

# 斐伊川汚濁負荷量の実態把握に関する研究

宮廻 隆洋

# 目次

要旨	・・・	1
第1章 序章		
1-1 はじめに	・・・	3
1-2 研究背景	・・・	5
1-3 研究の目的及び意義	・・・	8
1-4 論文の構成	・・・	11
第2章 日本海側河川に対する中国大陸からの越境汚染		
2-1 はじめに	・・・	13
2-2 方法	・・・	14
2-3 結果	・・・	16
2-4 考察	・・・	25
第3章 斐伊川における L-Q 式への二次式の適用と実測負荷の比較		
3-1 はじめに	・・・	25
3-2 方法	・・・	28
3-3 結果	・・・	31
3-4 考察	・・・	37
第4章 中国大陸由来の大気降下物による斐伊川の窒素・リン濃度の長期的変化		
4-1 はじめに	・・・	42
4-2 方法	・・・	44

4-3	結果	・・・	48
4-4	考察	・・・	58
第5章 斐伊川放水路による宍道湖へ流入する栄養塩負荷の削減			
5-1	はじめに	・・・	62
5-2	方法	・・・	64
5-3	結果及び考察	・・・	65
第6章 まとめ			
6-1	まとめ	・・・	70
6-2	水質改善に向けた今後の課題	・・・	72
参考文献			・・・ 76
謝辞			・・・ 86

## 要旨

湖沼水質保全特別措置法により指定湖沼となっている宍道湖は、5期25年に渡る水質保全計画において様々な水質改善のための対策が行われたことで、流入する汚濁負荷量は確実に削減された。しかし、近年の宍道湖はアオコの大量発生などの影響で栄養塩濃度が高めに推移しており、汚濁負荷の削減が必ずしも水質改善に結びついていないのが現状である。その要因の一つとして原単位法によって求められている汚濁負荷量が実態と乖離している可能性が考えられる。斐伊川は宍道湖へ流入する水量の約7割を占めていることから、斐伊川の汚濁負荷量の実態を正確に把握することは宍道湖・中海の水質改善を目指すうえで欠かすことができない。

本研究では、2010年7月～2011年6月にかけて斐伊川神立橋で行った365日の高頻度調査結果を基に、過去に行われた同様の調査と比較しながら斐伊川の現在の水質についての実態把握(①)、流量と負荷量の関係から求めたL-Q式に関して実測負荷量との相関性の向上(②)を行うとともに、近年問題になっている中国大陸からの越境汚染による斐伊川の水質に対する影響の検証(③)、2013年6月に完成した斐伊川放水路による宍道湖へ流入する汚濁負荷削減効果の試算(④)を行った。

今回の解析によって得られた成果は以下のとおりである。

- ① 今回の調査では、2001～2002年の調査に比べて $\text{NO}_3\text{-N}$ の年平均濃度が $0.38 \text{ mg L}^{-1}$ から $0.50 \text{ mg L}^{-1}$ に増加した。特に、偏西風の強い冬季(12～3月)には $0.44 \text{ mg L}^{-1}$ から $0.67 \text{ mg L}^{-1}$ へと大きく増加しており、中国大陸からの越境汚染の影響が考えられた。
- ② TP負荷量を従来の流量との関係式(一次式)から求めた場合、実測負荷量よりも低めとなった。これはTP濃度が出水時に土壌からの流出などで著しく増加するためであり、その影響を考慮して二次式を適用することで従来の一次式よりも相関性が向上し、実測負荷量に近い計算結果が得られた。

- ③ 降水及び斐伊川の TN は寒候期（11～3 月）に高いが、TP は反対に暖候期（4～10 月）で高かった。11 年間のトレンド解析において、TP は降水フラックスと斐伊川河川水濃度で明らかな増加傾向が見られたことから、中国大陸由来の大気降下物が窒素だけでなくリンにおいても斐伊川の河川水質に影響していることが示唆された。
- ④ 斐伊川放水路が当初からあったと仮定すると、TN と TP 負荷量の 30 年間の合計削減量はそれぞれ 2.8%、11.6%となった。TP 負荷量の削減効果は大きく、斐伊川放水路の運用が始まったことで、TN：TP 比が低下傾向にある宍道湖の TN：TP 比を逆に上昇させる可能性があることが分かった。

水質改善に向けた今後の課題として、汚濁メカニズム解明に向けた各種調査の継続のほか、汚濁負荷源として割合の大きい山林・農地負荷に関しては出水時における濁水源を特定し、効率の良い対策を行う必要があると思われる。また、現状では水質環境基準が達成困難な状況が続いていることを鑑み、県民にとっての宍道湖のあるべき姿を明確化し、それを目指すための宍道湖特有の基準値を設定（6 期計画では地域住民参加型の五感指標評価を採用）するべきである。さらに、2013 年 6 月に完成した斐伊川放水路が汚濁負荷削減対策の観点からも効果的であること、ヤマトシジミが湖内の生態系において大きな役割を持つうえ漁獲によって栄養塩の湖外への持ち出しも期待できるため、資源量を一定水準で確保することも重要であると考えられる。

## 第1章 序章

### 1-1 はじめに

島根県東部を流れる斐伊川は、仁多郡奥出雲町にある船通山を源流とする流域総面積 2,070 km<sup>2</sup> の一級河川であり、その流域は森林部分が 8 割ほど占めている。下流部には宍道湖と中海の 2 つの汽水湖が存在し、それらは大橋川を經由して繋がっており、最終的には中海から境水道を経て日本海へ注いでいる。斐伊川は大規模な洪水によりこれまでに幾度かその流路を変えており、江戸時代の 2 度の洪水を契機に出雲平野の西部方向を流れ大社湾に注いでいた流路が東向きに変わり、現在のように宍道湖へ注ぐようになった。宍道湖へ流入する河川は他にもいくつか存在するが、斐伊川からの流入量が圧倒的に多く、宍道湖全体の 7 割ほどを占めている。

宍道湖、中海はそれぞれ日本で 7 番目、5 番目の湖面積を持つ湖であると同時に、汽水湖としてもそれぞれ 3 番目、2 番目の面積を誇り、両湖合わせると日本最大の汽水湖である。宍道湖七珍や中海八珍で代表されるように、汽水湖という特殊な環境から多種多様な生物が生息している。特に、宍道湖はヤマトシジミの一大産地として全国的にもその知名度は高い。かつては都市部において圧倒的なシェアを誇っていたが、近年は漁獲量が大きく減少したため、一時期は青森県の十三湖に漁獲量を抜かれて第 2 位となっていた。現在はやや資源量が回復したことで 2014 年度に 4 年ぶりに漁獲量第 1 位に返り咲いたが、最盛期だった 1970～80 年代に比べるとその資源量は 2 割程度に留まっている。

また、両湖は国内有数の水鳥の越冬地であり、マガン、キンクロハジロ、スズガモなどが毎年 4 万羽以上飛来するほか、コハクチョウの越冬地の南限としても知られている。2005 年 11 月に両湖がラムサール条約登録湿地に登録されたことで、世界的にも重要な湿地であることが認められた。2015 年には登録 10 周年を記念し、島根県と鳥取県でそれぞれ記念行事が開催された。両湖は流域に生活する県民のみならず、世

界的にもかけがえのない湖であるため、後世に残していくことが重要である。

## 1-2 研究背景

宍道湖、中海は1955年頃までは泳ぐことが可能なほどきれいな水質だったが、高度経済成長期に水質が急速に悪化してきた。全国的に水質の悪化が深刻な問題となったことから、国は1970年に水質汚濁防止法を制定し、工場や事業場からの排水に対し排水基準を定め、1971年には公共用水域の水質汚濁に係る環境基準も定めた。その後は、科学的知見の蓄積や排出量の推移などを踏まえ、法改正により項目の追加や基準の強化がなされている。行政や事業者が基準達成に向けて様々な水質保全対策に取り組んできた結果、以前の水質よりもかなり改善されてきた。環境省がとりまとめている全国の公共用水域調査結果によれば、1974年で水質環境基準（BODもしくはCOD）の達成率は54.9%であったが、2013年では87.3%まで上昇している。河川での達成率が51.3%→92.0%と大幅に水質が改善されている一方で、湖沼においては41.9%→55.1%とそれほど水質改善が進んでいない。この理由の一つとして、海域や河川は汚濁負荷が流入してもすぐに拡散しやすい開放系であるのに対し、湖沼は閉鎖系の水域であり滞留時間も長いので流入した汚濁負荷が残りやすいという特殊性によるものであると考えられている。

全国的に湖沼の水質環境基準の達成率が特に低いことを受け、一段進んだ水質保全対策が必要との判断により湖沼水質保全特別措置法（以下：湖沼法）が1984年に制定された。湖沼法では、都道府県知事の申し出を受けた環境大臣が特に対策が必要な湖沼として“指定湖沼”に定めることができる。2015年現在、宍道湖・中海を含めた11湖沼が指定湖沼となっている。

指定湖沼では、周辺自治体が水質保全のための方針やそれに資する事業等を1期5ヵ年の水質保全計画として定める必要がある。宍道湖・中海は1988年に指定湖沼に指定され、1989年には第1期水質保全計画が策定された。以降は5期25年に渡って、1期ごとに水質目標値を定め、その達成に向けた様々な施策を実施してきた。具体的には、①下水道、農業集落排水、浄化槽等の生活排水処理施設の整備、②宍道湖・



中海流域における事業場排水規制、③化学肥料の減肥化や新しい耕作法の開発による農業負荷の削減などである。その結果、1988年当時の汚濁負荷量に比べて2014年度の汚濁負荷量は減少した(Fig. 1-1)が、実際の水質の経年変化を見る限りでは(Fig. 1-2)、そうした汚濁負荷量の減少が水質には反映されていないように思われる。

さらに近年の宍道湖では、藍藻類の *Coelosphaerium kuetzingianum* によるカビ臭(ジェオスミン)が2007~2009年に発生し、2010~2012年にかけてはガス臭(2-プロパンチオール)を持つ藍藻類のアオコ(*Microcystis* sp.)の大発生、水草の異常繁茂等今までは見られなかった状況が連続して観測されたこともあってか、直近の数年は水質がやや高めの状況が続いていた。

また、隣国である中国では著しい経済発展を遂げた代償として、かつての日本のような水質汚濁や大気汚染の深刻な被害が発生している。特に窒素酸化物(NOx)や硫黄酸化物(SOx)などの大気汚染物質が、黄砂と同じように偏西風に乗って日本海を超えて日本にも影響していることは周知の事実である。こうした大気汚染物質が雨とともに降下して、やがて日本の河川や湖の水質に影響することは想像に難くない

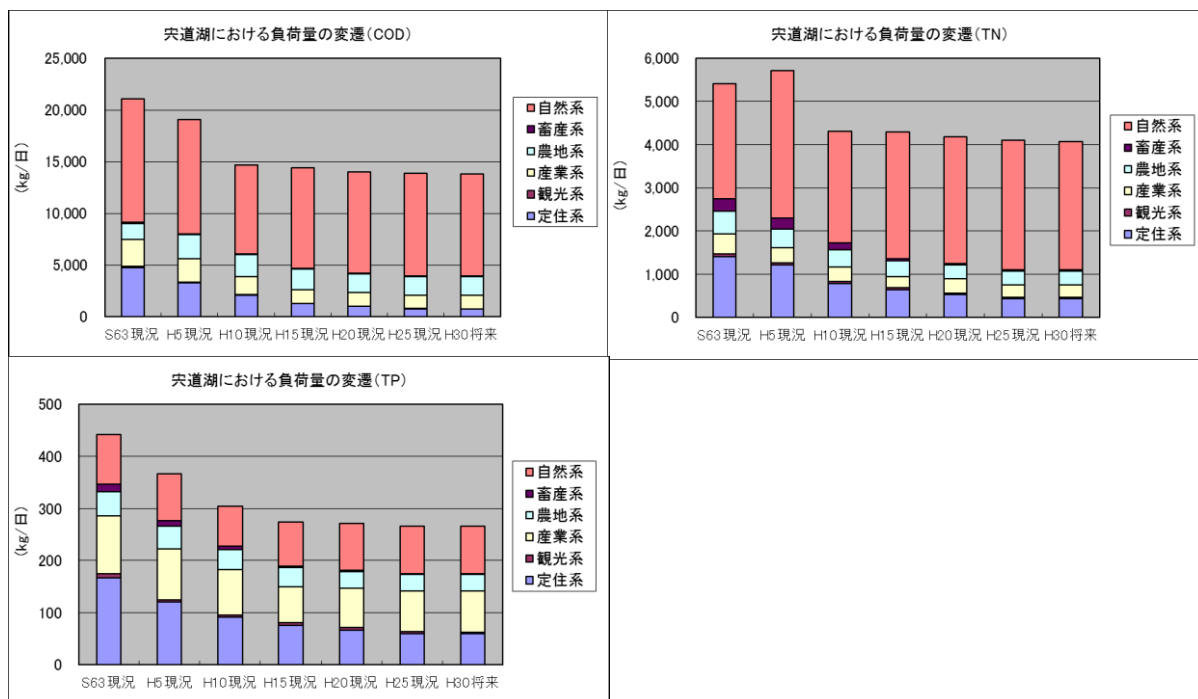


Fig. 1-1 宍道湖における流入負荷量の変遷

※宍道湖に係る湖沼水質保全計画(第6期)巻末資料より抜粋

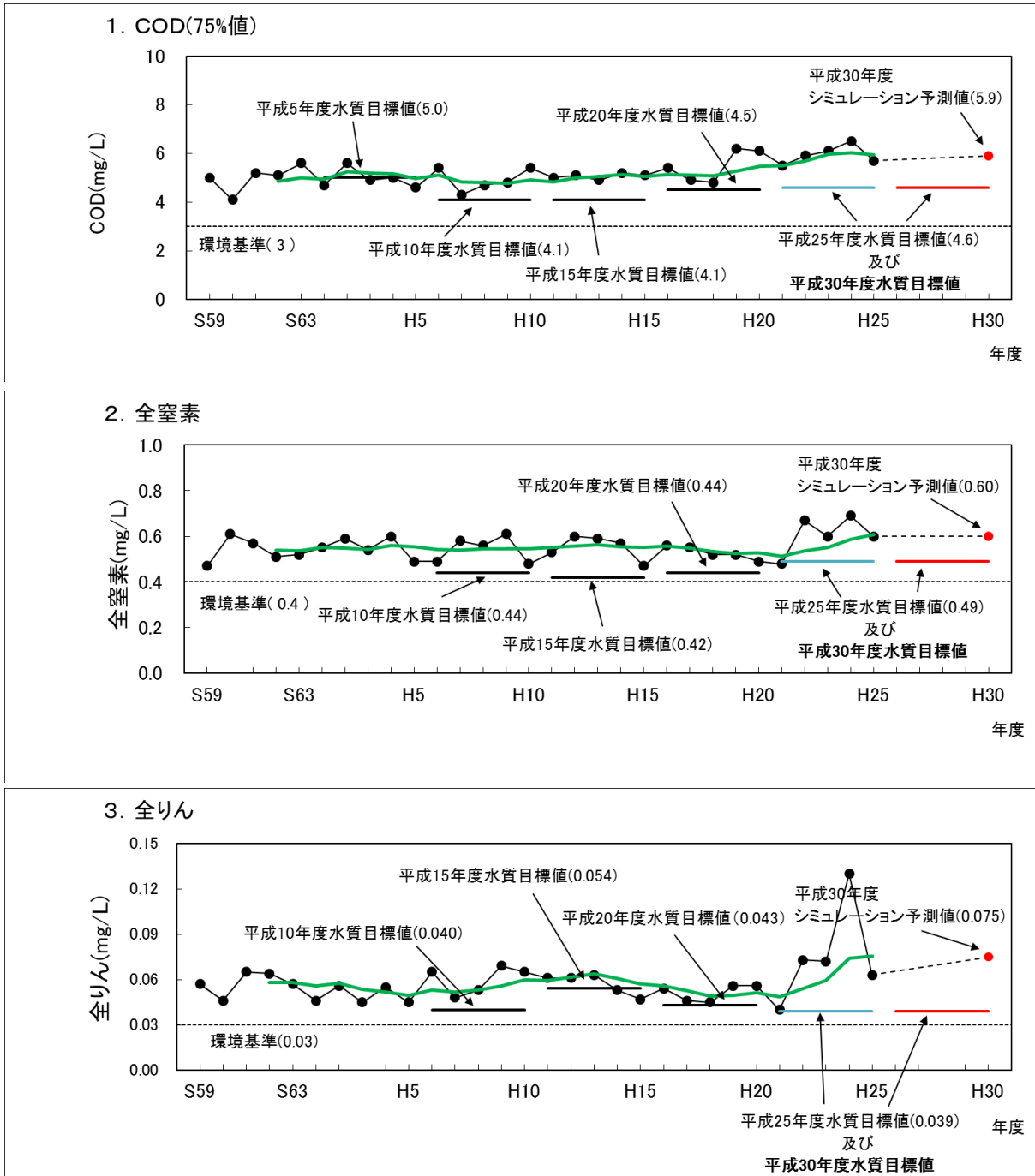


Fig. 1-2 宍道湖における水質環境基準項目（COD、TN、TP）の経年変化

※宍道湖に係る湖沼水質保全計画（第6期）巻末資料より抜粋

### 1-3 研究の目的及び意義

一般に水質悪化は有機物や窒素、リンといった栄養塩の増加によるものだが、その要因として内部負荷と外部負荷の2種類が考えられる。内部負荷は湖底から溶出した栄養塩を基に赤潮やアオコなどの植物プランクトンが増殖する。一方、外部負荷は主に陸域を経由して河川から流入による負荷であり、その起源は生活排水や工場排水、田畑からの農業排水、洪水による濁水などである。生活排水や工場排水は汚濁負荷の発生源として特定可能であることからいわゆる点源負荷、森林や農地などから発生する汚濁負荷は広範囲にわたるため面源負荷と総称されている。水質改善のためにはこうした負荷の削減が不可欠であるが、内部負荷は水温や日射量、風などの自然的要因に因るところが大きいため基本的に制御は不可能である。対して、外部負荷は点源負荷のような人為的要因も関係しているので、削減の余地が残されている。

水質改善の施策を講じるには、まず現状の負荷量がどの程度なのかを把握する必要がある。一般的に、流入負荷量の算出には2通りの計算方法が用いられる。

#### ① 原単位法

流域の人口や産業、土地利用形態などの情報を基に個別の汚濁負荷の“原単位”を設定し、それらの数値を用いて負荷量を算出する。

#### ② 実測法

河川において流量や水質の調査を実際に行い、その結果から負荷量を算出する。また、流量と負荷量の分布から関係式(L-Q式)を求めておくことで、任意の期間の流量を用いてその負荷量も推定できる。

原単位法は文献や過去の調査事例等により設定された原単位を用いてフレームを作ることで簡便に負荷量を計算できる。しかし、用いる原単位そのものが他の河川流域のものもあるため、本来求めたい河川の流入実態に合っているかどうか分らず、正

確な負荷量は求められない。実測法については、当該河川における直接の調査結果を基にするため正確な負荷量を求めることができるが、時間も人手も多く必要となるので頻繁に行うことは難しい。

宍道湖・中海では、湖沼水質保全計画策定時にシミュレーションモデルを用いて5年後の水質予測を行っているが、そのベースとなる汚濁負荷量は原単位法により求められている。宍道湖・中海の総負荷量のうち、特に割合の大きいのが山林からの負荷量である。Fig. 1-1 と Fig. 1-2 で示しているように流入負荷の減少と水質改善とが必ずしも結びついていない状況から、設定された原単位そのものが流入する汚濁負荷量の実態と合っておらず、特に面源負荷として最も影響の大きい山林からの負荷が逆に増えていることも考えられる。

そこで本研究では、島根県保健環境科学研究所が2010～2011年に実施した斐伊川365日調査結果を基に、斐伊川の汚濁負荷量の現状を整理し、宍道湖の水質改善へ向けて問題提起するために、下記1)～3)についての検証を行った。

- 1) 1983～1984年と2001～2002年に同じ地点で行われた過去の調査の結果と今回の調査結果を比較し、斐伊川の流入負荷がどの程度変化しているのか。
- 2) 実測負荷量を基に算出したL-Q式は、窒素に比べリンの相関はやや低めだったことから、より正確に負荷量を計算するために相関性を向上させることが可能か。
- 3) 汚濁負荷量と河川水質とでどのような関係にあるのか。また、近年中国大陸からの越境汚染が大きな問題になっているが、河川水質にもそのような影響は見られるのかどうか。

併せて、具体的な負荷量削減対策の観点から、宍道湖流域における治水対策として

国土交通省が 2013 年 6 月に完成させた斐伊川放水路について、神戸川への分流によって宍道湖へ流入する汚濁負荷量がどの程度削減を期待できるかを計算した。

## 1 - 4 論文の構成

本論文は 6 章から構成している。以下に各章の概略を述べる。

### <第 1 章>序論

研究の背景、目的及びその意義について述べる。

### <第 2 章>日本海側河川に対する中国大陸からの越境窒素汚染

同じ地点で実施した過去の調査結果と今回の調査結果とを比較し、斐伊川の水質がどのように変化しているのかを検証する。

### <第 3 章>斐伊川における L-Q 式への二次式の適用と実測負荷の比較

斐伊川から宍道湖へ流入する汚濁負荷量について、河川流量と負荷量の関係式 (L-Q 式) から求めた負荷量と今回の調査結果を基に積算した負荷量とを比較し、より実態に合うよう最適な L-Q 式を適用できるかを検証する。

### <第 4 章>中国大陸由来の大気降水物による斐伊川の窒素・リン濃度の長期的変化

斐伊川河川水質、降水濃度やその降下量の 10 年の長期変動から、斐伊川の傾向を割り出し、その増減の要因について検証する。

### <第 5 章>斐伊川放水路による宍道湖へ流入する栄養塩負荷の削減

2013 年 6 月に完成した斐伊川放水路の運用が始まったことで、実際に宍道湖へ流れ込む栄養塩負荷量の削減がどれくらい見込めるかを計算する。

## <第6章>まとめ

本研究に関する成果を簡単にまとめるとともに、宍道湖・中海の水質について、将来目指すべき方向性について提言を行う。

## 第2章 日本海側河川に対する中国大陸からの越境窒素汚染

### 2-1 はじめに

中国の NO<sub>x</sub> 放出量は 1995 年の  $1.39 \times 10^7$  t から 2030 年には  $2.11 \times 10^7$  t まで増加すると言われており、最近の中国の大気汚染はメディア等でも報道されているように非常に深刻な状況である。その影響は大陸内に留まらず、日本海を越えて日本にも及んでおり、近年では西日本を中心にその影響と思われる PM<sub>2.5</sub> や光化学オキシダント注意報が頻発するようになった。

中国大陸を起源とする汚染物質の日本、特に日本海側島根県への移流については、Mukai and Suzuki (1996) によって後方流跡線解析を用いて明らかにされ、その後さまざまな研究者により確かめられてきた。Yoshioka et al. (2009) は、島根県松江市において 1 降水ごとの採水を 1 年間行い、降水をもたらした気塊の後方流跡線解析を行うことで、西高東低の気圧配置に伴う雨（雪）が降る時に降雨（雪）中の全窒素濃度（主に硝酸及びアンモニア）が上昇することを明らかにした。また、Kamiya et al. (2008) は 2001 年 9 月から 2002 年 8 月までの 1 年間、島根県東部を流れる斐伊川において毎日採水を行い、Ishitobi et al. (1988) が行った中国大陸からの越境汚染がなかったと考えられる 1983-1984 年の調査結果と比較し、冬季において全窒素濃度、特に硝酸態窒素濃度が上昇していることを明らかにし、その濃度上昇の原因が中国大陸からの越境汚染によるものと報告している。

Kamiya et al. (2008) の調査後、中国大陸の大気汚染はさらに進行しているものと考えられることから、同様の調査を改めて行い、過去の調査結果と比較することで斐伊川の窒素濃度がどのように変化したのかを確認することとした。



## 2-2 方法

斐伊川河口部（宍道湖流入部）より 12km 上流にある神立橋において、2010 年 7 月 1 日～2011 年 6 月 30 日の 1 年間毎日採水を行った。1 日 1 回、朝 8 時頃にステンレス製バケツで表層水を汲み上げ、水温を測定後、ただちに冷凍保存し、1 週間に 1 回実験室に搬入した。分析は 1 週間に 1 回に行い、解凍した後に水素イオン濃度 (pH) と電気伝導度 (EC) の測定を行い、試料を Whatman GF/C でろ過した。亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2\text{-N}$ ) はスルファニル酸と N-1 ナフチルエチレンジアミン法 (Bendschneider and Robinson, 1952) により、硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3\text{-N}$ ) は銅 - カドミウム還元 (Wood et al., 1967) した試料を前述の  $\text{NO}_2\text{-N}$  の分析法に従い、アンモニア態窒素 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ ) はフェニル - ハイポクロライト法 (Scheiner, 1976) によって、全自動分析装置 (ブランルーベ TRAACS-2000) を用いてそれぞれ測定を行った。これらの 3 つの形態の窒素の総和を溶存態無機窒素 (DIN) とした。全窒素 (TN) 及び溶存態窒素 (DN) は熱分解化学発光法 (島津製作所 TOC-Vcsh TN ユニット) で測定を行い、懸濁態窒素 (PN) は TN と DN の差から、溶存態有機窒素 (DON) は DN と DIN の差からそれぞれ求めた。

神立橋から約 15 km 東に位置する島根県保健環境科学研究所では、以前に 2001 年 9 月 1 日から 2002 年 8 月 31 日までの 1 年間、今回と同じ地点において日曜日を除いて毎日採水を行い、同じ分析項目及び分析方法で調査をしており、その結果については Kamiya et al. (2008) が報告している。また、これらの調査とは別に 1993 年 4 月から同じ地点で毎月 1 回の採水を継続している。この調査は平水時の水質監視・評価を目的としたものであり、出水による濁水は異常値として評価対象外となるため、可能な限り平水時に採水を行っている。分析方法については前述と同じである。その他、2007 年 9 月 26 日から 2008 年 9 月 26 日にかけて人為的汚染がない斐伊川源流域 (流域面積:  $6.258 \text{ km}^2$ ) で週 2 回ずつ採水を行っており、分析項目と分析方法は前述のとおりだが、河川水中に含まれる硝酸の窒素・酸素安定同位体比を脱窒菌

法 (Sigman, 2001) により測定した。

斐伊川においては、上流から新伊萱、上島、大津 (Fig. 2-1) の 3 地点において国土交通省により毎正時の水位データから流量が計測されている。ここでは観測地点の 1 日 24 回分の流量データを平均し、日流量として扱った。2010 年 7 月 1 日～2011 年 6 月 30 日までの 3 観測地点について 2 地点ずつで流量の相関を確認したところ、

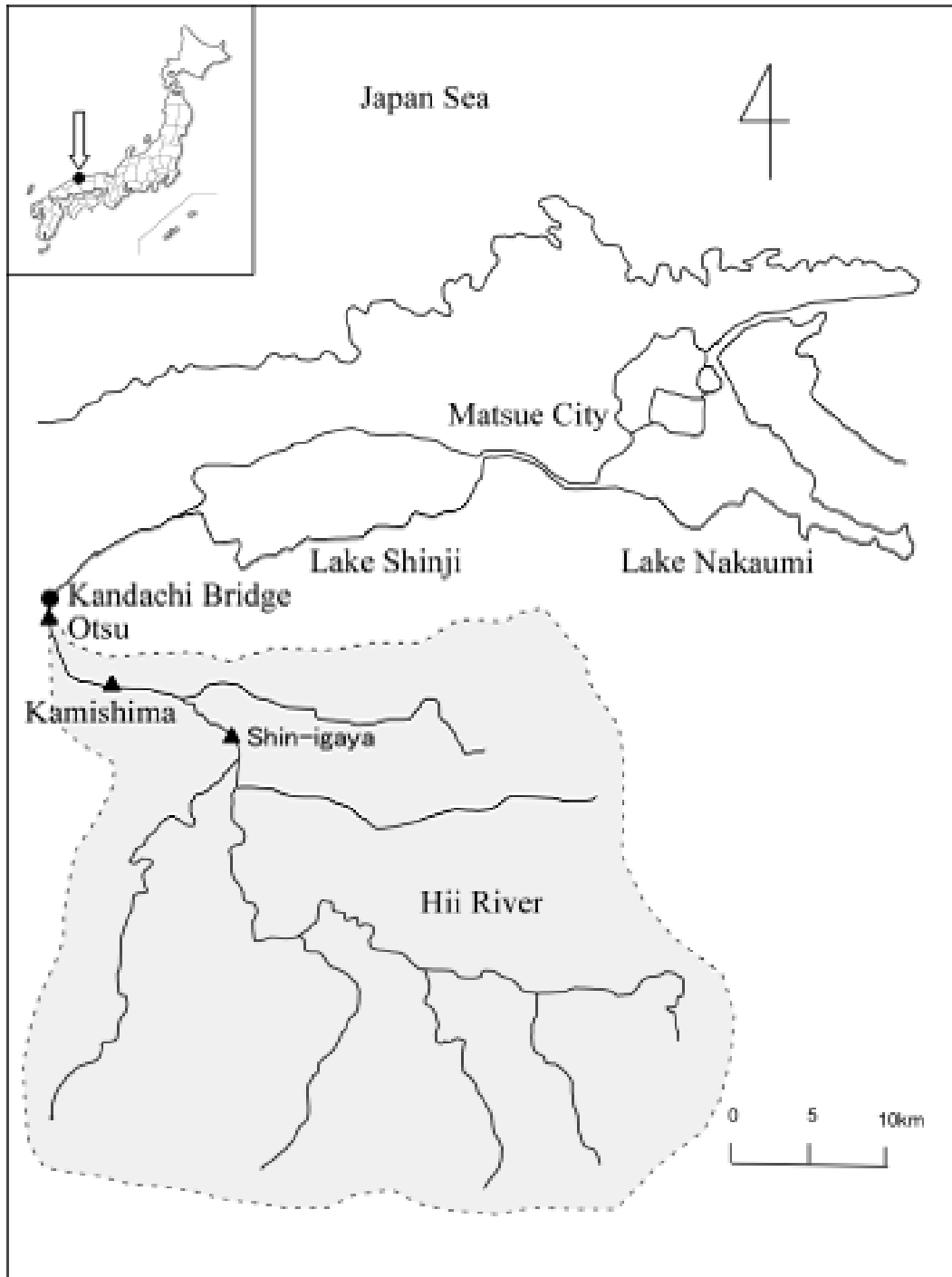


Fig. 2-1 位置及び斐伊川での採水地点

新伊萱 - 上島には良い相関があったが、大津 - 新伊萱、大津 - 上島は相関が良くないことから、大津地点の流量の信頼性が低いことが分かったので、上島の流量を使用することとした。なお、上島と大津の間には流入河川がないため流量にほとんど差がない。対象とした流域の総面積は 910 km<sup>2</sup> で、そのうち山林、水田・畑及び市街地その他が 2000 年度にはそれぞれ 81.3%、6.1%及び 12.6%（農林水産省、2002）で、2010 年度はそれぞれ 81.0%、3.1%、15.9%（農林水産省、2012）である。流域の森林の針葉樹林の割合は 55.5%で、その内訳はスギ 22.1%、マツ 17.3%、ヒノキ 16.1%である（農林水産省、2012）。また、人工林率は 51.4%である（農林水産省、2012）。この 10 年間で山林の割合はほとんど変わらないが、水田・畑は減少し宅地等が増加している。なお、宅地等には耕作放棄地も含まれている。流域人口は過疎化が進行しており、2000 年の 63,000 人から 2010 年には 56,500 人に減少している。島根県（2005）によれば 2001 年から 2010 年までの原単位法によって計算された生活・事業場系の発生負荷量にほとんど増減はない。また、水田・畑に対する施肥も側条田植機等による減肥化が進んでおり、負荷量は増加していないと思われる。従って、この 10 年間における流域からの負荷量は変化していないもしくは減少しているものと考えられた。そこで、Kamiya et al. (2008) が報告した 2001-2002 年調査と今回の調査で得られた負荷量にはっきりとした差が見られるのかどうかについて、ノンパラメトリック検定である Mann-Whitney の U 検定を用いて検証した。

### 2 - 3 結果

調査期間中、採水場所の上流において工事が行われた時期があり、その影響と思われる濁りを測定したことが 3 回あったため、これを異常値として除外し、試料数は 362 となった。期間内の総流量は  $1.51 \times 10^9$  m<sup>3</sup> であった。pH (Fig. 2-2a) の平均値は 7.57 で、最小値は 7.02、最大値は 8.17 とほぼ安定しており、流量との関係もほとんどなかった。EC (Fig. 2-2b) は平均値が 95.5  $\mu$ S cm<sup>-1</sup>、最小値は 64.7  $\mu$ S cm<sup>-1</sup>、

最大値は  $117.9 \mu\text{S cm}^{-1}$  で、濁水時に高く、出水と同時に低下する傾向があった。河川水中の各窒素成分については、ほとんどを DIN が占めており (Fig. 2-2c)、そのうちの 95%以上が  $\text{NO}_3\text{-N}$  であった。12 月に入ると DIN 濃度が著しく上昇し、3 月まで続いた。また、出水に伴いスパイク状の急激な濃度上昇が発生しており、それはほとんどが PN の上昇によるものだが、 $\text{NO}_3\text{-N}$  の上昇も出水後 1 週間程度観測された。 $\text{NO}_3\text{-N}$  と水温との間には良い相関 ( $R^2 = 0.68$ ) があった (Fig. 2-3)。

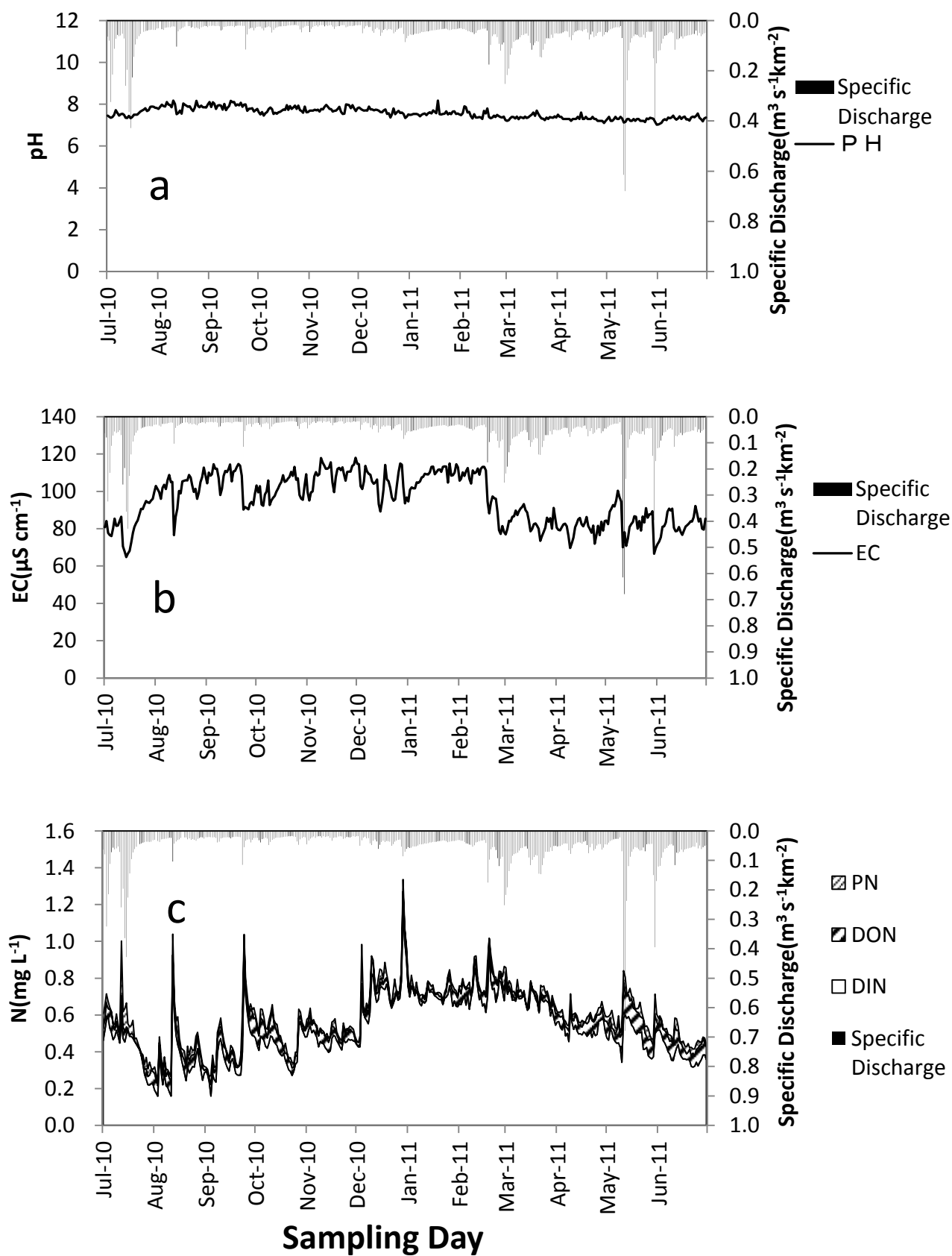


Fig. 2-2 調査期間における比流量 (Specific Discharge) 経日変化と pH (a)、EC (b) 及び各窒素成分 (c : PN + DON + DIN = TN) の測定結果

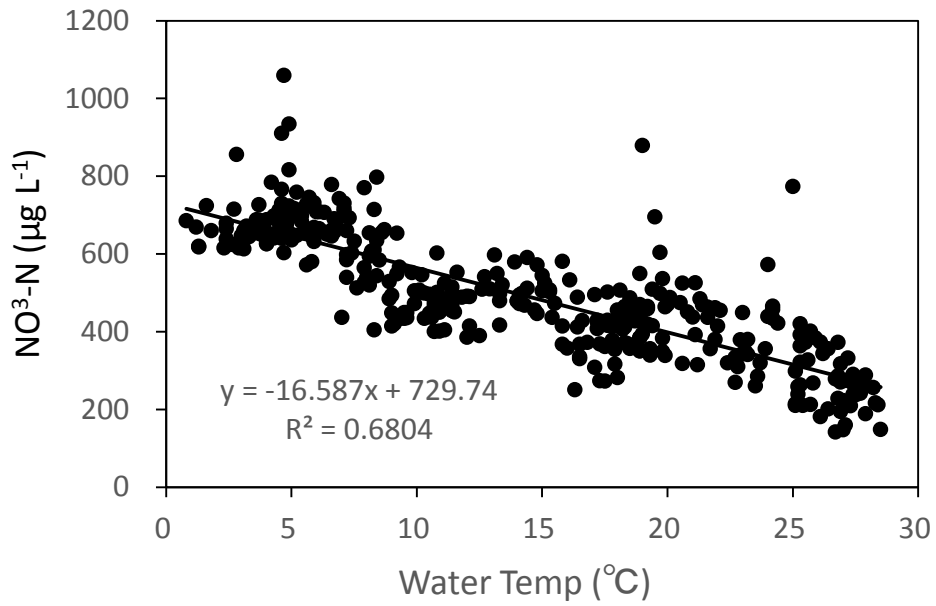


Fig. 2-3 水温に対する NO<sub>3</sub>-N 濃度の分布と近似曲線

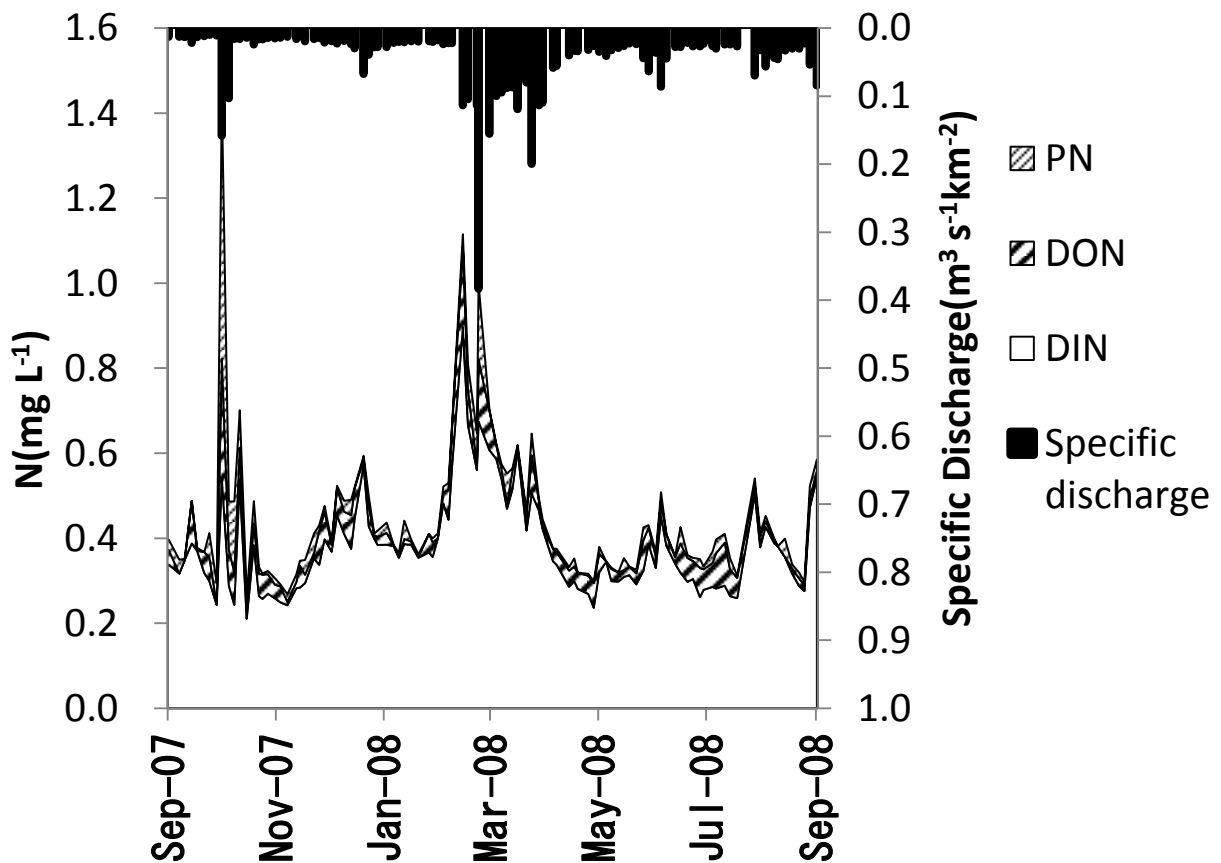


Fig. 2-4 斐伊川源流域調査時の比流量 (Specific Discharge) と各窒素成分 (PN + DON + DIN = TN) の経時変化 (2007-2008)

2007-2008年に行った源流域での調査も Fig. 2-2c と同様に、TN のほとんどが DIN であり、冬季の濃度上昇が確認された (Fig. 2-4)。DIN 濃度 (97%が  $\text{NO}_3\text{-N}$ ) が雪解けによる出水と同時に上昇しており、明らかに季節変化が観測された。

中国大陸からの越境窒素汚染による影響がどのように変化したのかを確認するため、今回の調査と Kamiya et al. (2008) による調査とを比較した。松江における降水量は 2001-2002 年が 1,938 mm で、2010-2011 年が 2,041 mm と若干 2010-2011 年の方が多かった。1983 年から 2012 年までの 30 年間の平均降水量は 1,788 mm であり、2 回の調査時ともこの平均降水量よりも多かった。流量は 2001-2002 年が  $5.2 \sim 362.8 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  の範囲にあり、平均値が  $45.3 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  で、総流量が  $1.43 \times 10^9 \text{ m}^3$  であった。一方、2010-2011 年では  $1.3 \sim 684.1 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  の範囲にあり、平均値が  $48.0 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  で総流量が  $1.51 \times 10^8 \text{ m}^3$  であり、降水量も多かったことから総流量としては 2010-2011 年の方が 5.6% 多かった。流量のヒストグラム (Fig. 2-5) を比較すると、2010-2011 年の方が高流量の頻度が若干高く、このため 2010-2011 年の総流量が少し多かったものと考えられた。2 回の調査から得られた回帰式から計算した  $\text{NO}_3\text{-N}$  の年間負荷量は、2001-2002 年が 565 t で、2010-2011 年が 885 t と約 57% の増加が

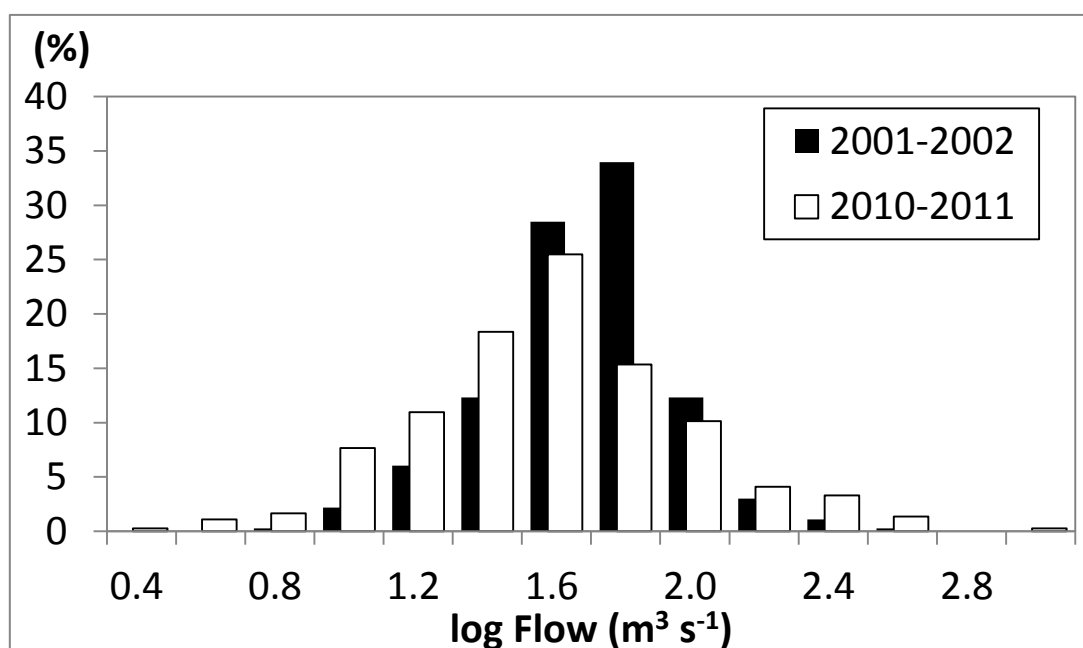


Fig. 2-5 2001-2002 年と 2010-2011 年の流量のヒストグラム

あった (Fig. 2-6a)、年間総流量に大差なくとも、大規模な降雨流出イベントの頻度によって流出負荷量は大きく異なるため、2010-2011 年の負荷量が大きかったのは高流量の出現頻度が多かったためと考えられた。しかし、2001-2002 年と 2010-2011 年それぞれの調査から得られた負荷量について Mann-Whitney の U 検定を行った結果、冬季 (12~3 月) の負荷量分布 (Fig. 2-6b) は明らかに有意差 ( $p = 0.002$ ) があり、2010-2011 年の負荷量の増加が認められた。一方でその他の月 (4~11 月) の負荷量分布には同検定において有意差は見られなかった (Fig. 2-6c)。NO<sub>3</sub>-N の年間単純平均値では 2001-2002 年が 0.38 mg L<sup>-1</sup> で、2010-2011 年が 0.50 mg L<sup>-1</sup> と大きな増加が観測された。2001-2002 年と 2010-2011 年のヒストグラム (Fig. 2-7) で、季節別にみると、NO<sub>3</sub>-N は冬季 (12~3 月) では 2001-2002 年に比べて 2010-2011 年が明らかに高濃度の出現頻度が非常に多くなっている (Fig. 2-7a)。2 回の調査結果の年間単純平均値も 0.44 mg L<sup>-1</sup> から 0.67 mg L<sup>-1</sup> へ大きく上昇している。その他の月についても、平均値は 0.35 mg L<sup>-1</sup> から 0.47 mg L<sup>-1</sup> へ上昇している (Fig. 2-7b)。TN の年間負荷量は 2001-2002 年が 786 t で、2010-2011 年が 1,082 t に約 38% 増加している。冬季におけるヒストグラムからも NO<sub>3</sub>-N 同様明らかに今回の調査の分布が高濃度に移動している (Fig. 2-7c)。平均値についても前回の 0.60 mg L<sup>-1</sup> から今回の 0.76 mg L<sup>-1</sup> へ上昇している。一方、その他の月の TN の平均値は 0.51 mg L<sup>-1</sup> から 0.52 mg L<sup>-1</sup> へとほとんど変化がない (Fig. 2-7d)。

島根県保健環境科学研究所が 1993 年 4 月から斐伊川神立橋において毎月 1 回ずつ行っている調査では、過去 20 年間の斐伊川の pH 値は 6.3~8.7 の範囲内にあり、平均値が 7.5 でほとんど変化は見られていないが、NO<sub>3</sub>-N 濃度は 0.0046 mg L<sup>-1</sup> y<sup>-1</sup> ( $p = 0.027$ ) で有意に増加している (Fig. 2-8)。また、2002 年 4 月からは月ごとの湿性降水物も採取しており、年間湿性 DIN 降水物量の近似直線は増加傾向を示しているが、調査期間が短いため統計的に有意ではなかった (Fig. 2-8)。



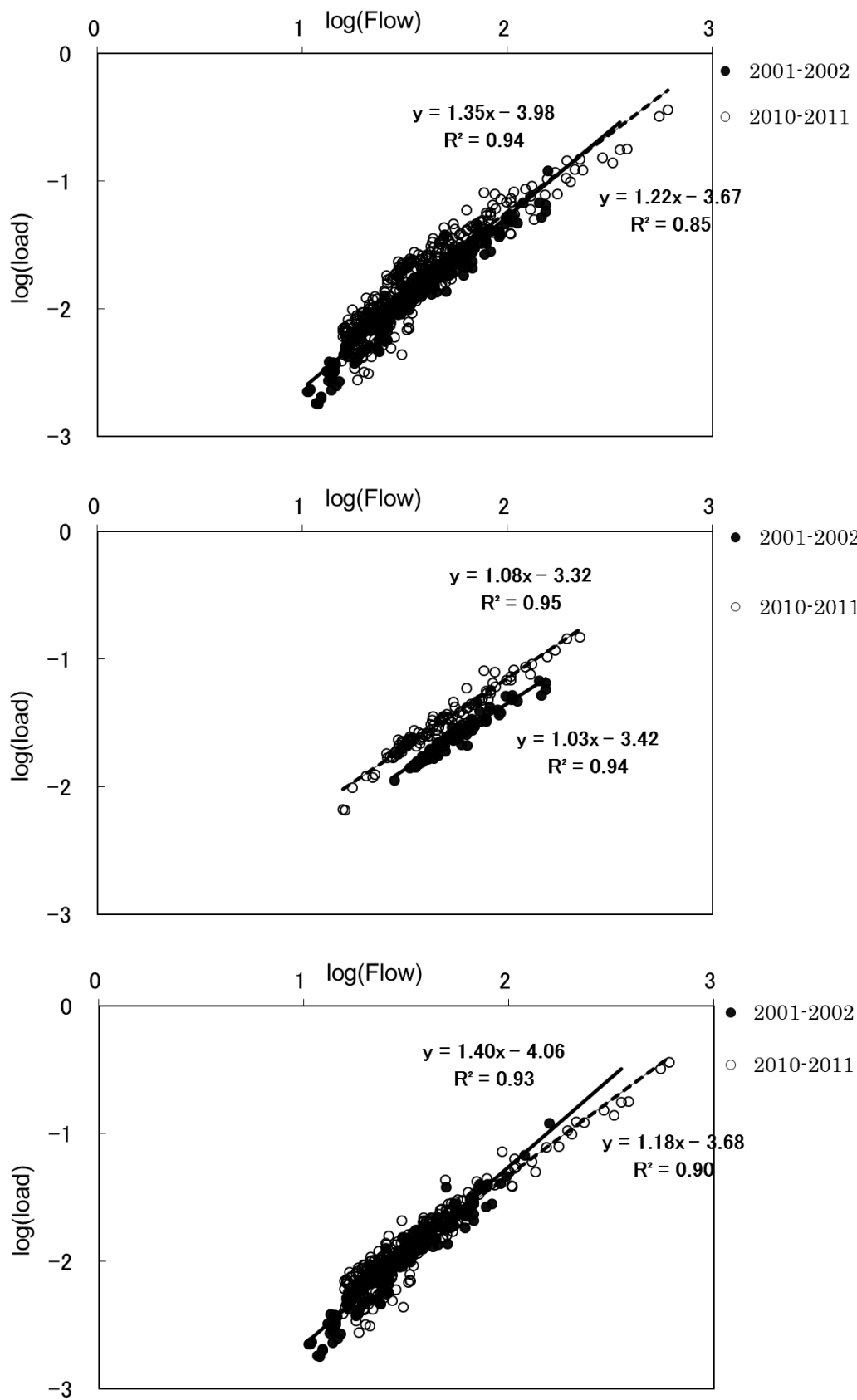


Fig. 2-6 2001-2002年及び2010-2011年の窒素負荷量と流量の分布と両年のL-Q式  
 (a) 全期間, (b) 冬季 (12~3月), (c) その他の月 (4~11月))

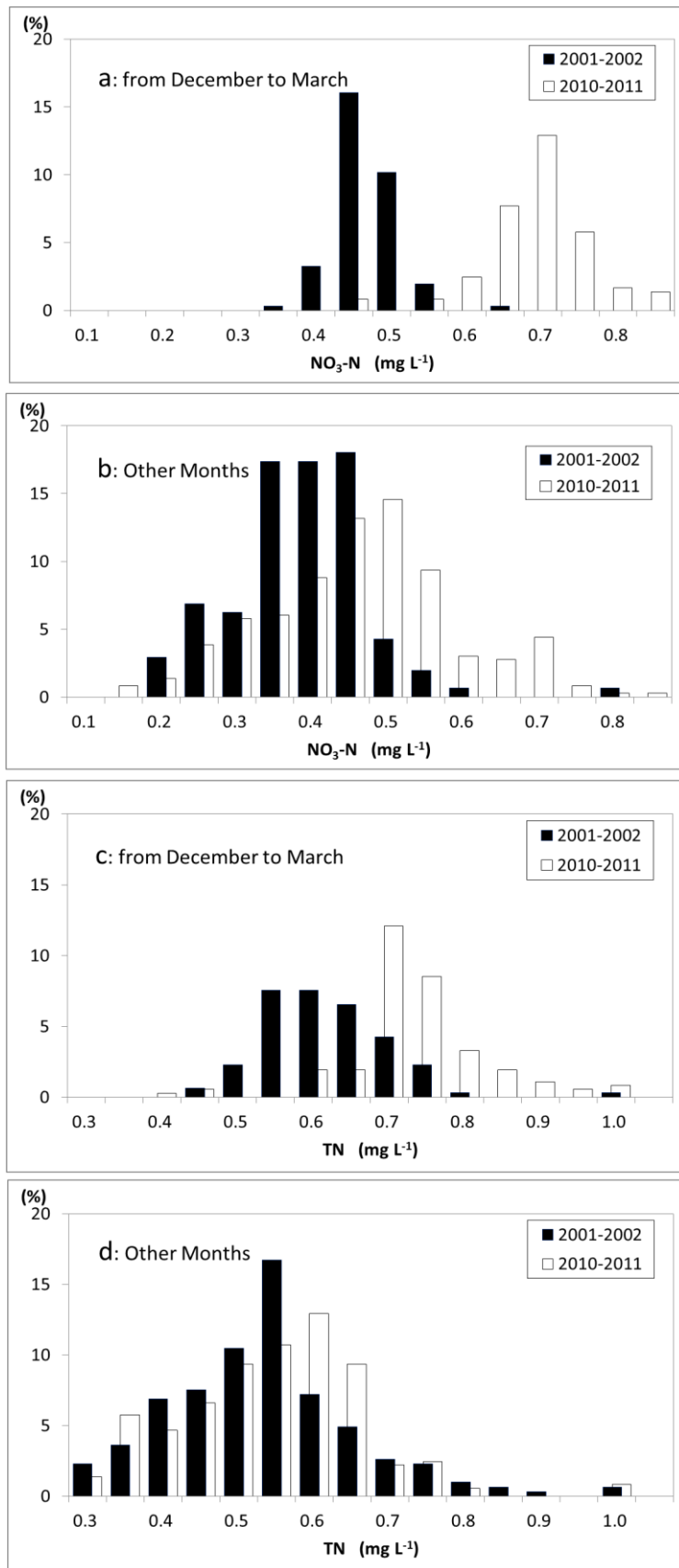


Fig. 2-7 2001-2002年と2010-2011年調査のNO<sub>3</sub>-NとTNのヒストグラム  
 (a) NO<sub>3</sub>-N : 12~3月, (b) NO<sub>3</sub>-N : 4~11月, (c) TN : 12~3月,  
 (d) TN : 4~11月

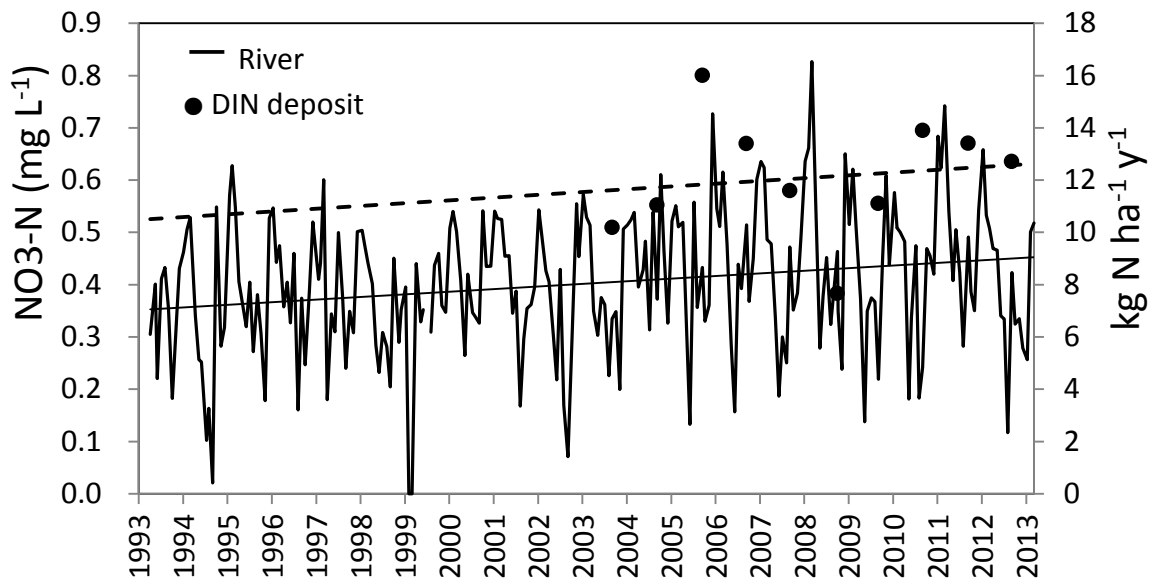


Fig. 2-8 1993-2012 年の斐伊川の NO<sub>3</sub>-N 濃度と 2002-2012 年の年間 DIN 降下物量の変化

## 2 - 4 考察

Stoddard (1994) は窒素飽和の段階に以下の数値を目安として設定した。

Stage 0 : 渓流水硝酸イオン濃度に明確な季節変動がみられる。生物の成長期に硝酸イオンは非常に濃度が低いか、検出できないくらいの程度だが、冬から春にかけての硝酸イオン濃度は  $0.2\sim 0.4\text{ mg N L}^{-1}$  になる。

Stage 1 : 硝酸イオンに強い季節変動がみられる。成長期にある程度硝酸イオンがみられるようになり、冬から春にかけての硝酸イオン濃度は最大で  $1.0\text{ mg N L}^{-1}$  になる。

Stage 2 : 季節変動はまだ確認できるが、成長期の平水時に硝酸イオン濃度が常に  $0.5\sim 1.0\text{ mg N L}^{-1}$  を示す。

Stage 3 : 季節変動が確認できなくなり、恒常的に高い硝酸イオン濃度を示す ( $> 1.0\text{ mg N L}^{-1}$ )。

島根県保健環境科学研究所では 2008-2009 年に人為的汚染のない斐伊川源流域において 1 年間にわたり週 2 回の頻度で調査を行ったが、やはり冬季には高濃度の硝酸態窒素が検出され、季節的な変動も観察された (Fig. 2-4)。この時の河川水中の硝酸と、同時に行った 1 降水ごとの雨に含まれる硝酸の窒素・酸素安定同位体比の測定結果 (Tabayashi et al. in preparation) では、雨中の硝酸の  $\delta^{18}\text{O}$  が  $58.08\sim 91.69\text{‰}$  の範囲にあり、平均値は  $75.92\text{‰}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$  が  $-5.36\sim 5.86\text{‰}$  の範囲にあり平均値で  $-0.18\text{‰}$  であった。一方、河川硝酸の  $\delta^{18}\text{O}$  は  $-5.88\sim 28.72\text{‰}$  の範囲にあり、平均値は  $4.38\text{‰}$  で、 $\delta^{15}\text{N}$  は  $-1.05\sim 6.30\text{‰}$  の範囲にあり、平均値は  $2.11\text{‰}$  であった。酸素安定同位体比の測定結果から、雨に含まれる硝酸は冬季においても一度土壤中に浸透し、酸素の交換を受けた後で河川に流出している。Ohte et al. (2001) によれば、日本の

森林域では夏季に河川水量の  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度が上昇するが、その理由として夏季の降水量の多さと高気温による窒素化合物の無機化（硝化）による流出が大きいためとしている。しかし、斐伊川源流域調査では冬季に河川の濃度が上昇している。この理由として、斐伊川流域は日本海側気象のために冬季の降水量と硝酸及びアンモニアの濃度が高いことと植物や微生物の活性が低く硝酸が吸収されずに流出しているためであることが考えられる。以上の理由から、斐伊川森林域は Stage 1 の状態にあり、まだ窒素飽和に至っていないと推定された。

欧米及び日本では窒素（DIN）降下物量が  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  以上で森林の窒素飽和が始まると言われている（Dise and Wright, 1995 ; Mitchell et al., 1997 ; Mitchell, 2011）。2003-2012 年にかけて松江で採取した湿性 DIN 降下物量の年平均値は  $12.1 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  であり、窒素飽和の閾値である  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  よりも若干高めであるが、斐伊川森林域は窒素飽和には至っていない。今のところ Mitchell et al. (1997) が窒素飽和の閾値とした数値は関東地方で得られたものであり、その他高濃度の硝酸が流出している渓流域の報告は太平洋側の大都市地域、特に関東地方で多い（例えば、Ohruai and Mitchell, 1997 ; Yoh et al., 2001 ; Ohte et al., 2004）。日本海側でも湿性降下物量はかなり調査されており、太平洋側よりも多いことが知られている（堀江ら、2012）。しかし、日本海側での河川源流域では水質調査があまりされておらず、窒素飽和に関する知見はほとんどない。よって今後は太平洋側以外の地域で調査を行い、窒素飽和の閾値が  $10 \text{ kg ha}^{-1} \text{ y}^{-1}$  で妥当かどうか全国的な視点で検証する必要があるのではないだろうか。

今回の調査における湿性降下物の採取地点は渓流域から約 60 km 離れており、かつ都市部のデータである。しかし、島根県内の硝酸及びアンモニアの湿性降下物量は松江よりも降水量の多い山間部に位置する川本の方が多く（島根県環境生活部、2011）、特に冬季に県内に降下する汚染物質の起源はほぼ大陸からもたらされていると考えられる。このことは Yoshioka et al. (2009) の観測結果からも支持される。従って、斐伊川源流域の森林にも同様に高濃度の降水があると考えられるが、高高度

の森林域の降水量は平地よりも多いことが通常であるため、実際は斐伊川源流の湿性降水物量は多くなる可能性がある。2002-2012年にかけて観測した月ごとのDIN降水濃度は、観測期間が短いため統計的に有意ではなかったが $0.012 \text{ mg L}^{-1} \text{ y}^{-1}$ で増加している。また、結果のところでも述べたように1993-2012年にかけて斐伊川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は $0.0046 \text{ mg L}^{-1} \text{ y}^{-1}$ で有意に増加している。実際、2001-2002年の調査では $\text{NO}_3\text{-N}$ の年平均値は $0.38 \text{ mg L}^{-1}$ であったが、2010-2011年には $0.50 \text{ mg L}^{-1}$ となり、冬季には $0.80 \text{ mg L}^{-1}$ を超えている日もあり、斐伊川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は確実に上昇傾向にある。太平洋側の都市部近郊河川と異なり、日本海側河川は中国大陸から運ばれてくる窒素によってロングレンジの窒素汚染を受けているため、このままでは斐伊川の森林域は近々窒素飽和を迎える可能性がある。よって、今後も大気降水物量と斐伊川の窒素濃度の変化を注意深く観測する必要がある。

## 第3章 斐伊川における L-Q 式への二次式の適用と実測負荷との比較

### 3-1 はじめに

河川の負荷量を把握するためには、できるだけ高頻度、可能であれば毎日採水を行ってその結果を基に算出するのが理想的（新田、1960）であるが、時間も人員も要するため実際に行うには作業的に困難である。そのため、ある程度の実測から対象物質の濃度と流量の積の対数と、流量の対数との一次関係式（いわゆる L-Q 式）を求めて計算するのが一般的である。L-Q 式を求めるためには、低流量時から洪水のような高流量時まで、広範囲の流量状況におけるデータ収集が必要であり（山口・吉川、1980）、そのためには可能な限り高頻度に調査を行う必要がある。L-Q 式が一次関数として成り立つためには、対象物質の濃度は流量が増加しても変化しないという条件が必要であるが、物質によっては濃度が流量に対しての関数になることも考えられる。そこで本研究では、斐伊川において毎日採水を 1 年間行い、実測負荷量と L-Q 式から計算される負荷量を比較することによって、各物質の負荷量と流量の分布から最適な L-Q 式を適応することを試みた。また、その結果を過去の調査に適用して再現性を検証した。

### 3-2 方法

斐伊川河口部（宍道湖流入部）より 12 km 上流にある神立橋において、2010 年 7 月 1 日～2011 年 6 月 30 日まで毎日採水を行った。1 日 1 回、朝 8 時頃にステンレスバケツで表層水を汲み上げ、水温を測定した後、ただちに凍結保存した。分析は 1 週間に 1 回ずつ行い、試料を解凍後、pH と電気伝導度（EC）の測定を行った。残りの試料についてはガラス繊維ろ紙（Whatman GF/C）でろ過した。懸濁物質（SS）の測定はマイクロ天秤による重量法で行った。化学的酸素要求量（COD）及び溶存 COD（D-COD）は日本工業規格 JIS K 0102 により分析した。懸濁 COD（P-COD）は

COD と D-COD との差により求めた。溶存反応性リン (SRP) はモリブデン-アスコルビン酸法 (日本分析化学会、1981) で分析した。全リン (TP) は原水 50 mL に 4% (w/v) の過硫酸カリウムを 5 mL 加えてオートクレーブ処理した後、SRP の分析法と同じモリブデン-アスコルビン酸法で分析し、溶存態リン (DP) はろ液を TP と同様に処理した後分析を行った。懸濁態リン (PP) は TP と DP の差から求め、DOP (溶存有機リン) は DP と SRP の差から求めた。亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2\text{-N}$ ) はスルファニル酸と N-1 ナフチルエチレンジアミン法 (Bendschneider and Robinson, 1952) により、硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3\text{-N}$ ) は銅-カドミウム還元 (Wood et al., 1967) した試料を  $\text{NO}_2\text{-N}$  の分析法によりそれぞれ行い、アンモニア態窒素 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ ) はフェニル-ハイポクロライト法 (Scheiner, 1976) により行った。なお、上記項目の測定には全自動分析装置 (ブランルーベ TRAACS-2000) を用いた。これら 3 つの形態の窒素の総和を溶存態無機窒素 (DIN) とした。全窒素 (TN) 及び溶存態窒素 (DN) は熱分解化学発光法 (三菱化学 TN-100) で測定を行い、懸濁態窒素 (PN) は TN と DN の差から求め、溶存態有機窒素 (DON) は DN と DIN との差から求めた。全有機炭素 (TOC) 及び溶存態全有機炭素 (DOC) は全炭素分析計 (島津製作所 TOC-Vcsh) を用いて行い、懸濁態全有機炭素 (POC) は TOC と DOC の差から求めた。溶存シリカ (D-Si) はモリブデン-アスコルビン酸法で分析した。

斐伊川では、大津、上島、新伊萱 (Fig. 3-1) の 3 地点において国土交通省により毎正時の水位データから流量データが計測されている。観測地点の 1 日 24 回分の流量データを平均することで、日流量として扱った。3 地点の流量と降水量の相関を精査したところ、大津地点の流量の信頼性が低いことが分かったため、上島地点の流量を使用することとした。対象とした流域の総面積は 910  $\text{km}^2$  で、そのうち山林、水田・畑及び市街地その他が 2010 年度はそれぞれ 81.0%、3.1%及び 15.9% (農林水産省、2012) である。流域の森林の針葉樹林の割合は 55.5%で、内訳はスギ 22.1%、マツ 17.3%、ヒノキ 16.1%である (農林水産省、2012)。また、人工林率は 51.4% である (農林水産省、2012)。流域人口は過疎化が進行しており、2000 年の 63,000



人から 2010 年には 56,500 人に減少している。

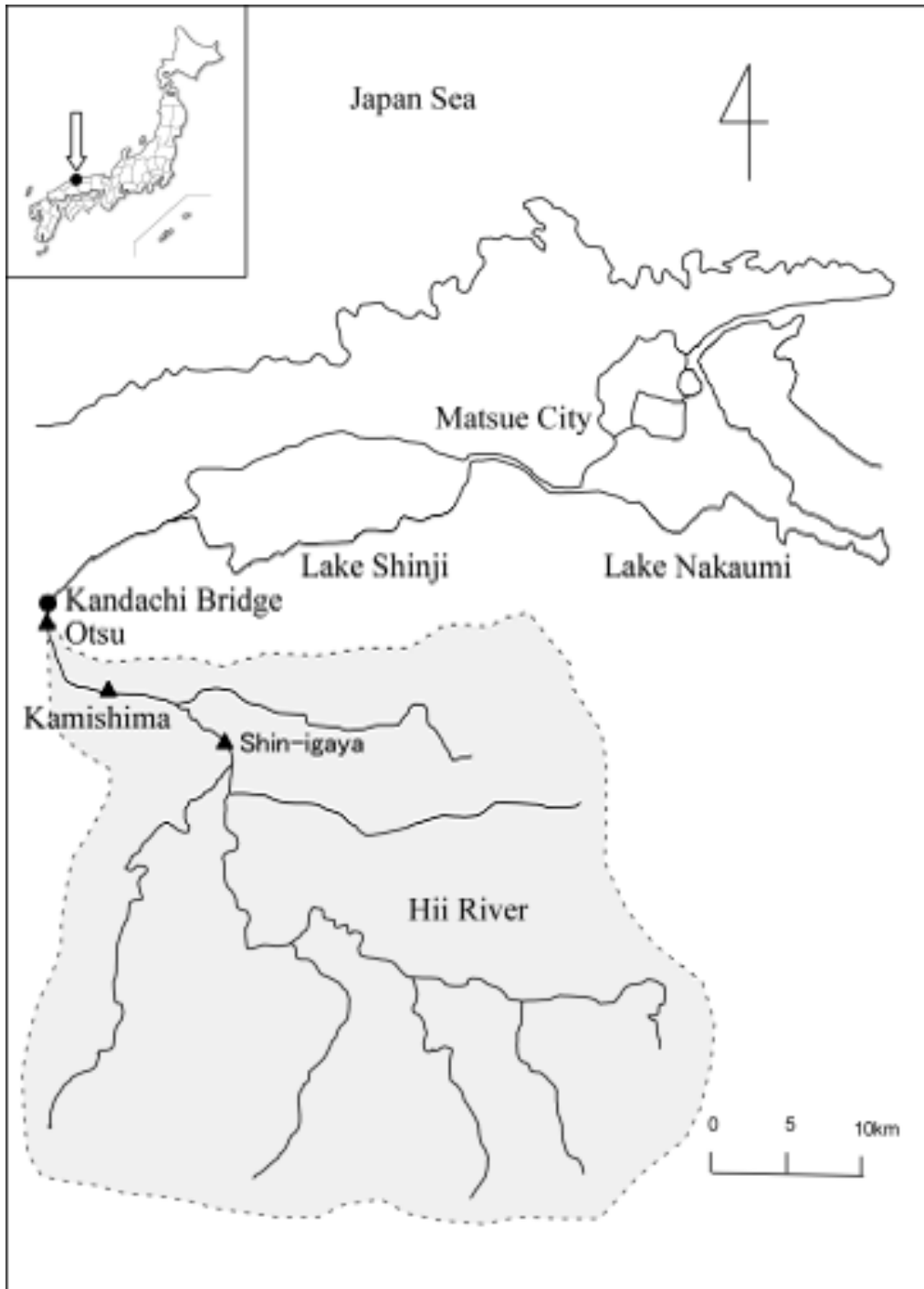


Fig. 3-1 斐伊川の位置と採水地点（神立橋）

### 3-3 結果

調査期間中、採水場所の上流において工事が行われた時期があり、その影響と思われる濁りを測定したことが3回あった。いずれも平水時であったため、この3回のデータについては採水の前後の日の平均値を使用することとした。よって、試料数は365のままである。

期間内の流量は $15.5\sim 607.8\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$ の範囲にあり、平均流量は $51.0\text{ m}^3\text{ s}^{-1}$ であった。比流量では流量範囲が $0.017\sim 0.679\text{ m}^3\text{ s}^{-1}\text{ km}^{-2}$ の範囲にあり、平均比流量は $0.057\text{ m}^3\text{ s}^{-1}\text{ km}^{-2}$ であった。総流量は $1.61\times 10^9\text{ m}^3$ であった。大きな出水は3度観測され、すべて梅雨の時期であった (Fig. 3-2)。3月にも若干の出水が観測されたが、これは雪解けによる影響と考えられた。

各項目の濃度範囲、単純平均値を Table 3-1 に示す。SS の最小値及び最大値は $1.4\text{ mg L}^{-1}$ 及び $173.2\text{ mg L}^{-1}$ と大きな差が見られた。大きな値は出水による濁水の影響と考えられる。単純平均値では $18.9\text{ mg L}^{-1}$ であったが、流量を考慮した加重平均値

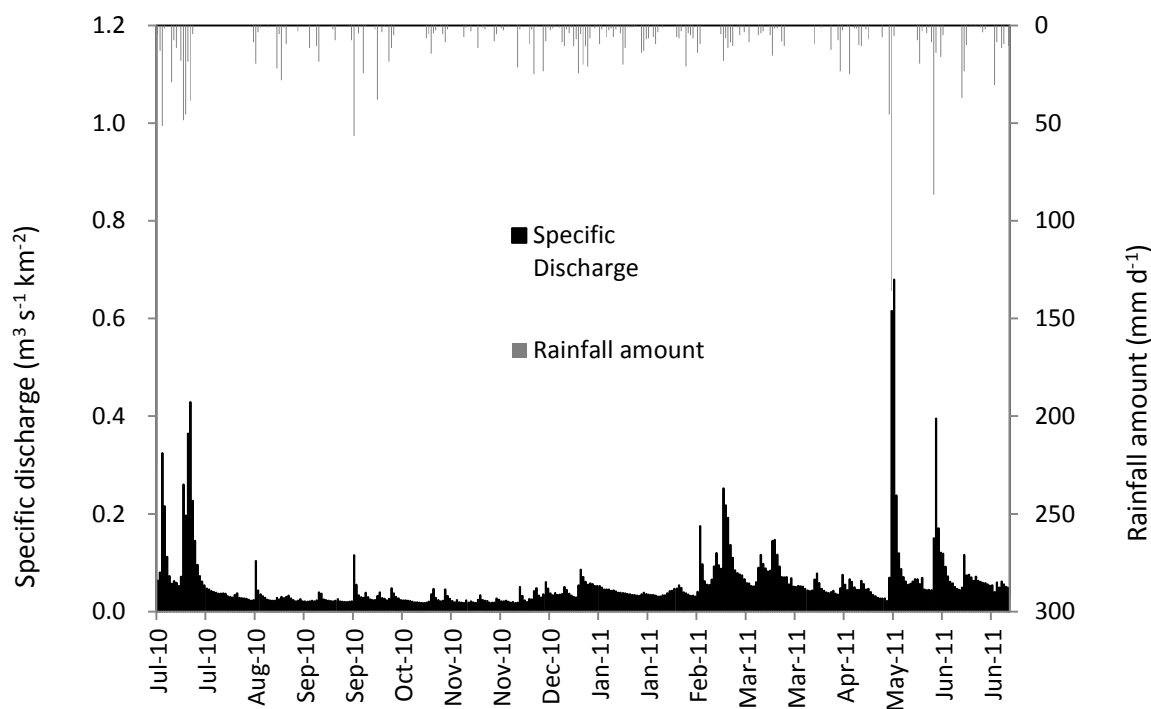


Fig. 3-2 比流量と横田における日降水量の経日変化

は 34.6 mg L<sup>-1</sup> と単純平均値よりもかなり大きく、出水時の影響が大きいことが示唆された。

COD は 0.9~15.0 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 2.6 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 4.0 mg L<sup>-1</sup> と SS 同様出水の影響が大きかった。D-COD は 0.7~5.6 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値は 1.8 mg L<sup>-1</sup> で加重平均値は 2.0 mg L<sup>-1</sup> と大きな差は見られなかった。これは出水の影響が比較的少ないためと考えられた。P-COD は 0.1~10.8 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値は 0.9 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値は 1.9 mg L<sup>-1</sup> で、出水時の影響を受けていると思われた。単純平均を見ると COD は 2.6 mg L<sup>-1</sup>、D-COD が 1.8 mg L<sup>-1</sup> で、D-COD の割合が 69% を占めていた。出水時の COD の上昇は D-COD、P-COD ともに見られたが P-COD の影響が大きかった。

Table 3-1 各成分の最大、最少、単純平均及び加重平均値

Constituent	Maximum	Minimum	Simple average	Weighted average
SS (mg L <sup>-1</sup> )	173.2	1.4	18.9	34.6
COD (mg L <sup>-1</sup> )	15.0	0.9	2.6	4.0
D-COD (mg L <sup>-1</sup> )	5.6	0.7	1.8	2.0
P-COD (mg L <sup>-1</sup> )	10.8	0.1	0.9	1.9
TOC (mg L <sup>-1</sup> )	6.5	0.7	1.1	1.4
DOC (mg L <sup>-1</sup> )	2.6	0.5	0.9	1.0
POC (mg L <sup>-1</sup> )	3.9	0.0	0.2	0.4
TN (mg L <sup>-1</sup> )	1.34	0.24	0.60	0.66
DN (mg L <sup>-1</sup> )	1.27	0.22	0.57	0.62
PN (mg L <sup>-1</sup> )	0.279	0.001	0.029	0.042
DIN (mg L <sup>-1</sup> )	1.17	0.16	0.52	0.55
NO <sub>3</sub> -N (mg L <sup>-1</sup> )	1.06	0.14	0.50	0.53
TP (mg L <sup>-1</sup> )	0.283	0.016	0.034	0.057
DP (mg L <sup>-1</sup> )	0.054	0.007	0.016	0.018
PP (mg L <sup>-1</sup> )	0.246	0.000	0.018	0.039
SRP (mg L <sup>-1</sup> )	0.040	0.003	0.011	0.012
D-Si (mg L <sup>-1</sup> )	7.7	3.6	6.4	5.9
TN/TP	48.1	3.0	21.4	11.6

TOC は 0.7~6.5 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 1.1 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 1.4 mg L<sup>-1</sup> と COD 同様出水の影響が大きかった。DOC は 0.5~2.6 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値は 0.9 mg L<sup>-1</sup> で加重平均値は 1.0 mg L<sup>-1</sup> と大きな差は見られなかった。これは出水の影響が比較的少ないためと考えられた。POC は 0.0~3.9 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値は 0.2 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値は 0.4 mg L<sup>-1</sup> で、濃度は低いが出水の影響を受けていると思われた。単純平均を見ると TOC は 1.1 mg L<sup>-1</sup>、DOC が 0.9 mg L<sup>-1</sup> で、DOC が 82% を占めていた。出水時の TOC の上昇は DOC、POC ともに見られたが、POC の影響が大きかった。

TN は 0.24~1.34 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 0.60 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 0.66 mg L<sup>-1</sup> と顕著な差はなかった。DN は 0.22~1.27 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 0.57 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 0.62 mg L<sup>-1</sup> であった。PN は 0.001~0.279 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 0.029 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 0.042 mg L<sup>-1</sup> と差が大きく、出水の影響が見られた。DIN は 0.16~1.17 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 0.52 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 0.55 mg L<sup>-1</sup> とほぼ同じ値であった。NO<sub>3</sub>-N は 0.14~1.06 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 0.50 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 0.53 mg L<sup>-1</sup> とほぼ同じであった。単純平均を見ると TN は 0.60 mg L<sup>-1</sup> で、DIN は 0.52 mg L<sup>-1</sup> と 87% を占めていた。DIN に含まれる 3 形態、NH<sub>4</sub>-N、NO<sub>2</sub>-N 及び NO<sub>3</sub>-N の中で NO<sub>3</sub>-N の割合が大きく 96% を占めており、NO<sub>3</sub>-N はほぼ検出限界の濃度で、残りは NH<sub>4</sub>-N であった。

D-Si は 3.6~7.7 mg L<sup>-1</sup> の範囲にあり、単純平均値が 6.4 mg L<sup>-1</sup>、加重平均値が 5.9 mg L<sup>-1</sup> と加重平均値の方が低い結果となった。これは出水時に濃度が低下することを意味している。

各項目の濃度と比流量の経時変化を Fig. 3-3 に示す。SS、COD (= D-COD + P-COD)、TOC (= D-DOC + P-DOC)、TN (= PN + DIN + DON) 及び TP (= PP + SRP + DOP) のピークが出水時の観測されている。12 月に入ると DIN 濃度が著しく上昇し、3 月まで継続した。上昇の原因は NO<sub>3</sub>-N が増加したため、冬季に発生

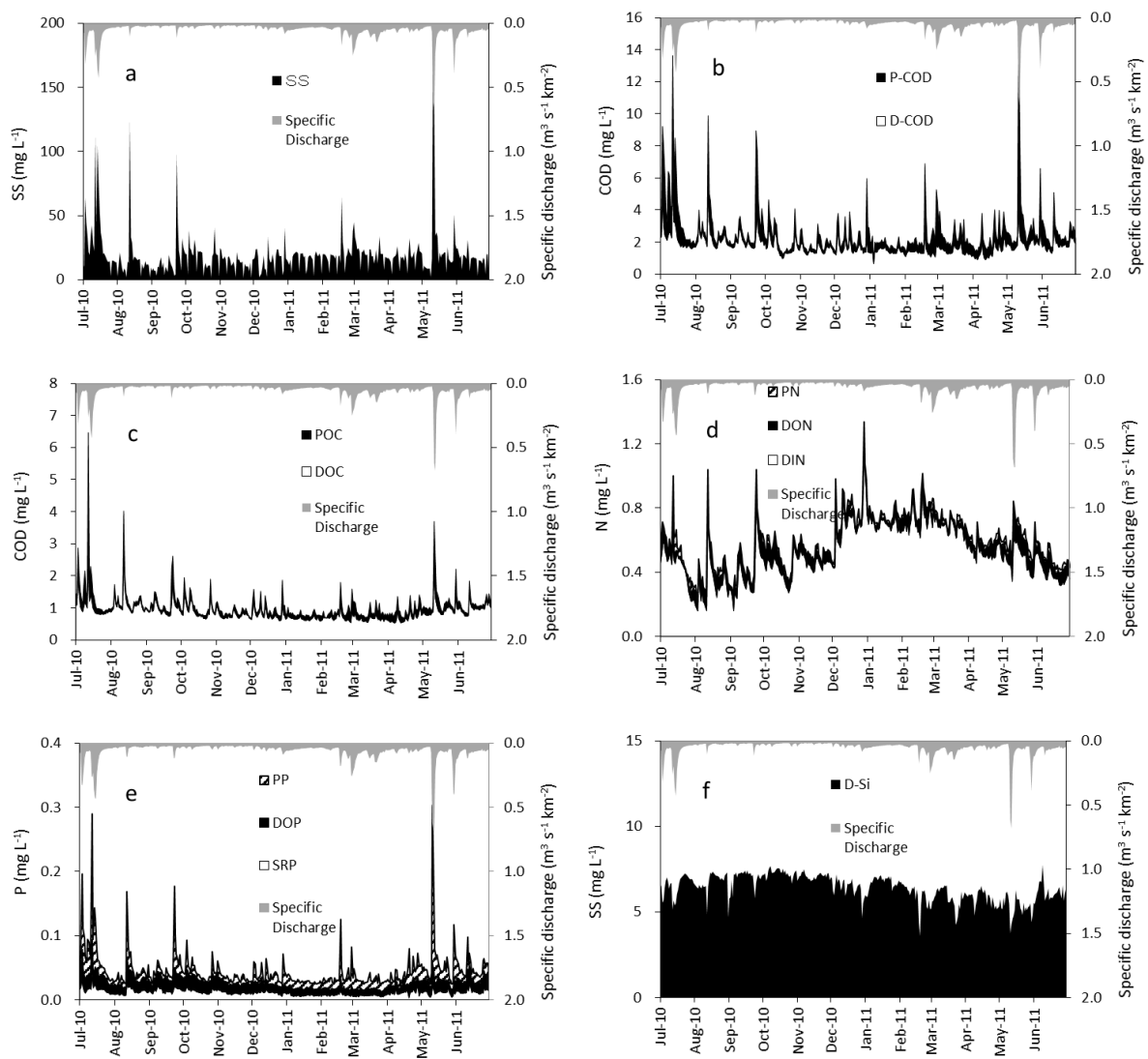


Fig. 3-3 各成分と比流量の経時変化

する西高東低の気圧配置によって中国大陸方面からもたらされる気塊の到来によって降下する雨・雪に含まれる窒素成分が上昇するためであると考えられている (Yoshioka et al., 2010)。また、出水に伴いスパイク状の濃度の急激な上昇が発生しており、この時 PN の上昇とともに  $\text{NO}_3\text{-N}$  も上昇し、出水後 1 週間程度影響が残っていた。TP も TN と同じく出水時にピークが観測され、原因は PP の濃度上昇であった。SRP 及び DOP の濃度変動は比較的少なかった。TOC も出水に伴う濃度上昇が観測されたが、主体は POC であった。TOC に対する DOC の占める割合は多く、単純平均値で 95% を超えていた。D-Si は他の項目と異なり、出水の度に濃度が低下

していた。これは D-Si が鉱物由来であり、D-Si を含まない降水によって希釈されていることが原因であると考えられた。

各項目の負荷量と流量との分布図を Fig. 3-4a~h に示す。図中に L-Q 式及び決定係数を示している。図に示した 8 項目は決定係数が示すようにほぼ直線的に分布していた。しかし、SS、COD、TOC、TP 及び SRP に関しては高流量域で回帰直線より

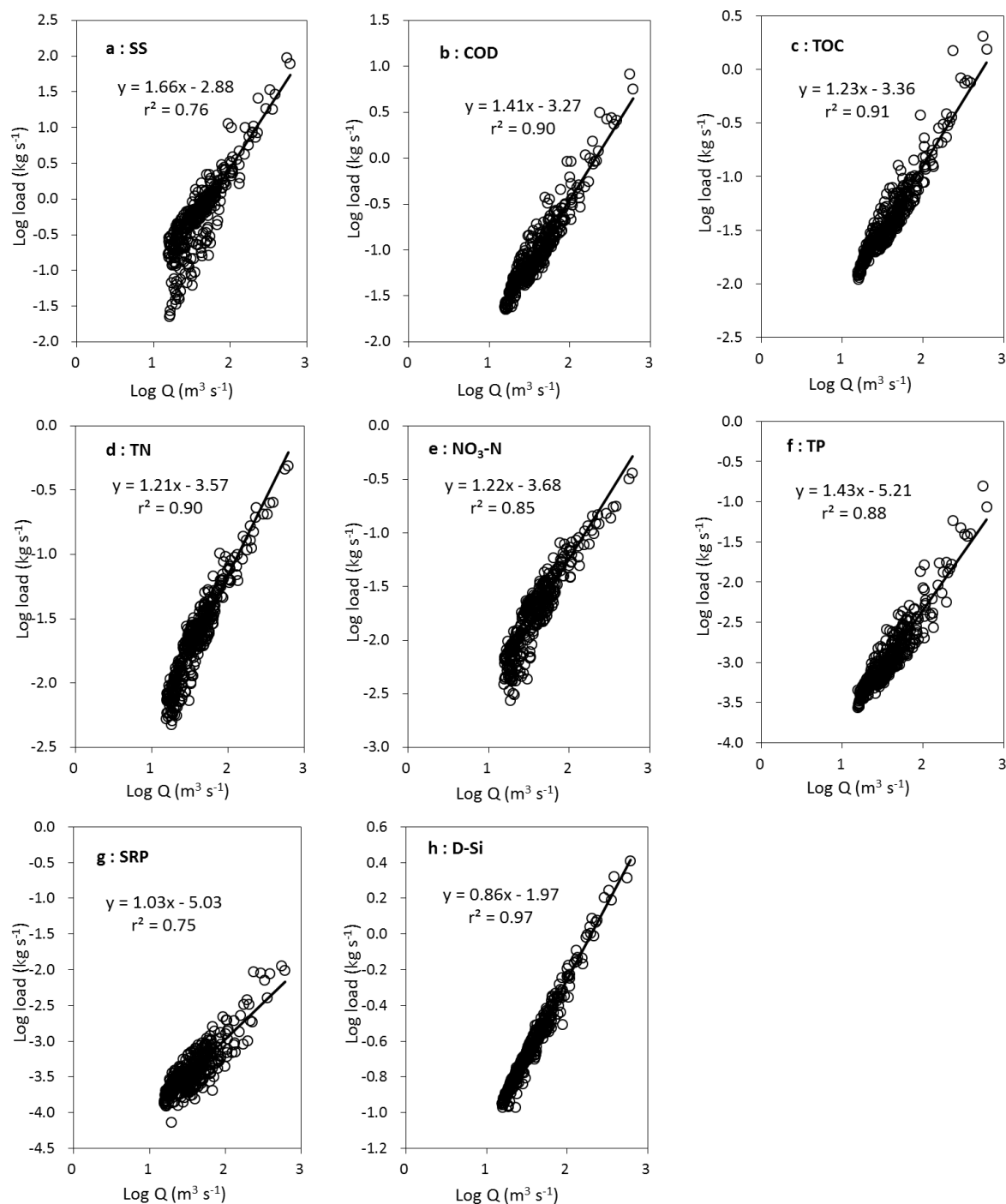


Fig. 3-4 各成分の負荷量の対数と流量の対数の関係式及び一次の L-Q 式

上方に分布していた。

Table 3-2 に各項目の回帰式、決定係数、実測濃度及び流量から計算した 1 年間の実測負荷量 (Load A)、LQ 式から計算した 1 年間の負荷量 (Load B) 及び Load A に対する Load B の比率 (B / A) を示す。TN、NO<sub>3</sub>-N 及び D-Si は B / A が 1 に近く、実測値から計算した 1 年間の負荷量の合計と L-Q 式から計算した 1 年間の負荷量はほぼ一致していた。しかし、SS、COD、TOC、TP 及び SRP に関しては比率が低いことから、L-Q 式からの計算値は低めに見積もっていると考えられた。

Table 3-2 各成分の年間負荷量 (Load A : 各調査日の濃度と流量から積算、Load B : 一次 L-Q 式から計算)

Constituent	Load A*	Load B*	Load B / Load A
SS	55700	44700	0.80
COD	6490	5380	0.83
TOC	2240	1930	0.86
TN	1060	1080	1.02
NO <sub>3</sub> -N	857	884	1.03
TP	91.6	69.1	0.75
SRP	20.0	16.9	0.85
D-Si	9480	9390	0.99

\* Unit : t year<sup>-1</sup>

### 3-4 考察

前節では  $\log L = a + \log F$  (Ferguson, 1986) を用いて負荷量を計算した。これと毎日の採水結果から計算した負荷量とを比較すると、Table 3-2 に示したように TN、NO<sub>3</sub>-N 及び D-Si は B/A が 1 に近く、実測値から計算した 1 年間の負荷量の合計と L-Q 式から計算した 1 年間の負荷量はほぼ一致していたが、SS、COD、TOC、TP 及び SRP に関しては比率が低く、L-Q 式を用いた計算では負荷量を過小評価していることが分かった。

通常、L-Q 式は負荷量と流量との分布をもとに一次回帰式を作成するが、前提条件として各項目の濃度は流量に関係なく一定である必要がある。Fig. 3-5a~h に各項目の濃度と流量の分布図、L-Q 式及び決定係数を示す。決定係数から見る限り、正の一次の関係があるのは、SS、COD、TOC、TP で、負の一次の関係があるのは D-Si であった。これらは流量が増加すると濃度も上昇していることを示している。ただし D-Si については流量の増加に伴って濃度が減少することを示していた。決定係数が若干低いのは、出水初期に高濃度の濁水が出て、出水後期には濃度が低くなることで (塚原ら、1998)、分布が広がるためであると解釈される (D-Si を除く)。負荷量は濃度と流量の積であり、この時濃度が流量と一次の関係にあれば L-Q 式は二次になるはずである。そこで、濃度が流量と一次の関係があった SS、COD、TOC、TP 及び SRP について L-Q 式に二次式を適応した (Table 3-3)。その結果、実測負荷に対する L-Q 式からの計算負荷の比率が向上し、最も比率が低かった TP において 0.75 から 0.91 まで改善された。



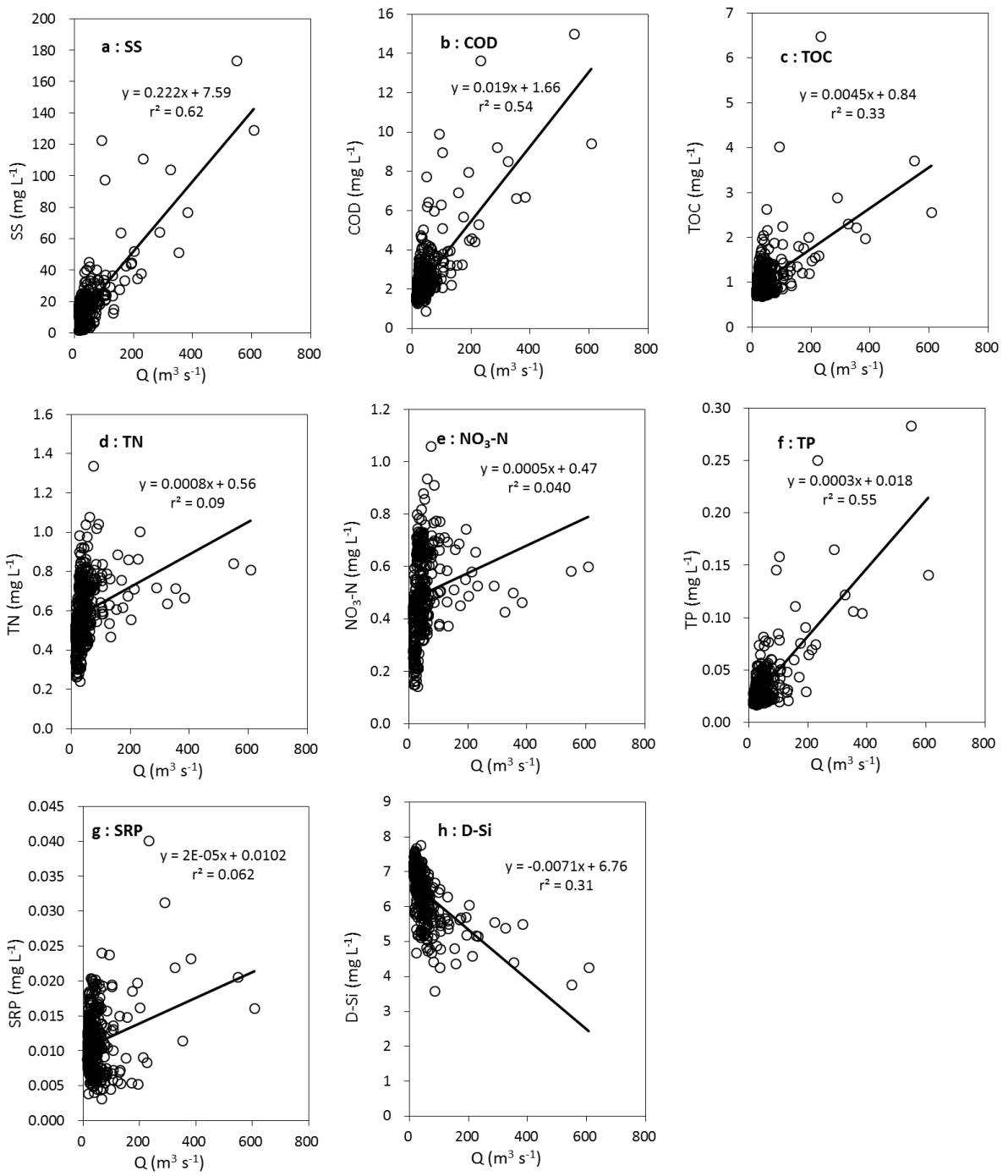


Fig. 3-5 各成分と流量の関係式

Table 3-3 各成分の二次 L-Q 式 (Load C : 二次 L-Q 式から計算)

Constituent	Quadratic expression	Load C*	Load B / Load A	Load C / Load A
SS	$\text{Log } L = 0.14 (\text{Log } Q)^2 + 1.17 \text{Log } Q - 2.47$	49000	0.80	0.88
COD	$\text{Log } L = 0.24 (\text{Log } Q)^2 + 0.55 \text{Log } Q - 2.55$	6070	0.83	0.94
TOC	$\text{Log } L = 0.26 (\text{Log } Q)^2 + 0.31 \text{Log } Q - 2.57$	2130	0.86	0.95
TP	$\text{Log } L = 0.34 (\text{Log } Q)^2 + 0.25 \text{Log } Q - 4.21$	83.5	0.75	0.91
SRP	$\text{Log } L = 0.28 (\text{Log } Q)^2 + 0.060 \text{Log } Q - 4.21$	18.1	0.85	0.91

\* : Calculated from quadratic expression. Unit : t

斐伊川神立橋では過去 2 回 (1983-1984 年、2001-2002 年)、斐伊川負荷量に関する同様の調査が行われている (Ishitobi et al. ; Kamiya et al., 2008)。この 2 回は 1 年間日曜日を除き毎日採水が行われた。今回の調査と合わせ、3 回ともデータがある TP について解析を行った。負荷量と流量の分布、一次及び二次の回帰式、それらの決定係数を Fig. 3-6a~c に示す。2001-2002 年の調査での決定係数 (一次及び二次共に  $r^2 = 0.73$ ) が小さく、これは最大流量が小さかったためと考えられた。このため 2001-2002 年の調査では、一次式及び二次式から計算された負荷量がそれぞれ 47.1 t、47.7 t とほとんど差がなかった。しかし実測負荷量に対する計算負荷量の比率 (Table

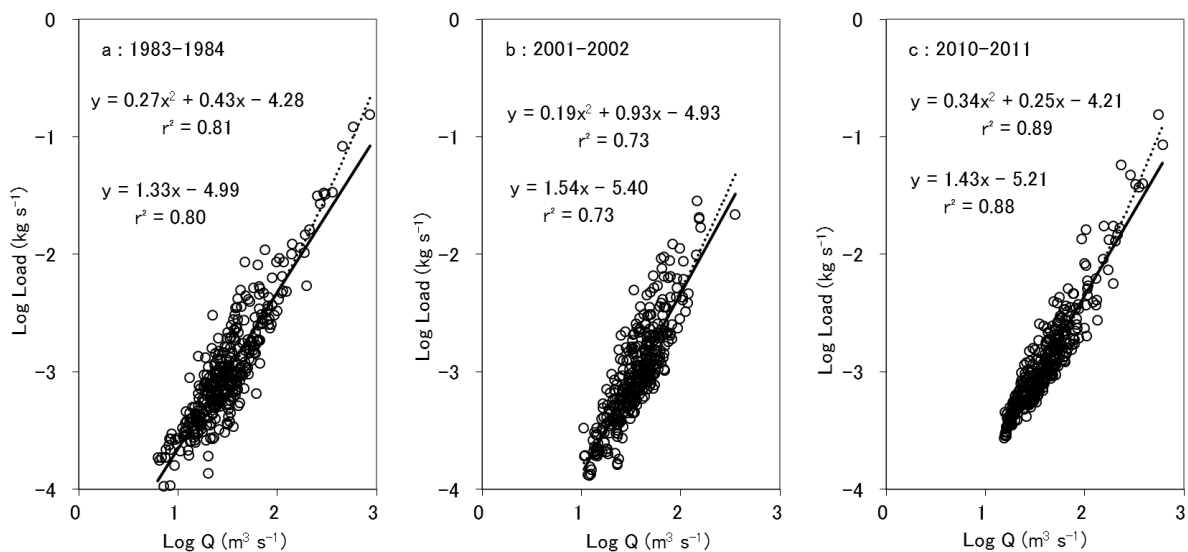


Fig. 3-6 1983-1984 年、2001-2002 年、2010-2011 年の TP 負荷量の対数と流量の対数の関係式 (一次式と二次式)

Table 3-4 3回の調査における流量とリン負荷量の比較

Observed year	Flow		Measured (t year <sup>-1</sup> )	Load	
	Flow range (m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> km <sup>-2</sup> )	Average flow (m <sup>3</sup> s <sup>-1</sup> km <sup>-2</sup> )		Linear equation (t year <sup>-1</sup> )	Quadric equation (t year <sup>-1</sup> )
1983-1984	0.0070 - 0.96	0.050	91.7	72.3	86.9
2001-2002	0.051 - 0.41	0.051	55.0	47.1	47.7
2010-2011	0.017 - 0.68	0.057	91.6	69.1	83.5

3-4) は、一次式は 0.87、二次式が 0.86 と 1983-1984 年や 2010-2011 年に比べ高かった。一次式と二次式で負荷量の計算結果に差が出るのは大きな出水がある場合で、1983-1984 年及び 2010-2011 年の調査がこれに該当した。これらの最大比流量は 1983-1984 年が 0.96 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup>、2010-2011 年が 0.86 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup>であったが、2001-2002 年の調査では 0.41 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> km<sup>-2</sup>と小さかった。このことが計算負荷量に差が出た原因であると考えられた。よって、河川からの負荷量を把握するために調査を行う場合、SS、COD、TOC、TP などの流量と一次の関係を持つ項目については、できる限り高流量時のデータを取得して L-Q 式を二次式に当てはめるのが適切であると考えられた。

これまでに多くの河川において負荷量が計算されているが、濃度と流量とが一次の関係にある項目については一次の L-Q 式を用いた負荷量積算により過小評価されていると考えられる。洪水のような大きな出水は年に何度も発生しないが、1度の出水は大きな負荷量を持っているため、全負荷量に与える影響は大きい。最近地球温暖化を原因とするゲリラ豪雨が全世界で頻発するようになった。1度の洪水でも河川からの負荷量は大きく、今後降水量が増加することで出水による負荷量が更に加算されることになれば、下流の湖や海へ流入する負荷量も増大することとなる。洪水に伴う濁水にはリンが多量に含まれ、多くの懸濁物質は下流の湖又は海で堆積する。堆積したリンは貧酸素化に伴い SRP として溶出するため、水温の上昇や貧酸素水域の増大により水質悪化が懸念される。また、大陸からの越境汚染 (Yoshioka et al., 2009) に

よって降水中の窒素濃度、リン濃度及びそれらの降下物量は上昇傾向にあり、その影響で斐伊川の窒素濃度及びリン濃度も増加している（※詳細は第4章で述べる）が、日本海側ではどこも同じ状況にあると考えられる。今後中国の化石燃料の消費量はますます増加することが考えられるが、浄化対策がなされない限りは日本への影響は増加する。したがって、河川の負荷量はまだ増加が予想されるため、使用する L-Q 式もできる限り新しいものを用いる必要がある。

## 第4章 中国大陸由来の大気降水物による斐伊川の窒素・リン濃度の長期的変化

### 4-1 はじめに

窒素とリンは、水環境において過負荷となった時に富栄養化を引き起こす主要な栄養素である。モニタリングや水質改善のための規制及び資金の配分を含めた適切な環境管理活動を実現するためには、これらの栄養素を同定、定量化することが重要である。

水域における栄養負荷は、下水道のような点源負荷となるものと農業排水のような面源負荷となるものとに分けられる。総負荷量は一般的に点源負荷と面源負荷を計算することで推計しており、それらの負荷量は流域内の様々な発生源の平均量を排出係数で乗算することで求めている (Driscoll et al., 2003)。この数学的手法は毎年 of 統計値を用いることで栄養塩負荷量の長期的変化を容易に検証できるのが利点であるが、川へ流入するまでの間の損失量を推定する必要があり (Hagy et al., 2004)、大気降水物を經由して遠隔地域から新たな負荷が生じると、長期的変化の研究における大きな誤差要因となっていると思われる。

中国大陸からの NO<sub>x</sub> 排出量は 1995 年の  $13.9 \times 10^6$  t から 2030 年には  $21.1 \times 10^6$  t に増加するものと見込まれている (Klimont et al., 2001)。Fukuzaki et al. (2001) は、気塊の流れが中国大陸から日本へと向かう頻度が最も多い冬の間において、日本海側の降水中の硫酸イオン、硝酸イオン、アンモニウムイオン、カルシウムイオンの濃度が高くなることを報告している。中国から越境してくる窒素化合物も日本の河川に影響しており、例えば Chiwa et al. (2012) は、越境気塊を起源とする窒素化合物が日本海に面する日本南西部において過去 30 年間で森林に窒素飽和を引き起こし河川水中の硝酸塩濃度を増加させていることを報告している。

中国では大気中のリンの量も増加して湖などの水質に影響を与えている。例えば、中国の Taihu 湖に流入する全リン (TP) の 8% (乾性沈着で  $0.04-0.44 \times 10^{-2}$  kg km<sup>-2</sup>

yr<sup>-1</sup>、湿性沈着で  $0.33 \times 10^{-2} \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ) が発電所から排出されるエアロゾルによるものとみられている (Luo et al., 2011)。窒素化合物と同様にリン化合物も中国から日本へと流れている。Tsukuda et al. (2006) は、日本の中部地方に降下する TP の  $15 \pm 5\%$  ( $106 \pm 41 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ) が東部ユーラシアから粉塵として運ばれたもので、TP の  $39 \pm 4\%$  ( $302 \pm 28 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ) が中国での石炭の燃焼由来であると推計した。人為的由来とする大気降下物中の窒素やリンの増加は、降下物が直接一次生産を増加させる貧栄養下の海洋水において大きく影響する (Kanakidou et al., 2012)。大気降下物による栄養塩負荷の増加も富栄養化した生態系を乱していると思われるが、大気中の窒素やリンが下流域において栄養塩濃度を増加させているという証拠はまだ定量的に示されていない。例えば中部地方にある森林の実験区において実施された 1993-1999 年の調査と 2000-2004 年の調査とでは、全窒素 (TN) の大気降下量は  $1,539 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  から  $1,943 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  に、同様に TP の降下量は  $66 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  から  $126 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  に増加した。しかし、森林の生態系が降下した窒素やリンを保持するため、河川水フラックスにさほど影響していなかった (Hartmann et al., 2008)。筆者の知る限りでは、大気降下物中の窒素やリンが河川水中の栄養塩濃度を増加させていることを立証した報告はまだない。

斐伊川は日本海の南西部に位置する島根県の東部を流れており、中国大陸から長距離輸送される大気降下物の影響を受けている。斐伊川水系内では点源負荷及び面源負荷の削減努力はなされているが、1884 年と 2002 年との間で TP の年間負荷量は  $96 \times 10^3 \text{ kg}$  から  $62 \times 10^3 \text{ kg}$  に減少したものの、TN の年間負荷量は  $860 \times 10^3 \text{ kg}$  から  $960 \times 10^3 \text{ kg}$  に増加した (Kamiya et al., 2008)。斐伊川集水域内には TN の増加を説明できるような負荷発生源がないことから、Kamiya et al. (2008) は大気降下物の増加によって増加したものと考えた。

1984 年と 2002 年の間で斐伊川の TP 負荷量は減少したものの、2000 年以降日本列島に到達する粉塵の頻度や強度がかなり増加していること (Lim and Chun, 2006)、中国からの窒素やリン排出量が指数関数的に増加していること (Tian et al., 2007)

から、TP 負荷量は 2002 年以後増加しているものと思われる。Yoshioka et al. (2009) は、斐伊川下流域に移動する降水中の TN 月平均濃度が中国北部から来る大陸性気塊に影響を受けていること、中国北部やシベリア西部を起源とする気塊によって大陸性の降水の方が他地域由来の降水よりも TP 濃度が高いことを報告した。

本研究では、水域内の点源・面源負荷により富栄養化している斐伊川において、(1) 斐伊川水系における降水中の窒素及びリンのフラックス、(2) 斐伊川の窒素、リン濃度及び河川負荷量についてそれぞれの長期的傾向 (2002 年 1 月から 2012 年 12 月) を調査し、(3) 斐伊川の栄養塩濃度における大気降下物中の窒素及びリンの影響を評価することを目的とした。Kamiya et al. (2008) が河川水質の評価を行った以降の期間について調査している。

## 4-2 方法

### 4-2-1 調査地域

斐伊川は日本の南西部に位置し、日本海へと注いでいる (Fig. 4-1)。神立橋における斐伊川の流域面積はおよそ 920 km<sup>2</sup> であり、その平均流量 (2002 年 1 月 1 日～2012 年 12 月 31 日) は 43.7 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup> である。斐伊川の栄養塩負荷は富栄養化した宍道湖へ流れ込んでおり、神立橋における流域面積は宍道湖全流域面積の 70% に相当する (Kamiya et al., 2008)。2000 年において流域内の 81.3% を森林が占め、6.1% が田畑、12.6% が住宅地や耕作放棄地となっていたが、2010 年ではそれぞれ 81.0%、3.1%、15.9% へと変わっている。また、流域内の人口は 2000 年で 63,000 人だったが、2010 年には 56,500 人に減少した。

2001 と 2010 年との間に流域内の栄養塩負荷が増えたという証拠はない。2001 年と 2010 年とでは、計算された栄養塩負荷量は同じであり (島根県、2002, 2012)、第 2 章でも述べたように田畑においては減肥化が進み肥料の使用量は減少していた。

この地域では 6～7 月に梅雨前線が発達し、長期間停滞してしばしば激しい降雨を

もたらす。台風は夏と秋に接近し、冬には大雪をもたらす雲が発生する。流域の山側の年間平均降水量は 2,300 mm であり、海岸側は 1,700 mm である（国土交通省中国地方整備局、2010）。

Yoshioka et al. (2009) は、中国北部（すなわち北京近郊）や中国南西部（すなわち上海近郊）由来の気塊により松江市の降水中の TN 濃度が季節的な影響を受けていることを報告しており、11～3 月にかけてはこれらの地域からの影響が半分以上であった。そのため本研究では、11～3 月については寒候期、4～10 月については暖候期とそれぞれ定義した。

#### 4-2-2 採水

松江市にある島根県保健環境科学研究所（北緯 35° 474981、東経 135° 012977）（Fig. 4-1）の屋上に設置した降水採取装置（US-410、小笠原計器）を用いて、2002 年 1 月から 2012 年 12 月にかけて 1 か月ごとに降水を採取した。この採取装置の感知器は雨や雪を感知すると自動的に蓋（直径 20 cm）が開き、止むと閉まるようになっており、乾性降下物を採取しない構造となっている。採取容器は冷蔵庫によって 5°C に保たれており、採取した降水は月平均濃度の分析のために混合し、月末に回収するまで冷蔵庫にて貯蔵した。栄養塩濃度が貯蔵期間内に変化しないことは予め確認している。松江市における月降水量は気象庁のデータベースを参照した。アメダス（AMEDAS）によると、斐伊川上流域に最も近い測定局が横田測定局である（北緯 35° 174562、東経 133° 103650）。横田測定局における 1884 年から 2013 年（30 年間）の降水量の最大値、最小値、平均値、中央値はそれぞれ 2,136.5 mm、1,263 mm、1,757.4 mm、1,748.3 mm であり、松江市（北緯 35° 458203、東経 133° 065225）ではそれぞれ 2,314.5 mm、1,338.5 mm、1,789.0 mm、1,792.0 mm であった。このことから、斐伊川流域における降水量は均一とみなした。

斐伊川の表層水を大津（北緯 35° 369788、東経 132° 781759）に位置する神立橋にて採取し、流量データは国土交通省中国地方整備局出雲河川事務所より入手した。



ステンレス製のバケツを用いて 2002 年 1 月から 2012 年 12 月にかけて毎月採水を行った。大津における 2002 年 1 月から 2012 年 12 月までの月平均流量は国土交通省の水文水質データベースから入手した。

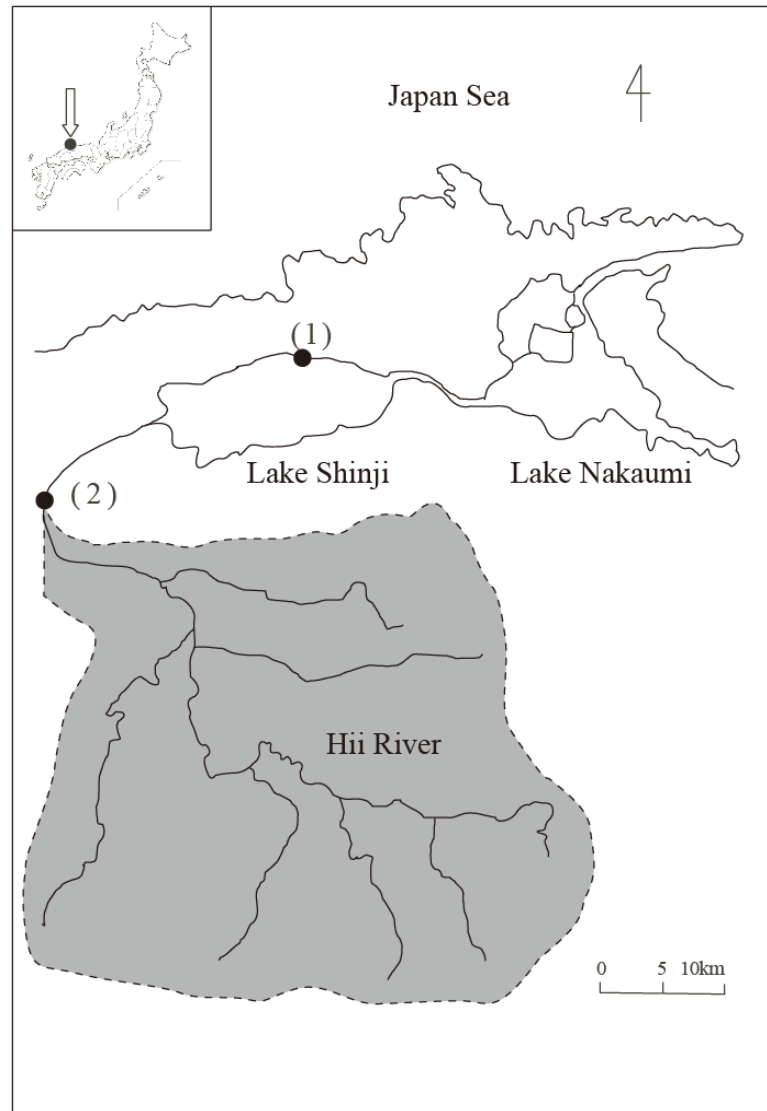


Fig. 4-1 降水(1)と河川水(2)の採取地点

#### 4-2-3 分析方法

採取した試料は TN、硝酸態窒素 ( $\text{NO}_3\text{-N}$ )、亜硝酸態窒素 ( $\text{NO}_2\text{-N}$ )、アンモニウム態窒素 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ )、TP、リン酸態リン ( $\text{PO}_4\text{-P}$ ) について分析した。溶存態物質の測定には、予め 200 mL の Milli-Q 水で洗浄して  $105^\circ\text{C}$  で 2 時間乾燥させた Whatman GF/C ガラス繊維ろ紙 (直径 47 mm、有効孔径  $1.2\ \mu\text{m}$ ) を用いて試料水をろ過したものを使用した。窒素とリンの溶存態濃度及び粒子態濃度が GF/C と GF/F のどちらを使用しても測定結果に有意な差が認められないことは予め確認した ( $p > 0.05$ : 片側 t 検定)。GF/C は日本の水質監視調査においてよく使用されており、GF/F は他国でよく用いられている。ろ過水中の栄養塩 ( $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ ) はオートアナライザー (Branluebbe TRAACS800) を用い、 $\text{NH}_4\text{-N}$  はインドフェノール青法 (Scheiner, 1976)、 $\text{NO}_2\text{-N}$  はナフチルエチレンジアミン法 (Bendschneider and Robinson, 1952)、 $\text{NO}_3\text{-N}$  はカドミウム還元法 (Wood et al., 1967)、 $\text{PO}_4\text{-P}$  はモリブデン青法 (日本分析化学会, 1994) によりそれぞれ分析した。TN 濃度は高温触媒燃焼法を用いた TN 分析計 (TN-100、三菱化学) により求め、粒子態窒素 (PN) 濃度はろ過前後の TN 濃度を差し引いて計算した。溶存態有機窒素 (DON) はろ過した TN 濃度から  $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$  の合計を差し引いて求めた。TP 濃度は原水 50 mL に 4% (w/v) のペルオキシ二硫酸カリウムを 5 mL 加えてオートクレーブ処理 (Ebina et al., 1983) 後、TRAACS800 に付属するリン酸測定用の分光光度計により求めた。粒子態リン (PP) 及び溶存態有機リン (DOP) は PN 濃度や DON 濃度と同じ計算により求めた。以降、未ろ過水の数値 (溶存態と粒子態の合計) を TN、TP とする。すべての項目の検出下限値は  $0.001\ \text{mg L}^{-1}$  であり、検出限界値未満の数値はすべて 0 として扱った。

相関分析、両側 t 検定及び Mann-Kendall の  $\tau$ -b 検定は統計解析ソフトウェアの SPSS Statistics ver21 (IBM 社) を用いて行った。Mann-Kendall の  $\tau$ -b 検定はある栄養塩濃度が長期的に増加傾向なのか減少傾向なのかを調べるために用いた。長

期的傾向については年単位で解析した。統計の解析結果（ $\tau$  値：順位相関係数、 $p$  値：棄却域の確率）はそれぞれの図表（Fig. 4-2, 4-5, 4-6, Table 4-4）に示した。それぞれの傾きについては、栄養塩濃度が経年でどれくらい増加傾向あるいは減少傾向なのかを調べるため、ProUCL ver5（U.S. EPA 社）を用いて Theil-Sen プロットの傾きを求めた。

#### 4-3 結果

##### 4-3-1 降水中の栄養塩濃度及びその負荷量

降水中の栄養塩濃度平均を Table 4-1 に示す。TN 濃度は  $922 \mu\text{g L}^{-1}$  であり、そのうち 89% ( $822 \mu\text{g L}^{-1}$ ) が溶存態無機窒素 (DIN) であった。NO<sub>3</sub>-N は DIN 濃度の 67% ( $547 \mu\text{g L}^{-1}$ ) を占めていた。NH<sub>4</sub>-N の平均濃度は硝酸塩のほぼ半分であり、NO<sub>2</sub>-N の平均濃度はかなり低かった ( $2 \mu\text{g L}^{-1}$ )。TP の平均濃度は  $17 \mu\text{g L}^{-1}$  であり、その大半が PP ( $7 \mu\text{g L}^{-1}$ ) と PO<sub>4</sub>-P ( $8 \mu\text{g L}^{-1}$ ) だった。

Table 4-1 2002 年 1 月～2012 年 12 月に採取した月ごとの降水栄養塩濃度一覧

	Number of samples	Average	Standard deviation	Minimum	Maximum
Total nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (TN)	118	922	540	226	3676
Dissolved organic nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	108	98	159	0	1024
Dissolved inorganic nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (DIN)	125	822	499	138	3555
Particulate nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	108	33	30	0	130
NH <sub>4</sub> -N ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	125	273	234	0	1242
NO <sub>2</sub> -N ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	125	2	3	0	15
NO <sub>3</sub> -N ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	125	547	370	45	3181
Total phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (TP)	123	17	17	3	101
Dissolved organic phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	116	3	4	0	23
Particulate phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	121	7	7	0	46
PO <sub>4</sub> -P ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	116	8	12	0	72

TN、TP 濃度は 1 年の中でそれぞれ季節的な変動を示した。降水中の栄養塩フラックス（流域面積に対する濃度×月降水量で計算）は全体的に似た傾向であった (Fig.

4-2A, C)。観測期間を通じて、TN は一貫して寒候期に高く、TP は暖候期に高かった (Table 4-2)。50  $\mu\text{g L}^{-1}$  以上の高濃度の TP は 5 回観測され、いずれも暖候期に発生していた。そのうち 4 回については  $\text{PO}_4\text{-P}$  が TP の 50%以上を占めていた (Table 4-3)。

寒候期に観測された高濃度の TN は、主に高濃度の DIN によるものであった (Fig. 4-3A)。DON、PN の平均濃度は寒候期も暖候期も同じであった。暖候期に TP 濃度が高くなるのは、主に  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度が高かったことによるものであった (Fig. 4-3B)。DOP の平均濃度は寒冷期よりも暖候期の方が少し高かったが、PP の平均濃度に季節での差は見られなかった。

TN は  $-0.44 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  と減少傾向を示したが、統計的に有意ではなかった (Fig. 4-2A)。降水物中の窒素化学種は安定しており、時間経過でほとんど変化しなかったが、DIN だけが  $0.91 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  と増加傾向を示した (Table 4-4)。一方、TP は  $0.11 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  で有意に増加傾向を示した。PP は  $0.04 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  (Fig. 4-2D)、DOP は  $0.04 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  とそれぞれ増加傾向を示し、全てのリン化学種が増加傾向にあった。 $\text{PO}_4\text{-P}$  ははっきりとした増加傾向を示さず (Fig. 4-2E)、TN:TP 比は明らかに減少傾向であった (Fig. 4-2F)。

TN (Fig. 4-4A)、TP (Fig. 4-4B) の降下量を経年で比較すると、TP が明らかに増加していた。他の年よりも一際高い 2011 年を除外しても、TP フラックスは 2002-2004 年よりも 2005-2012 年 (2008、2011 年を除く) の方が多かった (t-検定、 $t = -2.55$ 、自由度 = 7、 $p = 0.038$ )。11 年間の年平均フラックスは、TN が  $1.33 \times 10^3 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  (標準偏差 :  $\text{SD} = 3.11 \times 10^2 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ )、TP が  $26.4 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  ( $\text{SD} = 14.6 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ) だった。

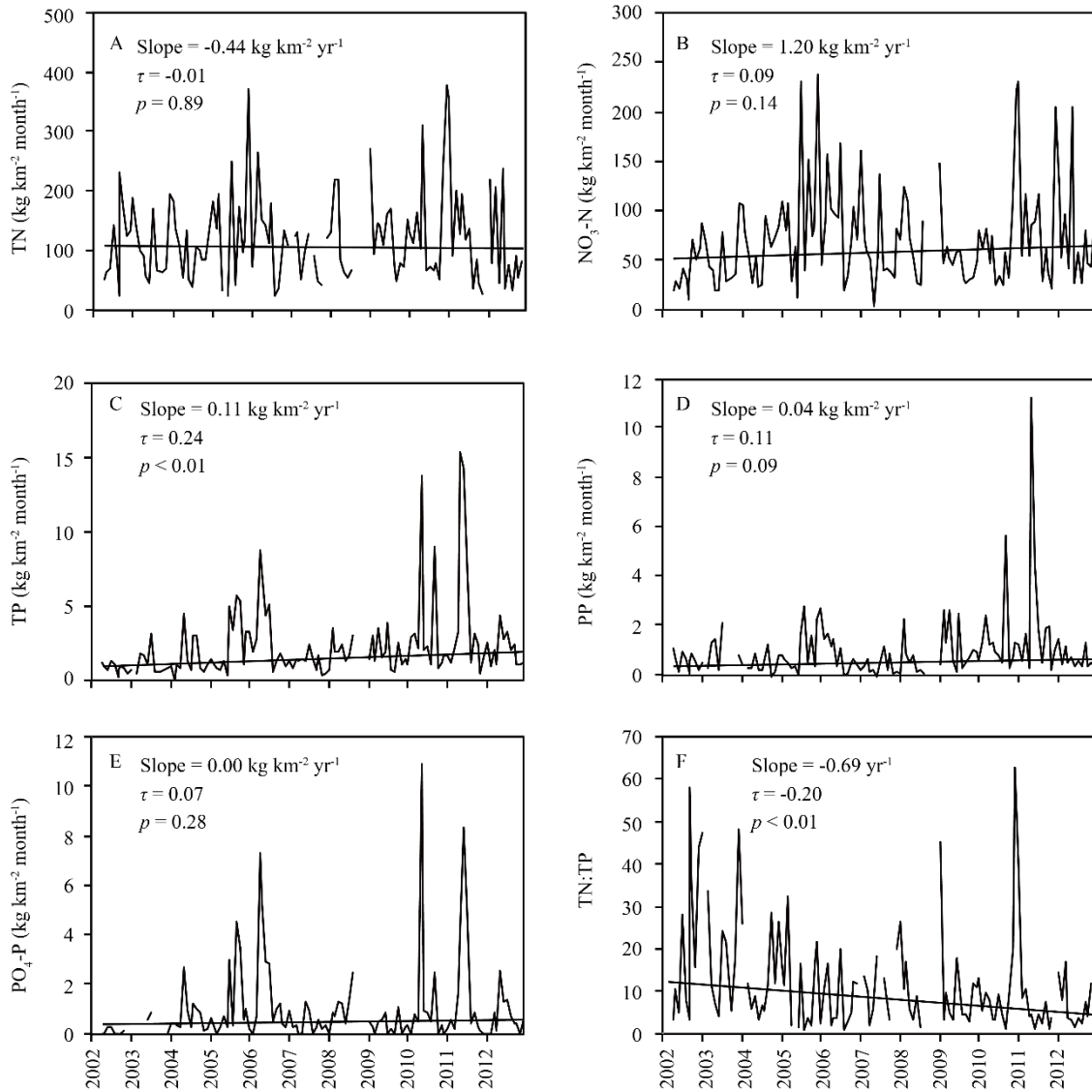


Fig. 4-2 2002年1月～2012年12月における降水の栄養塩フラックス（濃度×流域面積に対する月降水量）

Table 4-2 2002年1月～2012年12月の暖候期（4～10月）及び寒候期（11～3月）における降水及び河川水中のTN、TP平均濃度（両側t検定；自由度=10）

	Total nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )					Total phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )				
	Warm		Cold		<i>p</i>	Warm		Cold		<i>p</i>
	Mean	SD	Mean	SD		Mean	SD	Mean	SD	
Precipitation	771	174	1159	172	<0.01	21	10	10	4	<0.01
River	493	53	622	42	<0.01	33	8	26	5	0.03

Table 4-3 2002年1月～2012年12月においてTP濃度が $50 \mu\text{g L}^{-1}$ 以上となった時の各態リン濃度

Date	TP	DOP	PP	Phosphate	Phosphate:TP
Jun 2011	101	10	32	59	58
May 2010	91	10	9	72	79
Sep 2010	73	7	46	20	27
Apr 2006	70	1	10	59	84
May 2012	68	16	12	40	59

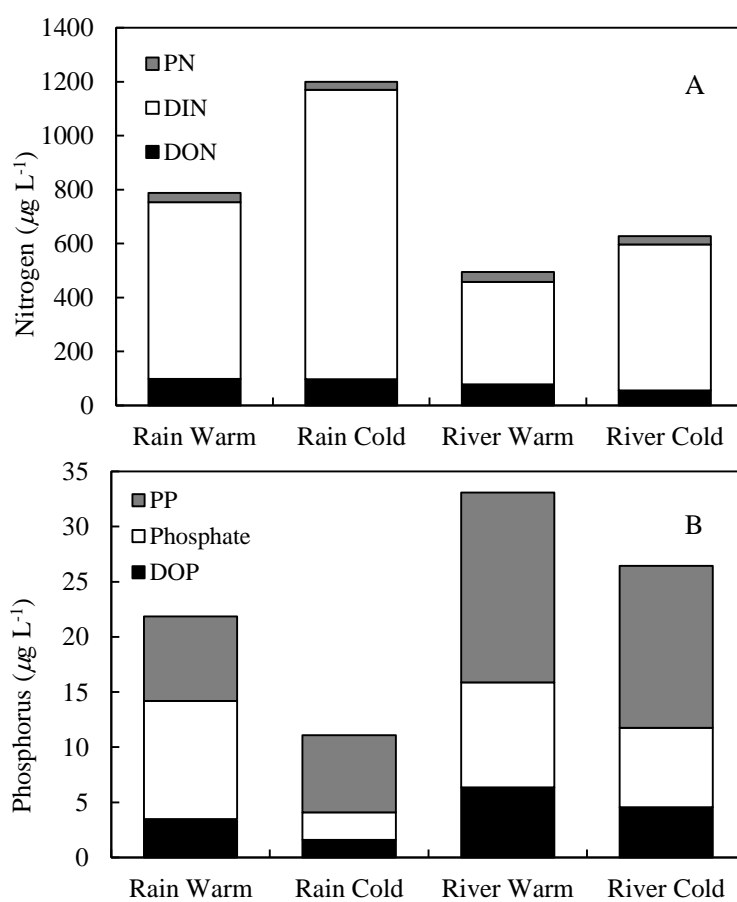


Fig. 4-3 2002年1月～2012年12月の暖候期（4～10月）及び寒候期（11～3月）における各態窒素（A）と各態リン（B）の平均濃度

Table 4-4 Mann-Kendall の  $\tau$ -b 検定による降水量及び降水の栄養塩フラックスの検定結果

	Precipitation	TN	DON	DIN	PN	TP	DOP	PP	PO <sub>4</sub> -P
Slope	-0.66	-0.44	-1.83	0.91	-0.07	0.11	0.04	0.04	0.00
$\tau$	-0.02	-0.01	-0.06	0.05	-0.03	0.24	0.21	0.11	0.07
$p$	0.79	0.89	0.39	0.45	0.60	<0.01	<0.01	0.09	0.28

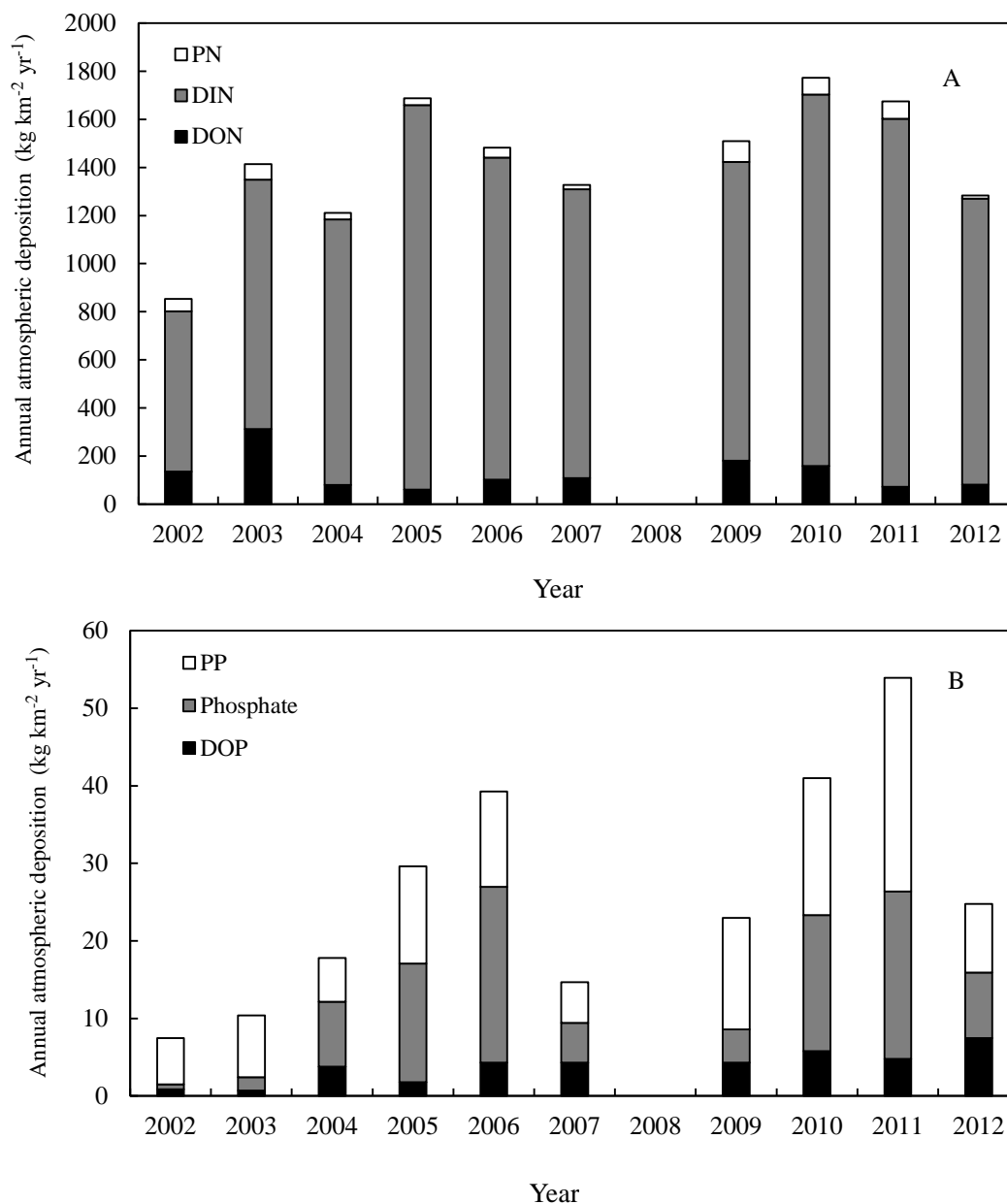


Fig. 4-4 2002～2012年降水の栄養塩フラックス (kg km<sup>-2</sup> yr<sup>-1</sup>) (A:窒素、B:リン) 経年変化 (※2008年は一部のデータ欠測のため未集計)

#### 4-3-2 河川水中の栄養塩濃度及びその負荷量

調査期間における斐伊川の TN の平均濃度は  $547 \mu\text{g L}^{-1}$  であり、うち 82% ( $447 \mu\text{g L}^{-1}$ ) が DIN であった (Table 4-5)。このうち  $\text{NO}_3\text{-N}$  は DIN の 96% を占め、平均濃度は  $428 \mu\text{g L}^{-1}$  だった。 $\text{NH}_4\text{-N}$  の平均濃度は  $16 \mu\text{g L}^{-1}$  で、 $\text{NO}_2\text{-N}$  はわずか  $3 \mu\text{g L}^{-1}$  であった。TP の平均濃度は  $30 \mu\text{g L}^{-1}$  であり、その 53% が PP で濃度は  $16.0 \mu\text{g L}^{-1}$  だった。溶存態リンである  $\text{PO}_4\text{-P}$  ( $9 \mu\text{g L}^{-1}$ )、DOP ( $6 \mu\text{g L}^{-1}$ ) は同じような濃度であった。

Table 4-5 2002 年 1 月～2012 年 12 月に採取した月ごとの斐伊川水質濃度一覧

	Number of samples	Average	Standard deviation	Minimum	Maximum
Total nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (TN)	132	547	145	205	925
Dissolved organic nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	127	70	58	0	368
Dissolved inorganic nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (DIN)	132	447	146	72	883
Particulate nitrogen ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	127	34	32	0	243
$\text{NH}_4\text{-N}$ ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	132	16	18.4	0	143
$\text{NO}_2\text{-N}$ ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	132	3	2	0	11
$\text{NO}_3\text{-N}$ ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	132	428	141	71	827
Total phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ ) (TP)	132	30	19	10	141
Dissolved organic phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	131	6	3	0	18
Particulate phosphorus ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	131	16	17	0	112
$\text{PO}_4\text{-P}$ ( $\mu\text{g L}^{-1}$ )	132	9	4	0	26
TN:TP	132	21.5	9.2	3.5	62.1

降水と同様に、河川水中の TN もまた暖候期よりも寒候期の方が高い濃度を示し、その差も明確だった (Table 4-2)。河川水中の TP は降水の結果と同様に、寒候期よりも暖候期の方が高い濃度を示し、明らかに差が見られた。

降水同様、寒候期に河川水中の TN が高濃度になることは、DIN 濃度が高いことから裏付けられる (Fig. 4-3A)。DON、PN 濃度は寒候期と暖候期とで同じであった。リンについては  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度が寒候期よりも暖候期の方が高かった (Fig. 4-3B)。



河川水中の TN 濃度は減少傾向 ( $-3.98 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ , Fig. 4-5A) を示した。DON ( $-4.75 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ ,  $p < 0.01$ ) と PN ( $-0.13 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ ,  $p < 0.05$ ) は有意な減少傾向を示す一方で、DIN は増加傾向 ( $2.34 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ ,  $p = 0.55$ ) を示した。河川水中の TP 濃度は有意な増加傾向 ( $0.51 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ , Fig. 4-5C) を示したが、 $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度のみが有意に増加傾向 ( $0.26 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ , Fig. 4-5E) を示しただけで、PP ( $0.00 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ , Fig. 4-5D) や DOP ( $0.00 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ ,  $p = 0.22$ ) は増加傾向を示さず、TN : TP 比については有意な減少傾向を示した ( $-0.51 \mu\text{g L}^{-1} \text{yr}^{-1}$ , Fig. 4-5F)。

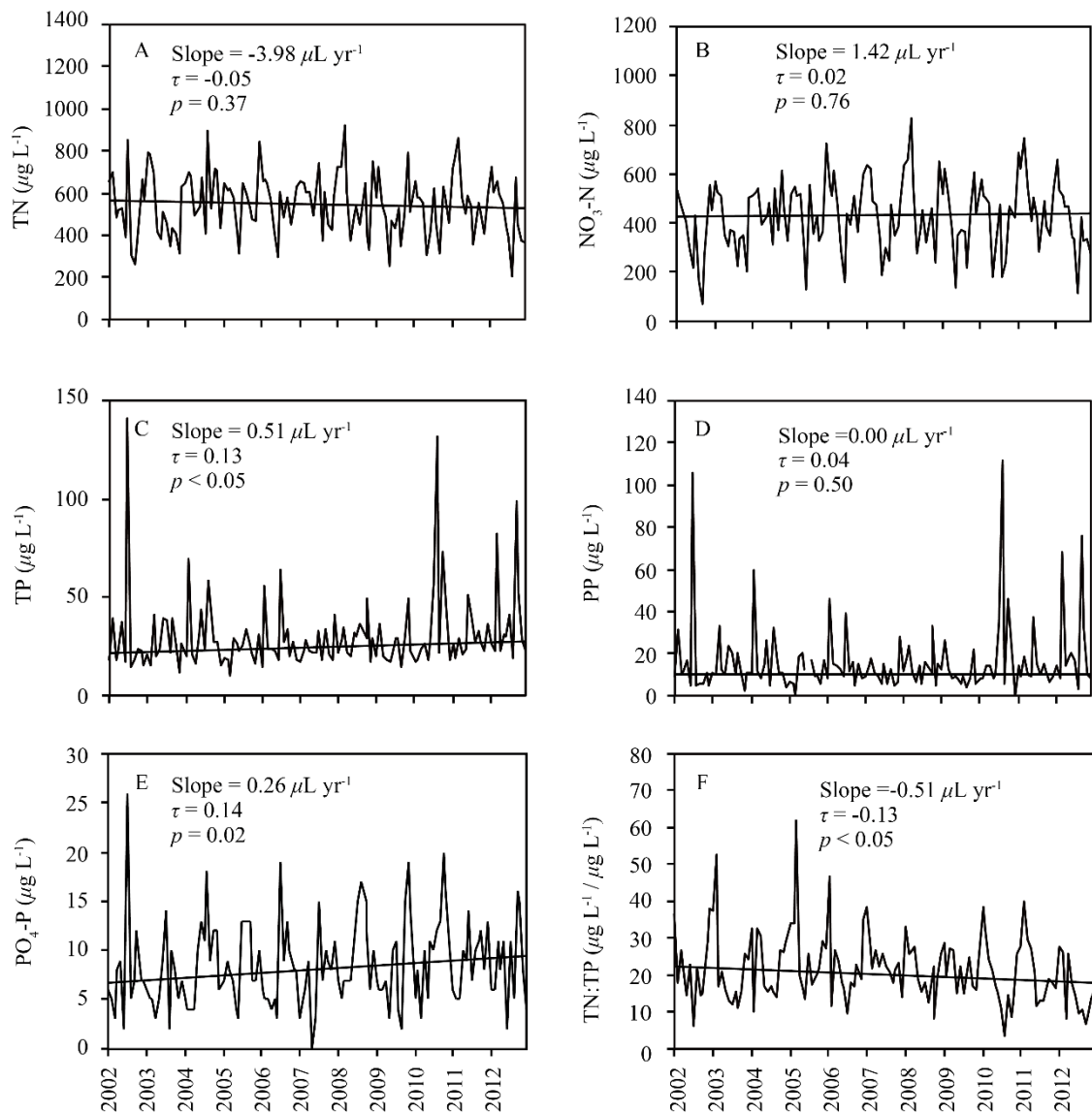


Fig. 4-5 2002年1月～2012年12月における斐伊川の栄養塩濃度推移

Table 4-6 Mann-Kendall の  $\tau$ -b 検定による斐伊川の月間流量及び栄養塩負荷量の検定結果

	Monthly flow	TN	DON	DIN	PN	TP	DOP	PP	PO <sub>4</sub> -P
Slope	-0.04	-1.80	-0.69	-0.71	-0.20	-0.01	-0.01	-0.04	0.02
$\tau$	-0.09	-0.09	-0.23	-0.04	-0.14	-0.01	-0.04	-0.04	0.05
$p$	0.13	0.14	<0.01	0.51	<0.05	0.92	0.53	0.51	0.42

TN ( $-1.80 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p = 0.14$ , Fig. 4-6A) と  $\text{NO}_3\text{-N}$  ( $-0.93 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p = 0.40$ , Fig. 4-6B) の月間降下量は減少傾向を示し、一方で DON ( $-0.69 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p < 0.01$ , Table 4-6) と PN ( $-0.20 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p < 0.05$ , Table 4-6) は有意な減少傾向を示した。TP の月間降下量 ( $-0.01 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p = 0.92$ , Fig. 4-6C) は一定だった。PO<sub>4</sub>-P だけが唯一増加傾向を示した ( $0.02 \text{ kg km}^2 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p = 0.42$ , Fig. 4-6E)。河川水中の濃度 (Fig. 4-5F) と同様、降下量における TN : TP 比は有意な減少傾向 ( $-0.51 \text{ yr}^{-1}$ ,  $p < 0.05$ , Fig. 4-6F) を示した。

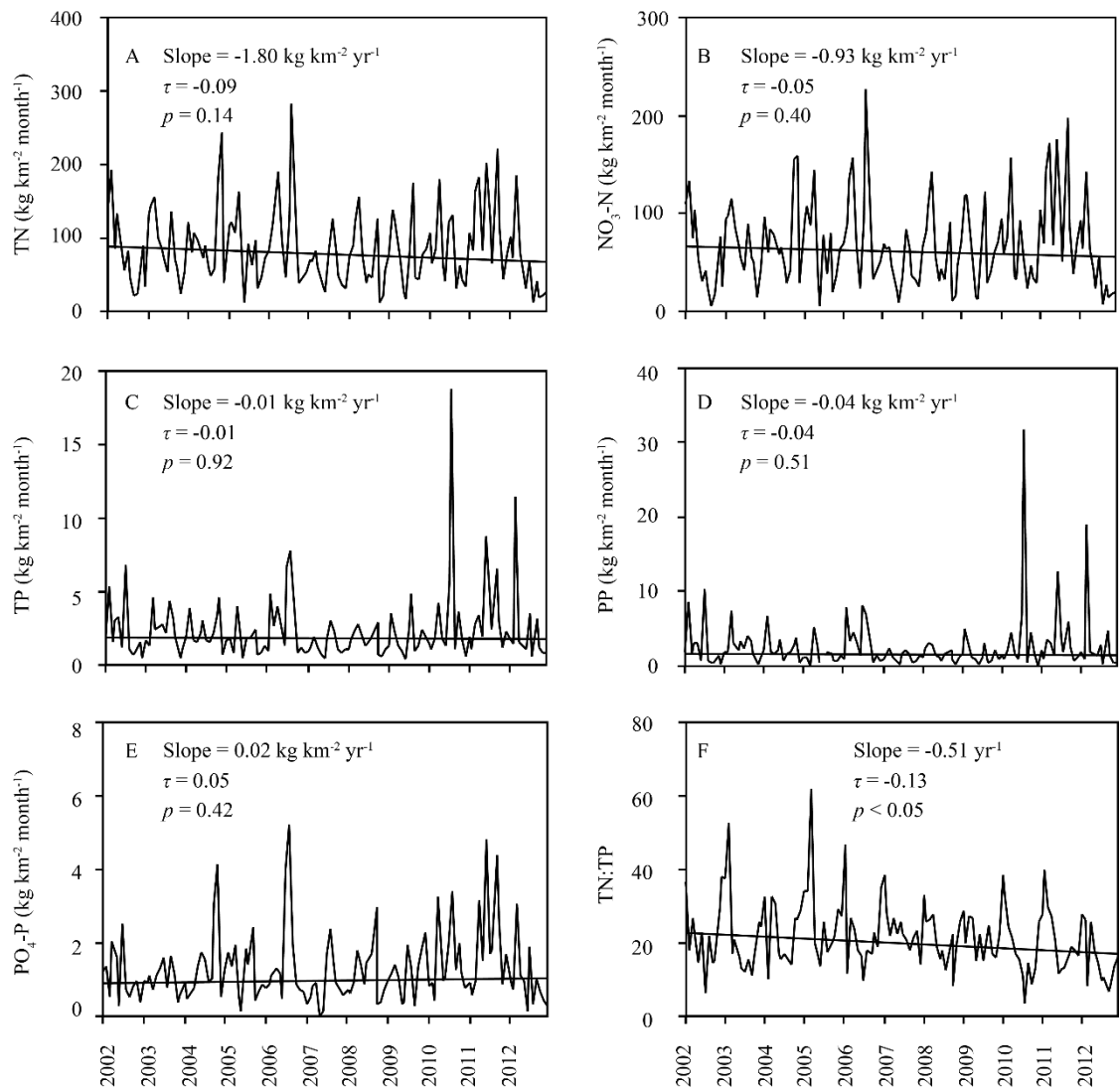


Fig. 4-6 2002年1月～2012年12月における斐伊川の栄養塩負荷量推移

### 4-3-3 降水及び河川水における栄養塩の関係

降水の窒素フラックスは河川負荷量に対して正の相関を示したが有意ではなかった (Table 4-7)。反対に、降水の TP 及び PO<sub>4</sub>-P フラックスは河川負荷量に対して有意な ( $p < 0.05$ ) 正の相関を示した。降水と河川水の濃度を比較すると、TN は降水の方が高く、TP は暖候期及び寒候期いずれにおいても河川水の方が高かった。

Table 4-7 2002年1月～2012年12月における降水の栄養塩フラックスと斐伊川の栄養塩負荷量との相関係数 (R)

Nitrogen species		Precipitation			
River water	TN	DON	DIN	PN	
Total nitrogen (TN)	0.05	-0.07	0.05	-0.03	
Dissolved organic nitrogen (DON)	-0.14	0.00	-0.17	0.03	
Dissolved inorganic nitrogen (DIN)	0.11	-0.07	0.12	-0.03	
Particulate nitrogen (PN)	-0.07	-0.02	-0.09	-0.04	

Phosphorus species		Precipitation			
River water	TP	DOP	PO <sub>4</sub> -P	PP	
Total phosphorus (TP)	0.13	-0.01	0.15	0.08	
Dissolved organic phosphorus (DOP)	0.04	-0.01	0.09	0.00	
Phosphate (PO <sub>4</sub> -P)	<b>0.22</b>	0.06	<b>0.20</b>	0.13	
Particulate phosphorus (PP)	0.10	-0.03	0.12	0.07	

#### 4-4 考察

##### 4-4-1 河川水における窒素降下物の影響

降水中の TN 濃度は暖候期よりも寒候期の方がかなり高かった (Fig. 4-3A)。この傾向は、松江市で 1 年間一降水毎に採取し、後方流跡線解析を用いて気塊の移送経路に関する TN の季節的变化の原因を調査した Yoshioka et al. (2009) の報告とも一致する。彼らは、北中国由来の大陸性気団の影響を受ける冬 (11~3 月) の間に、降水中の TN が高くなることを見出した。今回解析した期間において降水量は減少傾向 (Table 4-4) を示したことから、大気降下物中の DIN 濃度の増加傾向は、降水量の増加によるものではなく、降水中の DIN 濃度が増加したことによるものであった。従って、寒候期における降水中の TN 濃度の増加は、季節風によって中国大陸から運ばれてきた大気降下物の影響によるものと思われた。

降水中の TN フラックスは河川の TN、DIN 負荷量に対して有意な正の相関を示さなかったが (Table. 4-7)、降水中の TN 濃度は暖候期も寒候期も河川水の 2 倍以上であった (Fig. 4-3A)。DIN、特に  $\text{NO}_3\text{-N}$  は降水と河川水いずれにおいても主成分であった。これは、河川水中の TN 濃度が中国大陸由来の  $\text{NO}_x$  でかなり汚染された降水の影響を強く受けていることを示している。

斐伊川流域では、降下した窒素を保持していると思われる森林の割合が 81.3% である。しかし、利用可能な無機態窒素の量が植物や微生物の生物的な必要量を超えると、多量の窒素が森林の生態系に蓄積される。過剰な無機態窒素はその後、“窒素流出” (Aber et al., 1998) として知られるように  $\text{NO}_3\text{-N}$  の形態で森林土壌から河川へと放出される。Dise and Wright (1995) は、大気からの窒素降下量が  $1,000 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  を超えると過剰に窒素を蓄積することを報告した。斐伊川流域における窒素の年間平均降下量は  $1,000 \text{ kg km}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  を超えていることから (Fig. 4-4)、降水を通じて森林土壌に蓄積した窒素は短時間で斐伊川に流出し、河川水中の TN 濃度を増加させているものと思われる。

#### 4-4-2 河川水におけるリン降下物の影響

大気中の TP に対する  $\text{PO}_4\text{-P}$  と PP の寄与率はそれぞれ 47%、41%だった。暖候期に TP が  $50 \mu\text{g L}^{-1}$  を超える降水が発生するが、これは  $\text{PO}_4\text{-P}$  濃度とは無関係であった。それゆえ、大気中の TP に主として寄与するのは降水中の  $\text{PO}_4\text{-P}$  や黄砂として運ばれてくる鉱物性の塵であった。本研究では乾性降下物を採取していないことから、PP の実際の寄与率は調査結果以上の可能性が高い。

リン降下物の増加は日本中部地方の森林集水域においても観測されている。Hartmann et al. (2008) は本州中部地方の温帯性落葉広葉樹における降下量を 1993-1999 年と 2000-2004 年とで比較した。彼らは、TP の降下量が 1.9 倍 ( $66\text{-}126 \text{ kg m}^{-2} \text{ yr}^{-1}$ ) に増加しており、TP に対する  $\text{PO}_4\text{-P}$  の寄与率が 1993-1999 年で 45%、2000-2004 年で 61%であったと報告した。TP の増加は、日本列島に到達する塵の頻度や強度が大きく増えたこと (Lim and Chun, 2006)、2000 年以降中国からの窒素とリンの排出量が劇的に増えたこと (Tian et al., 2007)、そして中国大陸から移送される間に溶存態となった粒子の寄与によるものだった。本州中部地方と我々の調査地域における  $\text{PO}_4\text{-P}$  の増加の一致は、島根県において大気中の TP が中国大陸由来の大気降下物に関係していたことも示している。

降水と河川水のいずれも寒候期より暖候期の方が高濃度の TP を示し (Fig. 4-3B)、降水中の TP 及び  $\text{PO}_4\text{-P}$  フラックスと河川水中の  $\text{PO}_4\text{-P}$  負荷量との間には有意な正の相関が見られた (Table 4-7)。暖候期の間は降水及び河川水の TP 濃度が同じであったことから、降水が河川におけるリン負荷の起源となっていることが示される。2002 年と 2012 年との間に、大気フラックスと河川水の TP 濃度が増加した (Fig. 4-5C) 一方で、計算により得られた栄養塩の負荷量は同じだった (島根県、2002, 2012)。このことは、リン降下物の増加が斐伊川における TP 濃度の増加させていることを示す。

#### 4-4-3 富栄養化した生態系における栄養塩降下物の影響

人為的起源による窒素降下物の増加が、北半球の湖において初期の窒素制限から人為的なリン制限及び植物プランクトンの増長へと栄養塩制限の種類に変化をもたらしている (Bergstrom and Jansson, 2006)。2000 年までは斐伊川流域においてもそうであった。Kamiya et al. (2008) は神立橋において 1983-1984 年及び 2001-2002 年に関して斐伊川からの栄養塩負荷量を調査した。彼らは 1 年間毎朝採水を行った (休日を除く)。水質測定結果と河川流量から計算した年間の TN 負荷量は、寒候期に  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度が顕著に増加したことに伴い、 $860 \times 10^3 \text{ kg}$  から  $920 \times 10^3 \text{ kg}$  へと増加した。対照的に、TP 負荷量は  $96 \times 10^3 \text{ kg}$  から  $62 \times 10^3 \text{ kg}$  へと減少した。TN 負荷量の増加を説明できるような発生源が流域内にないことから、大気中の窒素の増加によるものであると考察している。

本研究の結果により窒素だけでなくリンも降水を通じて斐伊川流域に供給されていることが明らかになった。さらに、TP の大気フラックスは有意に増加傾向を示した (Table 4-4, Fig. 4-2C)。TP や  $\text{PO}_4\text{-P}$  に見られた有意な増加傾向は河川水中の濃度でも同様に観察された (Fig. 4-5C, E)。斐伊川の月間流量は減少傾向だったが、 $\text{PO}_4\text{-P}$  フラックスは増加傾向を示した。通常は出水や浸食に伴い増加する斐伊川の PP フラックスが減少傾向を示したため、河川の  $\text{PO}_4\text{-P}$  の増加は森林土壌からの溶出によるものと思われた。

DIN は降水における主成分であり、大半が  $\text{NO}_3\text{-N}$  であった。斐伊川流域への  $\text{NO}_3\text{-N}$  の降下量は増加傾向を示し、一方で  $\text{NO}_3\text{-N}$  負荷量は減少傾向を示した。大気中の窒素成分のみが降下した場合、微生物群に取り込まれる窒素の量はリン供給量により制限されるはずである。リン降下量の増加は従来よりも多くの窒素を微生物群に取り込ませることになり、それによって森林土壌から溶出する窒素の量は減少していると考えられる。

2002 年以降の中国大陸由来の TP 降下物の増加は、降水と河川水の両方の TN : TP 比に大きく影響している。TN : TP 比は降水、河川水濃度及び河川負荷量において有

意な増加傾向を示した。調査期間である 11 年間における TN、TP の平均濃度はそれぞれ  $547 \mu\text{g L}^{-1}$ 、 $30 \mu\text{g L}^{-1}$  であり、その TN : TP 比はおよそ 22 であった。長期間変動に関する回帰式に当てはめると、10 年後の TN、TP の平均濃度はそれぞれ  $507 \mu\text{g L}^{-1}$ 、 $35 \mu\text{g L}^{-1}$  と見積もられ、その TN : TP 比は 14 となった。Poste et al. (2013) はシアノバクテリア、特にミクロキスティス種 (*Microcystis sp.*) は TP が高濃度となって TN : TP 比が低下したときに優占することを報告しており、Ganguly et al. (2013) は汽水域では珪藻よりもシアノバクテリアの方が窒素制限下において優占することを報告している。従って、斐伊川における TN : TP 比の減少は下流の宍道湖の生態系を変化させている可能性がある。

本研究におけるデータは、中国大陸起源の  $\text{NO}_3\text{-N}$  やリンの降下量が斐伊川流域において増加していることを示している。特にリン降下量が増加したことで、リン溶出量の増加による河川水と降水との両方の TN : TP 比に影響している。より富栄養化した生態系では大気中の栄養塩降下におけるそうした変化の影響を受けており、特に TN : TP 比が変化して低下した場合、植物プランクトンに対する窒素制限の状態がさらに進み、シアノバクテリアの成長にかなり影響する。窒素飽和とは異なり、森林におけるリン飽和や浸出は科学的にほとんど注目されていない。安定同位体比法 (Elsbury et al., 2009 ; Young et al., 2009) を用いてリンの起源を特定する更なる研究が必要である。リン降下物がすぐに河川に流れ出しているのか、それとも森林土壌にしばらく留まっているのかについてもまた調査が必要と思われる。



## 第5章 斐伊川放水路による宍道湖へ流入する栄養塩負荷の削減

### 5-1 はじめに

8世紀頃の斐伊川は出雲平野に出た後は西進して日本海へ流入していた。近世初頭では斐伊川は分流して宍道湖へ流入していた（出雲河川事務所，1995）。近世になると山間部でたたら製鉄が発達し、大規模な鉄穴（かんな）流しが行われるようになり、大量の土砂が流入して河床が上昇してたびたび洪水を起こすようになった。松江藩が1641年に斐伊川左岸の連続堤の構築に着手したことで、1657年には斐伊川は東流して宍道湖へ流入するようになった（出雲河川事務所，1995；平田市誌編さん委員会，1969）。右岸に築堤を行わなかったのは、出雲平野の宍道湖側の低湿地の開発のために洪水によって運ばれる大量の土砂を利用するためである。そのため、幾度か「川違」が行われた。川違とは氾濫による流路の自然変更や河道の堆積を契機に人為的に流路を変更・固定化するもので、氾濫を防ぐとともに河口部に土砂を堆積させて新田の造成を目的とした。

斐伊川を宍道湖へ流入させたため、沿岸部ではたびたび洪水による被害が起こるようになった。その根本的な対策として放水路を造る計画は今から約150年前にはすでに考えられていたようで、いくつかの案が検討されており、その一つに現在の神立橋の下流から西側に水路を掘り日本海へ分流させる計画があった。これが現在の斐伊川放水路に最も近い考えであった。斐伊川放水路（Fig. 5-1）は2013年6月に竣工し、同年9月には初めての分流が行われた。2013年9月3～4日にかけて、秋雨前線の影響により約150 mmの降水があり、この時に斐伊川放水路の起伏ゲートが操作されて初めて分流が行われた。ピーク時には上島観測所で $1,250 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ の流量が観測されていたが、分流の結果本川に $700 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ が流れ、放水路に $550 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ が流れた。この時の分流比は5：3.9であった（出雲市，2013）。

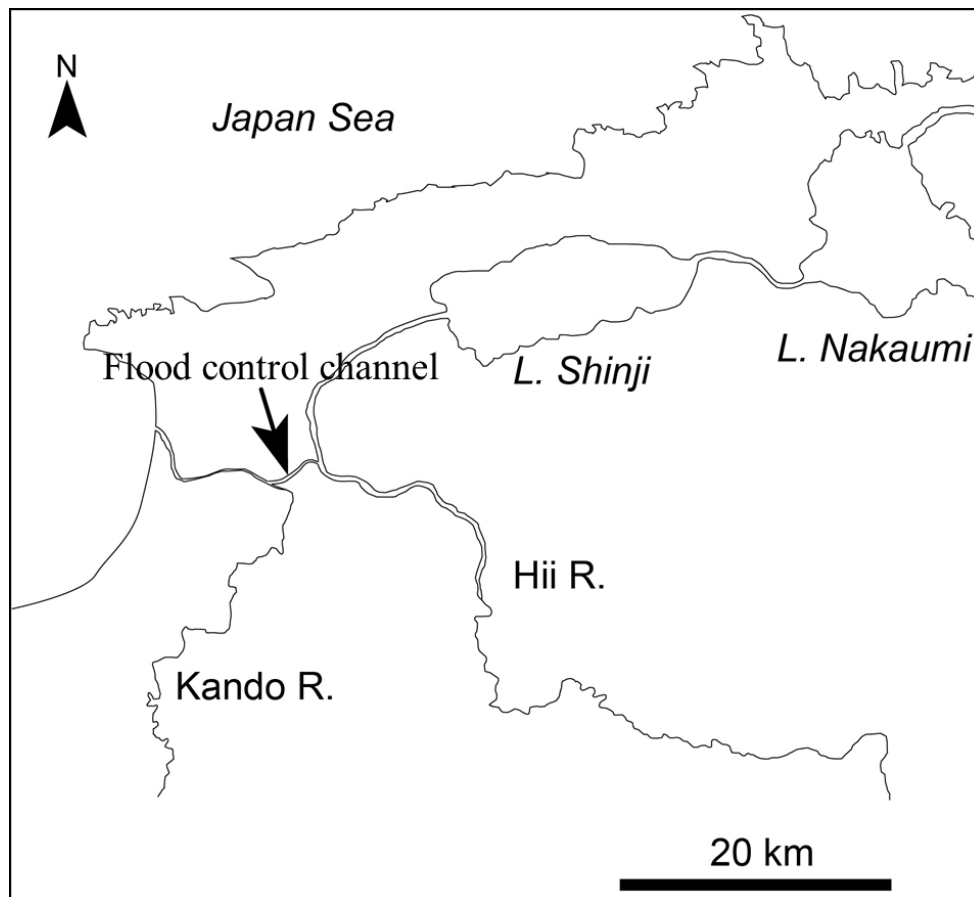


Fig. 5-1 斐伊川水系及び放水路

洪水は多量の栄養塩負荷、特にリンを下流にもたらず（神谷ら，投稿中）。下流に湖がある場合はその流入負荷の問題が大きい。宍道湖はこの30年間富栄養湖のままであり、リン負荷が十分に削減されていない影響が考えられる。栄養塩でも特にリンは流量の増加によって河川中の濃度も増加するので、通常流入する淡水量を栄養塩濃度の高くなる洪水時に人為的に分流することによって栄養塩負荷の削減が期待される。そこで過去30年間の斐伊川の流量データを用いて、斐伊川放水路があったと仮定して、分流により宍道湖へ流入する全窒素（TN）及び全リン（TP）がどの程度削減されるかを計算した。

## 5-2 方法

上島流量観測所の集水域に気象庁のアメダスの観測所が大東、掛合及び横田の3地点あるため、集水域の降雨量はこの3カ所の月間降水量を算出した。

斐伊川放水路は斐伊川の宍道湖流入部から約14.4 km上流に位置し、計画高水流量 $4,500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ （上島観測所）のうち、 $2,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ を神戸川へ分流する延長約4.1 kmの人工水路である。斐伊川放水路に分流する条件が次のとおりである（出雲河川事務所）。

- 1) 斐伊川本川の流量が約 $400 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ を超えると起伏ゲートを自然に超えて分流される。
- 2)  $500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ を超えると本川流量と放水路流量が概ね5:4になるようにゲート操作を行う。
- 3) 本川流量が $4,500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ を超える恐れがある場合は放水路流量を $2,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 以下になるようにゲート操作を行う。

斐伊川流量データは上島観測所のものを基に、欠測部分については大津観測所のデータを用い、さらに欠測がある場合はその前後のデータの平均値を用いた。1984年1月1日1:00~2013年12月31日24:00までの30年間、1時間ごとの流量データを用い、斐伊川本川と放水路の流量を下記のように計算した。

- ①  $0 \sim 400 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  : 本流が全量、放水路は $0 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$
- ②  $400 \sim 500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  : 本流は $400 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 固定、放水路は $400 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 引いた数値
- ③  $500 \sim 4,500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$  : 本流は $5/9$ 、放水路は $4/9$
- ④  $4,500 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1} \sim$  : 本流は $2,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 引いた数値、放水路は $2,000 \text{ m}^3 \text{ s}^{-1}$ 固定

負荷量については下記のL-Q式を用いた。

$$\text{TN} : \quad \text{Log}(L) = 1.21 \times \text{Log}(F) - 3.57 \quad (1)$$

$$\text{TP} : \quad \text{Log} (L) = 0.34 \times \text{Log} (F)^2 + 0.25 \times \text{Log} (F) - 4.21 \quad (2)$$

L : TN or TP load (kg s<sup>-1</sup>)      F : flow (m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)

放水路がない実際の TN 及び TP の負荷量は観測流量を式(1)、(2)に代入して求め、放水路を使用したと仮定した場合の負荷量は、①～④の条件から算出された本川の流量を使用した。ただし、斐伊川本川の負荷量の算出には、上島観測所における流量を用いた L-Q 式から負荷量を計算し、放水路の負荷量を差し引いたものを使用した。

### 5-3 結果及び考察

1984年1月1日1:00から2013年12月31日24:00までの時間流量の総データ数は262,992個であった。流量の欠測があったのは上島観測所のデータが9,837回、大津観測所のデータが3,907回、同時に欠測となったのは79回であった。対象とした30年間の流量の最大値は上島観測所で観測された2006年7月19日の2,358.1 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>、最小値は1984年8月に数回大津観測所で観測された0.08 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>、平均値は42.1 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>であった。30年間の総流量は3.99×10<sup>10</sup> m<sup>3</sup>であった。年間合計値の最大は2011年の1.89×10<sup>9</sup> m<sup>3</sup>、次いで1993年の1.87×10<sup>9</sup> m<sup>3</sup>、2006年の1.78×10<sup>9</sup> m<sup>3</sup>であり、最小値は1994年の7.82×10<sup>8</sup> m<sup>3</sup>であった。期間中に最大流量を観測した2006年7月19日6:00についてであるが、2006年7月16から19日にかけて、斐伊川の主要集水域である横田において356 mmの降雨があった。そのため斐伊川の水位が上昇し、斐伊川河口から約3 km上流にある出雲灘分水位観測所では、6:30に水位が5.37 mとなり、計画高水位である4.70 mを0.67 m超過した。この洪水による松江市の被害は、浸水面積629 ha、浸水家屋1,427戸、床上浸水212戸、床下浸水1,215戸であった。出雲河川事務所の報告によると、仮に斐伊川放水路がこの時に完成していれば灘分観測所における水位は1.3 m低下していたとしている。

Fig. 5-2 に 30 年間の年間降水量と年間流量の関係を示す。年間降水量と年間流量には良い正の相関が見られた ( $R^2 = 0.80$ )。Fig. 5-3a に実際の年間流量、斐伊川放水

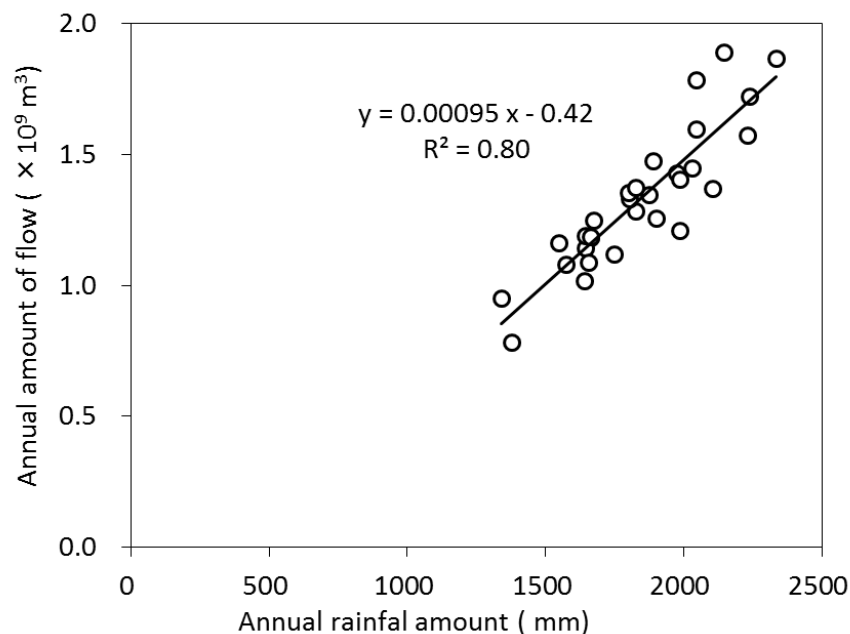


Fig. 5-2 年間降水量と年間流量の関係

路があったと仮定して計算した斐伊川本川の年間流量及びそれらの差である放水路の年間流量を示す。斐伊川放水路を流れた水量は、2006年が5.49%で最大で、1991年、1992年、1994年、2002年、2008年は斐伊川放水路には流れないという計算結果となった。30年間の合算としては1.6%が斐伊川放水路から流出した計算となった。水量としてはここ30年ではあまり大きな削減はなかった。上記(1)式を用いて計算したTN年間負荷量をFig. 5-3bに示す。年間負荷量は2011年が最大で1,342 t yr<sup>-1</sup>で、最少は1994年の456 t yr<sup>-1</sup>、30年の平均値は856 t yr<sup>-1</sup>であった。斐伊川放水路から流出する割合を求めたところ、最大で2006年の9.0%、最少は0%であった。各年の削減量の平均値は2.4%で、30年間の合計の放水路による削減量は2.8%と計算された。同様に(2)式を用いてTP負荷量 (Fig. 5-3c) について求めたところ、最大で

2006年の  $191 \text{ t yr}^{-1}$ 、最少で1994年の  $25.9 \text{ t yr}^{-1}$ 、平均で  $66.5 \text{ t yr}^{-1}$ であった。各年の削減量の平均値は  $8.2\%$ で、30年間の合計の放水路による削減量は  $11.6\%$ と計

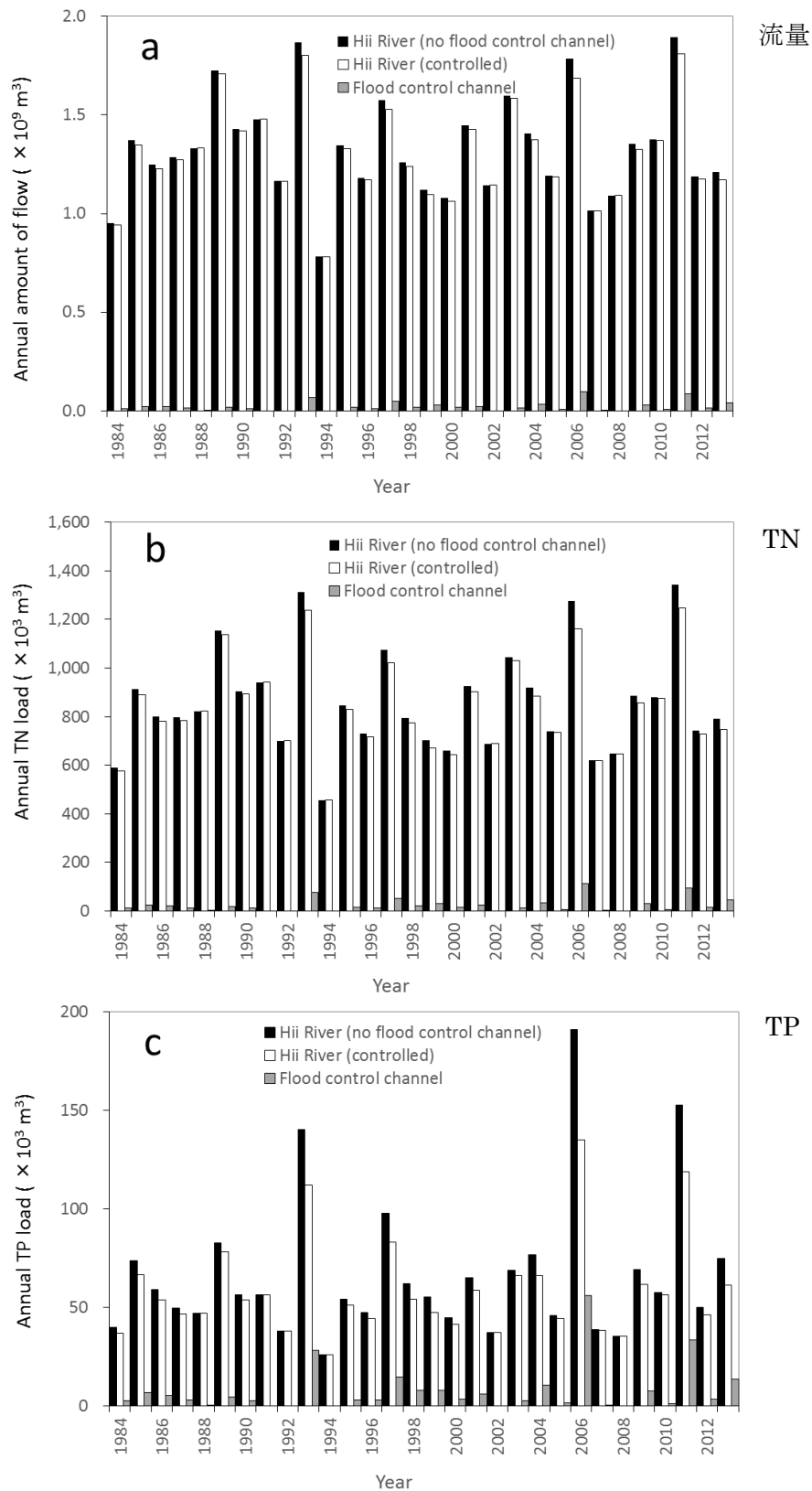


Fig. 5-3 各年の年間流量と TN、TP 負荷量. 左から斐伊川 (放水路なし)、放水路.

算された。年間流量と TN 及び TP 削減量の関係を Fig. 5-4 に示す。TN (Fig. 5-4a) 及び TP (Fig. 5-4b) は両方とも有意な正の相関が見られた ( $R^2 = 0.48, 0.43$ , それぞれ  $p < 0.001$ )。TN、TP とも流量の大きい年に削減量が大きかった。

2003 年から 2014 年までの宍道湖湖心における TN の平均値は  $0.53 \text{ mg L}^{-1}$ 、TP の平均値は  $0.053 \text{ mg L}^{-1}$  であり (島根県)、TN : TP 比は 10 である。通常、植物プランクトンの TN : TP 比は 16 であるため、宍道湖は窒素制限の湖沼と考えられる。宍道湖は汽水湖であり、特に夏季において塩分成層が発達する。水温の上昇に伴って

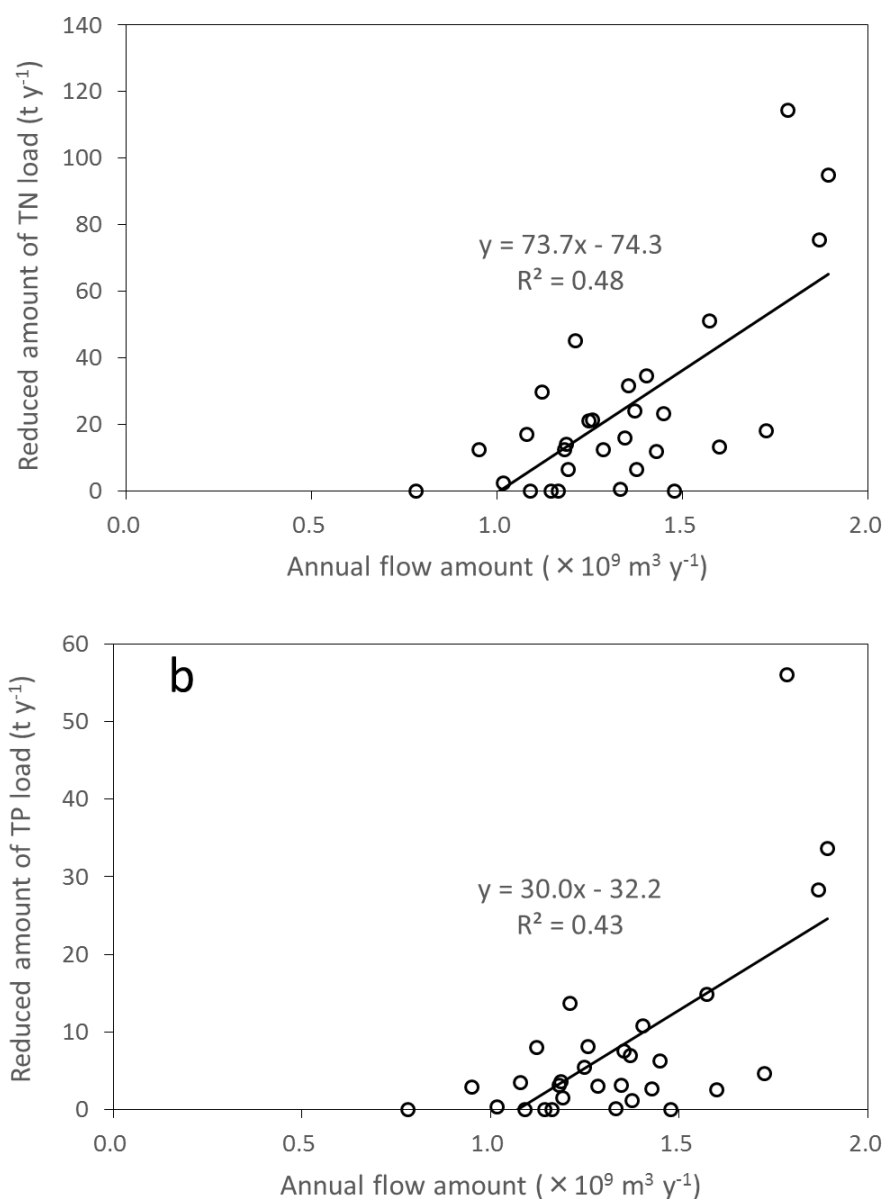


Fig. 5-4 年間流量と栄養塩削減負荷量の関係  
(a : TN, b : TP)

成層内部は貧酸素化し、それに伴い湖底の泥からリン酸が溶出する。宍道湖の TP 濃度は年によって変動が大きく、淡水流入量や上述の貧酸素水塊の発生状況など、気象によって変化する。また、第 4 章において斐伊川下流部の水質は過去 11 年で TN:TP 比が低下傾向にあることを指摘した。宍道湖では 2010~2012 年にかけて大規模な *Microcystis ichthyoblabe* によるアオコが発生した (佐藤ら, 2015)。この 3 年間の TN:TP 比はそれぞれ 8.9、9.5、7.0 と低い比率であった。Ganguly et al. (2013) によると、好適塩分条件において、藍藻 (*Doliospermum* sp.) は TN:TP 比が 8 の状態で最大増殖速度を示すのに対し、珪藻 (*Chaetoceros simplex*) は TN:TP 比が 12 の状態で最大増殖速度を示した。この現象を宍道湖に当てはめると TN:TP 比が 10 というのは藍藻又は珪藻が優占する境目にあると考えられる。宍道湖は二枚貝のヤマトシジミの一大産地であり、宍道湖漁業協同組合によれば 2014 年の漁獲量は約 3,400 t であった。珪藻は二枚貝の飼育に使用されることから餌としては適しているが、藍藻が餌となりうるかは明らかになっていない。よって、宍道湖においてどちらが優占するかがヤマトシジミにとって大きな問題である。宍道湖においては湖沼水質保全計画によって様々な水質改善政策が行われてきた。しかし、流域の下水道整備率がほぼ 100%になった現在でも水質が改善する傾向にはない (佐藤ら, 2015)。放水路を稼働させることによる TP の 11.6%削減は宍道湖の水質に対して大きな影響を持ち、TP 負荷量の削減はもとより TN:TP 比を上昇させてアオコの発生を抑制できる可能性がある。



## 第6章 まとめ

### 6-1 まとめ

島根県保健環境科学研究所が2010年7月1日～2011年6月30日の1年間毎日斐伊川神立橋で採水を行い、TN、TPなどの水質項目を調査した結果を基に、同じように高頻度で採水を行った過去の調査結果と比較しながら、現在の水質に関する実態把握を行うとともに、最近問題となっている中国大陸からの越境汚染が斐伊川水質に影響しているかを検証した。また、斐伊川放水路が完成したことから斐伊川の汚濁負荷量がどの程度削減の効果を期待できるかについても計算した。

本研究から得られた成果の概要は以下のとおりである。

- 1) 2001～2002年に行った調査と比較すると、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の平均値が0.38 mg/Lから0.50 mg/Lに増加していた。特に冬季の差が顕著だったことから、この時期特有の偏西風によって中国大陸から運ばれてきたものが斐伊川水質に影響していることが考えられた。
- 2) TP負荷量について計算値と実測値とを比較したところ計算値の方が低めとなった。これはTPが出水に高濃度なりやすいため、L-Q式は従来的一次式では大規模な出水ほどずれが生じやすく十分な精度は得られなかった。今回、二次式で表すことでそうした出水時の負荷量を実態に合わせて精度よく計算することができた。
- 3) 降水及び斐伊川のTNは寒候期(11～3月)が高いが、TPは逆に暖候期(4～10月)が高かった。また、斐伊川の11年間のトレンド解析の結果ではTNはげ炎症傾向を示したが、TPに明らかな増加傾向が見られた。このTPの増加は東アジア

起源の大気降下量が増えたことによるものと推察された。

- 4) 斐伊川放水路が 30 年前にすでに完成していたと仮定して、運用条件をそのまま適用させて負荷削減効果を試算したところ、30 年間合計の負荷削減量は窒素、リンでそれぞれ 2.8%、11.6%となった。特にリン負荷の削減量が大きいため、TN:TP 比が低下傾向にある宍道湖において、逆に TN:TP 比が高くなる可能性が示された。

## 6-2 水質改善に向けた今後の課題

5期25年間の宍道湖・中海湖沼水質保全計画の中で取り組まれた各種施策により、生活排水や工場排水などの点源負荷量は減少傾向にある。斐伊川下流の神立橋で行った3回の高頻度調査結果によれば、TN負荷量は $857\text{ t yr}^{-1}$ から $1,065\text{ t yr}^{-1}$ へと増加し、TP負荷量は $95.6\text{ t yr}^{-1}$ から $92.1\text{ t yr}^{-1}$ へと微減した。ただし、TPは2001~2002年の調査では $62.4\text{ t yr}^{-1}$ と一旦減少した後に、再び増加へと転じている。これは、今回の調査では2001~2002年の調査時よりも総流量が10%以上多く出水の頻度も多かったことが主要因のようであった。

原単位法で求めた数字を見る限りでは、流入汚濁負荷の削減という成果を得ることができたが、第1章で述べたように実際の水質は近年高めに推移しており、水質の改善には結びついていない。そうした現状を踏まえ、今後の湖沼水質保全計画を策定する際により効果的な対策を検討できるよう、島根県では2010年から汚濁メカニズムの解明を目的とした汽水湖汚濁メカニズム解明調査ワーキンググループ(WG)を開催している。

このWGではWG委員として招聘した陸水や水質シミュレーションなどの専門家の意見を参考にしながら、宍道湖の物質収支を把握して水質が横ばいである原因を検討し、2013年度末までの目標として以下の項目について必要な調査等を行ってきた。

- 1) 流入汚濁負荷量の正確な把握
- 2) 塩分成層による貧酸素水塊の発生と、それに伴う湖底からの栄養塩等の溶出が水質に与える影響の把握
- 3) 湖内有機物(難分解性有機物、植物プランクトン)の動態把握
- 4) 水質シミュレーションモデルの再現性向上

これらの成果は2014年8月に報告書として島根県のホームページで公表されている。

る。この報告書によれば、上記の項目に関してある程度の知見は得られたものの、汽水湖の複雑な汚濁メカニズムを解明するには依然としてまだ不明な点が多く、今後も継続した調査が必要であるとまとめている。また、宍道湖・中海の湖沼水質保全計画の最終目的は水質環境基準の達成であるが、水質がなかなか改善しない現在の状況を鑑み、WG 委員からは水質環境基準とは別の宍道湖・中海流域の地域特性に応じた目標（例えばシジミの漁獲量）を取り入れるべきだとの意見も出されていた。シジミは懸濁物を食餌としており、あまり水質が良いと多量に存在できなくなるため、継続的に資源量を確保するにはある程度の富栄養化は必要となる。住民の中にはシジミなどの水産資源が採れ、アオコ等が発生することで湖の景観が損なうことがなければ現状の水質でも問題ないと考える人もいるのではないかと思われる。

そこで、2015年3月に策定した第6期計画では、水質環境基準とは別の目標として住民参加型の五感指標（見る、聞く、嗅ぐ、味わう、触れる）による評価を取り入れており、現在の評価値よりも向上させることを目指している。このような、水質環境基準に縛られない、宍道湖や中海が将来目指すべきものを県民全体が関心を持って積極的に議論していく必要があるだろう。その上でどの程度の水質を維持していくかを考える必要がある。

これまでに述べたように、出水時に湖へ流入する汚濁負荷量はかなり多い。出水時に発生する負荷の起源については今のところ正確に把握されていないが、山林や農地から流出していると考えられる。山林や農地の負荷で最も影響が大きいのは土壌の流出に伴う濁水である。その負荷を低減するためには植林や適切な間伐による森林土壌の保全や農地から流出する土壌を削減することが大切である。しかし、森林の場合、斐伊川流域の8割以上を占めており、森林全体にこうした対策を行うには範囲が広く現実的ではない。農地に至っては流出形態すら分かっていない。水質保全計画は行政や住民の啓発という意味では大きな効果があったことは紛れもない事実である。しかし、下水道の普及率が100%近くとなった今では、その定型的なやり方では水質改善に結びつかないように思われる。それゆえ、主要たる汚濁負荷原因の濁水対策が今後

重要となってくる。同じ斐伊川の支流であっても濁水の出易さは一律でなく、場所ごとの地形や植生が影響していると思われる。実際にどの支流が最も濁水を発生しやすいのかを調査して濁水の範囲を絞ることができれば、効率の良い局所的な対策が可能になるかもしれない。

また、国土交通省ではこれまでに宍道湖流域で度々発生している大水害を未然に防ぐための治水対策の一つとして、1982年から斐伊川放水路の建設に着手しており、神戸川の拡幅を含めた工事が2013年6月に完成した。この放水路は斐伊川の流量が一定量(400 m<sup>3</sup> s<sup>-1</sup>)に達すると、分流堰のゲートが開いて神戸川方面へ流す構造となっていて、いわゆる出水時のピークカットの役割を担っている。出雲河川事務所の報告によると、2013年9月の大雨の際に実際に初めて運用され、宍道湖への流入水量を約2,500万m<sup>3</sup>低減させる効果を示したとのことである。第5章で述べたとおり、斐伊川放水路が30年前にすでに運用されていたと仮定した場合に30年間合計でリン負荷量が10%以上削減できるとの計算結果となった。治水対策だけでなく流入汚濁負荷対策としても十分に有効であると考えられることから、例えばもう少し低めの設定流量での運用も想定すると良いかもしれない。

中国大陸を由来とする大気汚染物質の影響が斐伊川の水質に大きく影響していることは第2章と第4章で述べた。上空まで上昇した大気汚染物質は、偏西風に乗って日本海を超えたのち雨と一緒に降り、山林や農地などを通じ土壌を経由して河川に流れ出す。経済発展によって中国からの排出量が今後も増加し続ける懸念があり、2015年に中国国内で最悪の大気環境を示す「赤色警報」が発令され、日本でも大きく報道されたことは記憶に新しい。国外からの越境汚染であるため、直接排出源対策をとることができないが、中国国内における大気環境の改善の機運を中国国民の間で高めることも必要であろう。

湖内対策としては、例えば宍道湖ではヤマトシジミが増えることによって水質が維持される可能性がある。ヤマトシジミは懸濁物(ほぼ植物プランクトン)食性であり、汚濁原因である植物プランクトンの増殖を抑制している。ヤマトシジミは擬糞として

取り込んだ植物プランクトンを排出し、それは底生生物であるゴカイ類の餌となる。ゴカイ類は魚の餌となるため、ヤマトシジミが増えることで湖内の生態系がうまく回ることになる。また、漁獲によってヤマトシジミが取り込んだ分だけ湖内の栄養塩の持ち出しも期待できるため、そうした意味でヤマトシジミの生存は湖の水質に大きな影響を与えている。今後の宍道湖の水質保全はこのような観点から行うことが重要であると考える。

## 参考文献

- Aber, J., W. McDowell, K. Nadelhoffer, A. Magill, G. Berntson, M. Kamakea, S. McNulty, W. Currie, L. Rustad, and I. Fernandez. 1998. Nitrogen saturation in temperate forest ecosystems hypotheses revisited. *Bioscience* **48**: 921–934.
- Bendschneider, K., and R. J. Robinson. 1952. A new spectrophotometric method for the determination of nitrite in sea water. *J. Mar. Res.* **11**: 87–96.
- Bergström, A. K., and M. Jansson. 2006. Atmospheric nitrogen deposition has caused nitrogen enrichment and eutrophication of lakes in the northern hemisphere. *Glob. Change Biol.* **12**: 635–643.
- Chiwa, M., N. Onikura, J. Ide, and A. Kume. 2012. Impact of N-saturated upland forests on downstream N pollution in the Tataro River basin, Japan. *Ecosystems* **15**: 230–241.
- Chugoku Regional Development Bureau. 2010. River infrastructure development project of Hii River.  
[http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/jimusho/suikai-seibi/files/keikaku\\_00.pdf](http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/jimusho/suikai-seibi/files/keikaku_00.pdf)
- Dise, N. B., and R. F. Wright. 1995. Nitrogen leaching from European forests in relation to nitrogen deposition. *Forest Ecol. Manag.* **71**: 153–161.
- Driscoll, C. T., D. Whitall, J. Aber, E. Boyer, M. Castro, C. Cronan, C. L. Goodale, P. Groffman, C. Hopkinson, K. Lambert, G. Lawrence, and S. Ollinger. 2003. Nitrogen pollution in the northeastern United States: sources, effects, and management options.

Bioscience **53**: 357–374.

Ebina, J., T. Tsutsui, and T. Shirai. 1983. Simultaneous determination of total nitrogen and total phosphorus in water using peroxodisulfate oxidation. *Water Res.* **17**: 1721–1726.

Elsbury, K. E., A. Paytan, N. E. Ostrom, C. Kendall, M. B. Young, K. McLaughlin, M. E. Rollog, and S. Watson. 2009. Using oxygen isotopes of phosphate to trace phosphorus sources and cycling in Lake Erie. *Environ. Sci. Technol.* **43**: 3108–3114.

Ferguson, R. I. 1986. River loads underestimated by rating curves. *Wat. Res. Res.* **22**: 74–76

Fukuzaki, N., T. Ohizumi, and K. Matsuda. 2001. Geographical and temporal variations of chemical constituents in winter precipitation collected in the areas along the coast of the Sea of Japan. *Water Air Soil Poll.* **130**: 1673–1678.

Ganguly, D., R. S. Robin, K. V. Vardhan, P. R. Muduli, K. R. Abhilash, S. Patra, and B. R. Subramanian. 2013. Variable response of two tropical phytoplankton species at different salinity and nutrient condition. *J. Exp. Mar. Biol. Ecol.* **440**: 244–249.

Hagy, J. H., W. R. Boynton, C. W. Keefe, and K. W. Wood. 2004. Hypoxia in Chesapeake Bay, 1950–2001: Long-term change in relation to nutrient loading and river flow. *Estuaries* **27**: 634–658.

Hartmann, J., T. Kunitatsu, and J. K. Levy. 2008. The impact of Eurasian dust storms and anthropogenic emissions on atmospheric nutrient deposition rates in forested Japanese catchments and adjacent regional seas. *Glob. Planet. Change* **61**: 117–134.



平田市誌編さん委員会（1969）：平田市 平田市教育委員会

堀江洋祐，野口泉，西山亮，岩崎綾，木戸瑞佳，中村雅和，松本利恵，山口高志，北村洋子，横山新紀（2012）：第5次酸性雨全国調査報告書（平成22年度） 全国環境研究会誌. **37**: 110–158.

Ishitobi, Y., M. Kawatsu, H. Kamiya, K. Hayashi, H. Esumi. 1988. Estimation of water quality and nutrient loads in the Hii River by semi-daily sampling . Jpn. J. Limnol. **49**: 11–17

出雲河川事務所：斐伊川放水路事業

<http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/jimusho/hikawa-hosuiro/index.html>

出雲河川事務所：平成18年7月豪雨斐伊川・神戸川流域の被害概要等速報

<http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/iinkai/oohashigawa/machi/vol05/files/05machi01.pdf>

出雲河川事務所：平成18.7洪水について

[http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/shiryokan/kiroku/h18\\_7/index.html](http://www.cgr.mlit.go.jp/izumokasen/shiryokan/kiroku/h18_7/index.html)

出雲工事事務所（1995）：斐伊川誌 建設省中国地方建設局（編）

出雲市（2013）：斐伊川放水路共用に伴う状況報告等について

<http://www.city.izumo.shimane.jp/www/contents/1387428961692/files/houkoku1.pdf>

神谷宏, 管原庄吾 : 高頻度調査によって明らかとなった洪水による栄養塩負荷 応用生態工学 (投稿中)

Kamiya, H., Y. Kano, K. Mishima, K. Yoshioka, O. Mitamura, and Y. Ishitobi. 2008.

Estimation of long-term variation in nutrient loads from the Hii River by comparing the change in observed and calculated loads in the catchments. *Landsc. Ecol. Eng.* **4**: 39–46.

Kanakidou, M., R. A. Duce, J. M. Prospero, A. R. Baker, C. Benitez-Nelson, F. J. Dentener, K.

A. Hunter, P. S. Liss, N. Mahowald, G. S. Okin, M. Sarin, K. Tsigaridis, M. Uematsu, L.

M. Zamora, and T. Zhu. 2012. Atmospheric fluxes of organic N and P to the global ocean.

*Glob. Biogeochem. Cy.* **26**: GB3026, doi:10.1029/2011GB004277

気象庁 : 過去の気象データ検索

<http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php>

Klimont, Z., J. Cofala, W. Schopp, M. Amann, D. G. Streets, Y. Ichikawa, and S. Fujita. 2001.

Projections of SO<sub>2</sub>, NO<sub>x</sub>, NH<sub>3</sub> and VOC emissions in East Asia up to 2030. *Water Air Soil Poll.* **130**: 193–198.

Lim, J. Y., and Y. Chun. 2006. The characteristics of Asian dust events in Northeast Asia

during the springtime from 1993 to 2004. *Glob. Planet. Change* **52**: 231–247.

Luo, J., X. Wang, H. Yang, J. Z. Yu, L. Yang, and B. Qin. 2011. Atmospheric phosphorus in

the northern part of Lake Taihu, China. *Chemosphere* **84**: 785–791.

Mitchell, M. J., G. Iwatsubo, K. Ohroi, Y. Nakagawa. 1997. Nitrogen saturation in Japanese

forests: an evaluation. *Forest Ecology and Management* **97**: 39–51.

Mitchell, M. J. 2011. Nitrate dynamics of forested watersheds: spatial and temporal patterns in North America, Europe and Japan. *J. For. Res.* **16**: 333–340.

宮廻隆洋, 田林雄, 大城等, 小山維尊, 中島結衣, 佐藤紗知子, 野尻由香里, 岸真司, 藤原敦夫, 神谷宏 (2014) : 日本海側河川に対する中国大陸からの越境窒素汚染. 陸水学雑誌. **75**: 27–34.

宮廻隆洋, 管原庄吾, 田林雄, 大城等, 小山維尊, 中島結衣, 神谷宏, 清家泰 (2014) : 島根県東部を流れる斐伊川における実測負荷と二次の LQ 式を用いた計算負荷との比較. 陸水学雑誌. **75**: 151–159.

Miyazako, T., H. Kamiya, T. Godo, Y. Koyama, Y. Nakashima, S. Sato, M. Kishi, A. Fujihara, Y. Tabayashi, M. Yamamuro. Long-term trends in nitrogen and phosphorus concentrations in the Hii River as influenced by atmospheric deposition from East Asia. *Limnology and Oceanography* **60**: 629-640

Mukai, H., and M. Suzuki. 1996. Using air trajectories to analyze the seasonal variation of aerosols transported to the Oki Islands. *Atmospheric Environment* **23**: 3917–3934

新田正 (1960) : 河川水質の変動に関する研究. 東京工業大学学報. 1–96.

日本分析化学会北海道支部 (1981) : 水の分析—第3版—. 化学同人

日本分析化学会北海道支部 (1994) : 水の分析—第4版—. 化学同人

農林水産省（2002）：2000 世界農林業センサス

[http://www.maff.go.jp/j/tokei/census/afc/2000/report\\_archives\\_01.html](http://www.maff.go.jp/j/tokei/census/afc/2000/report_archives_01.html)

農林水産省（2012）：2010 世界農林業センサス

<http://www.maff.go.jp/j/tokei/census/afc/2010/dai1kan.html>

Ohrui, K., and M. J. Mitchell. 1997. Nitrogen saturation in Japanese forested watersheds. *Ecological Applications* **7**: 391–401

Ohte, N., M. J. Mitchell, H. Shibata, N. Tokuchi, H. Toda, G. Iwatsubo. 2001. Comparative evaluation on nitrogen saturation of forest catchments in Japan and northeastern United States. *Water, Air, and Pollution*. **130**: 649–654

Ohte, N., S. D. Sebestyen, J. B. Shanley, D. H. Doctor, C. Kendall, S. D. Wankel, E. W. Boyer. 2004. Tracing sources of nitrate in snowmelt runoff using a high-resolution isotopic technique. *Geophysical Research Letters* **31**: L21506

Poste, A. E., R. E. Hecky, and S. J. Guildford. 2013. Phosphorus enrichment and carbon depletion contribute to high *Microcystis* biomass and microcystin concentrations in Ugandan lakes. *Limnol. Oceanogr.* **58**: 1075–1088.

佐藤紗知子, 神門利之, 大城等, 馬庭章, 藤原敦夫, 管原庄吾, 神谷宏, 大谷修司  
(2015): 宍道湖におけるアオコ発生の事前予測 陸水雑誌. **76**: 217-224.

Scheiner, D. 1976. Determination of ammonia and kjeldahl nitrogen by indophenol method.

Water Res. **10**: 31–36.

島根県（2002）：平成 13 年度湖沼汚濁負荷量削減状況調査業務報告書。公益財団法人島根県環境保健公社。

島根県（2005）：宍道湖に係る第 4 期水質保全計画

[http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko\\_nakaumi/04/sn\\_04keikaku\\_siryou.html](http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko_nakaumi/04/sn_04keikaku_siryou.html)

島根県（2010）：宍道湖に係る湖沼水質保全計画（第 5 期）

[http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko\\_nakaumi/dai\\_5\\_kosyou\\_keikaku/sn\\_05keikaku\\_data/keikaku\\_shinjiko.pdf](http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko_nakaumi/dai_5_kosyou_keikaku/sn_05keikaku_data/keikaku_shinjiko.pdf)

島根県環境生活部（2011）：平成 22 年度大気汚染測定結果報告書。81–84

島根県（2012）：平成 23 年度湖沼汚濁負荷量削減状況調査業務報告書。公益財団法人島根県環境保健公社。

島根県環境生活部環境政策課（2015）：汽水湖汚濁メカニズム解明調査ワーキンググループ報告書

[http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko\\_nakaumi/mekanizumu-WG/mekanizumu\\_wg.data/WG\\_houkokusho.pdf](http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko_nakaumi/mekanizumu-WG/mekanizumu_wg.data/WG_houkokusho.pdf)

島根県（2015）：宍道湖に係る湖沼水質保全計画（第 6 期）

[http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko\\_nakaumi/dai\\_6\\_kosyou\\_keikaku/index.data/6ki\\_shinjiko.pdf](http://www.pref.shimane.lg.jp/shinjiko_nakaumi/dai_6_kosyou_keikaku/index.data/6ki_shinjiko.pdf)

島根県：公共用水域・地下水調査

<http://pref.shimane.lg.jp/infra/kankyo/kankyo/mizu/chousa/>

宍道湖漁業協同組合：宍道湖の魚種別漁獲量 <http://shinjiko.jp/publics/index/8/>

Sigman, D. M., K. L. Casciotti, K. Andreani, C. Barford, M. Galanter, J. K. Bolhlke. 2001. A bacterial method for the nitrogen isotopic analysis of nitrate in seawater and freshwater. *Analytical Chemistry* **73**: 4145–4153.

Stoddard, J. L. 1994. Long-term changes in watershed of nitrogen-Its causes and aquatic consequences. in *Environmental chemistry of Lakes and Reservoirs, Advances in Chemistry Series* edited by Baker, L. A., American Chemical Society, Washington. **237**: 223–284

管原庄吾，宮廻隆洋，神谷宏，田林雄，清家泰：斐伊川放水路による宍道湖へ流入する栄養塩負荷の削減 陸水学雑誌（投稿中）

Tabayashi, Y., K. Miki, H. Kamiya, M. Yamamuro. (in preparation) Nitrogen load and runoff mechanism at mountain stream using nitrogen and oxygen isotope of nitrate.

Tian, H. Z., J. M. Hao, M. Y. Hu, and Y. F. Nie. 2007. Recent trends of energy consumption and air pollution in China. *J. Energ. Eng.-ASCE* **133**: 4–12.

塚原千明，角哲也，宮井貴大，柏井条介（1998）：カーテンウォール付常用洪水吐きの土砂放流特性. 土木技術資料. **40**: 178–183.

- Tsukuda, S., M. Sugiyama, Y. Harita, and K. Nishimura. 2006. Atmospheric phosphorus deposition in Ashiu, Central Japan—source apportionment for the estimation of true input to a terrestrial ecosystem. *Biogeochemistry* **77**: 117–138.
- Wang, Y., G. Zhuang, Y. Sun, and Z. An. 2005. Water-soluble part of the aerosol in the dust storm season—evidence of the mixing between mineral and pollution aerosols. *Atmos. Environ.* **39**: 7020–7029.
- Wang, Y., G. Zhuang, A. Tang, W. Zhang, Y. Sun, Z. Wang, and Z. An. 2007. The evolution of chemical components of aerosols at five monitoring sites of China during dust storms. *Atmos. Environ.* **41**: 1091–1106.
- Wood, E. D., F. A. J. Armstrong, and F. A. Richards. 1967. Determination of nitrate in sea water by cadmium-copper reduction to nitrite. *J. Mar. Biol. Assoc. UK.* **47**: 23–31.
- 山口高志, 吉川勝秀 (1980) : 河川の水質・汚濁負荷量に関する研究 (II) . 土木研究所報告. **154**: 1-43.
- Yoh, M., E. Komohira, K. Yagi. 2001. Regional distribution of natural stream nitrate in central Japan. *Water, Air, and Soil Pollution.* **130**: 655–660
- Yoshioka, K., H. Kamiya, Y. Kano, Y. Saki, M. Yamamuro, and Y. Ishitobi. 2009. The relationship between seasonal variation of total-nitrogen and total-phosphorus in rainfall and air mass advection paths in Matsue, Japan. *Atmos. Environ.* **43**: 3496–3501.
- Young, M. B., K. McLaughlin, C. Kendall, W. Stringfellow, M. Rollog, K. Elsbury, E.

Donald, and A. Paytan. 2009. Characterizing the oxygen isotopic composition of phosphate sources to aquatic ecosystems. *Environ. Sci. Technol.* **43**: 5190–5196.



## 謝辞

本研究を進めるにあたり、多くの方のご協力を頂きました。島根県保健環境科学研究所環境科学部長神谷宏博士には、同研究所水環境科に在籍した4年間において本研究に関して多大なるご指導やご助言を賜り、研究所から異動後も論文をまとめる際に暖かくご支援して頂きました。島根大学大学院総合理工学研究科教授清家泰博士には、今回の博士号取得申請の際に担当教官として快諾して頂き、島根大学在学6年間を含め多くのご助言やご指導を賜りました。陸水学に造詣が深い東京大学大学院新領域創成科学研究科教授山室真澄博士には、世界的にも有名な陸水学雑誌の1つである *Limnology and Oceanography* への投稿を薦めて頂きました。慣れない英語論文の投稿ということで悪戦苦闘する中、暖かいご指導ご助言を賜ることで、なんとか掲載に至ることができ、大変貴重な経験をさせて頂きました。また、共著者である筑波大学大学院生命環境科学研究科特任助教田林雄博士には、*Limnology and Oceanography* への投稿の際に統計解析に関してソフトの提供や解析値の図表化などを担当して頂きました。そして、島根県保健環境科学研究所所長大城等博士をはじめ、神門利之様ほか当時在籍していた水環境科の皆様には本研究以外にも測定、解析などで大変お世話になりました。そうした皆様のご尽力の結果を積み上げることで本論文をどうにかまとめることができました。心より感謝申し上げます。