

(6) 降雨による土壌層から河川への NO_3^- の排出

DRAINAGE OF NITRATE FROM THE SURFACE
SOIL LAYER TO RIVERS BY STORMS

海老瀬 潜 一*
Senichi EBISE**

ABSTRACT ; For most of water quality indicators in a river an annual total loading for the year with more rainfall became larger than that with less rainfall on the basis of the weekly data for two years. Especially, the discharge-weighted mean of nitrate concentration for one year was larger than the arithmetic mean. The frequency distribution of nitrate loading is not normal but skewed logarithmic-normal. These characteristics were distinct in agricultural-land and mountainous rivers and weren't seen for chloride. When the surface runoff occurs during a storm runoff, the concentration and loading of nitrate becomes peaks behind that of discharge, and the concentration keeps up higher level at the recession stage. Because the concentration of rain-water is low, that of river-water becomes a sudden drop by the dilution of surface runoff at the stage of a sharp increase of discharge. Consequently, most of the nitrate load increased by a storm runoff are drained out from the surface soil layer of river basins and carried by subsurface runoff. A specific total nitrate loading during the direct runoff of a storm could be estimated by the log-log regression equation of specific total discharges for many storm runoff events.

KEYWORDS ; Nitrate ; Storm runoff loading ; Subsurface runoff ; Surface soil layer ; Non-point source.

1. 緒 言

河川流域の降雨入力に対する水質の流出機構は、負荷の発生源（あるいは供給源）の位置とその存在形態に基づいた降雨の「洗い出し」作用に支配される。粒状物質あるいは懸濁物質では、地表面上や流路内に貯留・堆積したものの流出や、裸地の侵食による流出のように、降雨の表面流出との関係が強く、流出過程での貯留・堆積量の多いのが特徴である。これに対して、溶存物質は植生や凹地貯留などで一部トラップされるものの、晴天期間に地表面上に貯留されることは少ない。降雨に含有されるもの、粒状物質に吸着・保持されていて流出過程で脱着・離脱したもののほかは、地表面に近い土壌層から雨水浸透による「洗い出し」作用によって土壌粒子から溶脱したもの、土壌水中に含有されていて離脱したものなどで構成されている。このため、溶存物質の流出は、基底流出を構成する地下水流出に加えて、降雨の中間流出との関係が強い。もちろん、降雨自体に含まれるものもあり、一部は降雨の表面流出によって流出しているが、その降水中の濃度は霞ヶ浦流域内の上流河川水のそれと比べてかなり低いのが通常である。

流域から河川への NO_3^- の流出は、大気からの降下物としての供給に加えて、土壌微生物の硝酸化成作用によって好気的な環境下では安定な窒素化合物として土壌層から供給される。もっとも、人為的な点源負荷として種々の排水中に窒素化合物の一形態として含まれているため、上記の面源負荷としての自然排出とこの点源負荷としての人為排出の二つの排出形態が見られる。ここでは、 NO_3^- の自然排出現象を中心に検討するが、河川水では人為排出のウェイトも高いため、同じ溶存態物質で人為排出のウェイトの大きな Cl^- との比較をまじえながらその対比も明らかにする。この NO_3^- 、 Cl^- などの溶存物質の流出挙動を明らかにすること

*国立公害研究所 水質土壌環境部, **National Institute for Environmental Studies, Water and Soil Division.

は、降雨流出成分（表面流出・中間流出・地下水流出）の分離と各流出成分による流出負荷量の算定に役立つほか、近年増加した浄化槽や土壤浸透処理あるいは地中処分に伴う最終生成物質の流出による河川水質への影響¹⁾さらには、地下水の NO_3^- や Cl^- の高濃度化傾向との関連のチェックなどに有用と考えられる。この NO_3^- の降雨流出過程における他の溶存物質や溶存態成分との挙動の相違は、著者らが河川流量と河川流出負荷量との対応の観点から既に指摘している^{2),3),4),5)}。本論文では河川の流域特性と NO_3^- の関係、とくに土壤層からの雨水浸透に伴う NO_3^- の排出現象に焦点を絞り、河川における降雨時流出観測だけでなく、1年間あるいは2年間の毎週1回定時観測結果から考察する。したがって、水文学的には洪水の直接流出を対象とした短期流出と、低水流出を対象とした長期流出の両面から考察することになる。

2. 土壤層での無機態物質の挙動

一般に、土壤粒子はその吸着特性によって粒子表面に陽イオンを吸着するほか、土壤粒子間には土壤水として無機イオンを保持している。とくに、重金属や K^+ および NH_4^+ の吸着特性の著しい粘土粒子は、 PO_4^{3-} との特異的な吸着特性も有しているほか、陽イオンの中でもその吸着に選択性があり、吸着特性の違いによって陽イオン同志のイオン交換も行なわれる。また、土壤によっては黒ボク土のように K^+ や NH_4^+ の吸着力がさほど大きくないものも存在するし、土壤を構成する有機物質にも陽イオン吸着特性があるなど、土壤による吸着特性の差は大きい⁶⁾。土壤と陰イオンの関係は、上記の PO_4^{3-} を例外として、土壤中では Cl^- 、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} はとくに吸着され難い。

土壤層中では、表層部に多量に存在する有機態窒素が NH_4^+ を経て、硝酸化成作用によって最終的には NO_3^- まで変化するため、土壤層の下部に行くほど土壤水中の NO_3^- は高濃度を呈することが多い。もっとも農地には無機態を主とする多量の化学肥料が投入されるのが通常であり、収穫物を除いて多くの窒素分が土壤層に残留し、その負荷としてウェイトは非常に大きい。この土壤層内での Cl^- や NO_3^- の挙動に関しては佐久間⁷⁾の土壤柱状カラムでの室内浸透流出実験があり、小川の⁸⁾実際の畑地における浸透水の長期観測による降雨の影響の研究がある。

一般に、河川流域は山地、畑地、水田、市街地など複雑に入りまじった複雑な土地利用分布となることが多い。しかし、河川上流部に位置する山地、中・下流部に位置する農耕地あるいは市街地というように、比較的単純な形で捉え易い小河川流域や、全流域の中で単一の土地利用による負荷が特に大きくて他の土地利用による負荷が無視できるような河川流域については、各々の土壤層からの NO_3^- の排出特性をその土地利用と関連づけて検討することも可能である。

3. 流域特性と自然排出・人為排出の関係

河川流域における不透水性面積比率、透水性の程度や植生などは、土壤層からの NO_3^- の排出だけでなく、河川への水量の排出過程を支配する水文学的に重要な流域特性因子である。したがって、山地河川・田園地（農耕地）河川・市街地河川など流域内の主要な土地利用形態で大別できる河川流域ごとに、水量や水質の自然排出過程における水文学的な流出挙動に大きな差が見られる。市街地からは生活排水や工場・事業所排水などの負荷が排出され、その水量は他流域から導入されることが多い。また、農耕地には水田・畑地の灌漑用水が灌漑期間に限って他流域から導水されることがあり、その量は大量で、取水された流域と導水された流域とも影響が大きい。これら人為的な排出は、流域特性と河川流出負荷量の関係の解析を困難にしているが、流域の負荷特性と NO_3^- の流出挙動の関係を1年間を通した河川流出負荷量観測結果から検討を行う。

調査対象としたのは霞ヶ浦流入河川で、関東ローム層で表土を覆われた関東平野の北東部に位置し、最近6年間の年平均降水量が1,258 mm（恋瀬川流域柿岡観測地点）⁹⁾、ひと雨雨量で41 mm以上の降雨が積算雨量として34%、21~40 mmの降雨が同様に31%のウェイトを占めている。毎週1回定時の流出負荷量定期観測を2年間実施した3河川4地点（後半の1年間は3河川6地点）、1年間実施した7河川7地点をFig. 1

Table 1 Characteristics of river basins and specific loadings of $\text{NO}_3\text{-N}$ and Cl^- .

River	Observation Point	Observation Period	Drainage Area (km^2)	Ratio of Farmland and Forest (%)	Ratio of Urban Area (%)	Population Density (Capita./ km^2)	$\text{NO}_3\text{-N}$			Cl^-		$\text{NO}_3\text{-N}$ T-N (%)	Specific Discharge ($10^3 \text{ m}^3/\text{km}^2 \cdot \text{day}$)
							Specific Run-off Loading ($\text{kg}/\text{km}^2 \cdot \text{day}$)	Arithmetic Mean of Conc. (mg/l)	Discharge-weighted Mean of Conc. (mg/l)	Specific Run-off Loading ($\text{kg}/\text{km}^2 \cdot \text{day}$)	Arithmetic Mean of Conc. (mg/l)	Discharge-weighted Mean of Conc. (mg/l)	
Sakura	Eiri B.	'81 ~ '82	330.0	85	13	344	1.295	1.461	1.540	17.1	21.8	20.3	0.84
Sakai	Sakai B.	'81 ~ '82	17.6	67	33	1,082	1.129	0.980	0.958	34.5	29.6	29.3	1.18
Bizen	Komatsu B.	'81 ~ '82	6.5	52	44	2,228	0.655	0.560	0.571	49.3	44.0	43.0	1.14
Hanamuro	Amisakai B.	'81 ~ '82	34.4	61	37	1,241	5.041	2.752	2.534	62.9	32.3	31.6	1.99
Seimei	Seimei B.	'81 ~ '82	24.5	83	16	540	1.631	1.153	1.284	37.5	30.5	29.6	1.27
Ono	Henda B.	'81 ~ '82	120.6	81	17	626	1.859	1.817	2.073	24.8	28.2	27.7	0.90
Shintone	Kitakawara B.	'81 ~ '82	34.0	82	13	507	3.182	0.580	0.497	215.6	58.4	33.7	6.40
Koise	Koise B.	'78 ~ '79	151.0	90	9	371	1.602	1.195	1.466	16.0	15.4	14.7	1.09
Koise	Koise B.	'79 ~ '80	151.0	90	9	371	2.397	1.519	1.761	18.3	14.9	13.5	1.36
Sonobe	Sonobe shin B.	'78 ~ '79	72.8	87	12	410	2.742	2.213	2.139	27.3	22.5	21.3	1.28
Sonobe	Sonobe shin B.	'79 ~ '80	72.8	87	12	410	5.091	2.365	2.600	41.5	22.7	21.2	1.96
Sanno	Hinode B.	'78 ~ '79	12.4	61	38	1,807	2.439	0.791	0.897	69.7	27.2	25.6	2.72
Sanno	Kanoko B.	'78 ~ '79	3.9	-	-	-	3.640	2.745	2.567	84.4	68.3	59.5	1.42
Sanno	Hinode B.	'79 ~ '80	12.4	61	38	1,807	4.181	1.180	1.277	83.6	26.0	25.5	3.27
Sanno	Baraki-dai	'79 ~ '80	8.3	-	-	2,402	6.506	1.376	1.437	125.9	28.6	27.8	4.53
Sanno	Suginoi B.	'79 ~ '80	6.2	-	-	487	5.658	2.609	2.553	70.7	35.2	31.9	2.22
Sanno	Kanoko B.	'79 ~ '80	3.9	-	-	-	5.928	4.065	3.568	67.8	45.0	40.8	1.66

頻度で続く対数正規分布に近い形となっている。この NO_3^- と Cl^- の流出負荷量の頻度分布の相異は、それぞれの流出形態と負荷発生源の違いと考えられ、対数正規分布となる流量の頻度分布との対応から、増水時の NO_3^- の高負荷量、したがって、 NO_3^- 流出の降雨流出時のウェイトの大きさが示唆される。

4. 降雨流出と NO_3^- 流出負荷量

毎週1回程度の定期負荷量調査では、4日に1回程度の頻度で生じかつ短期間でその影響が消え易い降雨の影響を十分反映しているとは言い難い。定期調査の大半は晴天時流出で占められていると考えられ、点源負荷を主体とする人為排出の影響が面源負荷による基底流出（地下水流出）に加わって流出現象を支配している場合が多い。しかし、 NO_3^- は後述するように、 Cl^- のような溶存物質とは違って、降雨流出の影響が比較的長期間残存する特徴があるため、定期負荷量調査結果による降雨流出の影響を考察することができる。

Table 1中に各河川についての NO_3^- -Nと Cl^- の濃度の算術平均値と流量荷重平均値を示してある。 NO_3^- -N濃度においては、13の観測地点の17の年間観測のうち10個について流量荷重平均値が算術平均値を上回っている。算術平均値の方が大きい7個については、工場・事業所の排水を受ける河川と自己流量の数倍の灌漑用水を受ける河川で人為排出の影響のある流域である。 Cl^- 濃度では全て算術平均値が流量荷重平均値より大きい。これを（流量荷重平均／算術平均値）の比の形でまとめたものがTable 2である。また、観測年による相違は年間降水量の違いが比流量の違いとして影響を及ぼしている。Table 2には52個の観測値から求めた流量（Q）と流出負荷量（L）の間の経験式（指数関数式）も加えてある。これらから、 NO_3^- -Nの増水時の高濃度かつ高流出負荷量の関係が明らかとなった。溶存態成分を測定した7河川では、D T Nが4河川で、D-C O Dが2河川でそれぞれの濃度の流量荷重平均値が算術平均値を上回り、D T Pでは全て算術平均値が流量荷重平均値より大きかった。 Cl^- 濃度の算術平均値は荷重平均値に近いものも多いが、それより常に大きく、従来からの増水時の低濃度の説が裏打ちされた。ただ、 $L = a \cdot Q^n$ の指数関係式については相関係数の小さな場合もあるため、推論には限度があるが、 NO_3^- -Nと Cl^- 流出負荷の流量に対する挙動の相違は、指数nの違いから明らかである。

このほかに降雨や流量と NO_3^- -Nの濃度・流出負荷量の季節変化や月別変化から、その対応関係を見ることができる。2年間の定期観測値のある恋瀬川・園部川・山王川については、降水量と NO_3^- -Nの流出負荷量を季節変化として示したのがFig. 3である。 NO_3^- -N流出負荷量の夏季の低さと秋季～春季の高さが恋瀬川と園部川では目立った特徴であるが、市街地河川の山王川では季節変化が明瞭に現われない。ほぼ14カ月の定期観測値のある田園地河川の桜川と恋瀬川でも NO_3^- -N流出負荷量は、夏季に低くて秋季に高く、市街

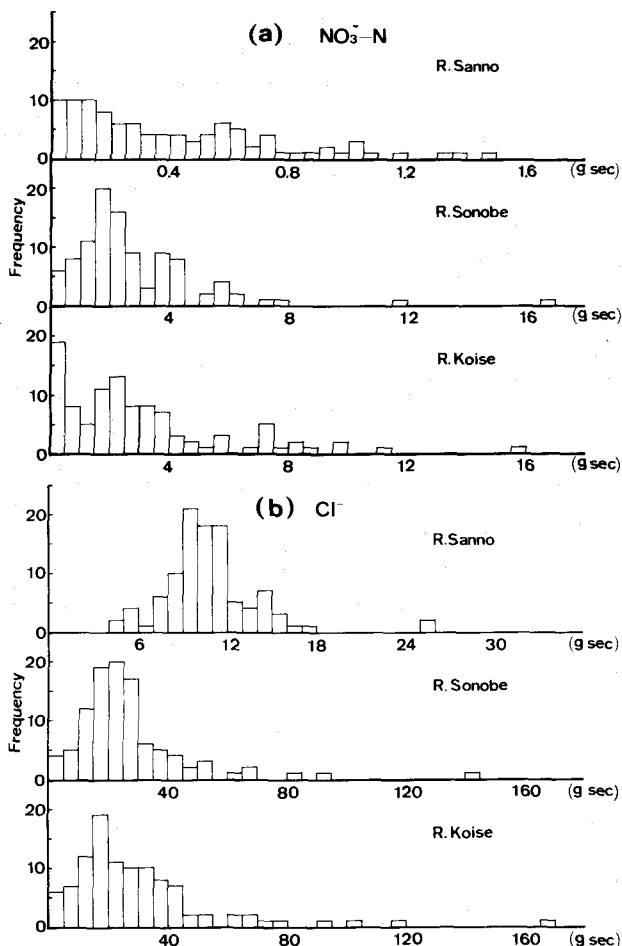


Fig. 2 Frequency distribution of NO_3^- -N and Cl^- loading.

Table 2 Relationships between loadings of $\text{NO}_3\text{-N}$ and Cl^- and discharge.

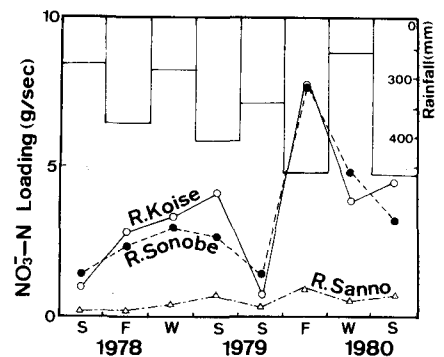
River	Observation Point	Observation Period	$(\Sigma L / \Sigma Q) / \bar{C}$		$L = a \cdot Q^n$ (Correlation Coefficient)	
			$\text{NO}_3\text{-N}$	Cl^-	$\text{NO}_3\text{-N}$	Cl^-
Sakura	Eiri B.	'81~'82	1.054	0.929	$1.010 \cdot Q^{1.249}$ (0.845)	$24.81 \cdot Q^{0.845}$ (0.979)
Sakai	Sakai B.	'81~'82	0.978	0.988	$1.112 \cdot Q^{1.058}$ (0.774)	$26.46 \cdot Q^{0.953}$ (0.891)
Bizen	Komatsu B.	'81~'82	1.020	0.977	$2.798 \cdot Q^{1.4709}$ (0.395)	$28.12 \cdot Q^{0.826}$ (0.826)
Hanamuro	Amisakai B.	'81~'82	0.921	0.980	$0.450 \cdot Q^{2.129}$ (0.576)	$30.36 \cdot Q^{0.845}$ (0.907)
Seimei	Seimei B.	'81~'82	1.114	0.971	$1.347 \cdot Q^{1.629}$ (0.919)	$26.09 \cdot Q^{0.870}$ (0.962)
Ono	Henda B.	'81~'82	1.141	0.981	$1.371 \cdot Q^{1.747}$ (0.792)	$27.79 \cdot Q^{0.912}$ (0.863)
Shintone	Kitakawara B.	'81~'82	0.857	0.577	$0.839 \cdot Q^{0.523}$ (0.862)	$49.67 \cdot Q^{0.680}$ (0.945)
Koise	Koise B.	'78~'79	1.227	0.943	$0.833 \cdot Q^{1.557}$ (0.944)	$15.60 \cdot Q^{0.855}$ (0.964)
Koise	Koise B.	'79~'80	1.159	0.901	$0.846 \cdot Q^{1.591}$ (0.902)	$15.33 \cdot Q^{0.761}$ (0.795)
Sonobe	Sonobe-shin B.	'78~'79	0.967	0.948	$2.044 \cdot Q^{0.955}$ (0.887)	$20.48 \cdot Q^{0.866}$ (0.841)
Sonobe	Sonobe-shin B.	'79~'80	1.099	0.934	$1.938 \cdot Q^{1.362}$ (0.789)	$22.81 \cdot Q^{0.865}$ (0.931)
Sanno	Hinode B.	'78~'79	1.134	0.944	$1.538 \cdot Q^{2.416}$ (0.391)	$24.51 \cdot Q^{0.912}$ (0.844)
Sanno	Kanoko B.	'78~'79	0.935	0.871	$1.785 \cdot Q^{0.916}$ (0.646)	$36.78 \cdot Q^{0.811}$ (0.754)
Sanno	Hinode B.	'79~'80	1.082	0.981	$1.514 \cdot Q^{1.637}$ (0.544)	$19.54 \cdot Q^{0.676}$ (0.815)
Sanno	Baraki-dai	'79~'80	1.044	0.971	$2.012 \cdot Q^{1.600}$ (0.650)	$21.47 \cdot Q^{0.688}$ (0.763)
Sanno	Suginoi B.	'79~'80	0.981	0.907	$2.417 \cdot Q^{0.983}$ (0.816)	$16.88 \cdot Q^{0.643}$ (0.815)
Sanno	Kanoko B.	'79~'80	0.878	0.906	$1.956 \cdot Q^{0.829}$ (0.618)	$28.04 \cdot Q^{0.866}$ (0.735)

[L : (g/sec), Q : (m³/sec)]

地河川では明瞭な季節変化は認められないという同様の傾向が見られた。これをさらに詳しく検討するために、月別の降水量や流量と $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度や流出負荷量の変化の対応を示したのがFig. 4 (a), (b)である。田園地河川の桜川と小野川について、全般に増水時の高濃度かつ高流出負荷量の傾向が認められる。とくに、秋季の11月に $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度はピークとなり、基底流出成分が支配的な場合、夏季8月の最低濃度の3倍以上にもなる。これは村岡・岩田¹³⁾による霞ヶ浦沿岸地下水の秋の終りの $\text{NO}_3\text{-N}$ の高濃度現象と一致する。一般に9~10月かなりの降雨があり、11月には降雨量が少ないのが通常である。夏季の地温の高い時期には、硝化菌の活性も高く、土壌層中での硝酸化作用も活発に行われる。9~10月の多量の降雨によって一部は中間流出成分となって降雨流出時に排出されるが、残りは土壌層下部へと浸透し、11月の乾燥した時期に高濃度の地下水流出成分となって排出され、河川の基底流出の $\text{NO}_3\text{-N}$ の高濃度現象になると考えられる。ちなみに、10~11月は土壌層の地下水タンクが空に近い状態となり、水文学的には水文年度の切り替わる時期に相当している。

5. 流出成分と流出負荷量

河川の流出負荷量(L)と流量(Q)の間の経験式(指数関数式)は、

Fig. 3 Seasonal changes of $\text{NO}_3\text{-N}$ loading and rainfall.

$$L = a \cdot Q^n = a \cdot Q^{n-1} \cdot Q \quad (1)$$

したがって、 $C = a \cdot Q^{n-1}$ となる。この経験式は、元来、濃度 (C) は流量のみによる変化として捉えようとした式である。また、流出負荷量を表面流出成分による部分を L_S 、中間流出成分による部分を L_I 、地下水流出 (基底流出) 成分による部分を L_B とすると、

$$L = L_S + L_I + L_B \quad (2)$$

さらに、流量も同様に表面流出成分を Q_S 、中間流出成分を Q_I 、地下水流出 (基底流出) 成分を Q_B とすると、

$$Q = Q_S + Q_I + Q_B \quad (3)$$

である。濃度についても表面流出成分、中間流出成分、地下水流出 (基底流出) 成分の濃度をそれぞれ C_S, C_I, C_B とすると、

$$L = C \cdot Q = C_S \cdot Q_S + C_I \cdot Q_I + C_B \cdot Q_B \quad (4)$$

ではあるが、 $C \neq C_S + C_I + C_B$ であり、

$$C = L/Q = (L_S + L_I + L_B)/Q \\ = (Q_S/Q) \cdot C_S + (Q_I/Q) \cdot C_I + (Q_B/Q) \cdot C_B \quad (5)$$

したがって、人為排出の影響が無視でき、面源負荷からの自然排出を対象とする場合、ほぼ単一の土地利用形態と見なせる流域に対して上述の (5) 式によって各流出成分の構成内容を検討できる。

一般に、表面流出成分となる雨水は、河川に流出するまでに地表上に存在したものを洗い出すため、表面流出成分濃度 C_S は雨水濃度かあるいはそれを若干上回る程度になると考えられる。霞ヶ浦流域での雨水の $\text{NO}_3^- \text{N}$ 濃度は、降雨時流出観測と同時に測定した結果では $0.05 \sim 0.31 \text{ mg/l}$ と、河川上流部の溪流河川での値よりもかなり低い。ちなみに、 $\text{NH}_4^+ \text{N}$ の $0.05 \sim 0.55 \text{ mg/l}$ 、 $\text{NO}_2^- \text{N}$ は $0.002 \sim$

0.026 mg/l 、 Cl^- は $0.2 \sim 2.6 \text{ mg/l}$ であった。このように表面流出成分は流出初期の段階での一時的な高濃度を除くと、他の流出成分濃度と比べて低いため、豪雨流出時のように表面流出成分 Q_S が卓越した流量急上昇時には河川水濃度 C は希釈されて急減する。もっとも、中間流出成分 C_I や地下水流出成分 C_B も常に一定濃度を維持しているわけではなく、後の Fig. 5, 6 で示すようにゆるやかな経時変化をしている。したがって、降雨流出時の表面流出成分や中間流出成分が存在する場合、1 つの流出成分が卓越していない限りは (1) 式のような単純な形で正確に表現することは困難である。

各流出成分の流量は、著者ら²⁾ のように多段のタンクからの流出量で対応させたタンクモデルのシミュレーションで推定することは可能である。しかし、河川流域内の植生や透水性などの地表面の特性や土地利用形態の複雑な分布を考慮すると、流量の面からの流出成分分離のアプローチだけでなく、水質の面からの流出成分分離のアプローチも必要である。河川流出負荷量の解析は流量と水質の両面を同時に考慮するため負荷発生源と流出径路を関連させて、流出成分の水質構成内容の検討をも可能にさせるものである。

6. 降雨に伴う NO_3^- の流出特性

大きな支流のない小河川流域では、流域内の降雨分布の一樣さを保持でき、単一の土地利用形態の流域と

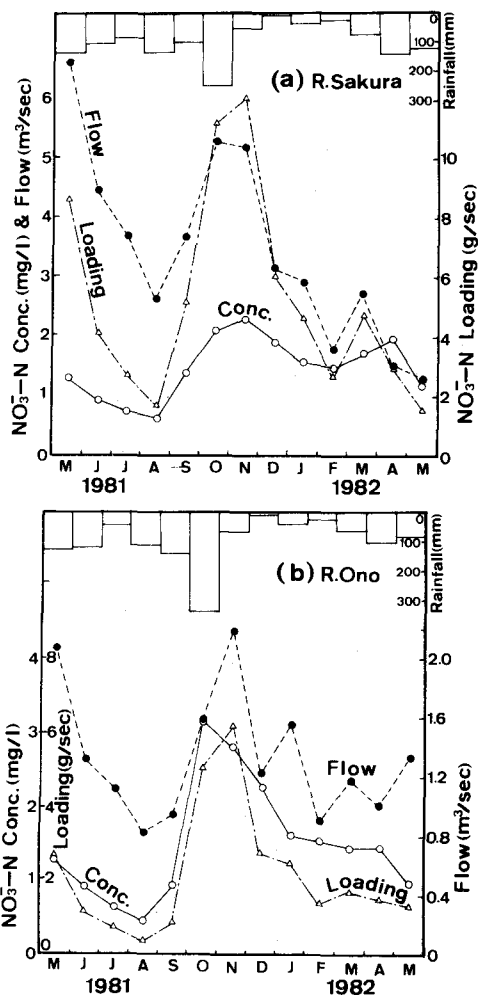


Fig. 4 Monthly changes of $\text{NO}_3^- \text{N}$ and flow in R. Sakura, and R. Ono.

して選び易く、流域内各地点からの流達時間の差違が小さい。これに対して、大河川流域では、広い流域内の降雨分布の一樣さが保持され難く、単一に近い土地利用形態であっても、多くの支流からの流達の時間遅れも重なって、流出変化の現象が平滑化され易い。ここでは、およそ2～150 km²の流域を対象とした降雨時流出負荷量調査によるNO₃⁻-Nの経時変化を追跡する。

Fig. 5は、1984年4月19～20日の23mmの降雨による恋瀬川（流域面積151 km²）、山王川（同124 km²）、恋瀬川支流天の川（同54.4 km²）の三河川同時の降雨時流出負荷量観測結果を流量とNO₃⁻-N濃度の変化について示したものである。市街地小河川の山王川での早い流量ピークの出現と、かなり遅れてNO₃⁻-N濃度の最大ピークの出現が見られる。田園地河川である恋瀬川では流量ピーク後かなり遅れてNO₃⁻-N濃度のピークが出現する。これに対して天の川では、流量の増加とともにNO₃⁻-Nの減少が見られ、降雨流出末期には降雨流出前の濃度レベルに回復しつつある。恋瀬川と山王川では、降雨流出末期にはNO₃⁻-Nは高濃度から徐々に減少しながらも降雨流出前より高いレベルで推移している。これらいずれの河川とも流量増加とともに流出負荷量は増加している。

この23mmの降雨は市街地部を除けば表面流出を生成するような降雨パターンでなかったため、恋瀬川・天の川での流量の増加のほとんどは中間流出成分によると考えられる。また、市街地河川の山王川では、市街地部の表面流出成分による流量上昇時にNO₃⁻-N濃度の低下が見られる。天の川では、山地・農地面積比率が高いけれども畜産排水を受けるなど人為排出の影響でT-N、NH₄⁺-N、NO₃⁻-Nが常に高濃度である。したがって、降雨に伴う中間流出成分によって、NO₃⁻-Nの土壌層からの排出が始まり、流出負荷量としては流量の増加とともに上昇し、濃度としては流量の減少とともに増加する形となることがわかる。ただ、降雨流出前のNO₃⁻-N濃度レベルが土壌層から排出されるそれよりも高い場合は、逆に河川水としては希釈されて天の川のように低濃度となるが、流出負荷量としては流量増加とともに上昇している。

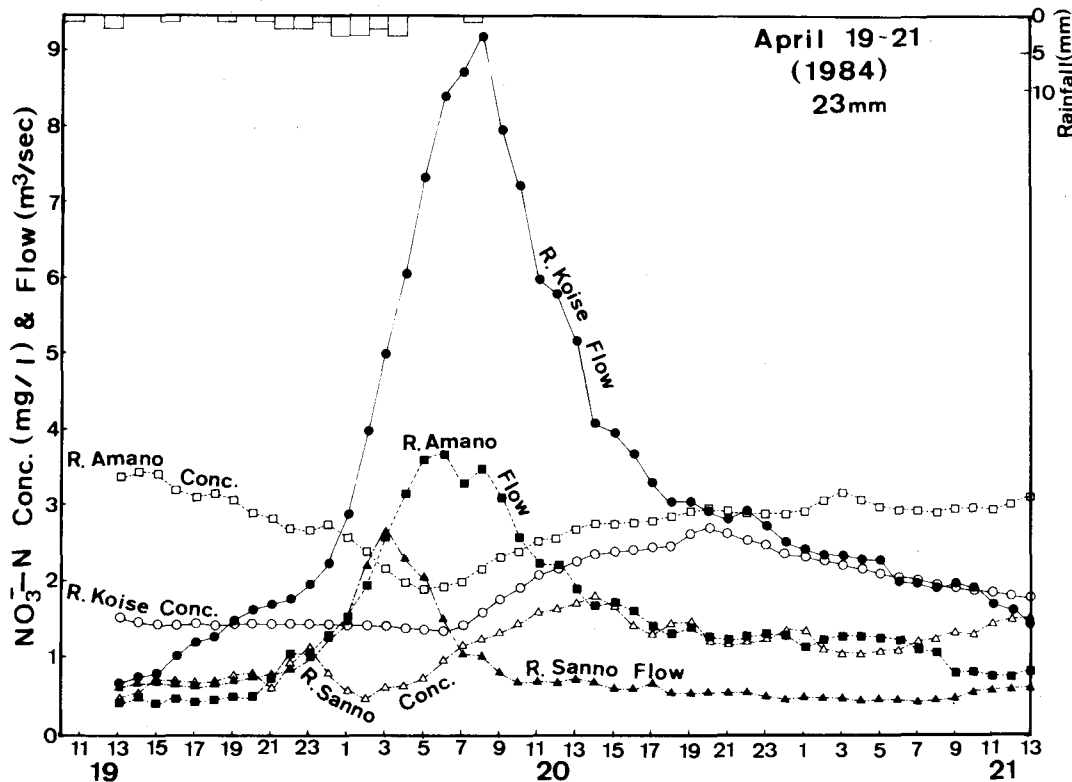


Fig. 5 Changes of NO₃⁻-N concentration in R. Koise, R. Amano and R. Sanno at storm runoff.

Fig. 6は、恋瀬川の一支流で筑波山系を流域とする小河川で、上流部が山地、中流部が山地と水田、下流部が水田となる流域での上中下流3地点での表面流出成分も生ずる1980年7月30～31日の73mmの小桜川での降雨時流出負荷量観測結果を示したものである。上流部で山地から里への流出端の中山、中流部で山地と水田の土地利用形態の朝日橋、下流部で水田が主となる小桜橋の3地点の流量と NO_3^- -N濃度の経時変化は、両者とも上流側から順にピークが出現しており、いずれの地点とも濃度ピークが流量ピークより遅れて現われている。最下流の小桜橋では、 NO_3^- -N濃度がピークの後若干低下するが流量通減期も降雨流出前のおよそ2倍の高濃度を維持

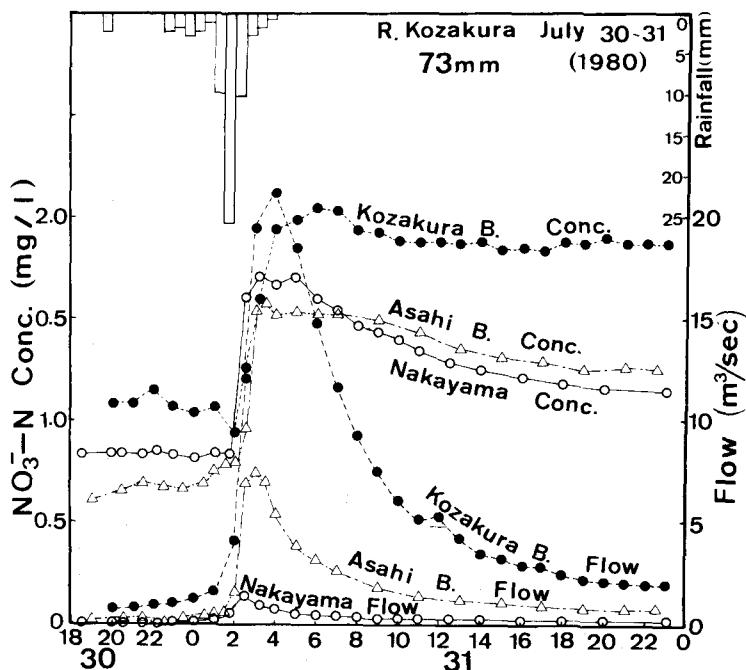


Fig. 6 Changes of NO_3^- -N concentration in three points of R. Kozakura at storm runoff.

し続ける。これに対して山地流出端の中山地点では、3地点の中で最も NO_3^- -N濃度の低下が大きい、流量通減期にはやはり高濃度を保持している。また、最下流の小桜橋では流量急上昇時に増加した表面流出成分の希釈による NO_3^- -N濃度の一時的な急低下が見られた^{4), 5)}この降雨に伴う NO_3^- -N濃度の流量ピーク後の増加とその流量通減期での高レベル保持は、著者ら³⁾の琵琶湖流入河川での同一降雨の3河川同時観測でも同様の現象を認めている。ここでは、流量と NO_3^- -N濃度の関係を図示したが、流量と NO_3^- -N流出負荷量の関係では、 NO_3^- -N流出負荷量は流量ピークに遅れて出現する濃度の高いピークの影響を受けて、やはり流量ピークより時間遅れのピークとなり、流量通減期には濃度の高レベル維持によって流出負荷量は漸減を続ける^{3), 4), 5)}

降雨量の小さな降雨の場合に多く生ずる流量増加に伴う NO_3^- -N濃度の減少に対しても、 NO_3^- -N流出負荷量ピークは、Fig. 5の天の川の場合のように、流量ピークより遅れて出現し、 NO_3^- -N流出負荷量は降雨流出前よりかなり大きな状態が続く。この NO_3^- -N流出負荷量の流量ピークより時間遅れのピーク出現と、流量増加に伴う高負荷現象は、 NO_3^- -N濃度が流量増加時に増加する場合でも減少する場合でも同様に認められる。これは、Fig. 5の場合を例として、流量と NO_3^- -N流出負荷量の経時変化を両対数紙上にプロットすれば、Fig. 7のように、 NO_3^- -N濃度の減少が見られた天の川を含めて3河川の場合とも反時計回りのループを描くことより明らかとなる。市街地河川の山王川では、中流部に市街地が存在し、上・下流部に農地が存在するため表面流出成分と中間流出成分が存在し、人為排出の影響も加わって NO_3^- -Nの濃度と流出負荷量とも変化が複雑であるが、Fig. 7で見られるように全体としては反時計回りの経時変化となっている。この NO_3^- -Nの変化に対して、 Cl^- は流量増加に対して濃度低下を示し、流量増加に伴い流出負荷量としては増加を示すものの NO_3^- -Nほど増加はしないため、流量と Cl^- 流出負荷量の両対数紙上の経時変化は他の多くの水質項目と同様に時計回りのループを描き、 NO_3^- とはその流出挙動を異にする。

この降雨流出過程における流量ピークより時間遅れの流出負荷量ピーク、流量通減期の高濃度と高流出負荷量維持、表面流出成分による流量急上昇時の一時的な濃度低下などの NO_3^- の流出挙動の特性は、農耕地と山地、さ

らに市街地も含めて面源からの自然排出として捉えと、 Cl^- や他の水質項目の挙動と比較して、主に土壌層からの降雨に伴う中間流出による排出現象として特徴づけられる。すなわち、降雨に伴う土壌層からの NO_3^- の排出は、降雨条件と土壌層の環境状態に支配されていることがわかる。新しく地表面から土壌層に浸透した雨水は、土壌層中を降下浸透あるいは側方浸透して土壌水を追い出し、土粒子に吸着した物質を洗い出し、一部は降雨以前からの土壌水と置換し、一部は降雨以前の土壌水とともに中間流出成分として流出し、残りは土壌水として保持されるとともに地下水流出成分にもなる。この比率は土壌層の環境状態と降雨条件に支配され、河川への自然排出を規定することになる。

山地・農地が流域内の主たる土地利用形態の 2 km^2 強の小河川流域から 151 km^2 の大きな河川流域まで、一部に市街地河川の2小河川を含めて、霞ヶ浦流入河川だけで $7\sim 195\text{ mm}$ の降雨量範囲の降雨についての34回の降雨時流出負荷量調査を実施し、上記の NO_3^- の降雨流出特性が明らかとなった。 151 km^2 と最も大きな流域面積の恋瀬川では、表面流出成分も生じた 50 mm の強雨の場合についても山本ら¹⁴⁾の流出負荷量観測結果より、小河川で見られるのと同様の NO_3^- の流出特性を確認している。山地・農地が主たる土地利用形態の場合、小規模な河川から中規模の流域河川まで、降雨に伴う NO_3^- の土壌層からの排出の特徴ある挙動特性を明らかにできた。

7. 一降雨による NO_3^- 流出負荷量の定量化

降雨に伴う NO_3^- の土壌層からの排出は明らかとなったが、弱雨から豪雨までの種々の降雨について、一連続降雨に対する直接流出期間の NO_3^- -N総流出負荷量の算定を試みる。 NO_3^- は流量速減期でも高濃度を維持し、降雨量が大きいほど漸減しながらもより長期間高濃度レベルを維持する。1年間あるいは2年間毎週1回の定期負荷量観測でも、 80 mm を超えるような降雨になると $7\sim 10$ 日間も NO_3^- 濃度にその影響が残る。これは遅い中間流出成分による影響が持続するためと考えられる。

したがって、ここでは NO_3^- 以外の水質項目との比較対照を考慮して、表面流出成分と早い中間流出成分による直接流出期間について解析を進めることにする。

山王川と備前川の市街地小河川の5地点での観測を含めて、恋瀬川本流（流域面積 151 km^2 ）、その支流の天の川（同 54.4 km^2 ）、小桜川の小桜橋（同 17.6 km^2 ）、朝日橋（同 8.0 km^2 ）、中山（同 2.4 km^2 ）、大

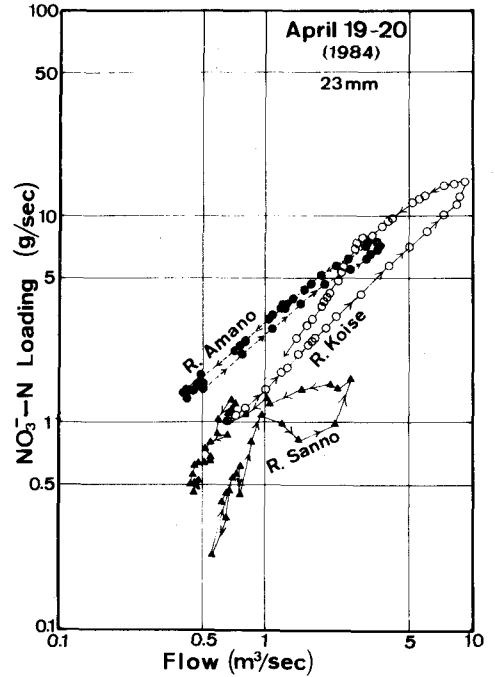


Fig. 7 Changes of relationship between NO_3^- -N runoff loading and discharge.

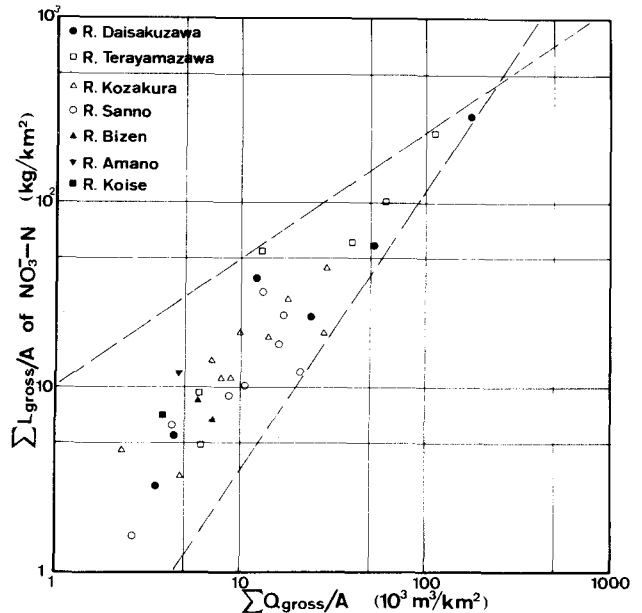


Fig. 8 Relationship between $\Sigma Q_{\text{gross}}/A$ and $\Sigma L_{\text{gross}}/A$ of NO_3^- -N.

作沢 (同 3.1 km²)、寺山沢 (同 6.3 km²) の 1979～1984 年の 12 観測地点での 7～195 mm の降雨範囲に入る 34 個の降雨時流出負荷量観測結果について、著者の提案した降雨時流出負荷量算定のための回帰モデル (第 1～第 4 モデル)¹⁵⁾ を NO₃⁻-N についても適用を試みた。一連続降雨の直接流出期間における流域面積当りの総流出流量に対する流域面積 (A) 当りの総流出負荷量の関係は、Fig. 8 に示されるように両対数紙上のかなり限られた範囲に分布する形となる。これを回帰関係として示すと、第 1 モデル、すなわち

$$\Sigma L_{\text{gross}}/A = a \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/A)^n \quad (6) \text{として}$$

$$(1) \text{ 全河川 (34 観測例, 相関係数 } r = 0.928) : \Sigma L_{\text{gross}}/A = 0.000687 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/A)^{1.078} \quad (7)$$

$$(2) \text{ 山地河川 (13 観測例, } r = 0.956) : \Sigma L_{\text{gross}}/A = 0.000793 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/A)^{1.055} \quad (8)$$

$$(3) \text{ 田園地河川 (11 観測例, } r = 0.943) : \Sigma L_{\text{gross}}/A = 0.001449 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/A)^{1.028} \quad (9)$$

$$(4) \text{ 市街地河川 (10 観測例, } r = 0.860) : \Sigma L_{\text{gross}}/A = 0.000510 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/A)^{1.111} \quad (10)$$

また、降雨によって直接流出期間がかなり異なるため、直接流出期間の時間 (T_{dir}) 当り、流域面積当りの総流出流量と総流出負荷量の関係を同様に両対数紙上にプロットしたのが Fig. 9 である。この関係もある限られた範囲に入るため、第 5 モデルとして、その回帰式を求めることができる。すなわち、

$$\Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}) = a \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}))^n \quad (11)$$

として、

$$(1) \text{ 全河川 (34 観測例, } r = 0.837) : \Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}) = 0.0034 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}))^{0.885} \quad (12)$$

$$(2) \text{ 山地河川 (13 観測例, } r = 0.929) : \Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}) = 0.00187 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}))^{0.980} \quad (13)$$

$$(3) \text{ 田園地河川 (11 観測例, } r = 0.875) : \Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}) = 0.00475 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}))^{0.866} \quad (14)$$

$$(4) \text{ 市街地河川 (10 観測例, } r = 0.525) : \Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}) = 0.01040 \cdot (\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}}))^{0.652} \quad (15)$$

ここで、単位は L (kg), Q (m³), A (km²), T_{dir} (hr) である。第 2～第 4 モデルについては、NO₃⁻ の基底流出 (地下水流出) の流出負荷量が季節によってかなり異なるため、回帰式を求めなかった。

ここでは、土壌層からの NO₃⁻ の降雨による排出が種々の降雨条件、土壌層の環境状態によって少しずつ異なるため、全ての観測値を統計モデルとしての回帰式で、一降雨の直接流出期間の総流出流量に対する総流出負荷量の形として求めた。市街地の例は比較のために求めたが、予想通り相関係数が低かった。この指数関数形の回帰式の係数 a と指数 n から河川の類別パターンの比較をすると、田園地の方が山地より多量の NO₃⁻ を排出する。また、大きな流量 (したがって降雨量) になると山地の方が急激な流出負荷量の増加をもたらすと考えられる。これは、(5) 式で示した降雨の流出成分の構成に関係し、中間流出成分の全流量に対する比率、すなわち、土壌層の厚さや NO₃⁻ の存在量に加えて中間流出成分の流出し易さに現象が支配されていると考えられる。

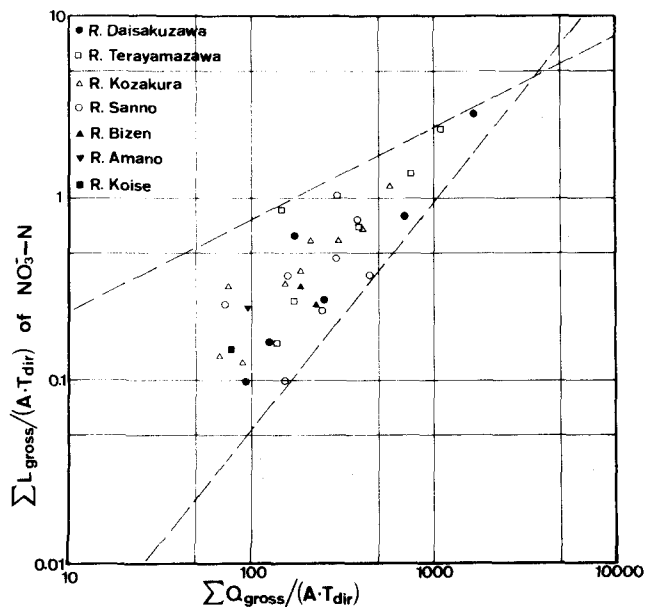


Fig. 9 Relationship between $\Sigma Q_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}})$ and $\Sigma L_{\text{gross}}/(A \cdot T_{\text{dir}})$ of NO₃⁻-N.

8. 結 論

降雨流出過程において、懸濁物質や懸濁態成分はむろんのこと、他の溶存物質や溶存態成分とも流出挙動の異なる NO_3^- に注目して、その挙動特性を明らかにし、土壤層からの排出と関連づけて考察した。 NO_3^- 濃度は降雨流出の後半に上昇することが多く、 NO_3^- 負荷量としては、流量ピークより遅れてピークが出現して流量逓減期間も漸減するものの、流出前よりも高いレベルを維持する。これは、水文学的な見方をすれば、中間流出と地下水流出によって土壤層から排出される現象と考えられる。この NO_3^- の土壤層からの排出は、降雨条件や土壤層の環境状態によって支配されと考えられるが、流域の土地利用形態をはじめとする流域特性や流域の負荷特性が複雑であるため、大きく山地や田園地のように流域を大別した形で定性的な比較検討を行った。

定量的には、種々の降雨条件や土壤層の環境状態を考慮して統計解析により回帰モデルを求めた。 NO_3^- -Nとして、一降雨による直接流出期間における総流出負荷量と総流出流量の関係として回帰式で表現できることを示し、山地と田園地の流域での回帰式の相違について考察した。各流域の流域特性と中間流出成分の流出のし易さ、負荷の存在量が NO_3^- の土壤層からの排出を支配する重要な因子であると考えられる。

この NO_3^- の降雨に伴う流出挙動の他の水質項目のそれとの相違を利用して、水文学における降雨流出成分の分離に降雨一流量の関係からのアプローチだけでなく、水質面からのアプローチを試みることができる。また、降雨流出成分の正確な分離が可能になれば、面源負荷の流出起源を明らかにでき、各々の降雨流出成分による流出負荷量が求まることになる。このほか、 NO_3^- の比流出負荷量や流出挙動を明らかにすることは、近年急増した浄化槽や土壤浸透処理などの窒素の安定は最終生成物としての NO_3^- の動向を知る手がかりともなる。終りに臨み、河川の流出負荷量調査に御協力を頂いた国立公害研究所水質環境計画研究室の皆様に感謝の意を表します。

引 用 文 献

- (1) 小倉紀雄・宇田川隆男(1978):青柳段丘の浅層地下水——とくに硝酸塩について——,水道協会雑誌,第529号, pp.32-41.
- (2) 海老瀬潜一・宗宮功・平野良雄(1979):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,21, pp.1422-1432.
- (3) 海老瀬潜一・村岡浩爾・大坪國順(1982):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, pp.279-284.
- (4) 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, pp.547-552.
- (5) 竹内邦良,坂本康,本郷善彦(1983): NO_3^- をトレーサーに用いた流出成分分離の可能性について,第27回水理講演会論文集, pp.405-413.
- (6) 日本土壤肥科学会編(1981):土壤の吸着現象——基礎と応用——,博友社, p.160.
- (7) 佐久間敏男・老松博行・飯塚文男・岡島秀夫(1979):粗大粒団を含むカラムの NO_3^- の流出,日本土壤肥科学雑誌, 50, pp.17-24.
- (8) 小川吉雄(1980):畑地からの窒素の流出に関する水文学的考察,土壤の物理性, 41, pp.68-79.
- (9) 水戸地方気象台(1978~1984):茨城県気象月報.
- (10) 地域開発コンサルタンツ(茨城県委託)(1982):汚濁負荷削減計画策定調査報告書, p.136.
- (11) 海老瀬潜一(1984):霞ヶ浦総流入負荷量の評価,国立公害研究所研究報告,第50号, pp.41-58.
- (12) 海老瀬潜一(1981):霞ヶ浦流入河川の流出負荷変化とその評価,国立公害研究所研究報告,第21号, p.130.
- (13) 村岡浩爾・岩田敏(1984):霞ヶ浦沿岸地下の水質特性,国立公害研究所研究報告,第50号, pp.21-39.
- (14) 茨城県公害技術センター(1984):霞ヶ浦流入汚濁負荷実態調査報告書(第2集).
- (15) 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, 20, pp.27-38.