



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	森林生態系の物質循環における土壌 - 植物系の役割 : 酸性降下物に対する緩衝機構を中心として
Author(s)	柴田, 英昭
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(農学)
Dissertation Number	甲第3894号
Issue Date	1996-03-25
DOI	https://doi.org/10.11501/3112018
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/32780
Type	doctoral thesis
File Information	3894.pdf



森林生態系の物質循環における土壌－植物系の役割

～酸性降下物に対する緩衝機構を中心として～

農芸化学専攻 博士課程

柴田 英昭

1996年

『 目 次 』

第1章 緒論	… 1
第2章 研究史	… 5
(1)酸性雨の歴史	
(2)大気中の酸物質の発生源および発生量	
(3)生態系への物質の沈着過程	
(4)林冠通過時の降水の化学性変化	
(5)乾性沈着速度の評価方法	
(6)酸性降下物が土壌へ与える影響	
(7)有機質および鉱質土壌の酸緩衝機構	
(8)物質収支に基づいた酸性降下物の影響評価方法	
第3章 研究地点と分析方法	… 12
(1)研究地点の位置	
(2)各地点における母材, 土壌および植生の概要	
1)植生の概要	
2)母材・土壌の概要	
3)土壌の一般理化学性	
(3)試水の分析方法	
第4章 降雨(雪)として生態系へ流入する物質フラックス	… 21
1. はじめに	
2. 方法	
(1)降水の観測方法	
(2)降水によるイオンフラックスの計算方法	
3. 結果と考察	
(1)pHおよびイオン濃度の季節変動	
(2)降雨(雪)の平均pH, イオン濃度	
(3)降水によるイオンフラックス	
4. 要約	
第5章 降雨(雪)によって供給される物質の供給源の推定	… 26
1. はじめに	
2. 海塩由来成分と非海塩性由来成分の分離方法	
3. 結果と考察	
(1)海塩由来と非海塩由来の分離	
(2)降雨(雪)中の nssSO_4^{2-} 発生源の推定	
(3)降雨(雪)のpHとイオン濃度の関係	
4. 要約	
第6章 雪面に対する乾性沈着フラックスの推定	… 34
1. はじめに	
2. 方法	
3. 結果	

- (1)積雪中のイオン存在量の推移
- (2)積雪表層におけるイオン濃度の変動

4. 考察

- (1)積雪内のイオン濃度の分布
- (2)積雪表層の物質収支および積雪内部の物質移動フラックス
- (3)乾性降下物の雪面に対する沈着フラックス

5. 要約

第7章 林内雨, 樹幹流として土壌へ流入する物質フラックス

... 43

1. はじめに

2. 方法

- (1)林内雨(雪)の採取方法
- (2)樹幹流の採取方法
- (3)林内雨(雪)および樹幹流のイオンフラックス計算方法
- (4)乾性沈着フラックスおよび溶出フラックスの推定方法

3. 結果

- (1)イオン濃度の経時変化
- (2)林内雨および樹幹流の平均イオン濃度
- (3)林内雨, 樹幹流によるイオン降下量

4. 考察

- (1)林内雨, 樹幹流のイオン組成
- (2)正味イオンフラックスの解析

5. 要約

第8章 土壌浸透水の化学組成と土壌からのイオン排出フラックス

... 53

1. はじめに

2. 方法

- (1)自然状態における土壌浸透水の採取方法
- (2)根遮断区における土壌浸透水の採取方法
- (3)土壌からのイオン排出フラックスの推定方法

3. 結果

- (1)自然条件下での土壌浸透水pHおよびイオン濃度
- (2)根遮断区における土壌浸透水のイオン組成
- (3)自然条件下での土壌からのイオン排出フラックス

4. 考察

- (1)土壌の違いが土壌浸透水の化学組成に及ぼす影響
- (2)植生によるイオン吸収の有無が土壌のイオンレジムに及ぼす影響

5. 要約

第9章 森林生態系における物質収支および物質循環フラックス

... 64

1. はじめに

2. 方法

- (1)各林の毎木調査および試料木の調査方法

- (2)有機質層位および鉍質土壌の採取方法
- (3)試料の調整および分析方法
- (4)植生の純一次生産量の推定方法
- (5)植生による元素吸収フラックスの計算方法

3. 結果

- (1)供試木の乾物重および毎木調査の結果
- (2)植生中の乾物および元素蓄積量
- (3)樹幹解析による年純一次生産量の推定
- (4)O層, 鉍質土壌の乾物重および元素蓄積量
- (5)リターフォールによる元素の還元フラックス

4. 考察

- (1)植生による元素吸収フラックス
- (2)森林生態系の物質収支

5. 要約

第10章 酸物質の流入に対する森林土壌の酸緩衝機構

... 79

- 1. はじめに
- 2. 実験方法
- 3. 結果

- (1)土壌水分吸引圧およびO層浸透水のD₂O濃度変動
- (2)各層土壌浸透水の流出率, 水量による加重平均pHおよびイオン濃度
- (3)各層土壌浸透水のpHおよびイオン濃度変動

4. 考察

- (1)O層通過時のpHおよびイオン濃度の変動に影響を及ぼす要因
- (2)O層における水およびイオン流出量
- (3)鉍質層位における酸の生成とそれに対する土壌の緩衝機構

5. 要約

第11章 O層における酸緩衝機構に及ぼす土壌と植生タイプの影響

... 97

- 1. はじめに
- 2. 方法
- 3. 結果と考察

- (1)O層浸透水pHおよびイオン濃度の地点別比較
- (2)O層浸透水中のCBD濃度の解析
- (3)O層における酸緩衝機構の地点別比較

4. 要約

第12章 総合考察

... 106

- (1)大気からの降雨としての酸負荷量
- (2)林冠におけるプロトン消費反応および乾性沈着フラックス
- (3)O層および鉍質土壌での酸緩衝機構
- (4)植生による物質循環の違いが生態系の酸緩衝機構に及ぼす影響
- (5)土壌の酸性化速度の推定

第13章 要旨	… 124
第14章 引用文献	… 126

謝 辞

本研究を行うに当たり、計画の立案から研究の遂行、取りまとめまで、あらゆる面でお世話になった北海道大学名誉教授の佐久間敏雄先生に厚く御礼申し上げます。佐久間先生には研究に対する考え方や方向性、現場における研究方法など数多くのことを直接教えて頂きました。有り難うございます。また、本論文を作成するに当たって、北海道大学農学部土壌学講座の波多野隆介教授に懇切な指導を賜り、深く感謝致します。同作物栄養学講座の但野利秋教授、農学部附属雨龍地方演習林長の笹賀一郎教授および同天塩地方演習林長の佐藤冬樹助教授には適切な御助言・御指導を頂きました。有り難うございます。特に、笹先生や佐藤先生には天塩での現場で懇切な御指導や多くの御協力をして頂きました。心から感謝致します。

北海道大学農学部附属苫小牧地方演習林技官の田中夕美子博士には、現地での研究を手伝って頂いたり、研究の遂行に当たって数多くの有意義な助言や励ましの言葉を頂きました。田中先生がいなければ、苫小牧での現地観測や現地実験を行うことが出来なかったでしょう。この場を借りて厚く御礼申し上げます。山形大学農学部(元北海道大学農学部附属演習林長)の藤原滉一郎教授には多くの適切な助言や激励のお言葉を頂きました。記して謝意を表します。また、苫小牧地方演習林長の石城謙吉教授には研究地を提供して頂いただけではなく、多くの激励のお言葉を頂いたことを深く感謝致します。苫小牧および天塩地方演習林の技官、事務官および技能補佐員の方々には研究地の維持・管理、また研究地へのアクセスの便宜などを図って頂きました。関係各位の皆様に深く謝意を申し上げます。特に、苫小牧地方演習林技能補佐員の藤田慶三郎氏には伐倒試料木調査の際に大変お世話になりました。有り難うございます。演習林研究部の船越三朗助手には貴重な文献を紹介して頂いたり、激励のお言葉を頂きました。厚く御礼申し上げます。

研究地の毎木調査の際には北海道大学大学院農学研究科林学専攻の片山和亮氏の御指導、御協力を頂いたことを深く感謝致します。全硫黄分析に際しては北海道開発局開発土木研究所土壌保全研究室長の石渡輝夫博士ならびに北海道大学農学部作物栄養学講座の山口淳一助教授に御指導、御協力頂きました。有り難うございます。土壌の蛍光X線分析の際には北海道大学理学部地質学鉱物科岩石学講座の中川光弘助手と鉱物学講座の寺田省一技官に御指導、御協力頂きました。記して謝意を表します。北海道大学農学部生物機能化学科生物有機化学講座の吉原照彦助教授ならびに箭田浩士博士には有機酸の性質や分析方法に関して多くのことを御教示頂いたことを感謝致します。また、大気中のSO₂濃度データを提供して頂いた苫小牧市環境監視センターの方々に深く感謝致します。

共同研究者として共に現場を歩き、議論を重ねてきた北海道大学農学部土壌学講

座の富田充子さん，森田真理さん，堂本弘之君，長峰徹昭君，切替眞智子さん，薄井伯征君，永喜多千春君にこの場を借りて厚く御礼申し上げます．この方々の協力が無ければ，本論文が完成することはなかったでしょう．有り難うございます．

北海道大学農学部土壌学講座の倉持寛太助手には実験手法や，解析方法などを教えて頂きました．厚く御礼申し上げます．事務官の入野尚子さんには事務的な事柄に関してお世話をして頂いただけでなく，公私にわたってたいへんお世話になりました．有り難うございます．土壌学講座で共に学んできた学生，院生の方々には研究活動を進める上でいろいろと協力して頂いたり，私にとっても良い刺激や助言を与えて続けてくれました．また，演習林の学生宿舎で多くの他大学，他学科の方々と知り合えたことは自分の研究にとっても良い影響を与えてくれました．紙面の関係上，ここに全員の名を挙げることはできませんが，心から感謝致します．

柴 田 英 昭

第1章 緒論

森林生態系の物質循環は大気圏、生物圏、土壌圏、水圏をめぐるエネルギーと物質の流れによって特徴づけられる(Jonson and Lindberg, 1993: 堤, 1987). 森林生態系はそのエネルギー源を天からの供給に依存している. 光合成に必要な二酸化炭素を始め, 降水中の窒素, 硫黄, ミネラルなどは生態系への入力として重要な役割を担っている. 土壌とそこに生育する植生は互いに強く影響を及ぼし合いながら, それぞれの気象条件に適した独自の物質循環系を形成している. 森林植生は落葉として土壌へ物質を還元する一方, 根を通じて土壌から養分を吸収するといった自己施肥系を形成している. 物質循環において森林植生は有機物の生産者として, 土壌動物や微生物は分解者の役割を担っており, 土壌は循環を司る「場」として重要なかなめとなっている. 土壌は物質の巨大なストックを持っており, 例えば, 京都における落葉広葉樹林では植生中の窒素現存量が約 0.8Mg ha^{-1} であるのに対し, O層を含む土壌全体の窒素現存量は約 8.7Mg ha^{-1} と植生の窒素現存量の約10倍の値に相当している(堤, 1987).

森林生態系に供給された降水は生態系を通過する際のさまざまな化学的・生物的反応によってそのイオン組成が変化するとされている(只木・赤井, 1974). 水の一部は林冠で枝や葉と接触し, 林内雨(Throughfall)として土壌表面へ流下する. また, 一部の降水は幹を伝って樹幹流(Stemflow)として土壌表面に到達する. 林冠には大気から乾性降下物(ガスやダストなど)として沈着した物質が存在し, 降水によってそれが洗い流されると林内雨や樹幹流中のイオン濃度は降水のそれと比べて上昇する. また, 葉面におけるイオン交換反応(プロトンと塩基性イオンとの交換など)やイオンの溶脱, 葉面吸収なども林内雨や樹幹流の組成に影響すると考えられる. 林冠における着葉期間, 葉面積, 林冠の物理的構造, 葉の形態・構造は樹種によって著しく異なる. 例えば, 常緑針葉樹林は落葉広葉樹林よりも着葉期間が長く, 一般的に葉面積指数は針葉樹林>広葉樹林である(吉良 1976). また, 大気-林冠境界面の凹凸は針葉樹林の方が顕著である. これらのことから, 乾性降下物の捕捉能力, 葉の反応性, 樹木内部との交換反応は樹種によって異なる可能性が強いと言われている(Schaefer and Reiner 1990). このような, 林冠通過時の降水の化学性の変動は土壌系への物質の流入プロセスや系全体の物質循環をコントロールするといった意味において重要な役割を担っていると予想される. 林床に到達した林内雨や樹幹流は土壌浸透水(Soil leachate)として下方浸透する. 林床に存在する堆積粗腐植層(O層)は多量の未分解有機物や酸官能基を有しており, ここでも溶液中のイオン組成は有意に影響を受けるとしている. 土壌中で浸透水のイオン組成に影響する反応としては①土壌固相とのイオン交換反応, ②植生によるイオン吸収, ③微生物による有機化, 無機化に伴うイオンの形態変化, ④土壌の風化による溶液中へのイオン

の放出などが挙げられている。

Switzer and Nelson(1972)は森林生態系の物質循環を①地球化学的過程 (geochemical process), ②生物地球化学的過程 (bio-geochemical process), ③生物化学的過程 (biochemical process)の3種の過程に支配されるものと定義した。①には接地気相中の物質変化, 沈着, 土壌への蓄積あるいはそれからの溶脱, 地下水への富化, 毛管上昇による地下からの供給が, ②には葉からの溶脱, 落葉落枝としての地表への還元, 土壌生物による分解, 摂食・同化, 排泄, 植物による吸収などが, ③には植物体内における変形・転流などが含まれる。生態系への酸性降下物の流入といった元素の地球化学的過程に対して, 樹木による土壌からの元素の吸収(生物地球化学的過程)はそれと対行する流れを司っている。

近年, 人間の産業活動にともなう廃棄物に起因する森林生態系の劣化が問題となってきた。中でも, 酸性降下物による森林の荒廃はヨーロッパや北アメリカを中心に問題となっている。自然状態における降水は大気中の二酸化炭素と平衡し, 理想状態では $\text{pH}=5.6$ と見積もられる。ただし, 火山の噴火など自然起源の SO_x などにより人為的な汚染を受けなくても pH は 5.0 前後の値を示すとも言われている(Howells, 1990)。しかし, 実際には測定されている降水の pH はこれらの基準を下回る値が多く報告されている(Howells, 1990)。降雨の pH を低下させる原因とされる工場などの人工的汚染源から排出された SO_x や NO_x は, 大気中をマスフローや拡散によって移動する。そして, あるものはエアロゾルまたはガスとして乾性沈着し(岡田 1987, 太田 1990), あるものは, 大気中の OH ラジカルとの酸化反応によって H_2SO_4 または HNO_3 に変化する(原 1987, Tanner 1990)。オキシアニオンとして水に溶けやすくなったこれらの物質は, 雲中の霧滴や雨水に溶け込んで酸性霧や酸性雨となって地表に到達する(Howells 1990, 池田 1987)。すなわち, 霧や降雨は, 大気中の物質を集めてそれを間欠的に土壌-植物系にインプットする役割を担っている。Shriner and Hendersonによると, 米国東部の広葉樹林において森林植生が年間に必要とする S 量は $1.4\text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ と見積もられ, 汚染が進んでいる地域では大気からの SO_4^{2-} 負荷量は $1.5\text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$ に達する(Johnson et al. 1985)。また, 生態系への酸負荷は, 土壌中での交換反応による土壌系外への塩基溶脱を促し, 樹木の正常な物質循環を損なう恐れがある(Johnson et al. 1985)。したがって, 森林生態系の物質循環を考えるさいに, 大気からのインプットを考慮することは必須の要件である(Johnson et al. 1982, MacDonald et al. 1992)。

また, 積雪寒冷地においては, 冬期間の湿性降下物は降雪の形で供給される。降雨は樹冠を通過後, 速やかに土壌へ流入するが, 降雪は地上に積雪の形で一時固定され, 融雪期に集中的に土壌へ流入する(Hazlett et al. 1992, 鈴木 1991, 鈴木・遠藤 1991)。このため, 湿性沈着が生態系をめぐる物質循環に与える影響は降雪・

積雪によって、夏型と冬型に明確に分けられる。冬期間の乾性降水物は積雪表面に沈着し、長期間にわたって蓄積されてゆき(Davidson and Wu 1990, Stottlemeyer 1987), 融雪初期には融雪水のpHが急激に低下する現象が観測されている(鈴木 1991, 鈴木・遠藤 1991)。融雪期の水分状態が高い状態で多量の低pH融雪水が供給されると、①土壌から Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^{+} などの陽イオンの集中的溶脱, ②土壌溶液中へのアルミニウムの放出, ③②に引き続く河川・湖沼へのアルミニウム放出, などの影響が懸念される。

以上のような降雨や降雪として生態系へ流入する酸性降水物に起因する森林劣化のメカニズムについては諸説が挙げられているが新藤ら(1995)によると、1)大気汚染物質(SO_x , NO_x など)や降水中の強酸(NO_3^- , SO_4^{2-})による植生への直接的被害, 2)土壌のpH低下, 3)土壌酸性化に伴うMgなどの塩基をはじめとする養分の欠乏, 4) Al^{3+} など毒性イオンの土壌溶液中への溶出, 5)窒素過剰による養分条件のインバランスや複合ストレスなどが挙げられている。

日本でも降水のpHやプロトン負荷量について、欧米での観測値に匹敵する値が報告されている。しかし、それが土壌の酸性化や樹木の衰退にどの程度影響を及ぼしているかということに関して統一的な見解は得られていない。その原因のひとつとして物質循環に関する長期的なデータの不足が挙げられるが、それと同時に酸が物質循環に与える影響を比較対照するための正確なバックグラウンドデータが野外観測からは困難であることも原因しているであろう。すなわち、酸性降水物の影響による森林劣化が認められていない森林生態系において物質循環過程がどのように進行し、その中で生じる酸の生成・消費過程を研究することは酸性降水物の影響や系の緩衝機構を考える際に非常に重要である。

日本で顕著な森林の衰退や土壌の酸性化は認められていない理由のひとつとして日本の土壌が酸に対する抵抗力が強いことが挙げられているが、日本において生態系レベルでその緩衝機構を明らかにした研究は見あたらない。本研究の主要な研究地である苫小牧の森林は樽前a, bを主体とする火山放出物未熟土上に立地する。この土壌は土壌肥料学会(1978)によると酸性雨に対する耐性が弱のグループに属する。苫小牧の周辺には苫小牧東部臨海工業地帯を有しており、吉武(1986)の報告では以前に酸性霧によるストロブマツの異常落葉が報告されたこともある。しかしながら、総じて森林は健全に生育しており、土壌-植物系に何らかの酸緩衝機構が働いているものと予想される。そのことを明らかにするためには森林生態系の物質循環と酸性降水物との関係に注目しなければならない。

本研究では森林生態系の物質循環過程において外部から供給された酸のフラックスが系内でどのように変化し、それに対して土壌や植生がどのような緩衝機構を司っているかを解明することを目的とした。主要な研究は北海道南西部に位置する苫

小牧で行い、同じ土壌に立地する広葉樹林と針葉樹林とを比較研究した。また、土壌や植生タイプの違いを検討するために道北の天塩山地に位置するトドマツ林とアカエゾマツ林についても一部研究対象に入れた。第4章から第9章までは森林生態系の物質循環の定量化に関する研究について述べ、第10章と第11章では土壌の酸緩衝機構に関する実験について述べる。

第2章 研究史

(1)酸性雨の歴史

イギリスのSmithは1852年に当時の工業都市マンチェスターとその周辺の降水の化学性を調べ、大気中の硫酸により金属の腐食が生じることなどを指摘し、1872年に出版した著書(Air and Rain: The Begining of a Chemical Climatology)の中で始めて「酸性雨(acid rain)」という言葉を用いた(大喜多, 1991). しかしながら、彼の成果に対して何ら適切な対策が取られないままに約1世紀が過ぎた. その後、アメリカのGorhamは1955~1965年にかけてイングランドおよびカナダにおいて工場地帯における酸性雨が化石燃料の燃焼によることなどを報告した.

Odenは1930年代からスウェーデン西岸のいくつかの湖でpHの測定を始めており、1961年にはスカンジナビア表層水測定ネットワークを発足させた. また、Odenは酸性化した降水と陸水の比較から大気汚染が国境を越えた広域的な汚染であることを指摘した(SEPA, 1991). 1972年にストックホルムで開かれた国連人間環境会議では①ヨーロッパ北部の降水の酸性化が急激に進行していること、②それと並行してスウェーデンの森林は衰退し、河川や湖沼が酸性化して魚類の生育数が減少していることが報告された(Howells, 1990). 1975年には第1回酸性雨と森林生態系に関する国際シンポジウムが合衆国のオハイオ州で開かれた. 1970年後半から1980年代にかけては各地でさまざまな観測事例が報告され、森林生態系の物質循環と酸性降下物の関係に関する論文がヨーロッパや北アメリカを主体に提出されている(van Breemen et al., 1987; Ulrich, 1989; Johnson and Lindcerg, 1992など).

日本においては原(1992)によると全国平均でpH約4.7の降水が観測されている. また、関東平野を中心にスギの衰退が1970年代から観測され始め、その衰退と酸性雨との関連を調べるために室内のポット試験がいくつか行われた(三宅ら, 1991; 野内, 1991; 松本1992b; 八木ら, 1993). それらの研究結果によると、樹木の光合成速度や葉の可視障害を起こすのはpHが2.0程度まで低下した時であり、現状の酸性雨ではその影響は発現しないであろうということであった. また、松本(1992a)はスギの水蒸気拡散コンダクタンスや水分導通抵抗を他樹種と比較し、立ち枯れの被害がスギに集中していることから、スギ衰退の主因は近年の関東地方の乾燥化がスギの水分レジムのバランスを崩したことにありと推察している. このように日本においては酸性降下物と森林被害の関係についての議論は依然として統一されていない.

(2)大気中の酸物質の発生源および発生量

酸性降下物の原因物質は主として大気中の硫黄酸化物(SO_x)と窒素酸化物(NO_x)である. 硫黄化合物は工場などの人為的な汚染源の他にも海洋、土壌、火山などの自然起源からも発生する(指宿 1990). 角皆・山本(1990)の計算によると1964年当時における大気圏への硫黄化合物の放出量(Tg-S y^{-1})の中で、人為的な汚染源である石炭

の燃焼によるものが38, 石油の精製, 燃焼によるものが19, 精錬, その他の工業に由来するのが8であった。それに対して, 自然起源である海塩起源の硫酸塩は平均 100Tg-S y^{-1} , 火山由来の硫黄化合物は 12Tg-S y^{-1} , 土壌から放出される硫黄化合物は 3Tg-S y^{-1} とされる。西ドイツにおける年間の SO_x 放出量(化石燃料の燃焼による)は1980年頃までに約 $70\text{kg-S ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ にまで増加し, その後, 脱硫装置の発達によって排出量は年々減少している(Ulrich 1989)。

窒素酸化物は化石燃料やバイオマスの燃焼, 土壌からの放出が主な放出源である(指宿 1990)。また, NH_4 は土壌中で微生物により NO_3 に変換されて H^+ を放出するため, これも酸性降下物に含めて考えなければならない。農業地帯に隣接した地域では NH_3 ガスの揮散に由来するものが大部分であり, オランダでは主として硫酸アンモニウムの形態で沈着する(van Breemen et al.(1989), Ivens et al.(1989))。鶴田(1990)によると1980年における日本での SO_2 , NO_x 排出量はそれぞれ $126 \times 10^4 \text{Mg}$, $134 \times 10^4 \text{Mg}$ であり, 中国のそれはそれぞれ $1500 \times 10^4 \text{Mg}$, $600 \times 10^4 \text{Mg}$ である。同様にアメリカの SO_2 排出量は $2130 \times 10^4 \text{Mg}$, NO_x 排出量は $1925 \times 10^4 \text{Mg}$ である。日本での排出量は中国やアメリカに比べて少ないが, 排出量を国土面積で割った排出強度(Mg km^{-2})は日本で3.4(SO_2), 3.6(NO_x)に対し, 中国では1.6(SO_2), 0.6(NO_x), アメリカでは2.7(SO_2), 2.1(NO_x)であり, 日本の方がやや高い値を示している。また, 日本では首都圏の発生強度が9.7(SO_2), 16.9(NO_x)と高く, 中国でも重慶において22.4(SO_2), 6.7(NO_x), アメリカのペンシルベニア州では15.6(SO_2), 8.0(NO_x)と高い値を示している。

(3)生態系への物質の沈着過程

これらの大気中の窒素・硫黄化合物は降水や気体, エアロゾル, 霧水の形態で林冠に沈着する。Ulrich(1989)はこれらの沈着物を①wet deposition(雨, 雪), ②dry deposition(エアロゾル, ガス), ③occult deposition(霧水)の3種類に分類した。開放露場においてポリ容器などの採取装置を用いた降水には①の他にも②や③の成分が混入している。近年, 降雨センサーが降水を感知し, 降雨時のみ蓋が開くような湿性降下物採取装置が開発され, ①のみを採取する方法が徐々に普及してきた。湿性降下物の観測結果は既に多くの論文で報告されている。例を挙げると, ドイツの24カ所の森林及びオランダの'Oude Maat'における観測ではwet depositionとして0.2~1.1, 0.08~0.37 $\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ のプロトンが沈着した(Ulrich, 1989; van Breemen et al., 1989)。日本において1989年から1992年に実施された環境庁酸性雨対策調査の結果では全国29地点における降水のpHは4.4~5.7の範囲にあり, 欧米と匹敵するほどの低pHの酸性降水が観測されており, 0.02~0.61 $\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ のプロトンが湿性沈着している(北野 1995)。

(4)林冠通過時の降水の化学性変化

生態系へ湿性降下物として物質を供給する降雨は、第一に森林植生の林冠と接触する。森林の林冠下で観測される降水(以下林内雨)は上記の①～③の影響をそれぞれ受けているために、林内雨の化学組成は湿性降下物が主体である降雨の化学組成とは異なる。また、林内雨の化学性は葉面に沈着した乾性降下物の洗脱の他にも、葉面からのイオンの溶脱や葉面におけるイオン交換反応、さらには葉面での養分吸収の影響も考えられる。林冠からの養分の溶脱は古くから研究されており(Tukey et al., 1963; Tukey, 1970; 木村, 1978), 物質循環の観点から林内雨の観測が多く行われていた(堤, 1987)。降雨は葉面の沈着物やワックス, クチンを洗い流すことによって葉面の反応性を増し, そこでのイオンの拡散を活発にする(木村, 1987)。

Lovett et al.(1985)は合衆国テネシー州に位置する3カ所の広葉樹林において葉面に沈着した H^+ の林冠への保持は主として Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ のイオン交換反応によることを示した。また、林内雨中のアニオンとして有機弱酸が重要な役割を果たしていることを示唆した。Lindberg et al.(1986)は合衆国北部の広葉樹林で大気降下物の観測を行い、以下のことを報告した。i)林冠に付着する乾性降下物のうち硫黄や窒素、遊離の酸は気体としてカルシウムやカリウムは粒子として大部分が沈着した。ii)林冠は遊離の酸と窒素の50～70%を保持し、逆にカルシウムとカリウムは放出された。iii)大気降下物による窒素と硫黄は植生の年間要求量のそれぞれ40, 100%に相当した。これらの報告は酸性降下物が林冠通過時のイオン組成変化に有意な影響を及ぼしていることを示している。

(5)乾性沈着速度の評価方法

無降雨期に林冠へ沈着する乾性降下物は系へのインプットとして重要であるが、林冠への乾性沈着を推定する方法は①幼木を用いた洗浄実験(佐久間ら, 1994), ②大気中のガス濃度や沈着速度などを用いる微気象的手法(Lindberg et al., 1986), ③人工的な採取装置(テフロンチャンバーやガラスシャーレなど)を用いて実測する方法(三宅ら, 1990), ④林内雨と降雨の観測から統計的手法を用いる方法(Lovett and Lindberg, 1984), ⑤葉面での交換反応が少ないイオンを指標とする方法(大河内ら, 1995)などが挙げられる(Davidson and Wu, 1989)。①や②の方法では得られた結果を森林全体にスケールアップする際に樹冠同志の遮蔽効果や林縁部での見積もりに問題が生じ、③の方法は表面の材質によって沈着速度が異なることが報告されている(Davidson and Wu, 1989)。④の方法についてLovett and Lindberg(1985)は正味降下物(林内雨としての降下物と降雨としてのそれとの差)を従属変数、降水量と無降雨日数を独立変数とした重回帰分析によって乾性沈着と林冠からの溶脱とを分離した。すなわち、乾性沈着フラックスは無降雨日数に比例し、葉からの溶脱は降水量に比例すると考えたのである。この方法は現地で実測した結果を用いることができるという意味で有用であるが、Puckett(1990)によると気孔からの SO_2 ガス

の取り込みなどによって50～100%の不確実さが残るとされている。⑤の方法は指標とするイオンが全て乾性沈着に由来するという仮定が必要であり、そのイオンを何にするかで結果が異なることが多少問題ではあるが、多くの場合NaやClを指標イオンとして用いている(大河内ら, 1995: Visser and van Breemen, 1995)。

(6)酸性降下物が土壌へ与える影響

農耕地における作物生育はしばしば酸性障害を受けるため、土壌酸性について多くの研究結果が蓄積されている(吉田, 1984)。大工原(1910)は土壌酸性の本体が Al^{3+} にあることを見だし、交換酸度の定量法を開発した。土壌溶液中の Al^{3+} は6分子の水を配位する水和イオンであり、水との解離平衡によって H^+ を溶液中に放出する。また、この水和イオンは溶液のpHによって解離と重合を繰り返すことによってpHを緩衝する働きを持つことが知られている(吉田, 1984)。このことはもちろん、森林土壌についても当てはまると思われ、実際に人工的に調整した酸性雨を土壌へ添加し、その後の土壌の化学性の変化や浸透液の化学性を研究した結果からは、①酸性雨が土壌のカチオン溶脱を増加させる(Lillieholm and Feagley 1988, Liu and Rhue 1990), ②酸性雨が有機物の溶解性や微生物の活性を変化させる(Evans et al. 1988, Like and Klein 1985), ③酸性雨の影響下における硫酸吸着量の違いが土壌からのカチオン溶脱量を規定する(Singh et al. 1980), ④プロトンの随伴アニオンの違い(SO_4 と NO_3)がAl溶脱に影響する(James and Riha 1989a), ⑤土壌中のイオン交換反応やアルミニウム・有機物の溶解性には酸性雨に由来するプロトンと同時に中性塩も“塩効果”として影響する(Berry et al. 1990)など多くの報告がなされ、警鐘が鳴らされている。

Ulrich et al.(1980)は1966年～1979年にドイツのSolling山地に湿性降下物および乾性降下物として沈着したプロトンの合計フラックスが $1.28 \sim 2.03 kmolc\ ha^{-1}\ y^{-1}$ であり、その影響で土壌溶液中 Al^{3+} 濃度が上昇したことを報告した。その後、Ulrich(1989)は土壌溶液中の Al^{3+} 濃度が植生に与える影響を土壌溶液中のCa/Al比で指標化することを提唱した(Huttermann and Ulrich 1984)。酸性降下物に起因するとされる土壌溶液中の Al^{3+} 濃度の上昇と水圏への Al^{3+} 放出は合衆国北東部のWhite MountainおよびAdirondack地域でも報告されている(Cronan and Schofield, 1979)。

鉱質土壌は流入する H^+ と土壌コロイドの交換基に吸着されている Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ などの塩基性イオンが交換し、交換基に取り込まれた H^+ はコロイド表面の配位子交換反応によって交換性 Al^{3+} として蓄積される。 Al^{3+} は生物に対する毒作用が強い物質なので、この段階になると植物、土壌生物の活性が抑制されるだけでなく、土壌系からの Al^{3+} の放出を加速することによって水圏の生物に対しても悪影響を及ぼす。酸性降下物の環境影響を回避する問題は、このような条件が実現しないようにする

にはどうすればよいかにあると考えられる(Bertsch 1990, Evans 1984, Howells 1990).

降雨の一部は林冠を通過する際に樹幹流としても土壌へ到達するが、樹幹流pHは樹種によってはかなりpHの低いものも見られる(佐々ら, 1990; 佐々ら, 1993)). 松浦ら(1990)はスギ樹幹近傍の土壌を樹幹からの距離別に採取し、土壌が樹幹を中心として同心円状に酸性化していることを示した。また、トレンチ調査の結果から、樹幹流が支持根を伝わって流下していることを示唆した。同様に、加藤・白井(1995)もスギ・ヒノキの樹幹直下の土壌が周囲と比べて樹幹流の影響で酸性化していることを示した。樹幹流の低pHの原因は酸性沈着に影響されるものと樹幹内部から溶出する有機酸の影響によるものとが考えられるため、樹幹流の低pHが大気からの酸性降水物によりものかどうかはまだ十分には解明されていない。樹幹流は林内雨に対して面積雨量の割合が小さく、物質収支の上での役割は小さいと思われるが、幹の近傍へ水が集中することを考えると局所的な土壌酸性化に対する影響は無視できない。

また、降雪が認められる積雪寒冷地帯では融雪期に酸性化した融雪水が集中的に土壌や水圏へ流入し(鈴木 1991, 鈴木・遠藤 1991), それらの酸性化をもたらすという現象がいくつか報告されている(Suzuki 1993, Jeffries 1990). 降雪による酸の負荷のみならず、積雪期間中に雪面へ供給される乾性沈着フラックスの見積もりは融雪期における土壌へのインプットを考える際に重要である(Davidson and Wu 1990, Stottlemeyer 1987).

(7)有機質および鉍質土壌の酸緩衝機構

森林生態系のO層は物質循環のなかで物質のプールとしての役割を持つことが重要視されており、その観点からの研究が多く行われてきた。つまり、植生タイプとO層の化学性の比較(Grigal and Ohmann 1989)や有機物の分解過程に関する研究(Foster 1989, Jorgensen et al. 1980, 仁王・沓名 1989, 仁王ら1989), 浸出液の肥沃度(Yavitt and Fahey 1984)についてなどである。また、土壌生成の立場からはO層で生成される有機酸が鉍質土壌のAlやFeの可動性に及ぼす影響に関する研究が多く報告されている(James and Riha 1989b, Satoh et al. 1990). 林内雨や樹幹流として林床へ到達した水はまず林床に存在するO層と接触する。O層には多量の未分解有機物が存在し、その分解過程で溶液中にイオンが放出される。また、分解に伴って形成される有機官能基はそれぞれのpKaに応じてプロトンを放出あるいは吸着する。O層通過時の浸透液の化学性変化は鉍質土壌へのインプットとして重要であり、土壌-植物系の酸緩衝機構を考える際に無視できない要因であると考えられる。James and Riha(1986)はニューヨーク州のスポドゾルにおけるOi, Oe, Oa層の酸中和能力を室内のバッチ実験により検証し、それらの層位が添加した酸(0~20cmol

HNO_3 kg^{-1} soil)の67~96%を保持することを示した。供試したO層の $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ は2.7~4.4の範囲にあり、O層での主要な酸緩衝機構はカチオン交換反応の他に有機弱酸のプロトン化が作用していた。Natscher and Swertmann(1991)も酸性土壌のO層の酸中和容量が大きく($10\sim 100\text{mmolc kg}^{-1}$)、O層が下層の鉱質土壌の酸性化に対する重要な障壁になっていることを示した。Richter et al.(1983)は合衆国テネシー州の広葉樹林においてO層浸透水 $\text{pH}(6.0)$ が林内雨 $\text{pH}(4.8)$ より有意に上昇し、O層が酸中和の重要な役割を果たしていることを示した。

鉱質土壌における酸中和機構を吉田・川畑(1988)は①炭酸塩・重炭酸による中和、②交換性塩基による中和、③二次鉱物による中和、④岩石および造岩鉱物の風化に伴う塩基の放出に分類した。さらに②については弱酸的な交換基の塩基と強酸的な交換基に吸着された塩基とに区別し、後者の反応後には粘土の破壊を伴って交換性 Al^{3+} が現れることになっているとしている。③には二次鉱物による酸吸着と Al_2O_3 の溶解が含まれる。また、Ulrich(1989)は土壌 $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ によって土壌の酸緩衝機構を分類し、 $\text{pH}8$ 以上~ 6.2 までを炭酸カルシウム緩衝系、 $\text{pH}6.2\sim 5.0$ までをケイ酸緩衝系、 $\text{pH}5.0\sim 4.2$ をカチオン交換緩衝系、 $\text{pH}4.2\sim 2.8$ をアルミニウム緩衝系、 $\text{pH}3.8\sim 2.4$ を鉄の緩衝系とした。但し、ここで用いた土壌 $\text{pH}(\text{CaCl}_2)$ は水で抽出した $\text{pH}(\text{H}_2\text{O})$ よりも土壌によっては $0.8\sim 1.0$ 程度低い値を示すと言われている。

van Breemen et al.(1982)はオランダの森林地帯に降下する窒素化合物(主として硫酸アンモニウム)に起因する硝酸化成がその地域の土壌酸性化の主因であり、それは窒素の負荷量が植生による窒素吸収量より有意に大きいことによって裏付けされるとしている。このことは酸性降下物の森林影響のなかでも「窒素過剰説」として広く知られている。

わが国においてもこれまでの酸性土壌の研究に基づいて、環境庁が土壌肥料学会に委託して土壌への酸性雨影響予察図を作成した(環境庁大気保全局, 1988)。これらの調査では現地で採取した土壌をポットに詰め、既知の酸性溶液を添加して土壌の pH や化学性の変化を追跡するといった手法を用い、土壌の酸緩衝能による耐性区分を3つのグループに分類した。耐性強グループにはグライ土や灰色低地土、褐色低地土、停滞水グライ土、グライ土などが含まれ、耐性中グループには褐色森林土、ポドゾル性土、集積水田土などが含まれる。耐性弱のグループには火山放出物未熟土の他、未熟黒ボク土、泥炭土、疑似グライ土、赤黄色土、岩屑土などが含まれる。

(8)物質収支に基づいた酸性降下物の影響評価方法

森林生態系の物質循環において系内部ではさまざまなプロトンの生成・消費反応が存在する。Driscoll and Linkes(1982)は合衆国のHubbard Brook Experimental Forest(HBEF)におけるプロトン収支を計算し、大気からのプロトン負荷と系内部でのプロトン生成・消費反応を比較した。その中で生態系内部でのプロトン生成反応

は①植生による正味カチオンの取り込み，②アニオンの無機化，③土壌へのカチオンの吸着，④土壌からのアニオンの脱着，⑤有機酸や二酸化炭素の解離，⑥ SO_3 や H_2PO_4 の風化，⑦カチオンの逆風化，⑧金属イオンの錯形成であり，その逆のプロトンの消費過程は①カチオンの無機化，②植生によるアニオン吸収，③土壌からのカチオンの脱着，④土壌へのアニオン吸着，⑤有機酸や二酸化炭素のプロトン化，⑥ SO_3 や H_2PO_4 の逆風化，⑦カチオンの風化，⑧金属イオンの錯体の破壊である（なお，ここでいうカチオンには H^+ は含まれていない）．van Breemen et al(1983)は土壌酸性化速度の見積もりにおいては生態系におけるプロトン収支の結果として計算される酸中和容量($\text{ANC}_{(s)}$)の減少速度($\Delta \text{ANC}_{(s)}$)の評価が重要であるとした．彼は土壌の $\text{ANC}_{(s)}$ を以下のように定義した．

$$\text{ANC}_{(s)} = 6(\text{Al}_2\text{O}_3) + 2(\text{CaO}) + 2(\text{MgO}) + 2(\text{K}_2\text{O}) + 2(\text{Na}_2\text{O}) + 4(\text{MnO}_2) + 2(\text{MnO}) \\ + 6(\text{Fe}_2\text{O}_3) + 2(\text{FeO}) - 2(\text{SO}_3) - 2(\text{P}_2\text{O}_5) - (\text{HCl})$$

括弧内はモル濃度を示す．このANCを構成する成分はreference pH(ref. pH)の値によって多少異なる．例えば $\text{pH} > 5$ では Fe_2O_3 ， Al_2O_3 ， MnO_2 の溶解は無視できるので．ref. $\text{pH}=5$ におけるANCは以下のように示される．

$$\text{ANC}_{(s)}(\text{ref. pH}=5) = 2(\text{CaO}) + 2(\text{MgO}) + 2(\text{K}_2\text{O}) + 2(\text{Na}_2\text{O}) + 2(\text{MnO}) \\ + 6(\text{Fe}_2\text{O}_3) + 2(\text{FeO}) - 2(\text{SO}_3) - 2(\text{P}_2\text{O}_5) - (\text{HCl})$$

van Breemen et al(1984)は森林土壌においてref. pHは3が妥当であろうとしている．それはヨーロッパなどで酸性化を問題としている土壌がほとんど $\text{pH}4$ 付近であり，既に溶液中に Al^{3+} が溶出している場合が多いからであろう．森林生態系のプロトン収支や ΔANC の評価はvan Breemen et al.(1984)の他にもUlrich(1989)，Bredemeir et al(1990)，Johnson and Lindberg(1992)，Nambu et al.(1994)などの報告がある．van Breemen et al.(1984)は土壌酸性化速度(ΔANC)の異なる21の生態系におけるプロトン収支を比較検討した結果，合衆国北東部やヨーロッパ北西部の多くの森林生態系は人為的汚染原由来の酸負荷が $1\text{--}5\text{ kmolc ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり，この大気から沈着したプロトンが生態系内部で生成するプロトンを上回った結果として溶液中に毒性イオンであるAlが放出されたことを示した．これらの計算を行うためには森林生態系における物質循環フラックスを定量化することが必要で，そのためには現地における詳細な長期観測が必要とされる．

以上のように，土壌－植物系に与える酸性降下物の影響を考察するためには，生態系の物質循環過程と酸性降下物の関係に着目して研究することが重要であり，そのためには土壌や植生タイプの異なる研究地点において比較研究することが重要であると考えられる．

第3章 研究地点と分析方法

(1) 研究地点の位置

物質循環に関する継続観測は北海道苫小牧市高丘に位置する北海道大学農学部附属苫小牧演習林(北緯42° 40′, 東経141° 36′)内と幌延郡字問寒別に位置する北海道大学農学部附属天塩地方演習林(北緯44° 55′, 東経142° 2′)内で行った(図3-1). 苫小牧では落葉広葉樹林(地点Df)と常緑針葉樹林であるストロブマツ林(地点Cf)で行った(図3-1). 両地点とも幌内川流域に位置し, 樽前山麓の東南東に傾斜した緩斜面(標高25~50m)に位置した. また, 両地点とも, 太平洋までの直線距離は約6kmであり, 南東方5~10kmには苫小牧東部臨海工業地帯が広がっている. 天塩での観測は天塩川支流である問寒別川の源流部である中の峰流域(以下, 天塩中の峰)と清川流域(以下, 天塩清川)で行った(図3-1). 両流域とも天塩山地に位置し, 中の峰流域ではアカエゾマツ林(地点Ak)とササ草地(地点N-Ss)で観測を行い, 清川流域ではトドマツ林(地点Td)とササ草地(K-Ss)で行った.

(2) 各地点における母材, 土壌および植生の概要

1) 植生の概要

地点Dfは天然の落葉広葉樹林の二次林でミズナラ(*Quercus mongolica* var. *grosseserrata*), イタヤカエデ(*Acer mono Maxim.*), サワシバ(*Carpinus cordata*), シナノキ(*Tilia japonica*), ホオノキ(*Magnolia obovata*), アオダモ(*Fraxinus lanuginosa* f. *serrata*), ヤマウルシ(*Rhus trichocarpa*)などが主要な植生であった. 下層植生はナニワズ(*Daphne kamtschatica* var. *jezoensis*), ヤマブドウ(*Vitis coignetiae*), エンレイソウ(*Trillium apetlon*), フッキソウ(*Pachysandra terminalis*), ツルアジサイ(*Hydrangea petiolaris*), オシダ(*Dryopteris crassirhizoma*)などであった. 地点Cfはストロブマツ(*Pinus strobus*)の植林地であり(1969年に植栽), 一部チョウセンゴヨウマツ(*Pinus koraiensis*)が混在している. 主な下層植生はサイハイラン(*Cremastra appendiculata*), チシマアザミ(*Cirsium kamtschaticum*), マイヅルソウ(*Maianthemum dilatatum*), ヤマブドウ(*Vitis coignetiae*), イワガラミ(*Schizophragma hydrangeoides*), オシダ(*Dryopteris crassirhizoma*), クサソテツ(*Matteuccia struthiopteris*)などであった. 両地点とも下層植生の多くは上部の林冠が開放している地帯に集中して繁茂していた.

天塩における地点Akは天然の常緑針葉樹林であるアカエゾマツ(*Picea glehnii*)林であり, 主な下層植生はチシマザサ(*Sasa kurilensis*)とクマイザサ(*Sasa senanensis*)およびツタウルシ(*Rhus ambigua*)が密生して繁茂していた. 地点Tdはトドマツ(*Abies sachalinensis*)の植林地(1962年に植栽)で下層植生はチシマザサ(*Sasa kurilensis*)とクマイザサ(*Sasa senanensis*)であった. 地点N-Ss, K-Ssはともにチシマザサ(*Sasa kurilensis*)とクマイザサ(*Sasa senanensis*)が主体で, 下層にはツタウルシ(*Rhus ambigua*)などが密生して繁茂している.

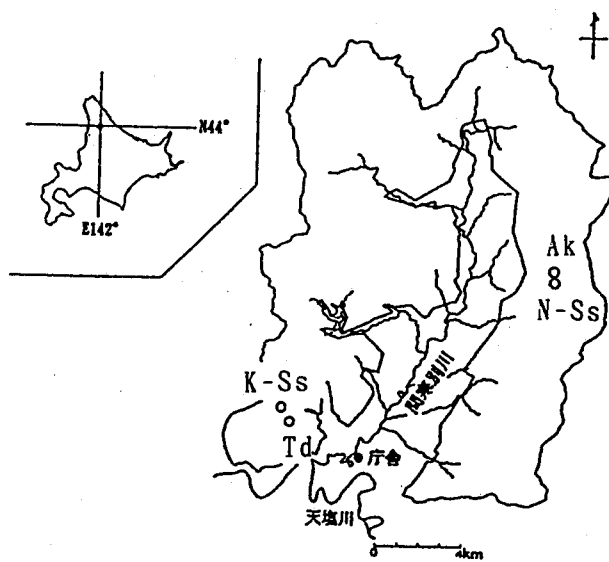
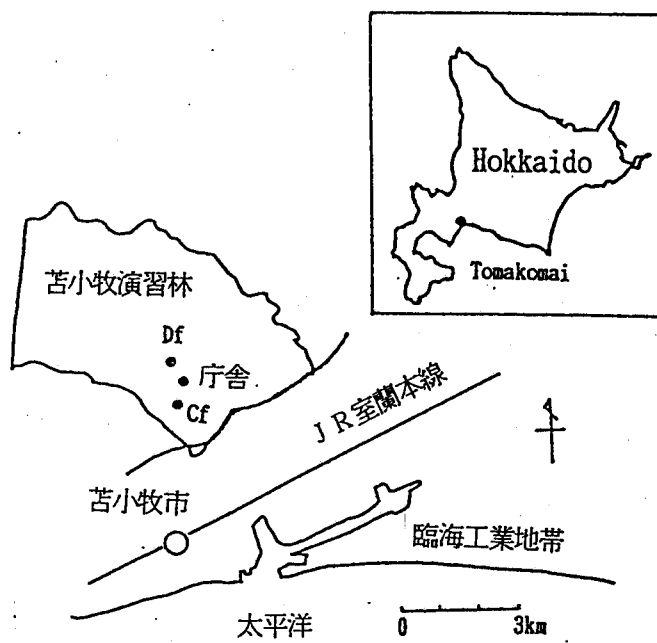


図3-1 観測地点の位置(上図, 苫小牧; 下図, 天塩)

2)母材・土壌の概要

表3-1, 3-2, 3-3に各地点の土壌断面記載結果を示す. 苫小牧の土壌は地点Df, Cfともに石英安山岩質の樽前a, b火山灰を母材とする火山放出物未熟土(Andic Regosol (FAO/Unesco, 1988), Typic Udipsamments (Soil Taxonomy, 1990))である. 天塩中の峰は地点Ak, Ssともに白亜紀の蛇紋岩を風化殻とする停滞水グライポドゾル性土(Gleyic Podzols (FAO/Unesco, 1988), Typic Cryaquods (Soil Taxonomy, 1990))に立地する. 天塩清川は新第三系堆積岩を母材とする一部に弱いポドゾル化作用を受けた酸性褐色森林土(Dystic Cambisols (FAO/Unesco, 1988), Typic Dystrochrepts (Soil Taxonomy, 1990))に立地する.

3)土壌の一般理化学性

表3-4, 表3-5に各地点の土壌一般理化学性を示す. 各地点の土壌各層からサンプルを持ち帰り, 苫小牧の地点Df, Cfは軽石が主体であるため新鮮土のまま分析に供した. 天塩の地点Ak, Td, N-SsおよびK-Ssにおける土壌は風乾後, 2mmのふるいを通した後, 分析に供した. また, 飽和透水係数, 三相分布の分析のために各層から100cc円筒容器を用いて未攪乱土壌を3反復で採取した. 化学性の分析項目及び方法は以下の通りである.

pH(H₂O); 1:2.5の水抽出後, ガラス電極法を用いた.

交換態陽イオン; 苫小牧はバッチ法, 天塩はショーレンベルガー法を

用いた. pH 7の1N-酢酸アンモニウムで抽出後, 抽出液中のCa²⁺, Mg²⁺は原子吸光法で, K⁺, Na⁺は炎光光度法で測定.

CEC; 酢酸アンモニウムで交換態陽イオンを抽出後の土壌をエタノールで洗浄後, 10% KClを用いて土壌に吸着されたNH₄を抽出し, NH₄はホルムアルデヒド法によって定量した.

飽和透水係数; 苫小牧は定水位法, 天塩は変水位法を用いた.

土壌の全塩基含有率; 蛍光X線分析法(苫小牧のみ)を用いた.

苫小牧の地点Df, Cfでは粗粒質火山放出物の性質を反映して飽和透水係数が他の地点と比較して高かった. 地点AkおよびN-Ssでは下層において気相率の低下が他地点より著しかった. 苫小牧の地点Df, Cfの土壌pH(H₂O)は5.3~6.2の範囲にあった. 地点Ak, N-Ssの土壌pH(H₂O)はA層でやや低いものの下層になるにつれて上昇し, Cg層では7以上の高い値を示した. これは超塩基性岩である蛇紋岩風化殻の影響を反映しているものと考えられる. 地点Td, K-Ssの土壌pH(H₂O)は全層にわたって5.0以下であった. 交換態陽イオン含有率は地点Ak, N-Ssで最も高く, 特に下層になるにつれて交換態Mgの含有率が高まった. 苫小牧の地点Df, Cfの交換態陽イオンはCaが主体であり, C層以下の含有率は他の地点と比べて著しく低かった. 地点Tdと地点K-Ssは同じ土壌タイプに立地するが, C層における交換態CaおよびMgの含有率は地点

表3-1 苫小牧における土壌断面調査の結果

層厚 (cm)	層名	調査結果
地点Df(広葉樹林)		
-0.5~0	I.	
0~4.5	IIA	黒褐色(7.5YR2/2)
4.5~10	A	黒褐色(7.5YR2/2), 砂壤土, 5~10mmの弱細粒状構造, 粗しょう, 湿, 小根すこぶる富む, 中根富む
10~18	C ₁	褐色(7.5YR4/6)70%, 橙色(7.5YR6/8)30%, 黒色(7.5YR2/1)10%, れき層, 15~20mmの軽石富む, 不規則な軽石間孔隙, 湿, 小根含む
18~25	C ₂	にぶい橙色(7.5YR7/3)75%, 浅黄橙色(7.5YR8/3)15%, 褐灰色(7.5YR4/1)6%, 黒色(7.5YR2/1)4%, れき層, 15~20mmの軽石富む, 不規則な軽石間孔隙, 湿, 小根含む
25~30	2AC	極暗赤褐色(5YR2/3)95%, にぶい橙色(5YR7/3)5%, 砂土, 5~10mmの軽石少, 不規則な軽石間孔隙, 湿, 小根富む, 中根含む
30~55+	2C	灰白色(10YR8/1)80%, 褐灰色(10YR4/1)10%, 黒色(10YR1.7/1)10%, れき層, 15mmの軽石富む, 不規則な軽石間孔隙, 湿, 小根含む
地点Cf(ストロームツ林)		
-4~-2.5	I.	
-2.5~0	F	
0~4.5	IIA	黒褐色(7.5YR3/2)
4.5~11	A	黒褐色(7.5YR3/2), 砂壤土, 約8mmの軽石少, 5~10mmの弱細粒状構造, 多孔質, 泡状, 割れ目状孔隙, 粗しょう, 半湿, 小根富む
11~15	C ₁	明褐色(7.5YR5/8)80%, 黒色(7.5YR2/1)19%, 灰白色(7.5YR8/2)1%, れき層, 30mm以下の軽石富む, 不規則な軽石間孔隙, 半湿, 小根含む
15~22	C ₂	明黄褐色(10YR7/6)92%, 灰白色(10YR8/2)5%, 黒褐色(10YR3/1)1%, れき層, 30mm以下の軽石富む, 不規則な軽石間孔隙, 半湿, 小根含む
22~31	2AC	褐色(10YR4/4)97%, 浅黄橙色(10YR8/4)3%, 砂土, 25mm以下の軽石少, 不規則な軽石間孔隙, 半湿, 小根含む
31~72	2C	にぶい黄橙色(10YR7/2)80%, 灰白色(10YR7/1)10%, 黒色(10YR1.7/1)10%, れき層, 35mm以下の軽石, 不規則な軽石間孔隙, 半湿, 根無し

表3-2 天塩中の峰における土壌断面調査の結果

層厚 (cm)	層名	調査結果
地点Ak(アカエゾマツ林)		
-9~-7	I.	
-7~0	F	
0~6	IIA	
6~11	A	暗黒色(2.5YR1.7/1), シルト質埴壌土, 粒状構造, 粗しょう, 構造間の不規則な孔隙, 湿, 小根および中根すこぶる富む, 大根有り
11~17	AE	褐色(7.5YR4/4), 埴壌土, 5~8mmの弱亜角塊状構造, 粗しょう, 管状孔隙富む, 湿, 小根富む, 中根含む
17~23	Eg	黒褐色から暗褐色(10YR6/2.5), 砂質埴土, 5~15mmの弱亜角塊状構造, 粗しょう, 管状孔隙含む, 割れ目状孔隙有り, 湿, 小根および中根含む
23~29	EBg	灰黄橙色(10YR6/2), 軽埴土, 明褐色(7.5YR5/8)の斑紋含む, 5~20mmの中亜角塊構造, 粗しょう, 管状孔隙含む, 割れ目状孔隙有り, 針状孔隙まれ, 湿, 小根および中根まれ
29~36	Bg	褐色(10YR4/6), 重埴土, 5~25mmの中亜角塊構造, 粗しょう, 管状および割れ目状孔隙有り, 湿, 小根および中根まれ
36~44	C ₁ g	明褐色(7.5YR5/7), 重埴土, 壁状構造, きわめて粗しょう, 割れ目状孔隙有り, 湿
44~58+	C ₂ g	灰オリーブ色(5Y5/3)50%, 褐色(10YR4/6)50%, 重埴土, 壁状構造, きわめて粗しょう, 割れ目状孔隙有り, 湿
地点N-Ss(ササ草地)		
-8~-5	I.	
-5~0	F	
0~6	IIA	暗褐色(7.5YR3/3), 埴壌土, 単粒状, 管状孔隙すこぶる富む, 湿, 細根すこぶる富む
6~21	A	黒褐色(7.5YR3/2), シルト質埴土, 10mmの中亜角塊構造, 堅硬, 管状孔隙すこぶる富む, 湿, 小根, 中根すこぶる富む
21~38	Eg	浅黄色(2.5Y7/3), シルト質埴土, 明褐色(7.5YR5/8)の斑紋すこぶる富む, 50mmの弱亜角塊状構造, 堅硬, 湿, 小根あり
38~46	Bg	黄褐色(10YR5/8), 重埴土, 明褐色(7.5YR5/8)の雲状斑紋すこぶる富む, 亜角礫富む, 10mmの弱亜角塊構造, 砕易, 湿
46~62+	Cg	褐色(10YR4/4), 重埴土, 明褐色(7.5YR5/8)の雲状斑紋すこぶる富む, 壁状構造, 割れ目状および管状孔隙あり, 湿

表3-3 天塩清川における土壌断面調査の結果

層厚 (cm)	層名	調査結果
地点Td(トドマツ林)		
-3~-2	I.	
-2~0	F	
0~3	A	黒色から黒褐色(7.5YR2/1.5), シルト質埴土, 5~10mmの中亜角塊状構造, 石礫なし, 管状, 針状, 割れ目状孔隙含む, 小根すこぶる富む, 中根富む, 大根あり
3~12	AE	灰褐色(7.5YR4/2), シルト質埴土, 10~20mmの弱亜角塊状構造, 管状, 針状, 割れ目状構造含む, 小根富む, 中根含む
12~28	B	明黄褐色(10YR6/8), 軽埴土, 15~30mmの強亜角塊状構造, 管状, 針状, 割れ目状孔隙含む, 小根含む, 中根まれ, 三二酸化物-腐植複合体のキュータン含む
28~60	C ₁	明黄褐色(10YR6/6), 軽埴土, 10~20mmの強角塊状構造, 管状, 針状, 割れ目状孔隙含む, 小根有り
60~100+	C ₂	褐色から黄褐色(10YR4.5/7), シルト質埴壤土, 10~15mmの中亜角塊状構造, 管状, 針状, 割れ目状孔隙含む, 小根まれ
地点K-Ss(ササ草地)		
-4~-2.5	I.	
-2.5~0	F	
0~2	IIA	
2~9	A	黒褐色(7.5YR2/2), 軽埴土, 5~10mmの弱亜角塊状構造, 小根すこぶる富む, 中根富む
9~18	AB	黒褐色(7.5YR3/2), 軽埴土, 5~15mmの強亜角塊状構造, 小根富む, 中根まれ
18~30	B	褐色(7.5YR4/4), 軽埴土, 5~20mmの強亜角塊状構造, 4~5cmの角れき富む, 小根含む 三二酸化物-腐植複合体のキュータン含む
30~51	C ₁	明褐色(7.5YR5/6), 重埴土, 5~20mmの強亜角塊状構造, 1~5cmの角れき富む, 15cmの角れきまれ, 小根含む
51~90+	C ₂	にぶい黄橙色(10YR6/4), 数十cmの角れきすこぶる富む, 小根あり

表3-4 各地点における土壌の一般物理性

地点	層位	三相分布(%)			飽和透水係数 (cm s^{-1})	容積重 (g cm^{-3})
		固相	液相	気相		
Df	A	19	48	33	1.1×10^{-1}	0.56
	C	32	30	38	1.9×10^{-1}	0.95
	2AC	34	31	35	7.6×10^{-2}	0.97
	2C	38	22	40	5.7×10^{-1}	1.03
Cf	A	27	40	33	1.0×10^{-1}	0.74
	C	38	24	38	2.2×10^{-1}	1.08
	2AC	38	35	27	3.6×10^{-2}	1.09
	2C	40	22	38	5.3×10^{-1}	1.11
Ak	A	6	36	58	8.6×10^{-2}	0.27
	Eg	40	43	17	2.6×10^{-4}	1.21
	Bg	22	63	15	2.1×10^{-3}	0.83
	Cg	38	54	9	2.5×10^{-3}	0.95
N-Ss	A	34	48	18	3.3×10^{-2}	0.26
	Eg	45	50	5	1.1×10^{-4}	1.26
	Bg	41	51	8	1.5×10^{-4}	1.09
	Cg	41	55	4	8.1×10^{-5}	1.07
Td	A	12	37	51	7.1×10^{-2}	0.23
	AE	26	42	32	1.9×10^{-2}	0.66
	B	33	54	14	3.0×10^{-3}	0.84
	C ₁	27	60	13	3.8×10^{-3}	0.70
	C ₂	30	58	13	1.2×10^{-2}	0.72
K-Ss	A	22	52	27	2.7×10^{-2}	0.46
	AB	30	58	12	1.0×10^{-3}	0.73
	B	34	58	8	1.8×10^{-5}	0.86
	C ₁	30	62	8	3.4×10^{-5}	0.78

表3-5 各地点における土壌の一般化学性

地点	層位	pH(H ₂ O)	交換態カチオン				CEC	塩基 飽和度 (%)	全カチオン			
			Ca	Mg	K	Na			Ca	Mg	K	Na
			(cmol. kg ⁻¹)						(mol. kg ⁻¹)			
Df	A	5.3	4.43	0.75	0.27	0.14	18.5	57	2.5	2.4	0.1	0.4
	C	5.7	0.19	0.04	0.04	0.03	2.5	43	2.7	2.7	0.1	0.4
	2AC	6.0	0.39	0.07	0.04	0.04	2.1	16	3.0	2.4	0.1	0.4
	2C	6.2	0.12	0.03	0.04	0.04	1.2	22	2.9	2.7	0.1	0.4
Cf	A	5.5	2.60	0.47	0.18	0.11	17.4	74	2.6	2.3	0.1	0.4
	C	5.8	0.51	0.10	0.06	0.05	2.2	26	2.9	2.8	0.1	0.4
	2AC	6.0	0.55	0.07	0.04	0.05	2.1	21	3.0	2.1	0.1	0.4
	2C	6.0	0.15	0.02	0.03	0.04	1.9	41	3.0	2.6	0.1	0.4
Ak	A	3.9	4.77	4.12	0.84	1.51	61.3	18	-	-	-	-
	Eg	5.7	0.93	2.65	0.16	0.37	15.1	27	-	-	-	-
	Bg	6.8	2.45	17.93	0.18	0.63	23.9	89	-	-	-	-
	Cg	7.5	1.99	19.92	0.12	0.63	27.0	84	-	-	-	-
N-Ss	A	4.8	5.13	4.87	1.38	0.64	34.8	35	-	-	-	-
	Eg	5.8	0.98	2.29	0.16	0.22	11.4	32	-	-	-	-
	Bg	6.3	1.19	6.91	0.07	0.21	13.2	64	-	-	-	-
	Cg	7.2	1.19	16.73	0.06	0.24	20.1	91	-	-	-	-
Td	A	4.5	2.44	1.41	0.39	0.30	25.1	18	-	-	-	-
	AE	4.6	0.23	0.33	0.28	0.18	18.0	6	-	-	-	-
	B	4.8	0.40	0.90	0.38	0.22	27.0	7	-	-	-	-
	C ₁	4.9	0.61	1.05	0.26	0.27	25.0	9	-	-	-	-
	C ₂	4.9	0.71	1.15	0.26	0.34	21.3	12	-	-	-	-
N-Ss	A	4.4	2.40	1.19	0.54	0.27	26.1	17	-	-	-	-
	AB	4.5	1.72	0.92	0.36	0.21	22.4	14	-	-	-	-
	B	4.7	2.35	1.50	0.25	0.22	21.7	20	-	-	-	-
	C ₁	4.9	2.53	1.76	0.24	0.26	26.5	18	-	-	-	-

K-Ssで明らかに高かった。

(3) 試水の分析方法

以後の章で示す降水，林内雨，樹幹流および土壌浸透水等の水試料については以下の項目を分析した。pHおよび HCO_3^- 濃度は採取後即座に分析し，他は4℃で保存したが，できるだけ速やかに分析した。pHはガラス電極法を用いて測定した。 Ca^{2+} ， Mg^{2+} 濃度は原子吸光光度法、 K^+ ， Na^+ 濃度は炎光光度法を用い， Cl^- ， NO_3^- ， SO_4^{2-} および PO_4^{3-} 濃度はイオンクロマトグラフィーによって分析した。 NH_4^+ 濃度はインドフェノール青法を用いて比色定量した。 HCO_3^- 濃度は電位差適定により，pHが4.3に低下するまでに消費される酸の量(アルカリ度；4.3BX)を測定し，これから HCO_3^- 濃度を計算した。

第4章 降雨(雪)として生態系へ流入する物質フラックス

1. はじめに

緒論で述べたように、降雨(雪)を媒介にした生態系への物質の入力は、森林生態系への物質循環を考える際に無視できない。pHの低い降水の流入は土壌-植物系からの塩基溶脱を促進し、物質循環のバランスを損ねる可能性がある。

降雨(雪)の化学組成は大気中における物質の濃度や降雨(雪)へ溶解する際の気象条件などによって左右されるために降雨(雪)水中のイオン濃度は時空間的に大きく変動するものと考えられる。したがって、降雨(雪)水による物質の負荷量を見積もるためには年間を通じた調査が必要である。

本章では開放露場において降雨、降雪の観測を行い、森林生態系への降水による物質負荷量を見積もることを目的とした。主たる研究は苫小牧で行い、降雨については天塩においても観測を行った。

2. 方法

(1) 降水の観測方法

降雨の観測は苫小牧、天塩の各地点に隣接する開放露場で行った。ただし、天塩での降雨の観測は地点N-Ss, K-Ssにおけるササ植被上で行い、地点Ak, Tdでは行わなかった。降雨は塩化ビニル製の雨樋を用いて採取した。苫小牧での樋の大きさは幅10cm、長さ360cmで、天塩では幅10cm、長さ180cmであった。雨樋は各開放露場において高さ1.2~1.5mにやや傾斜をつけて設置し、その下端にビニルチューブを取付けてポリ容器に接続した。雨水はそのポリ容器に集め、採集時に全重量を測定して降水量を計算した。苫小牧においては降雪期間中に地点Df, Cfの開放露場において内径約30cmの円筒容器を用いて降雪の採集を行った。降雪は測重後、実験室に持ち帰り室温で溶かした後に分析に供した。

苫小牧は1990年5月~1992年4月まで観測を行った。天塩中の峰は1992年と1993年の無雪期間(5月下旬~11月下旬)に観測した。天塩清川は1994年の無雪期間に観測を行った。苫小牧において試水の採集は1990年は原則として1降雨毎に行い、1991年以降は約2~3週間毎に行った。天塩では原則として1カ月毎に試水の採集を行い、降水量の多い時期には2週間毎に行った。

(2) 降水によるイオンフラックスの計算方法

降水によって生態系に供給される*i*種イオンのフラックスFRiは式(1)のように計算した。

$$FRi(\text{kmol. ha}^{-1}) = C_i \times P \times 10^{-5} \quad (1)$$

(C; イオン濃度($\mu\text{mol. L}^{-1}$), P; 降水量(mm))

3. 結果と考察

(1) pHおよびイオン濃度の経時変動

図4-1に苫小牧における地点Df, Cfの雨(雪)水のpH変動を、水量による月別加重平均値で示した。各年とも、pHは盛夏期(5~8月)に低く、秋~春(9~4月)に高かった。その傾向は、'91, '92年の観測結果で特に明瞭であった。降雨のpHは春先から徐々に低下し、盛夏期には、しばしば4.0以下の低い値を記録した。しかし、降水量が増加する9月以降は上昇し、おおむね4.5~5.5の範囲にあった。

図4-2に地点Cfにおける降水中の Ca^{2+} , Na^+ , Cl^- および SO_4^{2-} 濃度の変動を水量による月別加重平均値によって示した。なお、地点Dfにおいてもほぼ同じ変動傾向を示した。 Ca^{2+} 濃度は春から初夏にかけて高い値を示したが、 Na^+ 濃度は、秋から冬にかけて高く、月による変動の幅もこの時期に著しく大きかった。 Cl^- は Na^+ と類似した変動を示したが、'91年の5~7月、'92年の5~9月などには、 Cl^-/Na^+ が1.4を越えた期間が見られた。 SO_4^{2-} の季節変動パターンには、pHのそれと逆の傾向が認められた。

(2)降雨(雪)の平均pH, イオン濃度

表4-1に苫小牧、天塩の各地点における降雨(雪)の水量による加重平均濃度をまとめた。加重平均濃度は C_{avg} は式(2)のように計算した。

$$C_{avg} = \Sigma (C \times P) / \Sigma P \quad (2)$$

(C; イオン濃度($\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$), P; 降水量(mm))

苫小牧の二地点では降雨、降雪中の加重平均pHおよび加重平均イオン濃度はほとんど同様な値を示した(表4-1)。降雨は地点Df, Cfともに H^+ , Ca^{2+} , Na^+ が主要な陽イオンで、 Cl^- と SO_4^{2-} が主要な陰イオンであった。地点Df, Cfともに降雪中のイオン濃度は H^+ と K^+ を除いて降雨のイオン濃度よりも高く、特に Na^+ と Cl^- で顕著であった(表4-1)。天塩の二地点における降雨中のイオン濃度は苫小牧の二地点における降雨と比較して SO_4^{2-} 濃度がやや低く、 Na^+ , Cl^- 濃度がやや高かった。また、天塩中の峰における降雨pHは苫小牧の二地点における降雨pHとほぼ同じ値であったのに対し、清川における降雨のpHは他の地点における降雨pHより高かった。

(3)降水によるイオンフラックス

表4-2に降水によるイオンフラックスを示す。なお、苫小牧の地点Df, Cfにおける年間フラックスは、この地域の水文年を考慮して5月から翌年4月までを1年として計算した。この二地点におけるイオン負荷量は地点間に有意な差は認められなかった。苫小牧における降雨によるイオンフラックスは降雪のフラックスよりも大きく、降水量の違いを反映していたと考えられる。また、天塩の二地点における降雨による NO_3 および SO_4 降下量は苫小牧の二地点の1/2以下に過ぎなかった。

世界各地で観測された降水によるイオン年負荷量($\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$)を表4-3に示した。苫小牧の二地点は地点間の差が認められなかったので、代表として地点Dfを表に載せた。苫小牧は他の地点と比較してNaとClの負荷量が約 $1 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ 以上

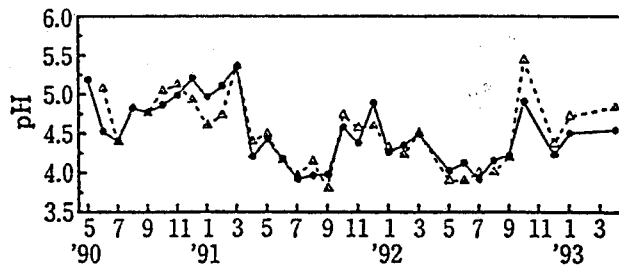


図4-1 地点Df, Cfにおける雨(雪)水のpH変動

●, 地点Df; △, 地点Cf

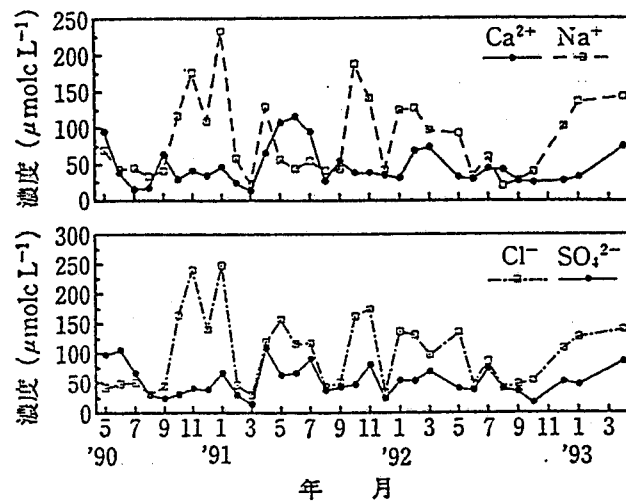


図4-2 地点Dfにおける雨(雪)水の Ca^{2+} , Na^{+} , Cl^{-} および SO_4^{2-} 濃度の変動

表4-1 各地点における降雨(雪)中の水量による加重平均pHおよびイオン濃度¹⁾

種別	期間	降水量 mm	pH	H^{+}	Ca^{2+}	Mg^{2+}	K^{+}	Na^{+}	NH_4^{+}	HCO_3^{-}	Cl^{-}	NO_3^{-}	SO_4^{2-}
地点Df(苦小牧)													
降雨	5~11月	1030	4.3	52	41	16	8	61	10	18	80	11	43
降雪	12~4月	344	4.5	34	47	31	9	119	18	25	121	21	62
地点Cf(苦小牧)													
降雨	5~11月	982	4.3	57	43	17	11	59	9	20	88	8	41
降雪	12~4月	294	4.6	28	50	29	9	124	21	20	127	18	62
地点N-Ss(天塩中の峰)													
降雨	5~10月	614	4.2	62	43	23	9	83	11	7	107	8	34
地点K-Ss(天塩清川)													
降雨	5~10月	391	5.1	9	28	23	7	113	9	42	132	9	32

1) 苦小牧: 1990年5月~1993年4月, 天塩中の峰, 1992年~1993年, 天塩清川; 1994年

表4-2 各地点における降雨(雪)によるイオン負荷量¹⁾

種別	期間	降水量 mm	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
kmol. ha ⁻¹ period ⁻¹												
地点Df(苫小牧)												
降雨	5~11月	1030	0.54	0.42	0.17	0.08	0.62	0.10	0.19	0.82	0.11	0.44
降雪	12~4月	344	0.12	0.16	0.11	0.03	0.41	0.06	0.08	0.42	0.07	0.21
	5~4月	1374	0.66	0.58	0.27	0.11	1.03	0.16	0.27	1.24	0.18	0.66
地点Cf(苫小牧)												
降雨	5~11月	982	0.56	0.42	0.17	0.11	0.58	0.09	0.20	0.86	0.08	0.41
降雪	12~4月	294	0.08	0.15	0.09	0.03	0.36	0.06	0.06	0.37	0.05	0.18
	5~4月	1276	0.64	0.57	0.25	0.13	0.95	0.15	0.26	1.24	0.14	0.59
地点N-Ss(天塩中の峰)												
降雨	5~10月	614	0.38	0.27	0.14	0.06	0.51	0.07	0.04	0.66	0.05	0.21
地点K-Ss(天塩清川)												
降雨	5~10月	391	0.03	0.11	0.09	0.03	0.44	0.03	0.17	0.51	0.03	0.12

1) 苫小牧；1990年5月～1993年4月，天塩中の峰，1992年～1993年，天塩清川；1994年

表4-3 世界各地における降水によるイオン降下量

地点	国名	年	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	出典
kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹												
Harste	Germany	1982-1985	0.34	0.51	0.11	0.06	0.23	0.45	0.29	0.40	0.81	4)
Solling	Germany	1973-1983	0.82	0.49	0.14	0.09	0.34	0.85	0.47	0.62	1.45	4)
Wingst	Germany	1983-1990	0.35	0.23	0.28	0.12	1.26	0.88	1.45	0.45	1.06	55)
Schluchsee	Germany	1987-1988	0.31	0.27	0.08	0.05	0.24	0.51	0.25	0.35	0.56	15)
Tennessee	U. S. A	1980-1982	0.71	0.27	0.07	0.04	0.05	0.08	0.11	0.13	0.78	43)
Coweeta	U. S. A	1985-1988	0.52	0.09	0.03	0.03	0.08	0.13	0.08	0.21	0.49	41)
Appalachian	U. S. A	1986-1989	1.80	0.51	0.14	0.17	0.19	0.01	0.25	0.32	1.50	44)
Oude Maat	Netherlands	1981-1984	0.19	0.39	0.21	0.05	0.88	1.19	0.90	0.54	1.30	132)
Nordmoen	Norway	1986-1988	0.58	0.06	0.03	0.02	0.11	0.31	0.13	0.34	0.54	41)
南京	China	1992-1993	0.18	1.04	0.15	0.07	0.13	0.53	0.19	0.20	1.57	8)
多摩	Japan	1988	0.76	0.55	0.13	0.06	0.33	0.58	0.96	0.63	1.07	81)
全国平均	Japan	1989-1992	0.24	0.21	N.D	N.D	N.D	0.03	N.D	0.19	0.63	54)
苫小牧(Df)	Japan	1990-1993	0.66	0.58	0.27	0.11	1.03	0.16	1.24	0.18	0.66	

の大きい値を示し、ドイツのWingstも同様の傾向を示した。NaやClは自然界において海水に最も多く存在するので、苫小牧やWingstなど海から比較的近い地点のNaやCl降下量は海水の影響を受けていることが示唆される。NH₄⁺降下量はオランダのOude Maatで約1.2 kmol. ha⁻¹ y⁻¹と最も多く、ドイツの4地点でも0.5~0.9 kmol. ha⁻¹ y⁻¹の範囲にあったのに対し、合衆国や地点Dfおよび全国平均では比較的少なかった(0.01~0.2 kmol. ha⁻¹ y⁻¹)。Ivens et al.(1989)によるとオランダにおける大気からのNH₄⁺沈着は農耕地における畜産廃棄物からのNH₄⁺の揮散を起源としている。中国の南京におけるNH₄⁺降下量は約0.6 kmol. ha⁻¹ y⁻¹と地点Dfや全国平均値よりもやや多かった。また、南京ではCa²⁺の降下量が他と比べて大きく、約1.0 kmol. ha⁻¹ y⁻¹に達している。地点DfのNO₃⁻およびSO₄²⁻降下量は全国の平均値とほぼ同じ値であったが、H⁺、Ca²⁺、NH₄⁺降下量は全国平均値より明らかに多かった。また、欧米で観測されたNO₃⁻やSO₄²⁻降下量は苫小牧より比較的多いのに対し、苫小牧のH⁺降下量は欧米での観測値に匹敵するほど多かった。人為的汚染源に由来する大気中の強酸アニオンは主としてNO₃⁻とSO₄²⁻であると考えられているが、苫小牧におけるNO₃⁻降下量はSO₄²⁻降下量の1/3以下に過ぎなかった。

以上のように、苫小牧における大気からの降下物はNaClの影響を強く受けていて、NH₄⁺やNO₃⁻の降下量は諸外国と比較して少ないのに対し、H⁺の降下量は欧米と匹敵する値を示した。次章では苫小牧における降水中のイオンの起源を海塩性と非海塩性とに分離し、非海塩性SO₄²⁻の起源について気象パラメーターを用いて推定する。

4. 要約

森林生態系への物質の入力である降水の化学性とその負荷量を明らかにするために年間を通じて降雨と降雪の観測を行った。その結果、以下のことが明らかとなった。

- ①降雨(雪)中の主要陽イオンはH⁺、Ca²⁺およびNa⁺であり、主要陰イオンはCl⁻とSO₄²⁻であった。
- ②降雨(雪)水中のpHは盛夏期(5~8月)に低く、秋~春(9~4月)に高い傾向にあった。またNa⁺とCl⁻濃度は同様の変動傾向を示し、秋に濃度が高まる傾向にあった。
- ③降水による年H⁺降下量は欧米における観測値に匹敵するほど多かった。また、Na⁺やCl⁻の降下量も多く、海塩の影響を受けていることが示唆された。

第5章 降雨(雪)によって供給される物質の供給源の推定

1. はじめに

前章でみたように降雨(雪)水中のpHおよびイオン濃度は季節によって大きく変動しており、その変動傾向はイオン種によって異なっていた。大気中に存在する物質の供給源はさまざまであり、それを特定することは容易ではない。緒論でも述べたように降水中の強酸アニオンである SO_4 や NO_3 には人為的汚染源から排出されるものと自然起源に由来するものとが存在する。海水中に存在する物質は波が飛沫する際に大気中へ海塩粒子として放出される。その海塩粒子が降水にとけ込み、沈着する過程でイオン種間での存在割合が変化しないとするならば、海水起源の降雨中のイオン濃度は既知であるそれらの海水中存在比から推定できる。本章では降雨(雪)水中における海塩起源のイオン負荷量を推定すると共に、非海塩起源の SO_4 の供給源を気象パラメーターを用いた重回帰分析によって推定することを目的とした。

2. 海塩由来成分と非海塩由来成分の分離方法

海塩由来(以下ssと略記する)のイオン濃度は、通常、 Na^+ イオンが全て海水に由来し、移送、沈着の過程で、これと他イオンとの存在比が変化しないとの仮定に基づいて求められる(式(1), (2))。

$$\text{ssC}_i = \text{C}_{\text{Na, rain}} \cdot (\text{C}_i / \text{C}_{\text{Na}})_{\text{ss}} \quad (1)$$

ここで、 ssC_i は海塩由来の*i*種イオンの濃度、 $\text{C}_{\text{Na, rain}}$ は降雨(雪)水中の Na^+ 濃度、 $(\text{C}_i / \text{C}_{\text{Na}})_{\text{ss}}$ は海水中の*i*種イオンと Na^+ の濃度比である(表5-1)。

非海塩由来(以下nssと略記する)のイオン濃度は式(2)のように求めることができる。

$$\text{nssC}_i = \text{C}_{i, \text{rain}} - \text{ssC}_i \quad (2)$$

ここで、 nssC_i は非海塩由来の*i*種イオンの濃度、 $\text{C}_{i, \text{rain}}$ は雨(雪)水中の*i*種イオンの濃度である。

3. 結果と考察

(1)海塩由来と非海塩由来の分離

図5-1に降雨(雪)中の Na^+ と Cl^- 濃度の散布図を示す。多くの点は図中の点線で示した海水中における両イオンの濃度比(SW)に近かった。これらの地域においてNaを多量に発生する汚染源は存在しないので、降雨(雪)中の Na^+ や Cl^- の大部分は海水由来の風送塩を起源としていと考えられる。図5-2には降雨(雪)中の Na^+ と SO_4^{2-} の散布図を示す。 $\text{Na}^+ : \text{SO}_4^{2-}$ のプロットは、全て直線SWよりも上方に分布し、降水の $\text{SO}_4^{2-} / \text{Na}^+$ 比が、海水の濃度比より高かったことを示していた。苫小牧の降水中の $\text{SO}_4^{2-} / \text{Na}^+$ 比が海水中の濃度比よりも高くなる程度には明瞭な季節性が認められた。秋から初冬(9~12月)の降雨(雪)は、 Na^+ 濃度の変動幅が大きく、プロットはSWにほぼ平行して分布し、SWと SO_4^{2-} 濃度の差は、ほぼ $50 \mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ 以下であった。これに

表5-1 海水中のNaとの元素存在比(等量比)¹⁾

	$(C_i/Na)_{ss}$
Ca	0.0439
Mg	0.2267
K	0.0208
Cl	1.1319
N	0.0228
S	0.1206

1)日本化学会(1984)より計算した

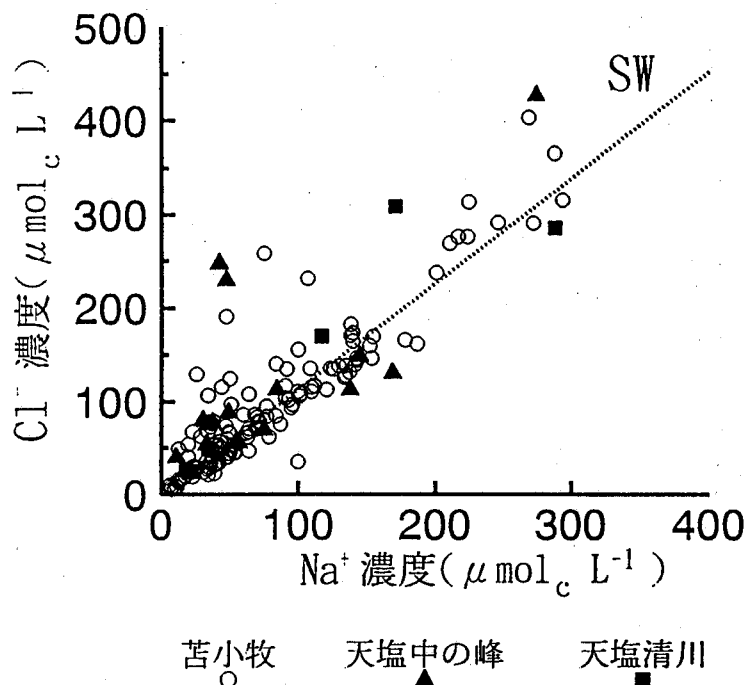


図5-1 降雨(雪)中の Na^+ と Cl^- 濃度の関係(点線(SW)は海水中の存在比を表す)

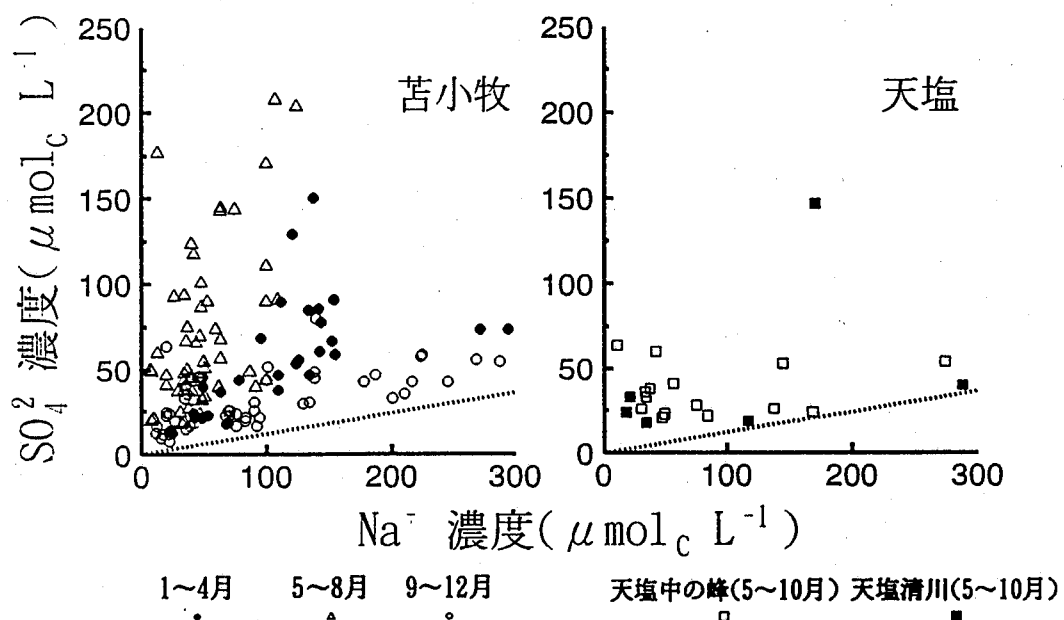


図5-2 降雨(雪)中の Na^+ と SO_4^{2-} 濃度の関係(点線は海水中の存在比を表す)

対して、初夏から盛夏期(5~8月)の観測値は、 Na^+ 濃度が $150 \mu\text{mol/L}$ を越えないにも関わらず、 SO_4^{2-} 濃度の最大値は約 $200 \mu\text{mol/L}$ 前後に達し、大部分のプロットの $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$ 比が1を越えた。また、厳冬期から融雪期(1~4月)にかけての観測値は、両者のほぼ中間に分布する。これらの解析結果と降雨のpHおよびイオン濃度の季節変動(第4章)との関係は以下のように考察された。

- ① 苫小牧における雨(雪)水のpH、イオン組成は海水に由来する自然汚染の影響を強く受けている。
- ② 海水による自然汚染は、9~11月に顕著で、 Na^+ 、 Cl^- 濃度およびpHを高める。
- ③ 人工的汚染源に由来する酸物質としては、 SO_4^{2-} が重要で、その影響は自然汚染が比較的少ない5~8月に強く現れる。

すなわち、静穏で、濃霧に閉ざされる日の多い春から盛夏期にかけては、海水に由来する自然汚染が少なく、相対的に、人工的汚染源に由来する酸物質の影響が強まって、これがpHの著しい低下をもたらす。この時期に多い濃霧が、これを助長している可能性もある(吉武, 1986)。これに対して、9~11月は、降雨頻度、降水量が増加するだけでなく、南東海上を通過する台風や低気圧による暴風雨が多く、これによる塩害がしばしば観察される(佐久間・佐藤, 1987)。この期間に見られる雨水の高pHには、南東の強風と海水起源の自然汚染が、密接に関係していると思われる。

表5-2には式(1)、(2)を用いて計算した Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 Cl^- および SO_4^{2-} について降水によるイオン負荷量を海塩由来(ss)と非海塩由来(nss)に分類した結果を示す。なお、窒素については海水中の $\text{NH}_4^+/\text{NO}_3^-$ 比についてのデータが得られなかったので $\text{NH}_4^+ + \text{NO}_3^-$ として計算した。全地点とも Mg^{2+} と Cl^- はほとんどが海塩由来であったのに対し、 Ca^{2+} 、 K^+ 、 $\text{NH}_4^+ + \text{NO}_3^-$ 、 SO_4^{2-} は非海塩由来が主体であった。また、全地点とも非海塩由来アニオンとして SO_4^{2-} が最も大きい値を示していた。一般に、 nssSO_4^{2-} は火山や人為的な汚染源に由来すると言われており、大気中の移動プロセスに基づいた物理的移動-沈着モデルがいくつか提案されている。以下では、苫小牧における nssSO_4^{2-} の供給源について、気象パラメーターを用いた統計分析による解析を試みた。

(2) 降雨中の nssSO_4^{2-} 発生源の推定

既往の物理化学的モデルは、大気中における SO_2 の輸送とその SO_4^{2-} への変化を数値化することによって、問題とする地点の湿性沈着を予測しようとするものが多い(Eliassen, 1980など)。したがって、まず、大気の SO_2 濃度と降水中の nssSO_4^{2-} 濃度の関係を検討した。苫小牧地域の大気汚染は、苫小牧市環境監視センターによってモニタ(地上5m, 溶液導電率法)されており、地点Cfおよび苫小牧市中心部(以下市街地と略称する)における大気中 SO_2 濃度が既知である。

図5-3には地点Cfにおける降水中の nssSO_4^{2-} 濃度の変動を示した。また、図5-4に

表5-2 各地点における降水による海塩性(ss), 非海塩性(nss)イオン負荷量^{a)}

地点	種別	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺ +NO ₃ ⁻	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻
		kmol. ha ⁻¹ period ^{-1 b)}						
地点Df	ss	0.05	0.23	0.02	1.03	0.02	1.17	0.12
	nss	0.53	0.04	0.09	0.00	0.32	0.07	0.53
		(92) ^{c)}	(14)	(81)	(0)	(93)	(6)	(81)
地点Cf	ss	0.04	0.22	0.02	0.95	0.02	1.07	0.11
	nss	0.53	0.04	0.11	0.00	0.26	0.16	0.47
		(93)	(15)	(85)	(0)	(92)	(15)	(81)
地点N-Ss	ss	0.02	0.12	0.01	0.51	0.01	0.57	0.06
	nss	0.25	0.03	0.05	0.00	0.10	0.09	0.15
		(92)	(20)	(81)	(0)	(90)	(13)	(70)
地点K-Ss	ss	0.02	0.10	0.03	0.44	0.01	0.51	0.05
	nss	0.10	0.00	0.01	0.00	0.06	0.01	0.07
		(84)	(0)	(65)	(0)	(85)	(3)	(57)

a) 苫小牧 ; 1990年5月～1993年4月, 天塩中の峰, 1992年～1993年,
天塩清川 ; 1994年

b) 苫小牧 ; 5月～翌年4月, 天塩中の峰 ; 5～10月, 天塩清川 ; 5～10月

c) ()内は非海塩性負荷量が全負荷量に占める割合(%)

は、 nssSO_4^{2-} 濃度の集計期間にあわせて大気中 SO_2 濃度の平均値を求めた結果を示した。市街地の大気中 SO_2 濃度が不規則な変動を示し、季節的特徴を認めにくいのにに対し、地点Cfの SO_2 濃度は、明瞭な季節変動を示した。すなわち、南または南東の風が卓越する4～8月に高い値が多く、北西風が卓越する冬期には低い値を示す傾向であった。さらに、市街地と地点Cfの濃度差は、冬期間に大きくなったが、5～8月のそれはあまり大きくならなかった。これらの事実は、①大気中 SO_2 の供給源が市街地にあり、②南あるいは南東風が卓越する時期に、市街地北西の森林地帯に移送される(太田ら, 1980; 太田ら, 1983)、③その際に拡散による濃度低下がほとんど起こらない、④北西の風が卓越する時期には、市街地と地点Cfの大気中 SO_2 濃度は無関係であることなどを示している。

また、図5-3と5-4を比較すれば、地点Cfにおける大気中 SO_2 濃度と降水中の nssSO_4^{2-} 濃度が類似した季節変動の傾向を示すことは明らかであり、両者の間には1%水準で有意な正の相関($r=0.37$)が認められた。相関係数がやや低かったのは、'90年6～7月、'92年9月～'93年1月の観測値にやや大きな食い違いがあったことによる。こうしたバラツキの原因は、 SO_2 の大気中における挙動、 SO_4^{2-} への変換、降雨による洗浄効果などが、時々局地的気象条件に敏感に反応して変動することにあると推察され、理論的にも観測データの面でも物理的モデルによるアプローチは困難である。

そこで、降水中の nssSO_4^{2-} の起源を予測するために、ステップワイズ重回帰分析(田中ら 1984)を行った。すなわち、気象パラメータとして、市街地および地点Cfにおける $\text{SO}_{2,\text{atm}}$ (s_1 および s_2 , $\mu\text{g m}^{-3} \text{d}^{-1}$)、平均全天日射量(Q_s , $\text{MJ m}^{-2} \text{d}^{-1}$)、平均気温(T_a , $^{\circ}\text{C}$)、平均相対湿度(H_d , %)、平均化期間における無降雨日数割合(D_s , %)、同じく霧日数割合(F_d , %)、日平均降水量(P_t , mm d^{-1})、平均風速(U , m s^{-1})、平均風向($\cos\theta$, 南東方向を 0° として計った方位角の余弦)を含む'90～'93年のデータセットを用い、これらを組み合わせた指標(例えば、 $U \cdot \cos\theta$)についても検討した。なお、従属変数は nssSO_4^{2-} の日平均負荷量($\mu\text{mol. m}^{-2} \text{d}^{-1}$)とした。また、予備的解析によって、年間を通した予測は困難なことが分かったので、モデル式の決定係数がより高い値を示すように、説明変数の大小関係を用いてデータを以下の4つに分類した。分類に用いた説明変数の境界値は試行錯誤によって決定した。まず、 F_d (霧日数割合)が30%以上のものとそれ以下のものに分類し、 F_d が30%以下のものは、 T_a (平均気温)によって3つに分類した($T_a \geq 15$, $15 > T_a > 5$, $T_a \leq 5$)。解析の結果を表5-3に総括した。

得られた重回帰方程式の決定係数は0.60～0.77の範囲にあり、すべて1%水準で統計的に有意であった。特に、霧日数割合の高い春先においてモデルの適合性が高かった。

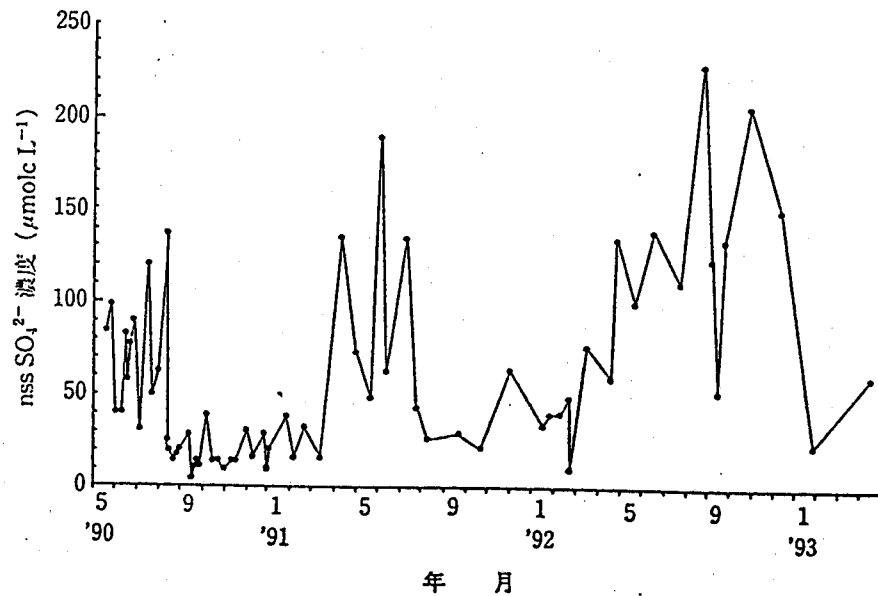


図5-3 地点Cfにおける降雨(雪)中の nssSO_4^{2-} 濃度の変動

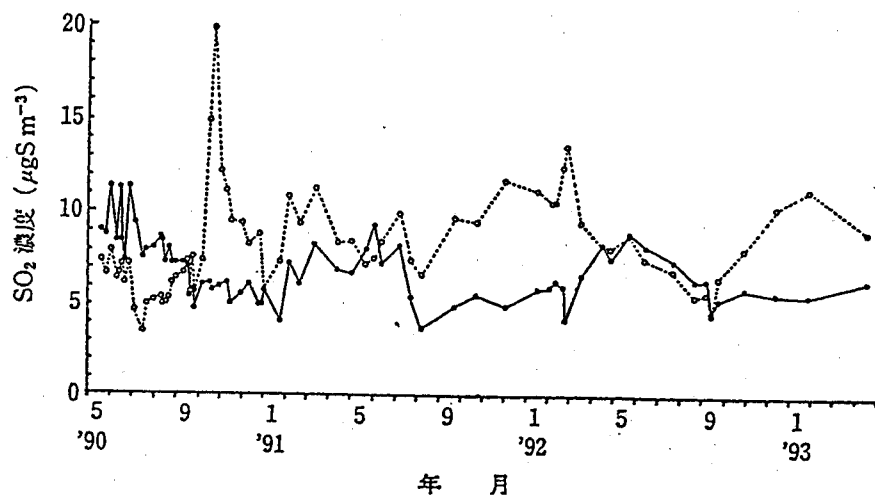


図5-4 大気中 SO_2 濃度の変動(○, 市街地(s_1); ●, 地点Cf(s_2))

表5-3 nssSO_4^{2-} フラックス($\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)を従属変数とした重回帰方程式の統計パラメーター

データ セット ^{a)}	標準回帰係数 ^{b)}							決定係数 ^{c)} R^2	自由度 d. f
	X(1)	X(2)	X(3)	X(4)	X(5)	X(6)	X(7)		
I	0.61	0.51	0.11		-0.35			0.77**	12
II	0.58		0.31			-0.71		0.69**	15
III	0.12	0.63		1.57	-1.19		0.28	0.71**	16
IV	0.56			0.48	-0.28	-0.30		0.60**	21

a) I : 霧日数割合(F_d , %) > 30, II : $F_d \leq 30$, 平均気温(T_a , °C) ≥ 15 . III : $F_d \leq 30$, $5 < T_a < 15$, IV : $F_d \leq 30$, $T_a < 5$

b) X(1) = $\bar{U} \cdot \cos \theta$, X(2) = 平均相対湿度(%), X(3) = 霧日数割合(%), X(4) = 平均日射量($\text{MJ} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$), X(5) = 地点Cfの SO_2 濃度($\mu\text{gS} \cdot \text{m}^{-3}$), X(6) = 無降雨日数割合(%), X(7) = 平均風速($\text{m} \cdot \text{s}^{-1}$)

c) **は決定係数が1%水準で統計的に有意であることを示す。

$U \cdot \cos \theta$ はすべてのデータセットにおいて正の要因として作用していた。 $U \cdot \cos \theta$ は Fay et al. (1985) の長距離輸送モデルにおいて、大気中のマスフローによる酸物質の移動を表す変数として用いられている。表5-3において、南東方向を 0° とした $U \cdot \cos \theta$ が正の要因として作用していることは、本調査地において SO_2 や $nssSO_4^{2-}$ が南東方向からマスフローによって供給されていることを示していると考えられる。また、太田(1990)は大気中に存在する $nssSO_4^{2-}$ 粒子を①燃焼過程によって生成されるもの、②大気中における SO_2 の気相酸化により生成されるもの、③大気中において SO_2 と他の粒子(水滴、海塩粒子)との反応により形成されるもの、④大気中において SO_2 以外のガス状硫黄化合物の酸化により生成されるものに分けている。②～④の酸化反応は大気中の OH ラジカルなどを触媒とした光化学反応によるものである。Fd や Hd (平均相対湿度) が正の要因としていることは、③のような霧滴中で酸化された $nssSO_4^{2-}$ の寄与があることを示唆しており、 Q_s (平均日射量) や s_2 (地点 Cf における大気中 SO_2 濃度) は大気中における SO_2 から $nssSO_4^{2-}$ の変換反応に関与する要因と考えられる。

以上の解析結果および苫小牧の立地条件から、降雨中の $nssSO_4^{2-}$ は南東風が卓越する期間に風や霧によって苫小牧東部臨海工業地帯および苫小牧市街から供給されていることが明らかとなった。

(3) 降雨の pH とイオン濃度の関係

図5-3に見られるように降水中の $nssSO_4^{2-}$ 濃度は、各年とも5～8月に高い値を示し、pH (第4章、図4-1) の変動と逆の変動傾向を示し、 H^+ 濃度と $nssSO_4^{2-}$ 濃度の間には1%水準で有意な正の相関が認められた ($n=137$, $r=0.53$)。 H^+ 濃度とその他のイオンの関係を調べるために、両地点における雨(雪)水中の H^+ 濃度 ($\mu mol \cdot L^{-1}$) を従属変数、各イオン濃度を独立変数としたステップワイズ重回帰分析を行った結果、次の重回帰方程式が得られた(式(3))。

$$H^+ = -0.999 \cdot (HCO_3^-) + 0.309 \cdot (nssSO_4^{2-}) + 49.159 \quad (3)$$

$$R^2 = 0.5437^{**} \quad d.f = 136$$

式(3)において HCO_3^- は負の要因として、 $nssSO_4^{2-}$ は正の要因として作用していた。つまり、 $nssSO_4^{2-}$ とともに供給される H^+ が雨(雪)水を酸性化させ、それに対して、 HCO_3^- が緩衝イオンとして H^+ 濃度を低下させる作用をしていることが示された。すなわち、苫小牧において非海塩由来の SO_4^{2-} が降雨の pH を低下させる主因であることが明らかとなった。

以上の解析では降水として降雨と降雪をひとまとめにした解析を行ったが、降雨と降雪はその物理的性質の違いや積雪期間の有無など、土壌-植物系へ流入するイオンの動態に関して無視できない違いがあることが予想される。次章では、積雪期間中のイオンの動態に焦点を絞った研究について述べる。

5. 要約

降水によって供給されるイオンの起源を推定するため、海水中の存在比および気象パラメーターを用いた統計解析を用いて以下のことを明らかにした

- ① 降水中の Na^+ と Cl^- 濃度は極めて高い相関係数を示し、かつその濃度比は海水のそれにほぼ等しかった。 SO_4^{2-} イオン濃度は、 Na^+ 濃度が低い範囲で、海水のそれから予想される値よりかなり高くなる例が多く、海水以外の起源に由来するものの影響が大きいことが明らかになった。
- ② 苫小牧における降水の H^+ 濃度と非海塩起源の SO_4^{2-} (nssSO_4^{2-})との間には正の相関が認められ、降水のpHを低下させている主原因は nssSO_4^{2-} であると判断された。
- ③ 降水による nssSO_4^{2-} 負荷量 ($\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$) は大気中における酸物質の移動や変換に関係する気象パラメーターによって、その変動の約60～80%を説明できた。すなわち、苫小牧の降水pHを低下させる主原因は非海塩起源の SO_4^{2-} であり、それは南東風が卓越する期間に風や霧によって苫小牧東部臨海工業地帯および苫小牧市街から供給されていることが明らかとなった。

第6章 雪面に対する乾性沈着フラックスの推定

1. はじめに

前章では降水中のイオンの起源について重回帰分析を用いて考察した。そこでは降雨と降雪は湿性降下物として同一母集団として扱ったが、土壌へ流入する過程を考えると、両者の違いは明瞭である。降雨中のイオンは林冠を通過後土壌へ速やかに流入するのに対し、降雪として供給された物質は積雪として土壌表層に一時的に蓄積される。雪面へは無降雪期間中に大気から乾性降下物による物質の供給があると考えられる。また、積雪期間中の融雪過程は降雪のイオン濃度と積雪のイオン濃度を異なるものにするとも考えられる。本章では積雪期間における積雪中のイオンの動態に注目し、降雪と積雪の物質収支から雪面に対する乾性沈着フラックスを見積もることを目的とした。

2. 方法

降雪の採取方法および採取時期については第4章で述べた通りである。積雪は雪質(日本雪氷学会北海道支部 1991)によっていくつかの層に区分した後、各層の厚さを測定し、内径20cm、厚さ5cmの塩化ビニル製試料円筒を用いて層毎に2~3反復で採取した。積雪の調査は地点Dfの開放露場において実施し、1992年1月~3月に4回行った。また、積雪表層の調査および雪の採取を1992年2月20~25日の間、1日1回の頻度で毎日行った。ただし、ここで積雪表層とは、積雪表面から深さ5cmまでの部分を意味する。採取した雪は重量を測定し、降雪試料と同様室温で融かした後、主要イオン濃度の分析を行った。分析方法は前節と同様である。降雪および積雪のイオン濃度($\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)は雪を融かしてできた溶液中のイオン濃度を意味する。

3. 結果

(1) 積雪中のイオン存在量の推移

1992年1月25日、2月9日、2月24日に苫小牧の開放露場において調査した積雪断面の構造を図6-1に示す。記号は現場で判断した雪質を示している。雪質については日本雪氷学会の分類(日本雪氷学会北海道支部 1991)に基づいて目視によって分類した。積雪は時間の経過とともに深くなっており、表層の新雪、こしまり雪の下には、やや密度の高いざらめ、しもざらめ雪が堆積していた。各調査日における積雪密度 S_v ($\text{Mg}\cdot\text{m}^{-3}$)および積雪水量 S_p (mm)は式(1)、(2)のように計算した。

$$S_v = S_w / V \quad (1)$$

(S_w ; 採取した雪の重量(g), V ; 採取容器の容積(cm^3))

$$S_p = S_w / S \times 10 \quad (2)$$

(S ; 採取容器の底面積(cm^2))

それぞれの調査日における積雪密度、積雪水量の深さによる分布を図6-2に示す。図6-2の縦軸はそれぞれの雪を採取した深さ(cm)を示す。1月25日と2月9日の積雪密度

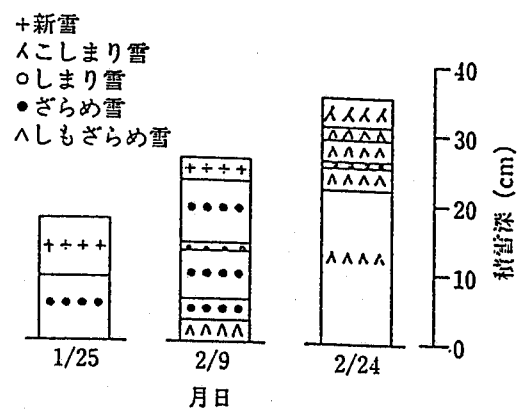


図6-1 積雪断面の構造(地点Dfの開放露場)

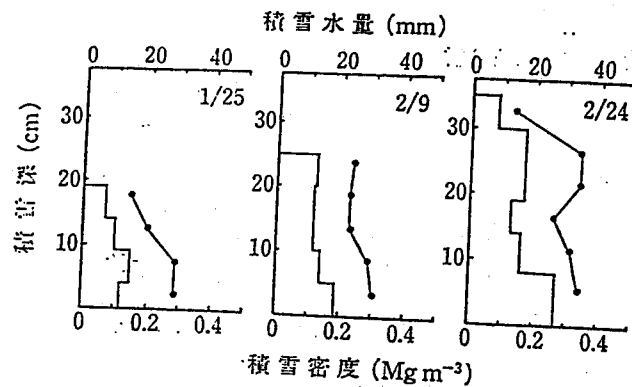


図6-2 積雪断面内の積雪密度および積雪水量分布(折れ線: 積雪密度, ヒストグラム: 積雪水量, 図中の数字は月日を示す)

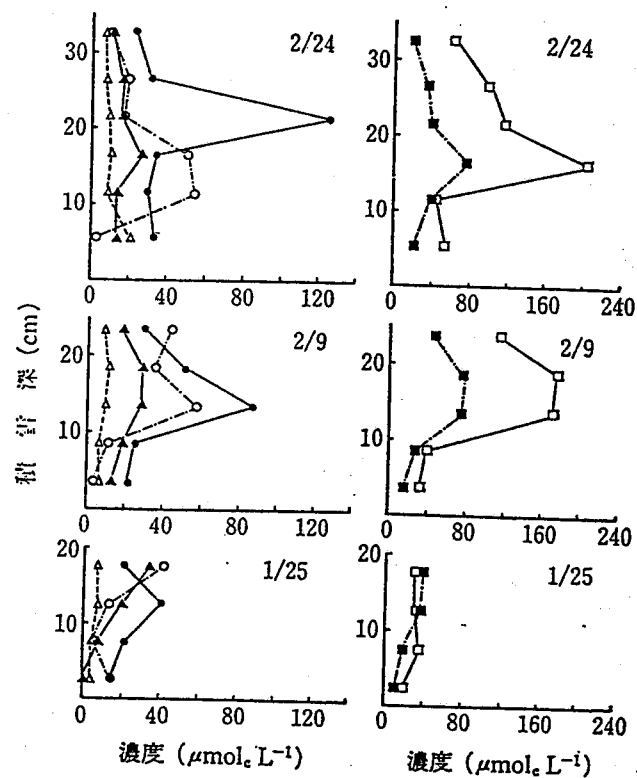


図6-3 積雪内部における各イオンの濃度分布

○, H^+ ; ●, Ca^{2+} ; △, K^+ ; ▲, NH_4^+ ; □, Cl^- ; ■, SO_4^{2-}

は積雪底面に近い部分で高く、2月24日には中央部よりやや上部にピークをもつ分布をしていた。また、積雪日数の増加につれて各層の積雪水量は徐々に増加した。

図6-3に積雪中におけるイオン濃度の深さによる分布を示す。各イオンの濃度ピークに注目すると、2月9日、24日の両日において、 H^+ 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ 、 SO_4^{2-} および Cl^- は断面の中央部にピークを持つ分布をしたのに対し、2月24日の K^+ は積雪底面に近い部分で高かった。2月24日における Ca^{2+} の濃度ピークは他のイオンのそれよりもやや上部に位置した。

(2) 積雪表層におけるイオン濃度の変動

図6-4に積雪表層の雪質とサンプルの採取位置を示す。日付は1992年2月22日を0日とした日数で表した。連続観測期間中(2月21~24日)、-1日と0日の間に5.2mm(降水量)の降雪を観測し、それ以外の降雪は認められなかった。下層の雪質について、0日目は記載がないが、いずれの日においても新雪やこしまり雪の下には、ざらめ雪の層がみられた。0~2日の間に積雪深はやや減少していた。積雪表層におけるイオン濃度の経時変化を図6-5に示した。 Na^+ 、 NH_4^+ および Cl^- は時間と共に濃度が低下し、その他のイオンはあまり変化がなく、 H^+ はやや上昇した。

4. 考察

(1) 積雪内のイオン濃度の分布

図6-3に見られるように積雪内のイオン濃度のピーク位置はイオン種によってそれぞれ異なった。 Ca^{2+} と Cl^- に注目すると、2月9日には両イオンのピークはほぼ同じ深さに位置したのに対し、2月24日の Ca^{2+} は積雪密度の高い深さ20~25cmにピークが存在するのに対し、 Cl^- はそれよりも積雪密度の低い15~20cmにピークがあった。これらの結果から、積雪内部においてイオンが移動、再分配され、その速度がイオンによって異なることが推測された。そこで、積雪中のイオンの移動性を解明するために積雪表層の化学性と量を連続観測した。

(2) 積雪表層の物質収支および積雪内部の物質移動フラックス

図6-5において濃度が低下しているイオンについては積雪深が減少していることからみて、雪面のごく表層における融雪にともなってそれらのイオンが下層に移動したことによるものと推測された。下層に存在するざらめ雪は新雪の数倍の密度を持ち、厳冬期の2日程度の融雪ではざらめ雪の内部に水が侵入したり、ざらめ雪自体が融けて下層に流下することはないと考えられる。

そこで、融雪に伴うイオン移動についての上記の推測を検証するために積雪表層における0~2日の物質収支を計算した。まず、積雪水量の推移を図6-6に示す。-1日における調査では雪面から5cmの深さに3.3mmの新雪が存在した。-1日と0日の間には5.2mmの降雪を観測した(図6-4)ので、0日以降はざらめ雪上部に8.5mmの積雪が存在することになる(3.3(積雪)+5.2(降雪))。2日目に雪面から5cmの深さで採取し

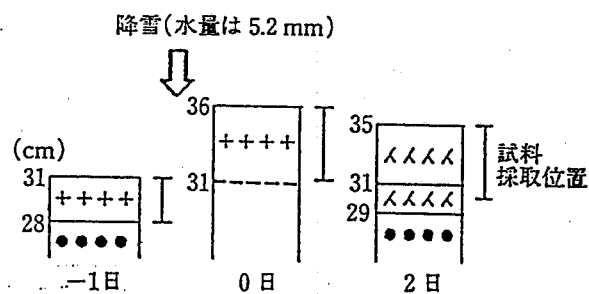


図6-4 積雪表層の雪質と試料採取位置の関係

雪質の凡例は図6-1と同じ, 0日 = 1992年2月22日

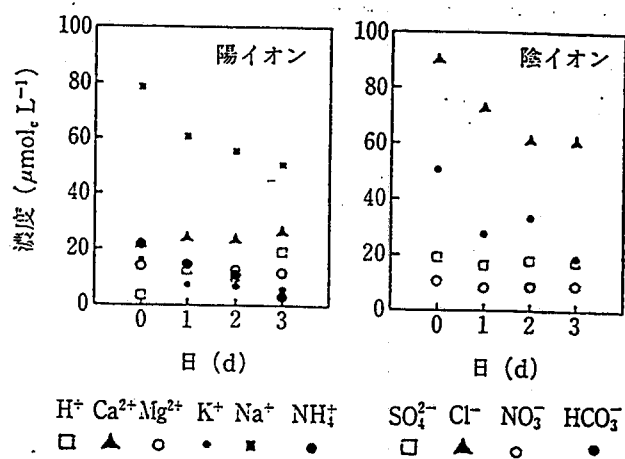


図6-5 積雪表層における各イオン濃度の経日変化(0日 = 1992年2月22日)

た雪の積雪水量は8.1mmであり、ざらめ雪上部に存在する積雪水量の計算値との間には0.4mmの差があった。0～2日間のざらめ雪上部において積雪水量が保存量であると仮定すると、2日目に採取した雪(雪面から5cmの厚さ)とざらめ雪の間には水深換算で0.4mmの積雪が存在したと計算される。以下、この部分を次層と呼ぶ(図6-6, 2日目の斜線部)。0日目には表層と次層を区別して採取していないので、0日目における表層と次層中の物質量を式(3), (4)のように計算し、合計することで0日目におけるざらめ雪上部の物質存在量(ΣSPV_0)とした(式(5))。

$$SPV_0 \text{ 表層} = SPC_0 \text{ 表層} \times P \quad (3)$$

SPV_0 表層 ; 0日目における表層中の物質存在量($\mu \text{ mol. m}^{-2}$)

SPC_0 表層 ; 0日目に実測した積雪表層中のイオン濃度($\mu \text{ mol. L}^{-1}$)

P ; -1日と0日の間に実測した降雪水量(mm)

$$SPV_0 \text{ 次層} = SPC_{-1} \text{ 表層} \times SP_{-1} \text{ 表層} \quad (4)$$

SPV_0 次層 ; 0日目における次層中の物質存在量($\mu \text{ mol. m}^{-2}$)

SPC_{-1} 表層 ; -1日目に実測した表層中のイオン濃度($\mu \text{ mol. L}^{-1}$)

SP_{-1} 表層 ; -1日目に実測した表層の積雪水量(mm)

$$\Sigma SPV_0 = SPV_0 \text{ 表層} + SPV_0 \text{ 次層} \quad (5)$$

表6-1には、計算の結果得られた物質収支と物質移動量、次層におけるイオン濃度、移動フラックスおよび移動速度係数を示した。雪面のイオンは融雪時に水と一緒に下部へ移動したと考えると、表6-1の備考に示したように0日目の存在量(ΣSPV_0 , 積雪水量8.5mm)と2日目の物質存在量(ΣSPV_2 , 積雪水量8.1mm)との差が2日目の次層に存在していると計算され、それを次層の積雪水量0.4mm(SP_2 次層)で割ったものを2日目における次層のイオン濃度(SPC_2 次層)とした(式(6))。

$$SPC_2 \text{ 次層} = (\Sigma SPV_2 - \Sigma SPV_0) \div SP_2 \text{ 次層} \quad (6)$$

ほとんどのイオンは次層に高濃度で集積しているという結果になった。次層部分に0日目に存在した物質量を計算し、その量を2日目の次層物質存在量から差し引いた値を日数で割ったものが表層-次層界面における移動フラックス(FSP_{0-2} , $\mu \text{ mol. m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)である(式(7))。

$$FSP_{0-2} = (SPV_2 \text{ 次層} - SPV_0 \text{ 次層}) \div d \quad (7)$$

(d ; 日数(day))

移動フラックスは $Cl^- > NH_4^+ > HCO_3^- > Na^+ > K^+$ の順に大きかった。しかし、積雪表層におけるイオン濃度($\mu \text{ mol. L}^{-1}$)が高いイオンほど、移動フラックスが大きい傾向もあり、フラックスのみからイオン種間の易動性の違いを評価することはできない。そこで、以下の方法によって、見かけのイオン移動速度係数(CM , cm d^{-1})を計算した。つまり、0～2日間に次層に移動したイオンは0日目には表層で観測された濃度で存在したと仮定し、それぞれの移動フラックス(FSP)を0日の表層のイオン濃度

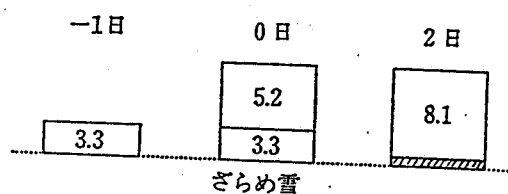


図6-6 ざらめ雪上部に存在する積雪水量(mm)の経日変化(0日 = 1992年2月22日)
2日目の斜線部は次層を示す(本文参照)

表6-1 積雪表層における物質収支

	物質存在量 ($\mu\text{mol}_e \text{ m}^{-2}$)			次層イオン濃度*2 ($\mu\text{mol}_e \text{ L}^{-1}$)	物質移動量*3 ($\mu\text{mol}_e \text{ m}^{-2}$)	移動フラックス ($\mu\text{mol}_e \text{ m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)	移動速度係数*4 (cm d^{-1})
	第0日*1	第2日*1					
		表層	次層				
Cl^-	580	494	86	215	73	36	40
NH_4^+	143	85	58	145	54	27	122
HCO_3^-	324	270	54	135	47	23	45
Na^+	502	447	55	138	43	22	28
K^+	101	58	43	108	41	20	126
NO_3^-	87	71	16	40	12	6	57
Mg^{2+}	105	100	6	15	2	1	7
Ca^{2+}	204	190	14	35	2	1	5
SO_4^{2-}	142	142	6	15	-2	-1	—
H^+	70	83	-12	—	—	—	—

*1 1992年2月22日を第0日とした物質存在量。

*2 次層のイオン濃度=(次層の物質存在量)÷(次層の積雪水量(0.4 mm))。

*3 物質移動量=(第2日の次層の物質存在量)-(第0日の次層の物質存在量)。

*4 移動速度係数=(移動フラックス)÷(第0日の表層イオン濃度)。

(SPC₀表層)で除すことによって式(8)のように移動速度係数CMを求めた。

$$CM = FSP_{0-2} \div SPC_0 \text{ 表層} \quad (8)$$

表6-1から明らかなように、 K^+ と NH_4^+ が 120 cm d^{-1} 以上の高い値を示し、それに次いで、 $NO_3^- > HCO_3^- > Cl^- > Na^+$ の順であった。 Ca^{2+} と Mg^{2+} は 10 cm d^{-1} 以下の小さい値を示した。このような、イオン種間での速度係数の差異は、①大気から供給される際の存在形態の違い(降雪粒子、エアロゾル、ガスなど)、②積雪内部での存在形態の違い(結晶表面、結晶内部)、③融雪水に対する溶解性の違いなどによるものと考えられる。

ここでは数日間というタイムスケールで雪面の物質収支から、積雪内部での物質の挙動について考察した。タイムスケールが長くなると、大気から雪面へ供給される乾性降下物の影響が無視できなくなる。そこで、以下では積雪への乾性降下物の沈着フラックスについて検討する。

(3)乾性降下物の雪面に対する沈着フラックス

SO_4^{2-} と K^+ について、降雪による積算降下量(B)、②積雪中の物質存在量(A)の推移を図6-7に示す。本調査地は観測期間、土壌表層が10cm程度凍結するため(石崎・田中, 1993)、積雪下面からの物質の流亡は無視できる。よって、(B)(mmol. m^{-2})は降雪の濃度(mmol. L^{-1})に降水量(mm)をかけたものを積算した値であり、その時点までの湿性沈着量に等しい。また、(A)-(B)は乾性沈着量(mmol. m^{-2})を示す。さらに、乾性沈着の平均フラックスは、(A)と(B)の増加速度($\text{mmol. m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)の差、すなわち図中曲線a, bの傾きの差として計算できる。全測点を用いて一次回帰を求め、平均乾性沈着フラックス($\text{mmol. m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)を計算した。

表6-2に(A)、(B)の増加速度(回帰直線の傾き)と平均乾性沈着フラックス($\mu\text{mol. m}^{-2} \text{ d}^{-1}$)の推定結果を示した。得られた回帰直線は HCO_3^- と降雪の Ca^{2+} を除いては全て1%水準で有意であった。乾性沈着フラックスが最も大きかったのは Cl^- で、それに続いて Na^+ 、 NH_4^+ 、 HCO_3^- 、 SO_4^{2-} の順になった。 SO_4^{2-} の乾性沈着フラックスは降水による SO_4^{2-} (表6-2)と同様にほとんどが非海塩由来のものであった。降雪による沈着フラックス(表4-2)では $NH_4^+ \approx NO_3^-$ であったのに対し、乾性沈着フラックスでは、明らかに $NH_4^+ > NO_3^-$ であり、 NH_4^+ が乾性沈着窒素の主体になっていることも注目される点である。また、冬期間の Ca^{2+} 、 Mg^{2+} の乾性沈着フラックスは H^+ とともにごく小さく見積もられた。ここで得られた雪面への乾性沈着フラックスの値は、針葉樹(トドマツ、チョウセンゴヨウマツ)の若木で測定された樹冠底面積当たり乾性沈着フラックス(佐久間ら, 1994)の値とほぼ等しい水準にあった。樹木の葉面積指数が2.5~3.5であったことを考慮すると、雪面の乾性降下物に対する沈着表面積あたりの捕捉効率は針葉樹の2-3倍に達することになる。雪面は日射や日中の昇温によって部分的に融解し、水分率が上昇することがこの高い捕捉効率をもたらす原因

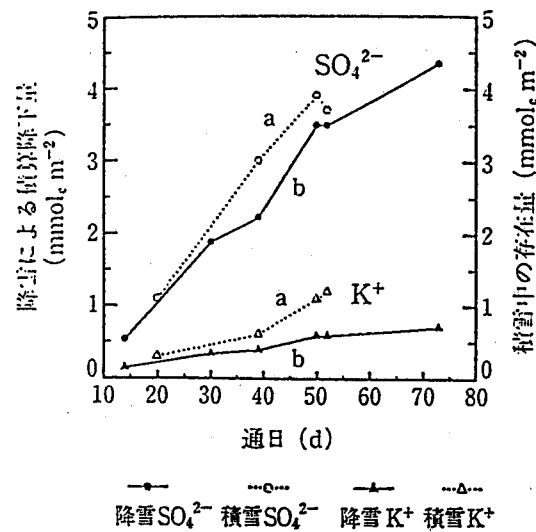


図6-7 降雪による積算降下量(b)と積雪中の積算存在量(a)の比較

0日 = 1992年2月22日

表6-2 各イオンの乾性沈着フラックス($\mu \text{molc m}^{-2} \text{d}^{-1}$)

	積雪中蓄積量 増加速度 (A)	降雪による 積算沈着速度 (B)	乾性沈着 フラックス (A-B)
Cl ⁻	302**	196**	106
Na ⁺	250**	184**	66
NH ₄ ⁺	61**	24**	37
HCO ₃ ⁻	34*	-2**	36
SO ₄ ²⁻	106**	79**	27
K ⁺	33**	12**	21
NO ₃ ⁻	36**	26**	10
Mg ²⁺	58**	50**	8
H ⁺	67**	73**	-6
Ca ²⁺	64	72**	-8

*, ** は回帰係数の決定係数がそれぞれ 5%, 1% 水準で有意であることを示す。

と推定される。

鈴木(1983)は1980～1981年にかけて、札幌市内の開放露場において、2つの降雪採取器の採取時期をずらすことによって、ほぼ同様な考え方で Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} の乾性沈着フラックスを推定した。その結果では、沈着フラックスは約3～91 $\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ の範囲にあり、今回の観測結果と同じオーダーにあったが、 Ca^{2+} と SO_4^{2-} の沈着フラックスが顕著に大きかった。このことは、本報告で得られた結果と逆の傾向であるが、調査地の地理的条件や大気中の物質濃度の違いを反映しているものと思われる。

なお、ここで計算した沈着フラックスは数カ月間の平均値であり、短期的な変動についての情報を含んでいない。時々気象条件による湿性、乾性沈着の変動を明らかにするには、積雪調査の頻度を格段に高めることが必要である。また、イオン種間の乾性沈着フラックスの違いを説明するためには、それぞれのイオンが大気中にどの程度の濃度で存在しているか、またどういった形態(ガス、エアロゾル粒子)で存在しているかについての情報が必要である。

以上の結果から、沈着フラックスの大きいイオンほど積雪内部での移動フラックスが大きく、集積濃度も高いことが明らかとなった。このことから、積雪表面に沈着した乾性降下物は雪面からの融雪水によって速やかに積雪内部を移動し、再凍結することによって高濃度の集積層が形成されることが示唆された。これらの結果は融雪期における土壌-植物系への物質のインプットを考える際に非常に重要であると考えられる。

本章まででは大気から生態系へ流入する物質の負荷量について述べてきた。これらの物質は第一に森林の林冠と接触する。次章では降水が林冠と接触する際の化学性の変化とそれに及ぼす要因について解析する。

5. 要約

雪面への乾性沈着フラックスと積雪内部における物質の再分配について、積雪と降雪の物質収支から考察した。

乾性降下物の沈着フラックスを積雪中に存在する物質と降雪によって供給される積算湿性降下物量の増加速度の差から見積もった。得られた沈着フラックス($\mu\text{mol} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$)は $\text{Cl}^- > \text{Na}^+ > \text{NH}_4^+$ の順に大きかった。

雪面からわずかに雪が融けることによって積雪中の物質が積雪内部を移動したことが推定され、これらの物質はざらめ雪上部で高濃度で集積する傾向にあった。また、その移動フラックスは乾性沈着フラックスの大きいイオンほど大きかった。イオンの移動速度係数($\text{cm} \cdot \text{d}^{-1}$)は K^+ 、 NH_4^+ で高かった。

第7章 林内雨および樹幹流による物質フラックスの定量化

1. はじめに

前章では降雨(雪)によって生態系に供給されるイオン負荷量を定量化した。森林生態系に沈着した降水の一部は林冠の葉と接触し、林内雨として土壌へ流入する。また、一部は幹を伝って、樹幹流として土壌へ供給される。本章では林内雨と樹幹流によって土壌へ供給される物質の負荷量を明らかにすることを目的とし、林冠を通過する際の降水の化学性変化に対する植生の役割について考察する。

2. 方法

(1)林内雨(雪)の採取方法

降雨(雪)の採取方法は第4章の方法に準じた。林内雨は各地点の林冠下(ササ草地は植被下)で降雨と同様の方法で採取した。林内雨の反復数は苫小牧では4反復、天塩の地点Ak, Tdでは3反復、地点N-Ss, K-Ssでは2反復である。林内雪の採取は地点Dfで1反復、地点Cfでは2反復した。林内雨(雪)の面積雨量は採取水量を採取面積で割ることによって算出した。以下では、林内雨と林内雪を区別して解析しないので、便宜上どちらも林内雨という表現を用いる。

(2)樹幹流の採取方法

樹幹流は内径約20mmの塩化ビニル製チューブを半割にしたものを樹幹に斜めに巻き付けてその下端をポリエチレン容器に接続することによって採取した。ビニルチューブと樹幹の隙間はシリコン充填剤によって埋めた。樹幹流の観測は各地点の代表樹種について行った。地点Dfではミズナラを代表樹種として用いた。地点Ak, Tdではそれぞれ2反復した。樹幹流の面積雨量は採取水量を樹冠投影面積で割ることによって算出できる。樹冠投影面積は樹幹流を採取している樹木の枝張りを4方向で測定し、その平均値を用いて面積を算出した。地点Df, Cfにおいて計算に用いた樹冠投影面積はそれぞれ11.9, 12.6m²であった。また、樹幹流の水量が採取容器のオーバーフローによって観測できなかった場合が多かったので、降雨量と樹幹流量の一次回帰直線から欠測日の樹幹流量を算出した。樹幹流量は観測した水量(L)を樹冠の投影面積(m²)で割ることによって算出した。計算に用いた一次回帰式は以下の通りである。

地点Df: 樹幹流量(mm) = $0.0377 \times \text{降雨量(mm)} - 0.220$ $r = 0.85^{**}$, d.f = 14

地点Cf: 樹幹流量(mm) = $0.0749 \times \text{降雨量(mm)} - 0.095$ $r = 0.81^{**}$, d.f = 6

(3)林内雨(雪)および樹幹流のイオンフラックス計算方法

林内雨(雪)および樹幹流によるイオン降下量の計算方法は第4章で述べた降雨によるイオンフラックス(FR)と同様である。つまり、イオン濃度に面積雨量をかけることによって算出した。

(4)乾性沈着フラックスおよび溶出フラックスの推定方法

林冠からの正味イオン降下量(Δ)を式(1)のように定義する.

$$\Delta_i = F(Tf + Sf)_i - FR_i \quad (1)$$

ただし, Δ_i : i 種イオンの正味イオン降下量, $F(Tf + Sf)_i$: 林内雨(雪)および樹幹流による i 種イオンの降下量, FR_i : 降雨(雪)による i 種イオンの降下量である.

Δ は林冠を通過する際の降雨と林冠とのイオンの授受の結果を反映している. Δ の供給源としては①葉面でのイオン交換反応および葉内部からの溶出, ②葉面でのイオン吸収, ③無降雨期間中に葉に乾性沈着したイオンの洗脱が挙げられる. 本章ではこれらの要因を仕分けるために, Naを乾性沈着の指標イオンとして以下の計算を行った(式(2), (3)). Na^+ は植生中の濃度が低く, 林冠から溶脱される量は無視しうると考えられる. 降雨によってもたらされるイオンフラックスには降雨採取器に沈着する乾性降下物を多少含むことも考えられるが, ここではそのことは無視して計算を行った. したがって, 計算に用いた仮定は①降雨として観測したイオンフラックス(FR_i)はすべて湿性降下物とする, ②林冠通過後のNaフラックスの増加量($\Delta Na^+ = F(Tf + Sf)_{Na} - FR_{Na}$)は全て乾性沈着によって供給される, ③乾性沈着のイオン存在比は降水中の存在比と同じである, の三点である.

i 種イオンについての林冠への乾性沈着量 Dd_i ($kmol \cdot ha^{-1}$)は式(2)のように計算した.

$$Dd_i = \Delta Na^+ \times FR_i / FR_{Na} \quad (2)$$

ただし, FR_i , FR_{Na} は降雨による i 種イオンおよび Na^+ の降下量($kmol \cdot c \cdot ha^{-1}$)である. 式(2)から計算される Dd_i を用いて, 葉内部からの i 種イオンの溶出量 LI_i ($kmol \cdot ha^{-1}$)は以下のように計算することができる(式(3)).

$$LI_i = (FR_i + Dd_i) - F(Tf + Sf)_i \quad (3)$$

3. 結果

(1)イオン濃度の経時変化

1990年5月から1993年4月までの地点DfとCfにおける降水と林内雨(雪)中の K^+ および SO_4^{2-} 濃度の変動を図7-1, 図7-2に示す. 両地点とも, 5月から11月の期間での林内雨 K^+ 濃度は降水の K^+ 濃度よりかなり高かった. また, 林内雨 K^+ 濃度の変動はバイモダルのパターンを示した. すなわち, 初夏と秋の林内雨 K^+ 濃度の上昇が顕著であった. 地点Cfにおける林内雨中の SO_4^{2-} 濃度は降雨の SO_4^{2-} 濃度より高い値で推移したのに対し, 地点Dfにおける林内雨中の SO_4^{2-} 濃度は降雨の SO_4^{2-} 濃度と統計的に有意な差は認められなかった(図7-2). 図7-3には地点Dfと地点Cfにおける降雨と林内雨のpH変動を示す. 地点Dfの林内雨pHは降雨pHより有意に上昇したのに対し($P < 0.001$), 地点Cfの林内雨pHは降雨pHと統計的に有意な差は認められなかった.

(2)林内雨(雪)および樹幹流の平均イオン濃度

表7-1には各地点で観測された林内雨(雪)の水量による加重平均pHおよびイオン濃

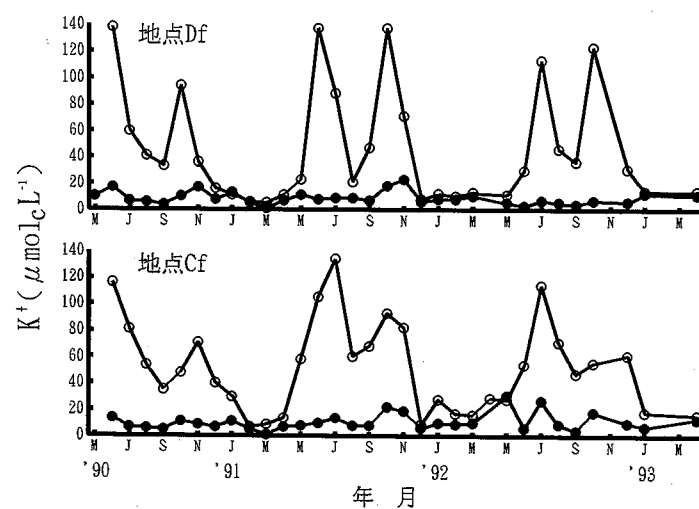


図7-1 地点Df, Cfにおける降雨(雪)と林内雨(雪)の K^+ 濃度の変動
●, 降雨(雪); ○, 林内雨(雪)

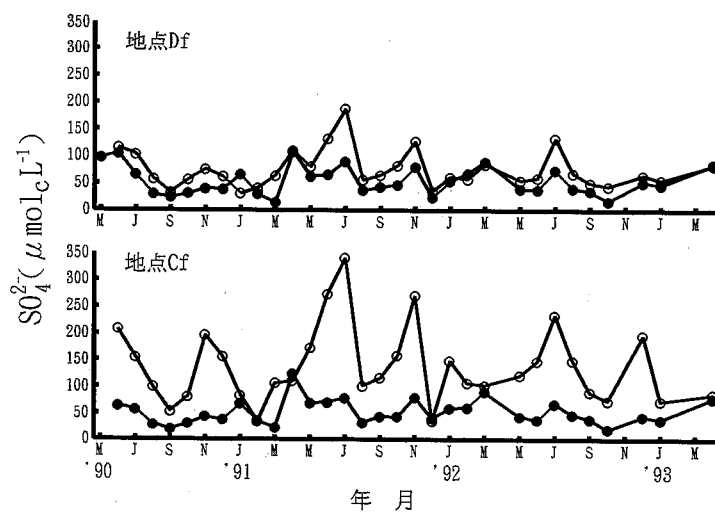


図7-2 地点Df, Cfにおける降雨(雪)と林内雨(雪)の SO_4^{2-} 濃度の変動
●, 降雨(雪); ○, 林内雨(雪)

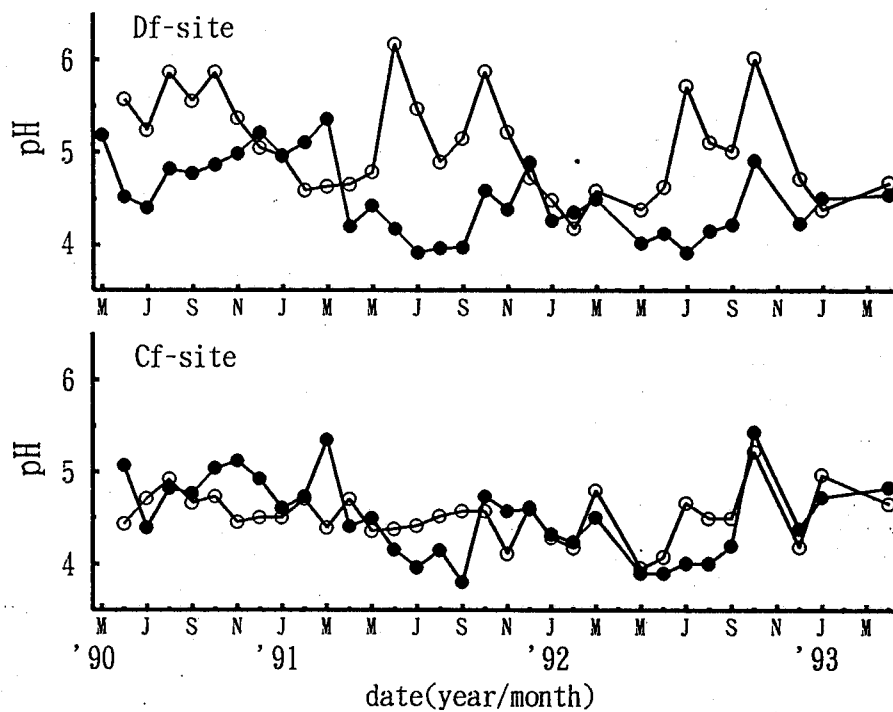


図7-3 地点Df, Cfにおける降雨(雪)と林内雨(雪)中のpH変動
●, 降雨(雪); ○, 林内雨(雪)

表7-1 各地点における林内雨(雪)の水量による加重平均pHおよびイオン濃度

地点	期間 ¹⁾	降水量 mm	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
$\mu\text{mol. L}^{-1}$													
地点Df	6~10月	751	5.1	7	68	35	62	79	15	82	88	11	68
	11~5月	361	4.6	25	65	40	20	153	21	34	168	20	73
地点Cf	6~10月	818	4.5	31	78	56	63	165	16	29	178	19	122
	11~5月	358	4.4	45	95	79	34	286	27	14	323	36	133
地点Ak	5~10月	399	4.4	40	84	132	119	444	16	18	581	17	111
地点N-Ss	5~10月	335	4.3	50	42	34	31	81	6	13	118	4	31
地点Td	5~10月	365	4.5	34	64	103	141	355	17	95	429	6	79
地点K-Ss	5~10月	364	5.2	6	33	40	48	134	10	64	256	10	51

1) 地点Df, Cf(苫小牧); 1990年5月~1993年4月
 地点Ak, N-Ss(天塩中の峰); 1992年~1993年
 地点Td, K-Ss(天塩清川); 1994年

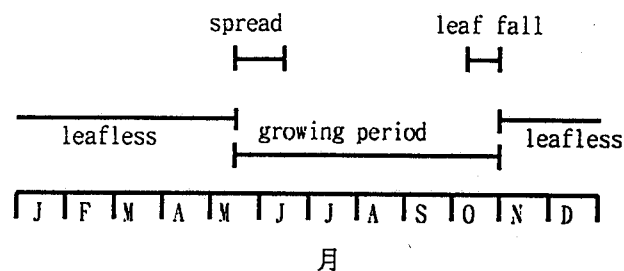


図7-4 苫小牧の広葉樹林における林冠の季節変動

度をまとめた。苫小牧の二地点(地点Df, Cf)では年間を通じた観測を行ったので、広葉樹林の林冠の季節変化によって集計期間を6~10月(期間Ⅰ)と11~翌年5月(期間Ⅱ)の2つに分類した。苫小牧地方において広葉樹林の新葉が展開するのは5月下旬であり、6月中旬には林冠がほぼ閉鎖する(図7-4)。また、10月下旬には落葉が始まり、11月初旬には完全に落葉する。常緑針葉樹林である地点Cfは年間を通じて林冠に葉を付けているが、地点Dfとの比較をするために同様の分類を行った。

苫小牧と天塩で観測された林内雨の主要な陽イオンは Na^+ であり、主要な陰イオンは Cl^- と SO_4^{2-} であった。苫小牧の二地点を比較すると、地点Cfの Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} 濃度は地点Dfより高く、 HCO_3^- 濃度は地点Df>Cfであった。天塩中の峰および天塩清川ではほとんどのイオンの濃度が針葉樹林である地点Ak, Tdの方がササ草地(地点N-Ss, K-Ss)より高かった。三流域の針葉樹林(地点Cf, Ak, Td)を比較すると苫小牧の地点Cfは地点Ak, Tdと比較して NO_3^- 、 SO_4^{2-} 濃度が高く、天塩の二地点(Ak, Td)は地点Cfと比較して Mg^{2+} や K^+ の濃度が高い傾向にあった。苫小牧の二地点(Df, Cf)について期間別の比較をすると、両地点について共通してることとしては K^+ 、 HCO_3^- を除いたイオン濃度については期間Ⅱで期間Ⅰより高かった。ただし、地点Dfの Ca^{2+} 濃度についてはあまり差が無かった。

各地点における樹幹流のイオン組成を表7-2に示した。樹幹流のpHは地点Df, Tdで5.2と高く、地点Akで3.7と著しく低かった。イオン濃度についてはほとんどのイオンについて天塩の地点Ak, Tdで高く、特に Na^+ や Cl^- で顕著であった。地点Cfの樹幹流中の NO_3^- 濃度は他の三地点より高かった。地点Akの樹幹流中のCBD濃度(Σ 無機カチオン濃度 - Σ 無機アニオン濃度)は $374 \mu\text{molc L}^{-1}$ と高く、 SO_4^{2-} と匹敵するほどの濃度であった。

(3) 林内雨、樹幹流によるイオン降下量

地点Df, Cfにおける降雨と林内雨の月別降水量を図7-5に示す。降雨、林内雨ともに晩夏から秋期にかけて降水量が高まり、地点Df, Cfを含みにした1990~92年までの降雨による年平均降水量は1324mmであった。苫小牧地方演習林内の気象観測結果によると1982~1993年の年平均降水量は1189mmであり、年変動は988-1500mmの範囲にあった。また、降水量の季節変動は図7-4とほぼ同様な傾向を示した。以上のことから、本研究で観測した降雨量はこの地域の長期観測値にかなり近い値であると結論できる。林内雨水量については比較し得る長期観測のデータが得られなかったが、降雨による降水量に対する林内雨水量の割合は地点Df, Cfにおいて3年間の平均でそれぞれ 75 ± 4 、 $85 \pm 4\%$ であり各林分とも4反復間の変動係数は8%以下であることから、林内雨水量のデータもほぼ長期観測値に近い値であると考えることができる。

降雨が林冠を通過する際のイオン収支について検討するために苫小牧の二地点において降雨、林内雨、樹幹流のイオン降下量を表7-3に示した。林冠を通過する際の

表7-2 各地点における樹幹流の水量による加重平均pHおよびイオン濃度

地点	供試木	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	CBD
$\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$													
地点Df	ミズナラ	5.2	7	123	61	63	175	10	66	215	8	110	38
地点Cf	ストロブマツ	4.4	43	88	75	58	273	17	18	235	49	140	113
地点Ak	アカエゾマツ	3.7	201	323	345	185	1451	91	86	1727	6	380	374
地点Td	トドマツ	5.2	6	189	430	152	1111	17	123	1343	15	264	161

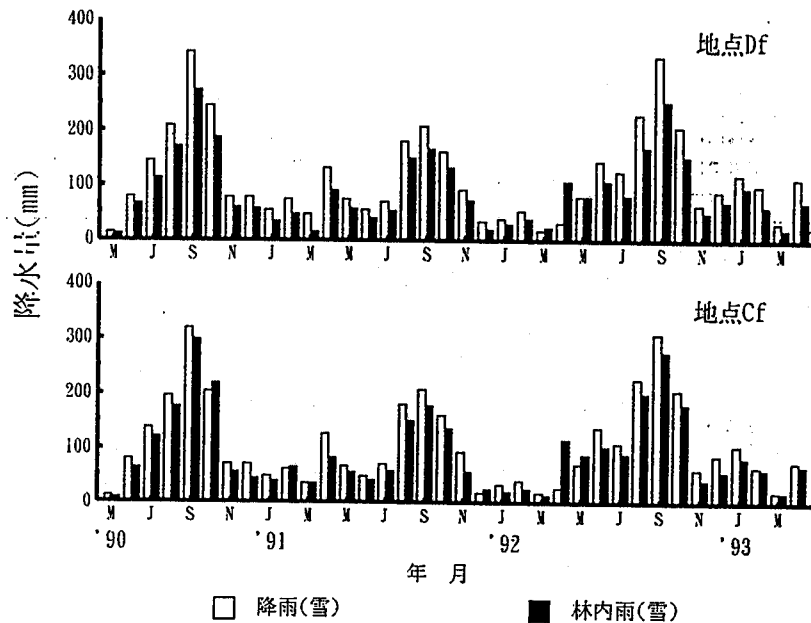


図7-5 地点Df, Cfにおける月別降水量と林内雨(雪)量の変動

表7-3 苫小牧におけるの降雨, 林内雨および樹幹流による期間別イオン降下量

地点	期間	種別 ¹⁾	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
$\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{period}^{-1}$												
Df	6~10月	降雨	0.48	0.36	0.14	0.07	0.49	0.09	0.18	0.62	0.10	0.38
		林内雨	0.04	0.49	0.25	0.46	0.55	0.11	0.61	0.61	0.07	0.48
		樹幹流	0.00	0.03	0.01	0.02	0.03	0.00	0.02	0.02	0.00	0.02
		△	-0.44	0.16	0.13	0.42	0.09	0.02	0.46	0.02	-0.03	0.13
	11~5月	降雨	0.18	0.23	0.14	0.05	0.55	0.08	0.10	0.62	0.09	0.28
		林内雨	0.09	0.24	0.14	0.07	0.55	0.07	0.12	0.60	0.07	0.26
		樹幹流	0.00	0.02	0.01	0.01	0.04	0.00	0.00	0.05	0.00	0.02
		△	-0.09	0.03	0.01	0.03	0.04	-0.01	0.02	0.03	-0.02	0.00
Cf	6~10月	降雨	0.45	0.34	0.13	0.06	0.45	0.08	0.16	0.57	0.08	0.33
		林内雨	0.21	0.60	0.43	0.50	1.25	0.12	0.24	1.34	0.14	0.93
		樹幹流	0.02	0.05	0.04	0.04	0.13	0.01	0.01	0.09	0.03	0.08
		△	-0.22	0.31	0.35	0.48	0.93	0.06	0.09	0.86	0.09	0.69
	11~5月	降雨	0.20	0.23	0.13	0.07	0.51	0.08	0.10	0.67	0.06	0.27
		林内雨	0.16	0.34	0.28	0.12	1.02	0.10	0.05	1.16	0.13	0.48
		樹幹流	0.01	0.02	0.02	0.01	0.07	0.00	0.00	0.08	0.01	0.03
		△	-0.03	0.13	0.18	0.06	0.59	0.03	-0.05	0.57	0.08	0.25

1) △ = (林内雨 - 樹幹流) - (降雨)

正味イオン降下量は表7-3中の Δ で示した(式(1)).

降雨によるイオン降下量は両期間とも地点間の差は認められなかった. 期間Ⅱの降雨による H^+ , Ca^{2+} , SO_4^{2-} 降下量は期間Ⅰよりやや少なかった. 地点Dfの樹幹流によるイオン降下量は両期間とも林内雨によるイオン降下量よりかなり少なかった. 地点Cfの樹幹流も同様の傾向を示したが, Na^+ や Cl^- についてはやや多かった. 期間Ⅰの地点Dfにおいて ΔK^+ と ΔHCO_3^- が正の値として最も大きかった. 期間Ⅱの地点Dfでは全てのイオンについて Δ は $\pm 0.1 \text{ kmolc ha}^{-1}$ 以下の小さい値を示した. 地点Cfの期間Ⅰにおいて Δ が最も大きかったのは Na^+ と Cl^- であり, 以下 SO_4^{2-} , K^+ と続いた. 地点Cfの期間Ⅱも同様に Na^+ , Cl^- および SO_4^{2-} の Δ が他のイオンよりも大きかったが, その値は期間Ⅰのそれぞれ63, 66, 36%であった. また, 地点Dfの期間Ⅱにおける ΔK^+ は小さく, 期間Ⅰに比べて1/8の値であった. 両地点とも ΔH^+ は負の値を示し, 期間Ⅰでの値の方がより小さかった. 期間Ⅰにおける地点Dfの ΔH^+ は地点Cfの2倍の値であった.

4. 考察

(1) 林内雨, 樹幹流のイオン組成

全ての地点において林内雨および樹幹流のイオン組成は降雨(第4章)と同様に海塩起源の $NaCl$ の影響を強く受けていた(表7-1, 7-2). 苫小牧の地点Cfでは天塩中の峰, 清川と比較して NO_3^- や SO_4^{2-} 濃度が高く, 都市や工業地帯が隣接する苫小牧の立地環境を反映しているものと考えられる. 地点DfではCfよりそれらの濃度がやや低かった. 苫小牧, 天塩中の峰および天塩清川において針葉樹林で広葉樹林やササ草地よりイオン濃度が高いのは, 針葉樹林は広葉樹林やササ草地と比べて大気-林冠面の凹凸が大きく, 無降雨期において大気中の物質を乾性沈着として捕捉する効率が高いことによると理解される.

地点Akにおける樹幹流で観測された高濃度のCBDは測定されていないアニオンを示し, 有機酸に相当するものと考えられる. アカエゾマツ樹幹流のpHが低いのは SO_4^{2-} の他に有機酸も影響していると考えられた.

(2) 正味イオンフラックスの解析

式(2), (3)を用いて計算した地点Df, CfにおけるDdとLIの集計結果を表7-4に示す. 乾性沈着によるイオン降下量は明らかに地点Cfの方が地点Dfより多く, 特に Na^+ , Cl^- , SO_4^{2-} および Ca^{2+} で多かった. 乾性沈着による NO_3^- , SO_4^{2-} 年間降下量は地点Cfでそれぞれ 0.22 , $0.92 \text{ kmolc ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$, 地点Dfで 0.02 , $0.08 \text{ kmolc ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった. 両地点とも全てのイオンについて乾性沈着量は期間Ⅰ>期間Ⅱであった. 地点Cfは期間Ⅱにも林冠に葉が存在するのにも関わらず, Ddは小さい値を示した. 期間Ⅱは地表面が長期間にわたり雪や氷に閉ざされており, このような気象条件と生物活性の低さが期間Ⅱの地点Cfにおいて乾性沈着を小さくしているのかもしれない

表7-4 苫小牧における林冠への乾性沈着によるイオン降下量(Dd)および
林冠内部からのイオン溶出量(LI)

期間	種別	地点	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
kmol. ha ⁻¹ period ⁻¹										
6~10月	Dd	Df	0.07	0.03	0.01	0.09	0.02	0.11	0.02	0.07
11~5月	Dd	Df	0.02	0.01	0.00	0.04	0.01	0.05	0.01	0.02
年間	Dd	Df	0.07	0.03	0.01	0.13	0.02	0.16	0.02	0.08
6~10月	Dd	Cf	0.70	0.26	0.13	0.93	0.16	1.19	0.17	0.68
11~5月	Dd	Cf	0.27	0.14	0.08	0.59	0.09	0.78	0.07	0.31
年間	Dd	Cf	0.89	0.39	0.20	1.48	0.23	1.93	0.22	0.92
6~10月	LI	Df	0.09	0.10	0.40	0.00	0.00	-0.10	-0.04	0.06
11~5月	LI	Df	0.01	0.00	0.03	0.00	-0.01	-0.02	-0.03	-0.02
年間	LI	Df	0.13	0.11	0.43	0.00	0.01	-0.10	-0.05	0.06
6~10月	LI	Cf	-0.39	0.08	0.35	0.00	-0.10	-0.25	-0.08	0.01
11~5月	LI	Cf	-0.15	0.03	-0.02	0.00	-0.06	-0.21	0.01	-0.06
年間	LI	Cf	-0.45	0.12	0.32	0.00	-0.14	-0.56	-0.05	0.02

(Davidson and Wu, 1989).

前章で計算した雪面への Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} の乾性沈着フラックスはそれぞれ66, 106, $27 \mu\text{molc m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ であった。期間Ⅱにおける Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} の乾性沈着フラックスは地点Dfでそれぞれ19, 24, $9 \mu\text{molc m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ であり、地点Cfで280, 370, $147 \mu\text{molc m}^{-2} \text{ d}^{-1}$ であった。このことから地点Cfの林冠が大気からの乾性沈着を捕捉する効率が高いことが示された。

LIについてはイオンによって正の値を示すものと負の値を示すものとがあった。負の値はそのイオンが林冠に取り込まれたことを示す。地点Cfの Ca^{2+} についてはLIの負の値が大きく、 Dd_{Ca} が過大評価されている可能性があった。このことは乾性沈着フラックスの推定に際しての乾性沈着のイオン存在比が降水の存在比と同じとした仮定③に問題があるのかもしれない。今後の研究課題として残された。地点DfでLIが最も大きかったのは K^+ で、林冠に葉が存在する期間Ⅰで顕著だった。地点Cfも同様に期間Ⅰにおいて LI_{K} が大きい値を示した。両地点とも期間ⅡにおいてはほとんどのイオンについてLIは期間Ⅰよりも小さい値を示した。図7-1の林内雨中 K^+ 濃度の変動からも推察されるように、両地点における葉からの K^+ の放出は樹木の生物活性の季節変動と密接な関係があると考えられた。つまり、新葉が展開する時期と紅葉から落葉期にかけて K^+ が葉面から溶出する傾向があった。期間Ⅱは期間Ⅰと比較して気温も低く、樹木の生物活性も低下している時期であるため、このことが期間Ⅱにおける K^+ のLIが小さい理由であると考えられた。

本章で示したように降雨が林冠を通過する際の化学性変化は植生タイプによって有意に異なった。林冠で化学的修飾を受けた林内雨や樹幹流は土壌へ浸透し、その一部は植生によって吸収される。次章では土壌浸透水の化学組成が土壌や植生タイプによってどのように異なっているかを明らかにする。

5. 要約

苫小牧および天塩の森林において林内雨と樹幹流のイオン組成および量を観測し、降雨が林冠を通過する際の化学性変化に対する植生の役割について検討した。

林内雨のイオン組成は海塩起源の NaCl の影響を強く受けていた。また、樹幹流は林内雨よりもイオン濃度が高かったが、水量が少ないために降下量としては林内雨よりも少なかった。林冠通過時のイオンの増減について考察するために Na イオンを乾性沈着の指標イオンとして正味イオンフラックス(林内雨+樹幹流-降雨)を乾性沈着と葉内部からの溶出とに仕分けた。その結果、広葉樹林では林冠での主要な反応は葉内部からのイオンの溶出で、特に K^+ で顕著だった。針葉樹林であるストロブマツ林では乾性沈着によるイオン降下量が多く、 SO_4^{2-} の年間乾性沈着フラックスは $0.92 \text{ kmolc ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ で、広葉樹林の約8倍の値を示した。 NO_3^- の正味フラックスは両地点とも負の値を示し、葉面での NO_3^- 吸収が生じていることを示唆した。

林冠からのイオン溶出および乾性沈着は植生の生物活性の季節変動と密接な関係が認められ、6～10月における林冠からのイオン溶出量および乾性沈着量はそれ以外の期間よりも多かった。

第8章 土壌浸透水の化学組成と土壌からのイオン排出フラックス

1. はじめに

前章でみたように林内雨や樹幹流として土壌へ流入するイオンフラックスは上層木の樹種によって大きく異なっていた。本章では土壌の違いが土壌浸透水のイオン組成に及ぼす影響を考察するとともに、土壌からのイオン排出フラックスを推定する。また、苫小牧の二地点においては植生によるイオン吸収の無い条件下におけるO層およびA層からのイオン流出量についても観測を行い、自然条件下での観測結果と比較することで土壌中でのイオン動態に及ぼす植生の影響を考察する。

2. 方法

(1)自然状態における土壌浸透水の採取方法

各地点とも土壌浸透水はO層直下、A層直下、C層内(苫小牧は2C層、天塩中の峰はCg層、天塩清川はB層、表3-1~3-3)で採取した。苫小牧での土壌浸透水の採取は佐藤・佐久間(1987)の方法によった。すなわち、円形の平板型低張力テンションライシメーター(有効直径30 cm)を2反復で埋設して土壌浸透水を採取した。ライシメーターは真空ポンプと圧力マノメーターによって重力排水のみを採取できる張力に保った。天塩では25×20 cmの長方形の平板型テンションフリーライシメーターを用いて土壌浸透水を採取した。苫小牧、天塩ともライシメーター上部の土壌は乱さない状態でライシメーターを設置した。

(2)根遮断区における土壌浸透水の採取方法

また、苫小牧の二地点では植生の根を遮断した区(根遮断区)を以下に述べるような方法で設け、O層およびA層直下の土壌浸透水を得た。O層における根遮断区は側面からO層に伸びた根を塩ビ製板を垂直に埋設することで遮断することで設けた。根遮断区におけるO層浸透水はO層直下に塩ビ製の平板型テンションフリーライシメーター(0.9×0.4 m)をO層を攪乱しないように側面から挿入することで採取した。根遮断区のA層浸透水は直径30 cm、深さ15 cmの円筒型有底ライシメーターを用いることで重力排水を採取した。ライシメーターの内部にO層およびA層土壌を未攪乱の状態で充填し、各地点の林内に設置した。ライシメーターは両地点とも10個設置した。A層浸透水はほぼ2から3週間間隔で採取した(1993年6月~翌年7月)。A層ライシメーター内部の土壌を化学分析するために、1993年6月、8月、10月、12月、および1994年4月、7月に両地点とも2個ずつのライシメーターを実験室に持ち帰った。土壌は新鮮土のまま7.6mmのふるいにかけて、水溶性 NO_3^- の含有率を分析した。水溶性 NO_3^- は1:5水抽出後、濾液をイオンクロマトグラフィーによって分析した。

(3)土壌からのイオン排出フラックスの推定方法

森林生態系の物質循環を考える際、土壌からのイオン排出フラックスは物質循環のアウトプットとして非常に重要である。なぜならばイオンの排出フラックスが大

気からの沈着フラックスよりも大きければそのイオンは生態系から正味流出していることなり、逆にインプットよりもアウトプットが小さければそのイオンは生態系に蓄積されていることになるからである。そこで、本章では苫小牧におけるC層土壌からのイオン排出フラックスを以下の方法を用いて推定する。

苫小牧地方は冬期間に土壌表層に土壌凍結が生じることが報告されており(石崎・田中, 1992), 冬期間の積雪下面融雪による土壌への浸透が無視できるとするならば, C層からのイオン排出フラックス(EX)は以下のように計算できる。

$$EX_i = SLC_i \times WP \times 10^{-5} \quad (1)$$

EX_i ; i種イオンの排出フラックス($\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$)

SLC_i ; i種イオンのC層土壌浸透水中の水量による

加重平均イオン濃度($\mu \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)

WP ; 土壌からの排出水量($\text{mm} \cdot \text{y}^{-1}$)

土壌からの排出水量は実測できなかったので、①熱収支法と②Cl収支法(Johnson and Lindberg 1992)の二つの方法を用いて推定した。熱収支法は一水文年において土壌水分貯留量の変化が無視できると仮定し、降水量と蒸発散量の差を土壌からの排出水量とする方法である(Nambu et al, 1994)。可能蒸発散量はChang(1970)の式を用いて月全天日射量から月純放射量を求め、ペンマンの組み合わせ法(樞根, 1973)を用いて計算し、それを月蒸発散量とした。月降水量から月蒸発散量を差し引いて月排出水量を計算し、それを合計することで年間の排出水量(WP_{EVP})とした。

$$WP_{EVP} = \sum (P - ET) \quad (2)$$

WP_{EVP} ; 熱収支法による土壌からの排出水量($\text{mm} \cdot \text{y}^{-1}$)

P ; 月降水量($\text{mm} \cdot \text{month}^{-1}$)

ET ; 月蒸発散量($\text{mm} \cdot \text{month}^{-1}$)

Cl収支法是一年間において土壌-植物系内のCl現存量は変化しないと仮定し、以下に示すようにCl収支から排出水量(WP_{Cl})を計算する方法であり、計算方法を式(3)に示す。

$$WP_{Cl} = ((FDw_{Cl} + FDd_{Cl}) / SLC_{Cl}) \times 10^5 \quad (3)$$

WP_{Cl} ; Cl収支法による土壌からの排出水量($\text{mm} \cdot \text{y}^{-1}$)

FDw_{Cl} ; Cl^- の湿性沈着フラックス($\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$)

FDd_{Cl} ; Cl^- の乾性沈着フラックス($\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$)

SLC_{Cl} ; C層土壌浸透水中の水量による加重平均 Cl^- 濃度($\mu \text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$)

両計算方法とも地表面流去水や土壌中の測方浸透の影響は考慮に入っていない。苫小牧における観測地点は傾斜は少なく、飽和透水係数はきわめて大きい。したがって、地表面流去水や土壌中の測方浸透による影響は年間の水収支の上で無視できると考えられるが、佐藤ら(1993)は天塩中の峰において河川水の水質を解析し、同

地点において降雨時に地表面流去や土壌表層の測方浸透が水収支の上で大きな割合を占めていることを示した。天塩において土壌からの排出水量を計算するためには、大気からの年間にわたる降水量およびイオン負荷量を観測する必要があるのと同時に、降雨時の地表面流去水量や土壌中の測方浸透水量を推定することが必要であり、今後の研究課題として残された。したがって、本研究では苫小牧の二地点においてのみ土壌からのイオン排出フラックスを計算した。

3. 結果

(1) 自然条件下での土壌浸透水pHおよびイオン濃度

図8-1に地点Df, Cfの各層土壌浸透水のpH変動を示した。土壌浸透水のpHは変動が大きく、明瞭な変動傾向は認められなかった。1990年の春から夏にかけては両地点の各層浸透水ともpHがやや低く、その後上昇した。地点DfではO層浸透水のpHが最も高く、A層浸透水のpHはO層浸透水pHよりもやや低い値で推移した。地点DfにおけるC層浸透水pHとA層浸透水pHの間には有意な差は認められなかった。地点CfではO層浸透水のpHが最も低く、下層になるにつれてpHが上昇し、特にA層－C層間のpH上昇が顕著であった。

表8-1には各地点における土壌浸透水の水量による加重平均pHおよびイオン濃度を示した。なお、CBDはカチオン濃度の合計からアニオン濃度の合計を引いた濃度を示す。地点Dfでは Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 NO_3^- 、CBDの濃度が下層になるにつれて低下したのに対し、 Na^+ 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 濃度は上昇する傾向にあった。地点Cfも地点Dfとほぼ同様な傾向を示したが、 Ca^{2+} 濃度は下層になるにつれて上昇する傾向にあった。天塩中の峰の地点Ak、N-Ssは下層になるにつれてpHが上昇する傾向にあった。地点AkにおけるA層浸透水中の Ca^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} 濃度はO層浸透水中のそれぞれの濃度に比べて低下したのに対して、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- 濃度がO層に比べて上昇した。地点AkのA層からC層への過程では Ca^{2+} 、 Cl^- 濃度が上昇し、他のほとんどのイオン濃度が低下した。地点N-Ssでは下層になるにつれて Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 HCO_3^- 、 Cl^- 濃度が上昇し、 K^+ 、 NH_4^+ 濃度はO層－A層間で低下した。天塩清川の二地点における浸透水pHはO層で最も高く、A層以下ではそれよりもやや低かった。地点Tdでは下層になるにつれて Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 NH_4^+ および HCO_3^- 濃度が低下し、 Cl^- と SO_4^{2-} は上昇した。地点K-SsではO層－A層間で Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Na^+ 、 Cl^- および SO_4^{2-} 濃度が上昇し、 K^+ 、 NH_4^+ および HCO_3^- 濃度が低下した。また、地点K-SsのA層－C層間では Cl^- と NH_4^+ 、 H^+ を除く全てのイオン濃度が低下した。天塩清川における浸透水中の Al^{3+} 濃度は両地点ともA層で最も高く、CBD濃度も同様の傾向を示した。

(2) 根遮断区における土壌浸透水のイオン組成

表8-2に地点Df, Cfにおける根遮断区のO層およびA層浸透水の水量による加重平均pHおよびイオン濃度を示し、表8-3にはライシメーター内のA層土壌の水溶性

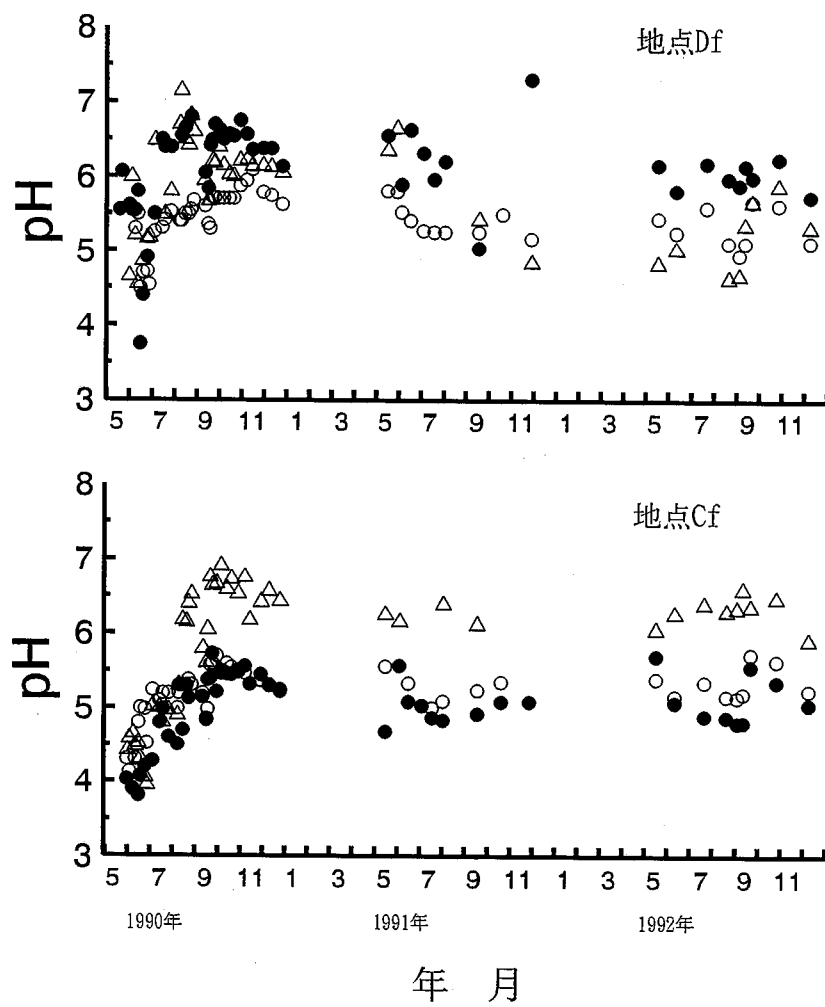


図8-1 地点Df, Cfにおける土壌浸透水pHの変動

●, O層; ○, A層; △, C層

表8-1 各地点における土壌浸透水の加重平均pHおよびイオン濃度

	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	Al ³⁺	CBD ¹⁾
$\mu\text{mol/L}^{-1}$														
地点Df(苫小牧, 広葉樹林)														
O層	5.5	3	263	95	157	121	65	200	195	56	95	10	N.D	148
A層	5.3	5	214	76	37	138	24	86	178	31	123	1	N.D	74
C層	5.2	6	158	52	23	216	4	81	184	7	154	2	N.D	31
地点Cf(苫小牧, ストローブマツ林)														
O層	4.9	13	308	133	60	147	22	80	226	22	139	4	N.D	212
A層	5.1	7	349	104	14	216	15	103	227	31	207	3	N.D	135
C層	5.4	4	563	83	11	423	29	202	540	43	308	2	N.D	18
地点Ak(天塩中の峰, アカエゾマツ林)														
O層	5.1	9	122	452	107	731	17	110	924	4	274	1	N.D	274
A層	6.6	0	93	777	43	672	15	573	629	5	234	1	N.D	234
C層	6.7	0	128	672	35	622	12	536	663	5	123	0	N.D	123
地点N-Ss(天塩中の峰, ササ草地)														
O層	5.5	3	48	133	28	172	17	55	178	1	38	0	N.D	129
A層	5.9	1	63	151	18	189	6	116	185	0	34	4	N.D	89
C層	6.8	0	101	426	16	215	6	384	203	0	46	7	N.D	124
地点Td(天塩清川, トドマツ林)														
O層	5.1	8	194	139	192	303	25	194	248	2	38	0	13	383
A層	4.6	23	75	98	142	418	16	87	255	2	44	0	53	414
B層	4.9	13	35	75	19	341	8	84	369	1	51	0	13	-14
地点K-Ss(天塩清川, ササ草地)														
O層	5.4	4	32	30	205	71	27	108	300	1	36	0	10	-69
A層	5.0	11	169	169	169	251	7	72	443	1	88	0	24	187
B層	4.8	16	119	100	47	228	18	55	470	0	56	0	16	-52

1)CBD = $\Sigma\text{cation} - \Sigma\text{anion}$

表8-2 地点Df, Cfの根遮断区におけるO層およびA層浸透水の水量による加重平均pHおよびイオン濃度

層位	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	CBD ¹⁾
$\mu\text{mol/L}^{-1}$													
地点Df													
O層	6.4	0.4	296	153	143	148	28	216	193	137	102	0	116
A層	5.6	3	535	202	127	164	18	69	173	620	140	0	46
地点Cf													
O層	5.3	6	361	124	38	136	36	52	112	299	102	0	135
A層	5.5	3	623	197	59	217	37	63	201	635	165	0	72

1)CBD = $\Sigma\text{cation} - \Sigma\text{anion}$

NO_3^- 含有率の推移を示した。根遮断区におけるO層浸透水pHは地点Dfで6.4、地点Cfで5.3と地点Dfの方が有意に高かった。A層浸透水pHは両地点ともほぼ同じ値を示した。自然状態(以下、自然区)における結果とそれぞれ比較すると、両地点とも根遮断区における NO_3^- 濃度がO層、A層ともに自然区よりも高く、A層でその差がより顕著であった。同様の傾向は Ca^{2+} や Mg^{2+} 濃度についても認められた。

(3) 自然状態における土壌からのイオン排出フラックス

図8-2に月別降水量と月蒸発散量の推移を示した。年平均可能蒸発散量は480 mmであった。したがって、熱収支法による地点Dfの排出水量は894 mm、地点Cfでは796 mmと計算された。また、地点Df、Cfにおける大気からの Cl^- 負荷量はそれぞれ1.42 (FDw=1.24, FDd=0.18), 3.21 (FDw=1.24, FDd=1.97) $\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であり(第4章, 第5章), C層浸透水の水量による加重平均イオン濃度はそれぞれ184, 540 $\mu\text{mol} \cdot \text{L}^{-1}$ であった。したがって、 Cl^- 収支法による地点Df、Cfにおける土壌からの排出水量はそれぞれ770, 594 mmと計算された。両地点とも Cl^- 収支法によって得られた排出水量は熱収支法による排出水量よりも小さい値を示しており、その差は地点Cfで大きかった。

熱収支法、 Cl^- 収支法によって計算された排出水量を用いて計算した土壌からのイオン排出フラックスを表8-4に示す。両地点とも熱収支法による Cl^- の排出フラックスは大気からの Cl^- 負荷量よりも大きく、特に地点Cfで顕著であった。両地点とも陽イオンとして Ca^{2+} 、 Na^+ の排出フラックスが大きく、陽イオンでは Cl^- 、 SO_4^{2-} のフラックスが大きかった。 H^+ と K^+ を除いて、全てのイオン排出フラックスが地点Cfで地点Dfより大きかった。

3. 考察

(1) 土壌の違いが土壌浸透水の化学組成に及ぼす影響

苫小牧、天塩中の峰、天塩清川における土壌の交換態塩基組成(第3章, 表3-4)の中でCaとMgの関係に着目すると、苫小牧の火山放出物未熟土はCaが主体であるのに対し、天塩中の峰における停滞水グライボドゾルはMgが主体である。天塩清川における酸性褐色森林土のCa/Mg比は苫小牧と天塩中の峰の中間的な割合であった。これらの土壌の交換態塩基組成の違いが土壌浸透水のイオン組成に及ぼす影響を考察するために、土壌中の Ca^{2+} 、 Mg^{2+} および K^+ 濃度の存在割合の推移をCa+Mg+Kを100%として図8-3に示した。図から明らかなように各地点の Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ の比率は下層になるにつれてそれぞれの土壌の交換態塩基組成を明瞭に反映していた。つまり、苫小牧の地点Dfと地点Cfでは下層になるにつれて Ca^{2+} の割合が大きくなり、天塩中の峰の地点Akと地点N-Ssは下層になるにつれて Mg^{2+} の割合が大きくなった。天塩清川の Ca^{2+} と Mg^{2+} は苫小牧と天塩中の峰の中間的な値で推移した。各地点とも K^+ の存在割合は林内雨やO層浸透水で大きく、鉾質土壌で小さかった。このように土壌浸透

表8-3 根遮断区におけるA層土壌の水溶性NO₃⁻含有率の推移

日付	水溶性NO ₃ ⁻ (cg kg ⁻¹)	
	地点Df	地点Cf
6. Jun., 1993	0.80	0.46
19. Aug., 1993	1.71	0.45
21. Oct., 1993	0.03	1.66
12. Dec., 1993	0.76	1.15
22. Apr., 1994	4.49	2.14
7. July, 1994	1.01	1.76

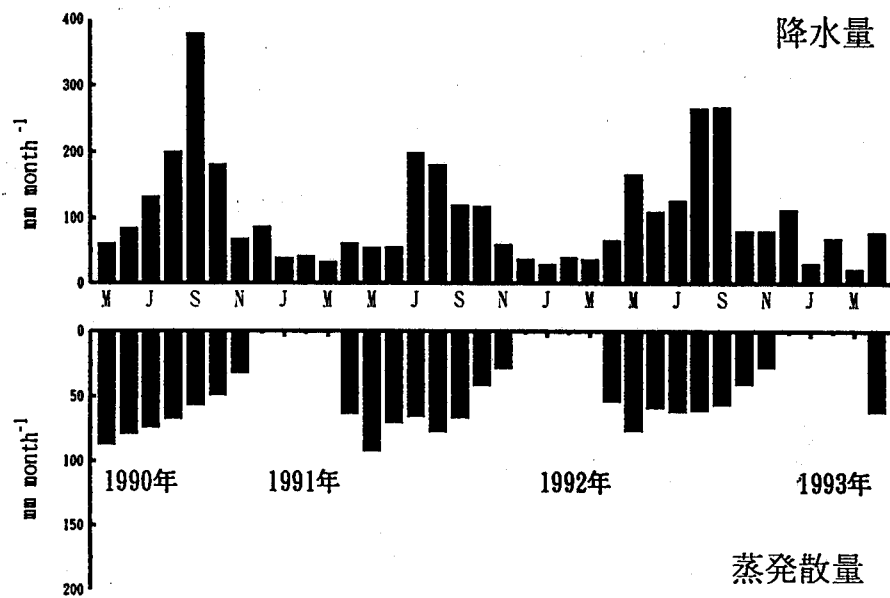


図8-2 苫小牧における月別降水量と蒸発散量の推移

表8-4 各林分におけるC層からの排出フラックス

	水量 (mm)	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	CBD ¹⁾
地点Df(広葉樹林)													
熱収支法	894	0.06	1.41	0.46	0.20	1.93	0.04	0.72	1.65	0.07	1.38	0.02	0.27
Cl収支法	770	0.05	1.22	0.40	0.17	1.66	0.03	0.62	1.42	0.06	1.18	0.01	0.23
地点Cf(ストロブマツ林)													
熱収支法	796	0.03	4.48	0.66	0.09	3.37	0.23	1.61	4.30	0.35	2.45	0.01	0.14
Cl収支法	594	0.02	3.34	0.49	0.07	2.51	0.17	1.20	3.21	0.26	1.83	0.01	0.10

1) CBD = Σ cation - Σ anion

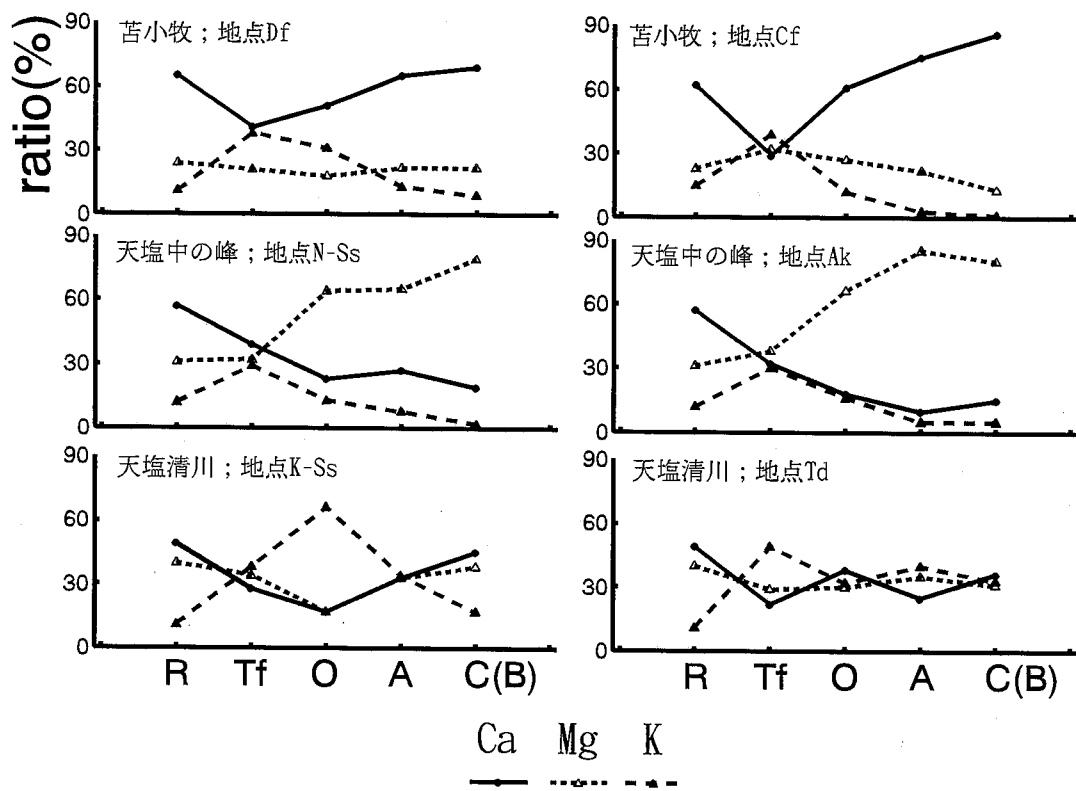


図8-3 降雨(R), 林内雨(Tf), 土壌浸透水(O, A, C(B))の塩基組成

$$\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+} + \text{K}^{+} = 100\%$$

水中の Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^{+} の存在割合は土壌の交換態塩基組成の影響を強く受けていることが明らかとなった。

(2) 植生によるイオン吸収の有無が土壌のイオンレジムに及ぼす影響

苫小牧の地点Df, Cfにおいて根遮断区の NO_3^- 濃度は自然区より有意に高く、根遮断区でのA層浸透水中の NO_3^- 濃度は自然区での濃度に対してそれぞれ約20倍の値を示した(表8-1, 表8-2)。また、根遮断区における NO_3^- 濃度は両地点とも明らかにA層>O層であった(表8-2)。これらの事実は、土壌中の微生物の硝酸化成による土壌溶液中への NO_3^- 放出が主としてA層内で生じていることを示している。硝酸化成によって NO_3^- が生成する際には H^+ が同時に生成し、A層浸透水中の NO_3^- が全て HNO_3 として存在するならば溶液のpHは4.0を大きく下回る値を示すことになる。両地点ともA層浸透水pHは5.5~5.6であり、 Ca^{2+} や Mg^{2+} 濃度が上昇していることから、硝酸化成によって生成した H^+ の大部分は土壌固相に吸着していた Ca^{2+} や Mg^{2+} と交換されたものと考えられる。両地点のA層浸透水の NO_3^- 濃度の変動は重回帰分析によって式(4), (5)のように示された。

$$\text{地点Df ; } (\text{NO}_3^-) = 1.120(\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}) - 1.124(\text{Cl}^-) - 29.3 \quad (4)$$

$$R^2 = 0.99^{**}, \text{ d.f.} = 8$$

$$\text{地点Cf ; } (\text{NO}_3^-) = 0.818(\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}) - 0.678(\text{Cl}^-) - 17.6 \quad (5)$$

$$R^2 = 0.94^{**}, \text{ d.f.} = 8$$

A層浸透水の NO_3^- 濃度の変動は $(\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+})$ 濃度のみによって地点Dfでは76%, 地点Cfでは90%が説明できたが、 Cl^- を加えることによってそれぞれ99%, 94%を説明することができた。この Cl^- は Ca^{2+} や Mg^{2+} と中性塩として供給されたものと考えられる。

このように植物根を遮断した区においては土壌で生成する NO_3^- が土壌中の塩基性イオンを可動化させ、A層土壌浸透水のイオン濃度を高めており、自然状態では植生によるイオン吸収がそれによるイオン濃度上昇を防いでいると考えられる。表8-5には根遮断区におけるA層からの年間イオン流出量を示す。A層から流出した NO_3^- は地点Df, Cfでそれぞれ5.1, 4.9 $\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であった。そこで、O層およびA層における年間 NO_3^- 生成量($\text{NO}_3^-_{\text{prd}}$)を式(6)のように計算した。ここではO層における水溶性 NO_3^- は分析していないので、O層における水溶性 NO_3^- 正味蓄積量については計算に含まれていない。

$$\text{NO}_3^-_{\text{prd}} = L_A \text{NO}_3^- - F(\text{Tf} + \text{Sf}) \text{NO}_3^- + \Delta \text{SNO}_3^- \quad (6)$$

$L_A \text{NO}_3^-$; 根遮断区におけるA層浸透水からの NO_3^- 流出量

$F(\text{Tf} + \text{Sf}) \text{NO}_3^-$; 林内雨と樹幹流による NO_3^- 流入量

ΔSNO_3^- ; A層土壌中に正味蓄積された NO_3^- 量

林内雨および樹幹流によって年間に土壌へ流入する NO_3^- は地点Df, Cfでそれぞれ

表8-5 地点Df, Cfの根遮断区におけるA層からの年イオン流出量

地点	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	CBD ¹⁾
	(kmol _e ha ⁻¹ y ⁻¹)											
Df	0.02	4.42	1.67	1.05	1.36	0.15	0.57	1.43	5.12	1.16	0.00	0.38
Cf	0.02	4.81	1.53	0.46	1.68	0.28	0.49	1.55	4.90	1.27	0.00	0.55

1)CBD = $\Sigma \text{cation} - \Sigma \text{anion}$

0.14, 0.31 kmolc ha⁻¹ y⁻¹であった(第7章, 表7-3). また, 土壌中の水溶性NO₃⁻含有率を用いて(表8-3), 実験終了時(1994年7月7日)と実験開始時(1993年6月16日)の増減から土壌中に水溶性NO₃⁻として年間に土壌に正味蓄積されたNO₃⁻を計算すると, 地点Df, Cfでそれぞれ0.05, 0.47 kmolc ha⁻¹ y⁻¹であった. よって, O層およびA層における年間NO₃⁻生成量を式(6)のように計算すると, 地点DfにおけるNO₃⁻_{prd}は5.3 kmolc ha⁻¹ y⁻¹, 地点Cfでは5.1 kmolc ha⁻¹ y⁻¹とほぼ同様の値を示した. 表8-4に示したようにC層土壌からのNO₃⁻排出量は地点Df, Cfでそれぞれ0.06, 0.26 kmolc ha⁻¹ y⁻¹であり, 両地点のNO₃⁻_{prd}のそれぞれ約1/88, 1/20の値であった. この違いは植生による吸収の影響を表すと考えられる. 同様な傾向はCa²⁺, Mg²⁺, K⁺, NH₄⁺についても認められた.

以上のように土壌中での硝酸化成による酸生成は土壌中でのイオンフラックスを増加させるが, 植生によるイオン吸収はそのフラックスを小さくする働きがあるものと推察される. このことをさらに詳しく研究するために, 次章では植生によるイオン吸収フラックスを実際に計算し, それが土壌-植物系の物質循環に対してどのような役割を果たしているかについて述べる.

5. 要約

各地点において土壌浸透水のpHおよびイオン組成を分析した. Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺の存在比の解析から, 苫小牧, 天塩中の峰, 天塩清川の3流域, 6地点における土壌浸透水中のCa²⁺, Mg²⁺, K⁺の組成はそれぞれの土壌交換態塩基組成の性質を強く反映していた. 苫小牧の二地点においてCl⁻の収支から見積もった土壌からのイオン排出フラックスは降水量と蒸発散量の差から見積もられる排出フラックスより小さかった. 地点Cfにおける土壌からのイオン排出フラックスはH⁺とK⁺を除いて地点Dfのイオンフラックスより大きく, 特にCa²⁺とCl⁻で大きかった. 地点DfとCfの根遮断区においてはO層およびA層で硝酸化成によるNO₃⁻の生成が認められ, それとほぼ同量の塩基性イオン(主としてCa²⁺, Mg²⁺)が溶液中に放出された. 根遮断区のA層からのCa²⁺, Mg²⁺, K⁺, NH₄⁺およびNO₃⁻フラックスは自然区におけるC層からのイオン排出フラックスよりも大きく, その差は植生によるイオン吸収の有無を反映しているものと考えられた.

第9章 森林生態系における物質収支および物質循環フラックス

1. はじめに

前章までにおいて大気からのイオン沈着フラックス，林内雨や樹幹流としての土壌へのイオン流入フラックス，土壌からのイオン排出フラックスを見積もった。そこで，本章では苫小牧の二地点(地点Df, Cf)において植生による元素吸収フラックスを推定し，生態系全体の物質収支および物質循環との関係を考察する。

2. 方法

(1)各林の毎木調査および試料木の調査方法

苫小牧の両地点において300m²(15×20m)のコドラート(2反復)を設置して上層木の毎木調査を行い，立木密度，樹種別優先度，樹高，胸高直径，胸高断面積などを測定した。

試料木の採取は1990年の落葉直前に行った。それぞれ伐倒木から幹(円盤試料)，枝，葉をサンプリングした。標準木については根，根株，幹，枝，葉に区別して新鮮重を測定し，適量のサブサンプルを実験室に持ち帰った。標準木について，胸高断面積(g, m⁻²)および部位別乾物重を測定し，全乾物重(m, kg)を算出した。根部は根株を掘り取った後，株から45~90°の扇型に追跡し，順次グランドシート上に掘り上げ，薄く広げてハンドソート法によって分取した。調査深は肉眼的に判断できる根張りの状態によって決定した(25~50 cm)。なお，上層木の元素組成に関する調査は天塩中の峰および天塩清川においても行った。

(2)有機質層位および鉱質土壌の採取方法

O層は苫小牧の各調査地において50×50 cmのサブプロット(3反復)を設け，5月，9月，11月にO層の全量を採取した。地点DfのO層は5月と9月においてF層はほぼ消失していたのでL+F層としてまとめて採取した。地点CfはL層とF層に分けて採取した。鉱質層位の土壌試料は，上記各サブプロットにおいて層別に200 cm³試料円筒(長さ5 cm)を用いて10反復で採取した。但し，HA層については層厚が2~3 cmのことが多かったので50 cm³試料円筒を用い，各20反復でサンプリングした。各試料は容積重を測定後，バットに広げ，良くほぐしてピンセットで根をほぐした。この根はバイオマスの算出時に上層木の根として計算した。

(3)リターフォールの観測方法

上面の直径約1 mの寒冷紗製リタートラップを各地点に三反復で設置した。トラップされた有機物はおおむね1ヶ月毎に回収して乾物重を測定後，粉碎して元素含有率を分析した。

(4)試料の調整および分析方法

有機物試料は全て70℃で乾燥して乾物重を求めた後，粉碎して分析に供した。土壌試料は粗大有機物を除いた後，風乾調整して分析に供した。有機物試料中のCa，

Mg, KおよびNaは硫酸-硝酸-過塩素酸法で湿式分解後, CaとMgは原子吸光法で, KとNaは炎光光度法で分析した. 鉍質土壤の交換態カチオンは新鮮土を用い, 1N-酢酸アンモニウム(pH 7)で抽出後, 上記の方法で抽出液の濃度を分析した. 全N濃度は乾式燃焼法(CNコーダー)を用いて分析した. 有機物試料中の全S濃度は酸素フラスコ燃焼法によって生成したSO_xを微量のH₂O₂に捕集し, イオンクロマトグラフィーによって定量した(佐久間ら 1994). 鉍質土壤の全S濃度は硝酸-過塩素酸-フッ素酸で分解後, 比濁法によって定量した(佐久間ら 1994). 植物体, O層の元素含有率は乾物重によって加重平均した.

(5) 植生の純一次生産量の推定方法

毎木調査で実測した上層木の単位土地面積当たり全胸高断面積を $G(\text{m}^2 \text{ ha}^{-1})$ とすれば, 標準木に換算した立木密度 $N(\text{本 ha}^{-1})$ は標準木の胸高断面積 $g(\text{m}^2)$ を用いて $N = G/g$ と表せるから, 上層木の単位土地面積当たりの乾物現存量 $M(\text{Mg ha}^{-1})$ は実測した標準木の全乾物重 $m(\text{kg})$ を用いて式(1)のように推定できる(木村 1976, 只木ら 1961).

$$M(\text{Mg ha}^{-1}) = N \times m \cdot 10^{-3} \quad (1)$$

地点Dfについては毎木調査において樹高のばらつきが2.2~13.4mと大きかったので, Hartig法(木村 1976)に準じて構成した樹木を胸高直径によって2クラスに分け, そのそれぞれを代表する標準木(ミズナラ, イタヤカエデ)を選定した. 地点Cfのストロームマツ林は一斉林型の植林地であったので, 単級法(木村 1976)を適用して中庸の生育状態のものを標準木として選び, 上と同様にして単位面積当たり乾物重を算出した.

次に標準木から採取した樹幹の円盤試料について調査年における胸高直径(rw, cm)および過去5年目までの年輪半径を4方向について計測し, 樹皮の厚さを補正して, 年平均直径増加量($\Delta rw, \text{cm y}^{-1}$)を求めた. 幹を円柱と仮定し, rw と Δrw を用いて標準木の年平均胸高断面積増加量($\Delta g = \pi \cdot rw^2 - \pi \cdot (rw - \Delta rw)^2, \text{m}^2$)と同平均成長率($\delta = rw^2 / (rw - \Delta rw)^2$)を算出した. δ の値が単位土地面積当たりの全乾物重(M)に対しても同じであると仮定し, 式(2)のように1年前の全乾物重(M_{-1})を推定した.

$$M_{-1} = M / \delta \quad (2)$$

よって, 上層木の年間純一次生産量NPPは式(3)のように計算できる.

$$\text{NPP}_j = M_j - M_{j-1} \quad (3)$$

なお, 上層木の部位別NPPは式(3)で求めた全NPPに標準木の部位別乾物比率を乗じて求めた.

(6) 植生による元素吸収フラックスの計算方法

上層木が純一次生産を達成するために年間に集積する元素量(以下集積速度と呼びRで示す)を葉とそれ以外の部分に集積する元素量に分けて考える(式(4)).

$$R = \Delta F + \Delta W \quad (4)$$

ただし、 ΔF =(葉のNPP・同元素含有率)、 ΔW =(葉以外の部分のNPP・同元素含有率)である。

ΔF は落葉・落枝によるフラックス(LF)、溶出フラックス(LI)および生葉から樹体内への再転流速(T)によって式(5)のように示すことができる。

$$\Delta F = LF + LI + T \quad (5)$$

LFはリタートラップ法により測定し、LIは林内雨と降雨の観測から測定しているが(第7章)、Tについては実測していない。一方、 ΔW は葉以外の部分の正味の元素吸収速度(ΔW_n)と細根の枯死による土壌への還元速度(RT)により式(6)のように示される。

$$\Delta W = \Delta W_n + RT \quad (6)$$

ΔW は葉以外の乾物一次生産量(NPP)と元素含有率を乗じて求めることができる。RTは小根のNPPが毎年更新されるものと仮定することで算出し、 ΔW_n は $\Delta W - RT$ として得た。上層木が土壌から年間に吸収する元素量(U)は年間の元素集積量(R)から転流速(T)を引いたものであるので、式(4)~(6)より式(7)のように表せる。

$$U = \Delta W_n + RT + LF + LI \quad (7)$$

3. 結果

(1) 供試木の乾物重および毎木調査の結果

表9-1に各地点における供試木の樹高、胸高直径、部位別乾物重および全乾物重を示した。供試木の樹高は3~16mで全乾物重は2~293 Mgであった。表9-2には各供試木の部位別元素含有率を示した。地点Dfのミズナラとイタヤカエデの元素含有率は他の樹種より高い傾向にあり、地点Cfのストロームマツの塩基含有率は他の樹種より低い傾向にあった。

表9-3には苫小牧の二地点において行った毎木調査の結果を示す。地点Df、Cfの立木密度はそれぞれ4300、1700本 ha⁻¹であり、胸高断面積は26、24 m² ha⁻¹であった。立木密度は地点Dfで地点Cfより大きかった。

(2) 植生中の乾物および元素蓄積量

毎木調査の結果と供試木の乾物および元素蓄積量から計算した苫小牧の二地点における植生の単位面積当たりの乾物蓄積量(M)および元素蓄積量を表9-4に示す。地点Df、Cfの植生中の全乾物蓄積量はそれぞれ232、83 Mg ha⁻¹であった。地点Dfでは全乾物重に対する幹の割合が高く、地点Cfでは葉や枝の占める割合が高かった。

吉村・古本(1973)は道東における林齢40~50年のシラカンバ林において地上部乾物重が50.8~112.4 Mg ha⁻¹であることを報告した。また、高橋ら(1974)は道北の林齢40年のシラカンバ林の地上部乾物現存量が145.9 Mg ha⁻¹であることを報告した。佐藤(1974)も道央における林齢47年のウダイカンバ林で調査を行い、地上部乾物現存量が90.6~143.1 Mg ha⁻¹の範囲にあることを報告した。道北地方のトドマツ、広

表9-1 供試木の部位別乾物重

地点	樹種	樹高	胸高直径	葉	枝	幹	根	合計
(Mg plant ⁻¹)								
Df	ミスナラ	16.2	20	7.6	39	170	76	293
Df	イタヤカエデ	13.6	14	2.3	20	85	36	143
Cf	ストロブマツ	6.3	12	4.0	12	12	10	38
Ak	アカエゾマツ	13.6	22	31	57	98	78	264
Ak	アカエゾマツ	7.3	10	2.8	6.5	14	15	38
Td	トドマツ	11.5	14	9.8	11	32	11	64

表9-2 各地点における供試木の部位別元素含有率

地点	樹種	樹高 (m)	部位	Ca	Mg	K	Na	N	S
(mol. kg ⁻¹)									
Df	ミスナラ	16.2	葉	0.52	0.11	0.17	0.10	1.04	0.085
			枝	0.26	0.04	0.04	0.003	0.50	0.005
			幹	0.16	0.01	0.03	0.003	0.15	0.007
			根	0.28	0.02	0.04	0.03	0.32	0.040
Df	イタヤカエデ	13.6	葉	0.72	0.26	0.23	0.04	1.23	0.119
			枝	0.70	0.06	0.05	0.002	0.55	0.017
			幹	0.23	0.03	0.03	0.002	0.15	0.007
			根	0.84	0.16	0.11	0.01	0.42	0.026
Cf	ストロブマツ	6.3	葉	0.08	0.07	0.11	0.01	1.02	0.071
			枝	0.10	0.04	0.05	0.04	0.34	0.019
			幹	0.03	0.01	0.01	0.003	0.12	0.008
			根	0.06	0.02	0.02	0.01	0.19	0.029
Ak	アカエゾマツ	13.6	葉	0.21	0.06	0.15	0.02	n. d	0.040
			枝	0.23	0.05	0.06	0.007	n. d	0.011
			幹	0.11	0.02	0.03	0.002	n. d	0.002
			根	0.16	0.03	0.05	0.003	n. d	0.005
Ak	アカエゾマツ	7.3	葉	0.12	0.07	0.14	0.004	0.49	n. d
			枝	0.25	0.04	0.05	0.01	0.30	n. d
			幹	0.09	0.02	0.02	0.002	0.11	n. d
			根	0.09	0.02	0.02	0.002	0.07	n. d
Td	トドマツ	11.5	葉	0.33	0.06	0.21	0.05	n. d	n. d
			枝	0.17	0.03	0.09	0.02	n. d	n. d
			幹	0.06	0.02	0.06	0.01	n. d	n. d
			根	0.08	0.01	0.10	0.02	n. d	n. d

表9-3 苫小牧の両地点における毎木調査結果

	地点Df	地点Cf
上層木の樹齡(年)	20~40	20
立木密度(本 ha ⁻¹)	4300	1700
胸高断面積(m ² ha ⁻¹)	26	25
平均胸高直径(cm)	6.5	13.5
平均樹高(m)	5.5	7.1

表9-4 両林分における植生の乾物および元素蓄積量

部位	乾物重 Mg ha ⁻¹	Ca	Mg	K kmol。 ha ⁻¹	Na	S	N
広葉樹林(地点Df)							
葉	4.8	3.0	0.9	1.0	0.1	0.6	5.5
枝	31	14.4	1.6	1.4	0.1	0.4	7.1
幹	136	31.9	2.8	4.0	0.3	1.1	20.4
根	70	32.2	5.1	4.2	1.2	2.5	19.3
合計	243	82	10	11	1.7	4.6	52.3
ストローブマツ林(地点Cf)							
葉	8.5	0.7	0.6	1.0	0.1	0.6	8.7
枝	26	2.7	1.0	1.3	0.1	0.5	8.8
幹	26	1.0	0.4	0.4	0.1	0.2	3.2
根	28	1.2	0.5	0.5	0.3	0.8	5.2
合計	89	5.6	2.4	3.1	0.5	2.1	25.9

葉樹(ミズナラ, イタヤカエデ, ダケカンバ, シナノキなど)混交林の地上部乾物重は141.7(広葉樹が88.8) Mg ha^{-1} であり(上田, 1972), 北海道日高地方の広葉樹林(ミズナラ, コナラ, アサダなど)の地上部乾物現存量は275.4 Mg ha^{-1} であった(菊沢・浅井, 1979). ミズナラやイタヤカエデなどを主とする広葉樹林である地点Dfの地上部乾物重の合計は172.4 Mg ha^{-1} であり, 上記の報告値の中でも比較的大きい値を示した.

針葉樹林の人工林については春木(1979)が北海道内において林齢の異なる5カ所のトドマツ人工林(林齢; 9~38年)において地上部の乾物現存量が3.5~74.3 Mg ha^{-1} の範囲にあることを報告した. また, 真鍋ら(1981)は林齢19年のトウヒ人工林, トドマツ人工林の地上部乾物重がそれぞれ90.1, 61.3 Mg ha^{-1} であることを報告した. 渋谷・酒井(1991)は苫小牧演習林内における林齢57年のトドマツ人工林の地上部乾物重が64.8 Mg ha^{-1} であることを報告した. 地点Cfの林齢は22年で, 地上部乾物重の合計は61.0 Mg ha^{-1} でありこれらの既往の針葉樹林での報告値の範囲内にあった.

広葉樹林についての既往の報告はカンバ類が中心であるが, 苫小牧の二地点においても既往の調査結果でも, 広葉樹林の乾物蓄積量は針葉樹林人工林よりも大きい傾向にあった. 地上部における幹, 枝, 葉の乾物重割合は地点Dfで79, 18, 3%であり, 地点Cfで43, 43, 14%であった. 北海道内で行われたウダイカンバやシラカンバを主とする広葉樹林の調査結果(佐藤, 1974; 高橋ら, 1974; 吉村・古本, 1973)によると地上部の全乾物重に対する幹, 枝, 葉の乾物重割合は83~90, 9~14, 2~3%であり, ヨーロッパトウヒやトドマツなどの針葉樹林における地上部の全乾物重に対する幹, 枝, 葉の乾物重割合は63~73, 11~17, 16~20%であった(真鍋ら, 1981; 渋谷・酒井, 1991; 春木, 1979). 地点Cfにおける植生の地上部乾物重は道内の他の針葉樹林と比べて, 枝の比率がやや高く, 葉の比率がやや低かった.

植生中の元素現存量は明らかに地点Df>地点Cfであり, 特にCaで両地点の差が顕著であった(表9-4). 堤(1973)は北海道のトドマツ天然林において地上部植生中のCa, Mg, K, Nの現存量が43, 48, 9, 41 kmolc ha^{-1} であることを報告した. また, 山本(1965)は道内の3カ所(野幌, 丸瀬布, 留辺蘂)におけるシラカンバの葉におけるCa, Mg, K, Nの現存量がそれぞれ0.34~0.68, 0.38~0.41, 0.09~0.13, 2.15~2.48 kmolc ha^{-1} であることを報告している. これらの報告値と比較しても地点Dfの植生中の元素蓄積量は大きく, 地点Cfではやや小さかった.

(3) 樹幹解析による年純一次生産量(NPP)の推定

各地点においてNPPの推定に用いた試料木の平均胸高断面積(g, m^2), 年平均胸高断面積増加量($\Delta g, \text{m}^2 \text{y}^{-1}$), 平均成長率(δ), 上層木の全乾物重($M, \text{Mg ha}^{-1}$), 1年前の上層木全乾物重($M_{-1}, \text{Mg ha}^{-1}$)および上層木の年間純一次生産量(NPP, $\text{Mg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$)を表9-5に示した. 計算の結果得られた両地点の年純一次生産量(NPP)は地

表9-5 純一次生産量の計算に用いたパラメーター¹⁾

	地点Df	地点Cf
$g(\text{cm}^2)$	171	102
$\Delta g(\text{cm}^2 \text{ y}^{-1})$	9.0	19
δ	1.06	1.24
$M(\text{Mg ha}^{-1})$	242.6	89.2
$M_{-1}(\text{Mg ha}^{-1})$	229.4	72.1
$\text{NPP}(\text{Mg ha}^{-1} \text{ y}^{-1})$	13.2	17.1

1) g ; 試料木の幹面積, Δg ; 幹面積の年増加量,
 δ ; 年成長率($g / (g - \Delta g)$), M ; 上層木の単位土地
面積当たりの全乾物重, M_{-1} ; 1年前の上層木の単位
土地面積あたりの全乾物重, NPP ; 乾物の純一次生産
量

点Df, Cfでそれぞれ13.2, 17.1 $\text{Mg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ であった。両地点の部位別NPPを表9-6に示す。植生の面積当たりの乾物重は明らかに地点Df>地点Cfであったのに対し、NPPは地点Cfで地点Dfより大きかった。

高橋ら(1974), 佐藤(1974), 菊沢・浅井(1979)による広葉樹林のNPPは5.6~10.2 $\text{Mg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲にあり, 真鍋ら(1981)によるヨーロッパトウヒ人工林とトドマツ人工林のNPPはそれぞれ11.3~14.5 $\text{Mg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ であった。地点Df, Cfにおける地上部のNPPはそれぞれ10.7, 14.3 $\text{Mg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ であり, 道内における既往の報告値とほぼ同様の値であった。

(4) O層, 鉱質土壌の乾物重および元素蓄積量

表9-7に地点Df, CfにおけるO層の乾物重と元素蓄積量を示す。両地点とも塩基の中ではCaが主体で, 次いで $\text{Mg} > \text{K} > \text{Na}$ の順であったが, 地点Cfの9月と11月におけるF層は $\text{Na} > \text{K}$ であった。地点Dfの塩基蓄積量は地点Cfの塩基蓄積量より大きく, 落葉直後の11月におけるO層(L+F+HA層)の塩基蓄積量($\text{Ca} + \text{Mg} + \text{K} + \text{Na}$)を比較すると地点Df, Cfでそれぞれ60, 38 kmol. ha^{-1} であり, 地点Dfで地点Cfの約1.6倍であった。

表9-8に各地点の交換態塩基現存量を示す。苫小牧の地点Df, CfはCaが主体であり二地点ともその大部分はA層に存在した。地点DfとCfにおける土層全体の塩基現存量には地点間の差はほとんどないが, 地点Dfの方が全体の現存量に占めるA層の現存量の比重が高かった。天塩中の峰ではMgが主体であり, 特に下層の現存量が大きかった。地点AkとN-Ssを比較すると, Akの方が明らかに土層全体の塩基現存量が大きかったが, K現存量については地点N-Ssの方がAkよりも大きく, 特に表層で顕著であった。天塩清川の二地点は $\text{Mg} > \text{Ca} > \text{K} > \text{Na}$ の順に大きく, 土層全体の塩基現存量は地点K-Ss>Tdであった。

(5) リターフォールによる元素の還元フラックス

表9-9に各地点におけるリターフォールによる元素の還元フラックスを示す。リターフォールの乾物重は地点Cfで地点Dfより大きかったが, SとNaを除いた元素(Ca, Mg, K, N)の還元フラックスは明らかに地点Dfで大きかった。表9-10には道北の森林で観測されたリターフォールの乾物重及び元素還元フラックスを示した(Hardiwinoto, 1991: Hardiwinoto et al., 1991)。地点Dfにおける元素還元フラックスは表7-8の値の中でもやや大きい値を示し, 地点Cfの元素還元フラックスはそれらよりも小さい値を示した。

4. 考察

(1) 植生による元素吸収フラックス

表9-11に苫小牧の二地点における元素吸収フラックス(U)とそれを構成する ΔW (ΔW_n , RT), LFおよびLIを示した。表中のLIは第7章の表7-4で計算した値を用いた。地点Dfの元素吸収フラックスはCaで最も大きく, それに続いて $\text{N} > \text{Mg} > \text{K} > \text{S} > \text{Na}$ の順で

表9-6 両地点における部位別の純一次生産量¹⁾

	地点Df (Mg ha ⁻¹ y ⁻¹)	地点Cf
△F	4.8	6.1
△Wn	7.8	10.0
RT	0.6	1.0
合計	13.2	17.1

1) △F=葉の純一次生産量

△Wn=△W-RT

△W=葉以外の純一次生産量

RT=根の枯死量(小根の純一次生産量と仮定)

表9-7 地点Df, CfにおけるO層の乾物重および元素蓄積量

地点	層位	調査月	乾物重 Mg ha ⁻¹	Ca	Mg	K	Na
				kmol _e ha ⁻¹			
Df	L+F	May	6.6	6.70	0.78	0.12	0.06
	L+F	Sep.	8.4	6.41	0.70	0.25	0.09
	L	Nov.	3.7	2.44	0.39	0.14	0.06
	F	Nov.	5.1	3.52	0.41	0.16	0.06
	HA	Nov.	131	33.7	6.42	3.62	9.02
	(L+F)	Nov.	8.8	5.96	0.80	0.30	0.12)
	(L+F+HA)	Nov.	140	39.6	7.22	3.92	9.14)
Cf	L	May	6.2	1.89	0.46	0.09	0.04
	F	May	6.0	1.02	0.44	0.17	0.13
	L	Sep.	11.8	3.12	0.73	0.22	0.09
	F	Sep.	6.9	1.40	0.35	0.16	0.27
	L	Nov.	6.3	1.42	0.43	0.10	0.06
	F	Nov.	7.2	1.28	0.33	0.16	0.26
	HA	Nov.	126	18.8	4.16	3.42	7.65
	(L+F)	Nov.	13.5	2.70	0.76	0.26	0.32)
	(L+F+HA)	Nov.	140	21.5	4.92	3.68	7.97)

表9-8 各地点における土壌の交換態塩基の現存量¹⁾

地点	層位	容積重 Mg m ⁻³	乾物重 Mg ha ⁻¹	Ca	Mg kmol _c ha ⁻¹	K	Na
苦小牧							
Df	A	0.51	306	13.6	2.3	0.8	0.4
	C	0.90	1710	3.2	0.7	0.7	0.5
	2AC	0.96	768	3.0	0.3	0.3	0.3
	2C	1.08	1836	2.2	0.7	0.7	0.7
	合計		4620	22.0	4.1	2.6	2.0
Cf	A	0.61	427	11.1	2.0	0.8	0.5
	C	0.92	1196	6.1	1.2	0.7	0.6
	2AC	0.98	980	5.4	0.7	0.4	0.5
	2C	1.07	2140	3.2	0.4	0.6	0.9
	合計		4743	25.8	4.3	2.5	2.4
天塩中の峰							
Ak	A	0.27	108	5.2	4.4	0.9	1.6
	Eg	1.21	1573	14.6	41.7	2.5	5.8
	Bg	0.83	1162	28.5	208.3	2.1	7.3
	Cg	0.95	1805	35.9	359.6	2.2	11.4
	合計		4648	84.2	614.0	7.7	26.1
N-Ss	A	0.26	390	20.0	19.0	5.4	2.5
	Eg	1.26	2079	20.4	47.6	3.3	4.6
	Bg	1.06	848	10.1	58.6	0.6	1.8
	Cg	1.07	1124	13.4	188.0	0.7	2.7
	合計		4441	63.8	313.2	10.0	11.5
天塩清川							
Td	A	0.23	69	1.7	1.0	0.3	0.2
	AE	0.66	594	1.4	2.0	1.7	1.1
	B	0.84	1344	5.4	12.1	5.1	3.0
	C	0.70	1540	9.3	16.2	4.0	4.2
	合計		3547	17.8	31.2	11.0	8.4
K-Ss	A	0.46	322	7.7	3.8	1.7	0.9
	AB	0.73	657	11.3	6.0	2.4	1.4
	B	0.86	1032	24.3	15.5	2.6	2.3
	C	0.78	1716	43.4	30.2	4.1	4.5
	合計		3727	86.7	55.6	10.8	9.0

1) 深さ50cmまでの現存量

表9-9 各林分におけるリターフォールによる元素の還元量

	乾物重 Mg ha ⁻¹ y ⁻¹	Ca	Mg	K	Na	N	S
			kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹				
地点Df	2.9	2.68	1.03	0.35	0.09	2.56	0.19
地点Cf	3.6	0.77	0.31	0.07	0.08	1.39	0.19

表9-10 道北の森林生態系におけるリターフォールによる元素還元フラックス
(Hardiwinoto, 1991: Hardiwinoto et al., 1991: 春木・呉, 1993))

樹種	乾物重 Mg ha ⁻¹ y ⁻¹	Ca	Mg	K	N
			kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹		
ミズナラ	3.4	1.58	0.20	0.14	1.95
シラカンバ	3.0	1.18	0.35	0.14	2.20
トドマツ	3.5	1.49	0.22	0.11	2.03
アカエゾマツ	3.7	n.d	n.d	n.d	2.01
広葉樹林 ¹⁾	0.3-3.3	n.d	n.d	n.d	0.30-1.35
トドマツ	1.3	n.d	n.d	n.d	0.76

1)ミズナラ林, シラカンバ林, ケヤマハンノキ林, ヤナギ林, ダケカンバ林

表9-11 各林分における樹木による元素吸収フラックスの内訳

		Ca	Mg	K	Na	N	S
		kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹					
地点Df	LF	2.68	1.03	0.35	0.09	2.56	0.19
	LI	0.13	0.11	0.43	0.00	0.00	0.06
	△Wn	2.71	0.32	0.32	0.05	1.75	0.12
	RT	0.11	0.02	0.02	0.01	0.19	0.04
	U	5.63	1.48	1.12	0.15	4.46	0.41
地点Cf	LF	0.77	0.31	0.07	0.08	1.39	0.19
	LI	0.00	0.12	0.32	0.00	0.00	0.02
	△Wn	0.66	0.25	0.29	0.06	2.16	0.14
	RT	0.01	0.01	0.00	0.00	0.31	0.06
	U	1.44	0.69	0.68	0.14	3.86	0.41

LF; 落葉落枝による土壌への還元フラックス

LI; 林冠からの溶出フラックス

△Wn; 葉以外の植生への蓄積フラックス

RT; 根の枯死による土壌への還元フラックス

U; 植生の元素吸収フラックス(U=LF+LI+△Wn+RT)

あった。地点Cfでは窒素の吸収フラックスが最も大きく、それに続いて $\text{Ca} > \text{Mg} = \text{K} > \text{S} > \text{Na}$ であった。両地点ともNaの吸収フラックスは $0.15 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ 以下の小さい値を示した。両地点間を比較するとSとNaを除いて地点Dfの元素吸収フラックスの方が明らかに大きい値を示した。特にCa吸収フラックスの差が顕著であり、地点Dfの $5.6 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ に対して地点Cfではその約1/4の $1.4 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ に過ぎなかった。道内における森林の元素吸収フラックスの報告は少ないが、河田(1989)のまとめによると、わが国における森林の年間Ca吸収フラックスは広葉樹林で $2.8 \sim 11.3 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ 、針葉樹林で $1.5 \sim 7.3 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ の範囲にあり、N吸収フラックスは広葉樹林、針葉樹林でそれぞれ $3.0 \sim 7.7$ 、 $1.3 \sim 8.6 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ の範囲にあった。

地点Dfでは地点Cfより植生の乾物現存量が大きかったが(表9-4)、リターフォールによる乾物重(表9-9)やNPP(表9-6)は地点Cfの方が大きかった。したがって、Caをはじめとする元素の吸収フラックスが地点Dfで地点Cfより大きい値を示したのは生態系の乾物蓄積量の違いというよりも樹種の違いによると考えられる。

(2) 森林生態系の物質収支

表9-12には土壌系の物質収支を示した。土壌系への物質の入力はリターフォール(LF, 表9-9)、林内雨(Tf)および樹幹流(Sf)であり(第7章, 表7-3)、系外への物質流出は植生による吸収フラックス(U, 表9-11)とC層からの土壌浸透水によるイオン排出フラックス(EX, 第8章, 表8-4の塩素収支法の値を用いた)から構成される。したがって、土壌系の物質存在量の増減(Δ_{soil})は

$$\Delta_{\text{soil}} = (\text{LF} + \text{Tf} + \text{Sf}) - (\text{U} + \text{EX}) \quad (7)$$

として示される。地点Dfにおける物質流入のうちLFとTf+Sfを比較すると、Ca、Mgおよび窒素は有機体(LF)として流入する割合が大きく、K、NaおよびSはイオン(Tf+Sf)として流入する割合が大きかった。一方、地点Cfでは窒素を除いた全ての元素はイオン(Tf+Sf)として流入する割合が大きかった。物質の流出についてUとEXを比較すると、地点DfではCa、Mg、Kおよび窒素はイオンとしての排出(EX)より植生による吸収(U)の方が割合が大きく、NaとSはイオンとしての排出(EX)が優勢であった。地点CfもCaを除いては地点Dfとほぼ同じ傾向にあった。地点Cfにおける土壌系からのCa流出はイオンとしての排出(EX)が優勢であった。土壌系での Δ_{soil} は全ての元素について負の値を示し、地点Dfの方がやや大きかった。

表9-13には地点Df、Cfにおける土壌-植物系の物質収支を示す。系への入力は降雨(雪)による湿性沈着フラックス(Dw)とガスやエアロゾルなどによる乾性沈着フラックス(Dd)から構成される。DwとDdについては第4章と第7章で既に述べた。系外への流出は前章で計算したC層からの元素排出フラックス(EX)による(表8-4の塩素収支法による値を用いた)。したがって表9-13中の Δ_{p} は

表9-12 各林分における土壌系の物質収支

		Ca	Mg	K	Na	N	S
		kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹					
		地点Df(広葉樹林)					
流入 ¹⁾	LF	2.68	1.03	0.35	0.09	2.56	0.19
	Tf+Sf	0.80	0.42	0.57	1.18	0.37	0.85
	合計	3.48	1.45	0.92	1.27	2.93	1.04
流出 ²⁾	U	5.63	1.48	1.12	0.15	4.46	0.41
	EX	1.22	0.40	0.17	1.66	0.09	1.18
	合計	6.85	1.88	1.29	1.81	4.55	1.59
Δ_{soil} ³⁾		-3.37	-0.43	-0.37	-0.54	-1.62	-0.55
		地点Cf(ストローブマツ林)					
流入	LF	0.77	0.31	0.07	0.08	1.39	0.19
	Tf+Sf	1.02	0.77	0.67	2.46	0.56	1.56
	合計	1.79	1.08	0.74	2.54	1.95	1.75
流出	U	1.44	0.69	0.68	0.14	3.86	0.41
	EX	3.34	0.49	0.07	2.51	0.43	1.83
	合計	4.78	1.18	0.75	2.65	4.29	2.24
Δ_{soil}		-2.99	-0.10	-0.01	-0.11	-2.34	-0.49

1) LF; リターフォール, Tf+Sf; 林内雨+樹幹流

2) U; 植生による吸収, EX; C層からの排出

3) Δ_{soil} = 流入合計 - 流出合計

表9-13 各林分における土壌-植物系の物質収支

		Ca	Mg	K	Na	NH ₄	NO ₃	ΣN	SO ₄
		kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹							
		地点Df(広葉樹林)							
流入 ¹⁾	Dw	0.58	0.27	0.11	1.03	0.16	0.18	0.34	0.66
	Dd	0.08	0.04	0.02	0.15	0.02	0.03	0.05	0.10
	合計	0.66	0.31	0.17	1.18	0.18	0.21	0.39	0.76
流出 ²⁾		1.22	0.40	0.16	1.66	0.03	0.06	0.09	1.18
Δ_n ³⁾		-0.56	-0.09	-0.01	-0.48	0.15	0.15	0.30	-0.42
		地点Cf(ストローブマツ林)							
流入	Dw	0.57	0.25	0.13	0.95	0.15	0.14	0.29	0.59
	Dd	0.94	0.40	0.21	1.51	0.24	0.22	0.46	0.94
	合計	1.51	0.65	0.34	2.46	0.39	0.36	0.75	1.53
流出		3.34	0.49	0.07	2.51	0.17	0.26	0.43	1.83
Δ_n		-1.83	0.16	0.27	-0.05	0.22	0.10	0.32	-0.30

1) Dw; 湿性降下物, Dd; 乾性降下物

2) 流出 = C層からの排出

3) Δ_n = 流入 - 流出

$$\Delta_n = (Dw + Dd) - EX \quad (8)$$

であり、 Δ_n が正の値を示すということはその元素が土壌-植物系内に正味蓄積されていること示し、 Δ_n が負の値を示すということはその元素が系外へ正味排出されることを示す。地点Dfでは Ca^{2+} 、 Na^+ 、 SO_4^{2-} の Δ_n が負の値を示しており、 Mg^{2+} と K^+ はほぼ収支バランスがとれていた。地点Cfでは NO_3^- 、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} および K^+ の Δ_n は正の値を示し、 Ca^{2+} 、 Na^+ および SO_4^{2-} の Δ_n は負の値を示した。両地点とも Δ_n の負の値は Ca^{2+} で最も大きく、地点Cfの $\Delta_n Ca^{2+}$ は地点Dfの約3.3倍の値を示した。

この違いは両地点間におけるDdによる大気からのCa流入フラックスの違いによってもたらされているが、土壌系収支(表9-12)で示した植生によるCa吸収フラックスの違いが大きいことも関係していると考えられた。年間に土壌-植物系から失われるCa量が深さ50 cmまでに存在する交換態Ca現存量(表9-8)に対する割合は、地点Dfで約1/39、地点Cfで1/14に相当した。土壌に存在する交換態塩基プールは現況の物質循環フラックスに対して十分に大きな容量を持っているといえる。また、両地点とも $\Delta_n N$ は正の値を示しており、大気から供給された窒素が生態系内部の物質循環に取り込まれ、系外への排出を小さくしていると考えられた。

同じ土壌に立地する広葉樹林とストロームマツ林では植生によるCa吸収フラックスの差が森林生態系の物質収支、特に塩基性イオンの系外への排出フラックスに対してかなり影響を及ぼしていると考えられた。言い換えると、広葉樹林では元素の生物地球化学的循環速度が針葉樹林であるストロームマツ林よりも大きく、生態系からの元素の排出といった地球化学的過程に対してその速度を有意に小さくする働きをしていると考えられた。

植生による塩基吸収フラックスの違いは、結果として植生-O層系の塩基蓄積量の違いとなって現れている(表9-4、9-7)。O層に関して言えば、L層とF層に蓄積された塩基量は地点Dfが地点Cfの約1.8倍の値を示している(表9-7)。

本章で述べたように、土壌-植物系内部ではリターフォールや植生による養分吸収、林冠からの溶脱などによる生物地球化学的循環による塩基フラックスは酸性降水物として降水により供給される H^+ (第4章)よりもかなり大きい。したがって、系外から流入する H^+ によって土壌中のイオン環境(特に塩基性カチオン)がどのように攪乱されるのかを調べるためには、植生による養分吸収や林内雨の影響の無い条件下で実験を行うことが必要である。また、本章までで述べたように土壌表層に存在するO層は塩基を大量に蓄積していることから、降水による H^+ に対してO層が鉱質土壌へ流入する酸のバッファーとして重要な役割を担っていることが推定された。したがって、次章以下では物質循環フラックスの異なっていた二地点において土壌が外部からの酸負荷に対してどのような反応を示し、土壌の酸中和機能や緩衝機構が植生によってどのように異なるのかについて述べる。

5. 要約

苫小牧の二地点(地点Df, Cf)において土壌-植物系の物質存在量および循環フラックスを推定した。地点Df, Cfにおける植生の乾物蓄積量はそれぞれ232, 83 Mg ha^{-1} と地点Dfの方が大きい値を示したのに対し、乾物の年純一次生産量(NPP)は地点Df, Cfでそれぞれ13, 17 $\text{Mg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ と地点Cfの方がやや大きい値を示した。植生による物質吸収量はリターフォールによる物質還元量(LF), 林冠からの物質溶脱量(LI), 葉以外の物質蓄積量(ΔW_n)および根の枯死による還元量(RT)の合計として計算した。植生による窒素や硫黄の吸収フラックスは地点間であまり差が認められなかったのに対し、アルカリ, アルカリ土類金属(以下, 塩基)の吸収フラックスは地点Dfの方が大きい値を示しており, 特にCaで顕著であった。この塩基吸収フラックスの差は土壌からの塩基排出フラックスの地点間差と密接な関係があると考えられた。つまり, 広葉樹林である地点Dfは土壌系内部で増加した塩基フラックスを植生による吸収によって小さくし, 結果として林冠-O層系の塩基蓄積量を大きくした。一方, 針葉樹林である地点Cfは植生による塩基吸収フラックスが小さいために土壌からの塩基排出フラックスが大気からのインプットよりも大きい値を示した。

第10章 酸物質の流入に対する森林土壌の酸緩衝能

1. はじめに

前章まででみたように苫小牧の地点DfとCfでは土壌-植物系の物質循環において植生による土壌からの塩基吸収フラックスは明らかに異なり、Caにおいて特に顕著だった。本章ではそのような異なる物質循環の場にある土壌が酸に対してどのような緩衝機構を有しているかを明らかにするために現地実験を行い、特に林床に存在するO層の機能について詳しく解析した。本章では土壌自体の酸緩衝能を調べるために、植生の影響を排除したプロット内で行った実験の結果を述べる。

2. 実験方法

地点Dfと地点Cfにおいて側面をビニルシートで遮水し、植物根の影響を排除した無攪乱プロット(70×70 cm, 深さ0.6 m)を設け、有効直径10cmの平板型テンションライシメーターを層別(O層直下, A層直下, 2C層内)に埋設した(図10-1)。ライシメーターのテンションは重力排水を効率的に採取できるような圧力に調節した。このライシメーターを用いて、酸の合計添加量を2段階(0.12, 0.40 kmol. ha⁻¹)に設定した溶脱実験(それぞれ実験Ⅰ, 実験Ⅱ)を行った。実験Ⅰは盛夏期(7月下旬)に、実験Ⅱは落葉直後(11月上旬)に行った。実験Ⅰ, Ⅱで用いたライシメーターは6月下旬に設置した。O層については実験Ⅰ, Ⅱよりもサンプリングスケールを大きくしたライシメーターを用いた実験を別に行った(実験Ⅲ)。実験Ⅲでは各地点のO層直下に側面から挿入した30×60 cmの波板型(3 cm毎に20個の溝が波型に存在する)テンションフリーライシメーター(図10-2)を用いた溶脱実験を7月下旬に行った。実験Ⅲのライシメーターにおける波板は3 cm毎に20個の溝が波型に存在するもので、これによってO層からの排出水を3×30 cmの短冊状の面積毎に分画採取することができる。実験Ⅲのライシメーターも設置から実験までに約1カ月間の間隔を置いた。

全ての実験においてかん水溶液はpH=4の希硫酸を用いた。したがって、酸の添加量はかん水する水量によって調節した。表10-1に示したように、実験Ⅰでは合計0.12 kmol. ha⁻¹のH⁺を2回に分けてかん水した。かん水量は1回目が40 mmで2回目が80 mmであった。1回目のかん水の数日後、2回目のかん水を行った。実験Ⅱでは合計0.40 kmol. ha⁻¹のH⁺を5回に分けて80 mm毎に3日間隔でかん水した。実験Ⅲは合計0.16 kmol. ha⁻¹のH⁺を3回に分けて50~60 mm毎に1日間隔でかん水した。実験Ⅲでは各日のかん水をさらに5~6回に分けて行った(20分間隔)。かん水量はプロット内に直径約2.5 cmの濾斗をつけたポリ容器を置いて測定した。また、実験Ⅰでは深さ毎(10, 20, 40, 50 cm)の土壌水分吸引圧をテンシオメーター法を用いて経時的に測定した(図10-1)。

土壌浸透水の来歴について考察するために、トレーサーとしてD₂Oを用いた(実験ⅠではNaBrも併用)。実験Ⅰでは40 mmのかん水直前にD₂O, NaBr(D₂O; 約0.6%,

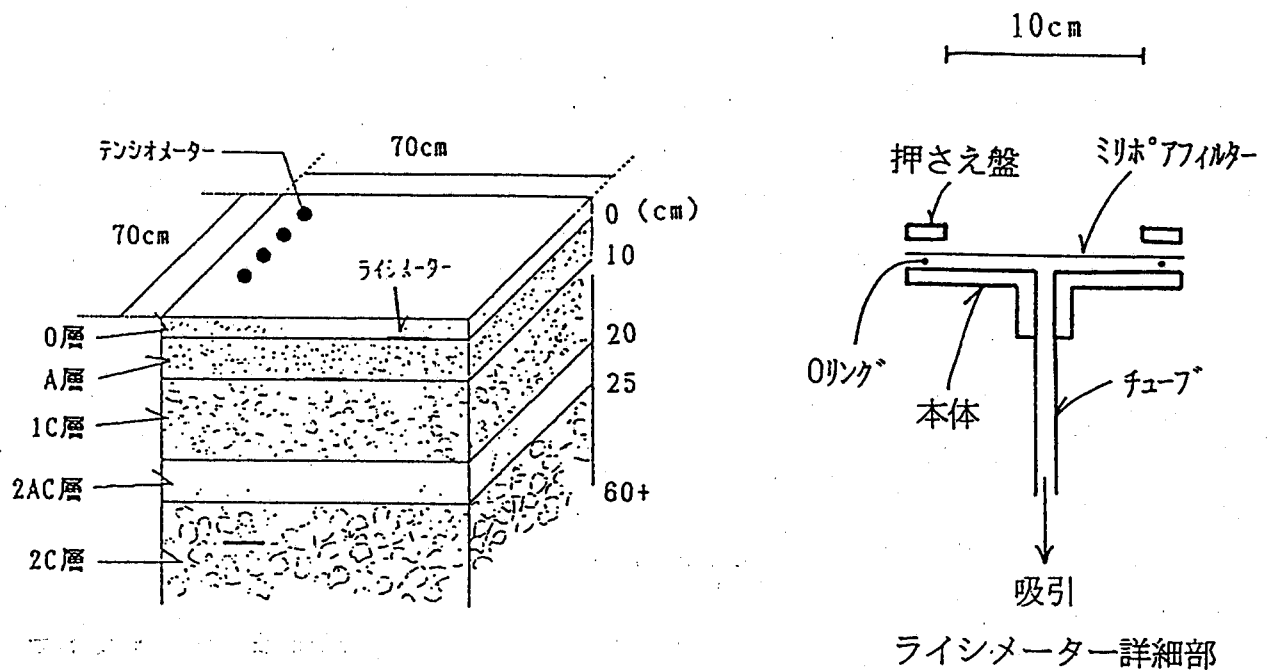


図10-1 実験Ⅰ，Ⅱにおける現地ライシメーターの構造

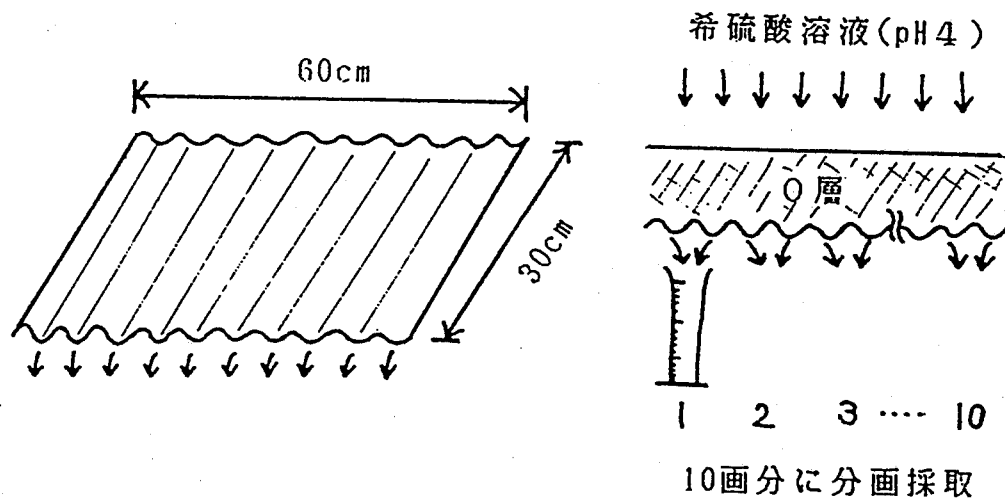


図10-2 実験Ⅲで用いたライシメーターの概要

表10-1 現地溶脱実験における希硫酸(pH=4)のかん水条件

	実験Ⅰ	実験Ⅱ	実験Ⅲ ¹⁾
かん水量(mm)	120	400	150
回数	2	5	3
かん水強度(mm hr ⁻¹)	40, 80	80	30
合計H ⁺ 量(kmol. ha ⁻¹)	0.12	0.40	0.16
実験の実施時期	7月下旬	11月上旬	7月下旬

1)実験Ⅲは0層のみを対象

NaBr; 約7.0 mol. L⁻¹)水溶液を約5 mmかん水した. 実験Ⅲでは1回目のかん水の前日に約2.5%のD₂O溶液を約5 mmかん水した. D₂O濃度の分析は佐久間ら(1989)の方法を用いた.

土壌浸透水を採取する時点は実験によって異なった. 実験Ⅰでの土壌浸透水の採取は散水中と散水後, 浸透水の流出に応じて随時行った. 実験Ⅱにおける土壌浸透水の採取はかん水後約2時間および次回のかん水直前に行った. 実験Ⅲにおける土壌浸透水の採取は各かん水の10分後に行った.

土壌浸透水の採取時に量を測定し, 実験室で主要イオン濃度の分析を行った(pH, EC, Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺, HCO₃⁻, Br⁻, Cl⁻, NO₃⁻およびSO₄²⁻). なお, 実験Ⅰ, Ⅱでは得られた浸透水が少量であったため, 実験ⅠではHCO₃⁻とNH₄⁺, 実験ⅡではNH₄⁺濃度の分析を行うことができなかった.

3. 結果

(1)土壌水分吸引圧およびO層浸透水のD₂O濃度変動

図10-3に実験Ⅰにおける土壌水分吸引圧(kPa)の経時変動を示した. 図中の矢印はかん水を行った時点を示す. 降雨開始直後に土壌水分吸引圧は急激に低下するが, すぐに回復して処理後約1日から2日以降は2~3 kPaの間で安定して推移した. 図10-4には実験ⅢにおけるO層浸透水中のD₂O濃度の変動を示した. 両地点ともかん水直後に濃度が高く, 地点Cfの方が高い値を示した. 2回目のかん水以降は地点間の濃度差はほとんど認められなかった.

(2)各層土壌浸透水の流出率, 水量による加重平均pHおよびイオン濃度

表10-2に実験Ⅰ~Ⅲにおける各層土壌浸透水の流出量及び採取水量による加重平均pHとイオン濃度を示した. O層浸透水の流出率は地点Dfで44~93%, 地点Cfで26~51%と実験間でかなりばらついた. 地点DfにおけるA層浸透水の流出率は実験Ⅰ, Ⅱともに100%を超える高い値を示した. また, 地点CfのC層土壌浸透水は実験Ⅰ, Ⅱともに20%以下の小さい値を示した.

全ての実験においてO層浸透水の採取水量による加重平均pHはかん水のpH(=4.0)に対して, 統計的に有意に高い値を示した(P<0.001). 実験Ⅰ, ⅡにおいてA層浸透水の加重平均pHは地点間の差が小さかった(表10-2). A層浸透水pHとO層浸透水pHを比較すると地点Dfでは実験Ⅰ, ⅡともにO層>A層であるのに対し, 地点Cfでは両実験ともO層<A層であった. 両地点ともC層浸透水の加重平均pHは実験Ⅰ, ⅡともにA層浸透水pHより高く, 地点間の差は小さかった.

両地点ともO層浸透水における主要なカチオンはCa²⁺であり, 全ての実験について同様に認められた. 実験ⅡではⅠ, Ⅲと比べてCa²⁺濃度がやや低かったのはかん水強度が実験Ⅰ, Ⅲより高かったことによると考えられる. 実験ⅠにおいてO層浸透水中のNa⁺濃度が実験Ⅱ, Ⅲより顕著に高かったのは実験Ⅰで用いたトレーサー

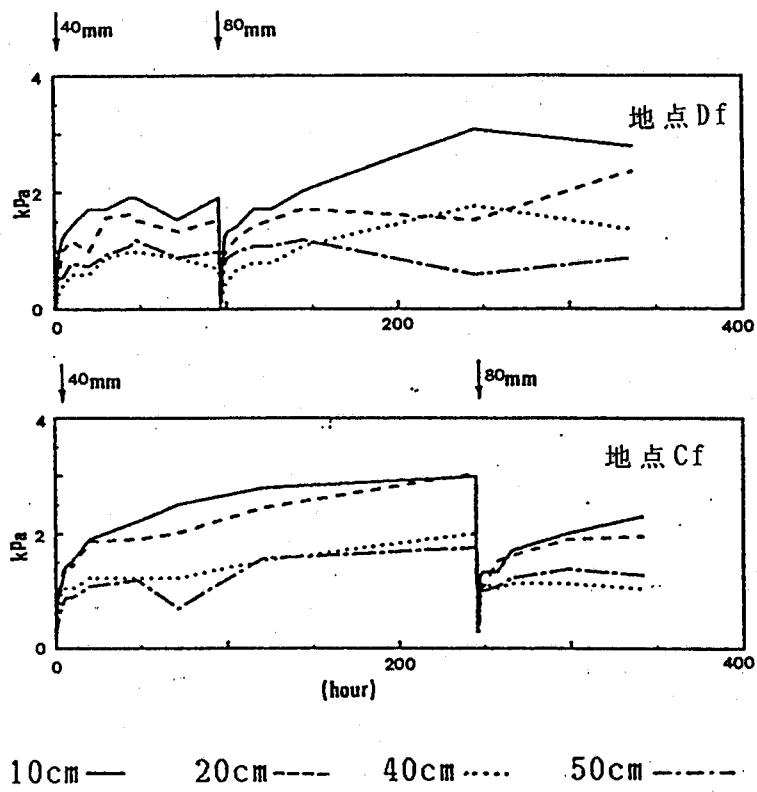


図10-3 実験Ⅰにおける両地点の土壌水分吸引圧(kPa)の変動
矢印はかん水開始時を示す

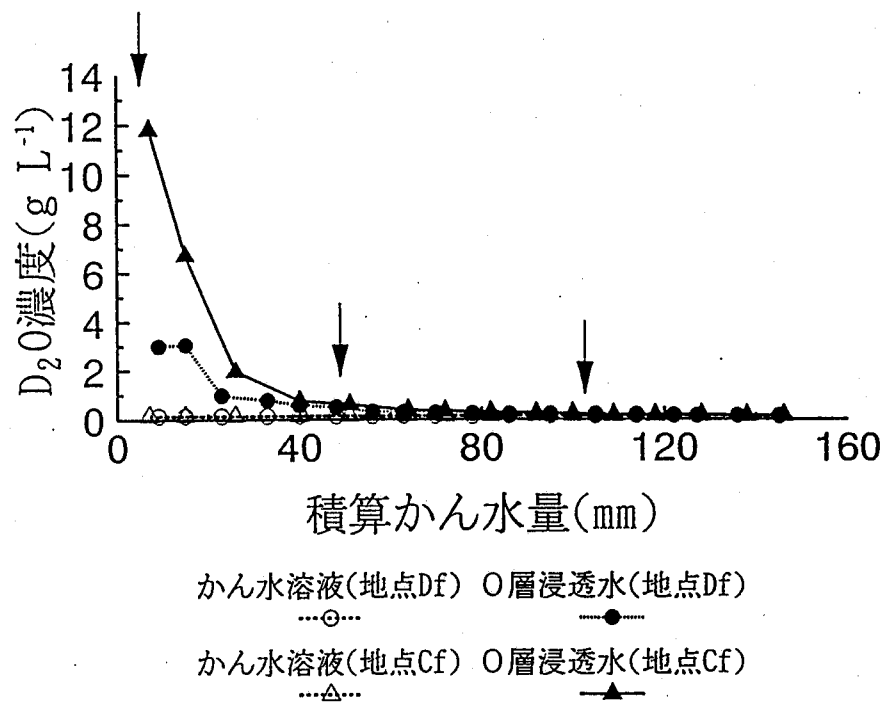


図10-4 実験Ⅲにおける両地点のO層浸透水中 D_2O 濃度の変動
矢印はかん水開始時を示す

表10-2 各実験における各層土壌浸透水の流出水量及び採取水量による加重平均pH, イオン濃度

層位	実験	散水量 (mm)	流出水量 ¹⁾ (mm)	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Br ⁻
(μmol. L ⁻¹)															
<u>地点Df</u>															
O層	I	120	53(44)	6.53	0	107	45	18	212	n. d	n. d	19	1	92	154
	II	400	374(93)	5.59	3	72	29	19	33	n. d	57	20	3	87	0
	III	150	76(52)	5.19	6	101	41	42	32	46	107	11	11	122	0
A層	I	120	213(178)	5.86	1	170	81	30	340	n. d	n. d	66	56	106	250
	II	400	452(113)	5.07	9	131	46	46	99	n. d	58	64	65	106	0
C層	I	120	82(68)	6.48	0	178	75	16	296	n. d	n. d	148	22	251	54
	II	400	367(92)	5.88	1	370	158	45	151	n. d	101	176	362	151	0
<u>地点Cf</u>															
O層	I	120	31(26)	5.12	8	196	104	55	459	n. d	n. d	23	3	84	651
	II	400	133(33)	5.15	7	64	35	16	56	n. d	41	31	9	95	0
	III	150	74(51)	5.20	6	140	44	57	97	17	104	36	43	129	0
A層	I	120	116(96)	5.81	2	134	50	11	302	n. d	n. d	42	60	93	211
	II	400	380(95)	5.28	5	167	44	39	118	n. d	53	71	109	119	0
C層	I	120	20(17)	6.88	0	179	54	13	180	n. d	n. d	164	18	207	40
	II	400	53(13)	6.02	1	417	94	8	485	n. d	106	245	551	149	0

1)()内の数字は流出率(%; 流出水量÷散水量×100)

(NaBr)の影響である。O層浸透水においてかん水した SO_4^{2-} を除いたアニオンで主要なものは HCO_3^- であった(実験Ⅰでは HCO_3^- は分析していない)。両地点ともA層土壤浸透水において主要なカチオンはO層と同様に Ca^{2+} であった。また両地点とも実験Ⅰ、ⅡにおいてA層浸透水の NO_3^- 濃度はO層浸透水の NO_3^- 濃度より高かった。C層浸透水における主要なカチオンも Ca^{2+} であるが地点Cfの実験Ⅱでは Na^+ も高い値を示した。C層浸透水の陰イオンでは HCO_3^- および NO_3^- 濃度が高かった。

(3)各層土壤浸透水のpHおよびイオン濃度変動

図10-5には実験Ⅱにおける各層浸透水のpH変動を示した。O層では地点間の差が明らかであり(地点Df>Cf)、かん水が進むにつれてその差が小さくなった。A層およびC層浸透水pHには地点間の差がほとんど認められなかった。図には示していないがこれらの傾向は実験Ⅰにおいても認められた。

図10-6には実験ⅢにおけるO層浸透水のpH変動を示した。それぞれの点は流出水量で加重した10分画の平均値を表し、横軸は毎回のかん水量を積算した積算かん水量(mm)で示した。1回目のかん水において、pHは明らかに地点Cf<地点Dfであったが、回が進むにつれて両地点のpH差は不明瞭になり、3回目のかん水になると地点DfのpH変動が大きくなった。図10-7には図10-6と同様に実験ⅢにおけるO層浸透水の陽イオン、陰イオン濃度の変動を示した。地点Dfの1回目のかん水では HCO_3^- が主要な陰イオンであったが、1から2回目にかけて著しく低下し、2回目以降は SO_4^{2-} が主要な陰イオンになった。一方、地点Cfの1回目処理では SO_4^{2-} と HCO_3^- が主要な陰イオンで、 Cl^- 濃度も初期に高かった。2回目には HCO_3^- 濃度が低下し、それに替わって NO_3^- 濃度が1回目と比べて上昇した。3回目には HCO_3^- 濃度がさらに低下し、 NO_3^- は上昇傾向を持続した。両地点とも SO_4^{2-} の濃度はあまり変動しなかった。地点DfにおけるO層からの浸透水は当初から比較的高い NH_4^+ 濃度を示したが、3回目のかん水においてはさらに上昇し、 Ca^{2+} とほぼ同じ濃度水準に達した。また、地点Cfの2回目のかん水の半ばには Ca^{2+} の鋭いピークが認められた。そのときにイオンバランスも相当崩れた(約 $0.2\sim 0.3\text{ mmol}\cdot\text{L}^{-1}$)。

実験ⅠにおけるA層浸透水のpH、 Ca^{2+} および NO_3^- 濃度の変動を図10-8に示す。2回目のかん水開始時期が地点間で異なるのは自然降雨によって地点Cfの2回目のかん水が遅れたためである。なお、自然降雨の流入は土壤表面をビニールシートで遮蔽することで防いだ。両地点ともA層浸透水pHと Ca^{2+} 濃度は同様の変動傾向を示した。また、両地点とも実験ⅠにおけるO層浸透水の NO_3^- 濃度は $10\mu\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$ 以下の小さい値で推移したのに対し、A層浸透水の NO_3^- 濃度は Ca^{2+} 濃度と同様に時間と共に上昇傾向を示した。

4. 考察

(1)O層通過時のpHおよびイオン濃度の変動に影響を及ぼす要因

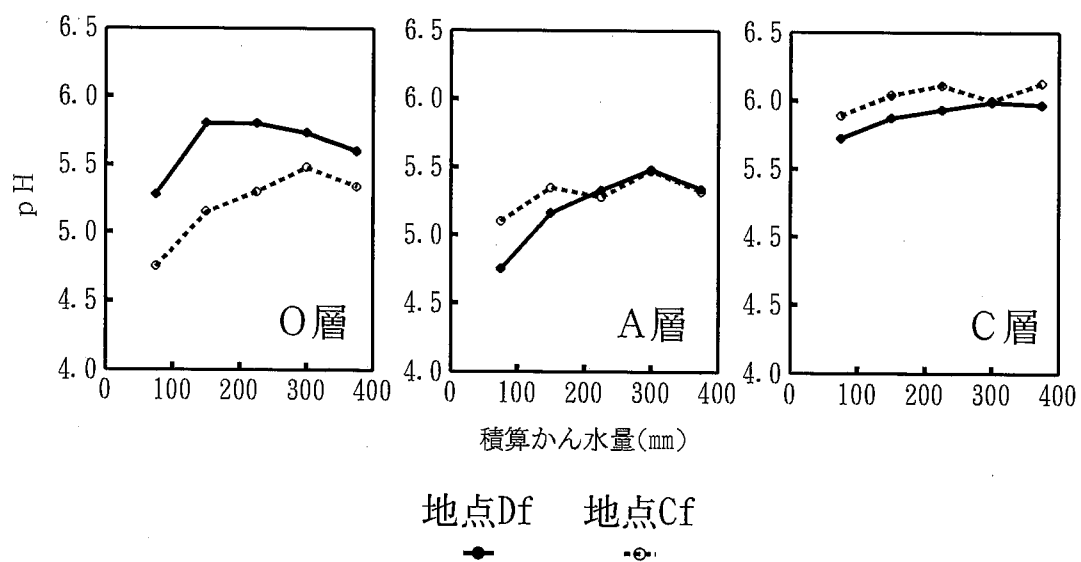


図10-5 実験Ⅱにおける各層土壌浸透水のpH変動

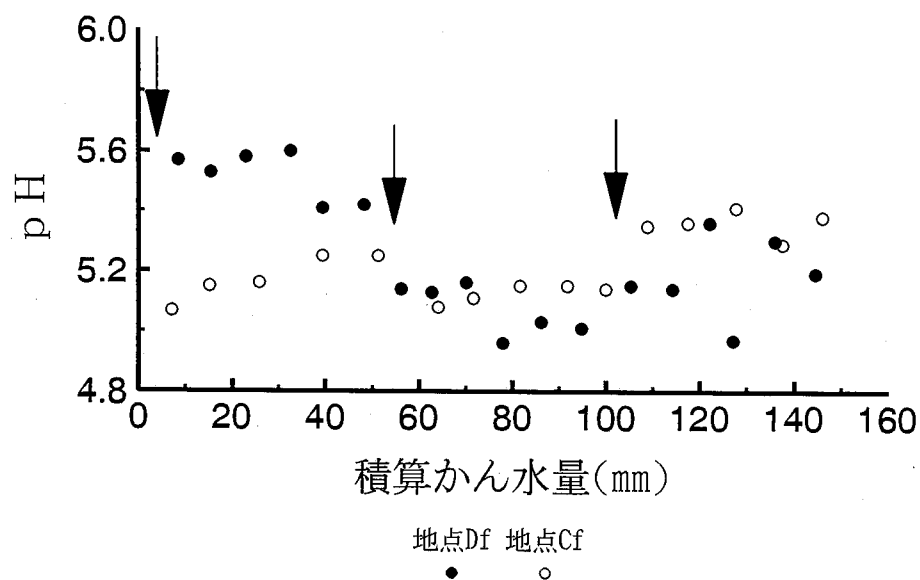


図10-6 実験ⅢにおけるO層浸透水pHの変動
矢印はかん水開始時間を示す

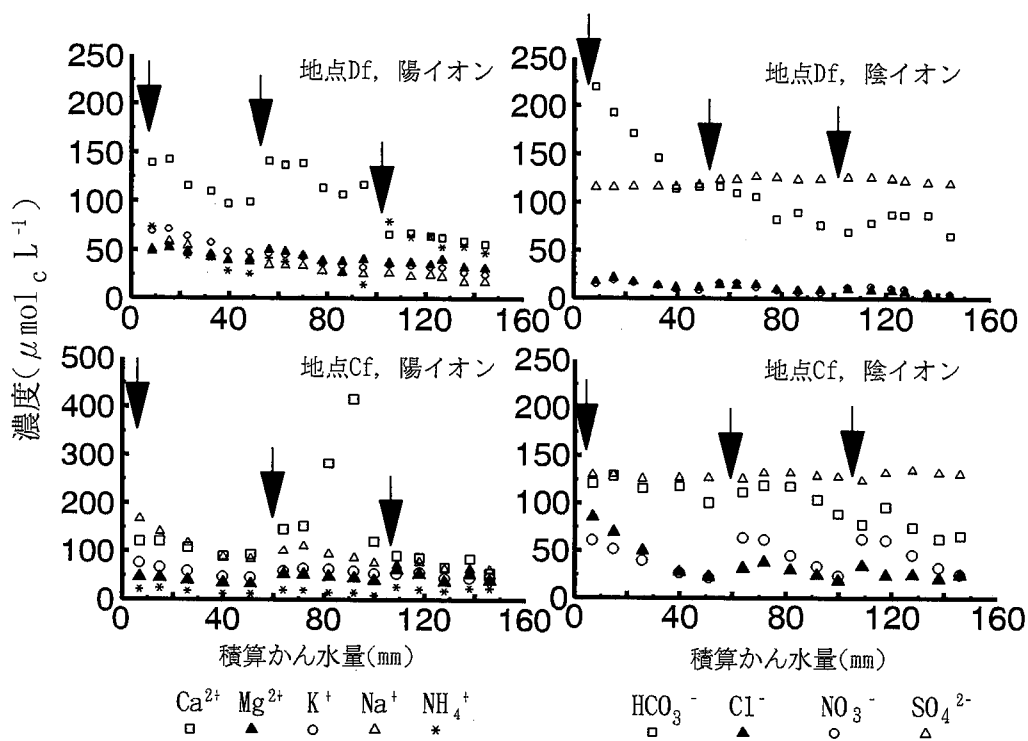


図10-7 実験ⅢにおけるO層浸透水のイオン濃度変動
矢印はかん水開始時間を示す

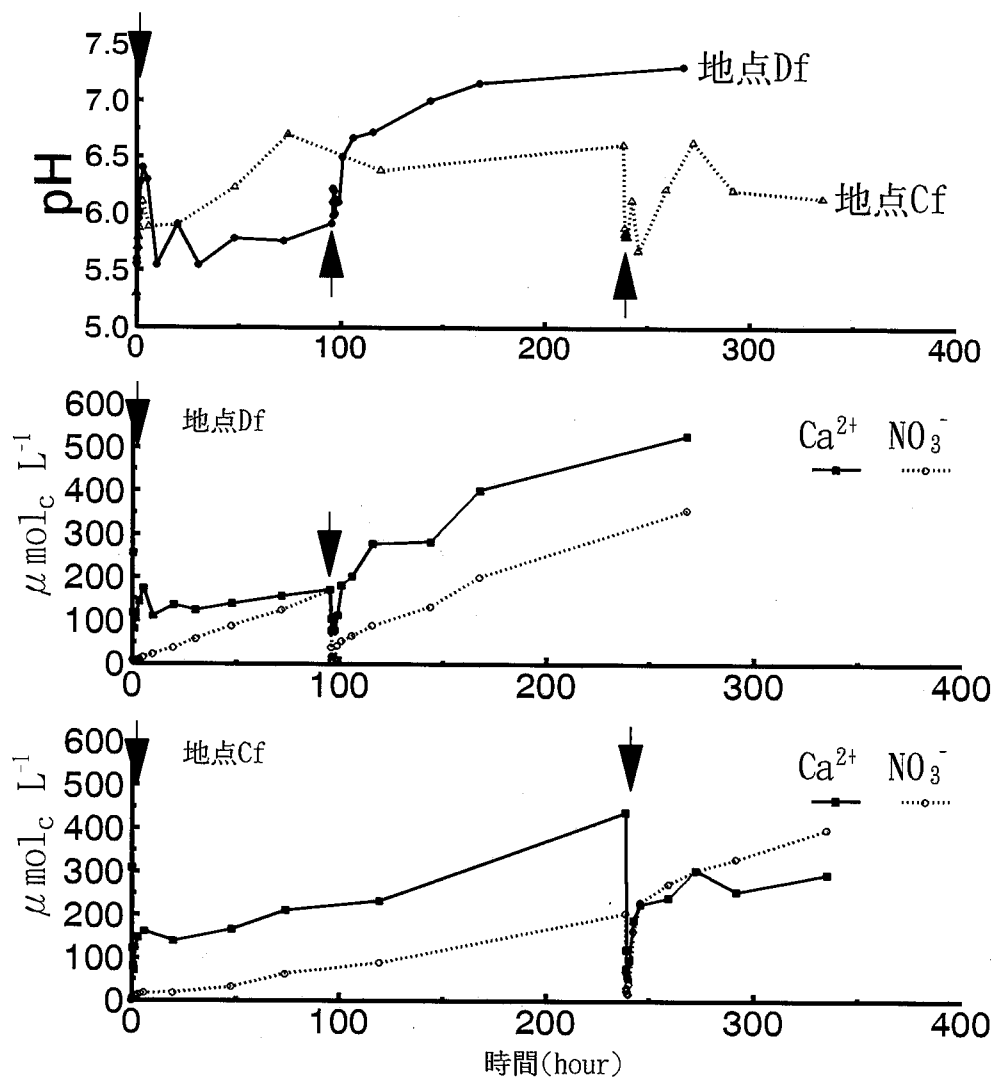


図10-8 実験 I におけるA層浸透水中のpH, Ca およびNO 濃度の経時変動
矢印はかん水開始時を示す

O層浸透水のpHは全ての実験においてかん水した溶液のpHより統計的に有意に上昇しており(表10-2), 流入する酸負荷に対してO層が十分に大きな酸中和容量を有していることを示していた。O層通過時のpH上昇と Ca^{2+} を主とする塩基濃度および HCO_3^- の濃度上昇は密接に関連していると考えられた。全ての実験において, 地点CfのO層浸透水pHは地点Dfより低く, かん水初期においてその差がより顕著であった(図10-5, 10-6)。また, 地点CfにおけるO層浸透水 SO_4^{2-} 濃度や NO_3^- 濃度は地点Dfよりやや高く, かん水初期においてより顕著だった(表10-2, 図10-7)。これらの事実は地点CfにおけるO層浸透水pHがO層に蓄積されていた SO_4^{2-} や NO_3^- の影響を強く受けていることを示唆している。

実験Ⅲにおいて, 地点DfにおけるO層浸透水中の NH_4^+ 濃度は3回目のかん水処理においてはさらに上昇し, Ca^{2+} とほぼ同じ濃度水準に達した(図10-7)。他の陽イオン濃度はあまり変化していないことから, 地点DfのO層からの浸透水pHが2-3回目間にやや上昇し, 3回目の変動が激しかったのは, NH_4^+ の放出と密接に関係していると考えられる。また, 実験Ⅲの地点Cfの2回目の処理の半ばにおける Ca^{2+} の鋭いピークとそれに伴うイオンバランスの崩れは, O層から有機酸が溶出していることを示唆している。

O層における酸緩衝機構と初期における地点間のO層浸透水pHの違いについてさらに詳しく検討するために, 地点間におけるO層浸透水 D_2O 濃度の差が大きかった(図10-4)実験Ⅲの1回目のかん水におけるO層浸透水の来歴を D_2O 濃度を用いて把握し, O層固相と溶液とのイオンの授受について考察を行った。まず, O層から流出したO層浸透水(Q_3)がO層液相にもともと存在した水(Q_1)とかん水溶液に直接由来する水(Q_2)の合計と考えた(図10-9)。 Q_1 の D_2O 濃度(D_1)はかん水前日に採取したO層浸透水の D_2O 濃度, D_2 , D_3 はかん水溶液およびO層浸透水の D_2O 濃度とすると, 水収支と D_2O の収支は式(1), (2)のように表せる。

$$Q_3 = Q_1 + Q_2 \quad (1)$$

$$Q_1 \times D_1 + Q_2 \times D_2 = Q_3 \times D_3 \quad (2)$$

式(1), (2)から Q_1 と Q_2 の水量を計算した。

O層浸透水によってO層から流出するイオン量(L_3)はO層浸透水のイオン濃度(C_3)と浸透水量(Q_3)から以下のように計算した。

$$L_3(\text{mmolc m}^{-2}) = C_3(\mu\text{molc L}^{-1}) \times Q_3(\text{mm}) \times 10^{-3} \quad (3)$$

Q_1 によるイオン濃度(C_1)はかん水前日に採取したO層浸透水のイオン濃度を用いた。 Q_2 によるイオン濃度(C_2)はかん水した溶液のイオン濃度である。 Q_1 , Q_2 によるイオン量(L_1 , L_2)も式(3)と同様に計算でき, O層からのイオン流出量(L_3)は式(4)のように表せる(図10-10)。

$$L_3 = L_1 + L_2 + \angle \quad (4)$$

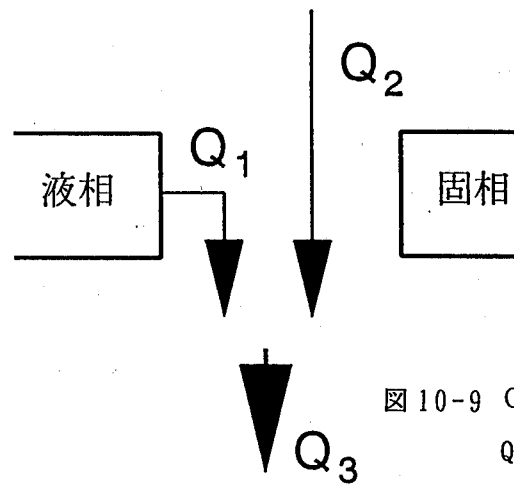


図10-9 O層を通過する際の水の分配過程
 Q_1 , O層液相にもともと存在した水
 Q_2 , かん水溶液に直接由来する水
 Q_3 , O層から流出したO層浸透水

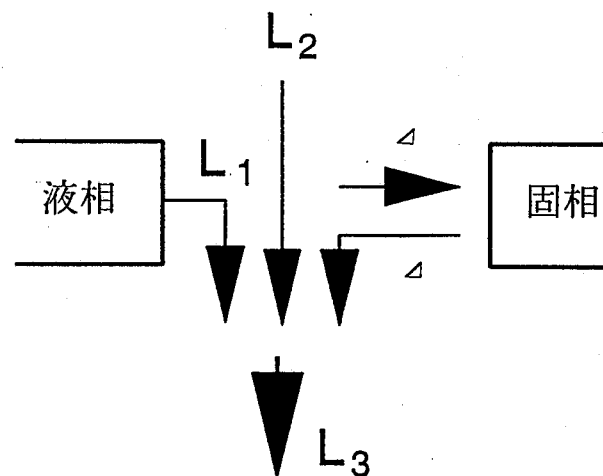


図10-10 O層通過時のイオンの動態

L_1 , もともとO層液相に存在したイオンに由来するイオン量
 L_2 , かん水溶液に由来するイオン量
 L_3 , O層からの流出する合計イオン量
 $L_3 = L_1 + L_2 + \Delta$

ここで Δ はO層固相と溶液とのイオンの授受を示しており、 Δ が正の値を示せば、そのイオンはO層固相から放出されたことを示し、 Δ が負の値を示せばO層固相に取り込まれたことを示す。

計算の結果得られた L_1 、 L_2 、 L_3 および Δ を表10-3に示した。両地点とも H^+ の Δ は負の値を示し、O層固相に H^+ が取り込まれていることを示していた。また、両地点とも H^+ と SO_4^{2-} を除いてO層から流出したイオン(L_3)の大部分はO層固相から放出されたもの(L_2)であった。このことから、両地点ともO層における酸中和の主要なメカニズムは溶液中の H^+ のO層固相への取り込みと Ca^{2+} を主とする塩基性イオンの放出であると考えられた。また、地点Cfは地点Dfと比較して L_1 の値が大きく、 NO_3^- と SO_4^{2-} は地点Dfのそれぞれ9.2、5.6倍の値を示した。地点CfではもともとO層に蓄積された NO_3^- や SO_4^{2-} が初期に溶液中に放出されることによって、初期の浸透水pHが地点Dfよりも低い値を示したものと考えられた。

(2) O層における水およびイオン流出量

実験Ⅲにおける両地点の分画別流出量を表10-4に示す。流出水量は分画毎によって大きく変動しており、その変動係数は地点Dfで38%、地点Cfで42%であった。地点Dfの2、3、9分画、地点Cfの3、5、10分画などは1~3回目のかん水を通じて高い流出率を示し、固定した水みちの関与を示唆している。また、地点Dfの4、7分画、地点Cfの4、5、10分画などはかん水ごとに流出率がかなり大きく変化しており、かん水の都度水みちがつながったり、閉塞したりしていることを示唆している。

O層の組成、構造からは、広葉樹林である地点Dfのほうが流出水量の変動係数が大きいと予想されるが、針葉樹林である地点Cfの空間的変動も地点Dfと同様に大きかった。このことは地点CfのO層におけるF層に見られる菌糸膜や疎水化した有機物、特に腐朽落枝などがO層内の水の流れを不均一にしている要因であると考えられる。O層からの流出水量を定量的に明らかにするためにはO層内部あるいは表面を水平移動する水量についても研究する必要があると思われる。

表10-5には実験Ⅲにおける両地点のO層からのイオン流出量を示した。両地点とも H^+ の負荷に対して、その影響はO層でほぼ完全に吸収されていた。流出した主要な陽イオンは両地点とも Ca^{2+} であった。地点Dfの3回目において Ca^{2+} の流出量が減少したのに伴って、 NH_4^+ の放出量が増加した。陰イオンは両地点とも SO_4^{2-} と HCO_3^- が主要イオンであった。 SO_4^{2-} は1回目のかん水において地点間の差が大きく(地点Cf>Df)、pHの違い(地点Cf<地点Df)をよく反映していた。また、かん水回数が増す毎に地点Cfの Na^+ 、 Cl^- 、 HCO_3^- の流出量は減少していた。地点Dfにおいても回数が増す毎に HCO_3^- 流出量が減少していた。

約3カ月分の H^+ 負荷($16 \text{ mmol} \cdot \text{m}^{-2} = 0.16 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$)に対して流出した H^+ は小さい値を示し、O層から流出した塩基量($Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+ + Na^+$)は地点Dfで16 mmol。

表10-3 実験ⅢにおけるO層でのイオン動態に関するモデル計算結果

種別 ¹⁾	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
(mmol. m ⁻²)										
地点Df										
L ₁	0.00	0.08	0.03	0.00	0.05	0.06	0.23	0.03	0.02	0.02
L ₂	1.97	-	-	-	-	-	-	-	-	1.97
L ₃	0.07	2.42	0.94	1.24	0.99	0.90	3.42	0.33	0.29	2.44
△	-1.91	2.34	0.91	1.23	0.94	0.84	3.02	0.29	0.27	0.45
地点Cf										
L ₁	0.02	0.16	0.08	0.02	0.39	0.13	0.52	0.20	0.21	0.10
L ₂	2.53	-	-	-	-	-	-	-	-	2.53
L ₃	0.19	3.08	1.15	1.69	3.34	0.49	3.43	1.38	1.10	3.73
△	-2.35	2.92	1.07	1.67	2.96	0.36	2.91	1.17	0.89	1.11

1) L₁ ; もともとO層液相に存在したイオンに由来するイオン量

L₂ ; 散水に直接由来するイオン量

L₃ ; O層浸透水によるイオン量

△ = L₃ - (L₁ + L₂)

表10-4 実験ⅢにおけるO層からの分画別流出水量

散水量		流出水量(mm)												
(mm)		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	平均	std ¹⁾	CV ²⁾
地点Df														
1	48	10	27	35	15	21	14	16	21	31	18	21	8	11
2	46	15	41	43	25	22	17	23	21	46	21	27	11	40
3	50	11	34	40	27	35	16	24	21	48	19	28	11	40
合計	145	35	102	118	67	78	47	64	63	125	58	76		38
% ³⁾		24	71	82	46	54	32	44	44	87	40	52		
地点Cf														
1	51	9	10	46	21	40	34	34	39	15	45	29	13	45
2	49	8	9	38	19	31	28	29	32	18	33	24	10	40
3	46	6	8	34	16	27	25	24	25	16	25	21	8	41
合計	146	24	27	117	56	98	87	87	95	49	103	74		42
%		16	19	80	39	67	60	59	65	33	70	51		

1)標準偏差

2)変動係数

3)流出率(%)=(合計流出量)÷(合計散水量)×100

表10-5 実験ⅢにおけるO層からのイオン流出量

回	地点	水量 (mm)	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	A/C ¹⁾
(mmol. m ⁻²)													
1	Df	21	0.1	2.4	0.9	1.2	1.0	0.9	0.3	3.3	0.3	2.4	0.96
	Cf	29	0.2	3.1	1.1	1.8	3.5	0.5	1.5	3.5	1.2	3.7	0.97
2	Df	27	0.2	3.5	1.2	1.1	0.9	0.9	0.3	2.7	0.3	3.4	0.86
	Cf	24	0.2	5.7	1.2	1.4	2.3	0.3	0.7	2.7	1.1	3.2	0.68
3	Df	28	0.2	1.7	1.0	0.9	0.6	1.7	0.2	2.1	0.3	3.4	0.99
	Cf	21	0.1	1.6	1.0	1.1	1.5	0.4	0.5	1.6	0.9	2.7	1.00
合計	Df	76	0.5	7.6	3.1	3.2	2.5	3.5	0.9	8.1	0.9	9.3	0.93
	Cf	74	0.5	10.4	3.3	4.3	7.2	1.3	2.7	7.8	3.2	9.6	0.86

1)Σアニオン/Σカチオン

m^{-2} , 地点Cfで25 $\text{mmol} \cdot \text{m}^{-2}$ であった。地点Dfでは流入した H^+ とほぼ同じ量の塩基がO層から流出したが、地点Cfでは流入 H^+ よりも大きい値を示しており、この差はO層内部での H^+ 生成あるいは他のアニオンと随伴して流出した塩基量を示すものと考えられる。O層から流出した塩基量は各地点の11月におけるL層とF層に蓄積された塩基量(第9章)の約1/45, 1/16に過ぎなかった。このことは流入する H^+ に対して酸中和のために交換放出される塩基が両地点のO層に大量に存在することを示している。すなわち、林床には毎年、新鮮落葉がリターフォールによって供給されることを考えると、O層の酸緩衝容量が現況の H^+ 負荷量に対して十分に大きいものであると考えられた。

(3) 鉱質層位における酸の生成とそれに対する土壌の緩衝機構

実験Iにおける地点DfのA層浸透液pHは(図10-8)、塩基や陰イオンの濃度変動に伴って次のような理由によって変動したと推測される。まず、かん水直後の一時的なpH低下は散水処理の影響というよりも、もともとA層に存在した土壌溶液のpHが低かったことによると考えられる(第8章, 表8-1)。その後のpHの一時的上昇は、 Ca^{2+} 濃度の上昇と密接な関係にあった(図10-8)。 Ca^{2+} 濃度の変動は NO_3^- 濃度と密接な関係があることから、図10-11に両地点の NO_3^- 濃度と Ca^{2+} 濃度の関係を示す。O, A層に蓄積された NO_3^- の影響が少ないと考えられる80 mmかん水後の10時間以降について、両地点ともにきわめて高い正の相関が認められ、 NO_3^- 濃度Xと Ca^{2+} 濃度Yの関係は $Y=aX^b$ で近似できた(式(5), (6))。

$$\text{地点Df: } Y=19.5 \cdot X^{0.565} \quad (r=0.992^{**}) \quad (5)$$

$$\text{地点Cf: } Y=11.6 \cdot X^{0.547} \quad (r=0.995^{**}) \quad (6)$$

NO_3^- 濃度の上昇はA層で硝酸化成が進行していることを示していると考えられ、式(5), (6)における高い相関はA層における NO_3^- の生成と Ca^{2+} の放出が密接な関係にあることを示している。地点Dfの40 mmかん水においては、両者の関係がはっきりしなかったが、地点Cfでは40 mmかん水においても同様の関係が認められた。地点Cfの40 mmかん水においては、 NO_3^- の濃度上昇に対する Ca^{2+} の濃度上昇が80 mm処理のそれに比較して低かった。

実験IIのA層浸透水は両地点とも実験Iで認められた(図10-8)ほどの NO_3^- 濃度の上昇は生じなかったが、その変動は実験Iと同様に Ca^{2+} 濃度の変動と類似していた(図には示していない)。実験IIは11月上旬に行われたため地温が実験Iよりも低く、土壌中の微生物の生物活性は低いと考えられる。そのことが実験Iと実験IIでのA層における硝酸化成速度の違いと関係があると考えられた。

A層では硝酸化成によって酸が生成するが、A層土壌の交換態塩基(主として Ca^{2+})が交換放出されることによって浸透水pHの著しい低下が生じなかったと考えられる。O層では植生の違いによってその浸透水pHが異なったが、A層においてはO

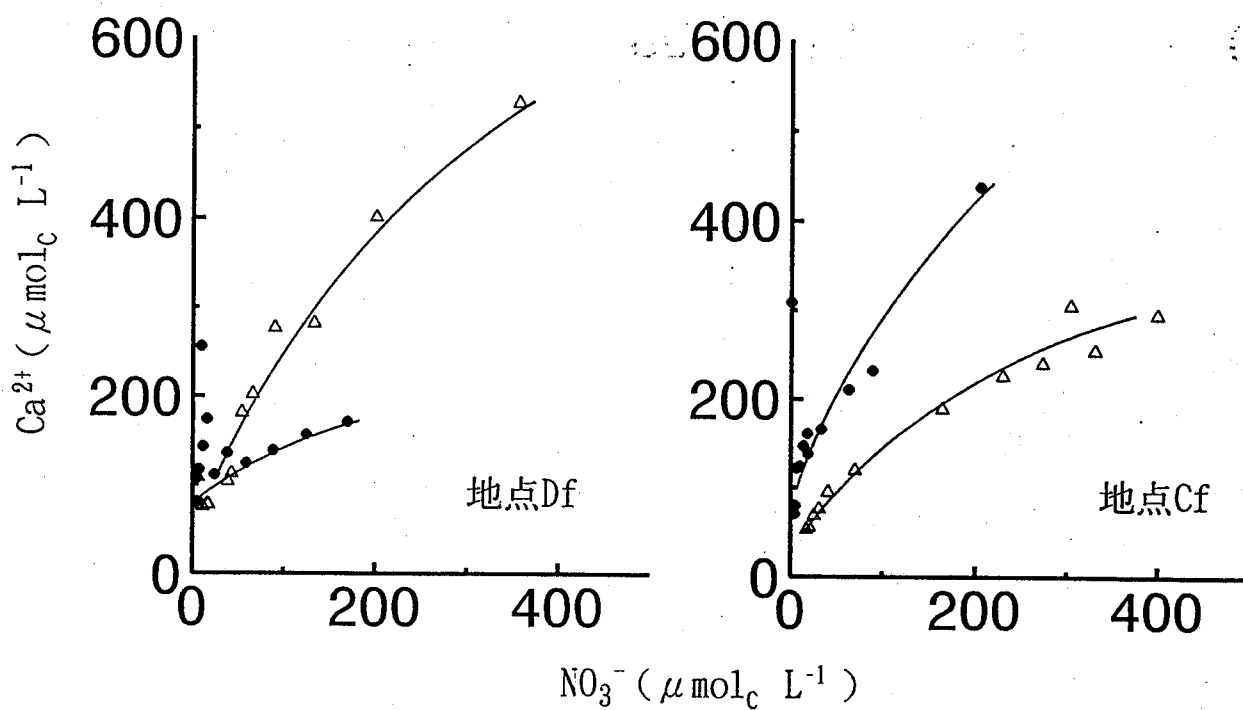


図10-11実験 I における A 層浸透水中の Ca^{2+} と NO_3^- 濃度の関係

● ; 40mmかん水, △ ; 80mmかん水

層浸透水によってもたらされる酸よりもA層土壌内における酸の生成・消費反応の影響を強く受けた結果として、地点間の違いが小さくなった。つまり、根を遮断した区においてA層における浸透水pHに対する植生の影響はO層よりも小さいと考えられた。

C層浸透水pHについてはさらに地点間の違いが小さく、ほぼ同じ値で安定して推移した(図10-4)。また、両地点ともC層浸透水pHはA層浸透水pHよりも明らかに高く(表10-2, 図10-5)A層での硝酸化成で生じた H^+ がA層-C層土壌間でほぼ完全に中和されたことを示している。両地点ともA-C層間におけるpHの上昇に伴って Ca^{2+} を主とする塩基性イオン濃度が上昇しており(表10-2), H^+ 中和の主要なメカニズムが H^+ と塩基の交換反応であることを示唆している。また、C層ではpHの上昇に伴い、 HCO_3^- 濃度も上昇している。 HCO_3^- は溶液中において重炭酸-炭酸平衡系を司り、溶液の酸緩衝力を高める働きをするイオンであることから、C層土壌浸透水のpHはA-C層間での H^+ と塩基の交換反応とその結果生じる $Ca-HCO_3$ 緩衝系の影響によって、高い値で安定して推移していると考えられた。

以上のように植物の影響の無い条件下では、外部からの H^+ に対してO層での酸中和反応がかなり重要な役割を担っていた。自然条件下では、林内雨や樹幹流によって土壌に流入する酸負荷量および樹木によるイオン吸収量などが地点によって大きく異なっている。自然条件下での物質循環と酸緩衝機構との関係については第12章の総合考察で述べる。

次章では実験Ⅲと同様の実験を天塩中の峰(地点Ak, N-Ss)および天塩清川(地点Td, K-Ss)において行った結果を整理し、土壌や植生タイプの違いがO層での酸緩衝機構に及ぼす影響を考察する

5. 要約

森林土壌の酸緩衝機能を解析するために、植物根による水および栄養塩等の吸収が無い条件で現地ライシメータによるモデル実験を地点Df, 地点Cfで行った。外部からの H^+ 負荷に対して土壌溶液の化学組成がどのように変動し、土壌自体の緩衝機構がどのように作用しているかを明らかにすることを目的とした。

実験は3種類(実験Ⅰ～Ⅲ)行った。実験Ⅰ, Ⅱでは酸の負荷量を2段階(0.1, 0.4 $kmol \cdot ha^{-1}$)に設定して実験を行い、実験ⅢはO層のみについて行った。すべての実験において両地点の土壌はかん水によって供給された H^+ のほとんどが表層に存在するO層によって中和された。O層での主要な酸中和機構はかん水による H^+ とO層固相に蓄積された塩基(特に Ca^{2+})との交換反応が重要な役割を担っていた。また、地点CfではO層に蓄積されていた NO_3^- や SO_4^{2-} の影響でかん水初期の浸透水pHが地点Dfより低い値を示した。

A層およびC層では、散水した SO_4^{2-} より土層内部における NO_3^- 生成に伴う H^+ の影

響が大きかったが、その影響は主として Ca^{2+} の溶出によって緩衝されており、土壌浸透水pHは両地点とも5.7~6.5に保たれた。

両森林とも外部からの H^+ 負荷や、内部で生成された H^+ に対して土壌から Ca^{2+} が主に放出された。O層(L+F層)に蓄積されている塩基(Ca, Mg, K, Na)は現況の年 H^+ 負荷(約 0.65kmolc ha^{-1})の約11倍(地点Df)および約6倍(地点Cf)に相当し、O層が酸性降下物に対する重要なバッファーとして機能していることは明らかであった。また、O層やC層浸透水でのpHの上昇に伴う HCO_3^- 濃度の上昇は、重炭酸緩衝系の働きによる土壌液相の酸緩衝力を高めていると考えられた。

第11章 O層での酸緩衝機構に及ぼす土壌と植生タイプの影響

1. はじめに

前章では、苫小牧の広葉樹林とストロームマツ林においてO層の酸緩衝能力が現況の酸負荷よりも十分に大きいことを現地でのモデル実験によって明らかにした。本章では同様の実験を道北に位置する天塩山地における中の峰および清川流域の各研究地点(地点Ak, Td, N-Ss, K-Ss)において行った結果と比較し、土壌や植生のタイプがO層での酸緩衝機構とどのような関係にあるのかを考察する。

2. 方法

希硫酸(pH=4)のかん水は前章の実験Ⅲとほぼ同じ方法を用いた。天塩中の峰(地点Ak, N-Ss)におけるライシメーターは苫小牧と同様のものを用いたが、天塩清川(地点Td, K-Ss)では70×40cmの平板型ライシメーターを用いた。ライシメーターの設置方法や分析項目は全て苫小牧での方法(前章, 実験Ⅲ)に準じた。天塩清川での実験においてのみO層浸透水中の全有機炭素濃度(TOC), 全有機窒素濃度(TON), 紫外部(260nm)吸光度(E_{260})を測定した。

TOCは乾式燃焼法で、TONはJIS K 0102 45.2に準じた方法で全窒素濃度(TN)を定量し、 $TN - (NO_3 + NH_4)$ として計算した。 E_{260} (丹保, 1985; 丹保・亀井, 1993)は溶液を0.45 μm のメンブレンフィルターで濾過後、紫外部260nmの吸光度を測定した。測定値は1 cmセルの吸光度として表した。

3. 結果と考察

(1) O層浸透水pHおよびイオン濃度の地点別比較

図11-1に希硫酸の積算かん水量とO層浸透液pHの関係を示す。天塩中の峰における地点Akは苫小牧の地点Df, Cfとほぼ同様な値で推移したのに対し、天塩清川における地点Tdは4.2~4.5の低い値で推移し、地点K-Ssはそれよりもやや高い値で推移した。地点TdはpHが低いものの3回目の処理においても散水したpH=4.0には低下せず、低いpHでの酸緩衝機構が働いていることが示唆された。天塩中の峰における地点N-Ssは他の地点と比較して著しく高い値で推移した。

表11-1にはO層浸透水の水量による加重平均イオン濃度を示す。なお、表中のCBD(Charge balance deficit)はカチオン濃度の合計からアニオン濃度の合計を差し引いたものである。苫小牧の二地点はカチオンの中で Ca^{2+} の占める割合が大きく、石英安山岩質の母材及び土壌の交換態カチオン組成(表3-4)の影響を強く反映していた。針葉樹林である地点Cf, Ak, Tdは広葉樹林である地点Dfよりも Na^+ の濃度が高く、このことは針葉が林冠に着葉している時期に風送塩として林冠に付着したNaClの影響(第7章)を示していると考えられた。しかしながら、 Cl^- 濃度は全地点とも海塩のNa/Cl濃度比から計算される濃度より低かった。このことは林冠の生葉がO層になる過程で Cl^- イオンが優先的に溶脱されたことによるのかもしれない。ただし、天塩

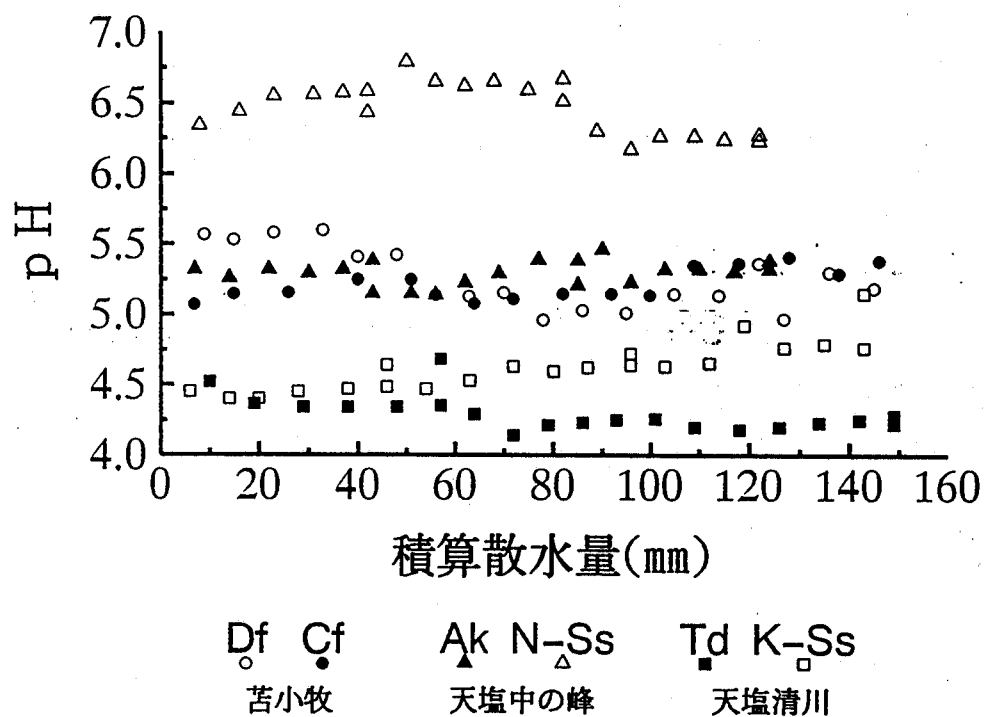


図11-1 各地点におけるO層浸透水のpH変動

表11-1 かん水実験における各地点のO層浸透水の水量による加重平均pHおよびイオン濃度

地点	pH	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	PO ₄ ³⁻	SO ₄ ²⁻	CBD
(μmol/L)													
苫小牧													
Df	5.2	6	101	41	42	32	46	107	11	11	0	122	17
Cf	5.2	6	140	44	57	97	17	104	36	43	0	129	51
天塩中の峰													
Ak	5.3	5	33	73	56	191	16	64	54	1	1	100	156
N-Ss	6.4	0	45	185	76	120	9	176	75	0	0	90	93
天塩清川													
Td	4.3	53	34	47	39	97	12	1	18	1	0	86	176
K-Td	4.6	27	31	36	128	39	24	27	79	0	0	138	38

清川におけるササ草地(地点K-Ss)は例外で Cl^- 濃度は Na^+ 濃度よりも明らかに高かった。

苫小牧の二地点はカチオンの随伴アニオンとして HCO_3^- の濃度が高かった。また、苫小牧では天塩と比較して NO_3^- 濃度がやや高く、苫小牧O層での硝酸化成が天塩より盛んであることを示唆している。

天塩中の峰における地点Ak, N-Ssのカチオン濃度の中でMgの割合が高いのはMgを多量に含有する蛇紋岩風化殻の化学性を反映するものである(表3-4)。特に天塩中の峰における地点SsはMg濃度が高く、それに伴い HCO_3^- 濃度が上昇した。このことが天塩中の峰の地点N-SsにおいてpHが6.4という高い値になったことと関係があると考えられた。同じ蛇紋岩土壌に立地する地点Akと地点SsでMg/Ca比を比較すると明らかに地点Ssの方が高く、ササ草地におけるO層の方がアカエゾマツのO層よりも蛇紋岩土壌のカチオン組成の影響を強く受けているといえる。

O層浸透水のカチオン組成について地点間の比較考察をするために図11-2にCa, Mg, KおよびNaのダイアグラムを示した。各辺のスケールは対辺のイオンとの合計濃度に対する割合(%)を示す(例えば、左上のCaは $\text{Ca}/(\text{Ca}+\text{Mg})$ を表す)。六地点のプロットはそれぞれ明瞭に区別することができた。 Ca^{2+} と Mg^{2+} の関係に着目するとそれは苫小牧の二地点はCaが60~80%の範囲に位置し、天塩清川は40~50%, 天塩中の峰は10~40%の範囲にプロットされた。このことはそれぞれが立地する土壌の化学性の違いを明瞭に反映していると考えられる。また、 K^+ と Na^+ の関係に着目すると、三流域とも針葉樹林(地点Cf, Td, Ak)におけるNaの割合は広葉樹林(地点Df)やササ草地(地点N-Ss, K-Ss)のそれよりも高い値で推移していた。これは針葉樹林の林冠が風送塩をより捕捉しやすく(第7章)、その影響がO層にまで及んでいることを示唆するものである。

(2) O層浸透水中のCBD濃度の解析

天塩の針葉樹林である地点Ak, TdはどちらもCBD濃度が $150 \mu\text{mol/L}$ 以上の値を示しており、苫小牧の二地点やササ草地のそれと比較して有意に高い値を示していた(表11-1)。CBD濃度は測定されていないアニオンに相当し、主として有機酸がその主成分であるといわれる(Arthur and Fahey, 1992)。O層浸透水中のCBD濃度と有機物の指標であるTOC, TON濃度および有機着色成分の指標とされる E_{260} との関係について天塩清川における分析データを用いて解析する。

図11-3に地点Td, K-SsのCBD濃度と E_{260} の関係をプロットした。凡例中の数字はかん水回数を示す(前章の方法を参照)。CBD濃度と E_{260} の間にはかん水回数の違いに関わらず統計的に有意な正の相関関係が認められ、特に地点Tdの相関係数が大きかった($r=0.962^{**}$, d.f=17)。丹保・亀井(1993)は泥炭水などの天然水や上水中のCOD(化学的酸素消費量), BOD(生物的酸素消費量), TOC, 見かけ分子量などを分析し、

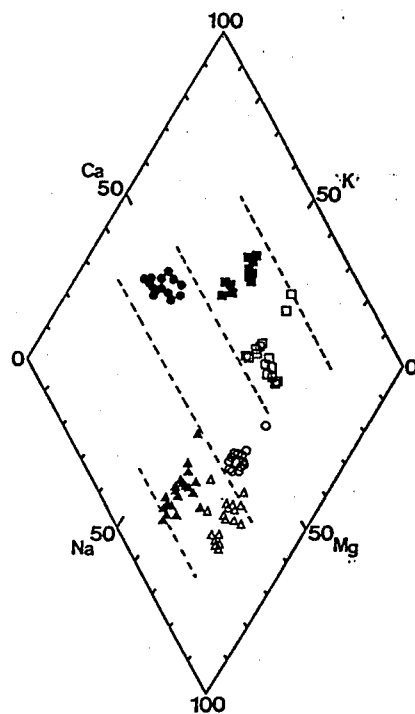


図 11-2 O 層浸透水のカチオンバランス(%)

- , 地点 Df ; □, 地点 Cf
 ●, 地点 K-Ss ; ○, 地点 Td
 ▲, 地点 N-Ss ; △, 地点 Ak

E_{260} は溶液中におけるフミン質などの有機着色成分の指標となり得るとしている。図11-3で認められた相関関係は、O層浸透水中のCBDを構成する成分が、260nmに吸収スペクトルをもつ有機物(E_{260} 発現性有機物)によって有意に特徴づけられることを示している。地点Td, K-Ssの代表的な試料についてイオンクロマトグラフィーを用いた低分子有機酸(クエン酸, シュウ酸, コハク酸, ピルビン酸, 酒石酸など)の分析を試みたが、測定可能な有機イオン種はすべて検出限界濃度以下であった。分子構造に芳香族有機物を持たない低分子有機酸は260nmのスペクトル吸収がかなり小さいことから、本実験で認められたCBDを構成するアニオンに対する E_{260} 非発現性有機物の寄与はほぼ無視できるレベルにあると考えられた。

両地点における E_{260} とTOC及びTON濃度の関係を図11-4にプロットした。地点Ssはかん水回数に関わらず、 E_{260} とTOC, TONの間には1%水準で統計的に有意な正の相関が認められた(それぞれ $r=0.89^{**}$, 0.85^{**} , $d.f=17$)。地点K-Ssでは E_{260} とTOCの間に各かん水において1%水準で有意な正の相関関係が認められ、かん水回数の増加に伴って E_{260}/TOC が大きくなる傾向にあった。この傾向は相関はやや低いものの、 E_{260} とTONの間にも認められた。

丹保の報告(1985)では、 E_{260} 発現性/非発現性の比率が変化しない条件下では、TOCと E_{260} の比は有機物の見かけ分子量の大小に比例することをゲルクロマトグラフィーを用いた実験によって示した。本実験では上述したように E_{260} 非発現性有機物の影響は小さいと考えられるので、図11-4の地点Tdに認められた処理回数の増加に伴う E_{260}/TOC 比の上昇は、散水処理が進むにつれてより分子量の大きい有機物が浸透水中へ溶出したことを示唆している。つまり、散水処理初期にはO層固相表面および液相中に蓄積されていた比較的分子量の小さい水溶性有機物の影響が強く、それらが洗い流された後にO層固相から水溶性有機物の中でも比較的分子量が大きい成分が浸透水中に溶出したと考えられた。

天塩は苫小牧よりも北に位置し、気温や地温がより低いことから、天塩と苫小牧におけるCBD濃度の違いは土壌や植生の影響というよりも気候の影響を強く反映しているものと考えられる。つまり、天塩での冷涼な気候下では有機物の分解が遅く、O層の分解過程で生じる有機酸が溶液中にアニオン(CBD)として放出されたのに対し、苫小牧では有機物の分解が天塩に比べて早く、溶液中への有機酸の放出は天塩ほど顕著ではなかったと考えられる。天塩中の峰の二地点(地点Ak, N-Ss)ではCBD濃度が高いのにも関わらず(表11-1)、O層浸透水のpHが天塩清川のそれらとより高い理由は(図11-1)、O層で生産された有機酸に伴うプロトンと交換し得るアルカリ物質がO層に豊富に存在していたためと考えられる。天塩の二つの針葉樹林(地点Ak, Td)におけるCBD濃度はそれぞれササ草地(地点N-Ss, K-Ss)で得られたCBD濃度よりも高い値を示している。地点Ak, TdにおけるO層の厚さはそれぞれのササ草地よりも厚

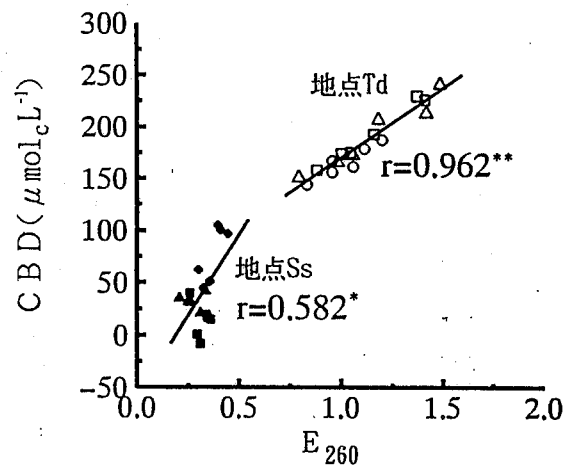


図11-3 地点TdとK-SsのO層浸透水中のCBD濃度と E_{260} の関係

○, Td(1); △, Td(2); □, Td(3)

●, K-Ss(1); ▲, K-Ss(2); ■, K-Ss(3)

括弧内の数字はかん水回数を示す

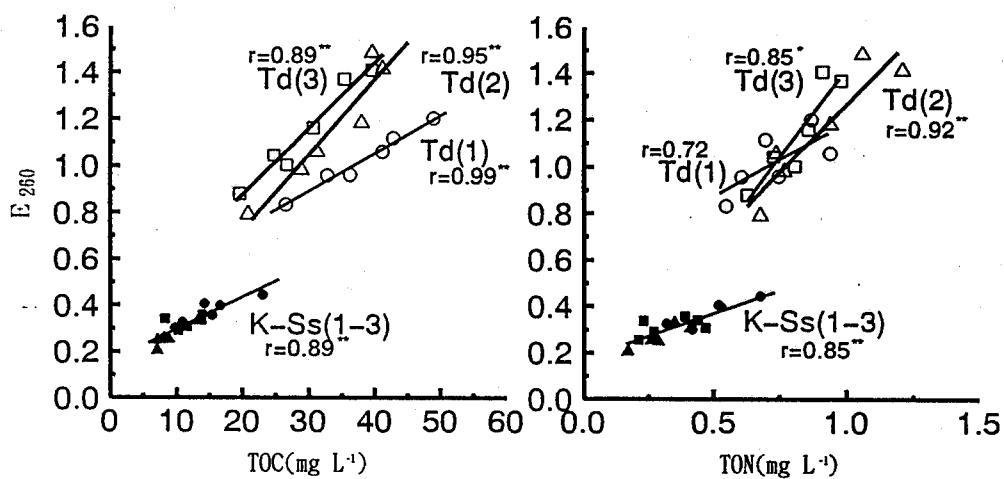


図11-4 地点TdとK-SsのO層浸透水中の E_{260} とTOCおよびTON濃度の関係

凡例は図9-3と同様である

いことから、天塩における針葉樹林とササ草地におけるCBD濃度の違いは針葉樹とササでのO層の分解率の違いと関係があることが示唆される。

(3) O層における酸緩衝機構の地点別比較

O層での酸緩衝機構について解析するために、各地点においてO層からのイオン流出量を計算し、添加した希硫酸との収支からプロトン取り込み量(H_{sink} ; 散水 H^+ - 流出 H^+)、アルカリ放出量を計算した。それらの関係を図11-5に示した。

苫小牧では地点二地点とも $Ca^{2+}+Mg^{2+}+K^+$ の積算放出量と H_{sink} 積算量はほぼ1:1の関係にあった。前節で述べたようにこれらのアルカリ物質の放出がO層でのプロトン交換反応の主要な機作であると考えられる。

天塩中の峰における地点Akは苫小牧の二地点と同様の傾向を示したのに対し、地点Ssは $Ca^{2+}+K^+$ 積算放出量と H_{sink} 積算量が一致していた。地点N-Ssは Mg^{2+} 濃度が高いのにも関わらず、O層でのプロトン消費反応にはほとんど関与していないということを示している。地点N-Ssでは HCO_3^- 濃度が Mg^{2+} と同様に高い値を示していることから、 $MgHCO_3$ の形態で中性塩として液相中に放出されたと推測される。地点Tdでは $Ca^{2+}+Mg^{2+}+K^++Na^+$ 積算放出量が H_{sink} 積算量とほぼ一致した。他の地点では Na^+ はO層でのプロトン消費反応に関与しない中性塩として存在すると考えられたのに対し、地点Tdでは Na^+ とプロトンの交換反応もプロトンのシンクとして作用していたことになる。地点K-Ssにおいては苫小牧の二地点および天塩中の峰の地点Akと同様に $Ca^{2+}+Mg^{2+}+K^+$ 積算放出量と H_{sink} 積算量とがほぼ一致した。

以上のように、鉱質土壌の表層に位置するO層は、鉱質土壌への酸インプットをコントロールする意味でその役割は非常に大きいことが示された。O層での酸緩衝機構は植生による土壌からの塩基の吸収ならびに落葉によるO層への塩基の濃縮還元といった土壌-植物系における塩基の生物地球化学的循環によって保たれていると考えられる。本章で述べたようにO層が保持する酸に対する中和機構は土壌や植生タイプによって異なっており、各地点の土壌や植生の化学性が相互に密接に関係している結果を反映していると考えられた。

4. 要約

あらかじめpHを4.0に調整した希硫酸をO層に散水し、O層浸透水の化学性を分析することによってO層の酸緩衝機構を解明するための実験を、前章での苫小牧と同様に道北の天塩山地に位置する二流域(天塩中の峰、天塩清川)で行った。天塩中の峰では天然のアカエゾマツ林とササ草地で、天塩清川ではトドマツ人工林とササ草地で実験を行った。

天塩の二流域は気候が冷涼であることを反映して、溶液中への有機酸の放出が顕著であり、天塩清川のトドマツ林、ササ草地ではO層浸透水pHは4.2~5.0の低い値で推移した。天塩中の峰のアカエゾマツ林、ササ草地では散水されたプロトンおよ

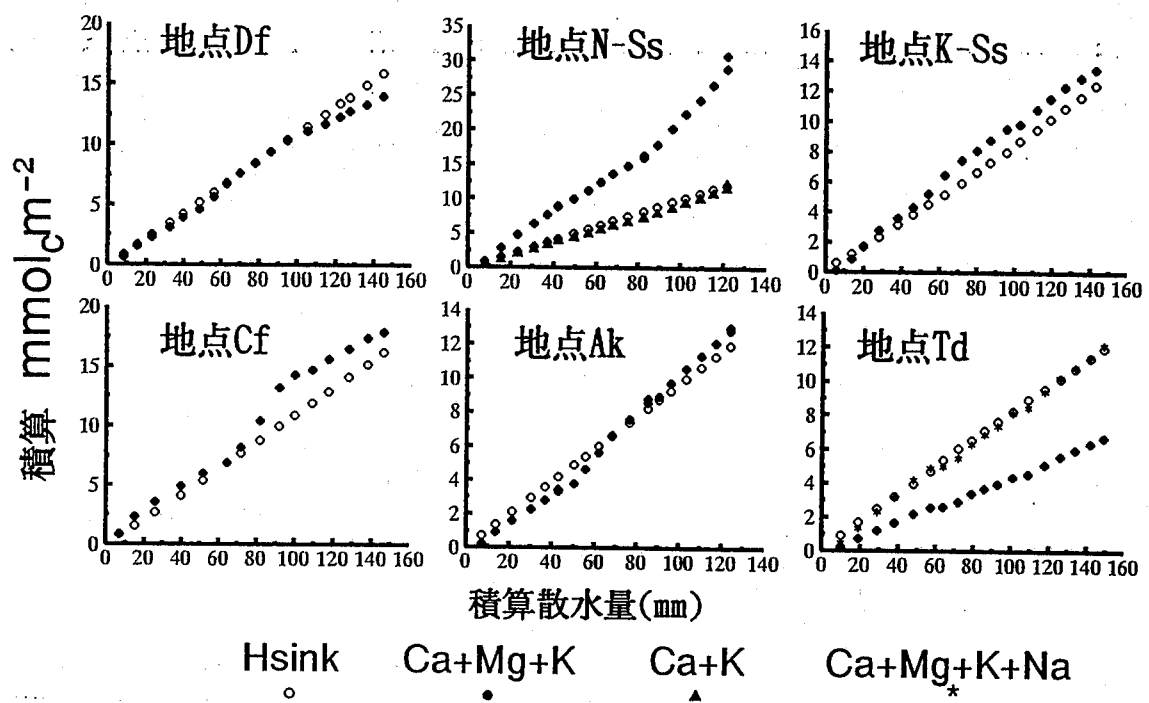


図11-5 O層溶脱実験における積算プロトン消費量と積算塩基放出量の関係
 Hsink, 積算H⁺消費量
 Ca, Mg, K, Na, 積算塩基放出量

びO層で生産された有機酸に対してO層から塩基性イオンが交換放出されることによって浸透水pHが散水pHよりも有意に上昇した($P < 0.001$).

天塩のトドマツ林では外部から供給した酸よりO層内部で生成された有機酸の影響が強く、CBD濃度として計算される有機酸はTOC、TONと有意な正の相関を示した。このCBD濃度は紫外吸光度(E_{250})と相関があることから、主として芳香族脂肪環を持った高分子有機酸であることが示唆された。

O層におけるイオン収支から計算したHsink(流入 H^+ - 流出 H^+)積算量は苫小牧の二地点と天塩中の峰におけるアカエゾマツ林においてO層からの Ca^{2+} 、 Mg^{2+} および K^+ の積算放出量とほぼ一致し、それらの地点においてO層でのイオン交換反応が酸緩衝機構の主要な機作であることを示した。天塩清川のトドマツ林はHsinkよりも $Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+$ の方が小さく、プロトンの消費過程には Na^+ も関与していることが示唆された。

以上の結果から、森林生態系のO層は大気から流入する H^+ の他に、冷涼な気候下あるいは分解率の遅い場合にはO層内部で生産される有機酸による H^+ の影響が大きくなるが、外部 H^+ および内部 H^+ は両者ともO層固相に存在する塩基との交換反応によって中和されることが明らかとなった。

第12章 総合考察

第10章、第11章で論じたように林床に存在する堆積腐植層(O層)は土壤へ流入するpHを調節する上で重要な役割を担っていると考えられた。総合考察では自然状態における林冠、O層および鉱質土壤における酸緩衝機構についてそれぞれ考察し、それらと生態系の物質循環との関係を苫小牧における二地点(地点Df, Cf)における研究結果から考察する。

(1)大気からの降雨としての酸負荷量

第4章で述べたように苫小牧の森林生態系に降雨として流入する H^+ は $0.66 \sim 0.64 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であり、プロトンの供給源としては非海塩起源の SO_4^{2-} が主体であり、 NO_3^- の割合は SO_4^{2-} よりも小さかった。研究史で述べたようにヨーロッパでは大気から降下する NH_4^+ が潜在的な酸として重要な役割として担っており、オランダにおける NH_4^+ 降下量は $1.19 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ に達した(van Breemen et al., 1989)。苫小牧における降雨としての NH_4^+ 降下量は $0.15 \sim 0.16 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であり、オランダでの観測値の7~8分の1に過ぎず、同地域における大気からの降雨としての NH_4^+ 沈着は土壤-植物系の酸性化要因としてあまり大きな役割を担っていないと考えられる。表12-1には北米やヨーロッパでこれまでに報告された降雨のpHおよび H^+ 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- 降下量を示す。苫小牧で観測された大気からのプロトン降下量はヨーロッパや北アメリカでの観測値と匹敵する値であった。しかしながら、苫小牧地方の森林において酸性降下物による著しい森林衰退は認められておらず、現段階では大気からの酸に対して生態系の緩衝機構が十分に働いていることを示唆している。図12-1には苫小牧の地点Df, Cfが立地する流域の河川(幌内川)の上流部と下流部における河川水のpH変動を示したが、降雨の低pHに対して河川水のpHはほぼ6.5以上の高い値で安定して推移していた。

(2)林冠におけるプロトン消費反応および乾性沈着フラックス

大気からのプロトン負荷量は地点Df, Cfの両地点でほとんど差は認められなかったのに対し、林冠通過後のpHは両地点で明らかに異なった。つまり、第7章の図7-3に示したように、地点Dfの林内雨pHは降雨pHよりも有意に上昇した($P < 0.001$)のに対し、地点Cfの林内雨pHは降雨pHと統計的に有意な差は認められなかった。地点Dfにおける林冠におけるプロトンの消費過程を林冠における物質収支から検討すると、樹木の生育が旺盛な6~10月における地点Dfの林冠におけるプロトン消費量は $0.44 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$ (表5-3の ΔH^+)であり、その時期の林冠からの K^+ 溶出(LI)は H^+ 消費量とほぼ等しい $0.40 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$ であった(表7-4)。このことは大気から降雨として沈着した H^+ が林冠において K^+ と交換されることによって林冠に取り込まれていることを示している。また、地点Dfにおける ΔHCO_3^- もほぼ同程度の $0.46 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$ であることから、林冠通過時におけるpH上昇に伴って溶液中の HCO_3^- 濃度が上昇していること

表12-1 北米, ヨーロッパ, 日本における湿性降下物の年平均pHおよび年 H^+ , SO_4^{2-} , NO_3^- 沈着量

場所	国	期間(年)	pH	H^+ ($kmol \cdot ha^{-1} \cdot y^{-1}$)	SO_4^{2-}	NO_3^-	SO_4^{2-}/NO_3^-	出典
Loch land	Scotland	1985-1991	4.72	0.43	1.16	0.37	3.1	6)
Maine	Germany	1989	4.39	0.42	0.19	0.23	0.8	56)
Schluchsec	Germany	1987-1988	4.87	0.31	0.56	0.35	1.6	15)
Laegeren	Switzerland	1985-1989	4.3	0.5	0.21	0.10	2.1	20)
North Carolina	U.S.A	1986-1989	4.1	1.8	1.50	0.32	4.7	44)
Wellston	U.S.A	1987-1989	4.4	0.33	0.37	0.27	1.4	57)
Tennessee	U.S.A	1980-1982	4.3	0.71	0.78	0.13	6.0	43)
Oude Matt	Netherlands	1981-1984	4.57	0.19	1.30	0.54	2.4	132)
全国29地点	Japan	1986-1988	4.7	0.34	0.97	0.27	3.6	23)
Tomakomai*	Japan	1990-1993	4.31	0.65	0.63	0.16	3.9	

*)本研究より

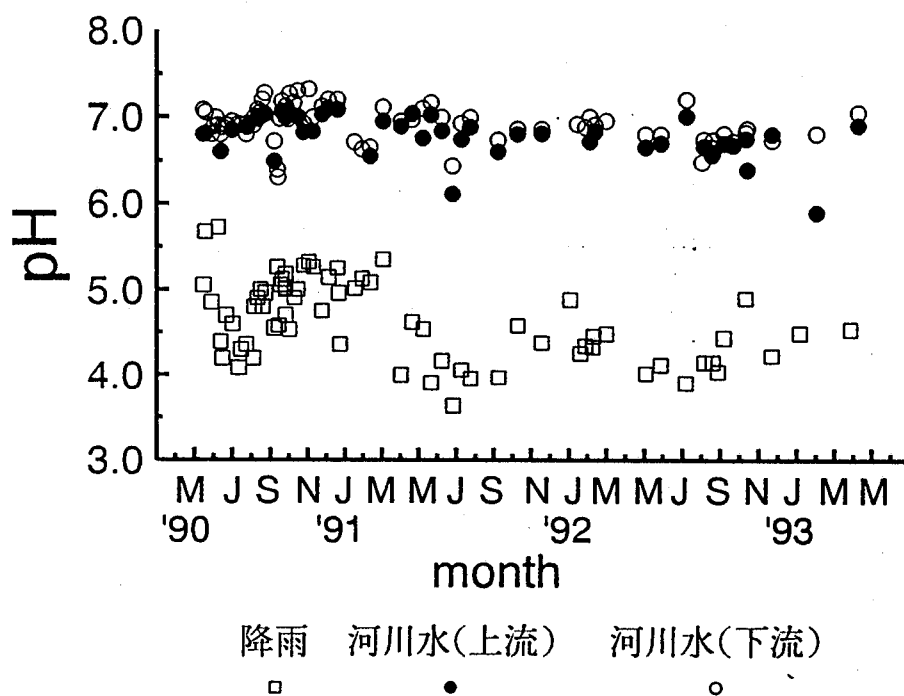


図12-1 苫小牧における降雨pHと河川水pHの変動

を示していた。地点Dfの林冠における6~10月の H^+ 消費量は大気からの降雨による H^+ 降下量の約90%に相当し、林冠における酸中和が土壌への酸の入力を低める重要な役割を担っていた。

地点Cfにおける6~10月の林冠からの K^+ 溶出(LI)は、 $0.35 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$ と地点Dfに匹敵する値を示したのにも関わらず、林冠通過時の H^+ 減少量は $0.22 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1}$ であり、地点Dfの1/2にしか過ぎなかった。溶出した K^+ が全てプロトンとの交換によるものと考え、地点Cfの林冠には地点Dfより多くの H^+ が大気から沈着していることになる。無降雨期間に大気から林冠へ乾性沈着する SO_4^{2-} 、 NO_3^- は明らかに地点Cfの方が大きく、6~10月では地点Dfのそれぞれ9.7、8.5倍の値であった。地点Cfは針葉樹林であり、広葉樹林である地点Dfよりも葉面積が小さく、大気-林冠境界面の凹凸は地点Cfでより顕著であると考えられる。したがって、林冠への乾性沈着量が地点間で異なるのは上層木の林冠の物理的構造の違いと密接な関係があると考えられた。

大気から生態系へインプットされる酸は上述のように湿性降下物によるものと乾性降下物によるものの合計量であり、プロトンの供給源は H^+ として測定されるものの他に潜在的なプロトンソースとして NH_4^+ が挙げられる。乾性沈着として降下する $nssSO_4^{2-}$ と NO_3^- がすべて H^+ を随伴していると仮定すると、生態系に対する潜在的な H^+ 降下量(potential total deposition; PTd_H)は式(1)のように定義できる。

$$PTd_H = Wd_H + Wd_{NH_4} + Dd_{nssSO_4} + Dd_{NO_3} + Dd_{NH_4} \quad (1)$$

ただし、 Wd_i 、 Dd_i はそれぞれ*i*種イオンの湿性および乾性沈着フラックスを示す(第4章; 表4-2, 第7章; 表7-4)。 $nssSO_4^{2-}$ の乾性沈着フラックスは Na^+ との海水中存在比を用いて、第5章の式(1)、(2)で示した方法を用いて算出した。得られた PTd_H は地点Df、Cfでそれぞれ 0.93 、 $1.98 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であり、地点Cfでは地点Dfの約2倍の値を示した。このことは植生によって生態系への酸沈着量が大きく異なることを示している。地点Cfでは無降雨期間における大気からの SO_4^{2-} や NO_3^- の乾性沈着によって地点Dfより多くの H^+ が林冠に沈着した結果、林冠での K^+ 溶出フラックスが地点Dfと同程度なのにも関わらず正味のプロトン減少量が地点Dfよりも小さくなったと考えられる。

(3) O層および鉍質土壌での酸緩衝機構

第10章、第11章では土壌に流入する酸をpH 4.0の希硫酸に設定した際の土壌の反応について研究し、表層にあるO層の酸中和容量が十分大きいことを明らかにしたが、実際の森林においては土壌への酸の流入は主として林内雨である。図7-3に示されたように地点Dfの林内雨pHは明瞭な季節変動を示したが図8-1にあるO層浸透水pHは林内雨pHの変動とは無関係に推移した。このことは地点DfのO層の酸緩衝容量が現況の林内雨pHの変動に対して十分に大きいことを示している。地点Dfでは林冠が

葉で閉鎖されている6~10月においては、林内雨のpHが既に平均5.1まで上昇しており、 H^+ 濃度は $7\mu mol \cdot L^{-1}$ に過ぎない。したがって、この時期における地点DfではO層での酸中和反応は第10章で述べた現地での溶脱実験で認められたほど顕著ではない。一方、落葉によって林冠が開放した時期(11~5月)には林内雨pHが平均4.6と低い値を示しているので降雨は林冠による化学的修飾をほとんど受けずに直接O層に流入する。特に融雪期には多量の融雪水が短期間で土壌へ流入するのでO層での酸緩衝機能は重要な役割を担っていると考えられる。現地溶脱実験(第10章)で示されたように地点DfのO層は短期間の集中的な酸の流入に対しても、その酸を十分に中和する能力を有している。

林冠での中和反応は H^+ 消費に伴う塩基の溶脱(主として K^+)をもたらすことから植生にとっては少なからずマイナスの影響を伴っている。さらに、林冠から溶脱によって植生中で減少した塩基量が土壌からの塩基吸収によって補償されれば、その際に根から土壌へ H^+ が放出され、正味の H^+ 中和は生じていないことになる。これに対してO層の酸中和反応によって有機物に取り込まれた H^+ は有機物の分解が完全に行われたならば消失してしまうことになり、この点において林冠での酸中和反応とは大きく異なる。

地点Cfでは降水が林冠を通過する際にpHの上昇がほとんど認められないため、O層での酸中和能力が年間を通じて重要な役割を担っており、O層浸透水の H^+ 濃度は林内雨の H^+ 濃度の平均して約3分の1に低下した。O層での主要なプロトン消費反応は H^+ と塩基性イオン(Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+)との交換反応であったが、地点CfのO層浸透水はCBD濃度が高く、O層固相から放出された有機酸も酸緩衝機構の重要な役割を担っていると考えられた。これは植生によるO層有機物の分解速度の違いと関係があると考えられる。地点Dfではほとんどの季節においてF層は薄く、O層のほとんどは新鮮有機物であるL層が主体であるのに対して、針葉樹林である地点CfのF層の厚さは地点Dfよりも大きく、落葉の分解率が地点Df>地点Cfであることを示唆している。したがって、地点CfではO層の有機物が分解する過程で溶液中に放出された有機酸がCBD濃度を司っていることが考えられる。一方、広葉樹林である地点DfのO層の有機物は分解が早く、分解の中間産物である有機酸の溶液中への放出は少ない。O層の有機物は完全に分解されると CO_2 と H_2O になり、溶液中の CO_2 は溶液のpHに応じて H_2CO_3 , HCO_3^- , CO_3^{2-} になる。地点DfではpHの上昇に伴い HCO_3^- 濃度が上昇し、溶液の酸緩衝力を増加させていると考えられる。

O層における酸緩衝能力を定量的に表すためには、O層からのイオンフラックスを定量化する必要がある。しかし、O層浸透水流速の定量はO層の複雑な物理的構造のために困難であった。ただし、O層へ流入する水が全部排出される場合には流出の最大値が、C層からの排出水のみがO層から排出されとした場合には流出の最

小値が得られる。そこで、式(2)、(3)を用いてイオンフラックスの最大値($EX_{o_{max}}$)と最小値($EX_{o_{min}}$)を推定した。

$$EX_{o_{max}}(\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}) = WP_{Ti+sf} \cdot SLo_i \cdot 10^{-5} \quad (2)$$

$$EX_{o_{min}}(\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}) = WP_{Ci} \cdot SLo_i \cdot 10^{-5} \quad (3)$$

WP_{Ti+sf} ; 林内雨量(mm y^{-1}) + 樹幹流量(mm y^{-1})(第7章, 表7-1)

WP_{Ci} ; C1収支法によるC層土壌からの排出水量(mm y^{-1})(第8章, 表8-4)

SLo_i ; O層浸透水における*i*種イオンの水量による加重平均イオン濃度
(第8章, 表8-1)

すなわち、 $EX_{o_{max}}$ は林内雨と樹幹流によってO層に流入した水が植生によって吸水されずに全てO層から下層へ流出した際の最大イオンフラックスを示し、 $EX_{o_{min}}$ は植生による吸水が全てO層で生じた際の最小イオンフラックスを示す。推定結果を表12-2に示す。O層から鉍質土壌へ流出する H^+ フラックスは地点Dfで $0.024 \sim 0.035 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 、地点Cfで $0.080 \sim 0.16 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、降雨として流入する H^+ フラックスのそれぞれ $1/19 \sim 1/28$ 、 $1/4 \sim 1/8$ に相当する小さい値であった。表12-2における $EX_{o_{max}}$ の値を用いて、O層からの H^+ および塩基($Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+$)流出フラックスと林内雨 + 樹幹流による H^+ および塩基流入フラックスとを比較した結果を図12-2、12-3に示す。図12-2は地点Df、Cfにおいて林内雨と樹幹流によって林床へ供給された H^+ のそれぞれ83、60%がO層に保持されたことを示している。さらに、 NH_4^+ を潜在的なプロトンソースと考えると、林内雨と樹幹流による H^+ と NH_4^+ の合計フラックスは土壌への潜在的な全 H^+ 降下量であり、地点Df、Cfでそれぞれ 0.31 、 $0.63 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ と計算され、O層からの H^+ 排出フラックスはこれらの値のそれぞれ約9分の1、4分の1であった。これらの結果はO層が現況の酸負荷に対してそれらを十分に中和する機能を有していることを示している。O層における主要な酸中和反応は塩基性カチオンとの交換反応であり(第10章, 11章)、図12-3においてO層から正味放出される塩基($Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^+$)フラックスは地点Df、Cfでそれぞれ最大 3.9 、 $3.4 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった。O層固相に蓄積されている塩基量はこれらの年間正味塩基放出量のそれぞれ約9倍の量に相当した。このように、O層は土壌全体からみると層厚は小さいものの、酸に対して十分大きな中和容量を有していると考えられた。

A層においてはO層浸透水の浸透による H^+ 流入より土壌内部での硝酸化成による H^+ 生成の影響を強く受けていた。植物根を遮断した区における NO_3^- 濃度は自然状態で観測された NO_3^- 濃度の約20倍であり、自然状態では植生による窒素吸収によって NO_3^- 濃度が低く保たれていると考えられる。このことは根遮断区において観測されたA層からの NO_3^- 流出量が植生によるN吸収量とほぼ同じ値を示していることから支持される。A層で生成した H^+ は速やかに土壌固相に吸着されている Ca^{2+} や Mg^{2+} と

表12-2 苫小牧におけるO層からのイオン排出量

	水量 ¹⁾ (mm)	H ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	K ⁺	Na ⁺	NH ₄ ⁺	HCO ₃ ⁻	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	PO ₄ ³⁻	CBD ²⁾
					(kmol _e ha ⁻¹ y ⁻¹)								
					地点Df(広葉樹林)								
EXO _{max}	1112	0.035	2.92	1.06	1.74	1.34	0.72	2.22	2.17	0.62	1.06	0.12	1.63
EXO _{min}	770	0.024	2.02	0.73	1.21	0.93	0.50	1.54	1.51	0.43	0.73	0.08	1.12
					地点Cf(ストロームツ林)								
EXO _{max}	1176	0.16	3.62	1.56	0.71	1.73	0.26	0.94	2.65	0.26	1.63	0.05	2.51
EXO _{min}	594	0.08	1.83	0.79	0.36	0.87	0.13	0.48	1.34	0.13	0.82	0.02	1.27

1) EXO_{max} ; 林内雨+樹幹流, EXO_{min} ; Cl収支法(第8章, 表8-4)によるC層土壌からの排出水量

2) CBD = $\Sigma \text{cation} - \Sigma \text{anion}$

Tf+Sf 0.13
(100)

O層

Lo 0.035
(27)

地点Df

Tf+Sf 0.40
(100)

O層

Lo 0.16
(40)

地点Cf

図12-2 O層における H^+ 収支($kmolc\ ha^{-1}\ y^{-1}$)

Tf+Sf; 林内雨と樹幹流による流入フラックス

Lo; O層からの排出フラックス(表12-3のEXo_{max}の値を用いた)

括弧内の数字はTf+Sfを100としたときの値

Tf+Sf 1.8

O層 51

Lo 5.7

地点Df

Tf+Sf 2.5

O層 30

Lo 5.9

地点Cf

図12-3 O層における塩基($Ca^{2+}+Mg^{2+}+K^+$)収支($kmolc\ ha^{-1}\ y^{-1}$)

Tf-Sf; 林内雨と樹幹流による流入フラックス

Lo; O層からの排出フラックス(表12-3のEXo_{max}の値を用いた)

ボックス内の数字はO層固相の塩基蓄積量($kmolc\ ha^{-1}$)

交換され、A層土壤浸透水は平均5.2~5.3の値で推移した。この反応については地点間の違いは認められなかった。

第10章で述べたように根を遮断した区におけるモデル実験ではC層浸透水pHに地点間の差は認められず、A層浸透水より明らかに上昇した。その主要な酸緩衝機構は土壤からの Ca^{2+} 放出とそれに伴う HCO_3^- の濃度上昇からなる Ca-HCO_3 緩衝系によると考えられた。これによってC層浸透水のpHは6.0以上の値で安定して推移するものと考えられた。しかしながら、第8章の図8-1に見られるように自然条件下でのC層浸透水pHは明らかに地点Cf>地点Dfであり、地点CfのC層浸透水pHはA層浸透水pHより有意に上昇しているのに対し、地点DfではA層浸透水pHとあまり差が認められなかった。このことは以下に述べるような植生による塩基性イオンの吸収フラックスの差と関係があると考えられる。図12-4, 12-5, 12-6に両地点における窒素、硫黄および塩基($\text{Ca} + \text{Mg} + \text{K}$)の循環フラックスを示す。地点Dfでは植生による Ca , Mg , K , Na 吸収フラックスの合計は約 $8.4 \text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、 N , S 吸収フラックスはそれぞれ4.5, 0.4 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であったから、植生によって吸収された N , S がすべて NO_3^- , SO_4^{2-} であるとする、植生が吸収する塩基性陽イオン(Ca , Mg , K , Na)は陰イオン(NO_3^- , SO_4^{2-})よりも3.6 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ だけ多いことになる。根遮断区でA層から放出される塩基性陽イオンは陰イオンとほぼバランスが取れており、その値は植生による窒素吸収フラックスとほぼ等しい。したがって、地点Dfの植生はA層以下の土壤溶液から過剰分の塩基性陽イオン(3.6 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)を吸収しなければならないことになる。一方、地点Cfの植生が吸収する塩基性陽イオンは陰イオン($\text{N} + \text{S}$)よりもやや少なく、A層から放出される塩基性イオン量(第8章, 表8-5)よりやや少ない。地点DfはA層で生成した H^+ に対してA層およびA-C層間で土壤から交換放出された塩基性イオンが植生に吸収されることによって、A-C層間での浸透水pHの上昇が軽減されているものと考えられた。一方、地点CfではA層浸透水によって下層へ流下した H^+ に対してA-C層間で土壤から塩基性イオンが交換放出され、そのイオンは植生によってほとんど吸収されないため、C層浸透水pHがA層浸透水pHより高い値を示したと考えられる。鉾質土壤を通過後の H^+ 排出フラックス(第8章, 表8-4のCl収支法)は地点Dfで0.05 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$, 地点Cfで0.02 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、降水によって供給された H^+ (0.7 $\text{ kmol c ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)の90%以上が土壤-植物系を通過する際に中和された。

(4) 植生による物質循環の違いが生態系の酸緩衝機構に及ぼす影響

第9章で述べたように土壤-植物系の物質循環において、地点間で最も顕著に異なっていたのは植生による塩基吸収フラックスであった(図12-6)。広葉樹林である地点Dfは林冠や土壤を通過する際に増加した塩基性イオンフラックスに対して植生がそれを吸収することによって土壤からの排出フラックスを小さくしていると考えられた。

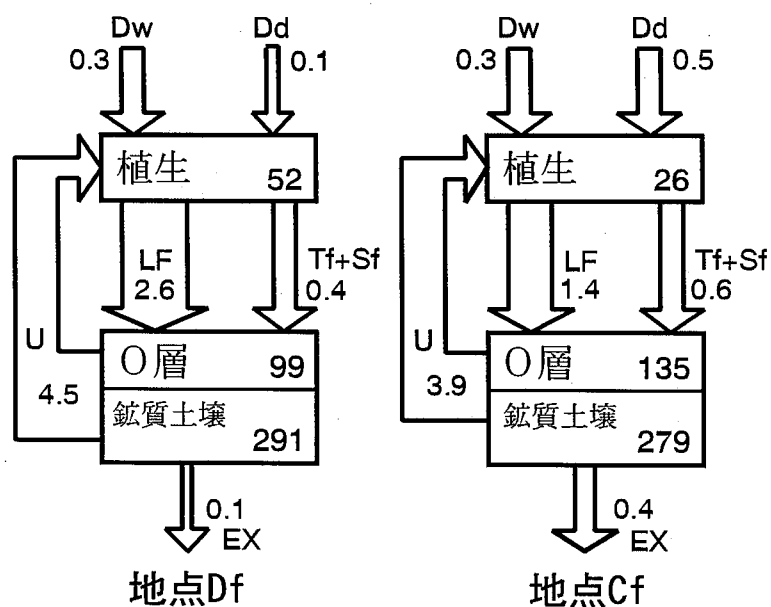


図12-4 各地点におけるNの循環と収支($\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)
 (Dw; 湿性降水物, Dd; 乾性降水物, LF; リターフォール)
 (Tf; 林内雨, Sf; 樹幹流, U; 吸収, EX; 系外への排出)
 ※植生と土壌の現存量は $\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1}$

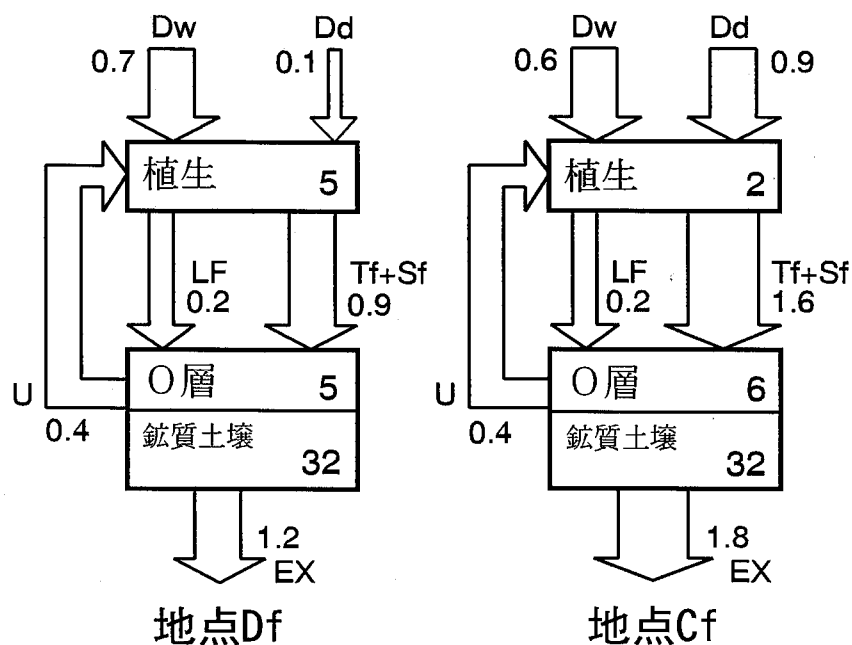


図12-5 各地点におけるSの循環と収支($\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)
 (Dw; 湿性降水物, Dd; 乾性降水物, LF; リターフォール)
 (Tf; 林内雨, Sf; 樹幹流, U; 吸収, EX; 系外への排出)
 ※植生と土壌の現存量は $\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1}$

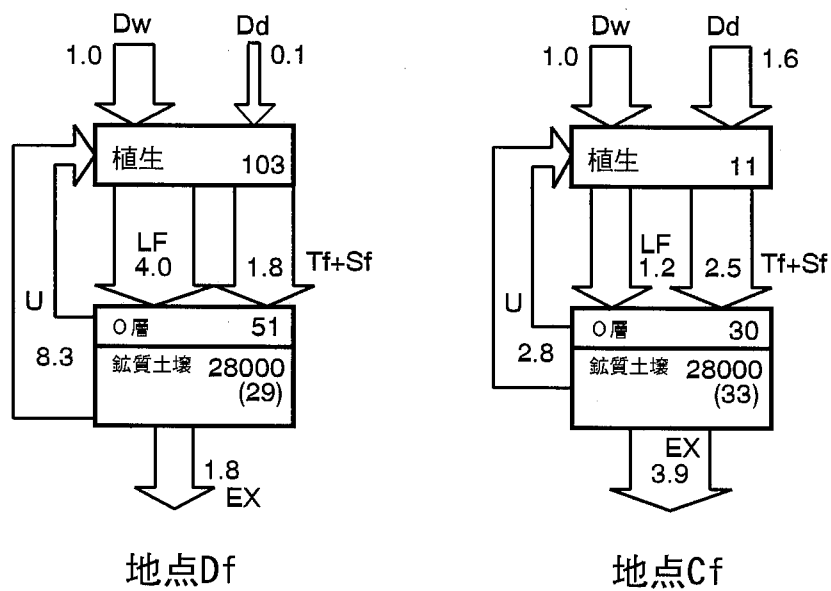


図12-6 各地点におけるCa+Mg+Kの循環と収支
フラックス; $\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$
プール; $\text{kmol}_c \text{ ha}^{-1}$

(Dw; 湿性降水物, Dd; 乾性降水物, LF; リターフォール)
(Tf; 林内雨, Sf; 樹幹流, U; 吸収, EX; 土壌からの排出)

※植生, O層および鉍質土壌は全量, 括弧内は交換態塩基

吸収された塩基性イオンは有機物として濃縮され、第一に林冠での酸中和に振り向けられ、落葉後はO層として土壌へ流入する酸の中和反応に貢献すると考えられる。林冠に生葉として存在している間は、主として K^+ が H^+ に対して交換放出され、O層では主として Ca^{2+} が放出された。これに対して地点Cfでは植生による塩基吸収フラックスが小さく、林冠や土壌を通過する際に増加した塩基性イオンフラックスを有意に小さくすることができず、その結果として、土壌-植物系から年間に失われる Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 量は地点Df、Cfでそれぞれ 0.7 、 $1.4 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ と針葉樹林である地点Cfは広葉樹林である地点Dfの約2倍の値を示した。

以上のように、植生による塩基性イオンの吸収は①林冠-O層系の酸緩衝力を維持し、②鉍質土壌へ流入する溶液のpHを高め、③土壌からの塩基の排出量を低下させる上で重要な役割を担っているといえる。

日本において同じ土壌に立地する広葉樹林と針葉樹林を比較した研究例は少ないが、堤(1989)は針葉樹林下の土壌肥沃度が低いのはO層からの有機酸の影響および針葉樹の葉のCa濃度が低いことに原因することを示唆している。土壌の酸性化が顕在化しているドイツのL.Heideにおける研究では、広葉樹林(oak)によるカチオン過剰吸収(カチオン吸収-アニオン吸収)は針葉樹林(pine)より顕著に大きく、林冠でのプロトン中和量も針葉樹林より大きかった。その結果、広葉樹林の土壌から排出される Al^{3+} 放出フラックスは針葉樹林の1/7である $0.31 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった(Bredemeir et al., 1990)。このことはドイツのSolling山地における広葉樹林(Beech)と針葉樹林(spruce)にも認められている。Solling山地では植生によるカチオン過剰吸収が針葉樹林<広葉樹林であることと、有機酸の生成量が針葉樹林>広葉樹林であること、さらに大気からの乾性沈着が針葉樹林>広葉樹林であることなどの結果として、針葉樹林下の土壌からの Al^{3+} 放出量は広葉樹林の約3倍である $5.8 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ に達した(Bredemeir et al., 1990)。これらは土壌の酸性化が進行し、土壌からの Al^{3+} 排出が顕在化している地域の研究結果であるが、土壌-植物系の酸性化に対して、植生の塩基性イオン吸収が重要な役割を担っているという点において本研究の結果を支持するものと考えられた。

(5)土壌の酸性化速度の推定

第2章で述べたように土壌の酸性化速度はその酸中和容量の減少速度

($\Delta \text{ANC}_{(s)}$)によって表すことができる(van Breemen et al., 1984)。本研究地において、ANCを構成する主要な物質は Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^+ 、 Na^+ および SO_4^{2-} であると考えられるので、ここでは ΔANC を式(4)のように概算した。

$$\Delta \text{ANC}_{(s)} = \Delta \text{Ca} + \Delta \text{Mg} + \Delta \text{K} + \Delta \text{Na} - \Delta \text{SO}_4 \quad (4)$$

それぞれの Δ は各元素の土壌に対する正味収支を示し、i種元素についての Δ_i は式(5)のように表せる。

$$\Delta_i = Dw_i + Dd_i - EX_i - \Delta bio_i \quad (5)$$

ただし、 Dw_i 、 Dd_i はそれぞれ湿性沈着および乾性沈着による物質流入フラックス、 EX_i は土壌下層からの物質排出フラックス、 Δbio_i は植生の正味物質蓄積フラックス(= ΔWn , 第7章)である。

各元素についての Dw_i 、 Dd_i 、 EX_i 、 Δbio_i および $\Delta ANC_{(s)}$ を表12-3に示した。地点Df、Cfにおける $\Delta ANC_{(s)}$ はそれぞれ -4.0 、 $-2.3 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった(表12-3)。van Breemen et al(1984)は世界各地における21の生態系における $\Delta ANC_{(s)}$ を①low rate($> -2.5 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)、②intermediate($-2.5 \sim -7.5 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)、③high rate($< -7.5 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)の三つのカテゴリーに分類した。③の例として、オランダにおける森林では ΔANC が $-9.2 \sim -15.6 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ に達している。本研究で計算した $\Delta ANC_{(s)}$ はその基準で考えると①～②程度の酸性化速度であった。ヨーロッパや北米において森林被害が問題となっている地帯では $\Delta ANC_{(s)}$ に対して外部からの H^+ の影響が主体であり、ドイツのSolling山地では大気からの全プロトン降下量(H^+ 、 NH_4^+ の湿性および乾性沈着フラックス)が $\Delta ANC_{(s)}$ ($-5.9 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$)の81%に達していた(Bredemeir et al., 1990; van Breemen et al., 1984)。

地点Df、Cfにおいて H^+ と潜在的な酸である NH_4^+ の湿性沈着フラックスの合計はそれぞれ 0.82 、 $0.79 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、 $\Delta ANC_{(s)}$ の約20、34%に過ぎない。しかしながら、本章(2)の式(1)で計算した PTd_H はそれぞれ 0.93 、 $1.98 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、これらの値は $\Delta ANC_{(s)}$ の約23、87%に相当する。したがって、地点Dfは地点Cfよりも土壌の酸性化速度が大きいもののそれに対する大気からの酸負荷の貢献度は小さいが、地点Cfにおける土壌の酸性化は大気からの乾性沈着による酸負荷の影響をより強く受けていることが示唆された。

Nambu et al.(1994)は琵琶湖東部の二つの森林地帯における $\Delta ANC_{(s)}$ が -5.9 、 $-1.7 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、その違いは土壌中での硝酸化成速度の違いによるものと考察している。地点Df、Cfにおいては第8章で述べたように土壌中の硝酸化成速度は地点間でほぼ同じであると考えられた。地点Dfにおける塩基($Ca + Mg + K + Na$)の Δbio (表12-3)は $\Delta ANC_{(s)}$ の約85%に相当する大きな値であり、地点Dfにおける土壌の酸性化速度($-\Delta ANC_{(s)}$)が地点Cfよりも大きいのは、植生による塩基吸収フラックスの差によると考えられた。すなわち、地点Dfでは大気からの H^+ の影響は林冠～O層系でほとんど吸収され、土壌中における酸の主体は硝酸化成由来の H^+ であり、その H^+ との交換反応による土壌固相からの塩基放出および植生による塩基の正味蓄積が地点Dfでの土壌酸性化の主体であると考えられた。

このように、酸性化による土壌の劣化は主として①土壌からの塩基溶脱、②植生による塩基の正味蓄積によるものであったが、針葉樹林である地点Cfでは①の寄与

表12-3 苫小牧の両地点における $\Delta\text{ANC}_{(s)}$ とその構成要因

	Ca	Mg	K	Na	S	$\Delta\text{ANC}_{(s)}$
	kmol. $\text{ha}^{-1} \text{y}^{-1}$					
地点Df(広葉樹林)						
Dw	0.58	0.27	0.11	1.03	0.66	
Dd	0.08	0.04	0.02	0.15	0.10	
EX	1.22	0.40	0.16	1.66	1.18	
Δbio	2.71	0.32	0.32	0.05	0.12	
Δ_i	-3.27	-0.41	-0.35	-0.53	-0.54	-4.02
地点Cf(針葉樹林)						
Dw	0.57	0.25	0.13	0.95	0.59	
Dd	0.94	0.40	0.21	1.51	0.94	
EX	3.34	0.49	0.07	2.51	1.83	
Δbio	0.66	0.25	0.29	0.06	0.14	
Δ_i	-2.49	-0.09	-0.02	-0.11	-0.44	-2.27

が大きく、酸性化によって失われる塩基は生態系から水圏へと一方的に排出される。それに対して、広葉樹林である地点Dfでは②が主体であり、樹体内に蓄積された塩基は生態系に保持される。これらの塩基は現在の植生が遷移の過程で他の森林系へ移行する際に枯死することによって土壌へ還元されるものと考えられる。すなわち、広葉樹林における土壌の酸性化は次世代に向けて塩基を蓄積していることになり、生態系の酸緩衝機能を維持する重要な役割を担っていると言える。

$\Delta \text{ANC}_{(s)}$ を構成する主要な因子であった土壌塩基の減少は、土壌の塩基飽和度を低下させる。この塩基飽和度の低下は、強度因子である土壌pHの低下をもたらし、植生に悪影響を与える。そこで、図12-7に世界および日本各地の土壌における塩基飽和度と土壌pHとの関係を示した(Soil Survey Staff, 1975; 三土, 1991; Wada, 1986)。非火山性土、火山性土ともに塩基飽和度と土壌pHの間には1%水準で有意な正の相関関係が認められた(非火山性土, $r=0.837^{**}$; 火山性土, $r=0.707^{**}$)。一般に、火山性土において植物に有害である Al^{3+} イオンの濃度が急激に上昇するのはpHがほぼ4.5~5.0以下とされている(三枝, 1994)。図12-7の火山性土において $\text{pH}<5.0$ のプロットは少ないが、その範囲における塩基飽和度はほぼ10%以下であった。このことを用いて、苫小牧の二地点における土壌酸性化所要年数を推定する(表12-4)。まず、乾土重量当たりの陽イオン交換容量(CEC, 表3-5)と乾土壌現存量(表9-8)から算出した単位面積当たりのCEC量(深さ50cm)は地点Df, Cfでそれぞれ138, 162 kmol. ha^{-1} であった。交換態塩基の現存量がそれぞれ31(Df), 35(Cf) kmol. ha^{-1} であるから(表9-8)、深さ50 cmまでの平均塩基飽和度はそれぞれ23, 22%と算出された。したがって、両地点において塩基飽和度10%の交換態塩基現存量は地点Dfで13.8, 地点Cfで16.2 kmol. ha^{-1} であり、現在の交換態塩基現存量との差(Δ 交換態塩基量)はそれぞれ17.2, 18.8 kmol. ha^{-1} であった(表12-4)。 Δ 交換態塩基量とO層に現存する塩基量の合計を Al^{3+} イオンによって植生の劣化が生じない範囲での土壌の塩基プールと仮定すると、その値は地点Df, 地点Cfでそれぞれ77.2, 56.8 kmol. ha^{-1} であった。両地点の土壌系から1年間に失われる塩基($\text{Ca}+\text{Mg}+\text{K}+\text{Na}$)フラックス(Δ 塩基 = $-(\Delta \text{Ca} + \Delta \text{Mg} + \Delta \text{K} + \Delta \text{Na})$, 式(5))は地点Dfで1.14, 地点Cfで1.45 $\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であるから、O層と鉱質土壌の塩基プールの回転速度(TUR)は式(6)のように計算できる。

$$\text{TUR} = \text{塩基プール} \div \Delta \text{塩基} \quad (6)$$

地点Df, 地点Cfにおける回転速度はそれぞれ17.2, 21.0年であった(表12-4)。ただし、自然条件下における交換態塩基量の減少速度(Δex)は Δ 塩基と鉱物の風化速度(ΔWEA)から構成されると考えなくてはならない(式(7))。したがって、式(6)のTURは鉱物の風化による塩基放出がない状態下($\Delta \text{WEA} = 0$)における土壌酸性化所要年数を意味する。

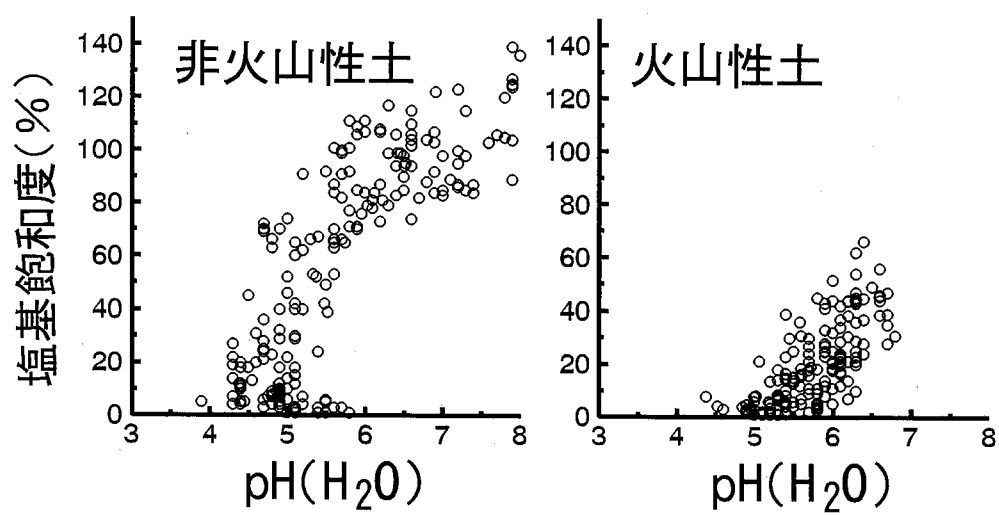


図12-7 世界および日本各地の土壌における土壌pHと塩基飽和度の関係

$$\Delta ex = \Delta \text{塩基} - \Delta \text{WEA}$$

(7)

岡島ら(1978)は1977年に噴火した有珠山噴出物('77Us)の理化学的特性を調べ、①噴火・堆積直後の火山灰および降下軽石の塩基飽和度が100%以上(過飽和)であること、②その交換態塩基の約80%以上が堆積後1年目の自然降雨によって容易に溶脱されるポテンシャルを有していることを明らかにした。また、地点Df, Cfの母材である樽前a, b火山灰(Ta-a, Ta-b)の噴火・堆積時期はTa-a(1C層)で1739年, Ta-b(2C層)で1667年である(北海道開発局, 1979)。これらのことから、現況での両地点における鉍質土壌の塩基飽和度がそれぞれ平衡状態にあるとすると、 Δ 塩基による交換態塩基の減少は鉍物の風化によって補われていることになる。その条件下では、鉍物による風化速度(Δ WEA)は式(8)のように計算できる。

$$\text{WEA} = \Delta \text{交換態塩基量} \div \text{TUR}$$

(8)

計算の結果、鉍物による風化速度は地点Dfで1.0, 地点Cfで0.9 kmol. ha⁻¹ y⁻¹であり、両地点ともほぼ同じ値を示した(表12-4)。さらに、これらの値は土壌-植物系からの正味塩基放出フラックス(表9-13の Δ_n)とほぼ同様な値を示した。この風化速度が維持されるならば、現況の生態系における塩基収支のもとでは土壌の塩基飽和度は低下しない。したがって、鉍物の風化速度は土壌からの交換態塩基減少による土壌pHの低下を阻止する能力を示すものであるが、土壌中に存在する全塩基現存量は両地点とも28000 kmol. ha⁻¹ y⁻¹であることから(図12-6)、現在の風化速度がこのまま維持されるならば、その継続可能年数は地点Dfで28000年、地点Cfでは31000年であった。これらのことは両地点の鉍質土壌が現況の地球化学的塩基循環において十分大きな緩衝力を保有していることを示している。

以上のように、森林生態系の物質循環において土壌と植生は相互に強く関係しながら独自の循環系を形成している。そのような系に対する外部からのインパクトを考える際には、植生と土壌を別個のものとして詳細に研究すると同時にその相互関係に注目した研究を行うことが重要である。特に、これまでは酸性降下物に対する土壌の緩衝機構についてはその研究対象が鉍質土壌に集中していたが、土壌と植生の相互関係の結果として形成されたO層に関して、より広範な研究を行うことが必要であると言える。

本研究で明らかとなったように、酸性降下物に対する生態系の緩衝機構は物質の生物地球化学的循環によって支えられ、特に広葉樹林の酸中和能力が高かった。したがって、その循環系が森林植生の衰退や皆伐などによって崩壊したならば、生態系の持つ緩衝能力は著しく低下するであろう。また、酸性降下物による浅層地下水や溪流水の酸性化を防ぐためにはその流域に存在する森林、特に広葉樹林の物質循環系を健全に保つことが重要であると思われる。今後は、広葉樹林と針葉樹林の物質循環に対する針広混交林生態系連鎖の影響や相互作用などについて研究すること

表12-4 苫小牧の両地点における塩基の回転速度および鉍物による風化速度

	Df	Cf	単位
現在の交換態塩基現存量	31	35	kmol. ha ⁻¹
塩基飽和度10%の交換態塩基現存量	13.8	16.2	kmol. ha ⁻¹
△交換態塩基量 ¹⁾	17.2	18.8	kmol. ha ⁻¹
〇層の塩基現存量	60	38	kmol. ha ⁻¹
塩基プール ²⁾	77.2	56.8	kmol. ha ⁻¹
EX-(Dw+Dd)+△bio ³⁾	4.5	2.7	kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹
回転速度 ⁴⁾	17.2	21.0	y
鉍物による風化速度 ⁵⁾	1.0	0.9	kmol. ha ⁻¹ y ⁻¹

1) △交換態塩基量=(現在の交換態塩基現存量)-(塩基飽和度10%の交換態塩基現存量)

2) 塩基プール=△交換態塩基量+〇層の塩基現存量

3) EX; 土壌からの塩基排出フラックス量, Dw; 湿性降下物による塩基流入フラックス
Dd; 乾性降下物による塩基流入フラックス, 植生による正味塩基蓄積フラックス

4) 回転速度=(塩基プール)÷ {EX-(Dw+Dd)+△bio}

5) 鉍物による風化速度=(△交換態塩基量)÷(回転速度)

が必要であろう。

第13章 要旨

森林生態系の物質循環は土壌と植物の密接な相互関係のもとに、自己施肥系といった独自の循環系を形成している。大気からの酸性降下物の沈着がこれらの循環系を損ね、樹木の生育に悪影響を及ぼすという懸念が欧米を中心に議論されてきた。森林土壌は酸性降下物によって供給される H^+ の影響で酸性化が進行すると同時に、その酸を中和する働きがあることが知られている。生態系の物質循環過程においてこの緩衝機構を明らかにするためには生態系の物質収支に基づいて議論することが重要である。

本研究では森林生態系の物質循環過程における酸性降下物に対する緩衝機構を明らかにするために、同じ土壌に立地する異なる植生の森林生態系において物質循環フラックスを調査し、各部位の物質収支に基づいて研究を行い、以下のことを明らかにした。

大気からの湿性降下物による年間のプロトン沈着量は平均 $0.65 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ に達し、欧米において森林衰退が顕著である地域と匹敵した値であった。しかしながら、森林の著しい衰退や土壌の酸性化は現段階では生じていない。苫小牧において降水のpHを低下させている主因は南東からの季節風によって臨海工業地帯から供給される非海塩起源の SO_4^{2-} に伴う H^+ であった。

降水として生態系へ流入する物質フラックスが植生タイプに関わらず地点間ではほぼ同じであったのに対し、針葉樹林(ストロブマツ林)の林冠はその物理的性質によって、大気からの乾性沈着フラックスが同一地域の広葉樹林より大きく、林内雨と樹幹流による SO_4^{2-} フラックスは降雨による SO_4^{2-} の約2.5倍に相当した。針葉樹林の林内雨pHは降雨pHと有意な差が認められないのに対し、広葉樹林における林内雨pHは林冠の着葉期間(6~10月)では降雨pHより有意に上昇し、その主要なメカニズムは葉面における H^+ と K^+ の交換反応であった。

林冠での化学的修飾反応を経た後に林内雨や樹幹流として土壌へ流入する酸に対して、林床に存在する堆積粗腐植層(O層)は鉍質土壌へ流入する酸を中和する重要な役割を担っており、溶液中の H^+ とO層固相の塩基性イオン、特に Ca^{2+} との交換反応が主要な機作であった。また針葉樹林のO層浸透水は有機酸の影響を受けており、天塩山地のトドマツ林下でより顕著であった。

これらの林冠-O層系の高い酸緩衝力は植生の塩基吸収とその還元により維持されている。植生のCa、MgおよびK吸収フラックスの合計は広葉樹林で $8.3 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ と針葉樹林の $2.8 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ より約3倍大きかった。この広葉樹林の大きな塩基吸収能が、根群域下への塩基排出フラックスを広葉樹林で $1.8 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ と針葉樹林の $3.8 \text{ kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ より約1/2小さくした原因と考えられた。また、鉍質土層では外部供給 H^+ より土壌内部生成 H^+ 量が多く、それは主としてA層での硝

酸化生成に由来していた。ただし、その内部生成 H^+ に対して土壌から Ca^{2+} 、 Mg^{2+} を主とした交換態塩基が溶液中に交換放出されることによって土壌浸透水pHの低下が緩衝された。

土壌の酸中和容量($ANC_{(s)}$)の減少速度から求められる土壌の酸性化速度($\Delta ANC_{(s)}$)は広葉樹林で -4.0 、針葉樹林で $-2.3 \text{ kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ と見積もられた。ただし、この $\Delta ANC_{(s)}$ の内容は地点間で異なり、広葉樹林では土壌からの植生による塩基の正味蓄積の影響が強かったのに対し、針葉樹林では根群域下への塩基溶脱の影響をより強く受けていた。広葉樹林での植生による塩基吸収は林冠-O層系の高い酸緩衝機能を維持すると共に、樹体内へ塩基を蓄積することによって次世代のための酸緩衝力を保持する役割を担っていると考えられる。

また、酸中和のための塩基プールを、鉍質土壌では塩基飽和度10%までの根群域の交換態塩基量、O層では全塩基現存量とすると、広葉樹林では77、針葉樹林では57 $\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった。これらの値は現況の土壌からの塩基減少フラックスに対して、それぞれ17.2、21.0年分に相当するものである。鉍質土壌の塩基飽和度が平衡に達しているとするれば、交換態塩基の減少は鉍物の風化によって補われていることになり、その風化速度は広葉樹林で1.0、針葉樹林で0.9 $\text{kmol. ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であった。これらの値は塩基の外部供給と排出にバランスしていた。また、土壌の全塩基現存量は鉍物の風化速度に対して、広葉樹林で28000年、針葉樹林で31000年分に相当した。これらのことは両地点の土壌が現況の地球化学的循環において、十分大きな緩衝力を有していることを示している。

以上のように植生による土壌からの塩基の吸収および林床への濃縮・還元過程は、土壌-植物系の酸緩衝機能や系外への元素排出フラックスに強く影響していた。言い換えると、酸性降下物に対する森林生態系の緩衝機構は元素の生物地球化学的循環過程によって支配されており、本調査地の広葉樹林ではその過程が元素の地球化学的循環より顕著に大きいことによって生態系の酸緩衝機構が維持されていた。今後の研究課題としては、広葉樹林と針葉樹林の物質循環に対する、広葉樹と針葉樹の混交林生態系連鎖の意義やその相互作用を明らかにすることであろう。

第14章 引用文献

- 1) Arthur, M.A. and Fahey, T.J. 1992: Biomass and Nutrients in an Engelmann spruce-subalpine fir forest in north central Colorado : pools, annual production, and internal cycling, *Can. J. For. Res.*, 22, 315-325
- 2) Bertsch, P.M.(1989): Aluminum Speciation: Methodology and Applications, in *Acidic Precipitation 4*, S.A. Norton, S.E. Lindberg and A.L. Norton, Springer-Verlag, 63-106, New York
- 3) Berry, D.F., Zelazny, L.W. and Waker, Jr., H.L.(1990): Aluminum and Organic Matter Mobilization from Forest Soil Infiltrated with Acidified Calcium Sulfate Solutions, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 54, 1757-1762
- 4) Bredemier, M., Matzner, E. and Ulrich, B.(1990): Internal and External Proton Load to Forest Soils in Northern Germany, *J. Environ. Qual.*, 19, 469-477
- 5) Cronan, C.S. and Schofield, C.L.(1979): Aluminum Leaching Responce to Acid Precipitation: Effects on High-Elevation Watersheds in the Northeast, *Science*, 204, 304-306
- 6) Dalziel, T.R.K., Howells, G. and Skeffington, R.A.(1992): The interaction of forest vegetation and soils with the aquatic environment; effect of catchment liming on lakes, in *ACIDIFICATION RESEARCH: EVALUATION AND POLICY APPLICATIONS*, T. Schnaider eds, Netherlands, 107-126
- 7) Davidson, C.I., and Wu, Y.L.(1989): Dry deposition of particles and vapors, in *Acidic Precipitation 4*, S.A.Norton, S.E.Lindberg, and A.L.Page eds, Springer-Verlag, New York, 103-216
- 8) (財)電力中央研究所(1994): 広域環境影響等評価技術実証調査, 環境影響評価技術等実証調査, 平成5年度調査報告書, pp284
- 9) Driscoll, C.T. and Likens, G.E.(1982): Hydrogen ion budget of aggrading forested ecosystem, *Tellus*, 34, 283-292
- 10) Eliassen, A.(1980): A Review of Long-Range Transport Modeling, *J.Appl.Met.*, 19, 231-240
- 11) Eliassen, A. and Tbones, J.S.(1983): Modelling of Long-range Transport of Sulphur over Europe: a Two-yaer Model Run and Some Model Experiments, *Atmos. Environ.*, 17, 1457-1473
- 12) Evans, L.S.(1984): Botanical Aspects of Acidic Precipitation, *Bot. Rev.*, 50, 449-490
- 13) Evans, Jr., A., Zelazny, L.W. and Zipper, C.E.(1988): Solution Parameters Influencing Dissolved Organic Carbon Levels in Three Forest Soils, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 52, 1789-1792

- 14) Fay, J.A., GOLOMB, D. and KUMAR, S.(1985): Source Apportionment of Wet Sulfate Deposition in Eastern North America, Atmos. Environ., 19, 1773-1782
- 15) Fager, K.H., Brahmer, G. and Zottl, H.W.(1990) :Element Budgets of Two Contrasting Catchments in the Black Forest(Federal Republic of Germany), J. Hydrol., 116, 85-99
- 16) Ferrier, R.C., Jenkins, A., Miller, J.D., Walker, B. and Anderson, H.A.(1990): Assesment of wet deposition mechanisms in an upland Scottish catchment, J. Hydrol., 113, 285-296
- 17) Foster, N.W.(1989): Influences of Seasonal Temperture on Nitrogen and Sulfur Mineralization/Immobilization in a Maple-Birch Forest Floor in Central Ontario, Can. J. Soil Sci., 69, 501-514
- 18) 藤原滉一郎, 佐藤冬樹, 笹賀一郎, 飯原慶子(1991): 1990~'91年冬期の道北地方の積雪分布と化学成分の変動, 雪氷支部要旨, 9-11
- 19) Grigal, D.F. and Ohmann, L.F.(1989): Spatial Patterns in Elemental Concentrations of the Forest Floor across the North Central USA, J. Environ. Qual., 18, 368-373
- 20) Haemmerli, F., Krauchi, N. and Stark, M.(1992): The Swiss nationalresearch program "Forest Damage and Air Pollution", in ACIDIFICATION RESEARCH: EVALUATION AND POLICY APPLICATIONS, T. Schnaider eds, Netherlands, 449-460
- 21) 原田 洸, 山本 肇, 塩崎正雄(1971): アカエゾマツの成長と土壌条件ならびに養分含有量について(Ⅱ)-アカエゾマツ林の養分現存量-, 日林講演集, 82, 85-87
- 22) 原 宏(1987): 大気中におけるSO₂, NO_xの変換, 日本気象学会:酸性雨, 気象研究ノート 158, 37-50
- 23) 原 宏(1992): 降水, 陸水の化学より, 季刊 化学総説 14, 69-78
- 24) Hardiwinoto, S., 矢島 崇, 五十嵐恒夫(1991): 落葉広葉樹林と常緑針葉樹林の林分構造及びリターフォール, 北演研報, 48, 115-155
- 25) Hardiwinoto, S.(1991): 北海道北部の落葉広葉樹林と針葉樹林のリターフォールの養分, 北演研報, 48, 307-323
- 26) 春木雅寛(1979): トドマツ人工林の物質現存量に関する基礎的研究, 北演研報, 36, 147-254
- 27) Hazlett, P.W., English, M.C., and Foster, N.W.(1992): Ion enrichment of snowmelt water by processes within a podzolic soil, J. Environ.Qual. 21, 102-109
- 28) 北海道開発局(1979): 北海道の特殊土壌-生成, 分布と土地改良-, 特殊土壌農地化調査報告書, pp394, 北海道開発局, 札幌
- 29) Howells, G.(1990): Emission, dispersion, deposition, in ACID

RAIN AND ACID WATERS, Ellis Horwood, England, 17-28

- 30) Huttermann, A. and Ulrich, B.(1984): Solid phase-solution-root interactions in soils subjected to acid deposition, Phil. Trans. R. Soc. Lond. B, 305, 353-368
- 31) 指宿堯嗣(1990): 酸性雨(環境の酸性化)の原因物質, 大気の化学より, 季刊 化学総説 10, 99-115
- 32) 飯田俊彰, 富田英二(1992): 積雪内における雪質変化に伴う溶質の流下の実態, 農土大会要旨, 498-499
- 33) 池田有光(1987): 長距離輸送モデル, 日本気象学会:酸性雨, 気象研究ノート 158, 139-152
- 34) 石崎武志, 田中夕美子(1993): 苫小牧演習林における積雪深および土壌凍結深の観測, 平成2~3年度文部省特定研究報告書, 寒冷積雪地域の森林が水文・気象・植物生態に与える影響の研究, 小林大二(編), 北海道大学低温科学研究所, 70-80
- 35) Ivens, W.P.M.F., Draaijers, G.P.J., Bleuten, W. and Bos, M.M. 1989: The Impact of Air-borne Ammonia from Agricultural Sources on Fluxes of Nitrogen and Sulphur towards Forest Soils, Catena, 16, 535-544
- 36) 伊豆田 猛・大谷知子・横山政昭・堀江勝年・戸塚 績(1993): モミ苗の成長に対する人工酸性雨の影響, 大気汚染学会誌, 28, 29-37
- 37) James, B.R. and Riha, S.J.(1986): pH Buffering in Forest Soil Organic Horizons: Relevance to Acid Precipitation, J. Environ. Qual., 15, 229-234
- 38) James, B.R., and Riha, S.J.(1989a): Aluminum Leaching by Mineral Acids in Forest Soils: I.Nitric-Sulfuric Acid Differences, Soil Sci. Soc. Am. J., 53, 259-264
- 39) James, B.R., and Riha, S.J.(1989b): Aluminum Leaching by Mineral Acids in Forest Soils: II.Role of the Forest Floor, Soil Sci. Soc. Am. J., 53, 264-269
- 40) Jeffries, D.S.(1990): Snowpack Storage of Pollutants, Release during melting, and impact on receiving waters, in Acidic Precipitation 4, S.A. Norton, S.E.Lindberg, and A.L.Page eds, Springer-Verlag, New York, 107-132
- 41) Johnson, D.W. and Lindberg, S.E.(1992): Atmospheric Deposition and Forest Nutrient Cycling, pp707, Springer-Verlag, New York
- 42) Johnson, D.W., Henderson, G.S., Huff, D.D., Lindberg, S.E., Ritchter, D.D., Shriner, D.S., Todd, D.E. and Turner, J.(1982): Cycling of organic and inorganic sulphur in a chestnat oak forest, Oeologia, 54, 141-148
- 43) Johnson, D.W., Richter, D.D., Lovett, G.M. and Lindberg, D.E.

- (1985): The effects of atmospheric deposition on potassium, calcium, and magnesium cycling in two deciduous forests, *Can. J. For. Res.*, 15, 773-782
- 44) Johnson D.W., van Miegroet, H., Lindberg, S.E., Todd, D.E. and Harrison, R.B. (1991): Nutrient cycling in red spruce of the Great Smoky Mountains, *Can. J. For. Res.*, 21, 769-787
- 45) Jorgensen, J.R., Wells, C.G. and Metz, L.J. (1980): Nutrient Changes in Decomposing Loblolly Pine Forest Floor, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 44, 1307-1314
- 46) 環境庁大気保全局(1988): 酸性雨等調査マニュアル, 環境庁, 東京
- 47) 加藤秀正・白井昌洋(1995): スギおよびヒノキ近傍土壌の酸性化, 土肥誌, 66, 57-60
- 48) 河田 弘(1989): 森林土壌学概論, 博友社, pp399, 東京
- 49) 樋根 勇(1973): 水の循環, 共立出版, pp230, 東京
- 50) 菊沢喜八郎, 浅井達弘(1979): 日高地方における広葉樹林の林分構造と生長量, 道立林試報, 16, 1-17
- 51) 木村和義(1978): 雨と植物-リーチングを中心として-, 農業気象, 34, 23-30
- 52) 木村和義(1987): 作物にとって雨とは何か, 農文教, pp197, 東京
- 53) 木村 允(1976): 陸上植物群落の生産力測定法, 生態学講座8, pp112, 共立出版, 東京
- 54) 北野 康(1995): 水の科学, pp254, 日本放送出版協会, 東京
- 55) Lamersdorf, N.P. and Meyer, M. (1993): Nutrient cycling and acidification of a northwest German forest site with high atmospheric nitrogen deposition, *Forest Ecology and Management*, 62, 323-354
- 56) Lawrence, G.B. and Fernandez, I. (1991): Biogeochemical interaction between acidic deposition and a low-elevation spruce-fir stand in Howland, Maine, *Can. J. For. Res.*, 21, 867-875
- 57) Liechty, H.L., Mroz, G.D. and Reed, D.D. (1993): Cation and anion fluxes in northern hardwood throughfall along an acidic deposition gradient, *Can. J. For. Res.*, 23, 457-467
- 58) Like, D.E. and Klein, R.D. (1985): The Effect of Simulated Acid Rain on Nitrate and Ammonium Production in Soils from Three Ecosystems of Camel's Hump Mountain, Vermont, *Soil Sci.*, 140, 352-355
- 59) Lilieholm, B.C. and Feagley, S.E. (1988): Effects of Simulated Acid Rain on Soil and Leachate Acidification of a Lexington Silt Loam, *Soil Sci.*, 146, 44-50
- 60) Lindberg, S.E., Lovett, M., Richter, D.D. and Johnson, D.W.

- (1986): Atmospheric and canopy interactions of major ions in a forest, *Science*, 231, 141-145
- 61) Liu, K.H., Mansell, R.S. and Rhue, R.D.(1990): Cation Removal during Application of Acid Solutions into Air-Dry Soil Columns, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 54, 1747-1753
- 62) Lovett, G.M. and Lindberg, S.E.(1984): Dry Deposition and Canopy Exchange in a Mixed Oak Forest as Determined by Analysis of Throughfall, *J. Appl. Ecol.*, 21, 1013-1027
- 63) Lovett, G.M., Lindberg, S.E., Richter, D.D. and Johnson, D.W. (1985): The effects of acidic deposition on cation leaching from three deciduous forest canopies, *Can. J. For. Res.*, 15, 1055-1060
- 64) MacDonald, N.W., Burton, A.J., Liechty, H.O., Witter, J.A., Pregitzer, K.S., Mroz, G.D. and Richter, D.D.(1992): Ion Leaching in Forest Ecosystems along a Great Lakes Air Pollution Gradient, *J. Environ. Qual.*, 21, 614-623
- 65) 真鍋逸平, 竹内典之, 川那辺三朗(1981): 密に植栽された若いトドマツとヨーロッパトウヒ林分の現存量と生長量, *京大演研報*, 53, 43-50
- 66) 松本陽介・丸山温・森川靖(1992a): スギの水分生理特性と関東平野における近年の気象変動－樹木の衰退現象に関連して－, *森林立地*, 34, 2-13
- 67) 松本陽介・丸山温・森川靖・井上徹雄(1992b): 人工酸性雨(霧)およびオゾンがスギに及ぼす影響と近年の汚染状況の変動－樹木の衰退現象に関連して－, *森林立地*, 32, 65-69
- 68) 松浦陽次郎・堀田庸・荒木誠(1990): 関東地方におけるスギ表層土壌のpH低下, *森林立地*, 32, 65-69
- 69) 三土正則(1991): 農耕地土壌分類改善のための土壌断面データ集, 農業環境技術研究所資料, 第12号, 農業環境技術研究所, pp56, つくば
- 70) 三宅 博・横田 太・伊豆田猛・戸塚 績(1990), スギにおける二酸化硫黄の乾性沈着と雨水によるイオンの溶脱, 「人間環境系」研究報告集 G028-N11-01, 26-32
- 71) 三宅 博・亀井信一・伊豆田 猛・戸塚 績 1991: 水耕栽培におけるスギ苗の生長 に対するアルミニウムの影響, *人間と環境*, 17, 10-16
- 72) 村尾直人・太田幸雄・山形 定・片谷教孝・岡本真 一・小林恵三 (1991): 東アジア地域を対象とした酸性雨モデルの開発, *環境科学会 1991年会講演要旨集*, p69
- 73) Nambu, K., Kunimatsu, T. and Kyuma, K.(1994): Rates of Soil Acidification under Different Patterns of Nitrogen Mineralization, *Soil Sci. Plant Nutr.*, 40, 95-106
- 74) Natscher, L. and Schwertmann, U.(1991): Proton buffering in

- organic horizons of acid forest soils, *Geoderma*, 48, 93-106
- 75) 日本土壤肥料学会(1978): 昭和62年度酸性雨による土壤影響調査, 昭和62年度環境庁委託業務結果報告書, pp105
- 76) 日本化学会(1984): 元素の存在度, 化学便覧基礎編 I, 丸善(株), 東京, p21
- 77) 日本雪氷学会北海道支部(1991): 雪氷調査法, 北海道大学図書刊行会, 札幌, p30
- 78) 仁王以智夫・沓名重明(1989): 種々の分解段階にあるスギ落葉の無機窒素代謝, 東大演研報, 81, 7-19
- 79) 仁王以智夫・春田泰次・川上日出國(1989): ポット内で分解させたスギ落葉の化学的・微生物的变化, 東大演研報, 81, 21-37
- 80) 野内 勇(1991): 酸性雨と植物被害, 農業気象, 47, 165-175
- 81) 小倉紀雄・佐々木佳恵子(1990): 多摩丘陵小流域における酸性降下物と緩衝作用, 「人間環境系」研究報告集G028-N11-01, 59-76
- 82) 岡田菊夫(1987): 硫酸・硝酸塩を含む大気エアロゾル粒子, 日本気象学会:酸性雨, 気象研究ノート 158, 51-74
- 83) 岡島秀夫・佐久間敏雄・今井弘樹・飯塚文男・木曾誠二・谷山一郎(1978): 有珠山1977年噴出物の土壌母材としての理化学的特性, 「有珠山噴火と環境変動」, 北海道大学, 335-347
- 84) 大喜多敏一(1991): 酸性雨問題の推移, 地球環境工学ハンドブック, 第14章酸性雨問題, 地球環境工学ハンドブック編集委員会(編), 615-629, オーム社, 東京
- 85) 大喜多敏一・小林喬郎(1990): 酸性降下物予測モデルの開発, 「人間環境系」研究報告集G028-N11-01, 1-13
- 86) 大喜多敏一・村野健太郎(1990): 大気汚染物質降下量の評価, 「人間環境系」研究報告集G028-N11-01, 14-25
- 87) 大河内博・細野哲也・丸山文隆・井川 学(1995): 丹沢大山における酸性降下物とスギ, モミ樹冠との相互作用, 環境科学会誌, 8, 305-316
- 88) 太田路一・川瀬 清・石崎健二・前田 豊(1980): 北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染, 北海道大学農学部演研報, 37, 287-305
- 89) 太田路一・川瀬 清・石崎健二・前田 豊(1983): 北海道大学苫小牧地方演習林の大気汚染(Ⅱ), 北海道大学農学部演研報, 40, 463-490
- 90) 太田幸雄(1987): 汚染物の沈着機構:雲, 霧への取り込み, 日本気象学会:酸性雨, 気象研究ノート 158, 85-106
- 91) 太田幸雄(1990): 大気エアロゾル, 大気の化学より, 季刊 化学総説 10, 学会出版センター, 123-145
- 92) Puckett, L.J.(1990): Estimation of ion sources in deciduous and coniferous throughfall, *Atmospheric Environ.*, 24, 545-555
- 93) Richter, D.D., Johnson, D.W. and Todd, D.E.(1983): Atmospheric Sulfur Deposition, Neutralization, and Ion Leaching in Two

- Deciduous Forest Ecosystems, J. Environ. Qual., 12, 263-270
- 94) 三枝正彦(1994): 酸性土壌におけるアルミニウムの化学, 低pHと土壌, 日本土壌肥料学会編, 博友社, 7~42, 東京
- 95) 佐久間敏雄, 堂本弘之, 佐藤冬樹, 小林 信, 田中夕美子(1994): 若木を用いた乾性降下物量の測定, 土肥誌, 65, 378~384
- 96) 佐久間敏雄, 増谷雪雄, 倉持寛太(1989): 天然水の重水存在率, 土肥誌, 60, 203-209
- 97) 佐久間敏雄, 佐藤冬樹(1987): 広葉樹林下の土壌中における無機元素の動態(第1報, 第2報), 北海道大学農学部演研報, 44, 537-552, 553-565
- 98) 佐々朋幸・後藤和秋・長谷川浩一・池田重人(1990): 盛岡市周辺の代表的森林における林外雨, 林内雨, 樹幹流の酸性度ならびにその溶存成分, 森林立地, 32, 43-58
- 99) 佐々朋幸・高橋忠幸・長谷川浩一(1993): 特定樹種の樹幹流による土壌の酸性化抑制作用(Ⅱ) センノキ, オニグルミについて, 日林誌, 75, 321-330
- 100) 佐藤大七郎(1974): 北海道のウダイカンバの天然林の物質生産ー林分生長論資料9ー, 東大演研報, 60, 109-117
- 101) Satoh, F., Sakuma, T. and Okajima, H.(1990): A Toposequence of Fine-Textured Soils in the Hilly Area of the Northernmost Part of Hokkaido: III, Soil Sci. Plant Nutr., 36, 251-260
- 102) SEPA(Swedish Environmental Protection Agency)(1991): Acidification and liming of Swedish freshwaters, ppl44, Sweden
- 103) Shriner, D.S. and Henderson, G.S.(1978): Sulfur distribution and cycling in a deciduous forest watershed, J.Environ.Qual., 7, 392-397
- 104) 渋谷正人, 酒井 武(1991): 樹下植栽されたトドマツ人工林の成長と現存量, 北演研報, 48, 293-306
- 105) 新藤純子・Armond, K・Bregt, K.・袴田共之(1995): 酸性降下物の臨界負荷量の概念と推定法の評価, 環境科学会誌, 8, 59-70
- 106) Singth, B.R., Abrahamsen, G. and Stuanes, A.(1980): Effects of Simulated Acid Rain on Sulfate Movement in Acid Forest Soils, Soil Sci. Soc. Am. J., 44, 75-80
- 107) Soil Survey Staff(1975): Soil Taxonomy, Agriculture Handbook No. 436, U.S. Government Printing Office, pp754, Washington
- 108) Stottlemeyer, R.(1987): Snowpack ion accumulation and loss in basin draining to lake Superior, Can.J.Fish.Aquat.Sci. 44, 1812-1819(1987)
- 109) Switzer, G.L. and Nelson, L.E.(1972): Nutrient accumulation and cycling in Loblolly Pine (Pinus taeda L.), Soil Sci. Soc. Am.

Proc., 36, 143-147

- 110) 鈴木啓助(1983): 札幌における降雪の化学的性質 - 特に海水起源物質濃度の成因について -, 地理学評論, 56, 171-184
- 111) Suzuki, K.(1987): Spatial Distribution of Chloride and Sulfate in the Snow Cover in Sapporo, Japan, Atmospheric Environ., 21, 1773-1778
- 112) 鈴木啓助(1991): 融雪中の溶存成分濃度の日変化, 雪氷, 53, 21-31
- 113) 鈴木啓助・遠藤八十一(1991): 十日市における酸性の融雪水, 森林立地, 33, 71-75
- 114) 只木良也・四手井綱英・酒瀬川武五郎・荻野和彦(1961): 森林の生産構造に関する研究(Ⅱ), シラカンバ幼令林における現存量の推定と生産力についての若干の解析, 日林誌, 43, 19-25
- 115) 高橋正通(1994): 堆積有機物層の養分レジムとその管理に関する研究, 博士論文, 北海道大学農学部, pp163, 札幌
- 116) 高橋幸男・浅井達弘・菊沢喜八郎(1974): 名寄のシラカンバ林の現存量について, 道林試報, 12, 29-37
- 117) 田中 豊・垂水共之・脇本和昌(1984): パソコン統計解析ハンドブックⅡ: 多変量解析編, 共立 出版, 東京, 16-24
- 118) Tanner, R.L.(1990): Sources of Acids, Bases, and Their Precursors in Atmosphere, in Acidic Precipitation 3, Sources, S. E.Lindberg, A.L.Page, and S.A.Norton eds, Springer-Verlag, New York, 1-20
- 119) Tukey, Jr., H.B. and Morgan, J.V. 1963: Injury to Foliage and its Effect Upon the Leaching of Nutrients from Above-Ground Plant Parts, Physiol. Plant., 16, 557-564
- 120) Tukey, Jr., H.B. 1970: The Leaching of Substances from Plants, Ann. Rev. Plant Physiol., 21, 305-324
- 121) 角皆静男・山本宏(1990): 大気中の硫黄化合物, 大気の化学, 季刊 化学総説, 日本化学会(編), 学会出版センター, 76-87, 東京
- 122) 鶴田治雄(1990): 東アジアの酸性雨, 地球環境の危機, 内嶋善兵衛(編), 岩波書店, 214-224, 東京
- 123) 堤 利夫(1987): 森林の物質循環, 東京大学出版会, pp124, 東京
- 124) 堤 利夫(1989): 森林の生活, 中公新書, pp197, 東京
- 125) 上田晋之助(1972): トドマツ・広葉樹混交林における養分要素の循環について, 日林講演集, 83, 110-112
- 126) Ulrich, B., Mayer, R. and Khanna, P.K.(1980): Chemical change due to acid precipitation in a losses-derived soil in central Europe, Soil Sci., 130, 193-199
- 127) Ulrich, B. (1989): Effects of Acidic Precipitation on Forest Ecosystems in Europe, in Acidic precipitation, vol.2, D.C.

- Adriano and A.H. Johnson eds, 189-272, Springer-Verlag, New York
- 128) van Breemen, N., Burrough, P.A., Velthorst, E.J., van Dobben, H.F., de Wit, Toke, Ridder, T.B. and Reijnders(1982): Soil acidification from atmospheric ammonium sulphate in forest canopy throughfall, *Nature*, 299, 548-550
 - 129) van Breemen, N., Mulder, J. and Driscoll, C.T.(1983): Acidification and alkalization of soils, *Plant Soil*, 75, 283-308
 - 130) van Breemen, N., Driscoll, C.T. and Mulder, J.(1984): Acidic Deposition and Internal Proton Sources in Acidification of Soils and Waters, *Nature*, 307, 599-604
 - 131) van Breemen, N., Mulder, J. and van Grinsven, J.J.M.(1987): Impacts of Acid Atmospheric Deposition on Woodland Soils in the Netherlands: II. Nitrogen Transformations, *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 51, 1634-1640
 - 132) van Breemen, N., Visser, W.F.J. and Pape, T.(1989): Biogeochemistry of an oak-woodland ecosystem in the Netherlands affected by acid atmospheric deposition, Wageningen, Agricultural reserch reports; 930, p114
 - 133) van Grinsven, J.J.M., van Breemen, N and Mulder, J.(1987): Impact of Atmospheric Deposition on Woodland Soils in the Netherlands: I. Calculation of Hydrologic and Chemical Budgets, *Soil Sci. Soc. Am. J.* 51, 1629-1634(1987)
 - 134) Venktram, A., Ley, B.E. and Wong, S.Y.(1982): A Statistical model to Estimate Long-term Concentrations of Pollutants Associated with Long-range Transport, *Atmospheric Environ.*, 16, 249-257
 - 135) Visser, P.H.B. and van Breemen, N.(1995): Effects of water and nutrient applications in a Scots pine stands to tree growth and nutrient cycling, *Plant Soil*, 173, 299-310
 - 136) Wada, K.(1986): Ando Soils in Japan, Kyushu University Press, pp276, Fukuoka
 - 137) 八木久義・丹下 健・相沢州平(1993): 酸性雨によるスギの成長および森林土壌に及ぼす影響, 資源環境対策, 29, 139-143
 - 138) 山本 肇(1965): 林木の生育と養分含有量についてーとくにシラカンバの着葉量およびその無機成分ー, 林試研報, 182, 10-64
 - 139) Yavitt, J.B. and Fahey, T.J.(1984): An experimental analysis of solution chemistry in a lodgepole pine forest floor, *Oikos*, 43, 222-234
 - 140) 吉田 稔・川畑洋子(1988): 酸性雨の土壌による中和機構, 土肥誌,

59, 413-415

- 141) 吉田 稔(1984): 土壤酸性の土壤化学的解析, 酸性土壤とその農業利用, 田中 明(編), 143-168, 博友社, 東京
- 142) 吉村健次郎, 古本浩望(1973): 広葉樹林の育成に関する研究 - シラカンバ林の第1次生産力について -, 日林北支論, 22, 93-96
- 143) 吉武 孝・増田久夫(1986): 苫小牧地域におけるストロームマツ等の異常落葉に関する考察, 林試研報, 337, 1-28
- 144) 吉武 孝(1990): 酸性霧降下地帯における異常落葉, 北方林業, 42, 293-296
- 145) Zhao, D., Xiong, J., Xu, Y. and Chan, W.H.(1988): Acid rain in southwestern China, Atmos. Environ., 22, 349-358