、短寿命核種を定量した。なお、Alの分析で対象とした ^{26}Al は石英ウールの $^{28}\text{Si}(n,p)^{26}\text{Al}$ によっても生成するので、濾過に使うウールの量を一定にし、その寄与を補正して定量した。

A-3. 結果と考察

A-3-1. 葉面沈着エアロゾルの元素組成の特徴

葉面に沈着したエアロゾルの元素組成をSc（汚染との関係が少なく殆どが土壌などの地殻物質に由来し、かつ、中性子放射化で精度良く定量できる元素）で規格化して（X/Sc比を用いて）土壌の元素組成（Bowen, 1979）と比較した結果、エアロゾルには、Se、Cr、Au、Br、As、Sb、Ag、Zn、I、Clなどが土壌に比べて豊富に含まれていた。図A-2は、Sc濃度を基準にして土壌起源の元素画分を差し引き、沈着エアロゾルに含まれる元素の非土壌画分、すなわち人為起源もしくは海塩・火山ガス起源の元素の割合を求めたものである。全地域を平均して見た場合、Au、Ag、Sb、Cl、Se、及びIでは90%以上が（AgとSeについては、定量できた試料が全体の20～30%で、かつ都市周辺のものに限られていたので、図2には示していない）、Br、Zn、及びAsでは80～90%が、Cr、Cs、Co、及びVでは40～60%が、そしてFeとNaでは約30%が非土壌性の元素である。これらの元素の中の陽イオン性ものは、塩素と強く結合する元素（Au: $pK_1=8.5$, Ag: 9.8など）や比較的低沸点の塩素化合物を生成する元素 {Sb: b. p. =223 $^{\circ}\text{C}$ (SbCl_3), Se: 178 $^{\circ}\text{C}$ (SeOCl_2), As: 130 $^{\circ}\text{C}$ (AsCl_3), Cr: 117 $^{\circ}\text{C}$ (CrO_2Cl_2)など} であり、エアロゾル中のCl濃度も高いので、化石燃料の燃焼、海塩の飛散、火山ガス（通常多量の塩酸を含む）の噴出の際などに塩化物として大気に放出されたものと推測される。中でもSbは、殆どが化石燃料の燃焼（車の排ガスなど）に由来すると考えられ {車のマフラーに付着した排ガスダストには4.3ppmのSbが含まれ、Sb/Sc比は11.3で（6車種の平均値）、Sbが著しく富化されていた（cf. 土壌のSb/Sc比: 0.14; Bowen, 1979）}、葉

面での蓄積性（後述）が高く、中性子放射化での分析精度も良好であるので、大気汚染の指標元素として有用であると考えられる。なお、葉面に沈着したエアロゾル中の元素は一部降雨によって溶脱する。特に、アルカリ金属（Na）や陰イオン性元素（Cl、Br、Iなど）は易溶性であるので、これらの沈着量と非土壌性画分の割合は実際には分析結果より相当に大きかったと考えられる。

また、図A-2に見られる様に、沈着エアロゾル中の元素の非土壌性画分の割合（及び濃度）は特定発生源の影響を受ける。例えば、恐山では火山ガス由来のAsが多いこと（ 540 ± 250 ng/5g-新鮮葉（n=3）；cf. 全国平均： 95 ± 135 ng/5g-新鮮葉（n=116）、1年葉での値）、屋久島で唯一石炭と重油を使用している化学工場（屋久電工）の近くではCo、V、Mnなどが顕著に多いこと（それぞれ、 84 ± 140 、 630 ± 570 、 1710 ± 1440 ng/5g-新鮮葉（n=4）；cf. 全国平均： 18 ± 31 、 180 ± 200 、 0 ± 750 ng/5g-新鮮葉（n=116）、1年葉））、そして海に近い恐山と屋久島では、内陸（例えば、つくば市の環境研）の場合に比べてI、Cs、Naなどの海塩起源の成分を多く含むことなどである。

A-3-2. エアロゾル沈着量の樹種・樹高特性

図A-3はエアロゾルとして葉面に沈着した元素量を樹種間で比較したものである。ここでは、葉の新鮮重当たりの沈着量で示したが、乾重量や葉面積当たりで見た場合も傾向は同じで、沈着量は一般的に広葉樹より針葉樹で多く、特にスギでは著しく多い。エアロゾルの沈着は、葉の形態、エピクチクラワックスの形態と化学特性の他、冬期には葉面に帯びる静電気にも関係すると考えられるが、詳しくは分かっていない。

図A-4は、色々な環境に生育するスギの孤立木について、枝の高さの影響をエアロゾル中のSb量で比較したものである。道路からの直接影響の少ない孤立木の場合（つくば市以外の例）、樹木の先端と下部は汚染大気からほぼ同程度の影響を受けるため、沈着量の高低差は殆ど認められない。しかし道路沿いの木（つくば市の例）では、車の排気ガスの直接影響で、下部の蓄積量が著しく増大する。また図には示していないが、林内の木では、突出した先端部に比較的多量のエアロゾルが沈着する。この様な傾向は、マツ、ヒバ、ヒノキなどの樹種でも同様であった。

A-3-3. エアロゾル沈着量の経時変化

図A-5は沈着量の経時変化をやはりエアロゾル中のSb量で追跡したものである。エアロゾルの沈着は5月頃の若葉（当年葉）の出現と同時に始まり、沈着量は時間と共にほぼ直線的に増加して（多くの場合秋から冬にかけて沈着速度が少し増加する）、冬期に最大に達した後はほぼ一定に保たれる。そのため、1年葉では、沈着量の時期的な変化は少なく、沈着量と洗脱量が平衡に達しているものと考えられる。多くの元素はSbとほぼ同様の蓄積パターンを示すが、アルカリ金属など一部の易溶性元素は比較的早い時期に定常に達したり、不規則な変化を示したり（多分、試料採取日前の降雨の状況に依存）する場合もある。

A-3-4. 葉面沈着エアロゾルによる大気汚染の評価

上で述べた様に、エアロゾルの沈着量は1年葉では既に定常に達していて、そのレベルは樹木が生育する環境の大気汚染の程度を反映すると考えられる。図A-6は、スギの1年葉に沈着したエアロゾル中のSb量を汚染度の異なる地域間で比較したものである。埼玉県が飛び抜けて高く、以下茨城県平野部、東北都市部、茨城県山地、東北山地、下北半島、屋久島の順で、埼玉県では屋久島の10倍程度の沈着が見られる。図A-7は、日光周辺のオオシラビソの葉に沈着したエアロゾル中のSb量を那須や八幡平のものと比較した結果である。沈着量の比較的多かった地域、すなわち念仏平、金精峠、男体山南東面、及び那須男鹿岳は、オオシラビソの衰退が見られる地域でもある。また図A-8は、屋久島の外周に生育するスギ葉に沈着したエアロゾル中のSb量を測定した結果であるが、島の北側で明らかに高く、九州あるいは大陸からの影響を示唆している。これらのSb沈着量の多い地域では、酸性汚染物質の負荷量も多かったと推測される。

A-3-5. 葉面沈着エアロゾルの植物影響

葉面に沈着したエアロゾルの樹木への影響は現在あまり分かっていないが、エアロゾルにはSb、As、Seなどの毒性の高い元素が濃縮されており、ダイオキシンやベンツピレンなどの有害物質も含まれているので、それらの影響は否定できない。また、葉面に沈着したエアロゾルは、葉面の濡れ性を増大（コンタクトアングルを低下）させ、蒸散、養分溶脱、汚染物質の侵入などを促進するとともに、エピクチクラワックスの劣化や流亡も引き起こす

(Percy et al., 1994; 佐瀬・高松, 1998)。さらに、沈着したエアロゾルの一部は気孔内部にも侵入する。特に針葉樹では気孔が窪んでいるため、エアロゾルが気孔に捕捉され易く、一度入ったものはなかなか洗脱されない。エアロゾルが気孔に侵入すると、いずれは気孔の開閉が阻害され、蒸散やガス交換の制御が出来なくなる。事実、エアロゾルの沈着量が著しく多い埼玉県のスギでは、 $42 \pm 18\%$ (n=4) (1年葉の場合)の気孔が阻害されていて {cf. 茨城県山間部: $2.8 \pm 0.5\%$ (n=4)}、主にこれに起因すると考えられる見かけのクチクラ蒸散(水分損失)速度の増大 ($1.01 \pm 0.24\%$ /h (n=4); cf. 茨城県山間部: $0.63 \pm 0.05\%$ /h (n=4); デシケーター法による; Sase et al., 1998b) や葉面から溶脱する塩基性元素量の増加 ($157 \pm 53 \mu\text{g/g}$ -新鮮葉 (n=4); cf. 茨城県山間部: $80 \pm 12 \mu\text{g/g}$ -新鮮葉 (n=4); いずれもpH=3の硫酸溶液に新鮮葉を2時間浸した時のNa+K+Mg+Caの溶脱量)も観察されている。スギは、導管の通導抵抗が大きく、水ストレスを受け易い樹種であると言われていたので(松本ら, 1992)、上記の様な変化、特に蒸散速度の増加が近年都市域で見られるスギ衰退の要因である可能性が高い(高松ら, 1996; Sase et al., 1998a; 1998b)。

A-4. おわりに

葉面に沈着したエアロゾル中の特定の元素(例えばSb)は大気汚染の有効な指標になる。スギやマツは全国に分布しているので、これらの葉面に沈着したSb量を分析すれば、あらゆる地域の汚染度を明らかにすることができる。Sb(特に塩化物)は揮発性で起源や大気中の挙動がSO_xやNO_xと類似していると推測されるので、酸性汚染物質の沈着量を評価するための指標元素にもなると考えられる。また、樹木から洗脱され、土壤に負荷されたSbは表層土

壤中に保存されるので、酸性汚染物質の累積負荷量の指標にもなる。

B. 森林生態系における湿性沈着物の動態に関する研究

〔要旨〕京都大学芦生演習林と屋久島において、それぞれ土壌植生調査と渓流水の水質調査を実施した。土壌の理化学性は立地に依存し、尾根から谷に向かって、pH、Mg、Ca、塩基飽和度は増加、一方C/N比は低下した。この変化は、植物の元素組成にも反映され（谷底部の植物はK、Mg、Caを多く含んでいた）、植物群落型にも影響を与えた。また、渓流水のpHとCa濃度は高地から低地に向かって上昇した。これらの結果から、山岳地域の高地（尾根）では、低地（谷）に比べて、土壌の酸性化や地質の風化が進行していて、土壌が既に貧栄養の状態にあり、僅かな環境変化でも植生に影響を与える可能性があるとして推測された。

〔キーワード〕植物群落型、土壌理化学性、土壌酸性化、立地、高度、屋久島、芦生

B-1. はじめに

我が国の森林衰退は、これまで、全国規模でのマツ枯れを始めとして、大山のモミ、日光周辺のオオシラビソやダケカンバ、赤城山のダケカンバ、屋久島高地のスギ、都市域のスギなどで報告されている（藤田ら，1994；村野，1994）。これらの地域は、マツや都市域のスギの場合を除き、概ね高地に集中している。高地では、冷涼な気候によって植生が貧弱であるため、土壌への有機物供給量が欠乏して土壌は通常未成熟となる。また、地形的条件のために、土壌の流亡も著しい。そのため高地では、土壌の発達、成熟度、層厚共に、不十分であることが多い（すなわち、土壌層に保持された可給態栄養塩類が本来的に乏しい）。一方、雨や霧の酸性度は、都市などの人口稠密地域から離れた山岳地域でも都市並に高いことが知られており、高地の森林生態系に負荷される酸性降水物量は相当であると考えられる。従って、土壌の酸性化を通じた酸性降水物の植生影響は、高地で最も顕在化し易いと推測される。特に、わが国の地質の13%を占める花崗岩地域は風化に強い鉱物に富み塩基成分に乏しいため影響が懸念される。

この観点から、京都府北部にある京都大学芦生演習林とわが国を代表する花崗岩地域である屋久島（比較対照のために筑波、苗木、八ヶ岳、尾鷲、及び北部鹿児島地域においても一部調査を実施）において、土壌や渓流水の理化学性と高度や地形的条件との関係を調査・研究した。また、現存植生と土壌の理化学性との関連も検討した。

B-2. 調査・実験

B-2-1. 調査地

調査地の一つは、京都大学芦生演習林（京都府北桑田郡美山町）北部、由良川の源流域にある野田畑谷を中心とする一帯で、標高およそ600-800mの所である。なだらかな尾根と、その間に切れ込む谷間が交錯する。土壌は、尾根・中腹部が泥質岩やチャート起源の褐色森林土で、谷底部は黒ボク土である。森林は、基本的にブナ、ミズナラ、イタヤカエデ等から成

る落葉広葉樹林であるが、平坦な尾根上にはスギが高い優占度で混入する。谷底部には、トチノキ、サワグルミを優占種とする溪畔林が発達する。

もう一つの調査地は屋久島（全島）である。この島は九州南端から約60kmの太平洋上にある山岳島（面積：約500km²；最高標高：1935m）で、花崗岩と鬼界カルデラの火砕流（約6300年前）の堆積物に由来する貧栄養の土壌（交換性塩基総量：0.1-1.5 cmol(+)/kg）で覆われている。土壌種は主に褐色森林土（約93%）で、局所的には赤色土、黒色土、泥炭土、ポドゾルなどが存在する。気候は、標高の増大に伴って亜熱帯性から亜寒帯性へと変化し、植生帯も森林（標高：100-1500m）から疎林（1600-1750m）、さらに高木限界（1800m）へと移行する。

B-2-2. 調査・実験方法

芦生演習林： 調査地を地形的位置から尾根部、中腹部、谷底部に区分し、それぞれの立地を代表する林分を選んで調査区（40箇所）とした。その場合、なるべく攪乱が少なく自然相を良く留めた箇所を選定した。10 x 10m²または20 x 20m²の方形区を設定し、植物群落を階層に区分して、階層毎に出現植物を記録、種別の被度を求めた。各調査区に1カ所の土壌試坑を掘り、土壌断面を観察した後、土壌の理化学性を分析するための試料を採取した。分析した項目は、含水率、空隙率、三相分布、pH(H₂O)、電気伝導度（EC）、陽イオン交換容量、交換性陽イオン（Na、K、Mg、Ca）、有機炭素、及び全窒素である。その結果から、塩基飽和度（BS）とC/N比を算出した。また、高さ5m以上の樹木については、毎木調査を行った。主要樹種から幹材と樹皮を採取し、その化学性（Na、K、Mg、Ca、有機炭素、全窒素）を分析した。さらに、各立地を代表する植物を選び、時期を変えてその生葉を採取して、同様の化学分析を行った。植生については、組成表を作成し、群落分類を行うとともに、それぞれの群落を特徴づける種を特定した。各調査区間の植生類似度を求め、それに基づいてクラスター解析とBray-Curtis法によるオーディネーション（座標付け）を行って、調査区間の親近性を表現した。

屋久島： 全島（高度0mから1700mまで）から渓流水を40試料採取した。採取は全季節にわたって、平水時に行った（屋久島では降雨後の水質変化が著しい）。試料は濾過（0.45 μm）後、pH、EC、陽イオン（Na、K、Mg、Ca、Sr、Pbなど）、陰イオン（Cl、NO₃、SO₄など）などを分析した。

B-3. 結果と考察

B-3-1. 芦生演習林の場合

調査結果を表B-1にまとめた。植生は、種組成から、尾根部立地を代表するアセビーネジキ型群落、中腹部を代表するブナ・ミズナラーチシマザサ型群落、谷底部を代表するトチノキ・サワグルミーリョウメンシダ型群落に分類された。また、尾根部の植生は、尾根の形状によって、尖尾根上に成立したアセビーネジキ型群落、丸尾根上に成立したブナーチシマザサ型群落、及び平尾根上に成立したスギクロモジ型群落に細分化された。各群落型を構成する種類数は、尾根部から谷底部に向かって増加したが、谷底では草本植物の種数が特徴的に多かった。土壌の化学性も尾根部から谷底部に向かって漸次変化した。すなわち、pH、Mg、

Ca、及びBSは増加、一方C/N比は低下した。このことから、尾根部では谷底部に比べて土壌の酸性化が進み、塩基の乏しい貧栄養の状態にあることが分かった。また、塩基性陽イオンは土壌表層部（L-H層とA層）に集中しており、土壌表層部と植物を含む生態系内で活発な元素循環が行われているものと思われた。窒素についても同様の傾向が認められた。

幹材と樹皮に含まれるCa量も、土壌の化学性の変化を反映して、尾根部に生育する樹種（ネジキ、リョウブなど13種；幹材：0.17%（乾重当たり）；樹皮：1.77%）から、中腹部の樹種（ミズナラ、イタヤカエデなど7種；0.22%；2.68%）、谷底部の樹種（トチノキ、サワグルミなど7種；0.29%；4.14%）へと増加した。また生葉においても、それぞれの立地を標徴する樹種（尾根部：ネジキ、アセビ、ウスノキ、ウスギヨウラク、イワカガミ；中腹部：ヤマモミジ、オオカメノキ、ブナ、ミズナラ、ミヤマシキミ；谷底部：トチノキ、サワグルミ、ヤブデマリ、コマユミ、ヤブマオ）で、Ca含量が尾根から谷に向かって増加した（尾根部：1.34%（乾重当たり）；中腹部：1.51%；谷底部：2.85%）（K、Mgでも同様の傾向が見られた）。

B-3-2. 屋久島の場合

花崗岩地域の渓流水は一般的に他の火山岩地域に比べpHや溶存元素濃度が低い。特にCaと重炭酸濃度が低く、花崗岩が風化されやすい物質（Ca斜長石、ガラスなど）に乏しいことを反映している。この傾向は屋久島でも同様である。pHとSO₄やNO₃濃度との1：1の関係は認められないが、NO₃やSO₄濃度は島の北部で高く（図B-1）、大陸からの酸性降水による影響が考えられる。また同島の降水のCl、Naはそのほとんどが海塩粒子成分に由来するが、渓流水のCl、Na濃度も島の中心に向い、高度の上昇と共に減少する。渓流水と降水の陽イオン組成に対して、塩素との比を用いて検討した結果、渓流水のNaの15%が、またCaについては50%が岩石からの溶脱によると示唆された。花崗岩から溶脱されたNa、Caの割合はそれに含まれる斜長石の組成にほぼ等しく、同鉱物の一致溶解が考えられる。降水、斜長石、渓流水のSr同位体組成の比較からも、渓流水のSrの50%は斜長石の溶解に由来すると考えられ、Ca/Cl比による推定と調和的である。

花崗岩地域の渓流水のAl濃度はpHの減少と共に増加する。pHの低い屋久島の渓流水では他地域より10倍以上も高濃度にAlを含んでいる。平衡論による検討では、河川水のAl濃度はギブサイトと非晶質ギブサイトの安定領域の間に入っており、風化性水酸化アルミニウムによりAl濃度が規制されていると考えられる（図B-2）。

北米の渓流水は大気降水物と異なる鉛同位体組成を示すことから、大気起源の鉛は土壌に強く吸着していると考えられている。屋久島の渓流水の鉛同位体組成は基盤岩や普通鉛を多く含むカリ長石とは明瞭に異なり、わが国の大気エアロゾルとほぼ同じ値を示している。同様な傾向は韓国においても認められることから、河川水に溶存する鉛は東アジア全域にわたり大気に由来する人為起源鉛の可能性がある。

また、屋久島の花崗岩を母材とする土壌の元素組成の特徴を、因子分析を用いて解析した結果、土壌構成元素は四グループ（グループ1：K、Rb、Mn、Nb、グループ2：Fe、Ti、Zr、Cr、グループ3：Ca、Sr、Na）、グループ4（Al）に分類できた。グループ1および3に属する元素の多くは河川水の主要元素であり、グループ2と4は風化されにくい元素である。因

子1はカリウム鉱物（カリ長石、黒雲母）の溶解成分（グループ1）と残留成分（グループ2）、また因子2は斜長石の溶解成分（グループ3）と残留成分（AlやSiに富む）とみなすことができる（図B-3）。

元素組成の深度分布によれば、黒雲母、アルカリ長石、斜長石から、それぞれ（Mg, Mn, Cu, Zn, Ni, Nb）、（K, Ba, Rb）、（Ca, Na, Sr）が溶脱している。一方残留濃縮元素のうち、Fe, Ti, Crは黒雲母、Pbはアルカリ長石、またAlの多くはもともと風化が激しい斜長石に由来する。Sは全ての地点において土壌上部ほど濃縮しており、有機態として存在するという考えを支持している。土壌の元素組成と母材の花こう岩との元素組成の比較を行い、減少・濃縮の程度について検討した。C層におけるCa濃度の減少は著しく、母岩の99%程度まで濃度が減少している（図B-4）。土壌上部ではCaやPが増加しており、これらは有機物として存在していることを強く示唆している。ただし鉱物の相対的風化の程度は場所により多少異なっている。

土壌中のFe/Ti比とCrやPbの濃度は土壌上層で高くなる傾向が認められ、大気起源の重金属元素が土壌上層に付加していると考えられる。このような分布パターンは有機物や帯磁率のパターンとも一致しており、土壌上部の有機物層で鉄に富む磁性鉱物が形成していることを示唆している。鉄に富む磁性鉱物（おそらく磁鉄鉱）は重金属元素を固溶したり吸着したりするので、土壌上層の高い重金属濃度もこうした考えで説明可能である。鉄磁性鉱物は、土壌のFe/Ti比が細粒になると共に高くなる傾向が認められることから、非常に細粒でケイ酸塩鉱物粒子の周辺に付着している存在形態が考えられる。そのような鉄磁性鉱物の形成には、生物活動おそらくバクテリアによる鉱物形成作用が考えられる。

わが国の地質を構成する岩石は火山岩や若い年代の岩石が多く、大陸の岩石に比較すると一般に低い $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 、高い $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ で特徴づけられる。屋久島や八ヶ岳地域における2ミクロン以下の細粒な土壌鉱物の両同位体組成は、中国の黄土地域に由来する粘土鉱物と同じないしはそれに近い値を示す。これら風成塵鉱物は土壌上層に多く含まれている。中国黄土との地球化学的比較から、土壌に含まれる風成塵鉱物は二次鉱物（イライト、カオリナイト）ないし風化に強い石英やFe-Ti鉱物で構成されており、元素組成的にはCaやMgに乏しくTiなどに富んでいる。

B-4. おわりに

山岳地域の高地（尾根）では、低地（谷）に比べて、土壌の酸性化が進み、塩基含量も低下している。土壌水（渓流水）の特性にも同様の変化が見られる。これらの変化は、植物の元素組成の変化を介して、樹種構成にも影響を与えていると考えられる。高地の土壌は植物にとって既に貧栄養の状態にあり、僅かな環境変化が植生に大きな影響を及ぼすと考えられるので、引き続いた監視が必要である。特に屋久島では土壌層が薄く、土壌層に保持された栄養元素の絶対量もかなり少ないと考えられるので注意が必要である。

引用文献

- Bowen, H. J. M.: *Environmental Chemistry of the Elements*, Acad. Press (London), pp. 333, (1979).
- 藤田慎一、市川陽一、宮永洋一、河野吉久: 電中研レビュー, No. 31, 27-33 (1994).
- Koyama, M. and Matsushita, R.: Bull. Inst. Chem. Res., Kyoto Univ., 58, 235-243 (1980).
- 松本陽介、丸山温、森川靖: 森林立地, 34, 2-13 (1992).
- 村野健太郎: 環境技術, 23, 724-727 (1994).
- Percy, K. E., Cape, J. N., Jagels, R. and Simpson, C. J.: *Air Pollutants and the Leaf Cuticles*, NATO ASI Series G, Vol. 36, Springer-Verlag (Berlin), 396 pp. (1994).
- 佐瀬裕之、高松武次郎: ぶんせき, 1998(10), 69-72 (1998).
- Sase, H., Takamatsu, T. and Yoshida, T.: Can. J. Forest Res., 28, 87-97 (1998a).
- Sase, H., Takamatsu, T., Yoshida, T. and Inubushi, K.: Can. J. Forest Res., 28, 546-556 (1998b).
- Takamatsu, T., Kawashima, M., Matsushita, R. and Koyama, M.: Res. Rept. NIES, 38, 68-80 (1982).
- Takamatsu, T., Kohno, T., Ishida, K., Sase, H., Yoshida, T. and Morishita, T.: Plant and Soil, 192, 167-179 (1997).
- 高松武次郎、佐瀬裕之、高田実弥、松下録治: 海洋化学研究, 9(1), 23-37 (1996).
- 高松武次郎、佐瀬裕之、高田実弥、松下録治: 放射化分析, 6, 27-31 (1997).
- 高松武次郎、佐瀬裕之、増澤敏行、越川昌美、川嶋宗継、高田実弥、松下録治: 京都大学原子炉実験所第33回学術講演会報文集, pp.130-135 (1999).
- Takamatsu, T., Satake, K. and Boratynski, J.: Abst. 15th Inter. Meet. IUFRO, (Dresden), p. 28, (1992).

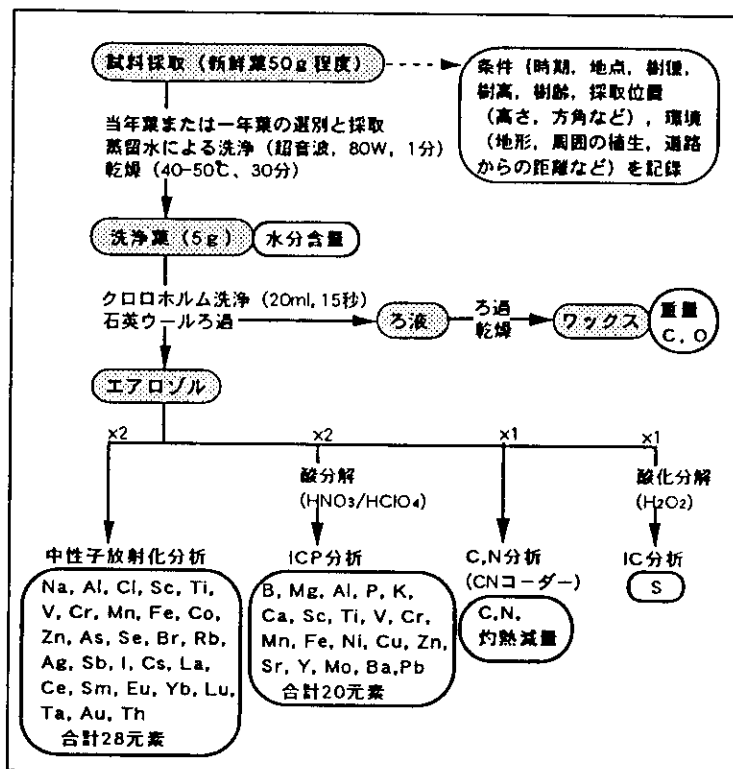
[研究成果の発表状況/誌上]

- 1) Nakano, T., Yokoo, Y., Okumura, M. and Satake, K.: Deficiency of Ca in the forested ecosystem of Yakushima island, a world heritage. Proc. of the Inter. Symp. on Acidic Deposition and its Impacts, NIES, 172-180 (1996).
- 2) Yokoo, Y. and Nakano, T.: Leaching experiment of volcanic soil for the determination of plant-available cations using Sr isotopes. Ann. Rep. Inst. Geosci., Univ. Tsukuba, 22, 37-40 (1996).
- 3) Nakano, T., Yokoo, Y. and Tanaka, T.: Surface water $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ values in the Kawakami forested basin, central Japan: Implication for the chemical weathering of volcanic rock. *ibid.* 22, 41-43 (1996).
- 4) Kobayashi, T., Nakagawa, Y., Tamaki, M., Hiraki, T. and Shoga, M.: Evaluation of acidic deposition onto forest canopies -Model calculations of dry deposition and leaching (or adsorption) rate-, Proc. of the Inter. Symp. on Acidic Deposition and its Impacts, NIES, 106-112 (1996).

- 5) Tamaki, M., Hiraki, T., Shoga, M., Nakagawa, Y., Kobayashi, T.: Rainfall, throughfall and stemflow sampler for monitoring effects of acid rain on forest ecosystem., *ibid.* 314-317 (1996).
- 6) 中川吉弘、小林禎樹、正賀充：降水の酸性化が着生地衣植物に及ぼす影響—生・死組織に見られる溶脱・吸着反応の差異。兵庫県立公害研究所報告, No. 28, 31-36 (1996).
- 7) 小林禎樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、平賀充：森林樹冠への酸性沈着の評価—樹冠通過雨測定とモデル式による乾性沈着速度の算出—。同上, 28, 37-44 (1996).
- 8) 光木偉勝：樹木着生蘚苔胞子の発芽成長に及ぼすSO₂、NO₂ガスの影響。同上, 28, 45-49 (1996).
- 9) 小林禎樹、中川吉弘：兵庫県におけるトゲウメノキゴケとナミガタウメノキゴケの分布。ライケン, 10, 9-10 (1996).
- 10) 中川吉弘：環境指標としての地衣類。同上, 10, 17-20 (1996).
- 11) 中川吉弘、小林禎樹、正賀充：降水の酸性化が着生地衣植物に及ぼす影響、—人工酸性雨による重金属の溶脱・吸着反応—。環境科学会誌, 9, 487-497 (1996).
- 12) 玉置元則：模擬酸性雨を用いる酸性雨データの精度管理。環境と測定技項術, 23, 60-79 (1996).
- 13) Takamatsu, T.: Convenient determination of total sulfur in environmental samples. *Inter. J. Environ. Anal. Chem.*, 62, 303-310 (1996).
- 14) Satake, K., Nakata, K. and Takamatsu, T.: pH distribution in a radial sections of the stem and root of *Cryptomeria japonica*. *Can. J. Forest Res.*, 26, 503-507 (1996).
- 15) 高松武次郎：酸性降下物に起因するイオウの土壤中での形態変化。KURRI-KR-1, 7-10 (1996).
- 16) 高松武次郎、佐瀬裕之、高田実弥、松下録治：酸性降下物の生態系への影響—都市域におけるスギ衰退の潜在的要因—。海洋化学研究, 9, 23-37 (1996).
- 17) 高松武次郎、河野紀章、石田圭子、佐瀬裕之：ササ群落が土壌の酸性化抑制と塩基保持に果たす役割。生物科学, 48, 65-74 (1996).
- 18) Takamatsu, T., Kohno, T., Ishida, K., Sase, H., Yoshida, T., Morishita, T. and Satake, K.: Role of Sasa-community in retaining basic cations in soil and preventing soil acidification. *Proc. Inter. Symp. Acidic Deposition and its Impacts*, NIES, 181-189 (1996).
- 19) Satake, K., Nakata, K. and Takamatsu, T.: Acidic outer bark of a conifer, *Cryptomeria japonica*. *ibid.*, 197-203 (1996).
- 20) Yuan, G., Soma, M., Seyama, H., Takamatsu, T. and Lavkulich, L.M.: Surface composition of podzolic soils and its significance in soil acidification studies. *ibid.*, 334-337 (1996)
- 21) Nakano, T. and Tanaka, T.: Strontium isotope constraints on the seasonal variation of the provenance of base cations in rain water at Kawakami, central

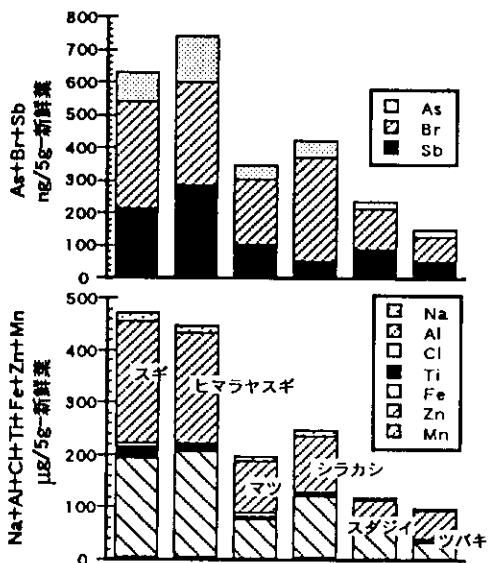
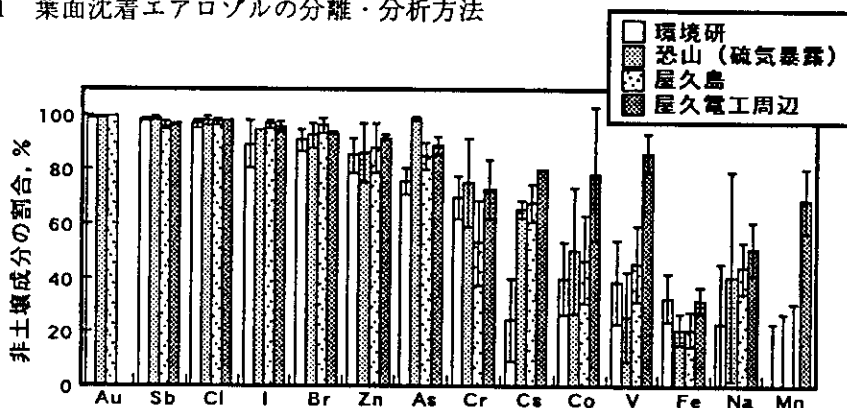
- Japan. Atmospheric Environment. v. 31, 4237-4245 (1997).
- 22) 小林禧樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、平賀充：森林樹冠への酸性沈着の評価
(2) 一乾性沈着及び成分溶脱(吸着)の季節変動一。兵庫県立公害研究所報告, 29, 44-52 (1997).
 - 23) 小林禧樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、平賀充：スギ、ヒノキ、コナラの樹冠下における林内雨量及び林内沈着量の分布。同上, 29, 89-92 (1997).
 - 24) 玉置元則：日本の森林地域での酸性雨調査の現状一酸性雨と森林枯損解明の研究を支えてきた人々一。環境技術, 26, 623-632 (1997).
 - 25) Takamatsu, T., Kohno, T., Ishida, K., Yoshida, T. and Morishita, T.: Role of the dwarf bamboo (*Sasa*) community in retaining basic cations in soil and preventing soil acidification in mountainous areas of Japan. *Plant and Soil*, 192, 167-179 (1997).
 - 26) 高松武次郎、佐瀬裕之、高田実弥、松下録治：放射化分析で見た葉面付着エアロゾルの元素組成特性とその植生影響。放射化分析, No. 6, 27-31 (1997).
 - 27) 中野孝教、横尾頼子、田瑞鈴：酸性研究におけるSr・Pb安定同位体。ぶんせき, 785-790 (1998).
 - 28) 中川吉弘：環境指標としての地衣類。遺伝, 52, 54-59 (1998).
 - 29) 玉置元則：酸性雨調査研究の到達点。資源環境対策, 34, 1129-1139 (1998).
 - 30) Sase, H., Takamatsu, T. and Yoshida, T.: Variation in amount and elemental composition of epicuticular wax in Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) leaves associated with natural environmental factors. *Can J. Forest Res.*, 28, 87-97 (1998).
 - 31) Sase, H., Takamatsu, T., Yoshida, T. and Inubushi, K.: Changes in properties of epicuticular wax and the related water loss in Japanese cedar (*Cryptomeria japonica*) affected by anthropogenic environmental factors. *ibid.*, 28, 546-556 (1998).
 - 32) 佐瀬裕之、高松武次郎：樹木葉ワックスの役割と分析。ぶんせき, 1998, 777-780 (1998).
 - 33) Yuan, G., Soma, M., Seyama, H., Theng, B.K.G., Lavkulich, L.M. and Takamatsu, T.: Assessing the surface composition of soil particles from some podzolic soils by X-ray photoelectron spectroscopy. *Geoderma*, 86, 169-181 (1998).
 - 34) 高松武次郎、河野紀章、石田圭子、佐瀬裕之：ササ群落の土壤酸性化抑制機能。「酸性環境の生態学」(佐竹研一編)、愛智出版、pp. 168-188 (1999).
 - 35) 高松武次郎、佐瀬裕之、増澤敏行、越川昌美、川嶋宗継、高田実弥、松下録治：放射化分析で見た葉面沈着エアロゾルの元素組成特性とその植物影響。第3回京都大学原子炉実験所学術講演会報文集、130-135 (1999).
 - 36) 高松武次郎：土壌及び底泥中イオウの簡易形態分析一硫酸態、酸揮発性態、パイライ

- ト態、並びに有機態イオウの分別定量一. 海洋化学研究, 12, 26-43 (1999).
- 37) Jeon, S-R. and Nakano, T.: Isotopic composition of Sr and Pb in limnetic molluscan shell in the Donjin area, central Korea. Ann. Rep. Inst. Geosci, Univ. Tsukuba, 24 (in press).
- 38) Yokoo, Y. and Nakano, T.: Input of atmosphere-derived cations into andesite during chemical weathering., *ibid.* 24 (in press).
- 39) 中川吉弘、小林禎樹：六甲山に生育するスギ葉中成分濃度の季節変動および標高分布. 兵庫県立公害研究所報告, 30 (印刷中).
- 40) 小林禎樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、藍川昌秀：六甲山におけるスギ樹冠への酸性沈着の標高分布. 同上, (印刷中).
- 41) 小林禎樹、中川吉弘、玉置元則、平木隆年、藍川昌秀：スギ林における乾性沈着量及び溶脱・吸着量の林内分布—樹冠の枝葉密度、樹間距離との関係. 同上, (印刷中).
- 42) 玉置元則：酸性雨モニタリングと研究面での課題. 環境技術, 27, (印刷中).

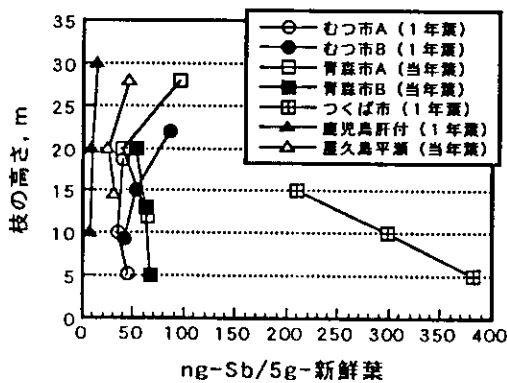


図A-1 葉面沈着エアロゾルの分離・分析方法

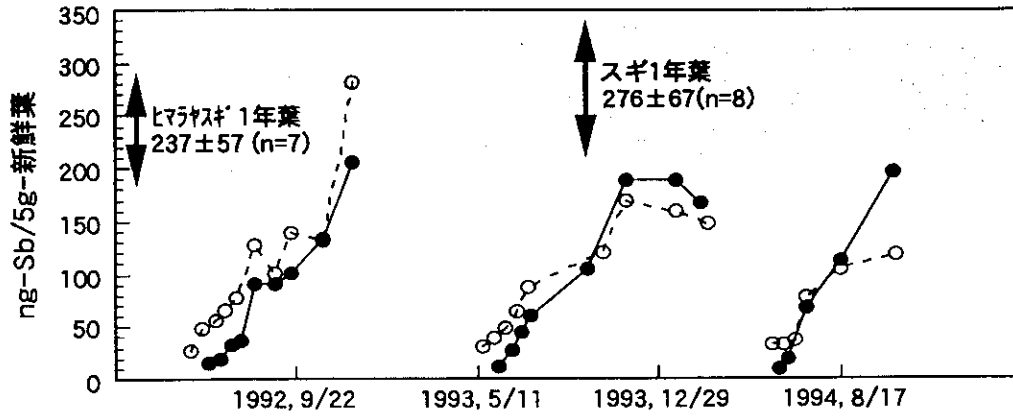
図A-2 葉面沈着エアロゾルに含まれる元素の非土壌画分の割合



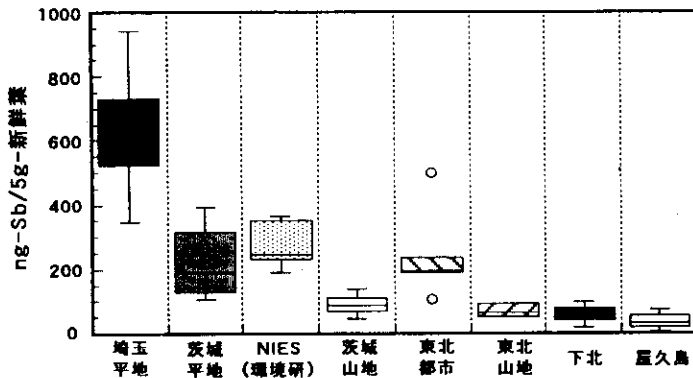
図A-3 エアロゾル沈着量の樹種間比較
調査地: つくば市国立環境研



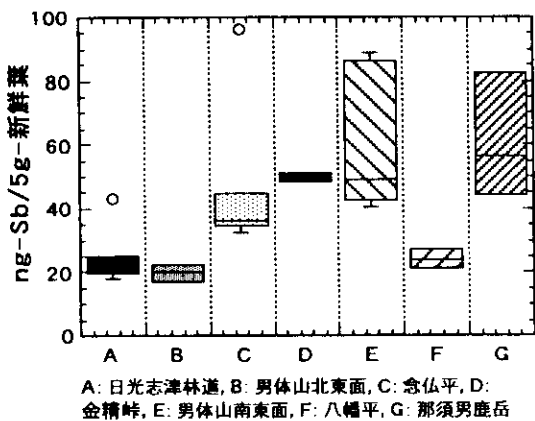
図A-4 エアロゾル沈着量 (Sb量) と枝の高さの関係



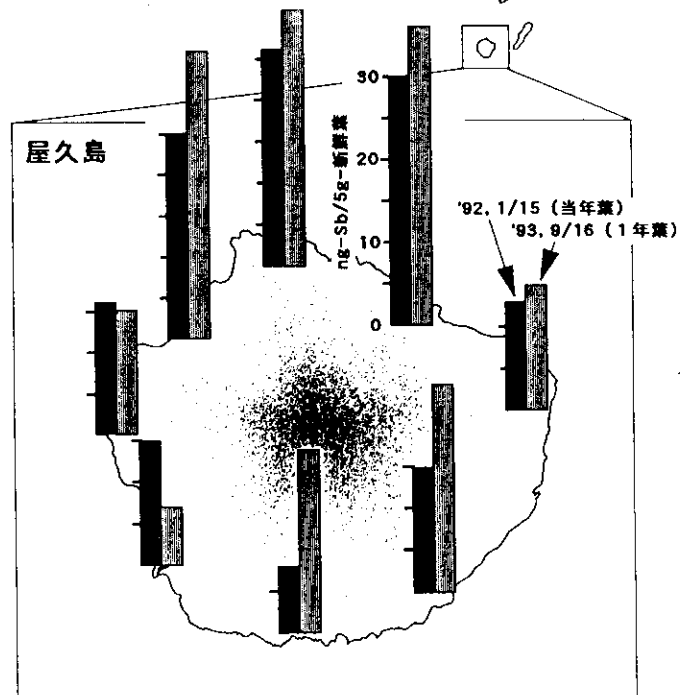
図A-5 エアロゾル沈着量の経時変化
調査地： つくば市国立環境研、(●) スギ、(○) ヒマラヤスギ



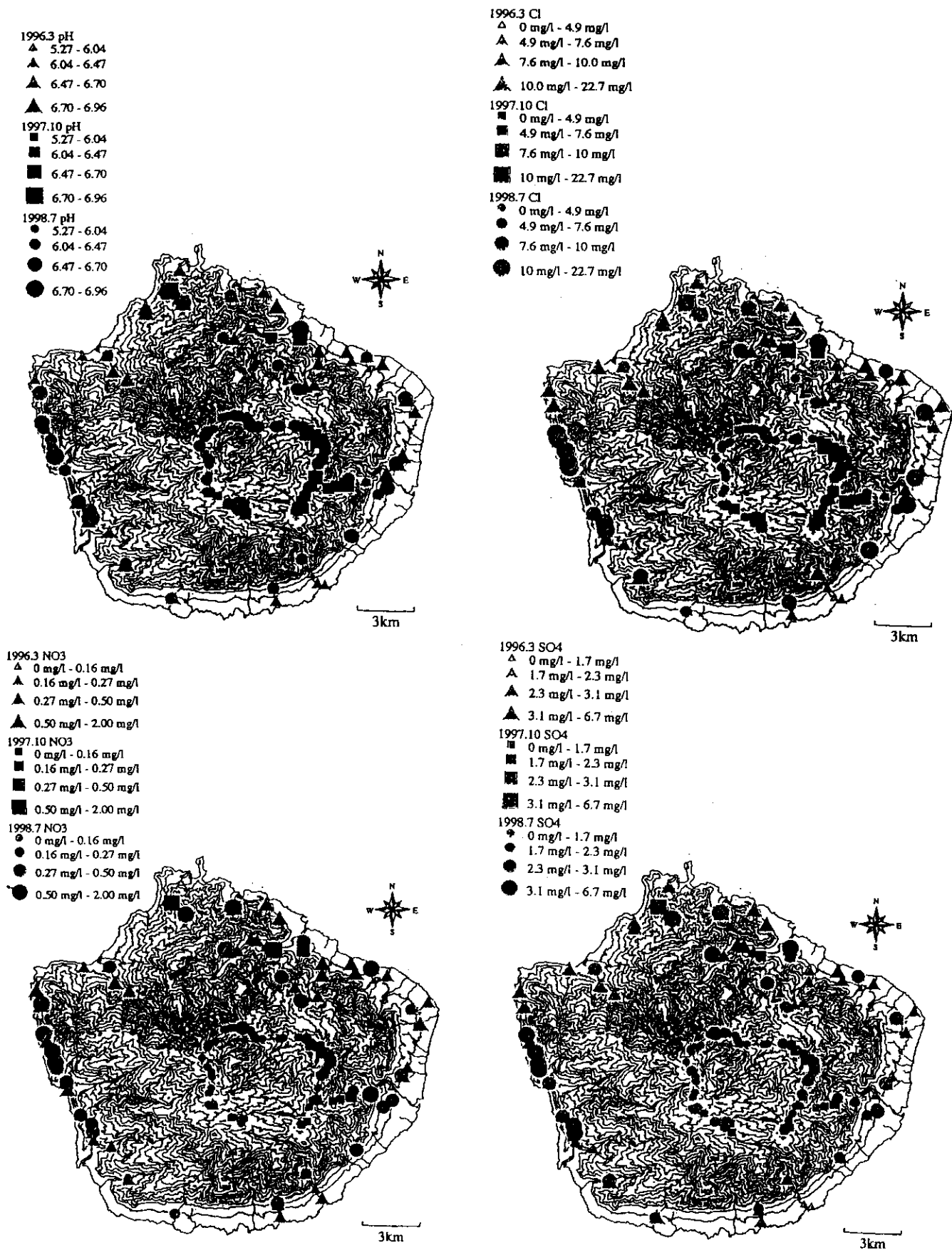
図A-6 エアロゾル沈着量 (Sb) の地域間比較 ースギの場合ー



図A-7 エアロゾル沈着量 (Sb量) の地域間比較 ーオオシラビソの場合ー

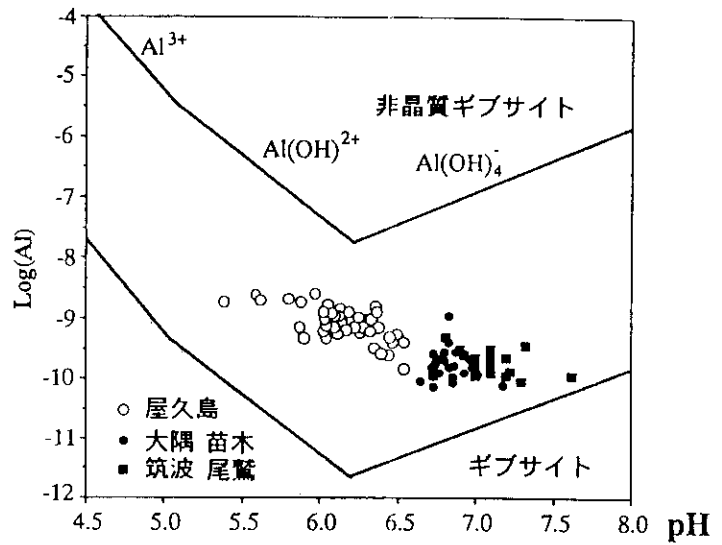


図A-8 屋久島外周スギのエアロゾル沈着量 (Sb量)

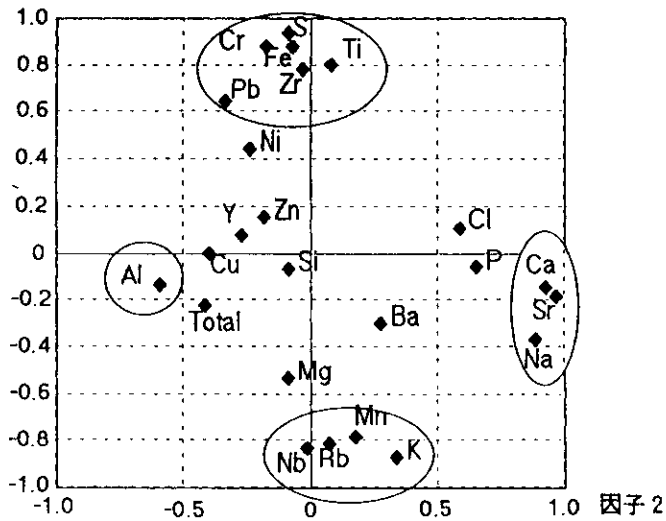


図B-1 屋久島溪流水のpH、Cl、NO₃、及びSO₄濃度の分布

図B-2 花崗岩地域の渓流水の
pHとAl濃度との関係



因子 1



図B-3 屋久島花崗岩土壌の
元素組成の因子分析

図B-4 屋久島花崗岩土壌に
おける相対元素濃度の
鉛直分布

