

C-052 酸性物質の負荷が東アジア集水域の生態系に与える影響の総合的評価に関する研究  
 (1) 大気沈着量の簡易測定手法の開発と東アジアにおける沈着量の測定

信州大学理学部

戸田任重・鈴木啓助

〈研究協力者〉	中国科学院東北地理与農業生態研究所	Dexuan Wang
	中国科学院華南植物研究所	Jiangming Mo、Yunting Fang
	中国科学院生態環境研究センター	Zhaozhong Feng
	タイ国 王室林野局	Jesada Luangjame
	信州大学理学部	楊柳・張玉欣

平成17～19年度合計予算額 11,894千円  
 (うち、平成19年度予算額 3,900千円)

※上記の合計予算額には、間接経費 2,745千円を含む

[要旨] イオン交換樹脂(アンバーライトMB-1、オルガノ)を用いた樹脂カラムを作製し、大気からの窒素沈着量の長期的測定性能を確認した。樹脂カラムを、中国のハイラル、長白山、長春、北京(東霊山)、広州(鼎湖山と黒石頂)の6地点の、広葉樹林・針葉樹林、および樹林外に設置し、大気からの窒素沈着量を測定した。測定された年間窒素沈着量(硝酸態とアンモニア態窒素)は、林外雨で2.5～20.7 kgN/ha/年、林内雨で1.4～39.2 kgN/ha/年であり、降水量の少ない北部で低く、降水量の多い南部で高い傾向を示した。しかし、同様の降水量でも窒素沈着量の変動は大きく、窒素沈着量と人口密度には有意な相関がみられ、人間活動に伴う窒素放出量の増加を反映していた。窒素沈着量が大きい地域では、樹林内の窒素沈着量が樹林外の沈着量を上回っており、大気汚染の深刻な地域では、葉面への乾性沈着の寄与が大きいことが示唆された。また、中国、特に窒素沈着量の大きい地域では、アンモニア態窒素が卓越していた。現在の中国では、肥料や畜産排泄物に由来する窒素が、自動車・工場等からのNO<sub>x</sub>に由来する窒素よりも、相対的な寄与が大きいことがわかった。土壌中に埋設した樹脂バッグにより測定した窒素溶脱量は、窒素沈着量と有意な相関を示し、降水量の多い南部の広州では、窒素溶脱量が窒素沈着量を上回っていた。広州・鼎湖山における樹脂バッグによる測定値(40～50 kgN/ha/9ヶ月)は、水収支に基づく窒素流出量(40.4 kgN/ha/年)ともよく一致していた。人間活動の増大に伴う窒素沈着量の増加は、中国の森林域からの窒素流出の増加を引き起こしている可能性が懸念された。

[キーワード] 大気沈着、窒素負荷、降水、イオン交換樹脂、東アジア

## 1. はじめに

これまでのわが国や欧米における研究により、大気からの酸性物質の長期的負荷が自然生態系の酸性化と窒素濃度の上昇を引き起こしていると考えられている<sup>1)</sup>。東アジアでは、近年の経済発展、食料需要の増大によるエネルギーや肥料の消費量の急激な増加に伴って、酸性物質(イオウ

酸化物、窒素酸化物およびアンモニア)の発生量の増加も著しく、環境影響が最も懸念される地域である<sup>2)</sup>。特に窒素は制御が困難で、生態系内での挙動が複雑であるため、アジアにおける反応性の高い窒素の増大の影響は世界的に大きな関心を集めている。東アジアでは、酸性雨モニタリングネットワーク(EANET)により12カ国数十地点でモニタリングが開始されているが、生態系影響の実態はまだ明確ではなく、負荷との関係から十分に解析されるにはいたっていない。東アジアはさまざまな気象条件、植生の地域を含み、酸性物質の挙動もそれぞれ異なることが予想される。酸性物質の負荷の実態とその影響の地域特性を明らかにすることは、東アジアにおける環境対策を策定するために不可欠である。

## 2. 研究目的

イオン交換樹脂を用いて大気沈着中の酸性物質(特に窒素化合物)を直接的に採集する手法を開発し、東アジアの頻繁にアクセスできない地域で長期積算負荷量を測定する方法を確立する。中国各地(内モンゴル、広東省広州周辺、吉林省長春周辺、および北京市)の森林域で測定を行い、窒素沈着量の地理的特性、組成の違い、人間活動との関連などを明らかにする。長野県内および東南アジア・タイの森林域においても同様の測定を行い、中国森林域での窒素沈着の特性を明らかにする。さらに、大気汚染の深刻な広州において、集水域内の物質収支の解析を試みる。

## 3. 研究方法

### (1) 窒素沈着量の測定

イオン交換樹脂として、アンバーライトMB-1(オルガノ)を用いた。本樹脂は、強酸性陽イオン交換樹脂としてスルホン酸基、強塩基性陰イオン交換樹脂として4級アンモニウム塩基を含む、再生済みの湿潤混合型樹脂(粒径300~850 $\mu$ m)であり、陽イオン、陰イオン両方の吸着能を有する。本樹脂と同等のイオン交換樹脂を用いた野外実証試験が北米の森林で行われており<sup>3)</sup>、本研究ではこの実証試験を参考とした。

硝酸イオンおよびアンモニウムイオンに対するアンバーライトMB-1の吸着率、回収率に関する試験は室内で行った。吸着率は、既知の硝酸アンモニウム溶液中に本樹脂を添加し、1時間振盪後、溶液中に残存した両イオン濃度を測定して算出した。吸着されたイオンの抽出には塩化カリウム溶液を用い、硝酸イオンは硫酸ヒドラジン還元法で、アンモニウムイオンは中和後インドフェノール法により測定した。

野外設置用のカラムは、市販の塩ビパイプにプラスチックロートを取り付けて作製した(図1)。外径22mm、内径16mm、長さ330mmの塩ビパイプに、ガラス繊維を10mm程度詰め、その上にイオン交換樹脂を湿重量で約30g充填した。そのカラムの上に直径125mmのプラスチック製のロートを取り付け、リターや昆虫の侵入を防ぐため、目合2mmのナイロンメッシュを被せた。この塩ビパイプの外側に、直射日光を防ぎ、ロートを固定するために、外径48mm、内径44mm、長さ340mmの塩ビパイプを取り付け、アングルを用いて、地上約500mmの高さに設置した。

本樹脂カラムと従来のバルク式採集装置との比較試験は、松本市内の浅間温泉付近（標高1,000m）および乗鞍高原（標高1,450m）で行った。バルク式採集装置には、樹脂カラムに取り付けたものと同じ大きさのロートを取り付けた。浅間温泉付近では2005年7月1日から12月12日まで、乗鞍高原では2005年7月11日から12月12日まで、樹林内と樹林外とに両方式の装置を設置した。バルク式採集装置は月に1回降水を回収した。イオン交換樹脂カラムは、設置期間中交換しなかったグループ（無交換）と、設置期間の途中で1回（浅間温泉は9月9日、乗鞍は9月14日）交換したグループ（交換）に分けた。

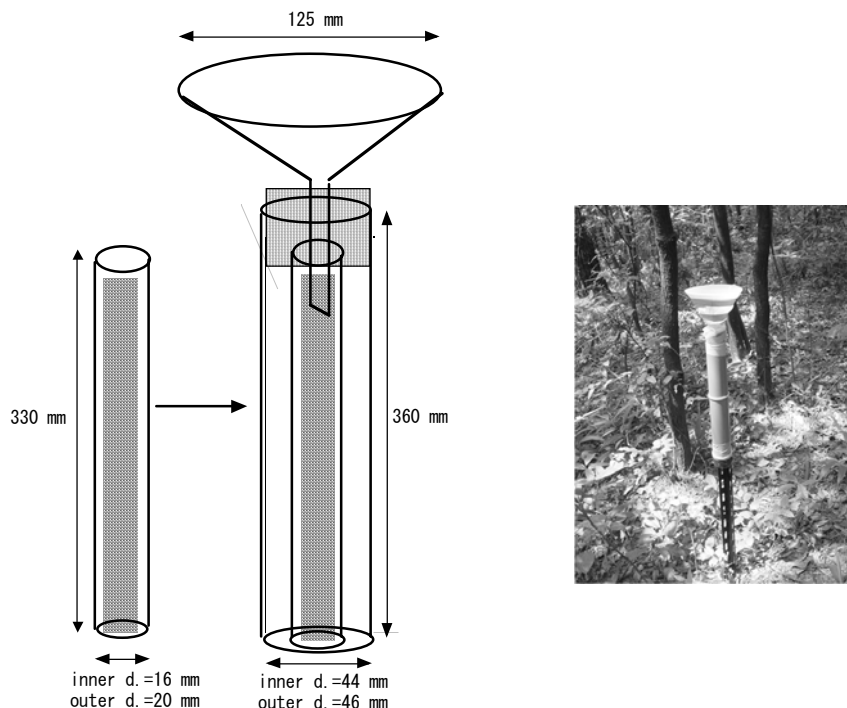


図1 イオン交換樹脂カラム

中国では、2005年7月に広州の鼎湖山、8月に吉林省の長白山と浄月潭公園（長春）、北京郊外の東霊山、2006年7月に広州の黒石頂、2006年8月に内モンゴルのハイラルに樹脂カラムを設置した（図2）。イオン交換樹脂を設置した中国の各森林域の優占樹種を表1に示した。内モンゴル・ハイラルは比較的疎らな針葉樹林、長白山は林外雨のみの測定、長春は市街地に近い公園内の平地林、北京・東霊山は北京市の北西、中心部から約100kmの山岳地帯、広州・鼎湖山の広葉樹林は樹齢400年と言われる自然林、針葉樹林はアカマツの植林、混交林は二次林、黒石頂は広葉樹の自然林である。

中国での調査地に加え、熱帯域での沈着量測定についての相互比較を行うために、2006年11月には、サブテーマ3が対象としているタイ・サケラートの樹林にも樹脂カラムを設置した。さらに、国内外の比較のため、長野県内6地点（大町市、松本市、大桑村、千曲市、佐久穂町、伊那市）の針葉樹林および広葉樹林にもカラムを設置した（2005年秋～2006年夏）。

各調査地で、各樹林タイプ内に5本、樹林外に3～5本、さらに樹脂の分解にともなう無機態窒素

放出量を測定するための対照カラム（降水は入らない）を3～5本設置した。設置したカラムは、3ヶ月～6ヶ月間隔で回収・交換した。降雪のある地域では、冬季にはロートの上に、外径130mm、内径120mm、長さ500mmの塩ビパイプを取り付けて、降雪を捕集した。長野県の場合は降雪量が多いため、外径130mm、内径120mm、長さ1,000mm（大町市のみ1,500mm）の塩ビパイプに長尺の筒状ビニールを挿入し、降雪を捕集した。中国の長春、鼎湖山、黒石頂では、地表面から約40cm付近に、樹脂バッグ（直径45mm、長さ20mmの塩ビパイプに上記イオン交換樹脂を充填）を埋設し、窒素溶脱量を測定した。

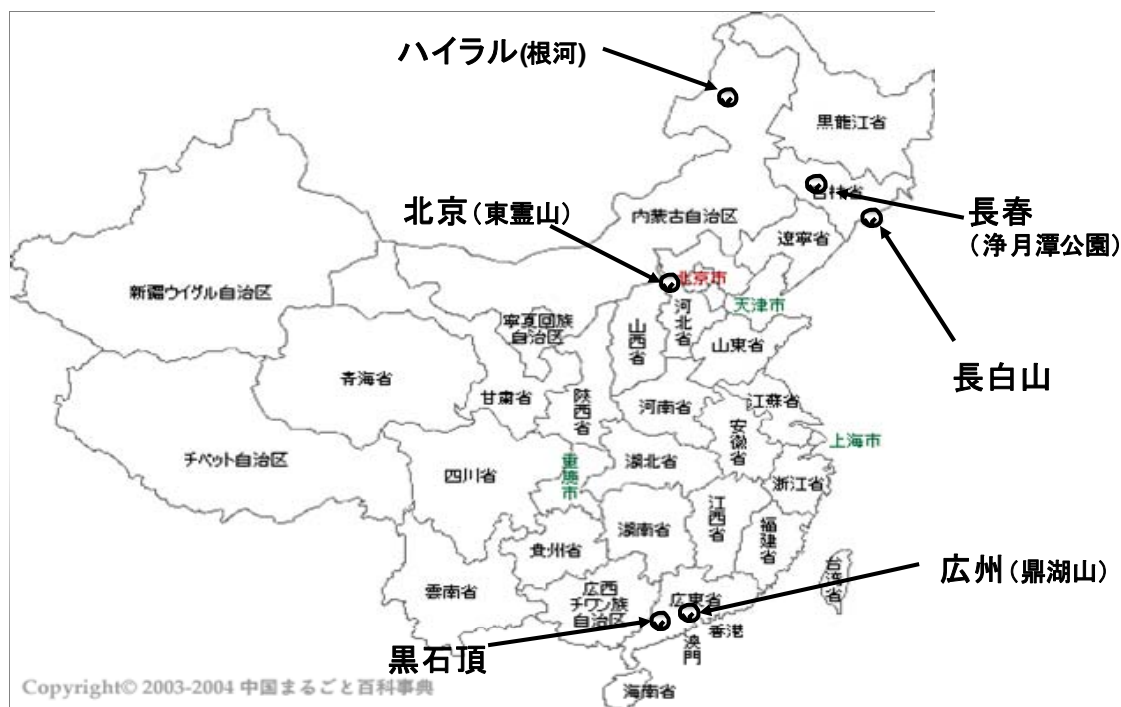


図2 中国の調査地

表1 中国各調査地の優占樹種と緯度・経度、標高、年間降水量  
(緯度・経度、標高はGPSによる実測、降水量は中国気象局による)

調査地	森林タイプ	優先樹種	緯度(N)	経度(E)	標高(m)	降水量(mm)
ハイラル (根河)	広葉樹林	シラカンバ	50° 54' 23.1"	121° 30' 04.5"	805	352
	針葉樹林	カラマツ	50° 54' 23.2"	121° 30' 04.6"	805	
長白山	(林外雨)	—	42° 23' 56.5"	128° 06' 24.4"	771	570
長春 (浄月潭公園)	針葉樹林I	カラマツ、二葉の松、杉	43° 47' 24.0"	125° 28' 34.1"	335	620
	針葉樹林II	カラマツ、二葉の松、杉	43° 47' 11.5"	125° 28' 56.2"	382	
	広葉樹林	チョウセンヤマナラシ、マンシュウグルミ	43° 47' 06.9"	125° 29' 07.2"	359	
北京 (東霊山)	針葉樹林I	チャイナパイン	39° 57' 33.0"	115° 25' 38.8"	1233	578
	針葉樹林II	カラマツ	39° 57' 24.7"	115° 25' 45.1"	1304	
	広葉樹林	クスノキ、フウ	39° 57' 27.9"	115° 25' 30.1"	1284	
広州 (鼎湖山)	針葉樹林	アカマツ	23° 09' 54.6"	112° 33' 19.8"	161	1983
	広葉樹林	ツメバキ、シイノキ、海南厚殻樹	23° 10' 10.7"	112° 32' 20.7"	246	
	混交林	ツメバキ、シイノキ、海南厚殻樹、アカマツ	23° 09' 52.6"	112° 32' 46.8"	148	
広州 (黒石頂)	広葉樹林I		23° 27' 19.0"	111° 53' 26.9"	509	1740
	広葉樹林II		23° 27' 29.5"	111° 54' 09.7"	451	

## (2) 河川からの流去量の測定

鼎湖山自然公園内の三宝峰流域において河川流量を測定するとともに、定期的に河川水を採取し化学分析を行った(図3)。調査対象流域の流域面積は0.0996 km<sup>2</sup>で、標高は175 mから525 mである。標高175 mの流域の出口には三角堰が設置されており、その溢流水位を自記記録し水位から流量を算出した。さらに、堰から溢流する河川水を採取し、その場でシリンジとディスポーザル・フィルターを用いて濾過しポリ瓶に入れ冷蔵庫に保存した。試水は日本に持ち帰り、電導度とpHを測定し、イオンクロマトグラフで主要溶存成分濃度を測定した。また、鼎湖山自然公園内にある中国科学院南方植物研究所屋上において、転倒升式降水量計によって降水量の測定を行った。河川流量と降水量の測定は2005年12月1日から2007年10月31日まで実施し、河川水の採取は2007年3月6日から2007年10月31日まで行った。なお、河川水の採取は2日に1回を基本とし、1日ごとに採取した場合もある。ほぼ8ヶ月間で136個の試水を採取・分析した。

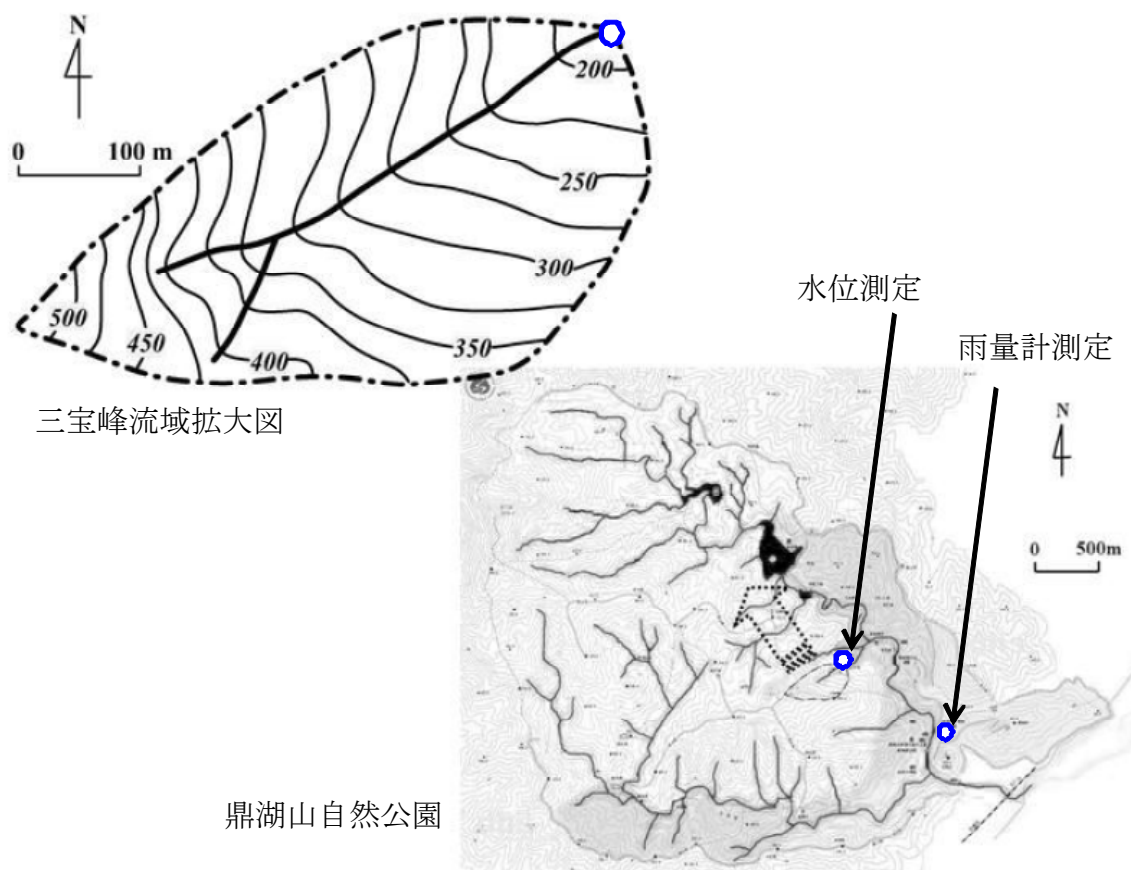


図3 鼎湖山自然公園と調査対象流域の地図

## 4. 結果・考察

## (1) イオン交換樹脂の性能

室内の吸着実験では、硝酸イオンに対して95.7%、アンモニウムイオンに対して97.4%、の吸着率が得られた（表2）。また、吸着されたイオンの抽出・回収実験では、塩化カリウムを用いた抽出により、硝酸イオンで100%以上、アンモニウムイオンで92.3%の回収率が得られた。

表2 イオン交換樹脂（アンバーライトMB-1）による硝酸態・アンモニア態窒素の吸着率と回収率（%）

	NO <sub>3</sub> -N	NH <sub>4</sub> -N
吸着率	95.7 (0.72)	97.4 (1.04)
回収率	113.7 (3.2)	92.3 (1.5)

( ) 内は標準偏差

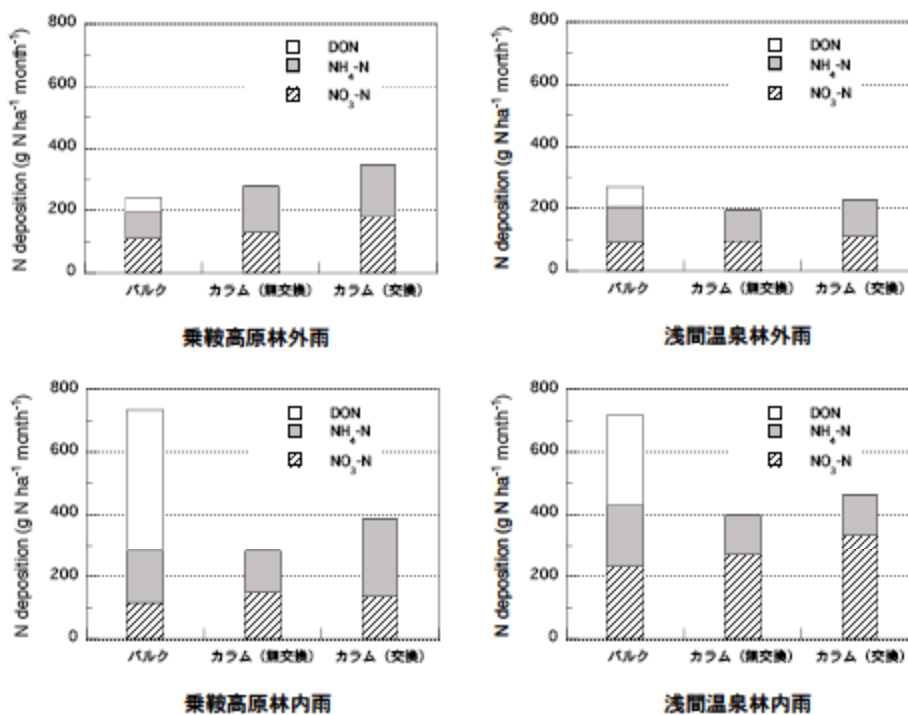


図4 バルク式採集装置とイオン交換樹脂カラムによる窒素沈着量の測定結果

アンバーライトMB-1を詰めたイオン交換樹脂カラムと、従来のバルク式採集装置とを、長野県松本市内の樹林内外に5~6ヶ月間設置し、降水に伴う窒素沈着量を測定した。硝酸態とアンモニウム態とを合わせた無機態窒素量では、イオン交換樹脂カラムは、バルク式採集装置と同等か、時にはその1.5~2倍近い観測値（乗鞍高原林外雨）を示した（図4）。いずれの観測地点でも、設置期間の途中でイオン交換樹脂を交換（約3ヶ月間）した方が、無交換（約6ヶ月間）のものより、無機態窒素の捕集量が多い傾向が認められた。このような差異がみられた理由としては、バルク式採集装置の貯水タンク内での無機態窒素の消失（微生物による有機化）、樹脂カラム内での有機物の分解（無機化）、イオン交換樹脂の吸着能の低下等の原因が考えられる。これまでの報告では、イオン交換樹脂の吸着能は1年間程度は保持されるとされているが<sup>3)</sup>、設置期間は短めの方がよく、長期間の設置では窒素沈着量が過小評価される可能性がある。樹脂カラム内での微生物活性抑制のために、チモール等の殺菌剤の利用も検討課題であろう。バルク式採集装置による観測では、特に樹林内で溶存態有機窒素がかなり認められた。樹脂カラムでは、帯電したイオン成分は吸着されるが、電氣的に中性の溶存物質は捕集されない。溶存態有機窒素に関しては、別に測定する必要があり、イオン交換樹脂を用いた測定は難しい。

## （2）東アジア各地の森林域における窒素沈着量

長野県内の樹林での窒素沈着量は、針葉樹林で1.3~9.7 kgN/ha/年、平均6.1±3.3 kgN/ha/年、広葉樹林で2.8~6.4 kgN/ha/年、平均5.4±1.3 kgN/ha/年であり、針葉樹林でやや高かった（図5）。長野県内の樹林では、硝酸態窒素が55.7%（針葉樹林で60.4%、広葉樹林で50.9%）、アンモニア態窒素が44.3%（針葉樹林で39.6%、広葉樹林で49.1%）であり、硝酸態窒素がやや上回っていた。

中国各地で測定された年間窒素沈着量（硝酸態とアンモニア態窒素の合計）は、林外雨では、ハイラルで2.5 kgN/ha/年、長白山で7.7 kgN/ha/年、長春で10.4~11.3 kgN/ha/年、北京で13.0 kgN/ha/年、広州・鼎湖山で19.5~20.7 kgN/ha/年、広州・黒石頂で10.4 kgN/ha/年であった（図6）。樹林内では、ハイラルの針葉樹林で1.4 kgN/ha/年、混交林で2.1 kgN/ha/年、長春の針葉樹林で13.3~18.1 kgN/ha/年、広葉樹林で10.6~10.9 kgN/ha/年、北京の針葉樹林で11.2~14.4 kgN/ha/年、広州の針葉樹林で36.7~39.2 kgN/ha/年、広葉樹林で30.3~34.5 kgN/ha/年、混交林で33.0~36.9 kgN/ha/年であった。2年間にわたる調査が行われた長春や広州の結果をみると、林外雨、林内雨ともに年変動は比較的小さいことがわかる。年間窒素沈着量は降水量の少ない北部で低く、降水量の多い南部で高い傾向を示した（図7）。しかし、同様の降水量でも窒素沈着量の変動は大きく、窒素沈着量はむしろ人口密度と有意な相関を示した（図8：林外雨で $r^2=0.82$ 、針葉樹林で $r^2=0.70$ 、広葉樹林で $r^2=0.96$ 、いずれも $P<0.05$ で有意）。中国の森林域における窒素沈着量は、人間活動に伴う窒素放出量の増加を反映していることが示唆される。窒素沈着量が大きい地域では、樹林内の窒素沈着量が樹林外の窒素沈着量を大きく上回っており（図9）、大気汚染の深刻な地域では、葉面への乾性沈着の寄与が大きいことが示唆された。また、中国の窒素沈着量の大きい地域では、アンモニア態窒素が60~80%を占めて卓越していた（図10）。この点は、上述した長野県とは対照的であり、現在の中国では、肥料や畜産排泄物に由来する窒素が、自動車・工場等からのNO<sub>x</sub>に由来する窒素よりも、相対的な寄与が大きいことがわかった。

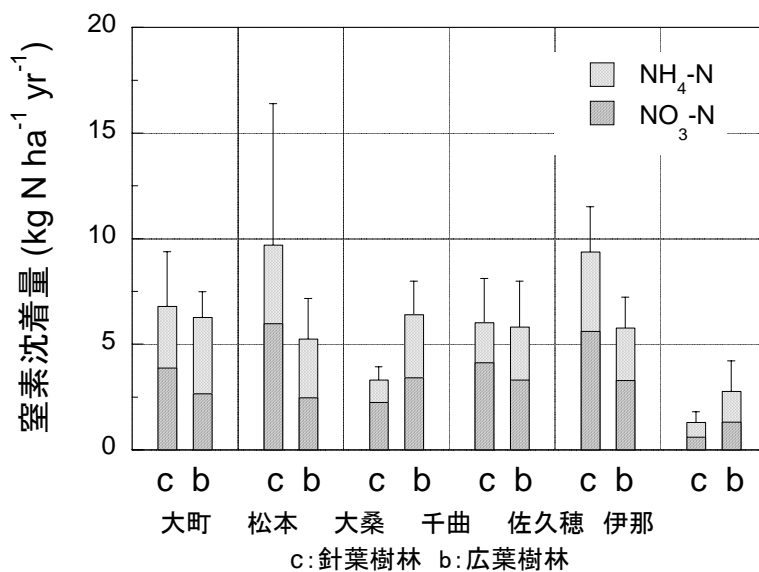


図5 長野県内における年間窒素沈着量

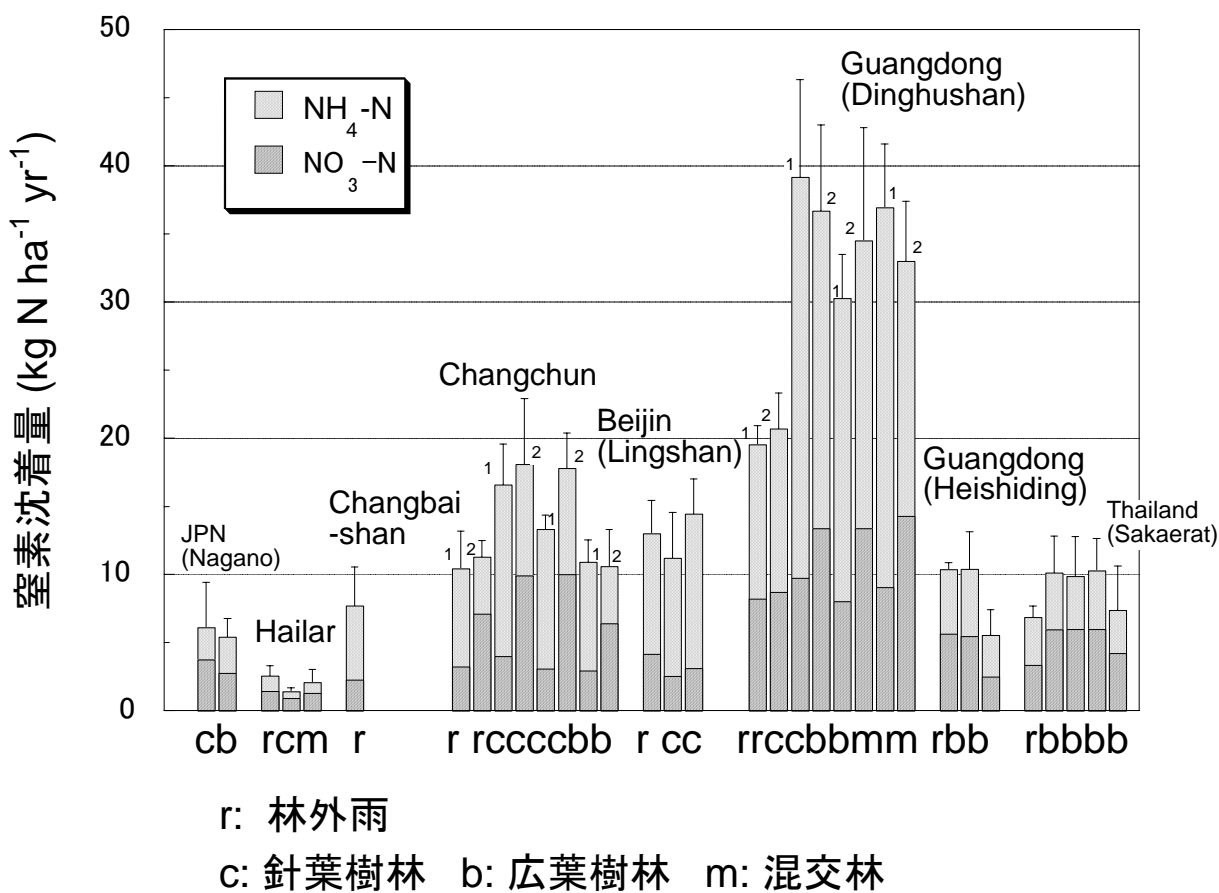


図6 中国各地および長野県、タイ・サケラートの森林域における年間窒素沈着量  
 (長春および広州の棒グラフ上の数値は調査1年目と2年目を示す)



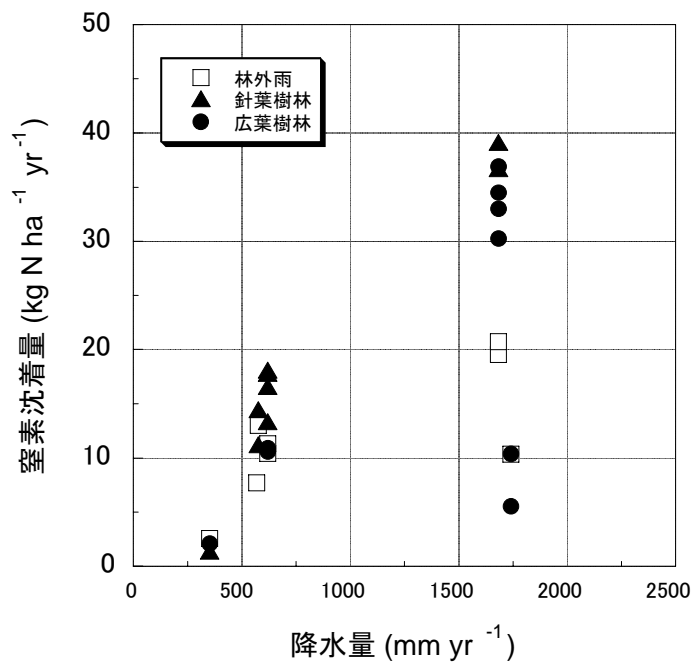


図7 中国各地の森林域における窒素沈着量と降水量との関係

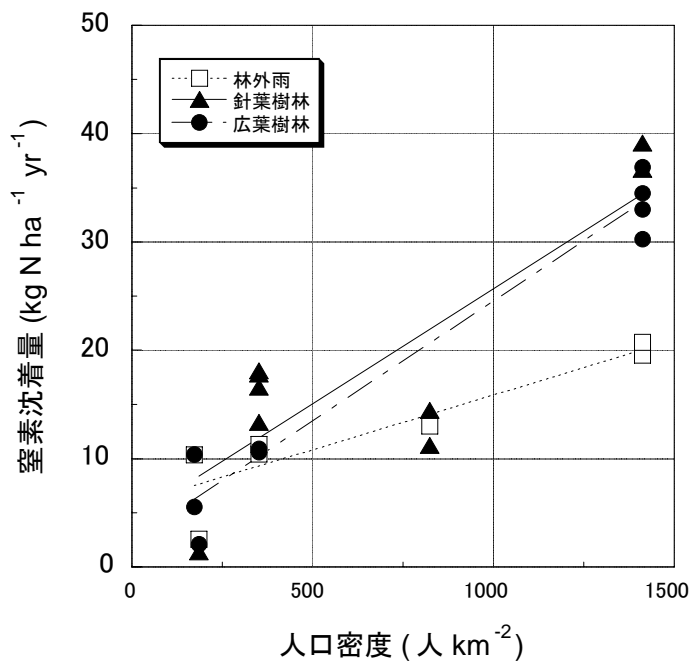


図8 中国各地の森林域における窒素沈着量と人口密度との関係

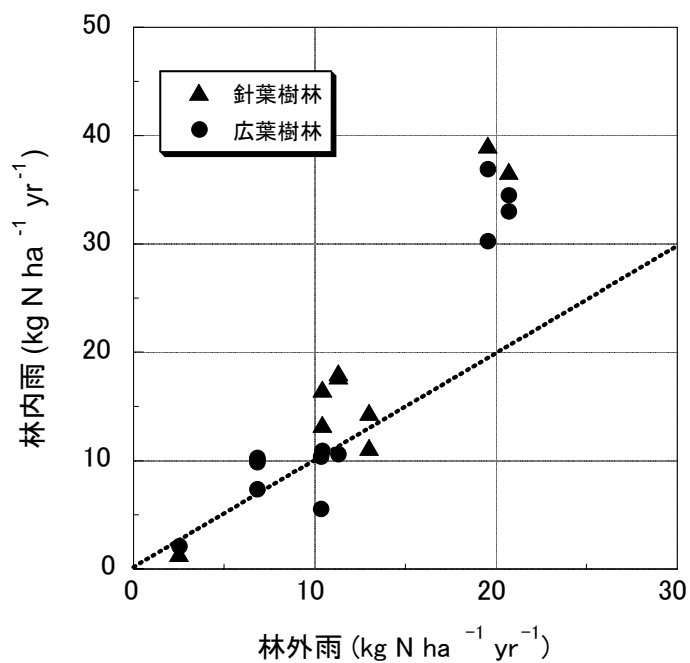


図9 中国各地の森林域における林内雨と林外雨による窒素沈着量  
(図中の点線は窒素沈着量が林内雨＝林外雨を示す)

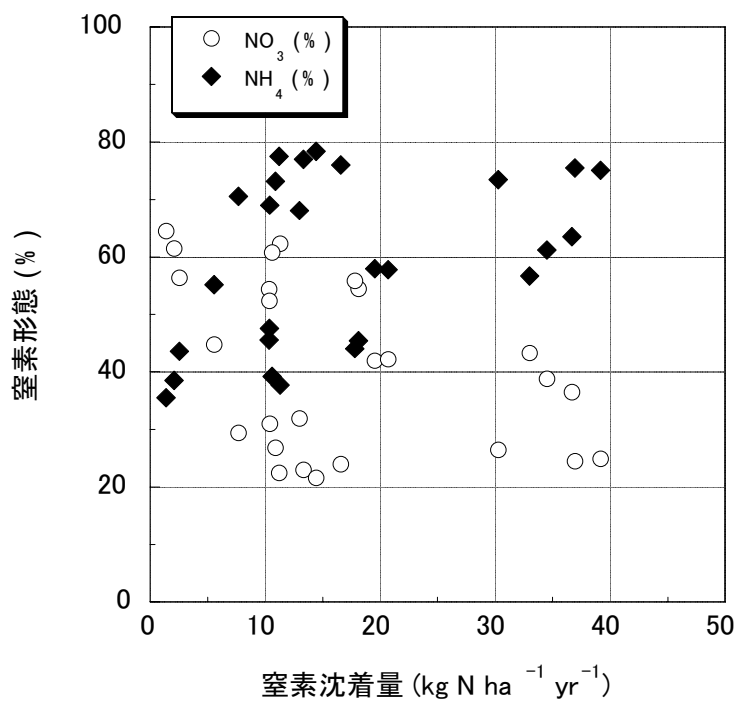


図10 中国各地の森林域における沈着窒素の形態

土壌中に埋設した樹脂バッグにより測定した窒素溶脱量は、窒素沈着量と有意な相関を示し、降水量の多い南部の広州（鼎湖山・黒石頂）では、窒素溶脱量が窒素沈着量を上回っていた（図11）。4. (1)で述べたように、イオン交換樹脂では電荷を帯びていない有機態窒素は吸着されない。また、6ヶ月近く放置したイオン交換樹脂では吸着能が低下し、今回の測定では窒素沈着量を過小評価している可能性がある。一方、樹脂バッグによる測定では、乾季に土壌水の上方方向への流れが生じた場合には溶脱量を過大評価している可能性が考えられる。しかし、後述するように、広州・鼎湖山における樹脂バッグによる測定値（40～50 kgN/ha/9ヶ月）は、同地で、2007年春から秋に行われた水収支と連続観測に基づく窒素流出量の推定値（40.4 kgN/ha/年）ともよく一致している。人間活動の増大に伴う窒素沈着量の増加は、中国の森林域からの窒素流出の増加を引き起こしている可能性が懸念された。

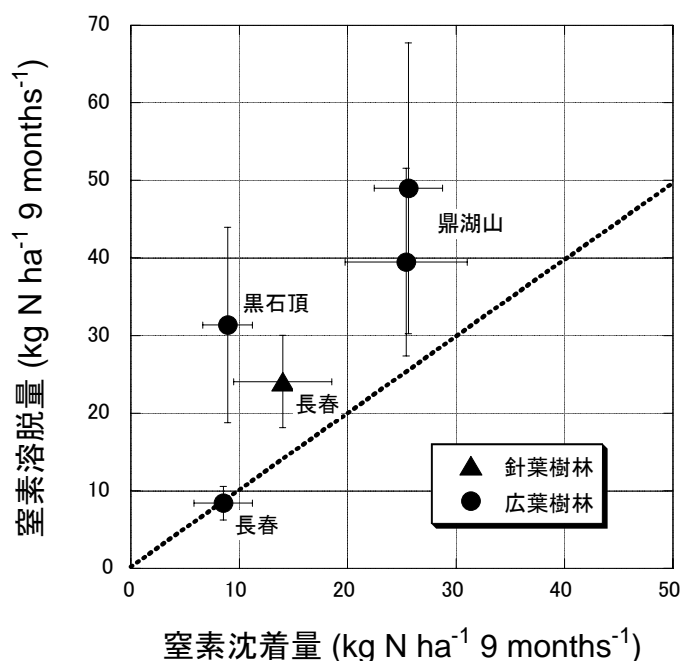


図11 中国長春と広州の森林域における窒素溶脱量と窒素沈着量との関係  
(図中の点線は窒素溶脱量＝窒素沈着量を示す)

### (3) 広州・鼎湖山における物質動態

調査対象流域における日流出高と日降水量の変動を図12に示す。4月から9月までぐらいがほぼ雨季にあたり、調査対象流域のような小河川において定常的に水流が発生するのはこの期間のみである。10月から翌年の3月までは降水量も少なく、調査対象流域に水流が発生するのは散発的になる。調査期間中における最大日降水量は2006年8月4日の121 mmで、当日の日流出高は167 mmに達した。当地域の降水は対流性の雲によってもたらされるために、標高とともに降水量は増加することが考えられる。観測はほぼ2年間の23ヶ月にわたって行われたが、2006年と2007年では雨季の降水量、流出高ともに大きく異なっていることがわかる。両者とも2006年の方が2007年よりも

多くなっている。月流出高と月降水量の変動を図13に示すが、雨季と乾季の対比がより明瞭になる。また、2007年に比べて2006年の雨季における降水量と流出高が大きいこともわかる。2005年12月から2006年11月までの年降水量は2103 mmで年流出高は1395 mmである。また、2006年11月から2007年10月までの年降水量は1457 mmで年流出高は897 mmである。2006年に比べて2007年では、降水量で7割ほど、流出高で6.5割ほどになっている。ソーンズウェイト法によって年間の可能蒸発散量を算出すると1000 mmほどになる。乾季の実蒸発散を考慮しても、年間に800 mm程度は蒸発散によって流域から消失すると考えられる。すると、降水量が若干過小となるが、降水量の観測は標高約50 mの地点で行っているため、前述のように降水量の高度効果を考慮する必要のあることがわかる。

2007年3月から10月までの、調査対象流域における日流出高と河川水の電導度・pHの変動を図14に示す。調査期間で電導度は7.52 mS/mから15.4 mS/mの間で変動しているが、降水によって流出高が増加すると河川水の電導度は急激に増大することがわかる。そして、流出高の減少とともに、河川水の電導度は減衰している。一方、河川水のpHは、調査期間で3.92から4.32まで変動しており、年間を通して極めて酸性な河川水であることが特徴である。降水によって流出高が増加すると、河川水のpHは低下する傾向にある。調査期間中において、河川水の電導度が最も大きく、pHが最も小さくなったのは2007年6月10日の試料である。

河川水の陽イオン濃度変動を図15に示す。河川水中の陽イオンでは $\text{Ca}^{2+}$ が最も高濃度であるが、降水による流出高の増大によって $\text{Ca}^{2+}$ 濃度は急激に増加する。同様に $\text{K}^{+}$ 濃度も流出高の増大時に急激に増加するが、 $\text{Ca}^{2+}$ に比べて $\text{K}^{+}$ の方が増加の割合が大きい。また、 $\text{K}^{+}$ は増加後の減衰も急激であるが、それに比べて $\text{Ca}^{2+}$ では減衰が緩やかである。このことから、 $\text{K}^{+}$ は洪水時の表面流によって多くが供給されており、 $\text{Ca}^{2+}$ は浅い地中流によっても供給されていることが示唆される。 $\text{NH}_4^{+}$ も流出高の増大時に高濃度になる傾向があるが、河川流出が継続した後の洪水では $\text{NH}_4^{+}$ 濃度の増加は観測されず、河川流出の少ない期間が続いた後の洪水では $\text{NH}_4^{+}$ 濃度が増加している。このことから、 $\text{NH}_4^{+}$ は乾性沈着によって流域に供給されていることが示唆される。一方、 $\text{Na}^{+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ とは洪水時に濃度が減少しており、これらのイオンは大気からの供給に比して地中からの供給が優先していることがわかる。

河川水の陰イオン濃度変動を図16に示す。 $\text{Cl}^{-}$ はほとんど濃度に変動が見られない。一方、 $\text{NO}_3^{-}$ と $\text{SO}_4^{2-}$ は、降水に伴う流出高の増大時に濃度が急激に増大する。しかしながら、両者の減衰傾向には差異が認められる。 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度は減衰が比較的急であるが、 $\text{NO}_3^{-}$ 濃度の減衰は緩やかである。 $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の変動傾向は前述の $\text{K}^{+}$ 濃度の変化傾向と類似している。 $\text{NO}_3^{-}$ 濃度の変化傾向は、 $\text{Ca}^{2+}$ 濃度の変化傾向と似ていると言える。河川水中の陰イオンでは $\text{NO}_3^{-}$ が最も高濃度であるが、調査期間中の濃度は11.6 mg/Lから37.8 mg/Lまで変動している。陽イオンと陰イオンのイオン・バランスを検討すると、低水時でそれぞれの濃度が低い時にはほぼバランスしているが、洪水時で高濃度になった際には、陽イオンの不足が顕著になる。これらの場合にはpHが4.0前後までも低下することから、洪水時には今回の調査では測定されていない金属イオンが溶出していることが推察される。

調査対象流域から河川水によって流去する $\text{NO}_3^{-}$ と $\text{SO}_4^{2-}$ のイオン量を次に検討する。河川水の採取期間239日の間に136個の試料を得ていることから、ほぼ1.8日に1回の頻度で採水したことになる。また、ふたつのイオンとも濃度変動が大きいこともあり、旬ごとの平均値によって議論することとする。調査期間の3月上旬から10月下旬までの河川水試料を旬ごとにみると、少ない時で5試料、

多い時で8試料が得られている。それぞれの試料中における各濃度の旬平均を当該旬における濃度とする。また、流出高も各旬ごとに算出することができる。各旬ごとの濃度と流出高によって、流域から流去するそれぞれのイオン量が求まる。それに流域面積を考慮することにより単位面積あたりのイオンの流去量も算出できることになる。以上のようにして算出した $\text{NO}_3^-$ と $\text{SO}_4^{2-}$ の各旬ごとの流域からの流去量を図17に示す。河川水の $\text{NO}_3^-$ 濃度の旬平均値は図16でもわかるように6月中旬に最も大きくなるが、流出高が4月下旬に最も大きくなることから、流域からの $\text{NO}_3^-$ イオンの流去量は4月下旬に最も大きくなっている。河川水の $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度の旬平均値は7月上旬に最大となるが、流域からの $\text{SO}_4^{2-}$ イオンの流去量も4月下旬に最も大きくなる。どちらのイオンとも4月下旬から7月上旬まで多くの流去量を示すが、7月中・下旬には降水がほとんど観測されないこともあり流去量も少なくなっている。さらに8月と9月にもそれぞれのイオンとも多くの流去量があり、乾季に入る10月には流去量も少なくなる。図12からも明らかなように、乾季には流域からの河川水の流出がほとんど観測されないことから、図17に示すような雨季のみの調査結果から年間のイオンの流去量を見積もることが可能と言える。図17に示す調査期間中における流域からの $\text{NO}_3^-$ イオンの流去量から、年間に $17.9 \text{ mg/m}^2$ の $\text{NO}_3^-$ イオンが、N換算で $4.04 \text{ gN/m}^2/\text{y}$ が流去していると見積もられる。 $\text{SO}_4^{2-}$ イオンについては、 $7.58 \text{ mg/m}^2/\text{y}$ が、S換算で $2.53 \text{ gS/m}^2/\text{y}$ が流去していると見積もられる。

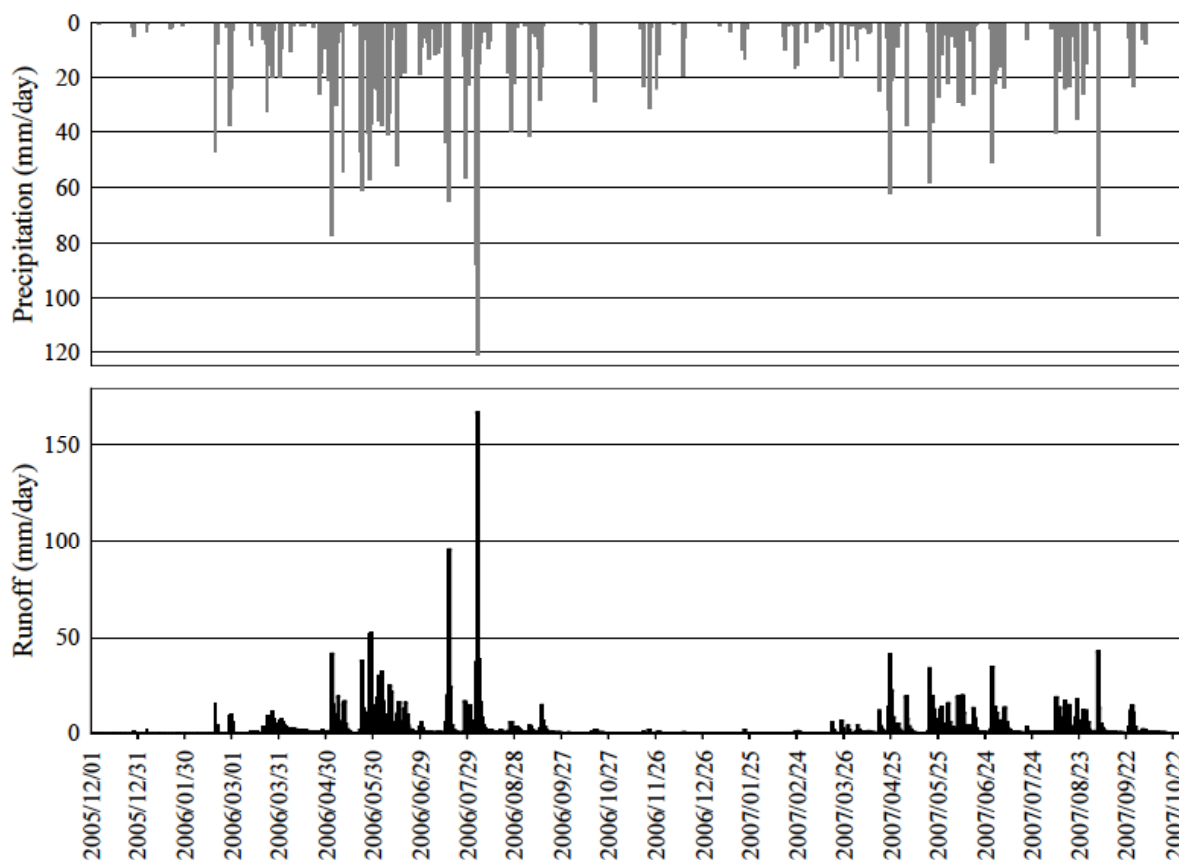


図12 調査対象流域における2005年12月から2007年10月までの日流出高と日降水量の変動

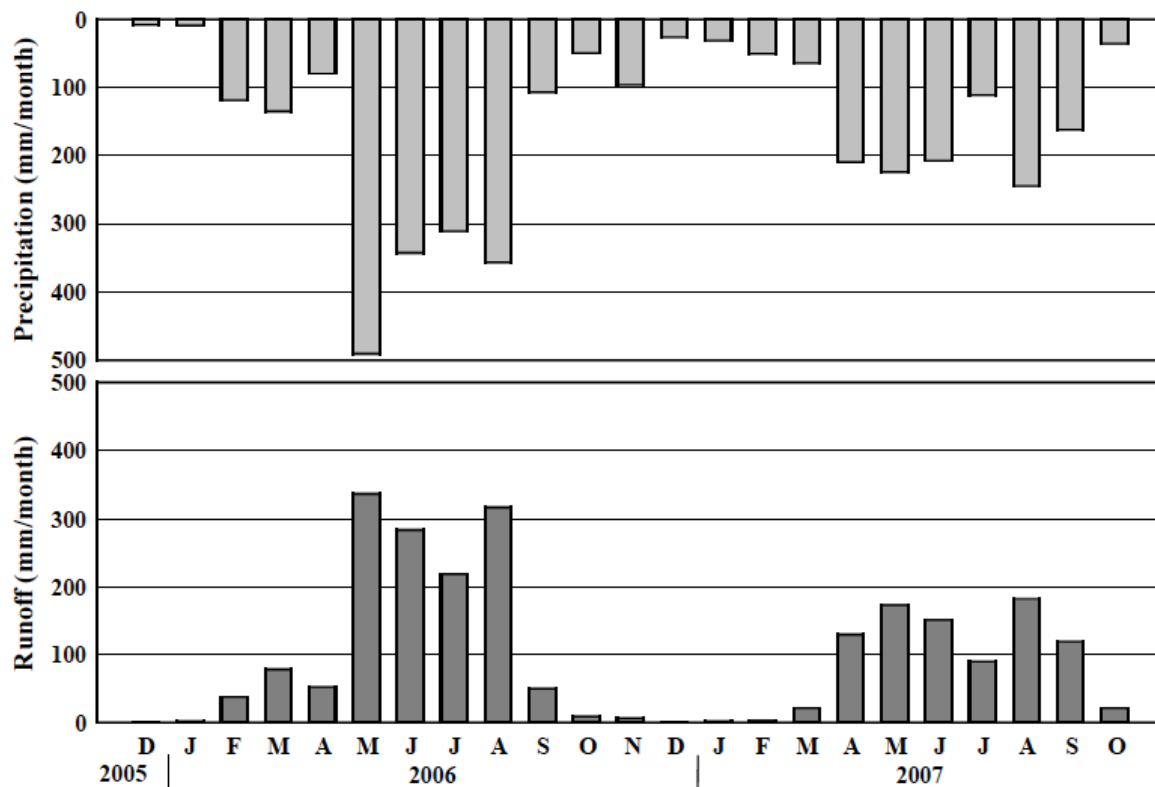


図13 調査対象流域における2005年12月から2007年10月までの月流出高と月降水量の変動

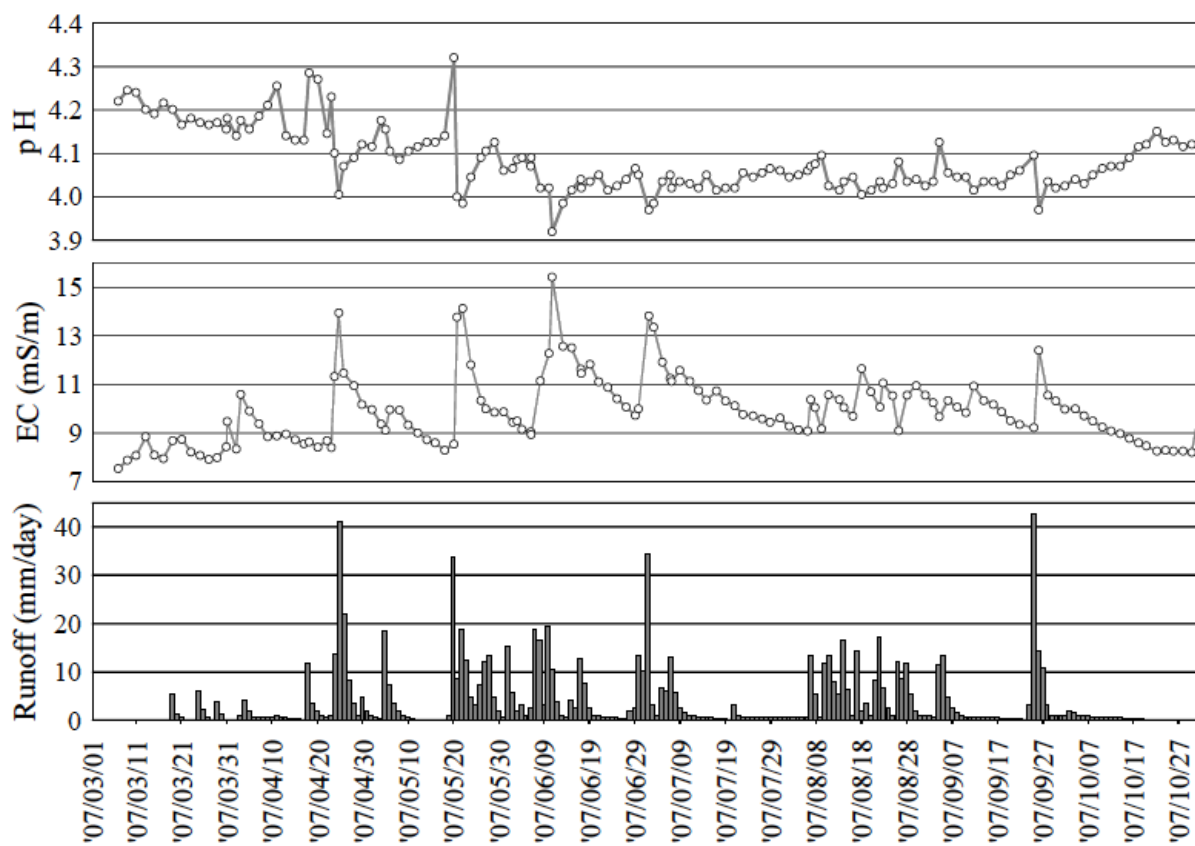


図14 調査対象流域における2007年3月から2007年10月までの流出高と河川水の電導度・pHの変動

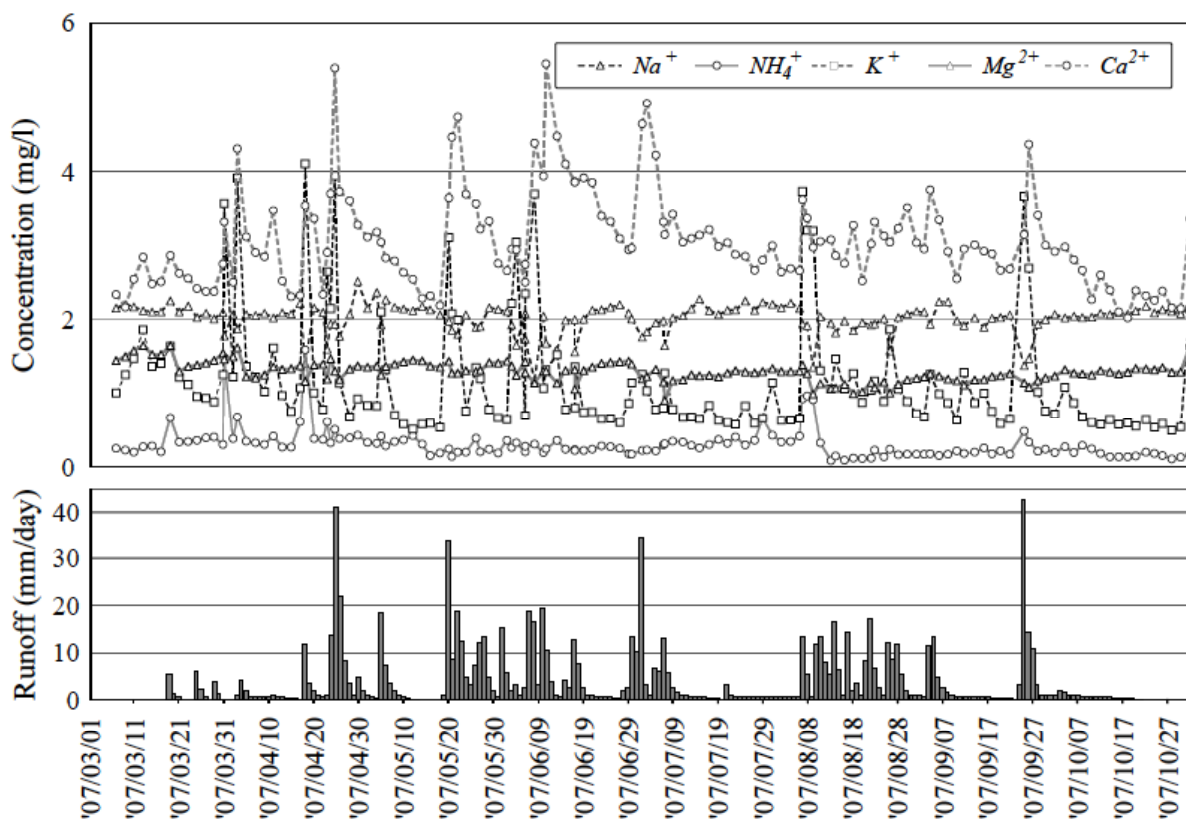


図15 調査対象流域における2007年3月から2007年10月までの流出高と河川水の陽イオン濃度の変動

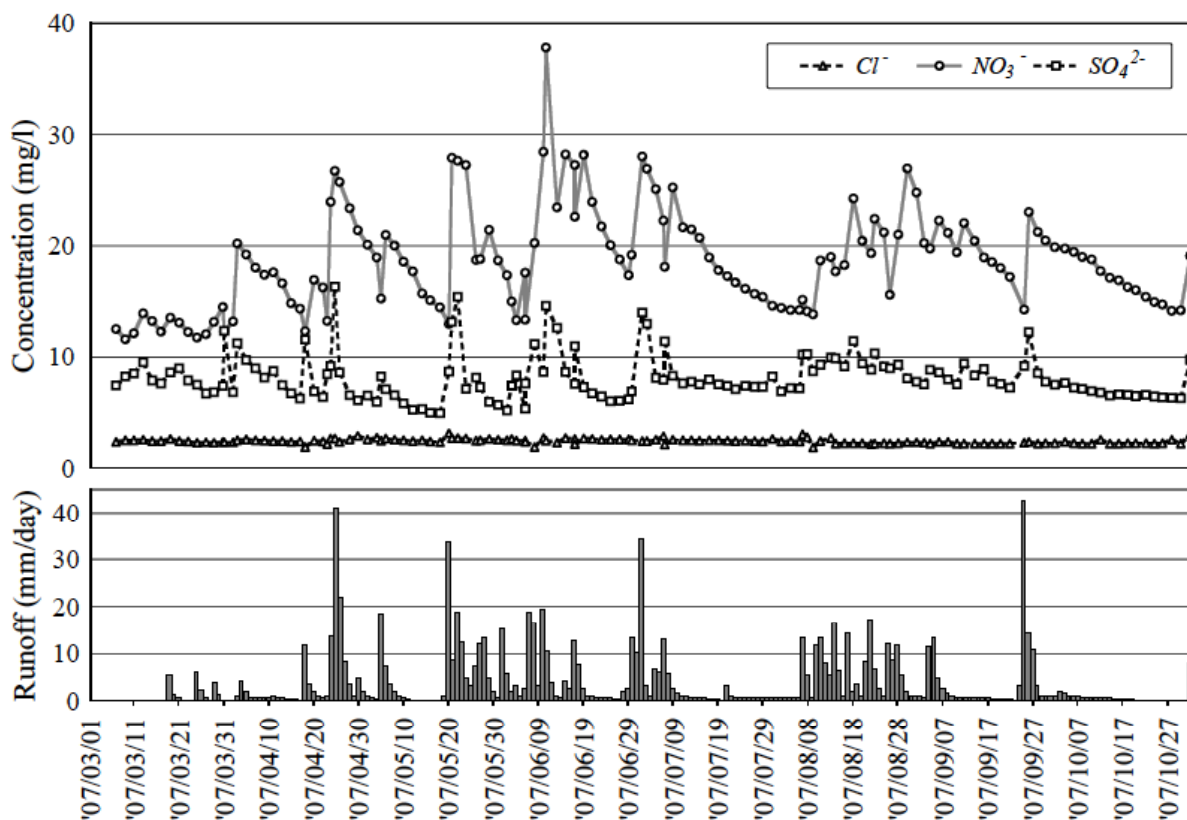


図16 調査対象流域における2007年3月から2007年10月までの流出高と河川水の陰イオン濃度の変動

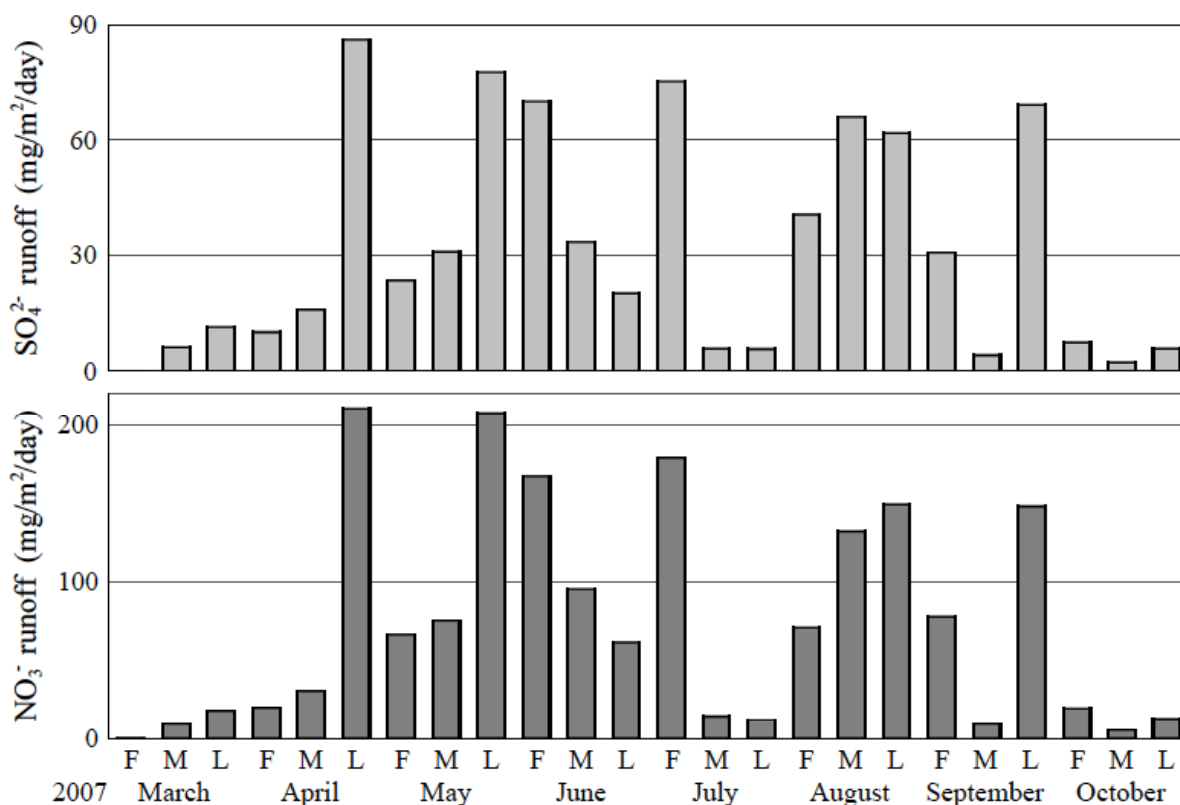


図17 調査期間中の旬ごとにおけるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>とSO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の河川水による流域からの流去量

## 5. 本研究により得られた成果

### (1) 科学的意義

同一の比較可能な方法により、中国各地の森林域における年間の窒素沈着量を計測できた。測定された年間窒素沈着量（硝酸態とアンモニア態窒素）は、林外雨で2.5~20.7 kgN/ha/年、林内雨で1.4~39.2 kgN/ha/年であり、降水量の多い南部で高い傾向を示した。しかし、同様の降水量でも窒素沈着量の変動は大きく、窒素沈着量と人口密度には有意な相関がみられ、人間活動に伴う窒素放出量の増加を反映していた。中国における窒素沈着量は日本（長野）に比べて2~7倍多いこと、大気汚染の深刻な広州では、樹木葉面への乾性沈着が窒素沈着量増大に大きく寄与していることが明らかになった。また、中国の窒素沈着量の大きい地域では、アンモニア態窒素が卓越しており、現在の中国では、肥料や畜産排泄物に由来する窒素が、自動車・工場等からのNO<sub>x</sub>に由来する窒素よりも、相対的な寄与が大きいことがわかった。土壌中に埋設した樹脂バッグにより測定した窒素溶脱量は、窒素沈着量と有意な相関を示し、降水量の多い南部の広州では、窒素溶脱量が窒素沈着量を上回っていた。人間活動の増大に伴う窒素沈着量の増加は、中国の森林域からの窒素流出の増加を引き起こしている可能性が懸念された。

### (2) 地球環境政策への貢献

本研究によりイオン交換樹脂を用いたアンモニア態、硝酸態の窒素の積算負荷量をバルクサンプリングに勝る精度で測定できることが示され、今後東アジア酸性雨モニタリングネットワーク



(EANET) などにおいて簡易なモニタリング手法としての利用が期待される。サブテーマ3での成果と共に樹脂カラムによる測定方法について、2008年7月に開催が予定されているEANET土壌・植生モニタリングタスクフォース会合で紹介される予定である。また本研究を契機に、長春市における窒素沈着量のモニタリングのための利用が試行的に行われている。

## 6. 引用文献

- 1) Aber J.D., Nadelhoffer K.J., Steudler P., and Melillo J.M. (1989) Nitrogen saturation in northern forest ecosystems, *BioScience* **39**, 378-386.
- 2) Shindo J., Okamoto K., and Kawashima H. (2003) A model-based estimation of nitrogen flow in the food production-supply system and its environmental effects in East Asia, *Ecological Modelling* **169**, 197-212.
- 3) Fenn M.E. and Poth M.A. (2004) Monitoring nitrogen deposition in throughfall using ion exchange resin columns: A field test in the San Bernardino Mountains. *J. Environ. Qual.* **33**, 2007-2014.

## 7. 国際共同研究等の状況

本研究課題の調査対象地域は東アジアであり、海外の研究者との連携は必要不可欠である。すでに、研究協力者として列挙してあるが、連携状況を含めて再度記載する。

王 徳宣 (Wang Dexuan) (中国科学院東北地理与農業生態研究所) : 長春でのイオン交換樹脂の設置と保守

莫 江明 (Mo Jiangming)・方 運霆 (Fang Yunting) (中国科学院華南植物研究所) : 広州でのイオン交換樹脂の設置と保守

Feng Zhaozhong (中国科学院生態環境研究センター) : 北京およびHailarでのイオン交換樹脂の設置と保守

Jesada Luangjame (タイ国立森林局) : タイ・サケラートでのイオン交換樹脂の設置と保守

## 8. 研究成果の発表状況

### (1) 誌上発表

〈論文 (査読あり)〉

- 1) 鈴木啓助・倉元隆之・田中基樹・村本美智子・南波雅治: 日本水文科学会誌、36: 105-116 (2006)  
「山岳地の源流域における水循環と物質循環」
- 2) 戸田任重・椎名未季枝・山崎未月・菅野万理子・今井響子: 日本水文科学会誌、36: 117-122 (2006)  
「長野県における渓流水・河川水の窒素濃度に及ぼす人間活動の影響」
- 3) 村本美智子・奈良麻衣子・浅利朋子・鈴木啓助: 日本水文科学会誌、37 (3): 73-83 (2007)  
「乗鞍高原の森林生態系における物質循環－1. 林内降水の化学特性と季節変化－」
- 4) 村本美智子・大浦典子・奈良麻衣子・鈴木啓助: 日本水文科学会誌、37 (3): 85-92 (2007)

「乗鞍高原の森林生態系における物質循環－2. 針葉樹林内と広葉樹林内における水循環と化学物質循環」

5) 田中基樹・鈴木啓助：日本水文科学会誌、37 (3)：115-121 (2007)

「山岳地の渓流水質形成に及ぼす流域平均傾斜の影響」

<その他誌上発表 (査読なし)>

該当なし

(2) 口頭発表 (学会)

1) 村本美智子・奈良麻衣子・鈴木啓助：日本雪氷学会2005年度全国大会 (2005)

「山地森林域における冬季降水中の化学特性」

2) 倉元隆之・鈴木啓助：日本雪氷学会2005年度全国大会 (2005)

「北アルプス源流域における融雪期の河川水質変動」

3) 田中基樹・鈴木啓助：日本雪氷学会2005年度全国大会 (2005)

「中央アルプス山岳地域における冬季降水の化学物質濃度変動」

4) 鈴木啓助・宮島涼子：日本雪氷学会2005年度全国大会 (2005)

「中部山岳地域における積雪全層化学調査」

5) 田中基樹・鈴木啓助：日本水文科学会2005年度学術大会 (2005)

「渓流水質を形成する流域特性要素の複合解析」

6) 倉元隆之・鈴木啓助：日本水文科学会2005年度学術大会 (2005)

「山地森林流域における化学成分濃度の季節変化」

7) 鈴木啓助・倉元隆之・村本美智子・南波雅治：日本水文科学会2005年度シンポジウム (2005. 10)

「山地流域における物質循環」

8) 戸田任重・上村由加里・椎名未季枝・山崎未月・岩岡雄一・今井響子：日本水文科学会学術大会シンポジウム「河川流域の物質循環研究」 (2005)

「人間活動に伴う河川水の窒素汚染」

9) 鈴木啓助・田中基樹・宮島涼子：日本気象学会2005年度秋季大会シンポジウム (2005)

「高山域の積雪から大気環境情報を読み解く」

10) 今井響子・菅野万里子・戸田任重：日本陸水学会甲信越支部会報第31号、p. 11 (2005)

「長野県内渓流水の硝酸態窒素濃度の地域差をもたらす要因」

11) H. Toda, Y. Zhang, K. Suzuki: 環境省地球環境研究総合推進費「酸性物質の負荷が東アジア集水域の生態系に与える影響の総合的評価に関する研究 (C-052)」研究報告会 (2006)

“Measurement of atmospheric nitrogen deposition by using ion exchange resin columns”

12) 今井響子・菅野万里子・戸田任重：日本陸水学会第71回大会 (2006)

「長野県内渓流水中の硝酸態窒素濃度の地域差をもたらす要因の解析」

13) 張 玉欣・戸田任重：日本陸水学会甲信越支部会第32回研究発表会 (2006)

「中華人民共和国の森林地帯における降水に伴う窒素降下量の地理的・季節的变化」

14) 倉元隆之・鈴木啓助：日本地球惑星科学連合2006年大会

「中部山岳地域における融雪水中の化学成分濃度変化」

15) 倉元隆之・村本美智子・鈴木啓助：2006年度日本水文科学会学術大会

- 「乗鞍高原における積雪ライシメーターによる融雪水の化学成分濃度変化」
- 16) 鈴木啓助・倉元隆之・田中基樹：日本地球惑星科学連合2006年大会（2006）  
「山岳地域の源流域における積雪期の物質収支」
- 17) Tanaka Motoki and Keisuke Suzuki: Shinshu University International Symposium, 2006,  
“Effect of topography on chemistry of stream water in a mountainous area”
- 18) Toda, H., Zhang, Y., Imai, K., Mo, J., Fang, Y., Wang, D., and Feng, Z.: 4th  
International Nitrogen Conference (Bahia, Brazil), 2007, “Nitrogen deposition rates  
measured by ion exchange resin columns in forests of China and Japan”
- 19) 張玉欣・戸田任重：日本陸水学会甲信越支部会第33回研究発表会（2007）  
「中国の森林生態系における窒素降下量の測定」

(3) 出願特許

該当なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催（主催のもの）

該当なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。