

10.1 流域スケールで見た物質動態特性の把握に関する研究(2)

研究予算：運営交付金（一般勘定）

研究期間：平 23～平 27

担当チーム：水環境研究グループ（水質）

研究担当者：岡本誠一郎、平山孝浩、北村友一、
對馬育夫

【要旨】

霞ヶ浦と印旛沼流域での流入河川の窒素、リン、微量金属濃度と土地利用の関係を検討するとともに、窒素・酸素安定同位体比により栄養塩類の流出機構を調査し、雨天時の窒素負荷源の寄与率を推定した。また、長期にわたる雨天時調査を継続し、栄養塩等の流出負荷量（L-Q 式）のデータを収集するとともに、市街地を中心に雨天時の平均流出濃度（EMC）の傾向について検討した。その結果、霞ヶ浦と印旛沼流域での栄養塩類と土地利用の関係の検討では、晴天時及び雨天時の溶存態・粒子態の金属の流出特性を把握した。窒素・酸素安定同位体比解析により栄養塩類の流出機構を調査し、高崎川（印旛沼流域）における雨天時の窒素負荷源の寄与率を推定した結果、高崎川上流部および市街地では、晴天時は畑地由来の窒素負荷が高く、降雨時は水田や森林由来の窒素負荷が増加すること等明らかにすることができた。雨天時の平均流出濃度（EMC）を用い、雨天時の市街地からの栄養塩の年間流出負荷量の推計手法を提案するとともに、晴天時/雨天時それぞれの栄養塩の流出負荷の寄与率を解明した。

キーワード：霞ヶ浦、印旛沼、栄養塩、雨天時調査、流出負荷量解析、安定同位体比

1. はじめに

近年、閉鎖性水域や河川においては、種々の対策が行われているにも関わらず栄養塩濃度は横ばい傾向にある。閉鎖性水域においては富栄養化が常態化しており、環境基準の達成率が低いため、閉鎖性水域の水質を良質に保つ必要がある。水質改善のために、河川管理者によるマスタープラン策定が行われているが、発生源ごとの水域への栄養塩類の流出機構が明確でないという問題点がある。本研究は、栄養塩類の発生源別と雨天時流出機構の解明を行うことを目的としている。

本研究では、霞ヶ浦と印旛沼流域での流入河川の窒素、リン、微量金属濃度と土地利用の関係を検討するとともに、窒素・酸素安定同位体比により栄養塩類の流出機構を調査し、雨天時の窒素負荷源の寄与率を推定した。また、長期にわたる雨天時調査を継続し、栄養塩等の流出負荷量（L-Q 式）のデータを収集するとともに、市街地を中心に雨天時の平均流出濃度（EMC）の傾向について検討した。

2. 霞ヶ浦と印旛沼流域での河川水質と集水域の土地利用の関係

霞ヶ浦流域の調査は、平成 21 年に調査した各河川流末の水質データとその集水域の土地利用を解析し、土地利用と水質の関係の概要を明らかにした。印旛沼流域の調査は、流域スケールで見た物質動態特性の把握に関する研究(1)と調査フィールドを合わせるとともに、霞ヶ浦流域の解析結果を踏まえ、流域内の畜産に着目した小流域において、より詳細な水質データの取得を行い、土地利用と水質の関係を解析した。

さらに、畑の割合と豚飼育密度が高い印旛沼流入河川である高崎川を対象とし、より調査地点を増やし、晴天時と雨天時の栄養塩類の流出特性を詳細に調査した。また、畜産業が盛んである鬼怒川支流の山川で雨天時調査を行い、高崎川と比較した。

2.1 研究方法

2.1.1 霞ヶ浦流入河川の溶存態窒素・リン・有機物濃度と集水域の土地利用の関係

2.1.1.1 霞ヶ浦流域の概要

図-1 に、調査対象とした霞ヶ浦の集水域と流入河川を示す。霞ヶ浦は茨城県南部に位置する総面積 219.9km²、平均水深 4m の富栄養湖である。西浦（171.5 km²）には 29 河川、北浦（36.2 km²）には 22

河川が流入している。霞ヶ浦流域全体の面積は2,157 km²である。本研究では、西浦流入河川のうち恋瀬川支流2河川を含む14河川、北浦流入河川のうち9河川を対象とした。

2.1.1.2 集水域の土地利用情報の整理

霞ヶ浦の集水域の土地利用情報は、GIS (Geographic Information System) を用いて整理した。行政界、河川流域界、土地利用のデータは国土数値情報¹⁾を利用した。人口と家畜頭数のデータは、「地図で見る統計」²⁾のうち、平成17年国勢調査および農林業センサスを利用した。

各河川の集水域の土地利用は、平成18年度版の100m細分メッシュデータを水田、畑、森林、市街地、荒地および道路・その他・水面(以下、道路等)に区分して河川流域ごとに集計し、土地利用割合を求めた。各集水域内の人口は、500mメッシュ人口データをもとに、河川流域ごとに集計して求めた。各集水域内の家畜頭数は、市町村別の家畜頭数から求めた。すなわち、国土地理院が発表している平成22年の市町村別面積および各市町村に属する湖面積³⁾を用いて各市町村の陸地面積を求め、市町村内の家畜の分布は均等であるとみなして家畜飼育密度を算出した。流域ごとの家畜頭数は、各河川流域の対応する市町村の面積に家畜飼育密度を乗じて算出した。

2.1.1.3 霞ヶ浦流入河川の水質データ

霞ヶ浦流入河川の水質データは、図-1の地点で、平成21年5月から平成22年3月にかけて、7月を除く各月に1回晴天時に調査を行ったものである。

水質測定項目は、NH₄-N、NO₃-N、NO₂-N、PO₄-P (TRAACS2000:BRAN+LUEBBE)、DOC (TOC-V:島津製作所)である。なお、流量観測は行っていない。

2.1.1.4 解析方法

データの解析はExcel統計2004を用いて行った。最初に、各土地利用等の項目と水質の関係を散布図と相関係数から個別に解析した。相関の有無の検定にあたっては、外れ値の影響を受けにくい順位相関係数を併用した。次に、土地利用と水質の関係の全体像を把握するため主成分分析および重回帰分析を行った。主成分分析は、土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度(全10項目)の相関係数行列を対象とし、集水域の土地利用を主成分得点で表した。そして、主成分得点と水質の相関関係を図示した主成分負荷量プロットから、土地利用と水質の関係を評価

した。重回帰分析は、多重共線性の問題を回避するため、主成分回帰法⁴⁾により行った。すなわち、土地利用データから計算された主成分得点を説明変数、水質を目的変数として重回帰分析を行い、土地利用と水質についての関係式を得た。

2.1.2 印旛沼流域の土地利用と水質の関係

2.1.2.1 印旛沼流域の概要

印旛沼は千葉県北西部に位置し、総面積は11.55km²、平均水深は1.7m、流域全体の面積は541.1km²である。図-2に、印旛沼流域における調査対象河川を示す。印旛沼流域では、鹿島川と高崎川流域内の土地利用特性の異なる5つの支流を調査対象とした。

2.1.2.2 集水域の土地利用情報の整理

印旛沼の集水域の土地利用割合、家畜頭数は、霞ヶ浦流域と同様にGISを用いて整理した。各集水域



図-1 霞ヶ浦の集水域と研究対象河川および調査地点

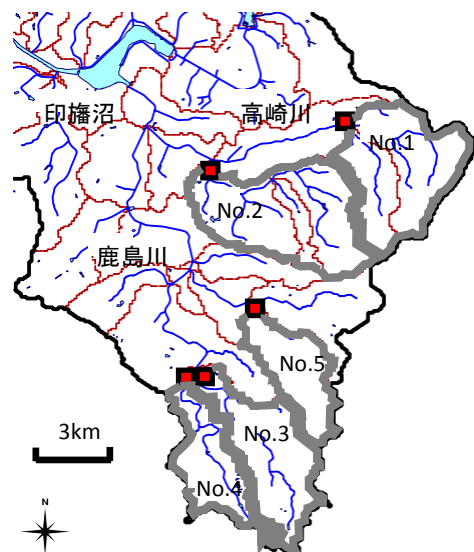


図-2 印旛沼の調査対象河川の集水域と調査地点

内の人口は、500m メッシュ人口データと市町村別下水道普及率⁹⁾を用いて、メッシュ毎の下水処理人口と未処理人口を求め、河川流域ごとに集計して求めた。

2.1.2.3 水質測定項目

印旛沼流入河川では、図-2のNo.1~5の地点で、平成24年1月から2月にかけて6回晴天時に流量観測と水質調査を行った。

水質調査項目は、水温、pH、EC、SS、VSS、DOC (TOC-5000：島津製作所)、T-N、T-P (TRAACS2000：BRAN+LUEBBE)、NH₄-N、NO₃-N、NO₂-N、PO₄-P、Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻ (イオンクロマトグラフDX-120およびICS-1100：日本ダイオネクス)である。金属類は6回の調査のうち4回、総濃度と溶存態の濃度を測定した。測定項目はFe、Mn、Cu、Mo、B、Zn、Al、Ni、Co、Se (ICP-MS X7CCT：サーモフィッシャーサイエンティフィック)である。

2.1.2.4 解析方法

土地利用と水質の関係は、地点間比較、相関係数、主成分分析によって解析した。各河川の水質は全調査の平均値を解析に用いた。また、T-NとT-Pについては集水域からの負荷量を原単位法で求め、実測負荷量と比較した。原単位法では、集水域の面源負荷量と、人、家畜による負荷量を各集水域に適用した。面源負荷量は、水田、畑、山林、市街地の面源負荷量原単位⁶⁷⁾と各集水域の土地利用形態別面積から求めた。森林と荒地の原単位は山林の値を、道路とその他の原単位は市街地の値を使用した。人の生活による負荷量は、下水処理人口分は流域外へ排出され、下水未処理人口分は合併浄化槽を利用すると仮定し、各集水域の下水未処理人口に、1人1日あたりの合併浄化槽の排出負荷量⁶⁷⁾を乗じて推定した。家畜による負荷量は、各集水域の家畜頭数に、豚と牛の1頭あたりの排出負荷量⁶⁷⁾を乗じて推定した。実測負荷量は、各調査のT-N、T-P濃度に流量を掛けて平均して求めた。

2.1.3 高崎川と山川の土地利用と水質の関係

2.1.3.1 調査河川と水質調査地点

印旛沼流入河川の鹿島川の支流である高崎川と、鬼怒川

の支流である山川を対象に、集水域の土地利用情報を整理し、栄養塩類の負荷量調査を実施した。図-3は、高崎川と山川の集水域と採水調査地点である。集水域の面積は、高崎川で79km²、山川で32km²である。高崎川の晴天時調査は、平成25年1月から2月にかけて4回実施した。本流の7地点(上流から下流に向かってA~Gとする)と、3つの支流(支流c、d、fとする)それぞれの上流と下流の、計13地点で調査した。

高崎川の雨天時調査は、平成24年11月17日に実施した。先行晴天日数は4日、累積降雨量は38.5mmである。降雨開始前を含め数時間おきに8回、本流のA、C、E、Gの4地点で流量観測と水質調査を行った。

山川の雨天時調査は、平成24年11月6日に実施した。先行晴天日数は5日、累積降雨量は40mmである。下流側の1地点で数時間おきに流量観測と水質調査を11回行った。

2.1.3.2 土地利用情報の整理

各採水地点より上流の集水域の土地利用情報を、GIS (Geographic Information System) を用いて整理した。高崎川では、数値地図50mメッシュ標高データ⁸⁾から求めた各メッシュの流下方向に基づき集水域の範囲を決定した。土地利用のデータは国土数値情報⁹⁾を利用した。人口と家畜頭数のデータは、「地図で見る統計」²⁾のうち、平成17年国勢調査および農林業センサスを利用した。

土地利用は、平成18年度版の100m細分メッシュデータを水田、畑、森林、市街地、その他の5種に区分して集水域ごとに集計し、土地利用割合を求めた。人口は、500mメッシュ人口データをもとに、

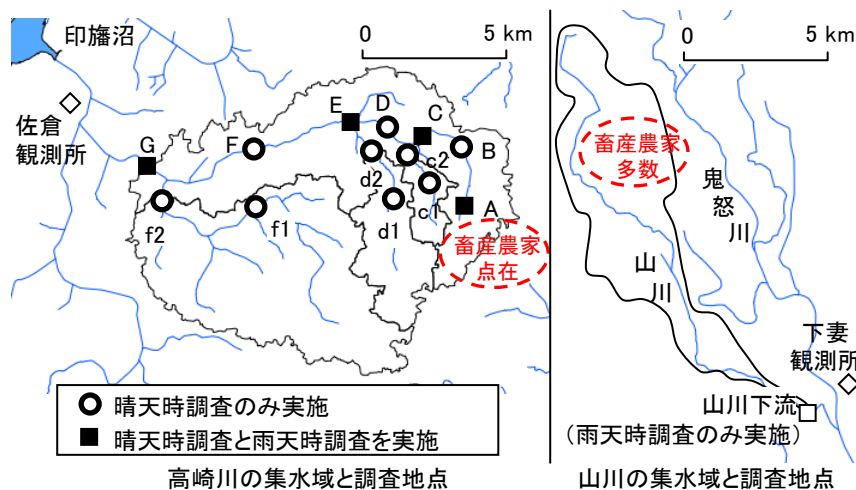


図-3 調査河川の高崎川と山川の概形および調査地点

集水域ごとに集計して求めた。家畜頭数は、市町村別家畜頭数を対応する市町村の 500m メッシュに均等に配分し、全集水域で集計した。

山川では、集水域の範囲、土地利用割合、人口、家畜頭数のデータは、利根川流域下水道整備総合計画に関する基本方針策定調査報告書⁹⁾を用いた。

2.1.3.3 水質調査方法

晴天時、雨天時それぞれの調査では、現地で水温、pH、DO、EC を測定するとともに河川水を採水し、流量観測を行った。水質測定項目はSS、VSS、DOC (TOC-5000: 島津製作所)、T-N、T-P および溶存態 N、P (TRAACS2000: BRAN+LUEBBE)、NO₃-N、NO₂-N、NH₄-N、PO₄-P、Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻ (イオンクロマトグラフ DX-120 および ICS-1100: 日本ダイオネクス) である。金属類は、総濃度と溶存態の濃度を測定した。粒子態濃度は、総濃度から溶存態の濃度を差し引いて求めた。測定項目はFe、Al、Zn、Cu、Mn、B、Ni、Co、Mo、Se (ICP-MS X7CCT: サーマフィッシャーサイエンティフィック) である。

流量観測は、河川を横断方向に適宜分割して水深

と流速を測定し、流量を河川断面積と流速の積として算出した。流速は電磁流速計を用い、6 割水深で測定した。高崎川の地点 G の雨天時調査では水深のみの測定であった。

2.1.3.4 雨天時調査のデータの解析方法

雨天時調査の結果を解析するにあたり、高崎川は佐倉観測所、山川は下妻観測所の 1 時間ごとの雨量データを使用した。各水質成分濃度、流量、集水域面積から比流量と比負荷量を求め、L-Q 式を導出した。また、流量と負荷量について、基底流出分と直接流出分を分離し、土地利用との関係を調べた。なお、高崎川の地点 G については雨天時の流量観測ができなかったため、流量は推定値を用いた。

2.2 結果と考察

2.2.1 霞ヶ浦流入河川の溶存態窒素・リン・有機物濃度と集水域の土地利用の関係

2.2.1.1 各調査河川流域の特徴

図-4 に、各河川の集水域面積と土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度を示す。集水域面積 100km² 以上の河川は西浦流入河川では桜川、恋瀬川、新利根川、小野川、北浦流入河川では巴川である。集水

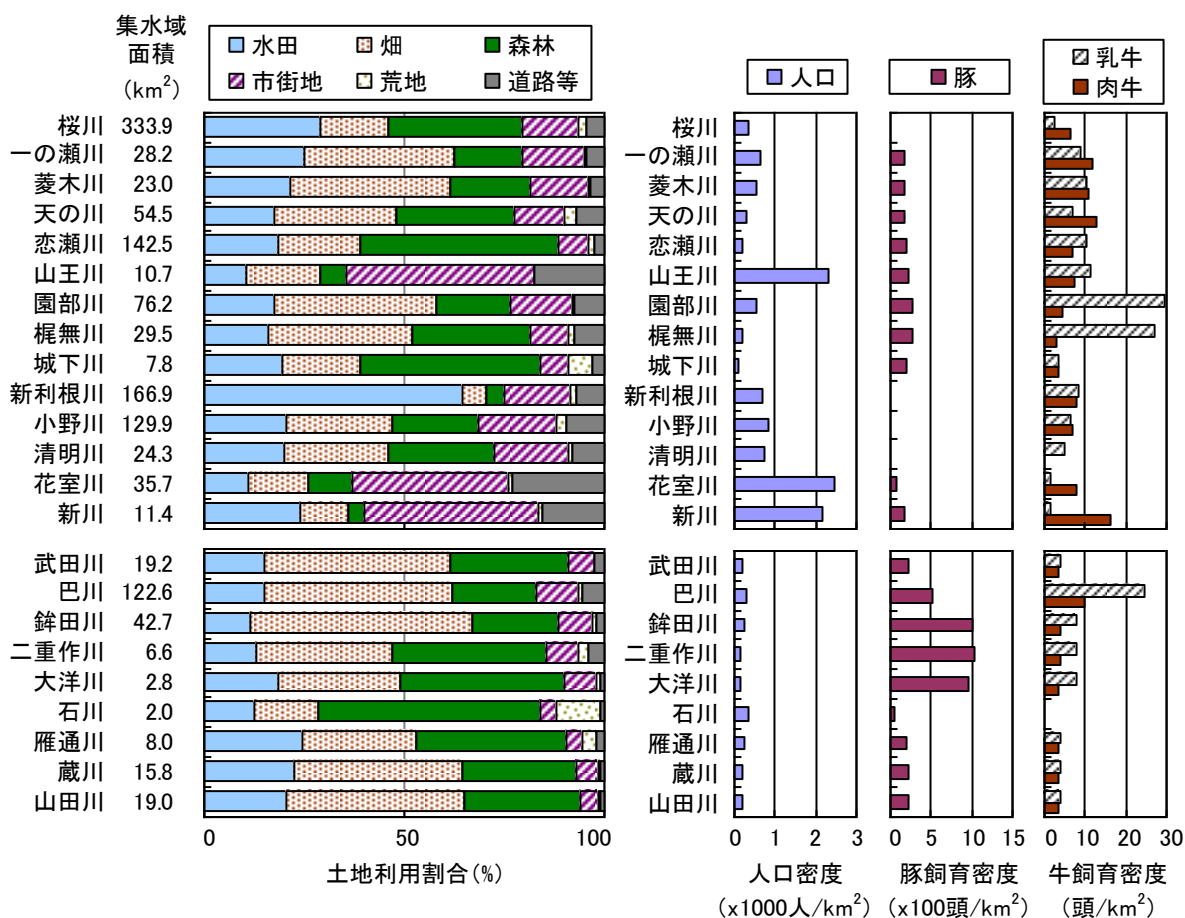


図-4 霞ヶ浦流域の各流入河川の集水域面積、土地利用割合、人口密度と家畜飼育密度

域の土地利用割合のうち、水田の割合が最大の河川は、新利根川（65%）である。畑の割合が最大の河川は、西浦流入河川では園部川（41%）、北浦流入河川では銚田川（56%）である。森林の割合は、恋瀬川、城下川、大洋川、石川で高い。市街地の割合は、山王川、花室川、新川で高く、これらの河川では森林の割合は約10%と低くなっている。北浦流入河川では市街地の割合はいずれも低い。道路等の割合と人口密度は、市街地の割合が高い河川で高い。豚の飼育密度は北浦の巴川、銚田川、二重作川、大洋川で高い。乳牛の飼育密度は園部川、梶無川、巴川で、肉牛の飼育密度は一の瀬川、天の川、新川で高い。

2.2.1.2 水質調査結果

図-5に、主な河川のNO₃-N、PO₄-P、DOC濃度の変化を示す。NO₃-N濃度は9月以降に高くなる傾向が観られた。PO₄-P濃度の変化は河川によって異なったが、1~3月よりも5、6月に高くなる傾向が観られた。DOCは5、6、8月に高く、9月以降は低下する傾向が観られた。新利根川では年間を通じて概ね一定であった。

2.2.1.3 土地利用割合と水質の関係

各河川の水質の年平均値として、10回の水質調査結果の平均値を求め、これと集水域の土地利用の関係を解析した。図-6に、水田、畑、森林、市街地の割合および豚、乳牛の飼育密度と水質の年平均値の

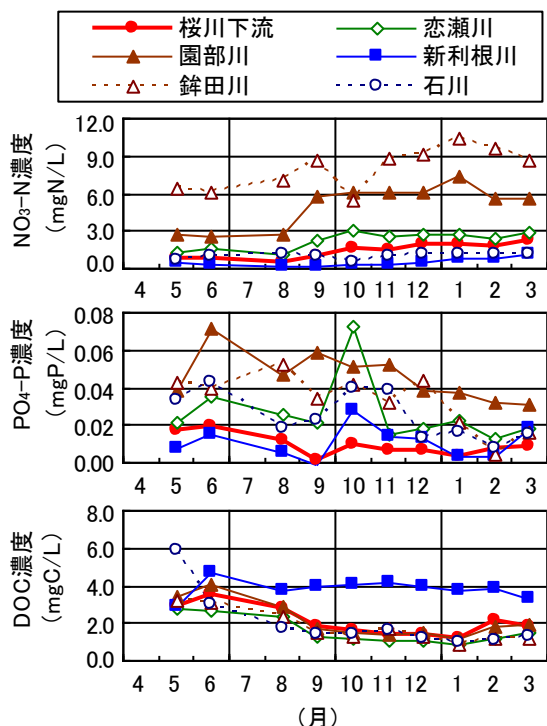


図-5 主な霞ヶ浦流入河川のNO₃-N、PO₄-P、DOC濃度の経月変化

関係を示す。表-1に、土地利用割合および家畜飼育密度、人口密度と水質項目の相関係数の一覧を示す。河川全域（n=23）に加えて、西浦流入河川のみ（n=14）、北浦流入河川のみ（n=9）で相関係数を求め、相関の有無を検定した。NO₃-N濃度と土地利用の関係についてみると、NO₃-N濃度は畑の割合に対して直線的な増加を示し、回帰直線の決定係数（R²）は0.76であった。畑の割合との相関係数は、全域、西浦流入河川のみ、北浦流入河川のみのいずれも0.85以上と高かった。水田とは負の相関を示し、水田の割合が高い新利根川で最低となった。森林の割合とは全体としては弱い負の相関を示した。市街地の割合との関係は、西浦流入河川では明確でないが、北浦流入河川では正の相関を示した。豚の飼育密度とは正の相関を示し、300頭/km²までは密度とともに増加する傾向であった。1000頭/km²付近では河川による違いが大きくなったが、相関係数と順位相関係数の両方でp<0.01で有意と判定された。乳牛の飼育密度とは正の相関を示した。

NO₂-N濃度と土地利用の関係は、明確ではないが、全域でみると畑の割合および豚の飼育密度と正の相関を示した。銚田川はNO₂-N濃度が高く、他の河川から外れた位置にプロットされた。西浦流入河川のみでは市街地や道路等の割合、人口密度と正の相関を示した。

NH₄-N濃度は全域でみると、森林の割合と負の相関を示した。また、有意とは判定されなかったが、市街地の割合とは正の相関であった。北浦流入河川では、市街地の割合が低いにもかかわらず、NH₄-N濃度が高い河川があった。

PO₄-P濃度は、水田と負の相関を示した。山王川はPO₄-P濃度が高いため、また新利根川は水田の割合が高いため、他の河川から外れた位置にプロットされた。市街地や道路等の割合、人口密度と正の相関を示したが、順位相関係数はp≥0.05で、有意とは判定されなかった。

DOC濃度は全体でも、新利根川を除いても水田と正の相関を示した。畑の割合および豚の飼育密度とは負の相関を示した。森林とは負の相関であったが、p≥0.05で、有意とは判定されなかった。

春季：5、6月、夏季：8、9月、秋季：10、11、12月、冬季：1、2、3月と区分して水質の平均値を求め、土地利用と季節毎の水質の関係を解析した。図-7に、土地利用割合および家畜飼育密度と季節毎の水質の相関係数を示す。NO₃-N濃度は、季節によら

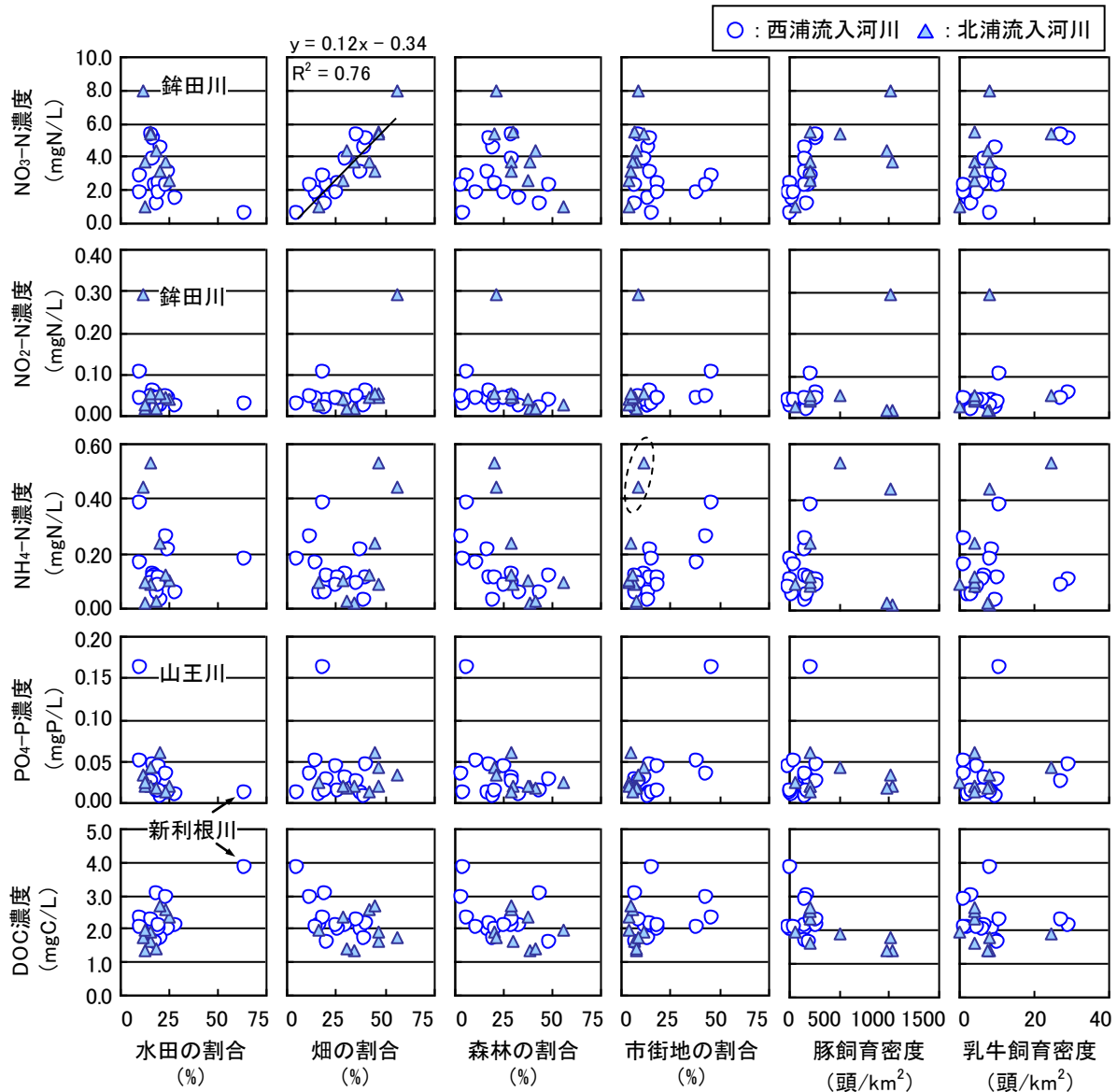


図-6 水田、畑、森林、市街地の割合および豚、乳牛の飼育密度と水質の年平均値の関係（霞ヶ浦）

表-1 土地利用割合および家畜、人口密度と水質の相関係数の一覧（霞ヶ浦）

		土地利用割合(%)						流域の家畜密度(頭/km ²)			人口密度(人/km ²)
		水田	畑	森林	市街地	荒地	道路等	豚	肉牛	乳牛	
NO ₃ -N	全域	-0.43 *	0.87 (**)	-0.09	-0.25	-0.41	-0.24	0.64 (**)	-0.02	0.50 (*)	-0.30
	西浦	-0.47	0.85 (**)	0.01	-0.17	-0.36	-0.11	0.70 (**)	0.07	0.77 (**)	-0.19
	北浦	-0.36	0.86 (**)	-0.78 *	0.70 (**)	-0.65	0.31	0.58	0.48	0.46	-0.28
NO ₂ -N	全域	-0.26	0.45 *	-0.25 (**)	0.07	-0.18 (**)	0.00	0.44 *	-0.08	0.09	0.06
	西浦	-0.39	0.02	-0.45	0.66 (*)	-0.51 (*)	0.57 (**)	0.36	-0.01	0.31	0.59 (*)
	北浦	-0.40	0.63 (**)	-0.53 (**)	0.31	-0.19	-0.05	0.39	0.06	0.10	0.10
NH ₄ -N	全域	-0.12	0.27	-0.49 (**)	0.32	-0.27	0.24	0.19	0.31 (*)	0.24	0.29
	西浦	-0.03	-0.35	-0.65 (**)	0.79 (**)	-0.42	0.62 *	0.15	0.40 (*)	-0.09	0.73 (**)
	北浦	-0.27	0.65	-0.72 (**)	0.61	-0.26	0.46	0.12	0.68 *	0.70 *	0.35
PO ₄ -P	全域	-0.35 (**)	-0.08	-0.37	0.60 **	-0.23	0.53 **	-0.02	0.02	0.15	0.59 **
	西浦	-0.41 (**)	-0.15	-0.37	0.69 **	-0.38	0.61 (*)	0.27	-0.08	0.11	0.64 *
	北浦	-0.07	0.40	-0.41	0.14	-0.18	0.17	-0.11	0.36	0.33	0.17
DOC	全域	0.69 (**)	-0.44 *	-0.39	0.21	0.06	0.18	-0.48 *	0.15	-0.11	0.21
	西浦	0.70 **	-0.61 *	-0.37	0.13	0.34	0.07	-0.15	0.04	-0.14	0.10
	北浦	0.66	0.07	-0.18	-0.55	-0.04	-0.35	-0.69 *	-0.05	-0.24	0.15

相関係数 *:p<0.05 **:p<0.01, 順位相関係数 (*):p<0.05 (**)<0.01

ず畑の割合および豚、乳牛の飼育密度と正の相関を示した。水田の割合とは負の相関を示した。NO₂-N濃度とNH₄-N濃度についてみると、冬季は他の季節と異なり、市街地と正の、森林と負の相関を示した。

PO₄-P濃度は季節による相関係数の変化が小さく、市街地の割合と正の、森林や水田の割合と負の相関を示した。DOC濃度は、春季は他の季節と異なり、どの項目とも相関係数が低かった。夏季～冬季は水

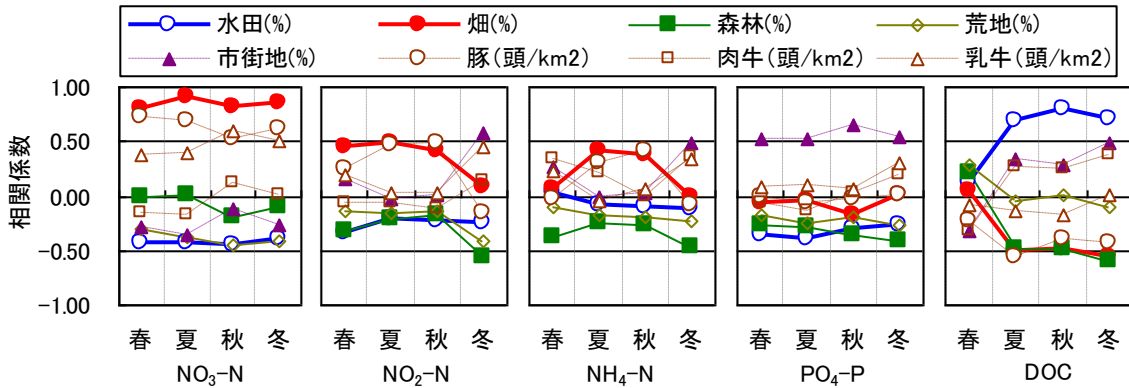


図-7 土地利用と水質の季節平均値の相関係数の比較（霞ヶ浦）

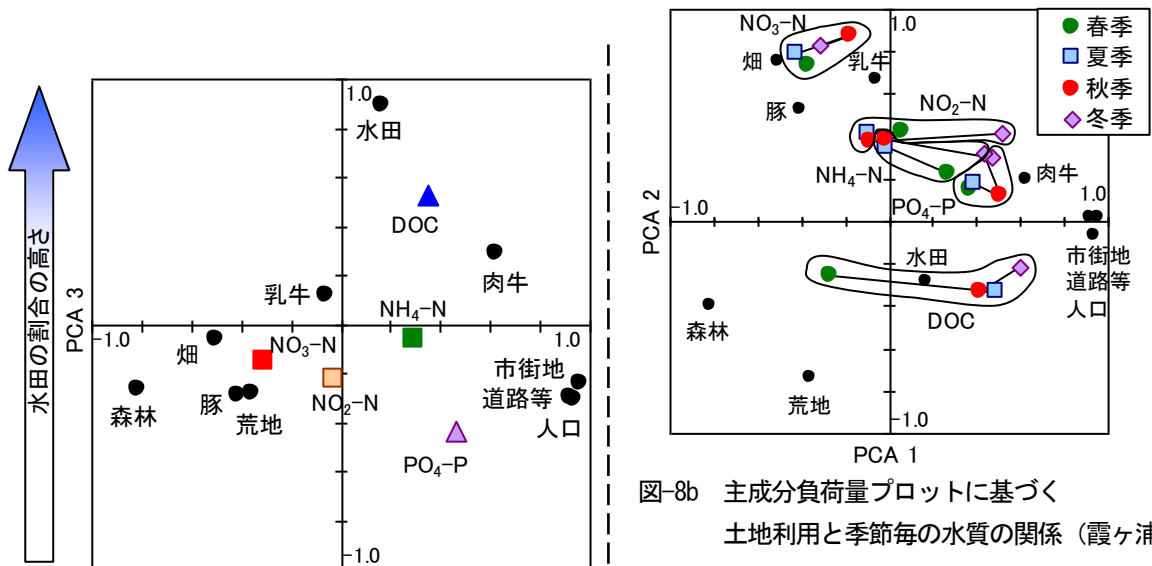


図-8b 主成分負荷量プロットに基づく土地利用と季節毎の水質の関係（霞ヶ浦）

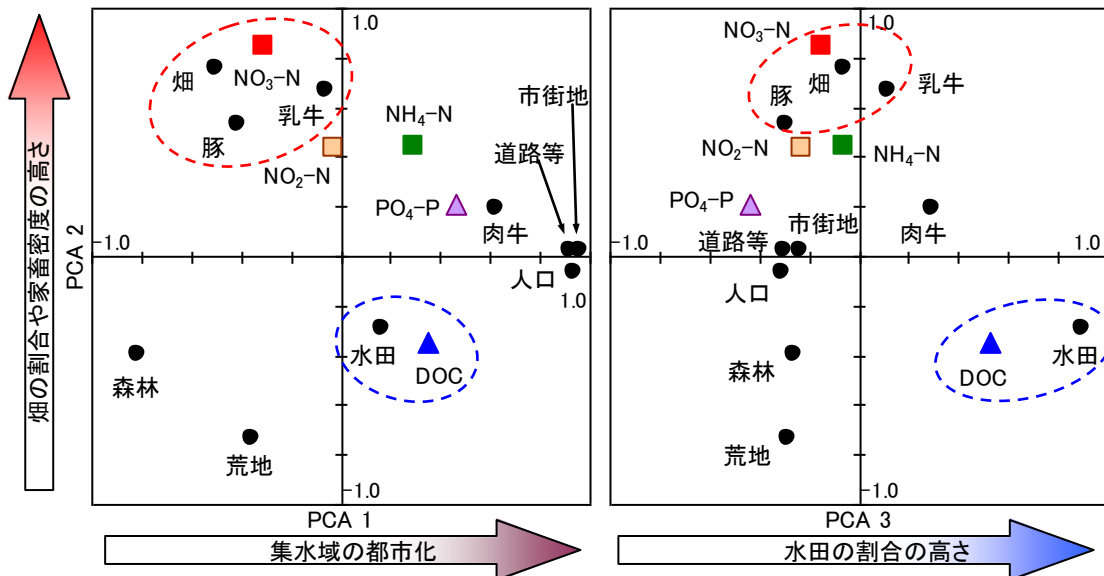


図-8a 主成分負荷量プロットに基づく土地利用と水質の年平均値の関係（霞ヶ浦）

田の割合と正の、畑や森林の割合と負の相関を示した。

2.2.1.4 多変量解析による水質の形成要因の把握

土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度を用いた主成分分析の結果、第3主成分までの累積寄与率は77.8%となった。集水域の土地利用特性は第1～第3主成分で概ね表現できていると考えられる。図-8aに、第1～第3主成分についての各項目の主成分負荷量プロットを示す。第1主成分は、市街地、道路等の割合および人口密度が+方向に、森林、畑の割合が-方向に分布したことから、集水域の都市化に関連する成分であると考えられる。第2主成分は、畑の割合および豚、乳牛の飼育密度が+方向に、水田が-方向に分布したことから、畑の割合と家畜飼育密度に関連する成分であると考えられる。第3主成分は水田の割合が+方向に分布しており、これを反映する成分であると考えられる。

土地利用の主成分得点と各水質の年平均値の相関係数を求め、図-8aの主成分負荷量プロット上における各水質の分布位置を調べた。NO₃-N濃度は、畑の割合、豚、乳牛の飼育密度と近い位置に分布した。畑からは肥料や堆肥に由来する窒素が流出するため¹⁰⁾、畑の割合とNO₃-N濃度の位置が近くなったと考えられる。豚の密度との関係については、糞尿によるもの¹¹⁾と考えられる。NO₂-N濃度は、第2主成分が正であったが、NO₃-N濃度と比較すると畑の割合から離れた位置に分布した。NH₄-N濃度とPO₄-P濃度は、第1、第2主成分が共に正の位置に分布しており、畑だけでなく市街地からも影響を受けていたと推測される。DOC濃度は、水田の近くに分布した。

次に、主成分得点と水質の季節毎の平均値の相関係数を求め、主成分負荷量プロット上の季節毎の分布の違いを調べた。図-8bに、第1、第2主成分と季節毎の水質の関係を示す。NO₃-N濃度は、いずれの季節も畑の割合や豚、乳牛の飼育密度の近くに分布した。集水域の畑や畜産業は、年間を通じてNO₃-N濃度に影響を及ぼしていると考えられる。NO₂-N濃度は、冬季に第1主成分の正の方向に移動し、市街地との相関が高くなった。NH₄-N濃度は、春季と冬季に第1主成分が正の位置に分布した。PO₄-P濃度の分布の変化は小さかった。DOC濃度は、夏季～冬季は水田の近くに分布していたが、春季は第1主成分が負となり、水田のプロット位置から離れた分布となった。

集水域の土地利用が水質に及ぼす影響を数値化す

るため、重回帰分析の1種である主成分重回帰分析を行った。その結果、NO₃-N濃度に関して、自由度修正済決定係数(R²)=0.816で次の回帰式が得られた。

$$\text{NO}_3\text{-N濃度 (mgN/L)} = \left(\begin{array}{l} -0.0375 \times \text{田} (\%) \\ +0.0479 \times \text{畑} (\%) \\ -0.0091 \times \text{森林} (\%) \\ -0.1797 \times \text{荒地} (\%) \\ -0.0052 \times \text{市街地} (\%) \\ -0.0085 \times \text{道路等} (\%) \\ +0.0016 \times \text{豚} (\text{頭}/\text{km}^2) \\ +0.0003 \times \text{肉牛} (\text{頭}/\text{km}^2) \\ +0.0582 \times \text{乳牛} (\text{頭}/\text{km}^2) \\ -0.0002 \times \text{人口} (\text{人}/\text{km}^2) \end{array} \right) + 2.47$$

畑の割合1%あたりのNO₃-N濃度の変化量は、畑で+0.048mgN/Lであった。家畜密度についてみると、豚は1頭/km²あたり+0.0016mgN/L、乳牛は1頭/km²あたり+0.058mgN/Lとなった。

2.2.2 印旛沼流入河川の水質と集水域の土地利用の関係

2.2.2.1 各調査地点の水質と集水域の土地利用の関係

図-9に、各集水域の土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度を示す。土地利用割合のうち、畑の割合はNo.1とNo.5で高く、森林の割合はNo.3で高い。水田の割合は、どの集水域も10%未満である。市街地の割合は、No.2の16%が最大であり、集水域による違いが小さい。全人口密度と下水処理されていない人口は、No.1とNo.2で多い。No.3とNo.4は全人口の90%以上が下水処理人口になっている。豚の飼育密度はNo.1で高く、No.3とNo.4で低い。肉牛の飼育密度はNo.2で、乳牛の飼育密度はNo.5で高い。

図-10に各調査地点の主要な水質項目(T-N、NO₃-N、NO₂-N、NH₄-N、T-P、PO₄-P、Na⁺、K⁺、Al、DOC)の平均値を示す。表-2および表-3に、土地利用と水質の全項目の相関係数を示す。T-N、NO₃-N、T-Al濃度はNo.1とNo.5で高く、畑の割合や豚の密度と正の相関を示した。NO₂-N濃度は、No.1、No.2、No.5で高かった。NH₄-N濃度はNo.1とNo.2で高く、市街地、道路等の割合や、肉牛の飼育密度、下水未処理人口の密度と正の相関を示した。T-P濃度とPO₄-P濃度はNo.1、No.2、No.4で高く、市街地、道路等の割合や全人口密度と正の相関を示した。T-N、T-Pは、森林の割合と負の相関を示した。Na⁺濃度はNo.1、No.2、No.4で高く、DOCはNo.2で高かった。

土地利用割合、全人口密度、下水未処理人口密度、家畜飼育密度と水質の平均値(計50項目)を用いた

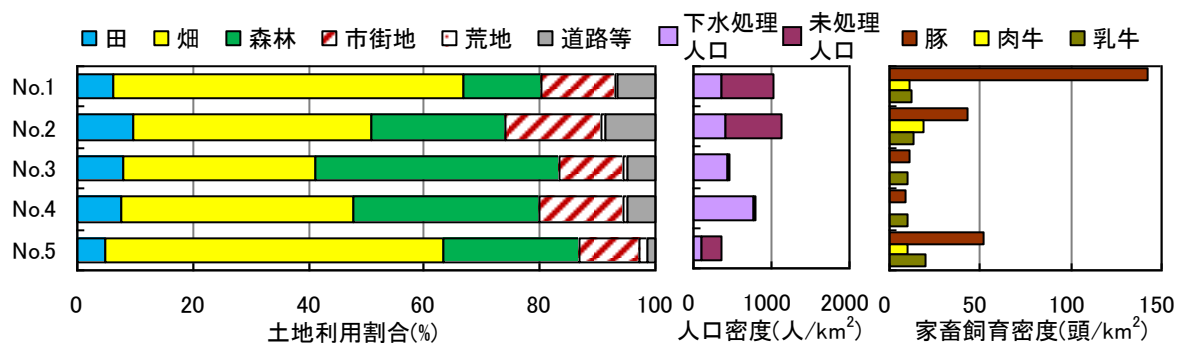


図-9 印旛沼小流域における、各調査河川集水域の土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度

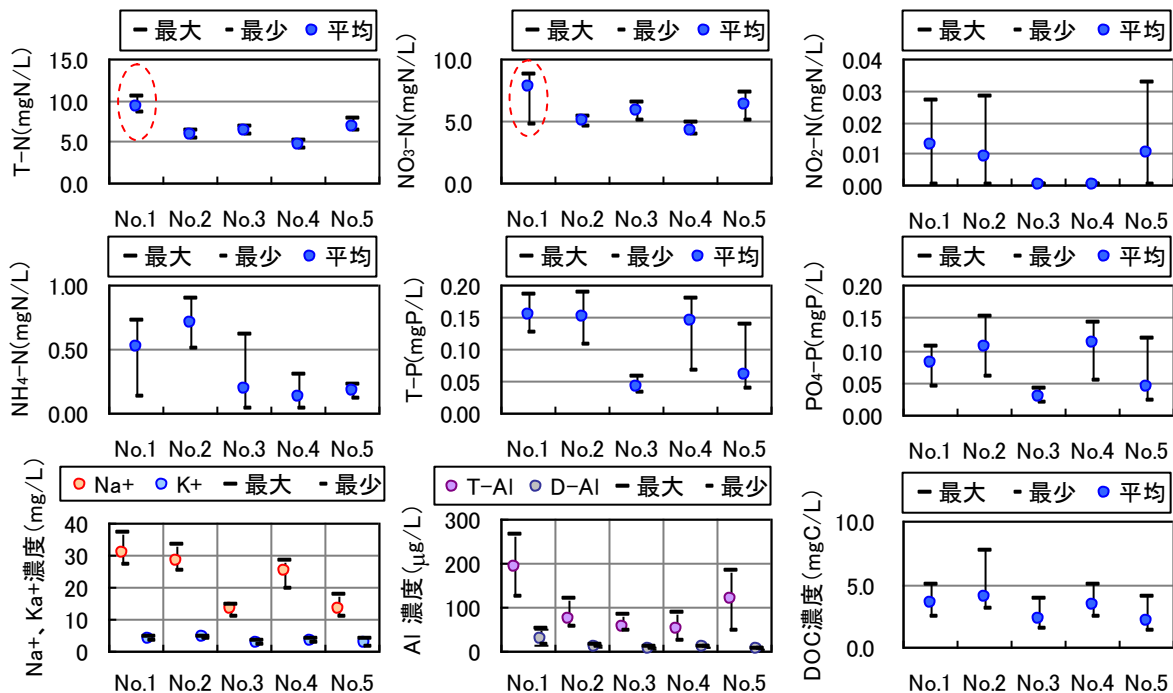


図-10 各調査地点の主要な水質項目の平均値 (印旛沼)

表-2 集水域の土地利用と水質の相関係数の一覧 (一般項目、窒素、リン、無機イオン) (印旛沼)

	土地利用割合 (%)						家畜飼育密度 (頭/km ²)			人口密度 (人/km ²)	
	田	畑	森林	市街地	荒地	道路等	豚	肉牛	乳牛	全人口	未処理
pH	0.24	-0.77	0.91	-0.14	-0.17	-0.21	-0.77	-0.90	-0.59	-0.43	-0.89
EC(ms/m)	0.43	0.17	-0.65	0.83	-0.57	0.85	0.50	0.61	-0.28	0.99	0.78
SS(mg/L)	-0.18	0.22	-0.29	0.35	-0.67	0.05	0.15	-0.24	-0.23	0.34	-0.09
VSS(mg/L)	-0.10	0.54	-0.77	0.36	-0.74	0.51	0.84	0.36	-0.21	0.75	0.65
DOC(mgC/L)	0.61	-0.06	-0.46	0.93	-0.56	0.90	0.28	0.52	-0.40	0.98	0.66
TN(mg/L)	-0.52	0.73	-0.64	-0.39	-0.17	0.00	0.91	0.34	0.23	0.13	0.54
D-TN(mg/L)	-0.52	0.72	-0.63	-0.40	-0.16	0.01	0.91	0.33	0.22	0.13	0.53
NH ₄ -N(mg/L)	0.47	0.17	-0.61	0.63	-0.12	0.81	0.50	0.88	-0.02	0.82	0.95
NO ₂ -N(mg/L)	-0.39	0.85	-0.92	0.00	0.16	0.09	0.83	0.82	0.64	0.33	0.83
NO ₃ -N(mg/L)	-0.63	0.75	-0.57	-0.53	-0.08	-0.15	0.86	0.25	0.30	-0.03	0.42
TP(mg/L)	0.32	0.20	-0.62	0.82	-0.65	0.71	0.42	0.45	-0.28	0.92	0.61
D-TP(mg/L)	0.44	-0.02	-0.41	0.91	-0.54	0.65	0.11	0.33	-0.30	0.83	0.41
PO ₄ -P(mg/L)	0.44	-0.04	-0.38	0.90	-0.52	0.62	0.07	0.31	-0.29	0.80	0.37
Na ⁺ (mg/L)	0.34	0.21	-0.65	0.78	-0.69	0.79	0.54	0.49	-0.34	0.97	0.70
K ⁺ (mg/L)	0.56	0.06	-0.56	0.78	-0.42	0.93	0.47	0.72	-0.28	0.96	0.86
Mg ²⁺ (mg/L)	0.45	0.04	-0.42	0.46	-0.49	0.86	0.58	0.53	-0.42	0.79	0.76
Ca ²⁺ (mg/L)	0.49	-0.67	0.58	0.36	0.35	-0.06	-0.91	-0.21	-0.06	-0.18	-0.47
Cl ⁻ (mg/L)	0.33	0.13	-0.53	0.82	-0.71	0.68	0.34	0.32	-0.36	0.89	0.50
SO ₄ ²⁻ (mg/L)	0.37	0.27	-0.73	0.78	-0.44	0.81	0.56	0.74	-0.13	0.96	0.88

表-3 集水域の土地利用と水質の相関係数の一覧（金属類）（印旛沼）

	土地利用割合(%)						家畜飼育密度(頭/km ²)			人口密度(人/km ²)	
	田	畑	森林	市街地	荒地	道路等	豚	肉牛	乳牛	全人口	未処理
T-Fe(μg/L)	0.25	0.32	-0.64	0.34	-0.11	0.67	0.68	0.83	0.04	0.67	0.94
T-Mn(μg/L)	0.62	-0.06	-0.39	0.60	-0.14	0.87	0.37	0.76	-0.20	0.78	0.84
T-Cu(μg/L)	0.10	0.44	-0.79	0.56	-0.67	0.68	0.77	0.54	-0.21	0.89	0.78
T-Mo(μg/L)	0.68	-0.14	-0.32	0.79	0.16	0.71	0.01	0.81	0.07	0.67	0.70
T-B(μg/L)	0.48	0.07	-0.50	0.77	0.17	0.58	0.10	0.85	0.24	0.67	0.72
T-Zn(μg/L)	0.62	-0.01	-0.51	0.82	-0.38	0.94	0.39	0.71	-0.29	0.96	0.84
T-Al(μg/L)	-0.61	0.90	-0.83	-0.25	-0.24	-0.01	0.98	0.41	0.33	0.24	0.60
T-Ni(μg/L)	0.01	0.59	-0.88	0.51	0.06	0.38	0.56	0.90	0.47	0.63	0.86
T-Co(μg/L)	0.15	0.48	-0.81	0.45	0.04	0.56	0.66	0.97	0.32	0.69	0.99
T-Se(μg/L)	-0.03	0.19	-0.27	-0.08	-0.64	0.42	0.67	0.03	-0.47	0.39	0.37
D-Fe(μg/L)	0.51	-0.90	0.91	0.02	-0.24	0.10	-0.71	-0.73	-0.77	-0.21	-0.68
D-Mn(μg/L)	0.70	-0.14	-0.34	0.69	-0.25	0.93	0.31	0.69	-0.32	0.83	0.79
D-Cu(μg/L)	0.43	-0.07	-0.31	0.88	-0.47	0.55	-0.02	0.25	-0.26	0.73	0.29
D-Mo(μg/L)	0.69	-0.21	-0.23	0.78	0.24	0.64	-0.12	0.76	0.09	0.60	0.60
D-B(μg/L)	0.46	0.07	-0.47	0.75	0.22	0.52	0.06	0.83	0.28	0.61	0.68
D-Zn(μg/L)	0.72	-0.15	-0.38	0.96	-0.24	0.86	0.09	0.67	-0.22	0.89	0.68
D-Al(μg/L)	-0.18	0.57	-0.74	0.18	-0.68	0.45	0.91	0.34	-0.19	0.65	0.65
D-Ni(μg/L)	0.09	0.43	-0.71	0.59	0.17	0.30	0.29	0.81	0.49	0.54	0.69
D-Co(μg/L)	0.60	0.03	-0.54	0.81	-0.20	0.88	0.35	0.82	-0.12	0.90	0.87
D-Se(μg/L)	0.08	0.55	-0.86	0.42	-0.02	0.54	0.72	0.95	0.31	0.69	0.99

※相関係数0.7以上または-0.7以下のものは、着色して示した

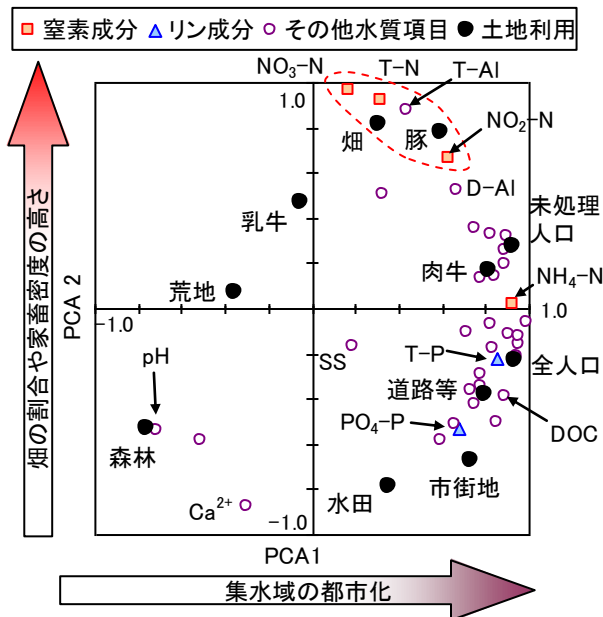


図-11 主成分負荷量プロットに基づく土地利用と各水質項目の関係（印旛沼）

主成分分析の結果、第2主成分までの累積寄与率は76%となった。図-11に、第1主成分と第2主成分の主成分負荷量プロットを示す。主成分1は、市街地の割合、全人口密度、肉牛の密度が正、森林の割合が負になっていることから、集水域の都市化に関連する成分と考えられる。主成分2は、畑の割合、豚と乳牛の密度が正、水田の割合が負になっている

ことから、畑の割合と家畜飼育密度に関連する成分と考えられる。水質項目についてみると、T-N濃度、NO₃-N濃度、NO₂-N濃度は畑の割合や豚の飼育密度の近くに分布した。一方、NH₄-N濃度は全人口、肉牛の密度、下水未処理人口の密度の近くに分布した。T-P濃度、PO₄-P濃度、DOC濃度は市街地や道路の割合、全人口密度の近くに分布した。

2.2.2.2 集水域の土地利用と栄養塩の流出負荷量の関係

図-12に、原単位法で求めた各集水域のT-N、T-P負荷量と、実測負荷量の比較を示す。T-N、T-Pのいずれも、各集水域の負荷量多少の傾向は、原単位法と実測とで一致していることがわかる。T-Pについてみると、No.1~5のいずれも、実測負荷量が原単位法による負荷量より低くなった。河川水中の冬季のT-P濃度が春季より低くなる傾向があることから、実測負荷量が低く算出された可能性がある。利根川流域別下水道整備総合計画(A)および第6次総量削減計画(B)に基づく負荷量と、原単位調査事例(C)に基づく負荷量を比較すると、原単位調査事例(C)では畑のT-N負荷量が大きく算出された。印旛沼流域における畑からのT-Nの面原負荷量原単位は、様々な地域の調査事例の平均値よりも小さいと推測される。原単位などの妥当性を評価するためには、年間を通した、また雨天時を含めた調査を行

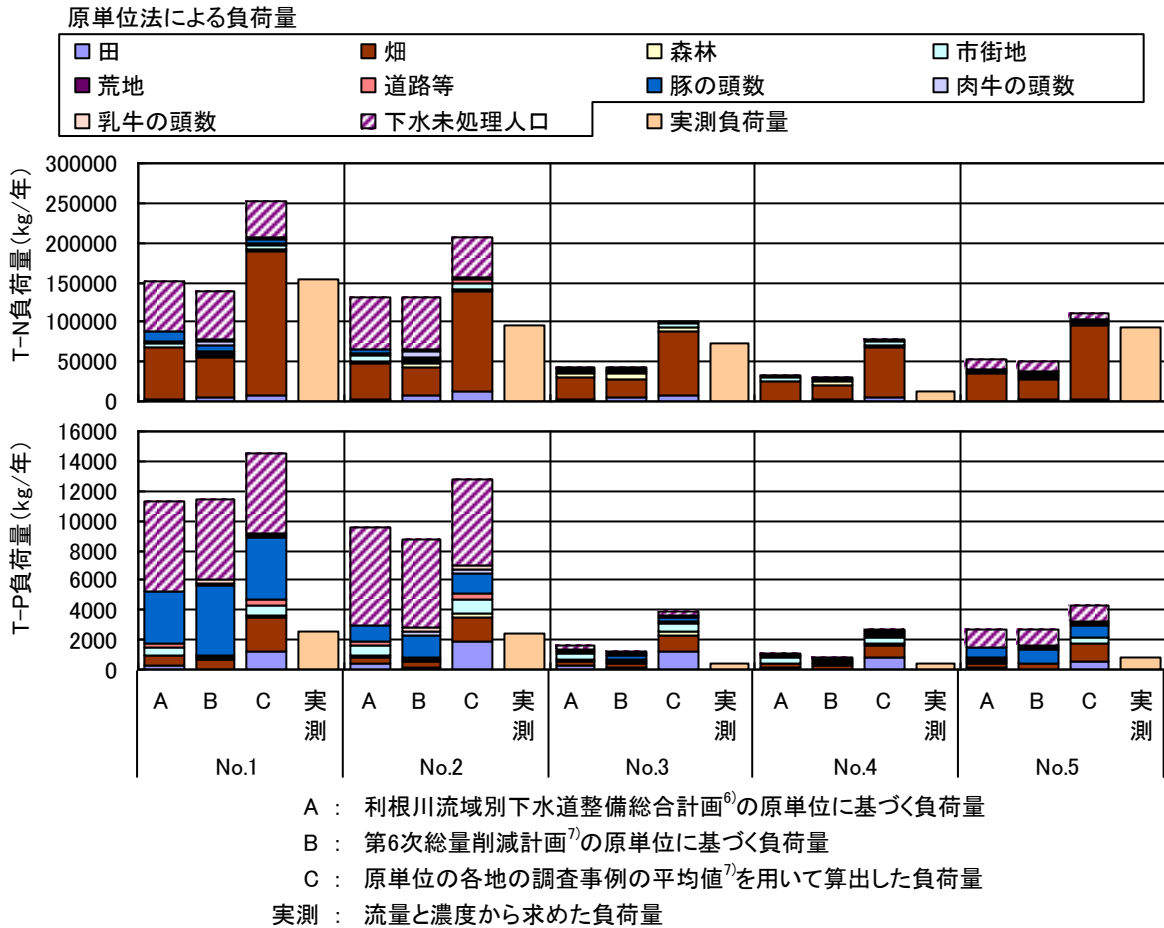


図-12 T-N、T-Pの原単位法による負荷量と実測負荷量の比較（印旛沼）

う必要がある。

2.2.3 高崎川と山川の土地利用と水質の関係

2.2.3.1 集水域の土地利用特性

図-13aは高崎川本流の地点A~Gの集水域面積と土地利用割合、人口密度である。比較のため山川のデータを合わせて示した。高崎川では、最上流の地点Aの畑の割合は86%であり、地点G（高崎川全体）の畑の割合は44%である。本流では下流の調査地点ほど畑の割合が低く、水田、森林、市街地、その他の割合が高い。山川では畑と水田の割合はいずれも40%で、森林の割合は3%と低い。高崎川の人口密度は山川と比較して高く、地点別でみると下流側の地点E、F、Gで高い。

図-13bは、3つの支流c、d、fの集水域面積と土地利用割合である。支流cは他の支流と比較すると、畑の割合と森林の割合が高い。支流fは集水域面積が最も大きい支流であり、市街地の割合が高い。各支流の上流のみで比較した場合も同様の傾向である。人口密度は支流dとfで高い。

図-13cは、採水区間ごとの小流域A~Gの面積と

土地利用割合である。小流域の面積は、Dが最小、Gが最大である。畑の割合は小流域A、Bで高く、森林の割合は小流域F、Gで高い。市街地の割合は他の小流域と比較するとC、Gで高い。人口密度は小流域C、E、Gで高い。

家畜頭数は、市町村別データの特性上、小流域ごとには算出できなかったが、全集水域でみると、高崎川では乳牛、肉牛、豚がそれぞれ800、1,170、6,250頭であった。山川ではそれぞれ119、864、17,005頭であった。全集水域の豚の密度は高崎川で80頭/km²、山川で530頭/km²となった。なお、高崎川の現地調査から、上流の地点A付近に畜産農家が点在していることを確認した。

2.2.3.2 晴天時調査

2.2.3.2.1 晴天時調査の結果

図-14は、各調査地点のSS濃度、溶存態窒素、粒子態窒素、NO₃-N、NO₂-N、NH₄-N、溶存態リン、粒子態リン濃度の4回の平均値である。SS濃度は、本流の地点Eと支流の地点d1で高かった。

全窒素濃度（溶存態+粒子態）は6.0~15.5mgN/L

の範囲であり、本流の地点 A~G では上流ほど高い値を示し、支流の地点 c1、c2 でも高かった。いずれの地点でも粒子態窒素濃度は0.6mgN/L 以下であり、全窒素濃度の大部分は溶存態であった。

NO₃-N 濃度は、概ね全窒素濃度と同様の傾向を示し、地点 A、B、C、c1、c2 で高かった。溶存態窒素濃度に占める NO₃-N 濃度の割合は、いずれの地点でも 70%以上となった。全窒素濃度と NO₃-N 濃度は、畑の割合と正の相関があることがわかる。

NO₂-N 濃度は本流の地点 A、B、C と支流の地点 d1、d2、f1 で高かった。

NH₄-N 濃度は、最上流の地点 A で最も高い値を示した。支流では地点 d1、f1 で高かった。

全リン濃度は、0.03~0.57mgP/L の範囲であり、最上流の地点 A は地点 B~G と比較して高い値を示した。支流では地点 d1 で高かった。リンの存在形態をみると、地点 A では大部分が溶存態リンであったが、地点 d1 では粒子態リンの割合が高かった。地点 G では、全リンに対する粒子態リンの割合は約 40%であった。

図-15 は、Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻ 濃度の、各調査地点の平均値である。Na⁺濃度は、

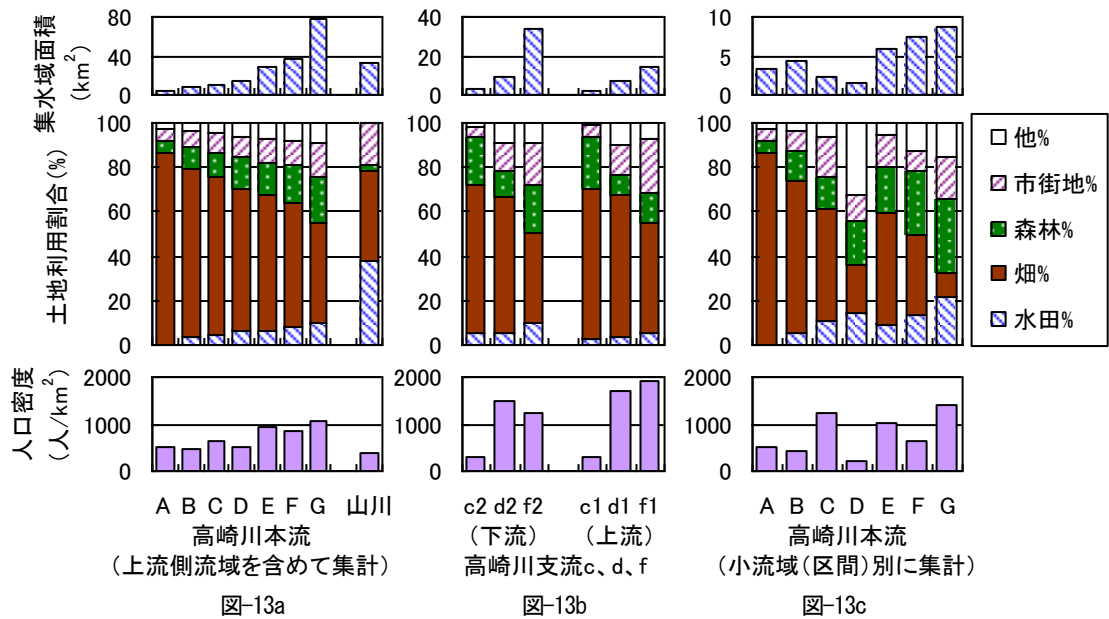


図-13 高崎川 13 調査地点の集水域と、山川の集水域の面積、土地利用割合、人口密度

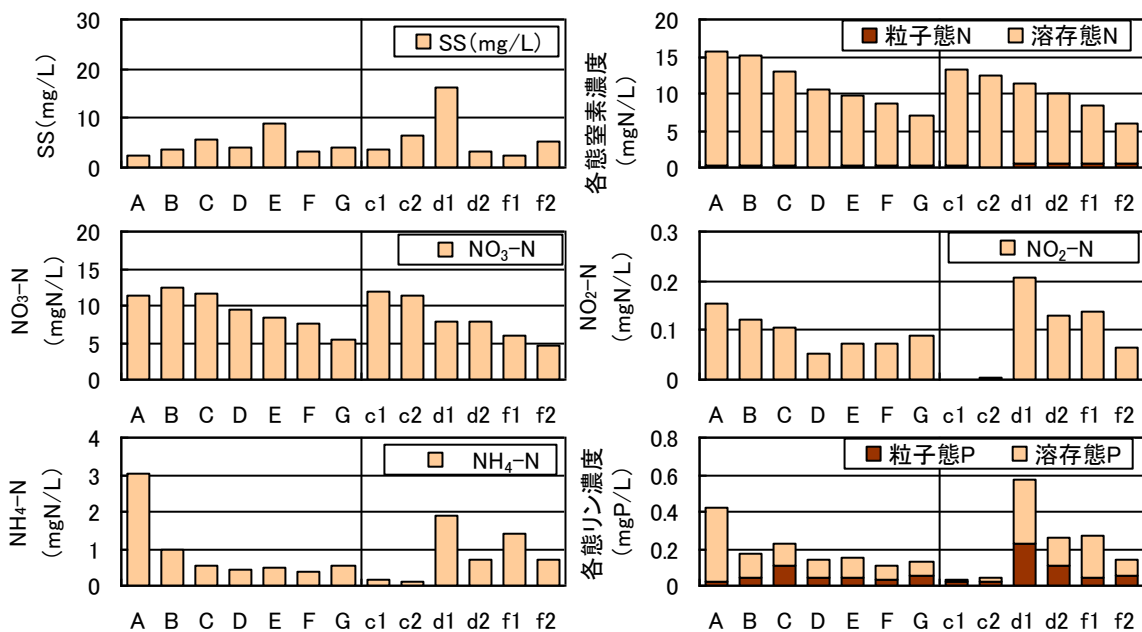


図-14 高崎川晴天時調査の SS、各態窒素、NO₃-N、NO₂-N、NH₄-N、各態リン濃度の平均値

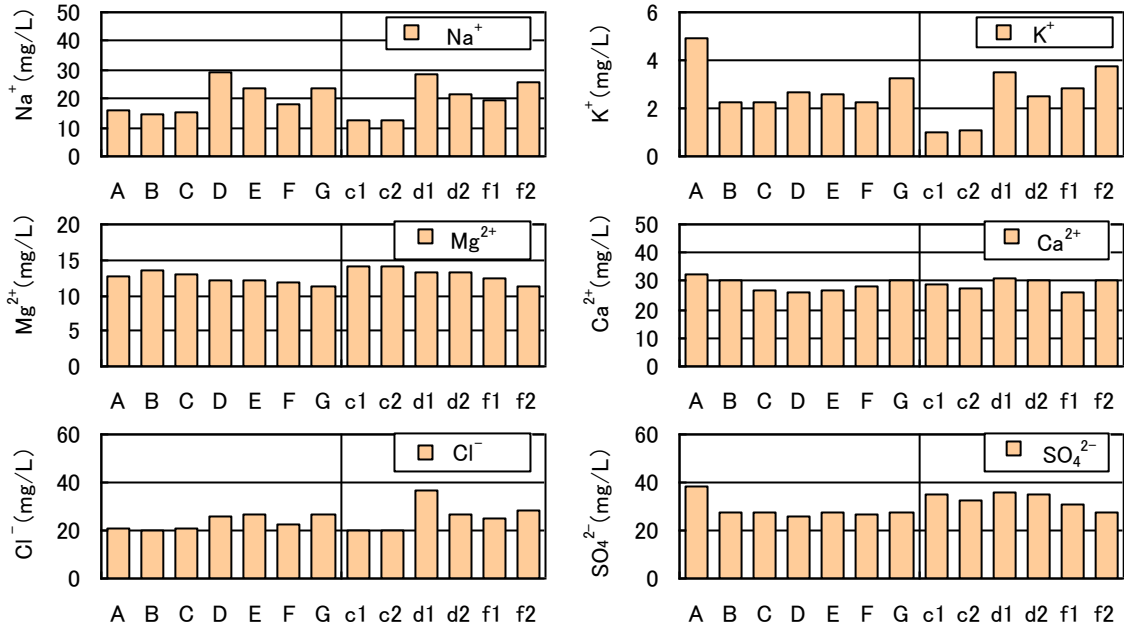


図-15 高崎川晴天時調査のNa⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻濃度の平均値

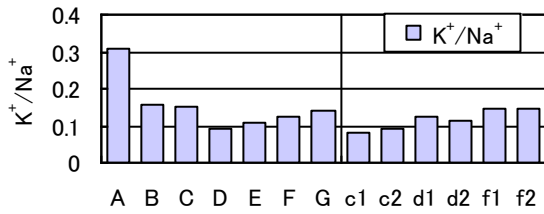


図-16 高崎川晴天時調査のK⁺/Na⁺

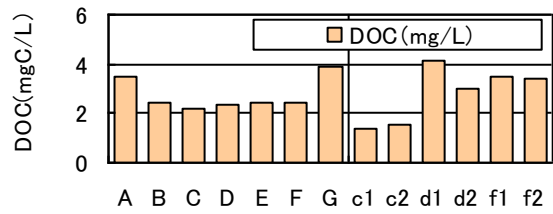


図-17 高崎川晴天時調査のDOC濃度の平均値

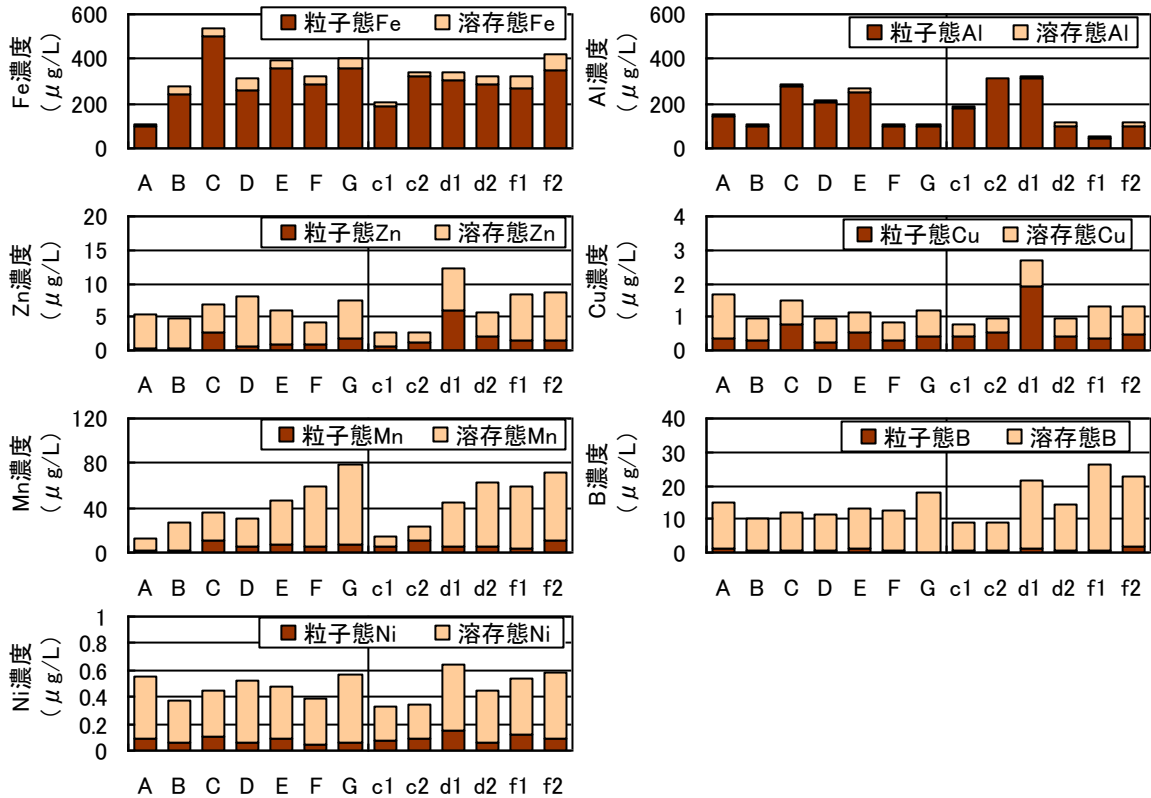


図-18 高崎川晴天時調査の粒子態と溶存態のFe、Al、Zn、Cu、Mn、B、Ni濃度の平均値

地点 A~C で低く、地点 D~G で高かった。支流では地点 c1, c2 で低く、地点 d1, d2, f1, f2 で高かった。Na⁺濃度と集水域の人口密度は、地点 D を除くと概ね正の相関を示した。

K⁺濃度は、集水域に畜産農家の点在する地点 A で最大となった。地点 B~F では濃度の違いは小さかった。地点 c1, c2 では他の地点と比較して低かった。

Mg²⁺濃度は、本流の上流で高くなる傾向がみられた。3つの支流を比較すると、支流 c で高かった。

Ca²⁺濃度は、本流では地点 A と G で高かった。支流では地点による違いは小さかった。

Cl濃度は、本流では、地点 D, E, G で高かった。支流では地点 d1 で高い値を示した。

SO₄²⁻濃度は、地点 A で高かった。地点 B~G の値は概ね等しかった。支流 c と支流 d は、支流 f と比較して高い値であった。

図-16 は、各調査地点の K⁺/Na⁺である。K⁺/Na⁺は、畜産排水の流入する河川で高くなることが知られている¹²⁾。地点 A では約 0.3、他の地点はいずれも 0.2

以下であった。地点 A の高い NH₄-N 濃度と K⁺/Na⁺ は、この集水域内の豚飼育密度が高いと推察されることから、畜産に由来するものと考えられる。

図-17 は、各調査地点の DOC 濃度の平均値である。DOC 濃度は、本流では地点 A, G で、支流では d1 で高い値を示した。

図-18 は、各地点の溶存態と粒子態の金属 (Fe, Al, Zn, Cu, Mn, B, Ni) 濃度の平均値である。河川水中の金属を粒子態と溶存態で区分すると、Fe, Al は主に粒子態、B は主に溶存態で存在していた。Mn, Zn, Cu, Ni は粒子態と溶存態の両方が含まれており、地点によって割合が異なった。地点別では、Mn は下流の地点ほど高くなる傾向がみられた。Fe は他の地点と比較して地点 A で低かった。Zn と Cu は、地点 d1 で高かった。Al は地点 C, c2, d1 で、B は d1, f1, f2 で高かった。Ni は、地点間で大きな違いはみられなかった。溶存態 Mn は、畑の割合と負の相関を示したものの、金属濃度と土地利用との明確な関係は見出せなかった。

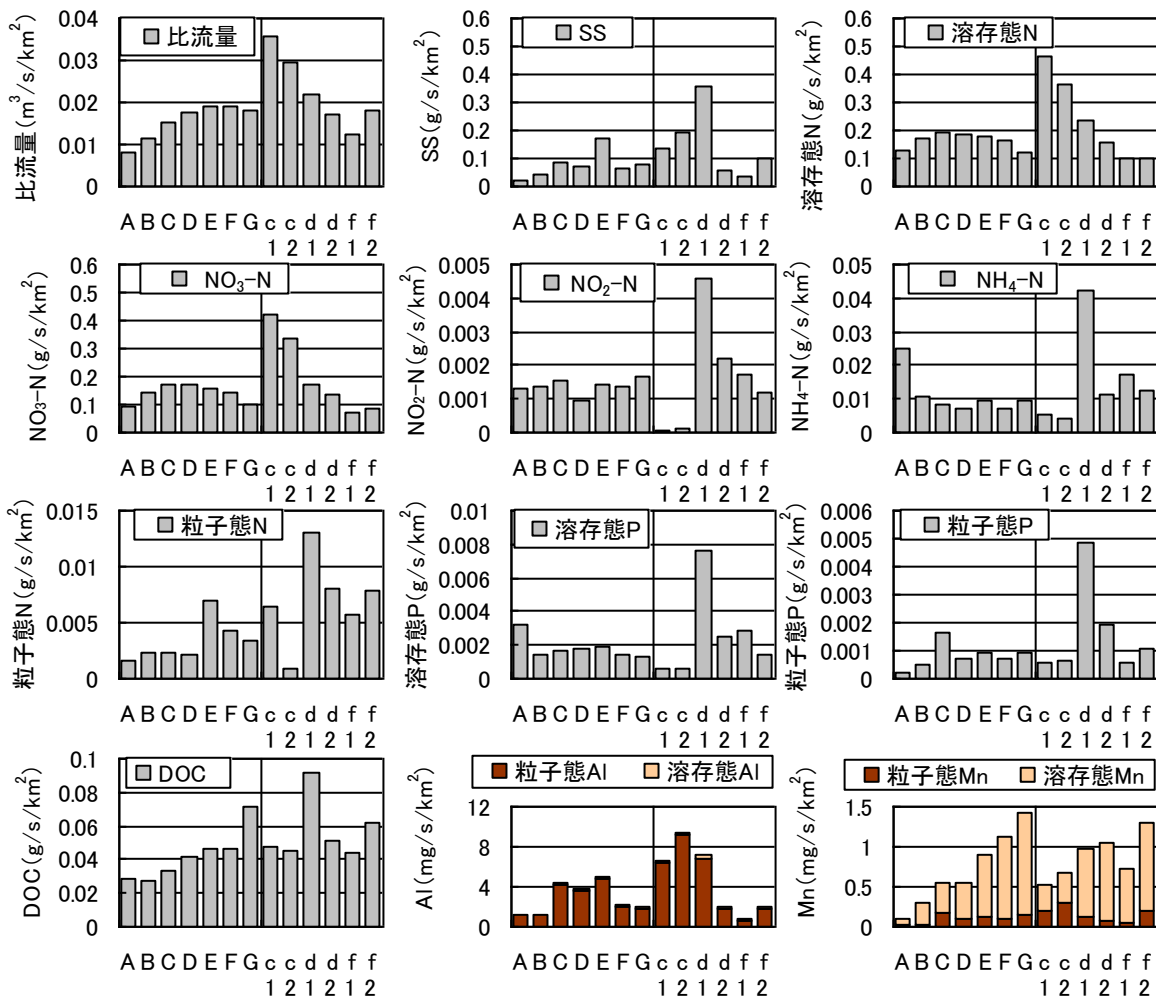


図-19 各地点の比流量と、SS、各態窒素、各態リン、DOC、Al、Mn の比負荷量

2.2.3.2.2 晴天時の流出負荷量の解析

栄養塩類の流出についてより詳細に解析するため、負荷量と比負荷量を算出した。すなわち各水質成分の濃度について、4回の調査の平均値を求め、平均流量を掛けて地点別の負荷量を算出し、上流側流域を含めた集水域の面積で割って比負荷量を求めた。

図-19は、各地点の比流量と、SS、各態窒素、各態リン、DOC、Al、Mnの比負荷量である。

比流量は、地点Aで低く、地点c1、c2で高かった。

SSの比負荷量は、本流では地点Eで、支流では地点d1で高かった。

溶存態窒素とNO₃-Nの比負荷量は、比流量と同様の傾向を示し、支流cの比負荷量が高いことがわかる。NO₂-Nは、地点d1で、NH₄-Nは地点Aとd1で比負荷量が高かった。粒子態窒素の比負荷量は、本流では地点Eで、支流ではc2を除いた5地点で高かった。

溶存態リンの比負荷量は、NH₄-Nと同様の傾向を示した。粒子態リンの比負荷量は、溶存態リンと異なり、地点Aで低かった。

DOCの比負荷量は、下流ほど高くなっていた。また、地点d1で高かった。

Alの比負荷量は、本流では地点C、D、Eで、支流では地点c1、c2、f1で高かった。Mnの比負荷量は、本流では下流側ほど高く、支流ではd1、d2、f2で高かった。

図-20は、高崎川の各調査地点の位置関係と、地点ごとの溶存態窒素の負荷量である。下流の地点ほど溶存態窒素の負荷量が増大していることがわかる。下流の負荷量と、上流の負荷量の差は、その区間の小流域からの流入負荷量を表すと考えられる。そこで、地点A～Gと支流c、d、fについて各水質成分の負荷量の差分を算出し、対応する区間の小流域の面積で割って、それぞれの小流域の比負荷量を求めた。図-21は、各小流域別の、比流量と各水質成分の比負荷量である。

比流量は地点C、E、支流cで高かった。

SSの比負荷量は、地点Eで高かった。地点D、Fでは差分が負の値になっており、粒子の沈降による負荷量の減少が考えられる。

溶存態窒素の比負荷量は、地点Dでは負の値、他の地点では正の値となり、地点Cと支流cで高かった。NO₃-Nの比負荷量は、溶存態窒素と同様であった。NO₂-Nは、地点Dでは負の値、他の地点では正

の値となり、地点Gで高かった。NH₄-Nの比負荷量は、地点Aで最大となった。地点B、C、Fでは0に近い値であった。粒子態窒素の比負荷量は、地点Eで高かった。

溶存態リンの比負荷量は、地点A、B、Dで高かった。粒子態リンの比負荷量は、地点Cで高かった。

Na⁺とK⁺は、地点Dで高かった。Mg²⁺は、溶存態窒素と同様の傾向を示し、地点Cと支流cで高かった。Ca²⁺は、地点A、B、Dでは他の地点より低い値であった。Cl⁻は、Na⁺と同様の傾向を示し、地点Dで高く、地点A、Fで低かった。SO₄²⁻はMg²⁺と同様の傾向を示した。DOCの比負荷量は、すべての地点で正の値となり、地点Gで高かった。

溶存態の金属では、Fe、Al、Znが地点Dで高かった。Cuは地点C、D、Fで高かった。Mgは下流の地点ほど高くなっていた。Bは地点C、E、G、支流fで高く、地点A、Bで低かった。Niは地点D、Gで高かった。

粒子態の金属では、差分が負の値になる地点が多く、粒子の沈降によって負荷量が減少したものと考えられる。Feは地点C、Eで高く、Alは地点C、Eと支流cで高かった。Znは地点C、Gで高く、Cuは地点C、Eで高かった。Mnは地点Cで、Bは地点Eで、Niは地点C、Eで高かった。地点C、Eでは、調査回数4回のうち1回で粒子態金属濃度が高くなったため、上記の結果となった。晴天時でも金属類の流出特性は変動することが明らかになったことから、より精度の高い金属類の流出特性解析のためには、調査回数や採水ポイントを増やす必要がある。

単位面積あたりの各負荷量と土地利用の関係は明確ではなかった。これは、小流域によって比流量が異なることなどが原因と考えられる。

以上、晴天時調査から、家畜密度の高い集水域で

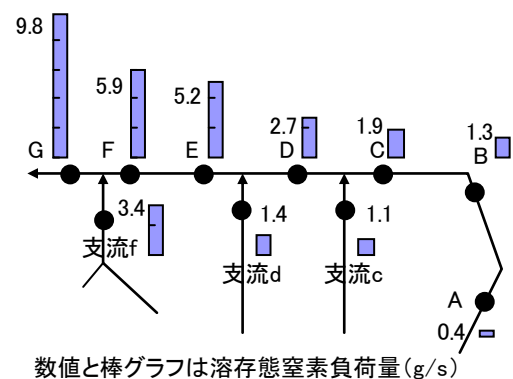


図-20 地点間の位置関係と、溶存態窒素負荷量



図-21 小流域（区間）別に求めた、比流量と、各水質成分の比負荷量

NH₄-N、溶存態リン、K⁺濃度が高く、Na⁺濃度が低下する傾向がみられた。必ずしも河川水質を土地利用などで説明できなかったが、より精緻な土地利用、地質、畜産、人口、下水道普及率などの集水域情報および水文情報を重ね合わせるにより栄養塩類の流出機構の解明に近づけると考えられる。

2.2.3.3 雨天時調査

2.2.3.3.1 雨天時調査の結果

図-22 は各時間の雨量と、高崎川の各調査地点における水深、SS 濃度、各態窒素濃度、各態リン濃度、各態窒素比負荷量、各態リン比負荷量、K⁺/Na⁺の変化である。高崎川の雨天時調査では、雨量のピークは21 時ごろであった。地点 A、C、E では水深のピークは雨量のピークの直後となったが、地点 G では水深のピークは雨量のピークに対して約4 時間遅れていた。SS 濃度はいずれの地点でも上昇し、ピークの時間は水深のピークと一致していた。

溶存態窒素濃度は、いずれの地点でも増水時に低下し、水深が下がるとともに上昇した。今回調査の時間内では、開始時と同じ濃度には戻らなかった。

粒子態窒素濃度は、SS 濃度と連動し、いずれの地点でも増水時に上昇したが、水深のピークが過ぎるともとの濃度に戻った。

NO₃-N 濃度は、溶存態窒素濃度と同様の変化を示した。溶存態窒素濃度に占める NO₃-N の割合は、地点 A では降雨前は95%であったが、高水深時には、54%まで低下した。

NH₄-N 濃度は、地点 A では、原因は明らかでないが一旦上昇した後、溶存態窒素濃度が最低となった21 時頃に一度低下し、再び高くなる変化を示した。地点間で比較すると、濃度の上昇は上流側ほど大きかった。

NO₂-N 濃度は、地点 A では降雨前に高かったが、降雨後に低下した。地点 C、E、G でも濃度の低下がみられた。

溶存態リン濃度はいずれの地点でも低いまま推移した。地点 A では増水時に低下する傾向がみられた。

粒子態リン濃度は、SS 濃度や粒子態窒素濃度と同様、増水時に上昇した。ピーク時の濃度を地点間で比較すると、上流側ほど高くなっていた。

比負荷量でみると、溶存態窒素は、地点 A では小さいピークを示し、C では概ね横ばい、地点 E、G では増水時に上昇した。

粒子態窒素はいずれの地点でも増水時に上昇した。比負荷量が最大となった時間に着目すると、地点 G

の溶存態窒素のピークは粒子態窒素のピークよりも先行していた。

NO₃-N の比負荷量は、溶存態窒素と同様の変化を示した。地点 G では、他の地点と比較してピーク時の上昇が大きかった。

NH₄-N と NO₂-N の比負荷量は、いずれの地点でも増水時に上昇した。地点 A では、他の地点と比較してピーク時の NH₄-N の上昇が大きかった。

粒子態リンの比負荷量は、粒子態窒素と同様の変化を示し、いずれの地点でも増水時に上昇した。溶存態リンの比負荷量は、粒子態リンと比較すると小さかった。

K⁺/Na⁺は、いずれの地点でも増水時に上昇し、ピークの時間は水深のピークとほぼ一致していた。地点間で比較すると、ピーク時の K⁺/Na⁺は、降雨前と同様地点 A で最大となっていた。雨天時においても、家畜密度が高いと推察される地点 A で、NH₄-N 比負荷量と K⁺/Na⁺が高くなる傾向がみられた。

図-23 は各時間の雨量と、山川における水深、SS 濃度、各態窒素濃度、各態リン濃度、各態窒素比負荷量、各態リン比負荷量、K⁺/Na⁺の変化である。山川の雨天時調査では、雨量は6 時頃と12 時頃に大きかった。調査開始時刻は8 時で、降雨の最中であった。水深は、19 時半まで上昇が続いた。翌7~10 時には低下したが、調査開始時と比較すると高かった。SS 濃度は、16 時半に最大となり、翌日までには低下した。

溶存態窒素濃度は、18 時までには低下し、翌日まで横ばいであった。粒子態窒素濃度は増水時でも小さく、顕著な上昇はみられなかった。

NO₃-N 濃度は溶存態窒素と同様の変化を示した。NH₄-N 濃度は8 時の時点では高かったが、10 時以降は低下した。NO₂-N 濃度は増水時に低下した。

溶存態リン濃度はあまり変化がみられなかった。粒子態リン濃度は増水時に上昇したが、翌日までには概ね初期の濃度まで低下した。

溶存態窒素、NO₃-N、NH₄-N、NO₂-N および粒子態リンの比負荷量は、増水時に上昇し、翌日には低下していた。一方、粒子態窒素と溶存態リンの比負荷量はあまり上昇しなかった。

K⁺/Na⁺は、増水とともに上昇し、翌日も高いままであった。山川の家畜密度は、高崎川の約6 倍であるが、NH₄-N 濃度や K⁺/Na⁺は、それに見合った増加は確認されなかった。

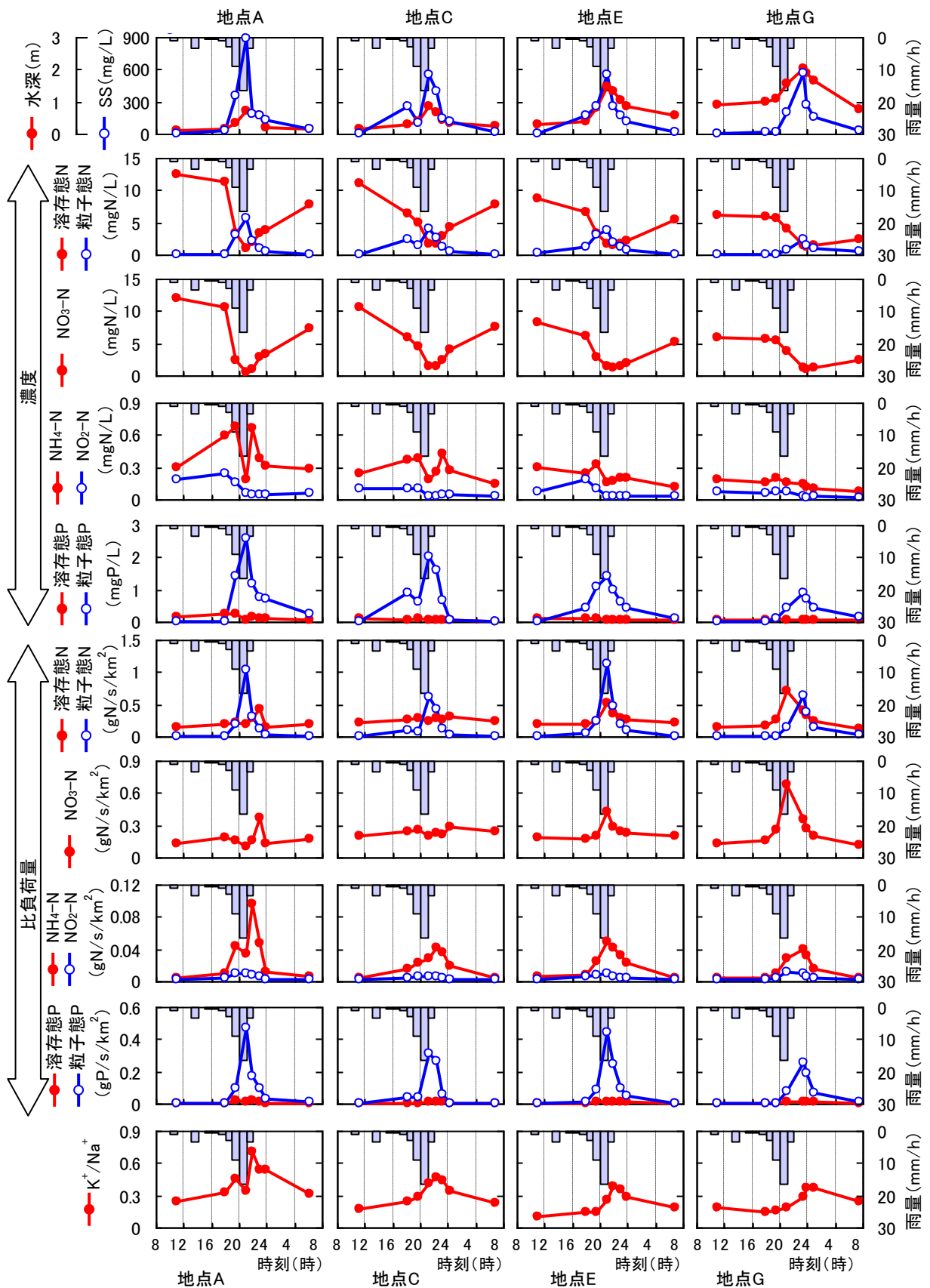


図-22 高崎川の雨天時調査の雨量、水深、SS濃度、各態窒素および各態リンの濃度と比負荷量、K⁺/Na⁺の変化

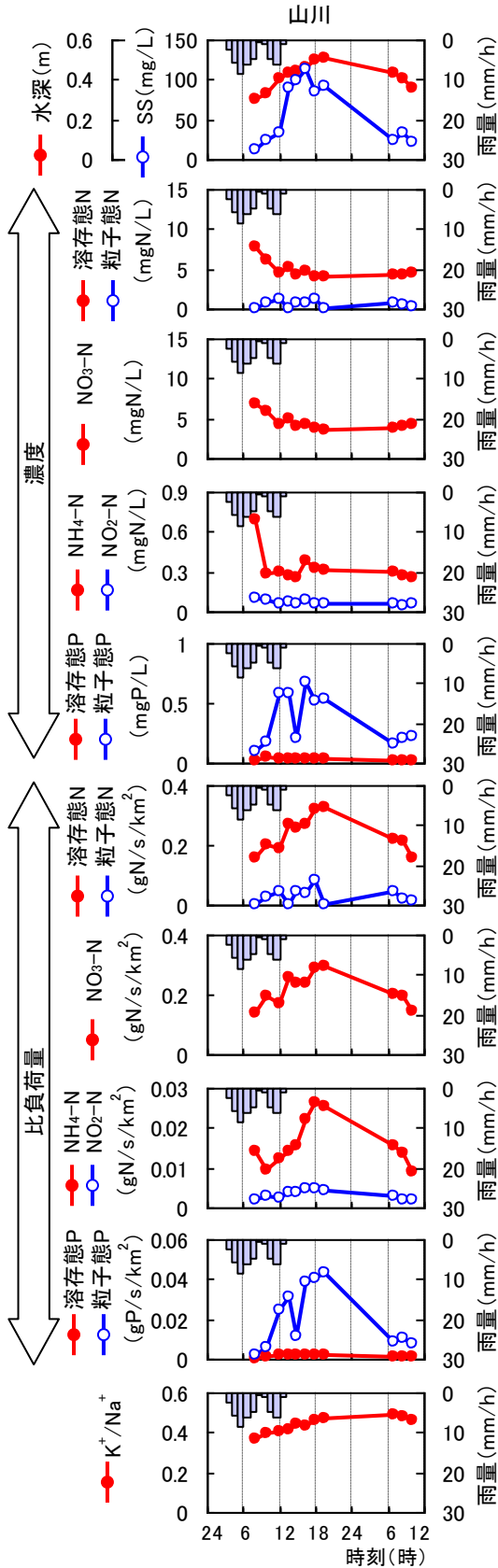


図-23 山川の雨天時調査の雨量、水深、SS濃度、各態窒素および各態リンの濃度と比負荷量、 K^+/Na^+ の変化

2.2.3.3.2 雨天時の流出負荷量の解析

図-24 は、溶存態窒素と粒子態窒素に関する、地点Aと地点Gにおける比流量と比負荷量の関係である。比流量と窒素比負荷量は、両対数グラフ上で概ね直線上にプロットされ、窒素の存在形態によって傾きが異なることがわかった。そこで、比流量と各水質成分の比負荷量の関係を、以下のL-Q式で表した。

$$L = aQ^b$$

ただし、 L ：比負荷量

Q ：比流量

a, b ：定数

定数 a, b は、比流量と比負荷量をそれぞれ常用対数に変換して最小二乗法により回帰直線を求めて算出した。表-4 は、主要な水質成分の、地点別の定数と R^2 である。定数 b は増水時の濃度変化を反映し、 $b < 1$ は濃度が低下する希釈型、 $b > 1$ は濃度が増加する洗い出し型、 $b = 1$ は濃度が変化しない一定型に分類される¹³⁾。定数 b に着目すると、SS はいずれの地点でも洗い出し型であった。

溶存態窒素、 NO_3-N 、 NO_2-N はいずれも希釈型であった。 NH_4-N は、上流側の地点A、Cでは $b = 1$ 、地点E、Gと山川では $b < 1$ となった。希釈型とならなかった地点A、Cでは、雨天時に集水域から NH_4-N が流出したと考えられる。粒子態窒素は、高崎川ではすべての地点で洗い出し型となった。山川では増水時に粒子態窒素の負荷量が上昇しなかったため、 $b < 1$ となった。

溶存態リンは、高崎川では概ね希釈型であったが、山川では洗い出し型となった。粒子態リンはいずれの地点でも洗い出し型となった。地点Cでは他の地点と比較して、粒子態リンの定数 b が高かった。

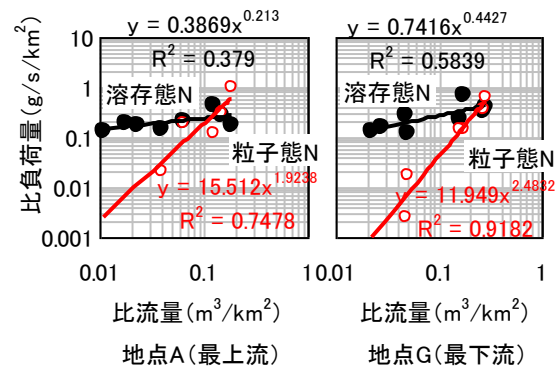


図-24 地点AとGにおける比流量と各態窒素の比負荷量の関係

表-4 主要な水質成分のL-Q式の定数a、bとR²

地点	a	b	R ²	地点	a	b	R ²	地点	a	b	R ²			
SS	A	7038	2.45	0.92	粒子態 P	A	6.65	1.77	0.91	溶存態 Fe	A	57.7	1.32	0.99
	C	17405	2.87	0.88		C	51.87	2.86	0.66		C	42.8	1.04	0.87
	E	1797	2.17	0.82		E	2.78	1.72	0.82		E	69.4	1.08	0.91
	G	4051	2.78	0.99		G	3.36	2.13	0.98		G	82.5	1.07	0.97
	山川	8063	2.65	0.86		山川	8.86	2.12	0.73		山川	93.3	1.02	0.63
溶存態 N	A	0.39	0.21	0.38	Na ⁺	A	1.60	0.53	0.83	溶存態 Al	A	113.3	1.47	0.97
	C	0.31	0.06	0.21		C	1.15	0.36	0.86		C	294.7	1.87	0.99
	E	0.57	0.31	0.85		E	2.75	0.43	0.60		E	111.6	1.47	0.99
	G	0.74	0.44	0.58		G	3.96	0.54	0.66		G	151.9	1.71	0.93
	山川	1.30	0.57	0.82		山川	3.42	0.62	0.94		山川	1107.4	2.38	0.95
NO ₃ -N	A	0.18	0.04	0.01	K ⁺	A	1.29	0.76	0.92	溶存態 Zn	A	7.49	1.06	0.90
	C	0.21	-0.02	0.02		C	1.29	0.83	0.98		C	6.39	1.04	0.90
	E	0.43	0.25	0.75		E	1.59	0.85	0.98		E	6.61	0.95	0.92
	G	0.59	0.39	0.48		G	1.70	0.80	0.95		G	7.30	1.02	0.98
	山川	1.18	0.57	0.83		山川	2.40	0.77	0.96		山川	4.99	1.02	0.79
NO ₂ -N	A	0.02	0.56	0.56	DOC	A	2.56	0.97	0.97	溶存態 Cu	A	2.35	1.06	0.93
	C	0.01	0.55	0.51		C	2.11	0.96	0.97		C	1.79	1.07	0.88
	E	0.01	0.52	0.44		E	2.97	0.99	0.98		E	2.47	1.14	0.90
	G	0.02	0.75	0.72		G	3.12	1.02	0.99		G	2.99	1.34	0.99
	山川	0.02	0.66	0.58		山川	4.42	1.07	0.97		山川	2.69	1.13	0.99
NH ₄ -N	A	0.38	1.00	0.83	粒子態 Fe	A	350986	2.35	0.92	溶存態 Mn	A	6.20	1.01	0.55
	C	0.29	1.03	0.81		C	1099787	2.84	0.89		C	11.51	0.95	0.35
	E	0.15	0.88	0.88		E	105783	2.21	0.89		E	3.61	0.83	0.44
	G	0.11	0.90	0.90		G	76548	2.38	0.97		G	6.74	0.63	0.80
	山川	0.11	0.65	0.53		山川	478409	2.74	0.87		山川	1.35	0.16	0.00
粒子態 N	A	15.51	1.92	0.75	粒子態 Al	A	368687	2.28	0.92	溶存態 B	A	5.84	0.86	0.93
	C	178.53	3.00	0.79		C	2036628	3.03	0.89		C	4.10	0.75	0.91
	E	4.92	1.56	0.85		E	143242	2.31	0.88		E	5.55	0.80	0.95
	G	11.95	2.48	0.92		G	144572	2.74	0.96		G	7.62	0.81	0.95
	山川	0.01	-0.30	0.01		山川	7794176	3.78	0.90		山川	12.38	0.86	0.98
溶存態 P	A	0.06	0.79	0.72	粒子態 B	A	1.16	0.57	0.27	溶存態 Ni	A	0.17	0.75	0.98
	C	0.04	0.82	0.88		C	1.08	0.69	0.28		C	0.13	0.67	0.97
	E	0.03	0.73	0.86		E	0.85	0.78	0.47		E	0.19	0.76	0.96
	G	0.04	0.92	0.92		G	0.29	0.20	0.20		G	0.29	0.84	0.90
	山川	0.04	1.16	0.66		山川	1.50	1.49	0.22		山川	0.06	0.42	0.30

※ 洗い出し型(b>1.1)は網掛け+太字で、希釈型(b<=0.9)は網掛けのみで示した。

Na⁺とK⁺は希釈型であり、表中には載せていないがMg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻も希釈型であった。Na⁺とK⁺は、地点による定数bの違いは小さかった。

DOCは、いずれの地点でも定数bが1に近い一定型となり、増水時の希釈や洗い出しの作用が小さかった。

粒子態金属では、Fe、Al、Zn、Cu、Mn、Niはいずれの地点でも洗い出し型であった。粒子態のBは、高崎川では希釈型、山川では洗い出し型となった。

溶存態金属は元素種によって異なった。Feは地点Aでは洗い出し型となり、他の地点では定数bが1に近かった。Alはすべての地点で洗い出し型となった。Znはいずれの地点でも定数bが1に近い値となった。Cuは、高崎川下流の地点E、Gと山川で洗い出し型となった。Mnは、高崎川下流の地点E、Gと山川で希釈型となった。BとNiは、いずれの地点でも希釈型となった。

L-Q式の定数bから、出水時には溶存態窒素濃度

は低下し、粒子態リン濃度は増加することなど、各物質の流出特性が明らかとなった。

降雨が栄養塩類の流出負荷量に及ぼす影響は、河川が増水した期間全体で評価する必要がある。そこで、地点別に累積流量と各水質成分の累積負荷量を求め、基底流出分と直接流出分に分解した。図-25は、基底流出と直接流出の概念図である。累積負荷量の計算は、1回目の調査から最後の調査までの時間範囲で行った。各調査間の濃度の変化を直線で仮定し、全体の累積負荷量を算出した。基底流出の各時間の負荷量は1回目(増水前)の負荷量と等しいと仮定して、基底流出分の累積負荷量を算出した。そして、全体から基底流出分を差し引いて直接流出分の累積負荷量を求めた。最後に、地点間の比較のため、集水域面積で割って累積比負荷量を求めた。

図-26は、各態窒素と各態リンの累積比負荷量である。全窒素の累積比負荷量は、地点Aよりも地点C、E、Gで大きかった。山川は、地点Gと同程度

となった。全窒素の累積比負荷量のうち、基底流出と直接流出はそれぞれ39~59%、41~61%となった。高崎川では、直接流出のうち48~74%は粒子態によるものであった。山川では直接流出のうち22%が粒子態であった。地点間で比較すると、溶存態窒素の直接流出は、地点Gと山川で、粒子態窒素の直接流出は地点Eで大きかった。

全リンの累積比負荷量は、山川と比較して高崎川で大きく、地点別では地点Eで大きかった。リンの累積比負荷量を基底流出と直接流出に分けると、それぞれ約4%、約96%となり、直接流出のうち約95%

は粒子態によるものであった。

累積負荷量と土地利用との関係を検討するため、地点C、E、Gについて上流側の累積負荷量との差分を求めた。図-27は、地点A、C、E、G、山川の土地利用割合と、各水質成分の累積比負荷量である。土地利用割合は、上流側の小流域ほど畑の割合が高くなっている。

基底流出と直接流出を含めた全体の累積比負荷量でみると、溶存態窒素は、地点Aは他の地点と比較して小さかった。直接流出のみに着目すると、地点Gと山川で大きかった。

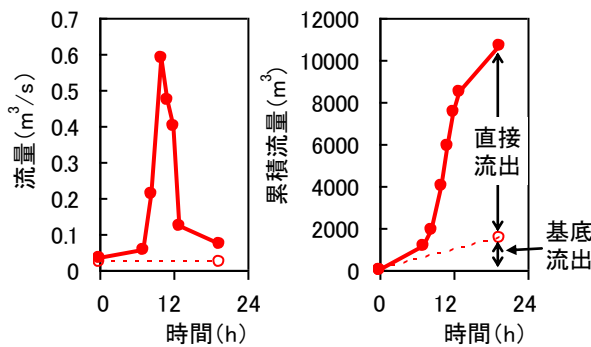


図-25 基底流出と直接流出の分解方法

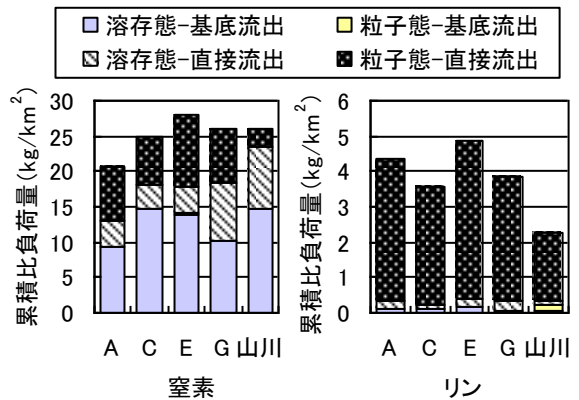


図-26 窒素とリンの累積比負荷量とその内訳

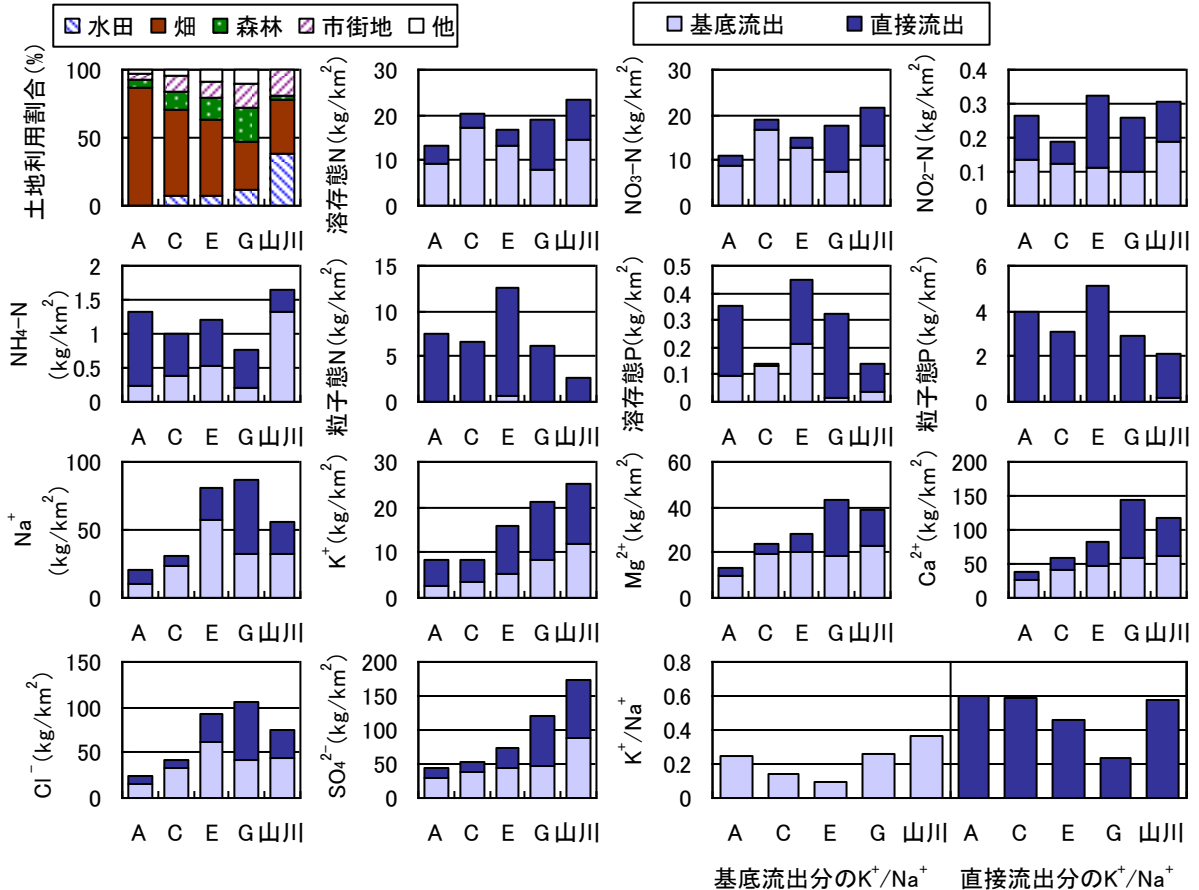


図-27 小流域（区間）別の土地利用と、各水質成分の基底流出と直接流出の累積比負荷量

NO₃-Nは、溶存態窒素と同様であった。NO₂-Nは、基底流出は山川で大きく、直接流出は地点Eで大きかった。NH₄-Nは、全体では地点Aと山川で大きかった。高崎川では、NH₄-Nの累積比負荷量に対する直接流出の占める割合は、地点Aでは83%、地点C、E、Gでは55~70%であった。山川の直接流出は低い傾向を示した。

粒子態窒素は、山川よりも高崎川で大きく、特に地点Eで大きかった。粒子態窒素はほぼ全量が直接流出であった。

溶存態リンは、高崎川の地点A、E、Gで大きかった。地点Cでは基底流出の割合が高く、地点Gと山川では直接流出の割合が高かった。

粒子態リンは、地点Eで最も大きく、次いで地点Aで大きかった。粒子態リンは粒子態窒素と同様、ほぼ全量が直接流出であった。

高崎川では、Na⁺、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺、Cl⁻、SO₄²⁻はいずれも、累積比負荷量が下流の地点ほど大きかったが、基底流出と直接流出に分けると、イオン種によって違いがみられた。Na⁺は、基底流出は地点Eで、直接流出は地点Gで高かった。K⁺は地点間で構

成が似ており、直接流出の割合は地点Aで70%、他の地点で約60%となった。

Mg²⁺の基底流出は、他の地点と比較して地点Aで小さかった。直接流出は、地点Gで大きかった。Ca²⁺はMg²⁺と同様の傾向であった。

Cl⁻は、Na⁺と同様の傾向を示し、SO₄²⁻はCa²⁺と同様の傾向を示した。

Na⁺とK⁺の累積比負荷量から、基底流出分と直接流出分のNa⁺/K⁺を算出したところ、地点A、C、Eと山川では、基底流出分と比較して直接流出分が高い値となった。集水域の家畜密度が高いと推察される高崎川上流と山川では、降雨時に畜産由来の負荷が流入している可能性がある。

図-28は、溶存態と粒子態の金属の、各地点の基底流出と直接流出の累積比負荷量である。溶存態金属の累積比負荷量は、Fe、Al、Zn、Cuはいずれも直接流出の割合が高く、地点間で比較すると地点E、Gで高かった。山川ではFeは高く、Al、Znは低かった。溶存態Mnは、地点C、G、山川で大きかった。溶存態Bは、K⁺と同様の傾向を示した。溶存態Niは、地点Gで大きく、地点Gでは直接流出の割

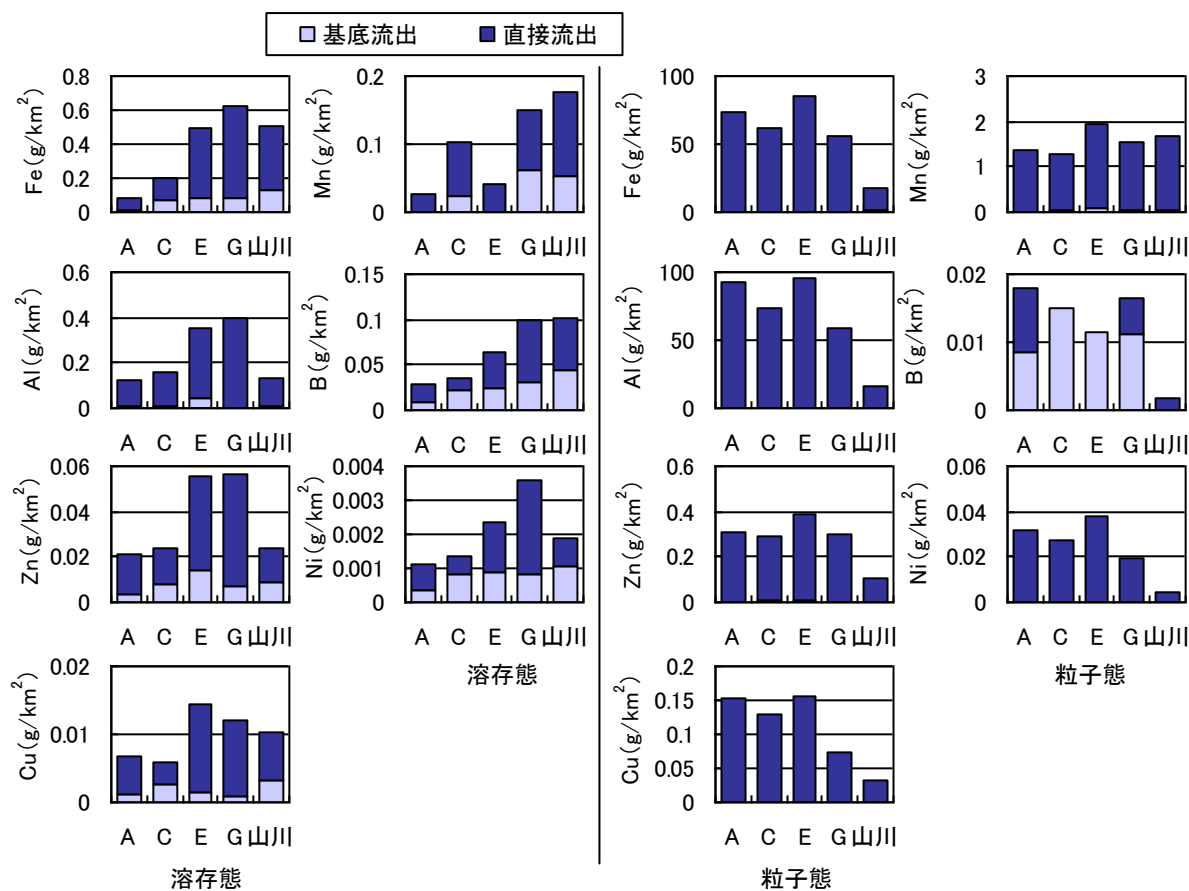


図-28 小流域（区間）別の、金属成分の基底流出と直接流出の累積比負荷量

合が高かった。

粒子態金属では、Fe、Al、Zn、Cu、Ni は同様の傾向を示し、山川よりも高崎川で大きかった。また、大部分は直接流出であった。Mn は、大部分は直接流出であり、山川でも高崎川と同程度の値を示した。粒子態Bは、高崎川では基底流出の割合が高かった。

各水質の累積比負荷量は、土地利用（水田、畑、森林、市街地、その他）だけから傾向をつかむのは難しいが、直接流出に着目すると、畑の割合が低下すると、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 、 Cl^{-} 、 SO_4^{2-} および溶存態のFe、Al、Zn、B、Niの累積比負荷量が高くなる傾向がみられた。これらは、畑以外からの流出と考えられる。より精緻な土地利用、地質、畜産、人口、下水道普及率などの集水域情報および水文情報を重ね合わせるにより、雨天時の発生源別の寄与を推定できる可能性がある。

2.3 まとめ

霞ヶ浦流域と印旛沼流域を対象に、GISを用いて河川ごとの土地利用状況を整理した。そして、各河川の土地利用割合、人口密度、家畜飼育密度と窒素、リン、有機物濃度の関係を解析した。得られた主な知見を以下に示す。

霞ヶ浦流域の調査では、

(1) 河川水の NO_3-N 濃度は集水域の畑の割合および豚の飼育密度と高い正の相関を示し、DOC濃度は水田の割合と正の相関を示した。

(2) 主成分分析から土地利用と水質の関係の全体像を解析した結果、集水域の畑の割合や家畜飼育密度が高い河川で NO_3-N 濃度が高くなる傾向が示された。

(3) 河川水の NO_3-N 濃度と集水域の土地利用の関係は、季節による違いは観られなかった。

印旛沼小流域の調査では、

(4) T-N、 NO_3-N 濃度は畑の割合や豚の密度と正の相関を示した。

(5) T-P、 PO_4-P 、 NH_4-N 濃度は市街地の割合や人口密度と正の相関を示した。

(6) 微量元素については、Alが畑の割合や豚の飼育密度と正の相関を示した。

また、印旛沼流入河川である高崎川を対象とし、晴天時と雨天時の負荷量調査を行うとともに、集水域内に畜産農家の多い鬼怒川支流の山川で雨天時調査を行い、濃度、負荷量、比負荷量の地点間比較や土地利用との関係から流出特性を調査した。得られた知見を以下に示す。

高崎川の晴天時調査からは、

(7) 集水域の畑の割合が高い上流の調査地点で、 NO_3-N 濃度が高かった。

(8) 集水域に畜産農家が点在する最上流の調査地点では、 NH_4-N 、溶存態リン、 K^{+} 濃度が高く、 Na^{+} 濃度が低かった。

(9) 金属成分については、FeとAlは粒子態の割合が、Mn、B、Niは溶存態の割合が高かった。

(10) 小流域ごとの比負荷量を求めると、 NH_4-N の比負荷量は、最上流の地点の集水域で大きかった。溶存態リンは、最上流だけでなく中流にも負荷の大きい集水域があった。

雨天時調査からは、

(11) 高崎川と山川のどちらも、溶存態窒素と NO_3-N の濃度は、増水のピーク時に低下した。 NH_4-N 濃度は高崎川の上流側で上昇した。

(12) 高崎川の調査では、L-Q式の定数bからは、粒子態N、Pは洗い出し型、溶存態N、Pは希釈型に分類された。また、粒子態成分は概ね洗い出し型、溶存態成分は概ね希釈型に分類されたが、溶存態Alは洗い出し型に分類された。

(13) 雨天時の高崎川の各地点の窒素の累積比負荷量を基底流出と直接流出に分けると、それぞれ39～59%、41～61%となり、直接流出のうち48～74%は粒子態によるものであった。

(14) リンの累積比負荷量を基底流出と直接流出に分けると、それぞれ約4%、約96%となり、直接流出のうち約95%は粒子態によるものであった。

(15) 小流域別の累積比負荷量を算出した結果、高崎川の上流と山川の集水域では NH_4-N の比負荷量が高いことがわかった。

(16) 雨天時の直接流出分の累積比負荷量から K^{+}/Na^{+} を求めると、高崎川の上流と山川で高い値を示した。

3. 安定同位体による栄養塩類の流出機構推定

近年、安定同位体比に着目した流域環境評価が盛んに行われている。安定同位体比には起源や反応履歴を示す情報が「刻印」されているためである（永田¹⁴⁾、2010）。例えば、¹⁴Nと¹⁵Nでは化学的な反応に差異はないが、質量が異なるため、同じ温度条件下でも原子の振動数に違いが現れ、¹⁴Nの方がより速く振動する。したがって、¹⁴Nの結合は¹⁵Nの結合に比べ切れやすく、窒素固定され易い。また、硝化・脱窒過程では大気中へ放出され易い（和田¹⁵⁾1986；酒井ら¹⁶⁾1996；高津ら¹⁷⁾2005）。一般的に、安定同位体の存在比はある特定の基準物質の安定同位体比に対する千分率偏差（ δ 記法）で（1）のように表される。

$$\delta^{15}\text{N}(\text{‰}) = \left(\frac{{}^{15}\text{N}/{}^{14}\text{N} \text{ 試料}}{{}^{15}\text{N}/{}^{14}\text{N} \text{ 大気}} - 1 \right) \times 1000 \quad (1)$$

基準物質と同じ安定同位体比であれば、 δ 値は0になり、重い同位体がより多く含まれていれば正になり、軽い同位体が多ければ負となる。

図-29にKendallら¹⁸⁾がまとめた硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}-\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラムを示す。これから以下の特徴がわかる。(i) 下水や畜産排水の処理場に由来する硝酸イオンは、窒素の安定同位体比が高い（ $\delta^{15}\text{N} = +10 \sim +20\text{‰}$ ）。処理場では、アンモニアの揮発や脱窒に伴って、¹⁴Nが選択的に大気中に放出される。一方、処理槽内では¹⁵Nが「濃縮」される。(ii) 大気由来の硝酸イオンは、酸素の安定同位体比が高い（ $\delta^{18}\text{O} = +60 \sim +90\text{‰}$ ）。大気中において、 O_3 は非常に高い $\delta^{18}\text{O}$ 値（ $90 \sim 122\text{‰}$ ）を示すため、降雨に含まれる硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}$ まで影響する。(iii) 水域生態系における主要な硝酸イオンの代謝過程に伴い、同位体分別が起こる。このうち、脱窒においては、窒素と酸素の両方について、しばしば大きな同位体分別が伴うため、ある水系の中で、脱窒が活発に進行していれば、 $\delta^{15}\text{N}-\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム上で直線的に並んだプロットとして識別される場合がある（図29上の矢印）。

大手ら（2008）¹⁹⁾は、琵琶湖流入主要河川である野洲川と安曇川の最上流部から河口（琵琶湖への流入地点）までの硝酸イオンの濃度と安定同位体比の流下変化を調査した。その結果、野洲川では、硝酸イオンの濃度は、上流から下流にむけて上昇傾向を示し、これとともに、 $\delta^{15}\text{N}$ も著しく上昇していたことを報告し、野洲川の中・下流域における窒素の負

荷が主に排水系（農業排水を含む）であることを推察した。また、安曇川の流程では、濃度の上昇も野洲川ほどの傾向は見られなかったことから、中・下流に集中した農耕地や住宅地がないため、 $\delta^{15}\text{N}$ の高い硝酸イオンが流入しないためであると推察した。また、赤松(2010)²⁰⁾は河床堆積物中の $\delta^{15}\text{N}$ について、流域内に森林しか存在しない河川ではすべての点でほぼゼロに近い値を示している一方で、都市域を流れる河川では全域で富栄養化の基準となる6%を超えていたことを報告した。

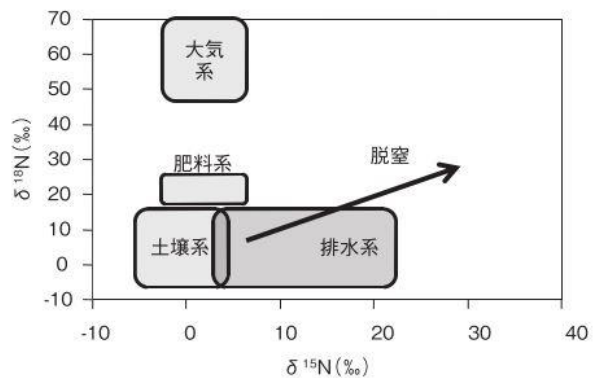
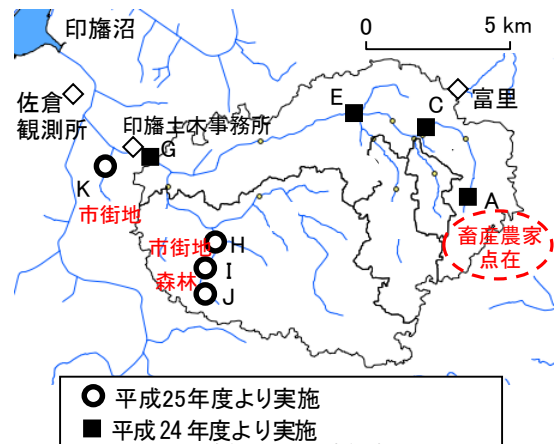


図-29 硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}-\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム



高崎川の集水域と調査地点



山川の集水域と調査地点

図-30 調査地点

ここでは出水時の河川水の水 (H₂O) の酸素・水素、硝酸イオンの窒素・酸素安定同位体比に着目することにより、出水時における栄養塩類の流出機構の解明を試みた。さらに同位体混合モデル²¹⁾を用いて流出した窒素の負荷源の推定を試みた。

3.1 調査方法

3.1.1 調査河川と水質調査地点

印旛沼流入河川の鹿島川の支流である高崎川と、鬼怒川の支流である山川を対象に、集水域の土地利用情報を整理し、栄養塩類の負荷量調査を実施した。図-30 は、高崎川と山川の集水域と採水調査地点である。集水域の面積は、高崎川で79km²、山川で32km²である。

高崎川の雨天時調査は、平成24年11月17日と平成25年1月18～20日に実施した。平成24年11月17日の雨天時の先行晴天日数は4日、累積降雨量は38.5mmである。降雨開始前を含め数時間おきに8回、本流のC、Gの2地点で流量観測と水質調査を行った。平成25年12月18～20日の雨天時の先行晴天日数は7日、累積降雨量は45mmであり、Iの1地点で数時間おきに流量観測と水質調査を10回行った。なお、C地点では畑の割合、I地点では、森林の割合が多い。

山川の雨天時調査は、平成24年11月6日に実施した。先行晴天日数は5日、累積降雨量は40mmである。下流側の1地点で数時間おきに流量観測と水質調査を11回行った。

3.1.2 雨天時調査のデータの解析方法

雨天時調査の結果を解析するにあたり、高崎川は佐倉観測所、山川は下妻観測所の1時間ごとの雨量データを使用した。河川流量、雨天時河川水の各水

質成分濃度、雨水と河川水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ および硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ (以下、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$) は実測とした。水の安定同位体比を用いた増水時の河川水の基底流出と直接流出への分離と硝酸イオンの窒素、酸素の安定同位体比を用いた硝酸性窒素の流出挙動を解析した。なお、採取したサンプルは赤外線半導体レーザーを用いたキャビティリングダウン吸収分光法により、水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ を、脱窒菌法により硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ を測定した。

3.1.3 同位体混合モデルを用いた窒素負荷源推定

安定同位体比分析に供した試料のサンプリングは、平成26年10月13日12時から10月14日6時までの18時間に7回、地点CおよびKで行った。硝酸イオン濃度はイオンクロマトグラフィーにより測定

し、硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の測定は、亜硝酸除去後、Sigman et al.²²⁾の脱窒菌法に従って分析した。脱窒菌によって還元されたN₂Oはコンフロー式安定同位体比質量分析計 (Thermo Fisher Scientific社製、DELTA plus Advantage) により分析した。また、水の安定同位体比は近赤外線半導体レーザーを用い、キャビティリングダウン吸収分光法 (CRDS) 法に

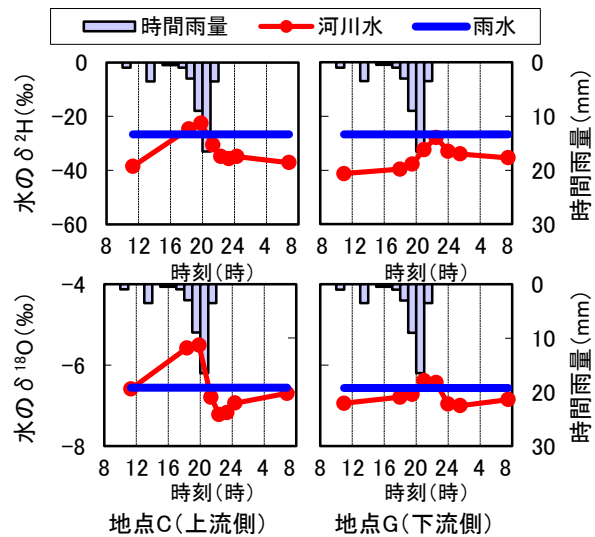


図-31 雨天時の河川水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の変化

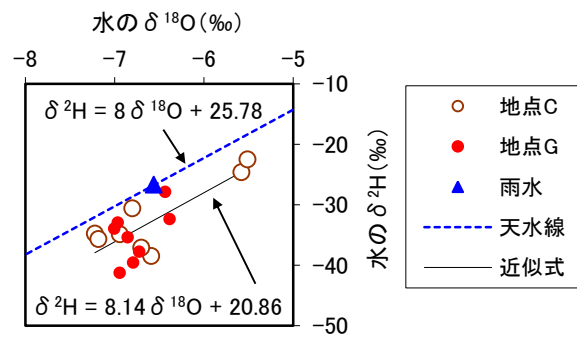


図-32 $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の関係

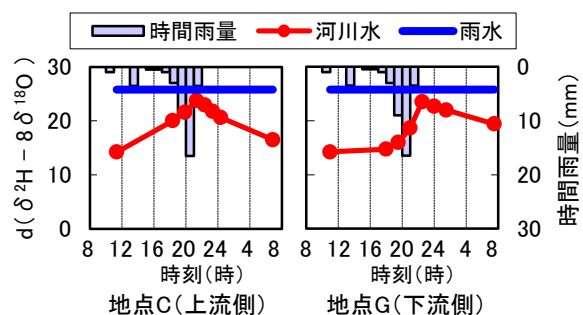


図-33 雨天時の河川水のdの変化

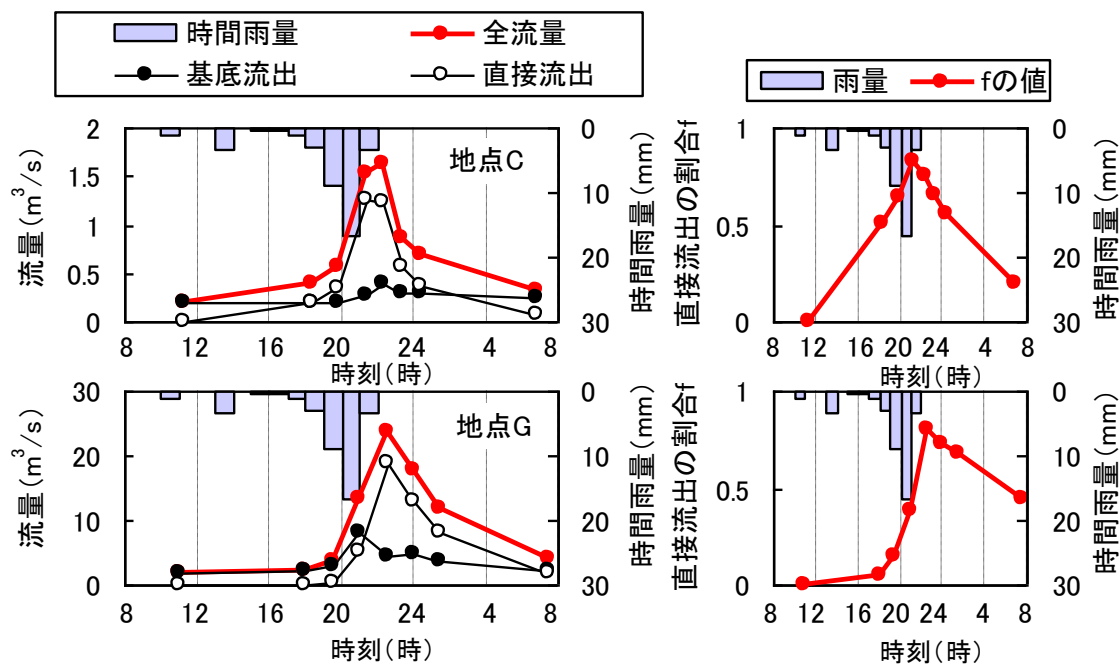


図-34 全体、直接流出、基底流出の流量と f の変化

より行った。なお、 $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{18}\text{O}$ の測定精度は、それぞれ $\pm 0.1\%$ および $\pm 0.3\%$ であった。負荷源別負荷割合の推定は、高津ら²¹⁾ の同位体混合モデルを用いた。

印旛沼流入河川の鹿島川の支流である高崎川を対象に、集水域の土地利用情報を整理し、栄養塩類の負荷量調査を実施した。

3.2 結果と考察

3.2.1 水の同位体比を用いた増水ピークの成分分離

図-31 は、平成 24 年 11 月 17 日の高崎川地点 C、G の河川水と雨水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の変化である。降雨前の河川水の $\delta^2\text{H}$ は雨水より低く、降雨に伴って増加した。地点 C では流量ピーク時には雨水より高くなった。河川水の $\delta^{18}\text{O}$ は、降雨前は雨水と近い値であり、一旦増加したあと減少し、翌日には初期の値に戻った。図 4 は $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の関係である。河川水の $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ は正の相関関係を示し、16 データで回帰直線を求めると、傾きは約 8 となった。雨水は河川水の近くにプロットされ、 $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ からは、河川水に占める雨水の割合の算出は難しいことがわかる。図-32 の点線は雨水を通る傾き 8 の直線である。大気中の水蒸気の蒸発と凝縮が平衡状態にあるとき、 $\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ の比は 8 となることが知られており（天水線²³⁾）、雨水データは 1 試料しかないが、変動する場合はこの点線に沿って変動するものと推測される。雨水のもととなった水蒸気の生成場所や生成環境を反映する指標（d:deuterium excess

parameter）として、以下の式が提案されている²³⁾。

$$d = \delta^2\text{H} - 8 \delta^{18}\text{O}$$

雨水の d は、日本では夏に低く (<10‰)、冬に高い (>20‰)²³⁾。図-33 は、高崎川河川水と雨水の d (deuterium excess parameter) である。本調査時の雨水試料の d は、26 と高く、冬の降水の特徴を示していた。河川水の d は、降雨とともに上昇し、ピーク時でも雨水の値を下回っていることがわかる。

$\delta^2\text{H}$ と $\delta^{18}\text{O}$ を用いた洪水ハイドログラフの成分分離は、一部が雨水の値を上回ったことや、河川水の値と近いことから、正しく計算できなかった。そこで、成分分離計算には d を用いた。降雨前の d を基底流出水、雨水の d を直接流出水の値として、この 2 成分の混合と仮定し、以下の式を適用した。

$$d_t = f \times d_{\text{new}} + (1-f) \times d_{\text{old}}$$

$$f = Q_{\text{new}} / Q_t$$

Q : 河川の流量

f : 混合率

d : deuterium excess parameter

添え字 t, new, old : 各時間の値、直接流出の値（雨水の値）、基底流出の値（降雨前の値）

図-34 は、全流量の測定値と、成分分離された基底流出、直接流出の流量および f の変化である。基底流出流量は、降雨時に若干増加する程度であり、直接流出流量と比較すると増加が小さかった。全流量がピークを示す 22:30 頃には、直接流出の割合が約 80% ($f \approx 0.8$) となった。下流側の地点 G では、

上流側の地点 C と比較して、洪水ピーク後の f の減少が遅かった。なお、平成 25 年 12 月 18～20 日の高崎川の調査では、増水前からの採水ができなかったため、基底と直接流出の成分分離は出来なかった。

3.2.2 硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ 、 $\delta^{18}\text{O}$ による流出解析

図-35 は、平成 24 年 11 月 17 日の硝酸性窒素濃度と、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の変化である。河川水では、硝酸性窒素濃度の低下に従い、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が低下し、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が上昇した。図-36 は、今回の雨水と河川水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ ダイアグラムと起源情報²⁴⁾ である。雨水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は 0‰、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は 72‰ であり、降水の範囲に含まれた。河川水は、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が 6～8‰、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が 1～5‰ の範囲にプロットされた。この位置は、土壌由来と糞尿や畜産廃棄物由来が重複している箇所であった。この領域を拡大すると、河川水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は、負の相関関係を示した。脱窒反応が進行するときは、同位体分別によって $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ がともに上昇し、正の相関となるから、今回の増水時の河川水中硝酸性窒素の同位体比の変化は、脱窒の進行していない硝酸性窒素の混合があったと考えられる。図-36 に矢印で示したように、降雨時の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の変化は単純な往復にはならず、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が上昇、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が低下した後は、先に $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が降雨前の値付近に戻り、その後 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が降雨前の値付近に戻った。これは、大気由来と化学肥料等の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低い硝酸性窒素の流出割合が増加したためと考えられた。

図-37 は、地点 C、G の比流量と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の関係である。 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は、河川の流量に対して直線的に増加していた。そこで、雨天時の $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は、雨水の高い $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の影響を受けて変化したと仮定し、硝酸性窒素濃度と流量から全体の負荷量を求め、以下の式で雨水由来の硝酸性窒素負荷量を推定した。

$$\delta^{18}\text{O}_t = \delta^{18}\text{O}_{\text{new}} \times f + \delta^{18}\text{O}_{\text{old}} \times (1-f)$$

この式から、

$$f = (\delta^{18}\text{O}_t - \delta^{18}\text{O}_{\text{old}}) / (\delta^{18}\text{O}_{\text{new}} - \delta^{18}\text{O}_{\text{old}})$$

$$\text{雨水由来負荷量} = f \times \text{全体の負荷量}$$

添え字 t、new、old：河川水、雨水、降雨前

図-38 は、硝酸性窒素の全負荷量と、雨水由来負荷量およびその割合である。雨水由来の硝酸性窒素の負荷量の全負荷量に対する割合は、0～4% と低く、上流よりも下流で高くなる傾向がみられた。

図-39 は、雨水由来の硝酸性窒素負荷量を 2 通りの方法、すなわち前述の $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ を用いる方法と、水の d を用いて表面流出水流量を求め、雨水の硝酸性

窒素濃度を掛ける方法で求め、比較したものである。雨水由来の硝酸性窒素負荷量は、地点 C ではピーク時の負荷量に差が生じたが、ピークの時間や変化の傾向は互いに類似していた。したがって、増水時の硝酸イオンの $\delta^{18}\text{O}$ の上昇は、雨水の高い $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の影響によるものと考えられる。硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ と $\delta^{18}\text{O}$ が、地下水と雨水の混合のみで決定されるとすると、両者は連動して変化するはずである。そこで、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ から求めた混合率 f と、降雨前河川水と雨水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ を用いて $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の推定値を算出した。図-40 は、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の変化の推定値と実測値の比較である。雨水由来の硝酸性窒素の混合率が低いと、推定値の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ はほとんど低下せず、実測値と乖離した。

雨天時の河川水中硝酸イオンの起源の正確な推定のためには、地下水と雨水だけでなく、他の要因を考慮する必要があることがわかる。硝酸イオンの $\delta^{15}\text{N}$ については、雨水の他に、森林渓流水²⁵⁾ や化学肥料などが低い $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ を示すことが報告されており、集水域の土地利用は、地点 C では畑の割合が 70% と高いことから、増水時には化学肥料等の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低い硝酸性窒素の流出割合が増加したと考えられる。今後、森林由来や化学肥料などの $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の測定が必要である。

表-5 は、河川水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と他の水質項目との相関係数の一覧である。図-41 は、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と、 K^+/Na^+ および溶存態 Al 濃度の関係である。 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は、増水時に増大する項目である流量や SS とは負の相関を示した。増水時に希釈される項目である硝酸性窒素、EC、無機イオン類各種とは強い正の相関を示した。 K^+/Na^+ とは負の相関であった。溶存態金属類では、B と正の、Al と負の強い相関を示した。

以上は、増水時の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低下に従って、 K^+/Na^+ と溶存態 Al 濃度が高い相関をもって増加することを意味し、増水時に流出する硝酸性窒素は、 K^+/Na^+ 、溶存態 Al と同じ起源である可能性がある。

図-42 は、平成 25 年 12 月 18～20 日の雨天時の高崎川 I 地点での硝酸性窒素濃度、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の変化である。本調査でも流量増加時に、硝酸性窒素濃度の低下に伴う、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低下と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の上昇が確認された。

図-43 は、山川の結果である。増水時の山川でも硝酸性窒素濃度の低下に伴って $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が低下していた。ここでは $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ の顕著な増加は観られなかった。

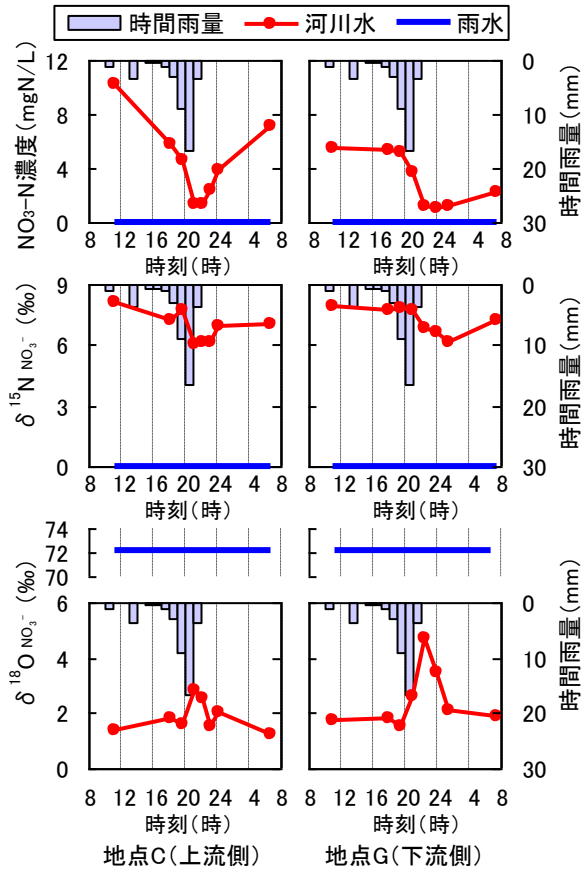


図-35 雨天時の河川水のNO₃-N、 $\delta^{15}\text{N NO}_3^-$ 、 $\delta^{18}\text{O NO}_3^-$ の変化

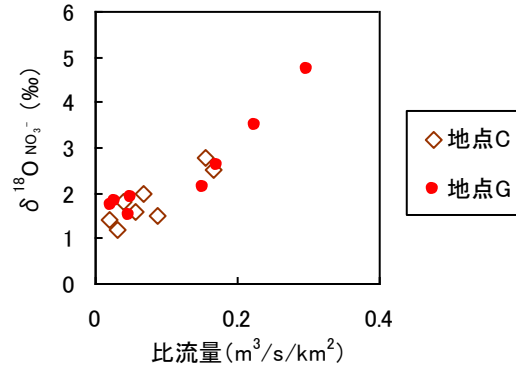


図-37 比流量と $\delta^{18}\text{O NO}_3^-$ の関係

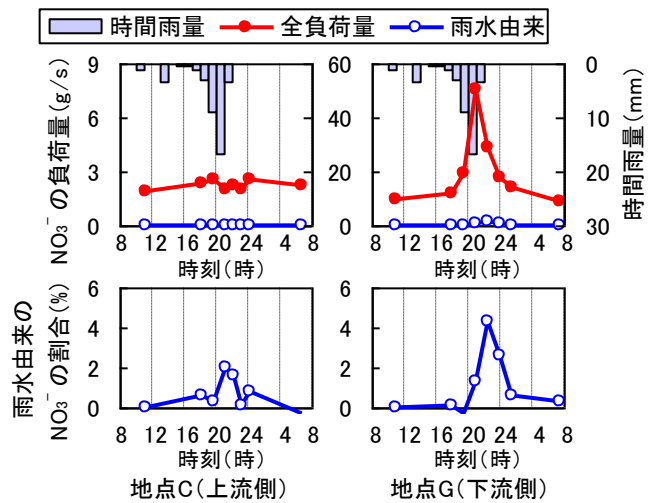


図-38 NO₃-Nの全負荷量と雨水由来負荷量およびその割合

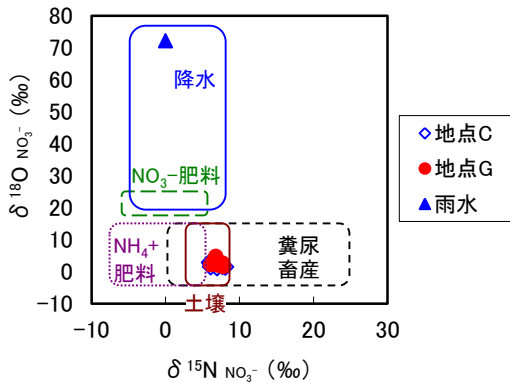


図-36 $\delta^{15}\text{N}-\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム上の河川水と降水の位置

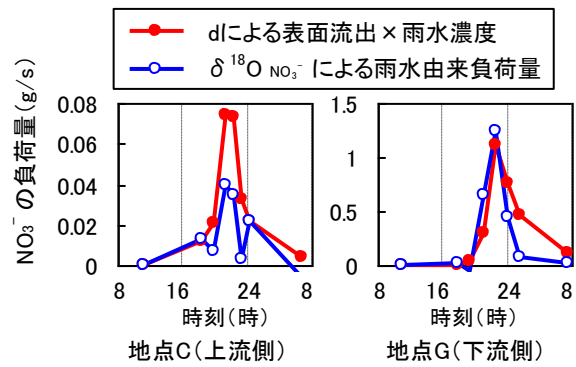


図-39 雨水由来のNO₃-Nの、水のdに基づく直接流出流量から求めた負荷量と、 $\delta^{18}\text{O NO}_3^-$ から求めた負荷量の比較

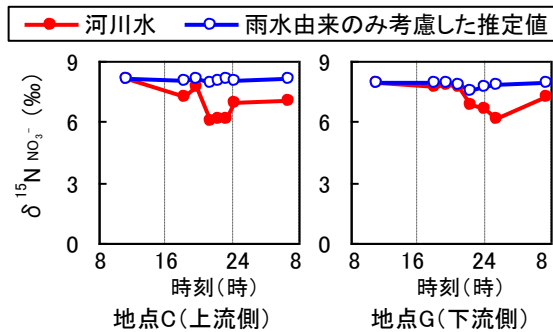
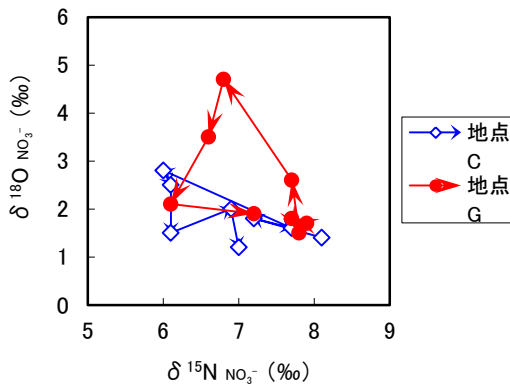


図-40 $\delta^{15}\text{N NO}_3^-$ の実測値と、雨水由来のNO₃-Nのみが混合したと仮定した場合の $\delta^{15}\text{N NO}_3^-$ の推定値の比較

表-5 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ と各水質項目との相関係数 R

	全流量	SS	粒子態N	粒子態P	$\text{NO}_3\text{-N}$	$\text{NH}_4\text{-N}$	$\text{NO}_2\text{-N}$	$\text{PO}_4\text{-P}$
地点C	-0.83	-0.71	-0.61	-0.67	0.86	0.10	0.82	0.49
地点G	-0.63	-0.53	-0.66	-0.67	0.91	0.75	0.85	0.79
	EC	Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	Cl^-	SO_4^{2-}	K^+/Na^+
地点C	0.86	0.93	0.89	0.86	0.89	0.92	0.88	-0.91
地点G	0.93	0.93	0.88	0.92	0.93	0.94	0.91	-0.94
	D-Fe	D-Mn	D-Cu	D-Mo	D-B	D-Zn	D-Al	D-Ni
地点C	-0.31	-0.05	0.22	-0.36	0.89	0.17	-0.88	0.90
地点G	-0.41	0.23	-0.72	0.72	0.90	-0.15	-0.97	0.80

※ 網掛けは、危険率1%で有意

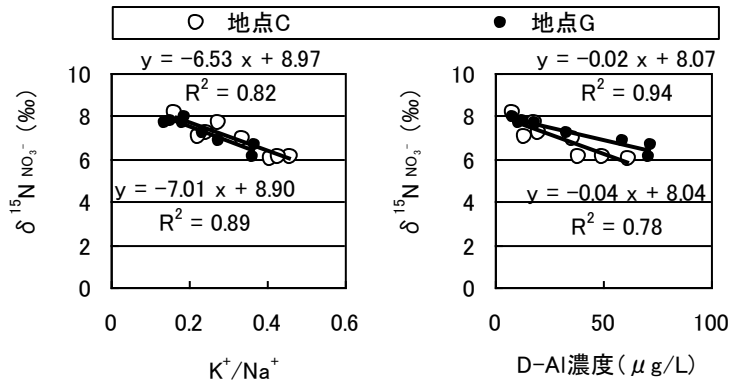


図-41 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ と K^+/Na^+ および D-Al 濃度との関係

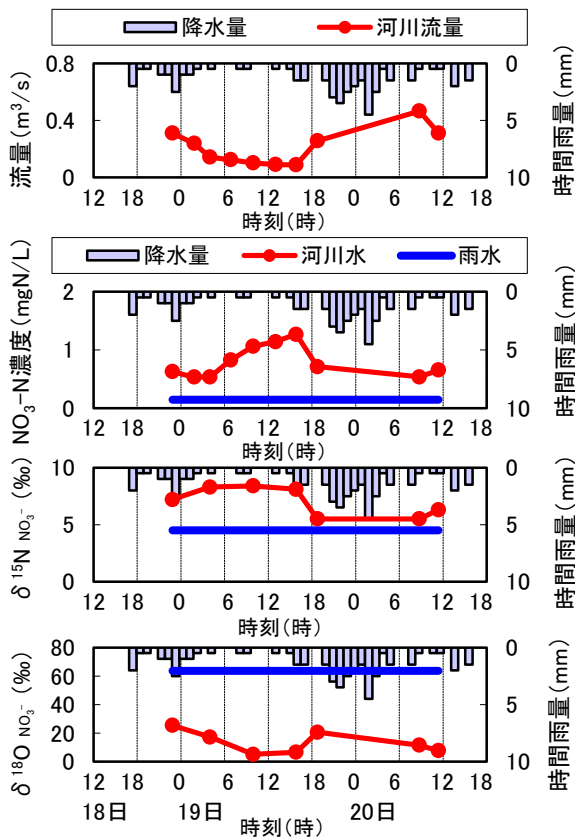


図-42 高崎川地点 I の流量、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$ の変化

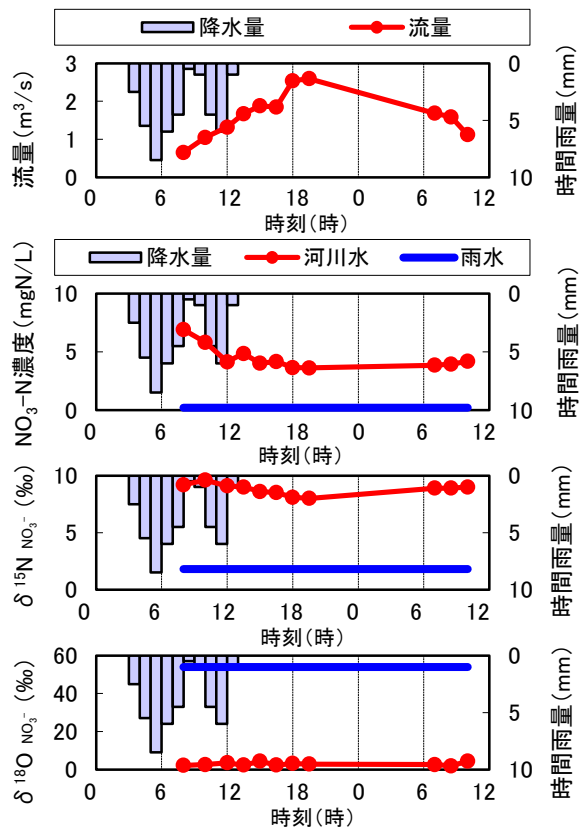


図-43 山川の流量、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$ の変化

増水時は硝酸性窒素濃度の低下に伴う $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低下は、土地利用によらず確認されたが、大気由来の硝酸性窒素の流出特性は、土地利用により異なる可能性があった。

3.2.3 安定同位体モデルによる負荷排出源の推定

図-44 はサンプリング時の時間雨量と河川流量および安定同位体比分析の結果から推定した直接流出量である。直接流出量の推定には、降雨前の d (deuterium excess parameter) を基底流出水、雨水の d を直接流出水の値として、この2成分の混合と仮定し、以下の式を適用した。

$$d_t = f \times d_{\text{new}} + (1-f) \times d_{\text{old}}$$

$$f = Q_{\text{new}} / Q_t$$

Q : 河川の流量

f : 混合率

d : deuterium excess parameter

添え字 t , new , old : 各時間の値、直接流出の値 (雨水の値)、基底流出の値 (降雨前の値)

地点 C および地点 K において、ピーク時の全流量は $0.6\text{--}0.7 \text{ m}^3/\text{s}$ とほぼ同等であるが、全流量に占める直接流出量の割合は、地点 C がおよそ $50\text{--}60\%$ に対して、地点 K は $60\text{--}80\%$ である。したがって、地点 K では地点 C に比べ地下水から流出の影響が少ないことが伺われる。

図-45 に地点 C および地点 K の各サンプリングの $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ ダイアグラムを示す。地点 C では、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が $6.7\text{--}7.5\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が $-1.0\text{--}2.2\text{‰}$ であるのに対し、地点 K では、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が $2.4\text{--}5.8\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が $0.6\text{--}12.0\text{‰}$ であった。 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が地点 C では比較的高いことから、土壌由来の硝酸や畜産廃棄物の影響を受けている可能性が考えられる²⁴⁾。また、地点 K では $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ ともに変動が大きいことから、時間経過とともに排出起源が大きく異なっている可能性が考えられた。そこで、高津らの同位体混合モデルを用い、負荷源別負荷割合をシミュレートしたところ (図-46~47)、地点 C では、降雨前のサンプリングでは、ほぼ畑地由来であるのに対し、時間の経過とともに森林由来、水田由来からの $\text{NO}_3\text{-N}$ が増加した。一方、地点 K では、降雨前のサンプリングでは、水田：森林：畑地が $1 : 5 : 4$ 程度であったのに対し、降雨初期には、森林由来の $\text{NO}_3\text{-N}$ の割合が増加し、その後、水田由来の割合が増加した。河川流量が平常時に近づくにつれ、畑地由来の割合が増加していることが推察された。これらのことから、地点 K における雨天時の窒素負荷源は時間経過と

ともに大きく変動していたことが示唆された。

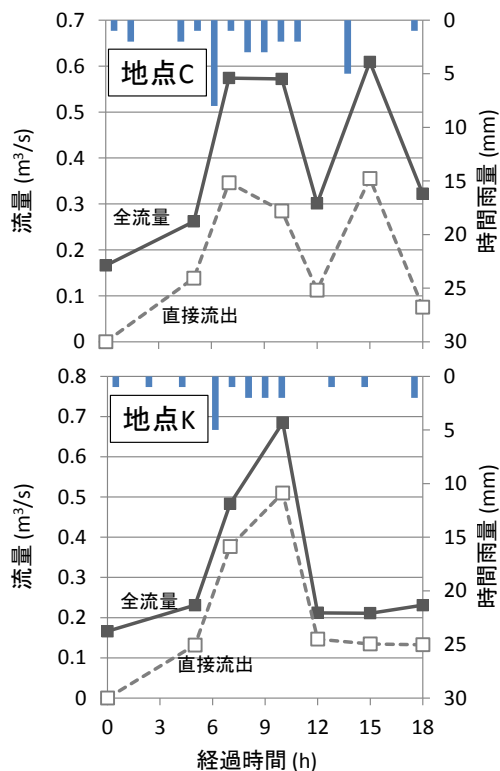


図-44 時間雨量および河川流量

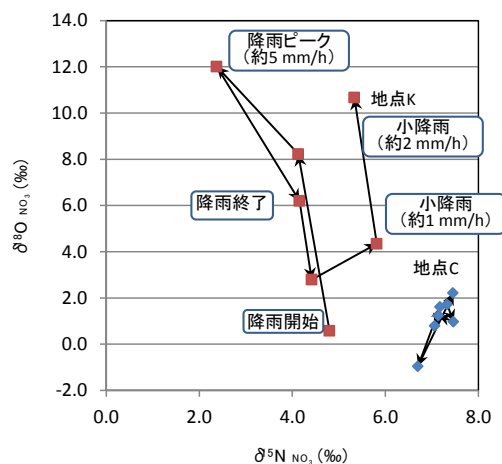


図-45 $\delta^{15}\text{N}$ - $\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム

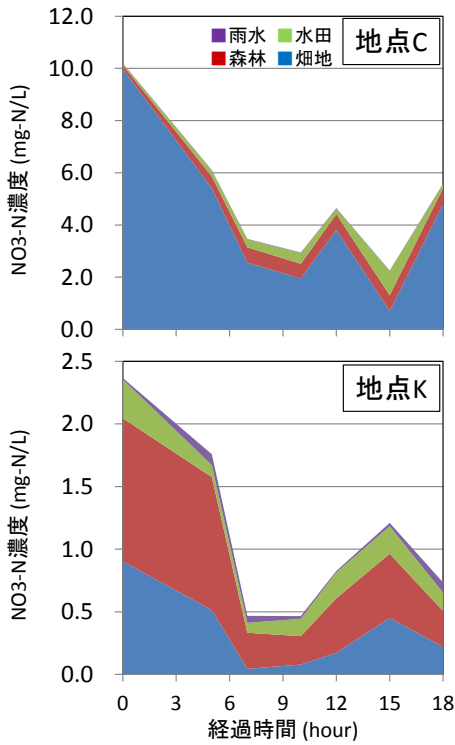


図-46 河川中のNO₃-N濃度の変化

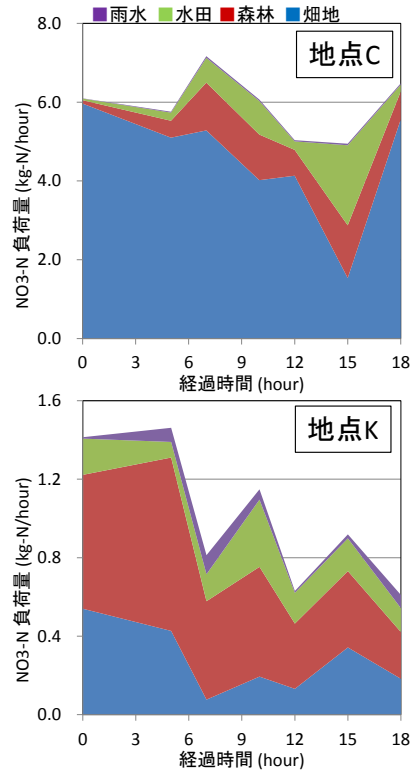


図-47 河川中のNO₃-N負荷量の変化

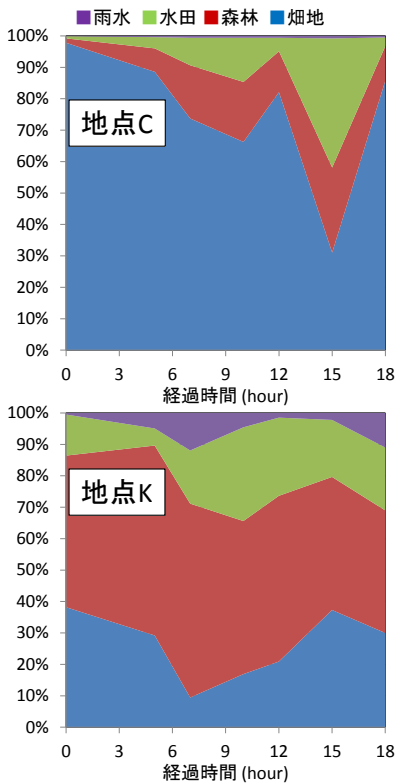


図-48 河川中のNO₃-N推定負荷源割合の変化

3.3 まとめ

印旛沼流入河川である高崎川で晴天時と雨天時の、鬼怒川支流の山川で雨天時の安定同位体比に着目した負荷量調査を行った。得られた知見を以下に示す。

- (1) 高崎川の雨天時において、水の同位体比を用いて成分分離を行ったところ、増水ピーク時の河川水の80%が直接流出であることがわかった。
- (2) 高崎川の雨天時の $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ を用いた解析から、増水時の硝酸態窒素負荷量の0~4%が雨水由来である可能性があった。
- (3) 畑の割合が多い高崎川の小流域では増水時に $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は低下することが明らかとなった。増水時には化学肥料等の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ の低い硝酸態窒素の流出割合が増加したと考えられた。
- (4) 安定同位体比モデルにより、雨天時の窒素負荷源の寄与率を推定した結果、流域の土地利用が主に市街地の地点では、窒素負荷源が時間経過とともに大きく変動し、流域の土地利用が主に畑地の地点では、窒素負荷源は時間経過に関わらずほぼ畑地由来であることが示唆された。

4. 雨天時の平均流出濃度の検討

わが国の湖沼などの閉鎖性水域では、種々の流入負荷削減対策が行われているにも関わらず富栄養化による水質障害が依然として解消していない湖沼が多くみられ、環境基準の達成率も河川や海域と比較して低い状態が長年にわたり継続している²⁶⁾。流域においては下水道整備や事業場排水の規制などの対策も進められ、閉鎖性水域への全体的な流入負荷量は漸減している水域も多いとみられるが、一方で総負荷に占める点源汚濁負荷の割合が減少し、山林、農地、市街地等からの非点源 (=面源) 汚濁負荷の割合が増加する状況となっている²⁷⁾。面源負荷の算定に用いられる負荷量原単位は一般に点源負荷のそれと比べて精度が低く、かつ雨天時負荷の評価が不十分なことなどから、実態より過小評価となっていると考えられる²⁸⁾。また現在、流域別下水道整備総合計画 (流総計画) や湖沼水質保全計画等の策定にも用いられる汚濁負荷量原単位の各種資料における数値には極めて大きなばらつきがあることが明らかになっており²⁹⁾、さらに本研究の過年度調査結果などからも、降雨時の流出を的確に把握することの重要性を指摘³⁰⁾してきたところである。

こうしたことから、日本水環境学会ノンポイント汚染研究委員会などの場において議論を重ねた結果として、平成27年1月に改定された流域別下水道整備総合計画調査指針と解説 (流総指針) では、市街地からの排出負荷量を単位面積当たりの年間平均汚濁負荷量原単位だけではなく、1降雨 (event) 当りで汚濁負荷量を算定する方法についても参考情報を提示することとされた³¹⁾。

今後の閉鎖性水域の水質保全対策の着実かつ効率的な進捗のためには、流域スケールでの栄養塩類等の流出などの物質動態の特性を十分に把握、予測したうえでの的確な対策を講ずることが必要であり、本研究では、栄養塩類の発生源別と雨天時流出機構の解明を行うことを目的としている。

雨天時におけるSS、有機物、栄養塩類等の流出特性を把握するため、特に夏期の台風等による豪雨を含む雨天時流出実態調査を行い、平均流出濃度に着目したデータ解析を行った。

4.1 調査方法

4.1.1 調査河川と水質調査地点

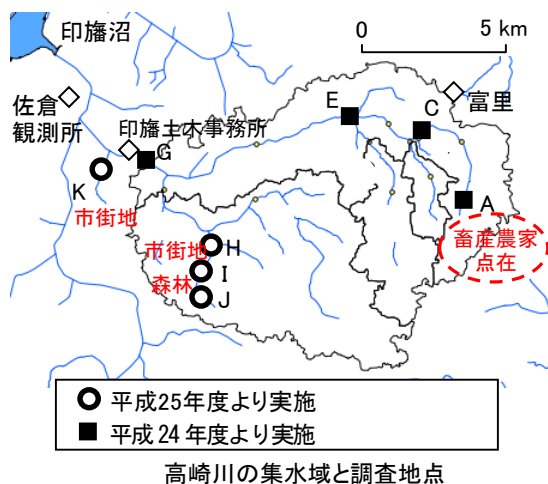
印旛沼流入河川の鹿島川の支流である高崎川を対象に、集水域の土地利用情報を整理し、栄養塩類の負荷量調査を実施した。図-49は、高崎川の集水域

と採水調査地点である。高崎川の集水域の面積は、79km²である。

表-6に雨天時を実施した日と地点、降雨概要として佐倉観測所での連続降雨 (4時間0mmが続いたら不連続) としての総雨量、時間最大雨量を示す。各調査において、おおよそ数時間おきに5回~10回、流量観測と水質調査を行った。

表-6 雨天時調査実施日、実施地点及び降雨概要

調査実施日	実施地点	佐倉観測所の累積降雨量(mm)	佐倉観測所の時間最大雨量(mm)
H24/11/6	A,C,E,G	38.5	16.5
H25/12/18~20	G~K	45	4.5
H26/1/8~9	A,C,E,G~K	23.5	5
H26/1/26	A,C,E,G~K	1	1
H26/2/7~8(降雪)	G~K	35	4.5
H26/3/13~14	G~K	12.5	5.5
H26/7/18~19	G~K	0.5	0.5
H26/9/7	G~K	10.5	2
H26/9/24~26	A,C,E,G~K	9	4
H26/10/5~6(台風)	G~K	176.5	19.5
H26/10/13~14	A,C,E,G~K	19	4.5
H27/7/15~16	A,G,J,K	6.5	3
H27/9/25	A,C,E,G~K	13	4
H27/11/14~15	G~K	28.5	4.5
H28/1/17~18	G~K	62	9.5



高崎川の集水域と調査地点

図-49 調査地点

4.1.2 雨天時調査のデータの解析方法

雨天時調査の結果を解析するにあたり、気象庁佐倉観測所の1時間ごとの雨量データを使用した。

調査データはSS、DOC、TN、TP、Fe、Mn、Cu、Zn、Alについて、流域からの単位面積当たり負荷量である比負荷量Lと、流域の単位面積当たりの流量である比流量Qとの関係であるL-Q式で整理した。A、C、E及びG地点については、平成25年1月から2月にかけて4回実施した晴天時データ(2.1.3.1参照)も併せてL-Q式で整理した。

一方、特に市街地からの非点源汚濁負荷については、晴天時に堆積して雨天時に降水によって運ばれ公共用水域に排出されると考えられる。前述の通り市街地からの排出負荷量はhaあたりの年間平均汚濁負荷量原単位ではなく、1降雨(event)当りで汚濁負荷量を算定する方が実態の流出現象を把握しやすいとの知見も得られている³¹⁾³²⁾ことから、得られた雨天時データについて、1降雨あたりの平均流出濃度(Event Mean Concentration; EMC)により整理し、当該1降雨の時間帯における総降雨量や時間最大降雨量などとの関係について考察した。なお、総降雨量や時間最大降雨量を決定する降雨の時間帯は、ここではEMCを算出する時間帯、すなわち、EMCを算出するための実濃度測定用水試料をサンプリングしている時間帯とした。

また、EMCと総雨量の関係と1降雨における総流出水量と総雨量の関係を求め、各降雨の総雨量から雨天時の年間流出負荷量を算定するとともに、降雨前のデータにより晴天時の年間流出負荷量を推定し、年間総負荷量の推定を試みた。

4.2 結果と考察

4.2.1 栄養塩等・微量金属の流出負荷特性

各調査地点の栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係を図-50~57に示す。各地点それぞれにおいて比流量と各栄養塩等の流出比負荷量の関係を、以下のL-Q式で表した。

$$L=aQ^b$$

ただし、L：比負荷量

Q：比流量

a, b：定数

定数a、bは、比流量と比負荷量をそれぞれ常用対数に変換して最小二乗法により回帰直線を求めて算出した。定数bは増水時の濃度変化を反映し、b<1は濃度が低下する希釈型、b>1は濃度が増加する洗い出し型、b=1は濃度が変化しない一定型に分類さ

れる¹³⁾。

土地利用の70%以上が市街地になる地点Kと60%以上が市街地になる地点J、土地利用の80%以上が畑地になる地点Aに着目し、地点KとJでは、11月~3月と7~10月の期間毎に、地点Aでは、7月~10月と11~2月の期間毎に区分して、それぞれにおいてL-Q式で表した。定数bに着目すると、SSは地点Jの7~10月を除き洗い出し型であった。SS以外では、地点KとJでは全て希釈型であった。地点Aでは、DOCがほぼ一定型、TNが希釈型、TPが洗い出し型であった。また、期間の違いによる大きな相違は見られなかった。地点C、E、Gは、土地利用の70~44%が畑地になり、地点Aと同様の傾向であった。地点Jの下流に位置する地点Iの土地利用は約30%が森林で約50%が市街地であり、その下流に位置する地点Hは地点Iより市街地比率が高い。これらの地点は、TPが一定型であること以外は、地点K、Jとほぼ同様であった。

各調査地点の微量金属の流出比負荷量と比流量の関係を図-58~65に示す。栄養塩等と同様にL-Q式で表した。地点K、J及びAの定数bに着目すると、地点Aは、D-Mn以外すべてが洗い出し型であった。地点Kは、D-Znとトータルすべてが洗い出し型で、D-Cuが一定型で、これら以外が希釈型であった。地点Jは、Fe、Mnが希釈型で、Alが一定型であったこと以外は、地点Kと同じであった。地点C、E、Gは、相関の低いD-Mnを除き、地点Aと同様の傾向であった。地点H、Iは、Mn、D-Cu、D-Znを除き、地点K、Jとほぼ同様であった。

4.2.2 市街地における平均流出濃度

地点Kにおける栄養塩等の1降雨あたり平均流出濃度(EMC)と当該降雨の現地調査時間帯(EMC算出時間帯)の総雨量・時間最大雨量及び先行無降雨日数(調査日前の無降雨日数)との関係を図66~68に示す。

DOC、TN、TPでは、EMCと総雨量・時間最大雨量との間には一定の相関が認められた。市街地からの非点源汚濁負荷は、晴天時に堆積して雨天時に降水によって運ばれると推定されることから、先行無降雨日数との関係も考えられたが、いずれのEMCも先行無降雨日数とは、相関関係が認められなかった。なお、これらの傾向は地点Jにおいても同様であった。また、ここで得られたTN、TPのEMCは、既往調査から算出され、流総指針³¹⁾に掲載されている「1降雨当りの平均水質」の範囲内であった。

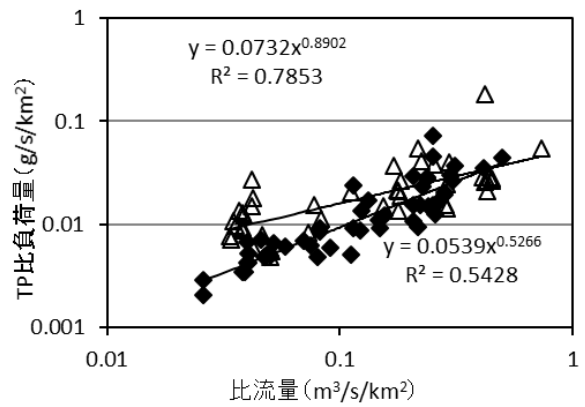
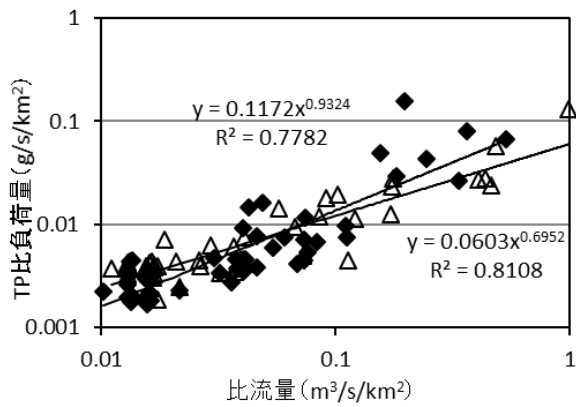
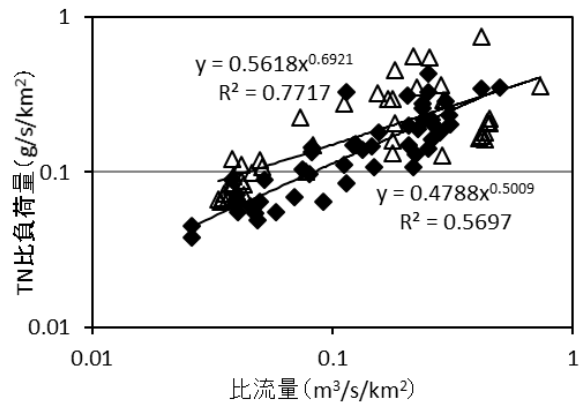
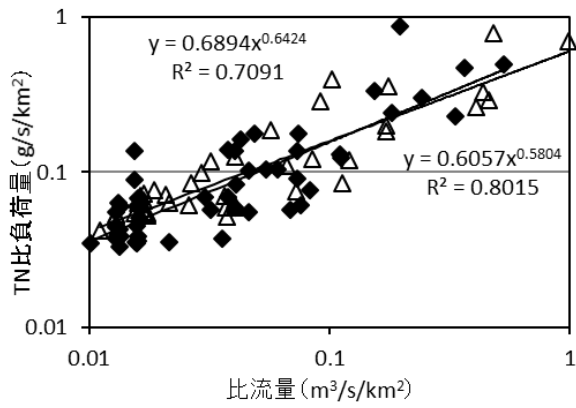
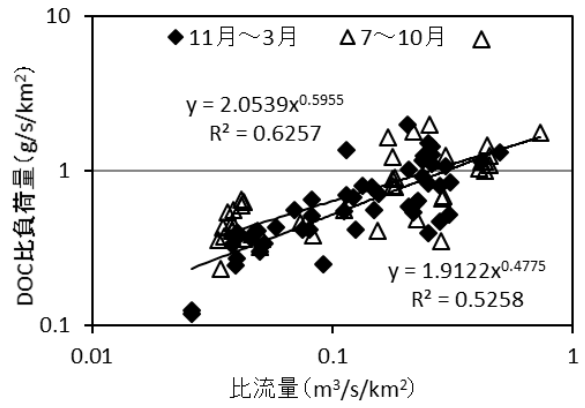
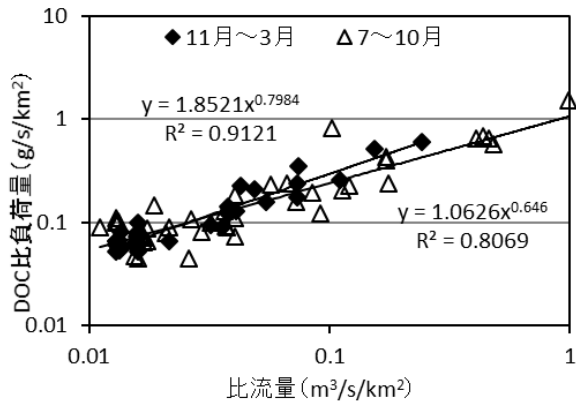
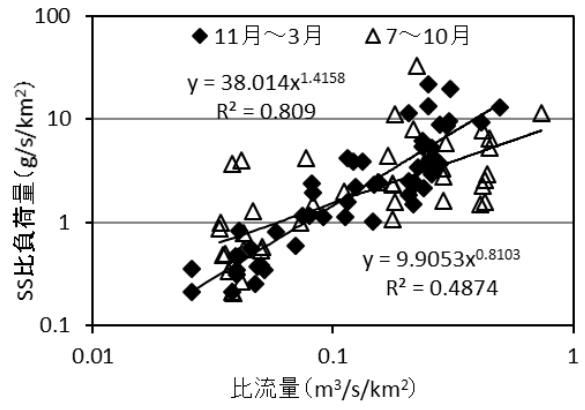
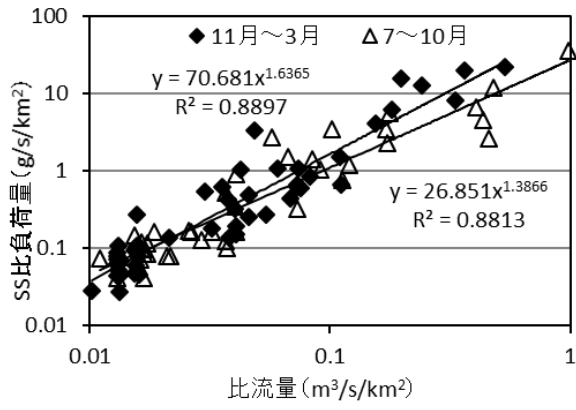


図-50 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点 K)

図-51 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点 J)

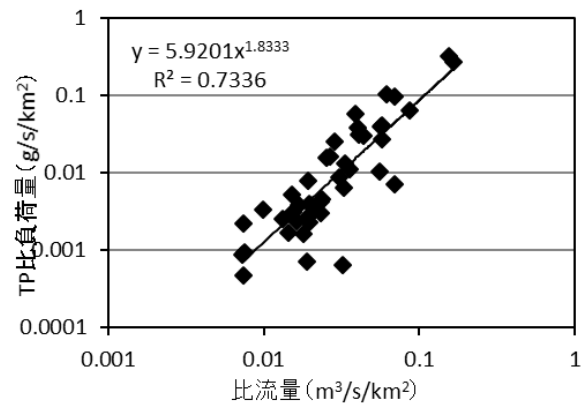
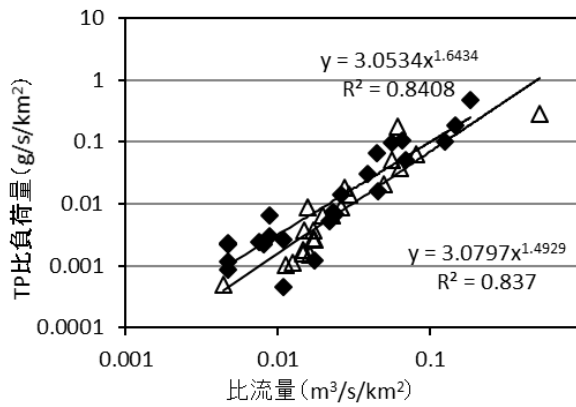
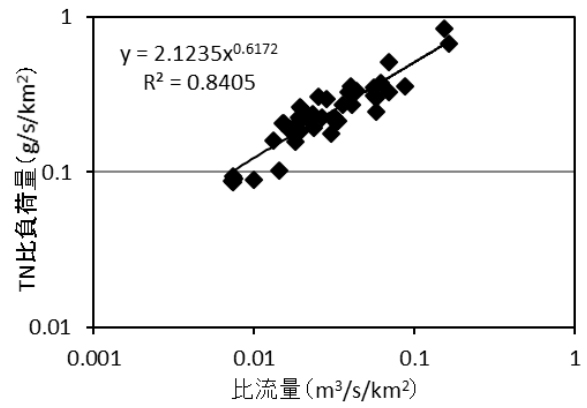
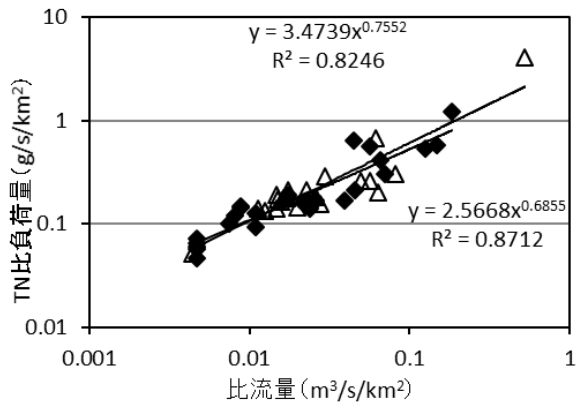
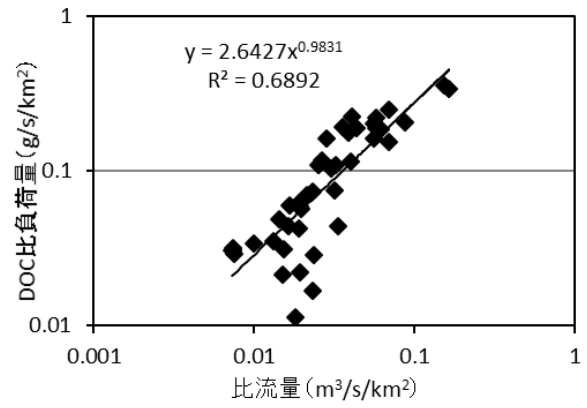
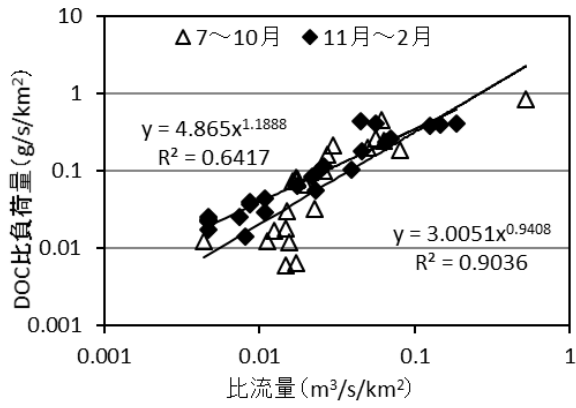
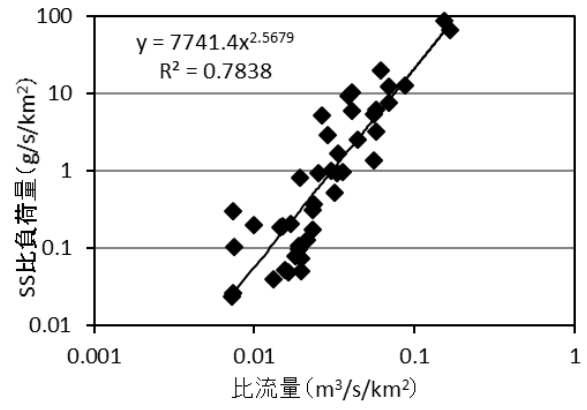
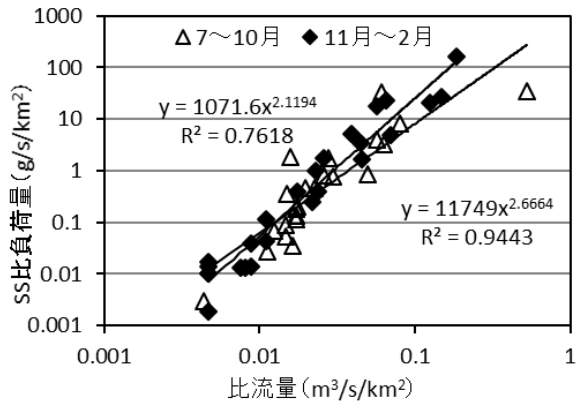


図-52 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点A)

図-53 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点C)

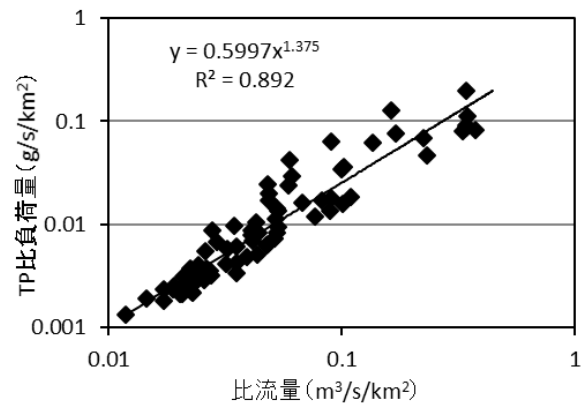
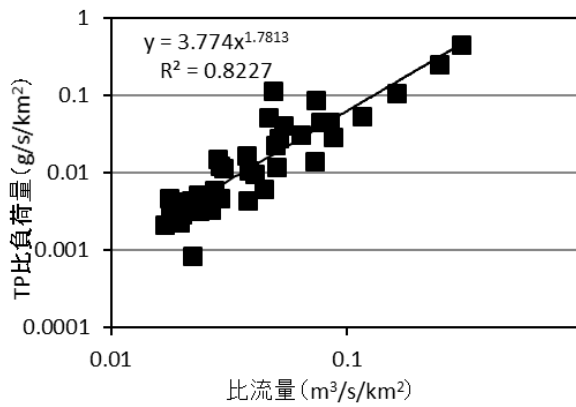
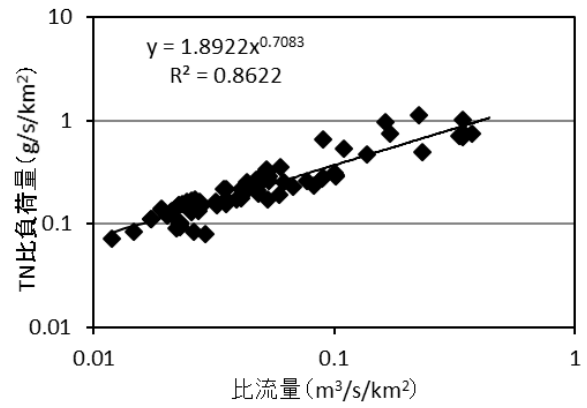
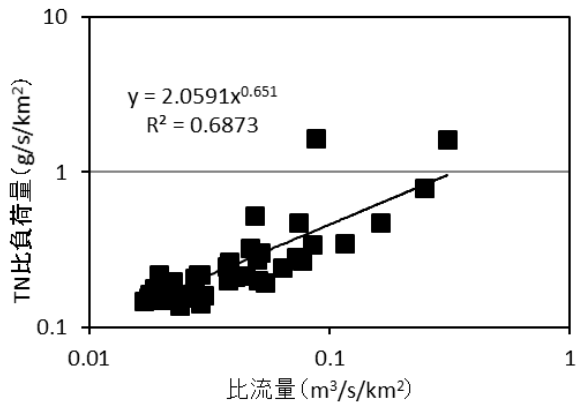
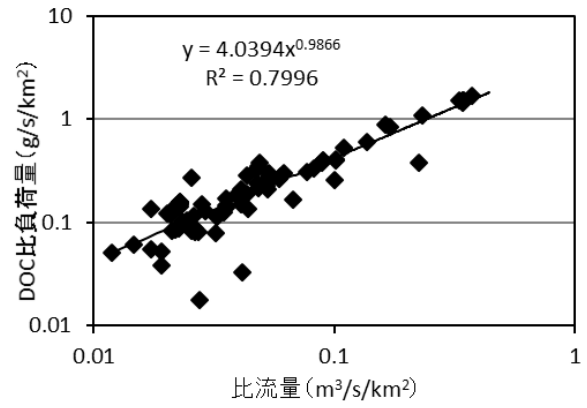
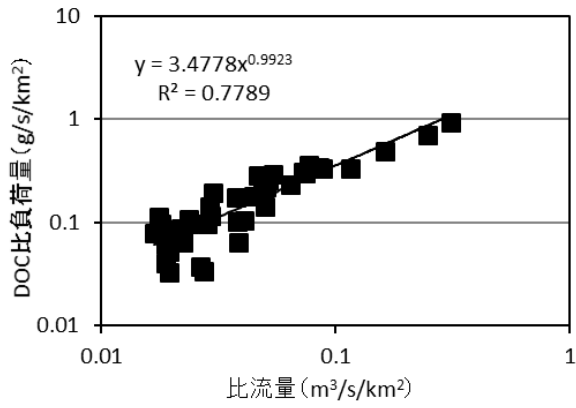
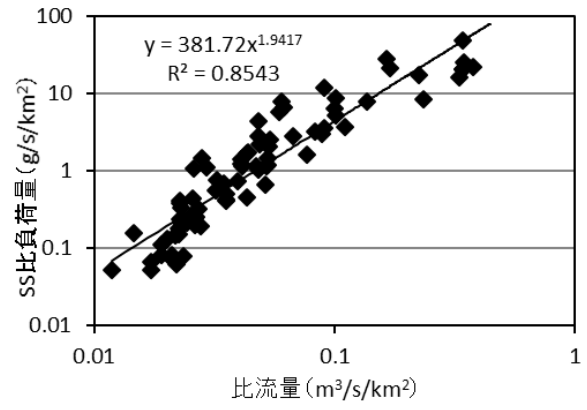
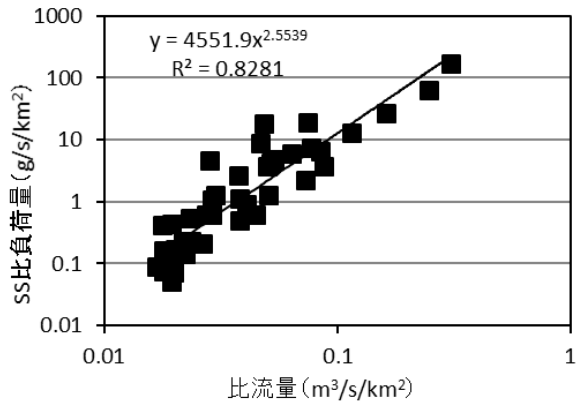


図-54 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点E)

図-55 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係
(地点G)

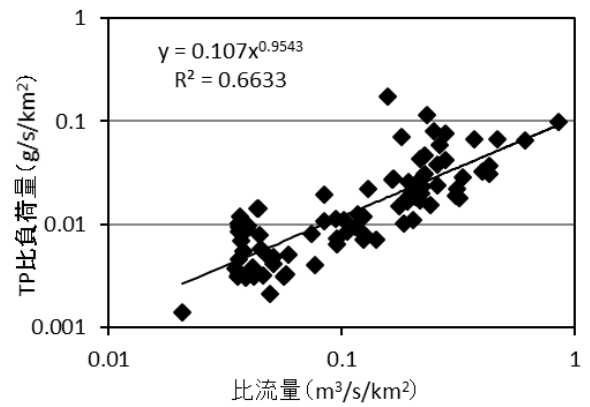
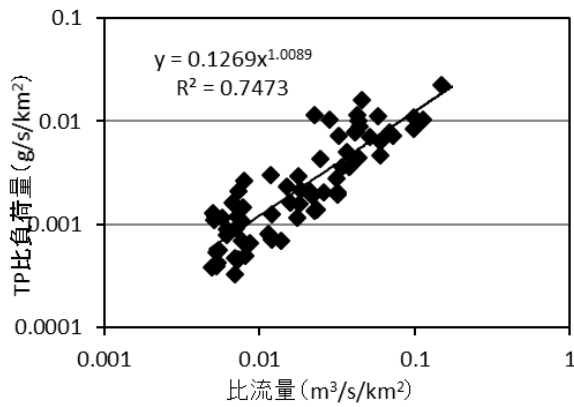
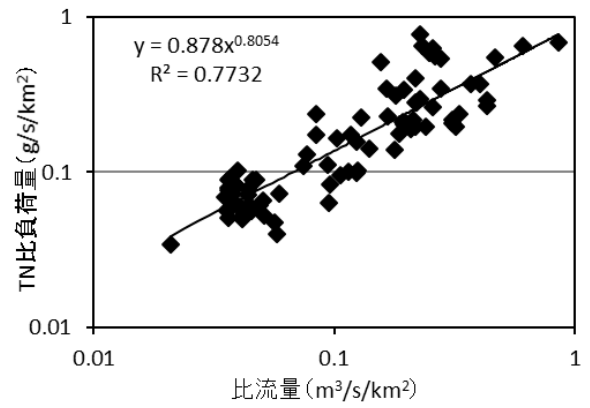
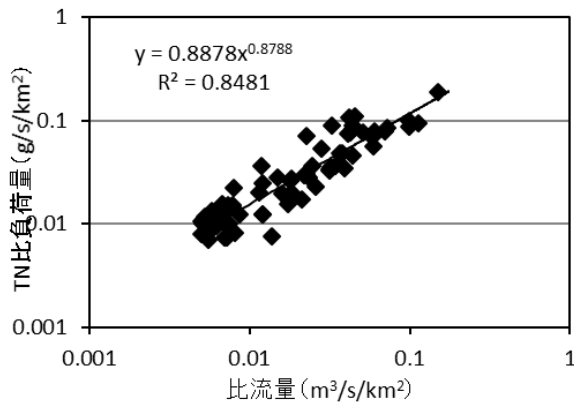
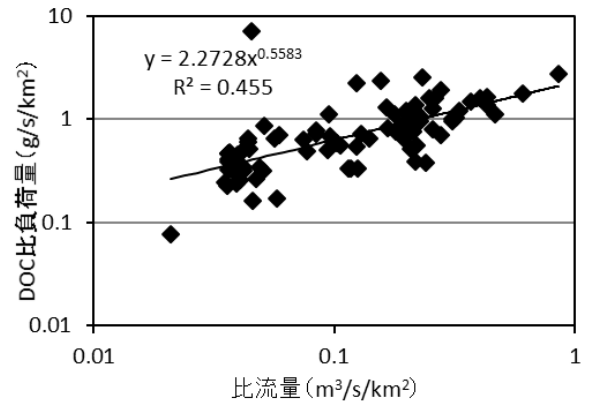
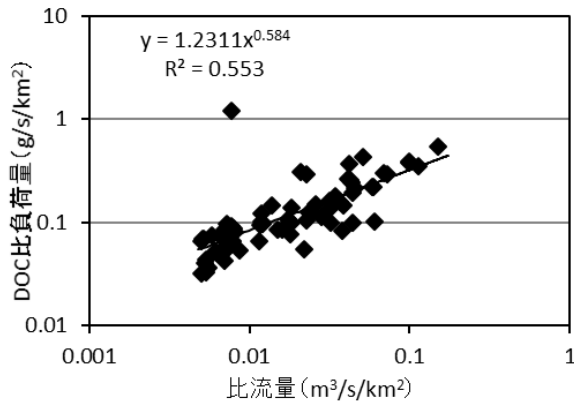
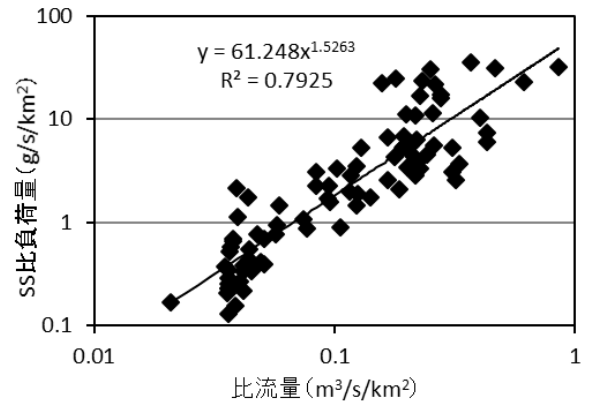
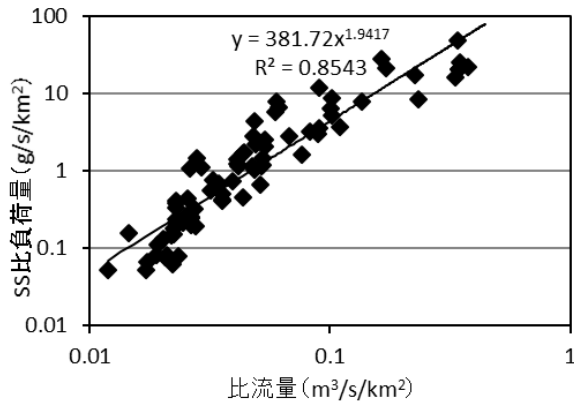


図-56 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係 (地点H)

図-57 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係 (地点I)

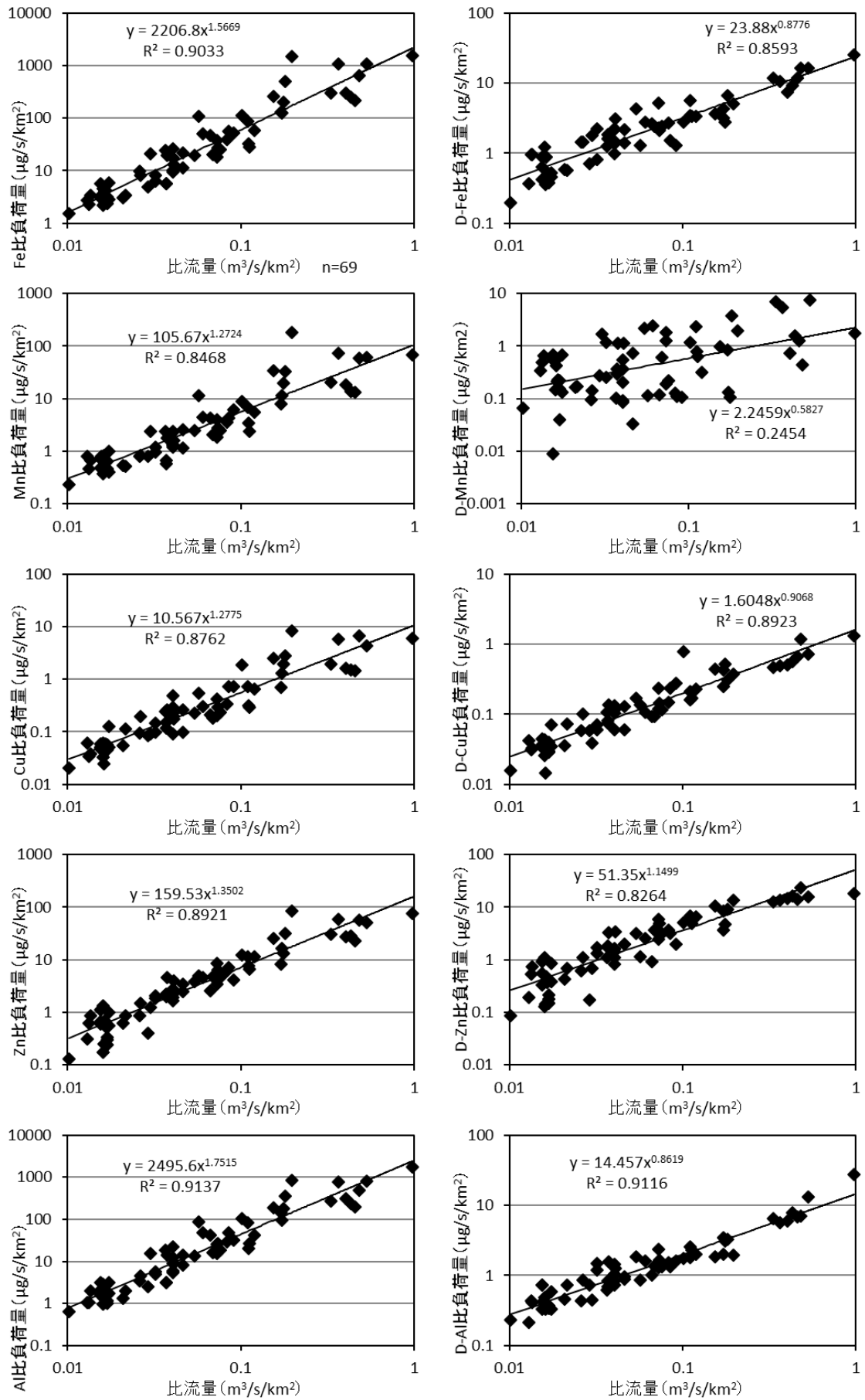


図-58 微量金属との流出比負荷量と比流量の関係 (地点K)

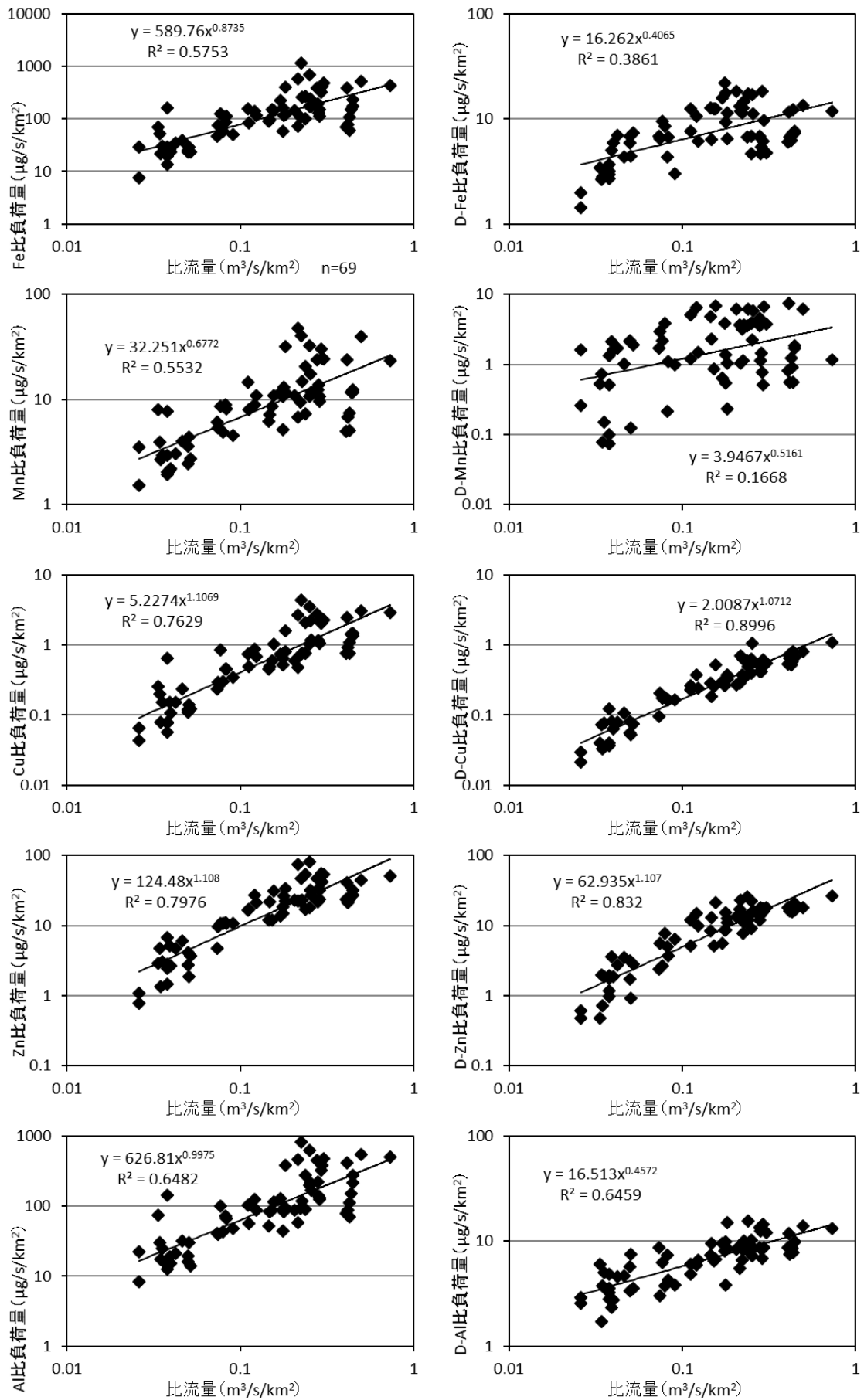


図-59 微量元素との流出比負荷量と比流量の関係 (地点J)

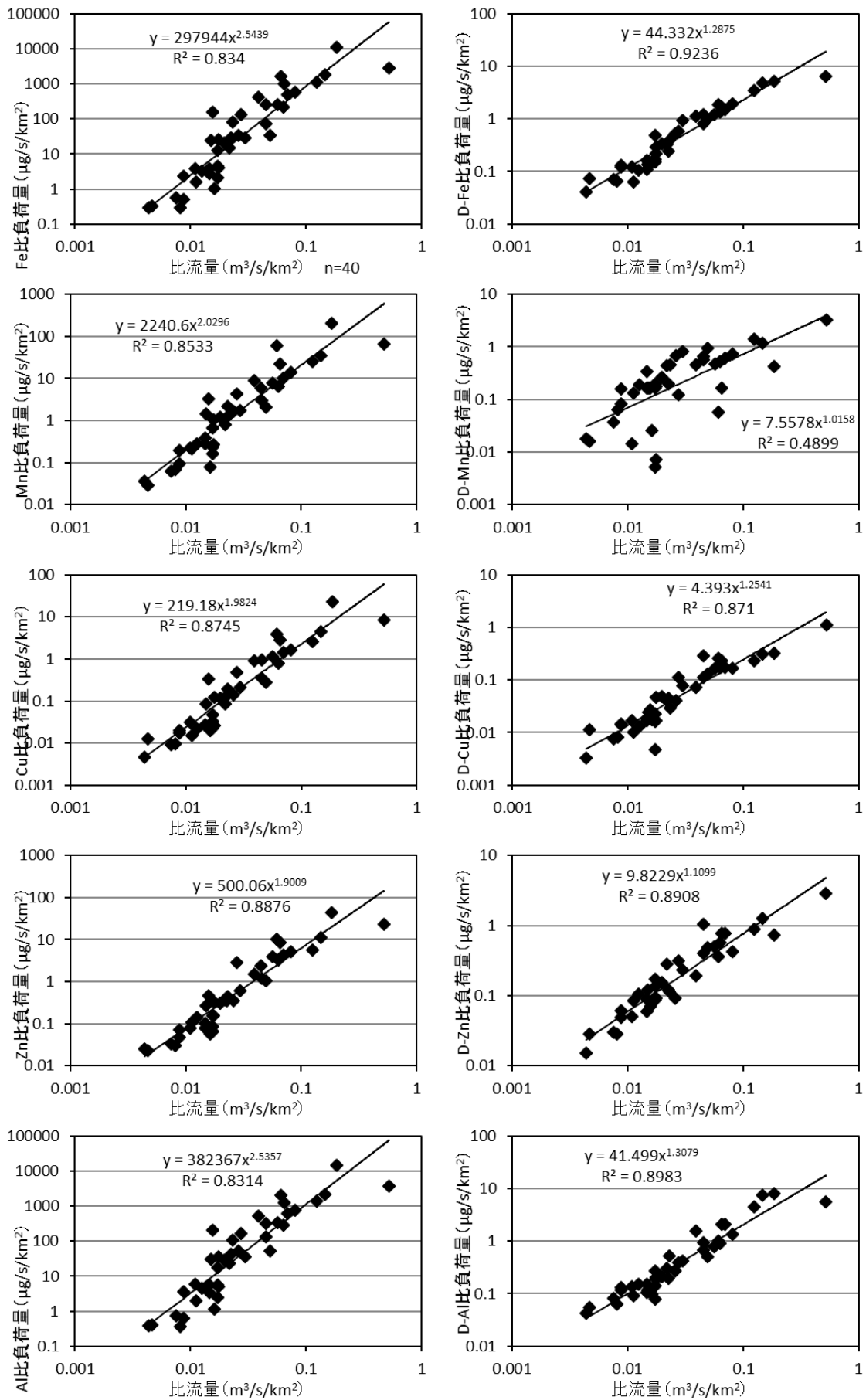


図-60 微量元素との流出比負荷量と比流量の関係 (地点 A)

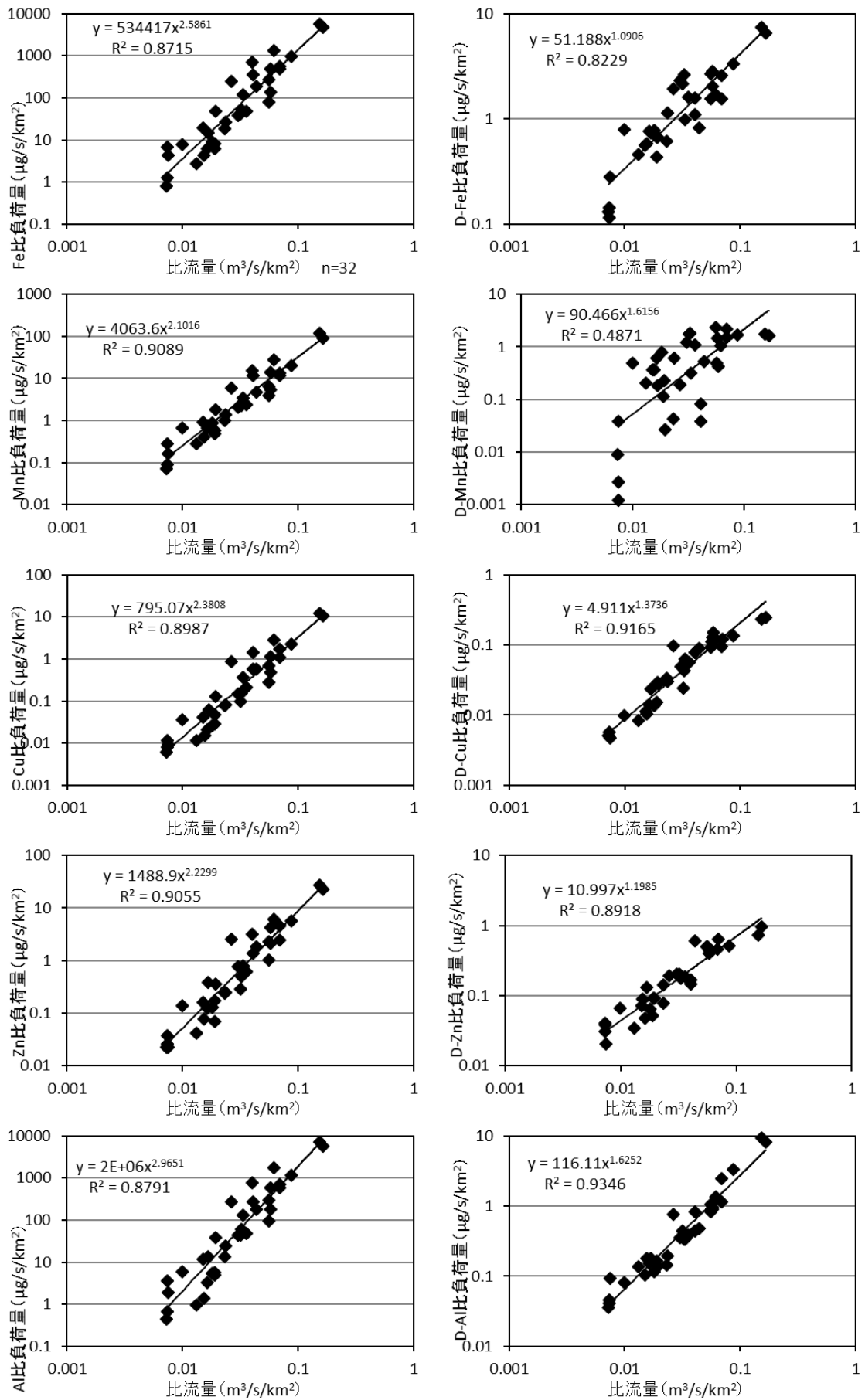


図-61 微量金属との流出比負荷量と比流量の関係 (地点C)

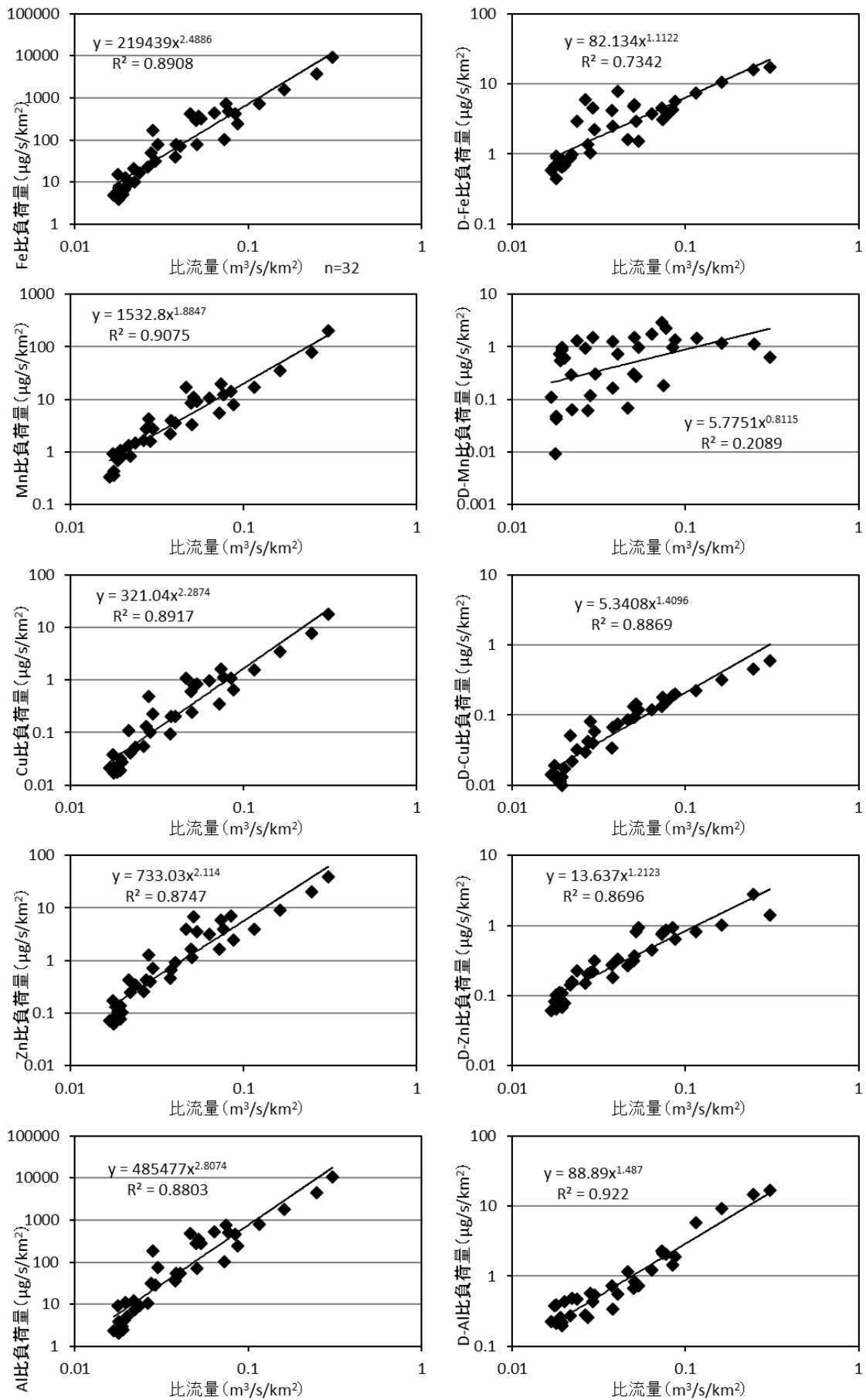


図-62 微量金属との流出比負荷量と比流量の関係 (地点E)

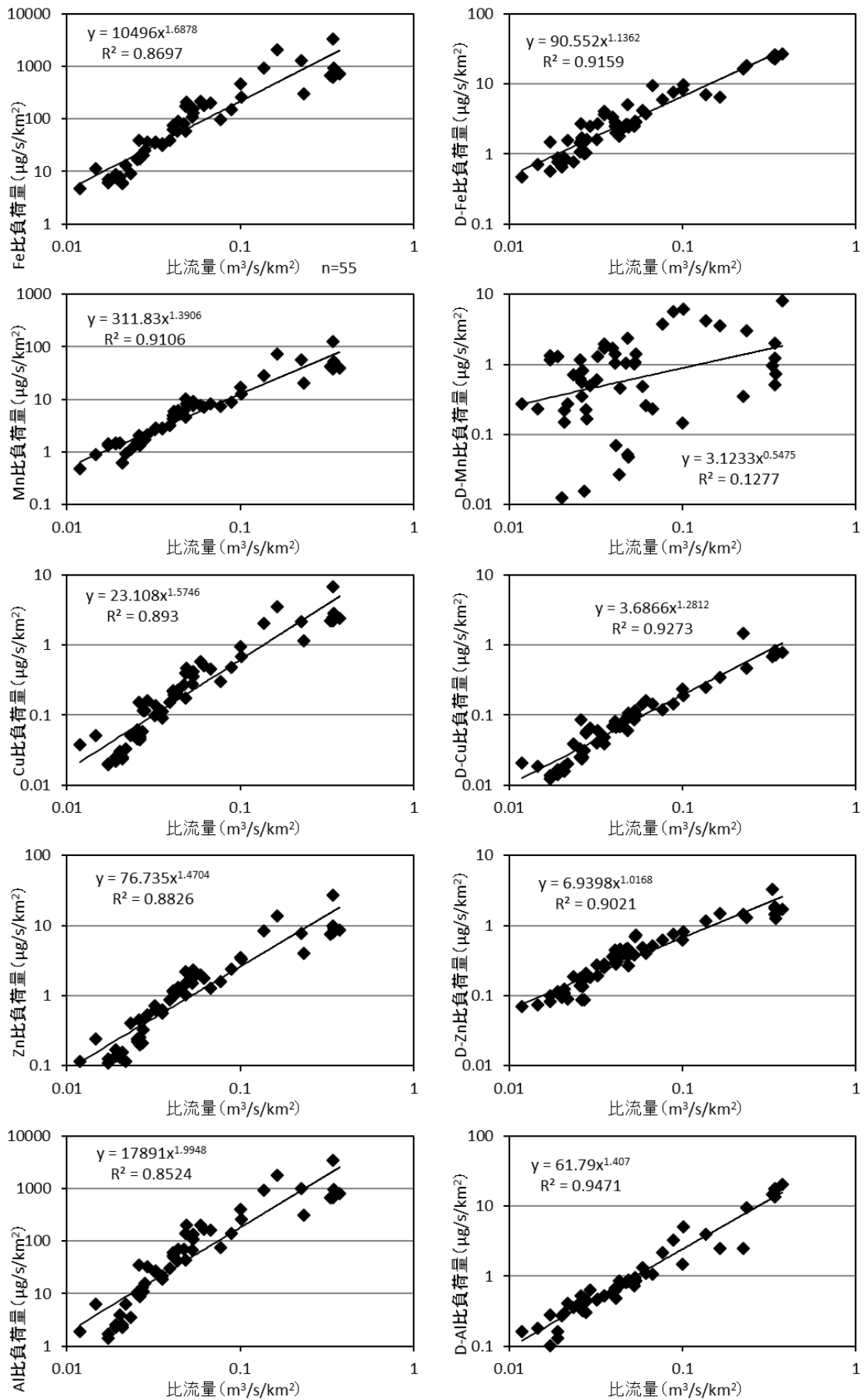


図-63 微量元素との流出比負荷量と比流量の関係 (地点G)

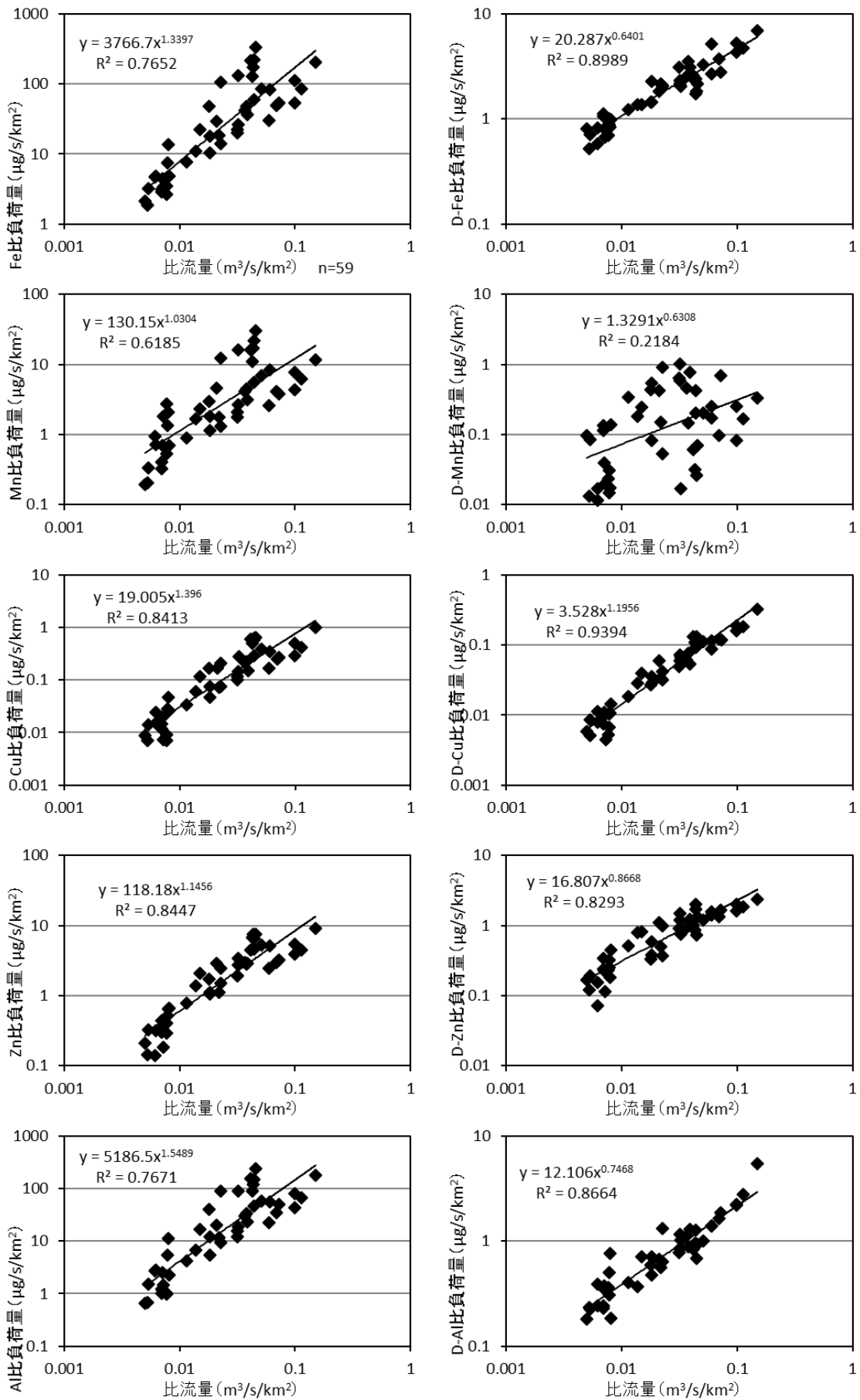


図-64 微量元素との流出比負荷量と比流量の関係 (地点H)

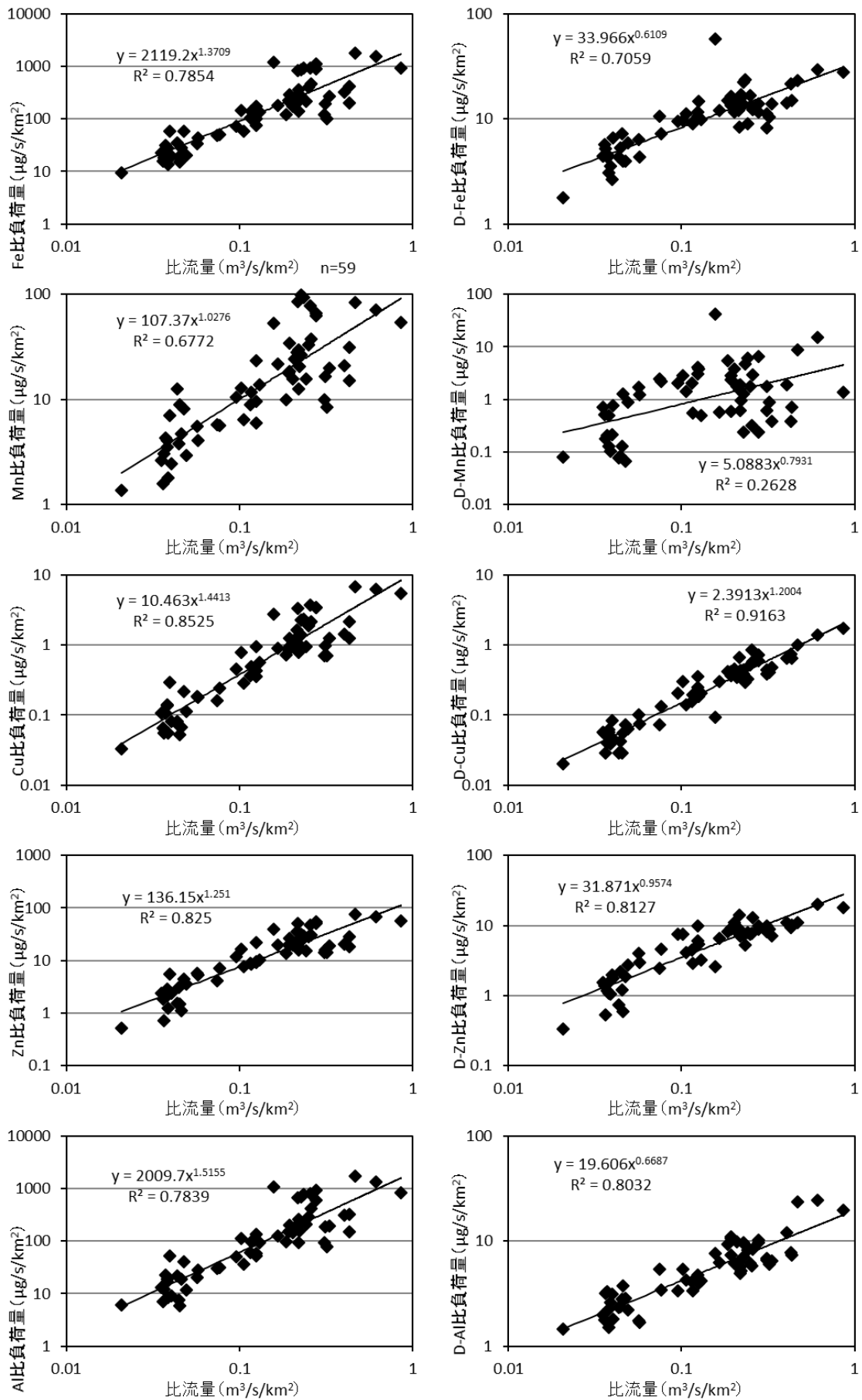


図-65 微量元素との流出比負荷量と比流量の関係 (地点 I)

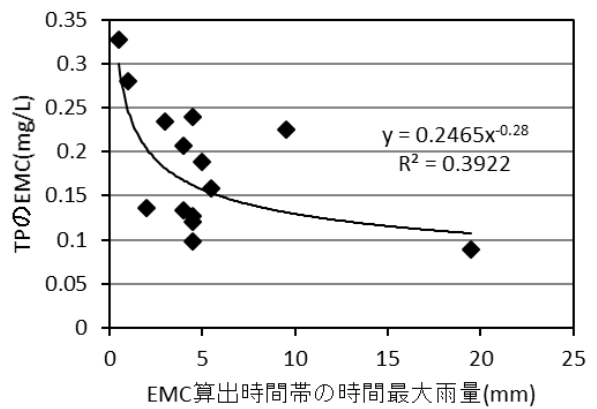
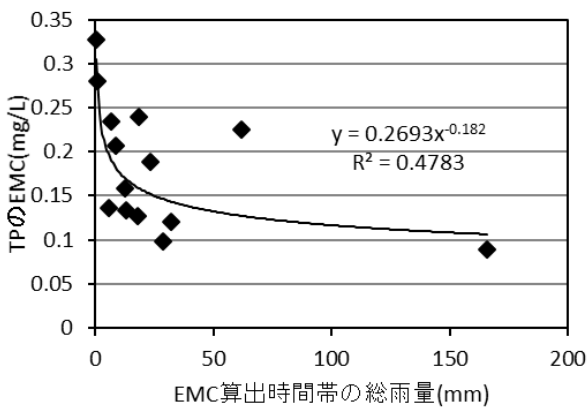
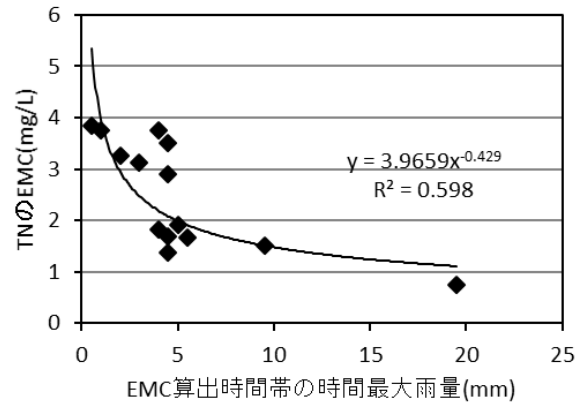
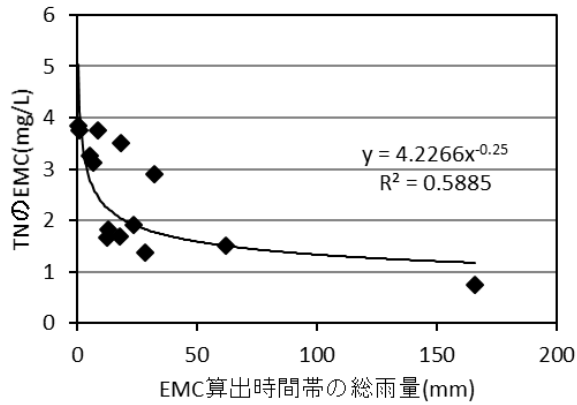
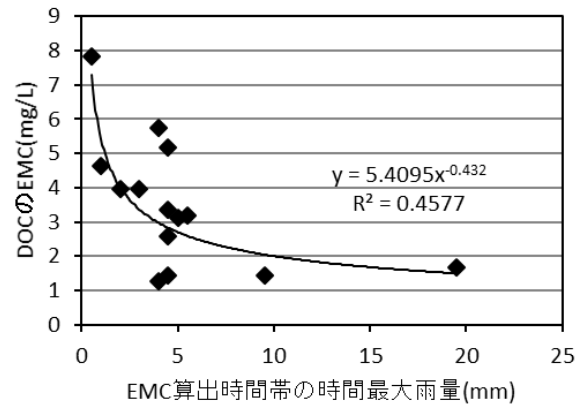
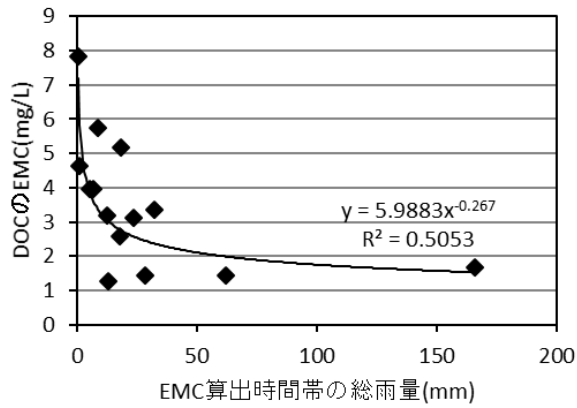
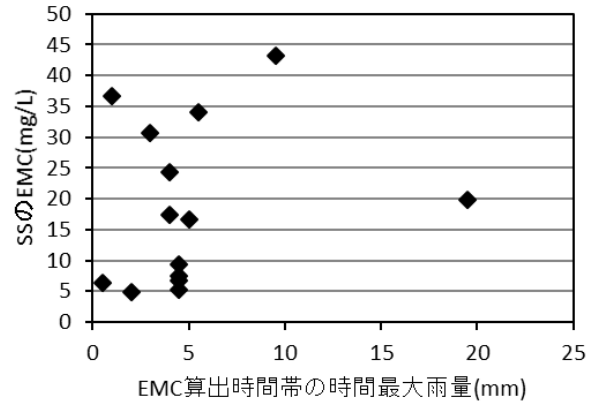
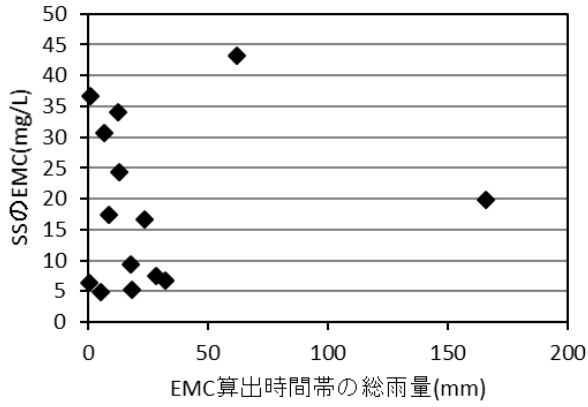


図-66 栄養塩等の EMC と総雨量の関係 (地点 K)

図-67 栄養塩等の EMC と時間最大雨量の関係 (地点 K)

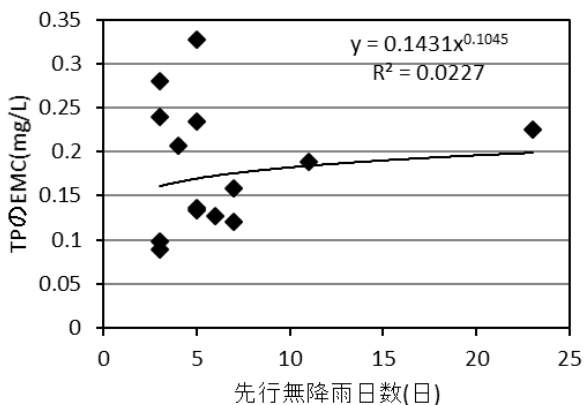
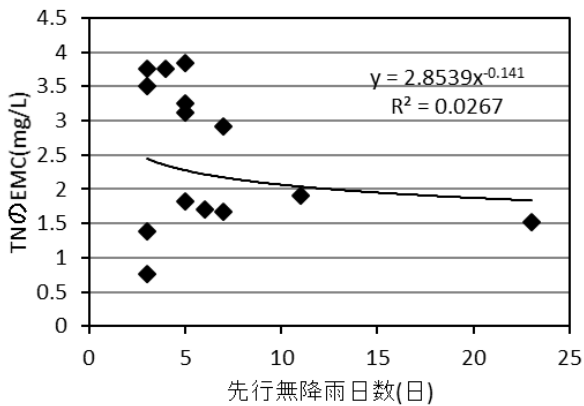
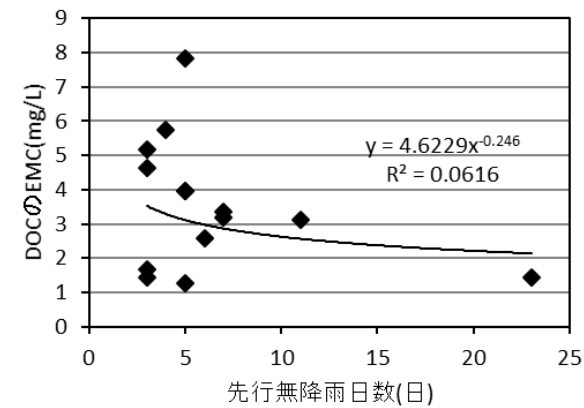
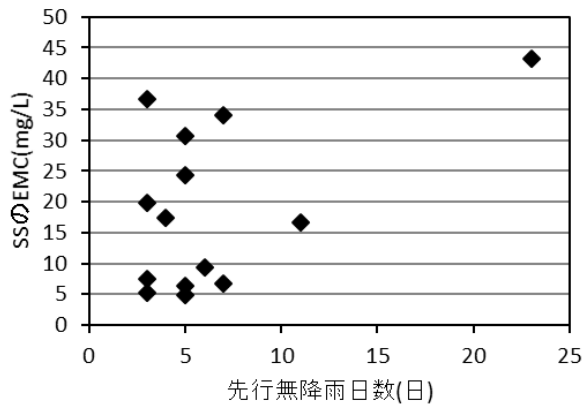


図-68 栄養塩等の EMC と先行無降雨日数の関係 (地点 K)

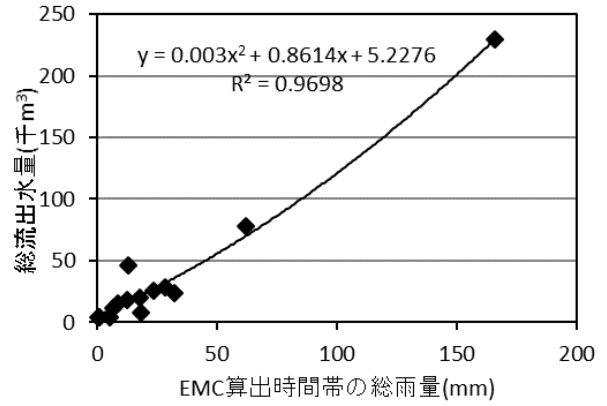


図-69 EMC 算出時間帯の総雨量と総流出水量の関係 (地点 K)

これらの結果から、市街地の DOC、TN、TP の排出負荷量は、EMC とその対象降雨の総雨量・時間最大雨量との関係を把握し、年間の降雨イベント毎の排出負荷量を算出・合計することにより、より精度よく類推できると考えられた。

4.2.3 市街地における平均流出濃度による年間総負荷量の推定

地点 K における EMC 算出時間帯の総雨量と総流出水量の関係を図-69 に示す。これらには、一定の相関が認められ、最小二乗法により近似式 (図-69 中) を求めた。

総雨量から図-66 中の近似式により EMC を、図-69 中の近似式により総流出水量を求め、それらを乗ずることにより、1 降雨での流出負荷量が求められる。これを 1 年分積算し、雨天時の年間総負荷量とした。なお、ここでは雨量 0mm が 12 時間連続した場合に降雨が途切れたものとし、途切れない降雨に含まれる雨量 0mm の時間は雨天時とした。

一方、雨天時調査データのうち、降雨前の流出負荷量の平均値を晴天時の流出負荷量とみなし、前述の雨天時に該当しない時間を晴天時とし、晴天時の流出負荷量を算出した。

地点 K における窒素・りんについて、平成 23 年から 27 年の雨量データより、各年の雨天時及び晴天時の年間総負荷量求め平均した結果を図-70 に示す。なお、併記している原単位法では、流総指針³⁾に掲載されている湖沼水質保全計画印旛沼第 6 期の原単位、GIS データより算出した山林・水田・畑地・市街地面積と千葉県提供の平成 7 年現在人口・家畜数を用い算出した。

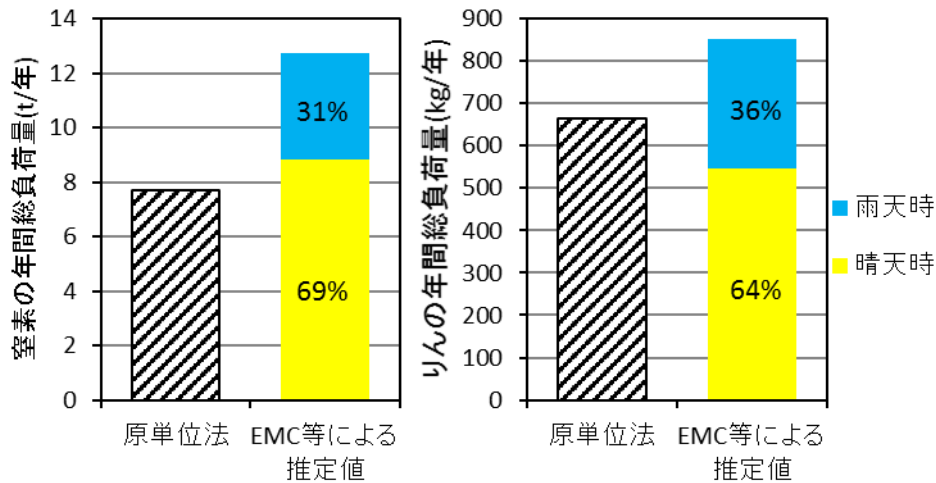


図-70 窒素・リンの年間総負荷量 (地点 K)

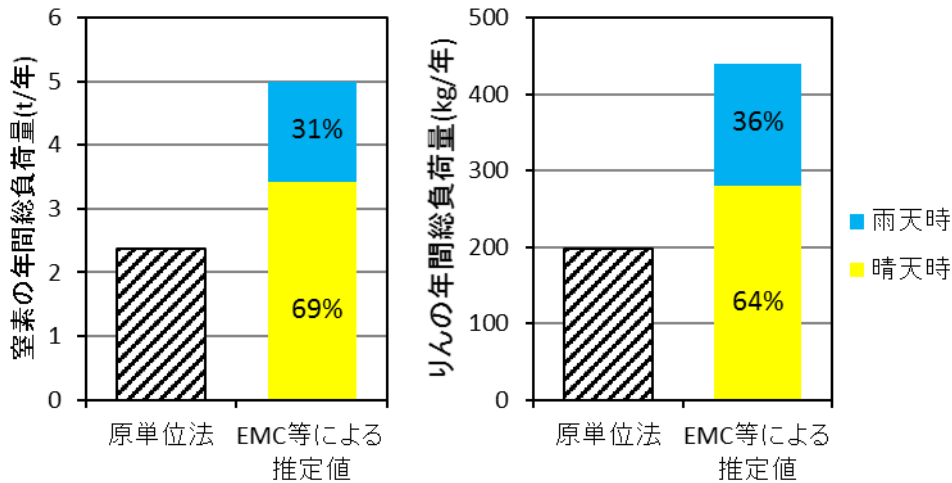


図-71 窒素・リンの年間総負荷量 (地点 J)

同様に、地点 J における同様の結果を図-71 に示す。地点 K、J とともに、窒素の年間負荷量の 31% が雨天時、69% が晴天時、リンの年間負荷量の 36% が雨天時、64% が晴天時であった。

原単位法における負荷量のうち、その占める割合が高いものは、いずれの地点においても市街地からの面源汚濁負荷で、地点 K で 8~9 割、地点 J で 6~7 割であった。湖沼水質保全計画印旛沼第 6 期の市街地の原単位は、総雨量 17mm 以下、なおかつ、最大時間雨量 4mm/hr 以下の 3 降雨 7 地点の現地調査³³⁾によっている。EMC 等による推定値には、総雨量 150mm 以上、なおかつ、最大時間雨量 20mm/hr 程度の雨天時調査結果も反映されている。平間ら³³⁾は、調査時の最大時間雨量または平均降雨強度が大きいほど、実測調査から求めた原単位の値が大きくなる傾向が見られるとしており、ここで求めた年間負荷量の原単位法と EMC 等による推定値の相違は、

調査時の降雨規模の違いが大きな要因の一つと考えられる。

4.3 まとめ

印旛沼流入河川である高崎川で雨天時の平均流出濃度 (EMC) に着目した負荷量調査を行った。その結果得られた結果を以下に示す。

(1) 流域の土地利用が主に市街地の地点と主に畑地の地点における栄養塩等の L-Q 式を季節毎に求めた結果、季節変動が見られなかった。

(2) 流域の土地利用が主に市街地の地点における雨天時の EMC の傾向について検討した結果、DOC、全窒素、全リンの EMC は総雨量・時間最大雨量との相関がみられた。

(3) 雨天時の平均流出濃度 (EMC) を用い、雨天時の市街地からの栄養塩の年間流出負荷量の推計手法を考案した。

5 おわりに

霞ヶ浦と印旛沼流域での流入河川の窒素、リン、微量金属濃度と土地利用の関係を検討し、晴天時及び雨天時の溶存態・粒子態の金属の流出特性を把握した。

窒素・酸素安定同位体比解析により栄養塩類の流出機構を調査し、高崎川（印旛沼流域）における雨天時の窒素負荷源の寄与率を推定した結果、高崎川上流部および市街地では、晴天時は畑地由来の窒素負荷が高く、降雨時は水田や森林由来の窒素負荷が増加すること等明らかにすることができた。

雨天時の平均流出濃度（EMC）を用い、雨天時の市街地からの栄養塩の年間流出負荷量の推計手法を提案するとともに、晴天時/雨天時それぞれの栄養塩の流出負荷の寄与率を解明した。

参考文献

- 1)国土数値情報（平成22年度版行政界データ、平成21年度版河川流域界データ、平成18年度版土地利用細分メッシュデータ）、国土交通省
- 2)地図で見る統計（H17国勢調査－世界測地系（500mメッシュ）、2005年農林業センサス－農業（総数））、総務省統計局
- 3)平成22年全国都道府県市区町村別面積調、国土交通省国土地理院
- 4)吉村季織、福原亘治、三ツ木健一郎、高柳正夫(2011)、Microsoft Excelを用いたケモメトリクス計算(4)－主成分回帰－、*Journal of Computer Chemistry, Japan*, 10(1), 32-43.
- 5)平成21年度版下水道統計、日本下水道協会
- 6)利根川流域別下水道整備総合計画 計画書より面原負荷量原単位（第5期湖沼水質保全計画）、500人槽以下の通常型合併浄化槽の排出負荷量原単位（第6次総量削減計画）、家畜の排出負荷量原単位（利根川流総計画基本方針）、千葉県（2012）
- 7)流域別下水道整備総合計画調査 指針と解説より原単位調査事例、第6次総量削減計画における原単位、日本下水道協会（2008）
- 8)平成13年版数値地図50mメッシュ（標高）日本－II、国土地理院
- 9)平成21年度利根川流域別下水道整備総合計画に関する基本方針策定調査報告書、利根川流域別下水道整備総合計画検討委員会（2009）
- 10)黒田清一郎、田淵俊雄(1996)、湧水中の硝酸態窒素濃度と負荷量の変動－野菜畑地からの硝酸態窒素流出特性に関する研究（I）－、農業土木学会論文集、181、31-38.
- 11)志村もと子、田淵俊雄(1996)、素掘貯留池を伴う養豚場が河川の窒素濃度に及ぼす影響－畜産主体の集水域における窒素流出に関する研究（I）－、農業土木学会論文集、182、1-7.
- 12)鈴木穰、小森行也、岡安祐司(2007)、流域における物質動態特性の解明と流出モデルの開発（2）、平成19年度下水道関係調査研究年次報告書集、117-126.
- 13)岩田杉夫、遠藤忠嗣、井上隆信、横田久里子、大久保陽子(2013)、中小河川からの栄養塩負荷の流出特性、*水環境学会誌*、36(2)、39-47.
- 14)永田 俊（2010）各種安定同位体を用いた流域窒素負荷の診断、*地球環境* 15(2)、189-194
- 15)和田英太郎（1986）生物関連分野における同位体効果－生物界における安定同位体分布の変動－、*RADIOISOTOPES* 35、136-146
- 16)酒井均、松久幸敬（1996）安定同位体地球化学、初版、東京、大学出版会
- 17)高津文人、河口洋一、布川雅典、中村太士（2005）炭素、窒素安定同位体自然存在比による河川環境の評価、*応用生態工学* 7(2)、201-213
- 18)Kendall, C., E. M. Elliot and S. D. Wankel（2007） Tracing anthropogenic inputs of nitrogen to ecosystems. In: R. Michener and K. Lajtha, eds., *Stable isotopes in ecology and environmental science*. 2nd ed., Blackwell Scientific, Oxford, 375-449.
- 19)大手信人（2008）大気降下物としての窒素が水源域に与える負荷、永田俊・宮島利宏（編）*流域環境評価と安定同位体－水循環から生態系まで*、京都大学学術出版会、59-69
- 20)赤松 良久（2010）河床堆積物の炭素・窒素同位体比に基づく流域環境評価、*土木学会水工学委員会環境水理部会研究集会*
<http://www.jsce.or.jp/committee/hydraulic/kankyousuiri/_workshop/h22/docs/08akamatsu.pdf>
- 21)高津文人、三浦真吾、今井章雄、小松一弘、川崎伸之、佐藤貴之、篠原隆一郎、渡邊未来、林誠二、中島泰弘、尾坂兼一（2015）硝酸イオンの酸素と窒素の安定同位体比による負荷源別負荷割合算定結果の検証 第49回日本水環境学会年会講演集、303.
- 22)D. M. Sigman, K. L. Casciotti, M. Andreani, C. Barford, M. Galanter, and J. K. Bohlke（2001） A bacterial method for the nitrogen isotopic analysis of nitrate in seawater and freshwater.

- Anal. Chem., 73, 4145-4153.
- 23)永田俊、宮島利宏(2008)、水の同位体比を利用した水循環の評価、「流域環境評価と安定同位体—水循環から生態系まで—」第2章、京都大学学術出版会、33-55.
- 24)永田俊、宮島利宏(2008)、大気降水物としての窒素が水源域に与える負荷、「流域環境評価と安定同位体—水循環から生態系まで—」第3章1節、京都大学学術出版会、59-69.
- 25)井手淳一郎(2011)、窒素・酸素安定同位体比を用いた扇状地河川における出水時の硝酸性窒素の起源推定に関する研究、河川整備基金助成事業成果報告書、助成番号:23-1211-01
- 26)環境省、平成26年版 環境・循環型社会・生物多様性白書、275-276、
https://www.env.go.jp/policy/hakusyo/h26/pdf/2_4.pdf
- 27)総務省(2004) 湖沼の水環境の保全に関する政策評価書、
http://www.soumu.go.jp/menu_news/s-news/daijinkanbou/040803_3_h.pdf
- 28)井上隆信(2003) 非特定汚染源の原単位の現状と課題、水環境学会誌 Vol.26、No.3、pp.131-134
- 29)日本水環境学会(2012)、非特定汚染源からの流出負荷量の推計手法に関する研究、平成23年度環境省環境研究総合推進費成果報告書(RFb-11T1)、3-24
- 30)岡本誠一郎、平山孝浩、對馬育夫(2014)、汚濁の現状把握と削減のためにできること：原単位からその先へ、第17回水環境学会シンポジウム講演集、101-102
- 31)国土交通省水管理・国土保全局下水道部(2015)、流域別下水道整備総合計画調査 指針と解説、74-76、
<http://www.mlit.go.jp/common/001065300.pdf>
- 32)上原浩、尾崎則篤(2014) 市街地汚濁負荷の現状と課題 第17回日本水環学会シンポジウム、103-104
- 33)平間幸雄、小倉久子(2004)、印旛沼流域の非特定汚染源負荷調査(2)、平成16年度 千葉県環境研究センター年報第4号、108-109

STUDY ON COMPREHENDING THE DYNAMIC CIRCULATION AND RUNOFF OF MATERIALS ON A BASIN SCALE (2)

Budget: Grants for operating expenses (General Account)

Research Period: FY2011-2015

Research Team: Water Environment Research Group (Water Quality)

Authors: OKAMOTO Seiichiro, HIRAYAMA Takahiro, KITAMURA Tomakazu, TSUSHIMA Ikuo

Abstract: The objective of this research was to identify the runoff mechanism of the pollution in river watershed. The relationship between the N, P concentrations in river water and land use of river watershed at Lake Kasumigaura and Lake Inbanuma was investigated using measured in situ data and data calculated using a geographic information system (GIS). The nutrients loads of ordinary flow and rainfall flow were measured at Takasaki river flowing into Lake Inbanuma. Nutrient load surveys were conducted to clarify the runoff mechanism from the river watershed by measuring the water's stable isotope ratios from Takasaki River flowing into Lake Inbanuma and Yama river flowing into Kinu River. To determine the mechanism involved in nutrient runoff from a river catchment in a rain event, nutrient load during a rain event was investigated in the Takasaki River flowing into Lake Inbanuma, with a focus on the event mean concentration (EMC) and the respective stable isotope ratios of water and nitrite ions.

Key words: Lake Kasumigaura, Lake Inbanuma, nutrient, rainfall-runoff investigation, runoff-loads analysis, stable isotope ratio