

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】

河川集水域からの栄養塩類の雨天時の流出機構を解明するため、印旛沼流入河川である高崎川で雨天時の平均流出濃度（Event Mean Concentration; EMC）と水と硝酸イオンの安定同位体比に着目した負荷量調査を行った。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負荷量と流量の関係を季節毎に求めた結果、季節変動がみられなかった。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、全りん、全りん、全りん、全りんのEMCは総雨量・時間最大雨量との相関がみられた。また、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。

キーワード：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

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¹⁾。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²⁾。しかしながら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³⁾。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⁴⁾、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⁵⁾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⁶⁾。

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。

平成26年度は、過年度調査に引き続き、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、過年度調査を含めてデータ解析を行うとともに、流出した栄養塩類の起源を推定するため、前年度に引き続き出水時の河川水の窒素・酸素安定同位体比分析を行い、さらに同位体混合モデル⁷⁾を用いて流出した窒素の負荷源の推定を試みた。

2. 調査方法

2.1 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

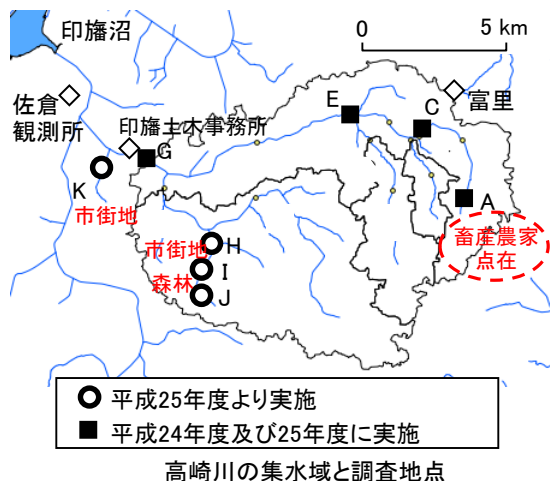


図1 調査地点

負荷量調査を実施した。図1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。

雨天時調査は、平成26年7月18～19日、9月7日、9月24～26日、10月5～6日および10月13～14日に実施した。佐倉観測所での連続降雨（6時間0mmが続いたら不連続）としての累積降雨量は、順に0.5mm、10.5mm、9mm、176.5mm、19mmであった。佐倉観測所での時間最大降雨量は、順に0.5mm、2mm、4mm、19.5mm、4.5mmであった。なお、10月5～6日は台風18号の豪雨であった。数時間おきに5回～9回、G～Kの5地点で流量観測と水質調査を行うとともに、A、C、Eの3地点は、9月24～26日および10月13～14日に他地点と同様の頻度で流量観測と水質調査を行った。

2.2 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、佐倉観測所の1時間ごとの雨量データを使用した。雨天時データは、平成26年度に実施した調査データとともに、

表1 平成25年度雨天時調査日及び降雨概要

調査実施日	佐倉観測所の 累積降雨量 (mm)	佐倉観測所の 時間最大降雨量 (mm)
H25/12/19～20	45	4.5
H26/1/8～9	23.5	5
H26/1/26	1	1
H26/2/7～8(降雪)	35	4.5
H26/3/13～14	12.5	5.5

平成25年12月～平成26年3月に実施した5回の降雨の調査データも併せて解析している（表1）。

調査データはSS、DOC、TN、TP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。

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^{6,8)}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。

2.3 雨天時流出水の安定同位体比分析

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.⁹⁾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 N_2O 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 $\pm 0.1\text{‰}$ および $\pm 0.3\text{‰}$ であった。負荷源別負荷割合の推定は、高津ら⁷⁾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. 結果と考察

3.1 降雨特性と栄養塩等の流出負荷量との関係

雨天時調査データのうち、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

の栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係を図 2～3 に示す。同様に、土地利用の 80%以上が畑地になる地点 A の流出比負荷量と比流量の関係を図 4 に示す。地点 K と J では、12 月～3 月と 7～10 月の期間毎に、地点 A では、9 月～10 月と 11～1 月の期間毎に区分して、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¹⁰。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 K における栄養塩等の 1 降雨あたり平均流出濃度 (EMC) と当該降雨時間内の総雨量・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 5～7 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⁹⁾に掲載されている「1 降当りの平均水質」の範囲内であった。

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。

3.2 安定同位体比分析による負荷排出源の推定

図 8 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

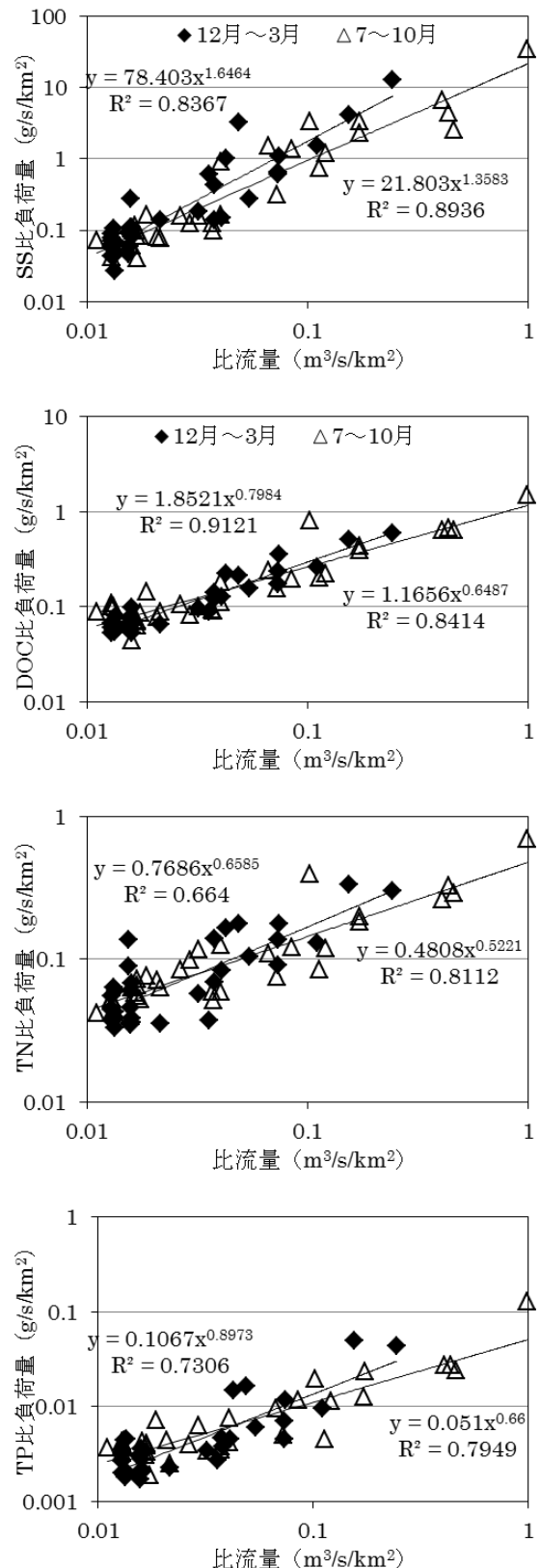


図 2 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係 (地点 K)

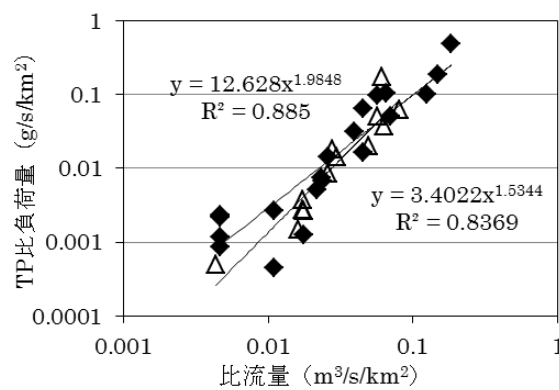
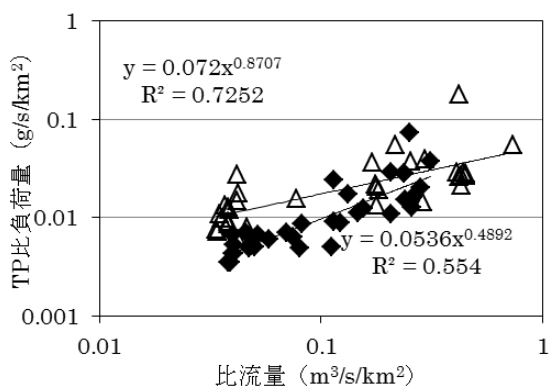
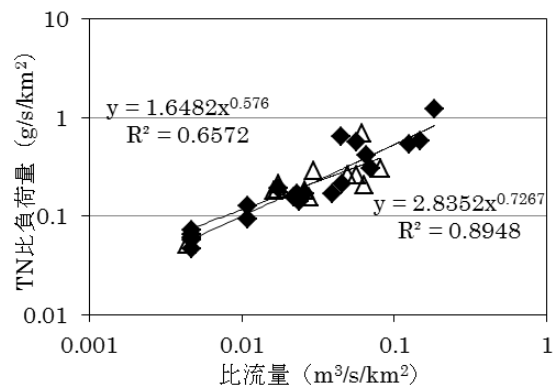
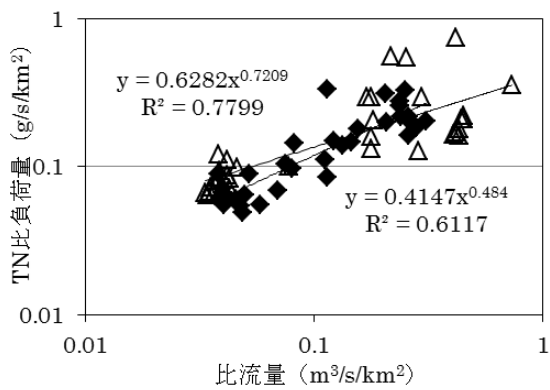
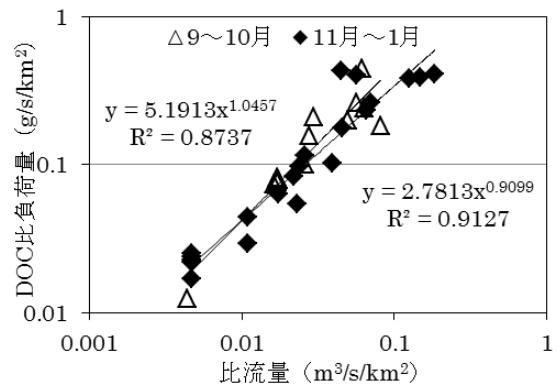
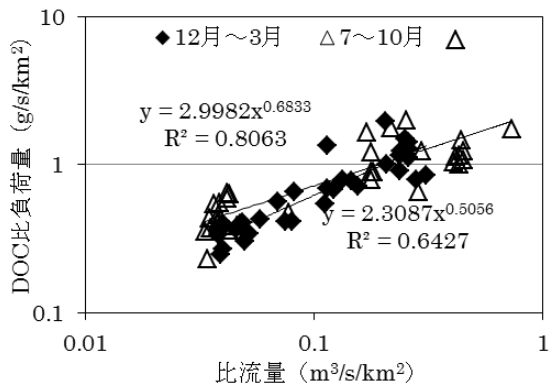
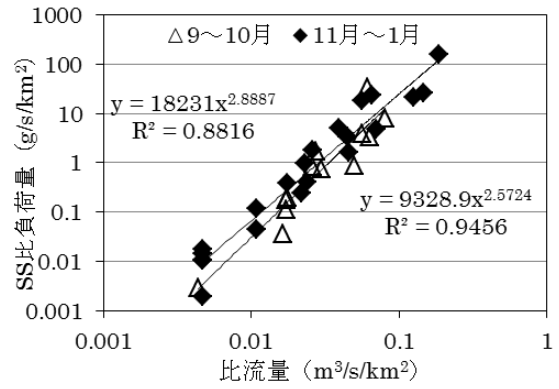
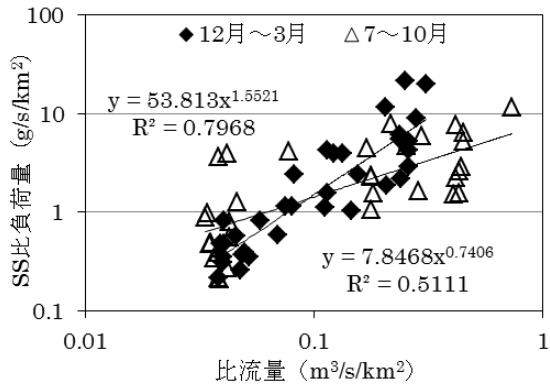


図3 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係 (地点J)

図4 栄養塩等の流出比負荷量と比流量の関係 (地点A)

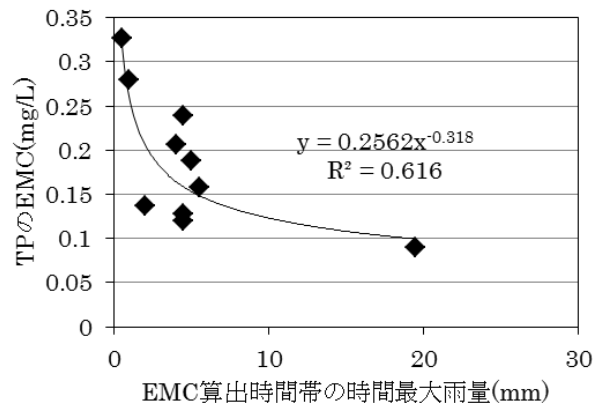
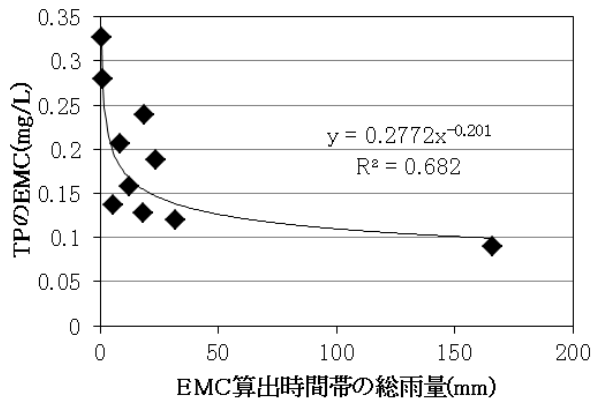
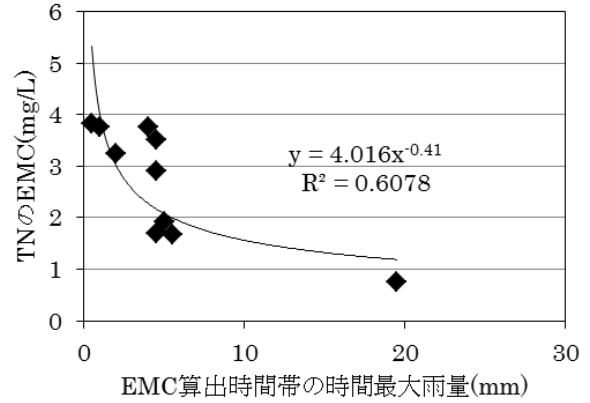
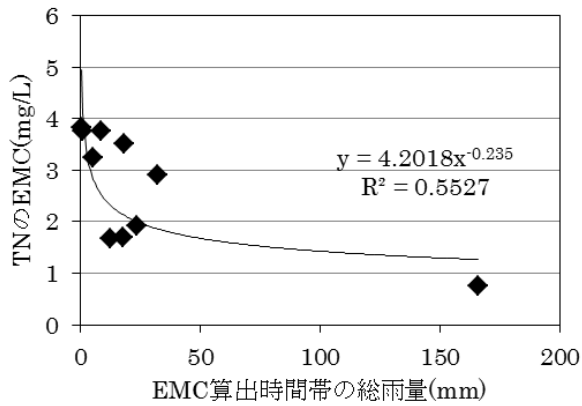
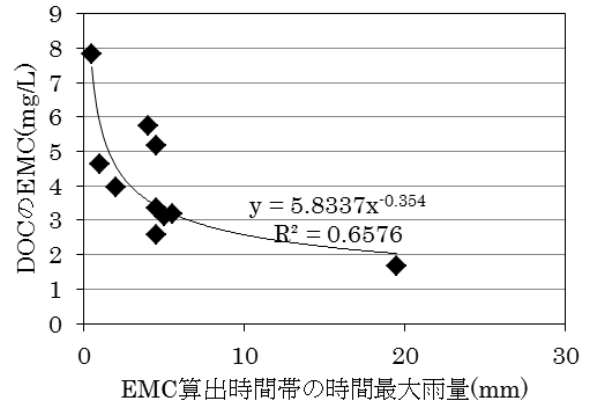
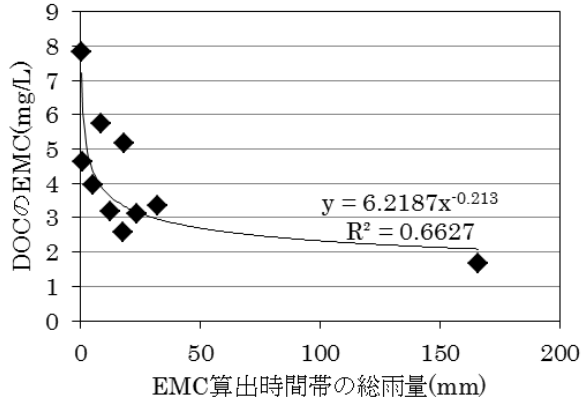
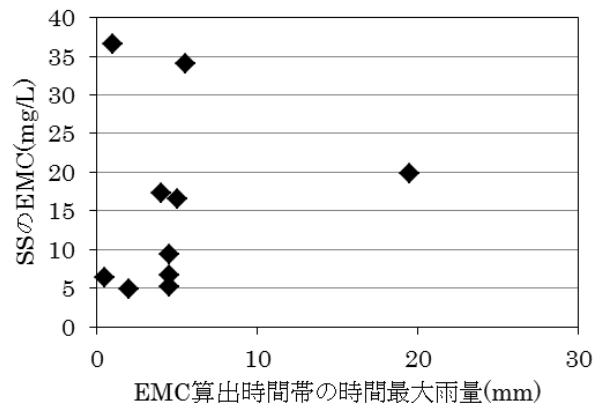
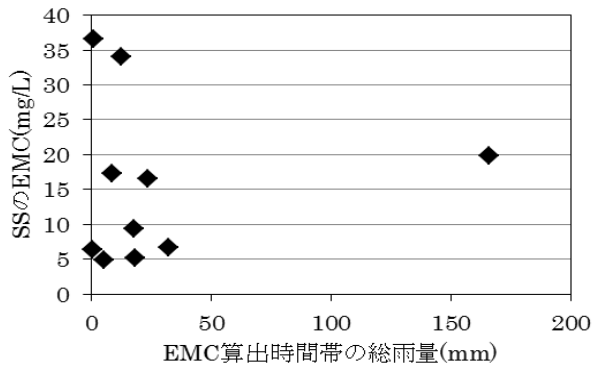


図5 栄養塩等のEMCと総雨量の関係(地点K)

図6 栄養塩等のEMCと時間最大雨量の関係(地点K)

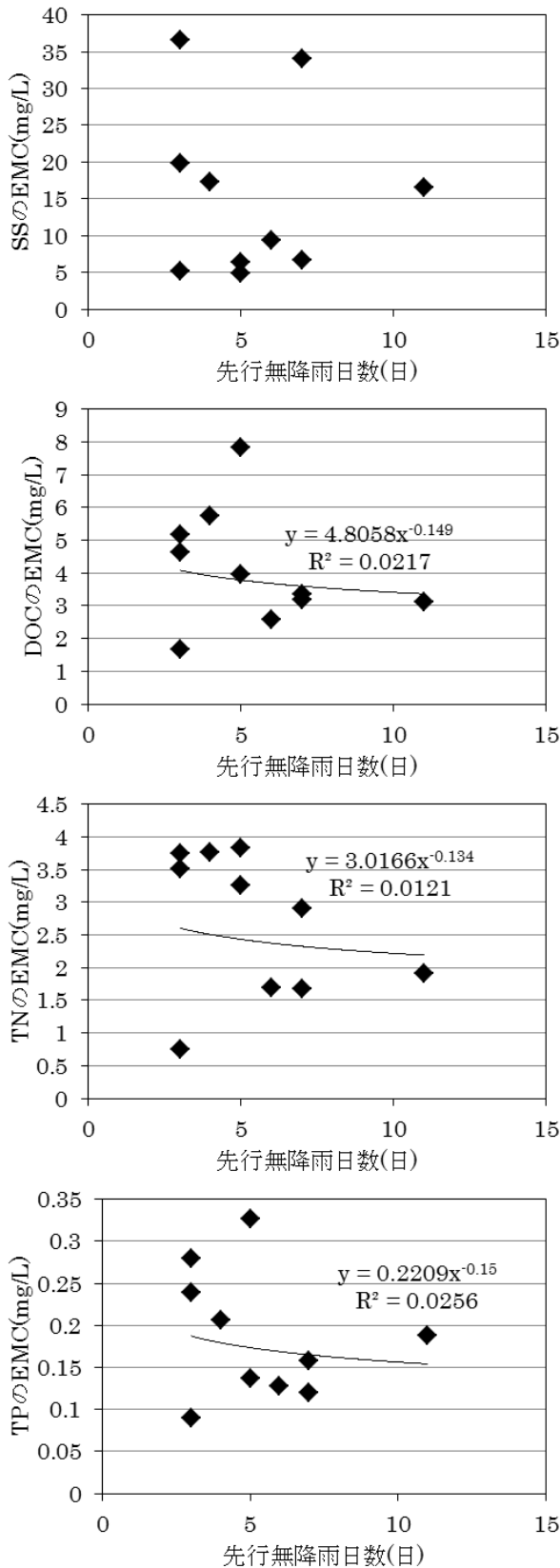


図7 栄養塩等のEMCと先行無降雨日数の関係 (地点K)

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 $0.6-0.7 \text{ m}^3/\text{s}$ 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がおおよそ $50-60\%$ に対して、地点Kは $60-80\%$ 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9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 $6.7-7.5\%$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が $-1.0-2.2\%$ であるのに対し、地点Kでは、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が $2.4-5.8\%$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ が $0.6-12.0\%$ 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

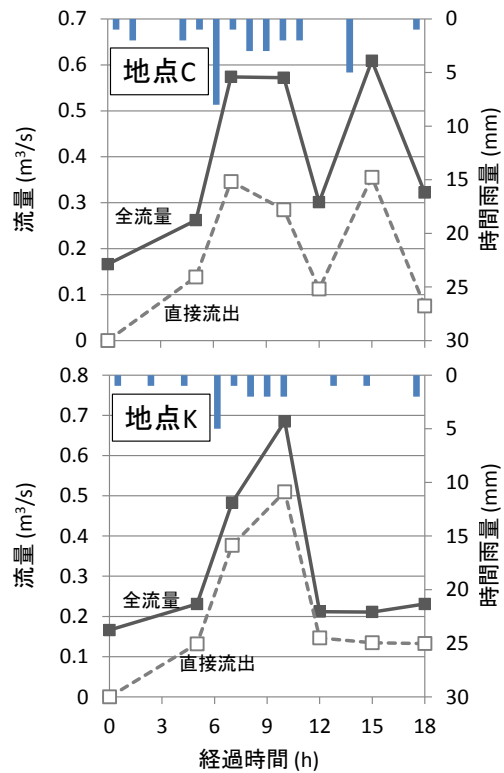


図8 時間雨量および河川流量

を受けている可能性が考えられる¹¹⁾。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10~12)、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。

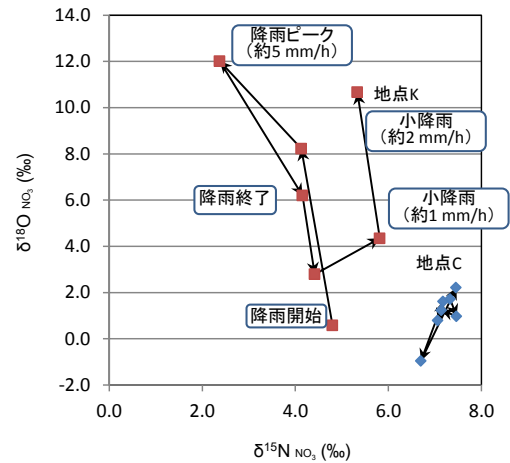


図9 $\delta^{15}\text{N}$ - $\delta^{18}\text{O}$ ダイアグラム

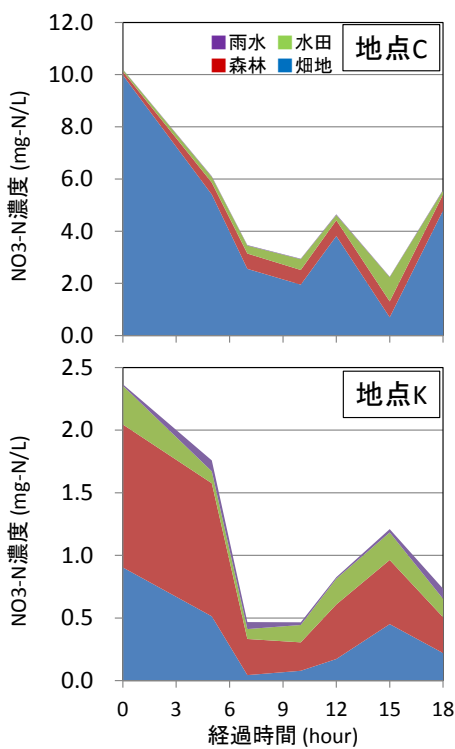


図10 河川中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の変化

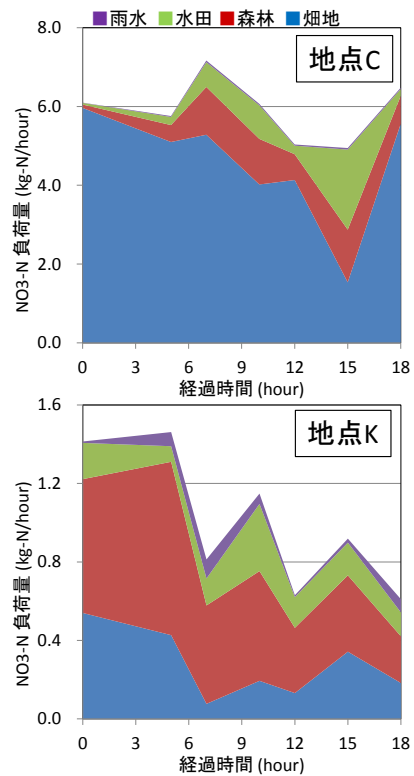


図11 河川中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量の変化

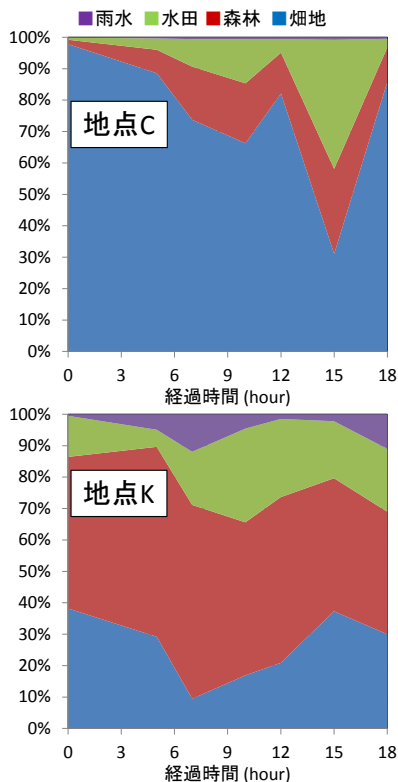


図 12 河川中の NO₃-N 推定負荷源割合の変化

4 おわりに

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)と水と硝酸イオンの安定同位体比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 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、全りん の EMC は総雨量・時間最大雨量との相関がみられた。

(3) 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。

参考文献

- 1) 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
- 2) 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
- 3) 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
- 4) 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
- 5) 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
- 6) 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>
- 7) 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.
- 8) 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
- 9) 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.
- 10) 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.
- 11) 永田俊、宮島利宏(2008)、大気降下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.

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:

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 Inba-numa, with a focus on the event mean concentration (EMC) and the respective stable isotope ratios of water and nitrite ions.

A relationship was observed between the nutrient load and the flow rate at points where the primary land use in the basin was urban, and where the primary land use was agricultural. There was no seasonal variation in the relationship. The EMC pattern was evaluated at the former points. The EMC values for DOC, total nitrogen and total phosphorus were found to be correlated to both total precipitation and maximum hourly precipitation. The contribution rate of nitrogen sources in a rain event was estimated through analysis of the stable isotope ratio model, which indicated a significant variation over time in the nitrogen sources at the points where the primary land use in the basin was urban, whereas the nitrogen source was agricultural use through a rain event at the points where the primary land use in the basin was agricultural.

Key words: Lake Inba-numa, nutrient, rainfall-runoff investigation, runoff-loads analysis, stable isotope ratio