

論 文

上賀茂試験地における湿性降下物と林内雨の
イオン濃度および流入量と窒素負荷量

中西麻美*・平田啓一**・中川智之*・柴田泰征*・大澤直哉***・柴田昌三****

Concentrations and inputs of inorganic anions and cations, and nitrogen in wet deposition
and throughfall in the Kamigamo Experimental Forest

Asami NAKANISHI*, Keiichi HIRATA**, Tomoyuki NAKAGAWA*,

Yasuyuki SHIBATA*, Naoya OSAWA*** and Shozo SHIBATA****

上賀茂試験地における湿性降下物のイオン濃度および流入量と、試験地面積の約6割を占めるヒノキが優占する天然生二次林の林内雨のイオン濃度および流入量を明らかにするために、1999~2001年に湿性降下物と林内雨の観測を行った。1961~1964年に上賀茂試験地で観測された、林外雨と林内雨の硝酸態窒素とアンモニウム態窒素の濃度および負荷量との比較も行った。1999年からの3年間で湿性降下物の年間加重平均pHは4.7から4.4へ有意に低下した ($p < 0.01$)。湿性降下物、林内雨ともにイオン濃度および流入量は、冬季には季節風にもたらされる海塩の影響を、4月には黄砂エアロゾルによる影響を受けていることが示唆された。1999~2001年の湿性降下物の NO_3^- 濃度および負荷量は、1960年代のバルク試料および林内雨の NO_3^- 濃度、負荷量をともに上回った。1999~2001年の湿性降下物による窒素負荷量は、1960年代のバルク試料による窒素負荷量に相当し、また林内雨による窒素負荷量は1960年代よりも大きかった。1960年代から窒素負荷量、特に硝酸態窒素負荷量が増大していることが示された。

キーワード：湿性降下物、林内雨、窒素負荷、硝酸態窒素負荷

To clarify concentrations and inputs of inorganic anions and cations in wet deposition and throughfall at the natural secondary forest dominated by *Chamecyparis obtusa*, we conducted the experiments from 1999 to 2001. Furthermore, we tried to compare the concentrations and inputs of nitrate and ammonium in bulk deposition and throughfall from 1961 to 1964 at the same site. Annual volume-weighted mean pHs of wet deposition significantly lowered from 4.7 in 1999 to 4.4 in 2001 ($p < 0.01$). Ionic concentrations and inputs in both wet deposition and throughfall were influenced by seasonal wind during winter season, and yellow sand aerosol that was brought to Japan archipelago from Ocher Plateau in April. Concentrations and inputs of nitrate in wet deposition from 1999 to 2001 were higher than those in both bulk deposition and throughfall from 1961 to 1964. Nitrogen inputs in wet deposition from 1999 to 2001 were approximately equivalent to those of bulk deposition in 1960s. Nitrogen inputs of throughfall in 2001 were larger than those in 1963-1964. It was suggested that nitrogen inputs, especially inputs of nitrate-nitrogen have substantially increased from 1960s.

Key words: wet deposition, throughfall, nitrogen input, nitrate-nitrogen input

1. はじめに

アジア地域では、硫黄酸化物や窒素化合物といった酸性降下物の排出が、今後とも増大することが予想されている (Galloway, 1995)。中国では、近年、激しい黄砂現象の発生回数が急速に増えており、日本でも、黄砂現象

時には、環境基準値を越える大気エアロゾル濃度が観測されている (国立環境研究所, 2001)。黄砂エアロゾルは、人為起源由来のガスを高い割合で捕捉し、硝酸、亜硝酸、硫酸を生成することが室内実験で確認されている (国立環境研究所, 2001)。また、窒素化合物がアジア大陸から日本へ長距離輸送されるために、1987年から1996

* 京都大学大学院農学研究科附属演習林

** 京都大学大学院農学研究科森林科学専攻

*** 京都大学大学院農学研究科地域環境科学専攻

**** 京都大学大学院地球環境学

* Kyoto University Forests, Graduate School of Agriculture, Kyoto University

** Division of Forest and Biomaterials Science, Graduate School of Agriculture, Kyoto University

*** Division of Environmental Science and Technology, Graduate School of Agriculture, Kyoto University

**** Graduate School of Global Environmental Studies, Kyoto University

年の10年間で、西日本における降水の NO_3^- および NH_4^+ 濃度が有意に上昇したという報告もある (Fujita *et al.*, 2001). 窒素は植物の養分元素であるが、森林生態系に過剰な窒素が供給されると、土壌の酸性化、土壌の窒素無機化・硝化の増加、地下水や渓流水への硝酸態窒素の流亡などのおそれがある。群馬県の森林では、渓流水による無機態窒素の流出量が降水による流入量を上回り (Ohrui and Mitchell, 1997), また、平水時の渓流水の NO_3^- 濃度が高いことが報告されており (Shibata *et al.*, 2001), それらの原因として高い窒素負荷量の影響が示唆されている。稲垣 (2001) は、林内雨による窒素負荷量とヒノキおよびスギ材の分解速度の関係を調べ、窒素負荷が大きい林分では、スギ材の易分解性有機物の分解速度が大きくなることを示した。増大しつつある酸性降水物に対する森林生態系の応答を把握し、予測していくために、降水や林内雨による酸性降水物の森林への流入量を調べることは重要である。

森林面積が国土のおよそ2/3を占める日本では、森林地域における大気降水物の実態、大気降水物が樹冠を通過する際に生じる変化、林内雨による物質の土壌への流入について観測する必要性が特に大きいと考えられる。林内雨は、降雨などの湿性降水物が林冠を通過する際に、葉や枝、幹から物質を溶脱し、林冠や幹に付着した乾性降水物を洗脱するために、樹体起源の物質や人為起源の酸性物質を含んでいる。したがって、林内雨の質および量を明らかにすることは、森林生態系における物質循環過程の中の、水を媒体とした物質流入量を把握するとともに、酸性降水物が植生や土壌、物質循環過程に及ぼす影響を明らかにするための有効な手段となる。

上賀茂試験地は、京都市街地の北側に位置する森林である。都市生活に隣接する自然環境としての役割という点から、上賀茂試験地における降水や林内雨、森林植生などの継続的な観測が必要と考えられる。1999年からは湿性降水物の観測体制を整え、現在も継続して観測を行っている。上賀茂試験地では、1961年から1963年にかけて丸山ら (1965) によって、1963年から1964年には岩坪・堤 (1967) によって、1960年代初頭の連続した3年間に林外雨と林内雨の観測が実施されている。北米ではHubbard Brook 試験流域 (HBEF) で1963年から養分循環に関する研究が始められ、降水や渓流水の水質観測が継続して行われており (Likens and Bormann, 1995), 観測開始から30年間にわたる林外雨と渓流水中の塩基性カチオンと硝酸、硫酸の質的・量的な変動が明らかにされている (Likens *et al.*, 1996). 日本ではHBEFのような長期的な観測はもちろん、1960年代の観測例すら非常に少ない。したがって、1960年代初頭に上賀茂試験地で

行われた丸山ら (1965), 岩坪・堤 (1967) による観測は、約40年前の林外雨や林内雨の質および量を知る上で、大変に貴重なデータである。観測に35年間のブランクはあるものの、同じ試験地において行われている現在の観測と1960年代初頭の観測結果とを比較することで、いずれの観測についてもその価値を高めることができると考えられる。

本研究では、上賀茂試験地における降水のイオン濃度および流入量および、試験地面積の約60%を占めるヒノキが優占する天然生二次林の林内雨のイオン濃度および流入量を明らかにするとともに、窒素負荷の現状を把握するために、湿性降水物および林内雨の季節的な観測を行った。さらに、1961~1964年に観測された、林外雨と林内雨の硝酸態窒素とアンモニア態窒素の濃度および負荷量との比較を行った。

2. 方法

2.1. 調査地の概要

本研究は京都大学大学院農学研究科附属演習林上賀茂試験地 (東経 $135^\circ 45'$, 北緯 $35^\circ 04'$) にて行った。上賀茂試験地における1966年~1995年の30年間の年平均気温は 14.6°C , 年平均降水量は1585mmであった (京都大学農学部附属演習林, 1998). 上賀茂試験地の全面積の約60%を占める、ヒノキおよびアカマツに広葉樹が混交した天然生二次林を調査の対象とした。この天然生二次林は、かつてはアカマツ二次林であったと考えられるが、1970年以降のマツ枯れによって大半のアカマツが枯死したために、現在はヒノキが高木層を占めている。林内のヒノキの樹齢は75~125年、樹高は14~21mであった (柳本ら, 2001). この林分では、枯死したアカマツの伐倒とその一部の搬出を除いては、50年以上の間、管理施業はなされてこなかった。

試験地の南東に位置する、標高が200~208mの北向き斜面に林内雨の採取地点を設定した。面積は20m×20mとした。1999年に調査区内の樹木の胸高直径 (1 cm以上) を測定した。調査区内で見られた主な樹木は、針葉樹はヒノキ (*Chamaecyparis obtusa*), アカマツ (*Pinus densiflora*), 常緑広葉樹の中・低木種はヒサカキ (*Eurya japonica*), サカキ (*Cleyera japonica*), ヤブツバキ (*Camellia japonica*), 落葉広葉樹の高木種はアオハダ (*Ilex macropoda*), コシアブラ (*Acanthopanax sciadophylloides*), 落葉広葉樹の中・低木種はコバノミツバツツジ (*Rhododendron reticulatum*), タカノツメ (*Evodiopanax innovans*), ネジキ (*Lyonia ovalifolia*), リョウブ (*Clethra barvinervis*) などがあった。ヒノキ

表-1 立木密度 (DBH $\geq$ 1cm) および胸高断面積比率
Table 1. Stand density (DBH $\geq$ 1cm) and ratio of basal area

species	layer	stand density	ratio of basal area
		$N\ ha^{-1}$	%
<i>Chamaecyparis obtusa</i>		3100	85.8
<i>Pinus densiflora</i>		75	6.6
evergreen broad-leaved species	tree layer	0	0
	sub-tree layer and shrub layer*	3325	2.8
deciduous broad-leaved species	tree layer**	300	1.7
	sub-tree layer and shrub layer***	3775	3.1
total		10575	100

species

*: *Eurya japonica*, *Cleyera japonica*, and *Camellia japonica*

***Ilex macropoda* and *Acanthopanax sciadophylloides*

***: *Rhododendron reticulatum*, *Evodiopanax innovans*, *Lyonia ovalifolia*, and *Clethra barbinervis*

の平均胸高直径は10.6cmだった。立木密度と樹種別の胸高断面積比率を表-1に示す。

2.2. 試料の採取および分析

降水試料の採取は、試験地構内の気象観測用露場に設置した大気降水採取器 (US-410, 小笠原製作所製) を用いて、ほぼ一週間おきに行った。大気降水採取器の感雨センサーを用いて、湿性降水物のみを採取した。上賀茂試験地 (以下、上賀茂) における大気降水採取器を用いた湿性降水物の水質観測は、1996年7月から開始され、当初は一降雨ごとに観測が行われていたが、1999年1月から1週間ごとの観測体制となり、現在も継続されている。本報告では、1週間ごとの観測となった1999年1月から2001年12月までの3年間の結果についてまとめた。

林内雨は、口径18cmのポリエチレン製ロートを取り付けたポリエチレン製ボトルを調査区内に3個設置して、採取した。林内雨の回収は、2週間から4週間間隔で行った。林内雨の観測は2000年6月から開始した。なお、湿性降水物と林内雨の採取日については、林内雨の採取回数31回のうち2回は湿性降水物と同一の日だったが、それ以外は異なる日となった。

湿性降水物および林内雨については容量を現地で測定した後、一部をポリビンに入れて実験室に持ち帰り、pH (ガラス電極法) と電気伝導度 (EC) を測定した。残りの試料は4℃以下で冷蔵保存し、一部を高速液体クロマトグラフィ (LC-10A, 島津製作所製) を用いて主要無機イオン濃度の分析に供した。

湿性降水物および林内雨の年間平均イオン濃度を算出する際には、降水量または林内雨量で重み付けを行い、加重平均値を算出した。H⁺濃度は、濃度換算時に誤差が大きくなる可能性があるが、ガラス電極法で測定した

pHの値を用いて換算した。pHの年間平均値は、H⁺の年間加重平均濃度から算出した。イオン流入量は、イオン濃度と降水量または林内雨量を乗じて算出した。なお、湿性降水物の加重平均濃度とイオン流入量を算出する際には、試験地構内の気象観測用露場で転倒マス雨量計により記録した降水量のデータを用いた。年降水量は1999年、2000年、2001年でそれぞれ1589mm、1474mm、1343mmであった。林内雨は観測開始が2000年6月だったので、年間平均イオン濃度、年間イオン流入量の算出には2001年1月から12月に観測した試料を用いた。試料によって採取間隔が異なるため、各試料の観測期間中の降水量および林内雨量を採取間隔の日数で除した降水強度を算出した。

3. 結果

3.1. イオン濃度の季節変動と年変動

湿性降水物および林内雨の降雨強度、EC、pH、イオン濃度の季節変動を図-1に示す。湿性降水物、林内雨ともに、6月から10月にかけて降雨強度が大きくなった。湿性降水物は降雨強度とECが有意な負の相関 (-0.385 , $p < 0.01$) を示し、林内雨でも有意な負の相関が見られた (-0.574 , $p < 0.01$)。湿性降水物のpHは、1999年 (1年目) は4~6、2000年 (2年目) は4~7の範囲で変動したが、2001年 (3年目) は4~5と変動幅が狭まった。林内雨は、観測期間を通じて4~5の範囲で変動した。ECおよびイオン濃度は、湿性降水物より林内雨で高い値を示した。Cl⁻、Na⁺は、湿性降水物、林内雨ともに11月から3月にかけてピークがあった。湿性降水物のNO₃⁻、SO₄²⁻、NH₄⁺、Ca²⁺は、3月から5月にかけて高い値を示す傾向が見られた。K⁺は高い値を示す場合もあったが、低い値で変動した。Mg²⁺は11月か

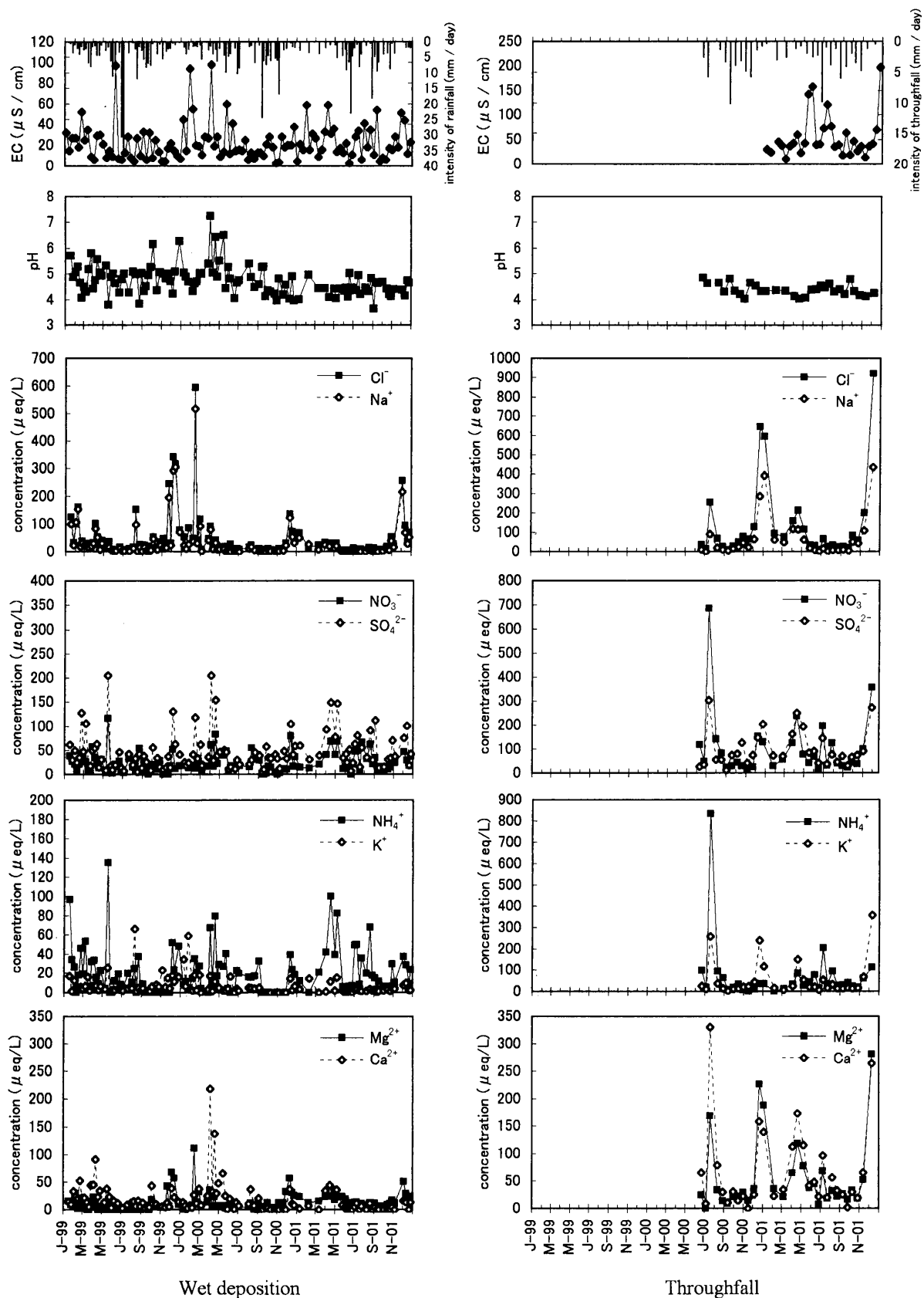


図-1 湿性降下物および林内雨の pH, EC, イオン濃度の季節変動

Figure 1. Seasonal variations of pH, EC, and concentrations of inorganic anions and cations in wet deposition and throughfall during the observation period.

ら1月に小さなピークがあった。林内雨は、2000年7月にほとんどのイオンで濃度が高くなったが、これは林内雨の降雨強度が0.04mmと非常に小さかった時だった。このときのpHとECは試料量のごく少量だったために、イオン分析を優先して欠測とした。林内雨では、 K^+ は11月から1月にかけて、また、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は11月から1月にかけてと3月から5月にかけてピークが見られた。

湿性降下物は3年間の全データを、林内雨は繰り返しを含む全データを、サンプリングした月を説明変数、ECやイオン濃度を目的変数として多重比較を行い、月や季節による違いと傾向を調べた。表-2に湿性降下物、表-3に林内雨の結果を示す。まず、湿性降下物について見てみる。 Cl^- は1, 2, 4, 11, 12月に、 Na^+ は11月から4月にかけて、有意に高かった ($p < 0.05$)。これらのイオンは、降雨強度が大きかった6, 7, 9月に最も低くなる傾向を示した。 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 Ca^{2+} は4月に最大となる傾向があり、中でも Ca^{2+} は、4月とそれ以外の月で有意な差があった ($p < 0.05$)。pH

が4月に5.2と、他の月と有意な違いはなかったが、12ヶ月のうちで唯一5以上の値を示した。次に林内雨について見てみると、ECは1, 4, 12月に有意に高く ($p < 0.05$)、また、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} は1月と12月に有意に高くなった ($p < 0.05$)。 SO_4^{2-} と Ca^{2+} は、1~5月、11, 12月および7月に有意に高かった ($p < 0.05$)。林内雨は湿性降下物と比べて、多重比較による月別の濃度の違いや変化の傾向が複雑になった。

湿性降下物および林内雨の年間加重平均イオン濃度を、表-4に示す。湿性降下物のpHは、1年目には4.7だったが、2年目には4.6、3年目には4.4に低下した。1年目、2年目、3年目と、観測年を目的変数としてTukey-KramerのHSD検定を行った結果、1年目、2年目よりも3年目で、有意に低かった ($p < 0.01$)。 Cl^- は1年目から3年目にかけて低下したが、 NO_3^- および SO_4^{2-} では高くなる傾向を示した。カチオンでは、 Na^+ は1年目から3年目にかけて低下したが、 NH_4^+ 、 Mg^{2+} および H^+ は高くなった。しかし、 H^+ 以外のイオンでは、

表-2 1999~2001年の湿性降下物の全データから算出したサンプリング月ごとの平均イオン濃度

Table 2. Means of ionic concentrations in wet deposition on basis of sampling month among pooled data from 1999 to 2001.

month	intensity of rainfall mm	EC $\mu S\ cm^{-1}$	pH	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	H^+
$\mu eq\ L^{-1}$												
Jan.	2.4 ^{ab}	22.0 ^{ab}	4.9	63.8 ^{abc}	21.4 ^{ab}	36.7 ^{ab}	39.6 ^{abc}	27.8 ^{ab}	20.4 ^a	9.4 ^b	8.3 ^b	0.03
Feb.	2.0 ^{ab}	34.6 ^{ab}	4.7	127.8 ^{ab}	21.0 ^{ab}	57.7 ^{ab}	115.9 ^{ab}	20.1 ^{ab}	8.3 ^{ab}	25.1 ^{ab}	22.6 ^b	0.03
Mar.	3.7 ^{ab}	19.0 ^{ab}	4.9	36.1 ^{bc}	22.4 ^{ab}	44.0 ^{ab}	28.2 ^{abc}	18.8 ^{ab}	6.4 ^{ab}	8.9 ^b	19.7 ^b	0.02
Apr.	2.7 ^{ab}	29.4 ^{ab}	5.2	43.7 ^{abc}	39.5 ^a	83.4 ^a	35.0 ^{abc}	39.4 ^a	7.1 ^{ab}	15.8 ^b	69.2 ^a	0.02
May	4.8 ^{ab}	23.8 ^{ab}	4.9	16.5 ^c	34.7 ^{ab}	59.5 ^{ab}	8.3 ^c	33.4 ^{ab}	6.1 ^{ab}	8.9 ^b	27.2 ^b	0.04
Jun.	9.2 ^a	13.5 ^b	4.5	8.5 ^c	15.8 ^{ab}	26.0 ^b	2.1 ^c	7.2 ^b	3.3 ^b	7.9 ^b	6.4 ^b	0.04
Jul.	8.8 ^{ab}	22.0 ^{ab}	4.6	8.7 ^c	32.4 ^{ab}	40.8 ^{ab}	1.8 ^c	26.7 ^{ab}	2.5 ^b	7.2 ^b	6.1 ^b	0.03
Aug.	4.3 ^{ab}	19.3 ^{ab}	4.8	25.9 ^{bc}	28.5 ^{ab}	33.5 ^{ab}	16.0 ^c	20.9 ^{ab}	9.2 ^{ab}	5.8 ^b	11.3 ^b	0.03
Sep.	7.9 ^{ab}	15.4 ^b	4.7	11.0 ^c	12.6 ^{ab}	30.3 ^{ab}	2.9 ^c	6.4 ^b	1.4 ^b	4.5 ^b	5.0 ^b	0.04
Oct.	3.9 ^{ab}	19.7 ^{ab}	4.5	20.1 ^c	13.5 ^{ab}	36.4 ^{ab}	12.8 ^c	4.3 ^b	3.0 ^b	8.5 ^b	5.9 ^b	0.05
Nov.	4.7 ^{ab}	17.1 ^{ab}	4.7	53.6 ^{abc}	8.4 ^b	26.0 ^{ab}	36.9 ^{abc}	1.3 ^b	6.6 ^{ab}	16.0 ^{ab}	3.8 ^b	0.03
Dec.	1.0 ^b	40.5 ^a	4.6	144.9 ^a	34.3 ^{ab}	67.8 ^{ab}	125.0 ^a	30.4 ^{ab}	9.2 ^{ab}	36.6 ^a	17.6 ^b	0.04

The values denoted by the different letters within each column are significantly different at $P < 0.05$ from Tukey - Kramer HSD test.

表-3 観測期間中の林内雨の全データから算出したサンプリング月ごとの平均イオン濃度

Table 3. Means of ionic concentrations in throughfall on basis of sampling month among pooled data during the observation period.

month	intensity of rainfall mm	EC $\mu S\ cm^{-1}$	pH	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	H^+
$\mu eq\ L^{-1}$												
Jan.	0.5 ^c	113.9 ^{ab}	4.5 ^{abcd}	485.3 ^{ab}	98.1 ^{ab}	150.4 ^{abc}	293.2 ^a	57.6 ^{ab}	116.4 ^{ab}	148.9 ^{ab}	114.9 ^{abcd}	36.6 ^{bc}
Feb.	3.0 ^{abc}	39.0 ^{cd}	4.4 ^{abcd}	92.0 ^c	29.6 ^{ab}	71.3 ^{abcd}	62.0 ^{cd}	0.0 ^{ab}	15.9 ^b	35.8 ^{bc}	22.5 ^{abcd}	44.8 ^{abc}
Mar.	2.6 ^{abc}	40.7 ^{cd}	4.3 ^{abcd}	75.0 ^c	55.2 ^{ab}	70.4 ^{abcd}	49.6 ^{cd}	12.0 ^{ab}	6.6 ^b	21.3 ^c	34.3 ^{abcd}	46.4 ^{abc}
Apr.	0.9 ^{bc}	97.0 ^{abc}	4.1 ^d	186.9 ^{bc}	181.3 ^{ab}	206.5 ^a	115.1 ^{bc}	58.4 ^{ab}	87.9 ^b	91.3 ^{bc}	143.5 ^{ab}	85.6 ^a
May	2.2 ^{abc}	56.2 ^{bcd}	4.3 ^{abcd}	75.0 ^c	60.2 ^{ab}	140.2 ^{abcd}	39.9 ^{cd}	35.7 ^{ab}	38.0 ^b	57.1 ^{bc}	78.7 ^{abcd}	63.6 ^{abc}
Jun.	4.9 ^{ab}	29.6 ^d	4.6 ^a	30.9 ^c	73.6 ^{ab}	39.9 ^d	9.7 ^{cd}	62.6 ^{ab}	16.4 ^b	35.2 ^c	45.4 ^{bcd}	27.8 ^c
Jul.	2.6 ^{abc}	35.8 ^d	4.6 ^{abc}	95.3 ^c	241.3 ^a	130.9 ^{abcd}	29.2 ^{cd}	255.0 ^a	91.0 ^b	67.5 ^{bc}	116.0 ^{abc}	27.5 ^c
Aug.	2.9 ^{abc}	39.1 ^d	4.4 ^{abcd}	37.6 ^c	97.8 ^{ab}	58.4 ^{cd}	11.5 ^{cd}	69.6 ^{ab}	25.1 ^b	25.1 ^c	49.9 ^{bcd}	39.8 ^{bc}
Sep.	5.0 ^a	24.4 ^d	4.6 ^{ab}	22.1 ^c	26.2 ^b	47.3 ^d	8.6 ^d	23.7 ^b	11.1 ^b	17.9 ^c	17.4 ^{bcd}	34.5 ^c
Oct.	4.0 ^{abc}	45.0 ^d	4.2 ^{bcd}	66.9 ^c	38.2 ^b	88.0 ^{bcd}	41.9 ^{cd}	20.5 ^b	16.9 ^b	25.4 ^c	21.4 ^{bcd}	68.4 ^{ab}
Nov.	3.4 ^{abc}	46.7 ^{cd}	4.4 ^{abcd}	130.5 ^c	56.3 ^{ab}	66.4 ^{bcd}	65.9 ^{cd}	28.9 ^{ab}	45.5 ^b	33.0 ^c	32.8 ^{bcd}	49.4 ^{abc}
Dec.	0.8 ^c	127.3 ^a	4.4 ^{abcd}	567.6 ^a	178.0 ^{ab}	166.2 ^{ab}	260.4 ^{ab}	51.2 ^{ab}	214.6 ^a	181.4 ^a	150.9 ^a	47.5 ^{abc}

The values denoted by the different letters within each column are significantly different at $P < 0.05$ from Tukey - Kramer HSD test.

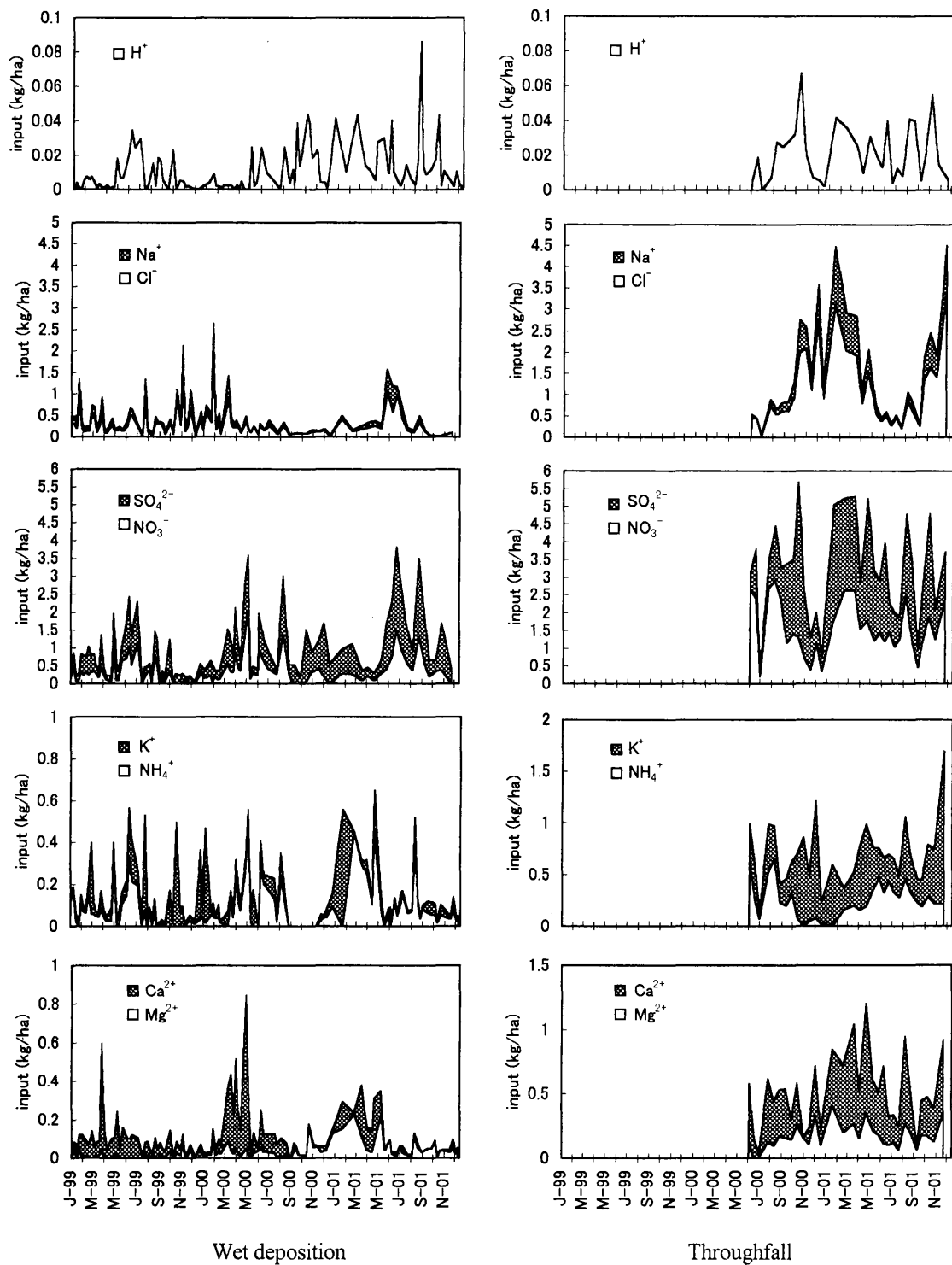


図-2 湿性降水物および林内雨のイオン流入量の季節変動

Figure 2. Seasonal variations of inputs of inorganic anions and cations in wet deposition and throughfall during the observation period.

年による有意な違いは見られなかった (Tukey-KramerのHSD検定, $p < 0.05$). H^+ は, 1年目と比べると, 3年目で有意な増加を示した (Tukey-KramerのHSD検定, $p < 0.05$). pHの場合とは異なり, H^+ で2年目と3年目の間に有意な差がなかったのは, pH値から換算する際の誤差の影響と考えられた.

2001年の年間林内雨量は913mmで, 降水量の68%だった. 2001年における林内雨の年間平均pHは4.3で, 林外雨よりも低かった. EC, 全てのイオンについて林外雨よりも濃度は高くなった.

3.2. イオン流入量の季節変動と年変動

湿性降水物および林内雨によるイオン流入量の季節変動を, 図-2に示す. 湿性降水物の H^+ は, 1999年の5月から10月にかけて大きな値を示したが, 2000年5月までは低い値で変動した. 2000年5月以降は変動幅が大きくなり, 月や季節による違いが明らかでなくなった. これは林内雨でも同じだった. Cl^- と Na^+ は, 湿性降水物, 林内雨ともに11月から4月にかけて高くなった. これらのイオンは, 湿性降水物では相関が0.90と有意に高く ($p < 0.01$), また降雨強度との関係も, Cl^- が0.63, Na^+ が0.71と高い相関を示した ($p < 0.01$). 林内雨では, Cl^- , Na^+ ともに降雨強度との有意な相関はなかったが, 2種のイオンの間には, 0.93と高い相関が見られた ($p < 0.01$). 湿性降水物の NO_3^- と SO_4^{2-} の間には, 0.79と

高い相関関係が見られ ($p < 0.01$), 3月から6月, 7月から9月に高い値を示す傾向があった. NH_4^+ は湿性降水物では3月から5月, 林内雨では7月から9月に高くなる傾向を示した. K^+ は湿性降水物では0.1kg ha⁻¹前後の低い値で変動し, 数回の観測時において高い値を示した. 林内雨では10月から12月にかけてピークを示し, このときには1 kg ha⁻¹を上回った. Ca^{2+} は湿性降水物で3月から5月に高くなり, 特に2000年には大きなピークを示した. 同様に林内雨でも3月から5月に最大となった. Mg^{2+} は湿性降水物では2000年11月から2001年5月まで大きくなったが, それ以外の期間は0.1 kg ha⁻¹未満の範囲で変動した.

年間イオン流入量を表-5に示す. 湿性降水物の Cl^- , Na^+ , K^+ は1年目から3年目にかけて減少した. 逆に1年目から3年目にかけて増加したのは, NO_3^- , SO_4^{2-} , NH_4^+ , Mg^{2+} , H^+ だった. 湿性降水物で見られた, 1年目から3年目にかけての, Cl^- , Na^+ , K^+ の低下と, NO_3^- , SO_4^{2-} , NH_4^+ , Mg^{2+} , H^+ の増加は, 年間加重平均濃度で見られた傾向と同じであった. 1年目, 2年目, 3年目と年ごとに湿性降水物の各イオンについてTukey-KramerのHSD検定を行った結果, 1年目と比べて3年目で有意な増加を示した ($p < 0.05$) のは, SO_4^{2-} , Mg^{2+} , H^+ だった. 林内雨では, H^+ 以外のイオンは, 湿性降水物よりも大きな流入量を示した.

表-4 湿性降水物および林内雨の年間加重平均イオン濃度

Table 4. Volume-weighted annual mean concentrations of inorganic anions and cations in wet deposition and throughfall.

sample	year	annual rainfall	pH	EC	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	H^+
		mm		$\mu S\ cm^{-1}$	$\mu eq\ L^{-1}$								
wet deposition	1999	1589	4.7	23.0	23.7	12.4	22.7	15.7	9.3	5.4	2.8	10.8	19.7
	2000	1474	4.6	22.2	18.9	16.1	31.7	10.9	10.4	3.7	7.3	13.6	26.2
	2001	1343	4.4	23.3	16.2	18.8	39.8	9.8	14.3	3.2	12.9	4.5	40.0
throughfall	2001	913	4.3	60.8	68.9	51.5	77.1	38.7	29.5	23.8	32.9	40.7	46.9

表-5 湿性降水物および林内雨による年間イオン流入量

Table 5. Annual inputs of inorganic anions and cations in wet deposition and throughfall.

sample	year	annual rainfall	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	H^+
		mm	$kg\ ha^{-1}\ yr^{-1}$								
wet deposition	1999	1589	13.3	12.2	17.3	5.7	2.7	3.3	0.5	3.4	0.3
	2000	1474	9.9	14.7	22.4	3.7	2.8	2.1	1.3	4.0	0.4
	2001	1343	7.7	15.7	25.7	3.0	3.5	1.7	2.1	1.2	0.5
throughfall	2001	913	22.3	29.1	33.8	8.1	4.9	8.5	3.7	7.4	0.4

3.3. イオン濃度と流入量の関係

表-6に、各イオンについて濃度と流入量の関係を示した。湿性降下物では、全てのイオンで有意な正の相関があり ($p < 0.01$)、濃度の上昇に伴い、流入量も増加することを示している。しかし林内雨では、濃度の上昇に伴い流入量も増加するという関係が見られたのは、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 H^+ だけであった。林内雨のその他のイオンでは有意な関係は見られず、濃度と流入量の間の関係はイオンによって異なった。

4. 考察

4.1. イオン濃度の季節による特徴

表2～3および図-1で示したように、湿性降下物、林内雨のイオン濃度は、イオンによってピークを示す月や季節が異なることが示された。湿性降下物、林内雨ともに、冬の季節風によって運ばれてきた、海塩の影響を強く受けていると考えられた。湿性降下物の Cl^- 、 Na^+ 濃度は、降雨強度が大きい6、7、9月に最も低くなることから、季節風の影響を受けない時期には、降雨量の増加に伴い希釈効果を受けていることが推察された。4月に湿性降下物の Ca^{2+} 濃度が、有意に高くなった原因は、晩冬から春にかけて黄土高原から飛散する黄砂エアロゾルによる影響と、推測される。黄砂は土壌起源のエアロゾルであり、Caが主要な成分である。国立環境研究所(2001)によれば、黄土粒子は酸性ガスを取り込む性質があること、黄砂エアロゾルは、その風送過程で人為由来の酸性ガス成分を表面補足することが、指摘されている。さらに、室内実験により、黄砂エアロゾルが人為起源系ガス成分(NO_2 、 SO_2 など)と反応して、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} を生成する触媒の効果を有すること、また、アンモニウム塩エアロゾルと反応することも、確認されている(国立環境研究所, 2001)。湿性降下物の NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 濃度が、 Ca^{2+} と同様に4月に大きくなった要因として、黄砂エアロゾルによる触媒的作用が生じた可能性が考えられる。黄砂エアロゾルは、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} の生成にも関与するが、酸の中和反応に寄与することも知られている。4月に湿性降下物のpHが5を上回る値を

示した(表-4)ことも、黄砂エアロゾルによる影響と考えられた。以上のことから、上賀茂の湿性降下物は、冬季には季節風に運ばれる海塩の影響を、さらに、4月に黄砂エアロゾルの影響を受けていることが推察された。

湿性降下物で、黄砂エアロゾルの影響を強く受けていると推察された NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} は、林内雨でも4月に高くなる傾向を示し、黄砂エアロゾルの影響を受けていることが示唆された。林内雨の K^+ 、 Mg^{2+} で、湿性降下物と比較して、大きな濃度の上昇が見られたことは、樹冠からの溶脱によって付加されているためと考えられた。林内雨は、乾性降下物が樹冠に沈着して洗脱される作用と、樹冠からの溶脱作用を受ける。さらに、葉や樹冠上での物質の保持や吸収といった作用について、以下に示すような報告がある。Louis *et al.* (2001)は、カナダの広葉樹林で湿性降下物に含まれる窒素が樹冠に保持されていること、窒素、リン、カリウムなどが葉で再吸収されていることを指摘した。Heinz and Arthur (1999)は、葉に沈着した NO_2 、 NH_3 ガスが、葉から吸収されることにより、根からの養分吸収が低下していることを報告している。無降雨期間や降雨強度といった降雨の特性が、林内雨の水質に影響することも知られており、Steven and Lin (1998)は、先行する無降雨期間の長さや林内雨のイオン流入量との間には有意な相関があること、樹冠の構造や種構成が、林内雨の水質に有意な違いを与えることも示している。また、降雨強度が大きいと森林への乾性沈着は小さくなるが、降雨強度が低いと森林へ乾性沈着する割合が増加するとの報告もある(Tørseth and Semb, 1998)。したがって、林内雨の月別の濃度の違いや変化の傾向が、湿性降下物よりも複雑になったのは、葉や樹冠上で生じる沈着、洗脱、溶脱、吸収などの作用、さらに、降水量、乾性降下物と湿性降下物の濃度および量、無降雨期間の長さなどのさまざまな要因が、複雑に関係して形成されるという林内雨の特性によるものといえる。表-6に示したように、林内雨の、 Cl^- 、 Na^+ 、 K^+ 、 H^+ 以外のイオンでは、イオン濃度と流入量に有意な相関が見られなかったことから、林内雨は、降雨強度、湿性降下物や乾性降下物の質と量、樹冠

表-6 観測期間中の全データを用いた湿性降下物と林内雨の各イオンの濃度と流入量の相関

Table 6. Correlations between ionic concentrations and inputs each ionic species in wet deposition and throughfall, pooled data from all samples during the observation period.

	n	Cl^-	NO_3^-	SO_4^{2-}	Na^+	NH_4^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	H^+
wet deposition	113	0.630 **	0.362 **	0.331 **	0.709 **	0.498 **	0.699 **	0.335 **	0.664 **	0.665 **
throughfall	31	0.563 **	-0.138 ns	-0.084 ns	0.481 **	-0.047 ns	0.563 **	-0.301 ns	0.093 ns	0.460 **

** : $p < 0.01$ from F -test

ns : not significantly different from F -test

上でのさまざまな反応が作用しあってイオン濃度と流入量が決定されていることが推察された。

4.2. 窒素負荷量：1961～1964年の観測データとの比較

1961～1964年と1999～2001年の上賀茂における湿性降水物、林外雨（バルク試料）およびヒノキ林内雨の窒素負荷量を表-7に示す。1961～1963年は丸山ら（1965）によって、1963～1964年は岩坪・堤（1967）によって観測された結果である。なお、丸山ら（1965）、岩坪・堤（1967）が観測を行ったヒノキ林は、当時、60～70年生で平均胸高直径7.6cm、樹高は約8mで、樹冠の閉鎖が不十分であったとされる。これらの値は、柳本ら（2002）により推定された、1960年前半の樹高（5～11m）および林齢（40～90年）の範囲内に入った。このことから、観測地点は異なるものの、上賀茂の面積の約60%を占める、同一のヒノキ林分内で実施されたと推測される。なお、林外雨の観測地点は、丸山ら（1965）、岩坪・堤（1967）ともに、本研究と同じ地点であった。丸山ら（1965）、岩坪・堤（1967）の採取試料は、雨樋を用いた一括採取試料（バルク試料）であり、化学分析には比色法を用いている。本研究では分別採取法を用いた湿性降水物試料で、分析方法もイオンクロマト法と、採取、分析方法ともに異なる。バルク試料は乾性降水物と湿性降水物のいずれも含むが、本研究で採取したのは湿性降水物のみで、乾性降水物については評価できない。バルク試料には乾性降水物も含まれるが、その寄与が一定でないために、バルク試料に占める湿性降水物と乾性降水物の割合が必ずしも一定になるわけではない。

Ferm and Hultberg（1999）は、代理表面法を用いて乾性降水物の推定を行った上で、乾性降水物を、林内雨と湿性降水物の差であると仮定した場合との比較を行っているが、イオンによってそれぞれの推定値に違いが見られ、これを単純に適用するには疑問が残る。Raffaella *et al.*（2000）は、乾性沈着の総沈着量（湿性沈着と乾性沈着の和）に占める割合は、 NH_4^+ 、 NO_3^- ともに3割前後と報告し、またSirois *et al.*（2001）は、窒素負荷量に占める湿性沈着の割合はおよそ2/3、すなわち乾性沈着の総沈着量に占める割合が1/3と報告している。一方で、Eugster *et al.*（1998）は、ガスによる乾性沈着は総窒素負荷量（ガス、湿性降水物、エアロゾル粒子による沈着量の総和）の60～82%と報告しており、これにエアロゾル粒子を合わせた乾性沈着量で見ると、乾性沈着の割合はさらに大きくなる。乾性降水物の量や割合については、測定法および推定法によって異なってくるために、正確に把握するのが困難なのが現状である。したがって、単純に比較するには問題もあるが、丸山ら（1965）、岩坪・堤（1967）の結果は、1960年代前半の上賀茂における状況を示しているものであり、本研究との比較を行うことで、約40年が経過した中での、おおよそその変化の傾向を把握できると考えられた。林内雨については、本研究と丸山ら（1965）、岩坪・堤（1967）では、採取器具がロートと雨樋で異なるものの、いずれもバルク試料なので比較するのに問題はないが、林齢による樹冠の状態の違いについての考慮が必要と考えられる。

1961～1964年のバルク試料、林内雨の硝酸態窒素負荷量（丸山ら、1965、岩坪・堤、1967）は、それぞれ1.4～

表-7 上賀茂における湿性降水物、林外雨（バルク試料）、ヒノキ林内雨による年間窒素負荷量
Table 7. Annual nitrogen inputs of wet deposition, bulk precipitation and throughfall at *Chamaecyparis obtusa* stand in Kamigamo experimental forest.

sample type	period	mean annual precipitation	NO ₃ ⁻ -N	NH ₄ ⁺ -N	N	reference
			(a)	(b)	(a) + (b)	
		mm	kg-N ha ⁻¹ yr ⁻¹			
wet deposition	1999	1589	2.8	2.1	4.8	this study
	2000	1474	3.3	2.2	5.5	this study
	2001	1343	3.5	2.7	6.2	this study
	1999-2001	1468	3.2	2.3	5.5	this study
bulk deposition	1961-1962	1779	2.3	4.4	6.7	13
	1962-1963	1693	2.3	3.8	6.1	13
	1963-1964	1793	1.4	2.1	3.5	7
throughfall	1961-1962	-	2.5	6.5	9.0	13
	1962-1963	-	2.7	4.7	7.4	13
	1963-1964	1231	1.9	4.4	6.3	7
	2001	913	6.6	3.8	10.4	this study

- : no available data

2.3, 1.9~2.7kg-N ha⁻¹ yr⁻¹で, 1999~2001年の湿性降下物による負荷量 (2.8~3.5kg-N ha⁻¹ yr⁻¹) よりも低かった。乾性降下物を含んでいない湿性降下物だけで, バルク試料, 林内雨による負荷量を上回ったことから, 硝酸態窒素の負荷量がおよそ40年間で大きく増加したことがうかがえる。アンモニア態窒素は, 1960年代のバルク試料よりも1999~2001年の湿性降下物で低い傾向を示した。1960年代のバルク試料では, アンモニア態窒素負荷量が硝酸態窒素負荷量よりも大きかったが, 1999~2001年の湿性降下物ではアンモニア:硝酸比が逆転して, 硝酸態窒素がアンモニア態窒素を上回った。林内雨のアンモニア態窒素負荷量は, 1960年代と比べて, 2001年で1.1~2.7kg-N ha⁻¹ yr⁻¹低かったが, 硝酸態窒素は2001年で1960年代よりも3.9~4.7kg-N ha⁻¹ yr⁻¹大きく, 2倍以上の増加を示した。林内雨でも, アンモニア:硝酸比が1960年代と2001年とで逆転し, 硝酸態窒素>アンモニア態窒素となった。1963~1964年のバルク試料のNO₃⁻, NH₄⁺の年平均濃度はそれぞれ5.7 μeq L⁻¹, 8.6 μeq L⁻¹ (岩坪・堤, 1967) だったが, 1999~2001年の湿性降下物ではそれぞれ12.4~18.8 μeq L⁻¹, 9.3~14.3 μeq L⁻¹と, NO₃⁻, NH₄⁺ともに湿性降下物でバルク試料の濃度を上回った。また, 林内雨のNO₃⁻, NH₄⁺の濃度の変化は, 1963~1964年の年平均濃度がそれぞれ10.7 μeq L⁻¹, 25.7 μeq L⁻¹ (岩坪・堤, 1967) で, 2001年ではそれぞれ4.8倍 (51.5 μeq L⁻¹), 1.2倍 (29.5 μeq L⁻¹) の上昇を示した。さらに, NO₃⁻濃度は, 2001年の湿性降下物で1960年代の林内雨よりも高くなった。1960年代には, バルク試料, 林内雨ともにNH₄⁺濃度がNO₃⁻濃度よりも高かったが, 本研究では湿性降下物, 林内雨のいずれも, NO₃⁻濃度がNH₄⁺濃度よりも高くなり, 濃度においてもアンモニア:硝酸比の逆転が見られた。1960年代からの約40年間で, 降雨のNO₃⁻濃度の上昇に伴い, 湿性降下物および林内雨の硝酸態窒素負荷量が増大していることが示された。

1960年代前半にはヒノキ林分は平均胸高直径7.6cm, 樹高8mで樹冠の閉鎖は不十分だった (丸山ら, 1965) が, 現在ではヒノキ林分の樹冠は閉鎖し, 胸高直径, 樹高もそれぞれ10.6cm, 約14mと大きくなっている。1960年代初頭の報告 (丸山ら, 1965; 岩坪・堤, 1967) には, 当時の林分の葉面積指数についての記述がないので, 具体的な数値を用いた比較ができないが, 約40年間で樹木および林分が成長して, ヒノキ樹冠による乾性降下物の捕捉率が大きくなったことも, 林内雨の硝酸態窒素負荷量が増大した要因の一つと推察される。アンモニア態窒素負荷量の減少については, 林内雨のNH₄⁺濃度は1.2倍の上昇を示したが, 林内雨量が2001年では1963

~1964年の74%と小さかったために, 結果として相殺された形となったと考えられる。しかし, 硝酸態窒素と差はあるにしても, アンモニア態窒素でも, ヒノキ樹冠の成長により乾性降下物の捕捉率が増大していると推測される。また, 2001年の林内雨の各試料についてのNH₄⁺の濃度と降水量の間には明瞭な関係はなく (表-6), イオン濃度が高いと負荷量が大きくなるという関係は見られなかった。2001年の林内雨のNH₄⁺濃度は, 1960年代の1.2倍と, NO₃⁻よりも濃度の上昇の割合は小さかったが, 湿性降下物のNH₄⁺濃度は, 1960年代のバルク試料のそれより大きくなっている。これらのことから, 実際はアンモニア態窒素の樹冠への沈着量は増加しているものの, 樹冠上でのNH₄⁺の吸収といった, 林内雨による負荷量を減じる作用が生じていた可能性もあると考えられる。本報告では林内雨については1年分の結果しかないので, 今後もアンモニア態窒素の変動について観測を継続していく必要があるだろう。

硝酸態窒素とアンモニア態窒素を合わせた窒素負荷量は, 1961~1964年のバルク試料で3.5~6.7kg-N ha⁻¹ yr⁻¹, 1999~2001年の湿性降下物で4.8~6.2kg-N ha⁻¹ yr⁻¹と, 試料タイプの違いに関わらず, ほぼ同じであった。Raffaella *et al.* (2000) およびSirois *et al.* (2001) の報告にならい, 総沈着量に占める湿性沈着と乾性沈着の比率を7:3と仮定した場合には, 乾性沈着による窒素負荷量は2.1~2.7kg-N ha⁻¹ yr⁻¹と算出される。これを湿性降下物による負荷量と足し合わせた窒素負荷量は6.9~8.9kg-N ha⁻¹ yr⁻¹となり, 1960年代のバルク試料による負荷量を上回った。窒素負荷量, 特に硝酸態窒素の負荷量が増大していることは明らかと考えられた。林内雨では, 2001年の窒素負荷量は1960年代よりも大きく, 1.2~1.7倍の増加を示した。アンモニア態窒素が樹冠上で吸収されている可能性も考えられるが, この増加は樹冠による乾性降下物の捕捉率の増大, 湿性降下物および乾性降下物による硝酸態窒素負荷量の増大によるものと考えられる。

5. おわりに

3年間の湿性降下物, 1年間の林内雨におけるイオン濃度および流入量の観測を行った。3年間で湿性降下物のpHが有意に低下し ($p < 0.01$), SO₄²⁻, Mg²⁺, H⁺の流入量は有意な増加を示した ($p < 0.05$)。上賀茂の湿性降下物, 林内雨のイオン濃度は, 冬季には季節風の影響を, 4月には黄砂エアロゾルによる影響を受けていることが示された。

1999~2001年の湿性降下物による窒素負荷量は,

1960年代のバルク試料による窒素負荷量に相当し、また林内雨による窒素負荷量は1960年代よりも大きかった。1999～2001年の湿性降水物の NO_3^- 濃度および負荷量は、1960年代のバルク試料および林内雨の NO_3^- 濃度、負荷量をともに上回り、降雨の NO_3^- 濃度の上昇に伴って負荷量も増大していることが示唆された。

1960年代前半の結果との比較を行ったことで、過去の貴重なデータを活用することや、長期観測の重要性について示すことができたと考える。今後、安定かつ持続的な観測を長期間にわたって実施し、得られたデータを広く活用するためのデータベースの構築といった体制、基盤作りが望まれる。

謝辞

天然生二次林の調査区の設定に際し、京都大学大学院農学研究科附属演習林職員の光枝和夫氏、平井岳志氏、橋田理也子氏、柳本順氏にご尽力いただいた。本研究の一部は科学研究費補助金（課題番号 11660149）および、河川環境管理財団の河川整備基金助成事業・助成金により行った。ここに記して感謝の意を表す。

引用文献

- 1) Eugster W., Perego S., Wanner H., Leuenberger A., Liechti M., Reinhardt M., Geissbühler P., Gempeler M. and Schenk J. (1998) Spatial variation in annual nitrogen deposition in a rural region in Switzerland. *Environ. Pollut.* 102(S1): 327-335
- 2) Ferm M., and Hultberg H. (1999) Dry deposition and internal circulation of nitrogen, sulphur and base cations to a coniferous forest. *Atmos. Environ.* 33: 4421-4430
- 3) Fujita S., Takahashi A., Hayami H., and Sakurai T. (2001) Long-term trends in the chemical composition of precipitation over western Japan. *Water Air Soil Pollut.* 130: 415-420
- 4) Galloway J. N. (1995) Acidic deposition: perspectives in the time and space. *Water Air Soil Pollut.* 85: 15-24
- 5) Heinz R., and Arthur G. (1999) Consequence of N deposition to forest ecosystems: Recent results and future research needs. *Water Air Soil Pollut.* 116(1-2): 47-64
- 6) 稲垣善之 (2001) 木材の初期分解における窒素負荷の影響. *森林応用研究*. 10(1). 43-50
- 7) 岩坪五郎・堤利夫 (1967) 森林内外の降水中の養分量について (第2報). *京大演報*. 39. 110-124
- 8) 国立環境研究所 (2001) 大気エアロゾルの計測手法とその環境影響評価手法に関する研究. 国立環境研究所特別研究報告 (開発途上国環境技術共同研究, 平成 8～12年度). SR-43-2001. 59pp.
- 9) 京都大学農学部附属演習林 (1998) 演習林気象報告 (第12回). 117pp.
- 10) Likens G.E., and Bormann F. H. (1995) *Biogeochemistry of a forested ecosystem*, 2nd ed. 159pp, Springer-Verlag. New York
- 11) Likens G.E., Driscoll C. T., and Buso D. C. (1996) Long-term effects of acid rain: response and recovery of a forest ecosystem. *Science*. 272: 244-246
- 12) Louis D., Rock O., Claude C., and Daniel H. (2001) Seasonal nutrient transfers by foliar resorption, leaching, and litter fall in a northern hardwood forest at Lake Clair Watershed, Quebec, Canada. *Can. J. For. Res.* 31(2): 333-344
- 13) 丸山明雄・岩坪五郎・堤利夫 (1965) 森林内外の降水中の養分量について (第1報). *京大演報*. 36. 25-39
- 14) Ohnishi H., and Mitchell M. J. (1997) Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds. *Ecol. Appl.* 7(2):391-401
- 15) Raffaella B., Laura G., and Gianni T. (2000) Wet and dry atmospheric deposition at prealpine and alpine sites in northern Italy. *Atmos. Environ.* 34: 1455-1470
- 16) Shibata H., Kuraji K., Toda H., and Sasa K. (2001) Regional comparison of nitrogen export to Japanese forest streams. *TheScientificWorld*. 1(S2): 572-580
- 17) Sirois A., Vet R., and MacTavish D. (2001) Atmospheric deposition to the Turkey Lakes Watershed: temporal variations and characteristics. *Ecosystems*. 4: 503-513
- 18) Steven H. P., and Lin T.-C. (1998) Throughfall chemistry of an ecotonal forest on the edge of the Great Plains. *Can. J. For. Res.* 28(10): 1456-1463
- 19) Tørseth K., and Semb A. (1998) Deposition of nitrogen and other major inorganic compounds in Norway, 1992-1996. *Environ. Pollut.* 102(S1): 299-304
- 20) 柳本順・柴田泰征・平井岳志・橋田理也子・中川智之・柴田昌三 (2002) 上賀茂試験地における天然生ヒノキ林の立木幹材積表の作成とその成長過程. 京都大学大学院農学研究科附属演習林試験研究年報2002. 9-17