

C-2 酸性汚染物質の陸水の水質と生物に与える影響の実態解明に関する研究

(1) 酸性汚染物質の溪流河川水の水質に与える影響の実態解明

独立行政法人国立環境研究所

大気圏環境研究領域 酸性雨研究チーム

佐竹研一

水圏環境研究領域 土壌環境研究室

高松武次郎・越川昌美

生物圏環境研究領域 生態系機構研究室

野原精一

東京農工大学農学部

楊宗興

北海道大学北方生物圏フィールド科学センター

柴田英昭

財団法人日本環境衛生センター酸性雨研究センター

小林洋康

平成14～16年度合計予算額（予定） 55,611千円

（うち、平成16年度予算額 17,253千円）

[要旨]

新潟県三面川水系で酸性雨（pH5.03）の降下時に連続的に採水し、その化学成分を調べた結果、渓流水はpH7.2から6.5に下がった地点や7.3から7.0に下がった地点があった。前者は花崗岩質の基盤岩石の溪流であった。

三面川の人工飼育のサケ稚魚はC-18%、N-13%であり、人工飼料はC-18%、N-9%であった。約2万匹のサケの遡上によって三面川流域にもたらされているK、Na、Fe、P、Caは、261、49、0.37、179、10 kg/年と推定された。

一方酸性化に伴って溶出し三面川に棲息するサケ科魚類2種（ニッコウイワナ、ヤマメ）に影響を与える可能性のあるAlの濃度は、全溶存Al、イオン性Al、有機・無機錯体Alの平均が最も高かった。一方、コロイド状Alは低かった。各態Alは $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ やpHとほとんど相関を示さなかった。

三面川地域に比較し、過去に酸性汚染物質が最も多く負荷されてきた関東山地では、渓流水の NO_3^- 濃度の高い流域では、根の吸収を免れて土壌深部にまで窒素が溶脱している状況が土壌中の NO_3^- の鉛直分布から明らかになった。特に溪流の NO_3^- 濃度が高い森林集水域の土壌では、窒素飽和と呼べる状況が生じていることが実証された。ただし、丘陵部の集水域では、脱窒によって NO_3^- 除去が行われていた。

酸性汚染物質の負荷は比較的少ない北海道北部の森林流域においては、森林流域において、約50 kgN/ha/yの NH_4NO_3 を実験的に散布し、土壌中の窒素動態、河川水質の変化を観測したところ、散布直後は河川水の硝酸濃度に著しい上昇が認められたものの、その後濃度は低下し、夏季から秋季にかけては対照流域と同様な濃度レベルまで低下した。流域の年間窒素収支を解析すると、実験的に散布した窒素の約90%は森林流域内に保持され、約10%のみが河川へと溶脱していた。

[キーワード] 酸性雨、三面川、酸中和能、窒素飽和、魚類

1. はじめに

人間活動の活発化に伴う大気への酸性物質の排出増加は、大気中の酸性汚染物質の濃度を上昇させており、その沈着による森林生態系や陸水生態系への悪影響が懸念されている。特に、北東アジア地域においては今後数10年間にわたって、中国大陸を中心とした窒素や硫黄の排出増加が予測されており、冬季、季節風の風下に位置する我が国の森林生態系への影響が心配されている。一方、近年、陸水の酸性化がもたらす問題として、pH 6台の微酸性環境下でサケ科魚類の産卵行動が抑制されることが明らかになり、実際の河川で影響が出ているか否かの早急な調査が求められている。また、都市近郊山岳地帯は既に窒素飽和の状態に達していて、森林の富栄養化が進行していることも確認されており、森林生態系への影響のみならず、飲料水源として需要が増大しつつある河川水や湧水の水質悪化も心配されている。我が国の酸性雨は現在も平均4.7程度で推移しており、一向に改善の兆しが見られない。このような状況下、上の懸念はますます現実的なものとなりつつある。

そこで、本研究では、酸性汚染物質の影響実態を解明するために、調査対象地域に、新潟県三面川水系（サケが回帰する河川で、花崗岩地質のために酸緩衝能が低く、かつ越境大気汚染の影響を受ける河川）、北海道北部の朱鞠内湖流域（冷涼で、北欧の酸性化顕在地域と類似した地域）、及び関東山岳水系（富栄養化地域）を、また対照地域に我が国で酸性汚染物質の負荷量が最も少ない屋久島を選定し、各地域で、溪流河川の各種溶存イオン、Alの形態分布、酸素・窒素安定同位体比、段階別酸中和能などの化学特性を空間的・時系列的に追跡するとともに、水生生物（主に魚）の分布調査や窒素安定同位対比の分析なども行って、水質と生態系の現状を解析した。

また我が国では国内で排出される窒素酸化物等の酸性汚染物質のみならず中国大陸や朝鮮半島起源の酸性汚染物質の生態系への影響が、特に酸中和能の乏しい溪流河川への影響が懸念されている。そこで、源流部に花崗岩地帯が広がり、且つ溪流河川に含まれるカルシウム濃度が国内の一般河川よりも低く、酸中和能の乏しいことが予測される新潟県北部の三面川（みおもて川）集水域を対象とし、酸性大気汚染物質がどこから飛来して来るのか、そしてその飛来は歴史的に見てどのように変化しているのかを解明することを主な目的として、①入皮（いりかわ）試料を用いた大気汚染の時系列変化の解明、②鉛安定同位体比の質量測定による大気汚染起源の確定について研究を行った。

2. 研究目的

新潟県三面川水系、西関東水系、北海道北部水系を対象にして以下点を明らかにすることを目的とした。

(1) 汚染物質の溪流河川水の水質に与える影響の実態解明：まず、対照（北海道）、微汚染（三面川水系、朱鞠内湖流域）、及び汚染（関東山岳水系）地域の溪流水質（pH; NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、Ca、Mgなどのイオン；各態Al；酸中和能；酸素・窒素同位体比など）を分析する。次に、降水や降雪によってもたらされた酸性汚染物質が森林、土壌層、基盤岩石などを経由して溪流にいたる過程での水質変化（汚染物質の消長）を地域別に明らかにして相互比較する。最終的に、調査水系を酸性化の危惧度によって分類し、その危惧度別に見た溪流河川水の水質の特徴とその地域、地質、その他環境因子との関連を明らかにする。

(2) 積雪地域の溪流河川における水質の自動連続モニタリング手法の確立を目的として、三面

川水系5箇所市販のメモリ機能付自動連続水質モニタリング装置を設置し、溪流河川水質の連続モニタリングを行い、装置の評価および得られたデータの解析を行う。

(2) 溪流河川の水質の魚類の分布行動に与える影響の実態解明

溪流河川において酸性雨やそれに連動した水質変化が魚類の分布行動にどのような影響を与えているかを明らかにするために、実際の河川で、サケ科魚類の体液イオン組成、内分泌系、及び行動学的変化を指標にした影響評価を実施する。具体的には、三面川でサケ科魚類の産卵行動や稚魚・成魚の分布に関する調査を行うとともに、採取した魚類試料の生化学的分析を行って、北関東鬼怒川水系の結果と比較する。また、(1)と協力して酸性化危惧度短期評価(酸性汚染物質による水質の短期変動が魚類に与える影響の評価)手法を確立する。

3. 研究方法

三面川は流域面積664.3 km²、流路延長50 kmの二級河川である(図1)。本研究では、まず広域での水質を把握するため2002年7月に57地点で採水を行い(図2)、次に魚類相・生物相と水質の関係を見るために16地点(F1~16)で調査を継続的に行った。一方、降水に伴う溪流河川の水質の変化を明らかにするため、自動採水器(Isco, Model 3700)で3~4時間毎に自動採水を行って水質の連続測定を行った。連続測定のための水のサンプリング地点は、地質条件の大きく異なる花崗岩質のミヨド沢(F2)と玄武岩質や安山岩質の石黒沢(F3)を選び2003年5月に行った(図2)。

調査は各採水地の現場でpH(堀場, D-24)、電気伝導度(堀場, D-24)及び水温を測定した後、250 mlポリプロピレンの容器に満水にして採水した後冷蔵して実験室まで輸送した。採水した水は全炭酸(TIC)(島津, TOC5000A)を分析した後、GF/Fガラスフィルター(ワットマン)でろ過し、栄養塩類(硝酸、亜硝酸、アンモニア、リン酸態リン)をオートアナライザー(ブランルーベ, TRAACS2000)で分析、イオンクロマト(東亜DKK, I A100)、溶存有機炭素(DOC)(島津, TOC5000A)、FeやリンをICP(日本ジャーレルアッシュ社, ICP750)でそれぞれ分析した。

三面川では、現地の状況に応じて投網・たも網・小型定置網を適宜使用して、魚類の採捕を行った。河川の魚類の採集を2002年10月に16地点(F1~16、図1)で行い、捕獲サンプルについては地点毎に属レベル以下の種の同定とそれらの分類群ごとに選別・分類・同定分析を行った。また、代表的な魚種・個体については写真撮影を行った。採取魚類サンプルは、各地点毎にイワナ・ヤマメ・その他とした。サンプル数は計20検体以上となるよう採捕に努めた。サンプルはビニール袋に入れて、宅配便にて実験室まで冷凍輸送した。レッドリスト等に掲載されている希少種は地点確認と撮影のみで放流した。

2002年10月に三面川の一括採捕地で捕獲された親個体(雄10個体、雌10個体)を漁業組合から購入し、サケの体長と体重との関係を求めた。同様に捕獲された個体から人工授精して発生した発眼卵を購入し発眼卵の重量を測定した。2002年に回帰した個体から生まれた稚魚を同漁業組合から購入して体長、個体重を測定した後、粉碎してサケの稚魚とその餌の炭素と窒素の安定同位体比(Finnigan, MAT-252)を測定した。

Alの分析試料はポリ瓶に直接採取し、冷暗所(4℃)に保管して実験室に持ち帰った後、孔径0.4 μmのNucleporeフィルターで濾過した。濾過水中の溶存Alは、ルモガリオン法¹⁾でイオン性Al(Al³⁺ + Al(OH)²⁺ + Al(OH)₂⁺ + Al(OH)₃⁰ + Al(OH)₄⁻)と有機・無機錯体Al(Al-L_x^{±+2}; Lは有機酸, Fなど)

の合計を、HPLC法²⁾で有機・無機錯体Alのみを、また、ICP-MS法で全溶存Al（イオン性Al + 有機・無機錯体Al + コロイド状Al）を分析し、それらの結果から、イオン性Al、有機・無機錯体Al、及びコロイド状Alの濃度を求めた。pHはガラス電極法で、NO₃⁻及びSO₄²⁻濃度はイオンクロマトグラフ法で、Na濃度はICP-AES法で測定した。

4. 結果・考察

(1)-1 三面川の水質

連続観測（2003年10月）の結果を図（3, 4, 5）に示した。雨の降り始めの10月29日昼から4時間毎に採水を始め、雨が降り出した。10月30日朝にはほぼ小康状態となり、11月2日に採水を完了した。降水の前のF2河川pHは6.9であったが、降水に伴ってそのpHは6.2以下に急激に下がった。同様に河川F3でも平水時にはpH7.3であったが、降水に伴って河川のpHは少し低下（6.46）し、回復も早かった。全炭酸（TIC）はF2では降水前に3.1ppmあったが、降水と共に低下して1/2程度になったが、F3では4.5ppmから3ppmへの低下であった。F2ではの降水時に河川の塩素イオンの1.5倍程度の上昇があり、F3では2倍の上昇があった。CaイオンがF3で降水時に低下したが、他のイオン成分は大きな変動は見られなかった。硝酸・亜硝酸は降水時に上昇して1.7倍になって直ぐに通常のレベルに戻った。電気伝導度は降水時にF2で上昇したが、F3では逆に減少した。調査対象とした溪流において酸性雨によって一時的にpHが低下、全炭酸濃度の低下、塩素イオンや硝酸の濃度の上昇が起こることを示していた。特に、花崗岩質であるF2地点ではサケ科魚類の繁殖行動に影響する程度のpH低下が見いだされ降雨の終了後も低いpH状態がしばらく続いた。

主要な陽イオンはNa, Ca, MgでKは少ない。平均するとK, Na, Ca, Mgは0.5, 4.9, 5.4, 1.6 ppmであった。主要な陰イオンはHCO₃, Cl, SO₄でそれぞれ平均17.3, 5.6, 4.4ppmあった。平均濃度はNO₃-N, NH₄-N, PO₄-Pはそれぞれ0.31, 0.012, 0.0036ppmであった。三面川の水質で示したように、溪流や河川はその地域の母岩や土壌、植生等を反映して独自のイオン組成、溶存有機物量を示している。特に酸性雨による花崗岩地域の河川の酸性化が一時的に起こることから、天然個体群は酸性化した河川を遡上せず海から河川流域への遡上移送が機能しないことが起こり得ると考えられる。サケの人工増殖事業の成功の一方で自然個体群が減少する懸念がある。たとえば、北欧や北米では1960～1970年代に酸性雨の影響が顕在化し、酸性化による鮭鱒類の稚魚の再生産の減少や融雪水や秋の長雨による魚類の死滅という現象が見られている（Leivestad et al, ²⁸⁾）。日本でも酸性雨が日常的に観測され、湖沼河川の酸性化は見られないものの、pH6.0台の微酸性下でサケ科魚類の産卵行動や母川回帰行動を抑制することが明らかになってきている（生田ら²⁰⁾）。0.01Nの硫酸を河川水に添加してどの程度酸性化するかを評価した（図8）。その段階別酸中和能をみると、三面川の溪流の殆どが危惧度1レベルで、中にはレベル2になった末沢川の事例があった。

(1)-2 三面川の魚類相

酸中和能に乏しい生態系である花崗岩質の基盤岩石を持つ三面川水系でサケ科魚類が分布しているか確認するために魚類相の調査をした。ヤマメ (*Oncorhynchus masou*, サクラマス) は下流域のF11, 12, 13, 15, 16の地点で捕獲され、ニッコウイワナ (*Salvelinus leucomaenis f. pluvius*) はF3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 11, 12, 13, 14, 15の主の上流域の地点で捕獲された。サケは一括採捕場を超えた遡上は確認できたものの調査地点では捕獲されなかった。魚類の地点別の出現種類数は0～11種で

あった。F16では今回の調査地点の中でもっとも多い11種が確認された。この地点では他の地点では出現していない回遊魚7種が出現していた。支川ではおよそ半数の8地点で2種以下であり、もっとも多くの種類が確認された綱木川でも6種であった。支川での出現種は主に上流域に生息する魚種に限定され、イワナ・カジカの2種に、ヤマメ・アブラハヤが加わるケースが多い。

2002年10月に三面川の一括採捕地で捕獲された親個体と2003年の放流個体のサケの体長と体重との関係を求めた。発眼卵は生重0.24g(乾重0.093g)から約半年で2.3倍の平均5.1cmの稚魚の個体重は1.2g生重(0.21g乾重)となった。平均4年後に回帰して50~80cmの体長になり体重も2~6kg生重(約5200倍)にもなって三面川へ戻ってきたことになる。

(1)-3 三面川のサケによる物質移動と生活史

三面川鮭産漁業組合の資料等によると三面川には明治初期には10万匹の漁獲があったが、徐々に減少して第二次世界大戦前後に最低の200匹程度に落ち込みその後増加して現在では1万匹のレベルにある。さけ・ます資源管理センターの統計によると平成13年度の漁獲量は沿岸で5507万匹、河川で365万匹あり河口域では約6%が捕獲されているにすぎない。最近の三面川には約2万匹の捕獲があり、増水の年には捕獲を免れた個体が半数あることもあるから(佐藤 私信)全国平均からすると日本の河川流域には最大に見積もって182万匹が河川に回帰していると推定される。捕獲されるサケの重量は全国平均3.6kgあることから、川で捕獲されているサケと同じ6552tが自然に回帰して物質を海から流域の自然にもたらしていると推定される。食品栄養成分表(科学技術庁資源調査会³⁾)によると生重100gのサケにはK, Na, P, Caがそれぞれ350, 66, 240, 14mg含まれているので、サケの遡上によって自然にもたらされているK, Na, P, Caは4332, 1247, 27569, 1838 t/年にもなる。約2万匹のサケの遡上によって三面川流域にもたらされているK, Na, P, Caは同様に、261, 49, 179, 10 kg/年と推定される。三面川の正確な流量を筆者らは把握できていないが、日本海側の北陸の一級河川の流量年表データを使って回帰分析し、流域面積から年間流量を推定すると、三面川河口では30年平均で $1571 \times 10^6 \text{ m}^3$ の水が海へ供給されていると推定される。今回測定した平均濃度はK, Na, P, Caはそれぞれ0.5, 4.9, 5.4, 0.0036, 1.6 mg l^{-1} であるから、K, Na, P, Caは786, 7700, 5.7, 2500 t/年供給されている。したがって流下移送に対して遡上移送として全流出量の0.03, 0.00064, 3.1, 0.0004%がサケによってもたらされていると考えられる。K, Na, Caの戻ってくる量は圧倒的に少ないがリンは3.1%もあるから三面川のような貧栄養な環境において無視できない量であろう。沿岸で94%、河口で6%のサケが人間によって全く捕獲されなかったとすれば三面川からの全流出量の52%のリンが本来の自然には回帰していたと考えることもできる。

産卵は、秋から翌年の1月末ごろまで行われる。ペアとなった雌雄のサケによる巣作りが始まり、雌が産卵床になる穴を掘り、雄はほかの雄が近づくのを防ぎ放卵・放精・受精が行われる(図6)。産卵が終ると、雌は卵を外敵から守るために穴を砂利で覆う。産卵される卵は、1尾当たり約3,000粒である。産卵行動が3~5日にわたって行われ、サケは数日間、産卵床を守るが、やがて力つき雄も死亡する。人間による捕獲が無ければ、海洋で育ったサケの体が河川流域に回帰して流域の動植物や微生物の栄養となる。物理的な河川の流れが森林から海に行く(流下移送)のに対して生物による海から森林への物質の循環(遡上移送)がかつては営まれていたわけである。

一括採捕をくぐり抜けて自然産卵した自然個体群と一括採捕の人工個体群の稚魚を見分けるた

めに炭素窒素の安定同位体比から区別できるか検討した（図7）。一般に海洋の炭素窒素と陸域の炭素窒素の安定同位体比は異なる。またサケは炭素-20‰窒素-10‰の同位体比を持つ。三面川の人工飼育のサケ稚魚はC-18‰、N-13‰であり、人工飼料はC -18‰、N -9‰であった。一般に淡水の湖沼の魚類の同位体比は窒素の同位体比が重いから、水生昆虫や陸上性昆虫などの自然の餌にしている所以他们らは図の右上がりの直線に位置し、人工飼料で育てられているサケ稚魚と異なる同位体組成となっている。今後、野外で人工飼育のサケ放流前後でサケの稚魚を捕獲し、その同位体比組成を調べることによって自然個体群の割合を示すことができると予想される。

(2) 三面川水系中のアルミニウム

Alの濃度と形態別分布は、地点間の変化の方が、季節や気象状況による変化より大きかったため、異なる時期に観測した4水系のデータを比較しても差し支えないと考えられる。表に、各水系における各態Alの平均を、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- と SO_4^{2-} の和、pH、Naとともに示した。 NO_3^- の平均は筑波山水系で最も高く、 SO_4^{2-} の平均は多摩川水系で最も高かった。 $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ の平均から、大気汚染は、筑波山水系と多摩川水系で激しく、泥川で少ないことがわかる。しかし、pHは筑波山水系（ 7.0 ± 0.3 ）と多摩川水系（ 7.3 ± 0.5 ）でともに中性であった。三面川水系では、全溶存Al、イオン性Al、有機・無機錯体Alの平均が最も高かった。一方、コロイド状Alの平均は多摩川水系で最も高く、三面川水系で最も低かった。各態Alは $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ やpHとほとんど相関を示さないことが明らかとなった。今回の溪流調査において、大気汚染の影響は、高い $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ として観測されたが、低いpHあるいは高いAl濃度として観測されることはなかった。しかし、集水域における大気汚染物質の蓄積が進行すると、溪流のpH低下やAl濃度上昇が起こることが懸念されるため、今後さらに経年変化を観測する必要がある。

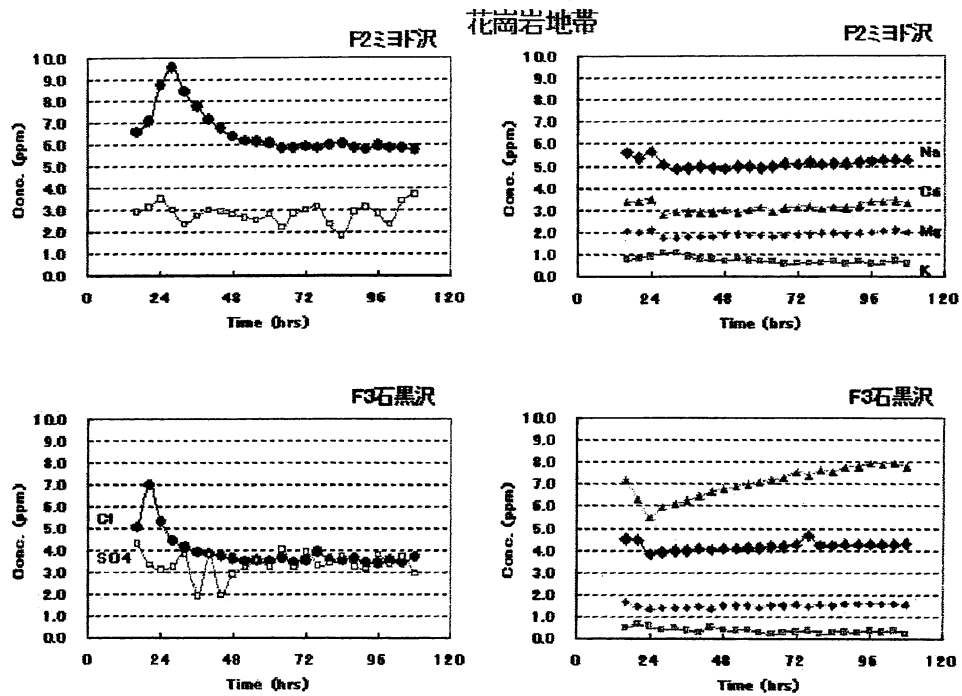


図3 三面川水系の溪流河川の陽イオンと陰イオン (2003年10月)

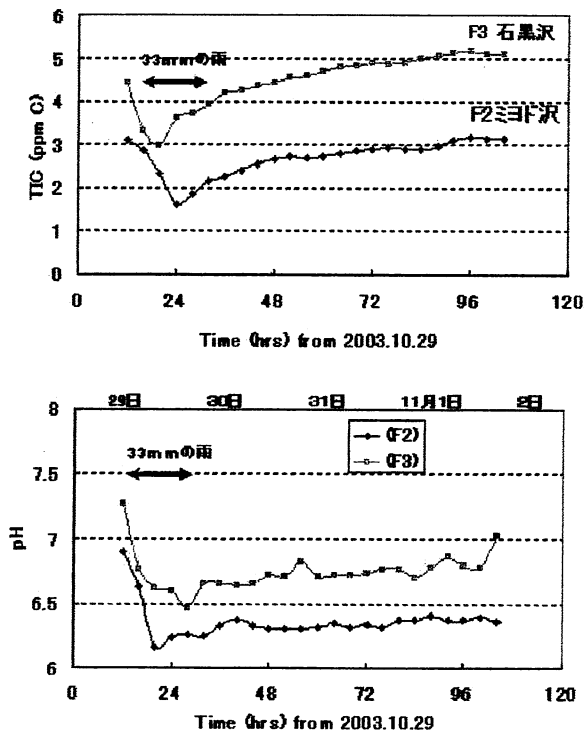


図4 三面川水系の溪流河川のpHと全炭酸の時間変化 (2003年10月)

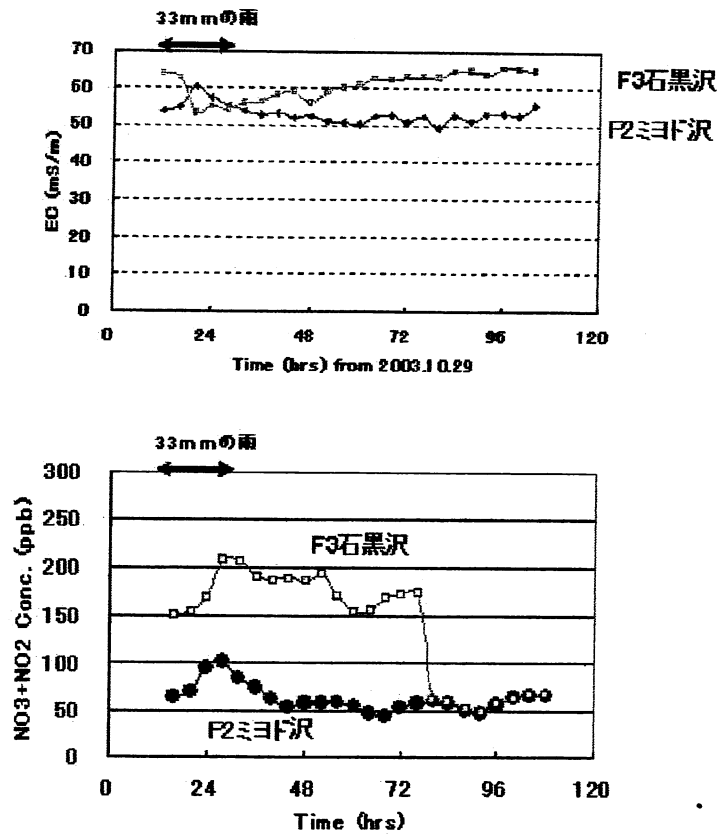


図5 三面川水系の溪流河川の電気伝導度 (EC) と硝酸・亜硝酸濃度の時間変化 (2003年10月)

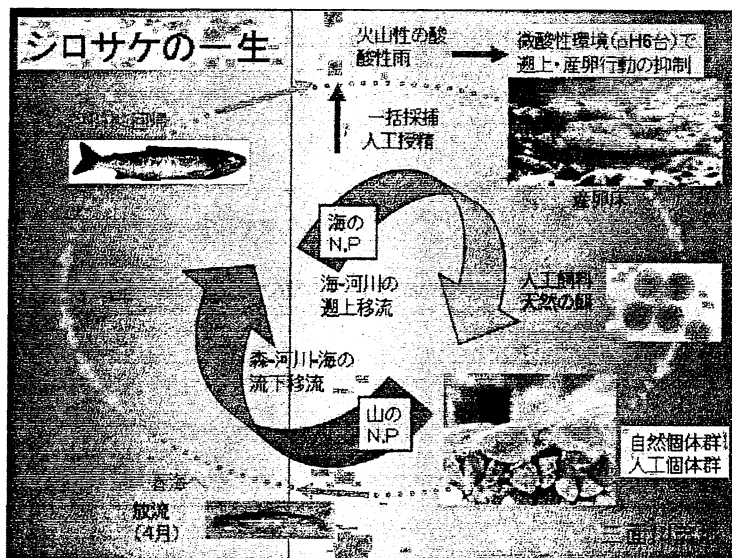


図6 サケの生活史

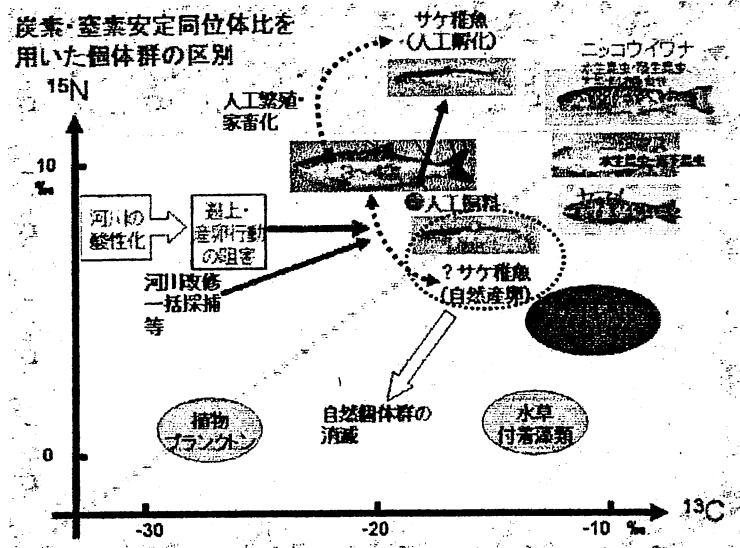


図7 サケの親個体・稚魚・餌の炭素窒素の安定同位体比

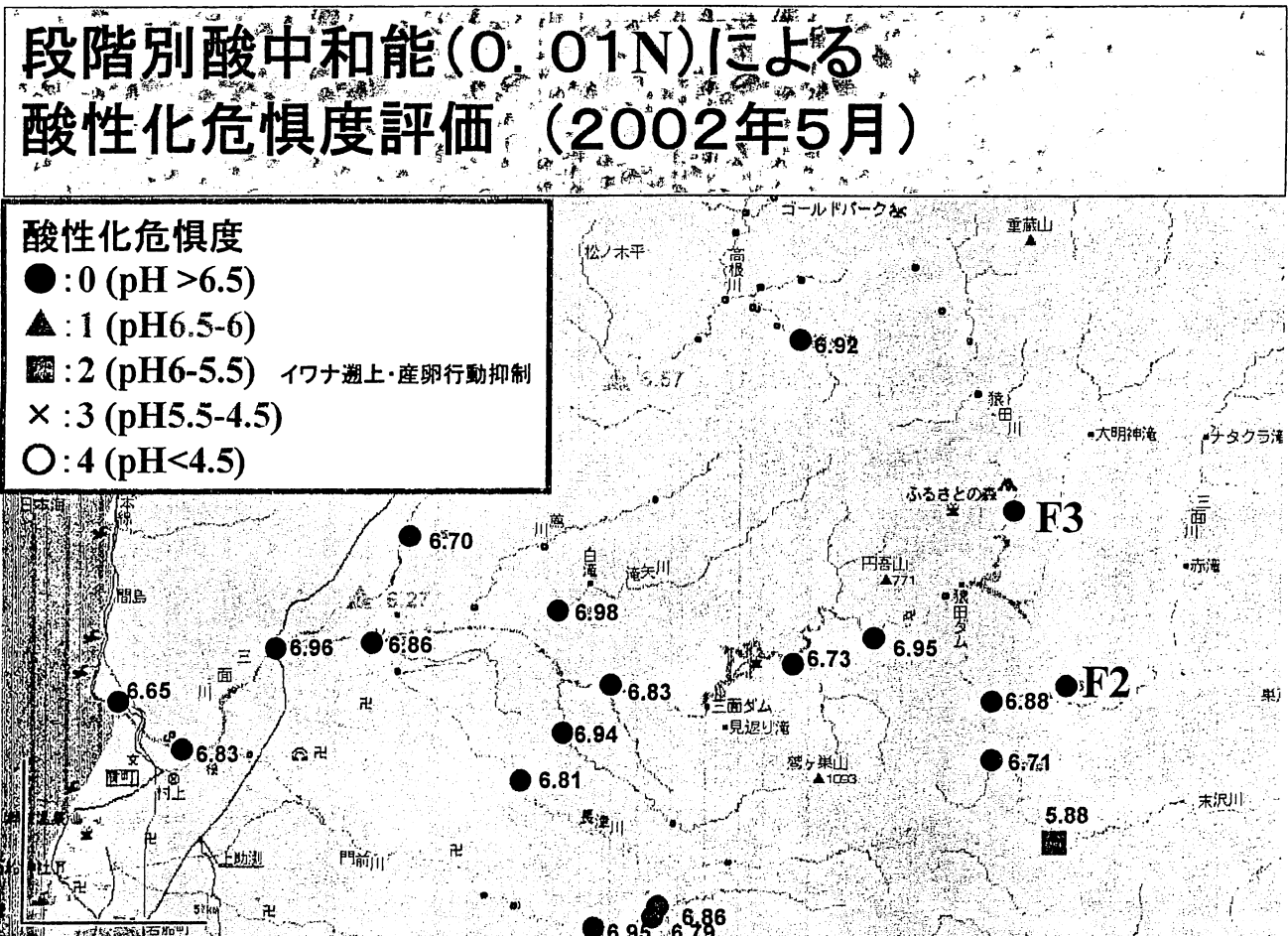


図8 段階別酸中和能による酸性化危惧度評価

(3) 三面川における自動連続水質モニタリング装置設置地点の水質基礎データについて

(3)-1 調査地点の水質データ

自動連続水質モニタリング装置メンテナンス時に採水した河川水のpH, EC, アルカリ度, イオン成分濃度を分析した結果（全期間の平均値、ただしイオン成分濃度は平成16年度の平均値）を表1に示す。平均値としては、pHは全河川とも7付近であり、ECについては、5~8mS/mの範囲内であった。アルカリ度については、飯田沢が最も低い値を示しており0.099meq/Lであり、それ以外の河川は0.2~0.3meq/Lの範囲内であった。平成16年6月に公表された環境省酸性雨対策調査総合とりまとめ報告書では、ECが10mS/m以下でアルカリ度が0.2meq/L以下の湖沼や河川は、酸性雨に対して感受性が高いとされており、花崗岩地域でもあることから、三面川水系は酸性雨に対する感受性が、比較的高い水系であると考えられた。

表1. 調査地点の水質データ

	茎太川	滝矢川	水明橋	飯田沢	平床谷
pH	7.19	7.18	6.97	6.71	7.25
EC(mS/m)	7.93	6.04	6.02	6.04	5.77
Alkalinity(meq/L)	0.309	0.239	0.219	0.099	0.263
Cl ⁻ (mg/L)	8.46	6.99	6.03	9.03	6.13
NO ₃ ⁻ (mg/L)	3.52	1.94	1.53	2.60	0.79
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	4.79	3.61	3.72	3.20	3.05
Na ⁺ (mg/L)	6.46	5.36	4.54	7.16	4.89
NH ₄ ⁺ (mg/L)	ND	ND	ND	ND	ND
K ⁺ (mg/L)	0.51	0.60	0.55	0.73	0.40
Mg ²⁺ (mg/L)	2.41	1.49	1.19	1.03	1.32
Ca ²⁺ (mg/L)	4.96	3.69	4.45	1.33	4.28

(3)-2 三面川水系のECとアルカリ度の相関

三面川水系5地点のECとアルカリ度の関係を図9に示す。ECとアルカリ度に正の相関が見られた。河川水中の溶存イオン量が低下するとアルカリ度が低くなり、酸緩衝能力が小さくなることを示した。

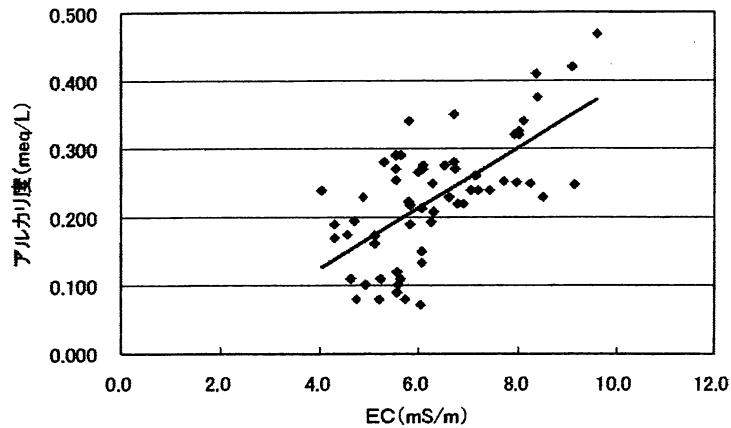


図9 ECとアルカリ度の関係

研究期間中における、アルカリ度の経時変化を図10に示す。夏期にアルカリ度が高く、冬期にアルカリ度が低くなるという季節的な傾向が見られた。冬期は夏季と比較して、酸緩衝能力が低くなることを示しており、酸性雨、雪などに対する感受性が高くなっていることが考えられた。

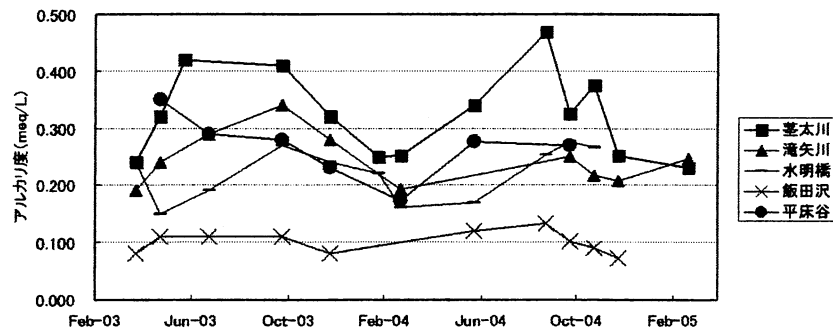


図10 研究期間中におけるアルカリ度の経時変化

(3)-3 自動連続水質モニタリング装置の評価

①長期連続モニタリング

研究期間中における、自動連続水質モニタリング測定データを、図3から図6に示す。

ECが0などの明らかに異常値と認められるデータについては棄却を行った。

欠測期間はあるものの、それぞれの河川における通年の連続したトレンドデータを取得することができた。それぞれ項目について、結果を以下に示す。

ア. pH (図11)

pHについては、当初、冬期後半から春先にかけての融雪期に低下傾向を示すと予想していたが、全体の傾向から、明確には確認されなかった。しかしながら、数日単位で見ると、年間を通じて微小なpHの低下が見られ、後に論ずるような、冬季の特徴的な変化も確認された。

イ. EC (図12)

全体的に変動幅が大きかった。砂礫の防止に対応したものの、メッシュ径以下の砂礫の混入によって、EC電極間距離の変化の可能性が考えられる。水明橋・平床谷においては、冬期にECが上昇している傾向が見られている。(1)③のアルカリ度の経時変化のデータから考えて、冬期に酸性汚染物質が河川に混入していることが考えられる。

ウ. DO (図13)

溶存酸素については、平均して10~15mg/Lであった。季節的な傾向はみられていない。指示値の変動が大きいところがあるが、要因は追求できなかった。

エ. 濁度

濁度については、1ヶ月のメンテナンスにおいても、河川の汚れや、水生藻類のセンサー部分への付着などにより長期的な連続測定ができなかった。日単位のセンサー部のクリーンアップなどが必要であることがわかった。

オ. 水深

水深については、溪流河川への設置ということで、水深が浅く、水位の変動が大きかったことにより、精度良く測定することができなかった。

カ. 水温 (図14)

水温については、季節的な温度変化を的確にとらえることができている。サーミスタ方式であるため、河川の汚れなどに対しては測定には支障がないことによるものであると考えられた。

(4) 西関東水系における窒素の動態

(4)-1 脱窒ゾーンの存在

多摩川流域の多数の溪流を調査した結果を述べるこれまでの調査と同様、NO₃⁻濃度は西方の山岳域では低く、東方の都心に近づくにつれ上昇する大きな地理的変動が示された。しかしながら、最も都心よりに位置する丘陵部は、逆にNO₃⁻濃度が低下するゾーンとなっていることが判明した。NO₃⁻/Cl⁻比の低下、SO₄²⁻の低下、Mn²⁺の検出、当該地域における脱窒についての過去の証拠から、この地域は、水文地形学的な理由によって還元域が発達し、NO₃⁻を除去する脱窒過程が広く行われていることが明らかとなった。これは溪流水のNO₃⁻濃度から流域の窒素過剰の程度を判断する場合に注意すべき一つの例外的ケースとなるものであり、これらの流域の森林はその濃度から推定される以上に窒素過剰と理解される。

(4)-2 土壌プロファイルの溪流NO₃⁻濃度レベルとの対応性

流域の窒素レベルとの対応性を確かめるため、関東、関西、北海道等広範囲の地域においてNO₃⁻の土壌プロファイルを調査した。その結果、渓流水のNO₃⁻が高濃度化していない森林（「低濃度地」）では、土壌のNO₃⁻は表層下で急減し、深層では検出限界以下となった（図15）。リター分解により放出された土壌無機態窒素が、植物根等により残らず吸収されている状況にあった。これに対し渓流水のNO₃⁻濃度の高い流域の土壌では、表層付近、吸収根の最大到達深度と考えられる1 m付近、それより深層のいずれにおいても、他に比べてNO₃⁻含有量が高いことが共通していた。吸収根の到達する深度を越えて高濃度のNO₃⁻が深部浸透している事実から、これらの森林で窒素が過剰化している状況にあることが実証された。中程度の濃度を示す流域の土壌では、NO₃⁻レベルが低い場合とやや高い場合が混在していた。このように、土壌のNO₃⁻の鉛直分布と渓流水により示される窒素レベルとの間に良好な対応性があることが明らかとなった。

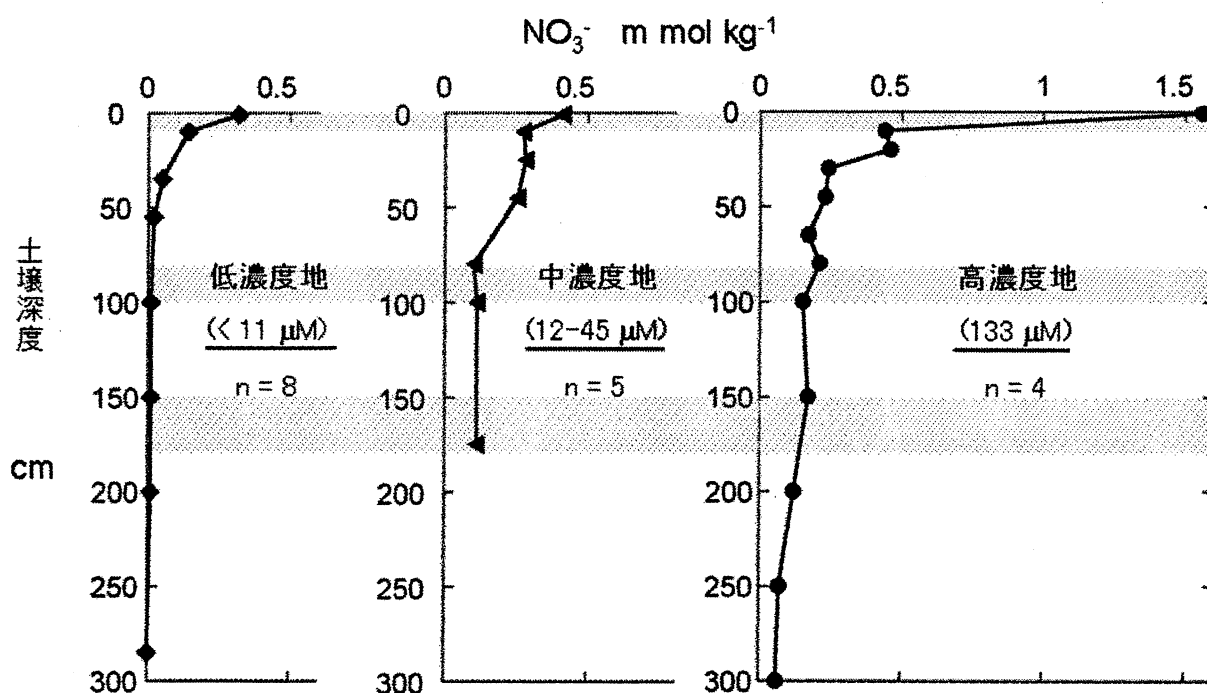


図15. 溪流NO₃⁻濃度の異なる森林集水域における土壌NO₃⁻含量の平均プロファイル
それぞれの測定数と渓流水のNO₃⁻濃度の範囲が図中に示されている。

(4)-3 土壤の酸性化の徴候

窒素飽和において多量の NO_3^- が生み出されると、 $\text{NH}_4^+ + 2\text{O}_2 \rightarrow \text{NO}_3^- + \text{H}_2\text{O} + 2\text{H}^+$ の反応によって H^+ も同時に生成する。したがって窒素の過剰化は、生態系酸性化の問題でもある。一般にプロトン H^+ は、土壤においてイオン交換作用により中和される。各地土壤中の水溶性 $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ 含量は水溶性 $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ 含量に対し電荷ベースではほぼ1:1の化学量論的關係を示し、この作用が行われていることが確認された。

ともに火山灰土壤である東京多摩および北海道東部の森林土壤を比較したところ、多摩では水溶性イオン濃度が北海道に比べてはるかに高く、さらには、多摩の土壤pH (H_2O) が全層で北海道より低いことがわかった(図16)。中和プロセスが十分進行していると思われる約3mの最深部のpHは、大気沈着の少ない対照地のpHが6.6であったのに対し、窒素飽和状況にある多摩では5.2~5.4の系統的違いを示した(表1)。このことより、酸性化が土壤深部にまで進行している徴候が示された。

(4)-4 渓流水水質に見られる酸性化の徴候

渓流水水質の地理的分布の調査から、pHの低下傾向が、都心側の NO_3^- 高濃度域において認められた(図17)。さらにこの地域に対応して、全陰イオンに占めるアルカリ度の割合も、低下の傾向が見出された(図18)。このアルカリ度の割合は、世界平均および国内の平均から、明らかに下回っていた。上述のように、イオン交換の結果として、それまで粘土鉱物などに保持されていた Ca^{2+} や Mg^{2+} の流亡が生ずる。渓流水水質には、 NO_3^- 濃度の増加とともに $\text{Ca}^{2+} + \text{Mg}^{2+}$ 濃度が上昇する関係が見られ、 NO_3^- が H^+ 供給源となることを通じて確かに Ca^{2+} や Mg^{2+} を流亡させている実態にあることが

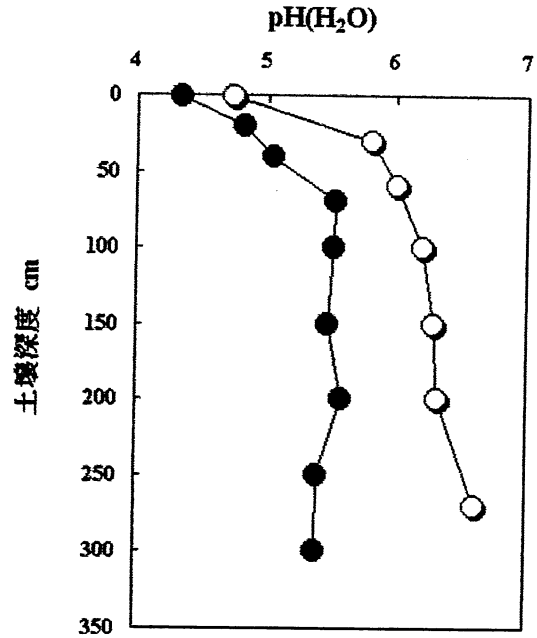


図16. 森林土壤のpH(H_2O)のプロファイル：
窒素飽和の状況にある森林（東京多摩丘陵，●）および対照地域（北海道阿寒，○）

表1. 窒素飽和地(n=4)および対照地(n=2)の森林土壤深部のpH(H_2O)と試料採取深度

			pH	土壤深度
窒素飽和	多摩	1	5.2	(310 cm)
		2	5.2	(350 cm)
		3	5.4	(300 cm)
		4	5.2	(300 cm)
対照地	北海道	1	6.6	(300 cm)
		2	6.6	(270 cm)

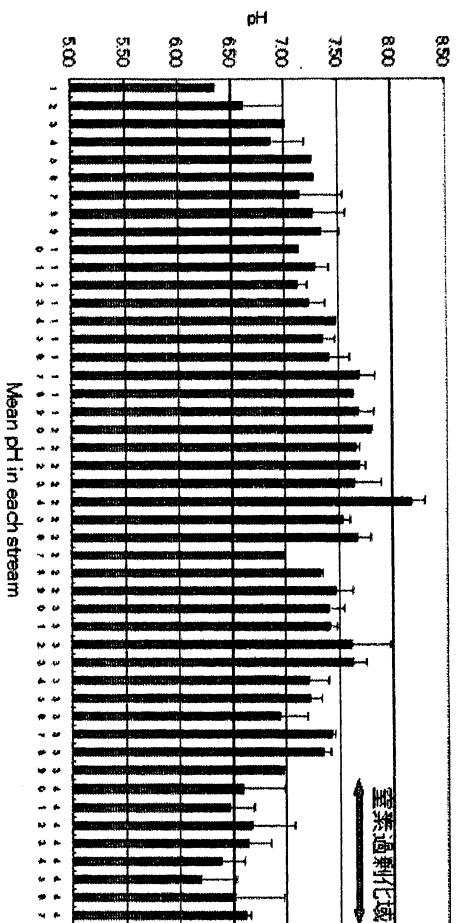


図17. 東京西部における溪流水のpHの地理的分布：図の右側ほど都心よりで、 NO_3^- 濃度が高い。

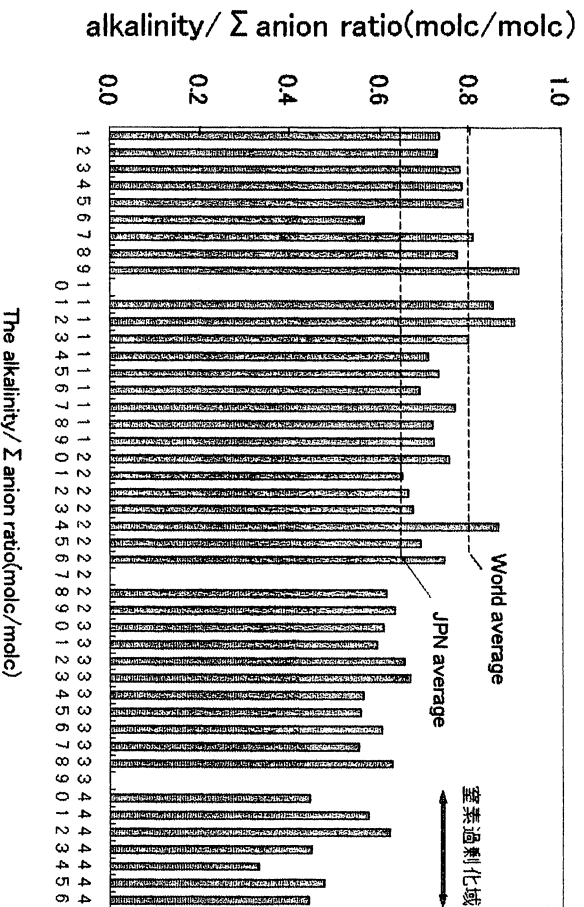


図18. 全陰イオン中に占めるアルカリ度の比率の地理的分布：世界の平均値と国内の平均値を図中に示す。図の右側ほど都心よりで、 NO_3^- 濃度が高い。

示された(図19)。さらには、 NO_3^- と $\text{Ca}^{2+}+\text{Mg}^{2+}$ 濃度との関係は直線的ではなく、次第に $\text{Ca}^{2+}+\text{Mg}^{2+}$ 濃度の上昇が低減する傾向にあった。以上のpH低下およびアルカリ度の割合が低下する傾向を考え合わせると、窒素過剰の状況が顕著なこれらの流域においては、土壤中でのイオン交換容量の不足、すなわち酸を緩衝する流域の能力が不足し始めている可能性があることが示された。

多摩川水系の渓流水質を文献値と比較により検討したところ、全ての支流で、10数年前より NO_3^- 濃度は高く、pHは低かった(表2)。このような時代変化から、現在まさにこれらの流域で窒素飽和が進行中であり、またそれに伴って溪流河川水の酸性化がもたらされつつある現状にある可能性があることが示された。

(4)-5 ピエゾメータを利用した土壌深層における中和過程の解析

窒素飽和状況にある「多摩丘陵」落葉広葉樹林内に設置されているピエゾメータから採取した地下水のEC(電気伝導度)とpHの測定結果を、図20に示す。データは、動水勾配、すなわち想定される地中の水流動の方向にしたがって並べている。流動方向に沿って、EC(電気伝導度)は増加、水素イオン濃度は減少する一貫した変化が見られた。図では水素イオン濃度をモル単位に換算して示しているが、pHでは5.2→5.9の変化に相当する。風化にともなって増加する主要溶存成分、すなわち SiO_2 , HCO_3^- , Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} のいずれについても、同様の濃度増加の傾向が認められた(図21)。20数mという地中深部で進行する風化とそれによる中和のプロセスを、これらの井戸の水質は表し

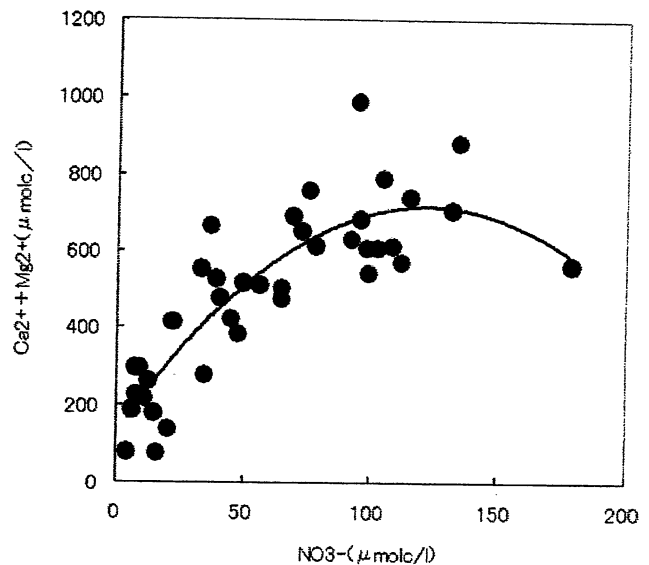


図19. 多摩川水系の渓流水における NO_3^- 濃度と $\text{Ca}^{2+}+\text{Mg}^{2+}$ 濃度の関係

表2. 多摩川水系の各支流において測定された平均pHと平均 NO_3^- 濃度：本研究と文献値との比較

			pH	NO_3^-
branch 1 (Ichinose river)	this study	7.22	12.1	
	1991	7.58	5.7	
branch 2 (Tama river)	this study	7.05	60.9	
	1991	8.07	28.8	
branch 3 (Kita-Akikawa)	this study	7.59	68.6	
	1991	7.97	54.0	
branch 4 (Minami-Akikawa)	this study	7.39	74.6	
	1991	7.75	48.9	
	1989	-	62.1	
branch 5 (Kita-Asakawa)	this study	6.89	107	
	1991	7.55	92.2	
	1989	6.99	95.1	
branch 6 (Minami-Asakawa)	this study	7.25	114	
	1989	6.88	103	

ていると理解できる。

なお、窒素飽和および酸性化にとって注目される NO_3^- は、地表20 m下の地下水において $300 \mu\text{mol L}^{-1}$ (4.6 mg N L^{-1}) 以上もの高濃度を示した (図22)。これは、深部土壌が高い NO_3^- 含有率を有するという結果と符合するものである。この森林小流域のモニタリングから示された NO_3^- の年間加重平均濃度は $209 \mu\text{mol L}^{-1}$ であり、それよりもやや高いレベルであった。しかし、生物活動の存在がこれまでほとんど認識されていない10 m以上もの地中深部であるにもかかわらず、流動方向に沿って NO_3^- が大きく減少する変化が見られた。 NO_3^- を除去する脱窒などの何らかの過程が行われ、流出する NO_3^- の低減に寄与している可能性が示された。この他のピエゾメータ系列を含め、水質成分間の関係を検討すると、 SiO_2 、 Na^+ 等、風化由来成分と H^+ 濃度の変化の間 (図23)、また上記風化由来成分相互の間には直線関係が認められた。地層の違いにかかわらず、風化にともなう水質形成と H^+ の消費はほぼ一定の化学量論的反応にしたがって進行していると思えることができた。成分間の関係から見積もられた、風化に伴う

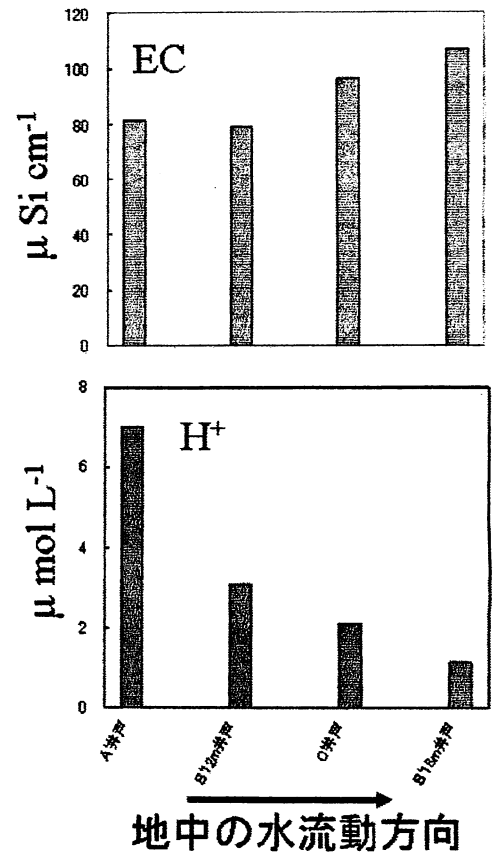


図20. 地中の水流動方向に沿った地下水の電気伝導度とpHの変化：それぞれのピエゾメータにおける測定値の平均

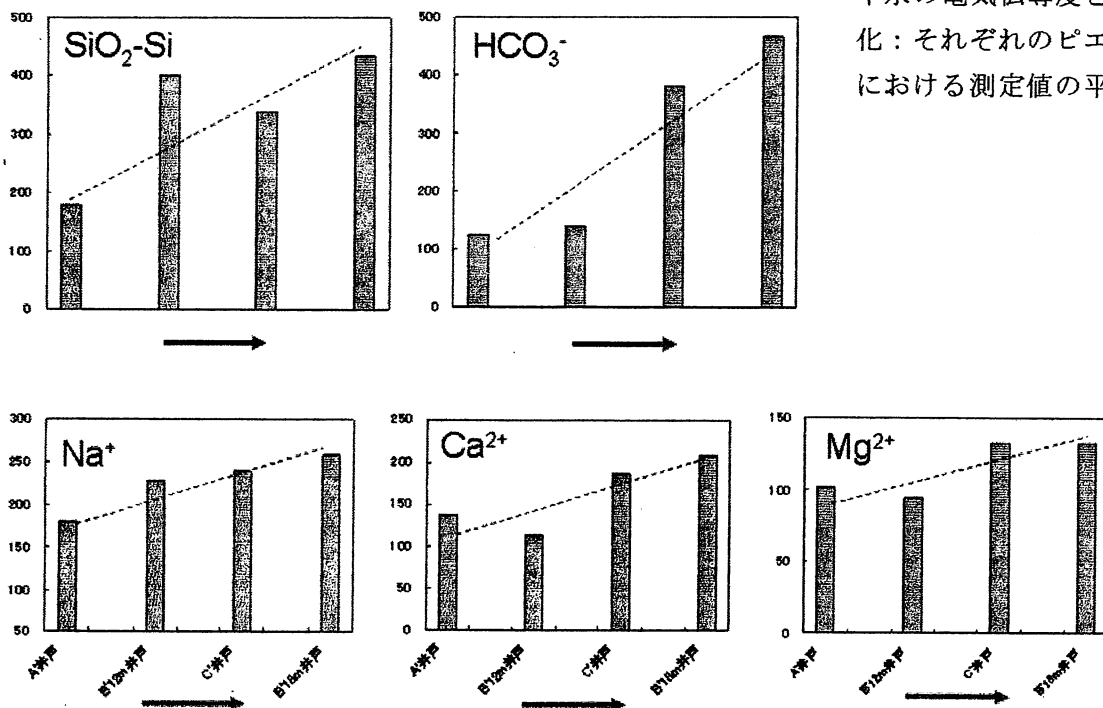


図21. 地中の水流動方向に沿った地下水の SiO_2 、 HCO_3^- 、 Na^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 濃度の変化：それぞれのピエゾメータにおける測定値の平均 (単位： $\mu\text{mol L}^{-1}$)

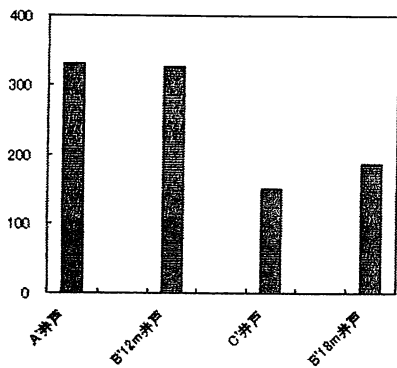


図22. 地中の水流動方向に沿った地下水の NO_3^- 濃度の変化：それぞれのピエゾメータにおける測定値の平均（単位： $\mu\text{mol L}^{-1}$ ）

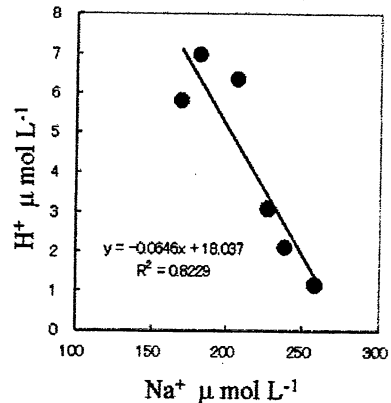
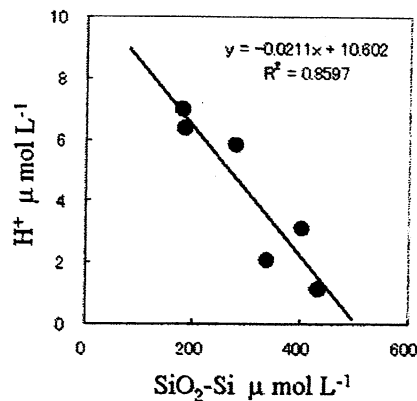


図23. 各ピエゾメータで測定された $\text{SiO}_2\text{-Si}$ 濃度（左）および Na^+ 濃度（右）に対する H^+ 濃度の関係

表3. 各ピエゾメータの水質から推定された，風化に伴って可溶化・放出される陽イオンのSiに対するモル比

Si 1 mol に対する生成量	mol	mol _e
Na^+	0.24	0.24
K^+	0.01	0.01
Ca^{2+}	0.32	0.64
Mg^{2+}	0.14	0.28
Σ	0.71	1.17

Si 1モル当たりの塩基成分の放出モル数は表3の通りであった。

今後、窒素飽和等による生態系酸性化の問題において、酸緩衝能に関する強度的、容量的解析が重要である。Siを基準にした数値は、風化だけによる供給速度を推定できるため、この点で有用である。このような、今後の酸性化の課題への取り組みに有用な速度論パラメータを得ることができた。

(5) 北海道北部地域における窒素の動態

(5)-1 斜面位置による土壌窒素代謝の違い

落葉層、鉍質表層土壌ともに土壌溶液や浸透水中の窒素の主要な形態は溶存有機窒素であった。土壌溶液中の硝酸イオン濃度は斜面下部において、他の地点よりも高まる傾向にあり、落葉層浸透水中の硝酸イオン濃度は斜面下部において、尾根部や斜面中部よりも有意に高かった ($p < 0.05$)。落葉層と鉍質表層土壌ともに正味硝化速度も斜面の位置によって変動しており、斜面下部では他の地点よりも正味硝化速度が高い傾向があった。これらの結果は、斜面位置の違いによる土壌水分の違いが土壌内での窒素代謝やそれに関連する土壌窒素水質に大きく影響していることを示している。さらに、土壌内での総窒素代謝速度の斜面位置別傾向も同様な傾向が認められた。落葉層、鉍質表層土壌ともに、総窒素代謝プロセスの中ではアンモニウムの無機化と有機化の速度が高く、アンモニウムイオンから生成される硝酸イオンは、それらよりも著しく低い値を示していた (Table 2)。このことは、生態系が依然として窒素栄養制限の環境下であり、微生物プロセスを通じて有機態窒素とアンモニウム態窒素との間に緊密な窒素サイクルが存在していることを示唆している。図には示していないが、落葉層では培養後24時間以内において15Nでラベルしたアンモニウム態窒素の90%が有機態窒素として保持されているのに対し、鉍質表層土壌では約50%ほどが保持されるに過ぎなかった。また、尾根と斜面下部の両地点ともに、落葉層における硝酸態窒素の有機化速度は、硝化速度と比べて高かったが、斜面下部の鉍質表層土壌では硝化速度が硝酸の有機化速度よりも高かった。窒素負荷一ヵ月後には、窒素負荷流域において落葉層の正味窒素無機化速度が有意に低くなる傾向があり、窒素負荷が土壌内での窒素代謝に何らかの影響を与えていることが示唆された。

(5)-2 窒素負荷が河川水質や窒素収支に及ぼす影響

窒素負荷流域では窒素負荷直後に河川水中の硝酸イオン濃度が一時的に高まったものの、約2ヵ月後には対照流域や負荷以前と同じ濃度レベルまで回復した。河川水として流域から流出した溶存窒素フラックスをに示した。対象流域では、全窒素の中でも溶存有機窒素の占める割合が高いのに対し、窒素負荷流域では硝酸態窒素の割合がたかまり、全窒素流出フラックスは窒素負荷により二倍以上に高まった。窒素負荷流域における河川からの硝酸流出の増加は、負荷直後の一時的な河川水の硝酸態窒素濃度上昇と関係があるものと考えられる。また、窒素負荷流域における窒素収支を解析すると、もともと存在する大気窒素沈着 ($2.3 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) と実験的に増加させた窒素負荷 ($50 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$) のインプットに対して、河川へと流出した窒素アウトプットは約10%に過ぎず、約90%は流域内に保持されていたことが明らかとなった。一方、北西ヨーロッパにおける既往の研究では、 $30\text{--}50 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$ 程度の大気窒素沈着に対してかなりの量が河川へと溶脱していることが知られている。したがって、本研究の結果は、大気汚染の影響がこれまであまり受けていなかった森林流域では窒素沈着増加の初期段階では、かなり大量の窒素を流域内に保持する能力があることを示唆している。それでも、そのような窒素保持能力や生態系の機能は時間とともに変化することも知られており、より長期的な観点からの継続研究が必要であろう。

5. 本研究により得られた成果

酸性雨 (pH5.03) の降下時に連続的に採水した結果、渓流水は pH7.2から6.5に下がった地点や7.3から7.0に下がった地点があった。前者は花崗岩質の基盤岩石の溪流であり、現在の日本の河川でも一時的にせよ酸性化が起ることが三面川流域で確認された。

魚類の地点別の出現種類数は0~11種であった。F16では今回の調査地点の中でもっとも多い11種が確認された。この地点では他の地点では出現していない回遊魚7種が出現していた。支川ではおよそ半数の8地点で2種以下であり、もっとも多くの種類が確認された綱木川でも6種であった。支川での出現種は主に上流域に生息する魚種に限定され、イワナ・カジカの2種に、ヤマメ・アブラハヤが加わるケースが多い。

三面川の人工飼育のサケ稚魚はC-18%、N-13%であり、人工飼料はC-18%、N-9%であった。約2万匹のサケの遡上によって三面川流域にもたらされているK, Na, Fe, P, Caは、261, 49, 0.37, 179, 10 kg/年と推定される。三面川河口では30年平均で $1571 \times 10^6 \text{m}^3$ の水が海へ供給されていると推定される。今回測定した平均濃度はK, Na, P, Caはそれぞれ 0.5, 4.9, 5.4, 0.0036, 1.6 mg l^{-1} であるから、K, Na, P, Caは786, 7700, 5.7, 2500 t/年海へ供給されている。したがって流下移送に対して遡上移送としてK, Na, P, Caはそれぞれ0.03, 0.00064, 3.1, 0.0004 %がサケによって海からもたらされていると考えられる。

三面川水系では、全溶存A1、イオン性A1、有機・無機錯体A1の平均が最も高かった。一方、コロイド状A1の平均は多摩川水系で最も高く、三面川水系で最も低かった。各態A1は $\text{NO}_3^- + \text{SO}_4^{2-}$ やpHとほとんど相関を示さないことが明らかとなった。

自動連続水質測定システムにおいて、積雪地域の溪流河川における微小な水質の変化を、冬期を含めて長期的にかつ連続的に測定することができた。特に、冬期や春先のデータについては、これまで取得することが非常に困難であったため、本測定システムは非常に有効な手段であると考ええる。また今回の得られた測定結果から、冬季の特徴的なpHとECの動きと、融雪時の水質の変化を明確にとらえることができた。酸性雨・雪の陸水水質への影響の研究だけではなく、酸性雨の水生生物への影響を評価する上でも有効な手法を確立することができたと確信する。

一方、西関東水系における窒素の動態については以下の成果が得られた。

- (1) 流域森林土壌の NO_3^- 含有量の鉛直プロファイルは、渓流水の NO_3^- 濃度の高低と良好な対応関係をもつことが判明し、渓流水の NO_3^- 濃度の上昇が森林の窒素過剰状況に由来したものであることが実証された。
- (2) ただし、脱窒によって NO_3^- 除去が行われる丘陵部の溪流は、 NO_3^- 濃度が窒素過剰状況を表さない特例的なケースとなっていることが判明した。
- (3) 溪流河川水ならびに土壌の NO_3^- の高濃度化が、 Ca^{2+} や Mg^{2+} 等の塩基の流亡を生じさせていることが確認された。
- (4) 窒素飽和の状況にある森林では3 mもの深部の土壌でもpHが低いこと、そのような地域における NO_3^- 濃度の高い溪流ではpHおよびアルカリ度が減少している傾向にあることが示された。また、過去のデータと比較して、渓流水は NO_3^- 濃度は増加、pHは低下している傾向があった。これらより、窒素飽和とそれによる酸性化が森林集水域において現実化しつつある徴候があることが判明した。

- (5) 河川水の水質形成や集水域での酸緩衝にとって重要であるにもかかわらずほとんど知見のなかった地中深部における風化過程について、ピエゾメータを用いた解析手法の有効性が示された。風化に伴って可溶化・放出されるSiに対する陽イオンのモル比という将来の解析に有益な基本パラメータが得られた。

北海道北部の森林流域において非汚染地域の森林生態系における大気窒素沈着の増加が生態系の窒素循環に及ぼす影響を明らかにするために、野外窒素負荷実験と室内土壌培養実験を行った。現地での土壌窒素の空間分布調査や河川水質の観測、窒素収支の解析などをつうじて、増加した大気窒素の90%が増加初年度に森林流域内に保持されることが明らかとなった。同位体希釈法を用いた土壌培養実験の結果などから、この窒素保持には土壌表層に生息する土壌微生物による迅速な窒素有機化が重要なメカニズムであることが示唆された。

6. 国際共同研究等の状況

なし

7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表 (学術誌・書籍)

<学術誌 (査読あり)>

- ① 苗村晶彦, 藤田俊忠, 倉田 斉, 土器屋由紀子, 楊 宗興: 自然環境研究 (Natural Environmental Science Research), 16, 1-6 (2003)
”秩父多摩甲斐山岳域における森林渓流水質の標高別分布”
- ② 野原精一・佐竹研一: 地球環境9: 61-74 (2004)
「溪流-森林系の物質移動と鮭の遡上」
- ③ 山本鎔子・大高明史・林卓志・福原晴夫・野原精一・落合正宏・尾瀬アカシボ研究グループ
陸水学雑誌: 65: 181-191 (2004)
「東北地方の赤雪」
- ④ 楊 宗興・木平英一・武重祐二・杉山浩二・三宅義則: 地球環境 9, 29-40 (2004)
”渓流水のNO₃-濃度と森林の窒素飽和”
- ⑤ Naemura, A., Yoshikawa, T., Yoh, M., Ogura, N. and Y. Dokiya: Natural Environmental Science Research, 17, 23-27, (2004)
” Dissolved inorganic and organic nitrogen in throughfall and stemflow of coniferous trees in nitrogen saturated forest”
- ⑥ Shibata, H., O. Sugawara, H. Toyoshima, S. M. Wondzell, F. Nakamura, T. Kasahara, F. J. Swanson and K. Sasa: Biogeochemistry, 69, 1, 83-104 (2004)
“Nitrogen dynamics in the hyporheic zone of a forested stream during a small storm, Hokkaido, Japan”
- ⑦ Xu, X., Hirata, E. and Shibata, H. : Basic and Applied Ecology, 5, 271-282 (2004)
“Effect of typhoon disturbance on fine litterfall and related nutrient input in a subtropical forest on Okinawa Island, Japan”

⑧ 若松孝志・高橋 章・佐藤一男・久保井喬・柴田英昭：日本土壤肥科学雑誌，75，2，169-178 (2004)

「窒素安定同位体を用いた大気由来NH₄⁺の森林土壌中における初期動態」

⑨ Ogawa, A., Shibata, H., Suzuki, K., Mitchell, M. J. and Ikegami, Y.: Hydrological Processes, in press

“Relationship of topography to surface water chemistry with particular focus on nitrogen and organic carbon solutes within a forested watershed in Hokkaido, Japan”

⑩ 柴田英昭：地球環境，特集「森林と溪流・河川の生物地球化学」，9，1，75-82 (2004)

「大気-森林-河川系の窒素移動と循環」

<学術誌 (査読なし) >

なし

<書籍>

① 野原精一：地球環境調査計測事典 第2巻 (陸域編)、209-214、フジ・テクノシステム (2003)

沿岸域 7-2 ①水草

② 楊 宗興、吉岡崇仁、他39名：陸水学雑誌、64，49-79 (2003)

「集水域の生物地球化学：その意義と展望」

③ 野原精一：生態学入門、233、東京化学同人 (2004)

④ 楊 宗興：身近な水の環境科学。ERECON, 13-32 (2004)

「第2章 溪流水の話」

⑤ 楊 宗興：水環境学会誌 27, 568-574 (2004)

「集水域の生物地球化学：課題と展望」

⑥ 柴田英昭：水環境学会誌，27，9，579-583 (2004)

「プロトン収支から森林河川の水質を考える - 外部収支と内部循環 -」

<報告書類等>

① 野原精一：尾瀬の保護と復元：26:31-41 (2004)

「尾瀬沼生態系における水質・底質環境と水生植物の動態 (2002-2003)」

(2) 口頭発表 (学会)

① 野原精一・佐竹研一・越川昌美・高松武次郎：日本陸水学会 第68回大会、岡山、(2003) 「三面川水系の溪流・河川の水質形成と魚類相」

② Naemura, A., Yoshikawa, T., Yoh, M., Ogura, N. and Y. Dokiya: 8th International Conference on Atmospheric Sciences and Applications to Air Quality (2003)

”Dissolved Inorganic and Organic Nitrogen in Throughfall and Stemflow of Coniferous Tree in a Nitrogen Saturation Forest

- ③ M. Yoh, Y. Akita, S. Toyoda and N. Yoshida: Goldschmidt 2003 Conference (2003)
 "Nitrogen stable isotope abundance of N₂O from composting of livestock waste: its variation and mechanics"
- ④ M. Yoh, Y. Takeshige and E. Konohira: IUGG (International Union of Geodesy and Geophysics) (2003) "N₂O emission from temperate monsoon forests in Japan as correlated with stream NO₃-concentration"
- ⑤ 古市淑子・楊 宗興：生物地球化学研究会 (2003)
 "異なる地域と地質における森林溪流水の水質の比較－石灰岩地帯の高NO₃-濃度"
- ⑥ 小出理博・楊 宗興：生物地球化学研究会 (2003)
 "森林および畑土壌のCO₂、N₂O放出とCH₄吸収特性－N添加への応答"
- ⑦ 野原精一・佐竹研一：日本陸水学会 新潟大会シンポジウムⅡ 酸性雨の陸水影響研究－その歴史と最新の研究成果－、「三面川溪流の酸性化危惧度評価とサケ科魚類」(2004)
- ⑧ 生田卓司、小林洋康、高橋昌臣、佐瀬裕之、戸塚績：第69回日本陸水学会 (2004年9月) シンポジウムⅡ 酸性雨の陸水影響研究－その歴史と最新の研究成果－
 「三面川溪流における酸性雨の水質影響の自動観測」
- ⑨ T. Fujita and M. Yoh: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)
 "NO₃- concentration of streamwater chemistry in a small catchment in Tama area Japan"
- ⑩ MOON C-G, M. YOH, CHOI I-Song* and Jong-Min OH: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)
 "The properties of Ecology concrete blocks using recycled aggregate for improving water qualities"
- ⑪ MOON C-G, M. YOH, CHOI I-Song* and Jong-Min OH: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)
 "Performance of contact oxidation process using recycled aggregate porous concrete (RAPC) for water purification"
- ⑫ YOH Muneoki, Koji SUGIYAMA, Yoshinori MIYAKE and Eiichi KONOHIRA: The First Korea-Japan Joint Symposium on Limnology (2004)
 "Nitrogen saturation and incipient acidification in some forested area in Japan as indicated by streamwater chemistry"
- ⑬ M. Koide and M. Yoh: Third Nitrogen Conference (2004):
 "A possible difference in microbial process for nitrous oxide (N₂O) production among Japanese soils"
- ⑭ 藤田俊忠・楊宗興：生物地球化学研究会 (2004)
 "窒素飽和地域の森林小流域の窒素の動態"
- ⑮ 楊 宗興・三宅義則・杉山浩史・木平英一：日本陸水学会 特別シンポジウム(2004)
 "関東地域に広がる森林溪流水の窒素汚染"
- ⑯ 柴田英昭：日本陸水学会第69回大会 (2004)
 「富栄養酸性雨を想定した窒素収支実験」

⑰ Hideaki Shibata, Takashi Kuboi, Eiichi Konohira, Fuyuki Satoh and Kaichiro Sasa: The 3rd international nitrogen conference (2004)

⑱ 楊 宗興：酸性雨問題研究会 (2005)

”窒素飽和： 大気沈着により生じつつある森林の環境変化”

⑲ T. FUJITA and M. YOH: 地球惑星合同大会 (2005)

”Hysteresis patterns of streamwater nitrate concentration in a “nitrogen saturated” catchment near Tokyo City, Japan”

“Retention processes of anthropogenic nitrogen deposition in natural forest watershed in northern Japan”

⑳ Hideaki Shibata: US-Japan joint workshop on biogeochemistry and hydrology in forest watershed associated with LTER (2005)

“Biogeochemical processes in cool-temperate forested basin in northern Hokkaido, Japan.”

(3) 出願特許

なし

(4) シンポジウム、セミナーの開催 (主催のもの)

なし

(5) マスコミ等への公表・報道等

なし

9. 成果の政策的な寄与・貢献について

我が国で推進して来た酸性雨研究の成果は2005年6月11-18日チェコ・プラハで開催された酸性雨国際学会で発表された。Good PolicyにはGood Scienceが必要であり、研究成果がGood Policyに生かされることが期待される。また2010年の酸性雨国際学会は中国北京で開催されることが決定されたので、アジア大陸からの長距離越境大気汚染等による日本の生態系影響に関する、又、長距離越境大気汚染の検証に関する本研究の成果は今後の政策を進める上でも重要である。