

C-4 酸性・酸化性物質に係る陸域生態系の衰退現象の定量的解析に関する研究

(4) 酸性降下物の陸水環境に及ぼす影響の定量的評価

東京農工大学大学院 農学研究科

小倉 紀雄, 飯泉 佳子, 横山 英也

独立行政法人 農業環境技術研究所 地球環境部

生態システム研究グループ

斎藤 元也

生態システム研究グループ 物質循環研究チーム

新藤 純子

平成 11～13 年度合計予算額

49,032 千円

(うち、平成 13 年度予算額

14,797 千円)

[要旨]: 外山沢の溪流水と地下水では冬期間(12月 - 2月)に Na^+ 、 Ca^{2+} のイオン濃度に変化が見られた。 Na^+ 、 Ca^{2+} は冬期間にイオン濃度が上昇し融雪後に減少し元の濃度に達した。イオン濃度の変化は流域全体が積雪によって覆われ水の地下への浸透が無くなり、中間流出が減少した事により、土壌や岩石由来のイオン成分である Na^+ 、 Ca^{2+} が十分に溶出した基底流出の流出割合が増加したためにそれらの成分の濃度が上昇した。融雪初期のアシッドショックの観測は出来なかったが、それに引き続いて起こる、流域を覆っていた積雪の一時期の流出に伴う地中由来のイオン濃度の減少が確認された。融雪期のイオン濃度の減少は五色沢でも確認された。

外山沢・五色沢どちらの沢においても冬期間を除くと流量とイオン濃度に明確な関係性が見られなかった。

2001 年 9 月の結果は、調査 1 週間前の台風 15 号によるこの地域の 891mm におよぶ積算雨量の影響により、外山沢・五色沢ともに地中由来のイオン成分の濃度減少が多く地点で見られた。

溪流水・地下水中の Cl^- はほぼ大気由来であると考えられるため、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- について考察するために $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 比、 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比(当量比)を用い降水の値との比較を行った。 $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 比は外山沢では降水に近い値を示したが五色沢では降水の値と比較して非常に高い値を示した。また五色沢では EC が高いことから SO_4^{2-} の由来は火山活動の影響であると考えられた。 $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比は五色沢で降水に近い値を示した。外山沢では、特に地下水で、降水よりも高い値を示した。また、土壌の水抽出液においても降水に比べ高い値を示した。 NO_3^- は EC も低く火山活動の地下からの影響は考え難いため、外山沢流域においては降下物由来の NO_3^- の付加が考えられた。

[キーワード] 溪流水、地下水、窒素飽和、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}

1. はじめに(研究目的)

近年世界的に酸性雨による森林衰退が報告されている。また奥日光地域においても近年酸性雨によるものと考えられる森林衰退が報告されている。この地域での森林衰退に関する研究は数多くなされている(谷本ら: 1996、畠山ら: 1995、畠山: 1999)。しかし、この地域では酸性雨と森林衰退との直接的な関係はまだ明確にわかっていない。

また、奥日光地域での陸水の水質に関する研究は古くから行われてきている(吉村: 1931、小林ら: 1985、村上ら: 1987)。しかしそれらの研究は酸性雨との関わりを考えているものではない。

く、あくまで奥日光地域の陸水の特性について調査がなされている。そして、これらの研究では季節を限定して調査を行ったものがほとんどであり、年間を通じての陸水環境についてはほとんど知られていない。

奥日光地域のような山岳において河川水質は直接的な人為影響を除いて考える事が可能である。そのために、河川の水質を規定する要因として主に雨水や雪からもたらされた水が土壌・地質との反応の影響や火山活動による温泉・鉱泉の影響を受けた結果と考えられる。

そこで本研究では奥日光地域において集水域の物質収支の一環をになう河川に注目し、森林衰退の著しい前白根山稜線付近からふもとの弓張峠にかけての外山沢集水域と前白根山山稜から五色山山稜部の東側斜面にある五色沢集水域において、年間を通じての河川と地下水の調査から流域の水および物質の挙動を明らかにし、森林生態系内の陸水環境を評価する事を目的として調査・研究を行った。

本研究の目的は

- ・外山沢と五色沢で年間を通じた水質変化の挙動の解明
- ・それらの水質を規定する要因についての考察
- ・酸性降下物の河川水・地下水（流域）への影響評価

以上の三つである。

2. 研究方法

調査は奥日光地域を流れる二つの河川である外山沢と五色沢とその流域を対象に行った。研究を進める方法として、溪流水・地下水の定期調査、水質に影響を与える大きな要因である流域に分布する岩石と土壌の調査、と二つの方向からアプローチをした。

(1) 溪流水・地下水（水試料）

調査地点（図 1）は外山沢で上流部より TM、TA、TAa、TB、TT の 5 地点、五色沢では GN、GS、GB、GC、GA、S、GSb の 7 地点で行った。

地下水の調査を外山沢集水域内にある国立環境研究所奥日光環境観測所施設内にある観測井戸 No1～No6 までの 6 本のうち No1、No3、No4 の 3 地点で行い、2001 年 9・10 月の調査ではさらに No2、No6 を調査した。

地下水の採水は採水ビンに紐をつけ井戸に下ろしていく方法を用い地下水面にふれる時にはなるべく水面を荒立てないように注意した。

調査期間は 2000 年 8 月（TM、TA、TAa では 2000 年 7 月）から 2001 年 10 月まで行い、調査頻度は月に 1・2 回程度である。河川の調査において上流部の観測地点では冬期の間、積雪が深く試料の採取ができなかった調査地点があった。年間を通じて採水できた調査地点は外山沢で TT、五色沢で GSb である。この二地点は各調査地域における最下流部にあたる。

また外山沢流域内調査地点の TB において春季連続調査として、2001 年 4 月 8・10 日の三日間で 10 時から 15 時まで毎正時ごとに試料の採取をおこなった。

現地での調査内容は河川水の採水をポリ瓶にて行い、ポリ瓶には水を溢れるまで入れ、中に気泡が入らないように蓋をした。採水と同時に pH（堀場製作所 D-12）と電気伝導度（EC）（堀場製作所 ES-12、ES-14）を測定した。

外山沢では TT、五色沢では GSb の各調査地点で採水時に流量観測を行った。

持ち帰った水試料はただちにアルカリ度の測定を行った。アルカリ度は塩酸 (0.1mol/l) を用いて自動滴定機 (東亜電波工業 AUT-301、TBT-101) を用い pH4.8 になるまで滴定し、このアルカリ度の値を換算し重碳酸イオン (HCO_3^-) の値とした。

水試料はろ過 (孔径 $0.45\mu\text{m}$) を行い、主要溶存イオン成分の分析をキャピラリー電気泳動装置 (横川アナリティカル社 HP^{3D}CE) を用いて測定した。

測定したイオン成分は以下の通り。

陽イオン： NH_4^+ 、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+}

陰イオン： Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-}

(2) 岩石・土壌試料

岩石・土壌試料の採取は外山沢で 2001 年 9 月 18-19 日、五色沢 2001 年 11 月 29 日に行った。岩石の採取はハンマーを用いて表面にある岩石を採取した。岩石試料を採取する時にはなるべく風化を受けていない岩石の採取を行った。土壌試料では表層部の枯葉を取り除きその下の層から見た目の層別に採取した。

岩石試料は外山沢では最上流部 (TMUA、TMUB)、上流部 (TMA、TMB) 西側支流 (TAA、TAB)、東側支流 (TB) 4 地点 7 試料、五色沢では最上流部 (GU) 中流北側斜面 (GBN)、中流南側斜面 (GBS) 4 地点 4 試料の採取を行った。

土壌試料は外山沢のみで行い上流部 (TU) で層別に 0~5、5~8、8~17、17~ (cm) の 4 試料と国立環境研究所奥日光観測施設観測井戸の周辺にて 3 地点 (TDA、TDB、TDC) でそのうち TDA に関しては層別 0~16、16~40 (cm) に 2 試料を採取した。

本研究地域は日光国立公園の特別保護地域に位置し土壌・岩石試料の採取は環境省、林野庁での所定手続きを行い採取許可を取得した後に採取を行った。

化学組成分析 (岩石・土壌試料)

岩石試料は表面の風化した部分を取り除いて粉碎ミルにかけた後、試料を 100 メッシュのふるいにかけて。土壌試料はあらかじめ 2mm のふるいにかけて後に 100 メッシュのふるいにかけて。ふるいにかけて試料は 105℃で 16 時間以上乾燥させ、間隙水を取り除いた後に重量を測定した。その後、試料を 830℃で 3 時間強熱し有機物、結合水を取り除き、重量を測定した。

強熱後の試料 1g に対し四ホウ酸リチウム 5g を加えガラスビードを作成した。作成したガラスビードは蛍光 X 線回折 (理学電機工業株式会社、RIX3000) を用い化学組成分析を行った。

水抽出成分 (土壌試料)

土壌試料では水抽出液の pH、電気伝導度 (EC)、イオン成分の測定に加え陽イオン交換容量 (CEC) の測定を行った。これらの分析は一般的には風乾土を用いるものである。しかし本研究では無機態の窒素に関して考察するため、乾燥処理を行うと無機態の窒素が増加する (乾土効果)、そのため本研究では湿土試料を用い乾燥土当りの重量に換算し分析を行った。

水抽出液中の pH は土 (乾燥土に換算) : 水 = 1 : 2.5 の重量比で振とうビンに入れ 1 時間浸透させた後に 1 時間放置したのちに pH を測定した。

水抽出液の電気伝導度とイオン成分は土（乾燥土に換算）：水＝1：5 の重量比で振とうビンにいれ1時間振とうさせた後にECを測定し、イオン成分は河川水・地下水の試料と同様にイオン成分の分析を行った。求めたイオン濃度（mg/l）はイオン当量（ $\mu\text{eq/l}$ ）、乾土 100 g 当りの水溶性イオン量（ cmolc/kg ）に換算した。

3. 結果・考察

(1) 水質の時間変化について

調査期間内の水質の変化には次のような二つの事柄が確認された。

- ① 積雪期・融雪期の変化：外山沢河川（TT）と地下水（井戸 No1）で 2001 年 1 月・4 月の冬期・春期にかけて数種のイオン成分濃度が上昇しその後もとの値に減少した（図 2、3）。

外山沢河川（TT）において Ca^{2+} は調査期間内の平均値が 190（ $\mu\text{eq/l}$ ）であったが、2001 年 2 月から徐々に増加し 2001 年 4 月には最大値の 255（ $\mu\text{eq/l}$ ）を示した。その後 2001 年 5 月以降になると 200（ $\mu\text{eq/l}$ ）を下回った。 Na^+ でも同様の挙動が見られ平均値が 171（ $\mu\text{eq/l}$ ）で最大値は 216（ $\mu\text{eq/l}$ ）を示した。 Ca^{2+} と Na^+ は 2001 年 2・4 月に濃度上昇が確認された。

観測井戸 No1 の地下水での時間変化は外山沢河川（TT）と同様に Ca^{2+} と Na^+ で 2001 年 1・3 月に濃度上昇が確認された。 Ca^{2+} の平均値は 226（ $\mu\text{eq/l}$ ）であり 2001 年 3 月では最大値 352（ $\mu\text{eq/l}$ ）を示した。 Na^+ では平均値が 124（ $\mu\text{eq/l}$ ）に対して 2001 年 3 月での最大値は 163（ $\mu\text{eq/l}$ ）を示した。観測井戸 No1 の地下水では Ca^{2+} と Na^+ の他に HCO_3^- でも 2001 年 1・3 月に濃度上昇が確認され、 HCO_3^- の平均値 186（ $\mu\text{eq/l}$ ）に対し 2001 年 2 月の最大値では 245（ $\mu\text{eq/l}$ ）を示した。観測井戸 No1 の地下水はイオン濃度の上昇にともない伝導度の上昇も確認された。これは地下水において HCO_3^- が伝導度を規定する最も大きな要因であるためであると考えられる。

以上の外山沢流域内の河川と地下水で確認された濃度変化により、濃度上昇の見られたイオン成分は Na^+ 、 Ca^{2+} である。一般にこれらのイオン成分の起源は土壌や岩石と言われ、Na や Ca は岩石の風化順列の中でも比較的風化されやすい成分である事が知られている。また、調査地の奥日光地域では冬期に流域全体が積雪によって覆われる事が確認されている。

これらの要素を統合すると冬期の流域全体への積雪が河川水・地下水の供給源となる降水の地下への浸透を遮断し、その為河川の流量が著しく減少し基底流出の割合が高くなったと考えられた。これは降水量が減少した後の調査（2000 年 11 月以降の冬期間）で河川の多くの場所で伏流している事からも推測できる。

淡水中での CO_2 の飽和溶解量は大気中の CO_2 の分圧と水温によって一定である（半谷、小倉：1995）。この事から基底流出水では地下での高い CO_2 濃度にもなう高濃度の HCO_3^- が推測され、そして風化に対して安定度の低い Na^+ 、 Ca^{2+} が水に取り込まれたと考えられる。表面流出～中間流出では基底流出ほどの地下での反応は無く、基底流出に比べ濃度が低いと考えられる。

積雪による降水の地下浸透への遮断から地下環境の変化が考えられ、流域の河川水・地下水では基底流出の割合が大きくなり濃度が上昇した。

流域を覆っていた雪が溶けると、イオン濃度はそれまで雪が積もる前の値にまで減少した。これは、流域を覆っていた積雪が無くなり降水の地下への浸透が復活し、表面流出～中間流出と基底流出の比率が元に戻ったためと考えられた。

また、外山沢河川水（TT）で HCO_3^- 濃度が上昇しなかった理由としては以下の理由が考えら

れる。地下では大気中に比べ CO_2 濃度が高く、そのため地下水には CO_2 が多く溶解こんでいると考えられる。その状態に対して河川水では大気 (CO_2 濃度が年間を通じて安定している) と接しているため河川水の HCO_3^- (CO_2) 濃度が年間を通じて安定した状態であると考えられる。

② 台風後の変化：外山沢 (TT)、五色沢 (GSb) では 2001 年 9 月の調査において一時的なイオン成分濃度の減少がみられた (図 2、4)。

2001 年 9 月でのイオン濃度の一時的な減少は外山沢では TM で顕著に見られ、陽イオンで Ca^{2+} 、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、陰イオンで HCO_3^- 、 SO_4^{2-} の減少が見られた。電気伝導度では $37.4 (\mu\text{S}/\text{cm})$ と調査期間内平均値 $43.9 (\mu\text{S}/\text{cm})$ に対して 15% の減少が見られた。

同時期に五色沢において GSb では陽イオンで Ca^{2+} 、 Na^+ 、 Mg^{2+} が陰イオンで HCO_3^- の減少が見られた。TT と異なり SO_4^{2-} の減少が見られなかった。電気伝導度において調査期間内平均値 $215 (\mu\text{S}/\text{cm})$ に対し $195.7 (\mu\text{S}/\text{cm})$ と 9% の減少が見られた。五色沢では他にも GN、GS、GB、GC の調査地点において一時的な減少傾向が見られた。GN、GS、GB、GC それぞれの調査期間内の電気伝導度は 258 、 291 、 254 、 $106.4 (\mu\text{S}/\text{cm})$ に対して 2001 年 9 月の値は 201 、 260 、 218 、 $81.4 (\mu\text{S}/\text{cm})$ とそれぞれ 22%、11%、14%、23% の減少が確認された。

2001 年 9 月の台風 15 号の影響ではないかと推測される。台風 15 号による奥日光地域の降水量は 9 月 8 日・11 日の 3 日間で 891mm であった。2001 年 9 月 18-20 日に行われたの調査は降水の終了から一週間経っているにも関わらず、河川では増水が確認された。河川の形態も以前の形態との変化が見られ多量の水が一時期に河川中に流れ込み河川の形態を変えてしまった。

この時期のイオン濃度減少の特徴としては降水由来成分の Cl^- 等では減少が少なく土壌・岩石由来成分の Na^+ 、 Ca^{2+} 、 HCO_3^- の成分で濃度減少が顕著であった。 SO_4^{2-} がこの時期に減少した地点では SO_4^{2-} の地下での供給が推測される。

このイオン濃度の減少は、台風による短期間に流域内へ多量の水量負荷は河川の通常時における流出過程に比べて表面流出や浅い中間流出が増加し地中でのイオン成分の供給を受けずに河川に流出した事が考えられる。

この時期にイオン濃度の減少が見られなかった調査地点はもともとイオン濃度が低く、見た目の特徴として比較的浅層からの湧出水である。このような調査地点では通常時から地中でのイオン成分の供給があまり無く、地中由来の成分が少ないと考えられ、台風による水量増加の影響を受けなかったと考えられる。

(2) SO_4^{2-} について

SO_4^{2-} は酸性降水由来のイオンの一種であると言われている。そのため、各調査地点において SO_4^{2-} について考察を行った。

水溶性イオン成分のうち、 Cl^- は強溶脱性の元素であるため自然土壌中には母岩由来の Cl^- はほとんど含まれず、主に大気由来である事が知られている。そのために河川の水には土壌・岩石由来の Cl^- はほとんど含まれないといえる。

そこで SO_4^{2-} について考察するため各調査地点と降水の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 比 (当量比) を求め図 5 に示した。降水のデータは農業環境技術研究所の新藤氏から提供された外山沢の国立環境研究所観測施設における本研究と同時期 (2000 年 7 月-2000 年 10 月) のものである。

外山沢での $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比の平均値は TM、TA、TAa、TB、TT でそれぞれ 6.18、3.43、4.46、3.49、4.48 となり、地下水では観測井戸 No1、No2、No3、No4、No6 でそれぞれ 2.37、2.83、3.92、4.10、4.35 である。一方、五色沢では GN、GS、GB、GSb、GC、GA、S でそれぞれ 22.9、25.2、25.4、22.1、27.4、9.24、26.5 である。降水中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比（平均値）は林外雨、林内雨でそれぞれ 4.88、3.34 であった。

外山沢、地下水での $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比は降水の濃度比と同程度か、これより低い値であった。

また、土壌（外山沢流域）の水抽出液での $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比を算出した。外山沢上流部の TU では深度 0-5、5-8、8-17、17-（cm）の層でそれぞれ 0.49、0.59、0.77、1.97 であった。外山沢下流部では TDA 0-16、TDA 16-、TDB 0-22、TDC 0-25（cm）でそれぞれ 0.64、0.54、2.06、0.32 を示した。土壌の水抽出液は降水に比べ非常に低い値を示した。土壌では Al や Fe の水和生成物及び粘土鉱物の結晶格子末端の Al-OH、Fe-OH の OH 基は SO_4^{2-} と配位子交換しやすい事が知られている。降水中に比べ外山沢、地下水での $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比が低い原因として、 SO_4^{2-} がこのような機構によって土壌に吸着されるため、あるいは土壌微生物の吸収同化及び還元作用による硫酸消費が考えられる。

また、土壌水抽出液では先に述べた外山沢流域内の河川や地下水に比べても低い値を示した。これは降水からもたらされた水が表面流出や浅い中間流出などの地中での滞留時間が短い流出機構の影響が考えられ、地中での SO_4^{2-} の吸着が十分でなかったから河川水・地下水中では土壌よりも $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比が高いのではないかと推測された。

一方、五色沢では、降水中の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}$ 比に比べて非常に高い値を示した。五色沢流域では降水から河川水に至る地中での SO_4^{2-} の添加が考えられた。地中での SO_4^{2-} が添加される事に対しての一つの考えとして、五色沢の湯の湖流入部付近には日光湯元温泉の源泉がいくつか存在し、五色沢では外山沢や他の山岳地域の河川に比べ非常に高い伝導度を示している事からも、温泉の形成に関連している地下での火山活動の影響が五色沢の上流部にも及んでいると考えられた。

(3) NO_3^- について

窒素酸化物は酸性降下物質の一種として地表面に降った後地中に浸透し土壌中に浸透する。近年土壌中に窒素が過剰に蓄積しているとの報告があり、土壌の窒素飽和として問題になっている。河川水、地下水、土壌の水抽出液中の NO_3^- から考察を行った。

NO_3^- について考察するため SO_4^{2-} について考えた時と同様の理由から各調査地点の NO_3^-/Cl 比（当量比）を求めた。その結果を図 6 に示した。外山沢流域での NO_3^-/Cl 比（平均値）は TM、TA、TAa、TB、TT でそれぞれ 2.01、1.70、1.65、1.79、1.81 となり地下水では観測井戸 No1、No2、No3、No4、No6 でそれぞれ 3.96、5.21、1.76、2.14、2.07 である。また五色沢では GN、GS、GB、GSb、GC、GA、S の値はそれぞれ 1.08、0.97、0.99、0.94、0.69、0.49、1.01 であった。

林外雨、林内雨での NO_3^-/Cl 比（平均値）はそれぞれ、1.38、0.72 であった。降水のデータは農業環境技術研究所の新藤氏から提供された外山沢の国立環境研究所観測施設における本研究と同時期（2000 年 7 月・2000 年 10 月）のものである。

これらの結果から外山沢、五色沢の両河川では降水と近い値を示した。これは窒素の循環について NO_3^- を指標にすれば窒素降下物による流域へのインプットと河川によるアウトプットのバ

ランスがとれているためであると考えられる。

観測井戸 No3、No4、No6 の地下水では降水の $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比とほぼ同じ値を示したが、観測井戸 No1、No2 の地下水では非常に高い値を示した。

また、土壌の水抽出液でも同様に $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比（当量比）を算出した。外山沢上流部の TU では深度 0-5、5-8、8-17、17-（cm）の層でそれぞれ 4.01、2.54、2.83、5.11 であった。外山沢下流部では TDA 0-16、TDA 16-、TDB 0-22、TDC 0-25（cm）それぞれの値は 18.2、1.72、16.2、6.58 を示し降水に比べ非常に高い値を示した。また表層で高い値を示す傾向が見られた。

さらに観測井戸 No1 付近の表層土壌である TDA0-16、TDB での水抽出液中 NO_3^- は 0.094、0.059（ cmolc/kg ）、観測井戸 No3 付近で採取した表層土壌（TDC0-25）では 0.050（ cmol/kg ）を示した。

表層土壌の水抽出性の $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比や NO_3^- 濃度から近年問題視されている土壌中の窒素飽和が示唆された。この影響が観測井戸 No1、No2 の地下水中の NO_3^- 濃度に反映している事が考えられた。また、他の観測井戸の地下水で NO_3^- 濃度に影響が見られなかったのは、図 7 の外山沢（本流部）模式断面図から、観測井戸 No1、No2 の地下水は崖錘堆積物（ dt_2 ）やその上に堆積した土壌の影響を受けているのに対して、観測井戸 No3、No4、No6 の地下水は水位面が非常に低く外山沢河川（TAa、TT）と同様に岩屑堆積層（ dt_1 ）の影響を受けているためと考えられた。

また表 1、表 2 に示した外山沢上流部の土壌（TU）での NO_3^- 濃度は 0-5、5-8、8-17、17-で 0.093、0.135、0.057、0.295（ cmolc/kg ）と表層で高い値を示した。

土壌中での NO_3^- 濃度や $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比が高い原因として NO_3^- 及び NH_4^+ 降下量が多いために、植物による吸着や溶脱等のアウトプットとつり合わず、降下した NO_3^- と NH_4^+ から硝酸化成により生じた NO_3^- とが、外山沢流域に蓄積していると考えられる。

それとは別に、外山沢には多くの野生の鹿が確認されその排泄物が頻繁に発見された。排泄物の影響によって外山沢流域土壌の NO_3^- 濃度の上昇も考えられた。

外山沢の窒素飽和の可能性については、伊豆田（2001）の中で以下のように述べられている。「Aber ら（1989）が提唱する森林生態系における窒素飽和を「 NH_4^+ や NO_3^- の量が植物や微生物の要求量を超えた状態」と定義し、0～3 の 4 つのステージに分類した。その中で窒素飽和状態であるステージ-2 の『流出水の NO_3^- 濃度に対する植物や微生物による見かけ上の窒素吸収の影響が小さく、生育期における流出水の NO_3^- 濃度の低下程度が小さくなり、明白な季節変化を示さない。』とある。

この定義によると外山沢流域の地下水・土壌では $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比が高く窒素が付加されている事が考えられ河川水（TT）で顕著な年間変動が見られないことから、外山沢流域は Aber ら（1989）によるステージ-2 の段階にあると考えられるだろう。

(4)既存の研究との比較

これまでの考察では主に本研究で得られたデータについての考察を行ってきたが、ここでは既存の研究と比較検討し外山沢、五色沢の特徴を明らかにする。

①河川の時間変化

まず本研究での水質の時間変化についてまとめると、融雪期に河川水・地下水の Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、

SO₄²⁻について減少が見られ、台風（大雨）の後にも同様にイオン成分に減少傾向が見られた。

このようなイオン成分の減少傾向については桜井ら（1998）の北アルプスにおける結果で3-6月、9-10月にイオン成分の減少傾向を示し、その理由も春-夏季におけるイオン濃度の低下が融雪期における主に陽イオン濃度の低い融雪と梅雨の表流水による希釈効果が働き、秋季の多雨時は、岩石等からの陽イオンの溶脱が進んだ表層地下水が洗脱されている効果が大きいためではないかと説明している。

また融雪時の陰イオンの挙動については飯田ら（1998）による山形県の日本海沿岸地域の多雪地域における研究で融雪期における溪流水での陰イオン成分の挙動について、溪流水では融雪初期に積雪内の濃縮作用でCl⁻、NO₃⁻で濃度の上昇が見られ、さらに融雪前の一時的出水時にもCl⁻が上昇が見られた。本格的融雪期に先立って積雪内の溶存イオンが積雪外へ選択的に流出したため、本格的な融雪期に大量に流出するイオン濃度の低い融雪水によって溪流水が希釈されたと述べられている。但し、日本海沿岸域での研究であり降雪中の海塩由来によるCl⁻濃度の影響が考えられ、内陸の奥日光での結果とはCl⁻の挙動について異なるであろうと考えられる。

また、この研究地域では非積雪期には降水ごとに陰イオン成分が大きく異なるのに対して溪流水の水質の変化がきわめて小さい事が述べられていて、本研究の結果と同様の傾向が見られた。本研究ではこれらの研究と同様の傾向が見られ、このような河川水のイオン成分の挙動は山岳地域の河川においては特有の現象であるものと考えられた。

②水質の比較

奥日光地域の陸水の水質を研究した最近の例としては村上ら（1987）による研究と小林ら（1985）による研究が報告されている。これらの研究例では外山沢や五色沢についてのデータはなく、本流域について直接過去のデータと比較する事は不可能であった。

しかし小林ら（1985）において、「River Yanagisawa（柳沢）」の調査地点は外山沢と流域が隣接している事から、流域の地質も同じであり流域の環境が似ているものと考えられる。そこで柳沢と外山沢河川（TT）でのSO₄²⁻/Cl⁻比（当量比）NO₃⁻/Cl⁻比（当量比）を比較し小林ら（1985）調査の行われた1979年と2000-2001年の値を比較検討した。

外山沢河川でのSO₄²⁻/Cl⁻比、NO₃⁻/Cl⁻比はそれぞれ4.48、1.82であり柳沢のSO₄²⁻/Cl⁻比、NO₃⁻/Cl⁻比の1.92、0.18を大きく上回る。

外山沢河川のSO₄²⁻/Cl⁻比、NO₃⁻/Cl⁻比は降水中の組成比（林外雨のSO₄²⁻/Cl⁻比、NO₃⁻/Cl⁻比は4.88、1.38）と比較するとそれほど高い値では無い事が「(4) NO₃⁻について」の考察によって確認されている。しかし、柳沢の組成比と比べると非常に大きく異なっている。

外山沢河川の水が降水と似た組成比を示していることから、同様の流域環境であると考えられる柳沢でも降水と同じような組成比であったと推測される。研究の調査時期は20年以上の隔たりあり、その間に降水中のSO₄²⁻、NO₃⁻が増加した事が推測され、このような降水中のSO₄²⁻、NO₃⁻が増加により流域にSO₄²⁻、NO₃⁻が付加したと推測された。

また降水の組成比が大きく変化した事を考えると、この間に奥日光地域にだけではなく大きな範囲での環境の変化が起きている事が考えられた。

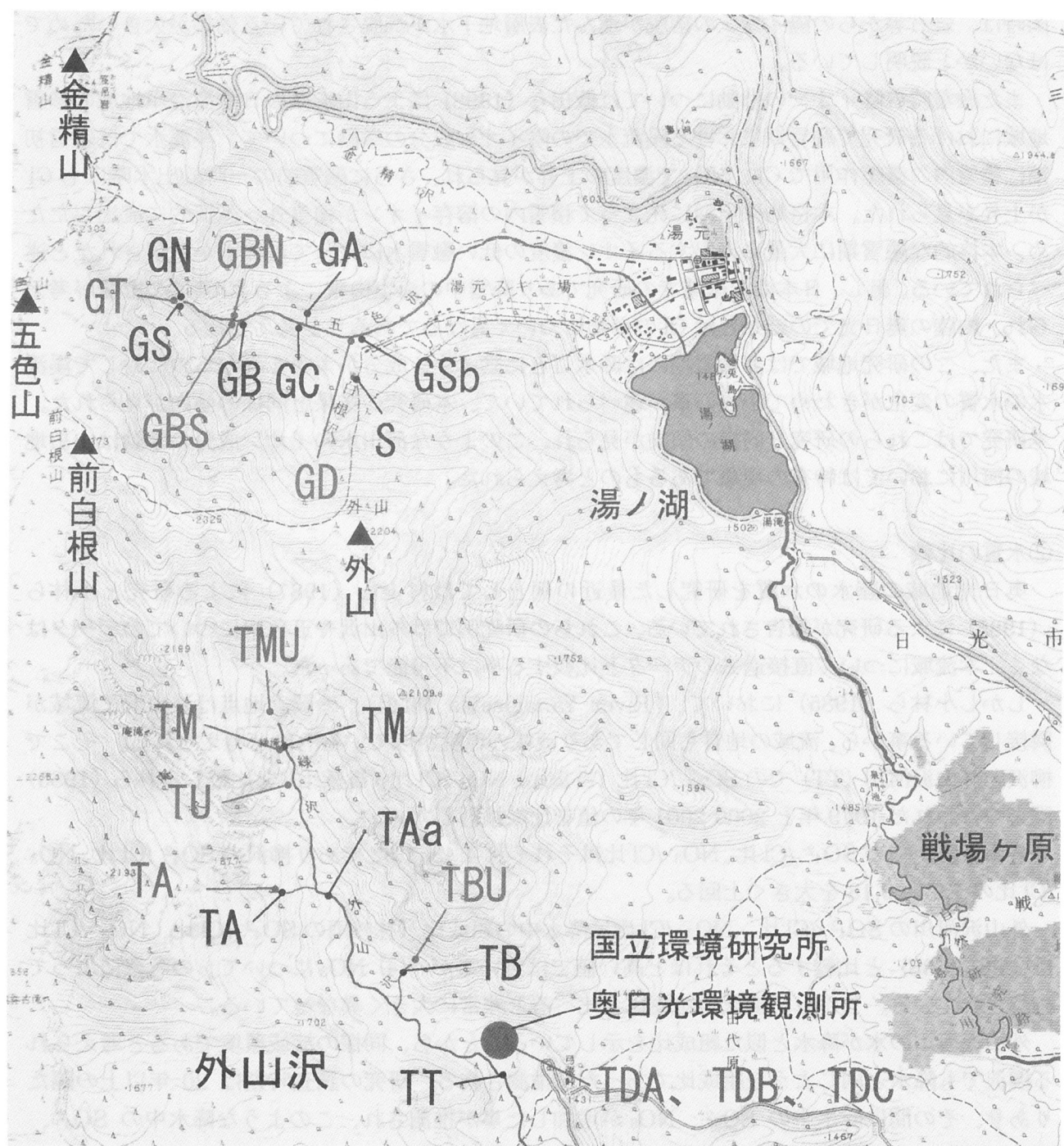


図1 調査地点

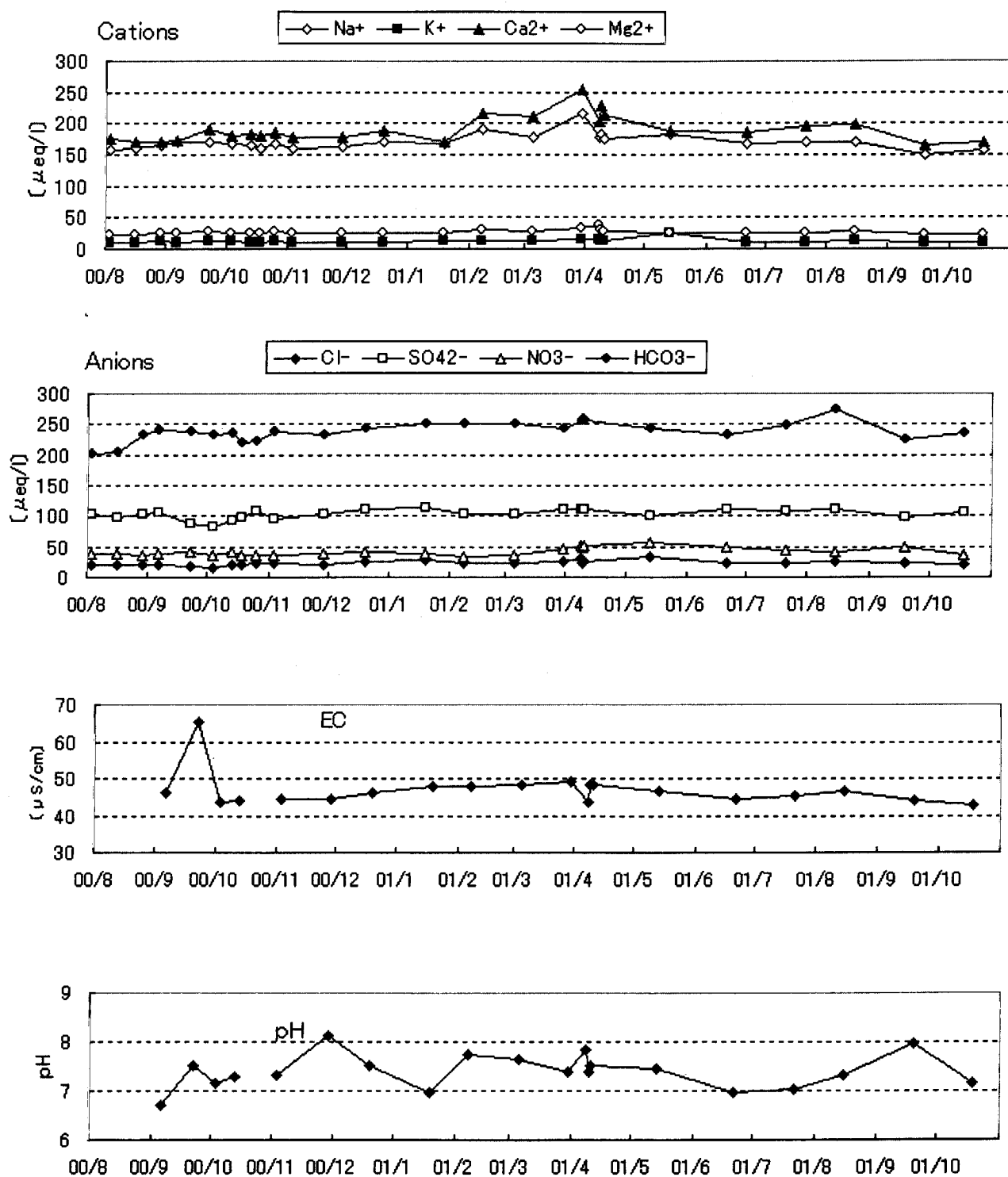


図2 TTにおける水質の経時変化

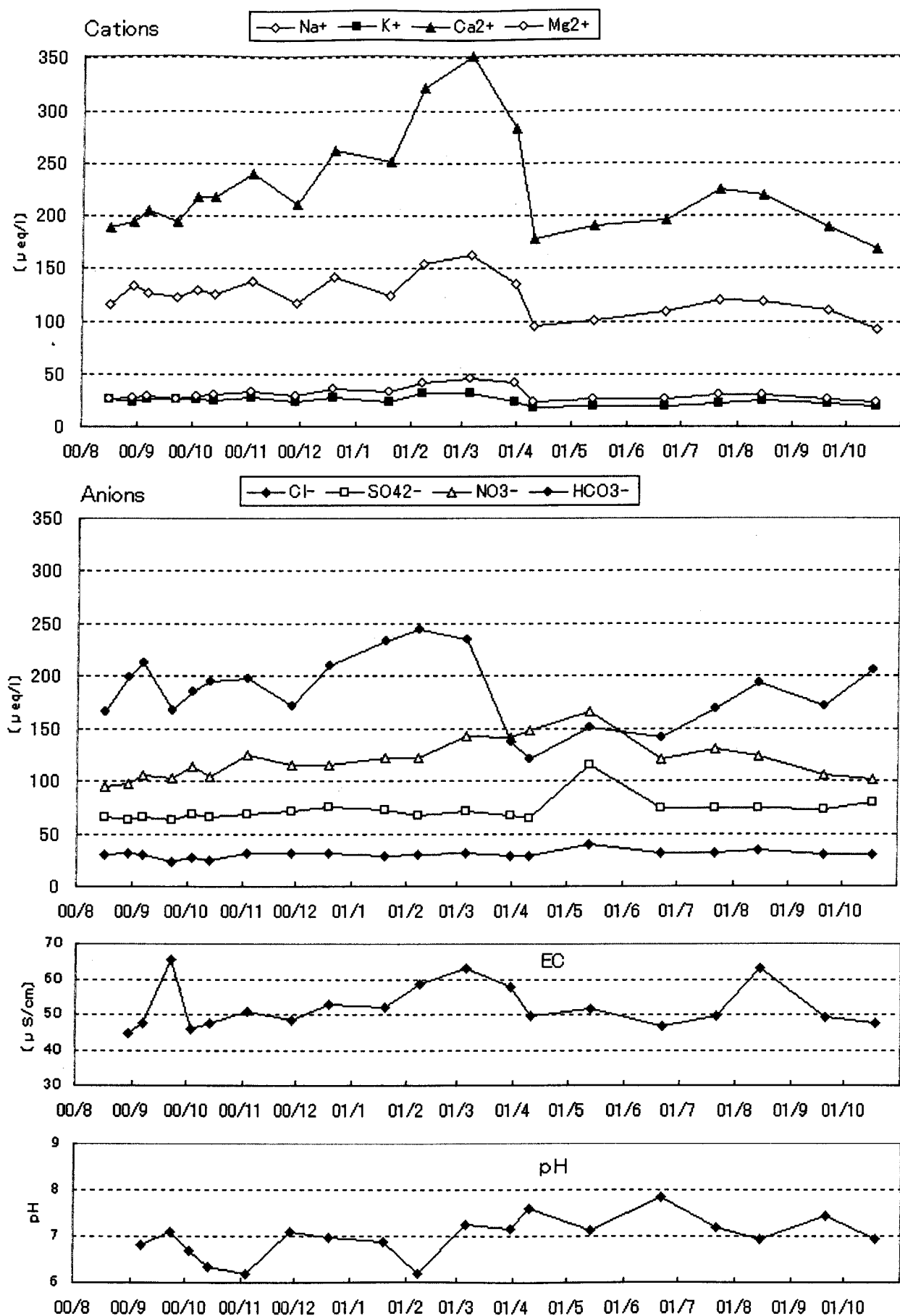


図3 地下水（井戸 No1）における水質の経時変化

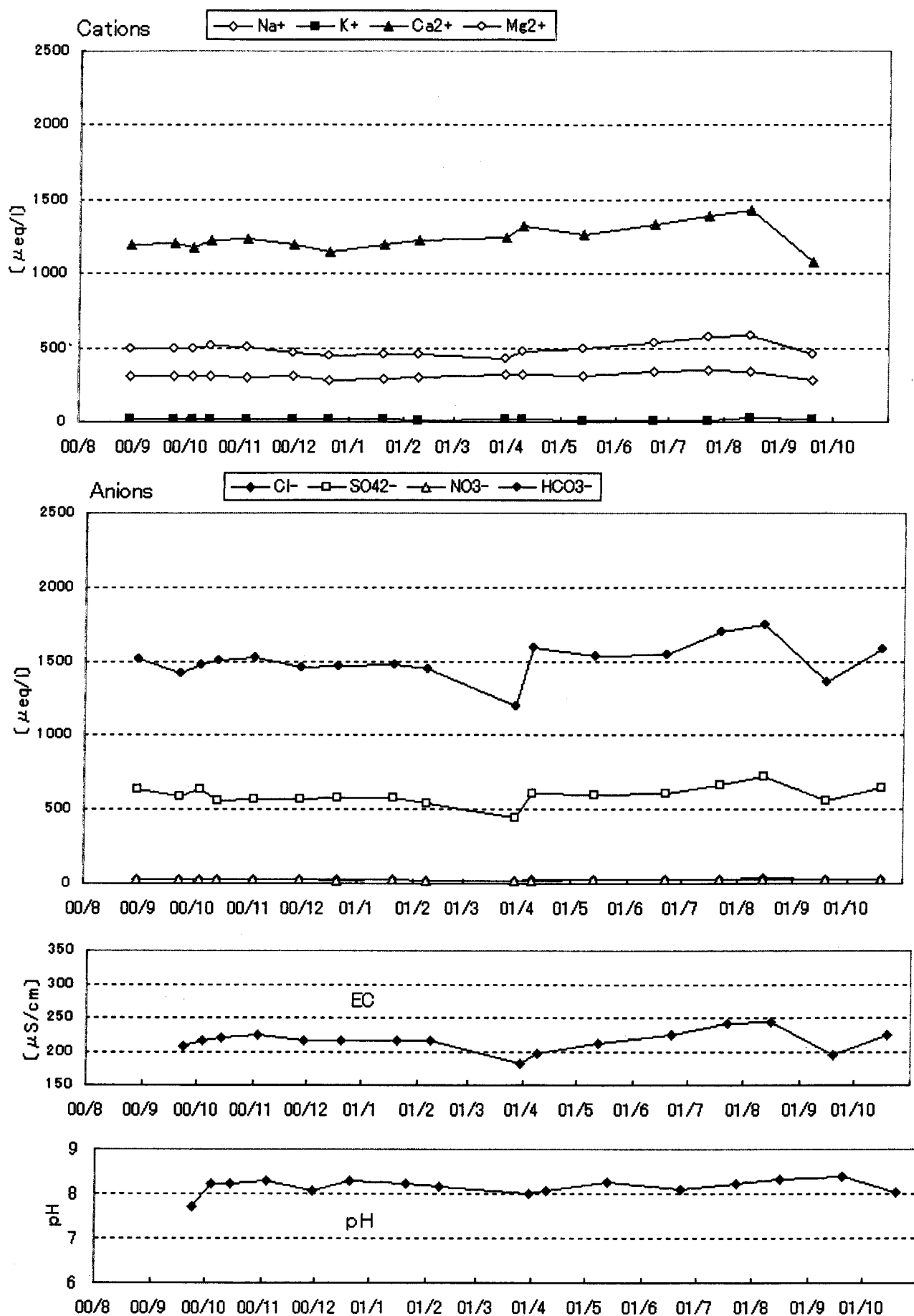


図4 五色沢 (GSb) における水質の経時変化

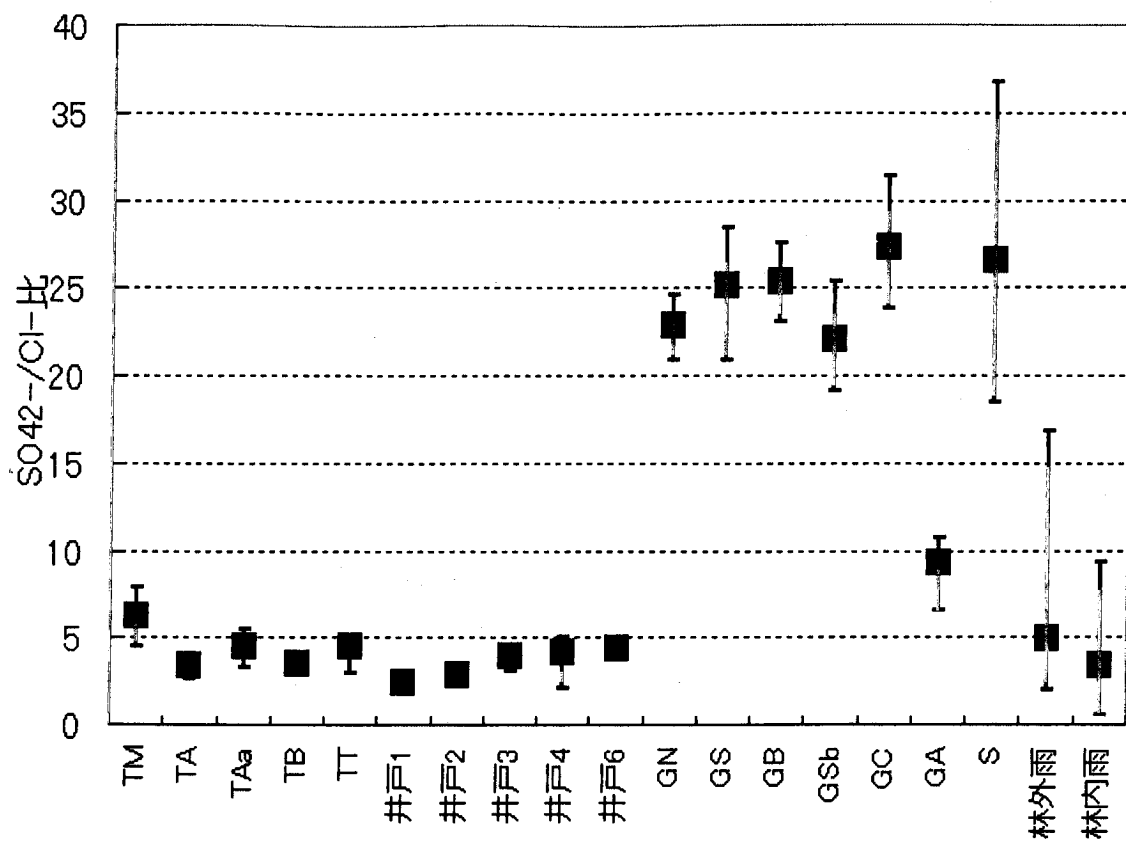


図5 各調査地におけるSO42-/Cl-比 (当量比)

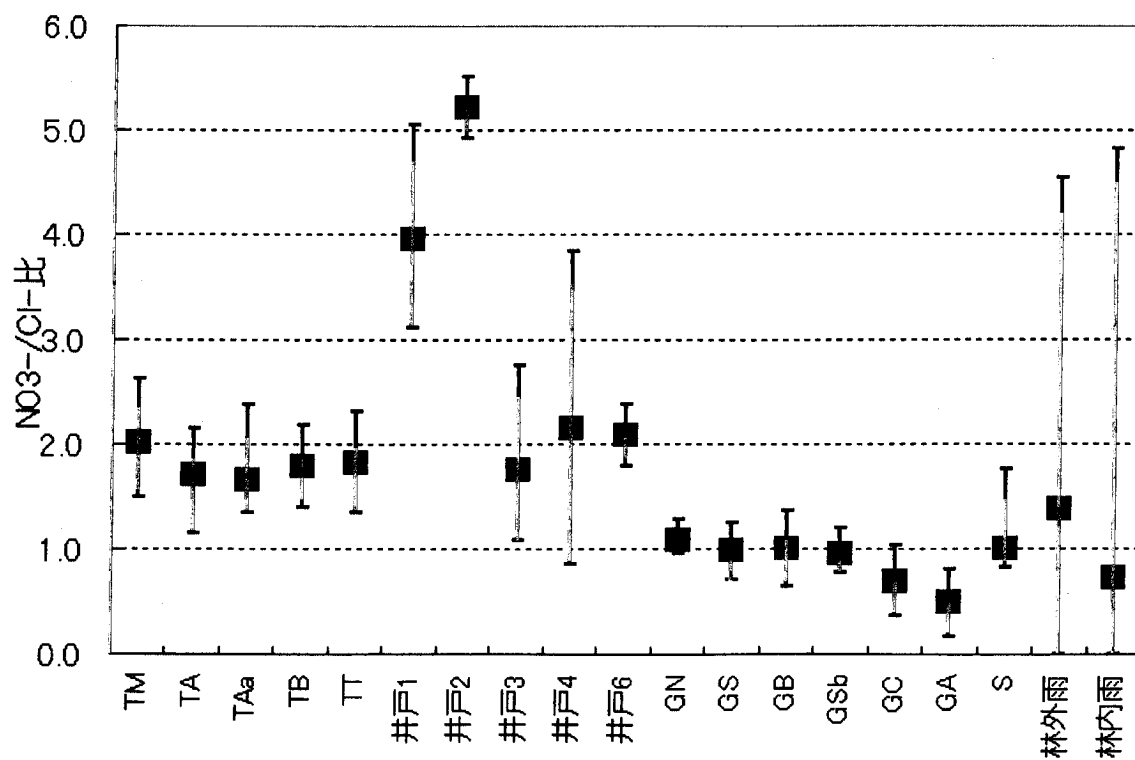


図6 各調査地におけるNO3-/Cl-比 (当量比)

表1 化学組成表 (重量%)

採取場所		Na ₂ O	Al ₂ O ₃	SiO ₂	P ₂ O ₅ (wt%)	CaO	K ₂ O	TiO ₂	MnO	Fe ₂ O ₃	MgO	WPI
岩石												
TMUA	最上流部	3.72	17.78	69.66	0.15	2.54	3.73	0.10	0.06	1.39	0.87	11
TMUB	最上流部	3.83	18.05	69.39	0.15	2.53	3.70	0.11	0.06	1.38	0.80	11
TMA	上流部	2.65	17.24	71.41	0.14	2.37	3.92	0.11	0.04	1.37	0.75	10
TMB	上流部	3.36	17.40	69.59	0.15	2.87	3.97	0.15	0.04	1.75	0.71	11
TAA	東側支流	3.41	18.24	69.19	0.15	2.74	3.67	0.12	0.02	1.78	0.68	11
TAB	東側支流	3.38	18.26	69.18	0.15	2.73	3.55	0.14	0.03	1.91	0.68	11
TBU	西側支流	4.00	17.88	68.75	0.15	2.86	3.71	0.12	0.08	1.56	0.88	12
GT	最上流部	2.83	19.50	70.92	0.12	1.90	2.71	0.10	0.04	1.23	0.65	8
GBN	中流域北側	3.10	20.46	58.22	0.15	5.40	1.70	0.59	0.14	6.77	3.48	18
GBS	中流域南側	3.19	19.19	70.28	0.12	2.12	2.71	0.12	0.04	1.47	0.75	9
GD	下流部	3.16	17.97	70.74	0.15	2.32	3.32	0.11	0.04	1.49	0.70	10
土壌												
TU	5-8	2.17	19.18	65.16	0.15	3.38	2.66	0.42	0.09	4.68	2.10	
TU	8-17	2.48	18.29	64.59	0.15	3.18	2.57	0.44	0.12	5.95	2.22	
TU	17-	2.51	18.41	63.98	0.15	3.32	2.60	0.44	0.13	6.05	2.40	
TDA	0-16	2.13	25.13	58.59	0.16	3.80	1.42	0.54	0.15	5.92	2.15	
TDA	16-40	1.58	14.26	47.65	0.15	5.18	0.16	1.12	0.51	19.99	9.39	
TDB	0-22	2.21	23.70	59.35	0.16	3.67	1.49	0.62	0.10	6.41	2.29	
TDC	0-25	3.43	21.11	63.58	0.15	3.44	2.65	0.29	0.16	3.63	1.55	

表2 外山沢土壌の化学組成

採取地点	深度 (cm)	含水率 (%)	EC (μ S/cm)	pH	CEC (cmol/kg)
TU	0-5	36	46.2	4.63	17
TU	5-8	71	34.0	4.80	2
TU	8-17	55	22.1	4.89	17
TU	17-	81	22.2	4.80	10
TDA	0-16	43	23.7	4.96	28
TDA	16-40	19	6.7	6.17	34
TDB	0-22	46	8.5	5.09	28
TDC	0-25	27	18.8	5.24	33

注) 水抽出液は
土:水 = 1:2.5
土:水 = 1:5
土:水 = 1:10 での抽出

採取地点	深度 (cm)	水溶性イオン							
		NH ₄ ⁺	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ⁻	NO ₃ ⁻
TU	0-5	0.031	0.023	0.046	0.110	0.022	0.023	0.046	0.093
TU	5-8	0.016	0.077	0.067	0.171	0.039	0.053	0.126	0.135
TU	8-17	0.012	0.034	0.022	0.067	0.018	0.020	0.062	0.057
TU	17-	0.038	0.245	0.143	0.326	0.115	0.058	0.454	0.295
TDA	0-16	0.012	0.022	0.033	0.072	0.014	0.005	0.013	0.094
TDA	16-40	0.002	0.017	0.006	0.011	0.002	0.002	0.005	0.004
TDB	0-22	0.008	0.019	0.018	0.041	0.012	0.004	0.030	0.059
TDC	0-25	0.003	0.015	0.022	0.045	0.009	0.007	0.010	0.050

4. 本研究により得られた成果

奥日光地域の外山沢と五色沢では以下のような特徴が見られた。

外山沢でのイオン成分の挙動は一般に山岳河川に見られる、融雪期での希釈による濃度減少、多雨時における濃度減少という特徴を示した。

また、この流域では降水との $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ (当量比) の比較や地下水の濃度から流域に NO_3^- が蓄積している事が考えられ、窒素飽和の可能性が示唆された。

約 20 年前の $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ 比と $\text{NO}_3^-/\text{Cl}^-$ 比 (当量比) のデータと比較した結果、外山沢では SO_4^{2-} 、 NO_3^- とともに流域に蓄積している事が示唆された。

五色沢では SO_4^{2-} 濃度に特徴が見られた。降水との $\text{SO}_4^{2-}/\text{Cl}^-$ (当量比) の比較や一般の山岳河川に比べイオン濃度が高いことから、五色沢での SO_4^{2-} は地下での火山活動の影響による添加であると推測された。

5. 引用文献

- 飯田俊彰、上木勝司、塚原初男 (1998) 多雪山地小流域における陰イオンの収支解析. 農業土木学会論文集、No195、77-84.
- 伊豆田猛 (2001) 森林生態系における窒素飽和とその樹木に対する影響. 大気環境学会誌、第 36 号第 1 号、A1-A13.
- 国立環境研究所 (1993) 奥日光地域の環境と生物—奥日光環境観測所試料(1988-1990)—. pp157 国立環境研究所.
- 小林純、森井ふじ、徳井利信 (1985) 奥日光における陸水の水質. 陸水学雑誌、第 46 巻 1 号、25-31.
- 桜井哲郎、福島和夫、山田哲雄 (1998) 北アルプス東麓河川水の水質特性と地質環境. 陸水学雑誌、59 巻 1 号、87-100.
- 谷本丈夫、劉岩、郷道知佳、大久保達弘、二瓶幸志 (1996) 奥日光・足尾・赤城山地における森林衰退と立地環境. 森林立地学会誌、38 (1)、1-12.
- 畠山史郎、村野健太郎 (1995) 奥日光前白根山における高濃度オゾンの観測. 大気環境学会誌、31 (2)、106-110.
- 畠山史郎 (1999) 奥日光地域における森林衰退と酸性降下物・酸性化大気汚染物質. 環境科学会誌、12 (2)、227-232.
- 村上敬吾、笹沼治雄、小山次朗、小林紀男、平山光衛 (1987) 中禅寺湖流域における陸水の水質形成について. 陸水学雑誌、第 48 巻 4 号、295-306.
- 吉村信吉 (1931) 日本の湖水の化学成分 I. 総論. 陸水学雑誌、第 1 巻、25-31.

[国際共同研究等の状況]

特記事項なし。

[研究成果の発表状況]

(1) 発表(学術雑誌)

なし

(2) 口頭発表

①横山英也、飯泉佳子、小倉紀雄（2001. 10）奥日光地域河川における水質の経時変化、陸水学会第66大会

(3) 出願特許

なし

(4) 受賞等

なし

(5) 一般への公表・報道等

なし

(6) その他成果の普及、政策的な寄与・貢献について

特記事項なし