京大演報68 '96 25～42

森林の成立過程における水質形成機構の変化
－植生の発達段階の異なる流域における水質・水文観測－

浅野 友子・大手 信人・小橋 澄治

Changes of hydrochemical processes along forest succession
—Catchment observation on the three different successional stages—

Yuko ASANO, Nobuhito OHTE and Sumiji KOBASHI

要　　旨

森林の成立，遷移過程において水質形成機構がどのように変化するかを明らかにすることを目的として，同じ基岩上に成立する，植生の発達段階の異なる3つの流域において水質水文観測を行った。3流域について，水質形成に影響する生物化学的要因と地球化学的要因の相違とそれらの相互作用の違いに着目し，各流域の主要な水文素過程ごとに溶存物質の濃度変動を考察した。その結果以下の知見を得た。森林流域では，裸地流域とは異なる風化過程が存在することが見いだされ，その相違の原因が森林が成立する土壌中に卓越するNO_3^-等の生成に伴うH^+であることが示唆された。発達した土壌中で土壌水に溶解して風化反応物として働くCO_2は，僅かに植生が侵入している裸地流域でも森林流域に近い濃度で存在し，上記の裸地－森林流域間の風化過程の相異は，CO_2条件によって生じているのではないことがわかった。生物化学的要因と，地球化学的要因は森林の発達につれて水質への影響の仕方が変化すること，成熟した森林に達するまでの過程において各要因の変化の速さは異なることが示唆された。

1　はじめに

森林流域は，植生と植生基盤としての土壌から成り立っている。流域内の水循環の過程において，森林流域は雨水から渓流水までの水質変換の場とみることができ，そうした観点からの水質水文観測がなされている[1]。一方，流域を森林生態系としてみると，水は物質循環の媒体として重要な働きをしており，生態系における物質の循環過程を明らかにする上で土壌と植生を一つのつながりとしてとらえ，流域レベルでの物質の移動に伴う水質の変化の過程を明らかにすることは重要な意味を持つ[2]。また，近年酸性雨による土壌酸性化，渓流水の酸性化などが問題となっており，森林の水質浄化作用といわれる働きのメカニズムを解明することの重要性が高まっている[3][4]。酸性雨に対する土壌の緩衝機能を評価するとき，実際の時間スケール，流域スケールでの観測が重要となっており，長期的には基岩の化学的風化によって起こる緩衝能の回復過程を十分に考慮する必要がある[5][6]。

こうしたことから近年，森林小流域内での水移動に伴う水質形成過程を解明しようとする研究が行われてきた[5][7][8][9][10]。流域における水質形成過程には図－1のように様々な要因が関与しあっ

ている。これまでの研究結果より，水質形成に影響を与える主要因は，主に次の二つに集約されていると考えられる。一つは，植物－土壌系の生態系内部物質循環系における反応に起因する生物化学的要因であり，もう一つは，地殻構成鉱物の化学的風化過程における反応に起因する地球化学的要因である。

ここで，地球化学的要因となる化学的風化過程の一般的なものとして，斜長石の風化の例を以下に挙げる。

$2Na_{0.5}Ca_{0.5}Al_{1.5}Si_{2.5}O_8+3CO_2+4.5H_2O \rightleftarrows$

斜長石＋二酸化炭素＋水

$1.5Al_2Si_2O_5(OH)_4+Na^++Ca^{2+}+$

カオリナイト（二次鉱物）＋カチオン＋

$3HCO_3^-+2SiO_2$……（1）

重炭酸イオン＋ケイ酸

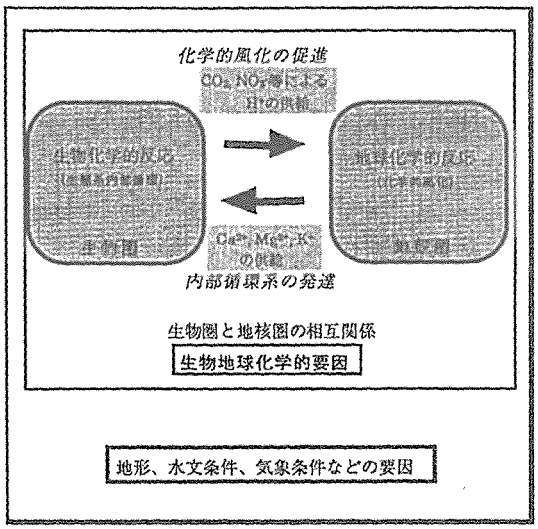

図1 森林流域における水質形成の概念モデル

化学的風化には様々な反応過程があるが，CO_2は量的に最も重要な影響力を持つ風化剤であるといわれている[11]。CO_2は生物の呼吸に起因し，水に溶解，解離して，以下のようになる。

$CO_2+H_2O=HCO_3^-+H^+$……（2）

この反応過程でできたH^+は，基岩鉱物の構造を破壊して，SiO_2やNa^+，Ca^{2+}等のカチオンを溶出させ，風化を促進させる[12]。また表層土壌においては，生物活動に起因する有機物の分解によってNO_3^-等が供給され，それらに由来するH^+によっても化学的風化は促進される[13]。すなわち図－1に示すように，生物化学的反応によって生成されたCO_2や酸性物質は化学的風化を促進し，化学的風化過程において溶出してきたカチオンは植物の栄養分として供給され生態系内部循環を発達させるというように，これら2つの要因は互いに影響を及ぼしあいながら変化していく。森林流域において様々な水文過程を通過する水は，各過程においてこうした化学的要素の影響を受けて水質を形成している。

本研究では，特に生物化学的反応が地球化学的反応に及ぼす影響，すなわち森林生態系を形成している生物の活動に起因する化学物質や反応が，化学的風化過程に及ぼす影響を明らかにするために，植生状態の異なる3流域において水質水文観測を行った。本研究では発達段階のことなる森林流域の水質形成を比較することにより，上記2つの要因がどのように発達，変化してゆくかについて考察する。

2 方　　法

2．1 試験地の概要

試験地は図－2に示すとおり，滋賀県南部田上山地に位置し，同じ風化花崗岩からなる基岩上にある3つの小流域である。これらの流域は近接しており，気温・降水量などの気候条件ほとんど変わらない。その中でも特に若女・桐生マツ沢の2試験地は，ほぼ類似した水収支を持つことが報告されている[14]。桐生マツ沢試験地は北緯34° 58′，東経136° 00′に位置しており，年平均気温は12.6℃である[15]。

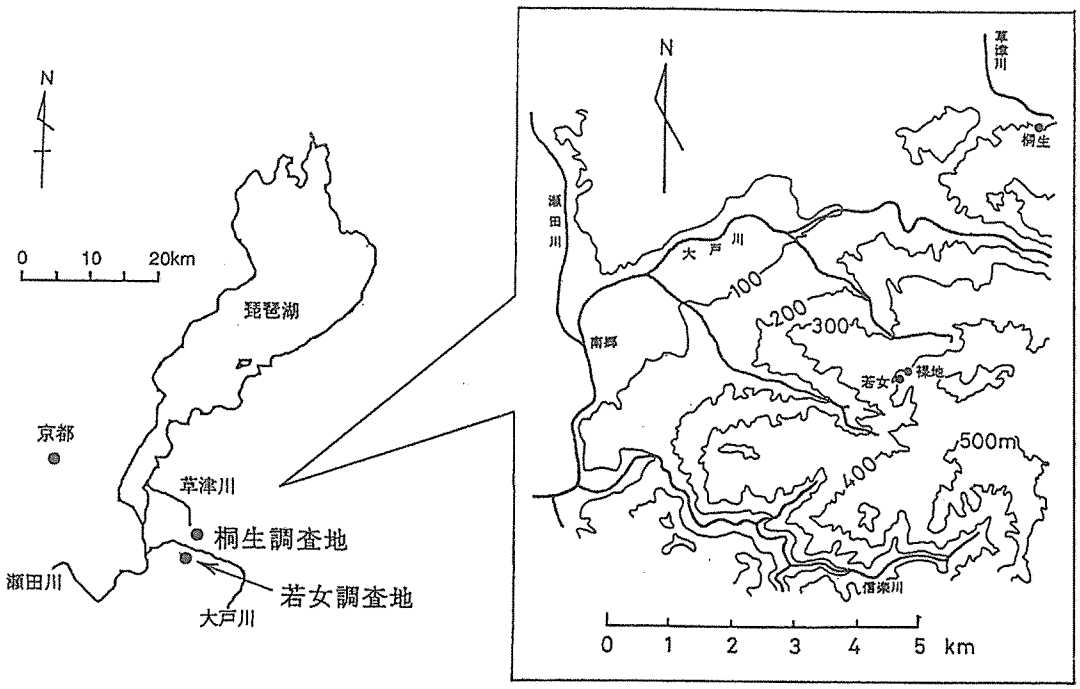

図2 桐生マツ沢，若女及び裸地谷試験地の位置

表1 対象試験地の諸元

	桐生マツ沢	若　女	裸 地 谷
面積	0.68ha	0.70ha（全体2.89ha）	0.18ha
斜面勾配（平均斜度）	ゆるやか（20.3°）	比較的ゆるやか（26.7°）	急斜面（34.1°）
植生	アカマツ，ヒノキ混合林。100年前より砂防植栽開始。比較的発達した森林。	アカマツ，ヒノキ，ヒメコマツ混合林。60年前より砂防植栽開始。	斜面下部谷沿いにアカマツ，ヒノキが侵入。ほとんどは裸地。
基岩鉱物	風化花崗岩	風化花崗岩	風化花崗岩
土層厚	最も厚い。土壌層はある程度発達。	桐生マツ沢に次ぐ厚さ。土壌層はやや発達。	薄い。土壌は全く発達せず，風化花崗岩が露出。
年降水量	1671.8mm	1709.1mm	1659.6mm
年蒸発散量	740.2mm	801.8mm	275 mm
年流出量	936.0mm	907.3mm	1384.6mm

桐生マツ沢試験地における数値は福嶌・鈴木[15]による。若女試験地，裸地谷試験地のデータは近畿地方建設局琵琶湖工事事務所発行の瀬田川砂防調査報告書[16][17]を参照した。（桐生試験地1972～1981年平均，若女試験地1981～1994年平均，裸地谷試験地1981～1985年平均）

3流域の諸元を表－1に示す。森林流域である桐生マツ沢試験地と若女試験地は，異なる植生状態にあるが，似通った水文条件下にあることが分かる。一方植生の殆ど発達していない裸地谷

試験地では，遮断蒸発・蒸散量が少ないため年蒸発散量が他の２流域のおよそ１／３となっており，そのために年流出量が多いことがわかる。同じ田上山地にある猫岩の裸地斜面と植栽地，及び桐生試験地との比較により，植生の有無はハイドログラフに大きな影響を与えるが，植生の良否はあまり関係しないという研究結果もある[18]。

同じ田上山地において土壌鉱物組成を調査し，その発達過程を検討した鳥居ら[19]によると，田上山の基岩は黒雲母花崗岩であり，その主要構成鉱物は，石英・カリ長石・斜長石・黒雲母及び主に斜長石起源と思われる風化粒子である。これらの鉱物の中で斜長石は風化抵抗性が最も低く風化しやすい。月森ら[20]は田上山地砂防林で森林再生に伴う土壌の変化を調査し，風化粒子中に含まれる二次鉱物はカオリン鉱物・雲母鉱物が主体であるが，植林後年数の経過とともにアルミニウムバーミキュライト・ギブサイトが増加する傾向にあること，またCECや交換態カチオンなどは年数の経過にともない増加傾向にあることを報告している。

以上のことから，森林の成立過程という観点では，若女試験地は植栽から60年が経過しており

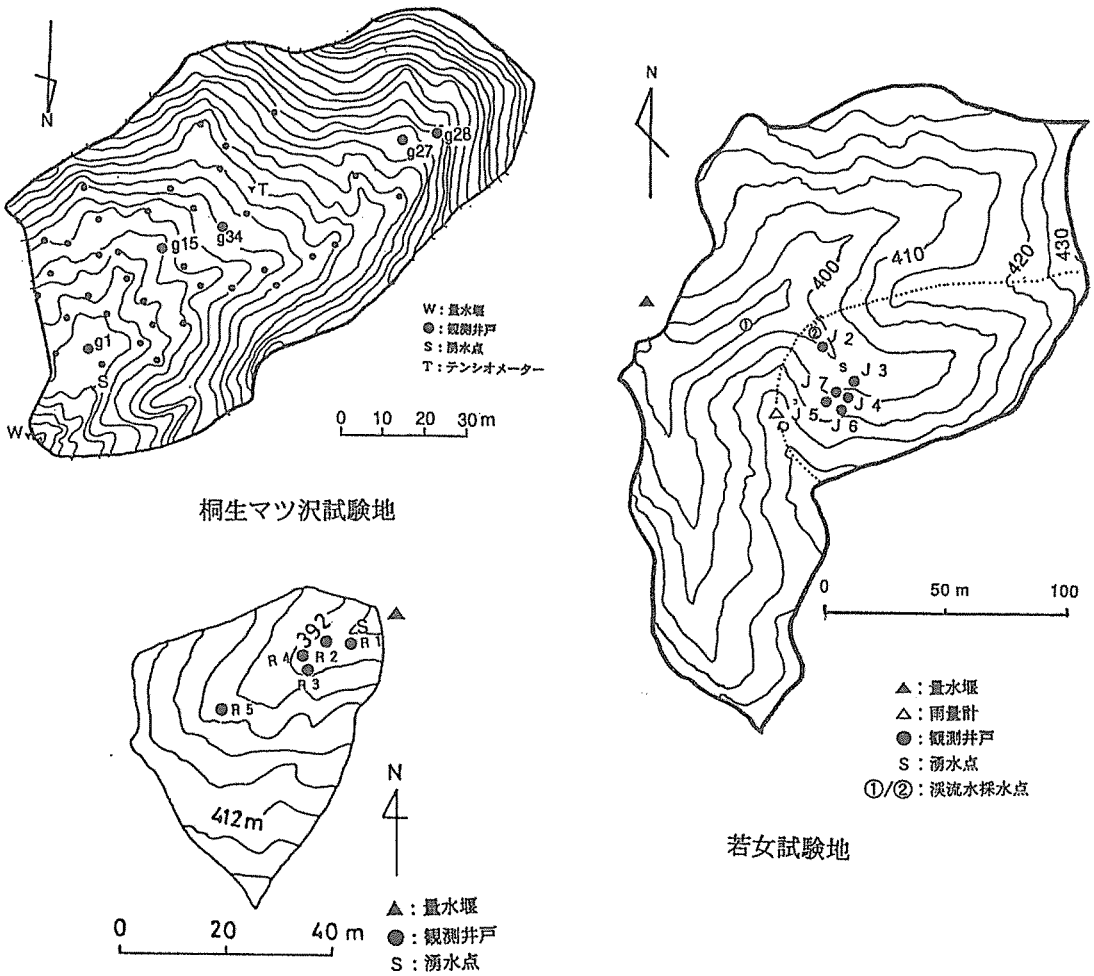

図３　各流域の地形図及び水文水質観測地点

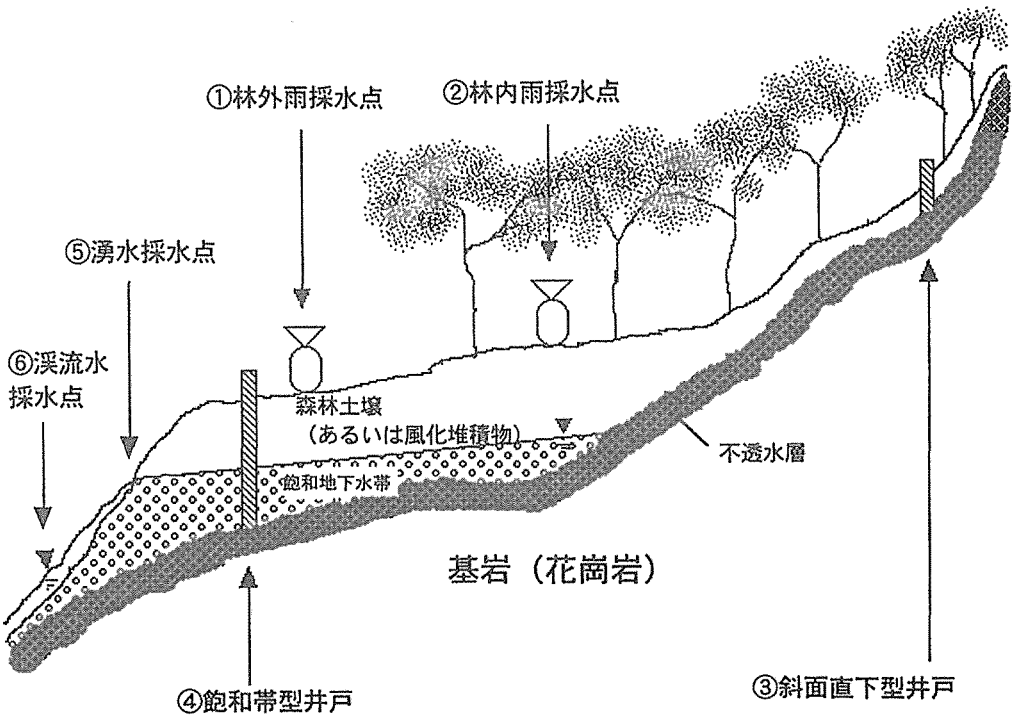

図４　流域水循環過程における採水地点の位置づけ

森林がほとんど成立していない裸地谷試験地と，100年前より植栽が開始され比較的成熟した森林が成立している桐生マツ沢試験地の中間に位置づけることができる。すなわち，発達する森林植生が流域水質の形成に及ぼす影響を考察する上で，これらの３つの流域は特徴的な段階を代表していると言える。

２．２　観測，採水及び分析方法

図－３に本研究で用いた水文水質観測地点を示した。森林における水循環過程に沿って水質の動態を観測するために図－４に模式的に示されているようにそれぞれの流域において地下水，湧水，渓流水を，桐生マツ沢と若女においては林外雨，林内雨をサンプリングした。裸地谷試験地，若女試験地は接しているために裸地谷における林外雨は若女と同じと考え，分析には若女のものを用いた。流出量は図－３に示すように，それぞれの流域下流端にある量水堰（Ｖノッチ三角堰）において自記水位計により観測されている。雨量は桐生と若女において転倒升式雨量計で観測されている。

地下水採水のための観測井戸を，それぞれの流域において斜面に沿い５～６基設置した。井戸の位置は図－３に示す通りである。各井戸は，その設置場所により次のように水文学的に三つのタイプに分けることができる[5]。それぞれを表－２に示す。

飽和帯型井戸：通常飽和地下水帯が存在し，最も乾いた時期においても地下水がなくならない井戸。主に斜面下部の不透水層上にある。下層土壌を浸透して飽和地下水帯に入ってくる水をサンプリングできる。

表2 各流域における観測井戸のタイプと深さ

	桐生マツ沢試験地 井戸番号（深さcm）	若女試験地 井戸番号（深さcm）	裸地谷試験地 井戸番号（深さcm）
斜面直下型井戸	G27 (162)	J4 (95)	R3 (42)
	G28 (30)	J5 (75)	R4 (40)
		J6 (78)	R5 (50)
		J7 (95)	
飽和帯型井戸	G1 (72)	J3 (215)	R1 (70)
	G15 (320)		
	G34 (512)		
移行帯型井戸		J2 (32)	R2 (70)

斜面直下型井戸：通常飽和地下水帯は存在せず，降雨イベントに対応して斜面部の不透水層上に発生する飽和側方流によって水位が上がる井戸。表層土壌を浸透してきた水をサンプリングできる。

移行帯型井戸：斜面直下型，飽和帯型井戸の中間的性質で，渇水期には地下水が存在せず，降雨がある程度連続して飽和地下水帯が上流に向かって拡大したときに水位が出て，しばらく飽和帯が残る井戸。

次に，水質分析のための試料水の採水項目と方法を示す。

林外雨，林内雨：直径20のポリエチレン製ロートで集めた雨水をポリボトルに貯留し採水する。

地下水：図－5のように基岩のところまで側壁全面にストレーナ加工を施した塩化ビニールパイプ製観測井戸を埋設し，ポリエチレンカップで採水。

湧水：小流域出口付近の湧水地点において，なるべく外気にさらされないうちに採水。

渓流水：湧水地点より下流で，大気と平衡状態になっていると思われるものを採水。

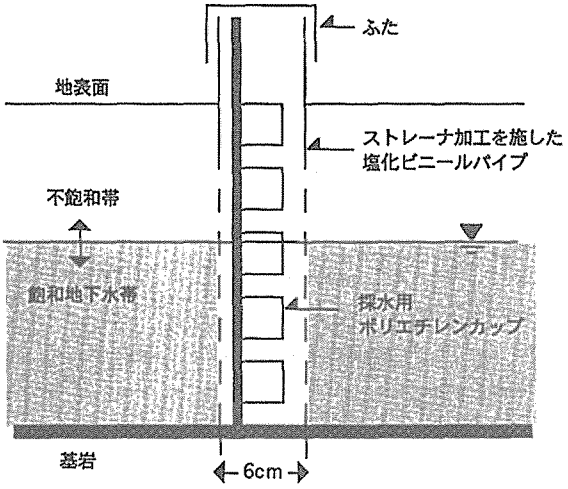

図5 地下水採水用井戸の構造

試料水は，フィールドにおいて採水直後に温度，電気伝導度（EC），pH，及び隔膜法炭酸ガス電極式CO_2濃度計（TOA CE-331）を用いて溶存pCO_2を測定した。また同時に採水したものをポリボトルに保存して実験室に持ち帰り，Na^+，NH_4^+，Ca^{2+}，K^+，Mg^{2+}，Cl^-，NO_3^-，SO_4^{2-}濃度を液体イオンクロマトグラフィー法（島津製作所製HIC-6A）を用いて測定した。SiO_2濃度測定は，モリブデン黄法（JIS K0101準拠）による。HCO_3^-濃度については，次式より算出した値を用いた。

$$[H^+]\ [HCO_3^-] \ / \ [CO_2]_{gas} = 10^{-7.81}$$

$[OH^-]$，$[H^+]$，$[HCO_3^-]$は1リットルあたりのイオンのモル濃度を表し，$[CO_2]_{gas}$は溶存pCO_2の値をatmで表したものである。また，H^+濃度やOH^-濃度はpHの測定値より算出した。平衡定数－7.81は，水温が5℃から30℃の範囲では－7.71から－7.86とそれ程変化しないことが知られている[21]。

桐生における水質観測は1990年より，若女・裸地谷における観測は1995年７月より開始されており，1996年２月現在続行中であるが，本研究では1995年７月から1995年12月までのデータを扱う。観測は１～２週間に一度の間隔で行われた。

3 結果と考察

3．1 各水文水質項目の季節変化

図－６に観測期間中の雨量，流出量をそれぞれの流域について示す。裸地谷では，他の森林２流域に比べ雨量に対する直接流出量が多いことがハイドログラフから読みとれ，前述のような水文過程の違いをよく表している。

図－７に観測された水質項目の７月から12月までの変化を示す。各要素について，林外雨・林内雨，２種類の地下水，そして湧水・渓流水の３つに分けて表した。季節変化の全体を把握するには，観測期間も短く，特に若女と裸地谷において観測データが十分とは言えないが，夏から冬にかけての変化が幾つかの項目で認められる。季節変化の要因としては水温の低下及び流出水量の減少が考えられる。流量の増減に伴う溶存物質濃度の変化については，平田・村岡[1]や徳地ら[2]によって検討され，主として地下水流出と、表面流や中間流等の直接流出の混合によってその濃度形成のメカニズムが説明される。つまり，土壌層のどの部位にその溶存物質の量が卓越するかによって，混合にともなって濃度が上昇したり，下降したりする。いずれにせよ，主要な議論は降雨イベント時の流量変化に溶存物質濃度がどう対応するかであることが多い。本観測の場合，通常降雨イベント中に採水を行うことは少ないので，サンプルは主として基底流出水で構成されていると見ることができる。桐生試験地の場合，基底流出水のほとんどは飽和地下水帯を経て流出するが，地下水帯の種々の物質濃度は地下水位や流量の変動に対して安定であることが，島田ら[8]によって報告されている。他の２流域についてこうした検討を行うことは今後必要となるが，サンプリングの手法上，大まかには本観測から得られた溶存物質濃度の季節変動には流量変動の影響は小さかったと見ることができる。

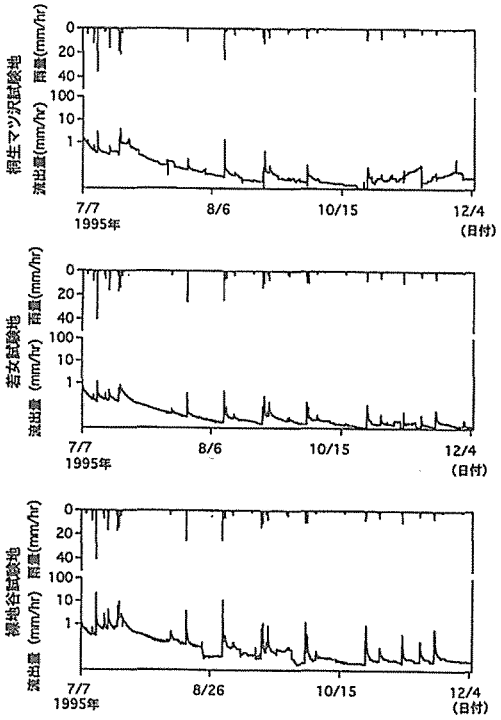

図６ 各流域における観測期間中の雨量，流出量

桐生マツ沢の観測結果で季節変化の見られる項目は，pCO_2及びNO_3^-濃度で，特に飽和帯地下水－湧水－渓流水の過程で顕著に見られる。両溶存物質とも土壌中の生物化学的な活動の結果生産されるため水温の変化と対応していると考えられる。Ca^{2+}，Mg^{2+}，K^+などは，NO_3^-の出現に呼応して土壌の交換基からリリースされる性質を持ったイオンで，NO_3^-の濃度変動と呼応して濃度変化が認められた。

一方SiO_2をはじめ，HCO_3^-，Na^+等は季節を通じて一定に保たれているのが観測された。これらの物質は主として土粒子の化学的風化反応によって供給される物質であり，上記の生物化学的

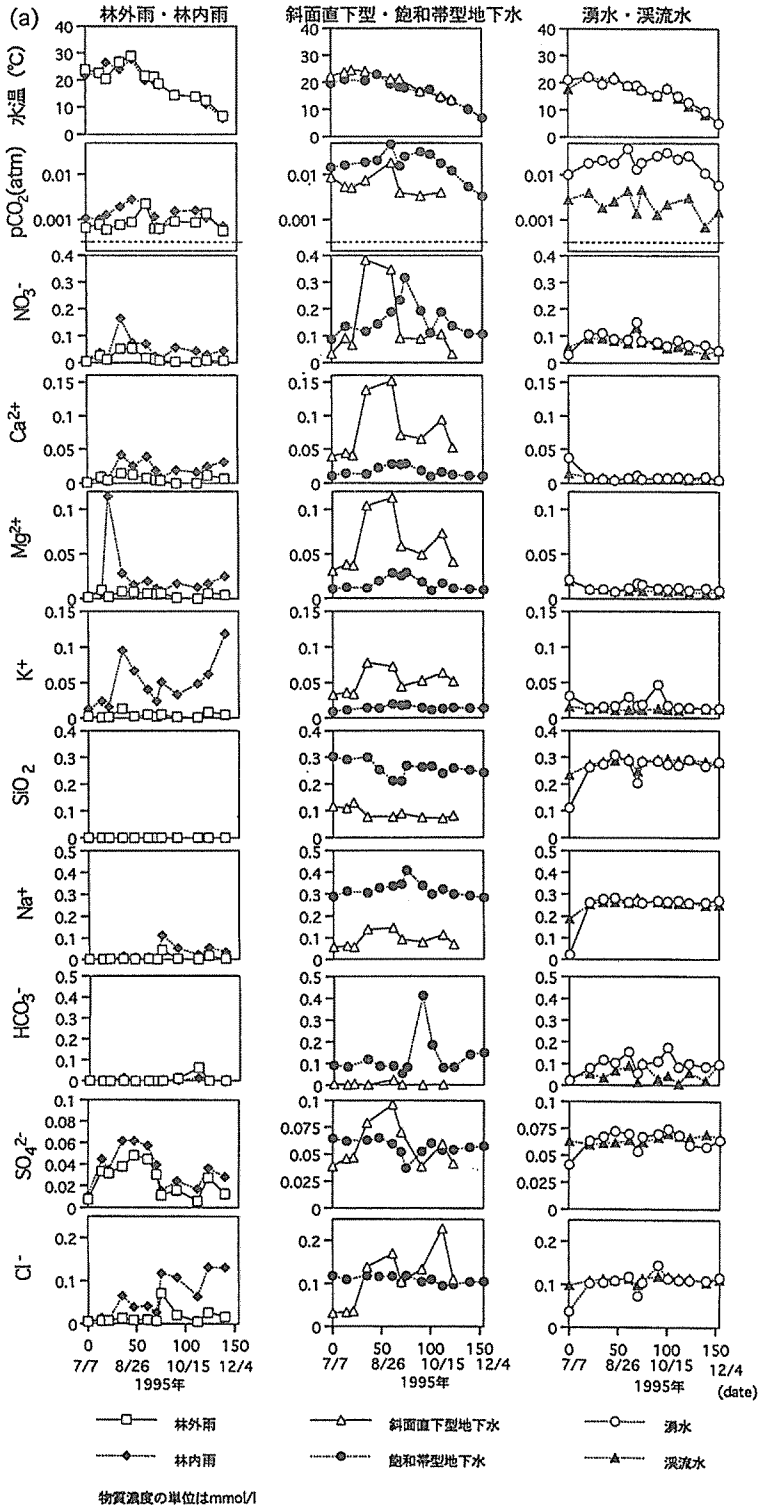

図7（a） 観測された水質項目の季節変化（桐生マツ沢試験地）

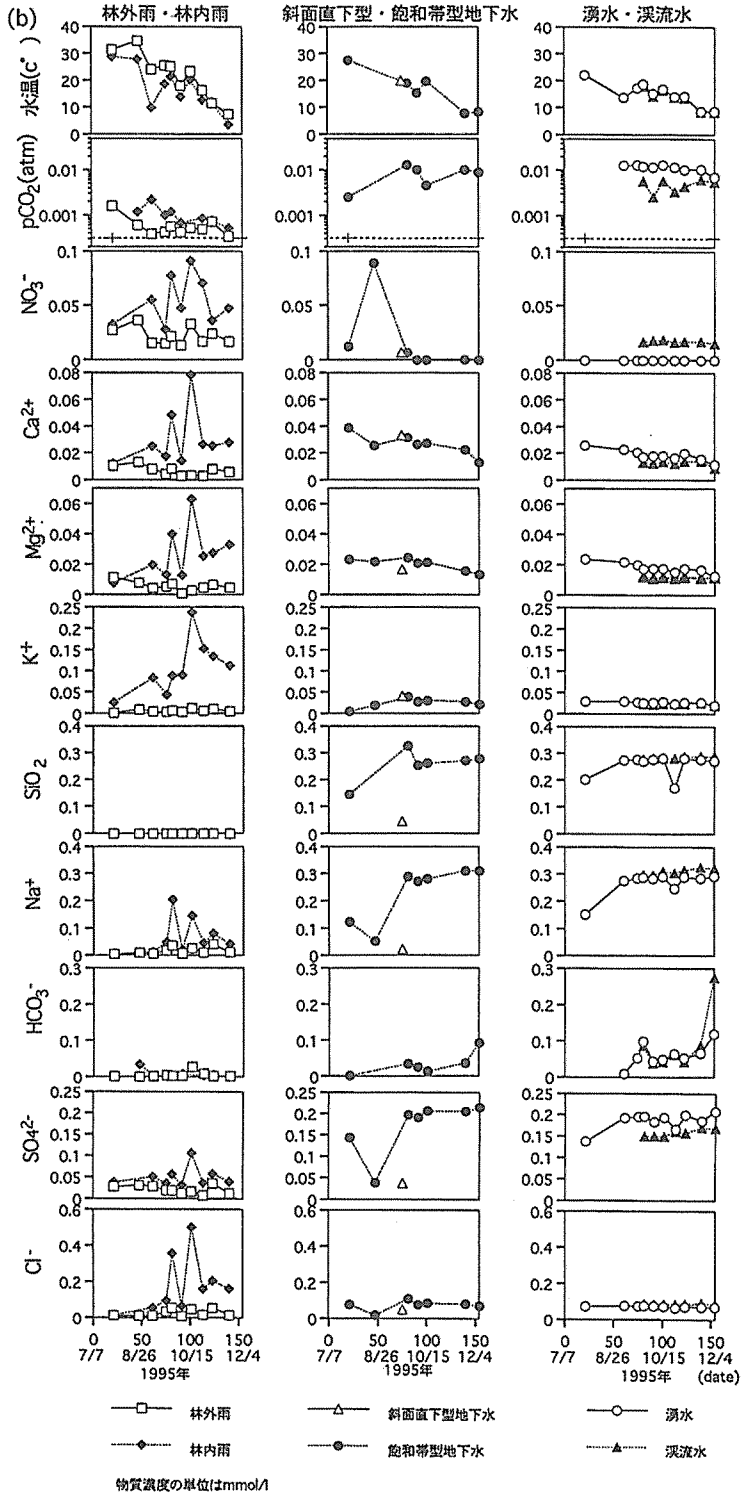

図７（ｂ） 観測された水質項目の季節変化（若女試験地）

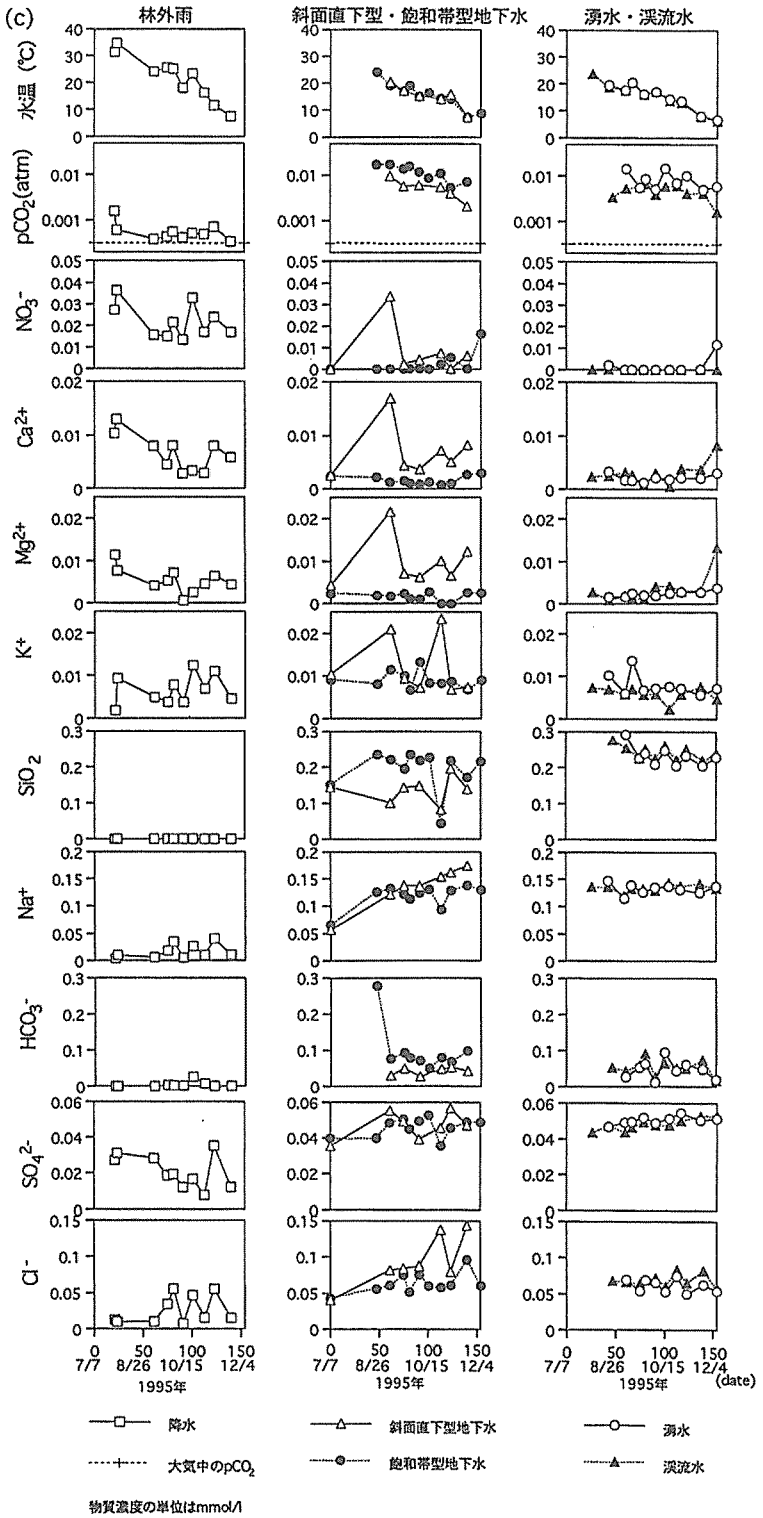

図7（c） 観測された水質項目の季節変化（裸地谷試験地）

な反応と比較すると，温度条件による影響を受けにくいためであると考えられる。

若女試験地に関しては，観測データが十分でないため上記のような季節変化が桐生に比べて明瞭でなはなかった。

裸地谷試験地においても，明瞭な季節変化は見られない。また裸地谷試験地に特徴的な傾向として，他の森林2流域においては飽和帯地下水－湧水－渓流水の過程で一定に保たれているSiO_2，HCO_3^-，Na^+等について，裸地谷においては，一定のレベルを保ちながらも変動の振幅が他より大きいことがわかる。これは，地形や土層厚の違いによる流出過程の違いが濃度の出現の違いとなって現れていると考えることができる。すなわち裸地谷は，他の流域に比べて異なる水文過程を持っており，これが水質形成について他の2流域と異なる特徴を与えているものと考えられる。

3．2　水質に影響を及ぼす地球化学的要因と生物化学的要因

3．2．1　考察の方針

前述したように本研究においては水質形成に影響を及ぼす2つの要因に注目し，それらの要因の相互作用，次に各要因が変化していく過程を考察する。生物化学的要因により決定される要素として，溶存pCO_2とNO_3^-濃度を，地球化学的要因により決定される要素としてSiO_2，Na^+，SO_4^{2-}濃度を，生物地球化学的な要因，すなわち上記の両方の要因が関与して決定される要素としてHCO_3^-濃度，pHを取り上げた。

先述のように森林における水質を形成する要因としては，ここで取り上げる地球化学的要因・生物化学的要因の他にも，地形や水文条件，気象条件など様々な要因が関与している。特に裸地谷においては，前述のように森林の成立している桐生・若女とは明らかに異なる地形・水文条件が存在する。すなわち土層が薄く斜面が急であるため，直接流出量が著しく多く，また土壌と水との接触時間が短いことが考えられる。さらに植生による蒸発散の影響を受けないため，流出量も多い。このようなことから，裸地谷においては，他の流域と比較して，溶存物質の濃度が低くなる可能性がある。

本研究では，地球化学的，生物化学的両要因の影響に主眼をおくが，地形や，水文条件の影響も取り入れた総合的な水質形成過程の比較検討は今後の課題としたい。

3．2．2　各試験流域内での水質形成過程について

図－8にカチオン及びアニオンの流域内での算術平均濃度の変化を示す。横軸はそれぞれの流域における水文過程に沿って降雨が流域内を浸透したのち流出するまでの過程を追っている。縦軸には上向きにカチオン，下向きにアニオンを当量で表した。それぞれの値は，観測期間中の算術平均値である。

カチオンとアニオンはどの流域においても電荷のバランスを保ちながら変動していることが分かる。特に桐生と若女の森林2流域においては，変化の傾向が類似している。林外雨から林内雨にかけては，植物の蒸発散による濃縮や葉に捕捉されていたエアロゾルの洗脱，植物体からの溶脱などの物質の添加によって，アニオン及び主なカチオンの増加が見られる。さらに土壌を浸透するに従って，化学的風化による物質の溶出に伴いイオン濃度が増加している。表層土壌では、NO_3^-等の出現が特徴的な変化を与える。飽和帯型の井戸においてイオン濃度は一定となり，降雨イベント時に表面流による希釈の影響を受ける以外は，濃度一定のまま流出していると考えられる。

森林における水の土壌浸透に従って，一般的には次のような緩衝作用が起こっている[5]。表層土壌浸透過程においては，林内雨やリターの分解・無機化によってもたらされた有機酸やNO_3^-な

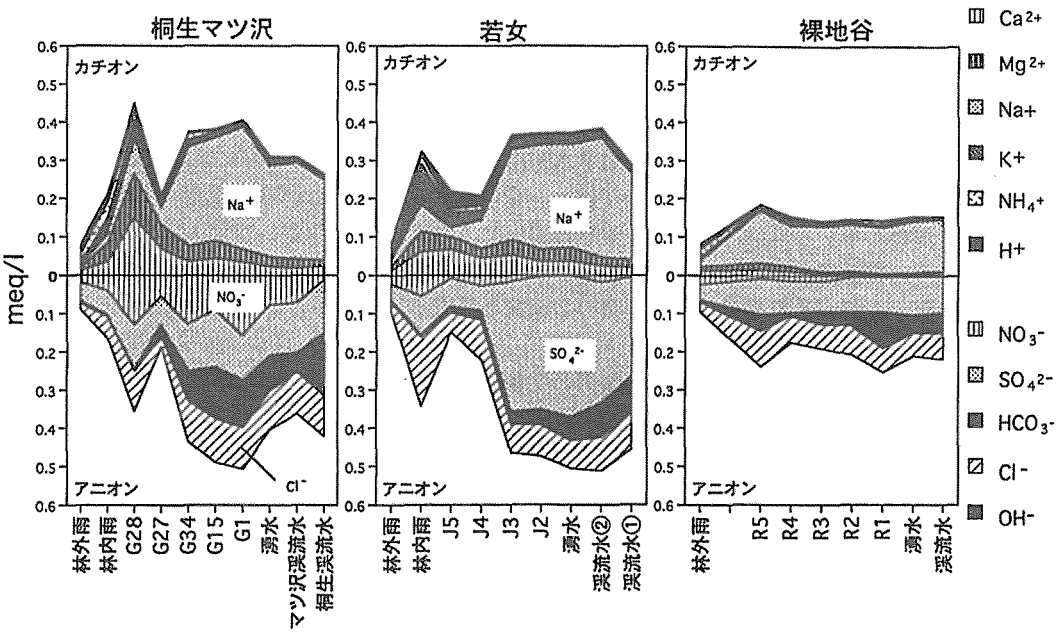

図8　各水文過程におけるアニオンとカチオンのバランス

どの生成の時に生じたH^+が，土粒子の交換サイトに吸着されているCa^{2+}やMg^{2+}などのカチオンによって置換される。さらに下層土壌浸透過程においては，土壌気相中のCO_2が，土壌水に溶解・解離してできるH^+が，主に岩石の化学的風化によって溶出するNa^+によって置換される。

図－8の桐生マツ沢と若女試験地におけるデータは，これらの過程をよく表していると考えられる。本流域においては，SO_4^{2-}とHCO_3^-は，主にNa^+によって電気的平衡が保たれているようである。SO_4^{2-}は降雨や有機物の分解無機化によっても供給されるが，これらの試験地，特に若女試験地においては，主に岩石の化学的風化によって供給されていると考えられる。

一方裸地谷においては，植生の影響が少ないため林外雨の溶存物質にさらに付加され林床へ添加されるイオンは少ない。また，土壌浸透に伴う，化学的風化の進行によるイオン濃度の増加もあまり見られず，他の流域と比較すると化学的風化過程の影響が小さいことが推測できる。これは，裸地谷では植生が化学的風化過程に与える影響が少ないことや，また化学的風化によって地下水中にリリースされる物質は土壌浸透中に濃度が上昇するが，裸地谷では土壌層が薄く浸透水が土壌中を通過する時間が短いことによる影響であると考えられる。

3．2．3　生物化学的要因によって形成される性質

(1)　溶存pCO_2

図－9は3流域において雨水から渓流水までの変化を比較するために，横軸に林外雨，林内雨，それぞれの流域における代表的な斜面直下型井戸と飽和帯型井戸（表－2の太字），湧水，渓流水を並べ，縦軸に観測期間における算術平均値をとったものである。溶存pCO_2は近似的にはその水と接している気体中のCO_2ガス濃度と平衡状態にあると考えられる。土壌中のCO_2ガスは根系や土壌動物などの生物の呼吸に起因しているため，溶存pCO_2は土壌中の生物化学的過程の成熟度や活動度の指標としてとらえることができる。裸地谷においては，わずかに存在している植生の影

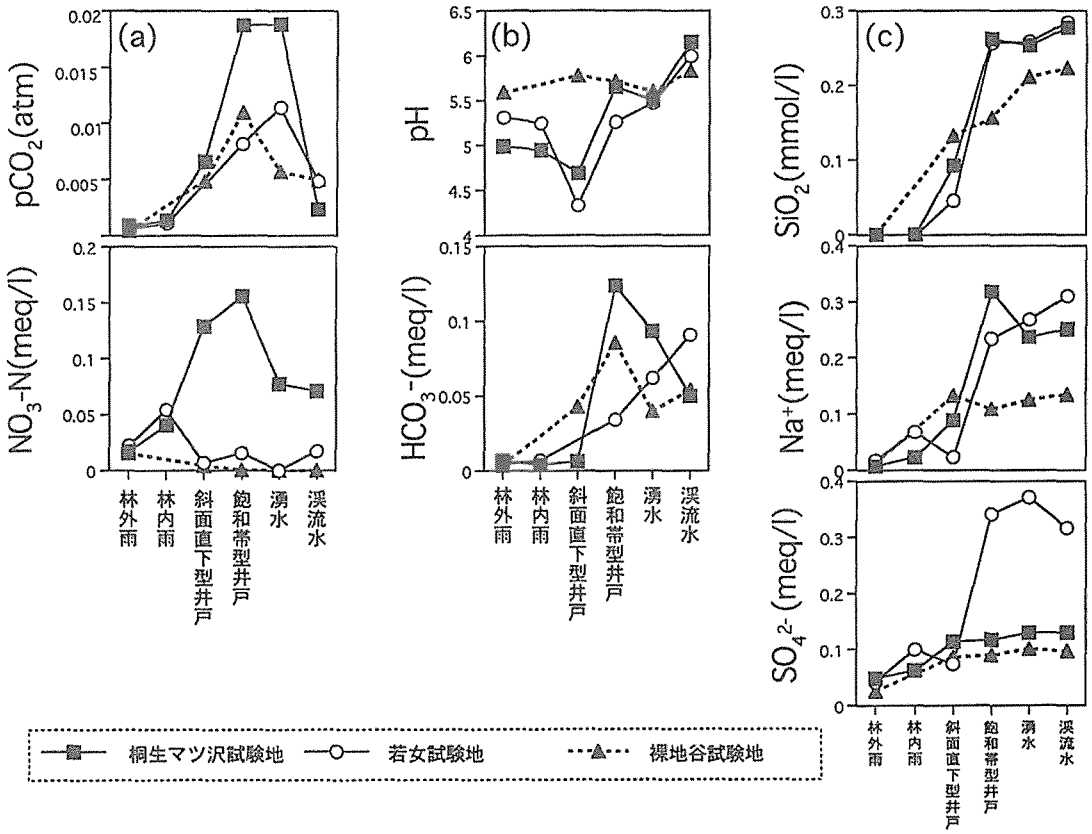

図9 生物化学的，地球化学的要因に着目した3流域における水質項目の変化
（a）生物化学的要因によって決定される水質項目 （b）生物化学的，地球化学的両要因によって決定される水質項目 （c）地球化学的要因によって決定される水質項目

響を取り除くために降雨イベントの直後にサンプリングしたデータのみを用い，平均した。これは以下の理由による。裸地谷においては，植生は斜面下部の飽和地下水帯が存在する狭い範囲に集中して存在するので，低水時に滞留している飽和地下水はこの植生の影響を受けていることが考えられる。従って，植生が無い斜面部における流出過程の特徴を抽出するために，斜面部で形成される直接流出が卓越すると考えられる降雨イベント時のサンプルを選択すれば，ある程度下流端の植生による影響を避けることができると考えられる。

溶存pCO_2は（1）式に示されるように化学的風化を促進する要因であり，図－9より土壌へ浸透するに従って値が大きくなっていることが分かる。この現象については浜田ら[20]によって明らかにされている。土壌気相中のCO_2は土壌動物，微生物，根などの呼吸によって供給される。表層近くで発生するCO_2の多くは地表面からは大気に向かって放出されていくが，深部方向には拡散が容易に進まず，孔隙中に滞留する。この結果，深層ほど濃度が高いプロファイルを示すことになる。桐生マツ沢における観測結果によるとCO_2ガスのソースは地表から75cm前後の深さまで存在し，それより深部ではソースの強度が低下するため濃度上昇が緩やかになるが，地下水帯に達するまでCO_2ガス濃度は上昇し続けるようであるという。そのため，それらの土壌孔隙中の空気と平衡状態にある土壌水のCO_2分圧も深くなるにつれ高くなる。湧水から渓流水にかけてはCO_2は

脱気して再び大気中のCO_2分圧に近いレベルに低下する[5]。

溶存pCO_2は桐生において他の流域の2倍近く大きな値を示しており，若女，裸地谷の値はほとんど同じである。この差は，森林植生とともに発達する土壌中の生物活動のレベルと対応していると考えることができる。すなわち，若女試験地と桐生試験地は，地上部の植生構成のみから分類すると，ともに森林が成立した流域とすることができるが，土壌系の発達段階から見ると，若女の方が未発達であると推測することができる。このことは，両流域の山腹植栽開始からの経過年数と対応している。

(2) NO_3^-濃度

NO_3^-は主として土壌中の生物学的活動に強く影響される溶存物質であり，これも生物化学的要因を司る生態系内部循環の発達段階の指標と見ることができる。NO_3^-はマイナスに帯電しているために本試験地のような温帯の森林土壌中ではNH_4^+や有機態窒素に比べて土壌に吸着されにくい。図－9よりNO_3^-は桐生の斜面部の地下水において非常に大きな値を示しており，その内部循環系における窒素の蓄積量，循環量が他の2流域に比べて多く，内部循環系が最も発達していることが示唆される。このことからも，土壌系の生物学的活動に関わる発達段階は，若女試験地よりも桐生試験地の方が進んでいると見ることができる。

3．2．4 地球化学的要因によって形成される性質

(1) SiO_2濃度

SiO_2は地殻の主要構成成分である。雨水にはほとんど含まれないため試水中のものはすべて風化によって生成したものである。また植物の吸収や土壌粒子表面への吸着の影響も少ないため風化量や風化速度を知る指標となる。桐生におけるSiO_2の濃度形成過程について，島田ら[8]は以下のように報告している。SiO_2濃度は鉛直不飽和浸透と一時的飽和側方流の過程で上昇し，飽和地下水帯において一定濃度に達する。また降雨による希釈を受ける以外はそのままの濃度で湧水，渓流水として流出する。さらに，SiO_2の溶出を伴う化学的風化は主に不飽和土壌層で生じていることを強調している。図－9からも上記のような流出特性が生じていたことが確認できる。桐生試験地と若女試験地においては降雨でもたらされた水が土壌中を浸透するに従ってほぼ同じ値まで濃度が上昇しているのに対し，裸地谷における濃度上昇はそれらより少し低いことがわかる。このことは，裸地谷試験地における化学的風化による水質への影響が，他の森林2流域に比べて小さいことを示している。

桐生と若女についての比較では，桐生においてpCO_2が若女の2倍近くまで上昇するのにもかかわらず同程度のSiO_2が溶出しているということは注目に値する。すなわち，両流域においては化学的風化過程に必要な土壌中のCO_2環境は十分に整っており，ここではCO_2は化学的風化速度を制限する要因にはなっていないということが示唆された。すなわち，両流域で生じている風化の進行には，若女レベルの土壌CO_2供給で十分であり，桐生においては過剰に存在しているという可能性が考えられる。植生の影響が少ない裸地谷においても，CO_2濃度は若女と同レベルにまで上昇する。従って，裸地谷においても風化に必要な量のCO_2が十分存在する可能性がある。しかし，前述のように裸地谷と他の森林2流域ではH^+の供給形態が異なるため，現時点で一概にそのように断定することはできない。

(2) Na^+濃度

Na^+は他のカチオンに比べ土壌に吸着されにくく，植物による吸収もないため化学的風化過程で溶出したものはほとんどがそのまま流出してくると考えられる。図－9より地球化学的要因で生成するNa^+濃度形成過程は，同じ要因によって生成するSiO_2濃度と似通った過程で起こっている

事がわかる。またNa^+濃度も，比較的高濃度でほぼ等しい値を示す森林2流域に対し，裸地谷試験地では低いという傾向があることがわかる。

化学的風化の結果生成される，この2つの物質濃度の相関関係を調べると森林2流域においてはNa^+：SiO_2がほぼ1：1で溶出しているのに対し，裸地谷においてはSiO_2が増加してもNa^+はほとんど増加が見られず，SiO_2のおよそ半分程度の低い値でほぼ一定値となった。このことは，3流域とも基岩地質が同じ風化花崗岩であるにも関わらず，裸地谷においては他の2流域と異なる風化過程の存在することを示唆している。流域における水質は，そのサンプル時の風化の進行状態を表しており，溶存物質の構成比，特に基本的なカチオンとSiO_2濃度の比によって，原理的にはどのような風化過程が起こっているか予測可能であることが，Tardy[23]などによって示されている。本調査の結果得られた相違が，どういう風化条件の違いに起因するのかを今後実証的に明らかにしていきたい。

(3) SO_4^{2-}濃度

SO_4^{2-}は，エアロゾルが雨水と共に流入するものや，生態系内部循環系を循環しているものなども考えられるが，これらの流域においては目立った雨水のSO_4^{2-}による汚染もなく，Sの起源は基岩構成鉱物の成分なので，その多くは岩石の風化起源のものであると考えられる。従ってここではSO_4^{2-}を地球化学的要因によって生成するものと分類した。

一つの流域において，あるいは異なる流域を比較したときに，NO_3^-濃度が高いとSO_4^{2-}濃度が低くなる，というようなSO_4^{2-}とNO_3^-の相関関係が報告されている[24)25)]。このことはSの酸化・溶出過程において，生物化学的要因が直接的あるいは間接的に大きく関わっている可能性を示唆している。

図－9よりSO_4^{2-}は若女において他の2流域と比べ非常に高くなっており，若女の地下水でpHが低下している原因であると考えられる。pHの低下によって，若女では微生物の硝酸活性が低くなり，NO_3^-濃度が低くなっていると考えられる。

3．2．5　二つの要因の相互作用によって形成される性質

(1) HCO_3^-濃度

HCO_3^-は生物化学的，地球化学的両要因の相互作用によって生成する。生物活動によって生成するCO_2の水への溶解・解離にともなって増加するため，図－9のHCO_3^-濃度の水文過程ごとの変化は，溶存pCO_2のそれと類似の傾向を示している。一方，化学式（1）からもわかるようにHCO_3^-は化学的風化の進行に伴って増加するために風化速度の指標と見ることができる。従って，Na^+，SiO_2濃度と共通した変動を見せると考えられる。

(2) pH

図－9に示すように森林2流域と裸地谷では異なるpHの変化が見られる。森林2流域においては，斜面直下型井戸において一時的にpHが下がり，土壌浸透していくに従ってpHが上昇しているのがわかる。これは表層土壌において生物活動に伴って生成される，主としてNO_3^-や有機酸等によるH^+の影響である。一方裸地谷においては生物活動の影響が小さいため，pHはほぼ一定で推移している。

前述のように，森林流域においては，水の土壌浸透に従って様々な緩衝のメカニズムが働いている。図－9のNO_3^-濃度やHCO_3^-濃度の増減からもわかるように桐生と若女の2流域においては前述のような2段階の反応過程が起こっていると考えられる。つまり，表層土壌浸透過程においてはNO_3^-などによるH^+が土粒子の交換サイトのCa^{2+}やMg^{2+}によって，下層土壌浸透過程においてはHCO_3^-によるH^+が，化学風化起源のNa^+によってそれぞれ置換されている。一方裸地谷にお

いては表層土壌層が存在しないため，下層土壌浸透過程における反応，つまりCO_2の溶解，解離によるH^+がNa^+によって置換される過程のみが起こっている可能性がある。

湧水から渓流水にかけての3流域におけるpHの上昇はCO_2の脱気によるものである[5]。

さらに，pHは森林流域においては一時的におよそ4.5前後にまで低下するが最終的には6程度まで上昇する。このことは森林の土壌浸透過程における緩衝作用の大きいことを示している。

3．3　森林植生の遷移に伴う，水質形成機構の発達について

最後に，3流域における水質形成要因を比較することにより，森林植生の遷移過程に伴う水質形成機構の発達について考察を行う。

3流域におけるそれぞれの物質の動態の傾向を表－3にまとめる。表－3より，若女において生物化学的要因と地球化学的要因の両方が影響するpHや地球化学的要因によって生成する物質は，主に桐生と同様な傾向を示していると言える。しかし一方で生物化学的要因についていえば，若女ではどの水質項目も裸地谷と同様の傾向を示している。このことは，若女試験地ではその地上部の構成は裸地谷よりも桐生マツ沢に近い発達段階にあると見られる森林が成立しているが，土壌の発達は桐生よりもかなり遅れていることを示している。これらのことより若女の森林は生物化学的に見ると裸地谷と同程度の未熟な土壌によって形成されているが，地球化学的に見ると比較的成熟しているということが考えられる。SO_4^{2-}については未知な要素が多いが，前述のようにその生成には生物化学的反応が深く関わっている可能性もあり，今後更なる観測・分析を必要としている。

以上のことより，森林の遷移段階において桐生と裸地谷の中間に位置する若女では，水質形成の発達段階においても他の2流域の中間に位置しているということがわかった。

表3　対象とした3流域の水質特性

	桐生マツ沢	若　女	裸　地　谷
pH	生物化学的要因で供給される酸の影響で一時的にpHが下がる。最終的には緩衝される。	桐生マツ沢と同じ。	生物化学的要因による影響が無いのでpHは下がらずほぼ一定。最終的に少しだけ緩衝される。
生物化学的要因			
溶存pCO_2	高い	それ程高くない	それ程高くない
NO_3^-濃度	非常に高い(他の8倍程度)	低い	低い
地球化学的要因			
Na^+濃度	高い	高い	低い（他の1／2程度）
SiO_2濃度	高い	高い	やや低い
SO_4^{2-}濃度	低い	非常に高い(他の3.5倍程度)	低い

4　ま　と　め

水質分析の結果，植生の発達段階の異なる3流域では水文過程に沿ってそれぞれ異なる水質形成過程を観測することができた。生物化学的要因の発達すなわち森林植生の発達に伴う，地球化学的要因の発達すなわち化学的風化の促進が観測された。

化学的風化に不可欠であるCO_2については，これらの試験流域においては化学的風化に必要と思われる量が十分に存在しており，風化速度を制限する要因にはなっていないということが示唆された。そして，実際にこれらの流域において化学的風化過程や速度の違いを生み出している要因は，生物化学的反応によって生成するNO_3^-や，主に地球化学的要因によって生成されると思われるSO_4^{2-}などの陰イオンであることが明らかになった。

さらに，各流域における生物化学的要因，地球化学的要因が水質形成に与える影響を比較すると，森林の遷移に伴ってこれらの水質形成要因も変化していることがわかった。また3流域の比較から，水質に影響を与える2つの要因は森林の遷移過程において同じ速さで変化するのではなく，地球化学的要因の変化が先行し，おくれて生物化学的要因が変化するという，タイムラグの存在することが示唆された。

引 用 文 献

1）平田健正・村岡浩爾（1988）：森林流域における物質循環特性の渓流水質に及ぼす影響．土木学会論文集．399（Ⅱ-10）．131-139

2）徳地直子（1993）：森林生態系における溶存物質濃度・量の垂直的・水平的分布に関する研究．京都大学博士課程学位論文．127pp

3）Probst A., E.Dambrine, D.Viville and B.Fritz (1990) : Influence of acid atomospheric inputs on surface water chemistry and mineral fluxes in a declining spruce stand within a small granitic catchment (Vosges massif, France), J.Hydrol., 116, 101-124

4）堀田庸共著（1993）：森林衰退－酸性雨は問題になるか－．102pp．林業科学技術振興所

5）Ohte,N., N.Tokuchi and M.Suzuki (1995) : Biochemical influences on the determination of water chemistry in temperate forest basin; Factors determining the pH value, Water Resour. Res., 31 (11), 2823-2834

6）中西麻美（1994）：森林が降水及び流出水の化学的性質に及ぼす影響．京都大学大学院修士論文．86pp

7）大手信人・徳地直子・鈴木雅一（1991）：森林流域内の水移動に伴う地中水・渓流水の水質変化．京大演報．63．69-81

8）島田緑子・大手信人・徳地直子・鈴木雅一（1992）：山地小流域における地下水・渓流水のSiO_2濃度形成．水・水学会誌．5（2）．3-11

9）大類清和・生原喜久雄・相場芳憲（1993）：森林集水域での土壌から渓流水への水質変化．日林誌．75（5）．389-397

10）大類清和・生原喜久雄・相場芳憲（1995）：森林小水域での水質変化の過程．水・水学会誌．8（4）．367-381

11）Bolt, G.H. and M.G.M.Bruggenwert (1976) : Soil Chemistry, Elsevier, NY

12）三枝正彦（1989）：粘土鉱物．季刊化学総説No.4．土の化学．日本科学会編．50-65

13）久馬一剛他共著（1984）：新土壌学．朝倉書店．東京．271pp

14）福嶌義宏・鈴木雅一・谷 誠・加藤博之（1978）：滋賀県南部の花崗岩山地における3つの小流域の水文観測報告．京大演報．50．115-127

15）福嶌義宏・鈴木雅一（1986）：山地流域を対象とした水循環モデルの提示と桐生流域の10日連続日・時間記録への適用．京大演報．57．162-185

16）近畿地方建設局琵琶湖工事事務所（1987）：瀬田川砂防調査報告．田上山地土砂生産流出解析報告書（X）

17) 近畿地方建設局琵琶湖工事事務所（1995）：瀬田川砂防調査報告．田上山地土砂生産流出解析報告書（XⅦ）
18) 福嶌義宏（1977）：田上山地の裸地斜面と植栽地斜面の雨水流出解析．88回日林論．391-393
19) 鳥居厚志・西田豊昭（1987）：花崗岩を母材とする未熟土壌に見られる土壌の発達に伴った一次鉱物組成の変化．98回日林論 203-205
20) 月森明美・平井秀明・久馬一剛（1992）：滋賀県田上山砂防林における森林再生に伴う土壌の変化．ペドロジスト．36 (1)．17-29
21) Stumm, W., and Morgan, J.J., (1981) : Dissolved carbon dioxide, in *Aquatic Chemistry : An introduction Emphasizing Chemical Equilibria in natural waters*, 2nd ed., pp.171-229, John Wiley, N.Y.
22) 浜田美鈴・大手信人・小橋澄治（1996）：森林流域における土壌CO_2ガス濃度の鉛直分布．日林誌（投稿中）
23) Tardy, Y.(1971) : Characterization of The Principal Weathering Types By The Geochmistry of Waters From Some European And African Cristalline Massifs, Chemical Geology, 7, 253-271
24) Likens, G.E., Bormann, F.H., Pierce, R.S., Eaton, J.S., and Johnson, N.M. (1977) : BIOGEOCHEMISTRY of a Forested Ecosystem, Springer-Verlag, N.Y.
25) 仲川泰則・徳地直子・西村和雄・岩坪五郎（1995）：森林流出水の水質特性に関する広域的比較．京大演報．67．40-50

Résumé

To clarify the changes of hydrochemical processes along forest succession, we carried out the intensive hydrochemical observations on the three catchment basins, which consist of the same weathered granitic bedrock with different forest successional stages. We especially noted the differences and interactions between the biochemical factor and the geochemical factor that affect water chemistry, and observed the changes of water quality at each hydrological process on three catchments.

The result represents the different process of chemical weathering affected by vegetation. This difference is mainly caused by biologically generated anions such as NO_3^- in forest soil. CO_2 plays an important role in chemical weathering process. However the catchment with little vegitation has about the same concentration of dissolved pCO_2 as the forested catchment. It suggests CO_2 is not the conclusive factor that caused difference in chemical weathering process. Influences on water chemistry by biochemical factor and geochemical factor changes as forest develops. In forest successional stages, these two factors don't change at the same time.