

Research Report from the National Institute for Environmental Studies, Japan, No.116, 1988.

国立公害研究所研究報告 第116号

自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(V)

Comprehensive Studies on Effective Use of Natural Ecosystems for Water Quality Management (V)

汚濁負荷の発生と流出・流達

Drainage and Flowing Down of Pollutant Load

昭和58～61年度 特別研究報告

Research Report in 1983～1986

環境庁 国立公害研究所

THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES

特別研究「自然浄化機能による水質改善に関する総合研究」
(期間 昭和58～61年度)

本研究報告(V)「汚濁負荷の発生と流出・流達」
(研究期間 昭和58～61年度)

特別研究責任者：合田 健* 水質土壌環境部長 (昭和58～60年度)
村岡浩爾 同 上 (昭和61年度)

特別研究幹事：須藤隆一・矢木修身・海老瀬潜一
田井慎吾・中杉修身・原沢英夫

報告書編集担当：海老瀬潜一

(*昭和61年3月 退任)

序

自然の浄化機能を応用した水質改善に関する本特別研究は、富栄養化防止に関する特別研究（昭和55～57年度）のあとを承けて昭和58年度から昭和61年度にかけて実施された。現在、湖や内湾などの閉鎖系水域及び都市内の中小河川の水質汚濁が問題となっているが、省資源、省エネルギー的である森林、土壌、水路、池沼及び水草帯の自然の浄化力を定量化し、この浄化力を水質改善に応用することを目的として研究が遂行された。

本報告書は中間報告も含めた9分冊報告書の第5分冊で、汚濁負荷の発生と流出・流達と副題をつけ、大気からの栄養塩降下量、生活雑排水とそれに含まれる合成洗剤の負荷原単位、渓流水質から見た森林の浄化機能、水質の流下過程における変化の物質収支法による評価、無機イオンの流出負荷量原単位と流出特性、小河川流域の流出負荷量とその流出特性などに関する8件の報文を収録している。これらの報文は、昭和58～59年度の特別研究報告第95号（中間報告）以降の継続的な研究成果もあれば、昭和58～61年度の4年間を通しての研究成果も含まれている。いずれも、霞ヶ浦流域を研究の場とした汚濁物質や栄養塩の負荷発生と流出・流達に関した報文であり、二つの研究グループ（汚濁負荷グループ：報文1～3、流出・流達グループ：報文4～8）の研究成果である。

大気降下物の栄養塩負荷については、昭和58年以前のデータを加えて経年変化や季節変化が明らかにされている。生活雑排水と合成洗剤の汚濁負荷原単位については、造成された住宅地で集中的に調査が行われ、原単位の比較や負荷削減の実践活動の検討がなされている。森林の浄化機能については、筑波山系に試験地を設定して渓流水質の調査と解析を行うとともに、その水収支と物質収支からの評価を行っている。また、汚濁負荷の流達については、農業用水路における調査データを加えて、通常の汚濁負荷量状態での日平均の流達率や総括的な自浄係数の算定がなされている。汚濁負荷の流出については、霞ヶ浦流入河川やその上流部の支川における定期調査や降雨時調査をもとに、無機イオンや有機汚濁物質の流出負荷量原単位とその流出特性の検討を行っている。

これら研究はいずれも当研究所に近い霞ヶ浦流域を研究の場としているものの、その研究成果や研究手法は他の地域や流域でも利用できるものと信じている。当研究所では引き続き昭和62年度からは「環境容量から見た水域の機能評価と新管理手法に関する研究」を開始している。今後の研究推進のためにも環境問題に携わる多くの方々より御批判を賜われれば幸いである。

昭和63年3月

国立公害研究所

所長 江上信雄

目 次

Abstract	1
I. 研究の概要	3
海老瀬潜一	
II. 報 文	
1. 大気からの栄養塩降下量とその変動	13
-降水とドライフォールアウトによるものの特性-	
安部喜也	
2. 生活雑排水に含まれる合成洗剤の負荷原単位	25
稲葉一穂・須藤隆一	
3. 生活雑排水の汚濁負荷原単位	39
細見正明・稲葉一穂・原沢英夫・須藤隆一	
4. 渓流水質からみた森林の浄化機能に関する研究(第3報) 溶存物質の流出機構	53
平田健正・村岡浩爾	
5. 渓流水質からみた森林の浄化機能に関する研究(第4報) 水収支と物質収支	75
村岡浩爾・平田健正	
6. 流下過程の水質変化の物質収支法による評価	99
海老瀬潜一	
7. 流域からの無機イオンの流出負荷量原単位と流出特性	111
海老瀬潜一	
8. 小河川流域の流出負荷量とその流出特性	133
海老瀬潜一	

CONTENTS

Abstract	1
I. Outline of the Studies	3
Senichi EBISE	
II. Papers	
1. Variation of the Amounts of Fallout Nutrients at Tsukuba	13
Yoshinari AMBE	
2. Per Capita Loadings of Synthetic Detergents in Gay Water	25
Kazuho INABA and Ryuichi SUDO	
3. Per Capita Loadings of Gray Water	39
Masaaki HOSOMI, Kazuho INABA, Hideo HARASAWA and Ryuichi SUDO	
4. Study on Water Purification of Forest from View of Stream Water Quality (III) Runoff Mechanism for Dissolved Material	53
Tatemasa HIRATA and Kohji MURAOKA	
5. Study on Water Purification of Forest from View of Stream Water Quality (IV) Water and Element Budgets	75
Kohji MURAOKA and Tatemasa HIRATA	
6. Estimation on Change of Water Quality during Flowing down in an Irrigation Channel by Mass Balance	99
Senichi EBISE	
7. Specific Loadings of Inorganic Ions from River Basins and Their Runoff Characteristics	111
Senichi EBISE	
8. Pollutant Loadings and Their Runoff Characteristics in Small River Basins ...	133
Senichi EBISE	

Abstract

This is the first series of final reports on the project research, "Comprehensive Studies on Effective Use of Natural Ecosystems for Water Quality Management" carried out during fiscal 1983-1986. Eight studies for estimating of fallout nutrient loading, per capita loading of gray water, river pollutant and nutrient loadings, change of river loading during flowing down, and purification ability of forest are included.

The results obtained are summarized as follows.

Monthly amounts of nutrient in the rain water and dry fallout have been measured at Tsukuba since 1977, and their seasonal and secular variations were analyzed. Fallout of total inorganic-N increased gradually with some minor variations, while total-P did not show such an increasing trend.

The surveys were carried out to estimate per capita pollutant loadings of gray water in small residential area, including the loading of synthetic detergent. Per capita loadings of gray water were 216 l/cap/d, 16.7g BOD/cap/d, 7.25g COD/cap/d, 1.33 gN/cap/d, 0.210 gP/cap/d, 2.1 g MBSS/cap/d, 1.0 gLAS/ cap/d and 0.07g POE-NS/cap/d. Though per capita loading of POE-NS was decreased about 30% by citizens' campaign for on-site reduction of loading, the reduction amounts of discharge rate, TOC, T-N and T-P estimated from the data with hourly sampling had the fluctuation of about 20% as coefficient of variation.

The studies on the changes of inorganic ion concentrations of streamwater in Tsukuba experimental forested basin during the flooding period of storm events have concluded that the runoff behaviors of inorganic ions was distinguished two types. Type I, which shows approximately the same concentration around the end of direct runoff period as the baseflow level of pre-storm, was the group of SiO₂, Na, Cl and specific conductance. Type II, which overshoot the baseflow level, was the group of NO₂-N, K, Ca and Mg. These runoff behaviors of inorganic ion were discussed the relationships between streamwater and soilwater.

The water budget and mass balances of inorganic ions in the experimental forested basin became clear for two years. The annual runoff rates were respectively 48% and 49%. The net gains in the forest occurred in NH₄-N, NO₂-N and PO₄-P, and net loss in NO₃-N, SiO₂, Cl, SO₄, Na, K, Mg and Ca on the basis of annual input-output budgets.

The specific loadings and runoff characteristics of inorganic ions were discussed on the basis of the results of the weekly observation for thirteen rivers and the storm runoff observation for seven rivers. From the correlation analysis between specific loadings of inorganic ions and the area ratios of land-use types in river basins, most of inorganic ions showed bigger correlation coefficients for urban area and agricultural area. But nitrate ion only became a higher correlation coefficient for farmland area. The increase of potassium concentration at the stage of the biggest peak of discharge during storm runoff periods was recognized as well as nitrate and sulfate ions.

The amounts of pollutant loading changes during flowing down in river and irrigation canal were estimated from the view points of flowing down rate and the degradation of organic matters. The estimating method was based on the data of the

24hrs observations under the ordinary loading condition, instead of the method by injecting an organic compound of high concentration. In the case where the sedimentation of particulate matter was a little, the flowing down rates of pollutant loading became nearly about 1.0. The deoxygenation coefficients of organic matters in the irrigation canal became larger than the usual values.

In three small river basins where the types of land-use and water-use were simple, the observations and statistical analysis were done to estimate more precisely the magnitude and runoff characteristics of pollutant loading for dry-weather day and rainy weather day. Particularly, the coefficients in the regression model for the estimation of storm runoff loading were discussed from the view point of the land-use characteristics of river basins.

研究の概要 Outline of the Studies

海老瀬 潜一¹
Senichi EBISE¹

1 研究目的

昭和58～61年度の特別研究「自然浄化機能による水質改善に関する総合研究」は、10の研究グループに分かれて4年間行われた。この特別研究は、水域の水質保全上ますます問題となってきた生活排水をはじめとする点源並びに山地、農耕地、市街地等の面源からの汚濁物質の流出・流達の実態を明らかにして、池沼、水路、土壌、水草帯等の有する自然浄化機能を解明し、これらを積極的に活用した新しい水質管理システムを確立すべく行われた研究である。

湖沼や河川の流域への汚濁負荷の入力は、自然的な要因によるものとして降水・降下塵等大気からの降下物があり、人為的な要因によるものとして各種の産業活動による負荷や生活に伴う負荷がある。このような汚濁負荷の発生量の定量とその特性を明らかにすることが、第1（汚濁負荷）グループの研究目的である。また、第2（流出・流達）グループの研究目的は、森林域の自然浄化機能の解明や山地・農耕地・市街地等の面源負荷からの排出負荷量の算定に加えて、河川における汚濁負荷の流出・流達過程での変化の定量化である。

本報告は上記の二つの研究グループの成果を収録したもので、上記特別研究の最終報告書の研究報告4分冊、総合報告及び霞ヶ浦全域調査資料の中の第1分冊である。既にこの特別研究の前半2年間の研究成果は4分冊で報告されており、その第1分冊の続編に当たる。

2 研究成果

第1及び第2グループの研究成果の概要を以下に示す。

(1) 第1グループ（報文1～3）

湖沼や河川の水表面へは直接負荷となり、面源負荷として流域への入力となる降水や降下じん等の大気降下物に対して、主に栄養塩の降下量の定量とその季節変動の特性を明らかにした。1か月単位で降水のみの試料と降下物全体の試料の回収を

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environmental Division, the National Institute for Environmental
Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

行った結果、年間降下量は全リンが23.2~45.5 (平均31.8) $\text{mg}/\text{m}^2/\text{y}$ 、全無機態窒素が732~1364 (平均1031) $\text{mg}/\text{m}^2/\text{y}$ の範囲にあった。1977年の観測開始以来の経年変化の傾向は、全リンが1981年頃から減少を示したが1986年以降は再び上昇傾向にあった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ は500 $\text{mg}/\text{m}^2/\text{y}$ 前後で安定しているが、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は2~3年周期で変動しながら増加する傾向を示し、全無機態窒素は9年間で約1.5倍に増加した。季節的にはいずれも春から夏にかけて高く、秋から冬にかけて低い傾向にあった。年降水量と全無機態窒素の降下量との間には正の相関が認められた。降下量を降水によるものとドライフォールアウトによるものに分けると、全リンで66%、全無機態窒素で60%が降水によるものであり、ドライフォールアウトと降水の窒素/リン比に大きな違いが見られ、ガス体の雨水への取り込みが考えられた。

生活系排水の平均的な汚濁負荷原単位の推定するため土浦市、長野市及び上田市の住宅地で生活排水及び生活雑排水の調査を行うとともに、アンケート調査を実施して排出負荷量とその背景との関係の検討を行った。この結果の多くは中間報告にまとめられている。さらに、し尿のみが系外処理されている25戸の集落において季節ごとの原単位調査を実施したほか、生活雑排水の排出原単位対策としての実践活動の効果の検討も行った。生活雑排水の汚濁負荷量の季節変化は認められず、BODやCODでは既報告値の最低値に近かった。1時間1回のサンプリング頻度では、流量とTOC、T-N、T-Pの汚濁負荷量で20%前後のバラツキがあった。生活雑排水の発生源対策としての実践活動により、TOCとMBASを除いて平均的に15%前後の削減効果が認められた。しかし、窒素やポリオキシエチレン型非イオン性界面活性剤を除けば、統計的には実践活動の前後での有意差は認められなかった。これは、既に住民が汚濁負荷量の削減に努めていたことと、サンプリング頻度によるバラツキの大きさにその効果が不明りようになったためと考えられる。

(2) 第2グループ(報文4~8)

筑波山系に67.5haの森林試験地を設定し、林外雨・林内雨・土壌水・地下水・渓流水の水量と水質の定期調査により、その水収支と物質収支を明らかにした。1985年度と1986年度の降水量と流出量に差はなく、流出率も48、49%で差は認められなかった。森林域からの流出負荷量は流量に支配されており、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が入力より出力が小さく、全無機態窒素はその逆になった。毎木調査による植物体固体量は降水からの入力では不足し、土壌からの補給が考えられる。渓流水中の溶存物質の流出変化を隔週ごとの定期調査と4回の降雨時流出調査から明らかにした。 $\text{NO}_3\text{-N}$ とCaが夏季に高濃度、冬季に低濃度の傾向を示したものの、他の水質項目では季節変化の特徴は認められなかった。降雨流出時には、流量増加時に濃度減少し、流量減速時に濃度増加して降雨終了後にはほぼ降雨前の濃度レベルに回復する物質とそれを上回る物質とに分かれた。ただ、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ と SO_4^{2-} はどちらのタイプとも言えない変化であった。降雨前後の土壌水の採取により、前者のタイプの物質は土壌層の鉛直方向に濃度分布が一樣か土壌表層で小さい分布形、後者のタイプは土壌表層に高濃度となる分布形になることが確認でき、地表面近くの土壌水が降雨の中間流出成分となって流出すると考えられる。

流域から河川を通じて排出される物質で、特に無機イオンに注目して、その流出負荷量原単位

と流出特性を流域内の土地利用形態との関係から検討し、流出特性を流量変化、特に降雨時流出における変化の特徴を明らかにした。霞ヶ浦に流入する10河川での毎週1回定時で1年間の流出負荷量調査データで解析した。有機汚濁の進んだ布街地河川ではほとんどの水質項目の比流出負荷量が高いが、 NO_3^- -Nは農耕地の多い河川で高い特徴が見られた。無機イオンの濃度や負荷量の変化は流量に大きく影響される。特に降雨流出時の調査から、流量増加に対して濃度をあまり減少させず、かえって濃度増加を示す無機イオンがあり、いずれの無機イオンも降雨流出時に流出負荷量ピークを示す流出特性が明らかとなった。 NO_3^- -Nや SO_4^{2-} の陰イオンだけでなく、陽イオンのKも流量増加時に濃度上昇することが確認された。Ca, Mg, Naについても同様の濃度上昇の見られる場合があった。

汚濁物質の河川や水路での流下過程における水質変化を評価するために、途中からの流出入の無視できる市街地河川(2.85km区間)と途中での流出入のない農業用水路(2.90km区間)において、上下流点での物質収支がとれる流出負荷量調査を実施した。晴天時24時間調査や定期調査結果より、市街地河川の山王川下流ではT-Nで8~13%、T-Pで14~35%、T-CODで14~35%の負荷量減少となり、リン酸態リンの懸濁物質への吸着と懸濁態リンの沈殿による減少が推定された。農業用水路の土浦用水では、通常の負荷量状態で1日の水質変化パターンを含んだ形で、日平均流達率を算定した。懸濁態有機物で0.7~1.0の値となるが、流路形状が一定で流速も大きいため他の水質項目ではほぼ1に近い値となった。上下流点での流量重みづけをした有機物質の日平均の濃度差から、酸化分解に沈殿や吸着などを含めた総括的な自浄係数を脱酸素係数の算定式によって求めた。従来の高濃度の精製有機化合物を上流に瞬時投入して下流での回収量から算定する手法で求められた値より、今回の通常の負荷量状態で種々の周日変化を含めた物質収支法に基づいた総括的な自浄係数は大きな値となった。

また、流域から河川を通じて流出する汚濁負荷の大きさと流出特性を高い精度で把握するため、人為的な汚濁負荷が少なくて比較的自然的な状態に保たれている河川上流部で流域が隣接する3河川の小流域において、降水負荷量調査、晴天時流出負荷量調査及び降雨時流出負荷量調査を実施した。その結果に基づいて、算定した原単位の降水負荷との比較評価や降雨時流出の回帰モデル式の検討を行っている。

3 研究組織及び研究成果一覧

本特別研究担当者のうち、表1及び表2に示す研究者がこの研究グループの研究と報告書の作成に携わった。また、表3には研究成果発表を一覧にした。

表1 研究担当者所属・氏名

プロジェクトリーダー	水質土壌環境部長	合田 健 (58~60年度), 村岡浩爾 (61年度)
水質土壌環境部		
陸上環境研究室	須藤隆一, 矢木修身, 岡田光正, 稲葉悠平, 細見正明, 富岡典子, 山根敦子	
水質環境計画研究室	村岡浩爾, 海老瀬潜一, 平田健正	
計測技術部		
大気計測研究室	安部喜也, 横内陽子	
分析室	西川雅高	

表2 客員研究員所属・氏名

橋本 奨 (58~61年)	(大阪大学工学部)
中沢雄平 (59~61年)	(長野県衛生公害研究所)
岡田光正 (60~61年)	(東京農工大学工学部)
滝 和夫 (61年)	(千葉工業大学工学部)
日野幹雄 (58~61年)	(東京工業大学工学部)
新藤静夫 (58~61年)	(筑波大学地球科学系)
宗宮 功 (58~61年)	(京都大学工学部)
田中 正 (58~61年)	(筑波大学地球科学系)
中辻啓二 (58~61年)	(大阪大学工学部)
津野 洋 (58~61年)	(京都大学工学部)
國松孝男 (58~61年)	(滋賀県立短大農業部)
浮田正夫 (58~61年)	(山口大学工学部)
橘 治國 (58~61年)	(北海道大学工学部)
山本哲也 (58~61年)	(茨城県公害技術センター)
端野道夫 (60年)	(徳島大学工学部)
合田 健 (61年)	(摂南大学工学部)

表3 研究発表リスト

〔口頭発表〕

- 安部喜也・西川雅高：降水中の粒子の元素組成について，1983年度日本地球化学会年会，八王子（58.10）
- 安部喜也：降水成分のデータ解析における二三の問題点，第24回大気汚染学会，四日市（58.11）
- 安部喜也・西川雅高：上越地域および最上川流域における降雪中の微量成分濃度とその分布，第24回大気汚染学会，四日市（58.11）
- 安部喜也：大気降下物中の栄養塩とその変動，日本陸水学会第49回大会，筑波（59.9）
- 安部喜也・西川雅高：降水中の粒子とその含有成分の変動，日本地球化学会昭和59年度年会，名古屋（59.10）
- 安部喜也・西川雅高：東京－筑波における積雪中の化学成分濃度の分布，第25回大気汚染学会，宇部（59.11）
- 安部喜也・西川雅高：筑波地域における降水中の微量成分濃度の変動と降雨特性，第25回大気汚染学会，宇部（59.11）
- 安部喜也・西川雅高：筑波地域における降水の水質特性とその変動，水文学研究会・陸水物理研究会第3回合同研究会，東京（59.12）
- 安部喜也：湖沼の栄養塩収支における大気降下物の意義，日本陸水学会第50回大会，大津（60.10）
- Ambe Y. and M. Nishikawa: Variations of chemical constituents in particulate matter in rain water. The 1984 Int Chem. Congr. Pac Basin Soc. Honolulu (59.12)
- 安部喜也・横内陽子・西川雅高：筑波における大気降下物中のリン，窒素含量とその変動，第27回大気汚染学会，京都（61.11）
- 稲葉一穂：CTAS法による非イオン性界面活性剤の分析法の検討，第20回水質汚濁学会，東京（61.3）
- 稲森悠平・風見敏明・須藤隆一：回転円板法による生活排水の脱窒，日本水処理生物学会第20回大会，大阪（58.11）
- 海老瀬潜一：河川流出負荷量から見た土地利用形態別流出負荷原単位，土木学会第38回年次学術講演会，横浜（58.9）
- 海老瀬潜一：降雨流出による溶存物質負荷量の増加，日本陸水学会第49回大会，筑波（59.9）
- 海老瀬潜一：晴天時と降雨時の流下区間物質収支による河川自浄作用の評価，土木学会第39回年次学術講演会，京都（59.10）
- 海老瀬潜一：降雨時に流出する河床付着藻類・付着生物量の評価，土木学会第40回年次学術講演会，仙台（60.9）
- Ebise, S: Estimation on drainage of nitrate from surface soil layer to river by storms. Int. Congr. "Nitrates in Water", Paris (60.10)
- 海老瀬潜一：りん酸態りんの流下に伴う懸濁物への吸着による減少，第20回水質汚濁学会，東京

(61.3)

海老瀬潜一：霞ヶ浦集水域における汚濁負荷の動態－集水域からの汚濁負荷の発生と流出。日本
土壌肥料学会（昭和61年度筑波大会），筑波（61.4）

海老瀬潜一：物質収支法による流下過程の水質変化の評価。第21回水質汚濁学会，小金井（62.3）

海老瀬潜一：無機イオンからみた河川の水質汚濁の評価。土木学会第42回年次学術講演会，札幌
（62.9）

海老瀬潜一：降雨による流量増加時の陽イオン濃度の上昇。日本陸水学会第52回大会，札幌
（62.10）

鈴木基之・岡田光正・河田孝雄：酸化池による生活雑排水の処理。化学工学協会第48年会，京都
（58.4）

合田 健：ノンポイントソースの制御。第3回琵琶湖研究シンポジウム，大津（59.12）

須藤隆一：これからの生活排水処理をめぐって。化学工学協会第17回秋季大会，仙台（58.9）

須藤隆一：生活雑排水処理における回転円板法。第5回回転円板法研究シンポジウム，東京
（58.10）

須藤隆一：自然浄化機能を活用した雑排水対策。日本水質汚濁研究会，雑排水対策セミナー。東
京（58.11）

須藤隆一：生活雑排水に関する技術的諸問題。生活系排水処理に関する講演会，東京（60.11）

須藤隆一：今後の生活雑排水処理対策について。第12回環境保全公害防止研究発表会，東京
（60.12）

須藤隆一：生活雑排水対策。第2回手賀沼シンポジウム，柏（61.8）

須藤隆一：私たちの生活雑排水と水。日本水処理生物学会第23回大会，猪苗代（61.10）

須藤隆一：生活雑排水について。第2回水環境問題対策推進協議会，秋保（61.10）

平田健正・村岡浩爾：山地小流域の渓流水質について。日本陸水学会第50回大会，大津（60.10）

平田健正・村岡浩爾：筑波山系の渓流水質について。日本陸水学会第51回大会，清水（61.10）

平田健正・村岡浩爾：森林小流域の渓流水質。土木学会第41回年次学術講演会，福岡（61.11）

Hirata, T and K. Muraoka: Separation of runoff components by stream solute. 23rd SIL
Congress, New Zealand, Hamilton（62.2）

平田健正・村岡浩爾：筑波山とその周辺の渓流水質。土木学会第42回年次学術講演会，札幌
（62.9）

細見正明・稲葉一穂・稲森悠平・原沢英夫・須藤隆一：アシ原による生活雑排水の処理。日本水
処理生物学会第23回大会，猪苗代（61.10）

細見正明・稲葉一穂・稲森悠平・原沢英夫・須藤隆一：アシ原の自然浄化能を活用した生活雑排
水処理。第4回自然浄化シンポジウム，筑波（62.3）

村岡浩爾・平田健正・岩田 敏：孤立林地の地下水水質の変化。第18回水質汚濁学会，東京
（59.3）

Muraoka, K and T. Hirata: Field observation of water quality in runoff process. US-
Japan Seminar on Physical Hydrology, Honolulu, Hawaii（62.1）

- 山根敦子・岡田光正・須藤隆一：浅い汚濁都市河川の自浄作用。日本陸水学会第48回大会，松本（58.9）
- 山根敦子・岡田光正・須藤隆一：生活雑排水の原単位。日本水処理生物学会第20回大会，大阪（58.11）
- 山根敦子・岡田光正・須藤隆一：汚濁都市河川の底泥における有機物の分解。第18回水質汚濁学会，東京（59.4）

〔印刷発表〕

- Ambe, Y. and M.Nishikawa (1983) : Measurements of fluctuations of the concentrations of trace elements in rain water. Proc. 6th World Congr. Air Qual., 1983, Paris, 97-99.
- 安部喜也・西川雅高（1985）：筑波地域における降水成分の特性について。ハイドロロジー，15，2-11.
- Inaba, K. (1987) : Determination of trace levels of polyoxyethylene-type nonion surfactants in environmental waters. Inter. J. Environ. Anal. Chem., 31, 63-73.
- 稲森悠平・須藤隆一（1983）：生活排水中の窒素，リン対策について。公害と対策，19(7)，48-55.
- 稲森悠平（1984）：生活雑排水および屎尿浄化槽放流水による公共用水域の富栄養化とその対策。建設設備と配管工事，22(2)，39-46.
- Inamori, Y., R.Sudo and T.Goda (1985) : Domestic sewage treatment using anaerobic bio-filter joined with aerobic bio-filter. IAWPRC's first asian conference on treatment, disposal and management of human wastes. 214-220.
- Inamori, Y., R.Sudo and T.Goda (1985) : Domestic sewage treatment using anaerobic bio-filter joined with aerobic biofilter. Water Sci. Technol., 18, 209-216.
- 稲森悠平・矢木修身・須藤隆一（1986）：沿岸海域の水質保全のための窒素，リン除去対策。用水と廃水，28(1)，66-77.
- 稲森悠平・矢木修身・須藤隆一（1987）：土壌トレンチ法による生活雑排水処理とその浄化特性。用水と廃水，29(1)，51-59.
- 海老瀬潜一・相崎守弘・大坪国順・村岡浩爾（1983）：河川流出負荷量としての河床沈殿・堆積物量の評価。水質汚濁研究，6，93-103.
- 海老瀬潜一（1984）：降雨時流出負荷量算定のための回帰モデル。衛生工学研究論文集（土木学会），20，27-38.
- 海老瀬潜一・村岡浩爾・佐藤達也（1984）：降雨流出解析における水質水文学的アプローチ。土木学会第28回水理講演会論文集，28，547-552.
- Ebise, S. (1984) : Separation of runoff components by NO_3^- -N loading and estimation of runoff loading by each component. In: Hydrochemical Balances of Freshwater Systems, (ed) E. Eriksson, Int. Assoc. Hydrol. Sci. 428p., 393-405.

- 海老瀬潜一 (1984) : 晴天時と降雨時流出を併せた土地利用形態別流出負荷量原単位. 京都大学環境衛生工学研究会第6回シンポジウム講演論文集, 6, 152-158.
- 海老瀬潜一 (1985) : 降雨による土壌層から河川へのNO₃⁻の排出. 衛生工学研究論文集 (土木学会), 21, 57-68.
- Ebise, S. and T.Goda (1985) : Regression models for estimating storm runoff load and its application to Lake Kasumigaura. Int. J. Environ. Stud., 25, B, 73-85.
- 海老瀬潜一 (1985) : 汚濁物質の降雨時流出特性と流出負荷量. 水質汚濁研究, 8(8), 31-36.
- 海老瀬潜一 (1986) : 陰イオン物質流出動態の土地利用形態による相違. 土木学会第30回水理講演会論文集, 30, 37-42.
- 岡田光正・須藤隆一・江島玄泰・稲森悠平 (1984) : 水路浄化法による生活雑排水処理に関する基礎的研究. 用水と廃水, 26, 595-605.
- 岡田光正 (1985) : 生活系排水の原単位. 第2回自然浄化シンポジウム-自然浄化機能による水質改善- (国立公害研究所), 7-14.
- 合田 健 (1984) : 水質汚濁防止対策の将来像-雑排水問題を考える前に-. 用水と廃水, 26, 457-472.
- 合田 健・須藤隆一他 (1985) : 生活排水処理システムの高度化に関する研究. 昭和59年度排水処理の高度化に関する総合研究(環境庁, 240p.), 9-1-9-23.
- 須藤隆一 (1983) : 雑排水をどうするか. 用水と廃水, 25(4), 47-53.
- 須藤隆一 (1984) : これからの生活排水処理をめぐって. 化学工学シンポジウムシリーズ, 4, 1-10.
- 須藤隆一 (1984) : これからの生活排水処理技術. 化学装置, 26(1), 58-63.
- 須藤隆一 (1984) : 生活雑排水処理における回転円板法. 環境技術, 13, 734-740.
- 須藤隆一 (1984) : 小規模生活排水処理における将来の処理システム. 環境技術, 13, 734-740.
- 須藤隆一 (1984) : 生活雑排水の処理技術. 水質汚濁研究, 7, 146-153.
- 須藤隆一 (1984) : 生活雑排水対策-小型合併処理の処理技術. 生活と環境, 29(7), 16-24.
- 須藤隆一 (1985) : これからの生活排水の処理技術. 住宅設備, 6(1), 45-50.
- 須藤隆一 (1985) : 生活雑排水対策の現状と課題. 設計資料, 21, 43-47.
- 須藤隆一 (1985) : 湖沼の汚濁と生活排水. 統計, 36(12), 7-12.
- 須藤隆一・稲森悠平 (1986) : 湖沼水質保全のための生活雑排水対策. 用水と廃水, 28, 825-835.
- 平田健正・村岡浩爾 (1986) : 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について. 第30回水理講演会論文集, 43-48.
- 平田健正・村岡浩爾 (1987) : 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について(2). 第31回水理講演会論文集, 59-64.
- Hosomi, M. and R. Sudo (1986) : Simultaneous determination of total nitrogen and total phosphorus in freshwater samples using persulfate digestion. Int. J. Environ. Stud., 27, 267-275.

- 細見正明（1987）：モデル水系におけ底質土の物質浄化機能．土・水研究会資料，農業環境技術研究所，63-78.
- 村岡浩爾（1987）：森林と河川の役割，水質源の保全．吉良竜夫編，人文書院，京都，113-118.
- 山根敦子・岡田光正・須藤隆一（1983）：有リン洗剤の使用禁止に伴う生活排水の汚濁負荷単位の変化．下水道協会誌，7(1)，1-9.
-

大気からの栄養塩降下量とその変動
- 降水とドライフォールアウトによるものの特性 -
Variations of the Amounts of Fallout Nutrients at Tsukuba

安部喜也¹

Yoshinari AMBE¹

要 旨

湖沼の水面あるいは流域に大気圏を通じて供給される栄養塩量とその変動の特性を明らかにすることを目的として、前期水特研より引き続いて、大気降下物中に含まれるリン及び窒素化合物濃度を測定した。測定は一か月単位で採取した降水のみの試料と降下物全体についての試料について行った。

季節変動の特徴については、先に報告した結果とあまり変わっていない。すなわち、Total-P については平均的に3月と6、7月に2回の高い時期があり、前者では変動が大きいものに対して、初夏の高い値は、おおむね毎年に見出し、生物活動との関連が推定される。Total-I,N は春から夏に高く、秋から冬に低かった。

降下量の経年変動について、Total-P は1981年頃から一様に減少の傾向にあったが1956年度には再び上昇を示した。N化合物については $\text{NO}_3\text{-N}$ は $500\text{kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ を中心として変動しているが経年的には安定していたのに対して、 $\text{NH}_4\text{-N}$ が2～3年周期で変動しつつ増加する傾向を示した。結果としてTotal-I,Nも全体としてこの9年間に1.2倍程度の増加傾向にあった。

年降水量とTotal-I,N降下量の間には、明らかに正の相関が認められ、降下N化合物の挙動が降雨と関係の深いことが示された。

降雨による降下量とドライフォールアウトによるものを比較すると Total-Pでは降下量のうち66%がドライであるのに対して、Total-I,Nでは60%が降雨とともに降下していた。

また、N/P 比はドライフォールアウトの場合平均約23と植物のそれに近かったのに対し降雨時のN/P は約66と高く、 NO_2 、 NH_3 などガス体の雨水中への取り込みが関わっていることが示された。

Abstract

Monthly amounts of nutrients in the rain water and dry fallout have been measured at Tsukuba since 1977, and their seasonal and secular variations were analyzed in this study.

A rapid increase of the amount of fallout of total-P in the early summer was significant presumably reflecting the high biological activity in this season.

Total inorganic-N also showed a similar pattern of seasonal variation having a more marked increase in spring.

1. 国立公害研究所 計測技術部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Chemistry and Physics Division, the National Institute for Environmental Studies,
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

Total inorganic-N also showed a similar pattern of seasonal variation having a more marked increase in spring.

Fallout of total inorganic-N increased gradually during this observation period with some minor variations, while total-P did not show such an increasing trend.

Comparing the concentrations of N and P in rain water to those of total fallout, it was found that nitrogen compounds are mainly attributed to rain water and phosphorus compounds are to dry particulate matters.

1 まえがき

大気圏から地表に降下する栄養塩については古くから、栄養の供給源の一つとして林学や農学分野で関心がもたれ、我が国でも比較的早くから測定研究が行われてきた。最近、水域の富栄養化が問題とされるに及んで、水域へあるいは流域への栄養塩の起源の一つとして大気経由のコースが特に注目され、こうした観点からの研究調査も行われている¹⁾。しかしいずれも比較的断片的なものであって、長期にわたり継続的に調べた例はほとんどない。

筆者は1977年より霞ヶ浦流域における大気降下物中栄養塩の湖水の富栄養化に対する影響を評価することを目的として毎月ごとに測定を続けて、既に何回かその結果を報告している²⁻⁴⁾。本特別研究の一部としても流域の河川や湖沼での栄養塩代謝を考える際の初期条件の一つとなるものとして、引き続き観測を続け、従来の結果と合わせて、経年変化の特徴を明らかにした。また、先に予備的に行った降水とドライフォールアウトとを分けたサンプリングについても2年以上にわたるデータが得られたので、その比較、解析を行った。

2 方法

2.1 サンプリング

1977年6月から、国立公害研究所研究棟屋上で、降水とドライフォールアウトと一緒に採取するサンプラー2台を設置して月ごとにサンプリングを行った。毎月月初めに新しいピンをセットし月末に1か月分として採取し分析を行った。採取期間には場合によって長短があったが、30日に標準化して月降下量を求めた。

並置した2個の採水ピンには試水の変質を防ぐため、あらかじめ、一方に0.1N硫酸20mlを入れTotal-P及びNH₄-Nの分析に用い他方には0.1N水酸化ナトリウム溶液20mlを加えておき、NO₂-N、NO₃-Nの測定に用いた。前者のピンでは、密栓してロートとピンをつなぐパイプにループをつくって、降下した雨水の一部を一時的にそこに貯留することにより、外部大気の流入を遮断した。また、1984年10月からは、自動降雨採水器2基を併用して、降水時のみの試料を同様にして採取した。

2.2 分析

栄養塩として分析した項目は、Total-P、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-Nでいずれもオートアナライザー（Technicon社製）を用いて定量した。試料は1、2の場合を除いていずれも降水と共存して

いたので水試料として取り扱った。降水の共存しなかった試料については17の蒸留水を加えてかくはんし水試料とした。

サンプリング及び分析方法の詳細については前報^{*)}に記した。

なおここで測定した Total-P は溶解性の全リンと、粒子中のリン化合物を紫外線分解して水溶液中に溶出してきたものの含量であって、粒子中に一部が残存することも考えられるため、必ずしも厳密な意味の全リンではない。

しかしながら湖水の富栄養化への影響の評価という観点から、これをもってリン降下量の指標とした。また、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 含量を Total-I.N. (全無機態N) として表した。

有機態のNを含めた全Nの測定を数回行った例では全Nは Total-I.N. より5~10%程度増加する。ここでは長期間にわたって測定データが得られている Total-I.N. について議論の対象とした。

3 結果と考察

3.1 単位面積当たりの月間栄養塩降下量の季節変動

各月ごとに採取した降下物中の栄養塩濃度と各月の降水量とから単位面積当たりの月間栄養塩降下量を求めた。前報に引き続く1983年1月から1986年12月までの値を表1に示す。これは降水によるものと、ドライフォールアウトによるものとを合わせたもので1か月間に単位面積に降下したリンと無機態窒素の全量に相当する。カッコの中は採取期間を30日として補正した値である。

1978年1月から1986年12月までの9年間の季節変化の平均値と変動の状態を表2と図1に示す。

新たに測定した年度についても前報^{*)}に示した特徴は大きく変わっていない。すなわち、Total-Pについては平均的には3月と6,7月の2回の高い時期がある。しかし、前者は変動が大きく、年によっては必ずしも顕著な現象でない。一方初夏の高い値は、おおむね各年に認められた花粉の発生などの生物活動との関連が推定される。一方 Total-I.N. は春から夏に高く、秋から冬にかけて低くなる傾向を示した。特に3月にかけての急増は顕著で、ほぼすべての年においてみられた。この上昇は $\text{NO}_3\text{-N}$ にもみられるが、特に $\text{NH}_4\text{-N}$ において著しかった。一方 $\text{NO}_2\text{-N}$ については9月から10月にかけての急激な減少が特徴的にみられた。N化合物のこうした春季夏季における降下量の増大は生物活動の増大、気温の上昇等による大気中でのこれら化合物の存在量の増大と、前報でも示したように降水量との関係があげられる。

3.2 栄養塩降下量の経年変動

年間降下量の1977年から1983年までの経年変化の傾向については前報に示したが、引き続き、1986年までの変動の状態を図2に示す。

Total-P は $24\text{kgP/km}^2\cdot\text{y}$ と $48\text{kgP/km}^2\cdot\text{y}$ の間を変動し1981年から一様に減少の傾向をみせていたが1986年度には再び上昇を示した。N化合物については $\text{NO}_3\text{-N}$ は $500\text{kg/km}^2\cdot\text{y}$ を中心として変動をしているが傾向としては安定しているのに対して $\text{NH}_4\text{-N}$ が、2, 3年の周期で変動しつつ増加する傾向を示した。この結果として、Total-I.N.も全体としてこの9年間に1.2倍程度増加する傾向を示した。

表 1 単位面積当たりの月間栄養塩降下量 (カッコ内は補正值)
 Table 1 Monthly amounts of fallout nutrients at NIES, Tsukuba

		(kg/km ² : month)				
	Total PO ₄ -P	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	Total I.N.	
1983	Jan.	1.23(1.05)	27.3(23.4)	0.03>(0.03>)	28.00(24.0)	55.3(47.4)
	Feb.	1.59(1.70)	32.9(35.3)	(18.5?)(19.8?)	24.64(26.4)	76.3(81.8)
	Mar.	2.00(2.07)	56.7(58.6)	1.14(1.46)	39.6 (41.0)	98.0(101.4)
	Apr.	4.75(4.32)	118.8(108.0)	0.25(0.23)	99.00(90.0)	217.5(197.7)
	May	3.19(3.19)	67.6(67.6)	0.07(0.07)	64.52(64.5)	132.2(132.2)
	June	3.76(3.76)	125.3(125.3)	2.51(2.51)	72.32(72.3)	200.5(200.5)
	July	3.06(2.96)	141.0(136.5)	2.12(2.05)	69.56(67.3)	213.9(207.0)
	Aug.	1.84(1.84)	59.8(59.8)	1.38(1.38)	9.20(9.2)	70.4(70.4)
	Sept.	1.59(1.59)	95.3(95.3)	3.18(3.18)	51.76(51.76)	150.2(150.2)
	Oct.	1.28(1.24)	52.2(50.5)	1.62(1.57)	42.46(41.09)	96.8(93.2)
	Nov.	1.69(1.69)	39 (39)	2.15(2.15)	17.36(17.36)	58.5(58.5)
	Dec.	1.79(1.92)	16.6(17.8)	0.52(0.56)	1.9 (2.04)	19.0(20.4)
1984	Jan.	1.65(1.38)	35.8(29.8)	0.06(0.05)	19.91(16.59)	55.6(46.3)
	Feb.	1.12(1.20)	25.9(27.8)	0.77(0.83)	16.17(17.33)	42.7(45.8)
	Mar.	2.69(2.69)	49.9(49.9)	1.02(1.02)	44.15(44.15)	92.2(92.2)
	Apr.	1.98(1.92)	46.8(45.3)	0.06>(0.06)	28.38(27.46)	75.0(72.6)
	May	1.46(1.41)	48.8(47.2)	0.55(0.53)	2.75(2.66)	52.1(50.4)
	June	2.06(2.06)	102.9(102.9)	2.43(2.43)	44.13(44.13)	149.5(149.5)
	July	1.58(1.58)	70.6(70.6)	1.58(1.58)	39.26(39.26)	111.4(111.4)
	Aug.	3.02(2.59)	19.8(17.0)	3.02(2.59)	5.26(4.51)	28.1(24.1)
	Sept.	3.67(3.18)	47.9(41.5)	38.40(33.28)	26.0 (22.5)	112.3(97.4)
	Oct.	3.28(3.83)	44.3(51.7)	2.54(2.96)	28.2 (32.9)	75.4(88.0)
	Nov.	1.56(1.30)	20.1(16.8)	1.60(1.33)	13.3 (11.1)	35.0(29.1)
	Dec.	1.50(1.40)	27.0(25.2)	1.44(1.34)	14.3 (13.3)	42.6(39.8)
1985	Jan.	1.41(1.69)	13.9(16.7)	0.60(0.72)	11.5 (13.8)	26.0(31.2)
	Feb.	2.41(2.68)	68.5(76.1)	2.41(2.68)	49.8 (53.3)	120.3(133.7)
	Mar.	1.44(1.39)	67.7(65.5)	1.87(1.81)	55.3 (53.5)	125.3(121.3)
	Apr.	2.49(2.49)	71.4(71.4)	1.49(1.49)	42.5 (42.5)	116.2(116.2)
	May	1.56(1.51)	47.8(46.3)	1.20(1.16)	33.8 (32.7)	82.8(80.1)
	June	3.16(3.16)	91.6(91.6)	2.53(2.53)	66.7 (66.7)	161.2(161.2)
	July	0.52(0.50)	41.4(40.1)	1.13(1.09)	42.9 (41.5)	85.0(82.7)
	Aug.	1.74(1.93)	13.0(14.4)	1.30(1.44)	16.6 (18.4)	31.0(34.4)
	Sept.	0.92(0.81)	30.6(27.0)	1.38(1.22)	45.7 (40.3)	78.0(68.8)
	Oct.	0.92(0.89)	38.3(37.1)	1.42(1.37)	29.8 (28.8)	69.5(67.5)
	Nov.	1.13(1.09)	37.2(36.0)	1.76(1.70)	30.7 (29.7)	69.7(67.4)
	Dec.	5.84(5.00)	38.2(32.7)	1.13(0.96)	22.9 (19.6)	62.4(53.4)
1986	Jan.	0.11(0.13)	6.7(7.7)	0.71(0.82)	4.71(5.43)	12.1(14.0)
	Féb.	1.07(1.07)	15.1(15.1)	0.34(0.34)	10.4 (10.4)	25.8(25.8)
	Mar.	15.5 (15.5)	257.0(257.0)	2.65(2.65)	82.8 (82.8)	342.1(342.1)
	Apr.	3.0 (3.0)	88.0(88.0)	0.2 (0.2)	54.1 (54.1)	142.0(142.0)
	May	5.28(4.95)	174.4(163.5)	1.92(1.8)	52.96(49.7)	228.8(214.5)
	June	5.44(4.95)	160.0(145.5)	0.8 (0.73)	162.1 (147.3)	323.2(293.8)
	July	1.12(1.29)	59.4(68.5)	0.9 (1.07)	44.0 (50.8)	104.3(120.3)
	Aug.	6.4 (5.82)	226.3(205.7)	0.49(0.45)	18.5 (16.8)	246.0(223.6)
	Sept.	0.74(0.82)	71.3(79.2)	0.86(0.96)	69.7 (77.4)	141.5(157.2)
	Oct.	3.12(2.93)	46.9(44.0)	1.70(1.59)	36.57(34.3)	85.2(79.9)
	Nov.	3.3 (3.41)	50.6(52.3)	1.52(1.57)	19.4 (20.1)	71.3(73.8)
	Dec.	3.85(3.12)	72.6(58.9)	3.3 (2.68)	30.6 (24.8)	106.7(86.5)

表 2 月別月間栄養塩降下量の1978~1986年間における平均と変動係数

Table 2 Means and coefficients of variations of monthly fallout of nutrients per unit area in Tsukuba

		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	Mean	
Total-P	mean	1.5	1.9	4.0	3.3	3.3	3.6	7.0	2.5	2.1	1.9	1.7	3.1	3.0	P kg/km ² ·month
	c.v.(%)	51	40	105	41	50	25	11	33	62	57	57	52		
NH ₄ -N	mean	20	32	79	66	63	71	55	45	48	42	34	27	49	N kg/km ² ·month
	c.v.(%)	41	55	80	46	65	63	72	131	55	30	42	39		
NO ₂ -N	mean	0.5	7.6	1.3	0.5	7.8	6.5	2.4	0.8	7.3	3.7	1.5	1.5	3.5	N kg/km ² ·month
	c.v.(%)	78	125	75	107	260	154	189	99	157	166	49	110		
NO ₃ -N	mean	16	24	59	66	50	57	54	29	50	34	25	18	40	N kg/km ² ·month
	c.v.(%)	58	58	47	52	52	63	44	88	49	45	64	69		
Total-I.N.	mean	37	67	139	133	121	145	111	75	105	80	61	47	93	N kg/km ² ·month
	c.v.(%)	45	48	55	39	38	46	43	78	36	29	44	46		

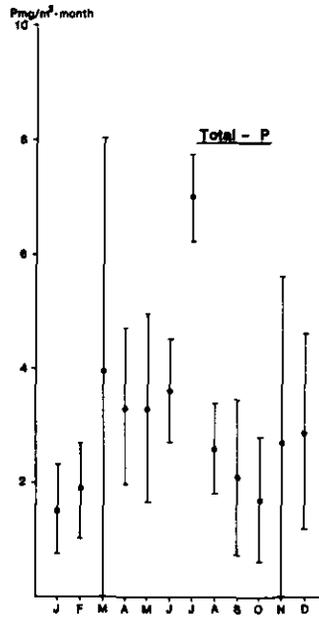


図 1(a) Total-P降下量季節変動

Fig. 1(a) Seasonal variations of the amounts of Total-P in the fallout

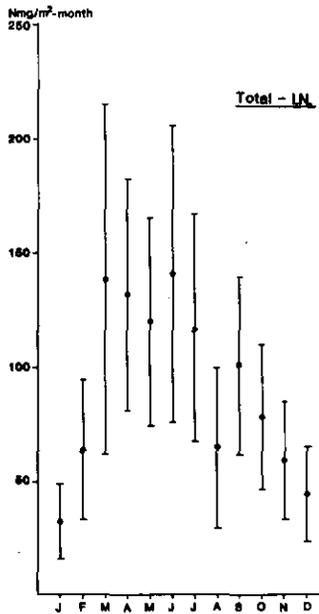


図 1(b) Total-I.N.降下量季節変動

Fig. 1(b) Seasonal variation of the amounts of Total-I.N. in the fallout

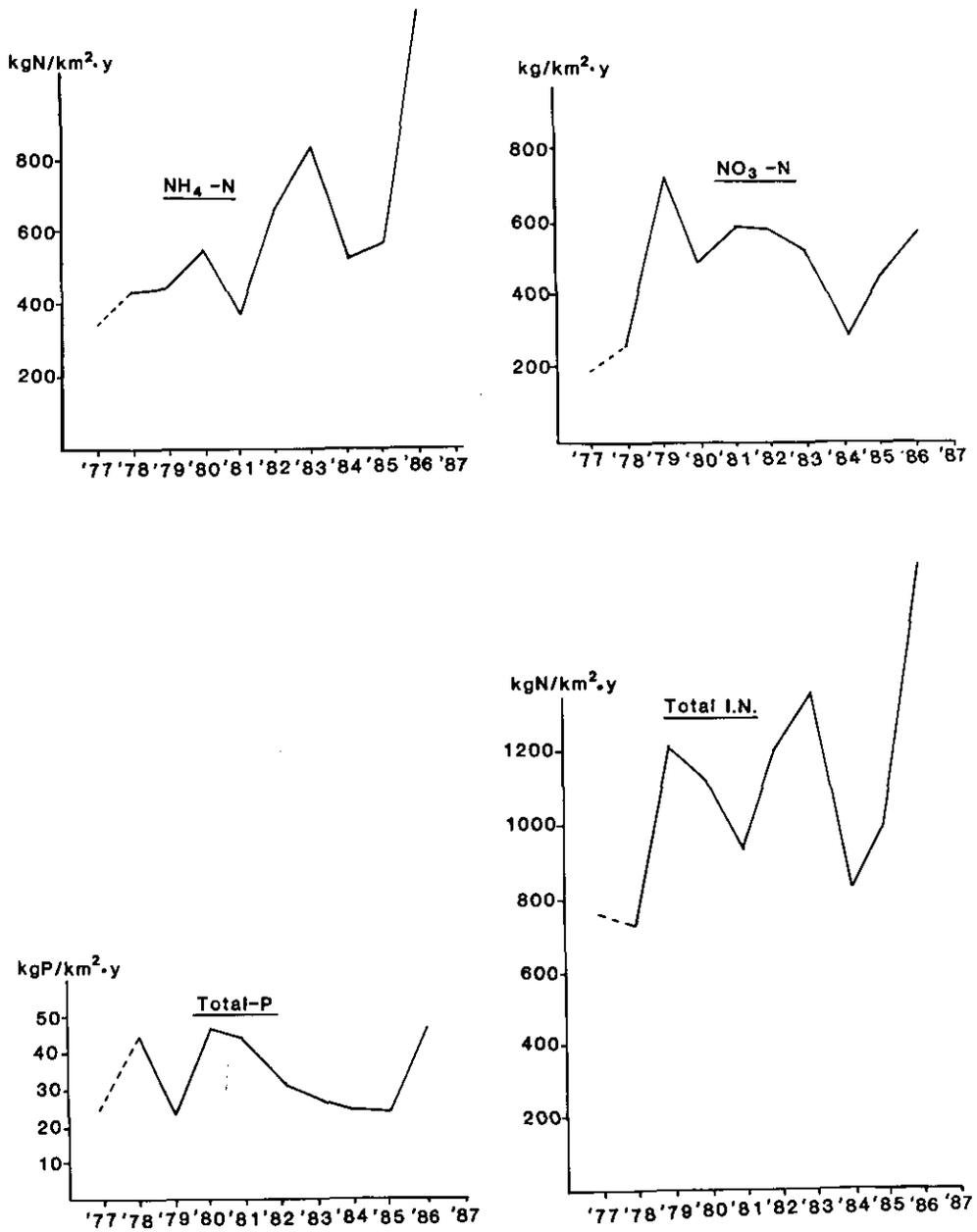


図 2 栄養塩年間降下量の経年変化

Fig. 2 Secular variations of the amounts of fallout nutrients

また小さな変動について Total-P, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$ のそれぞれの間には特に関係は認められなかった。しかしながら、年降水量と Total-I.N. の間には図3のように、前報までの期間では求められなかった、かなりはっきりした正の関係が認められ降下N化合物の挙動が降雨との関係が強いことが示された。

3. 3 降雨による降下量とドライフォールアウトによる降下量

全降下物と並行して、降雨時のみについてサンプルをとって、月間の降雨による降下量とした。全降下物量との差をドライフォールアウトによるものとした。1985, 86年の2年間について、それぞれの成分について降雨による分の変化を図4に示す。

平均的にみると、Total-P では降下量の約66%がドライフォールアウトとして降下するに対して、Total-I.N. では60%が降雨とともに降下している。なかでも $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$ は66%が降雨とともに降下している。 $\text{NH}_4\text{-N}$ でもドライフォールアウトの分が異常に大きかった月を別にすれば2/3以上が雨に由来している。このことは前報^{3,4)}で予察的に示された結果をさらに確かめるものである。

全降下量のうち降雨時に降った分の割合をR(%)として、その季節的特性をみるとTotal-Pの場合いずれの年も、4月に1度低い値をとり5,6,7月と少し高いが、8月以降低下している。Total-I.N.については2回の年の状況は類似していないが、いずれも月による変動は大きくない。

ドライフォールアウトによる量と、降雨による量のそれぞれの変動は表3ようになる。

Total-Pでは降雨による場合が高いのに対して、Total-I.N.の方が変動度は低く、ドライフォールアウトと降雨の間の差はなかった。

3. 4 雨水中栄養塩濃度の変動

雨水中に含まれる栄養塩濃度の1月単位での平均値は表4のごとくである。ただし、1月2月の降水量が10mm/m以下の場合には、蒸発による濃縮効果のために、測定した雨水の実際の濃度よりも高くなっているものと考えられるので考察の対象から除いた。他の月の場合も同様な効果は当然あるが、雨量が多いので濃度に対する影響は無視した。

Total-Pの場合、1985年度と1986年度では変動の様子は著しく違っていた。すなわち、1985年には、変動幅は3~20 $\mu\text{g/l}$ で平均値と標準偏差は $8 \pm 5 \mu\text{g/l}$ で5,7,8月に高かったのに対して、1986年度では、1~43 $\mu\text{g/l}$ ($17 \pm 18 \mu\text{g/l}$)と幅も広く、7月まで高濃度に対し、8月以降は2 $\mu\text{g/l}$ 以下であった。生物活動の盛んな夏季に高濃度になり、秋季に低下するが、こうした濃度差の原因については確認されていない。月間降水量と濃度との間には特別の関係は認められてなかったが、月200mm以上の降水の場合は5 $\mu\text{g/l}$ 以上にはならなかった。

N化合物の月平均の雨水中濃度の単純平均と変動を表に示すが、N化合物の変動係数は50%以下でPと比べて小さい。濃度変動が比較的小さいことは降下量が降水量に比例してくることを意味している。

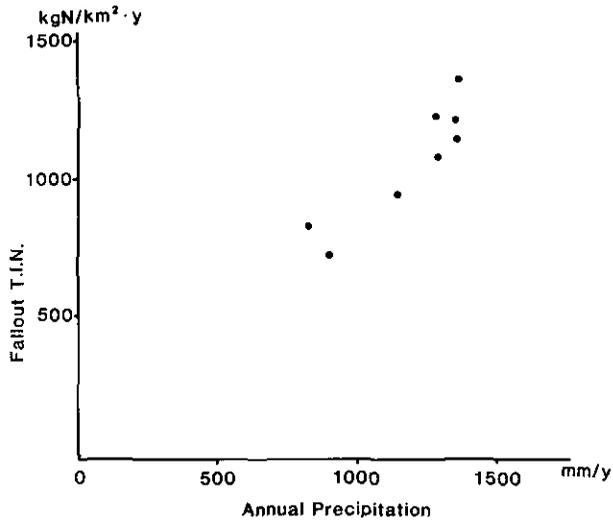


図 3 年間降水量と年間T.I.N.降下量の関係

Fig. 3 Relationship between annual precipitation and annual amount of fallout total inorganic nitrogen

表 3 栄養降下量の年間変動度及び平均N/P比

Table 3 Variation of the amounts of fallout of nutrients and mean N/P ratio

	Total-P(P kg/km ² ·m)			Total-I.N.(N kg/km ² ·m)			N/P		
	Dry fallout	Rain Water	R(%)	Dry fallout	Rain Water	R(%)	Dry fallout	Rain Water	
1985	mean	1.24	0.70	36(%)	18.5	66.3	78(%)	15	95
	c.v.	100(%)	57(%)	46(%)	51(%)				
1986	mean	2.8	1.3	32(%)	77.5	78	50(%)	28	60
	c.v.	88(%)	176(%)	76(%)	74(%)				

表 4(1) 雨水中栄養塩濃度の年間変動

Table 4(1) Annual variation of the concentration of nutrients in rain water

	Precipitation	Total-P	NO ₂ -N	NO ₃ -N	NH ₄ -N	Total-I.N.	N/P
1985 Jan.	7mm/month	(91) $\mu\text{g/l}$	(79) $\mu\text{g/l}$	(873) $\mu\text{g/l}$	(1396) $\mu\text{g/l}$	(2348) $\mu\text{g/l}$	(26)
Feb.	185	8	12	276	225	513	64
Mar.	144	6	13	303	375	691	115
Apr.	166	6	9	221	396	626	104
May	92	12	18	298	474	790	66
Jun.	316	3	4	134	260	398	133
Jul.	47	20	20	608	878	1506	75
Aug.	62	9	11	143	225	379	44
Sep.	153	3	8	204	206	418	105
Oct.	71	6	19	256	444	719	119
Nov.	63	6	22	341	408	744	124
Dec.	42	9	20	267	404	691	77
mean	112	8	14	277	390	678	87
c. v.		58%	41%	44%	46%	46%	

表 4(2) 雨水中栄養塩濃度の年間変動

Table 4(2) Annual variation of the concentration of nutrients in rain water

	Precipitation	Total-P	NO ₂ -N	NO ₃ -N	NH ₄ -N	Total-I.N.	N/P
1986 Jan.	2mm/month	(29) $\mu\text{g/l}$	(300) $\mu\text{g/l}$	(2300) $\mu\text{g/l}$	(3100) $\mu\text{g/l}$	(5700) $\mu\text{g/l}$	(197)
Feb.	17	25	28	648	670	1350	54
Mar.	189	38	8	197	891	1100	29
Apr.	100	3	9	270	321	600	200
May	160	43	9	278	299	590	14
Jun.	160	31	>0	424	527	950	31
Jul.	66	43	5	497	514	1040	21
Aug.	246	1	2	51	61	110	110
Sep.	123	1	11	419	340	770	770
Oct.	71	1	1	394	319	710	710
Nov.	46	1	16	293	372	680	680
Dec.	110	2	14	185	228	430	215
mean	108	17.2	9.4	332	413	757	45
c. v.		103%	82%	48%	52%	43%	

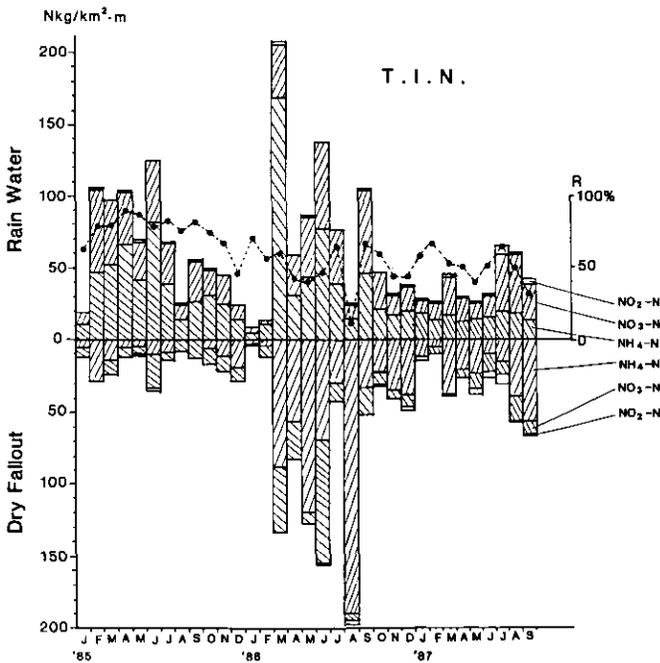
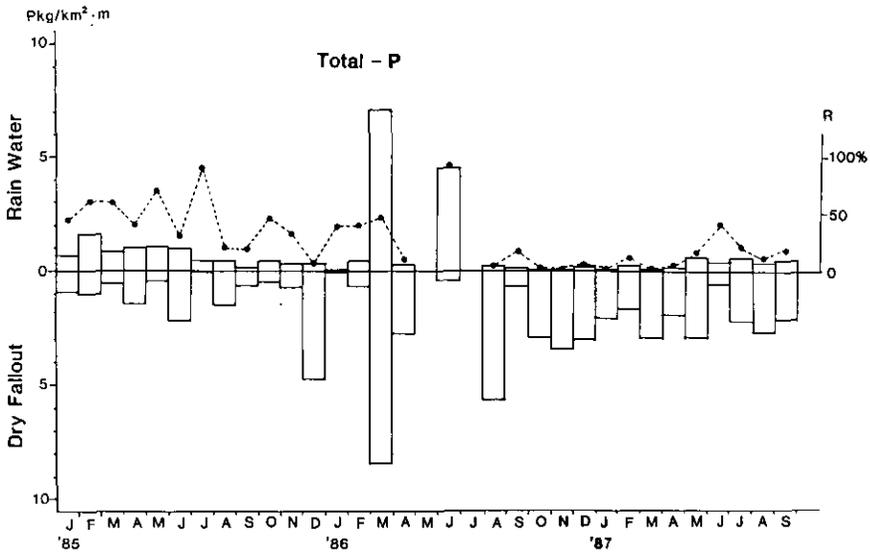


図 4 ドライフォールアウトと降雨による栄養塩降下量と全降下量中に占める降雨による部分の割合 (R)

Fig. 4 Monthly amounts of nutrients deposited with dry fallout and rain water. Variation of percent ratio of the amount fallen by rain to total amount (R).

3. 5 N、Pの比について

降下物中のNとPの比を降雨時のものと、ドライフォールアウトの場合と比べてみると、ドライフォールアウトの場合、わずかの例外を除くとN/P比は単純平均で約23で、陸生植物のN/P比(5~25)あるいは動物についてのN/P比に近く、ドライフォールアウト中に存在する生物遺体や、その分解物が、N、Pの主要な起源である可能性を示すものである。一方、降雨時における降下物中のN/P比は約66と高く、生物起源物質以外のN化合物、例えばNO₂、NH₃などのガス体の物質の雨水中への取り込みによるものがあることを示している。こうした部分は大気汚染の状況との関連が問題となる。

謝 辞

本研究に当たっては、計測技術部水質計測研究室 大槻 晃室長の助言を得たことを感謝する。

引 用 文 献

- 1) 田淵俊雄・高村義親(1985) : 集水域からの窒素・リンの流出。東大出版会、東京、226p.
- 2) 安部喜也・横内陽子・大槻 晃(1979) : 大気降下物中の栄養塩量について。国立公害研究所研究報告、第6号、79-83.
- 3) 安部喜也(1981) : 霞ヶ浦流域の降水特性および大気中からの栄養塩の供給について。国立公害研究所研究報告、第20号、27-42.
- 4) 安部喜也(1984) : 霞ヶ浦流域における大気中からの栄養塩の降下量およびその経年変動について。国立公害研究所研究報告、第50号、1-10.

生活雑排水に含まれる合成洗剤の負荷原単位
Per Capita Loadings of Synthetic Detergents in Gray Water

稲葉一穂¹・須藤隆一²

Kazuho INABA¹ and Ryuichi SUDO²

要 旨

生活雑排水に含まれる合成洗剤の排出負荷原単位を知るために、茨城県新治郡八郷町の集落を対象として水量と水質の調査を行った。得られた結果は次のとおりである。

- 1) 合成洗剤の原単位は、MBAS=2.1g・人⁻¹・d⁻¹、LAS=1.0g・人⁻¹・d⁻¹、POE-NS=0.07g・人⁻¹・d⁻¹であった。
- 2) LASの異性体別の成分比は年間を通してほぼ一定であった。
- 3) MBAS値とLAS値の比は夜に大きく変動したが、その他の時間はほぼ一定であった。
- 4) 負荷削減実践活動によりPOE-NSの原単位が約30%減少した。

Abstract

Surveys on quantity and quality of gray water from small residential area were made in Yasato, Ibaraki, in order to know the per capita loading of synthetic detergents.

The following results were obtained :

- 1) Per capita loadings of synthetic detergents in gray water were obtained as ; MBAS=2.1g cap⁻¹ d⁻¹, LAS=1.0g cap⁻¹ d⁻¹, and POE-NS=0.07g cap⁻¹ d⁻¹, respectively.
- 2) Distribution of the isomers of C₁₀ to C₁₄ LAS was not varied through a year.
- 3) Ratio of MBAS and LAS was similar for a day except at evening.
- 4) Per capita loading of POE-NS was decreased about 30% by citizens' campaign for input cut of loadings.

1 はじめに

全国各地の陸水域において、水質の悪化による水の華の発生、悪臭、飲料水源としての不適當化など、多くの問題が生じている。これらの問題を解消するためには、河川、湖沼へと流入する

-
1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental Studies. 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.
 2. 国立公害研究所 技術部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Engineering Division, the National Institute for Environmental Studies. 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

汚濁源を取り除く必要があり、例えば工場廃水、し尿などについては未処理のまま公共水域に放流することが禁止されている。しかし生活雑排水については法的な規則がなく、また下水道や合併式浄化槽の設置が遅れているためこれらの多くが未処理のまま公共水域に放流されているのが現状であり、そのため近年問題となっている水質汚濁の負荷のおよそ半分が生活雑排水によるものと言われている¹⁾。生活雑排水に由来する汚濁負荷量を削減するには、下水道の敷設、合併式浄化槽の設置などが必要であり、かつ根本的な対策と考えられるが、これらの整備、普及はいまだに進んでおらず、我が国の全人口の36%程度の処理を行っているにすぎない¹⁾。生活雑排水による水質汚濁を防止するためにはこれらの整備、普及を図るのは当然のこととして、普及率が低い地域では自然浄化機能の活用や、簡易処理装置の開発、導入も必要となる。

これらの様々な方法を検討する上で、まず生活雑排水に含まれる汚濁源の実態を測定し、さらにその流達や生分解の特性を正確に把握する必要がある。本報告では生活雑排水に含まれる汚濁負荷源物質の中で合成洗剤に由来する界面活性剤を取り上げ、その負荷原単位の詳細を検討することを試みた。合成洗剤は一般家庭から排出される生活雑排水にはほとんどの場合含まれておりその使用量及び内容がかなり明確なことから、合成化合物であるため河川、湖沼での内部生産がないことを考えると、これは単に生活雑排水の性状の把握に役立つだけでなく、汚濁物質の流達等の挙動の研究においても重要な位置を占めるものと思われる。洗剤に由来する界面活性剤の負荷原単位については、従来は日本工業規格の標準測定法にあるメチレンブルー活性物質として陰イオン性界面活性剤が測定されている例が多い。しかし近年、河川、湖沼の汚濁に与える生活雑排水の影響の大きさが言及されるようになって、一般家庭でも関心が高まっており、洗剤の使用量を減らすための試みがなされてきたり、使用する洗剤の内容についても石けん、アルコール系等かなり変化が見られる。メチレンブルー活性物質法では測定原理上メチレンブルー陽イオンと錯化合物を生成してクロロホルムへと可溶となる物質はすべて測定されるため、このような洗剤の使用量、内容の変化に関して正確な情報を得るのには限界がある。

そこで本研究では、陰イオン性界面活性剤の代表的な物質で使用量も最も大きい直鎖型アルキルベンゼンスルホン酸塩と近年使用量が增大してきているポリオキシエチレン型非イオン性界面活性剤についてまず測定方法の検討を行い、その後これら物質の定量を行って負荷原単位を算出した。

2 調査方法

2.1 調査対象

調査対象としては、茨城県新治郡八郷町陣馬地区の25戸の集落を選んだ。25戸の住宅は東向きの谷地に約10年前に建築された一戸建分譲住宅であり、他の住宅とは離れて位置している。これら25戸の生活雑排水は下水道が敷設されていないため各家庭から未処理のままU字溝へと集められ、谷地の入り口の樹から谷地へと導かれている。この排水は休耕田の湿地を通った後に付近のわき水、水田からの流出水とともに園部川へと流れ込んでいる。なお、対象地区の夜間人口は98人である。調査は昭和61年3月より62年6月まで行った。

2. 2 調査方法

1) 排水量の測定

排水量は集水したU字溝の水位変化による方法とU字溝から谷地へと導水している配管の流出部における水量の直接測定による方法を併用した。水位変化による方法は25戸の住宅からの生活雑排水が集まるU字溝の下流部にパーシャルフリューム型の流量計を設置して、その水位変化を自動記録して求めた。直接測定では、樹内の配管から流出する排水をビニール袋またはポリ容器に受け、その全量と採取に要した時間から求めた。

2) 採水方法

U字溝の末端部にある樹に自動採水機を設置し、1時間に1回、24時間の採水を行った。この自動採水機は屋外に設置されているため、温度の高い夏季には既に採水を終わったサンプルが採水機の中で分解等を起こす可能性があるため採水機の試料保存部にドライアイスまたは氷塊を入れて冷却した。一方、冬季には採水機内の水分が凍結するため採水不能となることがあった。このため冬季には採水機を用いず、1時間に1回ずつ樹内の配管からビニール袋で採水を行った。一日分のサンプルはそれぞれの時刻における流量に比例して混ぜ合わせた混合試料とした。なお、採水は15時から始めて翌日の14時までを1日とした。

3) 測定項目

合成洗剤由来の負荷原単位の値を求めるために行った測定はメチレンブルー-活性物質法²⁾によるメチレンブルー-活性物質(MBAS)の全量分析、高速液体クロマトグラフィーによる直鎖型アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)の成分分析、及びコバルトチオシアン酸抽出-ピリジルアゾレゾルシノール発色法によるポリオキシエチレン型非イオン性界面活性剤(POE-NS)の全量分析の3項目である。なお、試料は測定前にGF/Cろ紙によりろ過を行った。これより本研究で得られた値はすべて溶存態濃度である。

3 調査結果

3. 1 合成洗剤の負荷原単位

調査対象の25戸の住宅から1日に排出された総排水量、MBAS量、LAS量、POE-NS量のそれぞれの平均値を表1に示す。従来の報告値^{3), 4)}と比較した場合、総排水量はやや大きい値であるが文献値の範囲内に入っており、この調査対象地区の水使用量が一般的であることを示している。一方MBASの値は従来の報告値に比べてやや小さい値となった。これは青柳らによる同地区でのアンケート調査⁵⁾にもあるようにこの調査対象地区の住民が生活雑排水による水質汚濁に対して関心が高く、かなりの家庭で洗剤使用量の削減の試みを行っていたことが主因と考えられる。LAS及びPOE-NSについては文献値が乏しく比較は行わなかった。

前報³⁾において平日と休日の負荷原単位の比較を行ったところ有意の差があることが見いだされたが今回の調査結果においても同様の傾向があることがわかった。すなわち表1より週末のMBAS及びLASの原単位値がいずれも平日に比べてかなり大きくなっていることがわかる。しか

表 1 生活雑排水中の合成洗剤の原単位値

Table 1 Per capita loading of synthetic detergents in gray water

	Discharge	MBAS	LAS	POE-NS
	l cap ⁻¹ d ⁻¹	g cap ⁻¹ d ⁻¹	g cap ⁻¹ d ⁻¹	g cap ⁻¹ d ⁻¹
Weekday	214 ± 52	1.88 ± 0.45	0.81 ± 0.28	0.071 ± 0.028
Weekend	231 ± 40	2.73 ± 0.73	1.38 ± 0.25	0.078 ± 0.026
Average	219 ± 50	2.12 ± 0.60	0.97 ± 0.35	0.073 ± 0.027

しながら排水量及び POE-NS の原単位値は平日と週末で10%程度の上昇を示しただけであった。従来このような週末における負荷の増大については昼間人口の増加によって説明がなされているが、MBAS 及び LAS が主に洗濯用洗剤であるのに対して POE-NS は台所用洗剤としての使用が多いことを考え合わせるとこれらの差異が使用内容による可能性があることが考えられ、更に週末の生活パターンの把握についてアンケート調査等の必要がある。

なお調査日の天候及び季節に起因する原単位値の変化はほとんど見られなかった。

3. 2 生活雑排水中のLASの成分分別

湿地帯や水路での自然浄化の有効性を検討するにはそれぞれの界面活性剤について構造別の浄化能力の特徴を把握する必要がある。そこで排出された LAS について高速液体クロマトグラフィーによりその成分を分別し比率を求めた。図1にその結果を示す。それぞれの異性体成分はアルキル鎖長(n)及び置換位置(m)の二項でmφCnLASとして表した。調査対象の25戸の住宅から排出された LAS はその全量は表1に示すように変動が大きい但其の成分は年間を通してほぼ一定となった。

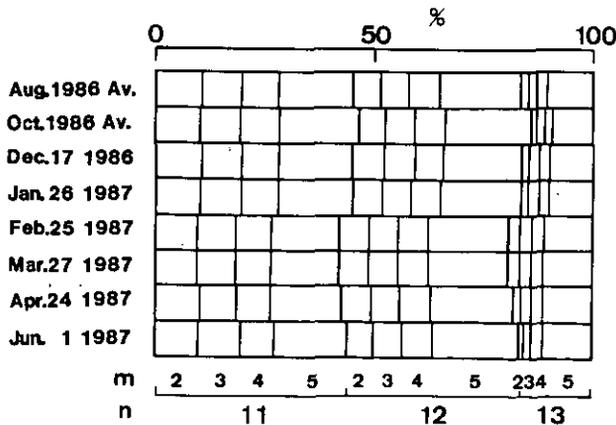


図 1 生活雑排水中のLASの異性体成分の分布

Fig. 1 Percentage distribution of component of LAS isomers in gray water

3. 3 MBAS値とLAS値の比較

従来から河川、湖沼や生活系排水中に含まれる合成洗剤の測定を行う場合にはほとんど MBAS 法が用いられてきている。しかしこの方法では多くの種類の陰イオン性物質が同時に測定されてしまうためにその意味があいまいであると問題視されていた。さらに高速液体クロマトグラフィーによる河川、湖沼中の LAS の定量の報告が行われるようになり 2 種のデータの比較も行われるようになったがその相関関係についてはかなりばらつきが大きい¹⁾。そこで今回、これらの研究を行う上での目安となる値を求めるために生活雑排水中の MBAS の量と LAS の量の比較を行った。

図 2 に調査地区の排水中の MBAS 及び LAS の量の日変動を 1 時間おきに測定した結果を示す。図 2 よりわかるように洗濯によると思われる大きなピークが午前中にあり両項目ともよく似た変動パターンを示している。ところが夜になると MBAS の値だけが上昇し始め、その比率は最大でおよそ 10 にまで達した。これはおそらく入浴による石けん等の影響と思われる。このように MBAS と LAS の間の相関が時間帯によって変化することを考えると、生活系排水や小規模河川の調査において 1 日分の採水のある時刻のみで行った場合にはその成分の考察の際には十分な検討を必要とするであろう。

なお表 2 に今回の調査で得られた MBAS と LAS の原単位値の比率をまとめた。日間の変動はやや大きめの値となったが、曜日、季節による変動は見られなかった。

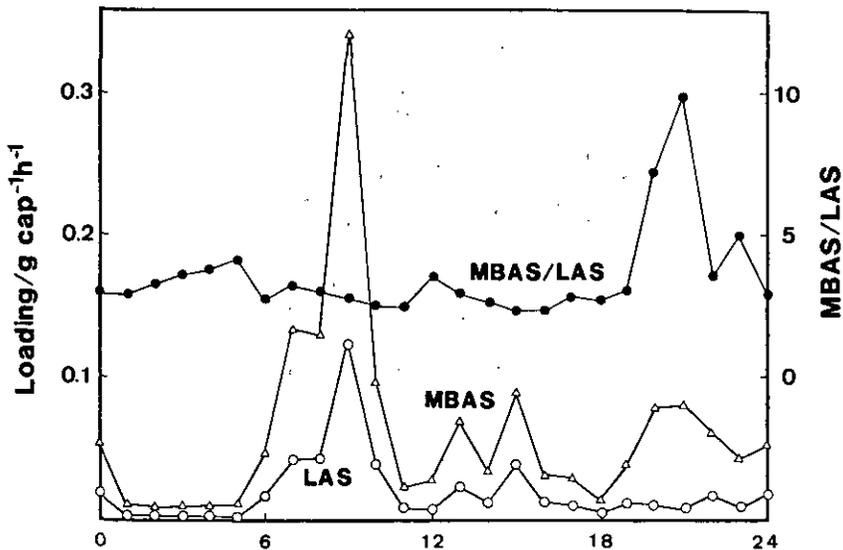


図 2 MBAS及びLAS原単位値の時間変化

Fig. 2 Changes of per capita loadings of MBAS and LAS in a day

表 2 生活雑排水中のMBASとLASの比率

Table 2 Ratio of MBAS and LAS in gray water

	Weekday	Weekend	Average
MBAS/LAS	2.37 ± 0.72	2.01 ± 0.51	2.27 ± 0.69

3.4 水質データから見た負荷削減実践活動の効果

生活雑排水による汚濁負荷量を削減するには、下水道や処理装置の導入が望まれるが、それ以前に一般家庭においても負荷量を削減することを日常から心掛けておくことが重要である。そこで本研究の期間内に調査地区の住民に対して洗濯や台所仕事における負荷削減の方法の説明会を行い削減教育の徹底を図った後に実際に削減活動を行ってその影響について検討した。調査期間は61年10月15日昼から11月1日昼までとし、それぞれ24時間の流量比例サンプルを作成して分析した。負荷削減の方法に関する説明会は10月20日に行い、当日の昼以降実践活動に入った。

図3に調査期間中のMBAS, LAS及びPOE-NSの負荷原単位の日間変動を、表3に実践活動前後でのこれら3項目の平均値を示す。表3より分かるようにMBASとLASについては実践活動の前後で負荷量の変化は見られなかった。一方、表3及び図3よりPOE-NSについては実践活動の前後で約30%の減少が見られ、日間変動も小さいことから有意の差があることが確認された。

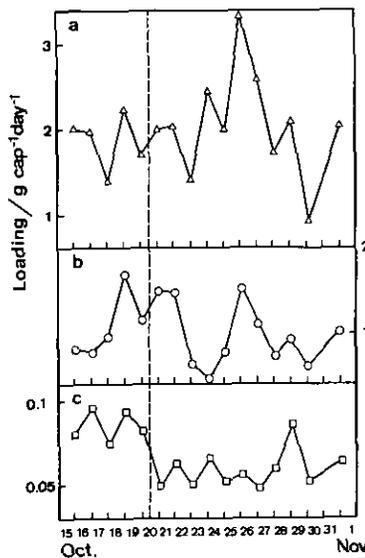


図 3 合成洗剤の原単位値に与える負荷削減実践活動の効果
(a)MBAS (b)LAS (c)POE-NS

Fig. 3 Effect of citizens' campaign for input cut on per capita loadings of (a)MBAS (b)LAS (c)POE-NS

測定項目によるこのような差異はそれぞれの合成洗剤の使用内容が異なっていることに起因すると考えられる。すなわち LASが主に洗濯用であるのに対して、POE-NSは台所用としての使用が多くそれぞれの削減効果が異なるためと思われる。同一調査期間に行われた青柳らのアンケート調査⁹⁾によれば実践活動の前後で洗濯用、台所用いずれも使用方法が変化しており負荷量の削減が期待された。表4にアンケート調査の結果を引用する。この結果を見る限り洗濯用洗剤の削減効果が無いとは考え難く、おそらく日間の使用量の変動が大きいいためその効果が明確に表れなかったものと思われる。

表 3 負荷原単位に与える実践活動の効果

Table 3 Effect of citizens' campaign for input cut on per capita loadings

	MBAS	LAS	POE-NS
	g cap ⁻¹ d ⁻¹	g cap ⁻¹ d ⁻¹	g cap ⁻¹ d ⁻¹
Before campaign	1.85 ± 0.33	1.03 ± 0.78	0.086 ± 0.009
After campaign	2.18 ± 0.62	1.03 ± 0.36	0.059 ± 0.011

表 4 合成洗剤に関するアンケート調査結果

Table 4 Results of questionnaire about synthetic detergents

問 あなたの家では、油汚れなどのついた食器をどのようにしていますか。			
	前	後	
1) いつも紙でふきとってから洗剤で洗う	6.1%	22.4%	
2) 汚れのひどい時は、紙などでふきとってから洗剤で洗う	30.6	44.9	
3) 水で流しておいてから、洗剤で洗う	28.6	4.1	
4) そのまま、洗剤で洗う	10.2	4.1	
5) その他	0	0	
無効解答			(24.5)
問 あなたの家では、洗濯洗剤の使用量をどのように決めていますか。			
	前	後	
1) 計量カップできちんと計量し、適量使用（適量より少なくしている場合も含む）するようにしている	20.4%	55.1%	
2) カップなどにより、目分量で使用している	46.9	20.4	
3) 洗剤の箱から直接入れている	4.0	0	
4) その他	0	0	
無効解答			(24.5)

4 まとめ

茨城県新治郡八郷町陣馬地区の25戸の住宅から排出される生活雑排水に含まれる合成洗剤の分析を行った結果、次の点が明らかとなった。

- 1) 生活雑排水に含まれる合成洗剤由来の負荷原単位値は、MBASとして $2.1\text{g}\cdot\text{人}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 、LASとして $1.0\text{g}\cdot\text{人}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ 、POE-NSとして $0.07\text{g}\cdot\text{人}^{-1}\cdot\text{d}^{-1}$ であった。
- 2) MBAS及びLASは平日と週末でその負荷原単位値は大きく異なり週末には平日のおよそ1.6倍となった。一方POE-NSの値は平日と週末で10%程度しか差はなかった。
- 3) 生活雑排水に含まれるLASの異性体を分別定量しその成分比を求めた。成分比は水温等によって影響を受けず、年間を通してほぼ一定であった。
- 4) MBAS法による陰イオン性界面活性剤の原単位値と高速液体クロマトグラフィーによるLASの原単位値は一致しないことからMBAS法による定量値には他の陰イオン性界面活性剤や陰イオンの影響があることが考えられた。またこの二つの値の比は一日の平均値としてはおよそ2.3で一定となったが、24時間の連続測定では夕方から夜にかけて入浴の時間と思われる頃に大きく変動した。このことから、この比率を基に洗剤の成分についての考察を行うには採水時刻を考慮する必要があることがわかった。
- 5) 負荷削減の実践活動によりPOE-NSの原単位値は平均して30%程度減少した。MBAS及びLASに関しては実践活動による削減の効果は見られなかった。

謝 辞

本研究を行うに当たり、調査地区の設定に御協力頂いた茨城県、八郷町、及び陣馬地区の住民の皆様へ感謝致します。また、研究内容について御討議頂いた国立公害研究所水質土壌環境部陸水環境研究室細見正明研究員に感謝致します。

付録1 高速液体クロマトグラフィーによる直鎖型アルキルベンゼンスルホン酸塩の定量

1) 目的

洗濯用の洗剤などに多く使用されている直鎖型アルキルベンゼンスルホン酸塩(LAS)は単一の組成ではなくアルキル鎖に含まれる炭素の数が10から14程度のものの混合物である。さらにこれらの化合物はアルキル基のどの炭素原子にフェニルスルホン酸基が結合するかにより異性体を持っている。これらの異性体の内どの成分が多く含まれているか、その成分比が流達などによってどのように変化して行くかなどを知ることは自然浄化機能の研究を行う上で重要である。そこで合成洗剤に含まれるLASの異性体が分別定量できるような方法を作成することを目的として分析条件の検討を行った。

2) 機器及び試薬

島津 LC-4A 型高速液体クロマトグラフに Shim-pack CLCタイプの15cmのODSカラムと5cmのガードカラムをつけて使用した。検出は島津SPD-2AS型紫外分光光度計により222nmの吸収を測定し

て行った。標準物質として使用したアルキル鎖長10から14 (C_{10} ～ C_{14})までのLASは C_{12} のもののみ東京化成より市販されているものを用い、他は花王石鹸栃木研究所より特別に入手した。その他の試薬等は液体クロマトグラフ用または特級のものを使用した。

3) 定量条件の設定

従来から行われているLASの高速液体クロマトグラフィーによる定量では溶出液として水-メタノールまたは水-アセトニトリルを用いてその組成を一定に保って溶出させている例がほとんどであるが⁷⁾⁸⁾、 C_{10} ～ C_{14} までのLASを一度に定量するには保持時間の差が大きすぎるため適当とは言えない。そこで水-アセトニトリル系でグラジエント溶出を行い保持時間を変化させて測定することを試みた。

溶出液の組成、グラジエント条件をいろいろ変化させて検討した結果、表5に示す条件でピークの分離が最もよいことが分かった。このときのクロマトグラムの例を図4に示す。図4よりアルキル鎖の長さの異なるLASの分離はできているが異性体については分離は完全ではない。これを完全にするには流速を小さくする、カラムを長くするなどが考えられる。しかしいずれの場合も1サンプルの測定に要する時間が長くなり多数のサンプルを扱えなくなること、それぞれの成分の変動が把握できれば良いことからこの条件を最終的な条件とした。

表 5 HPLCによるLASの測定条件
Table 5 Analytical condition of LAS by HPLC

1) 移動相条件		
組成	0.02mol dm ⁻³ NaClO ₄ 水溶液-アセトニトリル	
流量	1.0ml min ⁻¹	
2) グラジエント条件		
時間	NaClO ₄ soln. アセトニトリル	
0～10min	50%	50%
10～25min	直線グラジエント	
25～30min	20%	80%
3) 測定条件		
サンプル量	100 μl	
測定波長	222nm	

4) サンプルの前処理

環境水中に含まれる微量成分を分析する場合にはしばしばサンプルの濃縮及びクリーンアップが必要となる。特に本研究のように生活雑排水に含まれるLASのように共存する不純物の種類や濃度が非常に大きい系においては前処理の良否は測定結果に大きな影響を与える。LASの前処理については蒸発乾固した後アルコールで溶出する方法⁹⁾やカラムを用いる方法¹⁰⁾などが報告さ

れているが、操作が煩雑であり時間もかかる。最近、ODSミニカラムを用いる方法¹¹⁾が報告されたがこの方法では濃縮倍率が高く、河川、湖沼や海水中のLASの定量には便利であるが、一度吸着したLASをメタノールで溶出させるためフミン質やタンパク質のような高分子有機物系の不純物も同時に溶出する可能性がありカラムへの悪影響を考えると生活雑排水のような不純物を多量に含むサンプルに使用するのは難しい。特に本研究のように紫外部の吸収で測定を行うにはこれらの不純物の溶出は測定の感度、精度に大きな影響を与える可能性もある。また本研究のような生活雑排水中のLASは濃度が高いためそれほど高い濃縮倍率は必要ではない。そこでこれらの点を考え合わせてLASと不純物を分離する方法として溶媒抽出法を検討した。この方法は濃縮倍率をあまり高くすることはできないが簡単な操作で行えるのが利点である。

抽出溶媒としてはメチルイソブチルケトン (MIBK) を用いた。C₁₀~C₁₄LASを含む水溶液とMIBKを同体積取って10分間振とうした。水溶液に塩化カルウムを添加するとLASの抽出率は上昇し0.2M以上ではいずれの鎖長のLASもほぼ100%抽出された。このMIBKを別の試験管に取り5倍量のヘキサンを加え、水と振り混ぜることによりLASを水へと逆抽出することが可能であった。なお、この逆抽出の回収率はLASの鎖長により異なり、C₁₀LASでは50%程度しか逆抽出されなかった。一方、C₁₀~C₁₂LASでは回収率が100%を超える値となったが、これはMIBKと水との相互溶解度による体積変化によるものと思われる。しかしいずれの現象も同じ条件で標準サンプルを処理することにより補正が可能である。

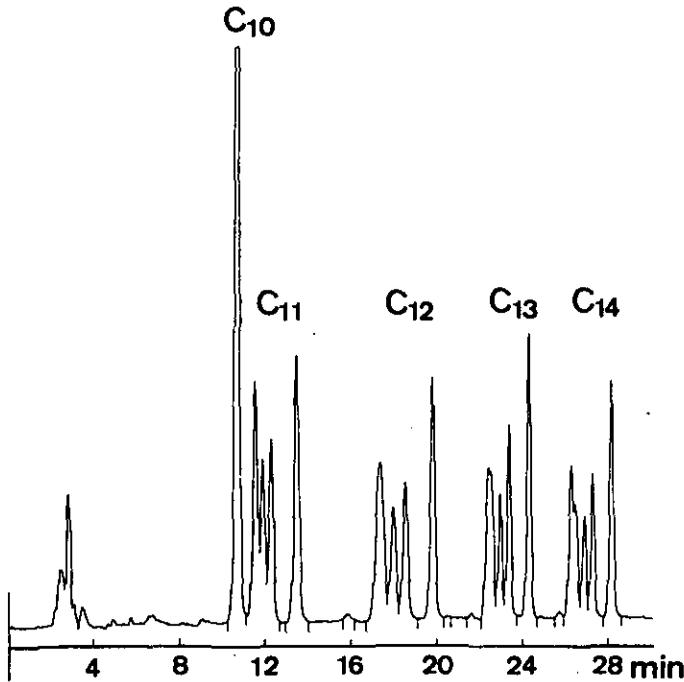


図 4 C₁₀~C₁₄LASのクロマトグラム

Fig. 4 Typical chromatogram of C₁₀~C₁₄LAS

MIBKによる抽出の際にMIBKと水との体積比を変化させることによりサンプル中のLASの濃縮が可能である。体積比を色々に変化させて標準溶液中のLASを抽出しその回収率を検討した結果、10倍程度の濃縮が可能であった。しかしこれ以上ではMIBKの体積変化により回収率が大きく変動するため不可能であった。

以上の操作方法を図5にまとめた。最初の抽出により水溶性の不純物がLASと分離され、逆抽出により油溶性の不純物がLASから分離される。この方法は濃縮倍率が低いためあまり汚染されていない河川、湖沼水のモニタリングには向かないが、生活雑排水のようなサンプルの測定には簡便で有効と言える。

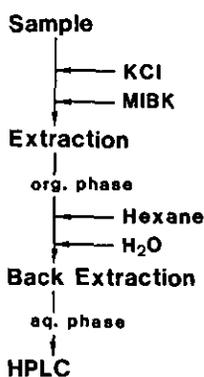


図 5 LASの前処理及び分析法

Fig. 5 Scheme of pretreatment and determination of LAS

付録2 ポリオキシエチレン型非イオン性界面活性剤の簡易分析法の改良¹²⁾

1) 目的

ポリオキシエチレン型非イオン性界面活性剤 (POE-NS) は近年使用量が増大している合成洗剤の一つである。このPOE-NSの定量法としてはテトラチオシアナトコバルト錯体の抽出を用いるコバルトチオシアン酸活性物質法 (CTAS法)¹³⁾ が広く用いられるが、この方法は感度が低いため実用性に乏しい。いくつかの改良法¹⁴⁻¹⁷⁾ が報告されているが前処理が煩雑であったり、呈色の安定性が低いなど問題点が残されている。またクロロホルムやクロロベンゼンのような毒性の高い有機溶媒を用いるため測定者の健康影響も心配される。本研究ではCTAS法を基に感度の向上、前処理の簡便化、そして毒性の低い有機溶媒の使用の3点を中心にして改良法の作成を試みた。

2) 機器及び試薬

POE-NSの標準物質として日光化学製のオクタエチレングリコールモノ-n-ドデシルエーテル (C₁₂POE₈; 99%GC) を用いた。その他の試薬はすべて特級品を用いた。測定は島津 UV-160型紫外可視分光光度計により行った。

3) 定量法の検討

CTAS法はPOE-NSのオキシエチレン鎖中の酸素原子の孤立電子対を利用して一価陽イオンを溶媒和し、テトラチオシアナトコバルト陰イオンとイオン対として有機溶媒へと抽出を行い、対イオンであるテトラチオシアナトコバルト錯体の吸収を用いて定量を行う間接定量法である。そこで抽出されたコバルトを高感度試薬で定量することでPOE-NSの定量の高感度化が可能である。

使用する溶媒は安全性を考えてトルエンとした。まずCTAS法の操作について試薬の濃度をいろいろに変えて検討した結果チオシアン酸アンモニウムが 3M, 硝酸コバルトが0.08M, 塩化カリウム飽和の条件で安定した測定が可能であることがわかった。次にトルエンへと抽出されたコバルトの定量の検討を行った。コバルトの高感度試薬としてはいくつかの試薬が知られているが本研究では水溶性錯体を生成する4-(2-ピリジルアゾ)-レゾルシノール (PAR) を用いた。pH8に調整した0.01% PAR水溶液とCTAS法により抽出操作を行ったトルエン相を同体積取って10分間振とうした。トルエン相のコバルトはすべて水相へと逆抽出されPAR錯体を生成して赤色を呈した。この錯体を510nmの吸収で定量した。正、逆両抽出をいずれも1:1の体積比で行った場合のC₁, POE₁に対するモル吸光係数は23000でありCTAS法の値のおよそ35倍となった。

4) 前処理法の検討

POE-NSは電荷を持たずしかも長いアルキル鎖を持つため有機溶媒への溶解度が高く、例えばC₁₂POE₁では水-トルエン系での二相間分配では99%以上がトルエンへと移行する。そこで従来からの泡沫濃縮¹⁰⁾やカラム分離法¹¹⁾の代わりにトルエンによる溶媒抽出法の可能性について検討した。トルエン抽出による濃縮は水相とトルエン相の体積を変化させて抽出しそのときの回収率から検討した結果100倍まで可能であることがわかった。一方クリーンアップについては環境水中で共存する可能性の高いLAS、フミン酸、そしてPOE-NSの分解生成物であるポリエチレングリコール(PEG)について検討した。PEGは正の誤差を生ずるが他は生活雑排水に含まれる濃度レベルでほとんど問題の無いことがわかった。

以上の前処理法及び定量法についてその操作手順を図6にまとめた。この操作により100倍の濃縮を行った場合にはppbオーダーの定量が可能である。この方法を用いて環境水中のPOE-NSを測定した例を表6に示す。添加試験及び再現性試験の結果も良好であった。

表 6 添加試験及び再現性試験の結果

Table 6 Summary of addition test and reproducibility test

Sample	POE-NS	測定回数	POE-NS
	添加量(ppb)		測定値(ppb)
手賀沼(1987.4.6)	0	8	26 ± 2
	45	3	74 ± 3
蒸留水	45	6	42 ± 1

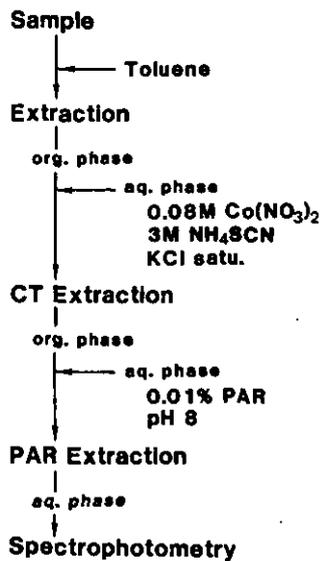


図 6 POE-NSの前処理及び分析法

Fig. 6 Scheme of pretreatment and determination of POE-NS

引用文献

- 1) 藤原正弘(1987): 生活排水と水質保全. 用水と廃水, 29, 5-10.
- 2) 日本規格協会(1981): 工場排水試験方法. JIS K0102.
- 3) 岡田光正・須藤隆一(1986): 生活系排水の原単位. 国立公害研究所研究報告, 第95号, 7-20.
- 4) 松井優實・松沢克典・矢野伸一・樋口澄男・中沢雄平(1987): 家庭雑排水の汚濁負荷原単位. 用水と廃水, 29, 144-149.
- 5) 青柳みどり・原沢英夫・細見正明(1988): 雑排水対策に対する住民の意識と行動. 国立公害研究所研究報告, 第119号, 31-46.
- 6) 日本水質汚濁研究協会(1986): 界面活性剤の水環境に及ぼす影響等に関する調査報告書.
- 7) Nakae, A., K. Tsuji and M. Yamanaka(1980): Determination of trace amounts of alkylbenzenesulfonates by high-performance liquid chromatography with fluorimetric detection. Anal. Chem., 52, 2275-2277.
- 8) 吉村孝一・中栄篤男(1982): 活性汚泥による直鎖アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウムの生分解性に関する研究 (I). 水質汚濁研究, 5, 19-25.
- 9) 吉川サナエ・佐野 仁・原田忠彦(1984): 高速液体クロマトグラフィーによる河川水中のLASの定量. 水質汚濁研究, 7, 191-194.
- 10) Saito, T. and K. Hagiwara(1982): Analysis of traces of surfactants in water with anion-exchange resin and polymeric adsorbent. Fresenius Z. Anal. Chem., 312, 533-535.
- 11) Kikuchi, M., A. Tokai and T. Yoshida(1986): Determination of trace levels of linear alkylbenzenesulfonates in the marine environment by high-performance liquid chromatography. Water Res., 20, 643-650.

- 12) Inaba, K. (1987): Determination of trace levels of polyoxyethylene-type nonionic surfactants in environmental waters. Intern. J. Environ. Anal. Chem., **31**, 63-73.
- 13) APHA, AWWA and WPCF(1985): Standard Method. 16th ed.
- 14) Favretto, L., B. Stancher and F. Tunis(1980): Determination of polyoxyethylene alkyl ether non-ionic surfactants in waters at trace levels as potassium picrate active substances. 105, 833-840.
- 15) Toei, K., S. Motomizu and T. Ueno(1982): Extractive spectrophotometric determination of non-ionic surfactants in water. Talanta, **29**, 103-106.
- 16) 村井省二(1984): チオシアン酸-鉄(Ⅲ)によるポリオキシエチレン系非イオン界面活性剤の吸光光度定量. 分析化学, **33**, T18-21.
- 17) Crisp, P., J. Eckert, N. Gibson and I. Webster(1981): An extraction-spectrophotometric method for the determination of non-ionic surfactants. Anal. Chim. Acta, **123**, 355-357.
- 18) 小林規矩夫・田中 久・沼田 一(1980): 河川, 下水中の非イオン性界面活性剤の定量, 衛生化学, **26**, 92-98.
- 19) 前川 勉・田川専照・塩谷勝夫・岸 彦平(1979): 界面活性剤による水質汚濁に関する研究・水質汚濁研究, **2**, 223-235.

生活雑排水の汚濁負荷原単位
Per Capita Loadings of Gray Water

細見正明¹・稲葉一穂¹・原沢英夫¹・須藤隆一¹

Masaaki HOSOMI¹, Kazuho INABA¹, Hideo HARASAWA¹ and Ryuichi SUDO¹

要 旨

生活雑排水の汚濁負荷原単位の特性を把握するため、茨城県八郷町にモデル地区(25戸)を設定し、各季節における汚濁負荷原単位調査を行うとともに、汚濁負荷原単位調査方法についてサンプリング頻度から検討し、さらに、生活雑排水の発生源対策としての実践活動の効果について検討した。得られた結果は以下のようである。

- 1) モデル地級の汚濁負荷原単位は、水量216 l/人/d, BOD 16.7g/人/d, COD 7.25g/人/d, TOC 9.17g/人/d, SS 8.46g/人/d, T-N 1.33g/人/d, T-P 0.210g/人/dで、文献値の範囲にあった。ただ、BODやCODなどの有機物関連項目は、文献値の最低値に近い値を示した。
- 2) サンプリング間隔の違いによる汚濁負荷量の評価値に対するばらつきを推定したところ、1時間に1回のサンプリング頻度では、流量やTOC、T-N、T-Pの汚濁負荷量とも20%前後のばらつきを有した値であることが示された。
- 3) 生活雑排水の発生源対策としての実践活動の結果、窒素を除けば、統計的には有意な除去効果が認められなかった。この理由として、2)で述べたように1時間に1回のサンプリング頻度から評価した汚濁負荷量は、20%前後のばらつきを有した値であること、またモデル地区では、実践活動以前からモデル地区住民の生活雑排水に対する意識が高く、住民がそれぞれ工夫して汚濁負荷の削減に努めていた結果と考えられた。

Abstract

Surveys on effluent quantity and quality from small residential area were carried out in Yasato-machi (Ibaraki Prefecture) to estimate per capita loadings and pattern of discharge for gray water, and to evaluate the variation of per capita loadings estimated from the surveys with various sampling frequencies and effects of on-site reduction measures of

-
1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.
 2. 国立公害研究所 総合解析部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Systems Analysis and Planning Division, the National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.
 3. 国立公害研究所 技術部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Engineering Division, the National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

gray water loadings by residents for themselves on effluent quantity and quality from the study area. The following results were obtained :

- 1) Per capita loadings of gray water were 216 l/cap/d, 16.7g BOD/cap/d, 7.25g COD/cap/d, 9.17g TOC/cap/d, 8.46g SS/cap/d, 1.33g T-N/cap/d, and 0.210 gT-P/cap/d. The values of per capita loadings of BOD, COD, and TOC were within the low range of values ever reported.
- 2) The simulation with various sampling frequencies by using Monte Carlo simulation and data of per capita loadings at intervals of ten minutes showed that the per capita loadings for discharge rate, TOC, T-N, and T-P estimated from the survey with one sampling per an hour had the variation of about 20% as coefficient of variation.
- 3) Little differences were noted between the loadings before and the loadings after the on-site reduction measures of loadings of gray water by residents for themselves, such as measures by the filtration of effluent from a kitchen and the wiping of oil attached to dishes and frying pans using paper towel. It was suggested through the questionnaire survey that the residents in the study area had been trying to reduce the loadings from the household effluent before the on-site reduction measures. If the reduction efficiency of loadings of gray water ranged within about 20% of them, the variation of per capita loadings estimated from the survey with one sampling per an hour would make vague the effects of the on-site reduction measures of gray water.

1 はじめに

我が国における水質汚濁は、一時的な危機は脱したものの、ここ数年水質回復は横ばい状況が続いている。水質の環境基準（生活環境項目）の達成状況からみると、31.0%の水域が不適合である。特に湖沼の汚濁が著しく、58.8%の湖沼が環境基準を超えている¹⁾。この現象は富栄養化と呼ばれており、琵琶湖や霞ヶ浦のように大きな湖沼はもちろんのこと、公園の池や濠にまで及んでいる。水域の汚濁負荷のうち、最も大きな役割を占めるのは生活排水であり、例えば印旛沼、手賀沼では70%を超えている²⁾。生活排水の負荷の大部分は、生活雑排水に由来している。

生活排水は、家庭排水、生活系排水、生活污水などとおおむね同じ意味であり、人間の生活活動に伴って排水される汚水である。しかしながら、公共下水道に取り込まれる場合を家庭下水、下水道に放流されない排水を生活排水と区別して呼ぶこともある。一方、生活雑排水というのは、生活雑排水のうちし尿を除いたものである。すなわち、厨房、風呂場、洗濯機などから排水される汚水が生活雑排水である。し尿は、汲み取り及び水洗便所とも、未処理のまま公共水域に放流されることは禁止されている。一部自家処理はあるものの、し尿排水は通常はなんらかの処理が施され、消毒後公共水域に放流されている。しかしながら、生活雑排水は法的な規制を受けないため、下水道が敷設されていないところ、及び合併浄化槽が設置されていないところでは、ほとんどの場合たれ流しの状態である。このため、たれ流された生活雑排水によって下水路や側溝、かんがい用水路、河川や湖沼などの水域、地下水などが汚濁され、都市河川の悪臭発生、閉鎖水域の富栄養化の進行などが起こり、大きな社会問題になっている。さらに、これらの水質汚濁は、

単独し尿浄化槽(水洗便所の汚水のみを処理)からの放流水によって助長されている。このため、水質を回復し、保全するためには、生活雑排水対策を強力に推し進める必要がある³⁻⁵⁾。

生活雑排水対策を進めるためには、雑排水の水量、水質など、その排出実態を正確に把握する必要がある。生活雑排水の汚濁負荷原単位(以下、原単位と略す)については既にいくつかの報告がある⁶⁻¹⁰⁾が、調査対象戸数や調査日数の少ないものが多く、数値にかなりの差がみられる。各家庭から排出される雑排水の水量と水質は生活様式や家族構成、季節、天候、曜日などによって異なるといわれ、より平均的な原単位を推定するためには、より多くの対象家庭と日数について調査することが望ましい。

本研究では、生活雑排水の汚濁負荷原単位の特性を把握するため、モデル地区を設定し、各季節における汚濁負荷原単位調査を行うとともに汚濁負荷原単位調査方法についてサンプリング頻度から検討し、さらに、生活雑排水の発生源対策としての実践活動の効果について検討する¹¹⁾。

2 モデル地区の概要

モデル地区(図1)は、茨城県八郷町大字山崎字陣馬にある戸数25戸(約100人)からなる1戸建て住宅地である。約12年前に分譲された宅地でモデル地区の大半は、サラリーマン家庭である。モデル地区では、単独し尿浄化槽が設置されているのは2戸で、地下浸透処理されており、残りの住宅ではし尿が汲み取り処理されている。したがって、モデル地区の生活雑排水は図1に示すような道路脇の排水路を通じて、無処理で放流され、図1の写真で示したU字溝の末端部に集まり、下流に位置するアシ原に流入する。

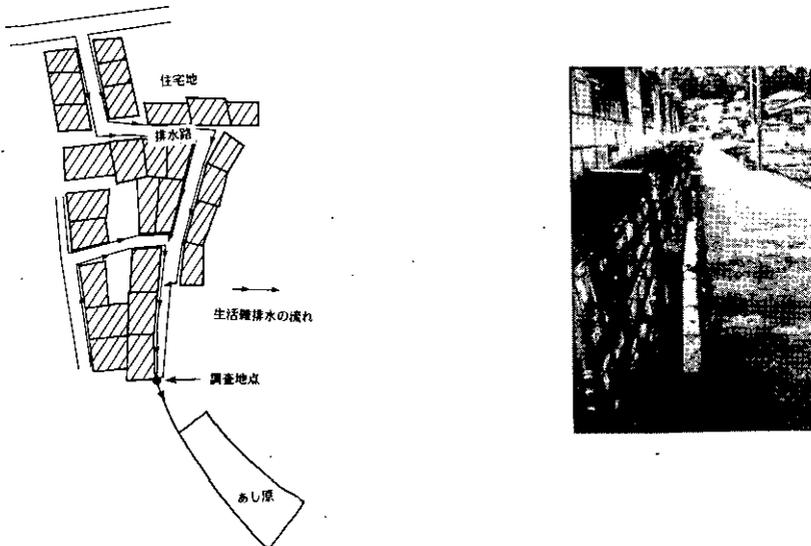


図 1 モデル地区の概要

Fig. 1 Study are and sampling location

3 モデル地区における生活雑排水の原単位調査

3.1 原単位調査

図1に示すモデル地区のU字溝の末端部(調査地点)で1時間ごとの採水試料と流量観測結果から混合試料を作成し、各水質項目を表1に示した分析方法^{1),2)}に従って測定し、汚濁負荷原単位を求めた。原単位調査は、1986年3月、5月、6月、8月、10月、12月、1987年1月、2月に計29回の通日調査を行った。また、1986年6月にはモデル地区の家族構成や生活パターンについてアンケート調査を行った。

表 1 水質分析項目及び分析方法

Table 1 Methods for chemical analysis of wastewater

分析項目	分析方法
SS	グラスフィルター (GF/C) 法
T-N	過硫酸カリウムを用いた窒素とリンの同時分解法
T-P	過硫酸カリウムを用いた窒素とリンの同時分解法
BOD	下水試験方法
COD	下水試験方法 (100℃における過マンガン酸カリウムによる酸素要求量)
TOC	全有機炭素分析計

3.2 一定間隔の通日調査から評価した平均汚濁負荷量のばらつき

サンプリング頻度の検討をするため、1986年5月13日から14日にかけて、10分間隔で採水並びに流量測定を通日調査を行った。流入水量並びに TOC、T-N、T-P 負荷量に関するサンプリング間隔の違いによる測定値のばらつきについてモンテカルロシミュレーションを用いて検討した²⁾。具体的には、1時間ごと、もしくは2時間ごとのような定期水質・水量調査結果に基づく1日当たりの平均汚濁負荷量がどの程度のばらつきを持ち、さらにそれがサンプリング間隔によってどのように異なるかを検討する。

しかしながら、定期調査といっても厳密な意味で一定の間隔といえない。現実には多少の採水時間のずれを含む。ここでは、このようなずれを含む定期サンプリングを仮定した。

まず、平均的なサンプリング間隔を m 時間に1回とする。さらに上述の仮定より、必ず、 m 時間ごとに定期調査をすることなく、 Δm 時間 ($\Delta m = m/6$ とする) のずれを含むものとする。したがって、1回目の調査時間を d_1 とすると、 i 回目 ($i \geq 2$) の調査時間 d_i は、

$$d_1 + m(i-1) - \Delta m \leq d_i \leq d_1 + m(i-1) + \Delta m \quad (1)$$

の範囲に存在する。なお、 m に対応して1日当たりの調査回数 n_s は、 $n_s = 24/m$ (ただし、 n_s は整数とする。) となる。この調査により評価される1日当たりの平均汚濁負荷量 μ_s は次式で表される。

$$\mu_y = \frac{\sum_{i=1}^{n_s} Y(d_i)}{n_s} \quad (2)$$

$Y(d_i)$: 調査時間 d_i における水質・水量調査結果

μ_y は、統計量である。すなわち、同一の m 時間間隔の調査に対し、様々な調査時間が考えられる。各々に対応する μ_y 値は異なるため、そのばらつきを μ_y の分散によって検討した。調査時間スケジュールは、 d_i ($1 \leq d_i \leq m$) の選択と (1) 式で定義される d_i ($i = 2 \sim n_s$) の選択方法によって異なる。ここでは、モンテカルロ法によって調査時間スケジュール選択のシミュレーションを行った。各調査時間に対する調査結果は、10分間隔で得られた詳細な（調査時間間隔が小さい）データを採用した。シミュレーションは1000回行い、調査 k ($k = 1 \sim 1000$) に対応する μ_y を $\mu_{y,k}$ とすると、 μ_y の平均値 μ_y 、並びにその不偏分散 S_y^2 は、次式で与えられる。

$$\mu_y = \frac{1}{1000} \sum_{k=1}^{1000} \mu_{y,k} \quad (3)$$

$$S_y^2 = \frac{1}{999} \sum_{k=1}^{1000} (\mu_{y,k} - \mu_y)^2 \quad (4)$$

3. 3 実践活動による生活雑排水対策

1986年10月には、台所排水からの汚濁負荷量の削減を目指した実践活動（油の拭き取り、台所ろ紙によるろ過、洗濯用洗剤の適量使用など）による効果について検討した。具体的には、台所ろ紙、油拭き取り用ペーパー、油固め剤、計量カップを配付し、台所ろ紙の使用方法や油の拭き取り方等について、あらかじめ説明会でモデル地区住民の方に熟知してもらった上で、10月20日から一斉に台所排水や洗濯排水からの汚濁負荷量の削減を目指した実践活動を実施してもらった。10月15日から11月1日まで、U字溝の調査地点で、実践活動前後における原単位調査を行った。

4 調査結果並びに考察

4. 1 モデル地区における汚濁負荷原単位

図2に29回の流量通日調査データを各時間ごとに平均化して、生活雑排水の流量の日変化を示す。松井ら¹⁴⁾が報告している生活雑排水の流量パターンと類似しており、7時から9時までの午前のピークと18時から21時までの午後のピークの二山型であった。これは、それぞれ洗濯や炊事の時間と一致していた。

住宅地区1における生活雑排水の汚濁負荷原単位を表2に示す。各季節により若干原単位が異なるが、調査回数がばらついており、大きな差はないと考えられる。29回調査データをまとめてみると、いずれの項目とも20%前後の変動係数を示した。ただ、モデル地区のBOD、COD等の有機性汚濁関連項目の原単位は、表3に示した文献値の中でも低い範囲内にあるのは、青柳ら²²⁾が指摘しているようにモデル地区の生活雑排水に対する意識の高さの表れと考えられる。文献値と比べ、最も顕著な差が認められたのは、リンの原単位で、1983年以前の報告値の1/3程度に減少していた。これはアンケート調査結果からも明らかかなように無リン洗剤が使用されているため

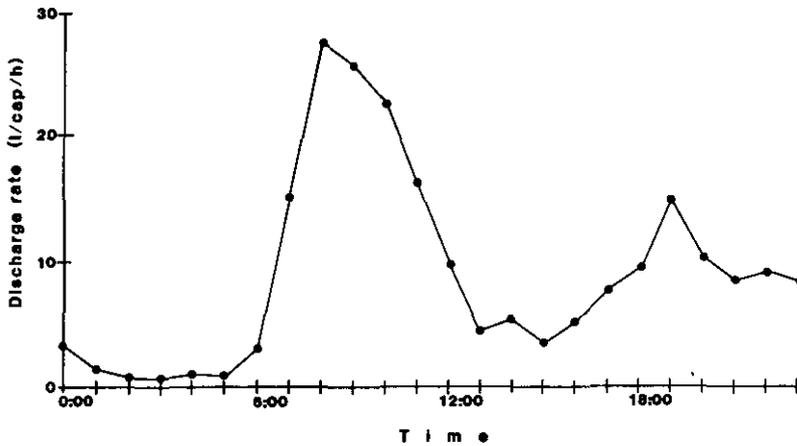


図 2 排水量の経時変化

Fig. 2 Diel change of discharge rate of gray water
Discharge in a time is shown by mean value
of 29 data investigated.

表 2 モデル地区における生活雑排水の汚濁負荷原単位

Table 2 Per capita loadings for gray water in the study area

期間	水量	BOD	COD	TOC	SS	T-N	T-P
	(l/人/d)	(g/人/d)					
春	179	19.7	7.36	7.96	9.4	1.43	0.224
夏	264	19.4	9.53	8.92	18.2	1.76	0.244
秋	199	15.6	6.41	9.63	4.9	1.11	0.192
冬	217	15.2	6.57	8.37	5.2	1.38	0.211
年間の平均値	216	16.7	7.25	9.17	8.5	1.33	0.210
変動係数(%)	22	25	32	30	107	32	32

である。

4. 2 サンプリング頻度からみた原単位調査方法

まず10分間隔で調査したときの流量及びTOC, T-N, T-P の負荷量の経時変化を図3に示す。流量の経時変化は、図2のように概略的には二つの山からなるが、10分間隔でみると非常に時間変動が大きいことがわかる。TOC, T-N, T-P のいずれの負荷量とも、10分間隔でみると流量の激しい変動に対応して、時間変動が大きい。これは、モデル地区の戸数が25戸と比較的小さいため、

また、各家庭から排出された生活雑排水が調査地点に到達するまでの時間が非常に短い（1分オーダー）ため、各家庭からの排出量の時間変動が調査地点での変動に反映されたと考えられる。

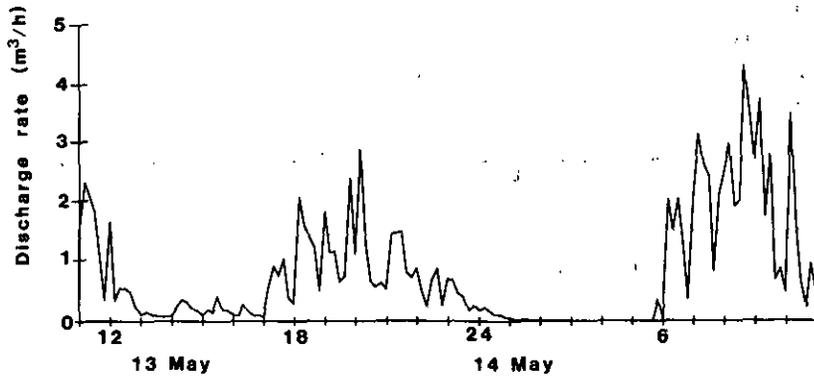


図 3(1) 排水量並びにTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量の経時変化（10分間隔）
 Fig. 3(1) Diel change of discharge rate, TOC loading, T-N loading, and T-P loading determined by sampling with 10 minutes interval

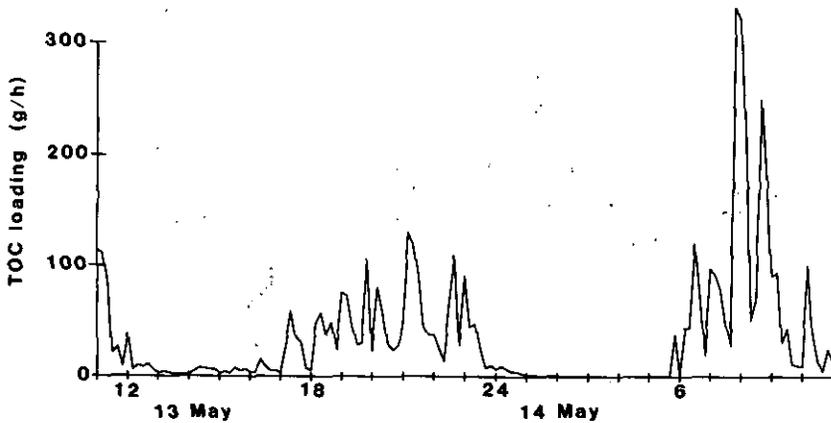


図 3(2) 排水量並びにTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量の経時変化（10分間隔）
 Fig. 3(2) Diel change of discharge rate, TOC loading, T-N loading, and T-P loading determined by sampling with 10 minutes interval

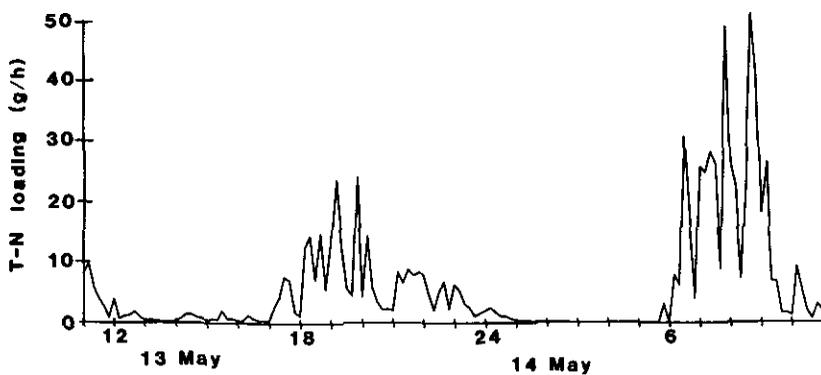


図 3(3) 排水量並びにTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量の経時変化 (10分間隔)
Fig. 3(3) Diel change of discharge rate, TOC loading, T-N loading, and T-P loading determined by sampling with 10 minutes interval

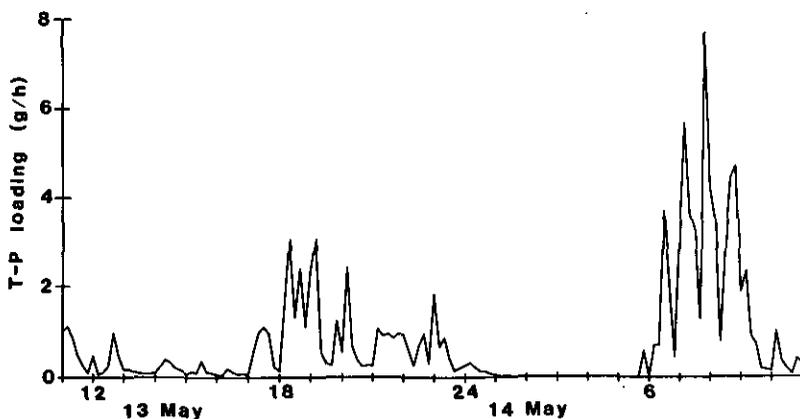


図 3(4) 排水量並びにTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量の経時変化 (10分間隔)
Fig. 3(4) Diel change of discharge rate, TOC loading, T-N loading, and T-P loading determined by sampling with 10 minutes interval

表 3 生活雑排水の水量及び汚濁負荷原単位

Table 3 Per capita loadings for gray water

水量 (l/l/d)	SS	BOD	COD (g/l/d)	TOC	T-N	T-P	調査者及び調査年次	備	考
224	...	30.5	2.46	0.32	建設省下水道部 1970	大阪, 神奈川の団地32世帯の夏期調査 出典: 家庭下水の汚濁負荷量の原単位に関する調査報告書	
186	日本河川協会 1972	生活用水利用実態調査	
...	...	27.1	1.63	0.37	建設省土木研究所 1973	地方都市9カ所	
100	...	28.3	20.0	...	2.41	0.5	農林省計画部 1974-1975	長野県農家4戸を30回調査	
176	...	40.0	18.0	...	2.90	0.90	環境庁 1980	群馬県伊勢崎市, 群馬町, 新田町の10家族を調査 出典: 生活排水対策調査報告書 (1982)	
149	...	29.1	14.3	...	1.25	0.46	環境庁 1981	群馬県新田町の3家族を調査 出典: 生活排水対策調査報告書 (1982)	
104	...	17.3	9.57	...	1.22	0.8	楠本ら 1980	茨城県内の13戸の家庭を調査 出典: 生活排水の処理に関する研究, 日本環境整備教育センター (1980)	
179	...	50.0	17.7	...	2.39	0.66	茨城県公害技術センター 1982	茨城県内の8戸の家庭を調査	
210	...	48.7	17.0	...	1.2	0.5	橋本ら 1982	沼津市の団地30戸と焼津市の団地39戸を年4回調査 出典: 静岡県衛生環境センター報告書 (1982)	
207	...	33.1	14.1	...	1.27	0.46	桜井ら 1979	K団地内の10戸を用途別排水調査 出典: 家庭排水の汚濁負荷量原単位調査, 神奈川県衛生研究所研究報告No.9 (1979)	
170	...	27.6	15.1	...	1.1	0.8	東京都公害局 1975	出典: 有機性汚濁物量の排出背景調査 (1975)	
113	...	30.5	12.2	...	1.16	0.68	兼子ら 1975	名古屋市の10家庭を2回調査 出典: 家庭雑排水と尿水の負荷量及び処理性に関する考案, 第14回下水道研究発表会講演集 (1977)	
150	7.8	17.3	7.4	...	0.98	0.42	平間ら 1981	し尿の単独浄化槽を設置している住宅団地 出典: 生活雑排水の汚濁負荷量原単位調査並びに洗剤に関するアンケート調査, 千葉県水質保全研究所 (1981)	
...	...	26	0.62	橋本ら 1983	広島県団地排水 出典: 生活雑排水に関する研究, 広島県環境センター研究報告第5号 (1983)	
167	0.50	梅本ら 1979	尼崎市および伊丹市の住宅公団団地 出典: 家庭雑排水のリン原単位調査, 兵庫県公害研究所研究報告No.11 (1979)	
186	14	28	12	13	1.4	0.23	松井ら 1987	長野県上田市K団地 (88戸, 250人) 出典: 家庭雑排水の汚濁負荷原単位, 用水と廃水, Vol.29 (1979)	
145	12	24	20	...	1.4	0.25	岡田ら 1986	土浦市K団地 出典: 生活系排水の原単位, 国立公害研究所研究報告, 第95号 (1986)	
190	24	35	12	...	2.3	0.40	岡田ら 1986	土浦市M地区 出典: 生活系排水の原単位, 国立公害研究所研究報告, 第95号 (1986)	
200	7.2	9.6	4.7	...	1.3	0.15	岡田ら 1986	土浦市W地区 出典: 生活系排水の原単位, 国立公害研究所研究報告, 第95号 (1986)	

表4にサンプリング間隔の違いによる生活雑排水の排出水量並びにTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量のばらつきを示す。図3から推定されるようにTOC, T-N, T-P負荷とも同様の時間変動を示すため、ひとつのサンプリング間隔に対応するばらつき(変動係数)はほぼ同一の値となった。当然のことながら、いずれの項目ともサンプリング間隔が短くなるほど各汚濁負荷量のばらつきが小さくなった。1時間に1度のサンプリング間隔では、排水量及びTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量は、それぞれ16%、16%、15%、21%程度のばらつきを有した値であることが推定される。

表 4 調査回数の違いによる算定汚濁負荷原単位のばらつき

Table 4 Variation of per capita loadings estimated from the simulation with various sampling frequencies using Monte Carlo simulation and data of per capita loadings at intervals of ten minutes

	経年変動	サンプリング間隔			
		30分間隔	1時間間隔	2時間間隔	4時間間隔
水量(l/人/d)	197				
シミュレーションによる					
平均値(l/人/d)		198	198	197	200
変動係数(%)		8.6	16	23	34
TOC(g/人/d)	8.50				
シミュレーションによる					
平均値(g/人/d)		8.92	8.87	8.85	8.72
変動係数(%)		9.4	21	31	48
T-N(g/人/d)	1.41				
シミュレーションによる					
平均値(g/人/d)		1.43	1.44	1.43	1.47
変動係数(%)		9.4	16	28	44
T-P(g/人/d)	0.188				
シミュレーションによる					
平均値(g/人/d)		0.213	0.212	0.211	0.209
変動係数(%)		8.8	15	26	43

4.3 実践活動による生活雑排水対策

図4及び図5に実践活動の前後におけるBOD, COD, TOC並びにT-N, T-Pの汚濁負荷量の経日変化を示す。BOD, DOC, TOCの汚濁負荷量及びT-N, T-Pの汚濁負荷量のそれぞれ同様の経日変化を示した。10月20日以降が実践活動の結果を示しているが、図からみてわかるように実践活動前後において大きな差が認められなかった。また、いずれの項目とも10月24日(金)から10月26日(日)においては、実践活動以前よりも高い値を示した。このモデル地区では、青柳ら²²⁾の実践活動前後のアンケート調査結果から実践活動が着実に実施されていたと考えられるため、この10月24日(金)から10月26日(日)までの期間は、なんらかの要因で汚濁負荷量が実際に増大した結果とみなせる。あえて推測するならば、このモデル地区では一般のサラリーマン家庭が大半であること、

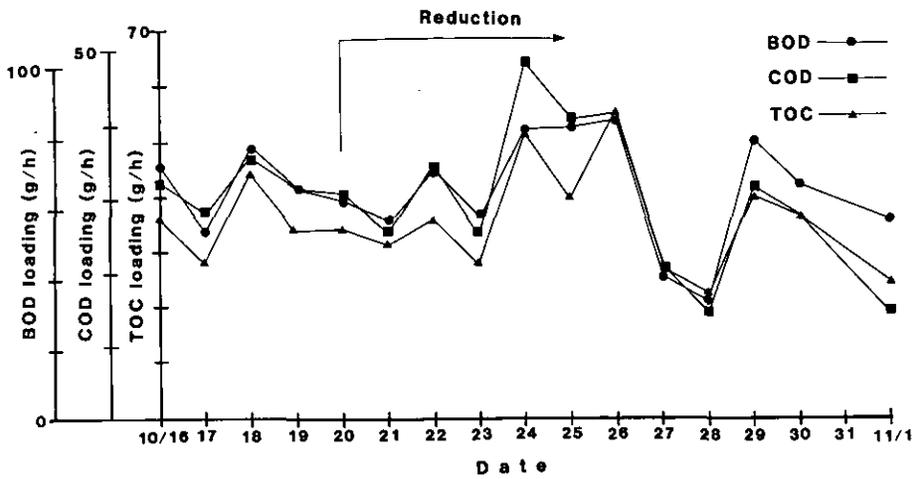


図 4 実践活動前後におけるBOD, COD, TOCの汚濁負荷量の経時変化
 Fig. 4 BOD loading, COD loading, and TOC loading before and after on-site reduction measures of loading of gray water by residents for themselves through information activities

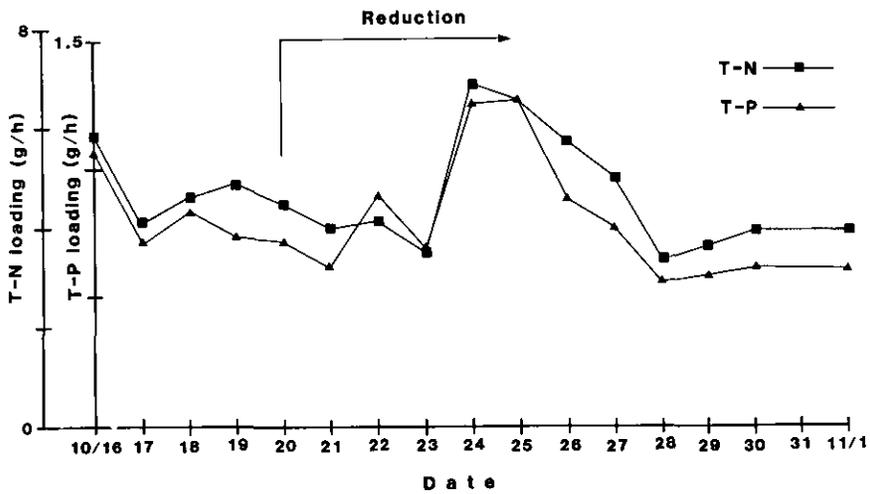


図 5 実践活動前後における T-N 並び T-P の汚濁負荷量の経年変化
 Fig. 5 T-N loading and T-P loading before and after on-site reduction measures of loading of gray water by residents for themselves through information activities

この時期が給料日と週末が重なっていることから、台所等からの汚濁負荷が増大したものと考えられる。

次に、1986年3月から6月までの汚濁負荷量データを実践活動の前のデータとして扱い、また10月20日から11月1日までの汚濁負荷量データを実践活動の後のデータとして整理し、モデル地区における生活雑排水の実践活動が汚濁負荷量に及ぼす効果を表5に示す。平均値で見れば、実践活動によりTOCを除く各水質項目の汚濁負荷量が20%程度減少した。ただ、統計的に有意な差(5%水準)が認められたのは、窒素のみであった。このように実践活動の前後における負荷量に有意差がほとんど認められなかったのは、表4で検討したように1時間に1回のサンプリング頻度によって算定される汚濁負荷量のばらつき自体が20%前後であることから推定される。

静岡県生活環境部の調査によると、実践活動による発生源対策を行うと、厨房ではBOD 65%、SS 65%、T-P 61%、T-N 63% 除去可能であるとしている⁶⁾。また千葉県では、台所ろ紙による削減効果を調査した結果、SS 50%、油分40%の除去率が得られた⁶⁾。これらの結果は、最高の削減効果と考えるべきであるが、厨房の管理を徹底すれば、台所排水の汚濁負荷の30%程度は削減可能であろう³⁻⁶⁾。

しかしながら、モデル地区では、実践活動による発生源対策の効果は顕著でなかった。この理由としては、モデル地区のBOD、COD等の有機性汚濁関連項目の原単位が、表3に示した文献値の中でも低い部類に属する(例えば、モデル地区のBOD原単位は、文献値の中央値や平均値のそれぞれ、59%、57%に相当し、仮に汚濁負荷原単位が全国で大きく異ならなければ、既に発生源での汚濁負荷削減対策が実施されているとみなせる。)ように、実践活動以前からモデル地区住民の生活雑排水に対する意識が高く、住民がそれぞれ工夫して汚濁負荷の削減に努めていた結果と考えられる。

表 5 モデル地区における実践活動の前後における生活雑排水の汚濁負荷単位
Table 5 Per capita loadings gray water before and after on-site reduction measures of loading of gray water by residents for themselves through information activities

項 目	実践活動前における 原単位の平均値	実践活動後における 原単位の平均値
流入水量(m ³ /人/d)	0.23	0.20
BOD (g/人/d)	18	15
COD (g/人/d)	8.0	6.4
窒素 (g/人/d)	1.5	1.1
リン (g/人/d)	0.22	0.19
SS (g/人/d)	8.0	4.6

5 まとめ

生活雑排水の汚濁負荷原単位の特性を把握するため、茨城県八郷町にモデル地区（25戸）を設定し、各季節における汚濁負荷原単位調査を行うとともに汚濁負荷原単位調査方法についてサンプリング頻度から検討し、さらに、生活雑排水の発生源対策としての実践活動の効果について検討した。得られた結果は、以下のようである。

- 1) モデル地区の生活雑排水は、朝と夕方の2回に主として排出され、洗濯や炊事の時間と一致していた。モデル地区の汚濁負荷原単位は、水量216 l/人/d, BOD 16.7g/人/d, COD 7.25g/人/d, TOC 9.17g/人/d, SS 8.46g/人/d, T-N 1.33g/人/d, T-P 0.210g/人/dで、文献値の範囲にあった。ただ、BODやCODなどの有機物関連項目は、文献値の最低値に近い値を示した。
- 2) 10分間隔でみた流量やTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量は激しい時間変動を示した。このデータを基礎にして、サンプリング間隔の違いによる汚濁負荷量の評価値に対するばらつきを推定したところ、1時間に1回のサンプリング頻度では、流量やTOC, T-N, T-Pの汚濁負荷量とも20%前後のばらつきを有した値であることが示された。
- 3) 生活雑排水の発生源対策として、モデル地区で実践活動を行った結果、平均値でみれば、20%前後の除去効果が示された。しかし、統計的には窒素を除けば、有意な差ではなかった。この理由として、2)で述べたように1時間に1回のサンプリング頻度から評価した汚濁負荷量は、20%前後のばらつきを有した値であること、またモデル地区では、実践活動以前からモデル地区住民の生活雑排水に対する意識が高く、住民がそれぞれ工夫して汚濁負荷の削減に努めていた結果と考えられた。

謝 辞

生活雑排水の通日調査に際し、御協力を頂いた陣馬地区住民の方々をはじめ、八郷町環境衛生課並びに茨城県環境局霞ヶ浦対策課の方々に感謝致します。

引 用 文 献

- 1) 環境庁（1987）：昭和62年版 環境白書.542p
- 2) 千葉県水質保全課（1981）：よみがえれ手賀沼の水.
- 3) 須藤隆一（1982）：生活雑排水からの負荷とその処理対策. 用水と廃水, 24, 397-407.
- 4) 須藤隆一（1983）：雑排水をどうするか. 用水と廃水, 25, 365-371.
- 5) 須藤隆一（1987）：生活雑排水をめぐる. 公衆衛生, 51, 380-386.
- 6) 環境庁水質保全局水質規制課（1985）：生活雑排水対策マニュアル.
- 7) 兼子 崇・杉下 進・高橋信司（1977）：家庭雑廃水と尿尿の負荷及び処理性に関する考察. 第14回下水道研究発表会講演集, 119-121.
- 8) 桜井敏郎・竹田 茂・小川雄比古・田所正春・高橋一三（1979）：家庭廃水の汚濁負荷原単位調査. 神奈川県衛生研究所報告, No.9, 55-56.
- 9) 梅本 諭・深田哲右・赤壁哲郎・古武家善成・北村弘行（1979）：家庭廃水のリン原単位調査. 兵庫県公害研究所研究報告, 第11号, 45-51.
- 10) 平間幸雄・小林節子・鎗田 功（1987）：生活雑排水の汚濁負荷原単位調査ならびに洗剤に

- 関するアンケート調査，昭和55年度千葉県水質保全研究所業務年報，58-60.
- 11) 橋本敏子・田口 哲・岡本 拓 (1983) : 生活排水に関する研究 (第4報) 生活雑排水の汚濁負荷とその由来について，広島県環境センター研究報告，第5号，62-66.
 - 12) 岡田光正・須藤隆一 (1986) : 生活系排水の原単位，国立公害研究所研究報告，第95号，7-20.
 - 13) 長野県生活環境部・長野県衛生公害研究所 (1984) : 家庭雑排水の処理に関する調査研究，75pp.
 - 14) 松井優實・松沢克典・矢野伸一・樋口澄男・中沢雄平 (1987) : 家庭雑排水の汚濁負荷原単位，用水と廃水，29，144-149.
 - 15) 茨城県環境局 (1984) : 霞ヶ浦流域生活雑排水処理技術指針，13-19.
 - 16) 山根敦子・岡田光正・須藤隆一 (1981) : 生活排水に占める洗たく用洗剤に由来する汚濁負荷，下水道協会誌，18(210)，11-19.
 - 17) 細見正明・稲葉一穂・稲森悠平・原沢英夫・須藤隆一 (1986) : アシ原による生活雑排水の処理，日本水処理生物学会第23回大会講演要旨集.
 - 18) 細見正明・稲葉一穂・稲森悠平・原沢英夫・須藤隆一 (1987) : アシ原の自然浄化能を活用した生活雑排水処理，第4回自然浄化シンポジウム.
 - 19) Hosomi, M. and R. Sudo (1986) : Simultaneous determination of total nitrogen and total phosphorus in freshwater samples using persulfate digestion. *Int. J. Environ. Stud.*, 27, 267-275.
 - 20) 日本下水道協会 (1985) : 下水試験方法 - 1984年版 - .
 - 21) 岡田光正・細見正明・高崎みつる・須藤隆一 (1984) : 湖沼水質調査に関する基礎的研究，用水と廃水，26，10-18.
 - 22) 青柳みどり・原沢英夫・細見正明 (1987) : 雑排水対策に対する住民の意識と行動について，第15回環境問題シンポジウム講演論文集，85-91.

渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究

(第3報) 溶存物質の流出機構

Study on Water Purification of Forest from View of Streamwater Quality

(III) Runoff Mechanism for Dissolved Material

平田健正¹・村岡浩爾¹

Tatemasa HIRATA¹ and Kohji MURAOKA¹

要 旨

本研究は筑波森林試験地で得られた4つの降雨時の渓流水質資料から、溶存物質の流出機構を検討している。要約すると、大抵の物質は流量増加時に濃度は減少し、通減時に増加する。そして、降雨に対する応答特性の違いは降雨終了後の通減期に現れ、ほぼ降雨前の濃度レベルに回復するType I と降雨前の値を上回るType II の2つの流出パターンのあることが見いだされた。Type I の代表的な物質にSiO₂があり、Na⁺、Cl⁻と電気伝導度もType I に属する。Type II にはNO₃⁻-Nがあり、K⁺、Ca²⁺、Mg²⁺もこれに属する。

流量通減時に見られる流出パターンの違いは通減時のハイドログラフを支配する中間流出成分、すなわち土壌水の流出に由来すると考えられ、この土壌水質の鉛直分布も調べられた。その結果、Type I に属する物質について濃度は鉛直方向にほぼ一様か、表層付近で深部より減少していること、一方Type II については表層付近で濃度の高まりが存在すること、が確かめられた。この分布特性は降雨流出パターンの違いをおおむね説明することができる。さらに、Type II に分類された物質はすべて、植物体にとっての多量必須元素に属することも明らかにされた。

Abstract

This paper describes the runoff mechanism for generating the chemical change of streamwater during the storm events, on the basis of four observed results in the Tsukuba experimental forested basin. The chemical changes of streamwater during the storm events allow to distinguish two types of stream solute runoff. Until the peak discharge concentration of each element decreases, due to a dilution effect by the surface runoff water. Whereas during the recession period, the concentrations increase, following two major modes: Type I, which shows approximately the same concentrations around the end of the runoff period as the baseflow level prior to the runoff event; Type II, which overshoots the baseflow level. The main solute belonging to Type I is SiO₂, as are Na⁺, Cl⁻ and specific conductance. The main solute of Type II is NO₃⁻-N, as are K⁺, Ca²⁺ and Mg²⁺.

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental
Studies. 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

These two behaviors are considered to be mainly caused by the solute difference in the interflow, main runoff component during the recession period. The interflow might change the streamwater chemistry by leaching soilwater, therefore the soilwater chemistry has been analysed. The solutes classified into Type I showed nearly uniform concentrations with depth, while the solute concentrations of Type II near surface were greater than those of deep soilwater and streamwater. Then, two results correspond respectively to the runoff features of Type I and Type II. Besides, all the materials belonging to Type II were found to be major essential elements closely involved in plant growth and forest ecosystem.

1 研究目的

森林域では物質は土壌-植物体を通して常に循環している。水分一つにしても、人力としての降雨は樹冠で一部遮断され、残りの部分が林内雨・樹幹流や直達雨量として林床に届く。その後、土壌中に浸透することになるが、比較的速く溪流に流出する成分と、地下水として流出する成分に分かれる。その間、蒸発や植物体の蒸散によって水分は失われることになる。水質については樹体や土壌との接触時間によって大きく変化し、その機構も水分移動に比べてさらに複雑である。すなわち植物吸収や土壌への吸着等によって濃度減少する物質もあれば、土壌・基岩母材からの溶出によって高まる物質もあるからである。

森林生態系での物質循環については、ハッパードブルックで行ったLikensら¹⁾の研究が著名である。これとほぼ同じ時期に、我が国では堤らによって京大上賀茂試験地で先駆的な調査が開始され²⁾、この研究は滋賀・桐生、若女、比叡山、梁ヶ谷、竜王山等の試験地へと引き継がれる³⁾。これ以外にも多摩丘陵⁴⁾、愛媛石手川源流部⁵⁾、等での観測例がある。しかしながら、森林生態系内での養分物質の動きについては未知のことが多く、十分な科学的データが蓄積されているとは言いがたい。森林の立地する水文・気象・地質・植生状態で物質の動態が大きく変化するからである。

中でも降雨時の流出負荷量は平水時の数百倍、あるいはそれ以上に上るにもかかわらず、負荷量の評価は勿論、その基礎となる降雨時の渓流水質について、観測資料は少ない⁶⁻⁸⁾。一口に観測資料と言っても、降雨時の渓流水は表面流出、中間流出、地下水流出の各成分から構成されており、これらの成分は、それぞれの発現の場の物質濃度を反映しており、濃度レベルも異なる。したがって、渓流水量が同じであっても、水量上昇時と通減時では渓流水の構成比が異なるため、物質濃度も変化するのが一般である。つまり、水量時系列に対応した形で、渓流水質の時間変化が描ける程度に、細やかな分析資料が要求されることになる。こうした背景から、著者等は筑波山系に森林試験流域を設け、1984年9月から、林外雨・林内雨、森林地下水及び渓流水について観測を行ってきた^{9,10)}。本報告では、これまでに得られた4つの降雨流出資料を基に、溶存物質の降雨流出特性について考察する。また最近の研究成果から、降雨流出に果たす土壌水の役割が重要視されている¹¹⁾。この土壌水も1986年2月から森林試験地で採取しており、土壌水の流出の渓流水質に及ぼす影響を明らかにする。本報告ではこれらの資料から、降雨によってもたらされた水分と水質が、森林生態系を経ることによりどのように変化し、また森林から流亡する水

質は生態系内の元素循環とどのような関係にあるのか、検討した。

2 筑波森林試験流域と観測

試験地は当研究所北方約17kmの茨城県新治郡八郷町中山地先を選定した。図1にあるように試験地は筑波山南東斜面に位置し、流域面積は67.5haである。流域特性は前報¹⁾に詳しく、ここでは概要を述べるに留める。

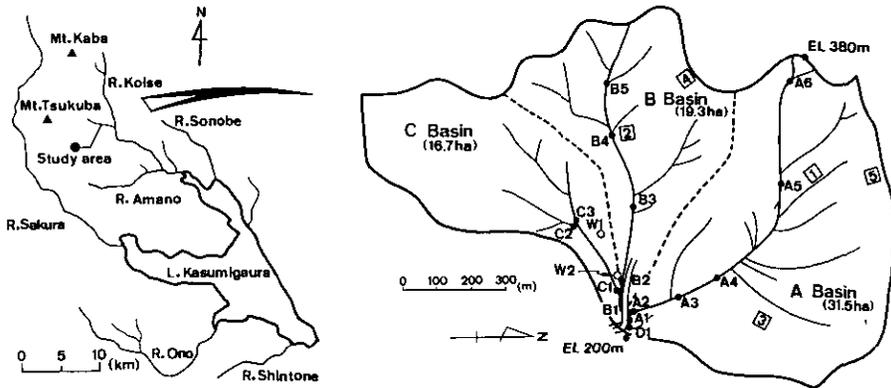


図 1 筑波森林試験地の位置と観測地点

Fig. 1 Location of Tsukuba experimental forested basin and measurement sites

2.1 地形・地質と植生

試験地の標高はおよそ200mから380mの範囲にあり、流域の平均斜度は15度である。標高200mの合流地点A1より北、西、南西に3本の溪流A、B、C沢が流れ、それぞれの流域面積は31.5、19.3、16.7haである。地質についてはB沢に沿って顕著な境界が走っており、基岩はB沢より北側で花コウ岩、南側で片麻岩となっている。観測井建設時に得られたボーリング資料からGL-10m付近に基岩が現れ(W1とW2地点)、その上部に風化花コウ岩と崖錐が分布し、各層の境界付近に帯水層のあることが確認されている。

調査地域はほぼ全域に植林が施されている。沢沿いを中心にスギ、尾根部周辺にヒノキとアカマツが広がり、これら3種で全流域の85%を占める。また毎木調査と林床植物刈取調査から、スギ、ヒノキ、アカマツの現存量(乾重)は7380、1150、490tであり、これら3種で全流域の92%を占める¹⁾。

2.2 現地観測

渓流水については3溪流の合流地点A1を含め、各溪流沿いに14点と残流域D1地点の計15地点で採取する。渓流水量はA1地点にフロート式自記水位計を設置しており、観測水位から流量に換算している。一方降雨はA1地点近くの裸地に転倒マス型雨量計を設け、転倒パルスを検出すること

によって10分単位の降雨量を観測している。これとは別にポット型雨量計も設置し、降雨を集水する。

林内雨はスギ、ヒノキ、落葉広葉樹林内にプロットを設け採取する。森林地下水についてはC沢沿いに2本の観測井W1とW2を建設した。

資料の採取は隔週に、降雨は毎週もしくは1雨ごとに回収する。こうした定期調査に加え、降雨に対する溶存物質の応答特性を調べるため、降雨時の溪流水質と水量の連続観測もA1地点で実施した。また土壌水の採取は、後述するように1986年2月から開始した。水質の分析項目は栄養塩類、金属元素、SS、pH、電気伝導度SCである。

2.3 降雨流出資料

1984年9月の観測開始来、梅雨期から夏季にかけて4回の降雨流出資料が得られている。これらは以後、Event 1からEvent 4として記述される。総雨量はEvent 1からEvent 4の順に48.0、136.5、26.5、291.0mm、降雨停止から24時間で計算された流出率は9.14、22.2、13.5及び14.9%である。また水文条件は次のようである。

Event 1 (1985年6月13日～14日)：降雨継続時間が31時間と長い割には総雨量は48mmであり、時間雨量も最大で4.5mmと小さい。6月11日22時から12日6時にかけて11.5mmの降雨はあるものの、先行降雨終了から13日の降雨開始までに21時間経過しており、水量から見ればほぼ平常時に戻った状態から観測が始まっている。

Event 2 (1985年6月30日～7月1日)：この降雨は台風8506号によってもたらされた。降雨パターンは四つに分かれ、最大時間雨量は時間経過の順に6.5、12.0、10.5、12.5mm/hである。先行雨量は6月28日に48mm、29日に1mmである。

Event 3 (1986年6月25日～26日)：総降雨量は26.5mmと4回の観測資料の中で最も小さい。しかし降雨継続時間は9時間と短く、最大時間降雨強度は8.5mm/hと大きい。

Event 4 (1986年8月4～5日)：この降雨は台風8610号によってもたらされ、総雨量は291.0mmと観測資料中最大である。最大時間降雨強度も40.0mm/hと極めて大きい。また10日以内の先行降雨量は0である。

以上を整理すると表1のようである。

表 1 Event 1からEvent 4の水文特性

Table 1 Hydrological runoff condition for Event 1 to Event 4

Observed period	Total rainfall	Maximum intensity	Runoff coefficient	Antecedent rainfall
	amount (mm)	(mm/h)	until 24 hours(%)	within 10 days(mm)
Event 1 June 13-14, 1985	48.0	4.5	9.14	23
Event 2 June 30-July 1, 1985	136.5	12.5	22.2	201
Event 3 June 25-26, 1986	26.5	8.5	13.5	76
Event 4 August 4-5, 1986	291.0	40.0	14.9	0

3 渓流水質の季節変化

森林は日平均気温 10°C で生長が始まり、 10°C で終わると言われている。地域的なばらつきはあっても、これは我が国ではほぼ4月から11月に相当し、この間に梅雨・秋霖の2つの雨季がある。一方冬季は低温・少雨であり、渓流水質も両者で何らかの変化をしていると予想される。

図2と図3は1984年9月から1986年8月までの渓流水質(試験地最下流端のA1)を日雨量、日流出量とともに描いている。これら溶存物質濃度の中で NO_3^--N が最も顕著な季節変化を示す。降雨流出の影響を受け、冬季(1985年2月)にも濃度上昇はみられるが、これを別にすればおおむね夏季に濃度が高まり、冬季に減少する。これに近い流出特性を持つ物質に Ca^{2+} がある。観測地域が異なっても夏季の NO_3^--N の高まりは堤からも指摘している¹⁵⁾。一方、Likensら¹⁶⁾はハッパードブルック試験地で NO_3^--N はむしろ冬季に高まることを報告している。もちろん夏季には植物体の吸収が考えられるが、冬季積雪下にあるこの試験地で、有機態窒素の無機化がどれ程起こるか問題である。図2には地下水水質も描いているが、 NO_3^--N については渓流水と地下水の間にある時間遅れが存在するようである。

SiO_2 は1985年2月や6月の資料に見られるように、降雨時には減少する傾向にあり、この時の NO_3^--N と対比すると、両者は逆位相の関係にあるように思える。しかし、降雨時の資料を別にとすると、年間を通して大きな変動は見られない。 Na^+ も SiO_2 の流出特性に近い。

これ以外の Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 K^+ 、 Mg^{2+} について、わずかに変動するが、この程度では季節変化とまでは認め難い。また電気伝導度(SC)も変動は小さい。

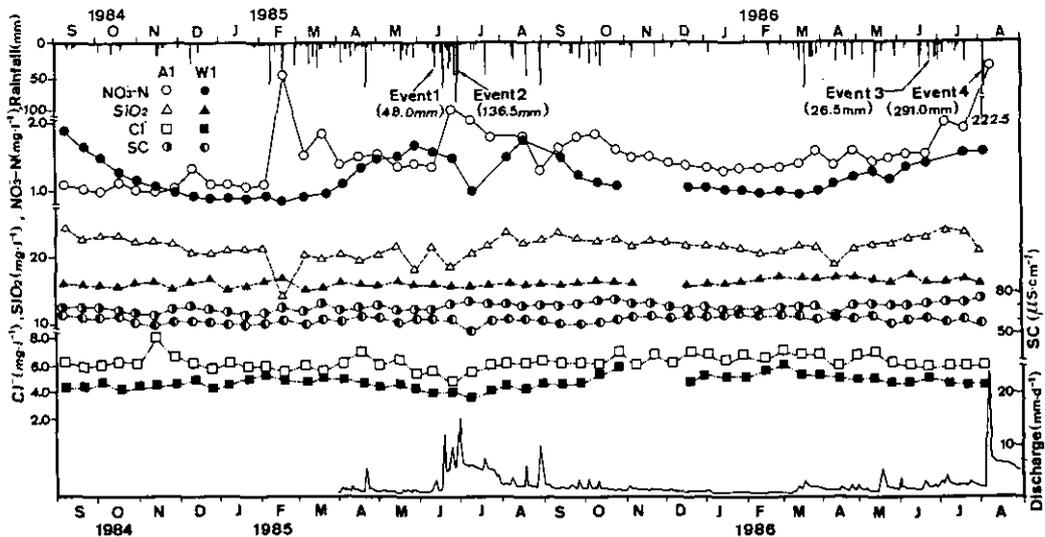


図 2 A1地点で観測された渓流水質の季節変化(1984年9月~1986年8月)

Fig. 2 Seasonal change of streamwater quality (September, 1984-August, 1986)

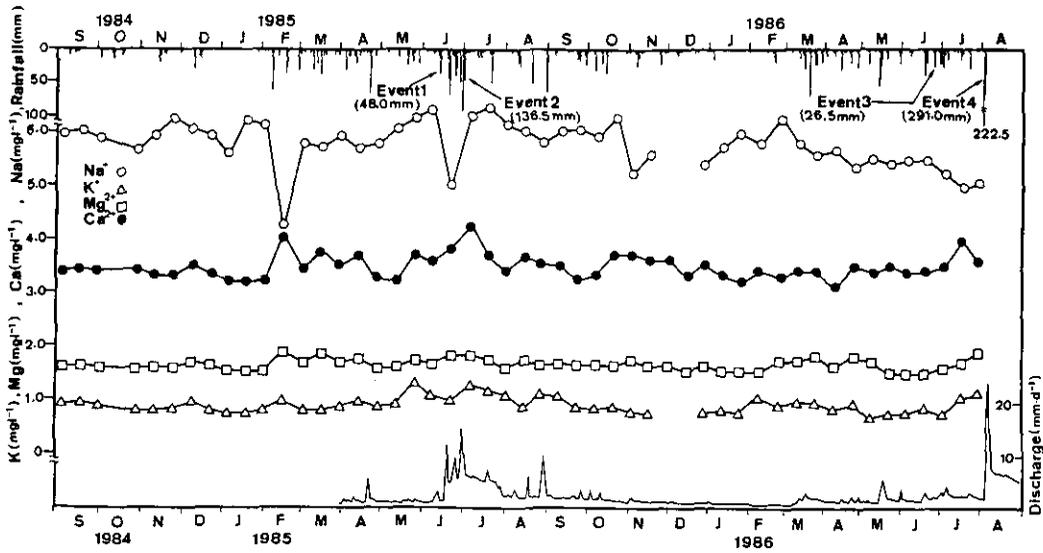


図 3 A1地点で観測された陽イオン濃度の季節変化 (1984年9月~1986年8月)
 Fig. 3 Seasonal change of cation concentration of streamwater
 (September, 1984-August, 1986)

4 降雨時の渓流水質

4.1 溶存物質の流出特性

晴天時の渓流水は主に地下水でかん養されており、水質も安定している。一方降雨時には地下水流出に地表面や土壌表層付近からの流出も加わるため、流量の変化のみならず、渓流水質も変化する。そこで、4つの観測資料から降雨時の渓流水質を概観すると次のようである。すなわち、水質濃度は流量増加時に減少し、ピーク流量時付近で最小となり、逓減時に増加する。そして降雨に対する水質の応答特性の違いは降雨終了後に現れ、降雨前の濃度レベルに回復するものと降雨前の値を上回るものに大別される¹¹⁾。前者を Type I、後者を Type II と呼ぶことにすれば、Type I に属する代表的な物質に SiO₂ があり、電気伝導度 SC、Na⁺ や Cl⁻ もこれに近い。Type II の代表的な物質に NO₃⁻-N があり、K⁺、Mg²⁺、Ca²⁺ も NO₃⁻-N の流出特性に近い。ただ SO₄²⁻ や PO₄³⁻-P については降雨強度や降雨パターンによって変化し、どちらとも分類し難い。もちろん細かく見れば、Na⁺、K⁺ 及び Cl⁻ 濃度は降雨流出初期に高まる傾向があり、SC も逓減時にわずかではあるが降雨前の値より大きくなる特徴を持つが、大略上に述べた2つの流出パターンに分類できると考えている。ここでは Event 1 と Event 2 の観測結果について説明する。

図4aはEvent 1の渓流水質と流量の経時変化であり、水質については Type I と Type II に区別して描いている。同図から、NO₃⁻-N は流量の増加に伴って減少し、ピーク流量時に最小となる。そして流量ピークに遅れて降雨終了後に NO₃⁻-N は最大となり、この値は降雨前の濃度を上回っている。同じ降雨に対して SiO₂ と電気伝導度 SC は共に流量増加時に減少し、NO₃⁻-N とほぼ同様のパターンを描くが、降雨終了後ほぼ降雨前の値に回復する点で NO₃⁻-N の挙動と異なる。Na⁺ と

Cl^- は SiO_2 に、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} は NO_3^- -Nの挙動に近い。

次にEvent2の観測結果を図4bに整理している。まず NO_3^- -Nについて、各降雨パターンに対応した流量ピーク時に濃度は最小となり、流量ピークに遅れて最大濃度が現れる。そして降雨終了後の濃度は降雨前の値を上回り、濃度レベルは異なるが定性的には図4aの結果と合致する。 SiO_2 については、降雨パターンに対応して変動を繰り返すが、降雨終了後には、ほぼ降雨前の値に回復する結果が得られている。Event2においてもSC、 Cl^- や Na^+ はTypeIに、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} はTypeIIに属する流出特性を有している。

ここで降雨時の渓流水構成成分について考える。一般論として、流出開始からピーク流量時までの上昇期は表面流出成分と地下水流出成分から成ると見られる。流量上昇期の渓流水質濃度の減少はこの表面流出成分の希釈効果で説明できる。森林域では顕著な表面流出は発生しないまでも、土壌との接触時間の極く短いター層付近からの流出がこれに相当すると思われる。一方、逓減期、特に降雨終了後は主に中間流出成分と地下水流出成分で構成されている。TypeIの SiO_2 の流出特性に見られたように、ほぼ降雨流出前のベース値に回復する性質は中間流出成分と地下水流出成分に含まれる濃度値に大差ないか、少なくとも中間流出成分の方が小さいことを示唆している¹¹⁾。また NO_3^- -Nに代表されるTypeIIの流出特性を説明するには、中間流出成分に地下水流出成分より高濃度な物質が含まれていなければならない。この中間流出成分は地表近くの土壌水の流出に由来するとみられ、流出パターンの違いは土壌水に含まれる物質濃度の違いによって引き起こされている可能性が強い。

4.2 降雨時の流出負荷量

Event2の観測資料から、降雨時の比累加流出負荷量 $\Sigma L/A$ と比累加流出水量 $\Sigma Q/A$ の関係を両対数紙上で示すと図5a、bとなる。図示のように、いずれの物質も

$$\Sigma L/A = a (\Sigma Q/A)^b \quad (1)$$

で表現されることがわかる。ここに、Aは流域面積、aとbは定数である。この関係は他の3ケースの流出事象についても成立することが確認されている。定数aとbは、観測値から最小自乗法によって求め、図中に記した。先述したTypeIとTypeIIの流出特性に注意してべき数bを見ると、TypeIに属する物質では1よりわずかに小さく、一方TypeIIについてはわずかに大きな値を取る傾向にあるが、おおむね1.0と見なして差し支えないように思える。このことは、濃度に多少の変動があっても、流出負荷量は流出流量に比例することを意味している。ちなみに NO_3^- -N濃度はベース値の0.46~1.31倍の範囲に留まっているのに対し、流量はベース値の最大9.3倍にも上り、流量増加が支配的であることがわかる¹²⁾。

5 土壌水質

降雨時の渓流水質には2つの変動パターンがあること、さらにその違いは中間流出成分に含まれる物質濃度に由来すると予想された。これを証明するには、土壌水質の分布特性は、特に降雨時の渓流水質と併せて土壌水質を観測する必要がある。

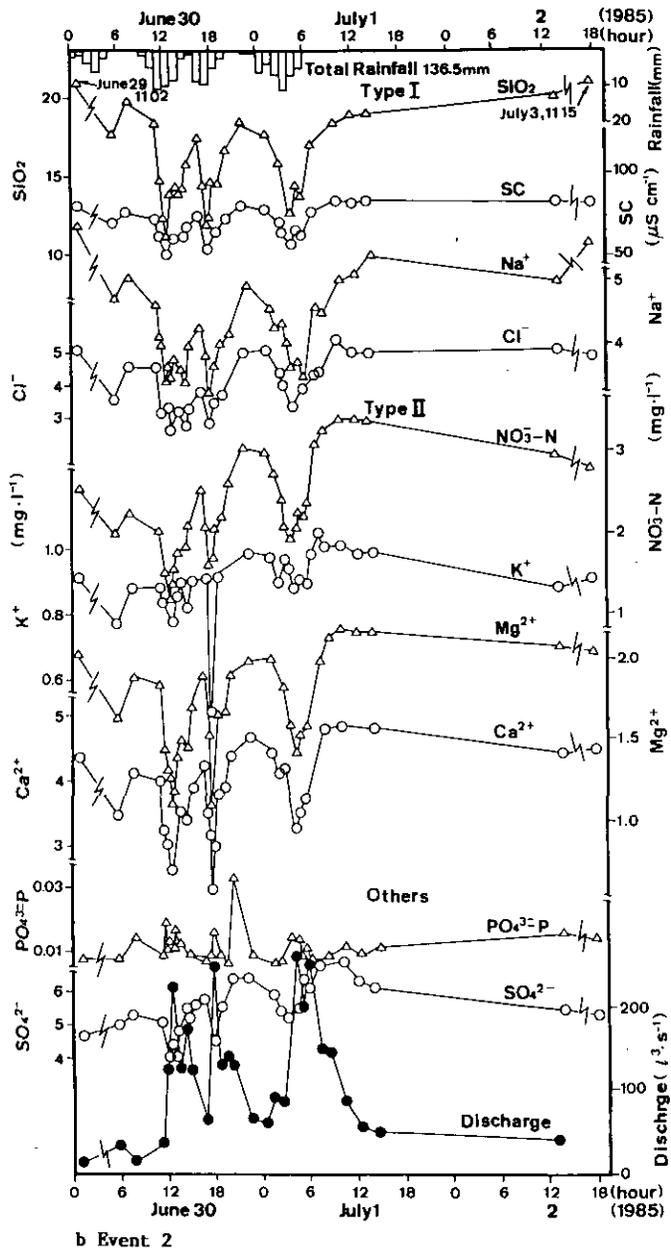
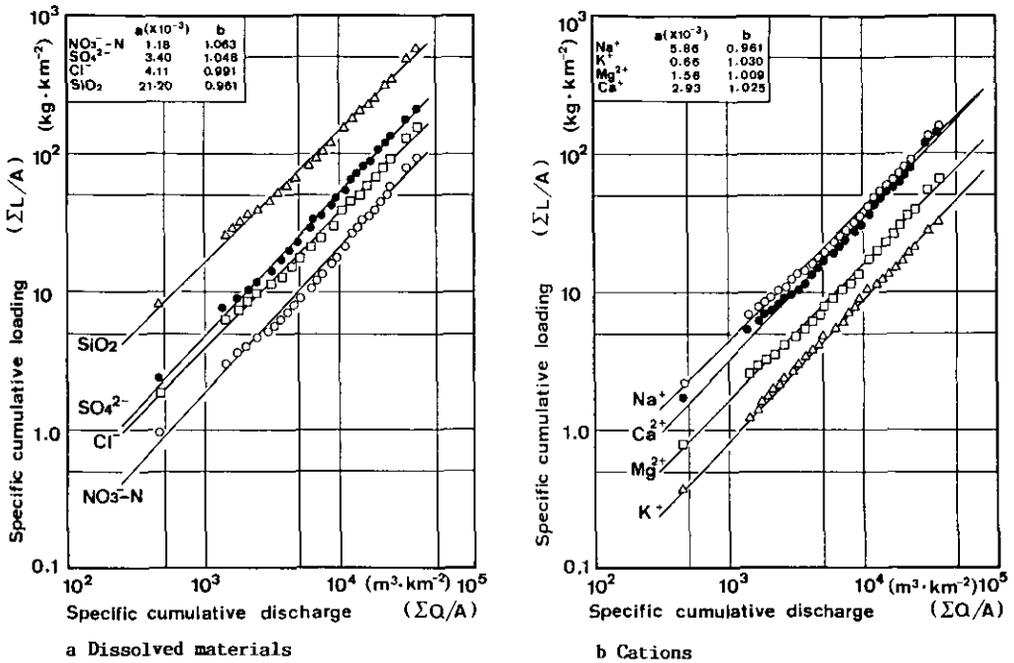


図 4(b) 溶存物質の降雨流出特性 : Event 2 (1985年6月30日~7月1日)
 Fig. 4(b) Runoff features of stream solute during storm events : Event 2
 (June 30-July 1, 1985)



a : 溶存物質

b : 陽イオン

a : dissolved materials

b : cations

図 5 Event 2における比累加流出負荷と比累加流出水の関係

Fig. 5 Relationship between specific cumulative runoff loading and specific cumulative discharge in Event 2

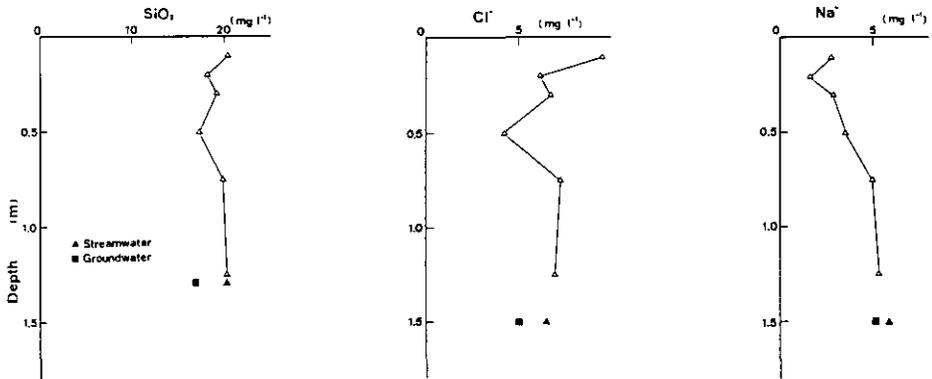
5. 1 観 測

土壌水はスギ林内の2地点で採取した(図1中のA4及びB4地点)。土壌水の採取には、直径2cm、長さ5cmの素焼きのポラスカップをポリエチレンロッドの先端に取り付けた装置を用いた。この装置をリター層を取り除いた地表面から所定の深度まで押し込む。採取深度は10、20、30、50、75(または95)、125、175cmの7深度である。ポラスカップに接続したマイクロチューブを三角フラスコにつなぎ、フラスコ内にサクシオンをかけて土壌水を吸引する。土壌水は1986年2月から月2回の割合で採取し、この定期調査に加え、降雨流出現象の前後でも調べた。

5. 2 鉛直分布

図6は1986年2月13日にB4地点で得られた土壌水に含まれる水質鉛直分布である。溶存物質濃度はType IとType IIに区別して描いているが、このケースでは採取量が少なかったため、電気伝導度SCの測定は行っていない。また図中下部に渓流水質(A1地点)と地下水質(W1-8.0m深)も記しているが、各濃度とも125cm深のデータは渓流水質にほぼ等しい。冬季には降雨は少なく、このケースでも観測前1か月の総雨量は2mmである。したがって、図6にある鉛直分布は降雨流

Type I



Type II

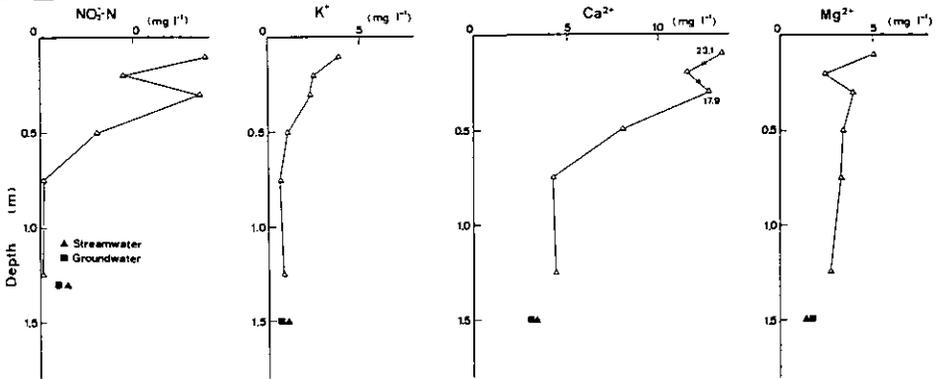


図 6 土壤水質の鉛直分布 (1986年2月13日)

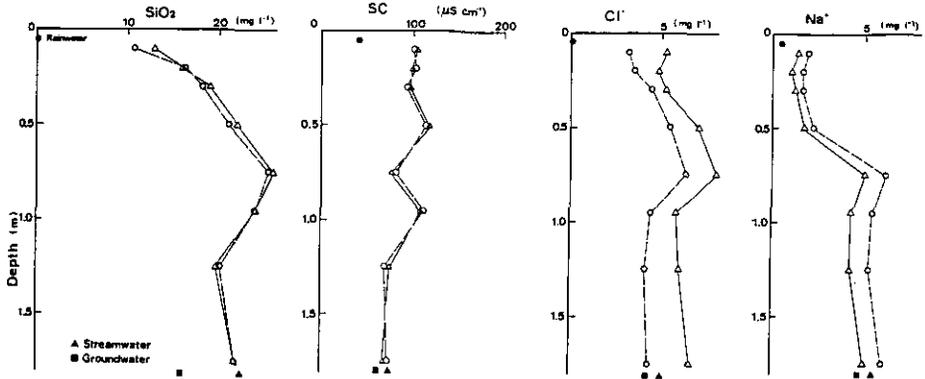
Fig. 6 Vertical profile of solute concentration in soilwater observed on February 13, 1986

出を経験する以前の初期状態と考えられる。

まずType Iの物質について SiO_2 濃度は鉛直方向にほぼ一様であり、 Cl^- も10cm深での高まりを別にすれば、鉛直方向に大きな変動はない。また Na^+ は50cm以浅で深部より小さくなっている。Type IIの NO_3^- -N、 K^+ 、 Ca^{2+} については50cm以浅で濃度の高まりが見られ、特にこの傾向は NO_3^- -Nと Ca^{2+} において顕著である。 NO_3^- -N濃度について言えば、土壤表層付近の10cm深では17.9mg/lと極めて高濃度であり、同図下部に示した溪流濃度1.31mg/lの14倍となっている。 Mg^{2+} のように判別し難い物質もあるが、これらの結果はType IとType IIの流出特性から推定された土壤水質に近い¹¹⁾。

図7と図8は降雨流出Event 3とEvent 4の前後で得られた土壤水質の鉛直分布を描いている。降雨流出時の渓流水質も同時に観測しているが、これについては後述する。図には対象降雨に含まれる濃度値と地下水及びA1地点の溪流濃度も記している。図7より NO_3^- -Nについて、深度

Type I



Type II

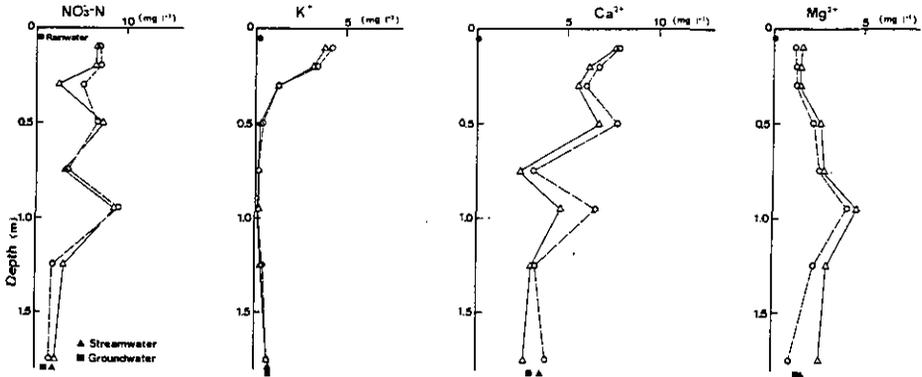


図 7 Event 3の前・後で観測された土壌水質の鉛直分布。

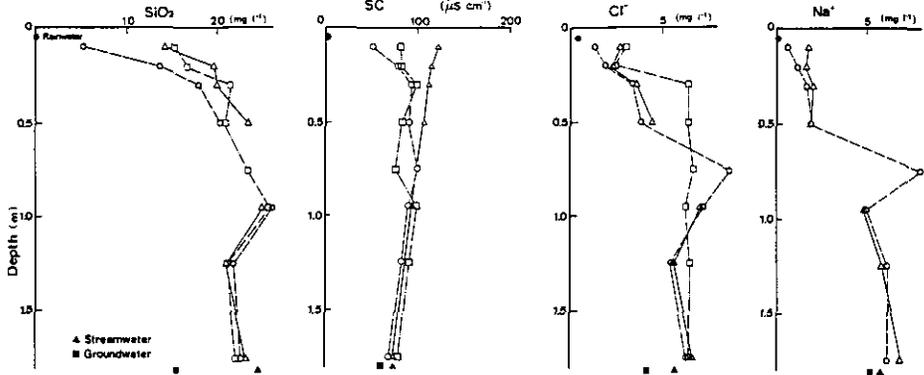
△と○は土壌水の採取時間であり（△：6月23日1100-24日1100，
○：6月25日1800-26日0900），●；対象降雨，▲；渓流水，
■；地下水の水質である。

Fig. 7 Vertical profile of solute concentration in soilwater before and after Event 3

Symbols of △ and ○ refer to the observing time, △: 1100 on 23rd-1100 on 24th, June and ○: 1800 on 25th-0900 on 26th, June. Each value relevant to the specified rainwater; ● streamwater; ▲ and groundwater; ■ is plotted.

10cmの濃度は6.7mg/lであり，図6と比較して減少しているが，K⁺，Ca²⁺と同様依然として高濃度を維持している。Type IのSiO₂，Cl⁻，Na⁺については，先行降雨による洗い出しもあって，50cm以浅で深部の値より減少している。SCの鉛直分布は，全体として深さとともに減少傾向にある。

Type I



Type II

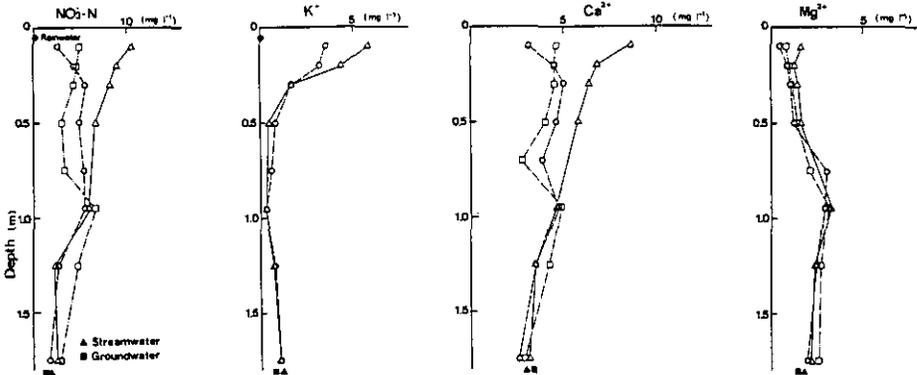


図 8 Event 4の前・後で観測された土壌水質の鉛直分布

Fig. 8 Vertical profile of solute concentration in soilwater before and after Event 4

Symbols are same as in Fig. 7. Δ : 1110 on 31st, July-1100 on 1st, August, \circ : 0800 or 5th-1400 or 6th, August and \square : 15th - 1100 or 16th, August.

しかし深部より土壌表層で高いと言っても変動幅は $33 \mu\text{S}/\text{cm}$ 、率にして47%程度におさまっている。この値は NO_3^- -Nの変動幅に比べて1けた以上に小さい。また総雨量26mm程度では降雨の前後で土壌水質の鉛直分布に大きな変化は現れていない。

図8の資料はEvent 4の降雨前7月31日、降雨終了直後の8月5日、と降雨終了後10日経過した8月15日に採取された。降雨前の鉛直分布については、濃度値に違いはあっても、分布パターンは図7と同様である。ただ台風8610号の降雨強度は最大40mm/hにも上り、そのため降雨終了直後に得られた土壌水質は、いずれも深度50cm以浅で減少している。これらの結果は、大略Type IとType IIの流出特性から予想された土壌水質の鉛直分布と合致する。ここで重要なことは、表層

土壌中の物質の蓄積状態が降雨時の渓流水質を支配しており、土壌水質の鉛直分布が変われば、溶存物質の流出特性そのものが変化する可能性があることである。例えば先行降雨がなく、多量の物質が土壌表面に蓄積されていれば、流量上昇期であっても表面流出成分によってこの物質が流亡し、渓流水濃度が上昇することもあり得る。堤・福篤¹⁸⁾は流量上昇期に NO_3^- -Nは増加し、逓減期に減少することを報告している。

5.3 季節変化

Type I と Type II に属する代表的な物質として SiO_2 と NO_3^- -N を取り挙げ、その季節変化を調べてみよう。図9は SiO_2 について、1986年2月から1987年4月までの表層10, 30, 50cm深と深層の125, 175cm深の濃度変化を描いており、図中上段に日雨量、下段に渓流水濃度も載せている。 SiO_2 は土壌・岩石起源の物質であり、降雨にはほとんど含まれていない。そのため、土壌との接触時間が長い程、濃度は高まることになる。図示のとおり、深度125cmと175cmの濃度は観測期間を通して18.9~25.4mg//の範囲にあり、変動は少ない。また渓流水濃度の年平均値21.1mg//にも近い。一方、10cm深の資料は図7と図8に見られたように、降雨浸透の影響を受けて濃度変動が大きくなっている。図10は Na^+ の季節変化を示しており、 SiO_2 と同様 Type I の変動特性がうかがわれる。

図11は NO_3^- -Nの季節変化を示し、日雨量と渓流水濃度に加え降水濃度も描いている。同図から、表層10cmと20cmの NO_3^- -N に明りような季節変化が認められる。すなわち、2月から5月にかけて減少し、その後上昇に転じる。6月以降、降雨の溶脱による一時的な濃度低下はあるものの、増加の傾向に変わりはなく、9月に最大となる。一方、125cm及び175cm深の濃度は2月以降漸増の傾向にあり、また8月以降減少し、11月にはほぼ2月の濃度レベルに戻っている。前者の濃度変動幅は16.6mg//と極めて大きく、これに比べ後者のそれは3.0mg//と小さい。

3月から7月までの月降雨量はそれぞれ196.5, 121, 187, 158, 132mmであり、特に多寡があったわけではない。にもかかわらず、表層付近の NO_3^- -N濃度は2月から5月にかけて減少し、その後上昇している。ここで NO_3^- -Nの供給源を考えてみよう。これには降雨・降下塵、リターを含めた有機物の分解と窒素固定がある。ただ最後に掲げた窒素固定は不明な点が多い。降雨でもたらされる窒素も森林にとって重要な収入源であるが、図11に示したとおり濃度は1mg//を超えない。 $\text{Inorg-N}(\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-)$ で見ても最大1.9mg//程度であり、表層近くの土壌水に含まれる NO_3^- -Nの増加を説明するには、10倍の濃縮過程が必要とされる。一方、リター等に含まれる有機物分解は温度が10℃上昇すれば、その分解速度は2倍になることが知られている¹⁸⁾。筑波地方の月平均温度は1月が最も低く1.8℃、2月2.7℃であり、最高は8月の24.5℃である¹⁹⁾。その差は約22℃であり、8月は冬季の4倍以上分解が進むことになる。以上から、6月以降9月までの表層土壌中の NO_3^- -Nの増加は、降雨による洗い出し効果より、分解による供給の方が大きかった可能性が高い。11月以降は分解速度は低下するが、降雨流出も少なく高濃度を維持していると推察される。 NO_3^- -N以外のType IIの物質として、図12は Ca^{2+} の季節変化を示している。

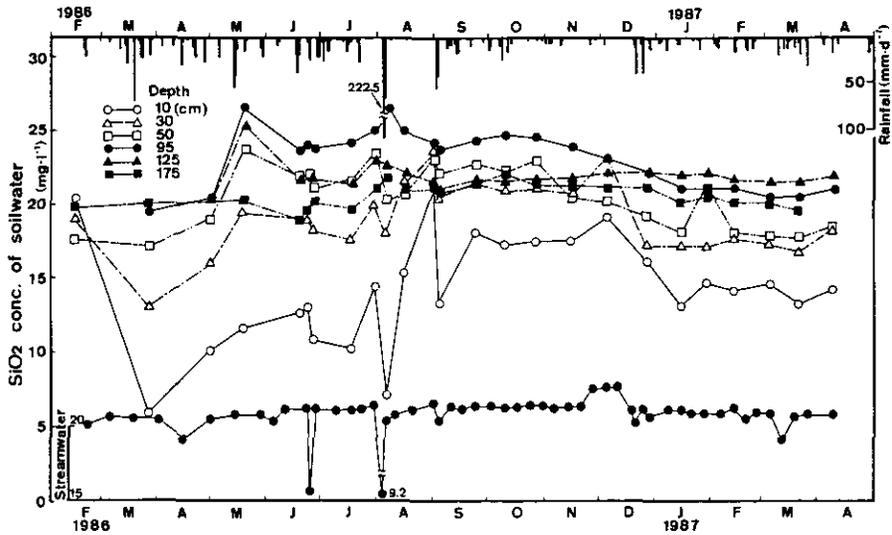


図 9 土壤水に含まれるSiO₂濃度の季節変化

Fig. 9 Seasonal change of SiO₂ concentration in soilwater

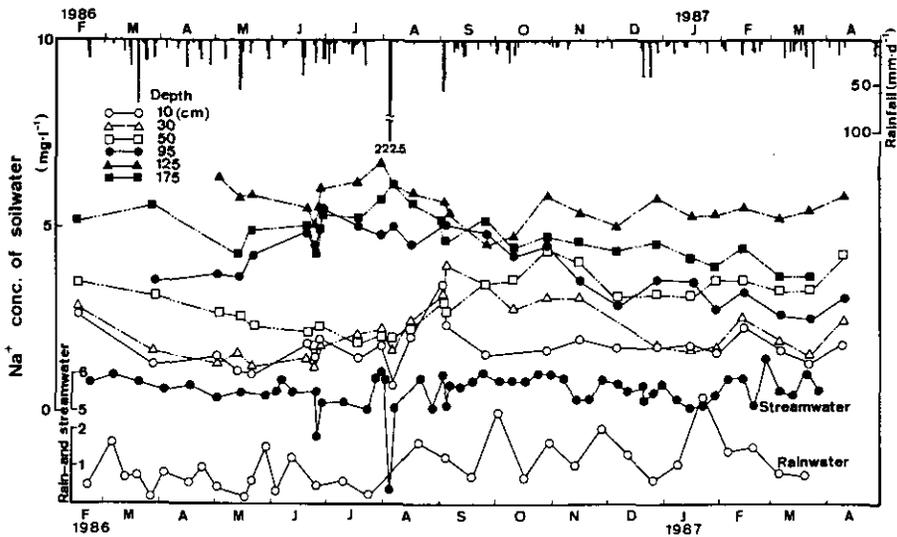


図 10 土壤水に含まれるNa⁺濃度の季節変化

Fig. 10 Seasonal change of Na⁺ concentration in soilwater

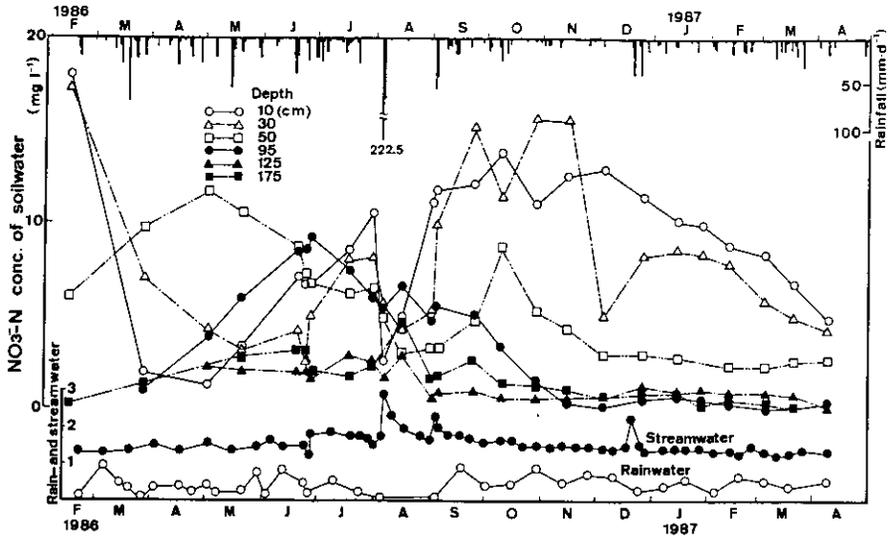


図 11 土壤水に含まれる NO_3^- -N濃度の季節変化
 Fig. 11 Seasonal change of NO_3^- -N concentration in soilwater.

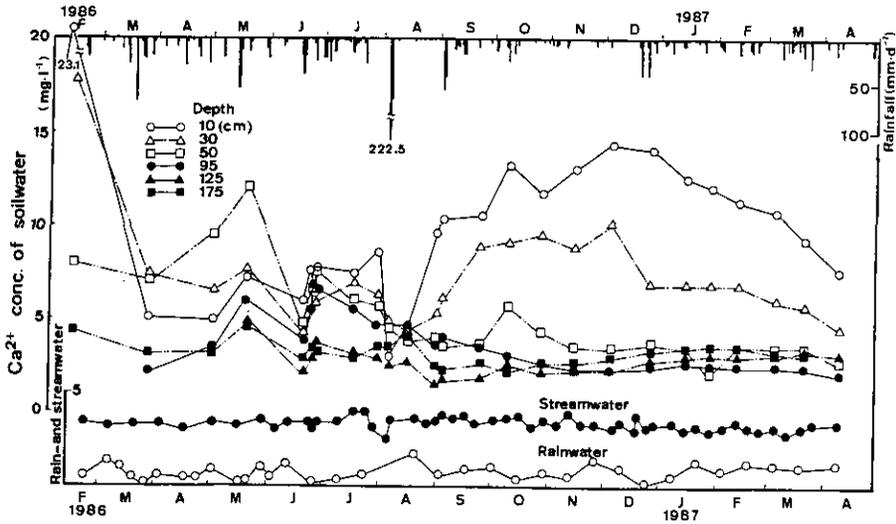


図 12 土壤水に含まれる Ca^{2+} 濃度の季節変化
 Fig. 12 Seasonal change of Ca^{2+} concentration in soilwater

5.4 土壤水質の降雨流出パターンに及ぼす影響

図13aとbは Event 3 及び Event 4 における溶存物質及び SCの降雨流出パターンを描いている。いずれの場合も SiO_2 と SCは降雨終了後、降雨前のレベルに回復し、Type I の特性を有している。一方 NO_3^- -NもType II の性質を保持している。ただし、 SiO_2 とSCのベースレベルを回復する

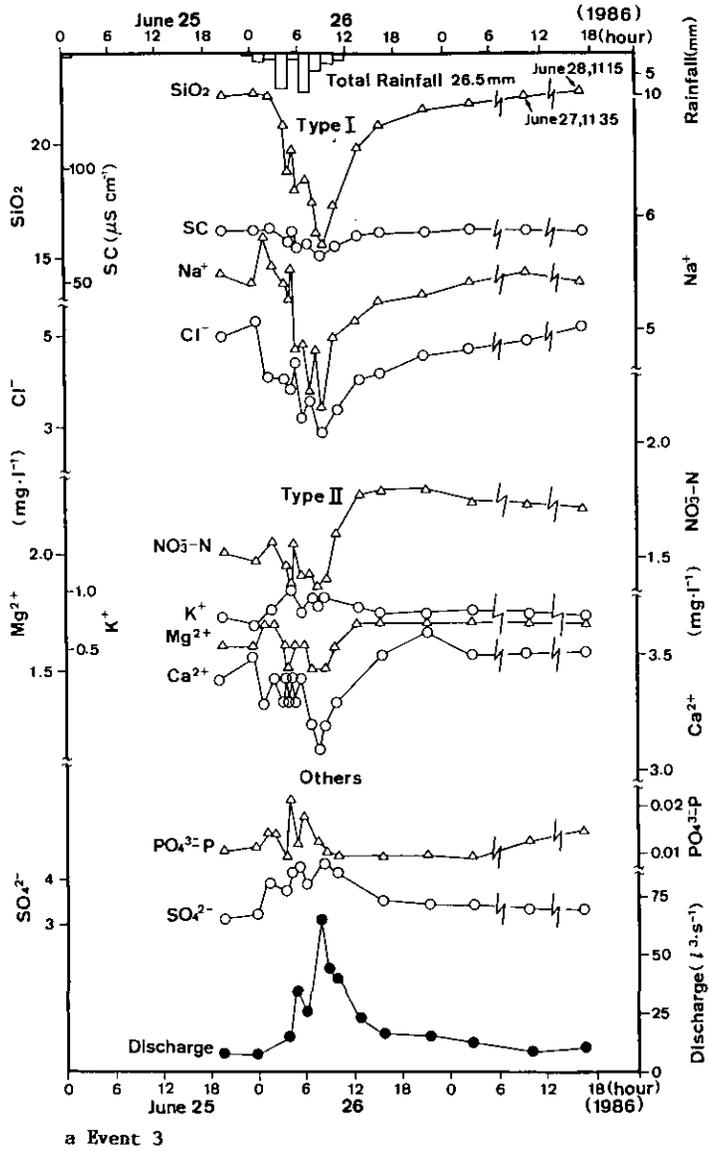


図 13(a) 溶存物質の降雨流出特性 : Event 3 (1986年6月25日~26日)
Fig. 13(a) Runoff features of stream solute during storm events : Event 3
(June 25-26, 1986)

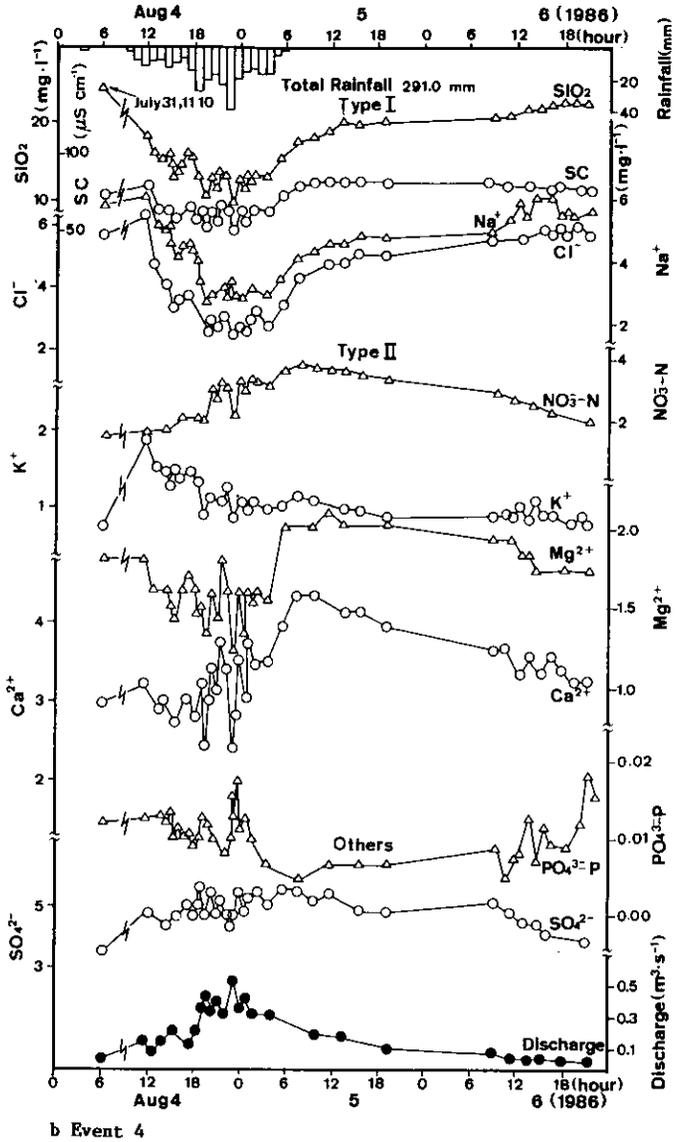


図 13(b) 溶存物質の降雨流出特性 : Event 4 (1986年8月4日~5日)
 Fig. 13(b) Runoff features of stream solute during storm events : Event 4
 (August 4-5, 1986)

までに要する時間が、Event 3とEvent 4で異なる。Event 3においては両者には大きな差はなく、事実 SiO_2 と SCをトレーサとし、mass balance法から降雨流出量に占める地中水の割合を求めると、それぞれ91.3%と91.8%となり、大差ない。しかし、Event 4では SCは降雨終了後、速やかに元に復するのに対し、 SiO_2 は降雨終了後5日経過してようやく降雨前の濃度値を回復する。これは図8にある土壌水質の鉛直分布を反映した結果と考えられ、土壌表層付近の希釈が大きかった分、渓流水の SiO_2 の回復に長時間要したと推察される。さらに上と同様 mass balance 法から降雨流出量に占める地中水の流出量を計算すると、図13bの水質時系列を反映して、 SiO_2 で67.1%、SCで88.8%となり、両者にかかなりの差が生じることになる。

6 森林生態系における元素循環と渓流水質

6.1 SiO_2 と窒素の存在量

表層土壌に蓄積された物質量は、中間流出成分に乗って流亡することにより、降雨時の渓流水質を左右している。このように、森林生態系に存在する物質量は渓流水質と強い相関があり、ここでは SiO_2 と窒素を例にとって、その存在量を調べることにする。

存在状態は気相、液相、固相とし、存在量はそれぞれの相での単位体積当たりの重量でまとめることとする。まず SiO_2 について、本来土壌・岩石起源の物質であり、大気中にはほとんど存在しない。また SiO_2 は火成岩の主成分であり、ばらつきはあるが、含有率は40~75%程度とされている¹⁹⁾。一方窒素については、森林土壌中に極めて多量に蓄積されており、その量は森林生態系に固定された全窒素量の90%以上を占めると言われている²⁰⁾。しかし、この窒素にしても、もともと岩石には含まれておらず、長年の微生物活動によって大気中の窒素ガスが土壌中に固定されたものである。これまでに報告されたいくつかの成果²¹⁾から、 SiO_2 と窒素の各相における存在量を整理すれば図14となる。窒素について言えば、表層土壌に極めて多量に蓄積されており、こうした存在形が土壌水質の分布を決定していると思われる。

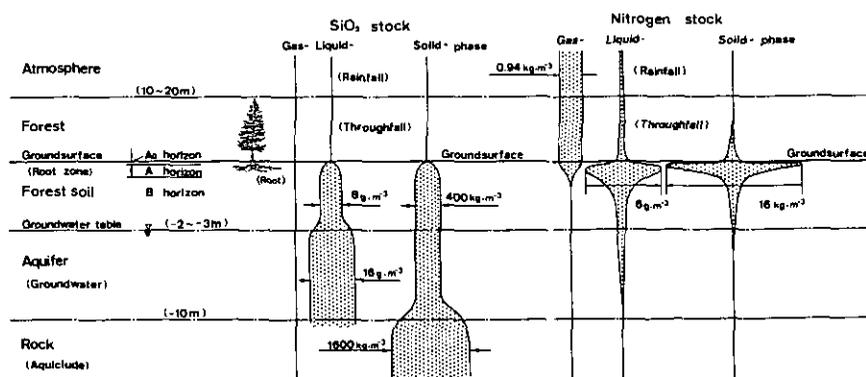


図 14 森林生態系における SiO_2 と窒素の存在量

Fig. 14 Standing stock of silicate and nitrogen in forest ecosystem

6. 2 水移動に伴う水質変化

降雨でもたらされた水質は、森林生態系を経ることによってどのように変化するのであろうか。ここでは前節までに得られた成果から、降雨・林内雨・土壌水・地下水・渓流水の順に水質変化を整理する。

図15は1986年4月から1987年3月までの年平均値をType I とType IIに分けて描いたものである。SiO₂は既述のように土壌・岩石起源の物質であり、降雨や林内雨にはほとんど含まれていない。これ以外の物質は降雨・林内雨・土壌表層へと移行するに伴って濃度は高まり、中でも林内雨のK⁺は樹体からの溶出もあって著しく増加する。土壌表層から渓流水の間で、Type Iの物質濃度は鉛直方向にほぼ一様か、土壌表層で小さく、Type IIについては土壌表層で高濃度になっているものが多い。Type IIに属するNO₃⁻-N, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺については、京大上賀茂試験地でも表層土壌中に高濃度で存在することが観測されている²⁾。さらに特徴的なことは、Type IIに分類された物質はすべて植物体にとっての多量必須元素に属することである²²⁾。そのため生態系内で循環しやすく、土壌表層付近に蓄積されたと考えられる。

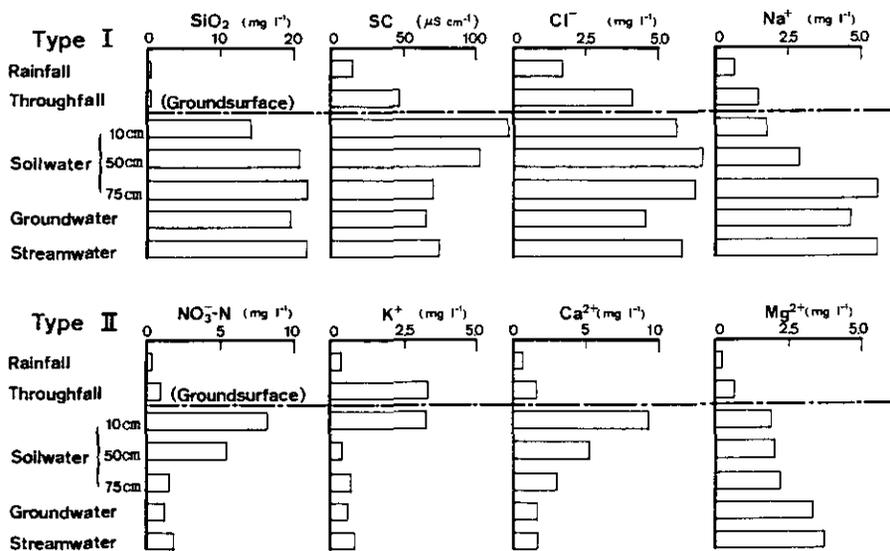


図 15 森林生態系における水移動に伴う水質の変化

Fig. 15 Chemical change with vertical water migration in forest ecosystem

7 結 論

渓流水質、中でもNO₃⁻-N濃度の変動は大きく、複雑な流出環境下にあると言われている。降雨時のNO₃⁻-Nについて言えば図4や図13にあるとおり、流量が同じであっても、流量上昇時と通減時にそれぞれベース濃度より小さい値と大きい値の二つを取ることができる。したがって、季節変化や晴天時、雨天時の区別なく、観測資料をすべてプロットすれば、流量と濃度は無関係にな

るとみられる¹⁾。ここで強調したいことは、でたために濃度変動が生じている訳ではなく、ある原因があつて変化していることである。すなわち、降雨時の溶存物質の流出には2つのタイプのあることが見いだされた。通減時にはほぼ降雨前の濃度レベルに回復するType Iと降雨前の値を上回るType IIである。Type Iの代表的な物質に SiO_2 があり、これ以外にも Na^+ 、 Cl^- や電気伝導度SCはこれに属する。Type IIには NO_3^- -Nがあり、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} もこれに属する。Type IIの物質であれば、降雨終了後の通減期に濃度は降雨前より高まるが、この状態に新たな降雨が加わると濃度はさらに上昇することになる。これは夏季の NO_3^- -N濃度の高まりを説明している。

流量通減時に見られる流出パターンの違いは中間流出成分、言い換えれば土壌水の流出に由来すると考えられ、この土壌水質の鉛直分布も調べられた。その結果、Type Iに属する物質について濃度は鉛直方向にほぼ一様か、表層付近で深部より減少していること、一方Type IIについては表層付近で濃度の高まりが存在すること、が確かめられた。この分布特性は降雨流出パターンの違いをおおむね説明することができる。このように、表層土壌に蓄積された物質量が降雨時の渓流水質を決定している事実は、水質水文学上重要な成果であると考えられる。さらに、Type IIに分類された物質はすべて植物体にとっての多量必須元素に属する事実も、森林生態系での元素循環と森林からの流亡水質を関係付ける上で重要な成果と考えられる。

筑波森林試験地においても、森林土壌を採取し、各元素の存在量を見積る必要はある。森林生態系も含め、降雨から溪流に至るまでの個々の物質の素過程を追究することは困難であるにしても、降雨-流出系において溶存物質の流出特性を理解する上で必要な観測資料は、着実に整いつつあると考えている。

謝 辞

本研究を進めるに際し、筑波大学地球科学系 田中 正先生には有益な御助言を頂いた。また試料の ICP-AES 分析は当研究所計測技術部 西川雅高氏にお願いした。試験流域の大部分は国有林であり、試験地の設置は笠間営林署、並びに同柿岡支所の御好意によるものである。地下水及び渓流水の水位観測に当たって、八郷町公衆衛生課と中山地区森林組合の方々から御協力を頂いた。ここに記して謝意を表します。

引用文献

- 1) Likens, G.E., F.H. Bormann, N.M. Johnson and R.S. Pierce (1967): The calcium, magnesium, potassium, and sodium budgets for a small forested ecosystem. *Ecol.*, **48** (5), 772-785.
- 2) 岩坪五郎・堤 利夫 (1968): 森林内外の降水中の養分量について (Ⅲ), 流亡水中の養分量について. 京都大学農学部演習林報告, **40**, 140-156.
- 3) 堤 利夫 (1987): 森林と流出水の水質. 森林管理のあり方とその科学的基礎. 環境科学研究報告集, B309-R12-9, 9-16.
- 4) 小倉紀雄・石野 哲・長野 潔・丹下 勲 (1986): 多摩丘陵における表面流出水中の窒素化合物の挙動. 陸水学雑誌, **47**(1), 17-26.
- 5) Kagawa, H., S.Naito, T.Ezaki and K.Ogami (1986): Seasonal changes in nitrate ion

- concentration in the headwater area of the Ishite River. Bull. Ehime Univ. Forest, 24, 43-50.
- 6) 海老瀬潜一・村岡浩爾・佐藤達也 (1984) : 降雨流出解析における水質水文学的アプローチ. 第28回水理講演会論文集, 547-552.
 - 7) Takeuchi, K. and Y. Sakamoto (1986) : Hydrograph separation using NO_3^- for identifying the interaction between surface and subsurface waters in a small mountainous basin. IAHS Publ., 156, 199-209.
 - 8) Tanaka, T. and T. Yamazaki (1984) : Characteristics of groundwater chemistry in the Hachioji experimental basin. Ann. Repts., Inst. Geosci., Univ. Tsukuba, 10, 36-39.
 - 9) 吉岡龍馬・奥田節夫・沖村 孝・田中 茂 (1976) : 豪雨時における六甲山系鶴甲地域の地下水位, 地下水流出量と溶存化学成分との関係, 京都大学防災研究所年報, 第19号B, 1-12.
 - 10) 平田健正・村岡浩爾 (1986) : 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について. 第30回水理講演会論文集, 43-48.
 - 11) 平田健正・村岡浩爾 (1987) : 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について (2). 第31回水理講演会論文集, 59-64.
 - 12) 樫根 勇 (1986) : 水文学研究の動向—地中水を中心に—. 地学雑誌, 95(7), 9-14.
 - 13) 村岡浩爾・平田健正 (1986) : 渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究 (第1報) —筑波山試験流域の概要と植生調査. 国立公害研究所研究報告, 第95号, 21-35.
 - 14) Muraoka, K. and T. Hirata (1987) : Field observation of water quality in runoff process, U.S.-Japan Seminar on Physical Hydrology, January, Honolulu, Hawaii.
 - 15) 堤 利夫・福嶋義宏 (1983) : 森林の水収支と流出水質に与える影響・森林の環境調節作用 3, 環境科学研究報告集, 15-20.
 - 16) Likens, G.E., F. H. Bormann, R.S. Pierce, J. S. Eaton and N. M. Johnson (1977) : Biogeochemistry of a forested ecosystem. Springer-Verlag, 65-86.
 - 17) Hirata, T. and K. Muraoka (1988) : Seasonal change of streamwater chemistry in Tsukuba experimental forested land. Jpn. J. Limnol., 49 (1), 1-9.
 - 18) 河原輝彦 (1976) : リターの分解について (IV) 土壌呼吸量中の根の呼吸量の推定. 日本林学会誌, 58(10), 353-359.
 - 19) 牛来正夫著 (1968) : 地殻・岩石・鉱物. 共立出版, 65-99.
 - 20) 国松孝男・吉良竜夫 (1986) : 山林からの栄養塩の流出と対策. 水処理技術, 27(10), 721-730.
 - 21) 堤 利夫著 (1973) : 陸上植物群落の物質生産Ib—森林の物質循環. 共立出版, 生態学講座 5b, 21-40.
 - 22) Muraoka, K. and T. Hirata (1988) : Streamwater chemistry during rainfall events in a forested basin. J. Hydrol. (in press) .

溪流水質から見た森林の浄化機能に関する研究

(第4報) 水収支と物質収支

Study on Water Purification of Forest from View of Streamwater Quality

(IV) Water and Element Budgets

村岡浩爾¹・平田健正¹

Kohji MURAOKA¹ and Tatemasa HIRATA¹

要 旨

本研究は筑波森林試験地(67.5ha)における水収支と物質収支を1985年4月から1987年3月までの2か年について調べたものである。

1985年4月から1986年3月までの年降水量は1576.5mm, 1986年4月から1987年3月までは1552.5mmであり, 過去5年間の平均値と比べると300mm程度多雨であった。両年の流出量は733.7mmと711.4mmであり, 年流出率はそれぞれ46.5%と4.58%となる。

降雨によってもたらされる収入と溪流によって搬出される支出から, 森林にとってプラスとなる物質に $\text{NH}_4^+ \text{-N}$, $\text{NO}_2^- \text{-N}$ と $\text{PO}_4^{3-} \text{-P}$ があり, マイナスとなるものに $\text{NO}_3^- \text{-N}$, Inorg-N, SiO_2 , Cl^- , SO_4^{2-} , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} と Ca^{2+} がある。 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ と $\text{PO}_4^{3-} \text{-P}$ は年間を通して流入量は流出量を上回っており, 確かに森林の浄化機能が働いていると考えられる。

一方Inorg-Nについて, 森林にとってマイナスになると言っても, 2月から5月にかけては流入量は流出量を上回っている。収支としてマイナスになるのは, 夏季の $\text{NO}_3^- \text{-N}$ の流出が極めて大きくなることに原因していると思われる。溪流水の $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 濃度は夏季に高まる性質があり, 特にこの季節に両年とも台風による多量の降雨があったからである。これら台風による影響を除去して収支を試算すると, Inorg-Nの流入量はほぼ流出量に匹敵している。加えて, 両年とも多雨であったことから, Inorg-Nについてはさらに現地実験を継続する必要がある。

Abstract

This paper describes the water and element budgets in the Tsukuba experimental forested basin with the area of 67.5 ha. The water amount and solute concentration of the rainfall and streamwater have been observed during two water cycles from April 1985 to March 1987.

Annual rainfall amounts during April 1985-March 1986 and April 1986-March 1987 are 1576.5mm and 1552.5mm, and become approximately 300mm larger than the mean value during the last five years from 1980 to 1985. Annual discharges in two years amount to 733.7mm and 711.4mm, therefore annual runoff rates correspond respectively to 46.5% and 45.8%.

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental Studies. 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

On the basis of annual input-output budgets, a net gain for the forest occurred in NH_4^+-N , NO_2^--N and $\text{PO}_4^{3--}\text{P}$, and a net loss in NO_3^--N , Inorg-N , SiO_2 , Cl^- , SO_4^{2--} , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} and Ca^{2+} . Inputs of NH_4^+-N and $\text{PO}_4^{3--}\text{P}$ overcome the outputs through the whole seasons in each year, and surely the purification of the forest can be expected.

With respect to Inorg-N , though it is a net loss for the forest, the input from February to March in each year exceeds the output. The net loss of Inorg-N is attributed mainly to the large amount of NO_3^--N runoff in summer season. NO_3^--N concentration in streamwater tends to be enriched in summer season, in addition to this feature the typhoons made the large magnitude of water input and output in two years. When the effect of the typhoons on the input-output budgets in both years is excluded, Inorg-N input seems to be approximately equivalent to the output. From this result and the large amount of rainfall during the observed terms, further experiment is required to determine the Inorg-N or NO_3^--N budget in the Tsukuba experimental forested basin.

1 研究目的

環境調節機能や環境資源として、森林は数多くの効用を持つと言われている¹⁾。森林の理水機能はよく知られるところであるが²⁾、多くの機能について、その素過程が究明され、十分な科学的データが蓄積されている訳ではない。

本研究の目的とする水質浄化機能も森林の持つ重要な基本機能の一つである。これを調べるには図1に示した森林生態系での水移動と、それに伴う物質濃度の変化を明らかにする必要がある。植物体の吸収や土壌吸着によって濃度減少する物質もあれば、土壌・基岩母材からの溶出によって増加する物質もあるからである。著者らはこうした視点から、降雨・林内雨・土壌水・地下水・渓流水と言った水分の鉛直移動による物質濃度の変化を、筑波森林試験地で調べてきた³⁾。中でも降雨時の渓流水質変化には2つのタイプがあり、その違いは土壌水の流出に由来することが明らかにされた⁴⁾。さらに二つの流出特性は植物体にとっての多量必須元素とそれ以外の物質に対応することも明らかにされた⁵⁾。ただ上に述べた調査をすべての森林域で実施するのは困難である。一般に森林は流域の最上流部に位置し、地理的条件も悪く、多くの労力が必要とされるからである。こうした場合、森林生態系内での物質循環はともかく、降雨によってもたらされる流入負荷量と溪流によって搬出される流出負荷量の差を取って、物質収支を調べるのが常とう手段である。筑波森林試験地でも、流入負荷量と流出負荷量から物質収支を調べることにする。

また、筑波森林試験地では毎木調査を2度実施し、植物体現存量を推定している。その間の現存量の変化から、植物体の生長に伴う栄養塩の固定量を求め、流入負荷量や流出負荷量との関連についても言及する。

2 筑波森林試験地と観測資料

森林試験地（茨城県新治郡八郷町中山）は筑波山南東斜面に位置し、流域面積は67.5haである。調査地域はほぼ全域に植林が施され、スギ、ヒノキ、アカマツの3種で全流域の85%を占める。

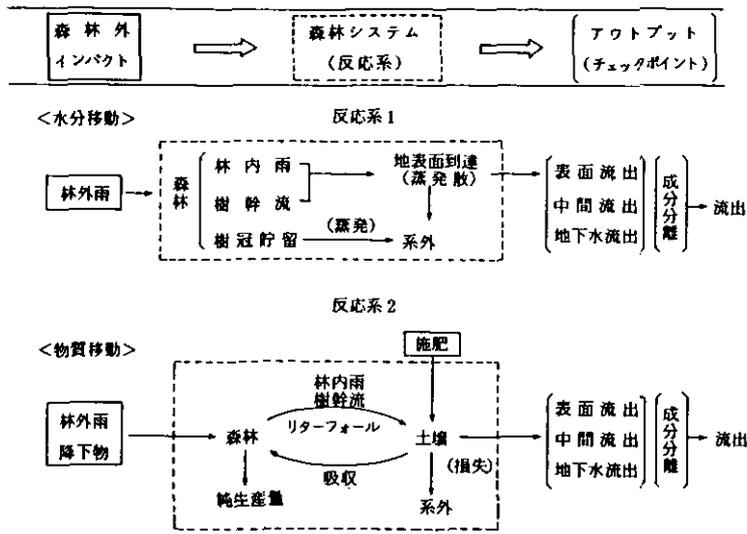


図 1 森林生態系における水分と物質の移動

Fig. 1 Migration of water and material in forest ecosystem

これら流域特性は前報⁶⁾に詳しく、ここでは水収支・物質収支を調べる上で必要な基本的知見の記述に留める。

2. 1 地形・地質と観測

図2は試験地の地形図と各種観測地点を示している。標高はおよそ200mから380mの範囲にある。標高200mの最下流端A1地点より北、西、南西に3本の溪流A、B、C沢が流れ、基岩はB沢より北側で花コウ岩、南側で黒雲母片麻岩となっている。現地踏査と観測井掘削時(W1とW2地点)に得られた地質柱状図から、図2中のI-1'断面に沿った地質縦断図を描くと図3となる。本試験地では崖錐と風化花コウ岩、及び風化花コウ岩と基岩との間に帯水層のあることが確認されており、さらにA1地点直下流で基岩が露出していることから、地下水はほぼA沢終端部に集水されていると判断した。

降雨はA1地点に転倒マス型雨量計(池田計器製LRT-100)を設置し、転倒パルスメモリーバック(東洋電子工業製)に記録して、10分降雨量を求めた。また水質分析用資料は内径20cm、深さ30cmのポット型雨量計で集水した。試験地からの流出水量はA1地点に自記水位計(池田計器製LR-100WP)を設置し、溪流水位から流量に換算した。試水の採取は、降雨については1降雨もしくは隔週に、溪流水は隔週に行った。これらの調査は1984年9月以来、継続されている。

以上の調査と並行して、植物体の現存量を推定するための毎木調査と林床植物刈取調査もヒノキ、スギ、落葉・広葉樹、アカマツ、ヒノキ幼木林地で実施し、これらの調査地点はそれぞれ図2にある①、②、③、④、⑤である。第1回調査はヒノキとスギの毎木調査について1984年2月、アカマツ、落葉・広葉樹とヒノキ幼木の毎木調査及びそれぞれの林床植物刈取調査を1984年10月

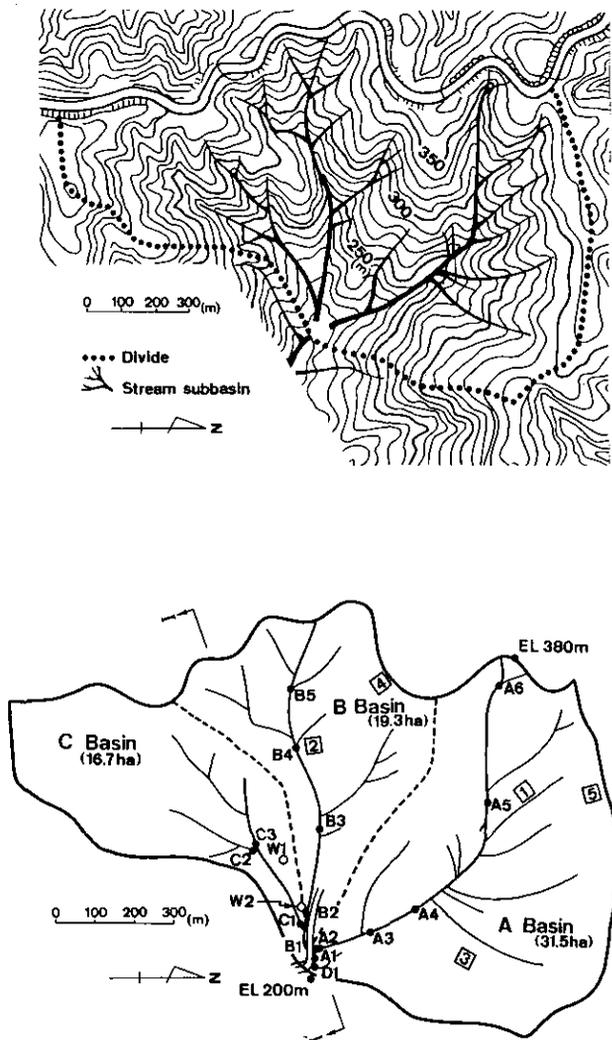


図 2 筑波森林試験地の地形図と観測地点

Fig. 2 Topographical feature and measurement sites in the Tsukuba experimental forested basin

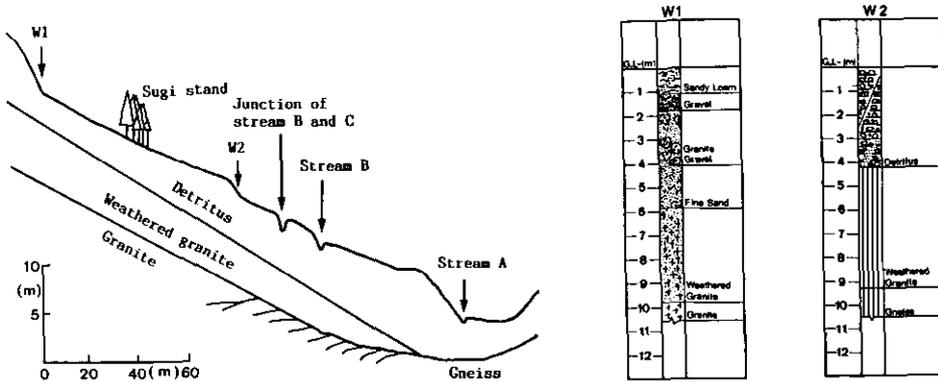


図 3 I-I' 断面に沿った地質断面図と地質柱状図

Fig. 3 Geological profile along I-I' section in Fig. 2 and vertical geological profiles at W1 and W2

に、第2回毎木調査と林床植物刈取調査を1986年10月に行った。

2. 2 降雨量と気温

筑波地方では4月中旬から立木の生長が始まることから、4月から翌3月までを1水文年とする。ここで収支計算の対象とする1985年4月から1987年3月までの月平均気温と月雨量を過去5年間(1980年4月から1985年3月)の平均値と比較する。気温についてはすべて館野(試験地より南に17km)の観測値⁷⁾、過去5年間の月雨量平均値は柿岡地磁気観測所(試験地より北西に6.3km)の資料⁷⁾、対象期間の月雨量は試験地での観測値を表1にまとめている。

気温については若干の変動はあっても、ほぼ平均的であることがわかる。一方、年降水量は5

表 1 月平均気温と月平均降水量

Table 1 Monthly temperature average and rainfall amount

Month	Apr	May	Jun	Jul	Aug	Sep	Oct	Nov	Dec	Jan	Feb	Mar	
Temperature(°C)	Mean												
Mean(1980-1985)	11.3	16.6	20.4	23.0	24.5	20.8	15.5	9.7	4.8	1.8	2.7	6.1	13.1
1985-1986	11.8	17.1	18.5	24.4	26.1	21.1	15.0	9.6	3.7	0.6	1.2	5.3	12.9
1986-1987	11.6	15.9	19.0	22.1	25.0	21.9	14.1	11.8	4.4	2.2	3.8	7.1	13.2
Monthly rainfall(mm)	Total												
Mean(1980-1985)	121.8	123.2	148.0	140.2	100.6	163.6	144.2	70.6	21.4	19.0	71.4	100.0	1224.0
1985-1986	167.0	96.0	415.5	131.0	211.0	102.0	101.5	76.0	25.5	16.5	38.0	196.5	1576.5
1986-1987	121.0	187.0	158.0	132.0	297.5	189.5	88.0	43.0	111.0	49.5	70.0	106.0	1552.5

年間の平均値と比較して、1985～1986年で352.5mm、1986～1987年で328.5mm多い。これには、1985年の台風8506（総雨量136.5mm、6月30日～7月1日）、8514号（105mm、8月30日～31日）と1986年の台風8610（291mm、8月4日～5日）が影響していると思われる。

2. 3 収支計算に用いる観測資料

収支計算に使用するのは、降雨量と水質、及び渓流水量と水質である。図4 a, bに1985年4月から1987年3月までの日雨量、日比流量と対象とする物質の渓流水濃度を描いている。

まず流出水量については、流域の出口A1地点で渓流水位が自記記録されている。この資料から30分間隔で水位を読み取り、水位-流量曲線から流量に換算した。用いた水位 h (cm) - 流量 Q (l/s) の関係式は

$$h < 8.5 \text{cm} \text{ で } Q = 0.172h^{2.27}$$

$$h > 8.5 \text{cm} \text{ で } Q = 14.0h - 80.1$$

である。上式は実測値と水理模型実験⁹⁾ から決定された。

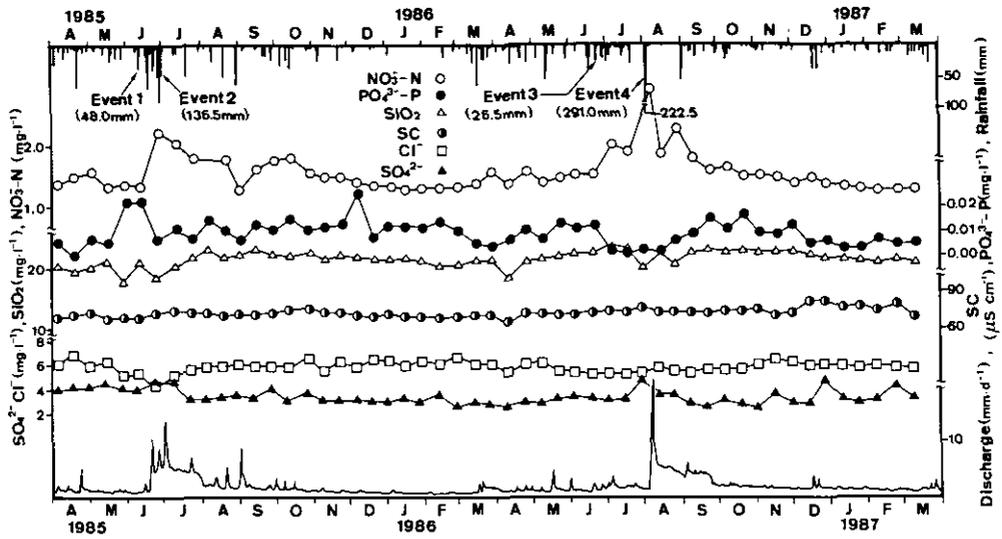
対象とする物質は $\text{NH}_4^+ - \text{N}$, $\text{NO}_2^- - \text{N}$, $\text{NO}_3^- - \text{N}$, Inorg-N ($\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$), $\text{PO}_4^{3-} - \text{P}$, SiO_2 , Cl^- , SO_4^{2-} , Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} であり、水質分析は $\text{NH}_4^+ - \text{N}$ から SO_4^{2-} まではオートアナライザ - (Technicon, SWA), Na^+ から Ca^{2+} までは ICP-AES 分析によった。流出負荷量を求める時、渓流水質の中で季節変動を示す物質については注意を要する。対象物質の内、明りよな季節変化をする物質は $\text{NO}_3^- - \text{N}$ であり、夏季に高まることがわかっている⁹⁾。ただ図4 aを見る限り、ほぼ季節変化は表現されていると判断し、隔週の分析資料から流出負荷量を見積りにすることにする。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ 以外の物質については大きな季節変化はない。また降雨時にも渓流水質は変化するが、その変動範囲は流量変化に比較して、1けた以上小さく、流出負荷量はおおむね流量で支配されることもわかっている⁹⁾。したがって、本研究では流出負荷量は隔週に得られた渓流水質を用いて評価することにする。

3 水収支

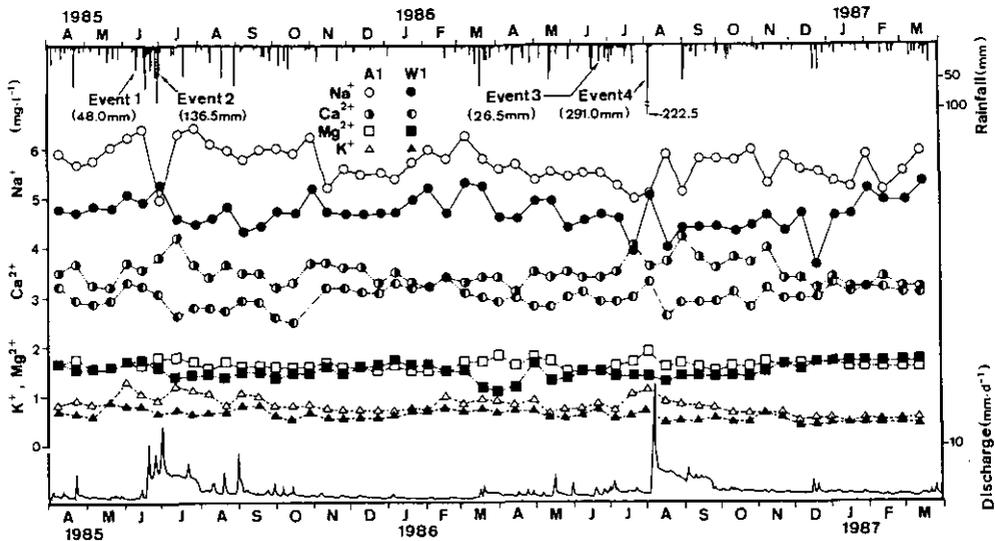
収入として降雨、支出として渓流水量を1か月単位でまとめ、図5に描いている。

両年共、春季から夏季にかけて雨量が多く、冬季に少ない。渓流水量もこれに従っている。1年間でまとめると、流入量は1985年4月から1986年3月で1576.5mm、1986年4月から1987年3月で1552.5mmであり、流出量はそれぞれ733.7mmと711.4mm、したがって年流出率は46.5%と45.8%となる。中野⁹⁾は森林域での年降水量と年流出量の関係をまとめているが、年降水量が1500mm程度では流出量は400-900mmの範囲にあり、筑波試験地はほぼ中間に位置している。

蒸発散量は流入量と流出量の差として見積られることが多いが、ここでは既往の経験式から推定してみる。これには Thornthwaite と Hamon 公式が知られている¹⁰⁾。いずれも季節変化の傾向は観測値とほぼ合致し、実流域へ適用可能とされているが、観測値との適合性や簡便さから土木水文学では Hamon 式が多用されている。本研究でも次式の Hamon 式から蒸発散能 E_p (mm/d) を求めた。



a Dissolved substances



b Cations

図 4 収支計算に用いた日雨量, 日比流量と渓流水質の季節変化
Fig. 4 Daily rainfall amount, daily specific discharge and seasonal change of streamsolute concentration utilized for input and output budgets

$$E_p = 0.14 D_o^2 \cdot P_o \quad (1)$$

ここに、 D_o ：可照時間， P_o ：日平均気温に対する飽和絶対湿度である。結果は図5中に描いている。年蒸発散能は1985年4月から1986年3月で750.3mm，1986年4月から1987年3月で739.3mmであり，これと年流出量の和はほぼ年降水量に見合った値となり，筑波試験地での年流出率はほぼ妥当な結果であると言える。

4 物質収支

4.1 流入負荷量

降雨水質は降雨量，無降雨時日数や季節によって変化すると思われる。また大気中に十分に供給可能な物質があれば，その濃度は降雨量に関係せずほぼ一定となり，限りがあれば降雨量の増加とともに減少すると予想される。ここではまず最初に，降雨量と物質濃度について調べることにする。

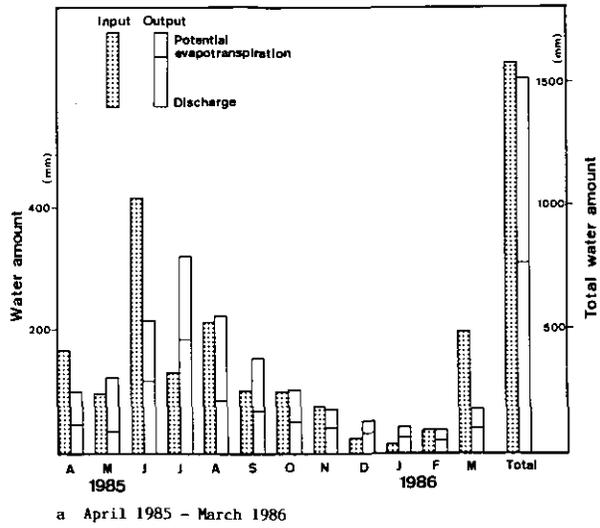
観測期間中，1985年4月から1986年3月に42個，1986年4月から1987年3月に34個の降雨水質資料が集められたが，この内1降雨に対応するものは前者で21個，後方で12個の計33個であり，この資料から降雨水質と降雨量の関係を調べる。概して，両者の間にはばらつきが大きく，そのため両対数紙上で整理すると図6となる。資料は観測年の違いを区別して記しており，またpHについては普通目盛で描いている。 $PO_4^{3-}-P$ ， Ca^{2+} とpHは降雨量との間に明確な関係は見いだせない。これ以外の水質は降雨量が増せば濃度は減少傾向にある。そこで，濃度Cと降雨量 Q_r を

$$C = a \cdot Q_r^b \quad (2)$$

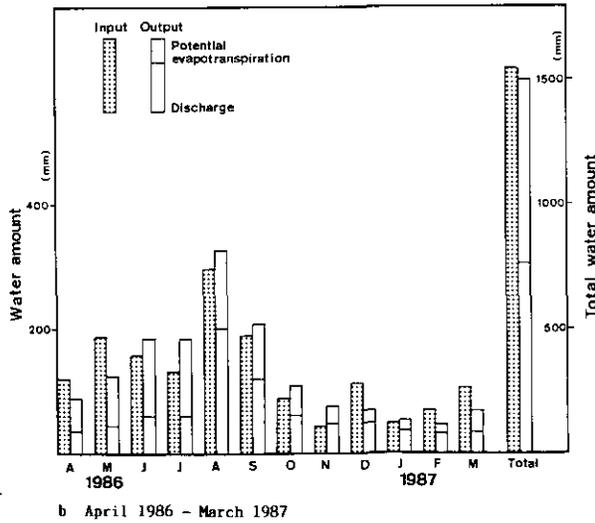
で近似し，定数aとbを計算した。その結果，相関係数の高い順に列挙すれば，Inorg-N， NH_4^+-N ， $NO_3^- -N$ ，電気伝導度SC， Na^+ ， K^+ ， SO_4^{2-} ， Mg^{2+} ， SiO_2 ， Cl^- となる。この内，相関係数の絶対値が0.7以上の水質について，定数a，bとともに(2)式の関係を図中に記した。また相関係数 γ はすべての水質について載せている。図示のように， NH_4^+-N とInorg-Nは両対数上でほぼ直線関係にあると結論できる。こうした NH_4^+-N と降雨量の関係は，丸山ら¹¹⁾によっても京都上賀茂試験地で得られている。彼らはリンについても上の関係を報告しているが，筑波試験地では観測されていない。

濃度と降雨量の関係から，無機態窒素類や Na^+ ， K^+ の大気中の存在量には限りがあると思われる。理想状態であれば，1降雨によってもたらされる流入負荷量はほぼ一定値，すなわちべき数 $b = -1.0$ となるが，筑波試験地では $b > -1.0$ の値を取っている。つまり流入負荷量にすると降雨量の増加とともに大きくなることを意味している。これを示せば図7となる。 $PO_4^{3-}-P$ については，負荷量にしても降雨量との間に明確な関係は認められない。

観測資料から，1か月単位で流入負荷量をまとめ，図8と図9に描いている。また回収した降雨が二つの月にまたがっている場合には，降雨量に応じてそれぞれの月に配分した。1か月単位でまとめても，負荷量にはかなりのばらつきが認められる。ただ1985年4月から1986年3月の期間で，降雨の多い6月(415.5mm)，8月(211.0mm)，3月(196.5mm)，4月(167.0mm)，7



a : 1985年4月～1986年3月
a : April 1985 - March 1986



b : 1986年4月～1987年3月
b : April 1986 - March 1987

図 5 1か月単位でまとめた降水量と流出水量
Fig. 5 Monthly rainfall amount and discharge

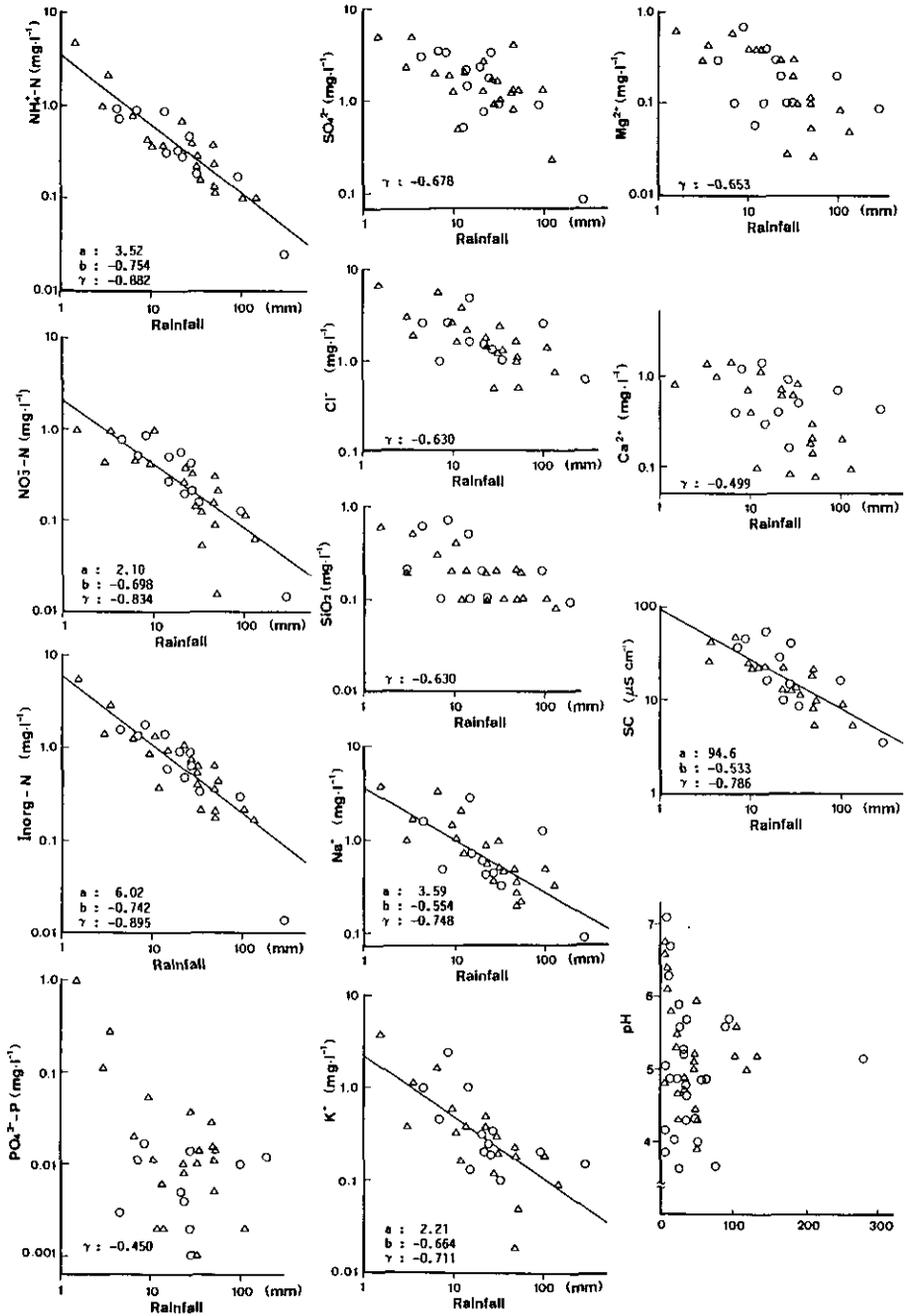


図 6 1 降雨に含まれる物質濃度と降雨量の関係

Fig. 6 Relationship between solute concentration and water amount in a rainfall

△ : April 1985 - March 1986, ○ : April 1986 - March 1987

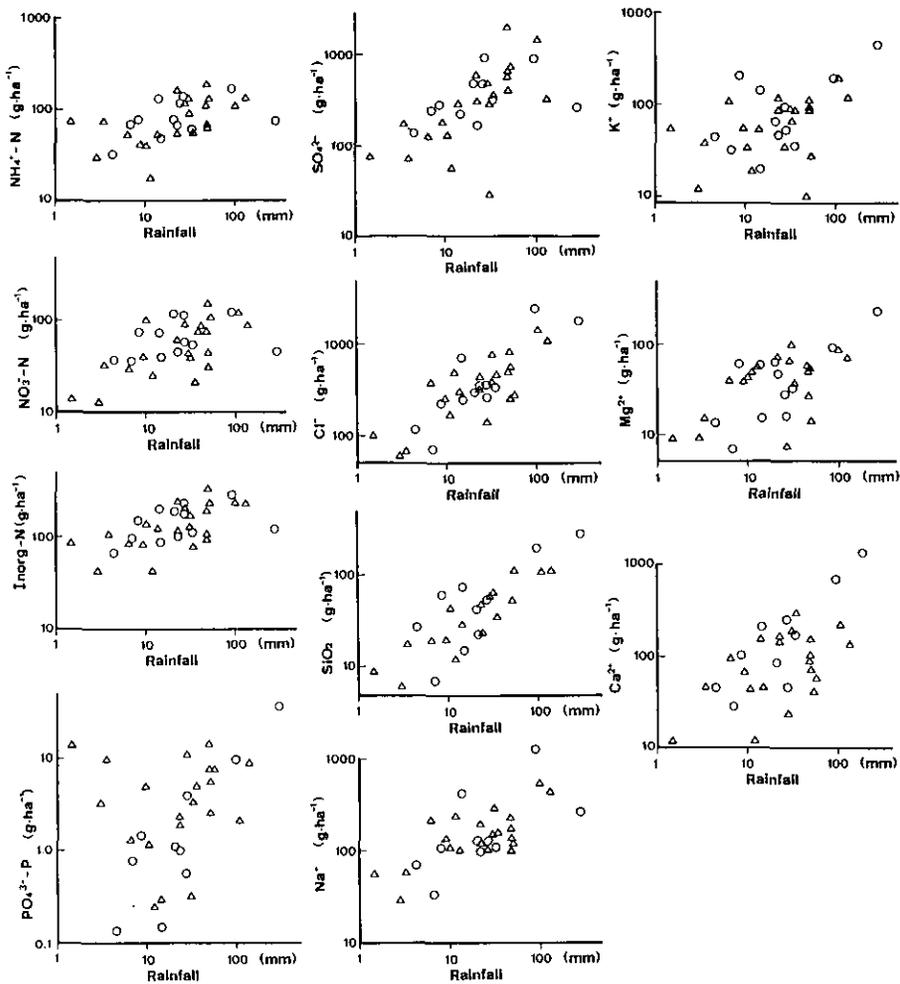


図 7 1 降雨でもたらされる流入負荷量と降雨量の関係

Fig. 7 Relationship between solute and water fluxes in a rainfall

△ : April 1985 - March 1986, ○ : April 1986 - March 1987

月 (131.0mm) には $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_3^-\text{-N}$, Inorg-N, $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$, Cl^- , SO_4^{2-} の流入負荷量は多くなり、冬季には少なくなる傾向にある。また Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} の流入負荷量は3月と4月に多くなり、それ以外では大きな変化は認められない。

一方、1986年4月から1987年3月の期間中、最も降雨の多いのは8月で、297.5mmになるが、この内291.0mmは台風8610でもたらされた。前述したように、大気中に存在する物質には限りがあり、1度に多量に降っても降雨量程には流入負荷量は増えない。そのため、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$, $\text{NO}_3^-\text{-N}$, Inorg-N, Cl^- , SO_4^{2-} の8月の流入負荷量は多くない。しかし、これを別にすれば、9月 (189.5 mm), 5月 (187.0mm), 6月 (158.0mm), 7月 (132.0mm), 4月 (121.0mm) にこれらの流入負荷

量は多い。PO₄³⁻-Pは8, 9, 10月に, Na⁺は4月と9月, K⁺は9月, Ca²⁺は3月と9, 10月に多くなっており, そのパターンは前年度の結果と異なっている。なお降雨でもたらされるInorg-Nの内, NH₄⁺-Nの割合は2年間の平均値で50.3%, NO₂⁻-N:0.8%, NO₃⁻-N:48.9%であった。このように降雨に含まれるNO₂⁻-Nは少なく, またSiO₂はほとんど含まれないため, 図8と図9には両物質を描いていない。

4. 2 流出負荷量

溪流によって搬出される流出負荷量は, 先に述べたように溪流水量に支配されている。したがって, 流量の多い夏季に増加する。1か月ごとにまとめた流出負荷量を流入負荷量と同じ図8と図9に描いている。1985年4月から翌3月にかけては, 各物質ともに7月に最大となり, 1986年4月からの期間についてはPO₄³⁻-Pが9月に最大となる以外はすべて8月に最大値を取る。中でも, NO₃⁻-Nは夏季に濃度が高まる性質があり, 流量増加と相乗して, 夏季の流出負荷量は極めて大きくなる。

4. 3 収支

1985年4月から1987年3月までの2か年について収支をとり, 表2に整理している。全体を通して, 流入負荷より流出負荷の方が小さく, 森林にとってプラスになっている物質はNH₄⁺-N, NO₂⁻-NとPO₄³⁻-Pであり, これ以外の物質は森林にとってマイナスとなっている。ここで, 各物質ごとにもう少し詳しく調べてみよう。

溪流水に含まれるInorg-Nの構成比は2年間の平均値として, NH₄⁺-N:2.0%, NO₂⁻-N:0.2%, NO₃⁻-N:97.8%となり, 降水に比較してNH₄⁺-Nの割合が極めて小さくなっている。この結果を反映して, NH₄⁺-Nの流出負荷量は図8と図9にあるように, 年間を通して流入負荷量より少ない。一方, NO₃⁻-Nは1986年6月と1987年2月を除いて, 流出負荷量は流入負荷を上回り, 特に両年ともに6月から9月にかけて流出負荷量の増加が著しい。この結果がInorg-Nで見ても, 森林にとってマイナスになったと考えられる。Inorg-Nの季節変化を見れば, 両年ともに少なくとも2月から5月にかけては流入負荷量は流出負荷量を上回っていることからわかる。特に収支の対象とした期間は平年に比べて多雨であったことに注意する必要がある。1985年には台風8506(136.5mm)と8514(105mm), 1986年には台風8610(291.0mm)による降雨があるが, 今これらの台風の影響を除いてInorg-Nの収支を推定してみよう。1985年の流入水量は計241.5mm, また流出水量は年流出率46.5%を用いると112.3mmとなる。Inorg-Nの溪流水濃度に7~9月の平均値1.72mg/lを使用すると, 台風による流出負荷量は1.93kg/ha, したがって年流出負荷量は10.58kg/ha/yとなる。降雨による年流入負荷量は二つの台風の0.462kg/haを差し引いて10.67kg/ha/yとなるが, この値は流入負荷量とほぼ見合ったものとなっている。1986年の台風8610について, 年流出率45.8%, 溪流水濃度として8月の平均値2.42mg/l, 台風による流入負荷量0.122kg/haから, 年流入負荷量と年流出負荷量を求めると10.0kg/ha/yと9.61kg/ha/yとなる。

次にPO₄³⁻-Pは土壌吸着されやすい物質であり, 加えて植物体にも吸収されるため, 冬季の一時期を除いて, 流入負荷量は流出負荷量を上回っている。Cl⁻やSO₄²⁻はInorg-Nに近いパターン

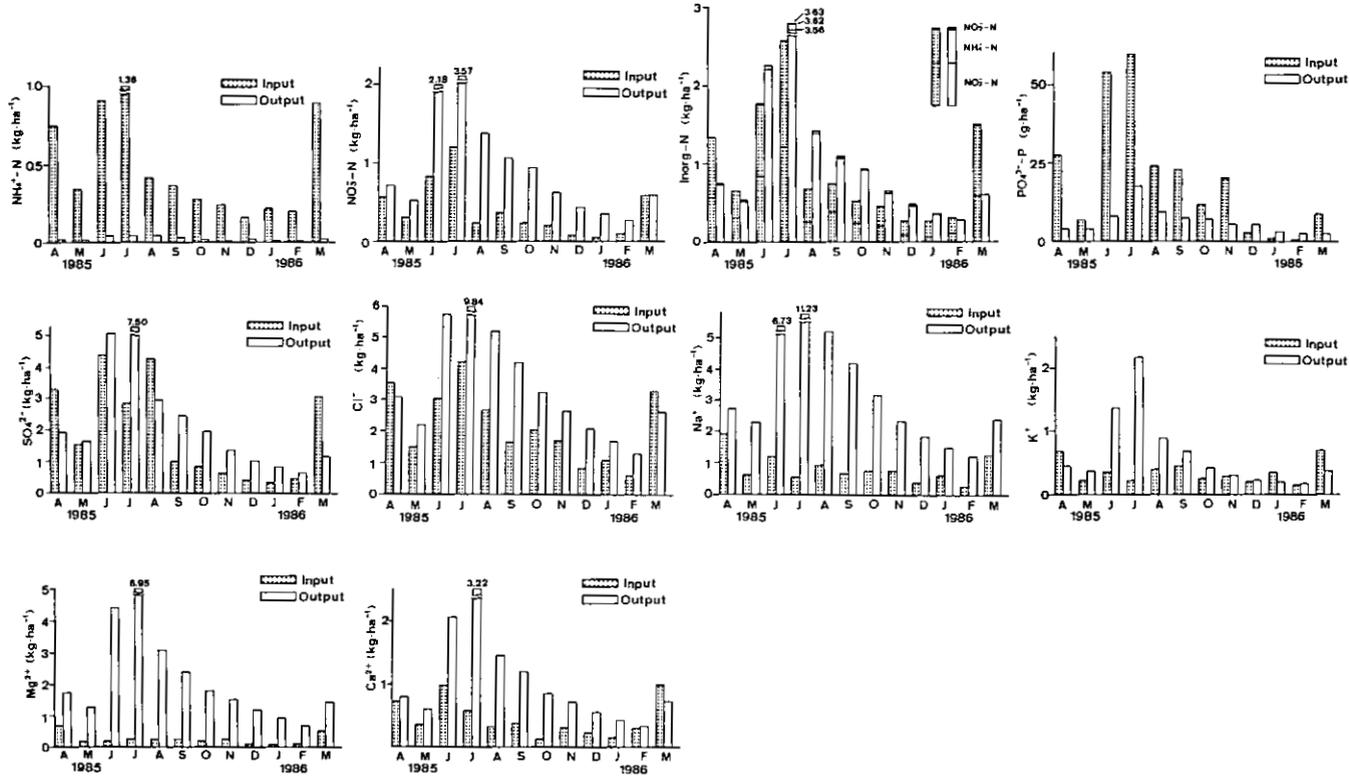


図 8 1985年4月から1986年3月までの月流入負荷量と月流出負荷量
 Fig. 8 Monthly solute input and output fluxes from April 1985 to March 1986

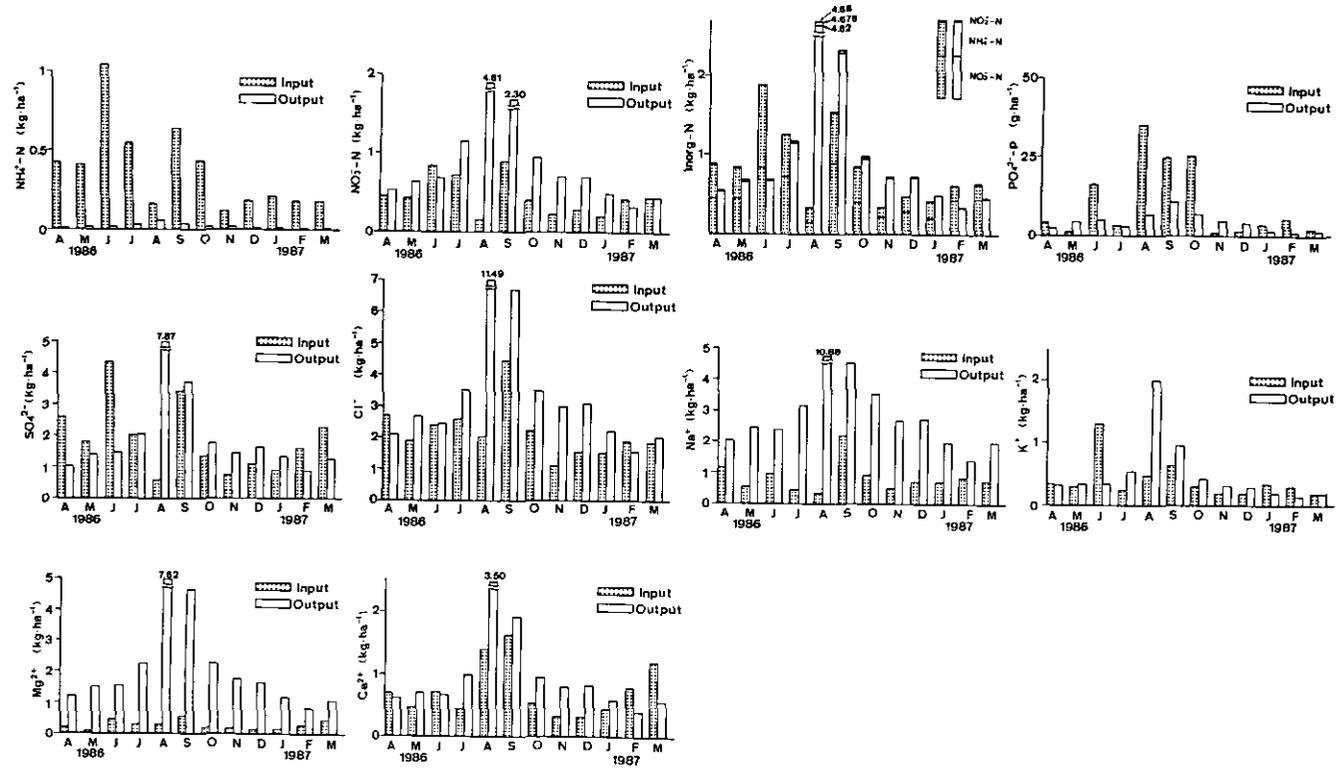


図 9 1986年4月から1987年3月までの月流入負荷量と月流出負荷量
 Fig. 9 Monthly solute input and output fluxes from April 1986 to March 1987

表 2 筑波森林試験地における2か年の水収支と物質収支 (1985年4月から1987年3月)
 Table 2 Annual input and output budgets of water and dissolved substances for the Tsukuba experimental forested basin during two water cycles

		NH ₄ ⁺ -N	NO ₂ ⁻ -N	NO ₃ ⁻ -N	Inorg-N	PO ₄ ³⁻ -P	SiO ₂	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	Na ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	pH	SC
Apr. 1985-Mar. 1986															
Input	Water amount(mm)	1576.5													
	Mean conc. (mg·l ⁻¹)	0.389	0.007	0.310	0.706	0.015	0.177	1.66	1.47	0.634	0.271	0.195	0.314	5.1	14.9
	Loading(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)	6.13	0.113	4.89	11.13	0.241	2.79	26.2	23.2	10.0	4.28	3.08	4.93		
Output	Water amount(mm)	733.7													
	Mean conc. (mg·l ⁻¹)	0.037	0.003	1.67	1.71	0.010	21.1	5.79	3.76	5.89	1.01	3.59	1.67	7.0	73.2
	Loading(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)	0.270	0.025	12.22	12.51	0.073	154.7	42.5	27.6	43.2	7.40	26.3	12.3		
Budget(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)		5.86	0.088	-7.33	-1.38	0.168	-151.9	-16.2	-4.40	-33.2	-3.11	-23.2	-7.34		
Apr. 1986-Mar. 1987															
Input	Water amount(mm)	1552.5													
	Mean conc. (mg·l ⁻¹)	0.294	0.004	0.355	0.653	0.008	0.174	1.70	1.50	0.660	0.313	0.223	0.586	5.0	14.6
	Loading(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)	4.56	0.067	5.51	10.14	0.116	2.70	26.21	22.7	10.2	4.87	3.46	9.09		
Output	Water amount(mm)	711.4													
	Mean conc. (mg·l ⁻¹)	0.034	0.003	1.77	1.804	0.007	21.7	5.83	3.38	5.50	0.788	3.60	1.66	6.7	74.4
	Loading(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)	0.239	0.023	12.57	12.84	0.047	154.3	41.5	24.0	39.1	5.60	25.6	11.8		
Budget(kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹)		4.33	0.045	-7.06	-2.69	0.070	-151.6	-15.2	-1.30	-28.9	-0.74	-22.1	-2.70		

を描いている。また SiO_2 はもともと土壌起源の物質であり、降雨にはほとんど含まれていない。筑波試験地でも、流出負荷量は流入負荷量の56倍にも上っている。

Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+} は一般に、降雨濃度より渓流水濃度の方が高い物質である。負荷量にすれば両者はほぼ等しいとの報告もあるが¹³⁾、筑波試験地では流出超過となっている。

森林域での物質循環についてはLikensら¹³⁾の研究が良く知られている。1963年から1974年までの12年間 Hubbard Brook 試験地で行った実験から、収入が支出を上回る森林にとってはプラスになる物質は NH_4^+-N , H^+ と $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ であり、マイナスになる物質は Ca^{2+} , Mg^{2+} , K^+ , Na^+ , SO_4^{2-} , Al^{3+} と溶存ケイ素であると報告している。またわずかにプラスになる物質は NO_3^--N と Cl^- であるとしている。 NO_3^--N について、12水文年の内、3年はマイナスになっている。我が国では堤ら¹⁴⁾によって精力的に調査されている。その一例として、京都上賀茂試験地では NH_4^+-N , NO_3^--N , P , K^+ , Ca^{2+} はプラスになり、 Mg^{2+} のみマイナスになると報告している¹⁵⁾。このように、森林生態系での物質移動は森林の立地する水文・地形・地質・植生等で大きく変化するものと見られる。特に窒素については、1 ha 当たり数tの規模で森林土壌中に蓄積されている¹⁶⁾。その生態系内での移動量について、植物吸収されるのは数十kg/ha/yのオーダーであり、その約半量はリターや林内雨・樹幹流によって林床に還元されると言う¹⁷⁾。加えて、流入あるいは流出する窒素量は10kg/ha/yかそれ以下であり、これらの移動量は生態系内に現存する窒素量に比べて極めて小さい。岩坪¹²⁾が指摘するように、森林の状態が変われば生態系内を循環する量もかなりの幅で変動し得ると考えられる。こうした背景から、筑波森林試験地での観測もさらに継続する必要がある。

5 植物体の生長と栄養塩の固定量

5.1 現存量の推定

植物体の生長による栄養塩の固定量を推定するため、毎木調査を行い、試験地内の植物体現存量を求めた。対象樹木はヒノキ、スギ、落葉・広葉樹、アカマツ、ヒノキ幼木である。第1回調査は1984年2月にヒノキとスギ植林地、同年10月に落葉・広葉樹、アカマツ、ヒノキ幼齢林地と各々の林床植物刈取調査を行った。第2回目は1986年10月に前回と同じこれら5地点で毎木調査と林床植物刈取調査を実施した。第2回調査結果をまとめると次のようである。

(a) ヒノキ林

第1回調査では20m×20mのコドラード内にヒノキ96本、スギ1本、サクラ3本が存在したが、今回の調査ではヒノキ2本が枯死していた。その結果、立木密度は2350本/haとなった。ヒノキの胸高直径は7.5~26.1cmで、平均値は16.8cmであった。

(b) スギ林

前回に設定したコドラード内で、スギ1本枯死していたため、密度は2930本/haとなった。胸高直径は9.4~29.6cmの範囲にあり、平均値は17.2cmであった。

(c) 落葉・広葉樹(クヌギ-コナラ林)

前回に比べて、胸高直径5cm以上の樹木で2本枯死していたのに対し、5cm未満の樹木では本数が若干増加した。そのため、立木密度はそれぞれ1550と6700本/haとなった。胸高直径は前者

で5.1~30.1cm, 後者で0.33~2.05cmの範囲にあり, 平均値は12.4cmと0.98cmとなった。

(d) アカマツ林

試験地内のアカマツ植林地はもともとマツ枯れが原因し, 個体数は少ない。今回の調査では, さらにマツ枯れのために本数は激減し, 密度は約42%減の490本/haとなった。一方, 胸高直径5cm未満の落葉・広葉樹が増加し, 密度は44%増の7470本/haであった。アカマツの胸高直径は5.8~20.8cmで, 平均値は12.7cmである。胸高直径5cm以上の落葉・広葉樹の本数には変化は見られなかった。胸高直径は5cm以上で4.6~20.8cm, 以下では0.80~3.81cmの範囲にあり, 平均値はそれぞれ11.7cmと2.05cmである。

(e) ヒノキ幼齢林

前回と比べて1本増加したため, 密度は2000本/haとなった。胸高直径は1.12~6.50cmで, 平均値は3.42cmである。

林床植物については各コドラード内に1m×1mの小コドラードを5か所設け, その中に生育する樹高1.3m未満の樹木と草木を地際ですべて刈り取り, 乾燥後秤量した。

樹高Hと胸高直径Dの関係式は既に第1回調査で得られている⁶⁾。これらをまとめると,

(a) ヒノキ林

$$\frac{1}{H} = \frac{1}{1.88D} + \frac{1}{18.6}$$

(b) スギ林

$$\frac{1}{H} = \frac{1}{1.91D} + \frac{1}{22.8}$$

(c) 落葉・広葉樹林

$$\frac{1}{H} = \frac{1}{2.52D^{0.663}} + \frac{1}{49.2}$$

(d) アカマツ林

$$\frac{1}{H} = \frac{1}{2.91D^{0.650}} + \frac{1}{15.8} \quad (\text{アカマツ})$$

$$\frac{1}{H} = \frac{1}{2.40D^{0.597}} + \frac{1}{34.8} \quad (\text{落葉・広葉樹})$$

以上の関係式と今回測定した胸高直径から樹高を算出する。また植物体現存量は既往の研究成果から, 上に求めた胸高直径と樹高を用いて, 幹, 枝, 葉及び地下部乾重を推定した⁶⁾。なお現存量の計算には, 前回と同じ相対成長関係式を用いた。結果は表3に器官別現存量としてまとめている。表中, 下段にある括弧内数値は前回の現存量である。

5. 2 植物体の現存量

ここでは植物体の生長によって, 固定される栄養塩量を推定する。2回の調査時期を考慮して, 生長期間はスギとヒノキで3年, 他の3種は2年とした。表3にある2回の現存量の差から, 植物体の生長速度を乾重(kg/ha/y)で示すと表4となる。

表 3 筑波森林試験地の推定現在量
Table 3 Estimation of stand dry biomass in several vegetations

							(t·ha ⁻¹)
Vegetation	Age(year)	Trees·ha ⁻¹	Stem wood	Branches	Foliage	Root	Total
<u>Hinoki(Chamaecyparis obtusa)</u> stand	30	2350	145.9	19.04	18.23	49.45	232.6
	(27)	(2400)	(126.9)	(15.70)	(15.90)	(43.0)	(201.5)
	Floor vegetation			0.0238	0.0096	0.0111	0.0445
				(0.0199)	(0.0081)	(0.009)	(0.0370)
Total biomass			145.9	19.06	18.24	49.46	232.6
			(126.9)	(15.72)	(15.91)	(43.01)	(201.5)
<u>Sugi(Cryptomeria japonica)</u> stand	27	2930	136.4	17.32	36.84	36.31	226.9
	(24)	(2950)	(125.6)	(15.8)	(33.9)	(33.2)	(208.5)
	Floor vegetation			0.00271	0.00105	0.00125	0.00501
				(0.00039)	(0.00015)	(0.00018)	(0.00075)
Total biomass			136.4	17.32	36.84	36.31	226.9
			(125.6)	(15.80)	(33.90)	(33.20)	(208.5)
Broadleaved stand							
	D>5cm	1550	60.68	9.68	1.67	25.7	97.73
		(1600)	(50.0)	(6.75)	(1.20)	(22.0)	(80.0)
	D<5cm	6700	0.250	0.0006	0.0002	0.292	0.542
	(6100)	(0.085)	(0.00012)	(0.00006)	(0.100)	(0.185)	
Floor vegetation			1.90	0.73	0.88	3.51	
			(1.23)	(0.48)	(0.57)	(2.28)	
Total biomass			60.93	11.58	2.40	26.87	101.78
			(50.09)	(7.98)	(1.68)	(22.67)	(82.42)
<u>Burned Pine(Pinus densiflora)</u> stand	25	490	11.39	1.64	1.03	4.02	18.08
	(23)	(844)	(14.80)	(1.82)	(1.33)	(5.33)	(23.28)
	Broadleaved stand						
	D>5cm	580	19.00	2.26	0.42	8.30	29.98
		(580)	(9.77)	(0.775)	(0.155)	(5.77)	(16.47)
	D<5cm	7450	2.10	0.017	0.0053	1.84	3.95
		(5200)	(1.60)	(0.013)	(0.0043)	(1.33)	(2.95)
	Floor vegetation			2.52	0.39	0.97	3.88
			(2.98)	(0.46)	(1.15)	(4.59)	
Total biomass			32.49	6.44	1.85	15.13	55.89
			(26.17)	(5.59)	(1.95)	(13.58)	(47.29)
Young Hinoki (<u>Chamaecyparis o.</u>) stand	7	2000	1.26	0.023	0.056	0.43	1.76
	(5)	(1956)	(0.22)	(0.0021)	(0.0076)	(0.076)	(0.31)
	Hinoki			4.10	2.46	2.19	8.75
	Floor vegetation			(2.22)	(1.33)	(1.18)	(4.73)
	Total biomass			1.26	4.12	2.52	2.62
			(0.22)	(2.22)	(1.34)	(1.26)	(5.04)

表 4 植物体各器官の生長速度

Table 4 Plant growth rate in each organ

(t·ha⁻¹·y⁻¹)

Vegetation	Stem wood	Branches	Foliage	Root	Total
Hinoki stand					
Hinoki	6.32	1.11	0.78	2.15	10.36
Floor vegetation		0.0013	0.0005	0.0007	0.0025
Total growth rate	6.32	1.11	0.78	2.15	10.37
Sugi stand					
Sugi	3.61	0.51	0.98	1.04	6.14
Floor vegetation		0.00077	0.0003	0.00037	0.0014
Total growth rate	3.61	0.51	0.98	1.04	6.14
Broadleaved stand					
D>5cm	5.34	1.47	0.24	1.85	8.90
D<5cm	0.083	0.00024	0.00007	0.096	0.18
Floor vegetation		0.34	0.13	0.16	0.62
Total growth rate	5.42	1.81	0.37	2.10	9.70
Burned Pine stand					
Pine	-1.71	-0.09	-0.15	-0.66	-2.61
Broadleaved tree					
D>5cm	4.62	0.75	0.13	1.27	6.77
D<5cm	0.25	0.0018	0.0005	0.25	0.50
Floor vegetation		-0.23	-0.035	-0.09	-0.36
Total growth rate	3.16	0.43	-0.05	0.77	4.31
Young Hinoki stand					
Hinoki	0.52	0.01	0.024	0.18	0.73
Floor vegetation		0.94	0.57	0.50	2.01
Total growth rate	0.52	0.95	0.59	0.68	2.74

ヒノキ林にはスギ1本とサクラ3本が含まれているが、全現存量に占める割合は2.1%であるため、ヒノキ現存量には含めていない。また、ヒノキ林、スギ林ともに林床の光環境は悪く、林床植物は少ない。結果として、ヒノキ林は滋賀30年生^{1*)}の現存量と比べても妥当な値である。スギ林は静岡^{1*)}や熊本^{2*)}の調査結果よりやや低いように思われる。

落葉・広葉樹は胸高直径が5cm以上と以下の樹木に分けて算定した。5cm以上の生長速度8.9t/ha/yは5cm以下の生長速度0.179t/ha/yに比べて圧倒的に大きくなっている。また林床植物の生長速度も胸高直径5cm以下のそれより大きい。

アカマツ林のアカマツは松枯れのため、すべての器官でマイナスとなっている。これに対し、落葉・広葉樹の生長がこれを補い、トータルとしてアカマツ林の現存量は増加している。林床植物の生長量もマイナスとなっているが、これは広葉樹の生長によって林床の光環境が悪化したためと考えられる。

ヒノキ幼齢林の測定事例は見当たらないが、スギ幼齢林では0.8t/ha/yの値が得られており、本調査結果もほぼ妥当なものと考えられる。

次に既往の研究成果²¹⁾を参考に、各器官の栄養塩含有率を生長速度に乗じて、植物体に固定される栄養塩量をkg/ha/yの単位で整理すると表5となる。さらに各植生の面積から、筑波森林試験流域全域の植物体生長による栄養塩の固定量を推定すると表6となる。モミ林では毎木調査は実施していないが、その生育状況から判断して、アカマツ林と落葉・広葉樹林の中間程度と考え、生長速度として両者の平均値を採用して求めた。ここで推定された栄養塩の固定量は、調査地域の結果を全域に適用されており、同じ植生であっても流域内すべて同一の生長段階にあるとは限らない。さらに栄養塩含有率も本調査で対象とした群落と既存調査の群落とでは生育環境も異なる。したがって、ここで得られた植物体生長に伴う栄養塩類の固定量はあくまでも推定値であることに注意する必要があるが、試験地全域から植物体の生長によって収奪される栄養塩量の目安になると考えられる。

ここで降雨によってもたらされる栄養塩量と固定量を比較してみよう。窒素について、表2による流入量は無機態であるが、有機態量を加算しても、植物体の生長量を賄うには不足するよう思える。リンについても同様である。また、K、CaとMgについては、固定量は流入量の2.9、4.3及び1.9倍となっている。こうした状況は筑波森林試験地に限らず、河田²²⁾や岩坪¹⁷⁾によっても報告されている。

6 結 論

森林は環境調節機能や環境資源として、多くの効用を持つと言われているが、この内本研究では水質浄化機能を検討している。観測地は筑波山系に設けられた森林小流域(67.5ha)であり、対象期間は1985年4月から1987年3月までの2か年である。

この2水年の降水量は1576.5mmと1552.5mmであり、過去5年間の平均値と比べると300mm程度多雨であった。また年流出量はそれぞれ733.7mmと711.4mmであり、年流出率は46.5%と45.8%となる。

降雨によってもたらされる収入と渓流水に乗って流亡する支出を調べると、森林にとってプラスになる物質に $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$ と $\text{PO}_4^{3-} \text{-P}$ が、マイナスになるものに $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 、Inorg-N、 SiO_2 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} がある。 $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ と $\text{PO}_4^{3-} \text{-P}$ については、年間を通してほぼ流入量は流出量を上回っており、確かに森林の浄化機能が働いていると結論できる。また SiO_2 は土壌起源の物質であり、流出負荷量は流入負荷量の56倍にも上っている。 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} はもとも降水濃度より渓流水濃度の方が高く、負荷量にしても森林にとって支出超過となっている。

降水中のInorg-Nの組成は $\text{NH}_4^+ \text{-N}$: 50.3%、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$: 0.8%、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$: 48.9%であるのに対し、渓流水では $\text{NH}_4^+ \text{-N}$: 2.0%、 $\text{NO}_2^- \text{-N}$: 0.2%、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$: 97.8%となり、渓流には $\text{NH}_4^+ \text{-N}$ と $\text{NO}_2^- \text{-N}$ は

表 5 植物体の生長に伴う栄養塩の固定量
Table 5 Nutrient fixation due to plant growth

Vegetation	(kg · ha ⁻¹ · y ⁻¹)				
	N	P	K	Ca	Mg
Hinoki stand					
Hinoki	26.06	2.73	12.17	35.08	10.76
Floor vegetation	0.043	0.0050	0.084	0.022	0.0065
Total	26.10	2.74	12.25	35.10	10.77
Sugi stand					
Sugi	21.65	2.51	12.63	32.77	6.72
Floor vegetation	0.025	0.00028	0.049	0.013	0.0038
Total	21.68	2.51	12.68	32.78	6.72
Broadleaved stand					
D>5cm	23.57	1.67	15.09	36.87	6.49
D<5cm	0.53	0.05	0.45	0.59	0.15
Floor vegetation	6.13	0.51	6.22	2.80	0.84
Total	30.23	2.23	21.75	40.26	7.47
Burned Pine stand					
Pine	-4.74	-0.49	-3.16	-6.41	-1.36
Broadleaved tree					
D>5cm	16.12	1.13	10.59	27.53	4.64
D<5cm	1.51	0.14	1.26	1.69	0.41
Floor vegetation	-2.89	-0.26	-2.95	-1.35	-0.36
Total	10.00	0.52	5.74	25.15	3.33
Young Hinoki stand					
Hinoki	1.40	0.15	0.70	1.84	0.73
Floor vegetation	22.52	1.83	22.75	10.19	3.22
Total	23.92	1.98	23.45	12.03	3.95

ほとんど流出してこない。したがって、森林にとってInorg-Nがマイナスになっているのは、NO₃⁻-Nの流出が原因している。ただInorg-Nが支出超過であると言っても、2月から5月にかけては流入量は流出量を上回っている。渓流水のNO₃⁻-N濃度は夏季に高まる性質があり、この時期に多量の降雨があると渓流水量の増加が相乗して、流出負荷量はさらに上昇することになる。対象期間は多雨であり、特に1985年には台風8506(総雨量136.5mm)と8514(105.0mm)、1986年には台風8610(291.0mm)が影響していると見られる。そこで、これらの降雨を除去して収支を試算すると、流出負荷量は流入負荷量にほぼ見合った値になることが示された。これより、2か年

表 6 筑波森林試験地全域の植物体生長に伴う栄養塩の固定量
 Table 6 Nutrient fixation due to plant growth in whole the Tsukuba
 experimental forested basin

Vegetation	Area (ha)	Nutrient fixation of plant body(kg·y ⁻¹)				
		N	P	K	Ca	Mg
Hinoki	5.7	149	16	70	200	61
Sugi	35.4	767	89	449	1160	238
Broadleaved tree	7.3	221	16	159	294	55
Burned Pine	8.9	89	5	51	224	30
Young Hinoki	6.3	151	12	148	76	25
Fir	1.7	36	3	25	60	10
Others	2.3	0	0	0	0	0
Total	67.5	1413	141	902	2014	419
kg·ha ⁻¹ ·y ⁻¹		20.9	2.1	13.4	29.8	6.2

の調査から窒素について結論を下すのは早計であり、さらに調査が必要となる。一般に窒素は森林土壌中に数t/haの規模で蓄積されている。一方流入あるいは流出する窒素量はせいぜい10kg/ha/y かそれ以下であり、これらの値は窒素の蓄積量に比べて極めて小さく、森林の状態が変わればかなりの幅で変化し得ると予想されるからである。

以上の調査とは別途、筑波森林試験地では毎木調査が2回実施され、その間の植物体現在量の変化から、植物体の生長に伴う栄養塩の固定量が推定された。その結果、他の試験地でも報告されているように、筑波森林試験地でも降雨によってもたらされる養分流入量のみでは植物体の生長を賄うことはできないようである。

森林生態系における物質循環については、研究が開始されてまだ日が浅く、森林の多くの効用がうたわれている一方で、これを正しく評価するに供する科学的知見は少ない。これが筑波森林試験地で実験を始めた直接の契機である。試験地の大部分は国有林であり、試験地や観測機器の設置と毎木調査は笠間営林署、並びに同柿岡支所の御好意によるものである。現地観測に際しては八郷町公衆衛生課と中山森林組合の方々から協力を頂いた。ここに記して謝意を表する次第である。

引用文献

- 1) 只木良也・吉良竜夫編(1982): ヒトと森林。森林の環境調節作用, 共立出版, 東京, 323p.
- 2) 有光一登著(1987): 森林土壌の保水のしくみ, 森林からのメッセージ1, 創文, 東京, 199p.
- 3) 平田健正・村岡浩爾(1986): 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について, 第30

- 回水理講演会論文集, 43-48.
- 4) 平田健正・村岡浩爾 (1987) : 山地小流域における溶存物質の降雨流出特性について. 第31回水理講演会論文集, 59-64.
 - 5) Muraoka, K. and T. Hirata (1988) : Streamwater chemistry during rainfall events in a forested basin. *J. Hydrol.* (in press).
 - 6) 村岡浩爾・平田健正 (1986) : 渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究. (第1報)筑波山試験流域の概要と植生調査, 国立公害研究所研究報告, 第95号, 21-35.
 - 7) 水戸地方気象台 (1980~1987) : 茨城県気象月報.
 - 8) 平田健正・村岡浩爾 (1988) : 渓流水質から見た森林の浄化機能に関する研究. (第3報)溶存物質の流出機構, 国立公害研究所研究報告, 第116号, 一.
 - 9) 中野秀章著 (1976) : 森林水文学. 共立出版, 東京, 137-159.
 - 10) 土木学会編 (1963) : 水理公式集. 技報堂, 東京, 39-42.
 - 11) 丸山明雄・岩坪五郎・堤 利夫 (1965) : 森林内外の降水中の養分量について (第1報). 京都大学農学部演習林報告, 36, 25-39.
 - 12) 岩坪五郎 (1987) : 降水と森林流出水の溶存物質含有濃度と含有量. 日本林学会第98回大会, 水文ワークショップ.
 - 13) Likens, G. E., F. H. Bormann, R. S. Pierce, J. S. Eaton and N. M. Johnson (1977) : *Biogeochemistry of a forested ecosystem*. Springer-Verlag, New York, 65-73.
 - 14) 堤 利夫 (1987) : 森林と流出水の水質. 森林管理のあり方とその科学的基礎, 文部省科研環境科学研究報告集, B309-R12-9, 9-16.
 - 15) 岩坪五郎・堤 利夫 (1968) : 森林内外の降水中の養分量について(Ⅲ). 流亡水中の養分量について, 京都大学農学部演習林報告, 40, 140-156.
 - 16) 堤 利夫著 (1973) : 陸上植物群落の物質生産1b-森林の物質循環, 共立出版, 生態学講座5b, 21-40.
 - 17) 岩坪五郎 (1976) : 森林生態系での植物養分物質の循環. 山岳・森林・生態学, 今西綿司博士古稀記念論文集, 中央公論社, 313-360.
 - 18) 竹内郁雄・只木良也・蜂屋欣二・河原輝彦・佐藤 明 (1975) : ヒノキ30年生林分の間伐試験一列状間伐を中心として. 林業試験場研究報告, 272, 141-155.
 - 19) 原田 洸・佐藤久男・堀田 庸・蜂屋欣二・只木良也 (1972) : スギ荘齢林の養分含有量に関する研究. 林業試験場研究報告, 249, 17-74.
 - 20) 只木良也・尾方信夫・長友安男・吉田武彦 (1967) : 森林の生産構造に関する研究X1. ササキスギと実生スギの28年生造林地の物質生産力, 林業試験場研究報告, 199, 47-65.
 - 21) 国立公害研究所 (1987) : 水質浄化機能に係わる毎木調査及び林床植物刈り取り調査. 29p.
 - 22) 河田 弘 (1978) : 森林生態系における栄養元素の動態と水域へのインパクト. 文部省科研環境科学研究報告集, B8-R12-1, 97-108.

流下過程の水質変化の物質収支法による評価
Estimation on Change of Water Quality during Flowing
down in an Irrigation Channel by Mass Balance

海老瀬潜一¹
Senichi EBISE¹

要 旨

途中からの流出入のない農業用水路の一定の流下区間において、その上下流端で流下時間の遅れを考慮した24時調査や毎日定時調査を実施し、流下負荷量や水質濃度の変化を物質収支法によって評価した。通常の流下負荷量の状態で普通に見られる物質の日平均の流達率や水質の形態変化の検討を行った。日平均の流達率では保存性の溶存物質は1前後の値が確認でき、懸濁態の有機物質は0.7~1.0の値が多かった。水質の形態変化では、下水道が未整備の市街地の河川で見られる流下過程での PO_4-P の懸濁物質への吸着による懸濁態化と、その懸濁物質の沈殿に伴う濃度及び負荷量の減少は、土浦用水でも一部で生じているものの、 PO_4-P とSSの濃度レベルと PO_4-P/SS が小さいために、顕著な変化とはならなかった。また、有機物質の上下流端での流量重みづけをした日平均の濃度差から酸化分解に沈殿や吸着などを含めた総括的な自浄係数を脱酸素係数の算定式によって求めると、通常の河川で高濃度の精製有機物質を瞬時投入して下流での回収量から計算されたその値と同程度か1オーダー高い値となった。この定形で流量や水質濃度の安定した農業用水路においても、沈殿や吸着などによる有機物質除去のウエイトが大きいことも明らかとなった。

Abstract

During flowing down in two reaches of an irrigation channel without influx and efflux the amounts of changes in the loadings and concentrations of pollutant matters were estimated by three diurnal observations and a daily observation. The flowing down rates of pollutant loadings and the changes of forms in water quality were discussed from the view point of mass balances under the ordinary loading condition. The diurnal means of flowing down rates for the conservative dissolved matter was certified to be nearly about 1.0, but those of most particulate organic matters ranged from 0.7 to 1.0. In the river, for an example, urban river where the concentrations of PO_4-P and SS were high, dissolved PO_4-P became particulate phosphorus with the adsorption to the suspended solids. But in the irrigation channel where both concentrations and the ratio of PO_4-P/SS were lower than urban rivers such change were small

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental
Studies. 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

and inconspicuous. The all inclusive self-purification coefficient of organic matter including sedimentation and adsorption was estimated as well as deoxygenation coefficient. The all-inclusive self-purification coefficient became larger than that by the conventional method using impulse injection of refined organic matter of high concentration. In the regular rectangular channel where the discharge and the concentration of water quality were stable, the removal of organic matter with sedimentation and adsorption was made clear to play a important roll in the all-inclusive self-purification as well as a river.

1 緒 言

流域から水路や河川に排出された物質は、その流下過程において物理的・化学的及び生物的な作用を受けて量的かつ質的に変化する。河川長が小さく急こう配の河川では、流下時間が短くて水質変化が比較的少ないが、実際の中小河川や水路においては河床こう配や河床形態の変化が多く、大量の汚濁負荷の排出を受ける場合には特に物質収支から見ると流下方向の水質濃度や負荷量の変化がかなりの量に達することもある。一般に、流下時間が長ければ分解や吸着による水質形態の変化は大きく、流速が小さければ懸濁物質の沈殿が顕著であるが、実際の中小河川や水路では流下途中での合流や分流が多いため、自浄作用と言われているこの現象の定量的な検討は困難なことが多い。

既に著者らは、中流部に市街地が存在し、下流部に存在する農耕地からの排出負荷量が中流部までのそれと比べて無視できる小河川において、流下方向の水質負荷量の減少を河床たい積物量などとの関係から検討を行っている^{1,2)}。また、途中からの流出入のない農業用水路において、一定の流下区間の物質収支法により水質負荷量の変化や水質形態の変化の検討を行った。この一定区間の流下過程の1日を通しての水質変化を、物質収支法で捕えて自浄係数や流達率で評価した。これまで、実際の河川の自浄係数や流達率の算定は、かなりの高濃度の精製された有機化合物を上流側でインパルス入力として投入し、下流側でその濃度ピークをおさえて回収率で評価する手法であった³⁾。この手法は高濃度で人工の汚濁物質の流下時間に限定した1日のある時点での変化を捕えるもので、著者の通常の汚濁負荷状態のまま1日間の変化を平均量として算定する手法とは異なった評価である。一定区間の流下時間を考慮した1日という期間の物質収支は、1日の変化パターンとしての流量や水質濃度の変化だけでなく、水温や光量のほか生物活動の周日変化サイクルを含んでおり、日常の排出負荷状態での日平均量としての流達率や見かけの自浄係数の算定が可能となる。

2 調査の概要

調査を実施した農業用水路の土浦用水は、霞ヶ浦に流入する最も流域規模の大きな河川の桜川からポンプ揚水され、一部トンネル区間を経て筑波研究学園都市を流下する。土浦用水は途中で他からの排水の流入がないため、分岐から次の分岐までを調査区間とした流下過程の水質変化を、上流点と下流点の流出負荷量差や水質濃度差として捕えることができる。調査区間は、図1に示すようにほぼ直線区間で、分岐直後を上流点とし、途中少量分水される中流点までの上流側区間

(0.95km)と、そこから下流点までの下流側区間(1.95km)及び両区間を併せた全区間(2.90km)の三つについて検討を行った。水路は、幅1.9mの三面コンクリート張りの矩形水路で、水路床こう配がほぼ一定で1000分の0.15程度の平坦な水路である。調査区間の上流点と下流点では、採水時ごとに水位と流速を測定して流量を算定した。水深はおよそ0.8m、流速は約0.6m/sで $1\text{ m}^3/\text{s}$ 前後のかなり安定した流量が維持されている。調査区間の流下時間は上・下流点の流速から推定できるが、各年ごとの調査とも高濃度食塩水を上流点に投入して、中・下流点でのその濃度ピーク(電気伝導度で測定)通過時間から求めた。

調査は、1983年から1986年の4年間のいずれも夏期に実施した。1983年8月5日～6日に24時間(毎時合計25サンプル)調査を下流側区間でのみで行った。1985年と1986年の7月29～30日に同様の24時間調査を上流側と下流側の両区間で実施した。また、1984年は7月23～8月15日に日曜日を除く毎日定時流出負荷量調査を両区間で実施した。3回の24時間調査とも、中流点及び下流点の採水時刻は、それぞれ測定された流下時間分だけずらせて行っているが、毎日定時調査では、上流点から下流点へと測定を進めたが、流下時間に比べて短い採水時刻のズレであった。

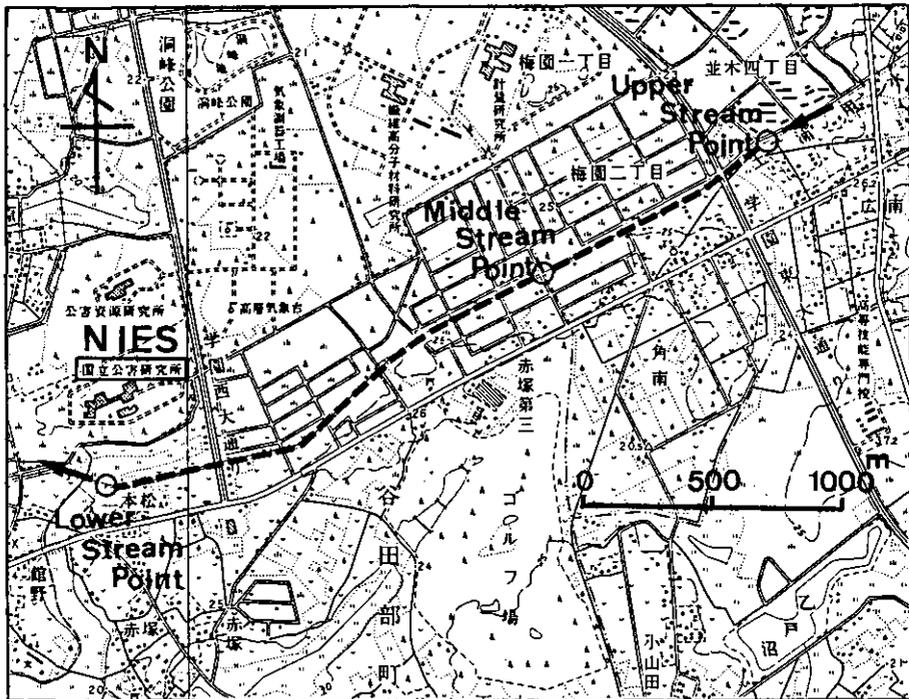


図 1 土浦用水と観測地点

Fig. 1 Observation points in Tsuchiura irrigation channel

流速は小型電磁流速計あるいはプロペラ型微流速計で測定した。水質分析は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 Cl 、 SiO_2 、 SO_4 、 Ca 、 Mg はオートアナライザーによる比色分析によった。 D-N 、 T-N 、 D-P 、 T-P 、 D-SiO_2 、 T-SiO_2 はペルオキシニ酸化カリウムを加えて加圧分解後オートアナライザーで測定した。 Na と K の分析は炎光光度計、 DOC は TOC メーターを用い、 SS はグラスファイバーフィルター法により測定し、フィルター上の懸濁物質の POC と PON は CHN コーダーで分析した。 DO と BOD_5 は酸素びん-滴定により、 COD はアルカリ性 KMnO_4 法によって測定した。なお、1983年～1985年の夏期の高水温時には、土浦用水の取水地点の桜川下流部においても霞ヶ浦同様にアオコ (*Micro-cystis* sp.) が出現したため、土浦用水の Chl-a の測定を4回の調査とも行っているが、4回目の1986年以外は SS 中のアオコのウエイトが非常に大きい状態であった。

3 水質変化の特徴

土浦用水の水質濃度の周日変化は、水温変化と、アオコを主とした微生物の呼吸と昼間の光合成による DO 濃度への影響が顕著であったものの、図2(a)、(b)にいくつかの水質項目についてのみ示すように、全般的に急激なあるいは大きな変化は見られなかった。これは、取水源の桜川が霞ヶ浦流入河川中で最大の河川長と流域規模であり、その流域の土地利用は市街地が13%、残りが山地・水田・畑地で占められており、桜川自体の水質濃度の周日変化が小さいためである。1982年2月に桜川の栄利橋地点で行った晴天時24時間流出負荷量調査でその周日変化の小ささを

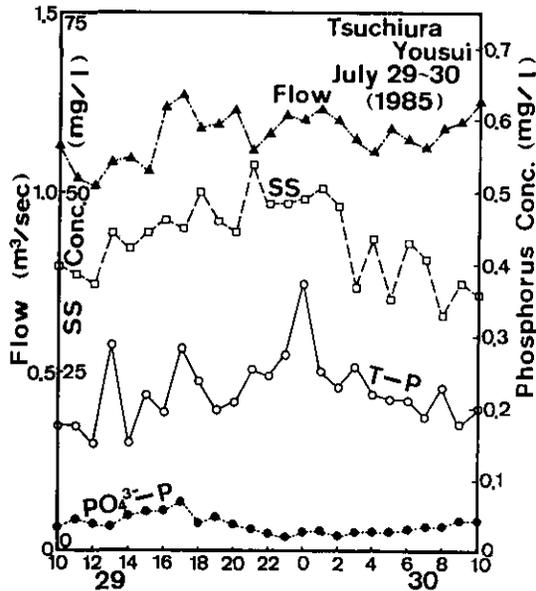


図 2(a) 流量と水質濃度の日周変化 (1985年)

Fig. 2(a) Diurnal changes of flow and water quality (1985)

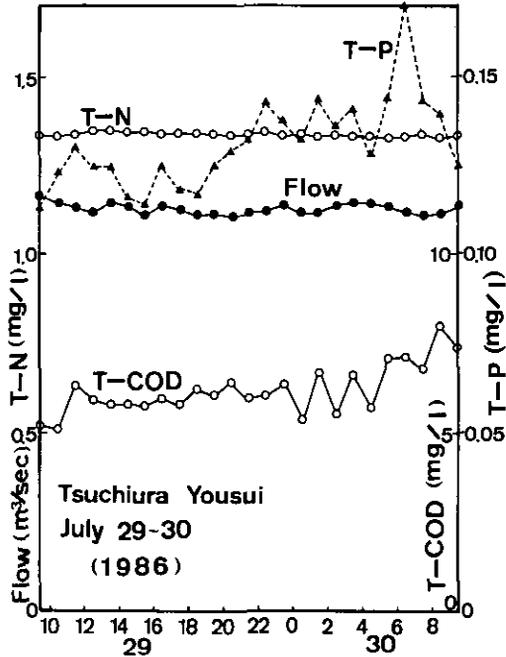


図 2(b) 流量と水質濃度の日周変化 (1986年)
 Fig. 2(b) Diurnal changes of flow and water quality (1986)

確認している⁹⁾。多くの測定項目の中で、3回の24時間調査ともT-P, PO_4^{3-} -P, SSの水質濃度変化が大きく、T-Nのそれは小さいという特徴が見られるが、霞ヶ浦に流入する市街地河川の山王川や備前川、さらに境川、花室川、清明川のように流域が小さく、流域内に占める市街地面積のウエイトの比較的高い河川のような水質濃度変化の大きさは見られない。また、1983~1985年の水質濃度が1986年のそれより全般的に少し高濃度であったと考えられる。表1に各調査年の上流側での水質濃度の平均値を示す。

4 流達率と水質の形態変化

4.1 日平均流達率

途中からの流出入のない流下区間における流下時間の遅れを考慮した上下流端での24時間(25サンプル)負荷量調査は、水質負荷量の日周変化を含んだ流下過程の物質収支をその上下流端の負荷量の総和あるいは平均値の差として、または水質濃度の平均値の差として捕えることができる⁹⁾。また、同時に流下過程の水質形態の変化の検討も可能である。この土浦用水では、流量が一定の上-中流区間と中-下流区間、さらに中流点でのおよそ10%の分水量を算定して上-下流区間の1日という期間の物質収支から日平均としての流達率が求められる。日平均流達率を各年

表 1 各年調査時の平均水質濃度（上流側）

Table 1 Arithmetic means of concentrations for each water quality indicator (upstream observation point)

	1983	1984	1985	1986
NH ₄ -H	0.084	0.426	0.116	0.091
NO ₂ -N	0.038	0.138	0.033	0.025
NO ₃ -N	1.047	0.587	0.584	0.730
Inorg-N	1.170	1.151	0.732	0.846
Org-N	0.783	1.244	0.990	0.532
T-N	1.953	2.395	1.722	1.378
DTN	1.256	1.559	0.940	0.920
PTN	0.697	0.836	0.782	0.458
PO ₄ -P	0.012	0.018	0.025	0.042
Org-P	0.096	0.207	0.165	0.089
T-P	0.108	0.225	0.190	0.132
DTP	0.026	0.040	0.052	0.048
PTP	0.082	0.185	0.138	0.083
Cl	26.0	37.9	28.1	26.0
SS	14.3	35.5	42.1	25.0
SiO ₂	20.7	14.9	14.3	15.1
T-SiO ₂	—	20.6	21.1	20.5
D-SiO ₂	—	15.1	14.4	15.4
P-SiO ₂	—	5.5	6.8	5.1
SO ₄	33.2	29.8	31.3	31.3
Ca	16.6	19.0	14.8	19.6
Mg	7.8	8.4	7.8	8.2
Na	16.3	24.7	15.2	16.5
K	4.9	5.9	4.7	3.9
Chl-a	59.6	93.0	97.6	4.3
T-DOD	7.62	10.18	8.92	6.20
D-COD	4.31	6.68	5.10	4.10
P-COD	3.31	3.50	3.82	2.10
POC	1.92	5.53	4.97	2.32
PON	0.39	1.08	1.03	0.39
DOC	—	—	2.53	4.28
BOD	—	—	4.23	6.37
DO	—	—	8.22	9.15
Flow	0.983	1.164	1.162	1.131

のケース、各区間について示したのが表2である。Cl, K, Na, Ca, Mgなど保存性の無機イオンについては、予想どおり1または1により近い値となっている。Clは一つのケースで0.96となるものの他のケースでは0.99~1.01とその保存性物質としての挙動は確認できる。SSについては、桜川でアオコの発生がなかった1986年に0.75の浄化となっているケースから1.16の汚濁化となっているケースまで存在した。有機物質のBOD, COD, DOCや、懸濁態の有機物質POC, PON, Chl-aなどは、小さいながらほとんどが浄化となっている。ただ、D-CODは0.97, 0.98と浄化となるケースがあるものの、1.01~1.11と汚濁化のケースも多い。これは、T-CODやP-CODとの対応を含めて、水質の形態変化として捕える必要がある。T-CODやP-CODの浄化と併せて考えれば、P-CODからD-CODへの形態変化が一部生じたとも推定できる。

この上-中流区間（長さ0.95kmで流下時間約30分）、中-下流区間（長さ1.95kmで流下時間約50分）、両区間を併せた上-下流区間（長さ2.9kmで流下時間約80分）のほぼ一定流速で三面コンクリート張りの水路の短い流程では、大きな水質負荷量の変化は見られなかったが、少量ながら確実な水質変化が捕えられた。最も濃度変化が顕著であったものは、POC, DOC, BODで有機態炭素の変化によるものと考えられる。両区間を通しての減少率は、1985年のケースではT-CODの6%からBODの9%の減少、1986年のケースではP-CODの22%, BODの21%, POCの20%, PONの13%の減少とSSの24%の減少に対応した懸濁態有機物質の変化となっている。すなわち、懸濁物質の沈殿を含めた有機物質の減少が認められた。

4. 2 水質の形態変化

下水道が未整備の市街地を流下する河川では、 $PO_4^{3-}-P$ が高濃度かつ高負荷量でしかも時間的に集中して排出されることが多い。合成洗剤の無リン化が進みつつあるが、依然として $PO_4^{3-}-P$ の濃度レベルは高いことが多い。石岡市の市街地を貫流して霞ヶ浦高浜入に流入する山王川では、中流部の市街地下流地点から畑地と水田の下流部を流下した最下流部の日の出橋地点まで（流下距離2.85km, 流下時間120~160分）に、市街地部で大量に負荷されたリン化合物の減少が顕著に認められた。 $PO_4^{3-}-P$ とT-Pがともに減少し、SSも大量に減少することから、 $PO_4^{3-}-P$ の懸濁態化かつ、懸濁態リンの沈殿によるT-Pの減少と考えられた。この現象が、 $PO_4^{3-}-P$ やSS濃度がともに山王川に比べてはるかに小さい土浦用水でも認められるかを検討した⁹⁾。

リン及びSSの水質濃度と流量の日周変化は図2に示されているが、24時間調査の各回の流量、SS及びリンの濃度、さらに $PO_4^{3-}-P/SS$ の平均値を表3に示す。また、各区間の上下流端での負荷量の差を表4に示す。▽印が減少を表す。リン化合物の流下に伴う減少は1985年と1986年の中-下流区間に集中して見られる。その他の区間や調査年でも $PO_4^{3-}-P$ やDTPの減少が見られることが多い。山王川は $PO_4^{3-}-P$ 及びSSが高濃度で、流下過程に三つの小さなせき上げが存在して流速も変化して、懸濁物質の沈殿が生じやすい流路であったのに対して、平坦で定形のコンクリート水路の土浦用水では、ほぼ一定の平均流速は0.5~0.6m/sと早く、SS濃度に比して $PO_4^{3-}-P$ 濃度が低く、 $PO_4^{3-}-P/SS$ の値が山王川と比べて小さかった。山王川の河川幅は土浦用水とほぼ同じ程度であり、河床は床固めされ、せき上げ部では泥の堆積物が多い状態であった。山王川の流量は土浦用水のその約半分であり、その日周変化は大きく、山王川の方の水深が浅く、河床付着微生物

表 2 日平均の流達率

Table 2 Flowing down ratio based on diurnal means of pollutant loading

	BOD			T-COD			P-COD			D-COD			POC			PON			Cl	
	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986
上流点-下流点	0.91	0.78	-	0.94	0.99	-	0.83	0.77	-	1.05	1.01	-	0.92	0.91	-	0.91	0.87	-	0.99	0.96
上流点-中流点	-	-	-	0.96	0.98	-	0.85	0.91	-	0.98	1.09	-	0.96	0.91	-	0.93	0.92	-	0.99	0.96
中流点-下流点	-	-	0.98	0.98	1.01	0.99	0.97	0.85	0.97	1.03	1.11	0.97	0.96	0.89	0.99	0.99	0.94	1.01	1.00	1.00
	DOC			O-N			O-P			Chl-a			SS			SiO ₂			K	
	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986
上流点-下流点	0.85	0.67	-	1.04	0.73	-	1.10	0.84	-	0.89	0.87	-	0.96	0.77	-	0.99	0.99	-	1.00	1.05
上流点-中流点	0.90	0.67	-	1.03	0.80	-	1.16	0.97	-	0.97	0.98	-	1.03	1.01	-	1.01	1.00	-	1.00	1.00
中流点-下流点	0.95	0.99	0.99	1.01	0.92	1.21	0.95	0.87	-	0.92	0.89	1.16	0.97	0.75	0.98	0.99	0.99	1.00	1.00	1.05

表 3 リンの各態成分と懸濁物質の平均濃度

Table 3 Average concentrations of phosphorate components and suspended solid

	1983	1985	1986
Flow (m ³ /s)	0.983	1.162	1.131
PO ₄ -P (mg/l)	0.012	0.031	0.042
DOP (mg/l)	0.026	0.036	0.048
PTP (mg/l)	0.082	0.186	0.083
T-P (mg/l)	0.108	0.221	0.132
SS (mg/l)	14.3	43.3	25.0
Chl-a (μg/l)	59.7	94.7	42.7
PO ₄ -P/SS	0.0008	0.007	0.0017

表 4 リンの各態成分と懸濁物質の流下区間での変化量

Table 4 Amounts of changes of phosphorate components and suspended solid in the flowing down reaches

	1983		1985		1986	
	中流点-下流点	上流点-中流点	中流点-下流点	上流点-中流点	中流点-下流点	
PO ₄ -P(kg/d)	▽ 0.16	0.54	0	0.35	▽ 0.26	
DTP (kg/d)	▽ 1.24	▽ 1.69	▽ 0.20	0.52	▽ 0.12	
PTP (kg/d)	2.79	4.97	▽ 0.79	▽ 0.43	▽ 0.98	
T-P (kg/d)	1.55	3.27	▽ 0.99	0.09	▽ 1.10	
SS (kg/d)	198	129	▽ 31	38	▽517	

のはく離流出による懸濁物質も見られた。土浦用水では桜川下流部で発生したアオコのSS中に占めるウエイトが大きく、しかもアオコは水表面付近に集まって流れる傾向があって、山王川とは懸濁物質の量と構成内容にも差異が見られた。このほか硝化によるNH₄-NのNO₂-NやNO₃-N への変化は定量的には確認できなかった。

5 総括的な自浄係数の評価

流下時間の遅れを考慮した途中からの流出入のない流下区間上下流端での1日を通しての水質濃度変化の観測結果は、有機物質やDOの濃度変化から自浄係数を算定することが可能である。流下時間は一定形状の水路ゆえ流速から推定できるが、各24時間調査とも上流端から高濃度食塩水を瞬時投入し、下流端への濃度ピークの到達時間より求めた値を用いることにする。

一般に炭水化物を主とした有機物質の水中での酸化分解は1次反応と考えられ、Lを残留有機

物質濃度(mg/l), K_1 を脱酸素係数(1/d), K_2 を沈殿または吸着などによる有機物質除去係数(1/d), t を時間とし, 移流や拡散の影響を無視すると, 次式で表される'。

$$dL/dt = -(K_1 + K_2) L$$

上流側あるいは初期の有機物質濃度を (mg/l) L_0 とすれば,

$$L = L_0 \cdot e^{-(K_1+K_2)t}$$

常用対数で表現するため, 10を底とした係数に $K_1 \rightarrow k_1$, $K_2 \rightarrow k_2$ と書き代えると,

$$L = L_0 \cdot 10^{-(k_1+k_2)t}$$

一方, 溶存酸素については, 酸素消費量を y とすれば, $y = L - L_0$ であるから,

$$Y = L_0 \cdot (1 - 10^{-(k_1+k_2)t})$$

したがって, 流下区間の上・中・下流点での流量重みづけをした日平均の濃度差から, 分解に沈殿や吸着を含めた総括的な自浄係数 (k_1+k_2) を求めて, 表5に示す。実際の河川で, 高濃度の合成有機物質を上流側に瞬時に投入して下流側でのその濃度変化を捕えて回収率として算定された (k_1+k_2) の値を楠田が表6にまとめている¹⁾。表6はほとんどがBODであるが, 両者を比較すると, 同程度の値から1オーダー高い値となっている。懸濁態の有機物質については, P-CODの一つのケースを除いて, SSの日平均流達率の小さかった1986年の値が1985年の値を上回っている。表5中の×印は浄化とならなかった場合である。これらを併せて考慮すると, この流下区間の総括的な自浄係数 (k_1+k_2) の値は沈殿や吸着などによる有機物質除去係数 k_2 の寄与が大きいたことが推察できる。先述の山王川の市街地下流区間では10~30%の流出負荷量の減少が生じており, 通常の河川では流路形態の変化, したがって流速や水深の変化によって, 沈殿や吸着などによる懸濁物質の濃度や負荷量の減少が生じていると考えられる。この土浦用水でも, 水路は定形で流速や水深はほぼ一定で, 水質濃度変化も小さくて大型の野外実験水路のようなものであるに

表 5 平常の汚濁負荷状態での日平均の総括的な自浄係数(1/d)

Table 5 Inclusive self-purification coefficient for a day under ordinary loading condition (1/d)

	BOD		T-COD		P-COD		POC		PON		DOC		O-N		O-P					
	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1985	1986	1983	1986				
上流点-下流点	0.83	1.89	-	0.48	0.04	-	1.56	2.01	-	0.66	1.67	-	0.75	1.10	1.36	3.40	-	2.43	×	1.07
上流点-中流点	-	-	-	0.76	0.45	-	3.31	2.00	-	0.77	1.94	-	1.47	1.73	2.26	8.22	-	4.78	×	0.71
中流点-下流点	-	-	0.28	0.29	×	0.11	0.39	2.02	0.35	0.59	1.51	0.13	0.26	0.72	0.75	0.17	0.99	1.02	0.03	1.71

表 6 総括的な自浄係数 ($k_1 + k_2$) の実測値 (楠田^{*)})
 Table 6 Observed values of inclusive self-purification coefficient
 ($k_1 + k_2$)(Kusuda^{*)})

事 例	$k_1 + k_2$ (1/d)	備 考
多摩川	0.1~1.88	現地観測 BOD
多摩川	0.12~0.20	室内実験 BOD
千曲川	1.2~2.4	現地観測 BOD
南浅川	0.52	現地観測 DOC
南浅川	0.066~0.087	室内実験 DOC(開始時の値)
松浦川	0.12~0.18	現地観測 BOD
巖木川	0.11~0.17	現地観測 BOD
筑後川	0.11~0.17	現地観測 BOD
浅 川	0.2	現地観測 BOD
残堀川	0.43	現地観測 BOD
野 川	0.03	現地観測 BOD
黒瀬川	0.31~3.3	現地観測 BOD
黒瀬川	0.38~1.29	現地観測 TOC
竹田川	0.361+0.111 (水温℃)	現地観測 BOD
竹田川	0.223+0.097 (水温℃)	現地観測 COD
底喰川	1.4	現地観測 BOD
町野川	-3.0 ~9.7 -1.35~5.35	現地観測 BOD

もかかわらず、見かけ上の自浄作用の中身はやはり沈殿や吸着などによっていると考えられる。脱酸素係数の実験等で求められた値や、2時間弱程度の流下時間を考慮すると、真の自浄作用としての酸化分解による有機物質濃度の減少のウエイトは小さいと推定できるが、結果は河道、流脱酸素係数の実験等で求められた値や、2時間弱程度の流下時間を考慮すると、真の自浄作用としての酸化分解による有機物質濃度の減少のウエイトは小さいと推定できるが、結果は河道、流況、流出負荷量などがかなり変化する実際の河川での自浄作用の実態が同じで、その係数値がケースによって異なるという形になっている。

6 結 論

実際の河川では、流下過程の途中から次々と排水が流下し、流下過程における水質の形態変化

の定量や流出率の算定、さらには自浄係数の測定が困難なことが多い。また、河川の流下過程の水質変化の算定には、高濃度の精製有機物質を瞬時に投入して下流側でその回収量をおさえるという時間的には一時的で、濃度や物質では特異な手法が一般に用いられている。そこで、霞ヶ浦流入河川の中で最も流域規模が大きい桜川下流部からポンプ揚水される農業用水路の土浦用水の途中から流出入のない流下区間において、通常の流下負荷量状態での物質収支法による流下過程の水質変化の評価を行った。三面コンクリート張りで定形状の0.95kmと1.95kmの長さに分けられる連続した2区間で、各区間の上下流端での流下の時間遅れを考慮した24時間調査や毎日定時調査を行い、流下負荷量や水質濃度変化から、日平均の流達率や水質の形態変化のほか、酸化分解に沈殿や吸着などを含めた総括的な自浄係数の算定を行った。

24時間調査による日平均の流達率では、保存性の溶存物質は1に非常に近い値となることが確認でき、全体の中では懸濁態有機物質の値が小さく、0.7~1.0の範囲のものが多かった。水質の形態変化では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の硝化は定量的に確認できなかったが、 $\text{PO}_4\text{-P}$ の懸濁物質への吸着による懸濁態化と、その懸濁物質の沈殿に伴う濃度及び負荷量の減少は土浦用水でもいくつかのケースで確認された。しかし、 $\text{PO}_4\text{-P}$ とSSの濃度レベルと $\text{PO}_4\text{-P/SS}$ が小さいために、大量の $\text{PO}_4\text{-P}$ やSSの排出負荷を受ける市街地河川のような顕著な変化とはならなかった。また、流下区間の上下流端での24時間調査に基づいた流量重みづけの日平均の濃度差から、酸化分解に沈殿や吸着などを含めた総括的な自浄係数を脱酸素係数の算定式によって求めた。これまでの手法、すなわち、通常の河川で高濃度の精製有機物質を瞬時投入して下流での回収量から算定する手法により求められた値と、同程度か1オーダー高い値となった。その内容を検討すると、流下時間の短かさもあって酸化分解による減少は小さく、このような定形で流量や水質濃度の安定した農業用水路においても、やはり沈殿や吸着などによる有機物質除去のウエイトが大きいことが明らかとなった。

この調査には、日本大学生産工学部工業化学科の夏期実習生の協力を得ていることを記し、謝意を表する次第である。

引用文献

- 1) 海老瀬潜一・相崎守弘・大坪國順・村岡浩爾(1983)：河川流出負荷量としての河床沈殿・堆積物量の評価。水質汚濁研究, 6(2), 93-103.
- 2) 海老瀬潜一(1986)：流達過程における水質負荷量変化とその評価。国立公害研究所研究報告, 第95号, 71-81.
- 3) 小倉紀雄・山崎宣明(1983)：南浅川における自浄作用。「環境科学」研究報告集, B207-R12-5, 51-68ほか.
- 4) 海老瀬潜一(1984)：霞ヶ浦流入河川による総流入負荷量の評価。国立公害研究所研究報告, 第50号, 41-58.
- 5) 海老瀬潜一(1987)：物質収支法による流下過程の水質変化の評価。第21回水質汚濁学会講演集, 183-184.
- 6) 海老瀬潜一(1986)：りん酸態りんの流下に伴う懸濁物への吸着による減少。第20回水質汚濁学会講演集, 100-101.
- 7) 杉木昭典(1974)：水質汚濁, 現象と防止対策。技報堂, 326-343.
- 8) 楠田哲也(1986)：河川における浄化機構。水質環境保全にはたす付着微生物の浄化能力の再評価とその効率化に関する総合研究(土木学会衛生工学委員会付着微生物分科会報告書), 95-115.

流域からの無機イオン流出負荷量原単位と流出特性
Specific Loadings of Inorganic Ions from River Basins and their
Runoff Characteristics

海老瀬 潜一¹

Senichi EBISE¹

要 旨

湖沼の富栄養化現象におけるNとPの重要性は周知の事実であるが、他の無機イオンの関与も無視できない。近年の農耕地への大量の肥料及び土壌改良材の投入による土壌層への蓄積的効果に加えて、大気汚染による降水としての負荷や酸性雨による土壌層への影響が懸念されている。この無機イオンの流域からの排出を河川での流出負荷量原単位として捕え、それと流域内の土地利用別比率との相関解析を行った。用いたデータは10河川についての毎週1回定時で1年間の流出負荷量調査データである。無機イオンの濃度や負荷量の季節変化には、雨量に基づいた流量の影響が大きく、水温の影響はさほど大きくないと推測された。流域から排出される無機イオンは、降雨時流出の流量増加に対して濃度をあまり減少させず、かえって濃度上昇を示すものもあり、降雨時流出による大量の流出負荷量となる流出特性が明らかとなった。NO₃⁻やSO₄²⁻の陰イオンの降雨による流量増加時の濃度上昇は既に指摘していたが、陽イオンのKでも濃度上昇が認められ、Ca、Mg及びNaの陽イオンについても濃度上昇の見られるケースが存在した。

Abstract

Other inorganic ions besides nitrogen and phosphorus have influence on the eutrophication of lake. The secular increase of the inorganic ion loading from a river basin are forecasted by the accumulated influence of the massive fertilizer injection in agricultural land and the influence of air pollution and acid rain. Here, the specific loadings and runoff characteristics of inorganic ions were discussed on the basis of the results of the weekly observation for thirteen rivers and the storm runoff observation for seven rivers. The specific loadings of inorganic ions for each river basin were estimated on the basis of weekly observation data for one year. From the correlation analysis between specific loadings of inorganic ions and the area ratios of land-use types in river basins, most of inorganic ions showed big correlation coefficients for urban area and agricultural area. But nitrate ion only become a high correlation coefficient for farmland area. In the correlation analysis between among inorganic ions other ions except nitrate ion have high correlation coefficients with one another. The seasonal changes in concentrations and

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environment Division, the National Institute for Environmental
Studies, 16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan.

loadings of inorganic ions were chiefly ruled by discharge and slightly by water temperature. In the period of storm runoff the concentrations of most inorganic ions did not steeply decrease and those loadings did increase fairly. Particularly, the increase of potassium concentration among the cation group at the biggest peak of discharge during a storm runoff period was recognized as well as nitrate and sulfate ions among the anion group.

1 緒言

河川水中の無機イオン濃度は、流域内の地質や土壌、降水成分等を主に自然的な影響を反映するものであったが、近年においては、農地への大量の肥料の投入、生活系排水、産業系排水、酸性雨の土壌への影響を含む大気汚染など人為的な影響を強く反映するようになってきている。無機イオンの中でもClが流域内の人口密度や工場・事業所排水量など人為的な汚濁の程度を反映することは、測定が容易でほとんどClに支配されている電気伝導度の値を通して知られている。また、排水処理がなされていなかったり不十分な排水を受け入れる河川では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ や $\text{PO}_4\text{-P}$ の濃度が高く、これらに $\text{NO}_3\text{-N}$ や $\text{NO}_2\text{-N}$ を含めて湖沼の富栄養化との関係から注目されている。しかし、その他の無機イオンについては、定期的な1年間の観測を通して流量との関係をも把握した流出負荷量としての定量的な評価がなされていない。ただ、上水用原水として取水される地点で、浄水操作のための指標として一部の陽イオンが測定されているのみである。

湖沼などでは、藻類の増殖に必要なだけの栄養塩や微量物質が必要な時期に存在するかどうか、逆に、増殖を阻害する物質の存在の有無とその程度が重要な問題である。したがって、需要側の藻類に対する供給側の流入河川の無機イオンの負荷量と流出形態を明らかにする必要がある。植物体構成元素の比率と河川や湖沼水中の元素存在比率の対応から見て、NとPのほかでは、KとSiが不足度の高い元素であり、Na, Ca, Mg, Cl, S等は前述の元素に比べて不足度が低いとされている¹⁾。元素によってその不足度に違いはあるけれども、これらの物質に他の種々の物質も加えて、流域からの流出負荷量の大きさと流出形態などの流出特性を明らかにすることは、湖沼の富栄養化対策だけでなく流域の汚濁化対策に有効である。ここでは、種々の土地利用形態を擁する流域の河川を対象に、流域の土地利用形態と流出負荷量の関係、水質項目間の関係、流出水質濃度や流出負荷量の流量との対応や季節変化特性などについて、毎週1回定時の1年間の定期調査や降雨時流出調査の結果に基づいて考察を行うことにする。

2 調査の概要

調査対象の河川はいずれも霞ヶ浦流入河川とその支川である。恋瀬川、山王川、園部川の高浜入に流入する3河川については1979年6月～1980年5月の1年間（年間降水量1332mm）に、境川、桜川、備前川、花室川、清明川、小野川、新利根川の7河川については1981年6月～1982年5月の1年間（同、1151mm）に毎週1回定時の流出負荷量調査を実施した²⁾。これらの河川を図1に河川名を□で囲んで示す。降雨時流出負荷量調査は、1979年から1986年までの間に恋瀬川の本川及び支川、山王川、備前川において行っている。特に、恋瀬川の支川では数多くの降雨時流出

の観測を行った。

水質分析方法は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 及びClについてオートアナライザーによる比色法、Na、K、Ca及び2価陽イオンについてはイオン電極法、CODについてはアルカリ性 KMnO_4 法である。降雨時流出のデータのほとんどは、Ca、Mg及び SiO_2 がオートアナライザーの比色法、NaとKが蛍光光度計によっている。

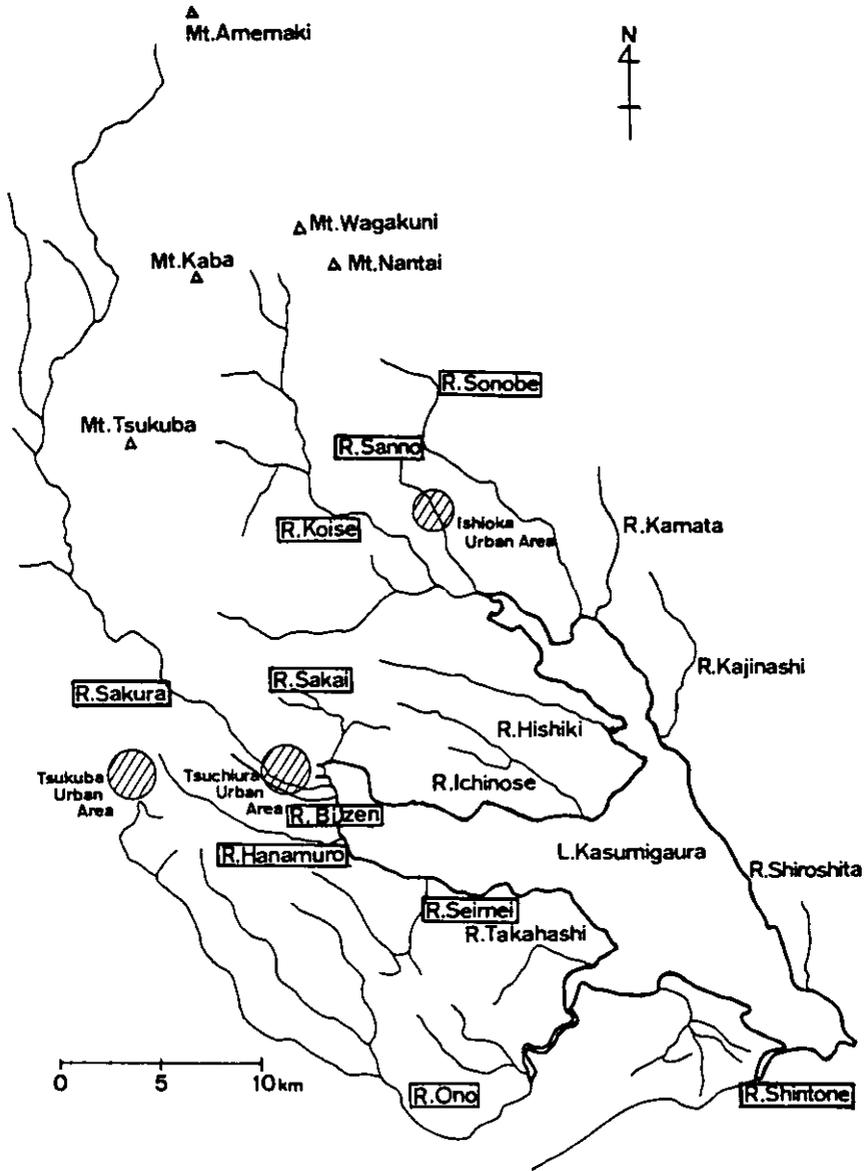


図 1 霞ヶ浦（西浦）流入河川

Fig. 1 Influent rivers into Lake Kasumigaura

3 定期観測による河川流出負荷量とその特性

毎週1回定時の流出負荷量調査を行った各河川の流域特性は、表1に示すとおりである³⁾。他には、新利根川はかんがい期に他水系から大量の農業用水の導水があり、流量と流出負荷量とも1年間を通しての解析は他の河川と同様には行い難い。花室川は一部流域が下水道整備されてその排水は他水系に流出している。園部川の下流部にはし尿処理場放流水が流入している。境川では下流域に集中するハス田が水田の項に含まれている。恋瀬川流域には約7万頭の豚の飼育が行われているなどの特徴がある。各河川の流域の土地利用形態からこれら10河川を見ると、備前川と山王川が市街地河川、桜川、小野川、清明川、恋瀬川及び園部川が田園地河川、境川と花室川が両者の中間的な性格の河川となっている。

表2に無機イオン及びCODの平均濃度と比流出負荷量を示した。また、表3に各無機イオンCODを含めた水質項目間の相関係数を示した。

Clは人為的な汚濁の程度を示す指標としてのCODと相関が高いほか、 PO_4-P 、Na、K、Ca及び2価陽イオンとの相関が高い。NaとKの相関は高く、両者ともCOD、 PO_4-P 、Clなど人為的な汚濁を反映する因子との相関は高く、Caや2価陽イオンとの相関も高い。 NH_4-N と NO_3-N の他の水質項目との相関の高低が逆の傾向で現れている。 $NO_2^- - N$ は低濃度かつ低流出負荷量であるが、Caと2価陽イオン以外の水質項目との相関がいずれも高い。1価の陽イオンのNaとKの他の水質項目との相関の程度がよく似た値となっている。2価の陽イオンの主たる構成イオンはCaとMgであるため、2価陽イオンとCaの他の水質項目との相関がほぼ同程度であることは容易に理解できる。

表 1 調査10河川の流域特性

Table 1 Characteristics of watersheds of observed rivers

	桜川	小野川	清明川	境川	花室川	備前川	新利根川	恋瀬川	山王川	園部川
流域面積(km ²)	330.0	120.6	24.5	17.6	34.4	6.5	34.0	151.0	12.4	72.8
人口密度(人/km ²)	281	554	541	902	1,068	1,939	1,668	365	1,807	346
林地面積(%)	37	29	29	21	20	20	(9)	46	15	30
水田面積(%)	25	20	22	16	14	21	(66)	20	12	19
畑地面積(%)	23	32	32	30	27	10	(7)	24	34	38
市街地面積(%)	13	17	16	33	37	44	(13)	9	38	12
平均流量(m ³ /s)	3.21	1.25	0.36	0.24	0.79	0.086	2.52	2.38	0.47	1.65

表4は、比流出負荷量と人口密度や流域内での各土地利用面積比率との相関を示したものである。COD、 PO_4-P 、Cl、Na及びKは、人口密度や市街地面積比率との相関が高く、林地や水田の面積比率と負の相関が高い傾向にある。Caは水田面積比率との負の相関が高いこと、2価陽イオンは林地面積比率との相関が高く、土地利用形態との相関ではCaと2価陽イオンの傾向は異なつた

表 2 無機イオンの平均濃度と比流出負荷量

Table 2 Mean values of concentrations and specific loadings of inorganic ions

		桜川	小野川	清明川	境川	花室川	備前川	新利根川	忍瀬川	山王川	園部川
COD	平均濃度(mg/l)	4.3	4.8	8.3	13.0	5.7	16.7	9.1	5.2	8.6	8.1
	比流出負荷量(t/km ² /y)	1.33	1.54	3.94	4.92	4.39	6.87	21.41	2.45	10.58	5.48
NH ₄ -N	平均濃度(mg/l)	0.40	0.22	1.08	1.69	0.48	3.47	0.52	0.46	1.00	2.29
	比流出負荷量(t/km ² /y)	0.10	0.07	0.47	0.64	0.32	1.45	0.78	0.22	1.10	1.36
NO ₂ -N	平均濃度(mg/l)	0.08	0.10	0.20	0.20	0.17	0.40	0.08	0.07	0.31	0.70
	比流出負荷量(t/km ² /y)	0.02	0.03	0.09	0.09	0.12	0.16	0.21	0.03	0.37	0.42
NO ₃ -N	平均濃度(mg/l)	1.46	1.82	2.43	0.98	2.75	0.56	0.58	1.52	1.18	2.37
	比流出負荷量(t/km ² /y)	0.47	0.68	0.60	0.41	1.84	0.24	0.33	0.88	1.51	1.86
PO ₄ -P	平均濃度(mg/l)	0.04	0.05	0.16	0.31	0.18	0.64	0.06	0.09	0.35	0.26
	比流出負荷量(t/km ² /y)	0.01	0.02	0.07	0.12	0.13	0.26	0.03	0.05	0.38	0.14
Cl	平均濃度(mg/l)	21.8	28.2	30.5	29.6	32.3	44.0	58.4	14.9	26.0	22.7
	比流出負荷量(t/km ² /y)	6.2	9.1	13.7	12.6	23.0	18.0	78.7	6.7	29.5	15.2
K	平均濃度(mg/l)	6.2	6.8	9.2	9.7	9.4	15.0	18.7			
	比流出負荷量(t/km ² /y)	1.9	2.2	4.2	4.5	7.0	6.3	28.9			
Na	平均濃度(mg/l)	8.5	10.9	14.4	14.4	14.8	26.0	41.9			
	比流出負荷量(t/km ² /y)	3.0	3.4	6.5	6.5	10.8	10.5	53.1			
Ca	平均濃度(mg/l)	11.8	12.4	14.1	10.5	19.3	14.7	12.5			
	比流出負荷量(t/km ² /y)	3.7	4.0	6.3	4.9	13.7	6.1	30.6			
2価陽イオン	平均濃度(mg/l)	20.6	22.1	23.8	18.8	32.8	26.1	24.9			
	比流出負荷量(t/km ² /y)	59.2	7.2	10.5	8.0	23.1	10.7	54.9			

表 3 水質項目間の相関係数

Table 3 Correlation coefficients among water quality indicators

	COD	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	PO ₄ -P	Cl	Na	K	Ca	2価陽
COD										
NH ₄ -N	0.789									
NO ₂ -N	0.775	0.814								
NO ₃ -N	0.342	0.206	0.649							
PO ₄ -P	0.984	0.774	0.720	0.294						
Cl	0.883	0.560	0.667	0.555	0.876					
Na	0.862	0.673	0.938	0.407	0.860	0.965				
K	0.844	0.617	0.912	0.462	0.823	0.976	0.994			
Ca	0.352	0.031	0.497	0.896	0.331	0.886	0.759	0.796		
2価陽	0.365	0.050	0.513	0.892	0.352	0.897	0.772	0.806	0.998	

結果となった。NH₄-Nは人口密度と相関があるが、他の因子との相関はあまり明確ではない。NO₂-Nはいずれの因子とも相関は低かった。ここで、耕地とは水田と畑地を併せたものである。

当然のことながら、人口密度や市街地面積比率は人為的な汚濁を反映する因子として認められるが、林地面積比率は2価陽イオンを除いた水質項目とは負の相関が高くなる傾向が見られた。また、水田面積比率も林地面積比率と同様の傾向となったが、その相関係数の値は林地に比べて小さくなった。この他、工場・事業所排水量や牛・豚の飼育頭数などの人為的な汚濁要因との相関分析も必要であろうが、土地利用形態と無機イオンの比流出負荷量との関係の強さは明らかとなった。

表2の比流出負荷量は、面積当たりの1年間の流出負荷量原単位であるが、市街地河川、田園地河川及びその中間的な性格の河川の三つ河川タイプに分けられるような値となっている。ほとんどすべての無機イオンが市街地河川、中間的な性格の河川、田園地河川の順に原単位の値が小さくなる傾向にあるが、NO₃-Nは他の無機イオンとは違って、上述の順で逆に大きくなる傾向にある。これら10河川の定期調査から得られた流出負荷量原単位は、表5の上段に示す範囲となる。

かつては、地質や土壌、降水成分など自然的な要因に支配されていた無機イオンの流出負荷量は、近年では工場・事業所排水や家庭雑排水のほか、肥料等の投入に伴う土壌層からの溶脱や大気降下物の増加も強く反映していると考えられる。したがって、各無機イオンと土地利用形態、特に市街地面積比率や人口密度との相関の高さからも明らかのように、面源負荷を背景として人為的な汚濁としての点源負荷の影響も大きく寄与していると判断できる。しかも定期調査は週1回の頻度であり、年間平均でおよそ4日に一度の頻度で一回16mm前後の降雨時流出の影響を十分反映しているとは言い難く、晴天時流出が主たる対象とした解析結果となっている。それゆえ、流域面積当たりの流出負荷量原単位では市街地河川の値がかなり大きな値となっているが、流域

表 4 土地利用と比流出負荷量の相関係数

Table 4 Correlation coefficients between land-use types and specific loadings

	人口密度	市街地	畑地	水田	耕地	林地
COD	0.809	0.686	0.078	-0.677	-0.276	-0.741
NH ₄ -N	0.601	0.474	-0.082	-0.270	-0.230	-0.518
NO ₂ -N	0.353	0.230	0.428	-0.495	0.193	-0.458
NO ₃ -N	-0.011	0.007	0.569	-0.606	0.284	-0.192
PO ₄ -P	0.882	0.745	-0.066	-0.647	-0.412	-0.736
Cl	0.775	0.746	0.140	-0.794	-0.272	-0.831
Na	0.827	0.884	-0.479	-0.575	-0.756	-0.850
K	0.783	0.877	-0.395	-0.648	-0.708	-0.873
Ca	0.316	0.507	-0.004	-0.692	-0.337	-0.563
2価陽イオン	-0.431	-0.395	-0.175	0.484	0.058	0.764

表 5 無機イオン流出負荷量原単位の範囲

Table 5 Ranges of specific loading of inorganic ions

	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	PO ₄ -P	Cl	K	Na	Ca	2 価陽
流域面積当たりの 原単位 (t/km ² /y)	0.07~1.5	0.02~0.4	0.2~1.9	0.01~0.6	6~30	2~7	3~11	4~14	7~59
流域入口当たりの 原単位 (kg/人/y)	0.1~3.3	0.06~1.2	0.7~5.4	0.04~0.41	9~25	3.2~7.7	5~12	3~13	6~22

人口当たりの流出負荷量原単位は、一部例外はあるものの、田園地河川でも市街地河川でもあまり変わらない値となり、表5の下段のようにより狭い範囲に入ることになる。NO₃-Nは他の無機イオンと異なって畑地面積との相関が見られるため、畑地面積当たりの流出負荷量原単位として表示すると、1.4~6.8t/畑地面積km²/yとなるが、すべての負荷量を畑地面積に押しつけた形となっている⁴⁾。

これらの統計値は、毎週1回の調査頻度のため、流域面積が小さく流程が短い中小規模の河川では降雨時流出の影響も短く、その影響を十分反映しているわけではない。一般に、面源からの汚濁負荷は降雨を介して河川に排出されるため、懸濁物質だけでなく溶存物質においても降雨時流出による流出負荷量が晴天時流出の流出負荷量より大きくなる。これは、降雨時流出の流量増加時に流量の増加比率に対して無機イオンをはじめとする溶存物質濃度の減少比率が相対的に小さいため、その流出負荷量が晴天時流出の場合より大きくなるからである。実際、降雨時流出の流量ピーク時に濃度が増大する陰イオン物質もあり、流量ピーク時に溶存物質の流出負荷量はピークを呈することが多い⁵⁾。降雨時流出の流量の最大ピーク時前後で濃度ピークが見られるものはNO₃-N、SO₄及び溶存ケイ酸の陰イオン物質だけでなく、後述するようにKをはじめとする陽イオンにもその傾向が見られるようになった。

このような無機イオンの降雨時流出特性は、降雨時流出を十分ではないが一部その影響を捕えている毎週1回の定期調査にも、高流量時の高流出負荷量として現れている。すなわち、毎週1回定時の52回の定期調査において、水質濃度の算術平均値(Σ濃度測定値/測定数)が流量加重平均濃度値(Σ流出負荷量/Σ流量)より小さくなる水質項目が多い⁶⁾。溶存物質については、溶存態のCOD(D-COD)が10河川のうち2河川で、D-Nが4河川で、NO₂-Nが3河川で、NO₃-Nが7河川で、PO₄-Pが2河川で、Kが5河川で、NaとCaが3河川で流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回った。D-P、NH₄-N、Cl及び2価イオンではいずれの河川でも算術平均濃度が流量加重平均濃度を上回っていた。なお、D-N、D-P及びD-CODについては7河川のデータのみでの結果である。恋瀬川、山王川及び園部川については、1979~1980年の前年の1978年6月~1979年5月にも同様の定期調査を実施していたが、この1年間の降水量が1092mmと少なく、1978~1979年の年間流出負荷量が1332mmの降水量の1979~1980年の年間流出負荷量より小さくなる水質項目がほとんどであった⁷⁾。さらに、1978~1979年の定期調査では、降水量の少なさもあって流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回る水質項目や河川数が少ないという結果であった。

これらを河川ごとに見ると、九つの無機イオンについて、林地や耕地が全流域に占める比率の最も大きい桜川で5項目、市街地と耕地がともに流域で大きなウエイトを占める境川で3項目、市街地河川の備前川で2項目、田園地河川の小野川で2項目、一部に下水道普及流域を有する花室川で2項目、中間的な性格の清明川で1項目、他水系から大量の導水を受ける新利根川で1項目であった。Naから2価陽イオンまでの4項目の測定のない恋瀬川、山王川、園部川では、恋瀬川が $\text{NO}_3\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ の2項目、山王川と園部川では $\text{NO}_3\text{-N}$ の1項目のみであった。市街地河川については $\text{NO}_3\text{-N}$ とK、田園地河川と中間的な河川については $\text{NO}_3\text{-N}$ 、K、Na、Caで流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回る傾向が見られた。

4 水質濃度と流出負荷量の季節変化特性

これらの無機イオンの濃度と流出負荷量の1年間を通しての変化を見てみると、降水量や流量との関係に強く支配されているものの、それ以外に水温や気温の変化や水田のかんがい期間（5～8月）などの季節的な特徴が見られる。毎週1回で年間52回の定期観測値を6～8月の夏季、9～11月秋季、12～2月の冬季、3～5月の春季に分け、13回ごとの算術平均値で各季節の比較を行った。Na、K、Ca及びClについて季節ごとの濃度平均値を図2に示す。Na、K及びCaの三つの陽イオンはほとんどの河川で6～8月が最大で3～5月が最小となっている。2価陽イオンは平均濃度の最大値が3～5月で、最小値は9～11月と他の陽イオンとは季節変化パターンが異なっていた。陰イオンのClは最大値が3～5月あるいは12～2月、最小値が9～11月に現れる河川が多かった。

流量の季節ごとの最大値は普通なら9～11月に、最小値は12～2月あるいは3～5月となるが、実際には、他流域からの導水や地下水の汲み上げ等のあるかんがい期の6～8月に最大値となる河川は7河川中4河川にもなった。水温の季節変化は、桜川を例にとれば、6～8月が最大値で24.2℃、9～11月17.2℃、12～2月が最小値で5.7℃、3～5月が15.4℃であった。冬季の12～2月の水温が低い時期は、降水量が極めて少なく、流量が減少するために無機イオンの多くは高濃度を呈する。したがって、無機イオン濃度と水温の相関は高くなく、さらに濃度と流量の積である流出負荷量と水温との相関は見られない。

流出負荷量の季節変化を流量との対応関係として2河川の例を図3と4に示す。これらの図より、流量の最大値に影響されて同じ季節に流出負荷量が最大値となる場合と、6～8月と9～11月の降水量に大きな差が見られないこともあって濃度の最大値に影響されて同じ季節に流出負荷量が最大値となる場合の二つに分類される。12～2月の冬季以外の各季節の降水量の差が小さかったこの1年間は、他からの導水や他の影響を見やすい条件にある。NaとKは6～8月の濃度が最大値の季節に最大流出負荷量となることが多かった。例として示した桜川と境川のように流量の季節ごとの平均値が適当なバラツキで分布している場合は、無機イオンの流量増加に対する流出負荷量増加の傾向は明りように認められる。このように、無機イオンの流出負荷量の季節変化は流量の季節変化に大きく支配されており、これに降雨量と流量の対応から他水系からの導水や地下水の汲み上げによるかんがい用水の影響と、水温変化から6～8月の地温や水温の高さが表土層での有機物の分解や無機イオンの溶脱を促進する影響などが加わった結果と考えられる。一

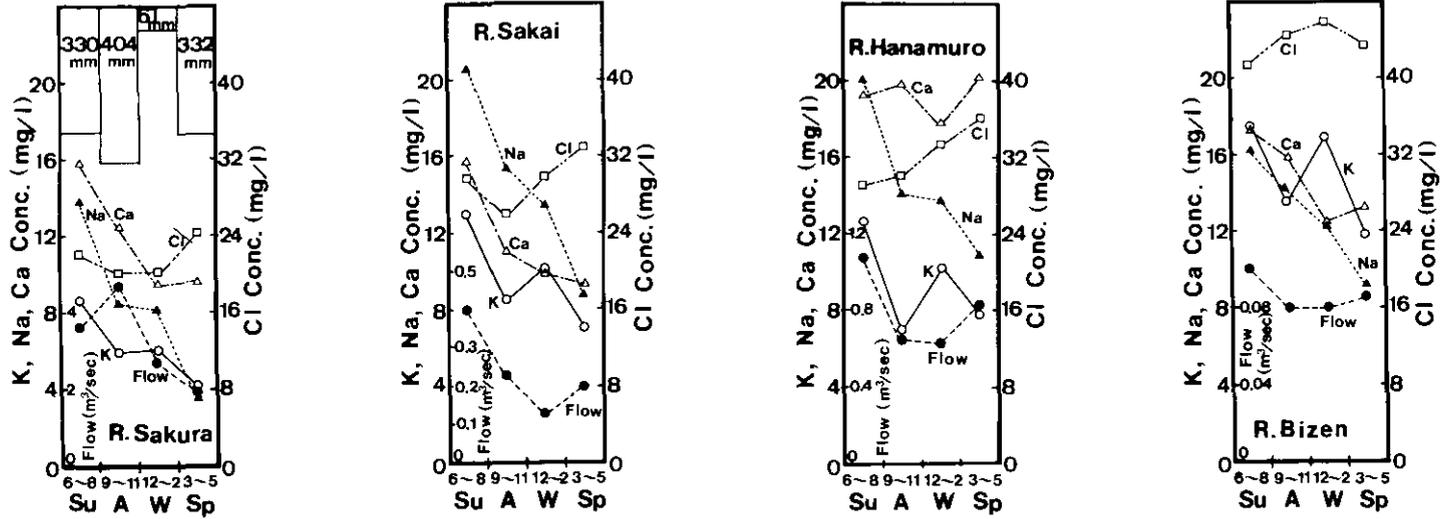


図 2 無機イオン濃度の季節変化特性

Fig. 2 Characteristics of seasonal change of inorganic ions

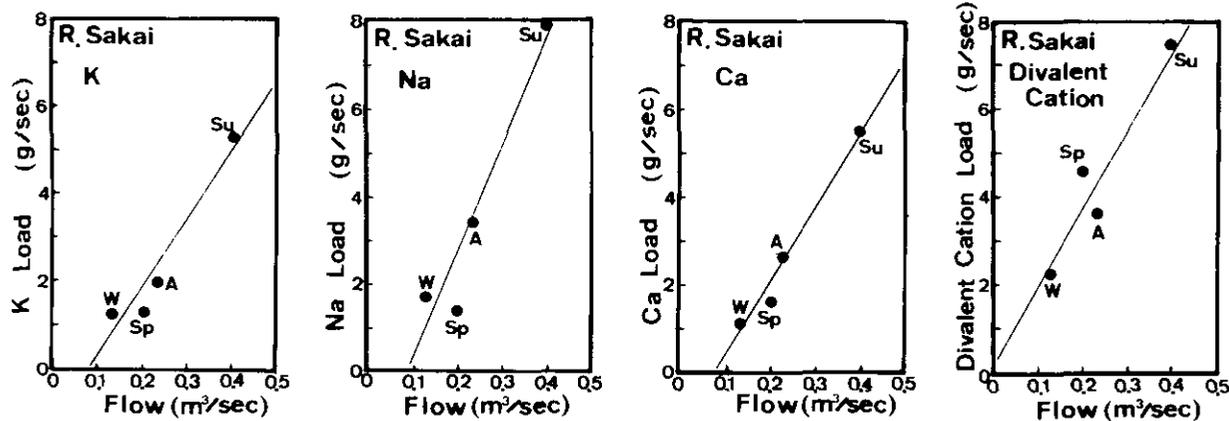


図 3 境川における流出負荷量と流量の関係

Fig. 3 Relationship between loading and flow of R.Sakai

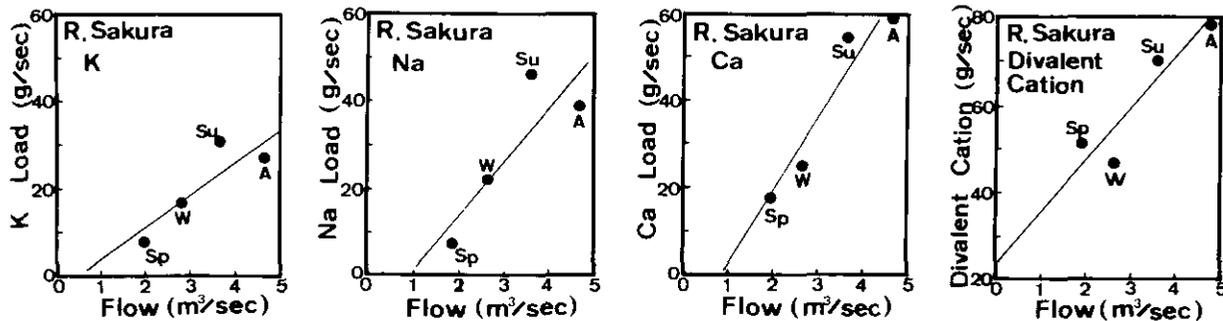


図 4 桜川における流出負荷量と流量の関係

Fig. 4 Relationship between loading and flow of R.Sakura

般に、かんがい期間には下流部の水田までかんがい用水を確保するため、降水から推定できる流域の自流量を上回る流量が観測される河川も多い。しかも、かんがい期間の水田への施肥による河川水質への影響もあり⁸⁾、6～8月の無機イオンの流出の内訳についてはさらに詳細な検討が必要であろう。

5 降雨時流出による流出特性

高流量時に流出負荷量が高くなることは先にも述べているが、高流量時に濃度上昇も起こることを、主として無機の陽イオンについて示すことにする。NO₃⁻、SO₄²⁻、溶性ケイ酸の陰イオンが降雨による流量増加時に濃度上昇する現象については、*first flush* 時以外は濃度上昇することがないCl⁻との対比を含めて報告している⁴⁾。ここでは、茨城県の筑波山系を水源として霞ヶ浦高浜入に流入する恋瀬川の上流部支川で、互いに流域を接する三つの小河川での同一降雨の流出観測結果と、恋瀬川本川と霞ヶ浦の背水域付近で恋瀬川に合流する最も大きな支川の天の川及び高浜入の入口で恋瀬川とともに霞ヶ浦に流入する山王川の3河川下流端での同一降雨の流出観測結果に分けて、無機陽イオンを中心にその流出特性を明らかにする。

5.1 河川上流部支川での流出特性

筑波山系の東南部を最上流とする小桜川(朝日橋地点、流域面積8.0km²)、寺山沢(同6.3km²)と大作沢(同3.1km²)の合流直前の地点で同一降雨の同時流出観測を十数回実施している。全流域のほとんどが山地である溪流河川の大作沢、最上流部が山地で下流とともに農耕地面積のウエイトが増す寺山沢、下流部にわずかな水田部分が存在する小桜川は上流部で互いに流域を接している。図5(a)、(b)、(c)は12月18～19日の36mmの降雨時流出の観測例である。この36mmの降雨のうち32mmが6～9時の2時間強の間に集中した降雨であり、通常は降水量が極めて少ない12月でありながら、この4日前の14～15日に37mmの先行降雨があった。流量の最大ピーク時付近でKのみが濃度ピークを呈し、Na、Ca、Mgは濃度減少を示し、その後、降雨直前の濃度レベルに徐々に戻っていく変化となっている。また、小桜川においては、流量ピーク後の11時以降にCaとMgがわずかながら降雨直前の濃度を上回る状態が持続している。寺山沢でもMgについて同様の傾向が見られた。図6(a)、(b)、(c)の6月20～21日の71mmの場合は、降雨による流量増加とともにK濃度が上昇し、流量ピークより先に濃度ピークに達し、流量ピークの後半まで降雨以前より高い濃度レベルを維持した後、ほぼ降雨直前の濃度レベルで推移する。また、Caは流量ピーク後の流量遞減状態の後半より濃度上昇を始め、その後も降雨直前より高レベルを維持しているのが小桜川で確認できる。MgもCaと同様の傾向にあるが、流量遞減状態での降雨以前の濃度をわずかに上回る程度であった。6月20～21日の先行降雨としては、12～13日に40mm、17日に1mm、18日に3mmという状態であった。図7は11月2日の12mmという小降雨量の降雨時流出で、図5の小桜川の朝日橋より下流で大作沢と寺山沢が合流した川又川に小桜川が合流する直前の小桜橋(流域面積17.6km²)での観測例である。上流部の朝日橋に比べて水田と畑地の農耕地面積の全流域面積に占めるウエイトがかなり大きくなっている。KやCaのほかにもNaも流量ピーク時付近で濃度上昇を示している。12mmというともっと降雨量の大きな降雨時流出の*first flush*に近い降雨条件

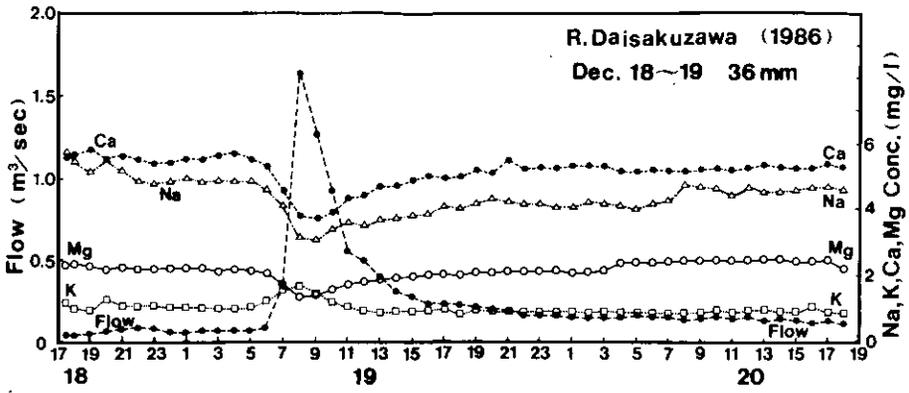


図 5(a) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 5(a) Variations of cation concentrations during storm runoff

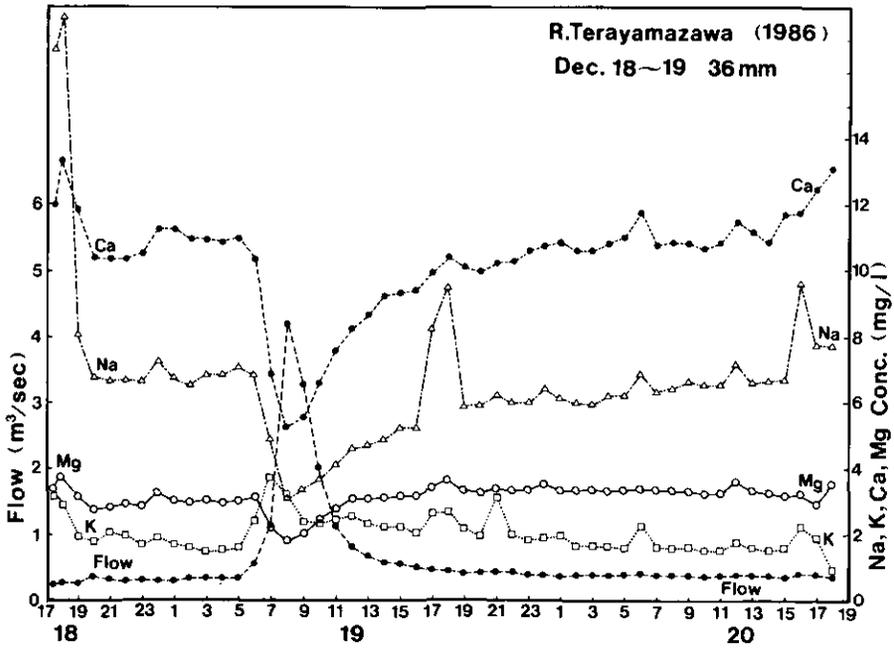


図 5(b) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 5(b) Variations of cation concentrations during storm runoff

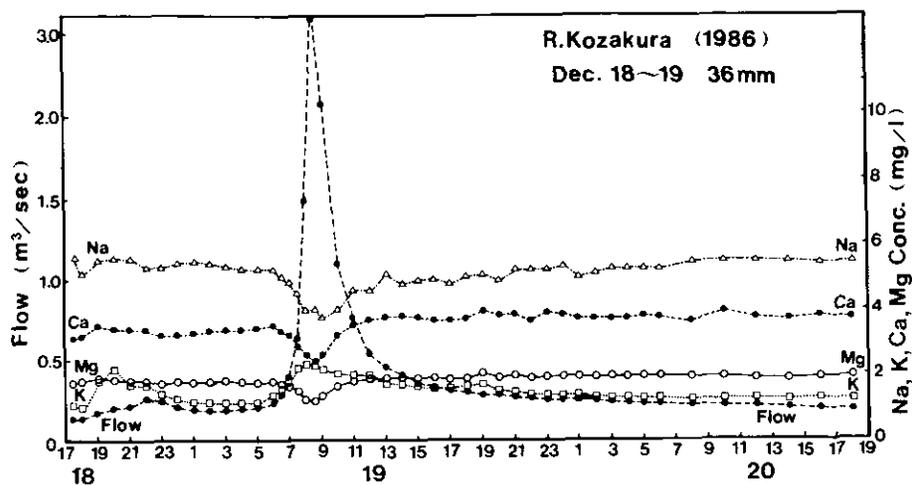


図 5(c) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 5(c) Variations of cation concentrations during storm runoff

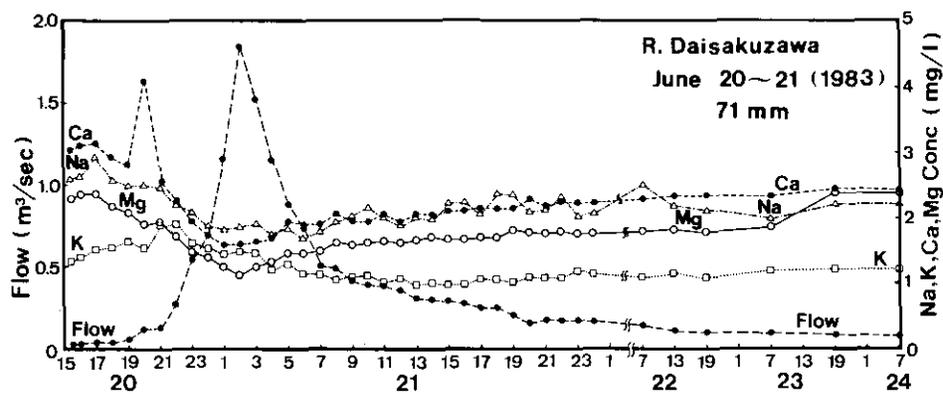


図 6(a) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 6(a) Variations of cation concentrations during storm runoff

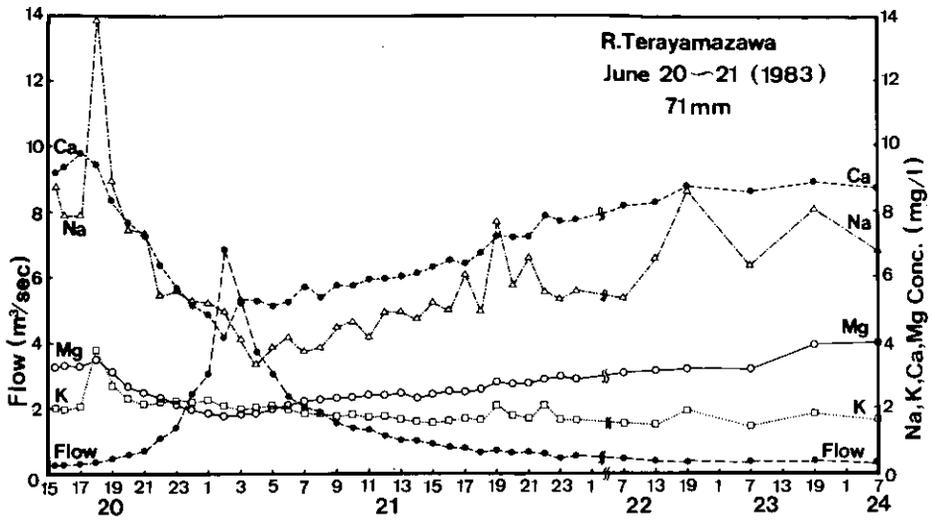


図 6(b) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 6(b) Variations of cation concentrations during storm runoff

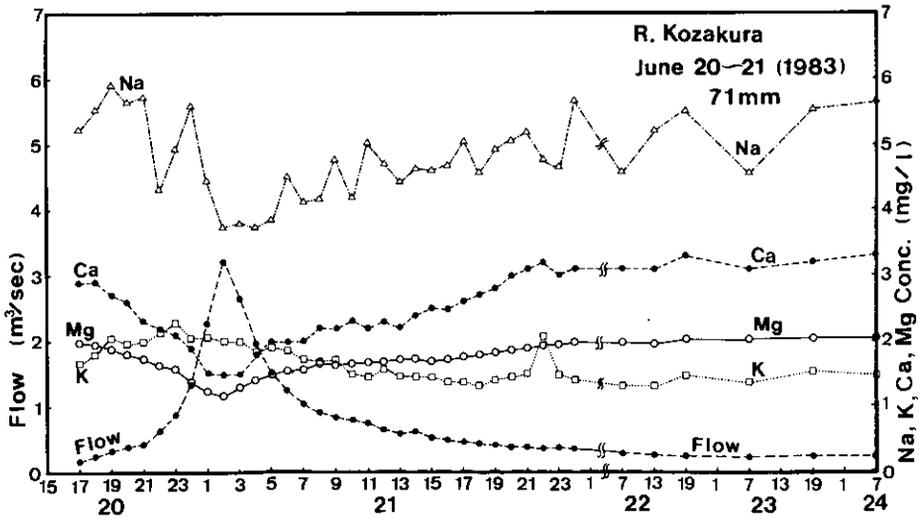


図 6(c) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 6(c) Variations of cation concentrations during storm runoff

であるが、小桜川の最下流ではゆっくりとした流量ピークに対してNa, K, Caの無機イオンの濃度増加が認められた例である。

このようにKはほとんどの降雨時流出において流量ピーク前後での濃度上昇が見られ、CaとMgは降雨量の少ない、したがって流量ピークの小さな降雨時流出に濃度増加が認められる。Naの降雨時流出の流量増大時に濃度上昇を示すことはまれであり、降雨時流出の初期の first flush時に他の無機イオンとともに小さな短い濃度ピークを呈することは多い。これらは、その降雨時流出の降雨条件に大きく左右されているだけでなく、降雨直前の無機イオンの濃度レベルを支配している先行降雨の条件や季節的な要因も影響していると考えられる。例えば、小さな流量ピークがいくつか出現した後に大きな流量ピークが存在するような降雨時流出の場合は、図8のようにK以外は最初の小さな流量ピークや次の最大の流量ピーク前後では濃度減少するものの、後半二つの小さな流量ピークには濃度上昇を示している。これは、降雨強度と降雨量がともに大きな降雨時流出の場合、降雨の表面流出成分が流量の大部分を占めることになり、上層層などから河川への無機イオンの供給量のウエイトが減少し、河川水中の無機イオン濃度が一時的に減少するからである⁹⁾。ちなみに、降水中のNH₄-NやNO₃-Nの濃度は小降雨量の場合高く、大降雨量の場合低くなり、平均でNH₄-Nは0.43mg/l, NO₃-Nは0.31mg/l, NO₂-Nは0.006mg/l, PO₄は0.002mgであった。Na, K, Ca, Mg及びSiO₂の降水中の濃度はほぼ0に近い低濃度である。また、Clは平均で1.5mg/l, SO₄は2.0mg/lであった。

むろん、降雨時流出において、降雨による流量の増加割合に比して無機イオン濃度が減少してもその減少割合が小さいため、その流出負荷量は降雨直前や晴天時流出の場合より大きくなることほとんどである。図9は7月30～31日の63mmの降雨時流出における流量と無機陽イオンの流出負荷量変化であるが、いかに無機陽イオンの流出負荷量が流出変化に追従して変化するかを示している。また、Kは多くの陽イオンの中でも降雨時流出の流量ピーク時に濃度上昇する例が多く、次いでCaやMgとなり、Naではあまり見られなかったという事実は、毎週1回1年間の定期調査における流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回った河川数がKで最も多く、次いでCaとNaであったことと符合する。

5. 2 河川下流部での流出特性

霞ヶ浦高浜入に流入する恋瀬川本川（流域面積151.4km²）、筑波山系の南西側を流下して高浜入近くの背水域付近で恋瀬川本川と合流する田園地河川の天の川（同54.4km²）、石岡市街地を流下して高浜入に流入する市街地小河川の山王川（同13.4km²）、において、4月19～20日の23mmの降雨時流出の同時観測を行った。図10(a), (b), (c)に3河川の流量と無機陽イオン濃度の経時変化を示す。この降雨時流出の先行降雨は4月5日の17mm, 4月16日の2mmと、比較的降雨量の少ない時期であった。天の川では、流量ピーク時以降にK濃度が増加し、そのままおよそ1日半の間増加したままの状態が続き、2日後には降雨直前の濃度レベルに戻った。恋瀬川本川では、流量増加に伴ってK濃度が徐々に増加して、約2日後には降雨直前の濃度レベルに戻るというゆっくりした増加から減少への変化が見られた。山王川では、流域内の屋根・道路等の不透水性地表面面積比率が高く、かつ、人為的な汚濁によりその濃度レベルが高くてその変動範囲内で

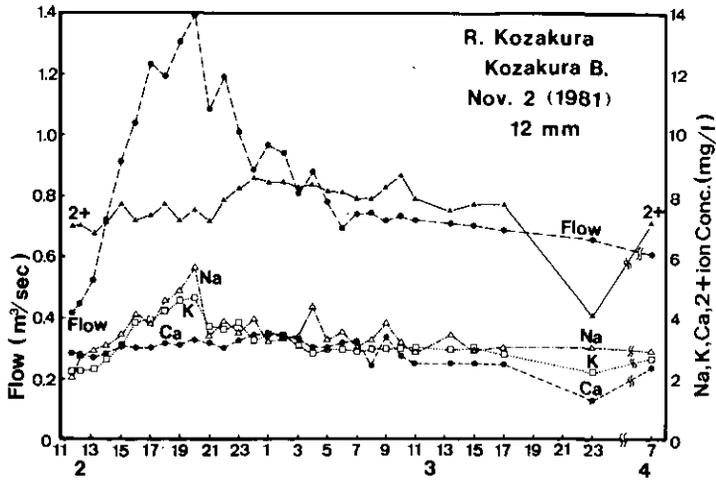


図 7 降雨時流出の陽イオン濃度変化
 Fig. 7 Variations of cation concentrations during storm runoff

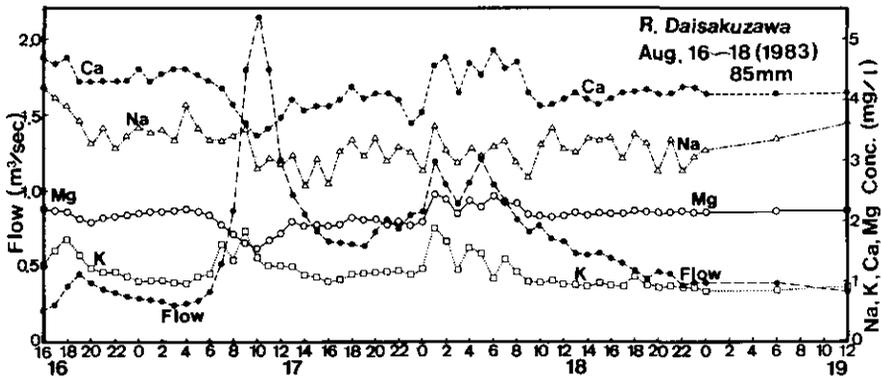


図 8 降雨時流出の陽イオン濃度変化
 Fig. 8 Variations of cation concentrations during storm runoff

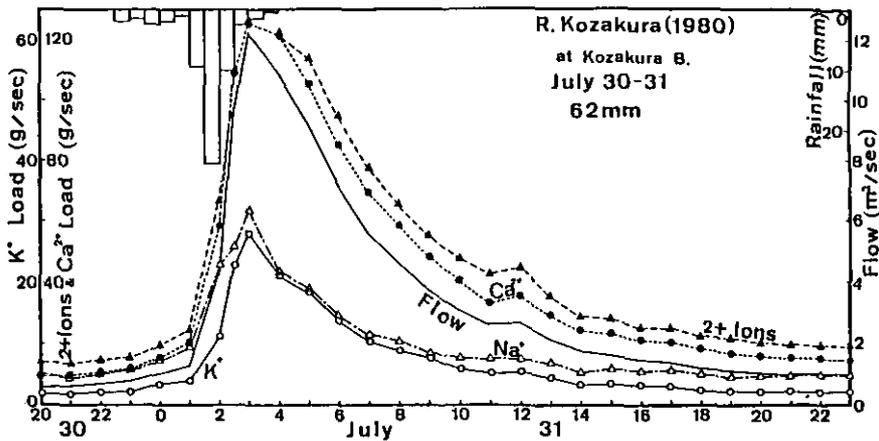


図 9 降雨時流出における陽イオン物質負荷量の経時変化
Fig. 9 Variations of cation loadings during storm runoff

の変化となり、Na, K, Ca及びMgの濃度の流量ピーク前後での上昇は認められなかった。また、流量変化に対する $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の濃度変化を、天の川について示したのが図11である。この23mm程度の降雨量の流量ピークに対しては、 $\text{NO}_2\text{-N}$ はほとんど濃度変化を示さず、 $\text{PO}_4\text{-P}$ は人為的な汚濁排出の影響も受けながら幾分か濃度上昇も示し、 $\text{NH}_4\text{-N}$ はCODのように人為的な汚濁排出を背景にしてかなりの濃度ピークを呈することが多い。このように人為的な汚濁がある程度以上存在する流域では、降雨強度があまり大きくなく、降雨による流量の増大ピークが降雨直前の流量の数倍程度にしか達しない場合は、 $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の小さな濃度ピークが流量ピーク時に出現することがある。河川や水路とその付近の流出しやすい場所で抑留や貯留されていた $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ が降雨による流量増加に伴い流出してくると考えられる。これらは、大きな降雨強度で、かつ、大きな降雨量の降雨時流出の最大ピーク前後ではこれらは濃度減少することがほとんどであり、その面源的な流出の要因は小さいと考えられる。

大きな流域の河川では、流達時間や土地利用形態の異なる多くの支流を擁していることが多く、流量や水質濃度の変化が平滑化されるためKをはじめとする無機イオン濃度の流量ピーク付近での顕著な変化は認め難いのかも知れない。霞ヶ浦流入河川で最も流域規模の大きな桜川下流部での1982年2月の晴天時24時間流出負荷量調査や、桜川下流部から揚水される土浦用水（農業用水路）での1983, 1985, 1986のいずれも7月における晴天時24時間流出負荷量調査から、桜川では流量の周日変化はほとんどなく、無機イオン濃度は小さな変動は見られるものの大きな日周変化は認められなかった。しかし、図10の山王川の例では、降雨時流出の影響が小さくなった4月20～21日の無機陽イオンの濃度変化は、人為的な汚濁の排出パターンに従った日周変化が見られる。このように、Naをはじめとする無機陽イオンの濃度や流出負荷量の日周変化は、一般に田園地河川では小さいが、市街地河川では人為的な汚濁を反映する水質項目と同様の増減を示すことが多い。

$\text{NO}_3\text{-N}$ 、 SO_4 及び溶存 SiO_2 の陰イオンが降雨時流出の流量増大時に濃度上昇するという事実は、降雨時流出においてもpHがほぼ中性の安定した状態を維持しているため、イオンバランスの観点から陽イオンでも流量増大時に濃度上昇するものの存在を暗示していた。農耕地が主たる土地利用形態の流域河川では、林地のそれと比べて SO_4 や $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度レベルが高いため、その降雨時流出の濃度上昇も高く、これに対応して無機陽イオンの濃度上昇もかなり明確に認めることができた。無機陽イオンの主たるものは、Na、K、Ca、Mgであるが、FeやMnの2種の陽イオンもオートアナライザーの比色法で何とか測定でき得る程度の濃度で存在する。一般に、霞ヶ浦への流入河川では、2種の陽イオンではCaが最も高濃度で次いでMgとなり、FeやMnは1mg/l前後かそれ以下の低濃度が多く、降雨時流出での大きな濃度変化としては捕えることはなかった。しかし、降雨時流出負荷量調査での無機イオンの流量増大時の濃度上昇やさほど濃度減少しないという事実は、結果として降雨時流出の高流出負荷量を示している。また、毎週1回1年間の定期調査において $\text{NO}_3\text{-N}$ はむろんのこと無機陽イオンにも流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回るものが存在することは、その高流量時の高流出負荷量を意味している。したがって、毎週1回1年間の定期調査より推定した無機イオンの流出負荷量原単位は過小評価となり、降雨時流出分の追加補正が必要となる。無機イオンの降雨時流出特性より、 $\text{NO}_3\text{-N}$ や SO_4 の陰イオンだけでなく、陽イオンでもKは確実に降雨時流出分の補正が必要であり、Ca、Mg及びNaについても同様の補正の必要性を指摘できる。

6 結 論

毎週1回定時1年間の河川流出負荷量の定期調査結果をもとに、無機イオンの流出負荷量原単位を示すとともに、無機イオンCODを加えた水質項目間の相関や流域内の土地利用形態との相関などにより、無機イオンと流域内の負荷発生源との関係や、晴天時流出を中心とした無機イオンの流出特性を明らかにした。無機陽イオンについては、流域内の土地利用形態との関係から人為的な汚濁による影響を強く反映しており、定期調査結果には面源的な汚濁要因のみならず、点源的な汚濁要因の寄与が大きいことが明らかになった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ のほかに、定期調査による流量加重平均濃度が算術平均濃度を上回る無機陽イオン(K、Ca及びNa)の存在が明らかとなった。

降雨時流出においても河川水のpHはほぼ中性で安定した状態を維持しており、イオンバランスの観点から $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 SO_4 及び溶存 SiO_2 等の陰イオンの濃度上昇に対応した無機陽イオンの濃度上昇も予想できた。実際、降雨時調査において、流量ピーク前後のKの濃度上昇が数多くの観測例で明瞭に認められてたが、Ca、Mg及びNaの同様の濃度上昇はさほど大きくない流量ピーク時前後にみられること多かった。無機イオンの多くは、降雨時流出の流量増大時に濃度上昇しなくても、濃度減少の比率が流量の増加比率より小さいために、結果的には高流量時の高流出負荷量となる。したがって、毎週1回の頻度程度の定期調査では降雨時流出を十分捕えているとは言えないので、その調査に基づいた無機イオンの流出負荷量原単位の算定は過小評価となる。このような高流量時の高流出負荷量の現象は面源的な汚濁負荷の流出の特徴であり、先行降雨と当該降雨の降雨条件、地温や水温等の季節的な要因、流域内の土地利用形態、さらには土壌層でのイオン交換能や土壌粒子との吸着能等の相違によって、無機イオンの濃度レベルとその変化範囲は異なってくる。

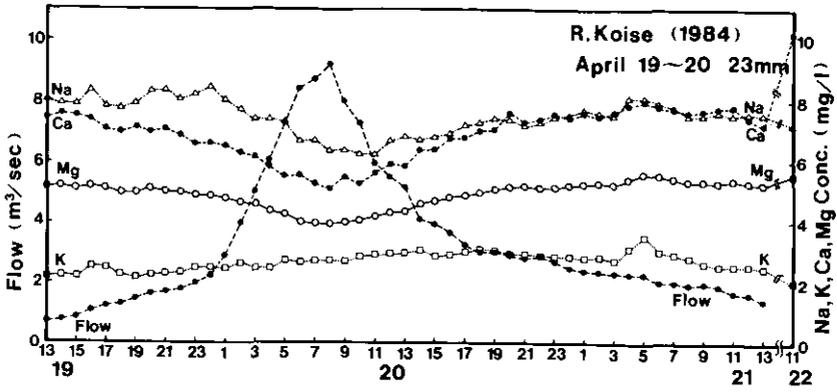


図 10(a) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 10(a) Variations of cation concentrations during storm runoff

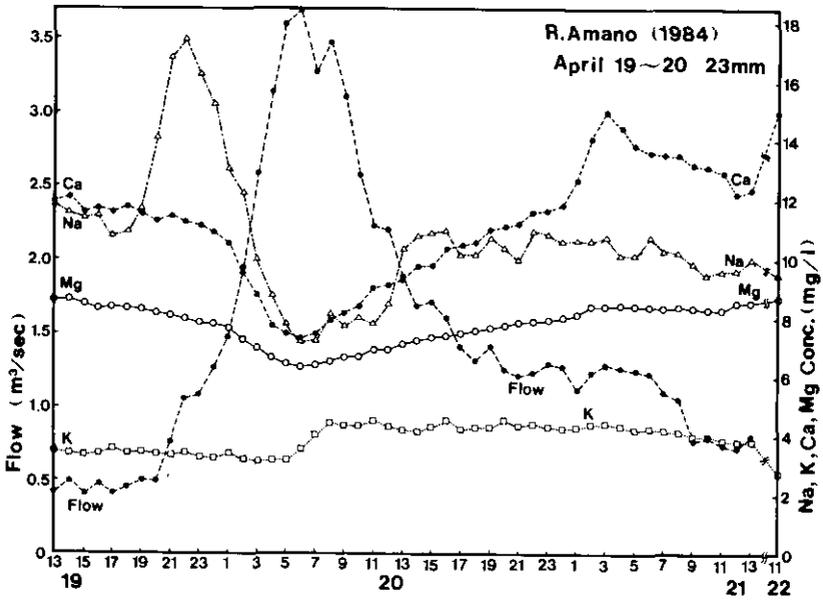


図 10(b) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 10(b) Variations of cation concentrations during storm runoff

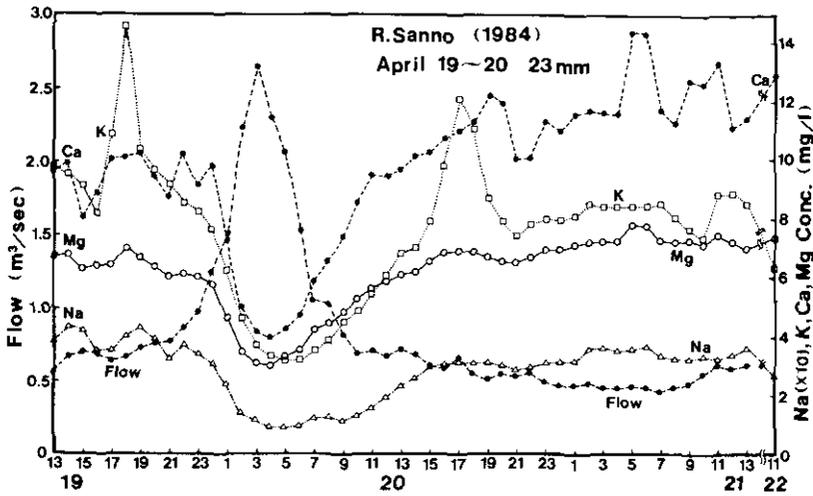


図 10(c) 降雨時流出の陽イオン濃度変化

Fig. 10(c) Variations of cation concentrations during storm runoff.

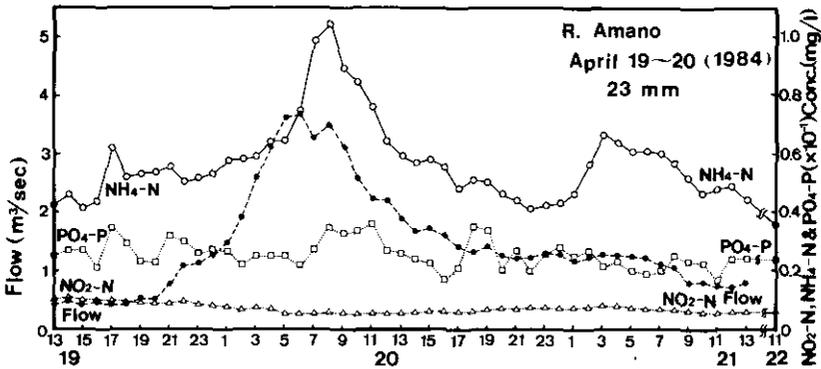


図 11 降雨時流出の無機イオン濃度変化

Fig. 11 Variations of inorganic ion concentrations during storm runoff

近年は農耕地への肥料等の投入や大気降下物などの面源的な汚濁発生源だけでなく、家庭雑排水や工場・事業所排水等の点源的な汚濁発生源も含めて、無機イオンの人為的な汚濁も進行している。さらに最近では、降水の酸性化も進行しており、酸性的な日本の土壌でもその蓄積的な影響によって無機陽イオンの溶脱を顕在化させ、河川水質に影響が現れることも十分考えられる。NO₃-NやSO₄の陰イオンに、K、Ca及びNaの陽イオンの降雨時流出の高流量時の濃度上昇は、農耕地への肥料等の大量投入や大気降下物等の流域への汚濁入力の影響として現れた現象と考えられる。このように、徐々にではあるが次第に重大になる可能性のある陽イオンを含めた無機イオン物質の流出の監視や流域からの流出管理を怠ることはできない。

ここに示した調査や検討結果は、すべて霞ヶ浦流入河川についてのものであり、年間 1300 ～ 1400mmの降水量、表土層が関東ロームに広く覆われており、畑地の農耕地としてのウエイトが高いなどの流域特性があるけれども、他の流域でもその数値の大小はあっても認められるものであろう。現に、降雨時流出における流量ピーク前後の流量増大時の $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 SO_4 及び溶存 SiO_2 の濃度上昇は他の流域でも認められている。ただ、 $\text{PO}_4\text{-P}$ の流出負荷量原単位はその調査年度のものであり、合成洗剤の無リン化の進行に伴って、現在ではもう少し小さな値となっていることが予想される。

引用文献

- 1) Vallentyne John R. (1974): The Algal Bowl-Lakes and Man (Miscellaneous Special Publication 22, Canada Department of Fisheries and Environment, Ottawa).
- 2) 海老瀬潜一 (1984): 霞ヶ浦流入河川による総流入負荷量の評価, 国立公害研究所研究報告, 第50号, 41-58.
- 3) 茨城県委託 (地域開発コンサルタント) (1982): 汚濁負荷削減計画策定調査報告書.
- 4) 海老瀬潜一 (1985): 降雨による土壌層から河川への NO_3 排出, 衛生工学研究論文集, Vol.21, 57-68.
- 5) 海老瀬潜一 (1986): 陰イオン物質流出動態の土地利用形態による相違, 第30回水理講演会論文集, 37-42.
- 6) 海老瀬潜一 (1984): 降雨流出による溶存物質負荷量の増加, 日本陸水学会第49回講演要旨集, 88.
- 7) 海老瀬潜一 (1981): 霞ヶ浦流入河川の流出負荷量変化とその評価, 国立公害研究所研究報告, 第21号, 130 p.
- 8) 海老瀬潜一 (1982): 面源負荷としての水田群の河川流出負荷量への影響, 土木学会第37回年次学次学術講演会講演概要集第2部, 151-152.
- 9) 海老瀬潜一 村岡浩爾・佐藤達也 (1984): 降雨流出解析における水質水文学的アプローチ, 第28回水理講演会論文集, 547-552.

海老瀬 藩一¹⁾

Senichi EBISE¹⁾

要 旨

流域内の土地利用や水利用形態が複雑でなく、比較的自然的な状態に保たれている河川上流部で流域が隣接する3河川の小流域において、河川を通じて流出する汚濁負荷の大きさと流出特性を明らかにするために、降水負荷量調査、晴天時流出負荷量調査、降雨時流出負荷量調査を実施した。晴天時に定期的に行った流出負荷量調査から求めた流出負荷量原単位は、山地がほとんどで農耕地が下流側でわずかに存在する2河川では降水負荷の約2倍、上流側が山地で中・下流側に農耕地と集落が存在する2河川では降水負荷の約4~7倍程度の値となった。また、10降雨の同時調査を含む各河川13~14回の降雨時流出負荷量調査による降雨時総流出負荷量を推定する回帰モデル式 ($\Sigma L_{p.r.o.s.s.}/A = a \cdot (\Sigma Q_{p.r.o.s.s.}/A)^n$) を求めた。高い相関係数で得られたモデル式から、流域がほとんど山地の2河川ではほぼ同程度の係数aとなり、流域の農耕地のウエイトの高い1河川のaより小さく、指数nは大きくなった。水質項目で見ると、COD、窒素、リン等のTotal、懸濁態及び溶存態についての指数はOrg-PとD-CODを除いて3河川とも1を越えた値となった。無機態イオンについては、NO₃-N、NO₂-N、PO₄-P及びKの指数nが3河川とも1を越える結果となり、降雨時流出による流出負荷量の増加の裏付けとなった。

Abstract

In the three adjacent small river basins where the type of land-use and water-use was simple, the observations and its statistical analysis were done to estimate more precisely the magnitude and runoff characteristics of pollutant loading for dry and rainy weather days. The specific pollutant loadings for dry weather days in a year from the two river basins, where mountainous in the upstream and middle reaches areas and farmland in the downstream area, became about twice as large as the specific pollutant loading of rain water in the basins. Those from other river basin, where mountainous in the upstream area, became about 4~7 times. The regression model equations of total pollutant loadings during any storm runoff, $\Sigma L_{p.r.o.s.s.}/A = a(\Sigma Q_{p.r.o.s.s.}/A)^n$, for three rivers were obtained from the observation data of 13~14 storm runoff events. The equations were obtained for almost all water quality indicators in each river with high correlation coefficients. In the two river basins where

1. 国立公害研究所 水質土壌環境部 〒305 茨城県つくば市小野川16番2
Water and Soil Environmental Division, the National Institute for Environmental Studies, 16-2 Onogawa, Tukuba, Ibaraki 305, Japan.

almost all catchment areas were occupied with mountainous area, the coefficients, a , become nearly same value and smaller than that in other river basin. The exponent, n , in the two river become larger than that in other river. The exponents for the total, particulate and dissolved components of COD, N and P in three rivers become the value beyond 1.0 except Org-P and D-COD. Also, the exponents of $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{PO}_4\text{-P}$, and K in three rivers were beyond 1.0. These analytical results were considered to support the increase of pollutant loading during the storm runoff periods.

1 はじめに

流域から排出されて河川を通じて流出する汚濁物質の流出負荷量の大きさと流出特性の流域特性との関係を究明するには、一般に、水利用や土地利用の単純な河川上流部の小流域を対象とした方が行いやすい。大流域では流域外からの導水や地下水の汲み揚げ等の水利用が多様であり、その排出先も下水道や浄化槽の排水まで含めると複雑である。また、河川下流部では、河川上流部からの流出負荷量も正確におさえておく必要がある。これらに比べて河川上流部の小流域では、流量測定が容易なほか流域内の汚濁負荷の特性の把握が行いやすい特徴を有している。特に、河川上流部では流域内が自然的な状態をよく残していることが多いため、主に降雨時流出における種々の物質の流域からの流出挙動が比較的単純な形で捕えやすい利点がある。それゆえ、河川上流部の小流域での精度の高い調査を実施し、その結果がより大きな流域にも適用できることも目標にして、以下に小流域での流出負荷量とその流出特性の検討を行うことにする。

2 調査対象流域の特性

調査対象とした流域は、霞ヶ浦に流入する河川で2番目に流域規模が大きく、霞ヶ浦で最も富栄養化の進行している高浜入への流入河川である恋瀬川の支流の上流部小流域である。すなわち、筑波山系に源を発し、恋瀬川の中流部で本川と合流する川又川の3支流の小桜川、寺山沢及び大作沢である。これら3河川は図1に示すように上流部の筑波山系では流域を接する小河川で、それぞれの河川の観測地点と流域面積は、小桜川が朝日橋で 7.99km^2 、寺山沢が島田橋で 6.31km^2 、大作沢が細内下橋で 3.11km^2 である。これら3河川での観測は、降雨時流出調査が1980年から1986年までの6年間、晴天時流出の定期調査が1984年から1987年までの3年間、降水の濃度及び負荷量調査が1984年から1987年までの3年間であった。

各小河川流域の特徴は、いずれも最上流部が筑波山系の山林で急傾斜の地形で、流下とともにこう配が緩やかになり畑地や水田あるいは集落が増加する。 3.11km^2 と最も流域面積が小さな大作沢では、ほとんどが急こう配の溪流河川であり、下流部の観測地点付近に集落と水田が集中的に存在し、流域人口は392人であった。 6.31km^2 と2番目に流域面積が大きい寺山沢は、山林は上流部に限定され、中・下流部は畑地と水田が占め、集落は中流部では散在し、下流部では集中して存在する。流域人口は562人であるが、小規模な工場・事業所も存在し、3河川の中では最も汚濁負荷の大きな河川流域である。小桜川の朝日橋までの流域は、流域面積が 7.99km^2 と最も流

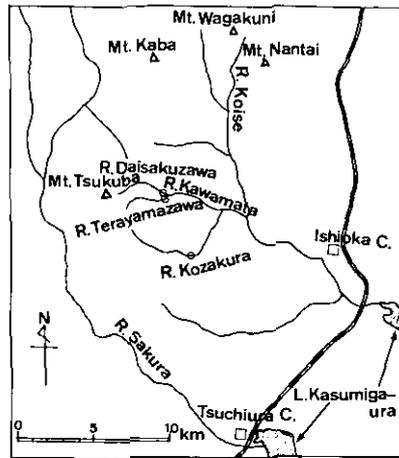


図 1 3河川の観測地点

Fig. 1 Observation points in three rivers

域面積が大きい、山林がその大部分を占め、水田や畑地は中・下流部に存在するものの山あいの河川沿いの狭い範囲に限られる。流域人口は296人で、集落は河川沿いに散在する。地形は河川の上流部と川沿いの両側が山林のかなり急傾斜となっている。

3 調査の概要

調査の一つに、これら小流域への自然負荷としての降水の入力を算定するため、3河川の流域近くで AMeDAS 観測地点の八郷町柿岡の地磁気観測所内に感雨器により降水時のみに採水器のふたが開く自動降水物採取装置を設備して観測を行った。本装置は太陽電池と蓄電池を組み合わせた電源を用いたため、菜種梅雨、梅雨期及び秋雨期の長雨状態には、感雨器の熱量とふたの開閉の電力が不足してすべての降水を採取できなかった。また、厳冬期には零下10度以下となるため、感雨器が十分働かなかったが、この時期の降水量は極めて少ないため、採取の被害は軽度であった。この柿岡での観測は1985年3月から1987年3月までの2年間であった。これに先立って、1984年6月から1987年5月までの3年間、自動降水物採取装置のテストと補助を兼ねて国立公害研究所屋上において直径26cmのステンレス製ポットで人力による降水の採取を行った。

晴天時流出負荷量調査は、定期的な調査として1984年5月から1987年4月までの3年間、原則として3河川とも同日に行った。1984年5月～1985年4月の1年間は19回、1985年5月～1986年4月の1年間は37回、1986年5月～1987年4月の1年間は22回であった。少ない回数の場合も各月1回以上の回数を確保した。このほかに、後述の降雨時流出調査において、大きな降雨の流量逓減状態の後も次の降雨まで引き続いて経日変化を観測したデータも存在するが、そのデータは晴天時流出負荷量調査には含めていない。

降雨時流出負荷量調査は、1980年7月から1986年12月の5年半の期間に、降雨による流量増加前から流量逓減期まで流量急変時は30分間隔、流量逓減時は1.5時間あるいは2時間間隔を含む

通常は1時間間隔の長時間調査を17降雨について行った。このうち3河川同時調査が10降雨、2河川同時調査が4降雨、1河川単独調査が3降雨となっている。降雨は1連続降雨ずつを対象にしており、195mmの大きな降雨量の降雨からわずか3mmの降雨までの範囲となっている。

4 流域への降水の負荷

調査対象の河川上流部の小流域では、流域内のほとんどが山地、水田、畑地の土地利用形態で占められ、水田や畑地でのかんがい用水も循環や地下水の揚水等の複雑な水利用もなく、わずかな流域入口による生活排水量も河川の固有流量と比べて無視できる利点がある。したがって、これら河川の流量変化は降水を主とした水文条件に支配されていると考えられる。また、その降水の濃度及び負荷量の観測を、河川上流部の晴天時流出や降雨時流出の河川水濃度のバックグラウンドとして、あるいは、それぞれの流出における流出負荷量のベースとして評価するために行った。

表1に茨城県新治郡八郷町柿岡におけるごくわずかの降雪も含む降雨の分類を、一連続降雨の規模に分けて示す¹⁾。1978年6月から1987年5月までの9年間の年平均降雨量は1,252mmであ

表 1 降雨の分類

Table 1 Classification of annual rain events

期 間	降雨範囲	41mm以上	31-40	21-30	16-20	11-15	6-10	1-5	全降雨量
			mm	mm	mm	mm	mm	mm	
1978年6月	降雨回数(回)	37	33	49	47	52	85	201	504
	合計降雨量(mm)	2,580	1,143	1,206	851	669	651	454	7,546
1984年5月	降雨量比率(%)	34.2	15.1	16.0	11.3	8.9	8.6	6.0	100
1984年6月	降雨回数(回)	3	5	13	3	4	14	45	87
	合計降雨量(mm)	187	174	320	51	46	109	117	1,004
1985年5月	降雨量比率(%)	18.6	17.3	31.9	5.1	4.6	10.9	11.7	100
1985年6月	降雨回数(回)	11	6	8	3	8	11	33	80
	合計降雨量(mm)	752	207	196	54	96	87	69	1,461
1986年5月	降雨量比率(%)	51.5	14.2	13.4	3.7	6.6	5.9	4.7	100
1986年6月	降雨回数(回)	3	5	8	10	11	11	39	87
	合計降雨量(mm)	402	171	207	172	143	81	84	1,260
1987年5月	降雨量比率(%)	31.9	13.6	16.4	13.7	11.3	6.4	6.7	100
1984年6月	降雨回数(回)	17	16	29	16	23	36	117	254
	合計降雨量(mm)	1,341	552	723	277	285	277	270	3,725
1987年5月	降雨量比率(%)	36.0	14.8	19.4	7.4	7.7	7.4	7.3	100
1978年6月	降雨回数(回)	54	49	78	63	75	121	318	758
	合計降雨量(mm)	3,921	1,695	1,929	1,128	954	928	724	11,271
1987年5月	降雨量比率(%)	34.8	15.0	17.1	10.0	8.5	8.2	6.4	100

表 2 降水の水質濃度の平均値 (mg/l)

Table 2 The means of water quality concentration of precipitation (mg/l)

Place	Period	Precipitation	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	Inorg-N	PO ₄ -P	Cl	COD	SiO ₂	SO ₄	Ca	Mg	pH
National Institute for Environmental Studies	'84 June - '85 May	807mm	0.331	0.005	0.236	0.572	0.003	1.28	2.18	0.06	1.69	0.23	0.12	3.5 ≤ pH ≤ 6.1
	'85 June - '86 May	1,388	0.531	0.006	0.314	0.850	0.027	1.73	1.56	0.24	2.44	0.42	0.22	3.2 ≤ pH ≤ 5.6
	'86 June - '87 May	1,111	0.381	0.007	0.351	0.739	0.011	1.45	2.02	0.05	1.53	0.15	0.08	3.0 ≤ pH ≤ 7.0
	'84 June - '87 May	3,292	0.431	0.006	0.307	0.745	0.016	1.53	1.87	0.13	1.95	0.28	0.15	3.0 ≤ pH ≤ 7.0
Kakioka	'85 Mar. - '87 Mar	1,599	0.348	0.004	0.282	0.634	0.002	1.17	1.86	0.07	1.25	0.12	0.07	3.5 ≤ pH ≤ 5.5

り、定期調査を実施した 1984年から1987年までの3年間の年平均降雨量は1,242mmとあまり変わりはない。年によっては年間降水量にはバラツキがあり、1984年6月～1985年5月の1年間は1,004mmと表1の9年間では最小であり、1985年6月～1986年5月の1年間は1,461mmで2番目に大きい値であった。1986年6月～1987年5月の1年間は1,260mmとほぼ平均に近い値であった。年降水量の小さかった1984年6月～1985年5月は、41mm以上の降雨が少なく、21～30mmの範囲の降雨が多いという特徴が見られた。

表2に国立公害研究所3階屋上で3年間観測したものと、八郷町柿岡の地磁気観測所地表面で2年間観測したものの降水水質濃度の平均値を示した。公害研究所屋上での降水量は最も近い館野の高層気象台での降水量より1984年6月～1985年5月の1年間で約230mm少なく、1985年6月～1986年5月の1年間で210mm多く、1986年6月～1987年5月の1年間で110mm多く、3年間では約95mm多くなった。また、柿岡においての降水時自動降下物採取装置は前述のように電源の問題から長雨期や厳冬期の採取が十分でなかったため、柿岡での降水量の55%しか採取できなかった。降水の水質濃度は、小降水量や先行晴天期間の長かった降水についてはほとんどの水質項目について高い濃度を示し、40mmを超えるような大きな降水量の降水では低い濃度であった。pHは前者の場合には3に近い酸性を示し、後者の場合には5～6の酸性となる傾向が見られた。流域への負荷という原単位的な観点からは、降水量と降水水質濃度を考慮した降水量重みづけ平均水質濃度（総降水負荷量／総降水量）での評価が望ましいと考えられる。本研究所周上での1985年6月～1986年5月の降水量重みづけの年間平均水質濃度は、COD、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 及び $\text{NO}_3\text{-N}$ を除いてすべての測定項目で3年間の最大値を示した。この1年間の降水量は3年間で最大であり、降雨時の降下物負量としても最大となる。また、採取が十分でなかった柿岡での2年間の降水量重みづけ平均濃度は、いずれの水質項目でも本研究所周上の3年間の同じ平均濃度よりも小さな結果となっている。しかし、柿岡での年間降水量の平年値（1951～1980年；1,377mm）は、館野（国立公害研究所より1km以内）のそれ（1951～1980年；1,273mm）より100mm多くなっており、単位面積当たりの降水による負荷量の両者の差は、降水量重みづけ平均水質濃度のそれよりはさらに近いものとなる。本研究所周での観測結果を基にした降水による負荷量は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ で470kg/km²・y、 $\text{NO}_2\text{-N}$ で340kg/km²・y、無機態窒素としては817kg/km²・y、 $\text{PO}_4\text{-P}$ で18kg/km²・y、CODで2,050kg/km²・y、 SO_4^{2-} で2,140kg/km²・y、Clで1,680kg/km²・yとなる。表2の柿岡の降水量重みづけ平均水質濃度と柿岡の同じ2年間の平均降水量（1,398mm）から計算される負荷量は本研究所周のものと同程度の値になる水質項目が多い。

5 晴天時流出による流出負荷量の評価

小桜川、寺山沢及び大作沢の晴天時流出における流出負荷量調査を1984年5月から1987年4月までの3年間に実施した。各年ごとの調査回数には違いがあるけれども、毎月最低1回以上の頻度を確保し、3河川同時調査を原則とした。しかし、他の調査とも併せて実施したこともあり、寺山沢と大作沢の調査回数が小桜川のそれを上回る結果となった。

表3に3河川の流量と水質濃度の平均値を示す。流量の1986年5月～1987年4月の1年間平均値が他の2年間より大きく、その影響が河川ごとに少しずつ異なって現れているように見える。

流量が大きくなれば、濃度が明りように減少しているのは Cl であり、他の濃度の減少や増大の傾向は河川ごとに異なっている。小流域ゆえに、わずかな人為的な汚濁の影響も直接的に受けることもその理由に挙げられる。しかし、表4の流出負荷量の平均値は、各調査年の流量平均値の違いをそのまま反映して、ほとんどの水質項目で流量平均値が大きい年には流出負荷量平均値も大きくなっている。3河川の3年間の平均値を単位面積当たりの流出負荷量原単位としてまとめると、表5のようになる。ほとんどの水質項目で、水田や畑地の面積、流域人口などの人為的な負荷排出源の多い寺山沢の値が最も大きい。流域の土地利用形態が似ている大作沢と小桜川はほとんど同じ位の値となっている。これらの値は、少ないと言えども人為的な汚濁も含んだ統計的な値であり、平均流量から判断してもかなり高流量状態の値となっている。したがって、流量が少なく、水質濃度が比較的小さな状態であった山地流域河川及び田園地流域河川の流出負荷量単位²⁾と比較すると、調査年が異なるけれどもかなり大きな値となっている。今回の調査はほとんど昼間時の測定であり、夜間時の測定値も含めるとさらに小さな値になると考えられる。

自然的な負荷のベースとして、他の種々の負荷との比較に用いることができる降水の流域への負荷は、表2の公害研究所屋上の3年間平均の降水量と降水濃度を用いると、 $Inorg-N$ は $817\text{kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ であるが、3河川の流出負荷量では $1,700\sim 3,860\text{ kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ と $2\sim 4.5$ 倍の値となっており、 $T-N$ になるとさらに大きな倍率となる。 PO_4-P では降水の $18\text{kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ に対して3河川では $79\sim 125\text{ kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ と $4\sim 7$ 倍であった。 $T-COD$ では降水の $2,050\text{ kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ に対して3河川では $4,200\sim 5,500\text{ kg}/\text{km}^2\cdot\text{y}$ の $2\sim 2.7$ 倍となっている。同様に、 SO_4 で $2.3\sim 4.9$ 倍、 Cl で $3.6\sim 6.3$ 倍の値であった。流域の植生や土壌の自然的なものから、水田や畑地に生活排水の人為的な負荷を加えて、降水による流域への負荷の2倍以上の流出負荷量となって河川を通して流出していることになる。河川水質濃度は、渓流水に近い大作沢や小桜川でも NH_4-N を除いて降水濃度よりかなり大きな値となった。

6 降雨時流出特性

3河川を対象に降雨時流出負荷量調査を実施した観測降雨の降雨量を表6に示す。小桜川については、朝日橋地点のみでの観測だけでなく、流下方向にその上流部や下流部との同時調査を行ったため、他の2河川と観測降雨の内容が一部異なっている。しかし、3河川同時調査も17観測降雨中10降雨にも達している。小桜川で13降雨、大作沢と寺山沢で14降雨と観測降雨数もわずかな一つの違いであるため、3河川の降雨時流出特性の統計的な比較も可能であろう。また、1980年7月から1986年12月までの間に毎年1～4回の観測を行い、195mm から3mmの降雨までの降雨量範囲がカバーできて、表1の降雨の分類から見て特に偏った分布とはなっていない。3mmの降雨については、非常に小さな降雨時流出であったが、晴天時流出に近い観測例として解析の対象に加えた。観測降雨は、降水量の最も少ない1月を除いて各月に分布しており、偏りも少ない。一つの降雨時流出について、降雨による流量増加の始まる時点から、流量の最大ピーク後の流量遞減状態で時間単位の水位変化がほとんどなくなる時点までの流量測定と同様に採水を行っている。この間の流量の累加量変化が、図2のように両対数紙上の経時変化プロットで流量遞減状態においてある上限値に無限に近づくような頭打ち状態を呈する特徴が見られる³⁾。この特徴を利用し

表 3 各観測期間の水質濃度の平均値 (mg/l ; Flow m³/sec)

Table 3 Means of water quality concentration for each observation period (mg/l ; FLOW m³/sec)

River	Period	Flow	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	1-N	0-N	T-N	DTN	PTN	PO ₄ -P	0-P	T-P	DTP	PTP
R.Daisakuzawa	'84 May - '85 Apr.	0.090	0.026	0.007	1.179	1.213	0.103	1.320	1.251	0.072	0.011	0.014	0.025	0.013	0.012
	'85 May - '86 Apr.	0.117	0.038	0.008	1.299	1.344	0.096	1.440	1.344	0.096	0.012	0.023	0.035	0.016	0.019
	'86 May - '87 Apr.	0.188	0.044	0.008	1.320	1.371	0.060	1.432	1.380	0.052	0.019	0.033	0.052	0.026	0.026
	'84 May - '87 Apr.	0.130	0.037	0.008	1.275	1.320	0.088	1.410	1.334	0.078	0.013	0.024	0.037	0.018	0.019
R.Terayamazawa	'84 May - '85 Apr.	0.151	0.059	0.017	1.548	1.630	0.258	1.914	1.637	0.249	0.016	0.089	0.105	0.022	0.084
	'85 May - '86 Apr.	0.297	0.077	0.018	1.524	1.619	0.232	1.851	1.713	0.138	0.025	0.093	0.117	0.034	0.083
	'86 May - '87 Apr.	0.316	0.055	0.012	1.471	1.538	0.120	1.658	1.549	0.110	0.032	0.075	0.107	0.042	0.065
	'84 May - '87 Apr.	0.265	0.067	0.016	1.516	1.601	0.209	1.815	1.651	0.157	0.025	0.087	0.112	0.033	0.079
R.Kozakura	'84 May - '85 Apr.	0.158	0.025	0.006	1.066	1.096	0.175	1.271	1.132	0.139	0.016	0.022	0.039	0.023	0.016
	'85 May - '86 Apr.	0.237	0.055	0.008	1.327	1.390	0.124	1.514	1.439	0.074	0.016	0.028	0.044	0.017	0.027
	'86 May - '87 Apr.	0.391	0.030	0.009	1.348	1.387	0.139	1.525	1.394	0.131	0.028	0.052	0.080	0.039	0.041
	'84 May - '87 Apr.	0.258	0.038	0.008	1.250	1.295	0.145	1.440	1.328	0.112	0.020	0.033	0.053	0.026	0.027
River	Period	T-COD	D-COD	P-COD	Cl	SS	T-SiO ₂	D-SiO ₂	P-SiO ₂	SiO ₂	SO ₄	Ca	Mg	Na	K
R.Daisakuzawa	'84 May - '85 Apr.	1.59	1.04	0.59	6.35	6.5	17.37	16.74	0.66	16.29	4.27	5.41	2.38	4.64	0.85
	'85 May - '86 Apr.	2.14	1.28	0.86	5.91	12.2	17.20	15.75	1.45	15.18	4.43	5.09	2.36	4.71	0.84
	'86 May - '87 Apr.	2.81	1.55	1.26	5.83	15.8	16.76	15.60	1.17	15.28	3.82	4.62	2.40	4.73	0.98
	'84 May - '87 Apr.	2.20	1.30	0.91	5.99	11.9	17.11	15.95	1.18	15.48	4.22	5.03	2.37	4.70	0.88
R.Terayamazawa	'84 May - '85 Apr.	3.62	1.66	2.02	10.87	56.5	29.22	22.85	6.53	21.95	8.18	10.71	3.50	8.28	1.52
	'85 May - '86 Apr.	3.85	2.05	1.80	8.35	50.0	24.43	19.00	5.43	17.94	7.97	10.36	3.17	7.54	1.54
	'86 May - '87 Apr.	3.38	1.90	1.48	7.04	24.4	20.24	18.73	1.51	18.19	6.29	9.65	3.39	6.91	1.56
	'84 May - '87 Apr.	3.67	1.91	1.77	8.64	44.8	24.46	19.89	4.65	19.01	7.58	10.26	3.31	7.56	1.54
R.Kozakura	'84 May - '85 Apr.	2.60	1.64	0.96	6.49	6.2	19.78	19.05	0.73	18.32	4.60	3.73	1.94	5.42	1.11
	'85 May - '86 Apr.	2.79	1.53	1.26	6.31	10.9	19.91	18.77	1.13	17.86	4.56	3.82	1.78	4.43	1.09
	'86 May - '87 Apr.	4.08	1.97	2.12	6.04	25.8	19.64	18.24	1.39	17.76	4.29	3.21	1.96	5.50	1.24
	'84 May - '87 Apr.	3.12	1.70	1.42	6.29	14.0	19.79	18.70	1.08	17.98	4.49	3.61	1.88	5.45	1.14

表 4 各観測期間の流出負荷量の平均値 (g/sec ; Flow m³/sec)

Table 4 Means of pollutant loadings for each observation period (g/sec ; Flow m³/sec)

River	Period	Flow	NH ₄ -N	NO ₂ -N	NO ₃ -N	I-N	O-N	T-N	DTN	PTN	PO ₄ -P	O-P	T-P	DTP	PTP
R. Daisakuzawa	'84 May - '85 Apr.	0.090	0.0026	0.0009	0.110	0.113	0.009	0.126	0.123	0.006	0.0009	0.0016	0.0025	0.0011	0.0014
	'85 May - '86 Apr.	0.117	0.0042	0.0008	0.154	0.159	0.008	0.167	0.150	0.017	0.0012	0.0032	0.0044	0.0016	0.0028
	'86 May - '87 Apr.	0.188	0.0071	0.0011	0.261	0.269	0.016	0.285	0.270	0.015	0.0048	0.0136	0.0185	0.0057	0.0128
	'84 May - '87 Apr.	0.130	0.0046	0.0009	0.173	0.179	0.011	0.191	0.179	0.014	0.0021	0.0058	0.0080	0.0026	0.0054
R. Terayamazawa	'84 May - '85 Apr.	0.151	0.0097	0.0027	0.254	0.267	0.045	0.321	0.269	0.043	0.0025	0.0159	0.0185	0.0032	0.0152
	'85 May - '86 Apr.	0.297	0.0246	0.0050	0.525	0.554	0.049	0.603	0.578	0.026	0.0060	0.0216	0.0276	0.0083	0.0193
	'86 May - '87 Apr.	0.316	0.0161	0.0038	0.534	0.554	0.030	0.584	0.557	0.028	0.0115	0.0236	0.0351	0.0159	0.0192
	'84 May - '87 Apr.	0.265	0.0186	0.0041	0.460	0.482	0.043	0.530	0.495	0.030	0.0066	0.0208	0.0274	0.0090	0.0183
R. Kozakura	'84 May - '85 Apr.	0.158	0.0041	0.0009	0.184	0.189	0.030	0.219	0.194	0.025	0.0025	0.0037	0.0063	0.0036	0.0027
	'85 May - '86 Apr.	0.237	0.0147	0.0014	0.381	0.397	0.020	0.416	0.403	0.013	0.0035	0.0072	0.0107	0.0036	0.0071
	'86 May - '87 Apr.	0.391	0.0137	0.0023	0.717	0.733	0.052	0.785	0.735	0.051	0.0150	0.0294	0.0444	0.0181	0.0263
	'84 May - '87 Apr.	0.258	0.0110	0.0015	0.418	0.431	0.033	0.463	0.435	0.028	0.0066	0.0127	0.0193	0.0079	0.0114
River	Period	T-COD	D-COD	P-COD	Cl	SS	T-SiO ₂	D-SiO ₂	P-SiO ₂	SiO ₂	SO ₄	Ca	Mg	Na	K
R. Daisakuzawa	'84 May - '85 Apr.	0.18	0.09	0.08	0.54	0.8	1.57	1.44	0.09	1.39	0.38	0.47	0.21	0.39	0.07
	'85 May - '86 Apr.	0.28	1.14	0.14	0.60	2.2	1.96	1.70	0.26	1.66	0.49	0.48	0.28	0.47	0.08
	'86 May - '87 Apr.	0.87	0.27	0.60	1.02	9.4	3.38	2.73	0.66	2.63	0.78	0.76	0.43	0.80	0.18
	'84 May - '87 Apr.	0.42	0.17	0.25	0.70	4.0	2.28	1.93	0.33	1.87	0.54	0.56	0.31	0.54	0.10
R. Terayamazawa	'84 May - '85 Apr.	0.64	0.25	0.39	1.71	11.2	4.73	3.35	1.34	3.20	1.27	1.57	0.53	1.21	0.22
	'85 May - '86 Apr.	1.08	0.59	0.49	2.31	13.1	6.90	5.45	1.45	5.18	2.50	2.89	0.92	1.99	0.41
	'86 May - '87 Apr.	1.53	0.60	0.92	2.08	13.7	6.70	5.70	1.01	5.44	2.09	2.77	1.04	1.98	0.48
	'84 May - '87 Apr.	1.10	0.51	0.58	2.10	12.8	6.33	4.99	1.31	4.75	2.09	2.53	0.86	1.79	0.38
R. Kozakura	'84 May - '85 Apr.	0.42	0.26	0.17	1.01	1.2	3.11	2.98	0.13	2.87	0.75	0.59	0.31	0.85	0.18
	'85 May - '86 Apr.	0.74	0.36	0.38	1.42	4.1	4.74	4.23	0.52	4.10	1.14	0.88	0.42	1.22	0.25
	'86 May - '87 Apr.	2.57	0.69	1.89	2.20	27.5	8.28	6.80	1.48	6.49	1.82	1.19	0.78	2.00	0.50
	'84 May - '87 Apr.	1.19	0.42	0.76	1.52	10.3	5.28	4.60	0.68	4.42	1.22	0.88	0.49	1.33	0.30

表 5 晴天時流出の流出負荷量原単位 (kg/km²・y)Table 5 Specific pollutant loadings for dry-weather day (kg/km²・y)

River	NH ₄ -N	NO _x -N	NO ₃ -N	DTN	TN	PO ₄ -P	DTP	TP	D-COD	T-COD	Cl	SO ₄	SiO ₂	Ca	Mg	Na	K
R.Daisakuzawa	46.6	9	1,750	1,820	1,940	21	26	81	1,720	4,260	7,100	5,480	19,000	5,680	3,140	5,480	1,010
R.Terayamazawa	93.0	20	2,300	2,470	2,650	33	45	137	2,550	5,500	10,500	10,400	23,700	12,640	4,300	8,940	1,900
R.Kozakura	43.4	6	1,650	1,830	1,830	26	31	76	1,660	4,700	6,000	4,820	17,445	3,470	1,930	5,250	1,180

表 6 観測河川の流域面積と観測降雨

Table 6 Watershed areas of observed rivers and rainfalls of observed runoff events

River	Observation Point	Watershed Area(km ²)	Rainfall of Observed Runoff Event (mm)																
			85	73	63	38	36	27	25	18	18	17	11	7	3				
R.Kozakura	Asahi Bridge	7.99																	
R.Terayamazawa	Shimada Bridge	6.31	195	85	73			36	35	28	27	25	18	18	17		8	7	3
R.Daisakuzawa	Ilosouchi-shita Brdige	3.11	195	85	73			36	35	28	27	25	18	18	17		8	7	3

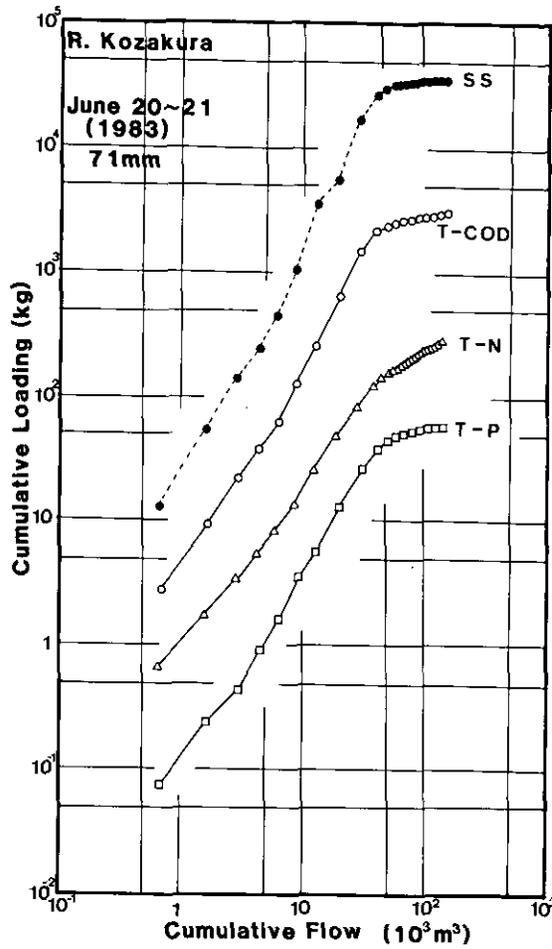


図 2 降雨時流出における累加流量と累加流出負荷量の関係

Fig. 2 Relationships between cumulative flow and cumulative loadings

て、各降雨のこの最終的な累加流量と累加流出負荷量の値を両対数紙上にプロットすれば、それらの点はある狭い範囲に分布して、非常に高い相関係数を有する回帰モデル式で表現できる関係となる。すなわち、流量を Q 、流出負荷量を L として一つの降雨時流出についての累加量を Σ を使って表わすと、

$$\Sigma L = a \cdot (\Sigma Q)^n \quad (1)$$

流域面積のスケールの違いを排除して、流域や河川相互間の比較を行うために、流域面積 A で除して、流量と流出負荷量とも降雨によるそれぞれの増加分 Q_{net} と L_{net} についてと、そのように流量や流出負荷量を分けないままの全流量 Q_{total} と全流出負荷量について、以下のような回帰モデル式で表現できる。

$$\Sigma L_{net} / A = b \cdot (\Sigma Q_{net} / A)^m \quad (2)$$

$$\Sigma L_{gross} / A = a \cdot (\Sigma Q_{gross} / A)^n \quad (3)$$

ここで、 a 、 b 、 a 、 n 、 m 及び n は定数である。

3河川のそれぞれの水質項目について、(3)式の関数式を求めて、相互比較を行うことにする。表7にCOD、窒素、リン等の各態成分を含めた水質項目について、表8に無機イオンの水質項目について、(3)式の関係を3河川の一覧表として示す。ここで、累加流量 ΣQ_{gross} の単位は $10^3 m^3$ 、累加流出負荷量 ΣL_{gross} の単位はkg、流域面積の単位は km^2 である。相関係数は、分析方法でイオン電極法によったデータを一部に含む小桜川のNaとMgの0.42と0.48と低いものがあったほかは、寺山沢のOrg-Pで0.73、 NH_4-N で0.72が目立つだけで、他は0.8以上で0.95を超えるものが多い。相関係数の低い水質項目には、降雨を介して流出する面源負荷よりは、点源負荷として人為的な汚濁要因が強く反映される項目が多くなる傾向にある。係数 a の値が大きい河川では、降雨時流出の前の段階、すなわち、晴天時流出の流出負荷量レベルが高く、指数 n の値が小さくなる傾向となる。この3河川の場合、寺山沢が晴天時流出の水質濃度や流出負荷がともに大きいため、3河川の中で a が大きく n が小さくなる傾向にあった。窒素、リン、COD等の各態別水質項目については、小桜川が大作沢より a が小さく n が大きくなる傾向となった。各河川ごとの回帰モデル式ゆえ、非常に高い相関係数であり、表7ではOrg-PとD-CODのほかはすべて指数 n が1を超えている。SSのほかP-COD、PIPの懸濁態成分や、懸濁態成分がその中で大きなウエイトを占めるOrg-PとOrg-N、及び、T-PやT-CODについての指数 n の値が大きい。

無機態イオンについては、 NO_3-N はむろんのこと NO_2-N や PO_4-P の陰イオンについて3河川とも1を超えた n 値となっているほか、陽イオンではKのみで3河川とも n が1を超えていた。Caで n の値が1を超える河川が二つあり、 SO_4 は n が1を超えた河川は一つで、他の2河川は1に近い値となった。また、 NH_4-N で1河川の n の値が1を超えたが他の2河川では1よりはるかに小さな n の値となっている。この回帰モデル式において指数 n が1を超える水質項目については、降雨時流出により流出負荷量や流出濃度が増加することの別の一つの裏付けともなる¹⁾。

また、降雨時流出の回帰モデル式の係数 a と指数 n の値からも、晴天時流出負荷量調査から求めた流出負荷量原単位の結果と同様に、大作沢と小桜川は人為的な汚濁負荷の少ない流域河川グループになり、寺山沢は人為的な汚濁負荷が無視できない流域河川グループになり、二つに分かれることが明らかになった。

7 結 論

流域から河川を通じて流出する汚濁負荷の大きさと流出特性を高い精度で把握するために、流域内の土地利用形態と水利用形態が複雑でなく、山地や農耕地等で比較的自然的な状態が保たれている河川上流部で流域が隣接する3河川の小流域において、降水負荷量調査、晴天時流出負荷量調査、降雨時流出負荷量調査を実施した。降水負荷量調査は、自然的な状態での流域への汚濁負荷のバックグラウンドを知るためと、河川最上流部の溪流水質濃度と降水濃度の関係を見るためであった。

表 7 回帰モデル式の一覧

Table 7 List of regression equations

Water Quality Indicator	R.Kozakura	R.Terayamazawa	R.Daisakuzawa
T-COD	$2.306 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.768}$ (r=0.875)	$3.212 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.525}$ (r=0.941)	$1.603 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.633}$ (r=0.936)
T-N	$1.161 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.288}$ (r=0.960)	$1.550 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.201}$ (r=0.962)	$1.403 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.134}$ (r=0.971)
T-P	$0.0451 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.752}$ (r=0.903)	$0.1093 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.338}$ (r=0.929)	$0.0366 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.575}$ (r=0.890)
SS	$5.452 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{2.284}$ (r=0.858)	$16.34 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.845}$ (r=0.934)	$3.379 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{2.128}$ (r=0.901)
P-COD	$1.038 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.385}$ (r=0.834)	$1.275 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.720}$ (r=0.919)	$0.5751 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.885}$ (r=0.907)
PTN	$0.1190 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.822}$ (r=0.867)	$0.1911 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.411}$ (r=0.855)	$0.1560 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.383}$ (r=0.859)
PTP	$0.0162 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{2.064}$ (r=0.874)	$0.0551 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.530}$ (r=0.902)	$0.0142 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.789}$ (r=0.843)
D-COD	$1.608 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.212}$ (r=0.957)	$3.184 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{0.993}$ (r=0.980)	$1.578 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.044}$ (r=0.980)
DTN	$1.057 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.191}$ (r=0.960)	$1.059 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.164}$ (r=0.950)	$1.153 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.075}$ (r=0.990)
DTP	$0.0365 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.148}$ (r=0.908)	$0.0583 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.030}$ (r=0.894)	$0.0179 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.145}$ (r=0.954)
Org-N	$0.1306 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.694}$ (r=0.858)	$0.3127 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.133}$ (r=0.871)	$0.1909 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.382}$ (r=0.873)
Org-P	$0.0187 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{2.034}$ (r=0.879)	$0.1933 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{0.632}$ (r=0.728)	$0.0349 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.044}$ (r=0.874)
T-SiO ₂	$16.82 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.176}$ (r=0.990)	$23.45 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.183}$ (r=0.930)	$16.68 \cdot (\sum Q_{\text{F-r.o.s.s.}}/A)^{1.033}$ (r=0.957)

表 8 無機イオンの回帰モデル式の一覧

Table 8 List of regression equations for inorganic ions

Ion	R.Kozakura	R.Terayamazawa	R.Daisakuzawa
NH ₄ -N	$0.02954 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.513}$ (r=0.816)	$0.24287 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.844}$ (r=0.718)	$0.08432 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.763}$ (r=0.797)
NO ₂ -N	$0.00483 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.263}$ (r=0.901)	$0.01478 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.190}$ (r=0.882)	$0.00934 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.071}$ (r=0.976)
NO ₃ -N	$0.9193 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.766}$ (r=0.966)	$1.0387 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.733}$ (r=0.988)	$1.0603 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.654}$ (r=0.992)
PO ₄ -P	$0.03002 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.129}$ (r=0.865)	$0.04073 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.051}$ (r=0.918)	$0.01285 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.144}$ (r=0.956)
Cl	$6.809 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.979}$ (r=0.967)	$14.568 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.788}$ (r=0.969)	$8.599 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.824}$ (r=0.986)
SiO ₂	$19.90 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.936}$ (r=0.984)	$24.89 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.888}$ (r=0.991)	$18.76 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.921}$ (r=0.996)
SO ₄	$4.571 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.971}$ (r=0.984)	$8.110 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.958}$ (r=0.981)	$3.496 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.061}$ (r=0.983)
Ca	$2.469 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.166}$ (r=0.861)	$9.369 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.929}$ (r=0.961)	$4.432 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.000}$ (r=0.970)
Mg	$1.746 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.805}$ (r=0.424)	$4.071 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.891}$ (r=0.994)	$2.868 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.960}$ (r=0.991)
Na	$5.045 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.735}$ (r=0.476)	$8.051 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.910}$ (r=0.956)	$4.223 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{0.968}$ (r=0.986)
K	$1.121 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.246}$ (r=0.958)	$2.195 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.010}$ (r=0.984)	$0.9981 \cdot (\sum Q_{\text{precip}}/A)^{1.071}$ (r=0.979)

3 河川の流域近くの柿岡での降水採取は完全ではなかったけれども、柿岡での降水濃度は国公研屋上でのそれに比べて全ての測定項目で低い濃度であった。3 河川の 1 か月 1 回以上の頻度での 3 年間の晴天時流出負荷量調査を行い、流出負荷量原単位を算定した。この流域からの汚濁物質の流出負荷量原単位をベース的なものとして流域への自然的な負荷の降水負荷を選び、これと比較することを試みた。人為的な汚濁が少なく、流域のほとんどが山地で占められ、溪流河川に近い大作沢と小桜川の流出負荷量原単位は、NH₄-N と T-COD で降水負荷の約 2 倍、PO₄-P で約 4 倍、SO₄ や Cl で 2 ~ 4 倍であった。流域内で農耕地の占めるウエイトが大きな寺山沢での

流出負荷量原単位は、人為負荷も大きくなって降水の約4～7倍の大きさとなった。

10降雨の同時調査を含めて各河川で13～14回の降雨時流出負荷量調査結果から、流域面積当たりの降雨時総流出負荷量を推定する回帰モデル式 ($\Sigma L_{r,\dots} / A = a \cdot (\Sigma Q_{r,\dots} / A)^n$) を求めた。各河川とも高い相関係数で得られたモデル式を比較すると、流域がほとんど山地の大作沢と小桜沢の係数 a はほとんどの水質項目でほぼ近い値となり、流域内の農耕地のウエイトが大きい寺山沢の係数 a より小さな値であった。同様に、小桜川の指数 n はほとんどの水質項目で大作沢の指数 n より少し大きな値となり、寺山沢の指数 n よりはかなり大きな値となった。これは、汚濁負荷レベルの高い河川では a が大きくて n が小さくなり、汚濁負荷レベルの低い河川ではその逆になる傾向を反映している。これは晴天時流出負荷量調査から求めた流出負荷量原単位と一致した結果である。

さらに、指数 n の水質項目についての特徴を見ると、COD、窒素、リン等の Total、懸濁態及び溶存態などの各成分については、寺山沢の Org-P と D-COD を除いて3河川とも1を超えた値となっている。無機態イオンについては、 $\text{NO}_3\text{-N}$ はむろんのこと $\text{NO}_2\text{-N}$ や $\text{PO}_4\text{-P}$ の陰イオンや K の陽イオンについても3河川とも指数 n が1を超える結果となった。これは降雨時流出による流出負荷量や流出濃度の増加を裏付けるものでもある。

終わりに臨み、各種の調査には水質土壌環境部水質環境計画研究室の方々から多くの御協力を得た。また、晴天時流出負荷量調査では生物環境部生物環境管理研究室の方々の御協力を得た。記して謝意を表する次第である。

引用文献

- 1) 茨城県気象月報および日報 (1978～1987) : 水戸地方気象台
- 2) 海老瀬潜一 (1984) : 流域内土地利用形態別流出負荷量原単位の解析, 国立公害研究所研究報告, 第50号, 89-102
- 3) 海老瀬潜一 (1984) : 降雨時流出負荷量モデル, 国立公害研究所研究報告, 第50号, 59-88.
- 4) 海老瀬潜一 (1985) : 降雨による土壌層から河川への NO_3 の排出, 衛生工学研究論文集, 21, 57-68
- 5) 海老瀬潜一 (1988) : 無機イオンの流出負荷量原単位と流出特性, 衛生工学研究論文集, 24, 267-271

国立公害研究所特別研究成果報告

- 第1号 陸水域の富栄養化に関する総合研究—霞ヶ浦を対象域として—昭和51年度.(1977)
第2号 陸上植物による大気汚染環境の評価と改善に関する基礎的研究—昭和51/52年度 研究報告.(1978)

(改称)

国立公害研究所研究報告

- ※第3号 A comparative study of adults and immature stages of nine Japanese species of the genus *Chironomus* (Diptera, Chironomidae). (1978)
(日本産ユスリカ科 *Chironomus* 属9種の成虫、サナギ、幼虫の形態の比較)
- 第4号 スモッグチャンバーによる炭化水素-窒素酸化物系光化学反応の研究—昭和52年度 中間報告.(1978)
- 第5号 芳香族炭化水素-窒素酸化物系の光酸化反応機構と光酸化二次生成物の培養細胞に及ぼす影響に関する研究—昭和51、52年度 研究報告.(1978)
- 第6号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅱ)—霞ヶ浦を中心として—昭和53年度.(1979)
- ※第7号 A morphological study of adults and immature stages of 20 Japanese species of the family Chironomidae(Diptera). (1979)
(日本産ユスリカ科20種の成虫、サナギ、幼虫の形態学的研究)
- ※第8号 大気汚染物質の単一および複合汚染の生体に対する影響に関する実験的研究—昭和52、53年度 研究報告.(1979)
- 第9号 スモッグチャンバーによる炭化水素-窒素酸化物系光化学反応の研究—昭和53年度 中間報告.(1979)
- 第10号 陸上植物による大気汚染環境の評価と改善に関する基礎的研究—昭和51~53年度 特別研究報告.(1979)
- ※第11号 Studies on the effects of air pollutants on plants and mechanisms of phytotoxicity. (1980)
(大気汚染物質の植物影響およびその植物毒性の機構に関する研究)
- 第12号 Multielement analysis studies by flame and inductively coupled plasma spectroscopy utilizing computer-controlled instrumentation. (1980)
(コンピュータ制御装置を利用したフレイムおよび誘導結合プラズマ分光法による多元素同時分析)
- 第13号 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1980)
Part 1. The distribution of chironomid species in a tributary in relation to the degree of pollution with sewage water.
Part 2. Description of 20 species of Chironominae recovered from a tributary.
(多摩川に発生するユスリカの研究
—第1報 その一支流に見出されたユスリカ各種の分布と下水による汚染度との関係
—第2報 その一支流に見出された Chironominae亜科の20種について)
- 第14号 有機廃棄物、合成有機化合物、重金属等の土壌生態系に及ぼす影響と浄化に関する研究—昭和53、54年度 特別研究報告.(1980)
- ※第15号 大気汚染物質の単一および複合汚染の生体に対する影響に関する実験的研究—昭和54年度 特別研究報告.(1980)
- 第16号 計測車レーザーレーダーによる大気汚染遠隔計測.(1980)
- ※第17号 流体の運動および輸送過程に及ぼす浮力効果—臨海地域の気象特性と大気拡散現象の研究—昭和53、54年度 特別研究報告.(1980)
- 第18号 Preparation, analysis and certification of PEPPERBUSH standard reference material. (1980)
(環境標準試料「リョウブ」の調整、分析および保証値)
- ※第19号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅲ)—霞ヶ浦(西浦)の湖流—昭和53、54年度.(1981)
- 第20号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅳ)—霞ヶ浦流域の地形、気象水文特性およびその湖水環境に及ぼす影響—昭和53、54年度.(1981)
- 第21号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅴ)—霞ヶ浦流入河川の流出負荷量変化とその評価—昭和53、54年度.(1981)
- 第22号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅵ)—霞ヶ浦の生態系の構造と生物現存量—昭和53、54年度.(1981)
- 第23号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅶ)—湖沼の富栄養化状態指標に関する基礎的研究—昭和53、54年度.(1981)
- 第24号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅷ)—富栄養化が湖利用に及ぼす影響の定量化に関する研究—昭和53、54年度.(1981)
- 第25号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(Ⅸ)—*Microcystis* (藍藻類)の増殖特性—昭和53、54年度.(1981)

- 第26号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(X)――藻類培養試験法によるAGPの測定――昭和53、54年度。(1981)
- 第27号 陸水域の富栄養化に関する総合研究(XI)――研究総括――昭和53、54年度。(1981)
- 第28号 複合大気汚染の植物影響に関する研究――昭和54、55年度 特別研究報告。(1981)
- 第29号 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1981)
 Part 3. Species of the subfamily Orthoclaadiinae recorded at the summer survey and their distribution in relation to the pollution with sewage waters.
 Part 4. Chironomidae recorded at a winter survey.
 (多摩川に発生するユスリカ類の研究
 ―第3報 夏期の調査で見出されたエリユスリカ亜科Orthoclaadiinae 各種の記載と、その分布の下水汚染度との関係について
 ―第4報 南浅川の冬期の調査で見出された各種の分布と記載)
- ※第30号 海域における富栄養化と赤潮の発生機構に関する基礎的研究――昭和54、55年度 特別研究報告。(1982)
- 第31号 大気汚染物質の単一および複合汚染の生体に対する影響に関する実験的研究――昭和55年度 特別研究報告。(1981)
- 第32号 スモッグチャンバーによる炭化水素-窒素酸化物系光化学反応の研究――環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究(フィールド研究1)――昭和54年度 特別研究中間報告。(1982)
- 第33号 臨海地域の気象特性と大気拡散現象の研究――大気運動と大気拡散過程のシミュレーション――昭和55年度 特別研究報告。(1982)
- ※第34号 環境汚染の遠隔計測・評価手法の開発に関する研究――昭和55年度 特別研究報告。(1982)
- 第35号 環境面よりみた地域交通体系の評価に関する総合解析研究。(1982)
- ※第36号 環境試料による汚染の長期モニタリング手法に関する研究――昭和55、56年度 特別研究報告。(1982)
- ※第37号 環境施策のシステム分析支援技術の開発に関する研究。(1982)
- 第38号 Preparation, analysis and certification of POND SEDIMENT certified reference material. (1982)
 (環境標準試料「池底質」の調整、分析及び保証値)
- ※第39号 環境汚染の遠隔計測・評価手法の開発に関する研究――昭和56年度 特別研究報告。(1982)
- 第40号 大気汚染物質の単一及び複合汚染の生体に対する影響に関する実験的研究――昭和56年度 特別研究報告。(1983)
- 第41号 土壌環境の計測と評価に関する統計学的研究。(1983)
- ※第42号 底泥の物性及び流送特性に関する実験的研究。(1983)
- ※第43号 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1983)
 Part 5. An observation on the distribution of Chironominae along the main stream in June with description of 15 new species.
 Part 6. Description of species of the subfamily Orthoclaadiinae recovered from the main stream in the June survey.
 Part 7. Additional species collected in winter from the main stream.
 (多摩川に発生するユスリカ類の研究
 ―第5報 本流に発生するユスリカ類の分布に関する6月の調査成績とユスリカ亜科に属する15新種等の記録
 ―第6報 多摩本流より6月に採集されたエリユスリカ亜科の各種について
 ―第7報 多摩本流より3月に採集されたユスリカ科の各種について)
- 第44号 スモッグチャンバーによる炭化水素-窒素酸化物系光化学反応の研究――環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究(フィールド研究2)――昭和54年度 特別研究中間報告。(1983)
- 第45号 有機廃棄物、合成有機化合物、重金属等の土壌生態系に及ぼす影響と浄化に関する研究――昭和53～55年度 特別研究総合報告。(1983)
- 第46号 有機廃棄物、合成有機化合物、重金属等の土壌生態系に及ぼす影響と浄化に関する研究――昭和54、55年度 特別研究報告 第1分冊。(1983)
- 第47号 有機廃棄物、合成有機化合物、重金属等の土壌生態系に及ぼす影響と浄化に関する研究――昭和54、55年度 特別研究報告 第2分冊。(1983)
- ※第48号 水質観測点の適正配置に関するシステム解析。(1983)
- 第49号 環境汚染の遠隔計測・評価手法の開発に関する研究――昭和57年度 特別研究報告。(1984)
- ※第50号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(I)――霞ヶ浦の流入負荷量の算定と評価――昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)

- ※第51号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅱ)―霞ヶ浦の物質循環とそれを支配する因子―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- ※第52号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅲ)―霞ヶ浦高浜入における隔離水界を利用した富栄養化防止手法の研究―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- 第53号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅳ)―霞ヶ浦の魚類及び甲かく類現存量の季節変化と富栄養化―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- 第54号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅴ)―霞ヶ浦の富栄養化現象のモデル化―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- 第55号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅵ)―富栄養化防止対策―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- 第56号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅶ)―湯ノ湖における富栄養化とその防止対策―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- ※第57号 陸水域の富栄養化防止に関する総合研究(Ⅷ)―総括報告―昭和55～57年度 特別研究報告。(1984)
- 第58号 環境試料による汚染の長期的モニタリング手法に関する研究―昭和55～57年度 特別研究総合報告。(1984)
- 第59号 炭化水素-窒素酸化物-硫黄酸化物系光化学反応の研究―光化学スモッグチャンバーによるオゾン生成機構の研究―大気中における有機化合物の光酸化反応機構の研究―昭和55～57年度 特別研究報告(第1分冊)。(1984)
- 第60号 炭化水素-窒素酸化物-硫黄酸化物系光化学反応の研究―光化学エアロゾル生成機構の研究―昭和55～57年度 特別研究報告(第2分冊)。(1984)
- 第61号 炭化水素-窒素酸化物-硫黄酸化物系光化学反応の研究―環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究(フィールド研究1)―昭和55～57年度 特別研究報告(第3分冊)。(1984)
- 第62号 有害汚染物質による水界生態系のかく乱と回復過程に関する研究―昭和56～58年度 特別研究中間報告。(1984)
- 第63号 海域における富栄養化と赤潮の発生機構に関する基礎的研究―昭和56年度 特別研究報告。(1984)
- ※第64号 複合大気汚染の植物影響に関する研究―昭和54～56年度 特別研究総合報告。(1984)
- ※第65号 Studies on effects of air pollutant mixtures on plants―Part 1。(1984)
(複合大気汚染の植物に及ぼす影響―第1分冊)
- ※第66号 Studies on effects of air pollutant mixtures on plants―Part 2。(1984)
(複合大気汚染の植物に及ぼす影響―第2分冊)
- 第67号 環境中の有害物質による人の慢性影響に関する基礎的研究―昭和54～56年度 特別研究総合報告。(1984)
- ※第68号 汚泥の土壤還元とその環境影響に関する研究―昭和56～57年度 特別研究報告。(1984)
- ※第69号 中禅寺湖の富栄養化現象に関する基礎的研究。(1984)
- 第70号 Studies on chironomid midges in lakes of the Nikko National Park。(1984)
Part I. Ecological studies on chironomids in lakes of the Nikko National Park.
Part II. Taxonomical and morphological studies on the chironomid species collected from lakes in the Nikko National Park.
(日光国立公園の湖沼のユスリカに関する研究
―第1部 日光国立公園の湖のユスリカの生態学的研究
―第2部 日光国立公園の湖沼に生息するユスリカ類の分類学的、生態学的研究)
- ※第71号 リモートセンシングによる残雪及び雪田植生の分布解析。(1984)
- 第72号 炭化水素-窒素酸化物-硫黄酸化物系光化学反応の研究―環境大気中における光化学二次汚染物質生成機構の研究(フィールド研究2)―昭和55～57年度 特別研究報告(第4分冊)。(1985)
- ※第73号 炭化水素-窒素酸化物-硫黄酸化物系光化学反応の研究―昭和55～57年度 特別研究総合報告。(1985)
- ※第74号 都市域及びその周辺の自然環境に係る環境指標の開発に関する研究。環境指標―その考え方と作成方法―昭和59年度 特別研究報告。(1984)
- 第75号 Limnological and environmental studies of elements in the sediment of Lake Biwa。(1985)
(琵琶湖底泥中の元素に関する陸水学及び環境化学的研究)
- 第76号 A study on the behavior of monoterpenes in the atmosphere。(1985)
(大気中モノテルペンの挙動に関する研究)
- 第77号 環境汚染の遠隔計測・評価手法の開発に関する研究―昭和58年度 特別研究報告。(1985)
- 第78号 生活環境保全に果たす生活者の役割の解明。(1985)
- 第79号 Studies on the method for long term environmental monitoring―Research report in 1980-1982。(1985)
(環境試料による汚染の長期的モニタリング手法に関する研究)
- ※第80号 海域における赤潮発生のモデル化に関する研究―昭和57/58年度 特別研究報告。(1985)

- 第81号 環境影響評価制度の政策効果に関する研究—地方公共団体の制度運用を中心として。(1985)
- 第82号 植物の大気環境浄化機能に関する研究—昭和57~58年度 特別研究報告。(1985)
- 第83号 Studies on chironomid midges of some lakes in Japan.(1985)
(日本の湖沼のユスリカの研究)
- 第84号 重金属環境汚染による健康影響評価手法の開発に関する研究—昭和57~59年度 特別研究総合報告。(1985)
- 第85号 Studies on the rate constants of free radical reactions and related spectroscopic and thermochemical parameters.(1985)
(フリーラジカルの反応速度と分光学的及び熱力学的パラメーターに関する研究)
- 第86号 GC/MSスペクトルの検索システムに関する研究。(1986)
- 第87号 光化学二次汚染物質の分析とその細胞毒性に関する研究—昭和53~58年度 総合報告。(1986)
- 第88号 都市域及びその周辺の自然環境等に係る環境指標の開発に関する研究Ⅱ。環境指標—応用例とシステム—昭和59年度 特別研究報告。(1986)
- 第89号 Measuring the water quality of Lake Kasumigaura by LANDSAT remote sensing.(1986)
(LANDSATリモートセンシングによる霞ヶ浦の水質計測)
- 第90号 ナショナルトラスト運動にみる自然保護にむけての住民意識と行動—知床国立公園内100平方メートル運動と天神崎市民地主運動への参加者の分析を中心として。(1986)
- 第91号 Economic analysis of man's utilization of environmental resources in aquatic environments and national park regions.(1986)
(人間による環境資源利用の経済分析—水環境と国立公園地域を対象にして)
- 第92号 アオコの増殖及び分解に関する研究。(1986)
- 第93号 汚泥の土壌還元とその環境影響に関する研究(Ⅰ)—昭和58~59年度 特別研究総合報告第1分冊。(1986)
- 第94号 汚泥の土壌還元とその環境影響に関する研究(Ⅱ)—昭和58~59年度 特別研究総合報告第2分冊。(1986)
- 第95号 自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(Ⅰ)—汚濁負荷の発生と流出・流達—昭和58~59年度 特別研究報告。(1986)
- ※第96号 自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(Ⅱ)—水草帯・河口域・池沼の生態系構造と機能—昭和58~59年度 特別研究報告。(1986)
- 第97号 自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(Ⅲ)—水路及び土壌による水質の浄化—昭和58~59年度 特別研究報告。(1986)
- 第98号 自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(Ⅳ)—自然浄化機能を活用した処理技術の開発と応用—昭和58~59年度 特別研究報告。(1986)
- 第99号 有害汚染物質による水界生態系のかく乱と回復過程に関する研究—昭和56~59年度 特別研究総合報告。(1986)
- 第100号 バックグラウンド地域における環境汚染物質の長期モニタリング手法の研究—特定汚染選択的検出法及び高感度分析技術の開発—昭和58~60年度 特別研究報告。(1986)
- 第101号 複合ガス状大気汚染物質の生体影響に関する実験的研究—昭和57~60年度 特別研究報告。(1986)
- 第102号 地球規模大気質変動に関する予備的研究。(1986)
- 第103号 環境調和型技術としての電気自動車の評価に関する基礎的研究。(1987)
- 第104号 Studies on chironomid midges in lakes of the Akan National Park.(1987)
(北海道阿寒国立公園の湖におけるユスリカ相の研究)
- 第105号 畑地土壌における水分と諸元素の動態。(1987)
- ※第106号 筑波研究学園都市における景観評価と景観体験に関する研究。(1987)
- 第107号 遠隔計測による環境動態の評価手法の開発に関する研究—昭和59~60年度 特別研究報告。(1987)
- 第108号 植物の大気環境浄化機能に関する研究—昭和57~60年度 特別研究総合報告。(1987)
- 第109号 地域環境評価のための環境情報システムに関する研究。(1987)
- 第110号 海域における赤潮発生モデル化に関する研究—昭和59~60年度 特別研究総合報告。(1987)
- 第111号 Application of X-Ray Photoelectron Spectroscopy to the Study of Silicate Minerals.(1987)
(ケイ酸塩鉱物研究へのX線光電子分光法の応用)
- 第112号 光化学汚染大気中における有機エアロゾルに関する研究—有機エアロゾルの生成と挙動に関する研究—昭和58~61年度 特別研究報告。(1988)
- 第113号 光化学汚染大気中における有機エアロゾルに関する研究—昭和58~61年度 特別研究総合報告。(1988)
- 第114号 水界生態系に及ぼす有害汚染物質の影響評価に関する研究—昭和60~61年度 特別研究

- 総合報告。(1988)
- 第115号 複合ガス状大気汚染物質の生体影響に関する実験的研究――昭和57～61年度 特別研究総合報告。(1988)
- 第116号 自然浄化機能による水質改善に関する総合研究(V)――汚濁負荷の発生と流出・流達――昭和58～61年度 特別研究報告。(1988)

※ 残部なし

Report of Special Research Project the National Institute for Environmental Studies

- No. 1* Man activity and aquatic environment—with special references to Lake Kasumigaura—Progress report in 1976. (1977)
- No. 2* Studies on evaluation and amelioration of air pollution by plants—Progress report in 1976-1977. (1978)

[Starting with Report No. 3, the new title for NIES Reports was changed to:]

Research report from the National Institute for Environmental Studies

- ※No. 3 A comparative study of adults and immature stages of nine Japanese species of the genus *Chironomus*(Diptera, Chironomidae). (1978)
- No. 4* Smog chamber studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides system—Progress report in 1977. (1978)
- No. 5* Studies on the photooxidation products of the alkylbenzene-nitrogen oxides system, and on their effects on cultured cells—Research report in 1976-1977. (1978)
- No. 6* Man activity and aquatic environment—with special references to Lake Kasumigaura—Progress report in 1977-1978. (1979)
- ※No. 7 A morphological study of adults and immature stages of 20 Japanese species of the family Chironomidae(Diptera). (1979)
- ※No. 8* Studies on the biological effects of single and combined exposure of air pollutants—Research report in 1977-1978. (1979)
- No. 9* Smog chamber studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides system—Progress report in 1978. (1979)
- No. 10* Studies on evaluation and amelioration of air pollution by plants—Progress report in 1976-1978. (1979)
- ※No. 11 Studies on the effects of air pollutants on plants and mechanisms of phytotoxicity. (1980)
- No. 12 Multielement analysis studies by flame and inductively coupled plasma spectroscopy utilizing computer-controlled instrumentation. (1980)
- No. 13 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1980)
Part 1. The distribution of chironomid species in a tributary in relation to the degree of pollution with sewage water.
Part 2. Description of 20 species of Chironominae recovered from a tributary.
- No. 14* Studies on the effects of organic wastes on the soil ecosystem—Progress report in 1978-1979. (1980)
- ※No. 15* Studies on the biological effects of single and combined exposure of air pollutants—Research report in 1979. (1980)
- No. 16* Remote measurement of air pollution by a mobile laser radar. (1980)
- ※No. 17* Influence of buoyancy on fluid motions and transport processes—Meteorological characteristics and atmospheric diffusion phenomena in the coastal region—Progress report in 1978-1979. (1980)
- No. 18 Preparation, analysis and certification of PEPPERBUSH standard reference material. (1980)
- ※No. 19* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Lake current of Kasumigaura(Nishiura)—1978-1979. (1981)
- No. 20* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Geomorphological and hydrometeorological characteristics of Kasumigaura watershed as related to the lake environment—1978-1979. (1981)
- No. 21* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Variation of pollutant load by influent rivers to Lake Kasumigaura—1978-1979. (1981)
- No. 22* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Structure of ecosystem and standing crops in Lake Kasumigaura—1978-1979. (1981)
- No. 23* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Applicability of trophic state indices for lakes—1978-1979. (1981)
- No. 24* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Quantitative analysis of eutrophication effects on main utilization of lake water resources—1978-1979. (1981)
- No. 25* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Growth characteristics of Blue-Green Algae, *Mycrocystis*—1978-1979. (1981)
- No. 26* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Determination of algal growth potential by algal assay procedure—1978-1979. (1981)

- No. 27* Comprehensive studies on the eutrophication of fresh-water areas—Summary of researches—1978-1979. (1981)
- No. 28* Studies on effects of air pollutant mixtures on plants—Progress report in 1979-1980. (1981)
- No. 29 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1981)
Part 3. Species of the subfamily Orthoclaadiinae recorded at the summer survey and their distribution in relation to the pollution with sewage waters.
Part 4. Chironomidae recorded at a winter survey.
- ※No. 30* Eutrophication and red tides in the coastal marine environment — Progress report in 1979-1980. (1982)
- No. 31* Studies on the biological effects of single and combined exposure of air pollutants—Research report in 1980. (1981)
- No. 32* Smog chamber studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides system—Progress report in 1979—Research on the photochemical secondary pollutants formation mechanism in the environmental atmosphere (Part 1). (1982)
- No. 33* Meteorological characteristics and atmospheric diffusion phenomena in the coastal region—Simulation of atmospheric motions and diffusion processes — Progress report in 1980. (1982)
- ※No. 34* The development and evaluation of remote measurement methods for environmental pollution—Research report in 1980. (1982)
- No. 35* Comprehensive evaluation of environmental impacts of road and traffic. (1982)
- ※No. 36* Studies on the method for long term environmental monitoring—Progress report in 1980-1981. (1982)
- ※No. 37* Study on supporting technology for systems analysis of environmental policy — The Evaluation Laboratory of Man-Environment Systems. (1982)
- No. 38 Preparation, analysis and certification of POND SEDIMENT certified reference material. (1982)
- ※No. 39* The development and evaluation of remote measurement methods for environmental pollution—Research report in 1981. (1983)
- No. 40* Studies on the biological effects of single and combined exposure of air pollutants—Research report in 1981. (1983)
- ※No. 41* Statistical studies on methods of measurement and evaluation of chemical condition of soil—with special reference to heavy metals—. (1983)
- ※No. 42* Experimental studies on the physical properties of mud and the characteristics of mud transportation. (1983)
- ※No. 43 Studies on chironomid midges of the Tama River. (1983)
Part 5. An observation on the distribution of Chironominae along the main stream in June, with description of 15 new species.
Part 6. Description of species of the subfamily Orthoclaadiinae recovered from the main stream in the June survey.
Part 7. Additional species collected in winter from the main stream.
- No. 44* Smog chamber studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides system—Progress report in 1979—Research on the photochemical secondary pollutants formation mechanism in the environmental atmosphere (Part 2). (1983)
- No. 45* Studies on the effect of organic wastes on the soil ecosystem—Outlines of special research project—1978-1980. (1983)
- No. 46* Studies on the effect of organic wastes on the soil ecosystem—Research report in 1979-1980, Part 1. (1983)
- No. 47* Studies on the effect of organic wastes on the soil ecosystem—Research report in 1979-1980, Part 2. (1983)
- No. 48* Study on optimal allocation of water quality monitoring points. (1983)
- No. 49* The development and evaluation of remote measurement method for environmental pollution—Research report in 1982. (1984)
- ※No. 50* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Estimation of input loading of Lake Kasumigaura—1980-1982. (1984)
- ※No. 51* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—The function of the ecosystem and significance of sediment in nutrient cycle in Lake Kasumigaura—1980-1982. (1984)
- ※No. 52* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Enclosure experiments for restoration of highly eutrophic shallow Lake Kasumigaura—1980-1982. (1984)
- No. 53* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Seasonal

- changes of the biomass of fishes and crustacia in Lake Kasumigaura—1980-1982. (1984)
- No. 54* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Modeling the eutrophication of Lake Kasumigaura—1980-1982. (1984)
- No. 55* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Measures for eutrophication control—1980-1982. (1984)
- No. 56* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Eutrophication in Lake Yunoko—1980-1982. (1984)
- ※No. 57* Comprehensive studies on the eutrophication control of freshwaters—Summary of researches—1980-1982. (1984)
- No. 58* Studies on the method for long term environmental monitoring — Outlines of special research project in 1980-1982. (1984)
- No. 59* Studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides-sulfur oxides system — Photochemical ozone formation studied by the evacuable smog chamber—Atmospheric photooxidation mechanisms of selected organic compounds — Research report in 1980-1982, Part 1. (1984)
- No. 60* Studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides-sulfur oxides system—Formation mechanisms of photochemical aerosol—Research report in 1980-1982, Part 2. (1984)
- No. 61* Studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides-sulfur oxides system — Research on the photochemical secondary pollutants formation mechanism in the environmental atmosphere (Part 1) — Research report in 1980-1982, Part 3. (1984)
- No. 62* Effects of toxic substances on aquatic ecosystems — Progress report in 1980-1983. (1984)
- ※No. 63* Eutrophication and red tides in the coastal marine environment — Progress report in 1981. (1984)
- ※No. 64* Studies on effects of air pollutant mixtures on plants—Final report in 1979-1981. (1984)
- ※No. 65 Studies on effects of air pollutant mixtures on plants—Part 1. (1984)
- ※No. 66 Studies on effects of air pollutant mixtures on plants—Part 2. (1984)
- No. 67* Studies on unfavourable effects on human body regarding to several toxic materials in the environment, using epidemiological and analytical techniques—Project research report in 1979-1981. (1984)
- ※No. 68* Studies on the environmental effects of the application of sewage sludge to soil—Research report in 1981-1983. (1984)
- ※No. 69 Fundamental studies on the eutrophication of Lake Chuzenji — Basic research report. (1984)
- No. 70 Studies on chironomid midges in lakes of the Nikko National Park
Part I. Ecological studies on chironomids in lakes of the Nikko National Park.
Part II. Taxonomical and morphological studies on the chironomid species collected from lakes in the Nikko National Park. (1984)
- ※No. 71* Analysis on distributions of remnant snowpack and snow patch vegetation by remote sensing. (1984)
- No. 72* Studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides-sulfur oxides system—Research on the photochemical secondary pollutants formation mechanism in the environmental atmosphere — Research report in 1980-1982, Part 4. (1985)
- ※No. 73* Studies on photochemical reactions of hydrocarbon-nitrogen oxides-sulfur oxides system—Final report in 1980-1982. (1985)
- ※No. 74* A comprehensive study on the development of indices system for urban and suburban environmental quality—Environmental indices—Basic notion and formation. (1984)
- No. 75 Limnological and environmental studies of elements in the sediment of Lake Biwa. (1985)
- No. 76 A study on the behavior of monoterpenes in the atmosphere. (1985)
- No. 77* The development and evaluation of remote measurement methods for environmental pollution—Research report in 1983. (1985)
- No. 78* Study on residents' role in conserving the living environment. (1985)
- No. 79 Studies on the method for long term environmental monitoring—Research report in 1980-1982. (1985)
- No. 80* Modeling of red tide blooms in the coastal sea—Research report in 1982-1983. (1985)

- No. 81* A studies on effects of implementing environmental impact assessment procedure
—With particular reference to implementation by local governments. (1985)
- No. 82* Studies on the role of vegetation as a sink of air pollutants—Research report
in 1982-1983. (1985)
- No. 83 Studies on chironomid midges of some lakes in Japan. (1985)
- No. 84* A comprehensive study on the development of assessment techniques for health
effects due to environmental heavy metal exposure—Final report in 1982-1984.
(1985)
- No. 85 Studies on the rate constants of free radical reactions and related spectro-
scopic and thermochemical parameters. (1985)
- No. 86* A novel retrieval system for identifications of unknown mass spectra. (1986)
- No. 87* Analysis of the photochemical secondary pollutants and their toxicity on
cultured cells—Research report in 1978-1983. (1986)
- No. 88* A comprehensive study on the development of indices systems for urban and
suburban environmental quality II —Environmental indices—Applications and
systems. (1986)
- No. 89 Measuring the water quality of Lake Kasumigaura by LANDSAT remote sensing.
(1986)
- No. 90* National trust movement in Japanese nature conservation — Trustworthy or
illusion?(1986)
- No. 91 Economic analysis of man's utilization of environmental resources in aquatic
environments and national park regions. (1986)
- No. 92* Studies on the growth and decomposition of water-bloom of Microcystis. (1986)
- No. 93* Studies on the environmental effects of the application of sewage sludge to
soil(I)—Research report and papers(Part 1)in 1983-1984. (1986)
- No. 94* Studies on the environmental effects of the application of sewage sludge to
soil(II)—Research report and papers(Part 2)in 1983-1984. (1986)
- No. 95* Comprehensive studies on effective use of natural ecosystems for water quality
management(I)—Drainage and flowing down of pollutant load— Research report
in 1983-1984. (1986)
- ※ No. 96* Comprehensive studies on effective use of natural ecosystems for water quality
management(II)—Structure and function of the ecosystems of littoral zone —
Research report in 1983-1984. (1986)
- No. 97* Comprehensive studies on effective use of natural ecosystems for water quality
management(III)—Self-purification in stream and soil—Research report in 1983-
1984. (1986)
- No. 98* Comprehensive studies on effective use of natural ecosystems for water quality
management(IV)—Development and application of wastewater treatment technolo-
gies utilizing self-purification ability—Research report in 1983-1984. (1986)
- No. 99* Effects of toxic substances on aquatic ecosystems—Final report in 1981-1984.
(1986)
- No. 100* Studies on the methods for long-term monitoring of environmental pollutants in
the background regions—Development of highly sensitive and selective analyt-
ical methods for measurement of pollutants in the background regions—Progress
report in 1983-1985. (1986)
- No. 101* Experimental studies on the effects of gaseous air pollutants in combination
on animals. (1986)
- No. 102* A review on studies of the global scale air quality perturbation. (1986)
- No. 103* Technological assessment of electric vehicle from the environmental protection
viewpoint. (1987)
- No. 104 Studies on chironomid midges in lakes of the Akan National Park. (1987)
Part I. Distribution of chironomid larvae in Lake Akan, Lake Panke and Lake
Kussyaro.
Part II. Chironomid midges collected on the shore of lakes in the Akan National
Park, Hokkaido(Diptera, Chironomidae)
- No. 105* Formulation of the dynamic behavior of water and solites leaching through the
field soil. (1987)
- ※ No. 106* Appraised landscape and thier environmental value in Tsukuba Science City.
(1987)
- No. 107* Studies on remote sensing for spatial and temporal analysis of environment —
Research report in 1984-1985. (1987)
- No. 108* Studies on the role of vegetation as a sink of air pollutants—Final report in
1982-1985. (1987)

- No.109* Studies on environmental information system for regional environmental evaluation. (1987)
- No.110* Modeling of Red Tide Blooms in the Coastal Sea - Final report in 1984-1985. (1987)
- No.111 Application of X-Ray Photoelectron Spectroscopy to the Study of Silicate Minerals. (1987)
- No.112* Study on the Organic Aerosols in the Photochemically Polluted Air - Studies on Formation and Behavior of Organic Aerosols - Research report in 1983-1986. (1988)
- No.113* Study on the Organic Aerosols in the Photochemically Polluted Air - Final report in 1983-1985. (1988)
- No.114* Studies on the Assessment of the Hazard of Chemical Substances to Aquatic Ecosystems - Progress report in 1985-1986. (1988)
- No.115* Experimental Studies on the Effects of Gaseous Air Pollutants in Combination on Animals - Final report in 1982-1986. (1988)
- No.116* Comprehensive Studies on Effective Use of Natural Ecosystems for Water Quality Management(V)-Drainage and Flowing Down of Pollutant Load- Research report in 1983-1986. (1988)

* in Japanese

※ out of stock

[昭和62年11月30日受領]

RESEARCH REPORT FROM
THE NATIONAL INSTITUTE FOR ENVIRONMENTAL STUDIES, JAPAN

No.116

国立公害研究所研究報告 第116号
(R-116-'88)

昭和63年3月31日 発行

発行 環境庁 国立公害研究所

〒305 茨城県つくば市小野川16番2

〒319-12 印刷 HEC印刷株式会社

茨城県日立市大みか町5-1-26

Published by the National Institute for Environmental Studies
16-2 Onogawa, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan
March 1988