ISSN（online） 2187-9508

国立環境研究所研究プロジェクト報告　第 107 号
NIES Research Project Report, No.107

SR － 107 － 2014

窒素飽和状態にある森林域からの窒素流出負荷量の定量評価および将来予測
（特別研究）

Evaluation and prediction of nitrogen load from nitrogen saturated forest area

平成 22 ～ 24 年度
FY2010 ～ 2012

NIES

独立行政法人　国 立 環 境 研 究 所
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES
http://www.nies.go.jp/

ISSN（online） 2187-9508

国立環境研究所研究プロジェクト報告　第 107 号
NIES Research Project Report, No.107

SR − 107 − 2014

窒素飽和状態にある森林域からの窒素流出負荷量の定量評価および将来予測
（特別研究）

Evaluation and prediction of nitrogen load from nitrogen saturated forest area

平成 22 ～ 24 年度
FY2010 ～ 2012

独立行政法人　国立環境研究所
NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES
http://www.nies.go.jp/

特別研究「窒素飽和状態にある森林域からの窒素流出負荷量の定量評価および将来予測」
（期間：平成 22 ～ 24 年度）

課題代表者：林　誠二

執　筆　者：渡邊未来、高津文人、越川昌美、林　誠二

編　　　者：越川昌美、林　誠二

序

本報告書は、平成 22 ～ 24 年度の 3 年間にわたって実施した特別研究「窒素飽和状態にある森林域からの窒素流出負荷量の定量評価および将来予測」の研究成果を取りまとめたものです。

窒素飽和とは、森林生態系が窒素過剰状態に陥ることです。通常の森林では、窒素は養分として消費されるため、渓流水への硝酸イオン流出量は少なくなっています。しかし、人為起源の窒素化合物が大気汚染を介して大量かつ慢性的に森林に流入すると、生態系が窒素過剰状態に陥り、渓流水への硝酸イオン流出量が増大します。渓流水の硝酸イオン濃度上昇が及ぼす影響としては、下流域の水質悪化や、硝酸イオン流出に伴うカルシウムなど栄養分の流亡が問題視されています。

本研究で対象とした筑波山森林試験地は、1980 年代後半に国立環境研究所の前身である国立公害研究所が実施した詳細な水・物質動態調査によって、当時から既に窒素飽和状態にあることが指摘されていました。これに対して、本研究の調査結果は、本試験地の森林生態系における窒素過剰状態が、約 4 半世紀前と比べさらに進行していることを示していました。この結果については、10 年単位での長期比較に基づいて森林域における窒素飽和の推移や進行を具体的に明らかにした調査事例が国内外において未だほとんどないことから、極めて有用な成果と考えています。

さらに、本研究では窒素飽和の影響として、下流域の水質悪化や、硝酸イオン流出に伴うカルシウムなど栄養分の流亡が問題となる可能性について、検討しました。まず、硝酸イオン中の窒素・酸素安定同位体比を用いた河川水中の窒素発生源解析の結果、本試験地を含め窒素飽和傾向にある筑波山森林域が、降雨流出時には、水田や畑作地といった他の非特定汚染源と変わらず、霞ケ浦への窒素流入負荷に対する主な発生源となっていることが確認されました。また、窒素飽和の進行によるカルシウム溶脱によって、樹木の生長に必要なカルシウムが欠乏しているか否かについては、ストロンチウム安定同位体比を用いた起源解析の結果、現時点の本試験地に関しては十分な供給源が存在することからカルシウム欠乏の可能性は否定されました。

これらの成果が、森林の窒素飽和の現状と影響を評価する基礎データとして、森林管理や水質保全に関する研究および行政に役立つことを期待しています。

本特別研究は、研究所内外の多くの方々にご協力・ご助言を頂きました。ここに深く感謝いたします。

平成 26 年 3 月

独立行政法人　国立環境研究所

理事長　住　　　明　正

目　次

1　研究の目的と経緯……………………………………………………………………………………… 1
1.1　研究の背景と目的 ……………………………………………………………………………… 1
1.2　研究の構成 ……………………………………………………………………………………… 2

2　研究の成果………………………………………………………………………………………… 4
2.1　筑波山における過去と現在の渓流水中硝酸イオン濃度の比較 ………………………… 4
2.1.1　背景と目的 …………………………………………………………………………………… 4
2.1.2　方法 …………………………………………………………………………………………… 4
2.1.3　結果と考察 …………………………………………………………………………………… 7
2.2　霞ヶ浦への硝酸性窒素流入負荷に対する森林域の寄与の推定 ………………………… 13
2.2.1　背景 …………………………………………………………………………………………… 13
2.2.2　目的 …………………………………………………………………………………………… 14
2.2.3　方法 …………………………………………………………………………………………… 14
2.2.4　結果と考察 …………………………………………………………………………………… 16
2.3　筑波山におけるカルシウム欠乏による森林衰退の可能性の検討 ……………………… 20
2.3.1　背景と目的 …………………………………………………………………………………… 20
2.3.2　方法 …………………………………………………………………………………………… 21
2.3.3　結果と考察 …………………………………………………………………………………… 23
2.4　まとめと今後の課題 ……………………………………………………………………………… 30

［資　料］
Ⅰ　研究の組織と研究課題の構成…………………………………………………………………… 35
1　研究の組織 ……………………………………………………………………………………… 35
2　研究課題と担当者 ……………………………………………………………………………… 35

Ⅱ　研究成果発表一覧………………………………………………………………………………… 36
1　誌上発表 ………………………………………………………………………………………… 36
2　口頭発表 ………………………………………………………………………………………… 37

1　研究の目的と経緯

1.1　研究の背景と目的

窒素は、生物にとって必須元素であり、タンパク質などの構成成分として生体のいたるところに存在する。また、大気もその 78 % は窒素分子で占められているが、ほとんどの生物は、この窒素分子を自ら利用することができない。生物はアンモニアや硝酸といった窒素化合物を利用するが、通常、これらの陸域生態系への供給量は限られている。しかし 20 世紀初め、大気中の窒素分子からアンモニアを合成する技術（ハーバー・ボッシュ法）が開発され、食糧増産や工業利用を目的とした窒素化合物の大量生産と大量消費が行われるようになった。人為的に生成される窒素化合物は、化石燃料の燃焼に伴う発生量も含めると、この 150 年間で 10 倍に増加したと推計されている[1)]。これは、我々の生活が豊かで便利になったことを間接的に示している。しかし一方で、窒素化合物の増加は、大気や土壌、水中での窒素化合物の蓄積を招き、それが高濃度になった結果、呼吸器疾患や酸性雨、地下水汚染といった問題の原因にもなっている[1)]。

森林を例にとると、窒素化合物の増加は、窒素飽和という問題を引き起こすことがある。窒素飽和とは、森林生態系が窒素過多な状態に陥ることである[2)]。通常、降水などによって森林生態系に供給される無機態窒素の量は少なく、また、その大部分は植物や微生物などに利用されるため、系外への窒素流出量は極めて少ない（図 1）。しかし、農地や畜舎から揮散するアンモニア (NH_3)、工場や自動車の排ガスに由来する硝酸（HNO_3）といった窒素化合物が、大量かつ慢性的に森林に負荷されると、植物や微生物の要求量を超えて生態系で蓄えきれなくなった窒素は、硝酸イオンとして渓流水に流れ込み、系外へ多量に流出する（図 1）。渓流水への硝酸イオン流出量の増大は、水源水質の劣化や、湖沼や内湾といった閉鎖性水域の富栄養化など、様々な問題の原因となる[1,3)]。また、硝酸イオンの流出はカルシウムイオンといった養分元素の流出を伴うため、森林生態系内の養分バランスが崩れ、森林衰退が生じることも懸念される[4,5)]。

欧米では、1980 年代半ばから、人間活動に由来する窒素化合物の増加が、広範囲にわたる森林の窒素飽和を引き起こしていることが明らかになっている。窒素飽和状態にある森林生態系の定義は様々あり、当初は、それ以上の窒素を吸収できない生態系[6)]、窒素の供給量が増加しても一次生産が増加しない生態系[7)]、窒素の流出量が流入量と同等かそれを上回っている生態系[8)]、などが提示されてきた。しかし現在では、生物が利用できる無機態窒素量が植物と微生物による要求量を超えた生態系[2)]、という定義が広く用いられている。また、窒素飽和の進行度は、文献毎に内容が少し異なるものの、欧米では、渓流水中の硝酸イオン濃度とその季節変動パターンの違いから、4 段階に分けて説明されることが多い[2,3,9,10)]。そのなかのひとつに、窒素飽和が最も進行した状態として、渓流水中の硝酸イ

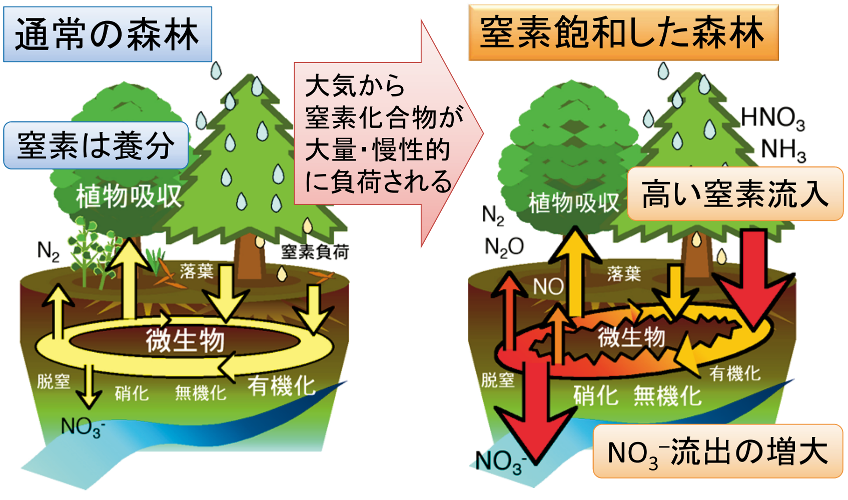

図 1　通常の森林と窒素飽和状態にある森林における窒素循環の概念図

オン濃度が常に1 mgN L^{-1}を超える高い状態であり季節変化を伴わないこと[3]、というものがある。日本では、渓流水中の硝酸イオン濃度の変動メカニズムが欧米とは異なるため、欧米の指標が必ずしも適用できないとの指摘もあるが[11-13]、この硝酸イオン濃度が1 mgN L^{-1}を超えていることを窒素飽和の目安と考えると、日本でも、関東地域をはじめとする大都市近郊の森林では、既に窒素飽和が顕在化しつつあるといえる[11,14-16]。

茨城県筑波山は、1980年代に行われた調査により[17]、大気からの窒素流入量と渓流水への窒素流出量が多いことが分かっており、日本でも窒素飽和状態にある危険性が高い森林と位置づけられている[11,12]。また、現在でも筑波山周辺の渓流水中の硝酸イオン濃度は高いことから[18]、筑波山は窒素飽和研究に適した森林地であると言える。さらに、筑波山の渓流水は、恋瀬川や桜川を経由して霞ヶ浦に流入する。霞ヶ浦の湖水は、約33万人の水道用水のほか、農業用水や工業用水としても利用されているため、筑波山は水源としても重要と言える。

以上を踏まえ、本研究では1980年代から窒素飽和状態が持続していると考えられる茨城県筑波山において、(1) 渓流水への硝酸イオン流出の変化から窒素飽和状態の推移を評価すること、(2) 下流域への窒素負荷発生源としての窒素飽和森林の寄与を見積もること、(3) カルシウム欠乏による森林衰退の可能性を調べることを目的とした。

1.2 研究の構成

本研究は、以下のサブテーマのもとで実施した。

サブテーマ1. 筑波山における過去と現在の渓流水中硝酸イオン濃度の比較

サブテーマ2. 霞ヶ浦への硝酸性窒素流入負荷に対する森林域の寄与の推定

サブテーマ3. 筑波山におけるカルシウム欠乏による森林衰退の可能性の検討

サブテーマ1では、茨城県筑波山において、渓流水中の硝酸イオン濃度を過去（主に1985年）と現在（主に2010年）で比較することによって、窒素飽和の推移を明らかにした。また、無機態窒素を対象に降水（林外雨・林内雨）経由での流入量と、渓流水経由での流出量を集水域単位で算出し、両者の関係から筑波山における窒素飽和の実態を評価した。

サブテーマ2では、霞ヶ浦の主要流入河川下流部を対象に、降雨時汚濁負荷流出量調査と、硝酸イオン中の窒素、酸素安定同位体比を用いた発生源解析によって土地利用別の硝酸性窒素流出負荷量の推定を行った。これにより、窒素飽和状態に陥った筑波山の森林域が、霞ヶ浦への窒素負荷発生源としてどの程度寄与するのかを明らかにした。

サブテーマ3では、カルシウム供給能の脆弱な花崗岩集水域を対象に、ストロンチウム同位体比をトレーサーとした渓流水中のカルシウム起源推定を行った。これにより、筑波山の窒素飽和森林において、硝酸イオンの流出に伴うカルシウム流出が、森林生態系の養分であるカルシウムを欠乏させ、森林衰退を引き起こす可能性があるかについて検討した。

なお、本研究開始時には、窒素飽和状態と林内環境を数値化する指標をそれぞれ確立し、両者の関係を解析することで、森林からの窒素流出量を左右する主な林内環境因子を抽出することを目的として、サブテーマ4. 窒素飽和状態と林内環境の関係解明、を計画していたが、この内容は2011年の研究プログラム改組に伴って先導プログラム「流域圏における生態系機能と環境因子の連動関係の定量評価に関する研究」に組み込まれたため、その成果は2016年度に予定されている先導プログラム終了報告で公開することとする。

引 用 文 献

1) Galloway J.N., Aber J.D., Erisman J.W., Seitzinger S.P., Howarth R.W., Cowling E.B., Cosby B.J. (2003) The nitrogen cascade, BioScience, 53, 341-356.

2) Aber J.D., Nadelhoffer K.J., Steudler P., Melillo J.M. (1989) Nitrogen saturation in northern forest ecosystems, BioScience, 39, 378-386.

3) Gundersen P., Schmidt I.K., Raulund-Rasmussen K. (2006) Leaching of nitrate from temperate forests - effects of air pollution and forest management, Environmental Reviews, 14, 1-57.

4) Peterjohn W.T., Adams M.B., Gilliam F.S. (1996) Symptoms of nitrogen saturation in two central Appalachian hardwood forest ecosystems, Biogeochemistry, 35, 507-522.

5) Schaberg P.G., DeHayes D.H., Hawley G.J. (2001)

Anthropogenic calcium depletion: a unique threat to forest ecosystem health? Ecosyst. Health, 7, 214–228.

6） Ågren G.I. (1983) Model analysis of some consequences of acid precipitation on forest growth, In: Ecological Effects of Acid Precipitation, SNV PM 1636, 233–244.

7） Nilsson J. (1986) Critical Loads for Nitrogen and Sulphur, Miljørapport 11, Nordic Council of Ministers, Copenhagen, 232 p.

8） Ågren G.I., Bosatta E. (1988) Nitrogen saturation of terrestrial ecosystems, Environmental Pollution, 54, 185–198.

9） Aber J., McDowell W., Nadelhoffer K., Magill A., Berntson G., Kamakea M., McNulty S., Currie W., Rustad L., Fernandez I. (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems - Hypotheses revisited, BioScience, 48, 921–934.

10） Stoddard J.L. (1994) Long-term changes in watershed retention of nitorogen: Its causes and aquatic consequences. L.A. Baker (Ed.), Environmental chemistry of lakes and reservoirs, American Chemical Society, Washington, DC, 223–284.

11） Mitchell M.J., Iwatsubo G., Ohrui K., Nakagawa Y. (1997) Nitrogen saturation in Japanese forests: an evaluation, Forest Ecology and Management, 97, 39–51.

12） Ohte N., Mitchell M.J., Shibata H., Tokuchi N., Toda H., Iwatsubo G. (2001) Comparative evaluation on nitrogen saturation of forest catchments in Japan and northeastern United States, Water Air and Soil Pollution, 130, 649–654.

13） Ohte N., Tokuchi N., Fujimoto M. (2010) Seasonal patterns of nitrate discharge from forested catchments: information derived from Japanese case studies, Geography Compass, 4, 1358–1376.

14） 木平英一，新藤純子，吉岡崇仁，戸田任重（2006），わが国の渓流水質の広域調査．日本水文科学会誌，36，145–149.

15） Ohrui K., Mitchell M.J. (1997) Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds, Ecological Applications, 7, 391–401.

16） Zhang Z., Fukushima T., Shi P., Tao F., Onda Y., Gomi T., Mizugaki S., Asano Y., Kosugi K., Hiramatsu S., Kitahara H., Kuraji K., Terajima T., Matsushige K. (2008) Seasonal changes of nitrate concentrations in baseflow headwaters of coniferous forests in Japan: A significant indicator for N saturation, Catena, 76, 63–69.

17） 平田健正，村岡浩爾（1991）筑波森林試験地における土壌水質および渓流水質の季節変化について．水工学論文集，35，105–110.

18） 吉永秀一郎，伊藤優子，相澤州平，釣田竜也（2012）関東平野北東部の森林流域における渓流水の NO_3^- 濃度分布と東京都心からの距離との関係．日本森林学会誌，94，84–91.

2　研究の成果

2.1　筑波山における過去と現在の渓流水中硝酸イオン濃度の比較

2.1.1　背景と目的

窒素飽和とは、水源となる森林が窒素過剰な状態に陥り、渓流水への硝酸イオン（NO_3^-）の流出量が増大する問題である[1)]。窒素飽和状態にある森林では、大気から多量かつ慢性的に流入する無機態窒素を保持しきれないため、過剰な NO_3^- 流出が生じる。なかには、土壌中に蓄積していた窒素化合物までもが流出し、無機態窒素の流出量が流入量を上回る場合もある[2)]（図 2）。

日本でも、関東地域などの大都市周辺の森林域では、既に渓流水の NO_3^- 濃度が高いこと確認されており[3, 4)]、窒素飽和が顕在化している[5-8)]。日本では、NOx 発生量が NH_3 発生量の 5.8 倍と見積もられており[9)]、窒素飽和が起きている地域は、NOx 降下量が多いことが指摘されている[3, 6, 10)]。近年、日本における大気中の NOx 濃度は漸減しているものの[11)]、中国大陸からの NOx 供給量は年々増加しているとの報告もある[12)]。したがって、日本の窒素飽和問題は今後も継続するものと考えられる。

茨城県筑波山は、1980 年代から窒素飽和している危険性の高い森林と位置づけられており[6, 13)]、現在でも渓流水の NO_3^- 濃度は高い[10)]。実際、2007 年から 2008 年にかけて筑波山の 40 源流域において、平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度を測定した結果、その平均値は 1.8 mgN L^{-1} であった。この値は全国平均値である 0.4 mgN L^{-1} の 4 倍以上[4)]、茨城県 611 地点の平均値である 0.8 mgN L^{-1} の 2 倍以上に達していた（図 3）。窒素飽和状態にある森林は、下流域への窒素負荷発生源となっている可能性があるため[14)]、筑波山のように窒素飽和状態が持続している森林において、渓流水への NO_3^- 流出量の時間的変化を調べることは、今後の窒素飽和対策や下流域の水質予測を行う上で重要と考えられる。

そこで本研究では、窒素飽和状態が持続している森林では渓流水の NO_3^- 濃度は上昇したかを明らかにするため、1980 年代に水文水質調査が行われた筑波森林試験地を対象に[15-19)]、林外雨の無機態窒素濃度と、渓流水の NO_3^- 濃度を測定し、過去と現在の値を比較した。また、筑波山森林が下流域への窒素負荷発生源となっているかを明らかにするため、現在の無機態窒素の流出量が流入量を上回っているかを集水域単位で調べた。なお、調査は 2010 年 4 月～ 2013 年 3 月の 3 年間行ったが、本報告では主に、集中的な観測を行った 2010 年 5 月～ 2011 年 4 月の 1 年間の結果について述べる。

2.1.2　方法

（1）調査地の概要

本研究の調査地である筑波森林試験地は、筑波山の南東斜面（茨城県石岡市小幡）に位置し、集水域面積 67.5 ha の森林集水域である（図 4）。ここでは、1984 年から 1989 年にかけて雨水や渓流水などの水文水質調査が行われており、現在の水質と比較可能なデータが存在す

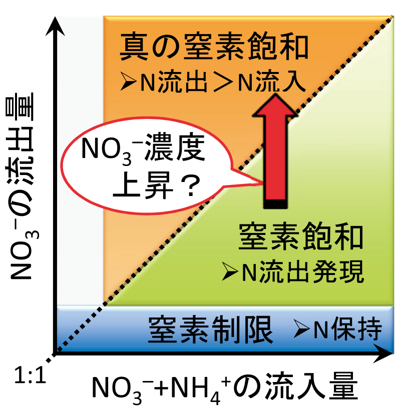

図 2　無機態窒素の流入量と流出量の関係を基準にした窒素飽和の概念図
既存文献を一部改変して作成[2)]。

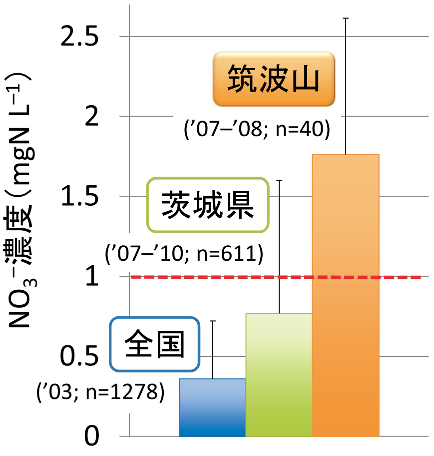

図 3　平水時における渓流水中 NO_3^- 濃度の比較
棒は平均値、エラーバーは標準偏差、括弧内は調査の時期と地点数を示す。全国値は文献引用[4)]。

る[15,16]。

筑波森林試験地は、標高がおよそ200 mから380 mの範囲にあり、その平均斜度は15度である[19]。筑波森林試験地からの流出水は、集水域出口であるT地点に集水されているが[19]、試験地内には、それぞれ北、西、南西方向に流れる渓流A、B、Cがあり、これらが集水域出口部分で合流している（図4）。渓流A、B、Cの集水域面積は、それぞれ31.5 ha、19.3 ha、16.7 haであり、各集水域の地質は、渓流Aが花崗岩、渓流BとCは花崗岩と変成岩（黒雲母片麻岩）から成る[19]。

2010年5月～2011年4月の年降水量は、調査地より北西6 kmに位置するアメダス柿岡観測所で1571 mmであった[20]。この値は、2003年4月～2012年3月の10年間における年降水量の平均値（1469 mm）より高く、調査時期が多雨であったことを示している。また、2010年5月～2011年4月の年平均気温は、調査地より南17 kmにある高層気象台舘野観測所で14.8℃であった[20]。これは、2003年4月～2012年3月の10年間の年平均気温（14.3℃）より高く、特に7月と8月の月平均気温は、例年より2度以上高く、猛暑であったといえる。

筑波森林試験地の森林植生の分布は、現地踏査を踏まえ、空撮画像を目視により樹種分類し、GIS上での画像解析により樹種毎の森林面積を求めた（図5）。樹種分類では文献値や関東森林管理局茨城森林管理署の森林調査簿と林班図も参考にした[19]。その結果、スギ林が36.3 ha、ヒノキ林が14.4 ha、広葉樹林等が16.0 ha、草地が0.8 haであった。全集水域面積に占める割合は、順に53.7 %、21.4 %、23.7 %、1.2 %であり、スギとヒノキの人工針葉樹林で集水域全体の75.1 %を占めていた。また、スギ林の林齢は、2011年4月時点で、全体の97 %が50年生前後であり、若齢林はわずかであった。一方、ヒノキ林や広葉樹林の林齢は、20年生前後から80年生前後まで存在していた。

（2）林外雨と林内雨の採取と分析

林外雨は、集水域出口部分であるT地点付近の草地で採取し、林内雨は、集水域BとCのスギ林で各1地点、集水域Aのヒノキ林2地点と広葉樹林1地点の計5地点で採取した（図5）。雨水はいずれも、2010年5月～2011年4月の1年間、バルクサンプラーを用いて採取し、1ヶ月に1回の頻度で回収した[21]。回収した雨水試料は、雨量を測定した後、ニトロセルロースフィルター（孔径＜0.45 μm, MILLIPORE社製）を通して濾過した。濾液中のNO_3^-とNH_4^+の濃度は、イオンクロマトグラフィー（DX-100, IonPack AS12A/AG12A, IonPack CS3/CG3, Dionex社製）で測定した。

林外雨の無機態窒素の年平均濃度は、雨水中のNO_3^-とNH_4^+の濃度に雨量を乗じて無機態窒素の年間流入量を求め、これを年間降水量で除して算出した。また、集水域単位の無機態窒素の流入量は、林外雨および各樹種の林内雨による無機態窒素の流入量を求め、これに草地および各樹種林の面積を乗じることで算出した。なお、スギ林とヒノキ林における流入量の計算には、各2地点の平均値を用いた。また、林外雨は、本調査期間の前年である2009年5月～2010年4月に得たデータも解析に利用した。

（3）渓流水の採取と分析

渓流水のNO_3^-濃度を過去と現在で比較する場合、平水時と降雨出水時では渓流水中NO_3^-濃度が大きく異な

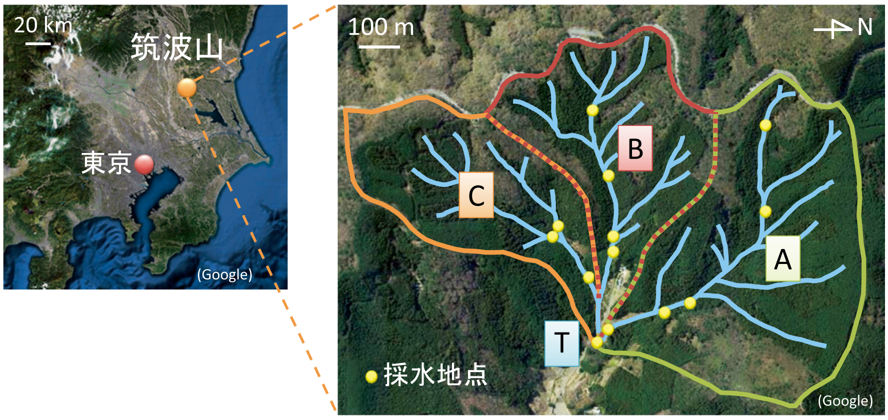

図4　筑波森林試験地の地図
水色の実線は渓流、黄色の点は渓流水の採水地点を示す。

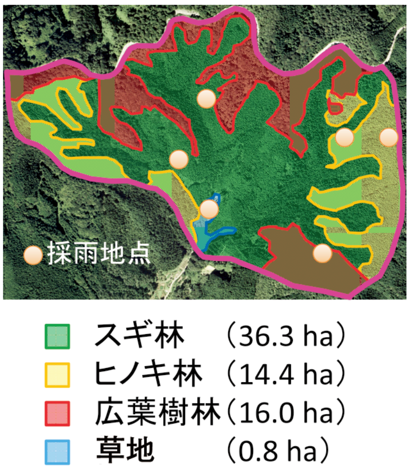

図 5　筑波森林試験地の植生図
橙色の点は雨水の採取地点を示す。

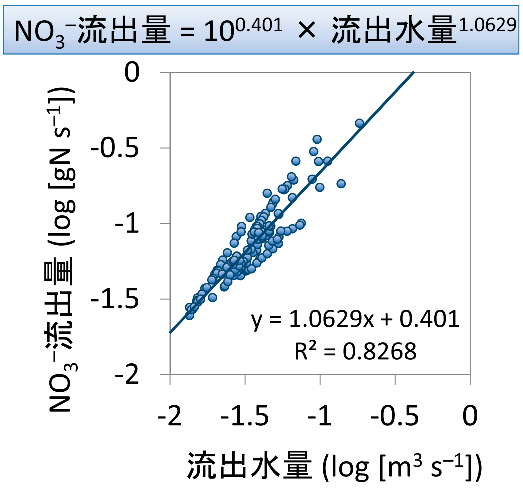

図 6　渓流水の NO_3^- 流出量（L）と流出水量（Q）の関係式（L-Q 式）
$L = 10^A \times Q^B$ で表されるため、A が切片で B が傾きとなる。

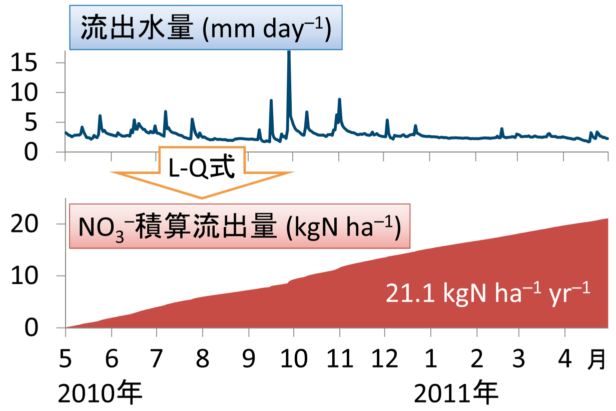

図 7　渓流水への NO_3^- の年間流出量の算出方法

ることを考慮する必要がある[17,18]。そこで本研究では、降雨出水時を含む NO_3^- 濃度の年平均値を求める調査と、平水時の NO_3^- 濃度を基準にした調査を実施した。なお、渓流水中の NH_4^+ 濃度はいずれも検出限界未満（< 0.05 mgN L^{-1}）であったため、渓流水中の無機態窒素は全て NO_3^- とみなした。

まず、集水域出口における渓流水中 NO_3^- 濃度の年平均値を求めるため、平水時と降雨流出時を含む全期間の平均値を算出した。T 地点において、2010 年 5 月、7 月、9 月、10 月の 4 回の降雨流出イベントに対し、降雨前の平水の状態から降雨後に流量が平水に戻るまでの間、ポータブル自動採水器（Model 3700, TELEDYNE-ISCO 社製）を用いて渓流水を 1 時間間隔で連続採水した。各イベントの総降水量は、67.0 mm、23.0 mm、30.5 mm、104.5 mm であった。採取した渓流水の NO_3^- 濃度は、雨水試料と同様の方法で測定した。また、渓流水の流出水量は、T 地点にポータブル型面速式流量計（MS-PII, ペンタフ株式会社製）を設置し、2010 年 5 月～2011 年 4 月の期間、10 分間隔で自動連続観測した。降雨流出時に得られた渓流水 147 試料について、NO_3^- 濃度と流出水量の積から NO_3^- 流出量（L）を求め、これと流出水量（Q）の関係式である L-Q 式を作成した（図 6）。この L-Q 式に 10 分間隔で 1 年間観測した流出水量を代入し積算することで、集水域単位の NO_3^- の年間流出量を算出した（図 7）。さらに、これを渓流水の年間流出水量で除することで、渓流水中 NO_3^- 濃度の年平均値を求めた。

次に、集水域出口における平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度を測定した。T 地点において、2010 年 5 月～2011 年 4 月の期間、2 週間に 1 回の頻度で晴天時の渓流水を採取し、先述した方法で NO_3^- 濃度を測定した。平水時の渓流水は、筑波山山頂の降水量と T 地点の流出水量の増加関係を踏まえ、採水前 12 時間の積算降水量が 2 mm 未満であり、かつ採水前 24 時間の積算降水量が 5 mm 未満の試料とした。全 26 試料のうち平水時の渓流水として選別された 25 試料を解析に用いた。なお、本調査期間前の 2008 年 5 月～2010 年 4 月に取得した 2 年間のデータも解析に利用した。

最後に、集水域内における平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度の空間分布を調べるため、T 地点の調査日と同じ日に、渓流 A 沿いの 5 地点（下流部から順に A2, A3, A4, A5, A6）、渓流 B 沿いの 4 地点（B2, B3, B4, B5）、渓流 C 沿いの 3 地点（C1, C2, C3）の計 12 地点でも渓流水を採取し、同様に分析して、各地点の平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度を求めた（図 4）。

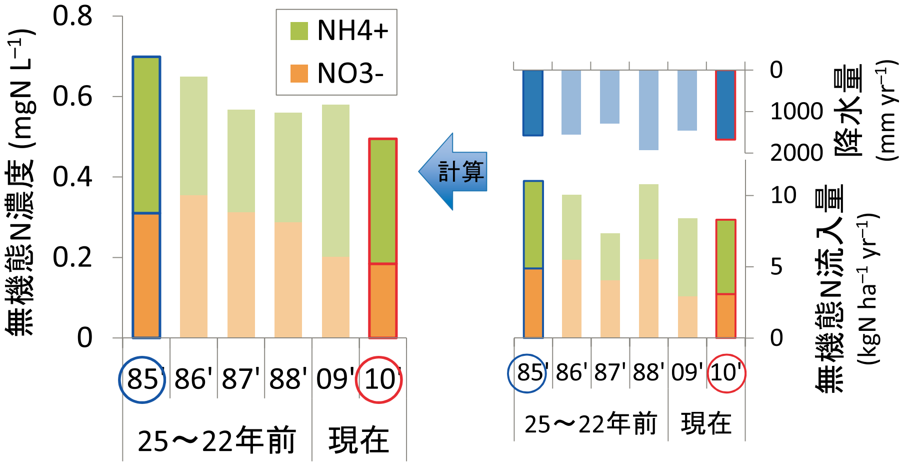

図 8　林外雨の無機態窒素濃度（左）、降水量（右上）、無機態窒素の流入量（右下）の比較

青線で囲んだ部分が 25 年前（1985 年 4 月～ 3 月）の値[15]、赤線で囲んだ部分が現在（2010 年 5 月～ 4 月）の値を示す。

（4）25 年前の各種水質データの収集

25 年前の林外雨における無機態窒素の年平均濃度、無機態窒素の年間流入量、年間降水量は、文献にある 1985 年 4 月～ 1986 年 3 月のデータを利用した[15]。さらに、24 年前～ 22 年前に相当する 1986 年 4 月以降の 3 年間のデータも利用した[15,16]。林内雨については、存在するデータが 23 年前と 22 年前のスギ林内雨だけであったため、集水域単位の無機態窒素の流入量は算出できなかった。また、林齢等が異なるため、現在と過去でスギ林内雨の値を比較することは行わなかった。

25 年前の集水域出口における渓流水中 NO_3^- 濃度の年平均値、NO_3^- の年間流出量、年間流出水量は、林外雨と同様、1985 年 4 月～ 1986 年 3 月の文献値を利用した[15]。また、集水域出口における平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度は、1985 年 4 月～ 1986 年 3 月の期間、2 週間に 1 回の頻度で測定したデータを、当時調査を行っていた平田健正博士に提供して頂いた。このなかから、筑波山山頂の降水量をもとに、採水前 12 時間の積算降水量が 2 mm 未満であり、かつ採水前 24 時間の積算降水量が 5 mm 未満の試料を平水時の渓流水として選別し、全 27 試料のうち 22 試料を解析に用いた。さらに、NO_3^- 濃度の空間分布の比較には、調査時期が半年異なるものの、集水域内 12 地点と T 地点で、1984 年 10 月～ 1985 年 9 月の期間、2 週間に 1 回の頻度で測定したデータを、同じく平田健正博士に提供して頂いた。これらは、全 29 試料のうち平水時の渓流水と選別された 19 試料を解析に利用した。

統計解析には、統計解析ソフト IBM SPSS Statistics（日本 IBM 社製）を使用した。

2.1.3　結果と考察

（1）林外雨の無機態窒素濃度の比較

林外雨の無機態窒素の年平均濃度は、1985 年が 0.70 mgN L^{-1} であったのに対し、2010 年は 0.49 mgN L^{-1} であり、25 年間で約 30 %低下していた（図 8）。内訳を見ると、NH_4^+ 濃度は 0.39 mgN L^{-1} から 0.31 mgN L^{-1} に、NO_3^- 濃度は 0.31 mgN L^{-1} から 0.18 mgN L^{-1} に変化しており、濃度低下の程度は NO_3^- の方が大きかった。この理由として、近年の自動車製造技術の向上により自動車の排出ガスに含まれる窒素酸化物が減少したことや、自動車 NOx・PM 法や首都圏で自動車排ガス等の規制に関する条例が整備されたことにより、大気への窒素酸化物の排出が抑制されたことが考えられる。1985 年～ 1988 年の値と 2009 年～ 2010 年の値を比べた場合も上昇傾向は見られなかったため（図 8）、全体的な傾向として、現在の林外雨の無機態窒素濃度は、25 年前に比べ漸減しているか横ばいであると考えられた。

林外雨の窒素汚染度を過去と現在で比較する場合、通常は無機態窒素の年間流入量ではなく、上述のように年平均濃度で比較することが適当と考えられる。なぜなら、無機態窒素の年間流入量は、年間降水量が増加するほど多くなる傾向がみられたためである（図 8）。しかし、1985 年と 2010 年の年間降水量は、それぞれ 1577 mm と 1676 mm と大きな違いがないため、林外雨によ

る無機態窒素の年間流入量も比較した（図8）。その結果、1985年の流入量が11.0 kgN ha^{-1}であったのに対し、2010年は8.3 kgN ha^{-1}と低くなっていた。また、2006年～2008年における無機態窒素の湿性沈着量の全国平均値は、8.9～10.3 kgN ha^{-1}の範囲であったため[22]、筑波山森林試験地における林外雨による無機態窒素の流入量は概ね全国並と考えられた。

森林地への無機態窒素の流入過程を考える場合、林外雨により測定できる湿性沈着だけでなく、ガス状や粒子状の物質が樹木葉面などに直接沈着する乾性沈着も重要である[23]。森林への無機態窒素の乾性沈着量は、大気汚染度と沈着面の特性によって変化するが、林外雨の無機態窒素濃度が、大気中の窒素汚染度を概ね反映していると考えれば、現在の大気汚染度は25年前に比べて悪化してないと言える。また、乾性沈着量は広葉樹林より針葉樹林で多いことが知られているが[2,23-25]、筑波森林試験地における現在の針葉樹林の面積は、25年前に比べ増加していなかった[19]。以上の理由から、現在の乾性沈着量が過去に比べて顕著に増加しているとは考えにくい。したがって、筑波森林試験地において、現在の無機態窒素の流入量は、過去に比べて増加していないと考えられた。

（2）渓流水中NO_3^-濃度の年平均値の比較

集水域出口における渓流水中NO_3^-濃度の年平均値は、1985年が1.7 mgN L^{-1}であったのに対し、2010年は2.0 mgN L^{-1}であり、一見すると25年間で約20 %上昇していた（図9）。しかし、NO_3^-濃度の年平均値は、1985年～1988年の4年間でも変動しており、1988年と2010年の値を比較すると、その変化は小さかった（図9）。

NO_3^-濃度の年平均値が年変動する原因は、主に渓流水の流出水量が年ごとに違うためと考えられ、実際、1985年～1988年は、渓流水の年間流出水量が多い年ほどNO_3^-の年間流出量が多かった（図10）。この1980年代に得られた関係図に、2010年の値をプロットした結果、ほぼ同じ直線上に表示された（図10）。この結果は、渓流水へのNO_3^-の年間流出量は、年間流出水量が支配しており、その関係は1980年代と現在で変化していない可能性を示している。具体例を挙げると、流出水量が同じような1988年と2010年は、NO_3^-の年間流出量も同じような値となり、結果として、その商である渓流水中NO_3^-濃度も同程度になっている可能性がある。したがって現時点では、渓流水中NO_3^-濃度の年平均値は、必ずしも25年間で上昇しているとは言えないと考えられた。

今後、流出水量が少ない年のデータを蓄積するなどして、渓流水の年間流出水量とNO_3^-の年間流出量の関係を複数年で比較できれば、新たな関係が見えてくる可能性も考えられる。

（3）平水時の渓流水中NO_3^-濃度の比較

集水域出口における平水時の渓流水中NO_3^-濃度は、年間を通じて1985年より2010年が高く（図11）、その平均値は、1985年が1.5 mgN L^{-1}であったのに対し、2010年は1.9 mgN L^{-1}と、25年間で約25 %上昇していた。平水時のNO_3^-濃度は、2008年以降の3年間で1.5 mgN L^{-1}を下回ることはなく、2008年と2009年の平

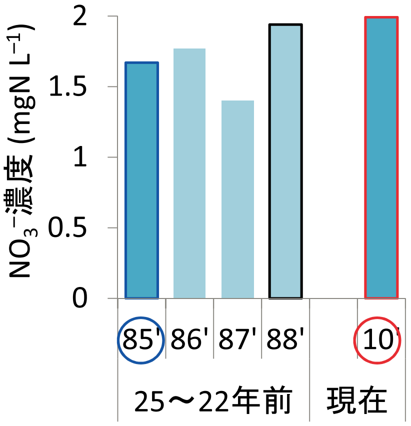

図9　渓流水中NO_3^-濃度の年平均値の比較
青線で囲んだ部分が25年前（1985年4月～3月）の値[15]、赤線で囲んだ部分が現在（2010年5月～4月）の値を示す。

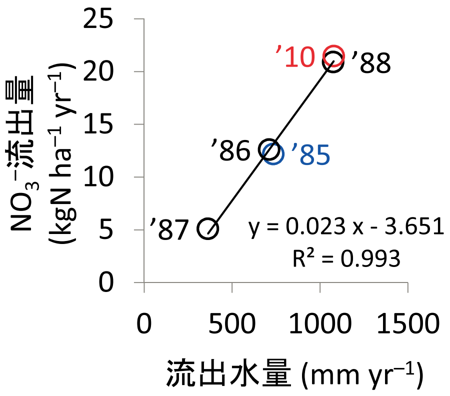

図10　渓流水の年間流出水量とNO_3^-の年間流出量の関係
1980年代と2010年で各値の算出方法は異なる[15, 17]。

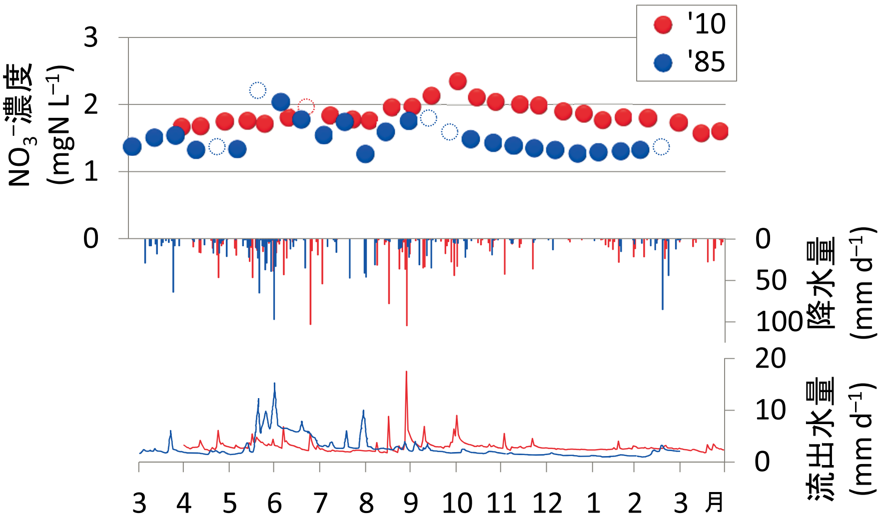

図 11　平水時における渓流水中 NO_3^-濃度（上）、降水量（中）、渓流水の流出水量（下）の比較

青色が 25 年前（1985 年 4 月～ 3 月）の値、赤色が現在（2010 年 5 月～ 4 月）の値を示す。25 年前の NO_3^-濃度は平田私信。降水量はいずれもアメダス柿岡観測所の値[20]。25 年前の流出水量は文献引用[18]。

均値はそれぞれ 1.9 mgN L^{-1} と 1.8 mgN L^{-1} であった。

平水時の渓流水中 NO_3^-濃度が上昇し、高く維持されている理由として、無機態窒素の流入量が増加していないことを考えると、集水域内の地下水や土壌中に多量の NO_3^-が蓄積しており、これが定常的に渓流に流出していることが考えられる。一方で、森林での蒸発散量が増加して渓流水への流出水量が減少した結果、平水時の NO_3^-濃度が上昇した可能性も考えられる。しかし、平水時の流出水量は 1985 年より 2010 年の方が多い傾向であり（図 11）、年間の雨水流出率も 1985 年が 47 % であったのに対し[15]、2010 年は 67 % と高くなっていた。そのため、集水域内の水が濃縮されて流出したことにより、平水時の渓流水中 NO_3^-濃度が上昇した可能性は低いと考えられた。

欧米では、渓流水の NO_3^-濃度とその季節変動が、窒素飽和の状態を判別する指標として用いられる[1, 26, 27]。例えば、欧州の森林では、窒素飽和の進行した Stage 3 の状態として“渓流水の NO_3^-濃度が、常に 1 mgN L^{-1} を超える高い状態であり、季節変化を伴わないこと”と定義されている[26]。一方、日本を含むアジアモンスーン地域の森林では、欧米の森林と渓流水中 NO_3^-濃度の変動メカニズムが異なるため、欧米の指標が必ずしも適用できないことが指摘されている[6, 13, 28]。しかしながら、平水時の渓流水中 NO_3^-濃度が常時 1.0 mgN L^{-1} を超えている状態は、森林域から顕著な NO_3^-流出が起きていると考えられる。なぜなら、この値は、日本における夏期の渓流水中 NO_3^-濃度の平均値である 0.36 mgN L^{-1} の 2.7 倍に相当し[4]、関東地域の中央値である 0.33 mgN L^{-1} の 3 倍に相当する[3]。また、日本における雨水中の無機態窒素濃度の平均値である 0.58 mgN L^{-1} の 1.7 倍に相当する[22]。さらに、下流域の生態系への影響も考慮した場合、日本の湖沼や海域における富栄養化に関連して定められている水環境基準のなかに、全窒素濃度 1.0 mgN L^{-1} 以下があり[29, 30]、水稲の正常な生育のために望ましい農業用水の指標では、全窒素濃度 1.0 mgN L^{-1} 以下が利用されている[30, 31]。

以上から本研究では、平水時の渓流水中 NO_3^-濃度が絶えず 1.0 mgN L^{-1} 以上であることは、森林生態系が窒素飽和状態にあることを示すものと考えた。筑波山森林試験地は、1985 年から平水時の渓流水中 NO_3^-濃度が 1.0 mgN L^{-1} を超えており（図 11）、2008 年以降は 1.5 mgN L^{-1} を超えていた。したがって、窒素飽和状態が持続している森林では、平水時の NO_3^-流出量が増大する可能性が示唆された。

なお、測定法の詳細は省略するが、平水時の渓流水中 Ca 濃度の平均値も、1985 年が 3.5 mg L^{-1} であったのに対し、2010 年は 5.8 mgN L^{-1} と、25 年間で約 67 % 上昇していた。この一因として、陰イオンである NO_3^-が、陽イオンである Ca_2^+ を伴って流出している可能性が考えられる。

（4）平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度の分布比較

集水域内 13 地点における、平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度は、25 年間で上昇したのが 11 地点、低下したのが 1 地点であった（図 12、図 13）。この結果は、窒素飽和状態が持続している森林では、集水域全体で渓流水の NO_3^- 濃度が上昇しているが、例外もあることを示している。さらに言えば、各地点の環境因子を比較することで、NO_3^- 濃度が上昇した地点の特徴を明らかにできる可能性も示している。

渓流 A の集水域では、平水時の渓流水中 NO_3^- 濃度は全地点で上昇しており、最下流部の A2 地点では、1.3 mgN L^{-1} から 1.6 mgN L^{-1} へと、25 年間で約 30 %上昇していた（図 13）。また、現在の NO_3^- 濃度は、A5 地点から A4 地点に流下する過程で約 30 %低下したが、これは両地点間に合流する支流の NO_3^- 濃度が低いためと考えられた（図 12）。実際、6 本の支流のうち左岸の 3 本について、2010 年 10 月以降、他の地点と同様に NO_3^- 濃度を測定した結果、平均値で 0.5 から 1.2 mgN L^{-1} という低濃度を示すことが確認された。渓流 B の集水域でも、平水時の NO_3^- 濃度は全地点で上昇しており、最下流部の B2 地点では、1.0 mgN L^{-1} から 2.2 mgN L^{-1} へと、25 年間で 2 倍以上に上昇していた（図 13）。また、現在の NO_3^- 濃度は、全地点で 2.0 mgN L^{-1} を超えており、25 年前からの上昇幅も他の地点に比べ大きかった。一方、渓流 C の集水域では、最下流部の C1 地点の NO_3^- 濃度は、現在も 25 年前も 2.0 mgN L^{-1} であり、変化が見られなかった（図 13）。C1 地点の上流で枝分かれしている 2 つの支流について、最下流部の NO_3^- 濃度をみると、C2 地点では 2.1 mgN L^{-1} から 1.8 mgN L^{-1} へと全 13 地点のなかで唯一低下していた一方、C3 地点では 1.9 mgN L^{-1} から 2.6 mgN L^{-1} に上昇していた。このことから、C1 地点の NO_3^- 濃度に変化が生じなかった理由は、NO_3^- 濃度の低下と上昇の効果が相殺されたためと考えられた。

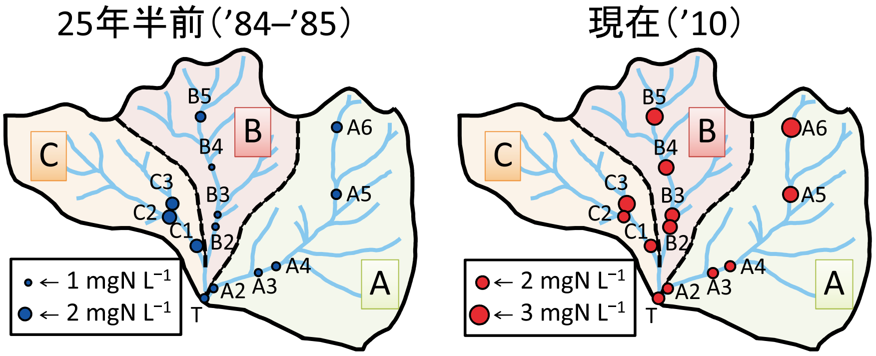

図 12　平水時における渓流水中 NO_3^- 濃度の比較
25 年半前の NO_3^- 濃度は平田私信。

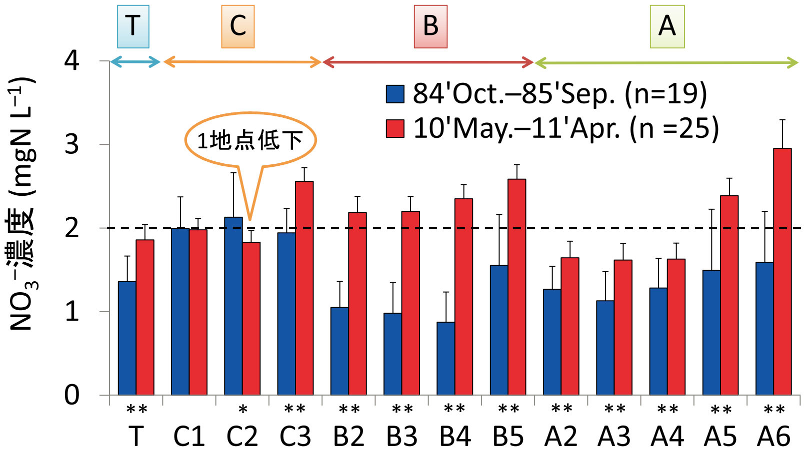

図 13　平水時における渓流水中 NO_3^- 濃度の比較
25 年半前の NO_3^- 濃度は平田私信。棒は平均値、エラーバーは標準偏差を示す。*は 25 年半前と現在の NO_3^- 濃度の平均値が有意に異なることを表す（$^{**}p < 0.01$, $^{*}p < 0.05$ by t-test）。

地点によって渓流水中 NO_3^- 濃度が異なる原因を調べるため、まず、森林調査簿にある各地点の上流部の樹種と NO_3^- 濃度の関係を調べた（図 14）。しかし、森林調査簿のデータが不十分であったこともあり、両者の間に明瞭な関係は見られなかった。次に、林齢との関係を調べた結果、渓流水中 NO_3^- 濃度が 2.0 mgN L^{-1} を超えている地点の上流には、林齢が 49 年生以上の壮齢林の林分しか存在しないものの、NO_3^- 濃度が 2.0 mgN L^{-1} 未満の地点の上流には、35 年生以下の若齢林の林分があることが確認できた（図 15）。これまで、森林の高林齢化に伴う窒素吸収量の低下が、渓流水中 NO_3^- 濃度を高くする可能性が指摘されている[7]。本試験地でも、高林齢の林分では樹木の窒素吸収量が少なく、生態系で吸収しきれなかった窒素が無機化や硝化を受けて溶脱した結果、渓流水の NO_3^- 濃度が高くなっている可能性が考えられた。さらに、本試験地内の人工針葉樹林は、管理不備な状態にあるため、窒素吸収量が低下している可能性もある。

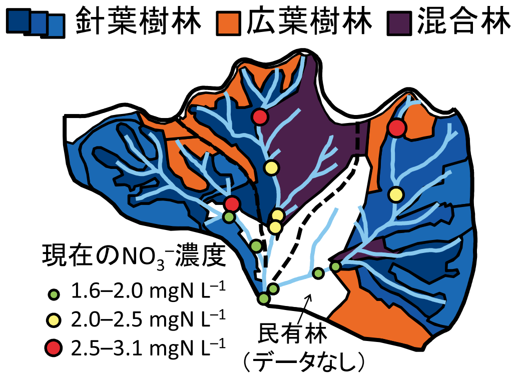

図 14　現在の渓流水中 NO_3^- 濃度と森林植生の関係
森林調査簿と林班図をもとに作成。

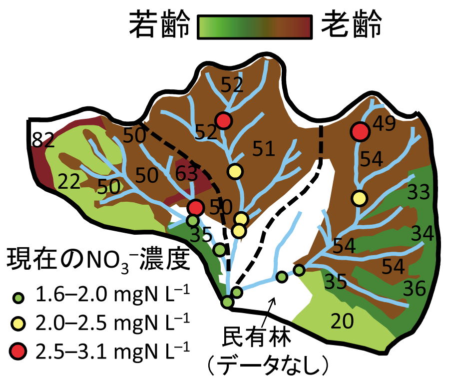

図 15　現在の渓流水中 NO_3^- 濃度と林齢の関係
森林調査簿と林班図をもとに作成。図内の数字は 2011 年 4 月時点における林齢を示す。

（5）現在の無機態窒素の流入量と流出量

2010 年 5 月～ 2011 年 4 月の 1 年間における、無機態窒素の流入量は 16.0 kgN ha^{-1} yr^{-1} であり、流出量は 21.1 kgN ha^{-1} yr^{-1} であった（図 16）。無機態窒素の流出量が流入量を上回っていることから、筑波山森林試験地は、真の窒素飽和と言われる状態にあり[2]、下流域への窒素負荷発生源となっていることが明らかになった。

無機態窒素の流入量は、ヒノキ林内雨、スギ林内雨、広葉樹林内雨、林外雨の順に高く、年間流入量はそれぞれ、19.6、16.1、13.1、8.3 kgN ha^{-1} yr^{-1} であった。本調査地は、ヒノキ林とスギ林が全集水域面積の 75.1 % を占めているため（図 5）、結果として、集水域全体の窒素流入量が高くなっていた。これまで欧州の森林では、無機態窒素の流入量が 10 kgN ha^{-1} yr^{-1} より低いと顕著な窒素溶脱は起きないものの、10 ～ 25 kgN ha^{-1} yr^{-1} になると窒素溶脱が起きはじめ、25 kgN ha^{-1} yr^{-1} を超えた森林は全て顕著な窒素溶脱が起きることが報告されている[32]。また、北東アメリカの森林では、窒素溶脱が起きる閾値は、無機態窒素の流入量が 9 ～ 13 kgN ha^{-1} yr^{-1} を超えることとされている[33]。これらの値は、日本でも窒素飽和が起きる目安として使われている[5,7]。筑波山森林試験地の無機態窒素の流入量が、これらの値を超えているという結果は、窒素飽和が起きていることを支持する結果といえる。

降雨流出時における渓流水への NO_3^- 流出量は、流出水量が多いほど高くなった（図 6）。降雨流出時の渓流水は、平水時にみられる基底流出だけでなく、雨水が地表や土壌中を流下して合流する直接流出や中間流出も含

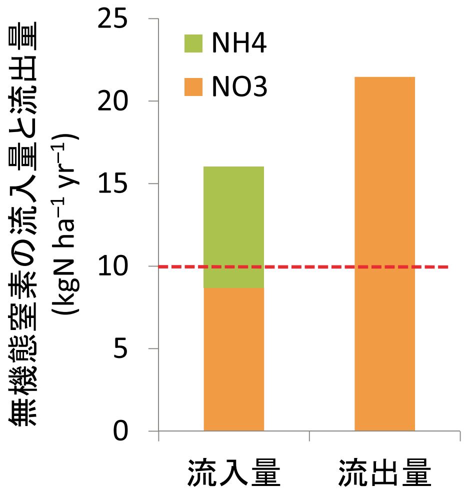

図 16　筑波山森林試験地における現在の無機態窒素の年間流入量と年間流出量
2010 年 5 月～ 2011 年 4 月までの 1 年間の値。

まれている。そのため、筑波山森林試験地には、地下水中だけでなく土壌中にも多量のNO_3^-が蓄積しており、これらが降雨流出時のNO_3^-流出に寄与することで、高いNO_3^-流出量になったと考えられた。また、NO_3^-の年間流出量から一日当たりの発生原単位を算出すると57.8 gN ha^{-1} d^{-1}となった。一方、湖沼水質保全特別措置法に基づく指定湖沼の水質保全計画では、森林系からの全窒素の発生原単位として、3.8 ～ 23.9 gN ha^{-1} d^{-1}が用いられていた[34]。両者を比較すると、窒素飽和状態にある森林からの窒素発生源単位は、これまで森林で考えられていた値を大きく上回っていることが分かる。そのため今後、流域の水質管理を考える場合、面源としての窒素飽和森林の重要性を再検討する必要があると考えられた。

一般に、森林は水質浄化機能を持つとされ、森林に流入した無機態窒素は、植物や微生物により消費されるため、系外への窒素流出量は限られている。しかし、筑波山森林試験地では、無機態窒素の流出量が流入量を上回っていることから（図5）、大気から流入する無機態窒素を保持しきれないだけでなく、慢性的な高窒素負荷によって生態系の窒素動態が変化し、土壌中に蓄積していた窒素化合物までもが流出していることが考えられた。

引　用　文　献

1) Aber J.D., Nadelhoffer K.J., Steudler P., Mellio J.M. (1989) Nitrogen saturation in northern forest ecosystems, BioScience, 39, 378–386.

2) Gundersen P., Sevel L., Christiansen J.R., Vesterdal L., Hansen K., Bastrup-Birk A. (2009) Do indicators of nitrogen retention and leaching differ between coniferous and broadleaved forests in Denmark?, Forest Ecology and Management, 258, 1137–1146.

3) 伊藤優子，三浦覚，加藤正樹，吉永秀一郎（2004）関東・中部地方の森林流域における渓流水中のNO_3^-濃度の分布．日本森林学会誌，86，275–278.

4) 木平英一，新藤純子，吉岡崇仁，戸田任重（2006），わが国の渓流水質の広域調査．日本水文科学会誌，36，145–149.

5) Chiwa M., Maruno R., Ide J., Miyano T., Higashi N., Otsuki K. (2010) Role of stormflow in reducing N retention in a suburban forested watershed, western Japan, Journal of Geophysical Research, 115, G02004.

6) Mitchell M.J., Iwatsubo G., Ohrui K., Nakagawa Y. (1997) Nitrogen saturation in Japanese forests: an evaluation, Forest Ecology and Management, 97, 39–51.

7) Ohrui K., Mitchell M.J. (1997) Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds, Ecological Applications, 7, 391–401.

8) Zhang Z., Fukushima T., Shi P., Tao F., Onda Y., Gomi T., Mizugaki S., Asano Y., Kosugi K., Hiramatsu S., Kitahara H., Kuraji K., Terajima T., Matsushige K. (2008) Seasonal changes of nitrate concentrations in baseflow headwaters of coniferous forests in Japan: A significant indicator for N saturation, Catena, 76, 63–69.

9) Kannari A., Tonooka Y., Baba T., Murano K. (2007) Development of multiple-species 1 km x 1 km resolution hourly basis emissions inventory for Japan, Atmospheric Environment, 41, 3428–3439.

10) 吉永秀一郎，伊藤優子，相澤州平，釣田竜也（2012）関東平野北東部の森林流域における渓流水のNO_3^-濃度分布と東京都心からの距離との関係．日本森林学会誌，94，84–91.

11) 環境省（2013）平成24年版 日本の大気汚染状況．環境省水・大気環境局 編，経済産業調査会出版，820 p.

12) Morino Y., Ohara T., Kurokawa J., Kuribayashi M., Uno I., Hara H. (2011) Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008, Journal of Geophysical Research, 116, D06307.

13) Ohte N., Mitchell M.J., Shibata H., Tokuchi N., Toda H., Iwatsubo G. (2001) Comparative evaluation on nitrogen saturation of forest catchments in Japan and northeastern United States, Water Air and Soil Pollution, 130, 649–654.

14) Chiwa M., Onikura N., Ide J., Kume A. (2012) Impact of N-saturated upland forests on downstream N pollution in the Tatara river basin, Japan, Ecosystems, 15, 230–241.

15) 平田健正，村岡浩爾（1991）筑波森林試験地における土壌水質および渓流水質の季節変化について．

水工学論文集，35，105-110.
16）平田健正，村岡浩爾（1992）筑波森林試験地における水および物質の移動について．水工学論文集，36，579-585.
17）村岡浩爾，平田健正（1988）渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究（第4報）水収支と物質収支．国立公害研究所研究報告，116，75-97.
18）Muraoka K., Hirata T. (1988) Streamwater chemistry during rainfall events in a forested basin, Journal of Hydrology, 102, 235-253.
19）村岡浩爾，平田健正（1986）渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究（第1報）筑波山試験流域の概要と植生調査．国立公害研究所研究報告，95，21-35.
20）気象庁，気象統計情報（http://www.jma.go.jp/jma/menu/report.html）.
21）Takamatsu T., Watanabe M., Koshikawa M.K., Murata T., Yamamura S., Hayashi S. (2010) Pollution of montane soil with Cu, Zn, As, Sb, Pb, and nitrate in Kanto, Japan, Science of the Total Environment, 408, 1932-1942.
22）全国環境研協議会（2008-2010）第4次酸性雨全国調査報告書（平成18-20年度），全国環境研会誌，33-35.
23）Watanabe M., Takamatsu T., Koshikawa M.K., Yamamura S., Inubushi K. (2008) Dry deposition of acidic air pollutants to tree leaves, determined by a modified leaf-washing technique, Atmospheric Environment, 42, 7339-7347.
24）De Schrijver A., Geudens G., Augusto L., Staelens J., Mertens J., Wuyts K., Gielis L., Verheyen K. (2007) The effect of forest type on throughfall deposition and seepage flux: a review, Oecologia, 153, 663-674.
25）Yoshida S., Ichikuni M., (1989) Role of forest canopies in the collection and neutralization of airborne acid substances, Science of the Total Environment, 84, 35-43.
26）Gundersen P., Schmidt I.K., Raulund-Rasmussen K. (2006) Leaching of nitrate from temperate forests - effects of air pollution and forest management, Environmental Reviews, 14, 1-57.
27）Stoddard J.L. (1994) Long-term changes in watershed retention of nitorogen: Its causes and aquatic consequences. L.A. Baker (Ed.), Environmental chemistry of lakes and reservoirs, American Chemical Society, Washington, DC, 223-284.
28）Ohte N., Tokuchi N., Fujimoto M. (2010) Seasonal patterns of nitrate discharge from forested catchments: information derived from Japanese case studies, Geography Compass, 4, 1358-1376.
29）中央法規出版 編（2013）環境六法（平成25年版），中央法規出版，1569-1629.
30）農業環境技術研究所（2006）水環境保全のための農業環境モニタリングマニュアル改訂版，218 p.
31）農林省公害研究会（1970）農業農村 整備事業計画作成便覧，農業農村整備事業計画研究会 編.
32）Dise N.B., Wright R.F. (1995) Nitrogen leaching from European forests in relation to nitrogen deposition, Forest Ecology and Management, 71, 153-161.
33）Aber J.D., Goodale C.L., Ollinger S.V., Smith M.-L., Magill A.H., Martin M.E., Hallett R.A., Stoddard J.L. (2003) Is nitrogen deposition altering the nitrogen status of northeastern forests? BioScience, 53, 375-389.
34）国土交通省，農林水産省，環境省（2006）湖沼水質のための流域対策の基本的考え方～非特定汚染源からの負荷対策～. 36 p.

2.2　霞ヶ浦への硝酸性窒素流入負荷に対する森林域の寄与の推定

2.2.1　背景

森林域は水に係る主な生態系機能の一つとして、降水中の汚濁負荷を除去する水質浄化機能を有している。これは、樹木を始めとする植物の栄養塩を吸収する作用によるところが大きい。大気降下物に含まれる窒素も、一般に森林は貧栄養状態にあることから、植物の必須多用元素として速やかに吸収、利用される。このため、森林域から流れ出る窒素量は小さく、単位面積当たりの窒素発生量である原単位で表した場合、畑作地や水田に比べて非常に小さいことが報告されている[1]。結果として、森林域からの窒素流出負荷は自然由来の負荷として扱われ、環境省による閉鎖性海域への流入負荷の総量規制対策や、全国各地の指定湖沼における水質保全計画においても、非特定汚染源として積極的に発生源対策を講じる

対象とされていない。

一方、森林域が窒素飽和状態に陥った場合、2.1 節において詳述したように、大気降下物経由で流入する窒素負荷量を上回る窒素負荷量が、森林域から系外へ流出することが明らかとされた。国土に占める森林面積割合が約 7 割に及ぶ日本では、河川流域に占める森林域の面積割合も一般的に高いことから、窒素飽和状態の進行は、結果として、ダム湖沼や内湾といった下流閉鎖性水域への流入窒素負荷量の増加をもたらす、あるいは既にもたらしている可能性が極めて高い。一方で、窒素飽和状態に陥った森林域が、窒素負荷発生源としてどの程度閉鎖性水位域の流入負荷に寄与するのか、定量的に検討した研究事例はほとんどない。しかしながら、中国大陸からの越境汚染の影響が懸念されること[2,3]や管理不備に伴う人工林の荒廃化[4]と言った、森林域における窒素飽和を助長する要因の影響が高まる現況において、非特定汚染源としての森林の実態と影響を正確に認識する必要が生じていると考える。

2.2.2　目的

以上を鑑み、本研究では、窒素飽和状態に陥った森林域が、窒素負荷発生源として流入水域にどの程度寄与するのかを把握するため、霞ケ浦流域を対象として、流入河川水中の硝酸イオンに含まれる酸素・窒素安定同位体比を用いた窒素発生起源推定法を用い、主に降雨流出時における森林域からの窒素負荷流出実態を明らかとすることを試みた。具体的には、霞ケ浦主要流入河川流域の中で比較的森林率の高い恋瀬川と、森林率が低く農地比率が高い鉾田川を対象に、大規模降雨時に連続採水した河川水中の硝酸イオンに含まれる酸素・窒素安定同位体比を基にした同位体混合モデルを用い、上記硝酸イオンに対する土地利用毎の寄与割合を推定することによって、両河川の降雨時における霞ケ浦への窒素流入負荷に占める森林起源の割合を推定した。

2.2.3　方法

これまで、流域レベルでの窒素の負荷量の推定や流達過程を解析するために、河川水や湖沼水中に含まれる全窒素と、詳細な流量観測のデータを用いた物質収支の研究がおこなわれてきた。しかしながら、こうした経験的モデルの多くは、排出過程から流出過程にいたるまで、すべてのパラメータを実データへのあてはめから導出している。従って、ある流域で得られたパラメータ・セットを使って、別の流域の水質動態を再現できるという保証はない。このため、降水、流量、水質データが詳細にとられていない河川においても適用可能な窒素循環の解析手法が必要となる。硝酸イオンの窒素安定同位体比（$\delta^{15}N_{nitrate}$）と酸素の安定同位体比（$\delta^{18}O_{nitrate}$）を利用した窒素負荷の評価方法は、そうした解析手法の一つである。硝酸イオンにおいて、^{18}O と ^{16}O の存在比を示す $\delta^{18}O_{nitrate}$ は ^{18}O を多く含む大気降下物由来硝酸イオンの寄与の解析に使われてきた[5,6]。一方、$\delta^{15}N_{nitrate}$ は生活排水や堆肥由来の農業排水の流入で高くなることが知られており、人間影響の指標となる[7-9]。

霞ヶ浦流域の面源負荷に関して言えば、畑地からは高濃度で $\delta^{15}N_{nitrate}$ の高い硝酸イオンが流出するのに対し、森林からはそれほど高い濃度ではなく、$\delta^{15}N_{nitrate}$ も低い硝酸イオンが流出する。また、夏場、流域に供給される灌漑水中の硝酸イオンは濃度が低く、$\delta^{15}N_{nitrate}$ は高い（図 17）。さらに、雨水由来の硝酸イオンの濃度は非常に低く、$\delta^{18}O_{nitrate}$ が非常に高い特質を有している。こうした硝酸イオンの起源ごとの濃度と同位体特性の違いは、下記に示す同位体混合モデルから起源ごとの硝酸イオンの寄与率を算出するのに適している。本研究では、霞ヶ浦北浦に流入する鉾田川と霞ヶ浦西浦に流入する恋瀬川の 2 河川の降雨時の河川水中の硝酸イオンの同位体比を使って、同位体混合モデルを回し、畑地起源、森林起源、灌漑水起源、雨水起源の計 4 種類の硝酸イオンの起源の寄与率の時間変化を解析した。

上記 2 河川での降雨時流出調査は、2012 年 6 月 19 日から 22 日に実施した。調査期間中、19 日から 20 日かけてと 22 日、計 2 回の降雨イベントが発生した。各イベントの総降雨量は、鉾田川流域内の AMeDAS 鉾田観測点では、80 mm と 38 mm、恋瀬川流域内の AMeDAS 柿岡観測点では、94.5 mm と 33.5 mm をそれぞれ観測した。各河川での採水地点は、国土交通省霞ケ浦河川事務所によって実施されている水位流量自動連続観測点の中、最下流点をいずれも選択し、鉾田川では鉾田川観測点（茨城県鉾田市鉾田）、恋瀬川では恋瀬川観測点（茨城県石岡市石岡（府中橋））とした。採水は、河川流量が降り始めからピークを経て、ある程度低減するまでの期間として想定した 3 日間を対象に、1 時間間隔で実施し、1 回あたり 1 ℓ の河川水をポリビンに採取した。採取した試料は 4 ℃で冷蔵し、48 時間以内に 0.45 μm メ

ンブレンフィルター―を用いたろ過によって、ろ液を作成した。ろ液中の硝酸イオンの測定は、オートアナライザー TRAACS800（ブランルーベ社製）を用いて行った。なお、調査期間中の河川流量データについては、上述の霞ケ浦河川事務所より時間平均流量データの提供を受けた。

同位体測定は共同研究を行っている山梨大学大学院附属国際流域環境研究センターの質量分析計（Hydra20-20, Sercon, UK）により行った。測定精度（4 種類（n ＝ 3, SD）の標準物質を元に算出）は、$\delta^{15}N_{nitrate}$ で ± 0.18 ‰、$\delta^{18}O_{nitrate}$ で ± 0.87 ‰であった。

同位体混合モデルの最もシンプルなものは一種類の同位体比を使って、二種類の混合割合を算出するものである。たとえば 0 ‰の起源物質 A と 100 ％の起源物質 B が混合し 25 ‰の物質 C ができている時、物質 C は物質 A と B が 3：1 で混合してできたものと算出される。一般論として、N 種類の同位体比からは｛N ＋ 1｝種類の起源物質の寄与率を算出することができる。しかしながら、通常、起源物質の種類は測定する同位体比の種類より多く、その同位体比も起源ごとにあるバラつきの範囲内で変動している点が解析をより複雑にしている。Phillips & Gregg（2001）は食物網構造解析における餌資源の同位体比の変動を考慮し、各種餌資源の寄与率の不確実性を評価した[10]。本研究の解析対象である硝酸イオンにおいても、畑地起源、森林域起源、灌漑水起源、雨水起源の最低でも 4 種類の主たる負荷源が存在し、それらの同位体比の平均値は異なるものの、負荷源よっては幅広い変動を示す。

そこで、本研究では、下記の 3 つの仮定を置くことで 4 ソースの同位体混合モデルを回し、これら主たる硝酸イオンの河川水への寄与率を解として算出することで、出水時における各種負荷源からの寄与率に変化があるのかを評価することとした。

（仮定 1）鉾田川と恋瀬川の流域も含む茨城県南地域の 76 の小河川の 2009 年夏の平水時に採水した河川水の硝酸イオンの $\delta^{15}N_{nitrate}$ と $\delta^{18}O_{nitrate}$ から、負荷源ごとの同位体特性と濃度を推定した（図 17）。この推測値は、鉾田川と恋瀬川の両流域にも適用できる。

（仮定 2）4 種類の負荷源以外に流域からの硝酸イオンの負荷源は存在するが、その寄与は小さく河川水の硝酸イオンの濃度や同位体組成を大きく変えることはない。

（仮定 3）流域の各種負荷源からの河川へと流出し混合した後に、採水地点まで流下する過程で、硝酸イオンが脱窒や微生物による吸収・同化の影響を受ける可能性はあるが、その寄与は小さく河川水の硝酸イオンの濃度や同位体組成を大きく変えることはない。

以上 3 種類の仮定が満たされているかどうか、4 ソースの同位体混合モデルを適用する前に、本来検証する必要がある。しかしながら、本研究では残念ながら未検証である。従って、結果および考察はこうした仮定が満たされていたと仮定した場合に限られる。

4 ソース同位体混合モデルは、ソース 1、2、3、4 および混合物中の硝酸イオン濃度を N_1, N_2, N_3, N_4, N_m

$\delta^{15}N_{nitrate}$ を $\delta^{15}N_1, \delta^{15}N_2, \delta^{5}N_3, \delta^{15}N_4, \delta^{15}N_m$

$\delta^{18}O_{nitrate}$ を $\delta^{18}O_1, \delta^{18}O_2, \delta^{18}O_3, \delta^{18}O_4, \delta^{18}O_m$

とした場合、下記の 3 元連立方程式を解くことで、その混合割合の解（$f_1, f_2, f_3, 1-f_1-f_2-f_3$）を得ることができる。

$$N_m^{-1} = f_1 N_1^{-1} + f_2 N_2^{-1} + f_3 N_3^{-1} + (1 - f_1 - f_2 - f_3) N_4^{-1} \tag{1}$$

$$\delta^{15}N_m = f_1 \times \delta^{15}N_1 + f_2 \times \delta^{15}N_2 + f_3 \times \delta^{15}N_3 + (1 - f_1 - f_2 - f_3) \times \delta^{15}N_4 \tag{2}$$

$$\delta^{18}O_m = f_1 \times \delta^{18}O_1 + f_2 \times \delta^{18}O_2 + f_3 \times \delta^{18}O_3 + (1 - f_1 - f_2 - f_3) \times \delta^{18}O_4 \tag{3}$$

解である f_1, f_2, f_3 は以下のようである。

$$f_1 = \frac{b_2c_3d_1 - b_3c_2d_1 + b_1c_2d_3 - b_1c_3d_2 + b_3c_1d_2 - b_2c_1d_3}{a_1b_2c_3 - a_1b_3c_2 + a_3b_1c_2 - a_2b_1c_3 + a_2b_3c_1 - a_3b_2c_1}$$

$$f_2 = \frac{a_1c_3d_2 - a_1c_2d_3 + a_3c_2d_1 - a_2c_3d_1 + a_2c_1d_3 - a_3c_1d_2}{a_1b_2c_3 - a_1b_3c_2 + a_3b_1c_2 - a_2b_1c_3 + a_2b_3c_1 - a_3b_2c_1}$$

$$f_3 = \frac{a_1b_2d_3 - a_1b_3d_2 + a_3b_1d_2 - a_2b_1d_3 + a_2b_3d_1 - a_3b_2d_1}{a_1b_2c_3 - a_1b_3c_2 + a_3b_1c_2 - a_2b_1c_3 + a_2b_3c_1 - a_3b_2c_1}$$

ただし、

$a_1 = \delta^{15}N_1 - \delta^{15}N_4, a_2 = \delta^{18}O_1 - \delta^{18}O_4, a_3 = N_1^{-1} - N_4^{-1}$

$b_1 = \delta^{15}N_2 - \delta^{15}N_4, b_2 = \delta^{18}O_2 - \delta^{18}O_4, b_3 = N_2^{-1} - N_4^{-1}$

$c_1 = \delta^{15}N_3 - \delta^{15}N_4, c_2 = \delta^{18}O_3 - \delta^{18}O_4, c_3 = N_3^{-1} - N_4^{-1}$

$d_1 = \delta^{15}N_m - \delta^{15}N_4, d_2 = \delta^{18}O_m - \delta^{18}O_4, d_3 = N_m^{-1} - N_4^{-1}$

ソース 1 から 4 が硝酸イオンの負荷源となる各種土地利用からの流出水に対応し、混合物は、それら流出水が混合し、採水地点まで流下した河川水とすることで、採水地点での硝酸イオンの負荷源別の寄与率を上記解の式から算出することができる。さらに、各種土地利用からの流出水中の硝酸イオンの濃度、同位体比ともに時空間

で変動することから、そのばらつきを考慮することで、より確からしい寄与率の解を得ることができる。具体的には、図17の小河川のうち、流域の土地利用パターンが極端なものを複数選び、それらの河川水の硝酸イオンの濃度、同位体比から負荷源ごとの硝酸イオンの濃度、同位体比の変動パターンを再現し、確率変動させることで得られる解の平均値を寄与率とした。こうした方法はモンテカルロ法と言われ、多様な確率分布型の負荷源に対しても柔軟に対応できる手法である。実際の解析では5万通りの負荷源ごとの硝酸イオンの濃度、同位体比のそれぞれに対して、採水地点の硝酸イオンの特性を満たす混合割合を算出し、有効解の平均値を寄与率としている。図17の各種土地利用100％のところの平均値（●）とSDバーが解析に使用した負荷源ごとの硝酸イオンの特性に対応する。ただし、灌漑水起源と雨水起源に関しては、それぞれ灌漑水（n ＝ 9）と林外雨（n ＝ 5）を直接採用し、その硝酸イオンのデータを元に確率変動させた。

2.2.4　結果と考察

（1）　鉾田川と恋瀬川における平水時の各種負荷源の寄与率の違い

鉾田川と恋瀬川は、それぞれの流域の土地利用形態が大きく異なる。採水地点より上流の流域における土地利用割合は、国土交通省の国土数値情報土地利用3次メッシュデータ（平成18年度）によれば、鉾田川流域で、森林域24.2％、水田11.3％、畑地53.9％、その他3.2％であり、恋瀬川流域では、森林域48.6％、水田21.6％、畑地18.7％、その他11.1％であった。両流域の土地利用割合の違いは、恋瀬川流域が森林域を主とする河川であることを示している。こうした流域の土地利用形態の異なる鉾田川と恋瀬川では、同位体混合モデルから算出

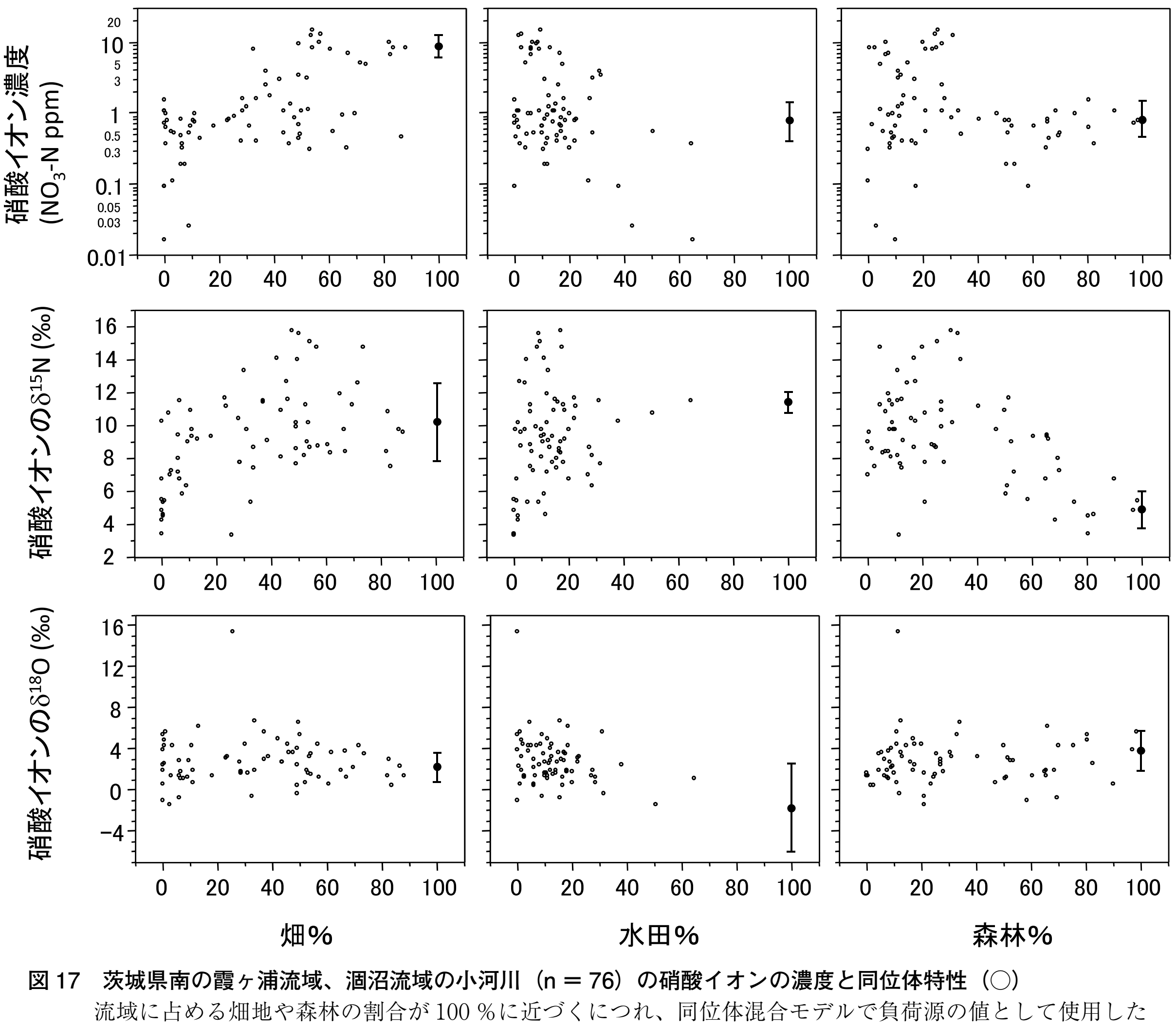

図17　茨城県南の霞ヶ浦流域、涸沼流域の小河川（n ＝ 76）の硝酸イオンの濃度と同位体特性（○）
流域に占める畑地や森林の割合が100％に近づくにつれ、同位体混合モデルで負荷源の値として使用した●印の値に近づく。
●印の上下のバーは同位体混合モデルの中で確率変動させる際に用いた変動幅（SD）に相当する。

される各種負荷源からの寄与率も大きく異なるはずである。流量の時間変化のデータから明らかな流量上昇が始まる前もしくは終わった後を平水時として、その期間の各種負荷源からの寄与率を**表1**に示した。その結果、鉾田川では9割以上が畑地起源であったが、恋瀬川では畑地起源は6割にとどまり、残りを灌漑水起源と森林域起源がほぼ等しく分けあっていた。こうした割合は各種土地利用から流出した硝酸イオンが単純に混合した時に期待される寄与率に近いと考えられた。なぜなら、**図17**からも分かるように、畑地から流出する河川水の硝酸イオンの濃度は水田や森林域からのそれに比べて10倍近い高い濃度を示す。このことは、流域に占める畑地の割合が10％になるだけで、他の土地利用からの硝酸イオンの負荷量を上回る量の硫酸イオンが畑地起源となることを意味している。恋瀬川においても畑地は流域面積の19.1％を占めることから、6割強が畑地起源であることが予想され、同位体混合モデルの結果（**表1**）もそれと近かった。この事実は、同位体混合モデルの仮定が実証されたわけではないが、鉾田川と恋瀬川に関しては各種負荷源から流出した硝酸イオンの混合プロセスが河川水中の硝酸イオンの濃度や同位体組成を大きく規定していることが分かった。

（2） 鉾田川と恋瀬川の出水時における各種負荷源の寄与率の変化

鉾田川と恋瀬川はその流域特性が大きく異なり、畑地起源の硝酸イオンが最も大きな硝酸イオンの負荷源となっていることが明らかとなったが、出水時には両河川ともに畑地起源の寄与率が大きく低下し、代わりに森林域起源の寄与が大きく増大することが明らかとなった（**表1、図18**）。出水時でも平水時の寄与率が維持されると仮定した場合（**図18**の平水時評価に相当）の負荷源別の硝酸イオン流出フラックスと実際に出水時の濃度と同位体比から算出した寄与率を元に評価した流出フラックス（**図18**の出水時評価に相当）の時間変化（**図18**）を比較することで、なぜ出水時にこうした寄与率の大きな変化が起こるのかについてのいくつかの視座を与えてくれる。畑地起源の割合が出水時評価で大きく低下するのは、出水ピークの後半においてである。畑地割合の少ない恋瀬川では出水ピークの前半においても低下がすでに始まっているが、この事実は畑地起源の硝酸イオンの流出は長くは続かないことを示している。畑地のような水はけの良い土地利用からの硝酸イオンの流出は土壌間隙水中の高濃度の硝酸イオンが雨水の浸透により流出してしまうと持続されないのかもしれない。それは、森林域などに比べて畑地土壌中に植物遺体が少なく、硝化による硝酸供給が追い付かないことを示唆しているのかもしれない。

一方、森林域起源の割合は、出水時中は著しく増加し、森林域由来の硝酸イオンの流出フラックスも平水時の寄与率からの推定値の2～3倍に増大した（**表1、図18**）。この事実は、森林域起源の硝酸イオンが流域から流出する際に、出水時は極めて大きなインパクトを持っており、平水時の寄与率をあてはめると過小評価になることを意味する。森林域起源の溶出フラックスが平水時の推定値から大きく上方へズレるのは出水時のピークから後半にかけてであった。このことは、畑地の場合とは逆に森林域では雨水が十分に浸透することでより多くの硝酸イオンが森林域より流出することを意味している。森林域においても土壌間隙水中により高濃度の硝酸イオンが蓄積されているが、地下水位の上昇にともないそれが溶脱され尽くすことなく、流出している背景があると

表1　鉾田川と恋瀬川の平水時と出水時それぞれの各種硝酸イオンの負荷源の寄与率
出水時の寄与率は2つの出水期間のデータを合わせて解析した。

各種硝酸起源		畑地起源	灌漑水起源	森林起源	雨水起源
鉾田川	平水時	93±4%	3±2%	4±2%	0.8±0.3%
	出水時	76±14%***	13±9%***	9±4%***	2.1±0.8%***
恋瀬川	平水時	63±3%	17±5%	18±3%	1.4±0.3%
	出水時	38±3%***	18±7%	42±20%***	1.5±0.6%

出水時の寄与率が平水時と有意に異なるものについては出水時の寄与率の右肩に***（$p<0.001$）を付した。
付していないものに関しては、$p<0.05$ で有意な違いは無かった。

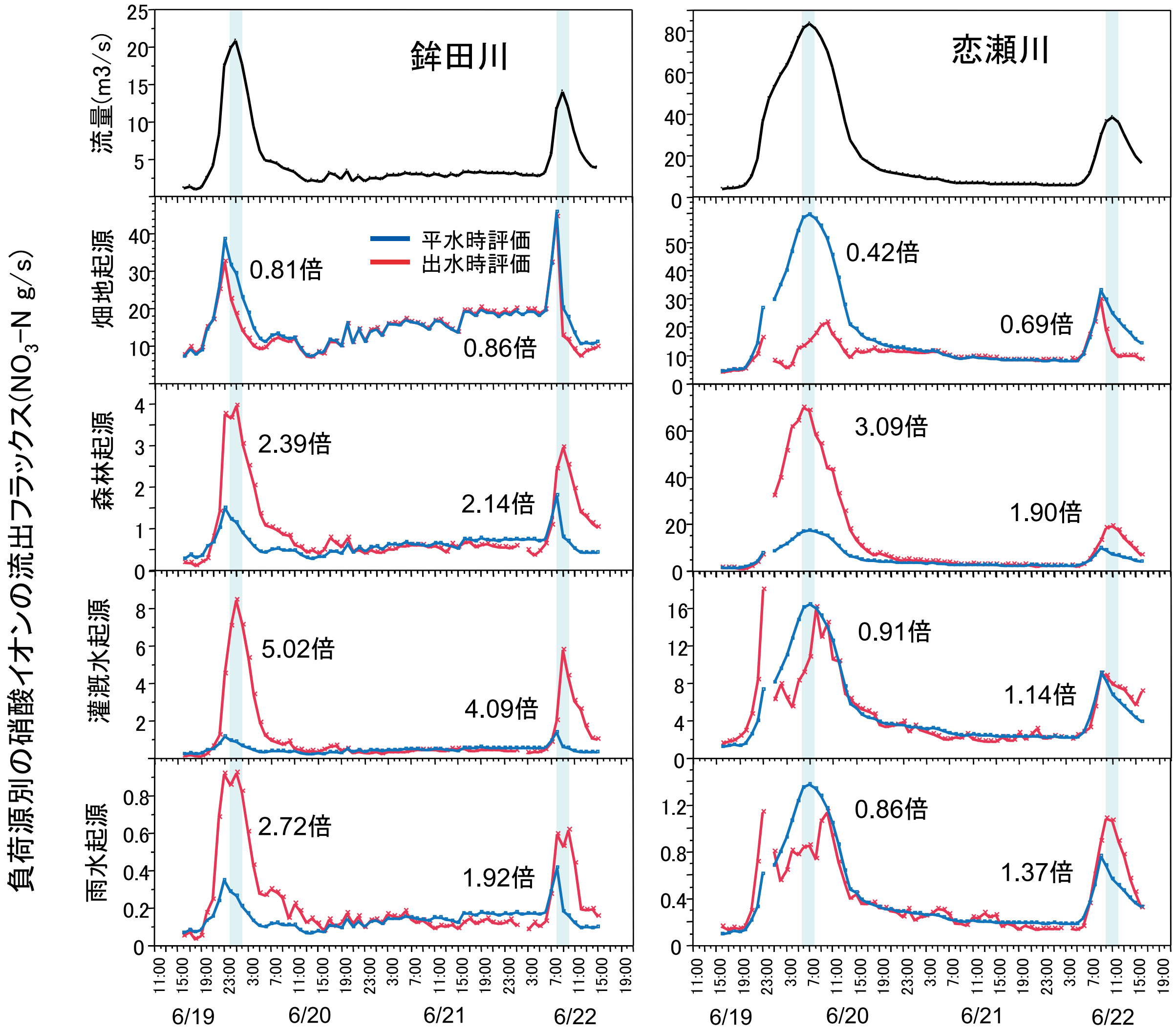

図 18　負荷源別硝酸イオンの流出フラックスの時間変化

出水時でも平水時の寄与率が維持されると仮定した場合（平水時評価）の負荷源別の硝酸イオン流出フラックスと実際に出水時の濃度と同位体比から算出した寄与率を元に評価した流出フラックス（出水時評価）の時間変化。2 つの出水ピークの横の倍数は、平水時のデータだけを用いて出水時を評価した場合に比べて実際は何倍の流出フラックスがあると考えられたかを示す。出水のピークの時間が水色縦線に相当する。（調査期間：2012 年 6 月 19 日〜 22 日）

考えられた。また土壌水分条件の上昇に伴う硝化活性の増加もこうした現象を加速している可能性がある。

灌漑水起源、雨水起源の流出フラックスは鉾田川では出水時に増大したが、恋瀬川では有意な変化は見られなかった（**表 1**、**図 18**）。その理由は現時点では不明である。水田が流域に占める割合は恋瀬川では鉾田川の 3 倍に達しており、平水時における灌漑水起源割合が恋瀬川で高い一因と考えられる。しかしこうした違いが出水時の反応の違いを説明することはできず、水田に入れられた灌漑水が降雨時に用水路にあふれ出やすい状況に違いがないかなど、今後両流域の水文プロセスの違いに注目すべきと思われた。

降雨流出時における霞ケ浦への窒素流入負荷量に対する森林域の寄与をより具体的に示すため、**図 18** に示した出水時評価による起源毎の硝酸イオン流出フラックス算定結果を用いて、鉾田川、恋瀬川それぞれの流域からの硝酸イオン全流出フラックスに占める各起源の寄与割合の時間変化を、**図 19** として示した。鉾田川流域については、畑地面積割合が 50 % 余りを占める農地河川流域であり、さらに、長年の畜産由来の堆肥や化学肥料の施用の影響もあり、土壌間隙水や地下水、平水時河川水のいずれにおいても硝酸イオン濃度は、非常に高い状態にある[11]。このため、畑地を起源とする硝酸イオン流出量は、降雨流出時においても他の起源（土地利用）と比べて卓越する結果をもたらしたと考えられる。森林域からの硝酸イオン流出フラックス推定値も、平水時と比べ

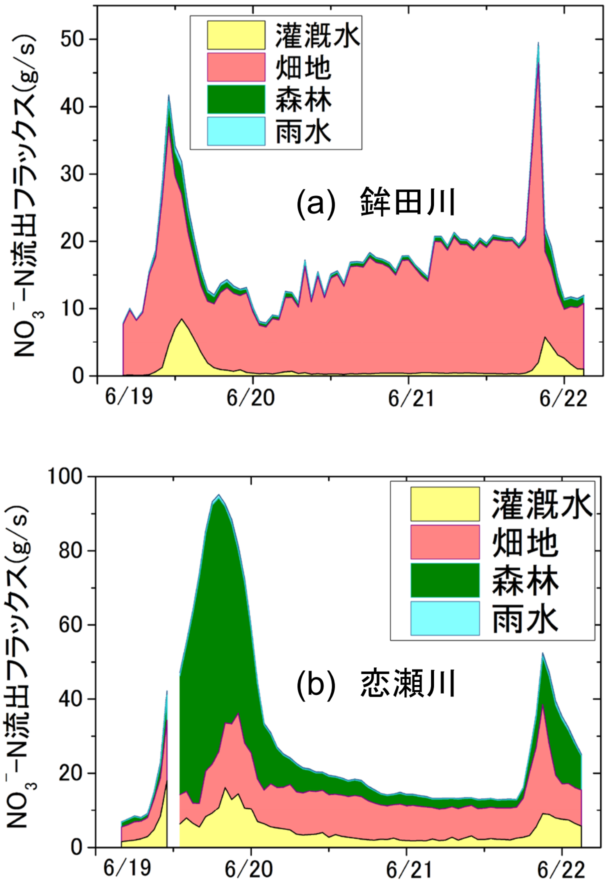

図 19 鉾田川と恋瀬川の降雨流出時における硝酸イオン流出フラックスと負荷源別内訳の時間変化
（調査期間：2012 年 6 月 19 日～ 22 日）

降雨流出ピーク時には 20 倍程度増加するものの、絶対量としては畑地起源の流出量に比べ小さく、硝酸イオンピーク流出量の 12 %程度を占めるに留まった。また、調査期間全体での森林域からの硝酸イオン総流出量は全流出量の 5 %程度となることが推定された。一方、森林域面積が 50 %近くを占める恋瀬川流域では、鉾田川流域とは大きく異なり、降雨流出時における森林域の窒素流出源として寄与の大きさを確認し得る結果となった。森林域からの硝酸イオン流出フラックス推定値は、降雨流出初期には畑地や灌漑水（水田）起源のフラックスを下回るものの、流出ピーク付近では平水時に比べ 60 倍程度増加し、全流出フラックスの 70 ～ 80 %を占める結果となった。また、調査期間全体での森林域からの硝酸イオン総流出量は全流出量の 45 %程度を占め、設定した起源の中で最も硝酸イオン流出に寄与することが確認された。

降雨流出時の硝酸イオン流出量に対する森林域の寄与に関して、鉾田川流域と恋瀬川流域で見られた大きな違いについては、単にそれぞれの流域における畑地や森林の面積割合の違いを単純に反映した結果に留まらず、鉾田川流域における畑地の窒素汚染の深刻さと、恋瀬川流域における森林域の窒素飽和の進行によって、その差異がより顕著なものになっていると推察される。特に、窒素飽和については、その影響が非常に顕著に表れた結果となったと考えられる。一般に、健全な窒素循環が営まれている森林であれば、有機物分解が活発に生じている表層土壌間隙水中のみに高濃度の硝酸イオンが検出され、根圏土壌における間隙水中の硝酸イオンは、樹木の吸収作用によって極めて低濃度となる。このため、雨水浸透により地下帯水層との兼ね合いで発生する、降雨流出の主な成分となる地中流が発生しても、それによる窒素流出負荷への寄与は流出水フラックス量に依存し、濃度との相乗作用による顕著な増加は生じないと考えられる。しかしながら、窒素飽和状態に陥った森林域においては、本報告書の 2.1 節で示したように、根圏土壌間隙水中に樹木の吸収能を大きく超える硝酸イオンが存在することになり、発生した地中流によってそれが溶脱することによって、窒素流出フラックスは相乗的に上昇することが示唆される。これにより、恋瀬川流域において、森林面積が 50 %に満たないにもかかわらず、降雨流出ピーク前後の窒素流出フラックスに対する森林域の寄与率が、最大で 83 %に達したと考えられる。また、鉾田川流域でも、出水時ピーク付近では雨水による希釈作用によって、硝酸イオン流出フラックスに対する畑地の寄与率は、平水時と比べ 95 %から 60 %まで減少する一方で、森林域の寄与率は逆に 2 %から 12 %に上昇しており、窒素飽和の影響が示唆される結果となった。

謝辞

本研究は、平成 24 年度地方公共団体環境研究機関等と国立環境研究所との共同研究（Ｉ型）の一環として、河川水質分析を茨城県霞ケ浦環境科学センターに担当いただいた。また、硝酸イオン中の窒素ならびに酸素安定同位体分析については、共同研究の一環として、山梨大学大学院附属国際流域環境研究センターに担当いただいた。ここに謝意を表します。

引　用　文　献

1）國松孝雄, 村岡浩爾（1989）河川汚濁のモデル解析, 技報堂出版, 259 p.

2) Yoshioka K., Kamiya H., Kano Y., Saki Y., Yamamuro M., Ishitobi Y. (2009) The relationship between seasonal variations of total-nitrogen and total-phosphorus in rainfall and air mass advection paths in Matsue, Japan. Atmospheric Environment, 43(22-23), 3496-3501.

3) Tsugeki N.K., Agusa T., Ueda S., Kuwae M., Oda H., Tanabe S., Tani Y., Toyoda K., Wang W-L., Urabe J. (2012) Eutrophication of mountain lakes in Japan due to increasing deposition of anthropogenically produced dust. Ecological Research, 27(6), 1041-1052.

4) 小倉康彦 (2005) 水害は人災だ－森は死んでいる－，清文社，160p.

5) Durka W., Schulze E.D., Gebauer G., Voerkelius S. (1994) Effects of forest decline on uptake and leaching of deposited nitrate determined from ^{15}N and ^{18}O measurements, Nature, 372, 765-767.

6) Mayer B., Bollwerk S.M., Mansfeldt T., Hütter B., Veizer J. (2001) The oxygen isotope composition of nitrate generated by nitrifi cation in acid forest floors. Geochim. Cosmochim. Acta, 65, 2743-2756.

7) Mayer B., Boyer E., Goodale C., Jaworski N.A., Breemen N.V., Howarth R.W., Seitzinger S., Billen G., Lajtha K., Naedelhoffer K., Dam D.V., Hetling L.J., Nosal M., Paustian K. (2002) Sources of nitrate in rivers draining sixteen watersheds in the northeastern U.S.: Isotopic constraints. Biogeochem., 57/58, 171-197.

8) 高津文人（2006）窒素安定同位体比による富栄養化診断，水文・水資源学会誌，19，413-419.

9) Ohte N., Tayasu I., Kohzu A., Yoshimizu C., Osaka K., Makabe A., Koba K., Yoshida N., Nagata T. (2010) Spatial distribution of nitrate sources of rivers in the Lake Biwa watershed, Japan: Controlling factors revealed by nitrogen and oxygen isotope values. Water Resource Res., 46, W07505.

10) Phillips D.L., Gregg J.W. (2001) Uncertainty in source partitioning using stable isotopes. Oecologia, 127, 171-179.

11) 黒田久雄（2012）面源負荷における硝酸性窒素の起源について，環境浄化技術，11，37-41.

2.3 筑波山におけるカルシウム欠乏による森林衰退の可能性の検討

2.3.1 背景と目的

2.1節では、筑波山森林試験地において、高濃度の硝酸イオン（NO_3^-）が森林生態系から流出する状態が25年以上続いてきたことを示した。2.3節では、NO_3^-の流亡が植物の栄養であるカルシウム（Ca）の流亡を伴う[1)]ことから、筑波山森林試験地においてCa欠乏による森林衰退が問題となる可能性について検討した。

無機窒素と同様の方法で、筑波山森林試験地におけるCaの収支を算出すると、1985年度[2)]も2010年度も渓流水からのCa流出が降水によるCa流入を大きく上回っていた（図20）。また、25年間でCa流入量はやや減少したのに対して、Ca流出量は2倍以上に増加した。一般に、渓流水からのCa流出量と降水によるCa流入量の差が、岩石や土壌の化学風化に伴うCa供給によって補われていれば、森林生態系内のCa量は維持されることになる（図21）。しかし、化学風化が不十分でCa供給能が低い地域の森林では、土壌や植物に貯蔵されたCaが流出し、植物のCa不足が問題となる[3)]。

欧米では、Ca供給能が特に低い花崗岩・片麻岩・石英砂岩などを母岩とする地域において、酸性降下物がCa循環におよぼす影響が研究されてきた。その中で、Sr同位体をトレーサーとして利用することにより、鉱物風化由来のCaと大気由来のCaとが、土壌、植物、渓流水の間をどのように循環しているのかが明らかになってきた[4-7)]。欧米の山岳地域の多くは、氷河により表土が削られているため、土壌の寄与が小さい。そのため、欧米の研究では、母岩の風化と大気からの供給という2成分系の混合として、Ca循環を取り扱うことが可能であった。

これに対して、氷河作用の影響を受けていない日本では、降水量が多いために母岩の風化が進んでおり、厚く発達した土壌層からのCa供給に加えて、大気から負荷される黄砂由来の炭酸Caの影響が指摘されてきた[8,9)]。さらに日本の様な島弧では、大規模な火山活動により大気に放出した火山灰が広域的に分布している。火山灰は、粒度が細かく比表面積が大きいため、鉱物風化が極めて速く進行する[10)]。火山灰は、植物や渓流水へのCa供給にも大きな影響を与えていると考えられるが、その影響の程度は一つの集水域内でも地形などを反映して大変複雑になるため、これまで火山灰によるCa供給の寄

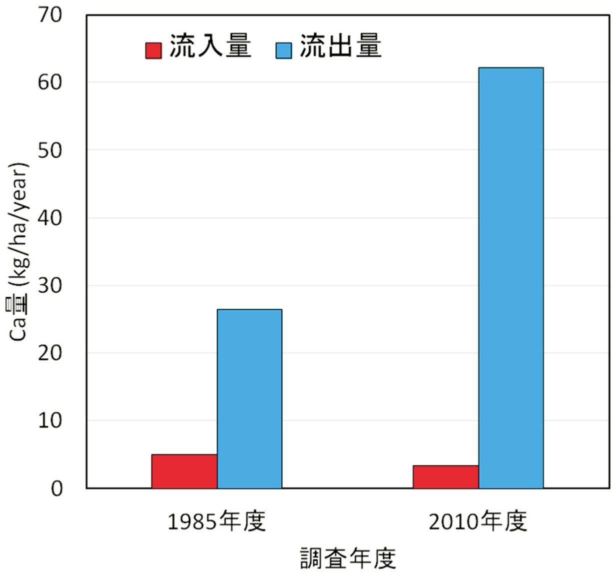

図 20 筑波山森林試験地における Ca 収支
流入量は、T 地点で観測した降水中の Ca 濃度および降水量から算出し、流出量は T 地点で観測した渓流中の Ca 濃度および流量から算出した。1985 年度は平田らの観測値[2] を用いた。

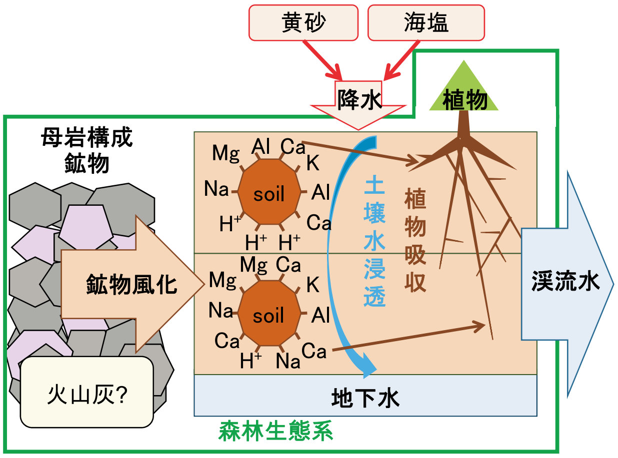

図 21 森林生態系におけるカルシウムの循環と鉱物風化によるカルシウム供給の概念図

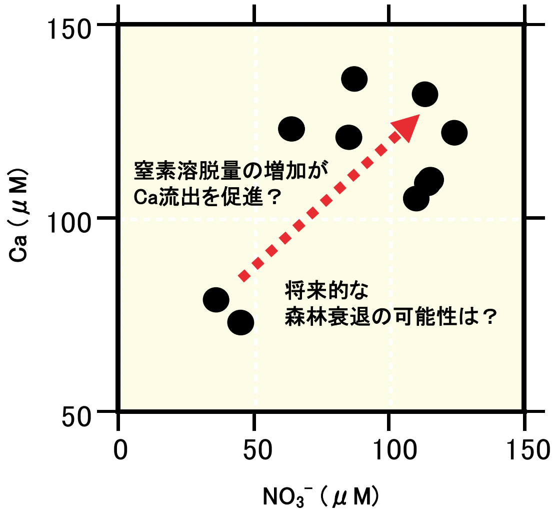

図 22 花崗岩集水域（Ca 供給能小）10 地点の NO_3^-濃度と Ca 濃度の関係

与を評価することは困難であった。

筑波山森林試験地を含む、筑波山の花崗岩集水域 10 地点の渓流水質を比較したところ、NO_3^-が高い渓流で Ca が高い傾向があった（図 22）ため、NO_3^-のカウンターカチオンとして Ca が流出していると考えられた。

そこで本研究では、窒素飽和により高濃度の NO_3^-が流出している筑波山森林試験地の花崗岩集水域において、系内の鉱物風化による Ca 供給が十分か否かを調べることを目的とした。解析にあたり「Ca が不足した森林生態系では、土壌・植物・渓流水中の Ca に占める鉱物風化起源 Ca の寄与が小さく、降水起源 Ca の寄与が相対的に大きい」ことを想定した。Ca の起源推定には Sr 同位体比を利用した。エンドメンバー候補として現地の花崗岩と降水を、森林生態系試料として渓流水、樹木、土壌などを採取し、$^{87}Sr/^{86}Sr$ と元素組成を分析して、Ca の供給源推定を試みた。

2.3.2 方法

（1）調査地の概要

本研究は、筑波山南端部の南東斜面に位置する筑波森林試験地の A 集水域で実施した（図 23）。

筑波山塊の地質は、約 15000 万年前の変成岩、約 7500 万年前の斑糲岩、および約 6000 万年前の花崗岩で構成され、さらに、約 3 万年前に噴火した赤城山の火山灰（鹿沼軽石層）が分布している[11]。筑波山の花崗岩は岩石記載学的に 7 つに分類され、その成因に応じて Sr 同位体比が変動することがわかっている[12]。筑波山の土壌は、尾根部が乾性褐色森林土に、谷部が褐色森林土に分類されている[13]。筑波山の土壌を調査した前島ら[14]は、火山灰が残存しやすい緩斜面では黒ボク土が存在することを指摘している。筑波山近隣の平地における平均気温は 14.2℃、年平均降水量は 1360mm である（それぞれ、アメダス「館野」地点とアメダス「柿岡」地点の 2005–2009 年の平均[15]）。

A 集水域の集水域面積は 26.3 ha である。標高はおよそ 200 m から 380 m の範囲にあり、流域の平均斜度は 20 度である。平田と村岡[16] によるボーリング調査によれば、A 集水域の全域が花崗岩である。A 集水域の花崗岩は、Arakawa and Takahashi[12] の 7 分類では

Porphyritic granodiotrite に含まれる。植生は林齢約 50 年のスギ・ヒノキ人工林を主体とする森林である。

試料は、A 集水域内の 7 地点とその下流の 1 地点で採取した(図 23)。試料採取点の標高は T(200 m)、A3(220 m)、A3g(240 m)、A5(300 m)、OH(330 m)、A6(340m)、A6g（360 m）、YH（370 m） である。T は 裸 地、A3、A3g はスギ林、OH と YH はヒノキ林、A5、A6、A6g はスギ・ヒノキ混合林である。

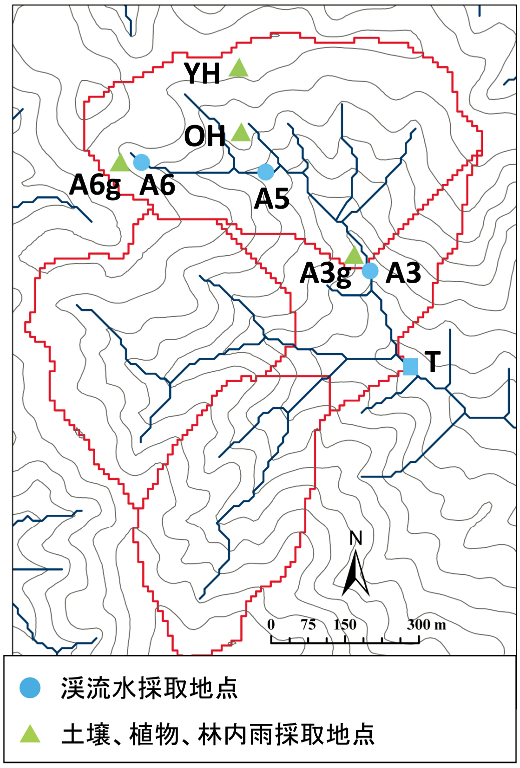

図 23　観測地点の地図

（2）試料

元素組成や Sr 同位体比を測定するために採取した試料は、土壌、母岩（花崗岩）、樹木（幹）、林内･林外雨、及び渓流水である（図 24）。

土壌は、YH、OH、A6g で A 層と B 層の、A3g で C 層の土壌を採取した。YH と OH では、B 層を暗色の B1 層と明色の B2 層に区分した。どの地点も A 層は厚さ約 10 cm、B1 層は厚さ約 20 cm であった。採取した土壌は風乾した後、2 mm の篩を通し、風乾細土にした。さらに風乾細土の一部を 110 ℃で乾燥したのち、メノウ乳鉢で粉砕して 0.5 mm の篩を通して微細土にした。微細土について、Sr 同位体、ICP-AES、CN、アロフェン含有量の分析を実施した。

花崗岩は、T 近傍の露頭で採取した。採取した岩石はハンマーで砕いて砂粒にした後、110 ℃オーブンで 24 時間乾燥した。これをめのう乳鉢で粉砕して 0.5 mm の篩を通した。Sr 同位体と ICP-AES の分析は土壌と同様に実施した。

樹木は、YH および OH 地点でヒノキを、A6g および A3g 地点でスギを採取した。伐採した幹をのこぎりで厚さ 1 cm の輪切りにし、幹表面から深さ 2 cm までの材を 1cm × 1cm × 2cm の角材として切り出して、樹皮を取り除いた。これを 70 ℃のオーブンで 3 日間乾燥した後、チタン製ミルで粉砕した。

林外雨は、T で採取した。2009 年 4 月 28 日にバルク

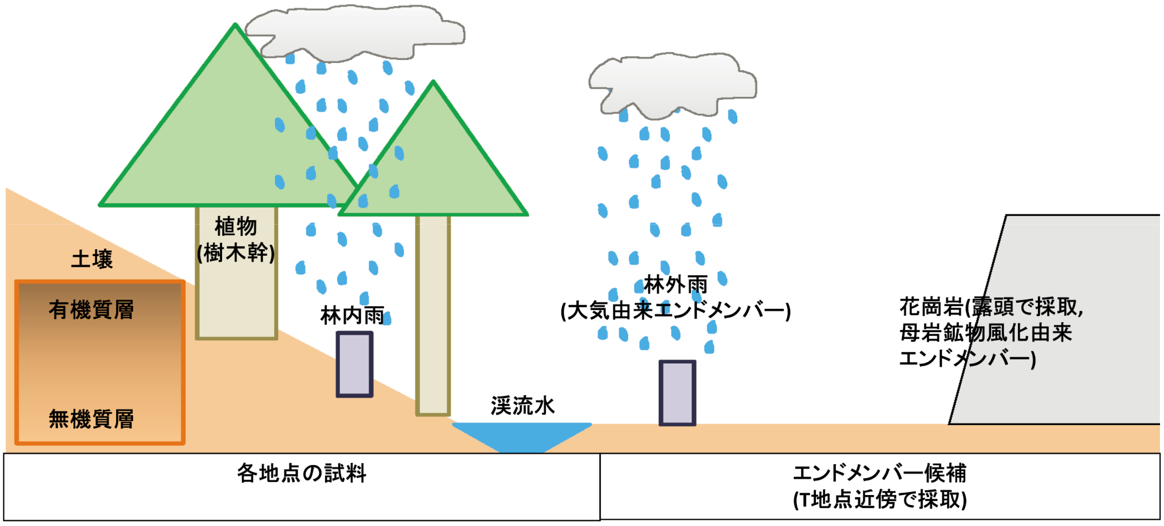

図 24　採取試料の概念図
水試料（降水、渓流水）は濾過，固体試料（土壌、植物、花崗岩）は酸分解した後に分析した。

サンプラーを設置し、約1ヶ月に1回の頻度でサンプラーのポリ瓶に集まった降水を回収した。サンプリング器具および手順はHou et al.[17]に準じた。溶存元素の分析は2011年4月27日までの2年間に採取した全20試料について実施した。Sr同位体分析は、2年間に回収した林外雨全20試料を各月の降水量重み付きで混合した試料（以下、年平均試料と呼ぶ）、2011年5月および7月に回収した試料の全3試料について実施した。

林内雨は、YHおよびOHで採取した。2010年4月30日にヒノキ樹冠下にバルクサンプラーを設置し、林外雨と同様に降水を回収した。溶存元素の分析は2011年4月27日までの1年間に採取した全試料について実施した。Sr同位体分析は、1年間に回収したOH地点林内雨全10試料を各月の降水量重み付きで混合した年平均試料、YH地点で2011年5月に回収した試料、の全2試料について実施した。

渓流水は、A6、A5、A3地点でポリ瓶に直接採取した。渓流水の採取期間は、2010年4月22日から2011年4月26日の1年間であり、2週間に1回の頻度で採水した。溶存元素の分析は全試料について実施した。Sr同位体分析を実施する渓流水試料は、季節と先行降雨を考慮して選んだ。3地点について、平水時として2010年9月6日の試料を選んだ。さらにA3地点において平水時と降雨後を含むように、15試料を選んだ。以上18試料についてSr同位体分析を実施した。河川の流量はT地点で観測した。

（3）化学分析

粉砕済みの土壌（約20 mg）および樹木（約150 mg）は、Hou et al.[18]の方法に準じ、高圧ボンベを用いて混酸（硝酸、過塩素酸、フッ化水素酸）で分解した後、ホットプレートで乾固した。これを7 mlの希硝酸に溶解し、濾過（クラボウ、クロマトディスク13AI、孔径0.45 μm）した。濾過した酸分解液を適宜希釈して、ICP-AES（Nippon Jarrell-Ash、ICAP-750）でSr、Ca、PをICP-AESで定量した。土壌のCN含有量は、元素分析計（アムコ、EA1112）で定量した。土壌のアロフェン様鉱物含有量は、8M HClと0.5M NaOHによる交互溶解法[19]を用いて分析した。

採取した降水と渓流水は、遮光・保冷して実験室に持ち帰り、一部は未濾過のまま、一部は濾過（Millipore、ニトロセルロースフィルター、孔径0.45 μm）して、分析まで冷暗所（4℃）に保存した。試水中のCl^-は、濾液をイオンクロマトグラフ（Dionex、DX-100）に導入して定量した。Sr、Ca、Mg、Na、K、Siは、濾液を0.2 M硝酸酸性にした後、ICP-AES（Nippon Jarrell-Ash、ICAP-750）で測定した。降水中のSrはICP-AESの定量下限未満であったため、ICP-MS（Agilent、HP7500）で定量した。

Sr同位体分析は、総合地球環境学研究所に設置されている表面電離型質量分析装置（サーモフィッシャーサイエンティフィック、TRITON）を用いて行った。土壌と樹木の酸分解液は1～2 μg Srに相当する量を、降水と渓流水の濾液は0.2～0.5 μg Srに相当する量をテフロンビーカーで乾固した後、2Mの高純度塩酸0.5 mlに溶解し、Na et al.[20]のカチオン交換カラム法でSrを分離抽出した後、表面電離型質量分析装置に導入した。試料を9～10検体測定する前後に、2検体の標準試料NIST SRM 987（SrCO3）を1回ずつ合計4回測定した。各試料の測定値は、前後に測定したNIST SRM 987の平均値（0.710239～0.710256）を0.710250として規格化した。本研究の測定期間を通じたNIST SRM 987の分析値は、$^{87}Sr/^{86}Sr = 0.710250 \pm 0.000018$（n = 22）であった。

2.3.3　結果と考察

（1）花崗岩土壌に含まれる火山灰起源物質の存在

図25に、土壌と降水、花崗岩、赤城山の火山灰の$^{87}Sr/^{86}Sr$を比較した。降水は、本研究で測定した林外雨のほか、Nakano et al.[21]が報告したつくば市内の最小値（0.70848）、平均値（0.70911）、最大値（0.71017）も示した。図25には、本研究で採取した花崗岩の分析値のほか、Arakawa and Takahashi[12]が報告した本研究地と同じタイプの花崗岩（文献中のTK-44、TK-62、TK-53）の値も示した。また、赤城山の火山灰の値として、赤城山を起源とする火山灰が筑波山に降下した時期（約3万年前）に形成された赤城火山岩（Kobayashi and Nakamura[22]中のAK0807）の値を示した。

土壌の$^{87}Sr/^{86}Sr$は、YH（0.70682～0.70718）では降水（0.70848～0.71017）および花崗岩（0.71196～0.71310）より低かった。YH地点B2層（0.70682）およびB1層（0.70694）は赤城火山岩（0.70685）とほぼ同じ値を示した。従って、YH地点の土壌は火山灰を主な母材にしていると考えられる。これに対して、OH地点の土壌の$^{87}Sr/^{86}Sr$は、花崗岩（0.71196～0.71310）と比

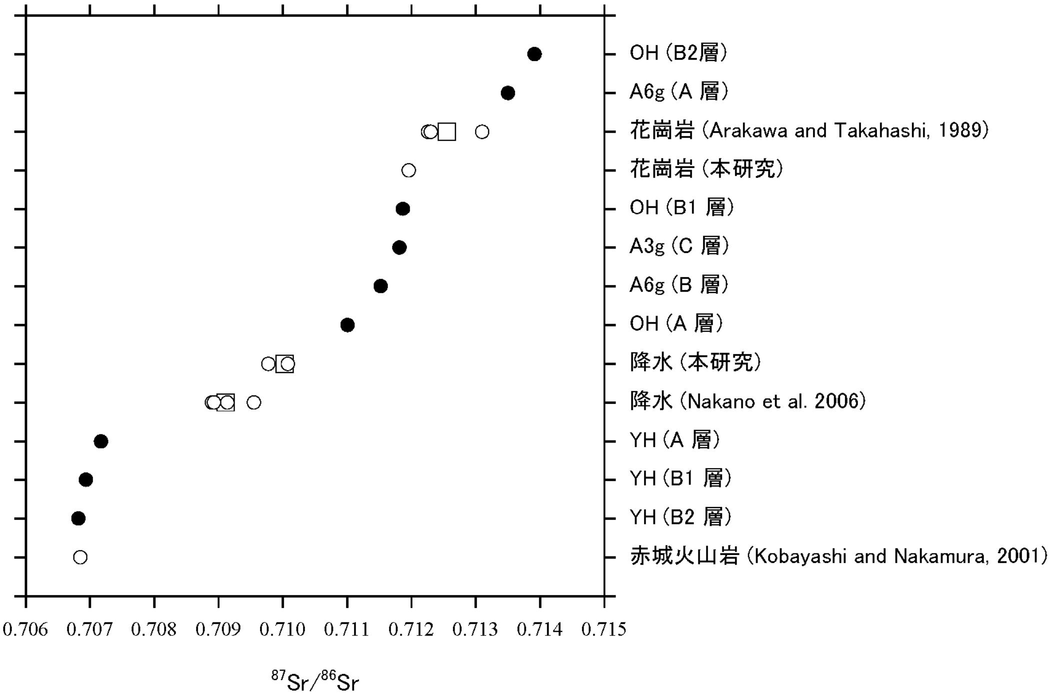

図 25 土壌試料（●）およびエンドメンバー候補（○）の $^{87}Sr/^{86}Sr$ 同位体比
□は各エンドメンバーの平均値を表す。土壌試料の採取地点と土壌層位も示した。

べると、B2 層（0.71392）はやや高く、B1 層（0.71187）と A 層（0.71101）はやや低かった。花崗岩に比べて低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示す A 層と B1 層は、火山灰由来の鉱物の存在を示唆している。

実際、火山灰の存在を直接示す指標であるアロフェン様鉱物の含有量は、YH 地点（37 ～ 39 %）の方が OH 地点（22 ～ 24 %）より高く、YH 地点の方が火山灰の影響が大きかった。ただし、OH 地点も、関東地方の褐色森林土壌の報告値[18]（11 %）より高いため、火山灰をある程度含んでいると言える。C、N、P のように火山灰に吸着し蓄積しやすい成分の土壌中濃度が、YH 地点（順に 4.8 ～ 5.8、0.3、0.02 ～ 0.03 mg/g）の方が OH 地点（1.4 ～ 3.3、0.1 ～ 0.2、0.01 mg/g）より高いことも、火山灰の寄与が大きいという考えと調和的である。YH 地点は尾根部の緩斜面であるために過去に降下した火山灰が残存しており、OH 地点は斜面中部であるために火山灰が侵食に伴って除かれたと考えられる。

しかしながら、OH 地点において、B2 層が花崗岩より高い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を持つ理由や、A 層がもっとも低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示す理由は、火山灰物質だけでは説明しにくい。後述するように、OH 地点における樹木の $^{87}Sr/^{86}Sr$（0.70989）は花崗岩より低いので、A 層の低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ はリターの存在によって説明できる。一方、B2 層が花崗岩より高い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示すのは、低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示す鉱物（斜長石やアパタイトなど）が風化しやすいのに対して、カリ長石などの $^{87}Sr/^{86}Sr$ が高く風化に強い鉱物が、土壌により多く存在するためと考えられる。B1 層は B2 層に比べて、リターの影響をより多く受けているのであろう。以上より、OH 地点の土壌は、花崗岩を主な母材にしていると考えられる。同様に、$^{87}Sr/^{86}Sr$ が花崗岩に近い値を示すことから、A6g 地点と A3g 地点の土壌も花崗岩を主な母材にしていると考えられる。

Shindo ら[23] は、筑波山麓において、土壌溶液の Sr 同位体比が降水由来 Sr と花崗岩由来 Sr の混合では説明できないほど低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示すことを見いだし、火山灰由来 Sr の寄与が示唆されることを指摘した。本研究では、土壌への火山灰由来 Sr の寄与だけでなく、以下に述べるように樹木や渓流水に対する火山灰由来 Sr の寄与を検討した。

（2）樹木に含まれる母材由来 Sr の寄与

図 26 に、樹木と降水、花崗岩、赤城火山岩の $^{87}Sr/^{86}Sr$ を比較した。樹木の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は、YH 地点（0.70767）では赤城火山岩（0.70685）と降水（0.70848 ～ 0.71017）の間に入るのに対して、A3g 地点（0.71112）では花崗岩（0.71196 ～ 0.71310）と降水の間に入った。OH 地点（0.70989）と A6g 地点（0.70948）は、降水の変動範囲内であった。

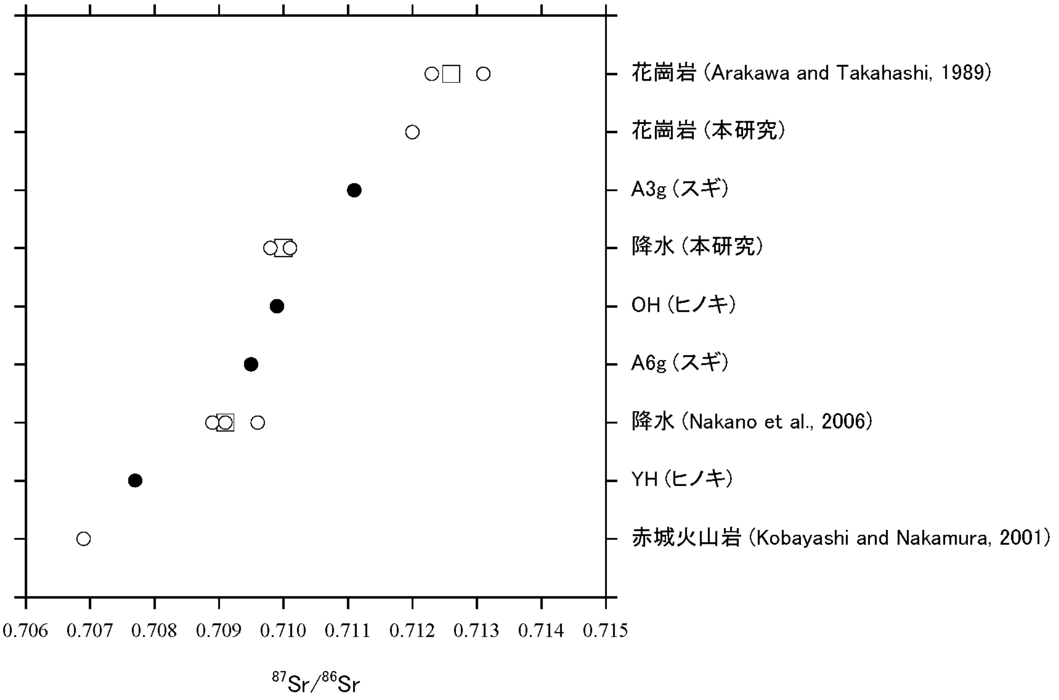

図 26 樹木試料（●）およびエンドメンバー候補（○）の $^{87}Sr/^{86}Sr$ 同位体比

□は各エンドメンバーの平均値を表す。樹木試料の採取地点と樹種も示した。

ある試料の Sr が母材と降水に由来すると仮定すると、近似的に次式が成立する[9,24]。

$$(^{87}Sr/^{86}Sr)_{sample} = f_{Sr\text{-}rain}\ (^{87}Sr/^{86}Sr)_{rainwater} + (1-f_{Sr\text{-}rain})\ (^{87}Sr/^{86}Sr)_{parent\ material} \qquad \text{Eq. 1}$$

ここで $f_{Sr\text{-}rain}$ は試料の Sr に対して降水起源の Sr が占める割合を表す。このとき、母材由来の Sr が占める割合は（$1 - f_{Sr\text{-}rain}$）である。

YH 地点における母材が火山灰だけであると仮定すると、樹木の Sr に対する母材と降水の寄与は Eq. 1 を用いて求められる。火山灰として赤城火山岩（0.70685）、降水として本研究の年平均値（0.71003）を用いると、樹木の Sr に対して火山灰起源の Sr が占める割合は 74 %となった。実際は、YH 地点の土壌にも $^{87}Sr/^{86}Sr$ が降水より高い花崗岩由来鉱物も存在している可能性があるので、この値は火山灰の寄与を過小評価している。従って、花崗岩と火山灰を合わせた母材からの寄与は、74 %以上ということになる。

同様に、A3g 地点での母材は花崗岩だけであると仮定し、樹木の Sr に対する母材と降水の寄与を計算した。ここで、花崗岩エンドメンバーの $^{87}Sr/^{86}Sr$ として本研究の測定値（0.71196）を用いた。その結果、A3g 地点の樹木の Sr に花崗岩起源の Sr が占める割合は 56 %となった。A3g 地点の土壌が火山灰由来の Sr を含んでいると、花崗岩からの寄与はさらに大きくなる。しかし、OH 地点の B2 層土壌が高い $^{87}Sr/^{86}Sr$（0.71392）を示すように、花崗岩土壌の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は花崗岩に比べて高くなる場合がある。したがって、花崗岩由来の Sr の植物への寄与は相対的に低くなる可能性が高い。

植物の Sr に母材由来の Sr が占める割合は、Bailey et al.[4] が 68 %、Nakano et al.[9] が 6 ～ 67 %と報告している。本研究の値（56 ～ 74 %）は文献値の中では高い方であり、YH 地点と A3g 地点では、十分な Sr が母材から植物に供給されていると言える。

（3）降水に含まれる母材由来 Sr の寄与

林外雨の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は、5 月の試料（0.71008）は、Nakano et al.[21] が報告したつくば市内の降水の平均値（0.70911）より高く、最高値（0.71017）に近かった。日本の降水の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は春季（3 月～ 5 月）に高くなり、黄砂に含まれている炭酸塩由来の Sr の寄与が大きくなる[21,25]。今回の結果も、黄砂由来の Sr を含むことを示している。7 月の試料（0.70978）が 5 月の試料より低い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示すのは、黄砂の影響が 5 月より弱いことを示す。2 年分の林外雨を降水量で重み付けして混合した試料の $^{87}Sr/^{86}Sr$（0.71003）は、5 月と 7 月の間の値を示した。

YH 地点で 5 月に採取した林内雨（0.70859）では、林外雨と YH 地点樹木（0.70767）の間であった。林内雨は、

林外雨の大気由来成分のほか、無降雨時に樹木の葉面に付着した大気由来成分（乾性沈着）と、樹木内部から葉面に溶出した成分を含むためである。Eq. 1 を用いて、林外雨（同時期の林外雨の値として 0.71008 を用いた）と火山灰（0.70685）の２成分系を仮定して、林内雨の Sr に対する火山灰の寄与を計算すると 46 %であった。林内雨の Sr に母材由来 Sr が占める割合として、Bailey et al.[4] は 57 %という値を報告しており、今回の値に比べてやや高い。本研究の値は、乾性沈着した黄砂を含む降水由来の Sr の寄与を反映したと言える。

OH 地点で採取した１年分の林内雨を降水量で重み付けして混合した試料の $^{87}Sr/^{86}Sr$（0.70985）は OH 地点樹木(0.70989)とほぼ同じであり、本研究の林外雨(0.70978 ～ 0.71008）の範囲内であった。そのため、$^{87}Sr/^{86}Sr$ を用いた母材由来 Sr の寄与算出は不可能であった。

（4）渓流水に含まれる Ca の起源

1）渓流水中元素濃度の地点間変化

１年間に観測した渓流水中元素濃度の平均値を、上流(A6 地点)、中流（A5 地点)、下流（A3 地点）で比較した結果を図 27 に示す。

渓流水の Cl 濃度は、上流と中流でほぼ同じであり、下流でやや減少した（上流の 94 %）が、その差はわずかであった。渓流水や浅層地下水に含まれる Cl は、蒸発岩や塩化物泉が分布する地域を除けば、一般に降水を起源としており、母材からの供給はわずかである[26, 27]。塩素を含め降水に溶存する成分は蒸発散と共に濃縮する。本地域の渓流水の塩素濃度が地点にかかわらずほぼ同じであることは、降水中の塩素濃度も蒸発散の影響も地点によって余り変わらないことを示している。

Si 濃度は上流から流下に伴って減少したがその差は小さく、下流では上流の 97 %であった。他方、Sr および Ca の濃度は流下に伴って大きく減少し、下流では上流の約 50 %であった。このように本流域では、人為負荷がなく地質環境も同じであるにもかかわらず、母材に由来すると考えられる Sr および Ca は上流域で高いという特徴がみられる。

2）渓流水中陽イオンに対する降水起源成分の寄与

渓流水に含まれている成分は、降水および土壌と母材に由来する。降水に由来する Cl は、植物に利用されたり土壌に保持されることが少ないため、殆ど全てが流出する。降水に由来する Cl の全てが渓流水に流出した場合、渓流水の元素 X に占める降水由来の X の割合（f_{rain}）は、次式で表現できる[9]。

$$f_{rain} = (X/Cl)_{rainwater} / (X/Cl)_{streamwater} \qquad \text{Eq. 2}$$

以下の f_{rain} 算出には（X/Cl）$_{rainwater}$ として林外雨年平均の X/Cl を用いた。

全渓流水試料中陽イオンについて、f_{rain} を算出して平均すると、K（100 %）が最も高く、Na（38 %）、Mg

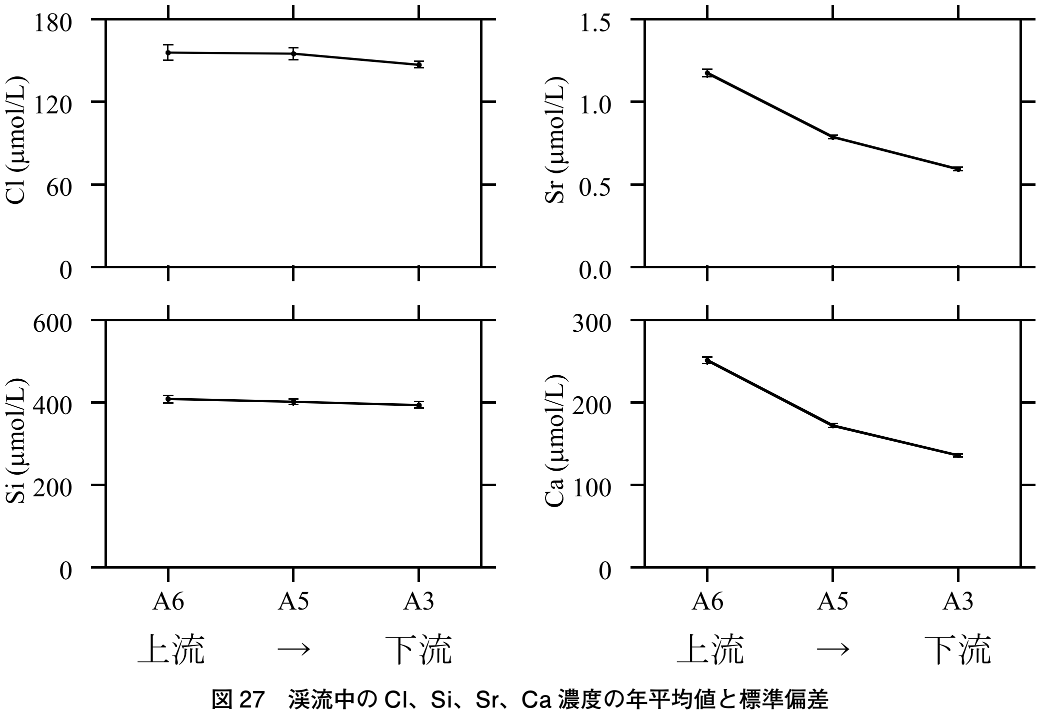

図 27　渓流中の Cl、Si、Sr、Ca 濃度の年平均値と標準偏差

(35 %)、Ca（22 %)、Sr（11 %）の順に低下した。渓流水中の K は大半が降水由来であること、Na、Mg、Ca、Sr は母材由来の寄与が大きいことがわかった。

3）渓流水の Sr 同位体比の地点間変化

平水時（6/9/2010）に 3 地点で観測した渓流水の $^{87}Sr/^{86}Sr$ を図 28a に示す。平水時の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は、A6 地点では降水（0.70848 ～ 0.71017）と同程度であったが流下に伴って上昇し、A5 地点と A3 地点では花崗岩（0.71196 ～ 0.71310）と同程度になった。これは、下流では流域の岩石や土壌からの寄与が大きくなるが、上流では $^{87}Sr/^{86}Sr$ の低い（1）降水 あるいは（2）火山灰の寄与が大きい、という二つの可能性が考えられる。上流の渓流水の方が高い Sr および Ca 濃度を示すこと、また火山灰は花崗岩に比べて風化しやすくケイ酸、Sr および Ca を放出しやすいことから、(2）の可能性が考えやすい。

A3 地点における $^{87}Sr/^{86}Sr$ の経時変化を示した（図 29)。降雨イベントの大きさの参考にするために T 地点の流量も示した。$^{87}Sr/^{86}Sr$ は、4 月から 9 月上旬まで約 0.7137 と安定していた。9 月と 10 月の降雨イベント後には約 0.7134 まで低下したが、12 月から上昇し、2 月には約 0.7137 に戻った。降雨後の $^{87}Sr/^{86}Sr$ は、平水時よりやや低かった。降水の Sr 濃度（0.01 μmol/L）は渓流水の Sr 濃度（0.5 ～ 1.2μmol/L）の 1 ～ 2 %程度と薄いため、降雨後の渓流水に降水が大量に混入していれば、渓流水の Sr 濃度は低下するはずである。しかし、降雨後の Sr 濃度は平水時と殆ど変わらなかった（図 29c)。従って、降雨時の $^{87}Sr/^{86}Sr$ 低下は、降雨が渓流水に直接混入して降雨由来 Sr の寄与が大きくなったためではなく、火山灰を含む土壌を通過した水の流入量が増えて火山灰由来 Sr の寄与が大きくなったためと考えられる。

4）渓流水に含まれる Sr の起源物質の定量的評価

Eq. 2 で算出した Sr の f_{rain} を Eq. 1 の $f_{Sr\text{-}rain}$ として用いると、Eq. 1 を応用した次式から、渓流水中 Sr に占める花崗岩由来 Sr の割合 $f_{granite}$ が得られる。

$$(^{87}Sr/^{86}Sr)_{streamwater}$$
$$= f_{rain}(^{87}Sr/^{86}Sr)_{rain} + f_{granite}(^{87}Sr/^{86}Sr)_{granite}$$
$$+ f_{volcanic\ ash}(^{87}Sr/^{86}Sr)_{volcanic\ ash} \qquad \text{Eq. 3}$$

$(^{87}Sr/^{86}Sr)_{granite}$ は、花崗岩の $^{87}Sr/^{86}Sr$ が 0.71196 ～ 0.71310 と幅があること、風化しやすい成分はより低い初生値（0.71078 ～ 0.71215）に近く、風化に耐えて残留する成分はより高くなること、などを考慮すると、どの値を用いるべきか議論の余地はあるが、ここでは仮に土壌の最高値（0.71392、OH 地点 B2 層）を用いた。さ

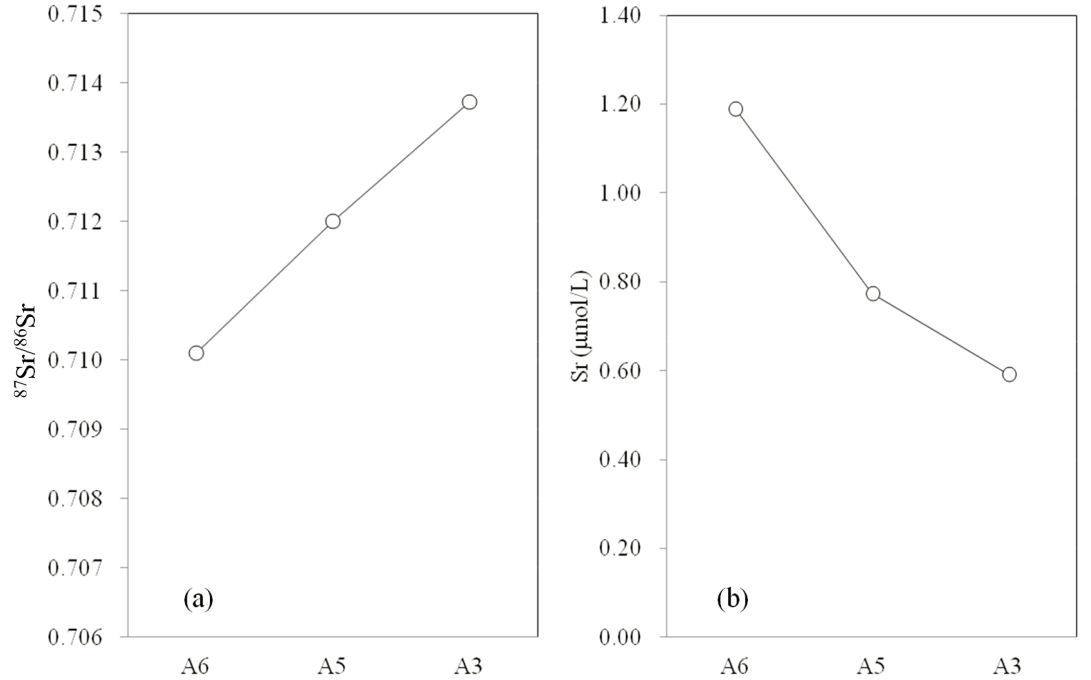

図 28　2010 年 9 月 6 日（平水時）における渓流水の $^{87}Sr/^{86}Sr$ および Sr 濃度

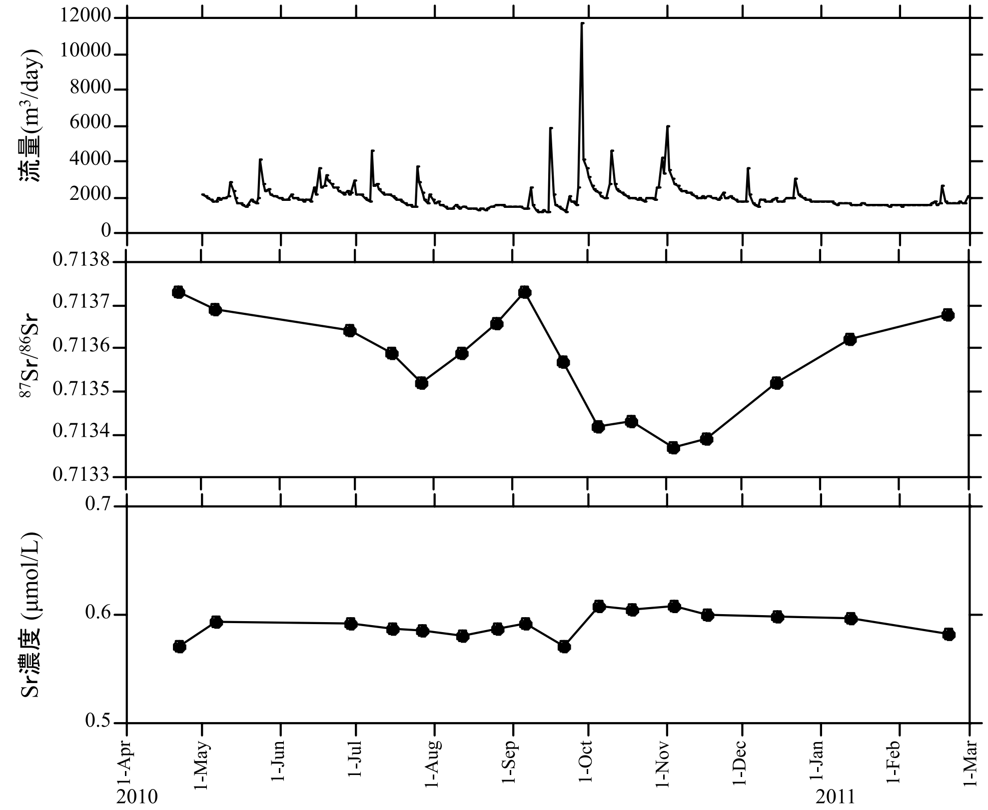

図 29　渓流水の流量、$^{87}Sr/^{86}Sr$、および Sr 濃度の季節変化
流量は T 地点の、$^{87}Sr/^{86}Sr$ および Sr 濃度は A3 地点の観測値。

らに、渓流水に含まれる Sr に占める火山灰由来 Sr の割合を $f_{volcanic\ ash} = 1 - f_{rain} - f_{granite}$ として算出した。

その結果を図 30 に示した。A6 地点での渓流水では火山灰由来 Sr が花崗岩由来 Sr より多かった。A5 地点では、平水時は火山灰由来 Sr の寄与が花崗岩由来 Sr の半分以下であったが、降雨後には火山灰由来 Sr の寄与が増大して花崗岩由来 Sr と同程度になった。A3 地点の火山灰由来 Sr は全試料で 1 %以下であった。

以上の方法により、Sr 同位体比が降水に近いため、Eq. 1 だけでは火山灰の寄与を評価できなかった渓流水試料についても、火山灰の寄与を評価することができた。

（5）まとめ

筑波山塊南端の森林生態系を構成する降水、林内雨、土壌、樹木、渓流水について元素組成と Sr 同位体比を分析し、以下の結果を得た。

1）本地域の地質は花崗岩を基盤とし、土壌は褐色森林土であるが、明瞭な火山灰層は認められない。斜面中部に位置する OH 地点の土壌やヒノキの $^{87}Sr/^{86}Sr$ は花崗岩に近い値を示すことから、土壌は花崗岩由来の鉱物を主体とし、それに含まれている Sr が植物体に取り込まれていることがわかる。これに対して、尾根部の緩斜面である YH 地点の土壌は基盤岩に比べて $^{87}Sr/^{86}Sr$ が明らかに低く、アロフェン量も高いことから、赤城山に由来する火山灰を含んでいると考えられる。同地点の樹木（ヒノキ）も火山灰に近い $^{87}Sr/^{86}Sr$ を示し、火山灰由来の Sr を多く（74 %）含んでいると見積もられる。

2）降水に主な起源がある渓流水の Cl は、地点によって濃度が余り変化しないのに対して、陽イオン成分は上流域で高く下流域で低い。一方、Sr 同位体比は上流部で低く、下流域で高いことから、上流域の表流水には火山灰に由来する Sr や Ca が多いことが示された。

3）マスバランス計算によれば、樹木に含まれている降水起源の Sr の割合は、YH 地点では 26 %、A3g 地点では 44 %で半分以下であった。表流水については、Cl を降水の指標として計算した結果、地点にかかわらず、含まれる Sr に対する降水由来の割合は 13 %以下であった。従って、本研究で対象とした森林生態系では、系内での花崗岩または火山灰の鉱物風化による Ca 供給は十分であり、Ca 不足による森林衰退の可能性は低いと考えられた。

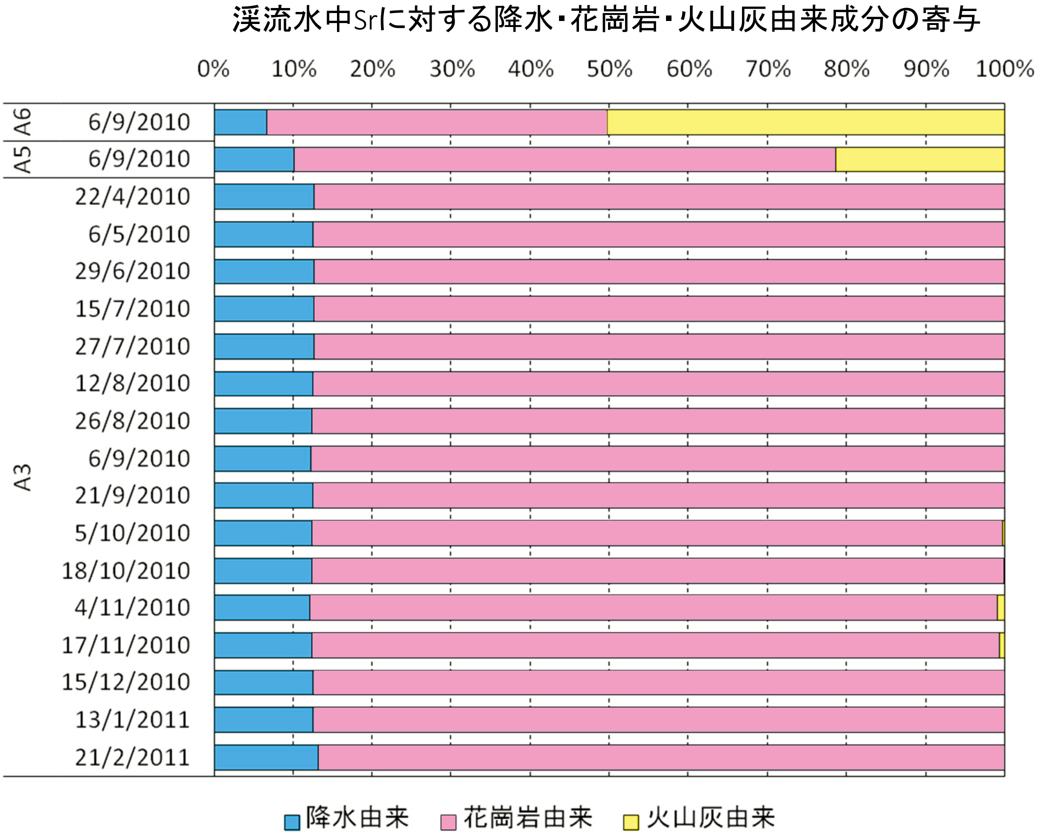

図 30　渓流水中 Sr に対する降水・花崗岩・火山灰由来成分の寄与

謝辞

本研究における Sr 同位体分析は、平成 24 年度総合地球環境学研究所「同位体環境学」共同研究「ストロンチウム同位体比を用いた森林生態系の塩基カチオン動態解析」（研究代表者　越川昌美、共同研究者　中野孝教）の一環として実施した。

引　用　文　献

1）Peterjohn W.T., Adams M.B., Gilliam F.S. (1996) Symptoms of nitrogen saturation in two central Appalachian hardwood forest ecosystems. Biogeochemistry, 35, 507–522.

2）平田健正，村岡浩爾（1991）筑波森林試験地における土壌水質および渓流水質の季節変化について．水工学論文集，35，105-110.

3）Schaberg P.G., DeHayes D.H., Hawley G.J. (2001) Anthropogenic calcium depletion: a unique threat to forest ecosystem health? Ecosyst. Health, 7, 214–228.

4）Bailey S.W., Hornbeck J.W., Driscoll C.T., Gaudette H.E. (1996) Calcium inputs and transport in a base-poor forest ecosystem as interpreted by Sr isotopes. Water Resour. Res., 32, 707–917.

5）Clow D.W., Mast M.A., Bullen T.D., Turk J.T. (1997) Stromtium 87/strontium 86 as a tracer of mineral weathering reactions and calcium sources in an alpine/subalpine watershed, Loch Vale, Colorado. Water Resour. Res., 33, 1335–1351.

6）Blum J.D., Klaue A., Nezat C.A., Druscoll C.T., Jhonson C.E., Siccama T.G., Eager C., Fahey T.J., Likens G.E. (2002) Mycorrhizal weathering of apatite as an important calcium source in base-poor forest ecosystems. Nature 417, 729–731.

7）Belanger N., Holmden C. (2010) Influence of landscape on the apportionment of Ca nutrition in a boreal forest of Saskatchewan (Canada) using 87Sr/86Sr as a tracer. Can. J. Soil Sci., 90, 267–288.

8）Nakano T., Yokoo Y., Anma R., Shindo J. (2001) Ca depletion in the soil column on a granite substrate on the island of Yakushima, a world natural heritage site. Water Air Soil Pollut., 130, 733–738.

9）Nakano T., Yokoo Y., Okumura M., Jeon S.-R., Satake K.

(2012) Evaluation of the impacts of marine salts and Asian dust on the forested Yakushima island ecosystem, a world natural heritage site in Japan. Water Air Soil Pollut., 223, 5575–5597.

10）若松孝志, 木平英一, 新藤純子, 吉岡崇仁, 岡本勝男, 板谷明美, 金班植（2006）わが国における渓流水のリン酸対リン濃度とその規定要因. 水環境学会誌, 29, 679–686.

11）吉岡敏和, 滝沢文教, 高橋雅紀, 宮崎一博, 坂野靖行, 柳沢幸夫, 高橋浩, 久保和也, 関陽児, 駒澤正夫, 広島俊男（2001）20万分の1地質図幅「水戸」（第2版）. 地質調査所.

12）Arakawa Y., Takahashi Y. (1989) Strontium isotopic and chemical variations of the granitic rocks in the Tsukuba district, Japan. Contrib. Mineral Petrol., 101, 46–56.

13）茨城県（1983）5万分の1土地分類調査「真壁」. 茨城県.

14）前島勇治（2007）筑波山の土壌,「土壌を愛し、土壌を守る」（日本ペドロジー学会編）, 博友社, 東京, 147–149.

15）気象庁：気象統計情報, http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php

16）平田健正, 村岡浩爾（1986）渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究 . 国立公害研究所研究報告, 95, 21–35.

17）Hou H., Takamatsu T., Koshikawa M.K., Hosomi M. (2005) Trace metals in bulk precipitation and throughfall in a suburban area of Japan. Atmos. Environ., 39, 3583–3595.

18）Hou H., Takamatsu T., Koshikawa M.K., Hosomi M. (2006) Concentrations of Ag, In, Sn, Sb, and Bi, and their chemical fractionation in typical soils in Japan. Eur. J. Soil Sci., 57, 214–227.

19）Kitagawa Y. (1977) Determination of allophane and amorphous inorganic matter in soils. B. Natl. Inst. Agr. Sci., Ser. B, 29, 1–48.

20）Na C.-K., Nakano T., Tazawa K., Sakagawa M., Ito T. (1995) A systematic and practical method of liquid chromatography for the determination of Sr amd Nd isotopic ratios and REE concentrations in geological samples. Chem. Geol., 123, 225–237.

21）Nakano T., Morohashi S., Yasuda H., Sakai M., Aizawa S., Shichi K., Morisawa T., Takahashi M., Sanada M., Matsuura Y., Sakai H., Akama A., Okada N. (2006) Determination of seasonal and regional variation on the provenance of dissolved cations in rain in Japan based on Sr and Pb isotopes. Atmos. Environ., 40, 7409–7420.

22）Kobayashi K., Nakamura E. (2001) Geochemical evolution of Akagi volcano, NE Japan: implications for interaction between island-arc magma and lower crust, and generation of isotopocally various magmas. J. Petrol., 42, 2303–2331.

23）Shindo J., Fumoto T., Oura N., Nakano T., Takamatsu T. (2001) Estimation of mineral weathering rates under field conditions based on base cation budget and strontium isotope ratios. Water Air Soil Pollut., 130, 1259–1264.

24）Graustein W.C. (1988) 87Sr/86Sr ratios measure the sources and flow of strontium in terrestrial ecosystems. In “Stable isotopes in ecological research” (eds. Rundel P.W., Ehleringer J.R., Nagy K.A.). Springer-Verlag, New York.

25）Nakano T., Tanaka T. (1997) Strontium isotope constraints on the seasonal variation of the provenance of base cations in rain water at Kawakami, central Japan. Atmos. Environ., 31, 4237–4245.

26）Petelet-Giraud E., Negrel P., Casanova J. (2003) Variability of 87Sr/86Sr in water draining granite revealed after a double correction for atmospheric and anthropogenic inputs. Hydrological Sciences, 48, 729–742.

27）Meybeck M. (2005) Global occurance of major elements in rivers. In “Surface and ground water, weathering, and soils” (ed. Drever J.I.). Elsevier-Pergamon, Oxford., 207–223.

2.4　まとめと今後の課題

本来、生態系のプロセスによって大気から固定化される窒素量と、硝酸性窒素が窒素ガス（N_2）として大気中に戻される量はほぼ均衡し、結果として、自然界では適正な窒素循環が営まれていた。しかし、産業革命以降、大規模な化学肥料の生産や農作物の栽培、化石燃料の燃

焼等といった人間活動により、環境中に大量の窒素化合物が蓄積されることで、地球規模のみならず地域規模においても、窒素循環に大きな変化が生じてきている。本報で取り上げた森林の窒素飽和現象は、正に、自然界における窒素循環の乱れを端的に表した事例と言える。我々が対象とした筑波山森林試験地は、1980年代後半に国立環境研究所の前身である国立公害研究所により実施された詳細な水・物質動態調査から、当時から既に窒素飽和状態にあったことが示唆されていた。

これに対して、今回我々が実施した調査結果は、本試験地の森林生態系における窒素過剰状態が、約4半世紀前と比べさらに進行していることを明らかとするものとなった。本結果については、10年単位での長期比較から、森林域における窒素飽和の推移や進行を具体的に明らかとした調査事例が国内外において未だほとんどないことから、極めて有用な成果と考えている。

また、森林域が窒素飽和に陥ることは、言い換えれば森林域が窒素負荷発生源として、流入水域の水質や生態系に及ぼす影響が無視できないものになることを意味している。本研究プロジェクトで実施した河川水中の硝酸イオンに含まれる窒素と酸素、それぞれの安定同位体比を用いた窒素発生源解析によって、我々の森林試験地を含め窒素飽和傾向にある筑波山森林域が、降雨流出時には、水田や畑作地といった他の非特定汚染源と変わらず、霞ケ浦への窒素流入負荷に対する主な発生源となっていることが確認された。今後、既に実施している筑波山広域を対象とした渓流水調査結果も含めた解析を行い、窒素負荷発生源としての森林域の実態をより正確に明らかにしていくことによって、霞ケ浦の水質保全に対する森林域からの窒素流出負荷削減対策の重要性をアピールしていく必要がある。

一方で、カルシウム供給能の観点から脆弱な地質である花崗岩集水域において、窒素飽和の進行によるカルシウム溶脱が、樹木の生長に対するカルシウム欠乏をもたらすか否かについては、ストロンチウム安定同位体比を用いた起源解析から、現時点の試験地に関してはその可能性は否定された。カルシウム欠乏を妨げる要因として、試験地に降下した火山灰がカルシウム供給源となっていることが判明するとともに、森林生態系における生元素の循環に対する堆積火山灰の役割を明らかとする知見を得た。

森林生態系を窒素飽和に至らしめる主な要因として、大気降下物由来の慢性的な高窒素負荷が挙げられる。一方、筑波山周辺の大気汚染常時監視点における窒素酸化物測定結果の長期推移や、1980年代後半と2010年との降水中の窒素負荷量の比較結果は、大気降下物由来の窒素負荷は、横ばいもしくは漸減傾向にあることを示している。このことは、試験地で観測された窒素飽和の進行が、外部負荷の増加を要因とするものではなく、森林生態系内の窒素循環における変化によってもたらされたことを示唆している。2.1節においても若干触れたが、我々は、その窒素内部循環の変化に対して、スギやヒノキを主とする人工林の管理不備による荒廃化が強く影響していると考えている。

我が国の森林面積の41％（林野庁調査結果：平成24年3月31日現在）を占める人工林は、その多くが第二次大戦後（60～70年代）の一斉拡大造林政策の一環として植林されたものである。本来であれば、その林齢からみてこれらは木材として供給されるべきところであるが、多くが国内林業の不振から間伐等の管理も十分に施されず放置状態にあり、筑波山も例外ではない。このように放置に伴い荒廃化した人工林地では、樹木の高齢化や、間伐遅れによる過密化に伴う生育不良や下層植生の消失が生じ、結果として植物による窒素吸収が低下し、生態系からの窒素溶脱が促進されると考えられる。

本研究では、今後の展開として、窒素飽和現象に及ぼす人工林荒廃の影響について、実態評価と機構解明に取り組む一方で、人工林管理による窒素飽和状態の改善の可能性について、併せて検討していくことを予定している。現在、間伐強度の異なるスギ人工林地を対象とした窒素動態研究に着手するとともに、これら調査結果に基づいた、森林生態系における窒素循環モデルの構築と適用を検討している。これにより、最終的には、森林管理に基づく森林域における窒素飽和の改善シナリオの構築を目指す予定である。

［資　料］

Ⅰ　研究の組織と研究課題の構成

1　研究の組織

［A　研究担当者］

地域環境研究センター

土壌環境研究室	林　誠二
	越川昌美
	渡邊未来
特別研究員	渡邊圭司（平成 22 ～ 24 年度）
湖沼環境研究室	高津文人

［B　客員研究員］

高松武次郎（茨城大学）（平成 22 ～ 24 年度）

［C　研究生］

石川隼人（茨城大学）　（平成 22 年度）

森田大智（茨城大学）　（平成 22 年度）

2　研究課題と担当者（＊客員研究員）

サブテーマ 1　筑波山における過去と現在の渓流水中硝酸イオン濃度の比較

渡邊未来、高松武次郎*、渡邊圭司、林　誠二

サブテーマ 2　霞ヶ浦への硝酸性窒素流入負荷に対する森林域の寄与の推定

高津文人、林　誠二

サブテーマ 3　筑波山におけるカルシウム欠乏による森林衰退の可能性の検討

越川昌美、渡邊未来、林　誠二

Ⅱ　研究成果発表一覧

1　誌上発表

発表者・(刊年)・題目・掲載誌・巻（号）・頁
高津文人，渡邊未来，林誠二，今井章雄，中島泰弘，尾坂兼一, 三浦真吾（2012）筑波山周辺の渓流水中の硝酸イオンの酸素・窒素安定同位体比による硝酸イオンの生成・混合・消費プロセスの解析．陸水学雑誌，73（1)，1-16
Takamatsu T., Watanabe M., Koshikawa-K.M., Murata T., Yamamura S., Hayashi S. (2010) Pollution of montane soil with Cu, Zn, As, Sb, Pb, and nitrate in Kanto, Japan.. Sci.Total Environ., 408 (8), 1932-1942

2　口頭発表

発表者・(暦年)・題目・学会等名称・予稿集名・頁
石川隼人，林誠二，渡邊未来，渡邊圭司，山村茂樹，越川昌美，高津文人，森田大智，高松武次郎（2011）長期比較から見た筑波山における窒素飽和の推移について．第45回日本水環境学会年会，第45回日本水環境学会年会講演集，315
Kohzu A. (2011) Studies of material cycling within lotic and lentic ecosystems by nitrate isotopic analysis. UY-GCOE Mini Seminar “Frontier and future of isotope science for assessing river basin environment”
Kohzu A., Watanabe M., Hayashi S., Imai A., Nakajima Y., Osaka K., Miura S. (2012) Metabolism in forest ecosystems from the analysis of nitrate 15N and 18O natural abundances in mountaion streams around Mt. Tsukuba, Japan. Voyages of Discovery, Abstracts, 65
越川昌美，渡邊未来，渡邊圭司，林誠二（2012）筑波山における渓流水中Ca濃度と集水域地質の関係．日本陸水学会第77回大会，同講演要旨集，138
Koshikawa-K.M., Watanabe M., Shin K.C., Takamatsu T., Hayashi S., Nakano T. (2012) Contribution of volcanic ash on base cation cycles in the Mt. Tsukuba forest ecosystem of Kanto, Japan as interpreted by strontium isotopes.. 2012 ASLO aquatic sciences meeting, Abstracts
三浦真吾，渡邊未来，林誠二，高津文人，今井章雄，小松一弘，川崎伸之，佐藤貴之，冨岡典子，篠原隆一郎（2011）筑波山における植生及び地形要因と渓流水中NO_3^-N濃度との関係．日本陸水学会第76回大会，日本陸水学会第76回大会講演要旨集，194
渡邊圭司，高津文人，竹中明夫，山村茂樹，林誠二，渡邊未来，須田亙（2011）樹木葉圏における微生物活動によるアンモニア酸化の痕跡．日本陸水学会第76回大会，日本陸水学会第76回大会講演要旨集，176
Watanabe K., Watanabe M., Suda W., Koshikawa-K.M., Yamamura S., Nishikiori T., Takenaka A., Tada C., Seiwa K., Hayashi S. (2012) Microbial community structure on tree leaves. The 28th Annual Meeting of the Japanese Society of Microbial Ecology, Abstracts, 153
渡邊未来，高松武次郎，越川昌美，村田智吉，山村茂樹，渡邊圭司，林誠二（2010）人為由来Sbの土壌蓄積量を指標にした森林土壌へのNO_3^-累積負荷量の推定．第51回大気環境学会年会，同予稿集，517
渡邊未来，林誠二, 三浦真吾，山村茂樹，渡邊圭司，越川昌美，高松武次郎（2010）筑波山の窒素飽和森林における無機態窒素の流入量と流出量の算定．日本陸水学会 第75回大会，同講演要旨集，53
渡邊未来，石川隼人，渡邊圭司，山村茂樹，高津文人，三浦真吾，越川昌美，高松武次郎，林誠二（2011）筑波山の渓流水中NO_3^-濃度は25年間で上昇したか？．日本陸水学会第76回大会，日本陸水学会第76回大会講演要旨集，195
渡邊未来，越川昌美，村田智吉，山村茂樹，渡邊圭司，林誠二，森田大智，石川隼人，高松武次郎（2011）関東における林外雨と林内雨中に濃縮された微量元素の特定と評価．第45回日本水環境学会年会，第45回日本水環境学会年会講演集，100
渡邊未来，林誠二，渡邊圭司，錦織達啓，多田千佳，深澤遊，清和研二（2012）間伐強度の違いがスギ林土壌からの硝酸溶脱特性に及ぼす影響．日本陸水学会第77回大会，同講演要旨集，141
渡邊未来，三浦真吾，渡邊圭司，山村茂樹，高津文人，錦織達啓，越川昌美，高松武次郎，林誠二（2013）茨城県筑波山における窒素飽和と森林管理．第124回日本森林学会大会，同学術講演集，76

国立環境研究所研究プロジェクト報告　第 107 号
NIES Research Project Report, No.107

（SR － 107 － 2014）

窒素飽和状態にある森林域からの窒素流出負荷量の定量評価および将来予測
（特別研究）
平成 22 ～ 24 年度
Evaluation and prediction of nitrogen load
from nitrogen saturated forest area
FY2010 ～ 2012

平成 26 年 3 月 31 日発行

編　集　国立環境研究所 編集委員会

発　行　独立行政法人 国立環境研究所

〒305-8506　茨城県つくば市小野川 16 番 2
E-mail: pub@nies.go.jp

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305-8506 Japan
March 2014

印　刷　株式会社　イ　セ　ブ

〒305-0005　茨城県つくば市天久保 2 丁目 11-20

無断転載を禁じます

国立環境研究所の刊行物は以下の URL からご覧いただけます。
http://www.nies.go.jp/kanko/index.html