

令和 3 年 10 月 21 日現在

機関番号：22604

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K07700

研究課題名(和文) 土壌菌核粒子中の重金属特性と土壌環境との関係性

研究課題名(英文) Relation between heavy metal properties in sclerotia grains and soil environment

研究代表者

渡邊 真紀子 (Watanabe, Makiko)

首都大学東京・都市環境科学研究科・教授

研究者番号：10175119

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,600,000円

研究成果の概要(和文)：セノコッカム属などの外生菌根菌が形成するメラニン質の菌核は、劣悪な環境下において樹木との共生関係を維持するために形成され、目視により森林土壌から検出することが可能である。本研究では、国内外の森林土壌から検出されるメラニン質の菌核粒子に含まれる重金属の濃度とその形成年代を求め、菌核粒子内部への金属濃縮機構を知ることを目的とした。ICP-OES, ICP-MS, SEM-EDS, XRF, AMS14C年代測定による分析を行った結果、土壌pH4～8の幅広い領域の森林から採取された菌核の元素組成の特徴が明らかとなり、土壌から菌核への金属元素の移行係数とこれを支配する因子として時間と土壌環境が指摘された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

わが国の森林土壌(低pH領域)については、土壌から菌核への金属元素移行係数のバックグラウンド値に関して信頼性の高いデータが得られた。また、放射性炭素年代測定によって得られた菌核の土壌残留期間の推定値から、菌核内部の金属元素の濃縮機構に関する新たな知見が得られた。半乾燥地域(高pH領域)の土壌からメラニン質菌核を検出し、その特性について明らかにすることが世界で初めてできた。菌体由来の構造物で土壌に長く残留する土壌菌核粒子が、重金属汚染等の過去の環境負荷推定や腐植金属複合体の形成メカニズム等に関する情報を保持する環境試料であることを示した点で、本研究で得られた知見は学術への貢献が大きい。

研究成果の概要(英文)：Melanic sclerotia formed by ectomycorrhizal fungi such as Cenococcum geophilum are essential component of the interface between the soil and roots of many arborescent species under adverse conditions and can be visually detected in forest soil. In this study, the concentration of heavy metal contained in melanin sclerotium grains were collected from forest soils in Japan and overseas to obtain metal concentration in the grains and to elucidate the mechanism of metal enrichment in sclerotia grains. As a result of ICP-OES, ICP-MS, SEM-EDS, XRF, and AMS14C dating analyses, the characteristics of elemental composition of sclerotia grains collected from a wide range of soil pH 4-8 became clear. Time and soil environment were pointed out as regulating factors of transfer factor of specific metallic elements from soil to sclerotia grain.

研究分野：土壌学

キーワード：菌核粒子 重金属 放射性炭素年代測定 金属移行係数 森林土壌 土壌環境

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

菌核粒子が土壤中でどれほど安定な物であるかについては、土壌学ではなく、地球科学・地球化学分野で注目されている。Hormes et al. (2004) はスウェーデン北部の氷河性堆積物中の埋没土壌から検出された *Cenococcum spore* の ^{14}C 年代を測定し、約 5000 年という結果を報告している。申請者は新潟県妙高山や国内各地の菌核粒子について AMS ^{14}C 年代を測定した結果、表土において modern ~ 1800 年という年代値を得た (Watanabe et al., ^{14}C ages and ^{13}C of sclerotium grains found in forest soils. *Soil Science and Plant Nutrition*, 2007)。この論文は、菌学分野からの海外被引用数も多い。その一つに、ヤンガードリアス (後氷期の寒の戻り、1 万 2500 年前) の成因に関して、インジウムを含む磁性体粒子、炭素球状体、ナノ・ダイヤモンドを含む粒子の存在から隕石などの宇宙起源を主張する Firestone 一派とヤンガードリアス相当層から菌核が検出されることなどから地球内起源を主張する Pinter 一派の有名な論争がある。申請者の複数論文がこの後者グループによって引用されている (例えば、A C Scott et al. *Fungus, not comet or catastrophe, accounts for carbonaceous spherules in the Younger Dryas "impact layer"* *GEOPHYSICAL RESEARCH LETTERS*, 2010)。申請者のこれまでの研究では、強い酸性の森林土壌から検出される菌核粒子は Al が濃縮されているのに対して、Pinter 一派の論文 (Daulton TL, S Amari S, Scott AC, Hardiman M, Pinter N, Anderson RS. *Comprehensive analysis of nanodiamond evidence relating to the Younger Dryas Impact Hypothesis. J. Quaternary Science* 32: 7-34, 2016) では、米国カリフォルニア島ヤンガードリアス相当層から検出される多量の菌核粒子の内部に Cu の濃縮が報告されている。この違いが、何故生じているか、明確な説明はなされていない。

2. 研究の目的

鉱山や火力発電所などを給源とする大気経路で拡散した重金属は森林によってトラップされ、リター分解を経て森林土壌に蓄積される。樹木と共生する菌 (カビ) がつくる、黒色で球状の耐久構造体である菌核 *Sclerotia* は、目視により森林土壌から検出することが可能であり、その内部は強い酸性条件下で対生物毒性をもつアルミニウムが多く含まれ、重金属も 10 ~ 100ppm オーダーで取り込まれている (Watanabe et al. 2007)。本研究では、国内外の森林土壌を対象に土壌菌核粒子に含まれる重金属濃度と粒子の形成年代を求めることにより、菌核に記録された環境情報を取得する。また、国内外の森林土壌から検出される土壌菌核粒子中の重金属のバックグラウンド・データの取得をめざす。

3. 研究の方法

(1) 調査地選定

北海道利尻島 (ハイマツ林)、青森県岩木山 (ブナ林)、秋田県小坂町 (ブナ林)、山形県鳥海山 (ブナ林)、福島県南会津郡 (ブナ林)、岐阜県御嶽山 (コメツガ林)、新潟県妙高山 (ブナ林)、東京都三頭山 (ブナ林・太平洋型)、モンゴル・ウランバートル郊外 (ヨーロッパ・アカマツ林) で採取された菌核と土壌試料を用いた。

(2) 土壌菌核粒子の年代測定

AMS ^{14}C 年代値の測定 (加速器分析研究所、福島県白河市へ委託分析)

(3) 土壌菌核粒子中の重金属の定量分析

ICP 発光分光装置 (ICP-OES, ICP-MS) を用いて菌核中の主要金属元素と微量元素の濃度を求めた。土壌の元素組成分析は、XRF を用いて、土壌中の金属元素の含量を求めた。

(4) 土壌菌核粒子の構造観察と元素分析

走査型電子顕微鏡 SEM とエネルギー分散型 X 線元素分析装置 EDX を用いて、土壌菌核粒子の内部構造観察と主要金属の分布を調べた (日本電子株式会社、昭島市にて立会分析)。

(5) 重金属の移行係数とバックグランド・データの取得

(6) 論文投稿、研究報告書の作成

4. 研究成果

本研究では、新潟県妙高山埋没腐植層中の菌核を標準試料として、モンゴル国立大学のB・オコンツェツェク教授(分析化学)と共同で菌核の重金属濃度の定量法を検討し、ICP-OESとICP-MSを併用した方法で行うことを決定した。土壌の重金属含量については、XRFを用いて、土壌から菌核への元素の移行係数の定義づけを行った。モンゴル・ウランバートル郊外の森林ステップ土壌、福島県南会津郡ブナ林、秋田県小坂町ブナ林ほかで新たに試料採取を行った。研究代表者がこれまで採取した試料を用いて、重金属元素の定量分析、SEM-EDSによる菌核内部の観察・分析、加速器¹⁴C年代測定による菌核の年代値を得た。その結果、土壌pH4~8の幅広い領域の森林から採取された菌核の元素組成の特徴を明らかにすることができた。土壌から菌核への主要元素(Al,Ca)および微量元素(As,Pbほか)の移行係数とこれを支配する環境要因が明らかとなった。中性~アルカリ性の森林土壌では土壌から菌核へのCuの移行係数が高いことが明らかとなったほか、菌核内部のヒドロキシアパタイトの集積が認められた。国内鉱山地域で煙害を被った森林では、土壌から菌核へのAs,Pbの移行係数が高いことが確認された。低pH領域では、菌核中のAs濃度に関して、バックグランドで1-10ppmであるのに対して煙害地域では10-100ppmであるという信頼性の高いデータが得られた。また、放射性炭素年代測定によって得られた国内菌核の形成年齢(土壌残留期間)推定値から、菌核の形成年齢が古いほど菌核中のAlとAsの濃縮が進むことが示唆された。取得したデータと既往文献をもとに、内部の金属元素の濃縮機構を考察した。また、モンゴル森林ステップ地域から採取された菌核の形成菌が*Cenococcum geophilum*であることがITS配列により確認された。本研究を進めるにあたり、モンゴル国内における調査・試料採取および土壌・菌核試料移送に関する許可をモンゴル政府機関より得てABS手続きを完了し、農林水産省植物防疫所より土壌・菌核試料の輸入許可を得て研究を遂行した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nyamsanjaa Khulan, Watanabe Makiko, Sakagami Nobuo, Oyuntsetseg Bolormaa	4. 巻 56
2. 論文標題 Metal accumulation in sclerotium grains collected from low pH forest soils	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Science and Health, Part A	6. 最初と最後の頁 303 ~ 309
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/10934529.2021.1872316	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計4件（うち招待講演 1件/うち国際学会 4件）

1. 発表者名 N. Khulan, M. Watanabe, O. Bolormaa.
2. 発表標題 Microelement compounds of sclerotium and forest soils samples.
3. 学会等名 Abstract of the 6th International Conference on Chemistry and Chemical Engineering Research and Development in Chemistry. pp.48, 2018 June, Ulaanbaatar (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 M. Watanabe
2. 発表標題 Environmental studies in soil. Perspectives of bridging chemistry and biology and geosciences in multi-scales.
3. 学会等名 Abstract of the 6th International Conference on Chemistry and Chemical Engineering Research and Development in Chemistry. pp.6, 2018 June, Ulaanbaatar (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Nyamsanjaa K., Sakagami N., Watanabe M., Oyuntsetseg B.
2. 発表標題 The concentrations of micro elements in sclerotia of Cenococcum geophilum
3. 学会等名 Goldschmit 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Watanabe M., Genseki A.
2. 発表標題 Micromorphological features of sclerotia of <i>Cenococcum</i> spp. collected from low pH forest soils
3. 学会等名 Goldschmit 2020 (国際学会)
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

研究代表者が所属する東京都立大学と研究協力者のボロルマ・オユンツェツェク教授が所属するモンゴル国立大学との全学交流協定（2017年10月締結）の下、本研究課題に関して、モンゴル国内における調査・試料採取および土壌・菌核試料移送に関する許可をモンゴル政府機関より得てABS手続きを完了し、農林水産省植物防疫所より土壌・菌核試料の輸入許可を得て研究を遂行した。

6. 研究組織			
	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	オユンツェツェク ボロルマ (Oyuntsetseg Bolormaa)	モンゴル国立大学・文理学部化学科・教授	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関		
モンゴル	モンゴル国立大学		