

日本の窒素沈着量の長期変動 (1977~2018 年)

徳地 直子^{*、1}・岩崎 綾^{2、9}・山口 高志³・久恒 邦裕⁴・中川 光⁵・
家合 浩明⁶・牧野 奏佳香^{7、10}・村野 健太郎⁸

日本の窒素沈着量を長期的に把握するため、全国環境研協議会、環境省（庁）、森林総合研究所、気象庁によるバルクあるいは窒素湿性・乾性沈着量を状態空間モデルを用いて解析した。窒素湿性沈着量は 1988 年には全国の中央推定値が 6.0 kg N ha^{-1} ($n=24$)、2000 年には 7.6 kg N ha^{-1} ($n=92$) に増加、2010 年の 7.6 kg N ha^{-1} ($n=82$) まではほぼ横ばい、その後減少に転じ、2018 年には 6.2 kg N ha^{-1} ($n=76$) になった。状態空間モデルにより窒素湿性沈着量の中央推定値が、東部日本では 2004 年まで、全国と日本海側では 2012 年まで増加し、その後減少する傾向が示された。窒素乾性沈着は 2003~2018 年に継続的に観測された 7 地点で年平均 $6.0 \pm 0.1 \text{ kg N ha}^{-1}$ であり、湿性沈着と乾性沈着を合わせた窒素総沈着量は $11.5 \pm 1.6 \text{ kg N ha}^{-1}$ 、乾性沈着の割合は 0.41~0.61 であった。窒素累積沈着量は過去 30 年間で 300 kg N ha^{-1} を上回ったと推定された。

キーワード：窒素湿性・乾性沈着、長期変動、状態空間モデル、森林生態系、窒素飽和、モニタリング調査

Naoko Tokuchi^{*,1}, Aya Iwasaki^{2,9}, Takashi Yamaguchi³, Kunihiro Hisatsune⁴, Hikaru Nakagawa⁵, Hiroaki Yago⁶, Soyoka Makino^{7,10}, Kentaro Murano⁸ (2023) Analysis of Long-term Variations of Nitrogen Deposition in Japan (1977–2018). J Jpn For Soc 105: 199–208 To clarify the long-term trend of nitrogen (N) deposition, the existing monitoring data was analyzed at the regional and national level from 1976 to 2018. We used the data of annual N depositions from the National Institute for Environmental Studies, the Ministry of the Environment, the Forestry and Forest Products Research Institute, and the Japan Meteorological Agency. Annual median of national N wet deposition was 6.0 kg N ha^{-1} in 1988 ($n=24$) and increased to 7.6 kg N ha^{-1} in 2000 ($n=92$), then it was 7.6 kg N ha^{-1} in 2010 ($n=82$). In 2018 N wet deposition decreased to 6.2 kg N ha^{-1} ($n=76$). The state space model demonstrated that N wet deposition significantly increased, after which tended to decrease at Eastern Japan from 2004, at the Japan Sea area, and in the nation from 2012. Nitrogen dry deposition averaged $6.0 \pm 0.1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($n=109$), total N deposition; the sum of wet and dry deposition, was $11.5 \pm 1.6 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$, N dry deposition ratio ranged from 0.41 to 0.61 during 2003–2018 based on the results of seven stations. Cumulative N deposition was estimated to have exceeded 300 kg N ha^{-1} over the past 30 years.

Key words: nitrogen wet/dry deposition, long-term variation, state space model, forest ecosystem, N saturation, monitoring

I. は じ め に

産業革命以降、ハーバー・ボッシュ法の普及によって、地球上で生物が利用可能なアンモニウムイオン（以下、 NH_4^+ ）や硝酸イオン（以下、 NO_3^- ）のような窒素（反応性窒素）の年間供給量が増加した。その結果、反応性窒素量は産業革命以前（1830 年ごろまで）の 2 倍に（Schlesinger 2009）、人為的な発生源からの窒素沈着量は、過去のレベ

ルに比べてほぼ 3 倍以上（Fowler *et al.* 2013；Kanakidou *et al.* 2016）になった。反応性窒素は大気から地球上のあらゆる生態系に沈着されている（Galloway *et al.* 2004）。反応性窒素は、大気中では光化学オキシダント、微小粒子状物質（ $\text{PM}_{2.5}$ ）、温室効果気体の存在量などに影響し、過剰に沈着された場合は森林生態系では植物の成長や生物多様性を低下させ（Baron *et al.* 2014；Bobbink *et al.* 2010）、分解などを通じて炭素循環にも影響をおよぼす（Janssens *et al.*

*連絡先著者（Corresponding author）E-mail: tokuchi.naoko.5r@kyoto-u.ac.jp  <https://orcid.org/0000-0001-5508-5951>

¹ 京都大学フィールド科学教育研究センター 〒606-8502 京都府京都市左京区北白川追分町（Field Science Education and Research Center, Kyoto University, Kitashirakawa-Oiwake cho, Sakyo-ku, Kyoto, Kyoto 606-8502, Japan）

² 沖縄県衛生環境研究所 〒904-2241 沖縄県うるま市市兼箇段 17-1（Okinawa Prefectural Institute of Health and Environment, 17-1 Aza Kanekadan, Uruma, Okinawa 904-2241, Japan）

³ 北海道立総合研究機構エネルギー・環境・地質研究所 〒060-0819 北海道札幌市北区北 19 条西 12 丁目（Research Institute of Energy, Environment and Geology, Hokkaido Research Organization, Kita 19, Nishi 12, Kita-ku, Sapporo, Hokkaido 060-0819, Japan）

⁴ 名古屋市環境科学調査センター 〒457-0841 愛知県名古屋市南区豊田 5-16-8（Nagoya City Institute of Environmental Sciences, 5-16-8 Toyoda, Minami-ku, Nagoya, Aichi 463-8585, Japan）

⁵ 京都大学東南アジア地域研究研究所 〒606-8304 京都府京都市左京区吉田下阿達町 46（Center for Southeast Asian Studies, Kyoto University, 46 Yoshida Shimoadachi cho, Sakyo-ku, Kyoto, Kyoto 606-8501, Japan）

⁶ 新潟県保健環境科学研究所 〒959-0291 新潟県燕市吉田東栄町 8-13（Niigata Prefectural Environment Science and Health Center, 8-13 Yoshida Higashisakaemachi, Tsubame, Niigata 959-0291, Japan）

⁷ 京都大学大学院農学研究科 〒606-8502 京都府京都市左京区北白川追分町（Graduate School of Agriculture, Kyoto University, Kitashirakawa-Oiwake cho, Sakyo-ku, Kyoto, Kyoto 606-8502, Japan）

⁸ 京都大学地球環境学堂 〒606-8501 京都府京都市左京区吉田本町（Graduate School of Human and Environmental Studies, Kyoto University, Yoshidahonmachi, Sakyo-ku, Kyoto, Kyoto 606-8501, Japan）

⁹ 沖縄県工業技術センター 〒904-2234 沖縄県うるま市州崎 12-2（Okinawa Industrial Technology Center, 12-2 Suzaki, Uruma, Okinawa 904-2234, Japan）

¹⁰ 現在：総合地球環境学研究所 〒603-8047 京都府京都市北区上賀茂本山 457-4（Present address: Research Institute for Humanity and Nature, 457-4 Motoyama, Kamigamo, Kita-ku, Kyoto, Kyoto 603-8047, Japan）
（2022 年 10 月 17 日受付；2023 年 4 月 17 日受理；2023 年 6 月 1 日発行）

©2023 一般社団法人日本森林学会：この著作はクリエイティブ・コモンズのライセンス CC BY-NC-ND（引用を表示し、改変せず、非営利目的に限定）の条件の元で再配布・二次利用が可能なオープンアクセスです。 <https://creativecommons.org/licenses/by-nc-nd/4.0/deed.ja>

2010)。さらに、森林生態系が窒素飽和 (Aber *et al.* 1998) に至ると、その影響は森林にとどまらず、沈着された窒素は河川から流出し、沿岸域での富栄養化による赤潮や底層の貧酸素化などの影響を引き起こす。気候変動や生物多様性の低下など人為によるさまざまな環境変動の中でも窒素循環の改変は大きく、すでに不可逆的な閾値とされるプラネタリーバウンダリー (planetary boundary) を超えていることが指摘され (Rockström *et al.* 2009)、気候変動のもとで炭素循環との相互作用や生物多様性へのさらなる影響が懸念されており (Greaver *et al.* 2016)、窒素循環機構の解明は急務である。

我が国では1960年代には火力発電所や石油化学コンビナートなどの建設により大気汚染が進み、ぜんそくなどの人体被害が発生して大きな公害問題となった。1970年11月末に開かれた臨時国会 (第64回国会) は、当時の公害対策を求める世論、社会的関心の高さに応えて公害問題に関する集中的な討議が行われたことから「公害国会」と呼ばれた。この中で大気汚染対策を進めることが決議され、官民一体の大気汚染対策への取り組みが本格的に進められた。当初この取り組みは硫黄酸化物 (以下、 SO_x) 対策に重点が置かれたが、1970年の東京都での光化学スモッグの発生を受けて、1973年には二酸化窒素 (以下、 NO_2) に対する環境基準が制定され、窒素酸化物 (以下、 NO_x) 対策として工場・火力発電への脱硝装置の設置、「昭和53年排出ガス規制」への対応のため乗用車の三元触媒の採用などが進められた。環境省の一酸化窒素、二酸化窒素モニタリング結果によると、大気中 NO_x 濃度は1970年代当初は30 ppbv以上であったのが、1980年には20 ppbv以下になった (環境省 2021a)。その後、粒子状物質対策に導かれての高性能触媒によるディーゼル排ガス対策が NO_x 削減にも寄与した。このため現在の大気中 NO_x 濃度は一般環境大気測定局では10 ppbv以下である (環境省 2021b)。

このように1980~2014年頃には日本国内の窒素排出量は減少し (大原・黒川 2018)、国内排出由来の沈着量も1980年代以降は以前より減少した地域もあると考えられる (徳地ら 2021)。しかし、2000年代前後から中国からの越境輸送が増加し (Okamoto *et al.* 2018)、窒素湿性沈着量は有意に増加した (Morino *et al.* 2011)。そして2000年代後半より中国の環境政策の結果、周辺地域への影響も低下したと考えられている (Duan *et al.* 2016)。一方、2014年にはインドにおける窒素排出量はヨーロッパ全体と同程度となりつつあり (Miyazaki *et al.* 2017)、今後も発展途上国、特に東アジアで排出量が増加することが予想され、越境輸送などを通じて地球規模での影響が懸念されている。加えて、沈着される窒素の形態についても、北米では SO_x 排出量の減少から硫酸イオン (以下、 SO_4^{2-}) のカウンターイオンとして長距離輸送されていた NH_4^+ の挙動が変化していることが報告されており (Butler *et al.* 2016)、我が国でも動向が注目されている (野口・山口 2019)。

日本国内や中国などでの窒素排出量が大きく変化した1990年以降、おもに窒素湿性沈着量については、大都市圏近郊を中心に検討された (環境省 2021b)、関東・中部

地域では森林に対する窒素沈着の評価も行われている (伊藤ら 2004)。加えて、関東圏以外にも越境大気汚染の影響が強いとされる日本海側 (牧野ら 2017; 大浦ら 2006) の調査は、環境省 (あるいは庁、以下、環境省) や全国環境研協議会 (以下、全環研) のそれぞれで評価が行われている (友寄ら 2009)。しかし、その他の地域や全国的な傾向について長期的に検討された例は多くない (Ban *et al.* 2016)。

窒素沈着の生態系への影響は長期にわたる蓄積によるところが大きく (de Schrijver *et al.* 2011)、沈着量の分布とその長期傾向を知ることは非常に重要である。特に多くの場合、施肥などが行われない森林域において窒素沈着は重要な系外からの窒素源である。また、沈着は湿性沈着と乾性沈着でもたらされるが、特に乾性沈着に関しては測定地点数が湿性沈着に比べて少ないことや、樹冠の凹凸が大きく地形が複雑な森林では乾性沈着の推定がより困難であること (Weathers *et al.* 2006) などさまざまな課題も存在する。しかし、窒素乾性沈着量が窒素総沈着量の3割程度を占めること (野口・山口 2010) が報告されており、窒素の総沈着量の検討には不可欠だが、乾性沈着量を含んだ総沈着量の長期の変動が示されたものは少ない。

そこで本論文では、我が国における窒素沈着量の長期変動傾向を明らかにし、窒素累積沈着量を推定することを目的とした。ここではまず窒素沈着として長期の情報がある湿性沈着量の経年変動を整理し、空間的・定量的に、そしてその形態を示した。同一地点での長期観測は限られているため地域ごとにとりまとめ、観測期間の異なる時系列データを状態空間モデルによって解析した。これにより近年までに大気から沈着された窒素湿性沈着量について地域および全国の長期傾向を読み解いた。次いで、2000年以降測定が始められた窒素乾性沈着量についても概観し、湿性沈着量と乾性沈着を合わせた窒素総沈着量を推定し、長期の変動や生態系への影響について考察を加えた。

II. 方 法

1. 使用したデータ

本論文では、沈着する窒素全体の中で大きな比重を占めると推察される NO_3^- と NH_4^+ を対象とした (以下、 NO_3^- と NH_4^+ を合算したものを窒素と記す)。用いたデータについてはJ-Stage電子付録付表-1にまとめた。主なデータは我が国を代表する長期モニタリング調査を行っている環境省と全環研によるものである。環境省では国際的・全国的見地から遠隔地等における酸性雨原因物質の長距離輸送の把握などを目的として、1983年に都市地域・田園地域・遠隔地域・生態系地域といった多様な環境で第1次酸性雨対策調査を開始し、酸性雨モニタリングに関するデータベースを公開している (日本環境衛生センター酸性雨研究センター 2004; 環境省 2021b)。しかし、第1次酸性雨対策調査は測定項目などから試行的なものが含まれていると考えられたため、第2次酸性雨対策調査まで継続された地点のみを対象とした。一方、地方公共団体の環境研究所を会員とする全環研における調査では、地域の環境保全の見

地から都市域及び田園地域等における酸性降下物の評価・解析に重点がおかれ、都道府県での調査地点が1地点の場合は原則として都市域で実施し、複数地点の場合は都市域および都市域から20～30 km離れた地点および地方に特有の地点で、1991年から環境省・国立環境研究所・酸性雨研究センター（現アジア大気汚染研究センター）の協力のもと調査を開始し、こちらもデータが公開されている（全国環境研協議会 2021）。それぞれの機関で調査の目的が異なり、全環研の観測はおもに都市域で行われ、環境省は都市以外での比重が高い。そのため全国平均値は全環研で高くなる傾向にあるが（野口・山口 2010）、一方で両機関の測定は相補的ともいえるため、両データセットから年間の窒素沈着量を用いた。さらに、森林総合研究所（2021、以下、森林総研）および気象庁による観測データ（気象庁 2021a）を加えた。

2. 窒素沈着物の採取および分析方法

環境省、全環研および森林総研のデータについて、沈着物の採取および分析方法と精度管理について表-1にまとめた。大気降下物は、環境省では1987年まで常時開口した容器で沈着物が採取され（以下、バルクと記す）、それ以降はいずれの観測も降水時開放型捕集装置により湿性沈着のみが採取されている。そこでバルク測定値および湿性沈着量を湿性沈着量とした。

乾性沈着量は大気濃度と基準高さにおける沈着速度から求められ（飯島ら 2020）、大気濃度については各機関で2000年ごろから測定が開始されたものの調査地点は湿性沈着ほど多くない。さらに、乾性沈着量の推定手法は現在も改良が加えられ、量として公表されているデータも少ない。そのため乾性沈着量は、2003～2018年の値が公表されている全環研での調査を対象とした（J-Stage 電子付録付表-1）。長期変動の解析には、そのうちの7地点（札幌北・新潟曽和・加須・豊橋・神戸須磨・太宰府・辺戸岬）のデー

タを用いた。乾性沈着はガス状・粒子状の測定がなされているが、ここではガス状 HNO_3 と粒子状 NO_3^- を合わせたものを乾性沈着の酸化態窒素成分、ガス状 NH_3 と粒子状 NH_4^+ を合わせたものを乾性沈着の還元態窒素成分とした。大気濃度の測定のためのフィルターパック法、乾性沈着量の推定方法については飯島ら（2020）などを参照されたい。また、湿性沈着量と乾性沈着量をあわせたものを総沈着量とした。

長期にわたる調査であるので、いずれの調査でも期間中に分析方法が更新されている（表-1）。方法については変遷があるものの精度管理がなされているので（例えば、岩崎ら 2018）、ここでは分析方法は問わないこととした。採取および分析方法、精度管理の詳細についてはそれぞれの報告を参照されたい。

3. 地域ごとのとりまとめ

今回用いたデータには同一地点で全期間を通じて観測されたものではなく、短期の観測や観測が途中で中断されているものも含む。これらのデータから地域での変動を捉えるため、降水の水質に影響する主要な要因に基づく全国環境研協議会（2007）の6地域区分を用いた。すなわち、非海塩性硫酸イオン（non-sea salt SO_4^{2-} 、以下、nss- SO_4^{2-} ）および硝酸イオン（以下、 NO_3^- ）濃度のクラスター分析を行い、その結果を基に降水量、nss- SO_4^{2-} および NO_3^- 濃度の高低、季節変動および地理的条件等を考慮した、「北部（NJ: Northern Japan area）」「日本海側（JS: Japan Sea area）」「東部（EJ: Eastern Japan area）」「中央部（CJ: Central Japan area）」「西部（WJ: Western Japan area）」および「南西諸島（SW: Southwest Islands area）」の6地域に分類した（図-1、J-Stage 電子付録付表-1）。

4. 統計解析

窒素湿性沈着量および窒素に対する NO_3^- -N 割合の長期変動とその地域差について、状態空間モデルの当てはめに

表-1. 使用したデータの採取機関と採取期間・方法および精度管理
Data source, sampling period and methods, accuracy management.

調査主体	期間	採取方法	精度管理の方法	データ有効性の判定
気象庁	1976～2011	降水時開放型捕集装置 (wet only 採取)	●酸性雨国際比較調査を実施（1978～）。	(情報なし)
環境省	1983～1987 1988～1997 1998～2018	常時開放型捕集装置 降水時開放型捕集装置 (wet only 採取)	(情報なし) ●イオンバランス（R1）、電気伝導率の計算値と測定値の比較（R2）が許容範囲から外れている場合は再分析を行う。 ●各分析機関に模擬試料を送付しその結果を比較する調査（測定分析精度管理調査）を実施。	(情報なし) 以下の場合分析値を無効。 1. バルク捕集 2. 試料汚染（黄砂混入の場合は全て有効、R1、R2基準内であれば有効） 3. 試料の日付が特定されなかった 4. 試料の捕集効率が10%未満 5. pH、ECが希釈測定された
全環研	1999～2001 2003～2016	降水時開放型捕集装置 (wet only 採取)	●イオンバランス（R1）および電気伝導率バランス（R2）が許容範囲を超える場合は再分析を行うなど、値の信頼性を確保した。 ●環境省のモニタリングネットワークの測定局を対象に行われている測定分析機関間比較調査に本調査参加機関も多数参加し、全環研として解析を開始。	完全度（測定期間の適合度を含む）が年間80%未満の場合は解析対象外。
森林総研	2000～2015	常時開放型捕集装置	●総陽イオンと総陰イオンのバランス・電気伝導率の実測値と理論値のバランスが許容範囲内であること。 ●外部からの混入物の影響を除去するため、 PO_4^{3-} 、 NH_4^+ 濃度が規定値以下であること。	精度についてチェックしたデータに不適格な項目が一つでもみられた試料は、補正等を行わず、溶存成分濃度のデータをすべて棄却。

環境省（2001）、全国環境研協議会（2019）、森林総合研究所（2014）、気象庁 https://www.data.jma.go.jp/gmd/env/acid/comparison_acid.html より作成。

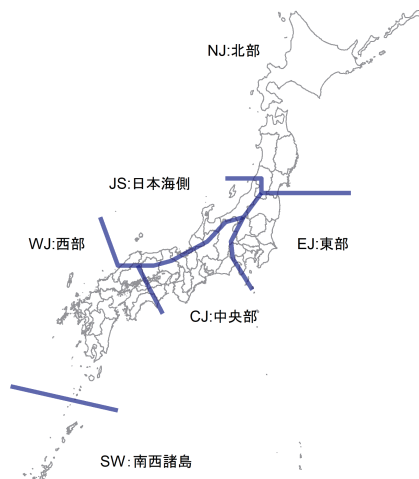


図-1. 地域区分 (全国環境研協議会 2017)

Area classification (followed National Environmental Laboratory Association 2017).

地域分類: NJ, 北部; JS, 日本海側; EJ, 東部; CJ, 中央部; WJ, 西部; SW, 西南諸島の六つに分けた。

NJ, Northern Japan area; JS, Japan Sea area; EJ, Eastern Japan area; CJ, Central Japan area; WJ, Western Japan area; and SW, Southwest Islands area.

よるトレンド解析を行い、各地域区分と全国についてのそれぞれで平均化した窒素湿性沈着の時間的変動を推定した。本研究では窒素の年間沈着量を検討しているため、今回用いられた状態空間モデルには季節トレンドは含まれていない。状態空間モデルは、各種の決定論的または確率論的過程によって推移する「真の状態」を想定した過程モデルと観測誤差を考慮して実測値からモデル内の各パラメータの事後確率分布と各種の代表値(平均および中央推定値)やベイズ信頼区間 (credible interval, 以下, 信頼区間) を推定する観測モデルからなる (馬場 2018)。本研究では、窒素湿性沈着量および NO_3^- -N 割合の時間的変化の推定には同じモデルを用いた。なお、 NO_3^- -N 割合は 0~1 の範囲で変化する割合データであるが、今回扱ったデータについては、おおよそ 0.45~0.55 を最頻値とする単峰型の分布傾向を示していたため、窒素湿性沈着量と同様に自然分布への当てはめが可能と判断した。過程モデルは二階差分の線形トレンドモデルを用いて以下のように記述した。

$$\mu_t = 2\mu_{t-1} - \mu_{t-2} + \varepsilon_{\mu}, \varepsilon_{\mu} \sim N(0, \sigma_{\mu}^2) \quad (1)$$

ここで、 μ_t は時間 t における窒素湿性沈着量の平均値、 ε_{μ} は過程誤差、 σ_{μ}^2 は分散を示す。

今回のデータでは、各地域区分内に地点ごとに観測期間が異なる複数のデータが含まれる。そこで、観測モデルはセグメント関数 (Stan Development Team 2020) を用いて以下のように記述した。

$$Y_{it} = \mu_t + \varepsilon_Y, \varepsilon_Y \sim N(0, \sigma^2) \quad (2)$$

ここで、 Y_{it} は時間 t における i 番目の観測地点での窒素湿性沈着量の実測値、 ε_Y は観測誤差、 σ^2 は分散を示す。観測期間のうち、全国および NJ の 1981 年の窒素湿性沈着量および NO_3^- -N 割合と WJ の 1984 年から 1987 年の NO_3^- -N 割合については、全ての観測地点でデータ欠測となってい

たので、観測モデルから以下のように時間 t における欠測値 (Y_{miss}) を推定した。

$$Y_{\text{miss}, t} = \mu_t + \varepsilon_Y, \varepsilon_Y \sim N(0, \sigma^2) \quad (3)$$

各パラメータの事後確率推定はベイズ推定的一种であるハミルトニアン・モンテカルロ法 (HMC 法) を使い、 $\text{Rhat} \leq 1.1$ および $\text{n}_{\text{eff}} \geq 100$ を基準としてパラメータの収束判定を行った (Gelman *et al.* 2013)。また、各時点における窒素湿性沈着量および NO_3^- -N 割合の増減傾向を検討するため、上記シミュレーションの結果を元に時間差分 ($\mu_t - \mu_{t-2}$) の事後確率を計算した。今回行った解析には統計ソフトウェア R 3.5.1 (R Core Team 2020) およびパラメータの事後確率推定には Stan 2.17.0 (Stan Development Team 2020) および R パッケージ 'rstan' (Stan Development Team 2020) を用いた。

III. 結 果

1. 窒素湿性沈着量

1) 地域と全国の窒素湿性沈着量

各地域において 1977~2018 年の窒素湿性沈着量は、JS を除きほぼ一山型の頻度分布となった。地域によってピークの位置などは異なり、NJ ではおおよそ 70% が沈着量 $6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 以下に属した L 字型に近い分布を示し、JS では $9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 以上の高沈着域にあるものが 50% に上った (図-2)。平均値 (標準誤差) では JS で $9.3 (0.2) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ と最も大きく、次いで WJ が $7.7 (0.1) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 、EJ が $7.1 (0.2) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 、CJ が $6.8 (0.2) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 、SW が $5.5 (0.3) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 、NJ が $5.1 (0.1) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ であり、JS や WJ で沈着が多かった。

全国の窒素湿性沈着量は、 $5 \sim 6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ を頂点とした一山型の頻度分布を示した (図-3)。最小値は 2003 年に小笠原で観測された $0.55 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 、最大は 1999 年の四日市の $25.8 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ であり、40 倍以上の大きな違いがみられた。 $3 \sim 6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ および $6 \sim 9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ の範囲にあるものがともに約 32% で、70% 近くが $3 \sim 12 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ の範囲にあり、平均で 7.2

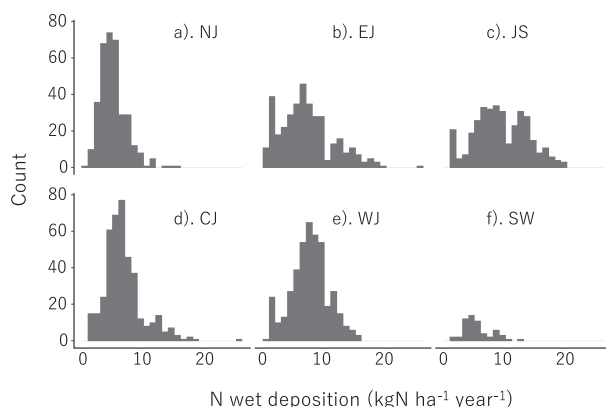


図-2. 1977~2018 年の各地域の年間窒素湿性沈着量頻度分布
Histograms of annual N wet deposition in each area from 1977 to 2018.

地域区分は図-1 を参照。

Area classification was same in Fig. 1

$\pm 0.1 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($n=1,948$) であった。

2) 長期的な変動

窒素湿性沈着量の地域ごとの長期変動としては、期間を通じて増加傾向がみられた NJ, 増加傾向から減少に転じた EJ と JS, 期間を通じて減少傾向を示した WJ と SW, 2 度の上昇を示した CJ の 4 パターンがみられた (図-4)。

最も沈着量の多い JS では 1989 年の測定開始以降増加し続け、2000 年代には中央推定値が $9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ (5~95% 信頼区間, 以下同様) を超え、2010 年には中央推定値が $9.8 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($9.3 \sim 10.4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) に達した。その後減少に転じ、2018 年には $9.4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ となった。次いで高い値を示した WJ では、1991 年の $8.4 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($7.4 \sim 9.5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) をピークとしてその後減少し続け、2018 年には $6.9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ となった。EJ では 2004 年に $8.5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ の最大値を示し、その後減少し、2018 年には $4.9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($3.9 \sim 5.9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) とピーク時の 60% 程度となった。中央推定値の信頼区間から、JS および EJ で顕著であった 2010 年頃までの増加とその後の減少傾向は統計的にも支持された。CJ では 2000 年に $7.5 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($6.8 \sim$

$8.2 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$), その後 2006 年の $6.7 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($6.0 \sim 7.2 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) まで減少し、2011 年に $7.2 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($6.6 \sim 7.8 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) まで再び増加し、再び減少した。NJ と SW は期間を通じた平均が $5.1 \pm 0.1 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$, $5.5 \pm 0.3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ と他の地域より小さかったが、NJ は期間を通じて増加、SW は期間を通じて減少傾向を示した。

全国の窒素湿性沈着量は、1988 年に $6.0 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($5.4 \sim 6.6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) ($n=24$) から、2000 年には $7.6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($7.3 \sim 7.9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) ($n=83$) に増加したのち、2010 年の $7.6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($7.3 \sim 7.9 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) ($n=82$) まで横ばいで推移し、その後減少に転じ、2018 年には $6.2 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ ($5.7 \sim 6.6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) ($n=76$) になった (図-5)。中央推定値の信頼区間から、今回全国でみられた 1988 年から 2010 年頃までの増加とその後の減少は統計的にも支持された。

3) 湿性沈着される窒素の形態

窒素湿性沈着における NO_3^- 態の割合は 2000 年以前の WJ や SW で NO_3^- 態の割合が 0.4 未満で他地域と比較して低かったものの、1990 年代半ば以降はいずれの地域にお

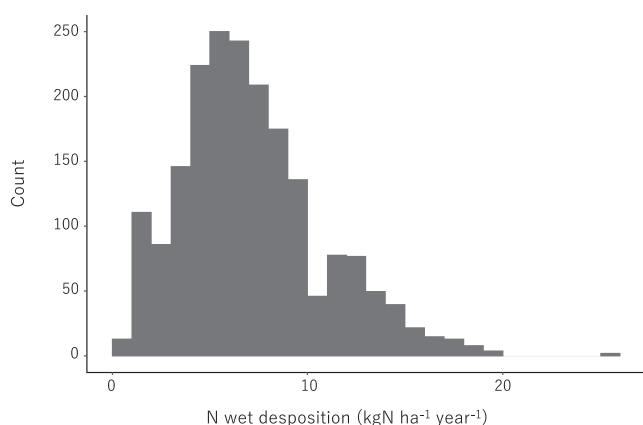


図-3. 1977~2018 年の全国の年間窒素湿性沈着量頻度分布
Histograms of annual N wet deposition in national level from 1977 to 2018.

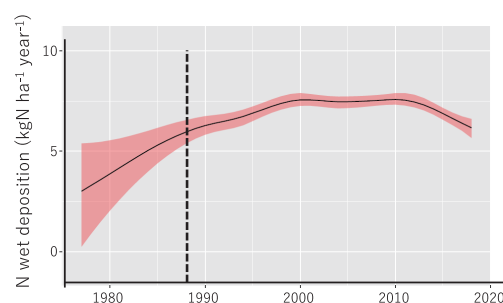


図-5. 1977~2018 年の全国の年間窒素湿性沈着量の経時的変動
Temporal fluctuations of annual N wet deposition in national level from 1977 to 2018.

凡例は図-4 を参照。1988 年 (点線) より前は、一部地域のための結果である。Legend is same as Fig. 4. Prior to 1988, the results were only available for some regions.

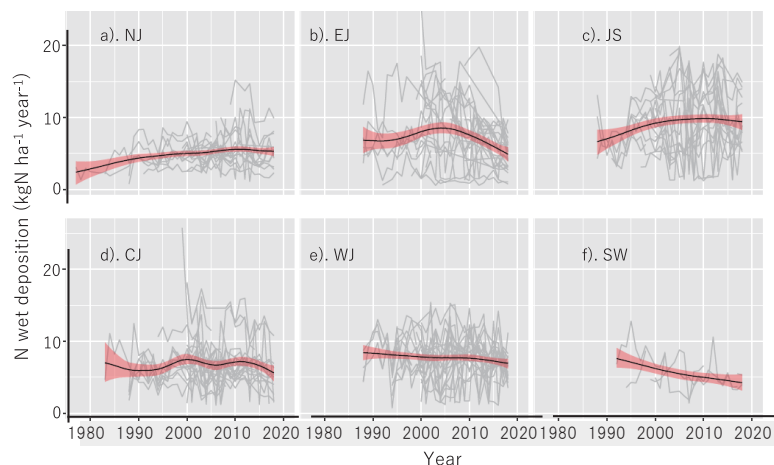


図-4. 1977~2018 年の各地域の年間窒素湿性沈着量の経時的変動
Temporal fluctuations of annual N wet deposition in each area from 1977 to 2018.

黒い線は中央推定値, 赤色範囲は 95% 信頼区間, グレーの線は測定地点ごとの変動を示す。地域区分は図-1 を参照。
Black line indicates median, gray lines shows each site and red band shows the 95% credible interval. Area classification is same in Fig. 1.

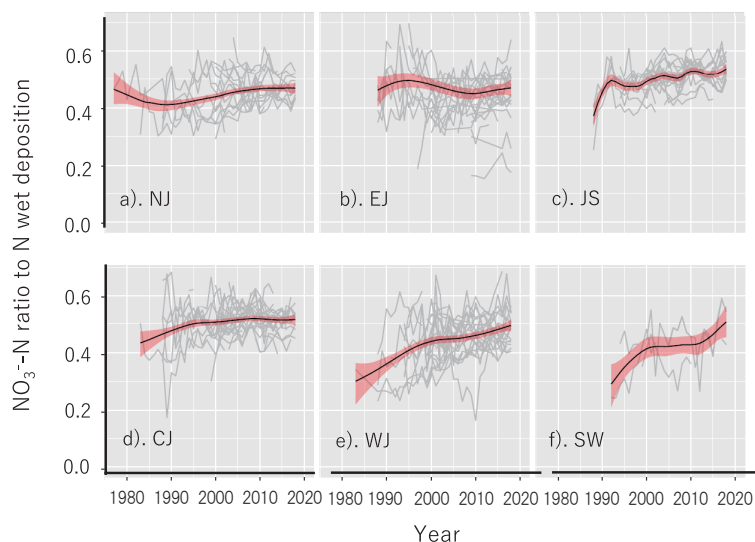


図-6. 1977～2018年の各地域の窒素湿性沈着量における硝酸態窒素割合の経時的変動
Temporal fluctuations of the ratio of NO_3^- -N to N wet deposition in each area from 1977 to 2018.

地域区分は図-1を参照。凡例は図-4を参照。

Area classification is same in Fig. 1. Legend is same as Fig. 4.

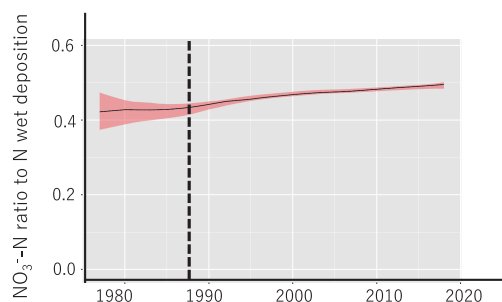


図-7. 1977～2018年の全国の窒素湿性沈着量における硝酸態窒素割合の経時的変動

Temporal fluctuations of the ratio of NO_3^- -N to N wet deposition in national level from 1977 to 2018.

凡例は図-4を参照。1988年より前は、一部地域のみ結果である。

Legend is same as Fig. 4. Prior to 1988, the results were only available for some regions.

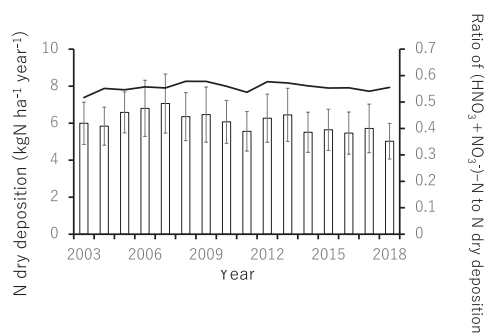


図-8. 2003～2018年の年間窒素乾性沈着量と酸化態窒素割合
Annual N dry deposition and the ratio of NO_x from 2003 to 2018.

棒グラフ白抜きは窒素乾性沈着量、縦線は標準誤差、折れ線は酸化態窒素の占める割合を示す。

Bars indicate N dry deposition, vertical lines show standard error. Line shows the ratio of NO_x .

いても NO_3^- 態が 0.4～0.5 で変動し、2018 年の割合は NJ で 0.47、JS で 0.54、EJ で 0.46、CJ で 0.51、WJ および SW で 0.49 であった (図-6)。CJ ではこの 30 年間を通じ 0.5 に近い値であり、 NO_3^- 、 NH_4^+ 両者の割合はほぼ等しかっ

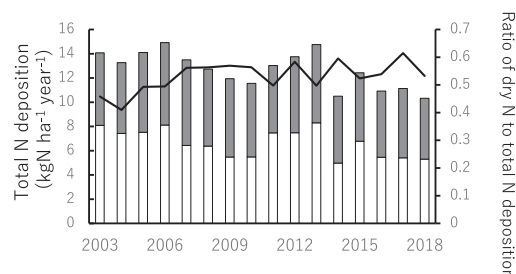


図-9. 2003～2018年の7地点における年間窒素総沈着量と窒素乾性沈着の割合の経時的変動

Annual N total deposition and the ratio of N dry deposition in seven sites from 2003 to 2018.

棒グラフ白抜きは湿性沈着量、グレーは乾性沈着量、折れ線は乾性沈着の占める割合を示す。

White bars indicate N wet deposition, gray bars show N dry deposition. Line shows the ratio of N dry deposition to N total deposition.

た。NJ、JS、WJ、SW では近年 NO_3^- 態の割合がやや増える傾向にあるが、逆に EJ では NO_3^- 態の割合がやや減少した。全国的には期間を通じてやや増加傾向がみられ、2018 年には 0.49 (0.48～0.50) となった (図-7)。

2. 窒素乾性沈着量とその経時的変動

窒素乾性沈着の観測は窒素湿性沈着ほど多くはない。また、継続的な観測はさらに少ない。全環研で 2003～2018 年の長期に観測された 7 地点が本論文で用いた六つの地域区分に対応し (CJ のみ 2 地点)、また観測が 2003～2018 年と比較的長期であるため、ここではこれらを対象とした。7 地点での平均窒素乾性沈着量は 2013 年まで $6\sim7 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ とほぼ横ばいで推移し、2014 年以降 $6 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ 以下で、期間の平均は $6.0 (0.1) \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ であった (図-8)。窒素乾性沈着量のうち酸化態窒素の占める割合は 0.52～0.58 でほぼ一定であった。

3. 窒素総沈着量の経時的変動と窒素累積沈着量の推定

窒素乾性沈着が継続的に測定されている 7 地点における窒素総沈着量の経時的変動を示した (図-9)。7 地点の

2003～2018年の窒素総沈着量は $9.3\sim 14.3\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ の範囲にあり、平均は $11.5(1.6)\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ であった。窒素湿性沈着と窒素乾性沈着量の間に有意な関係はみられず($n=93$, $p>0.1$)、窒素乾性沈着量は窒素総沈着量の $0.41\sim 0.61$ を占めた。7地点での2003～2018年の16年間の窒素累積沈着量は $184\text{ kgN ha}^{-1}\text{ 16 year}^{-1}$ となった。

IV. 考察

1. 窒素湿性沈着量の長期変動

大気降下物に関するモニタリング調査は1976年に気象庁によって岩手県大船渡市綾里において開始された。1983年には環境省の観測もはじめられ、バルクでの窒素沈着量は札幌、大阪でそれぞれ $2.1\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ 、 $4.6\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ であった(日本環境衛生センター酸性雨研究センター 2004)。同一地点での長期観測は非常に少ないため、全環研による地域区分を用いて解析した。

年間窒素沈着量の長期変動傾向は地域間で異なるが、NJでは1980年以降に有意に増加し、EJおよびJSでも1990年以降に増加傾向がみられた(図-4)。1980年以降は各地の都道府県環境研究所による調査でも窒素湿性沈着の著しい増加が報告されており(徳地ら 2021)、窒素湿性沈着量が増加した地域も多かったと考えられる。また、1998～1999年にはほとんどの地点で測定対象がバルクから湿性沈着に変更され、乾性沈着が含まなくなっていることも考え合わせると、それらの地域での窒素湿性沈着量の増加はより顕著であったと推察される(野口・山口 2010)。

1990年からは窒素湿性沈着量は地域内に大きな排出源をもつEJやCJに対して、地域内に明瞭な排出源の少ないJSで最も多くなった。この1990年前後の日本海側での硫酸沈着の約20%が北東アジア大陸部起源であるとされ(Ohizumi *et al.* 1997)、また2003～2006年に大陸からの越境輸送の影響で窒素湿性沈着量がそれ以前と比較して増加したことがわかっている(友寄ら 2009)。特に、1989～2008年の窒素湿性沈着中の NO_3^- は61～94%が中国の排出由来と推定され(Morino *et al.* 2011)、北西季節風の影響で大陸からの影響を特に受けやすいJSで量的に多いことが示されている。2012年以降は中国において石炭火力発電所に対する政策により NO_x 放出量が減少したこと(Duan *et al.* 2016)を反映し、全国レベルでの窒素湿性沈着量の有意な減少につながったと考えられる(図-5)。

2. 窒素乾性沈着と窒素総沈着量

2018年に窒素乾性沈着量が最も多かったのは、2点の測定地点のうち1点が周辺の畜産業の影響を受けていると言われるSWであった(飯島ら 2020)。窒素乾性沈着は気象条件や土地利用によって大きく変動し(野口・山口 2010)、さらに窒素乾性沈着量の計算過程には土地利用を考慮するため、広域の推定が困難である。しかし、総沈着量を把握することは生態系への影響を検討するためにも欠かせないため、乾性沈着の検討については、長期に測定がなされている7地点を対象とした。

全国での窒素総沈着量の把握は、窒素湿性沈着からの推定や東アジア地域における酸性雨の現状の把握とその影響

の解明に向けた地域協力体制である東アジア酸性雨モニタリングネットワーク(the Acid Deposition Monitoring Network in East Asia: EANET)による窒素湿性・乾性沈着の測定からの積み上げでこれまでにこなされている。野口・山口(2010)は2003～2007年の環境省の酸性雨長期モニタリングと全環研の結果をもとに、全国の $(\text{NH}_4^++\text{NO}_3^-)\text{-N}$ の窒素湿性沈着量を $7.1\sim 9.9\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ 、さらに窒素乾性沈着が窒素総沈着の30～50%であることから、窒素総沈着量を $10.6\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ ($76\text{ mmol m}^{-2}\text{ year}^{-1}$)とした。また、Ban *et al.* (2016)はEANETにおける離島など遠隔地の観測から、2003～2012年の全国の窒素総沈着量を $10\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ ($71\text{ mmol m}^{-2}\text{ year}^{-1}$)程度としている。都市域での測定も加えた2003～2018年の今回の結果($11.5\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$)はこれらの報告よりやや大きく、全国的に窒素総沈着量は2000年以降 $10\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ を超えるものと考えられた。

窒素総沈着量の長期的な傾向は、地域や年によって窒素湿性沈着量と窒素乾性沈着量の割合が異なるため、大小や経時的傾向は窒素湿性沈着量の場合と異なるものと考えられる。本研究において、全国では窒素湿性沈着量は2012年から(図-5)、窒素乾性沈着量は2014年から減少傾向がみられ(図-8)、窒素総沈着量も同時期から減少傾向にあるものと考えられる(図-9)。これらの傾向は欧米の先進諸国と一致する(Gilliam *et al.* 2019など)。一方、地球規模では今後の発展途上国での排出量や産業構造の変化も影響が大きく注目される。さらに、窒素沈着量には降水量などの気候要因も影響し、加えて気候変動により湿性と乾性といった形態の相対的な重要性が変化することが指摘されている(Engardt and Langner 2013)。そのため、窒素乾性沈着について測定地点を増やし、気候変動下での窒素沈着量を把握する必要があるだろう。

3. 窒素累積沈着量とその森林生態系への影響

1990年には窒素湿性沈着のみですでに全国平均(標準誤差)で $7.2(0.5)\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ に上っていた(図-5)。地域や年によって窒素湿性沈着量と窒素乾性沈着量の割合は異なるが、ここでは2003～2018年の窒素乾性沈着の結果から、窒素総沈着に占める乾性沈着の割合が最も低かったときの値 0.41 を用いて試算すると(図-9)、乾性沈着量は $5\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ と推定され、1990年代には既に $12.2\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ 程度の窒素総沈着があったものと推定される。加えて2012年以降は窒素湿性沈着の減少傾向がみられるものの、2018年の全国の窒素湿性沈着から推定される窒素総沈着量ですら $10.5\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ と $10.0\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ を超えることから、この30年間で全国的な窒素累積沈着量としては 300 kgN ha^{-1} 以上と考えられた。

$10.0\text{ kgN ha}^{-1}\text{ year}^{-1}$ という窒素総沈着量は、Clark and Tilman (2008)がミネソタ州の草原生態系で窒素沈着実験を行った際の「沈着量が極端に多くない場合」に相当するが、それでも種多様性が低下することが示されている。森林生態系では樹冠が乾性沈着物を捕捉するため乾性沈着の割合は平地の数倍になると報告されているため(Weathers *et al.* 2006)、日本全国の森林域での実際の窒素総沈着量は

今回の推定より多くなる可能性がある。de Schrijver *et al.* (2011) は欧州や北米での森林や草地など多様な植生での窒素沈着が種多様性に及ぼす影響をまとめ、草原やヒースランドでは種多様性が窒素累積窒素沈着量の増加によって有意に減少することを示した。加えて、種の損失は反応性窒素の沈着初期により明瞭であることが指摘されており (Roth *et al.* 2019)、日本においてもすでに窒素沈着による種の損失が生じているかもしれない。しかし、野外では窒素沈着によりオゾン (O_3) に対する感受性が変化する樹種 (渡辺・山口 2011) や、過酸化水素 (H_2O_2) など他の大気汚染物質の影響も指摘されており (久米ら 2011)、窒素沈着の直接的な影響を明らかにすることは難しい。

過剰な窒素沈着は生態系を窒素飽和に至らせ、河川へ窒素が流出するなど河川の水質形成といった生態系サービスなどにも影響する (Aber *et al.* 1998)。温帯森林生態系で窒素飽和に至る臨界負荷量は $10.0 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$ (Dise *et al.* 1998) とされており、本研究から窒素沈着量は全国的にすでに臨界負荷量に相当し、全国的な窒素飽和が懸念される。特に近年、世界的な畜産・農業由来の窒素の影響の増大が指摘されており (Bouwman *et al.* 2013), Maung *et al.* (2022) は宮崎県における上流に人為起源の窒素源のない山地河川水の調査において、 NO_3^- 濃度への畜産・農業活動への影響を報告している。

一方、Makino *et al.* (2021) は近畿地方の山地源流域河川水の NO_3^- 濃度に影響する要因を整理し、冬季積雪がみられる地域では積雪中の窒素成分が融雪期に流出するため、負荷された窒素が生態系に取り込まれず窒素飽和に至りにくいことを指摘した。加えて、Yu *et al.* (2018) は中国の亜熱帯地域で温帯より高い臨界負荷量 ($26 \sim 36 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ year}^{-1}$) を示し、植物の光合成や生態系の窒素の取り込みなどの生物活動が臨界負荷量に影響していると推察している。すなわち、地域により環境条件が多様な日本では窒素沈着に対する応答も多様であり、窒素沈着量の把握とともに地域の特性を考慮した臨界負荷量の推定などを行い (Yamashita *et al.* 2021)、適切な生態系管理を進めることも必要だろう。

また、ヨーロッパでは限定的ではあるが、生態系が窒素沈着の影響から回復 (recovery) しつつあることが示されている (Schmitz *et al.* 2019)。本研究において、日本全国でも総沈着量に 2014 年頃から減少傾向があると考えられたことから、我が国でも窒素沈着量と生態系の応答について今後の動向が注目される。

4. 沈着される窒素の形態と生態系への影響

NO_3^- と NH_4^+ は生態系での挙動も異なり、生態系への影響が異なる (徳地・大手 1998)。例えば、温帯域の多くの土壌はマイナスに帯電しているため、 NH_4^+ が土壌中に保持されやすく、植物の吸収利用もされやすい。それに対して、マイナスに帯電している NO_3^- は土壌中で移動しやすい。沈着された窒素が生態系内での各プロセスに配分されると考える動的窒素飽和仮説 (Lovett and Goodale 2011) に従うと、 NO_3^- として沈着されることにより河川へ流出しやすいと考えられる。Bowen *et al.* (2020) は米

国マサチューセッツ州の沿岸域での研究から、大気から沈着された NO_3^- -N は微生物の異化に、 NH_4^+ -N は藻類の一次生産に用いられることが多く、沈着される形態によって分解と一次生産のどちらが促進されるのかバランスが異なることを示した。沈着される形態は窒素循環のみならず、炭素循環や沿岸生態系の管理においても重要な課題である。

沈着される窒素の形態としては、多くの地域で全窒素に対する NO_3^- -N の割合がやや上昇傾向にあった (図-6)。この原因の一つとして、これまで NH_4^+ -N は SO_4^{2-} と結合することで安定した粒子として中国などから日本国内へ移流してきたが、 SO_2 排出量の減少に伴い、粒子としての NH_4^+ -N 移流量が減少した可能性が示唆されている (野口・山口 2019)。しかし、移流元の一つである中国では 2010 年以降 NO_x の排出規制で NO_x 沈着量は減少したものの、上述のように畜産・農業の活発化などから NH_4^+ -N 沈着量は増加し続けており、引き続き注意が必要である (Wen *et al.* 2020)。例えば、北米やチェコでは大気降下物中の NH_4^+ -N 割合が上昇していることが示されている (Butler *et al.* 2016; McHale *et al.* 2021; Hůnová *et al.* 2017)。

それぞれの形態の窒素はその主な起源が異なり、 NO_3^- -N および酸化態窒素は化石燃料の燃焼、 NH_4^+ -N や還元態窒素は農業活動によるところが大きい。今後は我が国でも化石燃料の使用規制により NO_3^- -N 排出が抑えられ、窒素沈着中の NH_4^+ -N の重要性が増すことが予想される。今回、 NO_3^- -N 割合が顕著に上昇している地域は WJ や観測地点は少ないが SW などの西日本であった。西日本での NO_3^- -N 割合の上昇の原因が上述のような NH_4^+ -N 移流量が減少したことによるのか、あるいは地域での農業活動の衰退や化石燃料の使用量の増加によるものかについては明らかでなく、大気質の管理においてこれらの原因解明が望まれる。

5. 今後の課題

酸性雨に関するモニタリング調査はすでに 50 年近く継続されているが、モニタリング調査には多大な労力や経費が必要である。2020 年には約 70 年継続されていた気象庁の生物季節観測の見直し・縮小が発表された (気象庁 2021b)。都市化などの影響で観測自体が難しくなったこともあるようだが、このような長期に続いた観測ですら、継続が難しいことがわかる。大気降下物に関する調査は、酸性雨調査と呼ばれることからわかるように降水の酸性度が社会問題であった時代に開始され、大気汚染の一つの課題として一定の理解をされているものと考えられる。しかし、酸性雨による人的被害が少なくなると、新たな課題への対応の必要性などから調査の継続が議論される。

酸性化の影響からの回復については多くの報告があるが、富栄養性の種に置き換わった場所での種の回復は明らかでないことが多く (Roth *et al.* 2019)、いったん失われた植生の回復には失われる際より長い年月が必要であることが指摘されている (Rowe *et al.* 2017)。すなわち、富栄養化により生じた不連続な系状態の変化 (レジームシフト) からの回復には、沈着量の減少だけでなく系状態が変化する過程 (ヒステリシスの谷) を越える必要があり (Gilliam *et al.* 2019)、生態系の窒素沈着の影響からの回復、そして

その把握には長い時間がかかる。前述のように沈着による生態系サービスへの影響なども踏まえ、大気降下物に関する情報は表層水の水質、農業や林業ならびに生態系への影響など広い分野に不可欠で、科学者のみならず政策立案にも必要であることが理解されるように広く働きかけねばならない。

生物季節観測については、その後、気象庁と環境省および国立環境研究所が生物季節観測を新しい枠組みで行うために協力することが示された（気象庁 2021b）。この枠組みには市民参加型の試行調査も検討されており、モニタリング調査の今後の在り方の一例として注目される。そして、包括的な考察が可能な汎用性の高い形でモニタリングを継続することが重要である。

V. 結 論

本研究では地域レベルから全国規模での窒素沈着の長期傾向を把握することを目的とした。全国規模で窒素沈着量は少なくとも今回整理した1988年以降から増加傾向にあり、2014年前後から減少傾向にあることが示された。地域ごとには数年のずれがみられるものの、日本海側、東日本で増加傾向は特に明瞭であった。これらの増加傾向は中国における窒素排出量の傾向と一致し、わが国の窒素沈着には大陸からの越境輸送の影響が示唆された。

窒素湿性沈着量は1990年に全国平均で7.2 kgN ha⁻¹ year⁻¹に達し、乾性沈着の測定結果も含めた窒素総沈着量は全国的に12.2 kgN ha⁻¹ year⁻¹と推定された。減少傾向にある2018年ですら窒素総沈着量は10.5 kgN ha⁻¹ year⁻¹と窒素飽和の閾値(10 kgN ha⁻¹ year⁻¹)を超えた可能性が示唆された。これらのことから過去30年間で窒素累積沈着量は300 kgN ha⁻¹を上回ったと推定された。窒素沈着は減少傾向にあるものの、近年、これまでと異なる負荷源の影響やそれに伴い沈着する形態の変化が示唆されており、今後も窒素沈着に関し継続的なモニタリングが欠かせないことが示された。

謝 辞

本研究は環境省、全国環境研協議会、森林総合研究所、気象庁などの膨大かつ緻密な長期モニタリング調査の情報を大気質の調査にとどまらず、ひろく活用することが可能であり、非常に重要であるとの認識からはじめられた。全国環境研協議会、環境省、森林総合研究所、および気象庁、そして、これらのモニタリング調査を支えられたすべての方に心から敬意を表します。特に、第6次酸性雨全国調査を支えてこられた皆様には、データの提供などご協力いただきました。編集委員には丁寧な査読とご指導をいただきました。深くお礼申し上げます。

本研究は、科研費15H04515, 19H03012, 22H02385, JST SICORP JPMJSC19C3, 人間文化研究機構総合地球環境学研究所のプロジェクト(Project No. RIHN 14200156)の支援を受けたものである。ここに記して、深くお礼申し上げます。

開示すべき利益相反の問題はない。

引用文献

- Aber J, McDowell, William, Nadelhoffer K, Alison M, Bernston G, Kamakea M, McNulty S, Currie W, Rustad L, Fernandez I (1998) Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems. *BioScience* 48: 921-934
- 馬場真哉 (2018) 時系列分析と状態空間モデルの基礎: R と Stan で学ぶ理論と実装. プレアデス出版
- Ban S, Matsuda K, Sato K, Ohizumi T (2016) Long-term assessment of nitrogen deposition at remote EANET sites in Japan. *Atmos Environ* 146: 70-78
- Baron JS, Barber M, Adams M, Agboola JI, Allen EB, Bealey WJ, Bobbink R, Bobrovsky MV, Bowman WD, Branquinho C, Bustamante MMC, Clark CM, Cocking EC, Cruz C, Davidson E, Denmead OT, Dias T, Dise NB, Feest A, Galloway JN, Geiser LH, Gilliam FS, Harrison IJ, Khanina LG, Lu X, Manrique E, Ochoa-Hueso R, Ometto JPHB, Payne R, Scheuschner T, Sheppard LJ, Simpson GL, Singh YV, Stevens CJ, Strachan I, Sverdrup H, Tokuchi N, Van Dobben H, Woodin S (2014) The effects of atmospheric nitrogen deposition on terrestrial and freshwater biodiversity. In *Nitrogen Deposition, Critical Loads and Biodiversity*. Sutton MA, Mason KE, Sheppard LJ, Sverdrup H, Haeuber R, Hicks WK (eds). Springer, 465-480
- Bobbink R, Hicks K, Galloway J, Spranger T, Alkemade R, Ashmore M, Bustamante M, Cinderby S, Davidson E, Dentener F, Emmett B, Erisman JW, Fenn M, Gilliam F, Nordin A, Pardo L, De Vries W (2010) Global assessment of nitrogen deposition effects on terrestrial plant diversity: A synthesis. *Ecol Appl* 20: 30-59
- Bouwman L, Goldewijk K, Van Der Hoel K, Beusen A, Van Vuuren D, Willems J, Rufino M, Stehfest E (2013) Exploring global changes in nitrogen and phosphorus cycles in agriculture induced by livestock production over the 1900-2050 period. *Proc Natl Acad Sci USA* 110: 20882-20887
- Bowen JL, Giblin AE, Murphy AE, Bulseco AN, Deegan LA, Johnson DS, Nelson JA, Mozdzer TJ, Sullivan HL (2020) Not all nitrogen is created equal: Differential effects of nitrate and ammonium enrichment in coastal Wetlands. *BioScience* 70: 1108-1119
- Butler T, Vermeylen F, Lehmann CM, Likens GE, Puchalski M (2016) Increasing ammonia concentration trends in large regions of the USA derived from the NADP/AMoN network. *Atmos Environ* 146: 132-140
- Clark CM, Tilman D (2008) Loss of plant species after chronic low-level nitrogen deposition to prairie grasslands. *Nature* 451: 712-715
- De Schrijver A, De Frenne P, Ampoorter E, Van Nevel L, Demey A, Wuyts K, Verheyen K (2011) Cumulative nitrogen input drives species loss in terrestrial ecosystems. *Glob Ecol Biogeogr* 20: 803-816
- Dise NB, Matzner E, Gundersen P (1998) Synthesis of nitrogen pools and fluxes from European forest ecosystems. *Water Air Soil Pollut* 105: 143-154
- Duan L, Yu Q, Zhang Q, Wang Z, Pan Y, Larssen T, Tang J, Mulder J (2016) Acid deposition in Asia: Emissions, deposition, and ecosystem effects. *Atmos Environ* 146: 35-69
- Engardt M, Langner J (2013) Simulations of future sulphur and nitrogen deposition over Europe using meteorological data from three regional climate projections. *Tellus B Chem Phys Meteorol* 65: 20348
- Fowler D, Coyle M, Skiba U, Sutton MA, Cape JN, Reis S, Sheppard LJ, Jenkins A, Grizzetti B, Galloway JN, Vitousek P, Leach A, Bouwman AF, Butterbach-Bahl K, Dentener F, Stevenson D, Amann M, Voss M. (2013) The global nitrogen cycle in the Twentyfirst century. *Philos Trans R Soc B: Biol Sci* 368: 2039-2047
- Galloway JN, Dentener FJ, Capone DG, Boyer EW, Howarth RW, Seitzinger SP, Asner GP, Cleveland CC, Green PA, Holland EA, Karl DM, Michaels AF, Porter JH, Townsend AR, Vörösmarty CJ (2004) Nitrogen cycles: Past, present, and future. *Biogeochemistry* 70: 153-226
- Gelman A, Carlin J B, Stern H S, Dunson D B, Vehtari A, Rubin D (2013) *Bayesian data analysis third edition*. CRC press
- Gilliam FS, Burns DA, Driscoll CT, Frey SD, Lovett GM, Watmough SA. (2019) Decreased atmospheric nitrogen deposition in eastern North America: Predicted responses of forest ecosystems. *Environ Pollut* 244: 560-574
- Greaver TL, Clark CM, Compton JE, Vallano D, Talhelm AF, Weaver CP, Band LE, Baron JS, Davidson EA, Tague CL, Felker-Quinn E, Lynch JA, Herrick JD, Liu L, Goodale CL, Novak KJ, Haeuber RA (2016) Key ecological responses to nitrogen are altered by climate change. *Nat Clim Change* 6: 836-843
- Hůnová I, Kurfürst P, Stráňík V, Modlík M (2017) Nitrogen deposition to forest ecosystems with focus on its different forms. *Sci Total Environ* 575: 791-798
- 飯島 宏・岩崎 綾・大小田修司・尾川成彰・菊地優也・濱村研吾・久恒那裕・横原秀明・山口高志・山田大介・家合浩明・久保智子・高石 豊 (2020) 第6次酸性雨全国調査報告書2018 (平成30年度). 全国環境研会誌 45: 85-121

- 伊藤優子・三浦 覚・加藤正樹・吉永秀一郎 (2004) 関東・中部地方の森林流域における渓流水中の NO_3^- 濃度の分布. 日林誌 86: 275-278
- 岩崎 綾・久恒邦裕・堀江洋佑・西山 亨・宮野高光・北岡宏道・木戸瑞佳・濱村研吾・三田村徳子・山口高志・横山新紀・佐藤由美・松本利恵・山添良太・家合浩明・仲井哲也・宇野克之・紺田明宏 (2018) 第6次酸性雨全国調査報告書 (平成28年度). 全国環境研会誌 43: 79-119
- Janssens IA, Dieleman W, Luyssaert S, Subke JA, Reichstein M, Ceulemans R, Ciais P, Dolman AJ, Grace J, Matteucci G, Papale D, Piao SL, Schulze ED, Tang J, Law BE (2010) Reduction of forest soil respiration in response to nitrogen deposition. *Nat Geosci* 3: 315-322
- Kanakidou M, Myriokefalitakis S, Daskalakis N, Fanourgakis G, Nenes A, Baker AR, Tsigaridis K, Mihalopoulos N (2016) Past, present, and future atmospheric nitrogen deposition. *J Atmos Sci* 73: 2039-2047
- 環境省 (2001) 湿性沈着モニタリング手引き書 (第2版) 環境省環境保全対策課. http://www.env.go.jp/air/acidrain/man/wet_deposi/index.html (2023年2月13日確認)
- 環境省 (2021a) 令和元年度大気汚染状況報告書. 第2章 20p.
- 環境省 (2021b) 大気汚染状況. <https://www.env.go.jp/air/osen/index.html> (2023年2月12日確認)
- 気象庁 (2021a) 大気・海洋環境観測年報データダウンロード. http://www.data.jma.go.jp/gmd/env/data/report/data/download/prec_dep_j.html (2023年2月12日確認)
- 気象庁 (2021b) 「生物季節観測」の発展的な活用に向けた試行調査の開始について. https://www.jma.go.jp/jma/press/2103/30a/210330_seibutsu.html (2023年2月12日確認)
- 気象庁: 降水・降下じん化学成分の品質管理. https://www.data.jma.go.jp/gmd/env/acid/comparison_acid.html (2023年2月12日確認)
- 久米 篤・渡辺幸一・永淵 修・朴木英治 (2011) 広域大気汚染の現状と森林生態系への影響—屋久島と立山の事例—. 日生態誌 61: 97-106
- Lovett GM, Goodale CL (2011) A New Conceptual Model of Nitrogen Saturation Based on Experimental Nitrogen Addition to an Oak Forest. *Ecosystems* 14: 615-631
- Makino S, Tokuchi N, Komai Y, Kunimatsu T (2021) Environmental factors regulating stream nitrate concentrations at baseflow condition in a large region encompassing a climatic gradient. *Hydrological Processes Hydrological Processes*. <https://doi.org/10.1002/hyp.14200>
- 牧野奏佳香・徳地直子・福島慶太郎・川上智則 (2017) 富山平野において近接する窒素飽和・非飽和落葉広葉樹林の窒素動態の比較. 日林誌 99: 117-127
- Maung NL, Tokuchi N, Makino S (2022) Evaluating the Influence of Environmental Factors on Mountain Stream Nitrate Concentrations in Miyazaki Prefecture. 環境技術 51: 267-278
- McHale MR, Ludtke A, Wetherbee G, Burns D, Nilles M, Finkelstein J (2021) Trends in Precipitation Chemistry across the U.S. 1985-2017: Quantifying the benefits from 30 years of Clean Air Act Amendment regulation. *Atmos Environ* 247: 118219
- Miyazaki K, Eskes H, Sudo K, Folkert Boersma K, Bowman K, Kanaya Y (2017) Decadal changes in global surface NO_x emissions from multi-constituent satellite data assimilation. *Atmos Chem Phys* 17: 807-837
- Morino Y, Ohara T, Kurokawa J, Kuribayashi M, Uno I, Hara H (2011) Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008. *J Geophys Res Atmos* 116: 1-17
- 日本環境衛生センター酸性雨研究センター (2004) 環境省酸性雨対策調査総合とりまとめデータ集. (CD)
- 野口 泉・山口高志 (2010) 大気からの窒素成分沈着. 地球環境 15: 111-120
- 野口 泉・山口高志 (2019) 北海道におけるアンモニウム塩の挙動. 大気環境学会誌 54: 178-184
- 大原利真・黒川純一 (2018) アジア全域と中国・日本における大気エアロゾル関連物質排出量の長期変化. エアロゾル研究: 95-101
- Ohizumi T, Fukuzaki N, Kusakabe M (1997) Sulfur isotopic view on the sources of sulfur in atmospheric fallout along the coast of the Sea of Japan. *Atmos Environ* 31: 1339-1348
- Okamoto S, Tanimoto H, Hirota N, Ikeda K, Akimoto H (2018) Decadal shifts in wind patterns reduced continental outflow and suppressed ozone trend in the 2010 s in the lower troposphere over Japan. *J Geophys Res: Atmos* 123: 12980-12993
- 大浦典子・鈴木啓助・奈良麻衣子・村本美智子・麓 多門・新藤純子・戸田任重 (2006) 貧栄養多雪地域における森林の窒素循環. 環境科学会誌 19: 217-231
- R Core Team (2020) R: A Language and Environment for Statistical Computing. R Foundation for Statistical Computing, Vienna
- Rockström J, Steffen W, Noone K, Persson Å, Chapin FS, Lambin EF, Lenton TM, Scheffer M, Folke C, Schellnhuber HJ, Nykvist B, de Wit CA, Hughes T, van der Leeuw S, Rodhe H, Sörlin S, Snyder PK, Costanza R, Svedin U, Falkenmark M, Karlberg L, Corell RW, Fabry VJ, Hansen J, Walker B, Liverman D, Richardson K, Crutzen P, Foley JA (2009) A safe operating space for humanity. *Nature* 461: 472-475
- Rockström J, Steffen W, Noone K, Persson Å, Chapin FS, Lambin EF, Lenton TM, Scheffer M, Folke C, Schellnhuber HJ, Nykvist B, de Wit CA, Hughes T, van der Leeuw S, Rodhe H, Sörlin S, Snyder PK, Costanza R, Svedin U, Falkenmark M, Karlberg L, Corell RW, Fabry VJ, Hansen J, Walker B, Liverman D, Richardson K, Crutzen P, Foley JA (2009) Planetary boundaries: Exploring the safe operating space for humanity. *Ecol Soc* 14: 32
- Roth T, Kohli L, Bühler C, Rihm B, Meuli RG, Meier R, Amrhein V (2019) Species turnover reveals hidden effects of decreasing nitrogen deposition in mountain hay meadows. *PeerJ* 2019: 1-20
- Rowe EC, Jones L, Dise NB, Evans CD, Mills G, Hall J, Stevens CJ, Mitchell RJ, Field C, Caporn SJM, Helliwell BC, Britton AJ, Sutton MA, Payne RJ, Vieno M, Dore AJ, Emmett BA (2017) Metrics for evaluating the ecological benefits of decreased nitrogen deposition. *Biol Conserv* 212: 454-463
- Schlesinger WH (2009) On the fate of anthropogenic nitrogen. *Glob Ecol Biogeogr* 106: 203-208
- Schmitz A, Sanders TGM, Bolte A, Bussotti F, Dirnbock T, Johnson J, Penuelas J, Pollastrini M, Prescher A K, Sardans J, Verstraeten A, De Vries W (2019) Responses of forest ecosystems in Europe to decreasing nitrogen deposition. *Environ Pollut* 244: 980-994
- 森林総合研究所 (2021) 森林降水渓流水データベース. <http://www.ffpri.affrc.go.jp/labs/fasc> (2023年2月12日確認)
- Stan Development Team (2020) RStan: the R Interface to Stan. R package version 2.21.1. <http://mc-stan.org/> (2023年2月12日確認)
- 徳地直子・大手信人 (1998) 森林生態系における H^+ 収支. 日生態誌 48: 287-296
- 徳地直子・岩崎 綾・山口高志・久恒邦裕・中川 光・村野健太郎 (2021) 我が国における窒素沈着量の長期変動—都道府県の調査を中心に—. 環境技術 50: 236-240
- 友寄喜貴・野口 泉・北村洋子・中川史代・溝口俊明・村野健太郎・向井人史 (2009) 2003-2006 年度の湿性沈着調査が示す越境大気汚染～全環研酸性雨全国調査結果より～. 大気環境学会誌 44: 117-127
- 渡辺 誠・山口真弘 (2011) 日本の森林樹種6種に対する窒素沈着を考慮したオゾンのリスク評価. 日生態誌 61: 89-96
- Weathers KC, Simkin SM, Lovett GM, Lindberg SE (2006) Empirical modeling of atmospheric deposition in mountainous landscapes. *Ecol Appl* 16: 1590-1607
- Wen Z, Xu W, Li Q, Han M, Tang A, Zhang Y, Luo X, Shen J, Wang W, Li K, Pan Y, Zhang L, Li W, Lee J Collett Jr, Zhong B, Wang X, Goulding K, Zhang F, Liu X (2020) Changes of nitrogen deposition in vChina from 1980 to 2018. *Environ Intern* 144: 1-9
- Yamashita N, Sase H, Kurokawa J (2022) Assessing critical loads and exceedances for acidification and eutrophication in the forests of East and Southeast Asia: A comparison with EANET monitoring data. *Sci Total Environ* 851: 158054
- Yu Q, Duan L, Yu L, Chen X, Si G, Ke P, Ye Z, Mulder J (2018) Threshold and multiple indicators for nitrogen saturation in subtropical forests. *Environ Pollut* 241: 664-673
- 全国環境研協議会 (2007) 第4次酸性雨全国調査報告書 (平成17年度). 全国環境研会誌 32: 78-152
- 全国環境研協議会 (2019) 第6次酸性雨全国調査報告書 2017 (平成29) 年度. 全国環境研会誌 44: 2-43
- 全国環境研協議会 (2021) 全国環境研協議会による酸性雨調査. <https://db.cger.nies.go.jp/dataset/acidrain/ja/research.html> (2023年2月12日確認)