

られる S が溪流に流出する一方で、現在も、生態系の許容量を超える N 沈着により、集水域での酸性化が継続していると考えられた。

(2) 広域的な集水域酸性化の可能性の検討

① 全国湿性沈着量の分布による伊自良湖集水域の位置づけとホットスポットの抽出

近年の全国の調査地点の中で、伊自良湖の nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、 NH_4^+ 及び H^+ の湿性沈着量は全 120 地点分布の中で上位 10% 以内に位置づけられ、特に H^+ は最大沈着量を示した。伊自良湖における酸性成分の大きな沈着量は、降水量が全国分布の上位 15% と多いことに加え、濃度も比較的高いことによる。 nss-SO_4^{2-} 、 NO_3^- 、及び H^+ 濃度は全国分布の中でそれぞれ、上位 27%、19% 及び 2% の位置にあった (図 3-3-3-6)。

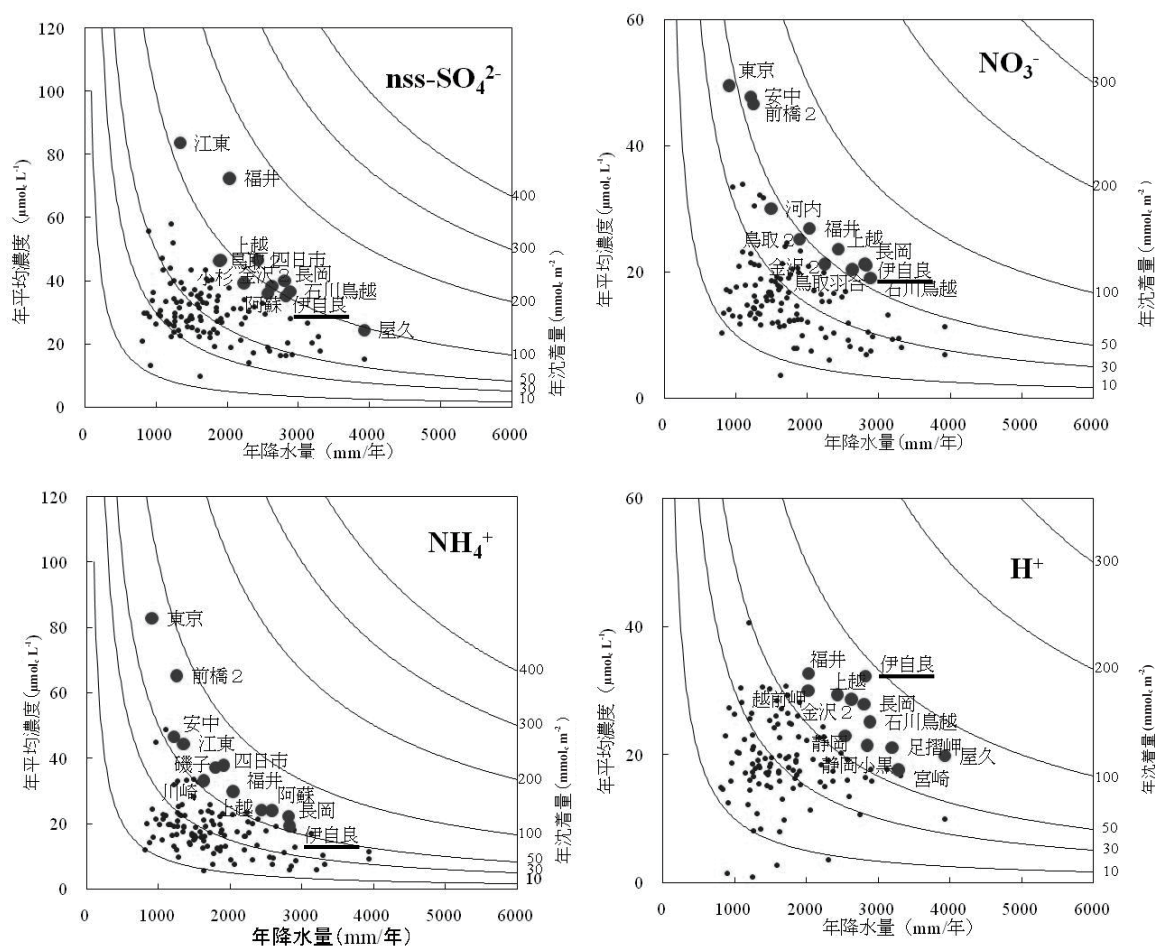


図 3-3-3-6 全環研 (1999-2004 年度 (平成 11-16 年度)) 及び環境省 (1998-2004 年度 (10-16 年度)) 調査地点の nss-SO_4^{2-} 、N (NO_3^- 、 NH_4^+)、 H^+ の降水量・濃度・湿性沈着量プロット

上記の 3.3.1 では、環境省による調査（約 50 地点）においてこれまで記録されたデータについて評価されたが、本調査では、全環研調査地点も入れた全 120 地点の過去約 5 年間の平均値について評価を行った。いずれの評価においても、伊自良湖の沈着量が全国最大レベルであることが示された。

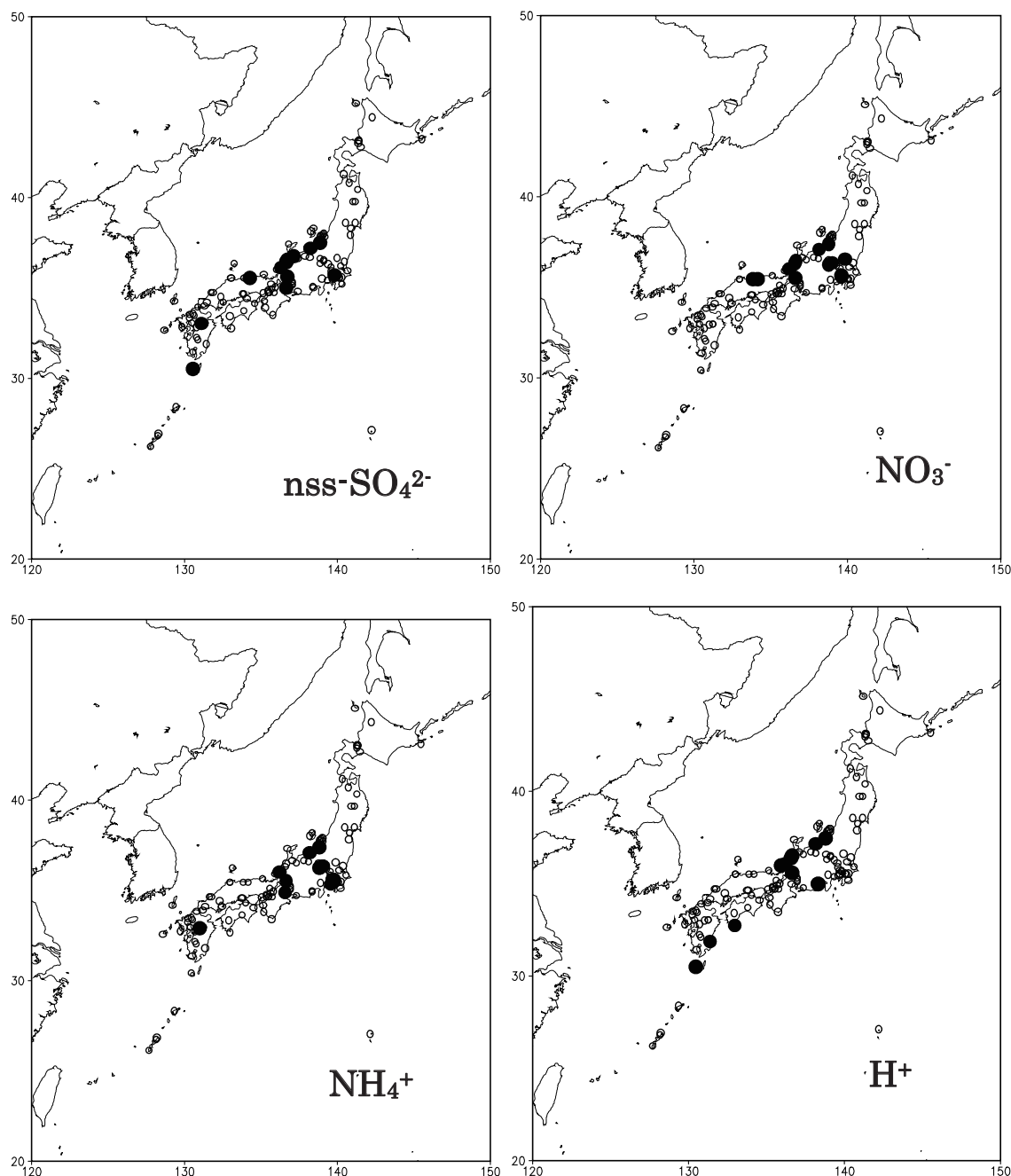


図 3-3-3-7 S、N、 H^+ の湿性沈着量の地理的分布（図 3-3-3-6 を基に作成）

黒丸は沈着量が全体の上位 10%以内にある地点を示す。

一方で、本解析により、伊自良湖に匹敵するレベルで沈着量が多い地域も抽出された（図 3-3-3-7）。 $nss-SO_4^{2-}$ 沈着量は、伊自良湖、四日市を含む中京地域の他に、本州中部の日本海側（福井、長岡、上越、石川鳥越など）、山陰（鳥取）及び九州（阿蘇、屋久）等で多かつ

た。NO₃⁻沈着量は、伊自良湖以外は、本州中部の日本海側、山陰（鳥取の2地点）、東京及び北関東（安中、前橋）等で多かった。NH₄⁺沈着量は、伊自良湖、四日市を含む中京地域の他に、本州中部の日本海側、東京周辺（東京、川崎、磯子）、北関東（前橋、安中）等で多かった。H⁺沈着量は、伊自良湖以外では、本州中部の日本海側、東海（静岡の2地点）及び九州（宮崎、屋久）等で多かった。広域的な集水域酸性化のリスク評価のためには、今後、これら沈着量の多い地域における、地質、土壌、植生、地形等の生態系の諸条件について、検討する必要があると考えられた。

上記の評価は、近年の沈着量を基にしたものであるが、酸性沈着の生態系への影響を考える上では、その積算量を考慮する必要もある。特に S の沈着量については、高度成長期の主要な工業地帯周辺においては、現在より著しく多かったと考えられることから、過去からの蓄積を考慮した評価も検討する必要があると考えられる。

②中部日本における公共用水域調査対象地点における酸性化傾向の検討

公共用水域調査が行われている、新潟県内 140 地点及び岐阜県内 120 地点について、排水等の人為的な影響が少ない地点として、BOD が 1.0 mg L⁻¹ 以下の河川をスクリーニングした結果、新潟県では 34 地点、岐阜県では 40 地点が抽出された（図 3-3-3-8）。

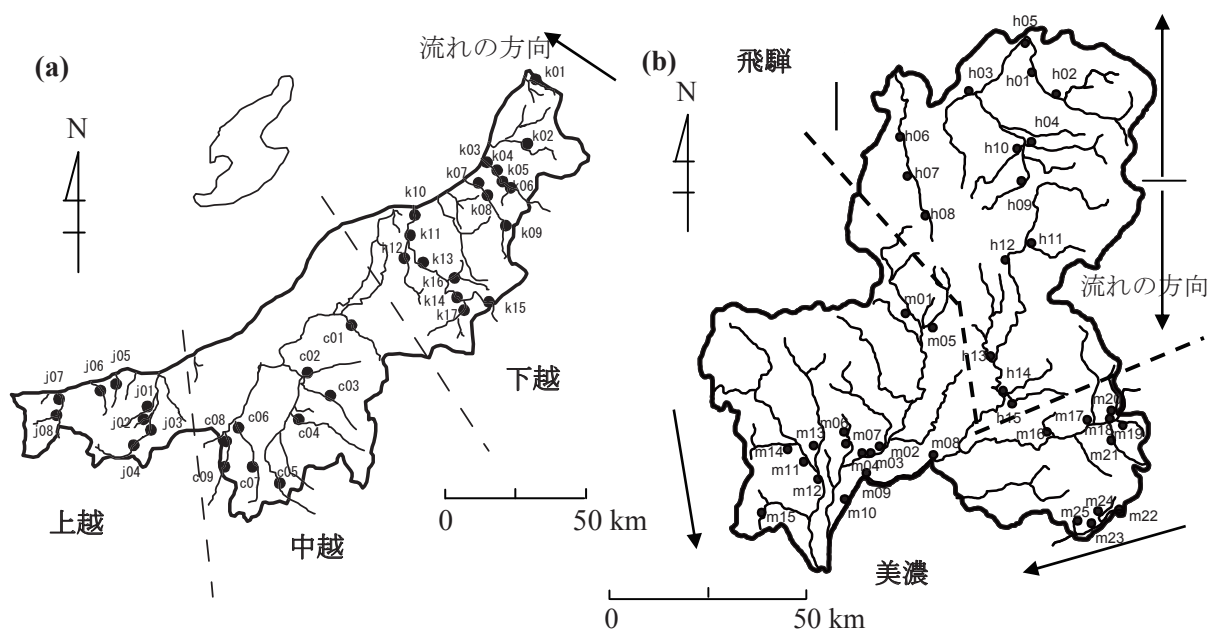


図 3-3-3-8 新潟県(a)及び岐阜県(b)における公共用水域 pH データの時系列的傾向の解析対象地点

人為的影響が少ないと考えられる BOD が 1.0 mg L⁻¹ 以下の地点（新潟県 34 地点、岐阜県 40 地点）

図中の矢印は、河川の流れる方向を示す。

これらの地点の 1980 年代半ばから 2003 年（平成 15 年）までの pH データの時系列的傾向を Seasonal Mann-Kendall 法を用いて解析を行った。また、河川 pH の低下傾向がみられた地点については現地採水を実施し、イオン濃度やアルカリ度等について分析を行うとともに

に、水質に大きく影響すると考えられる土地利用割合及びその変化について文献調査を行った。さらに温泉水の流入について、その疑いがある地点周辺について河川流路に沿った採水を実施し、影響の有無について検討を行った。

時系列的傾向の解析の結果、新潟県 11 地点、岐阜県 13 地点で河川 pH の長期的酸性化傾向が確認された（表 3-3-3-2）。新潟県では、pH の低下傾向を示した地点はすべて北部の下越地方に位置しており明瞭な地域性が確認された。岐阜県では地域性は明瞭ではなく、各地域の上流域で低下傾向がみられる地点があった。

表 3-3-3-2 新潟県(a)及び岐阜県(b)の公共用水域調査地点における pH 長期トレンドの検定結果

(a)						(b)						
地域	水系	河川	地点名	n	Zscore	地域	水系	河川	地点名	n	Zscore	
下越	大川水系	小俣川	k01	213	-2.45*	飛騨	高原水系	高原川	h01	191	-3.00**	
			k02	213	-3.06**				h02	191	-2.99**	
		三面川水系	三面川	k03	211		-4.92***	宮川水系	小鳥川	h03	96	3.24**
	k04			215	-4.71***		h04			191	-3.08**	
	荒川水系	荒川	k05	213	-7.34***		宮川	h05	191	-1.70		
			k06	215	-8.22***			庄川水系	庄川	h06	96	-2.87**
			胎内川水系	胎内川	k07					205	-1.25	h07
					k08		211	-2.27*	h08	64	-1.61	
					k09		215	-1.42	宮川水系	宮川	h09	191
	阿賀野川水系	阿賀野川	k10	213	-0.28		木曾川水系	小坂川	h11	96	-0.78	
			k11	213	-0.95				飛騨川	h12	192	-1.68
			k12	214	-1.12		馬瀬川	h13		186	0.01	
			k13	215	0.24			白川		h14	96	5.76***
			美濃(西部)	長良川水系	長良川		k14	213	-3.53***	黒川	h15	96
	k15	213					-3.58***	m01	192	3.42***		
	新谷川	k16					214	-3.31***	m02	192	-5.78***	
		k17					212	-3.78***	m03	192	-3.95***	
中越	信濃川水系	五十嵐川	c01	214	-1.29	m04	192	-3.77***				
			c02	213	0.13	吉田川	m05	192	6.00***			
			c03	213	-0.64		伊自良川	m06	192	8.53***		
			c04	196	1.03	m07		192	0.489			
			c05	212	0.11	木曾川水系	木曾川	m08	192	-6.28***		
			c06	215	2.65**			m09	192	-0.79		
			c07	212	0.66			m10	192	-1.48		
			中津川	中津川	c08	214	7.50***	揖斐川水系	揖斐川	m11	192	-5.03***
					c09	209	3.54***			m12	192	-2.63**
	上越	関川水系	矢代皮	j01	212	0.58	根尾川	根尾川	m13	192	-2.62**	
j02				215	2.90**	粕川			粕川	m14	188	1.27
関川				関川	j03		215	1.49		牧田川	牧田川	m15
					j04	214	5.50***	美濃(東部)	木曾川水系			中野方川
能生川水系		能生川	j05	215	1.08	付知川	m17			96	1.35	
			早川水系	早川	j06	213	-0.95	川上川	m18	96	1.39	
					姫川水系	姫川	j07	212	0.65	落合川	m19	96
阿妻川		阿妻川	j08	214			0.38	木曾川	m20	192	0.89	
			矢作川水系	矢作川	m21	96	2.98**					
上村川		m22	191	3.33***								
阿妻川		m23	192	-4.28***								
阿妻川		m24	180	2.86**								
阿妻川		m25	96	3.07**								

*=p<0.05 **=p<0.01 ***=p<0.001

*=p<0.05 **=p<0.01 ***=p<0.001

注. n は解析対象となったデータ数。Z-score は傾向の向きと大きさを示し、正の場合は上昇傾向、負の場合は低下傾向を示し、絶対値が大きいほどその傾向が明確であることを示す。有意に低下した地点の Z-score を網掛けで表示した。表(b)における飛騨地域の宮川水系の h09 や h10 の上流域には流紋岩が主に分布しており、地質的には木曾川水系の h11~h15 に近い。

これら pH 低下傾向を示した地点での現地採水の結果、新潟県下の解析対象地点の河川水質は、上流域の基岩地質が安山岩や石灰岩が支配的である上越・中越地方でアルカリ度及び EC が高く酸感受性が比較的小さいのに対し、上流域の大部分が花崗岩地質である下越地方では、多くの地点でアルカリ度は $0.200\text{mmol}_e \text{L}^{-1}$ 未満、EC は 10mS m^{-1} と低く酸感受性が高いことが確認された。河川 pH の長期トレンドの地域性は、それを反映しているものと考えられた。岐阜県にも地質的に酸感受性が高いと考えられる花崗岩、流紋岩、チャートなどが分布している。その地質分布と関連した地域性や河川水質の酸感受性との関係は明確ではなかったが、比較的上流に位置する h02、h09、m11 等の地点で河川 pH の低下傾向がみられた。

河川水質には、その集水域内における土地利用形態が大きく影響すると考えられる。また、我が国の場合、火山が多く上流部に温泉・鉱泉が存在する可能性も高い。流路に沿った調査の結果、新潟県中越の c06～c09 の地点や岐阜県の h02 では、EC や SO_4^{2-} 濃度が温泉付近で急激に上昇するなど、河川水質への温泉の影響が確認された。一方で、新潟県下越地方の k01、k06、k16、k17、岐阜県の h09、m11 などでは、集水域内の森林面積が 90% 以上で、田畑が占める割合も低く、温泉水の流入や鉱山等の影響も最小限と考えられた⁶⁾。

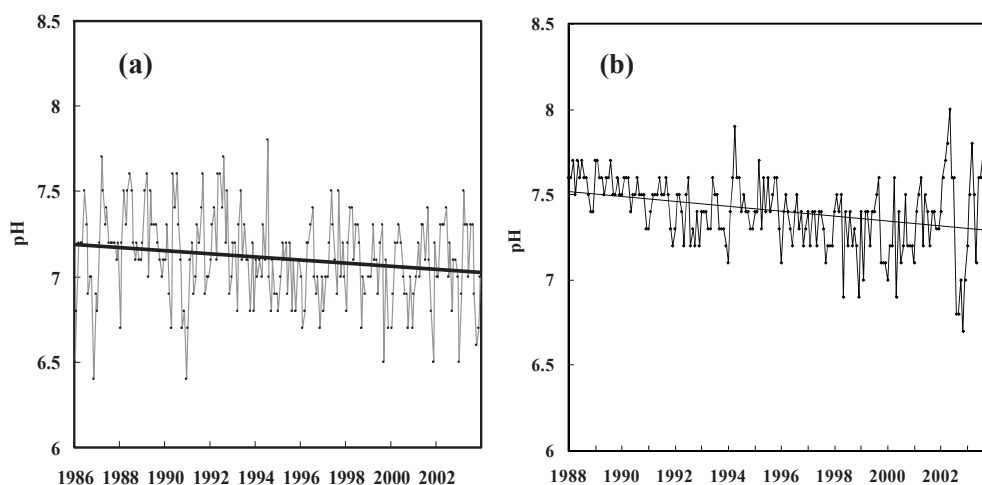


図 3-3-3-9 代表的地点の pH 低下傾向

(a): 新潟県 阿賀野川水系/新谷川 寿橋(k16) (b): 岐阜県 揖斐川 岡島橋(m11)

pH 低下傾向を示し、かつ土地利用形態や温泉水の影響が最小限と考えられた地点の典型的なトレンドを図 3-3-3-9 に示した。新潟県の地点の多くは図 a)に示す新谷川・寿橋 (k16) のように、比較的単調に継続して pH が低下する傾向がみられた。岐阜県については、図 b) に示す揖斐川・岡島橋 (m11) のように、伊自良湖流入河川の釜ヶ谷川と同様に 1996 年（平成 8 年）付近で低下がみられた。pH の有意な低下傾向が確認された釜ヶ谷川とは異なり、若干上昇するような傾向もみられた。新谷川の上流は花崗岩、揖斐川の上流はチャートを含む堆積岩や一部に花崗岩が分布していた。季節変動としては、新潟県、岐阜県の地点と

も、山間部の融雪期である4月あるいは5月に最も低いpHが記録されることが多く、いわゆるアシッドショック⁸を反映しているものと考えられた。

全国湿性沈着量分布でも明らかのように、日本海側と中部地方は全国的に湿性沈着量が多い地域と言える。本解析結果は河川水質への大気沈着を示す直接的な証拠となるものではないが、新潟県、岐阜県において酸性化を示した地点のうち、上述した地点については、温泉・火山といった自然要因、土地利用変化・農業活動・鉱山といった人為的要因では説明できないことも確かである⁶⁾。同様の現象が国内の酸感受性の高い他の地域で起こっている可能性もあり、今後溪流・河川水の酸性化についてさらに注目すべきであると考えられる。岐阜県内の地点については、同じ県内に位置する伊自良湖集水域でみられた酸性化傾向との関係について、集水域の特徴等についてさらに検討を行う必要がある。

3.3.4 集水域酸性化の現状と今後の集水域解析の方向性

これまでのモニタリングと本重点調査の結果、伊自良湖(釜ヶ谷)集水域においては、S、N、H⁺などの我が国で最も高い水準の負荷量が、森林生態系を介して溪流・河川水質に影響を与えたものと考えられた。

湿性沈着量、乾性沈着量を精緻に見積もった結果、当集水域では、欧米において溪流・河川へのNO₃流出の閾値とされている10kg-N ha⁻¹ y⁻¹をはるかに超えるN沈着量が確認された。実際に河川水のNO₃濃度は上昇傾向にあり、植物の吸収が盛んな夏季においてもNO₃⁻濃度は高い値を示し、季節性は失われている。河川pHも低下し、著しく大きいN沈着が河川の酸性化に寄与していることを示していた。これらの現象が顕在化する引き金となったのは、1990年代半ばの気象イベントであったが、その後も引き続き、生態系の許容量を超えるN沈着に伴うNO₃の流出により、集水域の酸性化が進みつつあると考えられた。

一方、Sは流入量以上に流出していることが明らかとなり、過去に蓄積したSが流出に転じて、上記の酸性化に寄与している可能性を示唆していた。増水時においてNO₃⁻とSO₄²⁻の濃度が同時に上昇する現象は、表層付近に蓄積しているSがNとともに流出していることを示唆していた。

伊自良湖集水域は、スギ、ヒノキ等の針葉樹が植林された、我が国の森林集水域としては典型的なもので、地質的にも同様の酸性岩が分布する地域は多い。集水域の酸性化は、本地域に特有の現象ではなく、集水域の酸感受性が高い上に酸性物質の沈着量が多いところに引き金となる気象イベントがあったという条件が満たされ、生じたものと考えられる。全国的な湿性沈着量評価の結果は、伊自良湖に匹敵する湿性沈着の負荷の大きな地域が他にも存在することを示しており、近年は特に本州中部の日本海側で湿性沈着量が多いことが明らかとなった。さらに、新潟県及び岐阜県における河川pHの長期低下傾向とその河川水質は、地質的に酸感受性が高く、酸性物質の沈着量が多い地域において、集水域の酸性化が生じている可能性を示していた。

⁸ 融雪期に高濃度の酸が流入することにより河川水質が一時的に大きく酸性化する現象

これらの事象を考慮すると、3.2節でも述べたように、生態系の酸感受性が高く酸性物質の沈着量が多い地域の特定を今後さらに進め、ホットスポットとして着目し、河川水質等への影響の顕在化について、より詳細に検討する必要があると考えられる。さらに、伊自良湖集水域内ではすでに表層土壌 pH が 4 未満にまで低下しているため、植物の生長に影響を与える Al^{3+} の土壌水中への溶出量の増加が危惧されることから、樹木への影響を含めて、継続したモニタリングが必要である。

今回、特に伊自良湖集水域で酸性化傾向が明確に確認できた背景には、上記のようなホットスポットとして条件が揃った地域であったという他に、酸性沈着、土壌・植生、陸水を含む総合的なモニタリングを継続してきたことが大きいと考えられる。集水域を単位とした生物地球化学的な物質の流れを解析することにより、より定量的に酸性沈着の生態系への影響を検討することが可能になった。今後さらに、酸性沈着の影響を評価するための総合的モニタリング手法として、集水域解析を十分活用するためには、以下のような課題が考えられる。

① 溪流・河川モニタリングの補強と集水域解析の推進

これまで湖沼中心であったモニタリングから、流域内の物質循環の変化を反映することが期待できる溪流・河川にも着目し、上述したホットスポットとなる地域を考慮しながら、より広く情報を収集する。伊自良湖集水域についても、今後も釜ヶ谷川の 2 週間に 1 回程度の継続的モニタリングを実施し、河川水質と流入・流出等の物質収支の長期的な評価を行う。将来的には、下記集水域モデルの開発と併せ、より効率的なデータの取得方法についても検討が必要である。

② 森林生育や養分吸収量の効率的推定法の開発

集水域の酸性化には、上述したように、樹木の生育やそれに伴う養分吸収量が大きく関わっていると考えられる。酸性沈着のような外部由来の H^+ により酸性化しているかどうかを定量的に評価するためには、森林全体としての生育や養分吸収量の推定が重要となってくる。これらのデータの推定には、森林成長に関する詳細かつ継続的な現地観測が必要とされているが、今後、集水域解析に用いる上で有用な効率的推定方法について検討する必要があると考えられる。

③ 既存試験地との連携

大学や研究機関による既存試験地における調査・研究の事例を参考に、酸性雨長期モニタリングとの連携について検討する。期間を定めた共同観測やデータ比較のための観測手法の標準化などを推進する。将来的に、伊自良湖データを含めた我が国における集水域に関する総合的な評価を検討する。これらの評価を通じて、酸性雨長期モニタリング計画における集水域解析の位置づけをより明確にしていく必要があると考えられる。

④ 東アジアへの普及

集水域解析は、今後さらに酸性沈着原因物質の排出量が増大すると予測される東アジア

ア地域にとって、生態影響を論ずる上で有効な手法になることが期待され、東アジアにおける集水域解析の事例を増やすことが望まれる。

⑤ 集水域モデルの開発

本重点調査の定量的データ、国内の既存試験地や東アジアにおける事例などの関連データの活用を図り、既存モデルの比較調査を含めた集水域モデルの開発を推進させる必要があり、上述した伊自良湖の酸性化メカニズムの検証にもモデルが必須である。なお、上記①②は、モデルの検証データとして有用である。

上記課題を考慮し、その有効性を十分に認識し広く理解を得ることによって、集水域解析手法を生態系影響の総合的モニタリング・評価手法として、推進していく必要があると考えられる。

(引用文献)

- 1) Kobayashi J. 1960. A chemical study of the average quality and characteristics of river waters of Japan. *Berichte des Ohara Instituts fuer Landwirtschaftliche Biologie Okayama Universitaet* 11: 313-358.
- 2) Nakahara, O., Takahashi, M., Sase, H., Yamada, T., Matsuda, K., Ohizumi, T., Fukuhara, H., Inoue, T., Takahashi, A., Kobayashi, H., Hatano, R., Hakamata, T. 2008. Stream water acidification and increasing NO_3^- discharge in a forested catchment in central Japan (submitted).
- 3) 栗田秀實・植田洋匡, 2006. 中部山岳地域上流域における陸水 pH の長期的低下—過去30年間の pH の低下と酸性雨の状況—. *大気環境学会誌* 41(2): 45-64.
- 4) van Breemen, N., Mulder, J. Driscoll, C.T. 1983. Acidification and alkalinization of soils. *Plant and Soil* 75: 283-308.
- 5) 徳地直子・大手信人 1998. 森林生態系における H^+ 収支. *日本生態学会誌* 48: 287-296.
- 6) Matsubara, M., Morimoto, S., Sase, H., Ohizumi, T., Sumida, H., Nakata, M. Ueda, H. 2008. Long-term declining trends of river water pH in Central Japan. *Water Air Soil Pollut* (in press). doi: 10.1007/s11270-008-9909-3

3.4 諸外国との比較

EANETは、1998年からの試行稼働を経て2001年より本格稼働を開始しており、モニタリングの成果はデータレポートとして毎年報告されている。2007年には、2000年から2004年における5年間のモニタリング活動の成果をとりまとめた「東アジアにおける酸性沈着に関する第1次評価報告書」¹⁾が公表され、初めてEANETにおける酸性沈着の科学的な解析、評価が行われた。また、北米では米国国家大気降下物測定プログラム (NADP) 等、欧州では長距離移動大気汚染物質モニタリング・欧州共同プログラム (EMEP) の枠組みで継続的なモニタリングが実施されている。

本節では、これらのデータを活用して、我が国における酸性沈着の状況と東アジア地域や欧米の状況とを比較した。

3.4.1 大気系

(1) 湿性沈着の状況

日本、東アジア、北米及び欧州における湿性沈着の状況について解析を行った。日本については、本モニタリングの遠隔地域及び田園地域に加え、全国環境研協議会酸性雨調査^{2)~5)}の非都市地域のデータも併せて用いた。また、東アジアは EANET⁶⁾、北米は NADP⁷⁾、欧州は EMEP⁸⁾の観測データを用いた。対象期間は、日本が2003年4月から2007年3月、その他は2003年1月から2006年12月とし、各地点の年間値は、完全度 (%TP 及び %PCL) が80%以上の観測データを用いた。

日本、北米及び欧州の3地域の降水量及び主な成分濃度等について、各地域の10、25、50、75、及び90パーセンタイル値を求めて図3-4-1-1に示した。また、図中には等沈着量線を加えた。日本の降水量は北米や欧州に比べ多雨域に広く分布しており、中央値の比較では、日本が 1680mm y^{-1} で北米及び欧州よりそれぞれ1.7倍及び2.5倍多い。 nss-SO_4^{2-} 濃度は、日本の観測データが北米や欧州に比べ高濃度側の狭い範囲に分布しており、日本の10パーセンタイル値が欧州の中央値にほぼ相当する。中央値の比較では、日本が北米及び欧州に比較して、それぞれ1.6倍及び1.3倍高い。結果として、日本の nss-SO_4^{2-} 沈着量は、中央値で 20mmol m^{-2} を越え、北米及び欧州に比較して3倍程度多いことが分かる。 NO_3 濃度は、欧州の広い分布範囲に日本と北米がほぼ含まれ、中央値の比較では欧州が最も高く、日本はその7割程度である。しかしながら、日本は降水量が多いために、沈着量は日本が北米や欧州に比較して2倍程度多い。

降水酸性度については、日本の分布幅が北米や欧州に比較して非常に狭いことが特徴的である。日本のデータがpH4台後半の狭い範囲に分布するのに対し、北米や欧州ではpH4台中盤からpH5台中盤までの広い範囲に分布している。中央値の比較では、日本がpH4.7、北米がpH4.9、欧州がpH5.0で、水素イオン濃度としては日本が北米及び欧州に比較して、