

徳島県内における陸域からの窒素流入負荷特性

徳島県立保健製薬環境センター

浅川 愛・酒池 遼*1・菅生 伸矢*2・中石 明希*2

Characteristics of nitrogen load from the land in Tokushima

Ai ASAKAWA, Ryo SAKAIKE, Shinya SUGAOI, and Aki NAKAISHI

Tokushima Prefectural Public Health, Pharmaceutical and Environmental Sciences Center

要 旨

近年、徳島県沿岸を含む瀬戸内海では貧栄養化が指摘されており、海域の実情に応じた栄養塩類の管理が求められている。そのための現状把握を目的として、本県沿岸瀬戸内海における陸域からの窒素流入負荷特性について調査した。その結果、陸域から流入する窒素の多くを硝酸態窒素が占めた。また、窒素流入負荷量は、夏季に比べ冬季の方が大きいことに加え、河川流量と強い正の相関を示すことが明らかになった。

Key word : 栄養塩 nutrient, 流入負荷量 inflow load, 瀬戸内海 Seto Inland Sea

I はじめに

瀬戸内海は我が国最大の閉鎖性水域であり、本県沿岸海域では阿南市蒲生田岬以北がそれに該当する。1960～1970年代には富栄養化が進行し、「瀬死の海」と言われるほど水質は悪化した¹⁾。しかし、1973年に瀬戸内海環境保全臨時措置法(後に特別措置法。以下「瀬戸内法」という。)の制定を契機に化学的酸素要求量(COD)及び窒素・リンの総量規制が行われた結果、水質は改善した²⁾。その一方で、近年は貧栄養化が指摘されており、栄養塩濃度の低下に伴い養殖ノリやワカメの色落ちが問題となるとともに、水産資源への影響も懸念されている³⁾。

そのような状況に鑑み、2015年に瀬戸内法が改正され、生物の多様性及び生産性が確保されるなどした「豊かな海」を目指すこと、また、海域ごと、季節ごとの課題に対応する必要性が指摘されている⁴⁾。

本県においても海域の実情に応じた栄養塩類の管理が求め

られ、そのためには陸域からの栄養塩類流入負荷量について把握することは必要不可欠である。しかしながら、これまでに体系的にとりまとめられた調査データは見当たらない。

そこで、本調査研究では、栄養塩の中でも本県沿岸海域において著しい減少が指摘されている⁵⁾ 溶存態無機窒素を含む窒素に着目し、季節変動や出水による変動も含めた窒素流入負荷特性について明らかにすることを目的とした。

II 方法

1 調査方法

環境省「平成31年度水質総量削減に係る発生負荷量等算定調査業務報告書⁶⁾」に準じ、A) 河川からの流入負荷量(以下「A」という。)、B) 海域への直接排出量(以下「B」という。)、及びC) その他(以下「C」という。)を合計することにより流入負荷量を算出した。

まず、Aは次のとおり算出した。対象河川は、本県沿岸瀬戸内海に流入する主要河川である、旧吉野川、今切川、吉野川、勝浦川、那賀川の5河川とした。各河川の位置と採水地

*1 現 キオクシア株式会社

*2 現 環境管理課

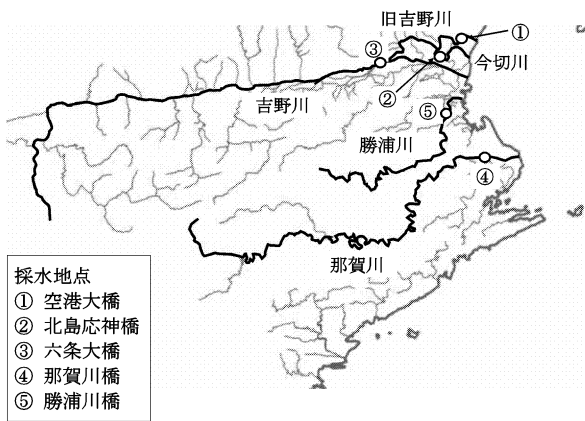


図1 河川の位置と採水地点

点を図1に示す。各採水地点において表層水を採水し、後述の分析方法により形態別窒素濃度を分析した。得られた濃度に河川流量を乗じ、Aとした。河川流量については、表1に示すデータを使用した。なお、吉野川から旧吉野川が分派するため、吉野川の河川流量は、中央橋における流量から、旧吉野川分派点において旧吉野川に流入する流量を差し引いて算出した。

次に、Bは次のとおり算出した。負荷量が大きいと考えられる排水量1,000 m³/日以上の実業場のうち、本県沿岸瀬戸内海に直接排出する実業場の放流水中の形態別窒素濃度を分析し、得られた濃度に排水量を乗じることにより算出した。

Cは、前述のA算出のための河川水の採水地点より下流に排出する、もしくは対象の5河川以外へ排出する、排水量1,000 m³/日以上の実業場からの排水中の形態別窒素濃度を分析し、得られた濃度に排水量を乗じることにより算出した。

2 調査時期

河川水については、2017年8月29日（夏季平水時）、2017年8月8日（夏季出水時）、2018年2月23日（冬季平水時）、2018年3月7日（冬季出水時）の計4回調査した。

事業場排水については、年間を通して水質に変化はないとみなし、平成29年7月から2月までの間に1回調査した。ただし、事業場のうち下水処理場については栄養塩管理運転を実施している事業場もあることから、河川水と同日に計4回調査した。

3 分析方法

採水当日に試料の分注・ろ過を行った。

試料のろ過には、450℃で4時間焼成した47 mm径のガラス繊維ろ紙（Whatman GF/C、孔径1.2 μm）を使用し、吸引ろ過を行った。得られたろ液は、溶存態全窒素（DTN）、亜硝酸態窒素（NO₂-N）硝酸態窒素（NO₃-N）、アンモニア態窒素（NH₄-N）の分析に用いた。なお、全窒素（TN）の分析には、ろ過を行わない試料を用いた。

表1 各河川における流量データ

河川名	河川流量データ
旧吉野川	旧吉野川河口堰放流量 ^{※1}
今切川	今切川河口堰放流量 ^{※2}
吉野川	中央橋流量 ^{※3} －旧吉野川流量 ^{※4}
那賀川	古庄流量 ^{※5}
勝浦川	棚野ダム放流量 ^{※6}

※1,2 独立行政法人水資源機構旧吉野川河口堰管理所提供

※3,5 水文水質データベース⁷⁾

※6 県河川整備課提供

TN, DTN, NO₂-N, NO₃-N, NH₄-Nの分析には、オートアナライザー（QuAAtro39、ビーエルテック（株）製）を使用した。

溶存態無機窒素（DIN）はNO₂-N, NO₃-N, NH₄-Nを合計することで算出し、溶存態有機窒素（DON）はDTNとDINとの差から算出した。粒子状有機窒素（PON）は、TNとDTNとの差から算出した。なお、値がマイナスになる場合はゼロとして取り扱った。

III 結果及び考察

1 平水時流入負荷特性

(1) 窒素構成形態

平水時における窒素流入負荷特性について明らかにするため、夏季平水時における窒素流入負荷量に着目した。

算出区分別窒素流入負荷量及び河川流量を表2に示す。なお、B+CはB及びCの合計量である。夏季平水時において、窒素流入負荷量の多く（81%）をDINが占めており、DON（12%）及びPON（7%）は少なかった。また、DINのうち、大部分（88%）がNO₃-Nであった。

算出区分別に見ると、窒素流入負荷量全体に占める割合はAが68%、B+Cが32%であった。NH₄-N及びPON以外の形態ではAが多く（57-79%）を占めたのに対し、PONではAが31%、B+Cが69%と割合が逆転した。また、NH₄-NではB+Cが91%とほとんどを占めた。このことから、NH₄-N及びPONは事業場から排出されるが河川水中には少なく、河川中で別の形態に変化する可能性が考えられる。

以上と概ね同様の傾向が冬季平水時においても見られた。

(2) 各河川における流入負荷特性

夏季平水時における算出区分別窒素流入負荷量を図2に示す。窒素流入負荷量を河川ごとに比較すると、今切川、那賀川、勝浦川に比べ、旧吉野川及び吉野川で顕著に高く、河川により明らかな差が見られた。

表2 算出区別窒素流入負荷量及び河川流量

区分	窒素負荷量 (kg/日)					計	河川流量 (m³/s)	
	DIN			DON	PON			
	NO ₂ -N	NO ₃ -N	NH ₄ -N					
A	33.0	2846.5	41.9	396.1	105.0	3422.5	73.3	
夏季平水	旧吉野川	17.9	1182.2	13.5	192.5	15.1	1421.2	26.9
	今切川	5.8	238.3	3.0	44.9	54.1	346.1	5.6
	吉野川	7.2	1193.6	21.6	114.8	15.9	1353.0	25.3
	那賀川	1.4	84.2	0.5	36.9	16.2	139.3	11.9
	勝浦川	0.7	148.3	3.3	7.1	3.6	163.0	3.7
B+C	24.5	752.0	410.9	215.9	238.6	1641.8	-	
A+B+C	57.5	3598.5	452.8	612.0	343.6	5064.3	-	
A	524.6	113423.6	1065.7	13523.5	16867.7	145405.2	2260.1	
夏季出水	旧吉野川	45.8	3608.3	321.4	842.9	703.3	5521.7	32.5
	今切川	34.2	3713.6	215.2	861.8	337.9	5162.8	30.9
	吉野川	340.1	90845.9	473.7	9061.5	13616.6	114337.9	1405.9
	那賀川	86.1	11770.6	55.4	2455.0	1962.8	16330.0	712.2
	勝浦川	18.3	3485.2	0.0	302.2	247.2	4052.9	78.6
B+C	25.0	659.1	337.1	231.4	215.5	1468.1	-	
A+B+C	549.6	114082.8	1402.8	13754.9	17083.2	146873.3	-	
A	48.9	5866.0	224.8	608.2	501.3	7249.2	81.4	
冬季平水	旧吉野川	21.2	2569.5	95.0	312.6	198.0	3196.2	31.4
	今切川	20.0	2190.7	115.3	224.9	192.9	2743.8	26.9
	吉野川	5.1	909.1	9.6	44.9	62.8	1031.5	11.7
	那賀川	1.9	82.1	3.1	19.9	39.2	146.2	9.2
	勝浦川	0.7	114.7	1.7	6.0	8.5	131.6	2.2
B+C	25.8	861.7	527.6	212.3	216.0	1843.3	-	
A+B+C	74.7	6727.8	752.3	820.5	717.3	9092.5	-	
A	222.2	12260.3	1706.9	285.3	969.0	15443.7	328.1	
冬季出水	旧吉野川	34.4	1727.3	266.9	84.9	145.6	2259.0	26.0
	今切川	27.2	1093.2	190.1	49.9	124.8	1485.1	25.6
	吉野川	128.1	7853.5	1046.8	0.0	499.1	9527.5	170.4
	那賀川	29.6	1389.5	180.9	150.4	189.6	1939.9	100.6
	勝浦川	3.0	196.9	22.1	0.0	10.0	232.1	5.5
B+C	30.1	812.3	456.6	211.3	228.0	1738.4	-	
A+B+C	252.4	13072.6	2163.5	496.5	1197.1	17182.1	-	

河川ごとの流入負荷特性をより詳細に調べるために、河川水中の濃度に着目した。夏季平水時における各河川の形態別窒素濃度を図3に示す。夏季平水時における窒素濃度は、今切川で最も高かったものの、旧吉野川、吉野川、勝浦川とはそれほど差は見られなかったのに対し、那賀川のみ顕著に低かった。この原因として、流域の土地利用の違いによる窒素流入量の違いが考えられる。那賀川以外の4河川は県内でも人口の集中する徳島市周辺に位置するが、那賀川は比較的人口の少ない県南部に位置する。吉野川流域の土地利用は山林約79%、農地約15%、市街地約5%、河川等約2%である⁹⁾のに対し、那賀川は山林約92%、農地約5%、宅地等市街地約3%である⁹⁾ことから、那賀川流域では農地及び宅地等市街地利用が少なく生活排水等の流入が少ないことが示唆される。

図2及び図3から、窒素濃度は那賀川以外の4河川でほぼ同じであったものの、河川流量の差から、旧吉野川及び吉野川で窒素流入負荷量が大きくなることがわかった。

窒素負荷量について形態別に見ると、いずれの河川においてもDINが多く(62-93%)を占めており、DON、PONの占める割合は低かった。また、DINのうち、ほとんど(96%以上)がNO₃-Nであり、NO₂-N及びNH₄-Nはほとんど含まれ

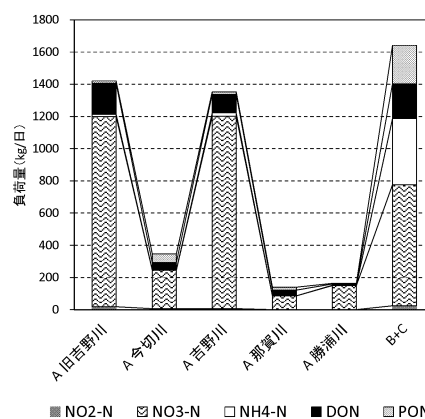


図2 夏季平水時における算出区別窒素流入負荷量

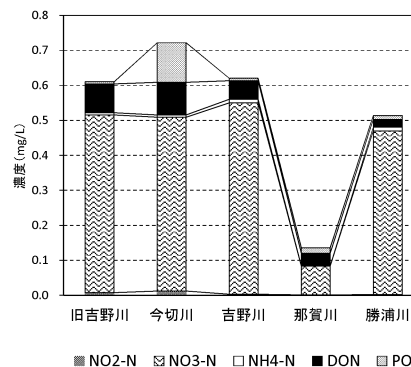


図3 夏季平水時における各河川の形態別窒素濃度

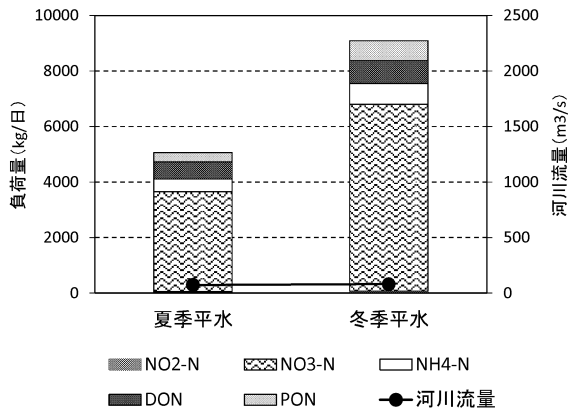


図4 夏季平水時及び冬季平水時における窒素流入負荷量

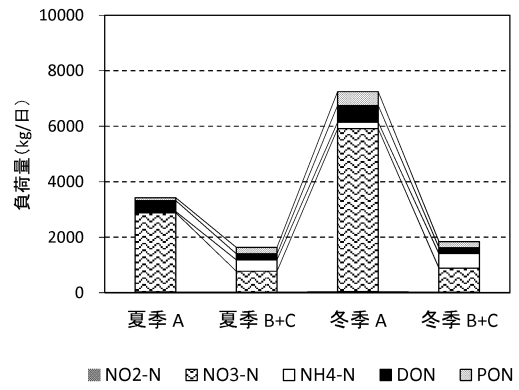


図5 夏季平水時及び冬季平水時における算出区別窒素流入負荷量

なかった。この結果は、平水時における丹波川（東京都）河川水の流出成分分析を行った牧野らの報告¹⁰⁾と一致する。

以上から、今回対象とした5河川における窒素流入負荷量は河川により大きく異なったが、これは、河川水中濃度が河川により大きく異なることに加え、河川流量の差に起因することがわかった。

2 季節変動

窒素流入負荷量の季節変動について明らかにするため、夏季平水時と冬季平水時とで比較した。

夏季平水時及び冬季平水時における窒素流入負荷量を図4に示す。表2及び図4から、窒素流入負荷量は、夏季平水時に比べ、冬季平水時の方が約1.8倍大きいという結果が得られた。このことから、平水時における窒素流入負荷量は、夏季に比べ冬季の方が大きい可能性が示唆された。この原因について明らかにするために、さらに詳細に比較した。

夏季平水時及び冬季平水時における算出区別窒素流入負荷量を図5に示す。Aに着目すると、窒素流入負荷量は、NO₂-N及びDONで約1.5倍、NO₃-N及びDINで約2.1倍、NH₄-N

で約5.4倍、PONで約4.8倍、夏季に比べ冬季で大きいことがわかった。

続いて、各河川中の濃度について夏季平水時と冬季平水時とを比較した。夏季平水時及び冬季平水時における各河川の形態別窒素濃度を図6に示す。窒素濃度は全ての河川において冬季の方が夏季の約1.3-1.9倍高かった。窒素構成形態のうち、ほとんどを占めるDIN及びNO₃-Nについても、全ての河川において冬季の方が約1.3-1.9倍高いという結果が得られた。坂井ら¹¹⁾は、江戸川におけるTN濃度は夏季に比べ冬季の方が高いと述べ、新井ら¹²⁾は、利根川における硝酸塩濃度は夏季に比べ冬季の方が高いことを報告しており、これらの報告と本調査結果とは一致する。

一方、NO₂-N、NH₄-N、DON、PONについても、夏季より冬季で高濃度となっているケースが多かったが、そうでないケースも見られた。しかしながら、これらの形態は低濃度である上に変化量も少ないため、窒素流入負荷量増減への寄与は少ないと言える。

以上から、平水時における窒素流入負荷量は、夏季に比べ

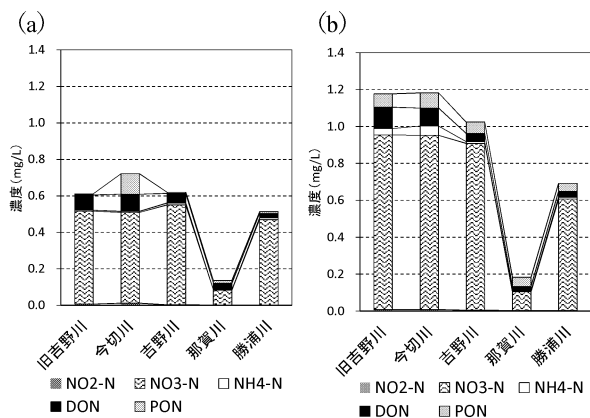


図6 夏季平水時 (a) 及び冬季平水時 (b) における形態別窒素濃度

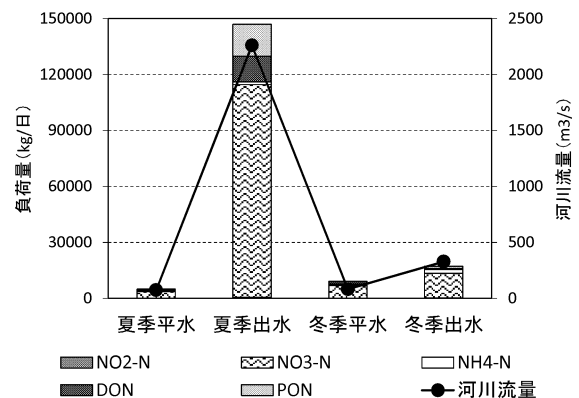


図7 季節別、河川流量別窒素流入負荷量

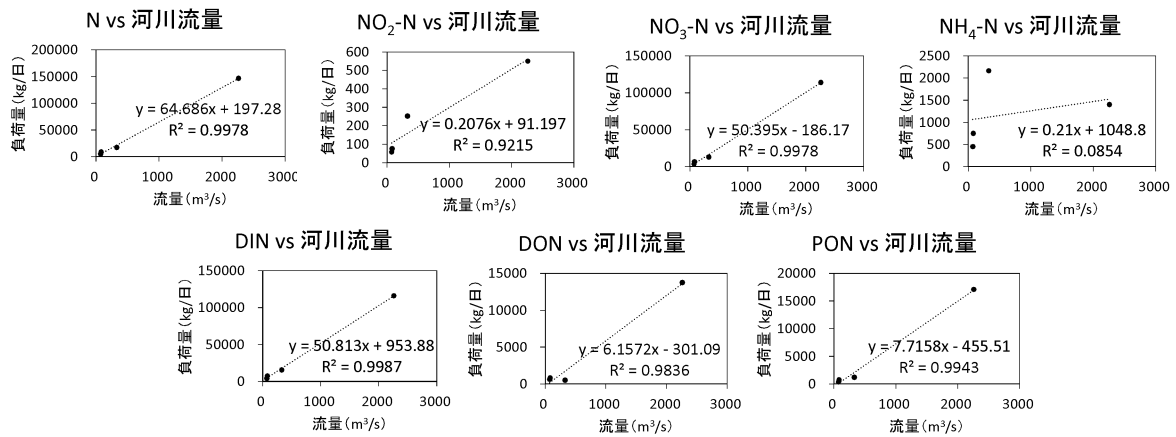


図8 窒素流入負荷量と河川流量との関係

冬季の方が約 1.8 倍大きいという結果が得られたが、これは、河川水中の窒素のほとんどを占める NO₃-N が冬季にはいずれの河川においても高濃度となることに起因することがわかった。しかしながら、今回は夏季及び冬季 1 回ずつの調査であり、さらなるデータの蓄積が求められる。

3 出水による変動

窒素流入負荷量の出水による変動について明らかにするため、夏季平水時と夏季出水時とで、冬季平水時と冬季出水時とで比較した。

季節別、流量別窒素流入負荷量 (図 7) から、各ケースで負荷量は大きく異なり、中でも夏季出水時の負荷量は顕著に大きいことがわかる。負荷量のグラフに河川流量をプロットすると、両者は類似した挙動を示した。

そこで、窒素流入負荷量と河川流量との関係 (図 8) を見ると、両者は強い正の相関 (決定係数 R²=0.9978) を示したことから、河川流量が増加するほど負荷量が増加することがわかった。また、窒素の各形態と河川流量との関係を見ると、NO₂-N、NO₃-N、DIN、DON、PON において強い正の相関を示した (R²=0.9215~0.9987) 一方で、NH₄-N は相関を示さなかった (R²=0.0854)。山田ら¹³⁾は、森林から流出する水質成分の特性を調査した報告において、懸濁成分は流量増大時に水質成分流出負荷が著しく増加し、NO₃-N は流量増加とともに流出負荷が増加するが、NH₄-N は流量増加と流出負荷量との相関性が悪いと述べている。また、NH₄-N の相関性が悪い理由について、化学反応などによって流出量が変化し制限されるためであるとしている。この山田らの報告と本調査結果は概ね一致した。

以上から、窒素流入負荷量は河川流量と強い正の相関を示すことが明らかになった。また、形態別に見ると、NO₂-N、NO₃-N、DIN、DON、PON が河川流量と強い正の相関を示すのに対し、NH₄-N のみ相関を示さないことがわかった。

IV まとめ

本県沿岸瀬戸内海における陸域からの窒素流入負荷量特性について調査したところ、次のことがわかった。

- (1) 海域へ流入する窒素の多くを NO₃-N が占めた。
- (2) 今回調査対象とした 5 河川の水質や河川流量が異なることにより、河川ごとの負荷量も大きく異なった。
- (3) 季節変動について調査した結果、夏季に比べ冬季の方が窒素流入負荷量は約 1.8 倍大きかった。
- (4) 出水による変動について調査した結果、NH₄-N 以外の形態において、流入負荷量は河川流量と強い正の相関を示した。

今回得られたこれらの知見は、本県沿岸瀬戸内海における栄養塩類の管理のための一助となると考えられる。

謝辞 本調査を実施するにあたり、試料やデータをご提供くださいました関係者の皆様に厚くお礼申し上げます。

参考文献

- 1) 山本民次：瀬戸内海の貧栄養化について (再考)、日本マリンエンジニアリング学会誌, **49** (4), 71-76 (2014)
- 2) 反田實, 赤繁悟, 有山啓之, 他：瀬戸内海の栄養塩環境と漁業, 水産技術, **7** (1), 37-46 (2014)
- 3) 阿保勝之, 秋山諭, 原田和弘, 他：瀬戸内海における栄養塩濃度等の水質変化とその要因, 沿岸海洋研究, **55** (2), 101-111 (2018)
- 4) 環境省水・大気環境局長通知：瀬戸内海環境保全特別措置法の一部を改正する法律の施行について, 平成 27 年 10 月 6 日, 環水大発第 1510061 号 (2015)
- 5) 酒井基介, 上田幸男：徳島県沿海の藻類養殖漁場における珪藻増殖が DIN 濃度減少に及ぼす影響, 徳島水研報, **8**, 1-6 (2012)

- 6) 環境省水・大気環境局：平成 31 年度水質総量削減に係る発生負荷量等算定調査業務報告書，令和 2 年 3 月（2020）
- 7) 国土交通省：水文水質データベース，<http://www1.river.go.jp/>（2020 年 8 月 31 日現在）
- 8) 国土交通省四国地方整備局：吉野川水系河川整備計画，平成 21 年 8 月（2009）
- 9) 国土交通省四国地方整備局，徳島県：那賀川水系河川整備計画，平成 19 年 6 月（2007）
- 10) 牧野育代，矢作裕司，大井秀一：河川流域における平水時と出水時の流出成分特性に関する分析化学的考察，水工学論文集，**54**，1213-1218（2010）
- 11) 坂井文字，二瓶泰雄，江原圭介，他：江戸川・荒川・多摩川・中川における出水時栄養塩・COD 負荷特性，水工学論文集，**52**，1117-1122（2008）
- 12) 新井雅之，中山哲巖，足立久美子，他：鹿島灘・九十九里浜沿岸での一次生産に及ぼす利根川・那珂川の影響について，海岸工学論文集，**53**，1101-1105（2006）
- 13) 山田俊郎，清水達雄，井上隆信，他：降雨時における森林集水域からの水質成分負荷流出特性，環境工学研究論文集，**36**，217-224（1999）