

矢作川上流の森林河川におけるフミン物質の季節変化と流出負荷量の把握

江端一徳（豊田工業高等専門学校）・三輪徹（長岡技術科学大学大学院）
渡利高大（長岡技術科学大学大学院）・松本嘉孝（豊田工業高等専門学校）

森林河川水中のフミン物質は、陸から海へ鉄イオンを運ぶキャリアーとして物質輸送に重要な役割を担っている。これまで、フミン物質の流出負荷量の定量評価を行った研究例は少なく、その流出特性についても未解明のままとなっている。本研究では、愛知県豊田市御内町を流れる森林河川を対象に、フミン物質の流出動態の把握とL-Q法を用いた年間流出負荷量の算出を行った。その結果、2019年と2020年における年間フミン物質流出負荷量の平均値は、3.38kg/ha/yrとなった。また、どちらの年においても最大流量を記録した7月は、フミン物質流出負荷量が最大となり、年間フミン物質流出負荷量のおよそ1/4を占めていることが明らかとなった。

キーワード：森林流域、溶存有機炭素、フミン物質、年間流出負荷量

I はじめに

わが国は国土の約2/3を森林が占めており(1)、水道水源として、良質な水源を確保することは、人々の豊かな生活を保つ上で必要不可欠である。森林から流出する溶存有機物中のうち30%から80%を占めているフミン物質(2)は、土壌有機物の分解や植物プランクトンの内部生産により生成される難分解性の高分子有機物である。フミン物質は、農薬や有機塩素化合物と結合し(3)、水中の様々な物質に影響を与えるほか、鉄イオンと錯体を形成し、陸域から海洋への鉄イオンのキャリアーとして作用する(4)ため沿岸水域の生物生産に必要な不可欠な物質となっている。一方、浄水処理過程で使用される塩素とフミン物質が反応することで発がん性物質であるトリハロメタンの前駆物質を生成する(5)ことが明らかとなっており、水道水源の安全性を評価する上で重要な指標となっている。

これまで、日本国内におけるフミン物質の定量評価は、琵琶湖や霞ヶ浦に代表されるように湖水やその流入河川を対象に実施されてきた(6,7)ものの、これら湖への流入河川は、都市域、森林流域、農業地域など複数の土地利用を含んでおり、森林流域のみに着目した研究例は比較的少ない(8,9)のが実状である。

また、天野ら(10)は、琵琶湖北湖流域の溶存有機物の総流入負荷を推定した結果、山林からの寄与が最も大きいことを報告しており、森林流域からのフミン物質の流出動態を把握する意義は大きいと言える。これまで、フミン物質の流出負荷量の推定に関して、フミン物質が金属元素と結合する特徴に着目し、例えば、Pettersson et al. (11)が、スウェーデンとフィンランドの間に位置するボスニア湾へ流下する24の河川について、フミン物質およびフミン物質と金属元素とが結合した各形態の流出量を推定している例がある。ただ、日本国内の森林流域からフミン物質がどの程度下流へと流出しているのかその実態把握を行った研究例はなく、年間での流出負荷量についても算出されていない。

そこで、本研究では、森林流域におけるフミン物質の流出動態を把握するとともに、年間のフミン物質流出負荷量を推定することを目的とする。

II 方法

1. 調査地概要

調査は、愛知県豊田市北東部に位置する御内流域で行った(図-1)。御内流域の流域面積は2.04km²で、標高は657mから1126mである。植生はスギ(*Chamaecyparis obtuse*)、ヒノキ(*Cryptomeria japonica*)の人工林で、基岩は変成岩である。御内流域における2015年から2018年の年平均降水量、年流出量はそれぞれ2434mm、1129mmで、年平均気温は10.9°Cである(12)。

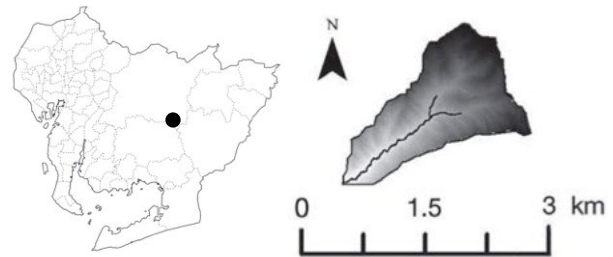


図-1. 豊田市内における御内流域の位置(左図黒丸)と流域界(右図)

2. 水文観測

河川の流量観測は、2019年1月から2020年12月の2年間、2,3週間おきに調査地に赴いた際に実施した。また、河川水位は流域末端にある砂防堰堤の直上に水位計(HM-500, Field Pro)を設置し、10分インターバルで連続観測しており、水位計の水位と調査時の河川流量との関係からH-Q曲線を作成し、流量計算を行った。また、降水量は、河川近傍に雨量計(Rain Collector II, Davis Instruments)を設置し、水位と同様に10分おきに観測を行った。

3. 水質観測

2, 3 週間おきの水文調査時において, 採水した水試料を, 実験室に持ち帰り, 0.45 μm のガラス繊維ろ紙 (GF/F, Whatman) で吸引ろ過し, 分析まで冷蔵庫で保存した。

溶存有機炭素 (Dissolved Organic Carbon : DOC) は, 全有機炭素計 (TOC and TN analyser, Analytik Jena multi N/C 3100) を用い, ろ過試料を 1M 塩酸で pH が 2 になるように調整し, 純空気を用いて無機炭酸を除去したのち, 白金触媒を用いた高温燃焼法により測定した。

フミン物質の測定には, まず標準試料として, 日本腐食物質学会より頒布されている Dando (褐色森林土) のフルボ酸標準試料を使用した。そして, フルボ酸標準試料, 河川水試料の三次元励起・蛍光スペクトル (Excitation Emission Matrix Spectroscopy, EEM) を, 分光蛍光光度計 (FP-8300, 日本分光) により測定した (13)。励起光の測定範囲は 220 から 380nm, 蛍光の測定範囲は 300 から 500nm とし, バンド幅は共に 5nm とした。EEM によって得られた結果は, 10 $\mu\text{g/L}$ の硫酸キニーネを用いて補正し, 相対蛍光強度を得た。河川水のフミン物質の 90% 以上はフルボ酸であるという報告 (6) があり, 本研究でも河川水試料の相対蛍光強度ピーク (励起波長 260nm, 蛍光波長 440nm) は, フルボ酸標準試料の蛍光強度ピーク波長に近かったことから, 河川水のフミン物質のほとんどはフルボ酸で占められると仮定した。そして, フミン物質濃度の推定には, 0.1 から 5mg/L の 4 段階に調整したフミン物質と, フルボ酸 EEM ピーク位置での相対蛍光強度との線形回帰式を求め, この回帰式から河川水試料のフミン物質濃度を求めた (14)。

4. DOC およびフミン物質流出負荷量の算定方法

流出負荷量の調査では, その流量と水質濃度を測定し, その積から流出負荷量を算出する。流量データは水位計により連続データを容易に取得できるものの, 水質濃度を連続的に取得することは難しい。そこで, 複数回の採水時における流量と負荷量の関係から得られた回帰式を用いて負荷量を算出する方法 (L-Q 法) が検討されている (15)。本研究でも同様の手法を用いて, DOC およびフミン物質の流出負荷量の算出を行った。今回, 流量と DOC 流出負荷量, また, フミン物質流出負荷量には正の相関があり, 決定係数はそれぞれ 0.95 と 0.56 であった (図-2, 図-3)。フミン物質については, 決定係数が DOC と比較して低い結果となったが, 相関係数は 0.75 と強い正の相関があるため, この式を用いて流出負荷量を算出することとした。

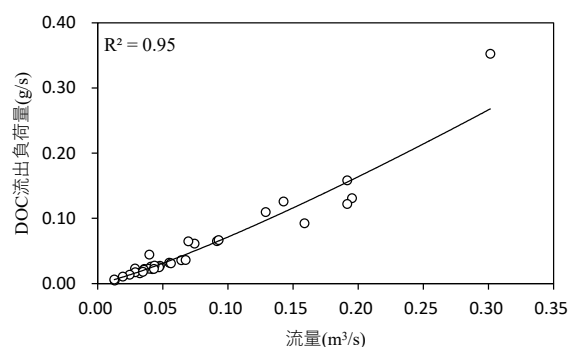


図-2. 流量と DOC 流出負荷量の関係

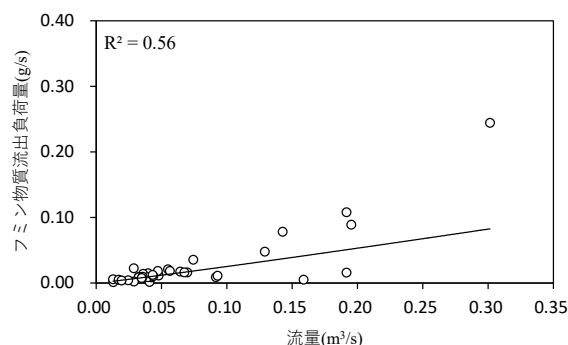


図-3. 流量とフミン物質流出負荷量の関係

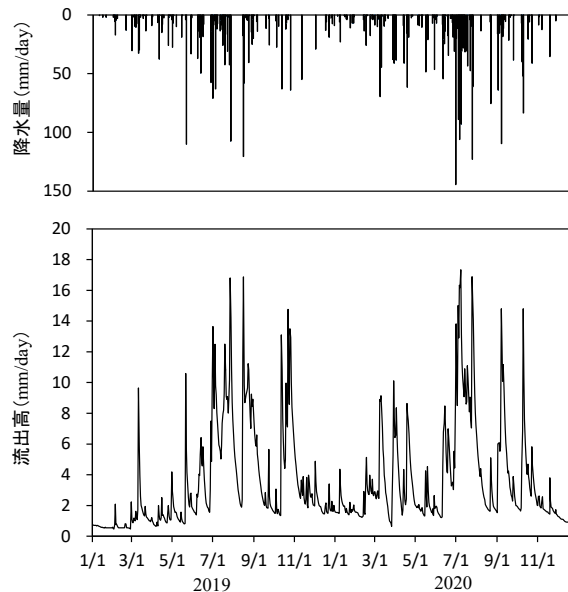


図-4. 降水量と流量の関係

III 結果と考察

1. 御内流域における水文結果

図-4 は, 2019 年から 2020 年における降水量と流量の関係を示している。年間降水量は 2019 年が 1980mm, 2020 年は 2672mm であった。日本の森林流域の年間降水量は 1901mm (16) であることから, 本調査流域における年間降水量はそれと同等もしくは多い結果となった。また, 月降水量はどちらの年も 7 月に最大値をとり, 梅雨時期である 6 月と合わせて, 年間降水量の約 4 割がこの 2 か月でもたらされる特徴が

みられた。また、流出高については、降水量に伴い、増減がみられ、2019年の最小値は0.46mm/day、最大値は16.9mm/day、平均流出高は、3.43mm/dayであった。同様に2020年の最小値は0.64mm/day、最大値は17.3mm/day、平均流出高は、3.76mm/dayであった。夏季の6月から9月において年間の流出量の5割から6割を占めており、アジアモンスーン域特有の梅雨や台風がもたらす降雨が流量増加に寄与しているものと考えられた。

2. DOCおよびフミン物質の季節変化

図-5は定期観測時のDOC濃度とフミン物質濃度の月別変化を示している。2年間の観測期間においてDOC濃度の最小値は0.34mg/L、最大値は1.17mg/L、平均値は0.65mg/Lとなった。2019年は11月に濃度上昇がみられたが、それを除くと、期間全体を通して、夏季に濃度が高く、冬季に低い結果となった。また、フミン物質濃度は、最小値0.03mg/L、最大値0.81mg/L、平均値は0.30mg/Lであった。フミン物質濃度は、DOC濃度の変化と同様に推移する傾向が見られたものの、明瞭な季節変化はみられなかった。また、DOC濃度に対するフミン物質濃度の割合は、最小値、最大値はそれぞれ5.4%、98.1%と、採水日によって大きく変動し、平均値は45.2%であった。九州地方の森林渓流水におけるDOC中のフミン物質の存在比は33から87%で、平均65%であったとの報告(14)があるが、本試験流域の平均値の結果は、それよりも小さかった。

3. DOCおよびフミン物質流出負荷量の推定結果

図-2、図-3で得られた回帰式を用いて、年間でのDOC流出負荷量およびフミン物質流出負荷量を算出した。その結果、2019年、2020年のDOC流出負荷量は、それぞれ9.45kg/ha/yr、10.4kg/ha/yrとなった。日本の森林流域におけるDOC流出負荷量は、10.8から67.5kg/ha/yrと報告(17,18,19)があり、本研究の結果はこれらの値よりも小さい結果となった。また、同様に、フミン物質流出負荷量は、2019年、2020年とそれぞれ3.22kg/ha/yr、3.53kg/ha/yrとなった。図-6に月別のDOCとフミン物質の流出負荷量を示す。DOC、フミン物質ともに、どちらの年も1月から7月にかけて上昇し、7月に最大値をとった後、減少していく傾向がみられた。特に、フミン物質流出負荷量については、降水量、流量が最大であった7月の流出負荷量は、年間流出負荷量のおよそ1/4を占めることが明らかとなった。また、月降水量とDOCおよびフミン物質流出負荷量と相関を取ると、DOC、フミン物質それぞれ決定係数が0.79、0.78と、どちらも強い正の相関がみられた(図-7)。フミン物質はDOCと同様に、土壤表層に多く分布しており(20)、降雨イベント時において、河川近傍の土壤からの流出が主要な起源である(21)と

指摘されていることから、図-6の結果と合わせて考えると、フミン物質流出負荷量の増大は、降雨による流量上昇により、森林土壌に蓄積したフミン物質が土壤表層から河道内へ流出することを示唆していると考えられた。

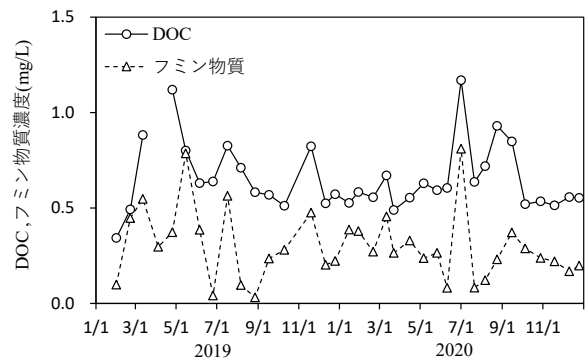


図-5. DOC濃度およびフミン物質の季節変化

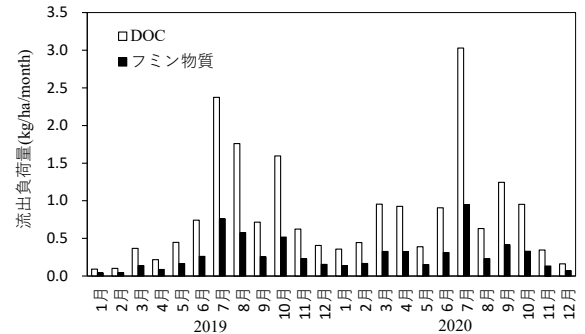


図-6. DOCおよびフミン物質流出負荷量の月別変化

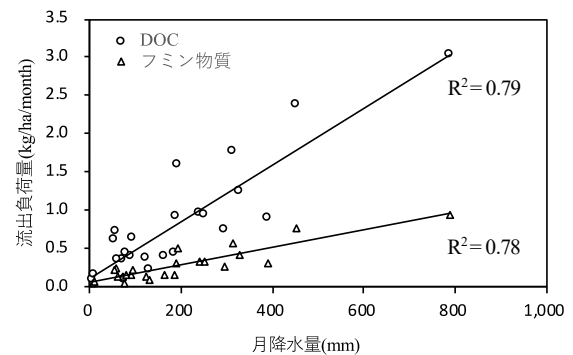


図-7. 月降水量とDOCおよびフミン物質流出負荷量との関係

IV 結論

本研究では、矢作川上流の御内流域を対象にフミン物質の流出負荷量の把握を目的に調査を行った。その結果、降水量は6、7月の梅雨や台風時期にかけて多く、これら2か月で年間降水量の約4割を占めていることがわかった。また、降水量の増加に伴い流量も増大し、月降水量が最も多かった7月に流量が最大となった。また、2019年と2020年の2年間平均DOC濃度は、0.65mg/L、フミン物質濃度は、0.30mg/Lとなった。そして、L-Q法を用いてDOCおよびフミン物質の年間の流出負荷量を算出した結果、2年間平均のDOC流

出負荷量は、9.90 kg/ha/yr, フミン物質流出負荷量は 3.38 kg/ha/yr となった。また、最大流量を記録した7月は、フミン物質流出負荷量が最大となり、年間フミン物質流出負荷量のおよそ1/4を占めていることが明らかとなった。今後は、降雨に伴う流量増大時にフミン物質が河川に流入することが示唆されるため、降雨出水イベント時におけるフミン物質の流出動態を把握する必要がある。

謝辞

本研究は、日本学術振興会科学研究補助金若手研究 BNo. 2582054 (代表：松本嘉孝, 2013年から2017年)の補助を受けて行われた。また、高専-長岡技科大学共同研究助成の支援を受けて行った。

引用文献

- (1) 林野庁 (2021) 令和2年度林業白書: 61
- (2) Mostafa KMG, Wu FC, Yoshioka T, Sakugawa H, and Tanoue E (2009) Dissolved organic matter in the aquatic environments. Wu FC and Xing B (eds) Natural Organic Matter and Its Significance in the Environment. Science Press : 3-66
- (3) 今井章雄 (2004) 水環境におけるフミン物質の特徴と役割. 水環境学会誌 27(2): 76-81
- (4) 岡田直己・熊澤翔平・林裕美子・寺井久慈 (2010) 森林植生の違いが渓流水の腐食物質-鉄錯体形成に及ぼす影響. 陸の水 43: 31-35
- (5) Pomes ML, Green WR, Thurman EM, Orem WH, Lerch HE (1999) DBP formation potential of aquatic humic substances. J Americ Wat Works Assoc 91(3): 103-115
- (6) 山田悦・鳥居克希・上田智也・寺井大地, 水口裕尊, 布施泰朗 (2018) 環境水中フミン物質の簡易分析法と琵琶湖・流域河川水での動態解析. BUNSEKI KAGAKU 67(7): 413-421
- (7) 小松一弘・今井章雄・松重一夫・奈良郁子・川崎信之 (2008) 三次元励起蛍光スペクトル法による霞ヶ浦湖水及び流域水中 DOM の特性評価. 水環境学会誌 31(5): 261-267
- (8) 中西麻美・徳地直子・勝山正則 (1999) 森林土壌の通過に伴う溶存有機炭素の蛍光特性の変化. 森林応用研究 8: 95-102
- (9) Katsuyama M, Ohte N (2002) Determining the sources of stormflow from the fluorescence properties of dissolved organic carbon in a forested headwater catchment. J Hydrol 268: 192-2002
- (10) 天野耕二・松本邦治・今井章雄・松重一夫 (2014) 河川水中の溶存有機物分画データと流域特性の関係. 水環境学会誌 27(10): 659-664
- (11) Pettersson C, Allard B, Borén H (1997) River Discharge of Humic Substances and Humic-bound Metals to the Gulf of Bothnia. Estu, Coast and Shelf Sci 44(5): 533-541
- (12) 松本嘉孝・江端一徳 (2020) 豊田市北東部の人工林流域から流出する平均溶存有機炭素濃度および年間流出量の算出. 矢作川研究(24): 15-22
- (13) 東直子・智和正明・大槻恭一 (2007) 山地小流域における森林渓流水中フミン物質の特性. 農業農村工学会全国大会講演要旨集 : 972-973
- (14) 大槻恭一・東直子・智和正明・井出淳一郎・丸野亮子・脇山義史 (2007) ヒノキ人工林流域における水・物質循環に関するプロセス研究. 農業農村工学会全国大会講演要旨集 : 74-75
- (15) 田淵俊雄・林寛司 (1987) 流量・負荷量関係式の信頼性について. 農業土木学会論文集 131: 11-18
- (16) 澤野真治・小松光・鈴木雅一 (2005) 森林における年降水量の農地・都市域との違い - 日本全域を対象として -. 水文・水環境学会誌 18(4): 435-440
- (17) Sakamoto T, Takahashi M, Terajima T, Nakai Y and Matsuura Y (1999) Comparison of the effects of rainfall and snowmelt on the carbon discharge of a small, steep, forested watershed in Hokkaido, northern Japan. Hydrol Process 13: 2301-2314
- (18) 長坂晶子・長坂有・石川靖 (2015) 北海道中央部の小流域における溶存有機炭素・無機態窒素の流出特性. 北海道林業試験場研究報告 52: 11-22
- (19) Ebata K, Ichikawa Y, Ishidaira H, Matsumoto Y, Nishida K (2018) Runoff load estimation model for dissolved organic carbon that considers soil and hydrologic processes in forested watershed. J water environ technol 16(5): 199-210
- (20) Yu HY, Li FB, Liu CS, Huang W, Liu TX, Yu WM (2016) Iron Redox Cycling Coupled to Transformation and Immobilization of Heavy Metals: Implications for Paddy Rice Safety in the Red Soil of South China. Advances in Agronomy 137: 279-317
- (21) Malcolm RL (1990) The uniqueness of humic substances in each of soil, stream and marine environments. Analytica Chimica Acta: 19-30