

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

(2) 流域における窒素、イオウの循環プロセスの解明

東京農工大学農学部	楊 宗興		
独立行政法人 森林総合研究所			
関西支所	森林環境研究グループ	谷川東子	
立地環境研究領域	養分環境研究室	高橋正通	
立地環境研究領域	土壌特性研究室	吉永秀一郎	
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

<研究協力者>	東京農工大学農学部	藤田俊忠
	平岡環境研究所	苗村晶彦
	昭光通商株式会社杉戸研究所	佐藤里恵

平成14～16年度合計予算額 16,039千円
(うち、平成16年度予算額 5,578千円)

〔要旨〕重要な大気沈着物質である窒素、イオウはいずれも生態系と強い相互作用を行う元素である。大気沈着物の生態系影響を解明するため、森林生態系におけるこれら元素の動態（内部循環、集水域での物質収支、土壌の微生物作用、蓄積等）を検討した。【窒素】都市近郊の森林集水域から流出する NO_3^- は年間加重平均濃度 $209\text{ }\mu\text{mol L}^{-1}$ で、大気沈着窒素量にほぼ相当し、典型的な窒素飽和の状況を示した。この森林では、広葉樹のコナラ、針葉樹のヒノキ若齢林、壮齢林のいずれにおいても、葉中の窒素含量およびリターフォール量が増加、窒素転流率が低下していた。リターフォールによる内部循環量は対照地の2倍にも達し、窒素の過剰化が葉の旺盛な繁茂を引き起こしている実態が明らかになった。また、土壌では独立栄養菌による硝化過程が活発で、それにより、温室効果ガスである N_2O の多量の放出が生じていることが示された。一方、対照地の一つでは硝化はほとんど行われず、 N_2O 放出もきわめてわずかであった。これらの違いは土壌のC/N比に依存しており、また添加実験から、基質供給の多寡のみならず硝化菌の有無という微生物生態学的理由も介在している可能性が示された。以上より、窒素サイクルの各過程、構成要素、微生物フローを含む生態系全体の改変として、窒素飽和状況が生じていることが明らかになった。【イオウ】本邦の火山灰性土壌は非火山灰性土壌や欧米の土壌に比べ、著しく大量のイオウを蓄積していることが明らかになった。HI-reducible Sと無機吸着態硫酸イオンがその主要な蓄積形態であり、それぞれはアルミニウムや鉄の酸化物に保持されていると考えられた。アルミニウム・鉄酸化物含有率の高い土壌ではHI-reducible Sの無機化速度は低く、アルミニウム・鉄酸化物との共存でHI-reducible Sが分解抵抗性を獲得していることが明確になった。イオウ循環プロセスを最も強く制御する土壌要因は鉱物特性であり、鉱物を豊富に含有する火山灰性土壌はイオウ蓄積能が高く、大量のイオウが大気から沈着し蓄積されている可能性が示された。

〔キーワード〕 森林生態系、窒素、イオウ、大気沈着、内部循環

1. はじめに

森林環境への影響が世界的に注目されている窒素は、一方で、陸上生態系において最も欠乏した重要な成分でもある。このため窒素の循環は、他のどのような養分元素にもまして系内でクローズしており、内部への保持により外部にもれ出すことがないことが特徴である。

これに対し、大気沈着窒素の長期の負荷のために、森林に“窒素飽和”現象が生じ始めていることが10数年前から知られるようになった。これは生態系がもはや窒素を保持しなくなる現象で、生物が必要とする量以上に利用できる窒素が増加した結果と理解されている。しかし、生態系内の各種物質循環過程、蓄積過程との関係はまだ十分明らかではない。大気沈着窒素が負荷された場合、生態系の物質循環系との間での緊密な相互作用が予想される。窒素飽和現象やその生態系影響を解明し、今後の根拠ある対策や予測を行うためには、このような森林生態系内部での相互作用系、すなわち内部循環との関係や植物、土壌、水等の間での動態を理解することが不可欠である。

硫酸イオンの形態で大気から供給されるイオウも、生態系において重要な相互作用が行われる。負荷された硫酸イオンが土壌粒子への吸着や有機態への形態変化により土壌へ蓄積されると、土壌水中で硫酸イオンの対イオンであった塩基性、あるいは酸性陽イオンの濃度も低下する。この現象は酸の消費を意味し、生態系の酸性化や物質循環に大きな影響を及ぼす。とくに土壌の硫酸イオン吸着は酸性沈着に対する緩衝作用として注目されている。一方、有機態イオウは土壌における滞留時間が吸着態硫酸イオンより長いので、長期的なイオウ蓄積形態としての意義が大きい。

欧米では、イオウ蓄積能の低い土壌に過剰の硫酸イオンが添加された結果、アルミニウムイオンの溶出が引き起こされ、森林衰退の原因となっていることが指摘されている。森林土壌がもつイオウの貯蔵庫としての機能は、このようなイオウの過剰供給がもたらす生態系への影響を緩和する役目を担うので、土壌がイオウを蓄積する能力を評価することが必要である。

イオウに関する研究では、まず、情報が皆無に近い本邦の土壌のイオウ蓄積実態を明らかにする。そのイオウの蓄積能が卓越している土壌と蓄積しやすいイオウ画分に焦点をあて、その動態を調査する。これらの調査をもとに、主要な硫黄循環プロセスを解明する。

2. 研究目的

(1) 窒素の循環プロセス

本来制限的であった窒素が陸域生態系に加われば、施肥効果によって一次生産が増大することが推定される。また、窒素の流亡現象には、土壌中での NO_3^- の存在量を左右しているであろう硝化過程の促進が考えられる。さらには、硝化が活発化すれば、その副産物である温室効果ガス N_2O 放出量の増加も予想される。

このことから本課題では、

- ①一次生産の増大
- ②土壌の硝化過程の促進
- ③温室効果ガス N_2O の放出量の増加
- ④森林集水域から流出する窒素レベルの増加

が果たして、またどれほど生じているか、大気沈着窒素の負荷に伴う生態系内での各種相互作用を明らかにする。これにより、将来の予測や対策に役立つ科学的知見を得ることを目的とする。

(2) イオウの動態と酸の消長プロセス

①イオウ蓄積実態調査

日本の森林土壌のうち、火山灰の性質が強く反映されている Andisols と森林に最も広く分布する Inceptisols について、形態別にイオウ現存量を明らかにする。イオウ画分のうち、硫酸イオンは大気から土壌へ供給されるイオウの主体であり、この硫酸イオンの安定同位体比 ($\delta^{34}\text{S}$) は土壌で硫酸イオンが無反応に溶脱しているのか、あるいは生物的・化学的な反応が繰り返されているのかという差異を反映すると考えられるため、硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ もあわせて測定する。このイオウ蓄積実態調査から、イオウの生態系への保持機構に機能する要因を解析する。

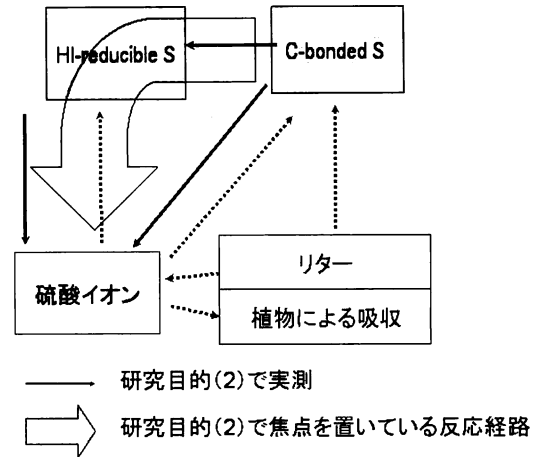


図1 イオウの内部循環プロセス

②イオウ内部循環プロセス（動態）調査

土壌培養実験におけるイオウ含有率と $\delta^{34}\text{S}$ の変化から、イオウの形態変化について推察する。現在知られている有機態硫黄の形態変化には、C-bonded S が HI-reducible S へ変化し、その HI-reducible S はさらに無機化されると硫酸イオンになる、という経路がある。本研究は特に、C-bonded S が HI-reducible S として保持されるのか、あるいは硫酸イオンにまで分解するのかという点に着目している（図1）。

3. 研究方法

(1) 窒素の循環プロセス

① 調査地

窒素飽和が生じていると判断されている東京八王子の「多摩丘陵」(Yoh et al., 2001¹⁾; Yoh, 2001²⁾) および対照地域 4 箇所（東京都檜原村、山梨県一ノ瀬高原、埼玉県奥秩父、長野県乗鞍）の計 5 箇所の森林集水域を選定し（図 2）、それら調査地において、樹木葉およびリターフォールの採取、土壌から発生する N_2O フラックスの測定、化学分析のための土壌の採取、現地での土壌培養実験、森林集水域からの溪流水の連続採取を行った。

② 樹木葉、リターフォールに関する調査

ア 樹木葉、リターフォールの採取と前処理

針葉樹林としてヒノキ、広葉樹林としてコナラを、またヒノキ林は異なる樹齢（それぞれ若齢林、壮齢林と呼称）の林分を選び、「多摩丘陵」と「秩父」両地域間でリターフォール等を採取した（表 1）。1m×1m×高さ 1.5m のフレームに袋状のネットを取り付けたリタートラップを一林分について 5 基設置し、2003 年 5 月～12 月の期間、毎月一回リターを回収した。集めたリターは混

合し、一つのサンプルとした。また、全ての調査林の生葉を、地上約 7 m の日当たりのよい部分から 8 月下旬に採取した。さらに、図 2 の 5 地点でヒノキ (*Chamaecyparis obtusa* Sieb. et Zucc.) の当年葉を採取した。採取は夏期に行い、地上約 3-6m の日当たりのよい外縁を選んで一地域について 3~5 試料を採取した。

植物、リター試料は 80℃ で二晩乾燥し、サンプルミルにより粉碎した。

イ 分析

乾式燃焼法により炭素、窒素含量を、硫酸と過酸化水素により湿式灰化した試料について原子吸光度法により K、Ca、Mg 含量を、モリブデンブルー吸光度法により全リンを測定した。また、微粉碎試料について、元素分析計付き質量分析計により窒素安定同位体比を測定した。

③ 森林土壌の微生物プロセスおよび N₂O 放出に関する現地調査と培養実験

ア N₂O フラックスの調査

「多摩丘陵」の広葉樹林地 (HD と表記) と針葉樹林地 (HC)、「乗鞍」の広葉樹林地 (SD) と針葉樹林地 (SC) において、チャンバー法により N₂O フラックスの測定を行った。チャンバーは移動式のポリエチレン製チャンバー (直径 16cm・高さ 12 cm) を用い、一林分について 9 つのチャンバーを設置した。内部の気体を 30 分間隔で 4 回、真空にしたバイアル瓶 (内容積: 18.5 ml) に採取し、その間の N₂O 濃度変化からフラックスを算出した。

N₂O 濃度の分析は、ECD 検出器付きガスクロマトグラフ (島津 GC14B、ポラパック Q50/80 メッシュ、ステンレスカラム 4 mm×3 mm×2.0 m) を用いて行った。

イ 現地培養法による窒素無機化速度、硝化速度の測定

呉ら (1998) ³⁾ のポリエチレンシートによるコア法を参考に、窒素無機化速度および硝化速度を測定した。土壌断面の 0-15 cm の土壌 (リター層も含む) を層位ごとに直径 10 cm、高さ 15 cm の塩ビ管に詰め、上下を厚さ 0.03 mm のポリエチレンシートで固定して埋め戻し、現場での土壌

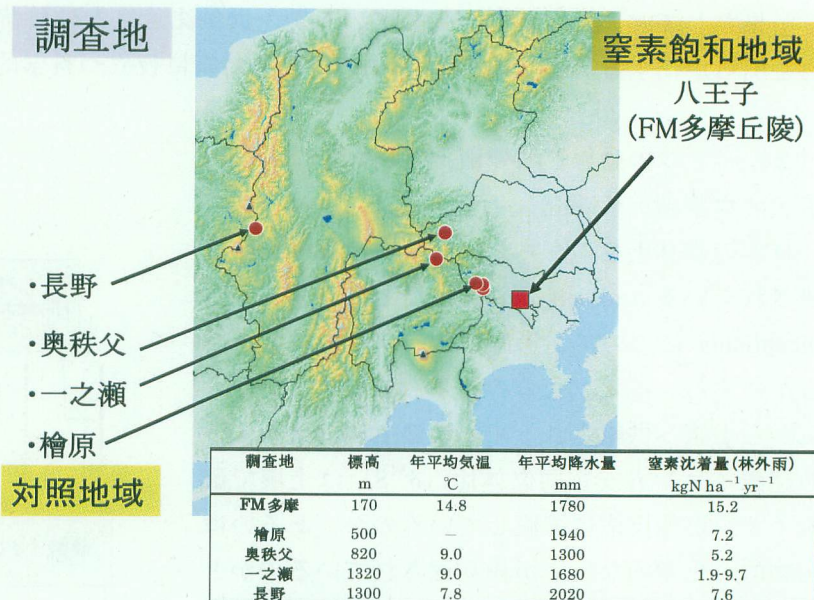


図2 窒素の循環プロセス調査地

表 1. リタートラップを設置した林分

	針葉樹(ヒノキ)		広葉樹
	“幼齡”	“壮齡”	(コナラ)
多摩丘陵 (東京八王子)	30年生 ×5	40年生 ×5	60年生 ×5
秩父 (埼玉県)	23年生 ×5	54年生 ×5	55年生* ×5

培養を開始した。一地点、1回の調査について6~8個の繰り返しを実施した。培養開始時の土壌として、土壌断面(0-15 cm)から一地点について3試料採取した。この試料および約1ヶ月後に回収した培養土壌について NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- 含量を測定し、培養前後の土壌の無機態窒素含量の差から窒素無機化速度および硝化速度を求めた。

土壌の NH_4^+ 含量は、生土を2M KCl溶液で1:10抽出後、遠心分離し、上澄みについてインドフェノール青法(Sagi, 1966)⁴⁾により定量した。土壌の NO_2^- 、 NO_3^- 含量は、生土を1:5水抽出後、遠心分離し、上澄みについてイオンクロマトグラフィーにより定量した。

また、土壌の仮比重を1.0と仮定して、面積当たりの速度を算出した。

ウ 地温

N_2O フラックスの測定時に、土壌表層(土壌深度10cm)の地温を地温計(YOKOGAWA Digital Thermometer Model 2455)にて測定した。また、サーモレコーダー(おんどとり Jr. TR-51 株式会社ティアンドデイ)を埋設し、60分ごとの地表面温度(土壌深度10 cm)を自動記録した。解析には一日ごとの平均値を用いた。

エ C/N比(0-10 cm)

リターなどの粗大な有機物を取り除いた A_0 層直下から10 cmの土壌を、各地点について10試料採取した。2 mmのフルイを通過させ、105℃で乾燥させた土壌を粉碎し、元素分析計(Flash EA 1112, アムコ)にて全窒素・全炭素含有量を測定した。

オ 実験室での土壌培養実験(添加実験)

各試験地から採取した A_0 層直下0-10 cmの土壌を冷蔵しながら持ち帰り、2 mmのフルイに通してよく混合した。生土約50gを容量300 mlの広口ガラス瓶に詰め、微生物の馴化を目的として、数日間、各温度に設定したインキュベーター内にて前培養を行った。その後、土壌水分が最大容水量の60%になるように純水、硫酸アンモニウム溶液(低濃度・高濃度)、硝酸カリウム溶液(低濃度・高濃度)のそれぞれを土壌に添加し、15、25、35℃で暗条件にて約2週間、本培養を行った。5つの処理区(Control、L- NH_4 、H- NH_4 、L- NO_3 、H- NO_3)は、土壌溶液の濃度がそれぞれ0、1、10、1、10 mol L^{-1} 上昇するよう設定した。これら1 mol L^{-1} 及び10 mol L^{-1} の濃度は、土壌10cmの深度までに行き渡った場合に各々約100 $\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ と約1000 $\text{kg N ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の負荷量に相当する。蒸発した水分は適宜、蒸留水を加えて補った。各処理について、それぞれ3連で培養した。

本培養開始後一日目と約2週間後(培養最終日)に、ガス採取口を取り付けたゴム栓で密栓し、 N_2O 濃度の変化からその生成速度を測定した。また、添加直後(培養開始時)および培養終了時の土壌の($\text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$)含量の差から硝化ポテンシャルを、($\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$)含量の差から無機化ポテンシャルを測定した。この報告では、25℃での培養の結果のみを取り上げる。

④ 大気沈着による窒素インプットと流出水によるアウトプットに関する調査

ア 調査地および現地調査内容

「多摩丘陵」において、コナラを優先樹種とする小集水域からの湧出水を自動採水装置を用い連続的に採取した。また、そこに設置したV字堰の水位と流量をモニタリングした。また、「多

摩丘陵」および「秩父」のスギ林において林内雨を毎月回収した。

イ 分析

水試料は濾過後、冷蔵保存し、イオンクロマトグラフにより陰イオン (NO_3^- 、 Cl^- 、 SO_4^{2-}) および陽イオン (Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+}) を測定した。降水については、全窒素計を用いた乾式燃焼法により全窒素を測定し、無機態窒素を差し引いて有機態窒素を求めた。

(2) イオウの動態と酸の消長プロセス

① 調査地

イオウ蓄積実態調査には、関東および中部地方の森林から採取した 83 の土壌試料 (Andisols 4 断面および Inceptisols 5 断面の全層位) を用いた (図 3)。土壌培養実験には、関東の亜高山帯林から採取した Inceptisols および Spodosol の表層土壌を用いた (図 3)。

② 土壌中のイオウ分析

イオウの測定は米国土壤学会の定める Tabatabai (1996)⁵⁾の方法に従った。全イオウは土壌試料を酸分解後、ICP-AES (Fisons Inst.、Maxim) を用いて定量した。無機態

イオウであり吸着態と溶存態硫酸イオンが主体の **PO₄ 可溶性 S** は、リン酸溶液を土壌へ添加し振とうした後、濾過して得た溶液中の硫酸イオンであり、Johnson and Nishita (1952)⁶⁾の蒸留法を用いて定量した。また溶存態硫酸イオンのうち、交換性硫酸イオンが主体である **Cl 可溶性 S** は、リン酸溶液の代わりに塩化カルシウム溶液を用い、イオンクロマトグラフィー (Yokogawa、IC7000、SERIES II) で定量した。土壌の中を自由に移動できる硫酸イオンが主体である **水溶性 S** は、リン酸溶液の代わりに蒸留水を用いて抽出し、蒸留法によって測定した。有機態イオウ化合物のうち **HI-reducible S** は、有機物中で酸素、窒素、イオウなど炭素以外の元素を介して炭素と結合しているイオウ化合物を指し、その主体はエステル硫酸態であり、分解されやすい画分である。この画分は土壌を直接 Johnson and Nishita (1952)⁶⁾の蒸留法に適用して得た測定値 (Total HI-reducible S) から **PO₄ 可溶性 S** を差し引き求めた。もう 1 つの有機態イオウ画分である **C-bonded S** は、有機物中で炭素と直接結合しているイオウ化合物であり、アミノ酸などが含まれ、分解されにくい画分である。C-bonded S は全イオウ含有率から HI-reducible S と **PO₄ 可溶性 S** の含有率を引いて算出した。Andisols と Inceptisols におけるイオウ含有率の差を t 検定を用いて解析した。**PO₄ 可溶性 S** のイオウ安定同位体比については、前述の **PO₄ 抽出液** に 6N HCl 1 ml を添加し加熱後 5% BaCl₂ を反応させて沈殿を取り出し、EA1110-DELTA^{plus} Advantage ConFloIII System で測定した (昭光通商杉戸 SI 分析センター)。土壌のアルミニウム、鉄酸化物の測定は、ISRIC (1993)⁷⁾ に従った。

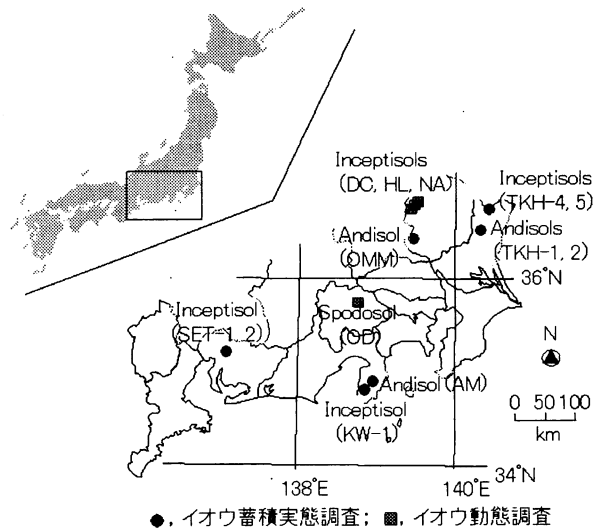


図3 調査地

③ イオウ動態調査におけるイオウ無機化速度の推定

生土をカラムに充填し、20℃および35℃で280日間培養した。この間、2週間に1度の頻度で0.01 M KCl溶液を上から流して溶出液を採取した。溶出液中の硫酸イオンは、同上のイオンクロマトグラフィーを用いて定量した。培養前後における土壌の吸着態硫酸イオンの変化量（増加量）を加算して無機化速度を算出した。培養前後の土壌中イオウ画分の安定同位体比 $\delta^{34}\text{S}$ を、各々次の方法で測定・算出した。

ア PO_4 可溶性Sの $\delta^{34}\text{S}$ 測定は、②と同様、土壌抽出液（リン酸溶液）に6N HCl 1 mlを加えて加熱し5% BaSO_4 を加え、放熱後、生成した BaSO_4 沈殿を回収して用いた。

イ Total HI-reducible Sについて前述の蒸留で得られたガス捕集液に0.1mol L⁻¹ AgNO₃溶液を反応させて得たAg₂S沈殿を用いて $\delta^{34}\text{S}$ を測定して、HI-reducible Sの $\delta^{34}\text{S}$ を次式で算出した：

$$\text{HI-reducible Sの}\delta^{34}\text{S} = (\text{Total HI-reducible S 含有率} \times \text{Total HI-reducible Sの}\delta^{34}\text{S} - \text{PO}_4\text{可溶性S 含有率} \times \text{SO}_4\text{可溶性Sの}\delta^{34}\text{S}) / \text{HI-reducible S含有率} \quad (1)$$

ウ C-bonded S の $\delta^{34}\text{S}$ は土壌とTotal HI-reducible Sの $\delta^{34}\text{S}$ から、2) 式で算出した：

$$\text{C-bonded S の}\delta^{34}\text{S} = (\text{土壌含有率} \times \text{土壌の}\delta^{34}\text{S} - \text{Total HI-reducible S含有率} \times \text{Total HI-reducible Sの}\delta^{34}\text{S}) / \text{C-bonded S 含有率} \quad (2)$$

なお、土壌および得られた沈殿の $\delta^{34}\text{S}$ は、EA1110-DELTA^{plus} Advantage ConFloIII Systemで測定した（昭光通商杉戸SI分析センター）。

4. 結果・考察

（1）窒素の循環プロセス

① 窒素過剰地と対照地における大気窒素沈着と溪流 NO₃⁻濃度の状況

「多摩丘陵」の森林源流部流出水のNO₃⁻濃度は、2002年11月13日から2003年11月13日までの一水年において65.5 μmol L⁻¹～563 μmol L⁻¹の範囲にあり、加重平均濃度は209 μmol L⁻¹であった。これは国内・海外の従来の報告値に対して最高レベルに相当し、この森林は著しく高濃度のNO₃⁻が流出している実態にあることが示された。

大気沈着物によるインプット（スギ林内雨のNO₃⁻+NH₄⁺+有機態窒素により推定）および溪流水による小集水域からのアウトプットの間の物質収支を表2に示す。なお、この期間における降水量は1950.5 mm/yであり、流出量は726.8 mm/yであった。流出水のNH₄⁺および有機態窒素は無視で

表2. 窒素循環調査地の窒素沈着インプットと流出水によるアウトプットの収支
(2002年11月～2003年11月)

	大気沈着窒素 (kg N ha ⁻¹ y ⁻¹)	渓流水による流出 (kg N ha ⁻¹ y ⁻¹)
多摩丘陵	32.2	23.7
秩父	10.4	4.9*

*想定される浸透水量1000 mm y⁻¹と渓流水のNO₃⁻濃度35 μmol L⁻¹に基づく推定値

きるレベルにあり、 NO_3^- 濃度により流出フラックスを見積もっている。

大気から年間に負荷される全窒素（スギ林林内雨により測定）は、「多摩丘陵」で $32.2 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、「秩父」で $10.4 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、「多摩丘陵」は対照地の「秩父」に比べ3倍多くの窒素が大気から負荷されていることが示された。なお、両地域間で有機態窒素の差は相対的に小さく（秩父 2.9 に対して多摩丘陵 $4.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ ）、 NH_4^+ の差は大きい（同様に 2.3 に対し $10.9 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ ）等、成分間の違いも見られた。

渓流水に含まれる窒素成分から推定したアウトプットは、大気沈着によるインプット量の74%に相当した。ところで、このような手法により集水域の物質収支を検討するためには水収支がとれていることが前提になる。集水域では深部への浸透による系外へのロスがありうるが、生物的、化学的な作用を受けない塩化物イオン Cl^- のインプットとアウトプットを比較した結果、両者がほぼバランスしていることがわかった。このことから、ここで調査地とした小集水域において深部浸透による水のロスはほとんどなく、インプットとアウトプットは直接比較してよいと見なせる。しかしながら、ここでの大気沈着窒素のデータは、スギ林において測定されたものであり、表面積が大きいスギ林は大気沈着物質を効率的に捕集して大きな林内雨濃度を示す傾向があるため、大気沈着窒素フラックスはかなりの程度過大評価されているはずである。このことを考慮すると、実際のインプットに対するアウトプットの比率はさらに高くなり、大気によりもたらされた窒素は100%近い比率で渓流水によって流出していると推測される。すなわち、調査した「多摩丘陵」の森林は、窒素を見かけ上ほとんど保持せず、まさに“飽和”している状況にあることが物質収支の結果から結論される。

既往の研究でしばしば示されているように、 NO_3^- 濃度は流量の増加にともない上昇を示した。このとき、主要陽イオン成分(Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+})の濃度は逆に低下、あるいはほとんど変わらなかった。しかし、 NO_3^- 濃度とpHの間には逆相関関係が見られ、高 NO_3^- に対応してpH低下が見られた（図4）。通常 NO_3^- など酸性原因物質により生成された水素イオン H^+ は土壌のイオン交換により中和され、 NO_3^- が増加してもpH変化はないと想定される。しかし、この結果

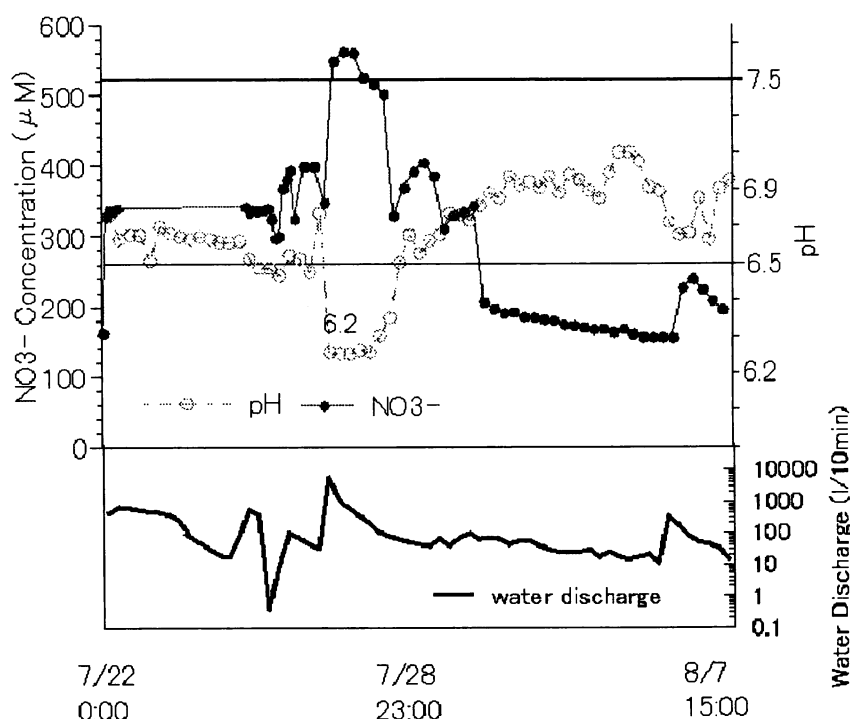


図4. 流量増加時の NO_3^- 濃度およびpHの変化の例（2003年夏季，「多摩丘陵」における観測結果）。この時、 NO_3^- 濃度は $500 \mu\text{mol L}^{-1}$ 以上に達し、それに呼応してpHの低下が見られる。

から、流量の大きな場合には NO_3^- により生じた H^+ は十分中和を受けることなく流出し、流出水の酸性化が現出することが判明した。

② 窒素飽和地と対象地域の森林における窒素の内部循環と特性

全調査期間における両地域のリターフォール量を表3に示す。溪流水濃度から窒素飽和の状況が推定される森林（多摩丘陵）のリターフォール量は、対照地（秩父）と比較して有意に高かった。2003年度の結果では、ヒノキ若齢林、ヒノキ壮齢林、コナラ林のそれぞれについて、2.1、1.7、1.8倍であった。なお、春から初冬に行ったこの2003年の調査においては、コナラ林については最

表3. 窒素飽和地（多摩丘陵）と対照地（秩父）におけるリターフォール量

kg ha^{-1}	ヒノキ（常緑針葉樹）				コナラ （落葉広葉樹）	
	若齢林		壮齢林			
	(2003)	(2004)	(2003)	(2004)	(2003)	(2004)
多摩丘陵	3867*	4290	3302*	4434	6990	5553
秩父	1861*	-	1998*	-	3977	-

終回収日の時点で落葉が終了していたため年間のリターフォール量に相当するが、一年を通じて落葉する常緑のヒノキは年間値ではない（表3の*印付きデータ）。そこで翌2004年に通年調査を行った結果、多摩丘陵のリターフォール量が前年同様の大きな値を持つことが確かめられた。2004年度の「多摩丘陵」コナラ林は2003年度に比べてやや低い値を示しているが、これはリターフォール量が気候要因（たとえば台風）により当然年格差がありうるためである。しかし、この2004年度の「多摩丘陵」コナラ林の場合においても、2003年度の「秩父」と比較して1.4倍も高い。したがって、「多摩丘陵」はどの林分でも「秩父」を大きく上回るリターフォール量をもつことは明らかである。それぞれの平均気温は 12.9°C 、 14.2°C と差が小さく、降水量もほとんど変わらない。制限的であった窒素が富化したことによって「多摩丘陵」で地上部の一次生産が増加し、リターフォール量が増加した結果であることは確かであろう。

つぎにリターフォールの窒素含量を、ヒノキ林を例に図5に示す。転流による秋季における窒素含量低下が全ての森林で見られるが、「多摩丘陵」の窒素含量は年間を通じて「秩父」より高レベル

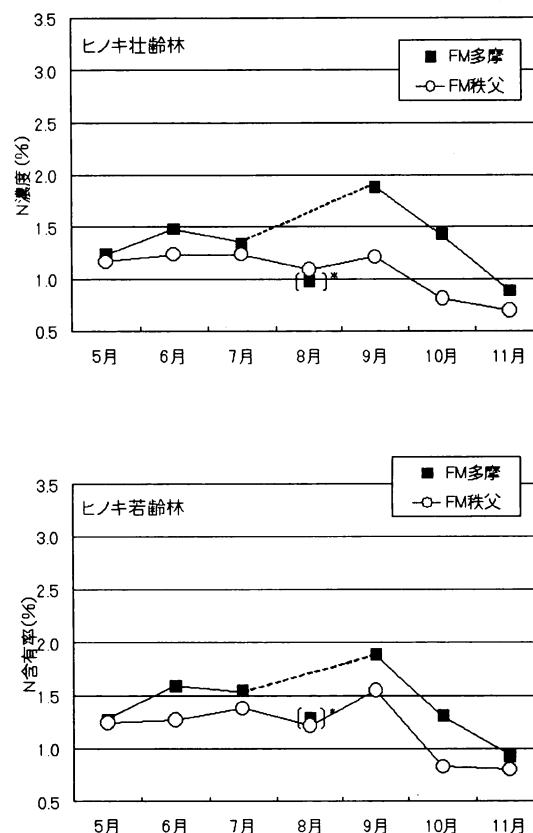


図5 「多摩丘陵」および「秩父」のヒノキ林におけるリターフォール中の窒素含量の季節変化

を維持した。図に見られるように、窒素含量の季節変化およびその地域間差は若齢林、壮齢林の間で非常に類似し、同時期の全てのデータで窒素飽和地の窒素含量は高い。

また、ヒノキの生葉の窒素含量を集水域の渓流水 NO_3^- 濃度の異なる森林で測定したところ、両者には正の相関関係が見られた(図6)。すなわち、渓流 NO_3^- 濃度の最も低い森林ではわが国のヒノキ林の平均値と等しい1.2%という値が測定されたのに対し、窒素飽和の「多摩丘陵」では2002年の測定で1.48%、2003年および2004

年の平均で1.47%であった。窒素含量が「多摩丘陵」>「秩父」であることはコナラ林についても同様であり、「秩父」で2.0%であるのに対し「多摩丘陵」では2.3%(2003年)ないし2.6%(2004年)であった。窒素飽和により窒素含量の上昇が生じていることは確実と見てよさそうである。「秩父」を対照地とすれば、窒素飽和地のヒノキ、コナラ林では、20%~30%に相当する窒素含量の上昇が生じていることになる。

一般に森林で不足しがちな窒素は、秋季、いわゆる転流により葉から回収され、落葉は生葉に比べ低い窒素含量を示す。窒素が潤沢な状況では転流を行う必要が小さくなり、落葉の窒素含量は通常より低下しなくなることが予想される。窒素飽和が推定される「多摩丘陵」における生葉、落葉期のリター、それらをもとに計算される窒素の転流率を表4に示す。2004年の結果から、ヒノキでは46%および57%、コナラでも52%と約半分の窒素が回収されていた(2003年のヒノキのリターフォールには、落葉広葉樹が混入し過小評価された可能性が高い)。この値は、窒素過剰の程

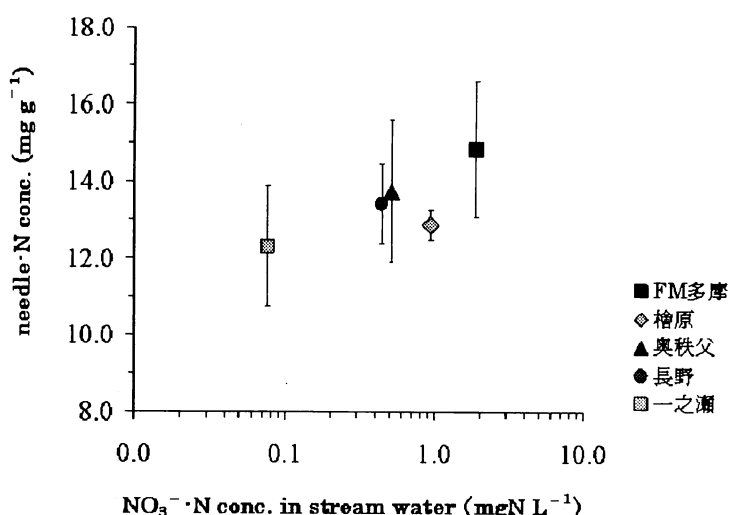


図6 各地のヒノキ生葉の窒素含量と集水域渓流水中の NO_3^- 濃度との関係

表4 窒素飽和地（「多摩丘陵」）におけるヒノキ、コナラの生葉とリターの窒素含量、およびそこから計算される窒素の転流率（2003年と2004年の結果）

	2003			2004		
	生葉N (mg g ⁻¹)	落葉期 リターN (mg g ⁻¹)	N転流率 (mg g ⁻¹)	生葉N (mg g ⁻¹)	落葉期 リターN (mg g ⁻¹)	N転流率 (mg g ⁻¹)
ヒノキ若齢林	14.83	9.31	37.2	16.21	7.49	45.9
ヒノキ壮齢林	13.93	8.90	36.1	16.21	7.00	56.8
コナラ壮齢林	23.08	10.10	56.1	26.21	12.66	51.7

度がこの森林ほどではないと考えられる「秩父」の63%、「八郷」の64%よりも小さく、窒素の回収の程度が低下していることを示している。また、転流による秋季の窒素含量低下の開始が「秩父」に比べ「多摩丘陵」では1ヶ月以上遅いという時期的違いも認められた（図省略）。「多摩丘陵」が窒素飽和状況にあることは、このような転流現象という定性的な側面からも支持される。

各月のリターフォール量と窒素含量をもとに、リターフォールによる窒素還元量が算出される。この量は、冬前の最後の調査時点で落葉が終了していたコナラについては、前述のように年間の内部循環量と見なすことができるが、ヒノキについては7月から12月の期間についての量となる。図7に示すように、「多摩丘陵」では「秩父」に比較しいずれの林分も約2倍の窒素フラックスをもつことが判明した（2003年の調査結果）。また、2004年も継続して調査した結果、同様の窒素還元量をもつことが確認された（表5）。「秩父」コナラ林の $41.2 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ は、温帯広葉樹林について報告されている 45 kg N/ha/年 （堤, 1987⁸⁾）とほぼ一致するのに対し、「多摩丘陵」では $107 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ （2003年）および $80 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ （2004年）であり、それを大きく上回る。窒素過剰状況の影響のために、窒素の内部循環フラックスは約2倍にまで増大していると見ることができる。なお、この内部循環の増大は一次生産されたリターフォール量の増加とリターフォール中の窒素含量の

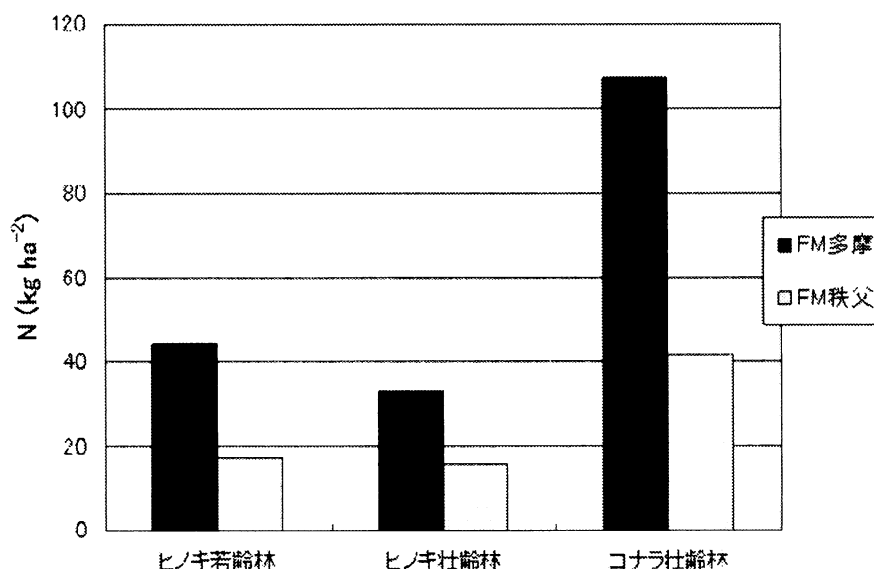


図7 「多摩丘陵」（窒素飽和地）と「秩父」（対照地）におけるリターフォールによる窒素還元量（2003年7月～12月）。ヒノキ若齢林，ヒノキ壮齢林，コナラ壮齢林についての比較。

表5 「多摩丘陵」における2003年と2004年のリターフォールによる窒素還元量

	2003	2004
	(kg/ha/ 7月-12月)	(kg/ha/ 7月-12月)
ヒノキ若齢林	40.8	37.7
ヒノキ壮齢林	29.8	28.2
コナラ壮齢林	104.3	80.1

増加の二つの側面をもつが、本研究の結果から見る限り、そのうち一次生産量の増大効果がより大きいようである。森林の窒素過剰化の結果、樹木は葉が多量に繁茂している状況にあることが明らかになった。

③ N_2O フラックス、土壌の無機化速度、硝化速度

夏季～秋季に、「多摩丘陵」と「乗鞍」の広葉樹林および針葉樹林において、現地の N_2O フラックス、土壌の無機化速度、硝化速度の測定を行った。 N_2O フラックスは乗鞍針葉樹林(SC)で $-5.3 \sim 4.5$ 、乗鞍広葉樹林(SD)で $12.2 \sim 39.8$ 、多摩針葉樹林(HC)で $9.9 \sim 50.0$ 、多摩広葉樹林(HD)で $29.6 \sim 82.5 \mu\text{g N}_2\text{O-N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ の範囲を示し、「多摩丘陵」で全般に大きな N_2O フラックスが測定された。SD、HC、HDにおいては地温の上昇に伴い N_2O フラックスの増大が見られ、筆者らの過去の調査と同じく、両者は指数関数により回帰される関係にあった（それぞれ r^2 は0.99、0.89、0.78）（図8）。一方、乗鞍針葉樹林(SC)では同じ観測期間中、ほとんど N_2O が放出されないという特徴が見られた。

現地の森林で培養を行って測定した各地点の硝化速度を図9に示す。測定値は、培養した深度0～15cmの土壌のみで硝化が生じ、土壌の仮比重を1と仮定して面積当たりで表している。「乗鞍」よりも「多摩丘陵」で、明らかに大きな硝化速度が測定された。とくに、SCにおける硝化速度は非常に低く（ 3.7 ± 1.1 、 $1.8 \pm 0.1 \text{ mg N m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ ）（ $\pm \text{SE}$ ）、 NO_3^- の生成はほとんど見られなかった。他地点と異なり硝化/無機化の比率は1を大きく下回り、無機化が生じていても硝化があまり駆動していない状況にあることが判明した。2回の測定値の平均の速度が年に150日継続し、残りの215日間は硝化は行われないと仮定して計算すると、SC、SD、HC、HDにおける年間の硝化速度の概算値は、それぞれ4.4、47、161、69 $\text{kg N ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ となる。

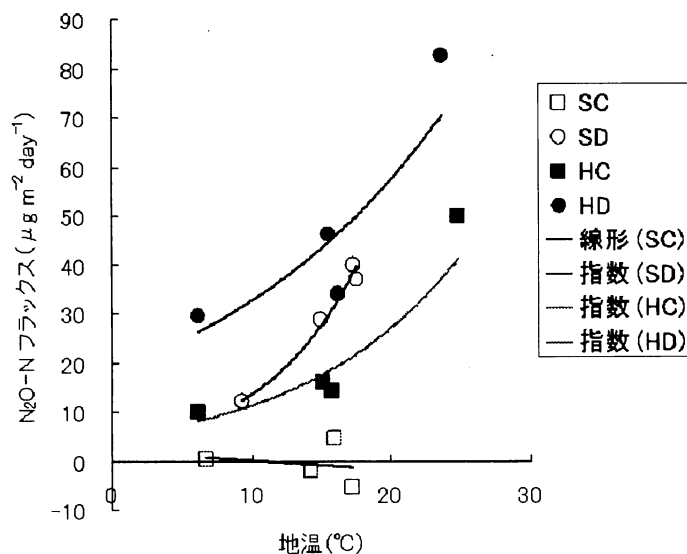


図8 4つの森林における N_2O フラックスと地温の関係。SC, SD, HC, HDはそれぞれ、乗鞍針葉樹林、乗鞍広葉樹林、多摩針葉樹林、多摩広葉樹林。

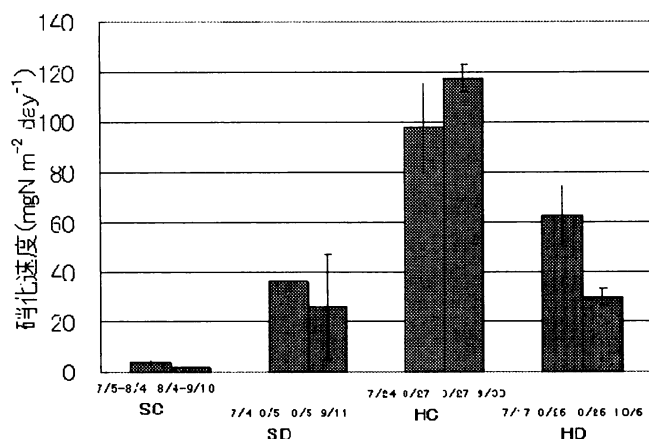


図9. 4つの森林の間での硝化速度の違い。2004年夏季に現地培養法により測定。エラーバーは標準誤差。

以上は、硝化速度が低いSCで N_2O フラックスが小さく、大きな硝化速度を示した「多摩丘陵」において大きな N_2O フラックスが見られたことを意味する。そこで硝化速度に対する N_2O フラックスの関係を図10に示す。各データと原点を結んだ直線の傾きは、硝化速度と N_2O -N生成速度との比率になる。SC、SD、HDは直線上にデータが分布したのに対し、HCはやや離れて分布している。しかし、硝化速度と N_2O -N生成速度との比は、0.03~0.22%の範囲にはいり、これは硝化に伴う N_2O の生成比率として示されている0.1%前後の値 (Goodroad and Keeney, 1984)⁹⁾ と一致した。本調査地の N_2O フラックスの大小は、基本的に硝化速度により規定されていると理解できる。なお、硝化においては N_2O のみならずNOも生成されるが、その割合は土壤の含水率により左右され、乾燥した土壤条件ほどNOの割合が増加することが知られている (Firestone and Davidson, 1989)¹⁰⁾。SC、SD、HC、HDの調査期間中の平均含水率はそれぞれ49%、56%、45%、37%であり、HDが例外的に低い。硝化に対する N_2O フラックスの割合がHDで低かったのは、土壤の含水率が低かった現地の状況が一つの理由に挙げられる。

SCで硝化と N_2O フラックスがともに非常に低かった理由としては、土壤のC/N比の影響が重要であった。図11に示すように、硝化ないし N_2O フラックスとC/N比の間には逆相関関係が見られた。硝化がC/N比に大きく左右されることは従来より土壤分野でよく知られた現象であり、正味の硝化はC/N比が20以下になってから開始するとされている。高標高の針葉樹林であるSCのC/N比はこの閾値を越える22.4であり、このC/N比の高さのために硝化およびそれに伴う N_2O 生成が抑制されていたものと考えられる。土壤を持ち帰って N_2O 生成能と硝化ポテンシャルを検討した後述の培養実験の結果でも、それら活性とC/N比の間に同様の逆相関関係が見出された。このことから、

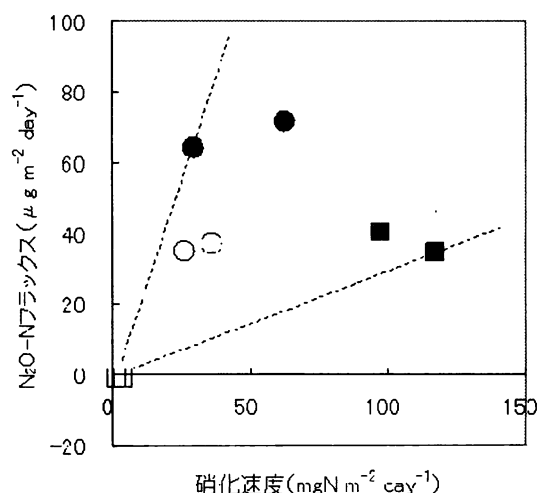


図10 N_2O フラックスと現地硝化速度の関係。□ : SC, ○ : SD, ■ : HC, ● : HD。点線は、 N_2O -N/ NO_3^- -Nの比が0.03%および0.22%に相当することを示す。

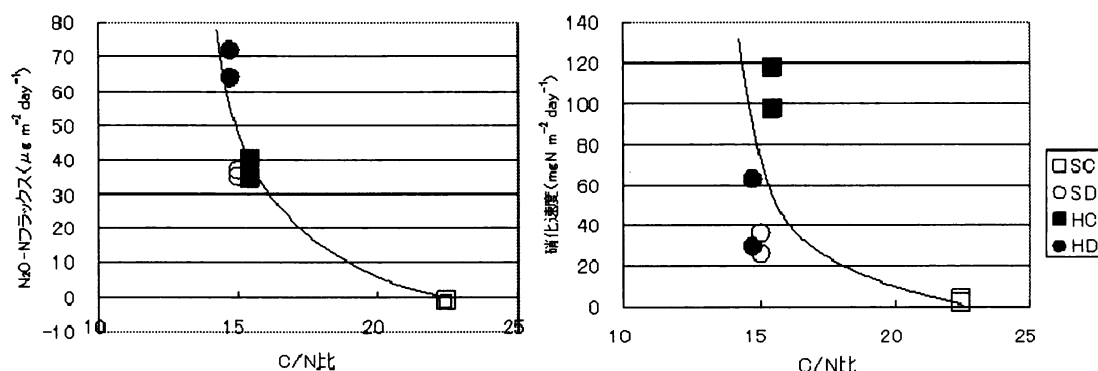


図11 4つの森林における N_2O フラックス (左) および硝化速度 (右) の土壤C/N比に対する関係。□ : SC, ○ : SD, ■ : HC, ● : HD。

C/N比は N_2O 放出に強く関係する重要因子となっていることが判明した。

各森林土壌を持ち帰り、培養実験を行って基質添加の効果を調べた。その結果、「多摩丘陵」のHC およびHDでは硝化ならびに N_2O 生成速度が NH_4^+ の添加によって促進され、 N_2O 生成が NO_3^- の生成とともに独立栄養の硝化細菌によって行われていることが実証された（図12）。それに対し、「乗鞍」の土壌では NH_4^+ 添加による促進の効果が認められなかった。とくにSCでは全ての実験において NH_4^+ を添加しても N_2O および NO_3^- 生成はほとんど促進されなかった（SDでは、ここに示していない実験でやや促進が見られるケースがあった）。高C/N比で硝化菌の利用できる NH_4^+ が常に制限状態にあることから、硝化を行う独立栄養の硝化菌自体が十分存在していないためと考えられる。硝化プロセスが、たんに基質の有無だけでなく、微生物フローラのレベルにおいても規定されている可能性があることがわかった。

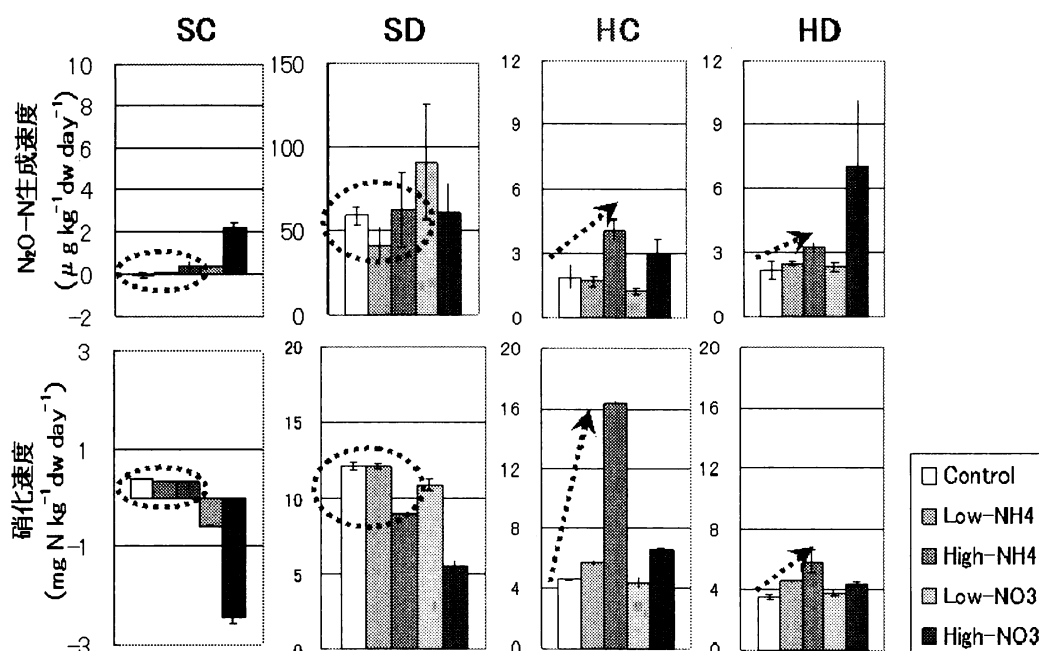


図12 培養実験における4つの森林土壌の N_2O 生成速度（上）および硝化速度（下）に対する NH_4^+ 、 NO_3^- の添加効果。5つの棒グラフは左から、コントロール、低レベル NH_4^+ 添加、高レベル NH_4^+ 添加、低レベル NO_3^- 添加、および高レベル NO_3^- 添加。

「乗鞍」（SCおよびSD）では基質を添加しても促進効果が見られない。

（2）イオウの動態と酸の消長プロセス

① イオウ蓄積実態

Andisolsにおけるイオウ現存量は、岩石が母材であるInceptisolsよりも極めて大きく、その傾向は火山灰の性質を最も強く持つMelanudandsで著しかった（表6）。表層から1m深までの現存量は、MelanudandsではInceptisolsの約4倍、火山灰と岩石の双方を母材とするFulvudandsでは約2倍に相当した。報告の多い50 cm 深までの現存量では、欧米の土壌は日本のInceptisolsと同程度であったのに対し、Andisolsでは2倍前後大きかった。このイオウ現存量の主体はHI-reducible Sと PO_4 可溶性

Sであった。

表6 日本の森林土壌のイオウ現存量（表層～1m深）

（現存量の単位はkg S ha⁻¹、全イオウに占める割合は%）

土壌分類	断面名	全イオウ	HI-reducible S		C-bonded S		PO ₄ 可溶性S	
		現存量	現存量	全イオウに 占める割合	現存量	全イオウに 占める割合	現存量	全イオウに 占める割合
Andisols								
Melanudand	TKH-1	8500	4600	54	1900	22	2020	24
Melanudand	TKH-2	8200	4710	57	870	11	2670	33
Fulvudand	AM	4300	2820	65	650	15	870	20
Fulvudand	OMM	3400	1180	35	880	26	1300	38
Inceptisols								
Dystrudept	KW-1	2000	1260	64	620	31	91	5
Dystrudept	TKH-4	1800	700	39	590	33	500	28
Dystrudept	TKH-5	2600	560	22	590	23	1440	55
Dystrudept	SET-1	1600	840	52	590	36	200	13
Dystrudept	SET-2	1600	350	22	440	28	800	50

HI-reducible S含有率の平均値は、Melanudandsで930 mg S kg⁻¹、Fulvudandで400 mg S kg⁻¹、Inceptisolsで130 mg S kg⁻¹であり、Andisolsの含有率はInceptisolsより著しく高かった（表層、下層とも $P < 0.001$ ）。HI-reducible Sは、Andisolsでは全イオウ含有率の47%を占める主要な画分であり、Inceptisolsでは全イオウ含有率に占める割合はAndisolsより若干低く39%であった。一方C-bonded S含有率はHI-reducible S含有率より低く、Andisolsでは全イオウ含有率の20%を占めるのみであった。AndisolsにおけるHI-reducible Sの含有率や全イオウ含有率に占める割合の高さは、本研究で用いているInceptisolsおよび欧米における既報値の中でも突出していた。これまでは、HI-reducible Sは一般に全イオウ含有率の10 ～ 30%を占めるにすぎず、C-bonded Sは40 ～ 80%を構成する主要な形態であると報告されている。日本のAndisolsでは両者の量的関係は逆であり、明らかに欧米の土壌の組成とは異なっていた。

PO₄可溶性S含有率の平均値は、Melanudandsが555 mg S kg⁻¹、Fulvudandsが313 mg S kg⁻¹、Inceptisols（Dystrudepts）が57 mg S kg⁻¹であり、Andisolsの方がInceptisolsより高かった（表層、下層とも $P < 0.001$ ）。とくに下層ではPO₄可溶性Sの全イオウに占める割合が高く、Andisolsでは平均47%、Inceptisolsでは平均37%であり、PO₄可溶性Sはイオウ化合物の主要な形態であることが明らかになった。欧米の既報値はほとんどが100 mg S kg⁻¹以下であったことから、日本のAndisolsはPO₄可溶性S含有率が著しく高く、高い硫酸イオン吸着能を持っていることが示された。なおInceptisolsは欧米の既報値と同程度であった。さらにPO₄可溶性S含有率が全イオウに占める割合は、既報値ではほとんどが0～20%であるので、日本のAndisolsで高いことが明らかになった。また溶存態硫酸イオンのみを示すCl可溶性S含有率および水溶性Sの含有率はPO₄可溶性S含有率より1～2桁低かったことから（ $P < 0.001$ ）、PO₄可溶性Sの主体は吸着態硫酸イオンであり、無機態の硫酸イオンはほとんど吸着態で存在していることが明らかになった。MelanudandsのB層では水溶性S含有率が著しく低く、2 mg S kg⁻¹に満たなかった。これらの溶存態硫酸イオン含有率は欧米の既報値と同

程度であった。

また硫酸イオンの $\delta^{34}\text{S}$ は、Andisols、Inceptisolsとも表層で低く、下層で高くなる傾向が認められた(図13)。この結果は硫酸イオンが単純に溶脱しているのではなく、微生物の取り込みなど生物が関わる反応あるいは吸着といった理化学反応を繰り返しながら、土壤中を移動しつつ保持されていることを示すと考えられる。従来、イオウは生物学的な反応はあまり起こらずに循環していると考えられたが、生物はイオウ動態に深く関わっていると推察された。また、Andisols下層では $\delta^{34}\text{S}$ 値がInceptisolsより高く、この結果は硫酸イオンの滞留時間がAndisolsで長いことを意味している可能性がある。

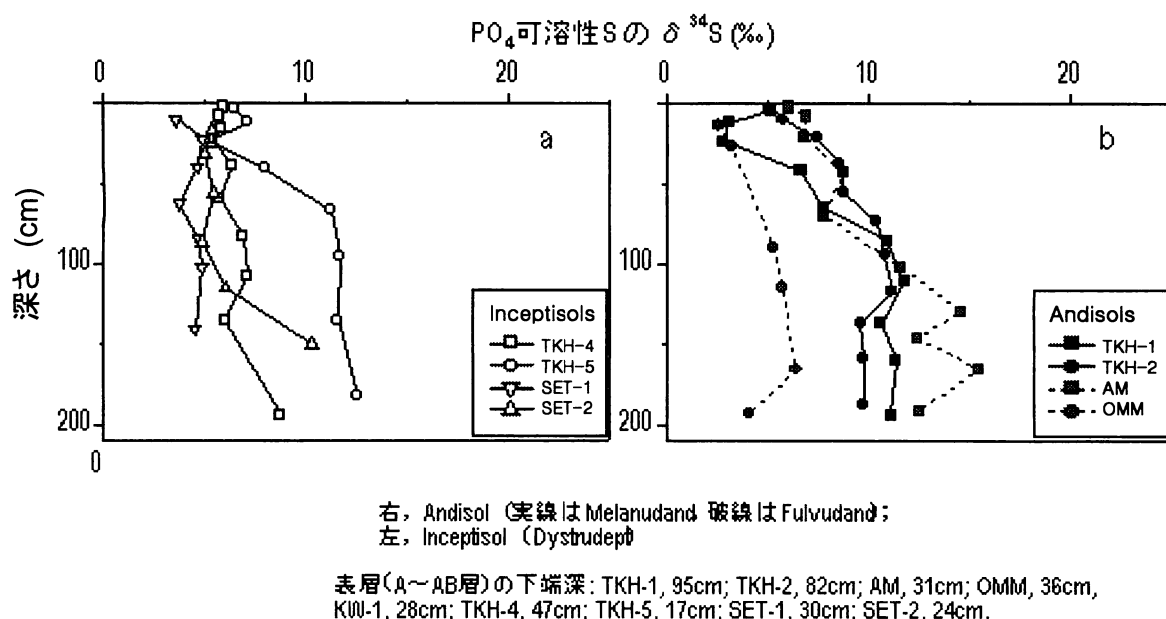


図13 PO₄可溶性S (硫酸イオン) の $\delta^{34}\text{S}$ の土壌断面プロファイル

② イオウ含有率と土壌特性との関係

イオウ現存量が大きく蓄積性の高い HI-reducible S と PO₄ 可溶性 S について、土壌特性との関係を調べた。その結果、HI-reducible S は結晶質のアルミニウムおよび鉄酸化物と良好な相関を持っていた(図14a)。従って、Andisols に蓄積されている HI-reducible S は、これらの鉱物と共存することによって微生物による無機化に対して安定化して存在していると考えられる。Inceptisols における HI-reducible S と酸化物との関係は、Andisols のものと差は認められず ($P > 0.05$)、HI-reducible S の安定化機構は土壌の種類にかかわらず存在していることが明らかになった。一方、PO₄ 可溶性 S 含有率は、非晶質のアルミニウムや鉄の酸化物およびアロフェン等の非晶質粘土との相関が高く(図14b)、これらの鉱物が硫酸イオンの吸着体として機能していることが示された。また Melanudands の水溶性 S は非晶質の酸化物や粘土と負相関を持っており(相関係数は-0.56~-0.86, $P < 0.01$)、Melanudands では吸着体となる酸化物等が多く硫酸イオン吸着能が高いため、水溶性の硫酸イオン含有率は低く維持されていると考えられた。

以上のことから Andisols のような酸化物含有率の高い土壌では、HI-reducible S 安定化や硫酸イ

オン吸着が機能し、流域からの排水に伴う硫酸イオンの流出量は相対的に小さいと推察される。土壌の酸化物のうち結晶質画分は HI-reducible S 現存量の、非晶質画分は吸着態硫酸イオン現存量の指標となることが示された。

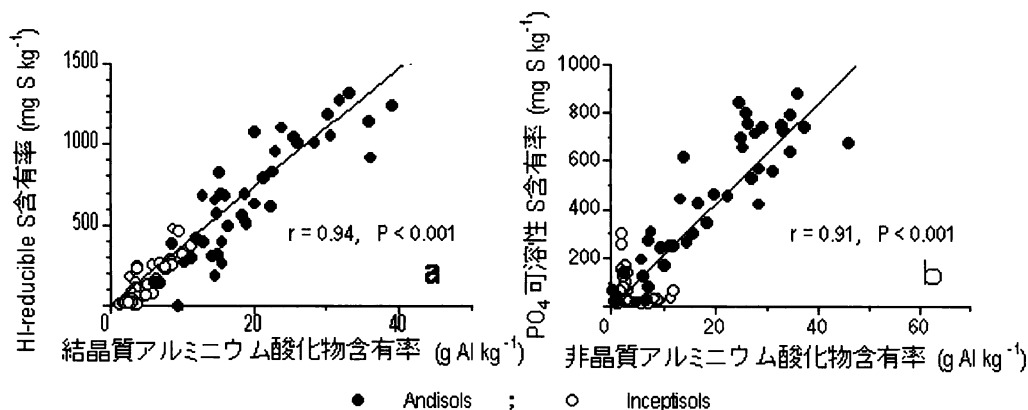


図14 蓄積性イオウ画分の含有率とアルミニウム酸化物含有率との関係

③ イオウ無機化速度と土壌鉱物との関係

土壌培養実験では、アルミニウム酸化物含有率が高い土壌の C-bonded S 無機化速度は HI-reducible S 無機化速度を上回った。また HI-reducible S 無機化速度はアルミニウム酸化物含有率と負の相関が認められた (図15)。

このことから酸化物による HI-reducible S の無機化抑制、つまり安定化機構が確認された。HI-reducible S は易分解性有機物であるため、HI-reducible S を安定化している酸化物を溶解させるような土壌の酸性化は、吸着態硫酸イオンだけでなく HI-reducible S の流出を通して流域に影響を与える可能性がある。

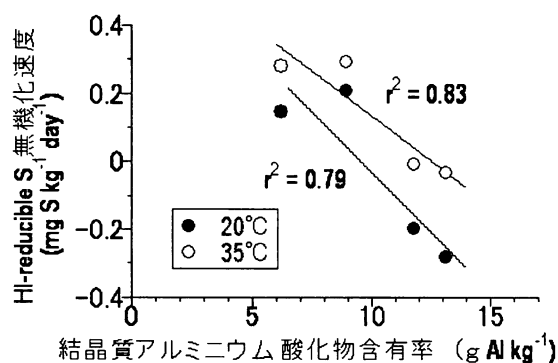


図15 HI-reducible S 無機化速度とアルミニウム酸化物含有率との関係

④ 有機態イオウの形態変化

培養後に C-bonded S 含有率は4土壌とも低下し、 $\delta^{34}\text{S}$ は低くなった。HI-reducible S 含有率は2土壌で低下し2土壌で高くなったが、 $\delta^{34}\text{S}$ はいずれも高くなった。PO₄可溶性Sは含有率、 $\delta^{34}\text{S}$ とも一定の傾向は見られなかった。また分解された C-bonded S が HI-reducible S へ変換される率を HI-reducible S 変化量 ÷ C-bonded S 変化量とすると、この値は土壌のアルミニウム酸化物含有率が高いほど低いことが明らかになった (図16)。このことから、C-bonded S → HI-reducible S → 硫酸イ

オンの反応がHI-reducible Sで止まるか硫酸イオンまで進むかは、土壌のアルミニウム酸化物含有率に影響を受けると考えられる。アルミニウム酸化物含有率が低い土壌ではC-bonded Sのみでなく当初含有されていたHI-reducible Sも分解し硫酸イオンになった。培養前後における硫黄化合物含有率の変化から推察される硫黄画分の形態変化を $\delta^{34}\text{S}$ の変化と照合したところ、例外はあるもののほとんどの試料で合致し、上述した解釈と矛盾しないことが明らかになった。

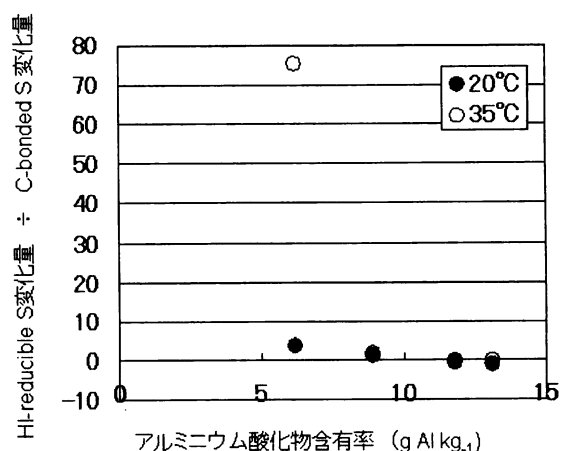


図16 C-bonded S からHI-reducible Sへの変換率 (C-bonded S /HI-reducible S比) とアルミニウム酸化物含有率との関係

5. 本研究により得られた成果

(1) 窒素の循環プロセス

① 対照地との比較から、窒素飽和に伴う次

のような窒素循環の特徴が明らかになった (図17)。

ア 加重平均で $209 \mu\text{mole L}^{-1}$ もの高濃度の NO_3^- が流出しており、大気沈着によるインプットとほぼ見合う典型的な窒素飽和状況の実態にある。

イ リターフォール量およびそれによる窒素還元量が約2倍に達し、葉の多量の繁茂が生じている。

ウ 硝化が活発に生じ、硝化の副産物である N_2O も多量に放出されている。

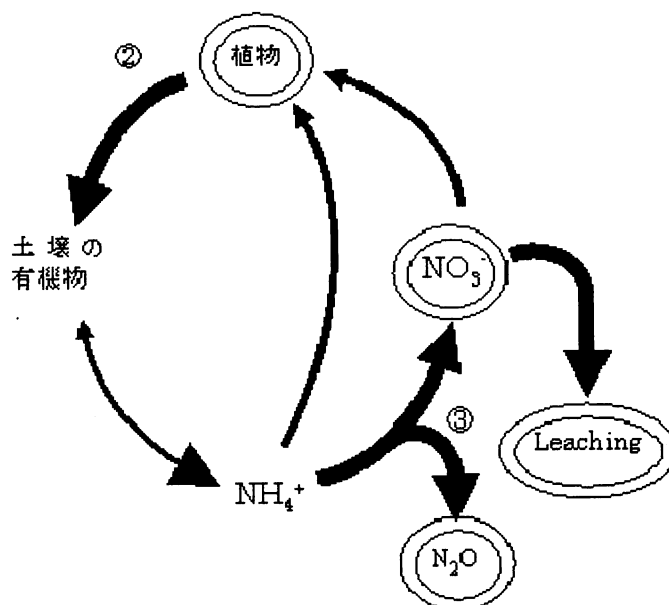


図17 窒素サイクルと “窒素飽和” に伴う変化

太い線と◎は、本研究から判明した本来より増大している部分。

② 対照地では、基質が乏しいという以上に硝化菌自体が制限されているという微生物生態学的な理由で、土壌での硝化がほとんど行われない場合があることが判明した。また、硝化および N_2O 生成は、土壌のC/N比に強く規定されていることがわかった。

③ 窒素飽和は、大気沈着によりもたらされた窒素の単なる流亡ではなく、生態系のあらゆる窒素サイクルを増進させる全体的な改変として生じていることが明確に示された。

(2) イオウの動態と酸の消長プロセス

イオウ内部循環プロセスを最も強く制御する要因には土壌の鉱物特性が挙げられ、イオウの一部は鉱物により循環ループから外れて安定して存在していること(図18)、また鉱物を豊富に含有する火山灰性土壌はイオウ蓄積能が非火山灰性土壌より高く、大気沈着イオウに起因する酸は大量に火山灰性土壌で消費されてきた可能性があることが示された。火山灰性土壌では非火山灰性土壌と等量のイオウが入っても、土壌から流亡するイオウ量は少ないと考えられる。ただし土壌の硫黄蓄積量には限界があると考えられるため、今後は土壌の鉱物量からイオウ

蓄積容量を推定し、イオウ現存量とのバランスを検討することで、各種土壌がイオウ蓄積能を発揮し続けられるか、排出フェーズに入るのかを把握することが可能になると考えられる。

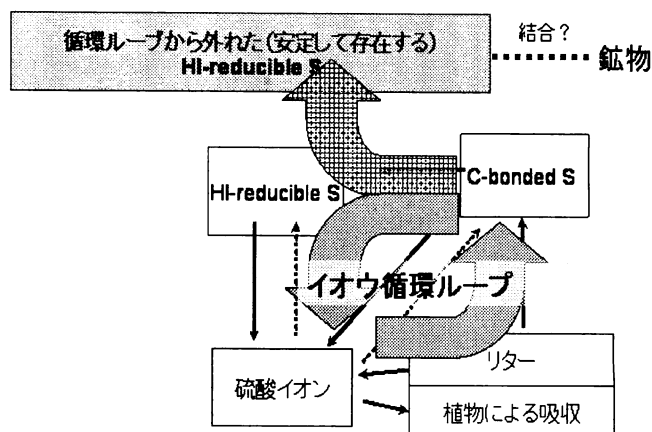


図18 森林土壌におけるイオウの動態

6. 引用文献

- 1) Yoh, M. (2001) Soil C/N ratio as affected climate : an ecological factor of forest NO_3^- leaching. Water, Air, and Soil Pollution, 130, pp 661-666
- 2) Yoh, M., E. Konohira and K. Yagi: Regional distribution of natural stream nitrate in central Japan. Water, Air, & Soil Pollut. 130, 655-660, (2001)
- 3) 呉 国南・戸田 浩人・生原喜久雄・相場芳憲 (1998) 森林土壌の窒素無機化が水溶性イオン量に及ぼす影響, 日本林学会誌, 80(1), pp 21-26
- 4) Sagi, T. (1966) Determination of ammonia in sea water by indophenol method and its application to the coastal and off-shore waters. Oceanogr.Mag., 18, pp 43-51
- 5) Tabatabai, M. A.: Sulfur; in Methods of Soil Analysis, Part 3, Chemical Methods, ed. D.L. Sparks, p. 921~960, SSSA book series 5, Madison, WI. (1996)
- 6) Johnson, C. M., and Nishita, H.: Microestimation of sulfur in plant materials, soils, and irrigation waters. Anal. Chem., 24, 736~742 (1952)
- 7) International Soil Reference and Information Center (ISRIC): Extractable iron, aluminum, manganese and silicon; in Procedures for Soil Analysis, 4th ed, ed. van Reeuwijk, L. P., p. 12-1~12-8, Wageningen, Netherlands (1993)
- 8) 堤 (1987): 森林生態学, 朝倉書店
- 9) Goodroad, L. L. and D. R. Keeney (1984) Nitrous oxide production in aerobic soils under varying pH, temperature and water content, Soil Biology and Biochemistry, 16(1), pp 39-43
- 10) Firestone, M.K. and Davidson, E.A. (1989) Microbiological Basis of NO and N_2O Production and

Consumption in Soil., In M. O. Andreae and D.S. Schimel.(eds.) Microbiological Exchange of Trace Gases between Terrestrial Ecosystem and the Atmosphere. John Wiley & Sons, Ltd. New York. pp 7-21.

7. 国際共同研究等の状況

国際共同研究計画名：

「酸性物質の負荷が東アジア集水域の生態系に与える影響の総合的評価に関する研究」。

協力案件名：

東アジアの異なる森林生態系における生態系構成要素の測定に基づく酸性物質循環の解析。

カウンターパート氏名・所属・国名：

王徳宣・長春東北地理農業生態研究所・中国，他。参加・連携状況：共同研究が合意され，本年の現地調査を準備中。

国際的な位置づけ等：

東アジアで急速に進行する大気沈着物負荷による生態系影響が解明される。

8. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

<論文（査読あり）>

- ① 苗村晶彦, 藤田俊忠, 倉田 斉, 土器屋由紀子, 楊 宗興: 自然環境研究(Natural Environmental Science Research), 16, 1-6 (2003)

「秩父多摩甲斐山岳域における森林溪流水質の標高別分布」

- ② 谷川東子, 高橋正通, 今矢明宏, 稲垣善之, 石塚和裕: 土壤肥科学雑誌, 74, 2, 149-155 (2003)

「アンディソルとインセプティソルにおける硫酸イオンの断面分布と現存量—吸着態および溶存態硫酸イオンについて—」

- ③ 楊 宗興・木平英一・武重祐二・杉山浩二・三宅義則：地球環境 9, 29-40 (2004)

「溪流水のNO₃濃度と森林の窒素飽和」

- ④ Naemura, A., Yoshikawa, T., Yoh, M., Ogura, N. and Y. Dokiya: Natural Environmental Science Research, 17, 23-27, (2004)

”Dissolved inorganic and organic nitrogen in throughfall and stemflow of coniferous trees in nitrogen saturated forest”

- ⑤ 谷川東子, 高橋正通, 今矢明宏：環境科学会誌, 17,3,211-215(2004)

「森林土壌における硫黄化合物の蓄積実態」

- ⑥ 谷川東子, 高橋正通, 今矢明宏：地球環境, 9,1,19-28 (2004)

「森林生態系における硫黄の循環と土壌の硫黄集積機構の意義」

<その他誌上発表（査読なし）>

- ① 楊 宗興, 吉岡崇仁, 他39名：陸水学雑誌, 64, 49-79 (2003)

「集水域の生物地球化学：その意義と展望」

- ② 谷川東子, 高橋正通, 吉永秀一郎, 今矢明宏：独立行政法人森林総合研究所平成15年度研究

成果選集、24-25 (2003)

「イオウを貯める土・貯めない土ーイオウが多い日本の土壌のナゾー」

③ 楊 宗興：身近な水の環境科学. ERECON, 13-32 (2004)

「第2章 溪流水の話」

④ 楊 宗興：水環境学会誌 27, 568-574 (2004)

「集水域の生物地球化学：課題と展望」

(2) 口頭発表 (学会)

① 谷川東子、高橋正通、今矢明宏：第113回日本林学会大会 (2002)

「AndisolsとInceptisolsにおける無機態硫黄化合物量ー吸着態および溶存態硫酸イオンについてー」

② Naemura, A., Yoshikawa, T., Yoh, M., Ogura, N. and Y. Dokiya: 8th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (2003)

”Dissolved Inorganic and Organic Nitrogen in Throughfall and Stemflow of Coniferous Tree in a Nitrogen Saturation Forest

③ M.Yoh, Y.Akita, S.Toyoda and N.Yoshida: Goldschmidt 2003 Conference (2003)

”Nitrogen stable isotope abundance of N_2O from composting of livestock waste: its variation and mechanics”

④ M. Yoh, Y. Takeshige and E. Konohira: IUGG (International Union of Geodesy and Geophysics) (2003)

“ N_2O emission from temperate monsoon forests in Japan as correlated with stream NO_3^- concentration”

⑤ 古市淑子・楊 宗興：生物地球化学研究会 (2003)

「異なる地域と地質における森林溪流水の水質の比較ー石灰岩地帯の高 NO_3^- 濃度」

⑥ 小出理博・楊 宗興：生物地球化学研究会 (2003)

「森林および畑土壌の CO_2 、 N_2O 放出と CH_4 吸収特性ーN添加への応答」

⑦ 谷川東子、野口享太郎、高橋正道、赤間亮夫：第114回日本林学会大会 (2003)

「亜高山帯土壌における硫黄無機化特性」

⑧ 谷川東子、高橋正通：環境科学会2003年会 (2003)

「森林土壌における硫黄化合物の蓄積」

⑨ T. Fujita and M. Yoh: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)

“ NO_3^- concentration of streamwater chemistry in a small catchment in Tama area Japan”

⑩ MOON C-G, M. YOH, CHOI I-Song* and Jong-Min OH: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)

”The properties of Ecology concrete blocks using recycled aggregate for improving water qualities”

⑪ MOON C-G, M. YOH, CHOI I-Song* and Jong-Min OH: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)

”Performance of contact oxidation process using recycled aggregate porous concrete (RAPC) for

water purification”

- ⑫ YOH Muneoki, Koji SUGIYAMA, Yoshinori MIYAKE and Eiichi KONOHIRA: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)

”Nitrogen saturation and incipient acidification in some forested area in Japan as indicated by streamwater chemistry”

- ⑬ M. Koide and M. Yoh: The Third International Nitrogen Conference, Nanjing, China (2004)

”A possible difference in microbial process for nitrous oxide (N₂O) production among Japanese soils”

- ⑭ 藤田俊忠・楊宗興：生物地球化学研究会 (2004)

「窒素飽和地域と森林小流域の窒素の動態」

- ⑮ 楊宗興・三宅義則・杉山浩史・木平英一：日本陸水学会 特別シンポジウム(2004)

「関東地域に広がる森林溪流水の窒素汚染」

- ⑯ 楊宗興：酸性雨問題研究会 (2005)

「窒素飽和：大気沈着により生じつつある森林の環境変化」

- ⑰ T. FUJITA and M. YOH: 地球惑星合同大会 (2005)

”Hysteresis patterns of streamwater nitrate concentration in a “nitrogen saturated” catchment near Tokyo City, Japan”

- ⑱ 谷川東子、野口享太郎、赤間亮夫、高橋正通：第115回日本林学会大会 (2004)

「亜高山帯土壌における硫黄無機化特性（Ⅰ）—培養による硫黄含有率および硫黄安定同位体比の変化—」

- ⑲ 高橋正通、稲垣昌宏、谷川東子、加藤正樹：第116回日本林学会大会 (2005)

「森林土壌のモニタリングと森林の生育衰退状況」

(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

なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

環境省の酸性雨生態影響解析ワーキンググループにおいて、生態影響解析に重要な基礎情報を提供した（酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書III部生態影響）。大気沈着物の慢性的な負荷による森林環境の劣化は、今後ますます本格化し、広域化する可能性が高い。本研究の成果は、森林衰退等の生態系変化の現状とその原因を解明し、今後生ずるであろうより深刻な状況への定量的予測に貢献する。土壌の酸化物をパラメータにしたイオウ蓄積の知見やイオウ循環モデルは国内の酸性化影響予測やその対策に利用できるだけでなく、アジア地域に分布するOxisolsやAlfisol土壌についても応用できる可能性がある。