

### C-3. 酸性降水物の陸水・土壌への影響機構に関する研究

(1) 日本における集水域の酸性化予測と陸水・土壌生態系への影響に関する研究

研究代表者 国立環境研究所 河合 崇欣

環境庁国立環境研究所

地球環境研究グループ	酸性雨チーム	河合 崇欣
	温暖化現象解明チーム	野尻 幸宏
化学環境部	動態化学研究室	田中 敦
水圏環境部	土壌環境研究室	高松 武次郎
	環境管理研究室	海老瀬 潜一
生物圏環境部	陸生生物研究室	岩熊 敏夫・多田 満

(委託先)

信州大学理学部	林 秀剛
名古屋大学水圏科研 農学部	坂本 充・寺井久慈 肘井 直樹
京都大学農学部	渡辺 弘之
茨城大学理学部	田村 浩
島根大学農学部	金井 信博
北海道環境科学研	坂田 康一

平成2年度—平成4年度合計予算額 61,615千円

[要旨] 環境庁の第1次酸性雨調査で、日本でも都市の近辺では欧米の被害顕在化地域と同程度の酸性降水物量が観測された。これを受けて、日本の集水域の緩衝作用の特徴を示すことと、今後の東アジア地域の経済発展に伴う酸性及び酸化性物質の国内への負荷量の増加の可能性などを考慮して、日本の緩衝能最弱点を絞り出すことを目標に、酸性岩を主たる母岩とする7つの変成帯に流域を持つ河川・湖沼の水質をアルカリ度を主たる指標として調査・研究した。

関連して、緩衝能の定量的評価のための手法の開発とともに、地質的な緩衝作用の恩恵を受け難く、影響が出ている可能性があるにもかかわらず、目に触れる機会が非常に少ないため情報が限られている、土壌動物への影響に関する文献調査も行った。以下のような結果が得られた。

1. 国内7つの変成帯に流域を持つ河川・湖沼のアルカリ度は、調査を行ったほとんどのところで $100 \mu eq/l$ 以上あり、流域のアルカリ度生成の機構を考慮すると、現在程度の酸性降水物量では、日本の河川・湖沼水が酸性化する可能性は将来ともほとんど無い。

2. 但し、飛騨変成帯にある山上湖(双六池、鷺羽池)では集水域の緩衝能が殆ど無く、降水の僅かな酸性化も湖水のpH低下につながる事が判った。また、北海道美唄にある東明池に流入する小河川で自動連続測定法を用いて、1992年春に融雪期pH低下を観測した。しかし、その後は同様の観測例はない。薄い表層土壌の下に粘土質不透水層が広がっているため集水域土壌緩衝能が小さくなる例である。実測で酸性化(負のアルカリ度)が把握されたのは、極限定され

たこの2つのみであった。美唄については1度だけで、その後は酸性化することがなかった。

3. 酸性化予測（流域の緩衝能低下監視）の最も基本的な指標項目であるアルカリ度の高精度測定法として、Gran's plot 法を改善し、半自動化した。

4. 酸性降水物の土壌動物への影響に関する文献調査を行い、実態についての報告を整理すると共に、評価の土台となっている調査・測定法の検討を行い、報告書にまとめた。

〔キーワード〕 酸性雨、陸水、緩衝能、変成帯、酸性化予測、アルカリ度

## 1. はじめに

環境庁の第1次酸性雨調査の結果から、日本でも欧米の被害顕在化地域とあまり変わらない酸性降水物量が全国の都市近郊で観測されることが明らかになった。にもかかわらず、同時に行われた湖沼の調査では酸性降水物によると思われる酸性化は確認されなかった。

ここでは、環境庁の調査結果を理解する基礎となる日本の集水域の緩衝作用の特徴を示すことと、今後の東アジア地域の経済発展に伴う酸性及び酸化性物質の国内への負荷量の増加の可能性などを考慮して、日本の最弱点を絞り出すことを目標に、酸性岩を主たる母岩とする7つの変成帯に流域を持つ河川・湖沼でアルカリ度を主たる指標として調査・研究を進めてきた。

また、緩衝能の定量的評価のための手法の開発とともに、地質的な緩衝作用の恩恵を受け難く、影響が出ている可能性があるにもかかわらず、目に触れる機会が非常に少ないため情報が限られている、土壌動物への影響に関する文献調査も行き、用いられている調査法も検討した。

## 2. 集水域の緩衝能と日本の特徴

酸性降水物に対する流域の緩衝能は、地質学、地球化学、気候土壌学、陸水学などの分野の研究の蓄積と欧米における陸水の酸性化に関する研究などの成果により、大きく

①地下に浸透した酸が土壌中の鉱物塩基によって化学的に中和される。（風化の化学的過程）

②窒素および硫黄が生物によって酸化や還元を受けるのに対応して、酸の生成と除去の両面があるが、特に還元や吸収同化（これも還元）による酸の除去。

の2つに支えられていることがよく知られている。中和への寄与では酸負荷量の増大に伴い①の重要性が急速に増す。生物的酸除去には、有機物等のエネルギー源が必要であることと、対応する生物の活性を維持するために負荷が安定していることが重要である。

日本は、環太平洋火山帯に属し、塩基性の強い安山岩系の第4紀火山噴出物に覆われている地域が広く分布するとともに、活発な地殻活動による母岩の破壊などにより厚い浸透層が形成されやすい。気候変化の大きい温帯にあって風化が比較的活発で、河川は急流が多く洪積平野では厚い浸透層を形成している。また、山地は豊かな樹木に覆われ比較的急斜面でも土壌層の保持が行われているため保水性がよく、酸の中和には有利である。地上に降った雨水には地表の腐植土壌層から供給される炭酸ガスが溶け込み、土壌鉱物の溶解を促進するため地下水や河川水は適度のアルカリ度を持ち、水自体にも中和力が付与されている。

他方、豊富な降雨によって表層土壌中の塩基性成分は溶脱が進み、多くの地域で土壌は塩基飽和度20%以下の酸性であると言われている。また、国内には7つの変成帯があり、内3つは高

圧型で4つは低圧型である。変成帯では花崗岩や流紋岩などの酸性岩（低塩基性岩）が母岩の主要部分を占め土壤の塩基性は小さい。特に、低圧型変成岩では結晶分離が不十分でガラス的性格が強いため温度の変化や機械的な破壊に強く、風化に伴う中和反応が起こりにくいと言われている。

これらの条件が合わさって流域の緩衝能が決まるので、酸性降水物に対する抵抗力は流域毎に微妙に異なる。既に報告されている河川・湖沼・地下水中のアルカリ度は、ほとんどの地域で降水の平均酸濃度を上回り、現状では乾性沈着を含めても平均的に見れば酸性降水物による陸水の酸性化の心配は少ないものと思われる。従って、今回の調査・研究の主たる対象をこれまでの調査に掛からなかった可能性のある、最も弱い緩衝能を持つ流域および河川・湖沼の絞り出しと、その集水域の酸性化予測を行うことに置いた。

### 3. 調査・研究と結果

以上のような検討と予備調査の結果から、陸水の酸性化が起こり易い諸条件が重なることによって局所的かつ一時的に河川や湖沼の酸性化が起こる場合が日本でも有るかもしれないと言う視点から次の点に注目して調査・研究を行ってきた。

①変成帯酸性岩地帯に集水域を持つ河川・湖沼及び山上湖など低緩衝能集水域の現状を把握するために国内の7つの変成帯の内、5つの変成帯（三群、領家、飛騨、阿武隈、日高）および島のほとんどが花崗岩でできている屋久島にある河川の水質調査を行った（図1）。現場で水温、pH、電導度を、採水して持ち帰った試料についてアルカリ度その他主要溶存イオンの濃度を測定した。河川水のアルカリ度は、最低でも150  $\mu$  eq/l (pH 3.8の雨水を同体積中和できる)程度であった。浸透層のアルカリ度生成量は一般に浸透水中の酸の濃度が増えると増大するので、これらの結果はいずれも、現在程度の酸性降水物量では近い将来河川が酸性化する心配が無い程度の緩衝能があることを示している。即ち、今回あらためて調査した河川についても

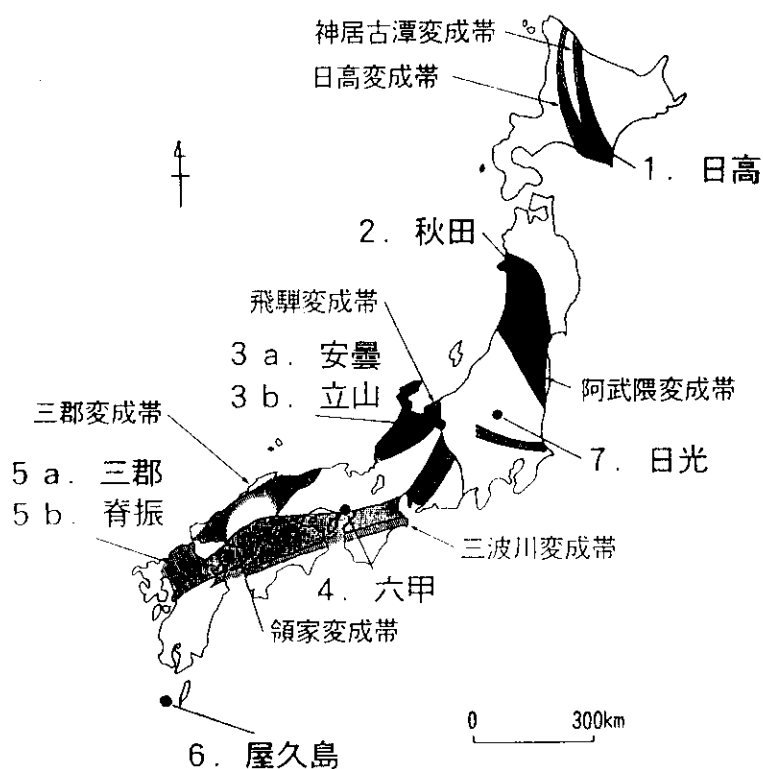


図. 1 日本の広域変成帯と調査地域の位置

高温期に酸性化する可能性は当面無いと言える。多くの調査地点で深層風化の進んだ花崗岩層が観察された。活発な地殻活動や適度の温度変化に加え花崗岩の中では比較的風化を受けやすい斜

表1 変成帯河川の電導度、pH、アルカリ度

採取日	採取地点	電導度 ( $\mu\text{S}/\text{cm}$ )	水温 ( $^{\circ}\text{C}$ )	pH	アルカリ度 ( $\mu\text{eq}/\text{l}$ )
	屋久島河川 (平均値)	27.4	8.6	6.76	38
910315	名水豊心水	28.3	7.7	6.59	10
	北九州三郡変成帯 (平均値)	37.6	10.2	7.4	218
900328	那珂川最上流部細流	26.5	7.3	6.18	128
	領家変成帯 (平均値)	87	10.4	7.8	602
900326	六甲洞川湖出口	48.7	12.0	7.56	161
	飛驒変成帯 (平均値)	31.0	9.4	6.9	185
900829	北ア双六池	7.1	---	5.81	-68 (酸性)
901103	木崎湖右岸	34.0	15.0	9.17	147
	日高変成帯 (平均値)	22.6	1.7	7.6	208
910305	楽古川上楽古橋	21.3	4.1	7.34	148

長石や灰長石の比率が高いなど、深層風化が進みやすいことが厚い浸透層を形成する主な理由として考えられる。花崗岩は平均的塩基性が低く代表的な酸性岩に分類されているが、石英の結晶をつなぐ糊の役割を

果たしている長石は比較的酸と反応して溶けやすいので、水がしみ込む程度に風化が進んでいる場合にはかなり強い緩衝能を示す。

環境庁の第1次酸性雨調査の結果によれば、湖水のアルカリ度が $50\mu\text{eq}/\text{l}$ 以下の湖沼が相当数報告されており、要注意湖沼として幾つかを確認のために調査したが、多くの場合は火山性もしくは腐

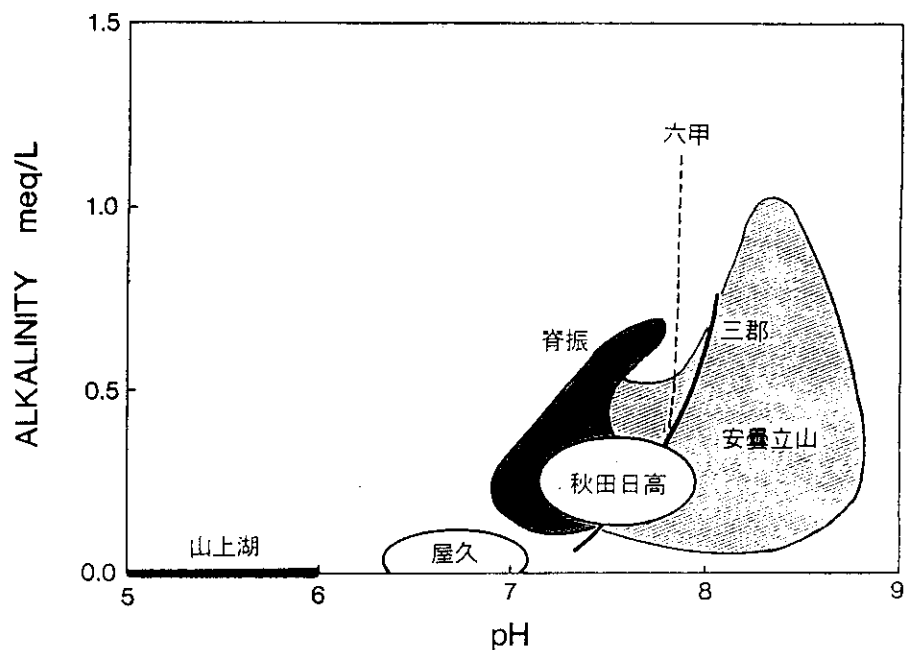


図. 2 各調査地域のアルカリ度/pH分布

植性の酸供給により低アルカリ度湖沼になっているものと思われた。この場合はアルカリ度に比べて全（陽）イオン濃度が高く、集水域の緩衝能は小さくないので酸性降下物による酸性化は余り心配ない。全イオン濃度も低く、集水域のアルカリ度生成が小さいことによると思われる低アルカリ度湖沼も幾つか有るが、集水域の腐植土壌層が薄く、浸透水中の炭酸ガス濃度が上がらないためである可能性もあるので確認の調査が必要である。これらの湖沼の調査結果も併せて日本の低塩基性母岩を持つ流域の現状と特徴を検討した。（表1）

図. 2 に調査結果をまとめて地域ごとのアルカリ度/pH分布図にして示した。アルカリ度が正でpHが低いと言うことは、中和されずに残っている遊離の炭酸の比率が高いことを示すのでアルカリ度生成速度（緩衝作用）が小さいことを示唆する。従って、この図からそれぞれの集水域の概ねの抵抗力が推定できる。本研究における調査地点では、北アルプス山上湖（双六池、鷺羽池）が最も弱く、次いで屋久島河川上流域が弱い。しかし、飛騨変性帯の中にあっても中・下流域では十分な抵抗力がある事が示唆されている。

## ②高頻度（連続）測定を用いる、低緩衝能集水域におけるpH降下の検出

平水時のアルカリ度はさほど低くない場合でも、酸性雪が融け始めるときに雪に含まれる酸がまとまって先に溶け出す（snowmelt acidic shock）ことにより、平均的酸濃度よりはるかに高い濃度の酸性水が多量に流れ出すことがあり、ヨーロッパで一時的な河川酸性化による被害を発見するきっかけとなった。これは純物理化学的現象であるため、日本でも酸を含んだ雪がつもる地域では程度の差はあれ起こっていると考えられる。

しかし、融雪時期は年によって違うことと、積雪量や気温の上昇速度なども地域によって差があることなどから、一般に行われている定期的な水質調査で融雪初期のpH降下を確実に把握するのは困難である。融雪直前から最低2カ月以上の期間高頻度（1-3日に1度）の試料採取が必要である。湖面（湖岸）の水で採水もできない場合が少なくない。また、この時期は雪崩や異常出水など調査に伴う危険も大きい。そこで、自動採水装置を作成し、水温、電導度、pHの自動測定記録計と組み合わせて現場に設置し、融雪期pH降下の実測を試みた。

典型例として奥日光の切込刈込湖（高温期を含む通年。栃木県公害研究所と共同）および中禅寺湖に注ぐ外山沢の中流域（高温期のみ）、粘土層によって表層土壌の浸透層が薄い流域の例として北海道美唄地区の東明池流入河川（水温・pH・電導度のみ自動連続測定、北海道公害防止研究所＝現北海道環境科学研究センター＝と共同）、風化が初期段階で集水域の保水性が低い流域の例として北アルプス山上湖（双六池、鷺羽池。高温期のみ。水温・pH・電導度のみ自動連続測定、信州大学と共同）を選んだ。河川のpHが低下傾向を示していると報告された信濃川源流域犀川上流部にある木崎湖（信州大学と共同）でも調査を行った。奥日光では同時に降雨量、酸負荷量を含む気象観測もおこなった。北アルプス双六池の周りでも積雪および雨水の採取を行った。

各地で測定された結果から、アルカリ度、各イオンの濃度の年変動パターンは場所毎に少しずつ異なり、集水域でのアルカリ度生成やイオン交換反応などによる緩衝作用が異なっていることが示唆された。これらのデータは集水域の緩衝能を推定する上で重要な役割を果たすものと思われるが、浸透層の緩衝能まで推定することができるような解析法はまだ無い。

高温期降雨時の酸負荷変動を反映して湖水のpH低下が起こっていることを示唆する測定項目

の経時変化が検出されたのは北アルプス山上湖だけであった。これらの湖の集水域は非常に狭く、母岩は花崗岩で風化も浅く、表層（土壌）の保水性も小さい。そのため、酸性降水は十分中和されないまま湖に達するという、日本では非常に珍しい例である。周辺の雪の中の酸含有量は、富山地区や松本盆地の雪に比べて遙かに低い。1991年4月に双六池畔で層別採取した雪ではアルカリ度が正で、酸性雪では無いことが示された。双六池、鷲羽池ともに夏期の湖水のアルカリ度は殆どゼロであることが明らかになったが、酸負荷量が少なければ、集水域の緩衝能が小さくても酸性化は起こらない。湖が浅く冬は凍ってしまうため年間を通しての実測値は得られていない。

屋久島の頂上付近にある花之江河湿原も環境が似ているが、流域面積もやや大きく、風化の進行も見られ、豊富な樹木に保持された形のやや厚い土壌浸透層が見られたので、双六池・鷲羽池ほどは弱くはないものと思われた。

北海道美唄地区の小河川で1990年の春先に融雪期pH低下と思われるpHの経時変化が観測された（図. 3）。しかし、1991、92年は把握できなかった。近くの桂沢ダムでは融雪期初期にアルカリ度が平水時の4分の1にまで下がった観測例があった。雪の中の酸含有量がもう少し増えれば一時的にしる酸性化する可能性が示唆された。奥日光切込湖、長野県木崎湖では融雪期pH低下が検出されなかった。

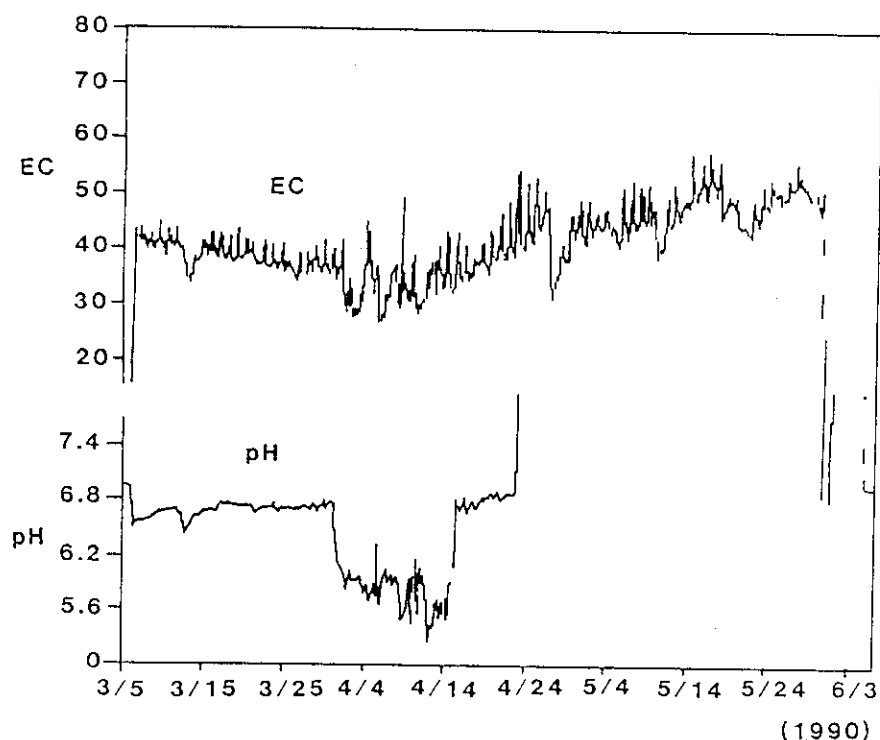


図. 3 北海道美唄地区で観測されたpH降下

奥日光の外山沢では24時間降雨量が100mmを越すと、河川水の増加とともにアルカリ度などが最大4倍にも増加する現象が発見された。この現象は短期間に繰り返される大雨でも減少することなく再現され蓄積物の一時的な流出とは異なるようである。どの様な機構で起こる現象なのか大変興味深い、酸性化の心配とは逆の変化なので掘り下げなかった。

③集水域及び湖内におけるアルカリ度生成と関連する窒素・イオウ循環、塩基性成分の移動等に関する調査および調査・測定法の開発

窒素、イオウ化合物の生物学的循環は、酸や塩基の生成・消滅に重要な役割を果たしている。特

に植物プランクトンによる硝酸イオンの吸収・同化と脱窒は重要である。硫酸イオンは硫酸還元菌によってイオウになる。これらの反応は関与する生物の活性が必要なため、供給が安定している場合により有効であると思われる。実際にどの程度の速度で還元が進んでいるのかを、奥日光の切込湖刈込湖湖心において、成層期の底層水中でアルカリ度増加速度と共に測定した。アルカリ度の増大が酸素消費、硝酸・硫酸還元の進行とよく対応していることが分かった（図. 4）。

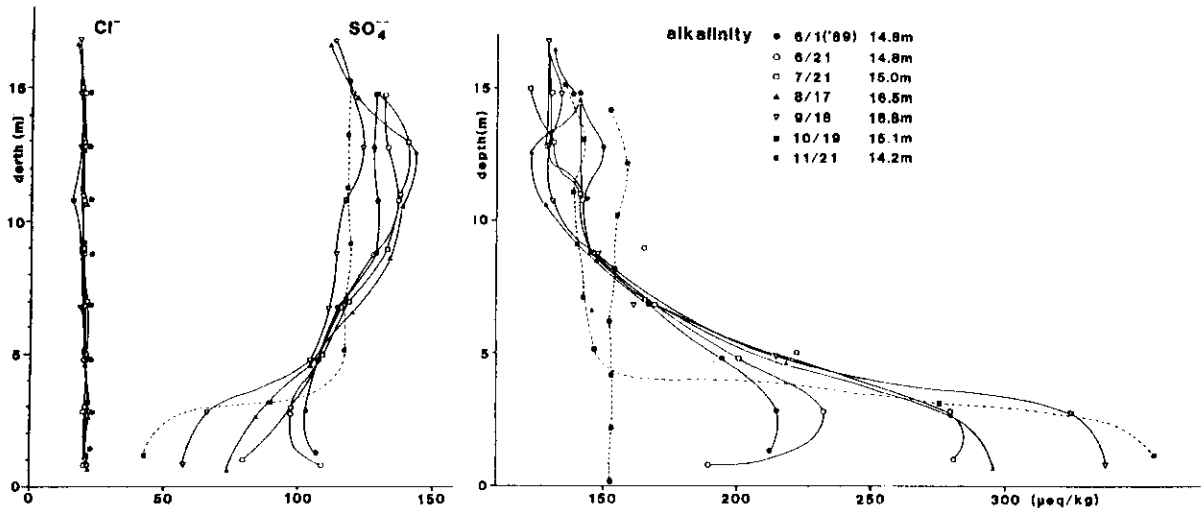


図. 4 成層期底層水中の硫酸イオンの減少とアルカリ度の増大の対応

化学的酸緩衝能が低い北信州の木崎湖および富栄養湖の諏訪湖における微生物学的酸緩衝能を検討するために、有機酸分析技術を合わせて、これらの湖沼における脱窒活性の周年変化、およびその支配要因として硝酸と有機酸の果す役割を調べた。

富栄養湖の諏訪湖において、1991年5月～10月の期間、10～20日間隔で底泥の脱窒活性を測定した結果、硝酸依存性を示す半飽和定数 ( $K_s$ ) は20～40  $\mu\text{M}$  の間で変動し、夏期に活性が低下するのは水中からの硝酸の供給レベルが低下するためであることが明らかとなった。一方中栄養湖の木崎湖では、湖心底泥の脱窒活性は夏期に高くなり秋から冬に向けて低下し、深底部より沿岸部の方が高い傾向を示した。硝酸イオン濃度に対する  $K_s$  値は沿岸部で深底部の3倍程度となっていて、硝酸供給過程に対応した脱窒菌群の分布が示唆された。当初予想した底泥間隙水中の有機酸分布と脱窒活性との間には直接的な対応関係が認められなかった。しかし、脱窒活性は、深底部底泥では表層0～3cmに、沿岸部では3～6cmに極大層があり、深底部で  $\text{S}^{2-}$  イオンの蓄積する層でも脱窒活性が認められ、脱窒菌と硫酸還元菌との共存関係が示唆された。

#### ④酸性降下物が土壤動物に与える影響に関する文献調査

日本では土壤および地下浸透層の緩衝能は比較的大きく、酸性降下物によって河川・湖沼が酸性化する可能性は少ないことが調査結果から推定されたが、浸透層の緩衝作用の保護を受け難い土壤表層に棲息する生物相への影響については、変化が起こっても目につき難いこともあって、まだ十分な情報や一般的評価が無い。そこで、原生動物から哺乳類までを広く含む土壤動物への酸性降下物の影響、土壤動物の働き・役割、そして土壤動物の変化・減少が生態系・農林業生産

に及ぼす影響について、樹上と地中・地表を往復する樹上節足動物をも考慮にいて、土壤生態系の被害の状況に関する文献調査と用いられている調査・実験法の検討を行った。200以上の文献と最新の主要レビューがリストされた（京都大学、茨城大学、名古屋大学、島根大学と共同）。

影響としては、まず①土壤動物がそれらと接触、あるいは体内に取り込んでの死亡など直接的影響と、②土壤pHの低下、それに伴う微生物相の変化、あるいは樹木の枯死など、広く環境・生態系の変化による間接的な影響に分けられる。樹木の枯死に伴う林床への日光の侵入、地表温度格差の増大、土壤の乾燥、あるいは地表植生の繁茂と言ったような環境の変化によって引き起こされる影響を、調査に基づいて酸性降下物と結び付けることは容易でない。直接的影響では、柔らかいからだできている線虫、ヒメミミズ、ミミズが感受性が高く、また一般に若令のものは影響を受け易い。トビムシ、カマアシムシなどでは変化・影響がでるのには、pH 3.3-4.0あたりが重要らしく、その変化影響は、土壤表層2-3cmまでしか現れないと言う。

土壤動物は、土壤動物相互、さらには地上・樹上の動物と密接な関連を持ち、同時にその植物、菌根、放線菌、糸状菌類、バクテリアとも深く結びついている。従って、土壤動物への影響調査には土壤化学者、土壤微生物学者、森林研究者が一体となった共同研究が要求される。すでにかかなりの研究蓄積をもっているヨーロッパでの研究をもとに、土壤生物全体に対する酸性降下物の影響について述べたMyrold, D. D.<sup>1)</sup>のレビューは大変参考になる。

#### 4. 考察とまとめ

地上に負荷された酸性降下物は、浸透水に含まれて地表から土壤層・地下浸透層を経て再び地表にしみ出したり湧出地下水となって河川・湖沼に至る。この間に、主に塩基性鉱物の溶解やイオン交換を伴う化学的中和と生物学的酸分解や吸収による酸性物質の除去によって酸性が弱められる。集水域におけるこの様な緩衝作用の強弱および酸性降下物の負荷量と負荷のパターンの相互作用によって地表から河川・湖沼までの領域がどのような酸性条件に曝されるかが決まる。

日本の河川・湖沼の集水域は、変性帯に広がる酸性岩地域に流域を持つ場合でも比較的厚く保水性の良い浸透層と保水性によって特徴づけられる、大きな緩衝能を持つことが明らかになった。

例外的に、北海道美瑛地区の東明池集水域や北アルプス山上湖の双六池、鷲羽池では一時的にせよ酸性降下物による河川・湖沼水の酸性化が起こっていると考えられる。即ち、本研究の調査で日本でも場所によっては一時的にしろ酸性降下物による河川や湖沼の酸性化が起こっていると言うことが見出された。しかし、場所（数）も面積も条件も極めて限定されており、日本の湖沼や河川流域について言えば、実質的に今程度の酸性降下物負荷量では将来ともに河川・湖沼水が酸性化する可能性は小さい。

従って、今後、日本の陸水域に関しては酸の年間負荷量、融雪期pH低下に関連するような流出特性などを考慮して、集水域の緩衝能が最も弱い幾つかの河川・湖沼で酸性化監視のモニタリング地点を選び、自動連続測定法をベースにした監視測定システムを整えていけば、大きな被害を未然に防ぐことは十分可能であろう。

しかし、そのためには将来酸負荷量の大幅な増加を引き起こさないことが重要であり、日本への酸性降下物負荷源となりそうな場所を重点として、発生源の抑制を考えて行く必要がある。



## 引用文献

1) Myrold, D.D. (1990), Effects of acidic deposition on soil organisms, Lucier, A.A. & S.G. Haines (eds.): Mechanisms of forest response to acidic deposition. 163-187, Springer-Verlag, N.Y.

## 研究発表の状況

発表者名	発表課題	発表誌名等
河合崇欣	酸性降下物による陸水生態系への影響について	<u>環境と測定技術</u> 20(1)、56-66、 (1993)
寺井久慈 ・楊 宗興	水圏からの窒素の放出／微生物の生態	学会出版センター(1993)
渡辺弘之	酸性降下物が土壌動物に与える影響	<u>環境と測定技術</u> 19(3)、52-58、 (1992)
寺井久慈	木崎湖底泥における有機酸の分布と脱窒活性	日本陸水学会第56回大会 (1991)
村上哲生 ・坂本 充	77サンプルによる湖沼と溜池の珪藻群集の遷移 過程の解析	日本陸水学会第56回大会 (1991)