

## 森林植生の違いが渓流水の腐植物質 - 鉄錯体形成に及ぼす影響

岡田直己<sup>1)</sup>・熊澤翔平<sup>2)</sup>・林裕美子<sup>3)</sup>・寺井久慈<sup>2)</sup>

### Effect of forest vegetations on the formation of iron - humus complex in mountain streams

Naoki OKADA<sup>1)</sup>, Shohei KUMAZAWA<sup>2)</sup>, Yumiko HAYASHI<sup>3)</sup> and Hisayoshi TERAI<sup>2)</sup>

#### 摘 要

河川中に溶存している腐植物質は、鉄イオンと錯体を形成し、陸域から海洋への鉄イオンのキャリアーとして作用するため、沿岸水域の生物生産に重要な役割を演じている。本研究では、森林植生の違いによって、渓流水中の腐植物質-鉄錯体 (HS-Fe) にどのような量的・質的变化があるのか検討を行った。調査地は、岐阜県恵那市にある中部大学恵那キャンパス周辺の渓流水と、宮崎県九州中央山地国定公園の最南峰に位置する綾の森の渓流水とした。恵那調査地では、腐植物質量の指標とした相対蛍光強度 (硫酸キニーネを用いて補正)、HS-Fe 量ともに、広葉樹林渓流水のほうが針葉樹林渓流水より有意に高い値を示した。また、相対蛍光強度と HS-Fe に高い正の相関 ( $r^2 = 0.840$ ) が見られたことから、広葉樹林渓流水は針葉樹林渓流水に比べて HS-Fe の供給量が多いと推察した。綾の森調査地は恵那調査地に比べ腐植物質の濃度が低く、HS-Fe 濃度も少ない結果となった。

キーワード：フルボ酸，腐植物質，渓流水，鉄

(2008年9月20日受付；2009年2月2日受理)

#### はじめに

鉄は光合成生物の色素の生合成 (Suzuki et al., 1995a), 呼吸をつかさどる電子伝達系, 硝酸塩等の還元酵素に深く関与している (Geider and Roche, 1994)。光合成生物は粒状鉄を直接摂取しているわけではなく、わずかに溶解している  $\text{Fe}(\text{OH})^{2+}$  を摂取していると考えられている (Anderson and Morel, 1983; Suzuki et al., 1995b)。腐植物質はカルボキシル基, フェノール性水酸基に富むことから、鉄を含む多価の原子価 (2価~6価) を持つ微量元素元素との親和性が強く、それらと錯体を形成してキャリアーとして作用するため、水圏における微量元素の移行挙動の支配因子の一つと考えられている (Kim, 1986)。また、河川水中の錯体を形成していない鉄は、酸素に触れることにより酸化され溶解性を失うため、河川水中の溶存鉄のほとんどは、腐植物質と有機錯体を形成していると考えられている。したがって、腐植物質は沿岸水域の生物生産に重要な役割を演じていると考えられる。腐植物

質の役割を定量的に評価し、生物生産を増加させる機構を明らかにするためには、陸域から河川を経由して供給される腐植物質量、構造・官能基特性、および鉄との錯体形成を検討する必要がある。

また、近年人工林の存在について様々な問題が取り上げられている。戦後、日本においては木材需要の高まりからスギなどの針葉樹が広範囲に植林された。現在、わが国では国土の70%が森林で覆われている。このうち、針葉樹と広葉樹の割合は概ね同じであるが、人工林と天然林で比較してみると大きな違いが出る。人工林では約9割が針葉樹であり、広葉樹はわずか1割程度しかない。逆に、天然林では約8割が広葉樹である (林野庁 HP)。近年、林業の低迷等により管理放棄された人工林が多く見られるようになったが、このような非管理人工林においては、樹冠が鬱閉しやすく、太陽光が林床に十分届かなくなる。その結果、下層植物が育ちにくくなり、林床が裸地化し、森林に期待されている湧水緩和機能・洪水抑制機能などが発揮できなくなることが危惧されて

<sup>1)</sup> 中部大学環境総合研究センター 〒487-8501 愛知県春日井市松本町 1200 Chubu University, Matsumoto-cho 1200, Kasugai, Aichi 487-8501, Japan

<sup>2)</sup> 中部大学応用生物学部 〒487-8501 愛知県春日井市松本町 1200 College of Bioscience and Biotechnology, Chubu University, Matsumoto-cho 1200, Kasugai, Aichi 487-8501, Japan

<sup>3)</sup> てるはの森の会 〒880-0014 宮崎県宮崎市鶴島二丁目 9-6 みやざき NPO ハウス 403 号 Teruha no Mori no Kai, Miyazaki NPO House 403, Tsurushima 2-9-6, Miyazaki 880-0014, Japan

(連絡著者 岡田直己 E-mail: n.okada@isc.chubu.ac.jp)

いる。そこで、環境に配慮した人工林管理の推進や、管理の行き届かない針葉樹人工林を広葉樹林へと植え替えることが検討されている（林野庁 HP；児玉, 2007）。しかし、森林形態が環境へ与える影響に関する研究例は少なく、その実証試験を展開することが緊急の課題となっている。

このようなことを踏まえ、本研究では森林植生の違いが渓流水中の腐植物質の量・質、および、鉄との錯体形成量にどのような違いを与えるのかを検討することを目的とした。

## 方法

調査地は岐阜県恵那市にある中部大学恵那キャンパス周辺の渓流水（図1）と、宮崎県九州中央山地国定公園の最南峰に位置する綾の森の渓流水（図2）とした。恵那調査地の林相は、コナラ・アベマキを優占種とした落葉広葉樹が生育し、スギ・ヒノキが部分的に植林されている。E-Aは集水域に広葉樹林と針葉樹林が存在している地点であり、E-Bは主に落葉広葉樹が生育している地点（広葉樹林渓流水）、E-Cはスギ・ヒノキが植林された地点（針葉樹林渓流水）である。綾の森では、シイ類、カシ類などの照葉樹林が大部分を占め、所々にスギ・ヒノキが植林されている。A-A、A-Bは照葉樹林か

らなり、A-Cはスギの人工針葉樹林となっている。恵那調査地では2007年3月から2008年1月までは月に一度調査を行い、その後は隔月に3月、5月に調査を行った。綾の森調査地では2007年12月、2008年6月、9月、11月に採水を行った。採水したサンプルは孔径0.45 μmのPTFE製メンブレンフィルター（JHWP04700, Millipore）によりろ過を行い、溶存有機炭素含量、相対蛍光強度、HS-Fe含量の分析を行なった。以下に分析方法の詳細を示す。

溶存有機炭素（DOC）含量：測定にあたり、0.45 μmメンブレンフィルターを通した試水5 mlに対して1Nの硫酸を50 μl添加し、二酸化炭素を除去してから測定を行なった。これを、全有機炭素計（Shimadzu TOC-VE）で定量した。

相対蛍光強度：10 μg L<sup>-1</sup>の硫酸キニーネ溶液の励起波長345 nm、蛍光波長450 nmの蛍光強度を10硫酸キニーネ単位（QSU）として見積もった（長尾・岩月, 2007）。試料の励起波長345 nm、蛍光波長450 nmの蛍光強度を測定し、硫酸キニーネで作成した検量線を使い相対蛍光強度を算出した。測定は、蛍光分光光度計（AMINCO・Bowman Series 2）を使用した。



図1. 恵那調査地採水地点.

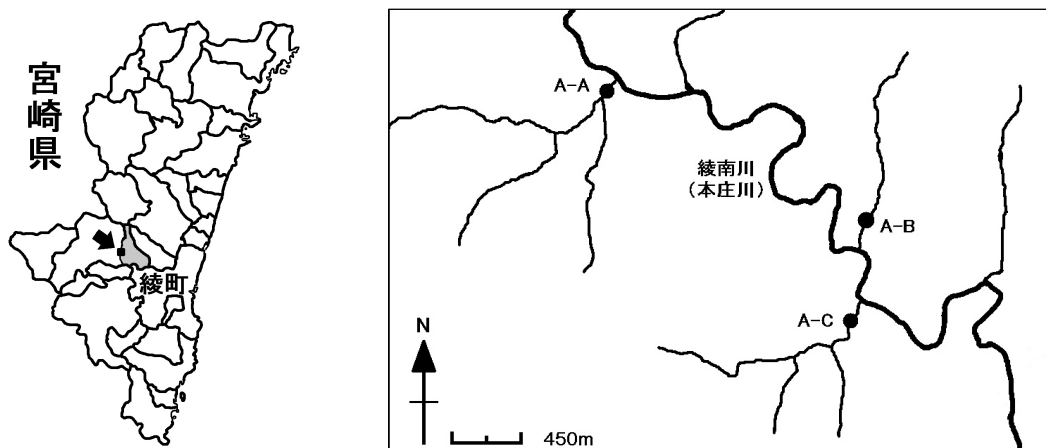


図2. 綾の森調査地採水地点.

腐植物質-鉄錯体 (HS-Fe) 量：腐植物質と錯体を形成している鉄の量を測定するために、樹脂による腐植物質の濃縮を行なった (Matsunaga et al., 1982)。使用した樹脂は弱陰イオン交換樹脂 (DEAE-Sepharose Fast Flow, GE ヘルスケアバイオサイエンス) で、ろ過した約 10L の試水の中に樹脂 100 ml を入れ、バッチ法により腐植物質を吸着させた。その後、1N 水酸化ナトリウムで樹脂に吸着した腐植物質を脱離させ、硫酸で pH2 ~ 3 に調整した。樹脂による腐植物質の回収率  $\pm$  SD は  $87.7 \pm 0.2\%$  であった。鉄の測定には原子吸光分析装置 (Aanalyst 400, パーキンエルマー) を使用した。イオン交換樹脂から脱離した Fe 濃度を実測し、濃縮前後の蛍光強度から算出した濃縮率と樹脂の回収率により、元の試水あたりの HS-Fe 濃度を求めた。

### 結果と考察

#### 恵那調査地

DOC 濃度の月別変動を図 3-a に示す。2007 年 6 月の調査日には一日の総雨量 54 mm、調査日の二日前に総雨量 41 mm の降雨があったため飛び抜けて高い値を示したと考えられる。Thompson 棄却検定 ( $p < 0.01$ ) により、2007 年 6 月のデータは計算から除いた。2007 年 6 月を除いた平均値  $\pm$  SD は、E-A  $1.6 \pm 0.41$ , E-B  $1.9 \pm 0.71$ , E-C  $1.4 \pm 0.61$   $\text{mg L}^{-1}$  であった。岡田ほか (2006)、清水ほか (2007) による 2005, 2006 年のデータ (調査地点：広葉樹林渓流水-恵那調査地西斜面を流れる渓流水 4 地点 針葉樹林渓流水-E-C, 調査期間：2005 ~ 2006 年 毎月一回) を見ると、2005 年の広葉樹林渓流水と針葉樹林渓流水の DOC 濃度平均値  $\pm$  SD は、それぞれ  $2.5 \pm 0.91$ ,  $1.3 \pm 0.41$   $\text{mg L}^{-1}$ 、2006 年では、 $1.9 \pm 0.84$ ,  $0.83 \pm 0.36$   $\text{mg L}^{-1}$  と広葉樹林渓流水で高くなり、2007 年と同じ傾向を示した。また、2005, 2006 年ともに 6 月から 9 月にかけて広葉樹林渓流水において DOC 濃度が高くなる傾向がみられた。広葉樹林および針葉樹林の渓流水の DOC 濃度の報告は数多くされているが、これらの報告においても DOC 濃度は広葉樹林渓流水で高くなっている (金子, 1998; 小柳ほか, 2002)。また、Axel and Karsten (2005) によると、落葉の分解実験において、広葉樹 (サイカモアカエド, ナナカマド) のほうが針葉樹 (トウヒ, マツ) に比べて DOC 放出量が多くなるという報告がされている。広葉樹林渓流水で DOC 濃度が高くなる主な原因は、広葉樹林では落葉量 (腐植土層の厚さ) が多いことと、広葉樹のリターの方が針葉樹のリターに比べて微生物に分解されやすいことであるとされている (Berg and McClaugherty, 2004)。恵那調査地でも同様の原因から広葉樹林は針葉樹林に比べて DOC の生産量が高くなると推察された。季節的な変動は、夏季における温度上昇によって微生物が活発化し、土壌または渓流水中の粗大有機物 (落葉や枝など) の分解が進むためと推察

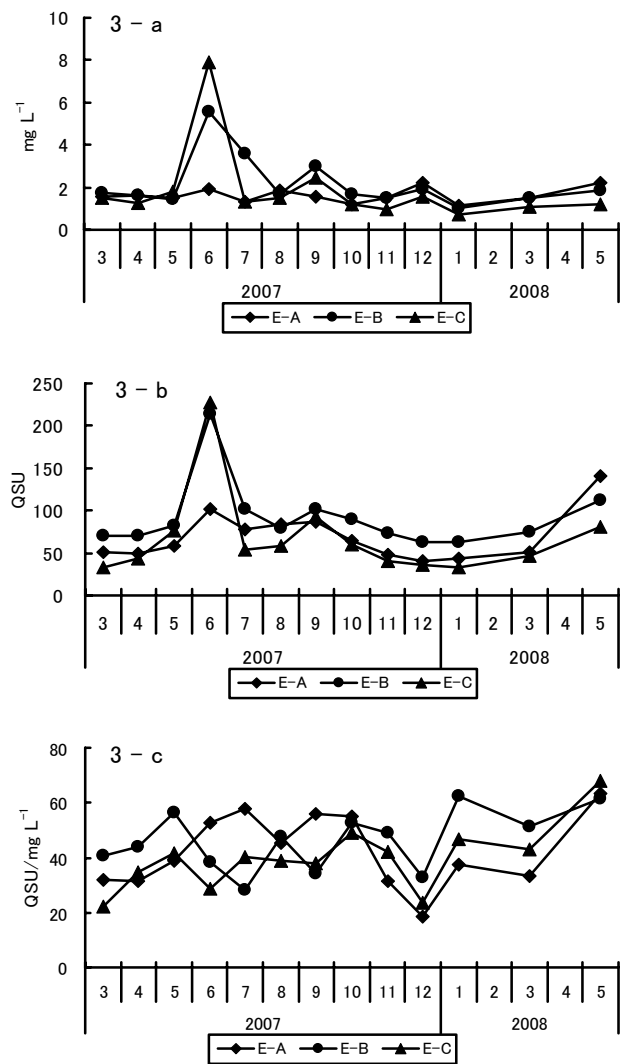


図 3. 恵那調査地における DOC 濃度 (3-a)、相対蛍光強度 (3-b)、相対蛍光強度/DOC 濃度 (3-c) の月別変動。

された (金子, 1998)。

相対蛍光強度の月別変動を図 3-b に示す。2007 年 6 月の値は DOC 濃度と同様に計算から除いた ( $p < 0.01$ , Thompson 棄却検定)。DOC 濃度と同様に 3 地点とも夏季・秋季に上昇する傾向がみられた。6 月は DOC 濃度と同様に E-B, E-C で高くなっており、降雨によって渓流水中に腐植物質も流れ込んでいることがわかる。2007 年 6 月を除いた平均値  $\pm$  SD は、E-A  $66.1 \pm 28.1$ , E-B  $81.9 \pm 16.2$ , E-C  $54.4 \pm 19.6$  QSU となり、広葉樹林渓流水 E-B と針葉樹林または針葉樹林が混在する渓流水 E-A・E-C の間で統計的に有意な差が認められた ( $p < 0.05$ , U-Test)。

DOC 量に対する腐植物質量の考察を行なうために相対蛍光強度/DOC 濃度を算出したが (図 3-c)、三地点の間に統計的に有意な差は見られなかった ( $p > 0.05$ , U-Test)。広葉樹林である E-B は季節的な傾向は見られなかったが、針葉樹・

広葉樹混合林および針葉樹林である E-A, E-C では、春季から秋季にかけて DOC あたりの腐植物質量が増加する傾向が見られた。一般に、広葉樹のリターに比べ針葉樹のリターに含まれるリグニンの割合は高いとされており、リグニン由来化合物が針葉樹の落葉の DOC 生産源として大きく寄与することも報告されている (Axel and Karsten, 2005)。また、リグニン分解産物には不飽和脂肪酸化合物、芳香族化合物などの蛍光物質が比較的多く含まれている (Berg and McClaugherty, 2004)。つまり、春季から秋季にかけて白色腐朽菌などリグニンを分解できる微生物が活発化し、リグニン由来化合物を分解することによって、この時季の DOC に対する腐植物質量が増加したと考えられる。

図 4-a に HS-Fe 濃度を示す。平均値はそれぞれ、E-A 46.0, E-B 89.6, E-C 43.0  $\mu\text{g-Fe L}^{-1}$  であった。E-B は他の 2 地点と比較して高い値を示し、統計的にも有意な差が認められた ( $p < 0.05$ , *U-test*)。これは DOC 濃度と相対蛍光強度の結果から、広葉樹林である E-B は他の 2 地点より腐植物質量含有量が多いため、多くの鉄と錯体を形成していると考えられた。E-A と E-C に関しては有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ , *U-test*)。

腐植物質の鉄錯体形成能力を検討するために、HS-Fe 濃度 / 相対蛍光強度を算出したが (図 4-b), 3 地点とも有意な差は認められなかった ( $p > 0.05$ , *U-test*)。このことから、今

回調査した 3 つの渓流水においては、腐植物質の鉄錯体形成能に大きな違いはないと推察された。また、相対蛍光強度と HS-Fe 濃度の相関をとると、高い正の相関 ( $r^2 = 0.840$ ) が得られたことから (図 5), HS-Fe 濃度は渓流水中の腐植物質量に大きく左右されると考えられ、恵那調査地において、蛍光強度の計測から試料の HS-Fe 濃度を推計できることが示唆された。

#### 綾の森

相対蛍光強度は恵那調査地と比較して低い値を示した (図 6)。腐植物質量が少なくなっている原因として、綾の森調査地は傾斜がきつい場所が多く、雨水が腐植土との接触時間、即ち腐植土層中での滞留時間が短いことが一因である可能性が考えられた。また、綾の森の大部分は土壌の少ない岩石地が多く広がっており (綾の森を世界遺産にする会, 2005), このことも腐植物質量が少なくなる原因の一つであると考えられた。冬季である 12 月に比べ、夏季の 6 月, 9 月は相対蛍光強度が約二倍の値を示しており、恵那調査地と同様に季節的な変化が見られた。綾の森の照葉樹林のリターフォール量は 5 月にピークがあることから (佐藤, 1998), 恵那調査地に比べ早い時期から腐植物質量が増大していると考えられた。照葉樹林渓流水である A-A と A-B の間には統計的な違いは見られなかったが ( $p > 0.05$ , *U-test*), 照葉樹林渓流水

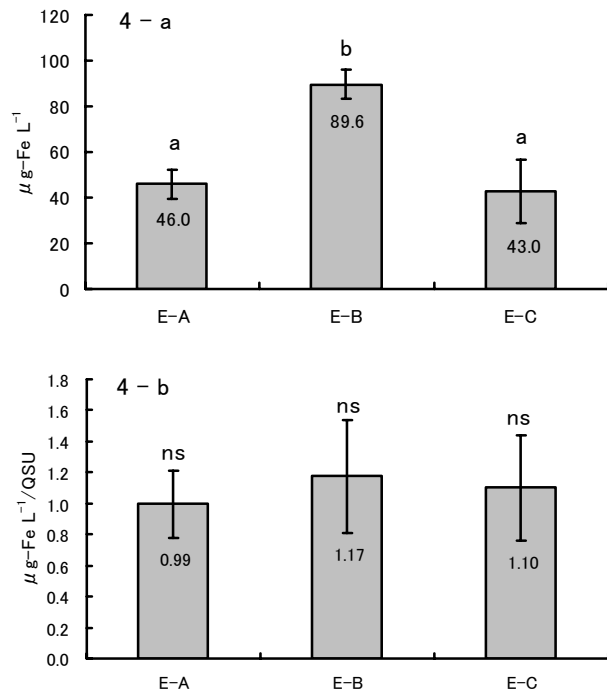


図 4. HS-Fe 濃度 (4-a) (恵那渓流水, 2007 年 10 月 ~ 2008 年 1 月の平均), a, b 間では有意差あり ( $p < 0.05$ ,  $n=4$ , *U-test*). HS-Fe 濃度 / 相対蛍光強度 (4-b) (恵那渓流水, 2007 年 10 月 ~ 2008 年 1 月の平均), ns ( $p > 0.05$ ,  $n=4$ , *U-test*). \* ns: not significant

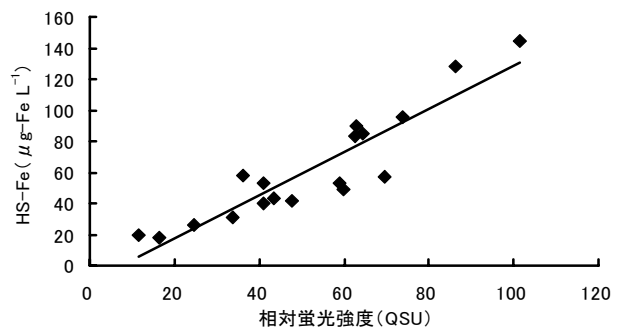


図 5. 恵那調査地における相対蛍光強度と HS-Fe 濃度の関係 ( $y=1.39x - 10.0$ ,  $r^2 = 0.840$ ,  $n=18$ ).

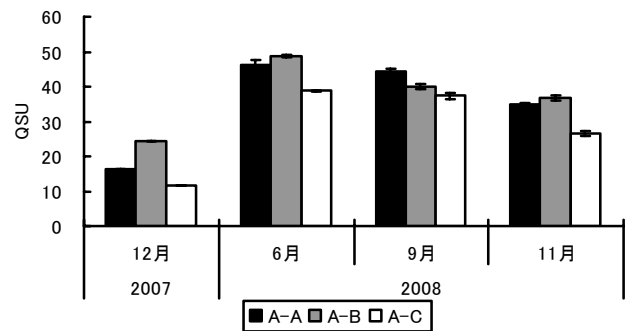


図 6. 綾の森における相対蛍光強度。

森林植生の違いが渓流水の腐植物質 - 鉄錯体形成に及ぼす影響

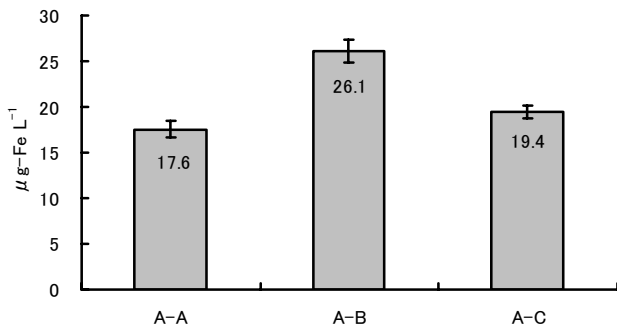


図 7. 綾の森における HS-Fe 濃度 (2007 年 12 月).

A-A, A-B と針葉樹林渓流水 A-C の間には統計的に有意な差が認められた ( $p < 0.05$ ,  $U$ -test).

図 7 に 2007 年 12 月の HS-Fe 濃度の結果を示す。相対蛍光強度と同様に恵那調査地の結果と比べて低い値となった。このことから、恵那調査地と同様に HS-Fe 濃度は渓流水中の腐植物質量に左右されると考えられるが、データ数が少ないため今後の継続的な調査が課題となる。

謝 辞

この研究を行うにあたり、中部大学 谷山鉄郎教授、石田康行准教授、上野薫講師にご指導頂きました。また、愛知工業大学 八木明彦教授、中部大学 関村利朗教授、山根恒夫教授、堤内要准教授には分析機器を使わせて頂き、ご助言も頂きました。名古屋大学大学院生 諸井国郎氏、愛知工業大学大学院生 梅村麻希女史には数々のご助言とご厚意を頂きました。中部大学応用生物学部寺井研究室の大学院生・学部生の皆様には、調査の支援、データの提供、ご助言など数多くのご厚意を頂きました。以上の皆様に心から感謝申し上げます。

文 献

Anderson, M. A. and F. M. M. Morel (1982) : The influence of aqueous iron chemistry on the uptake of iron by the coastal diatom *Thalassiosira weissflogii*. *Limnology and Oceanography*, 27: 789-813.

Axel, D. and K. Karsten (2005) : Amounts and degradability of dissolved organic carbon from foliar litter at different decomposition stages. *Soil Biology and Biochemistry*, 37: 2171-2179.

綾の森を世界遺産にする会 (2005) : 綾の照葉樹林ガイド. 鉦脈社, 宮崎.

Berg, B. and C. McClaugherty (2004) : 森林生態系の落葉分解と腐植形成 (大園享司訳). シュプリンガー・フェアラーク東京株式会社, 東京.

Geider, K. J. and J. L. Roche (1994) : The role of iron in

phytoplankton photosynthesis, and the potential for iron-limitation of primary productivity in the sea. *Photosynthesis Research*, 39: 275-301.

金子真司 (1998) : 森林からの有機物の流出特性. 森林総合研究所 関西支社年報, 第 40 号.

Kim, J. I. (1986) : Handbook on the Physics and Chemistry of the Actinides. 413-455.

児玉宏樹・伊藤大吾・東直子・智和正明・大槻恭一・宮島徹 (2007) : 針葉樹林及び広葉樹林渓流水からのフルボ酸の特性比較. 日本腐植物質学会 第 23 回講演会 講演要旨集, 44-45.

小柳信宏・浦川梨恵子・生原喜久雄・戸田浩人 (2002) : スギ・ヒノキ壮齡人工林小流域における降雨の移動に伴う溶存有機態窒素および溶存有機態炭素の動態. 森林立地学会誌 森林立地, 44: 11-20.

Matsunaga, K., K. Igarashi and S. Fukase (1982) : Behavior of Organically-bound Iron in Lake Ohnuma. *Japanese Journal Limnology*, 43: 182-188.

長尾誠也・岩月輝希 (2007) : 三次元蛍光分光光度法による深部地下水溶存腐植物質の簡易特性分析. *分析化学*, 56: 143-150.

岡田直己・後藤寛章・林愛 (2006) : 恵那キャンパスの溪流と湿地における水質の特徴及び季節変化. 中部大学応用生物学部環境生物科学科 寺井研究室 第 2 期生 卒業研究論文集.

林野庁ホームページ : <http://www.rinya.maff.go.jp/index.html>

佐藤保 (1998) : 森の落ち葉を測る - 照葉樹林のリターフォーラム量 -. 森林総合研究所九州支所, 第 44 号.

清水優子・山路裕一・山本絵梨子 (2007) : 恵那キャンパスの溪流と湿地における水質の特徴. 中部大学応用生物学部環境生物科学科 寺井研究室 第 3 期生 卒業研究論文集.

Suzuki, Y., K. Kuma and K. Matsunaga (1995a) : Effect of Iron on Oogonium Formation, Growth Rate and Pigment Synthesis of *Laminaria japonica* (Phaeophyta). *Fisheries Science*, 60: 373-378.

Suzuki, Y. K. Kuma and K. Matsunaga (1995b) : Bioavailable iron species in seawater measured by macroalga (*Laminaria japonica*) uptake. *Marine Biology*, 123: 173-178.

(担当編集委員 : 村瀬 潤, 名古屋大学生命農学研究科)

