

Effect of nitrogen deposition on nitrogen cycling in forested ecosystems and N₂O emission from the forest floor

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2019-12-20 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 大浦, 典子 メールアドレス: 所属:
URL	https://doi.org/10.24514/00002983

大気由来の窒素負荷が森林生態系の窒素循環および 林床からの N_2O 放出に与える影響

大浦典子*

(平成22年2月16日受理)

世界で人口増加や経済発展が進む中、食糧増産のための化学肥料の投入や増加する化石燃料の利用にともなう燃焼時の NO_x 放出などにより、大気圏および生物圏において反応性窒素は急激に増加しており、陸上生態系の窒素循環に及ぼす影響が懸念されている。本研究では、増加する大気由来の窒素負荷が森林の窒素動態に与える影響を明らかにするために、窒素負荷量の異なる関東周辺の6地点で窒素循環量を比較した。

林内降水中の NO_3^- および NH_4^+ を生態系への窒素のインプットとし、土壌からの NO_3^- および NH_4^+ の流出量を生態系からのアウトプットとして比較した。2から $29\text{kg N ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ の窒素負荷量レンジに対し、流出量は、 $1\text{kg N ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ 以下から $13\text{kg N ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ の範囲であった。窒素負荷量が小さい地点では、流出量も小さい傾向にあったが、窒素負荷量が $10-15\text{kg N ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ の範囲では、窒素流出量は大きくばらついた。このことから窒素アウトプット量は窒素インプット量だけでは説明できないことが明らかになった。

窒素負荷量が多い茨城の2地点では、浸透水が有機物層(A_0 層)を通過する際、無機態窒素量は林内降水の約2.5倍に増加した。一方、窒素負荷量が少ない奥日光や乗鞍の山岳地点(乗鞍の針葉樹林を除く)では、 A_0 層浸透水の無機態窒素量は、林内降水と同程度かやや下回った。すなわち、リターフォールなど有機物の分解過程で生じる無機態窒素量は地点間で変動が大きいことが示された。

更に、2年間にわたって実施した窒素添加・除去実験の結果、窒素添加により、 A_0 層浸透水の NO_3^- および NH_4^+ フラックスは増加したが、鉍質土壌層の土壌水では有意な差は認められなかった。一方、除去実験では、 A_0 層浸透水の NO_3^- および NH_4^+ フラックスが減少する場合もみられたが、鉍質土壌層での変化は認められなかった。すなわち、窒素負荷量の多い茨城の調査地では、外部から負荷される窒素量の短期的な変化よりも、微生物による窒素の有機化や無機化など内部循環にともなう無機態窒素の動態の寄与が大きいことが示された。

林床からの亜酸化窒素(N_2O)放出量を比較した結果、窒素負荷量やリターフォール窒素量が多い地点で多く、窒素流出量と同様の傾向があった。国内の59か所で実施した短期一斉観測では、土壌および渓流水の NO_3^- 濃度は、 N_2O 放出量と共に、各地点の推定窒素負荷量と有意な正の相関を示した。

リターフォール窒素量については、落葉広葉樹林と針葉樹林で窒素負荷量との関係が異なることが知られているが、本調査でも、針葉樹林に比べ落葉広葉樹林でリターフォール窒素量の変動幅が大きかった。一方、林外降水窒素量に対する林内降水窒素量の比は、針葉樹林で落葉広葉樹林に比べて大きかった。このことから、同じ地点でも、植生タイプの違いにより、林内降水窒素量とリターフォール窒素量のバランスが異なることが示唆された。長期にわたる窒素負荷は、土壌-植物系の内部循環窒素量の変化をとともなう場合もあることから、林床への窒素インプットとして、窒素負荷量(林内降水窒素量)と内部循環窒素量(リターフォール窒素量)の両方を勘案することが妥当と考えられた。生態系からの窒素アウトプット経路の一つである N_2O 放出は、土壌からの NO_3^- 流出と同様に、林内降水窒素量とリターフォール窒素量との合計と高い正の相関を示した。本研究により、森林生態系からの窒素流出は、降水にともなう大気由来の窒素負荷量と系内の循環窒素量とによって支配されていることが明らかになった。

目次

I 序論	3	(2) 森林毎のN ₂ O放出特性	43
1 窒素負荷量	4	(3) 窒素添加の影響	43
2 生態系影響	5	(4) N ₂ O放出の地域間差異	48
3 本研究の目的と構成	6	4 考察-N ₂ Oと環境要因との関係	50
II 森林における水移動にともなうイオンの移動	7	(1) 温度	50
1 背景・目的	7	(2) 土壌水分	52
2 調査地および方法	7	(3) 窒素量	54
(1) 調査地概要	7	(4) 重回帰分析	54
(2) 土壌調査	7	(5) その他の要因と交互作用	55
(3) 溶液の採取・分析	9	V 窒素の内部循環量および植物生長量評価	56
(4) イオンフラックス	10	1 背景・目的	56
3 結果および考察	11	2 調査地および方法	57
(1) 調査地の土壌	11	(1) リターフォール量	57
(2) 各調査地のイオンフラックスの特徴	12	(2) 生葉の窒素含有量	57
(3) 林外降水と林内降水	17	(3) 樹木調査	58
(4) A ₀ 層浸透水の季節変化	18	3 結果	58
(5) 土壌水の季節変化および年変化	22	(1) リターフォール量	58
III 窒素添加・除去実験	22	(2) リターフォールの季節変化	58
1 背景・目的	22	(3) 生葉の季節変化	59
2 調査地および方法	25	(4) 樹木現存量と生長量	61
(1) 調査地および窒素添加・除去方法	25	4 考察	62
(2) A ₀ 層浸透水、土壌水イオンフラックス	26	(1) 窒素負荷と窒素の内部循環	62
(3) 土壌の化学性測定	26	(2) 樹種特性	63
3 結果	27	(3) 樹木密度と窒素の内部循環	65
(1) 林内降水	27	(4) 窒素循環におけるリターフォール窒素の意義	66
(2) A ₀ 層浸透水イオンフラックス	27	VI 生態系の窒素循環とN ₂ O放出(総合考察)	66
(3) 土壌水イオンフラックス	27	1 目的	66
(4) 土壌の化学性	27	2 物質循環の比較	66
4 考察		3 窒素インプットと窒素アウトプット	66
- NITREXおよびハーバード林との比較 -	27	4 林床のC/N比	68
(1) インプット-アウトプット	27	5 林床への窒素インプット	71
(2) 窒素状況	32	6 生態系から環境への窒素負荷(N ₂ O、NO ₃ ⁻)	73
(3) 植生の影響	33	
(4) 添加窒素の行方	33	7 まとめ	74
IV 林床からの亜酸化窒素(N ₂ O)放出	34	謝辞	76
1 背景・目的	34	引用文献	76
2 調査地および方法	34	Summary	83
(1) N ₂ O放出量測定	34		
(2) 連続測定	35		
(3) 窒素添加処理とN ₂ O放出	36		
(4) 広域調査	36		
3 結果	39		
(1) N ₂ O放出量の時空間変動	39		

I 序論

人類は、19世紀後半にイギリスで起こった産業革命以降、現在、中国を中心とした東アジアで見られる経済発展に至るまで、世界各地で急激な経済発展や人口増加を経験してきた。人口の集中や都市化は、それらを支えるための農業の集約化やエネルギー消費の増加など、資源利用の集中をもたらした。その結果、大気汚染物質の排出をはじめ、河川や湖沼の水質汚濁など、多岐にわたる環境影響がもたらされてきた。

窒素は、人間を始め動物や植物などの生物にとって、生きていくために必要なタンパク質を構成する重要な元素である。大気中に豊富に存在する窒素ガス(N₂)は、特定の微生物しか利用できず、動植物や多くの微生物が利用可能な反応性の窒素(還元型無機態窒素や酸化型無機態窒素、有機態窒素を含む)は、多くの生態系で、生長の制限要因となってきた。陸上生態系において、この反応性窒素の固定量が、1960年以降急激に増加している(Galloway *et al.*, 2003)。人間活動による窒素固定量が、30年余りで約2倍(約150Tg)に増加したことが原因と考えられ(Galloway *et al.*, 1995; Vitousek *et al.*, 1997)、主な要因として、食糧生産にともなう農地への化学肥料投入量の増加や、化石燃料の燃焼にともなうNO_xの発生が挙げられる。

食糧生産において、窒素は、作物の生産量を大きく左右する重要な養分の一つである。19世紀までは、窒素固定菌と共生するマメ科植物などの有効利用や、有機資材の投入により、農地に反応性窒素を供給してきた。しかし、1917年に、ハーバー・ボッシュにより工業的にアンモニアを固定する方法が開発されると、効率的に農業生産量を増加させることができる化学肥料の利用が一気に普及した。これを契機に、農業分野を中心に、反応性窒素の投入量および循環量が劇的に増加した。Mosierら(2001)によると、1961年段階では、地球上の全窒素固定量のうち人為起源(農作物による窒素固定、化学肥料など)の占める割合は約28%(40Tg N yr⁻¹)であったが、その量は30年あまりの間に約4倍に増加し、1995年には、自然窒素固定量(100Tg N yr⁻¹)を上回り、全体の60%以上を占めると推定されている。農地に投入された窒素の大部分は、植物(作物)や微生物に取り込まれ、生物や土壌に蓄えられる。一方で、作物残渣の焼却や土壌中での形態変化を経て、窒素ガス(N₂)を始め、窒素酸化物(NO_x)や亜酸化窒素(N₂O)、アンモニア(NH₃)として大気へ放出される窒素もあり、この量が増加する

ことが予想されている(Galloway *et al.*, 2004)。また、農地では、作物残渣や有機資材の投入による窒素の再利用が行われているが、畜産業の増加や集約化などの農業形態の変化は、畜産廃棄物からのアンモニア揮散など、大気への窒素放出の増加や地下水等の硝酸汚染などをもたらす原因ともなる(川島ら, 2002)。

また、経済発展を支えるエネルギー利用において、化石燃料の燃焼にともなう反応性窒素固定量の増加が著しい。石油や石炭などの化石燃料の燃焼にともない排出されるNO_xは、二酸化硫黄(SO₂)とならぶ大気汚染の原因物質である。NO_xは、炭化水素など他の1次汚染物質と共に紫外線照射を受けて光化学反応を起こし、光化学オキシダントとなる。日本では、1968年に制定された大気汚染防止法による規制や、技術革新により、国内におけるSO₂や一酸化炭素(CO)などの排出量は著しく削減されている(環境省, 2005)。一方、NO_xは、排出抑制が難しい物質の一つである。NO_xは、化石燃料中の窒素成分が、燃焼により酸化されることにより、また、燃焼時の高温により、空気中の窒素分子が酸化されることにより生成される。NO_xの発生抑制対策として、低NO_x燃焼技術や、触媒システムを使った自動車排気ガスからのNO_x除去技術が適応されている。しかし、NO_xの国内排出量は、最近20年で再び増加傾向にあり(環境省, 2005)、大気中のNO₂濃度についても、1980年以降横這い状態である(環境省, 2002)。

増加した反応性窒素は、直接または生態系での窒素循環を経て、大気への窒素放出量を増加させ、その結果、大気からの乾性沈着や湿性沈着による窒素負荷量の増加がもたらされると考えられている(Galloway *et al.*, 2004)。大気由来の窒素負荷は、都市や農地などの発生源から離れた自然生態系にも影響を与えるため、広範囲への生態系影響が懸念される。生態系に負荷された窒素は、植物や土壌中の微生物によって有機化され、系内の内部循環に取り込まれるが、一部は、N₂やNO_xあるいは温室効果ガスの一つである亜酸化窒素(N₂O)として再び大気中に放出される。また、生態系が窒素飽和といわれる状態になると、地下水や河川への硝酸態窒素の流出量が増加することも指摘されている(Aber *et al.*, 1989)。このような生態系から環境への窒素流出の増加が懸念されている(Grennfelt & Hultberg, 1986; Vitousek *et al.*, 1997; Matson *et al.*, 2002; Galloway *et al.*, 2004)。

外部からの窒素負荷増加にともない、生態系の窒素飽和が生じ、系外への窒素流出量が増加する例は、北米やヨーロッパ、また日本においても報告されている(Ohrui

& Mitchell, 1997; Vitousek *et al.*, 1997; Matson *et al.*, 2002)。一方で、得られた関係の多くは、限られた樹種や地域内の適応に留まるといった側面を持つ。このため、多様な生態系における、窒素負荷と窒素流出に関する研究データの蓄積と解明が求められている。日本は国土の約7割を森林が占め、水の涵養機能や浄化機能など森林の果たしてきた役割は大きい。近年、都市近郊林で見られる渓流水の硝酸イオン濃度の上昇は、森林流出水が果たしてきた、下流の農業排水や生活排水の各成分を希釈する効果を大きく後退させ、河川や湖沼の水質悪化を助長することが懸念されている(田淵, 2005)。戦後に植林された国内の多くの人工林で、林齢60年前後の成熟林の割合が増加し、森林の窒素吸収量自体が低下したことも、この現象に拍車をかける懸念材料となっている(林野庁, 2004)。

そこで、日本国内における多様な森林生態系において、窒素負荷と窒素流出の関係を検討するために、生態系の窒素循環に関する調査研究を行った。

1 窒素負荷量

大気由来の窒素負荷の生態系影響を検討する際には、窒素負荷のレベルと共に、どの程度の期間負荷されているのかが重要となる。ヨーロッパでは、19世紀に農業研究を中心に、降水由来の窒素負荷量の測定が盛んに行われており、降水由来の窒素負荷量の変動を把握することができる(Skeffington & Wilson, 1988)。イギリスの長期モニタリングデータによると、19世紀半ばから20世紀半ばにかけて、降水中硝酸イオン量が約2倍に増加していることが示されている(Brimblecombe & Stedman, 1982)。ヨーロッパにおける別の調査では、1890年代から1970年代後半にかけて、硝酸イオンの負荷量が約3倍に増加したことが示されている。また、1955年からの5年と1970年からの5年間は、ヨーロッパ全体で、硝酸イオン負荷量が増加したが、アンモニウムイオン負荷量の増加は小さいと報告されている(Rodhe & Rood, 1986)。これらのデータは、ヨーロッパの都市域で起こった産業革命以降の工業化と集約的な畜産業の拡大は、ヨーロッパ全体において硝酸イオンの負荷量を増加させたこと、また、アンモニウムイオンについては、年代により地域的な差が大きく、全体としては緩やかな増加傾向をもたらしたことを示した。最も負荷量が多いと推測される1980年代には、イギリスで約 $10 \text{ kg N ha yr}^{-1}$ の湿性沈着が報告されており、硝酸イオンとアンモニウムイオンの負荷量は、ほぼ同じ割合であった(Brimblecombe &

Stedman, 1982)。酸性降水放出の規制が進んだ1980年代以降は、主な発生源である都市部で窒素酸化物やアンモニアの放出量減少にともない窒素負荷量が減少したが、長期にわたる大気輸送を考慮すると北欧などの周辺地域で、窒素負荷量が増加する地域もあることが示された(Fowler *et al.*, 2007)。

日本では、環境省が1983年から酸性雨対策調査を行っており、降水による窒素負荷量の全国的な動向を把握するためには、これらのデータが有効である(環境省, 2002)。また、全国環境研協議会(旧全国公害研協議会)が1991年から開始した全国酸性雨調査では、第3次調査から、湿性沈着に加え乾性沈着量を評価するための調査も実施されている(全国環境研協議会, 2003)。これらの調査から、硝酸イオンおよびアンモニウムイオン湿性沈着量は、田園地域に比べ都市部で大きく、また、九州や北陸地方を中心とした日本海沿岸地域で大きいことが明らかになっている。アンモニウムイオンと硝酸イオンの負荷量の割合は、平均するとほぼ同じであった。環境省の調査では、東シナ海に面した諸島地域や沿岸地域で、20年間の窒素負荷量の増加が顕著であったが、その他では横這い傾向であった。全国50か所の調査地における湿性沈着窒素量は、小笠原で $1.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と最も少なく、岐阜県伊自良湖で $18 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と最も多かった。平均すると、 $7.3 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ ($52 \text{ mmol m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$)となり(環境省, 2002)、藤田ら(2000)が、15の気候区ごとの代表点や島嶼に置いたバックグラウンド点など、国内21地点の観測データに基づいて見積もった窒素の湿性沈着量の全国平均値、 $7.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ ($54 \text{ mmol m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$)とほぼ一致した。

更に古いデータとしては、1913年から1924年(大正2-13年)に農事試験場本場(現在の東京都北区西ヶ原)で行われた調査結果の報告がある。これによると、降水による硝酸およびアンモニウムイオンの負荷量は、調査期間(12年)平均で、 $14.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であり、そのうちアンモニア態窒素の割合が83%を占めていた(川島, 1929)。ほぼ同じ時期に行われた調査(1919-1924年)では、大阪(柏原)、熊本(熊本市)、秋田(大曲)の各支場でそれぞれ、8.7、2.1、 $3.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ で、アンモニア態窒素の割合がそれぞれ61%、76%、74%であった(川島, 1929)。これらのデータから、20世紀の始めには既に、大都市周辺で高い窒素負荷があり、アンモニア態窒素の割合が多いという特徴がうかがえる。

このような既存データから、日本でも大都市周辺では、高い窒素負荷が長期(80年以上)にわたっているこ

とが推測される。

これまでに示した、国内およびヨーロッパの窒素の湿性沈着データは、いずれも都市域や田園、遠隔地などの開空地で採取された降水データであった。生態系への窒素負荷の影響が懸念されている森林では、林外降水に加え、樹冠による乾性沈着の捕捉や降水による洗脱過程を経た、林内降水による窒素量データが窒素負荷量として比較に用いられる。関東周辺の針葉樹林の調査では、林外および林内降水による窒素量は、それぞれ10–15 kg N ha⁻¹ yr⁻¹、13–36 kg N ha⁻¹ yr⁻¹と報告されている (Ohruj & Mitchell, 1997; 小柳ら, 2002; 楊, 2001; Baba, 1993; 伊藤ら, 2003; Oura *et al.*, 2001)。これら都市近郊林の窒素負荷量は、ヨーロッパ中央部の窒素負荷が大きい森林の値 (林外、林内それぞれ、~20 kg N ha⁻¹ yr⁻¹、20–40 kg N ha⁻¹ yr⁻¹) (Grennfelt & Hultberg, 1986) に比べ、やや低いか同程度であることが分かる。一方、北海道や本州の山岳地帯では、林外、林内いずれの降水による窒素量が5 kg N ha⁻¹ yr⁻¹以下の報告もある (柴田ら, 1994; Matsuura *et al.*, 2001; 大浦ら, 2006)。森林の窒素負荷量は、都市からの距離などの地理的要因の寄与が大きいと予想される。また、窒素沈着 (湿性および乾性) 量が大きい都市近郊林などでは、樹冠を通過することにより窒素負荷量が林外に比べ増加する場合がある。このような森林における窒素沈着の特徴は、森林生態系が、大気由来の窒素負荷の影響をより深刻に受ける原因の一つとなる。

2 生態系影響

大気由来の窒素負荷量の増加が生態系に与える影響については、土壌の酸性化を始め、植物生理に与える影響など多岐にわたる。その中で、生態系の窒素循環の観点からアプローチした研究により、窒素飽和といわれる現象が指摘されている (Skeffington & Wilson, 1988)。

窒素を含んだ雨は、植物への養分供給となるため、窒素が生育の制限要因となっている場合には、植物生長を促進させ、植物や土壌の窒素貯蔵量を増加させる。しかし、ある面積に生育できる植物の量や、その土壌に生育できる生物 (微生物) 量には上限がある (Agren & Bosatta, 1988)。窒素が十分に供給され、生長が促進されると、今度は窒素以外の養分や水、光など、他の要因が植物の有機物生産の制限要因となるためである。土壌中で相対的に窒素が余ると、見かけの窒素の無機化や硝化が促進され、地下水や渓流水への硝酸態窒素の流出や、硝化や脱窒からのN₂やNO_x、亜酸化窒素 (N₂O) の放出など、

系外へ出ていく窒素が増加すると考えられる (Aber *et al.*, 1989)。Aber ら (1989) によって、このような窒素飽和の過程が整理されたが、この基となった研究を始め、窒素飽和仮説を検証するための多くの研究が、ヨーロッパやアメリカ北部を中心に進められてきた (Wright & Treeme, 1995; Emmet *et al.*, 1998; Magill *et al.*, 2004)。

窒素飽和の結果、生態系からの流出量が増加するとされている硝酸イオンについては、窒素負荷量と渓流水の硝酸イオン濃度や流出量との間に、正の相関があるとの報告は多い (Aber *et al.*, 2003; Ohruj & Mitchell, 1997; Vitousek *et al.*, 1997; Dise *et al.*, 1998; Matson *et al.*, 2002)。一方で、窒素飽和の過程で変化すると考えられている、葉の化学性 (窒素含有率など) については、樹種や地域、標高などにより、負荷窒素への反応が異なることが、多く報告されている (Gundersen, 1995; Aber *et al.*, 2003; Dise *et al.*, 2004 など)。また、ヨーロッパの針葉樹林では、林床のC/N比が、生態系の窒素インプットに対するアウトプット比を説明するのに有効な指標であることが示されている (Emmett *et al.*, 1998)。アメリカ北東部のデータにおいても、林床のC/N比は、窒素負荷量や正味の硝化量と負の相関があることが示されている。それ以下になると、硝化の卓越が顕著になる土壌C/N比の閾値については、20から25という値が得られており、ヨーロッパの林床の値、24とほぼ同じであった。このように、ヨーロッパやアメリカ北東部で得られたデータから、窒素飽和過程に関して、地域を超えた一般性が示されている (Wright & Breemen, 1995; Emmett *et al.*, 1998; Bredemeier *et al.*, 1998; Aber *et al.*, 2003)。

一方で、窒素負荷の影響が顕在化するタイミングや程度については、土壌や植生などの生態系の構成要因や、土地利用履歴によって異なる窒素蓄積量などによって、大きく異なることも指摘されている (Skeffington & Wilson, 1988; Gundersen *et al.*, 1998)。例えば、窒素負荷量が同程度の生態系でも、気温や土壌タイプなどの環境条件が異なれば、植物の生長限界や有機物の分解速度なども異なる。負荷される窒素量の増加により、早く植物生長量の上限に達した場合には、土壌中の窒素割合が増加し始め、窒素の無機化が卓越すると考えられる。その場合にも、土壌中での有機物分解が十分に進んでいる場合には、速やかに無機化ステージへと移ると考えられるが、土壌のC/N比が高い場合には、微生物による窒素の有機化が進行した後に土壌中の窒素無機化が卓越し始めるという段階を経た推移が考えられる。

1980年代後半から、NITREXに代表されるような生態系を対象とした窒素飽和メカニズム解明のための実験的アプローチが行われてきた。窒素負荷量が異なるヨーロッパの針葉樹林を対象に、窒素の添加または除去により窒素負荷量を変化させ、生態系の反応を調査した。しかし、窒素負荷量の変化が硝酸の流出量などへ及ぼす影響については、生態系間で異なっており、(Wright *et al.*, 1995)、植物、土壌、土壌微生物など、様々な要素が相互に関係し合う生態系の物質循環において、負荷された窒素がその影響を顕在化させるのに、少なからぬ年月が必要であることもその一因となっている (Aber *et al.*, 1989)。また、統一的な実験手法を採用しても、調査地点間で異なる、窒素以外の環境要因の影響を受け、共通した結果が得られない場合もある。更に、その場所における典型的な物質循環は、土壌タイプや植生タイプ、気候といった広域的な要因に規制される部分もあれば、尾根部や谷部などの立地条件に由来する局所的な環境条件の違いや、林齢などに左右される部分もある。このように、物質循環に関わる要因は多岐にわたることが、実験の結果や解釈を複雑にしていると考えられる。

日本でも、都市化や農業の集約化にともなう大気汚染の影響を受け、窒素負荷量の大きい都市近郊の森林では、渓流水などへの窒素の流出量の増加が報告されつつある (Ohruai & Mitchell, 1997; Yoh *et al.*, 2001; 伊藤ら, 2004)。Ohruaiら (1997) は、群馬県の森林流域を対象にした調査で、林齢の違いが生態系からの窒素アウトプット量に影響を与えることを明らかにした。窒素負荷量が大きいサイトでは、樹木生長による窒素蓄積量の増加が比較的小さい、幼齢林や成熟林で、土壌からの硝酸態窒素の流出量が大きく、負荷量とほぼ同量の流出があることを示した。楊ら (2004) は、表層土壌のC/N比と土壌水の硝酸イオン濃度との間に、また、硝酸イオン濃度とN₂O放出量との間にそれぞれ正の相関があることを示しており、流域スケールでの地形や気象要因の変化に依存した窒素流出特性を明らかにした。しかし、多くのこれら国内で報告される窒素飽和現象は、都市近郊林が中心であり、郊外林や、奥山などでの調査データはまだ少ない。また、急峻な地形や湿潤な気候など、日本の森林に特徴的な要因が、窒素負荷量の増加に対してどのように影響するのかについての検討も必要である。

3 本研究の目的と構成

本研究では、日本の森林における窒素負荷量および窒素循環メカニズムの現状を明らかにし、大気由来の窒素

負荷量の増加が、森林の窒素循環メカニズムおよび環境への窒素流出量におよぼす影響を解明するために、以下のような構成で研究を行った。

まず始めに、生態系への窒素インプット量を把握するために、降水および林内降水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスの測定を実施した。更に、土壌-植物系の窒素動態の指標として、有機物層 (A₀層) および鉱質土壌層における降水浸透にともなう各イオンのフラックスを測定した。対象とした6つの森林生態系のイオンフラックスの比較から、各生態系の窒素負荷量と生態系内の無機態窒素 (硝酸、アンモニウムイオン) 動態との関係を議論した (II章)。

次に、窒素負荷量の違いが、生態系内の窒素動態メカニズムに与える影響を明らかにするために、林床に負荷される窒素量を人為的に変化させる、窒素添加・除去実験を実施した。窒素負荷量の大きい茨城の樹林地を対象に、イオン交換樹脂による硝酸、アンモニウムイオンなどの除去および硝酸アンモニウムの添加により、窒素負荷量を増減させた。処理期間2年の土壌各層からの硝酸、アンモニウムイオンフラックスを基に、系外からの窒素負荷量の変化が、土壌-植物系内の無機態窒素動態に及ぼす影響について議論した (III章)。

本研究では、生態系からの窒素放出経路の一つとして、N₂Oに注目した。国内での報告データが少ない林床からのN₂O放出について、各調査林でのN₂O放出パターンを明らかにした。更に、N₂O放出量と窒素負荷量との関係を明らかにするために、窒素添加処によるN₂O放出量への影響を調査した。更に、地点調査で得られた結果の一般性を検証するために、N₂O放出量の広域測定調査を実施した (IV章)。

生態系内の無機態窒素 (硝酸、アンモニウムイオン) 動態には、外部からの大気由来の窒素負荷量に加えて、系内の内部循環量の影響が大きいと考えられるため、リターフォールインプット量測定による内部循環窒素量の評価を行った。更に、既存の研究結果を基に、樹種や林齢による窒素循環特性の違いや、窒素負荷への応答について議論した (V章)。

最後に、森林の窒素循環調査の結果を基に、植生タイプによって異なる森林の窒素動態特性について議論した。ヨーロッパデータ (NITREX) と合わせて、林内降水による窒素負荷およびリターフォール窒素量をインプットの指標とし、土壌層からの窒素流出および林床からのN₂O放出量の推定方法を検討した (VI章)。

II 森林における水移動にともなうイオンの移動

1 背景・目的

森林生態系では、窒素などの養分の多くは、土壌と植物の間で、有機化や無機化過程を経ながら循環している。このような内部循環プロセスは、生態系全体の物質循環の主要な部分となっている。有機物の無機化によって生じた無機態窒素は、土壌中で、植物（根）による吸収や微生物による同化などにより再び有機化され生態系に保持されるが、一部は土壌水に溶けて移動する。最終的に溶脱として系外に出ていく窒素量は、多くの場合、降水によるインプット量よりも少ないことが報告されてきた（堤, 1985）。ところが、近年、渓流水で高い硝酸イオン濃度が観測されるなど、森林からの窒素流出が国内外で問題となっている（Ohruai & Mitchell, 1997; 楊ら, 2004; Grennfelt & Hultberg, 1986; Matson *et al.*, 2002）。このような窒素飽和現象は、土壌や植生に保持できる量を上回る窒素が、降水などにより負荷されることで生じ、土壌中で窒素の無機化が卓越することによって、主に硝酸イオンの系外流出として現れるといわれている（Aber *et al.*, 1989）。国内でも、市街地の拡大や農業の集約化に伴い、窒素負荷量が慢性的に高い地域が増加していると予想され、窒素濃度が高い降水は、生態系の内部循環を始めとする物質循環プロセスに様々な影響を及ぼすと考えられる。

そこで本章では、森林における降水および浸透水による無機態窒素等の動態を評価する。まず、林外降水および林内降水による、硝酸、アンモニウムイオンのフラックスを測定し、生態系への窒素インプット量を評価する。有機物（A₀）層および鉱質土壌層の浸透水による同イオンフラックスは、土壌各層における正味の有機化または無機化を評価する指標とする。また、土壌層50（または100）cmより下方への、硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、生態系からの流出として扱う。窒素負荷量の異なる、関東周辺の6つの森林を対象にした調査結果を基に、窒素負荷量と土壌内部での窒素動態、窒素の流出量の関係を検討する。更に、気候条件や植生の異なる生態系における、土壌表層のイオンフラックスの季節変化パターンに着目し、有機物の分解にともなう無機態窒素の出現特性を比較、検討する。

2 調査地および方法

(1) 調査地概要

調査は、関東周辺の3地域で実施した。茨城県つくば

市の観音台および石岡市の八郷、栃木県日光市奥日光の弓張峠および前白根、そして長野県安曇村（現、松本市）乗鞍岳を調査地に選定した（図1、表1）。茨城の観音台調査地（IK）は、独立行政法人農業環境技術研究所の敷地内にあるアカマツ平地林（標高20m）であり、周辺には農地や民家があり、国道や高速道路が近くを通っている。八郷調査地（IY）は、筑波山（標高876m）の北東4kmに位置し、眼下の八郷では農業や畜産が盛んに行われている。また、奥日光調査地および乗鞍調査地は山岳地帯であり、国立公園に指定されている地域である。奥日光では、前白根山尾根に近く風衝地にある林（NM）と、弓張峠と外山沢の間に広がる平坦な林（NY）とで調査を実施した。乗鞍では、乗鞍岳東斜面の中腹で、比較的平坦なシラカンバ林（SD）とシラビソ林（SC）を調査地に選定した。

なお、奥日光および乗鞍の調査地は、環境省地球環境総合推進費のプロジェクト研究の共通サイトとして設置されたもので、プロジェクトの一部として調査研究を行った。

(2) 土壌調査

各調査地における、土壌の化学性を比較するために土壌調査を行った。鉱質土壌の採取は、観音台で1997年7月、八郷では1997年8月に、0-10 cm、10-20 cm、20-35 cm、35-50 cmの深さ別に行った。乗鞍では、2002年9月に、A₀層直下0-5 cm、5-10 cm、10-20 cm および20-50 (45) cmの深さ別に採取した。採取土壌は2mmの篩にかけた後、pH (H₂O) を測定した（土壌環境分析法編集委員会, 1997）。また、観音台、八郷および乗鞍については、交換性アニオンの測定を行った。測定では、生土（約1g）を0.01 Mの水酸化ナトリウム溶液（約50 g）で30分間振とうした後、イオンクロマトグラフィ（Dionex DX500）で濾液のアニオン濃度を測定し、乾土あたりに換算した（亀和田, 1994）。また、105℃で48時間乾燥させた後に、土壌の炭素および窒素含有率を測定した。A₀層は約30 cm²を採取し、105℃で48時間乾燥させ、粉碎後に炭素および窒素含有率を測定した。全窒素および全炭素の測定には、元素分析装置（FLASH EA ThermoQuest, Italy）を用いた。日光については、2001年9月に、森林総合研究所が土壌層位ごとの採取および分析を行っており、この値を比較に用いた。植物試料の分析は、(株)パリーノサーベイによる測定値（CNコーダー、Yanako Ltd. MT600）を使用した。

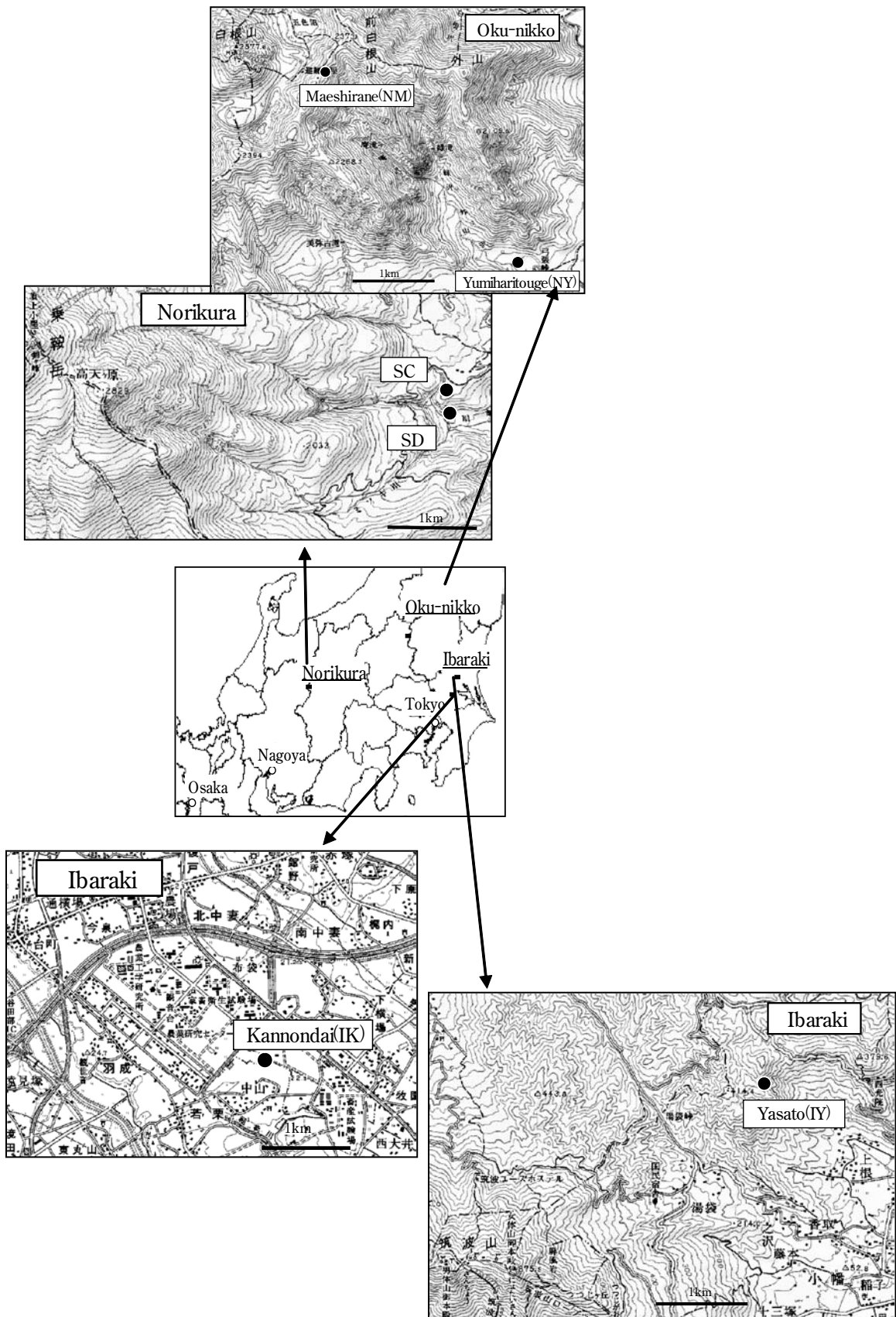


図1 調査地周辺地図
Location of measurement sites in Japan

表1 調査地点概要

土壤温度および降水量は調査地の測定値を示した

Summary of site concerning the location, soil type, vegetation and weather

エリア	サイト	緯度・経度	標高 (m)	土壤 (FAO)	植生	土壤温度 (-20 cm) (°C)	降水量 (mm yr ⁻¹)	調査期間
茨城県	八郷 (IY)	36° 14'41.0"N 140° 8'8.45"E	340	花崗岩質褐色森林土 (Gleyic Cambisols)	落葉広葉樹林 コナラなど (<i>Quercus serrata</i>)	13.3	1,307	1999/8-2002/5
	観音台 (IK)	36° 1'28.7"N 140° 6'40.3"E	20	淡色黒ボク土 (Gleyic, Haplic Andosols)	針葉樹林 アカマツ (<i>Pinus densiflore</i>)	14.5	1,076	1999/8-2003/7
栃木県 奥日光	前白根 (NM)	36° 47'53.6"N 139° 23'22.2"E	2,300	湿性ポトゾル化土壌 (Podzols)	落葉広葉樹林 ダケカンバ (<i>Betula Ermanii</i>)	7.6*	1,715	2000/7-2001/10
	弓張峠 (NY)	36° 46'29.8"N 139° 24'47.2"E	1,420	褐色森林土 (Gleyic Cambisols)	落葉広葉樹林 ハルニレなど (<i>Ulmus davidiana</i>)	10.6	1,686	2000/7-2001/10
長野県 乗鞍岳	乗鞍SC (SC)	36° 6'8.7"N 137° 36'10.3"E	1,705	湿性褐色森林土 (Gleyic Cambisols)	針葉樹林 シラビソ (<i>Abies Veitchii</i>)	7.1*	2,272**	2002/9-2004/10
	乗鞍SD (SD)	36° 5'58.2"N 137° 36'7.0"E	1,610	湿性褐色森林土 (Gleyic Cambisols)	落葉広葉樹林 シラカンバ (<i>Betula platyphylla</i>)	8.4*	2,272**	2002/9-2004/10

* 冬季の測定値がないため、欠測期間については推定値を用いた

** 近隣（乗鞍SU）の通年測定値を代用した

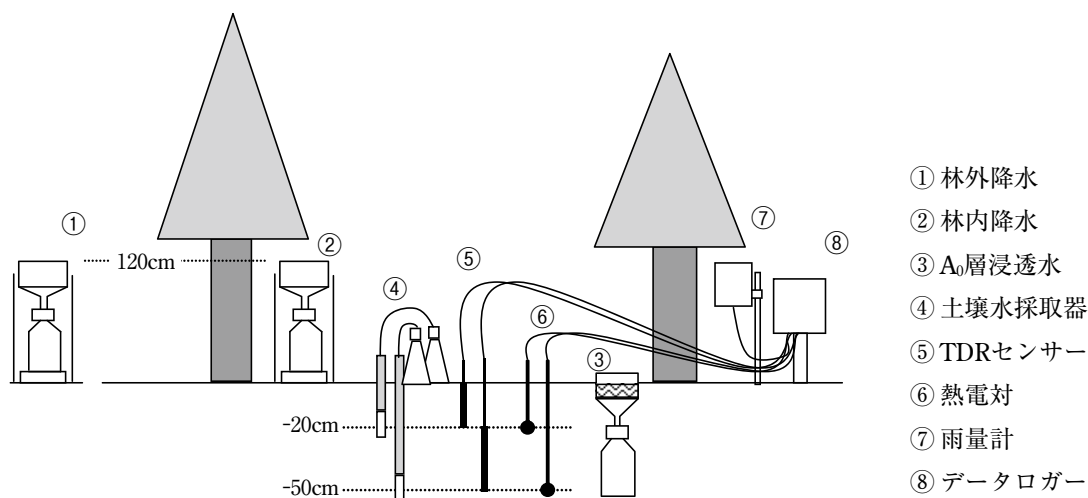


図2 物質循環調査概要

Design of the measuring system for material cycling in forest ecosystem

(3) 溶液の採取・分析

1) 林外降水および林内降水

各調査地における溶液採取の概要を図2に示す。まず、林外降水と樹冠を通過した林内降水の採取を行った。林外降水は、林内降水採取地から数百メートルの範囲内で、上空に遮断物のない場所を選び、採取装置の設置および採取を行った。乗鞍では、積雪期に調査地への入林が困難であるため、林内降水採取地から約3 km離れた信

州大学乗鞍寮付近に、林外降水採取のための調査地：乗鞍SUを設置し、年間を通して約2週間毎に採取を行った。降水採取は、採集用漏斗（直径20 cmの漏斗の上部に、高さ20 cmの筒部がある構造）を地上高約120 cmに設置し、フィルター（MILLIPORE SCWPO4700、8.0 μm またはWhatman、GF/D、2.7 μm）を通過させた降水をポリ瓶に捕集した。乗鞍SUでは、冬には、採取用漏斗およびポリ瓶に凍結防止装置を施し、雪などを溶かして採

取した。林内降水は、林内に林外降水採取装置と同様の装置を、1地点に4か所以上ずつ設置し、約2週間毎に採取した。積雪の多い奥日光および乗鞍（乗鞍SU以外）では、林内降水の採取は5月から10月末までの間で行った。11月から翌春までの寒候期には、垂直に立てた塩ビ管（直径約20 cm、高さ120 cm）の内側にポリエチレン袋を固定しておき、5月に溜まった雪解け水を採取し、寒候期の林内降水負荷量の推定に用いた。採取した降水は、現場で計量した後にサンプルを持ち帰り、pHの測定および濾過（ $0.22\mu\text{m}$ ）を行い、イオンクロマトグラフィ（Dionex DX500, U.S.A.）で、ナトリウム、カリウム、カルシウム、マグネシウム、アンモニウム、塩化物、硝酸および硫酸の各イオン濃度を測定した。

2) A_0 層浸透水および土壌水

直径13 cmの円形に切り取った A_0 層を、同径のブフナ漏斗に移し入れ、漏斗内の A_0 層が地表面と同じ高さになるように設置した（各3か所）。ブフナ漏斗を通過した水を A_0 層浸透水としてポリ瓶に捕集し（図2）、約2週間毎に現場で計量し、サンプルを持ち帰った。

土壌水の採取には、各深度に埋設したセラミック製のポーラスカップ（DIK-8390大起理化）を用いた。採水時に、ポーラスカップのチューブに試験管と三角フラスコを接続し、これらをポンプを使って-55から-60 cm Hgの陰圧に吸引し、1-2日後に、試験管と三角フラスコに溜まった土壌水を回収した。試験管で溢れた溶液が、フラスコに入るように接続してあり、試験管内の溶液は空気との接触が少ない。pH測定には、この試験管内の溶液を用いた。ただし、奥日光および乗鞍では、ポーラスカップのチューブを直接三角フラスコにつなぎ、減圧した状態で放置し、次のサンプル時に回収した。これらの採取は、約2週間毎に行った。観音台および八郷の採取は、20 cm、40 cm、60 cmおよび100 cmの4深度で反復は2-4で行い、その他の地点では、20 cmおよび50 cmの2深度で反復は3であった。全ての溶液サンプルは、実験室に持ち帰った後、直ちにpH（ H_2O ）を測定し、濾過（ $0.22\mu\text{m}$ ）した後に、イオンクロマトグラフィで各イオン濃度を測定した。

積雪地域（奥日光および乗鞍）における寒候期の A_0 層浸透水については、11月以降も採集器を置いたままにしておき、5月中旬に回収した。また、この期間中土壌水の採取は行わなかった。

(4) イオンフラックス

林外降水、林内降水、 A_0 層および鉍質土壌層での鉛直方向のイオンフラックスを、採集した溶液濃度と水フラックスを基に計算した。林外降水、林内降水および A_0 層浸透水については、採取時に計量した水量から捕集期間の水フラックスを求めた。鉍質土壌層における水フラックスはShindoら（2001）の方法に従い、以下に述べる手順で、降水量と土壌水分の時間変化および A_0 層浸透水量に基づいて推定した。

1) A_0 層浸透水量の日変化が、降水量の日変化に比例すると仮定し、捕集期間（約2週間）の A_0 層浸透水量を、各日に割り振ることにより、1日毎の A_0 層浸透水量を求める。

2) ある日（k日）の土壌層（0-20 cm）の土壌水分量とk日の A_0 層浸透水量の合計から翌日（k+1日）の土壌水分量を差し引いて、この日に土壌層から失われた水分量（ ΔW ）を求める。

3) k+1日の土壌水分が圃場容水量よりも大きい場合は、 ΔW を全て下方への流出量とみなし、圃場容水量より小さい場合は、圃場容水量に達するまでの水分減少は流出、圃場容水量を超える減少は蒸発散によるとみなす。

4) 20-50 cm土壌層に関しては、この層での土壌水分量変化と3)で求めた0-20 cm土壌層からの流入量を用いて同様の方法で流出量を求める。

5) 100 cm以下の水フラックスは、50 cm以下と同じと見なす。

ただし、各調査地各層の圃場容水量としては、蒸発散が盛んな7、8月のデータを除き、15 mm以上の降水が観測された翌々日の土壌水分を平均した値を用いた。土壌水分のモニタリングは、TDRセンサー（Campbell CS616）を0-20 cmおよび20-50 cm深に、それぞれ埋設し（3か所ずつ）、1時間毎の体積含水率データをデータロガー（Campbell CR10X）に収集した（図2）。雨量計（Campbell TE525など）により毎時間の降水量を計測した。また熱電対を20 cmおよび50 cmの深さに埋設し、地温の測定を行った。これらの自動計測は、観音台、八郷および乗鞍SUでは通年で、奥日光弓張峠では、降水量以外の項目は通年で測定した。奥日光弓張峠の降水および前白根、乗鞍SCおよび乗鞍SDでの測定は6月から10月末までの期間のみ実施した。

奥日光および乗鞍については、積雪により調査が中断したため、寒候期（11-5月）のイオンフラックスは以下の方法で推定した。林外降水、林内降水による寒候期

のイオンフラックスは、融雪後の5月に回収した寒候期間のサンプルの量と濃度から求めた。A₀層浸透水については、ポリ瓶の容量が小さく、全試料を捕集できなかったため、A₀層浸透水量を林内降水量と同量と見なした。ただし、乗鞍の2003年寒候期については、採取時に林床に残雪が10–20 cmあったため、林内降水量の90%として計算した。これと5月に回収した溶液の濃度とから寒候期のイオンフラックスを推定した。土壌水については寒候期のイオンフラックス推定は行わなかった。

サンプリング期間（約2週間）毎に各調査地3か所の値を用いて、イオンフラックスを求めた。サンプル間の差が大きい場合があったので、はずれ値の影響を受けない推定値を得るために、水フラックスおよびイオン濃度の各々について、3点の平均ではなく中央値を用いた。

3 結果および考察

(1) 各調査地の土壌

観音台調査地の土壌は淡色黒ボク土で鉍質土壌層のpHは5.4–6.0であった。一方、八郷調査地の土壌は花崗岩質褐色森林土で鉍質土壌pHは4.8–5.5であった（表2）。A₀層のC/N比は、アカマツが優占する観音台で36.9であったのに比べ、落葉広葉樹林の八郷ではやや低く、25.2であった。鉍質土壌層のC/N比は、観音台では、A層で16–17、B層で13–14であるのに対し、八郷では15–17弱であり層位間の差が小さかった。交換性硝酸イオンについては、観音台および八郷共に、35 cmより浅い土壌層で濃度が高く、約1 mmol kg⁻¹であったが、35 cm以下になると濃度は半減した。

奥日光前白根は、尾根直下の斜面に位置し、土壌は礫

表2 調査地土壌の特徴
Characteristics of the soil in measurement sites

サイト	層位	深度	pH (H ₂ O)	全窒素 (%)	全炭素 (%)	C/N	交換性NO ₃ ⁻ mmol kg ⁻¹
八郷 (IY)	A ₀ 層 (A)	0-10 cm	–	1.53	38.2	25.2	–
		10-20 cm	4.8	0.39	6.4	16.7	1.03
	(B)	20-35 cm	4.9	0.24	3.7	15.3	1.40
		35-50 cm	5.1	0.19	2.9	15.1	0.94
		35-50 cm	5.5	0.24	3.9	15.9	0.49
観音台 (IK)	A ₀ 層 (A)	0-10 cm	–	1.08	39.2	36.9	–
		10-20 cm	5.4	0.38	6.0	15.9	1.19
	(B)	20-35 cm	5.7	0.31	5.2	16.9	0.88
		35-50 cm	5.9	0.19	2.6	13.9	1.17
		35-50 cm	6.0	0.13	1.7	13.0	0.58
前白根 (NM)	A ₀ 層	CA1 0-5 cm	–	–	–	–	–
		CA2 5-10 cm	4.6	0.75	10.3	13.9	–
		CB1 10-25 cm	5.7	0.50	7.1	14.2	–
		CB2 25-60 cm	5.2	0.14	1.9	13.4	–
		CB2 25-60 cm	5.2	0.08	1.0	12.4	–
弓張峠 (NY)	A ₀ 層	A 0-13 cm	–	1.48	41.6	28.1	–
		B 13-30 cm	4.5	0.57	7.3	12.8	–
		C 30-37 cm	5.1	0.18	2.2	12.2	–
		C 30-37 cm	5.2	0.08	0.8	10.0	–
乗鞍SC (SC)	A ₀ 層	0-5 cm	–	1.56	53.0	34.2	–
		5-10 cm	3.7	1.45	25.9	18.1	0.05
		10-20 cm	3.9	0.67	11.9	17.5	0.12
		20-45 cm	4.3	0.55	10.5	19.1	0.11
		20-45 cm	4.8	0.47	10.4	22.2	0.13
乗鞍SD (SD)	A ₀ 層	0-5 cm	–	2.61	52.8	21.2	–
		5-10 cm	4.1	1.10	16.8	15.3	0.16
		10-20 cm	4.5	0.79	11.9	15.0	0.15
		20-45 cm	4.7	0.68	10.4	15.1	0.25
		20-45 cm	4.8	0.64	10.8	16.8	0.21

質未熟土と分類された。また、弓張峠は、外山沢河畔の平坦な低位段丘に位置し、土地分類図（経済企画庁総合開発局, 1974）によると褐色森林土と湿性ポドゾルの境界に位置する。鉍質土壌pHはいずれの地点も4.5-5.7の範囲であった。鉍質土壌のC/N比は、弓張峠で12.8-10と低く、調査地の中で最も低かった。

乗鞍の両調査地は、土地分類図では湿性褐色森林土と分類される。鉍質土壌のpHは、針葉樹林（乗鞍SC）で低く、特に表層付近で3.7-3.9と低かった。A₀層のC/N比は、落葉広葉樹林（乗鞍SD）で21と針葉樹林に比べて低かったが、落葉広葉樹のリターフォールの方が針葉樹に比べて窒素含有率が高い場合が多く、他の調査地でも共通にみられる傾向である。鉍質土壌のC/N比は、乗鞍SDで15-17、乗鞍SCで18-22であった。乗鞍と観音台および八郷の土壌で、窒素に関する項目を比較すると、鉍質土壌各層の全窒素含有率は、乗鞍の方がやや高い傾向にあったが、単位土壌重当たりの交換性硝酸イオン量を比較すると、乗鞍で観音台および八郷の1-5割程度であった（表2）。また、乗鞍では観音台および八郷に比べて炭素含有率が高かった。これらのことから、乗鞍では、土壌中に有機態で存在する窒素が多く、無機態窒素が少ないことが示された。

(2) 各調査地のイオンフラックスの特徴

森林の物質循環は、植物生産や分解をコントロールする気候条件に影響を受ける。一般に、冬でも暖かい亜熱帯林では、植物の生育は旺盛で生育期間が長いこと、また、マメ科植物や窒素固定細菌により窒素固定も活発であることなどから、生産される有機物量は多い。しかし、微生物による分解速度も大きいので、土壌中の窒素などの蓄積量は少ない。また、多雨によりもたらされる窒素は他の地域に比べて大きい。一方で養分の溶脱が起こりやすい。暖温帯では、四季が物質循環に影響を及ぼし、土壌も発達し、土壌や樹木への有機物としての窒素蓄積量が大きくなる。冷温帯では、一斉落葉などの季節影響が更に顕著になり、夏の生長期と冬の休止期の区別が明確になる。亜寒帯では、低温や積雪などにより生育期間が短く、温度が生長の制限要因となり、窒素の循環量は小さい（堤, 1987）。このように、気候条件による窒素循環の特徴があることを念頭に置き、大気由来の窒素負荷が、生態系の窒素循環に与える影響を検討する必要がある。

本研究の調査地である、観音台および八郷は暖温帯に、奥日光および乗鞍は冷温帯から亜寒帯に区分される。

1) 観音台および八郷

観音台および八郷では、夏および冬季に降水量が少なく、梅雨と秋に前線や台風の影響で降水量が多くなる（図3. a）。降水による窒素負荷量については、降水量の変化とほぼ同様の傾向を示した（図3. a, b）。

観音台の林外降水では、アンモニウムイオンが硝酸イオンに比べてやや多め、林内降水ではアンモニウムイオンと硝酸イオンがほぼ同じ割合で推移したが、両イオンフラックスの合計は、林内降水で林外降水の1.5倍であった（表3、図9）。アンモニウムイオンと硝酸イオンの季節推移をみると、秋から春先までは、林内降水によるフラックスの方が大きい。5月から7月にかけて、林外降水によるフラックスと林内降水によるフラックスが、ほぼ同じか逆転するケースがあった（図3. b）。また、A₀層浸透水は、林内降水によるフラックスに比べ、アンモニウムイオンで約1.5倍、硝酸イオンで4倍弱まで増加していた（表3）。A₀層での硝酸、アンモニウムイオンフラックスの増加は、5-10月の多降水月に顕著であった（図3. b）。このように、A₀層浸透水の硝酸イオンフラックスが林内降水の約4倍から20倍強までに増加したのは、暖候期の降雨の多い時期に、有機物の分解に伴い、窒素の無機化および硝化が盛んに起こったためと考えられる。硝酸、アンモニウムイオンの年間フラックスは、林外降水で18.9 kg N ha⁻¹ yr⁻¹であり、林内降水で28.7 kg N ha⁻¹ yr⁻¹と約1.5倍に増加し、A₀層浸透水では、74.4 kg N ha⁻¹ yr⁻¹と林内降水の約2.6倍であった。A₀層浸透水のうち72%は硝酸態であった（表3、図3. c、9）。八郷では、林外降水でアンモニウムイオンが硝酸イオンの約2倍であったが、林内降水では、両イオンはほぼ同量となった。両イオンフラックスの合計は、林外降水、林内降水でそれぞれ14.8 および12.4 kg N ha⁻¹ yr⁻¹であった。A₀層浸透水中の無機態窒素は、31.8 kg N ha⁻¹ yr⁻¹であり、そのうち硝酸イオンが83%を占めた（表3、図4. b、9）。A₀層浸透水では、アンモニウムイオンは林内降水フラックスとほぼ同量であったのに比べ、硝酸イオンはほとんどの月で、2-20倍に増加した。特に9月（ただし、2001年は8月）に、硝酸イオンフラックスの増加が顕著であった。

50 cm 鉍質土壌層では、観音台で、アンモニウムイオンがA₀層浸透水の12%以下に、また硝酸イオンは20%以下に減少した（図9）。一方、八郷では、アンモニウムイオンは観音台と同様に減少したが、硝酸イオンは、50 cmでは、A₀層浸透水の60%以上に相当する量のフラックスがみられ、100 cmで20%相当にまで減少し

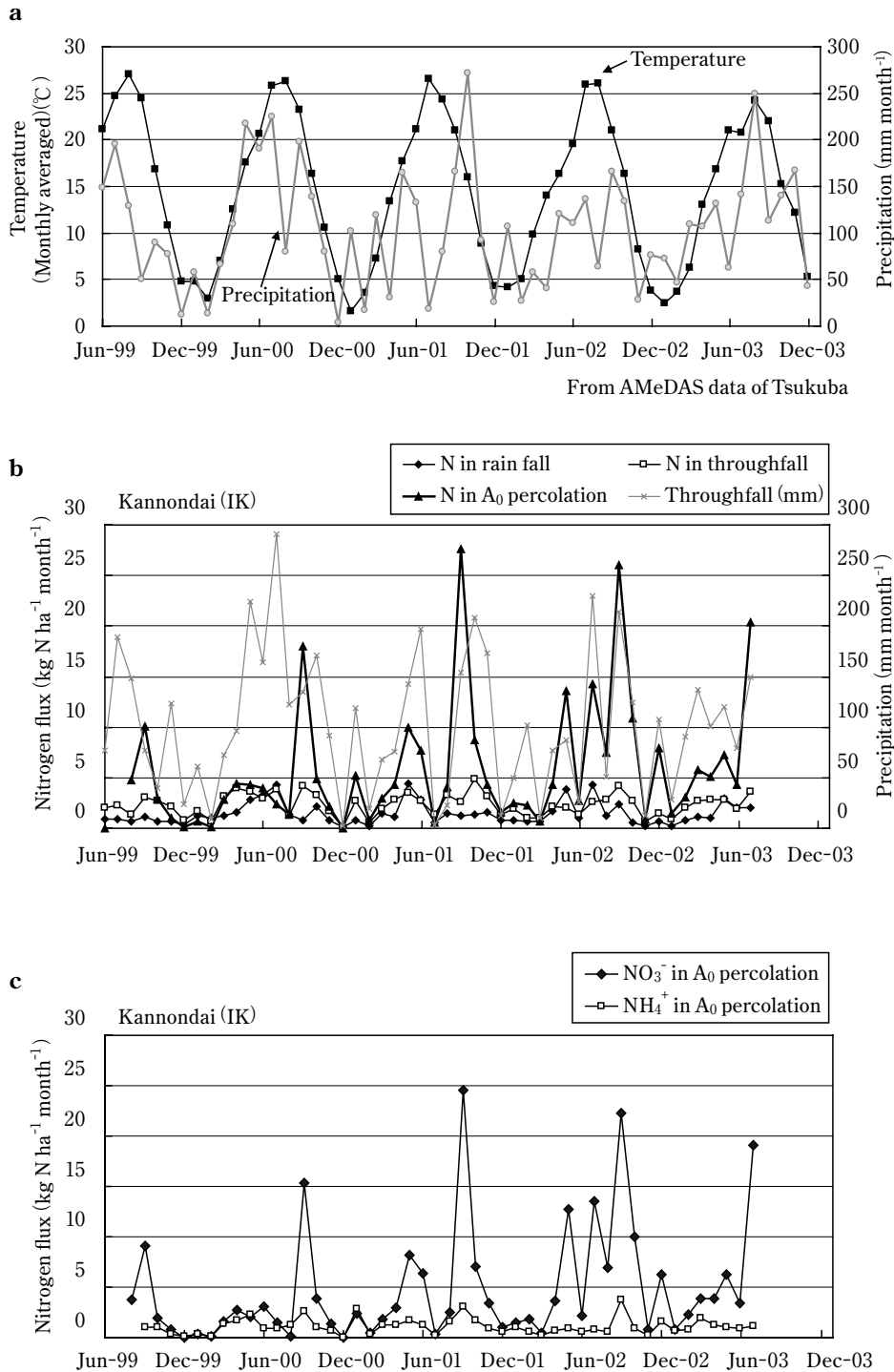


図3 気温および降水量の季節変化 (a) および観音台における林内降水、林外降水、A₀層浸透水による月ごとの硝酸、アンモニウムイオンフラックス (b, c) Meteorological data (a) and monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation (b, c) at Kannondai

表3 観音台および八郷における主なイオンフラックス

ただし、観音台の林外降水、林内降水およびA₀層浸透水は、2000年1月から2002年12月までの3年間、観音台土壌水および八郷については、2000年1月から2001年12月までの2年間の採取データを用いた。

Ion fluxes in Kannondai and Yasato sites

Averages of rainfall, through-fall and A₀ layer percolation in Kannondai were calculated with data during January, 2000 to December, 2002. Those of soil water in Kannondai and of all in Yasato were calculated with data during January, 2000 to December, 2001.

		water		NH ₄ ⁺		NO ₃ ⁻		K ⁺		SO ₄ ²⁻	
		平均	標準誤差 (%)	平均	標準誤差 (%)	平均	標準誤差 (%)	平均	標準誤差 (%)	平均	標準誤差 (%)
		mm yr ⁻¹						mmolc m ⁻² yr ⁻¹			
観音台 (IK)	林外降水	1,007	19	81.2	29	54.1	28	17.7	37	76.0	28
	林内降水	1,242	14	103.1	29	102.0	3	55.6	9	116.3	20
	A ₀ 層浸透水	1,089	11	151.4	53	379.9	41	169.7	39	188.2	5
	20cm土壌水	563	19	4.6	37	95.2	104	19.5	65	111.1	20
	50cm土壌水	539	14	4.2	0	78.8	78	4.8	34	49.4	7
	100cm土壌水	(539)	14	4.8	6	64.3	24	2.5	22	5.4	19
八郷 (IY)	林外降水	1,494	6	71.5	9	34.0	12	8.1	22	67.8	8
	林内降水	1,037	1	45.4	28	43.3	12	77.1	2	87.6	14
	A ₀ 層浸透水	1,152	8	38.8	30	188.5	27	131.3	10	119.5	6
	20cm土壌水	844	0	5.2	4	75.1	35	6.3	33	80.9	5
	50cm土壌水	824	6	4.5	12	119.5	63	2.0	22	53.3	6
	100cm土壌水	(824)	6	7.7	36	37.7	22	4.6	11	26.2	5

た。このことから、八郷では、50cm以深でも植物または微生物による窒素利用があると考えられた。八郷調査地を流域の一部に含む溪流で測定した硝酸イオン濃度は、年平均で約61 μmol l⁻¹であり、アンモニウムイオンと合わせると68 μmol l⁻¹であった。この値は、林外降水の平均濃度71 μmol l⁻¹とほぼ同じであった。観音台では、林内の井戸から採取した地下水の無機態窒素が、平均で22 μmol l⁻¹であり、林外降水の134 μmol l⁻¹に比べ16%程度に濃度が低下した。

2) 奥日光

年間フラックスの計算には、2000年11月から2001年10月までのデータを用いた。年間降水量は1700mm前後であり、林外降水による窒素負荷量は、前白根で7.4 kg ha⁻¹ yr⁻¹、弓張峠で19.3 kg ha⁻¹ yr⁻¹であった。

前白根では、林外降水に比べ林内降水で窒素負荷が増加した(表4、図10)。これは、夏季にみられたアンモニウムイオンフラックスの増加が原因であり、8月には林内降水で、林外降水の約5倍のフラックスがあった(図5. b)。弓張峠では、年間値では、林外降水に比べ林内降水で窒素フラックスは減少していたが、8月を例にとると、アンモニウムイオンは減少したが、硝酸イオンは増加しており、季節や成分ごとの違いがみられた。

また、A₀層浸透水によるアンモニウムイオンのフラックスは、いずれの時期も小さく、無機化により生じたアンモニウムイオンは、植物や微生物により硝化や有機化

に利用されたと考えられる。A₀層浸透水の硝酸イオンフラックスは、弓張峠で6月に特に大きかった(図5、6)。林外降水による無機態窒素(硝酸、アンモニウムイオン)インプットが大きかったこの時期に、植物などに利用されなかった無機態窒素が、硝化され、下層へ移動したと考えられる。その他の時期には、硝酸、アンモニウムイオンフラックスは比較的小さかった。すなわち、A₀層および鉱質土壌における、硝酸、アンモニウムイオンフラックスは両地点ともに小さく、無機態窒素は、速やかに有機物に取り込まれることが示唆された。

5月中旬に回収した林内降水およびA₀層浸透水から推定すると、寒候期(10月下旬から5月中旬)の水フラックスは、前白根で、年間値の約47%に相当する(表4)。この期間の林内降水による、アンモニウムイオンフラックスが約2.7 kg N ha⁻¹ (20 mmol m⁻²)、硝酸イオンフラックスが1.4 kg N ha⁻¹ (10 mmol m⁻²)と推定され、それぞれ年間値の、24%および60%であった。A₀層浸透水によるフラックスは、アンモニウムイオンで約6.8 kg N ha⁻¹ (50 mmol m⁻²)、硝酸イオンが6 kg N ha⁻¹ (42 mmol m⁻²)と推定され、それぞれ年間値の、78%および67%と高い割合を占めた。また、弓張峠における寒候期の水フラックスは、年間値の約30%であり、林内降水によるアンモニウムイオンフラックスが0.4 kg N ha⁻¹ (3 mmol m⁻²)、硝酸イオンが0.3 kg N ha⁻¹ (2 mmol m⁻²)と推定され、それぞれ年間値の5%および6%であった。A₀層浸

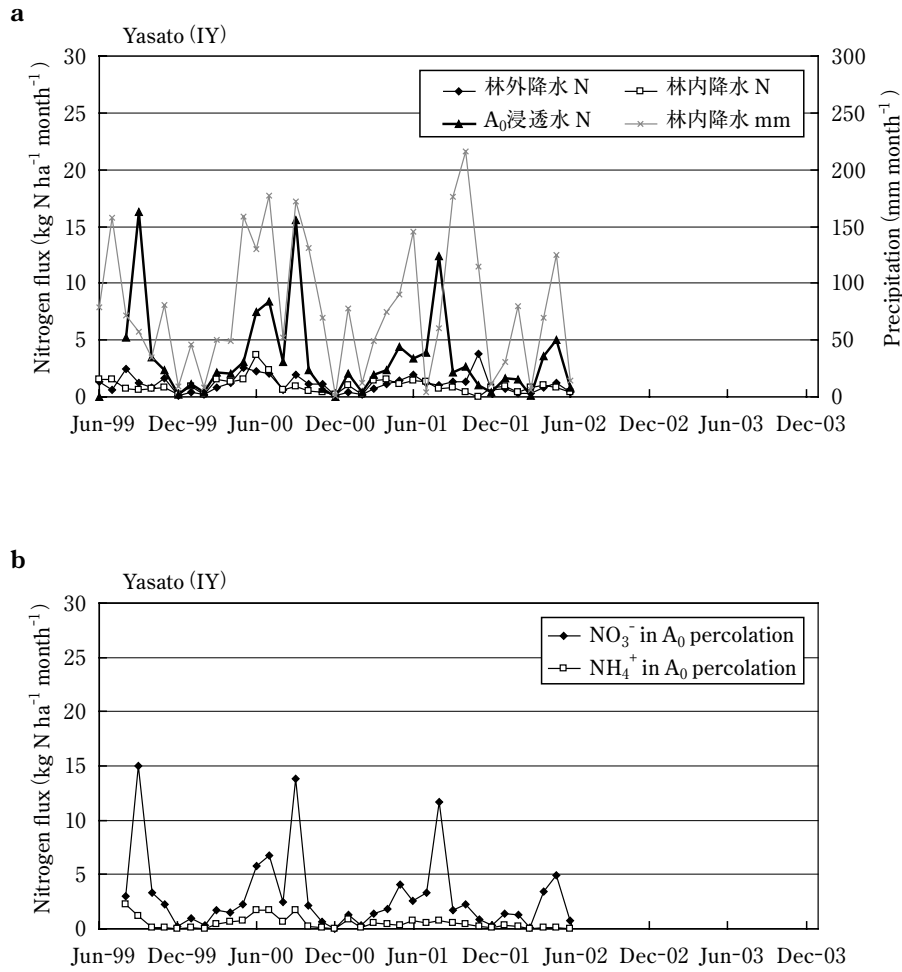


図4 八郷における林外降水、林内降水、A₀層浸透水による月毎の硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation at Yasato

表4 奥日光調査地における主なイオンフラックス
Ion fluxes in Oku-nikko sites

		water		NH ₄ ⁺		NO ₃ ⁻		K ⁺		SO ₄ ²⁻	
		'00/10-	'01/5-10	'00/10-	'01/5-10	'00/10-	'01/5-10	'00/10-	'01/5-10	'00/10-	'01/5-10
		'01/5		'01/5		'01/5		'01/5		'01/5	
		mm		mmol _e m ⁻²							
奥日光	林外降水	533	1,183	13.3	22.8	6.3	10.5	1.5	3.0	20.3	40.9
前白根	林内降水	1,005	1,167	19.8	63.2	10.0	6.6	4.3	41.4	34.5	45.8
(NM)	A ₀ 層浸透水	1,005	1,082	48.7	13.6	42.2	20.8	37.7	34.2	60.8	45.7
	20cm土壤水	-	815	-	4.9	-	3.3	-	7.5	-	24.5
	50cm土壤水	-	792	-	4.8	-	3.1	-	11.2	-	33.7
奥日光	林外降水	570	1,116	4.9	118.2	4.7	9.8	2.7	17.3	15.0	43.5
弓張峠	林内降水	433	1,044	2.9	54.8	2.1	34.0	17.0	121.0	15.5	46.8
(NY)	A ₀ 層浸透水	433	939	4.0	16.3	50.4	38.3	81.9	101.8	23.8	33.6
	20cm土壤水	-	491	-	4.3	-	163.6	-	38.8	-	49.6
	50cm土壤水	-	509	-	2.8	-	88.7	-	18.1	-	8.0

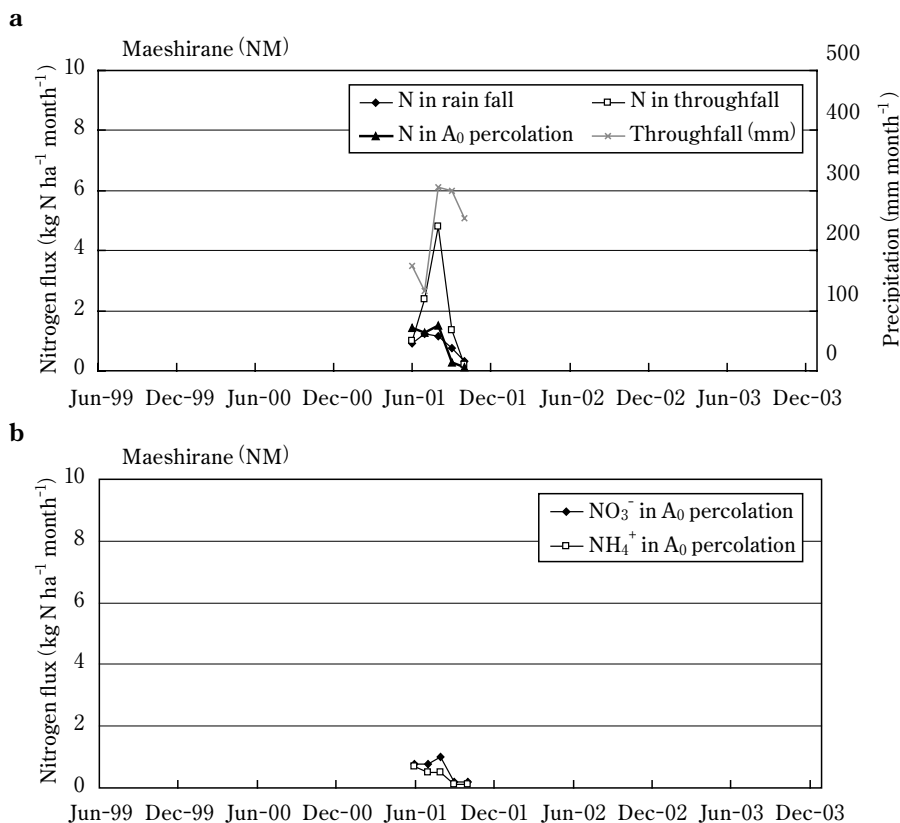


図5 奥日光前白根における林内降水、林外降水、A₀層浸透水による硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation at Maeshirane

表5 乗鞍調査地における主なイオンフラックス
Ion fluxes in Norikura sites

暖候期		water		NH ₄ ⁺		NO ₃ ⁻		K ⁺		SO ₄ ²⁻	
		2003, 2004		2003, 2004		2003, 2004		2003, 2004		2003, 2004	
		mm(5-10月) ⁻¹		mmol _c m ⁻² (5-10月) ⁻¹							
乗鞍SC	林外降水*	(1,395)	(1,949)	(4.8)	(15.0)	(5.9)	(9.5)	(4.5)	(4.6)	(22.4)	(23.5)
	林内降水	1,144	1,402	4.5	6.6	1.7	1.1	17.3	19.8	19.8	20.4
	A ₀ 層浸透水	1,116	1,368	65.6	110.6	0.2	1.0	63.8	42.8	21.6	18.6
	20cm土壤水	708	909	0.0	1.4	0.0	0.5	1.9	7.4	23.2	32.3
	50cm土壤水	630	964	0.0	1.6	0.0	0.5	1.4	3.5	20.1	20.7
乗鞍SD	林外降水*	(1,395)	(1,949)	(4.8)	(15.0)	(5.9)	(9.5)	(4.5)	(4.6)	(22.4)	(23.5)
	林内降水	1,407	1,793	8.9	10.2	3.2	1.8	16.2	29.7	51.4	35.7
	A ₀ 層浸透水	1,491	1,895	6.8	19.8	2.9	1.5	30.0	45.7	51.5	32.8
	20cm土壤水	1,094	1,368	0.2	6.0	0.0	0.3	3.5	5.8	36.0	25.7
	50cm土壤水	1,098	1,409	0.1	5.8	0.1	0.2	2.2	4.2	35.3	31.3
寒候期		water		NH ₄ ⁺		NO ₃ ⁻		K ⁺		SO ₄ ²⁻	
		2002, 2003		2002, 2003		2002, 2003		2002, 2003		2002, 2003	
		mm(11-5月) ⁻¹		mmol _c m ⁻² (11-5月) ⁻¹							
乗鞍SC	林外降水*	(795)	(911)	(3.5)	(8.4)	(4.8)	(9.2)	(1.3)	(2.0)	(16.5)	(27.6)
	林内降水	-	683	-	0.8	-	5.0	-	7.1	-	27.2
	A ₀ 層浸透水	-	(615)	-	88.6	-	3.0	-	22.6	-	19.1
	20cm土壤水	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	50cm土壤水	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
乗鞍SD	林外降水*	(795)	(911)	(3.5)	(8.4)	(4.8)	(9.2)	(1.3)	(2.0)	(16.5)	(27.6)
	林内降水	-	1,050	-	8.0	-	10.7	-	5.6	-	29.1
	A ₀ 層浸透水	-	(945)	-	38.4	-	17.3	-	36.6	-	48.2
	20cm土壤水	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	50cm土壤水	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-

*林外降水には乗鞍SUで採取した林外降水データを代用した

透水によるフラックスは、アンモニウムイオンで0.6 kg N ha⁻¹ (4 mmol m⁻²)、硝酸イオンが7.1 kg N (50 mmol m⁻²)と推定され、それぞれ年間値の20%および57%となった。これらの結果から、寒候期には、林内降水では、前白根の硝酸イオンフラックスが大きかった以外は、暖候期に比べて、硝酸、アンモニウムイオン濃度は低くフラックスも小さかった。しかし、A₀層浸透水については、前白根のアンモニウムイオンと硝酸イオンおよび弓張峠の硝酸イオンについて、寒候期に年間フラックス量の57–78%という大きいフラックスがあることが明らかになった。

3) 乗鞍

2002年9月から2004年10月まで断続的に調査を実施した。林外降水については、調査地から約3km離れた乗鞍寮近辺 (SU) で通年測定を行った。その結果、林外降水による窒素負荷量は2年間の平均で4.3 kg N ha⁻¹ (31 mmol m⁻²)であった。これは同じ山岳地帯の奥日光調査地と比べても、低い値であった。針葉樹林の乗鞍SCでは、林内降水で窒素成分の減少がみられ、硝酸イオンで0.1–0.5倍と、寒候期、暖候期ともに窒素成分が減少していた (表5)。一方、落葉広葉樹林の乗鞍SDでは、硝酸イオンは、林内降水で、暖候期には0.2–0.5倍と減少したが、寒候期には林外降水とほぼ同じであった。アンモニウムイオンについては、沈着量の年変動が大きく、林内降水における減少もばらつきが大きかった。一方、カリウムイオンは、林内降水で林外降水に比べて4–6倍に増加した。A₀層浸透水によるイオンフラックスでは、2林分で異なる特徴が捉えられた。乗鞍SCでは、アンモニウムイオンのフラックスが暖候期、寒候期いずれでも大きく、年間で約25 kg N ha⁻¹ (180 mmol m⁻²)であった (表5)。硝酸イオンフラックスは、林内降水に比べて小さく、変動も小さかった。一方、乗鞍SDでは、A₀層浸透水におけるアンモニウムイオンのフラックスは、年による変動が大きく、傾向は一定ではなかったが、林内降水とほぼ同じか、2倍程度に増加した。硝酸イオンについては、乗鞍SC同様に、低い値で安定していた。一方、乗鞍SCでは、A₀層でアンモニウムイオンフラックスが大きいという特徴がみられた。鉱質土壤層に移動すると、無機態窒素のフラックスは減少し、根域以下 (50 cm) では、アンモニウムイオン、硝酸イオンのフラックスは非常に小さくなった。奥日光と同様に多雪地域である乗鞍では、窒素負荷量は少ないが、積雪や融雪、気温などの気象要因による物質循環の支配が大きいため、積雪山岳地域特有の物質循環特性を持っているこ

とが明らかになった。具体的には、融雪期のイオンフラックスの増加などが挙げられる。乗鞍SCでは、A₀層浸透水で年間値の50–80%、乗鞍SDで70–80%が寒冷期に移動した。

(3) 林外降水と林内降水

林内降水は、樹冠に付着した乾性沈着を洗脱する効果により、各イオン成分が増加すると考えられるが、葉面からの吸収や溶脱が加味されるため、成分によっては、増加が増幅されたり、逆に減少したりする場合がある。我々の調査でも、茨城のアカマツ林では、アンモニウムイオン、硝酸イオンともに、林内降水で約2倍に増加したが、落葉広葉樹林では、硝酸イオンは増加し、アンモニウムイオンがやや減少し、合計で、ほぼ林外降水と同量の窒素フラックスとなった (表3、図9)。季節的な特徴も顕著であり、両地点とも5–7月に、アンモニウムイオンおよび硝酸イオンのフラックスが、林内降水で減少していた。葉が展開する初夏に、窒素の葉面吸収が大きくなることが原因と考えられる。奥日光弓張峠では、暖候期に、林外降水のアンモニウムイオンフラックスが約16.5 kg N ha⁻¹ (120 mmol m⁻²)と大きいのが特徴的であった。林内降水で、アンモニウムイオンフラックスは約半分に減少したが、硝酸イオンについては、逆に林内降水で3.4 kg N ha⁻¹ (24 mmol m⁻²)増加した。この理由としては、乾性沈着による増加が考えられる。同じ暖候期の林内降水で、カリウムイオンが100 mmol m⁻²増加しており、弓張峠では、暖候期に樹冠を介した物質移動が大きいことが示された。標高の高い前白根では、暖候期に、林外降水によるアンモニウムイオンの負荷が3.2 kg N ha⁻¹ (23 mmol m⁻²)であり、林内降水で約3倍に増加した。この林内降水での増加の理由については分かっていない。一方、硝酸イオンは林内降水で減少しており、成分による違いが顕著であった。奥日光一帯では、都心から輸送される大気汚染物質の影響が指摘されており (畠山, 2003)、我々の調査でも、奥日光の両地点における林内降水による窒素負荷量は、茨城の八郷とほぼ同じレベルであった。

同じく山岳地域である乗鞍では、奥日光に比べ窒素負荷量は非常に少なかった。暖候期 (5–10月)には、落葉広葉樹、針葉樹のいずれも林内降水でアンモニウムイオンおよび硝酸イオンのフラックスが減少しており、葉面吸収が起こっていたと考えられる。針葉樹では、寒候期 (11–5月)にも、樹冠による吸収が原因とみられる窒素フラックスの減少がみられた。調査を行った乗鞍の

東斜面は、大気汚染物質などの沈着が少ない地域であり、貧栄養な生態系で無機態窒素が速やかに植物に利用されたと考えられる。

以上の結果から、植物にとって光合成や生長に必要な無機態窒素は、葉面吸収などにより積極的に取り込まれるが、窒素負荷量の大きい地域では、林内降水の窒素負荷量が林外降水に比べて増加する場合があることが示された。樹冠通過による養分の変化として、アンモニウムイオンおよび硝酸イオンの吸収とともに顕著なのは、カリウムイオンの溶脱であった。乗鞍の落葉広葉樹林では、暖候期に林外降水の6倍、寒候期に3倍弱に増加した。硫酸イオンは、植物による吸収や溶脱に関与しないため、ナトリウムイオンと共に乾性沈着量の指標として使われる成分である。硫酸イオンは、樹冠通過により、観音台および八郷では、それぞれ50%および25%の増加がみられた。奥日光では、暖候期で両地点共に約10%増加した。乗鞍では、暖候期に落葉広葉樹林で、50-100%の増加がみられたが、針葉樹林では約10%の減少傾向があるなど、樹種による変異が大きかった。

(4) A₀層浸透水の季節変化

A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、林内降水のフラックスの影響を受けると予想される。そこで、降水量、林外降水、林内降水およびA₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスの月ごとの変化を調査地毎に比較した(図3~8)。観音台では、林内降水量と林内降水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスとの間に、正の相関がみられ($r=0.67$)、降水量が両イオンのフラックスに大きく寄与することが示された。一方、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスについても、年間を通して林内降水量との正の相関がみられたが、9月のフラックスが非常に大きく、年によっては、5月から7月の間にもやや大きなピークがみられる場合もあった。すなわち、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、降水量以外に、季節的な要因の影響を受けていることが示唆された。また、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、年間を通して林内降水のフラックスよりも大きく、A₀層で吸収される量よりA₀層から供給される量が多いことが示された(図3.c)。八郷でも、観音台同様に、5月から9月にかけてA₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスが大きくなり(図4.a)、その8割以上を硝酸イオンが占めた。観音台と八郷では、針葉樹林と広葉樹林という植生の違いはあったが、ほぼ同じ気候条

件の下、降水量が多い時にA₀層浸透水の硝酸イオンフラックスが大きくなるという類似した傾向がみられた。初夏から秋にかけて現れるA₀層浸透水の硝酸イオンフラックスのピークは、温暖な気候の下で、微生物による有機物分解にともない、窒素の無機化と硝化が促進されたことが原因と考えられた。奥日光では、データが1年分と少ないが、前白根では林外降水および林内降水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスに比べ、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、暖候期に減少したが、寒候期に増加し、年間では林内降水硝酸、アンモニウムイオンフラックスの約1.3倍弱となった(表3)。弓張峠でも同様に、年間で1.2倍に増加した(表3)。この値は、観音台および八郷の2.6倍に比べて小さい。詳細をみると、前白根では、暖候期に、林内降水に比べアンモニウムイオンフラックスが減少しており、逆に硝酸イオンフラックスが増加していた。すなわち、暖候期には、A₀層で硝化が起こっていたことが示唆された。寒候期には、アンモニウムイオンおよび硝酸イオンフラックスの両方が増加していた。一方、弓張峠では、暖候期にアンモニウムイオンフラックスが減少し、硝酸イオンフラックスは林内降水のフラックスとほぼ同量であった。以上の結果から、奥日光では、A₀層から、硝酸、アンモニウムイオンの形で移動する窒素量はあまり多くなく、大部分は寒候期(おそらく融雪期)に集中していることが明らかになった。有機物の分解(無機化)によって生じる無機態窒素は、暖候期には、速やかに有機化などにより利用され、正味の無機化(および硝化)は主に寒候期にみられることが示唆された。弓張峠では、12月下旬から4月上旬までの間、積雪下で土壌温度は徐々に低下し、20cm深で最低約1℃、50cm深で最低約2.5℃で、積雪期間の平均としては、20cm深で約1.5℃、50cm深で約2.5℃であった。この間、土壌の体積含水率は約48%でほぼ一定であった。積雪下でもCO₂は発生しており(森林総合研究所北海道支所, 2004)、有機物の分解や窒素の無機化、硝化が起こっている可能性も大きい。4月上旬以降は、地温の著しい上昇と共に土壌水分の変動も大きくなる。積雪条件下の安定環境の下で有機物の無機化および硝化により生じた硝酸イオンが蓄積されていた、又は、融雪期の環境変動(土壌水分、地温)時に無機化や硝化が起こったことなどが原因として考えられた。

乗鞍では、同じ積雪地域でも奥日光とは異なり、林内降水による硝酸、アンモニウムイオンフラックスが非常に小さく、SCで1.8 kg N ha⁻¹ (13 mmol m⁻²)、SDで

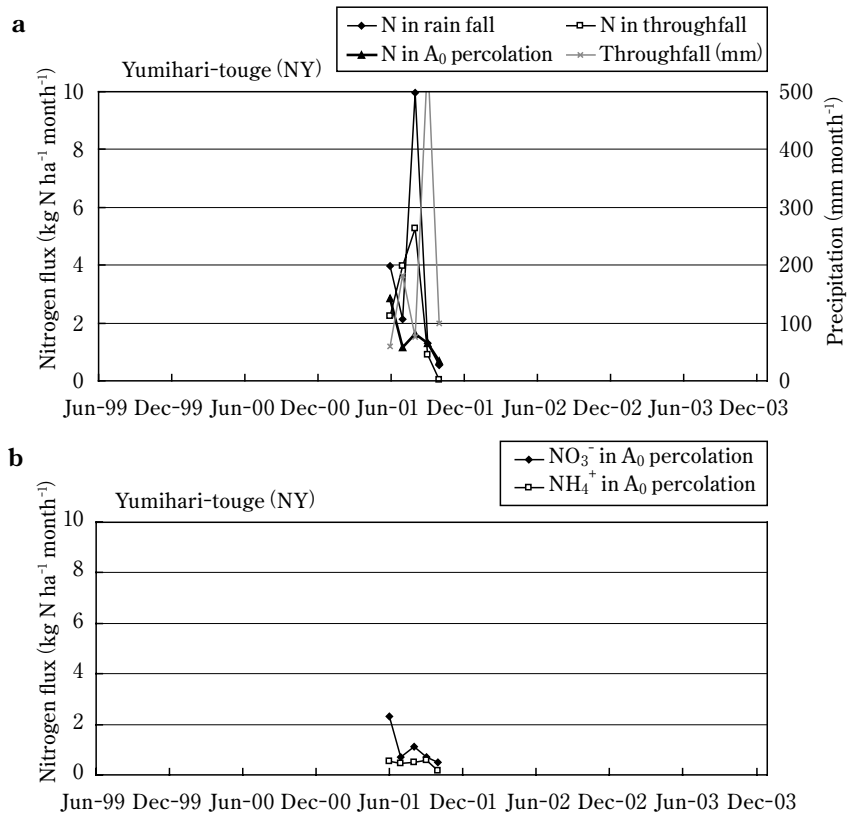


図6 奥日光弓張峠における林内降水、林外降水、A₀層浸透水による硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation at Yumihari-touge

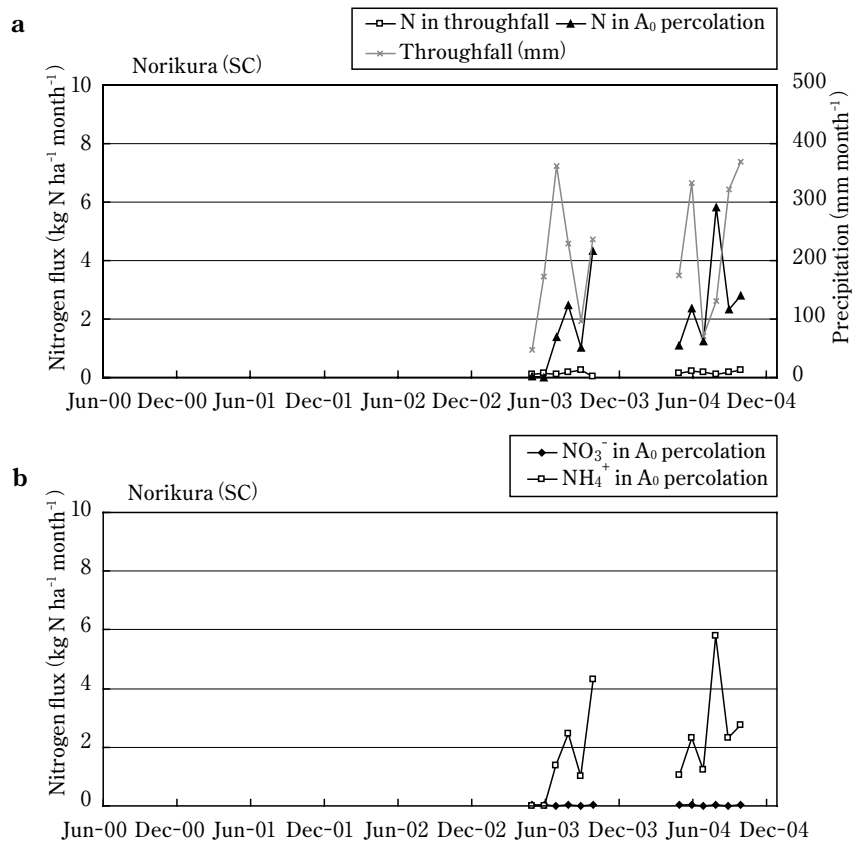


図7 乗鞍SCにおける林内降水、林外降水、A₀層浸透水による硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation at Norikura SC

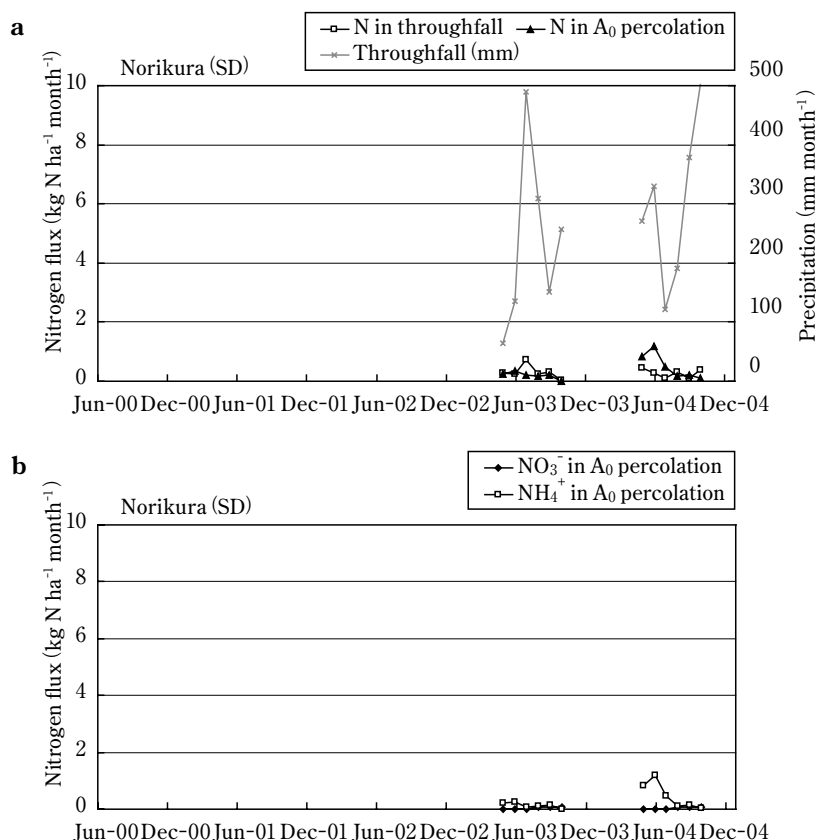


図8 乗鞍SCにおける林内降水、林外降水、A₀層浸透水による硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Monthly nitrogen ion fluxes in rain fall, throughfall and A₀ layer percolation at Norikura SD

4.3 kg N ha⁻¹ (31 mmol m⁻²)であった。一方、A₀層浸透水による硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、林内降水に比べて増加しており、針葉樹林のSCでは年間値で14倍、落葉広葉樹林のSDでは2.3倍であった。両林分ともに、アンモニウムイオンフラックスの増加が著しく(表4、図11)、SCでは、暖候期、寒候期共に、SDについては、寒候期にフラックスが大きくなった。硝酸イオンフラックスについては、SCでは、林内降水の約半分に減少しており、SDでは、暖候期に林内降水とほぼ同量、寒候期には林内降水に比べやや増加がみられた。季節的な特徴としては、SCで、6月から10月まで、降水パターンと相似した増減パターンを示しながら、観音台や八郷に比べても大きいアンモニウムイオンフラックスがみられた。一方SDでは、SCに比べてフラックス量は小さいが、5-6月にアンモニウムイオンフラックスがやや増加した。硝酸イオンフラックス量については、両地点で非常に小さく、硝化が起こり難い環境であることが示唆された。

観音台や八郷、乗鞍SCでみられた、A₀層の硝酸また

はアンモニウムイオンのフラックスの急激な増加について、環境要因との関係を吟味した。観音台および八郷では、9月に硝酸イオンを主とするフラックスの増加がみられたが(図3. b)、いずれのピークも直前に土壌水分の著しい低下(体積含水率約30%)があった。また、乗鞍SCでは、特に大きいアンモニウムイオンフラックスのピークが2003年には10月に、2004年には8月にみられた(図7. a)。土壌水分が最も低下した時期(2003年9月18日、2004年8月11、15日)の次の降水を含む期間のサンプルで、アンモニウムイオン濃度が高く、フラックスも大きいことが明らかになった。硝酸、アンモニウムイオンフラックスのピークは、微生物や植物による窒素の有機化を上回る量の無機化が生じた際に現れると考えられるが、厳しい乾燥の後の降水時にみられる増加は、乾燥にともなう微生物の死滅や飢餓状態直後の代謝(乾土効果)など、微生物の代謝に起因する無機化の増加が原因である可能性が示唆された。同じ乗鞍のSDでは、同じ時期に土壌水分の低下はSCと比べて顕著ではなかった。

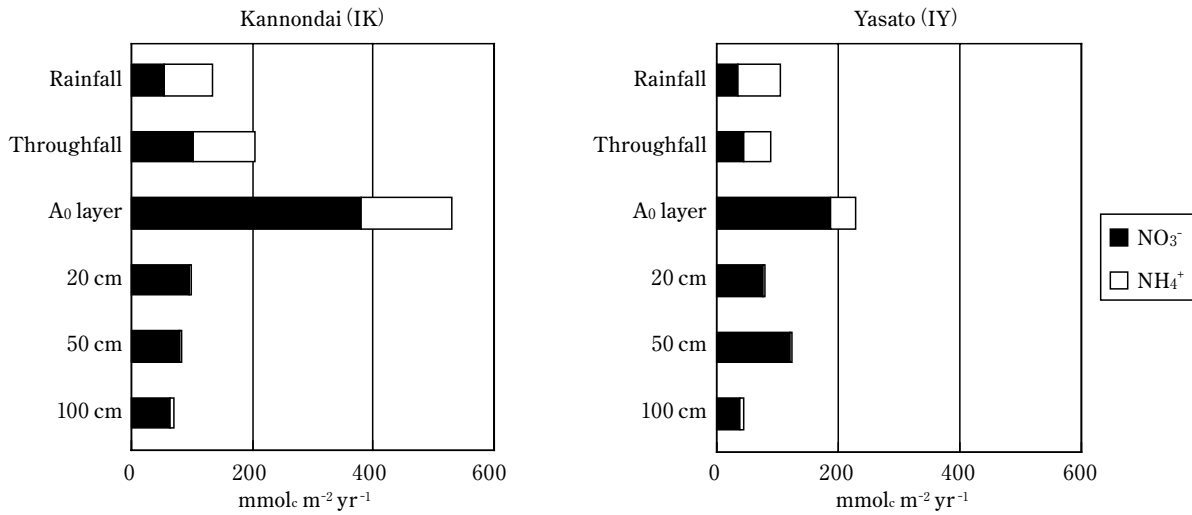


図9 観音台および八郷における林外、林内および土壌各層の硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Yearly fluxes of nitrogen ionic constituents at Kannondai and Yasato

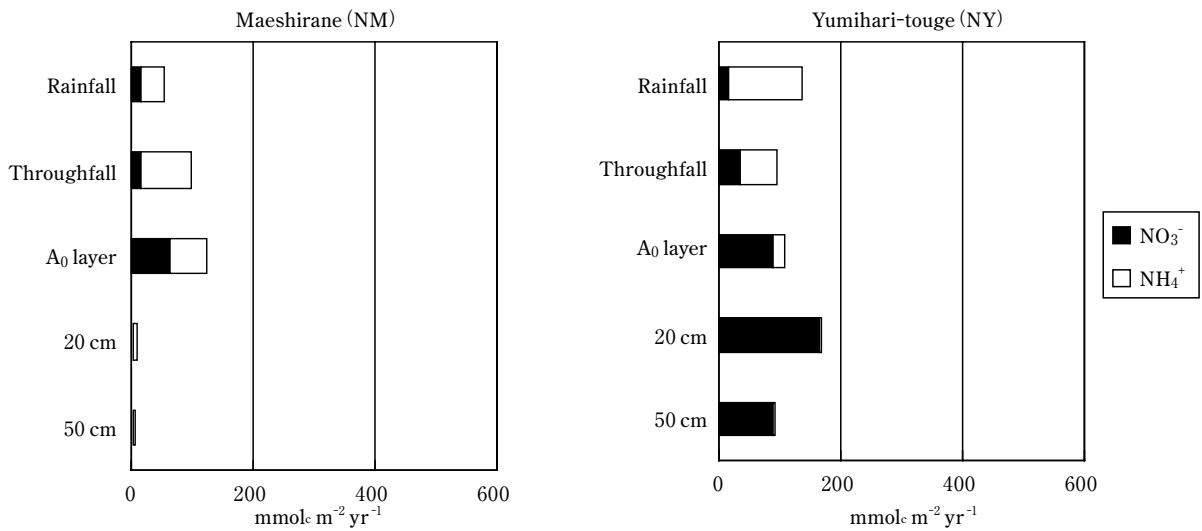


図10 奥日光前白根および弓張峠における林外、林内および土壌各層の硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Yearly fluxes of nitrogen ionic constituents at Oku - nikko sites

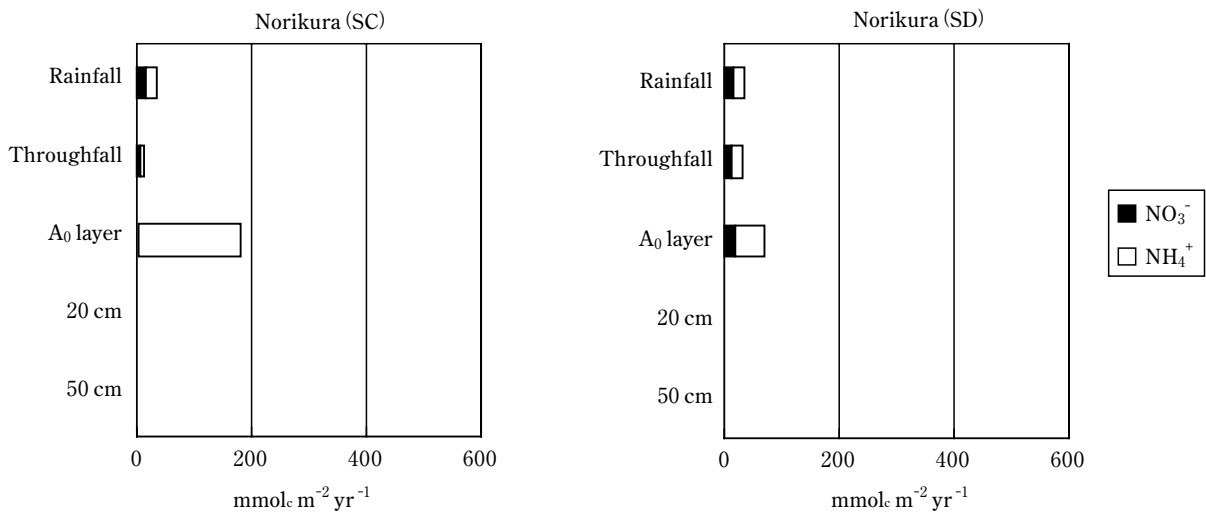


図11 乗鞍SCおよびSDにおける林外、林内および土壌各層の硝酸、アンモニウムイオンフラックス
Yearly fluxes of nitrogen ionic constituents at Norikura sites

(5) 土壌水の季節変化および年変化

観音台では、土壌水のアンモニウムイオン濃度は、各深度で非常に低かった。乾燥のため採水量が少ないときには高濃度になる場合があったが、それ以外は低濃度（観音台： $5.4 \pm 4.5 \mu\text{mol l}^{-1}$ ）で、目立った年変化はみられなかった。硝酸イオンについては、全体的には表層土壌において高濃度（20 cm： $< 435 \mu\text{mol l}^{-1}$ ）で、下層ほど濃度が低下する（100 cm： $< 316 \mu\text{mol l}^{-1}$ ）傾向が認められたが、4年間の観測で年変化が非常に大きいことが明らかになった。1999年6月から1年間の、各層の平均硝酸イオン濃度は、20 cm： $279 \mu\text{mol l}^{-1}$ 、40–60 cm： $317 \mu\text{mol l}^{-1}$ 、100 cm： $37 \mu\text{mol l}^{-1}$ であったが、2年目にはそれぞれ、125、107、 $148 \mu\text{mol l}^{-1}$ と上層で低下、下層で上昇した。3年目にはそれぞれ、13、9、 $194 \mu\text{mol l}^{-1}$ となり上層と下層との濃度が逆転した。図12に2つのプロット（K2、K5）の深度別イオン濃度の推移を示す。硝酸イオンについては、秋頃に浅い層で濃度が高くなり、徐々に低下していくという傾向があり、濃度変化は20 cmよりも40 cmで緩やかであった。しかし、2001年以降、表層土壌の硝酸イオン濃度が著しく低下し、逆に濃度が低かった下層で、硝酸イオン濃度が上昇する逆転現象がみられるプロットもあった（図12. b）。これらの濃度推移の経過から、上層での高濃度の硝酸イオンは、減衰しながら徐々に下層に移動している可能性が示唆された。また、測定した他のイオンの中で、硝酸イオンと類似した濃度変化を示したのは、カルシウムイオン（ Ca^{2+} ）とマグネシウムイオン（ Mg^{2+} ）であった。硝酸イオンとカルシウムイオンは A_0 層での供給量が多く、リターフォールなどの有機物分解にともなって生じると考えられる。また硝酸イオン濃度の変化は比較的緩やかに起こったが、これは火山灰土壌において硝酸の一部が土壌に吸着されており、土壌水の濃度変化に対して緩衝の役割を果たすためと考えられる。実際に観音台調査地の土壌（2000年4月採取）では、土壌水（生土と蒸留水を攪拌）で平均 0.6 mmol kg^{-1} であったのに比べ水酸化ナトリウムで抽出した場合に平均で約3倍の硝酸イオン（交換性硝酸イオン）が検出された（麓、未発表）。3年経過後（2003年11月採取）の土壌では、土壌水で $0.01 \text{ mmol kg}^{-1}$ 、交換性では 0.3 mmol kg^{-1} と硝酸イオン量は著しく減少していた。すなわち、土壌の硝酸イオン量は、半年から年単位で変動し、多量の硝酸イオンが生じた場合でも、あるスピードを持って減衰しながら下層に移動していくと考えられる。高硝酸イオン濃度（余剰）の原因は明らかではないが攪乱などが可能性として挙げ

られる。これらのことから、土壌（あるいは土壌水）の硝酸イオン量（濃度）は、そこで生成された硝酸イオンと上層から移動（通過）する硝酸イオンの両方を現していること、そのために硝酸イオン濃度の変化の解釈には1年から数年の幅を持ち、上層からの移流も考慮する必要がある。

八郷についても、観音台と同様に硝酸イオン濃度の経年的な低下傾向がみられた（図13）。

Ⅲ 窒素添加・除去実験

1 背景・目的

大気由来の窒素負荷量増加が、森林に与える影響については、様々な研究が行われている（Skeffington & Wilson, 1988; Maston *et al.*, 2002）。その中で、植物–土壌系において、窒素の蓄積量や循環が変化することによる生態系の攪乱については、窒素飽和として整理され（Aber *et al.*, 1989）、将来にわたる広範囲への影響が懸念されている。

森林生態系での物質循環には、いくつもの過程が複雑に作用しているため、窒素負荷の生態系影響を、実験的に検証することは困難である。しかし、1980年代末に、窒素負荷の生態系影響のメカニズムを解明するために、窒素の負荷量コントロール実験：NITREXがヨーロッパ各地で連携を取り大規模に敢行された（Wright & Breemen, 1995）。また、同じ時期にアメリカでも、ハーバード林を中心に同様の生態系実験が開始された（Magill *et al.*, 2004）。スプレイ装置や手撒きによる窒素成分の散布と、樹冠下に張られた屋根による雨の窒素成分の除去により、人工的に窒素負荷量を変化させ、これに対する生態系の反応が調査された。一連の窒素添加・除去実験により、窒素添加は、窒素流出を増加させ、窒素除去により流出量は減少するという処理効果が、多くの地点で共通した成果として得られた（Bredemeier *et al.*, 1998）。一方で、窒素負荷量と流出量との関係や、窒素負荷の影響が顕在化するまでの時間経過が、林床やリターフォールの化学性などにより表される、生態系の窒素状況によって異なることも明らかになった（Gundersen *et al.*, 1998; Fenn *et al.*, 1998; Emmet *et al.*, 1998）。また、植生タイプの異なる森林では、窒素負荷への反応が大きく異なることも、長期にわたる窒素負荷実験により示されている（Magil *et al.*, 2004）。

林床の化学性は、森林タイプや、有機物の分解に影響を及ぼす気候要因や土壌の物理性などの影響を受ける

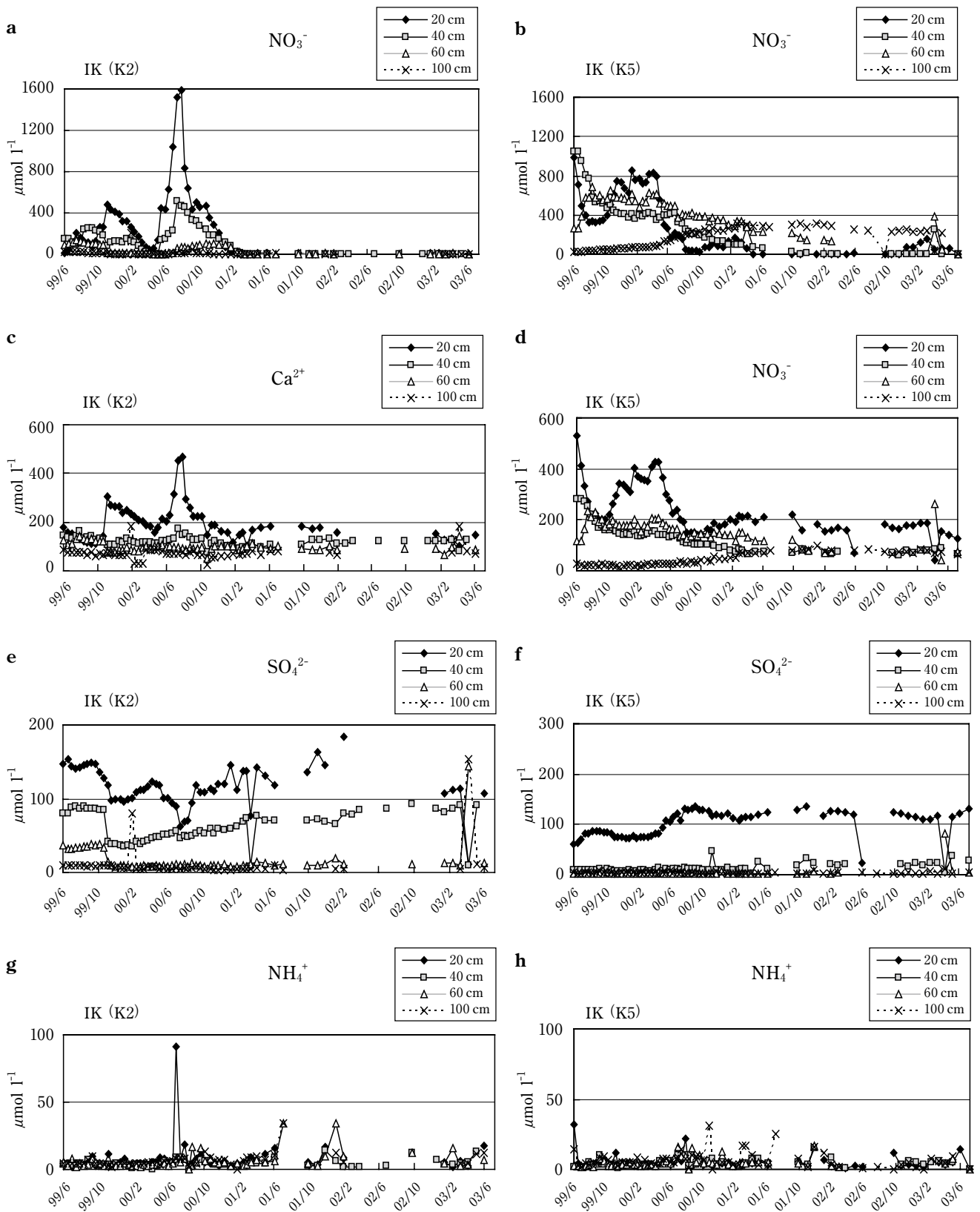


図12 観音台における各深度土壌水のイオン濃度推移

a, c, e, g (K2) および b, d, f, h (K5) はそれぞれ同じプロット。a, bは硝酸イオン、c, dはカルシウムイオン、e, fは硫酸イオン、g, hはアンモニウムイオン

Change of ion concentrations in soil solution from each depth soil layer at two plots in the Kannondai site

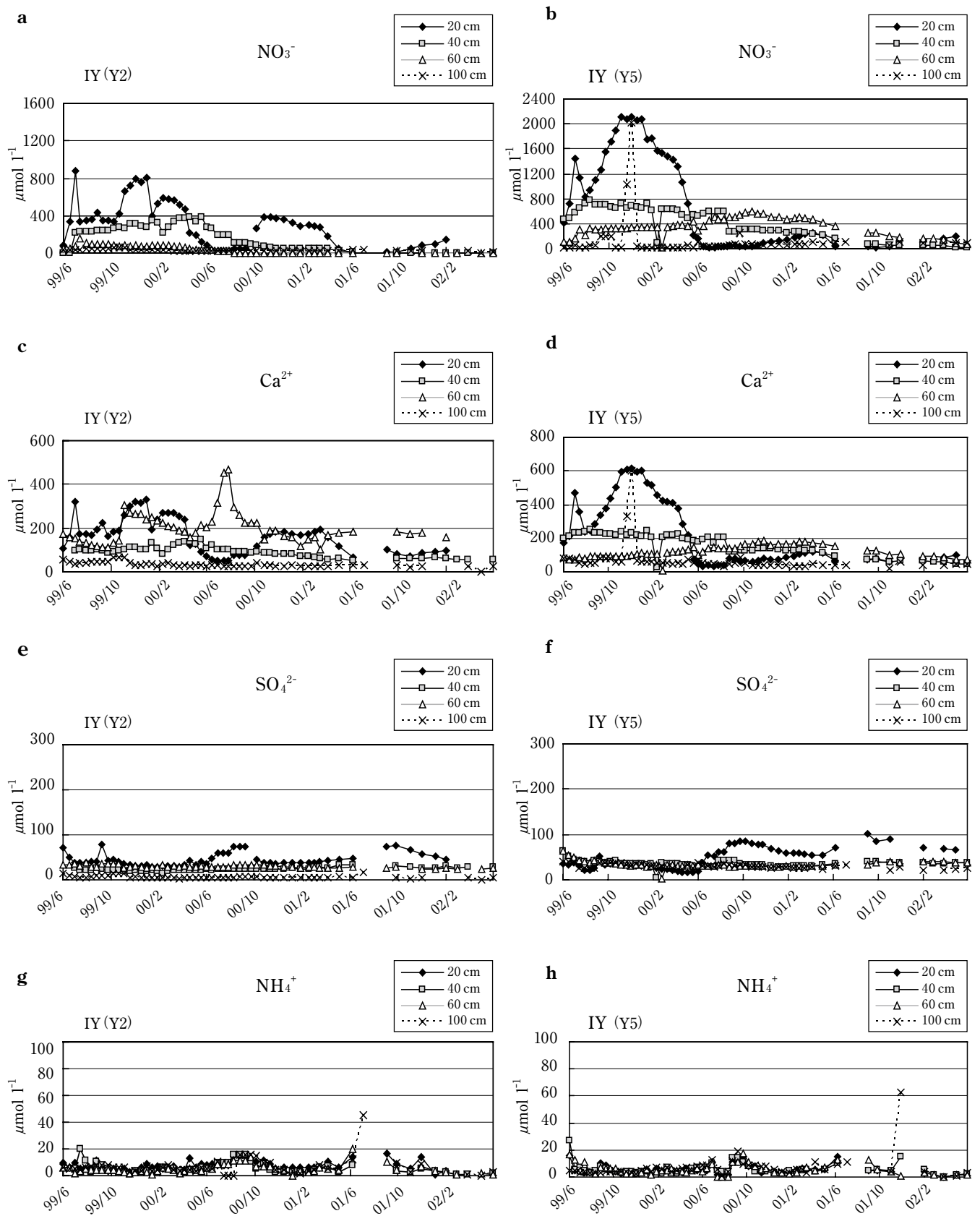


図13 八郷における各深度土壌水のイオン濃度推移

a, c, e, g (Y2) および b, d, f, h (Y5) はそれぞれ同じプロット a, b は硝酸イオン、c, d はカルシウムイオン、e, f は硫酸イオン、g, h はアンモニウムイオン

Change of ion concentrations in soil solution from each depth soil layer at two plots in the Yasato site

(堤, 1989)。そこで、ヨーロッパや北アメリカとは気候や土壌条件などが異なる日本において、窒素負荷量の制御実験を実施した。窒素負荷量の比較的大きな針葉樹林および広葉樹林を対象とした、2年間の窒素添加および除去の処理実験では、A₀層および鉱質土壌層における、無機態窒素のフラックスを調査し、有機物分解による無機化窒素と負荷窒素の関係について検討する。

2 調査地および方法

(1) 調査地および窒素添加・除去方法

調査は茨城県つくば市観音台のアカマツ林（淡色黒ボク土：Andisol）および同じく茨城県八郷町の落葉広葉樹林（花崗岩質褐色森林土：Cambisol）を対象とした。地点の詳細（図1）および、各地点の林外降水および林内降水の採取・測定方法については、II章と同様に行った。各地点に、以下の方法により、窒素除去区、窒素添加区および対象区を設けた（図14）。

窒素除去区では、イオン交換樹脂により、林内降水のイオン成分を一旦除去し、除去した窒素以外の主な塩基性イオン成分を散布により戻すことで、結果的に窒素成分および硫酸イオンを除去するという方法を用いた。50 cm × 100 cmの透明アクリル製の漏斗状屋根を、地表から約120 cmの高さに設置した。ビニール製の風雨よけを施し、屋根の下に降水が直接入らないようにした。漏斗状屋根で捕集した降水は、ステンレスネット、ガラスウール、メンブレンフィルター（MILLIPORE SCWPO4700、

8.0 μm）を通過した後に、イオン交換樹脂（Bio-Rad AG1-X8、AG500W-X8、各25 ml）を充填した2つのカラムを通過し、散布チューブから散布される仕組みとなっている（図15）（Shindo *et al.*, 2001）。このシステムによる各イオンの除去効果を確認するために、林内2か所に設置した25 cm四方の漏斗に、除去装置と同様のイオン交換樹脂充填カラムを接続し、通過水を捕集し、各イオン量の除去率を測定した。除去区では、イオン交換樹脂により全てのイオンが除去されるため、主な塩基を、KCl、MgCl₂、およびCaCl₂の水溶液で漏斗下の林床に戻した。各塩基の量は、林内降水を基に計算し、2Lの水溶液として2週間毎に散布した。

窒素添加区については、林内降水の窒素成分の2倍量を2Lの硝酸アンモニウム溶液として添加した（図14）。ただし、2週間毎に採取する林内降水成分の測定に、時間を要するため、林内降水回収後に行う散布では、1回前（2週間前）のサンプル測定値に基づいて作成した溶液を散布した。

対象区は、漏斗状屋根を設置した区（イオン交換樹脂は無し）と漏斗状屋根の無い区の2種類を設け、処理区の溶液散布の際には、純水を同量散布した（2L/0.5 m²）。

窒素除去処理は観音台で2000年1月より、八郷で2月より開始し、2002年6月まで実施した。窒素添加処理については、両調査地で2000年5月より2002年6月まで実施した。

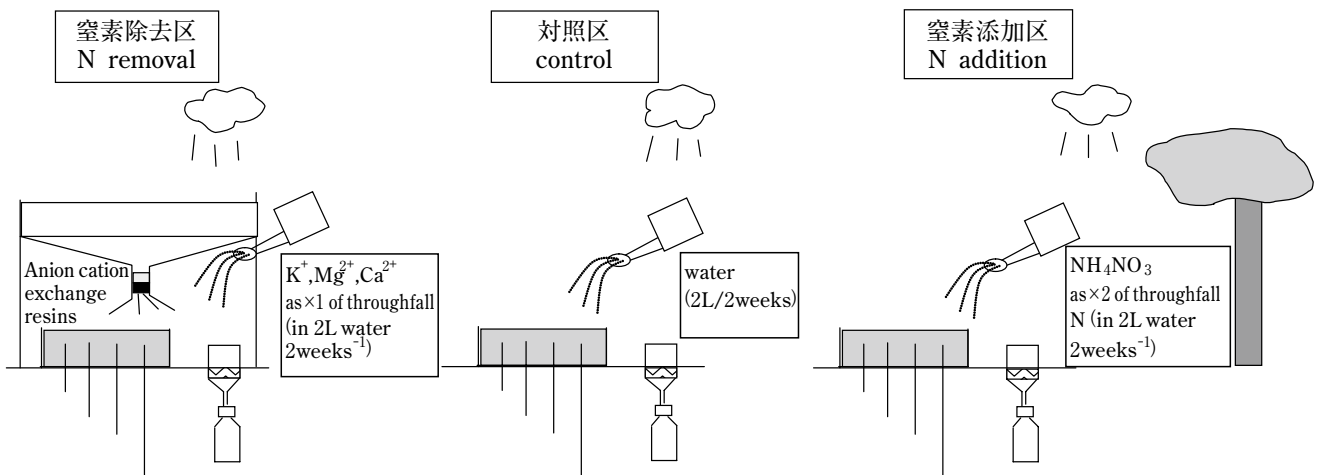


図14 窒素添加・除去実験概要
Outline of nitrogen addition and nitrogen removed experiment

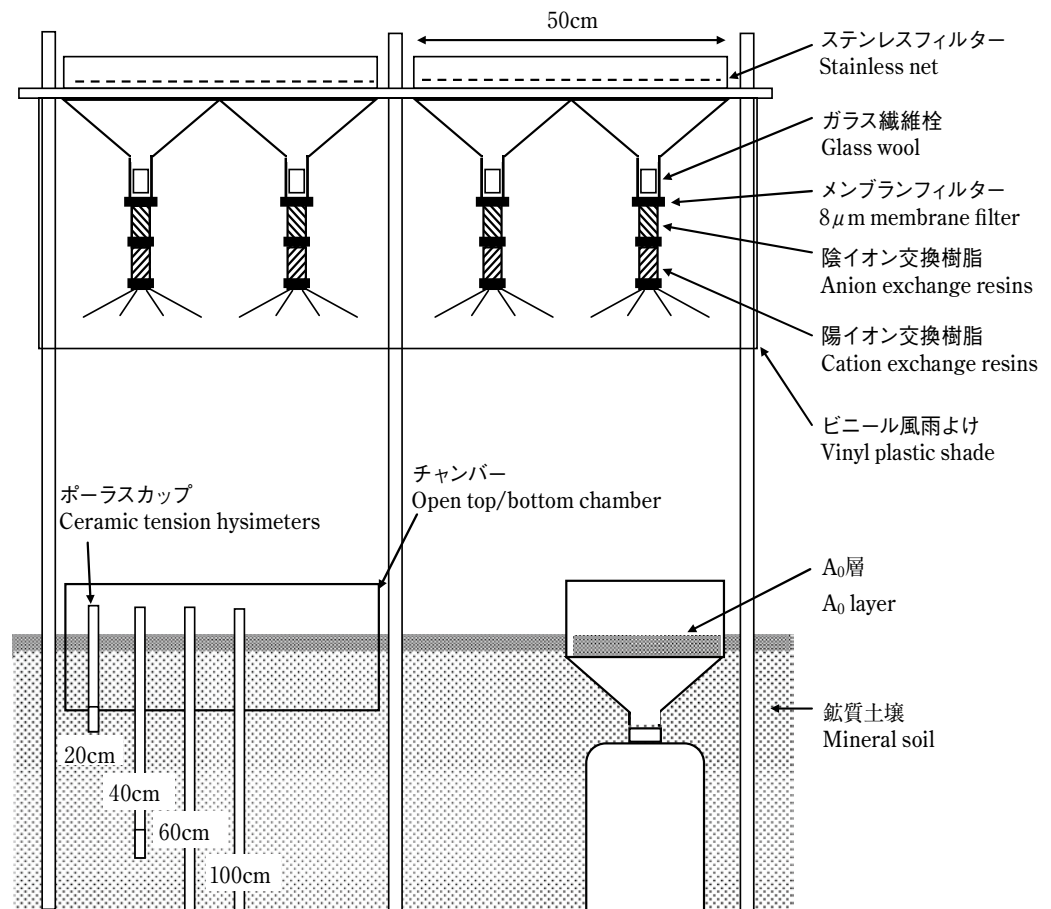


図15 降水窒素除去装置および採取システム
The nitrogen removal roof and sampling system

(2) A₀層浸透水、土壌水イオンフラックス

A₀層浸透水は、次のように採取した。まず、漏斗状屋根を設置した区では25cm四方の角形漏斗に、その他の区では直径13cmのブフナ漏斗に、切り取ったA₀層を静かに移し入れた。漏斗内のA₀層の表面が周囲の地表面と同じ高さになるように漏斗を設置し、漏斗の下部は、浸透水を捕集するためのポリ瓶（6Lまたは2L）に接続した（図14）。A₀層浸透水採取器の設置は、各調査地で処理区毎に4反復（ただし、対象区は8反復）で行った。

土壌水の採取には、各深度（20cm、40cm、60cm、100cm）に埋設したセラミック製のポラスカップ（DIK-8390）を用いた。採取方法および測定については、II章と同様に行った。各調査地で処理区各深度で2反復（ただし、対象区は4反復）で行った。

A₀層浸透水については、サンプルのイオン濃度と浸透水量からイオンフラックスを求めた。土壌水については、別途、降水量と土壌水分データから推定した土壌水フラックスを用い、イオン濃度との積からイオンフラッ

クスを試算した。水フラックスの推定方法についてはII章と同様に行った。

(3) 土壌の化学性測定

窒素添加および除去実験の開始前（観音台：2000年4月12日、八郷：2000年2月29日）と終了後（観音台：2003年11月26日、八郷：2003年6月19日）に土壌採取を行った。採取は金属製円筒（先端刃先の内径27.5mm）を用いて、地表面から、0-10cm、10-20cm、20-40cm、40-60cmの層別に採取した。同一サイト内で2か所から採取し、同じ深さの土層を混ぜて分析に用いた。各土壌層中のイオン含量は、生土1gに対して1gの純水を加えて振とうし、濾過（0.22μm）後にイオンクロマトグラフィで各イオン濃度を測定して求めた。また、生土1gに対し、0.01 M NaOHを50g加えて振とうし、抽出液のイオン濃度を同様の方法で測定し、交換性アニオン量を求めた（亀和田, 1994）。

3 結果

(1) 林内降水

2000年6月から2002年5月までのデータを用い、各イオンの年間フラックス（2年平均）を求めた結果を表6に示す。林内降水による窒素負荷量は、観音台で27.7 kg N ha⁻¹ yr⁻¹であり、ヨーロッパで窒素飽和の報告がある地域に匹敵する量であった（表7）。窒素添加区では、対照区の3倍強に相当する89.0 kg N ha⁻¹ yr⁻¹（6.36 mmol ha⁻¹ yr⁻¹）となり、除去区では1.8 kg N ha⁻¹ yr⁻¹（0.13 mmol ha⁻¹ yr⁻¹）であった。八郷における窒素負荷量は、対象区、添加区、除去区でそれぞれ、11.5 kg N ha⁻¹ yr⁻¹（0.82 mmol ha⁻¹ yr⁻¹）、37.0 kg N ha⁻¹ yr⁻¹（2.64 mmol ha⁻¹ yr⁻¹）、1.7 kg N ha⁻¹ yr⁻¹（0.12 mmol ha⁻¹ yr⁻¹）であり、観音台の窒素負荷量の4割強に相当した（ただし除去区以外）。

(2) A₀層浸透水イオンフラックス

観音台では、窒素添加、除去による林床への窒素負荷量の変化は、A₀層浸透水の窒素量に影響を与えた。観音台では、対照区に比べて、窒素添加区（対象区比約3倍の窒素負荷）で、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、1年目に対象区の約2.4倍に、2年目も2.2倍に増加した（図16.a）。一方、窒素除去区では、林床への無機態窒素の負荷量は、対象区の1割以下と低いにもかかわらず、A₀層浸透水は、対象区の5割前後となった。このことは、A₀層浸透水の無機態窒素動態には、林内降水による負荷窒素と、A₀層で有機物の分解等により生成される無機態窒素の両方が影響していることを示している。更に、マツ林である観音台では、負荷窒素の影響が直接的にA₀層浸透水に現れたのに対し、落葉広葉樹林の八郷では、A₀層浸透水への影響は段階的に現れた。すなわち、1年目には、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスに、各処理区間で有意な差は認められず、窒素除去区でやや大きいフラックスがみられた（図17）。2年目には、窒素添加区におけるA₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、対象区の2.3倍に増加し、添加の影響が現れ始めたが、除去区では、依然、対象区よりフラックスが大きかった。

(3) 土壌水イオンフラックス

各深度の鉍質土壌層における硝酸、アンモニウムイオンフラックスは、1年目と2年目で大きく傾向が異なった。観音台除去区の20 cm土壌水における硝酸イオンフラックスは、1年目（2000年6月–2001年5月）に、対

照区に比べやや小さい傾向がみられた。しかし、2年目（2001年6月–2002年5月）には、1年目に比べ、いずれの区においてもフラックスが激減した。40 cm以下のフラックスも2年目に著しく減少した（図16）。このため、鉍質土壌層の硝酸、アンモニウムイオンフラックスに対する、窒素処理の影響は認められなかった。八郷についても、1年目（2000年6月–2001年5月）に比べ2年目（2001年6月–2002年5月）に、20 cmおよび40–60 cm土壌層で土壌水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスが減少した（図17）。100 cm土壌からのフラックスは前年と同程度か、やや増加している区もあった。この結果からは、鉍質土壌層の硝酸、アンモニウムイオンフラックスについては、処理の効果に比べ、何らかの要因による年変動の影響が大きかったことが示唆された。

(4) 土壌の化学性

窒素添加・除去実験の開始前と終了時の間で、土壌の化学性を比較した（図18.1、18.2）。実験前後で、濃度が大きく変化している水溶性イオン成分は、観音台では硝酸イオンとアンモニウムイオン、カルシウムイオンであった。八郷では、硝酸イオンとカルシウムイオンの濃度低下が目立った。その他のイオン成分についても濃度の低下傾向がみられた（図18.1、18.2）。これらの各イオン成分の濃度低下は、窒素添加または除去の処理とは関係なく起こった。同地点で、一連の調査を始める前（1997年）に採取した土壌データを加え、交換性アニオン量の変化を比較した（図19）。硫酸イオン濃度は年変化が比較的小さく安定しているのに比べ、硝酸イオン濃度は深度間の高低関係も変化し、絶対値の変動も大きいことが示された。

4 考察 –NITREXおよびハーバード林との比較–

(1) インプット–アウトプット

窒素負荷に対する、生態系の窒素保持力を評価する際に、林内降水窒素負荷量（インプット）と流出量（アウトプット）とが対比される。本研究で、窒素添加・除去実験を実施した林分では、林内降水で負荷される窒素量に対して、土壌層（40–60 cm）から流出する窒素量は、観音台で約30%、八郷で約110%であった。

NITREXなどで行われた、生態系レベルの窒素添加・除去実験の結果によると、比較的早くその影響が顕在化したのが、流出水や土壌水の無機態窒素（DIN）であり（Dise *et al.*, 1998 ; Emmet *et al.*, 1998）、窒素添加・除去後1年以内に硝酸流出量の変化がみられるサイトの報告

表6 各調査地処理区における層別イオンフラックス

a: 観音台、b: 八郷、林外降水および水フラックス (*) はサイト内で共通の値を用いた
 Ion flux of each treatment plot at a) Kannondai and b) Yasato

a 観音台 (IK)

対象区 (control)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,133*	0.38	0.85	0.15	0.18	0.32	0.47	0.47	0.82
林内降水		889*	1.04	1.02	0.56	0.51	0.81	1.50	0.96	1.23
A ₀ 層浸透水		937	1.48	0.53	1.49	1.61	3.89	2.52	3.43	1.84
20cm土壌水		535*	0.88	0.04	0.17	0.38	0.76	1.13	0.72	0.54
40-60cm 土壌水		518*	0.90	0.04	0.05	0.41	0.54	1.30	0.59	0.26
窒素除去区 (N removed)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,133*	0.38	0.85	0.15	0.18	0.32	0.47	0.47	0.82
林内降水		889*	0.18	0.10	0.25	0.58	0.28	1.46	0.03	0.17
A ₀ 層浸透水		1,016	0.50	0.33	0.93	1.49	2.70	2.25	1.75	0.73
20cm土壌水		535*	0.32	0.03	0.17	0.48	0.62	1.30	0.41	0.40
40-60cm 土壌水		518*	0.76	0.03	0.30	0.39	0.42	1.58	0.48	0.12
窒素添加区 (N added)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,133*	0.38	0.85	0.15	0.18	0.32	0.47	0.47	0.82
林内降水		889*	1.04	3.21	0.56	0.51	0.81	1.50	3.16	1.23
A ₀ 層浸透水		1,080	1.83	1.72	1.78	1.85	5.00	3.12	7.42	2.03
20cm土壌水		535*	0.70	0.02	0.18	0.39	0.82	1.08	0.79	0.57
40-60cm 土壌水		518*	1.06	0.04	0.02	0.65	0.54	1.52	0.89	0.26

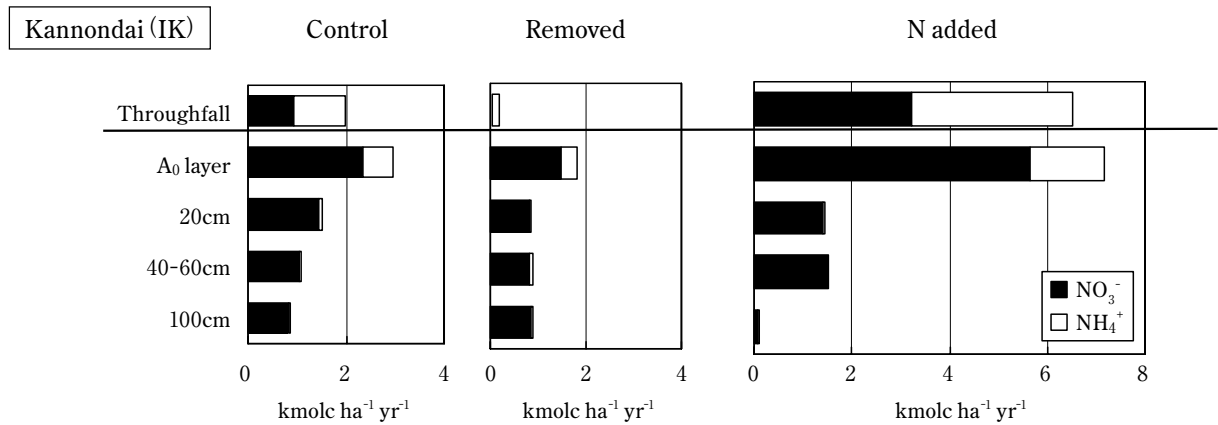
b 八郷 (IY)

対象区 (control)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,471*	0.42	0.65	0.09	0.17	0.29	0.45	0.34	0.67
林内降水		1,046*	0.73	0.42	0.80	0.58	0.77	0.96	0.42	0.89
A ₀ 層浸透水		1,149	0.96	0.36	1.33	1.66	2.88	1.23	1.98	1.23
20cm土壌水		813*	0.84	0.05	0.06	0.27	0.48	0.82	0.50	0.41
40-60cm 土壌水		782*	0.84	0.04	0.02	0.38	0.57	1.15	0.89	0.26
窒素除去区 (N removed)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,471*	0.42	0.65	0.09	0.17	0.29	0.45	0.34	0.67
林内降水		1,046*	0.10	0.10	0.68	0.62	0.39	1.61	0.02	0.08
A ₀ 層浸透水		1,033	0.34	0.28	1.47	2.21	3.61	2.32	2.92	0.55
20cm土壌水		813*	0.62	0.05	0.06	0.48	0.74	1.93	0.71	0.22
40-60cm 土壌水		782*	1.46	0.07	0.04	0.50	0.89	2.24	1.23	0.24
窒素添加区 (N added)	期間	water (mm)	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
k mol ha ⁻¹ yr ⁻¹										
林外降水	00/6-02/5	1,471*	0.42	0.65	0.09	0.17	0.29	0.45	0.34	0.67
林内降水		1,046*	0.73	1.32	0.80	0.58	0.77	0.96	1.32	0.89
A ₀ 層浸透水		1,017	0.75	0.63	1.24	1.77	3.09	1.24	3.15	1.11
20cm土壌水		813*	0.78	0.05	0.06	0.37	0.67	1.24	1.06	0.34
40-60cm 土壌水		782*	1.50	0.07	0.02	0.44	0.60	1.94	0.95	0.20

表7 主な窒素負荷実験サイトの窒素負荷レベルと生態系影響
Summary of stand responses at NITREX and at this study

Site	Species	Throughfall (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	Inputs After Treatment (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	Years of Treatment	Change in Nitrate Leaching	Change in Foliar Chemistry
Gårdsjön (Sweden)	<i>Picea abies</i>	11	51	4	Yes	No
Klosterhede (Denmark)	<i>Picea abies</i>	23	58	3	Yes	Yes
Aber (Walws)	<i>Picea sitchensis</i>	14	52 91	4	Yes Yes	Yes No
Solling (Germany)	<i>Picea abies</i>	36	16	3.5	Yes	No
Speuld (Netherlands)	<i>Pseudotsuga a menziesii</i>	50	4	5.5	Yes	No
Yesselsteyn (Netherlands)	<i>Pinus sylvestris</i>	45	4	5.5	Yes	Yes
Kannondai (Japan)	<i>Pinus densiflora</i>	28	1.8 89	2 2	No No	? ?
Yasato (Japan)	<i>Quercus serrata</i>	12	1.7 37	2 2	No No	? ?

a



b

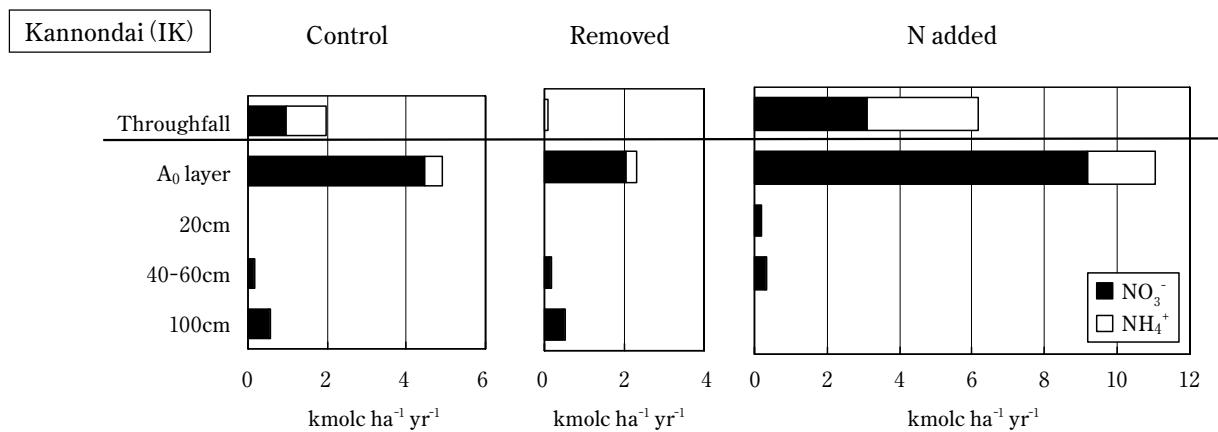


図16 窒素除去、添加実験における林内降水および土壌各層における硝酸、アンモニウムイオンフラックス（観音台）
a：処理開始後1年目、b：処理開始後2年目
Fluxes of nitrate ion and ammonium ion in throughfall, A₀ layer percolation and soil water in each treatment plots at Kannondai. a) first year of treatment, and b) second year of treatment

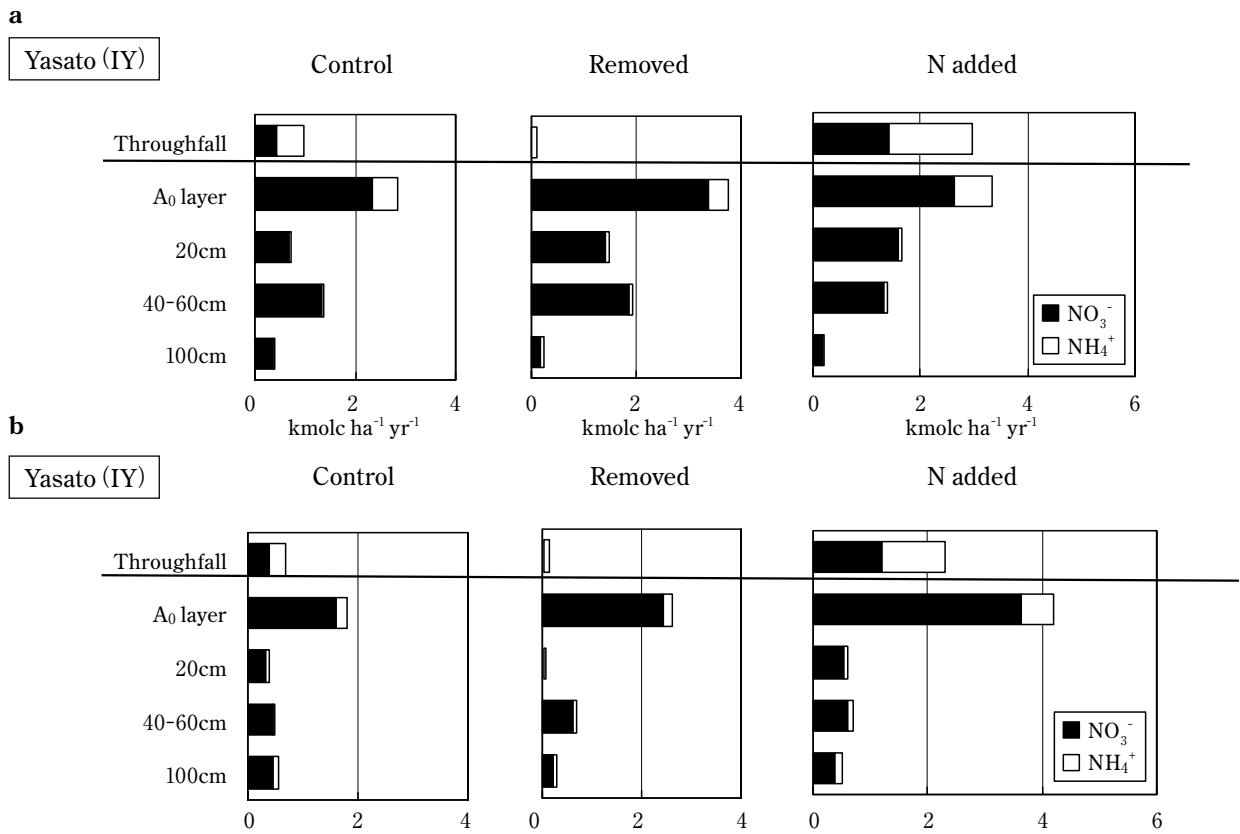


図17 窒素除去、添加実験における林内降水および土壌各層における硝酸、アンモニウムイオンフラックス (八郷)
 a : 処理開始後1年目、b : 処理開始後2年目
 Fluxes of nitrate ion and ammonium ion in throughfall, A₀ layer percolation and soil water in each treatment plots at Yasato. a) first year of treatment, and b) second year of treatment

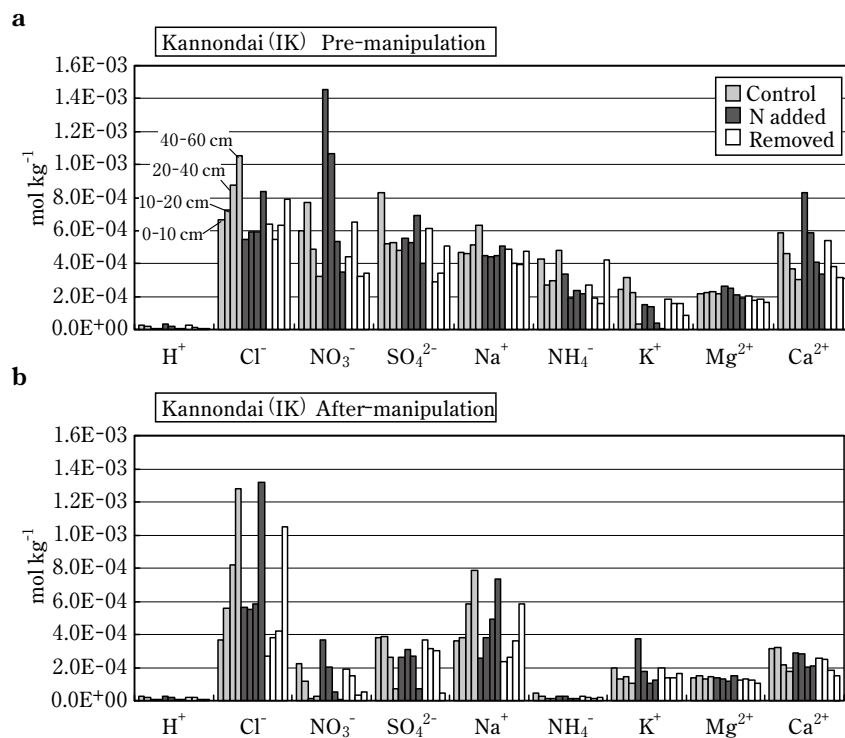


図18.1 土壌の水溶性イオン濃度 (観音台)
 a : 添加処理前 (2000/4/12採取) およびb : 処理後 (2003/11/29採取) 土壌の土壌溶液 (乾土:蒸留水 1:1)。
 棒グラフは左から順に、対照区、窒素添加区、除去区、0-10 cm、10-20 cm、20-40 cm、40-60 cm土壌。
 Water solubility ion content of soil sampled in a) before treatment and b) after treatment at Kannondai

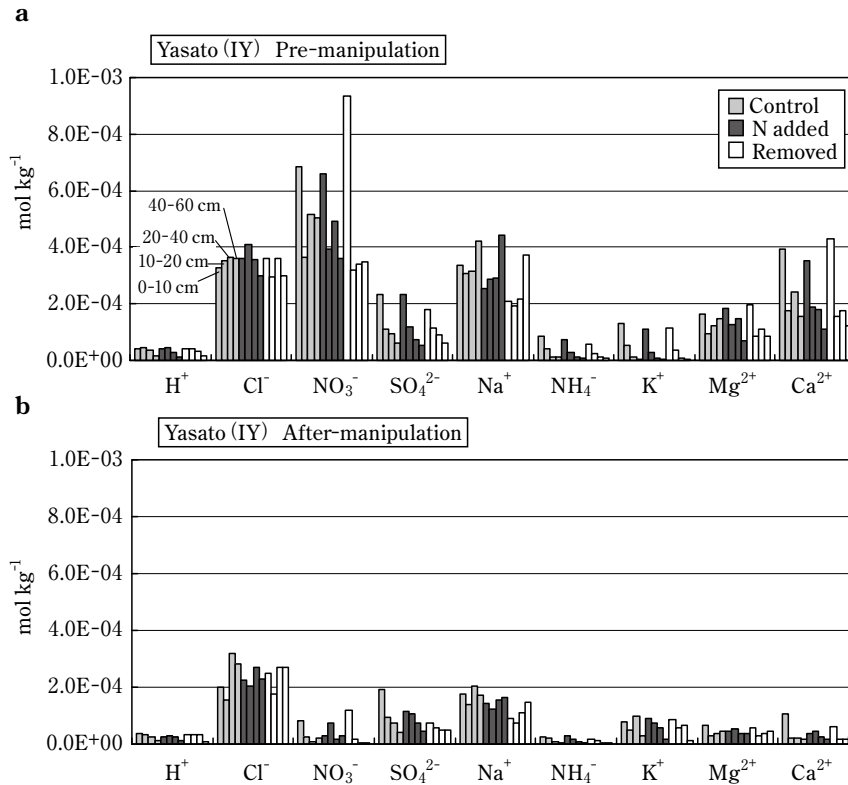


図18.2 土壌の水溶性イオン濃度（八郷）
 a: 添加処理前（2000/2/29採取）およびb: 処理後（2003/6/19採取）土壌の土壌溶液（乾土:蒸留水 1:1）。
 棒グラフは左から、対照区、窒素添加区、除去区の、0-10 cm、10-20 cm、20-40 cm、40-60 cm 土壌。
 Water solubility ion content of soil sampled in a) before treatment and b) after treatment at Yasato

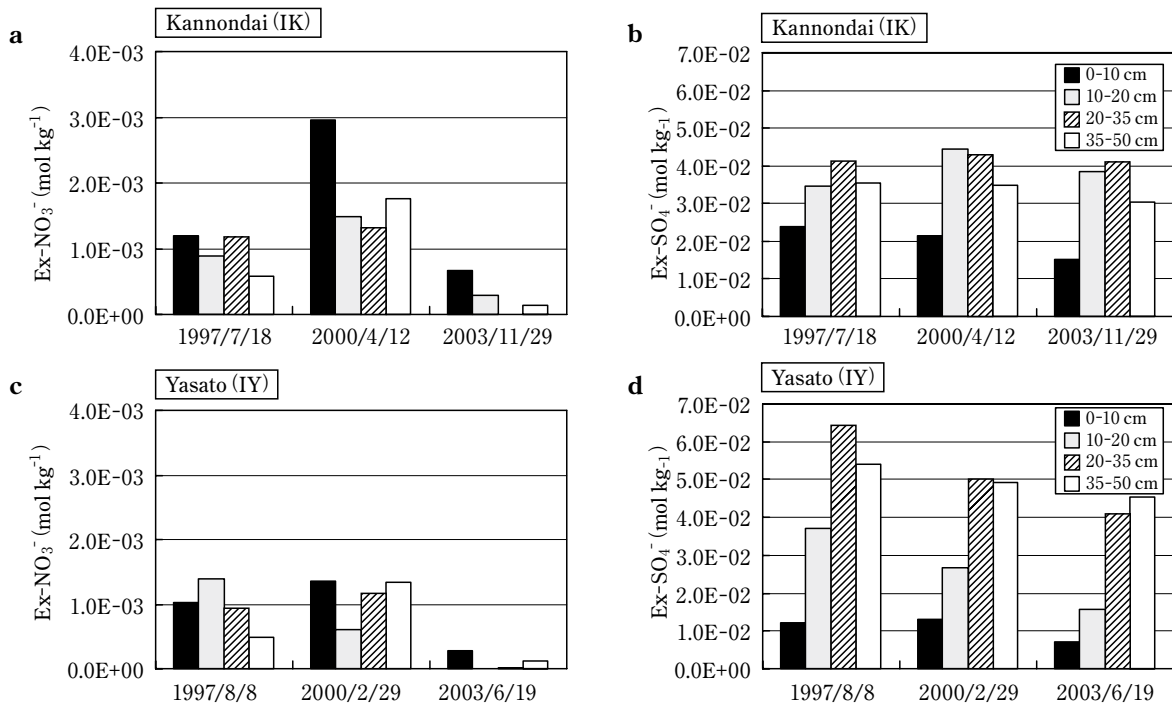


図19 交換性アニオン濃度の変化
 観音台および八郷における、各深度土壌の交換性硝酸イオン (a, c) および交換性硫酸イオン (b, d)
 調査開始時：1997年、窒素添加・除去実験開始前：2000年、および実験終了後（対照区）：2003年
 Secular distortion of soil chemistry
 Exchangeability nitrate ion in each depth of soil at a) Kannondai and c) Yasato. Exchangeability sulfuric acid ion in
 each depth of soil at c) Kannondai and d) Yasato

もある (Gundersen *et al.*, 1998)。しかし、処理の影響が現れる時期や規模は一様ではなく、もともとの窒素負荷量の多少により影響が異なる場合もある。窒素負荷量が多い地点では、窒素除去による硝酸流出量の減少効果は大きかった (図20)。窒素負荷量が $13-18 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の中程度のサイトでは、 $35 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の窒素添加により、硝酸イオン流出量はコントロールに比べ増加したが、負荷された窒素量の90%以上が生態系に保持されたケースもある (表7)。本研究では、窒素添加および除去の処理を行った結果、窒素負荷量の変化に対し、流出量に有意な変化はみられなかった (表6, 図20)。窒素負荷量は $12-29 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と中程度であり、前出のケースと類似している。一方で、窒素負荷量は $17 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ とそれほど大きくないが、硝酸イオン流出が起こっていたイギリスの調査地では、同量の窒素添加により硝酸イオン流出量が約3倍に増加した (Gundersen *et al.*, 1998)。このように、負荷窒素量に対する流出量の反応が異なる例は、アメリカでも報告されている。長期窒素添加実験が行われているハーバード林 (MA) では、 $150 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の添加の結果、針葉樹林では硝酸イオン流出量が増加したが、落葉広葉樹林では処理後数年間はほとんど変化が認められなかった (Magill *et al.*, 2004)。これらの結果から、窒素負荷量と硝酸流出量との間には、ある程度の正の相関を見出すことはできるが、窒素流出量を窒素負荷量のみで説明するには限界があることが示された (Gundersen *et al.*, 1998; Bredemeier *et al.*, 1998) (図20)。

(2) 窒素状況 (Nitrogen status)

窒素負荷量と硝酸流出量との間にみられる大まかな相関関係から大きく外れる地点について、その原因が検討される中で、窒素状況 (Nitrogen status) という指標を使った解析がGundersenら (1998) によって報告されている。“窒素状況”は主成分分析の結果得られた第一主成分で、葉やリターフォール、植物の吸収や根の状況、林床の有機物量や無機化、硝化などに関する約15のパラメータが関与している。この指標を用いると、前出の窒素負荷量が $17 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であったイギリスの調査地は、他の2サイトに比べて窒素状況が大きいという結果となった。この背景として、かつて湿原から林地へ造成されたという土地利用履歴があるこのサイトでは、土壌中の有機態窒素量が多く、窒素添加により速やかに窒素の無機化が卓越したと推測される。この他の指標として、林床のC/N比が24以下で、硝酸イオン流出量が急速に増加するという報告もある (Emmet *et al.*, 1998)。前述の“窒素状況”の中には多くの林床に関するパラメータが含まれていることから、両指標はほぼ同様の意味合いを持つと考えられる。後者の林床C/N比の方がよりシンプルな指標といえる (Gundersen *et al.*, 1998)。林床のC/N比は、窒素負荷量そのものの影響も受けるが、むしろリターフォールの質やそれらの分解過程などに大きく影響されることから、中長期的な窒素負荷量の影響を現す指標と解釈できる。更に土地利用の履歴の影響も含まれている (Aber *et al.*, 1998)。

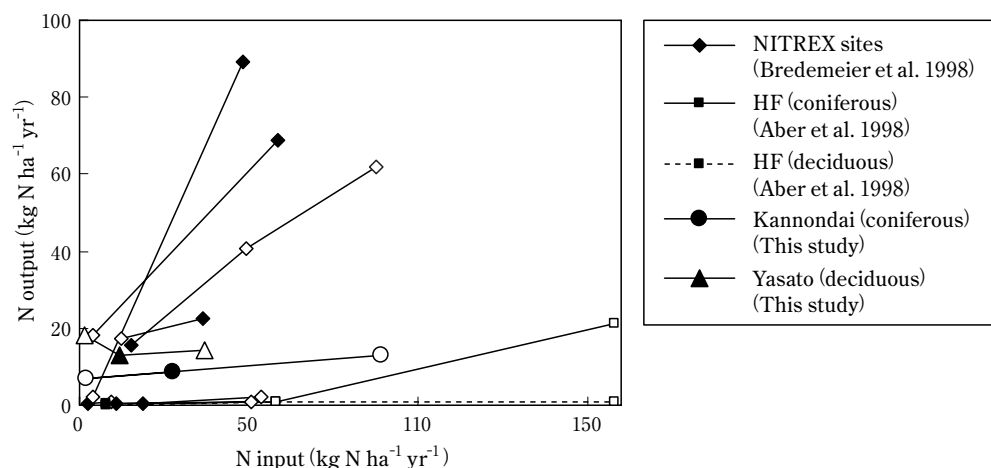


図20 窒素の負荷量と流出量

塗りつぶし印は無処理区の値を現し、白抜き印は処理により負荷量を変化させた結果の値を現す。ただし、線で結んだ印は同一地域のデータである。負荷量は林内降水、流出量は、場所により流出水または浸透水 (50-100 cm 深) の無機態窒素の値。

Input and output of nitrogen

The average of annual input and annual output of inorganic N at the NITREX sites, HF and Ibaraki sites. Closed marks represent control plots, open marks represent manipulated plots

本研究では、窒素添加の影響は、A₀層浸透水の硝酸イオン及びアンモニウムイオンのフラックス量の増加としてのみ現れた。窒素負荷量の大きいマツ林では1年目からその影響が現れたのに対し、窒素負荷量が約半分の落葉広葉樹林である八郷では2年目までに明らかな増加は認められなかった。このように、添加窒素の影響の出方が異なるのは、窒素負荷量の違いに基づく窒素状況の違いに起因するのではないかと考えられた。そこで、林床のC/N比を比べると、窒素状況が高いと考えられる観音台で、C/N = 36.9であり、NITREXの値と比べて高かった。一方の八郷では、25.2と低く、逆の結果であった。針葉樹林のみを対象としているNITREXに対し、落葉広葉樹林である八郷や、同じ針葉樹でも樹種が異なるアカマツ林を対象とした本研究では、リターフォールの質の違いが、林床のC/N比に大きく影響したと考えられる。また、リターフォールによる窒素量についても、観音台で17 kg N ha⁻¹ yr⁻¹弱であるのに対し、八郷では約62 kg N ha⁻¹ yr⁻¹と両調査地点間で大きく異なった(V章)。八郷では、負荷窒素量に対し、リター分解により生成される無機態窒素量の割合が大きいため、実験処理による負荷窒素量の変化に対して、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスの変化が現れにくかったと考えられる。また、自然状態での窒素負荷量が、観音台に比べて小さいため、添加された窒素が、A₀層で微生物などによる有機化に利用された可能性も考えられる。2年目に窒素添加区でA₀層浸透水の硝酸イオンフラックスが増加していることから、1年目はA₀層がバッファーとして機能したと解釈することができる。しかし、リターフォール量の年変化や場所による偏りなども、A₀層浸透水の硝酸、アンモニウムイオンフラックスに大きく影響すると考えられるため、2年間の調査結果では、これらの可能性について検証することは難しい。

(3) 植生の影響

NITREXの中で最も窒素状況が低いスウェーデンのサイトで、添加された硝酸アンモニウムが、表層付近での速い水の流れと共に硝酸イオンとして流出することが明らかになった(Moldan *et al.*, 1995)。添加された窒素は、微生物や植物による利用を経て流出すると考えられていたが、地形や土壌タイプによる水移動特性によって生じる停滞時間の短さや、低温による生物活性の低さが原因となって、窒素状況が低くても、硝酸イオン流出が起こるケースがあることが示された(Moldan *et al.*, 1995)。しかし、この場合の表面流出による窒素流出量は、添加

窒素量に比べて非常に小さく、インプットの2%以下であった。

Fennら(1998)は北アメリカにおける窒素負荷と森林の窒素飽和研究をレビューし、窒素飽和の起こる様々な条件を吟味した。窒素飽和が成熟した森林で起きやすいこと(窒素の蓄積量が多く、蓄積増加速度が小さい)、また標高の高い森林では起きやすいこと(植物による吸収量が少ない)を示した。更に窒素保持量の小さい生態系の特徴として、植物の生育期間が短いこと、土壌や地形条件などにより水と土壌の接触時間が短いことなどを挙げている。この様に、各サイトがどのような生態的特徴を持つのかを判断することは、窒素負荷と窒素飽和の状況との関係を解釈する際の重要な情報となる。

(4) 添加窒素の行方

我々が調査した、針葉樹林および落葉広葉樹林では、鉍質土壌の無機態窒素動態に対する、窒素処理の影響は認められなかった。この原因として、添加された窒素が、土壌中で微生物や植物に取り込まれることにより、有機化されたことが挙げられる。温暖湿潤な気候をもつ本研究の調査地では、土壌-植物系における窒素動態は、有機物の分解や吸脱着、植物や微生物による利用など、局所的に進行する内部循環に強く支配されており、窒素負荷に対する許容量が大きいと考えられた。一方で、土壌中の無機態窒素量は、経年的に変動しやすかったことが明らかになった。II章で述べたとおり、この調査期間に、硝酸イオンの経年的な濃度低下が起こっていたことが分かっている(図12. a, b)。高濃度ピークの下層への移動により、イオン濃度の垂直分布に逆転が生じたことが、フラックスの大きな変動の原因と考えられる。森林生態系では、人為的攪乱の他にも、樹木の枯死によるリターフォール量の急激な変化や、土壌層における根のリター量の急激な増加など、様々な攪乱が起こる可能性がある。これらの攪乱による系内の窒素動態の変動は、硝酸、アンモニウムイオンフラックスに対し、十分大きい影響を与えることが示唆された。Donaldら(2003)は、放牧林において土壌の硝酸イオンおよびアンモニウムイオンの蓄積量を継続的に測定し、季節変化が大きく、年変化もあることを示した。観音台および八郷において、硝酸イオンは、土壌の中で濃度変化しやすい成分であることが明らかになった。これらのことから、土壌溶液の硝酸、アンモニウムイオンフラックスには現れない窒素の動態として、例えば有機態窒素の蓄積量や溶存有機態窒素(DON)などについても中長期的な影響を調査する必要

があると考えられる。

ハーバード林では、数年間にわたり年間 150 kg N ha^{-1} の窒素添加を行ったにもかかわらず、根域以下への溶存無機体窒素 (DIN) の流出量は、添加量に比べて非常に小さかった。ここでの、DONによる流出量は、DINの15倍程度に相当し ($3-5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$)、窒素添加にほとんど影響されずに、処理期間中ほぼ一定量であった (Aber *et al.*, 1998)。また、ヨーロッパの窒素添加実験では、DON流出 (55 cm) は、 $0.5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と推定された。DIN (硝酸イオン) が、 $0.3 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ から3年間の添加処理で $4.2 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ へと増加しているのに比べ、DONは処理による差はみられず (Gundersen, 1998)、流出量の絶対量は異なるが、窒素添加に対する応答がみられない点はハーバード林の結果と一致した。

DINからDONへの変換については、微生物による比較的ゆっくりと起こる有機化に加え、それを上回る量の有機化を担う非生物のプロセスに関する報告もある (Magill *et al.*, 2004; Berntson & Aber, 2000; Davidson *et al.*, 2003)。 $^{15}\text{NO}_3^-$ の添加後0.1日後には、硝酸イオンはほとんど消失し、土壤有機物プール、細根、微生物体に取り込まれている。この速い硝酸同化プロセスは、非生物的同化プロセスの特徴である。これらの2つの同化のいずれもが、系からの硝酸イオン流出量に関与していることが指摘されている (Berntson & Aber, 2000)。

IV 林床からの亜酸化窒素 (N_2O) 放出

1 背景・目的

林床から放出する亜酸化窒素 (N_2O) ガスは、硝化の副産物として、また脱窒の中間物質として、主に微生物活動によって生成される。 N_2O は大気中の濃度は低い(約319 ppb)が、二酸化炭素 (CO_2) を基準とした地球温暖化係数は310と高く、温室効果ガスとして二酸化炭素やメタン (CH_4) と並びその排出量が注視されている (IPCC 2007)。Mosierら (1998) の試算によると、1990年代における地球全体の N_2O 放出量約 $17.7 \text{ Tg N yr}^{-1}$ のうち、約4割は農耕地や工業分野などからの放出であり、残りの約6割は海洋を含む自然生態系からの放出であると見積もられている。そのうち、自然土壌からの放出は約 6 Tg N yr^{-1} であり、 N_2O 放出全体の三分の一を占める。 N_2O の大気中濃度は産業革命以降著しい増加を示し、特に1980年以降は、年に約0.26%という急激な増加が続いている (IPCC 2007)。Gallowayら (2004) が行った N_2O 放出量の年代変化推定によると、1860年代から放出量

が顕著に増加した領域は、農地などの人為的攪乱土壌や人為影響のある河川や河口地域であり、人間活動にともなう反応性窒素の増加が、 N_2O 放出の増加をもたらすと捉えられている。

日本では、農学分野で、施肥効率の観点から N_2O 放出に関する研究が19世紀後半から行われており、その後は、農地から発生する温暖化ガスの一つとして研究が進められ現在に至っている (陽, 1990; 西尾, 1995; Akiyama *et al.*, 2005)。農耕地からの N_2O 放出については、平均で約 $1.8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 、日本全体では、 $8.37 \text{ Gg N yr}^{-1}$ と試算されている (農業環境技術研究所, 2003)。一方、森林に関しては、国内での N_2O 放出の寄与はあまりないとされてきたが、公表されたデータは非常に少ないのが実状である。Morishitaら (2007) の全国調査およびOuraら (2001) の関東での測定結果によると、日本の森林での N_2O 放出量は、それぞれ 0.14 、 $0.20-0.38 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と推定される。これらの値をもとに、森林からの N_2O 放出量をだまかに試算すると、年間約 $3.3-7 \text{ Gg N}$ となる。単位面積あたりの N_2O 放出量は、森林で農耕地の1割前後と小さいが、森林面積が大きいわが国では、森林からの N_2O 放出量は農耕地からの放出量にほぼ匹敵する。近年、都市近郊林でみられる渓流水への硝酸イオンの流出の増加は (Ohruai & Mitchell, 1997; Yoh *et al.*, 2001; 伊藤ら, 2004)、森林土壌における硝化または脱窒の増加を示唆しており、これにともなう N_2O 放出の増加も予想される。

本章では、森林からの N_2O 放出を、窒素負荷や窒素循環と関連づけて評価することを目的に、物質循環調査を実施した、関東周辺の6地点 (II章) において、林床からの N_2O 放出量を評価する。また、窒素添加・除去実験において、窒素負荷量の変化が N_2O 放出量に与える影響について検討する。定点調査で示された、各地点の窒素負荷量や窒素循環パターンと林床からの N_2O 放出パターンの関係について (Oura *et al.*, 2005)、広域での適応の妥当性について検討する。

2 調査地および方法

(1) N_2O 放出量測定

N_2O 放出の定点調査は、茨城県つくば市観音台にある平地林 (観音台: マツ林) および茨城県西南の筑波山北東に位置する八郷 (八郷: 広葉樹林) で、1999年6月からそれぞれ2003年10月、2002年6月まで実施した。その他に、栃木県奥日光の調査地 (前白根、弓張峠: 落葉広葉樹林) で、2000年7月から2001年10月まで、長野

県乗鞍岳中腹調査地（SC：針葉樹林、SD、SU：落葉広葉樹林）で、2002年7月から2003年10月までそれぞれ実施した。観音台および八郷は、積雪は年間数日程度であり、冬季は寒冷で乾燥する日が多い。奥日光および乗鞍調査地は、11月下旬から5月頃まで積雪があり、積雪量も2–3m以上である。各調査地の詳細についてはII章に示した。

N₂O放出量の測定には、クローズドチャンバー法を用いた。使用したチャンバーは、直径21 cm、高さ15 cmの円筒型の塩ビ製チャンバーあるいは、50 cm四方、高さ25 cmまたは40 cmの塩ビ製チャンバーで、測定前に予め約5 cm埋設しておいた。測定時にチャンバーに気密性のある蓋をし、マルチ針を通してチャンバー内の空気を5 mlまたは15 mlの真空バイアル瓶に採取した。6分から30分の間隔をおいて、合計4回サンプリングを行った。持ち帰ったサンプルは速やかにN₂O濃度測定に供した。N₂O濃度の測定は、ECD付ガスクロマトグラフィー（Shimadzu 14B）で行った。4 mのステンレスカラムにはポラパック Q（80/100メッシュ）を充填し、キャリアガスとして5%アルゴンメタンガスを27.2 ml min⁻¹の流量で流した。オープン温度は80 °C、検出器の温度は340 °Cとした。

検量線は、300 ppbおよび1000 ppbのN₂O標準ガスを用いて測定開始時に毎回作成した。ガスクロマトグラフィーへの試料ガスの挿入にはロック式シリンジを用い、測定時とサンプリング時との気圧や気温の違いによるガスの混入を回避した。サンプルガスを2 mlずつ挿入し、N₂Oのピーク面積と検量線からN₂O濃度を求めた。

林床からのN₂O放出量は、チャンバー内のN₂O濃度の上昇率から計算した。地表面からチャンバー上部までの高さを各チャンバーにつき4–5か所で測定し、それらの平均をチャンバー高とした。濃度上昇率については、蓋をしてからの時間を横軸にN₂O濃度をプロットし、4点から求めた傾きを用いた。ただし、測定値から得られた濃度変化又は回帰式の有意性については、標準ガスの繰り返し測定により得た測定誤差（標準偏差値：3.56 ppb）を用いて、回帰係数の標準誤差を求め、t検定を行った。又は、最大濃度差の有意性の検定を行った。その結果、最も感度の低い6分間隔（0.1 mチャンバー高）の測定において、約3 μg N₂O–N m⁻² h⁻¹以下の値については誤差範囲に含まれるとみなされる（5%の棄却率）。ただし、測定間隔が10–30分の観音台や八郷やチャンバー高を低くした三重での広域測定では、感度が5倍程度まで改善されている。

濃度増加率： r (ppb h⁻¹) とチャンバー高： h (m)、測定時の温度： t (°C) を用いて式(1)によりN₂Oフラックスを求めた。

$$N_2O \text{ (mg N m}^{-2} \text{ h}^{-1}) = 1.25 \times h \times r / 1000 * 273 / (273 + t) \dots(1)$$

定点調査では、基本的に2週間毎にガスサンプリングを実施したが、観音台および八郷における2001年4月から2002年2月までの1年弱の間は測定間隔を約1か月とした。奥日光については、(財)林業土木コンサルタンツ技術研究所にサンプリングを依頼し、また、乗鞍については、信州大学理学部物質循環学科（平林氏、奈良氏、村本氏）と共同でサンプリングを実施した。

(2) 連続測定

クローズドチャンバー法では、N₂O放出量の時間変化を細かく測定することが難しいため、N₂O自動分析計を用いて連続測定を行うためのシステムを構築した。このシステムは、細野ら（2008）のシステムに改良を加えたものである。N₂O自動分析装置（日本サーモエレクトロン株式会社）の構成は以下の通りである。

- 1) N₂O自動分析計 MODEL 46C（日本サーモエレクトロン株式会社）
- 2) 前処理ユニット
- 3) 加熱導管
- 4) サンプリングポンプ (P)
- 5) 標準ガス (N₂O) およびゼロガス（純窒素）
- 6) 制御・記録用パソコン

システムの概要は以下の通りである（図21）。蓋を閉め密閉したチャンバーに、ポンプを用い一定流量（0.65 l min⁻¹）でバッファータンクを経由した外気を送り込み、ほぼ同量（0.641 min⁻¹）のガスをチャンバーから前処理ユニットに送り出す。前処理ユニットでは、直前に加熱導管で温められたサンプルガスをフィルター通過させ、電磁弁により各サンプルガスおよび標準ガスの流路切り替えを行う。電子除湿器で除湿されたガスはN₂O分析計に送られ、N₂O濃度が測定される。各サンプルガスの切り替え時間および標準ガスの挿入頻度はパソコンから任意に設定することができるが、安定値を得るために1サンプル当たり7–10分の測定時間が必要となる。3チャンバーで交互に測定を行う場合、一連のガス切り替えスケジュール（図22）に従うと、各チャンバーで1時間強に1回の測定が可能となる。N₂ガスの値をゼロと

し、 N_2O 標準ガスをスパンとして検量線を作成し、サンプルガスの N_2O 濃度を決定する。各チャンバーを通過したサンプルガスの濃度と通過前のガス（外気）との濃度差および、ガス流量から、林床から N_2O 放出量を求める。ただし、 N_2O の値は分析計周辺の温度変化の影響を受けて変動するため、ゼロガスと標準ガスとの測定値と内部温度の関係から補正式を作成し、測定値の温度補正を行った。連続自動測定中は蓋を閉めたままとなるため、一回の測定は1-3日程度とした。なお、測定中はチャンバー上面をシートで覆い直射日光を遮断し、チャンバー内の温度上昇を防いだ。

(3) 窒素添加処理と N_2O 放出

観音台および八郷の窒素添加・除去実験区において N_2O 放出量の測定を行った。窒素添加・除去実験の詳細についてはⅢ章に示した。ここでは、溶液散布の要点のみを記す。窒素添加区では林内降水中の窒素量の約2倍に相当する硝酸アンモニウムを原則2週間おきに散布した。また、窒素除去区では、ルートに集められた降水が、イオン交換樹脂を通過してから林床に落ちるようになっている。樹脂に保持されたイオンの内、塩基については林内降水含有相当量を塩化物水溶液として林床に撒き戻した。この際、対象区には脱イオン水を同量散布した。 N_2O 放出量の測定は、密閉チャンバー法（50 cm 四方、高さ12-30 cm）で行い、ガスサンプリングは15分から30分間隔で4回行った。定期的なサンプリングとして2週間毎に、原則として窒素添加から7-12日後に1回測定を行った。また、窒素添加直後の N_2O 放出パターンの特徴をとらえるために、観音台において2000年11月から2002年9月にかけて窒素添加直後から2-3日間の連日測定を約20回実施した（図23）。まとまった降雨の後にも同様の集中測定を数回実施した。

各処理区の繰り返しチャンバー数は2であった。窒素添加後または、まとまった降雨の直後に、土壌中の N_2O の濃度を測定した。土壌ガスサンプラー（大起理化製）を、観音台調査地各区の各プロットに、表層から2.5 cm (A_0 層)、10 cm、20 cm、50 cmの位置に埋設しておき、サンプリングチューブの端から、ロック式シリンジで吸引しガスを採取した。対象深度の土壌ガスを確実に採取するために、チューブ内に残留するガスが十分に置き換わる量を予め捨て、ガスの混入を防ぐことに留意した。採取したガスは、真空バイアル瓶（5 ml）に加圧気味に移し入れ、実験室に持ち帰った後、ECD付ガスクロマトグラフィーで N_2O 濃度を測定した。

窒素添加量と N_2O 測定および N_2O プロファイル測定の手続きを表8に示す。

(4) 広域調査

調査は、2003年から2006年の夏季（7月から9月）に実施し、関東、紀伊、九州地方の合計10県59か所を対象とした（図24、表9）。調査地の決定に際しては、2002年に木平らが実施した全国渓流水調査の結果（木平ら、2006；新藤ら、2005）を参考にした。この調査は、環境省地球環境総合推進費研究の一環で行われたもので、上流に人為的な汚染源がない、まとまった面積の流域を持つ渓流を選定し、沖縄と千葉を除く45都道府県、合計約1,300か所で渓流水の採水調査を実施したものである。この調査の渓流水硝酸濃度分布結果を参考に、各地方で、硝酸イオン濃度傾斜を持つ地点が含まれるように調査流域を選定した。流域の中で実際にガス採取を行う地点は、林道から入りやすい平均的な斜面（中腹）を目途に、地図（2万5千分の1）上で設定した。調査対象地が国有林の場合は、入林許可申請を行った。また民有林等の場合には、各地域の森林管理所または森林組合を通じて許可を得た上で調査を実施した。

ガスフラックスはクローズドチャンバー法（直径21 cm、高さ15 cm、ただし、三重については直径25 cm、高さ9 cm）で測定した。チャンバーを林床に約2 cm埋め、蓋を閉めた後に6分間隔で4回、順次真空バイアル瓶にガスを採取した。ただし、三重については、開始後0分、5分、10分、20分に採取を行った。サンプルガスは、実験室に持ち帰った後に N_2O および CO_2 濃度を測定した。 N_2O 濃度測定およびフラックスの計算は、(1)と同様に行った。 CO_2 濃度は、赤外線ガス分析計（Fuji Electric, ZFUIDE23-55YYY, Japan）で測定した。現地調査は、車で移動しながら実施したため、ガス採取の時間帯は、午前8時30分から午後6時までの間となった。環境要因として、サンプリング時の温度（地表、-2 cm、-10 cm）および土壌の体積含水率（0-11 cm平均）をそれぞれ温度計（TC-850, LINE SEIKI, Japan）およびポータブルTDR（TRIME-Como, IMKO, Germany）で測定した。また、 A_0 層および鉍質土壌層（0-5 cm：茨城、福島以外、三重については0-20 cm層位別）の採取を行った。 A_0 層については、持ち帰った後に乾燥、粉碎し、炭素および窒素量を測定した。鉍質土壌は、炭素および窒素量に加えてpHおよび交換性アニオンを測定した。

ガスおよび土壌データの他に、地理データ（緯度、経

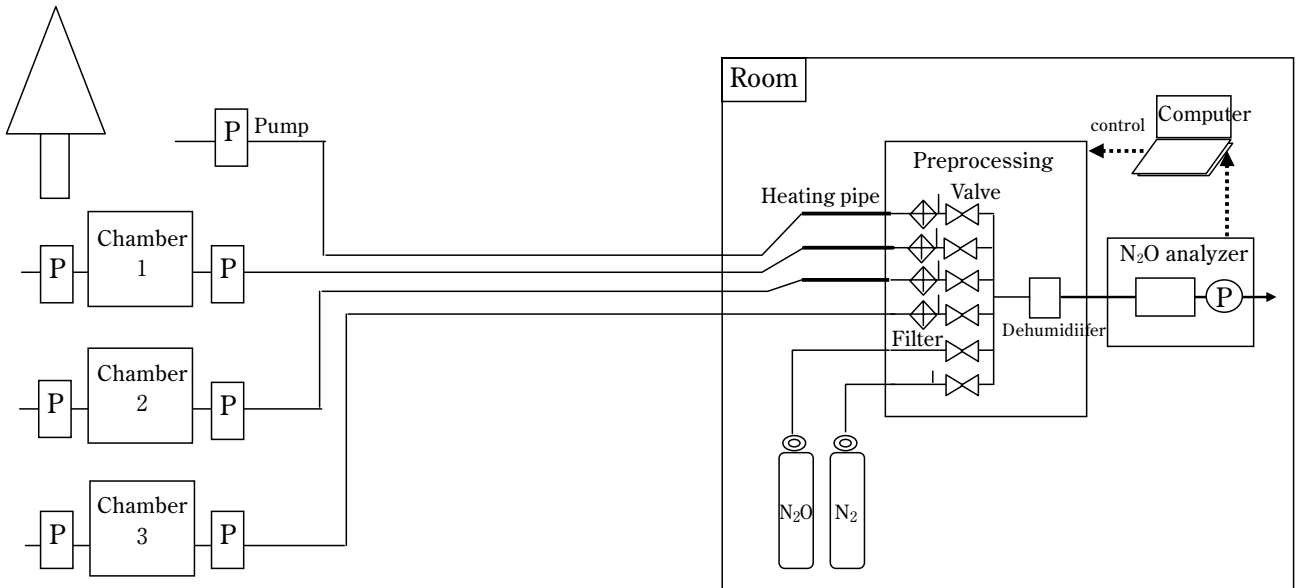


図21 N₂Oガス自動分析装置構成図
Outline of system of automatic N₂O analyzer

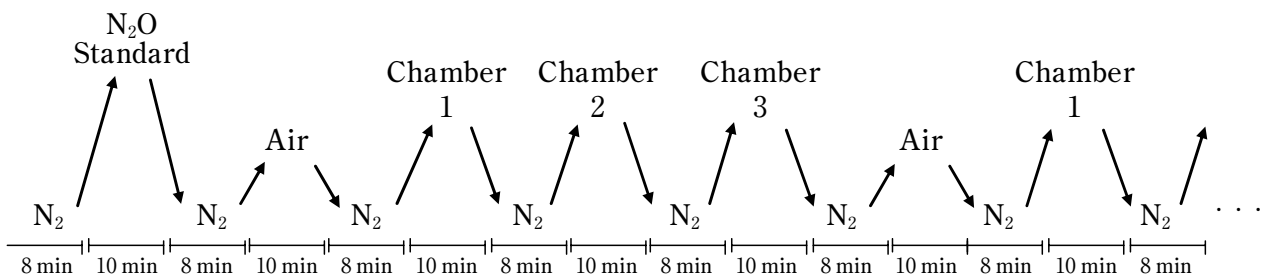


図22 N₂Oガス自動分析装置のサンプリングスケジュール例
A schedule of gas sampling for the system of automatic N₂O analyzer

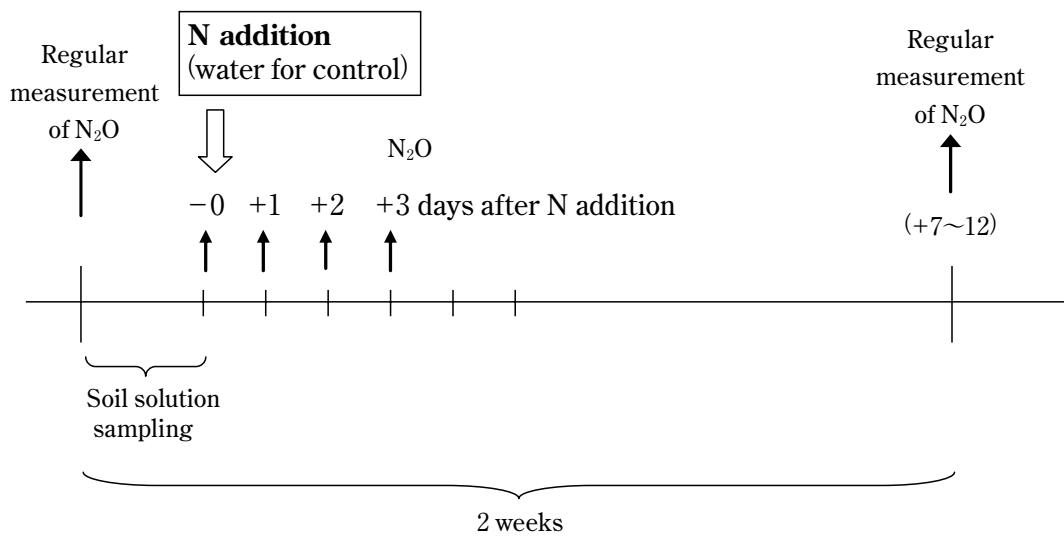


図23 窒素添加・除去実験におけるN₂O測定スケジュール
The measurement schedule of N₂O emissions in the nitrogen manipulation

表8 窒素添加および降雨イベント後のN₂OフラックスおよびN₂Oプロファイル集中測定スケジュール
The measurement schedule of N₂O emissions from the forest floor and of N₂O concentration profiles in the soil, they were conducted accompanied with the nitrogen application and the rainfall

期間	イベント (R:降水、N:窒素添加、Bは前日、 数字は経過日数、hは時間)	添加窒素 (g m ⁻²)	降水 (mm)	N ₂ O フラックス 測定	N ₂ O プロファイル 測定
2000/11/21-24	BN-N1h-N1-N2-N3	0.31		○	-
2001/1/12-15	N0h-N1-N2-N3	0.04		○	-
2001/2/1-3	N2h-N1-N2	0.39		○	-
2001/2/27-28	N1-N2	0.28		○	-
2001/4/27-29	N4h-N1-N2	0.81		○	-
2001/5/11-14	RBN-R1N3h-R1N1-R2N2-R2N3	0.23	29.5	○	-
2001/5/18-19	R2-R3	-	46.5	○	-
2001/5/25-26	N1-N2	0.40		○	-
2001/6/30-7/2	N1-N3	0.40		○	-
2001/7/17-19	BN-N1-N2	0.28		○	-
2001/7/26-27	BN-N1	0.28		○	-
2001/8/9-13	N1-N2-R1N3-R2N4	(-)	1.0	○	-
2001/8/22	R1	-	24.0	○	-
2001/9/5-9	(RBN)-N1-RN2	0.04	2.5	○	-
2001/9/19-21	BN-N1-N2	0.35		○	-
2001/10/10-12	R-R1-R2	-	132.0*	○	-
2001/10/18-20	RBN-R1N1-R2N2	0.83	15.5*	○	-
2001/12/7-12	R1N2-R2N3-R4N5-R5N6-R6N7	0.14	5.5	○(N2まで)	○
2001/12/14-22	R1-R2-R3-R4-R6-R9	-	7.5	○(R2まで)	○
2002/1/4		-	-	-	○
2002/1/18		-	-	-	○
2002/1/22-24	R1BN-R2N1-R3N2	0.12	26.0	○	○
2002/1/28-30	R1-R2-R3	-	48.5	-	○
2002/2/15		-	-	-	○
2002/2/18-20	R1BN-R2N1-R3N2	0.17	0.5	○	○
2002/3/18-19	BN-N1	0.11		-	○
2002/3/28-29	R1-R2R	-	31.0*	-	○
2002/4/10	R1	-	1.0*	-	○
2002/4/15-18	BN-N2-N3	0.09		-	○
2002/5/9-12	BN-N1-N2-N3	0.64		○	○
2002/5/20-22	BN-N1-N2	0.15		○(N1のみ)	○
2002/6/3-8	(BN)-N1-N2-N3	0.31		○	○
2002/6/17		-		○(定期)	○
2002/7/17		-		○(定期)	○
2002/7/29-8/2	(BN)-N1-N2	0.55		○	○
2002/9/2-9	(BN)-N0.5h-RN1-R1RN2-R2RN3-R3RN4	0.56	27.0	○	○

*雨量計データ欠測のためアメダスデータ (館野) を代用

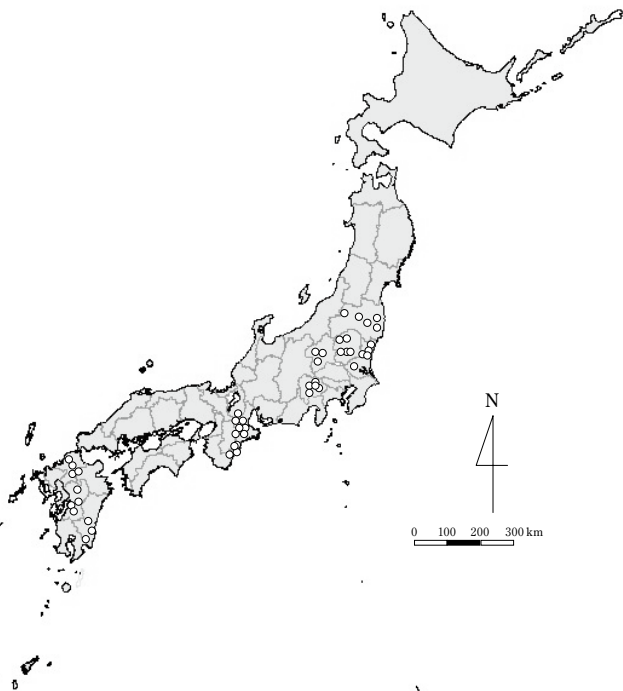


図24 広域調査実施地点
Sites location of the measurement conducted on wide region in Japan

表9 広域調査データ一覧
(項目については一部のみ示した)
Outline of the measurement conducted on wide region in Japan

県	調査地点数 (針葉樹林, 広葉樹林)	調査年月	サンプル数			
			渓流水	A ₀ 層	土壌 (0-5 cm)	N ₂ O, CO ₂
茨城1	10 (2, 8)	Jul-03	8	10	0	10
茨城2	3 (3, 0)	Sep-03	3	3	0	3
福島	5 (3, 2)	Sep-03	5	5	0	5
栃木	5 (4, 1)	Aug-04	5	5	5	5
群馬	4 (3, 1)	Aug-04	4	4	4	4
埼玉	4 (3, 1)	Jul-04	4	4	4	4
山梨	5 (3, 2)	Jul-04	5	5	5	5
福岡	5 (4, 1)	Aug-05	5	5	5	5
熊本	4 (3, 1)	Aug-05	4	4	4	4
宮崎	3 (3, 0)	Aug-05	3	3	3	3
三重	11 (9, 2)	Jul-06	11	11	11	11
合計	59 (40, 19)	0	57	59	41	59

度、標高)、地形データ(斜面方向、傾斜)、気象データ(平均気温、降水量)を解析に加えた。また、新藤ら(2005)による、肥料使用量および家畜生産量などの統計データから見積もったアンモニアの発生量と、既存のNO_x発生量データとを用いて推定した窒素沈着量分布(1km×1kmグリッド)を窒素負荷推定データとして用いた。この窒素負荷推定値に平均気温から推定した窒素固定(推定)量を加えた値、および降水量から推定した降水窒素濃度についても、N₂O放出量との関係を検証した。植生タイプについては、例えばスギ林の中には、低木として落葉広葉樹が混入している明るい林もあったが、これらは考慮せず、優占種で大まかに区切った。

データの統計解析には、JMP(SAS Campus Drive, U.S.A.)を用いた。

3 結果

(1) N₂O放出量の時空間変動

1) 平面的ばらつき(異常値—高N₂O放出)

観音台および八郷では、N₂O測定用に8個のチャンバーを設置した。両調査地では、チャンバー1、2、3および7が0.5–1m間隔で並び、観音台で約10m、八郷で約5m離れて、チャンバー4、5、6および8が同様に並ぶよう配置した。チャンバー設置直後の1999年6月から、2003年10月までのN₂O放出量推移を図25に示した(ただしマイナスの値は示していない)。観音台では、1999年6月から12月にかけて、K6で他のチャンバーに比べて10–20倍高いN₂O放出が継続的に観測された。その後、1999年11月頃から約1年間、K2で他のチャンバーの数倍高い放出が続いた。2001年9月からはK1で他の

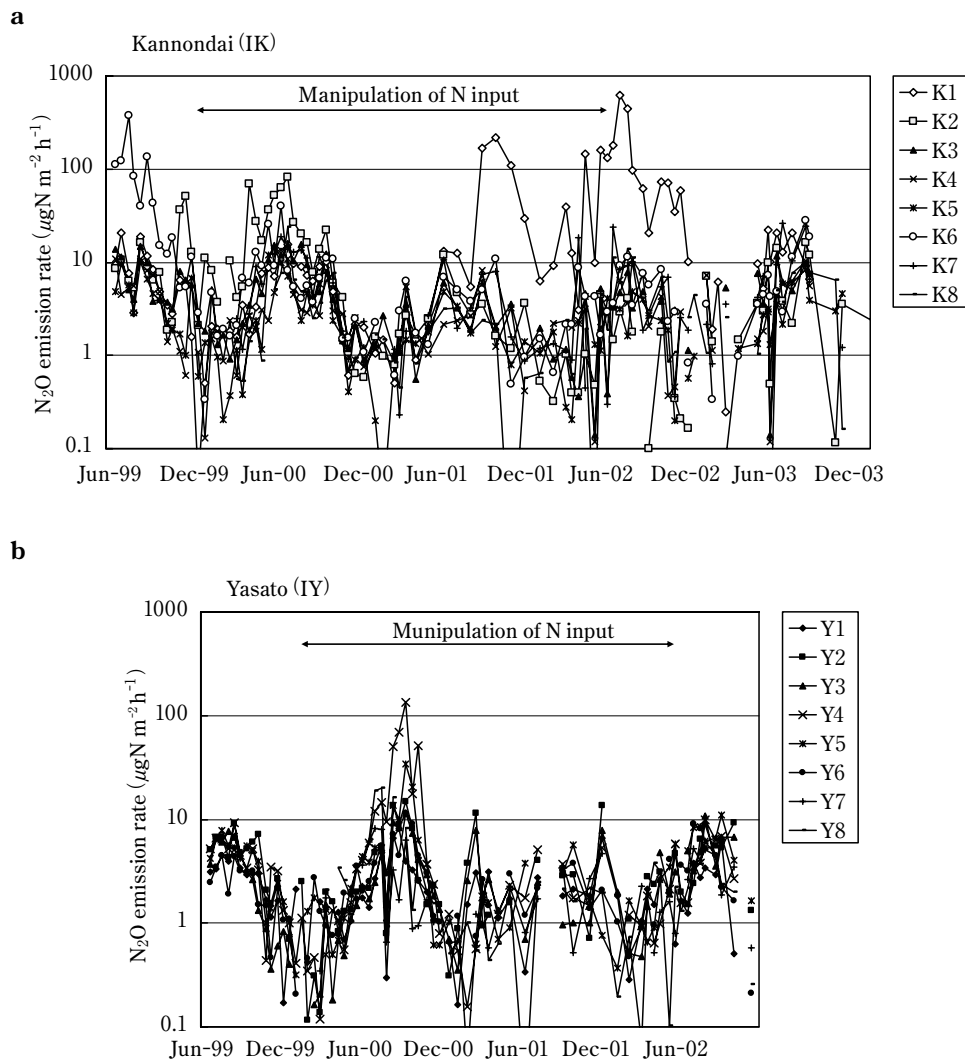


図25 観音台 (a) および八郷 (b) における各チャンバーのN₂O放出量の年変化
Temporally change of N₂O emissions from each chamber at a) Kannondai and b) Yasato

チャンパーに比べ約20–50倍高い放出が観測され、この高放出は1年間強続き、2002年7月1日には、 $624\mu\text{g N m}^{-2}\text{h}^{-1}$ という N_2O 放出量を記録した。すなわち、約4年半の測定期間中に、3つのチャンパーで、他に比べて1桁以上高い放出量が観測され、この高い放出はおよそ1年間続いた後に収束するという共通した傾向を示した。高放出のレベルについては、チャンパーによって異なったが、3つのケースのうち2つは、秋から高放出が始まり、その後は冬に低下し、4月から7月にかけて再び増加、秋から冬に向けて次第に低下という共通のパターンが確認された(図25. a)。八郷でも同様な高い N_2O 放出がみられたが、頻度は4年間で1ケースであった(図25. b)。なお、この様な高い放出期間については、 N_2O 放出レベルが他のチャンパーと大きく異なることから、窒素処理実験(Ⅲ章)における処理区間の比較を行う際には除外することとした。

2) 季節変化および年変化

観音台および八郷における3–4年の調査の結果、 N_2O 放出量は、冬に少なく夏に多いという季節的パターンを繰り返した。ただし、2001年については、夏期のピーク時の値が低めに推移し、八郷ではピークが確認できなかった。観音台について夏期の N_2O 放出量の年変化をみると、1999年と2000年に比べ2001年および2002年は少なく、2003年にはチャンパー間のばらつきは大きいと2000年程度に戻るという大まかな推移を示した(図25. a)。対象区のうち、高放出(前項参照)期間と見なされるチャンパーを除く3月から10月までの N_2O 放出量について年ごとに比較した結果、観音台では、2000年に比べ2001年および2002年は有意に少なく(それぞれp値: 0.024, 0.006)、2003年は他の年との有意差は認められず、中間的な値であった。八郷についても、調査を実施した2002年までの間、観音台とほぼ同様の傾向がみられ(図25. b)、2000年に比べ2001年で有意に少なく(p値: 0.026)、2002年は両年の中間的な値であった。 N_2O 放出量と合わせて測定した CO_2 放出量について同様の検定を行った結果、両調査地共に、年による有意な差は認められなかった(データは示していない)。また、 N_2O の高放出がみられるチャンパーにおいても、 CO_2 放出量には大きな変化は認められなかった。つまり、 CO_2 放出量は年変化が少なく、ほぼ同じ値で安定した季節変化を示すのに対し、 N_2O 放出量は、季節変化パターンはほぼ同じだが、放出量の絶対値は年により大きく変動することが明らかになった。

3) N_2O 放出量の日変化

1999年9月および10月に観音台調査地において、4時間間隔でクロズドチャンパー法による N_2O 放出量の終日測定を行った。1)で述べたとおり、この時期にチャンパーK6では、他のチャンパーに比べ常に約10倍程度多い N_2O 放出量が観測されており、1日のうちでは、午後から夕方にかけて大きな発生ピークがみられた。その他のチャンパーK1–K5では、 N_2O 放出量は同程度であり、夜間に放出量が減少する傾向がみられたが、日中の気温の高いときに必ずしも最大にならず(図26. a, b)、温度(チャンパー温度)と N_2O 放出量との間には、有意な相関はみられなかった。次に、 N_2O 自動分析装置を用いて断続的に実施した、約1時間毎の N_2O フラックス測定から、日変化を検討した。 N_2O 計の出力例を図27に示す。これらの測定値は、温度補正を行った後に検量線から N_2O 濃度を求め、各チャンパーの N_2O 放出量を計算した。2003年4月26日から5月3日の期間に実施した連続測定結果を、林内降水や温度(調査地近くの観測露場データ)と合わせて図28に示した。ただし、4月30日11時30分から5月1日9時の間は、降雨があったため測定は中断した。また、K3(ch3)については、4月28日から4月30日まで、ポンプトラブルにより欠測となった。K1(ch1)は、他のチャンパーに比べ N_2O 放出量が多かったが、特に4月27日午前4時頃、および4月29日午前3時頃に放出量が急増した。その後4–5時間かけて N_2O 放出量は徐々に減少した(図28. a)。5月3日の午後3時頃にも急激な放出量の増加があった。これらの N_2O 放出量急増の出現に、温度との関係はみられなかった。K2(ch2)およびK3(ch3)では、温度が高い日中に N_2O 放出量が多い傾向があった。4月30日に約15mmの降水があったが、降水イベントの前後で N_2O 放出量に大きな変化はなかった。8月17日から23日までの測定(図28. b)では、K2(ch2)およびK3(ch3)で欠測が多かったが、K1(ch1)の N_2O 放出量は、5日間安定した値(約 $8\mu\text{g N m}^{-2}\text{h}^{-1}$)を示した。この時期は、雨または曇りの天気が続いており、8月21日には7日ぶりに1時間以上の日照時間があった。この日は、気温の日変化と N_2O 放出量の変化が良く一致しており、K1(ch1)およびK2(ch2)で温度との相関係数がそれぞれ0.54および0.95であった。 N_2O 放出量の日内変動は、日内の気温変化と良く一致する場合があるが、一方で N_2O 放出のピークが気温のピークから12時間±2時間程度遅れて生じる場合もあった。以上の結果から、 N_2O 放出量は、温度のみに対応して変化するのではなく、温度の変化に伴って変化する土壤中の環境要

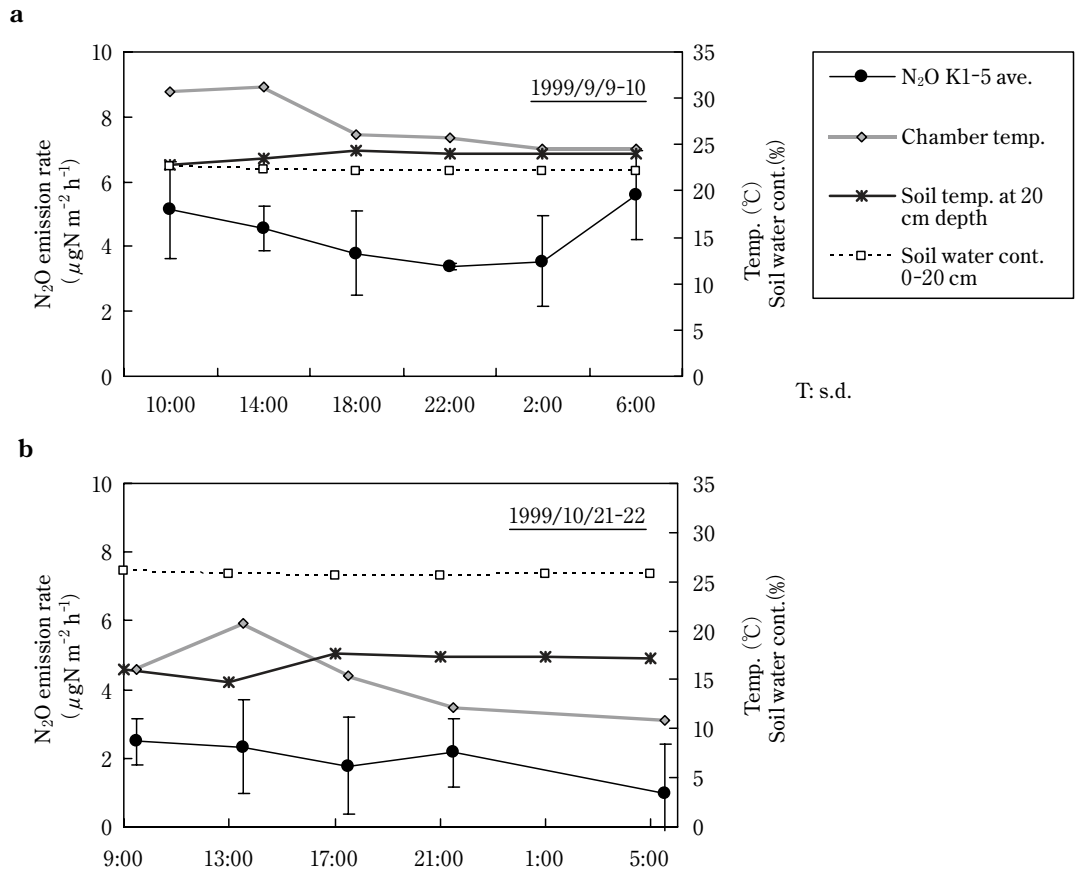


図26 観音台におけるN₂O放出量の日変化と環境要因
 a : 1999年9月9日10時から翌日6時まで
 b : 1999年10月21日9時半から翌日5時半まで
 Daily change of N₂O emission rate in Kannondai te at a) September and b) October 1999

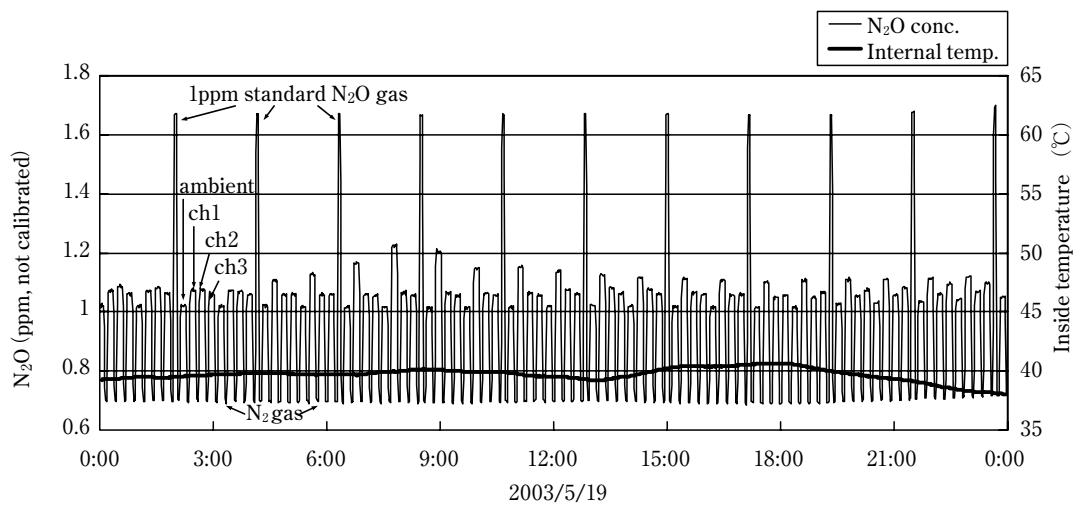


図27 N₂O連続測定装置の出力データ例
 Data example of the automatic N₂O analysing system

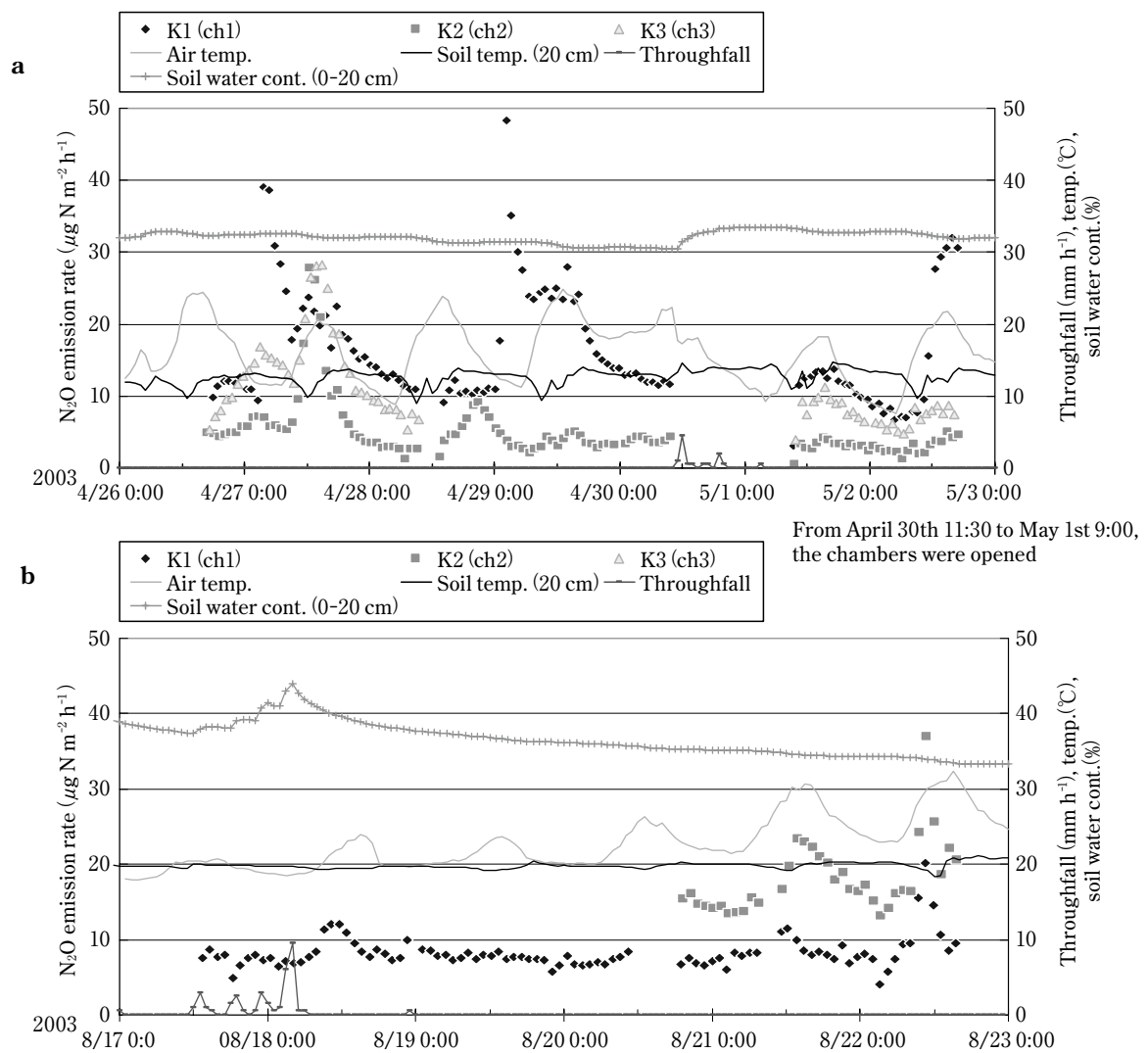


図28 N₂O連続測定装置によるN₂O放出量測定
 a: 4-5月、b: 8月のK1 (ch1)、K2 (ch2)、K3 (ch3)
 気温は調査地近くの観測露場データ
 N₂O emission rates measured by the automatic N₂O analyzing system at Kannondai site

因（例えば土壤の水分状態）との相互作用によってその生成、放出過程が影響されることが示唆された。

図29に2003年4月から9月までの、クローズドチャンバー法と連続測定法による測定値を比較した。ただし、連続測定データは、約1時間毎の測定データの日平均値を示した。クローズドチャンバー法は、10時から14時の間に10分間隔で4回採取したガス濃度から求めた1つのフラックス値を用いた。異なる2つの測定方法で求めたN₂O放出量を比較すると、クローズドチャンバー法の値が高い方に偏る場合があったが、季節毎の数値レベルやチャンバー間の大小関係は、両測定方法でほぼ一致した。すなわち、K1で現れたような（図28. a）夜間に起こる突発的な放出量増加については捉えることができ

ないが、昼間に放出量増加が起こるような緩やかな日変化については、10時から14時の間に行ったクローズドチャンバー法による測定値で、日平均値を代用できることが示された。定期的な測定で得られる値は、代表値としての不確定要素は多いが、多点で多時期に観測することにより、偏りの小さいデータを得られことが示された。一方で、本研究で用いた自動測定システムでは、測定中にチャンバーの蓋を閉めた状態が続くため、測定が長期にわたると、チャンバー内の環境が、野外と異なってくるという問題点がある。土壤水分や温度などのチャンバー内の環境条件の検証を行う必要がある。

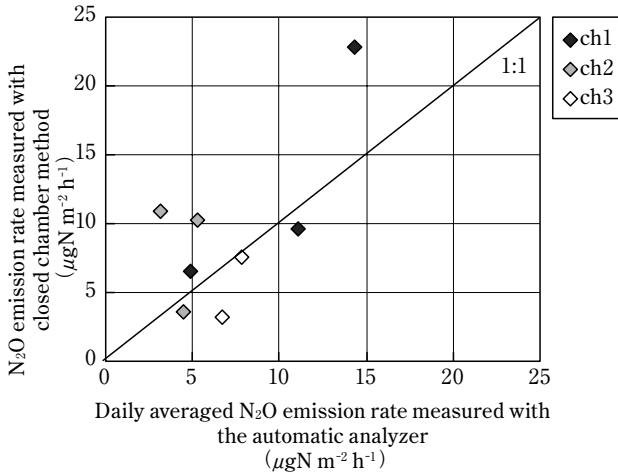


図29 連続測定装置とクロードチャンバー法によるN₂O放出量の比較
連続測定装置による測定値は、1時間毎データの日平均値、クロードチャンバー法による測定値は、11時～14時の間の1回測定値
Comparison of N₂O emission rates at Kannondai site measured with different methods Values measured with an automatic N₂O analyzing system are averages of hourly 24 data. Values measured with closed chamber method represent data measured once during 11 o'clock and 14 o'clock

(2) 森林毎のN₂O放出特性

1) 観音台および八郷

観音台（マツ林）における4年間（2000–2003年）のN₂O放出量（対象区）の平均は、 $4.6 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ であった。夏季に多く、冬季に少ない季節変化を示したが、年変動が大きく、年平均放出量の変動係数は68%であった（図30. a）。また、前述のとおり、特別に高いN₂O放出がみられるケースが4年間で3回（年約7.5%の割合）起こった。

八郷（落葉広葉樹林）における3年間（2000–2002年）のN₂O放出量の平均は、 $2.8 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ （変動係数25%）であった。観音台と同様な季節変化を示したが、観音台に比べ値はやや低めに推移しており、年によっては夏季のピークがみられない場合があった。また、冬季にも発生ピークがみられる場合があった（図30. b）。

2) 奥日光

積雪期を除き、2000年7月から2001年10月の間に測定を実施した。標高2300mの尾根付近に位置する前白根調査地では、N₂O放出量は非常に少なく、測定期間の平均は、 $1.1 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ （ほとんどが検出限界以下）で、夏季にもほとんど放出がみられなかった（図30. d）。一方、斜面下部に位置する弓張峠（標高1420m）では、図30. cに示した通り、初夏に $20-30 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ の非常に

大きいN₂O放出が捉えられた。5月から9月中旬にかけても大きい放出がみられ、測定期間の平均は、 $7.0 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ であった（年変動係数は12%）。

奥日光では、積雪期が長く、融雪期の養分移動が大きいこと、植物の生育期間が短いことなど冷温帯から亜寒帯にかけての特徴がみられる。N₂Oの放出パターンも、温帯の観音台や八郷とは異なっていた。前白根と弓張峠でN₂Oの放出量に大きな違いがみられた原因としては、気候条件および地形の違いに起因する植物量や土壌有機物量の違い、土壌水分条件の違いが原因の一つとして挙げられる（リターフォールについてはV章に示す）。

3) 乗鞍

林床からのN₂O放出量は、乗鞍の3地点（SC:針葉樹、SDおよびSU:落葉広葉樹）いずれにおいても非常に少なかった（図30. e, f）。本研究における測定方法では、ガスのサンプリング間隔や気温により多少変わるが、乗鞍調査地の場合 $1.6-2.5 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ あたりが検出限界となった。1か所3チャンバーの測定において1チャンバー以上で放出が観測できたのは、乗鞍SCでは、2004年5月に1チャンバーで $3.5 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、乗鞍SDで8月下旬に1チャンバーで $2.7 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ の放出がみられただけであった。

(3) 窒素添加の影響

1) 定期測定によるN₂O放出量評価

対照区のN₂O放出量は、夏場に多く冬場に少ない傾向がみられた（観音台 $0.4-7.6 \mu\text{g N m}^{-2} \text{h}^{-1}$ 、八郷 $0.0-5.7$ 、ただし2000年11月–2002年10月）。窒素等の散布後、7日以上を経過してから実施した定期測定では、観音台および八郷のいずれにおいても、N₂O放出量は対象区と処理区はよく似た季節変化を示しながら推移した。（図31. a, 32）。観音台および八郷について、窒素添加区と対照区とのN₂O放出量の比を比較した（図33）ところ、観音台では、N₂O放出量の少ない時期に添加区でやや多い傾向がみられた。2年半の平均値は対照区に比べ窒素添加区で有意に多いという結果であった（ $p < 0.0001$ ）。しかし、窒素添加処理前9か月間の値を比較してみても、窒素添加処理を行ったチャンバーの方が、対象区チャンバーに比べ高い値であった（ $p = 0.001$ ）。このことから、窒素添加処理期間にみられたN₂O放出量の差は、チャンバー特性の影響が大きく、窒素添加処理の効果を判定できなかった。そこで、それぞれのチャンバーについて、窒素添加処理前と処理後の値を比較したところ（分散分析）、対象区および窒素添加区のいずれも、処

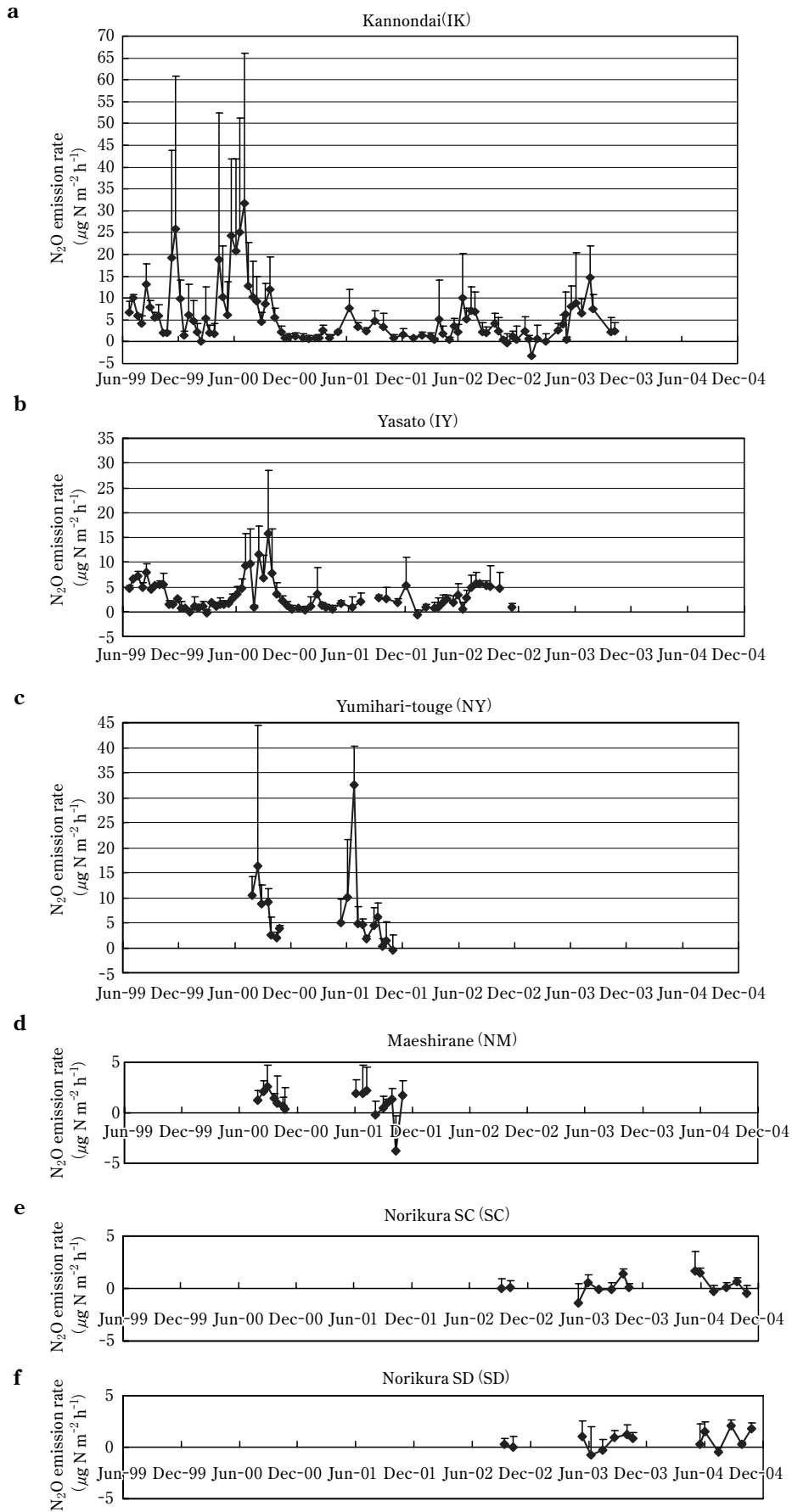


図30 各林分におけるN₂O放出量
 図中T線は標準偏差 (n = 2~4)
 N₂O emissions from the forest floor in each site

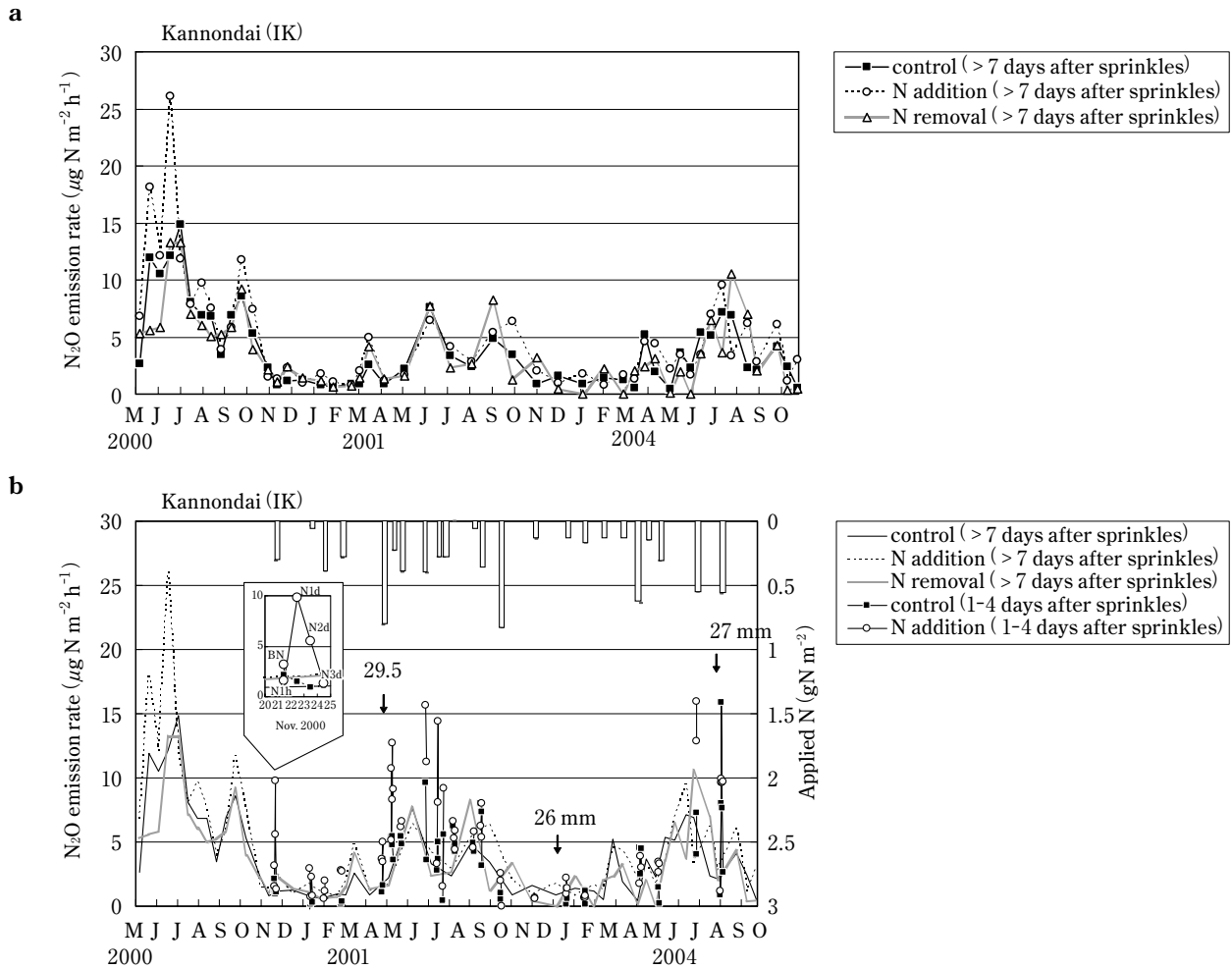


図31 窒素添加・除去区におけるN₂O放出量（観音台）
 a：窒素（又は水、陽イオン）散布後7日以上経過した日の値、b：印のない線はaと同じ物。■と○の印は、それぞれ水または窒素散布後1-4日後の値。図中の矢印は、処理の直前に日降水量が20mm以上のもの、数字は日降水量。垂れ下がり□は、添加したタイミングと窒素量を表す。図中の小グラフは、2000/11/20-25の拡大図、BN：窒素添加直前、N1h：窒素添加1時間後、N1d：窒素添加1日後、N2d：窒素添加2日後、N3d：窒素添加3日後
 N₂O emission rate in nitrogen manipulation plots at Kannondai.
 a: values of more than 7 days after of nitrogen (or water, cations) sprinkles in each plot. b: lines with no mark represent same as (a). Marks (■, ○) represent values of 1-4 days after of water or nitrogen sprinkles. Allow in (b) represent heavy rain (over 20 mm day⁻¹) at just before sprinkles. Allow in Boxes under the top line represent the amount and timing of nitrogen applied
 A small graph in figure shows the close-up of 2001/11/20-25. BN: before addition of N, N1h: one hour after N applied, N1d - N3d: 1-3 days after N applied

理前後で有意な差は認められなかった（それぞれ、 $p = 0.21, 0.65$ ）。一方、八郷では、対象区と窒素添加区の平均値に有意な差は認められなかった（ $p = 0.11$ ）。すなわち、林内降水の2倍の窒素添加処理の結果、処理後7日以降のN₂O放出量には、観音台および八郷において、有意な影響は認められなかった。ただし、対象区チャンバーの一つ（K2）で他のチャンバーに比べN₂O放出量が大きく、前述のN₂O高放出区と判断した。その他にも、窒

素添加区の一つ（K4）と窒素除去区の一つ（K1）および八郷の除去チャンバーの一つ（Y4）についても、窒素添加・除去実験期間中に高放出が出現した。高放出は、窒素の添加または除去処理とは異なる影響に起因すると考えられるため、これらのチャンバーについては、高放出期間に限り処理毎の平均値計算から除いた。

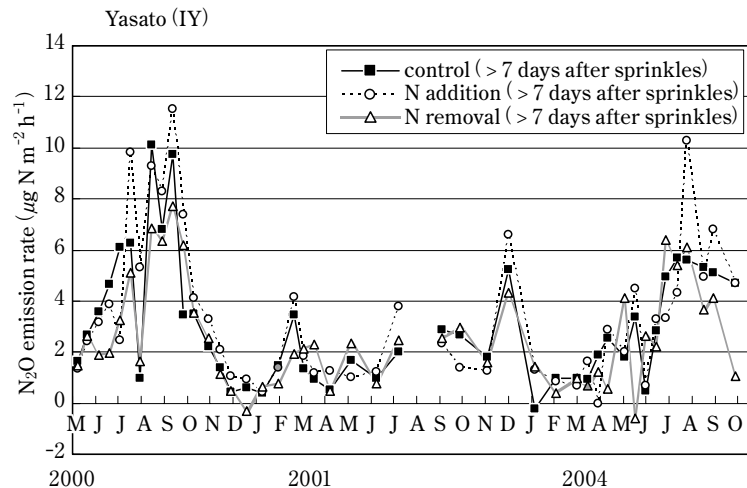


図32 窒素添加・除去区における N_2O 放出量（八郷）
窒素（又は水、陽イオン）散布後7日以上経過した日の値
 N_2O emission rate in nitrogen manipulation plots at Yasato.
Values of more than 7 days after of nitrogen (or water, cations) sprinkles in each plot.

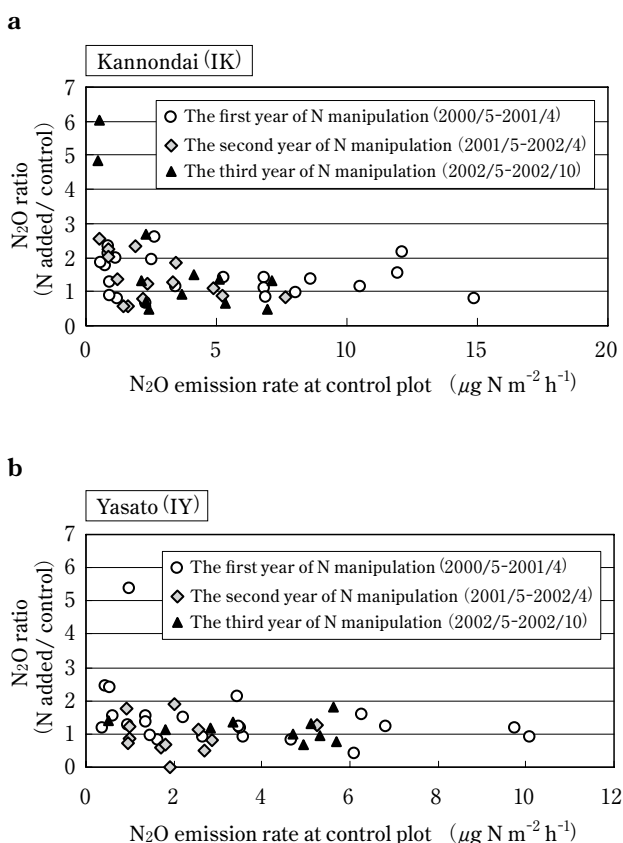


図33 窒素添加区と対象区の N_2O 放出量比
窒素又は水散布後7日以上経過した日の値で比較
a: 観音台, b: 八郷
Ratio of N_2O emission rate in nitrogen manipulation plots to that of control plots. Values of more than 7 days after of nitrogen (or water) applied in each plot.

2) 窒素添加直後の N_2O 放出特性

2000年11月から2002年9月にかけて21回行った窒素添加直後の集中的な N_2O 測定の結果、ほとんどの窒素添加処理で、1-2日後に N_2O 放出ピークが現れることが確認された（図31. b）。 N_2O 放出量は、窒素添加の数時間後に比べて1日経過後の方が多く、その後急激に減少するパターンが多くみられた。例えば、2000年11月21日には、窒素成分で 0.31 g m^{-2} 添加したが、添加直前の N_2O 放出量は、 $3.2 \mu\text{g N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ 、窒素添加1時間後には、 $1.6 \mu\text{g N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であったが、添加1日後には、 $10 \mu\text{g N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ と、添加前の約3倍に増加した（図31.b）。窒素添加溶液は、窒素濃度としては約10-200 ppmとなり、観音台における林内降水（平均6.5 ppm）と比べるとかなり高濃度だが、小雨時には50 ppmを超える林内降水も観測されている。1回の窒素添加量は $0.04-0.83 \text{ g m}^{-2}$ と林内雨窒素負荷量に対応して変動したが、添加直後の N_2O 放出量は窒素添加量と必ずしも対応しておらず、1月、2月に放出増加は、平均的に小さかった。

3) 土壌中 N_2O 濃度プロファイル

N_2O 濃度プロファイルは、-50 cmで濃度が最も高く、表層付近（-2.5 cm）で低い傾向にあった。しかし、表層の方が濃度が高くなる場合もあった。 N_2O 放出量が少ない時には、土壌の N_2O 濃度プロファイルは-2.5 cmから-50 cmまでの濃度差が20-30 ppb以下と非常に小さかった。また、2002年9月上旬に降雨時に、K2では N_2O 放出量が $25 \mu\text{g N m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ と急激に増加したが、このときの

N₂O濃度プロファイルは、-50 cmで最も濃度が高く、浅部に向かうにつれて濃度が減少し、-2.5 cmから-50 cmまでの濃度差が200 ppbを超えていた。対象区K2プロットでは、2.5 cm-50 cm間の濃度差とN₂O放出量との間に有意な正の相関がみられた ($r = 0.71$, $p < 0.01$) (図34)。

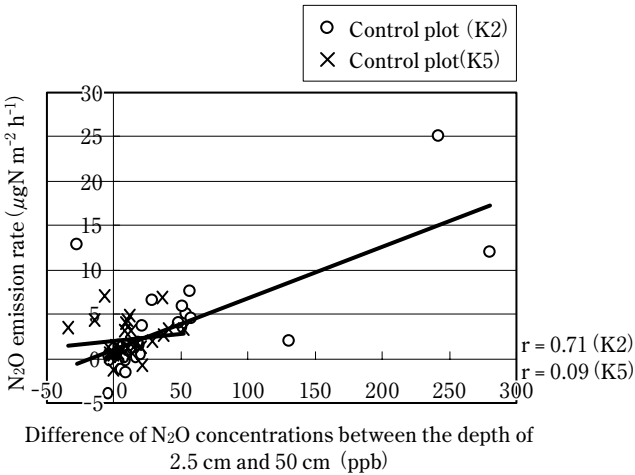


図34 観音台における深度間 (2.5 cmと50 cm) のN₂O濃度差とN₂O放出量との関係
Comparison of the N₂O concentration difference between two depth of soil layer of 2.5 cm and 50 cm to the N₂O emission rate

もう一方の対象区K5では、-2.5 cmから-50 cmまでの濃度差が顕著に現れず、N₂O放出量との間に有意な相関は認められなかった ($r = 0.09$, $p = 0.65$)。N₂O濃度プロファイルの変化とN₂O放出量との関係を検証するために、7月下旬から8月上旬と9月上旬の2時期についてプロファイルの詳細データを示した (図35、36)。対象区 (脱イオン水添加) および窒素添加区については、2チャンバーの平均値を、また、高放出がみられたK1 (窒素除去区) についても参考データとして示した。2002年7月下旬には、窒素添加区で添加後1-2日後にN₂O放出量が増加したが、このとき窒素添加の1日後に-10 cm層のN₂O濃度が上昇し、2日後には-10 cmの濃度が低下し、-2.5 cm濃度が上昇するという濃度プロファイルの変化があった (図35)。添加された窒素の一部が、鉍質土壌の浅い部分で、硝化等によりN₂Oが生成されたと考えられる。しかし、脱イオン水を添加した対象区でも、-10 cmのN₂O濃度がやや上昇していることから、添加された水分の影響も考えられる。N₂O放出量自体は窒素添加区で多いことから、プロファイル測定が困難な表層部分 (A₀層) で添加窒素由来のN₂O発生が起こっている可能性も考えられる。高放出時期に当たる窒素除去区 (K1) でも、表層か

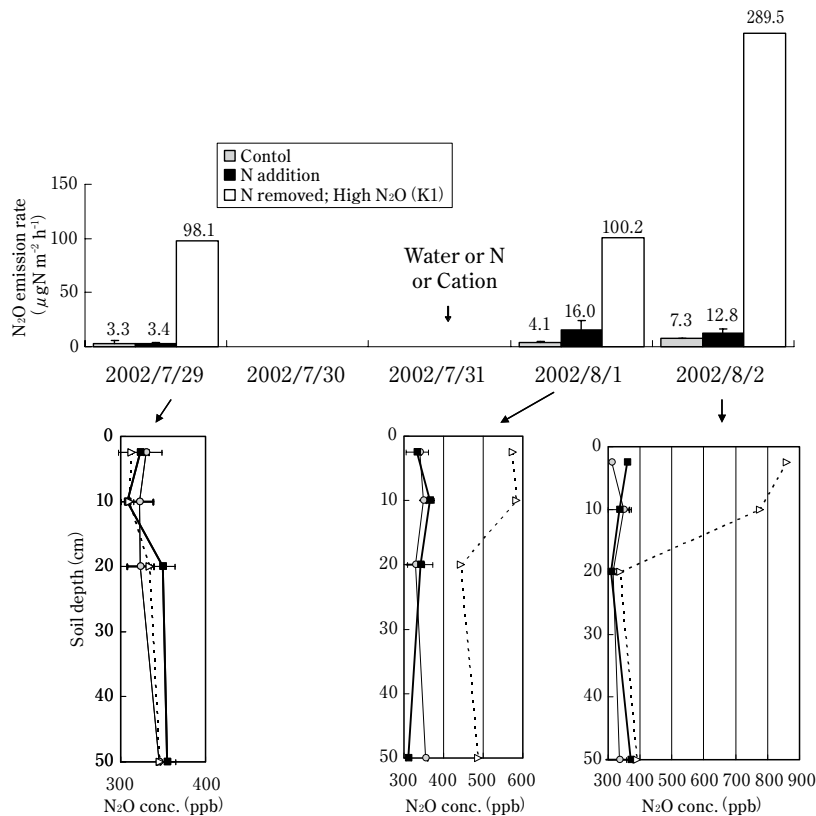


図35 観音台におけるN₂O放出量と土壌中N₂O濃度プロファイル (2002/7/29 - 8/2)
図中の矢印は、脱イオン水または窒素、塩基添加 (Water or N or Cation) イベントを示す
N₂O emission rates and N₂O conc. profiles in the soil at Kannondai site during 7/29 and 8/2

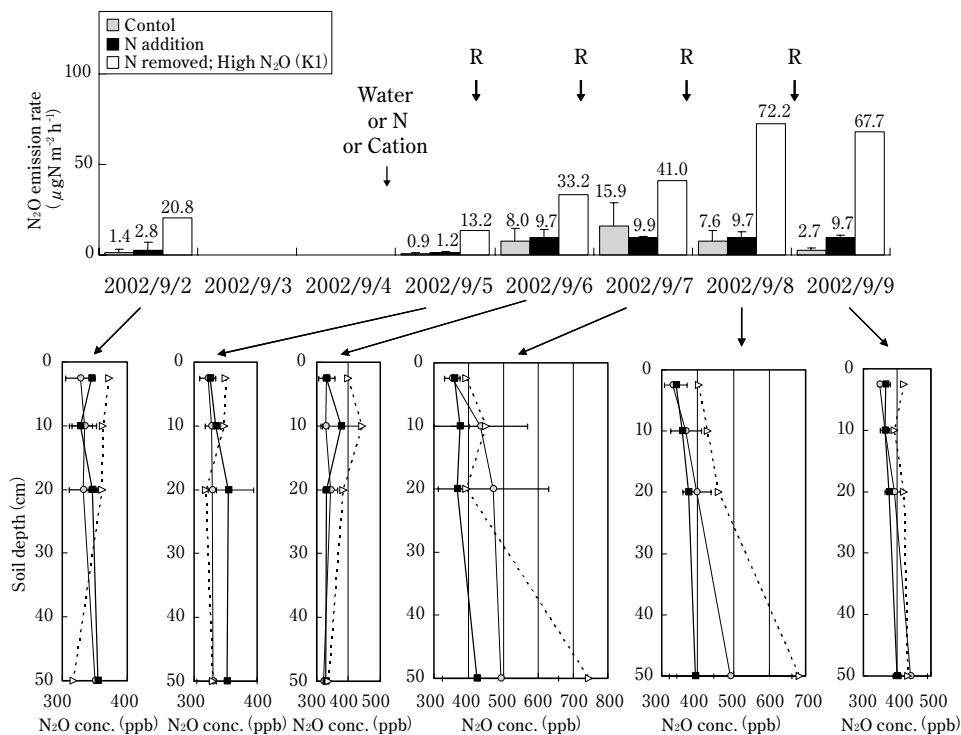


図36 観音台における N_2O 放出量と土壌中 N_2O 濃度プロファイル (2002/9/2 - 9/9)
 図中の矢印は、脱イオン水または窒素、塩基添加 (Water or N or Cation) や降水 (R) イベントを示す
 N_2O emission rates and N_2O conc. profiles in the soil at Kannondai site during 9/2 and 9/9

ら10 cmまでの N_2O 濃度の増加が顕著であった。これらのデータから、夏季の少雨期にあたる時期には、表層付近(0から10 cm)での反応が N_2O 放出に寄与していると考えられた。一方、2002年9月上旬には、窒素等を添加した翌日から降雨が4日間続いたが、窒素等添加の1日後に、-10 cmの N_2O 濃度が著しく上昇した(図36)。2日後以降は、-50 cmの N_2O 濃度が上昇し、 N_2O 放出量も高い値を維持した。対象区でも、同様に散布1日後の降雨直後から、 N_2O 放出量が増加したことから、降雨による影響が大きいと考えられる。降雨2日目には、ばらつきはあるが、-50 cmの N_2O 濃度がいずれの区でも上昇しており(図36)、降水浸透により土壌深部が N_2O 生成に適した条件になり、増加した N_2O が表層に向かって拡散した結果、高い N_2O 放出が生じたと推測される。降水4日目(9/9)には、-50 cmの N_2O 濃度がやや減少傾向を示したが、 N_2O 放出量は依然大きく、深度間の N_2O 濃度差と放出量の関係には、時間差あることが示された。これらの2時期の N_2O 放出では、プロファイル変化パターンが異なっており、土壌水分などの土壌環境状況の違いにより、 N_2O の発生深度が異なることが示唆された。

(4) N_2O 放出の地域間差異

1) 広域調査の要因解析

広域調査で得た測定データと、推定値を含む統計データ等とを合わせ、各因子間の単相関を求めた結果を表10に示す。調査地点の平均気温は、測定時の地温(10 cm)と高い正の相関($r=0.83$, $p<0.001$)を示した。このことから、夏季に実施した短期一斉調査で測定した地温は、各調査地の年平均気温の差をある程度反映したものになっている。

窒素に関する項目においても、地理、気象情報と関係があるものがあり、渓流水のアンモニウムイオン濃度と鈳質土壌の窒素および硝酸イオン濃度は、標高との間のそれぞれ負および正の有意な相関があった。また、鈳質土壌の窒素濃度は、年平均気温および地温(10 cm)との間に有意な負の相関がみられた。

窒素負荷量推定値(新藤ら, 2005)および推定降水硝酸イオン濃度は、実測した渓流水の硝酸イオン濃度および鈳質土壌の硝酸イオン濃度との間に、有意な正の相関を示した。この他に、渓流水のアンモニウムイオン濃度と渓流水のpHの間に負の関係($r=-0.54$, $p<0.001$)が、

表10 広域調査における相関係数一覧
Correlation coefficient of factors corrected in wide region survey in Japan

	相関係数: r	地理情報				気象情報		窒素負荷推定値			植生	渓流水				A ₀ 層		鉍質土壌 0-5 cm			林床ガス放出		測定時土壌条件				
		緯度	経度	標高	傾斜	平均気温	年降水量	窒素負荷量 (+N固定)	窒素負荷量	雨NO ₃ 濃度	植生 (針・広)	pH (H ₂ O)	NH ₄ ⁺ 濃度	NO ₃ ⁻ 濃度	N (無機態)濃度	C/N	N%	C/N	N%	NO ₃ ⁻ 濃度	N ₂ O	CO ₂	土壌 0cm 温度	土壌 10cm 温度	土壌 水分		
地理情報	緯度																										
	経度	0.94***																									
	標高	0.17	0.09																								
	傾斜	-0.16	-0.16	0.26*																							
気象情報	平均気温	-0.75***	-0.67***	-0.72***	-0.04																						
	年降水量	-0.68***	-0.59***	-0.33*	0.03	0.55***																					
窒素負荷推定値	窒素負荷量 (+N固定)	0.16	0.14	0.22	0.18	-0.14	-0.38**																				
	窒素負荷量	0.18	0.16	0.18	0.14	-0.13	-0.39**	0.92***																			
	雨NO ₃ 濃度	0.37**	0.37**	0.20	0.14	-0.21	-0.67***	0.7***	0.78***																		
植生	植生 (針・広)	n.s.	s.	s.	n.s.	s.	s.	n.s.	n.s.	n.s.																	
	pH (H ₂ O)	-0.31*	-0.33*	0.17	0.24	0.22	-0.16	0.25	0.21	0.33*	s.																
渓流水	NH ₄ ⁺ 濃度	-0.06	0.01	-0.55***	-0.48***	0.28	0.46**	-0.37*	-0.28	-0.54***	n.s.	-0.54***															
	NO ₃ ⁻ 濃度	0.06	0.01	-0.09	0.18	0.18	-0.36*	0.38**	0.44***	0.51***	n.s.	0.34*	-0.34*														
	N(無機態)濃度	0.07	0.02	-0.12	0.14	0.18	-0.37**	0.38**	0.44***	0.49***	n.s.	0.3*	-0.25	0.99***													
	C/N	-0.08	-0.07	0.09	0.22	0.01	-0.16	0.34*	0.35**	0.32*	s.	0.23	-0.18	0.27*	0.28*												
A ₀ 層	N%	0.16	0.13	-0.09	-0.35**	-0.07	0.14	-0.29*	-0.24	-0.22	s.	-0.35*	0.18	-0.17	-0.17	-0.8***											
	C/N	0.22	0.35*	-0.01	-0.14	-0.08	-0.13	-0.25	-0.28	-0.01	s.	-0.12	-0.30	-0.17	-0.20	-0.16	0.14										
鉍質土壌 0-5 cm	N%	0.32*	0.24	0.62***	-0.09	-0.54***	-0.12	0.29	0.29	0.08	s.	-0.27	-0.06	-0.28	-0.26	0.03	0.06	-0.16									
	NO ₃ ⁻ 濃度	0.42**	0.29*	0.51***	0.07	-0.56***	-0.41**	0.55***	0.54***	0.42**	n.s.	0.08	-0.32*	0.10	0.09	0.09	-0.05	-0.15	0.75***								
	N ₂ O	-0.12	-0.07	-0.07	-0.17	0.18	0.06	0.27	0.26*	0.15	n.s.	-0.05	-0.05	0.25	0.25	0.08	0.09	-0.24	-0.03	0.13							
林床ガス放出	CO ₂	0.06	0.08	-0.04	-0.10	0.00	0.11	0.01	-0.05	-0.06	n.s.	-0.43**	0.10	-0.17	-0.17	-0.20	0.23	0.31	0.17	0.09	0.15						
	土壌0cm温度	-0.67***	-0.68***	-0.08	0.3*	0.58***	0.38**	0.15	0.15	0.16	s.	0.42**	-0.39**	0.24	0.20	0.23	-0.17	-0.20	-0.38*	-0.12	0.09	-0.02					
測定時土壌条件	土壌10cm温度	-0.72***	-0.71***	-0.31*	0.28	0.82***	0.63***	-0.47**	-0.38**	-0.46**	s.	0.46**	-0.28	0.03	-0.02	-0.04	-0.04	0.02	-0.6***	-0.32*	-0.07	-0.04	0.86***				
	土壌水分	0.24*	0.24	-0.09	-0.3*	-0.12	0.04	0.03	0.03	-0.20	n.s.	-0.28	0.19	-0.04	-0.04	-0.16	0.11	0.02	0.12	0.22	0.27*	0.18	-0.25	-0.17			

ただし 30 ≤ n ≤ 59. *: p<0.05. **: p<0.01. ***: p<0.001

また鉍質土壌の硝酸濃度と全窒素量、A₀層のC/NとN% というように、関連の深い要因同士で高い相関がみられた (表10)。

広域調査 (2003-2006年) において、N₂O放出量と単独で相関が有意な要因は、窒素負荷量推定値と土壌の体積含水率であったが、いずれも有意水準は低く、相関係数も小さかった (表10)。ここで、窒素負荷量推定値が年間値であるのに対し、N₂Oは一時期データであることから、データの代表性を検証する必要がある。既知の周年測定データを用いて求めた、年平均N₂O放出量と、夏季 (7-9月) 平均N₂O放出量の平均値との関係をプロットし、図37に示した。図中の奥日光 (NY) で、他のサイトに比べ、夏季のN₂O放出量が年平均に対し高かったが、その他では、夏のN₂O放出量が多い地点では、年平均値も大きい傾向がみられた。積雪量の大きい奥日光 (NY) 調査地では、融雪時のN₂O放出量の年間値に占め

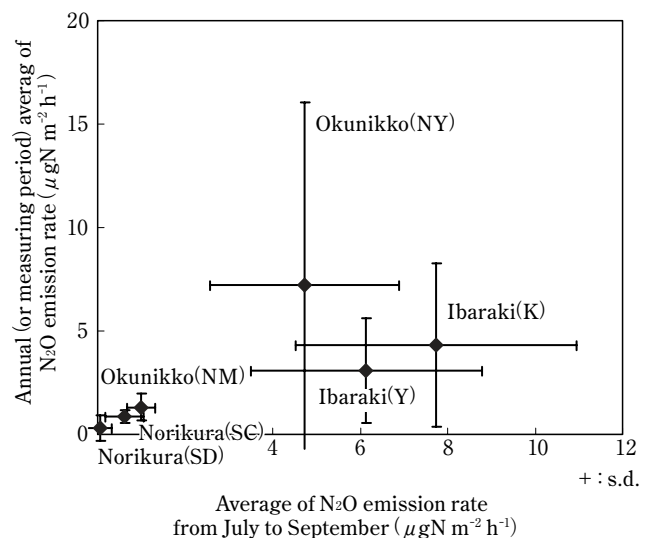


図37 夏季N₂Oと年平均N₂Oとの関係
The relation of N₂O emission rates between the average during the summer season and the annual average

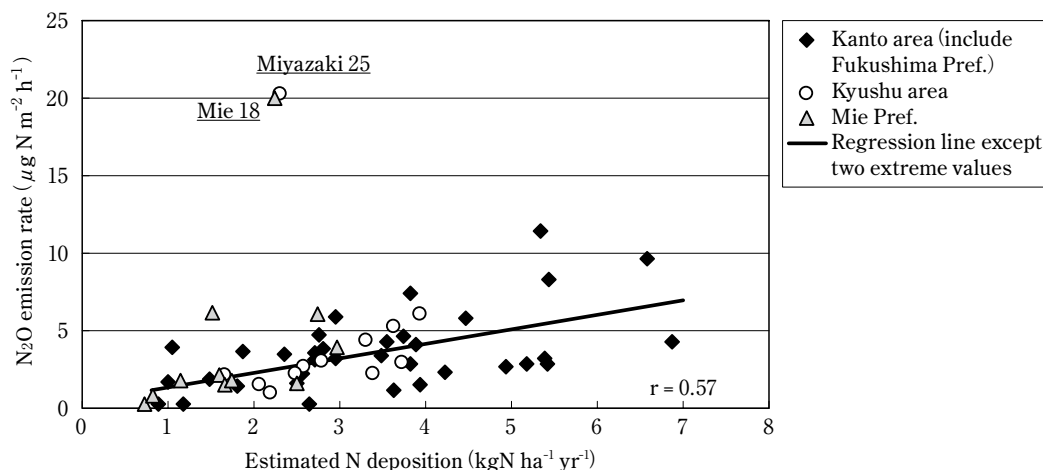


図38 推定窒素負荷量とN₂O放出量（夏季一時期データ）
Estimated nitrogen deposition rates and N₂O emission from forest floor

る割合が大きかったが、あまり積雪のない温帯林では、微生物活性の高まる夏季にN₂O放出量が多くなることから（図30）、無機化や硝化などに関係する地点ごとの窒素状況の違いがN₂O放出量の差として現れる可能性が大きい。

N₂O測定データについて、測定時の気象条件について吟味したところ、他の測定値から外れて特に高い値を示した2点について、測定直前に少量の雨が降り始めたとの記録があり、初期降雨の影響を受けている可能性が考えられた。この2点（宮崎25および三重18）を除き、各要因との相関係数を計算し直すと、窒素負荷推定値との相関係数が高くなり、有意水準も上昇した（ $r = 0.57$, $p < 0.001$ ）（図38）。土壌水分との関係については、2点を除いたことによる変化は小さかった。

2) 森林タイプ

日本の森林は、約4割を人工林が占めるので、地図上でランダムに選定した本研究の調査地においても、人工林の割合が7割弱と大きかった。また、分布については、自然林が残っているのは、河畔や急傾斜の斜面など、植林が困難な場所が多かった。森林タイプや構成樹種により、植生-土壌系の物質循環が異なることが予想されたが、本研究の調査対象地では、スギ植林が半数以上を占め、落葉広葉樹が約3割、その他には、マツ林、ヒノキ林、カラマツ林、常緑広葉樹林が数点ずつであり、樹種間の構成には偏りがあった。比較的サンプル数の多いスギ林と落葉広葉樹林について、樹種の影響が有意と判定されたのは、A₀層のC/N比と渓流水のpHの2項目であり（表10）、スギ林で広葉樹林に比べA₀層のC/Nが高く、また渓流水のpHも高い傾向にあった。

4 考察—N₂O放出量と環境要因との関係—

(1) 温度

フィールドで測定された既往研究では、N₂O放出量が温度の影響を受ける場合と、温度に影響されない場合との両方が報告されている。Bowmanら（1993）は、N₂O放出に対する温度の影響をレビューし、Q₁₀が5℃で5、30℃で1.5という値を取ることを示した。一方で、雨期・乾期のサイクルや凍結・融解のサイクルの中で、土壤中に窒素が一時的に蓄積されるような生態系では、N₂O放出量は温度によってコントロールされないことを指摘している。

我々の測定結果では、比較的温暖な観音台および八郷におけるN₂O放出量は、大まかに温度に依存した季節変化をすることが示された。一方、冷温帯にあたる調査地では、乗鞍や前白根で周年を通して低い値であったり、弓張峠で初夏に非常に高い値がみられるなど、N₂O放出パターンの温度依存性は小さく、温度以外の制限要因の存在が示唆された（図30、39）。冷温帯林では、平均気温が低いため、微生物活性が全般的に低い可能性が考えられる。そこで、同時に測定した各調査地のCO₂放出量について、温度依存性を比較した。林床からのCO₂放出は、植物の根の呼吸と微生物による呼吸との合計であり、様々な林分の平均で5割弱が植物根による呼吸と報告されている（Hanson *et al.*, 2000）。観音台および八郷におけるCO₂放出量は、温度を変数にした指数関数の当てはめにおいて高い正の相関がみられた（それぞれの地点で $r = 0.92$, 0.94 ）。N₂O放出量では温度依存性が明らかでなかった弓張峠および前白根においても、相関係数は低いCO₂放出量と温度に正の相関がみられた。乗鞍で

は、観音台や八郷と同様に高い相関があったが ($r = 0.73$)、回帰曲線は温帯林のものとはずれており、同じ温度 (特に低中温) での土壌呼吸が高いことが示された (図40)。ここで、CO₂放出量を温度等に依存した微生物活性を表す指標の一つとして用い、CO₂放出量を横軸にしてN₂O放出量をプロットした (図41)。観音台および八郷では、夏季に外れる測定点はあるものの、両者の間に正

の相関関係がみられた。一方、奥日光前白根および乗鞍では、CO₂に対するN₂Oの放出割合が観音台などに比べて著しく小さかった。逆に、奥日光弓張峠では夏季にCO₂に比べ高いN₂O放出割合が観測された。各調査地内でのばらつきはあるが、地点毎にCO₂放出量とN₂O放出量との関係の特徴付けることができる。すなわち、観音台や八郷では、CO₂放出量とN₂O放出量が同調していた

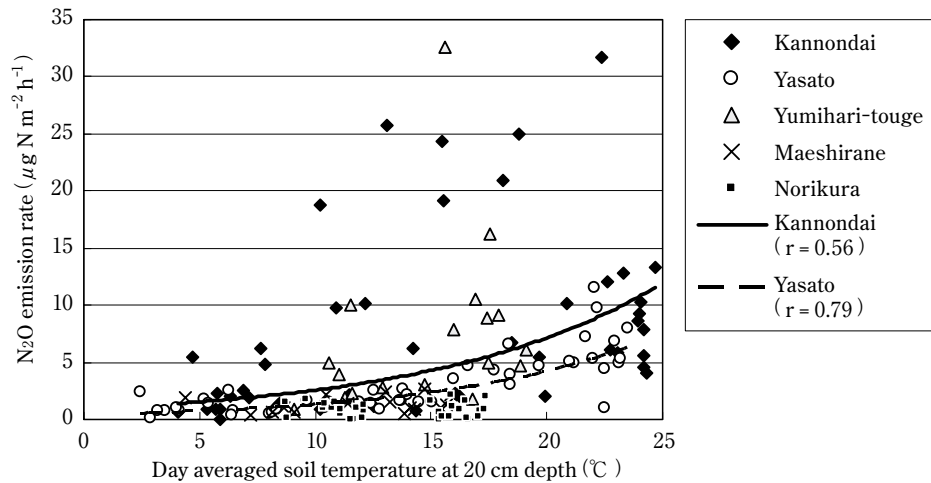


図39 N₂O放出量と温度 (日平均地温) との関係
 観音台および八郷：1999/6-2001/5、弓張峠および前白根：2000/7-2001/10、乗鞍：2002/9-2004/10の期間の測定値
 N₂O emission rates and soil temperature
 Data measured during 1999/6-2001/5 in Kannondai and Yasato, 2000/7-2001/10 in Yumihari-touge and Maeshirane, and 2002/9-2004/10 in Norikura.

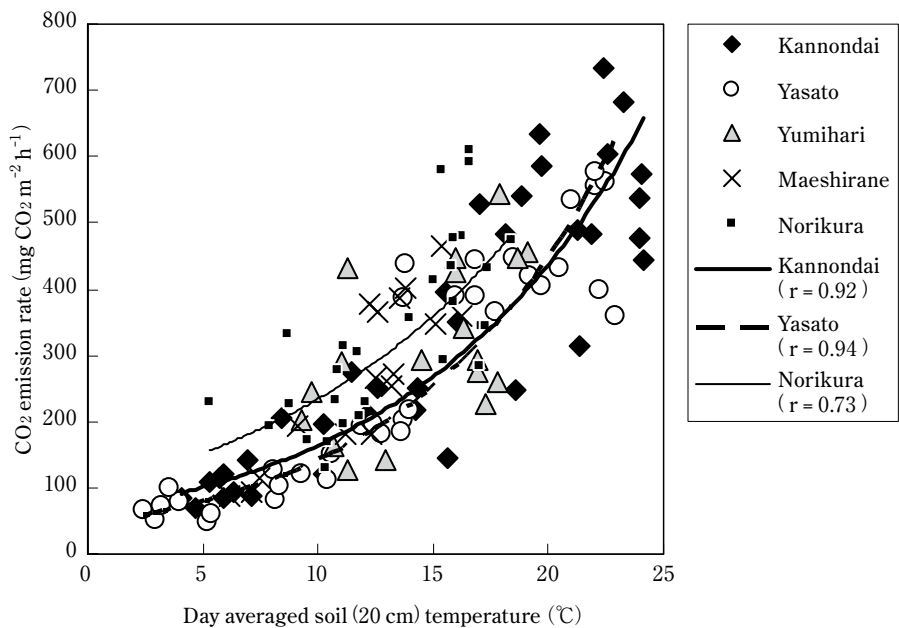


図40 CO₂放出量と温度 (日平均地温) との関係
 示したデータは、観音台および八郷：2000/2-2001/12、弓張峠および前白根：2000/7-2001/10、乗鞍：2003/6-2004/10の期間の測定値
 CO₂ emission rates and soil temperature
 Data measured during 2000/2-2001/12 in Kannondai and Yasato, 2000/7-2001/10 in Yumihari-touge and Maeshirane, and 2003/6-2004/10 in Norikura

が、乗鞍や奥日光前白根では、CO₂放出量に比べ、放出されるN₂Oは非常に少なく、温度以外の要因がN₂O放出の制限要因となっている可能性が示唆された。これらの結果から、N₂O放出にみられる季節的な温度依存性は、土壤水分や利用可能な窒素が適度な条件にある場合に限り、支配的にみられる特性であり、実際には温度は他の要因と相互作用を持ちながらN₂O放出に影響している。

(2) 土壤水分

既往研究における土壤水分とN₂Oの関係についての知見の多くは、培養実験から得られている (Bandibas *et al.*, 1994; Stevens *et al.*, 1997)。N₂Oの主な発生経路の一つである脱窒は、嫌気的な条件で起こるが、脱窒によるN₂O放出が最大となるのは、脱窒過程が最も促進される湛水状態ではなく、脱窒の中間物質であるN₂Oの拡散が起こる最大容水量の状態である。また、硝化過程で発生するN₂Oについては、最適土壤水分は最大容水量よりも低いところにある。実際の土壤では、水分条件は均一ではなく、土壤粒子や有機物の周囲では様々な土壤水分条件が混在しているため、測定された土壤水分値はそれらの平均値にすぎないが、硝化や脱窒が起こっているマイクロサイトでの状況を推定するための重要な指標の一つである。Davidsonらにより作られたHIPモデルでは、土壤水分がN₂O/NOフラックス比を決定する因子となっている (Davidson *et al.*, 2000)。

定点調査において、定期的に測定したN₂O放出量と測

定日の日平均土壤体積含水率の間には、有意な相関はみられなかった (図42)。これは、土壤体積含水率が高い場合にもN₂O放出が低い場合があるため、各土壤体積含水率レベルにおける最大N₂O放出量を比べると、土壤体積含水率が高くなるほど大きくなる傾向があった。つまり、本調査地においては、土壤水分がN₂O放出の必要条件と見なすことができる。一方で、観音台および八郷で7月から8月にみられるN₂O放出量の減少は (図30)、高温、少雨のために土壤水分が低下したことが原因と考えられる。1999年8月2日には、全てのチャンパーでN₂Oの放出量が著しく減少しており、CO₂放出量も減少した (データは示していない)。このときは、0-20 cm 土壤の体積含水率は約35%まで低下していた。

また、通常の降水イベントでは直後のN₂O放出量に顕著な増加はみられなかったが、2001年8月22日の降水 (24 mm) 後には、N₂O放出量が前日の2-3倍増加した。7月下旬から少雨と高温により土壤の体積含水率が低下し、降水直前には約26%にまで低下していた。このことから、乾燥による微生物の死滅や有機物構造の変化などいわゆる乾土効果により、降水後の窒素無機化が促進された可能性が示唆された。また、2002年秋の長雨時にN₂O放出ピークが現れたことから (図31. b)、乾燥や乾燥後の降水、長雨等ともなう土壤水分量の極端な増減は、N₂Oの放出に大きな影響を与えることが示唆された (図43)。

もう少し広域的な土壤水分の影響としては、熱帯にお

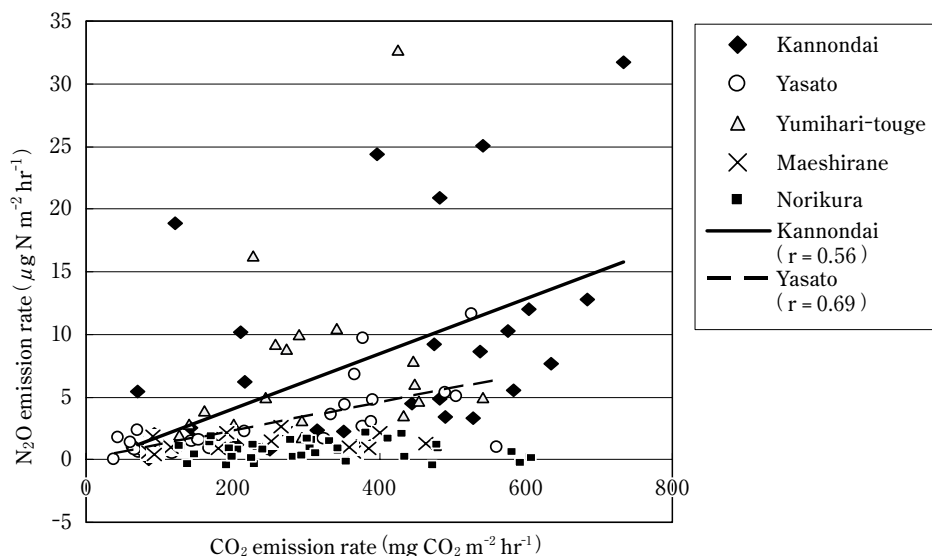


図41 定点調査で得られた林床から放出するCO₂とN₂Oとの関係
データは、観音台および八郷：2000/2 - 2001/12、弓張峠および前白根：2000/7 - 2001/10、
乗鞍：2003/6 - 2004/10
Relation of CO₂ emission rate to N₂O emission rate at each site

いて乾期から雨期への移行期の発生や、温帯の降雪地域で春先の融雪期の土壤水分増加にともなうN₂O発生ピークについての報告も多い (Schmidt *et al.*, 1988 ; Song *et al.*, 2006 ; Comas *et al.*, 2002 ; Papen *et al.*, 1999)。この現象の原因はいくつか挙げられているが、凍結融解または融雪時の浸水により死滅した微生物を炭素および窒素源として脱窒により生じるという説は、乾燥後の降雨イベントにも当てはめることができる。また、スウェーデンの湿った土壤に生育するトウヒ林では、地下水位が低下した際にN₂O放出ピークが生じる例がある。これは、

脱窒が起こりやすい嫌気的な土壤では、土壤水分が低下することでガスの拡散が起こり、N₂Oの放出量が増加したと考えられる (Arnold *et al.*, 2005)。

以上のことから、土壤水分とN₂O放出との関係は、気象イベントによって起こる植物の生長や微生物の消長を含めた物質循環のダイナミクスとの相互作用を持って現れる場合と、酸素濃度(嫌気性)や拡散係数の変化といった物理的要因として効く場合との両方が考えられる。

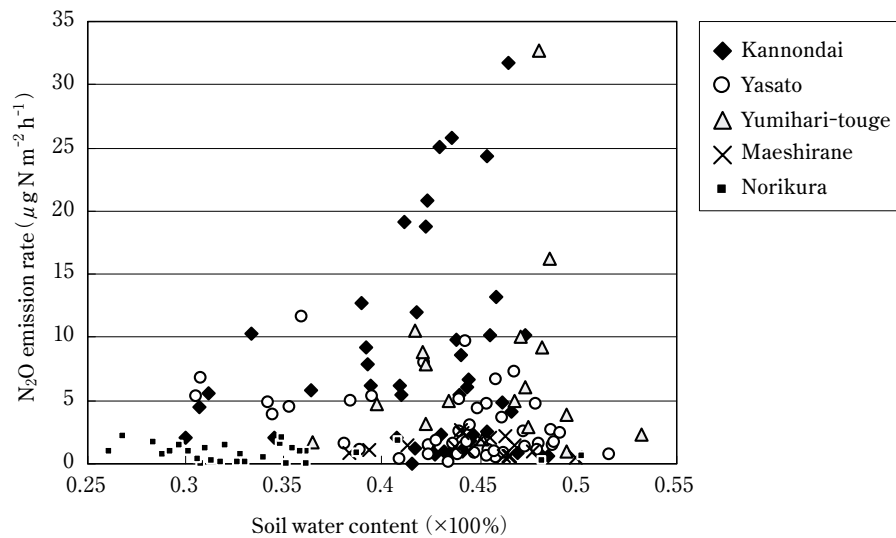


図42 N₂O放出量と土壤水分との関係
示したデータは、図4.19と同じ
N₂O emission rates and soil temperature
Data measured same period as fig 4.19

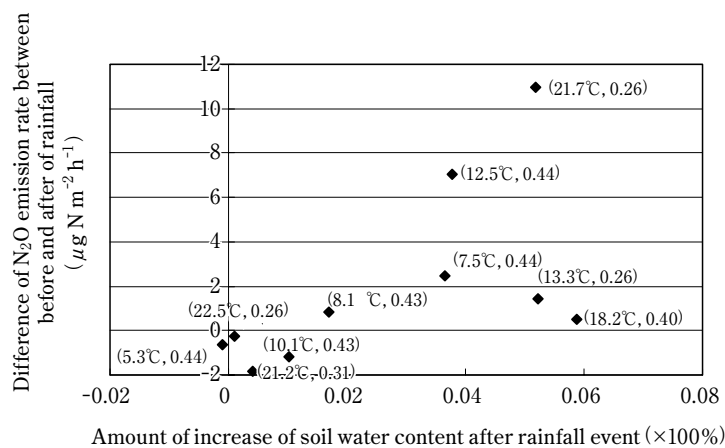


図43 降雨イベントによる土壤水分の増加とN₂O放出量の増加(観音台)
土壤水分の差は降雨前後の土壤水分の差から求め、N₂O放出量の差は、降雨後のN₂Oと降雨前(1日から15日前)との差から求めた。図中の()内は、地温(20cm)と降雨前の土壤水分(×100%)
Differences of N₂O emission rate between pre - rainfall and after rainfall are related with amount of increase of soil water content. Figures in parentheses show the soil temperature at 20 cm depth and the soil water content before the rainfall (×100%)

(3) 窒素量

観音台および八郷では、 N_2O 放出量は、窒素添加や酸性物質除去の処理に影響されず、温度や土壌水分に依存しながら比較的安定した変動を示した。このことから、リターフォールや土壌有機物の無機化から供給される、土壌中の無機態窒素に依存した硝化や脱窒などからの発生の寄与が大きいと考えられる。観音台および八郷調査地における林外、林内降水および A_0 層浸透水による無機態窒素イオンフラックス(II章)を月毎の値としてプロットすると(図3、4)、11月から翌年4月までの間は、林内降水と A_0 層浸透水との窒素フラックスはほぼ同じであるが、5月から9月の間は、 A_0 層浸透水の窒素フラックスが、林内降水のそれに比べ、数倍から10倍近くまで増加していた。特に9月に A_0 層浸透水の窒素フラックスの増加が顕著であり、これらの約9割は硝酸イオンが占めた。このことから、温暖な5月から9月の間に、 A_0 層でリターフォールなどの有機物の無機化により供給された無機態窒素を基質として硝化が活発に起こったとみられる。観音台および八郷で N_2O 放出量が多いのもこの時期であり、温暖で湿潤な条件下、有機物の分解が活発になり、窒素の無機化も増加し、硝化または脱窒の過程から生じる N_2O 放出量も増加したと考えられる。奥日光および乗鞍調査地では、 A_0 層浸透水による無機態窒素のフラックスは観音台や八郷に比べて非常に小さかった。窒素負荷量が比較的少なく、気温も低い冷温帯では、溶液で移動する無機態窒素は平均的に少なく、基質となる無機態窒素が少ないことが低い N_2O 放出の原因と推察された。一方で、融雪期の A_0 層浸透水のアンモニウム及び硝酸イオンフラックスは比較的大きく、年間フラックスの約5割から7割を占めると推計された地点もある。このような生態系の中には、気温は低い春先に高い N_2O フラックスが観測された奥日光弓張峠のようなケースもある。

Davidsonら(2000)は、パイプモデルの中で、窒素の循環量を NO や N_2O の発生量を決める最も重要な要因と位置づけているが、多くの窒素関係の指標(例えば、硝酸イオン濃度)の中で、どれが最も有効かという判断は難しいとしている。短期的なプロットスケールでの傾向を知りたい場合には、変異の幅を考慮する意味で窒素の利用可能性が指標として適し、また、1年以上続く長期的な調査の場合には、リターフォールデータが有効ではないかと述べている。

これは、森林における年間の系内循環窒素量を考える場合、リターフォールによる窒素インプット量が良い指

標となると考えられるためである。また、系外からの窒素インプット(大気由来の窒素負荷)量は、直接林床へ負荷される量が変動することに加えて、植物や土壌有機物に取り込まれることにより、徐々に内部循環の量あるいは質に影響を与えるという側面を持ち、生態系内の窒素循環プロセスに深く関係すると考えられる。定点調査地におけるリターフォール窒素量についてはV章およびVI章で詳しく検証することとするが、我々の調査でも、リターフォールによる窒素インプット量が大きい林分で、 N_2O 放出量が多い傾向は確認された。また、窒素負荷量が多い地点で、 N_2O 放出量が多い傾向があったが、有意な相関はみられなかった。

このような窒素負荷量と N_2O 放出量との傾向を更に多くの生態系で検証するために、関東、近畿、九州の合わせて59地点を対照として広域調査を実施した。その結果、 N_2O 放出量と窒素負荷量との間に有意な正の相関($r=0.26$, $p<0.05$)がみられた(表10)。窒素負荷量として用いた新藤ら(2005)の推定値は、都市周辺では、主に工業由来の NO_x の寄与が高いために窒素インプット量が大きくなった。また、九州の大部分では、農業由来のアンモニアおよび窒素固定量が強く推定されるため、窒素インプット量としては全国平均を上回る結果となった。広域調査では一時期のデータしかないため、そのデータの解釈を補足するために、温度(1)の項で述べた、 CO_2 放出量 N_2O 放出量の関係にみられる仮説を当てはめ、 CO_2 放出量と N_2O 放出量の関係を調べた(図44)。すなわち、測定条件の違いを CO_2 放出量でフィルタリングすることにより、生態系の窒素状況の影響を浮き彫りにしようとするものである。その結果、プロットは上部が右肩上がりの直線となるように分布した。それぞれのプロットの推定窒素負荷量をみると、上方に分布している点は、推定窒素負荷量の大きい地点が多く、推定窒素負荷量が少ない地点は CO_2 放出量にかかわらず N_2O 放出量が少なかった(図44)。

(4) 重回帰分析

広域調査の結果をもとに、 N_2O 放出量についての重回帰分析を行った。この結果、要因選択の過程で、窒素負荷推定量の寄与が最も大きかった。自由度調整済み決定係数(r^2)がより高くなる要因の組み合わせを採用した結果、窒素負荷推定量と土壌の体積含水率、温度(0cm)、年平均気温の4要因を変数が選定され、 N_2O 放出量(降水直後の高放出値2点を除く)の推定式は次式(2)となった。

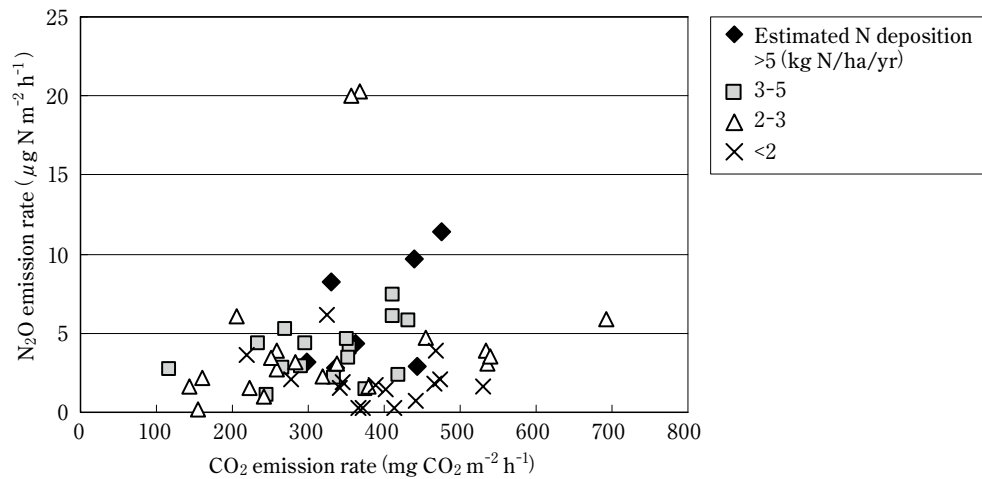


図44 広域調査データにおけるN₂O放出量とCO₂放出量との関係
 推定窒素負荷量 (kg N ha⁻¹ yr⁻¹) で記号を区分した
 N₂O emission rates and CO₂ emission rates measured in large area experiment.
 Marks represent level of estimated nitrogen deposition rate (kg N ha⁻¹ yr⁻¹)

$$N_2O(\mu g N m^{-2} h^{-1}) = -4.034 + 0.841 * N \text{ dep} (t km^{-2} yr^{-1}) + 0.103 * 0 \text{ cm temp. } (^\circ C) + 0.086 * \text{Soil water } (\%) + 0.004 * \text{Annual averaged temp. } (^\circ C)$$

.....(2)

推定値との相関は $r = 0.67$ ($r^2 = 0.45$, $p < 0.001$) であった (図45)。

(5) その他の要因と交互作用

N₂Oの発生に影響を与える他の要因として、pHが挙げられる。実験室やフィールドでの実験によりpHが脱窒や硝化に及ぼす影響は多岐にわたって調べられている (Ellis *et al.*, 1998 ; Sitaula *et al.*, 1995 ; Šimek & Cooper, 2002)。脱窒により発生するN₂OはpHが低い方が相対的に大きく、また硝化についてもpHが低い方がN₂Oの発生が相対的に大きいとされているが、土壌の種類や、窒素状況、水分状態など他の要因の作用もあるため、これらの傾向は常に当てはまる訳ではない。ヨーロッパの酸性化した森林では、石灰を散布することにより表層土壌のpH2.9-3.6からpH5.6-6.1へ上昇した結果、N₂Oの放出量が約1.6倍増加した (Butterbach-Bahl *et al.*, 1997)。Šimekら (2002) は、脱窒に対するpHの影響について、これまでの研究例を吟味し、以下のような結論を導き出している。すなわち、脱窒によって生じるガス (NO、N₂O、N₂) の合計は酸性よりも中性かややアルカリの方が大きくなるが、これは、脱窒の各酵素活性への影響よりもむしろ、土壌有機物量や無機態窒素量が少ないこと

$$N_2O = -4.034 + 0.841 * N \text{ dep}(t km^{-2} yr^{-1}) + 0.103 * \text{Temp.}(^\circ C) + 0.086 * \text{Soil water } (\%) + 0.004 * \text{Annual averaged temp.}(^\circ C) \quad (r^2 = 0.45)$$

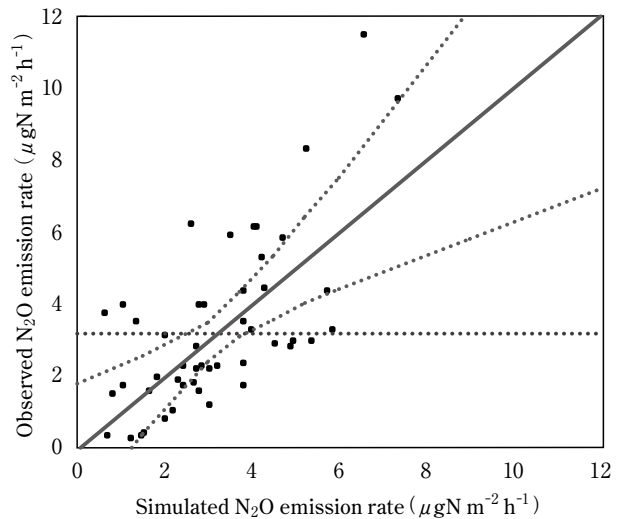


図45 広域調査データを用いたN₂O放出量の推定
 Simulation of N₂O emission rate by multiple regressions

から脱窒菌の菌数に制限が生じるためと結論づけている。また、発生ガスのうちN₂に対するN₂Oの割合は、pHが低い方が大きいことが分かっている。N₂/N₂O比については、pH以外に土壌水分の影響も大きく受けるが、温度が高くなると大きくなるという事例も示されている (Maag & Vinther, 1996 ; Rudaz *et al.*, 1999)。本研究では、実際のフィールドでN₂Oの放出に与えるpHの影響を明らかにしていないが、乗鞍の針葉樹林では、0-5 cm 鉦質土壌のpH (H₂O) が3.7と低く、このことが無

機態窒素が硝化や有機物への同化に利用され難かった理由ではないかと考えられた(大浦ら, 2006; 二井ら, 2000; Aber *et al.*, 1989)。

また、森林という生態系の特徴にも注意を払う必要がある。例えば、台風やハリケーンによる降雨の影響についても、単に降水の影響にとどまらず、風によるリターフォール量の増加や、倒木更新による植物生長の変化を伴って、数年にわたる影響として現れる場合も報告されている (Erickson & Ayala, 2004)。N₂Oが、その基質となる窒素 (アンモニウムイオンまたは硝酸イオン) の循環量と密接な関係があるということは、伐採や自然災害などによる樹木の枯死や持ち出しなどがN₂Oの放出量に大きい影響を持つという報告からも確認できる (Keller *et al.*, 1993)。

観音台および八郷でみられた高N₂O放出区の出現のケースでは、N₂O高放出チャンバーでのCO₂放出量の顕著な増加はみられなかった (データは示していない)。K2で高放出がみられた(図25. a)2000年8月頃に、20 cm 土壌水で硝酸イオン濃度が他の区に比べて高い傾向にあったこと (図12) から、何らかの原因で表層土壌が窒素豊富になり、硝化が促進されたと推測される。このような高N₂O放出か所の出現頻度について、簡単な試算を行うと、観音台では7.5%の確率で高N₂O放出が出現したことになる。八郷でも同様な高いN₂O放出がみられたが、頻度は4年間で1ケース (約3%) (図25. b) であり、八郷に比べ観音台で出現頻度が高かった。観音台は平地のマツ林 (およそ0.7 ha) であるが、松枯れが継続的に起こっているため、枯死木の地下部遺体やこれらを分解する微生物バイオマスの変動が、窒素の無機化を増加させ、高いN₂O放出の原因の一つ (窒素源) となっている可能性が挙げられる。すなわち、人為的または自然による攪乱は、N₂O発生的大幅な増加をもたらし、その結果、N₂O放出量のばらつきが大きくなることが示唆された。

Brummeら (1999) は、温帯林11データが3つのN₂O発生パターンに分けられることを示した。1)バックグラウンドパターンでは、N₂Oの発生量は10 μg N₂O-N m⁻² h⁻¹と小さく、気象要因に影響を受けない。2) 季節変化パターンは、湿地林における季節の地下水位変化がN₂O発生に影響を与えている例や、ブナ林や針葉樹林でみられる気温や土壌水分の影響を受けているような季節変化を示す。熱帯林でも季節変化がみられるが、これらは主に雨期や乾期の間で起こる土壌水分の変化に起因するとみなされている。3) イベントパターンは、急激なN₂O

発生ピークが突然現れるパターンであり、乾期の後の降雨時や、融雪時などにみられる。この分類は全ての発生パターンを網羅するのに十分ではないかもしれないが、大浦ら (2002) は、日本国内で得られた、数か所のN₂O放出パターンが、これらの3パターンに分類できることを示した。すなわち、窒素負荷量が少なく冷温な森林地帯では、年間のほとんどの時期にN₂O放出が観察されず、バックグラウンドパターンに、窒素負荷量が多く温暖な地域では季節変化パターン、そして窒素負荷量がやや大きく、冷温な地域では春先や台風時に発生ピークがみられるイベントパターンに分類された。Brummeら (1999) は、N₂Oの発生に関わる重要性の位置づけを提案し、その中で発生プロセスは最も低い位置にあり、生態系と環境とをつなぐインターフェースと位置づけている。最も上位に位置する要因として、土地利用の変化や、気候変動、森林管理などを挙げている。大気由来の窒素負荷は、はじめはプロセスへ影響を与えるが、やがて、上位の要因へと関係づけられていくとしている。これは、窒素負荷量の増加が短期的なN₂O放出量増加としての影響から、内部循環量の変化をとめない、慢性的な窒素流出 (N₂OやNO₃⁻) を引き起こす窒素飽和過程にも当てはまる。世界各国で測定されたN₂O発生パターンは多様であり、一つの軸で説明することは困難である。しかし、それぞれの地点では、マイナーなルール (パターン) が存在し (Peter *et al.*, 2000)、このルールを明らかにしていくことは、広域N₂O放出推定にもつながる必要なアプローチである。

V 窒素の内部循環量および植物生長量評価

1 背景・目的

森林生態系での物質循環において、植物を構成する主要成分である窒素などの養分の多くは系内で循環する経路を持っている (堤, 1987)。内部循環と呼ばれるこの経路では、植物根から無機態の形で吸収された窒素は、一部が樹体へと蓄積され、残りはリターフォール (有機物) として土壌へ還元される。そして、土壌生物や微生物による有機化および無機化作用を受け、再び植物に吸収される。窒素が相対的に不足しているような森林では、無機化窒素は、効率的に生物に取り込まれるため、森林における窒素の循環は閉鎖的であるという特徴を持つ (楊ら, 2003)。一方、大気由来の窒素負荷量増加により、渓流水などへの窒素流出などとして顕在化する窒素飽和の進行段階において、この内部循環の変化が重要な過程と

なること (Aber *et al.*, 1989) は、様々な研究によって実証されている (Gundersen *et al.*, 1998; Jussy *et al.*, 2004)。その中で、窒素負荷量増加にともない、リターフォールの量的変化 (Gundersen, 1995) や質的变化 (Magill *et al.*, 1997, 2004; Elvir *et al.*, 2006; Berg & McCaugherty, 2004; McNulty *et al.*, 1996; Dise *et al.*, 1998) が生じることが、観測データや実験データにより示されており、リターフォールは森林の内部循環の重要な指標と考えられる。

本研究では、物質循環調査を、針葉樹林と落葉広葉樹林の両方を含み、生育環境も平地から山岳地まで多様な森林を対象に実施した。このように、タイプの異なる森林において、大気由来の窒素負荷量の影響を評価するためには、内部循環の特徴を捉える必要がある。そこで、本章では、リターフォール調査に基づき、窒素の内部循環量を評価することを目的とする。また、リターフォールの化学性や、窒素回収率など、樹種や植生タイプにより異なる生物的特徴についても検討する。更に、リターフォール量に影響を及ぼすと考えられる樹木の生育状態を評価するために、現存量および生長量の推定を行い、リターフォール量との関係を考察する。

2 調査地および方法

(1) リターフォール量

物質循環調査 (II章) を行った観音台および八郷 (茨城)、奥日光 (栃木) および乗鞍 (長野) において、リタートラップ (0.9m × 1.2m, 1.4mmメッシュ, 2反復) によるリターフォール調査を実施した。調査地の詳細については、II章に示した。観音台 (2002年10月-2003年10月の1年間) および八郷 (2002年7月-2004年7月の2年間) では、通年でリターフォールを採取したが、落葉期や春の開花期には2週間間隔で採取を行い、冬季には頻度を下げて実施した。奥日光での採取期間は2001年5 (6) 月-同年10月末までの1シーズンで、積雪期間の採取は行っていない。同じく積雪地域である乗鞍では、2002年10月末-2004年10月末までの2年間リターフォール採取を行ったが、積雪期間には回収を行わず、春の融雪後にリタートラップ内に残ったリターフォールを回収してこの期間のデータとした。また、追加地点として、東京農工大学のFM多摩丘陵 (東京八王子) のヒノキ林およびコナラが優占する落葉広葉樹林においてリターフォール調査を実施した。本調査地周辺は、大気由来の窒素負荷量が大きく (林内降水で20-35kg N ha⁻¹ yr⁻¹)、降雨時に渓流水からの窒素流出がみられるケース

があり (<150μM)、窒素飽和が起こっていると考えられている地域である (Baba, 1993)。FM多摩丘陵については、樹齢の異なる2つのヒノキ植林 (HJ:30年生、HS:40年生) およびコナラ林 (樹齢約60年) を対象に2004年7月から翌年6月までの1年間、リタートラップ (1m × 1m, 0.5mmメッシュ, 3反復) で捕集したリターフォールを約1か月毎に採取した。この前年に同調査地で風間らがリターフォール測定を実施しており (風間ら, 2004)、これらの結果と合わせて検討した。

回収したリターフォールは、1) 葉、2) 枝および3) 花卉や毬果などを含むその他に分別し、80℃で48時間乾燥した後に計量し、粉碎を行った。再度乾燥した粉碎試料を用い、元素分析装置 (Flash EA1112, ThermoQuest, Italy) で窒素および炭素の含有率を測定した。ただし、奥日光サンプルについては、枝とその他の2つに分け、分析値は(株)パリオナーベイによる測定値 (CNコーダー、Yanako Ltd. MT600) を用いた。各器官の窒素含有率に重量をかけて積算し、期間別または年間のリターフォール窒素量を求めた。

(2) 生葉の窒素含有量

FM多摩丘陵では、植物葉の窒素状況を調べるために生葉の採取を実施した。対象樹木は、前述のリターフォール調査を実施した3つの林分内で、コナラおよびヒノキを各2本ずつ選定した。サンプリングは、陽の当たる枝を選んでおき (地上高2.5-5m)、毎回ほぼ同じ場所から、約20-30cmの枝先を切り落とした。採取には高枝切りばさみを用いた。採取枝は研究室に持ち帰った後、ヒノキについては緑の部分を葉として切り分け、直ちに80℃で48時間乾燥させた。コナラについては葉柄から先を切り分け、SPAD (ミノルタ) でクロロフィル量の目安となるSPAD値を測定した後に乾燥させた。粉碎試料を用い元素分析装置にて窒素および炭素含有率を測定した。

生葉データおよびリターフォールデータを用いて、葉の窒素の転流率を計算し、林分間で比較した。生葉は2004年の夏季3時期のデータを平均して計算に用いた。リターフォールから対象樹種の葉のみを選別して窒素含有量を測定し、重量当たりの窒素の減少割合を転流率とした。

(3) 樹木調査

リターフォール調査を実施した森林のうち、観音台および八郷、乗鞍、FM多摩丘陵において毎木調査を実施した。調査地内に15mまたは12m四方のコドラートを設け、胸高直径約3cm以上の全ての樹木について、胸高周囲を測定した。乗鞍では、地表から130cmの位置にラベルを打ち付け、巻き尺で樹周囲を測定した。2003年6月から2004年11月までに合計4回、同じ位置で胸高周囲を計測した。また、土木用亀裂変位計を用いた永田ら(2001)の方法を用い、各調査地で代表的な樹木3本について、幹の肥大生長をモニタリングした。観音台およびFM多摩丘陵では1時期、八郷では、2時期で毎木調査を実施した。130cmのスケールをもちいて、胸高周囲を測定した。また樹木生長の季節変化を把握するために、指標木数本に130cmの高さにビニールテープを巻き、定期的に胸高周囲を測定した。

樹木の肥大生長を推定するために、既存の推定式(3)、(4)(後藤ら, 2003)に各時期の胸高直径データ(DBH: cm)を当てはめて、それぞれの時期の地上部現存量(Wt: d.w.kg)を推定した。2時期以上で毎木調査を実施した八郷、乗鞍については、現存量の差から地上部年間生長量を推定した。また幹の養分率(堤, 1987)を用いて、窒素量への換算を行った。

$$Wt(\text{Conifer}) = 0.223 \times \text{DBH}^{2.11} \quad \dots\dots\dots (3)$$

$$Wt(\text{Deciduous}) = 0.043 \times \text{DBH}^{2.76} \quad \dots\dots\dots (4)$$

樹木による根からの窒素吸収量を地上部生長量およびリターフォール量などから、式(5-3)の様に仮定した。

$$\text{根からの吸収(N)量} = \text{リターフォール(N)量} + \text{地上部生長(N)量} - \text{葉面吸収(N)量} \quad \dots\dots\dots (5)$$

ここで、林外降水と比べて林内降水の窒素フラックスが小さい場合のみ、その減少を葉面吸収によるものとみなした。

3 結果

(1) リターフォール量

表11に各調査地のリターフォールの特徴を示した。落葉広葉樹林(八郷、茨城)で $4.8 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 、で亜高山帯の落葉広葉樹林(乗鞍、長野)で $2.4 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ および $2.7 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 、同針葉樹林(乗鞍、長野)で $3.7 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であった。松枯れが起こっている観音台(茨城)のマツ林では、リターフォール量は $2.9 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であった。奥日光の落葉広葉樹林では、積雪期を除く期間で、 0.9 t ha^{-1} および 4.6 t ha^{-1} であった。FM多摩丘陵では、2004年の1年間のリターフォール量を比較すると、コナラ林で6.3

$\text{t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 、ヒノキ林では、 $5.6-6.4 \text{ t ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であり、若齢林(30年)で壮齢林(40年)に比べリターフォール量が多かった。リターフォール量から窒素量に換算すると、FM多摩丘陵のコナラ林で非常に大きく、 $102.1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であった。次いで、八郷(茨城)および弓張峠(奥日光、栃木)で約 $60 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ という値であった。乗鞍では、 $20-40 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ と低めであり、前白根(奥日光、栃木)や観音台(茨城)の疎林でも $20 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以下であった。

(2) リターフォールの季節変化

年間のリターフォールがどのような季節分布を持つのかを明らかにするために、FM多摩丘陵のデータを例に、リターフォール量の季節変化を示した(図46)。いずれの林分も8月に台風による落葉落枝の増加がみられた後、秋の落葉期(10-11月)に大きなピークが現れるというパターンを示した。季節ごとの変動や、林分によるリターフォール量の大小関係は、風間ら(2004)による前年の結果とよく似た傾向を示した。7月から11月の5か月間のリターフォール量を前年データ(風間ら, 2004)と比較すると、コナラ林で35%、ヒノキ林で約15%減少していた。しかし、落葉などの生育ステージの進行は気象条件等により前後するため、カレンダーで区切るのは適当ではなく、平均的な年リターフォール量を測定するためには、季節パターンを加味した年単位のリターフォール測定を複数年行う必要がある。

FM多摩丘陵の2004年の年間リターフォール量および窒素量を器官別に示すと(表12)、いずれの林分でも葉リターが約7割を占めており、次いで枝リターが約1-2割を占め、壮齢林(コナラおよびヒノキ)で落枝の割合が大きい傾向がみられた。また春先の開花時期には、花弁などの割合が多く、葉リターの割合は3割以下に低下した。図47にリターフォールの器官別窒素含有率の季節変化を示した。いずれの林分においても、葉リターの窒素含有率は10-11月頃から徐々に減少した。枝リターについては、窒素含有率の季節変化は小さかったが、落葉樹のコナラ林で冬から春にかけて窒素含有率の増加傾向がみられた。リターフォール全体の窒素含有量は、9月に最も高くなり、秋から冬にかけて低下する傾向を示した。台風などによる落枝割合の増加や、落葉期に向けて茶化した落葉の割合が増加したことが窒素含有率低下の要因であった。ヒノキ若齢林および壮齢林では、周辺からの落葉広葉樹リターフォールの混入があり、10月から12月の2か月間の葉リター(全リターフォール量の70-

表11 各調査地のリターフォール特徴
Characteristics of the litterfall in each site

調査地	主な樹種	リターフォール			葉リター窒素含有率 (%) *1			
		重量 (t ha ⁻¹ yr ⁻¹)	窒素量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	C/N	平均	(最大-落葉ピーク時-最小)	[転流率(%)] *2	
奥日光	NY 落葉広葉樹	ハルニレ (<i>Ulmus davidiana</i> etc.)	4.6*3	59.9*3	-	1.5	(1.7-1.2-1.2)	[29.4]
	NM 落葉広葉樹	ダケカンバ (<i>Betula Ermanii</i>)	0.9*4	19.6*4	-	2.3	(2.5-2.2-2.1)	[12.0]
茨城	IK 針葉樹	アカマツ (<i>Pinus densiflore</i>)	2.9	16.8	90.3	0.7	(0.9-0.6-0.4)	[33.3]
	IY 落葉広葉樹	コナラ (<i>Quercus serrata</i> etc.)	4.7	61.9	39.4	1.8	(2.3-0.9-0.6)	[60.9]
	SU 落葉広葉樹	ミズナラ (<i>Quercus mongolica</i>)	2.4	21.3	60.2	1.8	(3.4-0.9-0.9)	[73.5]
乗鞍	SC 針葉樹	シラビソ (<i>Abies veitchii</i>)	3.7	29.8	71.3	0.9	(1.4-0.5-0.5)	[64.3]
	SD 落葉広葉樹	シラカンバ (<i>Betula spatyphylla</i>)	2.7	38.1	39.5	1.6	(2.3-1.6-1.1)	[30.4]
	HK 落葉広葉樹	コナラ (<i>Quercus serrata</i>)	6.3	102.1	30.1	2.3	(2.8-1.5-1.0)	[46.4]
FM多摩	HJ 針葉樹	ヒノキ(30) (<i>Chamaecyparis obtusa</i>)	6.4	68.2	48.2	1.4	(2.1-0.8-0.7)	[61.9]
	HS 針葉樹	ヒノキ(40) (<i>Chamaecyparis obtusa</i>)	5.6	54.7	56.5	1.5	(2.1-0.8-0.8)	[61.9]

*1 リターフォールのうち葉のみを選別したもの、日光については、枝以外のリターフォールの値

*2 葉リターの最大窒素含有率と落葉ピーク時窒素含有率から算出

*3 2001年5月-10月末

*4 2001年6月-10月末

表12 FM多摩丘陵における器官別リターフォール量および窒素量 (2004/7-2005/6)
Amount of litterfall and nitrogen in each organ

	リターフォール量 下段は窒素量 (kg ha ⁻¹ yr ⁻¹)			
	葉 (%)	枝 (%)	その他 (%)	合計
コナラ林 (HK)	4,516 (72) 82 (80)	1,038 (17) 10 (10)	706 (11) 10 (10)	6,260 102
ヒノキ若齢林 (HJ)	4,493 (70) 48 (71)	606 (9) 5 (7)	1,312 (20) 15 (22)	6,411 68
ヒノキ壮齢林 (HS)	3,983 (72) 43 (78)	1,123 (20) 7 (13)	452 (8) 5 (9)	5,558 55

97%) でみると、若齢林では乾物重で約40% (窒素量で59%)、壮齢林では乾物重で34% (窒素量で44%) が広葉樹であった。落葉広葉樹では落葉初期に、葉リターの窒素含有率は比較的高いため、ヒノキ単一の場合に比べてリターフォールの窒素含有率は高くなった。合計窒素については、コナラ林で102 kg N ha⁻¹でありヒノキに比べて大きかった。いずれの林分においても葉リターが窒素全体の7-8割を占めた (表12)。すなわち、開花期などのイベント時を除けば、各時期のリターフォール量および質 (窒素含有率) は葉リターによって左右される。

(3) 生葉の季節変化

前項で示したとおり、葉リターの化学性がリターフォール全体の質 (N%) に大きい影響を与えることから、生葉採取による葉の窒素含有率調査を実施した。本調査により、窒素の転流など、葉リター形成に関する検討を行うことを目的とした。図48にコナラおよびヒノキの生葉における窒素含有率の季節変化を示した。コナラでは、11月から12月にかけて窒素含有率が急激に減少し始め、落葉期には窒素含有率が1.3%と生育期のほぼ半分となった。同時に測定したクロロフィル量の目安と

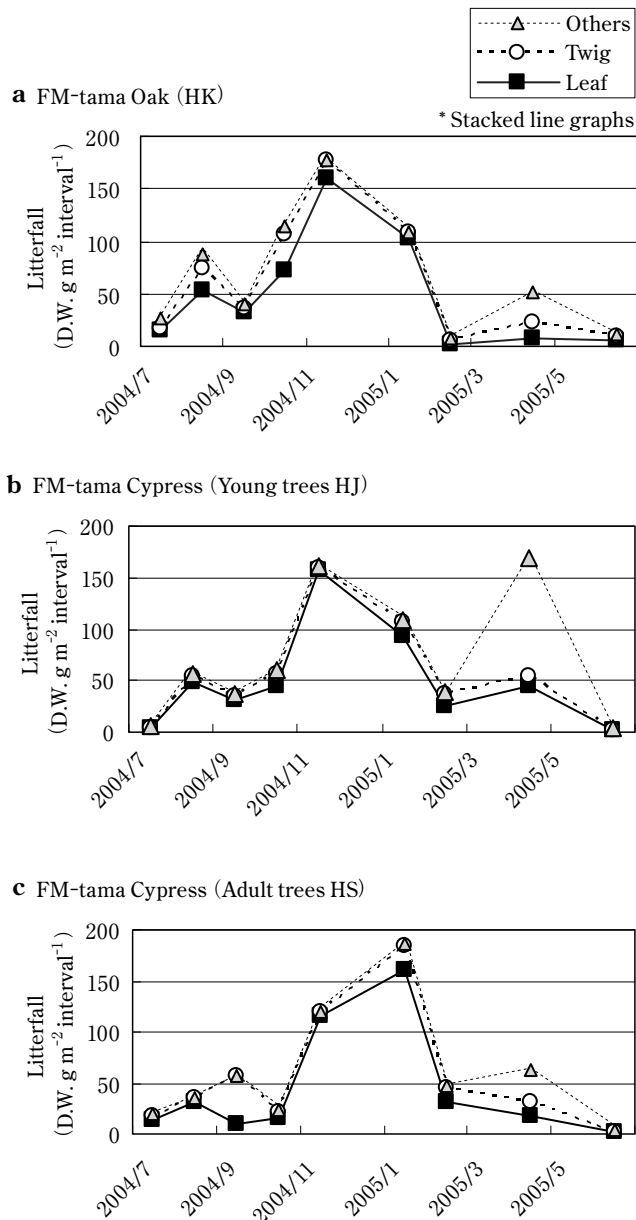


図46 FM多摩丘陵におけるリターフォール量の季節変化 (積み上げグラフ)
Seasonal change of amount of litterfall at 3 type of forest in FM-tama, Tokyo (Stacked line graph)

なる SPAD 値 (ミノルタ SPAD) は、窒素含有率とほぼ同調的に変化した。一部サンプルでは、秋に SPAD 値が減少し始めても窒素含有率に変化がみられず、この理由として、クロロフィルやタンパク質の分解と転流が段階的に行われているためではないかと考えられた。一方、ヒノキでは、初夏から夏にかけてわずかな窒素含有率の増加傾向がみられたが、調査期間を通して大きな変化はなく、1.4-1.6%で推移した。ヒノキなどの針葉樹では、春に新葉が開き、秋にまとまった落葉が起こるが、葉は

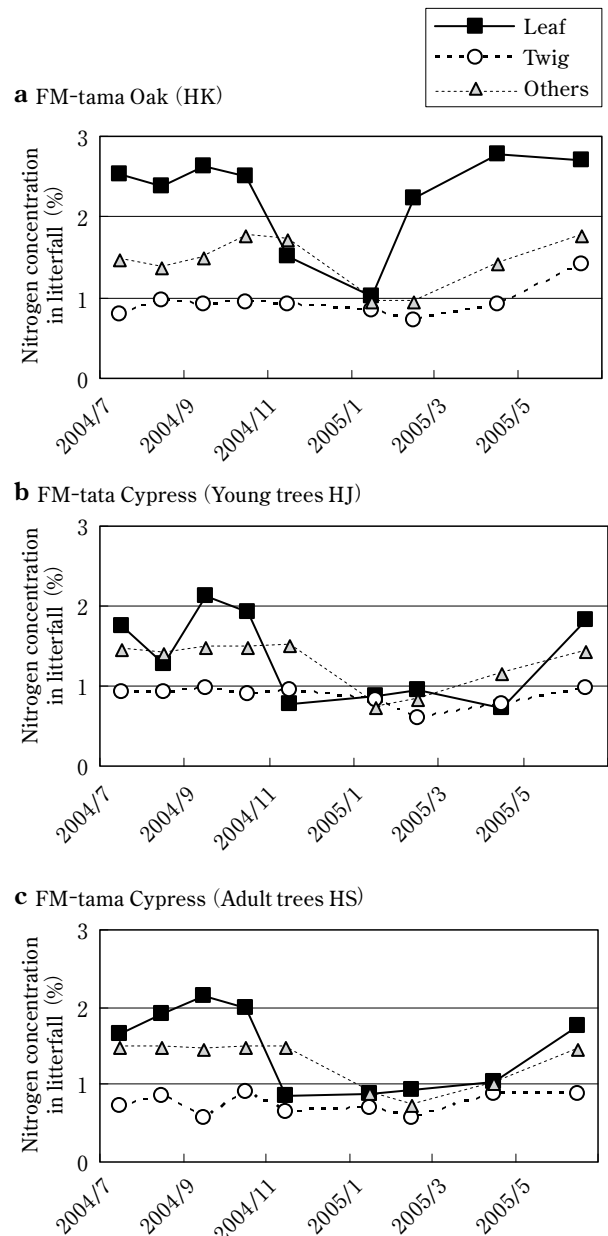


図47 各器官リターフォールの窒素含有率の季節変化
Seasonal change of nitrogen concentration in each organ of the litterfall

枝に数年宿存するため、古い葉から新しい葉へ窒素を始めとする養分の転流が生じると考えられる。落葉期に、茶化したヒノキ落葉のみを選別して測定すると、窒素含有率は0.7-0.75%に低下しており、落葉直前の転流により葉の窒素の50%程度が樹体に回収されたことになる。

図49ではFM多摩丘陵のコナラ林とヒノキ林について、葉リターと生葉との窒素含有率を比較した。葉リターでは、樹種の選別は行っていないが、林分の樹種構

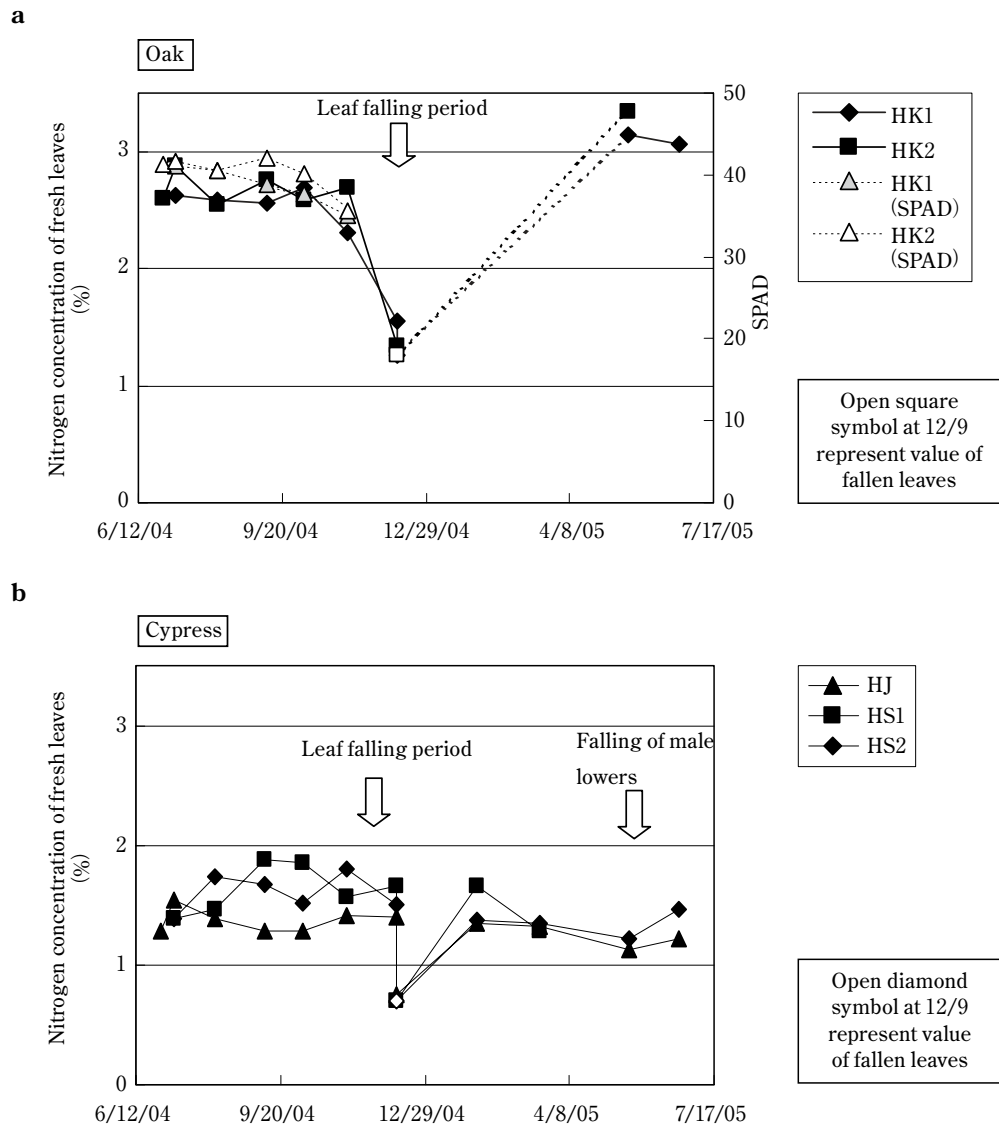


図48 生葉の窒素含有率の季節変化
 a) コナラ、b) ヒノキ
 Seasonal change of the nitrogen concentration of fresh leaves at FM-tama.
 a) Oak (*Quercus serrata*) b) Cypress (*Chamaecyparis obtuse*)

成から他樹種の落葉の混入は数%以下と推定された。コナラでは、枝を切り落とし直ちに葉を切り分けた生葉サンプルと、風などにより落下した葉リターの窒素含有率が、ほぼ同じであるという結果が得られた。コナラのように、一斉開葉式の植物の場合には、葉リターフォールの窒素含有率を生葉のそれと同等に扱えることが明らかになった。一方、ヒノキについては、夏から秋にかけ、生葉と落葉の窒素含有率の差が大きい傾向がみられた。この理由として、ヒノキのような複数年葉をつける植物の場合には、葉同士の窒素転流が起こるため、生葉とリターフォールの葉が必ずしも同じ窒素状態ではないためと考えられる。

(4) 樹木現存量と生長量

表13に胸高直径から計算した胸高面積 (BA: Basal Area, m² ha⁻¹)、地上部現存量および生長量を示す。茨城の観音台アカマツ林の林齢は約30年、FM多摩丘陵のヒノキ林がHJで30年、HSで40年であり、同コナラ林が60年であるが、その他の樹齢については不明である。平地林である観音台のアカマツ林は、近年の松枯れにより疎林となっており、他の調査林に比べ地上部現存量が極端に少ない。乗鞍SCではBAが57 m² ha⁻¹と大きく、胸高直径の大きい個体 (平均18.0 cm) が多かった。その結果、現存量は多く推定されたが、生長量は少なく見積もられた。一方、乗鞍SDでは、BAは37 m² ha⁻¹と小さく

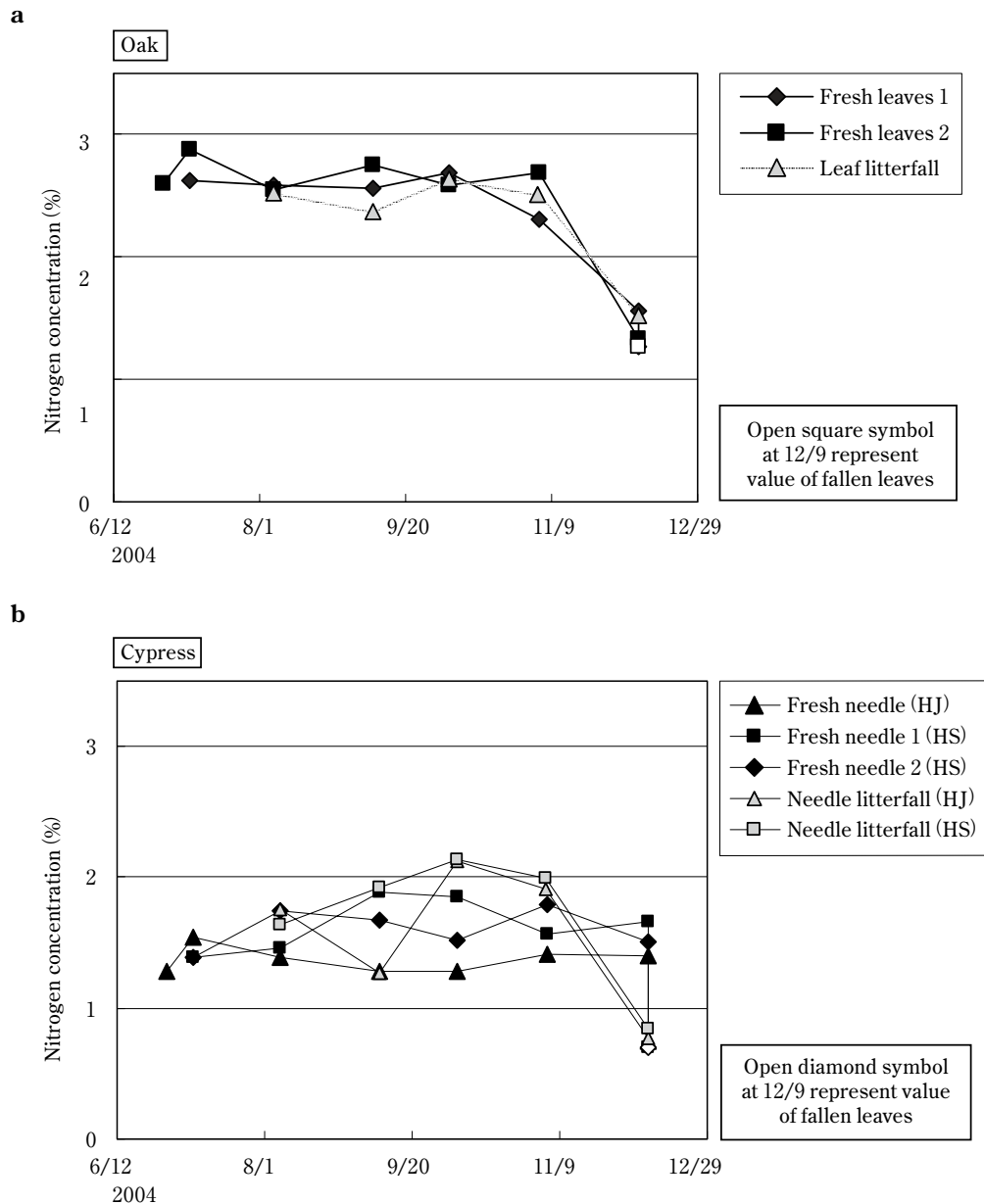


図49 生葉と葉リターの窒素含有率
a) コナラ、b) ヒノキ

Seasonal changes of the nitrogen concentration of fresh leaves (or needles) and leaf litterfall at FM-tama
a) Oak (*Quercus serrata*) b) Cypress (*Chamaecyparis obtuse*)

現存量は少ないが、生長量が多い結果となった。生長量を窒素量に換算すると、乗鞍SCにおける地上部への年間窒素固定量は、乗鞍SDの半分以下となった(表13)。八郷の落葉広葉樹林は、地上部現存量や生長量は、乗鞍SUと似た値であったが、リターフォール量については、約2倍と多かった。この両地点は、窒素の負荷量で約3倍の差があった。同程度の樹木生長を行いながら、リターフォールによる窒素の循環量は大きく異なることが明らかになった。FM多摩丘陵については、ヒノキ植林でBAは大きいですが、密植のためか細い個体が多く立ち枯れ木も

多かった。コナラ林は自然林であり、BAは小さいが、大木が多いため現存量は多く見積もられた。

4 考察

(1) 窒素負荷と窒素の内部循環

本研究で調査を実施した関東周辺の森林は、窒素負荷量が $5 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以下から $36 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 弱の範囲で変化し、これに対応するリターフォール窒素量は、落葉広葉樹では $20 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ から $100 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であった。針葉樹については、 $25 - 60 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であっ

表13 樹木現存量および生長量の推定
Aboveground biomass and growth rate of trees estimated with diameter at breast high

サイト	おもな樹種	BA (m ² ha ⁻¹)	推定樹木地上部現存量 (t ha ⁻¹)	Δ樹木地上部現存量 (=生長量)		リターフォール量	
				(t ha ⁻¹)	(kg N ha ⁻¹)	(t ha ⁻¹)	(kg N ha ⁻¹)
茨城	IK 針葉樹 (アカマツ) (<i>Pinus densiflora</i> Sieb. Et Zucc)	22.0	88	-	-	2.9	16.8
	IY 落葉広葉樹 (コナラ) (<i>Quercus serrata</i> Murray)	36.9	176	11.7	21.0	4.7	61.9
乗鞍	SU 落葉広葉樹 (ミズナラ) (<i>Quercus mongolica</i> Fisher ex Turcz. Var. <i>crispula</i> Ohashi)	31.4	152	10.8	19.5	2.5	21.3
	SC 針葉樹 (シラビソ) (<i>Abies Veitchii</i> Lindley)	56.9	231	6.8	7.1	3.3	25.9
	SD 落葉広葉樹 (シラカンバ) (<i>Betula platyphylla</i> Sukatchev var. <i>japonica</i> Hara)	36.8	198	7.9	14.3	2.8	38.7
FM多摩	HK 落葉広葉樹 (コナラ) (<i>Quercus serrata</i> Murray)	29.3	258	-	-	6.3	102.1
	HJ 針葉樹 (ヒノキ) (<i>Chamaecyparis obtusa</i> Endlicher)	38.5	147	-	-	6.4	68.2
	HS 針葉樹 (ヒノキ) (<i>Chamaecyparis obtusa</i> Endlicher)	50.4	200	-	-	5.6	54.7

ただし、測定は2002年から2005年の間に実施した

た。落葉広葉樹林では、窒素負荷量の増加にともない、リターフォール窒素量が増加する傾向がみられたが、有意な相関は認められなかった ($r = 0.74$ $p < 0.1$)。針葉樹林では、明らかな関係は認められなかった。

Gundersen (1995) によって報告された、ヨーロッパ各地のリターフォールデータでは、林内雨による窒素負荷量との間に、次のような関係がみられる。針葉樹では、窒素負荷量が $30 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ までは、負荷量の増加に応じてリターフォール窒素量も大きくなるが、窒素負荷量が $30 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ を過ぎると、リターフォール窒素量は頭打ちとなり、その値は $40 - 60 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ である。一方、落葉広葉樹については、窒素負荷量が $10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 強から $60 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 強までの範囲において、窒素負荷量とリターフォール窒素量の間に正の相関がみられ、リターフォールの窒素量は $130 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ でまで増加した。このデータに本研究の結果を加えて、図50に示した。国内データは、林内降水窒素負荷量の上限が小さいが、樹種による窒素負荷量とリターフォール窒素量との関係は、ヨーロッパのデータとほぼ同じ範囲内にプロットされた。両データから、林内降水窒素量増加にともなうリターフォール窒素量の増加傾向が、落葉広葉樹林でより明確であることが示された。一方で、奥日光前白根の落葉広葉樹林や、茨城観音台の針葉樹林など、生育障害などにより枯死個体が多い林分では、リターフォール窒素量は少なく、窒素負荷量から予想されるリターフォール窒素量から外れた点となった。このよ

うに、窒素以外の要因が生育の制限要因となるケースもあり、リターフォール窒素量は窒素負荷量によって一義的に決まる訳ではない。しかし、リターフォール窒素量が多い生態系は、窒素負荷量が $10 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以上で出現しており (図50)、増加する窒素負荷量は、リターフォール窒素量を増加させる必要条件となっている。

窒素の添加実験による生葉や葉リターの窒素濃度の変化については、他に多くの報告例がある (Elvir *et al.*, 2006; Sheppard *et al.*, 2001; Gundersen *et al.*, 1998; Andersson *et al.*, 2001)。McNultyら (1996) では、約 $15 - 30 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の窒素添加により、6年でトウヒ葉針の窒素含有率が2倍近く上昇した。Gundersenら (1998) は、窒素負荷の添加、除去実験 (NITREX) の結果から、もともとの窒素負荷量が $20 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以下の地域で、 $35 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ 以上の窒素添加により、リターフォールの窒素量が1-4割増加するという結果を示している。Diseら (1998) は、NITREXの結果と、ヨーロッパ各地の針葉樹の調査結果から、窒素負荷の増加が、当年葉の窒素濃度やリターフォール窒素濃度上昇に、中期的影響として現れることを示している。

(2) 樹種特性

一般に、針葉樹のリターフォールは、落葉広葉樹に比べてC/N比が大きい場合が多い (森田, 1972)。また、ハンノキ属のヒメヤシャブシでは、リターフォールの窒素含有率が大きい (堤, 1987)、これは多くのハンノキ属

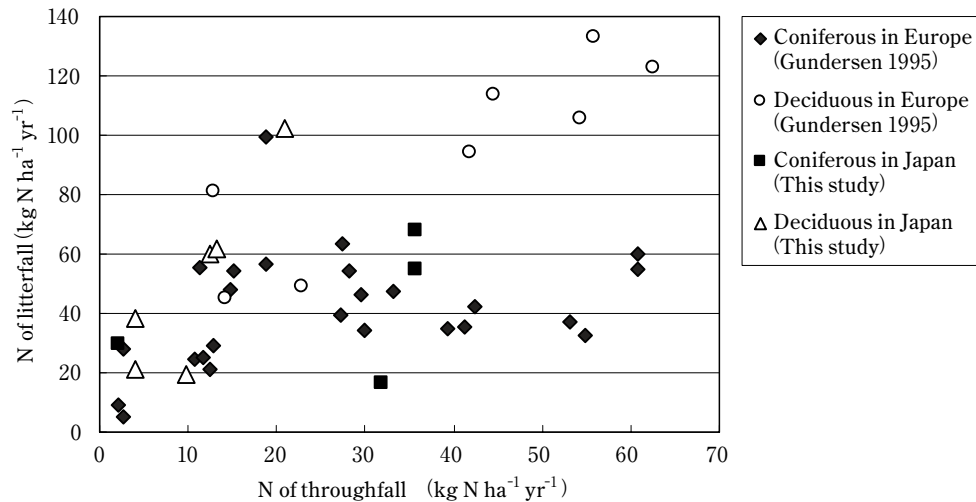


図50 林内降水による窒素負荷量とリターフォール窒素量
The effect of nitrogen input (throughfall) on nitrogen flux with litterfall

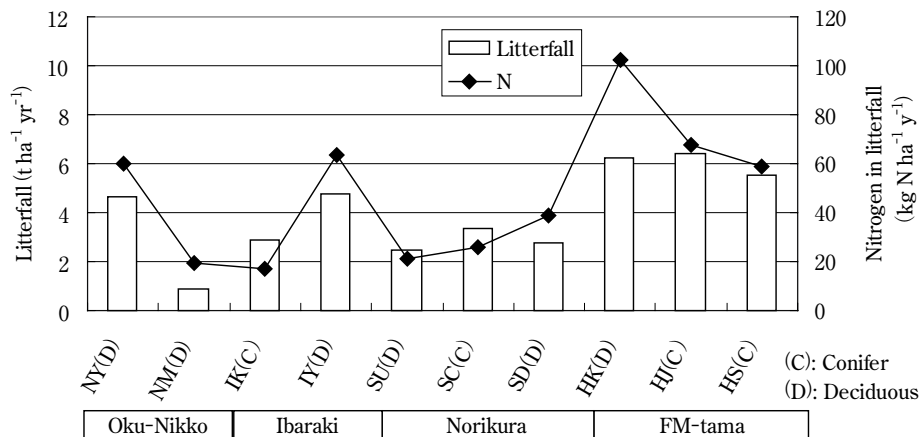


図51 各調査地のリターフォール量およびリターフォールによる窒素循環量
Amount of litterfall and litterfall nitrogen in experimental sites

の樹種同様に根粒菌を持っているため窒素に対するストレスが小さいためと考えられる。このように、根粒菌の有無や、広葉樹か針葉樹かなどの区別により、リターフォールの化学性や養分転流などの特性が異なることから (Waring & Franklin, 1979; Helmisaari, 1995)、窒素負荷量の変化により受ける影響も異なると考えられる。

本研究で調査した森林は、樹種構成が多様であるため、リターフォールの化学性や窒素量に関する樹種の影響を整理しておく必要がある。

対象とした落葉広葉樹林の落葉期の葉リターの窒素含有率は、0.9から2.2%の間での変動した。最も、窒素含有率の高いダケカンバ林では、リターフォールの窒素含有率の季節変化が非常に小さく、落葉時の窒素転流率が非常に小さいことも特徴的であった (表11)。コナラを

中心とする落葉広葉樹林では、0.9%と1.5%という生育地間の差がみられた。針葉樹林では、アカマツ林、ヒノキ林、亜高山のシラビソ林を比較した。落葉期の窒素含有率は、0.5から0.8%であり、落葉広葉樹林に比べて低かった。乗鞍の例で、針葉樹林と落葉広葉樹林を比較すると、リターフォール量は、針葉樹林が多かったが、落葉期の窒素含有率の差が大きく影響し、リターフォール窒素量としては、落葉広葉樹林で針葉樹林の約1.3倍となった (図51)。また、温暖で窒素負荷が大きいFM多摩では、リターフォール量は、どの林分もほぼ同程度の6 t ha⁻¹ yr⁻¹であったが、リターフォール窒素量では、落葉広葉樹林で針葉樹林の約1.5倍となり、リターフォールによる窒素の還元量は100 kg N ha⁻¹ yr⁻¹以上となった (表11、図51)。以上の結果、各調査地においてリター

フォール量に対する樹種の影響は認められなかった。しかし、落葉期の葉リターフォールの窒素含有率については、落葉広葉樹で高く、針葉樹で低いという大まかな傾向がみられた。その結果、同じ地域におけるリターフォール窒素量は、落葉広葉樹林で多い傾向となった。しかし、リターフォール量やリターフォール窒素量は、地域間の差も大きく、気候要因などを含む環境要因の影響が大きいと考えられる。また、FM多摩の針葉樹林では、リターフォール全体のC/N比が50前後であり、他の針葉樹林（アカマツ林：90、シラビソ林：71）に比べて低く、落葉や落枝などの窒素含有率が高いことが示され、窒素負荷などの環境影響を受けている可能性が示唆された。

(3) 樹木密度と窒素の内部循環

森林生態系における窒素蓄積増加量は、樹種や環境条件が同じでも、樹木密度などの植生状況によって異なる。生長初期段階では、植物の窒素蓄積増加率は大きいですが、バイオマス自体が小さいため、窒素の蓄積量および循環量はそれほど大きくない。樹木の生長が進むと植物からの還元量も増えるが、更に生長のため多くの窒素を要求し、生態系の窒素蓄積量は増加する。しかし、生態系のバイオマスが最大になると、窒素要求についての前年からの増加分は小さくなり、窒素の循環量に対する需要の割合が減少する（Helmisaari, 1995）。このような植生の状態の違いにより、系外から負荷される窒素の影響が異なると考えられている（Aber, 1989）。

そこで、本研究における調査林について、胸高面積

(BA) とリターフォール窒素量の関係を検討した。林齢の異なる針葉樹林を対象にしたヨーロッパにおける調査結果（Helmisaari, 1995; Jussy *et al.*, 2004）と合わせて、図52に示す。本研究の調査地では、同じBAでも平均胸高直径が小さく、樹木本数が多いという特徴があった。リターフォール窒素量はBAが30–50付近で他の報告に比べて多く（図52）、これらは窒素負荷量の多い地点であった。落葉広葉樹林では、BAが30弱にもかかわらず内部循環窒素量は多いなど、BAとは関係なくリターフォール窒素量が変動しており、これは窒素に対する要求度が、落葉広葉樹と針葉樹とで差があるというWaringら（1979）の結果を支持した。全体をみると、リターフォール窒素量はBAが40前後でピークを持ち、その後で減少している。つまり、絶対的なBAの大きさ（例えば40以上）が、リターフォール窒素量の減少を引き起こしている可能性があり、その原因として、樹木の生長量減少にともなう新鮮葉量の減少、または、樹体量の増加にともなう体内蓄積窒素の増加により、転流による窒素供給量の増加などの可能性が考えられる。

FM多摩丘陵の林齢の異なるヒノキ林では、リターフォール量、窒素量共に30年生林の方が40年生林に比べて多かった。リターフォールの内訳をみると、40年生林では落枝の割合が比較的大きく、葉やその他のリターフォールは30年生林に比べて少なかった。立ち枯れ木が多数みられることから、40年生林では、何らかの原因で生長が緩やかになっている段階であると考えられる。それぞれの林分のBAは、38.5と50.4であった（表13、図52）。

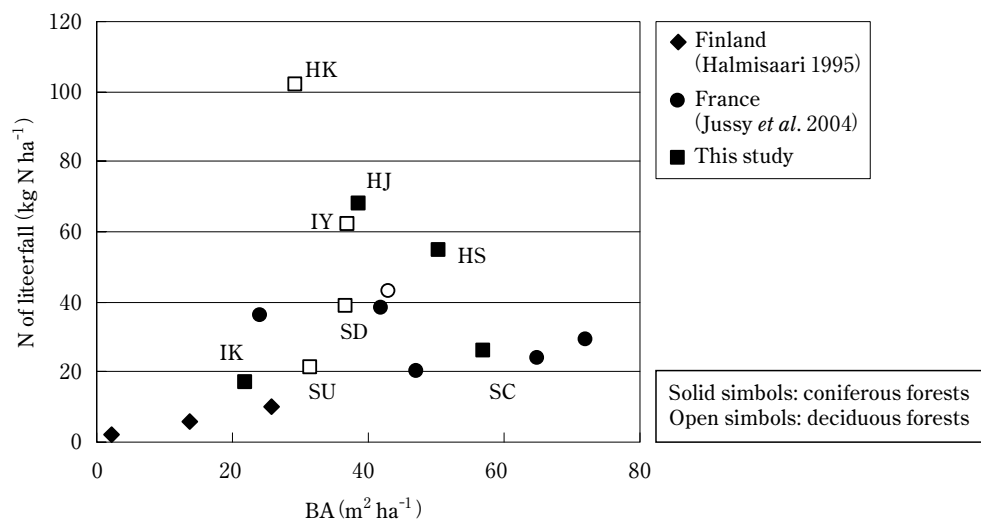


図52 胸高面積 (BA) とリターフォール窒素量
The relation of basal area (BA) and nitrogen of litterfall

(4) 窒素循環におけるリターフォール窒素の意義

本研究では、樹種や生育環境の異なる森林において、リターフォール窒素量を指標として内部循環を評価することを目的とした。その結果として、窒素負荷量の増加に対して、窒素の内部循環量が増加すること、また、針葉樹林と落葉広葉樹林とでは、窒素負荷量に対する反応が大きく異なることが明らかになった。一方で、窒素以外の要因により、樹木密度が小さい林分や、生育状態の不良な林分では、窒素の内部循環量は、窒素負荷量とは関係なく、少ないことも示された。このように、窒素の内部循環量は、窒素負荷量や、窒素負荷以外の様々な要因との相互作用によって決まるが、その中でも、植物の生物的な要素への依存が大きく、植生ごとに異なる窒素循環の特徴を良く表している。

リターフォール窒素を指標とした内部循環量は、窒素負荷により影響を受けるものであると同時に、物質循環の観点からみると、林床への有機物としての窒素負荷という意味を持つ。すなわち、大気由来の窒素負荷の一部が、植物を介して植物-土壌間の有機物としての窒素循環に取り込まれるのか、有機物量の循環量の変化をとまなわれないのか、リターフォール窒素の変化として現れる。この様な窒素の内部循環量を、林内降水により無機態で負荷される窒素と合わせて評価することで、植物との相互作用を含んだ林床への窒素負荷量を表すことができる。このような、大気由来の窒素負荷の植物への効果を含んだ、窒素インプットの指標は、多様な森林生態系での窒素循環の比較に適した有効な指標となると考えられる。

VI 生態系の窒素循環と N_2O 放出 (総合考察)

1 目的

本章では、窒素負荷量や植生タイプの異なる森林について実施した、窒素循環調査の結果に基づき、生態系の窒素循環の比較検討を行う。土壌からの硝酸イオン流出量および林床からの N_2O 放出量を、生態系からの窒素流出として、これらを制御する要因についての検討を行う。ヨーロッパの針葉樹林を対象に行われた、先行研究(NITREXなど)の結果と比較することにより、植生タイプの異なる森林における窒素循環の特徴を明らかにする。特に、針葉樹林と落葉広葉樹林とで異なる、樹冠を経由する窒素の循環パターンに注目し、これらを加味した、窒素流出量の推定方法を検討する。

2 物質循環の比較

II章からV章までに明らかにした窒素循環量の特徴をまとめ、表14に示した。なお、渓流水の硝酸イオン濃度など関連項目については、環境省のプロジェクト研究の報告書(環境省,2004)などから引用した。FM多摩丘陵(東京都八王子市)は、多摩丘陵の入り口に位置し、都心の影響を大きく受けている貴重な地点であるため、比較データとして加えた。ただし、リターフォール以外の項目については、文献値(Baba,1993)や統計値を引用したため、測定方法や測定時期の違いによる誤差を含む。

国内8か所の対象林には、立地環境や樹種の異なる植生が含まれている。茨城、長野、東京の各地点では、近接する針葉樹林と広葉樹林を比較した。また、温帯平地林から、山岳地帯の亜高山冷温帯林までを対象としており、立地環境も多様である。林外降水による窒素負荷量は、約 $4\text{ kg N ha}^{-1}\text{ yr}^{-1}$ から $20\text{ kg N ha}^{-1}\text{ yr}^{-1}$ まで、約5倍の差があり、都市近郊林であるつくば(茨城)や八王子(東京)で高く、山岳地帯の乗鞍(長野)で低かった。同じく山岳地帯の奥日光(栃木)では、窒素負荷量は中から高程度であり、尾根部と谷部という立地条件による負荷量や植生状態の違いが顕著であった。一方、表15に、ヨーロッパで行われた窒素負荷量制御実験(NITREX)のデータを示す(Gundersen *et al.*,1998)。NITREXでは、ヨーロッパ北部の針葉樹林を調査対象としており、土壌は寒冷地針葉樹林に特有なポドゾルであり、地点間の植生や土壌条件が類似しているという特徴を持つ。NITREXでは、各地点における窒素負荷の大小によって、窒素の添加または除去処理を施し、その生態系影響を評価したが、本研究では、各地点の対象区(無処理区)のデータを比較に用いた(表15)。NITREXの各地点における林外降水による窒素負荷量は、 $9\text{ kg N ha}^{-1}\text{ yr}^{-1}$ から $33\text{ kg N ha}^{-1}\text{ yr}^{-1}$ であり、国内調査地に比べ、より負荷量の多い地点を含んでいる。これらのデータを合わせて比較検討を行った(図53)。リターフォールについては、NITREXの針葉リターフォールデータに合わせて、葉または針葉のリターフォール量を比較した。

3 窒素インプットと窒素アウトプット

林内降水による窒素負荷量を窒素インプット量とし、50cmまたは根域から下層への硝酸イオン流出量を窒素アウトプット量として、生態系毎に比較した(図54.a)。窒素インプット量が多い地点で、硝酸イオン流出量が多くなる傾向がみられた。窒素に関しては、生態系におけるインプットとアウトプットの関係は、直線的ではな

表14 物質循環調査結果概要

Characteristics and concentration and flux data from experiment sites.

エリア	茨城県 つくば		栃木県 奥日光		長野県 乗鞍岳		東京都 八王子市	
サイト	八郷 (IY)	観音台 (IK)	前白根 (NM)	弓張峠 (NY)	乗鞍SD (SD)	乗鞍SC (SC)	FM多摩 丘陵1(HK)	FM多摩 丘陵2(HS)
緯度(N) 経度(E)	36° 14'41.0" 140° 8'8.45"	36° 1'28.7" 140° 6'40.3"	36° 47'53.6" 139° 23'22.2"	36° 46'29.8" 139° 24'47.2"	36° 5'58.2" 137° 36'7.0"	36° 6'8.7" 137° 36'10.3"	35° 38'18.6" 139° 22'36.0"	35° 38'15.5" 139° 22'40.5"
標高(m)	340	20	2,300	1,420	1,610	1,705	180	152
位置	斜面上部	平地	尾根部	斜面下部	谷部	斜面中位	尾根部	斜面中位
土壌 (FAO)	花崗岩質 褐色森林 土(Gleyic Cambisols)	淡色黒ボク 土(Gleyic Haplic Andosols)	未熟土 (Legosols)	褐色森林 土(Gleyic Cambisols)	湿性褐色 森林土 (Gleyic Cambisols)	湿性褐色 森林土 (Gleyic Cambisols)	-	-
降水量 (mm yr ⁻¹)	1,307	1,076	1,715	1,686	2,272* ¹	2,272* ¹	1,843* ²	1,843* ²
林外降水 窒素負荷量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	14.8 (2000-2002)	18.9 (2000-2002)	7.4 (2000-2001)	19.3 (2000-2001)	3.9* ¹ (2002-2004)	3.9* ¹ (2002-2004)	15.3* ³ (1990-1992)	15.3* ³ (1990-1992)
林内降水 窒素負荷量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	12.4 (2000-2002)	28.7 (2000-2002)	13.9 (2000-2001)	13.1 (2000-2001)	4.3 (2003-2004)	1.8 (2003-2004)	20.9* ³ (1990-1992)	35.6* ³ (1990-1992)
植生	落葉広葉 樹林 コナラなど (<i>Quercus serrata</i>)	針葉樹林 アカマツ (<i>Pinus densiflora</i>)	落葉広葉 樹林 ダケカンバ (<i>Betula Ermanii</i>)	落葉広葉 樹林 ハルニレなど (<i>Ulmus davidiana</i>)	落葉広葉 樹林 シラカバ (<i>Betula platyphylla</i>)	針葉樹林 シラビソ (<i>Abies Veitchii</i>)	落葉広葉 樹林 コナラ (<i>Quercus serrata</i>)	針葉樹林 ヒノキ (<i>Chamaecy paris obtusata</i>)
林齢	30	30	-	-	-	-	60	45
全リターフォール 窒素量 (kg N ha ⁻¹) [N%]	63.5 [1.33] (2002-2004)	16.8 [0.59] (2002-2003)	19.6 [2.20] (2001/6-10)	59.9 [1.29] (2001/6-10)	38.1 [1.39] (2002-2004)	29.8 [0.80] (2002-2004)	102.1 [1.63] (2004-2005)	54.7 [0.98] (2004-2005)
葉リター窒素量 (kg N ha ⁻¹) [N%]	49.2 [1.42] (2002-2004)	13.4 [0.55] (2002-2003)	19.0 [2.33] (2001/6-10)	53.9 [1.54] (2001/6-10)	29.2 [1.48] (2002-2004)	23.1 [0.81] (2002-2004)	82.3 [1.82] (2004-2005)	42.6 [1.07] (2004-2005)
A ₀ 層 C/N	25.2	36.9	-	28.1	21.2	34.2	-	-
土壌 C/N 0-10 cm (0-5 cm) 20-50 cm	16.7 15.5	15.9 13.4	14.1 12.4	12.8 10.0	15.2 (15.3) 16.8	17.8 (18.1) 22.2	(13.0)	(15.9) -
土壌 pH (H ₂ O) 0-10 cm 20-50 cm	4.8 5.3	5.4 6.0	5.1 5.2	4.5 5.2	4.3 4.8	3.8 4.8	- -	- -
窒素流出量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹) [硝酸イオン割合] 上段A ₀ 層 下段50 cm土壌	31.8 [83%] 17.3 [96%] (2000-2002)	74.4 [72%] 11.6 [95%] (2000-2002)	17.3 [50%] 1.1 [39%] (2000-2001)* ⁴	15.3 [81%] 12.8 [97%] (2000-2001)* ⁴	10.0 [27%] 0.43 [45%] (2003-2004)* ⁴	25.2 [2%] 0.15 [1%] (2003-2004)* ⁴	- -	- -
土壌水硝酸イオン濃度 (mg N l ⁻¹) 上段20 cm 下段50 cm	4.9 3.23 (1999-2001)	3.25 3.34 (1999-2001)	0.093 0.09 (2001/6-10)	10.39 6.16 (2001/6-10)	0.011 0.006 (2003/5-10, 2004/5-10)	0.005 0.007 (2003/5-10, 2004/5-10)	3.68* ³ 2.83* ³ (1990/3-91/5), (1990/10-91/5)	4.6* ³ 3.49* ³ (1990-1992)
渓流水硝酸イオン濃度 (mg N l ⁻¹)	0.90 (1999-2001)	-	-	0.63 (2000-2001)	0.054 (2002/6-10)		1.96* ³ (1990-1993)	
N ₂ O放出レベル (μg N m ⁻² h ⁻¹) [kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹]* ⁵	< 16 [0.25] (1999-2002)	< 30 [0.4] (1999-2003)	< 2.5 [0.11] (2001/6-10)	< 33 [0.63] (2001/6-10)	< 2 [0.09] (1999-2001)	< 2 [0.05] (1999-2001)	< 15* ⁶ [0.8] (1998-1999)	-

*1 乗鞍調査地の林外降水は、物質循環調査地から約3 km離れた採取地点の値

*2 アメダスデータ (八王子：1990 - 1993の平均値)

*3 文献値 (Baba, 1993) 等より計算した値

*4 50 cm 流出量は暖候期のみ値

*5 測定値平均から単純に時間積算した値

*6 文献値 (Yoh *et al.*, 2003) より計算

表全体の作成にあたり、環境省 (2004) を参照した

表15 NITREXの対象区データ

Characteristics of the site and concentration and flux data from control treatment at five NIREX sites

サイト	Gårdsjön (GD)	Klosterhede (KH)	Aber (AB)	Speuld (PS)	Ysselsteyn (YS)
緯度 経度	58°04'N 12°01'E	56°29'N 8°24'E	53°13'N 4°00'W	52°13'N 5°39'E	51°30'N 5°55'E
標高 (m)	–	27	300	–	–
位置	–	flat	–	–	–
土壌 (FAO)	Podsol	Podsol	Podsol	Haplic Podsol	Haplic Podsol
降水量 (mm yr ⁻¹)	1,100	860	1,850	800	700
林外降水窒素負荷量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	10	9	10	23	33
林内降水窒素負荷量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	13	23	14	50	59
植生(針葉樹)	ドイツトウヒ (<i>Picea abies</i>)	ドイツトウヒ (<i>Picea abies</i>)	ペイトウヒ (<i>Picea sitchensis</i>)	ダグラスファー (<i>Pseudotsuga nebiesii</i>)	ヨーロッパマツ (<i>Pinus sylvestris</i>)
林齢	81	75	35	33	45
葉針リターフォール 窒素量 (kg N ha ⁻¹) [N%]	13 [0.9]	27 [1.2]	49 [1.1]	35 [1.38]	55 [1.52]
A ₀ 層 C/N	32	33	22	21	20
土壌 C/N 0–30 cm	31	30	18	27	38
土壌 pH (H ₂ O) 0–30 cm	4.2	4.3	3.1	4.4	3.0
硝酸イオン流出量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹) 上段:A ₀ 層 下段:根域以下	NA 0.1	1.5 0.1	9 17	68 27	46 40
N ₂ O放出量 (kg N ha ⁻¹ yr ⁻¹)	0.055	0.04	0.5	NA	NA

注)Gundersenら (1998)より作成

く、窒素負荷量がある閾値を超え、10 kg N ha⁻¹ yr⁻¹から25 kg N ha⁻¹ yr⁻¹までの間の地点については、硝酸イオン流出量と窒素負荷量の間、一定の関係は見られず、硝酸イオン流出量の変動が非常に大きいことが示された。林床からのN₂O放出量については、窒素負荷量が、10 kg N ha⁻¹ yr⁻¹を超える辺りから、放出量が急激に増加する地点が出現したが、窒素負荷量とN₂O放出量との関係は明らかではなかった(図54. b)。

すなわち、大気由来の窒素負荷量が極端に少ない地域では、窒素の流出はほとんど認められず、一方、窒素負荷量が極端に多い地域で、硝酸イオン流出量の増加などによる窒素飽和現象が確認された。しかし、窒素負荷量が10–20 kg N ha⁻¹ yr⁻¹前後の地点については、硝酸イオン流出量やN₂O放出量などの環境への窒素流出量は、変動が非常に大きく、窒素負荷量以外の要因による影響を受けていることが示唆された。

国内の既存研究によると、関東や関西の森林での林内

降水による窒素負荷量は、10–20 kg N ha⁻¹ yr⁻¹の報告が多い(Ohrui & Michell, 1997; 小柳ら, 2002; 小林ら, 1995; 徳地・岩坪, 1992)。また、近年、窒素負荷量の増加傾向も報告されており(土器屋, 2001)、このような中–高程度の窒素負荷を受ける森林は、国内に多く分布すると推測される。この範囲の窒素負荷量が、環境からの窒素流出に対する閾値にあたると思われるため、窒素流出に関与する要因について更に吟味する必要がある。

4 林床のC/N比

Emmettら(1998)は、NITREXの結果をもとに、林床のC/N比が24以下になると、窒素負荷量に対する硝酸イオンの流出割合が増加するという結論を導いた。同様の現象は、アメリカの温帯林でも報告されている。林床のC/N比が22–24より大きいのか、窒素含有率が1.4%より小さい場合には、硝化が起こりにくいというデータが、窒素負荷量傾斜のある地点、または実験的に窒素負

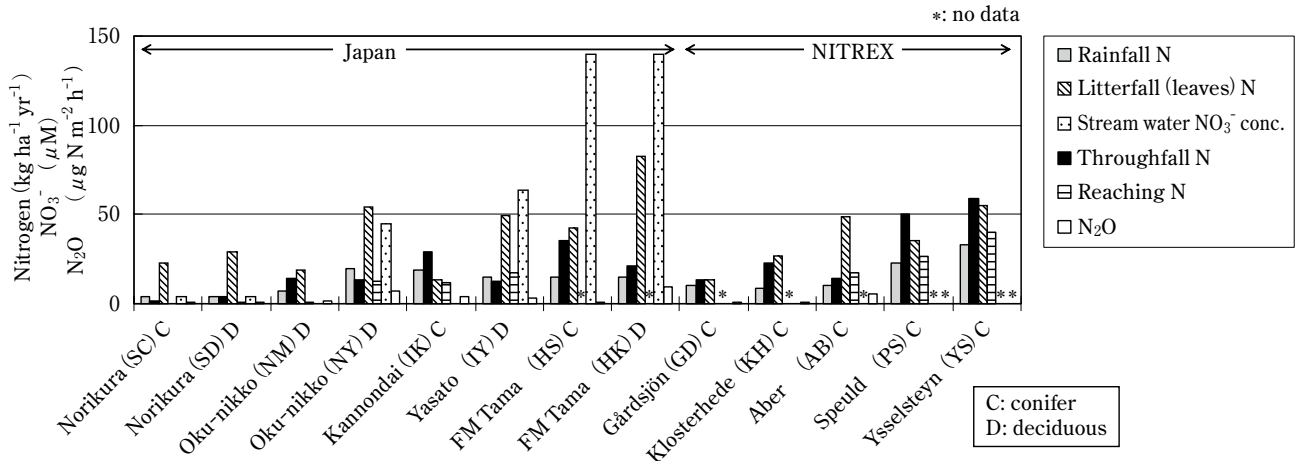


図53 生態系毎の窒素循環量
Characteristics of amount of nitrogen cycling in each experimental site

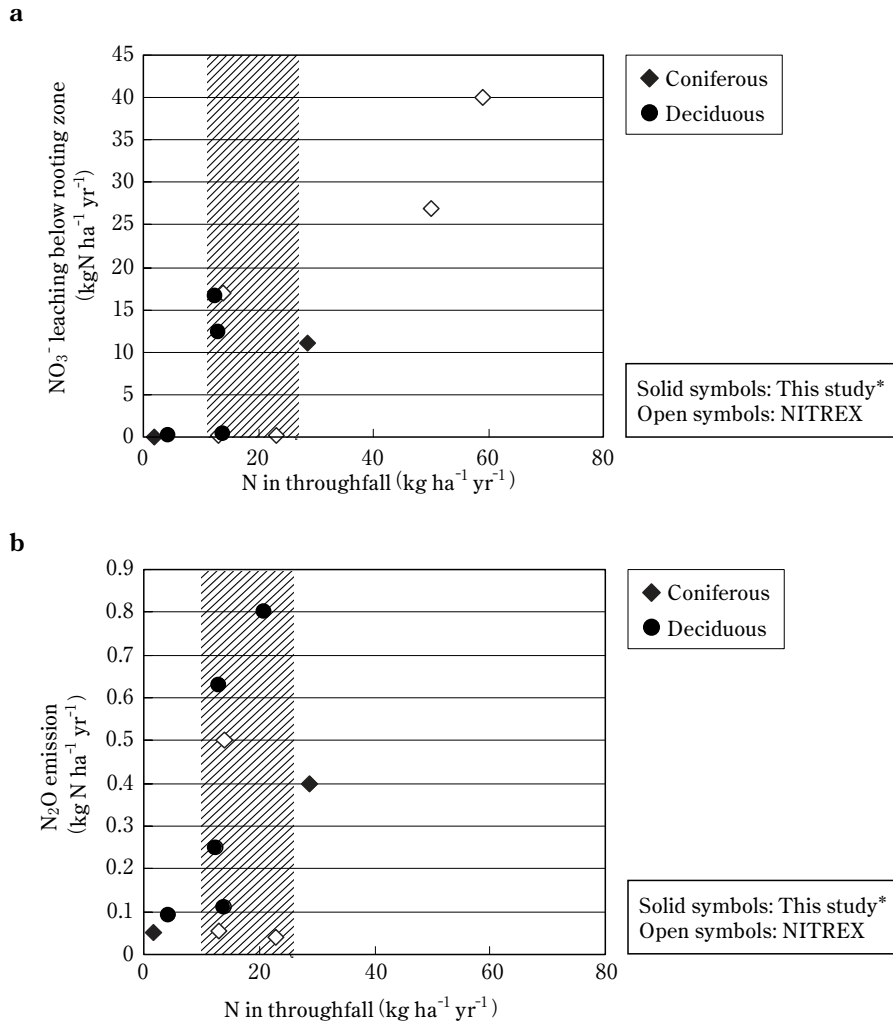


図54 窒素インプットと窒素アウトプット
林内降水窒素量と a) 根域以下への硝酸イオン流出量、および b) 臨床からの N₂O 放出量との関係。各マーク塗りつぶしは、本研究（*ただし、FM 多摩については文献値を引用）の国内データ、白抜きは、NITREX（ヨーロッパ）データ
The relation between nitrogen input and nitrogen output; a) NO₃⁻ leaching below rooting zone and b) N₂O emission from the forest floor

荷量を変えた実験で示されている (McNulty *et al.*, 1996)。土壌中の硝酸イオンは、有機態窒素の無機化とその後の硝化によって生成されるが、有機態窒素の無機化過程は、基質のC/N比に強く影響を受けることは良く知られており (楊, 2004; 日本ペドロロジー学会編, 2007)、微生物代謝に裏付けされた有効な指標と考えられる。

本研究で得られた林床 (A_0 層) のC/N比は、針葉樹では、34および37であり、いずれも NITREX の窒素負荷の少ない地点と同レベルであった。一方、落葉広葉樹林では、 A_0 層のC/N比の変動幅が大きく、リターフォールの化学性の違いが影響していることが示唆された (V章)。林床 (A_0 層) のC/N比と、森林へのインプット窒素に対する流出窒素の割合との関係をプロットすると、本研究の国内調査地点の値は、NITREXでみられた関係 (C/N

比24以下で、負の相関がみられる) から大きく外れる結果となった (図55.a)。

国内57か所を対象とした広域調査でも、窒素負荷 (推定量) と A_0 層の窒素含有率又はC/N比との間に有意な関係はみられなかった (IV章)。これらの結果から、NITREXでは窒素状況を示す有効な指標であった林床のC/N比について、日本国内の多様な林分に対しては、指標の有効性は確認されなかった。

この原因として、多様な樹種を対象にしたために、リターの質的変異の影響が大きいが挙げられるが、これに加え、土壌や気候要因の影響が大きいかも考えられる。NITREX調査地点の土壌であるポトゾルは、一般に、厚い A_0 層が堆積し、特にF層 (細破碎された植物遺体) やH層 (腐植層) が発達している (河田, 2000)。こ

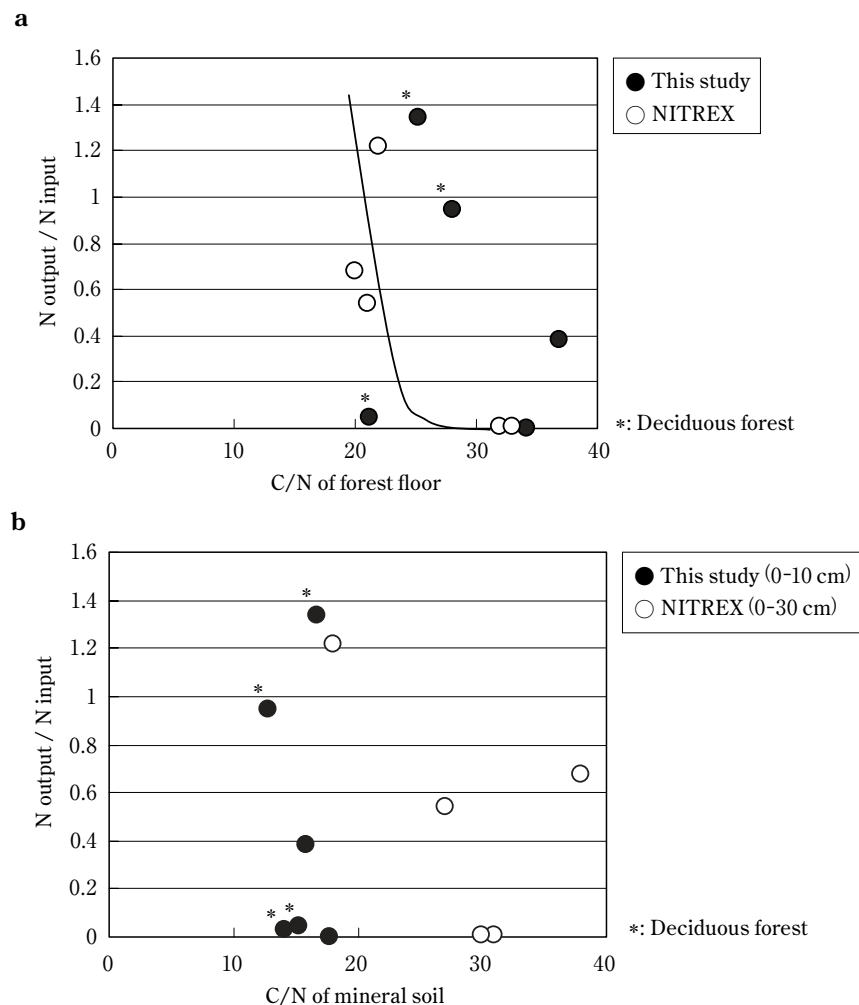


図55 林床のC/N比と、生態系への窒素アウトプット/インプット比
 a: 林床 (A_0 層) のC/N比およびb) 鉱質土壌C/N比との関係。塗りつぶしは、本研究の国内データ、白抜きは、NITREX (ヨーロッパ) データ
 The relation between the proportion of nitrogen inputs leached (N output / N input) and a) the carbon-nitrogen (C/N) ratio of the forest floor and b) the carbon-nitrogen (C/N) ratio of the mineral soil

のため、負荷された窒素の保持機構や、リターフォールの化学性を反映した微生物代謝の効果が、A₀層で比較的安定した性質として示されると考えられる。一方、比較的温暖湿潤な気候のもとで、有機物の分解が促進されるため、国内調査地の多くで、A₀層は数cmと薄かった。その結果、A₀層に占める、L層（リター層）の割合が大きくなり、C/N比は、NITREXに比べ高くなったと考えられる。すなわち、気候要因によるA₀層の発達過程の違いが、指標としての有効性の差をもたらしたと考えられる。

さらに、林床（A₀層）のC/N比に関して、採取方法についても注意が必要である。アメリカ高地での実験（McNulty *et al.*, 1996）では、採取したサンプルを5mmの篩にかけた後にCとNとを分析している。すなわち粗大有機物（葉や枝、根など）や石を除いたL層とF層とH層がある場合にはH層を合わせた物であると推測される。NITREXの多くでは、L層、F層、H層を平均した値が使われているが、H層が発達していない土壌では、L層とF層を平均した値が使われている。一方、Emmettら（1993）は、有機物層の内、L層とF層を林床とし、H層はもともとあった有機物として区別している。このように、林床（Forest floor）の扱いは、論文や生態系により微妙に異なるため、タイプの異なる生態系で比較する際には、その定義に注意する必要がある。本研究では粗大有機物を含む有機物層（A₀層）を、全て粉碎して測定したものをを用いた。また、鉍質土壌のC/N比について、林床のC/N比と同様に、森林へのインプット窒素に対する

流出窒素の割合との関係をプロットした（図55. b）。13から18の間で変動する表層鉍質土壌のC/N比と窒素の流出割合との間に、有意な相関は認められなかったが、やや負の相関傾向がみられた。Yoh（2001）は、多摩川流域の調査で、表層鉍質土壌のC/N比と土壌培養により生成された硝酸イオン量（全窒素に対する比）との間に、負の相関があることを示している。鉍質土壌のC/N比は、NITREXに比べ、国内調査地で低く、比較的安定していた。これらのことから、腐植に富んだA層を有するような土壌（湿性褐色森林土など）では、表層鉍質土壌のC/N比が、窒素状況を反映している可能性が示唆された。

以上の結果から、林床のC/N比や鉍質土壌のC/N比は、指標としての適応範囲が、気候条件や土壌や植生の種類などにより限定されるため、国内の多様な森林において、窒素飽和と密接な窒素状況を示す指標としては適さないことが明らかになった。

5 林床への窒素インプット

NITREXでは、森林への窒素インプット量として、林内降水による窒素負荷量を用いており、本研究でもこれに従った。しかし、林外降水と林内降水の窒素量の関係は、窒素負荷量以外に、針葉樹林か落葉広葉樹林か、あるいは樹木密度などの森林の状態によっても異なると考えられる。本研究のデータで比較すると、針葉樹林では、林外降水の窒素負荷量にほぼ比例して、林内降水の窒素負荷量は約2倍に増加している（図56）。これに対し、落

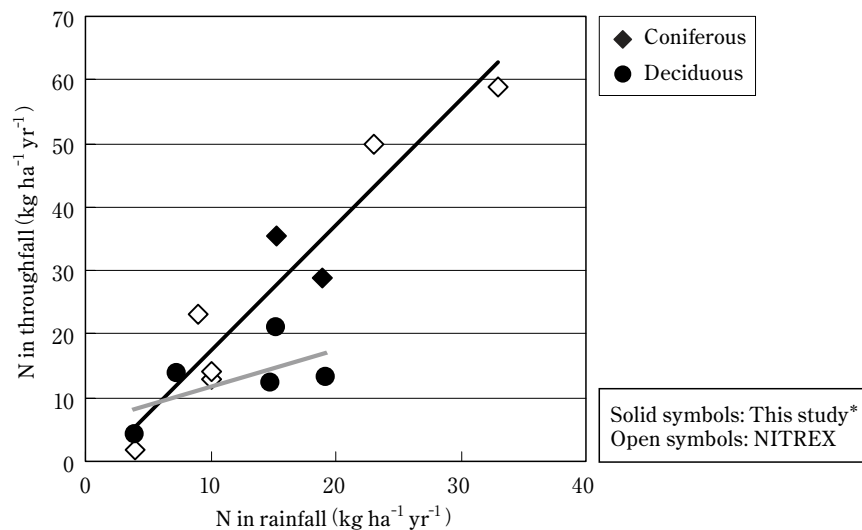


図56 林外降水窒素と林内降水窒素の関係
各マーク塗りつぶしは、本研究（*ただし、FM多摩については文献値を引用）の国内データ、白抜きは、NITREX（ヨーロッパ）データ
The relation between nitrogen of rainfall and nitrogen of throughfall

葉広葉樹林では、多少の増減はあるが、林内降水による窒素負荷量は、林外降水による窒素負荷量とほぼ同じレベルに止まっている (図56)。すなわち、同じ窒素負荷量、例えば $15 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の林内降水窒素負荷がある森林について、落葉広葉樹林の場合は、林外降水窒素負荷量が、 $15 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ であるのに対し、針葉樹林では、 $7-8 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ というケースが想定され、この差は非常に大きい。そこで、植生タイプの異なる森林の比較に、林内降水窒素負荷量を用いることの妥当性を検討することとした。

樹冠による主な効果としては、乾性沈着の捕捉と降雨による洗脱と、葉面吸収の二つが挙げられる (尾保手, 2004)。これらは、林外降水の窒素に対し、それぞれプラスとマイナスの相反する効果を持ち、これらの収支により、林内降水の窒素負荷量が決まる。針葉樹林と落葉広葉樹林で異なる葉の形態や生理特性は、乾性沈着捕捉量や葉面吸収量の差をもたらすことが予想される。本研究では、乾性沈着量と葉面吸収量の推定を行っておらず、これらについての議論はできない。一方で、葉に吸収された窒素成分は、樹体への転流や、リターフォールとして林床へ還元されることにより、植物-土壌系の内部循環に取り込まれる。そこで、林床へ還元される窒素として、葉リターフォールの窒素に注目し、林内降水窒素量との関係を調べた (図57)。林内降水窒素負荷量の増加に伴い、葉リターフォールの窒素量は増加したが、落葉広葉樹林で、針葉樹林に比べ、葉リターフォール窒

素量の増加率が大きいことが示された。つまり、同じ林内降水窒素負荷量の森林を比べた場合、落葉広葉樹の方がよりリターフォールによる窒素還元量が大きいことになる。これは、林外降水と林内降水の窒素量でみられた関係と逆である。つまり、樹冠による乾性沈着の捕捉、洗脱や葉面吸収の結果、林床にインプットされる主な窒素源として、林内降水窒素と葉リターフォール窒素を考えると、これらの量のバランスは、森林タイプによって大きく異なることが示された。

林床へのインプットとして取り上げた、林内降水窒素量と葉リターフォール窒素量を足し合わせたものについて、林外降水窒素量との関係をみると、植生タイプの違いによる増加割合の差は、非常に小さくなった (図58)。しかし、同じ林外降水窒素レベルでも、林内降水窒素量と葉リターフォール窒素の合計値が、大きく変動している地点もみられた。これらは、前述の、硝酸イオンの流出や N_2O 放出量のばらつきが大きい、林内降水窒素負荷量が 10 から $25 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ yr}^{-1}$ の地点を含んでいた (図58)。以上のことから、異なるタイプの森林への、窒素負荷量を比較する際には、林床への窒素インプットとして、林内降水窒素負荷量に、葉リターフォールの窒素量を加味することの妥当性が明示された。これらの値は、林外降水窒素量で代表される、大気由来の窒素負荷に、そこに生育する植生の相互作用の効果を加えたものと説明することができる (図59)。

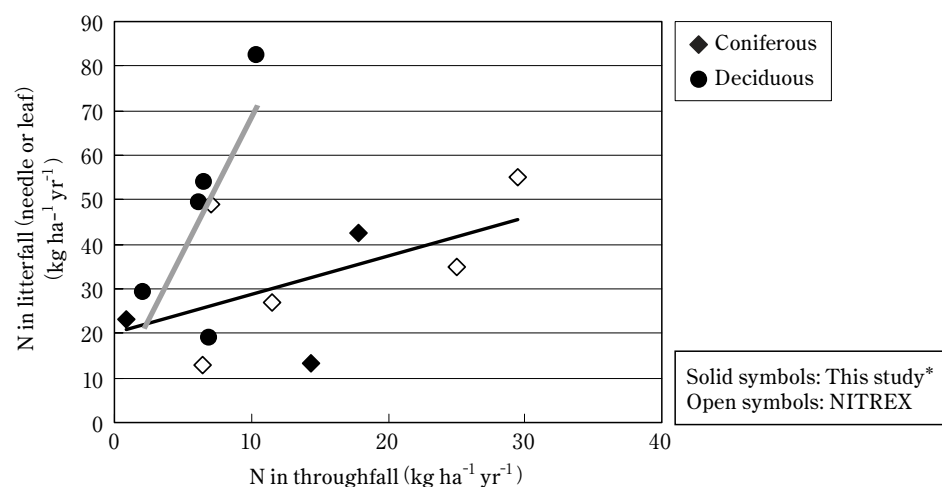


図57 林内降水窒素とリター（葉）窒素との関係
各マーク塗りつぶしは、本研究 (*ただし、FM多摩については文献値を引用) の国内データ、白抜きは、NITREX (ヨーロッパ) データ
The relation between nitrogen of throughfall and nitrogen of needle or leaf litterfall

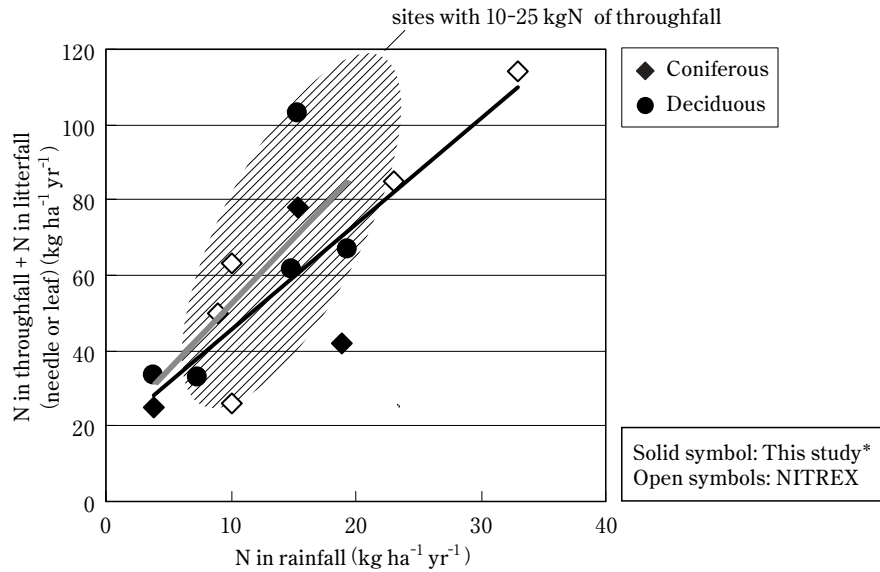


図58 林外降水窒素と林内降水窒素と葉リター窒素の和との関係
 各マーク塗りつぶしは、本研究（*ただし、FM多摩については文献値を引用）の国内データ、白抜きは、NITREX（ヨーロッパ）データ
 The relationship between the nitrogen of rainfall and total of the nitrogen of throughfall and litterfall (needle or leaf)
 Solid symbols show data of Japanese sites, open symbols show data of NITREX sites

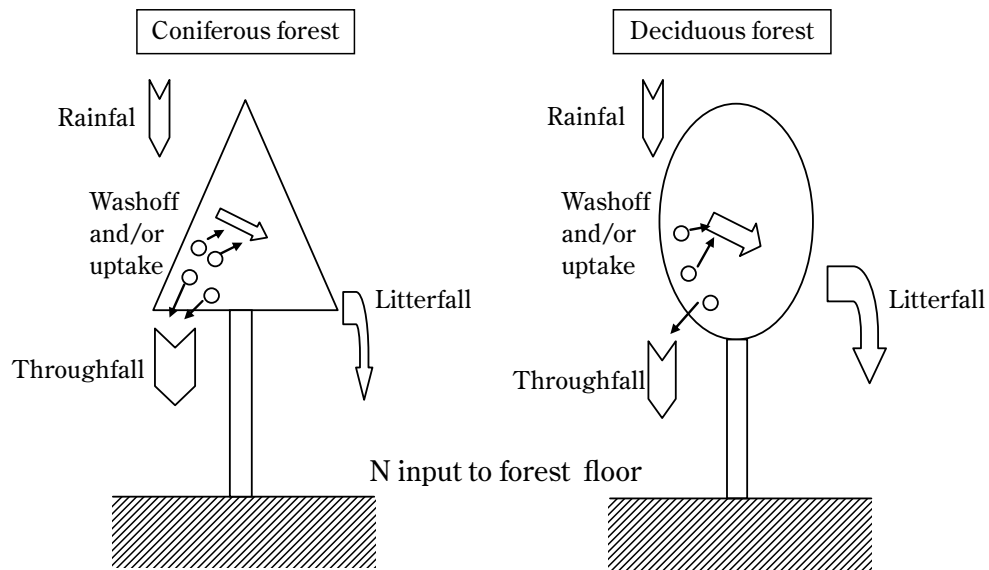


図59 林床への窒素インプットのイメージ図
 Image of nitrogen input to the forest floor that differ among tree types

6 生態系から環境への窒素負荷 (N₂O、NO₃⁻)

多様な植生を含む本研究調査地においも、土壌層から流出する硝酸イオン量や林床からのN₂O放出量は、大気由来の窒素負荷量の影響を受けていることは明らかである。しかし、窒素負荷量が中～高程度の森林では、これら生態系からの窒素流出（放出）量の変動が大きく、窒素負荷量以外の要因が関与していることが示唆された。そこで、前節で妥当性が示された、葉リターフォールの

窒素量を加えて、窒素インプットと窒素アウトプットとの関係を再検討した。窒素インプットとして、1) 林内降水窒素量、2) 葉リターフォールの窒素量、3) 林内降水窒素量と葉のリターフォール窒素量の合計、を用い、硝酸イオンの流出量とN₂O放出量それぞれとの関係を調べた（図60. a, b, c）。根域または50 cm土壌層からの硝酸イオン流出量については、林内降水窒素量および林内降水窒素量と葉リターフォール窒素量の和で、有意な正の

相関 ($p < 0.005$) がみられたが、後者の方で、より高い相関係数が得られた ($r = 0.95$)。N₂O放出量については、葉リターフォールの窒素量と、林内降水窒素量と葉リターフォール窒素量の合計において、有意な正の相関 ($p < 0.005$) がみられた。これについても、後者で相関係数が高い結果となった ($r = 0.87$)。これらの結果から、林内降水窒素負荷量と葉リターフォール窒素量の合計を、窒素インプットの指標として用いることにより、硝酸イオン流出量およびN₂O放出量に関して、多様な森林データを、それぞれを同一の式 (6)、(7) で回帰することが可能であることが示された (図60.c)。このことは、生態系の要求量を上回る窒素供給で定義される窒素飽和現象において、窒素負荷量や、その植生への相互作用の指標となる内部循環量 (葉リターフォール窒素量) が、生態系からの窒素流出量に大きく寄与していることを示す。

$$\text{NO}_3\text{-N leaching} = 0.4604 \times (\text{N of throughfall} + \text{N of needle or leaf litterfall}) - 13.763 \quad \dots\dots\dots (6)$$

$$\text{N}_2\text{O-N} = 0.01 \times (\text{N of throughfall} + \text{N of needle or leaf litterfall}) - 0.2098 \quad \dots\dots\dots (7)$$

ただし、式中のNは年間値

林床からのN₂O放出は、その発生経路が複数あり、経路により環境要因の寄与が異なるため、厳密な放出量予測は難しい。しかし、いずれの発生経路においても、無機態窒素の存在がN₂O発生の必要条件となる。有機物の分解過程において、窒素の無機化 (正味) が起こるのは、植物遺体とそれを分解する微生物体を含む有機物全体の窒素割合が、高くなった場合である。具体的には、微生物による窒素の有機化 (微生物体増加) が進んだ場合や、その結果として有機物の分解が進み、炭素の減少により相対的に窒素割合が増加するケースが考えられる。そして、このような相対的窒素割合の増加は、外部から生態系にインプットする窒素量の増加や、窒素含有率の高いリターフォールなどにより促進される。この様な背景からも、林床からのN₂O放出量の推定に、林床への有機物還元量と無機態窒素の負荷量の両方を加味することの妥当性が支持される。しかし、実際のN₂O放出は土壤水分や温度など様々な要因によっても規定されるため、今回の推定は、N₂O放出ポテンシャルの推定と意味づけられる。N₂Oで放出される窒素量は、林床への窒素インプット量 (林内降水窒素負荷量とリターフォール窒素量の合計) に対し、0.1-1%と非常に小さい。しかし、N₂O放出量は、著しい季節変化を示す場合があり、表層土壌で起こる窒素無機化量の変化に対応している可能性が示唆

される。観音台や八郷では、夏季に高い放出量が見られたが、これらの時期は、A₀層浸透水による硝酸イオンフラックスが比較的大きい時期と一致する (II章、IV章)。また、窒素添加実験による短期的なN₂O放出の増加も認められている (IV章)。

硝酸イオンについても、N₂O同様、生態系の無機態窒素の豊富さによって生成量が左右される。しかし、土壌層を通過して起こる流出では、土壌の浅い部分の濃度ピークが数か月から数年単位の時間遅れを持ち、より広く低いピークとなって下層で現れることが捉えられており (II章)、このことから、溪流の硝酸イオン濃度などは、比較的平均的な生態系の窒素状況を示す指標と捉えることができる。

7 まとめ

大気由来の窒素負荷量の増加が、森林生態系の窒素循環に与える影響が懸念されており、湿潤な気候条件のもと、多様な立地環境に成立する国内の森林についても、窒素流出量の評価や窒素飽和のメカニズム解明が求められている。そこで、本研究では、窒素負荷量が異なる、多様なタイプの森林を対象に、窒素循環量調査を行い、既往研究の結果と合わせて比較検討を行った。土壌からの硝酸イオン流出量および林床からのN₂O放出量を生態系からの窒素流出として、各生態系からの窒素流出量の推定方法を検討した。

針葉樹林を対象とした先行研究 (NITREX) で得られた結果について、国内の落葉広葉樹林を含む、多様な森林への適応可能性を検討した。林内降水窒素負荷との関係では、窒素負荷量が中から高程度の地点において、硝酸イオン流出量やN₂O放出量のばらつきが大きいことから、窒素負荷量以外の要因の関与が示唆された。また、林床のC/N比については、国内の調査地点の多くで、堆積有機物量が少なく、新鮮リターフォールの影響を大きく受け、C/N比はNITREXに比べて相対的に大きくなった。この結果、気候要因や土壌条件の異なる多様な森林の比較においては、林床C/N比を窒素状況の指標として用いることが難しいことが明らかになった。

植生タイプの違いについては、針葉樹林に比べ、落葉広葉樹林では、リターフォール窒素量が多いことや、樹冠通過による、降水の窒素量の増加が少ないことから、乾性沈着の捕捉や葉面吸収など、樹冠における作用が異なることが示唆された。そこで、林床への窒素インプットの指標として、林内降水窒素量に加え、葉リターフォールの窒素量の有効性を検討した。その結果、林内

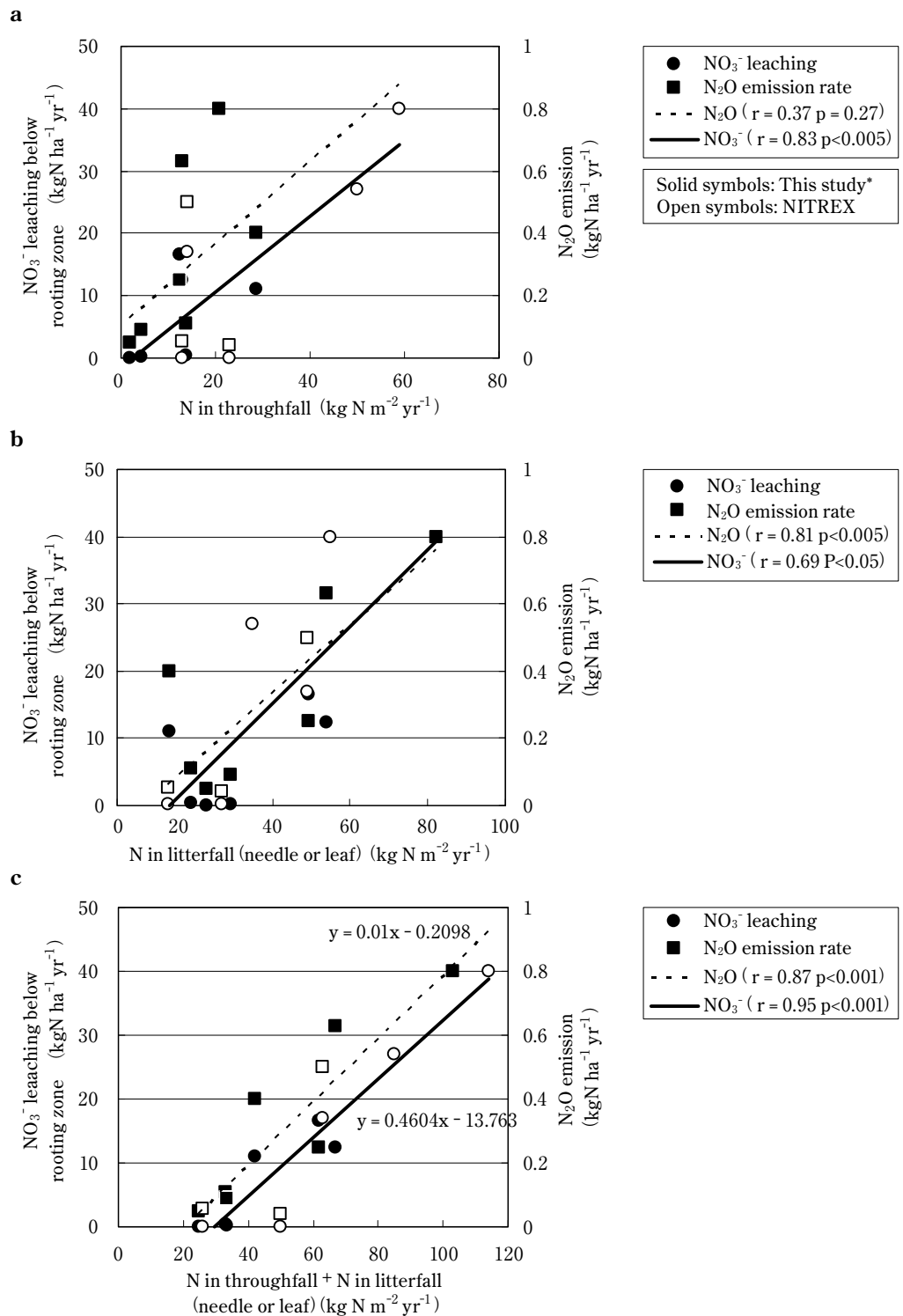


図60 林床への窒素インプットと窒素流出およびN₂O放出との関係
 窒素流出量（根域または50 cm 土壌層からの硝酸イオン流出量、および林床からのN₂O放出量）と、a：林内降水窒素量、b：リターフォール（葉）窒素量、c：林内降水窒素量とリターフォール（葉）窒素量の和との関係。各マークの塗りつぶしは、本研究（*ただし、FM多摩については文献値を引用）の国内データ、白抜きは、NITREX（ヨーロッパ）データ
 Nitrogen input to the forest floor and nitrogen output
 The relationship between the nitrate ion reaching and the N₂O emission rate and a) nitrogen in throughfall, b) nitrogen of litterfall (needle or leaf), c) total of the nitrogen of throughfall and litterfall (needle or leaf). Solid symbols show data of Japanese sites, open symbols show data of NITREX sites

降水窒素負荷量とリターフォールの窒素還元量の合計を、変数とすることで、多様な森林に適応可能な、土壌層からの硝酸イオン流出量および N_2O 放出量の推定式が得られた。

謝 辞

本研究を遂行するに当たり、終始懇篤なるご指導ならびにご助言をいただいた信州大学理学部教授の戸田任重博士に深く感謝いたします。農業環境技術研究所上席研究員の新藤純子博士には、研究推進にあたり、常に適切なご助言をいただき、ご支援、ご指導を賜りました。ここに深く感謝いたします。研究推進に際し、東京大学准教授の川島博之博士および信州大学理学部教授の鈴木啓助博士には、貴重なご助言を頂きました。東京農工大学農学部准教授の楊宗興博士には、窒素負荷と内部循環に関してご教授を頂き、リターフォール調査の推進と結果のまとめに際し、ご助言をいただきました。ご指導いただきました諸先生方に、深く感謝いたします。

乗鞍岳の現地調査において、大野川地区区長には、所有林の使用を許可していただき、また信州大学乗鞍寮には、隣接林での調査に協力いただきました。さらに、信州大学理学部の村本美智子氏、奈良麻衣子氏、平林明氏をはじめ、多くの学生の方々に、測定機器の維持管理およびデータの採取にご協力いただきました。FM多摩丘陵でのリターフォール調査および生葉調査の実施にあたり、東京農工大学の多摩フィールドセンター、センター長の原宏博士をはじめスタッフの方々には、フィールドの使用を快く許可していただき、また、資材の管理等にご便宜ならびにご協力いただきました。関係者のみなさまに感謝いたします。

広域森林調査では、入林手続きに際し、各地域の森林管理局および各県の森林管理署、各地区の林業組合の方々に協力を賜りました。茨城八郷の調査では、関東森林管理局森林技術センターに調査地の許可および森林基礎データの提供を得ました。これらの諸事務所のご協力に感謝いたします。

奥日光における調査は、環境省地球環境総合推進費C4「酸性・酸化性物質に係る陸域生態系の衰退現象の定量的解析に関する研究」による研究の一部として実施しました。また、乗鞍における調査は、環境省地球環境総合推進費C6「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」による研究の一部として実施しました。北海道大学

教授の波多野隆介博士をはじめ研究室の皆様には、樹木の肥大成長測定法についてご教授いただきました。また、森林総合研究所、信州大学、東京農工大他のプロジェクト参画研究者の皆様のご協力の下に、データを取ることができました。また、調査地の基礎情報に関する貴重なデータを使わせていただきました。研究推進上貴重なご支援をいただきましたことに、深く感謝いたします。

農業環境技術研究所の飯野宏幸氏、岡田利之氏、渡邊浩二氏、荒貴裕氏を始めとする研究技術支援室の方々には、現地調査の実施にあたり、ご協力、ご支援いただきました。サンプルの調整を援助していただいた中野蓉子氏には、正確で迅速なサンプル処理をしていただき、大きな助けとなりました。また、試料の分析に関して、農業環境技術研究所主任研究員の麓多門氏には、的確なご指導をいただきました。以上の皆様のご支援に対し、深く感謝いたします。

引用文献

- 1) Aber, J. D., K. J. Nadelhoffer, P. Steuder and J. M. Melillo (1989) : Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. *BioScience*, **39**, 378-386
- 2) Aber, J. D., W. H. McDowell, K. J. Nadelhoffer, A. H. Magill, G. M. Berntson, M. Kamakea, S. G. McNulty, W. S. Currie, L. E. Rustad and I. Fernandez (1998) : Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. *BioScience*, **48**, 921-934
- 3) Aber, J. D., C. L. Goodale, S. V. Ollinger, M. L. Smith, A. H. Magill, M. E. Martin, R. A. Hallett and J. L. Stoddard (2003) : Is nitrogen deposition altering the nitrogen status of Northeastern forests? *BioScience*, **53**, 375-389
- 4) Akiyama, H., X. Yan and K. Yagi (2006) : Estimations of emission factors for fertilizer-induced direct N_2O emissions from agricultural soils in Japan: Summary of available data. *Soil Science and Plant Nutrition*, **52**, 774-787
- 5) Andersson, P., D. Berggren and L. Johnsson. (2001) : 30 years of N fertilization in a forest ecosystem - The fate of added N and effects on N fluxes. *Water, Air, and Soil Pollution*, **130**, 637-642
- 6) Arnold, K. V., P. Weslien, M. Nilsson, B. H. Svensson and L. Klemedtsson (2005) : Fluxes of CO_2 , CH_4 and

- N₂O from drained forests on organic soils. *Forest Ecology and Management*, **210**, 239-254
- 7) Baba, M. (1993) : Acidification of forested andisols due to acidic deposition. Doctoral dissertation, Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo, Japan.
- 8) Bandibas, J., A. Vermoesen, C. J. De Groot and O. van (1994) : The effect of different moisture regimes and soil characteristics on nitrous oxide emission and consumption by different soils. *Soil Science*, **158**, 106-114
- 9) Berg, B. and C. McClaugherty 著, 大園享司訳 (2004) : 森林生態系の落葉分解と腐植形成. シュプリンガー・フェアラーク, 東京
- 10) Berntson, G. M. and J. D. Aber (2000) : Fast nitrate immobilization in N saturated temperate forest soil. *Soil Biology and Biochemistry*, **32**, 151-156
- 11) Boxman, A. W., D. van Dam, H. F. G. van Dijk, R. F. Hogervorst and C. J. Koopmans (1995) : Ecosystem responses to reduced nitrogen and sulphur inputs into twoconiferous forest stands in the Netherlands. *Forest Ecology and Management*, **71**, 7-29
- 12) Bredemeier, M., K. Blanck, Y. -J. Xu, A. W. Boxman, B. Emmet, P. Gundersen and R. F. Wright (1998) : Input-output budgets at the NITREX sites. *Forest Ecology and Management*, **101**, 57-64
- 13) Brimblecombe, P. and D. H. Stedman (1982) : Historical evidence for a dramatic increase in the nitrate component of acid rain. *Nature*, **298**, 460-462
- 14) Brooks, P. D., M. W. Williams and S. K. Schmidt (1998) : Inorganic nitrogen and microbial biomass dynamics before and during spring snowmelt. *Biogeochemistry*, **43**, 1-15
- 15) Burumme, R., W. Borken and S. Finke (1999) : Hierarchical control on nitrous oxide emission in forest ecosystems. *Global Biogeochemical Cycles*, **13**, 1137-1148
- 16) Butterbach-Bahl, K., R. Gasche, L. Breuer and H. Papen (1997) : Fluxes of NO and N₂O from temperate forest soils: impact of forest type, N deposition and limiting on the NO and N₂O emission. *Nutrient Cycling in Agroecosystem*, **48**, 79-90
- 17) Comas, L. H., T. J. Bouma and D. M. Eissenstat (2002) : Linking root traits to potential growth rate in six temperate tree species. *Oecologia*, **132**, 34-43
- 18) Davidson, E. A., M. Keller, H. E. Erickson, L. V. Verchot and E. Veldkamp (2000) : Testing a conceptual model of soil emissions of nitrous and nitric oxides. *BioScience*, **50(8)**, 667-680
- 19) Davidson, E. A., J. Chorover and B. D. Dail (2003) : A mechanism of abiotic immobilization of nitrate in forest ecosystems: the ferrous wheel hypothesis. *Global Change Biology*, **9**, 228-236
- 20) Dick, J. and J. Wilson (2001) : The effect of rainfall on NO and N₂O emission from Ugandan agroforest soils. *Phyton "Nitrogen emissions"*, **41**, 73-80
- 21) Dise, N. B., E. Matzner and P. Gundersen (1998) : Synthesis of nitrogen pools and fluxes from European forest ecosystems. *Water, Air and Soil Pollution*, **105**, 143-154
- 22) Dise, N. B. and P. Gundersen (2004) : Forest ecosystem responses to atmospheric pollution linking comparative with experimental studies. *Water, Air and Soil Pollution Focus*, **4**, 207-220
- 23) Elvir, J. A., G. B. Wiersma, M. E. Day, M. S. Greenwood and I. J. Fernandez (2006) : Effects of enhanced nitrogen deposition on foliar chemistry and physiological processes of forest trees at the Bear Brook Watershed in Maine. *Forest Ecology and Management*, **221**, 207-214
- 24) Emmett, B. A., D. Boxman, M. Bredemeier, P. Gundersen, O. J. Kjonaas, F. Moldan, 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
- 25) Emmett, B. A., B. Reynolds, P. A. Stevens, D. A. Norris, S. Hughes, J. Görres and I. Lubrecht (1993) : Nitrate leaching from afforested welsh catchments- Interactions between stand age and nitrogen deposition. *AMBIO*, **22**, 386-388
- 26) Emmett, B. A., P. A. Stevens and B. Reynolds (1995) : Factors influencing nitrogen saturation in Sitka spruce stands in Wales, UK.. *Water, Air and Soil Pollution*, **85**, 1629-1634
- 27) Erickson, H. E. and G. Ayala (2004) : Hurricane-induced nitrous oxide fluxes from a wet tropical forest. *Global Change Biology*, **10**, 1155-1162

- 28) Ellis, S., M. T. Nowe, K. W. T. Goulding, M. S. Mugglestone and L. Dendooven (1998) : Carbon and nitrogen dynamics in a grassland soil with varying pH: Effect of pH on the denitrification potential and dynamics of the reduction enzymes. *Soil Biology and Biochemistry*, **30**, 359-367
- 29) Elvir, J. A., G. B. Wiersma, M. E. Day, M. S. Greenwood and I. J. Fernandez (2006) : Effects of enhanced nitrogen deposition on foliar chemistry and physiological processes of forest trees at the Bear Brook Watershed in Maine. *Forest Ecology and Management*, **221**, 207-214
- 30) Fenn, M. E., M. A. Poth, J. D. Aber, J. S. Baron, B. T. Bormann, D. W. Johnson, A. D. Lemly, S. G. McNulty, D. F. Ryan and R. Stottlemyer (1998) : Nitrogen excess in North American ecosystems: Predisposing factors, ecosystem responses, and management strategies. *Ecological Applications*, **8**, 706-733
- 31) Fowler, D., R. Smith, J. Muller, J. N. Cape, and M. Sutton, (2007) : Long term trends in sulphur and nitrogen deposition in Europe and the cause of non-linearities. *Water, Air and Soil Pollution, Focus*, **7**, 41-47
- 32) Frolking, S. E., A. R. Mosier, D. S. Ojima, C. Li, W. J. Parton, C. S. Potter, E. Priesack, R. Stenger, C. Haberbosch, P. Dörsch, H. Flessa and K. A. Smith (1998) : Comparison of N₂O emissions from soils at three temperate agricultural sites: simulations of year-round measurements by four models. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, **52**, 77-105
- 33) Galloway, J. N., W. H. Schlesinger, H. Levy, A. Michaels and J. L. Schnoor (1995) : Nitrogen fixation: Anthropogenic enhancement-environmental response. *Global Biogeochemical Cycles*, **9**, 235-252
- 34) Galloway, J. N., J. D. Aber, J. W. Erisman, S. P. Seitzinger, R. W. Howarth, E. B. Cowling and B. J. Cosby (2003) : The nitrogen cascade. *BioScience*, **53**, 341-356
- 35) Galloway, J. N., F. J. Dentener, D. G. Capone, E. W. Boyer, R. W. Howarth, R. W. Seitzinger, G. P. Asner, C. C. Cleveland, P. A. Green, E. A. Holland, D. M. Karl, A. F. Michaels, J. H. Porter, A. R. Townsend and C. J. Vöosmarty (2004) : Nitrogen cycles: past, present, and future. *Biogeochemistry*, **70**, 153-226
- 36) Gundersen, P., B. A. Emmett, O. J. Kjønnaas, C. J. Koopman and A. Tietema (1998) : Impact of nitrogen deposition on nitrogen cycling in forests: a synthesis of NITREX data. *Forest Ecology and Management*, **101**, 37-55
- 37) Gundersen, P. (1998) : Effects of enhanced nitrogen deposition in a spruce forest at Klosterhede, Denmark, Examined by moderate NH₄NO₃ addition. *Forest Ecology and Management*, **101**, 251-268
- 38) Gundersen, P. (1995) : Nitrogen deposition and leaching in European forests—preliminary results from a data compilation. *Water, Air and Soil Pollution*, **85**, 1179-1184
- 39) Grennfelt, P. and H. Hultberg (1986) : Effects of nitrogen deposition on the acidification of terrestrial and aquatic ecosystems. *Water, Air, and Soil Pollution*, **30**, 945-963
- 40) Helmisaari, H. (1995) : Nutrient cycling in *Pinus sylvestris* stands in eastern Finland. *Plant and Soil*, **168-169**, 327-336
- 41) Herman, D. J., L. J. Halverson and M. K. Firestone (2003) : Nitrogen dynamics in an annual grassland: Oak canopy, climate, and microbial population effects. *Ecological Applications*, **13**, 593-604
- 42) Intergovernmental Panel on Climate Change (2007) : Climate Change 2007. The physical science basis.
- 43) Jussy, J. H., M. Colin-Belgrand, É. Dambrine, J. Rnger, B. Zeller and S. Bienaimé (2004) : N deposition, N transformation and N leaching in acid forest soils. *Biogeochemistry*, **69**, 241-262
- 44) Keller, M., E. Veldkamp, A. M. Weitz and W. A. Reinert (1993) : Effect of pasture age on soil trace-gas emissions from a deforested area of Costa Rica. *Nature*, **365**, 244-246
- 45) Kesik, M., P. Ambus, R. Baritz, N. Brüggemann, K. Butterbach-Bahl, M. Damm, J. Duyzer, L. Horváth, R. Kiese, B. Kitzler, A. Leip, C. Li, M. Pihlatie, K. Pilegaard, G. Seufert, D. Simpson, U. Skiba, G. Smiatek, T. Vesala and S. Zechmeister-Boltenstern (2005) : Inventories of N₂O and NO emissions from European forest soils. *Biogeosciences*, **2**, 353-375
- 46) Kiese, R., C. Li, D. W. Hilbert, H. Papen and K. Butterbach-Bahl (2005) : Regional application of PnET-N-DNDC for estimating the N₂O source strength of tropical rainforests in the Wet Tropics of

- Australia. *Global Change Biology*, **11**, 128–144
- 47) Killingbeck, K. T. (1996) : Nutrients in senesced leaves: Keys to the search for potential resorption and resorption proficiency. *Ecology*, **77**, 1716–1727
- 48) Klemetsson, L., A. K. Klemetsson, F. Moldan and P. Weslien (1997) : Nitrous oxide emission from Swedish forest soils in relation to liming and simulated increased N-deposition. *Biology and Fertility of Soils*, **25**, 290–295
- 49) Lamers, M., J. Ingwersen and T. Streck (2007) : Modeling N₂O emission from a forest upland soil: A procedure for an automatic calibration of the biogeochemical model Forest-DNDC. *Ecological Modeling*, **205**, 52–58
- 50) Li, C., J. Aber, F. Stang, K. Utterbach-Bahl and H. Papen (2000) : A process-oriented model of N₂O and NO emission from forest soils: I. Model development. *Journal of Geophysical Research*, **105 D4**, 4369–4384
- 51) Maag, M. and F. P. Vinther (1996) : Nitrous oxide emission by nitrification and denitrification in different soil types and at different soil moisture contents and temperatures. *Applied Soil Ecology*, **4**, 5–14
- 52) Magill, A. H., J. D. Aber, W. S. Currie, K. J. Nadelhoffer, M. E. Martin, W. H. McDowell, J. M. Melillo and P. Steudler (2004) : Ecosystem response to 15 years of chronic nitrogen additions at the Harvard Forest LTER, Massachusetts, USA. *Forest Ecology and Management*, **196**, 7–28
- 53) Magill, A. H., J. D. Aber, J. J. Hendricks, R. D. Bowden, J. M. Melillo and P. A. Steudler (1997) : Biogeochemical response of forest ecosystems to simulated chronic nitrogen deposition. *Ecological Applications*, **7**, 402–415
- 54) Matson, P. and P. M. Vitousek (1990) : Ecosystem approach to a global nitrous oxide budget. *BioScience*, **40**, 667–672
- 55) Matson, P., K. A. Lohse and S. J. Hall (2002) : The globalization of nitrogen deposition: consequences for terrestrial ecosystems. *Ambio*, **31**, 113–119
- 56) Matsuura, Y., M. Sanada, M. Takahashi, Y. Sakai and N. Tanaka, (2001) : Long-term monitoring study on rain, throughfall, and stemflow chemistry in evergreen coniferous forests in Hokkaido, northern Japan. *Water, Air, and Soil Pollution*, **130**, 1661–1666
- 57) May, J. D. and K. T. Killingbeck (1992) : Effects of preventing nutrient resorption on plant fitness and foliar nutrient dynamics. *Ecology*, **73**, 1868–1878
- 58) McDowell, W. H., A. H. Magill, J. A. Aitkenhead-Peterson, J. D. Aber, J. Merriam and S. Kaushal (2004) : Effects of chronic nitrogen amendment on dissolved organic matter and inorganic nitrogen in soil solution. *Forest Ecology and Management*, **196**, 29–41
- 59) McNulty, S. G., J. D. Aber and S. D. Newman (1996) : Nitrogen saturation in a high elevation New England spruce–fir stand. *Forest Ecology and Management*, **84**, 109–121
- 60) Moldan, F., H. Hultberg, U. Nyström, and R. F. Wright, (1995) : Nitrogen saturation at Gårdsjön, southwest Sweden, induced by experimental addition of ammonium nitrate. *Forest Ecology and Management*, **71**, 89–98
- 61) Morishita, T., T. Sakata, M. Takahashi, S. Ishizuka, T. Mizoguchi, Y. Inagaki, H. Yasuda, Y. Koyama, Y. Suzuki, N. Toyota, M. Muro, M. Kinjo, H. Yamamoto, D. Ashiya, Y. Kanazawa, T. Hashimoto and H. Umata (2007) : Methane uptake and nitrous oxide emission in Japanese forest soils and their relationship to soil and vegetation types. *Soil Science and Plant Nutrition*, **53**, 678–691
- 62) Mosier, A., C. Kroeze, C. Nevison, O. Oenema, S. Eitzinger and O. van Cleemput (1998) : Closing the global N₂O budget: nitrous oxide emissions through the agricultural nitrogen cycle – OECD/IPCC/IEA phase II development of IPCC guidelines for national greenhouse gas inventory methodology. *Nutrient Cycling in Agroecosystems*, **52**, 225–248
- 63) Mosier, A. R., M. A. Bleken, R. B. Chaiwanakupt, E. C. Ellis, J. R. Freney, R. B. Howarth, P. A. Matson, K. Minami, R. Naylor, K. N. Weeks and Z. L. Zhu (2001) : Policy implications of human-accelerated nitrogen cycling. *Biogeochemistry*, **52**, 281–320
- 64) Ohrui, K. and M. Mitchell (1997) : Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds. *Ecological Applications*, **7**, 391–401
- 65) Oura, N., J. Shindo, T. Fumoto, H. Toda and H. Kawashima (2001) : Effects of nitrogen deposition

- on nitrous oxide emissions from forest floor. *Water, Air and Soil Pollution*, **130**, 673–678
- 66) Oura, N., J. Shindo, T. Fumoto, H. Toda and H. Kawashima (2005) : Comparison of nitrogen cycling and deposition in forested areas in central Japan. 3rd *International Nitrogen Conference Contributed Papers*, p.620–625
- 67) Paavolainen, L., M. Fox and A. Smolander (2000) : Nitrification and denitrification in forest soil subjected to sprinkling infiltration. *Soil Biology and Biochemistry*, **32**, 669–678
- 68) Papen, H. and K. Butterbach-Bahl (1999) : A 3-year continuous record of nitrogen trace gas fluxes from untreated and limed soil of a N-saturated spruce and beech forest ecosystem in Germany I. N₂O emissions. *Journal of Geophysical Research*, **104 D15**, 18487–18503
- 69) Parton, W. J., E. A. Holland, Del S. J. Grosso, M. D. Hartman, R. E. Martin, A. R. Mosier, D. S. Ojima and D. S. Schimel (2001) : Generalized model for NO_x and N₂O emissions from soils. *Journal of Geophysical Research*, **106 D15**, 17403–17419
- 70) Peter, M., R. Brumme, K. Butterbach-Bahl, K. E. Dobbie, A. R. Mosier, D. Ojima, H. Papen, W. J. Parton, K. A. Smith and C. Wagner-Riddle (2000) : Evaluating annual nitrous oxide fluxes at the ecosystem scale. *Global Biochem. Cycles*, **14**, 1061–1070
- 71) Resteller, E., P. Viousek, C. Field, G. Shaver, D. Herbert and G. Ågren (2001) : Resource optimization and symbiotic nitrogen fixation. *Ecosystems*, **4**, 369–388
- 72) Rode, M. W. (1995) : Aboveground nutrient cycling and forest development on poor sandy soil. *Plant and Soil*, **168–169**, 337–343
- 73) Schmidt, J., W. Seiler and R. Conrad (1988) : Emission of nitrous oxide from temperate forest soils into the atmosphere. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **6**, 95–115
- 74) Schmidt, J., S. Wolfgang and C. Ralf (1988) : Emission of Nitrous oxide from temperate forest soils into the atmosphere. *Journal of Atmospheric Chemistry*, **6**, 95–115
- 75) Sheppard, L. A. Crossley, J. Parringron, F. Harvey and J. Cape (2001) : Effects of simulated acid mist on a Sitka spruce forest approaching canopy closure: significance of acidified versus non-acidified nitrogen inputs. *Water, Air and Soil pollutant*, **130**, 953–958
- 76) Shindo, J., T. Fumoto, N. Oura, H. Toda and H. Kawashima (2001) : Input-output budget of nitrogen and the effect of experimentally changed deposition in the forest ecosystems in central Japan. *The Scientific World*, **1**, 472–479
- 77) Šimek, M. and J. E. Cooper (2002) : The influence of soil pH on denitrification: progress towards the understanding of this interaction over the last 50 years. *Eurasian Journal of Soil Science*, **53**, 345–354
- 78) Sitaula, B. K., L. R. Bakken and G. Abrahamsen (1995) : N-fertilization and soil acidification effects on N₂O and CO₂ emission from temperate pine forest soil. *Soil Biology and Biochemistry*, **27**, 1401–1408
- 79) Skeffington, R. A. and E. J. Wilson (1988) : Excess nitrogen deposition: Issues for consideration. *Environmental Pollution*, **54**, 159–184
- 80) Song, C., Y. Wang, Y. Wang and Z. Zhao (2006) : Emission of CO₂, CH₄ and N₂O from freshwater marsh during freeze-thaw period in Northeast of China. *Atmospheric Environment*, **40**, 6879–6885
- 81) Stevens, R. J., R. J. Laughlin, L. C. Burns, J. R. M. Arah and R. C. Hood (1997) : Measuring the contributions of nitrification and denitrification to the flux of nitrous oxide from soil. *Soil Biology and Biochemistry*, **29**, 139–151
- 82) Stange, F., K. Butterbach-Bahl, H. Papen, S. Zechmeister-Boltenstern, C. Li and J. Aber (2000) : A process-oriented model of N₂O and NO emissions from forest soils: 2. Sensitivity analysis and validation. *Journal of Geophysical Research*, **105**, 4385–4398
- 83) Teepe, R., R. Brumme and F. Beese (2001) : Nitrous oxide emissions from soil during freezing and thawing periods. *Soil Biology and Biochemistry*, **33**, 1269–1275
- 84) Tietema, A., W. Bouten and P. E. Wartenbergh (1991) : Nitrous oxide dynamics in an oak-beech forest ecosystem in the Netherlands. *Forest Ecology and Management*, **44**, 53–61
- 85) Tietema, A., W. Bouten and P. E. Wartenbergh (1991) : Nitrous oxide dynamics in an oak-beech forest ecosystem in the Netherlands. *Forest Ecology and*

- Management*, **44**, 53-61
- 86) Tsutsumi, T., Y. Nishitani and Y. Kirimura (1983) : On the effects of soil fertility on the rate and the nutrient element concentrations of litterfall in a forest. *Japanese Journal of Ecology*, **33**, 313-322
- 87) Venterea, R. T., P. M. Groffman, L. V. Verchot, A. H. Magill, J. D. Aber and P. A. Steudler (2003) : Nitrogen oxide gas emissions from temperate forest soils receiving long-term nitrogen inputs. *Global Change Biology*, **9**, 346-357
- 88) Venterea, R. T., P. M. Groffman, L. V. Verchot, A. H. Magill, J. D. Aber and P. A. Steudler (2003) : Nitrogen oxide gas emissions from temperate forest soils receiving long-term nitrogen inputs. *Global Change Biology*, **9**, 346-357
- 89) Vitousek, P. M. (1984) : Litterfall, nutrient cycling, and nutrient limitation in tropical forests. *Ecology*, **65**, 285-298
- 90) Vitousek, P. M., J. D. Aber, R. W. Howarth, G. E. Likens, P. A. Matson, D. W. Schindler, W. H. Schlesinger and D. G. Tilman (1997) : Human alteration of the global nitrogen cycle: Sources and consequences. *Ecological Applications*, **7**, 737-750
- 91) Vitousek, P. M., S. Hattenschwiler, L. Olander and S. Allison (2002) : Nitrogen and nature. *Ambio*, **31**, 97-101
- 92) Waring, R. and J. Franklin (1979) : Evergreen coniferous forests of the Pacific Northwest. *Science*, **204**, 1380-1386
- 93) Wright, R. F. and N. van Breemen (1995) : The NITREX project: an introduction. *Forest Ecology and Management*, **71**, 1-5
- 94) Wright, R. F., J. G. M. Roelofs, M. Bredemeier, K. Blanck, A. W. Boxman, B. A. Emmett, P. Gundersen, H. Hultberg, O. J. Kjønaas, F. Moldan, A. Tietema, N. van Breemen and H. F. G. van Dijk (1995) : NITREX: response of coniferous forest ecosystems to experimentally changed deposition of nitrogen. *Forest Ecology and Management*, **71**, 163-169
- 95) Yoh, M. (2001) : Soil C/N ratio as affected by climate: An ecological factor of forest NO₃⁻ leaching. *Water, Air and Soil Pollution*, **130**, 661-666
- 96) Yoh, M. Y. Takeshige and E. Konohira (2003) : N₂O emission from temperate monsoon forests in Japan as correlated with stream NO₃⁻ concentration. IUGG 2003 Assembly abstract
- 97) 伊藤優子・三浦覚・加藤正樹・吉永秀一郎 (2004) : 関東・中部地方の森林流域における渓流水中のNO₃⁻濃度の分布. 日本林学会誌, **86**, 275-278
- 98) 伊藤優子・加藤正樹 (2003) : 関東地方の都市近郊平地林における降水中の成分濃度と負荷量 - 森林総合研究所構内における降水の観測結果 -. 森林総合研究所研究報告, **388**, 149-155
- 99) 内嶋善兵衛 (1990) : 地球環境の危機. p.155-162, 岩波書店
- 100) 尾保手朋子 (2004) : 乾性沈着による大気-森林系の物質輸送. 地球環境, **9**, 113-121
- 101) 大浦典子・鈴木啓助・奈良麻衣子・村本美智子・麓多門・新藤純子・戸田任重 (2006) : 貧栄養多雪地域における森林の窒素循環. 環境科学会誌, **19**, 217-231
- 102) 小柳信宏・浦川梨恵子・生原喜久雄・戸田浩人 (2002) : スギ・ヒノキ壮齡人工林小流域における降雨の移動にともなう溶存有機体窒素および溶存有機態炭素の動態. 森林立地学会誌, **44**, 11-20
- 103) 風間彩乃 (2004) : 窒素飽和が森林生態系の内部循環に及ぼす影響. 東京農工大学 卒業論文, 1-85
- 104) 片桐成夫・堤利夫 (1973) : 森林の物質循環と地位との関係について (I) Litter fall 量とその養分量. 日本林学会誌, **55**, 83-90
- 105) 亀和田國彦 (1994) : 畑地における土壌中陰イオン含量 (Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻) の垂直分布. 日本土壌肥料学雑誌, **65**, 255-265
- 106) 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
- 107) 川島祿郎 (1929) : 肥料学. p.957, 西ヶ原刊行會
- 108) 河田弘 (2000) : 森林土壌学概論. p.399, 博有社
- 109) 環境省 酸性雨対策検討会 (2002) : 第4次酸性雨対策調査取りまとめ. p.175
- 110) 環境省 地球環境局研究調査室 (2004) : 環境省地球環境総合推進費平成15年度研究成果 - 中間成果報告集 - (Ⅲ / 全6分冊). p.153-172
- 111) 環境省 (2005) : 平成17年度大気汚染物質排出量総合調査結果について. 報道発表資料, <http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=9621>
- 112) 小林禧樹・中川吉弘・玉置元則・平木隆年・正賀充 (1995) : 森林樹冠への窒素沈着の影響評価 - 乾性沈着と溶脱の分別評価法の検討 -. 環境科学会誌, **8**,

- 25-34
- 113) 木平英一・新藤純子・吉岡崇仁・戸田任重 (2006) : わが国の渓流水質の広域調査. 日本水文科学会誌, **36**, 145-150
- 114) 後藤義明・小南裕志・深山貴文・玉井幸治・金澤洋一 (2003) : 京都府南部地方における広葉樹二次林の地上部現存量及び純生産量. 森林総合研究所報告, **387**, 115-147
- 115) 柴田英昭・佐久間敏雄 (1994) : 苫小牧北西の森林地帯における酸性降下物. 日本土壤肥科学雑誌, **65**, 313-320
- 116) 新藤純子・木平英一・吉岡崇仁・岡本勝男・川島博之 (2005) : わが国の窒素負荷量分布と全国渓流水質の推定. 環境科学会誌, **18**, 455-463
- 117) 森林総合研究所北海道支所 (2004) : 平成15年度森林総合研究所北海道支所年報. 33-36
- 118) 全国環境研協議会・酸性雨調査研究部会事務局 (2003) : 第3次酸性雨全国調査 (平成11~13年度のまとめ). 全国環境研会誌, **28**, 126-196
- 119) 田淵利夫 (2005) : 湖の水質保全を考える - 霞ヶ浦からの発信 -. p.194, 技報堂出版株式会社
- 120) 堤利夫 (1987) : 森林の物質循環. p.124, 東京大学出版会
- 121) 土器屋由紀子 (2001) : 多摩川中~上流域の森林土壌からの N_2O の放出速度の地理的分布と窒素循環. 財とうきゅう環境浄化財団研究助成 No.220報告書 (代表: 土器屋由紀子)
- 122) 徳地直子・岩坪五郎 (1992) : 酸性雨と森林生態系の窒素循環. 森林立地学会誌, **34**, 14-19
- 123) 土壤環境分析法編集委員会編 (1997) : 土壤環境分析法. p.195-196, 博有社
- 124) 農業環境技術研究所 (2003) : 「環境影響評価のためのライフサイクルアセスメント手法の開発」研究成
果報告書. p.46-49
- 125) 永田修・波多野隆介 (2001) : 土壌条件の違いがアカエゾマツの成長および物質循環に与える影響 - 泥炭土, 灰色台地土に成立するアカエゾマツ林における比較 -. 日本土壤肥科学雑誌, **72**, 147-157
- 126) 西尾隆 (1994) : 耕地土壌の脱窒過程. 日本土壤肥科学雑誌, **65**, 463-471
- 127) 日本ペトロロジー学会編 (2007) : 土壌を愛し, 土壌を守る - 日本の土壌, ペトロロジー学会50年の集大成 -. p.38-39, 博有社
- 128) 畠山史郎 (2003) : 酸性雨. p.209, 日本評論社
- 129) 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
- 130) 二井一禎・肘井直樹 (2000) : 森林微生物生態学. p.322, 朝倉書店
- 131) 細野達夫・細井徳夫 (2008) : トマト養液土耕栽培からの N_2O および NO 放出特性の解明. 野菜茶業研究所研究報告, **7**, 9-25
- 132) 陽捷行 (1990) : 土壌生態系のガス代謝に関する研究. 日本土壤肥科学会誌, **61**, 227-230
- 133) 森田禧代子 (1972) : 本邦主要樹種の落葉の無機組織. 林業試験場研究報告, **244**, 33-50
- 134) 楊宗興 (2003) : 多摩川流域での窒素飽和の実体解明: その分布と解析. 財とうきゅう環境浄化財団研究助成 No.237報告書 (代表: 楊宗興)
- 135) 楊宗興・木平英一・武重祐史・杉山浩史・三宅義則 (2004) : 渓流水の NO_3^- 濃度と森林の窒素飽和. 地球環境, **9**, 29-40
- 136) 林野庁 (2004) : I. 次世代へと森林を活かし続けるために. 平成16年度林業・森林白書

Effect of nitrogen deposition on nitrogen cycling in forested ecosystems and N₂O emission from the forest floor

Noriko Oura

Summary

Human-induced increases in reactive nitrogen contribute to detrimental changes in nitrogen cycling in terrestrial ecosystems. The effects are expanded from near the source to the surrounding area by atmospheric transportation or solution infiltration in soils.

Forests in Japan provide various benefits to people such as supplying organic material to agricultural fields and maintaining the functioning of aquatic systems. Perhaps the most important function, providing a safe and steady water supply, seems to have been weakened in recent years. The release of nitrate ions (NO₃⁻) into stream water has begun to be reported in suburban forests in Japan where nitrogen deposition is high due to atmospheric transport from polluted urban area.

The purpose of this study was to clarify the nitrogen status of Japanese forests that have received chronic nitrogen deposition. We compared nitrogen cycling in six forest ecosystems with different levels of nitrogen deposition. As nitrogen input to the forest ecosystems, we measured inorganic nitrogen (NH₄⁺ and NO₃⁻) flux in throughfall. The amount of nitrogen in the litterfall and the inorganic nitrogen (NH₄⁺ and NO₃⁻) flux in A₀ layer percolation and soil water were measured to investigate the internal nitrogen cycling in the plant-soil system. As nitrogen outputs from the forest ecosystems, we measured N₂O emissions from the forest floor and inorganic nitrogen (NH₄⁺ and NO₃⁻) leaching from soils.

Ibaraki sites (IK and IY), where nitrogen depositions in rainfall ranged from 15 to 19 kg N ha⁻¹ yr⁻¹ were sites with high nitrogen deposition. Two Oku-nikko sites (NM and NY) located on the ridge and lower slope of Mt. Maeshirane (2373 m) had 7 and 19 kg N ha⁻¹ yr⁻¹ of nitrogen deposition, respectively. The other mountainous sites (SC and SD) are located hillside of Mt. Norikura (3026 m) and have very low nitrogen deposition of 4 kg N ha⁻¹ yr⁻¹.

Among ecosystems with different temperature, precipitation and nitrogen deposition rate, various seasonal patterns of ion fluxes were noted. In temperate sites (IK and IY), the NH₄⁺ and NO₃⁻ fluxes increased to 2.5 times those of throughfall by passing through the organism layer. From 80 to 90% of inorganic nitrogen flux was accounted for by NO₃⁻. The seasonal change in that flux is high in summer and low in winter, which seems to correspond roughly with changes in the amount of precipitation. Cases of extremely high nitrogen fluxes in A₀ layer percolation in the summer accompanied rainfall events just after a prolonged dry period.

At the mountainous sites in Oku-nikko (NM and NY) and in Norikura (SC and SD), the total NH₄⁺ and NO₃⁻ flux in A₀ layer percolation were the same or less than those in throughfall. In coniferous forest at site SC, inorganic nitrogen that corresponding 15 times that in throughfall infiltrated the A₀ layer as NH₄⁺, an exceptional value. At sites NM and NY, the NO₃⁻ flux in A₀ percolation was very high during the snowmelt period.

These results suggest that at temperate forest sites with high nitrogen deposition the inorganic nitrogen (NH₄⁺ and NO₃⁻) fluxes through the A₀ layer are high and are controlled by nitrogen mineralization during the decomposition of organic matter. In contrast, at mountainous sites with low nitrogen deposition, the inorganic nitrogen fluxes into the soil layer were very low. Thus, nitrogen immobilizations may outweigh nitrogen mineralization because of the poor nitrogen environment. In addition, relatively high NO₃⁻ flux pulses that appeared abruptly were detected after a prolonged dry period in summer or during the snowmelt period. Under these extreme conditions, microorganisms would be damaged and the increase in

nitrogen mineralization was likely induced by the death or regeneration of these.

A 2-yr nitrogen manipulation experiment was carried out in temperate forests (IK and IY) . Nitrogen (NH_4NO_3) application equal to twice the amount in throughfall induced increases in inorganic nitrogen (NH_4^+ and NO_3^-) fluxes only in the A_0 layer, but no change was observed in the mineral soil layer. Nitrogen removal also resulted in no significant effect on NH_4^+ and NO_3^- fluxes in the mineral soil layer. These findings suggest that nitrogen cycling in temperate forest ecosystems is more strongly governed by the internal nitrogen cycling, which consists of decomposition and assimilation of organic matter, than by short-term changes in nitrogen deposition.

Next, we focused on litterfall nitrogen as an index of internal nitrogen cycling. The amount of nitrogen in the litterfall and the C/N ratios of them were compared among sites. The characteristics of litterfall differed greatly between coniferous and deciduous trees. The C/N ratios in deciduous litterfall were large compared to those of coniferous litterfall, and they differed according to species. Among deciduous trees litterfall nitrogen also showed large variation across the site and was high at the sites with high nitrogen deposition.

N_2O emissions from the forest floor was measured at the six sites as an index of nitrogen output from the ecosystems. High averaged N_2O emission rates were detected at sites with high nitrogen deposition or high nitrogen internal cycling via litterfall. Moreover, N_2O emission rates showed a seasonal pattern similar to that of inorganic nitrogen (NH_4^+ and NO_3^-) fluxes in A_0 layer percolation. These results suggest that N_2O emission will occur at sites where there is a surplus of inorganic nitrogen, over both the short and long terms, for N_2O is generated with mineralized nitrogen.

To confirm whether the positive correlation between nitrogen deposition and N_2O emission noted at the study sites was applicable to other sites, N_2O emission was measured at about 60 points across Japan. The concentration of NO_3^- in both soil water and stream water had a significant positive correlation with the estimated nitrogen deposition. There was also a significant positive correlation (but with a low coefficient) between N_2O emission rates and estimated nitrogen deposition.

Our findings indicated that the nitrogen deposition level near urban areas in Japan, where nitrogen saturation has been suspected, is approximately the same as that in nitrogen-saturated forests in Europe. The chronic nitrogen deposition has increased the amount of nitrogen cycling within the plant-soil system. Our findings also suggest that the effect of increased nitrogen deposition in forest ecosystems depends on their capacity for nitrogen maintenance. The N_2O emission rate, which is one nitrogen output from an ecosystem, showed a positive correlation with total nitrogen deposition and internal cycling of nitrogen, as well as NO_3^- leaching from soils. N_2O shows clear seasonal patterns and is an effective index of short-term changes in the supply and demand of inorganic nitrogen.