

北関東地方の森林小流域における渓流水質の長期変化とその変動要因¹

Long-term changes in stream water quality and their influencing factors in forested small watersheds in the northern Kanto region

浦川梨恵子²・戸田浩人³・曹越⁴

Rieko Urakawa, Hiroto Toda, Yue Cao

【要約】北関東地方の約40の森林小流域において1992、2007、2022年の約30年間に3回実施した水質調査をもとに、渓流水質の長期変動と元素ごとの変動要因を明らかにした。塩基性陽イオン (Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^{+} 、 Na^{+}) と SiO_2 濃度は30年間にわたりほぼ一定であったが、陰イオン濃度 (Cl^{-} 、 NO_3^{-} 、 SO_4^{2-}) は2022年に低下がみられ、大気環境の改善と施肥影響の減少がその要因と考えられた。結果として陰イオン総量に対して陽イオン総量が過剰なため、重碳酸イオン濃度 (HCO_3^{-}) が上昇し、pHが上昇した。陽イオンと SiO_2 は各流域の地質の種類によって濃度が明瞭に異なり、この傾向は過去30年間一貫していた。施肥は Cl^{-} と NO_3^{-} 濃度に有意な影響を与え、施肥流域で15年以上にわたり高い濃度が観測された要因となった。大気 SO_4 -S沈着は SO_4^{2-} 濃度に影響を与え、過去30年間の沈着量の変動に伴い渓流濃度も変化した。研究対象地域では国内の他の地域と同様に著しい酸性沈着に見舞われてきたが、基岩や火山灰の風化による豊富な塩基性陽イオンの供給により渓流水の酸性化が免れていると考えられた。

キーワード：森林流域 渓流水質 大気沈着 長期変動 多量成分

1.はじめに

日本の水源地の多くは山地森林に位置し、人間生活や各種産業の基盤となる水資源を確保するために、森林を健全に保つ必要がある。大気汚染により、森林生態系の物質循環が攪乱し、渓流水質が劣化することが懸念されている（たとえば、Aber et al., 1989²; Likens et al., 1996³; Nakahara et al., 2010⁴; Sase et al., 2019⁵）。実際に、ヨーロッパや北米では1970～80年代、大気汚染を起因とする渓流水の著しい酸性化が報告された(Skjelkvåle et al., 2005⁶; Kothawala et al., 2011⁷; Eshleman et al., 2013⁸; Driscoll et al., 2016⁹)。一方、わが国は欧米に匹敵する大気沈着の負荷を受けているにもかかわらず(Duan et al., 2016¹⁰)、大多数の渓流水で酸性化は報告されていない(Ohte and Tokuchi., 1999¹¹)。このことは日本の森林の酸中和能力が大きいことを示しており、その要因として塩基性陽イオン[カルシウム(Ca^{2+})、マグネシウム(Mg^{2+})、カリウム(K^{+})、ナトリウム(Na^{+})]が豊富に供給され

ているためと推察されている(Ohte and Tokuchi., 1999¹¹)。森林生態系における酸中和機能が持続的であるかを評価するために、渓流水の主要な元素濃度 [Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 K^{+} 、 Na^{+} 、塩化物(Cl^{-})、硝酸(NO_3^{-})、硫酸(SO_4^{2-})、二酸化ケイ素(SiO_2)]の長期的な変動傾向を調査し、各物質の濃度に影響を与える要因を特定する必要がある。

本研究は、北関東地方の森林小流域において渓流水の調査を行い、過去の調査結果(大類ら, 1994¹²)、および当該調査地における長期的な降水モニタリングデータ(Urakawa et al., 2012¹³)を加え、以下の2つの課題の解明を試みた。

- ① 過去30年間の渓流水質の変化
- ② 水質に影響を与える要因とその長期的な変化

2.調査方法

2.1 調査地

調査地は群馬県みどり市の東京農工大学附属演習

¹ 本報告は既報(Urakawa et al., 2024¹)を日環センター所報のために再構成したものである。

² アジア大気汚染研究センター Asia Center for Air Pollution Research

³ 東京農工大学大学院農学研究院 Institute of Agriculture, Tokyo University of Agriculture and Technology

⁴ 東京農工大学大学院連合農学研究科 United Graduate School of Agricultural Science, Tokyo University of Agriculture and Technology

林フィールドミュージアム(FM)大谷山および草木で、それぞれ面積は約90 ha、450 haであり、渡良瀬川を挟んで約5 kmと近接している(図1)。1〜十数haの一次谷(河川の最上流)の小流域が、大谷山には11、草木には26の合計37流域存在する(図1)。樹種は、FM大谷山がすべてスギ・ヒノキ人工林であるのに対し、FM草木では天然落葉広葉樹林とスギ・ヒノキ人工林が約半数ずつ存在する。地質の種類は、大谷山がすべて秩父中生層の砂岩・粘板岩(以下、中生層)であるのに対し、草木は中生層が8、花崗岩が4、変成岩の一種であるホルンフェルスが14流域存在する。本研究では伐採、間伐、植栽など、数ある森林施業の中から施肥履歴を特に考慮した。大谷山では9流域で施肥の記録(1983〜1991年に窒素換算で合計20〜330 kgN/ha)があるのに対し、草木では施肥を実施した流域は存在しない。その他の流域特性として、流域面積、平均傾斜、標高および林齢を既報(大類ら, 1994¹²)により特定した。

2.2 試料採取および水質分析

渓流水の採水は2022年9月に実施した。試料は50 mLのポリプロピレンボトルに採水し、採取時に水温、pH、ECをポータブル型測定器(D-210PC, Horiba)で測定した。採水地点はスマートフォンで写真撮影し(図2)、GPS情報を記録した。試料は実験室に持ち帰り、0.45 μmのフィルターでろ過したのち、多量イオン(Ca²⁺、Mg²⁺、K⁺、Na⁺、Cl⁻、NO₃⁻、SO₄²⁻)をイオンクロマトグラフ(Thermo Scientific Dionex ICS-1100および-2100, Thermo Scientific)で、Si濃度をICP-MS (7500 Series, Agilent Technologies)で分析した。

2.3 データ解析



図1 調査地、右図の赤点が採水地点

今回の調査と同一地点で採取された30、15年前の水質データ [1992年(大類ら, 1994¹²)、2007年]を合わせて、時間経過にともなう水質の変化を検討した。また、FM大谷山におけるバルク沈着量の長期データ(Urakawa et al., 2012¹³)を用いて、SiO₂を除く多量成分 [Ca、Mg、K、Na、Cl、N(NH₄-N+NO₃-N)、SO₄-S] の1988年からの年間大気沈着量を算出した。

渓流水質の要因解析は、各種イオン濃度を従属変数、施業種、地質種類、流域面積、標高、傾斜、林齢、大気沈着量を説明変数として、PLS-R解析法(Partial Least Squares-Regression, 部分最小二乗回帰)を用いて各採水年および全ての採水年をまとめたデータについて分析した。各説明変数の影響力は本法で算出されるVIP指数(Variable Importance in Projections)により把握した。採取年間の濃度の有意差は多重比較(Tukey-HSD法)で分析した。全ての統計分析はR(R Core Team, 2022¹⁴)により実施した。

3.結果と考察

3.1 過去30年間の水質変化

渓流水中の各種イオン濃度およびSiO₂濃度の1992年に対する2007年、2022年の相関関係(図3)は統計的に有意であり($p < 0.01$)、1992年に濃度の高い流域は2007、2022年も高く、低い流域は採取年にかかわらず低いというように、過去30年間にわたり各流域の濃度の対応関係は変化していないことがわかった。陽イオンおよびSiO₂はおおむね1:1ラインの近傍に位置していることから、これらの濃度は30年間にわたりほぼ変化がない一方で、陰イオンの2007年は1:1ラインの近傍に、2022年の濃度は1:1ラインの下側に



図2 採水の様子 (FM 草木 Q 流域)

位置しているため、1992年に比較して2007年は同程度で、2022年には濃度が低下していたことがわかった。NO₃⁻はバラツキが大きいことから濃度低下の程度が流域によって異なることも推察された。陽イオン総量と陰イオン総量の差[(Ca²⁺ + Mg²⁺ + K⁺ + Na⁺) - (Cl⁻ + NO₃⁻ + SO₄²⁻)]を等量ベースで算出すると、x、

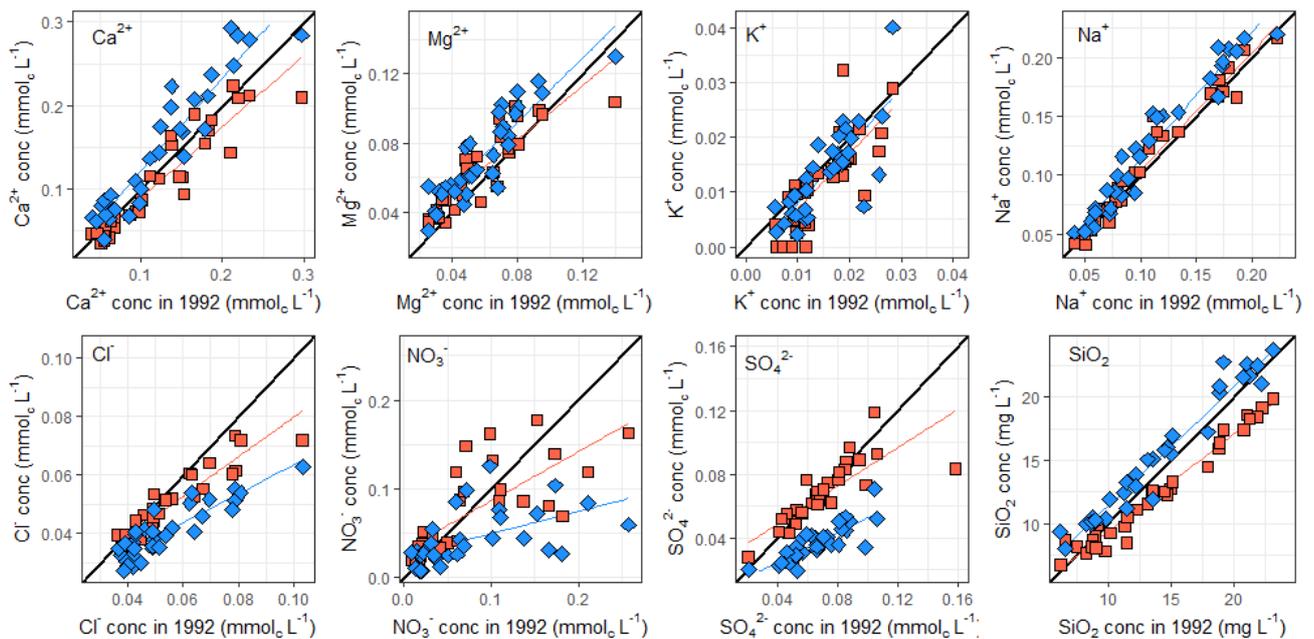


図3 1992年の濃度に対する2007年(赤)2022年(青)の関係
黒線, 1:1 ライン; 赤線, 2007年回帰線; 青線, 2022年回帰

y軸ともに正の値をとるため陰イオンに対して陽イオンが多いことがわかる(図4)。さらに、1992年に対する2007、2022年の関係を見ると1992—2022年の傾きは1992—2007年の傾きの約1.6倍であることから、2022年には陽イオンと陰イオンの差が拡大していることがわかった(図4)。これは、前述の陰イオン濃度の長期的な低下を反映している。イオンのバランスを保つために陰イオンであるHCO₃⁻が渓流水中に放出されていると推察され(Ohte et al., 1995¹⁵)、2022年のpH上昇(図5)はHCO₃⁻濃度の上昇が原因であると考えられた。

3.2 渓流水質に影響を与える要因とその長期変化

各種イオン濃度の地理的な分布に影響を及ぼす要因の長期的な変遷(図6)を見ると、Ca²⁺、Mg²⁺、Na⁺およびSiO₂濃度に対しては地質、Cl⁻およびNO₃⁻濃度については施業が30年間にわたりほぼ一貫して強い影響を及ぼしていた。K⁺、SO₄²⁻に対しては因子の入れ替わりが大きく一貫した影響因子は認められなかった。一方、全ての年代を入れた解析では、SO₄²⁻の濃度変動に対しては大気SO₄-S沈着の影響が大きかった(図6)。

図7は、陽イオンとSiO₂について最も影響力の高かった地質で区分し、箱ひげ図(ひげの上端:最大値、箱の上端:75%タイル値、箱中央:中央値、箱の下端:25%タイル値、ひげの下端:最小値、黒点:外れ値を

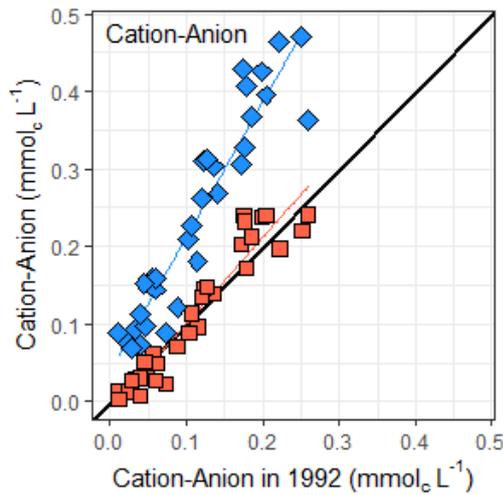


図4 陽イオン総量と陰イオン総量の差
 $[(Ca^{2+} + Mg^{2+} + K^{+} + Na^{+}) - (Cl^{-} + NO_3^{-} + SO_4^{2-})]$
 1992年に対する2007年(赤)、2022年(青)の関係
 黒線, 1:1 ライン; 赤線, 2007年回帰線; 青線, 2022年回帰線

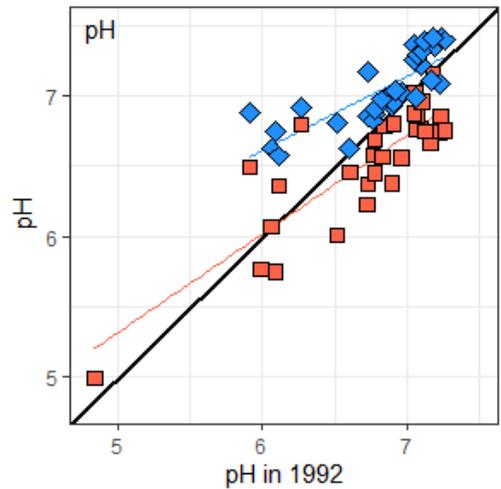


図5 1992年のpHに対する2007年(赤)2022年(青)の関係
 黒線, 1:1 ライン; 赤線, 2007年回帰線; 青線, 2022年回帰線

示す) で表示したものである。同一の地質区分における濃度の長期変化は、アルファベット (同一の地質種における採取年間の濃度差について多重比較検定を行い、有意水準5%で有意差がみられる場合に異なるアルファベットを付与) がおおむね同一であることから、約30年間にわたり顕著な濃度変動がないことがわかる。地質ごとの濃度は、高い順におおむね中生層 (大谷山) =花崗岩>ホルンフェルス=中生層 (草木) だった。同じ中生層でも、FM大谷山がFM草木よりも濃度が高かった要因として火山

灰の影響が考えられる。火山灰は基岩に匹敵する量の塩基性陽イオンを風化により供給することが明らかにされている(Koshikawa et al., 2016¹⁶)。またFM大谷山の一部の流域では土壌のNO₃⁻吸着特性から、火山灰土壌の分布が推察されている(浦川ら, 2009¹⁷)。以上のことから、FM大谷山とFM草木は、陽イオンの供給源として基岩と火山灰の寄与度が異なる可能性がある。今後、ストロンチウム安定同位体を利用した手法(Nakano et al., 2001¹⁸)等により塩基性陽イオンの起源や溪流への供給過程を解明する必要がある。

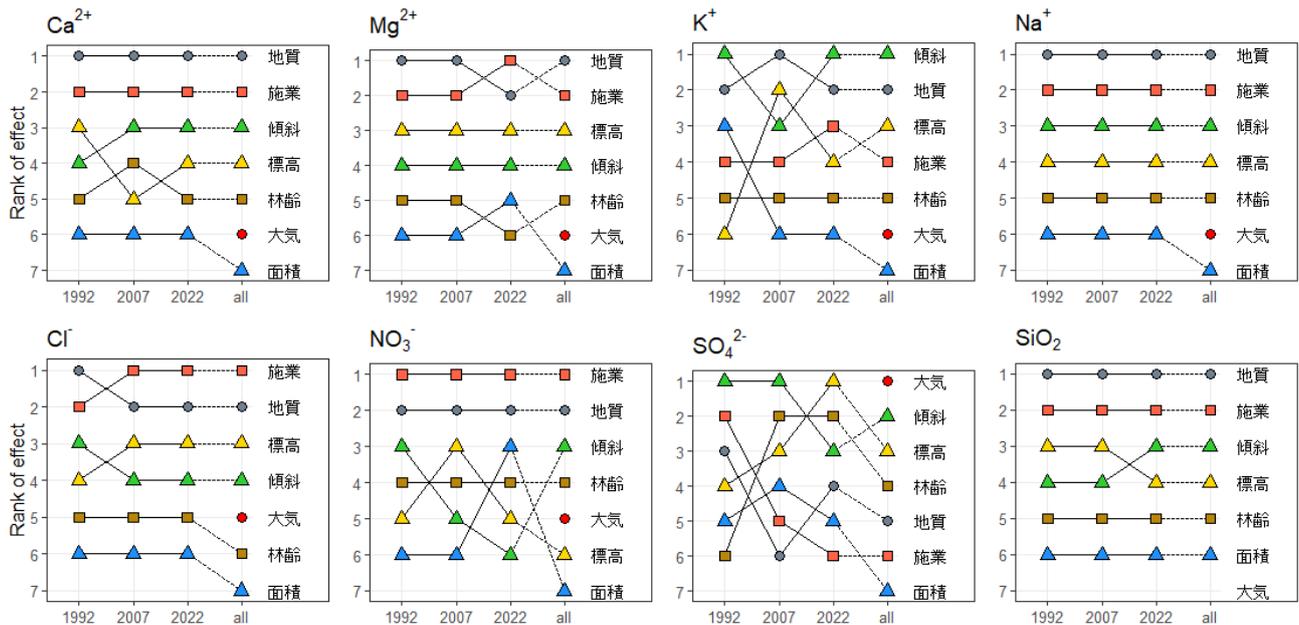


図6 各種イオン濃度に影響を及ぼす要因の長期変化
 PLS-Rによる説明力(VIP)が強い順に流域特性値を並べている

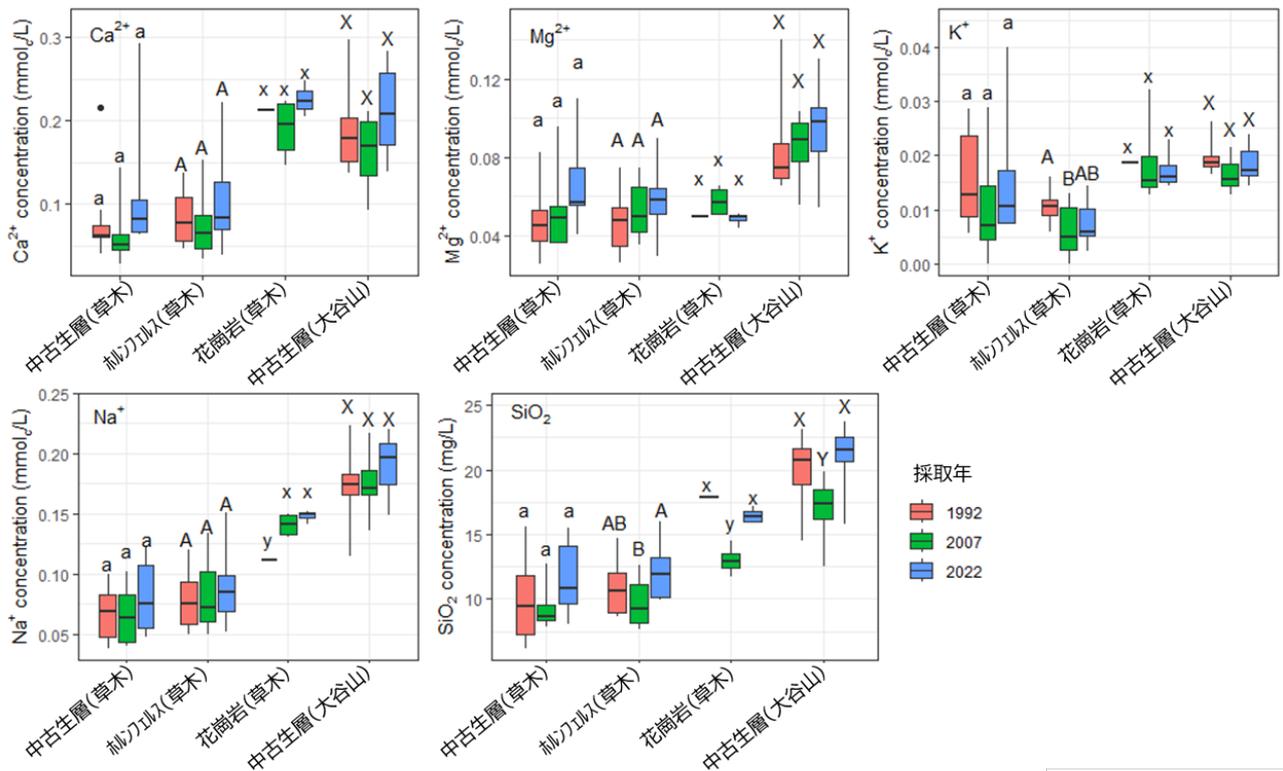


図7 陽イオンおよび SiO₂ 濃度の長期変化 (地質で区分)

異なるアルファベットは採取年で濃度が有意に異なることを示す ($p < 0.05$, 多重比較 Tukey-HSD test)

同一の地質区分では、1992、2007、2022年の濃度に有意差がなかったことから (図7)、基岩や火山灰の風化により塩基性陽イオンが安定的に供給されていることが明らかになった。

Cl⁻およびNO₃⁻濃度は長期的に低下し (図3)、濃度の地理的な分布に影響を及ぼす要因としては施肥が選択された (図6)。このため、Cl⁻とNO₃⁻について施肥で区分した上で濃度の長期変化をみると (図8)、Cl⁻、NO₃⁻ともに人工林+施肥区で1992年から2022年にかけて順次低下する傾向がみられた。FM大谷山内の9の小流域では1983~1991年に断続的に窒素換算で合計20~330 kgN ha⁻¹もの施肥が行われた。肥料の成分はN:P:K = 20:10:10であり、Kは塩化カリウム (KCl)として配合されているため、Clも10%程度含まれている。このことから1992年のCl⁻およびNO₃⁻の高濃度は施肥が原因と考えられる。施肥の終了から15年以上経過した2007年に観察された比較的高い濃度も、施肥由来のCl⁻およびNO₃⁻の流出遅延 (浦川ら, 2007¹⁹; 2009¹⁷) に起因すると考えられた。人工林+施肥区は2022年には他の施肥区と同程度まで濃度が低下した。NO₃⁻濃度の1992—2007、1992—2022間の関

係にバラツキが大きかった (図3) のは、施肥種間の濃度差によるものと考えられた。

渓流水SO₄²⁻濃度の30年の変化とFM大谷山で観測

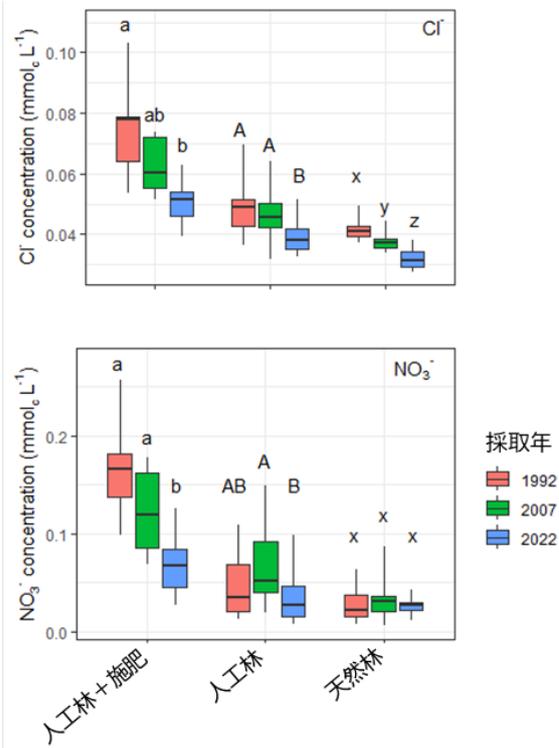


図8 Cl⁻および NO₃⁻濃度の長期変化 (施肥で区分)
異なるアルファベットは採取年で濃度が有意に異なる事を示す ($p < 0.05$, 多重比較 Tukey-HSD test)

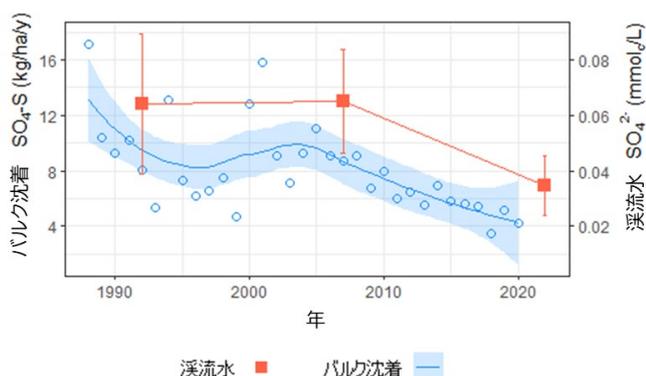


図9 FM大谷山におけるSO₄-S年間沈着量の経年変化と渓流水SO₄²⁻濃度（全流域の平均値、エラーバーは標準偏差）の変動

している大気沈着の1988年からの長期変動を重ねて、大気沈着と渓流水質の関係を検討した（図9）。国内の硫黄排出は1990年以降減少傾向であったが（Seto et al., 2002²⁰）、大陸からの越境大気汚染の流入増加により、SO₄-S沈着は2000年代半ばに再度ピークを迎えた（Duan et al., 2016¹⁰; Kurokawa et al., 2013²¹; 環境省, 2019²²; Ohizumi et al., 2016²³）。この傾向は群馬県の研究対象地域でも同様であり、越境大気汚染によるSO₄-S沈着のピークが2005年に観測されている（図9）。渓流水のSO₄²⁻濃度は、このSO₄-S沈着の変動に沿って変化した。具体的には、1992年と2007年は、国内排出の減少と大陸からの流入増加が釣り合い、SO₄-S沈着量が比較的維持されていたため、渓流水SO₄²⁻濃度の有意な変化は見られなかった。しかし、2005年以降の大気沈着減少に伴い、SO₄²⁻濃度は2022年には有意に低下した（図9）。以上のことから、渓流水のSO₄²⁻濃度は大気環境の変化に対して敏感に反応するといえる。しかし、研究対象地域に分布する火山灰土壌（浦川ら, 2007¹⁹）は、陰イオン交換によりSO₄²⁻吸着を示す（Tanikawa et al., 2009²⁴）。この特性がSO₄²⁻の保持と流出遅延を引き起こすため、過去の大気汚染の長期的な影響評価のためには、今後も継続的な渓流水質のモニタリングが必要である。

4.まとめ

群馬県内の37の森林小流域において30年にわたる渓流水質の調査を実施し、水質の長期変化、溶存元素の地理的な分布に影響を与える流域特性、

およびその長期的な変化を検討した。塩基性陽イオンとSiO₂濃度は30年間ほぼ変動がなかったのに対し、陰イオンは大気環境の変化や施肥後の経過時間にもなって濃度が低下した。陽イオン総量に対する陰イオンの不足を補うためにHCO₃⁻濃度が上昇したとみられ、2022年には渓流水のpHが上昇した。過去30年間、日本では欧米に匹敵する大気汚染を経験したが、基岩や火山灰の風化による豊富な塩基性陽イオンの供給により渓流水は酸性化を免れていることがわかった。一方で、FM大谷山とFM草木は5 kmほどしか離れていないが、陽イオンの起源や供給能力が異なる可能性が示唆された。今後は陽イオン供給能をさらに調査し、森林の酸中和機構が将来にわたって持続的に機能するかどうかを評価していく必要がある。

5.謝辞

東京農工大学FM大谷山・草木の技術職員の方々には、水文水質モニタリングに長期にわたりご協力いただいている。東京農工大学の三好貴之さん、アジア大気汚染研究センターの諸橋将雪さんには水質試料の採取・分析にご協力いただいた。アジア大気汚染研究センターの中村久美子さん、二見真理さんには論文草稿への有益な助言をいただいた。本研究はJESC研究奨励金、JSPS科研費JP19K06138、および総合地球環境学研究所の同位体環境学共同研究事業の助成を受けて実施された。ここに記して謝意を表する。

6.引用文献

- 1) Urakawa R, Toda H, Cao Y (2024): Long - term changes in stream water chemistry in small forested watersheds in the northern Kanto region. *Ecological Research*, pp.1 - 13. <https://doi.org/10.1111/1440-1703.12460>
- 2) Aber J, Nadelhoffer K, Steudler P, Melillo J (1989): Nitrogen Saturation in Northern Forest Ecosystems. *Bioscience*, 39, pp.378-386
- 3) Likens GE, Driscoll CT, Buso DC (1996): Long-Term Effects of Acid Rain: Response and Recovery of a Forest Ecosystem. *Science*, 272, pp.244-246.
- 4) Nakahara O, Takahashi M, Sase H, et al (2010): Soil

- and stream water acidification in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry*, 97, pp.141–158
- 5) Sase H, Takahashi M, Matsuda K, et al (2019): Response of river water chemistry to changing atmospheric environment and sulfur dynamics in a forested catchment in central Japan. *Biogeochemistry*, 142, pp.357–374
 - 6) Skjelkvåle BL, Stoddard JL, Jeffries DS, et al (2005): Regional scale evidence for improvements in surface water chemistry 1990–2001. *Environmental Pollution*, 137, pp.165–176
 - 7) Kothawala DN, Watmough SA, Futter MN, et al (2011): Stream Nitrate Responds Rapidly to Decreasing Nitrate Deposition. *Ecosystems*, 14, 274–286
 - 8) Eshleman KN, Sabo RD, Kline KM (2013): Surface Water Quality Is Improving due to Declining Atmospheric N Deposition. *Environmental Science and Technology*, 47, pp.12193–12200
 - 9) Driscoll CT, Driscoll KM, Fakhraei H, Civerolo K (2016): Long-term temporal trends and spatial patterns in the acid-base chemistry of lakes in the Adirondack region of New York in response to decreases in acidic deposition. *Atmospheric Environment*, 146, pp.5–14
 - 10) Duan L, Yu Q, Zhang Q, et al (2016): Acid deposition in Asia: Emissions, deposition, and ecosystem effects. *Atmospheric Environment*, 146, pp.55–69
 - 11) Ohte N, Tokuchi N (1999): Geographical variation of the acid buffering of vegetated catchments: Factors determining the bicarbonate leaching. *Global Biogeochemical Cycles*, 13, pp.969–996
 - 12) 大類清和, 生原喜久雄, 相場芳憲 (1994): 森林小集水域における渓流水質に及ぼす諸要因の影響. *日本林学会誌*, 76, pp.383-392
 - 13) Urakawa R, Toda H, Haibara K, Aiba Y (2012): Long-term hydrochemical monitoring in an Oyasan Experimental Forest Watershed comprised of two small forested watersheds of Japanese cedar and Japanese cypress. *Ecological Research*, 27, pp.245–245
 - 14) R Core Team (2022): *_R: A Language and Environment for Statistical Computing_*. R Foundation for Statistical Computing, Vienna, Austria, <https://www.R-project.org/>
 - 15) Ohte N, Tokuchi N, Suzuki M (1995): Biogeochemical Influences on the Determination of Water Chemistry in a Temperate Forest Basin: Factors Determining the pH value. *Water Resources Research*, 31, pp.2823–2834
 - 16) Koshikawa MK, Watanabe M, Shin K-C, et al (2016): Using isotopes to determine the contribution of volcanic ash to Sr and Ca in stream waters and plants in a granite watershed, Mt. Tsukuba, central Japan. *Environmental Earth Science*, 75, article number 501
 - 17) 浦川梨恵子, 戸田浩人, 生原喜久雄, 崔東寿 (2009): スギ・ヒノキ伐採流域における火山灰土壌の陰イオン吸着特性が NO₃⁻の長期流出に及ぼす影響. *日本森林学会誌*, 91, pp.184-191
 - 18) Nakano T, Yokoo Y, Yamanaka M (2001): Strontium isotope constraint on the provenance of basic cations in soil water and stream water in the Kawakami volcanic watershed, central Japan. *Hydrological Process*, 15, pp.1859–1875
 - 19) 浦川梨恵子, 戸田浩人, 生原喜久雄 (2007): 高齢化したスギ・ヒノキ人工林小流域における下層土の NO₃⁻吸着による窒素流出の遅延効果. *日本森林学会誌*, 89, pp.190-199
 - 20) Seto S, Nakamura A, Noguchi I, et al (2002): Annual and seasonal trends in chemical composition of precipitation in Japan during 1989–1998. *Atmospheric Environment*, 36, pp.3505–3517
 - 21) Kurokawa J, Ohara T, Morikawa T, et al (2013): Emissions of air pollutants and greenhouse gases over Asian regions during 2000–2008: Regional Emission inventory in Asia (REAS) version 2. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 13, pp.11019–11058
 - 22) 環境省 (2019): 越境大気汚染・酸性雨長期モニタリング報告書 (平成 25～29 年度)
 - 23) Ohizumi T, Take N, Inomata Y, et al (2016): Long-term variation of the source of sulfate deposition in a leeward area of Asian continent in view of sulfur isotopic composition. *Atmospheric Environment*, 140, pp.42–51
 - 24) Tanikawa T, Takahashi M, Imaya A, Ishizuka K (2009): Highly accumulated sulfur constituents and their mineralogical relationships in Andisols from central Japan. *Geoderma*, 151, pp.42–49

7.Summary

Based on water quality surveys conducted over approximately 30 years from 1991 to 2022 in about 40 forested small watersheds in the northern Kanto region, long-term fluctuations in stream water quality and the factors for individual elements were elucidated. The concentrations of alkaline cations (Ca²⁺, Mg²⁺, K⁺, Na⁺) and SiO₂ in stream water remained relatively constant

during the 30-year period, while decreases in the concentrations of anions (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) were observed in 2022, attributed to improvements in atmospheric environment and reduced fertilization effects. As a result of the excess of total cations compared to total anions, bicarbonate ion (HCO_3^-) concentration increased, leading to an increase in pH. Among environmental characteristics of watershed, geology consistently exerted significant influences on the spatial distribution of alkaline cations and SiO_2 concentrations throughout the 30-year period. Fertilization significantly affected Cl^- and NO_3^- concentrations, becoming a factor leading to high concentrations observed in fertilized watersheds for over 15 years (1992 to 2007). Atmospheric SO_4 -S deposition influenced SO_4^{2-} concentrations, causing fluctuations in stream concentrations along with changes in deposition amounts across the 30-year period. Although the study area has experienced significant acid deposition, it was suggested that stream water acidification has been avoided due to the abundant supply of alkaline cations from weathering of bedrock and volcanic ash.