

令和 6 年 6 月 20 日現在

機関番号：83102

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2019～2023

課題番号：19K06138

研究課題名（和文）重金属同位体を利用した森林生態系における大気沈着負荷量の推定と物質循環変動の解明

研究課題名（英文）Estimation of atmospheric deposition load and its effects on nutrient dynamics in forest ecosystems using heavy metal isotopes

研究代表者

浦川 梨恵子（Urakawa, Rieko）

一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター・生態影響研究部・主任研究員

研究者番号：40776720

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,400,000円

研究成果の概要（和文）：森林の生態系サービスを持続的に享受するため、環境変化にともなう衰退の兆候を早期に察知することが重要である。越境大気汚染物質の流入が森林の物質循環を攪乱する懸念があり、重金属の同位体比を用いた検出手法の確立が求められている。本研究では、日本の60余ヶ所の森林土壌や林床有機物に含まれる鉛（Pb）およびストロンチウム（Sr）の同位体比を分析し、大気沈着の起源の推定と、その森林生態系への影響評価を試みた。結果として、土壌および林床有機物のSr同位体比は地質と黄砂の影響を受け、Pb同位体比には越境大気汚染物質の寄与が示唆された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本課題の学術的意義は、土壌に蓄積する重金属の同位体比を用いて、生態系に流入する物質の起源を推定する新たな方法を確立したことである。日本の多地点の森林の有機物層や鉱質土壌に蓄積している鉛（Pb）およびストロンチウム（Sr）の同位体比を分析し、それらの地理的分布と影響要因を詳細に解明した。これにより、生態系の物質循環に対する大気汚染物質の影響を評価する手法を提供し、森林衰退を早期に察知することに繋がる。社会的には、森林保全や環境政策の推進に寄与し、国民の生活を支える森林の持続可能な管理に貢献することが期待される。

研究成果の概要（英文）：To sustainably benefit from the ecosystem services provided by forests, it is crucial to detect early signs of the decline due to environmental changes. There is a concern that transboundary air pollutants may disrupt the material cycling in forests, highlighting the need to establish early detection methods using heavy metal isotope ratios. In this study, we analyzed the isotope ratios of lead (Pb) and strontium (Sr) in soil and forest floor organic matter in over 60 forests in Japan. We aimed to estimate the origins of atmospheric deposition and assess its impact on forest ecosystems. The results indicated that the Sr isotope ratios in soil and forest floor organic matter are influenced by geological conditions and yellow sand, while the Pb isotope ratios suggest contributions from transboundary pollutants from the continent.

研究分野：森林環境学

キーワード：森林土壌 重金属同位体比 鉛同位体比 ストロンチウム同位体比 地理的分布 広域調査 越境大気汚染

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

### 1. 研究開始当初の背景

日本の森林は、木材生産、炭素固定、水源涵養、土砂流出防止などの機能を持ち、国民生活を支えている(林野庁, 2015)。これらの生態系サービスを持続させるために、森林生態系を取り巻く環境に対する物質循環の応答特性を把握することが重要である。わが国への越境大気汚染物質の流入は継続しており(環境省, 2014)、過剰な大気沈着物質の流入による森林衰退の兆候を早期に検出する手法の確立が求められている。

国内では、大気汚染と森林生態系の物質循環の関係を解明する研究が行われており、渓流水中の養分濃度の上昇や酸性化が長期的な負荷によって発現することが示されている(例えば Nakahara, et al., 2010)。しかし、長期モニタリングには多大な労力を必要とする。そこで本研究では、森林に蓄積している重金属やその同位体比に注目した。大気中の微粒子にはわずかながら重金属が含まれており、その安定同位体比(特に鉛(Pb)、ストロンチウム(Sr))は起源推定に利用されている。森林において重金属は、林床の有機物層や表層土壌に蓄積していると考えられており(Itoh, et al., 2007)、Pb と Sr の同位体比を調べることで微粒子の起源と負荷時期を推定できる可能性がある。

Pb は、1970年代まで日本国内でガソリンに添加され、大気中に多量に放出された。近年では、中国での石炭などの燃焼により放出された Pb が日本国内に流入することが指摘されているが(Nakano et al., 2006)、これら 2 種類の Pb の同位体比は異なる。Sr は地質母材に含まれているほか、砂塵によっても流入する。日本の土壌母材は主として火山噴出物を起源とするのに対し、中国大陸の砂漠は地質年代が古く、Sr 同位体比は両者で顕著に異なる。この性質を利用して、砂塵とともに運ばれる大気沈着物質の起源を推定することができる(中野, 2014)。

### 2. 研究の目的

森林に流入した重金属は、同位体比という、起源や流入年代のシグナルをともなって、林床有機物や土壌に長期にわたって蓄積・保存されている(図 1)。本研究ではこの性質に着目して、2 つの目的を設定した。

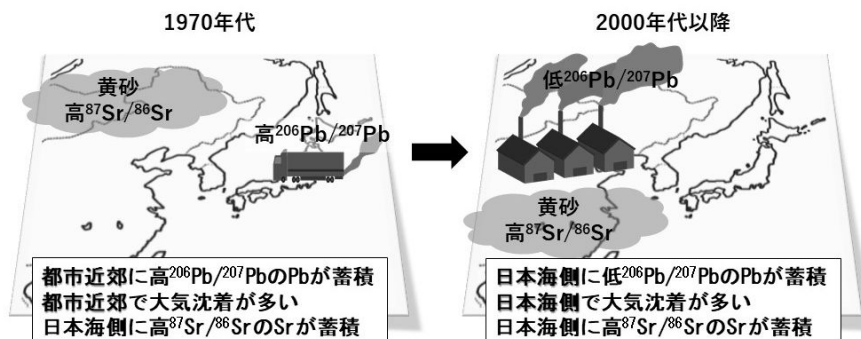


図 1 重金属の排出地域の変遷にともなう同位体比の変化

1. 重金属の排出地域は年代とともに変遷し、排出源によって同位体比が異なる。この特性を利用し、日本の多地点の森林で採取された土壌や林床有機物中の Pb、Sr 同位体比の分析を行い、その地理的分布特性を解明することで、大気沈着物質の起源、起源ごとの寄与度、および流入年代を推定する。
2. 1で得られる大気沈着物質流入量の長期傾向と、既存の土壌の物質循環に関わる特性値や森林モニタリングデータを組み合わせ、大気沈着物質が森林生態系の物質循環に与える影響を明らかにする。

### 3. 研究の方法

上記の 2 つの目的を達成するために、本研究では 2 つの課題を設定し調査・分析を実施した。

課題 1. Pb、Sr 同位体比の地理的分布特性の解明による大気沈着物質の負荷量の推定

日本の約 60 カ所の森林で採取された、土壌および林床有機物の Pb、Sr の濃度と安定同位体の分析を行い、同位体比の地理的な分布解明を試みた。

課題 2. 森林生態系における物質循環に及ぼす大気沈着影響の解明

調査対象地の表層地質、気候条件、樹種、および土壌特性に関するデータが入手可能である(環境省, 2014; Urakawa et al., 2015)。これらの各種特性値と Pb および Sr の同位体比との関係を検討し、同位体比が物質循環の指標として有用であるかを評価した。

#### 4. 研究成果

##### (1) Sr 同位体比

林床有機物中の Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) は採取地の地質年代が古いほど、また火成岩よりも砕屑岩やチャートで高くなる傾向がみられた (図 2)。また火成岩のみで検討すると、冬季降水割合 [年間降水量に占める冬季 (12~2月) の降水量の割合] が高くなるほど、つまり日本海側の地点で Sr 同位体比が高くなる傾向があり (図 3)、大陸からの風成塵の影響が示唆された。以上のことから森林に蓄積する Sr 同位体比には、地質と黄砂の寄与が大きいことがわかった。

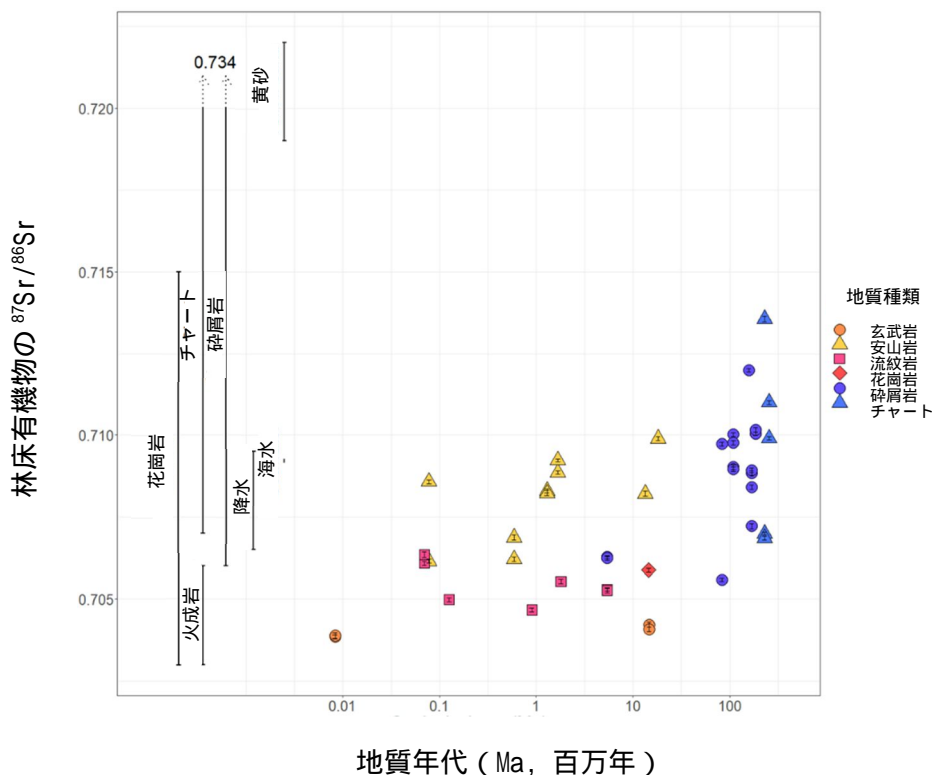


図 2 林床有機物の Sr 同位体比 ( $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ ) と地質の関係

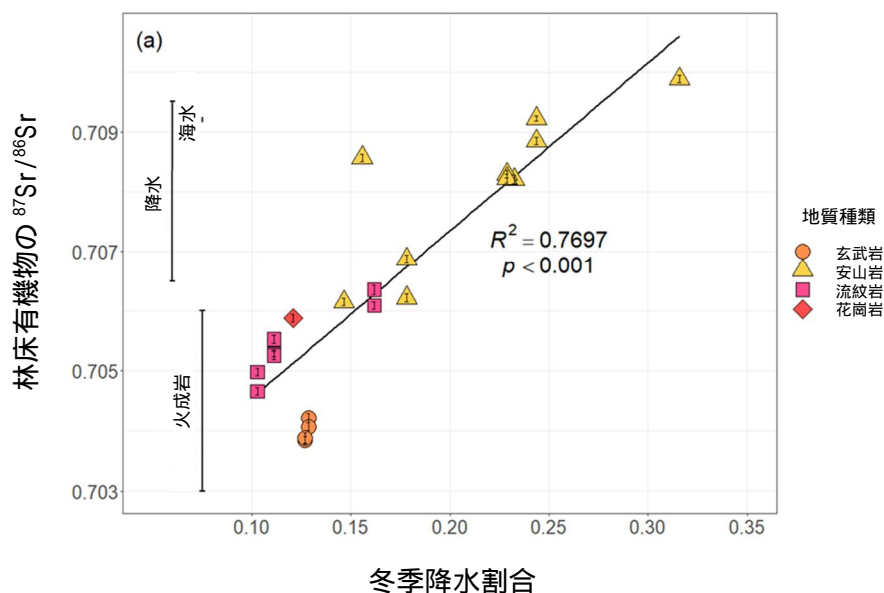


図 3 冬季降水割合と林床有機物の Sr 同位体比の関係

地質および気象条件に樹種や土壌特性値を加えて、土壌や林床有機物の Sr 同位体比を取り巻く要因を解析したところ (図 4)、Sr 同位体比が土壌の酸性度や塩基性陽イオン濃度に影響を及ぼしていることが明らかとなった。一方、土壌の微生物活性を表す窒素無機化速度に対しては、土壌有機物含量の影響が強く、Sr 同位体比が間接的に影響を及ぼす酸性度や塩基性陽イオン濃度の影響は顕著ではなかった。

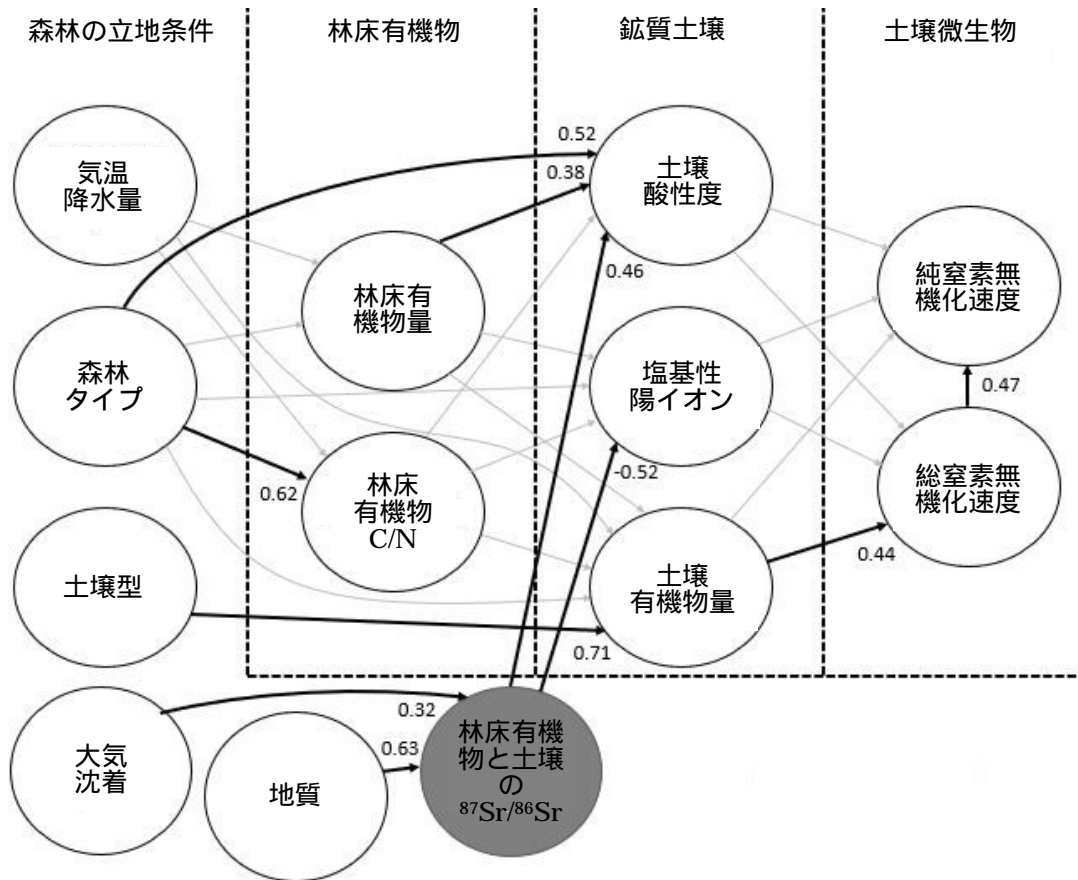


図4 Sr 同位体比を取り巻く要因解析  
太い矢印は有意な関係、矢印横の数字は関係の強さを示す。

## (2) Pb 同位体比

林床有機物中の Pb 濃度については、冬季降水割合の大きな日本海側の地点で高い傾向があったことから (図5) 大陸からの越境物質の負荷が示唆された。

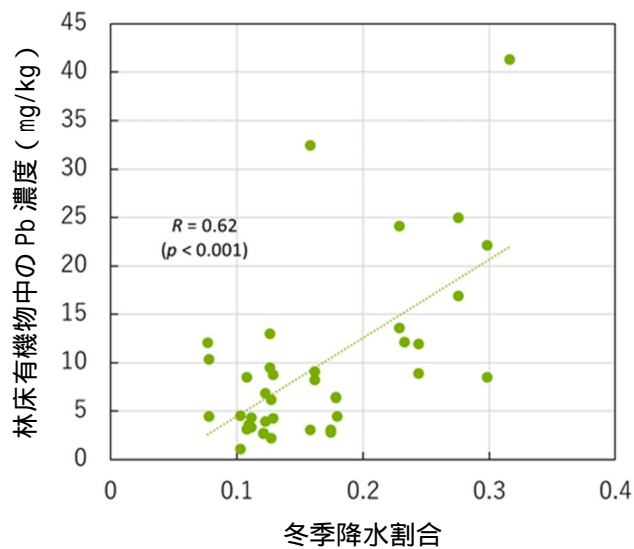


図5 冬季降水割合と林床有機物中 Pb 濃度との関係

林床有機物および土壌中の Pb 同位体比をみると (図6)、中国からの風成塵 (中国レス) とオーストラリア鉛を繋ぐ線に沿って遷移していた。林床有機物 > 土壌表層 > 土壌下層の順にガソリン鉛の影響が強く残っていることが示唆された。Pb 同位体比については地点間差が大きいため、採取地点の地質鉛の同位体比の情報を増やすなど、引き続き検討する必要がある。

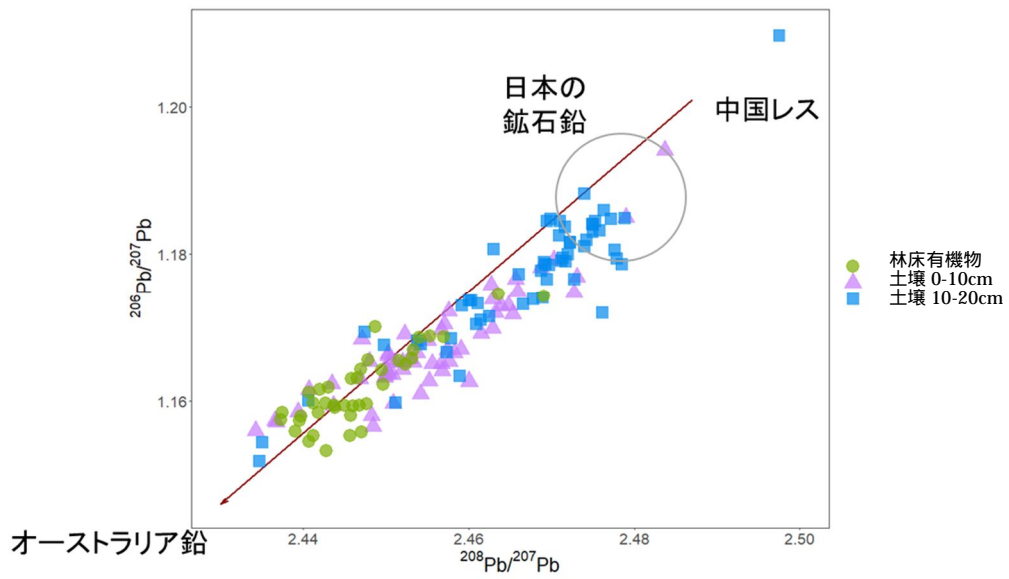


図6 林床有機物、土壌(0-10 cm)、土壌(10-20 cm)のPb同位体比の変遷

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計2件（うち査読付論文 2件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Urakawa Rieko, Ohta Tamihisa, Shin Ki-Cheol, Sase Hiroyuki, Shibata Hideaki, Chikamasa Takaya, Nakano Takanori	4. 巻 162
2. 論文標題 Effects of geological conditions and atmospheric deposition on soil biogeochemical properties in Japanese forested ecosystems revealed by Sr isotope analysis	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Biogeochemistry	6. 最初と最後の頁 57～77
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s10533-022-00991-z	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Urakawa Rieko, Toda Hiroto, Cao Yue	4. 巻 -
2. 論文標題 Long term changes in stream water chemistry in small forested watersheds in the northern Kanto region	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Ecological Research	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1111/1440-1703.12460	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 -

〔学会発表〕 計9件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Rieko Urakawa, Tamihisa Ohta, Ki-Cheol Shin, Hiroyuki Sase, Hideaki Shibata, Takaya Chikamasa, Takanori Nakano
2. 発表標題 Geographical distribution of radiogenic Sr isotope ratio in soil and its contributing factors in Japanese forest ecosystems
3. 学会等名 Acid Rain 2020-10th International Conference on Acid Deposition（国際学会）
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 浦川梨恵子、太田民久、申 基澈、佐瀬裕之、柴田英昭
2. 発表標題 日本の森林土壌に含まれる鉛同位体比の地理的分布特性
3. 学会等名 第11回地球研同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浦川梨恵子、太田民久、申 基澈、佐瀬裕之、柴田英昭、近政孝哉、中野孝教
2. 発表標題 森林土壌の化学性に及ぼす地質と大気降下物の影響 Sr同位体比による解析
3. 学会等名 第69回日本生態学会大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浦川梨恵子、太田民久、申 基澈、佐瀬裕之、柴田英昭
2. 発表標題 日本の森林土壌およびリター層に含まれる鉛同位体比の分布特性
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2022年大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 浦川梨恵子・太田民久・申 基澈・佐瀬裕之・柴田英昭・中野孝教
2. 発表標題 日本の森林土壌の化学性に対する地質と大気降下物の影響 Sr同位体比による解析
3. 学会等名 第10回同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浦川梨恵子・太田民久・申 基澈・佐瀬裕之・柴田英昭
2. 発表標題 日本の森林土壌に含まれる可給態鉛の地理的分布
3. 学会等名 第132回日本森林学会大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 浦川梨恵子・太田民久・申 基澈・佐瀬裕之・柴田英昭
2. 発表標題 森林土壌中の重金属分布の解明 鉛、ストロンチウムに着目した逐次抽出
3. 学会等名 第9回同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 浦川梨恵子・太田民久・申 基澈・佐瀬裕之・柴田英昭
2. 発表標題 森林土壌中の重金属分布の解明 鉛、ストロンチウムに着目した逐次抽出
3. 学会等名 第131回日本森林学会大会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 浦川梨恵子・太田民久・申 基澈・佐瀬裕之
2. 発表標題 森林土壌に含まれる重金属同位体比の長期変動
3. 学会等名 第13回同位体環境学シンポジウム
4. 発表年 2023年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

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 分担者	太田 民久  (Ohta Tamihisa)  (60747591)	富山大学・学術研究部理学系・助教    (13201)	



6. 研究組織（つづき）

	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
研究分担者	申 基チヨル  (Shin Ki-cheol)  (50569283)	総合地球環境学研究所・研究基盤国際センター・准教授    (64303)	
研究分担者	佐瀬 裕之  (Sase Hiroyuki)  (20450801)	一般財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センター・生態影響研究部・部長    (83102)	

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