農業気象 (*J. Agr. Met.*) 47 (3): 165–175, 1991

酸性雨と植物被害

野 内 勇

(農業環境技術研究所)

Acid Rain and Plant Damage

Isamu NOUCHI

(National Institute of Agro-Environmental Sciences,)
Kannondai, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan

1. はじめに

最近、地球規模の環境問題が注目されている。炭酸ガスを代表とする温室効果ガスの増加による地球の温暖化、南極のオゾンホールが発見によりにわかに注目されるようになった成層圏オゾン層の破壊とそれに伴う有害な紫外線放射量の増大、開拓と乱伐による熱帯林の減少、家畜の過放牧による砂漠化の拡大などである。また、酸性雨は地域的な汚染であるが、発生源から遠く離れた国々に影響を及ぼす国境を越えた汚染現象であるため、地球規模の環境変化の一つとも考えられ、国際的な取組が必要とされている。酸性雨は、ヨーロッパや北アメリカ東部のような高度に工業化した地域において、1960年から1970年代では湖沼の酸性化に基づく魚介類の死滅のような陸水生態系(例えば、USEPA, 1984)への悪影響、1980年代には酸性雨が原因と指摘されている森林衰退に見られる陸上生態系への悪影響(例えば、Shütt and Cowling, 1985)として顕在化してきた。

雨、雪、霧などの湿性酸性降下物および酸性ガスやエアロゾルなどの乾性降下物は植物に、直接あるいは間接的に、様々な面から植物に影響する可能性がある。直接的影響としては、地上部組織の損傷、植物体からの生体物質のリーチング(溶脱)や生理代謝変化等がある。間接的影響には、土壤の酸性化と土壤からの栄養塩類の溶脱、菌根菌の生長の変化、およびオゾン、昆虫、病原菌や霜のような他のストレス要因との複合作用による植物の生長や養分吸収の変化がある。ここでは、酸性雨の定義、わが国の酸性雨の現状、酸性雨の農作物生産への影響、

ヨーロッパや北米で拡大している森林衰退の原因説について概説する。

2. 酸性雨とは?

酸とは化学的には「水に溶けた時、解離して H^+ を放出する物質」と定義されている。一般に、pHが5.6以下の雨が酸性雨とされているが、このpH 5.6という値は大気中に含まれる炭酸ガスの気液平衡に由来する。すなわち、雲粒子は大気と十分接触しており、 CO_2 は以下のように解離している。

ここで、 CO_2 濃度が350 ppm (0.00035 atm)と仮定し、ヘンリー定数($K_H = 3.79 \times 10^{-2} \text{ mol l}^{-1} \text{ atm}^{-1}$)と式(2)の平衡定数($K_2 = 4.5 \times 10^{-7} \text{ mol l}^{-1}$)を用いると、

$$K_H = [H_2CO_3] / [CO_2 \text{ gas}] \\ = 3.79 \times 10^{-2} \text{ mol l}^{-1} \text{ atm}^{-1} \quad (4)$$

$$K_2 = [H^+] [HCO_3^-] / [H_2CO_3] \\ = 4.5 \times 10^{-7} \text{ mol l}^{-1} \quad (5)$$

この式(4)と式(5)より、次式を得る。

$$[HCO_3^-] = [CO_2 \text{ gas}] \times K_H \times K_2 / [H^+] \quad (6)$$

ここで、純水中の $[HCO_3^-]$ 濃度は水素イオン濃度 $[H^+]$ と等しいので、次式となる。

$$[H^+]^2 = [CO_2 \text{ gas}] \times K_H \times K_2 \\ = 0.00035 \text{ atm} \times 3.79 \times 10^{-2} \text{ mol l}^{-1} \text{ atm}^{-1} \\ \times 4.5 \times 10^{-7} \text{ mol l}^{-1} \\ = 5.97 \times 10^{-12} \text{ mol}^2 \text{ l}^{-2}$$

それ故、

1991年7月17日 受領、1991年9月4日 受理

$$[H^+] = 2.44 \times 10^{-6} \text{ mol l}^{-1} \\ = 2.44 \times 10^{-6} \text{ M}$$

さらに、 $\text{pH} = -\log [H^+]$ と定義されており、それ故、 pH は5.61となる。

しかし、大気中には自然発生源からの SO_2 などの酸性ガスが多量存在しているので、それらが降水中に溶存するとさらに酸性となる。一方、大気中には自然発生源からのアンモニアや炭酸カルシウムなど、アルカリ性のガスやエアロゾルも存在している。これらが、もともとある酸の一部を中和し、その分だけ pH を上げていることにもなる。つまり、天然の雨でも、 pH が5.6以下のものもあるし、5.6以上のものもある。

このように考えると、降水 pH のバックグラウンド値は必ずしも明確ではない。米国のNAPAP（国家酸性雨評価プログラム、National Acid Precipitation Assessment Program）では、 pH 5.0以下の降水を酸性雨としている（NAPAP, 1987）。すなわち、米国のミシシッピ川より東の地域の温帯緯度では、天然の雨（1500年以前）の pH の最もよい見積り値は5.0であり、さらに、この pH 5.0は雨の中の自然発生源の酸を考えると計算で求められることもできるので、 pH 5.0に比べてさらに強い酸性を示すものを酸性雨と称するとしている。一方、わが国では米国のような酸性雨としての定義の取決めはなされていない。酸性雨を考えた場合、 pH 5.6を何らかの目安とすればよいようである（原, 1991）。

3. 降水採取装置とわが国の降水 pH の現状

わが国の酸性雨の調査は主に自治体の公害研究所等を中心にされている。試料の採取方法は各調査機関によって異なり、初期降水の1mm毎に3あるいは5mmまで採取し、あとは一括採取の容量別分割採取法と1降水全量採取法がある。容量別分割採取法では、直径35cmのローで1mm降水を採取すると、ほぼ100ml採取でき、初期降水の各種イオンの濃度変化を解析できる。わが国では、これまでこの容量別分割採取法による初期降水の濃度把握が中心であったが、欧米での酸性雨による生態系への影響の実態が明らかになるにつれて、わが国でも最近では、大気から土壌や水系への汚染物質の降下量（濃度×降水量）による評価へと移りつつあり、それに伴って1降水全量採取法へと移りつつある。

また、採取法として、採取容器に覆いがついていて、降水時のみに大気に開放される降水時開放型と、常時大気に開放されている常時開放型がある。降水時採取型はわが国では感雨センサーがついて覆いが自動的にスライドするため「自動式採取装置」と呼ばれる。常時開放型の装置はbulk samplerといわれ、この装置では非降水

時にガスやエアロゾルが採取面に沈着する。なお、わが国では採取部と試料保存ビンとの間にメンブランフィルターを装着した「濾過式採取器」と呼ばれるものが普及している。「濾過式採取器」で採取された降水の pH は「自動式採取装置」で採取された降水データに比べると、 pH の値が0.1程度高い。これは、非降水時に沈着したアルカリ性成分が、降水時に徐々に溶出したものと推測されている（玉置・小山, 1991）。濾過式のバルク法による1986～1987年の全国調査である環境庁の第1次調査の結果をFig.1に示す（環境庁酸性雨対策検討会, 1990）。ここでは、 pH 4.6～5.1の年平均値が示されている。日本では際立った地域的な特色はない。わが国の都市部周辺の降水の年平均 pH は4.5に近く、北米やヨーロッパと

Fig. 1. Annual mean pH values in Phase-1 Study of Acid precipitation survey by Japan Environmental Agency (1990).

Survey periods: April 1986–March 1988

Sampling methods: filtering bulk sampler

1: Sapporo, 2: Mukawa, 3: Iwamizawa, 4: Aomori, 5: Hirosaki, 6: Sendai, 7: Ohgawara, 8: Koto-ku, 9: Musashino, 10: Toyama, 11: Kosugi, 12: Yoshinotani, 13: Tatsuguchi, 14: Minami-ku, 15: Meito-ku, 16: Yasaka, 17: Keihoku, 18: Osaka, 19: Ikeda, 20: Hiroshima, 21: Shobara, 22: Yamaguchi, 23: Hagi, 24: Kahoku, 25: Ochi, 26: Nagasaki, 27: Omura, 28: Yaku, 29: Yaku, Daichu-dake

Table 1. Chemical data of annual mean precipitation in Matsue from April 1985 to March 1988 (原, 1991).

pH	H ⁺	NH ₄ ⁺	Ca ²⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Na ⁺	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻	Cl ⁻	Amount of precipitation
4.72	19.1	19.5	28.3	4.3	37.0	130.1	16.9	62.3	157.8	1,618.7 mm

Unit of ion is $\mu\text{eq l}^{-1}$ except pH and amount of precipitation.

ほぼ同程度に酸性化している。

また、降水成分の標準的なデータを Table 1 に示した。pH を除いた各成分の濃度は等量濃度 $\mu\text{eq l}^{-1}$ で表されている。現代化学では原則としてこの単位は用いられていないが、酸性雨の化学ではイオンバランスなどを調べる上で有効である。等量とは酸、塩基、塩の化学等量のことであり、1 モルの H⁺ と反応する物質の相当量である。したがって、モル濃度 ($M = \text{mol l}^{-1}$) を表した数値を、そのイオンのイオン価で割れば等量濃度になる。例えば、NO₃⁻ のイオン価は 1、SO₄²⁻ のイオン価は 2 であるので、 $1 \mu\text{mol l}^{-1}$ の NO₃⁻ と SO₄²⁻ は、それぞれ $1 \mu\text{eq l}^{-1}$ と $0.5 \mu\text{eq l}^{-1}$ となる。

環境庁の第一次調査によると、SO₄²⁻ 降下量は $1.67 \sim 8.87 \text{ g m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、NO₃⁻ は $0.72 \sim 3.25$ 、NH₄⁺ は $0.25 \sim 1.79$ 、Ca²⁺ は $0.32 \sim 1.98 \text{ g m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった。欧米での SO₄²⁻ 降下量の最高値が $4.7 \text{ g m}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であることを考えると、わが国での SO₄²⁻ 降下量はかなり多いと思われる。このように、わが国の汚染物質降下量は極めて多いが、その理由は降水量が欧米に比べて非常に多いことによっている。

4. 酸性雨による植物の可視被害

酸性の雨や霧による可視的な被害は植物の葉や花卉に発生し、葉では白色や褐色のネクロシス(壊死)斑点やクロロシス(黄色化)であり、花卉では脱色斑点となる。葉被害発生の pH しきい値は、ほとんどの農作物では pH 3.5 以下であり、いくつかの感受性の樹木では pH 3.0 以下である(野内, 1990)。また、花卉は葉よりも酸性雨による被害を受けやすく、アサガオ花卉の脱色は pH 4.0 程度で発生する(野内, 1990)。

酸性雨による葉や花卉の斑点被害の程度は、水素イオン濃度と接触時間に依存し、水素イオン濃度が増加(pH の低下)すると被害面積が増加する(Evans, 1982)。また、葉表面の雨滴やフィルム状の雨の接触時間も障害の程度に影響し、雨滴が滞留しやすい葉脈ぎわ、葉縁や葉の先端に被害の発生が多い(Evans, 1982)。温度、湿度、風速、表面の濡れやすさと葉の形態はすべて接触時間に影響を与える。

5. 酸性雨のクチクラワックスへの影響

酸性雨による植物体への直接に影響を及ぼす部位、あるいは最初のターゲットは葉表面のクチクラである。クチクラはペクチン層、クチン層、ワックス層、エピクチクラワックスで構成され(Fig. 2)、化学的、物理的障害から植物体を保護したり、植物体内部からの水の蒸散を防ぐバリアーとして働いている。クチクラの最外層にあるエピクチクラワックスは、クチクラ上に分泌された板状、リボン状、チューブ状、桿状と様々な形の結晶状のワックスであり、葉の表面の性質を決定している。特に、酸性雨や大気汚染物質に対する主要なバリアーとして作用している(Jeffree, 1986)。このエピクチクラワックスが沈着すればするほど、葉表面は疎水性となり、クチクラ表面と雨滴との間の接触を少なくする。

5.1 葉の濡れやすさ

葉表面の濡れやすさは、雨滴と葉表面との接触角度あるいは雨滴の保持能力で評価される。雨滴と表面との間の接触角度が大きければ大きいほど疎水性であり(濡れやすい)、接触角度が小さければ小さいほど親水性である(濡れにくい)。濡れやすさと表面での雨滴の保持時間は単に表面の化学的性質ばかりでなく、エピクチクラワックスの結晶の形による表面の粗さにもよっている(Cape, 1983; Haines *et al.*, 1985)。

5.2 クチクラワックスの侵食

葉の濡れやすさと酸性雨による葉被害の程度には関連

Fig. 2. Structure of cuticle.

The wax layer is typically $2\text{--}10 \mu\text{m}$ thick but may be much thicker or thinner on individual plants or cell types.

(岩波 生物学辞典 第3版より)

があるが(Haines *et al.*, 1985), 葉の濡れやすさは、エピクチクラワックスの化学修飾により増加する。葉表面の濡れた部分(雨滴あるいはフィルム状)では、雨滴の蒸発につれて雨滴 pH が低下し、局所的に水素イオン濃度が増加し、クチクラワックスの侵食あるいは分解を生じる。強酸はワックスのエステル結合を加水分解し、ワックスマトリックスから長鎖の脂肪酸を遊離する。その結果、クチクラのもつ水をはじく性質を変化させ、その濡れやすさを増加し、さらには、ワックスのひび割れと破裂を生じる(Turunen and Huttunen, 1990)。表面ワックスの侵食は人工酸性雨あるいは酸性霧ばかりでなく、ガス状汚染質でも観察されている(Turunen and Huttunen, 1990)。

ワックスの分解が進行するにつれて、特に気孔の領域に症状が現れる。すなわち、2~30 カ月の人工酸性雨処理によって、トウヒやモミの針葉の気孔を覆っているエピスタタルワックス(気孔の孔辺細胞のエピクチクラワックス)は侵食を受ける(Rainallo *et al.*, 1986)。さらに、森林衰退が進行している中部ヨーロッパのトウヒやモミの針葉のエピスタタルワックスが酸性雨や雲水によって侵食されていることも観察されている(Sauter *et al.*, 1987)。エピクチクラワックスの侵食が進行すると、ワックスのチューブや粒子の溶解がおこり、気孔孔辺に集積し、結果として気孔が目づまりする。

酸性雨はクチクラワックスを侵食するばかりではなく、生化学的な代謝変化を引き起こしてクチクラの発育を遅らせたり、ワックス合成を変化させる。その結果、ワックス量が減少したり、組成が変化する(Riding and Percy, 1985)。これらの変化はワックスの物理的構造を変化させる方向に導く。酸性雨によるクチクラワックスの侵食と再生の阻害は、この最外層の表面層を枯渇させ、植物体内からのクチクラ蒸散および無機イオンのリーチングを増加させる結果を招く。侵食されたり、障害を受けてひび割れと破裂を伴ったエピクチクラワックスあるいはエピスタタルワックスは、健全なワックス構造の時よりも病原菌の侵入を受けやすく、また、昆虫の被害も容易にし、農作物や樹木の生長低下を生じる可能性がある。

5.3 クチクラの侵食による生理代謝変化 — 蒸散および光合成 —

エピクチクラワックスの総体的な侵食は、水蒸気に対するクチクラの拡散抵抗を減少する(Cape and Fowler, 1981)。このことは、クチクラのコンダクタンス(抵抗の逆数)を高め、クチクラ蒸散を増加させることになる(Mengel *et al.*, 1989)。また、気孔を通過する蒸散増加の現象は、穴とひび割れにより生じる気孔領域のワッ

クスチューブの溶解からおこり、気孔制御メカニズムの攪乱によっている(Riding and Percy, 1985)。

高緯度地方の寒冷地域では、冬の間に針葉表面のワックス侵食を引き起こす大気汚染は、水分吸収を阻む土壌凍結の時、遅い冬の間乾燥ストレスに対する危険度を増加する。春の強い日射が針葉表面を温め、強い水蒸気圧力差を導く、この時、気孔はほとんど閉じているため、クチクラ蒸散が刺激される(Larcher, 1980)。水バランスは負になり、針葉の水分含量は進行的に悪化する(Huttunen *et al.*, 1981)。最初の正常なレベルに近づくように蒸散を維持するため、古い葉を落葉することは樹木が生体維持を図ることを意味する。なぜなら、古い葉はより高いクチクラコンダクタンスをもっている。このようなメカニズムは森林衰退の付加的な説明を与えるかもしれない。

一方、ワックスチューブあるいは粒子の溶解とそれによる悪化的な集積の結果として気孔が目づまりし、気孔コンダクタンスを減少すると信じられている。そして、それによって、気孔蒸散が減少するとともに、特に、トウヒとモミ針葉の生育シーズンの間の炭酸ガス吸収量が減少する。特に、汚染の激しい地域では、閉塞された気孔の結果として蒸散の低いレベルは、水分制御の能力のロスと dry-out 開始のためによるかもしれない(Huttunen *et al.*, 1981)。あるいは、死につつある樹木の樹冠の中の針葉の全量の減少によっているのかもしれない(Sauter and Voss, 1986)。蒸散の阻害は土壌から蒸散流と針葉の中の相対的に高い水ポテンシャルを通して葉へのミネラル(Mg, Ca)の不十分な養分吸収を生じる。気孔の 80 から 90 % が構造的に塞がれるようになった時、針葉の落葉が生じる(Sauter and Voss, 1986)。

5.4 葉表面のバッファー化とリーチング

Adams は数種の植物の葉に pH 5.6, 3.5, 3.0 の人工酸性雨滴(50 μ l)を付着させ、雨滴の pH が 75 分の観察時間の間上昇し、一方、パラフィルム上の同じ雨滴の pH は植物表面のものよりも常に低かったことを観察した(Adams and Hutchinson, 1984)。このことは、葉が酸を中和する物質を葉表面に分泌し、酸性雨に対するバッファー能力を持つことを示すものである。このように、植物体から体内養分が流亡する現象をリーチング(溶脱)と称する。

葉から極性物質をリーチングするメカニズムは複雑であるが、カチオン交換と電解質の受動的ロスの両者が主なものである(Poborski, 1988)。カチオン交換プロセスは、クチクラの 2 極性結合部位(セルロース、ヘミセルロース、リン脂質とポリウリニジン分子の -OH と -COOH 基)に吸着されたカチオンが水素イオンによっ

て交換されるものである(Turkey, 1970)。カチオンはインプットされた酸を中和するのに重要であるが、酸性雨に長く暴露されると、葉からの各種の塩が消費され、結果としてバッファ能力のロスにより、障害の発生を増加させる(Adams and Hutchinson, 1984; Hutchinson and Adams, 1987)。

以上のように、酸性雨はクチクラのワックス成分と直接に化学的に反応し、組成と化学的性質を変化させ、間接的な生理代謝的な作用によりクチクラ生成を阻害する。このようなクチクラの変化は草本植物や木本植物に生理生態的な悪影響を与える。特に、森林衰退においてエピックチュラワックスの変化が関連するプロセスは以下のようにまとめられる。①葉の濡れやすさの増加、雨滴の保持時間の増加、葉への雨水成分の透過性の増加とその後の生体成分のリーチングを増加する。②増加あるいは減少した気孔拡散抵抗とクチクラ拡散抵抗は、蒸散速度を変化させる。クチクラ蒸散と気孔蒸散の増加は結果として樹体の乾燥化を招く。また、気孔の目詰まりによる気孔蒸散の低下は、光合成の低下と蒸散により駆動されている根からの必須養分の吸収を阻害する。③クチクラワックスの化学的な変化により、葉表面の透過性と濡れやすさが増し、様々な生物学的ストレス(病原菌の侵入など)と非生物学的ストレスに弱くなる。

6. 酸性雨の農作物の生長と収量への影響

野外において、酸性雨が直接、農作物に可視的な障害を生じたり、農作物の生長や収量の減少を引き起こしたという事例は国内外を通じてほとんど報告されていない。そのため、酸性雨の農作物への生長や収量への影響を調べた研究は、人工酸性雨の実験により行われている。Irving (1985) はハツカダイコンを温室内でポット栽培し、第1本葉が出葉してから4週令の収穫時までの全生育期間中 pH 5.0, 4.6, 4.2, 3.8, 3.4, 3.0, 2.6 の人工酸性雨を散水した。ハツカダイコンの下胚軸(肥大根)は人工酸性雨の pH が低い方で明らかに減少し、その収量減少のしきい値は、pH 3.4 と 3.0 の間であることを明らかにした。さらに、NAPAP (1987) における6か所のフィールドでの

ハツカダイコンの人工酸性雨実験結果は、Irving (1985) の温室での結果とほぼ同じであった (Fig. 3)。なお、NAPAP で使われている人工酸性雨装置は、①オープントップチャンバーを改造し、散水ノズルを取付け、降雨時のみにセンサーによりその降水を感知し、屋根が移動して降水を排除する降水排除オープントップチャンバーと、②通常はオープンな野外状態のほ場であるが、降水があった場合のみ即座にそのほ場の上に巨大なシェルターが移動して屋根がかかり、降水を排除する装置であり、その降雨量に見合った人工酸性雨をノズルから散水する

Fig. 3. Radish yield as a function of the acidity of simulated rain (Irving, 1987).

Data are means from one or two experiments at six different laboratories. ANL: Argonne National Laboratory, BTI: Boyce Thompson Institute, OME: Ontario Ministry of the Environment, BNL: Brookhaven National Laboratory, ORNL: Oak Ridge National Laboratory, OSU: Oregon State University.

Fig. 4. Effect of simulated acid rain over the growing season on the yield of several important agricultural crops (Kulp, 1987).

雨水排除可動シェルターフィールドである。

アメリカでのハツカダイコン、ビート、レタス、アルファルファ、トウモロコシ、ダイズ、コムギ、タバコ、ジャガイモ、エンバク、インゲンマメなどの主要農作物へのフィールドにおける人工酸性雨実験の結果は、Tornら(1987)やIrving(1987)によりまとめられている。それらによると、ビートとダイズを除いては通常の酸性雨レベルの範囲(pH 3.8~4.5)では、pH 5.6のコントロールの降水に比較して収量の減少はまったく認められず、かなり低い pH の酸性雨(pH 3.0~3.8)でも収量減少はほとんどない(Fig. 4)。

7. 酸性雨による農作物の生長阻害・収量減少のメカニズム

酸性雨は光合成に大きな影響を及ぼさないという報告が多い。例えば、pH 2.6 に暴露されたハツカダイコンでは個体の葉面積が減少したが、単位葉面積あたりの光合成速度には有意な差異はなかった(Irving, 1987)。また、pH 2.7 の酸性雨に暴露されたインゲンマメでは葉に可視被害が拡大したが、個体の光合成は減少しなかった(Trites *et al.*, 1987)。さらに、アルファルファ葉への酸性雨処理で、pH 2.0 で光合成および呼吸速度が大きく低下するが、pH 3.0 までの酸性雨では光合成速度や呼吸速度に大きな変化がなかった(Poter and Sheridan, 1981)。このように、一般には、非常に酸性の低い pH 2.0 のような場合を除いては、光合成や呼吸速度の変化を検出することはできていない。これは pH 3.0 程度の酸性雨でハツカダイコンやビートのような感受性の高い農作物の生長の減少を説明することは困難であるが、このような場合の生長や収量の低下は、次のように考えられる。酸性雨によって葉にネクロシスなどの斑点が生じ、検出できない程度の光合成速度の減少が生じる。光合成が減少することによって、植物は茎葉の生長あるいは子実や果実にまわすはずの同化産物を生長の方ではなくて、酸性ストレスに対する防御と被害修復や回復のエネルギー源として消費したものと考えられる(MaLaughlin, 1985)。また、ハツカダイコンなどに見られる酸性雨処理による根の生長減少の理由は、一般にストレス下におかれ、光合成などが抑圧されると、茎葉は同化産物の利用では根に比べ優先権をもっており、その結果、肥大根への光合成産物の分配が少なくなったためと考えられる(Irving, 1987)。このように、酸性雨に対する農作物の生長減少は「エネルギーの流れの方向」が乱れることによるものと説明できるかもしれない。

8. 酸性降下物の樹木への影響

酸性雨の樹木に対する直接的な作用は、基本的には農作物と同様であるが、土壌を通じた間接的影響においては大きく異なる。農耕地土壌では、通常、石灰等のアルカリを施用し、土壌が酸性化しないように土壌の pH を管理するとともに、多量の肥料を施用している。そのため、管理された農耕地土壌では、農作物の生長には土壌を通じた酸性雨の間接的な影響はほとんど問題とはならないが、人為的管理がなされない自然の森林生態系では酸性降下物中に含まれる窒素やイオウ化合物と水素イオンは大きな問題を生じる。

8.1 林内雨と樹幹流

森林の樹木葉は乾性および湿性の両降下物を捕捉する。林内を通過した降水では、植物の葉についた乾性および湿性の降下物や植物から溶脱される各種イオンが洗い流されるため各種イオンの降下量は増加する。樹木の枝葉を通過した雨は林内雨(あるいは樹冠雨(throughfall))、枝葉から幹を伝わってくるものは樹幹流(stemflow)と呼ばれている。一般に、林内雨は H^+ 濃度を低下させ、全カチオン濃度を増加させる傾向がある(Eaton *et al.*, 1973)。これは樹冠の中で葉と降水との間でカチオン交換がおこった結果であろう。枝葉に付着した乾性および湿性の酸性降下物とリーチングされた元素を運ぶ多量の樹幹流は、林内雨の樹冠効果により pH が上昇した時でさえ、樹幹流の pH を低下する(Eaton *et al.*, 1973)。この樹幹流は木の根本から約 2 m 外側に pH と交換性 Ca, Mg の濃度勾配を形成し、pH 値は樹幹付近で最も低く、周囲に向かって直線的に増加し、最大で約 pH 1.0 の違いが見られる。この樹幹付近では、耐酸性のある林床植物が育ち、種の多様性は低い(Falkengren-Grerup, 1989)。

8.2 土壌の酸性化

炭酸を含む酸性の降水は土壌の交換性塩基(普通の土壌の持つ交換性陽イオンのうち量的に多いのは、 Ca^{2+} , Mg^{2+} , Na^+ , K^+ , Al^{3+} , H^+ の 6 種で、Al と H 以外の陽イオンをまとめていう)を溶脱させる作用がある。降水に洗われた土壌は、一部は水の加水分解作用のため、また、一部は H^+ との交換反応によって、交換性 Ca, Mg, K, Na などの塩基を失い、それだけ交換性 H が増加する。そして、土壌の交換性 H がある程度まで増加すると、粘土(粒径 0.002 mm 以下)の破壊とその一部の溶解によって Al^{3+} を生じ、交換性 Al が現れる。酸性化の進んだ土壌では、交換性 H の他に交換性 Al が存在する(吉田, 1990)。Al イオンは酸性の物質であり、pH 4~5 以下では Al^{3+} のイオンであるが、それ以上では、中性

から微アルカリ性で水に不溶性の水酸化物の $\text{Al}(\text{OH})_3$ となる(吉田, 1990)。交換性 Al は酸性の土壌だけに存在する物質であり、交換性 H とともに土壌酸性化の主要な要因である。さらに、酸性雨による土壌の酸性化が促進されると、交換性 Al の出現だけでなく、アルミニウムが溶解してくる。大部分の酸性土壌において、酸性土壌の有害性は水素イオンの毒性ではなくて、高濃度の交換性アルミニウムが植物の生育不良の原因になっている。アルミニウムは根の細胞分裂や Ca や P の吸収や転流を阻害することが知られている。

9. 欧米の森林衰退

1970年初頭に西ドイツの黒い森と呼ばれるシュバルトバルトのモミに、これまで知られていなかった新たな樹木被害が現れた。この症状は葉が黄色化し、早期落葉を生じ、さらに樹冠全体の葉量が減少し、やがて枯死するという現象である(Schütt and Cowling, 1985)。1979年までにはトウヒでも同じような症状が現れた。トウヒ林の衰退は、1980年から1984年にかけて、中部ヨーロッパ、スカンジナビア半島南部、イタリア北部、バルカン半島の一部、ヨーロッパ東部のほぼ全域で確認され、さらに、衰退がヨーロッパアカマツ、ヨーロッパブナにも及んでいることが明らかになってきた。また、アメリカ合衆国北東部とカナダの東部でレッドトウヒやストロブマツ、ポンデローサマツ林でも観察されている。この森林の衰退現象はイギリスでは forest decline、アメリカでは主に forest dieback、ドイツでは Waldsterben(森林死)と呼ばれている。この森林衰退は、その後も急速に拡大している。

9.1 森林衰退の原因

この森林衰退を引き起こす原因として、種々の説が提出されているが、Schütt & Cowling(1985)は詳細なレビューを行い、(1)土壌の酸性化、(2)土壌塩類欠乏、(3)オゾン、(4)窒素過剰、(5)ストレス複合の5つの仮説に大別した。また、北島は1987年の国際植物学会の中央ヨーロッパの森林衰退エクスカージョンに参加して、多くの研究者との討論からもこの5仮説に大きく大別できるとした(北島, 1988)。

(1) 土壌の酸性化 — アルミニウム毒性説

ゲッティンゲン大学の Ulrich のグループがこの仮説を提唱した(Ulrich *et al.*, 1983; Ulrich, 1989)。この仮説はゲッティンゲンの近郊のゾーリング山地での養分の循環の長期間の研究より、膨大なデータに基づくものである。森林土壌は本質的に酸性化するが、大気から過剰な酸性降下物が森林にもたらされ、その結果、土壌の酸性化が促進される。森林土壌が酸性化すると養分となるカ

チオンの貯蔵量が減少し、また、リターの分解が遅くなる。そして、土壌心土の酸性化の結果として、植物に有害なアルミニウムが溶出し、樹木の細根系が表層土壌にシフトし、このシフトの結果、慢性的な水ストレスがおり、それがまた樹木の樹冠の貧弱化を引き起こす。ノルウェイトウヒの Mg 欠乏は針葉の黄化として現れるが、これは Mg イオンを Al イオンがブロッキングしていることに帰することができる。

この仮説は樹木の生長減少と水ストレス症状をよく説明できているが、まだ、未解明な部分が多く残っている。すなわち、他の多くの研究で酸性降下物、アルミニウムの移動と森林衰退との間での明確な関係を見出すことができていない。しかし、他の可能性と合わせた時、特に、マグネシウム欠乏がある土壌では、部分的な説明が可能である。

(2) 土壌塩類欠乏説

この仮説は、ミュンヘン大学の Rehfuess(1989)によって主張されている。高標高地のトウヒ林の土壌中のマグネシウム濃度が低く、葉内の極端なマグネシウム欠乏があった。酸性降下物は森林生態系に過剰な窒素を供給するが、土壌と葉からマグネシウムとカルシウムを溶脱し、葉は黄色化し、樹木の生長にとっての養分のアンバランスが生じ、樹冠の直接の肥料効果によって根と枝葉との間の生長のバランスが攪乱される。

(3) オゾン説

Aschmore(1985)やKrause *et al.*(1986)などが提唱している説でオゾンによる葉の光合成阻害や細胞膜の透過性などの生理機能障害が樹木の生長抑制をもたらしているとするものである。0.05~0.10 ppmのオゾンの長期暴露は光合成を低下させることが知られている。光合成の減少と呼吸の増加および転流の変化は、生長のためのエネルギーが少なくなり、また、生長に利用できるはずの炭水化物を別の代謝プロセスに消費してしまい、生長が低下する。さらに、オキシダントは細胞膜に障害を与え、それによって膜の透過性を変化させ、葉からの体内成分の溶脱(有機あるいは無機のリーチング)を生じる。これは、その後の害虫や病原菌による攻撃を受けやすくし、あるいは寒凍害などのストレスに対する感受性が高くなる。さらに、オゾンは酸性雨と同様に、葉のクチクラワックスを侵食する。

特に、アメリカでは高濃度オゾンの地域分布と森林衰退の地域分布が一致している。また、低地では通常、日中のオゾン濃度がピークをとる日変化を示すが、森林衰退が起こっている高標高地でのオゾン濃度は、夏の間しばしば昼夜を問わず高く維持され、樹木に対するオゾンストレスは標高の高い地点ほど厳しいことが知られてい

る。

このオゾン仮説の最大の拠り所は、現在の気環境レベルでは酸性雨、 SO_2 や NO_2 は樹木に直接の葉障害や生長低下をおこさないことであり、唯一オゾンのみが環境濃度レベルで樹木に障害を及ぼすものであることである。アメリカ国内ではこのオゾン仮説が有力であるが、単にオゾンの暴露実験では通常の森林衰退を再現できないため、反論もある。オゾンの相対的な重要性は地域、また、樹種によって異なるものと思われ、オゾンは北アメリカの森林衰退の第1次的要因かもしれないが、ヨーロッパの森林衰退にはわずかしき寄与していないかもしれない。

(4) 窒素過剰説

通常、森林では窒素が不足しており、窒素は森林の生産力を制限している元素である。近年、工場や自動車からの窒素酸化物が増加し、窒素の過剰供給を生み、樹木の生長のアンバランスや窒素以外の栄養塩類の欠乏症を引き起こし、菌根菌(樹木に水と養分の吸収をよくする)活力阻害と壊死、耐凍性や土壌病原菌への抵抗性を低下させる。

(5) ストレス複合説

Hinrichsen(1986)やLikens(1989)

らは、多数のストレスが複合して森林衰退を引き起こしていると考えている。すなわち、貧弱な土壌、寒凍害の気象条件、害虫の食害や病原菌の感染などの自然要因や、酸性降下物による土壌の酸性化や高濃度オゾンの暴露などの人為的要因が相加的、相乗的に作用する。そして、葉からのカチオンの溶脱、根や葉の生理機能低下、栄養塩類バランス悪化によって、生長の低下をきたし、かばつや寒凍害の悪気象条件や害虫と病原菌への抵抗性低下を招くとするものである。この説は前述4説の総合説と言え、多くの研究者はこの説を支持している。

なお、酸性雨やオゾンなどの大気汚染物質の森林樹木に及ぼす影響の作用機構の概略をFig.5に示した。

10. わが国の森林衰退

わが国の都市部周辺の雨水のpHは4.5程度であり(玉置・小山, 1991)、北米やヨーロッパとはほぼ同程度に酸性化している。しかし、わが国では欧米のような激しい森林の衰退現象は、まだ顕在下していない。わが国の森

Fig. 5. Conceptual diagram of reaction of wet- and dry-deposition on forest ecosystems (野内, 1990).

林を構成している樹種と欧米の森林を構成している樹種とが異なり、大気汚染物質や酸性物質に対する感受性が異なることが考えられる。さらに、欧米の土壌は土層が薄く、陽イオン交換容量が小さく、酸や塩基に対する緩衝能力が弱く、酸性雨の影響を受けやすいポドソル土壌である。一方、わが国の土壌は、比較的緩衝能力の強い褐色森林土や黒ボク土などで構成されており、酸性雨に対して耐性が強いと考えられている。

わが国では、明らかな森林衰退と見られる現象は生じていないが、関東平野のスギ、赤城山のシラカバ、丹沢山系の大山のモミ、苦小牧のストロブマツやその他の樹種、広島県のマツなどの衰退が酸性雨との関連で報告されている。しかし、その原因については、今なお不明な部分が多い。

その中で、関東平野のスギの衰退に関する原因究明の調査報告が多いが、酸性雨を含めた酸性降下物や光化学オキシダントの大気汚染が主原因であるとする報告(高橋ら, 1986; Sekiguchi *et al.*, 1986))や気象要因を含

めた生育環境の悪化が原因である (Morikawa *et al.*, 1990) とする異なった報告があり、まだ、その原因究明は今後の研究にゆだねられている。

11. おわりに

SO₂ および NO_x の現在の放出量は、北米およびヨーロッパに地域的スケールの大気汚染および敏感な生態系の酸性化を引き起こした。今後はこれらの地域での SO₂ および NO_x の放出量は大きく増加することはないと見られているが、北米およびヨーロッパでの SO₂ および NO_x の効果は持続し続け、場合によっては、陸水および陸上生態系に時間差遅れでの酸性化により、今よりさらに環境が悪化するかもしれない (Galloway, 1989)。アジア、アフリカおよび南米では人口増大と産業伸長のため、今後、数十年の間に SO₂ および NO_x の大気中への放出量は大きく増大すると考えられ、地球の酸性化はますます進むと予想される (Galloway, 1989)。農耕地では石灰施用により、土壌管理がなされているため、年平均値が pH 4.5 程度の酸性雨により農業生産に及ぼす影響はほとんどないと考えられるが、人間の管理がゆきとどかない山岳地帯の森林においてはその影響は深刻である。文部省「人間環境系」重点領域研究「酸性雨」研究班の大羽 (1990) は、アルミニウム溶出までの H⁺ 消費量 (酸に対する土壌の耐性) は、土壌によって異なるが、Al 濃度 5 ppm と 10 ppm をそれぞれ農作物と樹木の植物生育阻害濃度として、溶出 Al 濃度が 5 ppm を超える時間は、pH 4.0 の酸性雨で 10 年から 30 年であり、10 ppm を超えるのは 15~35 年であると算出している。わが国でも近い将来、土壌酸性化に由来する森林衰退がおこる可能性は否定できない。

森林衰退の原因究明の調査研究は、ヨーロッパやアメリカなどで精力的に行われている。ノルウェーやスウェーデンでは森林への大規模な酸性水の散布実験が 1969 年あるいは 1972 年から行われているが、現在まで現らかな酸性雨の影響は現れていない (Tamm, 1989)。Kulp (1987) は NAPAP の中間報告の中で、アメリカの 8 つの森林衰退地域の調査により、そのうち 2 つ地域の森林衰退はオゾンが原因であるとしたが、その他の地域では原因は明らかではないとしている。一方、ドイツではオゾン、酸性雨、土壌、極端な気象条件の相互作用が高標高地のトウヒ衰退の原因であるとの仮説を実証するため、ミュンヘンの照射環境研究所 (GSF) を中心としたプロジェクトによって、1986 年 7 月から 14 か月間トウヒのオゾンと酸性雨の複合暴露実験を閉鎖型のファイトロンで行った。この実験結果は、「Environmental Pollution」の 64 巻 (1990) の 189~395 ページに特集され、

14 の論文が収められている。しかし、酸性の山地土におけるオゾンと酸性ミストの複合がトウヒ衰退を説明する主要な要因であるとの実験的証拠は得られなかった (Blank *et al.*, 1990)。また、ドイツのホーレンハイム大学の Arndt を中心としたホーレンハイムでコントロールされた実験条件で自然のトウヒとモミのスタンド (林地) で観察される障害を再現することを目的に、1983 年から 1988 年の 5 年間 SO₂、オゾンと酸性雨を汚染物質としてオープントップチャンバーとライシメータを組合せ、樹木の生長、植物生理 (酵素活性やアスコルビン酸、グルタチオン、テルペン含量)、細根システムや菌根菌、土壌養分の動きなどを総合的に調べた。その研究結果も「Environmental Pollution」の 68 巻 (1991) の 195~478 ページに特集され、18 の論文が収められている。Arndt (1990) は、ホーレンハイムの実験で多くの知見は得られたものの、森林衰退の原因の結論として、センセーショナルな結果が得られなかったと述べている。

このように、欧米での多くの調査研究にもかかわらず未だ森林衰退の第一義的な原因は明らかではない。しかし、土壌の酸性化およびアルミニウムの毒性、マグネシウムの欠乏、オゾンや SO₂ ガス、および窒素の過剰沈着などの環境の酸性化によるストレスと自然環境の各種のストレス (寒凍害、かんばつ、病虫害) の複合したものがその要因であることは疑いがない。複数の要因のうちどの要因が第一義的かということは、地域、地形、森林の年齢などによって異なるものと思われる。森林衰退の原因究明に向けて、山地における大気環境のモニタリングや汚染質負荷量を長期に渡って把握することが必要である。わが国でも今後は大気化学、土壌化学、植物生理生態学、植物病理学など様々な面から樹木衰退地域においてその原因を総合的に検討する必要がある。

引用文献

- Adams, C. M.; Hutchinson, T. C., 1984: A comparison of the ability of leaf surfaces of three species to neutralize acidic rain drops. *New Phytol.*, **97**, 463-478.
- Arndt, U., 1990: Synoptic discussion of methods and results. *Environ. Pollut.*, **68**, 435-451.
- Ashmore, M., Bell, N., Rutter, J., 1985: The role of ozone in forest damage in West Germany. *AMBIO*, **14**, 81-87.
- Blank, L. W., Payer, H. D., Ffirrmann, T. and Rehfuess, K. E., 1990: Effects of ozone, acid mist and soil characteristics on clonal Norway spruce (*Picea abies* (L.) Karst) - Overall results and conclusions of the joint 14 month tree exposure experiment in closed chambers. *Environ. Pollut.*, **64**, 385-395.

- Cape, J. N., 1983: Contact angle of water droplets on needles of Scots pine (*Pinus sylvestris*) growing in polluted atmospheres. *New Phytol.*, **93**, 293–299.
- Cape, J. N., 1986: Effects of air pollution on the chemistry of surface waxes of Scots pine. *Water, Air, and Soil Pollut.*, **31**, 393–399.
- Cape, J. N. and Flower, D., 1981: Changes in epicuticular wax of *Pinus sylvestris* exposed to polluted air. *Silva Fennica.*, **15**, 457–458.
- Eaton, J. S., Likens, G. E., Borman, F. H.: Throughfall and stemflow chemistry in a northern hardwood forest. *J. Ecology*, **61**, 495–509 (1973).
- Evans, L. S., 1982: Biological effects of acidity in precipitation on vegetation; A review. *Environ. Exp. Bot.*, **22**, 155–169.
- Falkengren-Grerup, U., 1989: Soil acidification and its impact on ground vegetation. *AMBIO*, **18**, 179–183.
- Galloway, J. N., 1989: Atmospheric acidification: Projections for the future. *AMBIO*, **18**, 161–166.
- Haines, B. K., Jernsted, J. A., Neufeld, H. S., 1985: Direct foliar effects of simulated acid rain. II. Leaf surface characteristics. *New Phytol.*, **99**, 407–416.
- 原 宏, 1991: 酸性雨 第1講「酸性雨」とpH. 大気汚染学会誌, **26**, A1–A8.
- 原 宏, 1991: 酸性雨 第3講 酸性雨のデータをどうみるか. 大気汚染学会誌, **26**, A51–A59.
- Hinrichsen, D., 1986: Multiple Pollutants and forest decline. *AMBIO*, **15**, 258–265.
- Hutchinson, T. C. and Adams, C. M., 1987: Comparative ability of leaf surfaces to neutralize acidic reindrops. I. The influence of calcium nutrition and charcoal-filtered air. *New Phytol.*, **106**, 169–183.
- Huttenen, S., Havas, P. and Laine, K., 1981: Effects of air pollutants on the wintertime water economy of the Scots pine *Pinus sylvestris*. *Holarctic Ecol.*, **4**, 94–101.
- Irving, P. M., 1983: Acidic precipitation effects on crops: A review and analysis of research. *J. Environ. Qual.*, **12**, 442–453.
- Irving, P. M., 1985: Modeling the response of greenhouse-grown radish plants to acid rain. *Environ. Exp. Bot.*, **25**, 327–338.
- Irving, P. M., 1987: Effects on agricultural crops. In *National Acid Precipitation Assessment Program (NAPAP), Interim Assessment: the cause and effects of acidic deposition*, Vol. IV, Washington D. C. 6.1–6.50.
- Jacobson, J. S., Irving, P. M., Kuja, A., Lee, J., Shriner, D. S., Troiano, J., Perrigan, S., Cullinan, V., 1988: A collaborative effort to model plant response to acidic rain. *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **38**, 777–783.
- Jeffree, E. J., 1986: The cuticle, epicuticular waxes and trichomes of plants, with reference to their structure, functions and evolution. In *Insects and Plant Surface* (ed. by B. Juniper and Southwood), Edward Arnold, London, 23–64.
- 北島 薫, 1988: 中央ヨーロッパ森林衰退の現状と研究状況, 日生態会誌, **38**, 269–277.
- Krause, G. H. M., Arndt, U., Brandt, C. J., Bucher, J. Kenk, G., Matzner, E., 1986: Forest decline in Europe: Development and possible causes. *Water, Air, and Soil Pollut.*, **31**, 647–668.
- Larcher, W., 1980: *Physiological Plant Ecology*. 2nd ed. Springer-Verlag, New York.
- Likens, G. E., 1989: Some aspects of air pollutant effects on terrestrial ecosystems and prospects for the future. *AMBIO*, **18**, 172–178.
- Legge, A. H. and Crowther, R. A., 1987: Acidic Deposition and the Environment: Over view. Acid Deposition Research Program, Calgary, p. 234.
- McLaughlin, S. B., 1985: Effects of air pollution on forests: A critical review. *J. Air Pollut. Control Assoc.*, **35**, 512–534.
- Mengel, K., Hogrebe, A. M. R. and Esch, A., 1989: Effects of acidic fog on needle surface and water relations of *Picea abies*. *Physiol. Plant.*, **75**, 201–207.
- Morikawa, Y., Maruyama, Y., Tanaka, N., Inoue, T., 1990: Forest declines in Japan: Mature *Cryptomeria japonica* declines in the Kanto plains, Proceeding of XIX IUFRO world Congress, Division 2, 397–405, Montreal, Aug. 5–11.
- National Acid Precipitation Assessment Program, 1987: Interim Assessment. I–IV.
- 野内 勇, 1990: 酸性雨の農作物および森林木への影響. 大気汚染学会誌, **25**, 295–312.
- 大羽 裕, 1990: 酸性降下物が土壌の化学性に及ぼす影響と本邦土壌の酸中和能の評価. 文部省「人間環境系」重点領域研究G028 「酸性雨が陸上生態系におよぼす影響の事前評価とそれに基づく対策の検討」, pp. 113–131.
- Poborski, P. S., 1988: Pollutant penetration through the cuticle. p. 19–35. In *Air Pollution and Plant Metabolism* (ed. by S. Schulte-Hostede et al.), Elsevier, Amsterdam, the Netherlands.
- Porter, J. R., Sheridan, R. P., 1981: Inhibition of nitrogen fixation in alfalfa by arsenate, heavy metals, and simulated acid rain. *Plant Physiol.*, **68**, 143–148.
- Rehfuess, K. E., 1989: Acidic deposition – extent and impact on forest soils, nutrition, growth and disease phenomena in central Europe: a review. *Water, Air, and Soil Pollut.*, **48**, 1–20.

- Riding, R. T. and Percy, K. E., 1985: Effects of SO₂ and other air pollutants on the morphology of epicuticular waxes on needles of *Pinus strobus* and *Pinus banksiana*. *New Phytol.*, **99**, 555–563.
- Rinallo, C., Raddi, P. and Lonardo, V., 1986: Effects of simulated acid deposition on the surface structure of Norway spruce and silver fir needles. *Eur. J. For. Pathol.*, **16**, 440–446.
- 酸性雨対策検討会大気分科会, 1990: 酸性雨対策調査報告書.
- Sauter, J. J., Kammerbauer, H., Pambor, L. and Hock, B., 1987: Evidence for the accelerated micromorphological degradation of epistomatal waxes on Norway spruce by motor vehicle emissions. *Europ. J. Forest Pathol.*, **17**, 444–448.
- Sauter, J. J. and Voss, U., 1986: SEM-observations on the structural degradation of epistomatal waxes in *Picea abies* (L.) Karst. — and its possible role in the 'Fichtensterben'. *Eur. J. For. Pathol.*, **16**, 408–423.
- Schütt, P. and Cowling, E. B., 1985: Waldsterben, a general decline of forest in central Europe; symptoms, development and possible causes. *Plant Disease*, **69**, 548–558.
- Sekiguchi, K., Hara, Y. and Ujiie, A., 1986: Dieback of *Cryptomeria japonica* and distribution of acid deposition and oxidant in Kanto district of Japan. *Environmental Technology Letters*, **7**, 263–268.
- 高橋啓二, 沖津 進, 植田洋匡, 1986: 関東地方におけるスギの衰退と酸性降下物による可能性. 森林立地, **28**, 11–17.
- Tamm, C. O., 1989: Comparative and experimental approaches to the study of acid deposition effects on soils as substrate for forest growth. *AMBIO*, **18**, 184–191.
- Torn, M. S., Degrange, J. E., Shinn, J. H., 1987: The effects of acidic deposition on Alberta agriculture: A review. Prep for the Acidic Deposition Research Program by the Environmental Sciences Division, Lawrence Livermore National Laboratory. ADRP-B-08/87, p. 175.
- Triteš, L. F. and Bidwell, R. G. S., 1987: Effects of acidic precipitation on bean plants. *Can. J. Bot.*, **65**, 1121–1126.
- 玉置元則, 小山 功, 1991: 地上から見た日本の酸性雨. 大気汚染学会誌, **26**, 1–22.
- Turkey, H. B. Jr., 1970: The leaching of substances from plants. *Annual Review of Plant Physiol.*, **21**, 305–324.
- Turunen, M. and Huttunen, S., 1990: A review of the response of epicuticular waxes of conifer needles to air pollution. *J. Environ. Qual.*, **19**, 35–45.
- Ulrich, B., Mayer, R. and Khanna, P. K., 1980: Chemical changes due to acid precipitation in a loess-derived soil in central Europe. *Soil Sci.*, **130**, 193–199.
- Ulrich, B., 1989: Effects of acidic precipitation on forest ecosystems in Europe. In Acid Precipitation Vol. 2. Biological and Ecological Effects (ed. by D. C. Adriano and A. H. Johnson), Springer-Verlag, New York, 189–272.
- US Environmental Protection Agency, 1984: The Acidic Deposition Phenomenon and Its Effects. Critical Assessment Review, Vol. II. (ed. by A. P. Altshuller and R. Linthurst), EPA 600/8-83/016 BF.
- 吉田 稔, 1990: 酸性土壌の化学. 酸性雨—土壌・植生への影響(環境庁酸性土壌植生影響研究会編集), 公害研究対策センター, 東京, 12–18.
- Wellburn, A. (ed.), 1988: Air Pollution and Acid Rain: The Biological Impact. Essex, Longman Scientific & Technical, p. 274.