

学位論文題名

森林表層土壌における窒素の動態に伴う  
酸の生成および消費の解析

学位論文内容の要旨

酸性降下物の森林生態系への影響が世界各地で顕在化し、その対策のために、汚染物質の負荷に対する森林の許容範囲を知ることが重要な課題となり、いわゆる臨界負荷量を求める研究が進められてきた。その過程で、生態系外部からの酸の影響ばかりでなく、生態系内部で生成されたり消費されたりする酸のバランスが重要であるとの見解が提示された。生態系内部における酸の生成、消費には、塩基および窒素の動態が深く関わっており、生態系における酸、塩基、窒素の循環過程を把握することが重要である。とくに窒素の動態は、アンモニア化成を通して酸を消費し、硝酸化成を通して酸を生成するとともに、植物吸収を促進し、溶脱に大きな影響を与える。本研究は、森林表層土壌中での窒素の動態に伴う酸の生成と消費の関係を解析することを目的に行った。

1) 植物による形態別窒素吸収の土壌の酸性化への影響

無機栄養説に従えば、植物による窒素吸収は、 $\text{NH}_4^+$ 吸収と  $\text{NO}_3^-$ 吸収により行われる。植物が  $\text{NH}_4^+$ を吸収する場合は植物から酸が当量放出され、一方  $\text{NO}_3^-$ を吸収する場合植物は当量の酸を吸収する。したがって、いずれの形態で窒素吸収がおこるかは土壌の酸性化を左右する重要な課題であった。本研究では、苫小牧の広葉樹林 (Df) および針葉樹林 (Cf) において、植物の吸収がない区から、植物吸収のある区の正味のフラックスを差し引き、直接形態別窒素吸収を求めた。全窒素吸収量において、樹木の生長量から求めた推定値と本研究での推定値はよく一致した。 $\text{NO}_3^-$ による吸収が全窒素吸収量の Df で 96%、Cf で 97%を占めた。これまで土壌溶液の  $\text{NH}_4^+$ と  $\text{NO}_3^-$ 濃度比から形態別窒素吸収量を求める方法が提示されていたが、その方法では  $\text{NO}_3^-$ による吸収は Df で 56%、Cf で 57%であり、大きな差があった。

2) 森林表層土壌における年間の酸収支

Df および Cf の表層土壌 (0 層および A 層) での年間の  $\text{H}^+$ 収支を算出した。アンモニア化成、カチオン放出、弱酸の解離等の反応に伴う  $\text{H}^+$ フラックスは、植物吸収のない層での正味のイオンフラックスから求め、植物吸収に伴う  $\text{H}^+$ フラックスは 1) で示したイオンフラックスから求めた。硝酸化成に伴う  $\text{H}^+$ フラックスは、硝酸化成によって生成した  $\text{H}^+$ とイオン交換して放出したであろうカチオンのフラックスから求めた。全  $\text{H}^+$ ソースは Df および Cf でそれぞれ 13.1 および 11.5  $\text{kmol} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{y}^{-1}$ であった。両サイトとも林内雨および樹幹流から 0 層への  $\text{H}^+$ の流入はわずかで、内部  $\text{H}^+$ ソースが全  $\text{H}^+$ ソースの 99%~98%を占めた。主要な  $\text{H}^+$ ソースは植物による塩基性カチオンの吸収 (Df で 47%、Cf で 45%) と硝酸化成 (41%と 40%) であり、主要な  $\text{H}^+$ シンクは塩基性カチオンの風化およびイオン交換 (42%と 44%) と植物による  $\text{NO}_3^-$ 吸

収 (38%と40%) であった。表層土壌からのH<sup>+</sup>流出は無視しうるものであった。硝酸化成には、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 1 mol に対してH<sup>+</sup>が2 mol 生成するNH<sub>4</sub><sup>+</sup>起源の硝酸化成と、NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 1 mol に対してH<sup>+</sup>が1 mol 生成する有機態窒素起源の硝酸化成があるが、Df、Cfともに、有機態窒素を起源とするものであった。硝酸化成によって生成したH<sup>+</sup>は植物のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>吸収によって消費され、植物の塩基吸収によって生成したH<sup>+</sup>は土壌からの塩基放出によって消費されていた。

### 3) 表層土壌における硝酸化成の特徴

現状ではNH<sub>4</sub><sup>+</sup>降下は2.2 kg N ha<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup>と少ないが、今後増加が予想されるNH<sub>4</sub><sup>+</sup>降下の各種森林土壌への影響を明らかにすることは重要であるので、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>添加の室内実験を行った。

① 硝酸化成に及ぼす土壌の理化学性の影響： H<sup>+</sup>ソースとしての硝酸化成の土壌間差を比較するために、母材と植生（広葉樹、針葉樹）が異なる森林のA層土壌11点と隣接する畑土壌3点を供試して、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>添加を3段階（0、5.3、15.9 mg NL<sup>-1</sup>）にした無機栄養液を散水する6週間の洗浄培養実験を行った。NH<sub>4</sub><sup>+</sup>無添加では硝酸化成は著しく抑えられ、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>添加により促進したが、Ca<sup>2+</sup>飽和度10%未満の供試土4点（針葉樹林3点、広葉樹林1点）では、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を添加しても硝酸化成が起きなかった。硝酸生成量は一般に針葉樹林より広葉樹林で大きく、Ca含量の少ない頁岩および蛇紋岩を母材とするサンプルで硝酸化成能は低かった。H<sup>+</sup>放出量からみた硝酸化成の特徴として、外部から添加されたNH<sub>4</sub><sup>+</sup>を基質とする硝酸化成が主体であることが明らかになった。

② 硝酸化成に及ぼすミミズの影響： NH<sub>4</sub><sup>+</sup>降下の条件下でミミズが森林土壌の硝酸化成および硝酸化成によるH<sup>+</sup>放出に及ぼす影響を検討するため、広葉樹林地のA層土壌5点を供試し、ミミズ入りと対照の土壌カラムにNH<sub>4</sub><sup>+</sup>を含む無機栄養液を散水する6週間の洗浄培養実験を行った。硝酸生成量はミミズ添加によって60~123%増加したが、硝酸化成によって生成したH<sup>+</sup>量はそれほど増加しなかった（-17~71%増加）。H<sup>+</sup>放出量からみた硝酸化成の特徴として、ミミズ添加の方が有機態窒素を起源とする硝酸化成の割合が大きくなったが、これは窒素化合物がミミズの体内を通過することで易分解性となり、それを基質とした硝酸化成が起こったと思われる。

③ 硝酸化成をコントロールする化学的要因： 重回帰分析の結果、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>を基質とする硝酸化成ではpH（KCl）が高いほど、交換性Ca<sup>2+</sup>が多いほど促進されることがわかった。有機態窒素を起源とする硝酸化成は、これとは異なる要因でコントロールされていると考えられる。

### 4) 森林表層土壌におけるカチオン放出の特徴

硝酸化成等によって生成された土壌中の酸はイオン交換、風化などで消費される。その土壌間差を比較するために、8点の土壌カラム（広葉樹林6点、針葉樹林2点）に1週間に一度pH 3.3の希塩酸を45.3 mm 散水して1年間続ける室内洗浄実験を行った。この添加量は、現在のNH<sub>4</sub><sup>+</sup>負荷によって生じるH<sup>+</sup>および流入するH<sup>+</sup>の80倍である。得られた浸透液のpHは経過時間とともに緩やかに低下し、土壌の交換性塩基は大きく減少した。酸性褐色森林土および灰色台地土を除いて、Ca<sup>2+</sup>が主要な放出塩基であった。塩基放出の少ない酸性褐色森林土および灰色台地土からは早い時期からAlが溶出し続けた。火山放出物未熟土、褐色低地土および淡色黒ボク土における塩基放出能は高く、酸性褐色森林土および灰色台地土における塩基放出能は低かった。塩基放出の内訳をみると、塩溶出は1~21%とわずかで、イオン交換が52~144%を占め、風化は44~47%であった。塩基放出能は土壌の塩基飽和度および交換性Ca<sup>2+</sup>とそれぞれ正の対数関数の関係があった。したがって、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>降下によって高い硝酸化成能を示す土壌は塩基放出能も高いと考えられる。

## 5) まとめ

有機態窒素を起源とする硝酸化成で生成した  $\text{NO}_3^-$  をすべて植物吸収する森林では、生成した  $\text{H}^+$  はすべて消費されて土壤の酸性化が起きない。しかし  $\text{NH}_4^+$  が降下された場合、硝酸化成が起きる土壤では、その硝酸化成は  $\text{NH}_4^+$  を基質としたもの、すなわち 1 mol の  $\text{NO}_3^-$  に対し 2 mol のが生成する硝酸化成が主体となり、植物による  $\text{NO}_3^-$  吸収があっても  $\text{H}^+$  が土壤に残って塩基溶脱を促す。ミミズは有機態窒素起源の硝酸化成の割合を高め、酸性化防止に貢献している。硝酸化成が起きない森林では  $\text{NH}_4^+$  降下による硝酸化成の影響がないが、これらは pH が低く交換性  $\text{Ca}^{2+}$  が少ない酸性土壤であるから、 $\text{NH}_4^+$  降下によりわずかでも  $\text{NH}_4^+$  吸収が増加すると、それに伴う  $\text{H}^+$  による塩基溶脱、さらに Al 溶出によって土壤劣化につながるおそれがある。したがって、 $\text{NH}_4^+$  降下は森林土壤の酸性化にとって重大な問題であり、今後増加が予想される  $\text{NH}_3$  放出に対する規制が強く望まれる。

# 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 波多野 隆 介  
副 査 教 授 山 口 淳 一  
副 査 教 授 長谷川 周 一  
副 査 教 授 大 崎 満

学 位 論 文 題 名

## 森林表層土壌における窒素の動態に伴う 酸の生成および消費の解析

本論文は7章からなり、図24、表22、引用文献133を含む総頁数117の和文論文である。別に参考論文5編が添えられている。

酸性降下物の森林生態系への影響が世界各地で顕在化し、その対策のために、汚染物質の負荷に対する森林の許容範囲を知ることが重要な課題となり、いわゆる臨界負荷量を求める研究が進められてきた。その過程で、生態系外部からの酸の影響ばかりでなく、生態系内部で生成されたり消費されたりする酸のバランスが重要であるとの見解が提示された。生態系内部において窒素の動態は、形態の変換および植物吸収によって酸を生成、消費し、溶脱に大きな影響を与える。本研究は、森林表層土壌中での窒素の動態に伴う酸の生成と消費の関係を解析することを目的に行った。

本研究では、①植物による窒素の吸収形態を明らかにし、森林表層土壌における年間の酸の収支を算出する；②さまざまな森林表層土壌にアンモニウムを添加し、硝酸化成による酸生成の土壌間差を比較する；③さまざまな森林表層土壌を希塩酸で洗浄し、酸消費に伴う塩基放出の土壌間差を比較することを目的にして行い、以下の結果を得た。

### 1) 植物による形態別窒素吸収の土壌の酸性化への影響および酸の収支

苫小牧の広葉樹林、針葉樹林では、全窒素吸収量のそれぞれ96%、97%が硝酸態窒素により生じていた。土壌内部での酸生成は、有効化した全酸のそれぞれ99%、98%を占めた。主要な酸生成は植物による塩基性カチオンの吸収（広葉樹47%、針葉樹45%）と硝酸化成（広葉樹41%、針葉樹40%）であり、主要な酸消費は塩基性カチオンの風化およびイオン交換（広葉樹42%、針葉樹44%）と植物による硝酸吸収（広葉樹38%、針葉樹40%）であった。表層土壌からの酸の流出は無視しうるものであった。硝酸化成にはアンモニウムイオン由来 ( $\text{NH}_4^+ + 2\text{O}_2 = 2\text{H}^+ + \text{NO}_3^- + \text{H}_2\text{O}$ ) および有機物由来 ( $\text{R-NH}_2$ )

+ 2O<sub>2</sub> = H<sup>+</sup> + NO<sub>3</sub><sup>-</sup> + R-OH) があるが、広葉樹、針葉樹ともに有機物由来の硝酸化成であった。硝酸化成によって生成した酸は植物の硝酸吸収によって消費され、植物の塩基吸収によって生成した酸は土壌からの塩基放出によって消費されていた。

## 2) 硝酸化成に及ぼす土壌の理化学性およびミミズの影響

アンモニウム無添加で硝酸化成は著しく抑えられ、アンモニウム添加により促進したが、カルシウム飽和度 10%未満の土壌では、アンモニウムを添加しても硝酸化成が起きなかった。硝酸生成量は一般に針葉樹林より広葉樹林で大きかった。アンモニウム由来の硝酸化成量と酸生成量の比は 1 : 2 となり、アンモニウム負荷は土壌の酸性化を助長することが明瞭に示された。重回帰分析の結果、アンモニウムを基質とする硝酸化成は pH (KCl) が高いほど、交換性 Ca<sup>2+</sup>が多いほど促進されることを認めた。

ミミズの存在によりアンモニウム添加の硝酸化成量は 60~123%増加したが、酸の増加は-17~71%にとどまった。酸放出量からみた硝酸化成の特徴として、ミミズ添加の方が有機態窒素を起源とする硝酸化成の割合が大きくなった。

## 3) 森林表層土壌におけるカチオン放出の特徴

酸の消費に伴い放出され溶脱する主要な塩基はカルシウムであった。酸の添加が進行するにつれ、放出、溶脱する塩基量は徐々に低下し、アルミニウムが溶出した。交換性塩基量の少ない酸性土壌では早い段階からアルミニウムが溶出した。塩基放出の内訳をみると、塩溶出は 1~21%とわずかで、イオン交換が 52~144%を占め、風化は-44~47%であった。注入した酸に対する塩基放出量の比は土壌の交換性カルシウムと正の対数関数の関係が認められた。

以上から、大気降下アンモニウムは、交換性カルシウムが多い森林土壌では硝酸化成され、交換性カルシウムが少ない土壌ではアンモニウム吸収が増加し、それらによって生成する酸によって土壌の酸性化が進む。交換性カルシウムに乏しい土壌では早い段階でアルミニウムが溶出し、森林の衰退を招くと思われる。したがって、アンモニウム降下は森林の酸性化にとってきわめて重大であることが明らかになった。

以上のように本研究は、窒素の動態が森林土壌の酸性化に大きな影響を与えており、とくに大気からのアンモニウム降下が問題を引き起こすことを示したものであり、その成果は学術的に高く評価される。よって審査員一同は、切替眞智子は博士(農学)の学位をうけるのに十分な資格を有するものと認めた。