

(65) 琵琶湖集水域における大気降下物負荷量の 時間的空間的な差異の評価

橋本 尚己¹・永淵 修^{2*}・中澤 暦³・國松 孝男⁴

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)

³大阪大学大学院工学研究科環境・エネルギー工学専攻環境マネジメント学領域 (〒565-0871大阪府吹田市
山田丘2-1)

⁴滋賀県立大学環境科学部名誉教授 (〒522-8533滋賀県彦根市八坂町2500)

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

琵琶湖へ直接降下する汚染物質負荷量の評価法を検討するために琵琶湖集水域の5地点で調査を行った。Na⁺、Cl⁻といった海塩由来の物質負荷量は日本海に近い湖西・湖北の朽木や摺墨と、滋賀県の南端に位置する油日では、年間約6倍の差が生じた。TN、NO₃-Nは市街地である草津や高速道路が近郊を通過する摺墨で最大の負荷量を示した。TPやNH₄-Nは調査地周辺にゴルフ場のある油日で最大の負荷量を示した。SO₄²⁻とnssSO₄²⁻の負荷量は冬季に大陸の影響を受けやすい朽木と摺墨で最大値を示した。大気降下物負荷量は琵琶湖の南北など空間的・時間的に大きく変動するため、複数地点のデータを用いた琵琶湖における大気降下物負荷量評価法の確立が重要になる。

Key Words : Atmospheric deposition, anion, cation, ionic 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 (TN) 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²⁾。また、近年琵琶湖水中においてTN (Total Nitrogen) 濃度が増加傾向にあり、北湖、南湖でのTN、南湖でのTP (Total Phosphorus) 濃度は未だ環境基準を達成していない状況である³⁾。

中澤²⁾は琵琶湖集水域へ降下する大気降下物中のNO₃-NとSO₄²⁻、Cl⁻の長期変動と特徴について解析を行い、琵琶湖集水域での大気降下物負荷量は地域、調査地周辺の土地利用によって大きく異なることを示した。しかし、この報告の中では琵琶湖の水質に影響を及ぼすと考えられる窒素やリン、その他主要カチオンについては解析がなされていなかった。

本研究では従来の研究から得られた結果を踏まえ、琵琶湖湖面へ直接降下する大気降下物中のTN、TP、及び

主要イオンの琵琶湖への直接降下量の評価方法を検討する。

2. 方法

(1) 調査地点

調査地点は朽木、摺墨、彦根、草津、油日の5地点とした(図-1)。以下に各調査地点の特徴を示す。

朽木は琵琶湖湖西地域、滋賀県高島市麻生地先の「朽木の森」地点(標高200m)に設置した。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、人為的汚染源はほとんどない。人口密度は15人/km²、山林面積割合は38%(2004:朽木町)である。

摺墨は琵琶湖湖北地域、滋賀県長浜市(旧余呉町)の山間部にあり、採取地点は摺墨地先の滋賀県立大学集水域実験施設内に設置した。調査地周辺は森林地帯で北西からの季節風の影響を受ける豪雪地帯である。西約1.5km付近に北陸自動車道と国道365号線が走っており、

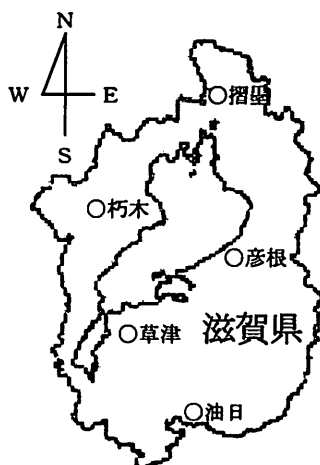


図-1 調査地点。外枠は滋賀県の行政区域である。

自動車排ガスの影響を受ける可能性がある。人口密度は 23 人/km²、山林面積割合は 35 % (2007 : 余呉町) である。

彦根は琵琶湖湖東地域、琵琶湖岸に近い滋賀県彦根市犬上川河口地先、滋賀県立大学内園場内設置した。彦根市は人口約 11.1 万人 (2007 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。人口密度は 1130 人/km²、山林面積割合 19 % (2007 : 彦根市) である。

草津は琵琶湖湖南地域、滋賀県草津市の滋賀県立草津東高等学校校舎の屋上に設置した。草津市の人口は約 12.3 万人 (2007 年) で、調査地周辺は都市部住宅地域である。人口密度は 2555 人/km²、山林面積割合は 4 % (2007 : 草津市) である。

油日は滋賀県南東部に位置し、滋賀県甲賀市地先油日岳に設置した。周囲には東西に名阪国道と南北に国道 1 号線がある。調査地から北東に約 10 km の地点には茶栽培地域 (土山) が、また、500 m 圏内にゴルフ場が多数存在し、これらの影響を受ける可能性がある。人口密度は 195 人/km²、山林面積割合は 23 % (2007 : 甲賀市) である^{4,9)}。

日本海から各地点までの距離は、朽木 : 25 km、摺屋 : 18 km、彦根 : 51 km、草津 : 61 km、油日 : 91 km である。

調査は 2000～2008 年に行った。ただし、調査地点によっては欠測期間もある。

(2) 試料の採取・分析

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下物採取装置 (バルクデポジションサンプラー) を 2 台並べて設置した。1

台には毎回、濃硫酸を 3 ml 添加し、TN、NH₄-N、TP 測定用とした。そしてもう 1 台は主要イオン (SO₄²⁻、Cl⁻、NO₃⁻-N、Na⁺) 測定用とした。採水は原則として月に 1 度行った。ただし、調査不能の月があったため 2 ヶ月に亘ったときもあった。欠測回数は 9 年間で朽木 3 回、摺屋 3 回、彦根 4 回、油日 4 回、草津 1 回であった。摺屋の 2002 年は欠測である。2 ヶ月に亘った月は平均値を各月に振り割った。貯水量はメスシリンダーを用いて全量測定した。降水量の計算式を以下に示す。

$$\text{降水量 (mm)} = (\text{貯水量 (ml)} / \text{ロータ面積 (cm}^2\text{)}) \times 10 \quad (1)$$

また、朽木、摺屋は例年 1 m 以上の積雪があるので、芝地上約 1.5 m に設置した φ 20 cm の温式雨雪量計からの排水を、21 L 容のポリエチレン (PE) 製タンクに貯水した。溶存成分は口径 1 μm のガラス繊維ろ紙でろ過した。

降水の分析は JISK0102 及び上水試験法に準拠して行った。すなわち、pH、EC はガラス電極法、TN は紫外線吸収法、NH₄-N はインドフェノール法、TP はモリブデン青・アスコルビン酸還元法、主要イオンはイオンクロマトグラフ (SHIMADZU CTO-10A、Metrohm 761 Compact IC 型) を用いて測定した。

なお、NO₃⁻、NH₄⁺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 NO₃-N、NH₄-N として表している。

(3) 非海塩性硫酸イオン

SO₄²⁻ 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。降水中に含まれている SO₄²⁻ 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⁹⁾。

$$\text{nssSO}_4^{2-} (\text{mg/l}) = \text{降水中}[\text{SO}_4^{2-}] - 0.251 \times \text{降水中}[\text{Na}^+] \quad (2)$$

[SO₄²⁻] は SO₄²⁻ の濃度を、[Na⁺] は Na⁺ の濃度である。0.251 は海水中 SO₄²⁻/Na⁺ の重量比を示す。

(4) 大気降下物負荷量

前述したように大気降下物の採水は月に 1 度行ったので、大気降下物負荷量は月負荷量として求めた。また、年負荷量はその年の月負荷量を合計して算出した。

月負荷量の求め方は次式で示した。

$$\begin{aligned} \text{降水量 (mm/month)} \times \text{濃度 (mg/L)} \\ = \text{負荷量 (kg/km}^2\text{/month)} \quad (3) \end{aligned}$$

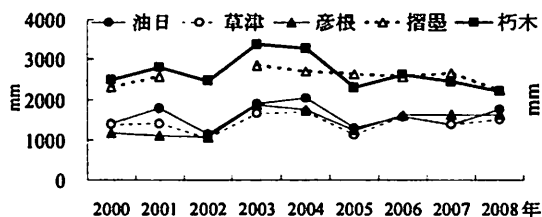


図-2 2000～2008 年における年間降水量

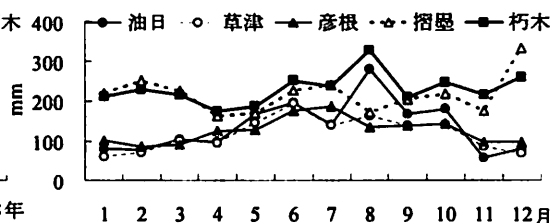


図-3 2000～2008 年における月間平均降水量

3. 結果と考察

(1) 降水量

降水量の経年変化と経月変化を図-2, 3に示した。降水量は朽木と摺墨では、年間 2,300～3,300 mm の間を推移し、彦根、草津、油日では 1,100～2,000 mm の間を推移した。

各地点の 2000～2008 年の年間平均降水量(平均値±標準偏差)は摺墨 2,600±150 mm, 朽木 2,760±370 mm,

彦根 1,500±290 mm, 草津 1,400±210 mm, 油日 1,600±280 mm であった。摺墨、朽木といった湖北・湖西地域の年間降水量は、その他 3 地点に比べて約 1,000 mm 程度多かった。各地点の 9 年間の月間平均降水量を見ると、彦根、草津、油日では夏季に降水量は多く、冬季に少ない季節変動を示した。一方、摺墨と朽木は冬季の多雪の影響で、冬季にも夏季同様に 200～300 mm 程度の降水量を示した。

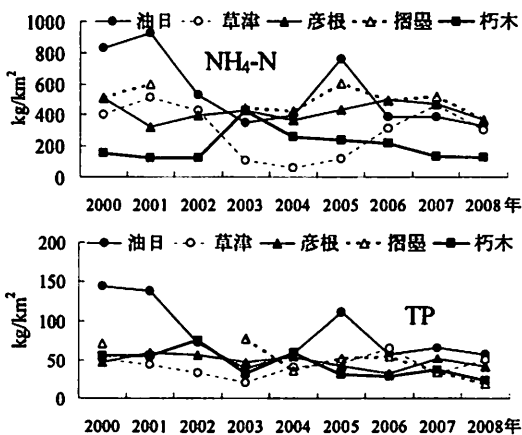
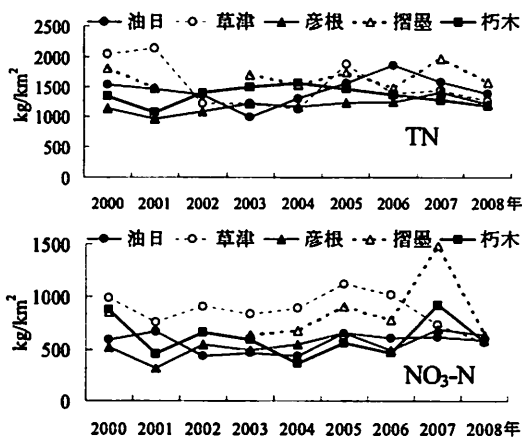


図-4 TN, NO₃-N, NH₄-N, TP, 2000～2008 年における年間負荷量

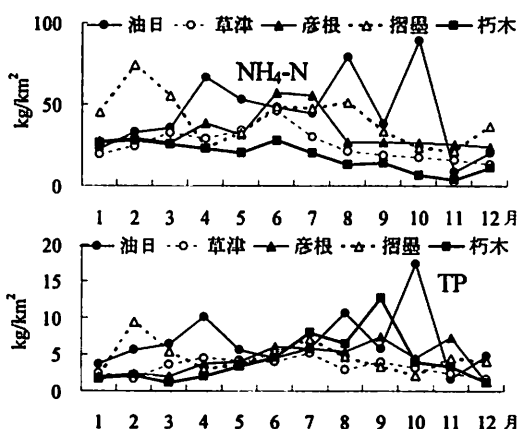
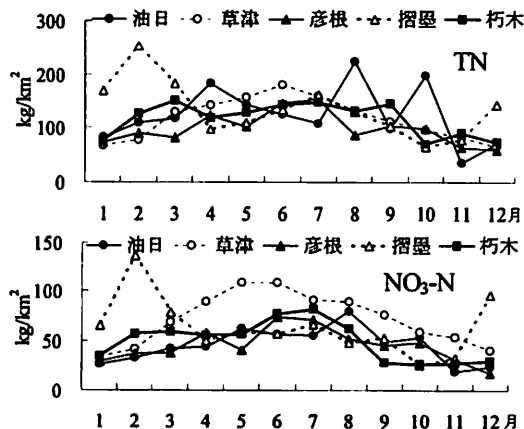


図-5 TN, NO₃-N, NH₄-N, TP, 2000-2008 年における月間平均負荷量

(2) 窒素, リン

TN, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NH}_4\text{-N}$, TPの経年変化と経月変化を図4, 5に示した。TN, $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量は2000年初頭においては草津でもっとも多かった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量は近年、摺墨や朽木で負荷量が大きくなってきている(図4)。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の年間平均負荷量($\text{kg}/\text{km}^2/\text{y}$)は摺墨で $890 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ と最も多く、次いで草津が $870 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ となった。草津と摺墨では降水量に大きな差があるが、負荷量ではほぼ差がみられなかった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の前駆物質である NO_x は、主に自動車排ガス由来であり、都市域の草津では交通量も多いため $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量が増加したと考えられる⁷⁾。摺墨と朽木の採木地はともに森林域だが、摺墨は朽木に比べ年間約1.5倍の負荷量を示した。摺墨の調査地点の西、約1.5km付近には北陸自動車道と国道365号線が走っており、その影響を受けたため $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量が増大したと考えられる。

窒素の溶存態成分である $\text{NH}_4\text{-N}$ の年間平均負荷($\text{kg}/\text{km}^2/\text{y}$)は油日で $540 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ と最も多く、次いで摺墨が $510 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ と多かった。日本における $\text{NH}_4\text{-N}$ の排出源は農業起源が66%, 都市起源が29%, 土壌起源が5%と言われている⁹⁾。また、農業由来の $\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷の場合、暖候期に濃度が高くなることが知られている⁹⁾。ここで、摺墨では夏季にひとつのピークを迎えているが、冬季にも大きな負荷量を示している。これは農業由来以外にも北陸自動車道や国道365号線といった人為汚染源からの寄与も考えられる¹⁰⁾。しかし、それだけでは $\text{NH}_4\text{-N}$ が冬季に負荷量が上昇する原因と断定するには不十分である。摺墨における $\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷量の原因についてはさらなる調査・研究が必要である。

TP負荷量は、系内からの影響を受けやすいことが知られているが¹¹⁾、今回は考慮せずに解析を行った。TP年間負荷量は油日で最も多く、9年間の年間平均負荷量($\text{kg}/\text{km}^2/\text{y} \pm \text{標準偏差}$)は $80 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y} \pm 35 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ であり、その他4地点は $50 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ 程度を推移した。9年間の月間平均負荷量を見ると、油日では10月にピークを迎えているが、周辺ゴルフ場の肥料施肥期間は5~7月で負荷量のピークとは合わず、油日におけるTP負荷量の原因は今後さらなる調査の必要がある。

(3) 主要イオン

主要イオン負荷量の経年変化、経月変化を図-6, 7に示した。 Na^+ , Cl^- 負荷量は毎年朽木または摺墨で最大となった。各調査地点における Na^+ の9年間の年間平均負荷量($\text{kg}/\text{km}^2/\text{y} \pm \text{標準偏差}$)は、摺墨 $5,000 \pm 1,060 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$, 朽木 $4,800 \pm 830 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$, 彦根 $1,500 \pm 370 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$, 草津 $820 \pm 160 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$, 油日 $760 \pm 250 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ であった。負荷量が一番大きかった摺墨では、負荷量が一番少なかった油日に比べ約6倍の

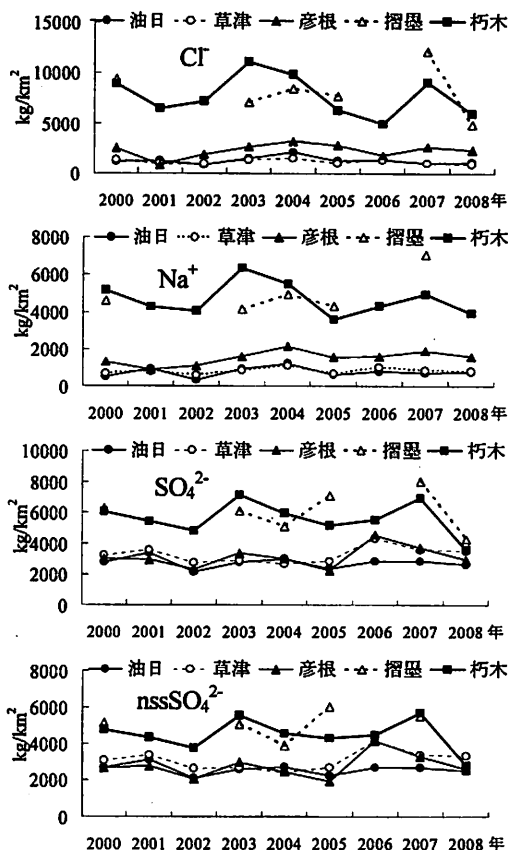


図-6 Na^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , nssSO_4^{2-} , 2000~2008年における年間負荷量

Na^+ が負荷されていた。 Na^+ 負荷量の経月変化を見ると、摺墨、朽木では11~3月に負荷量が大きく増大した。彦根でも僅かだが同様の傾向が見られた。また、図-8に調査地点の日本海との距離と Na^+ , Cl^- の年間負荷量を示した。 Na^+ 年間負荷量は日本海から距離が離れるに従い減衰した。 Cl^- 年間負荷量でも類似した傾向が見られた。これらから、冬季には摺墨、朽木、彦根では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。

nssSO_4^{2-} の年間平均負荷量は摺墨で一番多く、 $5,100 \pm 700 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ 、次いで朽木が $4,700 \pm 600 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ と多かった。彦根、草津、油日は $2,600 \pm 300 \sim 3,100 \pm 600 \text{ kg}/\text{km}^2/\text{y}$ の間であった。一見この関係は降水量に由来していると思われるが、季節変動を見てみると、摺墨、朽木では冬季に負荷量が増大する傾向があり、夏季には降水量ほどの負荷量の増大は見られなかった(図-7)。

ここで、 nssSO_4^{2-} の排出源は火山や石炭・石油などの化石燃料の消費、銅やニッケルなどの硫化金属の精錬など

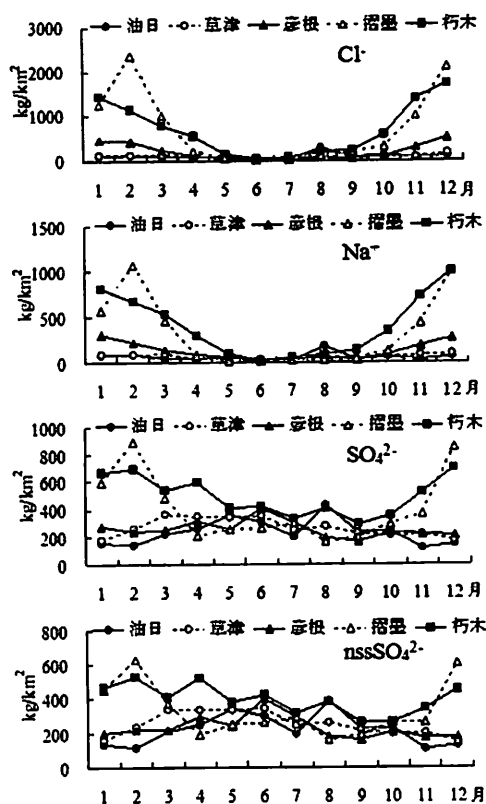


図-7 Na^+ , Cl^- , SO_4^{2-} , nssSO_4^{2-} , 2000~2008 年における月間平均負荷量

が主な排出源とされている¹²⁾。近年、欧米諸国や日本では、脱硫技術の発達やさまざまな行政的規制により硫酸酸化物の排出量は減少している¹³⁾。しかし、東アジアにおける経済活動の活発化に伴い、硫酸酸化物などの排出量が増加しており、越境汚染による大陸からわが国への硫酸化合物の負荷量の増加も懸念されている。さらに、片山¹⁴⁾や池田¹⁵⁾らは日本における硫酸酸化物沈着量の発生源別寄与率を求めている。これらは日本海側の硫酸酸化物沈着量は、7月などの夏季では三宅島など火山起源の沈着物が最も多く、12月などの冬季では大陸起源の沈着物が最も多いと示唆している^{14, 15)}。また、沈着量は日本海側では冬季に最大となり、一方、太平洋側では夏季に最大となる。

摺屋、朽木では冬季に nssSO_4^{2-} 負荷量が増加しており、彦根、草津、油日では冬季よりも春季から夏季にかけて増加していた。摺屋や朽木では、片山¹⁴⁾や池田¹⁵⁾の報告のように、冬季に大陸由来の硫酸酸化物の影響を受け、 nssSO_4^{2-} 負荷量が増加したと考えられる。また、日本国内において滋賀県より北部に nssSO_4^{2-} の前駆物質の重要な排出源がない点を考慮すると、越境輸送の影響を示唆し

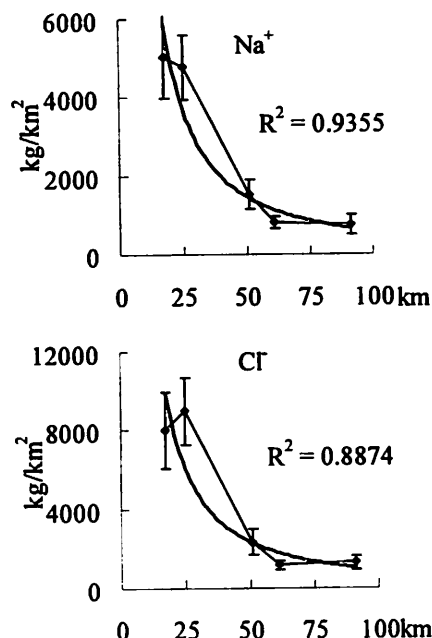


図-8 日本海との距離と Na^+ , Cl^- 年間負荷量

朽木: 25 km, 摺屋: 18 km, 彦根: 51 km, 草津: 61 km, 油日: 91 km

R^2 は相関係数を表す。エラーバーは 9 年間の標準偏差を示す。

ていると言える。ここで、冬季における摺屋での nssSO_4^{2-} 負荷量変動は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 負荷量変動と酷似しており、 $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ の形で存在していると考えられた。また、春季に nssSO_4^{2-} が増大したのは黄砂の影響と考えられ¹⁶⁾、夏季に nssSO_4^{2-} 負荷量が増加したのは桜島や三宅島を中心とした国内火山の影響が考えられる^{14, 15)}。

4. まとめ

本研究では、琵琶湖流域の複数地点で大気降下物を 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、摺屋で冬季に増加する日本海気候の特徴を示し、彦根・草津・油日では夏季に増加した。海塩由来成分である Na^+ , Cl^- の年間負荷量は日本海に近い朽木、摺屋で多い傾向を示した。さらに、これらの負荷量は、朽木や摺屋では 11~3 月といった冬季に最大となることから、日本海からの卓越風の影響を大きく受けることが明らかになった。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 負荷量は摺屋と草津で多くなった。草津では調査地周辺の市街地に

おける車の排ガスの影響から負荷量が増加したと考えられる。摺墨でも同様に調査地周辺をはしる高速道路の影響を受けたと考えられた。またTPやNH₄-Nは周辺地域に畑やゴルフ場などの農業地域がある油日や摺墨で最大となった。SO₄²⁻、nssSO₄²⁻負荷量は朽木と摺墨で多くなった。また朽木と摺墨では冬季にnssSO₄²⁻負荷量が増えたことから、大陸からの影響が示唆された。

中澤の報告²⁾に加え、本研究で新しく解析した物質でも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、大気降下物による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。また琵琶湖に直接降下する大気降下物負荷量は、従来草津に降下する降水のみを用いて算出されてきたが、本研究の結果、一箇所のデータだけでは過大評価や過小評価がされている可能性が示唆された。よって今後は、複数地点のデータを用いた琵琶湖における大気降下物負荷量評価法の確立が重要になる。

謝辞

本研究で用いたデータは、滋賀県立大学環境科学部旧國松研究室によって調査されていたものであり、國松研究室のメンバーに感謝いたします。

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) 中澤啓：琵琶湖集水域への大気降下物負荷量の季節変動、環境工学研究論文集, vol.46, pp. 89-94, 2009

- 3) 滋賀県環境白書平成20年度版
- 4) 滋賀県統計書2007年度版
- 5) 滋賀県統計書2004年度版
- 6) 半谷高久, 小倉紀雄：水質調査法第3版, 丸善, 1995
- 7) 内藤昌治, 上野一恵, 木庭亮一, 福島宏暢, 植木肇：熊本県宇土市における道路沿道の窒素酸化物濃度, 熊本県保険環境科学研究所所報30号, pp. 64-68, 2000
- 8) 神成陽容, 馬場剛, 速水洋：日本におけるアンモニア排出の推計, 大気環境学会誌, vol.36, pp. 29-38, 2001
- 9) 桜井達也, 沼野能弘, 中江茂, 藤田慎一：関東地方におけるアンモニアの動態解析, 大気環境学会誌, vol.37, pp. 155-165, 2002
- 10) 青井透, 森邦広, 池田正芳：低公害車からのアンモニアガスの発生と関越自動車トンネル排気中窒素成分が谷川岳山頂近辺の降雨に及ぼす影響, 土木学会第40回環境工学研究論文集, pp. 713-720, 2003
- 11) NAKAZAWA Koyomi, KUNIMATSU Takao and NAGAFUCHI Osamu：Using bulk deposit samplers to evaluate pollutant loads from atmospheric deposition, Journal of Ecotechnology Research, vol.15[2], pp. 53-58, 2010
- 12) 大喜多敏一：酸性雨, 博友社, 1996
- 13) 島山史郎：酸性雨, 日本評論社, 2003
- 14) 片山学, 大原利眞, 村野健太郎：東アジアにおける硫黄化合物のソース・リセプター解析-地域気象モデルと結合した物質輸送によるシミュレーション-, 大気環境学会誌, vol.39, No.4, pp. 200-217, 2004
- 15) 池田有光, 東野晴行：東アジア地域を対象とした酸性降下物の沈着量測定(Ⅱ)-発生源寄与を中心とした検討-, 大気環境学会誌, vol.32, No.3, pp. 175-186, 1997
- 16) 川村知裕, 原宏：日本の降水化学に対する黄砂の影響, 大気環境学会誌, vol.41, No.6, pp. 335-346, 2006

(2010.5.21受付)

Temporal and spatial distributions of pollutant loading in rainwater depositing the Lake Biwa watershed, Japan

Naoki HASHIMOTO¹, Osamu NAGAFUCHI^{1*},
Koyomi NAKAZAWA², Takao KUNIMATSU³

¹Environmental Science Graduate School, University of Shiga Prefecture, 2500 Hassaka, Shiga 522-8533, Japan

²Division of Sustainable Energy and Environmental Engineering, Osaka University

³Department of Ecosystem Studies, School of Environmental Science, University of Shiga Prefecture

We aimed to develop a method of calculating the loading rates of pollutants in rainwater depositing into Lake Biwa, in central Japan. Therefore, we have been carried out the survey of rainwater at the five sites of Biwa Lake Watershed for ten years over. A difference in loadings of approximately 6 times a year produced about Na^+ and Cl^- between western and northern sites (Kutsuki and Surumi) and Aburahi (southern Shiga Prefecture). Maximum values of TN and $\text{NO}_3\text{-N}$ were observed at the Kusatsu (eastern Lake Biwa) and Surumi sites, the former was located in urban area and an expressway passed at near the latter. Maximum values of TP and $\text{NH}_4\text{-N}$ were observed at the Aburahi site, which was located on near a golf course and a tea field. SO_4^{2-} and nssSO_4^{2-} levels increased toward winter at the Kutsuki and Surumi sites. From these results, the loadings of pollutants in rainwater depositing into Lake Biwa fluctuated spatially and temporally. Therefore, it is important to establish methods for calculating loading rates by using a number of different monitoring sites.