

C-6 流域の物質循環調査に基づいた酸性雨による生態系の酸性化および富栄養化の評価手法に関する研究

(1) 貧栄養流域における酸性物質の動態と収支の推定

|                            |                 |
|----------------------------|-----------------|
| 信州大学理学部                    | 戸田任重            |
| 独立行政法人農業環境技術研究所            |                 |
| 地球環境部生態システム研究グループ 物質循環ユニット | 大浦典子            |
| 信州大学理学部                    | 鈴木啓助            |
| 北海道大学北方生物圏フィールド科学センター      | 波多野隆介           |
| 名古屋大学理学部                   | 木平英一            |
| 東京農工大学農学部                  | 小倉紀雄 (平成14年度のみ) |

<研究協力者> 北海道大学農学部 中原 治

平成14～16年度合計予算額 29,624千円  
(うち、平成16年度予算額 9,383千円)

[要旨] 乗鞍岳東斜面の前川流域と北海道札幌近郊の白旗山を貧栄養な共同調査地として選定し、2002年から2004年にかけて3年間にわたり観測を継続した。前川流域では、窒素降下量、リターフール量、土壌水や渓流水中の硝酸イオン濃度、一酸化二窒素など温室効果ガスの放出量は、茨城県、多摩地域の富栄養流域での値よりいずれも低く、また奥日光など他の山岳観測結果と比較しても極めて貧栄養状態にあることが示された。

同じく貧栄養な札幌近郊の白旗山流域では、窒素降下量は少ないものの、5集水域間で窒素降下量には3倍、窒素流出量には2倍の差異が認められた。また、窒素降下量とカラマツの生長量とには有意な正の相関が認められ、窒素降下による施肥効果が示された。短期間(3週間)の窒素降下は、メタン吸収を抑制し、一酸化二窒素発生を促進する効果がある事も分かった。さらに、カラマツのN/P比が高いことから、白旗山流域の生態系が極めて強いリン制限にあること、リン制限のために、比較的小さな窒素降下量に対しても、硝酸イオン流出や一酸化二窒素の放出のような窒素流出が起きやすいことが示唆された。

全国1,242溪流の硝酸イオン濃度は、5-20 $\mu$ Mが全体の約半数あり、平均濃度は26.2 $\mu$ M、中央値は18.1 $\mu$ Mであった。硝酸イオン濃度の低い溪流は、北海道から東北に集中しており、濃度が高い溪流は、東京近郊、大阪近郊、瀬戸内、北九州でみられた。渓流水の硝酸イオン濃度は、気温とは正の、降水量とは負の相関関係を示したが統計的には有意ではなかった。それらに対し、大気由来の窒素負荷量と渓流水の硝酸イオン濃度とには有意な正の相関関係が認められた。約50年前に実施された全国調査と比べると、溶存イオンの中では硝酸イオンとアンモニウムイオンのみが顕著に増加していた。渓流水質は、気候や植生、母材などの要因にも影響を受けるが、窒素に関しては大気汚染を通じた人間活動の影響を強く受けていることが判明した。

[キーワード] 酸性降下物、窒素負荷、渓流水、一酸化二窒素、硝酸イオン

## 1. はじめに

東アジアではエネルギー需要の増大に伴うSO<sub>2</sub>排出量の増加、自動車の普及に伴うNO<sub>x</sub>発生量の急増、さらに農業由来のアンモニアの増大が予測される<sup>1)</sup>。窒素を含む酸性降下物質の増大は、土壌、地下水、渓流水などの酸性化と富栄養化の原因となる<sup>2,3)</sup>。窒素の供給過剰により、本来は窒素制限下にある森林から窒素が流出する現象（窒素飽和）が、欧米をはじめ<sup>4)</sup>、国内の森林でも報告されている<sup>5)</sup>。また、実験的に「窒素飽和」が引き起こされることもわかってきた<sup>6,7)</sup>。わが国は、地上には人為的汚染源のない広大な森林を有する。そこでの物質循環に酸性降下物質が影響を及ぼし始めている懸念がある。酸性物質の影響の程度は、植物による養分吸収、有機物分解、土壌からの塩基供給など、植物－土壌系における物質循環（内部循環）の大きさによって地域により異なるであろう。果たして、酸性降下物質はわが国の森林での物質循環に影響を及ぼしているのだろうか、影響しているとすればその程度はどのくらいか、地域による差異はどの程度あるのか。これらの問題に答えるために、平成14年度より16年度まで3年間にわたり本研究を実施した。

## 2. 研究目的

大気由来の酸性降下物質が、森林に降り注ぎ、森林での物質循環に変化をもたらし、最終的には渓流水の水質にまで影響する。本研究では、貧栄養流域における、酸性降下物質の動態を定量的に明らかにすること、および渓流水水質の国内での現状把握を目的とした。

長野県乗鞍岳東麓斜面の森林域における研究では、降水が樹冠を通過し、土壌表層に浸透する過程の中で、その溶存物質濃度がどのように変化していくのかを明らかにすることを目的として、試料の採取、分析、解析を行った。また、樹種によって樹冠における樹冠遮断量、樹冠通過量、樹幹流量の割合が異なることから、針葉樹と広葉樹による循環の違いや、また年間を通して調査を行うことより、季節変化についても検討する。さらに、林床からの、林床でのガス交換を通じた窒素移動についても検討する。

乗鞍と同様に貧栄養流域として選定した北海道札幌市近郊の白旗山では、植生、土壌種が同一で負荷量のみ異なる小流域を対象に、窒素負荷の影響を明らかにする目的で同様の調査を行う。また、白旗山は火山灰土壌であり、花崗岩母材の乗鞍との比較により土壌種による違いについても検討する。

国内における渓流水水質の全国的に比較可能なデータを取得し、現状を把握することを目的として、各県30地点以上を目標に、全国規模での採水調査を実施し、水質（特に窒素濃度）の地域差異をもたらす要因を検討する。

## 3. 研究方法

### (1) 流域の物質循環調査

我が国の貧栄養から富栄養の数カ所の流域を研究対象地として選定した。貧栄養流域として長野県前川流域と北海道札幌郊外の白旗山において観測を行った。特に長野県の前川流域を主な共同調査地として頻度の高い測定を行った。また従来観測を行っている東京の八王子のFM多摩丘陵（東京農工大学演習林）と茨城県の観音台・八郷を、富栄養な比較対象地とした。調査対象地を図1に示す。

### ①長野県前川流域

研究対象流域は長野県と岐阜県の境に位置する乗鞍岳(3026.3m)の東側斜面に広がる高山源流域である。研究対象流域の全流域面積は10.97 km<sup>2</sup>で標高は1470~3026 mの北西から東方向へ流路をもつ流域である。下流部はシラビソ・オオシラビソ群落が優占している。流域の表層地質は主に花崗岩から成っている。乗鞍岳は火口湖が点在するコニーデ型火山で、飛騨山脈に沿って分布する乗鞍火山列を構成する第四紀火山である。乗鞍火山は、6つの火山体からなる複合火山であり、約10万年前から現在に至る火山活動によ

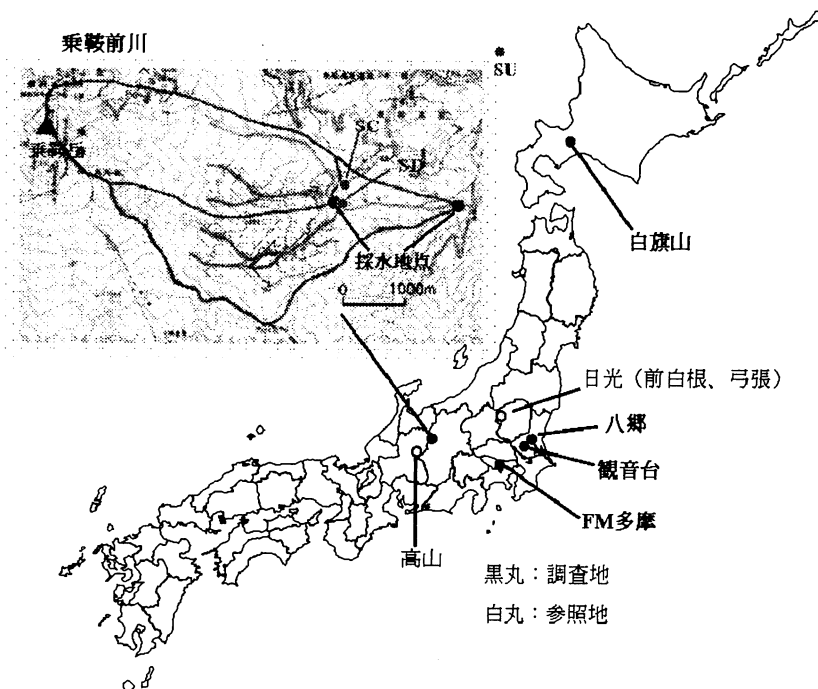


図1 調査対象及び参照流域と乗鞍前川流域の測定地点

て形成され、火山噴出物によって出来た台地が広がり、幼年期のなだらかな山容をしている。本研究で対象とした東斜面では、新期火山体からなる溶岩台地が広がっている。この地域の気候は、日本気象協会による奈川村の気象観測データを基にすると、1994年から2003年の年平均降水量は1929 mm、年平均気温は8.4℃であった。

信州大学乗鞍寮(SU)の標高は1440mである。植生はクリ・ミズナラ群落で、5月初旬に発芽を始め、6月中旬には展葉し、10月下旬にはすべて落葉する。針葉樹林内調査地(SC)は標高1600 mで、常緑針葉樹であるシラビソが優占し、落葉針葉樹であるカラマツも見られる。広葉樹林内調査地(SD)は標高1500 mで、シラカバが優占するが、低木にはシラビソなどの常緑針葉樹も見られる。

降水試料は信州大学乗鞍寮において林外降水2ヶ所、林内降水4ヶ所、針葉樹林内調査地と広葉樹林内調査地において林内降水をそれぞれ4ヶ所で採取した。信州大学乗鞍寮での試料採取期間は、2002年11月29日から2004年12月3日まで、広葉樹林内調査地と針葉樹林内調査地での試料採取期間は、2003年5月14日から10月22日および2004年5月12日から10月28日までである。試料採取には5Lのポリエチレンビンに直径20cmのロートをつけたバルクサンプラーを使用した。試料採取は定期的に行い、現場で重量を測定し、降水量を求めた。ロートおよびポリエチレンビンは純水で洗浄し、再設置した。採取した試料は実験室に持ち帰り、ろ過した後、電気伝導度を電気伝導度計(TOA: CM-30V)、pHをpH計(TOA: HM-30V)でそれぞれ測定し、イオンクロマトグラフ(DIONEX: DX-500)を用いて溶存物質( $\text{Na}^+$ ・ $\text{NH}_4^+$ ・ $\text{K}^+$ ・ $\text{Mg}^{2+}$ ・ $\text{Ca}^{2+}$ ・ $\text{Cl}^-$ ・ $\text{NO}_3^-$ ・ $\text{SO}_4^{2-}$ )濃度を測定した。

土壌水試料は各地点3ヶ所で採取した(信州大学乗鞍寮では2004年から4ヶ所)。信州大学乗鞍寮での試料採取期間は2003年4月24日から11月27日および2004年4月9日から11月17日まで、針葉樹林内調査地および広葉樹林内調査地での試料採取期間は2003年5月14日から10月22日および2004年5月12日から10月28日までである。試料採取にはポーラスカップ法を使用し、それぞれ20cmと

50cmの深さに設置した。試料採取・分析は降水試料と同様である。さらにHCO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度を硫酸滴定法によって測定した。Ao層浸透水試料は針葉樹林内調査地および広葉樹林内調査地において、それぞれ3ヶ所で採取した。試料採取期間は2003年5月14日から10月22日および2004年5月12日から10月28日までである。試料は、2Lまたは3Lのポリエチレンビンに直径13cmのロートを取り付け、ロートにAo層を入れ、地表面と同じ高さになるように設置して採取した。試料採取・分析は土壌水試料と同様である。

樹幹流採取は、各地点1ヶ所で採取した。調査期間は、信州大学乗鞍寮で2004年5月18日から11月17日まで、針葉樹林内調査地と広葉樹林内調査地で2004年8月30日から10月28日までである。試料は、幹の周りにシリコンシーラントを厚さ約2cmに塗り、そこにホースを取り付け、その上に厚さ3mmのビニールシートを巻いて固定して採取した。高さは地面から130cmの所に設置した。試料採取・分析は土壌水試料と同様である。

前川流域内の河川について、詳細な水質変動を明らかにするために、上流(標高 1610 m)・下流(標高 1470 m)の2地点に自動採水器 (ISCO-2900) を設置し、2002年5月24日から定期的に採水を行った。採水間隔は1日3回、0時、8時、16時の8時間間隔とした。試料採取・分析は降水試料と同様である。渓流水の水位は圧力センサーとデータロガー (KADEC-US) により自動計測し、流量観測により求めた水位-流量曲線に基づき流量の計算を行った。

林床からの温室効果ガス (N<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub>) のフラックスを、クローズドチャンバー (チャンバー: 直径 20cm×高さ 10cm) によりほぼ毎月測定した。

## ②北海道白旗山流域

札幌市清田区に位置する白旗山都市環境林 (N 42°56', 141°25')を調査対象地とした(図2)。調査地近傍の札幌管区気象台・札幌観測地点の年平均気温は8.2℃で、年降水量は1130mm、そのうち320mmが降雪で、11月後半から4月まで白旗山都市環境林は積雪に覆われる。白旗山都市環境林は面積1100haのうち人工林が900ha、天然生林が174haで人工林率は84%、樹齢50~60年程度のカラマツ人工林が全面積の72%を占める。針葉樹人工林はカラマツ以外にトドマツ、ヨーロッパアカマツが見られる。広葉樹は造林不適な急傾斜地を中心にシラカンバ、ヤチダモ、イタヤカエデをはじめとして、ミズナラ、ホオノキ、シナノキ、キタコブシ、ウダイカンバ、ヤマブドウ、サルナシなど数十種が見られ、大部分が50年前後の林分となっている。林床は、尾根沿いにチシマザサ、沢地よりカラマツ高齢林にクマイザサが繁茂している。白旗山都市環境林では1913年からカラマツの植林が始まり、1960年代後半からカラマツの需要が減少し、1984年からは「白旗山都市環境林」の整備が行われている。本研究の観測地点はカラマツ林分で行った。白旗山都市環境林のカラマツ林は概して5月に着葉し、10月から11月にかけて落葉する。土壌は淡色黒ボク土で、土壌断面調査の結果、微地形によりA層の層厚は変化するが、調査地帯はほぼ同様の断面形態を示す事が分かった。土壌が均一であることと、カラマツ林が72%を占める事から、白旗山都市環境林は本研究に適した立地であると判断した。

白旗山の5つの小集水域を設定した(A集水域~E集水域)。A~C集水域は南西から北東に向かって流れる山部川の南に位置し、D、E集水域はその更に南側で、厚別川の北に位置する。A集水域とD集水域では5地点で、他の3集水域(B集水域、C集水域、E集水域)では6地点に林内雨採取器を設置した(図2の白丸)。林内雨採取器は10cm x 180cmの雨樋を用い、A6、B4、C1、E2では3反復、

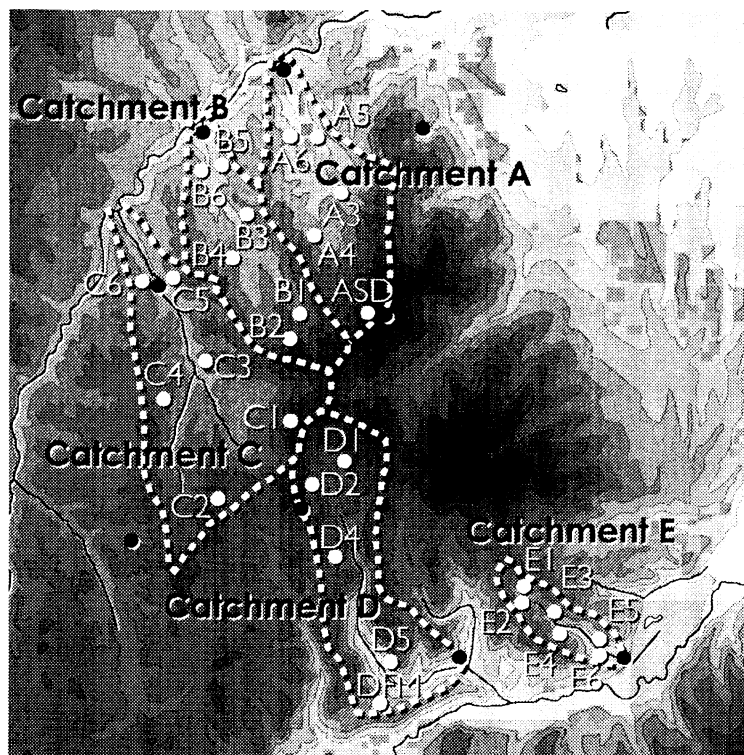


図2 北海道白旗山調査

DFMでは4反復、他の地点では2反復設置した。2002年度のみ反復なしの設置を行った。林外雨の採取は各集水域の出口と尾根近辺の樹冠による遮断がない9地点を選んで行った(図2の黒丸)。林外雨の採取も林内雨同様の雨樋を用いた。林外雨採取器は対象とする5集水域内では2反復、5集水域の外の2地点で3反復で設置した。降水試料の回収は約3週間の頻度で行った。降水試料は分析まで4℃の低温で保管した。林内雨と林外雨は、入山可能な5月から11月前半まで行った。

各集水域の出口において、月1回から2回の頻度で渓流水の採取を行った。渓流水試料はポリ容器で採取し、分析まで4℃の低温で保管した。渓流水の採取時には河川流量の測定も行った。渓流水試料の採取は、林内雨・林外雨同様に入山可能な5月から11月前半に行ったが、D集水域とE集水域は冬季間も渓流水採取地点に入る事が可能なため、2003年以降は、冬季間と融雪期の採取も行った。なお、A集水域とB集水域は地下水層への浸透が多く、流量が少なかったため、渓流水と地下水層への浸透水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度/Cl<sup>-</sup>濃度比が一定であると仮定して、塩素収支法を用いて窒素流出量を求めた。

水試料の分析は、pH以外の測定は、0.45 μmのメンブランフィルターで減圧濾過した水試料に対して行った。pHはガラス電極法で、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>濃度は炎光光度法で、Ca<sup>2+</sup>、Mg<sup>2+</sup>濃度は原子吸光度法で、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度はインドフェノール青法で測定した。Si濃度はモリブデン青法により測定した。主要陰イオン(Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)濃度は、0.2 μmのメンブランフィルターでさらに濾過した後にイオンクロマトグラフィーで測定した。

土壌表面のガスフラックスの測定はクローズドチャンバー法を用いて行った。金属製土台チャンバー(高さ10 cm、直径20 cm)をあらかじめ下層植生を除いて5 cm埋めて設置し、測定時にステン

レス製チャンパー(高さ20 cm、直径20 cm)を上重ねて測定を行った。ガス試料の採取はCO<sub>2</sub>とCH<sub>4</sub>は0、10分で、N<sub>2</sub>Oは0、60、120分で、NOは0、120分で行った。赤外線CO<sub>2</sub>分析計でCO<sub>2</sub>濃度を、FID付きガスクロマトグラフィーでCH<sub>4</sub>濃度を、<sup>63</sup>Ni ECD検出器付きガスクロマトグラフィーでN<sub>2</sub>Oを、NO<sub>x</sub>分析計でNO濃度を測定した。ガスフラックスは濃度変化を直線回帰して求めた。2003年度はA6、ASD、B4、B6、C1、C6、D1、DFM、E2、E6の10地点で非積雪期間(5月から11月)に約3週間間隔で測定を行った。2004年度はA6、B4、C1、DFM、E2の5地点で同様の測定を行った。

カラマツの着生葉は、A6、ASD、B4、B6、C1、C6、D1、E2、E6の9地点において、8月に林内雨採取器の近傍で採取した。リターは10月から11月にかけて採取した。着生葉とリター試料は通風乾燥後にミルで粉碎して分析に供した。全窒素と全炭素はCNコーダーで測定し、P含量は湿式分解の後、モリブデン青法で測定した。

カラマツの地上部成長速度は、札幌市緑化推進部が1989年から2003年にかけて行った毎木調査のデータを使用した。この調査では、林内雨採取器の設置場所近傍の8地点(A6、A4、ASD、B6、B2、C1、D2、D4)の31.6 m四方(0.1 ha)において、全てのカラマツの胸高(1.3 m)直径とカラマツ3、4本の樹高が測定されている。そこで、樹高を測定したカラマツの樹高と胸高直径とから樹高曲線を作成してカラマツの樹高を推定し、木幹材積表に当てはめて材積量を算出し、2回の測定値から樹木成長速度を推定した。

## (2) 渓流水質の広域調査

渓流水中の硝酸イオン濃度は測定も比較的簡単であり、流域の窒素レベルを全国的に把握するための良い指標であると考えられる。既存の測定結果に関して文献調査を行った結果、全国で多くの測定が行われているが、各々測定時期や精度が異なり、サンプリング位置や採取条件の把握が困難であるなど全国的な比較は難しい。統一した方法で短期間にサンプリングを行い、全国規模のデータベースを作成する方法を検討した。また、このデータに基づき、溪流への硝酸流出を支配する要因を解析するために、窒素循環に関わる広域情報(大気からの窒素負荷量、気温、降水量、植生、地質、地形など)をサブテーマ3と共同で収集した。

2002年は、前川を含む乗鞍・安曇野地域の詳細分布と、長野県三重県を対象に採水を行った。乗鞍・安曇野は、8月26~27日と9月10~11日の無降水日の4日間に複数地点で各1回採水し、同時に森林林床土壌(A層)を採取し、CHN分析装置によりC、N含有量を測定した。長野県全域は11月6日~11月16日の間に42か所で、三重県は11月28日~12月18日の間に22か所で採取し、イオン濃度を測定した。2003年は、7月1日~10月11日に、全国1,278カ所(長野県内の70カ所を含む)において、渓流水の水温(長野県内はpH、ECも)を測定し、渓流水を採水した。採水は全地点、期間内に1回のみ、降雨中や降雨直後の出水時は避けて行った。2004年は8月から9月にかけて、長野県内34地点において、採水、土壌採取、植物葉の採取を行った。

2003年の全国調査では、1県あたり30地点(北海道は100地点)を目安に、流域に農耕地や牧草地、人家、畜舎などの人為的汚染源のない溪流を選定した。沖縄県は、当初から本調査の対象とせず、また千葉県には適当な採取地点が見つからなかったため、この2県を除いた45都道府県が本調査の対象となった。現地では、ポリカーボネイト製のボトル(1Lおよび2L, No.2015, Nalgene, Nalge Nunc International, U.S.A.)に、十分とも洗いの上試料を採取し、他には、水温を測定するだけとした。採取した試料は、即日名古屋大学に宅急便(冷蔵)で送付し、通常24時間以内にガラ

ス繊維ろ紙（Whatman GF/F）でろ過、電気伝導度（Model D-25, 堀場製作所）とpH（Model CM-14P, TOA Electronics Ltd.）を測定した。また、一部のサンプルについては、アルカリ度を滴定法によって測定した。ろ過した試料は、50mlのポリエチレン製の容器（I・BOY, As one LTD.）に保存し、分析時まで-40℃で保存した。分析時に、凍結した分析試料を常温で融解させ、再度0.22 μmのメンブランフィルターでろ過を行い、溶存イオン濃度をイオンクロマトグラフ（Dionex DX500）で測定した。一部の分析値が、極めて高い濃度を示す場合があり、スミルノフの検定（ $p < 0.01$ ）によって、異常値として解析から除外した。スミルノフの検定は、すべての水質成分について行ったが、1つの成分でも異常値と判定された場合は、その試料をすべての成分について解析対象から除外した。その結果、1278試料のうち36試料を除外したため、本報告では1242試料を解析の対象とした。この異常値と判定された試料には、鉱泉や温泉など、地表水ではない水が混入していると考えられる。

#### 4. 結果・考察

##### （1）長野県前川流域（共同調査地）における物質循環

##### ① 乗鞍岳東麓斜面の森林域における化学物質動態

##### ア 林外降水量と林内降水量の関係

信州大学乗鞍寮地点における林外降水量と林内降水量は、樹木の成長期（樹木が発芽を始める5月から落葉する10月まで）においても成長休止期（11～4月まで）においても極めて高い相関を示し、それぞれの季節ごとに、ある一定の降水遮断率を持つ。また、樹木の成長期には成長休止期に比べて降水遮断率が大きく、さらに樹木の成長期には林外降水量が2.3mmを超えるまで林内降水量が観測されない。針葉樹林内降水量と広葉樹林内降水量はともに林外降水量との相関が高いが、降水遮断率は針葉樹林内降水量の方が大きい。

##### イ 林外降水の化学的動態

信州大学乗鞍寮における林外降水量と電気伝導度およびpHについての関係を図3示す。降水量と電気伝導度、降水量とpHの関係については、どちらも降水量が少ない時にはばらつきが大きく、降水量が多くなるにつれて値が収束する傾向が見られた。これは、降水量が少ない時には、降水時の気象条件によって高濃度の化学物質を含む場合やほとんど化学物質を含まない純水に近い場合などがあるためである。一方、大気中に浮遊する化学物質には地点毎にある上限値があると考えられ、降水量が多い場合には雲内除去と雲底下除去される化学物質が希釈されるために、電気伝導度は小さくなり、pHは純水と大気中のCO<sub>2</sub>の平衡値に近づくと考えられる。また、降水の電気伝導度は降水中のイオン総量に比例すると考えられるため、pHと降水成分との概略的な関係はpHと電気伝導度の関係で示すことができる。一般に、電気伝導度が低くなればpHが高くなるが、図3でも電気伝導度が低くなるとpHが高くなる傾向がみられた。これは、降水の酸性化によってSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>などの溶存物質濃度が増加することで、H<sup>+</sup>濃度も増加しているからである。このことは、pHと(NH<sub>4</sub><sup>+</sup> + nssCa<sup>2+</sup>)-(NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)の関係を示した図3右下の図でも説明できる。降水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>とnssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は降水の酸性化に寄与し、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>とnssCa<sup>2+</sup>は逆に酸性化を中和する働きをする。したがって(NH<sub>4</sub><sup>+</sup> + nssCa<sup>2+</sup>)-(NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + nssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)は降水酸性化の指標となる。酸性化指標が大きくなると、降水のpHは低下する。つまり、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>とnssSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の濃度が増加することで、H<sup>+</sup>濃度も増加してい

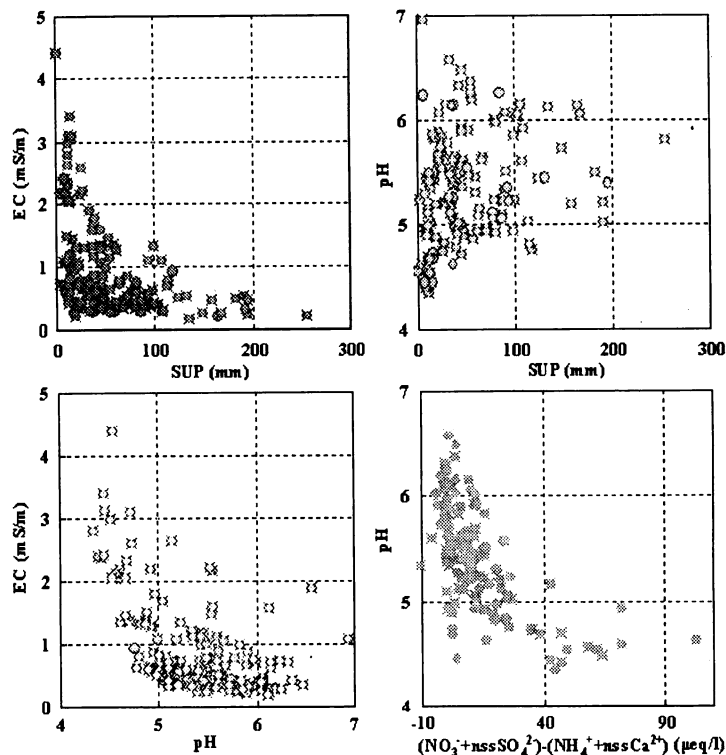


図3. 信州大学乗鞍寮における林外降水量(SUP)とpHおよび電気伝導度(EC)の関係

る。したがって、降水の酸性化寄与物質である $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{nssSO}_4^{2-}$ と中和物質である $\text{NH}_4^+$ と $\text{nssCa}^{2+}$ のそれぞれの濃度の大きさによって降水のpHが4から7の間で変動していることがわかる。

電気伝導度との関係と同様に、降水量が少ない時には各イオン濃度のばらつきが大きく、降水量が多いと各イオン濃度は小さくなる。 $\text{K}^+$ 濃度では降水量が100mm前後で高い値を示したものがあつた。また、 $\text{NH}_4^+$ 濃度では200mm弱の降水量で高い値を示す試料があるが、この試料は $\text{NO}_3^-$ 濃度も高くなっており、近傍からの肥料等の飛来が考えられる。さらに、 $\text{Ca}^{2+}$ で最も高い濃度を示した時は、他のイオンに比べて降水量が多かつた。この試料を採取したのは2004年3月12日であり、2004年3月10日に全国的に黄砂が確認されていることから、この試料は黄砂の影響を受けて $\text{Ca}^{2+}$ 濃度が高かつたものと考えられる。

表1には信州大学乗鞍寮で採取した林外降水の化学的性質についての相関行列を示す。降水中の $\text{H}^+$ 濃度はpHから換算した。 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ の各イオン濃度は、それぞれが相互に高い相関係数を示す。これは、この3種のイオンが主に海塩を起源とするイオンであるためと考えられる。また、電気伝導度と酸性化寄与物質である $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ においても高い相関がみられた。このことから、降水中の電気伝導度は、酸性化寄与物質によって大きく左右されていることがわかる。

ウ 林外降水と林内降水の化学的性質の比較 信州大学乗鞍寮での観測の結果、林外降水が樹冠を通過する時、樹木によって遮断されるため、林外降水よりも林内降水の降水量は減少する傾向が見られた。前述のように、5~10月の樹木の成長期には林外降水の0.80倍、11~4月の成長休止期には0.82倍が林内降水となつていた。夏季には樹木が展葉するので、展葉の進行に伴って降水遮断



表1. 信州大学乗鞍寮における林外降水の化学的性質に関する相関行列

|                                  | EC     | H <sup>+</sup> | Na <sup>+</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | Mg <sup>2+</sup> | Ca <sup>2+</sup> | Cl <sup>-</sup> | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | nssCa <sup>2+</sup> |
|----------------------------------|--------|----------------|-----------------|------------------------------|----------------|------------------|------------------|-----------------|------------------------------|-------------------------------|----------------------------------|---------------------|
| Pr.                              | -0.441 | -0.310         | -0.420          | -0.304                       | -0.294         | -0.366           | -0.341           | -0.343          | -0.426                       | -0.428                        | -0.419                           | -0.331              |
| EC                               |        | 0.777          | 0.740           | 0.732                        | 0.541          | 0.865            | 0.781            | 0.700           | 0.920                        | 0.952                         | 0.944                            | 0.767               |
| H <sup>+</sup>                   |        |                | 0.507           | 0.370                        | 0.458          | 0.534            | 0.406            | 0.423           | 0.631                        | 0.689                         | 0.685                            | 0.393               |
| Na <sup>+</sup>                  |        |                |                 | 0.434                        | 0.406          | 0.837            | 0.565            | 0.960           | 0.599                        | 0.671                         | 0.634                            | 0.534               |
| NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>     |        |                |                 |                              | 0.479          | 0.519            | 0.591            | 0.394           | 0.791                        | 0.744                         | 0.748                            | 0.586               |
| K <sup>+</sup>                   |        |                |                 |                              |                | 0.404            | 0.301            | 0.322           | 0.470                        | 0.615                         | 0.614                            | 0.290               |
| Mg <sup>2+</sup>                 |        |                |                 |                              |                |                  | 0.837            | 0.841           | 0.773                        | 0.856                         | 0.838                            | 0.820               |
| Ca <sup>2+</sup>                 |        |                |                 |                              |                |                  |                  | 0.543           | 0.839                        | 0.867                         | 0.867                            | 0.999               |
| Cl <sup>-</sup>                  |        |                |                 |                              |                |                  |                  |                 | 0.533                        | 0.607                         | 0.571                            | 0.513               |
| NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>     |        |                |                 |                              |                |                  |                  |                 |                              | 0.928                         | 0.928                            | 0.833               |
| SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>    |        |                |                 |                              |                |                  |                  |                 |                              |                               | 0.999                            | 0.858               |
| nssSO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> |        |                |                 |                              |                |                  |                  |                 |                              |                               |                                  | 0.860               |

率に違いが見られることが推察されたが、その差異は大きくなかった。林内降水が林外降水を上回っている試料も見られたが、これは、融雪期に樹木上に残っていた雪が解けたり、風向きなどの気象要因が関係したりした場合である。林内雨においても降水量が少ない時には電気伝導度は高くなり、pHは低くなる。降水量が多いときには電気伝導度が低くなり、pHは高くなる。また、林外降水と林内降水を比較すると、林内降水の電気伝導度が高くなることから、降水が林内を通過する間に、降水中に含まれる溶存化学物質濃度が増加していることがわかる。

イオン種毎に見ると、多くのイオンで林内降水の方が林外降水よりも濃度が高くなった。溶存イオン濃度の林内降水/林外降水の比はNa<sup>+</sup>は1.33、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>は2.55、K<sup>+</sup>は5.10、Mg<sup>2+</sup>は2.83、Ca<sup>2+</sup>は1.80、Cl<sup>-</sup>は1.50、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は0.98、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は1.39となり、K<sup>+</sup>とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>を除くイオンでは1.3~2.8倍の増加が見られた。K<sup>+</sup>ではイオン濃度の林内降水/林外降水の比は5.10倍と、林内降水で濃度が極めて高くなっている。このK<sup>+</sup>イオン濃度は樹木の成長期と成長休止期でも大きく異なり、成長休止期では林外降水の2.42倍であるのに対し、成長期では7.59倍にもなった。このような各イオン濃度の林内降水における増加は、樹冠に付いた粉塵の洗脱や樹冠からの溶脱が原因である。

特にK<sup>+</sup>が林外降水と林内降水で大きく異なるのは、樹木による溶脱量が多いためだと考えられる。また、樹木が発芽・展葉を始める時期からその溶脱量が増加し、落葉期を過ぎ、樹木に葉がなくなると樹木の面積が減少するため、溶脱量も減少する。したがって、このような季節変化が見られると考えられる。その中でも、最もK<sup>+</sup>濃度が高くなるのは10月後半で、ちょうど落葉期である。これは、葉が枯れ始めるとK<sup>+</sup>が溶出しやすくなるためである。K<sup>+</sup>でこのような季節変化が見られるのに対し、その他のイオンでは、降水量の少ない成長休止期に濃度が高くなる傾向が見られた。これは、2003年の夏から2004年の夏にかけて顕著に示されている。

一方、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>だけは、林外降水に比べて、濃度が減少していた。Nは植物の成長に必要なため、しばしば樹冠から吸収が起こり、林内降水で濃度が低下することがある。したがって、樹体によるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の吸収によって、林内降水中でNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の低下が見られたものと考えられる。

針葉樹林と広葉樹林の林内降水量を比較すると、全体的に広葉樹林内の降水量が多い。この原

因として、針葉樹の方が樹冠遮断量や樹幹流量が多いのではないかと考えられる。また、調査を行った針葉樹林内では、常緑針葉樹であるシラビソが優占している。落葉期になると、広葉樹林内では落葉によって遮断量が減少するのに対し、針葉樹林内では、これらの常緑針葉樹の遮断量が低下しないため、林内降水量に差が現れると考えられる。

降水量の変化に伴うpHや電気伝導度については、信州大学乗鞍寮での結果と同様に降水量の増加に伴い、電気伝導度の低下およびpHの増加が見られた。

針葉樹林内と広葉樹林内では林外降水の試料採取は行っていないため、信州大学乗鞍寮での林外降水の各イオン濃度と両林内降水のイオン濃度から林内降水/林外降水比を求めたものを表2に示す。表2によると、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>を除く全てのイオンで、どちらの樹林地でも林内降水において林外降水中よりもイオン濃度の増加が見られた。Na<sup>+</sup>、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>は針葉樹林地、広葉樹林地ともに1.28～3.82倍であった。K<sup>+</sup>はどちらの樹林地でも高い値を示したが、針葉樹と広葉樹で異なり、針葉樹では7.26倍、広葉樹では5.97倍となり、針葉樹の濃度が高くなった。しかし、2004年の調査で、針葉樹林内、広葉樹林内でK<sup>+</sup>濃度が最も高くなった時の林外降水との濃度を比較すると、広葉樹では19.52倍、針葉樹では11.60倍の濃度差となり、広葉樹林内のほうが高くなった。林内降水で溶存物質濃度が高くなる原因には、植物体からの溶脱と乾性沈着とが考えられるが、K<sup>+</sup>は85%以上が溶脱によるものとされる。このことから、針葉樹林内と広葉樹林内でのK<sup>+</sup>の溶脱量は、調査期間全体で見れば針葉樹林内の方が高いが、最も溶脱が活発なときには広葉樹林内の溶脱量が多くなるといえる。したがって、樹種によって、その溶脱量に差が見られ、最も溶脱量が多いときには、広葉樹の溶脱量が多くなると言える。

針葉樹林内と広葉樹林内で最も差が見られたのはMg<sup>2+</sup>であった。広葉樹林内降水中のMg<sup>2+</sup>濃度は林外降水中の濃度の2.96倍であり、他の溶存イオンの場合とほとんど変わらないが、針葉樹林内降水中では林外降水中の9.14倍となり、差異が著しい。Mg<sup>2+</sup>は葉からは溶脱しにくく、付着粉塵が50～80%を占めると考えられる。したがって、針葉樹林内では、乾性沈着によるMg<sup>2+</sup>の影響が大きいのではないかと考えられる。

一方、両樹林地での林内降水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、信州大学乗鞍寮における林外降水と林内降水の結果でも見られたように、林外降水に比べて濃度が減少している。針葉樹林内と広葉樹林内においても、樹体によるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の吸収が起こり、林内降水中で濃度が低下していると考えられる。

2003年と2004年のイオン組成を比較すると、H<sup>+</sup>の割合が2003年のほうが高かった。したがって、2003年のほうが酸性降水の影響があったと考えられる。その一方で、2004年は林外降水においてNH<sub>4</sub><sup>+</sup>の割合が高くなっていた。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>の由来は肥料として撒かれた成分の大気中への巻上げや、牧畜などの家畜の排泄物から大気中へ放出などが考えられる。このため、農業地帯や牧畜の盛んな場所では局所的にNH<sub>4</sub><sup>+</sup>が高くなることがある。乗鞍高原にも広大な放牧場があるので、この牧場の牛の排泄物などによって2003年と2004年でNH<sub>4</sub><sup>+</sup>濃度に差異が生じたことが考えられる。この放

表2. 針葉樹林内降水(SCT)および広葉樹林内降水(SDT)と林外降水(SUO)中のイオン比

|         | Na <sup>+</sup> | NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> | K <sup>+</sup> | Mg <sup>2+</sup> | Ca <sup>2+</sup> | Cl <sup>-</sup> | NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> | SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> |
|---------|-----------------|------------------------------|----------------|------------------|------------------|-----------------|------------------------------|-------------------------------|
| SCT/SUP | 1.53            | 3.55                         | 7.26           | 9.14             | 3.82             | 1.90            | 0.48                         | 1.28                          |
| SDT/SUP | 3.04            | 3.67                         | 5.97           | 2.96             | 1.42             | 1.28            | 0.22                         | 1.75                          |

牧場と標高がほぼ同じである信州大学乗鞍寮の林内降水中でも $\text{NH}_4^+$ の割合が増加するのに対し、放牧場よりも標高の高い針葉樹林内と広葉樹林内では、その影響をあまり受けず、2003年と2004年で大きな差異が見られない。

#### エ 各地点における沈着量

これまでは降水中の溶存イオン濃度について考察してきたが、イオンの発生源などを探るためには、各イオンの総量つまり沈着量の把握が必要である。降水中の各成分濃度と降水量の積によって、降水過程を経過して地表面に降下する量、つまり沈着量を求めることができる。本研究では、バルクサンプラーを使用しているため、ここで求められた沈着量は、湿性沈着と乾性沈着を合わせた量と考えた。

通年で観測している信州大学乗鞍寮での林外降水と林内降水による沈着量の変化を見ると、溶存イオン濃度の高い冬から春先にかけて沈着量が増加している。また濃度の高い春先に比べると少ないものの、植物の成長期である5~8月では、比較的降水量が多く沈着量が増加していた。この季節変化は特に $\text{K}^+$ で顕著に見ることができる。 $\text{K}^+$ は、夏季に濃度が増加しているため、溶存イオン濃度と降水量の両方の影響を受けたことによって、この季節変化が顕著に見られたものと考えられる。また他のイオンにおける沈着量の変化も月降水量とよく似た変動を示し、降水量の多いときには、沈着量は増加し、降水量の少ない時には沈着量が減少する傾向も見られる。

#### オ 土壌中への降水浸透過程での溶存イオン濃度の変化

降水と土壌水を比較すると、降水は降水量の変化に伴って電気伝導度やpH、溶存物質濃度が大きく変動するのに対し、土壌水は降水量による変動はあまり見られず、調査期間を通じてほぼ一定の値を示した。これは、降水が土壌に浸透すると一時的に土壌に水分が貯留され、それが徐々に深層に浸透したり、蒸発したりする。この時に微生物作用や土壌中でのイオン交換などが働き、時間的変動が平滑化されていると考えられる。

また、溶存イオン濃度では、 $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{HCO}_3^-$ の増加と $\text{SO}_4^{2-}$ の平滑化、 $\text{K}^+$ 、 $\text{NO}_3^-$ の低下が2003年と2004年で共通して見られた。一方、2003年では、 $\text{NH}_4^+$ が低下、 $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ の増加が見られたのに対し、2004年では顕著な変化は見られなかった。

土壌水はAo層を通り、A層に達する間に物質の授受が行われる。物質の溶出、交換性カチオンの吸収、根や土壌生物による吸収などがその主な作用とされている。土壌中では、アンモニア酸化菌や亜硝酸酸化菌による硝化作用によって、 $\text{NH}_4^+$ が $\text{NO}_3^-$ に変化する。次に、微生物による脱窒作用によって $\text{NO}_3^-$ が $\text{N}_2$ や $\text{N}_2\text{O}$ となり、植物によって吸収されたり、大気中に放出されたり、流出したりする。それと同時に $\text{HCO}_3^-$ が生成される。調査結果から $\text{NH}_4^+$ と $\text{NO}_3^-$ の濃度低下および $\text{HCO}_3^-$ が増加したことから、この作用が起きていると考えられる。また降水によって供給された $\text{NH}_4^+$ や $\text{NO}_3^-$ に比べると、土壌水での濃度が低いことからAo層や表層土において無機化が活発に行われていることが推察される。

一方、陽イオンでは $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ の増加が見られた。この2つのイオンは $\text{NO}_3^-$ の濃度によって規制されるといわれている。 $\text{NO}_3^-$ はコロイドに交換吸着される割合が少なく、大部分が土壌水中に溶存する。そこで、 $\text{NO}_3^-$ と電気的中性を維持するように土壌コロイドに置換吸着されている $\text{Ca}^{2+}$ や $\text{Mg}^{2+}$ などが当量的に引き出され、土壌水の溶存濃度を高める。

土壌水中の $\text{NO}_3^-$ が増加した場合、 $\text{Ca}^{2+}$ の放出が一番多く、次に $\text{Mg}^{2+}$ が多いとされているので、2003年の結果と一致する。2004年では $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ の増加が顕著に見られなかった。しかし $\text{NH}_4^+$ の増加が見られた。 $\text{NH}_4^+$ の増加の原因としては分解者による有機物の無機化によって生じたものが多かったことや、降水の $\text{NH}_4^+$ が2003年に比べて2004年で上昇していたことから、沈着量の増加も考えられるが、微生物による硝化作用が低下した可能性も考えられる。土壌水のイオン組成は降水量や気温などの環境要因、生育する樹木の樹種、さらには樹木の伐採などの林分状況、施肥、間伐などの保育による外的因子と土壌固有の内的因子に影響されるので、このような要因の変化も考えられる。深さ20cmと50cmでイオン組成に大きな変化が見られないことから、以上のような作用は、土壌水試料を採取した20cmよりも表層で活発に行われているといえる。

#### カ 針葉樹林内と広葉樹林内における土壌水の比較

林内降水が土壌表層に浸透する過程において、針葉樹林内および広葉樹林内の双方において、Ao層で電気伝導度や溶存イオン濃度の増加が見られる。そして、下層へ浸透する間に時間変動が平滑化される傾向が見られる。

針葉樹林内のAo層では、 $\text{NH}_4^+$ や $\text{K}^+$ に大きな濃度変化が見られたことから、下層植生や落葉層による溶脱や分解者による有機物の無機化が活発に行われているといえる。一方、広葉樹林内のAo層では、 $\text{K}^+$ や $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ に濃度変化が見られた。 $\text{K}^+$ は針葉樹林内と同様に下層植生や落葉層による溶脱のためと考えられる。また、2003年では $\text{NO}_3^-$ が高くなる時期があること、 $\text{HCO}_3^-$ が針葉樹林内のAo層に比べて高いことから、微生物による硝化作用や脱窒作用、土壌中でのイオン交換が針葉樹林内よりも活発に行われているといえる。

Ao層は、降水が土壌に浸透する過程の中で、最も変化が起こりやすい層であるが、針葉樹林内と広葉樹林内では、その作用に違いがあるように見える。広葉樹林内の方が、針葉樹林内よりもより表層で微生物による分解が行われていると考えられる。また、針葉樹林内と広葉樹林内における降水浸透過程でのイオン組成を比較すると、物質の組成はAo層で大きく変化し、下層へ浸透するとその組成に大きな変化は見られなくなった。したがって、針葉樹林内、広葉樹林内どちらも、Ao層で微生物活動や植生による吸収が活発であることがここからも説明できる。

しかし、Ao層より深層の土壌水中のイオン組成は、樹種による差異よりも、年変化が大きかった。2003年は針葉樹林内と広葉樹林内のどちらでも $\text{Ca}^{2+}$ や $\text{Mg}^{2+}$ の占める割合が高かったのに対して、2004年では $\text{Ca}^{2+}$ や $\text{Mg}^{2+}$ の占める割合が減少し、 $\text{Na}^+$ や $\text{NH}_4^+$ の割合が高くなった。このような年変化は、降水量や沈着量、気温などの環境要因、伐採などの林分状況、施肥、間伐などの森林管理による外的因子と土壌固有の内的因子の影響が大きいと考えられる。

#### キ 窒素循環量の他の地点との比較

信州大学乗鞍寮に隣接するミズナラ林 (SU) における年間窒素沈着量 (硝酸態+アンモニア態) は、林外雨で $4.2 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、林内雨で $4.3 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  であり、他の調査地や全国平均値<sup>8)</sup> ( $7.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ ) に比べかなり小さかった (図4)。窒素負荷量は年変動が大きく (林外雨で2003年:  $2.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、2004年:  $5.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、林内雨で2003年:  $3.2 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、2004年:  $5.4 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ )、降水量の変動 (約14%) に加え、 $\text{NH}_4^+$ 濃度の変動が大きかったこと (5-10月の平均濃度、2003年:  $5.6 \text{ } \mu\text{M}$ 、2004年:  $13.9 \text{ } \mu\text{M}$ ) が主な原因に挙げられる。積雪地域である乗鞍調査値では、積雪、融

雪に伴う物質循環に特徴的な点が見られた。針葉樹林SCでは、2003年の初降雪時に、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ が通常の6-7倍の濃度で観測された。これは樹冠の乾性沈着物が雪と共に降下したと考えられた。既に落葉している落葉広葉樹ではこのような高濃度の負荷は観測されなかった。SUにおいてヒータ付き採取器で採取した冬季の降水試料と、他の2地点で冬の期間(12-4月)溜めておいた融雪の分析によると、12月から4月の積雪期の降雪量は、年間降水量の約37%を占め、この期間の林内雨による窒素負荷量は年間値の約37~63%に相当した。硫酸については年間値の約42~52%であった。同様に冬の期間溜めておいた $\text{A}_0$ 層浸透水は、2003年には針葉樹林SCでは特に濃度が高いイオンは見られなかったが、落葉広葉樹林SDでは、 $\text{NO}_3^-$ 濃度が5-10月の平均濃度に比べ約6倍高く、窒素として年間フラックスの約67%が融雪期前後に $\text{A}_0$ 層から土壌層へ移動すると推定された。SDではその他にも $\text{NH}_4^+$ や $\text{Mg}^{2+}$ の濃度が比較的高く、気温の低い冬季にもリターの分解などが起こっていると考えられた。2004年には、SCでも冬季 $\text{A}_0$ 層浸透水で高濃度の $\text{NH}_4^+$ が測定された。年間を通じた $\text{A}_0$ 層から土壌への無機態窒素フラックスは、針葉樹林SCではほとんど(98%)がアンモニア態であり、落葉広葉樹林SDでは71%がアンモニア態、残りが硝酸態であった。土壌層での窒素フラックスは非常に小さかったが、その75~95%以上がアンモニア態であり、硝化が起こりにくい環境であることが示唆された。乗鞍調査地でリターフォールによる窒素の循環量は、落葉広葉樹SDで $38.1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ と比較的高く、次いで針葉樹SCの $31.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、落葉広葉樹SUの $21.3 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ の順であった。これらの値は日本の平均的な森林の窒素量(針葉樹： $33.2 \pm 12.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、広葉樹： $44.9 \pm 17.1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ )<sup>9)</sup>の範囲内であったが、気象条件の似た日光の弓張峠と比べるとリターフォール量及び窒素量ともに小さい。このように負荷量が小さく、内部循環量も比較的小さい乗鞍では、50cm土壌からの $\text{NO}_3^-$ 流出もほとんど見られなかった。一方、負荷量の大きい弓張峠や八郷では、リターフォールによる内部循環量が大きく、50cm土壌から下への窒素移動も大きかった。同様に窒素負荷量が高いFM多摩では、広葉樹で特にリターフォール量が大きくなっており、渓流水の $\text{NO}_3^-$ 濃度も高いことから、流出も大きいと考えられる。リターフォール量は

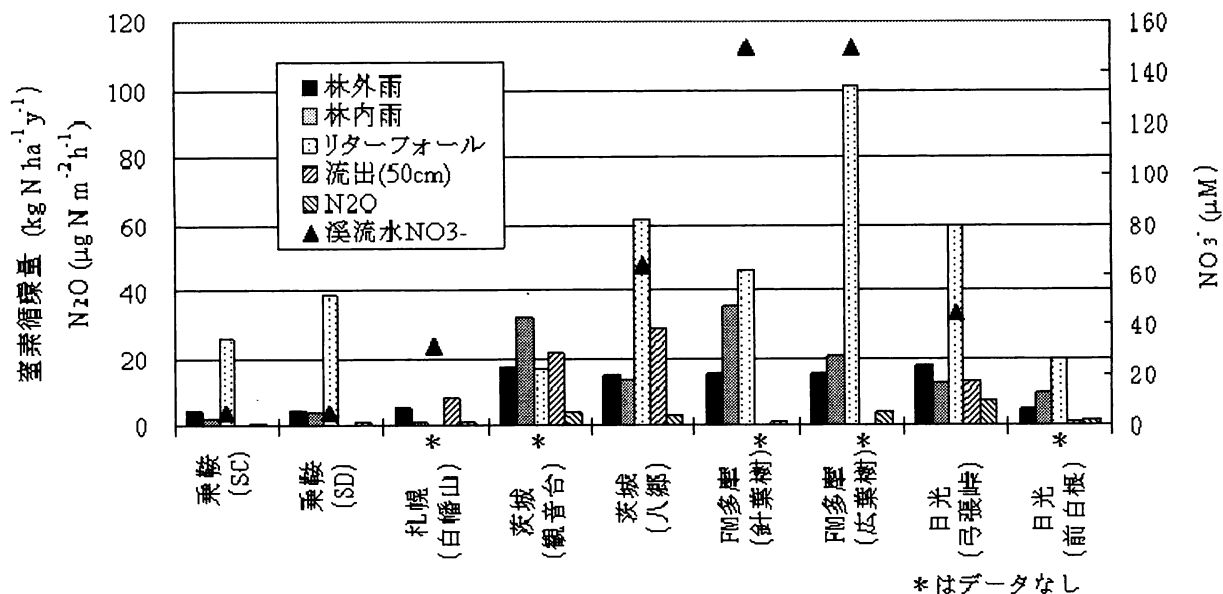


図4 各調査地の窒素循環量

一次生産量と密接に関係しており、気温など気象要因との関係が強いが、気象要因以外に窒素沈着量も関係していることが示唆された。

#### ク 林床からのガスフラックス

一酸化二窒素ガス ( $N_2O$ ) フラックスは、窒素負荷が多く循環量も大きい八郷などでは発生量も  $0.2\text{--}9.4 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$  と大きく、土壌温度と正の相関があることが示されている<sup>10)</sup>。乗鞍共同調査地では  $N_2O$  発生量は  $2.2 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$  以下と非常に小さく、温度依存性も見られなかった。季節的には、針葉樹林SCで落葉が始まった2003年10月上旬に  $1.4 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$  の発生が見られ、その他の期間は殆ど発生が認められなかった(図5)。翌2004年は、積雪期に  $A_0$  層浸透水の  $NH_4^+$  のフラックスが前年の3倍と大きな値を示し、5-6月も  $NH_4^+$  濃度が高めに推移した。この時期に比較的高い  $N_2O$  の発生が観測された。また、落葉広葉樹林SDでは、2003年には融雪後の5月と落葉期の10月に  $1.0\text{--}1.2 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$  の発生が観測された。先にも述べたように、SDでは融雪期の  $A_0$  層浸透水に高濃度の  $NO_3^-$  が観測されており、 $A_0$  層から土壌へ窒素が移動している5月に、硝化に伴い  $N_2O$  が発生したと考えられる。2004年には、同様に5-6月に  $N_2O$  発生が見られたほか、8月下旬と10月に約  $2.0 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$  の発生が観測された。 $N_2O$  発生量と  $A_0$  層浸透水の窒素フラックスとを比較してみると、針葉樹林SCでは、 $NH_4^+$  のフラックスが大きいとき、 $N_2O$  の発生ピークが見られた。落葉広葉樹林SDでは、5月に  $NH_4^+$  と  $NO_3^-$  のフラックスの増加が見られ、 $N_2O$  の発生ピークがこの時期に見られた。すなわち、貧栄養生態系である乗鞍調査地では、 $N_2O$  発生量は低く抑えられているが、土壌-植物間の窒素動態と関連して発生が認められたことから、 $N_2O$  が窒素負荷や有機物の無機化などによる窒素の供給と植物や微生物などによる窒素の需要のバランスを表す指標として有効であることが示唆された。

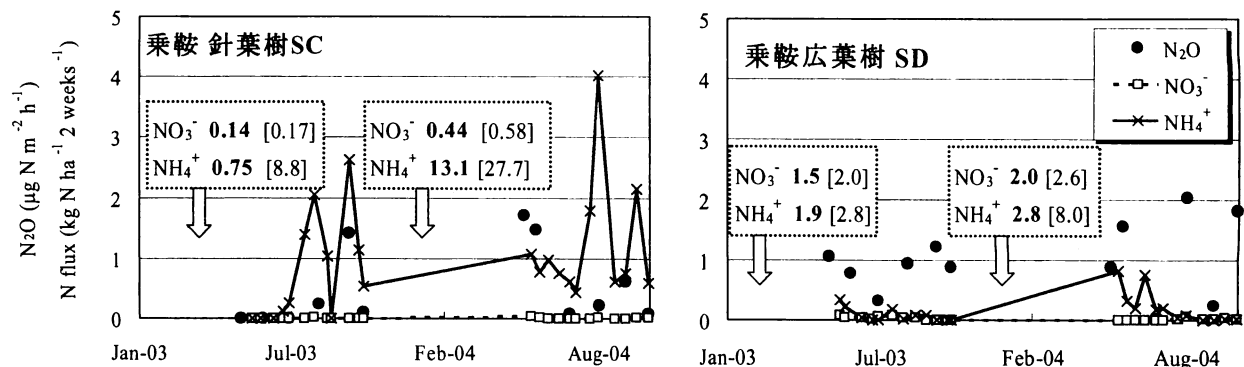


図5 林床からの  $N_2O$  発生量と  $A_0$  層浸透水の窒素フラックス

図中点線四角で囲まれた数字は、11-4月の硝酸およびアンモニウムイオンによる窒素フラックスを示す。[ ] 内は11月以降の1年間の各成分のフラックスを示す。

## ②乗鞍岳東側斜面の河川源流域における化学物質動態

### ア 河川水質の季節的変化

図6に調査期間中の日流出高と河川水のpH、電気伝導度の変化を示す。冬季には流出高が減少し、基底流出による涵養が明瞭になる。そして、春の融雪期に流出高は最も高くなる。梅雨や台

風による一時的な降雨によっても流出高は増加するが単発的である。河川水のpHは流出高の少ない基底流出時には高い値を示すが、融雪期や降雨に伴う流出高の増大時には一時的に低pHとなる。電気伝導度は、基底流出時には次第に高くなっていき、融雪期に最も低い値を示す。さらに、梅雨や台風などの際には一時的に電気伝導度は急激に低下する。流出高および河川水のpH、電気伝導度における上記の傾向は、いずれの年においても明瞭に観測された。

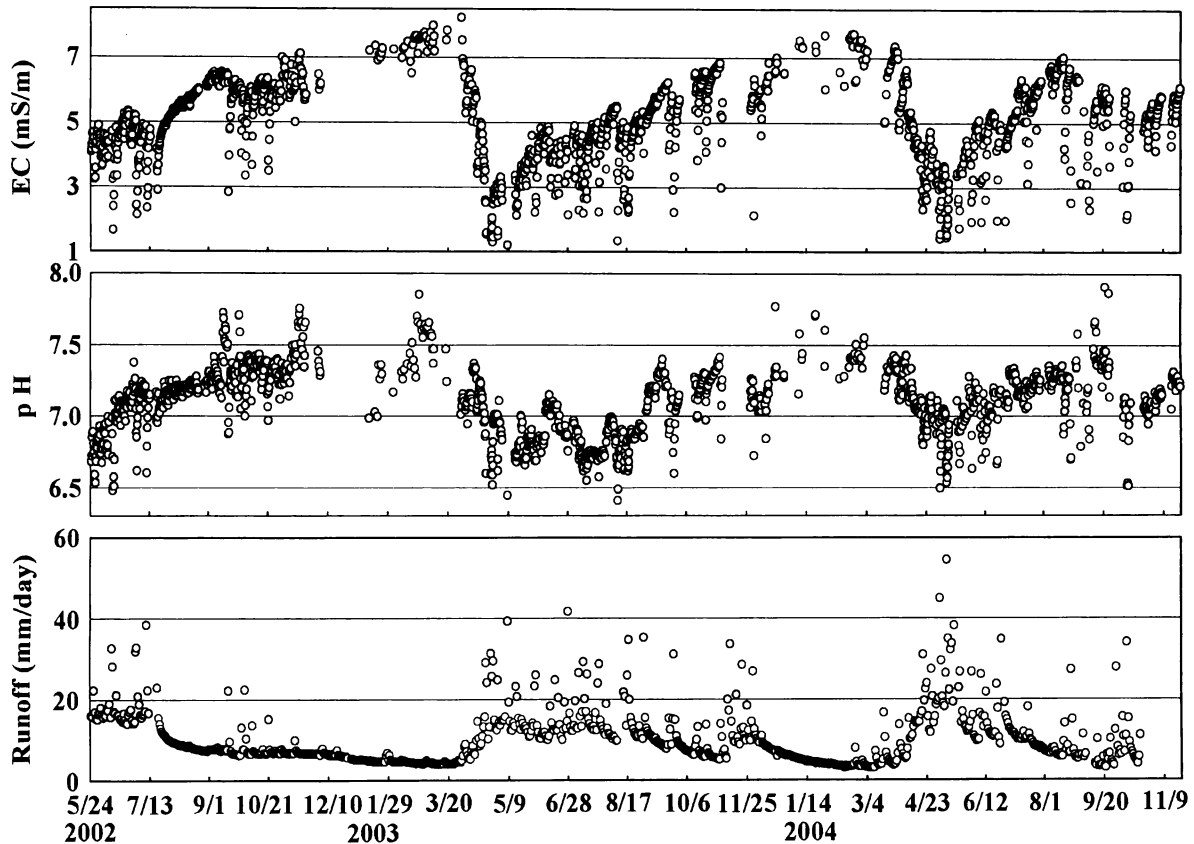


図6. 日流出高および河川水のpH、電気伝導度(EC)の変化

#### イ 研究対象流域における物質収支

研究対象流域における物質収支を図7に示す。水収支は流出超過になっている。これは、降水量の観測を1450m地点でのみ実施しており、山岳地域では一般に標高が高くなるに従い降水量が増大する影響を考慮していないためであると考えられる。さらには、本流域は南北に延びる山脈の東側に位置するため、冬季季節風による降雪時には風下側にあたり多量の吹きだまりが形成されていることが考えられる。このことは本流域の上部には夏まで残雪があることから裏付けられる。これらのことを考慮すれば、水収支はバランスするものと考えられる。陽イオンとしては、 $\text{Ca}^{2+}$ のみを図示するが、いずれの陽イオンも圧倒的に流出超過になっている。陽イオンについては、降水や乾性沈着由来の量に比べて岩石土壌からの溶出が極めて多いことを反映している。ところが、本流域の岩石土壌からの溶出はほとんど無いと考えられる $\text{Cl}^-$ と $\text{NO}_3^-$ については、沈着量と流出量がオーダー的にバランスしている。特に、 $\text{NO}_3^-$ については沈着量超過となっている。これは、流域内の植生によるNの消費によって流出量が減じているためであると考えられる。

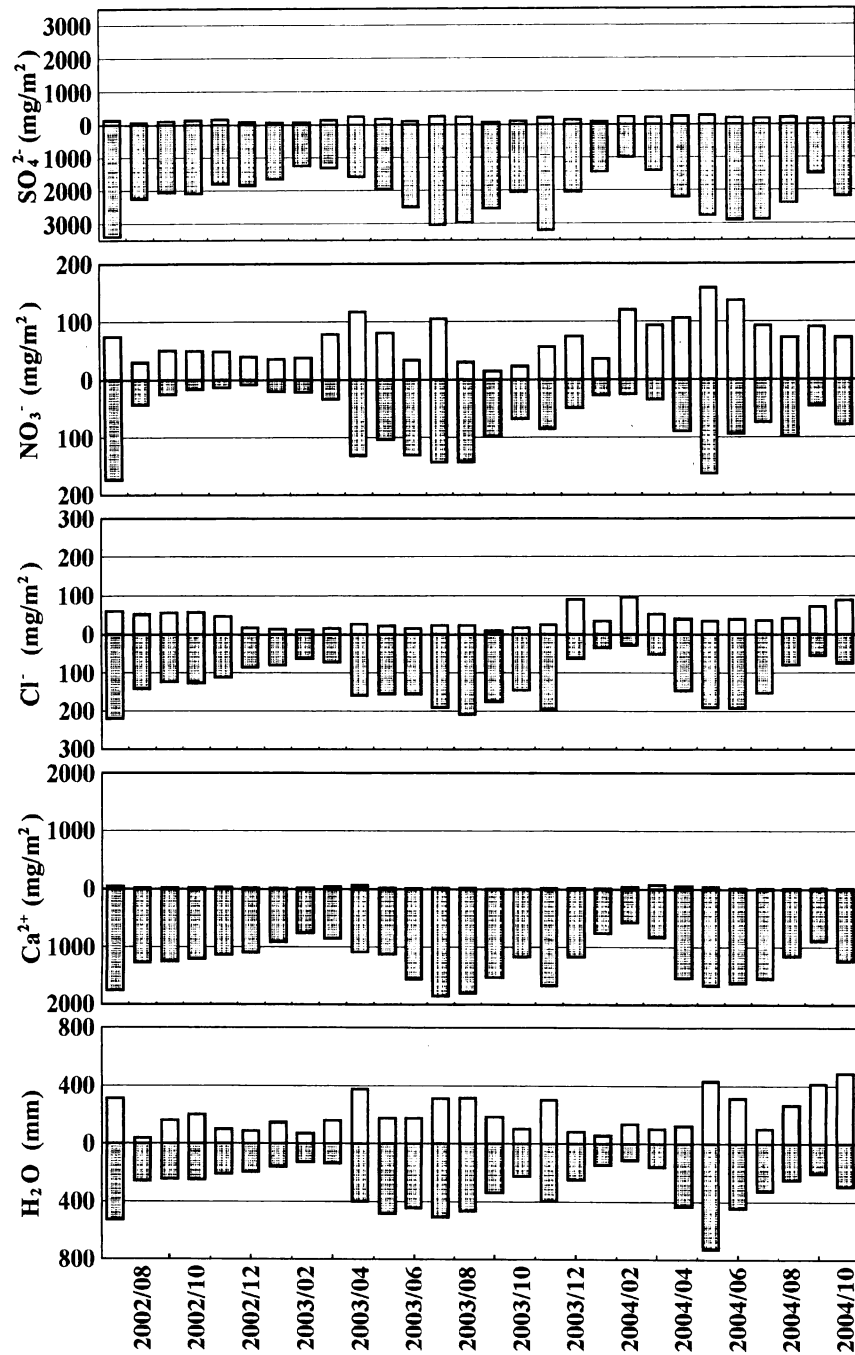


図7. 乗鞍源流域における水収支と化学物質収支

(2) 北海道白旗山流域

窒素降下量(林内雨DINフラックス)は地点間で最大約60倍の違いがあり、大きな空間変動を示した。また、林内雨DINフラックスと標高の間に有意な負の相関( $P < 0.05$ )があった(図8)。こうした空間変動や標高への依存性は樹冠吸収の影響の可能性を示すが、林外雨DINフラックスも同様の負の相関( $P < 0.05$ )を示したことから、窒素降下量そのものが標高に依存している事が分かった。



標高が低いほど降水量が増大する事と、山部川でも厚別川でも上流へ向かう(A集水域→C集水域、E集水域→D集水域)につれて窒素降下量が小さくなっている事から、市街地から河川沿いに上流に向かう水平方向の移動が窒素降下量を決める要因である可能性がある。なお、5集水域の窒素降下量は最大(E流域)と最小(D流域)で約3倍であった。

河川からの窒素流出量は最大(E集水域)と最小(D集水域)で2倍程度の差があった。非積雪期間の窒素流出量は窒素降下量と正の相関があり( $p < 0.05$ )、窒素降下量が河川の窒素流出に影響している事が明らかとなった(図9)。従来、窒素降下量の河川への $\text{NO}_3^-$ 流出への影響は $10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以上の窒素降下量で観察されているが、D集水域の出口で通年観測した窒素降下量は $3.4 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ に過ぎなかった。この結果は、白旗山都市環境林が既存の報告例と比べて窒素降下物にはるかに敏感に反応している事を示している。

窒素降下量とカラマツの生長量との間には有意な正の相関が認められた(図10、 $p < 0.05$ )。この結

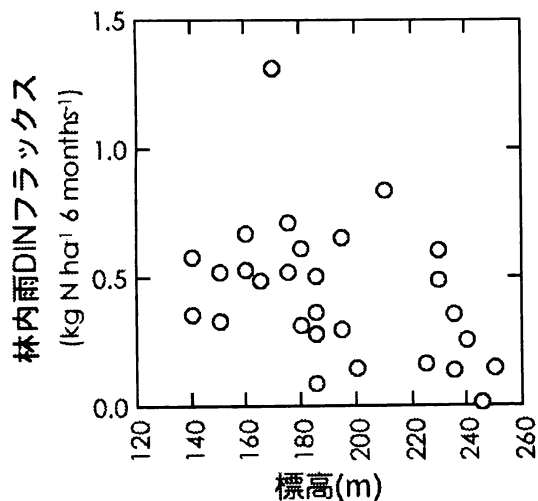


図8. 窒素降下量と標高の関係(非積雪期間)

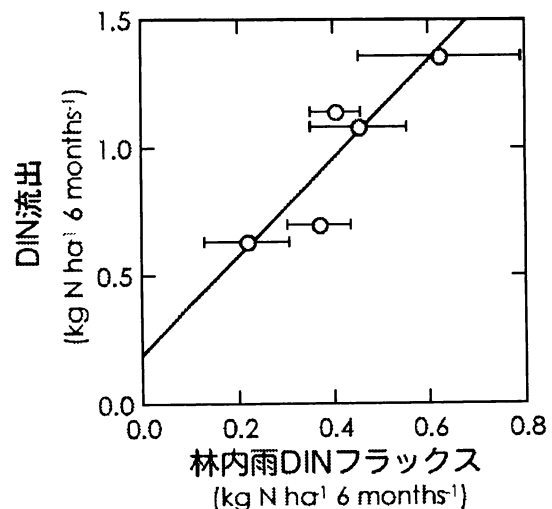


図9. 窒素降下量と窒素流出の関係

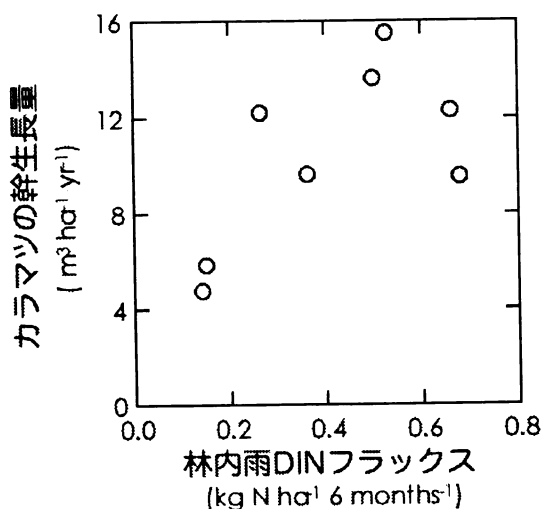


図10. 窒素降下量とカラマツ地上部生長量との関係

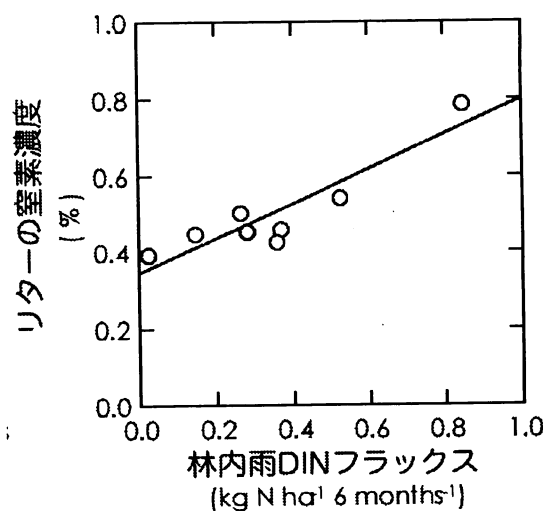


図11. 窒素降下量とカラマツのリターの窒素濃度との関係

果は、本調査地では窒素降下量が窒素肥料として機能し、窒素降下物がカラマツの生長を促進する事を示した。リターの窒素濃度も窒素降下量と正の相関(図11、 $p < 0.01$ )があった。生葉の窒素濃度は窒素降下量に依存しなかった事から、窒素降下量の違いが、落葉時の窒素の転流量に反映している(窒素降下量の少ない地点では転流量が大きい)可能性が示された。

非積雪期間の温室効果ガスの積算フラックスを、様々なパラメータを用いて重回帰分析で解析した。その結果、土壌表面からの $\text{CO}_2$ フラックスは地温のみに依存していた。 $\text{CH}_4$ フラックスは土壌の体積水分率の寄与が1番大きく、2番目に重要な説明変数としてフラックス測定前3週間の窒素降下量選ばれた。 $\text{N}_2\text{O}$ フラックスを重回帰すると、フラックス測定前3週間の窒素降下量のみが選ばれた(図12)。以上の結果から、短期間(3週間)の窒素降下量は $\text{CH}_4$ 吸収を抑制し、 $\text{N}_2\text{O}$ を促進する効果がある事が分かった。 $\text{NO}$ 放出は、調査した10地点のうち最も窒素降下量の高い地点E2のみ顕著な放出があった(E2の平均放出量は $1.9 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$ で、他の地点の平均放出量 $0.0\text{--}0.2 \mu\text{g N m}^{-2} \text{hr}^{-1}$ )。

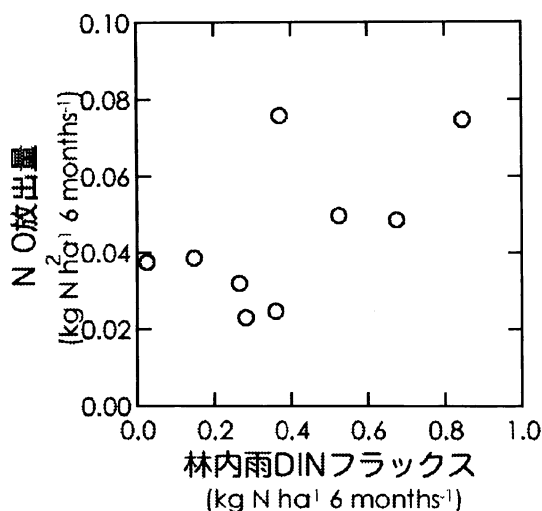


図12. 窒素降下量と土壌表面からの $\text{N}_2\text{O}$ 放出量の関係

以上の結果から、本調査地の白旗山都市環境林では、カラマツの生育、窒素の流出、温室効果ガスの放出に窒素降下物が影響していた。白旗山都市環境林の窒素降下量( $3.4 \text{kg N ha}^{-1} \text{yr}^{-1}$ )は欧米と比べても、日本の他の地域と比べても非常に小さい量である。しかし得られたデータから、この低降下量でもカラマツ林の窒素循環や炭素循環に十分影響する事が明らかとなった。そこで、この結果は他の生態系にも適用される普遍的な現象なのか？それとも白旗山都市環境林だけが特殊な生態系なのか？という疑問が起こる。図4に、白旗山の窒素フラックスも他の地域と比較して示したが、負荷量が同程度に小さい乗鞍と比較すると、土壌水中窒素濃度や渓流水窒素濃度が高く、インプットに対して流出量が多いことがわかる。

カラマツの着生葉の元素分析は、白旗山都市環境林の生態系が極めて強いリン制限にある事を示唆した(図13)。白旗山都市環境林のカラマツ着生葉のN/P比は35–71の範囲にある。これはTessier & Raynal<sup>11)</sup>が提案するリン制限の閾値11を大きく上回る値で、欧米のカラマツの文献値の約4倍であった。白旗山都市環境林の土壌は淡色黒ボク土なので、A層にはAl-腐植複合体が、B層にはアロフェンやイモゴライトが主要なコロイド組成として存在する。こうした物質は活性なAl-OH基に富み、リン酸固定能が極めて強い。白旗山都市環境林におけるリン制限の主因は、この強いリン酸

固定能に起因している。なお、乗鞍で採取したカラマツの着生葉のリン濃度は、0.25-0.37%程度で白旗山の値よりもかなり大きく、N/Pも7~9程度とリン制限の閾値11より小さかった。また、カラマツではないがFM多摩、八郷の生葉のリンと窒素の関係は欧米の文献値に近い位置にあった。

以上の結果から、火山灰土壌の上に成立した白旗山都市環境林の森林生態系は強いリン制限が原因で、比較的低い窒素降下量に対しても窒素の保持が十分に行われず、 $\text{NO}_3^-$ 流出と $\text{N}_2\text{O}$ フラックスに影響を与えた可能性が高いと判断した。

本研究で明らかとなった窒素降下物への鋭敏な反応は、火山灰を母材とする土壌の上に成立した森林生態系に広く一般的に見られる可能性があり、日本の多くの森林生態系が同様な鋭敏な反応を見せる可能性がある。しかし、こうした視点はこれまで全く顧みられることがなかった。そこで今後、窒素降下物の日本の森林生態系への影響を評価する場合には、対象とする森林生態系が窒素制限にあるのか？リン制限にあるのか？を把握する事が重要であると結論した。

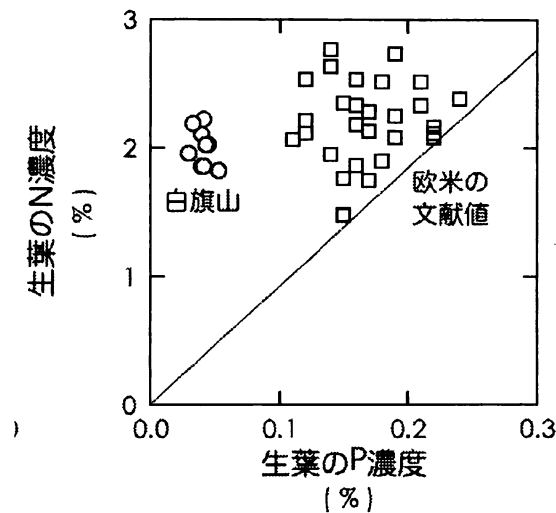


図13. カラマツの着生葉のP濃度とN濃度の関係(○:白旗山、□:文献値)

### (3) 渓流水広域調査

#### ① 3年間にわたる長野県での調査

2002年夏の乗鞍・安曇野地区における調査の結果、渓流水中の窒素の主要形態は $\text{NO}_3^-$ であり、 $\text{NH}_4^+$ はいずれの渓流でも極めて少ないことがわかった。

渓流水の $\text{NO}_3^-$ 濃度は地点間で大きな変動を示し(0~86  $\mu\text{M}$ )、いずれの年も、長野県の中央、南東部で高く、北西部で低い傾向を示した(図14)。2002年秋(40地点)の平均濃度は13(sd=±11)  $\mu\text{M}$ 、2003年夏(70地点)の平均濃度は18(±17)  $\mu\text{M}$ 、2004年夏(34地点)の平均濃度は18(±17)  $\mu\text{M}$ であり、2002年秋がやや低かったが、3年間の平均濃度には統計的な有意差は認められなかった(F-test、 $P=0.198$ )。以上のことから、渓流水の窒素濃度は比較的安定しており、地域差は大きい、年変化は小さいことがわかった。

長野県内の渓流水の $\text{NO}_3^-$ 濃度と標高とは、かなりのバラツキはあるものの有意な負の相関関係が認められた(図15、 $r^2=0.086$ 、 $P<0.05$ )。標高にともなう窒素負荷量の減少、気温低下にともなう微生物活性(土壌中の有機態窒素の無機化、硝化作用)の低下などが関与していると思われる。

る。流域の優占樹種による有意な差異は認められなかった。

2004年夏には、溪流流域の林床（A層上部）の土壌を採取し（各3点）、土壌中の炭素・窒素量を測定した。土壌の有機炭素含有率は1.8~19.7%（平均9.1±4.9%）、窒素含有率は0.09~1.19%（平均0.63±0.32%）であり、土壌のCN比は9.2~20.9（平均13.9±2.5）であった。

渓流水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度と土壌CN比とは負の相関関係がみられたが、統計的には有意ではなかった（図15、 $r^2=0.05$ 、 $P>0.05$ ）。林床土壌のCN比は、窒素飽和のよい指標になるとされているが<sup>6)</sup>、長野県の林床土壌のCN比は欧米での値に比べて低めであり、渓流水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度との関係ははっきりしない。

大気由来の窒素負荷が増大し、一方地殻由来で大気にはほとんど含まれていないリンは増加していないとすれば、窒素負荷の大きな地域では、土壌のNP比、植物葉のNP比の増加が予測される。そこで、2004年夏には、数種の木本および草本植物（ヒノキ *Chamaecyparis spp.*、カラマツ *Larix*

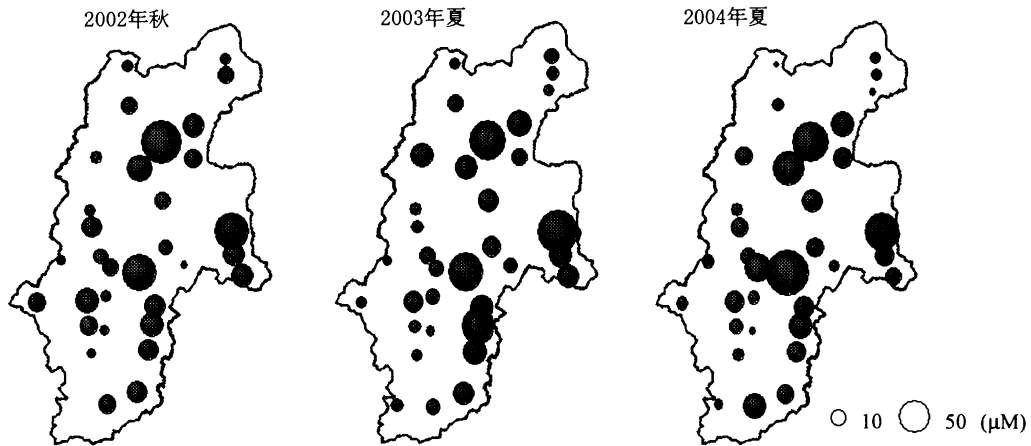


図14. 長野県における渓流水の硝酸イオン濃度

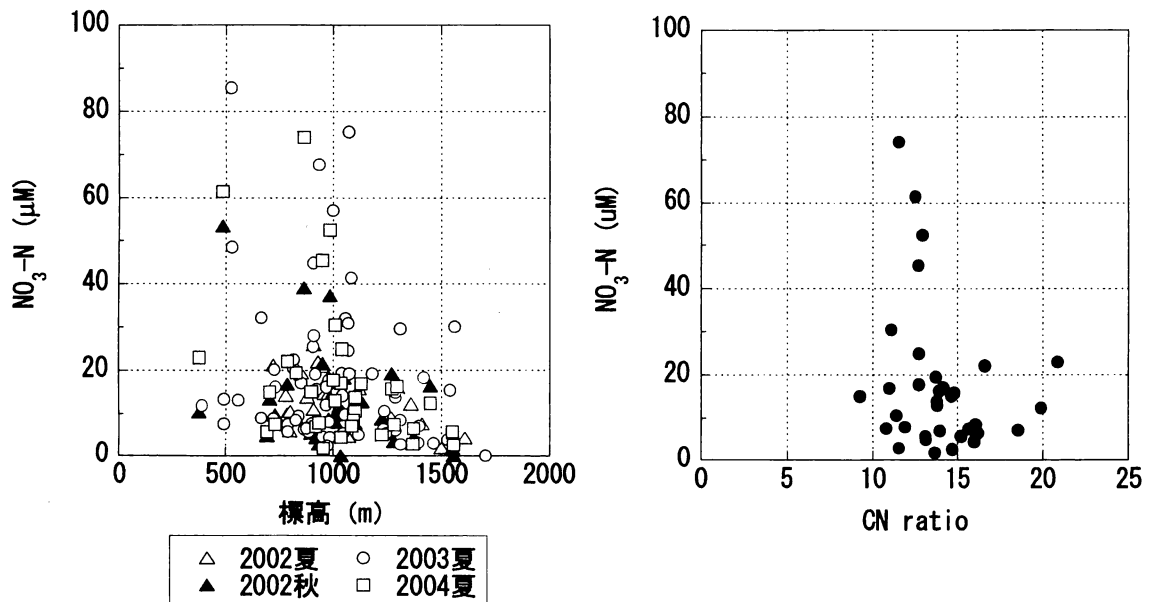


図15 長野県における渓流水の硝酸イオン濃度と標高（左）、林床土壌CN比（右）との関係

*kaempferi*、フサザクラ *Euptelea polyandra*、アカソ *Boehmeria tricuspidis* spp.、ササ *Sasa* spp.) の葉を採取し、その窒素、リン含有量も測定した。渓流水の  $\text{NO}_3^-$  濃度と植物葉のNP比とには、ヒノキ (サワラを含む) では正の、カラマツ・フサザクラ・ササでは負の相関関係がみられたが、いずれも統計的には有意ではなかった。

## ② 全国調査

### ア 渓流水質の全国平均値

全国で採取した1242渓流について、全国平均値はE.C.: 6.94 mS/m、pH: 6.84、 $\text{Cl}^-$ : 119  $\mu\text{M}$ 、 $\text{NO}_3^-$ : 26.2  $\mu\text{M}$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ : 62.8  $\mu\text{M}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ : 344  $\mu\text{M}$ 、 $\text{Na}^+$ : 211  $\mu\text{M}$ 、 $\text{NH}_4^+$ : 6.1  $\mu\text{M}$ 、 $\text{K}^+$ : 16.4  $\mu\text{M}$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ : 55.8  $\mu\text{M}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ : 135  $\mu\text{M}$ であった。イオンバランスを見てみると、アニオンでは $\text{HCO}_3^-$ が主要なイオンであり、イオン当量では半分以上を占める。次に、 $\text{Cl}^-$ と $\text{SO}_4^{2-}$ が多く、イオン当量では $\text{NO}_3^-$ の占める割合は小さい。しかし、全国平均で26.2  $\mu\text{M}$ と比較的高いことは、清浄な渓流にも十分に窒素が含まれていることを示している。また、 $\text{NO}_3^-$ の標準偏差が大きく、渓流によって濃度に大きな違いがある。県別に見ると、埼玉県の19渓流の平均が100  $\mu\text{M}$ を越えており、極めて濃度が高いことがわかる。

カチオンでは、 $\text{Ca}^{2+}$ が主要なイオンであり、イオン当量で約半分を占める。 $\text{Ca}^{2+}$ の次には、 $\text{Na}^+$ と $\text{Mg}^{2+}$ が多く、 $\text{K}^+$ と $\text{NH}_4^+$ は他のカチオンに比べるとその存在量は少ない。特に $\text{NH}_4^+$ は濃度が低く、 $\text{NO}_3^-$ と比較しても濃度は低いため、渓流水中の主要な窒素の形態は $\text{NO}_3^-$ であった。

本研究で得られた、日本の渓流水質を、欧米のデータと比較してその特徴を述べる。Lahermo et al.<sup>12)</sup> は、フィンランドの1165の 渓流を測定し、 $\text{HCO}_3^-$ を除くすべてのイオンで日本より濃度が高いことを示している。しかし、モル単位でイオン間の濃度を比較すると、 $\text{HCO}_3^- > \text{Cl}^- > \text{SO}_4^{2-} > \text{NO}_3^-$  (アニオン)、 $\text{Na}^+ > \text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+} > \text{K}^+$  (カチオン) という順番は日本とフィンランドで同じであった。フィンランドにおける $\text{NO}_3^-$ 濃度の平均値(73  $\mu\text{M}$ )は、日本の渓流の平均値(26.2  $\mu\text{M}$ )の3倍程度の濃度を示している。また、アメリカの300以上の渓流を調査した事例<sup>13)</sup>でも、 $\text{NO}_3^-$ 濃度の平均値は44  $\mu\text{M}$ であった。フィンランド、アメリカと平均値で比較した場合、日本の渓流は $\text{NO}_3^-$ 濃度が低いことがわかる。

### イ $\text{NO}_3^-$ 濃度の頻度分布

$\text{NO}_3^-$ 濃度について、5  $\mu\text{M}$ ごとに区分し、頻度分布で示した (図16)。10-15  $\mu\text{M}$ の渓流数が最大で、濃度が低いところにピークを持つ分布を示す。したがって、中央値は18.1  $\mu\text{M}$ で平均値 (26.2  $\mu\text{M}$ ) よりも低い値となる。中央値よりも濃度が低い渓流は、日本の中で平均値および中央値よりも濃度が低い渓流であり、低い濃度とするひとつの目安となるであろう。一方、平均値 (26.2  $\mu\text{M}$ ) の渓流は、全国で836番目に濃度が高い渓流に相当し、全体 (1242渓流) のほぼ2/3に位置する。平均値を上回る場合、日本の中では濃度が高い渓流と言う事ができる。また60  $\mu\text{M}$ を越える渓流も116 渓流あり、全体の10%弱を占める。60  $\mu\text{M}$ を越える場合、顕著に濃度が高い渓流と位置づけることができる。

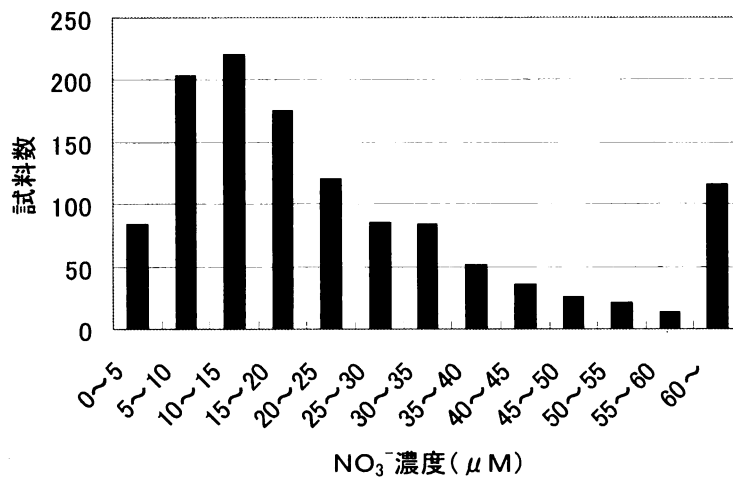


図16. 溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の頻度分布

ウ NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の分布とその要因

図17に、溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の分布を示す。NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度を高、中、低と3つに分類し、濃度の濃淡で示している（色の濃い地点で濃度が高い）。色の薄いNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の低い溪流は、北海道から東北に集中していることがわかる。一方、色の濃いNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が高い溪流は、東京近郊、大阪近郊、瀬戸

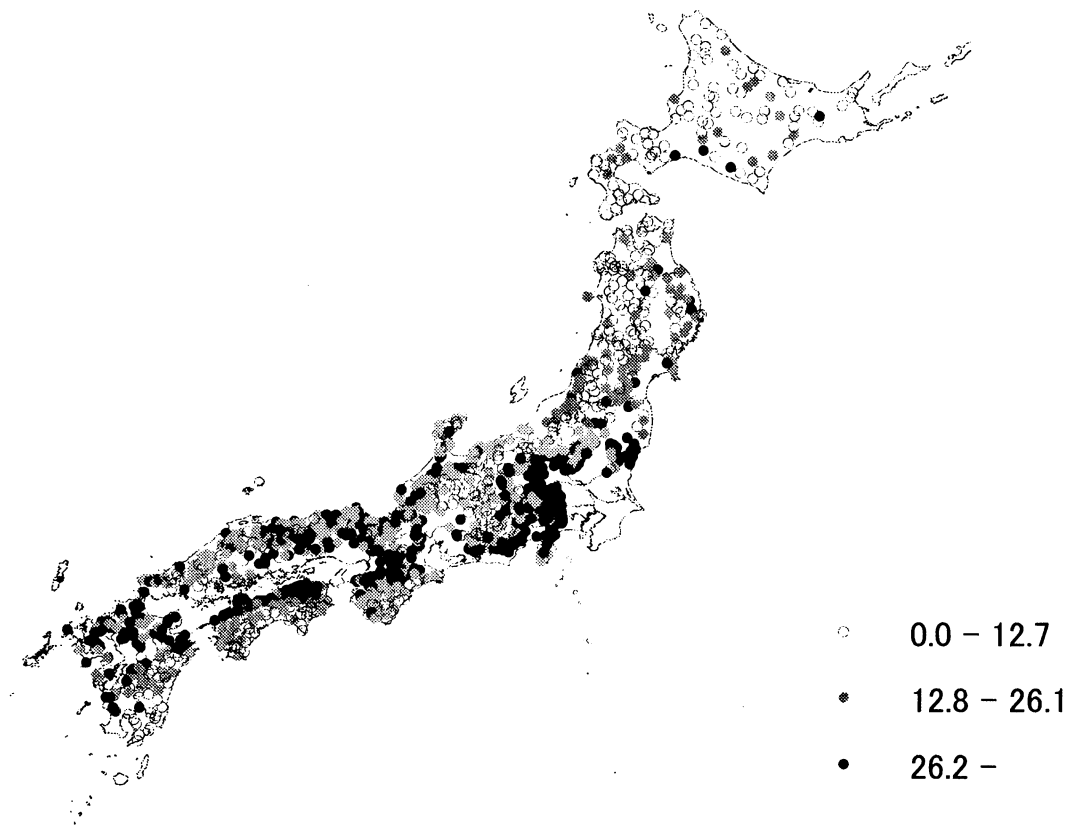


図17 溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度分布（単位はμM）

内、北九州と東京と福岡を結ぶラインに沿って集中している。この濃度の高い溪流の分布と対応する自然の要因は考えにくく、むしろ人口の分布と対応していると考えられる。本調査では、森林域の溪流のみを対象としており、人間の直接的な影響は考えられないので、大気経由の窒素負荷が森林生態系の窒素循環を経て、溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の上昇として現れていることを示唆している。流域ごとに、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度に影響をおよぼすと考えられる要因（大気からの窒素負荷量、気温、降水量、地形）を算定し、溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度との関係を検討した（図18）。ここで用いた大気からの窒素負荷量は、新藤ほか（本報告書）によるものである。図では、気温の低下、降水量の増大に伴って、渓流水のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が低下する傾向が認められるものの、有意な関係は得られなかった。気温、降水量とも、溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>の濃度に関与する要因であることは否定できないが、主要な要因ではないと考えられる。また、地形との関係も明瞭には見られなかった。ここで挙げた要因の中では、大気から森林への窒素負荷量と溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の間にのみ、正の相関が認められた。渓流水質は、気候や植生など自然の要因によって支配されていると考えられているが、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>に関しては大気汚染を通じた人間活動に主に支配されていると考えられる。

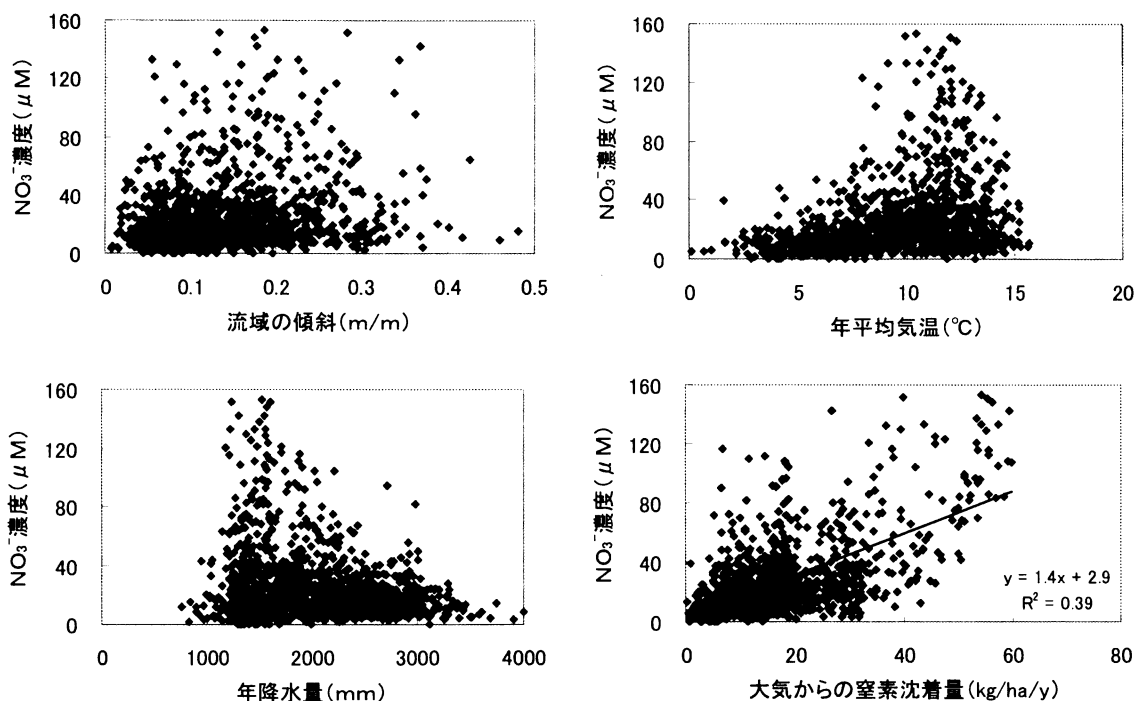


図18 流域環境と溪流のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の関係

#### エ 50年間における渓流水質の変化

1943-58年にかけて岡山大学の小林によって全国規模で河川水質が調査されており、過去の河川水質を知る貴重な資料になっている<sup>14)</sup>。観測地点は、大きな1級河川が中心であり本調査と違いがあるが、1943-58年は人為的な河川汚濁がまだほとんど無い時期と考えられ、その水質は当時の森林環境を反映していると考えられる。2003年に観測した本調査の結果と小林のデータを比較することによって、この約50年間に渓流水質にどのような変化が起きているか、検討を試みた。採取地点は一致していないので、両データとも各県ごとに平均値を求め比較した（図19）。

溪流の $\text{NO}_3^-$ 濃度は、1950年ごろと比較すると、ほとんどの県で、顕著に濃度が上昇しており、2倍程度の濃度を示す場合が多い。この50年間に溪流の $\text{NO}_3^-$ 濃度は大きく上昇したことを示唆しているが、前述のように大気経由の窒素負荷が、現在の溪流の $\text{NO}_3^-$ 濃度を支配していることを考え合わせると、この50年間に大気の窒素汚染が進み、その影響が溪流の $\text{NO}_3^-$ 濃度上昇として現れていると考えられる。

このような濃度上昇が認められるのは、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ という窒素化合物だけである。その他のイオンは、 $\text{HCO}_3^-$ で大きな変化がないのを除けば、濃度低下が認められる。さらに検討が必要であるが、この約50年間に窒素と同様に硫黄の大気汚染も同時に進行したと推定されるにも関わらず、溪流水中の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度が低下していることは興味深い。

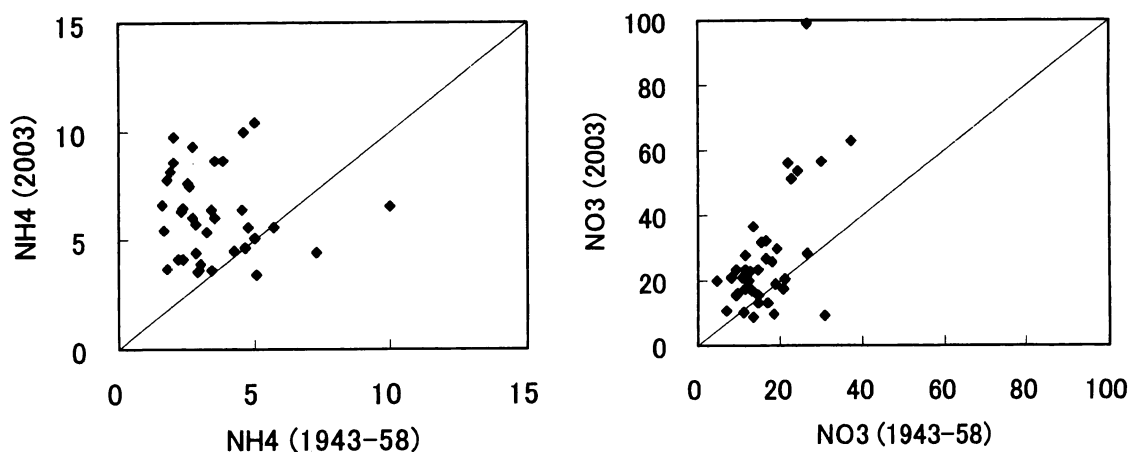


図19 1943-58年と2003年の水質の比較

## 5. 本研究により得られた成果

3年間にわたる通年調査の結果、共同調査地である乗鞍前川流域では、窒素降下量、リターフール量、土壌水や溪流水中の硝酸イオン濃度、一酸化二窒素など温室効果ガスの放出量は、茨城県、奥日光、多摩地域の富栄養流域での値よりいずれも低く、極めて貧栄養状態にあることがわかった。

林外降水、林内降水ともに降水量が少ない時には電気伝導度は高くなり、pHは低くなる。一方、降水量が多いときには電気伝導度は低くなり、pHは高くなる。林内降水中の溶存イオン濃度は、林外降水中と比較して増加し、特に $\text{K}^+$ 濃度では5.10倍と非常に高くなった。このような溶存イオン濃度の増加は、樹冠に付いた粉塵の洗脱や樹冠からの溶脱が原因である。また、針葉樹林内と広葉樹林内の林内降水量を比較すると、広葉樹林内の降水量が多く、降水の遮断量に違いが見られた。降水量の変化に伴って降水中の電気伝導度やpH、溶存物質濃度が大きく変動するのに対し、土壌水では期間を通じてほぼ一定の値を示した。土壌中で最も溶存イオン濃度に変化が見られるのはAo層であり、その変化は広葉樹林内の方が大きかった。土壌水は下層へ浸透するに従いその組成の変動は小さくなった。

河川の流出高は降雨による一時的な増水を除けば、春から秋にかけて減少し、冬季は安定した基底流量となる。流出高の増加は、融雪、降雨により引き起こされている。融雪時には流出高の緩やかな日変化がみられ、流出高の増加に伴い河川水の $\text{Na}^+$ 、 $\text{K}^+$ 、 $\text{Mg}^{2+}$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ 、 $\text{HCO}_3^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃



度と pH は低下するが、Cl<sup>-</sup>、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は上昇する。一方、降雨時には流出高は急激に増加し、河川水中の Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>濃度と pH の低下、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の増加傾向がみられた。

札幌近郊の白旗山流域も窒素降下量は乗鞍前川流域と同程度に小さいが、5集水域間で窒素降下量には3倍、窒素流出量には2倍の差異が認められた。また、窒素降下量とカラマツの生長量とには有意な正の相関が認められ、窒素降下による施肥効果が示された。短期間(3週間)の窒素降下は、メタン吸収を抑制し、一酸化二窒素発生を促進する効果がある事も分かった。さらに、カラマツの N/P 比が高いことから、白旗山流域の生態系が極めて強いリン制限にあること、リン制限のために、比較的小さな窒素降下量に対しても、硝酸イオン流出や一酸化二窒素の放出のような窒素流出が起きやすいことが示唆された。

長野県での3年間の調査の結果、渓流水の硝酸イオン濃度は地点間で大きな変動を示すが、平均濃度には年による統計的な有意差は認められず、渓流水の窒素濃度は比較的安定しており、地域差は大きい、年変化は小さいことがわかった。

全国1,242溪流の硝酸イオン濃度は、5-20μMが全体の約半数あり、平均濃度は26.2μM、中央値は18.1μMであった。硝酸イオン濃度の低い溪流は、北海道から東北に集中しており、濃度が高い溪流は、東京近郊、大阪近郊、瀬戸内、北九州でみられ、東京と福岡を結ぶラインに沿って集中していた。渓流水の硝酸イオン濃度は、気温とは正の、降水量とは負の相関関係を示したが統計的には有意ではなかった。それらに対し、大気から森林への窒素負荷量と渓流水の硝酸イオン濃度とには有意な正の相関関係が認められた。約50年前に実施された全国調査と比べると、溶存イオンの中では硝酸イオンのみが顕著に増加していた。渓流水質は、気候や植生、母材などの要因にも影響を受けるが、硝酸イオンに関しては大気汚染を通じた人間活動の影響を強く受けていることが判明した。

## 6. 引用文献

- 1) 川島博之・新藤純子 (2002) 酸性雨と地球規模の窒素循環、環境科学会誌 **15**: 281-286.
- 2) Galloway, J. N. & Cowling, E. B. (2002) Reactive nitrogen and the world: 200 years of change. *Ambio* **31**, 64-71.
- 3) Vitousek, P. M., Hattenschwiler, S., Olander, L. & Allison, S (2002) Nitrogen and nature. *Ambio* **31**, 97-101.
- 4) Aber, J. D., K. J. Nadelhoffer, P. Steudler, & J. M. Melillo (1989) Nitrogen saturation in northern forest ecosystems, *BioScience* **39**, 378-386.
- 5) 大類清和 (1997) 森林生態系での"Nitrogen Saturation"-日本での現状-, 森林立地 **39**, 1-9.
- 6) Emmett, B. A., D. Boxman, M. Bredemeier, P. Gundersen, O. J. Kjonaas, F. Moldam, P. Schleppei, A. Tietema, and R. F. Wright (1998) Predicting the effects of atmospheric nitrogen deposition in conifer stands: Evidence from the NITREX ecosystem-scale experiments, *Ecosystems* **1**, 352-360.
- 7) Magill, A. H., Aber, J. D., Berntson, G. M., McDowell, W. H., Nadelhoffer, K. J., Melillo, J. M. & Steudler, P. (2000) Long-term nitrogen additions and nitrogen saturation in two temperate forests. *Ecosystems* **3**, 238-253.
- 8) 藤田慎一・高橋章・速水洋・櫻井達也(2000)日本列島における硝酸イオンとアンモニウムイオンの湿性沈着量、環境科学会誌 **13**, 491-501.

- 9) 堤利夫 (1987) 森林の物質循環、東京大学出版会
- 10) Oura, N., Shindo, J., Tamon, F., Toda, H. and Kawashima, H., (2001) Effects of nitrogen deposition on nitrogen oxide emission from the forest floor, *Water Air and Soil Pollution* **130**, 673-678.
- 11) Tessier, J. T. & Raynal D. J. (2003) Use of nitrogen to phosphorus ratios in plant tissue as an indicator of nutrient limitation and nitrogen saturation. *J. Appl. Ecol.* **40**, 523-534.
- 12) Lahermo, P., M. J. Jaakko, and T. Tarvainen (1995) The hydrogeochemical comparison of streams and lakes in Finland, *Applied Geochemistry* **10**, 45-64.
- 13) Binkley, D., G. G. Ice, J. Kaye, and C.A. Williams (2004) Nitrogen and phosphorus concentrations in forest streams of the United States, *Journal of the American Water Resources Association* **40**(5), 1277-1291.
- 14) 小林純 (1971) 水の健康診断、岩波新書777、207pp、岩波書店、東京

## 7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

<論文 (査読あり) >

- ① H.Toda, Y.Uemura, T.Okino, T.Kawanishi and H.Kawashima: *Water Science and Technology* **46**, 431-435 (2002)  
“Use of nitrogen stable isotope ratio of periphyton for monitoring nitrogen sources in a river system”
- ② K. Suzuki: *Bulletin of Glaciological Research*, **20**, 15-20 (2003)  
“Chemical property of snow meltwater in a snowy temperate area”
- ③ K. Suzuki: *Hydrological Processes*, **17**, 2795-2810 (2003)  
“Chemistry of stream water in a snowy temperate watershed”
- ④ Nakahara, O., Yamagami, T., Koide, T., Sakai, K. and Hatano, R.: *Soil Science and Plant Nutrition*, **49**, 741-746(2003)  
“Spatial variation of nitrogen deposition over five adjacent catchments in Larch forest”
- ⑤ Morishita T, Hatano R, Nagata O, Sakai K, Koide T and Nakahara O: *Soil Science and Plant Nutrition*, **50**, 1187-1194 (2004)  
“Effect of nitrogen deposition on CH<sub>4</sub> uptake in forest soils in Hokkaido, Japan”
- ⑥ S. Zhou, H. Narita, K. Suzuki, and M. Nakawo: *Bulletin of Glaciological Research*, **21**, 23-29 (2004)  
“An estimate of spatial ratios for preferential water flow in a melting snowpack”
- ⑦ 鈴木啓助・久保池大輔・倉元隆之：日本水文科学会誌、**34**, 29-36(2004)  
「森林源流域における流出高の日変動と蒸発散量の関係」
- ⑧ 稲富素子・戸田任重・小泉博：システム農学、**20**, 2, 176-184 (2004)  
「人為的な窒素負荷が冷温帯林の土壌呼吸に及ぼす影響」
- ⑧ 新藤純子・岡本勝男・郭一令・戸田任重・川西琢也・田中恒夫・川島博之：地球環境、**9**, 1, 93-99

(2004)

「流域窒素循環モデルを用いた東アジアの窒素負荷の現状と環境影響の評価」

- ⑩ 鈴木啓助：地球環境、9, 51-62(2004)  
「渓流水の酸性化をもたらす融雪水」
- ⑪ 戸田任重・椎名未季枝・平林明・新藤純子・川島博之・沖野外輝夫：地球環境、9, 1, 41-48 (2004)  
「千曲川における窒素化合物の由来」
- ⑫ Suzuki, K.: Bulletin of Glaciological Research, 22, 57-61(2005)  
“Effect of winter warming on the stream water acidification”
- ⑬ Koide, T., Sakai, K., Kawahara, S., Usui, Y., Nakahara, O. And Hatano, R.: Phytion Annales Rei Botanicae (2005)  
“Susceptible response to nitrogen loading in a P-limited Larch Forest Ecosystem in Sapporo, Japan”  
(in press)
- ⑭ Konohira E. and Yoshioka T.: Ecological Research 20,3 (2005)  
“Dissolved organic carbon and nitrate concentrations in stream -A useful index indicating carbon and nitrogen availability in catchments”, (in press)

<その他誌上発表（査読なし）>

- ① 戸田任重、中佐錦、平野弘藏、上村由加里、沖野外輝夫、川島博之：システム農学、18, 90-99 (2002)  
「流域のつなぎ手としての物質循環」
- ② 鈴木啓助：信州大学環境科学年報、24, 107-114 (2002)  
「水素・酸素安定同位体を用いた流域水循環研究」
- ③ 木平英一：ウッドミック、235, 47-52 (2002)  
「窒素の循環から森林の環境を見る」
- ④ 信州大学山岳科学研究所編：山と里を活かす（自然と人の共存戦略）、信濃毎日新聞社、191-200 (2003)  
「第14章 山と人と川をつなぐ－窒素循環－（執筆担当：戸田任重）」
- ⑤ 鈴木啓助・戸田任重・佐藤利幸・樋上照男・朴 虎東・村越直美：信州大学環境科学年報、25, 143-146.(2003)  
「諏訪湖-天竜川流域における天然物質の循環過程の解析」
- ⑥ 木平英一：ウッドミック、248, 36-38 (2003)  
「森と人間の新たな関わりを模索して」
- ⑦ 鈴木啓助：ゆき、55, 23-29 (2004)  
「融雪水の酸性化は地球温暖化によって影響を受けるか」

(2) 口頭発表（学会）

- ① N.Oura, J.Shindo, T.Fumoto, H.Toda and H.Kawashima: Intecol International Congress of Ecology (2002)  
“Effects of nitrogen deposition on nitrogen cycle and N<sub>2</sub>O emissions from the forest floor”

- ② 大浦典子、新藤純子、麓多門、戸田任重、川島博之：環境科学会講演発表（2002）  
「林床からのN<sub>2</sub>O発生特性と林内の窒素循環」
- ③ 新藤純子、麓多門、大浦典子、永田修：環境科学会講演発表（2002）  
「奥日光外山沢流域の物質循環調査に基づいた酸性物質負荷の影響評価」
- ④ 小出隆広、酒井広平、山下剛志、中原治、波多野隆介：土壤肥料学会北海道支部会（2002）  
「都市近郊の森林生態系における窒素循環の定量的解析」
- ⑤ 平林明・戸田任重：第28回陸水学会甲信越支部会（2002）  
「乗鞍・安曇野における渓流水の硝酸態窒素濃度について」
- ⑥ 鈴木啓助・横山勝丘：日本雪氷学会全国大会(2002)  
「中部山岳地域における積雪層化学調査」
- ⑦ 倉元隆之・鈴木啓助：日本雪氷学会全国大会（2002）  
「温暖積雪地流域における河川水質変動」
- ⑧ 小出隆広、山上剛志、酒井広平、中原治、波多野隆介：日本土壤肥料学会全国大会（2003）  
「札幌近郊の森林生態系に窒素降下物がおよぼす影響—5つの小流域からの窒素流出におよぼす影響」
- ⑨ 酒井広平、小出隆広、森下智陽、中原治、波多野隆介：日本土壤肥料学会全国大会（2003）  
「札幌近郊の森林生態系に窒素降下物がおよぼす影響—温室効果ガス(CO<sub>2</sub>, CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O)フラックスにおよぼす影響」
- ⑩ 鈴木啓助・倉元隆之・吉田泰之・奈良麻衣子：第25回陸水物理研究会（2003）  
「北アルプス乗鞍岳源流域における水収支と物質収支」
- ⑪ 倉元隆之・市原弘貴・吉田泰之・鈴木啓助：日本雪氷学会全国大会（2003）  
「北アルプス源流域の融雪期における河川水中の化学成分濃度変化」
- ⑫ 横山勝丘・鈴木啓助：日本雪氷学会全国大会（2003）  
「中部山岳地域における冬季降水の化学物質濃度変動」
- ⑬ 鈴木啓助・倉元隆之・吉田泰之・奈良麻衣子：第25回陸水物理研究会(2003)  
「北アルプス乗鞍岳源流域における水収支と物質収支」
- ⑭ 大浦典子、新藤純子、麓多門、戸田任重、川島博之：環境科学会年会（2003）  
「窒素負荷量が異なる森林におけるN<sub>2</sub>O発生特性」
- ⑮ 菅野万理子・戸田任重：第29回陸水学会甲信越支部会（2003）  
「長野県における渓流水の窒素濃度について」
- ⑯ Oura, N., J. Shindo, T. Fumoto, H. Toda, and H. Kawashima : The 3rd International Nitrogen Conference, Nanjing, China (2004)  
“Effect of nitrogen deposition on nitrogen cycle in the plant-soil system and N<sub>2</sub>O emissions from the forest floors”
- ⑰ Toda, H., T. Takatsu, K. Wakahara, H. Kaneko, M. Inatomi, H. Koizumi, J. Shindo, K. Okamoto, and H. Kawashima: The Third International Nitrogen Conference, Nanjing, China (2004)  
“Effect of nitrogen addition on soil nitrate concentration in a cool-temperate forest”
- ⑱ Koide, T., Sakai, K., Kawahara, S., Usui, Y., Nakahara, O. and Hatano, R.: The 6th International Symposium on Plant Responses to Air Pollution and Global Changes (2004)

“Susceptible Response to Nitrogen Loading in a P-limited Larch Forest Ecosystem in Sapporo, Japan.”

- ⑲ Nakahara, O., Koide, T., Sakai K., Yamagami, T., and Hatano, R.: The 3rd International Nitrogen Conference Nanjing, China (2004)

“Spatial variation in nitrogen deposition enables to detect readily the effect of anthropogenic nitrogen on biogeochemical processes in forest ecosystems”

- ⑳ 今井響子・戸田任重：第30回陸水学会甲信越支部会（2004）  
「長野県内渓流水中の硝酸態窒素濃度の地域差をもたらす要因の解析」
- ㉑ 小出隆広・山上剛志・中原 治・波多野隆介：日本土壌肥料学会福岡大会(2004)  
「林内雨による窒素フラックスと樹木の栄養状態や生長との関係」
- ㉒ 中原治・波多野隆介：日本土壌肥料学会福岡大会(2004)  
「窒素降下物は本当に陸水を酸性化させるのか？」
- ㉓ 河原 俊典・酒井 広平・小出 隆広・中原 治・波多野 隆介：日本土壌肥料学会北海道支部会(2004)  
「森林生態系における窒素降下物が温室効果ガスフラックスにおよぼす影響」
- ㉔ 佐藤元彦・小出隆広・中原治・波多野隆介日本土壌肥料学会北海道支部会(2004)  
「森林生態系流域における融雪期の窒素流出」
- ㉕ 大浦典子、新藤純子、麓多門、戸田任重、川島博之：環境科学会年会（2004）  
「乗鞍岳における窒素循環特性」
- ㉖ 木平 英一・新藤 純子・吉岡 崇仁：第115回日本林学会大会（2004）  
「全国渓流調査の概要 JaLTERとその他の観測の協力体制について」
- ㉗ 木平英一・新藤純子・吉岡崇仁：環境科学会2004年会（2004）  
「全国規模の渓流水質調査」
- ㉘ 木平 英一・新藤 純子・吉岡 崇仁：第22回酸性雨問題研究会シンポジウム（2005）  
「大気から森林への窒素沈着と渓流水質-全国渓流調査の結果から」

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

- ① 鈴木啓助：下伊那教育会、2003年5月24日、飯田市立追手町小学校、「酸性降水の現状と測定方法」
- ② 鈴木啓助：信州大学公開講座「山と海は友達」、2003年10月25日、信州大学理学部、「山の水と海の水」
- ③ 戸田任重：信州大学公開講座「山と海は友達」、2003年11月15日、信州大学理学部、「人間活動を映す川の水」
- ④ 戸田任重：長野県日本中国友好協会、日中関係を考える連続市民講座（第7期）、2003年

- 12月13日、長野県勤労者福祉センター、「環境汚染-日本の事例と中国・東南アジアの概況」
- ⑤ 鈴木啓助：平成15年度信州大学山岳科学総合研究所公開シンポジウム「里地里山の生活と科学」、2004年3月27日、信州大学農学部、「雪から見た山の環境」

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

今後、学会誌、新聞報道等を通じ、成果の広報・普及に努める。