

フィールドサイエンス

Journal of Field Science

No.1 2002

あいさつ

表紙裏 フィールドサイエンスの発刊に寄せて／小倉紀雄

招待総説

1 酸性雨とフィールドサイエンス(I) 湿性沈着の現状と科学としての発展／原 宏

原著論文

15 土壌-水系における有害微量元素の臨界負荷量 (英文)／

Paces, T., Corcimar, S., Emmanuel, S., Erel, Y., Novak, M., Plyusnin, A., Veron, A. and Wickham, S.

23 紙およびアルミニウム混入パーティクルボードの基礎物性および電磁波シールド性能／

林 宏次・井上弘文・近江正陽・福田清春・富永洋司

31 丹沢山地におけるブナの個体群統計遺伝学的解析. I. プロット間およびサイズクラス別の遺伝的変異性 (英文)／竹中宏平・北村系子・古林賢恒・河野昭一

研究資料

55 富士山頂のエアロゾルの化学成分-1999年7月5-12日の観察 (英文)／

村上健太郎・米倉宣人・土器屋由紀子・林 和彦・澤 庸介・五十嵐康人・堤 之智

63 ススキのアセチル化と液化／福田清春・近藤和子・近江正陽・富永洋司

67 東京農工大学フィールドミュージアムにおける樹木生育状況の記録 (1990・2001)／桑原 繁

解 説

77 アメリカ合衆国北東部のフィールドサイエンスセンター,
Hubbard Brook Experimental Forest の紹介／戸田浩人

東京農工大学農学部附属広域都市圏
フィールドサイエンス教育研究センター

平成14年 3 月

フィールドサイエンスの発刊に寄せて

FSセンター長 小倉紀雄

FSセンター（広域都市圏フィールドサイエンス教育研究センター）は農学部附属の農場、演習林、波丘地実験実習施設を統合し、新たにフィールドサイエンスに関する教育研究を総合的に推進することを目的として平成12年4月に設置された附属施設です。本誌フィールドサイエンスはFSセンターの研究報告誌で、フィールドサイエンスに関する調査研究成果を掲載するものです。本誌は本学に所属する者だけでなく、フィールドサイエンスに関心のある方々にも研究発表の場として広く開放し、利用していただく研究誌です。

フィールドサイエンスは野外科学などとも言われ、いろいろな意味に用いられるようになりましたが、本センターでは『森林・農地・丘陵地などの各フィールドにおいて環境科学、森林科学、生物生産学などの多くの研究者が参加し、フィールドに適した調査・解析手法を開発し、地球環境の保全と再生、食糧・資源問題の解決、資源循環型社会の構築をはかるための総合的・学際的・実践的な研究を行う新しい学問領域である』と考えています。

FSセンターには首都から100 km 圏内に配置されている8カ所のフィールドがあり、これらをFM（フィールドミュージアム）とみなし、教育研究に利用しています。またFMには各フィールドからの様々な情報を発信・受信する基地（放送局）の機能も含まれています。平成13年10月には4カ所のFM（FM大谷山、FM唐沢山、FM草木、FM秩父；902 ha）の森林が持続的な森林管理が行われていることを国際的に認証する「国際認証」を受けました。国の保有する森林では初めて、また大学のもつ森林（演習林）では世界で初めてのことです。今後もFSセンターの森林を持続的に管理し、教育研究に活用しながら後世に残すことが使命です。また都市周辺にある4カ所のFM（FM府中、FM本町、FM津久井、FM多摩丘陵）は教育研究に利用するほかに地域社会に貢献するように活用することも本センターに課せられた重要な課題です。

本誌に掲載されるさまざまな研究報告により、本センターが目指す新しい学問体系であるフィールドサイエンスが評価されると思います。今回の創刊号にはチェコ共和国のPaces博士から論文を寄稿していただきました。今後、国際的にも評価される研究誌として発展するために多くの皆さまの積極的な投稿を期待しています。

Forward

Norio Ogura (Head of FS Center)

The Field Science Center (FS Center), whose forebears are University Farms, University Forests and Rolling Land Laboratory, was founded in April 2000. The Journal of Field Science is the FS Center's research report and is composed of various papers contributed by persons interested in Field Science.

Field Science is a new and integrated scientific area that seeks to conserve and rehabilitate global and local environments, solve food and resource problems, and establish a resource-recycling society, by using various fields such as forests, farm lands and urban hills.

We much appreciate Dr. Paces, who contributed the paper in the first issue of this journal. We hope that this journal develops into an international one, with many persons contributing excellent papers.

招待総説

酸性雨とフィールドサイエンス (I)
——湿性沈着の現状と科学としての発展——*1

原 宏*2

1. はじめに

「酸性雨」という環境問題は「雨が酸性になる」ことと定義され、社会的にも広く浸透していることばである。しかし、それはこの環境問題のほんの一部でしかない。

全体像を描くため「酸性雨」をもっと掘り下げ、問題の本質を科学的に捕えなくてはならない。

「酸性雨」の問題の科学的な大枠を見ると、物質が大気から地上へ向かう物質の沈着のことであり、大気中での物理的、化学的過程が総合的に関与していることがわかる。この沈着は地上の土壌、植生、陸水などの生態系での物質のサイクルへの新たな入力となる。このように「酸性雨」の科学は大気と地上生態系での物質循環を統合的に理解するための適切なモデルを提供し、その総合的な研究は新しい果実の豊かな実りを約束しているように思える。

ここでは酸性雨の大気環境化学を中心にして酸性雨の問題をじっくりと掘り下げ、問題を整理する。その上で酸性雨の最近の観測結果を吟味し、意義を考察する。さらに、その観点からフィールドサイエンスへの発展を論じたい。

2. 酸性雨の全体像

2.1 はじめに

酸性雨は気候変動、成層圏オゾン層破壊などともよく知られている環境問題である。その社会的なイメージは「雨が酸性になる」ことのようなものである。辞書には「大気汚染物質の窒素酸化物や硫黄酸化物が溶け込んで降る酸性の雨。水素イオン濃度指数 (pH, ピーエイチ, のこと: 引用者注) が5.6以下。土壌・森林・湖沼などに被害を与える」(新村出: 1998) と書いてあり、専門書といわれるものでも pH 5.6 など、ある数値以下の pH を示す雨のこととなっている。テレビや新聞などでも pH の値が

話題になる。専門書のなかでも「pH (ピーエイチ) 5.6以下の雨」として説明してある。

しかし、それは問題の核心を外し、たまたま目に付いたほんの一部を本質だとする早飲み込みである。

2.2 酸性雨とは

酸性雨と呼ばれるこの環境問題は石油や石炭を工場、発電所、ビルのボイラー、あるいは自動車のエンジンの中などで燃やすことから始まる。このとき二酸化硫黄、窒素酸化物という大気汚染物質が大気へと出て行き、風に乗って流れていく。これらの汚染物は風に流されながら、硫酸や硝酸にかわる。これらはともに強い酸であってそれぞれ微粒子やガスの形で大気中に現れ、汚染が進むとこれらの酸の濃度も増加する。これを大気が「酸性化」したという(原 1991, 1999)。

これらの酸は風に乗って輸送されながら大気中に数日間滞留するが、最終的には地上に戻ってくる。

「一度空中に上がったものは、地上にもどって来なければならない(What goes up must come down.)」という言葉のとおりである。このとき、発生源から 500 km~2,000 km 程度も離れた遠いところにまでも輸送されて沈着する。このスケールからみて、地球規模というには小さすぎ、局地的というには大きすぎるので、大陸規模の大気汚染と呼ぶこともある。

硫酸や硝酸が地上に戻るコースは二つある。一つは風に乗ったまま地上に戻り、樹木、建物などの表面にくっつくものである。このように、大気と接している地上の物体の表面に、ガスや微粒子(エアロゾル)が大気から拡散して付着、吸収されるのを乾性沈着という。

乾性沈着は風に乗ってやって来るので傘をさしても防ぐことはできず、植物の葉の裏側にも沈着する。また、わたしたちが呼吸とともに吸い込み、肺

*1 Received Oct. 29, 2001; Accepted Dec. 18, 2001

*2 国立公衆衛生院 〒108-8638 東京都港区白金台4-6-1

の中にも沈着する。この沈着は「目にみえない酸性雨」といえるもので、地上に沈着する酸の半分は晴れた日にやってくる。この経路は、酸性雨という言葉から想像しにくいだけに、その存在をはっきりと頭に入れておきたい。

もう一つのコースは水に溶けた状態で戻ってくるものである。雲を作っている水滴など、大気中にある水に溶け込んで、雨や霧などとして地上に到達する。この水に硫酸や硝酸がたくさん溶け込んでいると雨水は強い酸性を示すことがある。これは酸性雨の名の起こりでもある。これを湿性沈着という。

このように、大気中の硫酸の微粒子や硝酸のガスは、降っても照っても、地上にやって来るのである(図1)。

さて、こうして地上に戻ってきた酸は土や湖など陸域生態系を酸性にする。これを環境の「酸性化」という。土に生えている樹木や、湖に住んでいる魚などの生物、さらには文化財をはじめとする器物・建造物にも何らかの影響が出ると予想される。これらの影響は大気から地上に入ってきた酸の量によって決まるとすると、雨の場合なら、酸性が強くない雨(pHの高い雨)でもたくさん降ると、強い酸性の雨(pHの低い雨)が少し降るときと同じ量の酸が地上に入ることになる。影響のメカニズムは生物、化学、物理が相互に関連するので単純ではなく本論文の範囲を超える。ただ、大気化学の立場からいうとメカニズムは大きく二つに分けていいだろう。

ひとつは酸性化によるもので、土壌、陸水、生物体など環境要素における酸と塩基の化学平衡がずれるため二次的な変化が起き、これが影響を及ぼすものである。たとえば、土壌水のpHが低下し、アル

ミニウムイオンが溶出し、植物に害を及ぼすメカニズムである。

もうひとつは、環境に影響を与える物質がたまたま酸、あるいは酸に関連する物質の形をとっている場合である。問題となる特定の元素、そのものが問題であり、その化合物としての形態が酸であっても、なくても重要な場合である。窒素飽和など窒素化合物の沈着の問題がその例であり、硝酸、亜硝酸などの酸ばかりではなく、アンモニアなど酸以外の物質も、窒素化合物として重要になる。大気中の窒素化合物の形態は多様であるが、これらの窒素化合物の大気中での挙動を考えると、湿性沈着、乾性沈着により地上の生態系に負荷されるので問題が出てくるというものである。

2.3 酸性雨問題のおこり

1872年、Robert Angus Smithは20年以上にわたる研究をまとめた大著“Air and Rain”を出した(Smith, 1872)。そのなかで“acid rain”の語を用いた。この著書の内容は今でいう大気化学と公衆衛生学とにまたがるようなものであるが、現代の環境問題としての「酸性雨」とつながるので酸性雨の研究はSmithにまで溯ることができるとされる。

もっとも、酸(acid)と雨(rain)を組み合わせた語を初めて使ったのはフランスのM. Ducrosである。“acid rain”に対応するフランス語、“pluie acide”を使ったタイトルの論文を1845年に発表した(Ducros, 1845)。ただ、その研究は「酸性雨」として大きく発展するにはいたらなかった。

現代の酸性雨問題に対して警告を発したのはスウェーデンの科学者であった。科学的活動の中心となったのは土壌学者のS. Odénで、彼は酸性雨に関する陸水学、農学、大気化学の知見を総合的に初めてまとめた。スカンジナビアにネットワークを展開して陸水化学を観測し、そのデータを欧州大気化学ネットワーク(European Air Chemistry Network)の結果と合わせて1968年に発表した。そのときの文書は「大気および降水の酸性化と、自然環境に対するその影響(原文:Nederbödens och Luftens Försurning - dess orsaker, Förlopp och Verkan I Olika Miljöer, 英訳:The Acidification of Air and Precipitation and Its Consequences in the Natural Environment)」と題されていた(Odén, 1968)。そのキーワードは大気および降水の「酸性化(acidification)」であり、湿性沈着だけに限ってはいなかった。

Emission Transport and Transformation Deposition

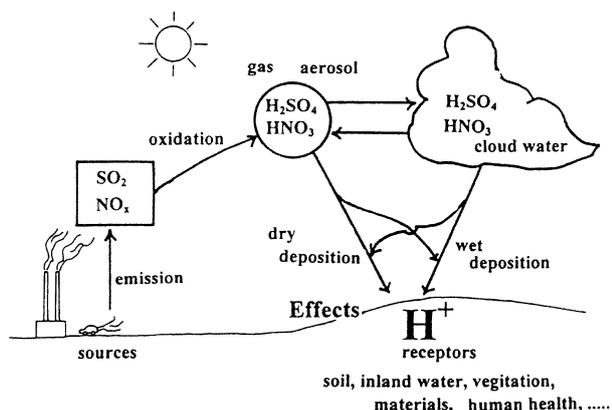


図1. 酸性雨の全体像(原 1999)

2.4 酸性雨ということば

「酸性雨」は Acid Rain という英語の訳であるようだが、英語ではこの問題の認識の深まりとともに異なった表現が出てきた。Acid Precipitation (酸性降水) は雨だけでなく雪などもあることを言ったものである。Acid Deposition (酸性沈着) は乾性沈着の存在と寄与を強調したもので、Acidification (酸性化) は酸性の物質が沈着すると環境が酸性に傾くことを主張している。また、Atmospheric Deposition (大気中にある物質の地上への沈着) という表現は酸だけでなくアンモニアなどの塩基やオゾンなどのオキシダント、さらには重金属なども含め、大気から地上に汚染物質が輸送され、生態系に注入されることを捕らえた表現といえる。さらに Acidifying Deposition ([環境を] 酸性化させる沈着) というべきだという研究者も出てきている。

「酸性雨」の語は「酸性」と「雨」という誰でも知っていることばを組み合わせた、実に秀逸な命名で、他分野の研究者はもちろん一般の人々の関心を広範に集めた意義は大きい。しかし、乾性沈着の存在と寄与だけでなく、環境における沈着の役割を考えた科学的な理解が必要である。

このように考えると、酸性雨の問題は学際的な研究が必要であり、また問題の切り口も多く種々の専門から入ることができる。したがって酸性雨の研究を学問的に深めることから、伝統的な学問分科の整理と総合化が期待され、新しい体系や価値観の創造の可能性を秘めている。

3. 大気化学

3.1 酸性雨の科学的な記述

地球上での物質循環

酸性雨の問題を科学的に理解するためには、地球上での物質循環の中で考える必要がある。

陸域と海洋における、土壌、森林、水など様々な地球表面の環境要素に生息する生物の活動や、火山などの地球化学的な過程により種々の物質が大気中に自然放出される。このように放出された物質は大気中で物理的、化学的なサイクルに入り、物理的な輸送、化学的な物質変換を受ける。これらの物理的、化学的過程は相互に関係しており、地球の放射バランス、雲の生成、成層圏の気温を支配するオゾン層など、大気の力学過程にも影響を及ぼしている。大気中のこの物質変換は地上にある物体や生体の表面に沈着して大気サイクルを終える。

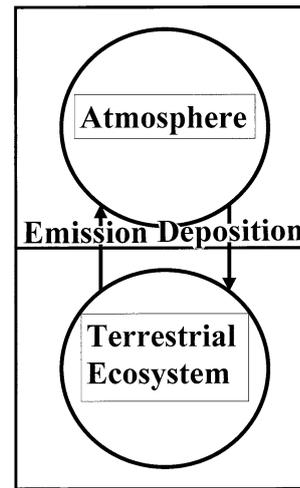


図2. 大気中のサイクルと地上生態系のサイクルをつなぐ沈着

地上にある物体や生体など環境要素の表面に沈着した大気中の物質はその物理的、化学的、生物学的な性質によりその環境要素と相互作用し、生態系へと移動する。そこで物理的、化学的、生物学的に複雑な連鎖過程が始まり、物質の地上サイクルに入っていく。

地球上の物質は、大気サイクルと地上サイクルの中で物理的、化学的、生物学的な作用を総合的に受けて物質循環をしている(図2)。この二つの物質サイクルを統合して生物地球化学サイクルという。大気サイクルと地上サイクルをつなぐ沈着過程

この生物地球化学サイクルを考えると、大気中のエアロゾルやガスが大気から地上へ沈着することは、大気中の物理的、化学的連鎖の最終過程である。また、地表への沈着は土壌、陸水など地上の生態系において起こるもうひとつの連鎖過程への入力である。

大気と接する地表面は大気と地上生態系との境界面であり、大気から物質が沈着する表面である。具体的には、一粒の砂、一枚の葉から、人間の肺胞表面にいたるまで、地上にあるすべての物体の表面は大気から物質が沈着する表面なのである。

沈着という概念は、この境界面を通しての物質移動と理解することができる。つまり、沈着は放出と対をなす概念で、大気系の科学と地上生態系の科学を統合的に理解するための要(かなめ)である。

この生物地球化学サイクルに対し、人間活動により放出される多種、多様な物質が加わると、自然のサイクルに歪(ひずみ)が出てくる。特に産業革命以来、化石燃料の使用による汚染物質の大気への放出や、地下資源の利用に伴う物質の地上への負荷は

生物地球化学サイクルへの入力に大きな割合を占めるようになっている。地球上の物質の自然なサイクルに対し、生産や消費など、人間活動による物質の放出が無視できなくなり、自然なサイクル、生物地球化学サイクル、だけでは地球上の物質循環を捕えることはできない。人間活動の影響まで含めて物質循環を考えるのが現代に必要とされる環境の科学である。

酸性雨を酸性物質の大気から地上への沈着とみると、まさにこれは生物地球化学サイクルへの摂動と認識することができ、地球上の物質サイクルを考えると人間活動を考慮したサイクルを意識しなくてはならない。

3.2 大気化学

酸化性物質

硝酸や硫酸は大気汚染物質の窒素酸化物 (NO_2) や二酸化硫黄 (SO_2) がそれぞれ大気中で酸化されて生成する。

窒素「酸化物」や「二酸化」硫黄が大気中で「酸化」されそれぞれ「硝酸」、「硫酸」に変換される。酸性雨においては、これらのほかにも「酸性」、「酸」など“酸”の字を含んだ述語がたくさん出てくる。その勢いで、酸化反応は、空気の主成分である酸素により進行するような感じをあたえかねない。

しかし、酸素は SO_2 や NO_2 を酸化するほど反応性は高くない。その主役はヒドロキシルラジカル (OH ラジカル) など、はるかに反応性の高い大気微量成分である。これらの酸化反応は雲を構成する水滴の外側の空間で起こり、化学反応でいう気相反応によって酸が生成する。また、二酸化硫黄は窒素酸化物と比べると非常に水に溶けやすい。大気中には過酸化水素 (H_2O_2) やオゾン (O_3) などの水溶性の酸化性物質も存在するので水滴の中での反応、液相反応によっても硫酸は生成する。

OH ラジカル

OH ラジカルは大気の大気微量成分であるが、大気中の主要な化学反応に関与するスーパースター的な化学種である。反応性の高いこのラジカルの濃度は、微量成分としては比較的高いレベルにある。OH が大気化学で非常に重要であるのは、その反応性が高いことと、たいていの反応で OH が再生され、その濃度が減少しないためである。OH の生成などについての化学反応から見ておきたい (図 3)。

大気中にあるオゾンは太陽光により光分解され酸

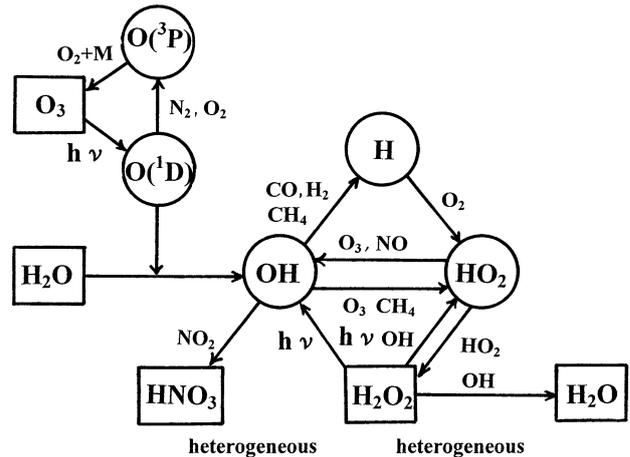
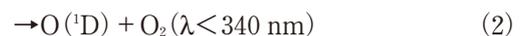


図 3. OH などの酸化性物質に関する主な化学反応 (Levy, II, 1971)

素分子と酸素原子が生成する。このとき太陽光の波長により最も低いエネルギー状態 (基底状態) の酸素原子の酸素原子 $\text{O}_3(^3\text{P})$ と、それよりもエネルギー状態の高い、励起酸素原子 $\text{O}(^1\text{D})$ が生成する。この $\text{O}(^1\text{D})$ は窒素分子や酸素分子など第三体の分子 (molecule, M) と衝突して、 $\text{O}(^3\text{P})$ になるか、水分子と反応して二個の OH ラジカルを生成する。この OH ラジカルはオゾンと反応し、ペルオキシラジカル (HO_2) と酸素分子になる。さらにこの HO_2 同士が再結合すると過酸化水素 (H_2O_2) と酸素分子に変換される。



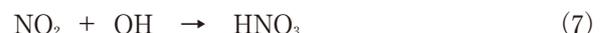
また、ここではくわしい化学過程には触れないが、OH, HO_2 のほか NO, NO_2 や CO, メタンを含む炭化水素などによりオゾンが生成される。

3.3 窒素酸化物や二酸化硫黄の酸化

3.3.1 気相反応

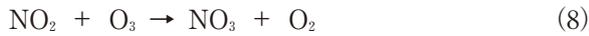
(1) NO_2

気相反応では OH が NO_2 を直接酸化し、硝酸が生成する。これは光化学反応で OH が生成する昼間に起こる反応である。



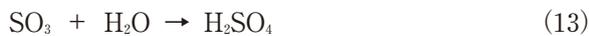
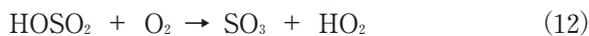
また、昼間生成したオゾンが夜間にも残っているとき、 NO_2 とこのオゾンが反応し NO_3 ラジカルを生成する。このラジカルと NO_2 とは五酸化二窒素 (N_2O_5) と化学平衡にある。この N_2O_5 は水と反応

して硝酸になる。このように硝酸は夜間にも生成する。昼間は NO₃ラジカルが生成しても、NO₃+hv→NO₂+O という光化学分解を受けるので、このメカニズムによる硝酸の生成はない。



(2) SO₂

SO₂の場合、つぎのような3段階の反応を経る。まず OH が SO₂ に付加し HOSO₂ が生成する。これは酸素と反応して HO₂ と三酸化硫黄 (SO₃) を生成し、SO₃ は水と反応して硫酸になる。



この一連の反応のうち、OH が付加する段階がもっとも遅いので、全体の反応速度を決め、律速反応といわれる。OH が付加するこの反応は SO₂ と OH の2つの分子が付加した中間体ができる。これを [SO₂⋯⋯OH][‡] と書く。これから安定な HOSO₂ が生成すれば次の段階に進む。

しかし、SO₂ と OH が衝突したときに生成する [SO₂⋯⋯OH][‡] は HOSO₂ が安定に存在する状態よりも高いエネルギー状態にあり余分のエネルギーを持っている。この余分なエネルギーにより [SO₂⋯⋯OH][‡] は、もとの SO₂ と OH に戻ってしまう。だが、このとき SO₂ や OH 以外の空気中の窒素や酸素など、第三者ならぬ第三体 (M と書く) が、[SO₂⋯⋯OH][‡] に衝突してこの余分のエネルギーを取り去ってくれば、安定な SO₂OH を生成する。



この M との反応が速度を支配するので、HOSO₂ が生成する速度は式(15)であらわされる。大気条件では [M] を定数と扱うことができ、k_S⁽³⁾[M] も定数になるのでこれを k_S とする。

$$\begin{aligned} d[\text{HOSO}_2]/dt &= k_S^{(3)}[\text{SO}_2][\text{OH}][\text{M}] \\ &= k_S[\text{SO}_2][\text{OH}] \quad (k_S = k_S^{(3)}[\text{M}]) \end{aligned} \quad (15)$$

反応(14)が一連の硫酸生成メカニズムでもっとも遅い反応であるので、硫酸の生成速度は結局、式(16)となる。

$$d[\text{H}_2\text{SO}_4]/dt = k_S[\text{SO}_2][\text{OH}] \quad (16)$$

(3) N と S

NO₂ も式(7)のように OH で酸化されるから NO₂ と SO₂ の酸化速度は次のように表される。

$$d[\text{HNO}_3]/dt = k_N[\text{NO}_2][\text{OH}]$$

$$k_N = 1.2 \times 10^{-11} \text{cm}^3 \text{molecule}^{-1} \text{s}^{-1} \quad (17)$$

$$d[\text{H}_2\text{SO}_4]/dt = k_S[\text{SO}_2][\text{OH}]$$

$$k_S = 1.2 \times 10^{-12} \text{cm}^3 \text{molecule}^{-1} \text{s}^{-1} \quad (18)$$

ここで重要なことは、反応速度定数 *k* が NO₂ の場合と SO₂ の場合では10倍違うことである。いま、NO₂ と SO₂ が同じ濃度で存在しているとすると、これらは OH ラジカルにより酸化される。これらの反応の速度は10倍違うので、生成する硝酸の濃度は硫酸のそれより10倍大きいことになる。

3.3.2 液相反応

大気中のガスが大気中の酸化性物質により水の中で酸化されるためには、次の三つのステップが必要である。いま SO₂ を例にとると、(1) 大気中の SO₂ が水に溶ける、(2) 大気中の酸化性物質 (O_x と書く) が水に溶ける、(3) 水の中でこれらが反応する。

このときの反応速度はその反応速度定数を *k* とすると次の式で表される。

$$d[\text{H}_2\text{SO}_4]/dt = k[\text{SO}_2(\text{aq})][\text{O}_x(\text{aq})] \quad (19)$$

ここで [] は液相での濃度であるが大気中の濃度 *P* と、その気体の溶解性を示すヘンリー定数 *H* (図4) との積で表される。

$$[\text{SO}_2(\text{aq})] = H_{\text{SO}_2} P_{\text{SO}_2} \quad (20)$$

$$[\text{O}_x(\text{aq})] = H_{\text{O}_x} P_{\text{O}_x} \quad (21)$$

$$d[\text{H}_2\text{SO}_4]/dt = k H_{\text{SO}_2} P_{\text{SO}_2} H_{\text{O}_x} P_{\text{O}_x} \quad (22)$$

SO₂ と NO₂ についてこの式を使って液相反応を評価してみたい。

(1) SO₂

SO₂ のヘンリー定数 *H*_{SO₂} と大気中の濃度 *P*_{SO₂} は小さな値ではないので、大気中に反応性が高く (*k* が大) 水に溶けやすく (*H* が大)、大気濃度が高い (*P* が大) 物質があれば液相での酸化反応が進む。種々の酸化性物質を検討すると、過酸化水素 (H₂O₂) とオゾン (O₃) は反応性が高い。過酸化水素は水溶性が高いが大気濃度は高くはない、またオゾンは水溶性は高くはないが大気濃度は高い。反応に効くのは反応性、水溶性、大気濃度の積、“*k H*_{O_x} *P*_{O_x}”であるが、過酸化水素とオゾンはこの積の値が大きい。したがって過酸化水素とオゾンは液相反応において重要な酸化性物質である。

反応メカニズムを考える前に、二酸化硫黄 (SO₂) が水に溶けたときの化学の説明が必要である。SO₂ は CO₂ よりも水に溶けやすい物質であり、溶けた SO₂、SO₂ · H₂O は2段階に解離し、水素イオンと

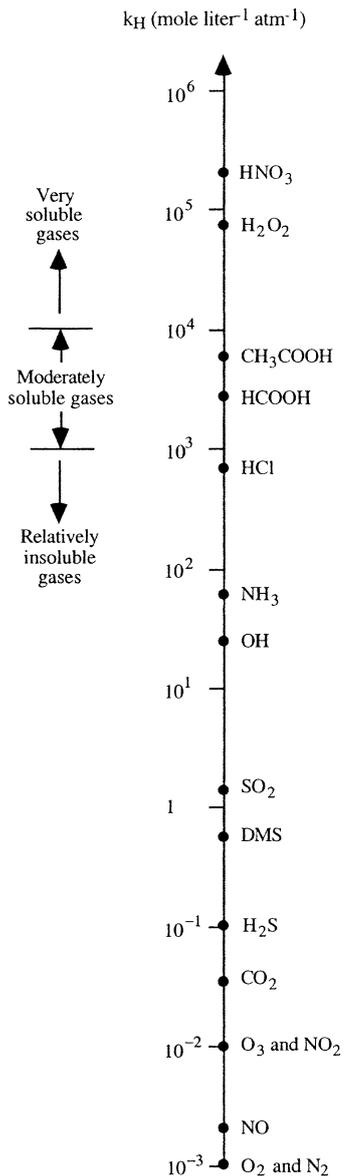


図4. 大気中の種々の化学種のヘンリー定数 (Hobbs, 2000)

対の陰イオンを放出する平衡にある (この平衡は二酸化炭素の溶解平衡と化学的に同じ取り扱いができる)。つまり、溶解した二酸化硫黄の各種化学種はイオン構造や電荷などの違いにより反応性が異なれば、その反応の速度は pH に大きく依存する。

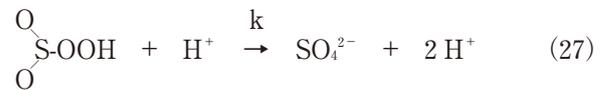
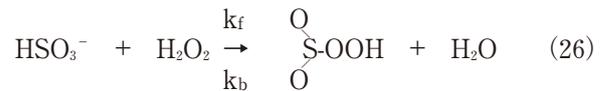


ここで溶解した SO_2 を化学種の形態を問わないとき原子価が IV 価である硫黄の化学種という意味で S(IV) と書く。また $[\text{S(IV)}] = [\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}] + [\text{HSO}_3^-] + [\text{SO}_3^{2-}]$ という関係にもなる。

過酸化水素による酸化反応

過酸化水素による酸化反応は、S(IV)のうち HSO_3^- との反応から始まる以下のメカニズムで進行

する。



このメカニズムから速度式は式(28)で表されるが、水素イオンが反応に関与するので pH が低い方が速度が大きい。

$$\begin{aligned} d[\text{SO}_4^{2-}]/dt &= (k_2 k_{lf} [\text{HSO}_3^-] [\text{H}_2\text{O}_2] [\text{H}^+]) / (k_{lr} + k_2 [\text{H}^+]) \\ &= (8.3 \times 10^4 [\text{H}_2\text{O}_2] [\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}] / (0.1 + [\text{H}^+])) \quad (28) \end{aligned}$$

オゾンによる酸化反応

オゾンによる酸化反応は S(IV) のいずれの化学種からも進行する。 O_3 は S(IV) を求核的に攻撃するので速度式は式(29)で示され、速度定数は電荷が増大するほど大きいので、速度の評価においては $\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ からの酸化は無視されることが多い。Ericksonらの値を挙げておく： k_0 ; $5.9 \times 10^2 \text{M}^{-1}\text{s}^{-1}$, k_1 ; $3.1 \times 10^5 \text{M}^{-1}\text{s}^{-1}$, k_2 ; $2.2 \times 10^9 \text{M}^{-1}\text{s}^{-1}$ 。

$$\begin{aligned} -d[\text{S(IV)}]/dt &= (k_0 [\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}] + k_1 [\text{HSO}_3^-] + k_2 [\text{SO}_3^{2-}]) [\text{O}_3] \\ &= (k_0 + k_1 K_1 / [\text{H}^+] + k_2 K_1 K_2 / [\text{H}^+]^2) [\text{S(IV)}] [\text{O}_3] \\ &= (3.1 \times 10^5 [\text{HSO}_3^-] + 2.2 \times 10^9 [\text{SO}_3^{2-}]) [\text{O}_3] \quad (29) \end{aligned}$$

オゾンによる酸化反応は S(IV) の化学種によりその速度定数が異なる。S(IV) の化学種 $\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$, HSO_3^- , SO_3^{2-} の存在割合は pH に大きく依存する。このことを考えるとオゾンによる反応は高い pH でその重要性が増してくる。

Hoffmann (1986) が提唱したオゾンと S(IV) の反応メカニズムを HSO_3^- の場合について示す (図5)。

(2) NO_2

大気中の液相酸化反応によって硝酸が生成する可能性はほとんどない。

まず水溶性をみると、硝酸の二酸化窒素、酸化窒素は水に溶解するが、二酸化硫黄に比べると100~1000分の一程度の溶解性しかない。これはヘンリー定数を見るとはっきりする： NO_2 ; $1.2 \times 10^{-2} \text{M atm}^{-1}$, NO ; $1.93 \times 10^{-3} \text{M atm}^{-1}$, SO_2 ; 1.3M atm^{-1} 。



水に溶けた NO_2 , NO , すなわち $\text{NO}_2(\text{aq})$, $\text{NO}(\text{aq})$ には次の平衡が成立する。

Ozone - S(IV) Mechanism
Sulfite Pathway

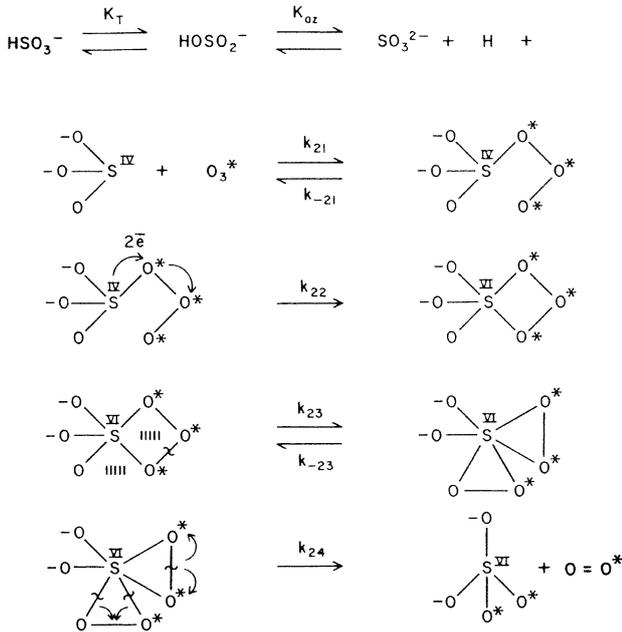
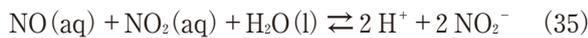


図5. オゾンによる亜硫酸イオンの酸化メカニズム (Hoffmann, 1986)



これらのうち、 $\text{NO}_2(\text{aq})$ 、 $\text{NO}(\text{aq})$ は水と反応し硝酸、亜硝酸が生成しうる。



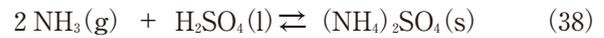
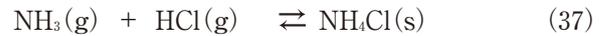
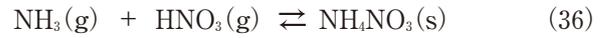
このときの反応(34)、(35)による硝酸、亜硝酸の生成速度は $[\text{NO}_2(\text{aq})]$ の2乗と濃度積 $[\text{NO}_2(\text{aq})][\text{NO}(\text{aq})]$ にそれぞれ依存する。このためヘンリー定数が小さいことと、大気中の NO_2 、 NO の濃度レベルが高くないことが2次で効くことになり、大気中の液相では $[\text{NO}_2(\text{aq})]^2$ と、 $[\text{NO}_2(\text{aq})][\text{NO}(\text{aq})]$ は小さい。また、 $\text{NO}_2(\text{aq})$ の過酸化水素やオゾンによる酸化も進行するが非常に遅い。これらを考えて大気中の雲水などの液相では、硝酸、亜硝酸の生成は進行しないと判断できる。

3.3.3 平衡

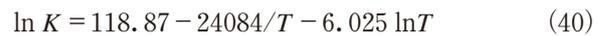
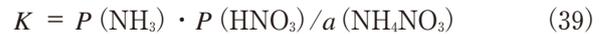
大気中の代表的な塩基性ガスであるアンモニアとの関係が大切である。

大気中の気相反応で生成した硫酸は微液滴のエアロゾル、硝酸はガスの形で存在する。また、ガスやエアロゾルが雲水滴のなかに溶解したり水滴内で生成しても、水が蒸発して水滴が無くなれば、やはりエアロゾルやガスの形で大気中に戻されることになる。

さて、硫酸や硝酸、そして焼却場などから排出される塩化水素 (HCl, 塩酸) とアンモニアガスはエアロゾル状のアンモニウム塩を生成し、次の化学平衡にある。



この化学平衡は温度に依存し、温度が高ければガスに解離する反応が卓越する。しかし、その解離する程度はアンモニウム塩により異なる。硝酸アンモニウムの場合を例にとるとその平衡定数は式(39)で表される。ここで $P(\text{NH}_3)$ 、 $P(\text{HNO}_3)$ は大気中の NH_3 、 HNO_3 の濃度である。 $a(\text{NH}_4\text{NO}_3)$ は NH_4NO_3 の活動度を表し、固体の活動度は1.00(unity)である。この化学平衡の式は熱力学的に計算することができ、式(40)が求まる。



NH_4Cl と $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の場合についても同様に求めることができる。それぞれの固相と平衡にある NH_3 濃度は以下のとおりである： NH_4NO_3 ; 6.3 ppb, NH_4Cl ; 9.6 ppb, $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$; 2.1×10^{-7} ppb (25°C)。

このことは大気中にアンモニアが放出されてもそのすべてがガスとして存在するわけではないこと、エアロゾルからもアンモニアが出ることがありうるなど、これらの化学平衡は大気中でのアンモニアを考える上で重要なポイントである。

4. 降水化学における酸

4.1 酸という物質

まず、酸そのものをよく考えよう。現代の化学では、酸はある性質を持った広い範囲の物質を包含する。しかし、酸性雨との関わりでは「水に溶けたとき、解離して水素イオン (H^+ , プロトン) を放出する物質」と考えればよい。たとえば硝酸の場合は水素イオンと対応する陰イオン (硝酸イオン) に解離して、水素イオンを放出する。



硝酸はふつう HNO_3 と書くが、構造を考えると HONO_2 と書く方が正確であり、その方がわかりやすい。一方向の矢印、 \rightarrow は左から右への一方向への変化を示し、逆の変化は無いことを示す。このように全ての分子が水素イオンを放出して、水素イオンと残りの陰イオンに解離してしまう物質を強酸という。

強酸に対して弱酸がある。亜硝酸（ HNO_2 あるいは HONO ）は硝酸に名前が似ているが弱酸である。亜硝酸は次のように水素イオンを放出する。



ここで両方向への矢印， \rightleftharpoons ，は平衡を表し左右両方向への変化があることと，その変化がある点で釣り合っていることを示す。

亜硝酸から水素イオンとして放出されるのは一部の水素原子であり，残りは未解離の酸の形で分子内にそのまま存在する。このように弱酸は水素イオンとして放出できる水素原子の一部を放出する。

強酸と弱酸の違い

物質が水に溶けるということは，その分子が水分子に周囲を取り巻かれて安定化することである。これが水和といわれる現象であり“溶ける”ということの本質でもある。硝酸は水に溶けて水素イオンと硝酸イオンに解離する。これを水和ということから説明したい。ここで水和した状態を“(aq)”で表す。

硝酸と水の系，“ HONO_2 と H_2O ”においては，未解離の硝酸分子， HONO_2 はそのままの形で水和して $\text{HONO}_2(\text{aq})$ となるよりも，イオンに解離し，それぞれのイオンが水和した $\text{H}^+(\text{aq})$ と $\text{NO}_3^-(\text{aq})$ で存在するほうがエネルギー的に安定である。

亜硝酸と水の系，“ HONO と H_2O ”において亜硝酸は $\text{HONO}(\text{aq})$ の形のもの $\text{NO}_2^-(\text{aq})$ の形ものが共存する。これはすべて $\text{H}^+(\text{aq})$ と $\text{NO}_2^-(\text{aq})$ として存在するよりも一部は $\text{HONO}(\text{aq})$ の形で残すほうが， $\text{HONO}(\text{aq})$ と $\text{NO}_2^-(\text{aq})$ を合わせた全体として安定だということである。

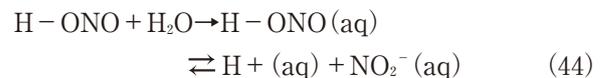
では，この挙動の違いはどこからくるのであろうか。硝酸のほうが亜硝酸よりも酸素原子が一個多く含むことと，その構造を頭に入れると説明できる。分子は原子が化学結合して新しい物質を形成したものであり，その化学結合は電子により形成される。酸素原子はそれ自体，電子を強く引っ張り，酸素原子と隣り合っている原子の電子を強く引き寄せている。

水素イオンとして放出される水素原子の電子が引っ張られている力が弱ければ，その水素原子を水が水和して水素イオンとして解離させてしまうことができる。つまり，酸を，水素イオンとして放出される水素原子に着目して，“ $\text{H}-$ （残りの原子団）”と書くと， $\text{H}-$ （残りの原子団）という結合が弱ければこの H は $\text{H}^+(\text{aq})$ として解離する。電子を残り

の原子団に置いていくことになるから，残りは陰イオンになる。硝酸の場合は次のように書くことができる。



もし， $\text{H}-$ （残りの原子団）の結合が上の場合より多少なりとも強ければ，この水素原子を水素イオンとして解離させるとき，水和して引っ張り出すのに結合が強い分だけ，エネルギーがよけいに必要になる。したがって全部の水素原子を放出させないで，一部は酸の形で水和させておくほうがエネルギー的に安定になる。亜硝酸の場合，次のように書ける。



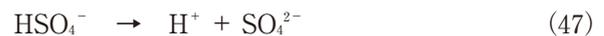
硝酸の場合， $\text{H}-\text{ONO}_2$ において，水素原子の電子を引っ張る酸素原子は直接には1個，間接には2個存在する。一方，亜硝酸の場合， $\text{H}-\text{ONO}$ において，酸素原子が直接，間接にそれぞれ1個ずつ，水素原子の電子を引っ張っている。このように水素イオンとして放出できる水素原子の引っ張られかた，結合の強さの違いが，硝酸と亜硝酸の酸としての性質を規定している。

なお，亜硝酸が水に溶けたとき HONO と NO_2^- の割合は pH に依存する。亜硝酸の解離平衡を以下のように表し，その平衡定数を K とすると $[\text{H}^+][\text{NO}_2^-]/[\text{HONO}] = K$ が成立する。



K は定数であるから $[\text{HONO}]$ と $[\text{NO}_2^-]$ の割合は $[\text{H}^+]$ に，つまり pH に依存する。 HONO 形の割合は pH が低くなるほど増加する。 pH 3.15のときこの割合は1：1である。弱酸のなかでも“強い酸”ほどこの1：1となる pH の値は低くなる。

強酸は，硝酸のほか硫酸（ H_2SO_4 ），塩酸（ HCl ）などがある。



また，弱酸には亜硝酸のほか，二酸化硫黄や二酸化炭素が溶けた亜硫酸（ H_2SO_3 ，あるいは $\text{SO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ，や炭酸（ H_2CO_3 ，あるいは $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ））などがある。

4.2 pHとは

前節で pH を説明せずに使ってしまったが， pH は水溶液の酸性の程度を表す定量的な指標である。 pH は色素が化学平衡で色が変わるところか

ら Srsen により定義された定量的な指標である。直接測定されるのはこの pH に対応する電気化学的な量である。現代の化学では pH は電気化学的な操作で定義されている量である。また、pH という物理量をあらわす記号と、その単位をあらわす記号が例外的に同一である（したがって「pH 値」などというのは「濃度値」というようなもので正確を欠くことになる）。実質的には pH は水素イオンの活量の逆数を常用対数に変換したものである。さらに降水などの希薄水溶液では活量は濃度に置き換えることができる。

$$\text{pH} = -\log(\{H^+\}) \doteq -\log([H^+]) \quad (49)$$

ここで $\{ \}$ と $[]$ は囲んでいる化学種のそれぞれ活動度と濃度をあらわす。pH が対数の形になっているのは、実際に測定される量が水素イオンの活量ではなく、その対数量であるためである。このため中性をはさみ、強い酸性から強い塩基性（アルカリ性）までの広範囲をあらわすことが可能である。

4.3 「pH 5.6」という値の意義

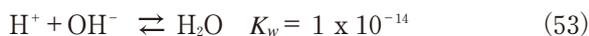
酸性雨をまだ「pH 5.6以下の雨」としている解説もある。しかし、ある数値をもって酸性雨を定義するのは科学的に不可能であり、無意味でもある。まず、この「pH 5.6」を考察してみよう。

清浄な雨は純水であって、これが大気中の二酸化炭素（炭酸ガス）と平衡にあり、溶解して生成した炭酸とも平衡にあると仮定しよう。このときの炭酸による水素イオン濃度を pH であらわすと、確かに pH 5.6になるのである。

炭酸は以下のように二段階に解離して、水素イオンを放出する。ここで H , K_1 , K_2 は温度 25°C のときのそれぞれヘンリー定数および第一、第二平衡定数である。



このほかに水と水素イオン、水酸イオンとの平衡を考える。ここで K_w は水のイオン積、 $[H^+][OH^-] = K_w = 1 \times 10^{-14}$ である。



これらの平衡の式から以下の関係が求まる。

$$[\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}] = H P_{\text{CO}_2} \quad (54)$$

$$\begin{aligned} [\text{HCO}_3^-] &= K_1 [\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}] / [\text{H}^+] \\ &= (K_1 / [\text{H}^+]) H P_{\text{CO}_2} \end{aligned} \quad (55)$$

$$\begin{aligned} [\text{CO}_3^{2-}] &= K_2 [\text{HCO}_3^-] / [\text{H}^+] \\ &= (K_1 K_2 / [\text{H}^+]^2) H P_{\text{CO}_2} \end{aligned} \quad (56)$$

$$[\text{H}^+][\text{OH}^-] = K_w \quad (57)$$

また、電気的中性の関係から陽イオンによる電荷と陰イオンによる電荷が等しい。

$$[\text{H}^+] = [\text{OH}^-] + [\text{HCO}_3^-] + [\text{CO}_3^{2-}] \quad (58)$$

平衡の関係式、(55), (56), (57) を入れると、

$$[\text{H}^+] = K_w / [\text{H}^+] + ((K_1 / [\text{H}^+] + (K_1 K_2 / [\text{H}^+]^2)) H P_{\text{CO}_2}) \quad (59)$$

整理して次の 3 次方程式を得る。

$$[\text{H}^+]^3 - (K_w + H K_1 P_{\text{CO}_2}) [\text{H}^+] - 2 H K_1 K_2 = 0 \quad (60)$$

いま $P_{\text{CO}_2} = 360 \text{ ppm} = 3.6 \times 10^{-4} \text{ atm}$ として、この方程式を二分法など適当な方法で解くと $[\text{H}^+] = 2.345 \times 10^{-6} \text{ mol L}^{-1}$ となり pH であらわすと pH 5.63 となる。

また、この pH 5.6 を降水の「酸性度」の「基準」となったいきさつにも興味がある。

Barett と Brodin (1955) は「スカンジナビアの降水の酸性度」と題する論文の中で、pH 5.7 を大気中の水についての中性点とみせる、としている： If one assumes that equilibrium is actually reached at the observed mean pressure of CO_2 , the pH may be calculated from the known equilibrium constants to be 5.7 at 25°C. (中略)

Since the samples are measured at room temperature, this value of 5.7 may be regarded as the neutral point for atmospheric water.

また、C. Junge はその 1963 年の著書、「Air Chemistry and Radioactivity」で、大気中の二酸化炭素やアンモニアと平衡にある水の pH を考察している (Junge, 1963)。大気中の二酸化炭素濃度を 300 ppm とし 10°C での pH 5.6 を得ている。ただし、温度は 25°C ではなく、10°C であるので関連する定数の値はかなり異なる。温度 10°C のときの値を記しておく： $H = 1.2 \text{ mol L}^{-1}$, $K_1 = 3.4 \times 10^{-7}$, $K_2 = 3.2 \times 10^{-11}$, $K_w = 3.6 \times 10^{-15}$ 。

なお、アンモニアについては、アンモニアだけが存在し、他の成分の存在は無いと仮定し、アンモニアガスの濃度が $3 \mu\text{g m}^{-3}$ のとき、水の pH は pH 8.9 と Junge は算出した。対流圏で通常観測されるレベルのアンモニアも水の pH に対して二酸化炭素に匹敵する効果を与えると指摘した。また、これらの濃度の二酸化炭素とアンモニアが共存しているときの pH も求め、pH 7.0 を得ている。

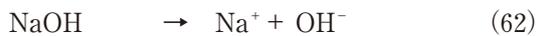
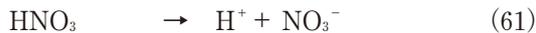
また Charlson と Rodhe (1982) は、天然の雨の pH を硫黄化合物のサイクルと、エアロゾルとして存在する硫酸イオンの濃度および雲水量の二つを考察し、pH 4.5~5.6 と見積もり、これに天然のアン

モニアや炭酸カルシウムを考慮するとさらに高い pH を考えている。

4.4 酸、塩基と中和そして pH

酸とは硝酸のように水に溶けて水素イオンを放出する物質であり、塩基とは水酸化ナトリウムのように水に溶けて水酸イオン OH^- を放出する物質である。

この水素イオンと水酸イオンが反応して水を生成する。残りはナトリウムイオンと硝酸イオンになり、硝酸ナトリウム、 NaNO_3 を溶解したのと同様の状態になる。



このことを硝酸という酸と水酸化ナトリウムという塩基が中和反応し、硝酸ナトリウムという塩（えん）を生成したという。この場合水素イオン H^+ 1 個と水酸イオン OH^- 1 個とが反応する。

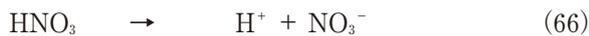
現代化学では使わない単位になってしまったが、酸、塩基、中和反応を扱うとき当量という単位が便利である。当量は分子量など式量をその電荷で割った量であり、現代化学の言葉で表現すると、正負の電荷の物質量をモル単位で表したものである。以下は、当量基準の濃度単位、 eq L^{-1} で表すことにする。

降水中での酸—塩基の相互作用

さて、降水中での酸と塩基の相互作用を考察するため、酸は硫酸と硝酸、塩基はアンモニアと炭酸カルシウムという 4 つの化合物がある水溶液の系、 H_2SO_4 , HNO_3 , $\text{NH}_3(\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O})$, CaCO_3 , H_2O を例にとる。まずこれらの物質が水に溶けたときの化学を吟味したい。

硫酸と硝酸

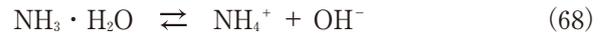
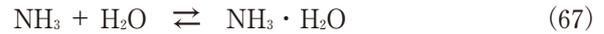
硫酸と硝酸は強酸であるのですべて解離する。



アンモニア

大気中に存在する代表的な塩基はアンモニア (NH_3) であり、ガスの形で存在する。このアンモニアが水に溶けると水酸化アンモニウム (NH_4OH あるいは $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) を生成するといわれるが、これはアンモニア分子が水分子に取り囲まれたものであり $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ と表記される。これが水酸イオン、 OH^- を放出し、アンモニウムイオン NH_4^+ はその

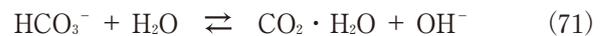
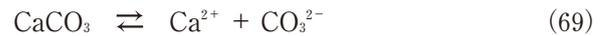
残った部分である。



水酸化アンモニウムは弱塩基に分類される塩基で、弱酸のときと同様に右側への変化だけでなく、左側へ戻る変化もあり、水酸化アンモニウム ($\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$) の形で存在するものと、アンモニウムイオンと水酸イオンの形で存在するものが平衡になっている。これはアンモニア、 NH_3 が水に溶けたとき $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の形よりも NH_4^+ の形のほうがさらに安定であるからである。

炭酸カルシウム

大気中にエアロゾルとして存在するカルシウム化合物の中に炭酸カルシウム CaCO_3 という塩基がある。炭酸カルシウムはまずカルシウムイオンと炭酸イオンに解離する。炭酸イオンは溶媒の水と反応して（加水分解）、水酸イオンと炭酸水素イオンに解離する。加水分解によるこれらの解離は炭酸イオンなどイオンの種類とその水溶液の pH に依存する。



これらのうち H^+ と OH^- が $[\text{H}^+][\text{OH}^-] = K_w$ の制限のもとに水を生成する。



以上がこの系での中和反応であるが、中和は H^+ と OH^- の間で起こり、 SO_4^{2-} , NO_3^- などのイオンは中和そのものには関与しないことに気をつけたい。

酸と塩基の中和

中和は酸の当量と塩基の当量の間で起こるので、酸が塩基のどちらかが多ければ多いほうが残る。いま HNO_3 の濃度が $30 \mu\text{eq L}^{-1}$ であるところに、 NH_3 が溶解し 10eq L^{-1} になったとしよう。まず $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ が $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ 生成し、その一部が NH_4^+ と OH^- になる。この OH^- が上のように HNO_3 からの H^+ と 1 : 1 で反応し水をつくる。前に述べたように $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ が $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ 生成するが、それが直ちに $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ の OH^- を放出するわけではなく、その一部が OH^- になる。一部であっても $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ から放出された OH^- は H^+ と反応し消費され、 OH^- がなくなる。こうするとまた $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ の一部が OH^- を放出し、これが硝酸からの H^+ と反応する。こうして H^+ と OH^- が消費されていく。硝酸のほうがアンモニアより濃度が高いからアンモニアは全て中和され、アンモニアによる OH^- のすべてが放出す

ることになる。

この反応は $30 \mu\text{eq L}^{-1}$ の HNO_3 と $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ の NH_3 との反応ということになり、 HNO_3 濃度は $30 - 10 = 20 \mu\text{eq L}^{-1}$ となる。このとき H^+ と OH^- がそれぞれ $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ 消費されたので、 H^+ と OH^- 、それぞれの対イオン NO_3^- と NH_4^+ がそれぞれ $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ 残ることになる。つまり硝酸が $20 \mu\text{eq L}^{-1}$ 残り、硝酸とアンモニアの中和により硝酸アンモニウム、 NH_4NO_3 が $10 \mu\text{eq L}^{-1}$ 生成したとみることができる。



生成した硝酸アンモニアは硝酸とアンモニアからなる塩であり硝酸塩であり、アンモニウム塩でもある。

酸-塩基の相互作用のまとめ

ここまでのまとめとして、硝酸アンモニウムや炭酸カルシウムを水に溶解したとき、その水溶液は酸性、塩基性のいずれを示すか考えてみたい。

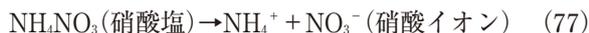
硝酸アンモニウム

硝酸アンモニウムはアンモニウムイオンと硝酸イオンに解離する。硝酸イオンは安定なのでそのままの形で存在する。一方、アンモニウムイオンは加水分解して、水和したアンモニア $\text{NH}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ (水酸化アンモニウム NH_4OH) と H^+ を生成し、酸性を示すことになる。これが「硝酸アンモニウムは強酸と弱塩基の塩だから酸性」の意味である。



このように硝酸塩を水に溶かすと NO_3^- が放出されるので NO_3^- のことを硝酸塩という人もある。これは誤ったいい方である。

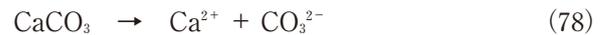
硝酸は水に溶けて NO_3^- を放出するが、硝酸塩ではなく硝酸である。 NO_3^- は硝酸イオンであり、硝酸からも硝酸塩からも出てくる。酸と塩、そして関連するイオンをきちんと区別しなくてはならない。



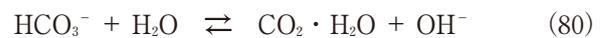
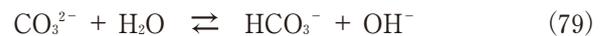
炭酸カルシウム

炭酸カルシウムは強塩基である水酸化カルシウム ($\text{Ca}(\text{OH})_2$) と、弱塩基である炭酸 (H_2CO_3 あるいは $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$) からなる塩と考えることができる。この塩が水に溶けるとき、カルシウム Ca は電子を放出してカルシウムイオン Ca^{2+} として存在するほうがエネルギー的に安定である。したがって CaCO_3 が水に溶けるとき、 CO_3 はカルシウムの放出する電

子を取って炭酸イオン CO_3^{2-} になり、つぎのように解離する。

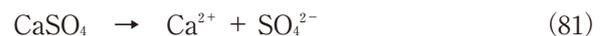


ところが CO_3^{2-} は二酸化炭素の溶解を考察したとき見たように炭酸水素イオン HCO_3^- の形の方が安定であるので、水と反応し、 HCO_3^- と OH^- を生成する反応と平衡になる。この HCO_3^- は $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ になる方がさらに安定であるので同様に $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ と OH^- を生成する反応と平衡になる。 HCO_3^- と CO_3^{2-} のいずれが安定かは亜硝酸のときと同様に pH に依存する。



初等化学では、「炭酸カルシウムは強塩基と弱酸からなる塩なので水に溶けると『強』のつく方の性質である塩基性を示す」と扱うが、この塩基性は CO_3^{2-} の化学によるものである。カルシウムは一度 Ca^{2+} として解離してしまうと、 HCO_3^- や CO_3^{2-} の化学に関与することはない。

おなじカルシウム化合物でも硫酸カルシウム CaSO_4 は強塩基の水酸化カルシウムと強酸の硫酸からなる塩と考えることができる。カルシウムイオンも硫酸イオンもそれぞれこの形が安定なので、 Ca^{2+} と SO_4^{2-} に解離し、それ以上の変化は起きず、 H^+ も OH^- も生成しないのでその水溶液は中性である。これが「強酸と強塩基の塩は中性である」ということである。



4.5 pAi

降水の pH は酸と塩基のバランス、つまり酸と塩基の種類と組成で決まる。観測できるのはこのバランスした結果であって、酸と塩基そのものが残っているわけではない。しかし、これまで詳しく述べた酸と塩基の化学を頭に入れると、少なくとも初期にあった酸と最終的に残っている酸についての推定ができる。これは実際の降水化学データを解釈する上で非常に有用な指標を提供してくれる。

もっとも、実際の降水ではその化学を決定する酸と塩基の全てが判っているわけではない。このため観測データに応用するときはもう一段の考察が必要である。説明は観測データを紹介、解釈するときにより詳しい説明することにして、ここでは基本的な概念を述べることにする。

まず、pH は酸と塩基のバランスで決まるということから次の関係が出てくる。

$$[H^+] = [\text{Acids}] - [\text{Bases}] \quad (82)$$

先に挙げた系で考える。2種の酸 H_2SO_4 , HNO_3 が存在するところに、塩基 $NH_3(NH_3 \cdot H_2O)$, $CaCO_3$ が加わったとき、式(82)は次のようになる。

$$[H^+] = ([H_2SO_4] + [HNO_3]) - ([NH_3] + [CaCO_3]) \quad (83)$$

酸と塩基の中和があっても中和反応が起こる前の酸や塩基の量は、対応するイオンの量と一致するから、式(83)は式(84)と書ける。

$$[H^+] = ([SO_4^{2-}] + [NO_3^-]) - ([NH_4^+] + [Ca^{2+}]) \quad (84)$$

この式は「現在の酸の濃度、すなわち中和が起こった後の酸の濃度は『最初にあった酸の量』と『後から加わった塩基の量』で決まる」ことを表している。

さて、ここで酸と塩基の中和がこれらの関係を使ってどう表されるかを考えると、式(84)の各項は以下に対応する。

測定される中和後の酸の濃度： $[H^+]$

中和前の酸の濃度： $([SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$

加わった塩基の濃度： $([NH_4^+] + [Ca^{2+}])$

したがって、比 $\{[H^+] + ([NH_4^+] + [Ca^{2+}])\} / \{[SO_4^{2-}] + [NO_3^-]\} = 1$ が成立する。

これから中和前の酸のうち、中和後も水素イオンとして残っている割合、分率酸性度 fractional acidity を考えると、式(85)が得られる。なお $([SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$ は入力酸性度 input acidity といわれ、記号 A_i であらわすことがある。

$$\text{fractional acidity} = [H^+] / ([SO_4^{2-}] + [NO_3^-]) \quad (85)$$

式(85)の分子、 $[H^+]$ の対数をとり符号を変えると pH であり、測定される量である。そこで、分母の $([SO_4^{2-}] + [NO_3^-]) (= A_i)$ を pH と直接比較できるようにするため、 $([SO_4^{2-}] + [NO_3^-])$ の逆数の対数を取り、この操作を意味する「p」を「 A_i 」の前につけ、式(87)のように pA_i を定義する。

$$pH = -\log [H^+] \quad (86)$$

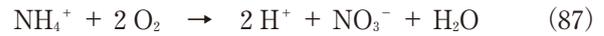
$$pA_i = -\log ([SO_4^{2-}] + [NO_3^-]) \quad (87)$$

pH を pA_i と比較して論ずると降水化学の概要を浮かび上がらせることができる。 pA_i は pH と相補的な量である。この意義を理解して実際のデータの解析に応用すると、降水化学の特徴を簡単に見ることができ、多量のデータに対しても定量的な比較、検討が可能になる。

4.6 pHe

大気中のアンモニアが降水に取りこまれると pH を上昇させ“酸性雨を緩和させる”ことになる。しかし、土壤に沈着すると微生物の作用により硝酸に

変換され、 NH_4^+ は土壤にとっては酸として作用する。



これを考慮して、土壤に対する実効、あるいは有効な pH とでもいうべき量を pHe を定義する。ここで添え字の e は有効な (effective) の意である。

$$pHe = -\log ([H^+] + 2[NH_4^+]) \quad (88)$$

この量は土壤に対する影響を考慮した指標であり、pH と併せて考察すると興味深い。この応用例も実際の降水データの紹介、解釈するときに述べる。

4.7 酸性雨と pH

これまでの考察で酸性雨問題における pH の意義と位置が明らかになったと思われる。ここで、pH と酸性雨問題との関連を簡単にまとめておく。

酸性雨を「酸性になった雨」と考えると、「酸性」というと pH となり、「では、pH がいくつだと酸性雨?」と続くだろう。たしかに低い pH の雨はそれだけで注意が必要であるが pH が高いからといって問題がないわけではない。しかし、pH は酸と塩基のバランスで決まるので、生成した硫酸や硝酸の直接的な指標にはなりえない。このへんをきちんと理解することが必要である。雨の中での硫酸や硝酸はそれらによる水素イオンとは定量的に対応してはいない。このため、pH は適切な指標とはなりえないのである。

pH は酸と塩基の両方で決まる量なので、環境問題においては総合的、結果的な指標とみることがもできる。酸性雨問題では大気からの沈着を受ける側を考えると、pH はきわめて有用な指標である。湖沼の水の pH や土壤水の pH は影響と直接結びつく定量的な判断基準である。

以下に、「酸性雨は『pH 5.6』以下の雨」という定義ではカバーできない問題点を整理する。

(1) 乾性沈着が認識されず、無視される

大気中で生成した硫酸、硝酸のうち、湿性沈着するものだけに目がいき、風に乗って沈着する乾性沈着が認識からすっぱり抜け落ちてしまう。地上に沈着する酸の半分は乾性沈着によるものであるが、pH だけに捕われてしまうと問題の半分以上を最初から無視してしまう結果になる。

(2) 沈着量の概念が無い

pH は水素イオンの濃度に対応する量であり、重要な指標のひとつである。しかし、水素イオンの沈着量の概念が考慮されない。環境要素に対する影響

は濃度とともに沈着量でも効くと思われる。水素イオンについても降水量をと併せ沈着量を算出し、濃度とともに評価すべきである。

(3) 水素イオン濃度でも評価することが必要である。

酸と塩基の中和など、降水の化学を考察するときには pH を水素イオン濃度に変換して議論することが必要である。硫酸イオン、硝酸イオンなどのイオン濃度と定量的に直接の比較ができるのは pH ではなく、水素イオン濃度である。pH をそのままで見ても定量的な議論には進まない。

(4) 天然の雨の pH は 5.6 をはさんだある範囲にある。

pH 5.6 は大気中の二酸化炭素だけを考慮した pH である。天然には火山からの SO_2 、 HCl や海洋から放出される硫黄化合物による硫酸など酸の発生源と、塩基性の土壌粒子、植物からのアンモニアなど塩基性物質の発生している。これを考慮すると pH 4.6 程度の低い値や pH 6 程度の値などが出ても不思議は無い。pH 5.6 は二酸化炭素だけを考慮したひとつの「基準」しかなく、その意義を過大評価してはならない。

(5) pH 単独で議論しないで pAi といっしょにして考える。

$\text{pAi} = -\log([\text{SO}_4^{2-}] + [\text{NO}_3^-])$ で定義される pAi の概念は「pH 5.6」定義に対する代案であり、基本に戻って発展させた提案である。「pH は酸と塩

基のバランスできまり、その酸と塩基の差しか表していない」、「はじめに酸があり、そこに塩基が加わり中和反応が起こる」ことを考察したものである。中和の前と後の pH の比較という観点から提案した指標である。

(6) 土壌中でのアンモニウムイオンの硝化も重要。アンモニアは大気中では塩基として働くが、沈着したアンモニウムイオンは微生物による硝化により土壌中では酸として働く： $\text{NH}_4^+ + 2\text{O}_2 \rightarrow 2\text{H}^+ + \text{NO}_3^- + \text{H}_2\text{O}$ 。したがって pH にあわせて $\text{pHe} = -\log([\text{H}^+] + 2[\text{NH}_4^+])$ を考察し、硝化過程を考慮した評価も大切である。

(7) pH のデータは試料の捕集、測定法とセットで考えること。

降水試料の捕集方法は容器が常時大気に開放されている常時開放型 (bulk sampler) と雨が降るときだけふたが開く降水時開放型 (wet-only sampler) に分類されるが、それぞれで試料の中身が異なり同一の基準で議論することができない。また、捕集期間が長くなると試料の変質が考えられ、当然 pH も変化する。

このほか、簡易測定法を含めた、pH の測定機器の種類や、捕集装置の設置場所も pH に影響を及ぼす因子である。同じ雨を対象にしても、これらの方法が違えば、pH はもとよりイオン濃度についても違った結果が出ることはよくある。

(つづく)

Critical Loads of Hazardous Trace Elements in Soil - Water System.*¹

T. PACES*², S. CORCIMARU*³, S. EMMANUEL*⁴, Y. EREL*², M. NOVAK*², A. PLYUSNIN*⁵,
A. VERON*⁶ and S. WICKHAM*⁷

Introduction

Terrestrial ecosystems may react adversely to high anthropogenic inputs of heavy metals and other trace elements (e.g. Cd, Pb, As). The hazardous trace elements (HTE) are transported via atmosphere and with wide-spread application of fertilisers from anthropogenic sources to soil and water recipients. It is therefore desirable to maintain such an input of the trace elements to ecosystems, which yields biologically available concentrations in soils at levels not harmful to biota. The concentration of HTE at which the ecosystem becomes endangered is called *critical concentration*. The anthropogenic inputs of HTE that maintain steady state concentrations of HTE at the critical level, not yet harmful to the ecosystem, are called *critical loads*. They are expressed in units of flux with respect to land surface, e.g. in $\text{g.m}^{-2}.\text{yr}^{-1}$ or $\text{kg. ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$. When the real load is higher than the critical load, the soil-water ecosystems are endangered. The difference between the critical and the real load is called an *exceedance of the critical load*. The time, when an initial concentration of HTE in soil will reach the critical concentration is called *critical time*.

The critical load concept has been developed for dispersed sources of pollution such as atmospheric pollution and agricultural inputs by fertilisation and application of other chemicals (Nilsson and Grennfelt P., 1988, de Vries and Bakker, 1996, Paces, 1998). The critical load of HTE can be calculated

from an inventory of inputs and outputs of the trace component in terrestrial ecosystems. Such inventory is called a *mass balance* or *budget* of HTE. The box model of the budget is in Fig.1. The mass balance is usually monitored in small hydrological catchments (0.5 to 5km²) representing land use conditions prevailing in a larger region.

The *pool* of HTE in soil is related to its *biologically available concentration*. It is expressed in g.m^{-2} or kg. ha^{-1} . The biologically available concentration is defined somewhat arbitrarily by a chosen analytical method. Soil is leached with an extract solution (Jones, 1990) and the leached content of the metal is considered to be biologically available. The extract solution can be a solution of 2M HNO₃, an acetic acid, ammonium chloride and ammonium fluoride (Mehlich, 1978), solution of acetic and nitric acid with ammonium nitrate and EDTA (Mehlich, 1984), extract solution according to Morgan and Wolf (1982) and others (Lindsay and Norvell, 1978).

Mass balance of Pb and Cd was evaluated in two small forest catchments in the Czech Republic. The budget consists of measured and calculated input and output fluxes of the metals per a unit area of the catchment. The measured fluxes include input by atmospheric deposition and output due to runoff of ground and surface water. Calculated fluxes include input by chemical and mechanical weathering of bedrock and output by mechanical erosion of soil and stream sediments. We estimated the uptake of

*¹ Received Sep. 29, 2001 ; Accepted Dec. 19, 2001

*² Czech Geological Survey, 11821 Praha, Czech Republic

*³ Institute of Microbiology, The Academy of Sciences of the Republic of Moldova, Chisinau, Moldova

*⁴ Institute of Earth Sciences, The Hebrew University of Jerusalem, Jerusalem, Israel

*⁵ United Institute of Geochemistry and Geology, Siberian Branch of Academy of Sciences, Ulan Ude, Russia

*⁶ Recherche et d'Enseignement en Géosciences de l'Environnement, Aix de Provence, France

*⁷ Galson Sciences Ltd., Grosvenor House 5 Melton Road, Oakham, United Kingdom

the metals by trees using tables of forest biomass production and chemical data presented in literature (Bergkvist *et al.*, 1989, Benes, 1994). The input of the trace elements due to weathering was calculated from the weathering rate of bedrock using a model of weathering developed by Paces (1985). Output due to mechanical erosion was evaluated according to a model presented by Paces and Pacesova (2001).

Theory

Accumulation or depletion of HTE in soil and water is result of a mass balance between natural and anthropogenic inputs and outputs (Fig.1). All symbols used in this chapter are summarised in Table 1. The mass balance of HTE is expressed by a differential equation

$$dP_i / dt = F_{atm,i} + F_{agr,i} + F_{mewth,i} + F_{chewth,i} - F_{up,i} - F_{run,i} - F_{meerosion,i}$$

where P_i is the soil pool of HTE i and F represents flux of HTE i .

If $dP/dt < 0$, the HTE is depleted, if $dP/dt > 0$, the

HTE accumulates and if $dP/dt = 0$, the pool of the HTE in soil is in a steady state.

The inputs do not depend on the size of the pool and their annual values are considered to be constant. The outputs are considered to be proportional to the size of the available pool. Then, the rate constants for the outputs are

$$k_{up,i} = F_{up,i} / P_i$$

$$k_{run,i} = F_{run,i} / P_i$$

$$k_{meerosion,i} = F_{meerosion,i} / P_i$$

After substitution to the mass balance equation, the change in the pool is

$$dP_i / dt = F_{atm,i} + F_{agr,i} + F_{mewth,i} + F_{chewth,i} - (k_{up,i} + k_{run,i} + k_{meerosion,i}) \cdot P_i$$

The integral of the equation from an initial (pristine) pool $P_{o,i}$ at the initial time t_0 is a time function

$$P_i = (F_i/k_i) - [F_i/k_i - P_{o,i}] \exp[-k_i \cdot (t - t_0)]$$

where

$$F_i = F_{atm,i} + F_{agr,i} + F_{mewth,i} + F_{chewth,i}$$

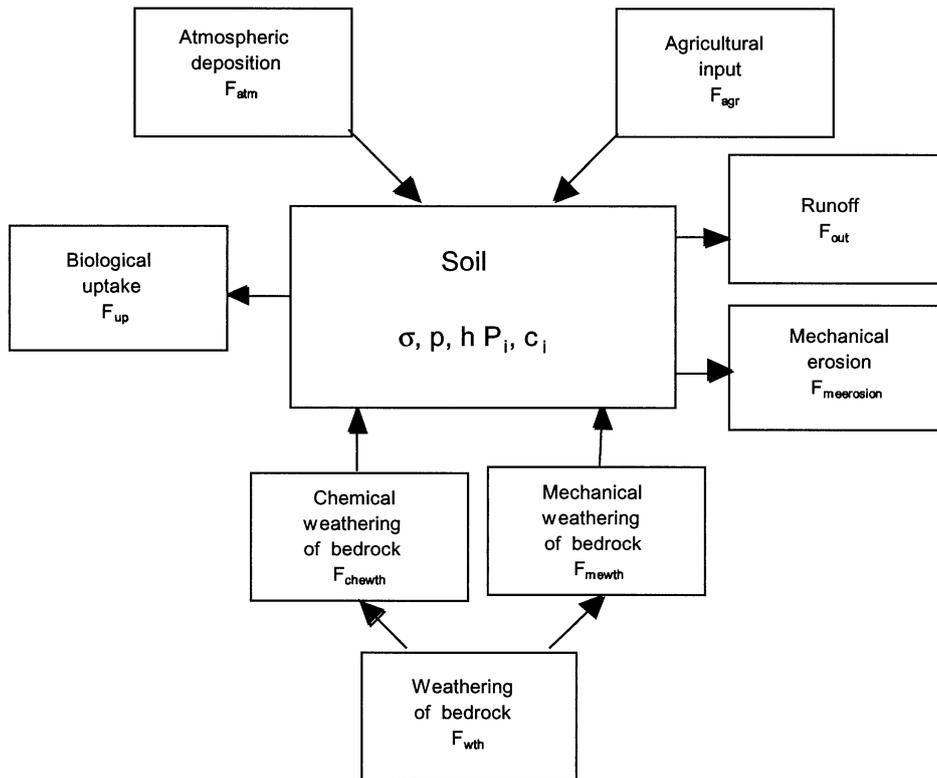


Fig. 1. A mass balance models and compartments for storage of hazardous trace elements (HTE) in soils. The symbols in the figure are described in Tab. 1

and

$$k_i = k_{up,i} + k_{run,i} + k_{meerosion,i}$$

The size of the pool P_i approaches a steady state value $P_{steady,i}$ when $dP_i/dt = 0$

$$P_{steady,i} = F_i/k_i$$

Expressing the time function in term of the concentration of HTM

$$c_i = (F_i/\text{塋}k_i) - [F_i/\text{塋}k_i - c_0] \exp[-k_i(t - t_0)]$$

and

$$c_{steady,i} = P_{steady,i}/\text{塋}$$

where

$$\text{塋} = 10^4 \cdot \sigma \cdot h(1 - p/100)$$

σ is density of soil, p is porosity of soil in percent of *in situ* volume, and h is biologically active thickness of soil.

Calculation of critical load

The critical load is related to a critical concentration of HTE. The critical concentration can be defined in three ways.

- (1) It can be represented by a steady state pool, which has developed under pristine inputs and outputs (before the pollution started),
- (2) it can be defined by a hygienic norm set for soils by a law of individual countries,
- (3) the critical concentration is determined by a toxicological experiment.

The critical load of HTE is such an anthropogenic input $(F_{atm,i} + F_{agr,i})_{critical}$ that will never cause an

Table 1. List of symbols

$c_{o,i}$	Initial (pristine) concentration of a chemical element i in soil [g.kg^{-1}]	$k_{meerosion,i}$	rate constant of mechanical erosion [yr^{-1}]
c_i	concentration of a chemical element i in soil during time [g.kg^{-1}]	$F_{x,i}$	flux of the major element [$\text{kg.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$], and trace element [$\text{g.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$] by a transport mechanism x .
$c_{critical,i}$	ecologically critical concentration of a chemical element i in soil [g.kg^{-1}]	$F_{atm,i}$	input of the element by atmospheric deposition
P_i	pool of a chemical element i in soil [g.ha^{-1}]	$F_{agr,i}$	input of the element by the application of agrochemicals
$P_{steady,i}$	steady state pool of a chemical element i in soil [g.ha^{-1}]	$F_{wth,i}$	input of the element by total (chemical + mechanical) weathering
$P_{o,i}$	initial (pristine) pool of a chemical element i in soil [g.ha^{-1}]	$F_{up,i}$	output of the element by biological uptake
$c_{rock,i}$	concentration of a chemical element i in rock [g.kg^{-1}]	$F_{run,i}$	output of the dissolved element by the runoff of water
ϑ	constant defined as $\vartheta = 10^4 \sigma \cdot h(1 - p/100)$ [kg.ha^{-1}]	$F_{chewth,i}$	input of the element by chemical weathering (dissolution of bedrock)
p	porosity of soil in percent of <i>in situ</i> volume [dimensionless]	$F_{mewth,i}$	input of the element by mechanical weathering (disintegration of bedrock)
σ	density of soil [kg.m^{-3}]	$F_{meerosion,i}$	output of the element i by mechanical erosion in stream
h	thickness of soil [m]	M_{soil}	mechanical erosion of soil due to runoff of stream water [$\text{kg.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$]
t	time [yr]	W_{rock}	total weathering of bedrock [$\text{kg.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$]
t_0	initial time (beginning of pollution) [yr]	C_{rock}	chemical weathering (dissolution) of bedrock [$\text{kg.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$]
$k_{up,i}$	rate constant of biological uptake [yr^{-1}]	M_{rock}	mechanical weathering of bedrock [$\text{kg.ha}^{-1}.\text{yr}^{-1}$]
$k_{run,i}$	rate constant of runoff [yr^{-1}]		

overpass of the critical concentration in soil. It is calculated from the integral of the mass balance equation for an assumption that k_i and $F_{mewth,i} + F_{chewth,i}$ are constant natural values and t is infinite. Then

$$(F_{atm,i} + F_{agr,i})_{critical} = C_{critical,i} \cdot k_i - (F_{mewth,i} + F_{chewth,i})$$

The exceedance of the critical load, EX_i is the difference between the real input from atmosphere and from agricultural chemicals and the critical input

$$EX_i = F_{atm,i} + F_{agr,i} - (F_{atm,i} + F_{agr,i})_{critical}$$

A dynamic property of critical load is a critical time, $t_{critical}$, when the critical concentration in soil is reached.

$$t_{critical,i} = - (1/k_i) \ln [(F_i - k_i \cdot C_{critical,i}) / (F_i - k_i \cdot C_{o,i})]$$

Weathering and erosion flux is calculated from the mass balance data on sodium and silicon according to a method described by Paces (1985). The calculation involves following assumption and equations: Assumption of a steady state for sodium and silicon in soil

$$dc_{Na} / dt = dc_{Si} / dt = 0$$

Total weathering of bedrock is

$$W_{rock} = (F_{mewth,Na} + F_{chewth,Na}) / C_{rock,Na} = (F_{mewth,Si} + F_{chewth,Si}) / C_{rock,Si}$$

Mechanical erosion of soil is

$$M_{soil} = F_{meerosion,Na} / C_{Na} = F_{meerosion,Si} / C_{Si}$$

Combining the above definitions with the mass balance equations for Na and Si, we express mechanical erosion of soil, M_{soil} :

$$M_{soil} = \{ [(F_{atm,Na} + F_{agr,Na} - F_{up,Na} - F_{run,Na}) / C_{rock,Na}] - [(F_{atm,Si} + F_{agr,Si} - F_{up,Si} - F_{run,Si}) / C_{rock,Si}] \} / [(C_{Na} / C_{rock,Na}) - (C_{Si} / C_{rock,Si})]$$

Total weathering of bedrock, W_{rock} , is calculated using the steady state mass balance equations for sodium or silica ($i = Na$ and Si)

$$F_{atm,i} + F_{agr,i} + F_{mewth,i} + F_{chewth,i} - F_{up,i} - F_{run,i} - F_{meerosion,i} = 0$$

After rearrangement

$$\begin{aligned} W_{rock} &= (F_{up,Na} + F_{run,Na} + F_{meerosion,Na} - F_{atm,Na} - \\ &F_{agr,Na}) / C_{rock,Na} \\ &= (F_{up,Si} + F_{run,Si} + F_{meerosion,Si} - F_{atm,Si} - \\ &F_{agr,Si}) / C_{rock,Si} \end{aligned}$$

The flux of HTE due to weathering can be now calculated using the model values of W_{rock}

$$F_{wth,i} = W_{rock} \cdot C_{rock,i}$$

Note that the assumption of the steady state for Na and Si is not implied for other elements including HTE. These elements can accumulate in soil ($dc_i/dt > 0$) or can be depleted ($dc_i/dt < 0$).

The rate of chemical weathering (dissolution of bedrock) is calculated from the mass balance of the cations of the major rock forming oxides (SiO_2 , Al_2O_3 , Na_2O , K_2O , CaO and MgO). The mass balance includes atmospheric precipitation, fertilisation, biological uptake and runoff:

$$C_{rock} = - \Sigma (F_{atm,i} + F_{agr,i} - F_{up,i} - F_{run,i}) \cdot (M_{oxide i} / z_i \cdot M_{ol i})$$

The sum includes all major elements except oxygen in rock (Na, K, Ca, Mg, Si, Al), $M_{oxide i}$ is molecular mass of the oxide of the element i , z_i is stoichiometric coefficient of the element in the oxide and $M_{ol i}$ is atomic mass of the element i .

The rate of mechanical weathering (disintegration) is calculated as the difference between total weathering and chemical weathering

$$M_{rock} = W_{rock} - C_{rock}$$

The weathering and erosion fluxes are calculated according to following formulas:

$$F_{chewth,i} = C_{rock} \cdot C_{rock,i}$$

$$F_{mewth,i} = M_{rock} \cdot C_{rock,i}$$

$$F_{meerosion,i} = M_{soil} \cdot C_i$$

Now, we have obtained all the fluxes in the mass balance equation. Therefore, we can evaluate the time function of the HTE in soil and we can calculate the critical load, its exceedance, and critical time.

Acquisition of data for the evaluation of critical load of Pb and Cd

The atmospheric, agricultural, biological and hydrological fluxes of major elements (Na, K, Ca, Mg and Si) have been monitored in several small representative hydrological catchments in the Czech Republic since 1975. Bedrock and soils were sampled once to determine concentrations of major elements. Physical characteristics of the soil (porosity, density and the active depth) were estimated as typical average values for the Czech forest brown soils (Dystric Cambisols). The monitored data and chemical analyses on major elements were used to calculate the weathering rate of bedrock and mechanical erosion of the soil in the polluted (acidified) Jezeri catchment in the Krusne hory Mountains and relatively clean Salacova Lhota catchment in the Ceskomoravska vrchovina Upland (Czech Republic). The geographical and hydrological characteristics of the catchments and methods of monitoring are given in a paper by Paces (1985).

The atmospheric deposition, runoff of Cd and Pb and concentrations of Cd and Pb in rock and soil were measured during the project LIMPIT financed by the European Union in 1999, 2000 and beginning of 2001. Monthly sampling of throughfall in both the catchments monitored the atmospheric flux. The throughfall volume was measured in 27 collectors in the polluted Jezeri catchment and in 9 collectors in the less polluted Salacova Lhota catchment. Runoff from the catchments was measured continuously at terminal gauging stations. Runoff was sampled monthly for chemical analysis.

The fluxes of the major elements and trace metals were calculated by multiplying their mean monthly concentrations in water with the monthly-accumulated throughfall and monthly runoff. Uptake by trees (predominantly *Picea abies* and *Fagus sylvatica*) was estimated from data on biological uptake given by Benes (1994) and Bergkvist *et al.* (1989). No application of fertilisers was recorded in the forest during the period of the LIMPIT monitoring.

The monitored and calculated fluxes of Cd and

Pb are used to evaluate the critical load, exceedance, and critical time of Pb and Cd in the two catchments. The critical parameters are calculated using the critical concentrations of Cd and Pb given by the Czech hygienic norm for soils.

Results

Data on concentrations of chemical components needed to evaluate critical load and related characteristics in the less polluted Salacova Lhota catchment and polluted Jezeri catchment are summarised in tables 2 and 3.

The calculated fluxes together with measured atmospheric and hydrologic fluxes, the critical loads, present exceedance of the critical loads and the critical times are summarised in tables 4 and 5. The monitoring of the two catchments yields data on major geochemical fluxes of Pb and Cd representing the typical forest ecosystem in central Europe

Table 2. Average chemical data used for critical load calculation in the Salacova Lhota catchment

	Rock	Soil
p - porosity %		40
σ - density kg.m^{-3}		1520
h - thickness of biologically active soil m		0.3
Conversion factor ϑ kg.ha^{-1}		273.6×10^4
	% by weight	% by weight
Na ₂ O	2.23	0.42
K ₂ O	4.22	1.53
CaO	1.25	0.22
MgO	2.48	0.50
SiO ₂	60.34	58.81
Al ₂ O ₃	17.85	7.99
	g.kg^{-1}	g.kg^{-1}
Cd	0.9×10^{-3}	0.30×10^{-3}
Pb	20×10^{-3}	76×10^{-3}

Table 3. Average chemical data used for critical load calculation in the Jezeri catchment

	Rock	Soil
p - porosity %		40
σ - density kg.m^{-3}		1520
h - thickness of biologically active soil m		0.3
conversion factor ϑ , kg.ha^{-1}		273.6×10^4
	% by weight	% by weight
Na ₂ O	2.47	0.47
K ₂ O	4.07	2.12
CaO	1.26	0.12
MgO	0.56	0.58
SiO ₂	75.42	48.54
Al ₂ O ₃	14.24	10.77
	g.kg^{-1}	g.kg^{-1}
Cd	0.4×10^{-3}	1.3×10^{-3}
Pb	12×10^{-3}	168×10^{-3}

Table 4. Critical load of Cd and Pb and related data in the Salacova Lhota catchment

W_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	482	
C_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	76	
M_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	406	
	Cd	Pb
c_{rock} - concentration in rock g.kg ⁻¹	0.9×10^{-3}	20×10^{-3}
c_o - present concentration in soil g.kg ⁻¹	0.3×10^{-3}	76×10^{-3}
$c_{critical}$ - Czech hygienic norm g.kg ⁻¹	0.4×10^{-3}	80×10^{-3}
Measured flux g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹		
F_{up}	0.5	8
F_{atm}	0.73	14
F_{agr}	0	0
F_{run}	0.1	3.7
Calculated flux g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹		
F_{chewth}	0.07	1.5
F_{mewth}	0.37	8
$F_{meerosion}$	0.13	34
Rate constants of output yr ⁻¹		
k_{up}	6.1×10^{-4}	3.8×10^{-5}
k_{run}	1.6×10^{-4}	1.8×10^{-5}
$k_{meerosion}$	1.6×10^{-4}	1.6×10^{-4}
Critical load calculation		
c_{steady} g/kg in soil	0.46×10^{-3}	40.5×10^{-3}
Critical load ($F_{atm,i} + F_{agr,i}$) _{critical} g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	0.6	38
Exceedance g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	0.1	-24
Critical time yr	1088	-490

Table 5. Critical load of Cd, Cu and Pb and related data in the Jezeri catchment

W_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	1580	
C_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	251	
M_{rock} kg.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	1329	
	Cd	Pb
c_{rock} - concentration in rock, g.kg ⁻¹	0.4×10^{-3}	12×10^{-3}
c_o - present concentration in soil g.kg ⁻¹	1.3×10^{-3}	168×10^{-3}
$c_{critical}$ - Czech hygienic norm g.kg ⁻¹	0.4×10^{-3}	80×10^{-3}
Measured flux g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹		
F_{up}	1.3	13
F_{atm}	0.97	25
F_{agr}	0	0
F_{run}	3.8	9.8
Calculated flux g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹		
F_{chewth}	0.10	3.0
F_{mewth}	0.53	16
$F_{meerosion}$	3.01	389
Rate constants of output yr ⁻¹		
k_{up}	3.7×10^{-4}	2.8×10^{-5}
k_{run}	1.1×10^{-3}	2.1×10^{-5}
$k_{meerosion}$	8.5×10^{-4}	8.5×10^{-4}
Critical load calculation		
c_{steady} g/kg in soil	2.6×10^{-4}	1.8×10^{-2}
Critical load ($F_{atm,i} + F_{agr,i}$) _{critical} g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	1.9	177
Exceedance g.ha ⁻¹ .yr ⁻¹	-0.9	-152
Critical time yr	871	988

under the stress of environmental acidification. Finally, we have calculated the proportion of individual inputs and outputs and expressed them in percentage of total input and output of the metals in ta-

Table 6. Proportion of individual fluxes expressed in percents of total input and output

	Cd	Pb		Cd	Pb
Salacova Lhota catchment					
F_{atm}	62.6	65.5	F_{up}	65.6	18
F_{agr}	0.0	0.0	F_{run}	17.0	8
F_{chewth}	5.9	5.4	$F_{meerosion}$	17.4	74
F_{mewth}	31.5	29.1			
sum	100.0	100.0	sum	100.0	100.0
Jezeri catchment					
F_{atm}	60.6	57.2	F_{up}	16.0	3.2
F_{agr}	0.0	0.0	F_{run}	47.0	2.4
F_{chewth}	6.3	6.8	$F_{meerosion}$	37.0	94.5
F_{mewth}	33.1	36.0			
sum	100.0	100.0	sum	100.0	100.0

ble 6.

Discussion and conclusions

Measured and calculated fluxes and critical parameters represent a situation in forested countryside in central Europe. The weathering and erosion rates in the Salacova Lhota catchment are characteristic of the weathering of biotitic sillimanitic gneiss of the Moldanubicum in the Bohemian massif. The weathering and erosion rates in the Jezeri catchment relate to biotite - muscovite gneiss of the Krusne hory Mountains. Table 6 indicates that the individual inputs of Cd and Pb are in similar proportions in both the catchments. The input due to atmospheric precipitation (about 64% of total input) predominates, followed by the input due to mechanical weathering (about 30%). Chemical weathering of bedrock does supply less than 6% of the metals in soil. On the other hand, individual output fluxes of Cd and Pb exhibit very different proportions. The mechanical erosion is the major output

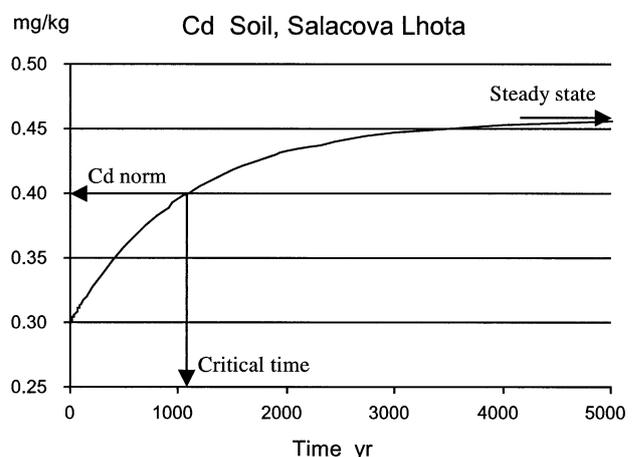


Fig.2. Predicted trend of Cd concentration in soil of the Salacova Lhota catchment

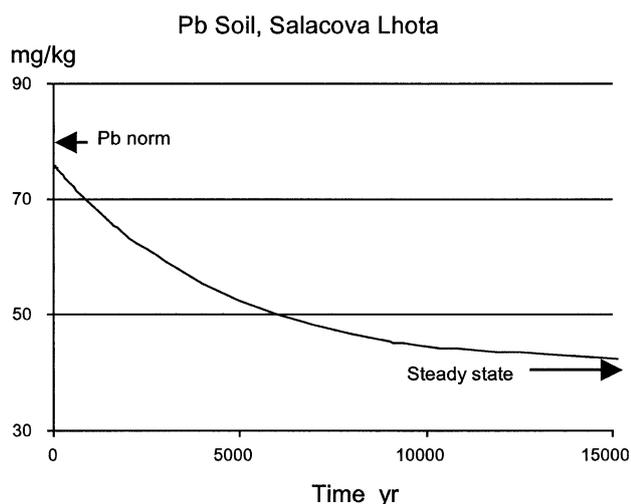


Fig. 3. Predicted trend of Pb concentration in soil of the Salacova Lhota catchment

mechanism for Pb (74 and 94%) while the output due to runoff of water is very small (below 2 and 8%). Cadmium is more soluble so that it is removed from soil by leaching and uptake by plants. Uptake by trees dominates in the healthy forest ecosystem in the Salacova Lhota catchment (66%). Runoff dominates as the output of Cd from the Jezeri catchment, where the trees have been damaged by acid atmospheric deposition (47%).

The present mass balance between inputs and outputs will cause future changes in the content of Cd and Pb in local soils. The trends are illustrated on figures 2 to 5. The tables 4 and 5 and figures 2 to 5 indicate that soils in the less polluted Salacova Lhota catchment and in the polluted Jezeri catchment have different critical loads, different exceedances of the load and different trends and critical times of Cd and Pb pollution.

Cadmium is below the critical level in the soils of the Salacova Lhota catchment but it is slowly increasing. The model predicts that the critical concentration will be reached after 1088 years. Lead in soil of the Salacova Lhota catchment is below the Czech soil norm (80 mg. kg^{-1}) and due to mechanical erosion its content in soil will decrease. The calculated negative critical time has no real meaning. It is just a projection of the curve to the critical concentration in the past. Both Cd and Pb in the soils of the polluted Jezeri catchment exceed their critical concentrations. This is due to high atmospheric inputs of these metals before ore mining and ore

smelting in the region stopped and usage of leaded gasoline sharply decreased during the last ten years. The highest atmospheric deposition of lead reached in average $570 \text{ g. ha}^{-1}\text{yr}^{-1}$ between 1965 to 1992 (Vile *et al.*, 2000). The deposition sharply decreased after 1992 due to economic changes in central Europe (fall of Communist system). The high deposition of Cd accompanied an intensive coal burning and ore smelting in the industrial region where the Jezeri catchment is situated. The present mass balance indicates that the content of the metals in soils will very slowly decrease. Cadmium will decrease to its critical soil concentration after 871 years and Pb will reach its critical concentration after 988 years. The decrease of the content of Cd and Pb in the soils is caused mainly by mechanical erosion of surface layer of soil polluted by historical high atmospheric deposition of the metals. The exceedance of present atmospheric input over the critical load of Cd and Pb is negative or about zero

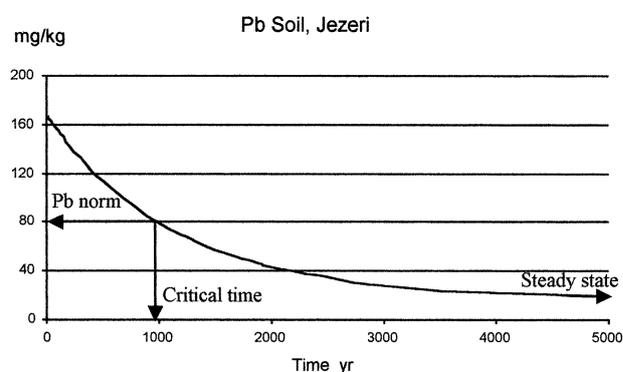


Fig. 4. Predicted trend of Cd concentration in soil of the Jezeri catchment

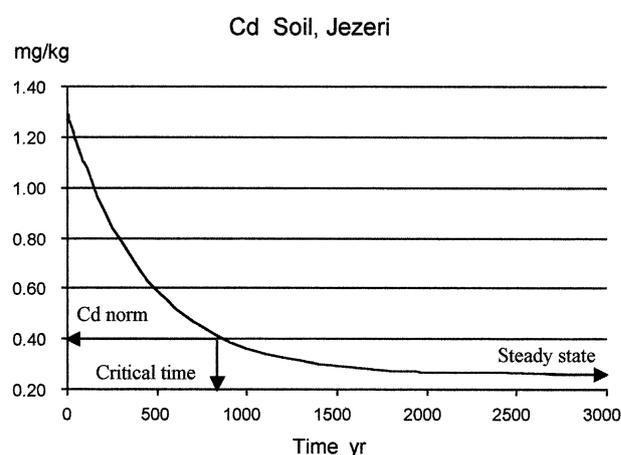


Fig. 5. Predicted trend of Pb concentration in soil of the Jezeri catchment

in all the cases. The exceedance would be, however, positive if the output due to mechanical erosion is reduced. At present, the metal pollution of the soil is transferred to running water in a form of suspended particles and bed load.

The model is too simple to represent exactly the behaviour of the real forest ecosystem. However, it can serve as an indication of trends that control the mass balance of HTE in soils.

Acknowledgement

This paper was prepared within the program of European Community COPERNICUS, Project LIM-PIT, contract No IC 15 CT 980130, headed by Steven M. Wickham, Galson Sciences LTD., Oakham, U.K. The authors thank to the two anonymous reviewers for their critical comments, which have led to a considerable improvement of this paper.

References

- Benes S. (1994) Content and mass balance of elements in the sphere of environment, Part II, 159 pp, Ministry of Agriculture of the Czech Republic, Prague (*in Czech*: Obsahy a bilance prvku ve sferach zivotniho prostredi, II. cast, Ministerstvo zemedelstvi Ceske republiky, Praha).
- Bergkvist B., Folkesson L and Berggren D. (1989) Fluxes of Cu, Zn, Pb, Cr, and Ni in temperate forest ecosystems. *Water, Air, and Soil Pollution* 47 : 217–286.
- de Vries W. and Bakker D. J. (1996) Manual for calculating critical loads of heavy metals for soils and surface waters. Draft February 1996, Report 114, DLO Winand Staring Centre, Wageningen, TNO Institute of Environmental Sciences, Delf.
- Jones J. B. (1990) Universal soil extractants, their composition and use. *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, 21 : 1091–1101.
- Lindsay W. L. and Norvell W. A. (1978) Development of a DTPA soil test for zinc, iron, manganese and copper. *Soil Sci. Amer. J.*, 42 : 421–428.
- Mehlich A. (1978) New extract for soil test evaluation of phosphorus, potassium, magnesium, calcium, sodium, manganese and zinc. *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, 9 : 477–492.
- Mehlich A. (1984) Mehlich No.3 soil test extractant : A modification of Mehlich No.2. *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, 15 : 1409–1416.
- Nilsson J. and Grennfelt P. (eds.) (1988) Critical loads for sulfur and nitrogen. Report from a Workshop at Skokloster, Sweden, March 1988. *Miljo rapport 1988* : 15, 418 pp, Nordic Council of Ministers, Copenhagen.
- Paces T. (1985) Sources of acidification in Central Europe estimated from elemental budgets in small basins. *Nature*, 315 : 31–36, London.
- Paces T. (1998) Critical loads of trace metals in soils : A method of calculation. *Water, Air, and Soil Pollution* 105 : 451–458.
- Paces T. and Pacesova E. (2001) Weathering of rocks in soil budgets of trace metals. *In* : *Water - Rock Interaction* (R. Cidu, ed.) v. 2, 997–1000, Balkema Publ., Lisse.
- Vile M. A., Wieder R.K. and Novak M. (2000) 200 years of Pb deposition throughout the Czech Republic : patterns and sources. *Environmental Science & Technology*, 34 : 12–21.
- Wolf B. (1982) An improved universal extracting solution and its use for diagnosis in soil fertility. *Commun. Soil Sci. Plant Anal.*, 13 : 1005–1033.

論文

紙およびアルミニウム混入パーティクルボードの
基礎物性および電磁波シールド性能^{*1}林 宏次^{*2}, 井上弘文^{*2}, 近江正陽^{*2}, 福田清春^{*2}, 富永洋司^{*2}Basic Physical Properties and Shielding Effectiveness of Paper-
and Aluminum-Blended Particleboard against Electromagnetic Wave.^{*1}Koji HAYASHI^{*2}, Hirofumi INOUE^{*2}, Masaharu OHMI^{*2},
Kiyoharu FUKUDA^{*2}, and Hiroshi TOMINAGA^{*2}

We produced paper- and aluminum-blended particleboards and investigated the influences of the kind of binder and mixture ratio on strength and dimensional stability. We also measured the shielding effectiveness of aluminum-blended (laminated) particleboard against electromagnetic wave.

Relationships between modulus of rupture (MOR) and mixture ratio of paper- and aluminum-blended particleboard depended on the kind of binder. Thickness swelling (TS) and water absorption (WA) were the same as described for MOR. For example, in the case of urea resin adhesives, the MOR of the paper-blended particleboard decreased with increasing paper content. For phenolic resin adhesives, the MOR of the paper-blended particleboard did not depend on paper content.

The shielding effectiveness of the aluminum chip-blended particleboard against electromagnetic wave increased with increasing aluminum content. For the aluminum-laminated particleboard, the shielding effectiveness against electromagnetic wave increased more than the aluminum chip-blended particleboard. This clarified that the shielding effectiveness against electromagnetic wave was achieved by laminating alone.

Keywords : particleboard, aluminum, bending strength, dimensional stability, electromagnetic wave

紙およびアルミニウムを異物として混入させたパーティクルボードを製造し、異物の混入率や結合剤の種類が強度特性および寸法安定性に与える影響について検討した。またアルミニウムを混入させたパーティクルボードに関しては、電磁波シールド（遮蔽）性能について検討した。

異物混入パーティクルボードの曲げ強さと異物混入率の関係は、結合剤の種類により異なった。また吸水厚さ膨潤および吸水率についても同様であった。例えば、紙混入パーティクルボードの曲げ強さは、ユリア樹脂接着剤を用いると紙混入率が増加するほどやや低下したが、フェノール樹脂接着剤を用いると紙混入率にほとんど影響されなかった。

アルミニウム混入（複合）パーティクルボードの電磁波シールド性能は、アルミチップ混入率が増加するに従い向上した。またアルミシート類を積層させた場合、アルミチップ混入ボードよりも良好な電磁波シールド効果（10～30 dB）を示した。一定の電磁波シールド機能の付与が、単純な積層方法によっても達せられることが明らかとなった。

キーワード : パーティクルボード, アルミニウム, 曲げ強度, 寸法安定性, 電磁波

^{*1} Received Aug. 29, 2001; Accepted Jan. 31, 2002

^{*2} 東京農工大学農学部 環境資源科学科 〒183-8509東京都府中市幸町3-5-8 : Department of Environmental and Natural Resource Science, Fac. of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo 183-8509, Japan

1. 緒言

建設リサイクル法などの各種リサイクル法の施行に伴い、資源は再利用される傾向にある。建築廃材等の木質廃棄物はボード用チップや製紙用チップとして再利用されている。一方、焼却や埋め立てにより廃棄もされている。その原因として、木質廃棄物中に金属類、プラスチック類等の異物が混入していることが挙げられる。

また近年、携帯電話の急速な普及に代表されるように、生活環境中に氾濫する電磁波が増大している。しかし一方では、電磁波の被爆等による電磁波障害も問題となっている(征木 1995)。

これらを背景として、本研究では木質廃棄物の再利用を想定し、紙およびアルミニウムを異物として混入させたパーティクルボードを製造し、その混入率や結合剤の種類が強度特性や寸法安定性に与える影響について検討を行った。そしてアルミニウムを混入させたパーティクルボードに関しては、電磁波シールド(遮蔽)機能の付与について検討した。

2. 実験方法

2.1 結合剤の合成

パーティクルボード用結合剤として、ユリア樹脂接着剤(UF, 樹脂率:46.0%, 粘度:129 cP), ポリ酢酸ビニルエマルジョン-イソシアネート系接着剤(PVAc-I, 樹脂率:41.3%, 粘度:822 cP), フェノール樹脂接着剤(PF, 樹脂率:49.4%, 粘度:158 cP)の三種類を用いた。

UFとPF樹脂接着剤は研究室製とした。PVAc-Iは、研究室内で合成したPVAcエマルジョン接着剤に、イソシアネート化合物-トルエン溶液(7:3)を混合して調製した。なお、イソシアネート化合物として、MDI 100(日本ポリウレタン社製)を用いた。

2.2 パーティクルボード製造

2.2.1 曲げ強度および寸法安定性試験用パーティクルボードの製造

原料パーティクルの樹種は、ダグラスファー(*Pseudotsuga menziesii* Franco), スギ(*Cryptomeria japonica* D. Don), アカマツ(*Pinus densiflora* S. & Z.)であり、パーティクルボード製造時に用いた結合剤の種類により樹種を変えた。即ち、UF樹脂を用いた場合はダグラスファー、PVAc-Iを用いた場合はスギ、PF樹脂を用いた場合はダグラス

ファーとアカマツの混合チップをそれぞれ使用した。原料パーティクルをふるいにかけて選別し、2 mesh から 5 mesh の間のパーティクルを含水率約 3%程度に調整してボード製造に用いた。

本研究では、木質廃棄物に混在する異物として、紙(コピー用紙の古紙, 厚さ0.089 mm, 坪量68.1 g/m²)およびアルミニウム(厚さ0.05 mm, 以下、アルミと略記)を用い、それらを混入させたパーティクルボード(異物混入パーティクルボード)を製造した。同紙チップおよびアルミチップは、寸法30×3 mmとし、異物の全乾質量が木材の全乾質量に対して5, 10, 15, 20%となるように調製した。また製造したパーティクルボードの寸法は300×150×7 mm, 目標全乾密度0.65 g/cm³, 目標含脂率8%とした。圧縮条件は、熱圧温度150℃(UF樹脂, PF樹脂)および160℃(PVAc-I), 初期圧縮圧力1.96 MPa, 熱圧時間10分(UF樹脂, PF樹脂)および13分(PVAc-I)とした。

2.2.2 電磁波シールド効果評価用パーティクルボードの製造

広葉樹混合チップ(小名浜合板社提供)を原料パーティクルとし、ふるい目5 mesh から 9 mesh の間のパーティクルを含水率約 3%に調整してパーティクルボード製造に用いた。結合剤は物理的試験用ボードの製造時と同様、UF樹脂, PVAc-I, PF樹脂を用いた。

紙は当然のことながら、電磁波シールド効果の期待はできない。そのため、アルミを混入させたパーティクルボードのみを電磁波シールド効果評価用ボードとした。その種類、寸法、混入率(全乾木材小片重量に対する重量割合)、およびパーティクルとの複合状態等をTable. 1に示す。また製造したパーティクルボードは、寸法300×150×4 mm, 目標全乾密度0.65 g/cm³, 目標含脂率10%であり、圧縮条件は熱圧温度150℃(UF樹脂, PF樹脂の場合)および160℃(PVAc-Iの場合), 初期圧縮圧力

Table 1. Type, size, mixture ratio, and composite state of aluminum products.

Type	Size	Mixture ratio	Composite state
Chip	30×3×0.05mm	0, 5, 10, 15, 20%	Blend
Wire	1mm φ, 10mm length	0, 5, 10, 15, 20%	Blend
Powder	Smaller than 83mesh	0, 5, 10, 15, 20%	Blend
Sheet	300×150×0.05mm		Laminate (face)
Foil	300×150×0.01mm		Laminate (face)
Mesh	300×150mm (14mesh)		Laminate (core)

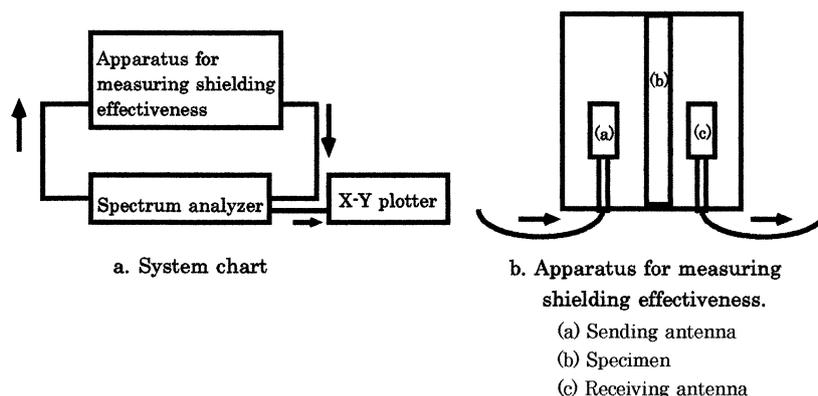


Fig. 1. Outline of apparatus for measuring shielding effectiveness.

1.96 MPa, 熱圧時間10分 (UF 樹脂, PF 樹脂) および13分 (PVAc-I) とした。

2.3 パーティクルボードの性能試験

2.3.1 曲げ強度試験および吸水厚さ膨潤試験

製造したボードを一週間以上恒温室 (25℃) で養生させて, 曲げ試験および吸水厚さ膨張試験に供した。試験方法は JIS A 5908に規定された曲げ試験および吸水厚さ膨潤試験に準ずるが, 試験体の寸法は, 130×30×7 mm (曲げ試験), 20×20×7 mm (吸水厚さ膨潤試験) とした。吸水厚さ膨潤率試験体は, 予めホットメルト接着剤を表面に塗布して表層を被覆して用いた。また吸水厚さ膨潤率を測定した後, それらの試験体について吸水率も測定した。試験体数は, 曲げ強さについては各種条件で8~9片, 吸水厚さ膨潤については4片とした。

2.3.2 電磁波シールド性能試験

曲げ強度試験および吸水厚さ膨潤試験と同様, 製造したボードを養生させて試験に供した。Fig. 1に電磁波シールド性能評価装置を示す。装置は, スペクトラム・アナライザ (R 3361 B, アドバンテスト社製), シールド材評価器 (TR 17301 A, 同社製), X-Yプロッタ (R 9833, 日立電子社製) により構成される (Fig. 1-a)。この装置は, 試験体が存在する場合としない場合のスペクトルの比較, あるいは2種の試験体を別々に測定し, 相対的なスペクトルの比較により材料のシールド性能評価ができる。

試験体を130×130 mmに切り出し, シールド材評価器の発信アンテナ室と受信アンテナ室の境界部に接地させ, ボードの電磁波シールド性能を測定した (Fig. 1-b)。なお測定は, 電界と磁界について行い, 周波数範囲を10 MHz~1000 MHzとした。

3. 結果および考察

3.1 曲げ強さ

Fig. 2に, 紙チップ混入パーティクルボード (以下, Pa ボードと略す) の曲げ強さ (MOR) を示す。紙は木材よりも引張り強さが小さいため, 混入率が高くなるに従い曲げ強さは小さくなると思われる。しかしこの傾向が顕著に表れたのは, UF 樹脂接着剤を用いて製造された Pa ボード (Pa/UF) のみであった。PVAc-I系接着剤により製造された Pa ボード (Pa/PVAc-I) は, 紙チップ未混入ボードよりも曲げ強さが低下したが, 紙の混入率には依存していなかった。PF 樹脂接着剤を用いた Pa ボード (Pa/PF) についても, 紙の混入量にほとんど依存せず, 他の2種類の Pa ボードよりも高い曲げ強さを示した。これは, PF 樹脂接着剤は浸透性に優れている

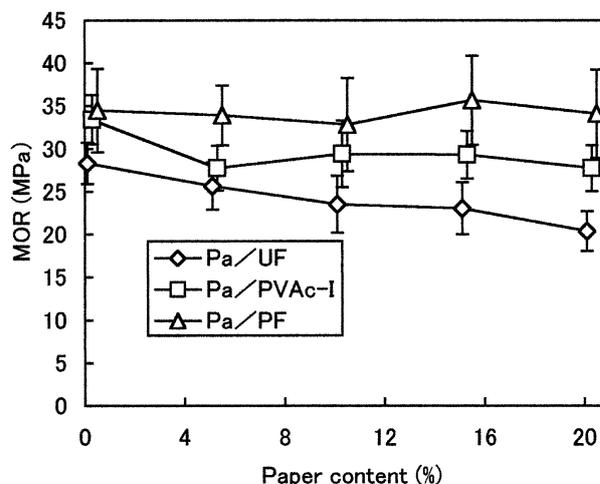


Fig. 2. Relationship between MOR and paper content of the paper-blended particleboard.

Note: Pa: paper-blended particleboard, UF: urea resin adhesives, PF: phenol resin adhesives, PVAc-I: polyvinyl acetate emulsion-isocyanate compounds. Vertical bars show standard deviation.

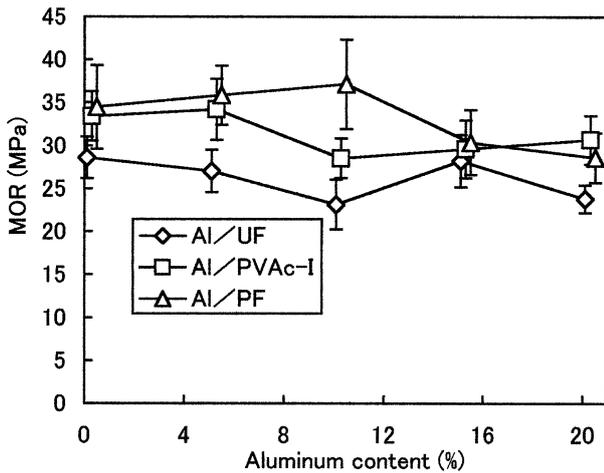


Fig. 3. Relationships between MOR and aluminum content of the aluminum chip-blended particleboard.

Note: Al: aluminum-blended particleboard.
Other symbols as in Fig. 2.

ため、紙に接着剤が浸透した状態で硬化し、それにより紙の層間はく離強さが増大したためと考えられる。また全ての試験片において、JIS A 5908の曲げ強さ18タイプを満たしていた。

アルミチップ混入パーティクルボード（以下、Alボードと略す）の曲げ強さ（MOR）を Fig. 3 に示す。Al ボードは、Pa ボードの紙混入の場合と異なりアルミ自体の層間はく離を考慮する必要がなく、且つアルミ自体の引張り強さが大きいことが考えられる。しかし Al ボードはアルミ未混入ボードよりも曲げ強さが向上するとはいえなかった。

PVAc-I系接着剤を用いて製造されたアルミチッ

プ混入ボード（以下、Al/PVAc-Iと略す）は、混入率10%で曲げ強さが低下した。これは、PVAc エマルジョンと MR-100が十分に混合されていないためと考えられる。ポリイソシアネート系接着剤を用いて、ステンレス鋼ファイバーを混入させたパーティクルボードの曲げ強さは、密度0.6~0.7 g/cm³の場合、ステンレスファイバー混入率10%で最大になり、その時、はく離強さも最大になるという報告がある（渋沢ら 1991）。しかし本研究では、アルミチップ混入率10%で最小の曲げ強さを示した。PVAc-I 接着剤の性能を十分に発揮することが出来れば、木材-金属間の接着力が向上し、Al/PVAc-Iの曲げ強さは向上すると考えられる。

PF 樹脂接着剤を用いて製造したアルミチップ混入ボード（以下、Al/PFと略す）は、アルミの混入率が10%でピークとなるが、有意ではなかった。これを越えると曲げ強さは低下し、特に混入率20%の場合、アルミ未混入時の約80%となった。フェノール樹脂を用いた場合、木材-金属間の接着力が低下するため強度が低下するという報告もあり、本研究からも同様なことが言える（渋沢ら 1993）。異物混入増加による強度の低下割合は、3種類の接着剤のなかで、アルミチップ混入率10%をこえるとPF樹脂接着剤が最も大きい。しかし、紙チップ混入ボードと同様、アルミチップ混入ボードにおいても全ての試験片がJIS A 5908の曲げ強さ18タイプを満たしていた。

3.2 吸水厚さ膨潤率, 吸水率

Fig. 4 に、紙チップ混入パーティクルボード (Pa

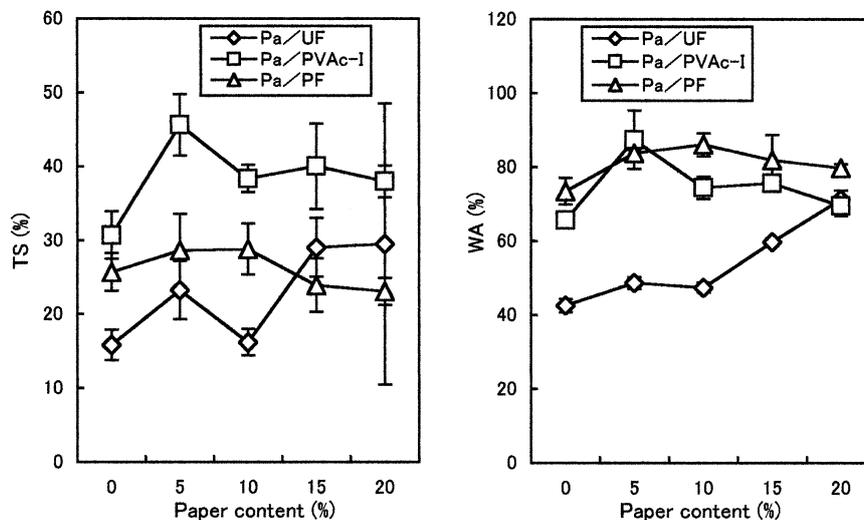


Fig. 4. Effects of paper content on thickness swelling (TS) and water absorption (WA) of the paper-blended particleboard.

Note: Symbols as in Fig. 2.

ボード)の吸水厚さ膨潤率(TS)および吸水率(WA)を示す。3種類の接着剤中で、不思議なことに耐水性能が最も劣ると考えられるユリア樹脂接着剤を用いたボード(Pa/UF)が最も耐水性に優れた結果となった。しかし紙の混入率が増加するに連れて、Pa/UFボードのTSおよびWAは増加しており、紙の混入が耐水性に影響を与えていることがわかった。また接着剤間で比較すると、最も大きなTSを示したのはPVAc-I系接着剤を用いたボード(Pa/PVAc-I)であり、最も大きなWAを示したのは、混入率5%を除いて、PF樹脂接着剤を用いたボード(Pa/PF)であった。

Pa/PVAc-IボードおよびPa/PFボードのTSおよびWAは、全ての条件でPa/UFボードよりも高い値を示した。これは、Pa/PVAc-Iボードの場合、PVAc-I系接着剤がボードの熱圧縮時に有効な化学反応が生じなかったことが原因として考えられ、またPa/PFボードの場合、ボード製造の際に硬化促進剤を使用しなかったため、接着剤が十分に硬化しなかったことが考えられる。またPa/PVAc-IとPa/PFのTSおよびWAは、紙混入率の増加と共に若干ではあるが低くなっていた。

Fig. 5に、アルミチップ混入パーティクルボード(Alボード)の吸水厚さ膨潤率と吸水率を示す。同一接着剤の場合、アルミチップ混入率増加に伴う、TSとWAの挙動がよく似ている。紙混入の場合(Fig. 4)と同様、TSとWAの相関が類推できる。WAが増加するほど、TSも大きい傾向がある。しかし、PF樹脂接着剤の場合は、大きなWA

の割には、TSが小さいことがわかる。PVA-I系接着剤を用いたボード(Al/PVAc-I)は、混入率が10%から20%になるとTSおよびWAが急激に低下し、特に混入率20%の時には未混入時の試験体とほぼ同様か、それより低い値を示した。アルミチップ混入率が増加すると、ボード内の木材チップ量が相対的に少なくなり、木材チップの圧縮率が低下する。その影響が、Al/PVAc-IボードのTSおよびWAに表れたと考えられる。またPF樹脂接着剤を用いたボード(Al/PF)に関しては、TS、WA共に変動が少なかった。なお、ユリア樹脂接着剤を結合剤としたボードのTS・WAが他の接着剤よりも、よい結果となった。その原因は、現在不明である。他の結合剤の性能をもっと発揮できる余地が残っているかもしれない。また、原料樹種の相違かもしれない。

3.3 電磁波シールド性能

電磁波シールドとは、電磁波エネルギーを吸収・反射させ、表面からのエネルギー伝搬を抑えることである。その原理は、電磁波の入射によりシールド材に電流が流れ、これによってシールド効果が生まれることにある。シールド材に電磁波が入射すると、その表面で入射波は反射し、一部のみがシールド材内部に入る。電磁波はシールド材内で減衰しながら反対側の表面まで伝搬され、一部のみが透過してシールド材外部に出てくる。一方、入射と反対側の表面で反射して内部に戻された電磁波は、シールド材内部を何回も往復・反復して減衰し、その都度、一部は表面を通過して外部に出てくることとな

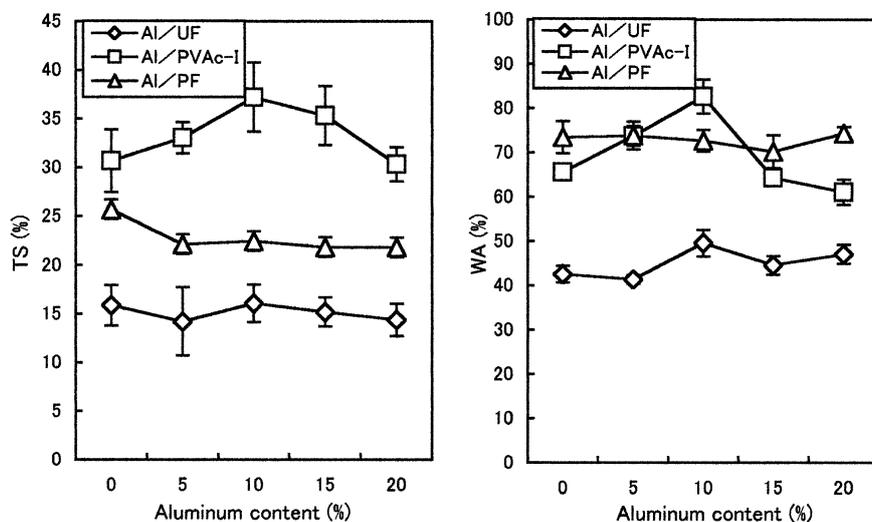


Fig. 5. Effects of aluminum content on thickness swelling (TS) and water absorption (WA) of the aluminum chip-blended particleboard.

Note: Symbols as in Fig. 2, 3.

る。つまり最初の透過電磁波と多重反射後の透過電磁波の総和が、最終的にシールド材を透過した電磁波である（長谷川ら 1991）。即ち、透過した電磁波エネルギーをどの程度減衰させたかが、材料の電磁波シールド効果となる。電磁波シールド効果は、試料が存在する場合と存在しない場合、あるいは2種類の試料について測定し、その相対比較により行われる（長澤ら 1989）。

本研究では、アルミ未混入パーティクルボード（control）との比較を行うことにより、アルミ混入パーティクルボードの電磁波シールド性能について検討を行った。

各種アルミ材複合ボードの電磁波シールド性能を Fig. 6～9 にそれぞれ電界、磁界として示す。Control ボードには、電界・磁界共にほとんどシールド効果が認められず、電磁波に対して解放状態であることがわかる。

アルミチップ混入ボードの場合（Fig. 6）、混入率の増加と共に電界・磁界共にシールド効果が増加した。これはアルミ混入の効果によるものであり、混入率が高くなるに従い、ボード内の面方向にお

るアルミの占有面積が増大するためと考えられる。電界に関しては、混入率5%以上になると100～300 MHzで10 dB以上のシールド効果が示された。特に混入率20%に関しては周波数100～350 MHzで20 dBをこえるシールド効果が示された。一方の磁界に関しては、混入率15%以下では全ての周波数範囲でシールド効果が10 dB以下と低い値となったが、20%になると300～880 MHzの広範囲で10 dBをこえ、410 MHzでは20 dB近くのシールド効果を示した。また電界・磁界において15%と20%の混入率において700～800 MHzでピークが認められた。500 MHz付近の文献（加藤ら 1991）から推測すると、これはアルミの特性によるものであると思われる。

アルミ粉末混入ボードの場合（Fig. 7）、電界・磁界共に全周波数範囲および全混入率でcontrolボードとほとんど変わらないスペクトルを示し、電磁波シールド効果が得られなかった。この傾向は、アルミワイヤー混入ボードの場合も同様であった（Fig. 8）。アルミ材の形状と結合剤の電気絶縁性の関係で、電磁波の反射・吸収が生じなかったと思

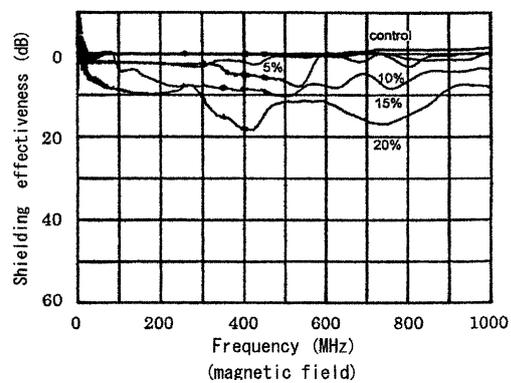
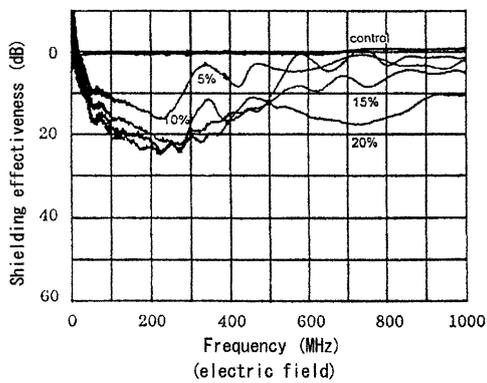


Fig. 6. Shielding effectiveness of the aluminum chip-blended particleboard against electromagnetic wave.

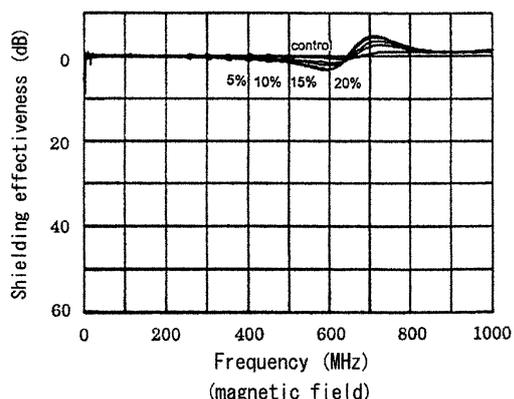
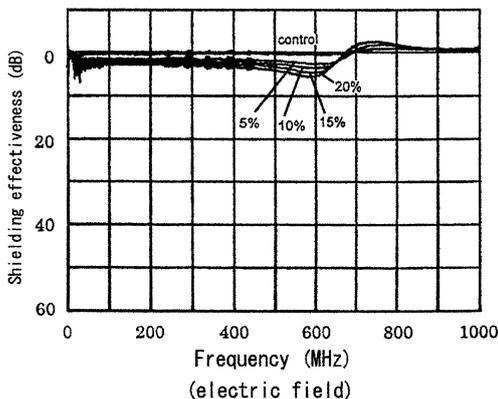


Fig. 7. Shielding effectiveness of the aluminum powder-blended particleboard against electromagnetic wave.

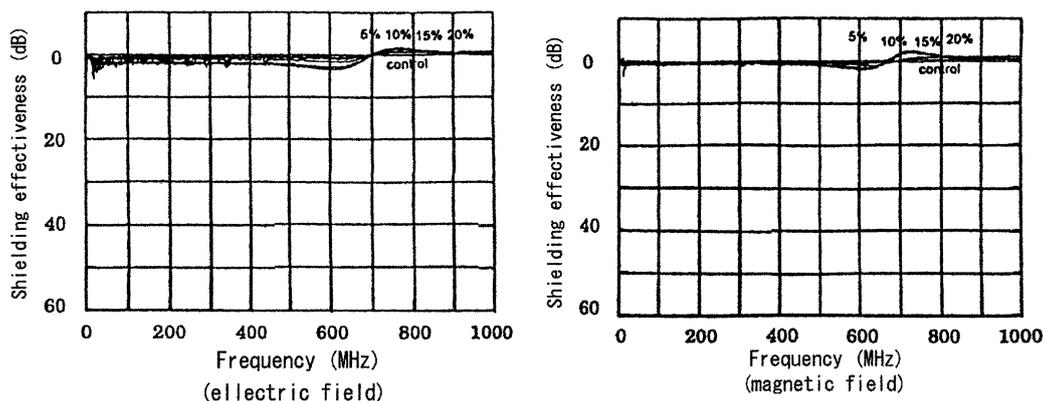


Fig. 8. Shielding effectiveness of the aluminum wire-blended particleboard against electromagnetic wave.

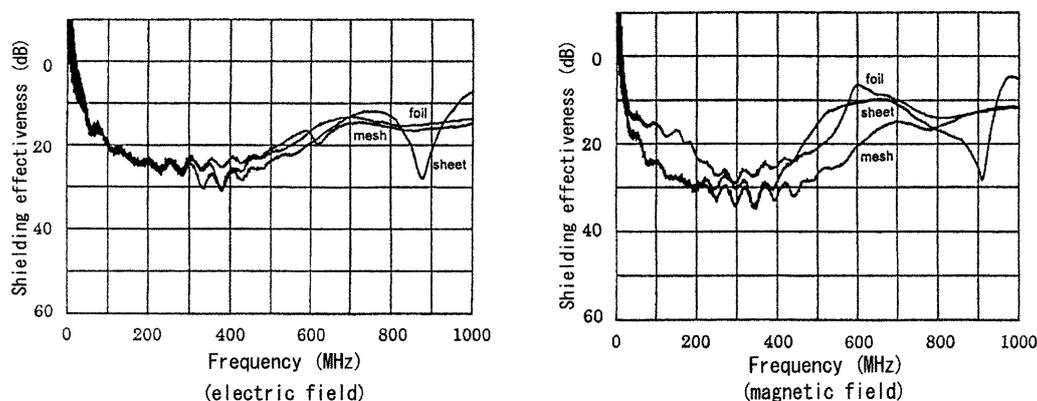


Fig. 9. Shielding effectiveness of the aluminum (foil, mesh, or sheet)-laminated particleboard against electromagnetic wave.

われる。

アルミ積層材 (foil, sheet, mesh) による複合ボードの場合 (Fig. 9), 電界は30 dBに達するものもあるが, 積層材によるばらつきがややある。磁界に関してはいずれの積層材でも似た傾向を示し, 低い周波数域 (200~400 MHz) では30 dB前後のシールド効果を示している。また高い周波数域 (600 MHz) では, 10 dB前後 (foil, sheet), 20 dB(mesh) となった。

以上の結果より, 電磁波シールド材のシールド特性は, シールド効果を有する材料が平面内にどれだけ広く分散され, それが連続層を形成していることに依存していることが明らかとなった。また400 MHz以上では, シールド材の厚みが一つの因子であることが考えられる。アルミ積層ボードは平面内にアルミが均一に分散されている。一方, アルミチップ混入ボードは同一混入率であっても, アルミの分散が不均一で且つ面方向への配向性が不確かなため, 評価には注意が必要であろう。

電磁波ノイズに対する FCC (米国連邦通信委員会) の規制基準では, Aクラスに分類される商用

機よりも Bクラスに分類される家庭用機の方が基準が厳しくなっている。電磁波ノイズの対象となる 30~300 MHz の周波数範囲で, 30 dB の電磁波シールド効果があればこの規制をクリアできる (長澤ら 1989, 加藤ら 1991)。本研究で30 dBを越える電磁波シールド効果が得られたのは, アルミホイル (磁界: 200 MHz 前後)・シート (磁界: 200~400 MHz) 積層ボードであり, 木質廃棄物の利用を考えたアルミ混入ボードの場合には, FCC をクリアする電磁波シールド効果は得られなかった。しかしアルミ混入ボードは低質材料の再利用を想定したものであり, アルミ混入率が高くなれば (20%), 電磁波シールド特性を補助的に付与させる用途に利用可能であることが示された。

4. 結 論

本研究では, 木質系廃棄物の再利用を想定し, 異物 (紙およびアルミニウム) を混入させたパーティクルボードを製造し, その曲げ強度性能および寸法安定性について検討を行った。またアルミニウム混入パーティクルボードについては, 電磁波シールド

性能の付与について検討を行った。その結果を以下に列挙する。

- 1) 異物混入パーティクルボードの曲げ強さは、異物混入率の増加とともに変動はあるものの、曲げ強さ残存率は80%をこえており、いずれの場合もJIS 18タイプに十分合格するものが得られた。
- 2) 一方、吸水厚さ膨潤率の変化は、吸水率の変化と概略一致したが、その厚さ膨潤率の大小の傾向は、PVAc-I 結合剤>PF 樹脂結合剤>UF 樹脂結合剤の順となった。結合剤の性能を十分発揮させる余地が、なお存在していることがわかった。
- 3) アルミチップ混入ボードの場合、混入率20%で電磁波シールド効果は電界・磁界に関して比較的良好な結果が得られた。しかしアルミワイヤー・粉末混入ボードは、共に電磁波シールド効果をほとんど示さなかった。
- 4) アルミ積層による複合ボードの場合は、他の複合(混入)ボードよりも良好な電磁波シールド効果(10~30 dB)を示した。一定の電磁波シールド機能の付与が、単純な積層方法によっても達せ

られることが明らかとなった。

参考文献

- 長谷川伸・杉浦行・岡村万春夫・黒沼弘(1991)電磁波障害. 85-95, 産業図書, 東京.
- 加藤昭四郎・黒須博司・村山敏博(1991)多積層木質系複合材料の製造とその電磁波シールド特性及び二三の性質. 森林総合研究所研究報告, 360:171-184.
- 征木翔(1995)人体を冒す電磁波の恐怖 携帯電話が危ない!! . 31-35, 64, 75-93, KK ベストセラーズ, 東京.
- 長澤長八郎・熊谷八百三(1989)Niめっき木片を用いた木質系電磁波シールド材. 木材学会誌, 35:1092-1099.
- 渋沢龍也・信田聡・大熊幹章(1993)金属を混合したパーティクルボードの熱的性質(第1報), 金属を混合したパーティクルボードの製造と基礎的物性. 木材学会誌, 39:642-649.

Demographic genetics of Siebold's beech (*Fagus crenata*) populations on the Tanzawa Mountains, Kanagawa, central Honshu, Japan. I. Genetic substructuring among plots and size classes*¹

Kohei TAKENAKA*^{2,3}, Keiko KITAMURA*⁴, Kengo FURUBAYASHI*², and Shoichi KAWANO*^{5,6}

Fagus crenata (Siebold's beech) is one of the major climax tree species in cool-temperate deciduous forests of Japan, and possesses a long life span, often exceeding ca. 250 years. On the west Tanzawa Mountains in Kanagawa Prefecture, typical beech forest stands of the Pacific type have developed, but rapid deterioration of beech populations by many biotic and abiotic factors in this area has been noted in recent years. In the present study, we have thus critically analyzed the demographic-genetic structures and changes in the beech populations in Tanzawa, with the main emphasis on the following two aspects: i) genetic substructuring among isolated local populations in Tanzawa, and ii) genetic differentiation among different size classes within local populations. Five transects were established as study plots. Tree locations of each sampling plot were first recorded, and then size measurements and leaf samplings were made for all the beech individuals including seedlings, juveniles, and mature trees for each study plot. Thirteen allozyme loci with 53 alleles in 11 enzyme systems were used as genetic markers. Size class distributions and genetic components were different among the different study sites. Genetic diversities were high in the center of the beech forests, but low at the forest edge and in isolated populations. Wright's *F*-statistics revealed genetic differentiation among the size classes. The genetic structures of each study population were obviously affected by the size class structures of each population. Significant *F_{IT}* was observed in the isolated and fragmented populations and also in the topographically complex subdivided populations. The patterns of genetic differentiation among the plots and size classes seemed to be affected by the degree of regeneration success of beech seedlings. The unique patterns of genetic substructuring found in the local populations with overlapping generations were also discussed in view of conservation biology.

Keywords : *Fagus crenata*, allozyme, conservation biology, demographic genetics, size class structure

1. INTRODUCTION

Recent progress in demographic genetics has proved that spatio-temporal genetic substructuring of plant populations is very complex, and this new approach is useful for analyzing the mechanisms of population differentiation (Hamrick and Nason,

1996; Kawano and Kitamura, 1997; Kitamura *et al.*, 1997 a, b, 1998, 2000, 2001 in press). In particular, woody plant species have long life spans, often exceeding several hundred years, and thus consisting of overlapping generations. Reflecting such backgrounds, we can expect to find complex patterns of demographic-genetic differentiation in the popula-

*¹ Received Sept. 7, 2001; Accepted Nov. 12, 2002

*² Department of Ecoregion Science, Faculty of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo 183-0054, Japan

*³ Division of Bioscience, Graduate School of Environmental Earth Science, Hokkaido University, Sapporo, Hokkaido 060-0810, Japan

*⁴ Forestry and Forest Products Research Institute, Kukizakicho, Ibaraki 305-8687, Japan

*⁵ Department of Botany, Graduate School of Science, Kyoto University, Sakyo, Kyoto 606-8502, Japan

*⁶ Professor Emeritus of Kyoto University: Present address: 303-204 Grenntown Makishima, Makishima-cho, Motoyashiki 51-1, Uji, Kyoto 611-0041, Japan

tions of woody species.

Siebold's beech (*Fagus crenata* BLUME) is a major tree species of the northern hardwood deciduous forests in Japan. This species is monoecious and wind-pollinated, and is also well known to exhibit a typical mast-flowering and fruiting (e. g. Maeda, 1988). The geographical range of Siebold's beech extends from southern Hokkaido, with its northernmost limit in the Kuromatsunai depression on the Oshima Peninsula, to the Japan Sea side of northern, central and south-western Honshu, and further to the scattered mountains on the Pacific coast of Honshu, Shikoku, and Kyushu (Miyawaki, 1967; Kitamura and Murata, 1979). This species is also well known to have a sharp geocline in leaf size (Hagihara, 1977) and rich genetic variations within its geographical range (Hashizume and Sugimoto, 1980; Nagano and Nasu, 1991; Nagata *et al.*, 1991; Kitamura *et al.*, 1992, 1997 a, b; Takahashi *et al.*, 1994, 2000; Kawano and Kitamura, 1997; Tomaru *et al.*, 1997, 1998; Koike *et al.*, 1998; Ohkawa *et al.*, 1998).

Abnormal withering of a large number of beech trees has been reported from the Tanzawa Mountains since the 1980's, especially along the ridges, which is now considered to be due to air pollution (Koeji and Suzuki, 1993; Maruta and Usui, 1997; Hirano, 1998). Their symptoms show strong effects of air pollutant deposition via fog and dew droplets absorbing gaseous sulfur and nitrogen dioxides carried by wind from the Keihin industrial zone and Tokyo Metropolitan areas over the past number of years. It is surprising to find that fog and dew droplets are highly acidic, often attaining pH 2 to 4 (Hosono *et al.*, 1994; Igawa, 1999; Igawa *et al.*, 1997, 1998).

Such an extraordinary rapid withering of mature trees in the forest stands may cause not only fragmentation and isolation of specific tree populations, but also decomposition of forest communities as a whole. Neither seedlings nor juveniles may be able to regenerate successfully in the Tanzawa populations under such circumstances. In the present study, we have conducted a detailed analysis to shed light upon the changes in the demographic-ge-

netic substructuring of the local beech populations in Tanzawa from the viewpoint of conservation biology (Hanski and Gilpin, 1997; Niemelä, 2001).

Over the last couple of decades, a number of studies on the genetic structures of natural plant populations have been conducted (e. g., Hamrick and Nason, 1996; Ouborg *et al.*, 1999; Wang and Szmidt, 2001). Most of these studies, however, were on the genetic variations within and among populations, and/or genetic differentiation of local populations and subpopulations in relation to their mating systems. For long-lived woody plant populations, it is important to analyze the genetic structures of populations in terms of specio-temporal context covering overlapping generations (Kawano, 1975; Alvarez-Buylla and Garay, 1994; Kitamura and Kawano, 1996; Kawano and Kitamura, 1997; Kitamura *et al.*, 1997 b, 2000, 2001 in press; Li *et al.*, 2001).

The purpose of this paper is to report the results of demographic-genetic analyses on the Siebold's beech populations in the west Tanzawa Mountains, focusing on the effects of the population fragmentation and isolation due to various external factors, including air pollution. A strong predation pressure by sika deer (*Cervus nippon*) is another factor in forest deterioration in the west Tanzawa Mountains, and thus we need to pay special attention to such biotic interactions as well.

2. MATERIALS AND METHODS

2.1 Study species

Siebold's beech is one of the representative deciduous broad-leaved trees in the cool-temperate climax forests in Japan (Ohwi, 1965), and is known to form two contrasting forest community types (Miyawaki, 1967). One occurs on the Japan Sea side of Hokkaido and Honshu, and normally forms large populations (although extremely fragmented and isolated populations are also known along the Japan Sea coast of Honshu: Ohkawa *et al.*, 1998; Kawano *et al.*, unpubl. obs.), while the other scatters as small to medium-sized isolated populations in the montane zone of the Pacific side. The communities on

the Japan Sea side are mainly dominated by *Fagus crenata*, coexisting with *Acer mono*, *Fraxinus sieboldiana*, *Tilia japonica*, *Quercus crispula*, *Acanthopanax sciadophylloides*, *Kalopanax pictus*, and *Magnolia hypoleuca*, whereas those on the Pacific side are dominated by *Fagus crenata* and *F. japonica*, often mixed with several other deciduous hardwoods and conifers, such as *Carpinus* spp., *Acer* spp., *Quercus crispula*, *Tilia japonica*, *Zelkova serrata*, *Kalopanax pictus*, *Abies firma*, *A. homolepis*, and *Tsuga sieboldii* (Konta, 1991).

2.2 Study site

The Tanzawa Mountains are located at the border of Kanagawa and Yamanashi Prefectures on the Pacific side of Honshu (Fig.1). Most areas of the woodlands below the altitude of 800 m above sea level (Ohno and Ozeki, 1997 a) are dominated by artificial Japanese Red Cedar (*Cryptomeria japonica*) and Hinoki Cypress (*Chamaecyparis obtusa*) plantations maintained for the past 100 years. *Tsuga*

sieboldii stands and *Fagus crenata*–*F. japonica* mixed stands cover the montane zone at the altitudes of 800–1200m. Above 1200m in altitude, Siebold's beech is dominant in the deciduous forests (Ohno and Ozeki, 1997 a), with *Fraxinus lanuginosa*, *Acer amoenum*, *Cornus kousa*, *Meliosma myriantha*, *Tilia japonica*, *Clethra barvinervis*, *Styrax japonica*, *Alnus hirsuta*, *Magnolia hypoleuca*, and *Carpinus cordata* also being found. Beech forests on the Tanzawa Mountains accompany dwarf bamboos in the underlayer of the forests (*Sasa hayatae* in the higher elevation sites, but *Sasamorpha borealis* at the lower elevation). *Sasamorpha borealis* is a characteristic component of beech forests on the Pacific side (Miyawaki, 1967), as well in the Tanzawa Mountains. Beech forests are often scattered on gentle slopes and/or flat ridges on the Tanzawa Mountains.

2.3 Study plots

Five study plots were established in the west Tanzawa Mountains (Fig.1). Profiles of each study

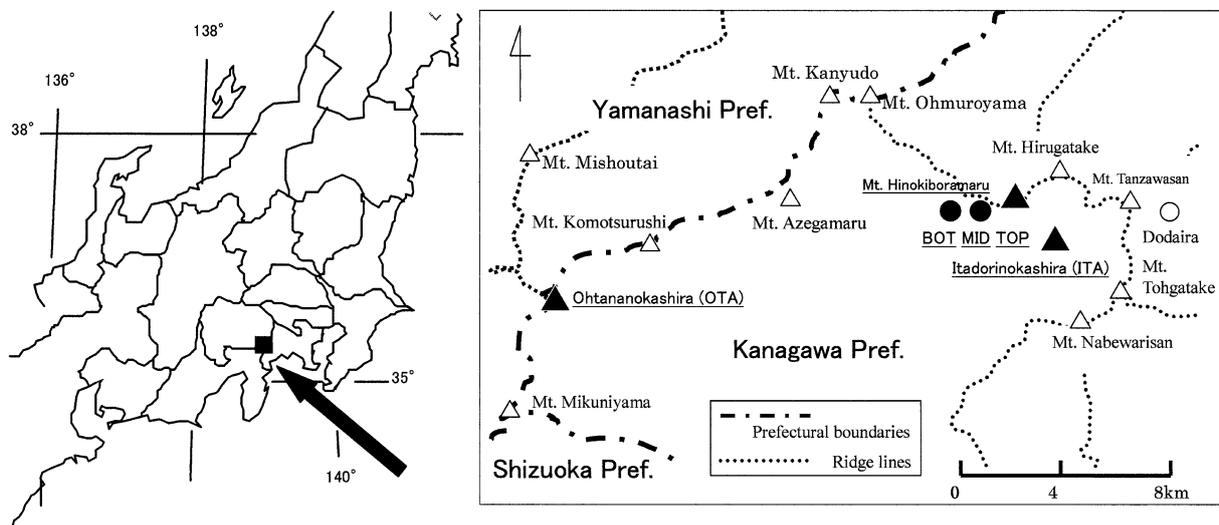


Fig. 1. Study plots in the west Tanzawa Mountains, Kanagawa Prefecture.

Table 1. Profiles of each study plot.

Study plot	Location	Altitude (m)	Plot size (ha)	Plot shape (m×m)	Number of individuals	Individual density (/ha)
TOP	The top of Mt. Hinokiboramaru	1,600	0.25	100×25	39	156.0
MID	Middle of Higashisawa ridge	1,200–1,400	3.67	*	195	53.1
BOT	Bottom of Higashisawa ridge	1,000	0.56	70×80	40	71.4
ITA	The top of Itadorinokashira	1,196	2.40	200×120	138	57.5
OTA	The top of Ohtananokashira	1,268	0.64	80×80	84	131.3

*A total of eight 50×50m, one 15×40m, 25×25.5m, 50×70m, 50×120m and 70×100m quadrats.

plot are summarized in Table 1. The plot TOP is near the top of Mt. Hinokiboramaru. It is located in the midst of one of the most damaged parts of beech forests on the Tanzawa Mountains, where many individuals are badly damaged due to air pollution (Koeji and Suzuki, 1993; Hosono *et al.*, 1994; Maruta and Usui, 1997; Igawa *et al.*, 1997, 1998; Hirano, 1998; Igawa, 1999). Dwarf bamboos on the forest floor are sparse because of feeding pressure by sika deer, so that they have been replaced by other herbaceous species, such as *Veratrum album*, *Ligularia dentata*, and *Aconitum* spp., which contain alkaloids and some other toxic substances, and are thus disliked by deer (Appendix Ia).

The plot MID is located halfway down the Higashisawa ridge, which stretches from the top to the bottom of Mt. Hinokiboramaru. Beech forests in MID are formed on the complex topography of the Higashisawa ridge with steep ridges and valleys. The plot BOT is located at the bottom of the Higashisawa ridge. In the plot BOT, Siebold's beech and Japanese beech (*F. japonica*) coexist together with the same cover degree. This plot is regarded to be located at the edge of beech distribution on the Higashisawa ridge. Beech forests in MID and BOT on Higashisawa ridge accompany dense dwarf bamboo thickets in the forest understory (*Sasa hayatae* and *Sasamorpha borealis* above and below ca. 1,300 m in altitude, respectively) (Appendix Ib, c).

The plots ITA and OTA are neighboring populations of the Higashisawa ridge (Fig.1). The plot ITA is located on the top of Itadorinokashira, a peak on the ridge that continues to Mt. Hinokiboramaru. It is a fragmented population scattered on the flat peak and dwarf bamboo on the forest floor is sparse (Appendix Id). OTA is located on the top of Oh-tananokashira (Appendix Ie). This is an isolated population on the edge of the west Tanzawa Mountains. Dwarf bamboo density on the forest floor changes drastically in this plot.

According to the plant sociology, TOP is classified into the *Miricacalio - Fagetum* retrogressive phase, MID and ITA into *Corno-Fagerum crenatae*, BOT into *Fagerum crenato-japonicae* (Ohno and Ozeki, 1997 b), and OTA is a *Styrax obassia-Fagus*

japonica community (Miyawaki, 1977).

Leaf sampling, mapping location and size measurement (diameter at breast height [DBH] or diameter at ground height [DGH]) of all 496 individuals that occur within these plots were made in May 1998 at TOP, August 1998 at ITA and OTA, August 1998 and August 1999 at MID, and August 2000 at BOT. Collected leaves were brought into the laboratory under low temperature conditions on ice, and then stored at -80°C in the deep-freezer until the enzymes were extracted.

2.4 Allozyme analyses

One hundred milligrams of leaf tissue from each individual plant was ground to a powder with liquid nitrogen and homogenized with 1.5ml extract buffer made up of 0.1 M Tris-HCl (pH 7.5), 25% (v/v) glycerol, 1% (v/v) Tween 80, 10 mM DTT, 1% (v/v) 2-mercaptoethanol and 70 mg/ml polyvinylpyrrolidone (Shiraishi, 1988). The homogenates were centrifuged at 20,000 $\times g$ for 20 minutes at 4°C . Fifteen microliters of the resulting supernatant was used for electrophoresis for each enzyme. Polyacrylamide vertical slab gel electrophoresis was conducted according to the methods of Davis (1964) and Orstein (1964). Seven percent running gel and 3% spacer gel were used. Electrophoresis was carried out at 4°C , 12.3 mA/cm² for 150 minutes. The procedures used in detection of diaphorase (DIA) followed those of Richardson *et al.* (1986). The method of gel staining for aconitase (ACO) and isocitrate dehydrogenase (IDH) followed that of Soltis and Soltis (1989). Enzymatic assays for alanin aminopeptidase (AAP), aspartate aminotransferase (AAT), amylase (AMY), fumarase (FUM), leucine aminopeptidase (LAP), phosphogluco isomerase (PGI), phosphoglucomutase (PGM) and 6-phosphogluconate dehydrogenase (6PG) followed those of Shiraishi (1988).

Thirteen putative loci were scored for all the individuals. The interpretations of zymograms were based on the quaternary structure of each enzyme (Weeden and Wendel, 1989). According to the zymograms, individual phenotypes were interpreted into genotypes.

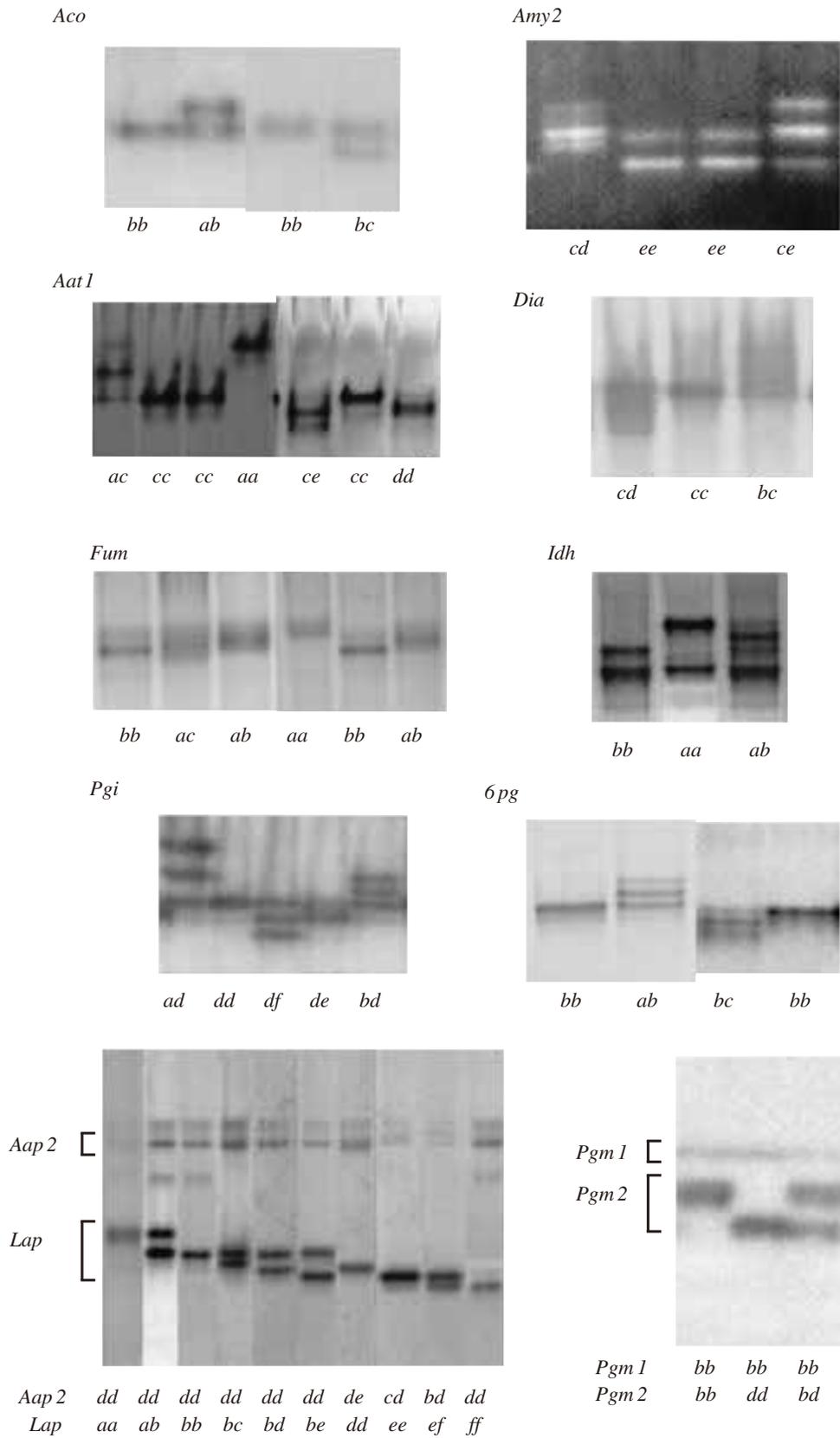


Fig. 2. Zymograms for representative genotypes.

Table 2. Size class discrimination and each number of individuals.

Size class		TOP	MID	BOT	ITA	OTA
Class 0	DGH ¹⁾ <1cm	0	1	0	41	14
1	1 ≤ DBH ²⁾ <20cm	6	39	27	23	19
2	20 ≤ DBH <40cm	13	61	6	19	27
3	40 ≤ DBH <60cm	11	59	4	21	14
4	60 ≤ DBH <80cm	7	32	3	17	9
5	80cm ≤ DBH	2	3	0	17	1

¹⁾ Diameter at ground height

²⁾ Diameter at breast height

2.5 Data analyses

2.5.1 Allozyme variability among plots and size classes

All the individuals were divided into six size classes based on their diameters (Table 2). Multi-locus genotypes (MLG) of individuals were determined based on the combination of 13 polymorphic loci. The number of MLG per individual (uniqueness index), genotype frequencies, allele frequencies, mean observed heterozygosity (H_o) and expected heterozygosity (H_e) were calculated for each polymorphic locus, plot and size class.

2.5.2 Genetic differentiation among plots and size classes

Weir and Cockerham's (1984) estimates of Wright's (1951) F -statistics (F_{IT} , F_{ST} , and F_{IS}) were used to characterize the overall genetic subdivision. The extent of inbreeding in all the populations combined (F_{IT}) was partitioned into inbreeding due to non-random mating in each subpopulation (F_{IS}) and inbreeding due to the correlation among alleles caused by their occurrence in the same subpopulation (F_{ST}). The relationship among F_{IT} , F_{ST} , and F_{IS} is: $(1 - F_{IT}) = (1 - F_{ST})(1 - F_{IS})$.

Calculations were made among size classes and/

or plots using FSTAT (Goudet, 2000). The significances of F_{IT} , F_{ST} , and F_{IS} per locus and overall loci were tested against the null hypotheses, namely F_{ST} is not greater than zero, and F_{IT} or F_{IS} does not deviate from zero, obtained by 1, 300–7, 800 permutations. Whether or not there is a significant genetic differentiation among plots or size classes is assessed by F_{ST} being significantly greater than zero.

3. RESULTS

3.1 Allozyme variability among plots

Thirteen loci (Fig.2; *Aap 2*, *Aat 1*, *Aat 3*, *Amy 2*, *Aco*, *Dia*, *Fum*, *Idh*, *Lap*, *Pgi*, *Pgm 1*, *Pgm 2*, *6pg*) with a total of 53 alleles were scored in 11 enzyme systems. All of them were revealed to be polymorphic within plots except for *Aco* in BOT and OTA, and *Pgm 1* in TOP and ITA (Appendix II and III).

The number of individuals, number of MLG and uniqueness indices for each plot are shown in Fig.3. Uniqueness index was 1.0 in TOP, high in MID and BOT, while those in ITA and OTA were low.

The values of H_e and H_o are shown in Table 3. The expected heterozygosity (H_e) dropped gradually from TOP, MID to BOT, and appeared to be small in ITA and OTA. Both H_e and H_o were ob-

Table 3. Expected heterozygosity* (H_e) and observed heterozygosity (H_o) for each locus and plot.

		<i>Aap2</i>	<i>Aat1</i>	<i>Aat3</i>	<i>Aco</i>	<i>Amy2</i>	<i>Dia</i>	<i>Fum</i>	<i>Idh</i>	<i>Lap</i>	<i>Pgi</i>	<i>Pgm1</i>	<i>Pgm2</i>	<i>6pg</i>	average
H_e	TOP	.026	.213	.129	.026	.543	.235	.487	.165	.640	.372	.000	.289	.165	.253
	MID	.126	.137	.178	.025	.321	.145	.449	.168	.742	.253	.057	.421	.045	.236
	BOT	.050	.184	.050	.000	.283	.025	.500	.240	.696	.391	.025	.433	.025	.223
	ITA	.084	.050	.085	.022	.309	.112	.448	.190	.679	.220	.000	.342	.043	.199
	OTA	.036	.206	.072	.000	.293	.024	.456	.104	.717	.294	.025	.198	.024	.188
H_o	TOP	.026	.231	.135	.026	.447	.205	.385	.179	.256	.333	.000	.282	.179	.207
	MID	.123	.133	.179	.026	.277	.128	.477	.174	.408	.262	.037	.297	.046	.197
	BOT	.050	.200	.050	.000	.275	.025	.550	.275	.436	.350	.025	.625	.025	.222
	ITA	.087	.051	.080	.022	.246	.116	.457	.168	.404	.188	.000	.341	.043	.169
	OTA	.037	.183	.074	.000	.220	.024	.476	.110	.256	.309	.000	.195	.024	.147

*Calculated by FSTAT

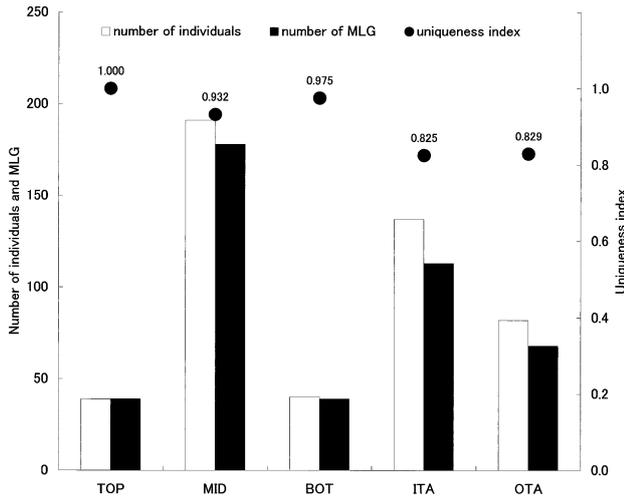


Fig. 3. Number of individuals, number of MLG and uniqueness index for each plot.

served to be lowest in OTA.

3.2 Genetic differentiation among plots

Wright's F -statistics for each locus within or among plots are shown in Table 4. All of the values, F_{IT} , F_{ST} and F_{IS} , for the overall loci showed significant positive values except for F_{IS} in BOT. All of these values were also significantly positive in *Lap*, which was exceedingly polymorphic. Other significant positive values were observed in F_{IT} for *Amy 2* and *Pgm 1*, F_{ST} for *Aat 3*, *Dia*, *Pgm 2* and *6 pg*, and F_{IS} among plots for *Amy 2*, *Dia* and *Pgm 1*.

3.3 Genetic variations among size classes

3.3.1 Size class structures, number of MLG and uniqueness index

The number of individuals, number of MLG and

uniqueness indices for each size class and plot are shown in Fig.4. No and only one individual was found in class 0 ($DGH \leq 1$ cm) in TOP and MID, respectively (Table 2). The size class distribution showed a peak in class 2 ($20 \leq DBH < 40$ cm) in TOP, MID and OTA. Except for ITA, the size class structures did not show a typical L-shape distribution, as expected in the size class distribution of a sexually regenerated population. The uniqueness indices were almost parallel except for OTA, where it gradually increased as the size class became large.

3.3.2 Differences in number of genotypes, alleles, and homozygote and heterozygote frequencies among size classes

Differences in genetic variation among six different size classes were calculated for a number of each genotype and allele, and homozygote and heterozygote frequencies of each locus for each size class (Figs.5 a-m). There were several genotypes unique to specific size classes. Those in size class 4 and/or 5 were: *Pgm 2-dd*, *Pgi-ff*, *Pgm 2-dd* in class 4 in TOP; *Lap-ab*, *Aap 2-ee*, *Pgm 1-dd* in class 4, in MID; *Pgi-be*, *bf*, in class 4 in BOT; *Aap 2-cd*, *Lap-df*, *Pgi-ad*, *ee* in class 4, and *Aat 3-bc*, *Pgi-cd* in class 5 in ITA.

The alleles unique to size classes 4 and/or 5 were *Pgm 2-d* in class 4 in TOP, *Aap 2-c* and *Lap-a* in class 4 and *Lap-c* in class 5 in ITA.

Table 4. Wright's F -statistics for each locus and plot.

locus	F_{IS}						F_{IT}	F_{ST}
	TOP	MID	BOT	ITA	OTA	total		
<i>Aap2</i>	.000	.025	-.006	-.038	-.008	.005	.012	.008
<i>Aat1</i>	-.082	.024	-.085	-.014	.111	.016	.030	.014
<i>Aat3</i>	-.047	-.006	.000	.058	-.027	.003	.013	.010 *
<i>Aco</i>	.000	-.010	-	-.005	-	-.006	-.007	.000
<i>Amy2</i>	.176	.138	.027	.203	.250	.168 *	.179 *	.013
<i>Dia</i>	.126	.116	.000	-.039	-.006	.069 *	.082	.014 *
<i>Fum</i>	.209	-.062	-.099	-.018	-.043	-.028	-.029	-.002
<i>Idh</i>	-.086	-.038	-.147	.117	-.052	-.007	-.006	.002
<i>Lap</i>	.600 *	.460 *	.374 *	.398 *	.643 *	.478 *	.496 *	.035 *
<i>Pgi</i>	.105	-.036	.106	.142	-.049	.033	.042	.009
<i>Pgm1</i>	-	.352	.000	-	1.000	.421 *	.423 *	.004
<i>Pgm2</i>	.023	.294	-.444	.003	.014	.099	.116	.019 *
<i>6pg</i>	-.086	-.017	.000	-.019	-.006	-.035	-.012	.022 *
Over all loci	.184 *	.165 *	.006	.145 *	.221 *	.157 *	.170 *	.016 *

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.

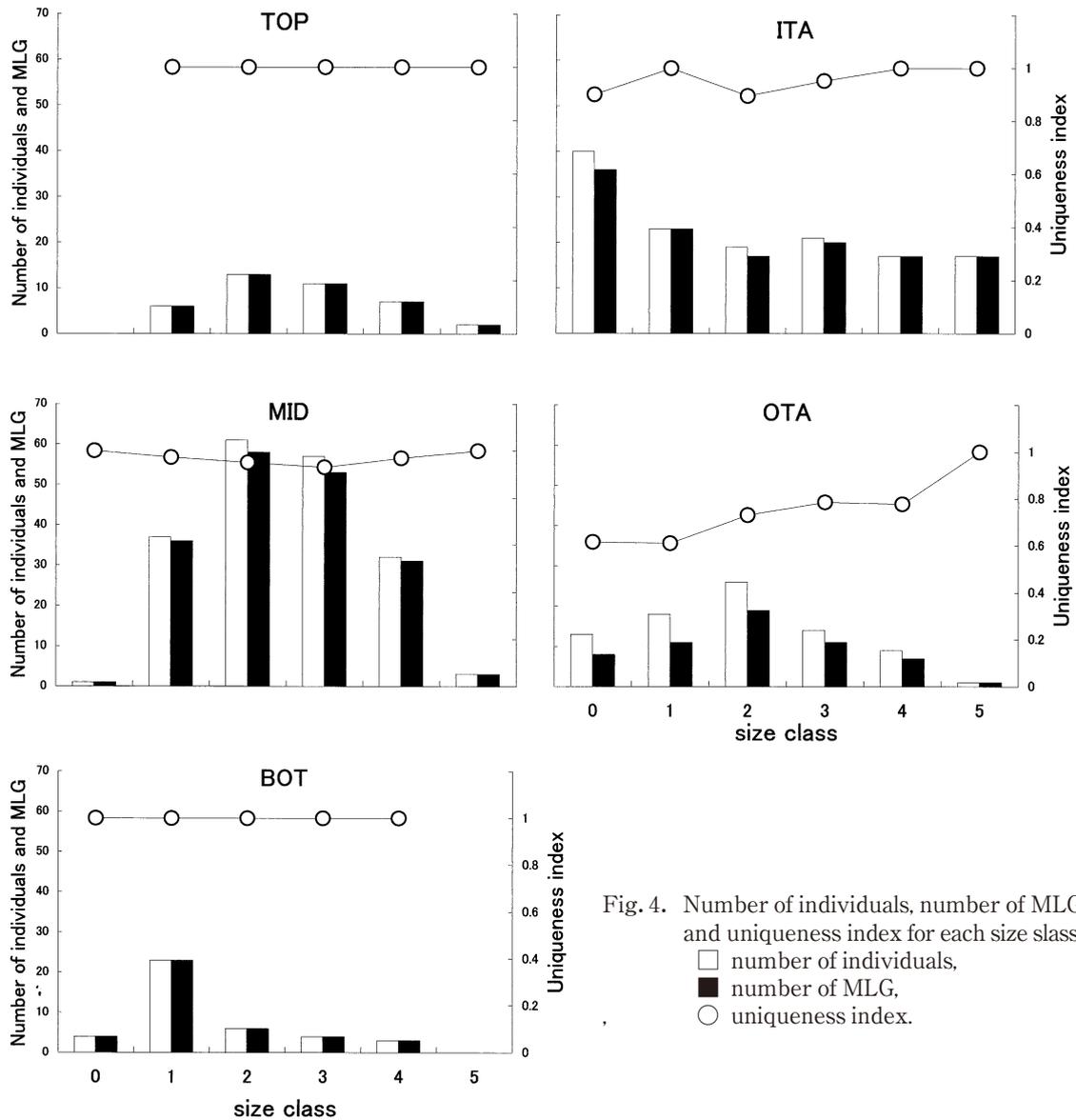


Fig. 4. Number of individuals, number of MLG and uniqueness index for each size class;
 □ number of individuals,
 ■ number of MLG,
 ○ uniqueness index.

3.3.3 *F*-statistic value among size classes

Wright's *F*-statistics for each locus within or among size classes were calculated for each plot (Tables 4 and 5 a-e). *F_{ST}* for the overall loci showed significant values at MID.

F-statistics values for several loci were observed to be significantly positive. That is, *F_{ST}* in MID, and *F_{IS}* for the total size classes in all plots and for each size class 0–2 in OTA for *Lap* ; and *F_{IT}*, *F_{ST}* and *F_{IS}* for the total and each size class 2–4 in MID for *Pgm 1*.

The values of *F_{IS}* for each size class are illustrated in Fig.6. Positive significant values were observed in class 2–4 in MID, and class 0 and 2 in OTA.

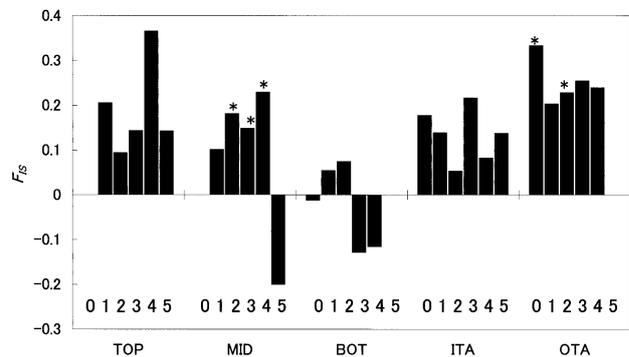


Fig. 6. Inbreeding coefficient (*F_{IS}*) for each size class. *Significantly different from zero ; p < 0.05. The numbers correspond to size class.

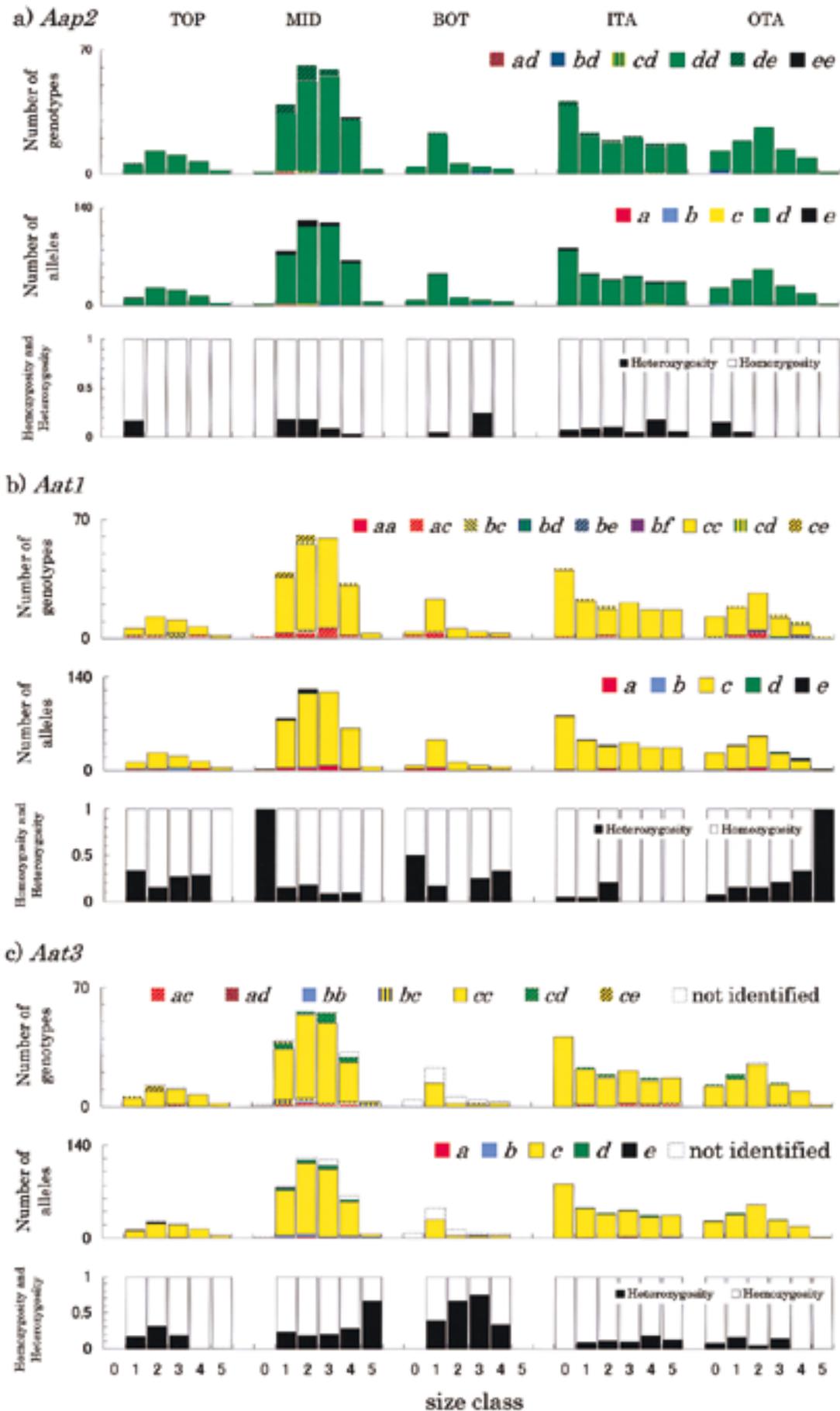


Fig. 5 a – c. Number of each genotype and allele, and homozygosity and heterozygosity for each size class and plot (continued).

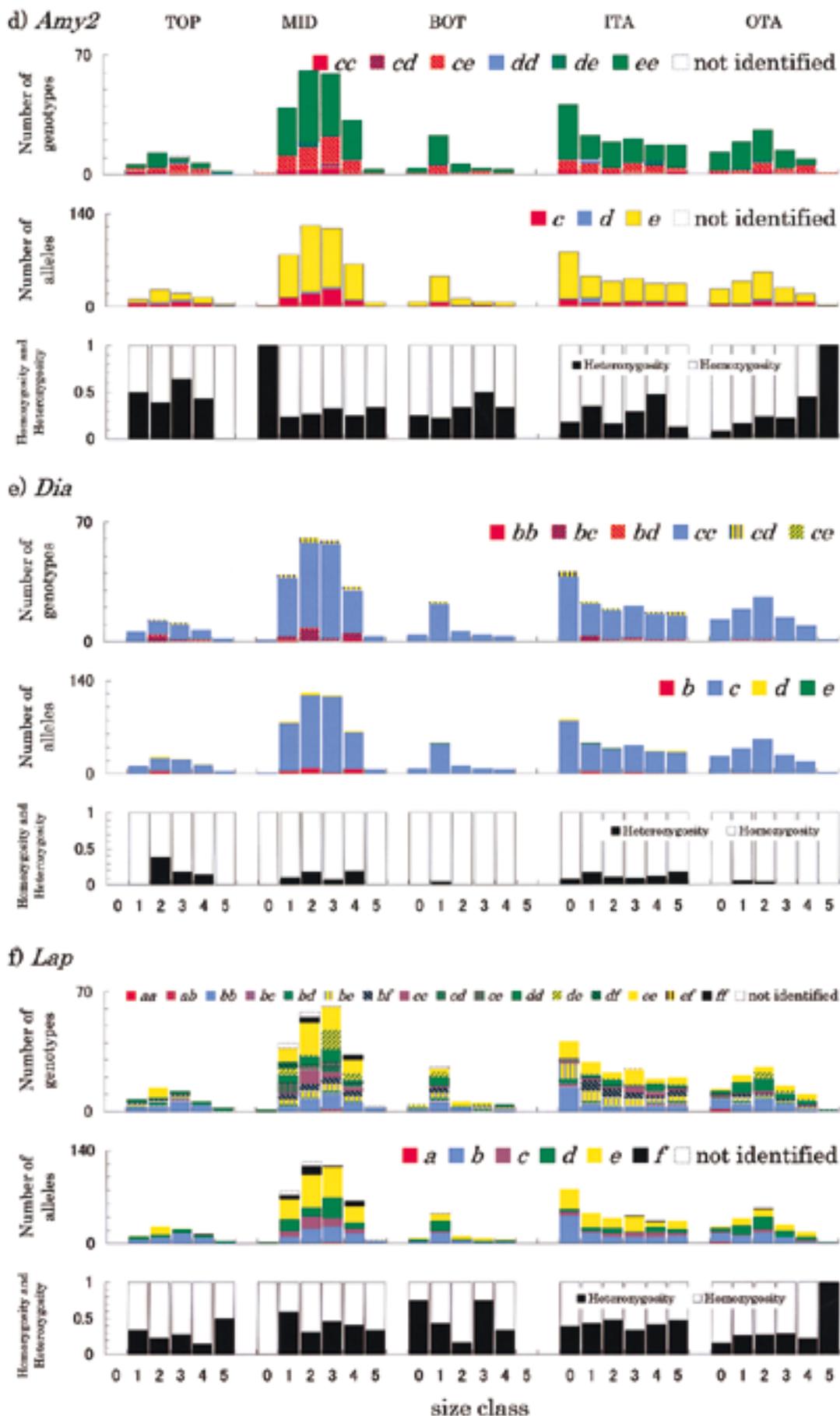


Fig. 5 d – f. Number of each genotype and allele, and homozygosity and heterozygosity for each size class and plot (continued).

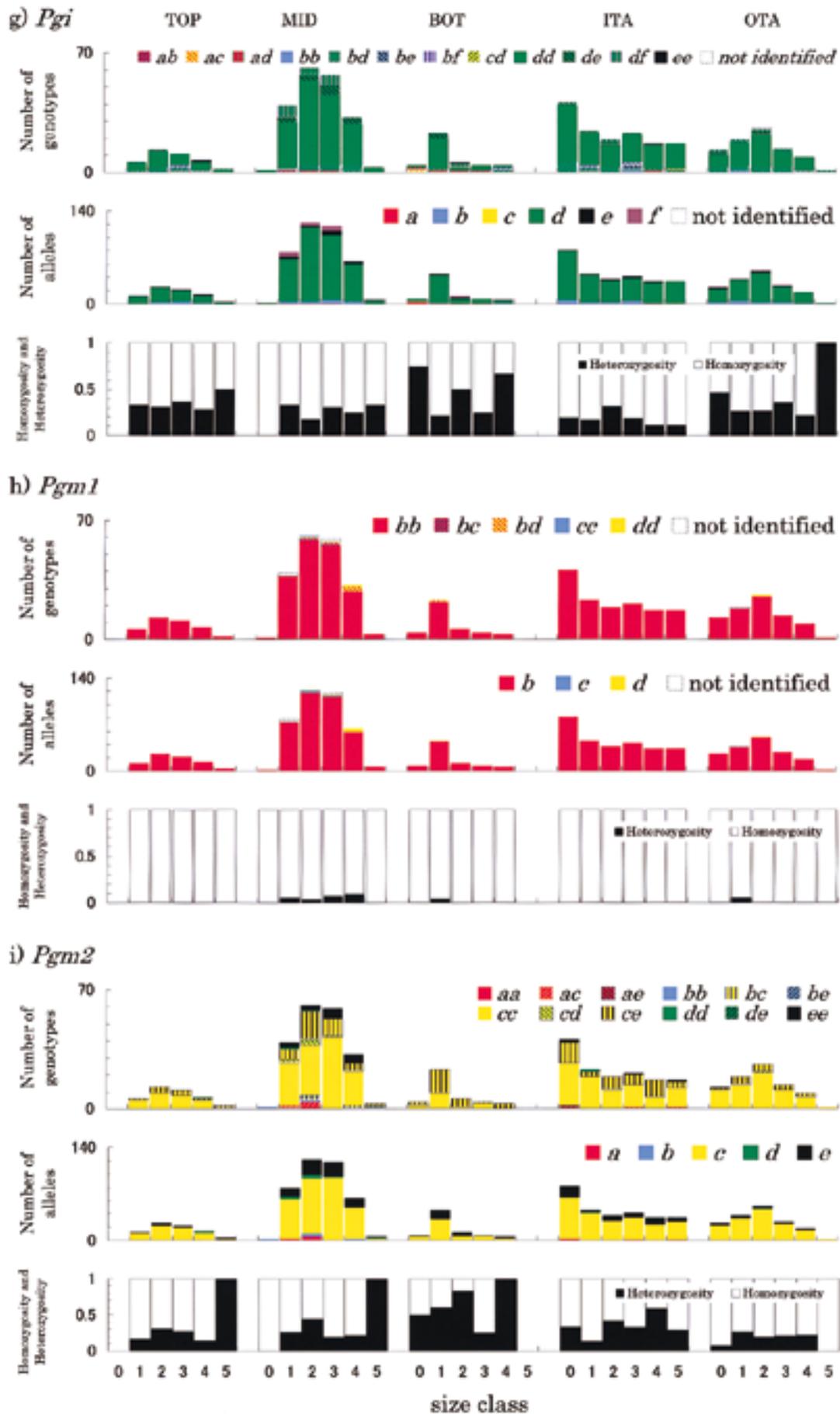


Fig. 5 g – i. Number of each genotype and allele, and homozygosity and heterozygosity for each size class and plot (continued).

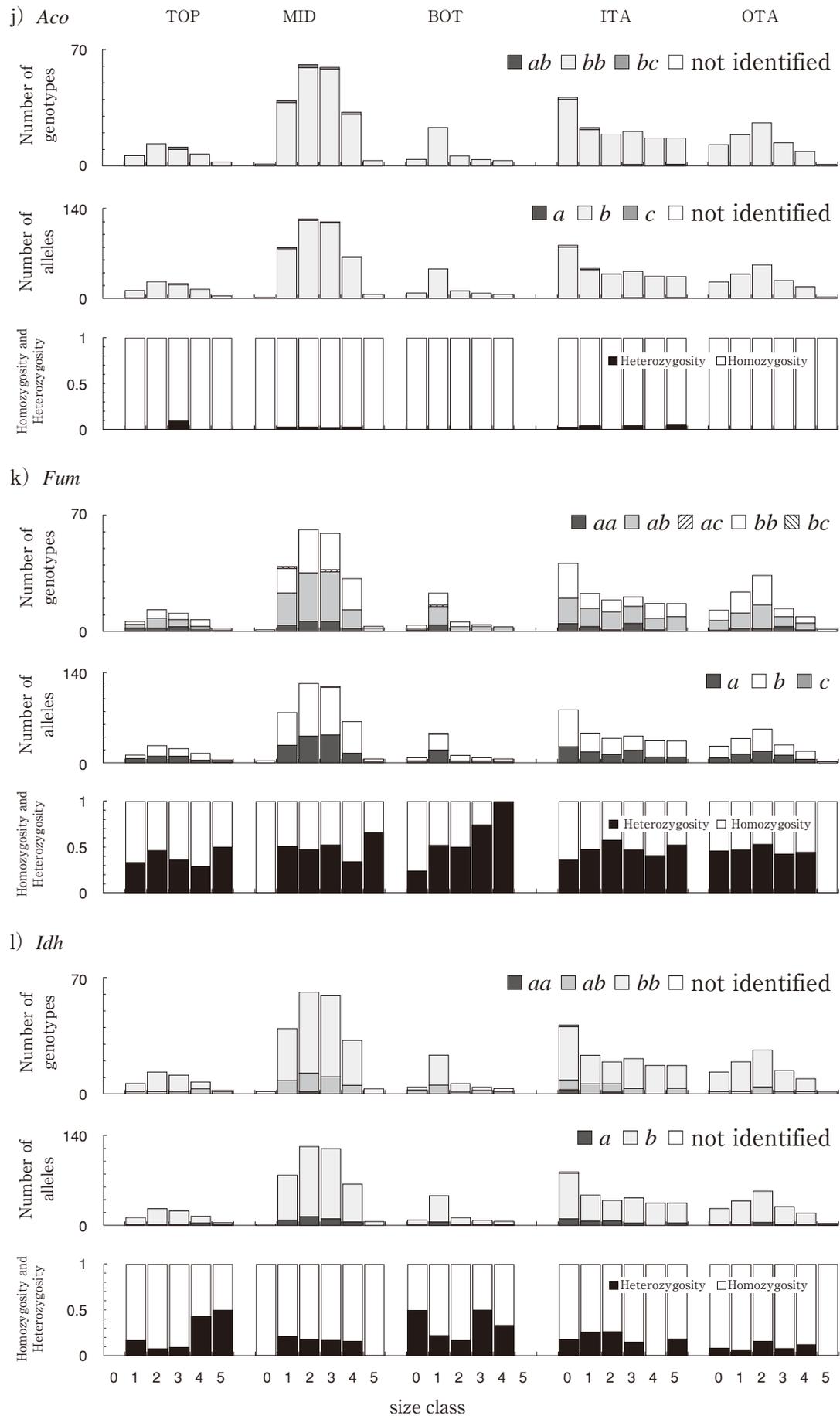


Fig. 5 j–l. Number of each genotype and allele, and homozygosity and heterozygosity for each size class and plot (continued).

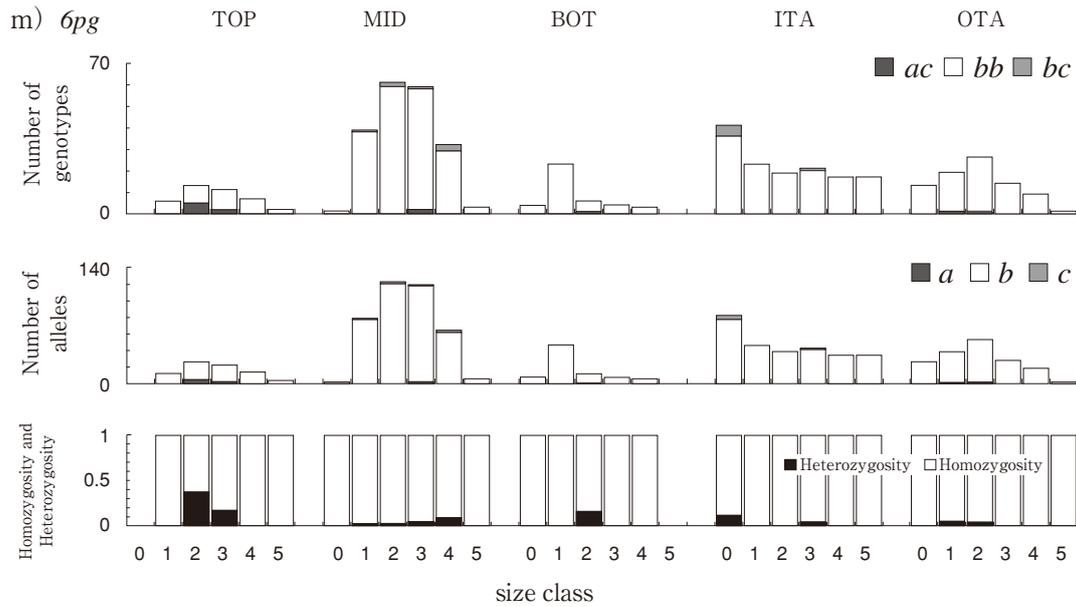


Fig. 5 m. Number of each genotype and allele, and homozygosity and heterozygosity for each size class and plot.

Table 5 a. Wright's F -statistics for each locus among or within size class. (TOP)

size class	F_{IS}						total	F_{IT}	F_{ST}
	0	1	2	3	4	5			
locus									
<i>Aap2</i>	---	---	---	---	---	---	.011	.028	.017
<i>Aat1</i>		-.053	-.021	-.111	-.091	---	.009	.026	.018
<i>Aat3</i>		.000	-.100	.000	---	---	-.011	-.010	.001
<i>Aco</i>		---	---	.000	---	---	.021	-.006	-.028
<i>Amy2</i>		.211	.024	.061	.217	1.000	.169	.177	.010
<i>Dia</i>		---	.024	-.026	.500	---	.135	.124	-.012
<i>Fum</i>		.412	.065	.310	.368	.000	.242	.199	-.057
<i>Idh</i>		.000	.000	.000	-.200	.000	-.111	-.078	.030
<i>Lap</i>		.487	.644	.469	.750	.000	.568 *	.608 *	.093
<i>Pgi</i>		-.053	-.103	.208	.429	.000	.033	.042	.009
<i>Pgm1</i>		---	---	---	---	---	.134	.096	-.043
<i>Pgm2</i>		.000	-.143	-.111	.647	-1.000	.010	.027	.017
<i>6pg</i>		---	-.200	-.053	---	---	-.128	-.074	.049
Over all loci		.206	.095	.144	.366	.143	.178 *	.186 *	.010

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.Table 5 b. Wright's F -statistics for each locus among or within size class. (MID)

size class	F_{IS}						total	F_{IT}	F_{ST}
	0	1	2	3	4	5			
locus									
<i>Aap2</i>	---	-.062	-.075	-.028	.659	---	.030	.023	-.007
<i>Aat1</i>	---	-.048	-.055	.249	-.022	---	.015	.027	.012
<i>Aat3</i>	---	-.061	.134	-.052	-.060	-.333	-.012	-.004	.007
<i>Aco</i>	---	.000	-.008	.000	.000	---	.001	-.015	-.016
<i>Amy2</i>	---	.182	.143	.165	.083	.000	.141	.136	-.006
<i>Dia</i>	---	.303	.016	-.018	.181	---	.116	.116	.000
<i>Fum</i>	---	-.080	-.057	-.100	.058	-.333	-.062	-.063	.000
<i>Idh</i>	---	-.101	.061	-.084	-.069	---	-.029	-.041	-.012
<i>Lap</i>	---	.339	.111	.419	.472	-.200	.278 *	.299 *	.028 *
<i>Pgi</i>	---	.000	-.008	-.012	-.033	---	-.012	-.018	-.006
<i>Pgm1</i>	---	.254	.629 *	.380 *	.467 *	---	.454 *	.462 *	.015
<i>Pgm2</i>	---	-.043	-.053	-.004	-.088	.000	-.035	-.036	.000
<i>6pg</i>	---	---	.493	-.004	.363	---	.346	.353 *	.011
Over all loci	---	.102	.182 *	.149 *	.230 *	-.200	.161 *	.167 *	.007 *

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.

Table 5 c. Wright's F -statistics for each locus among or within size class. (BOT)

size class	F_{IS}						total	F_{IT}	F_{ST}
	0	1	2	3	4	5			
locus									
<i>Aap2</i>	---	.000	---	.000	---	---	-.013	-.003	.009
<i>Aat1</i>	-.200	-.054	---	.000	.000	---	-.089	-.083	.006
<i>Aat3</i>	---	---	---	.000	---	---	-.231	.155	.314
<i>Aco</i>	---	---	---	---	---	---	---	---	---
<i>Amy2</i>	.000	.197	-.053	-.200	.000	---	.069	.002	-.072
<i>Dia</i>	---	.000	---	---	---	---	.045	-.027	-.075
<i>Fum</i>	.571	.009	-.250	-.500	-1.000	---	-.071	-1.116	-.042
<i>Idh</i>	-.200	-.100	.000	-.200	.000	---	-.130	-.157	-.024
<i>Lap</i>	-.059	.431	.750	-.059	.600	---	.394 *	.363	-.052
<i>Pgi</i>	-.125	-.063	.250	.000	.111	---	.012	.151	.141
<i>Pgm1</i>	---	.000	---	---	---	---	.045	-.027	-.075
<i>Pgm2</i>	-.200	-.419	-.667	.000	-1.000	---	-.461	-.435	.018
<i>6pg</i>	---	---	.000	---	---	---	-.024	.013	.037
Over all loci	-.012	.055	.075	-.129	-.116	---	.006	.007	.001

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.Table 5 d. Wright's F -statistics for each locus among or within size class. (ITA)

size class	F_{IS}						total	F_{IT}	F_{ST}
	0	1	2	3	4	5			
locus									
<i>Aap2</i>	-.026	-.023	-.029	.000	-.043	.000	-.027	-.041	-.014
<i>Aat1</i>	-.006	.000	-.051	---	---	---	-.030	-.011	.019
<i>Aat3</i>	---	-.011	-.029	.316	-.043	-.016	.055	.058	.004
<i>Aco</i>	---	.000	---	.000	---	.000	-.003	-.005	-.002
<i>Amy2</i>	.286	.193	.333	.121	-.191	.614	.208	.202	-.007
<i>Dia</i>	-.026	-.054	-.014	-.026	-.016	-.043	-.035	-.040	-.005
<i>Fum</i>	.149	-.004	-.261	.070	-.028	-.333	-.022	-.017	.004
<i>Idh</i>	.326	-.128	.151	-.053	---	-.067	.109	.118	.010
<i>Lap</i>	.347	.334	.383	.477	.481	.349	.388 *	.400 *	.019
<i>Pgi</i>	-.072	.150	-.096	.435	.480	-.016	.147	.141	-.007
<i>Pgm1</i>	---	---	---	---	---	---	---	---	---
<i>Pgm2</i>	.080	.365	-.241	.060	-.391	.158	.000	.004	.004
<i>6pg</i>	-.053	---	---	.000	---	---	-.036	-.015	.020
Over all loci	.178	.139	.054	.217	.083	.138	.141 *	.146 *	.006

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.Table 5 e. Wright's F -statistics for each locus among or within size class. (OTA)

size class	F_{IS}						total	F_{IT}	F_{ST}
	0	1	2	3	4	5			
locus									
<i>Aap2</i>	-.043	.000	---	---	---	---	-.026	-.004	.022
<i>Aat1</i>	.000	-.038	.160	.204	.172	---	.096	.114	.020
<i>Aat3</i>	.000	-.059	---	-.020	---	---	-.030	-.026	.004
<i>Aco</i>	---	---	---	---	---	---	---	---	---
<i>Amy2</i>	.647	-.038	.302	.328	.059	---	.240	.252	.016
<i>Dia</i>	---	.000	.000	---	---	---	.015	-.012	-.027
<i>Fum</i>	-.043	-.025	-.171	.161	.059	---	-.024	-.048	-.023
<i>Idh</i>	.000	.000	-.064	.000	.000	---	-.082	-.044	.035
<i>Lap</i>	.789 *	.630 *	.632 *	.595	.706	---	.649 *	.641 *	-.022
<i>Pgi</i>	-.152	.193	-.071	-.111	-.067	---	-.040	-.051	-.010
<i>Pgm1</i>	---	---	1.000	---	---	---	1.000	1.000	-.049
<i>Pgm2</i>	.647	-.125	-.068	-.083	-.067	---	.041	.007	-.036
<i>6pg</i>	---	.000	.000	---	---	---	.015	-.012	-.027
Over all loci	.323 *	.187	.229 *	.239	.240	---	.228 *	.220 *	-.010

*Test of significance by 1300 permutations for F -statistics; $p < 0.05$.

4. DISCUSSION

4.1 Allozyme variability and differentiation among plots

Expected heterozygosity had the highest value in TOP, and gradually dropped along MID, BOT, and showed lower values in ITA and OTA. The uniqueness index was 1.0 in TOP, which means every individual has a different MLG to each other. The uniqueness index was also high in MID and BOT, while those in ITA and OTA were relatively low. The plots TOP, MID and BOT had a small number of seedlings (zero, one and four, respectively). It was reported that in the beech populations of the Ogawa Forest Preserve, Ibaraki Prefecture, many of the beech seedlings shared the same MLG as each other (Kitamura *et al.*, 1997 a). Thus, the uniqueness index must be discussed in relation to size class structures. The uniqueness indices were relatively low in size class 0 and 2 in ITA; whereas those in OTA gradually increased as size class became larger, although the values were lower than those of other plots except for size class 5. This shows that genotypic variations are relatively low in OTA, regardless of differences among size class structures in the other plots.

Ohkawa *et al.* (1998) reported that fragmented and isolated small lowland beech populations in Toyama on the Japan Sea side of Honshu had conspicuously lower genetic variability compared to large continuous montane populations of Tateyama. Physical distances might strictly limit the gene flow among/between beech individuals and populations, and thus the extent of the gene flow within or between populations, and the resultant genetic drift may play significant roles in determining the levels of genetic variability and degrees of differentiation among populations. Beech is monoecious, and a typical anemochore. According to our recent analysis on the gene dispersal from mother trees with different genotypes, a sharp decline of gene flow occurs within a range of at most 10 to 25 m in the case of American beech (*Fagus grandifolia*) populations (Kitamura *et al.*, unpubl. data and in prep.). The pollen dispersal range within the woodland is thus

rather limited. A somewhat similar situation might be the case in Siebold beech too.

A significant positive value of F_{ST} indicates various levels of differentiation among plots reflecting spatial subdivisions in the west Tanzawa Mountains (Table 4). Differences of genetic parameters, such as H_e , H_o , and uniqueness indices among different plots in the west Tanzawa Mountains might also reflect the locations and population size of each plot, from the midst to the edge (TOP-MID-BOT) along the Higashisawa ridge, and to fragmented and/or to isolated patch populations (ITA and OTA).

In the Tanzawa Mountains, many beech trees have been damaged, mainly by air pollution, since the 1980's, especially along the ridges (Koeji and Suzuki, 1993; Maruta and Usui, 1997; Hirano, 1998; Hosono *et al.*, 1994; Igawa, 1999; Igawa *et al.*, 1997, 1998). Fragmentation and isolation of beech populations due to rapid withering of mature beech trees have also been taking place in the populations developed on the ridges near peaks and slopes with steep valleys. We could expect a rapid loss of genetic diversity within or among local populations, just as was found in the fragmented and isolated beech populations on the Toyama plain (Ohkawa *et al.*, 1998), because effective gene flow among mature individuals will decline sharply due to the sudden death of mature trees within a patch population or subpopulation.

4.2 Genetic differentiation within plots

The values of F_{IT} for TOP, MID, ITA and OTA were significantly positive (Tables 5 a-e). Important factors that cause F_{IT} to deviate greater than zero are an indication of non-random mating, such as inbreeding and assortative mating, parental inbreeding, the Wahlund effect by population subdivision, homozygote preferring selection and random genetic drift (Nei, 1987). Each significant positive value of F_{IT} might be due to; 1) random genetic drift by losing many individuals rapidly since the 1980's in TOP due to air pollution, 2) further population subdivisions based on topography in MID, 3) inbreeding among a limited number of mature trees

and limited gene flow from neighboring populations by fragmentation and isolation in ITA and OTA, respectively.

The values of F_{IS} for size class 2–4 in MID and class 0 and 2 in OTA were significantly positive (Fig.6). These size classes must contain considerably aged individuals because beech is long-lived, often attaining ca. 250 years old. Previous research on the beech forests on the Japan Sea side reports that it takes ca. 90 years on an average for a beech tree to reach 20 cm in DBH (size class 2 ranges 20–40 cm) (Asano, 1983). Growth of the trees also depends on the site-specific environment where each individual is established. Taking into account the significant positive values of F_{IS} for size class 2–4, it can be assumed that the plots MID and OTA have been influenced by population subdivisions and population fragmentation over a relatively long period of time.

4.3 Genetic heterogeneity among size classes and its conservation through regeneration of beech forests

Beech populations are normally composed of exceedingly complex overlapping generations, which have been maintained by past repeated reproductive events. Genetic components of mother trees directly affect the genetic substructuring of seedlings. Such aspects have been shown in a series of our recent demographic genetic analysis on the American beech populations (Kitamura *et al.*, 2000, 2001, and unpubl. obs. and in prep.). In reproductive events related to the mast-fruiting every several years, the genetic components of mother trees may change by the death of old individuals and by recruitment of young individuals reaching the reproductive stage. And it can also be assumed that environmental changes may cause the levels of genetic heterogeneity among different generations. Significantly positive F_{ST} among different size classes was observed in MID (Table 5 b), indicating the presence of genetic heterogeneity among different size classes. Heterogeneity among size classes is due to differences in allele frequency, including rare genotypes with rare alleles in specific size classes (Figs.

5). The amount of genetic diversity revealed in the present study, existing in each size class heterogeneously, indicates the total level of genetic diversity included in the local beech populations on the Tanzawa Mountains.

Kitamura *et al.* (1997 a) reported that, based on the number of unique MLG found in the seedling populations, there is no doubt that newly borne seedlings are contributing, by an increasing degree, to the total genetic diversity of local populations. Dense seedling covers are normally present in the surroundings of specific mother trees, showing an exceedingly high level of genetic heterogeneity in the seedling stage.

In Tanzawa populations, the number of individuals in size class 0 were, however, exceedingly low in TOP, MID and BOT (zero in 0.25 ha, 0.27 ha⁻¹ and 7.14 ha⁻¹, respectively), while those in ITA and OTA were even lower (21.88 ha⁻¹ and 17.08 ha⁻¹, respectively), compared to the number of seedlings and/or juveniles in previous studies (Shimano and Okitsu, 1993, 1994; Maruta and Kamitani, 1996; Ninomiya, unpubl. data). Furthermore, as noted previously, the number of mother trees has been reducing rapidly due to air pollution since the 1980's on the ridges near peaks. Even without air pollution, however, old trees will eventually be eliminated from the populations by natural death. Furthermore, seedlings will not be able to establish well in these plots due to the rapid decrease of mother trees. Without inheritance of alleles specific to the presently existing mother trees to the next generations, the possibility is very high that these rare alleles will disappear from certain populations by genetic drift or stochastic events over the next several decades.

The most important factors that affect regeneration of a beech forest are supply of ample seeds and the environmental conditions of the established site. Most of the individuals in size class 0 in ITA and OTA (25 and 14, respectively) were four years old in 1998 and those in MID and BOT were younger than seven years old in 1999 and 2000, when the samplings were made, respectively. There was mast-fruiting in 1993 in various places throughout

Japan (Sato, 1999), including the Tanzawa Mountains (Nakagawa *et al.*, 1994).

It is well known that beech exhibits a typical mast-flowering and fruiting, and makes a large number of seed banks and seedlings, while many of them cannot survive for more than 10 years within dense dwarf bamboo thickets, mainly because of light shortage on the forest floor (Maeda, 1988). And thus, regeneration of beech populations follows gap dynamics (Nakashizuka, 1987; Yamamoto, 1989, Yamamoto and Nishimura, 1999). Mechanisms and effects of synchronous death or shrinking of dwarf bamboos, which are thought to be a trigger for regeneration of beech stands, have been focused on in recent studies on the relationships not only with synchronous flowering every several decades, but also herbivory pressure by deer, freezing temperatures and avalanches during the winter, geomorphic disturbances, changes in behavior of seed predaceous animals and interspecific competition after synchronous death of ecological congeners, and so forth.

Regeneration dynamics have also been studied in beech forests on the Pacific side. Shimano and Okitsu (1993) reported that the density of juveniles (less than two meters in height) was 345 ha^{-1} on Mt. Mito in Okutama, Tokyo Prefecture, and this is exceedingly low compared to that of beech forests on the Japan Sea side. Shimano and Okitsu (1994) further reported that the number of beech juveniles (smaller than 10 cm in DBH) was very small in beech forests on the Pacific side, including Mt. Kanyudo, which is located in the west Tanzawa Mountains (Fig.1), while on the Japan Sea side of Honshu, the number of beech juveniles was higher than that of other canopy tree species. They concluded that other tree species would replace beech, because they regenerate constantly with a large number of juveniles, whereas beech has only a small number of juveniles, although large-stemmed beech trees may have remained in the forests at the study sites on the Pacific side, but this is inexplicable simply in terms of the predominant existence of dwarf bamboos on the forest floor.

Censuses of beech seedling establishment were

also conducted in 1994 on Mt. Mikuniyama (Maruta and Kamitani, 1996), which is located near the Tanzawa Mountains (Fig.1). It was concluded that there are enough established seedlings (11 m^{-2} in November 1994) and no fatal disturbance factor; however, juveniles older than two years old might not be able to survive because of the light shortage on the forest floor despite the lack of dwarf bamboos. Maruta and Kamitani (1996) inferred from their census and previous studies that fatal factors for survival of beech seedlings are damage by animal and insect predation on the Pacific side, whereas those on the Japan Sea side are damage primarily by fungi. They also pointed out the necessity of further studies in various types of beech forests in relation to snowfall, dwarf bamboo and deer.

Mast-fruiting occurred in 1996, and censuses of seedling and juvenile survival have been done over the five years from 1997 in Dodaira, the east Tanzawa Mountains (Fig.1), where dwarf bamboo thickets have also been reduced in cover over the last couple of decades. There are two study sites inside and outside of a vegetation protection fence against deer. The number of seedlings and juveniles resulting from mast-fruiting in 1996 reduced from $17,405 \text{ ha}^{-1}$ in June 1997 to $4,030 \text{ ha}^{-1}$ in July 2001 (23.15% of survival) inside and $1,308 \text{ ha}^{-1}$ in October 1998 to 48 ha^{-1} in July 2001 (3.67% of survival since October 1998) outside of the fence, respectively (Ninomiya, unpubl. data). The extent of seedling and juvenile deaths was explained as being due to various causes: about 20 percent by insect predation and 25 percent due to a delay or lack of leaf development; however, the true reasons for most of the seedling deaths are not apparent at present. Furthermore, feeding by deer was not observed despite the fact that there is a considerable difference in seedling and juvenile density between inside and outside of the protection fence. It seems that soil erosion also damages seedling and juvenile establishment on slopes without vegetation (Ninomiya, pers. comm.).

Small numbers of juveniles in MID and BOT, where all of them occurred along the trail passes where dwarf bamboos are sparse (Appendix Ic),

might be due to the existence of dwarf bamboos, although no individual in class 0 was found in TOP despite the lack of dwarf bamboos. To conserve the rare alleles specific to mature size classes through regeneration, we need to detect and remove disturbance factors for the seedling and juvenile establishment in relation to complex environmental factors specific to each plot, such as dwarf bamboos, desiccation, predation pressure by mammals and insects, soil erosion, artificial disturbance, air pollution and global warming, and to protect them until they recruit the next reproductive individuals; however, it takes at least 40–100 years for stabilization of established individuals (Yonebayashi, 1996), although we have to be careful not to introduce excessive manipulation against natural environmental constraints.

It is also important to clarify how differences in size class structure, i.e., according to the number of seedlings and juveniles, affect the maintenance of genetic diversity. There are two hypotheses: one is that the present genetic diversities in each plot in the west Tanzawa Mountains have been formed through regeneration with a large number of seedlings and juveniles, although only a limited number of seedlings and juveniles is present today. Another is that those were originally formed through regeneration with a small number of seedlings and juveniles. To answer this question, we must await further critical analyses.

For conservation of genetic diversity, spatial as well as temporal heterogeneity must be maintained within the local populations. Within these local beech populations in the west Tanzawa Mountains, there still occurs a rich spatial heterogeneity in genetic diversities. Localization of genetic diversity and patterns of spatial genetic differentiation will be discussed in a following paper (Takenaka *et al.*, in preparation).

ACKNOWLEDGMENTS

We thank Hiroshi Saito of Kanagawa Prefecture and students in the Laboratory of Forest Conservation Biology, Tokyo University of Agriculture and Technology, for their help in the field. This study

was supported by Grants-in-aid from the Japan Fund for Global Environment from 1997 to 1999, and from the Japan Forest Technology Association (JAFTA) from 2000 to 2001.

REFERENCES

- Alvarez-Buylla, E.R. and Garay, A. A. (1994) Population genetics structure of *Cecropia obtusifolia*, a tropical pioneer tree species. *Evolution*, 48 : 473–453.
- Asano, T. (1983) Regeneration Process of Beech Forests. Ph. D. dissertation, Osaka City University, Osaka, Japan (in Japanese; the title was translated by the authors).
- Davis, B. J. (1964) Disk electrophoresis II : Method and application to human serum proteins. *Annals of New York Academy for Science*, 121 : 404–427.
- Goudet, J. (1995) FSTAT (version 1.2) : A computer program to calculate *F*-statistics. *Journal of Heredity*, 86 : 485–486.
- (2000) FSTAT, a program to estimate and test gene diversities and fixation indices (version 2.9.1). Available from <http://www.unil.ch/izea/softwares/fstat.html>. Updated from Goudet (1995).
- Hagiwara, S. (1977) A geocline in leaf size of the Siebold's beech, *Fagus crenata*. *Shuseibutsugaku Kenkyu I* : 39–49 (in Japanese).
- Hamrick, J. L. and Nason, J. D. (1996) Consequences in Dispersal in Plants. *In* : Population Dynamics in Ecological Space and Time, Rhodes, O. E. Jr., Chesser, R. K. and Smith, M. H. (eds.), The University of Chicago Press, Chicago : 203–236.
- Hanski, I. A. and Gilpin, M. E. (1997) Metapopulation Biology-Ecology, Genetics, and Evolution. Academic Press, San Diego.
- Hashizume, H. and Sugimoto, S. (1980) A study of the breeding system in natural forests of Buna (*Fagus crenata* BLUME) using the peroxidase isozyme technique. *Hardwood Research*, 1 : 59–71 (in Japanese with English summary).
- Hirano, Y. (1998) Analysis of topographical factors and deterioration of beech trees around the top of Mt. Hinokiboramaru, Tanzawa, using GIS.

- Geographical Review of Japan, 71 A-7 : 505-514 (in Japanese with English summary).
- Hosono, T., Okochi, H. and Igawa, M. (1994) Fog-water chemistry at a mountain side in Japan. Bulletin of Chemical Society of Japan 67 : 368-374.
- Igawa, M (1999) Forest decline and acidic mist in the Tanzawa and Ohyama Mountains. Environmental Science, 12 : 233-240 (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- , Tsutsumi, Y., Mori, T. and Okochi, H. (1998) Fogwater chemistry at a mountain side forest and the estimation of the air pollutant deposition via fog droplets based on the atmospheric quality at the mountain base. Environmental Science & Technology, 32 : 1566-1572.
- Kawano, S. (1975) The productive and reproductive biology of flowering plants. II. The concept of life history strategy in plants. The Journal of College of Liberal Arts, Toyama University, 8 : 51-86.
- and Kitamura, K. (1997) Demographic genetics of the Japanese beech, *Fagus crenata*, in the Ogawa Forest Preserve, Ibaraki, central Honshu, Japan. III. Population dynamics and genetic substructuring within a metapopulations. Plant Species Biology, 12 : 157-177.
- Kitamura, K., Homma, K., Hagiwara, S., Takasu, H., Utech, F. H., Whigham, D. H. and Kawano, S. (2001) Demographic genetic analyses of the American beech (*Fagus grandifolia* EHRH.) I. Genetic substructurings of Blue Ridge and Piedmont, Virginia, and Great Smoky populations. Plant Species Biology, 16 : 219-230.
- and Kawano, S. (1996) Demographic genetics of tree matapopulation - A case study of *Fagus crenata* and *Fagus grandifolia*. Japanese Journal of Ecology, 46 : 179-183 (in Japanese).
- , Okuizumi, H., Seki, T., Niyama, K. and Shiraishi, S. (1992) Isozyme analysis of the mating system in natural populations of *Fagus crenata* and *F. japonica*. Japanese Journal of Ecology, 42 : 61-69 (in Japanese with English summery).
- , Shimada, K., Nakashima, K. and Kawano, S. (1997 a) Demographic genetics of the Japanese beech, *Fagus crenata*, at Ogawa Forest Preserve, Ibaraki, central Honshu, Japan. I. Spatial genetic substructuring in local populations. Plant Species Biology, 12 : 107-135.
- , —, — and — (1997 b) Demographic genetics of the Japanese beech, *Fagus crenata*, in the Ogawa Forest Preserve, Ibaraki, central Honshu, Japan. II. Genetic substructuring among size classes in local populations. Plant Species Biology, 12 : 137-155.
- , Takasu, H., Hayashi, K., Ohara, M., Ohkawa, T., Utech, F. H. and Kawano, S. (2000) Demographic genetic analyses of the American beech (*Fagus grandifolia* EHRH.) I. Genetic substructurings of northern populations with root suckers in Quebec and Pennsylvania. Plant Species Biology, 15 : 43-58.
- Kitamura, S. and Murata, G. (1979) Colored Illustrations of Woody Plants of Japan Vol. II Revised Edition. Hoikusha Publishing Co. Ltd., Osaka (in Japanese).
- Koeji, T. and Suzuki, K. (1993) Current situation on withered and damaged beech and fir trees in the Tanzawa Mountains. NIPPON RINGAKUKAI KANTO-SHIBU TAIKAI HAPPYO RONBUNSHU, 44 : 65-66 (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- Koike, T., Kato, S., Shimamoto, Y., Kitamura, K., Kawano, S., Ueda, K. and Mikami, T. (1998) Mitochondrial DNA variation follows a geographic pattern in Japanese beech species. Botanica Acta, 111 : 87-91.
- Konta, F. (1991) Flora in Beech Forests. *In* : Natural Environment and Its Conservation on Buna (*Fagus crenata*) Forest, Murai, H., Yamatani, K., Kataoka, H. and Yui, M. (eds.), Soft Science Inc., Tokyo : 35-46. (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- Kubota, M. (1990) The changes of isozyme patterns in different sampling seasons and sampled organs. NIPPON RINGAKUKAI TOHOKU-SHIBU-KAISHI, 42 : 238-239 (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- Li, Y. C., Krugman, T., Beiles, A., Korol, A. B. and Nevo, E. (2001) Spatio-temporal allozyme di-

- vergence caused by aridity stress in a natural population of wild wheat, *Triticum dicoccoides*, at the Ammiad microsite, Israel. *Theoretical and Applied Genetics*, 102 : 853–864.
- Maeda, T. (1988) Studies on natural regeneration of beech (*Fagus crenata* BLUME). *Special Bulletin of the College of Agriculture, Utsunomiya University*, 46 : 1–79.
- Maruta, E. and Kamitani, T. (1996) Seedling establishment of *Fagus crenata* BLUME on the Pacific side of Japan I – Emergence and survival of current-year seedlings on Mt. Mikuni. *Japanese Journal of Forest Environment*, 38 (1) : 43–52 (in Japanese).
- and Usui, N. (1997) The Forest Damage on Mt. Hinokiboramaru. *In* : Scientific Reports on the Natural Environment of the Tanzawa and Ohyama Mountains Kanagawa Prefecture, Yokohama : 78–80. (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- Miyawaki, A. (ed.) (1967) *Vegetation of Japan*. 535 pp, Gakken, Tokyo (in Japanese).
- , Minowa, R., Fujiwara, K., Suzuki, K., Nakamura, Y. and Ohyama, H. (1977) *Vegetationskarte der Präfektur Yamanashi*. Yamanashi Prefecture, Yamanashi (in Japanese).
- Nagano, S. and Nasu, J. (1991) Studies on the genetic diversity of *Fagus crenata* BLUME II. *Bulletin of the Iwate University Forests*, 22 : 21–28 (in Japanese with English summary).
- , — and Mishima, N. (1990) A study on the genetic diversity of beech forests I. *NIPPON RINGAKUKAI TOHOKU-SHIBUKAISHI*, 42 : 235–237 (in Japanese ; the title was translated by the authors).
- Nakagawa, S., Hoshiyama, T., Koyama, N., Mitsuhashi, M., Hagiwara, M. and Arai, Y. (1994) Beech (*Fagus crenata*) seed products at Dodaira Tanzawa in 1993. *Bulletin of the Kanagawa Prefecture Forest Experiment Station*, 20 : 91–94 (in Japanese with English summary).
- Nakashizuka, T. (1987) Regeneration dynamics of beech forests in Japan. *Vegetatio*, 69 : 169–175.
- Nei, M. (1987) *Molecular Evolutionary Genetics* (Translated by Gojobori, T. and Saitou, N.). Columbia University Press, New York.
- Niemelä, J. (2001) The utility of movement corridors in forested landscapes. *Scandinavian Journal of Forest Research, Supplement*, 3 : 70–78.
- Ohkawa, T., Nagai, Y., Masuda, J., Kitamura, K. and Kawano, S. (1999) Population biology of *Fagus crenata* BLUME I. Demographic genetic differentiations of lowland and montane populations in Toyama, central Honshu, Japan. *Plant Species Biology*, 13 : 93–116.
- Ohno, K. and Ozeki, T. (1997 a) Vegetation of Tanzawa Mountains (Advanced study on the Fagetea crenatae region). *In* : Scientific Reports on the Natural Environment of the Tanzawa and Ohyama Mountains, Kanagawa Prefecture, Yokohama : 103–121. (in Japanese).
- and — (1997 b) Actual Vegetation Map of the Mountains Belt (Fagetea crenatae Region) of the Tanzawa Mountains. *In* : Scientific Reports on the Natural Environment of the Tanzawa and Ohyama Mountains, Appendix 3, Kanagawa Prefecture, Yokohama (in Japanese).
- Ohwi, J. (1965) *Flora of Japan*. 2 nd. ed. 1582 pp, Shobundo, Tokyo (in Japanese).
- Orstein, L. (1964) Disk electrophoresis I : Background and theory. *Annals of New York Academy of Science*, 121 : 321–349.
- Ouborg, N. J., Piquot, Y. and Van Groenendael, J. M. (1999) Population genetics, molecular markers and the study of dispersal in plants. *Journal of Ecology*, 87 : 551–568.
- Richardson, B. J., Baverstock, P. R. and Adams, M. (1986) *Allozyme electrophoresis*. Academic Press, San Diego.
- Sato, T. (2000) In 1999, the Fruit Bearing of Beech (*Fagus crenata*) in Japan. *TOYAMA-NO-SEIBUTSU*, 39 : 35–39 (in Japanese with English summary).
- Shimano, K. and Okitsu, S. (1993) Regeneration of mixed *Fagus crenata*–*Fagus japonica* forests in Mt. Mito, Okutama, west of Tokyo. *Japanese Journal of Ecology*, 43 : 13–19 (in Japanese with English summary).
- and — (1994) Regeneration of natural *Fagus crenata* forests around the Kanto district. *Japanese*

- Journal of Ecology, 44 : 283–291 (in Japanese with English summary).
- Shiraishi, S. (1988) Inheritance of isozyme variations in Japanese black pine, *Pinus thunbergii* PARL. *Silvae Genetica*, 37 : 93–100.
- Soltis, D. E. and Soltis, P. S. (eds.) (1989) *Isozymes in Plant Biology*. Dioscorides Press, Portland.
- Takahashi, M., Mukouda, M. and Kono, K. (2000) Differences in genetic structure between two Japanese beech (*Fagus crenata* BLUME) stands. *Heredity*, 84 : 103–115.
- , Tsumura, Y., Nakamura, T., Uchida, K. and Ohba, K. (1994) Allozyme variation of *Fagus crenata* in northeastern Japan. *Canadian Journal of Forest Research*, 24 : 1071–1074.
- Tomaru, N., Mitsutsuji, T., Takahashi, M., Tsumura, Y., Uchida, K. and Ohba, K. (1997) Genetic diversity in *Fagus crenata* (Japanese beech) : influence of the distributional shift during the late-Quaternary. *Heredity*, 78 : 241–251.
- , Takahashi, M., Tsumura, Y., Takahashi, M. and Ohba, K. (1998) Intraspecific variation and phylogeographic patterns of *Fagus crenata* (FAGACEAE) mitochondrial DNA. *American Journal of Botany*, 85 : 629–636.
- Wang, X. R. and Szmidt, A. E. (2001) Molecular markers in population genetics of forest trees. *Scandinavian Journal of Forest Research*, 16 : 199–220.
- Weeden, N. F. and Wendel, J. F. (1989) Genetics of Plant Isozymes. *In* : *Isozymes in Plant Biology*, Soltis, D. E. and Soltis, P. S. (eds.), Dioscorides Press, Portland : 46–72.
- Weir, B. S. and Cockerham, C. C. (1984) Estimating *F*-statistics for the analysis of population structure. *Evolution*, 38 : 1358–1370.
- Wright, S. (1951) The genetical structure of populations. *Annals of Eugenetics*, 15 : 323–354.
- Yamamoto, S. (1989) Gap dynamics in climax *Fagus crenata* forests. *Botanical Magazine*, 102 : 93–114.
- (1999) Canopy gap formation and replacement pattern of major tree species among developmental stages of beech (*Fagus crenata*) stands, Japan. *Plant Ecology*, 140 : 167–176.
- Yonebayashi, C. (1996) Natural History of Beech Forests. *In* : *Natural History of Beech Forests*, Hara, M. (ed.), Heibonsha, Tokyo (in Japanese; the title was translated by the authors).

和文要旨

樹木は長寿命であるため、野外集団中に世代の重なり合った構造を有している。また、集団が成立した背景には、時間的空間的な環境変動が反映されており、それらを解析する研究は現在まであまりなされてこなかった。ブナは極相林を構成する代表的な樹種で、その寿命は約250年と長く、集団中に様々な世代の個体を有している。このような地域集団を解析する手法として、今日では個体群統計学的解析が有効な手法として用いられている。丹沢山地では、1980年代から主稜線部におけるブナの立ち枯れが進行し、後継樹の更新も少ない。西丹沢ブナ地域集団が保有する遺伝的多様性とその時空間的分布様式を把握するために、この地域に成立するブナ地域集団および隣接する隔離集団に、合計5カ所の調査区を設置した。調査区内に生育するすべてのブナ計496個体について、各調査区内の位置および地際あるいは胸高直径を測定し、アロザイムを遺伝子マーカーとして11酵素種13遺伝子座について分析を行った。解析の結果、1) ブナ地域集団の中心に位置する局所集団、末端部に位置する局所集団、隔離分布した局所集団の順に、遺伝的多様性が下がっていく傾向のあること、2) 集団の保有する遺伝的多様性について、地際あるいは胸高直径を用いたサイズクラスによる世代間の遺伝的変異、つまり特定のサイズクラスに特有の遺伝子型あるいは対立遺伝子のあることが観察された。集団の分布様式およびサイズクラスから見た西丹沢地域のブナの遺伝的多様性について、保全生態学的観点から考察を行った。

キーワード：アロザイム、保全生物学、個体群統計遺伝学、集団間変異、サイズクラス構造



Appendix Ia. Study plot at the top of Mt. Hinokiboramaru (TOP).



Appendix Id. Study plot at the top of Itadorinokashira (ITA).



Appendix Ib. Study plot at the middle of the Higashisawa ridge (MID).



Appendix Ie. Study plot at the top of Ohtananokashira (OTA).



Appendix Ic. Study plot at the bottom of the Higashisawa ridge (BOT).

Appendix II. Genotype frequencies for each plot.

		Plot	TOP	MID	BOT	ITA	OTA			Plot	TOP	MID	BOT	ITA	OTA
Number of individuals		39	195	40	138	84					39	195	40	138	84
locus	genotype						locus	genotype							
<i>Aap2</i>	<i>ad</i>	-	0.005	-	-	-	<i>Lap</i>	<i>aa</i>	-	-	-	-	-	-	0.012
	<i>bd</i>	-	0.005	0.025	-	0.024		<i>ab</i>	-	0.005	-	-	-	-	-
	<i>cd</i>	-	0.015	-	0.007	-		<i>bb</i>	0.385	0.139	0.225	0.212	0.268	-	-
	<i>dd</i>	0.974	0.872	0.950	0.913	0.963		<i>bc</i>	0.026	-	0.025	0.029	-	-	-
	<i>de</i>	0.026	0.097	0.025	0.080	0.012		<i>bd</i>	0.128	0.027	0.125	0.066	0.073	-	-
	<i>ee</i>	-	0.005	-	-	-		<i>be</i>	0.077	0.075	0.150	0.212	0.061	-	-
<i>Aat1</i>	<i>aa</i>	-	0.005	-	-	-	<i>bf</i>	0.026	0.021	-	-	-	-	0.012	
	<i>ac</i>	0.103	0.072	0.175	0.022	0.061	<i>cc</i>	-	0.075	0.025	0.066	0.049	-	-	
	<i>bc</i>	0.128	0.010	0.025	-	0.012	<i>cd</i>	-	0.032	-	0.015	-	-	-	
	<i>bd</i>	-	-	-	-	0.012	<i>ce</i>	-	0.064	-	0.044	0.024	-	-	
	<i>be</i>	-	-	-	-	0.024	<i>dd</i>	0.205	0.096	0.150	0.051	0.244	-	-	
	<i>cc</i>	0.769	0.862	0.800	0.949	0.817	<i>de</i>	-	0.112	0.125	0.029	0.085	-	-	
	<i>cd</i>	-	0.005	-	0.007	0.024	<i>df</i>	-	0.021	-	0.007	-	-	-	
<i>ce</i>	-	0.046	-	0.022	0.049	<i>ee</i>	0.154	0.257	0.150	0.263	0.171	-	-		
<i>Aat3</i>	<i>ac</i>	0.026	0.026	-	0.029	-	<i>Pgi</i>	<i>ab</i>	-	0.005	-	-	-	-	-
	<i>ad</i>	-	-	-	0.007	-		<i>ac</i>	-	-	0.025	-	-	-	-
	<i>bb</i>	-	0.005	-	-	-		<i>ad</i>	-	0.010	0.125	0.007	-	-	-
	<i>bc</i>	-	0.051	-	0.007	0.012		<i>bb</i>	-	-	-	0.007	0.012	-	-
	<i>cc</i>	0.821	0.769	0.475	0.920	0.915		<i>bd</i>	0.205	0.062	0.050	0.101	0.183	-	-
	<i>cd</i>	-	0.087	-	0.036	0.061		<i>be</i>	0.026	-	0.025	0.022	-	-	-
<i>Aco</i>	<i>ab</i>	-	-	-	0.014	-	<i>bf</i>	0.026	0.010	-	-	-	-	-	
	<i>bb</i>	0.974	0.974	1.000	0.971	1.000	<i>cd</i>	-	-	-	0.007	-	-	-	
	<i>bc</i>	0.026	0.026	-	0.007	-	<i>dd</i>	0.641	0.738	0.625	0.797	0.671	-	-	
<i>Amy2</i>	<i>cc</i>	0.077	0.051	0.025	0.043	0.061	<i>de</i>	0.051	0.087	0.075	0.036	0.073	-	-	
	<i>cd</i>	0.051	0.010	-	-	-	<i>df</i>	0.026	0.087	0.050	0.014	0.049	-	-	
	<i>ce</i>	0.308	0.241	0.225	0.196	0.171	<i>ee</i>	0.026	-	0.025	0.007	-	-	-	
	<i>dd</i>	0.051	-	-	0.014	-	<i>Pgm1</i>	<i>bb</i>	1.000	0.933	0.975	1.000	0.976	-	-
	<i>de</i>	0.077	0.026	0.050	0.051	0.049		<i>bc</i>	-	0.010	-	-	-	-	-
	<i>ee</i>	0.410	0.672	0.700	0.696	0.720		<i>bd</i>	-	0.026	0.025	-	-	-	-
<i>Dia</i>	<i>bb</i>	-	0.010	-	-	-		<i>cc</i>	-	0.005	-	-	-	-	-
	<i>bc</i>	0.103	0.077	-	0.058	0.024		<i>dd</i>	-	0.005	-	-	0.012	-	-
	<i>bd</i>	0.051	0.005	-	-	-		<i>Pgm2</i>	<i>aa</i>	-	0.005	-	-	-	-
	<i>cc</i>	0.795	0.862	0.975	0.884	0.976	<i>ac</i>		-	0.026	-	0.022	-	-	-
	<i>cd</i>	0.051	0.046	-	0.043	-	<i>ae</i>		-	-	-	0.007	-	-	-
<i>ce</i>	-	-	0.025	0.014	-	<i>bb</i>	-		0.010	-	-	-	-	-	
<i>Fum</i>	<i>aa</i>	0.205	0.092	0.125	0.109	0.110	<i>bc</i>		-	0.021	-	-	-	-	-
	<i>ab</i>	0.385	0.467	0.525	0.457	0.476	<i>be</i>	-	0.010	-	-	-	-	-	
	<i>ac</i>	-	0.005	0.025	-	-	<i>cc</i>	0.692	0.595	0.375	0.623	0.793	-	-	
	<i>bb</i>	0.410	0.431	0.325	0.435	0.415	<i>cd</i>	-	0.041	-	-	0.012	-	-	
	<i>bc</i>	-	0.005	-	-	-	<i>ce</i>	0.282	0.195	0.625	0.312	0.183	-	-	
<i>Idh</i>	<i>aa</i>	-	0.005	-	0.022	-	<i>dd</i>	0.026	0.005	-	0.007	-	-	-	
	<i>ab</i>	0.179	0.174	0.275	0.167	0.110	<i>de</i>	-	0.005	-	-	-	-	-	
	<i>bb</i>	0.821	0.821	0.725	0.804	0.890	<i>ee</i>	-	0.087	-	0.029	0.012	-	-	
<i>6pg</i>	<i>ab</i>	0.179	0.010	0.025	-	0.024	<i>Aat3</i>	<i>ac</i>	0.026	0.026	-	0.029	-	-	
	<i>bb</i>	0.821	0.954	0.975	0.957	0.976		<i>ad</i>	-	-	-	0.007	-	-	
	<i>bc</i>	-	0.036	-	0.043	-		<i>bb</i>	-	0.005	-	-	-	-	
							<i>bc</i>	-	0.051	-	0.007	0.012	-	-	
							<i>cc</i>	0.821	0.769	0.475	0.920	0.915	-	-	
							<i>cd</i>	-	0.087	-	0.036	0.061	-	-	
							<i>ce</i>	0.103	0.005	0.025	-	-	-	-	

Appendix III. Allele frequencies for each plot.

		Mt. Hinokiboramaru				
		Higashisawa ridge			ITA	OTA
Plot		TOP	MID	BOT		
Number of individuals		39	195	40	138	84
locus	allele					
<i>Aap2</i>	<i>a</i>	-	0.003	-	-	-
	<i>b</i>	-	0.003	0.013	-	0.012
	<i>c</i>	-	0.008	-	0.004	-
	<i>d</i>	0.987	0.933	0.975	0.957	0.982
	<i>e</i>	0.013	0.054	0.013	0.040	0.006
<i>Aat1</i>	<i>a</i>	0.051	0.041	0.088	0.011	0.030
	<i>b</i>	0.064	0.005	0.013	-	0.024
	<i>c</i>	0.885	0.928	0.900	0.975	0.890
	<i>d</i>	-	0.003	-	0.004	0.018
	<i>e</i>	-	0.023	-	0.011	0.037
<i>Aat3</i>	<i>a</i>	0.013	0.013	-	0.018	-
	<i>b</i>	-	0.031	-	0.004	0.006
	<i>c</i>	0.885	0.854	0.488	0.957	0.951
	<i>d</i>	-	0.044	-	0.022	0.030
	<i>e</i>	0.051	0.003	0.013	-	-
<i>Aco</i>	<i>a</i>	-	-	-	0.007	-
	<i>b</i>	0.987	0.987	1.000	0.982	1.000
	<i>c</i>	0.013	0.013	-	0.004	-
<i>Amy2</i>	<i>c</i>	0.256	0.177	0.138	0.141	0.146
	<i>d</i>	0.115	0.018	0.025	0.040	0.024
	<i>e</i>	0.603	0.805	0.838	0.819	0.829
<i>Dia</i>	<i>a</i>	-	-	-	-	-
	<i>b</i>	0.077	0.051	-	0.029	0.012
	<i>c</i>	0.872	0.923	0.988	0.942	0.988
	<i>d</i>	0.051	0.026	-	0.022	-
	<i>e</i>	-	-	0.013	0.007	-
<i>Fum</i>	<i>a</i>	0.397	0.328	0.400	0.337	0.348
	<i>b</i>	0.603	0.667	0.588	0.663	0.652
	<i>c</i>	-	0.005	0.013	-	-
<i>Idh</i>	<i>a</i>	0.090	0.092	0.138	0.105	0.055
	<i>b</i>	0.910	0.908	0.863	0.888	0.945
<i>Lap</i>	<i>a</i>	-	0.003	-	-	0.012
	<i>b</i>	0.513	0.195	0.375	0.365	0.341
	<i>c</i>	0.013	0.121	0.038	0.112	0.061
	<i>d</i>	0.269	0.185	0.275	0.108	0.323
	<i>e</i>	0.192	0.385	0.288	0.408	0.256
	<i>f</i>	0.013	0.072	-	0.007	0.006
<i>Pgi</i>	<i>a</i>	-	0.008	0.075	0.004	-
	<i>b</i>	0.128	0.038	0.038	0.069	0.104
	<i>c</i>	-	-	0.013	0.004	-
	<i>d</i>	0.782	0.862	0.775	0.880	0.823
	<i>e</i>	0.064	0.044	0.075	0.036	0.037
	<i>f</i>	0.026	0.049	0.025	0.007	0.024
<i>Pgm1</i>	<i>b</i>	1.000	0.951	0.988	1.000	0.976
	<i>c</i>	-	0.010	-	-	-
	<i>d</i>	-	0.018	0.013	-	0.012
<i>Pgm2</i>	<i>a</i>	-	0.018	-	0.014	-
	<i>b</i>	-	0.026	-	-	-
	<i>c</i>	0.833	0.736	0.688	0.790	0.890
	<i>d</i>	0.026	0.028	-	0.007	0.006
	<i>e</i>	0.141	0.192	0.313	0.188	0.104
<i>6pg</i>	<i>a</i>	0.090	0.005	0.013	-	0.012
	<i>b</i>	0.910	0.977	0.988	0.978	0.988
	<i>c</i>	-	0.018	-	0.022	-

Chemical Species in Aerosol at the Summit of Mt. Fuji during July 5-12, 1999^{*1}

Kentaro MURAKAMI^{**2}, Hiroto YONEKURA^{***2}, Tetsuo YOSHIKAWA^{*2}, Yukiko DOKIYA^{*2}, Kazuhiko HAYASHI^{*3}, Yosuke SAWA^{*4}, Yasuhito IGARASHI^{*4} and Yukitomo TSUTSUMI^{**4}

Atmospheric chemistry research campaigns lasting one or two weeks have been performed at Mt. Fuji weather station (3776m a.s.l.) every summer since 1997. During these campaigns, aerosols, precipitation and fog samples are collected. Chemical species in aerosol and precipitation samples are determined using ionchromatography, low background γ spectrometry, etc. Trace gases (CO, H₂, NO_x, NO_y, HCl, H₂O₂ and MHP) have been measured, as well as O₃, which has been continuously observed since 1992 using a Dasibi type UV spectrophotometer. This report focuses on the chemical species in aerosol collected using low volume air samplers every 4 hours at the summit and at Tarobo (1300m a.s.l. on the ESE slope) during the 1999 campaign. The concentrations of SO₄²⁻, NH₄⁺ and NO₃⁻ in aerosol at the summit were lower than those at Tarobo and other sites at lower elevations. The temporal changes of their concentrations at the summit appeared to be generally independent from those at Tarobo. However, during periods of very low wind speed, the concentration of SO₄²⁻ at the summit was relatively high. This corresponded with similar high concentrations at Tarobo, thus some uplift of polluted air mass from a lower elevation was also suspected as a source of the high SO₄²⁻ in the aerosol of the summit. In addition, the concentration of SO₄²⁻ in the aerosol, as well as the concentration of ozone at the summit, was high when continental air was passing the summit and low when marine air was passing.

1. Introduction

Free troposphere, involving 70% of the global air in weight, is still one of the frontiers of atmospheric chemistry. Because the free troposphere is very difficult to approach, most sample collection is performed by airplane observations. Therefore, sampling has been limited to comparatively favorable meteorological conditions when airplanes can fly. Mountains higher than 3000m are other candidates for sampling free troposphere sites. However, the accompanying boundary layers, even though small, should be considered in selecting sampling sites.

The summit of Mt. Fuji (3776m a.s.l.) is thought to be in the free troposphere most of the time throughout the year due to its shape (Tsutsumi *et al.*, 1994). In addition, electricity, shelter and other utilities for field observation are available at the Mt. Fuji weather station at the summit.

The collection of samples at such a place involves overcoming many difficulties, including high wind speed which causes precipitation to come from every direction, not only from the upper side, as well as frequent thunder. Since 1990, some of the authors have collected precipitation samples at the summit (Dokiya *et al.*, 1993, Maruta *et al.*, 1993) and

*1 Received Sept. 7, 2001 ; Accepted Dec. 20, 2001

*2 Faculty of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, 3-5-8 Saiwaicho, Fuchu, 183-8509, Japan (E-mail: dokiya@cc.tuat.ac.jp)

**2 present address: Shinanen Co.

***2 present address: kmri

*3 Meteorological College, 7-4-81, Asahicho, Kashiwa, 277-0852, Japan

*4 Meteorological Research Institute, 1-1, Nagamine, Tsukuba, 305-8687, Japan

**4 present address: Japan Meteorological Agency, Otemachi, Tokyo, 100-8122, Japan

aerosol samples (Tsuboi *et al.*, 1994, Sekino *et al.*, 1997). In these reports, the concentrations of chemical species in precipitation and aerosol at the summit were generally very low in comparison with those obtained at a lower elevation. Tsutsumi *et al.* (1994) has been measuring ozone concentrations since 1992.

Based on this preliminary work, summer research campaigns lasting from 10 days to 2 weeks of intensive observation were begun in 1997 (Tsutsumi *et al.*, 1998 and 2000, Dokiya *et al.*, 1999 and 2001, Hayashi *et al.*, 2001). During the 1999 campaign, the observation period was again carried out during early summer, the late Baiu season, in order to confirm the 1998 results when no clear termination of the Baiu season had been seen. (The Baiu season is Japan's rainy season, occurring every June and July throughout the Japanese islands excluding Hokkaido. It is caused by and influenced by the strength and relative balance of the Okhotsk high and North Pacific high air pressures.) In addition, an on-site determination of peroxides using liquid chromatography was performed to obtain the first continuous observation data on H₂O₂ and MHP in the free troposphere anywhere in East Asia. Com-

paratively higher concentrations of these hydroperoxides, as compared with other mountainous areas such as Nikko, were found with unique diurnal concentration changes, the details of which are reported elsewhere (Yonekura *et al.*, personal communication).

2. Experimental

The '99 summer campaign on atmospheric chemistry at the summit of Mt Fuji was performed during July 5–12, 1999; late Baiu season. An outline of campaigns is summarized in Table 1. Aerosols and gas samples are introduced through inlets of long Teflon tubes set on the roof of a cottage attached to the weather station. Exceptions are the high volume air sampler, the precipitation sampler and the fog sampler. Sampling operations are conducted in the room underneath.

Aerosol samples, precipitation, and fog were also collected at the Tarobo refuge hut in the same manner, as well as continuous determination of surface ozone using UV spectrometry. The hut, built at 1300m a.s.l. on the ESE slope, belongs to the Mt. Fuji weather station.

The detailed collection methods and analytical

Table 1. Outline of Mt. Fuji Summer Campaign '99

	Methods and intervals	and sampling	Analytical methods and species analysed
<u>Summit</u>			
<u>Gases</u>			
O ₃	UV spectrometer, continuous		O ₃
CO	GC, continuous		GC, CO and H ₂
Peroxides	Mist chamber, 4 hours		LC, H ₂ O ₂ and MHP
<u>Aerosol</u>			
Bulk	Low volume air sampler, 4 hours	4	Ionchromatography, SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺
Be-7	High volume air sampler, 4 hours	4	Low background gamma spectrometry, Be-7 Ionchromatography, SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺
Size distribution	optical particle counter		
Individual	a handmade impacter		EDX, Si, S, K, Ca
<u>Precipitation</u>	plastic sampler, one day		Ionchromatography, SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺
<u>Fog</u>	passive sampler(Usui Co)		
<u>Tarobo</u>			
<u>Gas</u>	UV spectrometer, continuous		
O ₃			
<u>Aerosols</u>	Low volume air sampler, 4 hours	4	Ionchromatography, SO ₄ ²⁻ , Cl ⁻ , NO ₃ ⁻ , NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , K ⁺
Bulk	plastic sampler, one day		
<u>Precipitation</u>	hand made passive sampler		
<u>Fog</u>			

procedures are as follows: (1) Aerosol was collected on a Nuclepore filter, at 12 l/min with a low volume air sampler, changing filters every 4 hours. The filters were kept in cold storage and brought back to the laboratory where they were soaked in distilled water for extraction and used for ionchromatography. (2) Aerosol was collected on a quartz fiber filter with a high volume air sampler at 1000 l/min, changing filters every 4 hours. The filters were packed in a small plastic container for the determination of ^{7}Be using low background gamma spectrometry.

Trace Gas: Concentrations of surface ozone were measured continuously using UV spectrometry.

3. Results and Discussion

3.1 Meteorological conditions during the campaign

The meteorological conditions (temperature, solar radiation, humidity, wind speed and wind direction) at the summit of Mt. Fuji during the campaign (July 6–11) are shown in Fig.1 a, b, c, d and e. Even

though the Baiu front stayed around the Japanese islands during the campaign, not much rain occurred except for the first half day and the last two days. A cold air mass from the northwest passed the summit, resulting in a light snow on July 6. From July 7, the wind direction was northeast and wind speed was 2–8 m/s, resulting in relatively calm conditions at the summit. These conditions continued up until late morning of July 10, when wind speed became very low and the air mass apparently changed to that from the Pacific Ocean. It was later announced that the Baiu season of this year ended on July 23. However, the weather condition was generally fine, presumably because of the strong Okhotsk high, with some occasional cyclonic conditions affecting the summit.

3.2 Concentrations of chemical species in the aerosol at the summit and Tarobo

Concentrations of chemical species at the summit of Mt. Fuji are known to be generally very low compared with those obtained at lower elevations (Tsuboi *et al.*, 1994, Sekino *et al.*, 1997). During this

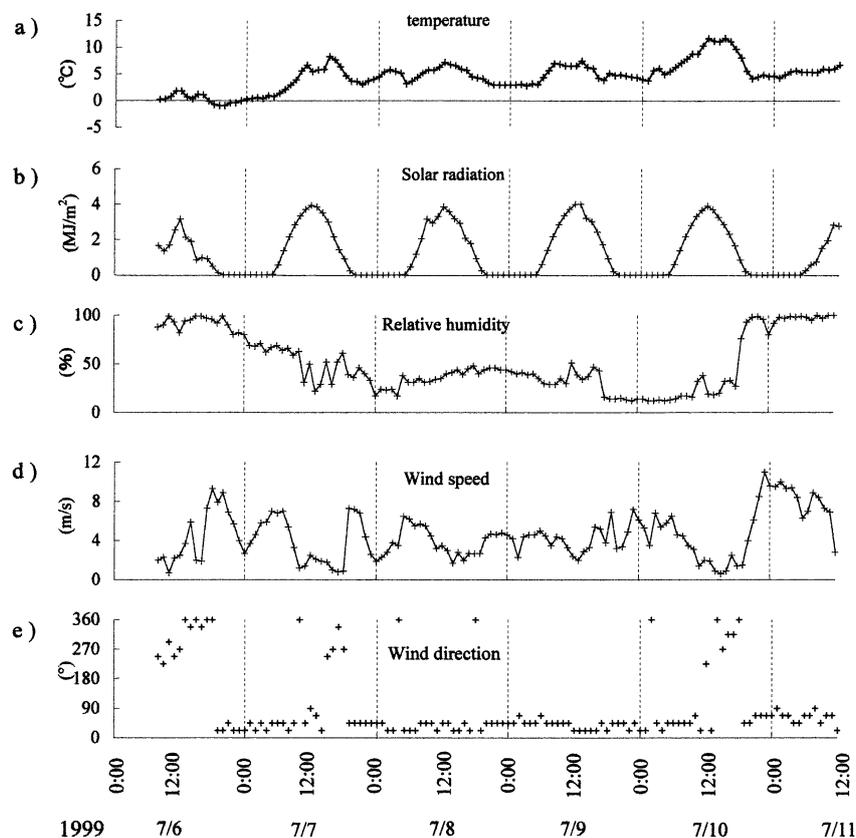


Fig.1. Meteorological conditions at the summit of Mt. Fuji (July 6–11, 1999); a. temperature, b. solar radiation, c. relative humidity, d. wind speed and e. wind direction

Table 2. Mean concentrations of chemical species in aerosol at Mt. Fuji

concentration neq/m ³	aerosol		
	SO ₄ ²⁻	NH ₄ ⁺	NO ₃ ⁻
Summit			
July, 1999	5.3	9.3	5.3
July, 1998	3.7	10.9	1.6
Aug, 1997	4.4	5.5	0.14
Tarobo			
July, 1999	25.2	43.8	10.2
July, 1998	—	—	—
Aug, 1997	40.5	42.1	0.67
Fuchu*	128.2	256.1	163.2
FM Tama Hills*	136.1	—	53.2

* Matsumoto & Ogura, 1992

campaign, a comparison was made between the aerosols collected simultaneously at the summit and at Tarobo. Mean concentrations of chemical species in this campaign period are summarized in Table 2 and Fig.2. Mean concentrations obtained during the 1997 and 1998 summer campaigns are also shown in the figure, as well as those at Fuchu and Field Museum Tama Hills (F. M. Tama Hills) for examples of lower elevations. These sites are located in suburbs within the Tokyo Metropolitan area where some of the authors maintain study fields (Matsumoto and Ogura, 1992). The broken line shows the concentration ranges of these species obtained in the free troposphere of the European Alps (Fuzzi and Wagenbach, 1997).

As shown in the figures, the concentrations of sulfate, nitrate and ammonium ions in the aerosol collected at the summit of Mt. Fuji were very low compared with those obtained at Tarobo, Fuchu, and F. M. Tama Hills, Hachioji. They also are within the concentration ranges of these species in aerosols obtained in the European Alps (Fuzzi, S. and Wagenbach, 1997). Vertical distribution of particulate sulfate in atmosphere over the continents obtained by airplane observations are shown in a textbook (Warneck, 1988) with values of 0.1~1 μgS/m³ at 2000~3000 m, which is also within a concentration range similar to the European Alps.

This data indicates that concentrations of these chemical species were very low at the summit of Mt. Fuji, which can be considered as representative

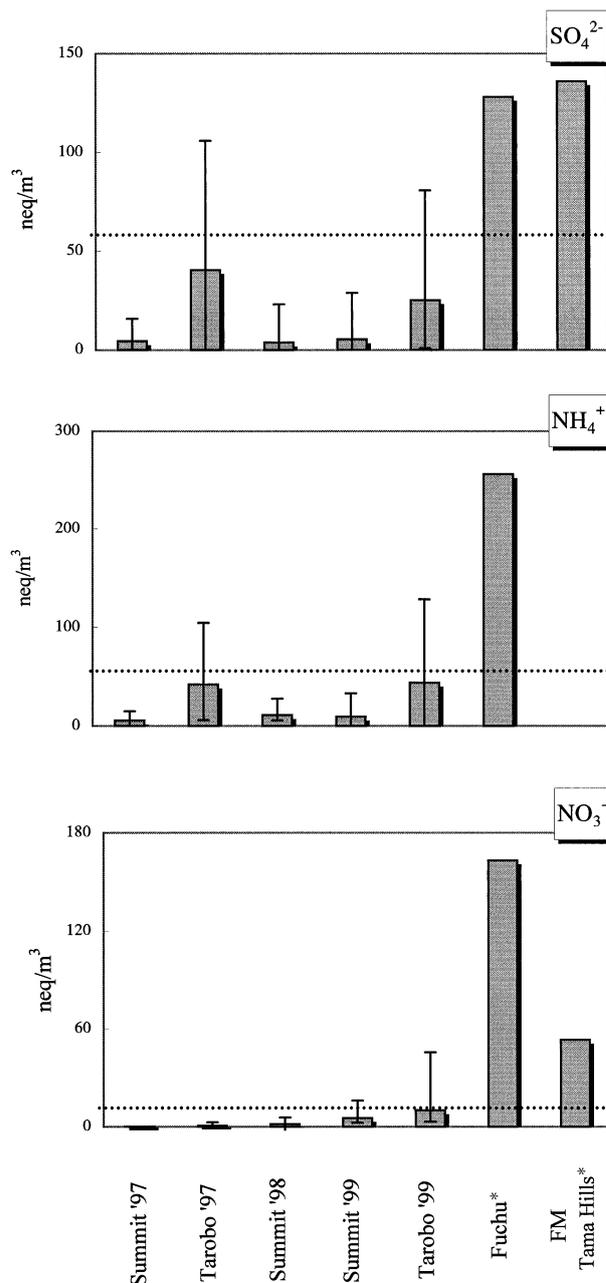


Fig.2. Mean concentration of SO₄²⁻, NH₄⁺ and NO₃⁻ at the summit and Tarobo of Mt. Fuji; a. SO₄²⁻, b. NH₄⁺, c. NO₃⁻

* Matsumoto & Ogura, 1992

.....concentration range in the free troposphere of the European Alps (Fuzzi & Wagenbach, 1997)

of these chemical species in the free troposphere.

3.3 Concentration changes of sulfate, ammonium and nitrate in the aerosol at the summit of Mt. Fuji, in comparison with those at Tarobo.

The results for concentrations of sulfate, ammonium and nitrate in the aerosol samples of every 4 hours are plotted in Fig.3, a (summit) and b (Tar-

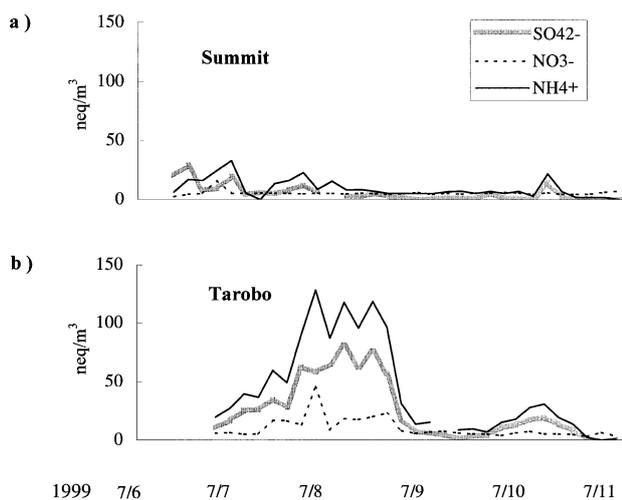


Fig.3. Concentrations of SO_4^{2-} , NH_4^+ and NO_3^- at the summit and Tarobo of Mt. Fuji ; a. Summit, b. Tarobo

obo). Periodical concentration changes of sulfate and ammonium ions showed fairly similar trends at each sampling site, except for the first day (July 6) at the summit, but these trends are not similar for the two sampling sites. The concentration of nitrate was very low and almost constant at the summit except for the first day. However, at Tarobo, the concentration of nitrate was higher and showed a similar concentration trend as sulfate and ammonium ions.

When the concentration changes of sulfate and ammonium ions at both sampling sites are compared in detail, the high concentration peak of these species around noon on July 7 and July 10 at the summit coincided with their peaks at Tarobo. They also coincided with the weak wind speed at the summit, indicating a possibility of an event whereby polluted air from a lower elevation was lifted up by the valley wind. However, concentration data from other sampling sites of lower elevation at different directions would be needed for more detailed analysis.

3.4 Ozone concentration at the summit and Tarobo

Surface ozone concentration at the summit is known to be a good index of air mass inventory (Tsutsumi *et al.*, 1994 and 1998). The concentrations of surface ozone at the summit and Tarobo during the campaign are shown in Figs.4 a (summit) and b (Tarobo). It is apparent that the con-

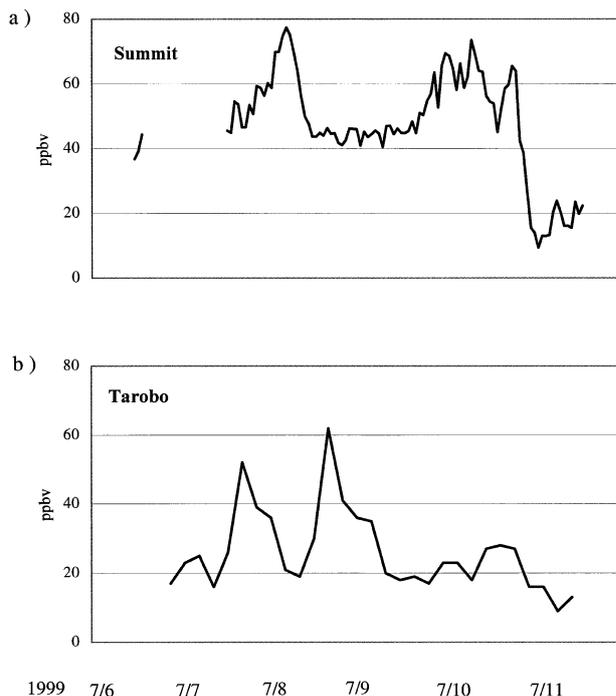


Fig.4. Concentration of surface ozone at the summit and at Tarobo of Mt. Fuji ; a. Summit, b. Tarobo

centration of ozone at the summit was higher than that at Tarobo throughout the observation period, corroborated by former observations (Tsutsumi *et al.*, 1998). No typical diurnal pattern, high in daytime with a maximum peak in afternoon and low at night, is seen at the summit or even at Tarobo during July 9 to 11.

The concentration of ozone at the summit was around 20 ppbv on July 5 (data on July 5 are not shown in the figure). It gradually increased to 40 ppbv around noon on July 6, but then no data was obtained until noon on July 7 due to instrumental trouble. In the afternoon of July 7, when the humidity decreased and the wind direction shifted to northeast, the concentration of ozone increased to 80 ppbv during early morning on July 8. After that, it decreased to 40–50 ppbv and was constant one and a half days, then increased to 60–70 ppbv during the night of July 9. This higher concentration continued until the night of July 10 when it suddenly decreased with the entrance of a wet air mass, after which it was as low as 20 ppbv on July 11. As previously reported, background concentration of ozone at the summit was estimated to be around 50 ppbv from the specific relation with ^7Be , a cosmogenic radio-isotope (Tsutsumi *et al.*, 1998).

Therefore, the higher concentration of ozone observed during early morning on July 8 and July 10 are thought to be caused from an air mass of high ozone concentration over the Continent, and the lower concentration on the last day of the observation due to a marine air mass.

Since the concentration of surface ozone is generally high at the summit, oxidative chemical reactions might be expected. However, concentration changes of chemical species in the aerosols and trace gases such as H_2O_2 appeared to be more under the influence of the movement of air masses than the chemical reactions on site because of high wind speed, low temperature and low pollutant concentrations (Yonekura, personal communication).

On the other hand, at Tarobo, the concentration of surface ozone was around 20 ppbv during the night of July 6, increased to 50 ppbv in the afternoon of July 7, decreased to around 20 ppbv in the early morning on July 8, then increased to 60 ppbv followed by a decrease to 20 ppbv with no further increases afterward. It decreased to as low as 10

ppbv in the early morning of July 11. The reason for these high ozone concentrations at Tarobo has not been clarified yet, however, some transport of polluted air mass from the Tomei highway and/or Gotenba City 30 km downwards is suspected. In any case, it was apparent that the major air masses at Tarobo were different from those at the summit.

3.5 Back trajectory analysis

Isentropic backward trajectory analysis was conducted using global P level analysis data provided by Japan Meteorological Agency (JMA). The procedure for calculation was the same as that reported by Tsutsumi *et al.* (2000). As illustrated in Fig.5, the air mass at the summit of Mt. Fuji came mostly from the northwest and northeast, in other words, from the Asian Continent during July 7–10. At midnight on July 10, a marine air mass from the south entered, coinciding with the decrease in O_3 concentration.

When the marine air mass reached the summit, the concentrations of sulfate and ammonium ions in the aerosol at the summit decreased. Even at Tar-

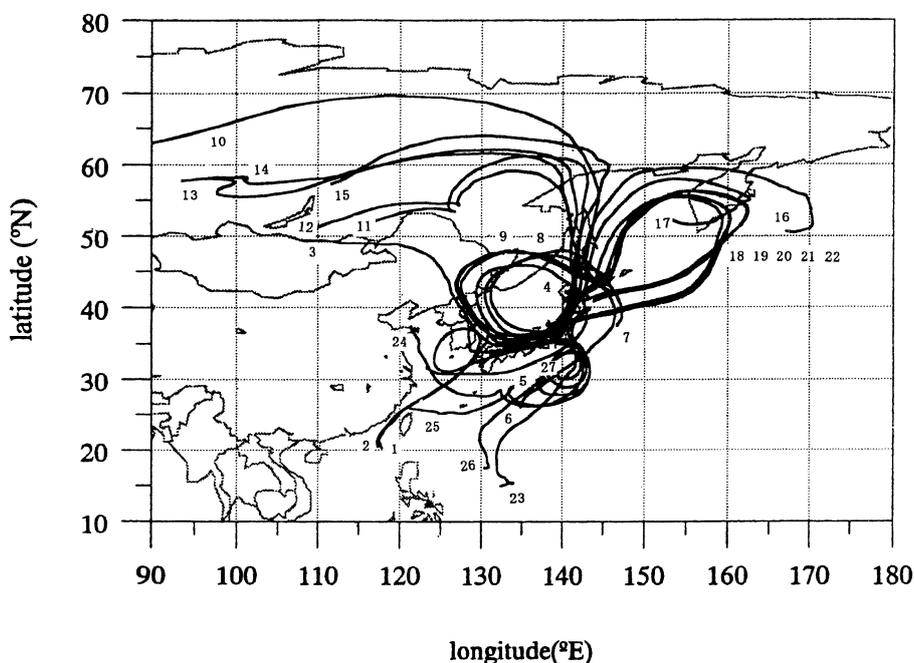


Fig.5. Backward trajectories at the summit of Mt. Fuji (4 days backward), starting point is 1:9:00 JST, July 5, 1999, 2:15:00, July 5, 3:21:00, July 5, 4:3:00, July 6, 5:9:00, July 6, 6:15:00, July 6, 7:21:00, July 6, 8:3:00, July 7, 9:9:00, July 7, 10:15:00, July 7, 11:21:00, July 7, 12:3:00, July 8, 13:9:00, July 8, 14:15:00, July 8, 15:21:00, July 8, 16:3:00, July 9, 17:9:00, July 9, 18:15:00, July 9, 19:21:00, July 9, 20:3:00, July 10, 21:9:00, July 10, 22:15:00, July 10, 23:21:00, July 10, 24:3:00, July 11, 25:9:00, July 11, 26:15:00, July 11, 27:21:00, July 11.

obo, the concentrations of these species and the surface ozone lessened at the same time, presumably showing a large scale influence of marine air mass.

4. Conclusion

Intensive observations of atmospheric chemistry at the summit and Tarobo were performed during July 6–11, 1999 (Summer campaign '99), a late Baiu season. The concentrations of chemical species in aerosol were measured every 4 hours at the two sampling sites for one week. From the data analyses with meteorological conditions and other samples such as ozone, the following points can be summarized as the characteristics of Mt. Fuji aerosol.

1. The concentrations of sulfate, ammonium and nitrate were much lower at the summit than at Tarobo and other sites of lower elevation.
2. The concentrations of sulfate and ammonium showed similar temporal change at both sites but that of nitrate did not at the summit.
3. The concentration of surface ozone at the summit, which showed a clear reverse correlation with relative humidity, has been supposed to be a good index of the movement of air mass. When the ozone concentration was high, the summit was generally within the influence of Continental air.

The summit of Mt. Fuji is mostly in free troposphere throughout the year, which will provide information on long range transport of chemical species. It has proved to be a very promising site for the continuous observation of air chemistry of the free troposphere. However, these observations are limited to the summer season at present due to severe meteorological conditions at other times of the year. More information on other seasons is necessary for future studies.

Acknowledgements

The authors would like to express their hearty gratitude to the staff of Mt Fuji weather station for their assistance in the observations. Thanks are also due to Dr. Shiro Hatakeyama of the CGER National Institute for Environmental Studies for his help in observation of peroxides.

References

- Dokiya, Y., Takeshige, Y., Murakami, K., Hayashi, K., Igarashi, Y. and Tsutsumi, Y. (1999) Atmospheric aerosol at the summit of Mt. Fuji. Abstract, First Asia Aerosol Conference (Nagoya), 94–95.
- Dokiya, Y., Tsuboi, K. and Maruta, E. (1993) Chemical composition of the precipitation at Mt. Fuji and its seasonal variation. *Tenki*, 40 : 539–542.
- Dokiya, Y., Yoshikawa, T., Komada, T., Suzuki, I., Naemura, A., Hayashi, K., Naoe, H., Sawa, Y., Sekiyama, T. and Igarashi, Y. (2001) Atmospheric chemistry at the summit of Mt. Fuji : A challenging field for analytical chemists. *Anal. Sci., Supplement*, 17 : i 809–i 812.
- Fuzzi, S. and Wagenbach, D eds. (1997) Cloud multi-phase process and high alpine air and snow chemistry, EUROTRAC vol.5, 286 pp, Springer.
- Hayashi, K., Igarashi, Y., Tsutsumi, Y. and Dokiya, Y. (2001) Precipitation chemistry at the summit of Mt. Fuji, Japan. *Water, Air and Soil Pollution*, 130 : 1667–1672.
- Maruta, E., Tsuboi, K. and Dokiya, Y. (1993) Chemical composition of precipitation at Mt. Fuji in relation to pressure patterns. *Environ. Sci.*, 6 : 311–320.
- Matsumoto, K. and Ogura, N. (1992) Chemical composition and behavior of atmospheric aerosols in Fuchu city, Tokyo. *Chikyukagaku (Geochemistry)*, 26 : 95–104.
- Sekino, H., Nara, C., Tsuboi, K., Hosomi, T., Dokiya, Y., Igarashi, Y., Tsutsumi, Y. and Tanaka, S. (1997) Acid deposition at the summit of Mt. Fuji -observation on gases, aerosol, fog and precipitation in summer, 1994 compared with summer 1993. *J. Aerosol Res., Jpn.*, 12 : 311–319.
- Tsuboi, K., Hosomi, T., Dokiya, Y., Tsutsumi, Y., Yanagisawa, K. and Tanaka, S. (1994) Chemical species in aerosol, gases and precipitation at summit of Mt. Fuji. *J. Aerosol Res., Jpn.*, 11 : 226–234.
- Tsutsumi, Y., Igarashi, Y., Zaizen, Y. and Makino, Y. (1998) Case studies of tropospheric ozone events observed at the summit of Mt. Fuji. *J.*

- Geophys. Res., 103 : 16, 935–16, 951.
- Tsutsumi, Y. and Matsueda, H. (2000) Relationship of ozone and CO at the summit of Mt. Fuji (35.35 N, 138.73 E, 2766 m above sea level) in summer, 1997. *Atmos. Environ.*, 34 : 553–561.
- Tsutsumi, Y., Zaizen, Y. and Makino, Y. (1994) Tropospheric ozone measurement at the top of Mt. Fuji. *Geophysical Research Letters* 21 : 1727–1730.
- Warneck, P. (1988) *Chemistry of the Atmosphere*, Acad. Press, San Diego.
- Yonekura, H., Hatakeyama, S., Tsutsumi, Y., Igarashi, Y., Sawa, Y., Hayashi, K., Murakami, K., Yoshikawa, T. and Dokiya, Y. (submitted to *Atmospheric Chemistry*)

研究資料

ススキのアセチル化と液化*¹福田清春*², 近藤和子*², 近江正陽*², 富永洋司*²Acetylation and Liquefaction of *Miscanthus sinensis**¹Kiyoharu FUKUDA*², Kazuko KONDOU*², Masahiro OHMI*² and Hiroshi TOMINAGA*²

Wood is liquefied by a reaction with phenol under high temperature and high pressure. This method of liquefaction was applied to *Miscanthus sinensis* to develop a new use for it. However, *Miscanthus sinensis* was more difficult to liquefy than wood, so acetylated *Miscanthus sinensis* was used as a sample for liquefaction. The degree of liquefaction increased with increasing degree of acetylation. As an application of this study, foam was prepared from the liquefied *Miscanthus sinensis*.

keywords : *Miscanthus sinensis*, liquefaction, acetylation

木材は高温・高圧下においてフェノールと反応し液化する。この液化反応をススキに応用した。しかし、ススキは木材に比べて液化し難かった。そこで、ススキをアセチル化した後に液化させたところ、アセチル化の程度に応じて液化効率が上がった。また、本研究の応用として、液化物から発泡体の調製を行った。

キーワード：ススキ、液化、アセチル化

1. 緒言

石油依存型社会からの脱皮を目指して、持続可能な石油代替資源の開発が求められており、木材に期待が寄せられている。しかし、世界的に見るならば、大幅に森林面積が減少しつつある現在、そしてその延長にある未来において、森林から生み出される貴重な木材の利用は困難になることも予想される。したがって、木材以外の植物資源にも注目する必要がある。

この様な背景から、我々は雑草、特にススキの資源化に関して一連の研究を行ってきた。ススキは我が国の全土のみならず、アジア一円に広く分布する耐酸性の強い植物であり、瘦薄地においても極めて旺盛な生育を遂げるという特徴を持っている。土地単位面積あたりの乾物生産量は、ススキが優勢な地域でのデータによると1 haあたり13 t/年におよぶ。これに対し、日本の森林の純生産量は1 haあ

たり13.9 t/年であることから、ススキの生産量は森林の生産量に十分匹敵することが分かる¹⁾。ススキは以前は一番安価な屋根材料として、あるいは俵等の材料として大量に使用されていたが、現在ではほとんど用途を持たず、単に雑草として扱われているにすぎない。

本研究においては、近年木材を用いて行われてきた研究のうち、液化およびその液化物からの発泡体の調製などの研究成果³⁻⁵⁾を、未利用植物資源であるススキに応用しようとするものである。

2. 実験方法

2.1 試料

以前に報告したと同様に²⁾、ススキ (*Miscanthus sinensis* Anders) の茎および葉鞘部分をワイリーミルにて粗く粉碎した後、磁性の回転式ボールミルで3~4日間微粉碎した。これをアルコール・ベンゼン (1:2 v/v) 混液にて6時間抽出処理した

*¹ Received Sept. 10, 2001; Accepted Nov. 1, 2001

*² 東京農工大学農学部 環境資源科学科 〒183-8509東京都府中市幸町3-5-8: Department of Environmental and Natural Resource Science, Fac. of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo 183-8509, Japan

後、60℃で48時間乾燥させ、これを無処理試料として実験に用いた。

2.2 アセチル化

ジムロート型冷却管、温度計および攪拌用すり合わせシールを取り付けた三ッ口500 ml 容セパラブルフラスコに、無水酢酸150 ml、ピリジン200 mlを入れてアセチル化浴を作り、室温下でよく混合する。これに60℃で48時間乾燥させた無処理試料10 gを入れ、セパラブルフラスコごと湯浴槽に置き、攪拌しながら80℃で種々な時間アセチル化反応を行った。反応後、内容物を吸引ろ過し、十分反応液を取り除いた後、残さを攪拌子を入れたビーカーに移した。これにメタノール350 mlを入れ、マグネチックスターラーにより攪拌しながら一晩放置し洗浄を行った。アセチル化の程度は反応前後の試料質量から質量増加率を算出して調べた。

2.3 液化

無処理木材を試料として、白石らはフェノール等と木粉を高温高圧下に反応させ、液化物を得ることに成功している³⁾。この方法によるススキの液化について実験を行った。試料0.5 gを60℃で48時間乾燥させ精秤した後、ステンレス製の小型耐圧反応管にいれ、液化薬剤としてフェノールまたは1,4-ジオキサンを加えた。この際の液化薬剤量や反応時間、反応温度等の実験条件が液化率に及ぼす影響について、Table 1のごとくにL₈直交表に基づく実験計画法にて検討を行った。

Table 1. Allocation of experimental factors in the L₈ orthogonal table

No.	Reaction Temperature (°C)	Ratio*	Reaction Time (hr)	Moisture content (%)	Liquefacient reagent
1, 9	100	1:5	1	0	Phenol
2, 10	100	1:10	2	20	1, 4-Dioxan
3, 11	150	1:5	1	20	1, 4-Dioxan
4, 12	150	1:10	2	0	Phenol
5, 13	200	1:5	2	0	1, 4-Dioxan
6, 14	200	1:10	1	20	Phenol
7, 15	230	1:5	2	20	Phenol
8, 16	230	1:10	1	0	1, 4-Dioxan

* Ratio of mass of *M. sinensis* to liquefacient reagent

反応後、耐圧反応管をオイルバスより取り出し、室温下に放冷した。この内容物を1,4-ジオキサンで洗浄しながら1 G-3 グラスフィルター上に移して吸引ろ過し、60℃で48時間乾燥させ精秤した。液化率は液化反応後の残渣量と試料量の比から求め

た。

アセチル化試料についても同様な液化を行った。

2.4 発泡体の調製

木材から発泡体を調製した白石らの方法⁴⁾を参考にして、アセチル化したススキから発泡体の調製を試みた。ジムロート型冷却管を取り付けた30 mL ナス型フラスコに、多価アルコール類またはビスフェノール A 2 gを入れ、湯浴槽につけて80-100℃に加熱した。これに濃塩酸 (35-36%) を1.5 mL 加えてマグネチックスターラーによってよく攪拌した。試料1 gを少しずつ加え、30分間放置した。その後、攪拌しながら2時間反応させた。なお、多価アルコール類としてはビスフェノール A, 1, 6-ヘキサンジオール, 1, 4-ブタンジオール, 1, 2, 3-プロパントリオールを用いた。

以上のごとく調製した液化物を100 mL 容のビーカーに移し、40%水酸化ナトリウム水溶液にて中和した。試料と等量の75%ポリメリック MDI・トルエン溶液を少しずつ加え、試験管に流し入れた。さらに発泡させるための触媒として n-ブチルアミン0.25 ml を加えてガラス棒で約20秒間攪拌し、100℃の下に約10分間反応させた。その後24時間放置し、発泡体を調製した。

2.5 X線回折、赤外線吸収スペクトル (IR スペクトル)

試料を粉砕することによる結晶化度の変化を調べるため、東京都産業技術研究所に依頼して X 線回折を行うとともに、各種試料について赤外線吸収スペクトルの測定 (島津製作所製 FTIR-8100) を行った。

3. 結果と考察

3.1 無処理試料の液化

試料を微粉砕する前後の X 線回折結果について Fig. 1に示す。セルロースを含む試料の反応性は、セルロースの結晶性によって大きな影響を受ける。これは、セルロース結晶は、その表面でのみ反応が行われ、結晶内部はほとんど反応しないからである。従って、セルロース試料中の結晶領域をあらかじめ破壊しておくこと、その反応性は増加するものと期待できる。セルロース結晶の破壊法には種々な方法があるが、ここではボールミルによる磨細法を選択して実施した。Fig. 1の結果より、ボールミルによる微粉砕によってセルロースの結晶構造が十分に破壊されたことが分かる。

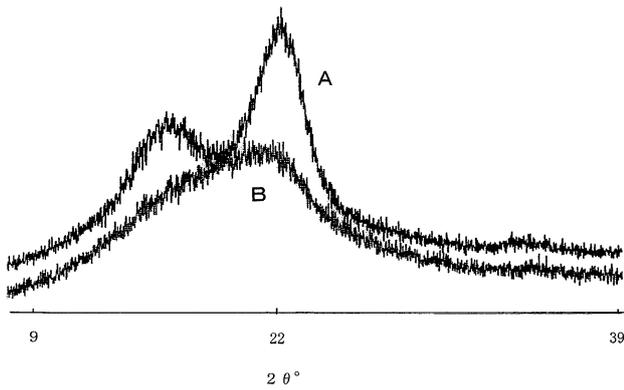


Fig. 1. X-ray diffractograms of *M. sinensis* before (A) and after (B) the finely grinding with a ball mill.

ちなみに Segal の方法にて結晶化度を求めると、微粉碎前の試料について44%、微粉碎後の試料について11%となった。

次に無処理試料について行った液化実験の分散分析結果を Table 2 に示す。また、有意性を示した反応温度、液比および反応時間について、要因効果の推定図を作成したところ、Fig. 2 に示す結果を得た。この結果より、試料の液化に際して効果的な反応条件を選ぶと、反応温度が230°C、液比が1:10、反応時間が1時間であった。しかし、実験全体を通して最大でも液化率は高々十数%にしか達しておらず、木材を試料として行われた白石らの同様の実験で得られた80-90%という液化率⁴⁾と比較して、かなり低い値となっている。この理由については不明であるが、ススキに含まれるリグニンと木材のリグニンの構造の違いが一因として考えられよう。ススキのリグニンはp-オキシ核を含み、ベンゼン環の2, 3, 5, 6位が他の構成単位と結合していない、つまり縮合反応が起こり易い構造であり、液化反応中に溶け難い構造へと変化することが考えられよう。

Table 2. Analysis of variance concerning the effect of various experimental factors on the rate of liquefaction

Factor	s. s.	d. f.	m. s.	F
Temperature	278.21	3	92.74	71.34**
Time	60.41	1	60.41	46.47**
Ratio ^{a)}	48.06	1	48.06	36.99**
Moisture content	0.13	1	0.13	0.1
Liquefacient reagent	0	1	0	
Error	9.13	7	1.3	
Total	395.9	14		

a) see Table 1

** statistically significant at the 99% level

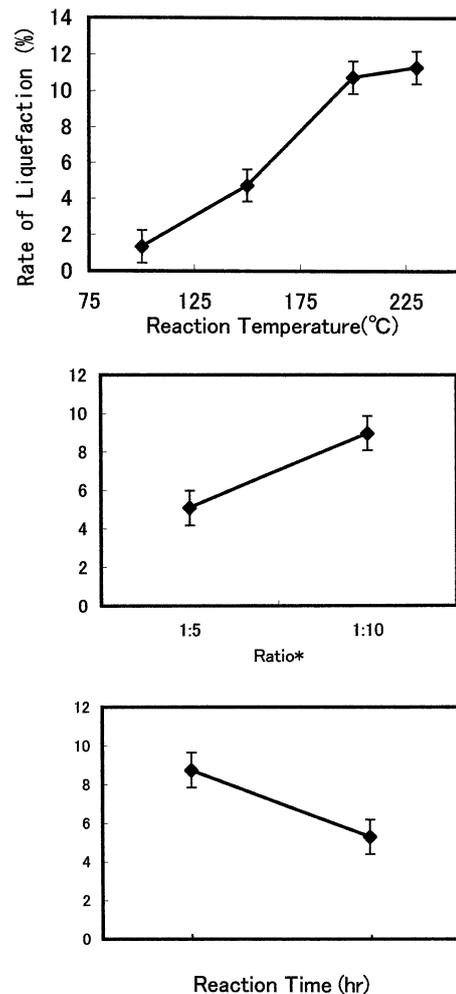


Fig. 2. Relationship between the ratio of liquefaction of *M. sinensis* and various experimental conditions. * see Table 1.

3.2 アセチル化の程度と液化率

無処理ススキでは木材で達成された高い液化率が実現できなかった。そこで化学修飾を施した試料について液化処理を行った。アセチル化前後の試料のIRスペクトルを Fig. 3 に示す。アセチル化後の試料では、アセチル化前の試料に比較して、水酸基に由来する 3400 cm^{-1} 付近の吸収帯は相対的に強度を減少しており、一方、アセチル基中のカルボニル基由来の 1750 cm^{-1} 付近の吸収帯は強度を増加している。これらの結果は、試料中の水酸基がアセチル基で置換されたことを示しており、試料は確かにアセチル化していることが確認できる。

試料のアセチル化の程度が液化率に及ぼす影響について Fig. 4 に示す結果を得た。この結果より試料のアセチル化の程度が上昇するとともに液化率も高くなることが分かる。80%を越える液化率は木材で達成されている液化率に匹敵するものである。

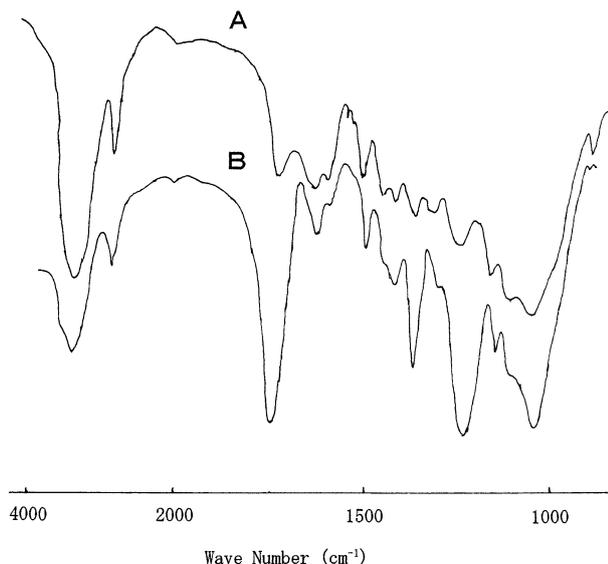


Fig. 3. IR spectra of *M.sinensis* before (A) and after (B) acetylation.

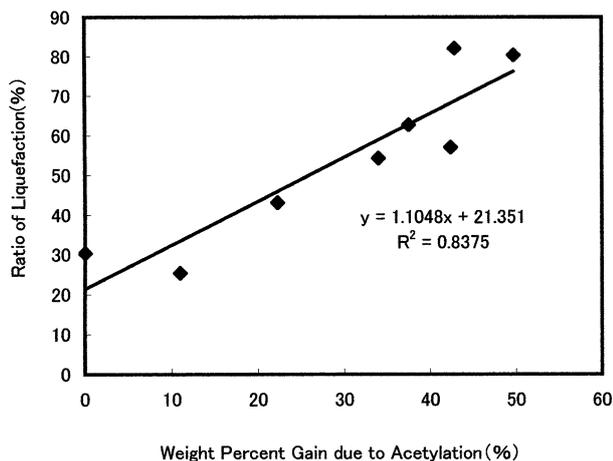


Fig. 4. Relationship between the degree of acetylation and the ratio of liquefaction

3.3 発泡体の調製

アセチル化した試料について4種類の溶媒にて液化した後、発泡体の調製を試みた。ここで用いた方法は白石らによって木材について行われた方法であり⁴⁾、木材では各種液化物および発泡体がこの方法で調製されている。しかし、*n*-ブチルアミンを加えずに行った実験では、発泡体の調製を試みたが、いずれも発泡体は調製できなかった。そこで、1, 2, 3-プロパントリオール(グリセリン)を溶媒



Fig. 5. Foam prepared from the liquefied sample

として *n*-ブチルアミンを少量加えて反応させたところ、Fig. 5に示す様に発泡体を調製する事ができた。これは、*n*-ブチルアミンが、接触し難いイソシアネートと水との相溶化剤 (compatibility) として働いているためではないかと推定されよう。なお、発泡体の密度を測定すると凡そ 0.3 g/cm^3 程度であった。

文 献

- 1) 宮崎 信 (1983) ウッドケミカルの先端技術と展望. 26 pp, シーエムシー(株), 東京.
- 2) 福田清春・菅谷 玲・近江正陽・富永洋司 (2001) 微粉碎したススキのエステル化と熱軟化性. 木材学会誌, 47: 452-457.
- 3) Sejin, Pu and Shiraishi, N. (1993) Liquefaction of wood without a catalyst. Mokuzai Gakkaishi, 39: 446-452.
- 4) 白石信夫・合田和弘 (1984) アリル化またはカルボキシメチル化による木材のプラスチック化と接着剤への応用. 木材工業, 39: 329-335
- 5) Shiraishi, N., Onodera, S., Ohtani, M. and Masamoto, T. (1985) Dissolution of esterified or esterified wood into polyhydric alcohols or bisphenol A and their application in preparing wooden polymeric materials. Mokuzai Gakkaishi, 31: 418-420.

研究資料

東京農工大学フィールドミュージアム (FM) における
樹木生育状況の記録 (1990・2001)^{*1}桑原 繁^{*2}Trees observed in University Forests of TUAT in 1990 and in 2001^{*1}Shigeru KUWABARA^{*2}

Trees in University Forests of TUAT were investigated in 1990 and in 2001 to determine if they were ready for the collection and the conservation of forest gene resources. A table including all tree species and their populations (nil, a few or many) was made, and 295 types of trees (247 species, 5 subspecies, 34 variety and 9 forma) were recorded.

keywords : tree species, subspecies, variety, forma, fauna

東京農工大学農学部附属広域都市圏フィールドサイエンス教育研究センター (FSセンター), FM大谷山 (旧大谷山演習林), FM草木 (旧草木演習林), FM唐沢山 (旧唐沢山演習林) および FM秩父 (旧埼玉演習林) の樹木について, 森林遺伝子資源の収集と保存の必要性から, 種類と生育状況が1990年と2001年に調査された。その結果, 種・亜種・変種および品種を合わせ295樹種および各種の生育状況がFM別に記録された。

キーワード: 樹木種, 亜種, 変種, 品種, 相

1. はじめに

東京農工大学農学部附属広域都市圏フィールドサイエンス教育研究センター (FSセンター), FM大谷山 (旧大谷山演習林), FM草木 (旧草木演習林), FM唐沢山 (旧唐沢山演習林) および FM秩父 (旧秩父演習林) の樹木について, 森林遺伝子資源の収集と保存の必要性から, 種類と生育状況が調査された (新井1991)。その結果, 種・亜種・変種を合わせ294樹種および各種の生育状況がFM別に記録された。

新井 (1991) の報告から10年経過した2001年, 森林遺伝子資源を収集して保存し, 種の多様性を維持するうえで, 再調査が必要となり, 実施されたので, ここに報告する。樹木個体群の変動を長期にわたり解析するさいの, 一助となれば幸いである。

本文を草するにあたり, 希少樹種の生育場所など

多数の助言をして下さった元東京農工大学演習林長新井雅夫先生, 終始指導して下さい下さった東京農工大学FSセンター自然環境教育研究分野長岸洋一教授, 現地を案内して下さい下さったFM唐沢山主任松崎秀司技官およびFM秩父主任内田武次技官に, それぞれ深い謝意を表します。

2. 調査方法

調査地の概要

FM大谷山は, 群馬県勢多郡東村大字神戸にある。標高は560~1080 mの範囲にあり, 一部は亜高山地帯に達する。年平均気温は12.7℃, 年降水量は1566 mmである。

FM草木は, 群馬県勢多郡東村大字草木にある。標高は650~1150 mの範囲にあり, 一部は亜高山地帯に属す。年平均気温は13.8℃, 年降水量は1346 mmである。

^{*1} Received Oct. 29, 2001; Accepted Jan. 21, 2002

^{*2} 東京農工大学農学部附属フィールドサイエンス・センター, FM大谷山 〒376-0304群馬県勢多郡東村神戸字上の山277: Field Musium Oyasan, Tokyo University of Agriculture and Technology, Godo, Azuma-V., Gunma-Pref. 376-0304, Japan

FM唐沢山は、栃木県安蘇郡田沼町大字栃本にある。標高は80~290 mの範囲にあり、丘陵地にある。年平均気温は14.1℃、年降水量は1279 mmである。

FM秩父は、埼玉県秩父郡大滝村大字大滝にある。標高は800~1464 mの範囲にあり、ほとんどが亜高山地帯に属す。年平均気温は9.0℃、年降水量は1298 mmである。

各FMの沿革、地質、林況などは、前報告(新井1991)を参照して下さい。

調査期間

2001年10~11月に、FM大谷山(92 ha)は2日、FM草木(415 ha)は3日、FM唐沢山(162 ha)は3日、FM秩父(234 ha)は3日かけ、現地調査が行われた。

調査方法

全林小班を一度は通過し、各FMごとに樹種名と生育状況(多数, 少数, 無)を記録した。少数とは、容易に生育木を確認できず、FM単位で10本は確認できなかったものである。なお、少数の樹種の生育地点と本数は、林小班図に記録した。

3. 結果および考察

学名、種間分類群、和名の表記および配列は、主として環境庁自然保護局編(1987)の植物目録に依り、一部の学名、和名については林編(1989)、北村・村田(1979 a,b)、佐竹ら編(1989 a,b)、杉本(1979)を引用した前報告(新井1991)と同じである。

ただし、和名、学名などについてはその後改訂されたものがあり、勝田編(2001)の森林科学用語集に統一した。そのため前報告の和名を改訂したものは、アカメヤナギ→フリソデヤナギ、ウスゲクロモジ→ミヤマクロモジ、ツクバグミ→ニッコウナツグミ、マルバナツグミ→ナツグミの4種であり、学名を改訂したものは28種であった。

調査結果を、表-1に示す。樹木目録に収録された木本植物は、前報告では4 FM全体で、亜種、変種、品種合わせて294種であった。今回の調査で

は、前報告で記載もれとなっていたサワラを加えて295種(67科, 144属, 247種, 5亜種, 34変種, 9品種)で構成されている。その中には、今回4 FMでまったく確認されなく目録から除くべき樹種も含まれているが、調査の精度が上がれば再確認の可能性があるので、目録には調査対象樹種として10年間残す考えである。

表-1を見ると、樹種によって生育状況の大きな変動が目立ったが、参考程度の資料としたい。これは、調査場所や調査期間、調査者の違いによる変動も考えられたので、生育状況の変動は今回は考察されなかった。今回の調査から、生育数が少数の樹種は林小班図に記録され、調査方法も統一されるので、樹種個体群の消滅等は、次回からはより精度高く報告されるであろう。今後このようなモニタリング調査を5年間隔で組織的にを行い、そのつどここに記録したい。

引用文献

- 新井雅夫(1991) 演習林の樹木. 東京農工大学農学部演習林報告, 29:1-18.
- 林 弥栄編(1989) 日本の樹木. 750 pp, 山と溪谷社, 東京.
- 環境庁自然保護局編(1987) 植物目録. 740 pp, 大蔵省印刷局, 東京.
- 勝田 柁編(2001) 森林科学用語集. 637 pp, 林学会, 東京.
- 北村四郎・村田 源(1979 a) 原色日本植物図鑑 木本編 I. 401 pp, 保育社, 東京.
- 北村四郎・村田 源(1979 b) 原色日本植物図鑑 木本編 II. 540 pp, 保育社, 東京.
- 佐竹義輔・原 寛・亘理俊次・富成忠夫編(1989 a) 日本の野生植物 木本 I. 321 pp, 平凡社, 東京.
- 佐竹義輔・原 寛・亘理俊次・富成忠夫編(1989 b) 日本の野生植物 木本 II. 305 pp, 平凡社, 東京.
- 杉本順一(1979) 日本樹木総検索誌. 552 pp, 六月社, 大阪.

表1. 樹木目録と確認数 (1990→2001, 0 無・±少数・+多数)

学名	樹種名 和名	フィールドミュージアム			
		大谷山	草木	唐沢山	秩父
[SPERMATOPHYTA 種子植物]					
[GYMNOSPERMAE 裸子植物]					
Pinaceae		マツ科			
<i>Abies firma</i>	モミ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. homolepis</i>	ウラジロモミ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Larix kaempferi</i>	カラマツ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Picea torano</i>	ハリモミ	±→±	0→±	0→0	±→±
<i>Pinus densiflora</i>	アカマツ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Tsuga sieboldii</i>	ツガ	±→+	+→+	0→0	+→+
Taxodiaceae		スギ科			
<i>Cryptomeria japonica</i>	スギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>C. japonica</i> f. <i>caespitosa</i>	ムレスギ	±→0	±→0	0→0	0→0
Cupressaceae		ヒノキ科			
<i>Chamaecyparis obtusa</i>	ヒノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>C. pisifera</i>	サワラ	±→±	+→+	±→±	0→0
Cephalotaxaceae		イヌガヤ科			
<i>Cephalotaxus harringtonia</i>	イヌガヤ	±→0	0→0	+→+	±→+
Taxaceae		イチイ科			
<i>Torreya nucifera</i>	カヤ	±→0	0→0	±→0	0→0
[ANGIOSPERMAE 被子植物]					
[DICOTYLEDONEAE 双子葉植物]					
[CHOLIPETALAE 離弁花類]					
Juglandaceae		クルミ科			
<i>Juglans mandshurica</i> var. <i>sachalinensis</i>	オニグルミ	+→±	+→+	+→+	+→+
<i>Pterocarya rhoifolia</i>	サワグルミ	0→0	+→+	0→0	+→+
Salicaceae		ヤナギ科			
<i>Populus sieboldii</i>	ヤマナラシ	±→0	0→+	+→0	+→±
<i>Salix bakko</i>	バッコヤナギ	±→+	+→+	±→0	+→+
<i>S. chaenomeloides</i>	フリソデヤナギ	0→0	0→0	±→0	0→0
<i>S. gracilistyla</i>	ネコヤナギ	±→0	0→0	+→+	0→0
<i>S. integra</i>	イヌコリヤナギ	+→0	+→+	+→0	+→0
<i>S. kinuyanagi</i>	キヌヤナギ	0→0	0→0	±→0	0→0
<i>S. sachalinensis</i>	オノエヤナギ	+→0	+→+	0→0	+→0
<i>S. serissaefolia</i>	コゴメヤナギ	0→0	±→0	0→0	0→0
<i>S. shiraii</i>	シライヤナギ	0→0	0→0	0→0	+→±
<i>S. subfragilis</i>	タチヤナギ	0→0	0→0	±→0	0→0
<i>S. vulpina</i>	キツネヤナギ	±→0	±→0	0→0	0→0
Betulaceae		カバノキ科			
<i>Alnus firma</i>	ヤシャブシ	+→+	+→+	0→+	+→+
<i>A. hirsuta</i>	ケヤマハンノキ	+→±	+→+	0→0	+→+
<i>A. japonica</i>	ハンノキ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Betula ermanii</i>	ダケカンバ	±→±	+→+	0→0	+→+
<i>B. grossa</i>	ヨグソミネバリ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>B. maximowicziana</i>	ウダイカンバ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>B. platyphylla</i> var. <i>japonica</i>	シラカバ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>B. schmidtii</i>	オノオレカンバ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Carpinus cordata</i>	サワシバ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>C. japonica</i>	クマシデ	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>C. laxiflora</i>	アカシデ	+→+	+→+	+→+	+→+

学名	樹種名 和名	フィールドミュージアム			
		大谷山	草木	唐沢山	秩父
<i>C. tschonoskii</i>	イヌシデ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Corylus sieboldiana</i>	ツノハシバミ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Ostrya japonica</i>	アサダ	0→0	0→0	0→0	+→+
Fagaceae	ブナ科				
<i>Castanea crenata</i>	クリ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Castanopsis sieboldii</i>	スダジイ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>C. cuspidata</i> f. <i>lanceolata</i>	ホソバスダジイ	0→0	0→0	+→±	0→0
<i>Fagus crenata</i>	ブナ	±→0	+→+	0→0	+→+
<i>F. japonica</i>	イヌブナ	+→±	+→+	+→0	+→+
<i>Quercus acutissima</i>	クヌギ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Q. glauca</i>	アラカシ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Q. mongolica</i> ssp. <i>crispula</i>	ミズナラ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Q. myrsinifolia</i>	シラカシ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Q. salicina</i>	ウラジロガシ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Q. serrata</i>	コナラ	+→+	+→+	+→+	+→+
Ulmaceae	ニレ科				
<i>Celtis jessoensis</i>	エゾエノキ	±→0	±→0	0→0	±→0
<i>C. sinensis</i> var. <i>japonica</i>	エノキ	0→0	0→0	±→+	0→±
<i>Ulmus davidiana</i> var. <i>japonica</i>	ハルニレ	±→±	±→0	±→0	0→0
<i>U. laciniata</i>	オヒョウ	0→0	+→+	0→0	±→0
<i>Zelkova serrata</i>	ケヤキ	+→+	+→+	+→+	+→+
Moraceae	クワ科				
<i>Broussonetia kazinoki</i>	ヒメコウゾ	+→±	+→0	+→+	+→+
<i>Ficus nipponica</i>	イタビカズラ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Morus bombycis</i>	ヤマグワ	+→+	+→+	+→+	+→+
Urticaceae	イラクサ科				
<i>Boehmeria spicata</i>	コアカソ	±→0	±→+	+→0	+→±
Santalaceae	ビャクダン科				
<i>Buckleya lanceolata</i>	ツクバネ	+→0	+→0	0→0	+→±
Loranthaceae	ヤドリギ科				
<i>Viscum album</i> var. <i>coloratum</i>	ヤドリギ	+→±	+→±	+→+	+→+
Magnoliaceae	モクレン科				
<i>Magnolia obovata</i>	ホオノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
Schisandraceae	マツブサ科				
<i>Schisandra repanda</i>	マツブサ	+→+	+→+	+→+	+→+
Lauraceae	クスノキ科				
<i>Lindera glauca</i>	ヤマコウバシ	±→0	0→0	±→+	+→
<i>L. obtusiloba</i>	ダンコウバイ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>L. praecox</i>	アブラチャン	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>L. sericea</i> var. <i>glabrata</i>	ミヤマクロモジ	±→0	±→0	0→0	±→0
<i>L. umbellata</i>	クロモジ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>L. umbellata</i> var. <i>membranacea</i>	オオバクロモジ	±→0	±→0	0→0	±→0
<i>Machilus thunbergii</i>	タブノキ	0→0	0→0	±→0	0→0
<i>Neolitsea sericea</i>	シロダモ	±→0	0→0	+→+	0→0
Trochodendraceae	ヤマグルマ科				
<i>Trochodendron aralioides</i> f. <i>longifolium</i>	ナガバノヤマグルマ	0→0	±→±	0→0	±→±
Eupteleaceae	フサザクラ科				
<i>Euptelea polyandra</i>	フサザクラ	+→+	+→+	±→±	+→+
Cercidiphyllaceae	カツラ科				
<i>Cercidiphyllum japonicum</i>	カツラ	±→±	+→+	0→0	+→+

学名	樹種名	和名	フィールドミュージアム			
			大谷山	草木	唐沢山	秩父
Ranunculaceae		キンポウゲ科				
<i>Clematis apiifolia</i>		ボタンズル	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>C. apiifolia</i> var. <i>biternata</i>		コボタンズル	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>C. japonica</i>		ハンショウズル	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>C. stans</i>		クサボタン	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>C. terniflora</i>		センニンソウ	+→+	+→+	+→+	+→+
Berberidaceae		メギ科				
<i>Berberis thunbergii</i>		メギ	+→+	+→+	0→+	+→+
Lardizabalaceae		アケビ科				
<i>Akebia quinata</i>		アケビ	+→±	+→+	+→±	+→±
<i>A. trifoliata</i>		ミツバアケビ	+→+	+→+	+→+	+→+
Menispermaceae		ツヅラフジ科				
<i>Cocculus orbiculatus</i>		アオツヅラフジ	+→+	+→+	+→+	+→+
Actinidiaceae		マタタビ科				
<i>Actinidia arguta</i>		サルナシ	+→+	+→+	0→+	+→+
<i>A. polygama</i>		マタタビ	+→+	+→+	0→0	+→+
Theaceae		ツバキ科				
<i>Camellia japonica</i>		ヤブツバキ	±→0	0→0	+→+	0→0
<i>Eurya japonica</i>		ヒサカキ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Stewartia pseudo-camellia</i>		ナツツバキ	+→+	+→+	+→+	+→+
Hamamelidaceae		マンサク科				
<i>Hamamelis japonica</i>		マンサク	+→+	+→+	+→+	+→+
Saxifragaceae		ユキノシタ科				
<i>Deutzia crenata</i>		ウツギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>D. crenata</i> f. <i>candidissima</i>		シロバナヤエウツギ	±→0	0→0	+→±	0→0
<i>D. gracilis</i>		ヒメウツギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>D. scabra</i>		マルバウツギ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>D. uniflora</i>		ウメウツギ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>Hydrangea hirta</i>		コアジサイ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>H. involucrata</i>		タマアジサイ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>H. paniculata</i>		ノリウツギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>H. petiolaris</i>		ツルアジサイ	0→0	+→0	0→0	+→+
<i>H. scandens</i>		ガクウツギ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>H. serrata</i>		ヤマアジサイ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Philadelphus satsumi</i>		バイカウツギ	+→0	+→+	0→0	+→+
<i>Ribes sinanense</i>		スグリ	0→0	0→0	0→0	±→±
<i>Schizophragma hydrangeoides</i>		イワガラミ	+→+	+→+	0→±	+→+
Rosaceae		バラ科				
<i>Chaenomeles japonica</i>		クサボケ	0→0	0→0	±→±	0→0
<i>Kerria japonica</i>		ヤマブキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Malus toringo</i>		ズミ	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>M. toringo</i> var. <i>zumi</i>		オオズミ	±→±	0→0	0→0	+→+
<i>Pourthiae villosa</i> var. <i>laevis</i>		カマツカ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Prunus apetala</i>		チョウジザクラ	+→±	+→±	0→0	+→±
<i>P. buergeriana</i>		イスザクラ	0→0	+→+	+→+	+→+
<i>P. grayana</i>		ウワミズザクラ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>P. jamasakura</i>		ヤマザクラ	±→±	±→±	+→+	+→+
<i>P. maximowiczii</i>		ミヤマザクラ	0→0	0→0	0→0	+→±
<i>P. pendula</i> f. <i>ascendens</i>		エドヒガン	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>P. verecunda</i>		カスミザクラ	+→+	+→+	0→0	+→+

学名	樹種名 和名	フィールドミュージアム			
		大谷山	草木	唐沢山	秩父
<i>Pyrus pyrifolia</i>	ヤマナシ	±→0	±→0	±→0	±→0
<i>Rosa luciae</i>	アズマイバラ	±→0	0→0	+→±	0→0
<i>R. multiflora</i>	ノイバラ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Rubus crataegifolius</i>	クマイチゴ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. hirsutus</i>	クサイチゴ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>R. illecebrosus</i>	バライチゴ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>R. mesogaeus</i>	クロイチゴ	±→0	±→0	0→0	0→0
<i>R. microphyllus</i>	ニガイチゴ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. palmatus</i> var. <i>coptophyllus</i>	モミジイチゴ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. parvifolius</i>	ナワシロイチゴ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. phoenicolasius</i>	エビガライチゴ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Sorbus alnifolia</i>	アズキナシ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>S. alnifolia</i> var. <i>submollis</i>	オクシモアズキナシ	+→+	0→0	0→0	0→0
<i>S. commixta</i>	ナナカマド	±→0	±→0	0→0	0→0
<i>S. commixta</i> var. <i>rufo-ferruginea</i>	サビハナナカマド	0→0	0→0	0→0	±→+
<i>S. gracilis</i>	ナンキンナナカナド	+→0	+→+	0→0	+→+
<i>S. japonica</i>	ウラジロノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Spiraea japonica</i>	シモツケ	+→0	+→±	±→±	+→±
<i>S. nipponica</i>	イワシモツケ	0→0	0→0	0→0	+→±
<i>Stephanandra incisa</i>	コゴメウツギ	+→+	+→+	+→+	+→+
Leguminosae	マメ科				
<i>Albizia julibrissin</i>	ネムノキ	+→±	+→+	+→+	+→+
<i>Caesalpinia decapetala</i> var. <i>japonica</i>	ジャケツイバラ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Cladrastis platycarpa</i>	フジキ	0→0	+→±	0→0	0→0
<i>C. sikokiana</i>	ユクノキ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>Indigofera pseudotinctoria</i>	コマツナギ	±→0	0→0	±→±	0→0
<i>Lespedeza bicolor</i>	ヤマハギ	+→0	+→+	+→±	+→+
<i>L. buergeri</i>	キハギ	+→±	+→0	+→+	+→+
<i>L. crytobotrya</i>	マルバハギ	+→±	0→+	0→+	0→±
<i>L. homoloba</i>	ツクシハギ	+→+	+→+	+→+	±→±
<i>Maackia amurensis</i> ssp. <i>buergeri</i>	イヌエンジュ	+→+	+→+	0→0	0→0
<i>Pueraria lobata</i>	クズ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Wisteria floribunda</i>	フジ	+→+	+→+	+→+	+→+
Euphorbiaceae	トウダイグサ科				
<i>Mallotus japonicus</i>	アカメガシワ	0→0	0→0	+→+	±→±
<i>Sapium japonicum</i>	シラキ	+→+	0→0	+→+	+→+
Rutaceae	ミカン科				
<i>Orixa japonica</i>	コクサギ	+→0	+→±	+→+	+→±
<i>Phellodendron amurense</i>	キハダ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Skimmia japonica</i>	ミヤマシキミ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Zanthoxylum ailanthoides</i>	カラスザンショウ	±→0	0→+	±→0	±→0
<i>Z. piperitum</i>	サンショウ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Z. piperitum</i> f. <i>brevispinosum</i>	ヤマアサクラザンショウ	+→±	+→±	0→0	0→±
<i>Z. schinifolium</i>	イヌザンショウ	+→0	+→0	+→+	+→+
Simaroubaceae	ニガキ科				
<i>Picrasma quassioides</i>	ニガキ	0→0	0→0	0→0	+→+
Anacardiaceae	ウルシ科				
<i>Rhus ambigua</i>	ツタウルシ	+→0	+→0	0→0	+→+
<i>R. javanica</i>	ヌルデ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. trichocarpa</i>	ヤマウルシ	+→+	+→+	+→+	+→+

学名	樹種名	和名	フィールドミュージアム			
			大谷山	草木	唐沢山	秩父
Aceraceae			カエデ科			
<i>Acer argutum</i>		アサノハカエデ	±→0	+→+	0→0	±→0
<i>A. capillipes</i>		ホソエカエデ	0→0	0→0	0→0	±→0
<i>A. carpinifolium</i>		チドリノキ	+→+	+→+	+→0	+→+
<i>A. cissifolium</i>		ミツデカエデ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>A. crataegifolium</i>		ウリカエデ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. diabolicum</i>		カジカエデ	+→0	+→+	0→0	+→+
<i>A. distylum</i>		ヒトツバカエデ	+→0	+→+	0→0	+→+
<i>A. japonicum</i>		ハウチワカエデ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>A. micranthum</i>		コミネカエデ	+→0	+→+	0→0	+→+
<i>A. nikoense</i>		メグスリノキ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>A. palmatum</i>		イロハモミジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. palmatum</i> var. <i>amoenum</i>		オオモミジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. palmatum</i> var. <i>matumurae</i>		ヤマモミジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. pictum</i> ssp. <i>marmoratum</i> f. <i>connivens</i>		ウラゲエンコウカエデ	+→+	+→+	+→0	+→+
<i>A. pictum</i> ssp. <i>marmoratum</i>		エンコウカエデ	0→+	0→+	+→+	0→+
<i>A. pictum</i> ssp. <i>ambiguum</i>		オニイタヤ	+→+	+→+	+→0	+→+
<i>A. rufinerve</i>		ウリハダカエデ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. shirasawanum</i>		オオイタヤメイゲツ	0→0	0→±	0→0	±→±
<i>A. sieboldianum</i>		イタヤメイゲツ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>A. tenuifolium</i>		ヒナウチワカエデ	+→0	+→+	0→0	+→+
Hippocastanaceae			トチノキ科			
<i>Aesculus turbinata</i>		トチノキ	+→0	+→+	0→0	+→+
Sabiaceae			アワブキ科			
<i>Meliosma myriantha</i>		アワブキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>M. tenuis</i>		ミヤマハハソ	0→0	0→0	0→0	+→+
Aquifoliaceae			モチノキ科			
<i>Ilex crenata</i>		イヌツゲ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>I. geniculata</i>		フウリンウメモドキ	±→±	±→±	0→0	0→0
<i>I. macropoda</i>		アオハダ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>I. macropoda</i> f. <i>pseudomacropoda</i>		ケナシアオハダ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>I. pedunculosa</i>		ソヨゴ	0→0	0→0	±→±	0→0
<i>I. serrata</i>		ウメモドキ	0→0	0→0	±→±	0→0
Celastraceae			ニシキギ科			
<i>Celastrus flagellaris</i>		イワウメヅル	±→0	0→0	0→0	±→±
<i>C. orbiculatus</i>		ツルウメモドキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>C. orbiculatus</i> var. <i>strigillosus</i>		オニツルウメモドキ	+→±	+→±	+→±	+→±
<i>Euonymus alatus</i>		ニシキギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>E. alatus</i> f. <i>ciliatodentatus</i>		コマユミ	+→±	+→+	0→±	+→+
<i>E. fortunei</i>		ツルマサキ	+→0	+→0	+→0	+→+
<i>E. macropterus</i>		ヒロハツリバナ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>E. oxyphyllus</i>		ツリバナ	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>E. sieboldianus</i>		マユミ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>E. sieboldianus</i> var. <i>sanguineus</i>		カントウマユミ	0→0	±→0	0→0	0→0
Staphyleaceae			ミツバウツギ科			
<i>Euscaphis japonica</i>		ゴンズイ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Staphylea bumalda</i>		ミツバウツギ	+→+	+→+	±→0	+→+
Rhamnaceae			クロウメモドキ科			
<i>Berchemia racemosa</i>		クマヤナギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Hovenia dulcis</i>		ケンボナシ	±→0	±→±	+→±	+→+

学名	樹種名 和名	フィールドミュージアム			
		大谷山	草木	唐沢山	秩父
<i>Rhamnus japonica</i> var. <i>decipiens</i>	クロウメモドキ	0→0	0→0	±→±	0→0
Vitaceae		ブドウ科			
<i>Ampelopsis glandulosa</i> var. <i>heterophylla</i>	ノブドウ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Parthenocissus tricuspidata</i>	ツタ	±→0	±→0	+→+	±→±
<i>Vitis coignetiae</i>	ヤマブドウ	±→±	+→+	0→0	+→+
<i>V. ficifolia</i>	エビズル	±→0	0→0	+→0	0→0
<i>V. flexuosa</i>	サンカクズル	+→+	+→+	+→+	+→+
Tiliaceae		シナノキ科			
<i>Tilia japonica</i>	シナノキ	+→±	+→±	0→0	+→±
<i>T. maximowicziana</i>	オオバボダイジュ	±→0	±→0	0→0	0→0
Thymelaeaceae		ジンチョウゲ科			
<i>Daphne pseudomezereum</i> var. <i>koreana</i>	チョウセンナニワズ	0→0	0→0	0→0	+→±
Elaeagnaceae		グミ科			
<i>Elaeagnus glabra</i>	ツルグミ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>E. multiflora</i>	ナツグミ	0→0	0→0	±→±	0→
<i>E. nikoensis</i>	ニッコウナツグミ	±→0	0→0	0→0	0→0
<i>E. umbellata</i>	アキグミ	±→0	0→0	±→±	+→+
Flacourtiaceae		イイギリ科			
<i>Idesia polycarpa</i>	イイギリ	0→0	0→0	+→0	0→0
Stachyuraceae		キブシ科			
<i>Stachyurus praecox</i>	キブシ	+→+	+→+	+→+	+→+
Alangiaceae		ウリノキ科			
<i>Alangium platanifolium</i> var. <i>trilobum</i>	ウリノキ	+→±	+→+	±→+	+→+
Cornaceae		ミズキ科			
<i>Aucuba japonica</i>	アオキ	0→0	0→0	+→+	0→0
<i>Benthamidia japonica</i>	ヤマボウシ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Cornus controversa</i>	ミズキ	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>C. macrophylla</i>	クマノミズキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Helwingia japonica</i>	ハナイカダ	+→+	+→+	+→+	+→+
Araliaceae		ウコギ科			
<i>Aralia elata</i>	タラノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>A. elata</i> var. <i>canescens</i>	メダラ	0→0	+→+	+→+	0→0
<i>Eleutherococcus sciadophylloides</i>	コシアブラ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>E. spinosus</i>	ウコギ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Evodiopanax innovans</i>	タカノツメ	+→+	+→+	0→+	+→+
<i>Hedera rhombea</i>	キズタ	+→0	+→±	±→+	±→+
<i>Kalopanax septemlobus</i>	ハリギリ	+→+	+→+	+→+	+→+
[SYMPETALAE 合弁花類]					
Clethraceae		リョウブ科			
<i>Clethra barbinervis</i>	リョウブ	+→+	+→+	+→+	+→+
Ericaceae		ツツジ科			
<i>Enkianthus campanulatus</i>	サラサドウダン	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>E. cernus</i> var. <i>matsudae</i>	チチブドウダン	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>E. subsessilis</i>	アブラツツジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Lyonia ovalifolia</i> var. <i>elliptica</i>	ネジキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Menziesia pentandra</i>	コヨウラクツツジ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>Pieris japonica</i>	アセビ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>Rhododendron keiskei</i>	ヒカゲツツジ	0→0	0→0	0→0	+→+
<i>R. obtusum</i> var. <i>kaempferi</i>	ヤマツツジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. pentaphyllum</i> var. <i>nikoense</i>	アカヤシオ	+→+	+→+	0→0	0→0

学名	樹種名	和名	フィールドミュージアム			
			大谷山	草木	唐沢山	秩父
<i>R. quinquefolium</i>		ゴヨウツツジ	+→+	+→+	0→0	0→0
<i>R. semibarbatum</i>		バイカツツジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>R. tschonoskii</i>		コメツツジ	+→+	0→0	0→0	+→+
<i>R. wadanum</i>		トウゴクミツバツツジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Tripetaleia paniculata</i>		ホツツジ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Vaccinium hirtum</i> var. <i>pubescens</i>		ウスノキ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>V. oldhamii</i>		ナツハゼ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>V. smallii</i> var. <i>glabrum</i>		スノキ	0→0	0→0	+→+	0→0
Myrsinaceae		ヤブコウジ科				
<i>Ardisia japonica</i>		ヤブコウジ	±→0	0→±	+→+	0→0
Ebenaceae		カキノキ科				
<i>Diospyros kaki</i> var. <i>sylvestris</i>		ヤマガキ	±→0	±→0	+→+	0→0
<i>D. lotus</i>		マメガキ	±→+	±→±	0→0	+→+
Styracaceae		エゴノキ科				
<i>Pterostyrax hispidus</i>		オオバアサガラ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Styrax japonicus</i>		エゴノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>S. obassia</i>		ハクウンボク	+→+	+→+	±→±	+→+
<i>S. shiraianus</i>		コハクウンボク	+→+	+→+	0→0	0→0
Symplocaceae		ハイノキ科				
<i>Symplocos sawafutagi</i>		サワフタギ	+→+	+→+	+→+	+→+
Oleaceae		モクセイ科				
<i>Fraxinus lanuginosa</i>		アオダモ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>F. longicuspis</i>		ヤマトアオダモ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>F. spaethiana</i>		シオジ	0→±	+→+	0→0	+→+
<i>Ligustrum obtusifolium</i>		イボタノキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>L. tschonoskii</i>		ミヤマイボタ	±→0	±→±	0→0	+→±
<i>Osmanthus heterophyllus</i>		ヒイラギ	0→0	0→0	+→+	0→0
Apocynaceae		キョウチクトウ科				
<i>Trachelospermum asiaticum</i>		テイカカズラ	±→0	±→0	+→+	±→0
Asclepiadaceae		カガイモ科				
<i>Marsdenia tomentosa</i>		キジヨラン	0→0	0→0	+→+	0→0
Rubiaceae		アカネ科				
<i>Paederia scandens</i>		ヤトイバナ	+→+	+→+	+→+	+→+
Verbenaceae		クマツヅラ科				
<i>Callicarpa japonica</i>		ムラサキシキブ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>C. mollis</i>		ヤブムラサキ	±→0	0→±	+→+	0→0
<i>Clerodendrum trichotomum</i>		クサギ	+→+	+→+	+→+	+→+
Solanaceae		ナス科				
<i>Lycium chinense</i>		クコ	0→0	0→0	+→±	0→0
Buddlejaceae		フジウツギ科				
<i>Buddleja japonica</i>		フジウツギ	+→+	+→+	+→+	+→+
Caprifoliaceae		スイカズラ科				
<i>Abelia spathulata</i>		ツクバネウツギ	+→+	+→+	+→±	+→+
<i>A. tetrasepala</i>		オオツクバネウツギ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Lonicera gracilipes</i>		ヤマウグイスカグラ	+→0	+→+	+→+	+→+
<i>L. gracilipes</i> var. <i>glandulosa</i>		ミヤマウグイスカグラ	0→0	±→0	±→0	±→0
<i>L. japonica</i>		スイカズラ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Sambucus racemosa</i> ssp. <i>sieboldiana</i>		ニワトコ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Viburnum dilatatum</i>		ガマズミ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>V. erosum</i> var. <i>punctatum</i>		コバノガマズミ	0→0	0→0	0→0	+→+

学名	樹種名 和名	フィールドミュージアム			
		大谷山	草木	唐沢山	秩父
<i>V. furcatum</i>	オオカメノキ	±→±	+→+	0→0	+→±
<i>V. phlebotrichum</i>	オトコヨウゾメ	+→+	+→+	±→+	+→+
<i>V. plicatom</i> var. <i>tomentosum</i>	ヤブデマリ	+→+	+→+	±→0	+→+
<i>V. urceolatum</i> var. <i>procumbens</i>	ミヤマシグレ	±→0	+→+	0→0	+→+
<i>V. wrightii</i>	ミヤマガマズミ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>Weigela decora</i>	ニシキウツギ	+→+	+→+	0→±	+→+
<i>W. maximowiczii</i>	キバナウツギ	0→0	0→0	0→0	+→+
Compositae	キク科				
<i>Pertya glabrescens</i>	ナガバノコウヤボウキ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>P. scandens</i>	コウヤボウキ	0→0	0→0	+→+	0→0
[MONOCOTYLEDONEAE 単子葉植物]					
Liliaceae	ユリ科				
<i>Smilax biflora</i> var. <i>trinervula</i>	サルマメ	0→0	0→0	0→0	±→+
<i>S. china</i>	サルトリイバラ	+→+	+→+	+→+	+→+
<i>S. sieboldii</i>	ヤマカシユウ	+→±	+→±	+→+	+→+
Gramineae	イネ科				
<i>Pleioblastus chino</i>	アズマネザサ	+→+	+→+	+→+	0→0
<i>Pseudosasa japonica</i>	ヤダケ	0→0	±→0	+→+	0→0
<i>Sasa nipponica</i>	ミヤコザサ	+→+	+→+	0→0	+→+
<i>Sasamorpha borealis</i>	スズタケ	0→±	±→+	0→0	+→+

解説

アメリカ合衆国北東部のフィールドサイエンスセンター
—Hubbard Brook Experimental Forest の紹介*1—

戸田 浩人*2

Introduction of Hubbard Brook Experimental Forest, New Hampshire, USA *1

Hiroto TODA *2

This report outlines the studies in the Hubbard Brook Experimental Forest (HBEF) in the northeastern US. Studies in HBEF are characterized by the long-term ecological monitoring of the nutrient circulation in the forested small watersheds, nutrient dynamics of forest ecosystem using a sandbox experiment, and relationships between bird populations and their forest environment. The Hubbard Brook Research Foundation has managed these research projects since 1993.

Keywords : Experimental forest, Forest ecosystems, Long-term monitoring

米国北東部にあるフィールドサイエンス・センターの Hubbard Brook Experimental Forest (HBEF) における研究概要を紹介する。HBEF における研究の特徴は、長期生態モニタリングの継続であり、森林小流域における物質循環、砂箱実験を用いた森林生態系の養分動態、および森林をとりまく環境と鳥類動態の関係などの調査がおこなわれている。現在、このような HBEF での調査研究は、1993年に設立された Hubbard Brook Research Foundation によって賄われている。

キーワード：野外実験林、森林生態系、長期モニタリング

1. はじめに

森林生態学や水文学に興味を持っていれば、米国北東部にある Hubbard Brook Experimental Forest (HBEF) というフィールドサイエンス・センターを見聞きしたことがあると思う。HBEF では落葉広葉樹林を主体とする森林流域において、1955年から降水量や溪流流出水量などの水文的観測、1963年からその水質をベースとした物質動態の研究が続けられ、非常に多くの成果が上げられている。研究成果の概要は、「Pattern of Processes in a Forested Ecosystem」(Borman and Likens, 1979) や「Biogeochemistry of a Forested Ecosystem, 2nd edition」(Likens and Borman, 1995) にまとめられており、後者は邦訳されている。筆者は、2001年7月

に HBEF で開催された年次研究会に参加する機会を得、現在も HBEF において続けられている精神的な研究に触れることができた (Fig. 1)。ここでは、HBEF で展開されている最新の研究の概要とともにフィールドサイエンス・センターとしての機能・組織運営についてご紹介したい。

2. 歴史とその運営

アメリカ合衆国北東部の New England 地域のちょうど中央部に New Hampshire 州 White 山脈があり、HBEF はその山脈の西側に位置する約3,160 ha、標高222~1,015 m の森林流域である (Fig. 2)。車では、Interstate Highway 93号を降りてから10分足らずで到着するため、New England の大学 (New Hampshire 州立大学, Dartmouth 大学, Yale 大学

*1 Received Sept. 7, 2001; Accepted Oct. 30, 2001

*2 東京農工大学農学部 地域生態システム学科 〒183-8509東京都府中市幸町3-5-8 : Department of Ecoregion Science, Fac. of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology, Fuchu, Tokyo 183-8509, Japan



Fig. 1. In front of Hubbard Brook USDA Forest Service headquarters.
Cooperators meeting place for Hubbard Brook Ecosystem Study.
USDA: United States Department of Agriculture

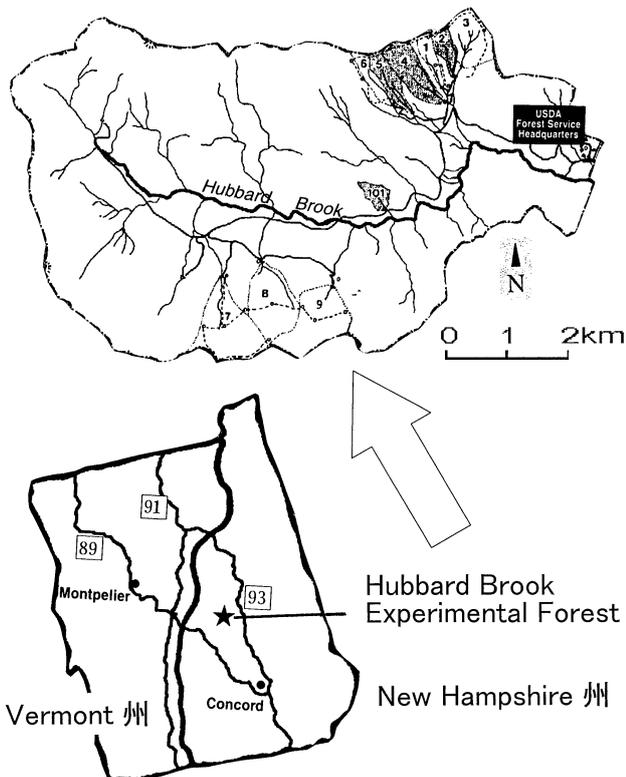


Fig. 2. Location of Hubbard Brook Experimental Forest

など) や研究所ばかりでなく, New York 州立大学 (Syracuse, New York) などからも訪れ易い立地条件にあり, これら多くの研究者・組織によって研究・教育の場として利用されている。

設立当初の1955年は, アメリカ合衆国農務省 (United States Department of Agriculture (USDA)) 森林局の New England 地域における流域管理のための研究拠点であった。1963年より Dartmouth 大学と USDA 森林局が共同で, 森林小流域を用いた森林生態系への人為による影響を調査・研究するプロジェクトが開始された。今日では, 40を越える組織の研究者が HBEF における生態学的研究 (Hubbard Brook Ecosystem Study) に参画している (Fig. 3)。

以上のようなフィールド研究は, 国立科学基金 (National Science Foundation) と USDA 森林局から資金援助を受けていたが, 近年は, 後述の独自の基金で賄われている。HBEF における科学的調査を通しての陸域および水域生態系の把握と管理, 長期に渡る生態学的モニタリングとその公表・教育活動を目的として, 1993年に Hubbard Brook Research Foundation (HBRF) が非営利団体として設立された (Fig. 4)。その予算規模は, 2000年末の収支で約 \$ 565,000に及んでいる。

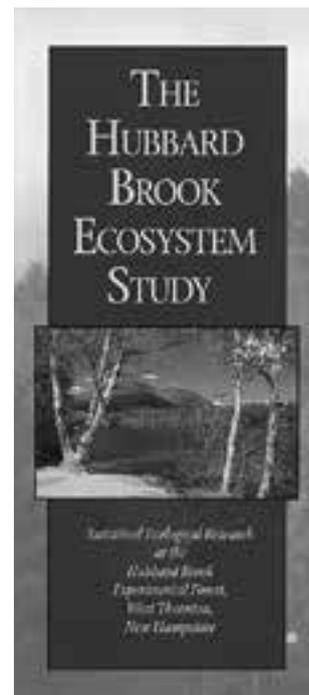


Fig. 3. The brochure of the Hubbard Brook Ecosystem study



Fig. 4. Annual report of Hubbard Brook Research Foundation of 2000

3. 主な研究とその成果

2001年のHBEF研究会では、2日間に渡って開催され、8つのSession (Aquatic Ecosystems, Forest Ecology, Terrestrial Ecosystems, Nitrogen Processes, Sandbox, Birds, Bugs and Genes など)を通して45の多彩な発表がなされた。これらのHBEFのフィールドサイエンス・センターとしての特徴を一口に言えば、長期生態モニタリングの継続である。

森林生態系における降水（大気降下物）と溪流流出水の観測による物質収支のモニタリングは、HBEFでも最も長期間に渡り調査研究されている。HBEFは中心を流れるHubbard Brookとその20以上ある支流から形成されており、支流のうち9つの森林小流域に水量を測るためのゲージが設けられている (Fig. 2)。また、24箇所で降水量（降雪量を含む）を測定しており、これらの溪流水や降水に溶存する化学物質（無機元素や溶存有機物）が分析されている。1950年代から続く膨大なデータを使用して、今日まで1,500編余の科学・学術論文を発表している。このような長期に渡るデータ集積は世界でもまれであり、貴重な科学の遺産といえる。今回

の研究会でもデータの長期性を生かした、“A long-term record of ice cover for Mirror Lake - continuation of the trend” や “The long-term temporal trends and spatial pattern in the concentration and speciation of aluminum in drainage waters” など、また長期データの集積があるので可能な、“Potential tools for monitoring environmental stress in forests: detection of stress in trees using physiological changes as indicators,” “Good and bad years of forest growth” や “Elevated nitrogen inputs to the Northeastern U. S.: impacts on air, terrestrial and aquatic resources” などが発表された。

学術論文ばかりでなく、1970～1990年のデータを元に、一般向けの冊子「Acid Rain Revisited」が2001年に発行（前述のHBRFにより）され、大気浄化活動の改訂を提案している (Fig. 5)。今回の研究会でも、“A retrospective analysis of the response of soil and stream chemistry at the HBEF to atmospheric emission controls from the 1970 to 1990, Amendments of the clean air act” が報告された。これは、Boston Globe や New York Times といったマスメディアにも大きく取り上げられ、社会的な関心とともに高い評価を受けている。

また、HBEFではSandbox experiment（砂箱実験）も長期に渡って実施されている。砂箱実験と

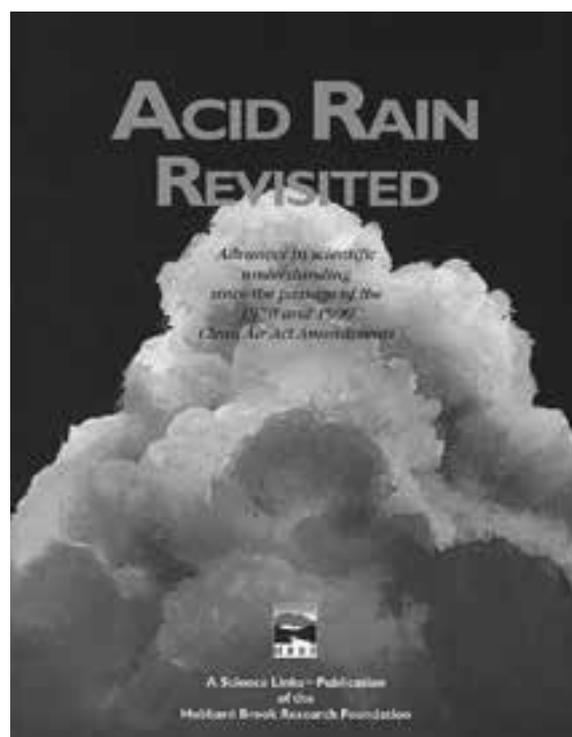


Fig. 5. Cover of Hubbard Brook Research Foundation's science link report, “Acid Rain Revisited”

は、森林生態系を一定の体積の砂と基質（有機物や鉱物）を入れて、様々な樹種を植栽して再現した野外における実験である。この方法は、複雑な自然状態の生態系における収支の観測だけでは研究困難な、窒素固定量や一次鉱物の風化量などを実験的に求めるために用いられている。最近のHBEFの砂箱実験では、植栽樹種の違いによる養分動態だけでなく、伐採・植栽後の養分の移入や蓄積速度について考察が深められている。今回の研究会では、“Nitrogen cycling in a Red Pine stand - final analysis form a 15-year sandbox study”や“Differential effects of five forest tree species on early successional soil development: evidence from the Hubbard Brook Sandbox Experiment”などが発表された。

さらにHBEFでは、北米で最も長期間の質の高い鳥類動態の記録が続けられている。この研究では、森林管理や地球環境と新熱帯地域 (neotropical) からの渡り鳥の生息数との関係などについて多くの知見が見出されている。最近の知見では、ジャマイカで越冬する black-throated blue warbler (*Dendroica caerulescens*) は、エル・ニーニョの年には激減し、ラ・ニーニャの年には増加していることが明らかにされている。このような地球規模での環境変化による鳥類動態の変化を予測することは、例えば地球温暖化などが生態系全体に及ぼす影響を考えるうえでの貴重なデータとなる。今回の研究会では、“A landscape approach to the causes and consequences of spatial variation in abundance forest birds”や“Food as a determinant of reproductive success in the Black-throated Blue Warbler”などの発表があった。

4. おわりに

東京農工大学大谷山演習林（現フィールド・ミュージアム大谷山）においても、1979年より隣接する2箇所の森林小流域に量水堰を設け、HBEF同様の長期モニタリングを続け、現在まで22年間データを集積し、数多くの成果を上げている（例え

ば、Haibara and Aiba, 1990）。HBEFや大谷山における長期モニタリングによる多くの成果は、環境や森林生態系の変化に関する研究とはすぐに結論が得られるものばかりでなく、短期間データからの推論には大きなあやまりを生じることがあり、地道な観測を続けるこのと大切さを物語っている（Likens and Borman, 1995）。このような、地道な長期モニタリングは、観測現場のスタッフ（研究者・技術者）の努力に負うところが大きいことはいまでもなく、資金面・スタッフにおける多くの協力と理解を受けて初めて可能となる。

謝 辞

HBEFにおける年次研究会への参加は、筆者がNew Hampshire州立大学に文部省在外研究員として行く機会が得られたことで実現した。在外研究中、東京農工大学農学部の生原喜久雄教授はじめ森林環境学講座の皆様、New Hampshire州立大学のMcDowell教授およびAitkenhead博士には、大変お世話になりました。ここに記して御礼申し上げます。

引用文献

- Borman, F. H. and Likens, G. E. (1979) Pattern of Processes in a Forested Ecosystem. 253 pp, New York Spring-Verlag, New York.
- Haibara, K. and Aiba, Y. (1990) Effects of tending practices on nutrient dynamics in a young stand of sugi (*Cryptomeria japonica*) and hinoki (*Chamaecyparis obtusa*). *Forest Ecology and Management*, 30: 233-246.
- Likens, G. E. and Borman, F. H. (1995) Biogeochemistry of a Forested Ecosystem, 2nd edition. 159 pp, New York Spring-Verlag, New York. [Likens, G. E. and Borman, F. H. (1997) 森林生態系の生物地球化学 (及川武久監訳・伊藤昭彦訳). 176 pp, シュプリンガー・フェアラーク東京, 東京.]

投 稿 規 程

「フィールドサイエンス」(英文名: Journal of Field Science) は, 東京農工大学農学部附属広域都市圏フィールドサイエンス教育研究センターの研究報告誌で年1回以上発行される。

本誌には, 広くフィールドサイエンスに関する研究成果などを掲載する。

1. 目的

フィールドサイエンスに関する研究成果を公表し, その発展に寄与する。

2. 投稿者

東京農工大学に所属する者およびフィールドサイエンスに関心をもつ者

3. 報文の種類と内容

- (1) 原著論文: 独創的な研究で, 価値ある結論あるいは実験・調査結果を含むもので未発表のものに限る。
- (2) 研究資料: 測定・観察記録, 既成の知見の確認など研究上報告する価値のあるもので未発表のものに限る。
- (3) 総説・解説: フィールドサイエンスに関するレビュー, 実験・調査方法に関する解説など。

4. 報文の原稿

- (1) 原稿は, 和文または英文とする。
- (2) 原稿は, 別に定める執筆要領に従って作成し, 刷り上がり20ページ以内とする。

5. 投稿手続き

原稿は正副各1部を次の様式による原稿送り状を添えて, 編集委員長に提出する。

- (1) 著書名
- (2) 表題
- (3) 原稿枚数(表紙, 本文, 要旨, 図, 表および写真のそれぞれの枚数)
- (4) 報文の種類
- (5) 別刷り希望部数

6. 原稿の受理・採否

- (1) 原著論文の審査は編集委員会で委嘱した学内および学外の審査員各1名以上が行い, 論文等の採否は, 審査結果に基づいて編集委員会が行う。
- (2) 研究資料および総説・解説の原稿の審査は, 審査員1名以上で行う。

- (3) 原稿が受理されたのち, 原稿が入力されたフロッピーディスク(DOS/V 1.44 MB)にテキストあるいは書式付きテキスト)を提出する。

7. その他

- (1) 別刷希望者は実費負担とする。

執 筆 要 領

1. 原著論文

- (1) 和文原稿
 - 1) 和文表題
 - 2) 著者名
 - 3) 英文表題
 - 4) 著者名のローマ字書きフルネーム
 - 5) ランニングタイトル(和文)
 - 6) 英文要旨・キーワードおよび和文要旨・キーワード
 - 7) 本文(はじめに, 試料と方法, 結果, 考察)
 - 8) 引用文献
- (2) 英文原稿
 - 1) 英文表題
 - 2) 著者名のローマ字書きフルネーム
 - 3) 和文表題
 - 4) 著者名
 - 5) ランニングタイトル(英文)
 - 6) 和文要旨・キーワードおよび英文要旨・キーワード
 - 7) 本文(Introduction, Materials and Methods, Results, Discussion)
 - 8) 引用文献
- (3) 原稿の表紙(第1枚目)には, 上記1)~5)を記載し, 脚注として著者の所属(学科名等)を和文および英文で記載する。

2. 用語等

- (1) 和文原稿は, A4判用紙(縦)を用い横書きとし, ワードプロセッサにより1000字(40字, 25行)に印字する。
- (2) 英文原稿および英文要旨は, A4判用紙(縦)にワードプロセッサ1行約60字詰め, 25行で印字する。
- (3) 動物・植物等の和名, 外来語および原語によらない場合の外国の地名・人名はカタカナとする。学名はイタリックとする。
- (4) 用語は, 原則として文部省編「学術用語集」

に使われているものを用いる。

- (5) 量記号は、イタリックのローマ字もしくはギリシャ文字のアルファベットの1字、またはこれに添字を付けたものを用いる。
- (6) 単位は国際単位系 (S 1) を用いることが望ましい。

3. 要旨・キーワード

- (1) 和文要旨は約500字以内に、英文要旨は約300語以内にまとめる。なお、和文原稿の英文要旨は約600語以内にまとめる。
- (2) キーワードは日本語および英語でそれぞれ5個以内とし、和文および英文要旨の後に書く。なお、英文の1つのキーワードは3単語以内とする。
- (3) 要旨は和文、英文ともそれぞれ別紙に記載する。

4. 本文

- (1) 和文、英文ともに本文の見出しはポイントシステムによる記号を用い、大見出し、中見出し、小見出しをそれぞれ1., 1.1, 1.1.1とする。さらに細分を要する場合は (a), (b), ……、を用いる。

5. 図・表

和文原著論文の場合、図・表の題名・注等は英文とする。

- (1) 図 (写真は図として取り扱う)
 - 1) 図の題名および注はその順序に図の下に書く。
 - 2) 図は白紙に鮮明に書く。また、図のサイズは印刷される大きさの約2倍に描く。
 - 3) 図は1枚ごとに別紙とし、図番号の表示は、Fig. 1. のようにする。
本文中で図番号を示すときも同様とする。
 - 4) 写真は鮮明なものを用いる。題名および注はその順序に写真の下に記載する。
 - 5) 図の挿入箇所は、原稿の該当位置の右欄外に図番号を朱書きして指定する。
- (2) 表
 - 1) 表の題名は表の上に、注は表の下にそれぞれ記載する。
 - 2) 表は1枚ごとに別紙とし、表番号の表示

は、Table 1. のようにする。

本文中で表番号を示すときも同様とする。

- 3) 表の挿入箇所は、原稿の該当位置の右欄外に表番号を朱書きして指定する。

6. 研究資料および総説・解説

原著論文の執筆要領に必ずしも準じなくても良い。

7. 引用文献

- (1) 引用文献は著者名のアルファベット順に記載し、本文の該当箇所に (著者名, 年号) または著者名 (年号) のように明示する。
- (2) 雑誌の場合は、著者名 (年) 表題、雑誌名、巻または号 (通巻ページでないものは巻号) : 最初のページ-最後のページとする。
- (3) 単行本の場合は、著者名 (発行年) 書名、ページ、発行所、所在地とする。

引用文献の書き方 (例)

文献は本文中に引用されたものすべてを記載する。雑誌名は原則として、省略しないで表記する。

(a) 雑誌論文

田中阿歌磨・星野隆一 (1933) 択捉島湖沼踏査概況及其の湖沼形態, 水の理化学的所見. 陸水学雑誌, 3 : 1-19.

Birge, E. A. and Juday, C. (1934) Particulate and dissolved organic matter in inland lakes. *Ecological Monograph*, 4 : 440-474.

(b) 単行本の全部

吉村信吉 (1937) : 湖沼学. 266 pp, 三省堂, 東京.
Ruttner, G. E. (1957) *Fundamentals of Limnology* (Translated by Frey, D. G. and Fry, F. E. J.) 380 pp, Toronto University Press, Toronto.

(c) 単行本の章または分冊

小林繁男 (1993) 熱帯林土壌のせき悪化. 熱帯林土壌, 真下育久編, 385 pp, 勝美堂, 東京 : 280-333.

Syrett, P. J. (1962) Nitrogen Assimilation. *In* *Physiology and Biochemistry of Algae*, Lewin, R.A. (ed.), 670 pp, Academic Press, New York : 171-188.

フィールドサイエンス編集委員会

編集委員長 小倉 紀雄 東京農工大学農学部 FS センター長, 教授

編集委員 土器屋由紀子 FS センター教授
岸 洋一 FS センター教授
鈴木 馨 FS センター助教授
島田 順 FS センター助教授
板橋 久雄 FS センター教授
坂上 寛一 生物生産学科教授
国見 裕久 応用生物科学科教授
久保 隆文 環境資源科学科教授
吉川 正人 地域生態システム学科助手
林谷 秀樹 獣医学科助教授
石井 泰博 硬蛋白質利用研究施設助教授

事務局 本橋 一恭 FS センター事務長

英文校閲者 CRIPE, R. A. Spacegate, Tsukuba, Ibaraki, Japan

Editorial Committee of Journal of Field Science

Editor-in-Chief

Norio OGURA Director of Field Science Center, Professor of Tokyo University of Agriculture and Technology

Editorial Board

Yukiko DOKIYA Professor of Field Science Center
Yoichi KISHI Professor of Field Science Center
Kaoru SUZUKI Associate Professor of Field Science Center
Jun SHIMADA Associate Professor of Field Science Center
Hisao ITABASHI Professor of Field Science Center
Kan-ichi SAKAGAMI Professor of Dep. of Biological Production
Yasuhisa KUNIMI Professor of Dep. of Applied Biological Science
Takafumi KUBO Professor of Dep. of Environmental and Natural Resources Science
Masato YOSHIKAWA Assistant Professor of Dep. of Ecoregion Science
Hideki HAYASHIDANI Associate Professor of Dep. of Veterinary Medicine
Yasuhiro ISHII Associate Professor of Scleroprotein and Leather Research Institute

Management Office

Kazuyasu MOTOHASHI Chief of Field Science Center Office

English Referee

CRIPE, R. A. Spacegate, Tsukuba, Ibaraki, Japan

平成14年 3月10日 印刷

平成14年 3月25日 発行

発行所 東京農工大学農学部附属 FS センター
☎183-8509 府中市幸町 3-5-8 ☎042-367-5799
印刷所 電算印刷株式会社
☎390-0821 松本市筑摩 1-11-30 ☎0263-25-4329



Journal of Field Science

No. 1

March, 2002

Forward

New publication - Journal of Field Science./ Ogura, N.

Invited review

- 1 Acid rain and field science (1) Scientific perspective on wet deposition./ H.Hara

Articles

- 15 Critical loads of hazardous trace elements in soil-water system./
Paces, T., Corcimaru, S., Emmanuel, S., Erel, Y., Novak, M., Plyusnin, A., Veron, A. and Wickham, S.
- 23 Basic physical properties and shielding effectiveness of paper- and aluminum-blended particleboard against electromagnetic wave./ Hayashi, K., Inoue, H., Ohmi, M., Fukuda, K. and Tominaga, H.
- 31 Demographic genetics of Siebold's beech (*Fagus crenata*) populations on the Tanzawa Mountains, Kanagawa, central Honshu, Japan. I. Genetic substructuring among plots and size classes./
Takenaka, K., Kitamura, K., Furubayashi, K. and Kawano, S.

Research materials

- 55 Chemical species in aerosol at the summit of Mt. Fuji during July 5–12, 1999./
Murakami, K., Yonekura, H., Yoshikawa, T., Dokiya, Y., Hayashi, K., Sawa, Y., Igarashi, Y.
and Tsutsumi, Y.
- 63 Acetylation and liquefaction of *Miscanthus sinensis*./ Fukuda, K., Kondo, K., Ohmi, M. and Tominaga, H.
- 67 Tree observed in University Forests of TUAT in 1990 and in 2001./ Kuwabara, S.

Introduction

- 77 Introduction of Hubbard Brook Experimental Forest, New Hampshire, USA./ Toda, H.
-

FIELD SCIENCE CENTER, TOKYO UNIVERSITY OF
AGRICULTURE AND TECHNOLOGY
Fuchu, Tokyo 183-8509, Japan