

二次林表層土における重水標識土壌水, $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ および 主要イオンの鉛直方向への移動

誌名	日本林學會誌 = Journal of the Japanese Forestry Society
ISSN	0021485X
巻/号	784
掲載ページ	p. 467-474
発行年月	1996年10月

農林水産省 農林水産技術会議事務局筑波産学連携支援センター
Tsukuba Business-Academia Cooperation Support Center, Agriculture, Forestry and Fisheries Research Council
Secretariat



論 文

二次林表層土における重水標識土壌水, $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$
および主要イオンの鉛直方向への移動

嶋 一 徹*・沖野千歳*・千葉喬三*

嶋 一徹・沖野千歳・千葉喬三：二次林表層土における重水標識土壌水, $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ および主要イオンの鉛直方向への移動 日林誌 78: 467~474, 1996 森林土壌表層での水と溶存イオンの下層への移動を D_2O と $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ をトレーサーとして用いて調べた。異なる林地から塩化ビニール製パイプを用いて非攪乱の土壌カラムを採取した。これに人工降雨装置を用いて均等に雨水溶液を滴下した。滴下は雨量 4 mm で連続 10 時間を 2 回行った。2 回目の降雨ではトレーサーとして D_2O と $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ を添加した。褐色森林土の土壌カラムでは重水の流出にともない Cl^- および Mg^{2+} , Ca^{2+} 濃度の増加が認められたが, カラム下層への $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ 移動はほとんど認められなかった。土壌での Mg^{2+} と Ca^{2+} の移動速度は重水のそれとほぼ一致していた。しかし, 林床有機物層を除去した林地の土壌カラムでは, 添加した $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ の大部分が重水とともに流出した。黒ボク土では, アニオンが吸着され, 重水の流出が認められたにも関わらず Cl^- 濃度の明らかな増加は認められなかった。

キーワード：重水標識水, 土壌水の鉛直方向への移動, 二次林

SHIMA, K., OKINO, C., and CHIBA, K.: The vertical movement of the D_2O -tagged soil water, $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ and major ions in topsoil of secondary forests. J. Jpn. For. Soc 78: 467~474, 1996 The vertical movement of soil water and major ions in topsoil of secondary forests were investigated by using D_2O and $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ as tracers of water and nutrient elements, respectively. Undisturbed soil columns were collected with cylinders made of vinyl chloride pipe in different stands. The rain solution was dropped uniformly on the column by using the artificial rainfall equipment in twice. The artificial rainfall was continued for 10 h at constant intensity of 4 mm/h. At the second time of rainfall, the tracer solution labeled with D_2O and $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ applied on the column. The concentrations of Cl^- , Mg^{2+} , and Ca^{2+} increased with the D_2O discharge and only small quantity of $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ moved to the lower horizon on the Brown forest soil columns. The downward velocity of the D_2O -tagged water agreed approximately with that of Mg^{2+} and Ca^{2+} . But large amount of the $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ was discharged with the D_2O -tagged water on the column that was collected in the forest floor removal stand. In spite of heavy water discharging, the concentration of Cl^- in discharged soil solution did not increase obviously in Andosol column because of the effect of anion absorption into the soil.

Key words: D_2O -tagged soil water, secondary forest, vertical movement of soil water

I. はじめに

これまで森林生態系の物質収支を明らかにするため, 森林内外の雨水や渓流水の水量と成分濃度について多くの調査が行われてきた(1, 2, 4, 10)。しかし, 森林の養分保持や水質浄化の機能を把握するためには, これらの情報だけでなく, 流出水の水質がどのように形成されるのかを知る必要がある(13)。森林土壌中での溶存物質の動態に関しては, 肥料に含まれる元素をトレーサーとして施用したのち, ポーラスカップ法を用いて主要イオンの移動特性について検討した報告や(22), ライシメーターを用いて調べた Cl^- 濃度の変化から土壌水の移動様式を考察した報告(19)などがみられる。土壌中での物質移動は, おもに水の動きに支配されているが, その移動様式は均一でなく, 水溶性塗料などを用いた研究から, 粗間隙が発達した土壌では流入した水や溶質が粗間隙中を速い速度で流下することが報告されている(6, 14, 20)。また, 土壌へ供給された物質は, 溶媒である水に運搬される移流ばかりではなく, 交換反応や団粒中への拡散などが複雑に組み合わさって土壌中を移動する(8)。このため水とそれに溶存する物質の移動は必ずしも一致せず, 化学生物的活性が低い Cl^-

でも水の動きと異なる場合があることが報告されている(7, 21)。森林土壌系における水とそれに溶存する物質の動態を同時に直接定量的に解明する方法の一つに, 同位体をトレーサーとして添加したのち, 土壌中における移動特性を調べる方法がある。しかし, 同位体の使用や存在比の測定は, 分析設備や経費的な制約が加わるため容易でなく, これまで畑土壌を対象とした報告はいくつかみられる(7, 11, 18)。しかし, 耕耘を伴わず, 土壌表層から下層にかけて養分含有率や物理化学的性質が大きく異なる森林土壌を対象としたものはほとんどない(15)。

本研究では, 野外から非攪乱の土壌カラムを採取し, これに重水および重窒素を含む人工降雨を降らせて, 底部から流出する土壌通過水のイオン組成とトレーサー存在比から, 土壌での水と溶存物質の鉛直方向の移動について検討を行った。

なお, 本研究にあたり島根大学農学部教授片桐成夫博士, 滝本義彦博士ならびに同演習林の技官の方々には試料採取と演習林施設の利用に際して便宜を図っていただきました。ここに記して感謝の意を表します。

II. 材料と実験方法

1. 調査林分の概況

岡山大学附属半田山自然教育研究林（以下、半田山と呼ぶ）、島根大学農学部附属三瓶演習林（同、三瓶）および岡山市尾上の神道山（同、神道山）から、1994年10月下旬に土壤カラムを採取して実験を行った。このうち半田山は、ナナメノキ (*Ilex chinensis*)、アラカシ (*Quercus glauca*) およびコナラ (*Quercus serrata*) を優占種とする広葉樹二次林で、土壤は古生層の粘板岩を母岩とする乾性褐色森林土である。1994年3月下旬に南向き斜面に幅40m、斜面長80mの調査地を設けて、西側半分は放置プロット、東側半分は林床有機物層を全て除去する処理プロットとした。これら両プロットの斜面中部から土壤カラムを採取し、それぞれ半田1および半田2とした。三瓶はコナラ (*Quercus serrata*)、ヤマボウシ (*Cornus Kousa*)、エゴノキ (*Styrax japonica*) を優占種とする落葉広葉樹二次林であり、土壤は乾性黒色土である。土壤カラムは南東向き斜面の中部から採取した。神道山はアカマツ (*Pinus densiflora*) を優占種とし、これにコナラ (*Quercus serrata*) などの広葉樹が混交するマツ二次林で、土壤は粘板岩を母岩とする乾性褐色森林土である。土壤カラムは南向き斜面の上部から採取した。

2. 人工降雨試験

人工降雨実験には内径150mm×長さ210mmの塩化ビニール製パイプを、各調査地の土壤を攪乱しないように深さ20cmまで挿入したのち取り出し、その底部にステンレス製1.5mmメッシュの金網を張り、ポリエチレン製ロートを取り付けたものを用いた。実験は図-1に示した装置を用いて行った。この装置は雨水溶液が微量定量ポンプを経由して、シリコンパイプの先端に付けた採血用シリンジ針から土壤カラムに滴下するものである。シリンジ針部分はパソコンで制御した2軸モーターで任意の位置に移動でき、この部分を土壤カラムの上部で定期的に移動させることで、雨水溶液をカラム上方10cmの位置から均一

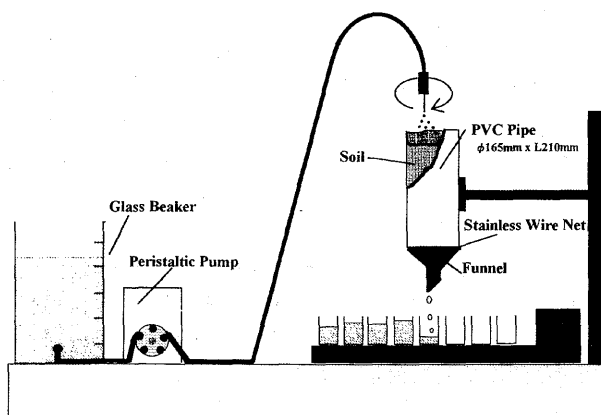


図-1. 実験に用いた人工降雨装置
Design of the artificial rainfall system.

に滴下させた。滴下速度は、毎時80mlであり、これは時間雨量約4.5mmに相当する。実験に用いた雨水溶液は1993年の半田山の林内雨平均濃度をもとに、 $\text{Na}^+ : 0.087 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{K}^+ : 0.215 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{Ca}^{2+} : 0.180 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{Mg}^{2+} : 0.117 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{NH}_4\text{-N} : 0.107 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{Cl}^- : 0.118 \text{ meq l}^{-1}$, $\text{SO}_4^{2-} : 0.089 \text{ meq l}^{-1}$ とした。この溶液のpHは5.4~5.5の範囲であった。

土壤カラムは採取時以前の降雨履歴などによって、土壤の含水比が異なることが予想される。そこで、実験ははじめに、採取した土壤カラムに10時間連続して雨水溶液を降らせたのち（第1回降雨）、15°Cの恒温器に48時間静置して土壤の水分条件をそろえた。その後、再び同一条件で雨水溶液を10時間連続して降らせた（第2回降雨）。第2回降雨では、開始後3~3.5時間目にトレーサー溶液を降らせ、土壤カラム内の鉛直方向の移動を調べた。トレーサー溶液は重水をイオン交換水で希釈しD/H=90%としたものに、 $^{15}\text{NH}_4\text{Cl}$ (99.9 atom %) を $5 \text{ g} \cdot \text{l}^{-1}$ (92 mm) 含む溶液である。 $\text{NH}_4\text{-N}$ および Cl^- 以外のイオン組成ならびに滴下速度は第1回降雨と同じである。トレーサー添加にともなう付加量を ha 当りに換算すると、 $^{15}\text{NH}_4\text{-N}$ が 31.2 kg、 Cl^- が 73.7 kg である。降雨にともないカラム底部から流出した土壤通過水は30分間隔で回収し、pHをガラス電極法、 Na^+ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、および SO_4^{2-} 濃度をイオンクロマト法で測定するとともに、重水濃度と重窒素存在比の測定に供試した。また、試験が終了したのち、土壤カラムは自由水の流出がみられなくなるまで15°Cの恒温器に静置し（8~10時間程度）、その後カラムの上部から深さ5cmごとの土壤を採取し、細土、根系および礫に区分して重量を測定した。細土については、遠心分離法を用いてpF 4.2までの土壤水を分離したのち、重水および重窒素濃度を測定した。また、土壤カラムの採取地点付近の任意の3地点で深さ20cmまでの土壤を採取し、交換性カチオン（1規定酢酸アンモニウム抽出）および陽イオン交換容量（ショールンベルガー法）を測定した(3)。

3. トレーサーの分析

重水は、はじめに鈴木ら(18)の方法に準じて回収した試料水を昇華精製し、共存する不純物を除去した。この精製試料について、白金触媒疎水性カラムを用いたTCDガスクロマト法(12, 16)を用いて重水濃度の測定を行った。測定はポリスチレン-ジビニルベンゼン共重合体からなる疎水性ポーラスポリマー（ジーエルサイエンス(株)、Gas-kuropack 54, 80~100メッシュ）担体の微細孔表面に白金を担持させた触媒カラム（φ3mm×0.8m）と、モラキュラシーレブ5A（60~80メッシュ）を充填した水吸収カラム（φ3mm×1m）を接続して、TCD検出器付きガスクロマトグラフ（島津GC-14A）で行った。キャリアガスは市販の超高純度水素ガスを用い、カラムおよびインジェクション温度80°C、カラム恒温槽90°C、検出器温度150°Cでキャリア流量は20ml/分、ブリッジ電流140mA

で行った。

また重窒素については、30分間隔で回収した土壤通過水の窒素量が少ないため、個々の試料を質量分析に供することができなかった。そこで、トレーサー付加後の土壤通過水を一括して測定した。測定は、試料水の無機態窒素をアルカリ溶液で水蒸気蒸留し、これを希硫酸溶液に捕集したのち、アルゴン雰囲気下で濃縮したものについて質量分析法を用いて行った(17)。

III. 結果と考察

1. 重水の定量に関する検討

重水標準試料を用いて注入量ならびに重水濃度を变化さ

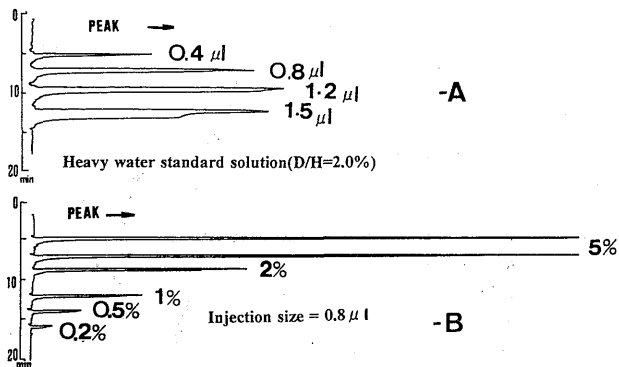


図-2. 標準試料を用いた注入量(A)と重水濃度(B)の違いを示すクロマトグラム

Chromatograms showing the effects of injection volume on the 2.0% D₂O solution (A) and the changes of integrated peak areas against the D₂O concentrations (B).

せたときのクロマトグラムを図-2に示した。注入量が1.2 μ l以下の場合、重水のピーク面積は注入量に応じて増加するが、注入量がそれ以上の場合には、本研究に用いた機器と分析条件では、重水ピークがテーリングするため再現性が劣ることが確認された。そこで、注入量を0.8 μ lとして標準試料の分析を行った結果、重水濃度とピーク面積の間の直線性は非常に高いことが確かめられ($r^2=0.9997$)、本実験に際して重水濃度の定量を行うことに問題はないことが確認された。また、重水ピークのリテンションタイムは数分であり、この分析条件を用いれば比較的短時間に多点の試料を分析することも可能であることが確かめられた。

2. カラム採取地の土壌の性質

各調査地の深さ20cmまでの土壌の諸性質を表-1に示した。半田山は土壌が緻密で固相率が高く、深さ15~20cmでは固相率が50%以上であった。また、礫の分布も多くなっていた。神道山でも深さ10cm以下では礫が多く、固相率も高くなっていた。これら調査地では全窒素、全炭素含有率が深さにともない急激に減少しており、土壌は未発達で浅かった。特に半田2の深さ10cm以下では、全窒素、全炭素含有率がそれぞれ0.4~0.3ならびに3.3~2.2 g \cdot kg⁻¹と極端に低くなっていた。これに対して、三瓶は黒ボク土が厚く堆積しており、固相率も30~39%と低く、礫がほとんど含まれていなかった。

土壌のカチオン交換容量は、半田2の深さ0~5cmで40.52 meq \cdot 100 g⁻¹と、他の調査地よりやや高くなっている以外は、いずれもほぼ同じ値であった。交換性カチオン量は、半田2を除きほぼMg²⁺>Ca²⁺>K⁺>Na⁺の順であ

表-1. 採取地点の表層土の性質

Some characteristic of topsoil of sampling sites.

採取地 Site	深さ Depth (cm)	固相 Solid	液+気相 Moisture and air phase (Volume %)	礫 Gravel (kg \cdot L ⁻¹)	根系 Roots (g \cdot L ⁻¹)	pH (H ₂ O)	全窒素 Total-N (g \cdot kg ⁻¹)	全炭素 Total-C (g \cdot kg ⁻¹)	CEC Cation Exch. capacity	交換性カチオン Exchangeable cation			
										Na	K	Ca	Mg
半田1	Ao layer	—	—	0.01	0.00	6.03	11.25	410.0	—	—	—	—	—
Handa 1	0~5	32.1	67.9	0.02	0.85	4.66	5.25	105.0	34.37	0.355	1.529	6.487	7.094
	5~10	44.6	55.4	0.21	0.11	4.75	1.98	43.9	17.42	0.288	0.811	1.519	3.168
	10~15	46.2	53.8	0.34	0.11	4.45	0.72	12.5	15.13	0.164	0.366	1.606	1.285
	15~20	54.3	45.7	0.17	0.08	4.58	0.32	4.6	10.05	0.217	0.400	1.106	1.548
半田2	0~5	33.5	66.5	0.02	0.78	4.56	7.07	83.6	40.52	0.234	1.176	1.863	2.200
Handa 2	5~10	48.3	51.7	0.26	0.19	4.60	1.12	21.1	16.34	0.466	0.425	1.213	2.126
	10~15	48.5	51.5	0.25	0.11	4.36	0.42	3.3	17.07	0.193	0.305	0.818	2.135
	15~20	51.3	48.7	0.21	0.06	4.40	0.33	2.2	15.45	0.325	0.306	0.989	2.820
三瓶	Ao layer	—	—	0.00	0.00	6.10	10.52	354.3	—	—	—	—	
Sanbe	0~5	30.3	69.7	0.01	0.48	6.26	5.25	74.5	26.45	0.136	0.678	3.133	0.972
	5-10	32.5	67.5	0.03	7.93	6.21	4.23	60.8	18.42	0.077	0.247	1.154	0.517
	10~15	31.8	68.2	0.03	2.83	6.49	3.25	47.3	17.27	0.072	0.241	0.719	0.559
	15~20	38.9	61.1	0.03	1.47	6.53	2.78	39.2	15.05	0.085	0.210	0.301	0.807
神道山	Ao layer	—	—	0.00	0.00	5.96	11.58	462.1	—	—	—	—	
Shindou	0~5	36.9	63.1	0.01	2.19	5.47	5.84	52.2	34.36	0.257	0.583	1.597	0.576
	5~10	48.9	51.1	0.04	7.32	5.44	0.78	9.6	18.98	0.184	0.275	0.535	0.370
	10~15	49.8	50.2	0.11	0.96	4.16	0.65	5.9	15.23	0.139	0.297	0.252	0.306
	15~20	47.3	52.7	0.18	0.20	4.26	0.34	5.5	13.53	0.153	0.181	0.192	0.315

り、半田山が三瓶、神道山よりやや多い傾向にあった。同一林分である半田1、半田2を比較すると、半田2では交換性カチオン量、特に表層のカルシウム、マグネシウムが少ない傾向にあり、林床有機物層の除去処理にともなう養分元素の溶脱が起こっていると考えられた(10)。

3. 雨水溶液と重水の土壌カラム通過

第1回降雨にともない土壌カラム底部から流出した土壌通過水の経時変化を図-3に示した。土壌通過水の流出パターンにはカラムによる違いがみられた。神道山と三瓶では、それぞれ降雨開始から1.0および3.5時間後に流出がはじまり、その後約1時間で流量が降雨とほぼ等しくなっていた。半田1でも降雨開始から1時間で土壌通過水の流出がはじまり、その後徐々に流量が増加していた。これに対して、半田2では降雨開始直後から土壌通過水が流出していた。第2回降雨での土壌通過水と重水含有率の経時変化を図-4に示した。第1回降雨とは異なり、土壌通過水の流出にはカラムによる違いがほとんど認められず、いずれも降雨開始から1.5~2.0時間が経過した時点で降雨と土壌通過水の量がほぼ等しくなっていた。カラムにおける水収支がほぼ一定になった後1.0~1.5時間が経過した時点で(降雨開始から3.0時間目)、雨水溶液にトレーサーを添加した。半田1と神道山で重水の流出が認められたのは、トレーサー添加後1.5~2.0時間目であり、土壌通過水の重水濃度は徐々に増加する傾向にあった。これに対して、半田2ではトレーサー添加直後から重水の流出が認められ、1.0時間後には重水濃度が9.8%とピークに達した。また、三瓶では添加後2.5時間目に重水濃度が急に増加したのち、降雨終了時まで2.5%前後を推移していた。

土壌中を溶液が均質に分散しながら流出する場合、溶質の流出濃度曲線はシグモイド曲線となるが、粗間隙中を選択的に流れる場合には、浸透初期に急激な濃度上昇を示すことが知られている(8)。このことから、神道山では重水がカラム内をほぼ均質に浸透しながら流出していたと考えられた。また、半田1でもこれに近い浸透形態であったこ

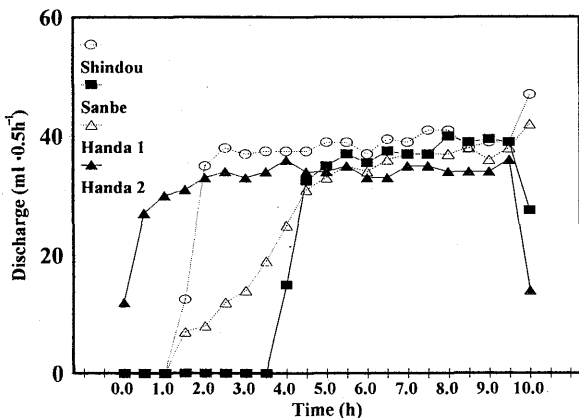


図-3. 土壌通過水量の時間変化 (第1回降雨)
Changes in water discharge from soil column (The first time of rainfall).

とが推測された。これに対して、半田2や三瓶では、土壌中の粗間隙を、添加した重水標識水の多くが通過したものと考えられた。とくに半田2では、重水濃度が添加直後から増加し、約1時間でピークに達していることから、トレーサーの大部分が土壌の亀裂部分などの大きな間隙を早い速度で通過したことが推測される。これは半田2土壌の固相率が高く、礫が多いことに加えて、土壌有機物が少ないことによると考えられる。しかし、三瓶では固相率が低く礫がほとんど存在していないことから、水の通過パターンには、土壌の疎水性や粒径組成が関与しているのかもしれない。

4. 土壌通過水のイオン濃度の変化

土壌通過水の主要アニオン濃度および、主要カチオン濃度とpHの経時変化をそれぞれ図-5、6に示した。第2回降雨のアニオン濃度の変化をみると、三瓶以外では重水濃度の上昇にともない、Cl⁻濃度の急激な上昇が認められ、トレーサー添加にともない付加したCl⁻が重水とともに流

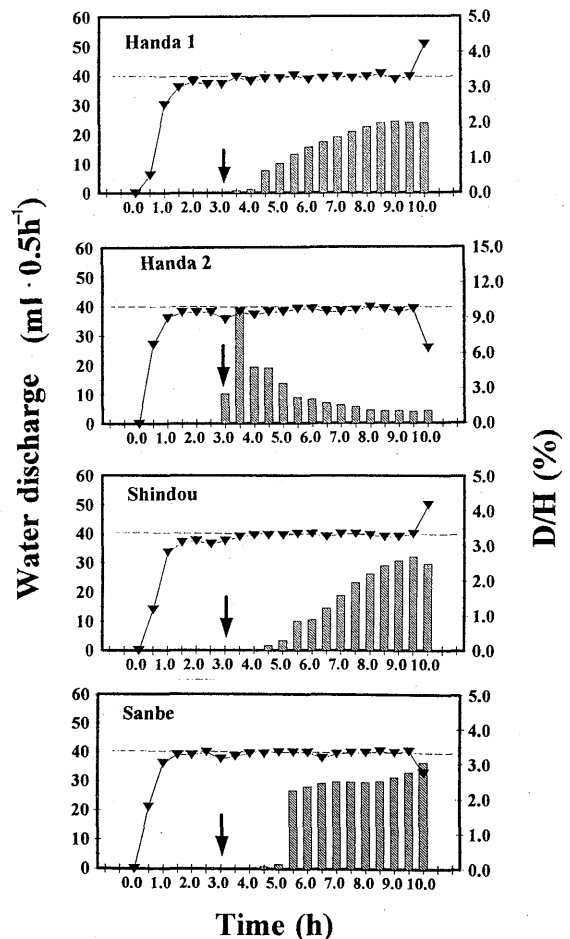


図-4. 土壌通過水量と重水含有率の変化 (第2回降雨)

Changes in water discharge and concentration of heavy water (The second time of rainfall).

Legend: ▼, Water discharge; ▨, D/H.

Note: Arrows show the tracer applied period.

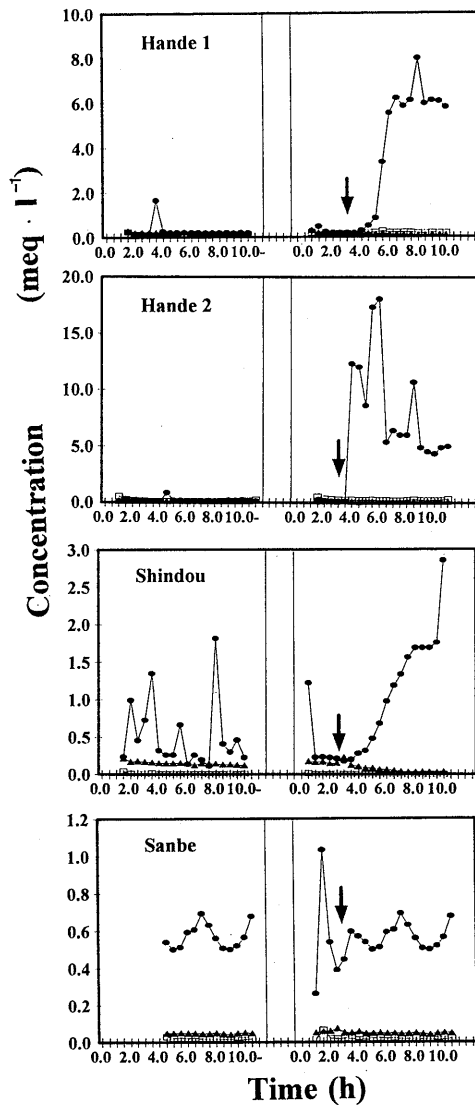


図-5. 土壌通過水の陰イオン濃度の変化
Changes in concentrations of major anions in soil solution discharged from soil column.

Legend: ●, Cl⁻; □, NO₃⁻-N; ▲, SO₄²⁻.
Note: Arrows show the tracer applied period.

出したものと思われた。しかし、Cl⁻と重水濃度の変化パターンは、神道山でほぼ一致しているものの、それ以外では、必ずしも一致していなかった。とくに半田2では、Cl⁻濃度のピークが重水濃度のピークから約1時間遅れていた。また、いずれのカラムでもNO₃⁻-NおよびSO₄²⁻濃度にはほとんど変化が認められなかった。

カチオン濃度の変化もカラムやイオンによる違いが認められた。神道山では重水濃度の上昇とほぼ同時に、Mg²⁺、Ca²⁺濃度の上昇とpH値の低下が認められた。これら2価のカチオン濃度変化のパターンは重水やCl⁻濃度のそれと近似していたことから、土壌での¹⁵NH₄⁺-N吸着にともない、2価のカチオンが流出したと推測される。半田1でも重水濃度の上昇にともないカチオン濃度の変化が認められた。最も顕著な上昇が認められたのはMg²⁺およ

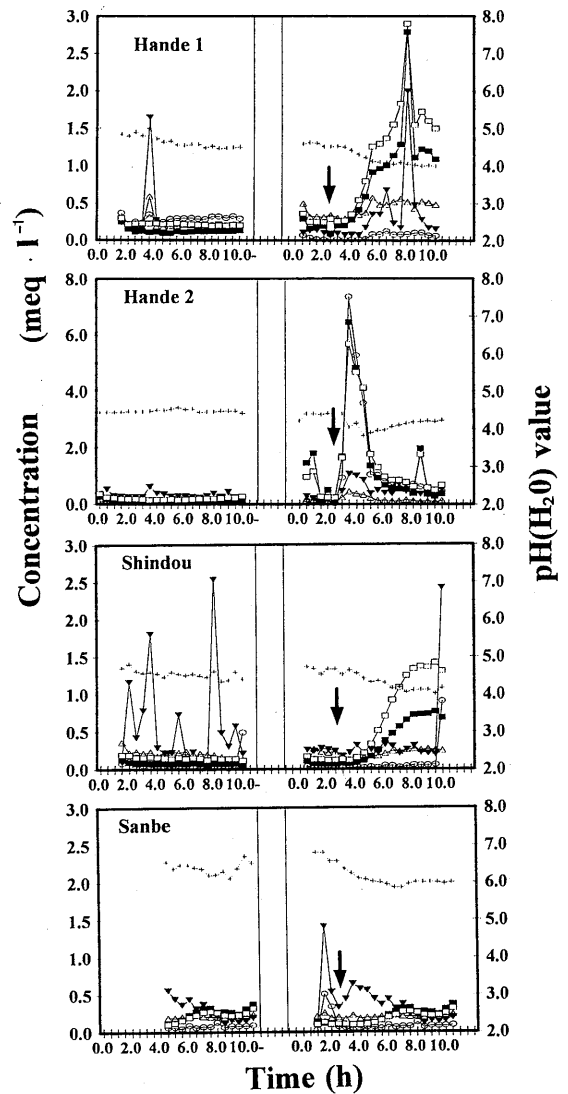


図-6. 土壌通過水の陽イオン濃度とpH(H₂O)値の変化
Changes in concentrations of major cations and pH(H₂O) value in soil solution discharged from soil column.

Legend: □, Mg²⁺; ■, Ca²⁺; △, K⁺; ▼, Na⁺; ○, NH₄⁺-N; +, pH.
Note: Arrows show the tracer applied period.

びCa²⁺であり、NH₄⁺-NとNa⁺濃度の変化はごくわずかであった。しかし、これら2価のカチオン濃度は降雨開始4.0~8.0時間目まで急激に上昇しており、重水濃度の変化パターンとは若干異なっていた。これに対して、半田2ではトレーサー添加直後から、Mg²⁺、Ca²⁺に加えて¹⁵NH₄⁺-N濃度の急激な上昇が認められた。これらの濃度の変化パターンは、重水濃度のそれに近似していた。各調査地のカチオン交換容量には大きな差がみられず、半田2のカラム全体では約450 meqであり、各深さごとに求めた塩基飽和度も17.9~28.7%の範囲であった。これに対して第2回降雨による付加量はカラムのカチオン交換総容

量の1/100以下であった。このことから半田2における $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ の流出は、土壤そのものの養分保持能力の差ではなく、雨水溶液が土壤粗間隙を速やかに通過したことによると推測される。

一方、三瓶をみると重水の流出が認められたにも関わらず、トレーサー添加後の Cl^- 濃度に明らかな上昇が認められず、このような土壤では、 Cl^- の挙動から土壤中での水の移動様式を推測することは難しいことが判明した。これは三瓶が火山灰由来の黒ボク土で、高いアニオン交換能を有すためと推測されるが、本実験ではAEC（アニオン交換容量）の測定を行っておらず、詳細な検討はできなかった。また、カチオン濃度にも明らかな上昇は認められなかった。三瓶は全層にわたり固相率が低く、土壤間隙を水が早い速度で通過したと推測されたが、半田2と異なり土壤通過水のイオン濃度の経時変化は全く異なっていた。これより土壤養分の保持能力は、水の浸透形態だけでなく、土壤の理化学性など他の因子も深く関与していると考えられた。

また、土壤溶液は電氣的バランスを保つためアニオン濃度の上昇にともない交換性カチオンが溶出されるが、その溶出は Ca^{2+} が最も多い場合(22)や土壤の交換性カチオン量に依存する場合(5)がある。半田1と神道山の交換性カチオン量は(表-1)、 $\text{Ca}^{2+} > \text{Mg}^{2+}$ の順であったが、 NH_4^+-N の吸着にともない溶出したカチオンは Mg^{2+} が最も多くなっており、土壤の交換性カチオン量とは一致していなかった。

第1回降雨についてみると、半田1と神道山では Cl^- 濃度が一時的に上昇する場合がみられ、その変動は K^+ 濃度とよく一致していた。しかし、第2回降雨ではトレーサー添加にともなう Cl^- 濃度の上昇と K^+ 濃度の変動は一致していない。林地への NH_4Cl 施肥試験でも、土壤溶液のアニオン濃度の違いによって K^+ の挙動が変化することが報告されている(22)。このように、土壤通過水の Cl^- や K^+ 濃度が水の浸透パターンとは異なる不規則な変動をみせる事実は、土壤中を移動しやすいアニオンや2価カチオンより交換吸着されにくい K^+ (9)の挙動が単純でないことを示しており、今後さらに検討を加える必要があると考えられた。

5. 土壤カラムにおける水とイオンの移動量

降雨にともない添加した重水と $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、 Cl^- がカラム内を等しい速度で移動すると、これらがカラムを通過し流出する量も等しくなるはずである。また、第2回降雨では降雨開始直後を除いて、トレーサーの流出まで土壤通過水量とイオン濃度が安定していた(図-5, 6)。そこで、 Cl^- については、トレーサー添加後の濃度から、第2回降雨開始後トレーサー添加までの平均値を差し引いたものが、トレーサー添加にともない増加したものと仮定して、流出量の経時変化を算出した。カチオンについては、添加した NH_4^+-N が直接流出したものや、土壤で吸着され、代わりに2価のカチオンが溶出したものがある。そこで、

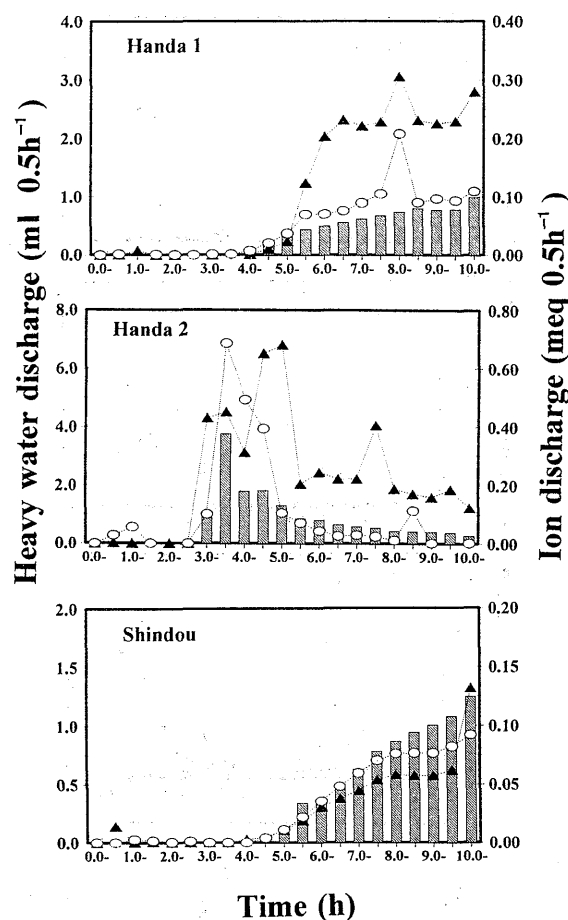


図-7. 重水とイオン流出量の時間変化
Changes in the amounts of heavy water and ions in solution discharge.

Legend: \square , D_2O ; \blacktriangle , Cl^- ; \circ , Cations.

半田1および神道山については Mg^{2+} と Ca^{2+} の合計、半田2については NH_4^+-N と Mg^{2+} 、 Ca^{2+} を合計したものについて、 Cl^- と同様の方法でトレーサー添加にともなう流出量の変化を推定した。三瓶を除く各カラムについて、重水と Cl^- およびカチオン流出量の経時変化を比較したのが図-7である。なお、本実験で添加した総量は重水が36 ml、 $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ と Cl^- が各約3.7 meqである。したがって、これらが等しい速度でカラムを通過した場合、仮に重水流出が $3.6 \text{ ml} \cdot 0.5 \text{ h}^{-1}$ であるならば、 Cl^- とカチオンは各々 $0.37 \text{ meq} \cdot 0.5 \text{ h}^{-1}$ が流出するはずであり、図中では両者の点がほぼ一致する。

神道山と半田1では重水と Cl^- 濃度の変化パターンはほぼ一致していたが、量的にみると土壤の交換反応により溶出し、流出したカチオン($\text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$)が、重水の移動量に近似していた。半田2では重水の急激な流出がみられた時点で、重水とカチオン($^{15}\text{NH}_4^+-\text{N} + \text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$)の流出量に大きな差が認められたが、全体的な流出パターンは Cl^- よりカチオン($^{15}\text{NH}_4^+-\text{N} + \text{Mg}^{2+} + \text{Ca}^{2+}$)が重水と近似していた。カチオンは土壤交換基と吸脱着を繰り返しながら移動するため、土壤下層への動きが Cl^- より遅れ

ることが報告されている(19)。また、林地に NH_4Cl を付加した場合、 NH_4^+-N は硝化作用により NO_3^--N に変化しながら土壌下層へ移動するため、 Cl^- の移動より遅れる(22)。しかし、本実験は短期間であり、 NO_3^--N 濃度の変化から $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ がほとんど硝化されていないと推測される。このような場合で、土壌中を水が比較的均質に移動したときには、土壌への NH_4^+-N 吸着と 2 価のカチオンの溶出が起こっても、水とカチオンの動きがほぼ一致していることが明らかになった。また、 Cl^- の流出は重水とは若干異なっていたが、これは土壌粒子の負吸着の効果(7)によるものかもしれない。この点に関しては今後検討を加

える必要がある。

6. 土壌カラム内におけるトレーサーの残存とイオンの分布

実験終了時の重水と ^{15}N の分布を図-8 に示した。半田 2 ではカラム内の重水残存量がわずかで、深さによる違いも認められなかった。このことから、トレーサーが全層に配分され、速やかに流出したためと考えられた。また、 ^{15}N はその約 3/4 が流出していたが、カラム内では深さ 5cm までの表層に多く残存していた。これより $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ の一部は土壌表層に吸着されたものの、それ以外は水の移動にともない直接流出したと考えられた。

一方、半田 2 以外のカラムでは残存する重水の大半が深さ 5 cm 以下に分布するのに対して、 ^{15}N は深さ 10 cm までの表層に半分以上が分布していた。これは重水が降雨の継続にともない下層へ浸透したのに対して、 $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ の多くは土壌表層に保持されていたことを示している。また、半田 1 と神道山では ^{15}N の約 1/5~1/3 が pF 4.2 までの土壌水中に存在したのに対して、三瓶では林床有機物層を除き土壌水中に ^{15}N がほとんど存在しなかった。半田 1 と神道山でカラムに残存する ^{15}N の一部が土壌に吸着されず、団粒や土壌間隙へ拡散した土壌水に溶存するかたちで存在するのならば、先に示した重水と 2 価カチオン ($\text{Mg}^{2+}+\text{Ca}^{2+}$) の流出量がほぼ同じであるという結果(図-7)とは一致しない。その理由は、遠心分離を用いた土壌水の採取方法に問題があるのかもしれない。あるいは、土壌によっては吸着された $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ より多くの 2 価カチオンが流出したのかもしれない。しかし、この点に関しては明らかでなく、今後さらに検討する必要がある。

以上の結果から、降雨にともない約 $30 \text{ kg} \cdot \text{ha}^{-1}$ 程度の NH_4^+-N が短期間に付加されても、その大半は表層土壌に保持され、水と溶存イオンだけが下層へ移動する事実を、 D_2O 、 $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ 、カチオン、 Cl^- 等の分布と移動から明らかにすることができた。また、半田 1 と半田 2 の比較から、水が土壌の粗間隙等を急速に通過する場合、陽イオン交換容量に大きな差がなくても、森林土壌の NH_4^+-N 保持量は少なく、水の浸透形態が土壌養分の吸着・保持に関与することが考えられた。しかし、養分の吸着・保持は水の浸透形態のみに支配されているのではなく、三瓶と半田 2 の比較からわかるように、土壌自体の性質も大きく関与していることが明らかになった。

IV. おわりに

重水と $^{15}\text{NH}_4^+-\text{N}$ および Cl^- をトレーサーとした人工降雨試験から、降雨とカラム流出水が等しく、見かけの上は土壌通過水の流出に違いがみられない場合でも、土壌内の水の浸透形態には大きな違いがあることが明らかになった。重水が土壌中を比較的均質に浸透した場合には、水の移動が Cl^- よりも交換反応にともない溶出した 2 価カチオンと近似している結果が得られた。これに対して、水が土壌の粗間隙を選択的に通過した場合やアニオン交換能が高

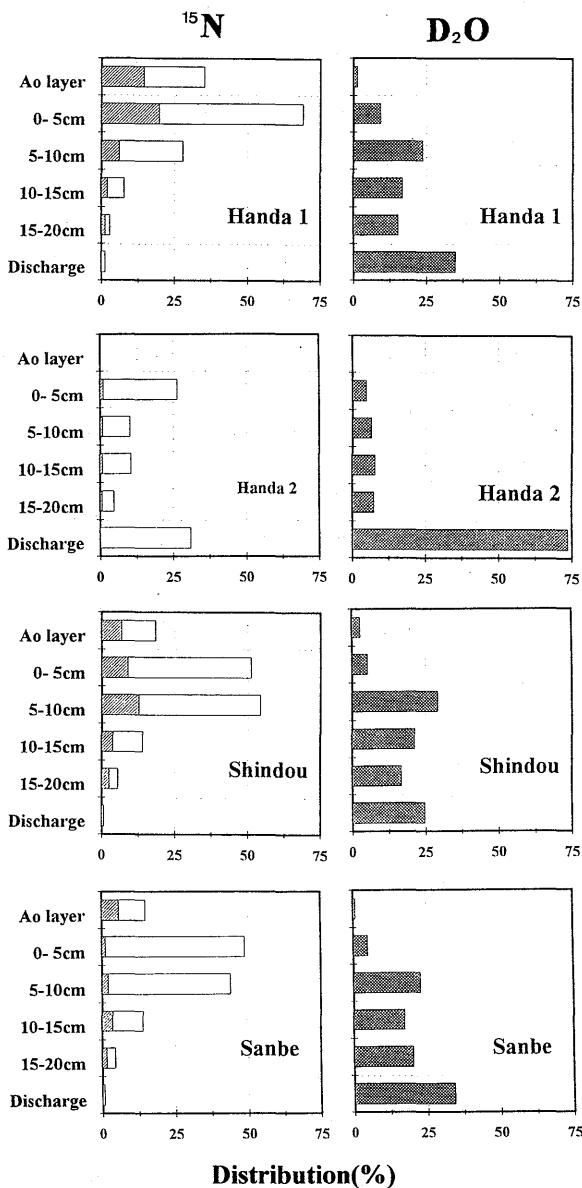


図-8. 重水ならびに重窒素の土壌カラム内における分布

Percentage distribution of heavy water and ^{15}N remaining in the soil column

Legend: □, Total ^{15}N ; ▨, ^{15}N in the soil solution (pF 4.2).

いといわれている火山灰由来の黒ボク土では、水とアニオンの移動量が必ずしも一致しないことが判明した。土壤における NH_4^+ -N 保持能力は水の移動様式と密接に関係しており、森林における養分保持や水質浄化機能について検討する際には、非攪乱の土壤において水の挙動を正確に把握することが必須であると考えられた。また、土壤中での水の移動には土壤構造に加えて、降雨の強度や継続時間など多くの因子が関与している。本報では雨量 4.5 mm という条件で実験を行っただけである。今後、土壤中での水と溶存物質の挙動については、降雨の強度や継続時間などを変化させて、さらに検討を行う予定である。

引用文献

- (1) 有光一登 (1982) 森林土壤の水分に関する研究 (第2報) 森林土壤の水分および溶存成分の動態. 林試験報 318: 11-78.
- (2) 岩坪五郎・堤 利夫 (1968) 森林内外の降雨中の養分量について (III) 流亡中の養分量について. 京大演報 40: 140-156.
- (3) 土壤標準分析法・測定法委員会 (1988) 土壤標準分析・測定法. 335 pp, 博友社, 東京.
- (4) FILLER, M. C. (1977) Nutrient movement through western hemlock western red-cedar ecosystems in southwestern British Columbia. *Ecology* 58: 1269-1283.
- (5) 生原喜久雄・戸田浩人・相場芳憲 (1988) 森林土壤での NO_3^- -N および K の下層への動き. 東京農工大演報 25: 13-18.
- (6) 波多野隆介・佐久間敏雄・岡島秀夫 (1983) メチレンブルートレーサー法による水みちの分布状態. 日土肥誌 54: 10-16.
- (7) 波多野隆介・江 耀宗・佐久間敏雄・岡島秀夫 (1988) 水と溶存イオンに対する畑土壤団粒の source-sink 効果 D_2O を水のトレーサーとして. 日土肥誌 59: 253-259.
- (8) 石黒宗秀 (1994) 土壤中の溶質移動におよぼす粗間隙の影響. 日土肥誌 65: 349-356.
- (9) 河田 弘 (1989) 森林土壤学概論. 400 pp, 博友社, 東京.
- (10) LIKENS, G. E., BORMANN, F., FISHER, D., and PIERCE, R. (1970) Effects of forest cutting and herbicide treatment on nutrient budgets in the Hubbard Brook watershed-ecosystem. *Ecology* 48: 772-785.
- (11) MOUTONNET, P. and COUCHART, P. H. (1982) Heavy water tracing of soil-water transfers under irrigation. *Soil Sci. Soc. Am. J.* 46: 435-438.
- (12) 森下謙三・野田茂行 (1989) ライフサイエンスのための安定同位体利用技術 (IX) ガスクロマトグラフ利用による重水の分析法とトレーサー利用. *Radioisotopes* 31: 619-627.
- (13) 大類清和 (1994) 森林流出水の水質研究と森林の水質浄化機能を把握する上での課題. *森林科学* 12: 34-40.
- (14) OMOTI, U. and WILD, A. (1979) Use of fluorescent dyes to mark the pathways of solute movement through soil under leaching conditions: 2. Field experiments. *Soil Sci.* 128: 98-104.
- (15) RIEKERK, H. (1971) The mobility of phosphorus, potassium, and calcium in a forest soil. *Soil Sci. Soc. Am. Proc.* 35: 350-356.
- (16) 佐久間敏雄・倉持寛太・斉藤英樹 (1982) 土壤中における重水の挙動追跡法 分析の精度と試料調整法. 日土肥誌 60: 197-202.
- (17) 嶋 一徹・内海健司・千葉喬三 (1993) 広葉樹二次林の林地表層における生物窒素固定ならびに窒素の無機化・有機化速度. 日林誌 75: 390-396.
- (18) 鈴木大介・寿松木章・栗原 淳 (1982) 重水利用による土壤中の物質移動の解析. 日土肥誌 53: 467-470.
- (19) 徳地直子・黒田幸夫・岩坪五郎 (1991) 森林生態系における溶存物質濃度・量の鉛直変化 (I) スギ人工林における塩素イオンとナトリウムイオンと土壤水の垂直的移動. 日林誌 73: 135-144.
- (20) WHITE, R. E. (1985) The influence of macropores on the transport of dissolved and suspended matter through soil. *Advances in soil sci.* 3, 358 pp, Springer-Verlag, New York, 95-120.
- (21) WHITE, R. E., THOMAS, G. W., and SMITH, M. S. (1984) Modeling water flow through undisturbed soil cores using a transfer model derived from ^3HOH and Cl transport. *J. Soil Sci.* 159-168.
- (22) 岡子光太郎・生原喜久雄・相場芳憲 (1992) 2種の陰イオンを付加した森林土壤溶液における陽イオンの動態. 日林誌 74: 185-193.

(1996年9月13日受理)