

平成 28-29 年度 特別研究費報告書

森林集水域における大気降水由来の
窒素化合物利用効率に関する研究

環境科学部 環境生態学科 尾坂兼一

1. はじめに

近年地球規模で大気降水による陸域への窒素化合物負荷量の増加が報告されている(Galloway et al., 2008, Science)。窒素化合物は森林生態系の成長にとって必須な栄養成分であるが、森林から流出した窒素化合物は下流域の富栄養化に影響を与えることが知られている。そのため、大気降水による陸域への窒素負荷量増加に対する森林集水域の応答を明らかにすることは、将来の琵琶湖集水域環境を予測する上で重要であるといえる。

これまで、窒素負荷増大に対する森林集水域の応答として、窒素化合物流入量増加が植生-土壌間の窒素循環量を増加させた後、それが植生の窒素要求量を上回ると、森林集水域からの窒素化合物流出量が増加すると考えられてきた(窒素飽和仮説, Aber et al., 1998)。しかし近年、¹⁵N トレーサー実験から、森林集水域に流入した窒素化合物が植生による窒素要求量などの生物的要因にとは別に、集水域の水文(水移動)過程に影響されて流出する可能性も報告されており(Curtis et al., 2011)、大気降水による窒素化合物負荷量増大に対する森林集水域の応答を制御しているメカニズムについて、未だ十分に明らかになっていない。

森林集水域に流出入する最も主要な窒素化合物は硝酸イオン(NO_3^-)であるが、近年簡易測定が可能になったその酸素安定同位体比($\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$)は、森林集水域内で生産された NO_3^- と大気降水由来の NO_3^- では大きく異なる値をとる(Kendall et al., 2007)。そのため、森林集水域から流出する NO_3^- の $\delta^{18}\text{O}$ を測定することにより、森林集水域にもたらされた大気降水由来の NO_3^- のうちのどの程度が流出しているのか、反対に言えば、森林集水域ごとの大気降水由来 NO_3^- の利用率、保持効率を明らかにすることができる。

Rose et al. (2015)は、アメリカ東部の窒素循環量の異なる4つの森林集水域において $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ を用いた観測を行い、土壌-植物間の窒素循環量が多く、植生の窒素要求量以上に土壌に窒素が蓄積している集水域ほど大気降水由来の NO_3^- 流出量が多かったことを報告しており、これは Aber et al. (1998)の仮説と一致する。一方で、申請者が窒素循環量だけでなく、水文過程も異なる2つの森林集水域において $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ を用いた観測を行ったところ(科研費若手(B), 2013-15)、Aber et al.(1998)の仮説や、Rose et al.(2015)の観測結果とは異なり、大気降水由来の NO_3^- 流出量は、森林集水域内の窒素循環量などの生物的要因よりも、水文学的要素などの地形、物理過程に影響されていることを示唆した(Osaka et al., 2016)。しかし、Rose et al. (2015) の研究は水文過程の特徴が整理されていない集水域であり、申請者らの研究も2集水域の比較でしかない。今後、水文学的特性、窒素循環的特徴の両方が整理された複数の森林集水域で同様の研究を

行うことができれば、集水域の水文学的特徴、窒素循環的特徴が森林集水域の大気降水由来 NO_3^- の利用効率に与える影響を明らかにし、大気降水による窒素負荷量増加に対する森林集水域の応答に関する重要な知見を手に入れることができる。

本研究では滋賀県大津市の桐生水文試験地内の5森林集水域(0.09-5.99ha)において、降雨時、平水時に降水、溪流水の水文・水質観測($\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ を含む)を行うことにより、これらの5集水域における大気降水由来 NO_3^- の利用効率を明らかにする。また、林床の有機物層、鉍質土壌層の化学分析、微生物活性測定を行い、土壌中の窒素循環特性を明らかにする。これらの5集水域は微地形の違いにより水移動過程が異なることが報告されており(Iwasaki et al., 2015)、これらの情報を基に集水域の水文学的特性、集水域の窒素循環特性が森林集水域における大気降水由来窒素の利用効率に与える影響を明らかにすることを目的とする。

2. 方法

2.1 調査地

本研究は、滋賀県大津市草津川上流に位置する桐生水文試験地(図 1)を調査地とした。本研究地はヒノキ沢(H)、リョウブ沢(R)、アカカベ(A)、マツ沢(M)の4つの流域を構成の一部として保有しており、調査時にはそれら4流域を一体とした桐生本流(K)も調査を行った。調査を行った4流域は風化花崗岩質土壌によって構成されており、植生は明治期に一斉に植林されたヒノキ林である。そのため流域からの水、窒素流出プロセスに関して地質、植生の違いの影響を考慮しなくてよい。それぞれの流域の面積と斜度を(表 2.1.2.)に記す。

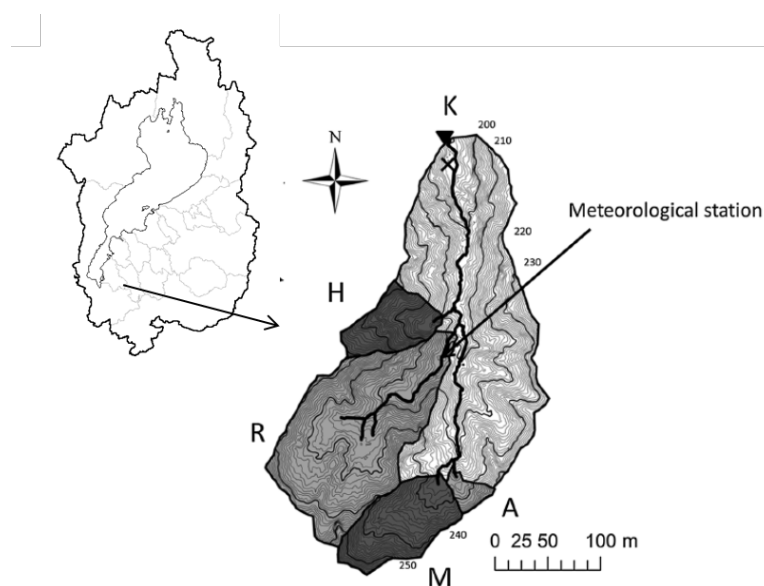


図 1. 桐生水文試験地の場所と地形図 (Iwasaki et al., 2015 改良)

表 2. 各流域面積と平均斜度 (Iwasaki et al., 2015, 西本, 2017 を元に作成)

流域	面積(ha)	斜度(°)
本流	5.99	25.3
ヒノキ沢	0.40	26.5
リョウブ沢	1.75	22.7
アカカベ	0.09	23.0
マツ沢	0.68	21.4

2.2 各流域の水文観測

各流域の末端には量水堰を設置し、圧力式水位計を用いて量水堰内水位の連続観測を行った。流量は圧力式水位計から水位流量曲線(実測の流量と量水堰内水位の関係式)を用いて算出した。降水量は流域中央部の露場(図 1 中の Meteorological Station)において、転倒マス式雨量計を用いて測定した。

2.3 林内雨、渓流水の採取と試料の化学分析

サンプル採取は、3-4 週間に一度の定期採水と降雨時連続採水の 2 種類行い、定期採取では渓流水と林内雨、降雨時連続採水では渓流水を採水した。渓流水はヒノキ沢以外の流域ではそれぞれの流域に存在する量水堰直上で採水し、ヒノキ沢は量水堰直下で採水した。林内雨は各流域の上部と下部に 5L ボトル 1 本ずつを設置した。ボトルには直径 17 cm の漏斗を接合し、ボトルの外側にはアルミテープを巻いた。漏斗内にはピンポン玉を設置し、その上に金網を設置した。アルミテープを巻くことで遮光し、水温の上昇と苔や微生物の活動を抑えた。ピンポン玉はボトル内の水の蒸散を防ぎ、金網は落ち葉などの混入を防止するために設置した。採水時にはそれぞれの重さを計測し、ボトル内に溜まった水を重さと同等の比率になるように 1 つのボトルに入れて回収し保管した。降雨時連続採水は 2016 年 8 月 29-9 月 2 日、2016 年 9 月 20-23 日、2017 年 8 月 7-8 日、9 月 16-17 日、10 月 21-22 日までの計 5 回行った。各流域に自動採水機を設置し、降雨開始直前から降雨終了数時間後まで 1 時間から数時間間隔で渓流水を採水した。サンプルは定期採水、降雨時の連続採水ともにサンプルを回収してから 3 日以内にアドバンテック社製メンブレンフィルター(孔径 0.47 μm)を用いて濾過を行い、濃度測定用のサンプルは冷蔵、窒素安定同位体比測定用のサンプルは冷凍保存した。

冷蔵保存サンプルからは DN、 Na^+ 濃度、 NO_3^- 濃度、降雨時における NO_3^- の窒素・酸素安定同位体比($\delta^{18}\text{O}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$)を測定し、冷凍サンプルからは SiO_2 と平水時における NO_3^- の窒素・酸素安定同位体比($\delta^{18}\text{O}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$)を測定した。DN 濃度はペルオキシ二硫酸カリウム-紫外線吸光度法(UV-2450: Shimadzu, Japan)を使用した。 Na^+ 濃度、 NO_3^- 濃度は京都大学にて

イオンクロマトグラフィー法を用いて測定した。NO₃⁻の安定同位体比($\delta^{18}\text{O}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$)の分析には脱窒菌法を使用し、山梨大学国際環境流域センターにてサーコン社製の GC-IRMS を用いて測定した。

2.4 土壌の採取と試料の化学分析

2017年4月26日、7月27日、11月16日の計3回、流域面積の小さいアカカベでは3地点、それ以外の流域では5地点で土壌の採取を行った。それぞれの地点において0-10cmと20-30cmの土壌の採取を行い、ファスナー付きのプラスチック・バッグに入れて保冷剤入りのクーラーボックスで持ち帰り、持ち帰った土壌は直ちに2mm目のふるいにかけて、冷蔵庫で保存した。

篩別後の土壌を約50gずつ200mlビーカーに入れた後、105°Cの温度に設定した乾燥機(図2.31)に48時間入れ土壌を乾燥させ、乾燥の前後で質量差から含水率を算出した。また乾燥後の土壌を乳鉢に移し、粒径が0.1mmになるまで粉碎した後、CNコーダーで全窒素、全炭素濃度を測定した。さらに、篩別後の土壌を4本の50ml遠沈管に約20gずつ入れた。4本のうち2本は約30gの2N塩化カリウム水溶液を加えて1時間振とうした後15分間2500rpmで遠心分離し、上澄み液を孔径0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過して試料水とした。残りの2本の遠沈管に入れた土壌は恒温器で2週間培養した後、他の2本と同様の処理を行い、試料水を得た。なお、恒温器の設定温度は4月の土壌は10°C、7月の土壌は23°C、11月の土壌は12°Cとした。試料水からはNO₃⁻濃度とNH₄⁺濃度をフローインジェクションアナライザー(FIA)で測定し、土壌中のNO₃⁻濃度とNH₄⁺濃度、無機化速度、硝化速度を算出した。

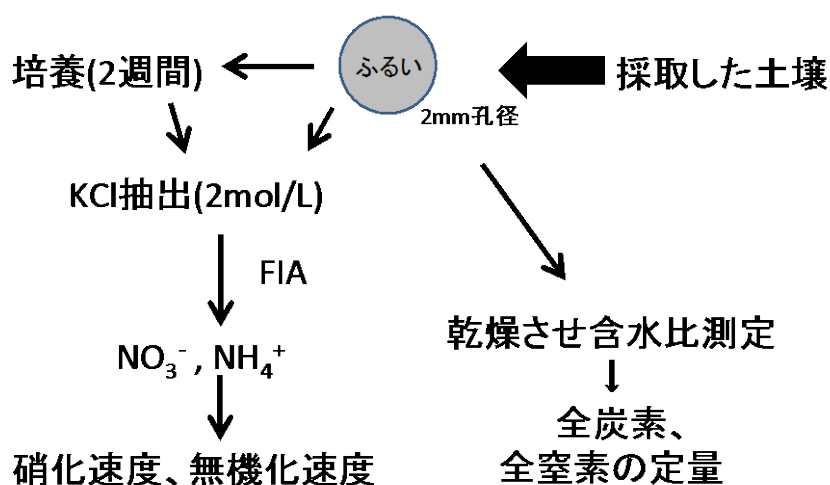


図 2. 土壌分析の流れ

3. 結果と考察

3.1 各流域の水文環境

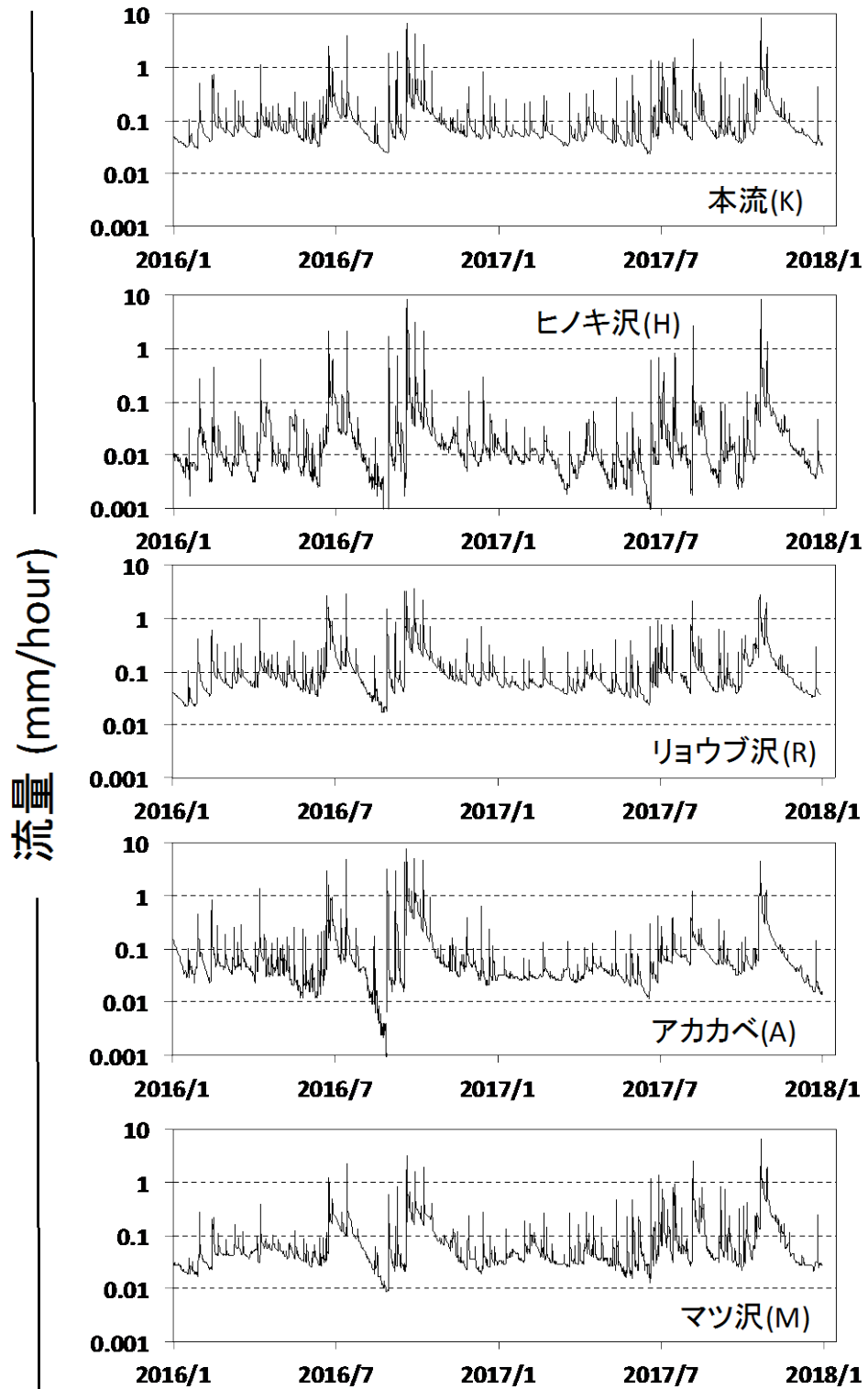


図 3. 観測期間中の各流域の流量の時間変動

図3に観測を行なった各流域の流量を示す。2016年、2017年の桐生水文試験地における年降水量はそれぞれ1886、1820mmであるのに対し、2016年の本流(K)、ヒノキ沢(H)、リョウブ沢(R)、アカカベ(A)、マツ沢(M)における年流出流量はそれぞれ999、389、1190、1133、695mm、2017年の本流(K)、ヒノキ沢(H)、リョウブ沢(R)、アカカベ(A)、マツ沢(M)における年流出流量は945、302、884、653、886mmであった。Kosugi and Katsuyama (2007)がエネルギー収支から算出した桐生水文試験地における年間蒸発散量は2001年から2003年の平均で735mmであったことから、本研究期間においても同様の年間蒸発散量であったとすると、理論的には2016年で1151mm、2017年で1086mmの年流出流量となるはずである。一方で実際の流量は全体的に理論的な流量よりも少なく、特にヒノキ沢(H)で流量が少なかった。このことはヒノキ沢(H)では流域から流出する水の全てを流域末端の量水堰で捕らえられていないことを示しており、流域末端から表層水として流出する以外に基岩浸透に浸透し、流域外へ流出している成分があることを意味している。

図4に林内雨、渓流水中のNa⁺濃度を示す。一般的に渓流水中のNa⁺濃度は基岩風化由来であり、林内雨で濃度が低く渓流水で濃度が高い。またNa⁺は土壌、基岩から溶出してくるため、土壌中や基岩中を長く移動してきた水、すなわち滞留時間の長い水でNa⁺濃度が高い。表流水の他に基岩浸透によっても流域外へ水が流出していると

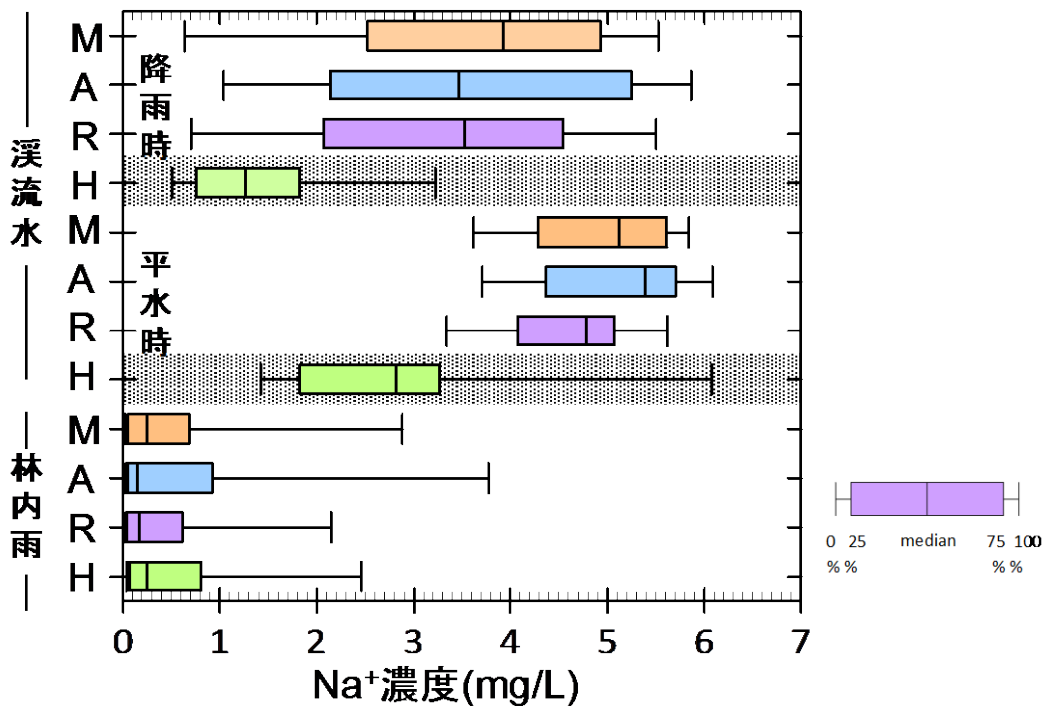


図4. 林内雨と渓流水中のNa⁺濃度

考えられたヒノキ沢(H)における降雨時、平水時の Na^+ 濃度はともに他の流域と比較して明らかに低い。これはヒノキ沢(H)において土壌深層部まで浸透した滞留時間の長い Na^+ 濃度の高い水は基岩浸透で流出していること、ヒノキ沢(H)からは表層水として比較的土壌の浅いところを通過した滞留時間の短い成分が流出していることを示唆している。

3.2 各流域の土壌中の窒素循環過程

図 5、6、7、8 に各流域における土壌中の NO_3^- 濃度、 NH_4^+ 濃度、 NO_3^- 生成速度、 NH_4^+ 生成速度を、図 9、10 に各流域の硝化速度と NO_3^- 濃度の関係、無機化速度と NH_4^+ 濃度の関係を示す。桐生水文試験地の土壌中の NO_3^- 濃度はどの流域においても 0-10 cm よりも 20-30 cm の方が高く、 NH_4^+ 濃度は 20-30 cm よりも 10-20 cm で高い傾向が見られた。本研究では土壌中の NO_3^- 濃度は滋賀県の他の森林流域(例えば Osaka et al., 2016)と比較して極めて低い値であった。一方、 NH_4^+ 濃度は NO_3^- 濃度の約 10 倍であり滋賀県の他の森林流域(例えば Osaka et al., 2016)と比較して同程度であった。本研究で測定された全ての流域の NO_3^- 生成速度(森林土壌中において NO_3^- は主に NH_4^+ が微生物により酸化されて生成する)も極めて低い値であったことから、本研究地の土壌中の窒素循環系は NH_4^+ が蓄積し NO_3^- まで生成されにくい系であると言える。また、硝化速度は特にリョウブ沢やヒノキ沢で小さい傾向にあり、これらの流域では NO_3^- は生成されにくいと言える(図 9)。マツ沢、アカカベ、リョウブ沢、ヒノキ沢の土壌の CN 比の平均値はそれぞれ 15.6、14.9、18.0、17.9 である。土壌の CN 比が高いところでは硝化が進みにくいことが各地の研究で報告されており(例えば Aber et al., 2003)、本研究の結果はこれら既存の研究と一致する。

土壌中の NO_3^- 濃度と NO_3^- 生成速度の季節変動は共に、4月と11月に比べて7月で高くなった。7月に高くなる理由として、地温の上昇による微生物の活性によるものと考えられる。また、土壌中の NO_3^- 生成速度はどの流域も極めて低いものの A、M 流域で高く、H、R 流域で低かった。

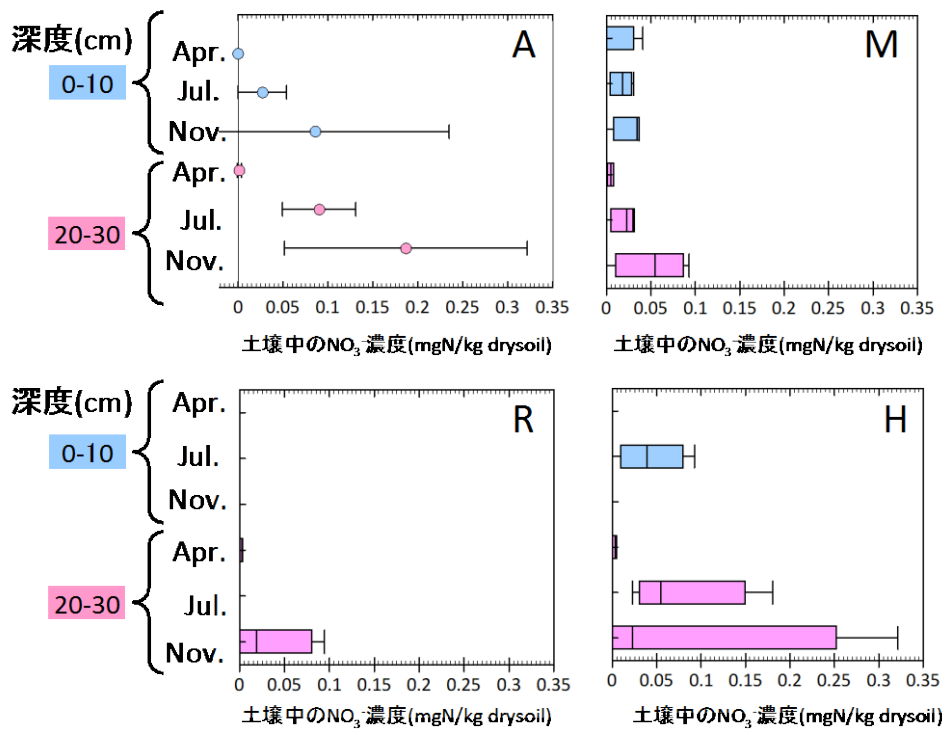


図 5. 各流域の土壌中の NO_3 濃度. A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

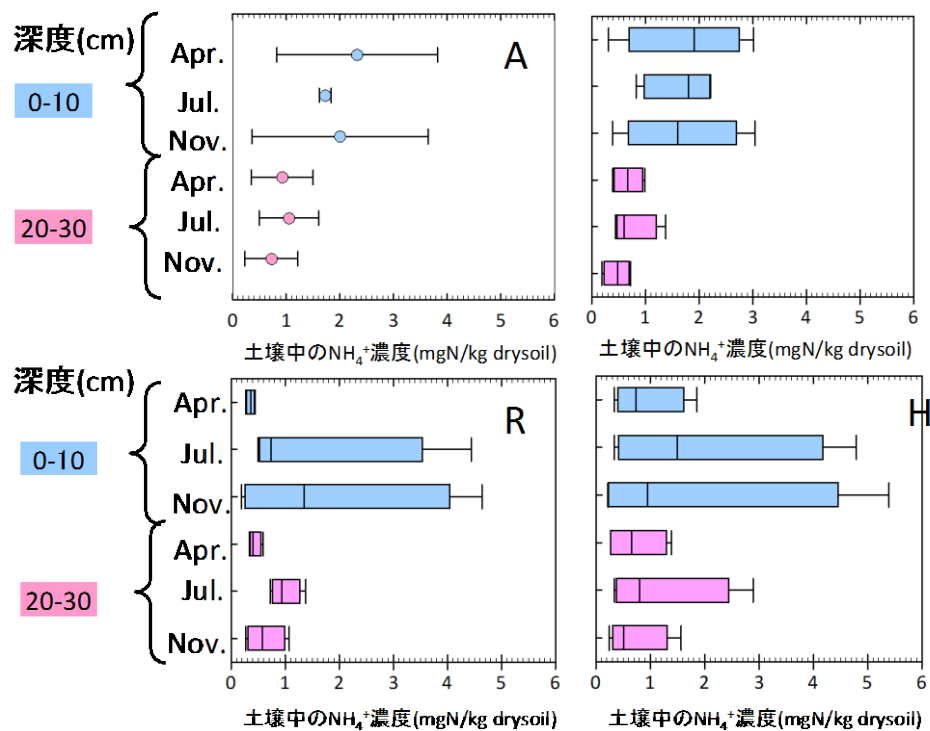


図 6. 各流域の土壌中の NH_4^+ 濃度. A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

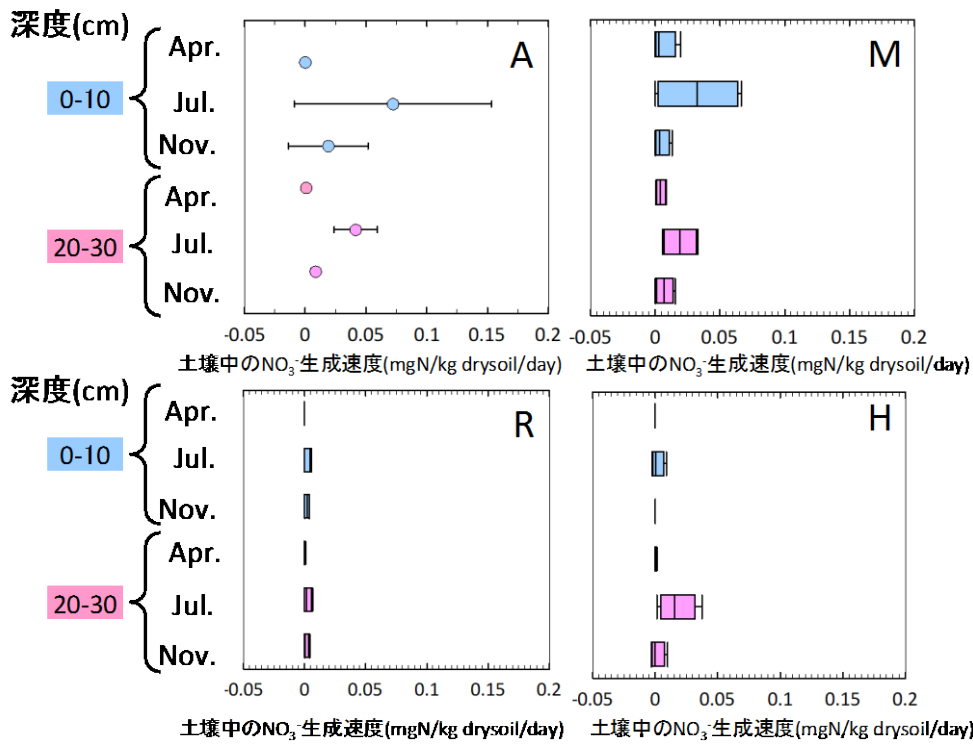


図 7. 各流域の土壌中の NO_3^- 生成速度. A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

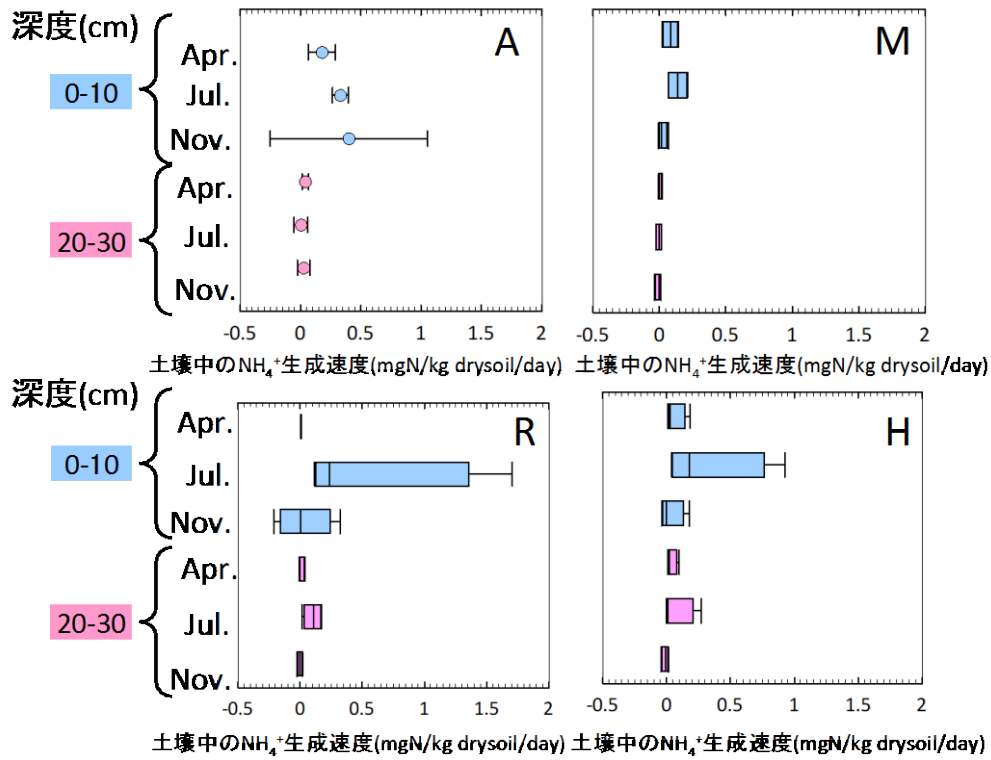


図 8. 各流域の土壌中の NH_4^+ 生成速度. A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

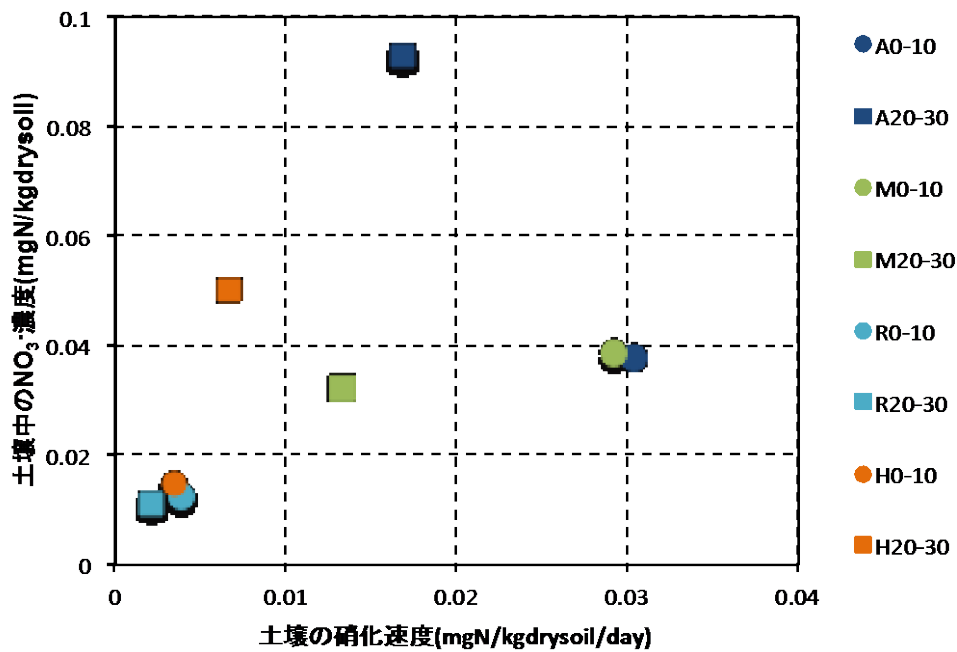


図 9. 各流域の土壌中の硝化速度(NO₃⁻生成速度)と NO₃⁻濃度の平均値の関係. 凡例の A はアカカベ, M はマツ沢, R はリョウブ沢, H はヒノキ沢, 数字は土壌深を示す。

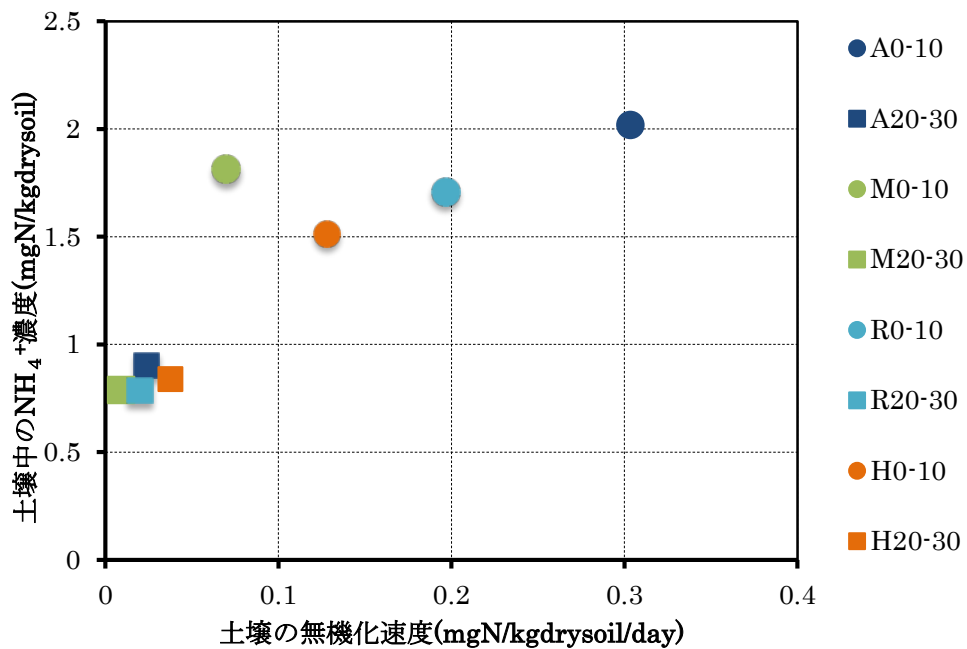


図 10. 各流域の土壌中の無機化速度(NH₄⁺生成速度)と NH₄⁺濃度の平均値の関係. 凡例の A はアカカベ, M はマツ沢, R はリョウブ沢, H はヒノキ沢, 数字は土壌深を示す。

3.3 各流域の窒素流出過程とそれに対する水文環境と土壌中の窒素循環過程の影響

図 11、12、13 に本研究における降雨調査時の降水量と流量の関係、降水量と NO_3^- 流出量の関係、流量と NO_3^- 流出量の関係を示す。同じ降水量の降雨でも、降雨時に流出する NO_3^- 量は流域ごとに大きく違った。この原因の一つに降雨時の流出応答特性が流域ごとに異なることがあげられる。すなわち、図 11 に示すように同規模の降雨であっても水の流出量は流域ごとに異なるため、同じ降水量でも流量の多い流域では多量の降水で土壌中の NO_3^- が洗い流されるため NO_3^- 流出量が多くなったと考えられる。そのため、同程度の流量では流域に関係なく流出する NO_3^- 量が同程度であったが(図 13)、ヒノキ沢のみは他の流域と比べて同じ流量でも NO_3^- 量が少なかった。

図 14、15 に本研究における降雨調査時の降水量と大気降下物由来の NO_3^- 流出量の関係、流量と大気降下物由来の NO_3^- 流出量の関係を示す。大気降下物由来の NO_3^- 流出量も NO_3^- 流出量と同様に同じ降水量の降雨でも流域ごとに流出量は異なったが、同じ流量であればヒノキ沢(H)も含めてどの流域も同程度の大気降下物由来の NO_3^- が流出した。つまりヒノキ沢(H)は降雨時に他の流域と同じ流量があったとしても NO_3^- 流出量は少ないが、大気降下物由来の NO_3^- は他の流域と同程度流出する。このことは、流域から流出する NO_3^- は大気降下物由来の NO_3^- と硝化由来の NO_3^- からなるため、ヒノキ沢(H)では同じ流量でも硝化由来の NO_3^- の流出量が少ないということを意味する。またそのため、ヒノキ沢(H)では流出する流域から流出する NO_3^- に対する大気降下物由来の

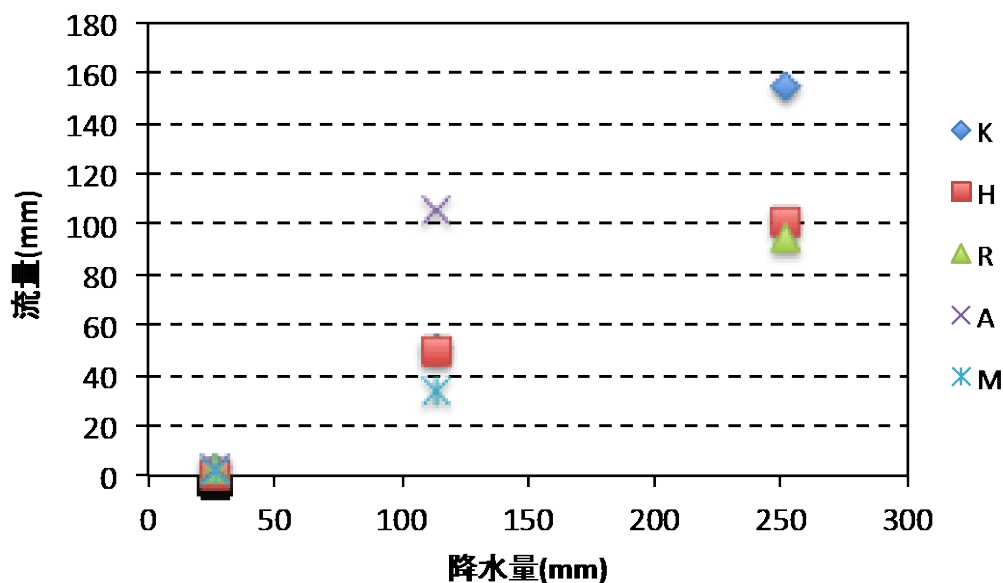


図 11. 各流域における降雨時の降水量と流量の関係. 凡例の K は本流、A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

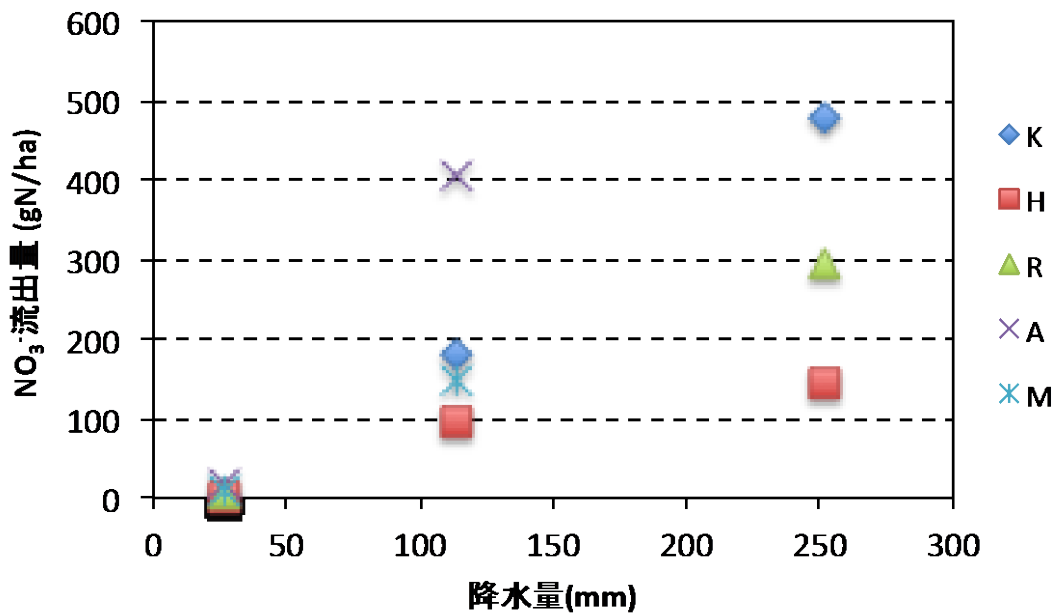


図 12. 各流域における降雨時の降水量と NO₃流出量の関係. 凡例の K は本流、A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

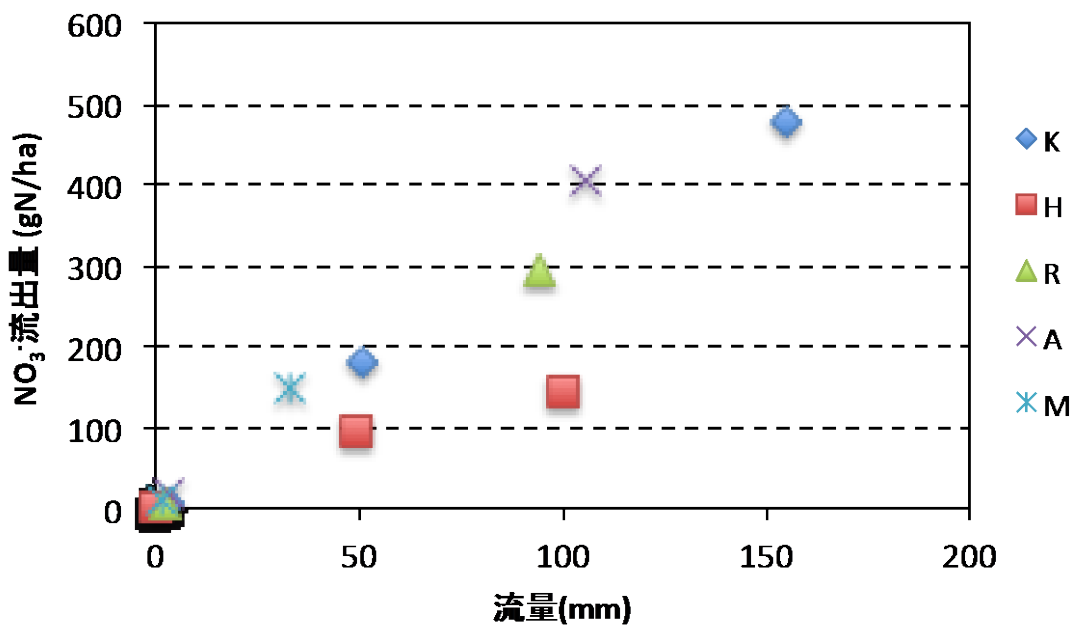


図 13. 各流域における降雨時の流量と NO₃流出量の関係. 凡例の K は本流、A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

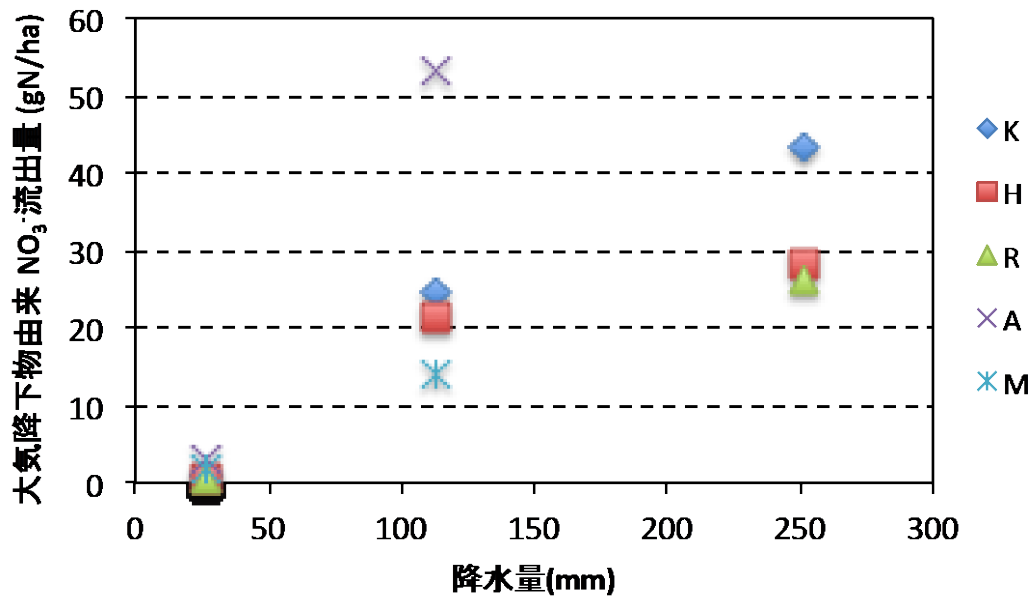


図 14. 各流域における降雨時の降水量と大気降水由来の NO₃⁻ 流出量の関係. 凡例の K は本流、A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

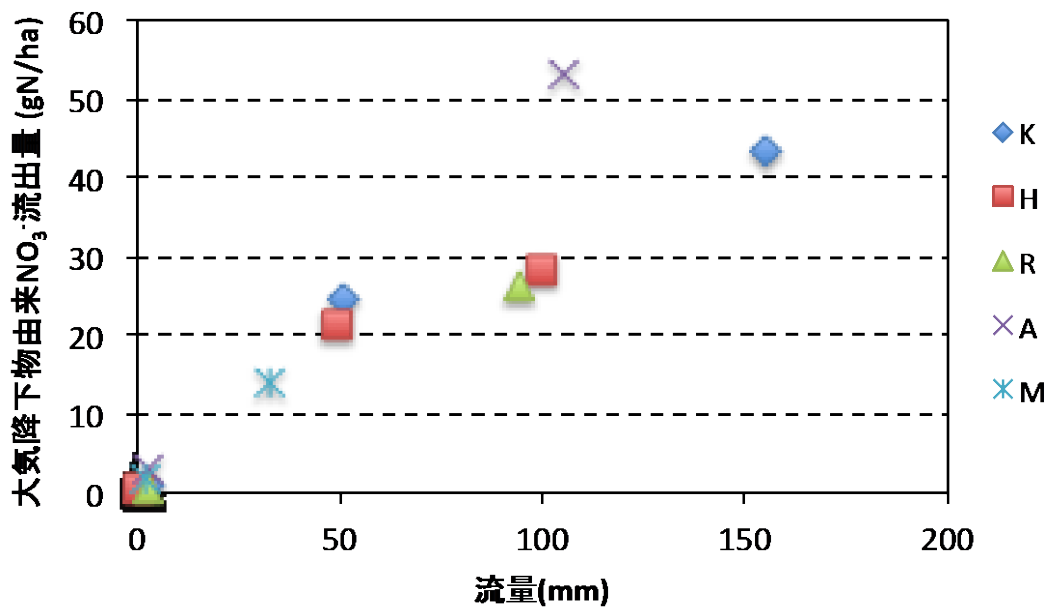


図 15. 各流域における降雨時の流量と大気降水由来の NO₃⁻ 流出量の関係. 凡例の K は本流、A はアカカベ、M はマツ沢、R はリョウブ沢、H はヒノキ沢を示す。

に対する大気降水由来 NO_3^- 流出量の割合は 8.9–14.8% (平均 12.2%) である一方、ヒノ NO_3^- 流出量の割合が高く、本流(K)、リョウブ沢(R)、アカカベ(A)、マツ沢(M)における NO_3^- 流出量キ沢におけるそれは 19.6–26.8% (平均 22.8%) であった。

本研究で研究を行なった各流域は隣接しているため大気降水物として流入する窒素量が同じであると考え、どの流域も流量に対する大気降水由来の NO_3^- 流出量が同程度であることから、流域にもたらされた窒素化合物が一度流域内の窒素循環系に取り込まれる量は同程度であると考えられる。年流出流量、平水時、降雨時の Na^+ 濃度から、ヒノキ沢(H)は他流域と比べて滞留時間の短い浅い地下水が流出しており、流域にもたらされた窒素化合物が生態系に取り込まれる時間が短いと考えられたが、流域にもたらされた窒素化合物が一度流域内の窒素循環系に取り込まれる量は流域の水移動経路特性に大きく影響されないことが明らかになった。

また、土壌中の窒素循環特性も流域ごとに異なり、土壌の CN 比が低いリョウブ沢(R)やヒノキ沢(H)では無機化により NH_4^+ が生成されても NO_3^- 生成されなかった。また土壌の CN 比がリョウブ沢(R)やヒノキ沢(H)で高かったことから、土壌の NO_3^- 保持、不動化(微生物や土壌有機物による NO_3^- の取り込み)のポテンシャルはリョウブ沢(R)やヒノキ沢(H)で高いと考えられたが、これも流域にもたらされた窒素化合物が一度流域内の窒素循環系に取り込まれる量に大きな影響を与えていないことが明らかになった。ただし、流域内の窒素循環過程の違いは水移動経路特性ほどの違いはなかったことから、流域にもたらされた窒素化合物が一度流域内の窒素循環系に取り込まれる量は水移動過程よりも窒素循環過程に制御されている可能性が示唆された。

4. 参考文献

- Aber J., W. McDowell, K. Nadelhoffer, A. Magill, G. Berntson, M. Kamakea, S. McNulty, W. Currie, L. Rustad, and I. Fernandez (1998), Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems, *BioScience*, 48, 921–934.
- Aber J. D., C. L. Goodale, S. V. Ollinger, M.-L. Smith, A. H. Magill, M. E. Martin, R. A. Hallett, and J. L. Stoddard (2003), Is nitrogen deposition altering the nitrogen status of northeastern forests?, *BioScience*, 53(4), 375–389
- Curtis C.J., C. D. Evans, C. L. Goodale, T. H. E. Heaton (2011) What Have Stable Isotope Studies Revealed About the Nature and Mechanisms of N Saturation and Nitrate Leaching from Semi-Natural Catchments?, *Ecosystems* (2011) 14: 1021–1037 DOI: 10.1007/s10021-011-9461-7.

- Galloway J. N., A. R. Townsend, J. W. Erisman, M. Bekunda, Z. Cai, J. R. Freney, L. A. Martinelli, S. P. Seitzinger, and M. A. Sutton (2008), Transformation of the nitrogen cycle: recent trends, questions, and potential solutions, *Science*, 320, 889, doi: 10.1126/science.1136674.
- Iwasaki K., M. Katsuyama, M. Tani (2015) Contributions of bedrock groundwater to the upscaling of storm-runoff generation processes in weathered granitic headwater catchments, *Hydrol. Process.* 29, 1535–1548.
- Kendall C., E. M. Elliott, and S. D. Wankel (2007), Tracing anthropogenic inputs of nitrogen to ecosystems, In: *Stable isotopes in ecology and environmental science*, edited by Michener, R. and Lajtha, K., 375-449, Blackwell Publishing, Oxford.
- Osaka K., T. Kugo, N. Komaki, T. Nakamura, K. Nishida, and O. Nagafuchi (2016), Atmospheric nitrate leached from small forested watersheds during rainfall events: Processes and quantitative evaluation, *J. Geophys. Res. Biogeosci.*, 121, doi:10.1002/2015JG003210.
- Rose L. A., E. M. Elliott, and M. B. Adams (2015), Triple nitrate isotopes indicate differing nitrate source contributions to streams across a nitrogen saturation gradient, *Ecosystems*, 18, 9891-9898.