

NO₃⁻をトレーサーに用いた流出成分分離の可能性について On the Possibility of Hydrograph Separation Using NO₃⁻

山梨大学工学部 正員 竹内 邦良

山梨大学工学部 正員 坂本 康

山梨大学大学院 学生員 本郷 善彦

1. はじめに

流出成分分離は、河川流出水を降雨から流出に至るまでの経路別に分離する作業であり、水粒子には印が付かないため、極めて困難な作業である。にもかかわらず、これは有効降雨推定という流出解析の第一段階に必要な作業に直接関連しており、水文学の基本課題の一つである。流出成分としては、①表面流出、②早い中間流出、③遅い中間流出、④地下水流出、の4成分が考えられることが多い。①・②を合わせて直接流出、③・④は基底流出とも呼ばれる。いずれも概念的な分類であって、必ずしも厳密に定義されたものではない。

また、各成分の分離方法としては、

- 1) 便宜的方法 例えば Linsley 等による $N = 0.8A^{0.2}$ を用いる方法
- 2) ³H 等の radioisotope による方法
- 3) 水質成分を用いる方法
- 4) 日野・長谷部等による、確率過程の手法による方法¹⁾

などあるが、2～4は緒についたばかりであり、これまでのところもっぱら1)が実用されている。

本論文では、3)の水質成分を用いる方法のうち、NO₃⁻をトレーサーとした場合の成分分離の可能性を検討するものである。この方法については、すでに海老瀬らの研究^{2),3)}があるが、本論文はその細部を検討するとともに、新しい観測例を追加するものである。

まず、トレーサーとしてのNO₃⁻の特徴は次のとおりである。硝酸塩はいずれも非常に水溶性が高い。Ca²⁺、Mg²⁺などの陽イオンと違い、NO₃⁻は陰イオンであるため土粒子等に吸着されず、溶解後は水と共に移動する。また、直接流出期間内の脱窒・同化作用による量的変化も少ないと考えられる。

NO₃⁻-N濃度の分析には、Cd-Cuカラムによる還元法を用いた。⁴⁾この方法で、同一試料について2回測定し、その差が0.01 mg/ℓ以内になったとき、その平均値を測定結果として採用した。濃度は mg/ℓ で表示した。

次に、調査の対象とした相川流域(笛吹川の支流である荒川の一派川)の形状と観測地点の分布をFig.1に示す。流域は山梨大学北にある流域面積約8.4 km²の山地で、そのうち森林86.4%、田・畑・桑田3.9%、残り9.7%は住区・河川・道路である。流域内の人口は800人である。流域内の本川流路長は4.3 km、平均河床勾配1/9.6、観測期間内の最低流量は0.002 m³/secであった。

2. 河川水中のNO₃⁻-N濃度の空間分布と長期変化

河川水中のNO₃⁻-N濃度の流下方向の変化を調べた。

Fig.2はFig.1に示した1～9の採水地点における河川水のNO₃⁻-N濃度である。通算8回の観測結果の内6回分を示している。

- 1) 6/17及び8/26を除くと、各地点での濃度は毎回比較的安定した分布形状を示している。最上流で高く、徐々に低下し、さらに下流で再び上昇するパターンである。
- 2) 6/17は灌漑期であるため、肥料としてのNO₃⁻を含む水田からの流出により、全体として高いレベルになっている。水田の多い下流での増加が特に著しい。8/26は8月初めの台風10号とその後の降雨による洗い出しの結果、全体に低いレベルで他と異なる分布形状になっているものと考えられる。

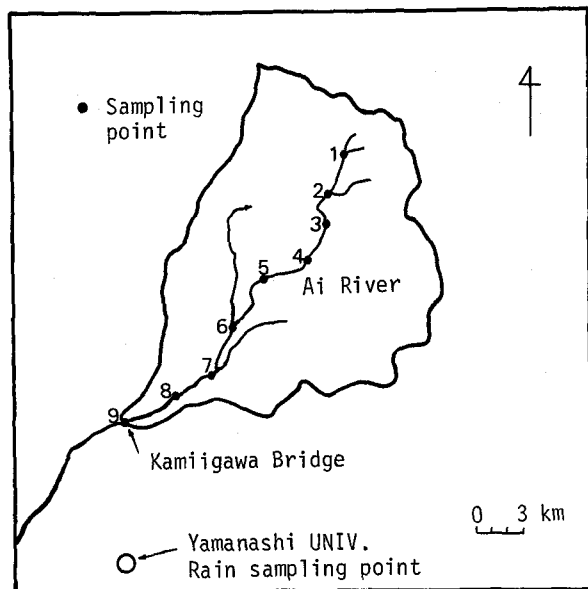


Fig. 1 Ai River basin and sampling points.

Fig. 2 Spatial distribution of NO_3^- -N concentration of river water along the Ai River.

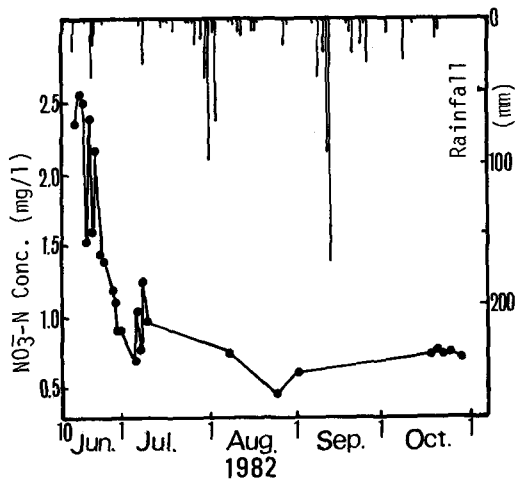
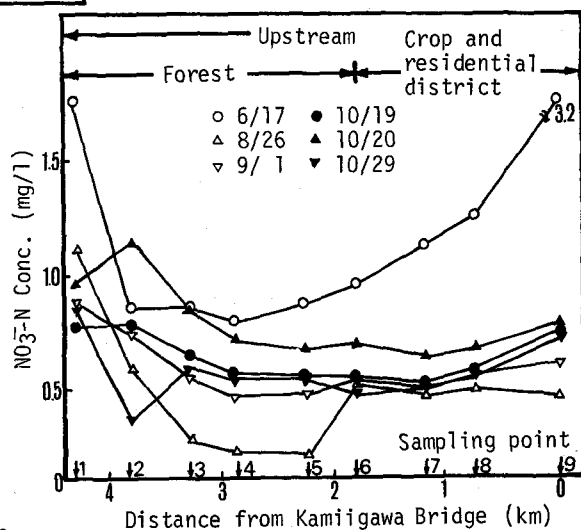


Fig. 3 Daily precipitation series and temporal changes of NO_3^- -N concentration of river water at Kamiigawa Bridge.

3) 1～5地点までの漸減傾向は、河川の自浄作用の一種によるものと考えられる。6～9の漸増傾向は、田・畑や家庭排水の影響と考えられる。

次にFig.3は、最下流点での長期的な NO_3^- -N濃度変化である。日降雨量時系列と併せて示してある。観測時点が粗で傾向をつかむことは難しいが、6月の田への施肥による高濃度の後、1～2ヶ月間に徐々に洗い出され減少してゆくのがわかる。次に、測定頻度の高い10月19日から29日までの変化をみると、 NO_3^- -N濃度は降雨により一旦上昇し再び減少するというパターンを示している。しかしながら降雨の前後数日～1週間のような短期間であれば、河川水の NO_3^- -N濃度のベースは変わらないと考えてさしつかえないと思われる。全期間でのベースは、灌漑期を除いてほぼ $0.6 \sim 0.7 \text{ mg/l}$ 前後である。

3. 降雨流出時の河川水中の NO_3^- -N濃度

Fig.4は、a) 6月20日～21日、及び b) 7月8日の降雨に伴う流出時の最下流点における河川水中の NO_3^- -N濃度の時間変化を、降雨量と共に示したものである。

降雨の流出に伴ない NO_3^- -N濃度は高まり、その後徐々に減少するパターンをとる。降雨流出に伴う濃度上昇高は、両降雨ともほぼ 0.4 mg/l である。施肥・灌漑の影響の残っている6月20日の降雨では、長期低減傾向を反映して、降雨の前後では、基底流出の濃度と思われるものは下っている。7月8日の降雨では、観測時間が短いため断定は出来ないが、降雨流出前より高いレベルで、比較的長期間安定するようである。

Fig.5aは、流量と NO_3^- -N負荷量との関係を、両対数グラフ上に示したものである。反時計まわりのループを描くことから、 NO_3^- -N負荷のピークは流量のピークよりおくれて現われることがわかる。Fig.5bに示したイオン総負荷量⁵⁾では、このようなループは現われない。このことから NO_3^- は、ピーク発生時期の異なる流出成分を分離するためのトレーサーとして、利用され得る可能性を具えていることがわかる。

4. 降雨中の NO_3^- -N濃度

Fig.6、7a、7bは山梨大学環境整備工学科屋上において降雨を採水し、水質の経時変化を測定した結果である。採水は、屋上に設置した $1 \text{ m} \times 1 \text{ m} \times 10 \text{ cm}$ の受け皿からポリ容器に集める方式で行なった。測定値は、気象庁(気仙沼)⁶⁾、環境庁(国立公害研)⁷⁾などの観測値の平均値と大差なかった。しかしながら、時間変化の測定例はこれまでなく、この3図は、この種の資料としてははじめてのものである。図によれば、

- 1) 全体に降雨初期は高濃度であり、降雨継続と共に低下する傾向がみられる。
- 2) 初期濃度は降雨により異なる。
- 3) 濃度は降雨強度に反比例する傾向がある。

このことから、 NO_3^- の供給源である大気中の塵埃の量は、降雨が継続すると低下すると考えられる。また強度の弱い雨で濃度が高くなることの原因は不明であるが、弱い雨ほど平均的には雨滴が小さく、雨滴表面積が降雨量に対し相対的に大きくなるためと考えれば説明がつく。降雨中の NO_3^- -N濃度はばらつきが大きい、最頻値としては、 $0.1 \text{ mg/l} \sim 0.3 \text{ mg/l}$ 程度とみなされる。

5. 表面流出水中の NO_3^- -N濃度

Fig.7a、7bには、降雨中の NO_3^- -N濃度と同時に、山梨大学グラウンドの表面流出水、および同大学環境整備工学科屋上の排水樋から採水した水の NO_3^- -N濃度を示してある。グラウンドは小石まじりの赤土(ローム)から成り、まばらに雑草もはえている。採水はグラウンドにできた直径10m程度の大きな水溜りから、側溝へ流下する点で行なった。水溜りであるため、降雨終了後も数時間排水が続いている。一方樋の水は、屋上約 60 m^2 部分の水を集めて約15m流下してきたものを、一階で採水した。屋上には雑草はほとんど生えていないが、排水口の付近に目づまりがあり水溜りが出来ているため、やはり降雨終了後数時間排水がつづいた。

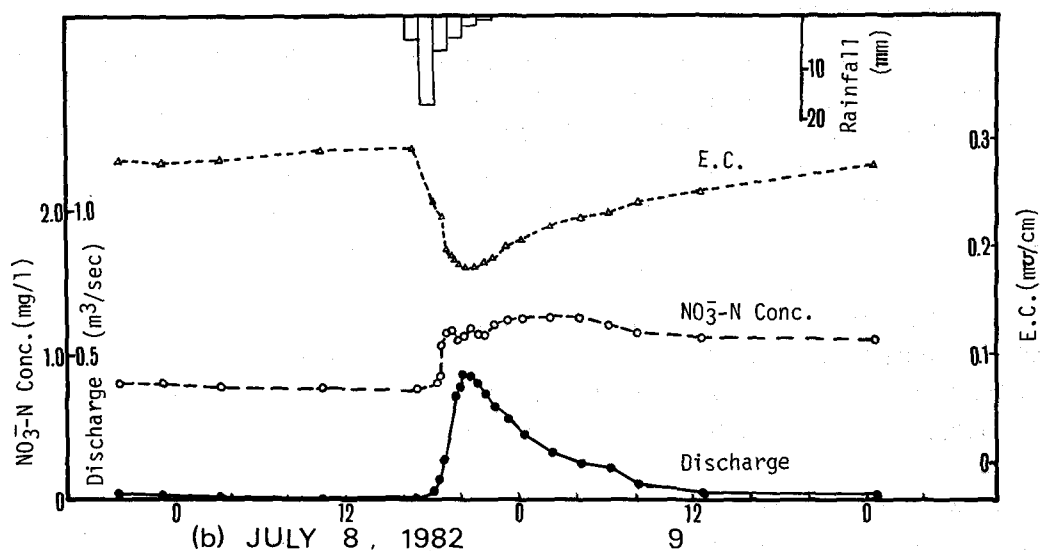
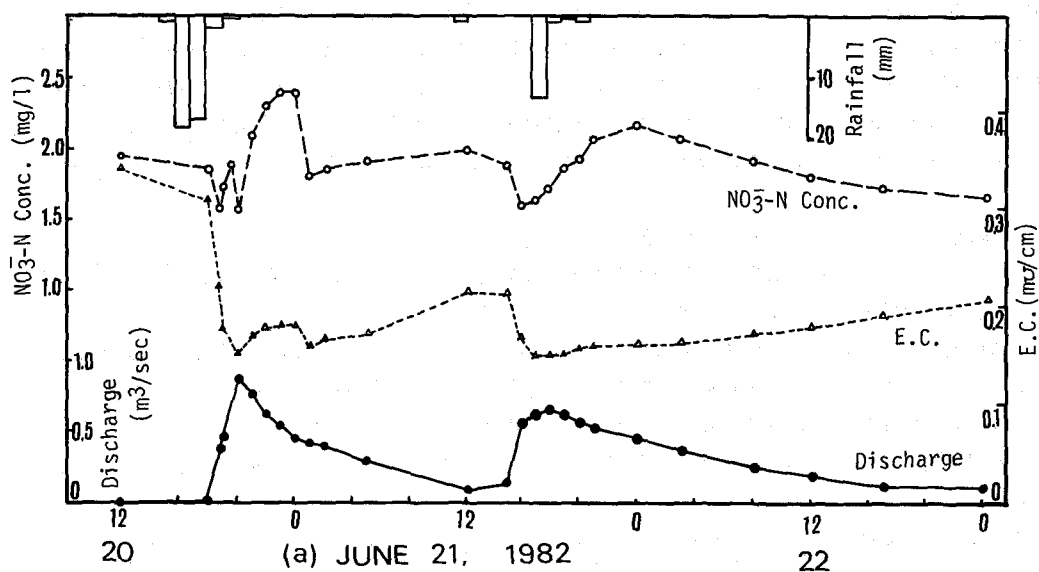


Fig. 4 Hyetograph, hydrograph and corresponding changes of $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration, and electric conductivity of river at Kamiigawa Bridge.

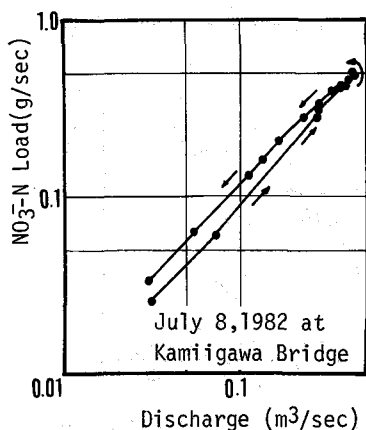


Fig. 5a NO_3^- -N load vs. discharge.

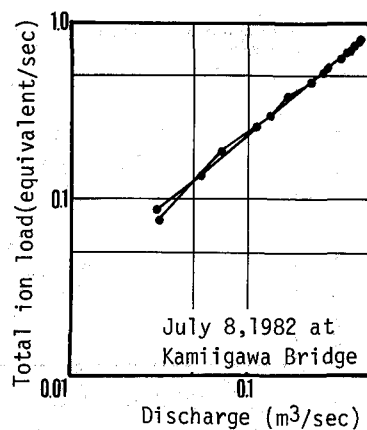


Fig. 5b Total ion load vs. discharge.

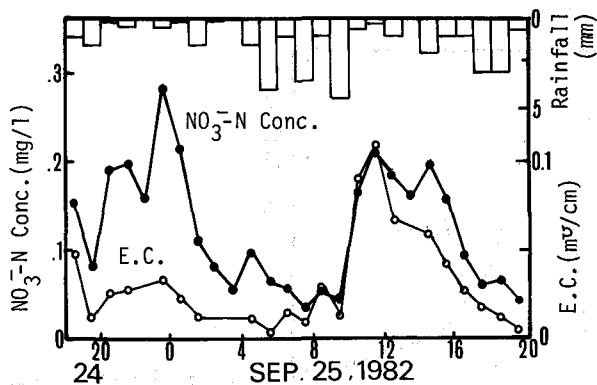


Fig. 6 Rainfall intensity and corresponding NO_3^- -N concentration and electric conductivity of rain water.

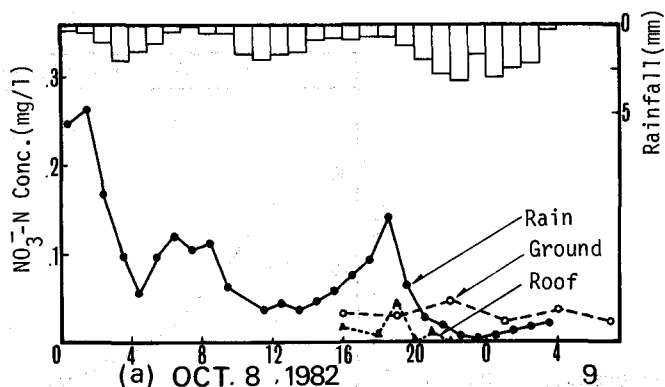


Fig. 7a Rainfall intensity and NO_3^- -N concentration of rainwater, as compared with NO_3^- -N concentrations of surface discharges from the university ground and from the roof.

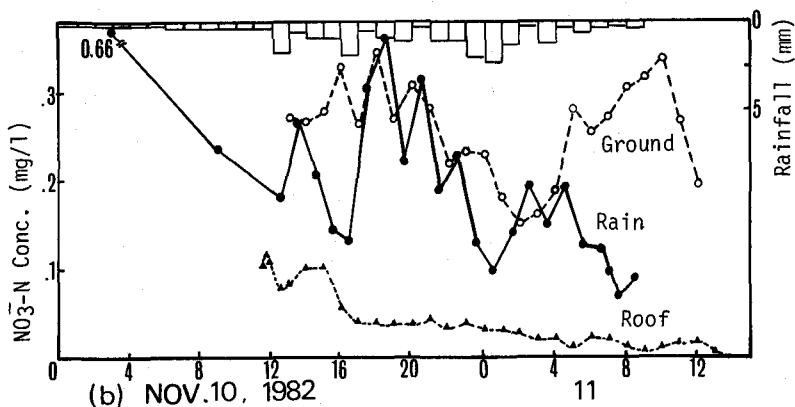


Fig. 7b Rainfall intensity and NO_3^- -N concentration of rainwater, as compared with NO_3^- -N concentrations of surface discharges from the university ground and from the roof.

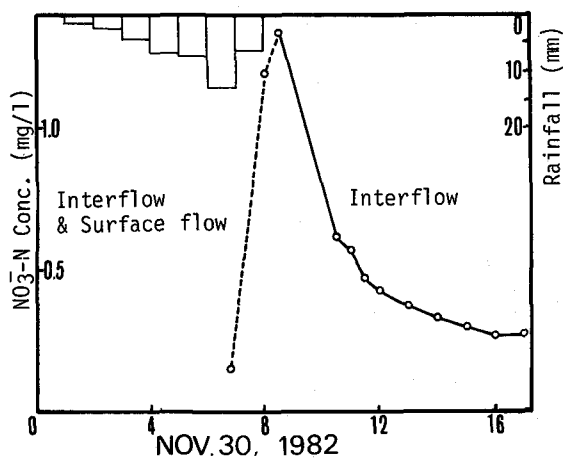


Fig. 8a Temporal changes of NO_3^- -N concentration of water discharged from the underground of grass-grown slope.

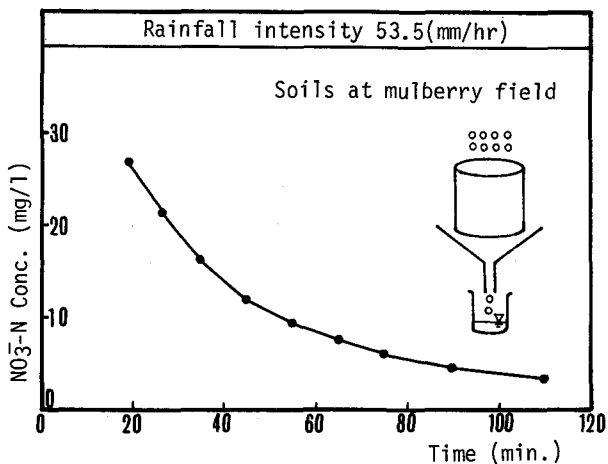


Fig. 8b Temporal changes of NO_3^- -N concentration of water discharged from a soil column under the artificial rain.

グラウンドからの表面流出は、滞留時間の関係からか、降雨の NO_3^- -N濃度に比べ、①時間的に遅れたパターン、ならびに、②それを平滑化した傾向が見られる。全体的に濃度は降雨と同程度である。

一方樋の水の NO_3^- -N濃度は、降雨の濃度に比べ極めて低いという注目すべき事実が観測された。排水口周辺ならびに樋には、特に目立った泥・植生等の微生物層は目視されない。濃度低下のメカニズムや、この現象がこの樋に特有のものであるのか等については、今後の検討が必要である。

以上、不浸透域からの表面流出のうち、グラウンド、屋上からの流出水の調査結果からは、 NO_3^- -N濃度は降雨と同程度のもの、およびそれ以下のものの合成であると結論できる。

6. 地下水中の NO_3^- -N濃度

地下水中の NO_3^- -N濃度を知るために、流域内外十数本の井戸から採水、測定したが、井戸によって値がかなりばらつく。低いもので 0.45 mg/l 、高いものでは 13 mg/l のものもある。これは、井戸周辺での排水や、井戸内の植生の影響と考えられる。平均的な値を知るため、甲府市水道局が汲み上げている昭和水源他数地点の井戸水の総合値を調べた。いずれも、井戸水面までの深さは 10 m 内外である。値は $1.7 \sim 3.1 \text{ mg/l}$ の範囲で平均 2.3 mg/l と、比較的安定したものであることがわかった。なお、これに近い値を示した井戸が流域内外で4本みられた。

地下水の平均濃度を 2.3 mg/l とすると、Fig.2、3からもわかるように、河川水の濃度はこれよりもずっと低い。これは、地下水が河川へ流出し、流下して観測点に至るまでに、何らかの作用（自浄作用）をうけることによるものと考えられる。無降雨時の河川水の濃度が安定しているのは、少なくとも無降雨時には自浄作用の程度が安定しているためと考えられる。

7. 土壌流出水中の NO_3^- -N濃度

中間流出成分にあたる、表層土壌からの流出水の濃度変化をみるため、山梨大学構内の斜面からの降雨流出水の分析を行なった。斜面は、勾配 $1/1.3$ で表面は数 cm の高さの雑草で覆われている。総降雨量 43.5 mm 、 NO_3^- -N濃度 0.006 mg/l の降雨の際の、流出水の NO_3^- -N濃度変化をみるとFig.8a のようになった。図では、破線で、表面流出と中間流出の両方の影響が考えられる降雨中の流出水の濃度変化を、実線で、降雨終了後の濃度変化を示してある。この図のように、降雨終了後表面流出がみられなくなってしまうからの流出水の濃度は、指数関数的に減少し、その減少傾向は8時間程度も続いた。これは、遅れて流出する水は、すでに NO_3^- の洗い出された土壌中を流れてくる割合が多くなるためと考えられる。

以上の観測結果を補い、さらに流出量と濃度との関係をみるために、土壌カラムに人工降雨を与え、流出水を調べる室内実験を行った。その結果をFig.8bに示す。用いた土は、桑田から採取したもので施肥による NO_3^- を多量に含むものである。その乾燥状態での見かけの密度は 0.91 g/cm^3 で、人工降雨前後の含水比は 44.9% 、 54.8% であった。用いた土壌カラムの長さは 12.5 cm で、体積は 982 cm^3 である。このカラムに蒸留水を2時間、 53.5 mm/hr で散布して、そのときの流出水を分析した。このときも現場観測と同じように、 NO_3^- -N濃度は指数関数的に減少した。さらにその曲線を外挿することにより、時刻0のときの値からは降雨前の土壌水の濃度に、時刻 ∞ のときの値からは降雨後の土壌水の濃度に近い値を推定できることがわかった。流出量と濃度との関係をみると、濃度がほぼ一定の値（初めの土壌水濃度の $6 \sim 7 \%$ ）に下がるまでの2時間の総流出量は、降雨後の土壌水分量の約1.5倍であった。また、土壌カラムからの NO_3^- -Nの総流出負荷量は、2時間の降雨では初めに土壌中に存在した NO_3^- -Nの30%程度であった。これらのことから、降雨後の土壌水濃度や土壌水分量などを測定することで、降雨中の土壌からの流出水の濃度変化を推定することも可能と考えられる。

次に、実際の土壌中の NO_3^- 量が場所により、あるいは降雨の前後によりどの程度異なるかを明らかにするために、表面の植生の状態が違う山梨大学講内の3地点について、降雨直後と降雨5日後での土壌中の NO_3^- -N濃度の測定を試みた。各地点で降雨直後と降雨5日後に3サンプルずつ土壌を取り、一定量の蒸留水中

で分散・溶出させて浸出液の NO_3^- -N濃度を測定した。各地点、各採取時での NO_3^- -N濃度の3つの値の内、差の小さい2つの値の平均値は、雑草におおわれ樹木の影響も受けている斜面では、降雨直後で0.21 mg/ℓ、降雨5日後で2.32 mg/ℓ、砂・礫が多く雑草におおわれた平坦な庭では0.15、2.84、グランドでは0.35、0.65であった。ただし、同じ場所でもサンプルによる違いが、最大で平均値の170%もあり、分析の精度には問題がある。しかし、全体的には、植生により濃度が異なること、及び降雨後の日数の経過により、 NO_3^- が増加する傾向は認められたと言えよう。

8. 流出成分分離の可能性について

以上の観測結果のうち、成分分離に関連した点をまとめると以下ようになる。

- ① 河川水中の NO_3^- -N濃度の長期変動傾向は、灌漑期施肥後の急速な洗い出しの後には、比較的安定している。
- ② 無降雨が続くと河川水の濃度は低下し、降雨に伴う流出があると上昇する。流出前後の基準値は、短期間であれば一定とみなしてさしつかえない。
- ③ 雨水中の NO_3^- -N濃度は、降雨時の河川水濃度に比べ低い。降雨の継続とともに漸減するとともに、降雨強度に反比例した様相の変動を示す。
- ④ 表面流出水の NO_3^- -N濃度は、降雨と同程度のものおよびそれ以下のものの合成と考えられる。
- ⑤ 地下水の NO_3^- -N濃度は、無降雨時の河川水濃度より高い。これは、地下浸透過程で土壌表層の NO_3^- が溶出し、地下水濃度を増すが、少なくとも無降雨時であれば、地下水が河川へ流出し流下する過程で受ける何らかの作用により、濃度が低下するものと考えられる。
- ⑥ 雨水の洗い出しにより土壌から供給される NO_3^- は、時間と共に一定ではなく減少する。その減少傾向は指数関数型であり、初期値は無降雨継続日数、先行降雨、土質、植生、土地利用等により大いに異なる。

以上のことから、降雨に伴ない河川水の NO_3^- -N濃度が増すのは、雨水そのものや表面流出水に原因するのではなく、一旦地下浸透した後流出する中間流出水、あるいは地下水によるものであるということが出来る。そこで、この事実に基づいて、流出成分の分離が可能であるかどうかを検討したい。

流出成分として、表面流出、早い中間流出、地下水流出（遅い中間流出を含む）の3成分を考える。それぞれ添字として、S、I、Gを用いる。3成分の合成である河川水には、添字Tを用いる。流出負荷および流量の連続式から、

$$C_T(t) \cdot Q_T(t) = C_G(t) \cdot Q_G(t) + C_S(t) \cdot Q_S(t) + C_I(t) \cdot Q_I(t) \quad (1)$$

$$Q_T(t) = Q_G(t) + Q_S(t) + Q_I(t) \quad (2)$$

ここに $C(t)$ は時刻 t における NO_3^- -N濃度 (mg/ℓ)、 $Q(t)$ は流出量 (ℓ/sec) である。

各変数のうち観測可能なものは、河川水の濃度 $C_T(t)$ および流量 $Q_T(t)$ のみである。したがって、未知数6つ、式2本ということになる。上記調査結果によれば、表面流出水の濃度 $C_S(t)$ は、河川水濃度 $C_T(t)$ に比べ小さく、降雨と同じと考えても大差ない。また、その時間変化は、降雨濃度の変化が平滑化されて流出してくるので、ほぼ一定としてよい。したがって $C_S(t)$ には、降雨の平均濃度 C_R を用いることができる。これでも未知数5つである。

ここで、海老瀬ら³⁾は極めて大胆な仮定を導入した。すなわち、

$C_G(t)$: 一定で、出水開始直前の河川水、すなわち基底流出の濃度とする。

$Q_G(t)$: 一定で、出水直前の河川流量とする。

$C_I(t)$: 一定で、流出低減部で中間流出の卓越するとみられる部分での河川水濃度とする。

以上の仮定を採用すると、未知数は、 $Q_S(t)$ 、 $Q_I(t)$ のみとなり、分離が可能となる。すなわち、中間流出成分 $Q_I(t)$ は、

$$Q_I(t) = \{ (C_T(t) - C_R) \cdot Q_T(t) - (C_G - C_R) \cdot Q_G \} / (C_I - C_R) \quad (3)$$

より求められる。

相川流域の場合、例えば7月8日の降雨では、雨水の平均濃度 $C_R = 0.07 \text{ mg}/\ell$ に比べ、地下水流出の濃度 $C_G = 0.77 \text{ mg}/\ell$ 、河川水の濃度 $C_T = 0.77 \sim 1.25 \text{ mg}/\ell$ は十分高いので、Fig.4b の例のように 出水前の基底流出 Q_G が、出水時の流量 $Q_T(t)$ に比べ極めて小さい場合には、(3)式は近似的に

$$Q_I(t) \simeq \{C_T(t)/C_I\} \cdot Q_T(t) \quad (4)$$

となる。このことは、 C_I が常に $C_T(t)$ より大きくなければ、中間流出が総流出より多くなるという矛盾を生じることを意味している。したがって海老瀬等のように $C_I(t)$ を一定と考え、中間流出の卓越する流出低減部での河川水濃度を C_I と仮定する方式では、その部分で $C_T(t)$ が最大ではないため、 $C_T(t) > C_I$ の部分からは 負の表面流出が出てくることになる。また、それを避けるため $C_T(t)$ の最大のものを C_I に選ぶと、 $C_T(t) < C_I$ となる流出低減部で、一旦終わった表面流出が再び現われるということになる。

このような矛盾が生じる原因は、その仮定にある。以下に個々の理由を列挙する。

- ⑦ $C_I(t)$ を一定とは考えにくく、また 実際の土壌からの溶出過程の観察事実とも相容れない。
- ⑧ 地下水流出の濃度 $C_G(t)$ を一定とする仮定は、晴天時の基底流出としてはふさわしいが、降雨時にあっても晴天時と同様 高濃度の地下水が河川に流出してくる間に薄くなるとは限らない。
- ⑨ 地下水流出 $Q_G(t)$ が降雨流出時も一定と考えることには、田中ら⁸⁾の反証もあり、成分分離を行う上での仮定としてはふさわしくない。

9. 結 論

NO_3^- -Nの河川水中の時空間分布、降雨中の変動、表面流出中の濃度、地下水中の濃度、ならびに土壌からの溶出過程について調べ、前節①～⑥に揚げた結論が得られた。また、 NO_3^- をトレーサーとして用いた流出成分分離の可能性については、未知数が多く、それらを定数とみなすことには⑦～⑨の問題点があり、これを解決することが先決であることが結論された。

最後に本研究に加わった筆者等の研究室の学生諸兄に深甚なる謝意を表する。

- 1) 日野・長谷部：流量時系列のみによる流出解析について、土木学会論文報告集、№300、1980年8月 pp. 43～56
- 2) 海老瀬・宗宮・平野：タンクモデルを用いた降雨時流出負荷量解析、用水と廃水、vol.21、№12、1979、pp.46～56
- 3) 海老瀬・村岡・大坪：降雨流出成分の水質による分離、第26回水理講演会論文集、1982年2月 pp.279～284
- 4) 日本分析化学会北海道支部：水の分析、第3版、pp.216～220
- 5) 建設産業調査会：地下水ハンドブック、p.135
- 6) 気象庁：大気バックグラウンド汚染観測年報、昭和56年、昭和57年
- 7) 安部喜也：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、№20、1981、pp.27～42
- 8) 田中・間島・佐藤：蓮沼川および西谷田川の流出特性について、筑波の環境研究、5A、1980、pp.20～25