

(9) 利根川源流域における窒素飽和現象によるとみられる硝酸イオンの流出 - その広がりと経年変化 -

寺西 知世¹・川上 智規^{1*}・青井 透²・宮里 直樹²・森 邦広³

¹富山県立大学短期大学部環境システム工学科

²群馬高等工業専門学校 環境都市

³登山家

* E-mail:kawakami@pu-toyama.ac.jp

群馬県内の利根川流域において、人為的な汚染のない渓流水中の硝酸イオン濃度の地域的な分布を調べた。群馬県の北東部にあたる尾瀬周辺では硝酸イオン濃度が $30\mu\text{mol/l}$ 以下の地点が多かった。北部の谷川岳周辺の湯檜曾川上流部においては硝酸イオン濃度が $30\sim 50\mu\text{mol/l}$ と山岳地の渓流水としては高い濃度を示した。窒素収支を測定した結果、湯檜曾川の支流の一ノ倉沢集水域では、窒素流出量が沈着量を上回っていると推定された。また、南西部の鱒川流域や碓氷川流域では非常に高濃度の硝酸イオンが流出しており、鱒川では最上流部であっても約 $140\mu\text{mol/l}$ に達していた。また、鱒川支流の東谷、大沢川ではそれぞれ $270\mu\text{mol/l}$ 、 $330\mu\text{mol/l}$ と高濃度であった。碓氷川の水道水源の水質データから高濃度の硝酸イオンの流出は少なくとも1988年ごろには発生しており、その後も若干上昇の傾向である。群馬県内の利根川流域においては広範囲で窒素飽和となっている可能性がある。

Key Words : Tone river, Gunma prefecture, Nitrogen saturation, Oze-marsh, Mt. Tanigawa,

1. はじめに

窒素飽和は、大気から森林への窒素化合物の沈着量が増加し、森林が必要とする窒素量を継続して上回る状態と定義されている¹⁾。重度の窒素飽和状態では森林が衰退することによりバイオマスが減少し、バイオマスに含まれる窒素の流出が生じることによって、さらに土壌中の窒素濃度が上昇する。その結果、降雨などにより森林にもたらされる窒素沈着量を上回る量の窒素が硝酸イオンとして森林から渓流水に流出し、陸水の富栄養化や酸性化を引起すとされている^{2,3)}。窒素飽和現象は、ヨーロッパや北米で研究が進んできたが、我国でも大類ら(1997)が群馬県の渡良瀬川上流部の東京農工大学演習林で、Kawakamiら⁴⁾が富山市の呉羽丘陵の渓流水で、また、Youら⁵⁾は多摩川上流部において窒素飽和を報告しており、日本においても次第に窒素飽和化が進行してきている。しかしながら、これらの報告は、特定の地域に限定

されており、未だ国土の広範囲で窒素飽和が発生しているとは認識されていない。ところが群馬県内の利根川上流部では、新潟県境に近い谷川岳の源流域⁶⁾、長野県境に近い妙義荒船佐久高原、埼玉県境に近い吉井町の溪流など⁷⁾、群馬県内の広い範囲で高濃度の硝酸イオンが流出していることが明らかとなってきた。本研究では、群馬県内の利根川流域を対象とし、硝酸イオンの流出の広がりを調べるとともに、いつから硝酸イオンが流出し始めたのかについて現在得られる知見を基に整理し、窒素飽和との関連を検証した。

2. 研究の方法

群馬県内の利根川上流域は、図-1に示すように北東部の福島県や栃木県との県境に近い尾瀬から流下する片品川、新潟県との県境の奥利根から流下する本流、谷川岳

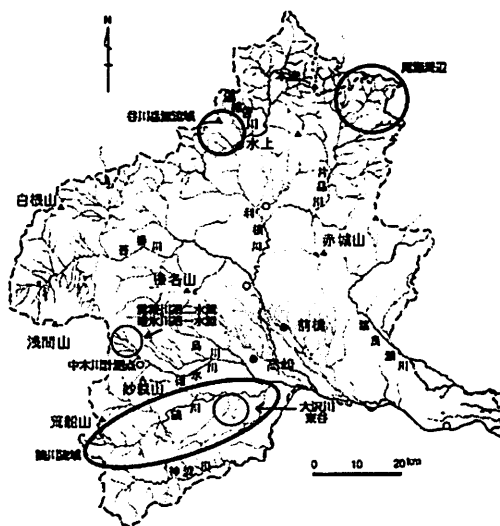


図-1 群馬県利根川流域図と主なサンプリング場所

から流下する湯楡首川、長野県との県境近くの草津白根山や浅間山から流下する吾妻川、碓氷峠から流下する碓氷川、妙義山や荒船山から流下する鏡川などに分かれる。本研究では、これらの地域の渓流水に関して2000年から2009年にかけてサンプリングを実施し分析した結果、ならびに、文献から得られる値も併せて、硝酸イオン濃度について地域的な分布を整理した。その結果、碓氷川や鏡川では高濃度の硝酸イオンが流出していることが明らかとなったため、過去19年間にわたる碓氷川水道水源のデータを用い、硝酸イオン濃度の経時変化を調べた。

渓流水のサンプリングは直接的な人為汚染が無いと思われる山地渓流水から採水を行った。降雨については常時開放型のバルクサンプラーを図-1の中木川計測点に設置して採取した。従って、乾性沈着による成分も含まれている。雨量は採取した降水の量から算出した。

これらのサンプルの窒素成分に関して、2006年以前のサンプルについてはオートアナライザAOCS IIを用いて分析した。一方2006年以降のサンプルについては孔径0.45μmのメンブレンフィルターでろ過した後、イオンクロマトグラフを用いて分析した。イオンクロマトグラフは陽イオン用としてDionex ICS1500 (溶離液: 20mmol/l メタンスルホン酸、分離カラム: IonPac CS-12, サプレッサー: CSRS-ULTRAII)を用いた。陰イオン用としてはDionex ICS2000 (溶離液: 23mmol/l~40mmol/l KOH, 分離カラム: IonPac AS-18, サプレッサー: ASRS-ULTRAII)を用いた。

中木川計測点における日平均流量は安中市の測定値を用いた。

表-1 片品川上流域の硝酸イオン濃度

採水地点	硝酸イオン濃度 (μmol/l)		サンプル数
	最大	平均	
大江川	18	4	4
岩清水	6	4	4
冬路沢	9	3	3
柳沢	4	2	2
大清水	11	4	4
硫黄沢	8	2	2
笠科川	4	2	2
照葉峽	4	2	2

表-2 谷川岳源流域の硝酸イオン濃度

	採水地点	硝酸イオン濃度 (μmol/l)			サンプル 数
		最大	平均	最小	
群馬県側 利根川 水系	一ノ倉沢 樹林帯	50	43	34*	63*
	一ノ倉沢 岩石帯	77	27	4*	77*
	マチガ沢 樹林帯		44**		71**
		57***	39***	34***	45***
	マチガ沢 岩石帯		22**		52**
		56***	32***	14***	38***
新潟県側 2002年 6月,11月 採水	毛渡沢 1号ダム		14		2
	蓬沢 2号ダム		14		2
	黒金沢		11		2
	4箇所平均				
	大源太沢		18		2
	葎沢		36		2
	毛渡沢		16		2

* 2006年8月~2007年12月採水 ** 2000年9月~2001年7月

***2007年2月~2008年5月採水

表-3 谷川岳の渓流水における硝酸イオンと塩化物イオンの濃縮比の比較

	NO ₃ 比 (樹林帯/岩石帯)	Cl比 (樹林帯/岩石帯)
一ノ倉沢	1.6*	1.1*
マチガ沢	1.2**	1.3**

*2006年8月~2007年12月の算術平均濃度より算出

**2007年2月~2008年5月の算術平均濃度より算出

3. 結果と考察

(1) 尾瀬周辺(群馬県北東部)

2001年1月から2002年2月にかけて採水した尾瀬周辺の片品川上流部の渓流水中の硝酸イオン濃度の平均値を表-1に示す⁹⁾。2002年の8月から10月にかけての尾瀬の降雨に含まれていたアンモニア性窒素と硝酸性窒素の合計は $31\mu\text{mol/l}$ であった。渓流水の硝酸イオン濃度は降雨の窒素濃度より低く、集水域で利用されたものと考えられる。ちなみに渓流水と同じ期間に採水を実施した尾瀬沼の硝酸イオン濃度は6回の平均で $4\mu\text{mol/l}$ と低かった⁹⁾。

(2) 谷川岳源流域(群馬県北部)

谷川岳源流域では、湯檜曾川と、その支流の一ノ倉沢ならびにマチガ沢においてサンプリングを継続している。

特に一ノ倉沢とマチガ沢では集水域が森林に覆われている樹林帯と、植生が乏しい岩石帯のそれぞれから流出する渓流においてサンプリングを行い、水質を比較した⁹⁾。2000年～2008年における硝酸イオン濃度の比較を表-2に示す。また、利根川水系ではないが、谷川岳の新潟県側の渓流水の水質も併せて示す⁹⁾。

群馬県側の渓流水は新潟県側の渓流水に比較して硝酸イオン濃度が高い傾向がある。このことは、群馬県側の渓流水は関東平野からもたらされる窒素化合物の沈着の影響を受けている可能性を示している。

また、ここで特筆すべきは、一ノ倉沢やマチガ沢では集水域が樹林帯である渓流水の方が、岩石帯の渓流水より硝酸イオン濃度が高い点である。樹林帯における蒸発散量は岩石帯より大きいと考えられるため、濃度で比較する場合には濃縮による影響を考慮する必要がある。そ

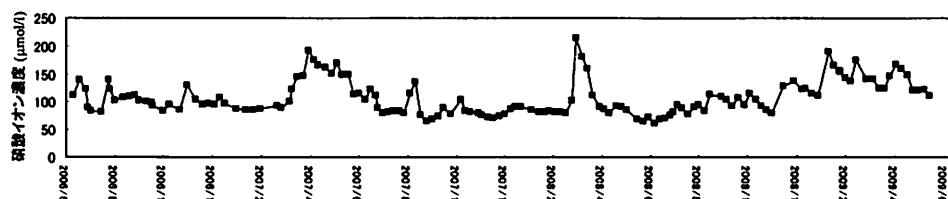


図2 中木川計測点における硝酸イオン濃度の変化

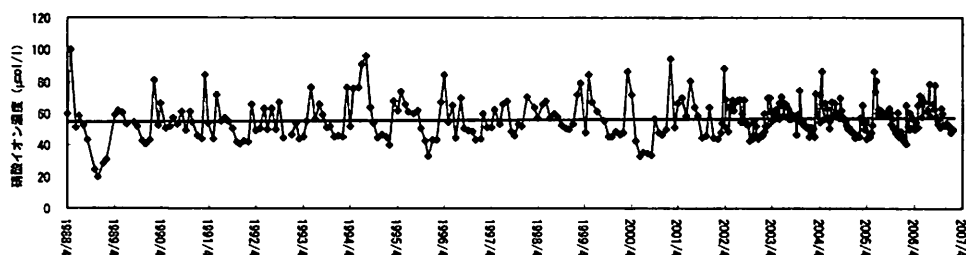


図3 碓氷川第一水源硝酸イオン濃度 19年間の変化

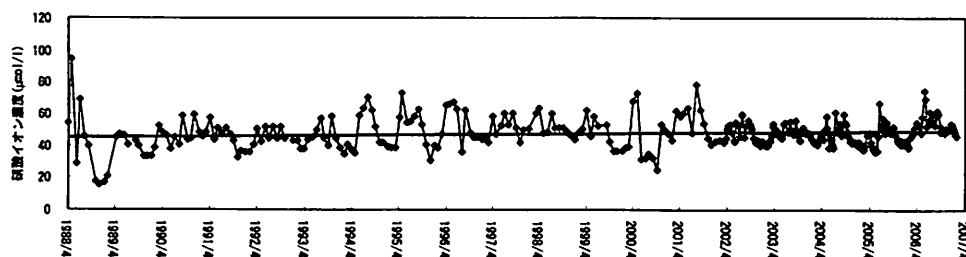


図4 碓氷川第二水源硝酸イオン濃度 19年間の変化

ここで土壌からの溶出が少ないとされる塩化物イオンを蒸発散による濃縮の指標として考えると、表-3に示すように、一ノ倉沢では1.1倍、マチガ沢では1.3倍に濃縮したとみることができる。しかしながら、硝酸イオン濃度は一ノ倉沢では樹林帯が岩石帯に比較して1.6倍あり、濃縮を考慮したとしても樹林帯から流出する硝酸イオン濃度が岩石帯からの濃度を上回っていることになる。このことは森林が窒素を消費するのではなく、供給源となっていることを示しており、窒素飽和状態であると考えられる。蒸発散による濃縮を考慮すると、マチガ沢においても樹林帯から流出する硝酸イオン濃度が岩石帯からの濃度とほぼ同等にまで上昇している。

(3) 鏡川流域(群馬県南西部)

鏡川流域は多くの支流において高濃度の硝酸イオンが流出していることが報告されている⁷⁾。本川最上流部の荒船湖の上流部では硝酸イオン濃度が約140 $\mu\text{mol/l}$ に達しているほか⁷⁾、吉井町の東谷や大沢川では2006年7月と12月の平均でそれぞれ270 $\mu\text{mol/l}$ 、330 $\mu\text{mol/l}$ にも達している。いずれも、飲料基準である「亜硝酸性窒素と硝酸性窒素の合計で10 mg-N/l (714 $\mu\text{mol/l}$) 以下」という値よりは低いが、人為的汚染の無い最上流部で既に基準値の半分近くの濃度に達している水域が存在すること自体異常なことと思われる。流下するに従って人為的な影響を受け、次第に窒素濃度が上昇していくことも確認されている⁷⁾。

また、碓氷川の支流であり妙義湖上流の中木川の硝酸イオン濃度の変化について2006年7月から2009年6月までの結果を図-2に示す。4月に濃度が高い傾向が見られるが、夏に低く冬に高いというような明瞭な季節変化は見られない。降雨のデータが継続して得られた、2008年1月～12月の集水域内の窒素収支をとってみると、降雨中のアンモニウムイオン、硝酸イオンの合計と降雨量から算出した窒素沈着量は、1900kg-N/yearであった。集水面積は1117haであったので、17kg-N/ha/yearに相当する。一方、窒素流出量は渓流水の硝酸イオン濃度と日平均流量との積で求めた日流出量を積算した。ただし、硝酸イオン濃度は次のサンプリング時までには前回から変化せず一定であると仮定した。その結果、窒素流出量は、2700kg-N/year、24kg-N/ha/yearとなり流出量が約1.4倍多かった。ここでも森林が窒素の供給源となる窒素飽和の影響が示唆される。

碓氷川に関しては、碓氷上水道企業団（現在は安中市上下水道部）による水源の硝酸態窒素の分析結果が19年間にわたって利用できる。碓氷川第一水源、霧積川第二水源それぞれについて硝酸イオンと亜硝酸イオンの合計の変化を図-3ならびに図-4に示す。既に1988年より高濃度の硝酸イオンが流出していたことを示している。明瞭な

季節変化は見られない。19年間のデータを最小二乗法で近似するとわずかに正の傾きが得られ、これは19年間に3～4 $\mu\text{mol/l}$ の濃度上昇に相当する。

(4) 群馬県全域のまとめ

2002年1月から2008年12月にかけて採水を実施した主な地点と硝酸イオン濃度の最大値を、0-30、30-100、100-200、200 $\mu\text{mol/l}$ 以上に区分し地図上にプロットしたものを図-5に示す。硝酸イオン濃度がどの程度まで上昇し得るのかを推定するために最大値をとった。また、県中央部は市街地や農地であり、人為汚染の可能性があるので、この図にはプロットしていない。

群馬県北部では硝酸イオン濃度が0-30 $\mu\text{mol/l}$ の地点が多い。一方、群馬県南西部では硝酸イオン濃度が100-200、200 $\mu\text{mol/l}$ 以上の地点が多く分布している。このことから、群馬県内の溪流、河川水中の硝酸イオン濃度は地域的な差があることがわかった。群馬県南西部には傾

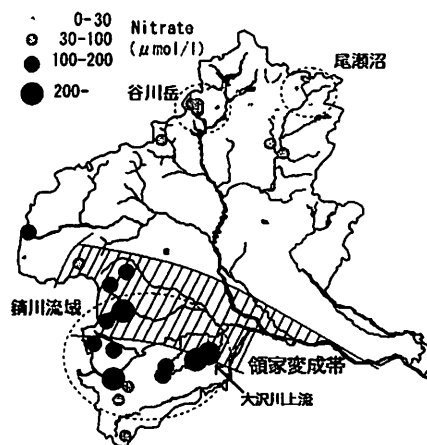


図-5 群馬県内採水地点と硝酸イオン濃度

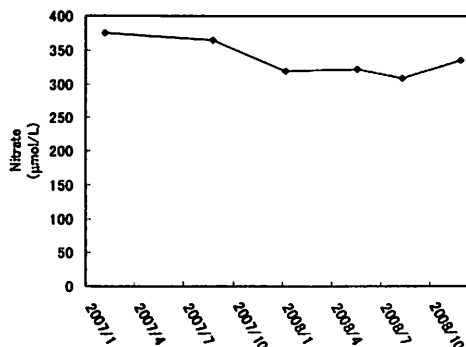


図-6 大沢川の硝酸イオン濃度

家変成帯が分布し、図-5に斜線で傾家変成帯の分布を示した。傾家変成帯では硝酸イオンの流出が多いとも言われているが¹⁰⁾、その南部に分布する秩父変成帯においても高濃度の硝酸イオン濃度が検出されており、地質との関連性は薄いと考えられる。これは、木平らが実施した全国1242の溪流水の調査においても同様であり大気汚染の影響が指摘されている¹¹⁾。木平らの調査においても硝酸イオン濃度の最高値は160 $\mu\text{mol/l}$ 弱であり、鎭川支流の大沢川の330 $\mu\text{mol/l}$ がいかに高濃度であるかということもよく示している。また、大沢川の硝酸イオン濃度の経時変化を図-6に示す。大沢川の硝酸イオンは2007年2月から2008年12月までのおよそ2年間、硝酸イオン濃度の季節的な変化はみられない。

(5) 窒素飽和との関連

年間窒素沈着量が10kg-N/ha/yearを超過すると窒素飽和が発現する可能性がある¹²⁾と報告されている。青井らによると、降雨による年間の窒素沈着量は、前橋市で25~30kg-N/ha/year、水上では12kg-N/ha/year、尾瀬沼で4kg-N/ha/year、首都圏では12~13kg-N/ha/yearと推定された¹³⁾。特に前橋市では窒素沈着量が非常に高く、都心部の倍にも達している。前橋市を含む鎭川流域は、関東平野南西部から西部を経て、長野県に抜ける大気汚染物質の輸送経路上にあることから¹⁴⁾沈着量が多くなり、窒素飽和が発現している可能性が考えられる。

Stoddardは溪流水の水質の年間の変動特性から窒素飽和のステージとして、ステージ0からステージ3の4つの区分を定義した²⁾。Stoddardの定義によるとステージ0では溪流水にほとんど硝酸イオンは流出しない。樹木による窒素の吸収が少ない冬期にわずかに流出する程度である。ステージ1では窒素沈着量の増加に伴って、森林の成長が促進される。溪流水では冬期の硝酸イオン濃度がステージ0より高濃度になると同時に、夏期の低濃度の期間が短くなる。ステージ2は森林が必要とする以上の窒素が供給される窒素飽和状態で、森林の成長制限因子が窒素ではなくなる。土壌から硝酸イオンの流出が始まり、溪流水ではこれまで見られていた硝酸イオン濃度の季節変化が見られなくなる。ステージ3では高濃度の硝酸イオンが流出することによって、降雨などによる森林への窒素沈着量を上回る窒素が森林生態系から流出するとされている¹⁾。

このStoddardの定義が適用できるとすると、尾瀬周辺地域は窒素飽和にはなっておらず、ステージ0と考えられる。谷川岳の一ノ倉沢やマチガ沢では、硝酸イオン濃度の季節変化が見られず、森林が窒素の供給源となっていることから、ステージ2か3ではないかと考えられる。碓氷川では硝酸イオン濃度の季節変化は見られず、ス

テージ2または3に相当する。このような現象が19年も以前から継続していたことになる。また、鎭川の支流からは非常に高濃度の硝酸イオンが流出しており、重度の窒素飽和状態のステージ3にあるものと考えられる。

窒素飽和が北部では起きていないのに対し、南西部で起きているのは、首都圏からの大気汚染物質の輸送系路上にあり、窒素沈着量が北部に比べ大きいことが考えられる。

4. 結論

群馬県の利根川上流域では、広範囲にわたって高濃度の硝酸イオンの流出が見られる。谷川岳の源流域においても森林が窒素の供給源となっているなど、Stoddardの定義による窒素飽和のステージが2または3と見られる集水域が群馬県内の広範囲に広がっている。碓氷川では19年前からこのような状態が継続している。これらは首都圏から移流する窒素化合物の過剰な沈着による可能性が考えられる。群馬県内ではステージ0の健全な集水域は尾瀬周辺に残っているだけである。

謝辞：本研究は、財団法人 河川環境管理財団からの助成を受けて実施した。碓氷川各水源の水質データ及び中木川流量データを適宜提供頂いた安中市上水道部に厚くお礼申しあげる。

参考文献

- 1) Aber, J., McDowell, W., Nadelhoffer, K., Magill, A., Bernston, G., Kamakea, M., McNulty, S., Currie, W., Rustad, L., and Fernandez, L.: Nitrogen Saturation in Temperate Forest Ecosystems: Hypotheses revisited, *BioScience*, Vol. 48, No. 11, pp. 921-934, 1998.
- 2) Stoddard, L. J.: Long-Term Changes in Watershed Retention of Nitrogen. In: *Environmental Chemistry of Lake and Reservoirs*, L. A. Baker (ed.), *Adv. Chem. Ser.*, Vol. 237, pp. 223-284, 1994.
- 3) McNulty, S. G., J. D. Aber and S. D. Newman: Nitrogen Saturation in a high elevation New England spruce-fir stand, *Forest Ecology and Management*, Vol. 84, pp. 109-121, 1996.
- 4) Kawakami, T., Honoki, H., and Yasuda, H.: Acidification of a small stream on Kureha Hill caused by nitrate leached from a forested watershed, *Water, Air, and Soil Pollution*, Vol. 130, pp. 1097-1102, 2001.
- 5) You, M., E. Konohira, and K. Yagi: Regional Distribution of natural stream nitrate in central Japan, *Water, Air, and Soil Pollution*, Vol. 130, pp. 655-660, 2001.
- 6) 森邦広, 阿部聡, 青井透: 谷川岳の降雪雨と各沢水中窒素濃度の関係, 第36回日本水環境学会年会講演集, pp. 108, 2002.

- 7) 池田正芳, 阿部聡, 青井透: 烏川, 鍬川における高い窒素濃度とその原因, 第 36 回日本水環境学会年会講演集, pp. 103, 2002.
- 8) 阿部聡, 青井透, 森邦広, 平野太郎: 尾瀬沼と谷川岳での降雨中窒素濃度の相違, 第 37 回日本水環境学会年会講演集, pp. 122, 2003.
- 9) 森邦広, 森千恵子, 青井透: 谷川岳の群馬県側と新潟県側の沢水中窒素濃度の相違, 第 37 回日本水環境学会年会講演集, pp. 110, 2003.
- 10) 西川宏幸, 國松孝男, 後藤直成, 肥田嘉文, 駒井幸雄: 林地溪流水の窒素濃度と地質, 第 40 回日本水環境学会年会講演集, pp. 561, 2006.
- 11) 木平英一, 新藤純子, 吉岡崇仁, 戸田任重: わが国の溪流水質の広域調査, 日本水文学会誌, Vol. 36, No. 3, pp. 145-149, 2006.
- 12) Dise, N. B., R. F. Wright: Nitrogen leaching from European forest in relation to nitrogen deposition, *Forest Ecology and Management*, Vol. 71, pp. 153-161, 1995.
- 13) 青井透, 平野太郎, 鎌田素之: 尾瀬沼・前橋市及び川崎市での降雨中窒素濃度及び湿性降水量の違い, 第 39 回日本水環境学会年会講演集, 2005.
- 14) 栗田秀實, 植田洋匡: 沿岸地域から内陸の山岳地域への大気汚染物質の輸送および変質過程, 大気汚染学会誌, Vol. 21, No. 5, pp. 428-439, 1986.

(2009. 5. 22 受付)

Nitrate leaching from forested watersheds of tributaries of Tone River, Gunma Prefecture. - Space distribution and time series of nitrate concentration -

Tomoyo TERANISHI¹, Tomonori KAWAKAMI¹, Toru AOI², Naoki MIYAZATO², and Kunihiro MORI³

¹Dept. of Environmental Systems Engineering, Toyama Prefectural University

²Dept. of Civil Engineering, Gunma National College of Technology

³Alpinist

Nitrate concentrations of stream water of tributaries of Tone River, which were not directly affected by human activities, were measured in Gunma prefecture and summarized in relation to nitrogen saturation. Space distribution of nitrate concentration was also investigated. The stream water on the southern part of Gunma Prefecture, through where the air mass passes from Tokyo metropolitan area, had elevated nitrate concentrations in general. While Yubiso River in the Tanigawa area in the northwestern part of Gunma prefecture showed 30-50 $\mu\text{mol/l}$ of nitrate. In the Oze area in the northeastern part of Gunma Prefecture had a lower concentration of nitrate below 30 $\mu\text{mol/l}$. The nitrogen budget of Ichinokurasawa, one of the tributaries of the Yubiso river in Tanigawa area, showed that the nitrogen leaching exceeded nitrogen deposition. The Nakaki stream, a tributary of Usui River in the southern part, also showed an excess leaching of nitrogen from the watershed. In addition, the Oosawa river, a tributary of Kabura River in the southern part, showed an extremely high nitrate concentration as 330 $\mu\text{mol/l}$. These results indicated that nitrogen saturation leading to a nitrate leaching was prevailing regionally in Gunma Prefecture except the Oze area. According to the analysis data from waterworks of the Usui River showed that the elevated nitrate concentration had been observed at least since 1988.