

(12) 琵琶湖集水域への大気降下物負荷量の季節変動

中澤 暦¹・永淵 修^{2*}・國松孝男²

¹ 滋賀県立大学大学院環境科学研究科 (〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町2500)

² 滋賀県立大学環境科学部 (〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町2500)

* E-mail: nagafuti@ses.usp.ac.jp

琵琶湖集水域内での Cl^- , $\text{NO}_3\text{-N}$, SO_4^{2-} , nss-SO_4^{2-} の大気降下物負荷量を評価するために, 4地点 (朽木, 彦根, 草津, 油日) で長期モニタリングを実施した. 調査地点の最北の朽木と最南の油日の Cl^- , $\text{NO}_3\text{-N}$, SO_4^{2-} , および nss-SO_4^{2-} の日負荷量の平均値は, それぞれ18.8と1.2, 1.34と0.37, 13.3と2.30, 9.73と2.10 $\text{g m}^{-2}\text{d}^{-1}$ であった. Cl^- , $\text{NO}_3\text{-N}$, SO_4^{2-} , および nss-SO_4^{2-} は調査地点が南下するに従い減少する傾向が冬に顕著に見られた. 夏では SO_4^{2-} 負荷量が市街地域の彦根, 草津で大きくなった. 琵琶湖の南北などの地域・調査地 (都市・森林), および季節によって大きく変動することが明らかとなった.

Key Words : atmospheric deposition, nitrate-nitrogen, sulfate and non-sea-salt sulfate ion, chloride ion, loads

1. はじめに

琵琶湖など閉鎖性水域の水質保全には, 非特定汚染源からの栄養塩負荷量の評価が重要である. 琵琶湖へ流入する全窒素 (T-N) 負荷量のうち, 湖面に降り注ぐ, 直接降下量は28 % を占めると報告されて¹⁾おり, 閉鎖性水域への大気降下物負荷量は無視できない. さらに, T-N大気降下物負荷量のうち, 硝酸態窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) は約30 % を占める²⁾と報告されている. $\text{NO}_3\text{-N}$ は大気汚染物質の NO_x とも関係が深く, 大気汚染物質の NO_x や SO_x は呼吸器系疾患などの人体影響のほか, 植物の枯死にも関係している言われている.

琵琶湖集水域は南北約70 km に伸びており, 大気降下物の負荷量やその特徴が異なっていると考えられる. しかし, このような比較的大規模な集水域で大気降下物負荷量を正確に評価した例は少ない.

そこで本研究では, 琵琶湖集水域へ降下する大気降下物中の $\text{NO}_3\text{-N}$ と SO_4^{2-} , Cl^- を長期にわたり測定し, その変動と特徴を解析したので報告する.

2. 方 法

(1) 調査地

調査地を図-1 に示す. 琵琶湖集水域に4地点を設定した.

湖西の森林地域の調査地点の, 滋賀県高島市麻生地先, 「朽木の森」地点 (標高200m, 以下, 朽木と略する) では, 1990~2008年の間調査した. 調査地周囲は森林地帯で北西からの季節風の影響を受け, 多雪地帯であり, 人為的汚染源はない.

湖東の市街地域の調査地点は, 琵琶湖岸に近い滋賀県彦根市犬上川河口地先である. 旧滋賀県立短期大学内4階建て校舎の屋上で1990~1994年にかけて, 2000~2008年は, 滋賀県立大学内園場で実施した (以下, 彦根と略する). 彦根市は人口約11万人 (2006年) であり, 調査地域の近隣には湖岸道路と彦根市ごみ焼却場があり, 人為的汚染源が存在する. なお, 1995~1999年は欠測である.

湖南の森林地帯の調査地は, 滋賀県甲賀市地先, 油日 (標高280m, 以下, 油日と略する) で, 調査は1990~2008年に実施した. 周囲には東西に名阪国道と南北に国道1号線がある. また, 調査地から北東に約10kmの地点には茶栽培地域 (土山) が存在する.

湖南の市街地域の調査地点は, 滋賀県草津市の滋賀県立草津東高等学校校舎の屋上 (以下, 草津と略する) である.

調査期間は、1990～2008 年までである。草津市の人口は約 12 万人 (2006 年) で、調査地周辺は、住宅地域である。

日本海から各地点までの距離は、朽木:25 km, 彦根:51 km, 草津:61 km, 油日:91 km である。

(2) 実験方法

大気降水物の採取 前報²⁾と同様に、20 L 容の灰色タンクに直径が 20 cm のポリエチレン (PE) 製のロータを取り付けた大気降水物採取装置を 1 基設置した。原則として月 1 回、メスシリンダーを用いて貯水量を全量測定したのち、回収した。貯水量は降水量の算出に用いた。朽木では 12～2 月にかけて積雪があるが、融雪用のヒーターの取り付けは行わなかった。

降水量 雨雪量計を用いた。

水質分析 JIS法および上水試験法に準拠して、前報²⁾と同様の方法で分析した。すなわち、硝酸イオン (NO_3^-)、塩素イオン (Cl^-)、ナトリウムイオン (Na^+)、硫酸イオン (SO_4^{2-}) はイオンクロマトグラフ (SHIMADZU CTO-10A) で分析した。なお、 NO_3^- については水域における窒素負荷量等窒素ベースで議論することが多いので硝酸態窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) として表している。

非海塩由来成分 SO_4^{2-} の人為的起源による沈着量の把握のために、非海塩由来成分 (non sea salt ; nss-) を求めた³⁾。降水中に含まれている SO_4^{2-} の海塩に由来する成分割合を Na^+ を基準として海水中の Na^+ に対する比率から算出した。

$$\text{nss-}[\text{SO}_4^{2-}] = \text{降水中}[\text{SO}_4^{2-}] - 0.251 \times \text{降水中}[\text{Na}^+] \quad (1)$$

ここで、0.251 は海水中 $\text{SO}_4^{2-}/\text{Na}^+$ の重量比を示す。

大気降水物負荷量 前述したように、大気降水物採取装置による大気降水物負荷量は原則として月ごとに回収して分析したが、日数が一定ではなかったため、月平均の

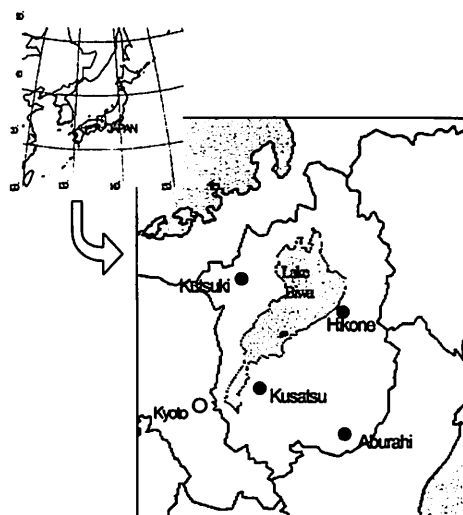


図-1 調査地点

日平均大気降水物負荷量 (以下、日負荷量) $L_d (\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1})$ を次式で求めた。

$$L_d = (\text{ClV}/s)/d \quad (2)$$

ここで、 $\text{Cl} (\text{mg l}^{-1})$, $\text{V} (\text{ml})$, d はそれぞれ採取月の濃度、貯水容量、日数で、 $s (\text{cm}^2)$ はロータの受水面積である。

3. 結果と考察

(1) 長期変動

4 地点の日降水量および年降水量, Cl^- , SO_4^{2-} , nss-

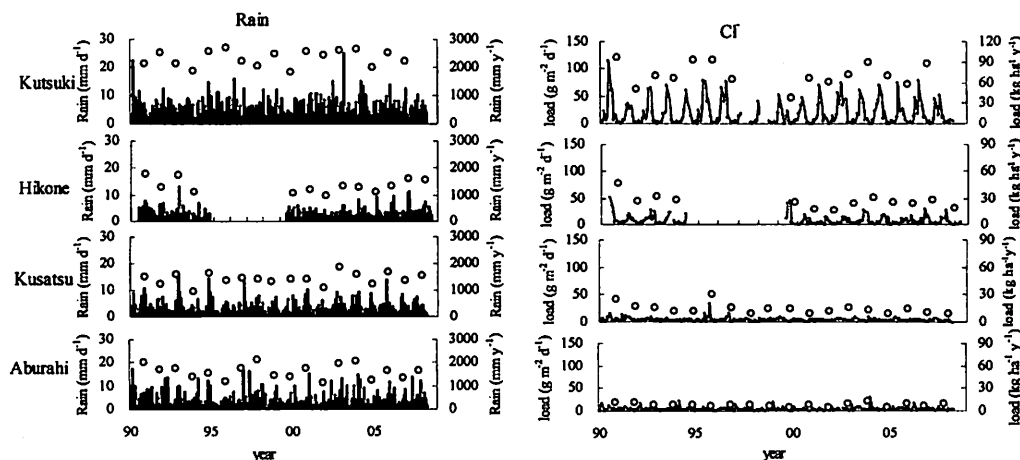


図-2 4 地点の年降水量、日降水量と、 Cl^- の年負荷量、日負荷量の長期変動

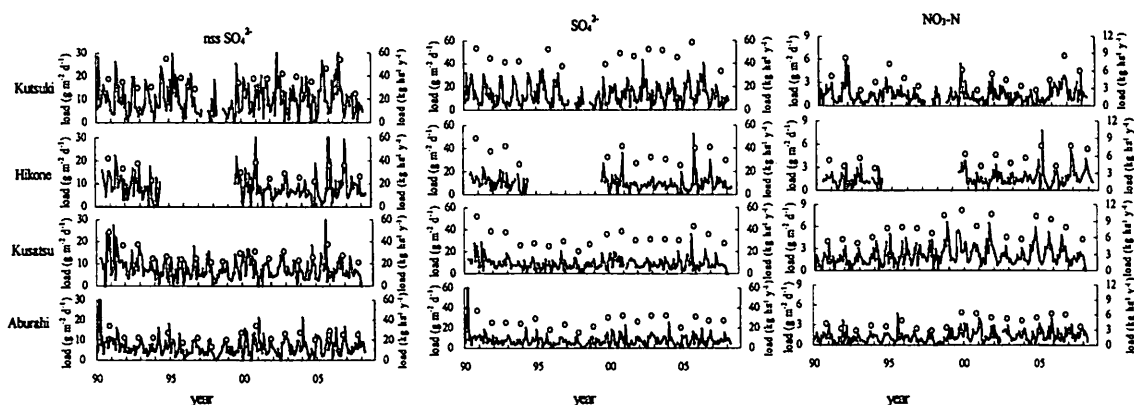


図-3 4地点の SO_4^{2-} , nss-SO_4^{2-} , $\text{NO}_3\text{-N}$ の年負荷量と日負荷量の長期変動

SO_4^{2-} , $\text{NO}_3\text{-N}$ の日負荷量, 年負荷量をそれぞれ図-2と図-3に示した。調査期間中の年降水量の平均値は朽木, 彦根, 草津, 油日でそれぞれ2350, 1350, 1440, 1530 mm y^{-1} であった。朽木の年降水量は2000~3000 mm y^{-1} で変動し, 4地点の中で最も多かった。他の3地点では1300~1500 mm y^{-1} で変動した。各地点とも年毎の変動がみられたが, 一定の傾向は示さなかった。

季節変動を明らかにするために, 12ヶ月を4季節にわけ, それぞれ, 冬: 12~2月, 春: 3~5月, 夏: 6~8月, 秋: 9~11月とした。

CI年負荷量は, 調査地点が南下するに従い減少し, 朽木では40~100 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲, 油日では93~18.7 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲で変動した。CI日負荷量を見ると, 朽木では冬に60~80 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ まで上昇し, 夏に小さくなる明確な季節変動を示した。降水中のCIは一般に海塩粒子由来であり, 朽木は冬に日本海側からの季節風の影響を強く受けていると考えられた。

SO_4^{2-} 年負荷量は, 朽木で37.4~58.2, 油日で14.9~37.2 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲で, 調査地点が南下するに従い年負荷量が小さくなり, CIと同様の傾向を示した。 SO_4^{2-} 日負荷量は, 朽木で冬に高く, 夏に低下する傾向が見られ, CIの特徴と一致し, SO_4^{2-} も朽木では冬に日本海からの季節風の影響を受けていることが示唆された。

nss-SO_4^{2-} 年負荷量の平均値は, 朽木で48.6, 彦根, 草津, 油日では34.9, 30.9, 24.0 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ で朽木で負荷量が大きく, SO_4^{2-} と同様の傾向を示した。しかし nss-SO_4^{2-} 日負荷量は, 朽木で冬に高く夏に低い明確な季節変動はみられなかった。

$\text{NO}_3\text{-N}$ 年負荷量の平均値は朽木, 彦根, 草津, 油日でそれぞれ, 4.83, 5.53, 7.34, 4.50 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ であった。年負荷量は草津で最も大きく, 次いで彦根であった。両調査地

は市街地であり, 都市活動の影響がその要因の一つと考えられた。年負荷量の変動は, 油日では2000年までは2.86~4.89 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲で変動したが, 2000年以降増加し3.70~6.37 $\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$ の範囲で推移した。2000年までとそれ以降の年負荷量平均値と標準偏差は 3.51 ± 0.67 , 5.49 ± 0.87 であった。同様に, 草津と彦根では, それぞれ 6.63 ± 1.68 , 8.14 ± 2.03 と 4.72 ± 0.85 , 5.90 ± 1.39 であった。草津と彦根では年負荷量に変動があるものの2000年以降年負荷量が増加する傾向が見られた。前述したように, 油日, 彦根, 草津の降水量は $\text{NO}_3\text{-N}$ の年変動で見られたような増加傾向は見られず $\text{NO}_3\text{-N}$ 年負荷量の上昇と降水量には関連がないと考えられた。したがって, 2000年以降, 大気汚染物質の濃度が上昇し, 負荷量が増大したと考えられた。長期変動から彦根と草津の都市活動の影響および, 朽木と彦根の冬における類似性が認められた。

(2) 月別大気降下物負荷量の年平均偏差

長期変動では, 大気降下物負荷量の月別の変動がわかりにくい。そこで, 各地点の月別大気降下物負荷量の変動を明らかにするために年平均偏差を求めた。すなわち各月の日負荷量を次式によって標準化した。それらを年は考慮せずに月毎に平均と標準偏差を求めた。

$$(x-\mu)/\delta \quad (3)$$

ここで, x =日負荷量, μ =各年の日負荷量平均値, δ =各年の日負荷量から求めた標準偏差を示す。

その結果を図-4に示した。

冬の降水量は朽木と彦根以南の3地点でそれぞれ, -1~0, 0~1の範囲で, 朽木で冬に降水量が多くなったが,

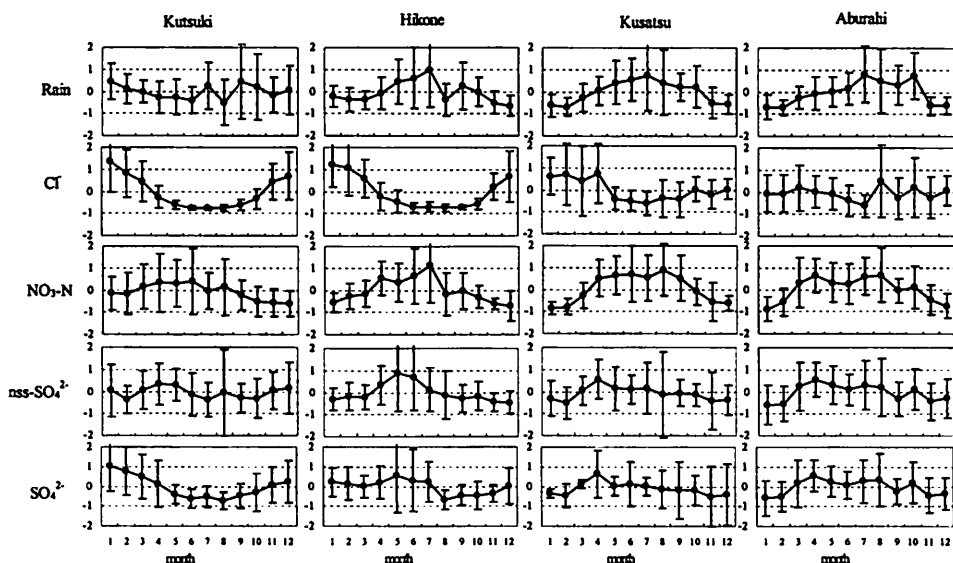


図4 地点別大気降下物負荷量の季節変動
エラーバーは標準偏差を示す。

これは、朽木が豪雪地帯のためである。また、7、9月も降水量が増加する傾向が見られた。彦根と草津では、5月から降水量が増加し始め、彦根の8月を除いて、10月まで降水量が多くなった。油日では7～10月に降水量が多く、彦根や草津とは異なった傾向を示した。

Clの負荷量が、朽木と彦根で、-1.0～0.5の間で変動し、冬に大きく夏に小さくなった。草津では、変動幅が-0.6～0.8で朽木と彦根に比べて小さく、冬に大きく夏に小さくなる傾向は明確でなかった。油日ではその傾向も見られなかった。(1) 長期変動の項と同様に、調査地点が南下するに従ってCl年負荷量が減衰し、冬には、朽木と彦根で日本海側からの季節風の影響を受け、草津と油日ではその影響は小さいことが明らかになった。

朽木の SO_4^{2-} の大気降下物負荷量は、冬に高く夏に低くなるCl負荷量と同様の変動を示した。しかし、彦根

以南の3地点ではその傾向は見られなかった。 nss-SO_4^{2-} と SO_4^{2-} 大気降下物負荷量を比較すると、朽木で春と冬に小さな増加が見られ SO_4^{2-} 負荷量の変動と異なった。彦根以南の3地点では、それぞれの地点で SO_4^{2-} と nss-SO_4^{2-} の変動が一致し、海塩粒子の影響が小さいと考えられた。

$\text{NO}_3\text{-N}$ の月別大気降下物負荷量は、彦根、草津、油日で、春～夏にかけて高くなる一山の変動を示した。彦根では4～7月、草津では4～9月に0～1の範囲で変動した。前述したように草津と彦根は年負荷量が大きく、両調査地は市街地にあるため、およそ2地点の変動パターンは類似した。一方、草津から33 kmと比較的距離が近い、油日の月別降下量と比較すると、油日では3～8月に0～1の範囲で変動した。調査地周辺はそれぞれ市街地、森林地域で条件が異なるが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量の変動が類似したことから、油日は都市域の影響を受けている可能性が示

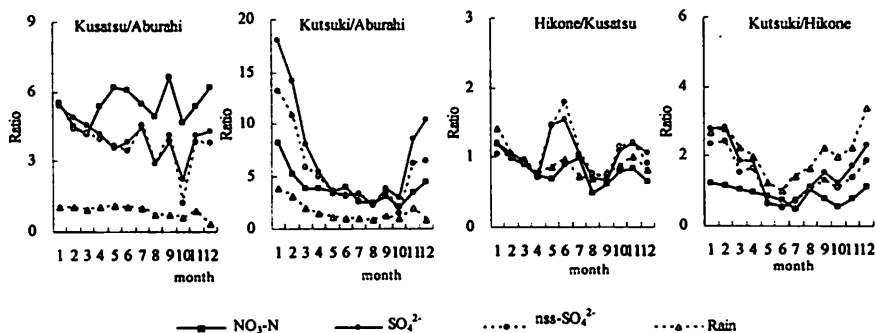


図5 4地点間の日負荷量の比率

唆された。

(3) 地点間の比較

(1) 長期変動と(2) 月別大気降下物負荷量の年平均偏差の結果から、朽木と彦根の大気降下物負荷量は、冬に似た変動パターンを示した。また、彦根と草津では朽木、油日に比べて $\text{NO}_3\text{-N}$ の大気降下物負荷量が高くなった。さらに、森林域の油日では都市域の影響を受けていることが示唆された。そこで、地域、調査地（都市・森林）別に大気降下物負荷量の特徴を明らかにするために地点間の比を求めた。すなわち、琵琶湖南部の草津/油日、森林域の朽木/油日、市街地域の彦根/草津、琵琶湖北部の朽木/彦根の4条件について比率を求めた。比率の算出には4地点の日降水量および日負荷量を、年を考慮せず月ごとに平均したものを用いた。結果を図-5に示した。

琵琶湖南部の草津/油日の $\text{NO}_3\text{-N}$ 比は4.2～6.6の範囲で変動した。 nss-SO_4^{2-} とともに市街地域の草津で負荷量が大きくなる傾向が見られた。

森林域の朽木/油日の $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 SO_4^{2-} 、 nss-SO_4^{2-} 比は、10～2月に大きい、5～10月では小さく、3.0～3.5の範囲で変動幅は小さかった。琵琶湖集水域では冬に日本海からの季節風の影響を強く受けるが、夏には、森林域の変動は類似することが示唆された。

市街地域の彦根/草津の比は、降水量と $\text{NO}_3\text{-N}$ でほぼ同様の変動を示した。各項目の比は0.7～1.5の範囲で変動し、彦根と草津では変動が類似した。 nss-SO_4^{2-} は5～6月を除いて降水量の変動と一致した。市街地域での負荷量は年間を通して大きな変動がないことが明らかになった。

琵琶湖北部の朽木/彦根の比は $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 nss-SO_4^{2-} ともに冬に大きく5～8月に小さくなり、朽木の負荷量が冬に大きくなった。森林域の朽木/油日の比に比べ、琵琶湖北部の朽木/彦根の比が小さくなったことから、森林域と都市域という調査地の条件より、琵琶湖北部では気象要因による影響を強く受けていると考えられた。

(4) 日本海側からの距離別の変動

4地点の日降水量および日負荷量を、年を考慮せず季節ごとに平均し、日本海からの距離順に並べてプロットした。結果を図-6に示した。

朽木の降水量は全季節で、他の3地点より多くなり、6～8 mm d^{-1} の範囲で推移した。彦根と草津の降水量は、冬でそれぞれ、2.4、2.5 mm d^{-1} で同程度だった。春、夏の彦根と草津の降水量は、それぞれ3.5と4.4、4.1と5.7 mm d^{-1} で、彦根に比べ草津で降水量が高い傾向がみられ、秋を除き、降水量が類似した。油日では冬は8 mm d^{-1} となったが、春～秋では他の3地点に比べ降水量が少ない傾向が見られた。

Cl^- 負荷量は全地点で冬と春に高く、朽木の43.7 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ を最高に、日本海からの距離順に負荷量が低下した。また、地点毎の平均値の差の検討（検定）を行うと、有意であった（ $p<0.01$ ）。

SO_4^{2-} 負荷量も冬に、南下するに従い顕著に減少する傾向が見られた。 nss-SO_4^{2-} 負荷量も同様に減少傾向を示したが、統計的に有意な差は見られなかった。この傾向は春にも継続して見られた。夏の nss-SO_4^{2-} 負荷量は市街地域の彦根と草津で大きく、それぞれ10.2と8.5 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であった。 SO_4^{2-} でも同様の傾向を示した。夏の彦根と草津の nss-SO_4^{2-} の上昇は集水域全体に共通する要因ではなく、都市活動の影響も一つの要因として考えられた。

冬の $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量も、南下するに従い減少する傾向が見られ、朽木の冬の負荷量は1.2 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であった。春と夏には市街地の草津と彦根で $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量が多くなり、草津で2.20と2.82、彦根で1.84と2.45 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ で、都市活動の影響が示唆された。一方、朽木と油日の森林域ではその負荷量が小さく春と夏でそれぞれ、1.7、0.46と1.5、0.94 $\text{g m}^{-2} \text{d}^{-1}$ であった。油日では周辺に交通量の多い国道および窒素肥料を大量に使用する茶畑があるが、その影響は小さかった。

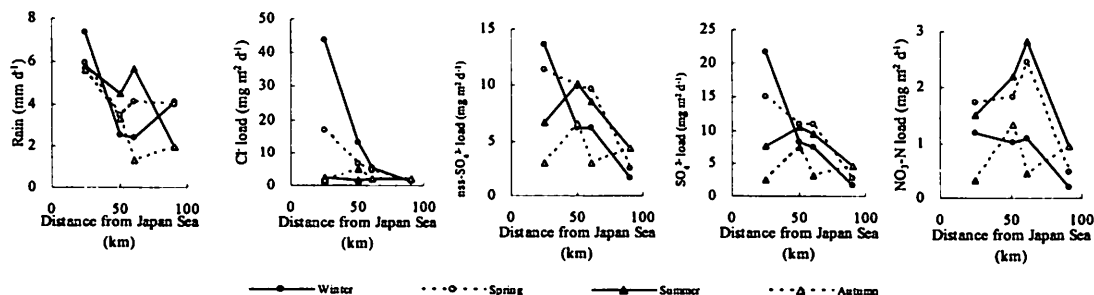


図-6 日本海からの距離別・季節別雨量および負荷量の変動

4. まとめ

本研究では、大気降下物を1ヶ月ごとに回収し、琵琶湖集水域での大気降下物負荷量の評価を行った。降水量は、朽木で冬に増加する日本海気候の特徴を示し、彦根・草津では6～7月に増加した。油日では7、10月に増加した。Cl⁻、SO₄²⁻、nss-SO₄²⁻、NO₃-Nは冬に日本海からの距離が離れるに従って負荷量が減少する傾向がみられた。地点間で比較すると、市街地域の彦根と草津では、夏にNO₃-N、nss-SO₄²⁻負荷量が大きくなった。

琵琶湖集水域での大気降下物負荷量は地域、調査地の土地利用によって大きく異なることが分かった。したがって、琵琶湖集水域への負荷量の見積もりは、地域と調査項目別に評価する必要性が示唆された。

参考文献

- 1) 國松孝男：琵琶湖の物質収支-琵琶湖から流出する物質量を測定する-、滋賀県琵琶湖研究所所報, Vol.12 pp.68-73, 1995.
- 2) T. Kunimatsu and M. Sudo : long-term fluctuation and regional variation of nutrient loads from the atmosphere to lakes, *Water Science and Technol.*, Vol. 53 No.2 pp.53-61, 2006.
- 3) 酸性雨調査法研究会編：酸性雨調査法, pp. 267, ぎょうせい, 1993.

(2009. 5. 22 受付)

The Seasonal Fluctuation of Atmospheric Deposition onto the Lake Biwa basin

Koyomi NAKAZAWA¹, Osamu NAGAFUCHI²
and
Takao KUNIMATSU²

¹ Environmental Science Graduate School, Graduate School of the University of Shiga Prefecture

² Department of Ecosystem Studies, School of Environmental Science, the University of Shiga Prefecture

The long-term monitoring was conducted in order to characterize the seasonal and geographical change of Cl⁻, NO₃-N, SO₄²⁻ and nss-SO₄²⁻ loads in the Lake Biwa basin. The four experimental sites were set and experiments were conducted more than ten years. The high Cl⁻, NO₃-N, SO₄²⁻ and nss-SO₄²⁻ loads were found in the winter season in Kutsuki. In addition, the loads become decreased with the distance from the northeast site. The loads of those materials at Kutsuki and Aburahi, the farthest north and south of our experimental site, were 18.8 and 1.20, 1.34 and 0.37, 13.3 and 2.30, 9.73 and 2.10 g m⁻²d⁻¹, respectively. In Summer, the loads of nss-SO₄²⁻ was higher in urban area of Kusatsu and Hikone than forested area of Kutsuki and Aburahi.