

鵜川水系水質に関する研究 (第 2 報)

硝酸イオン濃度の季節変動

福崎 紀夫*, 村井 沙耶**

(平成 27 年 10 月 30 日受理)

Studies on the features of dissolved constituents in Ukawa River system

Part 2: Seasonal variations of nitrate concentration

Norio FUKUZAKI* and Saya MURAI**

In recent years, there has been great concerns for the nitrogen saturation phenomenon in forest ecosystems caused by increased wet and dry deposition of nitrogen compounds emitted from the combustion of fossil fuels. The nitrogen saturation phenomenon is considered to be that increased nitrogen flow out to forest stream not only in the non-growth period but also in the growth period of forest plants. In this study, in order to understand the current situation of nitrogen saturation phenomenon from nitrate concentrations and their seasonal variations in upper and middle streams of Ukawa river, which is flowing through Kashiwazaki City, Niigata Prefecture, the river water was sampled from the eleven sites for once a month from June 2009 to February 2011, and was determined the major soluble constituents including nitrate and alkalinity. As a result, it was revealed that nitrate concentration has a clear seasonal variation with higher in winter and lower in summer, however, nitrate were detected as 0.5-1.5 mg/L levels in summer when biological activities are lively, so the nitrogen saturation phenomenon in the forest water shed of Ukawa river is considered to be undeniable situation.

Key words: river water, nitrate concentration, seasonal variation, nitrogen saturation

1. はじめに

窒素は生命体にとって最も重要な元素の一つであり、作物の生長に不可欠な養分である。地球大気の約 78%は窒素から構成されているが、大気中の窒素は常温では不活性であるため、人間を含めた多くの生物は大気中の窒素を直接利用することはできず、しばしば生物の成長制限要因となってきた^[1, 2]。温帯林生態系では樹木の生長が窒素によって制限されていると考えられており、生態系を構成する生物群は限られた窒素を効率的に利用するための競争関係を維持しているとされる。また、河川に生息する生物群集にとって、森林から河川に溶脱する窒素は栄養源として非常に重要とされる^[3]。20 世紀初頭にハーバー・ボッ

* 環境科学科教授 Department of Environmental Science, Professor

** 環境科学科卒業生 Department of Environmental Science, Graduate

シュにより大気中窒素から人工的にアンモニアを生産する技術が開発されるまでは、生命活動はニトロゲナーゼを持つ生物による窒素固定に依存していたとされる。ハーバー・ボッシュ法の開発により人間活動による窒素の固定と利用は飛躍的に増加し、現在では人類が化学肥料として固定する窒素量は自然の固定量とほぼ同量といわれている^[1]。このことは農業生産の向上に大きく貢献する一方で、湖沼・沿岸域の富栄養化など環境悪化の原因を引き起こした。さらに、化石燃料の燃焼に伴って発生する窒素酸化物の増加も続いており大気汚染の原因となるとともに、湿性・乾性沈着により水圏では富栄養化が、土壌圏では窒素飽和現象をもたらしつつある^[2]。水圏における富栄養化は、農耕地の肥料や生活排水・工業排水など、人間活動による中・下流域河川水への悪影響であり、このほか近年では溪流水など河川上流域において窒素濃度の上昇が見られている。後者は窒素飽和によるものと考えられ、植物や微生物が必要とする以上の窒素が大気から負荷されることにより、生態系内を循環する窒素量や窒素の無機化、硝化速度が増大し、植物の非生長期にさらに成長期においても窒素の溪流水への流出が増加する現象とされている^[1]。他方、冬季においても窒素成分に対して高い保持力を有する森林の存在^[4]や河川流域における土地利用状況や地形によって河川水中の窒素濃度は影響を受け、湿地や河畔林、水田といった土地利用は水を浄化する能力を有することが報告されている^[5,6]。

本報告では、上記の森林－河川環境における窒素移動を背景として、近い将来治水ダムが完成することにより水質の変化も予想される鵜川を研究対象とし、上・中流域における硝酸イオン濃度の現状と季節変化の実態についてとりまとめ窒素飽和の可能性について考察した。鵜川は新潟県柏崎市内の山岳部を源流部とし主に水田地帯を流れる二級河川であり、溶存成分と流域の地質については前報^[7]を参照されたい。

2. 鵜川水系の概要と採水地点

鵜川は、米山山塊の東斜面と黒姫山地の西斜面に発し、多くの支流を集めながら、南方から北方に流れ、柏崎平野の南部をとって日本海に注ぐ、流域面積 108.7km²、流路延長 24.6km の二級河川である(図-1 参照)^[8]。

鵜川水系の上流部を構成する主な支流としては、兜巾山(標高 676m)系と尾神山(標高 757m)系から流れる荒又川(鵜川源流)、鷹の巣山(624m)・大達間山系及び兜巾山系からの溪流を集める阿相島川、黒姫山(標高 890m)の軽が岳山系から流れる折居川、同じく黒姫山の西斜面の大滝を主軸にして両側の谷川を集めて流れる赤平川、清水谷川の出壺の清水を源流部として大沢入山系の谷川を集める清水谷川がある。鵜川治水ダムはこの清水谷川地区上流部に現在建設中であり、平成 19 年(2007 年)12 月に転流式が行われ平成 20 年度からダム本体の掘削に着手し平成 36 年竣工予定とされている^[9]。

中流域では左岸野田地内において米山山塊東端部を源流部とする田屋川が払川となり鵜川に合流し、右岸古町地域において黒姫山地の北部丘陵地域を源流とする芋川が鵜川に流入している。さらに下流域右岸では、水田地帯の排水を集水する横山川と鵜川段丘丘陵

地域を源流部とする軽井川がそれぞれ流入している。

鵜川の左岸に広がる米山山塊は、主峰を米山(標高 993m)とし、山体は深い V 字谷地形を呈している。米山山塊の周辺は標高 200-300m の丘陵地帯や段丘によって形成されている。鵜川上流右岸に広がる黒姫山地は、主峰を黒姫山(標高 890m)とし、北東—南西方向の主稜線を持つ山地であり、南西側の鷹の巣山から北東側の黒姫山まで約 10km の稜線が続いている^[8]。鵜川水系の地質については前報^[7]に記載した。

調査地点は前記の支流の流入状況を踏まえ図-1に示す 11 地点とした。これらの内、生活排水と水田排水の影響の少ない地点は、①阿相島川、④清水谷川、⑥弘川及び⑨水上である。また、鵜川本流の採水地点は②町原橋、③折居橋、⑤野田大橋、⑧佐水橋、⑪中村橋である。⑦野田橋と⑩芋川橋は、それぞれ、鵜川支流の弘川と芋川における主に農業排水影響を見るために設定した採水地点である。

なお、河川水と比較するため新潟工科大学北棟屋上において降水をろ過式捕集法により採取した。

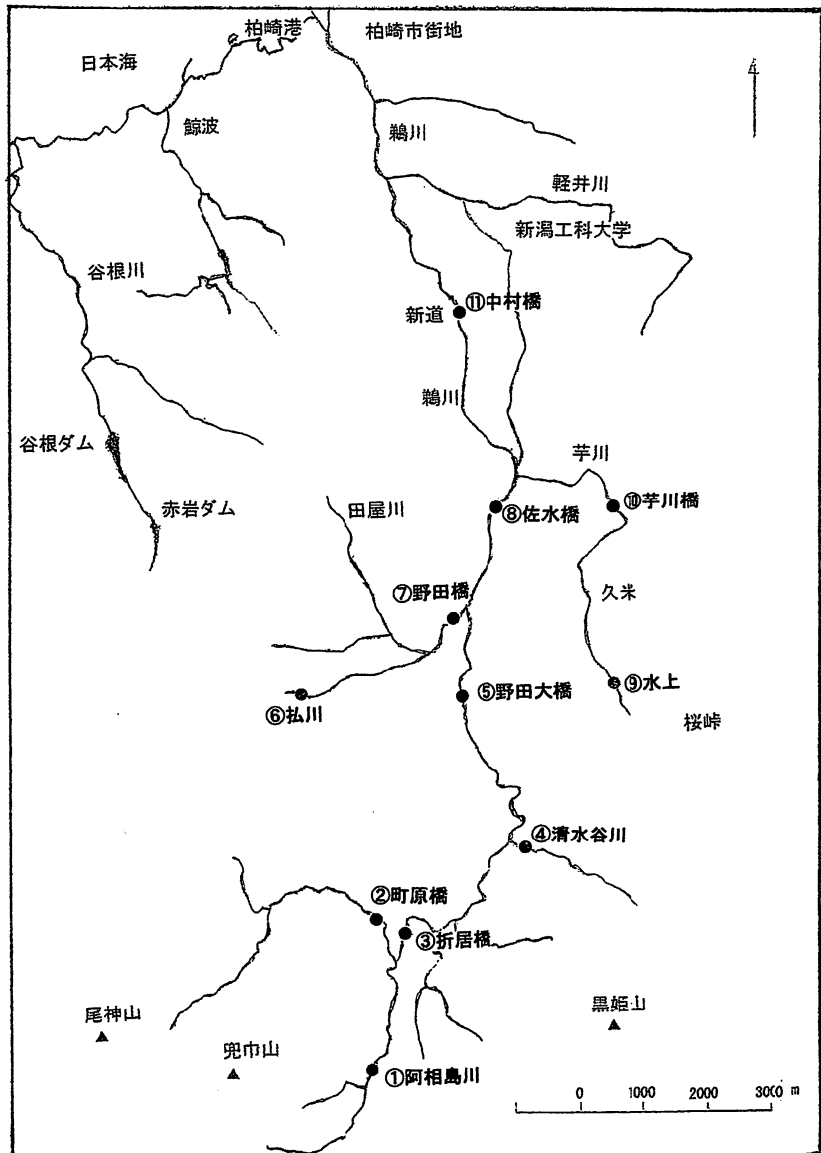


図-1 鵜川採水地点

3. 方法

3.1 測定項目及び測定方法

3.1.1 測定項目

河川水及び降水の測定項目は、pH、塩化物イオン(Cl^-)、硝酸イオン(NO_3^-)、硫酸イオン(SO_4^{2-})、ナトリウムイオン(Na^+)、カリウムイオン(K^+)、マグネシウムイオン(Mg^{2+})、カルシウムイオン(Ca^{2+})、アンモニウムイオン(NH_4^+)及びアルカリ度である。

3.1.2 測定方法

河川水及び降水中の Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 NH_4^+ はイオンクロマトグラフ分析法^[10,11]により、pHはガラス電極法により測定した。また、アルカリ度はメチルオレンジ-メチルレッドを指示薬とし0.01規定硫酸を用いた滴定法^[12]により測定した。

3.2 測定値の精度管理

河川水及び降水試料の測定値の精度管理には、アルカリ度をすべて重炭酸イオン(HCO_3^-)とし、両者とも試料水の陽イオンと陰イオンの分析値の当量濃度の差が7%以内であることを目安とし^[11,12]7%を超える場合は再度測定した。

3.3 調査期間

河川水試料は2009年6月から2011年2月までの間毎月1回同一日に採水し分析に供した。また、降水試料は同期間の間週毎に捕集した。

4. 結果と考察

4.1 主要成分濃度等の平均値

降水及び河川水のpH及び主要成分濃度の平均値を表-1に示す。降水のpHは4.68であるのに対し、河川水のpHは7.0以上となっている。これは、大気降下物中の Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 及び K^+ が、それぞれ、0.39、0.53及び0.23 mg/Lであるのに対して、河川水中のこれらの成分濃度は数倍以上の値を示しており、集水域の岩石風化物由来の塩基性成分の溶け出しによるものと考えられる。これに伴い、降水のアルカリ度は0.0 meq/Lであるのに対して、河川水のアルカリ度は0.3~0.8 meq/Lを示し、河川水の酸性化に対して地質からの緩衝作用^[13]が現れたものと考えられる。

一方、陰イオンの Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} は、降水と河川水ではほぼ同レベルの濃度となっている。しかし、地点によって濃度は異なり、降水濃度よりも高い地点と低い地点があり、地質の影響と考えられる。 NH_4^+ は、降水濃度よりも河川水中の濃度がはるかに低い値となっており、大気中のアンモニアガスあるいはアンモニウム塩が湿性あるいは乾性沈着により地表面に到達後、栄養成分として植物や土壌微生物による取込みや硝酸イオンに酸化された後、生物活動による脱窒^[14-16]などにより濃度減少が大きい成分と考えられる。河川水の NO_3^- の平均値を見ると、①阿相島川、④清水谷川、⑥弘川といった上流あるいは中流域において鶴川に流入する渓流水中の濃度が高い傾向が見られる。

表-1 降水及び河川水の pH 及び主要成分濃度の平均値

| | Cl | NO ₃ ⁻ | SO ₄ ²⁻ | Na ⁺ | K ⁺ | Mg ²⁺ | Ca ²⁺ | NH ₄ ⁺ | pH | アルカリ度 |
|-------|------|------------------------------|-------------------------------|-----------------|----------------|------------------|------------------|------------------------------|------|-------|
| 単位 | mg/L | mg/L | mg/L | mg/L | mg/L | mg/L | mg/L | mg/L | | meq/L |
| 降水 | 7.66 | 1.09 | 2.86 | 4.32 | 0.23 | 0.53 | 0.39 | 0.32 | 4.68 | 0.0 |
| ①阿相島川 | 8.05 | 1.13 | 8.25 | 6.69 | 1.50 | 2.36 | 7.69 | <0.05 | 7.56 | 0.50 |
| ②町原橋 | 8.03 | 0.57 | 3.04 | 5.54 | 1.11 | 1.68 | 4.77 | <0.05 | 7.42 | 0.35 |
| ③折居橋 | 8.09 | 0.70 | 5.30 | 6.02 | 1.28 | 2.03 | 6.20 | <0.05 | 7.54 | 0.43 |
| ④清水谷川 | 7.82 | 1.35 | 6.38 | 6.03 | 1.77 | 2.46 | 8.18 | <0.05 | 7.50 | 0.55 |
| ⑤野田大橋 | 8.62 | 0.69 | 5.41 | 6.71 | 1.49 | 2.19 | 6.56 | <0.05 | 7.55 | 0.48 |
| ⑥払川 | 8.17 | 1.44 | 2.17 | 5.78 | 0.98 | 1.28 | 4.65 | <0.05 | 7.40 | 0.33 |
| ⑦野田橋 | 10.1 | 0.89 | 3.07 | 7.03 | 1.32 | 1.84 | 5.29 | <0.05 | 7.31 | 0.41 |
| ⑧佐水橋 | 9.36 | 0.71 | 4.73 | 7.00 | 1.45 | 2.11 | 6.36 | <0.05 | 7.57 | 0.47 |
| ⑨水上 | 9.11 | 0.98 | 4.73 | 6.61 | 1.21 | 1.81 | 5.18 | <0.05 | 7.39 | 0.36 |
| ⑩芋川橋 | 13.3 | 0.99 | 5.23 | 9.96 | 1.68 | 2.15 | 5.56 | <0.05 | 7.35 | 0.42 |
| ⑪中村橋 | 9.99 | 0.79 | 4.97 | 7.59 | 1.50 | 2.18 | 6.45 | <0.05 | 7.43 | 0.47 |

4.2 硝酸イオン濃度の季節変動

4.2.1 鵜川上流域

鵜川上流域の①阿相島川，②町原橋，③折居橋および④清水谷川における NO₃⁻濃度の季節変化を折居橋における水温の変動とともに図-2に示す。NO₃⁻濃度は3地点とも似た変動を示し，水温の変化とは逆に，冬季に高く夏季に低くなっている。濃度レベルは2010年1月を除き清水谷川で最も高く，町原橋で最も低くなっており，これらが合流する折居橋ではこれらの中間よりもやや町原橋に近い値となっている。NO₃⁻濃度は「はじめに」で述べたように生物活動が不活発となる冬季には濃度上昇が見られているが，渓流水とみなすことができる清水谷川と阿相島川において夏季にも0.5～1.3mg/L程度の濃度が観測されており窒素飽和現象の可能性は否定できない。清水谷川においては冬季に1.5～2.2mg/Lとなっており冬季と夏季の差が小さい。

4.2.2 払川水系

中流域で鵜川に合流する⑥払川とその下流の⑦野田橋における NO₃⁻濃度の季節変化を野田橋における水温の変動とともに図-3に示す。NO₃⁻濃度は2地点とも似た変動を示し，やはり冬季に高く夏季に低くなっている。野田橋では払川と田屋川が合流後の水質となっているが濃度レベルは源流部である⑥払川で高く，野田橋で低く流下途中での脱窒や植物による取込が考えられる。上流部と同様に夏季においても払川源流部で0.8～1.7mg/L程度の濃度となっている。また，夏季には農業活動が活発になりその影響が懸念される野田橋においても明確な濃度上昇は見られていないことから，この水

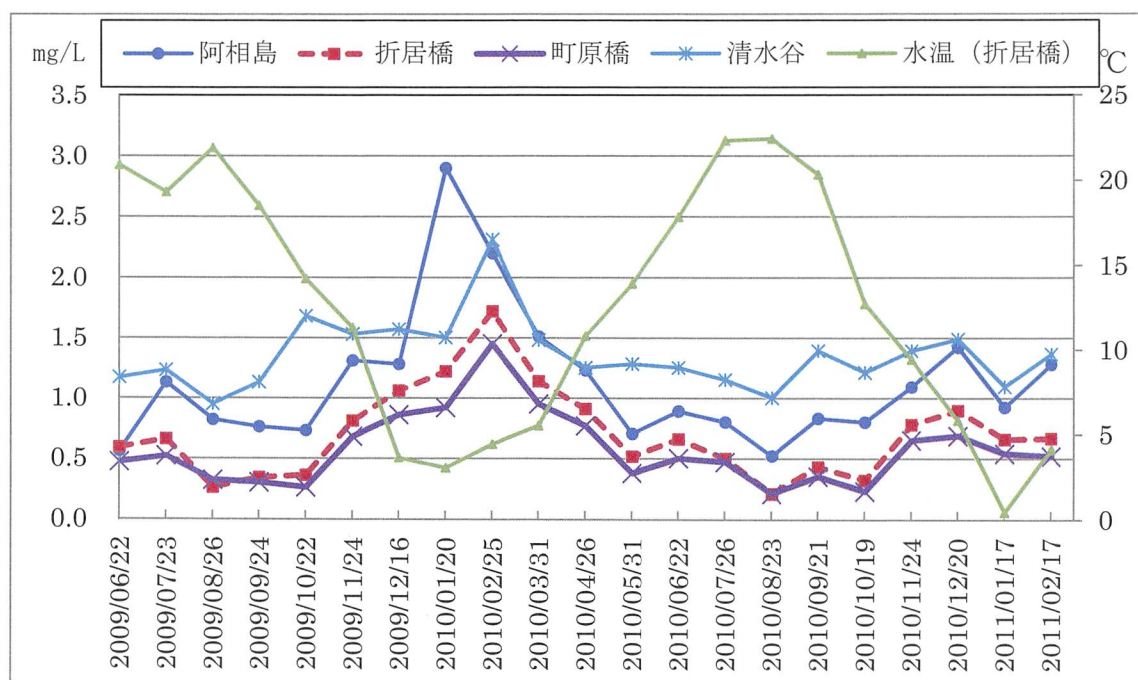


図-2 鵜川上流域における NO_3^- 濃度の変化

系で窒素肥料の流入などの農業活動や生活排水の影響は少ないと考えられる。

4.2.3 芋川水系

中流域で鵜川に合流する芋川水系における NO_3^- 濃度の季節変化を図-4に示す。源流部の採水地点は水上集落の上流約 500m 地点であり、下流は水田地帯を流下後の芋川橋である。なお、水温は芋川橋での測定値である。水上と芋川橋の 2 地点とも似た変動を示し、他の水系と同様に冬季に高く夏季に低くなっている。夏季の芋川橋では濃度変動が大きく、窒素系肥料の流入等の人為的影響も考えられる。冬季には 2 地点がほぼ同程度の濃度となっており、流下過程での生物による NO_3^- の取込や脱窒の影響は小さいものと考えられる。

4.2.4 鵜川本流

鵜川の上流域（折居橋）から中流域（野田大橋から中村橋）における NO_3^- 濃度の季節変化を図-5に示す。夏季の中村橋を除き、折居橋、野田大橋、佐水橋の 3 地点はともによく似た変動を示し、特に冬季には極めて良く似た濃度変動を示した。夏季には中村橋で濃度変動が大きく、農業活動などによる窒素の流入等の影響が考えられる。2010 年 2 月には 4 地点ともほぼ同程度の濃度となっており、流下過程での生物による NO_3^- の取込や脱窒の影響、あるいは雪解け水の流入による影響は小さかったものと考えられる。他方、中村橋においては夏季・冬季とも流域の最高値を記録することが多く年間

を通して農業活動を含め人為的発生源の影響も否定できないと考えられる。

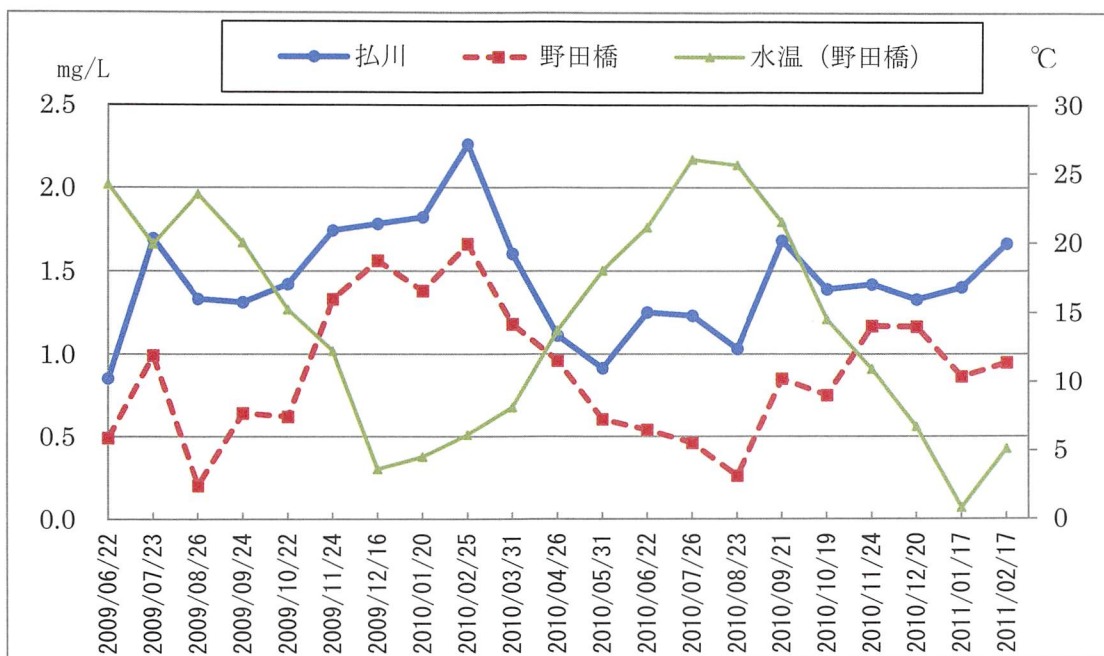


図-3 払川水系における NO_3^- 濃度の変化

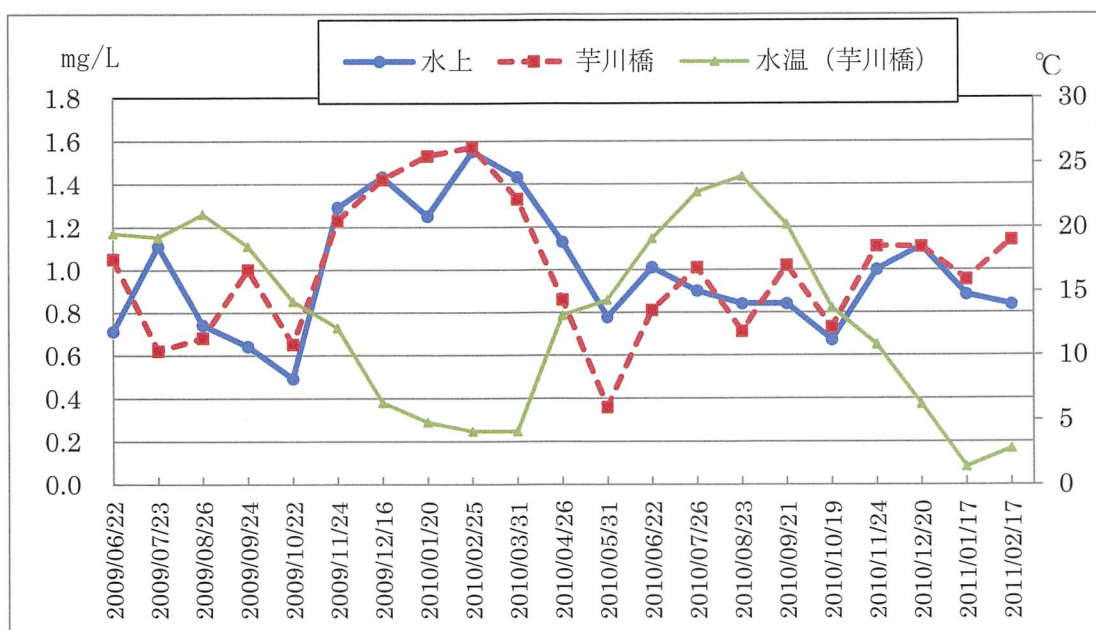


図-4 芋川水系における NO_3^- 濃度の変化

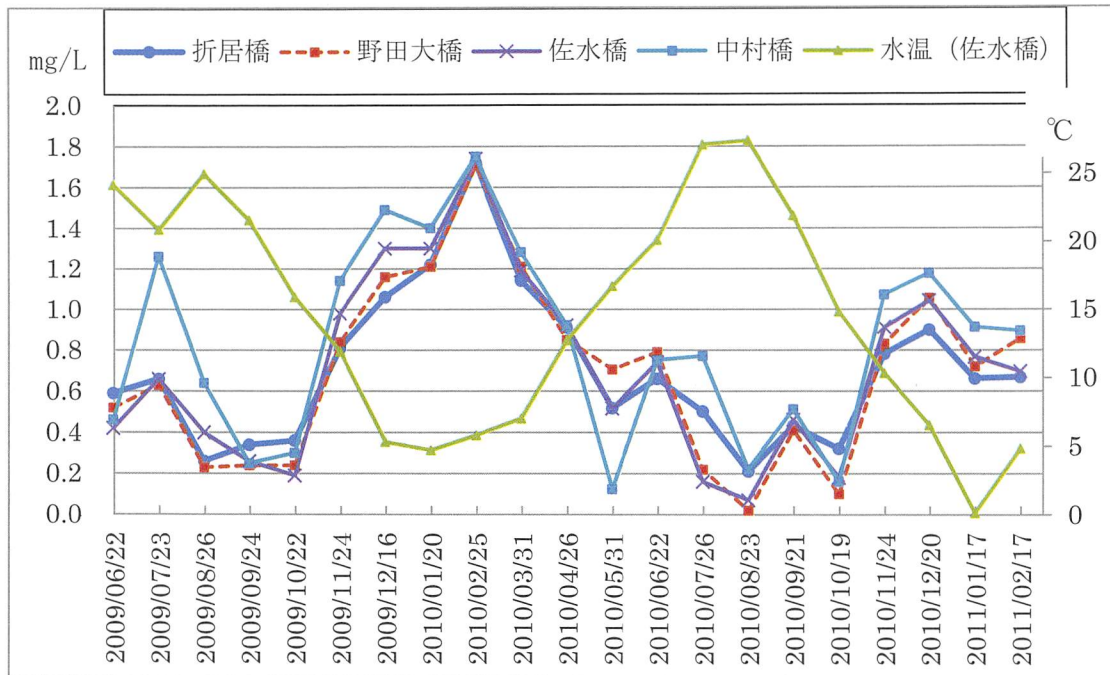


図-5 鶴川本流における NO_3^- 濃度の変化

5. まとめ

近年、化石燃料の燃焼に伴って発生する窒素酸化物の増加により、大気環境では都市大気汚染の原因となるとともに、湿性・乾性沈着により水圏では富栄養化が、土壌圏では窒素飽和現象が懸念されている。窒素飽和現象は植物や微生物が必要とする以上の窒素が大気から負荷されることにより、生態系内を循環する窒素量や窒素の無機化、硝化速度が増大し、植物の非生長期に、さらに生長期においても窒素の渓流水への流出が増加する現象とされている。

本研究では、近い将来治水ダム建設により水質の変化も予想されている新潟県柏崎市を流れる鶴川の上・中流域における硝酸イオン濃度の現状と季節変化の実態を把握し窒素飽和現象の可能性について考察する目的で、河川水試料は2009年6月から2011年2月までの間毎月1回同一日に採水し、硝酸イオンを含む主要な溶存成分とアルカリ度を測定した。また、比較のため降水試料を同期間に週毎に捕集し同一項目について分析した。その結果、硝酸イオンは冬季に高く、夏季に低下する季節変化が明確であるが、生物活動が活発な夏季にも0.5-1.5 mg/L程度検出されており鶴川水系集水域において窒素飽和現象も否定しえないことが判明した。

文献

- [1] 新藤純子，人間活動に伴う窒素負荷の増大と生態系影響，地球環境，9(1)，3-10，

- 2004.
- [2] 新藤純子, 木平英一, 吉岡崇仁, 岡本勝男, 川島博之: 我が国の窒素負荷量分布と全国溪流水水質の推定, 環境科学会誌, 18(4), 455-463, 2005.
 - [3] 柴田英昭: 大気-森林-河川系の窒素移動と循環; 地球環境, 9(1), 75-82, 2004.
 - [4] K. E. Judd, G. E. Likens, and P. M. Goffman, High nitrate retention during winter in soils of the Hubbard Brook Experimental Forest, Ecosystems, 10, 217-225, 2007.
 - [5] 木村園子ドロテア, 岡崎正規: 多摩川流域における土地利用と河川水窒素濃度との関係; 地学雑誌, 117(2), 553-560, 2008.
 - [6] 峯孝樹, 小野寺真一, 齋藤光代, 吉田浩二, 重枝豊美, 竹井努: 黒瀬川流域における窒素流出の空間分布特性とそれに及ぼす地形の影響; 広島大学総合科学部紀要IV理系編, 29, 115-122, 2003.
 - [7] 福崎紀夫, 近藤友宏: 鶴川水系水質に関する研究(第1報)水系地質と溪流水中の溶存成分との関係; 新潟工科大学研究紀要, 17, 19-27, 2012.
 - [8] 小林巖雄, 立石雅昭, 黒川勝己, 吉村尚久, 加藤禎一: 岡野町地域の地質; 地質調査所編地域地質研究報告, pp. 1-58, 1992.
 - [9] 新潟県柏崎地域振興局地域整備部 ダム建設課 二級河川鶴川治水ダム建設事業のご紹介, www.pref.niigata.lg.jp/kashiwazaki_seibi/
 - [10] 環境庁大気保全局: 酸性雨等調査マニュアル, 1994.
 - [11] 環境省地球環境局環境保全対策課・酸性雨研究センター: 湿性沈着モニタリング手引書第2版, 2001.
 - [12] 環境省地球環境局環境保全対策課・酸性雨研究センター: 陸水モニタリング手引書(初版), 2005.
 - [13] 小倉紀雄, 一國雅巳: 環境化学, 裳華房, pp. 132, 2004.
 - [14] 小倉紀雄: 河川における物質代謝と物質循環; 陸水の化学, 日本化学会編, 学会出版センター, 1992, pp. 34-44.
 - [15] 楊宗興: 森林の窒素飽和と化学分析; 酸性雨研究と環境試料分析, 佐竹研一編, 愛智出版, 2000, pp. 220-233.
 - [16] 柴田英昭, 戸田浩人, 稲垣善之, 館野隆之輔, 木庭啓介, 福澤加里部: 森林源流域における窒素の生物地球化学過程と溪流水質の形成; 地球環境, 15(2), 133-143, 2010.