長野工業高等専門学校紀要第 52 号(2018)　1-4

鳥居川流域を対象とした窒素化合物の季節・地域変化に関する検討

酒井美月＊1・阿部卓也＊2

Nonpoint pollution of surface waters with nitrogen
—Seasonal and Regional water quality change for Tori river and Chikuma river—

SAKAI mizuki and ABE takuya

The change of nitrogen concentration in Chikuma River and Torii River was analyzed two years. The concentration in both rivers changed due to land use of the catchment area and the seasonal. It is estimated the load from monthly data of river flow and survey concentration data. Total water flow rate changed due to snowfall, snow melt or increasing of summer rainfall has been confirmed that it effected the load of nitrogen in each river; especially nitrogen load was high from March to April and from July to August. According to the flowing down, nitrate (NO_3-N) and ammonia nitrogen (NH_4-N) with anthropogenic source was increased. Land uses of the catchment by GIS and nitrogen concentration have strong correlation between proportion of paddy fields and Total organic nitrogen, urban area and NO_3-N, respectively.

キーワード：河川水質，窒素化合物，非特定汚染源，GIS，土地利用情報

1．まえがき

わが国では高度経済成長に伴って工場や住宅からの排水により公共用水域の水環境は急激に悪化した．この状況を改善するべく水質汚濁の防止にかかわる様々な基準が制定され，徐々にその水質は改善されてきたが，湖沼，湾内といった閉鎖性水域での富栄養化はいまだ完全には解決していない．湖沼のこれら水域における汚染原因の一つに河川から流入する栄養塩類があり，河川水質の改善が課題となっている．河川水質はその流域の地形，気候，土地利用など様々な要因によって異なっており，地点ごとの状況に応じた水質調査，汚染の発生源との関係を明らかにすることが求められている．

河川水中の栄養塩類のひとつである窒素化合物はその発生源から，特定汚染源（点源）と非特定汚染源（面源）に分けられる．点源（工場等）からの窒素流出は法律による排出規制等により著しく改善されている[1]．一方面源からの汚染は広範囲にその事象が発生し，その実態把握や対策が困難であるという特質をもっている[2]．面源汚濁負荷の評価には一般に原単位法による算出が行われているが，その値は必ずしも実際の評価対象流域から得られたデータとは限らない．地形や地質，産業や土地利用状況，気温や降雨などの気象状況など河川を取り巻く環境は流域によってそれぞれ特徴を持ち異なっており，面源汚染の実態調査を全国展開し，データを蓄積することが求められている[3]．とくに長野県は山岳県であり，大半の河川流域が大河川の上流域に当たる．また農業が盛んな県であり，下流域への影響を考える上でも農耕地からの栄養塩類の溶出に関する知見を得る必要がある．また冬季には降雪があるため雪の中に含まれる大気由来の窒素化合物について，あるいは雪解け時期の河川水質に与える負荷についても検討の必要があるが，現状では十分な知見が得られているとは言いがたい．そこで本研究では長野県を源流とする信濃川上流域の千曲川，および長野県北部に位置し，千曲川の支流である鳥居川を対象に，河川水中及び冬季の大気降下物中の窒素化合物について調査を行い，調査対象地域における集水域の土地利用状況と併せて，水質の季節・地域変化および負荷量に関する検討を行った．

*1　環境都市工学科　准教授
*2　中部電力（平成 23 年度環境都市工学科卒）
原稿受付　2018 年 5 月 18 日

２．調査対象河川の概要

調査対象地域は千曲川本流および鳥居川とした．

千曲川は信濃川の長野県内での呼称である．長野県上水内郡村上村に位置する甲武信ヶ岳（標高2475m）に水源を発し，長野市で犀川と合流する．全長367kmの信濃川のうち，長野県内の千曲川の河川長は214kmである．千曲川流域には150万人を超える人々が生活しており，長野県の人口（約215万人）の約70%を占めている．山林をはじめ農地，市街地といった多様な土地利用が見られる．雨水は最上流部から信濃川河口まで流れ下るには平均約5日間を要するが, 流量が増加した場合は約20時間で流れ出る．

鳥居川は戸隠山奥社付近（標高約1270m）に水源を発し，信濃町，飯綱町（旧牟礼・三水村）を通り八蛇川をはじめとするいくつかの支流と合流したのち信濃川（千曲川）本流と合流する[4]．流路長は約34.4km，標高差は約940m，流域面積は約162km^{2}である．上流部の集水域は森林が大部分を占め，流下するに従い畑地や水田，果樹園などの農地が増加する．上流は積雪地帯であり，流量は冬場に減少し春先に雪解けとともに増加する傾向がみられる．

３．調査方法

３－１　試料採取地点と頻度

河川水採水地点は，千曲川本流にてAから9地点（図1 : 左図），鳥居川にて①から⑨までの9地点と合流後の千曲川の1地点（図1右図，鳥居川⑩は千曲川 H 地点と一致）とした．河川水質調査は2009年から2011年の2年間に実施した. 千曲川は1年間に夏季（7月），冬季（2月）1回ずつの延べ4回，鳥居川では月1回の延べ12回の採水を行った. 大気降下物および地下水の調査は鳥居川流域にて 2011年から2012年にかけて行い, 採取地点は各2地点(大気降下物Ⅰ・Ⅱ，地下水Ⅲ･Ⅳ)とした（図 2）．大気降下物はバルク試料(乾性降下物を含む)として屋外に常時開放型簡易雨水採取装置を設置し採取した．地点IIは高度が高いため期間中降雪を採取した．

３－２　分析対象物質と分析方法

水質調査は上水･下水試験方法に準じて行った. 基礎水質項目（pH，電気伝導度（EC)，溶存酸素（DO)）を採水時に現地にて測定し，河川水試料は容器にいれ密閉，低温にて運搬し，速やかに実験に供した．分析対象物質は形態別窒素濃度：全窒素（TN)，硝酸態（NO_3-N)，アンモニア態（NH_4-N）とし，有機体窒素　(TON）は上記測定結果から算出した

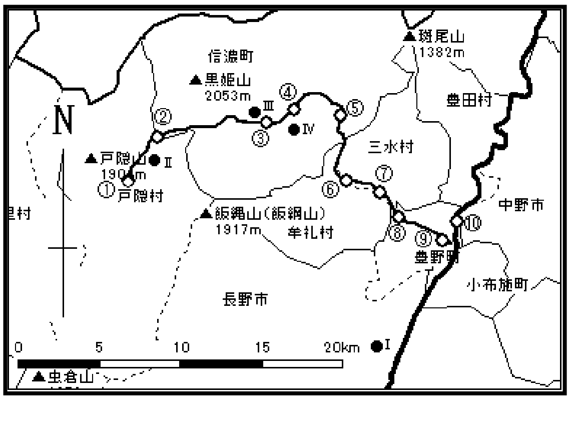
３－３　土地利用情報の把握

対象河川の採水地点上流集水域と土地利用情報をArcGIS ver.10（ESRI）とその拡張ソフトであるSpatial Analyst　(ESRI）を用いて求めた．国土地理院発行の数値地図25000に含まれる50m標高データを用いて仮想河川をつくり，これに実河川の情報を重ね，採水地点上流の集水域を抽出し，これに国土数値情報1/10細分区画土地利用データの情報を重ね，各地点の集水域の土地利用情報を得た．

３－４　河川流量の把握

水質分析から得られた濃度値に地点における流量を乗じて負荷量の推定を行うために，地点ごとの流量を調査した．千曲川における水質測定地点における河川流量は国土交通省水文水質データーベースより, 2002年～2009年の日平均流量の中央値を用いて各月についてもとめ，EからIの5地点について流

千曲川　A（川上村）からI（飯山市）の9地点



鳥居川　①から⑨の9地点および⑩（千曲川のH地点に一致）: 河川水　I，II : 大気降下物 III，IV : 地下水　を採取

図１　試料採取地点

量データを得た．鳥居川では長野県の千曲川水系水質調査結果より，1999～2010 の中央値を用いて月別に地点流量を計算した．上流の③，下流の⑨の 2 地点および千曲川本流の H（鳥居川⑩）の流量を得て，負荷量推計に用いた．

４．研究の成果

４－１　河川水の濃度と組成

千曲川（n=4），鳥居川（n=24）の各地点の平均窒素濃度を図 2，図 3 にそれぞれ示す．千曲川では TN の濃度範囲は 0.192-2.52mg/L で，調査期間中の平均値は 1.29mg/L であった．期間を通じて地点 C でもっとも高濃度を示していた．地点 A から B にかけては濃度および組成がほぼ変化せず，NO_3-N＝TON>>NH_4-N という組成であった．C 地点より下流ではとくに NO_3-N の占める割合が高く，その比率は C から I の 7 地点平均で 71.9%であった．TON は上流の A,B 地点では 43%, 46%を占めていたが，C 地点以降では NO_3-N の増加に伴い，12-30%を示した．

鳥居川では，TN 平均値は上流部（①-④）0.195mg/L 下流部（⑤-⑨）0.776mg/L，千曲川合流後（⑩）1.48mg/L であった．どの形態の濃度も最下流部で千曲川本流⑩より低濃度であった．上流部の平均 NO_3-N 濃度は 0.086mg/L で，全国渓流水中の平均値（0.36mg/L）[5] よりも低かった．濃度の流下に伴う変化では，①から④の上流部で通年において濃度が減少する様子が見られた．地点①周辺が平らな湿地となっており，流下するにしたがい黒姫山南山麓と飯縄山北山麓からの流入水によって流量が増加し希釈されることによると考えられる．この区間における TN の組成は TON≧NO_3-N >>NH_4-N であった．⑤の地点で濃度は急上昇し，その後穏やかに増加しながら流下，千曲川に合流した．全区間での TN 組成は上流部では TON≧NO_3-N で地点⑤以降は NO_3-N＞TON となり，NH_4-N はどの地点でも 10%前後の値であった．濃度の急激な上昇，組成の変化から上流と下流では窒素化合物の排出源が異なる，あるいは水質への排出源からの応答が集水域の規模から速いことが示唆された．

４－２　濃度と流量の季節変化

千曲川において，地点 A から B ではその濃度および組成に季節変化は確認されなかった．地点 C と D では冬季に TN 濃度が高く，夏季には低くなった．組成をみると TON および NO_3-N は冬季よりも夏季のほうが低く，NH_4-N は夏季のほうが高くなった．千曲川上流域では周辺に農地が広がっており，C 地

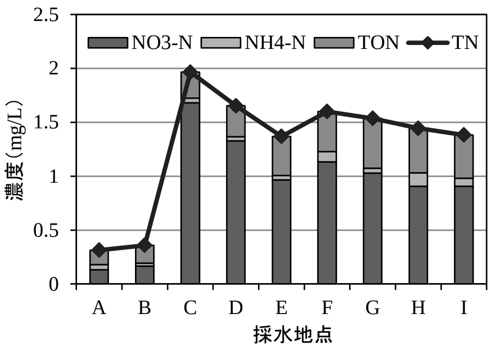


図 2　千曲川の形態別窒素濃度測定結果

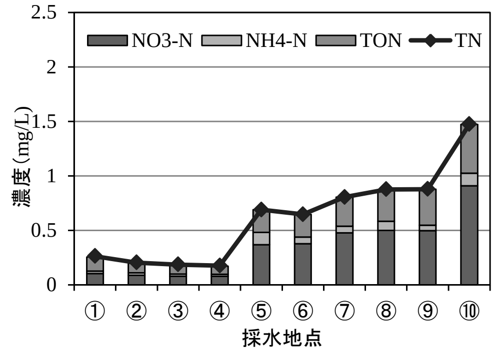


図 3　鳥居川の形態別窒素濃度測定結果

点での濃度上昇はこの農地からの影響を反映している可能性がある．地点 E から G にかけて，TN 濃度は冬季と夏季で変化が少ないが，組成をみると NO_3-N 割合が冬季よりも夏季のほうが高い値を示した．　地点 H から I にかけて，TN 濃度は冬季のほうが夏季よりも高い値を示し，冬季は TON の割合が高くなっていた．

流量観測が行われている地点（E～I）における流量を確認したところ（図 4）流量は流下に伴い増加し，特に犀川と合流した後の H および I で流量が増大しているが，F 地点以降の各地点での月別流量は類似の傾向を示すことが確認された．雪解けの影響が考えられる 4 月から 5 月に流量が増加し，その後夏季の降雨の影響によりもっとも降水量の多い 7 月に増加する．調査を行った 2 月および 7 月は，千曲川における流量最小・最大の時期に一致していることが確認された．

鳥居川について，調査期間の 1 年目と 2 年目の結果を上流部と下流部で平均した TN 濃度として図 5 に示す．図には合わせて③，⑨の地点での流量結果を示した．上下流共に通年の結果はおおむね一致しており，下流部で 2 月，3 月に高濃度になり 4 月に急激に降下する様子が両年ともにはっきりと現れた．③，⑨の両地点で，4 月に流量が増大している．信

濃町は年間の合計降雪深が 800cm にもなる豪雪地帯であり，その雪解け水によって 4 月に流量が急増するものと考えられる．これにより希釈効果が働き，4 月に濃度が減少していると考えられる．下流部では 4 月と 7 月に同程度の流量の増加が見られるが，7 月の濃度減少は小さく 4 月の濃度減少のほうが大きかった．これは 2 月，3 月に高濃度になる原因が流量だけではないことを示唆している．

４－３　負荷量推定

流量データのある地点において，濃度と流量，日数の積から月間の窒素負荷量（tN/month）を推算した．

千曲川への負荷量計算では 4 地点を対象にそれぞれの採水時期の流量を用いてその時期の負荷量を推定した(図 6)．どの地点においても夏季に負荷量が増加し，またその支配要因は NO_3-N であることが確認された．TON は冬季と夏季であまり差が見られなかった．濃度結果では夏季の結果が低くなっていたが，夏季の農繁期に併せ流量も増加しているために希釈効果が働いていたためと考えられる．負荷量による確認で，夏季（7 月）の負荷量が冬季より大きく，農繁期を含む活動のある夏季の河川への窒素溶出が大きいことが示唆された．

鳥居川においては，上流部（地点③），下流部（地点⑨）ともに年間に 2 回のピークが有り，春先の 4 月と，夏季の 7 月 8 月頃に負荷量が大きくなっていた．千曲川合流直前となる最下流部の地点⑨の結果を図 7 に示す．NO_3-N については夏場より春先のほうが負荷量が大きいことが分かった．千曲川本流と同様，濃度結果（図 5）では 4 月には特に下流部で 1 年目，2 年目ともに減少が見られたが，これは流量が増加したことによる希釈効果によるもので，負荷量で確認した場合，春先には増加することが確認された．また特にこの時期の負荷量上昇には NO_3-N の影響が大きいことが確認された．千曲川に対する鳥居川の TN 負荷量割合は 2.2%であった．

４－４　集水域の土地利用状況および水質との関係

GIS を用いて求めた採水地点ごとの集水域の面積とその利用方法別の割合（土地利用割合）を表 1，表 2 に示す．

千曲川において源流から，各土地利用が集水域に占める割合をみると，地点 A,B の集水面積は小さくその大半は森林で，地点 C では畑地の割合が若干上昇する．地点 D から F にかけて水田と市街地が増加した．地点 H で犀川と合流することにより集水域面積が倍以上となった．また地点 F から I にかけては土地利用の構成はほぼ等しかった．土地利用割合と

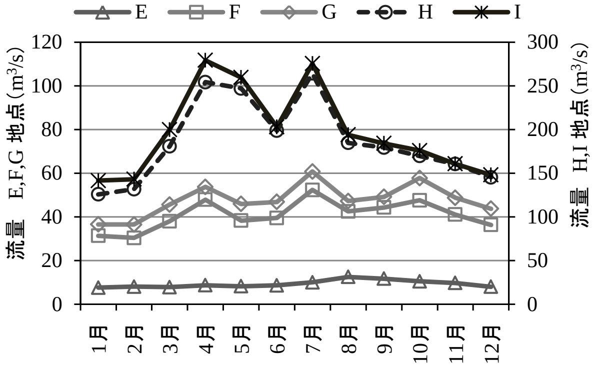


図 4　千曲川の流量の月別変化

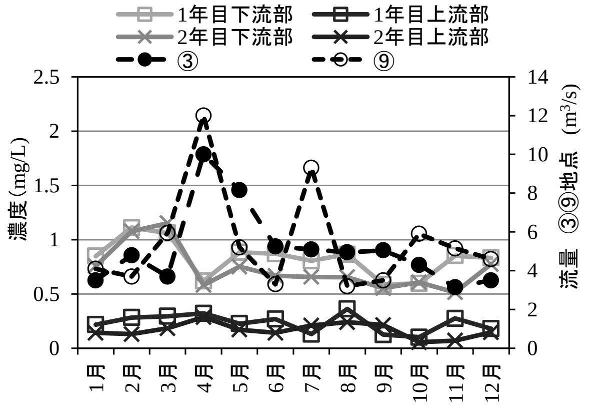


図 5　鳥居川における濃度と流量の季節変化

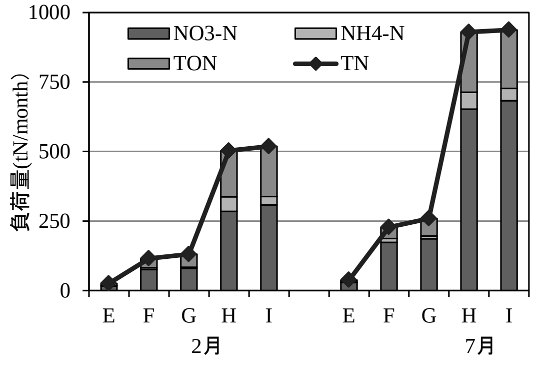


図 6　千曲川における季節別負荷量推定結果

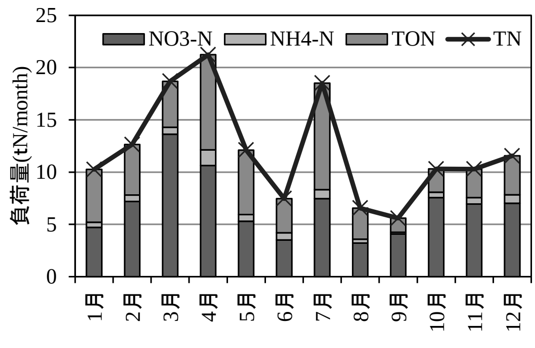


図 7　鳥居川における季節別負荷量推定結果

窒素の関係を形態別に相関係数を求め明らかにした（図 8）．千曲川では TON が最も土地利用割合と相関が強く，全流域においては森林と強い負の相関が

表 1　千曲川の地点別土地利用割合と集水面積

地点	水田	畑地	市街地	森林	その他	集水面積
	割合(%)					(km²)
A	0.00	2.87	0.00	95.6	1.530	20.4
B	0.00	4.08	0.04	93.6	2.247	33.4
C	0.31	7.02	0.43	85.7	6.495	156
D	1.15	10.07	0.83	81.1	6.822	525
E	5.92	8.51	3.25	73.9	8.452	1201
F	7.71	9.96	3.87	70.7	7.732	2045
G	7.92	9.48	5.11	69.5	7.960	2604
H	7.94	8.14	5.72	70.7	7.473	6546
I	8.16	8.44	5.70	70.2	7.486	6846

表 2　鳥居川の地点別土地利用割合と集水面積

地点	水田	畑地	市街地	森林	その他	集水面積
	割合(%)					(km²)
①	0.00	0.00	0.314	83.4	32.5	3.19
②	0.00	0.00	0.108	79.8	40.2	19.1
③	0.00	0.95	0.055	88.8	20.4	49.1
④	0.79	1.50	0.18	87.5	20.0	50.1
⑤	9.44	5.76	3.26	73.6	15.8	94.8
⑥	9.49	5.71	3.19	74.0	15.2	99.8
⑦	12.1	7.83	3.86	67.9	16.5	141
⑧	12.1	8.53	4.20	66.5	17.3	149
⑨	12.6	9.89	4.35	64.9	16.7	156

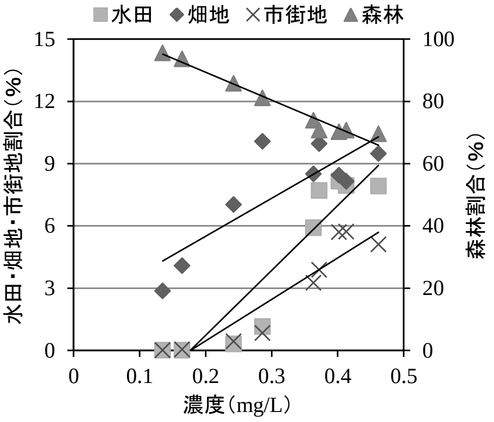


図 8　千曲川流域の土地利用割合と TN の関係

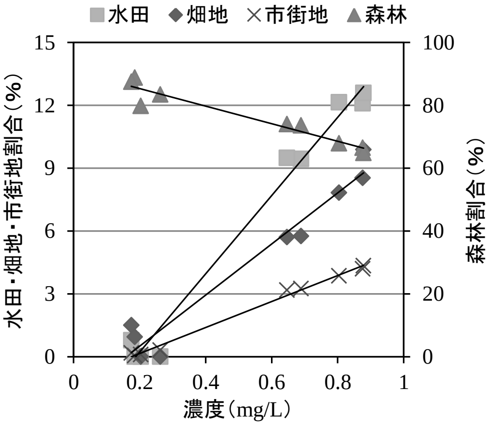


図 9　鳥居川流域の土地利用割合と TN の関係

見られた．千曲川は下流では集水域が広大になるため，窒素の形態変化や流量の増加などにより土地利用との関係が明らかに表れにくくなると考え，常流の地点 A～D についてのみの相関を確認したところ，全域の結果より土地利用と強い相関が確認された．特に畑地と森林について相関が強く，畑地，市街地，森林ともに危険率 p が 0.001 を下回った．正の相関をもつ畑地や水田，市街地からは有機体窒素が供給され，森林地域は供給源よりも窒素蓄積に働く可能性が示唆された．

鳥居川の源流から集水域の土地利用を見ると，上流域では森林がその大部分を占め，その他の割合も大きい．これは地点②付近に位置する戸隠牧場や戸隠スキー場などによる．地点③から④にかけては狭窄部となっており集水域がほぼ変わっておらず，地点⑤で信濃町の農耕地を大きく流域に含むようになる．ここで窒素濃度が急上昇したのは，水田，畑，市街地といった人為的な土地が一挙に増えたためと考えられる．⑥では森林がわずかに増えるものの組成は⑤とほぼ変わらず，濃度が横ばいとなっているのはこれを反映しているためと考えられる．地点⑦で旧牟礼村を集水域に含む．果樹の生産が盛んな旧三水村は地点⑧および⑨でわずかに含む程度であまり集水域には入っていないことが分かった．以上から鳥居川では窒素の供給源が上流では森林，下流では農地や市街地に由来する事が示唆された．各形態の窒素と土地利用割合の検討を行った．結果の相関を図 9 に示す. 各土地利用割合と NO_3-N および TON の結果は図の TN と類似で総じて良い相関を示した ($p<0.001$)．一方で NH_4-N ではばらつきが大きかった($p<0.05$)．NH_4-N のように環境中での形態変化の速度が速く，顕著な物質には発生源の情報をすぐに反映することが出来ない検討方法では表現が出来ず，さらなる検討が必要であることが示唆された．

４－５　大気降下物及び地下水

豪雪地帯である対象地域では春に融雪による流量増加がみられる．積雪は流量増加という季節変化をもたらすだけではなく，それ自体が窒素負荷をもたらしていると言える．河川水への影響は，大気降下物から直接あるいは土地を経て間接的起こると考えられ，土地に供給された窒素は地下水へも影響していると考えられる[6)]. 市街地における大気降下物 (I) 森林部における積雪（II）および上流域に位置する井戸の地下水（III，IV）の結果を図 10 に示す.

地点 I における大気降下物の平均 TN 濃度(n=4)は 1.680mg/L，平均 NH_4-N 濃度は 0.595mg/L であり，河川水より高濃度となった．濃度のばらつきは大きいが，NH_4-N 組成割合は全期間においてほぼ等しく 35%であり，河川水と比較して高比率であった．地点Ⅱにおける積雪の平均 TN 濃度(n=7)は 0.269mg/L, 平均 NH_4-N 濃度は 0.053mg/L であった. NH_4-N 組成

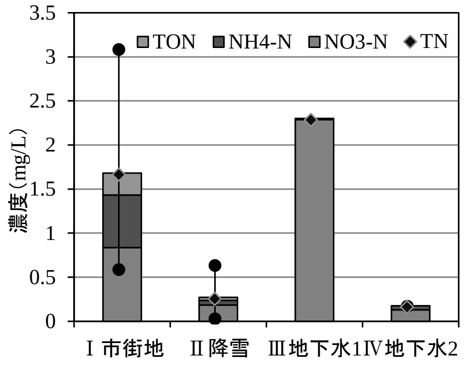


図 10　大気降下物・降雪・地下水の調査結果

（バーは TN の最大、最小、平均を表す）

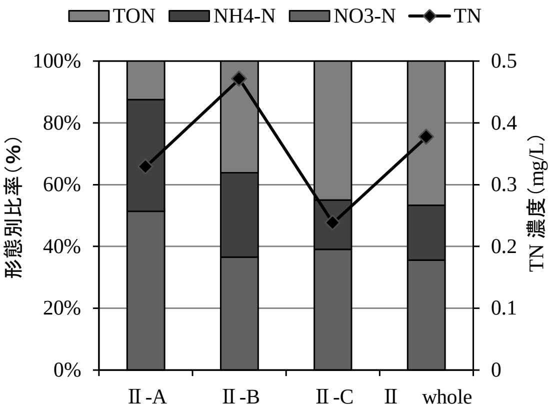


図 11　降雪の縦方向における濃度変化

（表層 A より 1 層 20cm、積雪深 60cm）

割合は全期間においてほぼ等しく 20%であり，河川水にくらべ高比率でⅠとⅡの結果で共通した．地下水試料である地点Ⅲの TN 濃度は 2.3（mg/L）で河川水と比べて高く，その 99%が NO_3-N であった．地点Ⅳでは試料Ⅳ-1 とⅣ-2 で TN 濃度はほぼ等しく，こちらもその大部分を NO_3-N が占めていた．地下水には浸透可能な形態の窒素多くなるため，TON は含まれず，NO_3-N と NH_4-N によって構成されていた．積雪の深さ方向のデータでは振ってからの時間経過の大きい下層試料で TON 濃度が降雪より高くなると言う結果が得られた（図 11）．NO_3-N など移動性の高い形態の窒素化合物が、積雪から下層，土壌へ移行している可能性が示唆される．地下水の 2 地点は直線距離にして 1.5 ㎞も離れていないにもかかわらず性状は大きく異なっていた．牧場や水田等に囲まれた地点Ⅳより山際に位置するⅢの濃度が高く，山への降雪が融雪し地下浸透し湧水となっている地点で濃度を高くしている可能性がある．地下水の挙動を明らかにするためには地質や水脈等の調査も必要であるといえる．

5．あ と が き

本研究において得られた結果は以下である．

・千曲川，鳥居川における窒素濃度の形態別変化を確認したところ，両河川において濃度は季節変化を示し流下に伴い集水域，あるいは大気降下物の影響を受け濃度が上昇していた．

・河川流量について調査データより月別の推計値を得て，濃度データに併せ負荷量の推算を行ったところ，降雪・融雪，あるいは夏季の雨量増加による流量変化が確認され，負荷量もその影響を受けていた．特に 3 月から 4 月にかけての雪解け時期，および 7 月から 8 月にかけての雨量の増加により，河川水中の窒素負荷が増大していることが確認された．

・流下に従い人為起源を持つ硝酸態，アンモニア態窒素の増加がみられ，GIS による集水域の面積および土地利用割合と濃度の相関を確認したところ，水田･畑地･市街地の割合と NO_3-N･TON の間につよい相関がみられ特に TON と畑地との相関が強かった．

･市街地，および森林域における大気降下物，降雪，積雪の分析結果から，積雪では根雪になるに従い TON の比率が大きくなり，春先の雪解け時に河川水中の負荷が増大する結果と一致した．

河川水中の窒素化合物は，周辺の土地利用に伴い供給される窒素源と，土地に蓄積されていた大気由来の窒素の双方により構成されているものと考えられる．とくに本県においては積雪の影響が春先の窒素負荷量の増大に影響を与えていることが確認されたため，降雪および積雪中の窒素化合物の形態とその河川への影響についてさらなる検討の必要がある．

参 考 文 献

1) 國松孝男，村岡治爾：河川汚濁のモデル解析　技報堂出版，1989

2) 国土交通省・農林水産省・環境省，湖沼水質のための流域対策の基本的考え方～非特定汚染源からの負荷対策～，2006

3) 吉田正則，藤原伸介：水田､飼料畑､茶園､埋立処分地からなる中山間流域の窒素・リン・COD の負荷特性　日本土壌肥料学雑誌　72，2001

4) 松岡保正，内山秀一：鳥居川と 33 用水の流域診断，1997

5) 木平英一，新藤純子ら：わが国の渓流水質の広域調査　日本水文科学会誌 36，2006

6) 財団法人河川環境管理財団「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