福島県中通りにおける 阿武隈川水系源流域の渓流水質

苗村 晶彦¹・渡邊 善之²・小柳 信宏³・楊 宗興⁴・渡辺 幸一⁵

¹正会員 戸板女子短期大学 総合教養センター (〒105-0014 東京都港区芝2-21-17)

E-mail: naemura@toita.ac.jp

²非会員 公益財団法人平岡環境科学研究所 (〒252-0102 神奈川県相模原市緑区5-15-6)

E-mail: mavit@yahoo.co.jp

³非会員 一般財団法人新潟県環境衛生研究所 (〒953-0135 新潟県新潟市西蒲区南谷内333-1)

E-mail: oyanagi0009@gmail.com

⁴非会員 東京農工大学大学院 農学研究院 (〒183-8509 東京都府中市幸町3-5-8)

E-mail: yoh@tuat.ac.jp

⁵非会員 富山県立大学 工学部 (〒939-0398 富山県射水市黒河5180)

E-mail: nabe@pu-toyama.ac.jp

首都圏に由来する汚染気塊の影響により、これと北接する福島県において光化学スモッグ注意報が発令されることがある。森林の物質循環に及ぼす大気の影響を調べるため、福島県中通りを流れる阿武隈川水系の源流域において、平水時の Cl⁻濃度および NO₃⁻濃度を測定した。渓流水中の Cl⁻濃度は、高い順に郡山、福島、西白河となった。首都圏の秩父多摩甲斐山岳域と比較すると、本調査値は標高の割りに郡山と福島で Cl⁻濃度が高かった。NO₃⁻濃度については、3地点の平均濃度が 12.8 μM で渓流水へのリーチングが相対的に小さく、地点間の変動も小さかった。関東周辺の森林渓流水では高濃度の NO₃⁻が観測されるが、福島県中通りにおいては関東地方の窒素飽和問題とは異なることが考えられる。

Key Words: air mass pollution, stream water, Fukushima, Abukuma River System, chloride, nitrate

1. はじめに

森林集水域に降った雨水は樹木、土壌を通過することにより、様々な溶存物質を含み化学変化を経て地下水や森林渓流水となっていく。したがって、森林渓流水は森林生態系の物質循環における重要な物質の流出経路である。大気から渓流水質に及ぼす影響については、鹿児島県の屋久島の例として、化石燃料由来の硫酸化物の長距離輸送による水質への顕著な影響が報告されている¹⁾。

渓流水中の溶存化学成分には、大気由来の影響を反映するものとして塩化物イオン (Cl⁻) が挙げられる²⁾。大気からの Cl⁻は、降水等によって森林へ流入した際には、森林生態系の影響をほとんど受けない。また、Cl⁻は岩石中にはわずかしこ含まれず、岩石の風化過程で渓流水に寄与する量はほとんどない。

森林生態系内の物質循環において、欧米の研究例から指摘され始めた森林生態系における窒素飽和という問題が存在する。これまで窒素に欠乏した生態系とされてき

た森林生態系が、大気からの窒素負荷のため窒素について過剰化した現象である³⁾。典型的現象として、森林から窒素のリーチング（大部分の形態は、硝酸イオン (NO₃⁻)）がはじまり、窒素飽和状況を示す指標として森林渓流水の NO₃⁻濃度が重要である。首都圏周辺の森林渓流水では、多摩川の中～上流域の多数の渓流水についての通年調査における各 NO₃⁻濃度の変動係数は 14.0～50.0%の範囲で平均 26.7%であり、平水時に限る限り 1 回のデータでもかなり高い時間代表性があることを論じている⁴⁾。また小柳のデータ⁵⁾によると、北関東地方の群馬県みどり市の利根川水系の森林渓流水 (*n*=48) 中の NO₃⁻濃度の変動係数は 16.6%であり上記を裏付け、Cl⁻濃度については 5.9%であり主要イオンの中では最も変動係数が小さく、特に時間代表性があると考えられる。

ところで、わが国で光化学スモッグ注意報は依然として多く発令されており、更に発令範囲は広域化している。2007 年および 2009 年には光化学スモッグ注意報の発令が観測史上最多の 28 都府県に及んだ⁶⁾。福島県におい

図-1 調査地

でも首都圏由来の汚染気塊の影響で光化学スモッグ注意報が発令されている^{7,8)}。光化学スモッグの原因となる物質のほとんどはオゾン (O_3) である。また、 NO_3 濃度と O_3 は二酸化窒素 (NO_2) から二次汚染物質として生成され関連し合っている報告もある⁹⁾。渡邊・渡邊は、福島県内で高濃度 O_3 が出現する原因として、首都圏から福島県へ O_3 等大気汚染物質が輸送されるとしている⁷⁾。

本研究では、大気汚染の影響として首都圏に北接する福島県で人口が集中する中通り地域の阿武隈川水系の森林渓流水に着目した。そこで大気からの影響として Cl^- 濃度および NO_3^- 濃度を調べた。また、福島県内オキシダント (Ox) 濃度を解析し、光化学スモッグと森林渓流水の関わりについて考察した。

2. 方法

調査地は図-1 に示す通りである。阿武隈川は、水源を旭岳 (標高 1853 m) とする福島県、山形県および宮城県を流れる一級河川の流域面積 5390 km²、延長 239 km で、東北地方で北上川に次ぐ長さで日本有数の河川である。調査地は福島県中通り地域の福島市内、郡山市内および西白河郡西郷村の中通りを貫通する東北自動車道および国道 4 号線より西側の阿武隈川水系の源流を調査地とした。福島市、郡山市および西白河郡に東接する白河市の人口はそれぞれ 29.4 万、33.5 万および 6.1 万 (2015 年 10 月現在) である。

福島市内の源流 (大滝川, 北緯 37.82 度, 東経 140.33 度, 標高 400 m), 郡山市内の源流 (逢瀬川, 北緯 37.41 度, 東経 140.20 度, 標高 460 m) および西白河郡西郷村

内の源流 (千歳川, 北緯 37.19 度, 東経 140.10 度, 標高 510 m) において、2015 年 8 月 28 日 (夏季調査) および同年の 12 月 14 日 (冬季調査) の平水時に採取した。いずれの調査地も針葉樹林と広葉樹林の混交林で集水域は福島・大滝川が 2.9 km²、郡山・逢瀬川が 3.0 km²、西白河・千歳川が 6.2 km² である。また 3 箇所の調査地の真ん中に位置する郡山 (北緯 37.37 度, 東経 140.33 度, 標高 249 m) における 8 月調査時の降水量は 24 日 0.0 mm, 25 日 0.0 mm, 26 日 12.5 mm, 27 日 0.5 mm, 28 日 1.5 mm であり、12 月調査時の降水量は 10 日 0.0 mm, 11 日 40.0 mm, 12 日 0.0 mm, 13 日 0.0 mm, 14 日 0.0 mm であった。採取した試料については、ADVANTEC 社のメンブランフィルター (ポアサイズ 0.45 μ m) で濾過した後、溶存成分について Cl^- および NO_3^- 濃度は、夏季調査では DIONEX 社のイオンクロマトグラフィー (DX-120) を用いて測定した。また、冬季調査については DIONEX 社のイオンクロマトグラフィー (IC-1600) を用いて測定した。

また、福島、郡山および白河における Ox 濃度を 2013 年 4 月 1 日から 2015 年 3 月 31 日まで解析した。解析の対象とした場所はいずれも学校とし、福島市立福島第一中学 (以下、福島, 北緯 37.74 度, 東経 140.46 度, 標高 64 m), 郡山市立橋小学校 (以下、郡山, 北緯 37.39 度, 東経 140.38 度, 標高 233 m), 福島県立白河旭高校 (以下、白河, 北緯 37.12 度, 東経 140.22 度, 標高 350 m) とした。用いたデータは各自治体が設置している大気常時監視測定結果とした。

3. 結果

(1) Cl^- 濃度

福島・大滝川, 郡山・逢瀬川および西白河・千歳川における渓流水中の Cl^- 濃度を表-1 に示す。3 箇所の Cl^- 濃度は平均 66.8 μ M となった。広域で同時期に採取し比較した渓流水質のケースでは、光化学スモッグ注意報が多発する首都圏の秩父多摩甲斐山岳域において標高差別 (標高 220~2200 m) における調査データがある¹⁰⁾。そのデータでは Cl^- 濃度は標高が上がる毎に低下する傾向が見られ、最も低かった大弛峠 (富士川水系, 標高 2200 m) の 11.2 μ M と比較して 6.0 倍、最も高かった八王子城址 (多摩川水系, 標高 220 m) の 87.0 μ M と比較して 0.77 倍となった。秩父多摩甲斐山岳域では、標高 (x) と Cl^- 濃度 (y) との間で指数近似すると相関係数が 0.943 となり、

$$y = 77.7e^{-0.0009x} \quad (1)$$

が得られている。その近似式に採取地点の標高を充てると福島・大滝川, 郡山・逢瀬川および西白河・千歳川はそれぞれ 54.2, 51.4 および 49.1 μ M となり、福島・大滝

表-1 福島県中を通りにおける渓流水中の Cl 濃度

	夏季調査 (μM)	冬季調査 (μM)
福島・大滝川	67.0	79.0
郡山・逢瀬川	76.3	86.8
西白河・千歳川	44.4	47.5

表-2 福島県中を通りにおける渓流水中の NO_3 濃度

	夏季調査 (μM)	冬季調査 (μM)
福島・大滝川	10.9	13.1
郡山・逢瀬川	12.9	15.5
西白河・千歳川	11.3	12.9

川と郡山・逢瀬川ではこの理論値よりそれぞれ 1.34 倍、1.59 倍と高くなった。

(2) NO_3 濃度

福島・大滝川、郡山・逢瀬川および西白河・千歳川における渓流水中の NO_3 濃度を表-2 に示す。3 箇所の NO_3 濃度は平均 $12.8 \mu\text{M}$ となった。変動係数は 12.8 % となり、季節変動しやすい NO_3 濃度としては変動が小さかった。冬季の方が若干高かったが、これは窒素不足の状態にある健全な森林において、植物の非生育期である冬季において NO_3 が十分に吸収されずに渓流水に流出すること³⁾ が考えられる。また、秩父多摩甲斐山岳域における広域な調査のデータ¹⁰⁾と比較しても標高 1300 m の犬切峠（多摩川水系）の $34.0 \mu\text{M}$ よりも低い結果となった。今回の調査で得た値に近いものとしては新潟県三面川水系の平均で $10 \mu\text{M}$ という報告¹¹⁾や、北アルプスの信濃川水系の乳川で $14.2 \mu\text{M}$ という報告¹²⁾や、チベット高原の桑桑（Sangsang）の東の小河川（北緯 29.4 度、東経 86.9 度）では $17.8 \mu\text{M}$ という報告¹³⁾がある。

北関東地方の群馬県みどり市の利根川水系の森林渓流水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は $0.8\sim 1.6 \text{ mg L}^{-1}$ (NO_3 濃度に換算すると $57\sim 114 \mu\text{M}$) で推移し¹⁴⁾、都心の近くの丘陵地帯における横浜市内の大岡川源流では $104 \mu\text{M}$ という報告があり¹⁵⁾、それに比べると北関東地方に隣接するといえ福島県内の阿武隈川水系の値は非常に小さかった。

(3) Ox 濃度

森林渓流水の結果に対して、福島県内の Ox 濃度については、2013 年 4 月 1 日から 2 年間の平均値で、福島が 25.4 ppb、郡山が 29.2 ppb、白河で 30.9 ppb となった。南会津および東京タワーにおける Ox 濃度について、それぞれ 28.1 ppb および 26.0 ppb となっており¹⁶⁾、福島県内においては福島が若干低い、福島と東京での Ox 濃度の違いはほとんど見られない。

4. 考察

2015 年度における福島県¹⁷⁾、東京および全国平均¹⁸⁾の Cl の湿性沈着量の年間値は、それぞれ 36.7 meq m^{-2} （以下、同様）、37.8、209.8 であった。福島県中を通り地域は太平洋側の浜通り地域との間に阿武隈山地が南北に連なるが、福島と東京の Cl の湿性沈着量がほぼ同程度であることから、標高の割りに秩父多摩甲斐山岳域に比べて海塩の影響を受けやすいと考えられた。

NO_3 は大気中で NO_2 から OH ラジカルによって酸化され生成する。つまり NO_3 は NO_2 が原因物質となる。首都圏の中心地である東京（東京都練馬区の北町小学校；北緯 35.77 度、東経 139.66 度、標高 31 m）と、今回の調査地の福島（福島県福島市の森合小学校；北緯 37.77 度、東経 140.45 度、標高 78 m）におけるそれぞれの小学校の測定局で NO_2 濃度を比較すると¹⁹⁾、2013 年 3 月 21 日から 1 年間の平均では東京で 26.2 ppb、福島で 9.9 ppb となり、福島は東京の 0.38 倍であった。一次汚染物質の NO_2 から二次汚染物質の O_3 が生成されるが、福島県で光化学スモッグ注意報が発令される際は、ほとんど首都圏からの汚染の輸送に因る⁸⁾。光化学スモッグの指標となる Ox 濃度（大部分は O_3 濃度）について、福島県会津地域で解析したところ、首都圏の中心地に位置する東京タワーの平均値とほとんど差はなかった¹⁶⁾。福島県ではこの 10 年、光化学スモッグ注意報が発令されたのは浜通り地域の南部に位置するいわき市がほとんどであり、福島県内で人口が集中する中通り地域は 2009 年 5 月 21 日に発令されたただけである⁸⁾。今後は、人口の集中する中通り地域に加えて浜通り地域に着眼点をおくことも重要だと考えられる。

また、2015 年度における福島県¹⁷⁾、東京および全国平均¹⁸⁾の NO_3 の湿性沈着量の年間値は、それぞれ 14.7、25.5 および 21.8 meq m^{-2} であり、 NH_4^+ の湿性沈着量の年間値は、それぞれ 27.8、32.2 および 21.7 meq m^{-2} であった。大気からの湿性沈着の窒素負荷では NO_3 について福島は東京と比較して 0.58 倍であり、一次汚染物質である

乾性沈着の NO_2 と同様に二次汚染物質の NO_3 も福島では小さい。

大気汚染の輸送については、首都圏の光化学スモッグが、夏季に埼玉県、群馬県の利根川筋を南東地上風（海風）にのって飛来し、利根川水系の碓氷川筋から碓氷峠（県境で最も低い場所）を經由し長野県の軽井沢に達する²⁰⁾。また自動車などの移動発生源の多い首都圏においては硝酸塩由来の物質が、海風によって内陸に長距離輸送される²⁰⁾。北関東の群馬県内の利根川水系上流域では西部および北部で広範囲に窒素飽和現象が出現していると推測している²¹⁾。文献²¹⁾から具体的な場所で算出すると、碓氷川水系源流域 ($n=18$) の渓流水中の NO_3 濃度の加重平均値は $121 \mu\text{M}$ である。福島県においては 2000 年から 2014 年までの 15 年間で光化学スモッグ注意報は 12 回発令された。福島県では東から浜通り地域、中通り地域および会津地域の 3 つに大別されるが、光化学スモッグ注意報が発令された延べ日数は 15 年間で浜通りが 6 日、中通りが 7 日、会津が 1 日である⁸⁾。そのほとんどが首都圏由来の大気汚染物質の飛来に因ると解析されている⁸⁾。しかしながら、調査した森林渓流水中の NO_3 濃度が北アルプス東麓の信濃川水系¹²⁾等と同程度の為、福島県の森林生態系の物質循環において渓流水中の NO_3 のリーチングは僅かである。

酸性化や窒素飽和をもたらす NO_3 濃度が福島県中通りの森林生態系のアウトプットとしてリーチングされていないことから福島県と隣接する栃木県や群馬県の北関東地方の窒素飽和问题とは異なることが考えられる。しかしながら、2015 年にも福島県において光化学スモッグ注意報が発令されたことから大気環境と森林渓流水質との関連性は今後も求められる。特に NO_3 への酸化と O_3 の生成は NO_x からの二次汚染物質としてほぼ同時に進行する場合がある為⁹⁾、今後も追求していくことが重要である。

参考文献

- 1) 海老瀬潜一, 永淵修: 屋久島溪流河川水質の流出特性と酸性雨影響, 陸水学雑誌, Vol. 63, pp. 1-10, 2002.
- 2) 鶴見実, 一國雅巳: 多摩川上流の沢水に含まれる無機成分の化学的特徴, 環境科学会誌, Vol. 2, pp. 9-16, 1989.
- 3) Aber, J. D., Nadelhoffer, K. J., Steudler, P. and Mello, J. M.: Nitrogen saturation in northern forest ecosystem, *Bioscience*, Vol. 39, pp. 378-386, 1989.
- 4) 楊宗興: 陸水学の視野を広げる: 陸域研究との相互作用, 陸水学雑誌, Vol. 61, pp. 166-167, 2002.
- 5) 小柳信宏: 森林小流域における土壌系での炭素および窒素の動態バランスに関する研究, 東京農工大学

博士論文, 2002.

- 6) 苗村晶彦, 渡邊善之: 東京タワーにおける夜間高 NO_2 濃度とポテンシャルオゾン濃度との関係, 日本生気象学会雑誌, Vol. 53, pp. 39-44, 2016.
- 7) 渡邊善之, 渡邊明: 福島県海岸域における高濃度オゾンの出現, 大気環境学会誌, Vol. 47, pp. 145-154, 2012.
- 8) 渡邊善之, 井手神志, 佐藤真由, 清野弘, 苗村晶彦, 渡邊明: 福島県における高オゾン濃度出現の特徴, 第 21 回大気環境学会北海道東北支部学術集会講演要旨集, pp. 20-21, 2014.
- 9) 佐々木一敏, 栗田秀實, 村野健太郎, 水落元之, 植田洋匡: 大気汚染物質の長距離輸送時における硫酸塩硝酸塩等の挙動, 大気汚染学会誌, Vol. 21, pp. 216-225, 1986.
- 10) 苗村晶彦, 藤田俊忠, 倉田斉, 土器屋由紀子, 楊宗興: 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, 自然環境科学研究, Vol. 16, pp. 1-6, 2003.
- 11) 越谷昌美, 渡邊未来, 高松武次郎, 林誠二, 野原精一, 佐竹研一: 新潟県三面川水系における渓流水質と集水系の地質および地形の関係, 陸水学雑誌, Vol. 72, pp. 71-80, 2011.
- 12) 桜井哲郎, 福島和夫, 山田哲雄: 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, Vol. 59, pp. 87-100, 1998.
- 13) 藤田俊忠, 曾木芳史, 吉川哲生, 西尾友宏, 津野宏, 楊宗興, 土器屋由紀子, 沼口敦: チベット高原の河川水の化学成分特性, 分析化学, Vol. 50, pp. 213-218, 2001.
- 14) 小柳信宏, 浦川梨恵子, 生原喜久雄, 戸田浩人: スギ・ヒノキ壮齡人工林小流域における降雨の移動に伴う溶存有機態窒素および溶存有機態炭素の動態, 森林立地, Vol. 44, pp. 11-20, 2002.
- 15) 苗村晶彦, 楊宗興: 横浜市大岡川源流域における森林渓流水質, 環境科学会誌, Vol. 29, pp. 201-205, 2016.
- 16) Naemura, A., Nakamura, K. and Fukuoka, Y.: Oxidant concentration by the solar term in Minami-Aizu mountainous region, Fukushima Prefecture, Japan, *Symposium on Atmospheric Chemistry & Physics at Mountain Sites*, Abstracts, pp. 61, 2017. http://npofuji3776.net/document/ACPM2017/ACPM2017_Abstract-Book_ver20171018.pdf (2017 年 10 月 20 日にアクセス)
- 17) 福島県: 平成 27 年度大気汚染の常時監視測定結果, pp. 23-26, 2016.
- 18) 環境省: 平成 27 年度酸性雨調査結果について, 2016. <http://www.env.go.jp/air/acidrain/monitoring/h27/mat01-h27.pdf> (2017 年 8 月 8 日にアクセス)
- 19) 苗村晶彦, 渡邊善之: 東京, 福島および釜石における太陽黄経による NO_2 の季節変動, 日本生気象学会雑誌, Vol. 53, pp. S52, 2016.
- 20) 栗田秀實, 植田洋匡: 沿岸地域から内陸の山岳地域への大気汚染物質の輸送および変質過程, 大気汚染学会誌, Vol. 21, pp. 428-439, 1986.
- 21) 青井透: 人為的な汚濁源のない利根川上流域における窒素汚染, 地球環境, Vol. 15, pp. 145-152, 2010.

(2017. 3. 1 受付)

STREAM WATER CHEMISTRY IN THE ABUKUMA RIVER SYSTEM,
THE NAKADORI OF FUKUSHIMA PREFECTURE

Akihiko NAEMURA, Yoshinobu WATANABE, Nobuhiro OYANAGI,
Muneoki Yoh and Koichi WATANABE

The usual amount of water concentration in stream water chemistry of the Abukuma River System flowing through the Nakadori of Fukushima Prefecture was investigated. The results showed that Cl^- concentration in the stream water of the Abukuma River System was $66.8 \mu\text{M}$ on average. Compared with Chichibu-Tama-Kai mountainous catchments, the effect of atmospheric deposition such as seasalt in the stream water of the Abukuma River System is stronger for its altitude. The NO_3^- concentration in the Abukuma River System was $12.8 \mu\text{M}$ on average. Thus, the nitrogen saturation due to air mass pollution has not been observed in forest of the Nakadori, Fukushima Prefecture.