

令和 2 年 9 月 16 日現在

機関番号：24201

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2019

課題番号：17K15288

研究課題名(和文) 酸素安定同位体比を用いた森林における窒素の流入、蓄積、流出過程の相互関係の解明

研究課題名(英文) Isotopic study on interaction between nitrogen deposition, retention, export in forested watersheds.

研究代表者

尾坂 兼一 (Osaka, Ken'ichi)

滋賀県立大学・環境科学部・講師

研究者番号：30455266

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では4森林小集水域で集水域の水文過程、窒素循環過程と大気降水由来NO₃⁻、硝化由来NO₃⁻の関係を測定、解析した。その結果、降雨時の水移動経路が異なる集水域においても降雨時の大気降水由来NO₃⁻流出量は大きくは変わらないことが明らかにした。また、土壌中の窒素蓄積量と集水域からの窒素流出量の間には明瞭な関係はなく、土壌中の硝化速度違いが降雨時のNO₃⁻流出量に影響していると考えられた。これらのことは、森林土壌中の窒素動態は森林流域からの窒素流出量に影響を与えるものの、表層流出水によるNO₃⁻流出だけでは森林土壌中の窒素の蓄積には影響を与えないことを示唆している。

研究成果の学術的意義や社会的意義

水域の富栄養化、飲料水質の低下を招くNO₃⁻の大気降水物として陸域への供給が地球規模で増加している現在、大気降水物によるNO₃⁻負荷増加が森林生態系からのNO₃⁻流出量に与える影響を明らかにすることは学術的、社会的意義が大きい。本研究では森林生態系にもたらされるNO₃⁻のうち森林生態系内の窒素循環過程に取り込まれない成分である“uncontrollable”な流出が一定量存在すること、それらは集水域の水移動特性、窒素循環特性には影響されていなかったことが明らかになった。これらのデータをもとに今後、他集水域のデータと比較し、森林に流入した窒素の流出プロセスについてより理解を進めることができる。

研究成果の概要(英文)：In this study, we observed and discussed the influence of hydrological and nitrogen dynamics processes in the watershed on atmospheric and nitrified NO₃⁻ in four small forest watersheds. As a result, it was clarified that the amount of atmospheric NO₃⁻ exported does not change significantly even in a watershed where the hydrological processes during rainfall is different. Moreover, there was no clear relationship between the nitrogen accumulation in soil and the export from the watershed, and it was considered that the difference in nitrification rate in soil affected NO₃⁻ exported during rainfall. These results suggest that nitrogen dynamics in forest soil affects nitrogen export from the forest watershed, but NO₃⁻ export from surface runoff alone does not affect nitrogen accumulation in forest soil.

研究分野：森林水文学

キーワード：窒素流出 森林 大気降水物 安定同位体比

1. 研究開始当初の背景

森林生態系に流入する窒素化合物の主成分である NO_3^- は下流域の水域環境における富栄養化、温室効果ガス発生の主要原因物質であるが、森林生態系内の窒素循環過程と流入する NO_3^- 量との関係については十分に明らかにされていない。

これまで NO_3^- 負荷増加に対する森林生態系の応答として、まず NO_3^- 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って窒素飽和状態になり、 NO_3^- 流出量が増加すると考えられてきた(Aber *et al.*, 1998, BioScience)。しかし近年、窒素飽和に達していない森林生態系においても、大気降水物として流入した NO_3^- が植生に利用されることなく流出している可能性が報告されている(Curtis *et al.*, 2011, Ecosystems; Osaka *et al.*, 2016, Journal of Geophysical Research, 図1中の大気降水物由来の NO_3^- 流出)。これらの研究は、森林生態系が大気降水物としてもたらされた NO_3^- の全てを利用・蓄積できている訳ではないことを示しており、大気降水物由来 NO_3^- 流出量の大小によって実際に森林生態系に取り込まれる正味の NO_3^- 量が変化することを意味している。

また集水域の水文過程などの窒素循環過程以外の要因が、大気降水物由来 NO_3^- 流出を含む、 NO_3^- 流出過程に影響している可能性があることは、森林生態系からの窒素流出過程が窒素蓄積・循環過程に従属するものではなく、窒素流出過程もまた窒素蓄積・循環過程に影響していることを示唆している。つまり、大気降水物による森林生態系への NO_3^- 負荷増加が森林生態系からの NO_3^- 流出量に与える影響を予測するためには、従来のような集水域内の窒素循環過程が窒素流出に与える影響の解明だけでなく、同時に、大気降水物由来の NO_3^- 流出を含む NO_3^- 流出過程や、それが集水域の窒素蓄積・循環過程に与える影響についても明らかにすることが必要であると考えられるが、そのような研究はほとんどない。

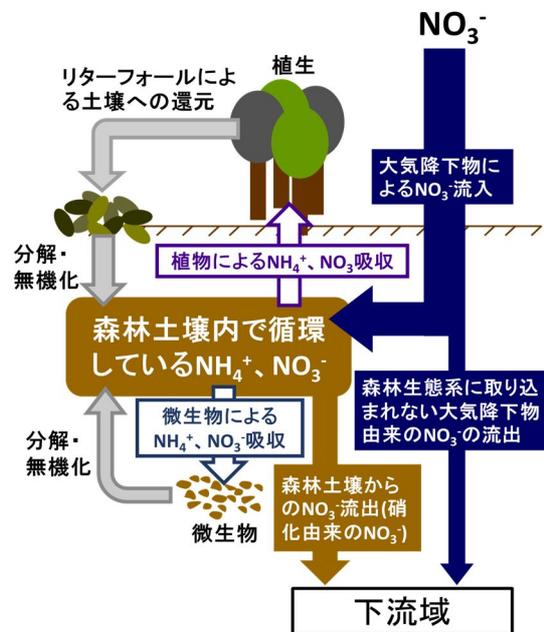


図1. 近年明らかになってきた森林の窒素循環過程と流入する窒素化合物の関係

2. 研究の目的

本申請では、森林生態系における大気降水物由来 NO_3^- 流出も含めた NO_3^- 流出過程と窒素蓄積・循環過程の関係を解明することを目的とし、土地利用履歴、窒素流入量履歴が同程度で、地形・水文学的特性が異なる4つの隣接した森林集水域で観測を行う。

3. 研究の方法

(1) 調査地

本研究は滋賀県南部の桐生水文試験地内の4つの小集水域(A, M, R, H流域)とそれらを含む1つの中集水域(K流域)で行なった。本4集水域は戦後に植林されるまではげ山で、それ以降の窒素流入量は同程度であると考えられるため、それぞれの集水域における NO_3^- 流出過程の違いが、集水域の窒素蓄積量や循環過程に表れていると想定される。また、4小集水域の水文過程は詳細に観測されており(Iwasaki *et al.*, 2015, Hydrological processes)、H流域は他の集水域と比べて降雨時には比較的滞留

時間の短い水が流出することが明らかになっている。そのため本4集水域において大気降水由来と硝化由来の NO_3^- 流出過程、窒素循環特性を明らかにし、それら相互関係を解明することで、大気降水由来の NO_3^- 流出も含めた NO_3^- 流出過程やそれと窒素蓄積・循環過程の関係を明らかにすることが可能となる。

(2) 平水時、降雨時における渓流水質調査

桐生水文試験地の5集水域(A, M, R, H, K流域)において2017年から2019年にかけて1-2ヶ月に一度の頻度で計23回の平水時調査を行い、渓流水中の硝酸イオン濃度と硝酸イオンの酸素安定同位体比の測定を行なった。また、A, M, R, H, K流域において降雨時に連続的な渓流水採取を2017年8月(139.2 mm)、9月(26.4 mm)、10月(251.5 mm)の計3回行った。また2016年に採取した99.6mm、97.4mmの降雨調査サンプル、2012年に採取した101.3、56.5mmの降雨調査サンプルの NO_3^- 濃度、硝酸イオンの酸素安定同位体比分析も行き、同時に解析を行なった。

(3) 土壌調査

2017年4月、7月、10月にそれぞれの集水域の5地点(A流域のみは3地点)の0-10、20-30cmの土壌を採取し、2mmの篩を通し絶乾した後、全窒素と全炭素の測定を行った。生土壌のKCl抽出溶液中の NH_4^+ 濃度と NO_3^- 濃度の測定を行い土壌中の NH_4^+ 、 NO_3^- 現存量を算出するとともに、2週間培養後の NH_4^+ 、 NO_3^- 現存量との差から無機化速度、硝化速度を算出した。

4. 研究成果

(1) 平水時における各集水域の NO_3^- 濃度と大気降水由来と硝化由来成分の NO_3^- 流出

桐生水文試験地のA, M, R, H, K流域流出水における NO_3^- 濃度の平均値(標準偏差)はそれぞれ0.44(0.10)、0.46(0.06)、0.18(0.07)、0.29(0.08)、0.27(0.05) mgN/Lであり、流域間で大きな違いがあることが明らかになった。A, M, R, H, K流域流出水における NO_3^- イオンの酸素安定同位体比の平均値(標準偏差)はそれぞれ、8.6(1.8)、6.4(1.9)、6.1(2.3)、18.3(4.9)、9.4(2.6)‰であった。これらのことから平水時に集水域から流出する NO_3^- 濃度はA, M>H, K>Rであり、流出する NO_3^- における大気降水由来成分の割合はH流域で高いことが明らかになった。このことは隣接している森林集水域においても流出 NO_3^- 中の大気降水由来 NO_3^- の割合が異なることを意味している。

(2) 降雨時における各集水域の NO_3^- 濃度と大気降水由来と硝化由来成分の NO_3^- 流出

一般的に降雨時における森林集水域からの物質の流出は集水域からの流出水量に応じて増加することから、図2に各集水域における1降雨での流出水量と大気降水由来 NO_3^- 流出量、硝化由来 NO_3^- 流出量、総 NO_3^- 流出量の関係を示す。なお大気降水由来 NO_3^- の流出量に関してはOsaka et al., (2016, Journal of Geophysical Research)と同様の手法で降雨時の硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}$ 値の時系列データから算出

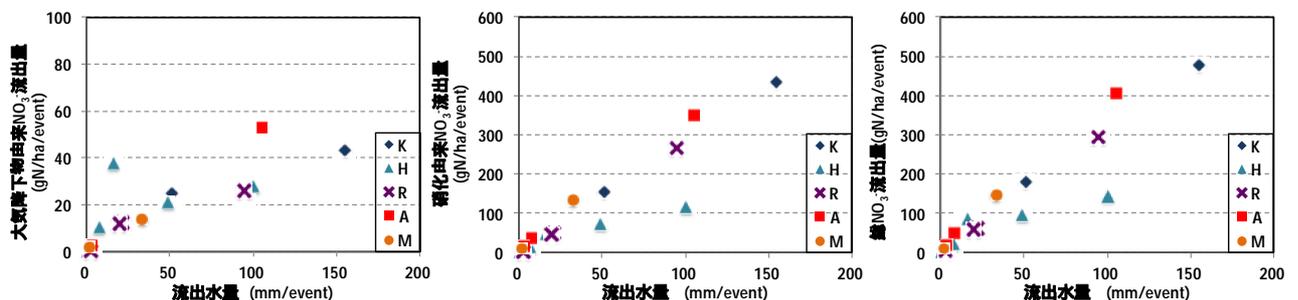


図2. 1降雨での流出水量と大気降水由来 NO_3^- 流出量、硝化由来 NO_3^- 流出量、総 NO_3^- 流出量の関係

した。降雨時においても平水時と同様に、H 流域では他流域と比べて渓流水中の硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}$ 値が高く流出する NO_3^- における大気降水由来 NO_3^- の割合が高かったが、降雨時は他の流域と比べて NO_3^- 濃度が低かったため、大気降水由来 NO_3^- 流出量としては他の流域と大差がなかった。一方で、流出水量と硝化由来 NO_3^- 流出量の関係は小規模降雨時の H 流域と H 流域以外では同様であったが、降雨の規模が大きくなると、H 流域では他の流域と比べて流量に対する硝化由来の NO_3^- 流出量が少なくなった。

前述の通り H 流域では降雨時に他の流域よりも滞留時間の短い水が流出しており、本研究でも、地質由来のイオン物質である Na^+ 濃度が H 流域のみで低かったことから(図 3)、H 流域は平水時も降雨時も他の流域と比較して相対的に滞留時間の短い水が流れていると考えられる。それにもかかわらず、降雨時の流出水量に対する大気降水由来 NO_3^- 流出量の関係は他の集水域と大きく変わらなかったことから、この程度の水文過程の違いは大気降水由来 NO_3^- 流出に大きく影響しないと考えられる。一方で大規模降雨時の H 流域で他の集水域よりも硝化由来 NO_3^- 流出量が少なかったことは、H 流域では降雨時の流出水ソースエリアの NO_3^- が枯渇しやすい状態にあることが示唆される。

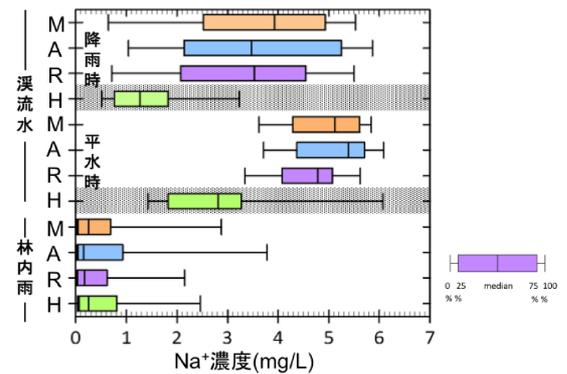


図 3. 各集水域の林内雨と渓流水の Na^+ 濃度

(3) 各集水域の土壌中の窒素動態

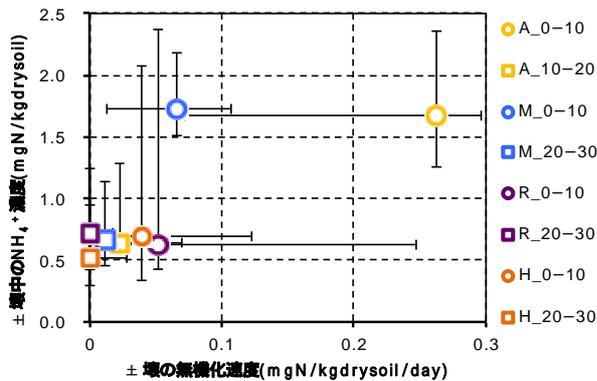


図 4. 各集水域における土壌中の無機化速度と NH_4^+ 濃度の中央値と四分位範囲

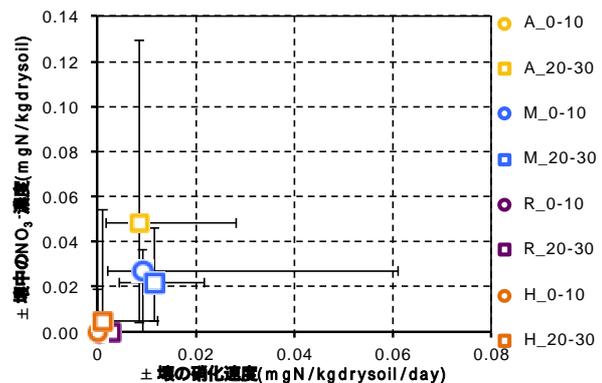


図 5. 各集水域における土壌中の硝化速度と NO_3^- 濃度の中央値と四分位範囲

図 4 に各集水域における土壌中の無機化速度と NH_4^+ 濃度の中央値と四分位範囲、図 5 に各集水域における土壌中の硝化速度と NO_3^- 濃度の中央値と四分位範囲を示す。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, Journal of Geophysical Research)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 倍程度存在し、滋賀県の他の森林流域(例えば Osaka et al., 2016, Journal of Geophysical Research)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 R 流域や H 流域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。M、A、R、H 流域の土壌の 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, *BioScience*)、本研究の結果はこれら既存の研究と一致する。

(4) 森林生態系における NO₃⁻流出過程と窒素蓄積・循環過程の関係

林内雨の窒素分析からは大気降水物として各集水域にもたらされる窒素量は同程度であることが明らかになった。一方で、降雨時における流量に対する総 NO₃⁻流出量、硝化由来 NO₃⁻流出量は M、A、R、K 流域では同程度であったが、H 流域では顕著に低かった。特に大規模な降雨になるほどその差が開くことから、大規模降雨では H 流域では土壌中の NO₃⁻現存量が枯渇して総 NO₃⁻流出量が少なくなる可能性が考えられる。一方で流量に対する大気降水物由来の NO₃⁻の流出量は M、A、R、H、K 流域で大きく変わらなかった。降雨時の水文過程は H 流域が他の流域と比べて比較滞留時間の短い水が流出することが考えられたが、これらの水移動経路の違いは大気降水物由来の NO₃⁻流出量とは関係ないことが明らかになった。

土壌中の総窒素蓄積量は A>R>H>M であり、これは H 流域の NO₃⁻流出量の少なさを説明できない。一方で各流域の土壌中の NO₃⁻濃度、生成速度は A=M>R=H であり、このことは特に大規模な降雨時において H 流域の総 NO₃⁻流出量が他の流域と比べて少なかったことが土壌中の NO₃⁻の枯渇が原因であることを支持している。しかし土壌中の土壌の蓄積量と総 NO₃⁻流出量の間に関係性が見出されなかったことから、本研究からは森林土壌中の窒素動態は森林流域からの窒素流出量に影響を与えるものの、窒素流出量は森林土壌中の窒素の蓄積には影響を与えないと考えられた。

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.
- 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.
- 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.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計12件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 5件）

1. 発表者名 勝山正則, 芳賀弘和, 福島慶太郎, 小田智基, 藤本将光, 尾坂兼一, 長野龍平
2. 発表標題 水の安定同位体比を用いた山地源流域における溪流水平平均滞留時間の決定機構の比較
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2018年大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 勝山 正則, 尾坂 兼一, 芳賀 弘和
2. 発表標題 高時間分解能水質観測データを用いた森林流域の渓流水硝酸イオン濃度変動の実態解明
3. 学会等名 水文水資源学会2018年度大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 勝山正則, 芳賀弘和, 福島慶太郎, 小田智基, 藤本将光, 尾坂兼一, 長野龍平, 江草智弘
2. 発表標題 山地源流域間の溪流水平平均滞留時間の相違を規定する要因
3. 学会等名 第130回日本森林学会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Katsuyama, M., Osaka, K., Haga, H
2. 発表標題 High-frequency monitoring of nitrate in ground- and streamwater reveals variant C-Q relationship in a forest catchment
3. 学会等名 AGU Fall Meeting (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Katsuyama M., Ohte N., Osaka K.
2. 発表標題 Long-term dynamics and future perspective of streamwater chemistry in forested headwater catchments
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Ohte N., Osaka K., Katsuyama M., Oda T., Mizugaki S.
2. 発表標題 Effects of extreme events on nitrogen export from forested ecosystems: a review
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 梶谷侑生, 尾坂兼一, 藤田健斗, 勝山正則, 中村高志, 西田継
2. 発表標題 森林渓流水中の硝酸イオン濃度に与える乾性沈着・湿性沈着の影響
3. 学会等名 日本地球惑星科学連合2017年大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 梶谷侑生, 尾坂兼一, 藤田健斗, 勝山正則, 中村高志, 西田継
2. 発表標題 森林集水域内部の窒素循環が渓流水質に与える影響の解明
3. 学会等名 日本水環境学会第52回大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 尾坂兼一, 肥田嘉文, 國松孝男, 大手信人
2. 発表標題 降雨時期と降雨規模が森林集水域からの懸濁態, 溶存窒素流出に与える影響 : 大規模降雨の増加が森林からの窒素流出に与える影響
3. 学会等名 日本陸水学会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Katsuyama, M., Haga, H., Fukushima, K., Oda, T., Fujimoto, M., Osaka, K., Nagano, R., Egusa, T
2. 発表標題 Comparison of hydrological control in streamwater residence time across headwater catchment
3. 学会等名 AGU Fall Meeting2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takaaki Ishibashi, Ken'ichi Osaka, Keisuke Koba, Takashi Nakamura, Kei Nishida
2. 発表標題 Isotopic study on seasonal nitrogen dynamics at Lake Biwa
3. 学会等名 JpGU-AGU Joint Meeting 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 石橋孝晃, 尾坂兼一, 木庭啓介, 中村高志, 西田継
2. 発表標題 窒素安定同位体比を用いた琵琶湖水における窒素循環構造の検討
3. 学会等名 日本陸水学会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----