

3.2 生態影響モニタリング

3.2.1 土壌・植生モニタリング

(1) 平成 20～24 年度における土壌モニタリング結果

基礎データの収集及び大気沈着による影響評価を目的として、主に樹木影響に着目した 13 地域と土壌影響に着目した 6 地域の計 19 地域 (25 地点 50 プロット) での土壌・植生モニタリングを平成 15 年度から実施している。なお、土壌に着目した地域では、平成 13 年度からモニタリングを開始しており、経年変化評価にはこれらのデータも用いた。

①調査地点における土壌の化学的特性と酸緩衝能

現在までの土壌・植生モニタリング地点と、各地点における pH、及び酸性沈着への緩衝能の指標として用いられる交換性塩基 (Ca+Mg+K) と交換性 Al の当量比 (以下、(Ca+Mg+K)/Al 当量比¹⁾) の最新値 (平成 20～24 年度) を図 3-2-1 に示した。

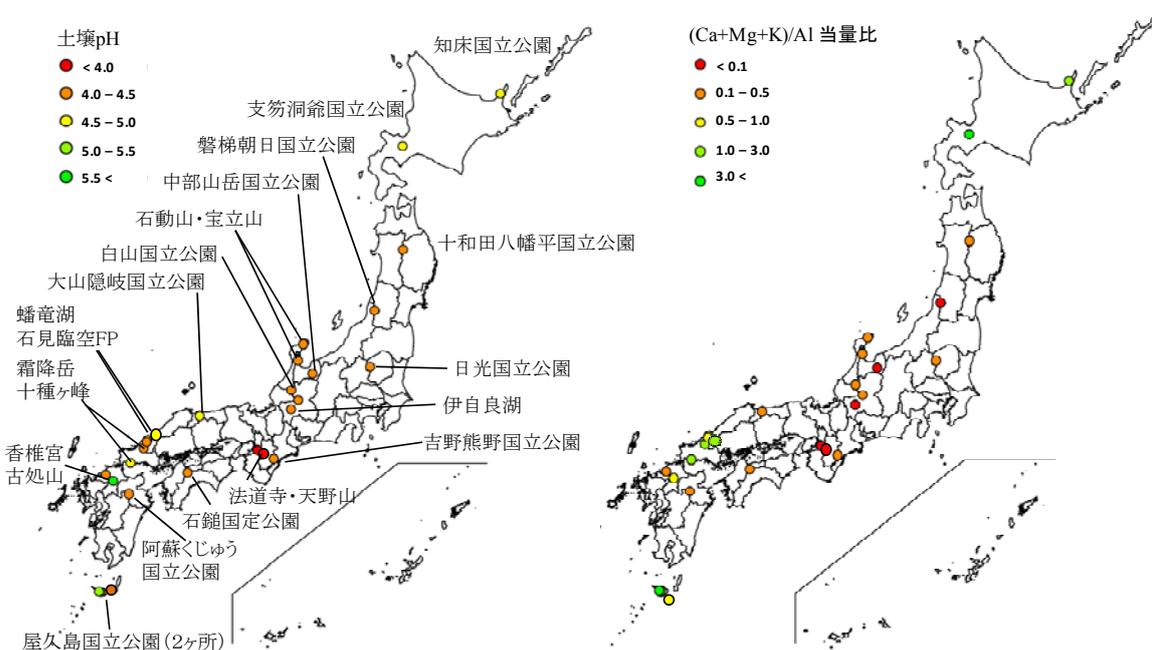


図 3-2-1 土壌・植生モニタリング地点における土壌表層 (0-10 cm) の pH(H₂O) (左) と交換性 (Ca+Mg+K) / Al 当量比 (右)

注：各地点の最新値 (2 プロット×5 サブプロットの平均)

¹ 1M CH₃COONH₄ 溶液の NH₄⁺ によりイオン交換されて抽出される塩基 (Ca, Mg, K など) と 1M KCl 溶液の K⁺ により抽出される Al を当量比で表現したものを。土壌酸性化過程においては、塩基の溶脱と Al の活性化が生じ、この比が小さくなる。塩基交換による酸緩衝能の指標の 1 つ。

本モニタリングは森林植生を対象としており、調査地点の土壌は褐色森林土（14 地点）、黒ぼく土（4 点）、赤黄色土（4 点）、ポドゾル性土（3 点）の 4 つの大群（土壌種）² に分類される [1]。土壌種による明確な酸性度の違いは見られず、多くの地点で pH (H₂O) は 4.5 以下と強い酸性を示した。酸性沈着への緩衝能の指標として用いられる (Ca+Mg+K) /Al 当量比は、磐梯朝日国立公園（以下、国立公園及び国定公園は省略）、伊自良湖、石鎚（褐色森林土）、中部山岳（ポドゾル性土）、法道寺（赤黄色土）で 0.1 以下と他地点に比べ特に低かった。一方、知床、支笏洞爺、蟠竜湖、古処山、屋久島（褐色森林土）や霜降岳（赤黄色土）では比較的高い pH や (Ca+Mg+K) /Al 当量比が見られた。

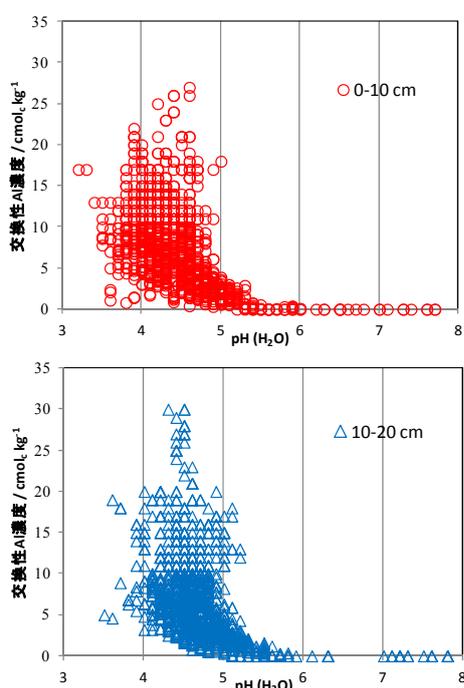


図 3-2-2 本モニタリングの土壌における pH と交換性 Al 濃度の変動範囲
注：平成 13～24 年度の全測定値

上記モニタリング地点の土壌 pH と交換性 Al 濃度の関係を図 3-2-2 に示した。土壌 pH が低いほど、交換性 Al 濃度が高くなる傾向がみられた。本モニタリングにおける土壌 pH は 4 から 5 の範囲に最も多く分布しており、4 以下の非常に低い pH は次層（10-20 cm）よりも表層（0-10 cm）で多く見られた。土壌酸性化過程では、pH によって異なる酸緩衝作用が働くことが知られており、次ページのコラムに示したように、Al の緩衝作用の働く pH 4～5 の範囲 [2]では、酸の負荷量が大きくても土壌 pH は容易に低下しない。本モニタリング地点における土壌のほとんどは 5.5 以下の pH 範囲にあったため、外部から流入する酸は主に Al による緩衝作用を受けていると考えられる。有機物が少なく鋹物（Al を含む）がより多く存在する次層ではこうした緩衝能が高いものの、表層では鋹物による緩衝能が低く、さらに有機物由来の有機酸の影響を受けて pH がより低下する傾向があったと考えられる。緩衝に伴い土壌溶液中に溶解する Al³⁺ は植物根にとって有害であり、pH のみならず Al の挙動についても注視する必要がある。

以上のように、土壌の化学的特性及び酸緩衝能はモニタリング地点や深度によって大きく変動していた。こうした空間変動の多くは地質学的な時間スケールでの土壌生成作用によって生じたものであるが、土壌・植生に対する人為影響を評価するためにはこれらのメカニズムの下で生起する土壌化学特性の空間変動をあらかじめ考慮する必要がある。

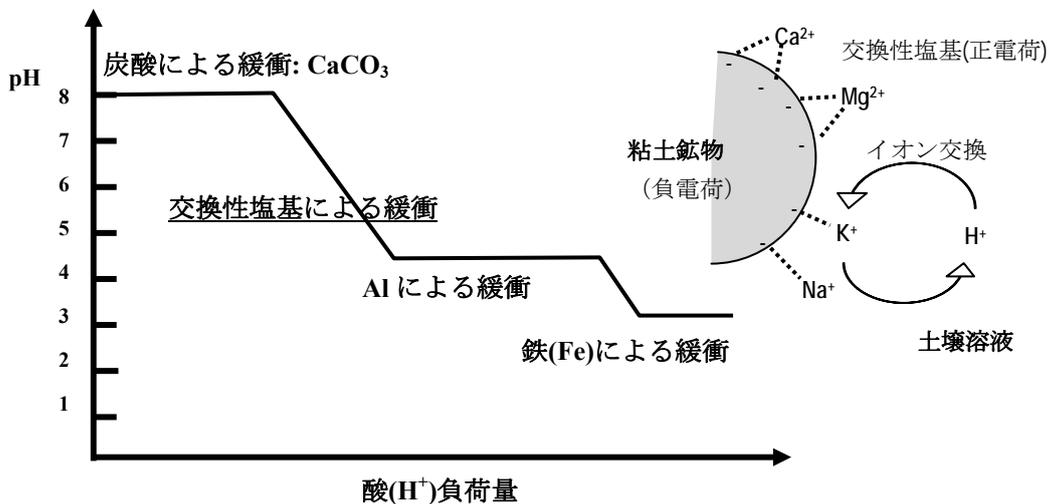
² 酸性沈着に対する緩衝能は土壌種によって異なる（コラムを参照）。

土壌の種類と酸性沈着への緩衝能

酸性沈着に対する緩衝能は、以下の土壌種の上から順に弱い。

- ① 赤黄色土：化学的風化作用を強く受けた塩基が少ない Al に富む強酸性の土壌で、西南日本の丘陵地帯や洪積台地上に広く分布している。
- ② ボドゾル性土：湿潤寒冷な亜寒帯針葉樹林下において生成された強酸性の土壌で、北海道北部及び本州、四国、九州の山岳地帯に分布している。
- ③ 褐色森林土：我が国の代表的な森林土壌で全国に分布している。その多くは塩基飽和度が低い（50%未満）酸性の土壌である。
- ④ 黒ぼく土：火山灰を母材とする有機物に富んだ土壌で、火山山麓に広く分布する。

土壌酸性化過程においては、pH によって異なる緩衝作用が働き、日本の森林土壌の多くが示す pH4 から 6 の間では、主に交換性塩基による緩衝が生じる。土壌溶液中の H^+ は、粘土鉱物表面に保持されていた交換性塩基とイオン交換により土壌に吸着され、植物にとって有用な Ca^{2+} や Mg^{2+} のような塩基が流出する。Al による緩衝作用が働く pH4 付近では pH は容易には低下しないが、植物に有害な Al^{3+} が溶解する（下図は Ulrich [2] を参考に作成）。



② 土壌化学性の経年変化

土壌モニタリングにおいては、土壌特性が大きな空間変動を示すことが多いため、図 2-2 に示した階層サンプリングにより各階層における分散（ばらつき）の大きさを評価できるシステム³を採用している。本システムでは、モニタリング地点の土壌につき、その土壌が分布する区域内にランダムに 2 つのプロットを選び、そのプロット内の 1 m²内に 5 つのサブプロットを置き、そこから表層土と次層土の分析用サンプルを採取し、2 回の繰り返し分析を行っている。5 年に 1 回、以上の手順による調査を実施した。土壌化学性の経年変化を評価するためには、このシステムを活用した枝分かれ分散分析により土壌毎に各年次間の分析値の比較をすることができる。

各地点の年次間の土壌化学性を比較するにあたっては、上記階層サンプリング・システムを考慮した枝分かれ分散分析により、まず地点レベルでの経年変化を評価した (i で詳述)。次に、地点の状況によっては 2 つ設定されたプロットのうち、一つのプロットだけで変化が見られた場合もあったため、プロットレベルでの経年変化も評価した (ii で詳述)。

i) 地点レベルでの土壌化学性の経年変化

地点レベルでの表層 (0-10 cm) 及び次層 (10-20 cm) における土壌 pH (H₂O) と塩基飽和度の経年変化を図 3-2-3 及び図 3-2-4 に示した。

³土壌モニタリングにおける階層サンプリングとそれを活用した分散分析：統計学的には、年次が母数因子（特定の水準がとりあげられる因子）、プロット、サブプロット、繰り返し分析が変量因子（不特定多数の集合から無作為に取り出された因子）からなる次のような混合モデル（母数、変量の両因子が混合しているモデル）として分散分析を行うことができる。

$$X_{ijkl} = \mu + \alpha_i + B_{ij} + C_{ijk} + \varepsilon_{ijkl}, \quad i = 1, 2 (\text{又は } 3), j = 1, 2, k = 1, \dots, 5, l = 1, 2, \\ \sum \alpha_i = 0, B_{ij} = N(0, \sigma_B), C_{ijk} = N(0, \sigma_C), \varepsilon_{ijkl} = N(0, \sigma)$$

ここで、測定値 X_{ijkl} に対し μ は全体の平均、 α_i 、 B_{ij} 、 C_{ijk} 、 ε_{ijkl} はそれぞれ年次、プロット、サブプロット、繰り返し分析であることを示し、 α_i は定数 ($\sum \alpha_i = 0$) であり、他方で、 B_{ij} 、 C_{ijk} 、 ε_{ijkl} は平均 0、分散 σ の正規分布からの確率変数である。この分散分析モデルでは、年次間に有意差があるかどうかを検定し、プロット以下については、分散の大きさを推定することとなる。表 3-2-1 に示すように、年次間の有意差検定は、年次の分散（平均平方）をプロットのそれで除して得られる F 値によることとなる。また、年次平均の標準誤差もプロットの分散から得られる。

表 3-2-1 各モニタリング地点における土壌毎の分散分析表

変動因	水準数	自由度	推定される分散の期待値
母数 年次	$n_A = 2$ 又は 3	$n_A - 1$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + n n_C \sigma_B^2 + n n_C n_B \kappa^2$
変量 プロット(同じ年)	$n_B = 2$	$n_A(n_B - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2 + n n_C \sigma_B^2$
変量 サブプロット(同じプロット)	$n_C = 5$	$n_A n_B (n_C - 1)$	$\sigma^2 + n\sigma_C^2$
変量 測定(同じサブプロット)	$n = 2$	$n_A n_B n_C (n - 1)$	σ^2

注：年次の分散の期待値にある κ は、母数因子の分散成分を示し、 σ は、変量因子の分散成分を示す。

全国の25調査地点において、表層のpH(H₂O)は宝立山でのみ有意に低下した。次層のpH(H₂O)は屋久島2と霜降岳で有意に低下しており、石鎚では有意に上昇した。表層の塩基飽和度は大山隠岐で減少したが、石見臨空及び宝立山では逆に増加した。次層の塩基飽和度は法道寺でのみ有意な増加が認められた。なお、その他の土壤特性値の統計解析結果については参考表2-62に示した。

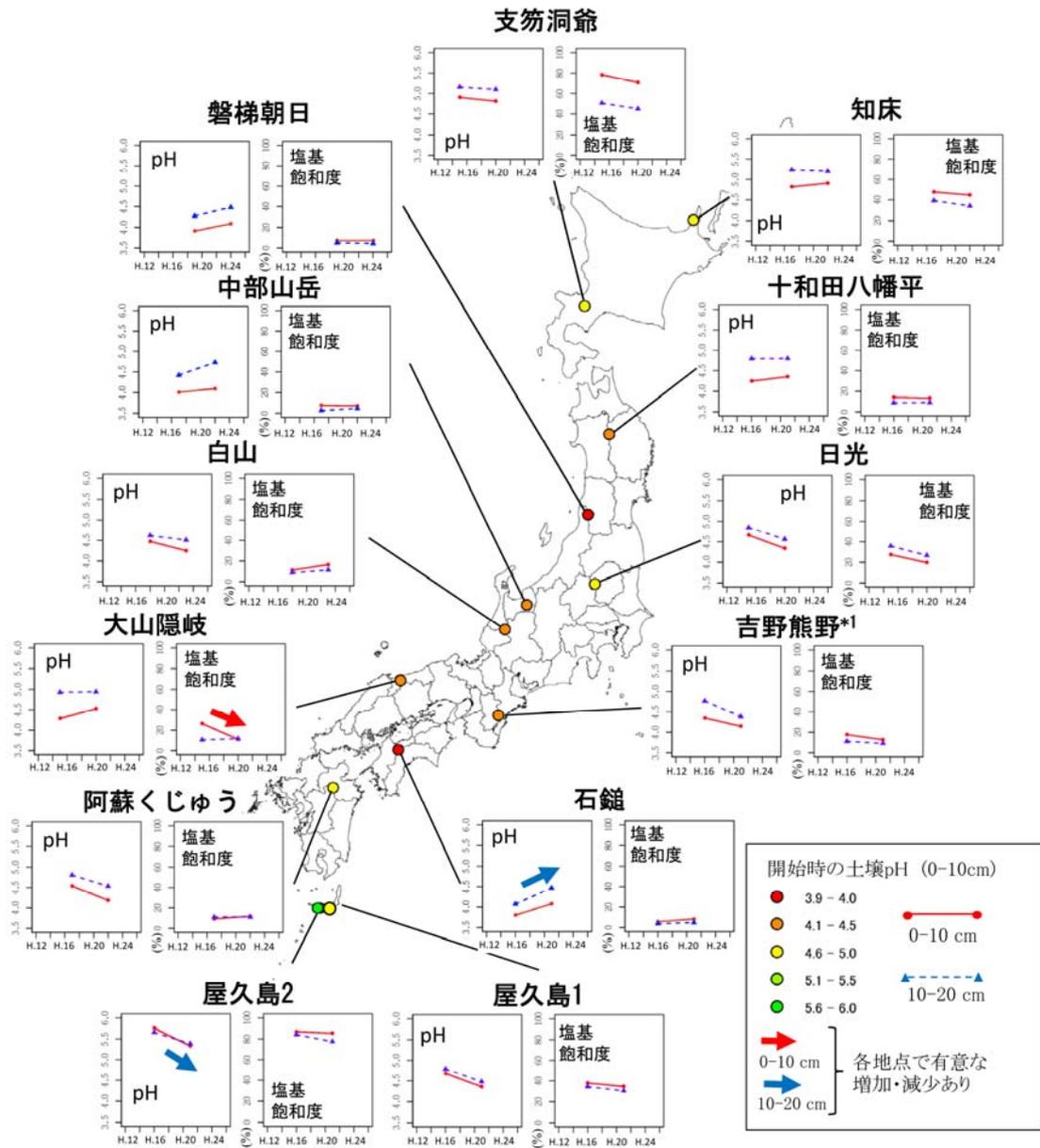


図 3-2-3 地点レベルでの pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (1)

注1：地図上に示された色分けの丸は各地点での本モニタリング開始時における各地点の表層 pH(H₂O)を示す。注2：繰り返し分析、サブプロット及びプロットによる枝分かれ分散分析 (表 3-2-1, n = 20) によって各地点での経年変化の効果を検定し、有意であった場合には太矢印で示した。(p < 0.05)。*1 吉野熊野における平成 16 年度の次層は 10-55 cm で採取されたため参考値として示す (統計解析なし)。

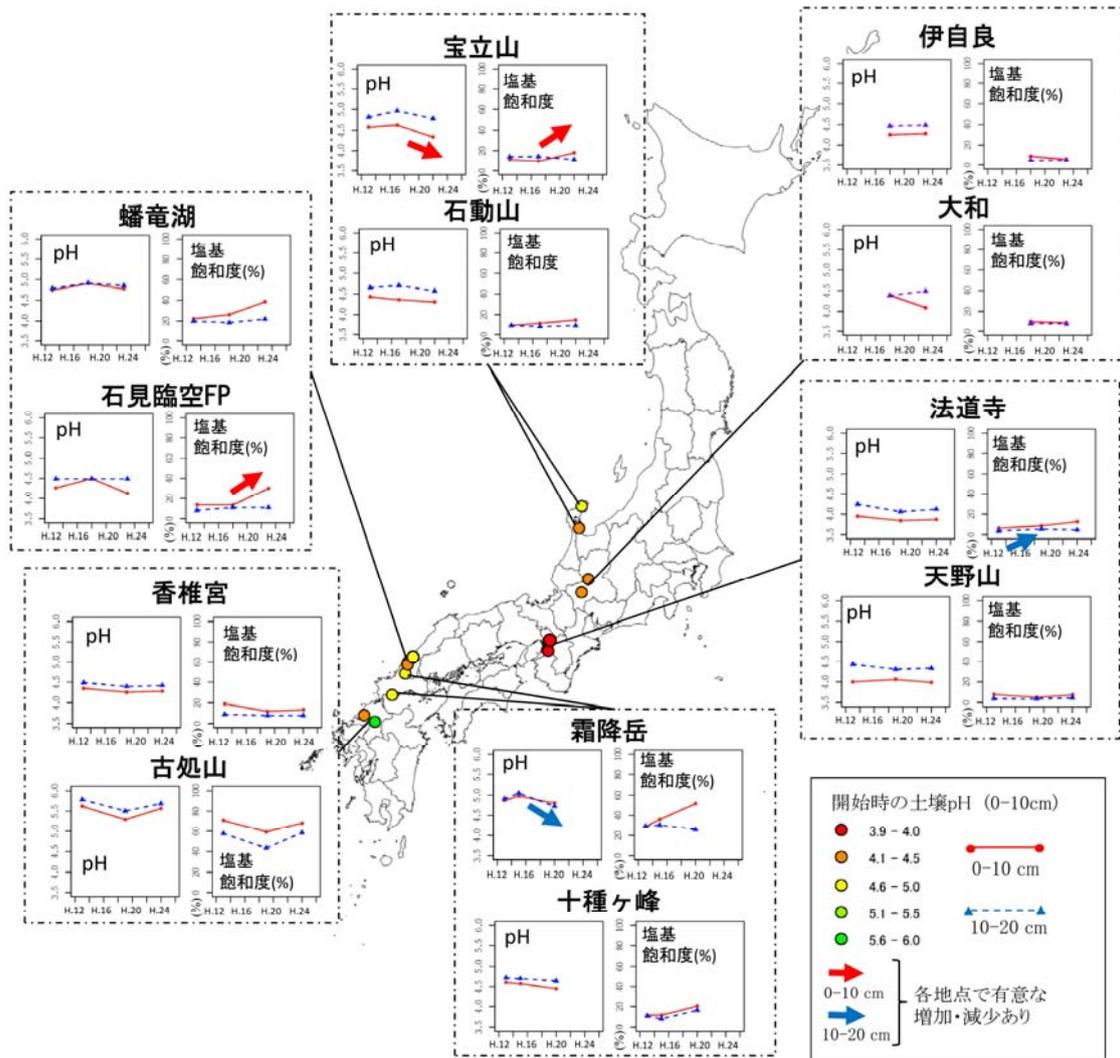


図 3-2-4 地点レベルでの pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (2)

注 1 : 地図上に示された色分けの丸は各地点での本モニタリング開始時における各地点の表層 pH(H₂O)を示す。注 2 : 繰り返し分析、サブプロット及びプロットによる枝分かれ分散分析 (表 3-2-1, n = 20) によって各地点での経年変化の効果を検定し、有意であった場合には太矢印で示した。3 回以上の調査が行なわれた地点における年次間の有意差は Tukey の方法により検定した ($p < 0.05$)。

ii) プロットレベルでの土壌化学性の経年変化

プロットレベルでの表層 (0-10 cm) 及び次層 (10-20 cm) における土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化を図 3-2-5 及び図 3-2-6 に示した。各地点に設置された 2 プロットのうち少なくとも 1 プロットで有意な経年変化が見られた場合に矢印で示した。その他の主な土壌特性値を含めた解析結果の詳細については参考表 2-63 に示した。

プロット毎に統計解析を実施した場合、全 50 プロット中の 11 プロットで表層 pH(H₂O)の一貫した上昇・低下が見られ、日光、吉野熊野、阿蘇くじゅう、屋久島、宝立山、大和、

石見臨空ファクトリーパーク（以下、石見臨空 FP）において各地域内に設置された 2 プロット中の少なくとも 1 プロットで表層 pH(H₂O)が低下していた。日光、阿蘇くじゅう、屋久島では同一プロットの表層と次層で pH(H₂O)が同時に低下しており、宝立山、石見臨空 FP、大和では表層のみ、霜降岳、法道寺では次層のみで pH(H₂O)が低下していた。一方、石鎚の 1 プロットでは表層と次層の pH(H₂O)が、磐梯朝日と中部山岳の 1 プロットでは次層の pH(H₂O)がそれぞれ有意に上昇していた。なお、石見臨空 FP の 1 プロットでは表層の pH(H₂O)が有意に上昇した後に再び低下しており、調査期間を通じての一貫した傾向が不明であった。表層の塩基飽和度は、支笏洞爺、日光、大山隠岐、吉野熊野、伊自良の少なくとも 1 プロットで有意な減少が見られた一方、十和田八幡平、阿蘇くじゅう、宝立山、蟠竜湖、石見臨空 FP、法道寺、霜降岳では逆に有意な増加が認められた。

地点代表性を持つ i)地点レベルでの経年変化に対し、ii)プロットレベルでの土壌化学性の経年変化は地点内の各プロットに見られたより局所的なスケールでの経年変化を示している。同一地点内においても地形等の要因によって酸の感受性は容易に変動するため、こうした局所影響の評価も重要と考えられる。これら地点、若しくはプロットの土壌毎で認められた変化に関し、特に大気沈着影響が関与する可能性のある表層 pH(H₂O)の変動要因について、塩基飽和度やその他の土壌化学特性値、さらに次項より述べる植生調査との関連を本項の最後に述べた（表 3-2-4 及び表 3-2-5）。

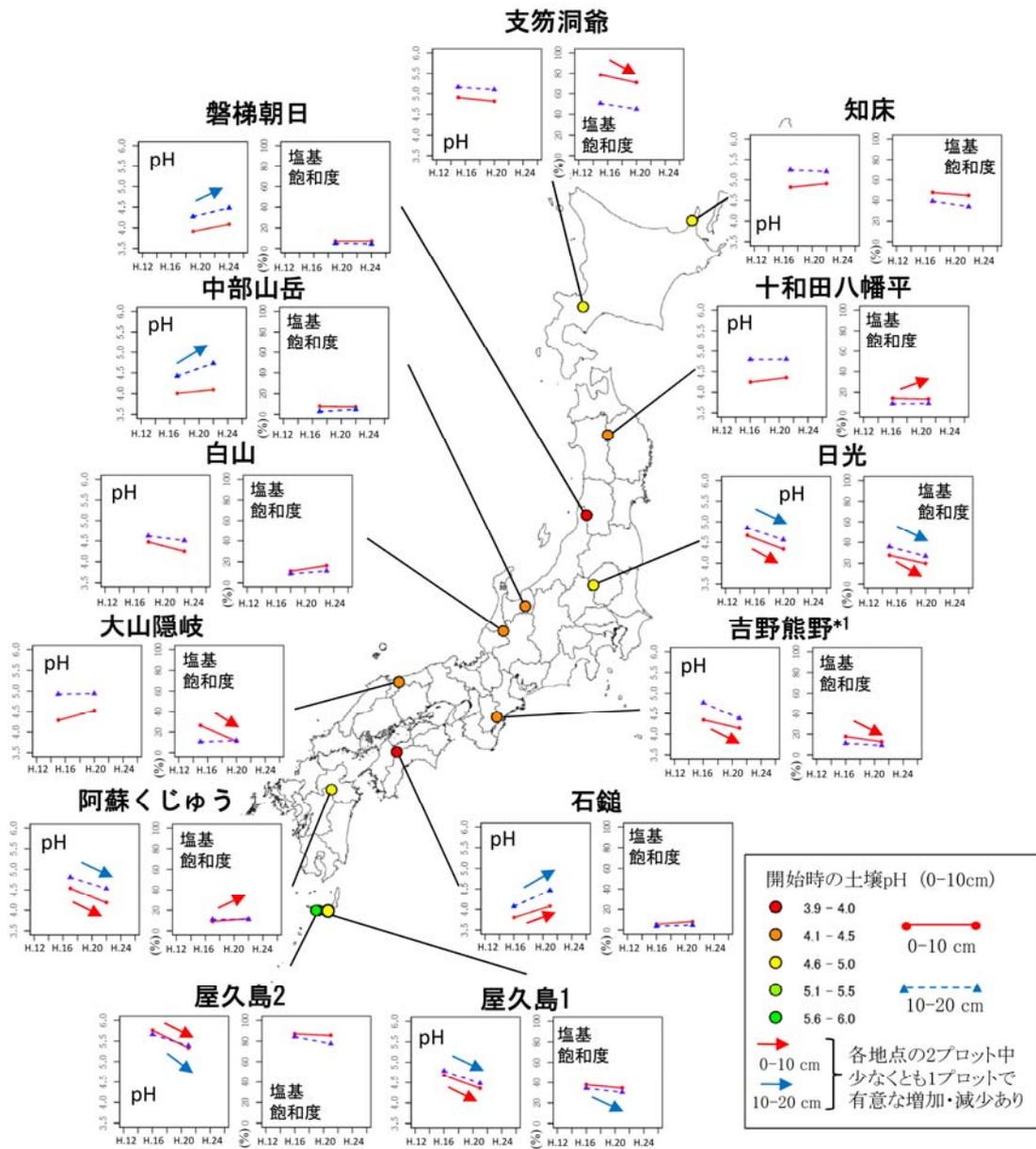


図 3-2-5 プロットレベルでの土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (1)

注：各地点に設置された2プロットのうち少なくとも1プロットで統計的に有意であった地点について矢印で示す。サブプロットと繰り返し分析による枝分かれ分散分析 (n = 10) をプロット毎に実施し、経年変化の効果が有意であった場合に細矢印で示した ($p < 0.05$)。*1 吉野熊野における平成 16 年度の次層は 10-55 cm で採取されたため参考値として示す (統計解析なし)。

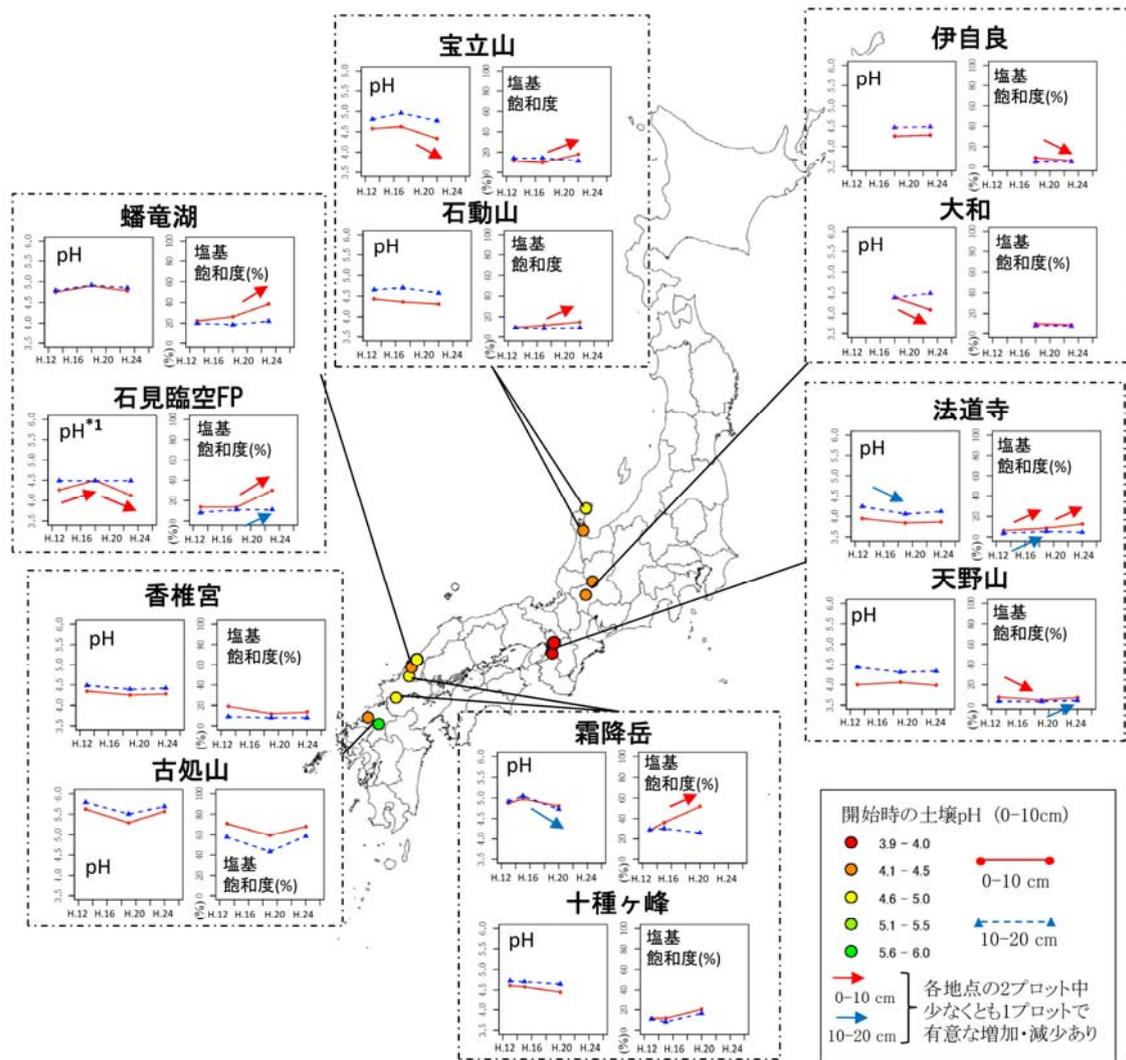


図 3-2-6 プロットレベルでの土壌 pH (H₂O)と塩基飽和度の経年変化 (2)

注：各地点に設置された2プロットのうち少なくとも1プロットで統計的に有意であった地点について矢印で示す。サブプロットと繰り返し分析による枝分かれ分散分析 (n=10) をプロット毎に実施し、経年変化の効果が有意であった場合に細矢印で示した。3回以上の調査が行なわれた地点における年次間の有意差は Tukey の方法により検定した ($p < 0.05$)。*1 石見臨空の pH はプロット 1 で有意な低下のみ見られた一方、プロット 2 で有意に上昇した後に低下していた。

(2) 平成 20~24 年度における植生モニタリング結果

① 樹木衰退状況

樹木衰退度調査は毎年一回、すべてのプロットで実施されている。各観察項目の評価に加え、落葉率と葉色の異常を総合的に判断するダメージクラスによる評価を行った (表 3-2-2)。表 3-2-3 にこれらの兆候が見られた樹木の割合が多かった地点を順位で示した。大山隠岐では「樹勢変化」、「枝の成長異常」及び「葉の変形」の見られた割合が、吉野熊野

では「梢端の枯損」及び「枝葉の密度の異常」が見られた割合が、また磐梯朝日では、「落葉率」及び「葉色の変化」の見られた割合が、それぞれ最も高く、他の項目でも高い割合を示した。

また、磐梯朝日、大山隠岐、十和田八幡平、吉野熊野の4地点では1以上のダメージクラスが認められた樹木の割合が5%を超えていた。これらの地点は、平成22年度までの中間報告でもダメージクラスが高いことが指摘され、継続的に衰退度が指摘されている。このダメージクラスは、平成19年度から改訂されたEANETの様式 [3] に従って導入された、大気汚染影響との関連が特に指摘されている衰退度項目であり、これらの4地点について、衰退度項目の経年変化を図3-2-7に示した。十和田八幡平の衰退度は、平成16年度の台風被害の後、一度回復傾向を見せたものの、過去5年間は衰退が進行した。大山隠岐では、同様の傾向が見られたが、平成24年度には衰退度が減少した。吉野熊野でも、一時期再び衰退度が上昇したが、平成21年度以降は回復傾向が見られた。磐梯朝日は、平成19年度に新規設置された地点であり、平成22年度及び23年度に「落葉率」や「枝葉の密度の異常」の急激な上昇が見られたが、平成24年度にはこれらの項目の割合は減少し、回復が見られた。回復が見られつつある大山隠岐や磐梯朝日での長期的な傾向については今後更にデータの蓄積が必要である。

樹木衰退の要因としては、大気沈着のような人為的要因だけでなく、台風や積雪、病虫害といった自然的要因による影響が考えられる。特に磐梯朝日のケースにおいては、病虫害が平成22～23年度にかけてこの地域で大発生したことが落葉率に影響したと考えられる。また、吉野熊野国立公園内の大台ヶ原では近年になってシカ食害が多く報告されている [4]。

表 3-2-2 落葉率と葉色から判断されたダメージクラス

葉色 \ 落葉率	1	2	3
0	0	1	2
1	1	2	2
2	2	3	3
3	3	3	3

注：落葉率及び葉色は、それぞれ、5段階（0：落葉なし～4：枯死）及び4段階（0：変色なし～3：激しく（60%以上）変色）で、示し、その組み合わせでダメージクラスを算出。

表 3-2-3 異常が観測された樹木の出現率*1が高かった地点

梢端の枯損			落葉率			樹勢変化			枝葉の密度の異常		
順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率
1	吉野熊野	38%	1	磐梯朝日	36%	1	大山隠岐	55%	1	吉野熊野	53%
2	香椎宮1	33%	2	宝立山	15%	2	吉野熊野	41%	2	大山隠岐	35%
3	中部山岳	24%	3	法道寺	13%	3	中部山岳	27%	3	磐梯朝日	23%
4	大山隠岐	22%	4	吉野熊野	10%	4	伊自良	25%	4	白山	22%
5	知床	20%	5	大山隠岐	8%	5	十和田八幡平	22%	5	香椎宮1	21%
6	香椎宮2	20%	6	十和田八幡平	8%	6	知床	21%	6	中部山岳	18%
7	法道寺	19%	7	支笏洞爺	5%	7	法道寺	20%	7	法道寺	13%
8	支笏洞爺	19%	8	石見臨空FP	3%	8	大和	13%	8	霜降岳	11%
9	古処山1	18%	9	中部山岳	3%	9	霜降岳	13%	9	支笏洞爺	8%
10	日光	18%	10	白山	2%	10	日光	12%	10	香椎宮2	7%

枝の成長異常			葉の変形			葉色の変化			1以上のダメージクラス		
順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率	順位	調査地点	出現率
1	大山隠岐	54%	1	大山隠岐	10%	1	磐梯朝日	38%	1	磐梯朝日	33%
2	白山	30%	2	吉野熊野	3%	2	大山隠岐	25%	2	大山隠岐	14%
3	宝立山	26%	3	中部山岳	1%	3	吉野熊野	13%	3	十和田八幡平	6%
4	十和田八幡平	23%	4	十和田八幡平	1%	4	石見臨空FP	5%	4	吉野熊野	5%
5	吉野熊野	18%				5	十和田八幡平	3%	5	法道寺	3%
6	中部山岳	17%				6	知床	3%	6	石見臨空FP	2%
7	法道寺	8%				7	宝立山	1%	7	知床	1%
8	石鎚	6%									
9	磐梯朝日	5%									
10	石見臨空FP	5%									

*1 出現率 = 異常が観測された樹木数 / 全観測木数。注1：平成15年度から平成24年度までの平均。注2：落葉率及びダメージクラスについては平成19年度から平成24年度の平均（平成19年度以降に導入されたため）。

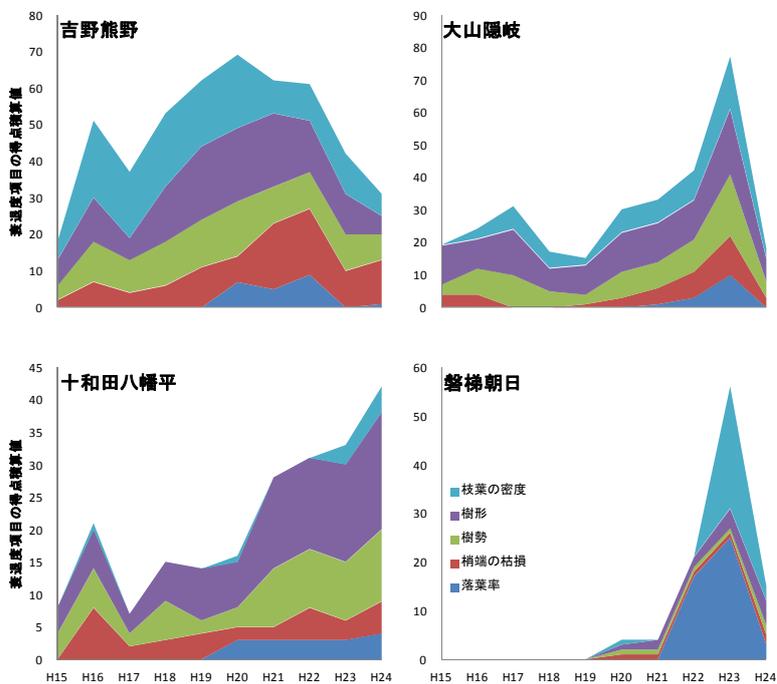


図 3-2-7 全観察木に占める各衰退度項目の得点合計の積算値とその経年変化
(吉野熊野、大山隠岐、十和田八幡平、磐梯朝日)

② 毎木調査による森林の状況

毎木調査結果を基に算出した単位面積当たりの胸高断面積の合計及び個体密度について、経年変化を図 3-2-8 に示した。樹木の肥大成長の指標である胸高断面積の合計は、1 回目の調査の値を 1 とすると、多くの地点でそれより大きな値を示し、モニタリング期間中にこれらの森林の樹木が成長していることを示していた。10%以上、胸高断面積合計が低下したのは、石鎚と伊自良だけであった。個体密度は増大している地点もあるが、倒木・枯死・間伐等で減少している地点も多く見られた。多くの場合は、個体密度が低下した結果、成長が促進されたように見受けられ、成長量の観点からは森林全体としての衰退は確認されていない。

石鎚の胸高断面積合計は、1 回目の調査値よりも約 20%も減少したが、個体密度も減少していた。これは直径数 10 cm の個体（ブナ）の枯死により、森林プロット全体の胸高断面積の合計値が低下したものであった。伊自良及び蟠竜湖の個体密度の減少は森林管理に伴う間伐によるものであった。蟠竜湖では胸高断面積合計が 3 回目の調査では 1 回目とほぼ同じレベルまで回復していたが、伊自良では、10%の胸高断面積合計の減少が見られた。伊自良では間伐後、まだ樹木が十分に成長していないと考えられた。特に、石鎚と伊自良については、今後の樹木の成長を注視する必要があると考えられた。

③ 下層植生の状況

下層植生調査の結果から、種数の経年変化、出現種数及び消滅種数を図 3-2-9 に示した。明確な減少傾向が確認された地点は、中部山岳、石動山、霜降岳、古処山 1 及び 2 であった。これらの地点とは逆に、十和田八幡平、磐梯朝日及び吉野熊野では大幅な種数の増加が見られた。また、総数としては大きな変化の見られなかった地点についても、出現種と消滅種を見てみると、実際には種組成が変化していることがわかる。ただし、石鎚、屋久島 1 及び 2 については、そういった種組成の変化も見られなかった。

下層植生の変化が見られた地点のうち、石動山では、チシマザサの優占が進み、他の植物種を抑制している可能性が指摘されている。また、霜降岳では、台風による樹木衰退からの回復に伴う林冠の状況の変化が下層植生に影響を与えた可能性が指摘されている。古処山では、やや若齢の天然林であったことから、植生遷移の進行により、多くの下層木が枯死したものと考えられており、ニホンジカの分布拡大による食害により、林床植生に影響が現れた可能性も指摘されている。

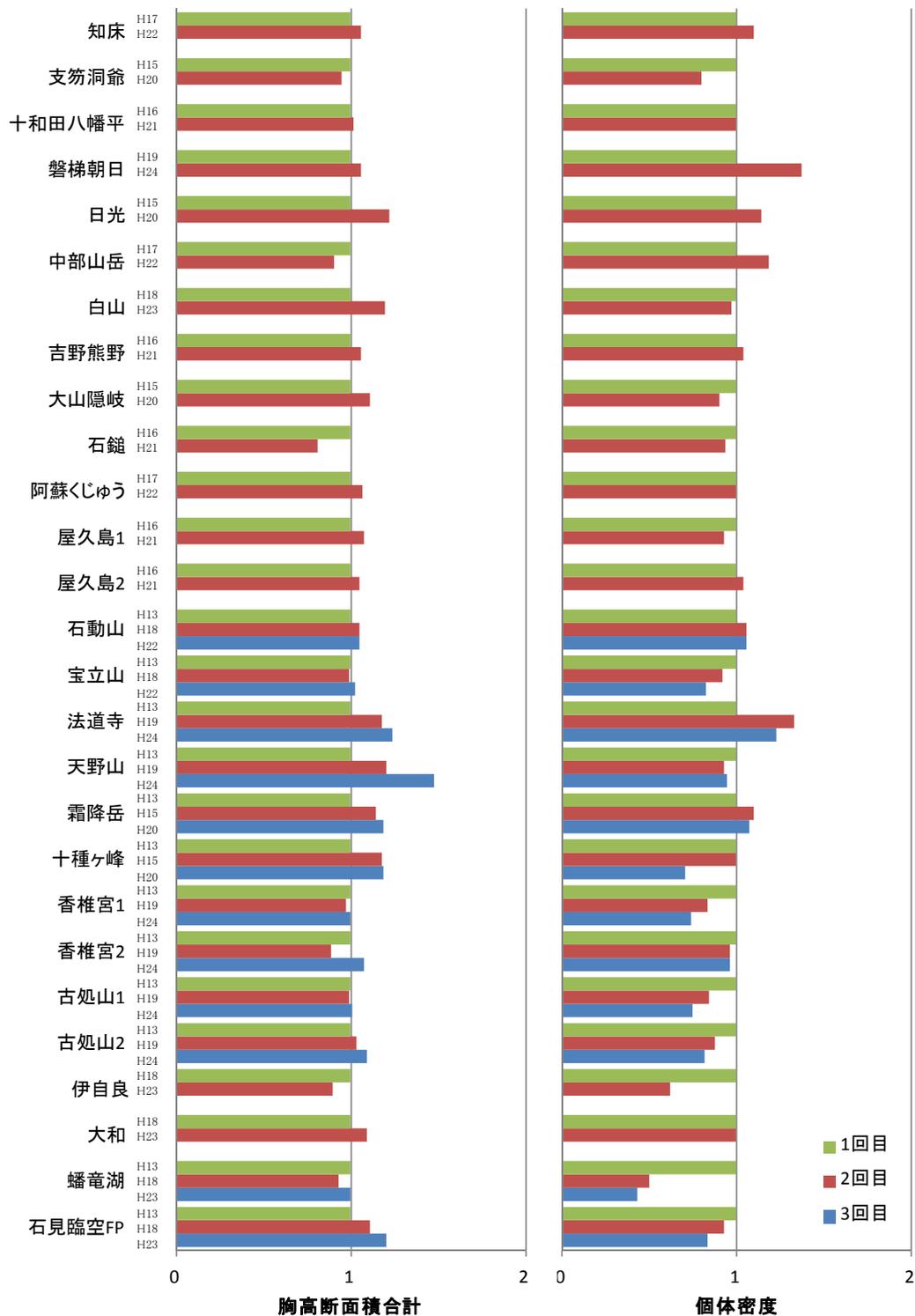


図 3-2-8 毎木調査（胸高直径 4cm 以上）による胸高断面積合計（m² ha⁻¹）及び
個体密度（本数 ha⁻¹）の経年変化

注：図中の値は1回目の値を1とした2回目及び3回目調査での比率

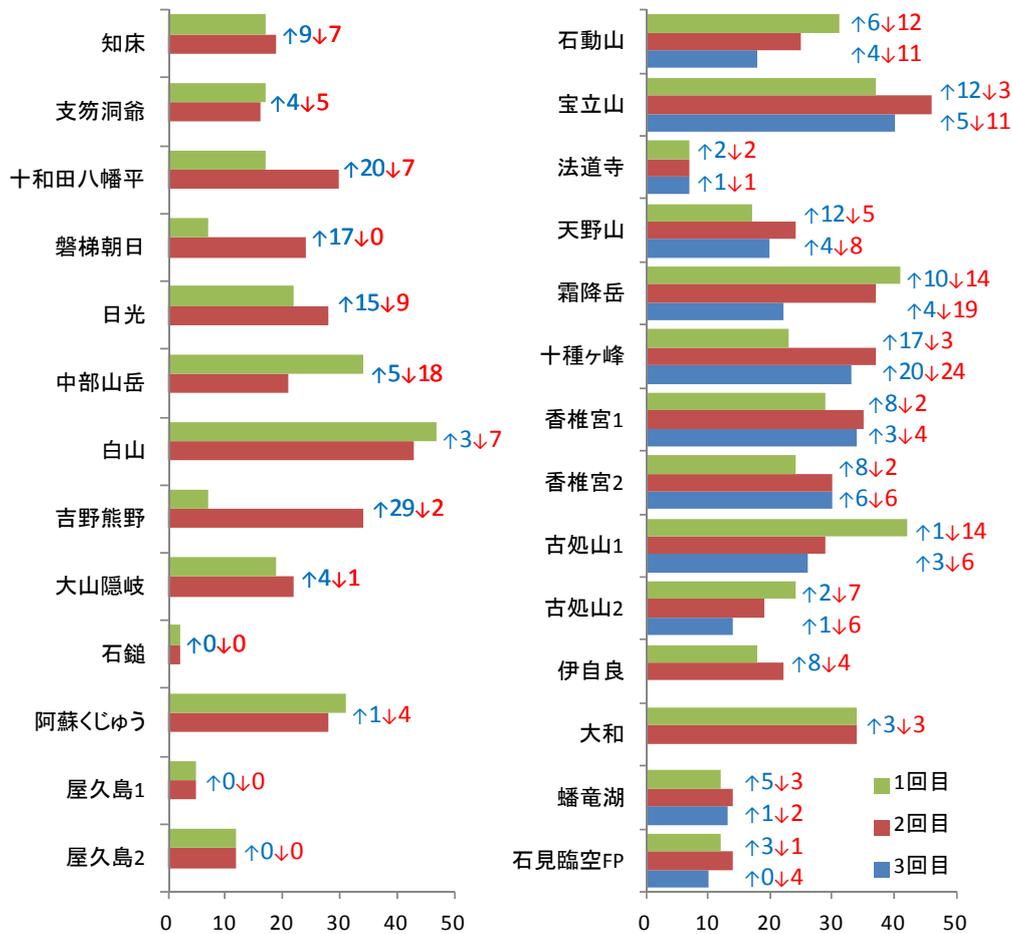


図 3-2-9 下層植生調査による種数の経年変化

注1：種の総数を棒グラフで、新たに出現した種数を青数字、消滅した種数を赤数字で示した。注2：各地点の下層植生調査は毎木調査と同年度に実施している。

(3) 土壌・植生特性に対する大気沈着の影響

森林における土壌化学性の経年変化は森林動態（種数、構造や生産量の変化等）と密接に関連しているため、大気沈着の影響を明らかにするためには土壌のみならず森林動態の全体に影響を与える外部要因を幅広く考慮する必要がある。特に近年ではニホンジカによる林床の裸地化（不嗜好性植物の増加）、マツ・ナラ枯れに代表される病虫害の増加などが全国で報告されており、台風、集中豪雨、豪雪等の増加による気象害も無視できない。本項では、特に大気沈着による影響を最も受けやすい表層土の pH(H₂O)において一貫した上昇・低下がみられた 11 プロットに着目し、土壌と植生の特性（表 3-2-4）及びそれらに影響する可能性のある外部要因（間接的な pH 規定要因）（表 3-2-5）を整理して示した。

表層の pH(H₂O)が低下した 11 プロットのうち、日光、屋久島 2、宝立山、石見臨空 FP の 5 プロットでは pH(KCl)の低下も同時に認められた（表 3-2-5）。pH(KCl)は土壌溶液中に溶

存している酸に加え、土壌の粘土鉱物等に静電的に吸着している酸を含むため、より長期的な土壌酸性の要因となる可能性がある。さらに日光、吉野熊野では塩基飽和度の低下が同時に見られたことから、これらのプロットでは土壌の持つ酸緩衝能の低下を伴って pH が低下した可能性があった。

胸高断面積は森林の衰退・回復の傾向を示す良い指標となる。吉野熊野、石鎚、宝立山

表 3-2-4 0-10 cm で土壌 pH の一貫した上昇・低下が見られた地点 (11/50 プロット) における土壌・植生の特性

地点名 (プロット 番号)	立地と表層土壌の特性*1							植生の特性*1				
	土壌	斜面方位	傾斜度	標高(m)	pH (H ₂ O)	塩基飽和度 (%)	CN 比	植生タイプ	優占種	樹高 (tree height)	個体密度	優下層の種
日光(2)	ポドゾル土	北	10	1320	4.3	18	-	天然林	フナ ウラジロ モミ	400	ウラジロ モミ イロハ モミジ	28
吉野熊野 (1)	褐色森林土	-	0	1470	4.1	12	10-13	天然林	フナ ウラジロ モミ	550	ミヤマ スミレ	34
石鎚 (1)	褐色森林土	南	30.5	1470	4.1	9	16-17	天然林	フナ リョウブ	1150	スズタケ	2
阿蘇くじゅう (1)	黒ぼく土	南西	10	1230	4.4	12	16-17	天然林	フナ	417	コックバネ ウツギ タンナサ ワフタギ	28
阿蘇くじゅう (2)	黒ぼく土	南西	10	1230	3.9	11	17-19					
屋久島 1 (1)	褐色森林土	南西 ~北西	27	1140	3.7	32	16	天然林	スギ ハイノキ	1220	ハイノキ ヒサカキ	5
屋久島 2 (1)	褐色森林土	北東 ~南東	24	212	5.4	85	15	天然林	ヒサカキ サカキ	1540	サカキ ヒサカキ	12
宝立山 (1)	赤色土	南西	15	430	4.4	16	18-19	二次林	フナ ミズナラ	2370	ヒメモチ ハイイヌ ツゲ イワウチワ	40
宝立山 (2)	赤色土	南西	15	430	3.4	20	16-20					
大和 (1)	黒ぼく土	南西	10	700	3.9	9	-	人工林	ヒノキ	460	シロモジ	34
石見臨空 FP (1)	赤色土	西北西	19	100	3.9	32	18-21	二次林	スダジイ タブノキ	1300	スダジイ	10

*1 各土壌及び植生の特性値は直近の調査実施年度に得られた情報に基づく。

を除くプロットでは胸高断面積合計が 5%以上増加 (表 3-2-5) していたため、森林が通常の森林成長プロセス (回復) にあって土壌養分の吸収が進んでいると考えられた。塩基性陽イオンを含む土壌養分の吸収は植物根からの水素イオンの放出を伴うため、短期的な時間スケールでの pH 低下要因になった可能性がある。こうした回復は風雪害 (日光、阿蘇くじゅう、大和) や病虫害 (石見臨空 FP) による多少の攪乱を受けた通常の生態応答である

と推察され、大気沈着の影響と共に土壌 pH に関与すると考えられる。吉野熊野では胸高断面面積の変化はほとんど見られなかったものの、下層植生の種数が7種から34種へと急速に回復していた。これは深刻なニホンジカの食害を防ぐためにシカ防護柵が設置された結果と考えられ、下層植生による養分吸収の増大が表層における pH 低下要因の一つとなった可能性もあった。一方、宝立山とその周辺ではナラ枯れ被害が過去に多く報告されており、

表 3-2-5 0-10 cm で土壌 pH の一貫した上昇・低下が見られた地点 (11/50 プロット) における土壌・植生モニタリング項目の経年変化及び考慮した外部要因

土壌 pH の変化が見られた地点 (プロット番号)	土壌化学性の経年変化*1					植生の経年変化			考慮した外部要因						
	深度	pH (H ₂ O)	pH (KCl)	塩基濃度	交換酸度	塩基飽和度	樹木衰退度	胸高断面面積	個体密度	下層の種数	ニホンジカ食害	病虫害	風雪害	酸性化リスクマップの強度	推定成長量低下率 オゾンによる
日光 (2)	表層	↘	↘	→	→	↘	樹形・枯損*7	↗	↗	↗	○	×	*8 ○	IV	3.9% (ブナ)
	次層	↘	↘	→	→	↘		↗	↗	↗	○	×	*8 ○	IV	3.9% (ブナ)
吉野熊野 (1)	表層	↘	→	→	→	↘	樹形・枝成長・枯損・落葉率・葉色	→	→	↗	*9 ○	*10 ○	*8 ○	II	2.6% (ブナ)
	次層	-	-	-	-	-		↗	↗	↗	○	○	*8 ○	II	2.6% (ブナ)
石鎚 (1)	表層	↗	→	↗	→	→	樹形・枯損・障害	↘	↘	→	×	○	○	II	2.6% (ブナ)
	次層	↗	→	↗	→	→		↘	↘	→	×	○	○	II	2.6% (ブナ)
阿蘇くじゅう (1)	表層	↘	↗	→	→	→	なし	↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV	2.3% (ブナ)
	次層	↘	↗	↘	→	→		↗	→	↘	△	×	*8 ○	IV	2.3% (ブナ)
屋久島 1 (1)	表層	↘	→	→	→	→	なし	↗	↘	→	△	×	×	IV	0.5% (スギ)
	次層	↘	→	→	→	↘		↗	→	→	△	×	×	IV	0.5% (スギ)
屋久島 2 (1)	表層	↘	↘	→	→	→	なし	↗	→	→	△	×	×	IV	-
	次層	↘	↘	→	→	→		↗	→	→	△	×	×	IV	-
宝立山 (1)	表層	↘	↘	→	→	↗	枝成長・落葉率	→	↘	↗	×	*11 ○	×	V	2.0% (ブナ)
	次層	→	↘	→	→	→		→	↘	↗	×	*11 ○	×	V	2.0% (ブナ)
大和 (1)	表層	↘	→	→	↗	→	樹形・枯損	↗	→	→	○	×	*12 ○	III	-
	次層	→	↗	→	→	→		↗	→	→	○	×	*12 ○	III	-
石見臨空 FP (1)	表層	↘	↘	→	→	→	樹形・枯損・葉色・障害	↗	↘	↗	×	*11 ○	×	V	3.3% (スダジイ)
	次層	→	→	→	→	→		↗	↘	↗	×	*11 ○	×	V	3.3% (スダジイ)

*1 統計的に有意な増加を ↗ 減少を ↘ で示し、有意差が見られなかった場合に → とした。*2 異常出現率が平均 5% 以上あった項目を示す。*3 5% 以上の増加あるいは減少を ↗ と ↘ で示した (2 回目に増加して 3 回目で減少した場合は ↗ とした)。*4 ○ はプロット内、△ は当該地域において各種要因の報告があることを示し、× は報告例がないことを示す。*5 過去 25 年間の累積酸負荷量を考慮した土壌の酸性化リスクマップによる強度 (図 3-2-17 を参照 I: 酸性化リスクが低い → V: 酸性化リスクが高い)。*6 2011 年の気象場を用いた AOT40 (図 4-2-1) と樹種別のオゾン応答特性 (4.2.1) より算出された、各プロットの優占種における推定成長量低下率。括弧内は評価対象の樹種を示す。*7 梢端の枯損。*8 平成 16、17 年の台風。*9 平成 16 年にシカ防護柵を設置後は影響なし。*10 ブナハバチ・ブナアオシヤチホコ食害。*11 ナラ枯れの履歴あり。*12 平成 16、22 年の大雪。

枯死木周辺の表土流亡等を通じて pH の低下に影響する恐れもあるが、プロット内のナラ枯れは一部の樹木に限られており、短期的に見ればその可能性は低い。

これらの外部要因のうち特に大気沈着の影響を明らかにするため、後述の 3.2.4 で示す過去 25 年間の酸性沈着を考慮した酸性化リスクマップ（図 3-2-17）の強度を用いた。これによれば表層 pH の低下した吉野熊野、大和において酸性化のリスクは低く（強度 II-III）、pH の変化が上述のようなシカ食害、病虫害、風雪害とその回復に起因した一方で、大気沈着の影響は少なかったと考えられる。日光、阿蘇くじゅう、屋久島については酸性化リスクがやや高い（強度 IV）ものの、各種のかく乱要因と通常の森林成長プロセスも pH 低下に寄与した可能性があり、双方の要因を加味した上での議論が必要である。宝立山と石見臨空 FP ではナラ枯れの他に考慮された外部要因が見られなかったものの、pH の低下と同時に塩基飽和度の増加が認められた。前述のコラムに示したように、外部からの酸の流入は土壤中の塩基性陽イオン等の流亡を伴って pH の低下を引き起こすと考えられており、宝立山と石見臨空 FP の傾向はこれらの仮説に矛盾する。主に有機物層除去の程度に起因する土壌採取時の誤差等がこうした経年変化観測の不確実性要因となっていた可能性があった。一方、宝立山と石見臨空 FP は酸性化リスクが最も高い地域（強度 V）に含まれており、実際に酸性沈着の影響を最も受けやすい赤色土の上に森林が成立している。大気沈着の影響を受けやすい表層のみに pH の低下が見られていることから、両地域で大気沈着由来の酸が土壌の酸性化に一定の影響を及ぼした可能性は否定できない。特に宝立山では地点レベルでの pH 低下が認められ、近傍の輪島試験林においても長期的な pH 低下が観測されている（後述のコラム）ことから、大気沈着による生態系影響を今後も注視する必要がある。

石見臨空 FP では 4.2.1 で後述するオゾンによる推定成長低下率が日光に次いで高い（表 3-2-5）が、これはオゾン感受性の高いスダジイが優占し、推定された AOT40（オゾン暴露量の指標）も比較的高いためである。このプロットでは毎年実施される樹木衰退度で葉色の変化（オゾン影響の指標となる）が報告されている。こうしたオゾンによる樹木影響を加味した土壌酸性化の議論も今後必要になると考えられる。

土壌化学性の長期変動について（フォローアップ調査の概要）

土壌の長期的な酸性化傾向について確認するため、第3次酸性雨対策調査（平成5～9年度）の調査地点のうち、プロットの保存状況や自治体の実施体制等を考慮し、再調査可能と判断された地点についてフォローアップ調査が実施された。岩手県の磐清水で大幅なpHと塩基飽和度の低下が見られた。輪島試験林や（旧）石動山では表層の塩基飽和度が減少し、輪島試験林の次層でpHの有意な低下が見られた。大牟田や積川神社でみられた塩基飽和度の上昇や磐清水で見られた顕著な酸性化の原因は明らかではないが、輪島試験林と（旧）石動山は3.2.4で述べる酸性化リスクの高い地域に位置しており、近接する現行モニタリングの調査地点（宝立山）における酸性化傾向と矛盾しないため、この地域における長期的な大気沈着影響の可能性が示唆された。

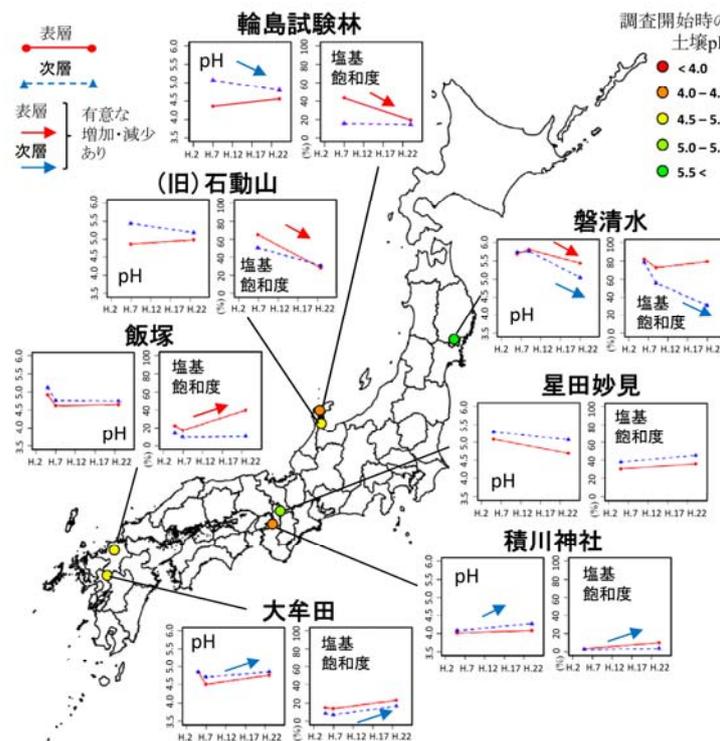


図 フォローアップ調査地点における土壌表層及び次層における pH(H₂O)と塩基飽和度の経年変化（平成5～24年度）各地点を示す丸点の色は調査開始年度の表層 pHを示す。
注：各地点の表層及び次層の層位区分については参考表 2-64 を参照。各地点で設定された5つのサブプロットのデータを基に、分散分析を用いて経年変化の有意差を検定した（ $p < 0.05$ ）。各地点の土壌種：磐清水（黒ぼく土）、輪島試験林（赤色土）、（旧）石動山（褐色森林土）、星田妙見（褐色森林土黄色系）、積川神社（褐色森林土）、飯塚（褐色森林土赤色系）、大牟田（褐色森林土黄色系）。

3.2.2 陸水モニタリング

(1) 平成 20～24 年度における陸水モニタリング結果

陸水モニタリングでは、酸性化に対する感受性の高いと考えられる湖沼及び河川 [5]⁴を対象に 11 地点を選定し、年 4 回のモニタリングを実施した。

各調査地点の集水域の特徴を表 3-2-6 に示した。流紋岩やチャート等の比較的酸に対する緩衝能が低いと考えられる地質にある湖沼が多い。また今神御池、刈込湖、双子池等のように、ポドゾル性土壌が分布する比較的高地に位置する湖沼もある。

表 3-2-6 各調査地点の集水域の特徴

	湖沼名	表層地質	土壌の種類	植生
山形県	今神御池	半固結堆積物（地すべり層）等	乾性ポドゾル化土壌等	ブナ・チシマザサ群落等
栃木県	刈込湖	流紋岩・安山岩	乾性及び湿性ポドゾル等	オシラビソ・シラビソ・コマツガ等
長野県	双子池	溶岩（横岳溶岩群・双子峰溶岩）	湿性腐食型弱ポドゾル土	ミドリキササグサ群落等
新潟県	山居池	新第三紀中新世真更川層	褐色森林土壌	ミズナラ、コナラ、クリ等
石川県	大島池	流紋岩及び安山岩質火砕岩石類	乾性褐色森林土壌	クヌギナラ群落とスギ・ヒノキ・ササ植物
福井県	夜叉ヶ池	砂岩・頁岩、チャート	褐色森林土壌	ブナ、オハコモジ
岐阜県	伊自良湖	チャート	褐色森林土壌	針葉樹（アカマツ、ヒノキ、スギ）等
京都府	沢の池	チャート	乾性褐色森林土	アカマツ、コナラ、ツツジ類
島根県	蟠竜湖	第 4 紀更新世堆積物 礫、砂、粘	残積性未熟土壌	アカマツ、クロマツ
山口県	山のロダム	流紋岩質岩石	褐色森林土壌	コハ・ミツバツツジ、アカマツ群集
香川県	永富池	閃緑岩	乾性褐色森林土壌	クスギ、コナラ、アカマツ等

上記調査地点の湖沼表層水及び流入河川水の水質について、平成 20～24 年度の 5 年間の平均値を表 3-2-7 に示した。本調査対象地点の大部分は $0.200 \text{ mmol}_e \text{ L}^{-1}$ 以下の低アルカリ度であった。特に、双子池（雌池）、夜叉ヶ池及び沢の池はアルカリ度が $0.030 \text{ mmol}_e \text{ L}^{-1}$ 以下、pH が 5.8 以下であり、酸感受性が高い湖沼として確認された。一方、永富池は他の地点に比べて比較的高いアルカリ度及び pH を示していた。NO₃⁻濃度では、伊自良湖の流入河川である釜ヶ谷川（伊自良湖への主要流入河川、過去の報告書では伊自良川とも記述された）が最も高い値を示し、同じく流入河川の孝洞川、及び伊自良湖も比較的高い値を示した。さらに、山居池及び蟠竜湖では比較的高濃度の Cl⁻や Na⁺が認められ、これらの湖沼が海塩の影響を受けていることが推測された。

⁴ EANET ではアルカリ度 $0.200 \text{ mmol}_e \text{ L}^{-1}$ 以下、EC 10 mS m^{-1} 以下の湖沼や河川が酸性化に対して感受性が高いとされているが、我が国においては、より感受性の高い湖沼・河川を特定するために EC は 5 mS m^{-1} 以下を基準とすべきであると提言されている。

表 3-2-7 各調査地点の水質（平成 20～24 年度）

湖沼名	採水地点	pH	EC (mS m ⁻¹)	アルカリ度 (mmol _e L ⁻¹)	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	
					(μmol _e L ⁻¹)								
山形県	今神御池	湖心表層	6.16	4.09	0.064	83.1	*1	187	*1	248	11.8	29.0	48.3
栃木県	刈込湖	湖心表層	6.87	3.37	0.167	112	3.86	19.6	*1	131	14.8	130	16.5
長野県	双子池(雄池)	湖心表層	7.05	1.83	0.114	33.8	15.2	10.0	*1	49.3	6.88	106	16.3
	双子池(雌池)	湖心表層	5.74	0.66	0.020	26.3	3.24	9.22	0.65	13.0	4.39	19.7	6.83
新潟県	山居池	湖心表層	6.90	9.28	0.112	96.0	*1	550	*1	522	31.8	80.1	114
石川県	大島池	湖心表層	6.70	4.50	0.146	34.8	10.8	186	3.06	199	28.4	66.6	79.5
福井県	夜叉ヶ池	湖心表層	5.30	1.66	0.012	38.5	7.56	62.1	3.57	60.7	8.52	18.8	17.3
岐阜県	伊自良湖	湖心表層	7.09	3.99	0.166	102	22.6	56.4	0.63	85.2	6.42	147	106
	釜ヶ谷川	流入河川	7.00	4.24	0.147	127	32.1	56.9	*1	89.1	6.48	147	118
	孝洞川	流入河川	6.89	3.63	0.132	96.4	23.7	60.1	*1	97.5	5.54	96.3	109
京都府	沢の池	中央表層	5.74	1.71	0.027	35.2	*1	79.7	*1	64.2	6.93	35.2	31.1
島根県	蟠竜湖	湖心表層	7.01	10.6	0.167	85.3	2.47	647	1.97	614	47.3	82.7	155
	蟠竜湖 No.3	湖心表層	6.99	10.4	0.173	87.9	2.50	633	1.93	606	47.6	88.8	156
山口県	山のロダム	湖心表層	6.56	6.13	0.097	102	8.97	292	*1	342	25.6	67.0	72.6
香川県	永富池	湖心表層	7.25	8.65	0.428	162	27.7	135	3.12	319	23.7	365	92.9

*1 定量下限値又は検出下限値未満。注：測定値が下限値未満の場合は 0 とみなし平均値を計算した。なお、pH の平均値は水素イオン濃度の算術平均とした。

上記 5 年間の平均値（pH は H⁺ に換算）について、水質を特徴づける各分析項目を変数とした主成分分析⁵を行い、情報の集約化と解釈を試みた。その結果、変数間の分散を示す主成分負荷量（a）、並びに調査地点毎の主成分得点（b）が得られた（図 3-2-10）。なお、永富池は、他湖沼と比べてアルカリ度や Ca²⁺濃度が比較的高く、分析に含めると他の地点の傾向が分かりにくくなるため除外した。主成分負荷量（a）及び主成分得点（b）について、第一主成分を X 軸、第二主成分を Y 軸として図示し、水質と調査地点の傾向を分類した。なお、第一主成分は 50.6% の情報量を集約し、第二主成分は 29.5% の情報量を集約していたことから、この 2 成分で約 80% が説明された。

各項目の主成分負荷量（a）の結果より、EC 及び多くのイオン種が正方向に分布していることから、X 軸方向の第一主成分は、湖沼水又は河川水の「イオン濃度の高低」を示していると考えられた。特に、Na⁺や Cl⁻が大きな負荷量を示すことから海塩の影響を表している可能性があった。一方、Y 軸方向の第二主成分は、「水質の酸性度」を示していると考えられた。このことは、Ca²⁺やアルカリ度の分布に対し、H⁺が反対方向に分布していることから推測された。この第二主成分上では、正方向に SO₄²⁻や NO₃⁻の負荷量が大きく、本調査で解析対象となった湖沼・河川においては、これらの酸の多くが生態系内で中和され、

⁵ 複数の変数間の相関（相関係数行列）を少数の合成変数（主成分）で説明する統計手法。ここでは、分析結果は、バリマックス法回転により算出したものを用いた。

Ca²⁺等を伴い流出しているように考えられた。以上の結果より、図の第3象限は、酸性度が高かつ溶存イオン濃度が低い水質を示しており、酸性化に注意を要すると考えられる。

次に、各調査地点の主成分得点 (b) の結果より、各地点の特徴を確認したところ、今神御池、沢の池、双子池（雌池）及び夜叉ヶ池がそれぞれ第3象限に分布した。上述したようにこれらの湖沼は酸感受性が高いと考えられ、今後の酸性化傾向に留意する必要がある。一方、伊自良湖集水域（伊自良湖、釜ヶ谷川、孝洞川）では、酸性度はこれらの湖沼に比べ高くはないものの SO₄²⁻や NO₃⁻の濃度が高いことが特徴と考えられた。さらに、日本海沿岸に位置する山居池と蟠竜湖では、海塩由来の Na⁺や Cl⁻のほか、Mg²⁺や K⁺などの主要な陽イオンの濃度が高いことが確認された。

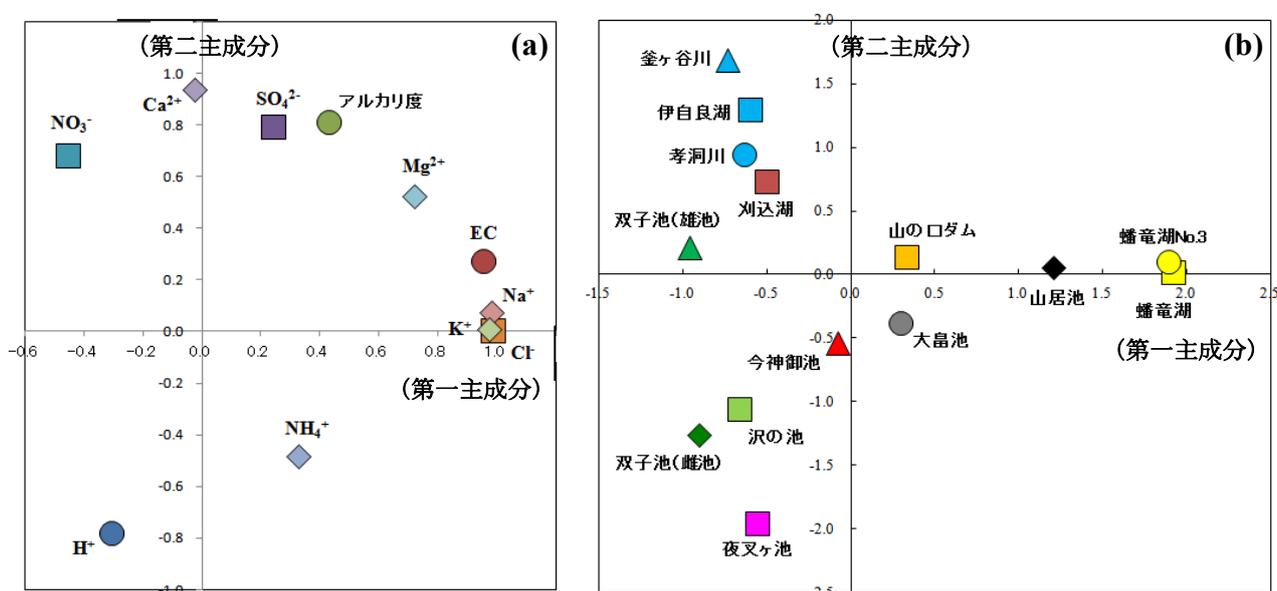


図 3-2-10 主成分分析における主成分負荷量 (a) 及び各地点の主成分得点 (b)

(2) 陸水の長期的傾向

表 3-2-8 に各調査地点における主要成分の長期トレンド解析結果を示した。全ての調査地点において、モニタリングを開始して以降、少なくとも 10 年は経過している。解析には年 4 回サンプリングの季節性を考慮した季節性 Mann-Kendall 検定 [6]を用いた。Mann-Kendall 検定とは、時間順序と観測データの順序の間の順位相関を用いたノンパラメトリックな検定方法で、データ間の差が正か負かの情報に基づいて上昇あるいは低下傾向性を検定する。ここでは、有意判定の際に用いる有意水準をそれぞれ 5% ($p = 0.05$), 1% ($p = 0.01$), 0.1% ($p = 0.001$) とした。

トレンド解析の結果、各調査地点の湖沼表層水及び流入河川水のうち、夜叉ヶ池及び釜ヶ谷川において pH の有意な低下傾向 ($p < 0.05$ 及び 0.01) が確認された。成分別に見ると、

アルカリ度では、夜叉ヶ池で有意な低下傾向 ($p < 0.001$) が見られたほか、双子池 (雌池) 及び永富池でもそれぞれ有意な低下傾向 ($p < 0.05$ 及び 0.01) が確認された。また、 SO_4^{2-} では双子池 (雄池) が、 NO_3^- では釜ヶ谷川が、それぞれ顕著に有意な上昇傾向 ($p < 0.001$) を示していた。なお、イオン種全般では、蟠竜湖及び蟠竜湖 No. 3 で多くの有意な上昇傾向が確認された。

前述の主成分分析における分析結果と併せ考えると、夜叉ヶ池は他の湖沼に比べ酸感受性が高く、酸性化が進行中であることが示唆された。また、伊自良湖集水域でも、 NO_3^- 濃度の上昇は主成分分析の結果とも一致していることから、今後はこれらの濃度変化についても留意する必要があると考えられる。

表 3-2-8 湖沼表層水及び流入河川水の水質長期トレンド解析結果

湖沼名	解析開始年	N	Z-score										
			pH	EC	アルカリ度	SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}
今神御池	2001	46	-0.58	-0.04	-0.22	2.03*	0.3	0.65	1.15	3.12**	1.36	0.11	1.39
刈込湖	2003	40	1.3	1.44	2.24*	-2.82**	-1.71	-1.51	1.04	-0.58	0.59	0.76	1.34
双子池(雄池)	1998	45	3.17**	1.04	1.9	4.38***	-1.16	-3.36***	-1.52	3.55***	-0.36	2.99**	1.29
双子池(雌池)	1998	45	-0.8	-2.64**	-2.31*	0.59	-3.4***	-2.56**	-2.07*	1.43	-1.29	-2.28*	-3.74***
山居池	2001	47	-0.5	1.24	1.83	2.83**	-1.29	0.21	-2.24*	0.42	-0.18	-0.81	-0.78
大島池	2003	39	2.52*	4.32***	2.93**	-0.09	2.36*	-1.76	0.13	0.46	3.85***	1.77	3.99***
夜叉ヶ池	2000	49	-2.06*	-1.8	-3.68***	-2.03*	0.53	-2.79**	-2.38*	-2.19*	0	-2.04*	-2.77**
伊自良湖	1989	95	-0.49	3.25**	5.62***	-0.89	2.71**	-1.93	-1.67	-1.54	-4.32***	1.37	0.04
釜ヶ谷川	1989	96	-3.04**	1.61	2.16*	-0.89	4.04***	-1.02	-5.52***	-0.32	-2.53*	-0.62	-0.66
孝洞川	1989	74	1.81	3.57***	2.18*	1.93	2.25*	-1.69	-5.05***	1.02	-1.27	-0.18	0.39
沢の池	2003	40	1.97*	-1.4	2.72**	-0.58	-1.42	-2.38*	0	0.13	0.82	2.74**	1.24
蟠竜湖	1989	96	1.79	6.91***	5.43***	-2.73**	0.41	7.19***	0.3	7.34***	2.4*	2.21*	6.23***
蟠竜湖No.3	1989	96	2*	5.88***	6.07***	-1.83	0.84	6.5***	-0.15	7.21***	1.94	3.61***	5.15***
山のロダム	2003	40	-0.85	2.19*	-1.84	2.78**	0.31	1.57	-0.88	2.33*	2.27*	1.12	0.18
永富池	2003	40	-0.49	-2.29*	-2.56**	-2.74**	-0.58	-3.6***	-0.49	-0.99	-1.72	-2.43*	-1.93*

注：Z-score は変化傾向を検定するための統計量を表し、正の値が上昇傾向、負の値が低下傾向をそれぞれ意味する。なお、表中の*/**/**を付した値は、トレンド検定を行った結果、それぞれ、有意水準 5%、1%、0.1% で有意差が認められたことを示す。

特に、pH の有意な低下傾向が認められた夜叉ヶ池並びに伊自良湖集水域の釜ヶ谷川について、図 3-2-11 に各成分の経年変化を示した。有意な変化傾向が見られた項目については、図中に有意水準及び Z-score とともに矢印で上昇あるいは低下の傾向を示した。夜叉ヶ池は、釜ヶ谷川と比べると pH やアルカリ度が著しく低い。日本海に近い (約 20 km) 夜叉ヶ池山と三周ヶ岳との稜線付近にある夜叉ヶ池は、周囲に発生源はなく、溶存有機炭素 (DOC) の濃度が低く火山由来の湖沼でもないため、大気沈着の影響を直接的に反映し、酸性化が進行している可能性が考えられた。

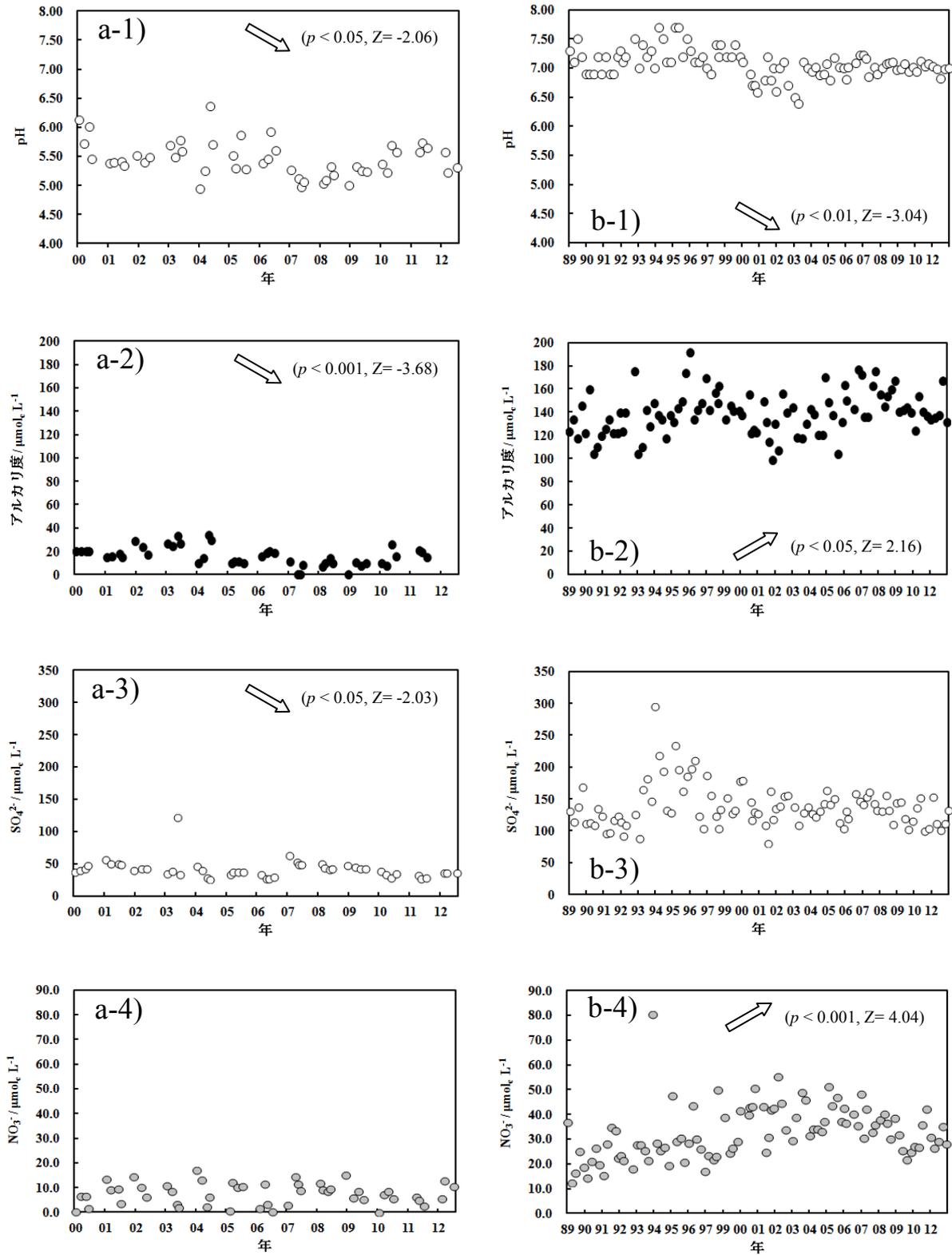


図 3-2-11 夜叉ヶ池表層水 (a) 及び釜ヶ谷川 (b) における pH、アルカリ度、 SO_4^{2-} 及び NO_3^- の経年変化

注1 : 各グラフは、a-1, b-1: pH、a-2, b-2: アルカリ度、a-3, b-3: SO_4^{2-} 、a-4, b-4: NO_3^- を示す。注2 : 夜叉ヶ池表層水のアルカリ度 (a-2) における 2007 年及び 2009 年データと、同じく夜叉ヶ池表層水の NO_3^- (a-4) における 2010 年データには、それぞれ定量下限未満値が含まれる。

3.2.3 集水域モニタリング

(1) 流入・流出収支

集水域モニタリングでは、集水域という一定面積において、大気沈着から河川水までの流入・流出過程をモニタリングすることにより、大気沈着と河川水質をより関連づけて考察するとともに、大気沈着による生態系影響を定量的に評価することが期待されている。岐阜県伊自良湖集水域では、1994年から1996年にかけてNO₃⁻、SO₄²⁻及びAlの特異的な高濃度流出やそれに伴うpHの低下傾向が指摘され[7]、それを受けて平成17年度(2005年度)から19年度まで行われた集中調査を基礎として、平成20年度(2008年度)から集水域モニタリングが定期モニタリングとして開始された。

①水収支

伊自良湖集水域では、降水及び河川流出の季節性を考慮して、比較的降水量も河川からの流出量も少ない11月初旬から翌年の同時期までを1水年とした。過去5水年における降水量、河川流出量及び流出率を表3-2-9に示した。降水量は、伊自良湖測定所で最も少なく、最も多い赤谷のそれと比較すると15-25%程度少なかった。そのため、②で示す集水域全体の物質収支の計算においては、湿性沈着による流入量は平均降水量を用いて補正を行った。流出率は、降水量が著しく多かった2009-2010水年を除けば、日本の森林集水域における既報値(降水量3000mmで60-70%程度[8])より低めであり、流出量を過小評価している可能性も考えられた。

表 3-2-9 各水年における降水量、河川流出量及び流出率

水年		2007-2008	2008-2009	2009-2010	2010-2011	2011-2012
降水量 (mm)	赤谷	2956	3547	4522	3913	3276
	伊自良湖測定所	2253	2678	3920	3157	2732
	青少年の家・湖岸	2793	2712	3717	3583	2986
	平均	2667	2979	4053	3551	2998
河川流出量 (mm)		1397	1677	2687	1703	1496
平均降水量に基づく流出率*1(%)		52	56	66	48	50
(赤谷の値に基づく流出率)		(47)	(47)	(59)	(44)	(46)

*1 河川流出量を降水量の平均で除して算出。

② 主な物質の流入量・流出量

集水域への大気からの物質流入量は、国内 EANET 局でもある伊自良湖酸性雨測定所の湿性沈着及び乾性沈着モニタリングのデータを基に、湿性沈着量及び乾性沈着量の和として 1 年間の総沈着量を推計した。その際、湿性沈着量は、上述した斜面における降水量分布も考慮し、3 地点の平均値を用いて補正を行ったため、測定所における湿性沈着量よりは若干大きい値になっている。乾性沈着量は、EANET 乾性沈着量推定マニュアル [9] に従い、3.1.3 で用いられた推定 (Inferential) 法により算出した。河川からの 1 年間の物質流出量は、2 週間に 1 回分析された釜ヶ谷川の河川水濃度と河川流出量を基に算出した。

表 3-2-10-a 各水年の主な物質の年間流入量 (大気沈着量)

水年		SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	N
		kmol _c ha ⁻¹					kg ha ⁻¹
2007	2008	1.0	0.7	0.5	0.5	0.1	17.1
2008	2009	1.0	0.6	0.5	0.6	0.2	17.3
2009	2010	0.9	0.6	0.6	0.5	0.2	15.7
2010	2011	1.0	0.6	0.7	0.6	0.2	16.4
2011	2012	0.8	0.5	0.6	0.5	0.1	14.6

注 1：湿性沈着量と乾性沈着量の和として算出。注 2：湿性沈着量は、上述した斜面における降水量分布も考慮し、3 地点の平均値を用いて補正を行った。注 3：mol_c は、イオンの量を電荷のモル数で示すもの。

表 3-2-10-b 各水年の主な物質の年間河川流出量

水年		アルカリ度	SO ₄ ²⁻	NO ₃ ⁻	Cl ⁻	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺
		kmol _c ha ⁻¹					
2007	2008	2.2	2.1	0.6	0.9	ND ^{*1}	2.1
2008	2009	2.4	2.2	0.7	1.0	0.001	2.0
2009	2010	3.6	3.2	0.8	1.5	0.054	3.0
2010	2011	2.0	2.1	0.6	0.9	0.004	2.1
2011	2012	2.0	2.0	0.5	0.8	0.002	1.9

注：アルカリ度は pH4.8 法による。*1 NH₄⁺濃度が年間を通じて定量下限未満の場合、流出量も定量下限未満 (ND) とした。

物質流入量は、降水量が著しく異なっていたにも関わらず、水年による変化はほとんどなかった (表 3-2-10-a)。ここで得られた推計結果は、前回のとりまとめにおける 2006-2007 水年のそれと同じレベルであった [7]。窒素の総沈着量は、これまでの推計結果同様、河川

への NO_3^- 流出の閾値といわれる 1 年当たり 10 kg N ha^{-1} を大きく上回ったが、2007-2009 年の 2 水年と比較すると、2009-2012 水年の沈着量は若干低めであった。一方、流出量は、流量を反映して、2009-2010 水年は物質流出量も前の 2 水年より多く推計された (表 3-2-10-b)。

物質流入量と物質流出量を比較すると、 SO_4^{2-} 、 Cl^- 及び Ca^{2+} では、流出量が流入量を大きく上回っていた。前回のとりまとめにおける推計 [7] と同様に、 SO_4^{2-} の流出量は流入量の 2 倍以上であり、特に 2009-2010 水年には 3 倍以上にもなった。また、窒素については、溶存無機態窒素 ($\text{NO}_3^- + \text{NH}_4^+$) の流入量 ($1.0 - 1.1 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1}$) の 50 - 80% 程度 ($0.5 - 0.9 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1}$) が、 NO_3^- 又は NH_4^+ として流出していた (NH_4^+ は生態系内で硝化されるため、ほとんど NO_3^- として流出していた)。

Ca^{2+} については、土壤中に多く吸着・蓄積されているものが流出したと考えられるが、 Cl^- は生態系内でほとんど利用されないと考えられており、流入量と流出量が同程度になることが多いとされている。これを考慮して、仮に Cl^- の流入量が流出量と同程度であったとして、 SO_4^{2-} の流入量を Cl^- との組成比に合わせて増やしたとしても、5 水年の平均 SO_4^{2-} 流入量は $1.7 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ であり、平均の流出量 ($2.3 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) はそれを上回っていると考えられる。近年、過去に硫黄沈着量が多かった北米の集水域において、流入量以上に SO_4^{2-} が流出していることが報告されており、蓄積していた SO_4^{2-} が流出している可能性が示唆され、 SO_4^{2-} の流出は H^+ の生成を伴うことから、酸性化からの回復を遅らせる要因の一つとして着目されている [10]。鉱物由来の硫黄の可能性も考慮する必要があるが、平成 15~17 年度の集中調査時に実施された伊自良湖集水域内の土壌断面調査では、代表的な含硫黄鉱物であるパイライト (黄鉄鉱: FeS_2) は検出されず、地質面からの大きな影響は確認されていない。一方で、3.2.4 で議論する要監視地域の抽出作業により、伊自良湖集水域を含む岐阜県山間部で過去 25 年間の硫黄累積沈着量が全国的にも高いことが明らかとなった。また、それ以前の我が国の高度成長期には、さらに急速な沈着量の増大があったことが示唆されており [11]、その頃からの大気由来の硫黄の蓄積も考慮する必要がある。伊自良湖集水域内の土壌は、関東や中部に分布する岩石性土壌の中でも、酸性度が高く硫黄の蓄積能が高いことが示唆されており、全硫黄に占める有機態硫黄の割合が高いことが報告されている [12]。伊自良湖でも北米のケースと同様に、これまでに生態系内に蓄積した硫黄の流出が生じている可能性が考えられた。窒素飽和していると考えられる本集水域では、多くの窒素が生態系内で利用されず流出していることが示唆されたが、まだその流出量は流入量よりは少なく、流入した窒素の一定量は生態系内で消費・蓄積されており、生態系が窒素の放出源になるような段階 (Stage 3) [13] [14] には至っていないと考えられた。

③ 乾性沈着の不確実性の検討

②では詳述していないが、本地域の総沈着量に占める乾性沈着の寄与率は、多くの項目で10%未満であった。乾性沈着の推計に用いた Inferential 法が、本来斜面地に適用することを想定していないことに加え、伊自良湖測定所は谷間に位置するため風速が過小評価されている可能性が指摘されている。そのため、上記物質収支における乾性沈着の不確実性について、特に乾性沈着速度に大きな影響を及ぼす風速に着目し、伊自良湖測定所から東西南北 10~20 km に位置するアメダス局（岐阜、美濃、樽見、揖斐川）の風速データを用いて乾性沈着速度を試算し、伊自良湖測定所データの不確実性を検討した。その他の気象要素は伊自良湖測定所のデータを用いた。

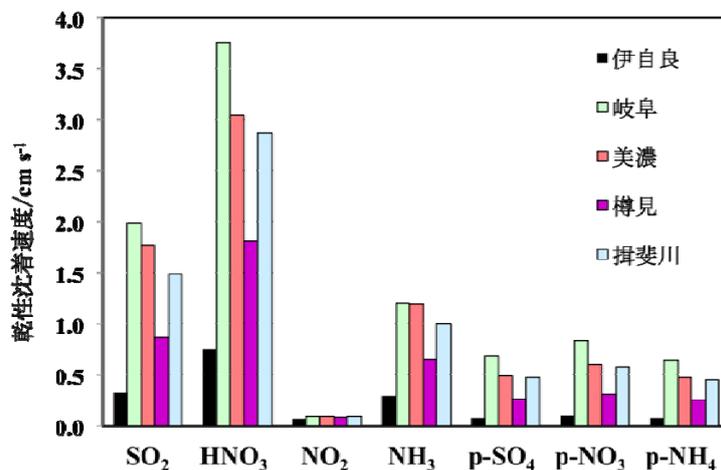


図 3-2-12 伊自良湖測定所及び近傍のアメダス局の風速データを用いた時の年平均乾性沈着速度（2010-2011 水年）

注：p-SO₄、p-NO₃、及び p-NH₄は、それぞれの粒子状物質を示す。

伊自良湖測定所の年平均風速は 0.4 m s^{-1} とアメダス局に比べて顕著に低く、年間の約 25% が風速 0 であった。アメダス局については平均値が $1.1 \sim 2.6 \text{ m s}^{-1}$ の範囲にあり、平野部の岐阜局で数値が高かった。2010-2011 水年における近傍のアメダス局の風速データを用いて算出した乾性沈着速度を図 3-2-12 に示した。伊自良湖測定所の大気濃度の代表性について考慮する必要はあるものの、これらの沈着速度を用いて乾性沈着量を算出すると、硫黄化合物の乾性沈着量は伊自良湖測定所よりも 2.3~4.4 倍、窒素化合物の乾性沈着量は 2.4~5.6 倍大きい値になる可能性があった（図 3-2-13）。

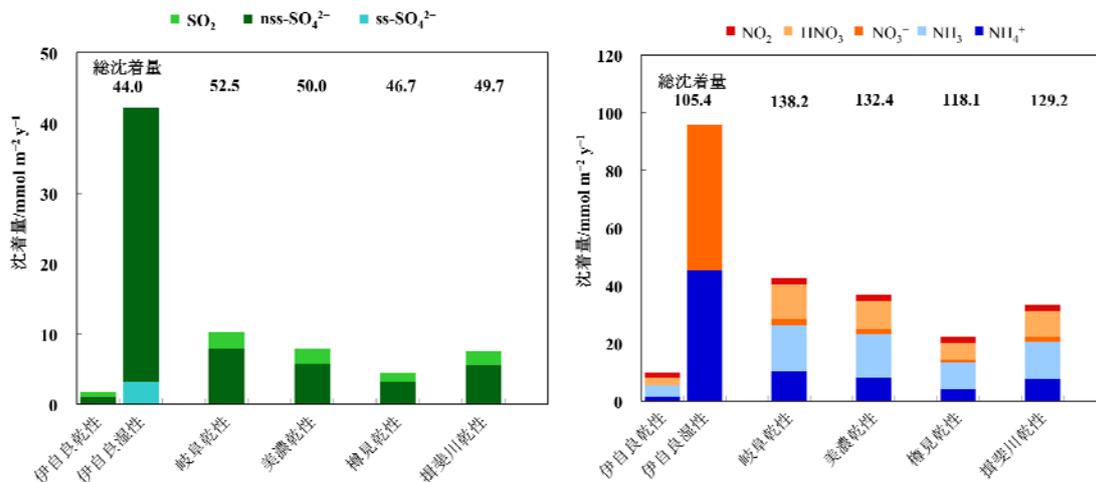


図 3-2-13 伊自良湖測定所及び近傍のアメダス局の風速データを用いた時の硫黄化合物（左）及び窒素化合物（右）の乾性及び湿性の年間沈着量（2010-2011 水年）

注 1：図中の総沈着量は、各アメダス局の気象データを用いて推定された乾性沈着と伊自良湖測定所の湿性沈着の和である。注 2：ここで示した湿性沈着量は伊自良湖測定所の実測値であるため、降水量分布で補正した湿性沈着量を用いた表 3-2-10-a の総沈着量とは値が若干異なる。

伊自良湖集水域における物質収支の議論の大きなポイントとしては、上述したように特に硫黄において、大気からの流入量以上に渓流水に流出している点である。2010-2011 水年の場合、推定された SO_4^{2-} の年間流出量は $2.1 \text{ kmol}_c \text{ ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ ($103 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$) であった。図 3-2-13 上で示された最も乾性沈着量が多くなる岐阜局のケースでも、その総沈着量は $52.5 \text{ mmol m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であり、流出量の 50%未満であった。伊自良湖集水域全体への湿性沈着量は、伊自良湖測定所に比べ斜面上部でより降水量が多い可能性があり（表 3-2-9）、2010-2011 水年では、2 割程度斜面上部の降水量が多かった。その点を考慮したとしても、流入量に比べ流出量が著しく多いと考えられる。よって、硫黄の流入・流出収支については、乾性沈着の不確実性を考慮したとしても、これまでの議論と同様の結論が導き出せると考えられた。

しかしながら、硫黄及び窒素化合物のいずれのケースにおいても、伊自良湖測定所における推計値は過小評価である可能性が示されたため、今後、乾性沈着並びに総沈着量等の評価においては、これらの不確実性についても考慮すべきであると考えられた。

(2) 伊自良湖流入河川の水質の経年変化

湿性沈着量が全国のモニタリング地点で最も多い伊自良湖集水域では、1990 年代から河川水の pH やアルカリ度の低下傾向 [11]や NO_3^- 濃度の上昇傾向、更に土壌の酸性化傾向も見られ、窒素飽和が進んでいることが示唆されている [15]。また、今回も確認されたよう

に、 SO_4^{2-} の大气からの流入量に比べ河川からの流出量が著しく多く、過去に蓄積した硫黄が流出している可能性が指摘されている [7]。

釜ヶ谷川の主な水質について、河川流出量を加味した各水年の加重平均濃度を表 3-2-11 に示した。pH は横ばいかやや上昇気味であり、アルカリ度や SO_4^{2-} 濃度には一定の傾向は見られなかった。 NO_3^- 濃度は変動しているものの、2005-2008 年の 3 水年に比べると、2009-2012 年の 3 水年の値は低かった。大气からの流入量も近年低めであったため、それを反映した可能性も考えられた (表 3-2-10-a)。

伊自良湖集水域内の窒素飽和が進行したきっかけは、酷暑・干ばつの気象イベント後の無機窒素の放出と樹木成長量の低下に伴う窒素吸収の低下と考えられている [15]。集水域全体の詳細な施業記録は明らかではないが、人工林が多くを占める伊自良湖集水域内では 2002-2004 年、また 2006-2007 年に間伐が林班毎に段階的に実施されたことが記録されており、河川中の NO_3^- 濃度がそれ以降低めであることから、これらの施業により、森林の健全性が高まり窒素吸収が増大したことが影響している可能性はある。一方で、釜ヶ谷川流域の 2 地点では 2008-2009 水年以降、一時的に水温と NO_3^- 濃度との間に負の相関が見られるようになり、森林による窒素吸収の回復の兆候とも考えられたが、2010-2011 水年以降は再び水温と NO_3^- 濃度の関係は不明瞭となり、夏季においてもまだ高い NO_3^- 濃度が見られている (図 3-2-14)。また、pH やアルカリ度にも目立った変化は見られていないことから、現時点では、窒素飽和からの回復傾向はまだ明確ではない。また、上述したように、 SO_4^{2-} は流入量以上に流出しており土壌表層に蓄積していることも示唆されたため、今後更に注意深く監視していくことが重要であると考えられた。

表 3-2-11 伊自良湖集水域釜ヶ谷川における河川水質の各水年の加重平均濃度

水年		pH	アルカリ度	SO_4^{2-}		NO_3^-
				(μmol _e L ⁻¹)		
2005	2006	6.8	127	121	42.9	
2006	2007	6.9	137	139	41.3	
2007	2008	6.8	156	147	43.0	
2008	2009	7.0	142	131	39.3	
2009	2010	7.0	135	121	29.4	
2010	2011	6.8	120	120	36.4	
2011	2012	6.8	136	132	30.1	

注：各水年の RW1 における年間流出量を基に算出。

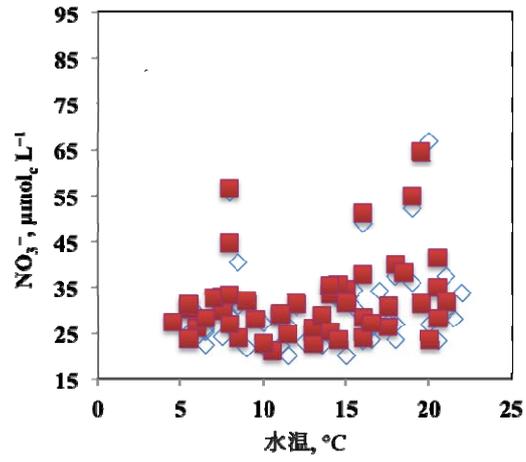


図 3-2-14 釜ヶ谷川における 2010-2012 水年の水温と NO₃⁻濃度との関係

注：流量が 0.5 m³ s⁻¹ を超えるような高流量時のデータは除いた。

3.2.4 生態系影響の要監視地域に関する抽出方法の検討

(1) 土壌・陸水酸性化の要監視地域

酸性沈着の土壌への影響は、酸に対して化学的特性が変化しやすい土壌（＝感受性が高い土壌）と、酸に対して化学的特性が変化しにくい土壌（＝感受性が低い土壌）によって異なる。陸域生態系の酸性化は、土壌・植生・地質の酸感受性が高く、かつ人為由来の酸沈着が多い地域で生じやすい（酸性化のリスクが高い）可能性があり、そのような地域を要監視地域として抽出することが求められる。本項では、大気質モデルによるシミュレーションを基に算出した25年間の酸累積負荷量及び土壌・植生・地質の地理情報を用い、陸域生態系の重要な構成要素である土壌・陸水の酸性化リスクを半定量的に評価・マッピングし、要監視地域を抽出した。

(2) 使用したデータとマッピングの方法

「酸感受性の高い土壌・地質を持ち、かつ過去の累積的な酸負荷が多い森林地域では土壌・陸水の酸性化リスクが高い」という仮定に基づいて各リスク要因を重み付けし、酸性化リスクの強度を評点化した。酸性化リスクに対する酸負荷量と酸感受性の重みは等しく、また、土壌の酸性化リスクは土壌の感受性を反映する一方で陸水の酸性化リスクは土壌と地質の感受性を等しく反映するものとした（図3-2-15）。評価グリッドの一边を20kmとし、森林植生⁶が75%以上を占める集水域を抽出して評価対象とすることで、大気沈着影響の考慮が困難な農地・市街地及び大河川の中・下流域を除外した。化学輸送モデルCMAQ ver.4.4（空間解像度80km）により1981年から2005年までの東アジアにおける各化学種の沈着量を計算[16][17][18]し、硫黄・窒素酸化物及びNH₃（又はNH₄⁺）の湿性・乾性による沈着量を25年間にわたり積算したものを酸累積負荷量（図3-2-16）とした⁷。日本の陸域における酸累積負荷量の分布を自

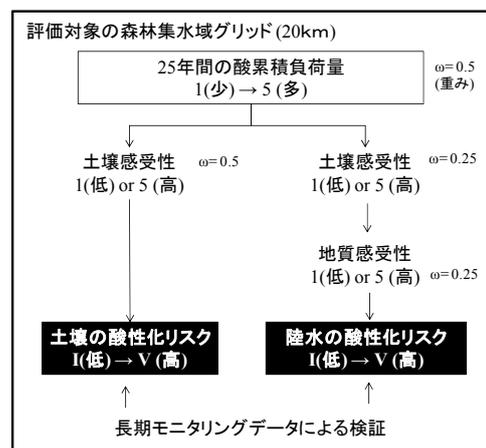


図3-2-15 土壌・陸水酸性化リスクの評価

るものとした（図3-2-15）。評価グリッドの一边を20kmとし、森林植生⁶が75%以上を占める集水域を抽出して評価対象とすることで、大気沈着影響の考慮が困難な農地・市街地及び大河川の中・下流域を除外した。化学輸送モデルCMAQ ver.4.4（空間解像度80km）により1981年から2005年までの東アジアにおける各化学種の沈着量を計算[16][17][18]し、硫黄・窒素酸化物及びNH₃（又はNH₄⁺）の湿性・乾性による沈着量を25年間にわたり積算したものを酸累積負荷量（図3-2-16）とした⁷。日本の陸域における酸累積負荷量の分布を自

⁶ 環境省第5回自然環境保全基礎調査「植生調査」の成果（3次メッシュデータ）を使用した。群落コードより「市街地」「造成地」「果樹園」「水田」「畑地」「牧草地」等を除いた群落・群集・群団・植林を森林植生の分布とした。なお、一部の自然草地等、明瞭な分類が困難な群落も森林植生に含めた。

⁷ 全S沈着(kgS ha⁻¹25y⁻¹)=SO_{2w}+SO_{4wA}+SO_{2d}+SO_{4dA}, 全N沈着(kgN ha⁻¹25y⁻¹)=HNO_{3w}+NO_{3wA}+NO_{2w}+NO_w+HNO_{3d}+NO_{3dA}+NO_{2d}+NO_d+NH_{3w}+NH_{4wA}+NH_{3d}+NH_{4d}, 正味の酸負荷量(keq ha⁻¹25y⁻¹)=全S沈着/32.065×2+NO₃沈着/14.0067+NH₃沈着/14.0067×2として算出した(添字はwが湿性,dが乾性,Aが粒子状物質を示す)。尚、計算データが存在しないため塩基類の沈着は考慮されていない。

然階級分類（Jenks の最適分類法）によって 5 つのカテゴリに分類し、土壌と地質の酸に対する感受性を 2 つのカテゴリに分類⁸して評価グリッド毎に属性値として与え（表 3-2-12）、算出された土壌・陸水の酸性化リスクの評点（I:低い, II:やや低い, III:中程度, IV:やや高い, V:高い）を全国でマッピングした（図 3-2-17）。なお、土壌・地質の酸に対する感受性については過去に発表された「酸性雨の土壌への影響予察図」 [19] や「酸性雨に対する感受性分布図」 [20]における分類等も参考にした。

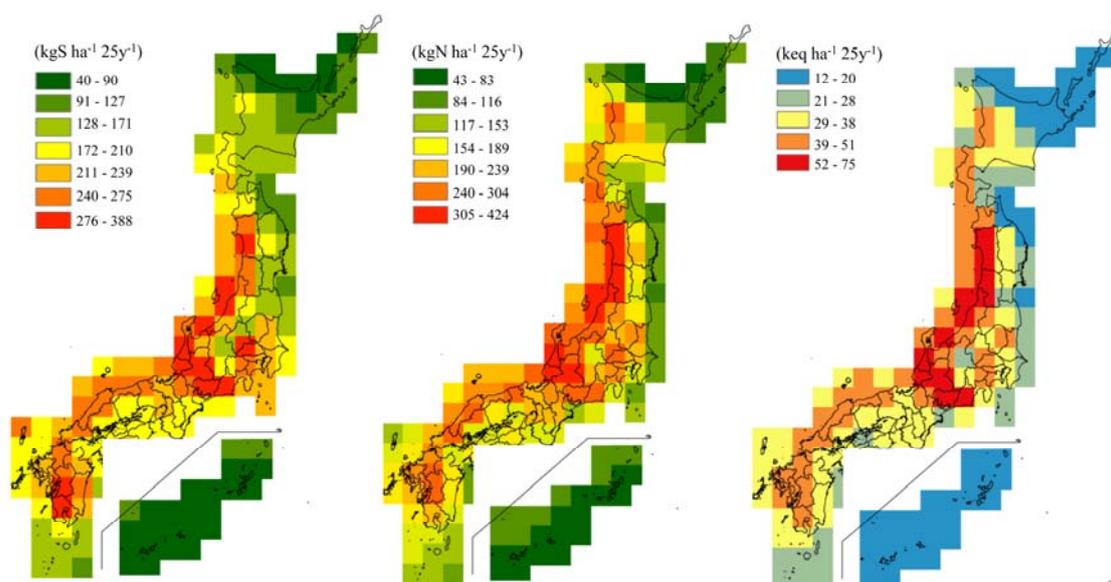


図 3-2-16 モデルによって推定された過去 25 年間の S 累積負荷量（左図）、N 累積負荷量（中図）及び正味の酸累積負荷量（右図）

表 3-2-12 正味の酸累積負荷量及び酸に対する感受性に応じた土壌・地質の分類と評点化

評点	正味の酸累積負荷量 (keq ha ⁻¹ 25y ⁻¹)	感受性	地質の酸感受性	土壌の酸感受性
1	12-20 ^{*1}	低い	石灰岩、蛇紋岩、かんらん岩、火山灰・ローム、安山岩、玄武岩、斑レイ岩、砂礫・泥岩（第四紀堆積岩）等	グライ土、黒ぼく土、暗赤色土、湿性褐色森林土
2	21-28			
3	29-38			
4	39-51		花崗岩、流紋岩、片麻岩、粘板岩・砂岩・チャート・輝緑凝灰岩（古生代堆積岩） ^{*2} 、砂岩・頁岩・礫岩（中生代堆積岩）等	乾性ポドゾル、乾性褐色森林土、赤黄色土、泥炭土、湿性ポドゾル、未熟土等
5	52-75	高い		

*1 日本の陸域における沈着量分布を自然階級分類(Jenks の最適分類法)によってカテゴリ化。 *2 輝緑凝灰岩の酸感受性は低いと考えられるが、地質図の同一カテゴリ（古生代堆積岩）に属するチャート及び砂岩の酸感受性は高いと考えられるため、リスク評価の観点から感受性の高いグループに分類した。

⁸ 国土調査による土地利用分類図 1/50,000 土地分類基本調査（土壌図及び表層地質図）を使用した。酸性化リスクが相対的に高い地域を検出するため、土壌・地質の酸感受性に 1 と 5 の明瞭な差をつけた。

(3) 土壌・陸水酸性化の要監視地域とマップの妥当性

土壌と陸水の酸性化リスクは西日本の日本海側、九州西部及び中部地方を中心に高い地域が見られ、酸性化の要監視地域として抽出された(図 3-2-17)。また、北陸以北の日本海側においても一部で酸性化リスクの強度が高い地点が見られた。一方、北海道や東北の太平洋側では酸性化のリスクが比較的低い地域が多かった。モデルにより推定された 25 年間の酸累積負荷量が日本海側と中部地方を中心に多かったのに加え(図 3-2-16)、西日本や中部地方で酸感受性の高い土壌や地質が幅広く分布する国土の特徴をよく反映していた。

陸水の酸性化リスクが高く算出された地域は、過去に酸性化が報告された伊自良湖集水域 [11]、沢の池 [21]、新潟県北部の河川 [22]を含み、土壌の酸性化リスクが高かった地域は同じく土壌の酸性化が報告された伊自良湖 [15]を含んでいた。また、本モニタリングにおいて土壌の酸性化が確認されている宝立山や石見臨空 FP (3.2.1)、陸水の酸性化が報告されている夜叉ヶ池 (3.2.2) もリスクが高い地域に含まれていた。このことから、示された酸性化リスクマップは現状をある程度反映した妥当なものであると考えられるため、同レベルのリスクが確認された地域を考慮したモニタリングが必要と考えられる。

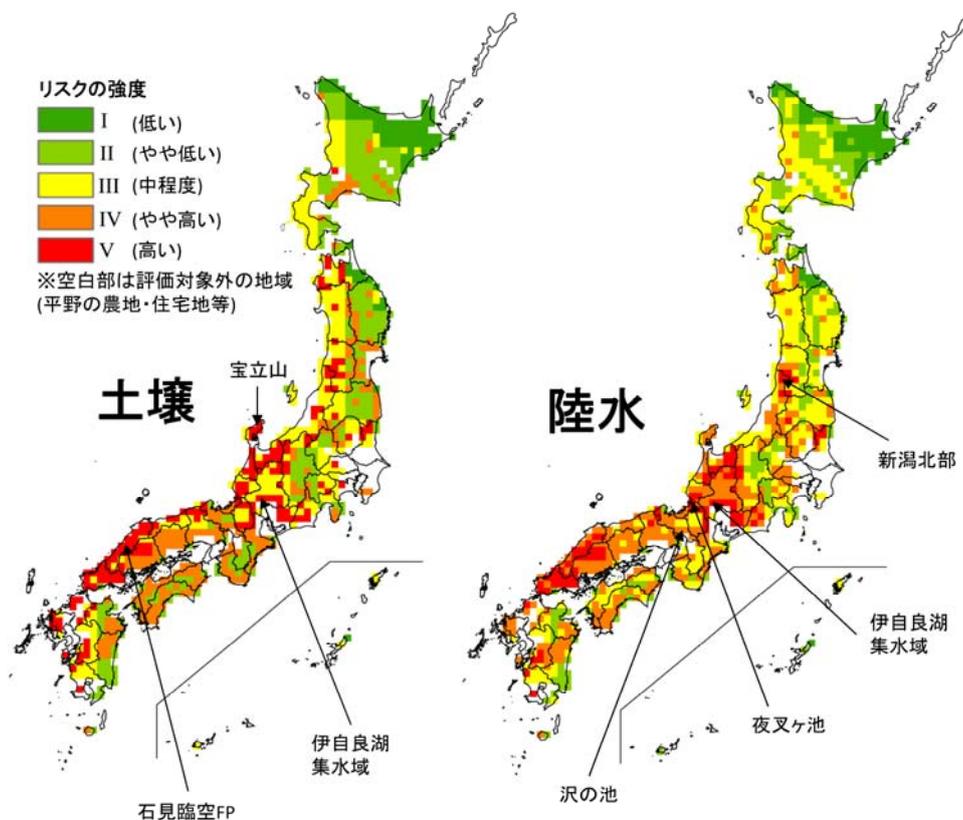


図 3-2-17 土壌・陸水の酸性化リスクマップ

注：例として、沢の池では推定された正味の酸累積負荷量が $37.4 \text{ keq ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ (評点 3)、地質が粘板岩・砂岩・チャート・輝緑凝灰岩 (評価 5)、土壌が残積性未熟土赤色系 (評点 5) より、 $3 \times 0.5 + 5 \times 0.25 + 5 \times 0.25 = 4$ で陸水酸性化のリスク強度は IV となった。

(3.2 の引用文献)

- [1] 日本ペドロロジー学会第四次土壌分類・命名委員会, 日本の統一的土壌分類体系—第二次案—, 博友社, 2002.
- [2] B. Ulrich, “An ecosystem approach to soil acidification” In *Soil Acidity (Edited by B. Ulrich and M. E. Summer)*, Berlin, Springer-Verlag, 1991.
- [3] Network Center for EANET, Sub-manual on forest vegetation monitoring in EANET, Acid Deposition and Oxidant Research Center (ADORC), 2006.
- [4] 横田岳人, “ニホンジカが森林生態系に与える負の影響” *森林科学*, vol. 61, pp. 4-10, 2011.
- [5] 環境省酸性雨対策検討会, 酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書, 環境省, 2004.
- [6] R. M. Hirsch, J. R. Slack and R. A. Smith, “Techniques of trend analysis for monthly water quality data” *Water Resour. Res.*, vol. 18, no. 1, p. 107–121, 1982.
- [7] 環境省, 酸性雨長期モニタリング報告書(平成 15～19 年度), 環境省, 2008.
- [8] 小川滋, “森林と水資源(第 3 章)” In *水文大循環と地域水代謝 (丹保・丸山編)*, 技報堂出版, 2003, pp. 45-71.
- [9] Network Center for EANET, Technical Manual for Dry Deposition Flux Estimation, Asia Center for Air Pollution Research (ACAP), 2010.
- [10] M. J. Mitchell and G. E. Likens, “Watershed Sulfur Biogeochemistry: Shift from Atmospheric Deposition Dominance to Climatic Regulation” *Environ. Sci. Technol.*, vol. 45, pp. 5267–5271, 2011.
- [11] T. Yamada, T. Inoue, H. Fukuhara, O. Nakahara, T. Izuta, R. Suda, M. Takahashi, H. Sase, A. Takahashi, H. Kobayashi, T. Ohizumi and T. Hakamata, “Long-term Trends in Surface Water Quality of Five Lakes in Japan” *Water, Air, and Soil Pollution, Focus 7*, pp. 259-266, 2007.
- [12] 谷川東子, 伊藤嘉昭, 福島整, 杉山暁史, 佐瀬裕之, 山下尚之, 今矢明宏, 高橋正通, “高分解能 2 結晶型 X 線分光を用いた伊自良湖集水域土壌のイオウ結合形態の評価 (P1-200)” *第 124 回森林学会学術講演集*, p. 141, 2013.
- [13] G. M. Lovett, K. C. Weathers and W. V. Sobczak, “Nitrogen saturation and retention in forested watersheds of the Catskill Mountains, New York” *Ecological Applications*, vol. 10, no. 1, pp. 73-84, 2000.
- [14] J. L. Stoddard, “Long-term changes in watershed retention of nitrogen” In *Environmental chemistry of lakes and reservoirs. Advances in Chemistry Series 237 (Edited by L. A. Baker)*, Washington, D.C., American Chemical Society, 1994, p. 223–284.
- [15] O. Nakahara, M. Takahashi, H. Sase, T. Yamada, K. Matsuda, T. Ohizumi, H. Fukuhara, T. Inoue, A. Takahashi, H. Kobayashi, R. Hatano and T. Hakamata, “Soil and stream water acidification in a forested catchment in central Japan” *Biogeochemistry*, vol. 97, pp. 141-158, 2010.
- [16] J. Kurokawa, T. Ohara, I. Uno, M. Hayasaki and H. Tanimoto, “Influence of meteorological variability on interannual variations of springtime boundary layer ozone over Japan during 1981–2005” *Atmos. Chem. Phys.*, vol. 9, p. 6287–6304, 2009.
- [17] Y. Morino, T. Ohara, J. Kurokawa, M. Kuribayashi, I. Uno and H. Hara, “Temporal variations of nitrogen wet deposition across Japan from 1989 to 2008” *J. Geophys. Res.*, vol. 116, D06307, 2011.
- [18] M. Kuribayashi, T. Ohara, Y. Morino, I. Uno, J. Kurokawa and H. Hara, “Long-term trends of sulfur deposition in East Asia during 1981–2005” *Atmos. Environ.*, vol. 59, p. 461–475, 2012.
- [19] 環境庁水質保全局・日本土壌肥料学会, 酸性雨の土壌への影響予察図 (1/200 万), 環境庁, 1983.

- [20] 吉永秀一郎, 鈴木裕一, 松倉公憲, 小林守, 新井正, “国土数値情報を用いた酸性雨に対する感受性分布図の作成” *日本土壌肥科学会雑誌*, vol. 65, no. 5, pp. 565-568, 1994.
- [21] S. Yoshikawa, S. Yamaguchi and A. Hata, “Paleolimnological investigation of recent acidity changes in Sawanoike Pond, Kyoto, Japan” *Journal of Paleolimnology*, vol. 23, no. 3, pp. 285-304, 2000.
- [22] H. Matsubara, S. Morimoto, H. Sase, T. Ohizumi, H. Sumida, M. Nakata and H. Ueda, “Long-term declining trends in river water pH in Central Japan” *Water air and soil pollution*, vol. 200, pp. 253-265, 2009.