

# 印旛沼流入河川における窒素汚染の実態と その要因

## CURRENT STATUS AND CONTRIBUTING FACTOR OF NITROGEN POLLUTION IN INFLUENT RIVER INTO LAKE INBA-NUMA

赤松良久<sup>1</sup>・二瓶泰雄<sup>2</sup>・長谷川定<sup>3</sup>・林薫<sup>4</sup>・湯浅岳史<sup>5</sup>・上原浩<sup>5</sup>・小倉久子<sup>6</sup>  
Yoshihisa AKAMATSU, Yasuo NIHEI, Sadamu HASEGAWA, Kaoru HAYASHI,  
Takashi YUASA, Hiroshi UEHARA and Hisako OGURA

<sup>1</sup>正会員 工博 東京理科大学助教 理工学部土木工学科 (〒278-8510 千葉県野田市山崎2641)

<sup>2</sup>正会員 工博 東京理科大学准教授 理工学部土木工学科 (〒278-8510 千葉県野田市山崎2641)

<sup>3</sup>非会員 学(工) 東京理科大学学部生 理工学部土木工学科 (〒278-8510 千葉県野田市山崎2641)

<sup>4</sup>非会員 学(工) 千葉県県土整備部河川環境課 (〒260-8667 千葉市中央区市場町1-1)

<sup>5</sup>正会員 修(工) パシフィックコンサルタンツ(株) (〒163-0730 東京都新宿区西新宿2-7-1)

<sup>6</sup>正会員 修(理) 千葉県環境研究センター (〒261-0005 千葉市美浜区稲毛海岸3-5-1)

High-concentration nitrogen is observed in influent rivers into Lake Inba-numa. This is one of important factor for prolonged eutrophication in Lake Inba-numa. In this study, we conducted water and sediment sampling at a number of measurement stations in the influent rivers into Lake Inba-numa and analyzed nutrient concentration of river water and stable isotope of sediment. In Takasaka River, the detailed observations and GIS analysis were conducted to clarify the contributing factor of nitrogen pollution. The results indicate that the nutrient concentration in Takasaka River is closely related to the land use of catchment basin and there is a positive correlation between permeable area in the catchment basin and non-point source of nitrogen, which is derived by subtracting point source from observed nitrogen flux. The contributing rate of groundwater to nitrogen pollution and flow discharge, which was estimated using the unit loading of the permeable area, was found to be 20~84% and 28~74%, respectively.

**Key Words :** Lake Inba-numa, nitrogen pollution, land use, unit loading method, GIS analysis

### 1. はじめに

水質問題を抱える河川では、下水道整備等による有機物負荷削減により、有機物指標（BODやCOD）は減少傾向である一方、富栄養化原因物質である窒素汚染が深刻化している。関東地方北部等では流域の“窒素飽和”と呼ばれる窒素の高濃度化が指摘されており<sup>1)</sup>、河川での窒素汚染の一因であると考えられている。千葉県印旛沼流入河川でも類似した窒素汚染が見られ、T-Nの経年変化は横ばいであり、その結果、印旛沼の水質汚濁問題が長期化している<sup>2)</sup>。流域の窒素飽和の要因としては一般に大気降下物が挙げられるが、印旛沼流域では畑地が多く、過去から現在までの施肥の影響を強く受けている可能性が高いものの、印旛沼流入河川の窒素汚染の実態は不明である。このため、河川における窒素汚染状況と流域内の土地利用特性もしくは負荷源との関連性を定量的に明らかにするとともに、農地負荷の主な輸送経路となる地下水や湧水を含めた総

合的な水・物質循環の解明が不可欠である。

本研究では、印旛沼流入河川の中で特に窒素汚染が深刻な高崎川流域を対象とした河川水・地下水の栄養塩・有機物環境や安定同位体比に関する総合的調査を実施し、高崎川における窒素汚染の実態やそれと土地利用特性の関係を明らかにし、窒素汚染のソースを定量化することを試みる。これと同時に、印旛沼全流入河川一斉調査や都市河川（大堀川）の調査結果、公共用水域水質データを活用し、流域全体の窒素動態を多角的に検討し、汚濁負荷解析と現地観測結果を組み合わせ、河川における流量や窒素フラックスに対する地下水起源の寄与率を推定する。

### 2. 研究方法

#### (1) 観測概要

印旛沼は、北沼（北印旛沼）と西沼（西印旛沼）に分かれており、湖面積は11.55km<sup>2</sup>、流域面積は

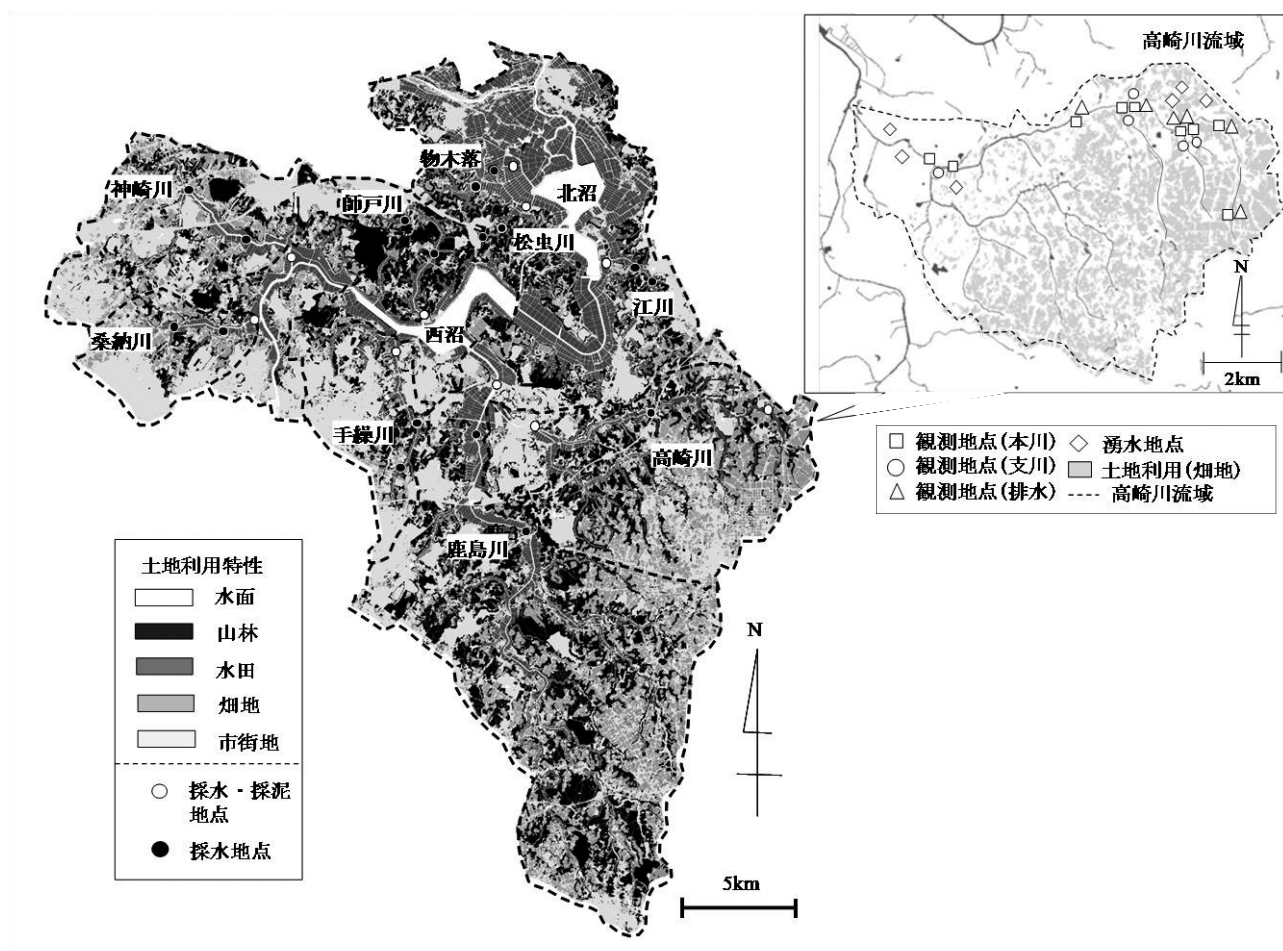


図-1 印旛沼流域の土地利用(2007年)と流入河川の観測地点

541km<sup>2</sup>である(図-1)。2007年時点での流域全体の土地利用は、山林24%、畑地21%、水田16%、市街地35%、水面4%である<sup>2)</sup>。印旛沼には北沼へは江川、松虫川、物木落、西沼へは鹿島川、手繰川、新川、神崎川、師戸川、桑納川の合計9河川が流入している。また、最大の流入河川である鹿島川の支流として高崎川、勝田川、弥富川等がある。これらの流入河川のうちの高崎川を対象として河川での窒素汚染の要因を詳細に検討した(図-1)。高崎川は全長6.1km、流域面積85.3km<sup>2</sup>であり、鹿島川と合流し、印旛沼に流入する。高崎川は、かつて氾濫の常襲地帯であったため、護岸整備が全川にわたり行われている。高崎川流域の土地利用特性は、山林23%、水田8%、畑33%、市街地34%、その他2%であり、農地開発が進んでいる。

本研究では、①高崎川流域の河川水・地下水に関する詳細調査、②印旛沼全流入河川の一斉水底質調査、という2種類の現地観測及びデータ整理を行った(図-1)。①では、高崎川本川9地点(図-1中の□印)、支川5地点(同図○印)において河川水及び河床底質を採取した。また、コンクリート護岸された本川に、排水管を介して横流入し“地下水起源”と見なせる排水も6地点(図-1中の△印)で採水した。これらの調査を2009/8/26、10/15、11/10、12/2、2010/1/8の計5回行った。最後の回では河川流

量をポータブル式電磁流速計(PMV-3、(株)エヌケーエス製)により計測した。採水サンプルの分析項目としては、T-N、D-N、NO<sub>2</sub>+NO<sub>3</sub>-N、NH<sub>4</sub>-N、T-P、D-P、PO<sub>4</sub>-P、COD、酸素同位体比( $\delta^{18}\text{O}$ )であり(T-、D-は「全」、「溶存態」を表す)、底質サンプルについてはC・N含有量、炭素・窒素安定同位体比( $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ )である。分析法としては、N・Pにはオートアナライザー(swAAAt、(株)BLTEC製)、安定同位体比は同位体比質量分析計(DELTAV Average, Finnigan TM)により測定し、CODには過マンガン酸カリウム法を用いた。②では、2009/11/10に流入河川(西沼：鹿島川、神崎川、手繰川、桑納川、師戸川、北沼：江川、松虫川、物木落)を対象に、各河川2、3箇所において一斉採水・採泥調査を実施した(図-1)。この一斉観測は①の高崎川観測とほぼ同日に行われており、採水・採泥サンプルを上記項目について分析した。

## (2) 公共用水域水質データの収集及び汚濁負荷解析

過去の窒素汚染状況を把握するために、高崎川における公共用水域水質データを収集した。観測地点は、高崎川6地点である。また、高崎川の水質環境の形成要因となる集水域情報(流域面積や土地利用特性)や原単位法による汚濁負荷解析結果を比べるために、GIS(ArcView9.3、ESRI社)によるデータ

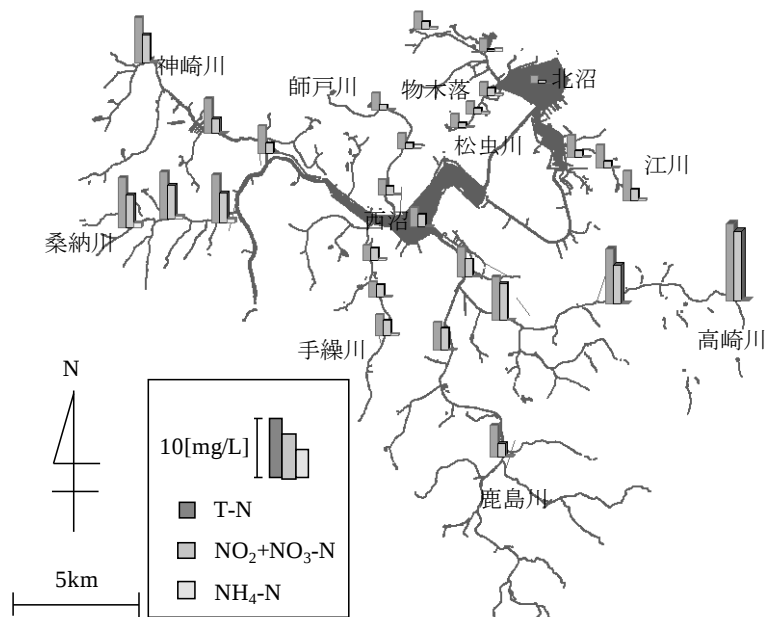


図-2 印旛沼流入河川における窒素濃度の空間分布 (2009/11/10)

解析を行った。後者の汚濁負荷解析では、汚濁負荷を点源・面源負荷に分け、家庭（生活）・工場・下水処理場・畜産による負荷を点源とみなし、森林・農地（田・畑）・市街地などからの負荷を面源とみなした。点源負荷に関しては湯浅ら<sup>3)</sup>によってまとめられた印旛沼流域の100mメッシュの点源負荷データを用いた。

### 3. 観測結果及び考察

#### (1) 印旛沼流入河川の水質・底質環境

図-2に印旛沼流入河川の窒素濃度（T-N,  $\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N}$ ,  $\text{NH}_4\text{-N}$ ）の空間分布を示す。まず、T-Nの結果を見ると、西沼に流入する河川の上流部で濃度が高く、西沼の濃度は北沼に比べて高いことが分かる。また、ほとんどの流入河川において上流から流下方向にT-Nが減少する傾向が見て取れる。高崎川は印旛沼流入河川の中でもT-Nが高く、他河川の上流のT-Nと比べ2倍以上の濃度であった。さらに、多くの地点において、T-Nの大部分を $\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N}$ が占めており、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は0.5mg/L以下と相対的に低い。しかし、一般に水生生物が正常に生息するには少なくとも $\text{NH}_4\text{-N}$ は0.02mg/L以下を維持することが望ましく<sup>4)</sup>、その基準を満たす地点は印旛沼流入河川では存在しない。したがって、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 環境の観点から見ると印旛沼流入河川は健全な河川生態系を育む環境では無いと言える。

次に、河川底質の汚染状況を見るために、印旛沼流域における底質の $\delta^{13}\text{C}$ - $\delta^{15}\text{N}$ マップを図-3に示す。高崎川に関しては2009/11/10、2009/12/2の縦断方向の7地点のデータを示す。一般に上流では森林地帯（ $\delta^{15}\text{N}$ ：-1～+1‰,  $\delta^{13}\text{C}$ ：-27‰）の影響を受けて $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{13}\text{C}$ は小さい値をとる。河口域では付着藻類や微生物活動の活発化によって $\delta^{15}\text{N}$ および $\delta^{13}\text{C}$

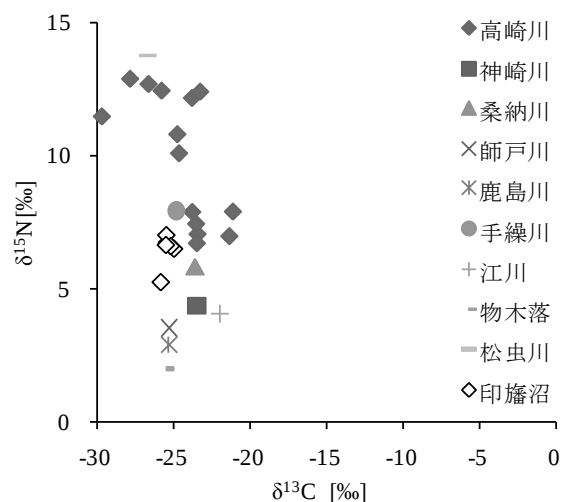


図-3 印旛沼流域における底質の $\delta^{13}\text{C}$ - $\delta^{15}\text{N}$ マップ

は河口に近づくにつれて大きい値になる<sup>5)</sup>。また、河川において $\delta^{15}\text{N}$ が6‰を超える場合は汚濁が著しく、富栄養化が進行していると考えられる<sup>6)</sup>。 $\delta^{13}\text{C}$ に関してはすべての地点で-30～-21‰の範囲にあり、印旛沼および各河川間での明確な違いは見られない。一方、 $\delta^{15}\text{N}$ は高崎川の全地点、手繰川、松虫川において6‰を超える富栄養化した状態にあることが分かる。特に、高崎川上流の地点においては12‰を超える高い値となっている。また、印旛沼内の $\delta^{15}\text{N}$ は植物プランクトンの値（7‰）に近く、沼の底質は植物プランクトンの死骸が堆積していると考えられる。

#### (2) 高崎川の水質環境

平水時（2009/11/10）における高崎川のT-N、T-P、

COD,  $\delta^{18}\text{O}$ の縦断変化を図-4に示す。ここで本川, 支川, 排水(地下水)の結果を示す。本川のT-Nは, 最上流部では14mg/Lと極めて大きく, 下流に行く と徐々に低下している。これは上流部ほど流域内の 畑地率が高いことと関係していると考えられる。支 川や排水のT-Nも大局的には上流から下流に向かっ て減少しているが, その大きさは全体的に本川のT- Nよりも小さい。このT-Nの縦断変化パターンは他 の4回の計測でも同様の傾向が見られた。また, 図- 5に1997年から2008年にかけての佐倉市および富里 市の公共用水域水質データを用いた高崎川6地点で のT-Nの計測結果を示す。ここでは, 1997~2000, 2001~2004, 2005~2008年のそれぞれ4年間の平均 値を示す。合流部から約12kmの地点で公共用水域水 質データの結果が本観測値を大きく上回っているも のの, 縦断変化パターンは本観測結果と同様の傾向 が見られる。また, 1997年から2008年にかけてT- Nは全体的に増加傾向にあることが分かる。一方, T-PやCODに関しては, 最上流の地点でT-Pが高い 値をとっているものの, T-Nのような明確な縦断方

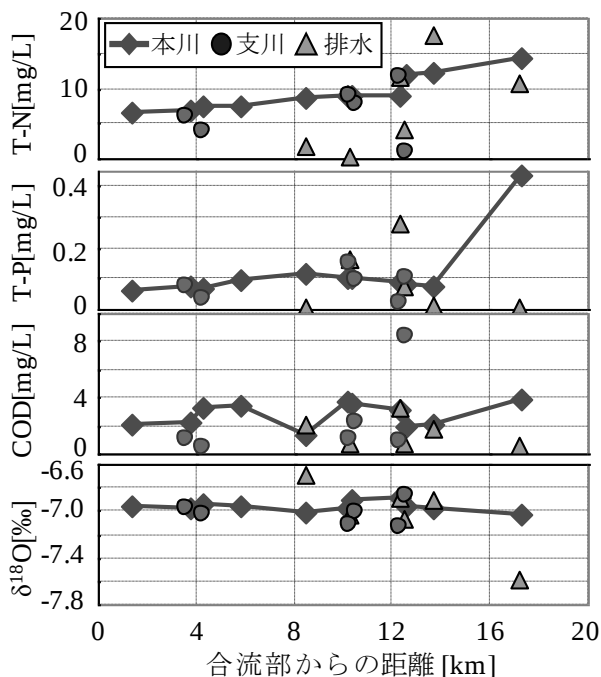


図-4 平水時の高崎川における T-N, T-P, COD,  $\delta^{18}\text{O}$ の縦断変化 (2009/11/10)

向変化は見られず, 上下流に顕著な差は生じてない。また,  $\delta^{18}\text{O}$ に関しても, 本川では-7.0‰前後で推移し, これらの結果は支川や排水でも同じである。これは本川と支川, 排水の水の起源が概ね同じであることを示しており, 高崎川本川や支川の水の起源は地下水経路が大部分を占めることが示唆された。

このような高濃度が観測された窒素濃度と集水域の土地利用特性の関係を明らかにするために, 各観測地点の集水域の畑地, 水田, 山林, 市街地の割合とその地点でのT-Nの相関図を図-6に示す。ここでは, 高崎川における2009年8月~2010年1月にかけての全てのT-Nの測定結果を用いた。T-Nと集水域内の水田, 山林, 市街地の割合にはやや負の相関が見られる一方で, 畑地の割合とは明確な正の相関があることが分かる。以上より, 高崎川流域では畑地が主な窒素源となることが示唆された。

#### 4. 河川流量・T-N負荷に対する地下水寄与の推定

##### (1) T-Nフラックスに対する点源・面源負荷の影響

前章で記述した高崎川における窒素汚染の要因を検討するために, 高崎川におけるT-Nフラックスの観測値に対する点源負荷及び面源負荷の影響を検討する。図-7はT-Nフラックスに対する実測値と同一地点における原単位法による点源負荷の解析値の相関図を示している。ここでは, 本研究で行った高崎

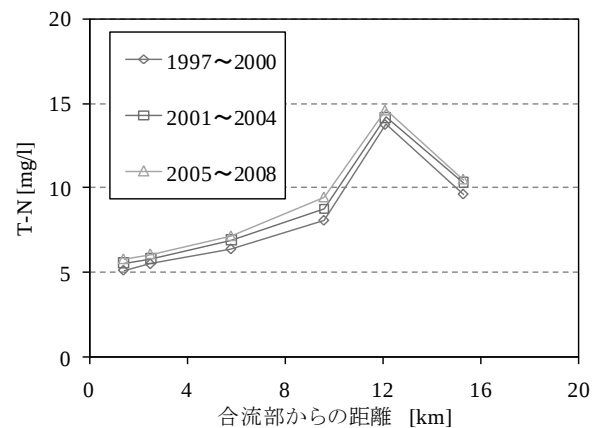


図-5 1997年~2008年における高崎川の T-N縦断変化

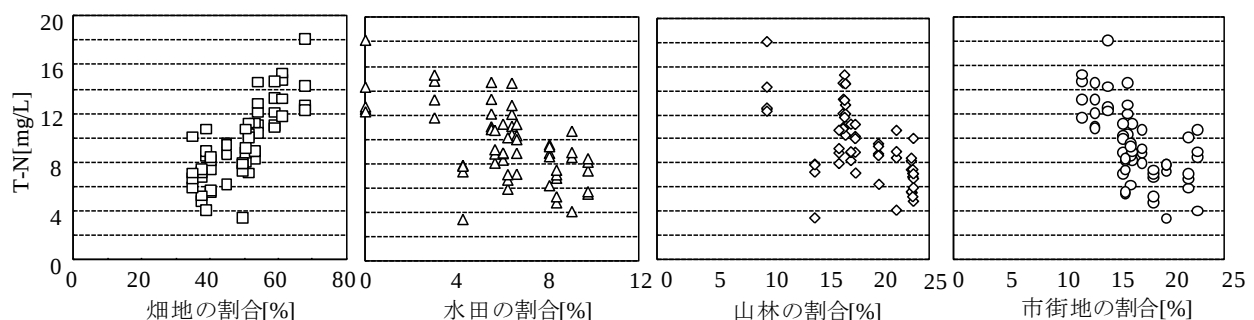


図-6 各観測地点におけるT-Nと集水域の土地利用割合の関係(高崎川)

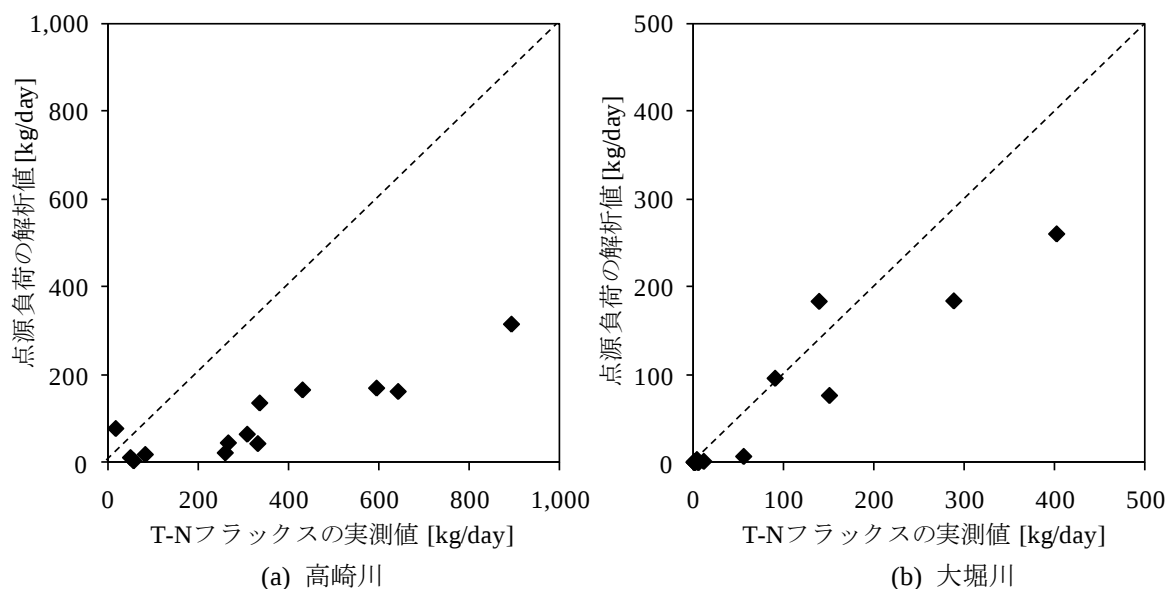


図-7 T-Nフラックスの観測値と点源負荷の解析値の比較

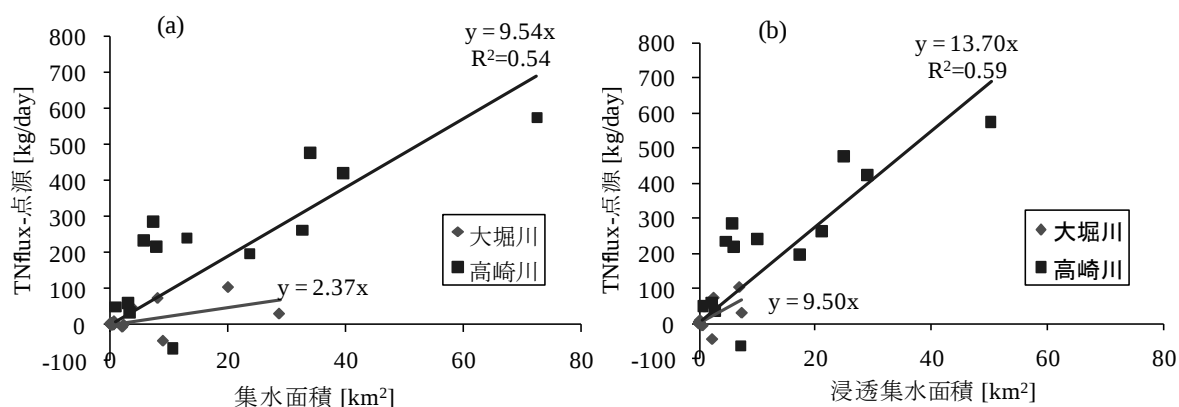


図-8 面源負荷（T-N負荷実測値と点源負荷の差）と(a)集水面積および(b)浸透流域面積の相関関係

川の結果に加えて（同図(a)，2010/1/8），比較のため，集水域が市街化している手賀沼流入河川（大堀川）の結果も表示している（同図(b)）<sup>7)</sup>．両河川における観測結果は平水時に行われたものである．これより，農地河川である高崎川では実測値が点源負荷の解析値を大幅に上回っているものの，都市河川である大堀川では両者は同程度となっている．この結果から，平水時では，大堀川のT-N負荷には点源負荷の影響が主であるものの，農地河川（高崎川）では点源負荷以外の影響が大きいことが示唆された．

そこで，高崎川および大堀川を対象として，T-N負荷の実測値から点源負荷を差し引いたもの（＝面源負荷）と各地点の集水面積の相関図を図-8(a)に示す．同一集水面積では，高崎川の方が大堀川よりも大きく，流域全体としては高崎川の面源負荷の方が大堀川よりも大きい．面源負荷の輸送経路は出水時では表流水と地下水，平水時では地下水のみであることから，高崎川と大堀川の違いは平水時の地下水影響の受け方の差である．そこで，横軸を集水面積でなく，“浸透”集水面積（＝山林と，水田，畑

地の面積和）を取ると（図-8(b)），両河川間の結果は概ね一致し，第一義的には浸透流域面積の大きさが各河川に対する地下水影響の程度を変化させたものと考えられる．また，横軸を浸透集水面積にすることによって，高崎川での近似式の相関係数の増加が見られる．両データ間の近似直線の傾きは浸透流域平均の“原単位”に相当しており，高崎川では $13.7\text{kg}/\text{km}^2/\text{day}$ となる．

## (2) 地下水起源の流量・T-N負荷量の推定

浸透流域平均の“原単位”と流域内の浸透流域面積を掛け合わせ，地下水起源のT-N負荷量を算出した．高崎川の各観測地点において算定した地下水起源の負荷量と実測のT-N負荷量の比較を図-9(a)に示す．地下水起源の窒素負荷量は実測値の20～84%を占めている．特に合流点付近の地点では地下水起源の負荷量が50%を上回っており，高崎川において地下水起源の窒素負荷の影響が大きいことを示している．

また，以下のような関係式(1)が成り立つとして，地下水起源の流量（以下，地下水流量と呼ぶ）を算

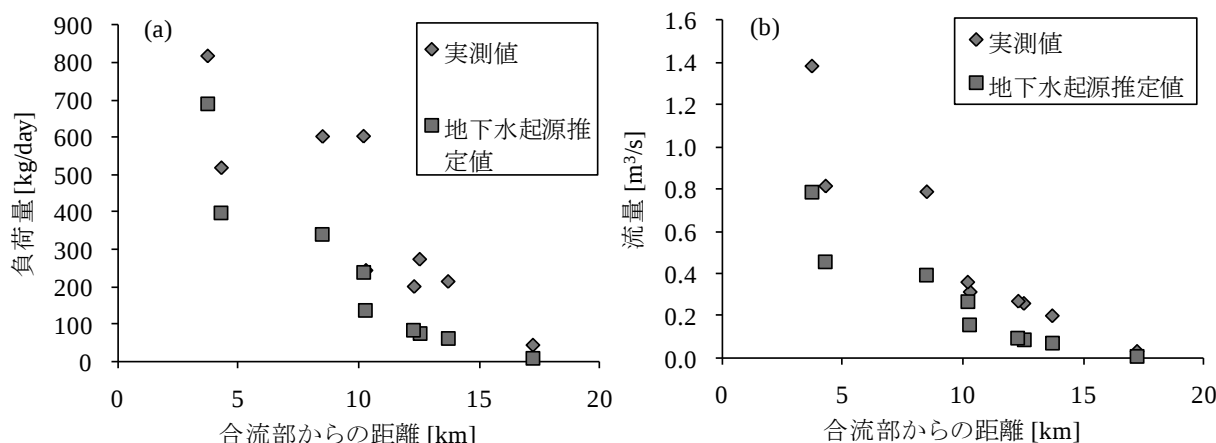


図-9 高崎川における (a) T-N負荷量と (b) 河川流量の縦断変化に関する実測値と地下水起源の推定値の比較

出する。

$$\begin{aligned} & (\text{地下水流量} \times \text{地下水窒素濃度}) \\ & = (\text{浸透流域原単位} \times \text{各地点の浸透流域面積}) \quad (1) \end{aligned}$$

ここで、地下水窒素濃度としては、データが限られているため、高崎川流域における湧水濃度の平均値(=10.1mg/L)<sup>9)</sup>を採用した。図-9(b)に各観測地点における地下水流量と河川流量の比較を示す。これより、地下水流量は河川流量の28～74%を占めており、これらは白鳥<sup>9)</sup>の試算と概ね一致している。以上より、高崎川の窒素汚染改善には、浸透域である農地起源の面源負荷削減が不可欠であり、それには地下水や湧水環境を改善させることが必須であることが示唆された。

#### 4. 結論

本研究では、印旛沼流入河川における窒素汚染の実態とその要因の解明に向けた現地観測およびそのデータ解析を実施した。得られた主な結論は下記のとおりである。

- 1) 印旛沼流入河川の一つである高崎川は水質・底質の両面において窒素汚染の状態になっている。
- 2) 河川内における実測の窒素フラックスから点源負荷を差し引いた面源負荷と集水域の浸透面積に明確な正の相関が見られることが分かった。
- 3) 高崎川における浸透流域平均の“原単位”を用いて地下水起源のT-N負荷量および地下水流量を算出した結果、それぞれ平水時の河川におけるT-N負荷量の20～84%、河川流量の28～74%を占めていることが明らかとなった。
- 4) 高崎川の窒素汚染改善には、浸透域である農地起源の面源負荷削減が不可欠であり、それには地下水や湧水環境を改善させることが必須である。

謝辞：現地観測及びデータ解析に対して、東京理科大学理工学部土木工学科水理研究室学生諸氏には多大なる御助力を頂いた。また、安定同位体比の分析に関して、東京工業大学理工学研究科の池田駿介教授ならびに池田研究室の学生の皆様に機器の使用法等、多くのご指導を頂いた。本研究の一部は、下水道振興基金研究助成金（研究代表者：二瓶泰雄）および国土交通省建設技術研究助成（研究代表者：赤松良久）によるものである。ここに記して謝意を表す。

#### 参考文献

- 1) 河川環境管理財団：大気由来の窒素に着目した流域の窒素収支に関する研究，2009。
- 2) 千葉県：印旛沼流域水循環健全化会議資料，2009。
- 3) 湯浅岳史・吉田正彦・上原浩・佐々木亨：GISを用いた汚濁負荷量の算定と流域浄化機能の評価，水環境学会年次講演会，2005。
- 4) 菊池幹夫，若林明子：アンモニア汚染の環境リスク評価，東京都環境科学研究所年報，Vol.1997，pp.143-148，1997。
- 5) 和田英太郎・水谷広・柄沢亭子・蒲谷裕子・南川雅男・米本昌平・辻堯：大槌水系における有機物の挙動，地球化学，vol.18，pp.89-98，1984。
- 6) 高津文人：窒素安定同位体比による富栄養化診断，水文・水資源学会誌，vol.19，No.5，pp.413-419，2006。
- 7) 二瓶泰雄・服部裕司・小久保武・大竹野歩：GISを用いた手賀沼流入河川の汚濁負荷解析，水工学論文集，Vol.48，pp.1459-1464，2004。
- 8) 二瓶泰雄・真茅良平・堀田和弘・湯浅岳史：印旛沼流域における湧水の栄養塩・COD環境の把握，水工学論文集，Vol.54，pp.1351-1356，2010。
- 9) 白鳥孝尚：生きている印旛沼-民族と自然-，崙書房出版，2006。

(2010.4.8受付)