

酸性雨の土壌への影響について（第1報）

【大気・地球環境室】

九鬼貴弘・尾田喜夫・田中長義・田中卓実・吉田篤史

The effect of acid rain on soil

Takahiro KUKI, Yoshio ODA, Osayoshi TANAKA, Takumi TANAKA, Atsushi YOSHIDA

Abstract

Acid rain (acid deposition) in Tottori Prefecture has been detected and recorded for many years now. Although the effects of acid rain are recognizable, the exact influences on the ecosystem are not well-understood. Moreover, although the ecosystem is known to express many buffer functions against acid rain, the mechanisms and limits of these buffer functions are relatively unknown. Furthermore, we are unable to predict the trajectory of the impact of acid rain on ecosystems.

The soil system is the key point of consideration when researching the influence of acid rain on ecosystems. Before rainwater filters into the water system or is absorbed by plants, it must permeate through soil. Taking all this into consideration, the goal of this study was to develop an understanding of the basic mechanisms of acid rain buffers and develop techniques for the prediction of the influence of acid rain on the soil system.

First we made “Artificial Acid Rain (pH:3)” based upon rainfall in Tottori Prefecture. We also made a “Soil Pot” from a stuff soil sample collected from the surface layer of one of three representative soil types found in Tottori Prefecture (Andisol, Grus, Sand dune soil). This soil sample was contained in a garden pot, hence the term “Soil Pot.”

We then sprinkled “Artificial Acid Rain (pH:3)” on “Soil Pot” under controlled conditions regulated by an artificial weather control room, whereby we measured pH, EC, basic cation (Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+) in the outflow water filtered through “Soil Pot”.

pH values in outflow waters that were filtered through Soil Pots were higher than pH values of Artificial Acid Rain samples. These results indicate that all soil samples express buffering properties. However, the results also show that the concentration of basic cation in outflow water had decreased, and consequently that the amount of acid addition increased. We can infer from this that bases have been eluted and washed away from soils. Furthermore, the acidity of outflow from Andisol, considered to be a strong buffer, is high; whereas, the acidity of Sand dune soils, considered to be a weak buffer, is weak.

In a field survey and soil analysis of Andisol soil type in Mt Daisen, Andisol soil was determined to be acidified from surface to deep horizon (depth:1m). Results from this investigation show that the acidity of this surface horizon soil is strong; thus, lending support for the results from the above experiment. On the other hand, the acidity of the deep horizon soil (depth>30cm) is relatively low.

1 はじめに

酸性雨は県内各地で観測されているが、現在のと

ころ、酸性雨が原因であることが明らかな生態系への影響は確認されていない。生態系の酸に対する緩衝能が大きいことによると言われているが、その機

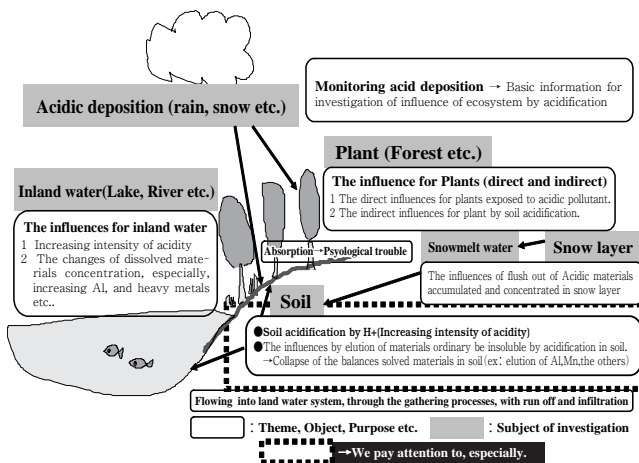


Fig 1 The effect of acid rain on the ecosystem
 …Soil plays a keystone role in the ecosystem.

構や限界について不明な点が多く、また将来的にどうなるのか判っていない。

降水は土壌を経由して水系に流れ込み、また植物に吸収されることから、土壌は酸性雨（降水）の生態系への影響を考える上での要であるといえる（Fig 1）。

このことを踏まえ、酸性雨の土壌への影響機構解明・予測のための知見を得ることを目的とし、当所に設置されている人工気象室を利用し、県内の代表的な土壌に対し、降水観測データを基に酸組成を調製した「人工酸性雨」の降下実験を行った。また、この実験に用いた土壌のうち、早期酸性化の可能性が示唆された黒ボク土壌について、現地調査等を実施し、若干の知見を得たので報告する。

2 方法

1) 表層土への人工酸性雨流下実験

(1) 供試土壌の調製等¹⁾

県内の代表的な土壌である黒ボク土（大山にて採取）、まさ土、砂丘未熟土の表層土を供試土壌とした。これら土壌を採取して持ち帰り、大きな枯れ葉、枯れ木等を取り除いて均一に混合し、ワグネルポット（断面積 1/5,000アール）に 3 kg 充填し、各土壌につき 2 ポット、2 × 3 = 6 個のポットを準備した。

(2) 人工酸性雨の調整と降下方法

降下させた人工酸性雨は、以下のとおり調製した。

- ① 酸性度：pH = 3
- ② 酸組成…硫酸イオン及び硝酸イオン組成：

$$[\text{SO}_4^{2-}] / [\text{NO}_3^-] = 1.05 \text{ (モル比)}$$

…過去 5 年間の県内降水の酸組成（ NO_3^- 、 SO_4^{2-} ）に合わせた。

この人工酸性雨を、1 日当たり 10mm/時間で連続 4 時間（→1 日につき約 40mm）で連続 5 日間、計約 200mm を 1 期間として合計 2 期間、約 200mm × 2 = 約 400mm 降下させた。

なお、県内で観測されている降水の平均 pH が 4.8 で、降水量が年間約 2,000mm であることから、この実験で土壌に添加した酸（ H^+ ）負荷量（pH 3 で 400mm）は、

$$(10^{-3.0} \times 400) / (10^{-4.8} \times 2,000) = 12.6 \rightarrow 13$$

のとおり、県内の降水による酸負荷量の約 13 年分に相当。

人工酸性雨を降下させて土壌を通過してきた流出水をタンクで受け、1 日毎に回収して測定した。

(3) 測定項目

回収した流出水について、以下のとおり測定。

- pH：ガラス電極法
- EC：導電率法
- Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ ：濾過後イオンクロマトグラフ法

2) 大山黒ボク土壌調査

「平成 15 年度環境省酸性雨土壌・植生長期モニタリング調査（大山隠岐国立公園内ブナ林で実施。以下「モニタリング調査」とする）」の機会に、当該調査地点内 2 箇所（表層～深層部（約 1 m 強）の土壌調査（現地調査及び土壌分析）を実施した。

なお、当該調査地点は 1) の実験で供した黒ボク土壌の採取地点から 5 km 程度のところにある。

(1) 現地調査・試料採取^{2), 3), 4)}

モニタリング調査で設定した 2 つの調査区域（プロット I、II）内中心部に幅約 1 m × 奥行約 2 m × 深さ約 1 m の穴を掘り、その一面（斜面上方側）に調査断面を作成し、表層から順に A1 層、A2 層、AB 層、B 層の 4 層に層位分けして現地調査を実施した後、各層位毎に土壌を採取した（Fig 2）。

同じ箇所の土壌でも、表層から深層へと性状が大きく変化していることが（現地調査の範囲内で）判った。

(2) 試料調整

採取した土壌（生土）試料を大型ポリエチレン袋

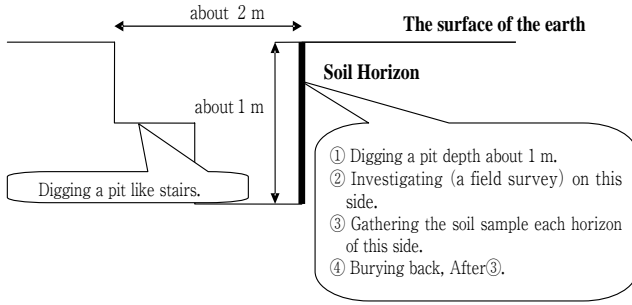


Fig2 The method of soil investigation(a field survey)

に入れて持ち帰り、試薬等使用していない部屋で実験用ペーパータオルを敷いたかごに広げ、時々手で塊を潰しながら、また木片・落葉・根等の夾雑物を取り除きながら自然乾燥させた後、磁性乳鉢とシリコンゴム杵を用いて粉碎し、孔径2mmのふるいを通して「風乾細土壌試料」とし、以下の化学分析等に供した。

(3) 測定項目

- pH(H₂O)、pH(KCl) :

水又は1M-KCl振とう抽出・ガラス電極法

- 交換性塩基 (Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺) :

1M-酢酸アンモニウム振とう抽出・原子吸光法

- 交換酸度、交換性Al、H⁺ :

1M-KCl溶液抽出・中和滴定法

3 結果・考察

1) 表層土への人工酸性雨流下実験

(1) pH、ECの推移

人工酸性雨降下量に対する土壌流出水のpH、EC値の推移を示す (Fig 3, 4)。当該人工気象室内の降雨装置噴射部の性能により、降雨量にバラツキがあるため、降水量については、ワグネルポット設置場所付近で実測した値を用いてプロットした。

まず、流出水pH (土壌溶液のpHを反映) は、黒ボク土で5~4台後半、砂丘未熟土で7前後で推移した。どの土壌も添加した人工酸性雨 (pH3) よりも高い値となり、一定の緩衝作用が認められた。なお、緩衝能力が高いとされる黒ボク土で流出水pHが最も低かった。

次に、流出水EC値 (溶存電解質濃度を反映) は、実験開始直後のデータが得られていないものの、実

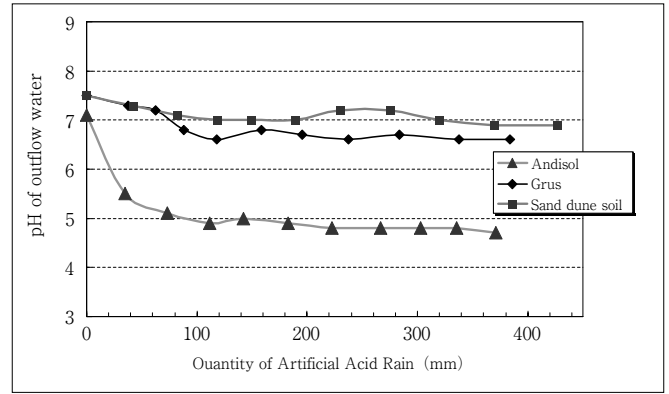


Fig3 pH values in outflow waters from all Soil Pots, sprinkling “Artificial Acid Rain (pH:3)” soil sample, using the surface layer samples of typical soil in Tottori prefecture

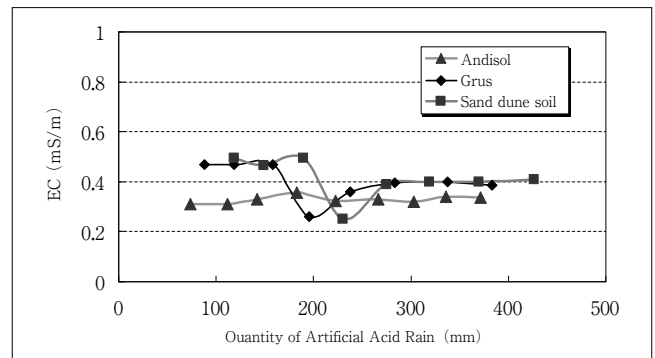


Fig4 EC values in outflow waters from all Soil Pots, when we stuffed “Artificial Acid Rain (pH:3)” soil sample

験期間を通じて、

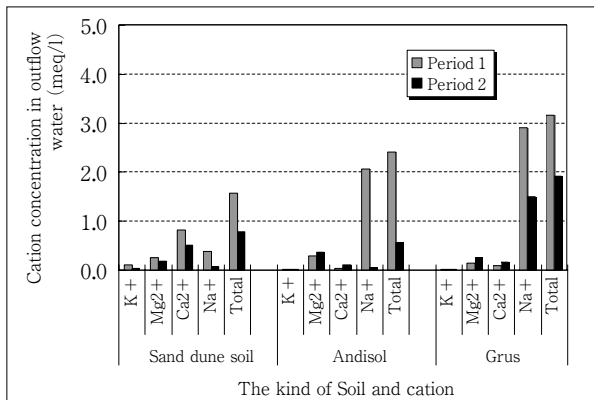
砂丘未熟土≒マサ土>黒ボク土

で推移した。なお、人工酸性雨降下量が200~250mmとなったところで、マサ土と砂丘未熟土で変動 (一旦低下後再上昇) が認められた。しかしその後は、低下前のレベルよりも低いものの一定値 (0.4mS/m) 前後で推移し続けた。黒ボク土ではこのような変動は認められなかった。

(2) 流出水中の塩基性陽イオン濃度

次に、1期間毎 (0~200、200~400mm) の流出水中の塩基性陽イオン濃度測定結果を示す (Fig 5)。個別のイオン種及び土壌種毎の違いがあるものの、大体どの土壌も期間の経過 (→酸負荷量の増加) とともに流出する塩基性陽イオン濃度が低下し、塩基が溶脱・流亡することが示唆された。

個別のイオン種及び土壌種毎の結果について、Na⁺、K⁺については、ほぼ全ての土壌で流出水中濃度が期間1 > 期間2となったが、Ca²⁺、Mg²⁺については、砂丘未熟土ではNa⁺、K⁺と同様となったが、黒ボク土、マサ土では、逆に、期間1 < 期間2となった。これについては、イオンの価数による挙動の違いや、土壌のイオン吸着量・親和力の違いによるものと思われる。



Period1: The datas of the period, Artificial Acid Rain sprinkled 0~200mm
 Period2: " 200~400mm

Fig5 Cation component in outflow waters from Soil Pots, stuffed "Artificial Acid Rain(pH:3)" soil sample

(3) 検討

以上の実験で、緩衝能力が高く酸性化への耐性が強いと言われる黒ボク土壌で早期に酸性化が起こる可能性があることが示唆され、逆に酸緩衝能力が低いと言われる砂質土壌の砂丘未熟土等で意外に酸性化への耐性が強い可能性があることも示唆された。

2) 大山黒ボク土壌調査

(1) 土壌pH・交換酸度等

Table 1 に土壌pHの測定結果を示す。

pH (H₂O) は土壌の液相中に溶存するH⁺濃度に対応するものであり、土壌の酸性度の強さが反映されている。一方pH (KCl) は土壌粒子表面に吸着している酸性陽イオン (H、Al) も過剰のKClで置換・浸出して反映されることから、その分、pH (KCl) 値が低くなっていた (その差 ΔpH=0.7~0.8)。

交換酸度 (交換性Al+H当量) とpHとの関係を Fig 6 に示した。交換酸度や交換性Hの増加に伴って、pH (H₂O)、及びpH (KCl) いずれも低下している。なお、どの層も酸性であったが、表層部ほど酸性

Table 1 pH of soil

Horizon	Depth(cm)	pH (H ₂ O)	pH (KCl)
A1	0~8 or 10	4.0~4.6 (average 4.3, n=10)	3.3~3.9 (average 3.5, n=10)
A2	8 or 10~30	4.8~5.1 (average 4.9, n=10)	4.0~4.3 (average 4.2, n=10)
AB	30~50 or 75	5.3 (n=2)	4.7~4.8 (n=2)
B	50 or 75~90 or 120	5.5~5.6 (n=2)	5.0~5.2 (n=2)

度が強く、下層部の酸性度は比較的弱かった。交換酸度もこれに対応していた (Table 1、Fig 6)。

(2) 交換性陽イオン (土壌表面の吸着陽イオン) 組成
 土壌粒子表面は負に荷電していることが多く、陽イオンを吸着している場合が多い。吸着されている陽イオンは、他のより吸着されやすいイオンや過剰のイオンを添加すると、イオン交換反応により交換・脱着されるものが多いので、これらを「交換性陽イオン」という。

酸性雨等で酸 (H⁺) が土壌に加わっても、Ca²⁺等の交換性陽イオンとのイオン交換反応で、H⁺は吸着・固定され、土壌溶液中の酸性度は保たれる。これが「土壌の緩衝能」の大きな要因の1つであるが、限界がある。

酸性化が進行するとH、Alの割合が増加する (Fig 7)。

各層土壌の交換性陽イオン組成を以下に示す (Fig 8)。

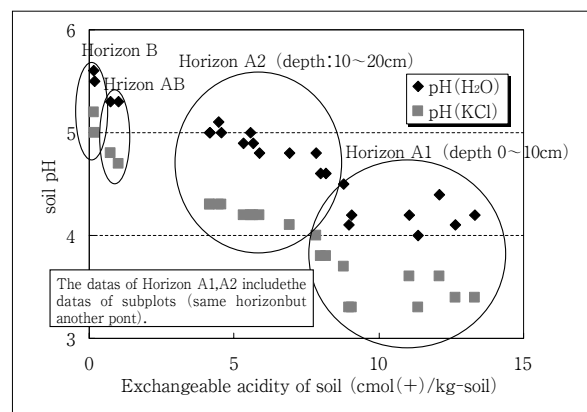


Fig6 Exchangeable acidity and pH of soil in crowded

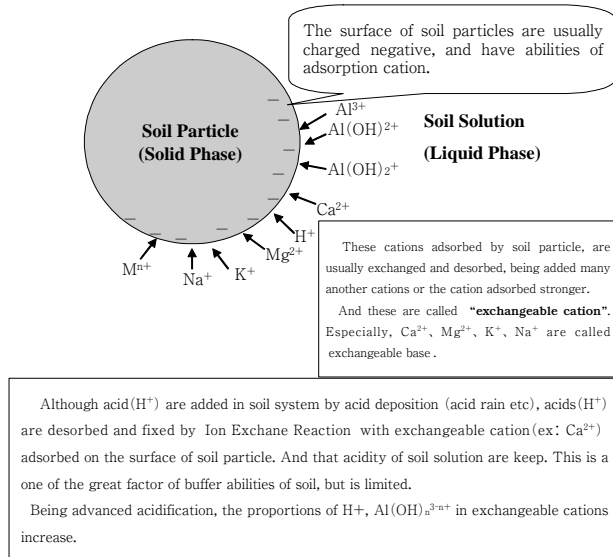


Fig7 The cation exchange abilities of soil and exchangeable cations

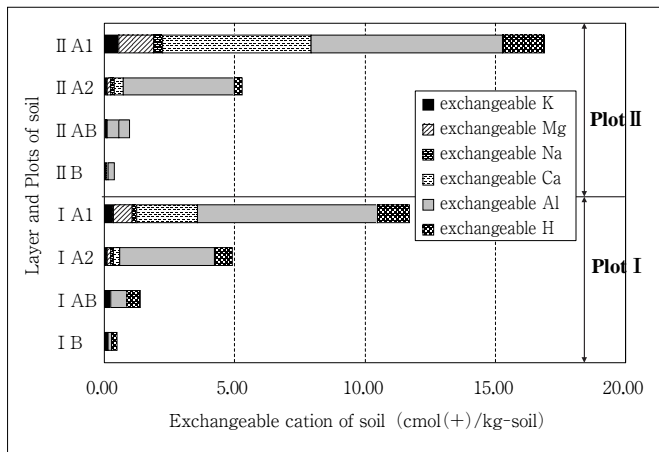


Fig8 The exchangeable cation component on each soil layer of Andisol in Mt Daisen

どの層の土壤も塩基性陽イオン (Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺) の割合が低く、酸性陽イオン (Al, H⁺) の割合が高く、土壤が酸性化していることが示唆された。

これに関連して、土壤酸性化によるAlの植物等への影響を考える際によく用いられる (Ca+Mg+K)/Al (mol比) を交換性陽イオン量より算出して示す (Fig 9)。

「土壤溶液」中の当該値が1よりも小さくなると植物の生長が抑制されるとの報告があり、また、酸性化させた褐色森林土で12週間生育させたスギ苗の乾物生長量と土壤中の水溶性元素濃度から算出した (Ca+Mg+K)/Alとの関係から、この比が5より小

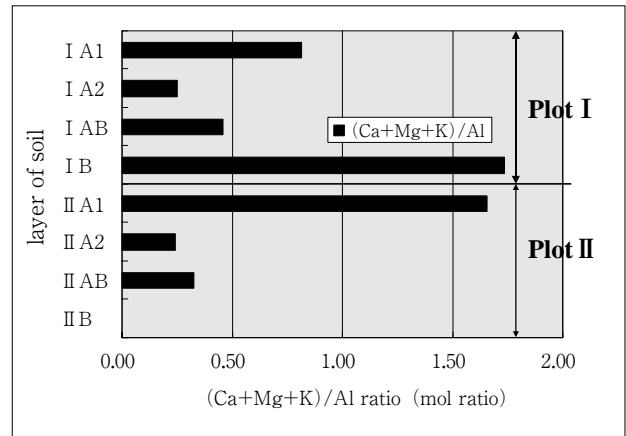


Fig9 (Ca+Mg+K)/Al ratio mol ratio of exchangeable cation in soil each horizon in 2 plots of Andisol in Mt Daisen

さくなるとスギ苗の乾物生長が低下し始めたとの報告もある^{5), 6)}。

今回の測定結果から算出した数値は「交換性陽イオン」についてのものであり、そのまま適用できないが、「土壤溶液」中へは、交換平衡 (+溶解平衡) の関係にあって、土壤溶液中に容易に溶出する可能性もあることから、当該地点の植生への影響の可能性も考えられる。

なお、最も酸性度が高い最表層部土壤で、塩基性陽イオン量が比較的高かった。このことについては、植生 (樹木、下層木・草) の作用 (植物が地中下層からこれらを吸収。→葉・茎等に蓄積→枯死して地表部に落下・堆積→腐朽・溶出→土壤に供給等) によると考えられる⁶⁾。また、同時に酸性陽イオン量も多いので、酸性度も高いと考えられる。

表層部土壤の酸性度の強さについては、近年の酸性雨以外にも、母材が古く風化が既に進行していることや、表層部や表面の有機物分解・腐植化の過程で生じる有機酸の影響も考えられる。

4 まとめ及び今後の課題

表層土への人工酸性雨降下実験、及び大山黒ボク土壤調査結果より、以下のことが判った。

- 1) 黒ボク土、マサ土、砂丘未熟土の表層土に人工酸性雨 (pH 3) を添加したところ、どの土壤も流出水のpH上昇が見られ、一定の緩衝作用が認められた。

- 2) 酸への緩衝能が高いとされる黒ボク土の流出水の酸性度が強く、低いとされる砂丘未熟土で弱かった。
- 3) 酸添加量の増加とともに流出水中の塩基性陽イオン濃度が低下、塩基の溶脱・流亡が示唆された。
- 4) これを受け、大山の黒ボク土壌について調査（現地調査・分析）したところ、表層部は酸性度が強く、成分データより植物影響の可能性も考えられたが、深層部では比較的酸性度は弱いことが判った。なお、この酸性化が酸性雨によるものかは未解明。
- 5) 以上より、大山黒ボク土壌は、表層部ですでに酸性度が強く、人工酸性雨添加実験（表層土への添加実験）結果は、それを反映したものと思われる。

このことを念頭に、今後は、土壌調査を実施した大山黒ボク土や氷ノ山褐色森林土土壌、砂丘未熟土等について、必要な基データを得た上で、自然の状態（上～下部へと何層かに別れており、各層毎に性質が異なる）を再現し、人工酸性雨降下実験を実施する予定。

「生態系の要」としての土壌に対する酸性雨の影響について、土壌への浸透性の違いも踏まえ、各層への影響、特に深層部への影響や、継続的に酸（酸性雨）が添加されていったときの変化等についての知見を得ていくこととする。

参考文献

- 1) 相原敬次・小山恒人他（1999）「人工酸性雨の流下による土壌の化学性の変化と流出イオン」
神奈川県環境科学センター研究報告第22号
- 2) 環境省地球環境局（2003）「土壌・植生モニタリング手引書」
- 3) 日本土壌肥料学会監修・土壌環境分析法編集委員会編（1997）「土壌環境分析法」 博友社
- 4) 農林省農林水産技術会議事務局監修・土壌養分測定法委員会編（1994）「土壌養分分析法」 養賢堂
- 5) 環境庁地球環境部監修（1997）「地球環境の行方－酸性雨」 中央法規
- 6) 佐竹研一編著（1999）「酸性環境の生態学－酸汚染と自然生態系を科学する－」 愛智出版