

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 18 日現在

機関番号：82101
 研究種目：若手研究（B）
 研究期間：2010～2012
 課題番号：22780150
 研究課題名（和文） 森林窒素飽和が大気中へのNO発生増加に及ぼす影響の定量的評価法の開発
 研究課題名（英文） Measurement of the nitric oxide production potential in soils of nitrogen saturated forest.
 研究代表者
 渡邊 未来（WATANABE MIRAI）
 独立行政法人国立環境研究所・地域環境研究センター・主任研究員
 研究者番号：50455250

研究成果の概要（和文）：森林土壌からの一酸化窒素（NO）発生量の増加は、酸性雨やオゾンの増加を引き起こすため、森林生態系に悪影響を与える危険性がある。そこで本研究では、森林土壌の一酸化窒素（NO）生成ポテンシャルを測定する新たな方法を開発した。窒素飽和森林でNO生成ポテンシャルを測定した結果、森林土壌は大気中NOの発生源として高いポテンシャルを有していることが示唆された。また本法は、土壌から発生したNOや大気中NOの窒素安定同位体比の測定も容易にした。

研究成果の概要（英文）：Increase in nitric oxide (NO) emission from forest soils poses a risk of adverse effect on forest ecosystem, because it may cause increases in acid deposition and ozone production. In this study, to determine the NO production potential in forest soils, a new method was developed. NO production potential measured in nitrogen saturated forest suggested that forest soil had a high potential for an emission source of atmospheric NO. Additionally, this method facilitated the measurements of $\delta^{15}\text{N}$ of NO emitted from soils.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	800,000	240,000	1,040,000
2011年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	2,700,000	810,000	3,510,000

研究分野：農学

科研費の分科・細目：森林学・森林科学

キーワード：窒素飽和・森林土壌・一酸化窒素・窒素安定同位体比

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

1. 研究開始当初の背景

窒素飽和とは、水源となる森林が窒素過剰状態に陥り、溪流への窒素流出量が増大する問題である。通常、森林生態系は窒素不足な状態にある。しかし、人為起源の窒素化合物であるアンモニアや硝酸が大量かつ慢性的に負荷されてきた森林では、生態系で消費しきれなかった窒素が、渓流水に硝酸イオン (NO_3^-) として多量に流出する。 NO_3^- 流出量の増大は、水源水質の劣化や湖沼の富栄養化といった様々な問題を引き起こす可能性がある。欧米では1980年代以降、広い範囲で窒素飽和が報告されている。わが国でも大都市周縁の森林地では、既に渓流水中の NO_3^- 濃度が高いことから、窒素飽和が顕在化しつつある。しかし日本の窒素飽和研究は、現状評価や原因解明に留まっており、生態系影響や対策手法については進んでいない。今後、経済発展の著しいアジア地域を中心に、窒素飽和現象およびそれに伴う問題が拡大すると予想されることから、早急にこれらの研究を開始する必要がある。

窒素飽和状態にある森林では、高い窒素負荷により土壌からの一酸化窒素ガス (NO ガス) 発生量も増大することが指摘されている。しかし、窒素飽和と NO ガス発生との関係性を評価した研究例は、日本のみならず世界的にも少ない。土壌から発生した NO は、大気中で NO_2 へと酸化される。 NO_2 は、さらに酸化されて HNO_3 になったり、光化学反応によってオゾンが発生源となる。したがって NO 発生量の増大は、酸性雨とオゾンという二つの経路を通じて、森林生態系に悪影響を及ぼす危険性がある。ゆえに、森林土壌からの NO 発生量を把握することは、これら問題を理解する上でも重要である。にもかかわらず、 NO 発生量を実測した研究例が非常に限られているのは、測定法に問題があるためと考えられる。

通常、土壌から発生した NO は、速やかに NO_2 へと酸化されて土壌に吸収される。そのため NO 発生量の測定には、 NO 濃度の連続モニタリングが必要となる。これまではチャンバー法が広く使われているが、この方法では ppb レベルの NO 濃度を測定できる高感度 NO_x 計が必要である。しかし高感度 NO_x 計は200万円前後の高価な装置であるため普及は難しい。さらに、 NO_x 計は固定電源を必要とするため、野外での多点観測には向いていないという欠点がある。以上のことより、土壌からの NO 発生量を低コストかつ野外で測定できる手法の開発が求められている。

2. 研究の目的

本研究は、窒素飽和の影響評価に取り組むものであり、その大きな目的は、窒素飽和が大気中への NO 発生増加に及ぼす影響を定量的に評価することである。そのためにまず、森林土壌の NO 生成ポテンシャルを低コストで正確に計測する手法を開発した。また、窒素飽和状態にある森林土壌を対象に NO 生成ポテンシャルを実測し、硝化活性との関係を調べた。さらに、大気中の NO_x 濃度に対する土壌発生 NO の寄与を簡便に評価する方法を開発するため、土壌から発生した NO の窒素安定同位体比の測定も行った。

3. 研究の方法

森林土壌の NO 生成ポテンシャルの測定法を図1に示す。測定装置は、既に開発した NO_x 濃度測定-清浄空気供給装置 (Watanabeら, 2008) を改良して作成した。森林土壌は採取後、4 mm 目の篩を通し、最大容水量の60%水分量に調整して5日間前培養し、微生物活性を安定させた。湿重量で100gの前培養土壌を1Lのガラス瓶に充填し、密閉した状態で、容器内の空気を NO 捕集フィルター (捕集試薬は PTIO と TEA) に通しながら、0.5 L/min の流速で循環させ、これを25°C暗所で24時間培養した (図1)。フィルター捕集した NO は、 NO_2^- と NO_3^- として水抽出し、 PTIO を除去した後、イオンクロマトグラフィーで定量した。フィルターを通過した NO を定量的に捕集して回収できることは、室内実験で確認した。また、容器内の空気の滞留時間を2分未満と短くすることで、発生した NO が NO_2 に酸化されたり、土壌に吸収される前に捕集できる構造にした。

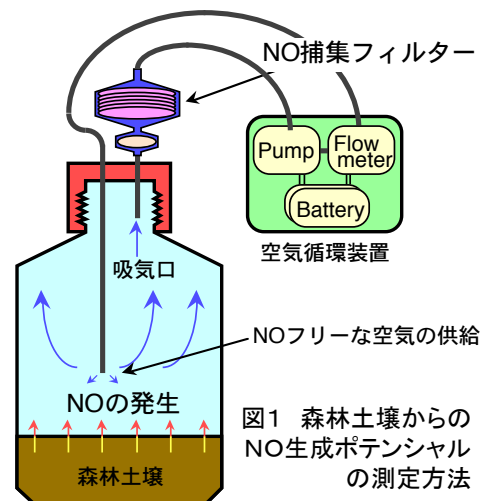


図1 森林土壌からの NO 生成ポテンシャルの測定方法

実際のNO生成ポテンシャルの測定には、茨城県筑波山の2箇所のスギ林分の各3地点からHF層とA層(0-5 cm)をそれぞれ採取して使用した。筑波山森林が窒素飽和状態にあることは、採取地点を含む67.5 haの森林集水域において、無機態窒素の流出量が負荷量を上回ってこということで確認した。無機態窒素の流出量は、集水域出口の渓流水を4回の降雨流出イベント期間に測定し、NO₃⁻流出量(L)と流出水量(Q)の関係式(L-Q式)を求め、この式と10分間隔で1年間観測した流出水量を用いて算出した。無機態窒素の負荷量は、ヒノキ林、スギ林、広葉樹林の林内雨を測定してNO₃⁻とNH₄⁺の負荷量を求め、これに航空写真を用いた画像解析により求めた各樹種の森林面積を乗じて算出した。2010年5月~2011年4月の1年間における、無機態窒素の流出量(21 kg N/ha/yr)は、負荷量(16 kg N/ha/yr)を上回っており、筑波山森林は真の窒素飽和と呼ばれる状況であった。また、現在と1980年代の水質データを比較した結果、林外雨の無機態窒素濃度は漸減していたが、平水時の渓流水中NO₃⁻濃度は上昇していた。そのため筑波山森林は、1980年代より窒素飽和状態が持続していると考えられた。

筑波山スギ林のHF層とA層は正味の硝化速度も測定した。NO生成ポテンシャルの測定時に、同じ前培養土壌をポリ袋に入れ、25℃暗所で好氣的に7日間培養した。培養前後の土壌を水抽出し、抽出液中のNO₃⁻濃度をイオンクロマトグラフィーで測定し、土壌中NO₃⁻濃度の増加量から正味の硝化速度を算出した。

土壌から発生したNOの窒素安定同位体比($\delta^{15}\text{N}$)の測定は、NO生成ポテンシャル測定用の抽出液を用いて、脱窒菌法により行った。抽出液中のNO₂⁻とNO₃⁻を脱窒菌(*P. chlorophis*)を用いてN₂Oガスに変換し、コールドトラップとGCを使って分離精製後、安定同位体比質量分析計に導入して $\delta^{15}\text{N}$ を測定した。 $\delta^{15}\text{N}$ は大気窒素ガスを基準として求めた。なお、抽出液中にわずかに残存したPTIOが、脱窒菌に悪影響を及ぼすことを避けるため、N₂Oガスを質量分析計に導入するための前処理ラインを微量分析仕様に改変したものを使用した。

4. 研究成果

NO生成ポテンシャルの測定条件として、流速や土壌充填量を複数検討した結果、方法で述べた条件が測定値の安定性と土壌の取り扱いの観点から最適と判断した。本法は、土壌から発生したNOをフィルター捕集し

てイオンクロマトグラフィーで測定するが、NOの日平均濃度で1 ppbvを測定できるため、測定精度は高感度NO_x計と同等といえる。装置自体は20万円以下で作成できたが、分析にはイオンクロマトグラフィーの使用が便利であり、一概に安価な方法とは言えない。また、PTIO試薬が1gあたり6千円~1万円と高価であるため、1回測定のランニングコストが2千円程掛かった。しかし、本装置はバッテリー稼働式であるため、ガラス瓶の底を抜いて土壌に差し込む改良を行うことで、野外観測もできるという利点を有している。

窒素飽和状態が持続している筑波山のスギ林土壌におけるNO生成ポテンシャルは、0.07~0.52 mg N/kg-d soil day⁻¹であった(図2)。これはNO捕集フィルターに通した空気中の平均NO濃度に換算すると6~39 ppbvであった。筑波山の大气中NO_x濃度が5 ppbv程度であることを考えると、森林土壌は大气中NO_xの発生源として高いポテンシャルを有していることが示唆された。また、HF層のNO生成ポテンシャルは、A層より高い傾向であった。図2に示す通り、土壌のNO生成ポテンシャルは、正味の硝化速度と正の相関があった($r=0.802$, $p<0.01$)。この結果は、土壌中のNOが主に硝化プロセスで生成されていることを示唆している。

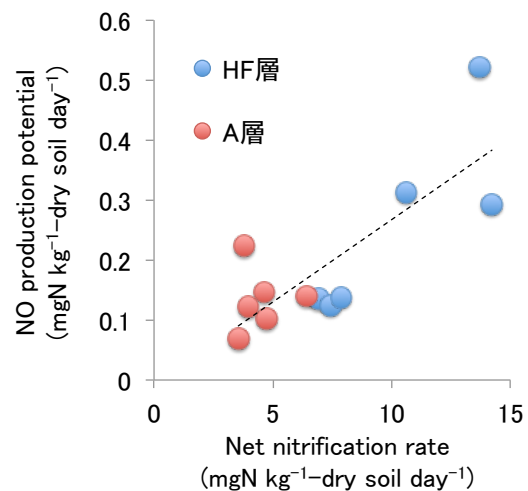


図2 筑波山土壌の正味の硝化速度とNO生成ポテンシャルの関係

筑波山のスギ林土壌から発生したNOの $\delta^{15}\text{N}$ は、-31.8‰から-39.9‰の範囲にあり、HF層の方がA層より低い傾向であった(図3)。図3に示す通り、NO生成ポテンシャルが高いほど、NOの $\delta^{15}\text{N}$ が低くなる傾向であったが、有意な相関関係はなかった($r=-0.393$, $p>0.1$)。

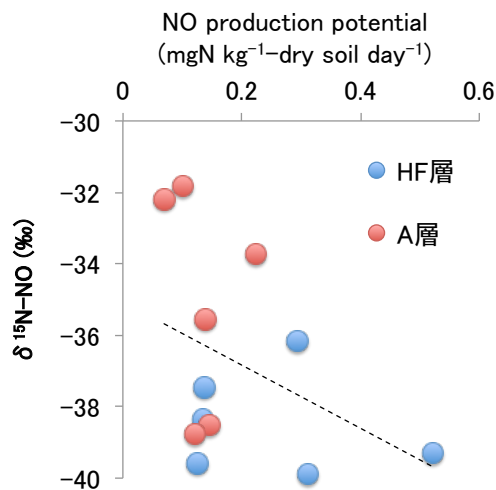


図3 筑波山土壌のNO生成ポテンシャルと $\delta^{15}\text{N-NO}$ の関係

近年、土壌から発生するNO（またはNO_x）の $\delta^{15}\text{N}$ は、自動車排ガスや工場排煙など都市活動に伴って発生するNO_xの $\delta^{15}\text{N}$ とは大きく異なることが明らかになってきた。前者は-4.9‰から-2.0‰、後者は-1.3‰より高い値が報告されている。本研究でも、土壌から発生するNOの $\delta^{15}\text{N}$ が低いことを確認できた。ここで、森林大気中のNO_xは土壌由来NO_xと都市由来NO_xの混合によってできていると仮定すれば、今後、森林大気中のNO_x、土壌から発生したNO_x、都市大気中のNO_xの $\delta^{15}\text{N}$ を測定することで、森林大気中のNO_xに対する土壌由来NO_xの寄与を、幅はあるにしても算出できると考えられる。

5. 主な発表論文等

（研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線）

〔雑誌論文〕（計2件）

(1) YuHua KONG, Mirai WATANABE, Hirohiko NAGANO, Keiji WATANABE, Miwa YASHIMA, Kazuyuki INUBUSHI: Effects of land-use type and N addition on nitrous oxide and carbon dioxide production potentials in Japanese Andosols. *Soil Science and Plant Nutrition*, in press.

(2) 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: 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*, 査読有り, 73 (1), 2012, 1-16.

〔学会発表〕（計5件）

(1) 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: 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, 2013年3月26日, 岩手県盛岡市.

(2) 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: 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, 2012年09月15日, 愛知県名古屋市.

(3) 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, 富岡典子, 篠原隆一郎: 筑波山における植生及び地形要因と渓流水中NO₃-N濃度との関係. 日本陸水学会第76回大会, 2011年9月25日, 島根県松江市.

(4) 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: 筑波山の渓流水中NO₃-濃度は25年間で上昇したか? 日本陸水学会第76回大会, 2011年9月25日, 島根県松江市.

(5) 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: 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, 2010年9月19日, 青森県弘前市.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

渡邊 未来 (WATANABE MIRAI)

独立行政法人国立環境研究所・地域環境研究センター・主任研究員

研究者番号: 50455250