

まえがき

本書は、河川や湖沼等の水域に供給される窒素の発生源として、大気降下物由来の窒素に着目したものである。酸性雨の原因物質の一つである窒素化合物は、生物にとっての栄養物質でもある。しかし、その量が生態系の必要量より上回ると、森林の栄養過剰害、ひいては土壌の酸性化、陸水の富栄養化をもたらすことが懸念されている。このことは、大気降下物由来の窒素を、酸性雨の成分として、また富栄養化の栄養塩として、二つの意味から捉えることが重要であることを示唆している。

このような新たな視点から、大気環境における窒素挙動、乾性および湿性沈着等の供給機構、森林等の流域に与える影響、その他の発生源の窒素を含めた流域での流出過程や流域における窒素収支を総合的に明らかにすることを目的とした研究が望まれていた。そこで、財団法人河川環境管理財団では、河川整備基金を活用して全国的かつ総合的な観点から行う研究事業として、平成19年度から2年間にわたり「大気由来窒素に着目した流域の窒素収支に関する研究」が実施された。この研究を進めるにあたり、水環境や大気環境、森林、生物地球科学等の研

究者からなる研究会が組織された。その研究成果のエッセンスをとりまとめたものが本書である。

本書の出版にあたり、大学の教科書的な内容でなく、世間にあまり知られていない森林の窒素飽和現象等の窒素をめぐる事象について最新の研究成果を踏まえ、水環境分野に興味を持つ学生、環境問題に取り組むNPO等の方々にもわかりやすく紹介することを目指して編集した。読者の皆様に、大気由来の窒素を富栄養酸性化物質として認識していただければと考えている。そして、河川や湖沼の水環境を扱う行政機関の方々には、今後の河川水質管理を進めるためにも、河川における窒素管理において必要となる手法や視点が何か、効率的で総合的な窒素の負荷削減のための計画策定のあるべき姿はどのようなものか、さらには河川において窒素モニタリングをいかに行うべきか、などを検討いただくきっかけになることを期待している。

2012年1月

古米 弘明

目 次

序章 大気由来窒素に着目した河川水質の捉え方 1

第1章 渓流水の高い窒素濃度 9

- 1.1 利根川上流域における窒素の状況 9
- 1.2 その他の流域における窒素をめぐる現象 15

第2章 窒素の起源と大気からの降下物 25

- 2.1 環境に附加される自然起源と人為起源の窒素化合物 25
- 2.2 大気降下物の測定 37
- 2.3 全国における大気降下量の実態 46
- 2.4 大気中での窒素の移動 52

第3章 森林の窒素飽和現象 61

- 3.1 森林からの窒素流出の特徴 61
- 3.2 窒素飽和現象 63
- 3.3 各地の窒素飽和状況 66

第4章 窒素の排出源の特定 83

- 4.1 安定同位体法による排出源の特定 83
- 4.2 窒素安定同位体比から見た利根川上流域の特徴 92
- 4.3 環境汚染のタイムカプセル樹木入皮による
窒素汚染史解明の可能性 95

第5章 流域の窒素管理に向けて	111
5.1 富栄養酸性化物質である窒素による 水環境への影響	111
5.2 流域の窒素収支の把握	120
5.3 流域の窒素管理へ向けた提言	128
 索引	 139

序章

大気由来窒素に着目した 河川水質の捉え方

本書では、河川や湖沼等の水域に供給される窒素化合物の発生源という観点から、大気降下物由来の窒素化合物に着目して、大気降下量、森林域からの流出量、発生源や排出源の推定手法等を中心に、最新の知見やそれらに関連する知識が紹介されている。

大気降下物の窒素化合物は、酸性雨の原因物質であるとともに、森林域にとっては重要な栄養物質であり、その量が過剰になると、土壤の酸性化や陸水の富栄養化をもたらすことが懸念されている。既に、河川への硝酸態窒素が流出するという窒素飽和現象が報告されてきているが、現時点では河川水質に深刻な影響が顕在化しているとは断定できない。しかし、河川上流域における窒素挙動の把握なくしては、下流域における富栄養化への対応を含め、今後の流域の水質管理を適切に進めることは困難になると考えられる。

そこで、大気由来窒素に着目した河川の窒素の捉え方、そして、流域における窒素管理の在り方を考えるために重要となる

視点と本書の構成を以下に紹介する。

○ 河川水質における窒素の位置づけ：なぜ、河川の窒素が重要なのか？

窒素に関する水質環境基準としては、硝酸態窒素と亜硝酸態窒素が人の健康の保護に関する項目として河川を含む公共用水域や地下水に対して設定されている。また、富栄養化の側面から、湖沼と海域に対しては全窒素(T-N)や全リン(T-P)が生活環境の保全に関する項目として定められている。しかし、河川の水質環境基準には、T-NやT-Pが設定されていない。ここでいう湖沼とは、天然湖沼、および1,000万 m^3 以上で、かつ、水の滞留時間が4日間以上である人工湖が該当する。したがって、ダム湖の中には河川として、あるいは湖沼として扱われているものがある。

そのため、その下流にダム湖や湖沼がある河川上流域における窒素のモニタリングの重要性は高いと認識すべきであることがわかる。このことは、平成17年に取りまとめられ、その後も改訂されている「今後の河川水質管理の指標について(案)」に記載されているとおりである。すなわち、下流域や滞留水域への影響を考えた場合、上流域を含めて流域全体での窒素管理は重要である。なお、上流域の河川水質はきれいなものであるという想定が必ずしも正しいとは限らないことを考えるべきである。

流域における窒素の起源とその収支：どこから、窒素は河川にもたられるのか？

河川等の水環境に存在する窒素はどこからもたらされるのか、流域における人間生活、工場や事業所等の生産活動に伴う排水からもたらされるだけでなく、面源負荷として、森林、農地、市街地からの流出負荷がある。実は、面源負荷として見逃していけないものとして、降水等からの大気降下物由来の窒素があることを認識することが大事である。5.2で紹介しているように、利根川上流域では、大気降下物に由来する窒素負荷量の占める割合は、家畜排泄物の堆肥由来の窒素量と同程度であり、流域へ降下したり、投入される量の30%近くにも上る。畜産の盛んな地域であることを考えると、大気降下物由来の窒素の影響が大きいことが伺える。

したがって、大気降下物由来の窒素を含めて流域の窒素収支を把握してこそ、河川環境管理に役立つ効率的で総合的な窒素の負荷削減のための計画策定が可能となる。流域における窒素収支を算定評価するためには、窒素の発生源とその起源、そして、その負荷量を正しく把握することが求められる。そのことから、事業所排水の水質規制、下水の高度処理導入の推進だけではなく、森林管理、家畜排出物の管理、農地や市街地からの面源負荷の削減、自動車排ガスの管理等も含めて効率的な削減方策を検討する時代となっている。

○ 河川上流の溪流における窒素挙動：なぜ、河川上流部で窒素濃度が高い所があるのか？

一般に河川上流部には人為的な汚濁負荷は少ないことから、大気降下物や森林からの流出負荷に着目することが重要となる。1章において、人為的汚染のないと思われる利根川上流域の溪流の水質調査から、群馬県西部で無機態窒素濃度が特徴的に高いことが明らかになったことがまず紹介されている。同様に、関東地方において森林から流出する渓流水中の硝酸態窒素濃度が隣接する地方より高いことも併せて報告されている。

また、酸性雨調査結果を活用した窒素の大気降下量の全国分布状況からも、利根川上流域、北陸地方、山陰地方にも降下量が高い地点があることもわかってきている。例えば、2章で紹介されているが、大気からの窒素湿性降下量の高い所では、15 kg-N/ha・年以上になる。降水量を単純に1,500 mm/年とすれば、降水中の平均窒素濃度は1.0 mg/L以上に相当する。これが河川上流部の濃度レベルとなれば、流域全体の窒素収支において大気由来の窒素が大きく影響することが想定される。なお、世界自然遺産に指定された東京都小笠原での降下量は1.9 kg-N/ha・年であり、当然のことながら降水中の窒素濃度も低い。

○ 森林のメタボ化：河川の硝酸態窒素の高濃度は何を意味するのか？

窒素は植物の成長に必要な成分であることから、森林生態系

においては一般的には吸収されて、多量に河川に流出することはない。また、窒素化合物としてアンモニウムイオンは土壤に吸着されやすく硝化作用を受けることから、硝酸イオンの形態で流出する。言い換えれば、渓流水の濃度が高いことは、森林が必要とする以上に窒素が供給される状態が継続されることにより生じるとされている。いわゆる、窒素飽和現象である。

森林生態系が窒素過多となってメタボ状態になっていることから、この飽和現象が進行すると、河川に硝酸態窒素が流出することになり、下流域の酸性化や富栄養化を引き起こすことにもつながる。この現象については3章において、群馬県西部、谷川岳、富山県呉羽丘陵、六甲山における窒素飽和の段階が進行している事例として報告されている。

窒素起源の特定手法：大気降下物中と排水等の窒素の由来を識別できるか？

河川上流域における窒素挙動を把握するには、大気降下量や森林からどのように流出してくるのか、人為活動に伴う窒素の排出との寄与の大きさを議論することが重要となる。その際、流出する形態として主要なものである硝酸イオンの起源が特定できることは非常に有意義である。その起源解析に、硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比を用いる方法が活用できることが4.1で紹介されている。

窒素には2種類(^{14}N , ^{15}N)の安定同位体が、酸素には3種類(^{16}O , ^{17}O , ^{18}O)が存在する。重い元素(^{15}N , ^{18}O)と軽い元素

6 序章 大気由来窒素に着目した河川水質の捉え方

(^{14}N , ^{16}O)の存在比のことを安定同位体比($^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$, $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$)と呼ぶ。具体的には、大気降下物由来の硝酸イオンは相対的に $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ が高く、 $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ が低い。一方、排水中の硝酸イオンは、 $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ が高く、 $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$ が低い。

硝酸イオンの起源に応じてこの安定同位体比が異なることから、窒素の発生源の特定が可能となる。そこで、大気降下物中の窒素と排水由来の窒素との判別を目的に、研究会の枠組みの中で利根川上流域の水質調査を戦略的に行った。そして、窒素安定同位体比の測定結果から、硝酸性窒素濃度が高い群馬県南西部の支流は降雨由来の窒素の影響を大きく受けていることが4.2において紹介されている。

本書の構成

本書は本章を除き5つの章から構成されているが、**図1**にその内容を起承転結としてまとめてみた。まず、1章で研究会発足のきっかけとなった、利根川上流部の渓流水等で観測された高い窒素濃度に関する研究紹介がなされている。この興味ある現象を深く理解するために、着目した大気降下物由来の窒素について2章において解説している。地球環境スケールでの窒素汚染、大気降下量の測定方法や降下量実態等の大気由来の窒素を議論するための関連基礎知識が紹介されている。そして、3章では、大気から供給される窒素化合物量と森林での必要量の関係から評価される窒素飽和現象について事例を含めて解説

されている。この2, 3章は、導入で提起した渓流水の高い窒素濃度を受け、その背景となる知識を提供してその理解を促す部分である。

4章では、窒素の排出源の特定に活用できる安定同位体比を活用した手法とその適用例が示されるとともに、大気由来(自動車起源)の窒素汚染の記録としての樹木入皮を活用する興味ある手法も併せて紹介している。流域の窒素管理のためには、窒素排出源を把握しながら流域全体での窒素収支を理解することが重要となる。

5章では、河川や湖沼における窒素の影響を整理した後、大気降下物を含めて流域の窒素収支の算定事例を示している。この算定結果が正しいという立場ではないことに注意していただ

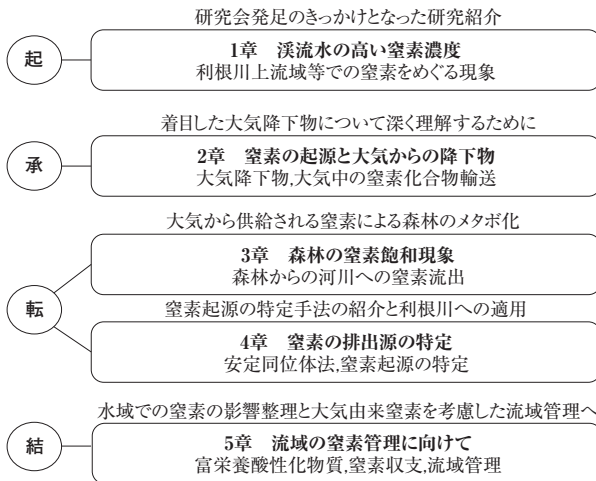


図-1 起承転結になぞらえた本書の構成

8 序章 大気由来窒素に着目した河川水質の捉え方

きたい。この収支計算から、何がわかり、何がわからないかをまとめたことが大事な成果だと考えている。そして、最後に大気降下物由来の窒素も考慮して流域における窒素管理を行ううえで、基本とすべき認識事項と今後に向けた提言をまとめている。

第1章

渓流水の高い窒素濃度

1.1 利根川上流域における窒素の状況

1.1.1 群馬県内の渓流水の濃度分布

筆者(青井)は長く水処理プラントメーカーに勤務し、現在、群馬工業高等専門学校(群馬県)の教員として2001年より利根川上流域の、人為的な汚濁源がないと思われる渓流における水質調査を継続している。調査を始めてしばらくし、群馬県西部の渓流の多くで窒素濃度が1 mg/Lを超えることに気づき、不思議に思ったことを今でもよく覚えている。その頃の筆者の認識では、森林から流出する渓流水の窒素濃度はきわめて低く、流下するにつれて生活排水、工場排水、農地排水等の流入によって窒素濃度が上昇すると考えていた(田淵, 2005)。

筆者が調査を行ってきた群馬県周辺の渓流における窒素濃度を図-1.1に示す。採水はすべて6~10月に行っている。窒素には、落葉等の有機態のもの、無機化されてアンモニア態(NH_4 -

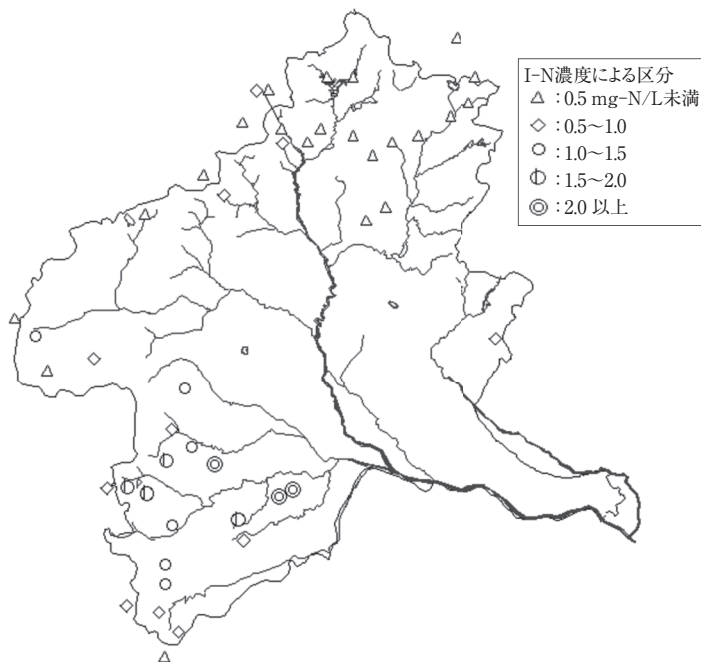


図-1.1 利根川上流域の渓流水のI-N濃度

N)や硝酸態($\text{NO}_3\text{-N}$)になったものがある。図には無機態の窒素(I-N)を示している。なお、I-Nの大半は $\text{NO}_3\text{-N}$ である。図では、I-N濃度が 1 mg/L 以上の溪流は、すべて群馬県西部に集中している。最もI-N濃度の高い地点は碓氷川上流で、 2.9 mg/L という値である。県の北部と東部においてはすべて 1 mg/L 以下で、地域で顕著な差を見てとれる。図には県西部と北部の県境を越えた隣県の水質も記載してある。西部の長野県側の値は群馬県内より低くなっている。

窒素の 2.9 mg/L という濃度が水環境において持つ意味について考えてみる。水環境において、窒素は 2 つの基準に採用されている。一つは、『水質環境基準(生活項目)』として湖沼や海域における富栄養化に関連して定められている基準で、最も緩い区分の値は、全窒素(T-N)で 1 mg/L 以下である。もう一つは、『水道水質基準及び水質環境基準(健康項目)』として定められている $\text{NO}_3\text{-N}$ と亜硝酸態窒素($\text{NO}_2\text{-N}$)の和で、基準値は 10 mg/L 以下である。群馬県西部における渓流水の窒素濃度と比べると、水道水質基準は十分クリアするが、水質環境基準の富栄養化の値を上回る値となっている。

渓流水で富栄養化の基準の値を上回る高濃度の窒素が検出されると言う、関係の研究者らからは、最初は驚きよりもデータがおかしいのではないかという疑いで受け止められることが多かったようである。2009 年に群馬県内で開催された水生昆虫の研究会において、筆者の研究室の学生が利根川の支流の一つである烏川での水生昆虫・珪藻の報告を行った。調査地点の I-N 2.1 mg/L, リン酸態リン($\text{PO}_4\text{-P}$) 0.03 mg/L と報告したところ、渓流水の窒素濃度がそんなに高いことはあり得ないとか、リンがないのに窒素だけ高いのはおかしいではないかという意見が相次いで出された。群馬高専に赴任当初の筆者もそうであったと懐かしくもあり、この研究の必要性を大いに感じさせられたものである。

1.1.2 上流域の水質の季節変化

図-1.1の結果は夏季に測定した値であるが、上流域における窒素濃度は年間ではどのように変化しているのかをしてみる。年間のデータの得られている県北部の湯檜曾川(土合堰堤上流)のI-Nの季節変化を図-1.2に示す。採水は、上流に人為的汚濁のない地点で行った。

湯檜曾川においては、3月下旬が最も高く0.6mg/Lを超える濃度となり、6~8月に最も低く0.2mg/L前後である。3月下旬が最も高くなるのは、2月からの雪解けに伴う凍結融解の繰返して起こる無機イオンが水より先に溶出するという溶脱現象によると考えられている。溶脱によりI-N濃度が低くなった雪渓の融解に伴いI-N濃度は徐々に低下し、6~8月の夏季には年間を通して最も低くなり、そして秋季から再び上昇し次の降雪期を迎えるという年間変化が観察される。

湯檜曾川の経年変化をもとに考えると、図-1.1で示した値は6~10月の採水であることから、年間で低目の期間のものであるといえる。

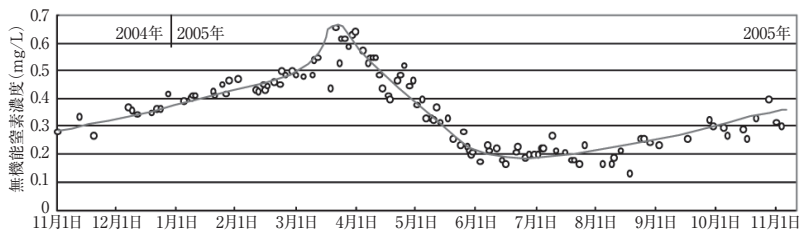


図-1.2 湯檜曾川におけるI-N濃度の季節変化(2004年11月~2005年10月)