長野県における溪流水・河川水の 窒素濃度に及ぼす人間活動の影響

戸田 任重^{*1}・椎名 未季枝^{*1}・山崎 未月^{*1}
菅野 万理子^{*1}・今井 響子^{*1}

Human impact on nitrogen concentration of streams and rivers in Nagano Prefecture

Hideshige TODA^{*1}, Mikie SHIINA^{*1}, Miduki YAMAZAKI^{*1},
Mariko KANNO^{*1} and Kyoko IMAI^{*1}

Abstract

Nitrate was the dominant form of dissolved nitrogen in stream waters in Nagano Prefecture. Nitrate concentration showed a large geographical variation, ranging from 0.02 to 1.20 mg N L⁻¹. Although there are significant negative relationships between nitrate concentration and altitude or annual precipitation, artificial influence accompanying with rainfall has not yet been confirmed on nitrate concentration in stream waters in Nagano Prefecture. In the Chikuma and Tenryu Rivers, dissolved organic nitrogen was observed in addition to the dominant nitrate. Dissolved total nitrogen concentration was around 1.5 mg N L⁻¹ in the middle part of the both rivers. Nitrogen stable isotope ratio of periphyton increased downstream in the Chikuma River, whereas it was high in the upper reach and then decreased downstream in the Tenryu River. Nitrogen sources might shift from agricultural and mountain origins to sewage and livestock waste in the Chikuma River. Nitrogen derived from a sewage treatment system mainly contributed to the river nitrogen in the upper reach of the Tenryu River.

Key words: nitrogen pollution, river, nitrogen stable isotope ratio, Chikuma River, Tenryu River

キーワード：窒素汚染，河川，窒素安定同位体比，千曲川，天竜川

I. はじめに

河川には、流域から様々な物質が流入している。窒素に関してみれば、上流域では、近接した森林から、落葉や落枝の形態で懸濁態窒素が直接入る。降水に伴い表面流去あるいは地下浸透により、無機態や有機態の溶存態窒素も流入する。地下浸透には、土壌有機物の無機化に由来する窒素

も含まれる。人間活動の増大に伴い、大気中の窒素化合物が増加し、降水由来の窒素負荷が増え、本来窒素制限であった森林からの窒素の流出が増加しているとの指摘もある (Aber *et al.*, 1989; Ohnishi and Mitchell, 1997; Shibata *et al.*, 2001; Yoh *et al.*, 2001)。人間活動が活発になる中流域では、農耕地由来の窒素や、人間・家畜からの排せつ物、食品工場などからの排水が流入してくる。

* 1 信州大学理学部 Faculty of Science, Shinshu University

様々な起源の窒素は、河川水中では、混合し、変換されて、硝酸態窒素をはじめとする窒素化合物として存在する。これらの流入した窒素は、河川水質に影響を及ぼし、またそこに生息する生物に利用されている。窒素（硝酸態窒素）濃度が高すぎれば、飲用水として不適になるし、それがダムや湖沼、内湾等に流入すれば植物プランクトンの大増殖を引き起こし、アオコや赤潮の原因にもなる。河川水の窒素レベルを適切に保ち、下流域を含む河川生態系を健全な状態で維持管理していく上で、集水域を含む河川での窒素動態の把握が必要である。

本論文では、長野県内の溪流、および千曲川、天竜川の窒素濃度と人間活動との関連を検討する。

II. 方法

渓流水は、流域地上部には農耕地、牧草地、人家、畜舎などの人為的汚染源がない森林域で採水した。採水は、2003年夏（8月～9月）に70地点、2004年夏（8月～9月）に34地点で、原則として降水直後は避けて行った。千曲川では、2001年8月、10月、12月に、信濃川上村（長野―新潟県境から195km）から坂城町（同97km）まで、計17地点で、河川水および河床付着藻類を採集した。天竜川では、2001年8月と9月に、釜口水門直下から長野―静岡県境まで計7地点で、河川水および河床付着藻類を採集した。

各採水地点において、EC計（METTLER TOLED, MC126）、pH計（METTLER TOLED, MP126）を用いて、溪流の水温、pH、電気伝導度（EC）を測定した。渓流水、河川水は、100～500 mLのポリ瓶に採取し、冷蔵して実験室に持ち帰り、ガラスろ紙（Whatman GF/C）で濾過後、分析まで冷凍保存した。河床付着物は、流速や水深が同じような場所から、1～3個の礫を採取し、礫表面の付着物を歯ブラシでこすり取り採集した。

硝酸態窒素・亜硝酸態窒素は、イオンクロマトグラフ（DIONEX DX-120）を用いて測定した。アンモニア態窒素（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ）はインドフェノール

法で、溶存態全窒素（DTN）はペルオキシ二硫酸カリウム分解法で、分光光度計（日本分光 V-530）を用いて比色分析法により測定した。溶存態有機窒素（DON）については、溶存態全窒素から溶存態無機窒素（ $\text{NH}_4\text{-N} + \text{NO}_3\text{-N}$ ）を差し引いて求めた。河床付着物は、水生昆虫を取り除いた後、60℃で乾燥させ、粉末にして窒素安定同位体比測定に供した。

付着藻類の窒素安定同位体比は、元素分析計（Fisons 社 FlashEA1112 型）を接続した質量分析計（Finnigan MAT DELTA plus-SE 型）を用いて測定した。 $\delta^{15}\text{N}$ 値は以下の式で定義される。

$$\delta^{15}\text{N} (\text{‰}) = (\text{R}_{\text{sample}} / \text{R}_{\text{standard}} - 1) \times 1000$$

R は $^{15}\text{N} / ^{14}\text{N}$ 比である。窒素の標準試料は大気窒素で、ワーキングスタンダードとしてグリシン（ $\delta^{13}\text{C} : -0.2\text{‰}$, $\delta^{15}\text{N} : -33.0\text{‰}$ ）を用いた。測定誤差は $\pm 0.2\text{‰}$ であった。

III. 結果と考察

1. 長野県内の渓流水の窒素濃度

長野県内全域を対象とした、2003年夏季の調査では、渓流水の無機態窒素の大部分は、硝酸態窒素であり、アンモニア態窒素はごくわずかで（平均 $0.014 \text{ mg N L}^{-1}$ ）、亜硝酸態窒素は検出限界以下（ $<0.01 \text{ mg N L}^{-1}$ ）であった。硝酸態窒素濃度は、0.03 から 1.20 mg N L^{-1} であり、約 40 倍の地理的変動を示した（Fig. 1）。上信越高原、妙義・秩父山系、中信高原・八ヶ岳、赤石山脈で比較的高い値がみられ、飛騨山脈や木曽山脈では濃度が低かった。2003年夏季の硝酸態窒素濃度の平均値は 0.25 mg N L^{-1} であった。2004年夏季の硝酸態窒素濃度も、 $0.02 \sim 1.04 \text{ mg N L}^{-1}$ の変動範囲を示し、平均値は 0.25 mg N L^{-1} であり、地理的な濃度分布も、2003年とほぼ同様であった。両年とも県内中央部、東部・南部で高く、西部で低い傾向が認められた。この濃度分布は、2002年秋季の木平（私信）の調査結果でもみられている。これらのことから、渓流水の硝酸態窒素濃度の年変動

Fig. 1 Nitrate concentration of stream water in summer of 2003 and 2004 in Nagano Prefecture.

は比較的小さく、地理的変動が大きいことがわかる。これまでの解析では、渓流水の硝酸態窒素濃度と、標高や年間降水量との負の相関関係は認められているが、大気降下物を通しての人為的影響を示す明確な証拠は、少なくとも長野県内では得られていない。

2. 千曲川における窒素汚染

千曲川では、硝酸態窒素に加えて、溶存有機態窒素もみられた (Fig. 2)。溶存態全窒素濃度は、上流では 0.1 mg N L^{-1} 程度であったが、高原野菜栽培の盛んな地域では 2 mg N L^{-1} を越え、その後はやや低下し、中流部では 1.5 mg N L^{-1} 前後で推

Fig. 2 Dissolved nitrogen concentration and nitrogen stable isotope ratio of periphyton along the Chikuma River. Vertical bar of the isotope ratio indicates standard deviation.

移した。付着藻類の窒素安定同位体比は、上流の -1.5‰ から次第に増加し、中流部では $+6 \sim +8\text{‰}$ に達した。

千曲川流域において原単位法で算出した単位面積当たりの窒素負荷発生量（比負荷量）は、 $8 \sim 20 \text{ kgN ha}^{-1} \text{ 年}^{-1}$ で、下流ほど増加する傾向を示した（戸田ほか，2004）。上流部では、森林および農耕地（主に畑地）由来の窒素負荷が主体であり、下流にいくにしたがい、家畜排せつ物および下水処理水由来の窒素負荷量が増加している。特に、下水処理水由来の窒素負荷量の増加が大きい。下水処理水と家畜排せつ物由来の窒素とを合わせると、全発生負荷量中の割合は、上流の6%から下流の40%へと上昇している。すなわち、原単位法からは、千曲川流域では、人間活動増大にともなう窒素負荷量の増加とともに、その中身が下水処理水や家畜排せつ物由来の窒素にシフトしていることが示唆される。

下水処理水や家畜排せつ物に由来する窒素の安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}$ 値）は比較的高い値（ $+10 \sim +20\text{‰}$ ）を示す（Macko and Ostrom, 1994）。千曲川周辺の下水処理水の溶存態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は平均 19.5‰ であった（Toda *et al.*, 2002）。したがっ

て、千曲川流域では、窒素負荷源の変化にともない、流入する窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値も高まっているものと考えられる。流入してくる窒素の安定同位体比の変化は、河川水中の窒素の同位体比、さらにはそれを吸収同化して生育する付着藻類にも反映してくるはずである。Fig. 2 でみられた付着藻類の窒素安定同位体比の上昇は、上述した窒素源の変化を反映したものであろう。

千曲川では、付着藻類の $\delta^{15}\text{N}$ 値と、下水処理水と家畜排せつ物に由来する窒素の相対的割合とは有意な正の相関関係が認められている（Toda *et al.*, 2002）。原単位法に基づく推定でも、付着藻類の窒素安定同位体比からも、千曲川では流下にもない、流入してくる窒素の起源が、農耕地・森林由来の窒素から下水放流水および家畜排せつ物由来の窒素にシフトしていることが示唆された。

3. 天竜川における窒素汚染

天竜川でも主要な窒素の形態は硝酸態窒素であり、溶存有機態窒素もみられた（Fig. 3）。溶存態全窒素濃度は、千曲川と同程度の 1.5 mg N L^{-1} 前後であった。付着藻類の窒素安定同位体比は、最上流部の釜口水門で最も高く（ 15‰ ）、水門から

Fig. 3 Dissolved nitrogen concentration and nitrogen stable isotope ratio of periphyton along the Tenryu River. Vertical bar of the isotope ratio indicates standard deviation.

25km 付近までは急速に低下し、その後+5～+7%で推移した。諏訪湖釜口水門直上では、諏訪流域下水処理施設からの処理水が放流されている。付着藻類の窒素安定同位体比からは、天竜川上流部25km 付近までは、下水放流水由来の窒素の影響が大きいことが示唆される。

下水放流水由来の窒素が主であるにも関わらず、釜口水門直下の溶存態全窒素濃度は 1.2 mg N L^{-1} でそれほど高くはない。夏季の諏訪湖では、植物プランクトンが活発に繁殖し、湖水中の無機態窒素は吸収しつくされて、湖水中にはほとんど残っていない(沖野, 1990)。釜口水門から流出する湖水のうち、下水放流水の割合は水量的には小さく、流出水中の窒素濃度は低くなっている。しかし、湖水の溶存態窒素中での下水放流水に由来する窒素の相対的割合は高く、結果として流出水の溶存態窒素の同位体比が高くなっている。下水放流水に由来する窒素は、天竜川を流下する間に付着藻類に吸収され次第に河川水中からは減少し、支流を通して流域から流入してくる窒素に置き換わる。付着藻類の窒素安定同位体比から、天竜川の上流部(諏訪湖直下)では下水放流水由来の窒素の影響が大きく、中流部では流域の農耕地・森林由来の窒素にシフトしていることが示唆された。

Ⅳ. おわりに

長野県内の渓流水の溶存態窒素は、そのほとんどが硝酸態窒素であり、その濃度は $0.02 \sim 1.20 \text{ mg N L}^{-1}$ で大きな地理的変動を示した。渓流水の硝酸態窒素濃度と、標高や年間降水量との負の相関関係は認められているが、大気降水物を通しての人為的影響を示す明確な証拠は、少なくとも長野県内では得られていない。千曲川・天竜川では、硝酸態窒素が主であるが、溶存有機態窒素もみられた。溶存態全窒素濃度は、両河川ともに中流部では 1.5 mg N L^{-1} 前後であった。付着藻類の窒素安定同位体比は、千曲川では流下に伴い上昇したが、天竜川では最上流部(諏訪湖直下)で最も高く、流下に伴い減少した。千曲川では流入し

てくる窒素の起源が、農耕地・森林由来の窒素から下水放流水および家畜排泄物由来の窒素にシフトしていることが示唆された。天竜川上流では、諏訪湖流域下水道からの放流水に含まれる窒素の影響が大きく、中流では流域の農耕地・森林に由来する窒素にシフトしていることが示唆された。

謝 辞

本研究は、環境省地球環境研究総合推進費(C-6, C-052)、および千曲川河川生態学術研究の支援を受けて実施した。

文 献

- 沖野外輝夫(1990): 諏訪湖—ミクロコスモスの生物—, 八坂書房, 204pp.
- 戸田任重・椎名未季枝・平林 明・新藤純子・川島博之・沖野外輝夫(2004): 千曲川における窒素化合物の由来, 地球環境, **9**(1): 41-48.
- Aber, J. D., Nadelhoffer, K. J., Steudler, P. and Melillo, J. M., 1989. Nitrogen saturation in northern forest ecosystems. *BioScience*, **39**: 378-386.
- Macko, S. A. and Ostrom, N. E. (1994): Pollution studies using stable isotopes. In: K. Lajtha and R. H. Michener, *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science*, Blackwell Scientific, Oxford, 45-62.
- Ohrui, K. and Mitchell, M. J. (1997): Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds. *Ecol. Appl.*, **7**: 391-401.
- Shibata, H., Kuraji, K., Toda, H. and Sasa, K. (2001): Regional comparison of nitrogen export to Japanese forest streams. *The Scientific World*, **1**(S2): 572-580.
- Toda, H., Uemura, Y., Okino, T., Kawanishi, T. and Kawashima, H. (2002): Use of nitrogen stable isotope ratio of periphyton for monitoring nitrogen sources in a river system. *Water Science*

and Technology, **46** (11-12): 431-435.

(受付 2006年 5 月 6 日)

Yoh, M., Konohira, E. and Yagi, K. (2001): Regional distribution of natural stream nitrate in central Japan. *Water, Air, and Soil Pollution*, **130**: 655-660.

(受理 2006年 7 月10日)

この論文に対する「討論」を2007年 2 月28日まで受け付けます。