

VI 研究報告・調査報告

1 湖沼環境研究室

(研究報告)

1-1	霞ヶ浦（西浦）におけるユレモ目 <i>Planktothrix suspensa</i> の季節変動と 水平・鉛直分布……………	33
1-2	¹³ Cトレーサーを用いた植物プランクトン生産物の分解過程の解析 ；夏季と秋季の比較……………	41
1-3	北浦底泥における脱窒活性の分布の特徴……………	48
1-4	北浦におけるリンの低減化に関する研究……………	52
1-5	ハス田から流出する汚濁負荷削減のための調査研究……………	57
1-6	降雨時における湖沼流入3河川の汚濁負荷流出特性……………	65

(調査報告)

1-7	農業排水再生プロジェクト事業……………	75
1-8	霞ヶ浦北浦水際等浄化共同事業……………	79
1-9	霞ヶ浦湖内水質モニタリング調査事業……………	82
1-10	湖沼の水質保全に関する調査研究事業……………	84
1-11	牛久沼の水質保全に関する調査事業……………	89
1-12	水環境化学物質調査事業……………	93

2 大気・化学物質研究室

(研究報告)

2-1	微小粒子状物質（PM2.5）の地域特性に関する研究……………	94
2-2	茨城県における浮遊粒子状物質（SPM）の総合解析……………	99

(調査報告)

2-3	PM2.5 と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究……………	106
2-4	有害大気汚染物質調査事業……………	108
2-5	大気環境中のフロン濃度調査事業……………	112
2-6	大気環境中のPRTR対象化学物質調査事業……………	115
2-7	酸性雨の実態把握調査事業……………	118
2-8	大気環境中の石綿調査事業……………	120
2-9	百里飛行場周辺地域における航空機騒音実態調査事業……………	121
2-10	成田国際空港航空機騒音実態調査事業……………	123
2-11	化学物質環境実態調査事業……………	126
2-12	公害事案等処理対策調査事業……………	128

1-1 霞ヶ浦（西浦）におけるユレモ目 *Planktothrix suspensa* の 季節変動と水平・鉛直分布

中村剛也, 花町優次, 北村立実

Seasonal and Vertical Changes of phytoplankton in Lake Kasumigaura (Nishiura)
Koya NAKAMURA, Yuji Hanamachi, Tatsumi Kitamura

キーワード：植物プランクトン, *Planktothrix suspensa*, 栄養塩, 光環境, 光合成

1. はじめに

霞ヶ浦（西浦）の藍藻は、2007年以降の夏季に *Microcystis* が優占する状況から通年ユレモ目の藍藻が優占する状況に遷移し、植物プランクトン現存量に対する割合も大きくなってきている。

霞ヶ浦において出現するユレモ目の藍藻はフォルミディウム科4属5種およびプセウドアナバナ科5属10種に分類され、それぞれ *Planktothrix suspensa*, *Pseudanabaena galeata* が、高い優占度を示していた¹⁾。一般的にユレモ目の藍藻は、アオコを形成する *Microcystis* や *Anabaena* のように表層に集積することではなく、弱光環境の深層でしばしば極大を示すことが知られている^{2), 3)}。したがって、ユレモ目の優占は栄養塩に加えて、光環境等の影響も強く受けている可能性がある。

一般的に、富栄養湖では植物プランクトンのもつクロロフィル (Chl) によって青色と赤色の波長の光が消費される⁴⁾。藍藻はフィコビリタンパク (フィコシアニン, フィコエリスリン, アロフィコシアニン) と呼ばれる補助色素をもつために、通常植物プランクトンが利用できない緑色からオレンジ色 (550nm から 650nm) の光を用いて光合成を行うことが可能である⁵⁾。したがって、霞ヶ浦における植物プランクトン群集 (特にユレモ目) の制御要因の解析には光環境の質的な変動も考慮する必要がある。

光環境は水深によって急激に減衰するため、光環境の影響を受けて植物プランクトンの群集構造も大きく変化する可能性があるが、近年霞ヶ浦において植物プランクトンの群集構造の鉛直分布に関する知見はほとんど見られない。本研究では、植物プランクトン群集の鉛直的な分布を把握する調査を実施し、植物プランクトンと同時に物理化学的要因を測定することによ

って植物プランクトンの分布に影響を及ぼす要因について検証した。また、表層・下層水における植物プランクトン群集の生理的な活性に差があるのかを調査するために、光合成速度を測定し、霞ヶ浦における植物プランクトン群集構造を把握することとした。

2. 方法

2.1 霞ヶ浦における植物プランクトン現存量・光環境の季節変動と鉛直分布

2010年4月から霞ヶ浦（西浦）湖心 (36° 02' 16" N, 140° 24' 15" E, 水深約 7m: Fig.1, St.1) および大岩田沖 (36° 04' 172" N, 140° 13' 559" E, 水深約 3m: Fig.1, St.2) において植物プランクトン現存量や栄養塩 (DIN, DIP), 水温などの環境条件を測定した。また、夏季からは鉛直分布を明らかにするため、一定の水深間隔で湖水を採取した。加えて、光環境を把握するため4波長放射照度計 (OCR-504, Satlantic) を用いて、Chl.a およびフィコエリスリンの吸収極大となる 442, 554, 566, 671nm の放射照度を測定した。

2.2 表層・下層における植物プランクトン群集の光合成速度の測定

2011年2月24日に Fig.1, St.3 に示した内水面試験場の棧橋 (36° 05' 55" N, 140° 24' 01" E, 水深 4.3m) において表層水と下層水 (水深 4m) の湖水を用いて様々な水深に酸素ビンをつるし、水深によって光環境を変化させて光合成速度を測定した。

試水を酸素瓶に封入し、全光束 (PAR) の相対照度が約 100%, 25%, 10%, 1% となる水深にそれぞれ正午から午後4時までの4時間培養を行った。培養後、ウインクラー法によって溶存酸素を定量し、培養前の濃度との比較によって酸素生産速度を算出した。

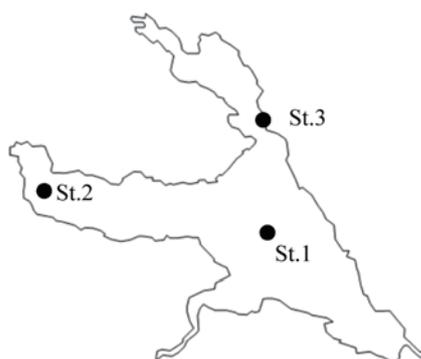


Fig.1 調査地点の概要 (St.1: 湖心, St.2: 大岩田沖, St.3: 茨城県水産試験場内水面支場棧橋).

3. 結果

3.1. 霞ヶ浦 (湖心) における植物プランクトン現存量の季節変動

2008年からの湖心における植物プランクトン現存量および組成を Fig.2 に示す。植物プランクトンは、種によって細胞の生体積量が大きく異なるために、細胞数では生体積量は細胞内に保有している Chl.a, 炭素量や窒素量といった植物プランクトンの細胞内要素と対応が困難になる場合がある。生体積量はこれらの細胞内要素によく対応することが知られている⁶⁾。したがって、本研究では生体積量 ($\text{mm}^3 \text{L}^{-1}$) で現存量を表した。

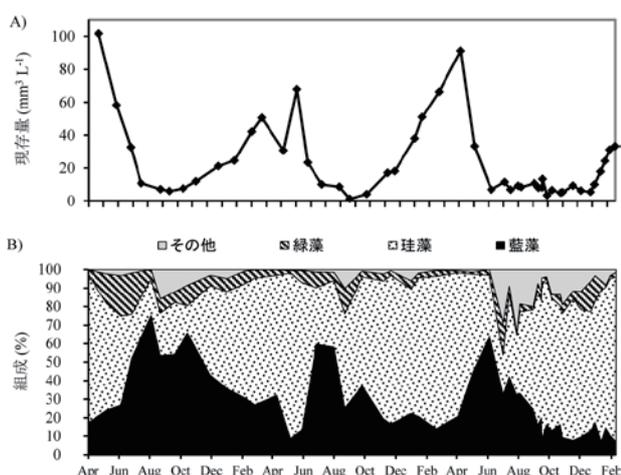


Fig.2 湖心における 2008 年以降の植物プランクトン現存量および組成 (過去のデータは霞ヶ浦環境科学センターのモニタリングデータを参照)

植物プランクトン現存量は冬季から春季にかけて極大を示す傾向にあった。組成はほとんどが藍藻と珪藻で構成され、藍藻は大部分がユレモ目であり、その他は夏季に *Microcystis* が僅かに出現する程度であった。珪藻は春季を除いて *Aulacoseira* が高い優占度を示していた。

ユレモ目の現存量は、アオコを形成する浮遊性藍藻のように夏季に極大となるわけではなく、年間を通じて出現し

た。ユレモ目では、*Pse. galeata* が夏季に優占し、夏季を除いた期間は *Pla. suspensa* が優占した。

3.2. 霞ヶ浦の湖心・大岩田沖におけるユレモ目藍藻 *Planktothrix suspensa* 現存量および光環境の鉛直分布

霞ヶ浦は夏季に日成層が形成されることがあるが、頻りに鉛直混合が起きている湖沼である。湖心において水温や溶存酸素等の物理化学的な要因の鉛直分布はほぼ均一であった。また、DIN, DIP などの栄養塩の鉛直分布もほぼ濃度差は見られなかった (Fig.3B and C)。

湖心において通年で出現するユレモ目藍藻 *Pla. suspensa* および *Aulacoseira* の鉛直分布を Fig.4 に示す。湖心において *Pla. suspensa* が常に確認され、現存量は $0.05 \sim 3.26 \text{ mm}^3 \text{L}^{-1}$ で変動した (Fig.4A)。 *Pla. suspensa* は深層においても現存量を維持していた。

霞ヶ浦の光環境は水深にしたがって大きく減衰した。特に、波長 442nm の光が最も早く減衰し、次に 672nm の光が減衰した。また、波長 554, 566nm の光は同程度の減衰傾向を示し、波長 442, 671nm の光より深い水深まで到達した (Fig.5)。

大岩田沖 (St.2) における *Pla. suspensa* 現存量の鉛直分布を Fig.6 に示す。大岩田沖では夏季に *Pla. suspensa* が確認されず、出現したのは 11 月以降であった。また、最大 $1.58 \text{ mm}^3 \text{L}^{-1}$ であり、湖心と比較すると低い現存量であった。大岩田沖の各波長光は湖心と同様に 442nm, 672nm, 554nm, 566nm の順で減衰するが、それぞれ光消散係数 K_d を比較すると、大岩田沖の値が約 1.5 倍以上高い傾向にあった (Table 1)。

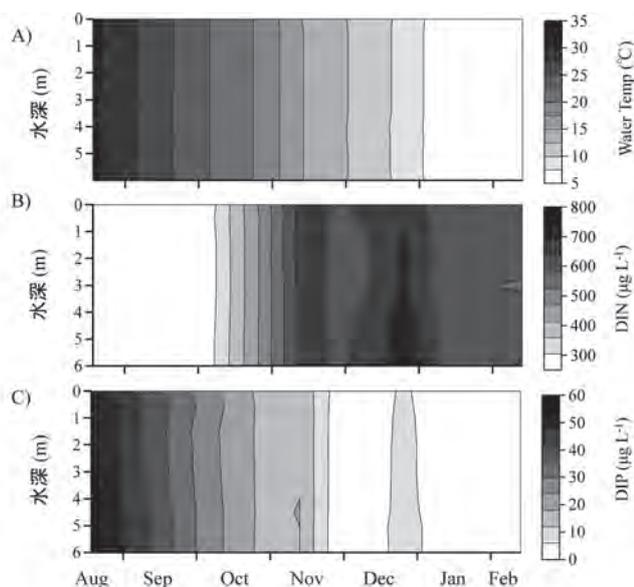


Fig.3 霞ヶ浦(湖心)における水温, 栄養塩(DIN, DIP)の鉛直分布. A): 水温, B): DIN, C): DIP.

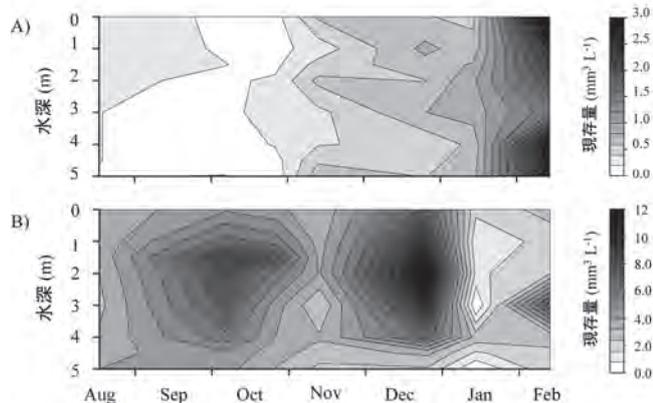


Fig.4 湖心(St.1)における *Planktothrix suspensa* および *Aulacoseira* 現存量の鉛直分布.

3.3. 表層・下層における植物プランクトン群集の光合成

St.3における2月の植物プランクトン群集は羽状目珪藻の *Synedra acus*, *Nitzschia acicularis* およびユレモ目 *Pla. suspensa*, *Pse. galeata* が高い現存量を示した (Fig.7)。各水深の湖水における植物プランクトン現存量はそれぞれ $8.46 \text{ mm}^3 \text{ L}^{-1}$, $6.41 \text{ mm}^3 \text{ L}^{-1}$ であり、0mの現存量が高い傾向であった。4mではほとんどの種の現存量は減少する傾向であったが、*Pla.*

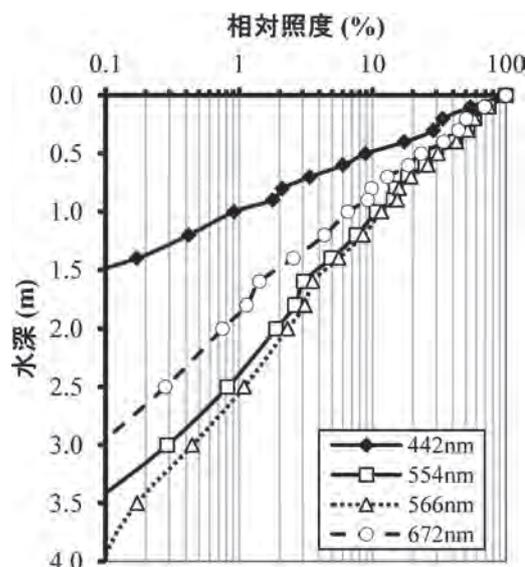


Fig.5 2010年10月26日, 湖心における光環境の鉛直分布 (◆ 442nm, □ 554nm, △ 566nm, ○ 672nm)

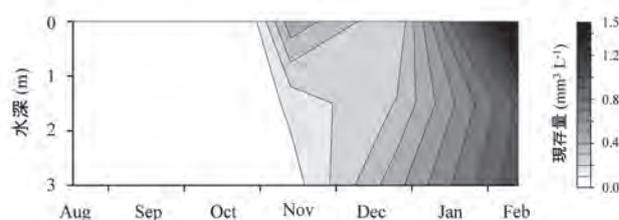


Fig.6 大岩田沖(St.2)における *Planktothrix suspensa* 現存量の鉛直分布.

Table 1 湖心と大岩田沖における光消散係数の比較(2011年11月25日測定).

St.	K_d			
	441.8nm	553.5nm	566.0nm	671.5nm
湖心	4.17	1.86	1.52	1.91
大岩田沖	6.37	3.00	2.56	2.87

suspensa は2倍増加し、優占度を上げていた。

表層(0m)および深層(4m)の光合成速度を Fig.8 に示す。本実験では実験開始時における PAR は $2.69 \sim 328 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ であり、各処理区における実際の光量子量(相対照度)は $328 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ (100%), $77.8 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ (23.7%), $33.9 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ (10.3%), $5.94 \mu\text{mol m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ (1.81%) であった。

この光環境において、4mの植物プランクトン群集の光合成速度が0mの群集を上回る傾向を

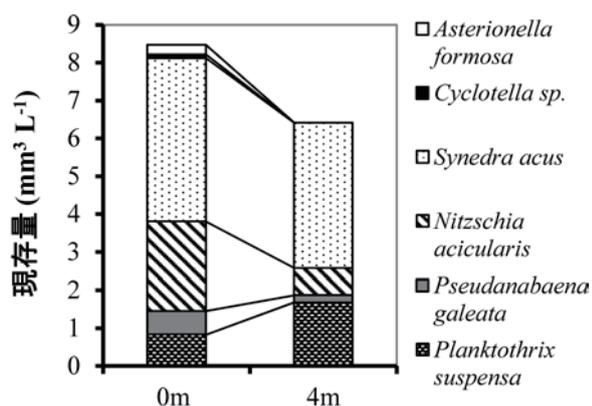


Fig.7 表層(0m), 深層(4m)における植物プランクトンの現存量

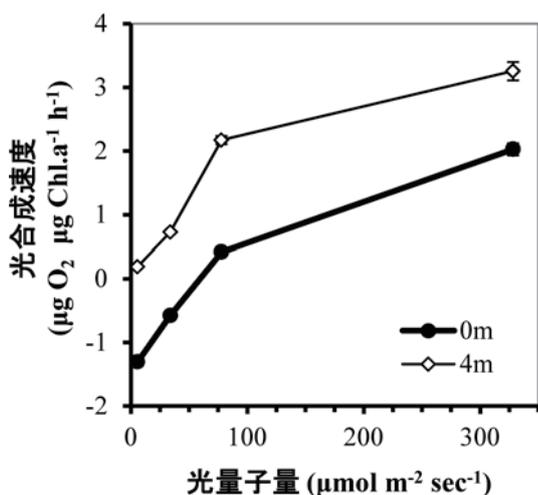


Fig.8 St.3(2011年2月24日)における植物プランクトン群集の光合成速度(◆0m, ◇4m)

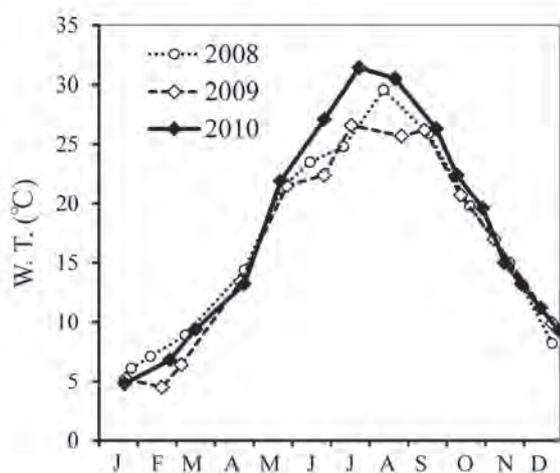


Fig.9 湖心における水温の季節変動(◆2010年, ◇2009年, ○2008年, 霞ヶ浦環境科学センターのモニタリングデータを参照)

Table 2 試験時における環境条件等の測定結果

	0m	4m
Water Temp. (°C)	8.0	6.8
pH	8.71	8.32
DO (mg L ⁻¹)	7.95	7.37
TN (µg L ⁻¹)	2382	1931
PON (µg L ⁻¹)	324	324
DIN (µg L ⁻¹)	1212	1179
TP (µg L ⁻¹)	47	50.1
POP (µg L ⁻¹)	37	39.4
DIP (µg L ⁻¹)	1.7	1.7
Chl.a (µg L ⁻¹)	41.0	36.6
Pheo色素	2.1	14.7

示した。また、 $100\mu\text{mol m}^{-2} \text{sec}^{-1}$ 以下における4mの光合成速度は0mと比較して立ち上がり勾配が大きかった。

試験時における St.3 の環境条件等の測定結果を Table 2 に示す。試験時において各水深では4mの水温が低い傾向を示した。溶存態の栄養塩は水深によって大きく変動することはなかった。Chl.aは4mの植物プランクトン現存量と同様に4mが低く、フェオ色素は高い傾向であった。

4. 考察

4.1. 霞ヶ浦湖心のプランクトン群集構造に対する環境要因の影響

ユレモ目の藍藻は珪藻と同様に、春季に増殖する傾向であり、夏季には現存量を低下させる。鉾碕ら⁷⁾は *Pla. suspensa* と近縁の *Pla. agardhii* を用いて水温を変動させて培養を行ったところ、水温の上昇と共に増殖速度は高くなるものの現存量は高水温域では低下することが示されている。2010年の霞ヶ浦は30°C以上に水温が維持されており、過去2年と比較しても高い水温が夏季に維持されていた (Fig.9)。本湖沼において優占する *Pla. suspensa* は水温が最適水温外であったために現存量の低下が起きたものと示唆される。一方、*Pse. galeata* は高水温に適応していることが指摘されており、高水温の維持によって減少した *Pla. suspensa* のニッチをうめたものと示唆される。

Reynolds⁶⁾によれば、霞ヶ浦で優占する植物プランクトンの多く(特に *Planktothrix* や *Pseudanabaena*)がエネルギー制限を強く受けている環境において優占することが示されている。また、Oliver & Ganf⁸⁾も藍藻内におけるユレモ目の優占には光環境が大きく関わっていることが述べられている。すなわち、ユレモ目の優占を誘導する要因として、光環境が大きく関与している可能性がある。*Pla. suspensa*は *Aulacoseira*と異なり有光層内で極大を示すわけではなく、ほぼ全ての水深で現存量を維持していた。また、時には深層において極大を示す傾向があった。*Planktothrix*は中層以深に局在することが知られている。Watanabe⁹⁾は中沼の夏季に出現する *Pla. mougeotii*が水温成層付近に顕著な集積を起こし、約11日で1分裂の速度で群集が維持されたと報告している。これは、*Planktothrix*が細胞内のガス胞を調節して自らその水深に集積していることが明らかとなっている^{10), 11)}。すなわち、*Planktothrix*は他の植物プランクトンが増殖できないような弱い光環境においても増殖することができる可能性がある。しかたがって、急激な光環境の減衰が起きる霞ヶ浦において、*Pla. suspensa*は他の植物プランクトンより多くの生産層をもつことによって現存量を維持しているものと示唆される。

一般的に、水自身の吸収によって長波長域が減衰し、水中に溶存する無機・有機物の吸収や懸濁粒子の散乱によって短波長域が減衰する。また、植物プランクトンのもつChl.aなどの色素による吸収の影響も大きい。霞ヶ浦において光強度の急激な減衰は波長によって異なる傾向を示した。442nm, 672nmの減衰は植物プランクトンや粒子散乱によって、3m以浅で相対照度が0.1%となった。*Aulacoseira*や *Nitzschia*などの珪藻は光合成を行う色素として、Chl.a, cやカロチノイドをもつ。また、藍藻はChl.aやカロチノイドの他にフィコビリタンパクをもつ。フィコビリタンパクには、それぞれ544~568nm, 612~645nmに吸収帯をもつフィコエリスリンとフィコシアニンがあり、これらの波長光を光合成のエネルギー源として利用することができる。霞ヶ浦では、554nm, 566nmの

波長光は442nm, 672nmの波長光と比較して深層に到達することが示されており、これらの波長光が利用できる *Pla. suspensa*は広い生産層をもつ可能性がある。

*Pla. suspensa*は珪藻が現存量を低下させている水深において現存量が増加させていた。深層の植物プランクトン群集は光合成速度も表層とは異なる傾向を示した。深層の群集は弱光環境においても光合成によって現存量を維持できる可能性が推測できる。以上のことから、霞ヶ浦の植物プランクトン群集は水深による光環境の変動によって異なる群集構造をもち、棲み分けを行っている可能性が示唆された。

4.2. 霞ヶ浦の *Planktothrix suspensa* の地域的な変動

霞ヶ浦は複数の肢節部があり(土浦入, 高浜入部など)、本研究における調査地点の湖心と大岩田沖はそれぞれ、湖央部の中心, 土浦入奥部に位置している(Fig.1)。したがって、水深の他に様々な環境要因が異なる傾向を示した。その一例として、各地点における表層のDIN濃度の変動をFig.10に示す。大岩田沖はDINが湖心と比較して2倍近い濃度を示していた。これは、流入河川による窒素外部負荷の影響を受けているためであり、大岩田沖はDIN/DIP比も高いまま維持されることとなった。これらの流入河川からの外部負荷の影響によってDINが供給されているためであると示唆される。一般的に、藍藻は細胞内のN/P比が低いとされている。実際、過去の霞ヶ浦において、*Microcystis*や *Pla. agardhii*が優占時のTN/TP比はそれぞれ4.1, 12.0と低い値であった¹²⁾。また、本間^{13), 14)}によって霞ヶ浦におけるユレモ目の優占が光環境の変化と窒素制限によって支配されていることが指摘されている。したがって、流入河川から窒素が供給され、高いN/P比が維持されている大岩田沖では、*Pla. suspensa*が他の種に比べ増殖を維持できなかったものと考えられる。

また、大岩田沖などの沿岸部は底泥の巻き上げや流入河川などによって供給されている無機態の懸濁物が供給されやすい。懸濁物質における有機態の割合は湖心: 58.0 ± 8.70 (S.D.) %で

あるのに対して、大岩田大岩田沖は 36.0 ± 8.07 (S.D.) % であり、大岩田沖の懸濁態物質は無機態のものが多い傾向であった。沿岸部において、光環境の減衰に大きく寄与し、植物プランクトンの群集構造に影響を与えている可能性が示唆された。

本間¹³⁾は *Pla. suspensa* の比増殖速度が最大 40.8 日であることを示している。2005 年の霞ヶ浦における *Microcystis* の比増殖速度 72.3 時間と比較すると¹⁵⁾、*Pla. suspensa* は増殖速度が非常に遅いことが示唆される。*Pla. suspensa* は増殖速度が遅いために、河川水の流入による群集の希釈や湖奥部への流出の影響を受けており、沿岸部では現存量を維持が困難となる可能性があった。

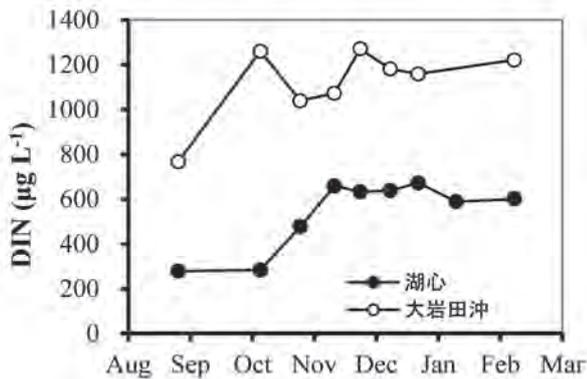


Fig.10 湖心および大岩田沖の表層 (0m) における DIN の変動。



Fig.11 霞ヶ浦 13 観測点とそれぞれの地点の *Pla. suspensa* の季節変動を対象としたクラスター分析のデンドログラム (2008 年から 2009 年霞ヶ浦環境科学センターのモニタリングデータを参照)

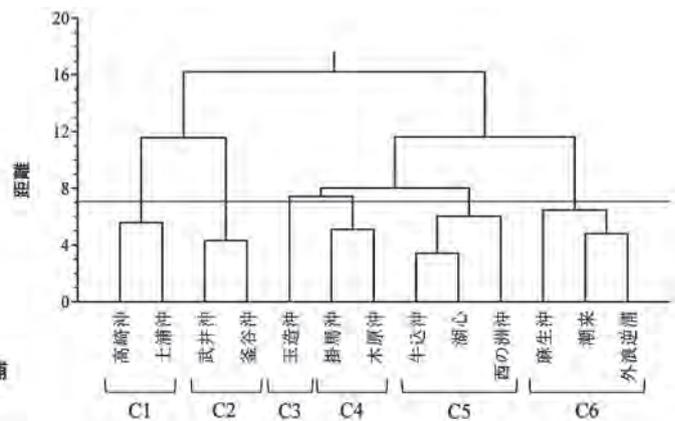
この様に、霞ヶ浦は肢節部などで *Pla. suspensa* の季節変動が大きく異なる可能性がある。したがって、2008 年以降の霞ヶ浦モニタリング調査 13 地点の *Pla. suspensa* の季節変動を対象としてクラスター解析を行った。その結果を Fig.10 に示す。デンドログラムを距離 7 で区分すると 6 つのクラスターに分類できた。

Cluster 1

このクラスターには土浦入と高崎沖といった肢節部の奥部に位置する観測点によって構成されていた。これらの地点は大岩田沖と同様に *Pla. suspensa* が確認できなくなる期間があった。これらの地点は大岩田沖と同様に大きな流入河川の付近にあり、その影響によって *Pla. suspensa* の季節変動が類似したものと示唆される。

Cluster 2

北浦の 2 つの観測点がこのクラスターに該当した。北浦は西浦と大きく異なる環境である。近年においても、西浦では発達しない *Microcystis* のブルームが夏季に確認されている¹⁵⁾。また、北浦における *Pla. suspensa* は西浦の群集が流入することによって維持されていることが示唆されている。これらの要因によって、西浦中央部 (Cluster3 から Cluster6) とは大きく異なる季節変動パターンを示したものと考えられる。



Cluster 3 および Cluster 4, Cluster 5

西浦は土浦入と高浜入の大きな枝節部があり、玉造沖は高浜入の最下流部に位置していることから高浜入の寄与が大きいと示唆される。また、掛馬沖と木原沖は土浦入の中央部に位置している観測点である。これらの水塊における *Pla. suspensa* は、湖心、西の洲沖、牛込沖などの湖中央部とは異なる季節変動を示した。したがって、それぞれの枝節部は湖中央部とは異なる機構で *Pla. suspensa* が制御されている可能性がある。

Cluster 6

湖尻部といわれる麻生沖や潮来、外浪逆浦にて構成されていた。麻生沖は 3m 以浅の水深が維持されている。湖底まである程度の光が到達することが推察できる。遠浅であるこの環境は麻生沖における群集が下流側の外浪逆浦へ流入するため、これらの地点は類似した変動を示したものと示唆される。

これらのクラスター群に分かれる要因として、植物プランクトン群集を制御する環境要因がそれぞれ大きく異なっているためであると示唆される。特に、西浦は主要な流入河川が土浦入や高浜入の奥部に位置しており、湖中央部へ流下するに従って DIN 濃度は低下していく。DIN の水平的な変動が *Pla. suspensa* の増殖に影響を与えていると示唆される。また、水深が異なることから光量子量やスペクトル分布などの光環境が大きく異なる可能性がある。現在の霞ヶ浦の植物プランクトンの群集構造からも光環境は大きな制御要因であると示唆される。また、藍藻ブルームの優占種の制御要因に有光層と混合層の水深比が挙げられていることから⁸⁾、それぞれの水塊において光環境の影響が異なっている可能性がある。その他にも、様々な環境要因によって *Pla. suspensa* 現存量が制御されている可能性もあり、詳細な検討が必要となると考えられる。

5. まとめ

1) 霞ヶ浦（西浦）において、栄養塩や水温の鉛直方向の差はない傾向であったが、植物プ

ランクトンには明確な鉛直分布が確認された。特に、ユレモ目 *Pla. suspensa* は、ほぼ全層で現存量を維持できる可能性があった。

- 2) 表層と深層の植物プランクトン群集では光合成速度が異なる特性を示し、深層の植物プランクトン群集も弱光環境に適応して現存量を維持していることが推察された。
- 3) *Pla. suspensa* は複数の水塊で異なる季節変動をしている可能性が示唆された。

謝辞

本研究は文部科学省からの「特別電源所在地県科学技術振興事業補助金」の交付を受けて実施された。

参考文献

- 1) 本間隆満 (2007) 霞ヶ浦における藍藻ユレモ目のフロラ、霞ヶ浦環境科学センター年報第 3 号, p124–128.
- 2) Mur, L. R., Skulberg, O. M. and Utkilen, H. (1999) Chapter 2 Cyanobacteria in the Environment, Carous, I. and Bartram (eds), *J. Toxic cyanobacteria in Water*, WHO, p15–40.
- 3) Halstvedt, C. B., Rohrlack, T., Andersen, T., Skulberg, O. and Edvardsen, B. (2007) Seasonal dynamics and depth distribution of *Planktothrix* spp. in Lake Steinsfjorden (Norway) related to environmental factors, *Journal of plankton research* 29, p471–482.
- 4) ホーン, A. J. & ゴールドマン, C. R. (1999) 陸水学 (手塚泰彦 訳), p43–50.
- 5) 西澤一俊 & 千原光男 (1979) 藻類研究法, p474–497.
- 6) Reynolds C. (2005) Ecology of Phytoplankton.
- 7) 鉾碕有紀, 塚崎嘉彦, 加藤賢二 (2003) 三方湖で優占する糸状藍藻 *Planktothrix agardhii* の増殖特性について, 福井県衛生環境研究センター年報, 第 2 巻 p98–102.

- 8) Oliver, R. L. & Ganf, G. G. (2002) Chapter 6 Freshwater blooms, Whitton, B. A. & Potts, M. (eds), **The Ecology of Cyanobacteria – Their Diversity in Time and Space**, Kluwer Academic Publishers, p149 – 194.
- 9) Watanabe, M. (1979) Studies on the metalimnetic blue – green alga *Oscillatoria mougeotii* in eutrophic lake with special reference to the potential growth. **Arch. Hydrobiol.**, 86, 66 – 86.
- 10) Brook, A. J., Baker, A.L. & Klemer, A.R. (1971) The use of turbidimetry in studies of population dynamics of phytoplankton populations with special reference to *Oscillatoria agardhii* var. *isothrix*. **Mitt. Int. Ver. Limnol.**, 19, 244 – 252.
- 11) Walsby, A.E., Vtkilen H. C. & Johnson, I. J. (1983) Buoyancy changes of red coloured in Lake Giersjøen, Norway. **Arch. Hydrobiol.**, 97, 18 – 38.
- 12) Takamura, N., Otsuki, A., Aizaki, O. and Nojiri, Y. (1992) Phytoplankton species shift accompanied with transition from nitrogen dependence to phosphorus dependence of primary production in Lake Kasumigaura, Japan. **Arch. Hydrobiol.**, 145, 447 – 467.
- 13) 本間隆満 (2008) 霞ヶ浦における優占藻類種の動態及び優占機構の解明に関する調査研究, 霞ヶ浦環境科学センター年報 第4号, p36–37.
- 14) 本間隆満 (2009) 霞ヶ浦における優占藻類種の動態及び優占機構の解明に関する調査研究, 霞ヶ浦環境科学センター年報 第5号, p32–33.
- 15) 本間 隆満, 小松 伸行, 根岸 正美, 中村 剛也, 朴 虎東. (2008) 霞ヶ浦 (西浦・北浦) における *Microcystis* 属の形態種組成と栄養塩濃度の関係, 日本水産学会誌, 74, 189 – 198.

1-2 ^{13}C トレーサーを用いた植物プランクトン生産物の分解過程の解析 —夏季と秋季の比較—

花町優次, 中村剛也

Study on the Decomposition Process of Phytoplankton Products Using ^{13}C Tracer; Comparison between summer and autumn period, by Yuji HANAMACHI, Koya NAKAMURA

キーワード: 植物プランクトン、有機炭素、易分解性有機物、難分解性有機物

1 はじめに

霞ヶ浦における有機物の供給源は大きく分けて、流域から河川を通じて流入してくる外来性有機物と、湖内植物プランクトンの光合成生産に由来する自生性有機物とがある。霞ヶ浦の有機汚濁を抑制するためには、それぞれの起源の湖内有機物に対する寄与率を正確に把握したうえで、個別の対策を講じる必要がある。

自生性有機物の供給源である植物プランクトンは、主に炭水化物やたんぱく質、脂質によって構成されており、大部分は易分解性有機物である¹⁾。しかし、一部には難分解性有機物として長期間水中に残存するものもあり、また、易分解性有機物も細菌による変性を経て難分解化することが知られている²⁾。従って、植物プランクトンは易分解性有機物だけではなく、難分解性有機物の供給源でもある。また一般的に、富栄養湖においては自生性有機物の供給量のほうが外来性有機物の供給量よりも大きい^{3), 4)}ため、自生性有機物の中のごく一部が難分解性有機物であったとしても、その総量は外来性の難分解性有機物より大きくなる可能性がある。

ここで問題となるのは、植物プランクトン由来有機物の推定方法である。生体の植物プランクトン量はChl *a*濃度や顕微鏡観察によって見積もることができるが、植物プランクトンの遺骸やそれから溶出した溶存態有機物(Dissolved Organic Matter; DOM)、細菌がそれらを取り込んで改変した有機物などは、化学的に同定不可能な有機物が多く⁵⁾、外来性有機物と区別して測定することが難しい。そこで霞ヶ浦においてはこれまで、自生性有機物と外来性有機物の紫外吸光特性の違い⁶⁾や、蛍光特性の違い⁷⁾を利用した推定が行われてきた。また、外来性有機物の供給速度、底泥からの有機物溶出速度

を用いて湖内有機物量の増減をモデル化し、実際値と計算値の差を自生性有機物の寄与率と推定した研究もある⁸⁾。しかし、これらの研究はあくまで間接的な方法を用いており、また、研究間での推定値のばらつきも大きい。

この問題を解決するための方法として、植物プランクトンによる有機物生産と生産された有機物の分解を疑似現場的に再現し、 ^{13}C トレーサーを用いてそれらの過程における有機物の変化を追跡することが考えられる。この方法の利点は、1. 現場の植物プランクトン群集、細菌群集及び湖水を用いるため、純粋培養株や人工培地を用いた生産・分解実験よりも現実的な環境を再現できること、及び、2. ^{13}C トレーサーを用いることにより、植物プランクトン由来有機物と外来性有機物を区別して測定することができること、である。現在筆者らはこの方法を用いて、年間を通じた植物プランクトン由来有機物の寄与を評価することを目的として研究を行っている。ここでは、夏季と秋季の結果について報告する。

2 方法

2.1 屋外生産実験

2010年8月3日及び10月20日、霞ヶ浦湖心の表層水を9Lポリカーボネート容器に採取した。容器中の試水に ^{13}C トレーサーとして $\text{NaH}^{13}\text{CO}_3$ を添加し、湖水を導入した屋外実験池で24時間培養した。この培養によって、試水中の植物プランクトンに現場と同様の水温・光・栄養条件で光合成を行わせ、その生産物を ^{13}C で標識した。

2.2 暗所分解実験

次にこの試水を暗条件下の振盪培養器(20°C, 60rpm)に移すことによって植物プランクトン

の光合成生産を停止させ、標識された生産物の100日間分解実験を行った。分解実験中に1日から2ヶ月の頻度でサブサンプルを700mlずつ採取した。

2.3 対照実験

8月3日の表層水については、暗所分解実験の開始直前に ^{13}C トレーサーを加えた試水も用意し、対照実験とした。

2.4 分析

2.4.1 植物プランクトンの種組成

屋外生産実験開始前の試水100mlにグルタルアルデヒド5mlを加えて植物プランクトンを固定し、顕微鏡で計数した。各種植物プランクトンの生体積を個体数に乘じ、それぞれの生体積を計算した。

2.4.2 有機物の分画

暗所分解実験中に採取したサブサンプルは、ガラス繊維濾紙(Whatman GF/F、孔径 $0.7\mu\text{m}$ 、 450°C で4時間処理)で直ちに濾過をし、濾紙上に残った有機物(Particulate Organic Matter; POM)と、濾液中の有機物(DOM)に分画した。濾紙、濾液ともに、次の作業まで -20°C で冷凍した。DOMはさらに、限外濾過(Pall Minimate TFF Systemと限外濾過カートリッジ(Pall Minimate TFF capsule with Omega 1K membrane: 分画分子量1kDa))によって高分子量(High Molecular Weight; HMW-)DOM(>1kDa)と低分子量(Low Molecular Weight; LMW-)LMW-DOM(<1kDa)に分画した。

2.4.3 POCの濃度と ^{13}C atom%の測定

POMの付着している濾紙を塩酸蒸気上に30秒間かざし、溶存態無機炭素を除去した。次にこの濾紙を、水の吸収剤として五酸化ニリン、及び塩酸の吸収剤として水酸化ナトリウムを入れたデシケーターに入れ、一晚以上乾燥させた。この濾紙をSn製のカップで包み、元素分析・質量分析計(ThermoFisher EA1108とThermoFisher Delta Plus)で分析した。

2.4.4 DOCの濃度と ^{13}C atom%の測定

HMW-DOM及びLMW-DOMの炭素濃度は全炭素計(Shimadzu TOC)で測定した。 ^{13}C atom%の測定のため、まず分画したDOMを凍結乾燥によって粉末状にした。粉末化したDOMから無機炭素を除去するため、12N塩酸の蒸気によって酸性雰囲気にしたデシケーター内に置いて放置した。次にこれを、五酸化ニリン及び水酸化ナトリウムを入れたデシケーターに入れ、一晚以上乾燥させた後、Sn製カップに包み、元素分析・質量分析計(ThermoFisher EA1108とThermoFisher Delta Plus)で ^{13}C atom%を測定した。

2.5 生産物濃度の算出

屋外生産実験終了時からt日後における有機物の ^{13}C atom%とその濃度は以下の式によって表現できる。

$$C_t a_{is} = P_t a_{ic} + (C_t - P_t) a_{ns}$$

ここで、 C_t 及び a_{is} は生産物以外も含めた有機炭素有機炭素全体の量及び ^{13}C atom%、 P_t はt日後の試料における生産物の残存量、 a_{ic} はトレーサーを加えた試水の無機炭素の、 a_{ns} はトレーサーを添加する前の有機炭素の ^{13}C atom%である。この式は、t日後における有機物中の ^{13}C の全量(左辺)は、t日後における生産物中の ^{13}C 量(右辺第一項)とt日後における生産物以外の有機物の ^{13}C 量(右辺第二項)の和に等しいことを表している。

C_t 、 a_{is} 、 a_{ns} 、 a_{ic} は実測することができるので、この式を以下のように変形することにより、 P_t を計算することができる。

$$P_t = C_t (a_{is} - a_{ns}) / (a_{ic} - a_{ns})^9$$

Table 1 実験に用いた試水中の植物プランクトン種組成

綱名	属名・種名	細胞数 (cells ml ⁻¹)		生体積 (mm ³ l ⁻¹)		生体積換算係数 (μm ³ cell ⁻¹)
		夏季	秋季	夏季	秋季	
藍藻	<i>Microcystis aeruginosa</i>	1,400		0.09		65
	<i>Microcystis</i> sp.	3,160		0.21		65
	<i>Chroococcus minutus</i>	160		0.01		32
	<i>Merismopedia</i> sp.	320		0.00		10
	<i>Woronichinia</i> sp.	2,600		0.09		35
	<i>Aphanizomenon issatschenkoi</i>	480		0.03		53
	<i>Anabaena</i> sp.	720		0.09		120
	<i>Pseudanabaena galeata</i>	54,000	10,000	1.35	0.25	25
	<i>Pseudanabaena biceps</i>	4,500		0.15		33
	<i>Planktothrix suspensa</i>	31,000	11,000	0.63	0.22	20
	<i>Phormidium</i> cf. <i>willei</i>		8,200		0.11	14
	<i>Phormidium</i> sp.	23,000		0.46		20
	計	121,340	29,200	3.10	0.59	
クリプト藻	<i>Cryptomonas ovata</i>	360	80	0.54	0.12	1500
	計	360	80	0.54	0.12	
珪藻	<i>Aulacoseira granulata</i>	640	320	0.97	0.48	1510
	<i>Aulacoseira</i> sp.	960	1,100	1.45	1.66	1510
	<i>Cyclotella</i> sp.	360	280	0.14	0.11	400
	<i>Rhizosolenia eriensis</i>	40		0.16		4000
	<i>Synedra</i> sp.		40		0.01	300
	<i>Nitzschia acicularis</i>	120	160	0.25	0.34	2100
	計	2,120	1,900	2.97	2.60	
緑藻	<i>Chlamydomonas</i> spp.	40		0.01		300
	<i>Dictyosphaerium pulchellum</i>	1,440		0.16		108
	<i>Monoraphidium</i> sp.	80	40	0.02	0.01	200
	<i>Coelastrum</i> sp.	320		0.20		610
	<i>Scenedesmus</i> spp.	160	160	0.05	0.05	300
	計	2,040	200	0.43	0.06	
合計		125,860	31,380	7.04	3.37	

3 結果

3.1 植物プランクトンの種組成

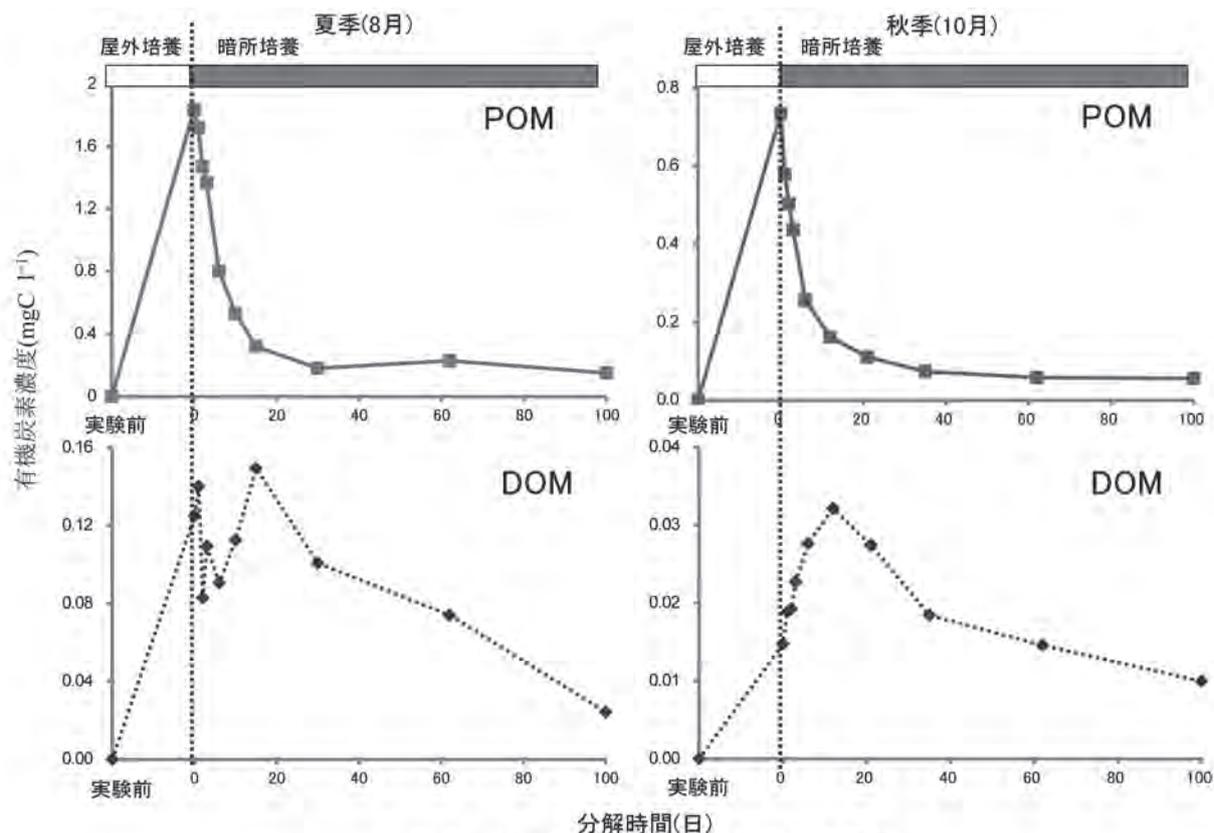
実験に用いた試水中の植物プランクトンの種組成 Table 1 に示す。夏季において、植物プランクトンの生体積は $7.04 \text{ mm}^3 \text{ l}^{-1}$ であり、藍藻類と珪藻類がそれぞれ 44% 及び 42% を占めていた。

秋季における生体積は夏季の約半分 ($3.37 \text{ mm}^3 \text{ ml}^{-1}$) であった。これは主に藍藻類が $0.59 \text{ mm}^3 \text{ l}^{-1}$ に減少したためである。一方で珪藻類の量はあまり減少しなかったためにこの時期の優占種となり、77% を占めていた。

3.2 生産物の分解過程

3.2.1 夏期

実験中における生産物(すなわち、¹³C で標識された有機物)の変化を Fig. 1 に示す。屋外生産実験終了時までには、 1.8 mgC l^{-1} の POM 及び 0.13 mgC l^{-1} の DOM が生産され、両者の合計は 1.9 mgC l^{-1} であった。従って生産された有機物の大部分(94%)は POM であり、DOM の割合は 6% にすぎなかった。暗所分解開始後、標識された POM の濃度は 15 日目までに急激に減少し、30 日目以降はほとんど変化しなくなった。一方、標識された DOM の濃度は、初期には増減が見られ、15 日目に最大値 (0.15 mgC l^{-1}) を示した。その後は 100 日目まで単調に減少した。

Fig. 1. ^{13}C で標識された有機炭素の分解過程Table 2. 100日目における生産物の残存量(mgC l^{-1})

	POM	DOM
夏季	0.15 (7.7%)	0.025 (1.2%)
秋季	0.056 (7.5%)	0.010 (1.3%)

括弧内は屋外生産実験で生産された全有機炭素量に対する割合を示す。

実験終了時(100日目)までに残存した有機物を難分解性有機物と定義すると、生産物のうち、 0.15mgC l^{-1} が難分解性POMとして、 0.025mgC l^{-1} が難分解性DOMとして残存した(Table 2)。これらの値はそれぞれ、屋外生産実験で生産された有機炭素の7.7%及び1.2%に相当する量であった。

3.2.2 秋期

屋外生産終了時までには ^{13}C によって標識された有機物の濃度は、POMが 0.73mgC l^{-1} 、DOMが 0.015mgC l^{-1} であり、夏期よりさらにDOMの割合が小さかった(2%)。これらの濃度は夏期よりも少なく、POMにおいて半分以下、DOMにおいては10%程度であった(Fig. 1)。暗所分解開始後、標識されたPOMの濃度は15日目までに急激に減少し、30日目以降は変化しなくな

るといふ夏期と同様の結果となった。一方、標識されたDOMの濃度は分解開始後から増加が見られ、12日目に最大値(0.032mgC l^{-1})に達したのち、減少に転じた。

生産された有機物のうち、難分解性POMとして残存した量は 0.056mgC l^{-1} 、難分解性DOMとして残存した量は 0.010mgC l^{-1} であり、それぞれ生産された全有機炭素の7.5%及び1.3%に相当した。

3.2.3 DOMの分子量組成の変化

分解実験における、生産物中のDOMの分子量組成変化をFig. 2に示す。夏季の実験において、分解開始直後はDOMの大部分(92%)はHMW-DOMであった。しかし100日間の分解によってDOMに占めるLMW-DOMの割合が増加し(42%)、採水時の湖水DOMに近い分子量組成になった。

秋季の実験においては、実験開始時のLMW-DOMの割合が夏季の実験よりも多かった(40%)。100日目にはさらにその割合が増加し、67%になった。

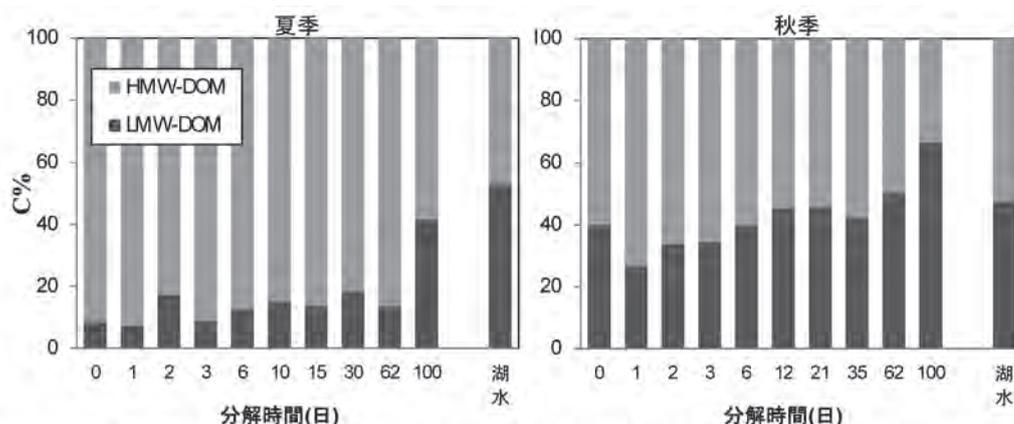


Fig. 2. ^{13}C で標識されたDOMの分子量組成の変化。比較のため、採水時の湖水DOMの分子量組成も同時に示す。

4 考察

4.1 生産された有機物の分解性の違い

今回の実験における難分解性有機物の残存量 (Table 2) は、植物プランクトンによる一日当たりの難分解性有機物生産速度と見なすことができる。すなわち、例えば夏季においては、毎日 0.025mgC l^{-1} の難分解性 DOM が生産されているということになる。その量は POM においても DOM においても夏季のほうが多かった。生産された全有機物に対する難分解性 POM、DOM の割合は夏季・秋季ともに非常に近い値を示したことから、この差は生産された有機物の分解性の違いではなく、単純に生産量の大きさによるものと考えられる。しかし、夏季と秋季では植物プランクトンの種組成が大きく異なり、夏季には藍藻類と珪藻類の割合が同程度であったのに対し、秋季では藍藻類の割合が小さくなった。それにもかかわらず難分解性有機物の生産割合が変わらなかったことは、藍藻類と珪藻類では、生産する有機物の分解性が変わらない可能性があることを示唆している。

一方で、実験初期における DOM の分子量組成は 2 つの実験で異なっており、夏季の方が HMW-DOM の割合が大きかった (Fig. 2)。自然水中の HMW-DOM は LMW-DOM より易分解な性質を持っているとされている⁵⁾ことから、易分解性 DOM については夏季の方が生産量が多かった可能性がある。実際に、DOM が最大値を示してから 100 日目までの減少率は夏季

(84%) の方が秋季 (59%) より大きかった。

これらのことから、珪藻類と藍藻類では生産物中に占める難分解性 DOM の割合は変わらないが、易分解性 DOM については藍藻類の方が多く生産する可能性があることが示唆された。ただし、今後他の季節や場所においてもこれと同様の結果が得られるか確認する必要がある。

4.2 植物プランクトン生産物の寄与

- 本研究で得られた結果、及び、以下 4 つの仮定、
1. 難分解性有機物は 100 日以上時間が経過しても分解されない。
 2. 植物プランクトンによる有機物生産は表層 1m のみで起こる。
 3. 霞ヶ浦の平均水深は 4m。
 4. 霞ヶ浦の滞留時間は 200 日。

に基づいて、植物プランクトン由来有機物の湖内における存在量を試算した。例として、Fig. 3 に夏季に生産された DOM の動態予測を示す。Fig. 1 に比べると、仮定 2、3 より、全 DOM 量が 4 分の 1 に、さらに、仮定 4 により、1 日当たり 200 分の 1 ずつ減少した値となっている。

このような除去過程を経る DOM が毎日生産された場合、その湖水中での存在量は、各分解時間における DOM の量を全て積算した量、すなわち Fig. 3 のグラフの積分値となる。またそのうち、斜線で示した部分の面積が易分解性 DOM、灰色で示した部分の面積が難分解性 DOM の量になる。これらの面積を計算した結果、易分解性 DOM は 1.3 mgC l^{-1} 、難分解性 DOM は 1.2

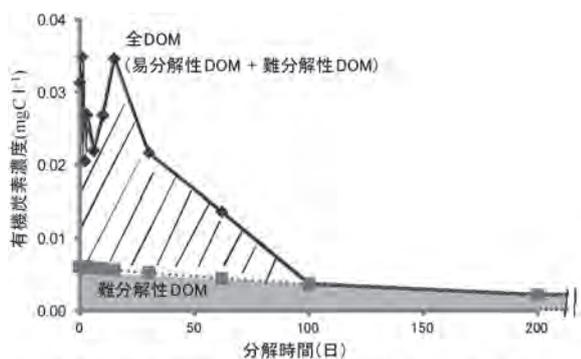


Fig. 3. 夏季に生産されたDOMの湖水中における動態予測。実線は全DOM量を、点線はそのうちの難分解性DOMの量を示している。難分解性DOMの初期量についてはTable 2の値を用いた。

Table 3. 計算によって求められた植物プランクトン由来有機物の濃度 (mgC l⁻¹)

	POM			DOM		
	易分解	難分解	計	易分解	難分解	計
夏季	3.5	7.6	11.1 (316%)	1.3	1.2	2.5 (66%)
秋季	1.2	2.8	4.0 (167%)	0.2	0.5	0.7 (19%)

括弧内は湖水中に元々存在していた有機物量に対する割合を示す。Fig. 3では200日目までしか示していないが、計算では200日目以降の面積も含めてある。

mgC l⁻¹、合計で 2.5 mgC l⁻¹ であった (Table 3)。これは現場に実際に存在していた DOM の 66% に相当する量である。

同様の計算により、夏季の POM、秋季の POM、DOM についても、植物プランクトンの寄与を見積もった。その結果、POM については両実験ともに 100% 以上、秋季の DOM については 19% が植物プランクトン由来であると計算された。この結果から、植物プランクトン由来有機物は、湖内 POM の大部分、DOM についても大きな割合を占めていることが示唆された。POM における寄与率が 100% を超えた原因については、沈降による水柱からの除去を考慮していないことが挙げられる。また、DOM においてはその寄与率が夏季と秋季では大きく異なったことから、より妥当な寄与率を求めるためには一年を通じた寄与率の変化を把握する必要がある。

5. まとめと今後の課題

植物プランクトンによる有機炭素の生産速度、及び生産された有機炭素の分解過程を把握し、それらの値から、植物プランクトン由来の有機炭素の湖内における寄与を見積もった。その結果、夏期においては POM の 100% 以上、DOM

の 66% が、秋期においては POM の 100% 以上、DOM の 19% が植物プランクトン由来であると見積もられた。霞ヶ浦の DOM の起源については、外来性有機物の寄与が大部分としている研究⁷⁾から 50% 程度と見積もっている研究⁶⁾までであるが、今回の研究は後者を支持する結果となった。

ただし、植物プランクトンの寄与率には季節変動があることが示されたため、さらに冬期・春期における実験も行い、年間を通じた植物プランクトンの寄与率の変化を把握する必要がある。また、見積もられた寄与率は常に 20° C で分解が進行した場合の値であるため、実際の値とは異なる可能性がある。従って今後は、分解中の温度変化も考慮に入れた見積もりが必要になると考えられる。

謝辞

本研究は文部科学省から「特別電源所在県科学技術振興事業補助金」の交付を受け実施されたことを記し謝意を表す。

6 文献

- 1) Hanamachi Y, Hama T, Yanai T (2008) Decomposition process of organic matter derived from freshwater phytoplankton. *Limnology* 9: 57–69
- 2) Ogawa H, Amagi Y, Koike I, Kaiser K, Benner R (2001) Production of refractory dissolved organic matter by bacteria. *Science* 292: 917–920
- 3) Sakamoto M (1975) Trophic relation and metabolism in ecosystem. In: Mori S, Yamamoto G (eds) *Productivity of communities in Japanese inland waters*. University of Tokyo Press, Japan, pp 405–410 (JIBP – Synthesis, vol 10)
- 4) Saunders GW, Cummins KW, Gak DZ, Pieczynska E, Straskrabova V, Wetzel RG (1980) Organic matter and decomposers. In: Le Cren ED, Lowe – McConnel RH (eds) *The functioning of freshwater ecosystems*. Cambridge University Press, Cambridge, pp 341–392 (IBP, vol 22)
- 5) Hama T, Yanagi K, Hama J (2004) Decrease in

- molecular weight of photosynthetic products of marine phytoplankton during early diagenesis. *Limnol Oceanogr* 49: 471–481
- 6) Fukushima T, Park J, Imai A, Matsushige K (1996) Dissolved organic carbon in a eutrophic lake; dynamics, biodegradability and origin. *Aquat Sci* 58: 139–157
 - 7) 鈴木穰・北村友一・日下部武敏 (2009) 湖沼における難分解性有機物の発生源とその質及び挙動特性に関する研究. 環境省総合環境政策局総務課環境研究技術室編 平成 20 年度環境保全研究成果集 : 41.1– 41.16
 - 8) 国立環境研究所 (2004) 国立環境研究所特別研究報告 SR - 62 - 2004 湖沼における有機炭素の物質収支および機能・影響の評価に関する研究
 - 9) Hama T, Miyazaki T, Ogawa Y, Iwakuma T, Takahashi M, Otsuki A, Ichimura S (1983) Measurement of photosynthetic production of a marine phytoplankton production using a stable ^{13}C isotope. *Mar Biol* 73: 31–36

1-3 北浦底泥における脱窒活性の分布の特徴

北村 立実, 中村 剛也, 花町 優次, 八木岡 敦*¹, 小松崎 将一*¹, 黒田 久雄*¹

Characteristics of distribution of dinitrification activity in Lake Kitaura sediment

Tatsumi KITAMURA, Kouya NAKAMURA, Yuji HANAMACHI, Atsushi YAGIOKA, Hirokazu KOMATSUZAKI, Hisao KURODA

キーワード：北浦, 流入河川, 硝酸態窒素濃度, 粒度組成, 脱窒活性

1 はじめに

湖沼等の底泥は汚濁負荷源の一つと考えられているが、様々な微生物が生息している。脱窒は微生物の代謝活動を通じて富栄養化の要因の1つである窒素を、硝酸(NO_3^-)から窒素ガス(N_2)に変換して系外に放出することから湖沼が持つ窒素自浄作用として知られている。現在、霞ヶ浦の窒素濃度は環境基準を達成していない¹⁾が、霞ヶ浦水質汚濁の防止のためには湖沼のもつ自浄作用を把握することは重要である。これまで諏訪湖で行われた脱窒調査では諏訪湖の全窒素負荷量のうち約5%が脱窒によって浄化されていることが報告されている²⁾。また、脱窒に関しては水温、炭素源、 NO_3^- 濃度に依存していることが知られており^{3,4)}、さらに湖中央部等の水深の深い場所よりも沿岸部の浅い場所において脱窒活性や脱窒速度が高い傾向があることが報告されている⁵⁾。茨城県の霞ヶ浦においても西浦の高浜入を中心に脱窒調査が行われ、底泥表層で脱窒活性が高く、水温や NO_3^- 濃度の上昇に応じて脱窒活性が高くなることが報告されている⁶⁻⁸⁾。霞ヶ浦底泥の脱窒については部分的に詳細に調査されているが、面的に把握されていない。霞ヶ浦は平均水深が4mで、最大水深も約10mと浅い。霞ヶ浦底泥における脱窒量を把握し、脱窒効果を検証するためには面的に調査する必要がある。

そこで、本研究では河川から高濃度の NO_3^- -Nが流入する北浦流入河川を含めた北浦の NO_3^- -Nの動態を把握し、底泥における脱窒活性を面的に調査したので報告する。

*¹ 茨城大学農学部

2 調査概要

調査期間は2010年7月から2011年3月まで実施した。調査地点は北浦流入河川である鉾田川の上流、中流、下流の3地点(R1~R3)と北浦4地点(K1~K4)である(Fig.1)。採水はR1~R3では表層から採取し、K1~K4では湖底直上0.5m(下層)で採取した。採泥はR1~R2では底泥の堆積が少なかったためスコップでポリボトルに採取し、R3~K4では $\phi 70\text{mm} \times 500\text{mm}$ のアクリルコアパイプに採取した。その後、アクリルコアパイプの底泥の直上水を除き、コアカッターで底泥の表層2cmをカットし採取した。水質の分析項目は水温、 NO_3^- -Nとし、JIS法に準拠して分析した。底泥の粒度組成は粒度分析装置(島津社製SALD-2200)で分析した。粒径区分は土木学会に準じて区分した⁹⁾。脱窒活性はアセチレン阻害法^{4,10)}で分析した。まず、100mL広口ガラス瓶に湿潤底泥3gを入れ、 NaNO_3 水溶液(NO_3^- -N: 1 mg/L) 20mLを加え、内径4mのガラス管の

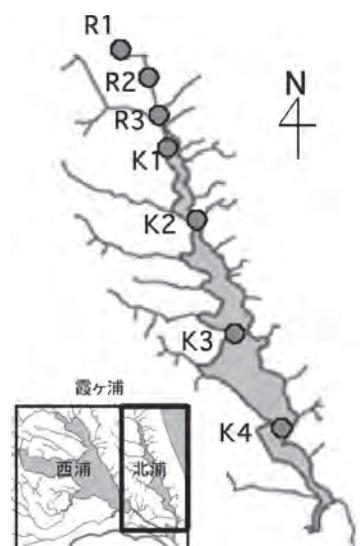


Fig. 1 調査地点図

ついたブチルゴム栓で密封した。瓶内を窒素ガスで置換し、ガスタイトシリンジでアセチレン飽和水2mLを添加した。そして、30分間暗条件で振とう培養し、5分、15分、30分において真空採血管5mLを用

いて N_2O ガスを採取した。培養温度は調査時の水温を基に設定し $25^{\circ}C$ (8月), $20^{\circ}C$ (10月), $15^{\circ}C$ (11月), $10^{\circ}C$ (12月) とした。捕集したガスは ECD ガスクロマトグラフ (島津社製 GC-8A) で分析した。ECD ガスクロマトグラフはポラパック Q 等を充てんしたステンレスカラムで、メタン・アルゴン混合ガスをキャリアーガスとし、カラム温度 $80^{\circ}C$ および検出器温度 $340^{\circ}C$ で分析した。液相濃度は N_2O の溶解度係数 11) を用いて算出し、瓶内の N_2O 全量を求めた。 N_2O 量の時間による増加量から、測定に供した底泥の単位時間単位重量あたりの N_2O 発生速度を求め、底泥の見かけ比重を用いて単位体積あたりの N_2O 発生速度に換算した。さらに底泥は表層を試料としたことから、単位面積あたりの N_2O-N 発生速度に換算し脱窒活性とした。

3 結果と考察

3-1 流入河川および北浦における NO_3-N 濃度と水温の動態

Fig. 2 に 2010 年 7 月から 2011 年 3 月までの銚田川と北浦下層における NO_3-N 濃度 (Fig. 2 上) と水温 (Fig. 2 下) の動態について示した。河川の水質については、 NO_3-N 濃度が $7 \sim 11 \text{mg/L}$ と高い状況にあり、とくに 1 月、2 月の冬季に最も高かった。そして、流入河川河口部 R3 から北浦上流部 K1 へ流入すると、 NO_3-N 濃度が 7 月～9 月では 4mg/L 低下し、K2 以南の下流部では NO_3-N が消失した。しかし、10 月以降は R3 から K1 の NO_3-N 濃度の低下量が 2mg/L と減少し、K2 以南の下流部においても NO_3-N 濃度が残るようになり、2 月以降は K4 においても 1mg/L 以上存在した。

水温に関しては、10 月までは河川河口部で水温が低く、湖内に入ると約 $4^{\circ}C$ 上昇したが、11 月以降は逆に河川河口部の方が湖内よりも高い傾向が見られた。また、北浦湖内では 7 月から 12 月まで、全域でほぼ様な水温であったが、2 月では K1～K2 の上流部で約 $2^{\circ}C$ の差が見られた。

NO_3-N 濃度と水温の分布を比較すると、10 月までは湖内全域で $20^{\circ}C$ 以上となり、K1 から K2 の間で NO_3-N 濃度が消失した。11 月以降は湖内全域で水温が $15^{\circ}C$ 以下になり、K1 から

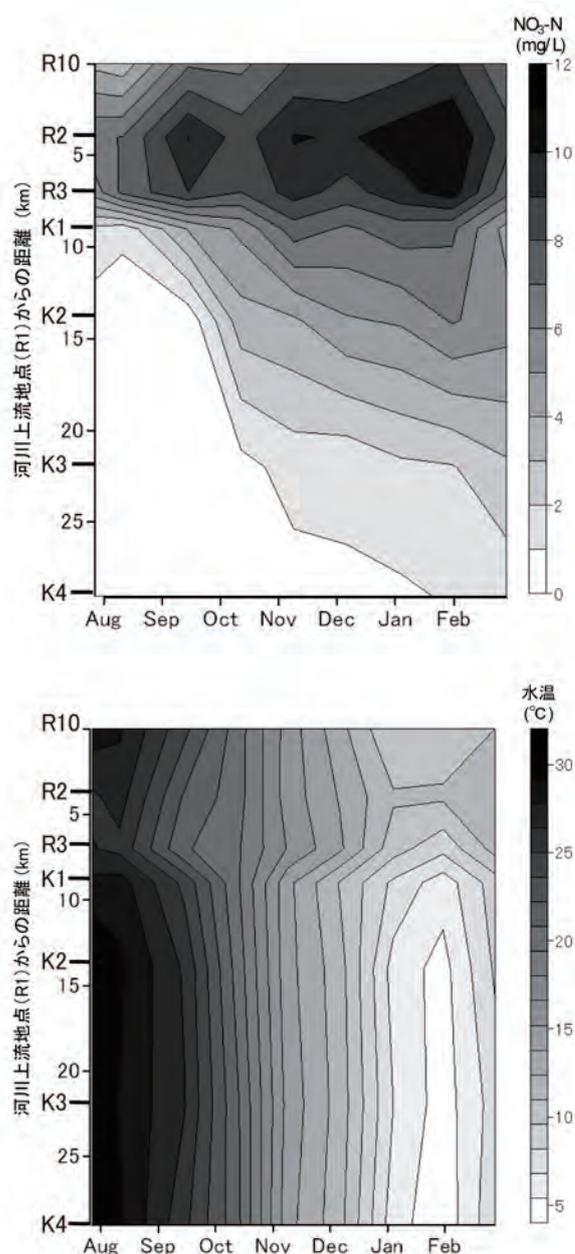


Fig. 2 流入河川から北浦湖内(下層)における NO_3-N 濃度と水温の分布

K2 の間における NO_3-N 濃度の低下が小さくなり、下流まで NO_3-N 濃度が残る傾向が見られた。

3-2 北浦底泥における脱窒活性の分布

Fig. 3 に培養温度に対する各地点の脱窒活性を示した。 $25^{\circ}C$ では R3 が $204 \text{mgN/m}^2/\text{d}$ で最も高く、続いて R1 で $155 \text{mgN/m}^2/\text{d}$, K1 で $98 \text{mgN/m}^2/\text{d}$ と大きく低下したが、脱窒活性は流入

河川や北浦上流部で高い傾向が見られた。また、20℃では25℃に続き流入河川河口部のR3が最も高かったが25 mgN/m²/dと大幅に低下した。10℃と15℃では0.1～10 mgN/m²/dと各地点の脱窒活性で大きな違いは見られなかった。R2に関してはどの水温によっても脱窒活性は低かった。

Fig. 4に各地点における脱窒活性試験の培養前後のNO₃-N濃度の低下率について示した。全体的に水温が上昇するとともにNO₃-N濃度の低下率が高くなる傾向が見られた。しかし、R2においてはほとんど変化しなかった。脱窒活性の高かったR3については10℃～25℃においてもNO₃-N濃度の低下率は高く、15℃のときはK1が最も低下率が高かったものの、脱窒活性と同様、流入河川河口部や北浦上流部で低下率が高い傾向が見られた。また、R1では25℃で低下率が70%とR3と同じくらい高かったが、20℃以下では10%以下と極端にNO₃-N濃度の低下率が低下した。

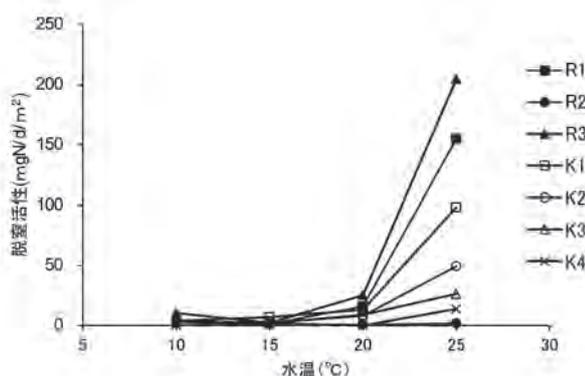


Fig. 3 各水温における流入河川と北浦湖内の底泥脱窒活性

3-3 脱窒活性と粒度組成の関係

底泥の脱窒活性と粒度組成を比較し検討した。Table 1に脱窒活性が高かった25℃(8月)と20℃(10月)の各地点における粒度組成を示した。R1の8月と10月の粒度組成を比較すると、8月ではシルトの割合が最も大きかったのに対し、10月は砂がほとんどを占めた。これは10月の調査の1週間前の台風によってシルト以下の細かい土砂が流れ、砂だけが残ったと考えられた。また、最も脱窒活性が高かった河川河口部のR3は夏季と秋季共にシルトが大きな割合を占めていた。河口部では水深が深くなり流速

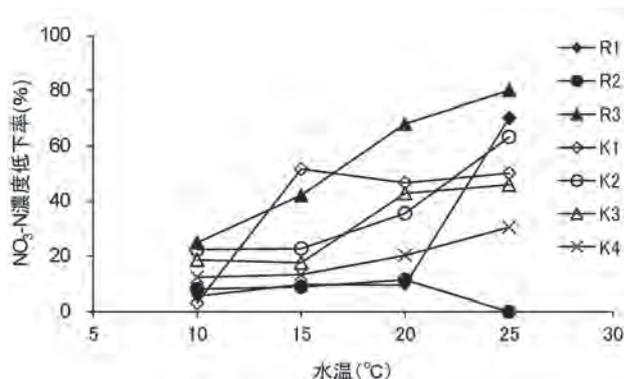


Fig. 4 各水温における流入河川と北浦湖内の底泥脱窒活性試験前後のNO₃-N濃度の低下率

が遅くなるために土砂の流出は抑えられたと考えられた。これらのことから河川河口部や北浦上流域で沈降、堆積した河川上流からの土砂が脱窒活性を高めている可能性があることが示唆された。

Table 1 8月と10月における底泥の粒度組成

8月	粘土	シルト	砂
	0~5 μm %	5~75 μm %	75 μm以上 %
R1	24	43	33
R2	0	0	100
R3	29	70	1
K1	45	55	0
K2	98	2	0
K3	36	64	0
K4	1	23	76
10月	粘土	シルト	砂
	0~5 μm %	5~75 μm %	75 μm以上 %
R1	0	0	100
R2	0	0	100
R3	20	58	22
K1	45	55	0
K2	44	56	0
K3	21	78	0
K4	11	44	45

4 まとめ

- 本研究において以下のような知見が得られた。
- 北浦流入河川や北浦湖内のNO₃-N濃度は河川河口部で7月から9月までは4mg/L低下したが、10月以降は2mg/Lと低下量が減少した。
 - 湖内の水温が20℃以上では湖内上流部でNO₃-N濃度が消失したが、15℃以下ではNO₃-N濃

度の低下が小さくなり、下流まで $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が残る傾向が見られた。

- 底泥の脱窒活性は河川河口部や北浦上流部で高い傾向が見られた。
- 脱窒活性試験の培養前後の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の変化を比較しても河川河口部や北浦上流部で濃度の低下率が高い傾向が見られた。
- 底泥の脱窒活性は底泥の粒度組成がシルトの割合が大きい地点で高く、砂の割合が大きい地点では低い傾向が見られた。
- 陸域由来の土砂が河川河口部に沈降・堆積し、脱窒活性を高めている可能性があると考えられた。

謝辞

本研究を行うにあたり、信州大学理学部の戸田任重教授にはアセチレン阻害法の分析方法について懇切丁寧にご教授して頂いた。ここで謝意を表す。また、本研究の一部は、国環研と地環研との C 型共同研究「浅海域の干潟・藻場における生態系機能に関する研究」において情報・意見交換を介して実施された。関係各位に謝意を表す。さらに、本研究は文部科学省から「特別電源所在県科学技術振興事業補助金」の交付を受け実施されたことを記し謝意を表す。

参考文献

- 1) 茨城県生活環境部環境生活課 (2009) : 環境白書, 59-65.
- 2) Toru Hasegawa, Tokio Okino (2004) : Seasonal variation of denitrification rate in Lake Suwa sediment, *Limnology*, 33-39.
- 3) 森田尚, 前河孝志 (2006) : 琵琶湖湖底堆積物の脱窒活性, 滋賀県水産試験場研究報告, 51, 1-9.
- 4) 清家泰, 近藤邦男, 伊達善夫, 石田祐三郎 (1986) : 汽水湖・中海における窒素代謝 II - 夏期における底泥表層部での脱窒特性 -, 日本陸水学会誌, 47, 2, 133-141.
- 5) 沖野輝夫 (1984) : 湖沼の生態学, 共立出版株式会社, 121-131
- 6) 細見正明, 須藤隆一 (1984) : 霞ヶ浦底泥からの窒素及びリンの溶出について-高浜入を中心として-, 国立公害研究所研究報告, 51, 191-203.
- 7) 中島拓男, 相崎守弘 (1981) : 霞ヶ浦高浜入における脱窒, 国立公害研究所研究報告, 22, 89-97.
- 8) 自然状態の湖沼底泥表層の採取と脱窒活性の測定 (1980) : 日本土壤肥料学雑誌, 51, 6, 517-519.
- 9) 土木学会 (1992) : 土質試験のてびき [改訂版], 丸善株式会社, 24-33.
- 10) 戸田任重, 日高伸 (1996) : 高濃度硝酸態窒素含有地下水の流入する水田下層土における脱窒活性, 水環境学会誌, 19, 2, 170-175.
- 11) 駒田充生, 竹内誠 (1999) : 土壌を含む気液平衡系における亜酸化窒素溶解度, 日本土壤肥料学雑誌, 70, 6, 804-807.

1-4 北浦におけるリンの低減化に関する研究

1 目的

北浦におけるリンの高濃度の発生時期や発生場所等を予測することや、具体的な対策を提案したり実施した施策の効果を確認したりするためには、リンの物質循環モデルを作成することが必要である。これまでの研究においても、霞ヶ浦におけるリンの季節変化や地点分布、底泥からの溶出速度・量やそのメカニズム等について解明してきたものの、モデルを作成するための最新の基礎データを入手することを目的として、湖水及び流入河川の水質を調査し、その季節変化や地点差について検討した。

さらに、実施した北浦の流入河川調査より、長茂川のリン酸態リン濃度が高濃度で推移していることが確認された。長茂川の水質が北浦湖内の水質に与える影響を検討するために、各河川水の濾液での植物プランクトンの培養試験を行い、河川の栄養塩の植物プランクトンの増殖に与える影響も併せて検討した。

2 調査方法

(1) 湖内水質調査

- 1) 調査期間：平成 22 年 8 月～平成 23 年 1 月
(2 回 / 月 12 回 / 年)
- 2) 調査地点：北浦 5 地点 (K_W1～K_W5)、外浪逆浦 1 地点 (S_W1)
各地点 3 層 (表層、中層、底層)
- 3) 調査項目：透明度、水温、pH、DO、COD、TN、TP、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、PO₄-P、Chl.a 等

(2) 流入河川水質調査

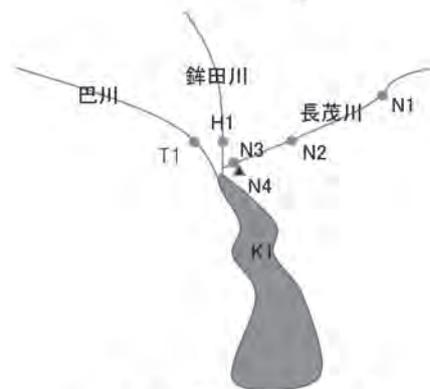
- 1) 調査期間：平成 22 年 8 月～平成 23 年 1 月
(2 回 / 月 12 回 / 年)
- 2) 調査地点：6 河川 (K_R1～K_R6)
- 3) 調査項目：流量、透視度、水温、pH、DO、COD、TN、TP、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、PO₄-P、Chl.a 等

(3) 長茂川等水質調査

- 1) 調査期間：平成 23 年 2 月 17 日
- 2) 調査地点：長茂川 4 地点 (N1：上流 橋名不明、N2：中流 永長橋、N3：下流 長茂川橋、N4：長茂川排水樋門)
銚田川 1 地点 (H1：旭橋)
巴川 1 地点 (T1：一の橋)
- 3) 調査項目：透明度、水温、pH、DO、COD、TN、TP、NH₄-N、NO₂-N、NO₃-N、PO₄-P、Chl.a 等

(4) 促進培養試験

- 1) 調査期間：平成 23 年 2 月 26 日～平成 23 年 3 月 16 日
- 2) 実験方法：N3, H1, T1, K1 (巴川沖：2 月 16 日採取) の試水を GF/B でろ過し、各試料単独、及び、河川調査から求めた流量比で混合した試料 (HT：H1 500ml + T1 1,500ml, HT+長：H1 500ml + T1 1,500ml + N3 100ml) を 2L デュラン瓶に 2L 入れ、武井沖で採水したサンプルを植種液として 10ml を添加



し、25°Cで照明を点灯し培養した。

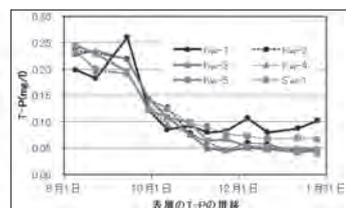
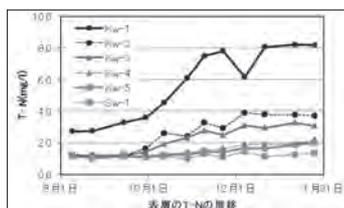
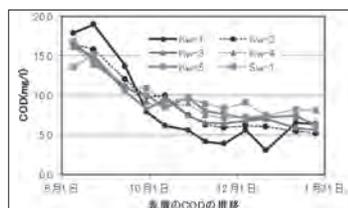
3) 調査項目 : SS, COD, TN, TP, NH₄-N, NO₂-N, NO₃-N, PO₄-P, Chl.a 等

3 結果の概要

(1) 湖内水質調査

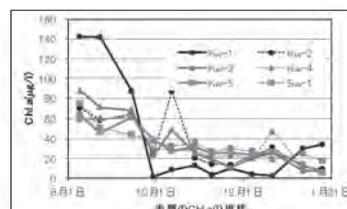
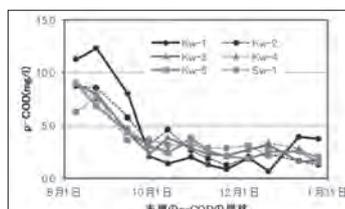
各地点における表層の COD, TN, TP, の季節変化を見てみると, COD と TP については, 夏季から冬季にかけて単調減少を示すものの, TN については逆に夏季から冬季にかけて単調増加を示した。一方, 同じ項目において地点比較をしてみると, COD は夏季における河口部の Kw-1 で他の地点より高く, 秋～冬季においては下

流の地点ほど濃度が高くなる傾向を示したが, 同じ季節変化を示した TP では逆



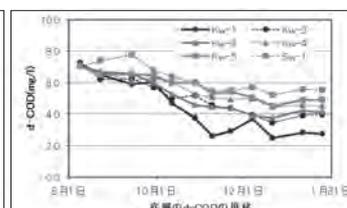
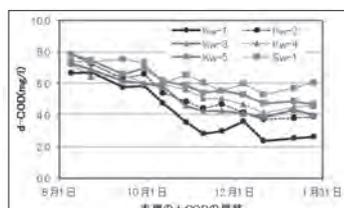
で, 夏季では河口部でやや低く, 秋～冬季には河口部ほど高い値を示した。TN については, 河口部で高く, 下流の地点ほど濃度が低下する傾向が見られた。

次に, COD について, 粒子態 (p-), 及び, 溶存態 (d-) に分けて検討する。一般的に p-COD の上昇は植物プランクトンの増殖によって引き起こされるといわれていることから, p-COD と Chl.a の季節変動等を比較してみると, 全地点において両者ともに同じ傾向を示し, 相関係数を計算したところ, 0.81 ~ 0.99 と非常に高いことが確認された。このことから, 植物プランクトンの変動が p-COD の変動の大きな要因となっていることが推測される。また, Chl.a の季節変化を見ると, 夏季において Kw-1 が他の地点に比べ非常に高いことと併せて, 夏季から冬季にかけて濃度が減少している傾向が確認された。一般的には, リンが豊富にあると植物プランクトンが増殖することが確認されているが, Kw-1 においては底質からのリン溶出は起きにくいことが確認されていることから, 夏季に Kw-1 で Chl.a 濃度が高い値を示す原因については, 入河川等の要因があると考えられる。

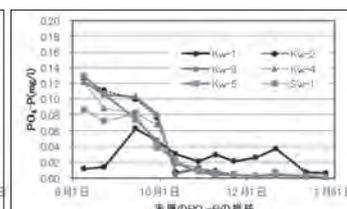
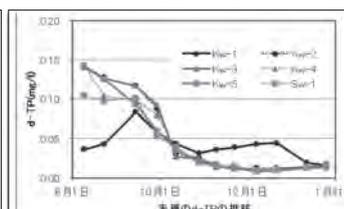
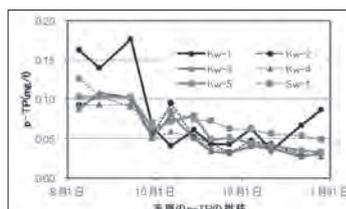


一方, 表層と底層の d-COD の季節変化を見てみると, p-COD に比べ変動幅が小さいものの, 傾向は似ていることが確認された。このことから, d-COD も植物プランクトンによる可能性が示唆されるが, 河口部において Chl.a の傾向が異なる点もあることから, 今後の検討課題である。

最後にリンを粒子態 (p-), 及び, 溶存態 (d-) に分けて検討する。表層における p-TP の季節変化を見てみると, 前述の p-COD や Chl.a の季節変化を同じ傾向を示しており, p-TP は植物プラン



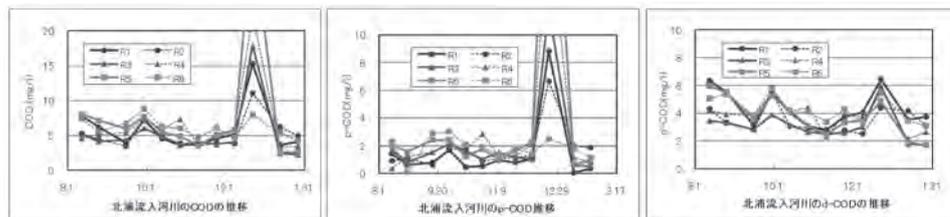
クトンに取り込まれたリンであることが推測される。一方, d-TP では全地点で夏季から冬季にかけて明確な単調減少の傾向がみられたものの, 夏季において Kw-1 は他の地点に比べて低い値を示した。



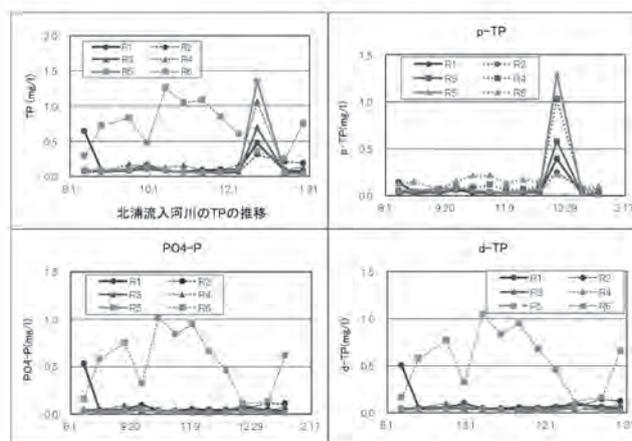
(2) 流入河川水質調査

平成22年8月から1月の間に計12回採水を実施したが、そのうち平成22年12月22日の1回については、降雨後の増水時のものである。

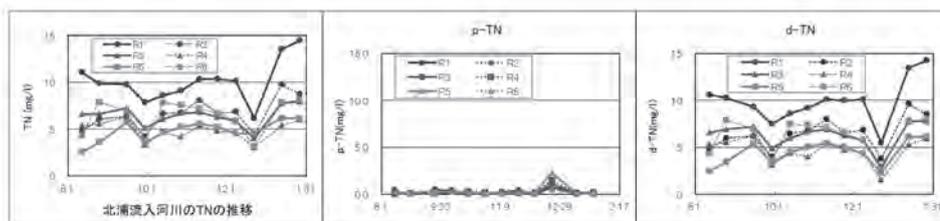
まず、COD、p-COD、d-CODの季節変化を見てみると、明確ではないものの、増水時を除くと全ての項目において夏から冬にかけて低下しているように見える。また、増水時はR6を除いてp-CODが急激に上昇したが、d-CODについては増加したものの、p-CODほど上昇しなかった。



一方、TP、p-TP、d-TP、PO₄-Pの季節変化を見てみると、R6（長茂川）を除いて大きな違いは確認されず、年間を通して低い値を示しているが、R6では他の河川に比べて非常に高い値を示した。また、TP、d-TP、PO₄-Pの各項目の濃度を比較すると、全ての項目の値がほぼ一致することから、平常時においては、流入河川中のTPの大部分がPO₄-Pで占められていることが確認された。一方、増水時の高TP濃度は、p-TPによるものだと考えられ、平常時に比べて高い濃度を示した。



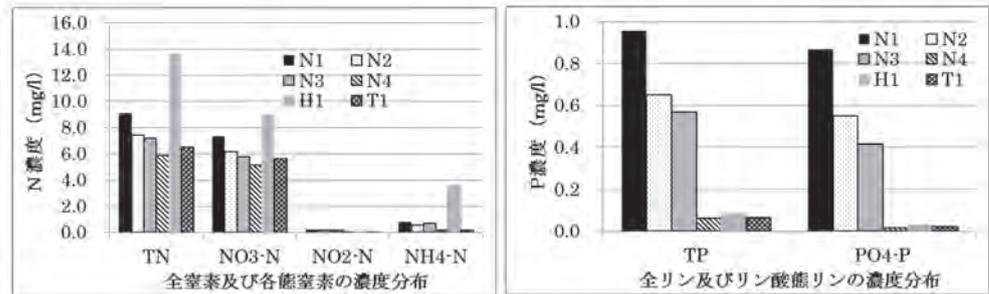
次にTN、p-TN、d-TNの季節変化を見てみると明確な季節による違いは確認されなかったが、増水時の濃度を見てみると、p-TNは増加し、d-TNは減少している傾向はリンと同じであるが、TN濃度は低下していた。この傾向の違いは、流域から流入する際の形態の違いによるものと考えられる。降雨時には平常時に比べて土粒子等の懸濁物質が多く流入するが、増水時にTP濃度が上昇したことは、TPは主に土粒子等の懸濁物質に多く吸着されており、増水時には平常時に比べて多くの懸濁物質が流入したことから濃度が高くなったものと推定される。一方、増水時にTN濃度が減少したということは、TPとは逆に土粒子等の懸濁物質にはあまり吸着されていないことが推測される。さらに、平常時に比べて増水時にd-TN濃度が低くなることから、窒素は主に溶存態で流入しており、増水時には雨水等により希釈されていることも推測される。



違いは、流域から流入する際の形態の違いによるものと考えられる。降雨時には平常時に比べて土粒子等の懸濁物質が多く流入するが、増水時にTP濃度が上昇したことは、TPは主に土粒子等の懸濁物質に多く吸着されており、増水時には平常時に比べて多くの懸濁物質が流入したことから濃度が高くなったものと推定される。一方、増水時にTN濃度が減少したということは、TPとは逆に土粒子等の懸濁物質にはあまり吸着されていないことが推測される。さらに、平常時に比べて増水時にd-TN濃度が低くなることから、窒素は主に溶存態で流入しており、増水時には雨水等により希釈されていることも推測される。

(3) 長茂川等水質調査

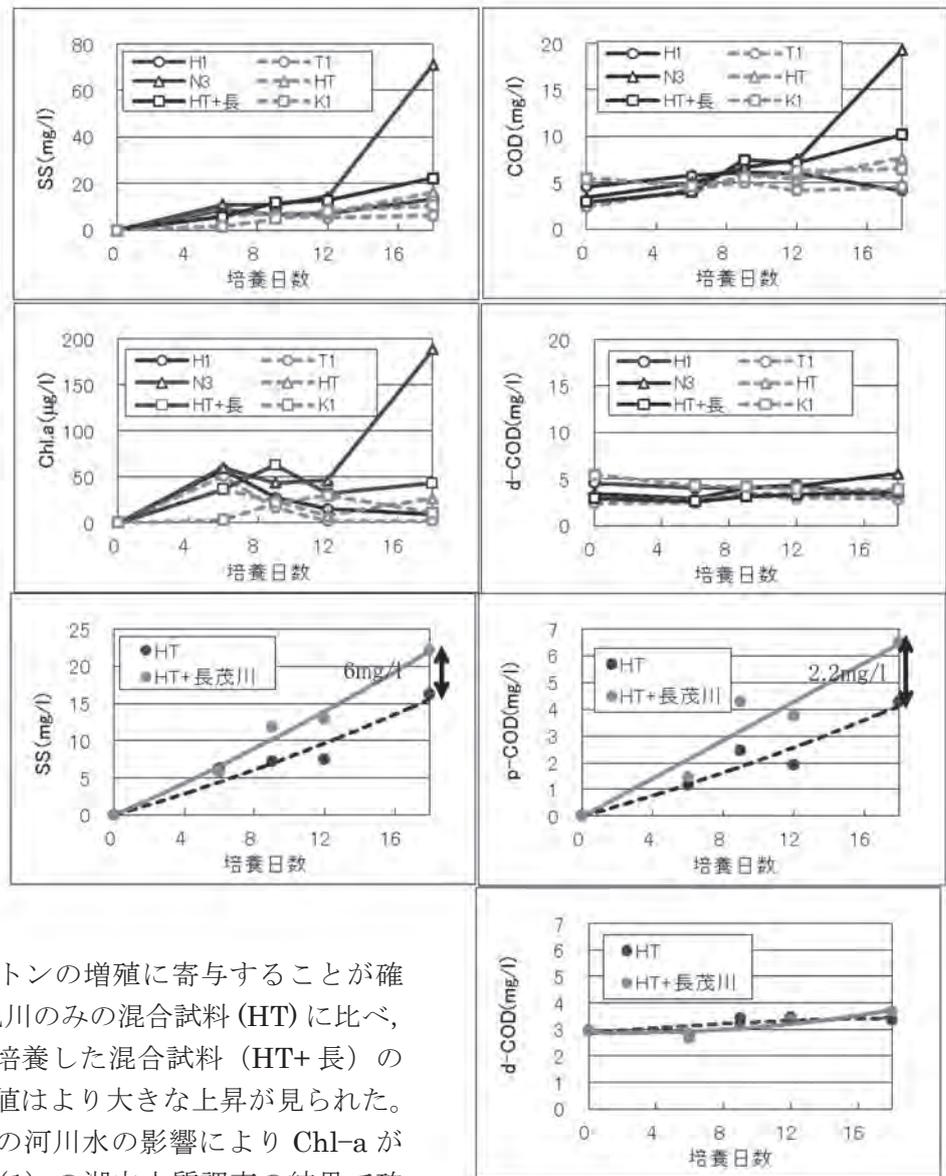
全窒素と各態窒素濃度及び全リン，リン酸態リン濃度を示す。全地点とも硝酸態窒素が高く（5.1～8.9mg/l），銚田川はアンモニア態窒素も高い（3.5mg/l）という結果が得られた。それに伴い全窒素も全河川で高く，5.8～13.6mg/lであった。一方，リンについてはN1～N3（長茂川本線の全域）で高いことがわかる。長茂川のリン酸態リン濃度は0.41～



0.86mg/l (N4:0.01mg/l) で，上流側で高い濃度を示した。長茂川最下流の長茂川橋上流側で本川に合流する排水樋門でのリン酸態リン濃度は0.02mg/lと低かった。

(4) 促進培養試験

北浦最北部に流入する3河川水 (H1, T1, N3), 北浦湖内の最北部の湖沼水 (K1), 及び，河川水を所定量ブレンドした試験水 (HT, HT+長) を用いた培養試験を行った。SS, COD, d-COD及びChl.aの推移を示す。18日間の試験でCODの増加量はN3が一番大きく(+16mg/l), HT+長, HT, T1, K1の順となったが，H1では若干減少した(-0.4mg/l)。SS, Chl.aも同様に推移する一方，d-CODではほとんど変動がないことから，CODの上昇は，植物プランクトンの増殖によるp-CODの上昇によるものであることが推測される。このことから長茂川の水は，植物プランクトンの増殖に寄与することが確認された。また，銚田川，巴川のみの混合試料 (HT) に比べ，長茂川を少量加えた試料で培養した混合試料 (HT+長) の方が，SS, COD, Chl.aの値はより大きな上昇が見られた。これらのことから，長茂川の河川水の影響によりChl-aが上昇することが確認され，(1)の湖内水質調査の結果で確



認められた河口部における高濃度の Chl.a は長茂川の湖水による影響で植物プランクトンが増殖されたことが要因と推測され、植物プランクトン増殖する際に $\text{PO}_4\text{-P}$ を利用したために、河口部における $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が他点に比べて低い値を示したものだと考えられる。

4 まとめ

湖内水質と併せて流入河川の水質を同時に測定し、さらには流入河川水を用いて植物プランクトンの培養試験を実施したところ、次のことが得られた

- ・湖水中の COD の変動の要因の一つとして、植物プランクトンの変動が大きな要因となっていることが推測された。
- ・ $\text{PO}_4\text{-P}$ を多く含む長茂川の河川水を使用した植物プランクトンの培養実験の結果、長茂川の河川水が他の河川水に比べて植物プランクトンが増殖しやすい湖水であることが確認された。また、その影響により、夏季の河口部において Chl.a 濃度が高い値を示すことが推測された。
- ・平常時における流入河川中の TP の大部分は $\text{PO}_4\text{-P}$ で占められているが、増水時には土粒子等の懸濁物質と一緒に高濃度の d-TP が流入することが推測された。一方、TN については、平常時にはリンと同様に主に溶存態で流入するものの、増水時には雨水等によって希釈されていることが推測された。

1-5 ハス田から流出する汚濁負荷削減のための調査研究 (H18～H21)

吉尾 卓宏^{※1}, 山本 麻美子^{※2}, 元木 努^{※3}, 北村 立実^{※1}, 片倉 洋一^{※4}

1 はじめに

茨城県は全国一のレンコンの産地である。2009年の出荷量は24,800t(全国出荷量の47%),作付面積は15.8km²であり¹⁾,作付面積の95%が霞ヶ浦に接する市町村で行われ,特に湖岸周辺に集中している²⁾。ハス田の霞ヶ浦流域に占める割合は0.8%と少ないが³⁾,「水堀」と呼ばれる水圧を利用した方法で堀取りを行うため濁水が生じやすいこと,ハス田の多くが湖岸近傍に位置し,代かきや堀取り等の作業時に発生した濁水が流出水として直接霞ヶ浦に入りやすいこと,などから霞ヶ浦への汚濁負荷の流入が懸念されており,汚濁負荷の削減が求められている。

そこで,本研究では,ハス田からの流出水の実態を把握するために,流出水濃度の年間を通じた動向の調査を行うとともに,休耕田を利用したハス田からの流出負荷削減方法を検証した。

2 調査地の概要

調査は土浦市沖宿町のハス田で実施した(図1)。調査圃場を含むこの流域の土地利用はほぼハス田である。用水は,霞ヶ浦から最上流部の用水路までポンプで加圧して送水し,用水路を通じて最上流のハス田に灌漑した後は,最下流のハス田まで田越灌漑を行っている。排水は,最下流のハス田から堤脚水路,樋門を通じて霞ヶ浦に流出している。この流域の最下流に試験区を設定し,試験区の直上に隣接する,標準的

な作付け管理を行っているハス田を対照区とした(図2)。

図1 調査区を含む流域図

※¹茨城県霞ヶ浦環境科学センター

※²茨城県県西農林事務所企画調整部門

※³茨城県企業局水質管理センター

※⁴茨城県鹿島下水道事務所

図2 調査圃場

3 調査方法

3-1 ハス田からの流出水の実態把握

水質の調査は、対照区からの流出水で行った。調査期間は平成18年4月から平成21年3月まで、採水は1～5回/週実施し、分析項目はSS, COD, d-COD, T-N, DTN, T-P, DTP及び水温, DOであり、分析方法はJISK0102に準拠した。

3-2 休耕田を利用したハス田からの流出負荷削減

ハス田(対照区)からの流出水を、一般的には堤脚水路へ流出するところ、流出前に試験区であるハス田を通過させた場合の、流出負荷削減効果について検証した。試験区の面積は385m²、調査開始前2年間耕作放棄されており、調査実施前に繁茂した植物を撤去し整地を行った。また、畦畔板を周囲に設置し表流水が流入口以外から入らないようにした。対照区からの流出水が試験区に流入し、試験区を通過後堤脚水路へ流出する。採水は試験区への流入水と流出水で1～5回/週実施、分析項目はSS, COD, T-N, T-Pであり、分析方法はJISK0102に準拠した。

試験区の状態から調査期間を表1のように3つに分けた。

表1 試験区条件

	調査期間	作付け	備考
調査①	H18.4～H19.1	無し	マコモが自生
調査②	H19.4～H21.1	ハス(無施肥)	作付け量 250kg/10a
調査③	H21.4～H22.1	ハス(無施肥)	作付け量 500kg/10a

調査①では特に作付けを行わず、自生していたマコモが生育している状態であった。調査②、③はハスを作付けし、特に調査③ではより高い負荷削減効果を期待して、作付け密度を調査②の2倍とした。調査期間中、施肥は行わなかった。

3-3 ハス田底泥中の窒素・リンの動向

ハス田からの流出負荷の動向を詳細に検証す

るため、対照区、試験区の底泥調査を平成21年5月から平成22年の2月までの期間に2ヶ月に1回行った。泥は表層より10cm刻みの3層(上層, 中層, 下層)を採取し、3,000rpmで20分間遠心分離機にかけたあと、土壌は底質調査方法(環境省, 2001)によりN, Pを、土壌間隙水はJISK0102に準拠し、DTN, DTPの分析を行った。

3-4 掘取り時流出濁水の負荷削減効果

平成21年度は対照区、試験区それぞれの掘取り時の流入水, 流出水を調査することで、掘取り時の負荷削減効果を検証した。分析項目はSS, COD, T-N, T-Pであり、分析方法はJISK0102に準拠した。

1) 試験区通過による負荷削減効果

対照区掘取り時に発生した濁水を、試験区に通した時の負荷削減効果について検証した。調査は対照区で掘取り作業が開始されてから試験区の水の流出が止まるまで行った。調査期間は平成22年2月21日から3月1日であり、その間、実際に掘取りが行われたのは5日間である。

2) 無施肥による負荷削減効果

試験区は4年間無施肥であったため、底泥中の窒素やリンが減少していると思われ、掘取りなど底泥が流出する時の負荷削減が期待できる。そこで、試験区と対照区の掘取り時の流出水質を比較しその効果を検証した。試験区の掘取り期間は平成22年2月4日から5日の2日間、対照区は上記の通りである。

4 結果

4-1 ハス田からの流出水の実態把握

ハス田からの流出水中の4年間の平均濃度は図3、水温とDOは図4の通りである。CODとSS, T-NとT-Pがそれぞれほぼ同様の傾向を示しており、CODとSSは、4月が最も濃度が高く夏季に向けて濃度が減少し、冬期にまた濃度が上昇した。特にSSで冬期の濃度上昇が顕著にみられた。一方、T-NとT-Pでは4月から8月にかけて濃度が上昇し、9月以降濃度が急激に減少した。また、DOは4月から6月にかけて急激な低下が見られた。

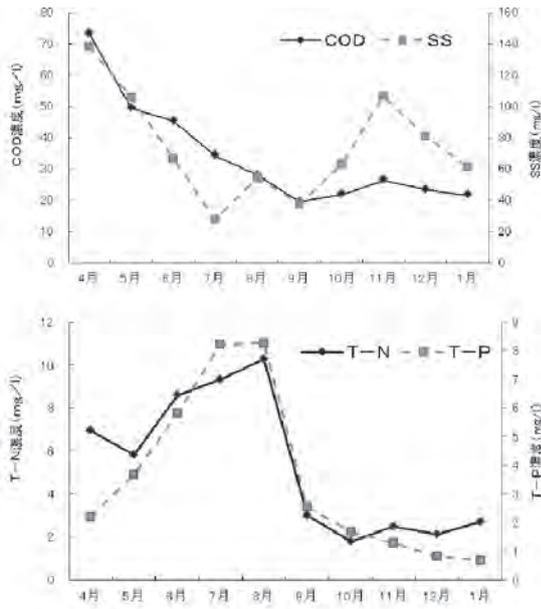


図3 調査期間中4年間の対照区からの流出水平均濃度の推移

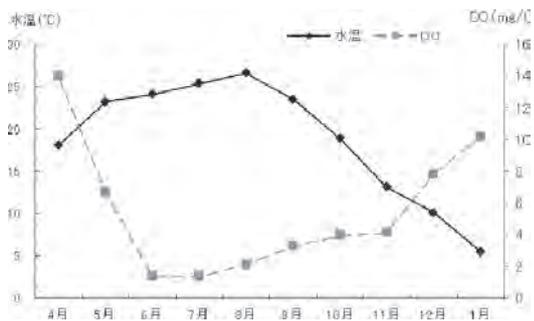


図4 調査期間中4年間の対照区からの流出水平均水温とDOの推移

CODとT-N, T-Pを溶存態と懸濁態の割合の推移で見ると、どの項目もSSと連動し、4月に懸濁態割合が高く、夏にかけて減少し、冬期にまた割合が高くなった(図5)。また、溶存態窒素について成分を細かく見てみると、4月は溶存性の有機態窒素が大部分であるが、5月以降アンモニア態窒素が上昇し8月に最大となり、9月以降減少した。また、9月には硝酸・亜硝酸態窒素の上昇が見られた(図6)。

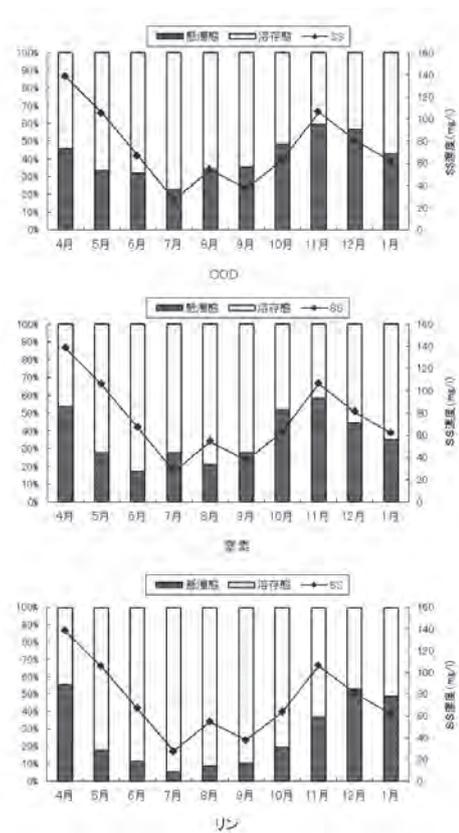


図5 流出水中の溶存態と懸濁態の割合の推移

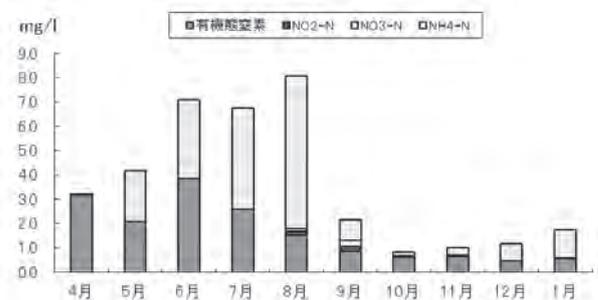


図6 各態窒素の割合の推移

4年間の調査期間のうち21年度は流入・流出水量についても詳細な調査を行った。結果は図7の通りで、流入・流出水量は降水量に影響されていた。また、調査期間中の試験区への流入量と流出量は流入が約3800m³、流出が約4100m³となりほぼ同量であった。なお、試験区の現地調査日数218日に対して、流出量が確認できた日数は70日と、約1/3の日数であった。また、流入水量が確認できた日数は36日で、流出量が確認できた日数の約半分となり、平均的な滞留時間は約2日間と推定される。

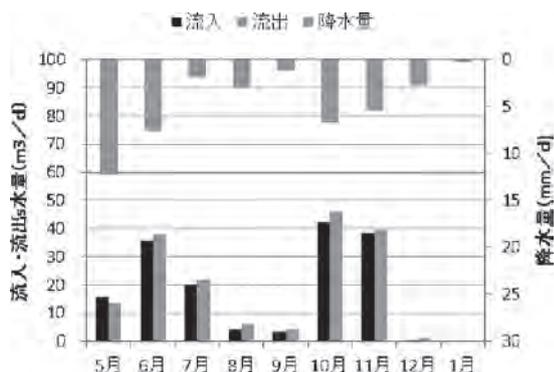


図7 流入・流出水量及び降水量の平均量の推移

4-2 休耕田を利用したハス田からの流出負荷削減

試験区からの流出負荷削減効果は、削減率として、流入水濃度と流出水濃度から以下の式1により算出した。

$$P = ((C_{in} - C_{out}) / C_{in}) \times 100 \text{ [式 1]}$$

P: 削減率 (%) C_{in} : 流入水濃度 (mgL^{-1}) C_{out} : 流出水濃度 (mgL^{-1})

各調査期間中の削減率は表2のとおりである。

表2 各調査期間中の削減率

	COD	SS	T-N	T-P
調査①	7.3%	37.6%	11.6%	1.8%
調査②	8.8%	31.9%	15.9%	16.8%
調査③	29.9%	67.3%	19.9%	16.4%

※調査②は2ヶ年の平均

無作付け時に比べてハス作付け時ではリンの削減率が向上した。また作付け密度を2倍にすることによりCOD, SS, T-Nの削減率がさらに向上した。

一方、調査期間中のハスの収量および収穫に伴う窒素・リンの持ち出し量は表3の通りである。収量に関しては平成20年度農林水産統計によると県平均値は $1.7 \text{ kg} / \text{m}^2$ であり、比較しても遜色はなかった。

表3 年度ごとのレンコン収量および窒素、リンの持ち出し量

	レンコン収量 kg / m^2	窒素量 g / m^2	リン量 g / m^2
H19年度	2.0	3.0	1.0
H20年度	1.8	5.3	0.9
H21年度	2.2	6.6	1.1

4-3 ハス田底泥中の窒素リン濃度の動向

土壌間隙水中のDTNの動向(図8)は、深さ別に大きな差はなく、対照区では5月から9月にかけて濃度が上昇し、以後減少していった。試験区では9月に濃度が高くなったが、それ以外は対照区と比較して低濃度で推移した(図8)。DTP(図9)は0-10cmでは対照区において、5月から9月にかけて上昇し、以後減少したが、10-20cm, 20-30cmでは7月から11月にかけて上昇し、以後減少した。試験区では全体的に対照区より低濃度で推移した。(図9)

土壌中のT-Nの動向(図10)は、対照区では大きな変動はなく、9月と2月(堀取り後)に若干減少した。試験区は0-10cmでは 8 mg/g-dry で推移して、3月(堀取り後)に減少した。10-20cm, 20-30cmでは減少傾向で推移した(図10)。T-Pでは調査区の方が濃度が低い傾向であった。(図11)

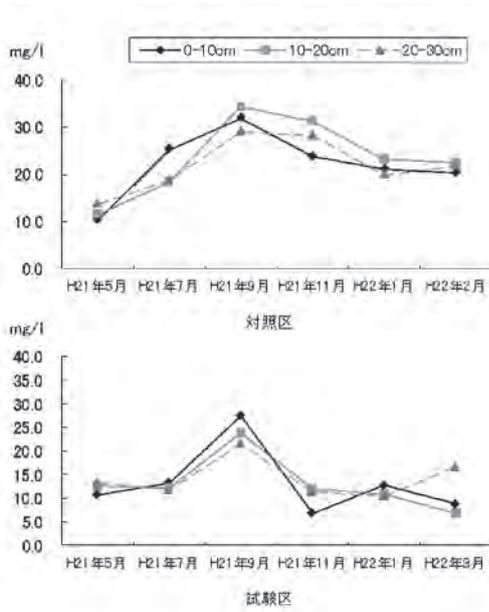


図8 土壤間隙水中のDTNの動向

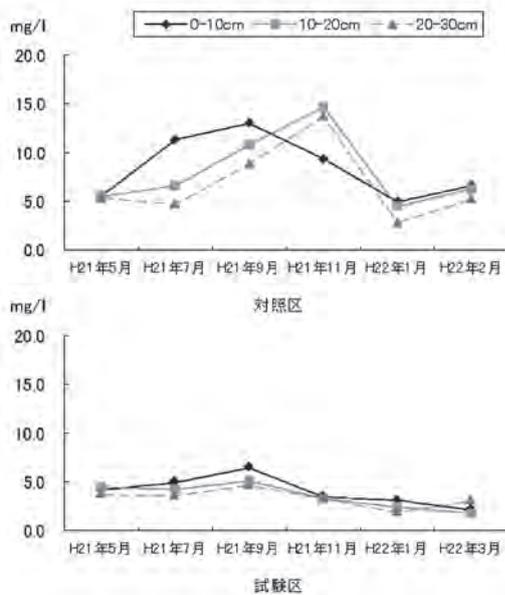


図9 土壤間隙水中のDTPの動向

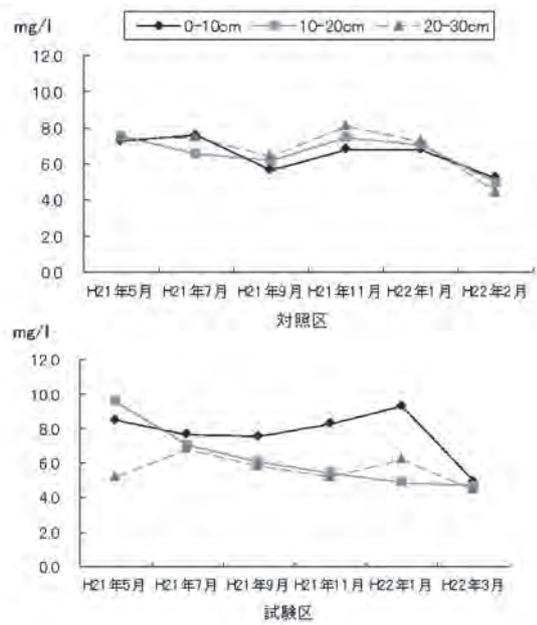


図10 土壤中のT-Nの動向

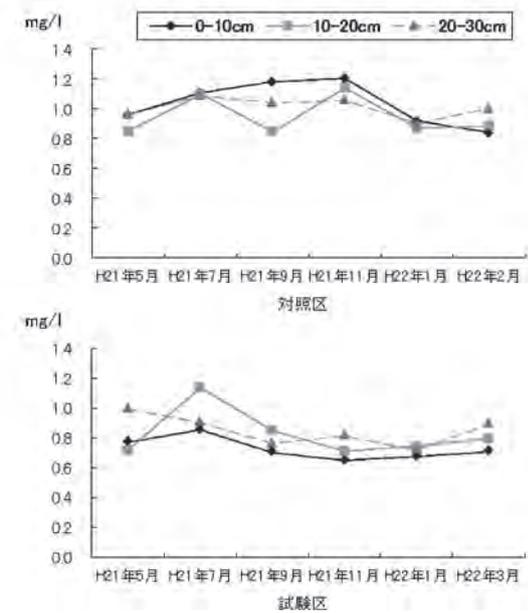


図11 土壤中のT-Pの動向

4-4 掘取り時流出濁水の負荷削減効果

1) 試験区通過による負荷削減効果

対照区で掘取りを行ったときの、試験区への流入水と流出水の平均濃度は図12のとおりであり、試験区を通過させることにより急激に減少した。その削減率は表4の通りで、COD, SSで90%以上、T-N, T-Pも80%以上を示した。また、窒素、リンの溶存態と懸濁態の平均濃度から割合を比較すると流入水は大部分が懸濁態であり、流出水は大部分が溶存態であった。(図13)

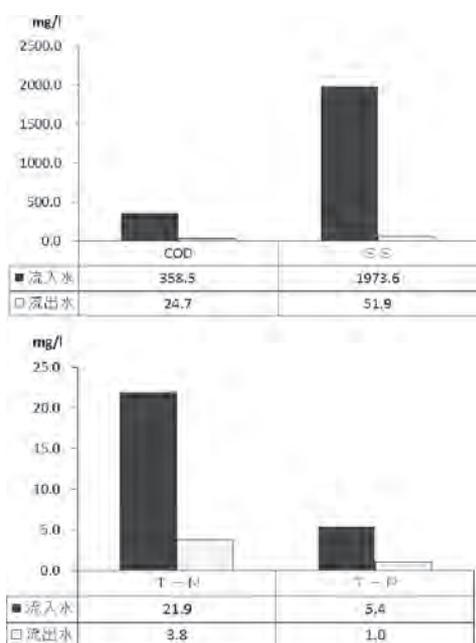


図12 流入水と流出水の平均濃度

表4 掘り取り時の調査田通過時の削減率

COD	SS	T-N	T-P
93.1%	97.4%	82.9%	81.0%

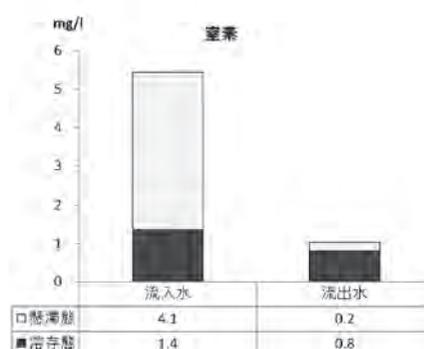
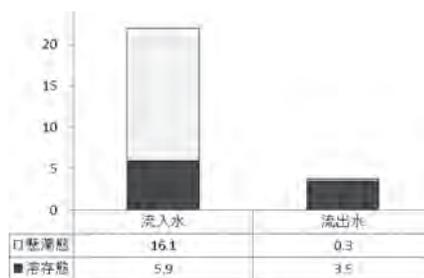


図13 流入水と流出水の窒素・リンの溶存態、懸濁態割合

2) 無施肥による負荷削減効果

対照区と試験区の掘取り時流出水の平均濃度は図14の通りであり、試験区掘の取り時の方が濃度が低くなった。

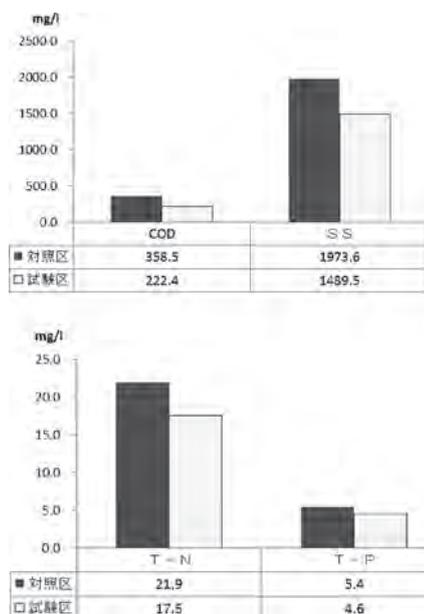


図14 掘取り時の流入、流出平均濃度

5 考察

5-1 ハス田からの流出水の実態把握

ハス田における年間の作業スケジュールはおおむね表5の通りである。4月から5月にかけて元肥施肥と代かき及び植え付けが行われ、6月から8月の間に2回から3回に分けて追肥が行われる。そして10月から2月までが掘り取り期間であるが、ピークは12月前後となる。

表5 ハス田の年間作業スケジュール

4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
← 代かき・元肥・植え付け		← 追肥			← 掘り取り						



この作業スケジュールとハス田からの流出水濃度の推移を比較してみると、CODとSSは濃度の高い時期が代かき、掘り取り時期と一致している。懸濁態の割合もこの時期に高くなっていることからこれらの作業の影響が大きいと思われる。

一方、T-N、T-Pは4月から濃度が上昇し7月、8月に最も濃度が高くなり、その大部分が溶存態であった。そして、収穫時期の濃度上昇は見られなかった。夏季の濃度上昇については、この時期行われる追肥や、夏季には水温の上昇、DOの低下もみられることから、底泥からの溶出が影響している可能性が考えられる。

5-2 休耕田を利用したハス田からの流出負荷削減

何も作付けを行わない状態の休耕田ではSSの削減効果が認められたが、これは沈殿によるものと思われる。次にハスを作付けした結果は、作付け無しの時比べてCOD、SS、T-Nは効果に大きな差はなかったが、リンの除去率が向上

した。ハスは特に地下茎でリンを多く吸収するという報告⁴⁾⁵⁾があり、その効果が現れたものと思われる。ハスの作付け密度を2倍に増やした場合、COD、SSは除去効果が向上したが、T-N、T-Pは大きな差は見られなかった。CODとSSの除去率の増加は、作付け密度が増えることによって、水の流れが妨げられ、見かけの滞留時間が増加した結果、さらに沈殿したと考えられる。それに対してリンはハスによる吸収が大きいと考えられるが、作付け密度を増やしても、削減効果が向上しなかった理由は、同じ面積内では生体量の増加には限界があったためと思われる。レンコンの収穫量を比較すると、通常の間作を行った調査②では、平均 1.9kg/m^2 に対して調査③では 2.2kg/m^2 であり、収量の増加はあったが2倍にまではならなかった。

5-3 ハス田底泥中の窒素・リン濃度の動向

土壌間隙水中のDTN、DTPの傾向を見ると、対照区では、流出水と同様の傾向が見られた。夏期の濃度上昇の原因も、ハス田からの流出水と同様、追肥や底泥からの溶出が考えられる。

一方、試験区では、比較的低濃度で推移したが、9月に特にDTNの濃度上昇がみられた。調査田は追肥を行っておらず、また、9月は約1ヶ月間、流入・流出水が無く、降雨もない状態で直上水が滞留しており、見かけ上、外部からの負荷の流入・流出はなかった。このことから、土壌間隙水のDTN濃度の上昇は、底泥からの溶出が起これたと考えられる。

土壌中のT-N、T-P濃度については土壌中に含まれる濃度が元々高いため流入水の影響は小さく、効果を明確には出来なかった。

5-4 掘り取り時流出濁水の負荷削減効果

対照区の掘り取り水の負荷削減効果は80%以上と高い効果があった。これは掘り取り時の流出水が主に懸濁態であり、ハス田における沈殿効果による浄化効果が現れたと考えられる。また、施肥を行わないことにより掘り取り時の流出水濃度が低下したと考えられる。

6 まとめ

今回は、ハス田からの流出水の実態を把握するための流出水濃度の動向調査と、休耕田を利用したハス田からの流出負荷削減方法を検証した。

ハス田からの流出水はCOD、SSは春期と冬

期に濃度が高くなり、特に懸濁態の割合が高くなった。これは代かき、堀取りなどの農作業が影響している。T-NとT-Pは春から夏にかけて濃度が上昇した。これは、追肥による影響が大きいと思われるが、一部は底泥からの溶出の可能性が示唆された。

ハス田流出水の負荷削減については、堤脚水路への流出直前にハス田を通過させることによって負荷削減効果が確認された。特に堀取り時の濁水中の負荷削減効果が高かった。また、無施肥による効果は、底泥からの溶出量の削減、堀り取り時の負荷削減効果が期待できた。

これまでハス田からの負荷削減対策として節水や減肥と行った方法が報告⁶⁾されているが、田越しかんがいのように区画が整理されていない流域では水量や施肥を区画ごとにコントロールすることは難しく、そのような流域では水路に隣接したハス田を負荷削減に利用する今回の方法は有効であると思われる。

引用文献

- 1) 農林水産省統計情報／作況調査（野菜）平成21年度産秋冬野菜等の作付け面積，出荷量
- 2) 農林水産省統計情報／作況調査（野菜）平成18年市町村別データ
- 3) 茨城県：第5期の霞ヶ浦に係る湖沼水質保全計画策定関係資料集 第二部5-1
- 4) 小松鋭太郎ら，(1981)：食用ハスの生育経過と養分吸収，茨城園試研報第9号
- 5) 木内浩一，(1997)：手賀沼におけるハスの分布と土壌中の植物利用可能リン，千葉県環境研究センター年報
- 6) 折本ら，(2002)：被服肥料及び節水管理によるレンコン田からの窒素負荷低減技術，平成14年度 関東東海北陸農業研究成果情報

1-6 降雨時における涸沼流入3河川の汚濁負荷流出特性

須能紀之, 片倉洋一*

Characteristics of the three rivers runoff pollution loads flowing into Lake Hinuma during rainfall
Noriyuki SUNOH, Yoichi KATAKURA*

キーワード：涸沼，流入河川，汚濁負荷，土地利用，表面流出

1. はじめに

涸沼は那珂川支流の涸沼川に形成された汽水湖で、ヤマトシジミなど魚介類の漁場であるとともに、ヒヌマイトトンボなど希少動植物の生息場所としても貴重な湖であるが、流域における人口増や生活様式の多様化、産業活動の進展などにより水質の汚濁が進行した。このため茨城県は2000年に湖沼B型類型に指定すると同時に水質目標と総合的な水質保全対策を定めた第1期涸沼水質保全計画を策定した。以降、2期10年にわたり、下水道の整備や合併処理浄化槽の設置など生活排水対策や、家畜排せつ物処理施設の整備推進など様々な対策を進めてきた。これらの対策により、徐々に発生源からの排出負荷量が抑制された結果、流入河川の水質は、CODおよびTPについては改善されてきたものの、TNについては改善されなかった。一方、湖内水質については、TPはわずかながら水質目標を達成したが、CODおよびTNは、目標を達成できなかった。このため、水質環境基準の達成に向けて、2010年に第3期涸沼水質保全計画を策定し、引き続き総合的な水質保全対策を計画的に推進している¹⁾(表1)。

涸沼の湖面積は9.35km²であるのに対して、流域面積は439km²と約47倍であることから、湖内の水質は流域からの汚濁負荷の影響が大きいと考えられており、2010年度における流入河川からのCODの負荷量は5,333kg/day(29.5%)で、主な内訳は田畑・市街地・山林その他を合わせた面源系が

44%、生活系が30%、畜産系が23%と算定されている¹⁾。同様にTNの負荷量は2,869kg/day(51%)で、主な内訳は面源系が37%、畜産系が33%、生活系が26%であり、TPの負荷量は163kg/day(47.7%)で、主な内訳は生活系が52%である¹⁾。

涸沼流域では生活排水対策(下水道・農業集落排水施設の整備、高度処理型浄化槽の設置促進)、畜産対策(堆肥の流域外流通の促進)、面源対策(エコファーマー等による耕作面積の拡大)を進めて汚濁負荷の削減を図っているが、効果的な浄化対策を実施するためには、各流入河川流域からの汚濁負荷流出特性を解明することが必要不可欠である。涸沼流域では2006年から流入河川調査を行い、特徴的な水質を有する河川について実態の把握はできたものの、汚濁負荷流出特性の解明までは至っていない。

そこで、集水面積の大きい涸沼川および涸沼前川、そして市街地の割合が高い石川川の3流入河川を選定して調査を行ない、降雨時における汚濁負荷特性を検討した。

2. 方法

調査地点における集水面積および土地利用面積は、桑名ら²⁾が行った国土院発行の100mメッシュ1/10細分区画土地利用データからGISソフトウェアにより算出した値を用いた。



図1 涸沼流入河川の集水域および調査地点

表1 涸沼の水質基準および現況

水質項目	環境基準値	第2期水質保全計画水質目標値	現況 ^{*2}	第3期水質保全計画水質目標値
COD ^{*1}	5.0	5.5	6.6	5.5
TN	0.6	1.4	1.8	1.4
TP	0.05	0.08	0.08	0.06

*1: 75%値(現況の数値を除く)

*2: 2005～09年における公共用水域調査3地点の年度平均値

*茨城県鹿島下水道事務所

降雨時調査は涸沼川、涸沼前川および石川川の高橋、長岡橋および入野橋で行なった(図1)。降雨開始時を0hとして1時間毎の採水および流量調査を3地点同時に24時間後まで行ない、調査日を変えて計3回実施した。調査は第1回目を2010年9月8~9日、第2回目を10月28~29日、第3回目を12月3~4日に実施した。また、降雨時と比較するため、2011年3月17~18日に平水時の調査を実施した。

水質の分析項目はCOD, DCOD, PCOD, TN, DTN, PN, DON, NH₄-N, NO₃-N, NO₂-N, TP, DTP, PP, DOPおよびPO₄-Pで、溶存態成分はガラス繊維濾紙(Whatman GF/B)による濾液を分析し、懸濁態成分を算出した。

降水量はアメダス(水戸, 笠間)のデータを平均して使用した。

3. 結果

(1) 土地利用の状況

涸沼川の高橋における集水面積は221.45km²で、主な土地利用の割合は、森林が50.0%、田が16.5%、畑が9.8%を占め、森林は上流域に偏在していた(表2)。涸沼前川の長岡橋における集水面積は95.4km²で、主な土地利用の割合は、森林が29.7%、田が25.3%、畑が20.5%を占めていた。石川川の入野橋における集水面積は12.27km²で、主な土地利用の割合は、森林が27.0%、田が29.4%、市街地が18.3%、畑が14.2%を占めていた。

涸沼川における田の面積割合は16.6%で、涸沼前川(25.3%)や石川川(29.4%)と比べて低かった。涸沼川における畑の面積割合は9.8%で、涸沼前川(20.5%)や石川川(14.2%)と比べて低かった。涸沼川における森林の面積割合は50%で、涸沼前川

表2 流入河川の平水時流量および集水域の土地利用

流入河川	涸沼川	涸沼前川	石川川
調査地点	高橋	長岡橋	入野橋
平水時流量(m ³ /s)*1	3.98	1.43	0.18
集水面積(km ²)	221.45	95.40	12.27
田	16.5	25.3	29.4
畑	9.8	20.5	14.2
樹木畑	8.3	5.4	0.4
土地利用	森林	29.7	27.0
割合(%)	荒地	2.7	1.6
	市街地	8.0	9.2
	その他	3.0	7.2
	水域	1.7	1.1
			0.3

*1: 平水時調査による平均値

(29.7%)や石川川(27.0%)と比べて高かった。石川川における市街地の面積割合は18.3%で、涸沼川(8.0%)や涸沼前川(9.2%)と比べて高かった。

(2) 平水時における流量と水質濃度

調査開始前1週間の総降水量は1mmで、前日の夜中から明け方にかけて0.5mm/h程度のごく弱い降水があったが、調査中の降水量は0mmであった。

涸沼川における流量はやや変動がみられ、最小値に対する最大値の変動幅(以下「変動幅」という)は1.3倍で、平均値は、3.98m³/sであった(図2)。COD濃度はやや変動がみられ、変動幅は1.4倍で、平均値は3.2mg/Lであった。TN濃度はほぼ一定で、変動幅は1.1倍、平均値は2.18mg/Lであった。TP濃度は変動がみられ、変動幅は1.5倍で、平均値は0.047mg/Lであった。

涸沼前川における流量はほぼ一定で、変動幅は1.2倍、平均値は1.43m³/sであった。COD濃度は変動がみられ、変動幅は2.1倍で、平均値は3.7mg/Lであった。TN濃度はほぼ一定で、変動幅は1.1倍、平均値は2.59mg/Lであった。TP濃度は変動がみられ、変動幅は3.3倍で、平均値は0.055mg/Lであった。

石川川における流量はやや変動がみられ、変動幅は1.3倍で、平均値は0.18m³/sであった。COD濃度はやや変動がみられ、変動幅は1.5倍で、平均値は5.6mg/Lであった。TN濃度はやや変動がみられ、

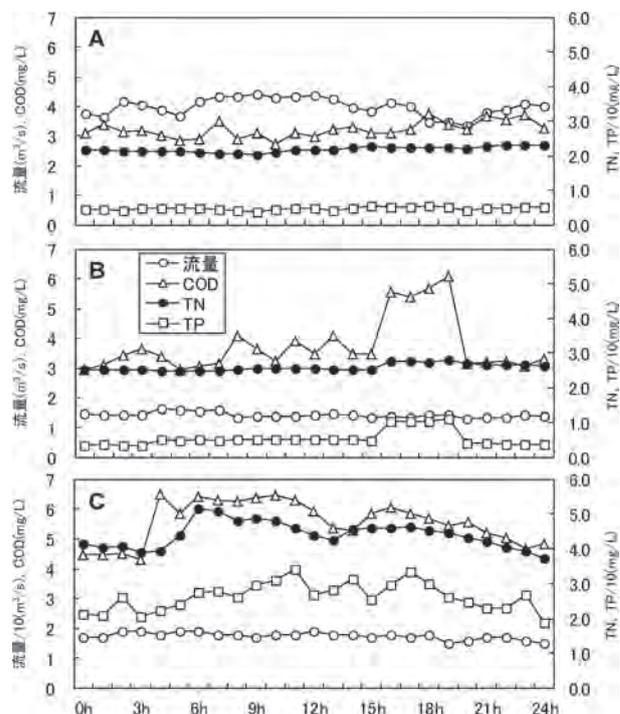


図2 平水時調査における流量および各水質濃度の推移
A: 涸沼川(高橋), B: 涸沼前川(長岡橋), C: 石川川(入野橋)

変動幅は1.4倍で、平均値は4.40mg/Lであった。TP濃度は変動がみられ、変動幅は1.8倍で、平均値は0.263mg/Lであった。

石川川は他2河川と比べて流量は少ないが、水質濃度はCOD, TN, TPともに高い傾向がみられ、特にTPは涸沼川の5.6倍、涸沼前川の4.8倍であった。

(3) 降雨時における降水量の推移

第1回目調査における総降水量は19mmで、調査開始2～6時間後の間に0.3～9.0mmのやや強い降雨が継続し、7～15時間後には0.3～1.5mmの弱い降雨が散発的にあった(図3)。最大降雨強度は4時間後の9mm/hであり、2～6時間後の間に総降水量の84.2%(16.0mm)の降雨が集中してあった。16時間後以降の降水量は0mmであった。

第2回目調査における総降水量は28.8mmで、調査開始0～15時間後までの間に0.5～3.3mmの弱い降雨が継続し、最大降雨強度は6時間後の3.3mm/hであった(図4)。16時間後以降の降水量は0mmであった。

第3回目調査における総降水量は54.3mmで、調

査開始3～8時間後までの間に3.0～15.0mmの強い降雨が短時間に集中してあり、最大降雨強度は8時間後の15mm/hであった(図5)。9時間後以降は16時間後に0.25mmの降水量があった他は0mmであった。

(4) 降雨時における流量と水質濃度

a) 第1回目調査

涸沼川における流量は、降水量に対して遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度(調査開始4時間後)よりも6時間遅く、調査開始10時間後に現れ、10.56m³/sであった(図3)。COD, TNおよびTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれピークが認められた。COD濃度のピークは流量のピークよりも2時間遅く現れ、13.3mg/Lであった。TNとTP濃度のピークは流量のピークよりも1時間早く現れ、2.87mg/Lと0.339mg/Lであった。

涸沼前川における流量は、降水量に対して遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度よりも6時間遅く、調査開始10時間後に現れ、2.31m³/sであった。COD, TNおよびTP濃度は、流量に合わせて変動し、それぞれ2回ピークが認められ、いずれも流量のピークより早かった。COD濃度のピークは流量のピークの4時間前と1時間前に現れ、18.4mg/Lと20.0mg/Lであった。TN濃度のピークは流量のピークの5時間前と3時間前に現れ、3.48mg/Lと3.55mg/Lであった。TP濃度のピークは流量のピークの5時間前と2時間前に現れ、0.439mg/Lと0.510mg/Lであった。

石川川における流量は、降水量とほぼ同期して変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度よりも2時間遅く、調査開始6時間後に現れ、1.23m³/sであった。COD, TNおよびTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれピークが認められた。COD, TNおよびTP濃度のピークは流量のピークよりも1時間早く現れ、それぞれ40.8mg/L, 6.28mg/Lおよび1.333mg/Lであった。

b) 第2回目調査

涸沼川における流量は、降水量に対して遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度(調査開始6時間後)よりも8時間遅く、調査開始14時間後に現れ、25.50m³/sであった(図4)。CODとTP濃度は流量のピーク前後で一定になる傾向がみられ、濃度のピークはやや不明瞭であったが、流量のピーク前後に認められた。COD濃度

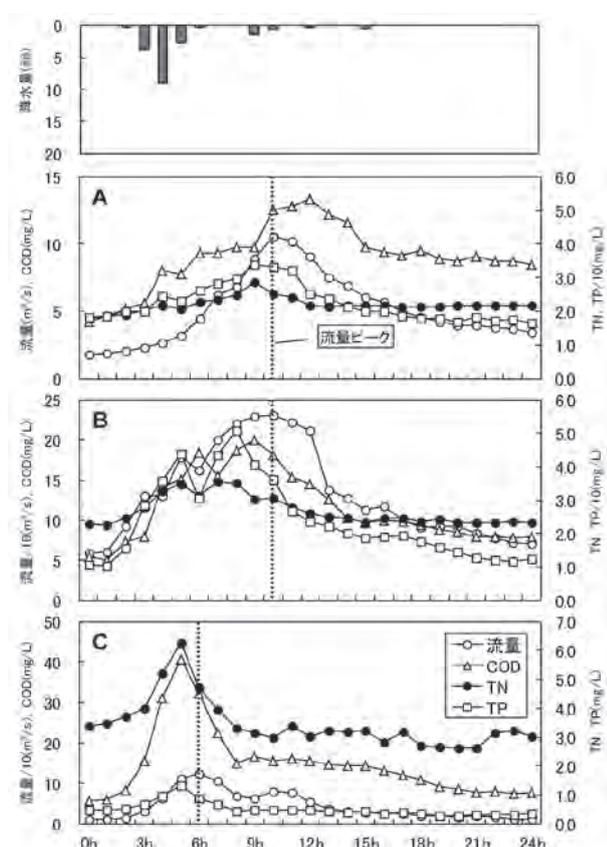


図3 第1回目調査時における降水量、流量および各水質濃度の推移
A: 涸沼川(高橋), B: 涸沼前川(長岡橋), C: 石川川(入野橋)

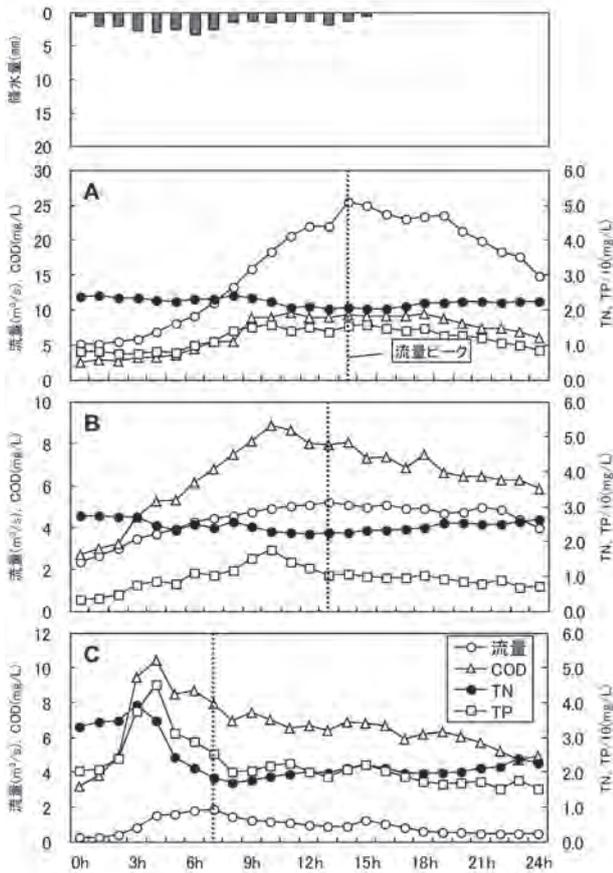


図4 第2回目調査時における降水量、流量および各水質濃度の推移
A: 涸沼川(高橋), B: 涸沼前川(長岡橋), C: 石川川(入野橋)

のピークは流量のピークの3時間前と4時間後に現れ、9.7mg/Lと9.5mg/Lであった。TP濃度のピークは流量のピークの4時間前と1時間後に現れ、0.158mg/Lと0.157mg/Lであった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピークの1時間後に最小値(2.05mg/L)を示した。

涸沼前川における流量は、降水量に対して遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度よりも7時間遅く、調査開始13時間後に現れ、5.21m³/sであった。CODとTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれピークが認められた。CODとTP濃度のピークは流量のピークよりも3時間早く現れ、8.9mg/Lと0.178mg/Lであった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピークの1時間前に最小値(2.22mg/L)を示した。

石川川における流量は、降水量とほぼ同期して変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度よりも1時間遅く、調査開始7時間後に現れ、1.86m³/sであった。CODとTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれピークが認められた。CODとTP濃度のピークは流量のピークよりも4時間早く

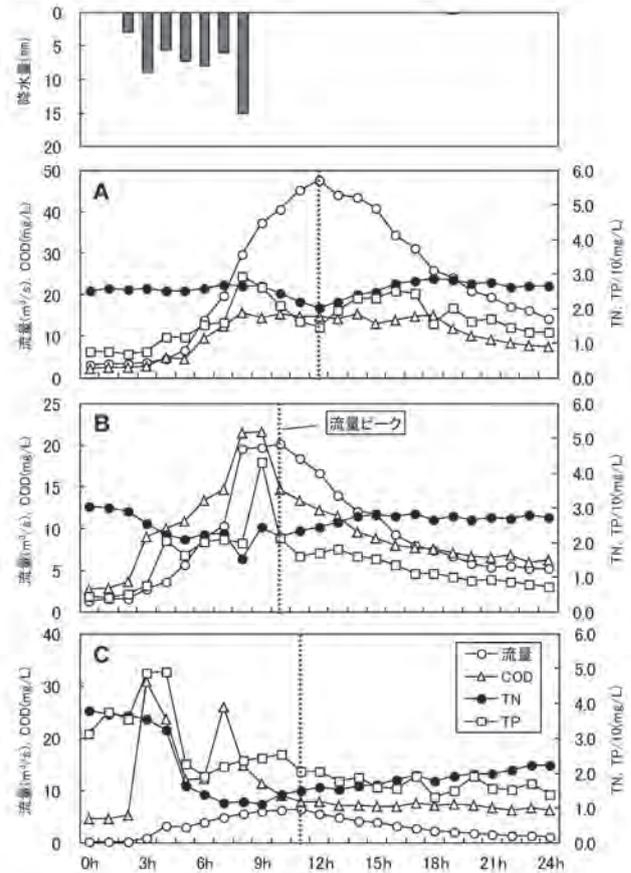


図5 第3回目調査時における降水量、流量および各水質濃度の推移
A: 涸沼川(高橋), B: 涸沼前川(長岡橋), C: 石川川(入野橋)

現れ、10.5mg/Lと0.452mg/Lであった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピークの1時間後に最小値(1.69mg/L)を示した。

c) 第3回目調査

涸沼川における流量は、降水量に対してやや遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度(調査開始8時間後)よりも4時間遅く、調査開始12時間後に現れ、ピーク時の流量は47.61m³/sであった(図5)。COD濃度は流量のピーク前後で一定になる傾向がみられ、濃度のピークはやや不明瞭であったが、流量のピーク前後に認められた。COD濃度のピークは流量のピークの4時間前と2時間後に現れ、15.8mg/Lと15.4mg/Lであった。TP濃度は流量のピーク付近で減少する傾向がみられ、濃度のピークは流量のピーク前後に認められた。TP濃度のピークは流量のピークの4時間前と4時間後に現れ、0.295mg/Lと0.250mg/Lであった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピーク時に最小値(2.01mg/L)を示した。

涸沼前川における流量は、降水量とほぼ同期して変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨

強度よりも2時間遅く、調査開始10時間後に現れ、ピーク時の流量は $20.11\text{m}^3/\text{s}$ であった。CODとTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれピークが認められた。CODとTP濃度のピークは流量のピークよりも1時間早く現れ、 21.7mg/L と 0.430mg/L であった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピークの2時間前に最小値(1.53mg/L)を示した。

石川川における流量は、降水量に対してやや遅れて変動する傾向がみられた。流量のピークは最大降雨強度よりも3時間遅く、調査開始11時間後に現れ、ピーク時の流量は $6.45\text{m}^3/\text{s}$ であった。CODとTP濃度は流量に合わせて変動し、それぞれ2回ピークが認められ、いずれも流量のピークより早かった。COD濃度のピークは流量のピークの8時間前と4時間前に現れ、 30.8mg/L と 26.0mg/L であった。TP濃度のピークは流量のピークの7時間前と1時間前に現れ、 0.493mg/L と 0.255mg/L であった。TN濃度は流量の増加に対して減少する傾向がみられ、流量のピークの2時間前に最小値(1.12mg/L)を示した。

(5) 流量のピークと水質濃度の変化

各調査地点における流量と各水質濃度との関係は、呉ら³⁾、呉ら⁴⁾および呉・山田⁵⁾が提唱している①流量ピークより水質濃度ピークが早い「初期高濃度型(ファーストフラッシュ型)」、②濃度ピークが遅い「後期高濃度型」、③流量の最大値付近で水質濃度が最低値を示す「流量希釈型」に分けられた。

第1回目の調査では、涸沼川の水質はCODが②型、TNとTPが①型であった(表3)。涸沼前川および石川川は全ての水質が①型であった。

第2回目の調査では、涸沼川の水質はCODとTPが①と②の複合型を示し、TNは③型であった。涸沼前川はCODとTPが①型、TNは③型であった。石川川はCODとTPが①型、TNは③型であった。

第3回目の調査では、涸沼川の水質はCODとTPが①と②の複合型を示し、TNは③型であった。涸沼前川と石川川の水質はCODとTPが①型、TNが③型であった。

水質濃度型は降水量に応じて変化し、涸沼川の水質濃度型はCODでは降水量が20mm未満の場合②型を示し、20mm以上の場合①と②の複合型を示した。TPは降水量が20mm未満の場合①型を示し、20mm以上の場合①と②の複合型を示した。TNは総降水量が20mm未満の場合①型を示し、20mm

表3 降雨時調査における降水量と水質濃度型

		降水量(mm)	COD	TN	TP
涸沼川	1回目	19.0	②	①	①
	2回目	28.8	①②	③	①②
	3回目	54.3	①②	③	①②
涸沼前川	1回目	19.0	①	①	①
	2回目	28.8	①	③	①
	3回目	54.3	①	③	①
石川川	1回目	19.0	①	①	①
	2回目	28.8	①	③	①
	3回目	54.3	①	③	①

①:初期高濃度型(ファーストフラッシュ型), ②:後期高濃度型, ③:流量希釈型

以上の場合③型を示した。

涸沼前川の水質濃度型はCODとTPは降水量によって変化せず、①型を示した。TNは降水量が20mm未満の場合は①型を示し、20mm以上の場合③型を示した。

石川川の水質濃度型はCODとTPは降水量によって変化せず、①型を示した。TNは降水量が20mm未満の場合は①型を示し、20mm以上の場合③型を示した。

(6) 平水時と降雨時における比流量と比負荷

a) 比流量

平水時における涸沼川の比流量は、やや変動がみられ、変動幅は1.3倍で、平均値は $65\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ であった(図6)。涸沼前川の比流量はほぼ一定で、変動幅は1.2倍、平均値は $54\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ であった。石川川の比流量はやや変動がみられ、変動幅は1.3倍で、平均値は $51\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ であった。比流量は涸沼前川と石川川は同程度であったが、涸沼川はそれに比べて大きく、約1.2倍であった。

降雨時における比流量は、涸沼川は全調査ともに降水量に対して遅れて緩やかに増加する傾向がみられ、第1～3回目調査における比流量の平均値は、84, 264, 384 $\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ で、平水時の1.3, 4.1, 5.9倍であった(図6)。涸沼前川の比流量は、涸沼川と同様に降水量に対して遅れて増加する傾向がみられ、第1回目と第2回目調査では涸沼川よりも増加が緩やかであった。第3回目調査では涸沼川とほぼ同程度であった。第1～3回目調査における比流量の平均値はそれぞれ、50, 166, 342 $\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ で、平水時の0.9, 3.1, 6.4倍であった。石川川の比流量は、全調査ともに降水量に合わせて顕著な増加を示し、第1～3回目調査における比流量の平均値は、127, 269, 902 $\text{m}^3/\text{h}/\text{km}^2$ で、平水時の2.5, 5.3, 17.7倍であった。

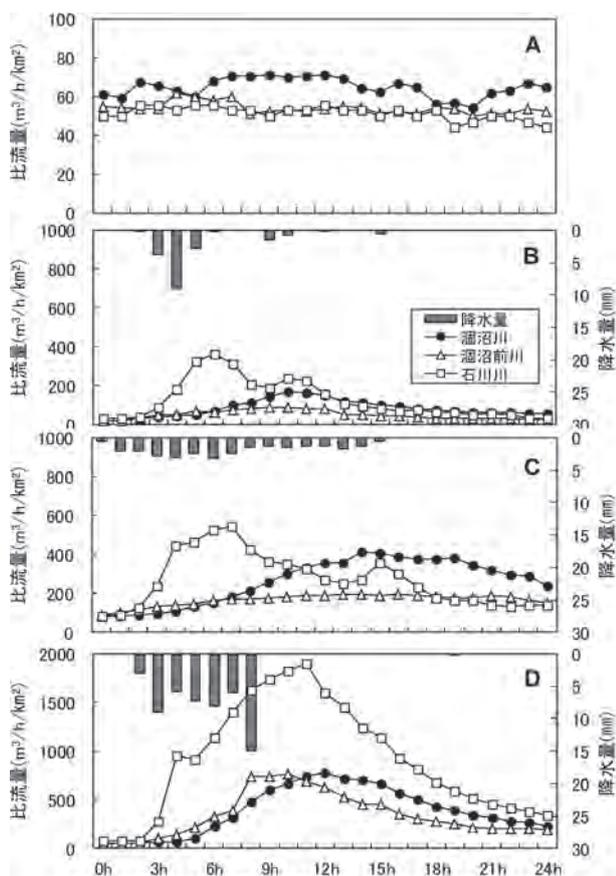


図6 平水時および降雨時調査における降水量と比流量の推移
A: 平水時調査, B: 第1回目調査, C: 第2回目調査, D: 第3回目調査

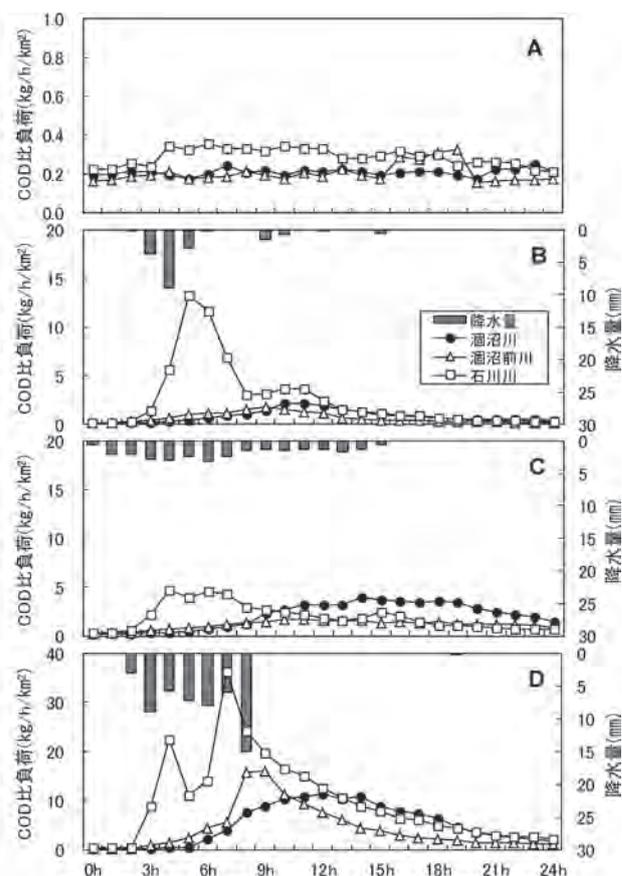


図7 平水時および降雨時調査における降水量とCOD比負荷の推移
A: 平水時調査, B: 第1回目調査, C: 第2回目調査, D: 第3回目調査

b) COD 比負荷

平水時における COD の比負荷は、濁沼川は変動がみられ、変動幅は 1.5 倍で、平均値は 0.21kg/h/km^2 であった (図 7)。濁沼前川の比負荷は、変動がみられ、変動幅は 2.1 倍で、平均値は 0.20kg/h/km^2 であった。石川川の比負荷は、変動がみられ、変動幅は 1.7 倍で、平均値は 0.29kg/h/km^2 であった。濁沼川と濁沼前川の比負荷は同程度であったが、石川川はそれに比べて大きく約 1.4 倍であった。

降雨時における COD の比負荷は、濁沼川は全調査ともに降水量に対して遅れて緩やかに増加する傾向にあり、第 1～3 回目調査における比負荷の平均値は、 $0.85, 2.07, 5.01\text{kg/h/km}^2$ で、平水時の 4.1, 10.0, 24.1 倍であった (図 7)。濁沼前川の比負荷は、濁沼川と同様に降水量に対して遅れて増加する傾向にあり、第 1 回目と第 2 回目調査では濁沼川よりも増加が緩やかであった。第 3 回目調査では濁沼川よりも増加が顕著であった。第 1～3 回目調査における比負荷の平均値は、 $0.66, 1.12, 4.23\text{kg/h/km}^2$ で、平水時の 3.3, 5.6, 21.0 倍であった。石川川の比負荷は、全調査ともに降水量に合わせて顕著な増加を

示し、第 1～3 回目調査における比負荷の平均値は、 $2.59, 1.93, 9.80\text{kg/h/km}^2$ で、平水時の 8.9, 6.7, 33.8 倍であった。

c) TN 比負荷

平水時における TN の比負荷は、濁沼川はやや変動がみられ、変動幅は 1.3 倍で、平均値は 0.14kg/h/km^2 であった (図 8)。濁沼前川の比負荷はほぼ一定で、変動幅は 1.2 倍、平均値は 0.14kg/h/km^2 であった。石川川の比負荷は変動がみられ、変動幅は 1.7 倍で、平均値は 0.23kg/h/km^2 であった。濁沼川と濁沼前川の比負荷は同程度であったが、石川川はそれに比べて大きく約 1.6 倍であった。

降雨時における TN の比負荷は、濁沼川は降水量に対して遅れて緩やかに増加する傾向がみられ、第 3 回目調査では増加が顕著であった (図 8)。第 1～3 回目調査における比負荷の平均値は、 $0.19, 0.58, 0.97\text{kg/h/km}^2$ で、平水時の 1.4, 4.1, 6.9 倍であった。濁沼前川の比負荷は、濁沼川と同様に降水量に対して遅れて増加する傾向にあり、第 1 回目と第 2 回目調査では濁沼川よりも増加が緩やかで、第 3 回目調査では濁沼川と同程度であった。第 1～3 回目調査

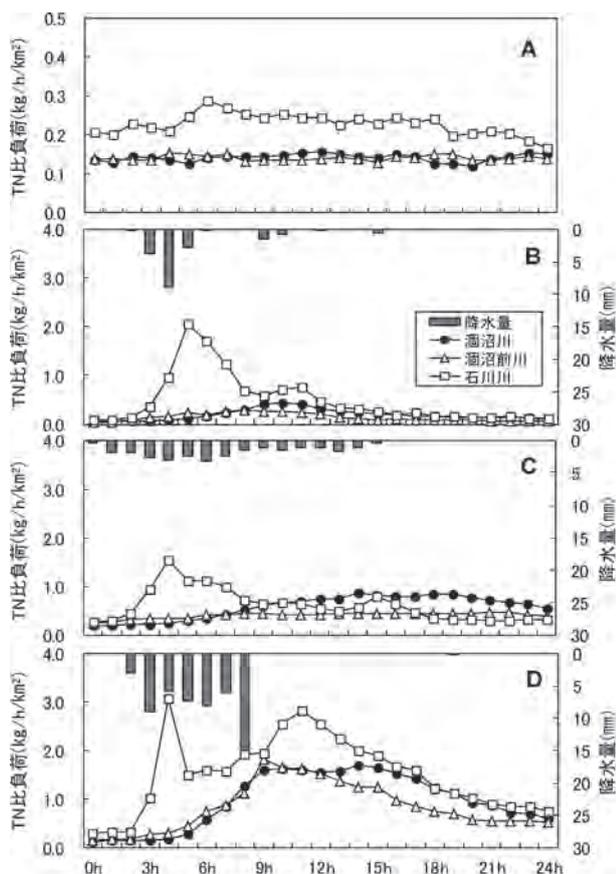


図8 平水時および降雨時調査における降水量とTN比負荷の推移
A: 平水時調査, B: 第1回目調査, C: 第2回目調査, D: 第3回目調査

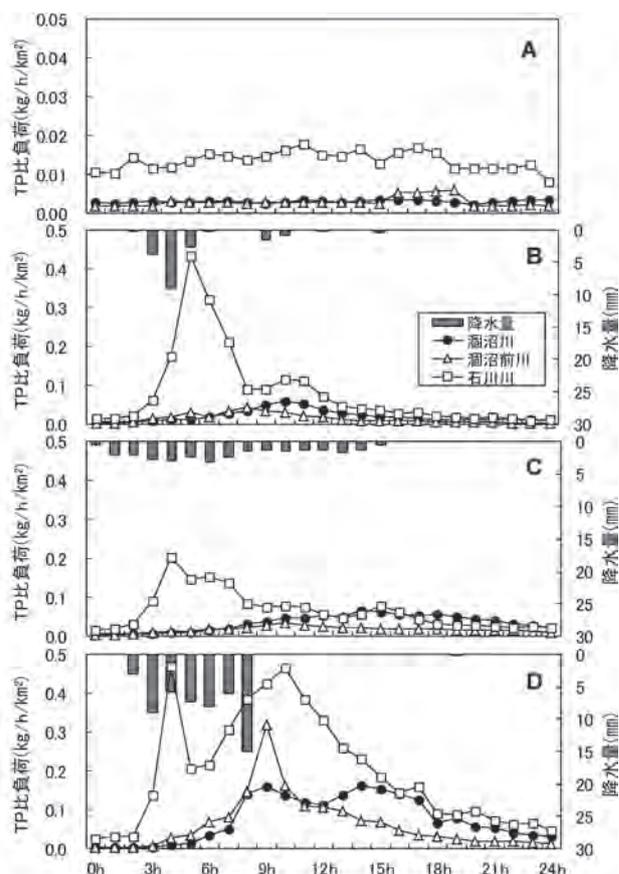


図9 平水時および降雨時調査における降水量とTP比負荷の推移
A: 平水時調査, B: 第1回目調査, C: 第2回目調査, D: 第3回目調査

における比負荷の平均値は、0.14, 0.41, 0.84kg/h/km²で、平水時の1.0, 2.9, 6.0倍であった。石川川の比負荷は、全調査ともに降水量に合わせて顕著な増加を示し、第1～3回目調査における比負荷の平均値は、0.49, 0.61, 1.51kg/h/km²で、平水時の2.1, 2.7, 6.6倍であった。

d) TP比負荷

平水時におけるTPの比負荷は、涸沼川は変動がみられ、変動幅は1.5倍で、平均値は0.003kg/h/km²であった(図9)。涸沼前川の比負荷は変動がみられ、変動幅は3.3倍で、平均値は0.003kg/h/km²であった。石川川の比負荷は変動がみられ、変動幅は2.2倍で、平均値は0.011kg/h/km²であった。涸沼川と涸沼前川の比負荷は同程度であったが、石川川はそれに比べて大きく約3.7倍であった。

TPの比負荷は、涸沼川は全調査ともに降水量に対して遅れて緩やかに増加する傾向がみられ、第3回目調査では増加が顕著であった(図9)。第1～3回目調査における比負荷の平均値は、0.020, 0.034, 0.075kg/h/km²で、平水時の6.7, 11.2, 24.7倍であった。涸沼前川の比負荷は、涸沼川と同様に降水

量に対して遅れて増加する傾向にあり、第1および第2回目調査では涸沼川よりも増加が緩やかであった。第3回目調査では涸沼川よりも増加が顕著であった。第1～3回目調査における比負荷の平均値は、0.014, 0.017, 0.062kg/h/km²で、平水時の4.7, 5.6, 20.8倍であった。石川川の比負荷は全調査ともに降水量に合わせて顕著な増加を示し、第1～3回目調査における比負荷の平均値は、0.081, 0.065, 0.196kg/h/km²で、平水時の7.4, 5.9, 17.8倍であった。

3河川ともに降水量に対応して比流量が増加し、比流量の増加に対応して比負荷が増加する傾向にあった。涸沼川と涸沼前川では降水量と比流量・比負荷との間にタイムラグがあるのに対して、石川川では同期する傾向がみられた。3河川間における比負荷の平均は全調査で石川川が最も大きく、涸沼前川が最も小さかった。

(7) 負荷に占める水質の成分割合

a) COD

CODは3河川ともに平水時では溶存態成分であるDCODの割合が高く、降雨時には懸濁態成分であるPCODが増加する傾向がみられた(図10)。

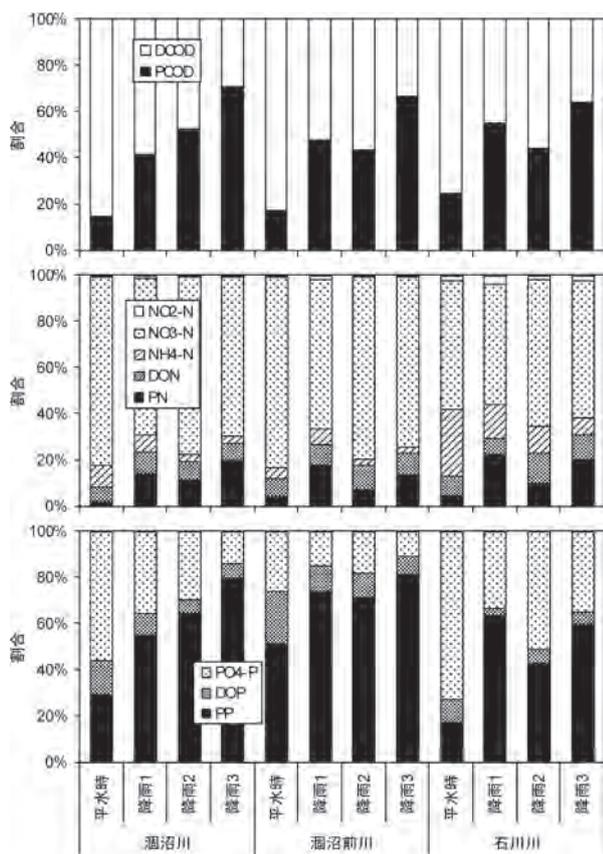


図10 各調査の負荷に占める水質の成分割合

PCOD の割合は、澗沼川は平水時で 14.7%，降雨時では 41.4～70.6%であった。澗沼前川は平水時で 17.3%，降雨時では 43.4～66.4%であった。石川川は平水時で 24.6%，降雨時では 44.1～63.9%であった。平水時における PCOD の割合は石川川が他 2 河川に比べて高く，降雨時では 3 河川の差は小さかった。降雨時における PCOD の割合は澗沼川では降水量に応じて増加したのに対し，他 2 河川では最大降雨強度に応じて増加する傾向がみられた。

b) TN

TN は 3 河川ともに平水時も降雨時も溶存態成分 (DON, $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$) の割合が 73.8～97.8%と高く，溶存態成分の中でも $\text{NO}_3\text{-N}$ の割合が 48.4～82.5%と高かった (図 10)。石川川では $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_2\text{-N}$ の割合が 7.6～28.9%，2.0～3.8%で，他 2 河川 (2.6～9.3%，0.6～1.7%) と比べて高かった。

また，降雨時には溶存態成分の割合が減少し，懸濁態成分である PN が増加する傾向がみられた。PN の割合は，澗沼川は平水時で 2.2%，降雨時では 11.3～19.7%であった。澗沼前川は平水時で 4.1%，降雨時では 7.2～17.6%であった。石川川は

平水時で 4.8%，降雨時では 9.9～22.3%であった。平水時における PN の割合は澗沼川が他 2 河川に比べて低く，降雨時では石川川の割合が高かった。降雨時における PN の割合は 3 河川ともに最大降雨強度に応じて増加する傾向がみられた。

c) TP

TP は，平水時は溶存態成分 (DOP, $\text{PO}_4\text{-P}$) の割合が 48.5～82.6%と高く，降雨時には懸濁態成分である PP の割合が増加する傾向がみられた (図 10)。平水時における PP の割合は澗沼前川が 51.5%と他 2 河川 (澗沼川 29.2%，石川川 17.4%) に比べて高かった。PP の割合は，澗沼川は平水時で 29.2%，降雨時では 55.3～79.9%であった。澗沼前川は平水時で 51.5%，降雨時では 71.6～81.4%であった。石川川は平水時で 17.4%，降雨時で 42.7～63.5%であった。降雨時における PP の割合は澗沼川では降水量に応じて増加したのに対して，他 2 河川では最大降雨強度に応じて増加する傾向がみられた。

4. 考察

(1) 土地利用と水質濃度型

澗沼前川および石川川の集水域における土地利用は澗沼川に比べて田・畑の割合が高く，森林の割合が低い。さらに石川川では市街地の割合が高い。一般的に森林は保水力があり，降雨時に表面流出が起こりにくく，反対に市街地はアスファルト舗装やコンクリートで土壌表面が被覆されているため，表面流出が起こりやすいと考えられている。また，田や畑などの農地は一定の浸透量があるが，浸透量を超えた場合は表面流出が起こると考えられている。このため澗沼前川や石川川の集水域では表面流出が起こりやすく，懸濁態成分の割合が高い COD と TP はファーストフラッシュ型を示しやすくなると推察された。

一方，澗沼川では森林の割合が高くて，田・畑・市街地の割合が低いことから，表面流出は起こりにくいが，森林は上流域に偏在しているため，降雨初期では中下流域の田・畑・市街地の影響が現れ，降雨後期では上流域の森林の影響が現れることから，懸濁態成分の割合が高い COD と TP はファーストフラッシュ型と後期高濃度型の複合型を示しやすくなると推察された。

TN は COD や TP と異なり，3 河川ともに平水時

も降雨時も溶存態成分の割合が高かったことから、負荷は主に中間流出由来によるものが大きく、降雨時は中間流出量の増加による高濃度化よりも、希釈効果の方が大きくなるため、流量希釈型を示しやすくなると推察された。

(2) 土地利用と比流量・比負荷

比流量と比負荷は、土地利用が同じであると仮定した場合、集水面積に関係なくほぼ同じ値を示すと考えられるが、実際は異なっており、その要因は土地利用の影響が大きいと考えられる。

平水時における比流量は、涸沼川が他2河川と比べてやや大きい値を示したが、比負荷はCOD、TN、TPともに涸沼川と涸沼前川は同程度で、石川川が最も大きかった。涸沼川・涸沼前川と石川川の集水域における土地利用は、市街地の割合が大きく異なっていたことから、平水時における石川川の負荷は市街地由来のものが大きいと考えられた。

降雨時における比流量と比負荷は石川川が最も大きく、涸沼川、涸沼前川の順であった。市街地や田・畑の割合が高いほど表面流出が起りやすく、森林の割合が高いほど表面流出が起りにくいことから考えると、比流量と比負荷の大きさは石川川>涸沼前川>涸沼川の順になると思われるが、実際は石川川>涸沼川>涸沼前川の順で、涸沼前川と涸沼川が逆転していた。石川川が最も大きくなった理由としては、石川川の集水域は市街地および田・畑の割合が高いことから、3河川の中では最も表面流出が起りやすいため、比流量および比負荷が最も大きくなったものと推察された。涸沼前川と涸沼川が逆転した理由としては、涸沼前川の集水域には武具池、不動谷津池、弁天池、清水池、湛沼等のため池が多く存在することから、降雨時にはこれらが緩衝域的な役割を果たしているのではないかと考えられる。このため、涸沼前川の集水域は、涸沼川の集水域よりも田・畑の割合が高いにもかかわらず、表面流出が起こった場合、一時的にため池に貯留されるため、比流量と比負荷は涸沼川よりも小さくなるのではないかと推察された。

5. まとめ

各流入河川を比較した場合の特徴を以下のように整理した。

(1) 涸沼川

涸沼川は、集水面積が広くて、森林の割合が高く、

田・畑および市街地の割合が低い。

降雨に対する流量の増加反応は、遅く緩やかである。

降雨時における水質濃度型は、降水量が20mm未満の場合はCODが後期高濃度型、TNとTPがファーストフラッシュ型を示す。降水量が20mm以上の場合、CODとTPはファーストフラッシュ型と後期高濃度型の複合型、TNは流量希釈型を示す。降雨時における比流量の増加は、1.3～5.9倍で、比負荷の増加は、CODが4.1～24.1倍、TNが1.4～6.9倍、TPが6.7～24.7倍である。

(2) 涸沼前川

涸沼前川は、集水面積が中程度で、田・畑の割合が高く、市街地の割合が低い。

降雨に対する流量の増加反応は、遅く緩やかである。

降雨時における水質濃度型は、CODとTPは降水量の多少にかかわらずファーストフラッシュ型を示す。TNは降水量が20mm未満の場合はファーストフラッシュ型、20mm以上の場合には流量希釈型を示す。降雨時における比流量の増加は、0.9～6.4倍で、比負荷の増加は、CODが3.3～21.0倍、TNが1.0～6.0倍、TPが4.7～20.8倍である。

(3) 石川川

石川川は集水面積が狭く、田・畑および市街地の割合が高く、森林の割合が低い。

降雨に対する流量の増加反応は、早く急である。

降雨時における水質濃度型は、CODとTPは降水量の多少にかかわらずファーストフラッシュ型を示す。TNは降水量が20mm未満の場合はファーストフラッシュ型、20mm以上の場合には流量希釈型を示す。降雨時における比流量の増加は、2.5～17.5倍で、比負荷の増加は、CODが9.0～34.2倍、TNが2.2～6.6倍、TPが5.9～14.5倍である。

6. 文献

- 1) 茨城県 (2010) : 第3期涸沼水質保全計画, pp.11.
- 2) 桑名美恵子, 根岸正美, 時岡利和, 天野邦彦 (2007) : 涸沼流入河川における水質と土地利用との関係, 第41回水環境学会年会講演集, 249.
- 3) 呉修一, 劉金双, 江花亮, 山田正 (2006) : 小流域における水質ハイドログラフの形成過程お

VI 研究報告等

よび推定手法に関する研究, 土木学会水工学論文集, 50, 349-354.

- 4) 呉修一, 北村知里, 江花亮, 山田正 (2005) : 小流域における水質ハイドログラフの形成過程に関する研究, 土木学会水工学論文集, 49, 157-162.
- 5) 呉修一, 山田正 (2004) : 単一斜面における水質ハイドログラフ形成過程に関する研究, 土木学会水工学論文集, 48, 55-60.

1-7 農業排水再生プロジェクト事業

1 目的

霞ヶ浦への流入負荷を削減する方法の一つとして、霞ヶ浦流域の農地から、霞ヶ浦へ流入する流入負荷を削減する方法を、農村計画課と共同で実施、検証した。霞ヶ浦湖岸の水田地帯における農業排水の循環利用を行う循環かんがいシステムの整備（低位部対策）、及び、谷津田上流部における休耕田を活用した $\text{NO}^3\text{-N}$ の除去施設の整備（高位部対策）を農村計画課で行い、当センターでは、これら施設の汚濁負荷の削減効果を検証した。

2 方法

(1) 低位部対策

霞ヶ浦からかんがい水を取水している水田地帯で、排出される農業排水を循環し、かんがい水として再利用したときの、霞ヶ浦への流出負荷抑制効果を検証する（図1）。抑制効果の検証方法は、調査流域において、従前のかんがい時及び循環かんがい時の流入・流出負荷を測定し、流出負荷から流入負荷を差し引いた差し引き負荷を比較した。また、降雨時はかんがい水を必要としないと考え、降水量5mm以上の日の調査データは外した。

調査は、水稲田とハス田それぞれ1箇所で行った（図2）。

1) 水稲田

調査期間：従前のかんがい
平成20年4月23日～8月31日
(調査日数102日)

循環かんがい
平成22年4月11日～8月31日
(調査日数79日)

調査地点：玉造南部土地改良区内1箇所
(手賀地区：循環面積38.1ha)

調査対象：機場

測定項目：流量、COD、SS、T-N、T-P等

調査方法：機場に自動採水機及び流速計を設置、採水は1日1回行い、流速を5分ごとに記録した。

2) ハス田

調査期間：従前のかんがい

平成 22 年 4 月 1 日～5 月 4 日、

9 月 6 日～12 月 31 日

(調査日数 110 日)

循環かんがい

平成 22 年 5 月 1 日～9 月 5 日

(調査日数 99 日)

調査地点：戸崎地区土地改良区（循環面積 55ha）

調査対象：機場，樋門及び河川流入水

測定項目：流量，COD，SS，T-N，T-P 等

調査方法：機場に自動採水機及び流速計を設置，採水は 1 日 1 回行い，流速を 5 分ごとに記録した。

また，河川からの流入水及び樋門においては週 1 回採水，流量調査を行った

(2) 高位部対策

霞ヶ浦に流入する河川上流部で，浸出水中の硝酸態窒素を，休耕田を通すことによる浄化効果を検証した。なお，浄化効果の検証は茨城大学と共同で行った。

調査地点

・ 鉦田川流域

鈴振地区 (978m²)，渡戸地区 (1944m²)，
井戸尻地区 (596m²)，来徳地区 (1944m²)

(調査期間：平成 22 年 4 月～

平成 22 年 12 月，1 回/週)

山の田地区 (1206m²)，弁天第一地区
(753m²)，弁天第二地区 (1535m²)

(調査期間：平成 22 年 9 月～

平成 23 年 3 月，2 回/月)

・ 武田川流域

次木地区 (1589m²)，武田地区 (872m²)，両宿地区 (869m²)

(調査期間：平成 22 年 9 月～平成 23 年 3 月，2 回/月)

調査対象：休耕田の流入口と流出口

測定項目：流量，pH，EC，COD，SS，T-N，T-P 等

3 結果の概要

(1) 低位部対策

1) 水稲田

今年度の循環かんがい時の負荷削減効果は図7の通りで、CODで0.43kg/ha/d、T-Nで0.07kg/ha/d、T-Pで0.01kg/ha/dの負荷削減効果が見込まれる。

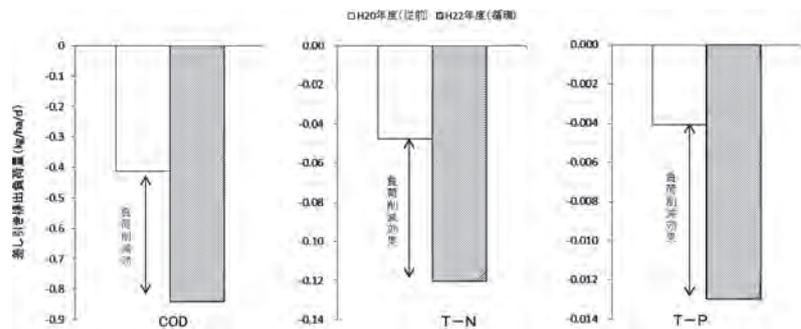


図7 差し引き負荷比較による負荷削減効果（水稲）

2) ハス田

ハス田における循環かんがい時の負荷削減効果は図8の通りで、CODで2.36kg/ha/d、T-Nで0.26kg/ha/d、T-Pで0.051kg/ha/dの負荷削減効果が見込まれる。

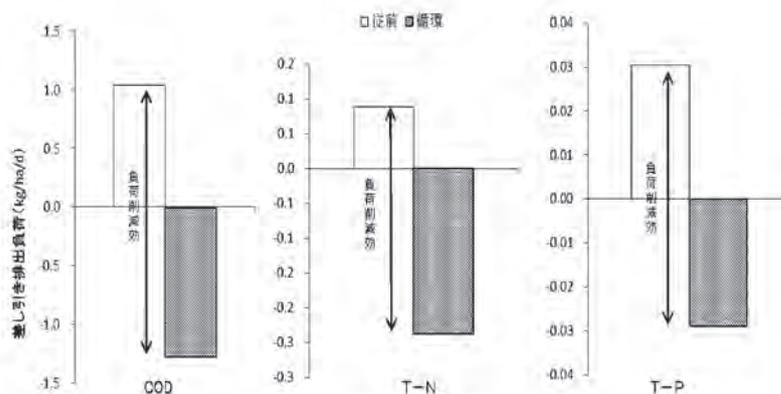


図8 差し引き負荷比較による負荷削減効果（ハス田）

(2) 高位部対策

高位部に結果については、年間を通じて漏水などの事故がなく、安定して調査を行うことができた鈴振地区の結果について示す。

流入・流出量とその濃度は図9、10の通りである。流量は流入、流出ほぼ同量で推移した。濃度は流入よりも流出の方が低く推移し、特に夏期に流出水の濃度の低下が顕著にみられた。

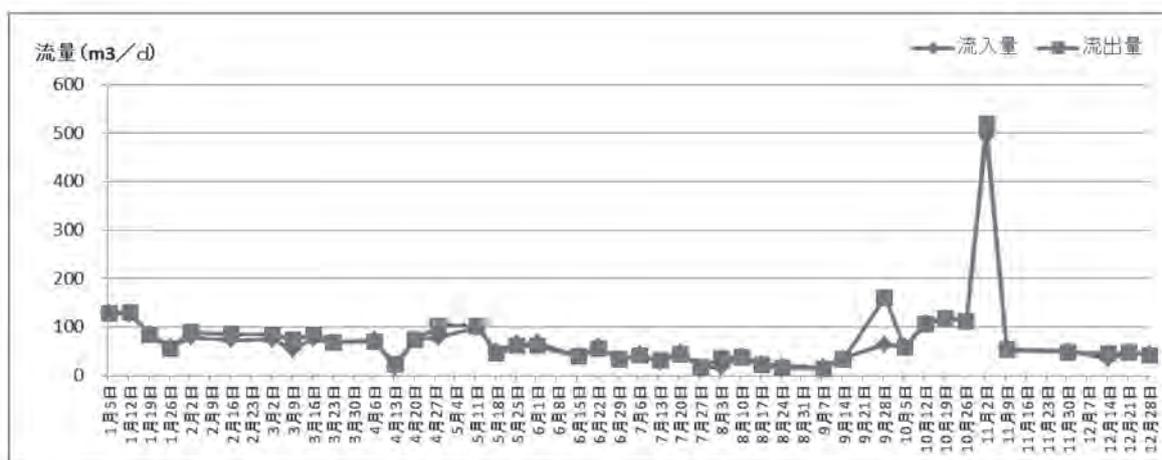


図9 調査期間中の流入、流出量の推移

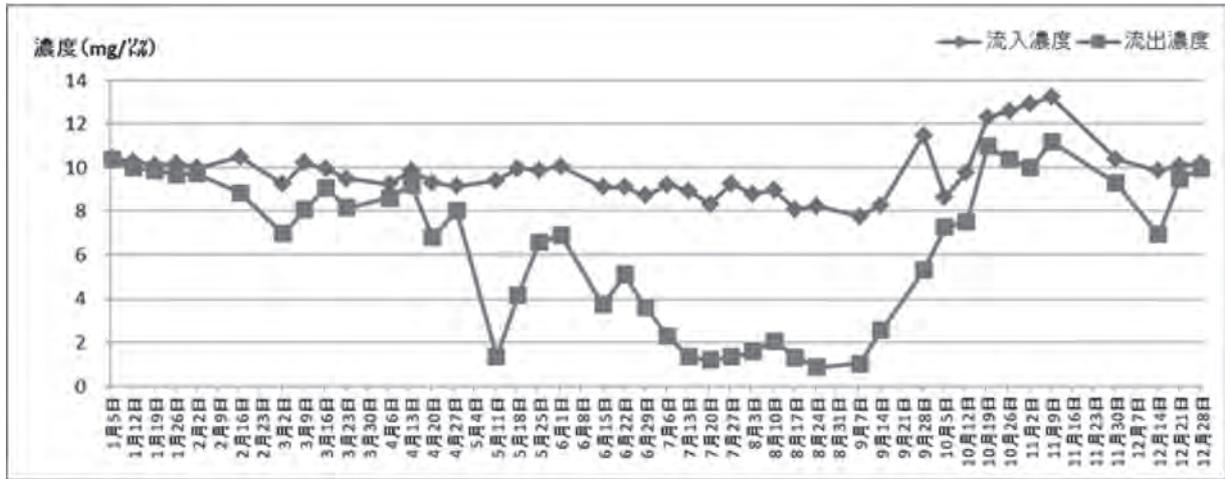


図10 調査期間中の流入、流出濃度の推移

表1 調査期間中の月別の負荷削減量

	1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月
負荷削減量 (kg)	0.82	-0.27	1.65	0.77	11.76	7.86	6.87	4.87	1.84	5.32	11.46	1.37

これらの流量と濃度から、鈴振地区の年間の負荷削減効果は、約 54kg / 年となり、1 ha あたりに換算すると約 555 kg / ha・年の負荷削減効果が見込まれる。

1-8 霞ヶ浦北浦水際等浄化共同事業

1 目的

霞ヶ浦・北浦周囲の堤防陸側には農地からの排水を目的とした堤脚水路が整備されているが、面源負荷として直接霞ヶ浦へ排出されていることから浄化対策が課題となっている。そこで、堤脚水路を管理する（独）水資源機構が整備した水質浄化施設について、その効果検証を行う。

2 方法

堤脚水路に植物を植えたイカダを浮かべ、植物による水質浄化を試みた。イカダの形状は幅 1.115m × 長さ 2.11m の木枠にカゴトレーを 10 個取り付け、両脇 4 つのトレーには浮力体としてポリタンクを、中央 6 つのトレーには水質浄化に利用する植物を植えたロックウールを設置した。（図 1）

設置場所は北浦に隣接する吉川第 2 用排水機場につながる堤脚水路で、3 種類の植物について、生育した植物中の T-N、T-P 含有量を分析し、T-N、T-P の回収量を調査した。

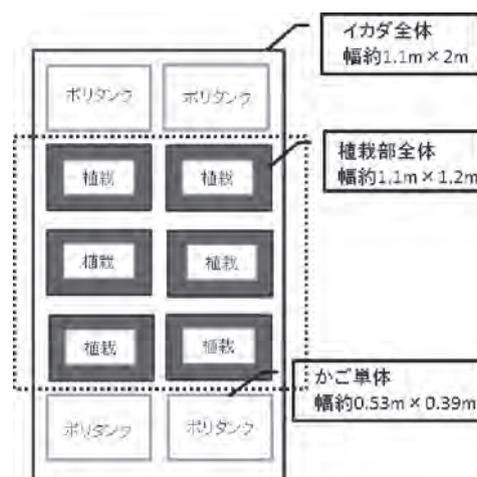


図 1 イカダの形状

(1) イタリアンライグラス

イタリアンライグラスは家畜飼料として利用される牧草で、主に、秋から春にかけて生育する。

供試したイタリアンライグラスは「はたあおば」、「ヒタチヒカリ」の 2 品種で、それぞれの品種で 3 基、2 品種を混合して植えたイカダを 3 基、合計 9 基用意した。用意したイカダは機場南側と北側の堤脚水路に設置した。（図 2）設置は平成 21 年 11 月 27 日に行い、平成 22 年 5 月 2 日に全量刈り取った。

図 2 イカダ設置図（イタリアンライグラス）

(2) 飼料イネ

飼料イネは家畜飼料用に改良されたイネで、茎葉が大きくなるため生体量が多く、より多くの窒素リンを回収することが期待される。

供試した飼料イネは「ゆめあおば」,「クサホナミ」の2品種で、それぞれの品種で6基、合計12基のイカダを機場北側の堤脚水路に設置した。(図3)設置は平成22年7月29日に行い、平成22年9月29日に全量刈り取った。

(3) ハナカンナ

ハナカンナは景観植物として利用され、また、水質浄化に対する有効性も報告されている。

イカダは3基用意し、機場南側の堤脚水路に設置した。(図3)設置は平成22年7月29日に行い、11月4日に、地上部がまだ枯れていない状態でイカダ1基分刈り取り、3月2日に地上部がすべて枯れた状態で残りのイカダ2基分を刈り取った。

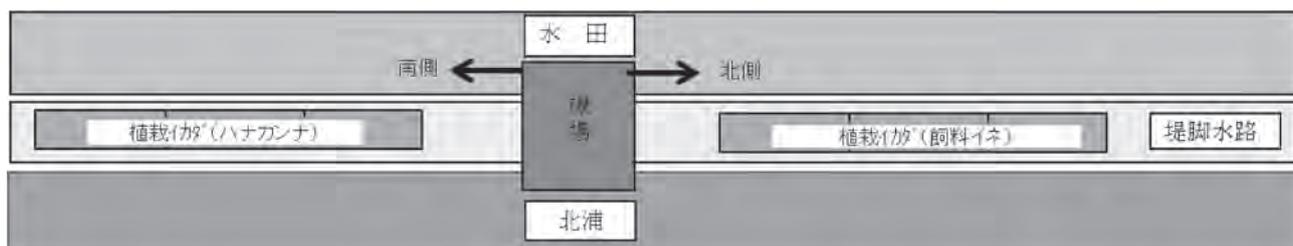


図3 イカダ設置図(ハナカンナ、飼料イネ)

3 結果

植栽した植物の刈り取り量は表1の通りであった。また、成分値、窒素・リン回収量は表2の通りであった。

表1 植栽した植物体の刈り取り量

	刈り取り区画	全量kg	刈り取り量(kg/m ²)	
		現物	現物	乾物
はたあおば	イカダ3基	24	6.15	0.74
ヒタチヒカリ	イカダ3基	21	5.38	0.49
混合	イカダ3基	24	6.15	1.51
クサホナミ	イカダ3基	20	5.13	1.34
ゆめあおば	イカダ3基	35	8.97	2.50
ハナカンナ(刈取り11月)	イカダ1基	0.552	0.42	0.04
ハナカンナ(刈取り2月)	イカダ2基	1.328	0.51	0.06

表2 植物体の成分値、及び窒素・リンの回収量

	乾物率	T-N(乾物中)	T-P(乾物中)	回収量(全量g)		回収量(g/m ²)	
	%	%	%	窒素	リン	窒素	リン
はたあおば	12.1	2.8	0.2	81.3	5.8	20.8	1.49
ヒタチヒカリ	9.1	3.6	0.4	68.8	7.6	17.6	1.96
混合	24.5	2.4	0.3	141.1	17.6	36.2	4.52
クサホナミ	26.1	2.4	0.3	125.3	15.7	32.1	4.02
ゆめあおば	27.9	2.1	0.3	205.1	29.3	52.6	7.51
ハナカンナ(刈取り11月)	9.8	2	0.2	1.1	0.1	0.8	0.08
ハナカンナ(刈取り2月)	11.5	2.6	0.2	4.0	0.3	1.5	0.12

(1) イタリアンライグラス

窒素、リンの回収量は、はたあおばはT-N 20, 8 g/m², T-P 1, 49 g/m², ヒタチヒカリはT-N 17, 6 g/m², T-P 1, 96 g/m², 混合はT-N 36, 2 g/m², T-P 4, 52 g/m²となった。回収量のばらつきは、湿害による影響が考えられる。

(2) 飼料イネ

窒素, リンの回収量はクサホナミでT-N $32.1\text{g} / \text{m}^2$, T-P $4.02\text{g} / \text{m}^2$, ゆめあおばはT-N $52.6\text{g} / \text{m}^2$, T-P $7.51\text{g} / \text{m}^2$ であった。今回は台風によるイカダの破損で刈取りは1回だけであったが, 2番草まで刈り取ることができれば回収量の増加が見込まれる。

(3) ハナカンナ

窒素, リンの回収量は11月刈取り時でT-N $0.8\text{g} / \text{m}^2$, T-P $0.08\text{g} / \text{m}^2$, 3月刈取り時でT-N $1.5\text{g} / \text{m}^2$, T-P $0.12\text{g} / \text{m}^2$ となり, 他の植物と比較してかなり回収量が低くなった。これは生育時期が遅かったこと(推奨時期は5月から9月), 夏期の高温の影響による生育量の低下が考えられる。

1-9 霞ヶ浦湖内水質モニタリング調査事業

1 目的

霞ヶ浦において詳細な水質調査を継続的に実施し、水質汚濁状況の空間的・経時的変動を把握する。また、蓄積した水質データを今後の施策立案及び他の研究の基礎資料とする。

2 方法

(1) 調査期間

平成 22 年 4 月～平成 23 年 2 月 (1 回/月の計 11 回)

※平成 23 年 3 月は東日本大震災の影響で未調査。

(2) 調査地点

霞ヶ浦 (西浦, 北浦及び常陸利根川) の環境基準点及び補助地点。全 14 地点。
詳細は下記及び図 1 のとおり。

西浦 : 掛馬沖, 木原沖, 牛込沖, 高崎沖,
玉造沖, 湖心, 西の洲沖, 麻生沖,
土浦沖の 9 地点

北浦 : 武井沖, 釜谷沖, 神宮橋の 3 地点

常陸利根川 : 潮来, 外浪逆浦の 2 地点
計 14 地点

分析試料は、水面下 0.5 m (上層) 及び湖底直上 0.5 m (下層) の位置で採水した。



図 1 調査地点

(3) 測定項目

pH, 電気伝導率 (EC), 酸化還元電位 (ORP), 溶存酸素量 (DO), 化学的酸素要求量 (COD, d-COD), 懸濁物質 (SS), 全窒素量 (TN, d-TN), 全りん量 (TP, d-TP), 各態窒素量 ($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$), りん酸イオン量 ($\text{PO}_4\text{-P}$), 有機体炭素量 (TOC, DOC), クロロフィル濃度 (Chl.a, Chl.b, Chl.c)

3 結果の概要

(1) COD

- ・調査地点別で見た年平均は、上流側から下流側に向かって増加する傾向がみられた (図 2 (a))。
- ・上層における年平均は、西浦が 8.6 mg/L, 北浦が 9.8 mg/L, 常陸利根川が 10 mg/L で、霞ヶ浦全域平均では 9.0 mg/L であった。
- ・下層における年平均値は、西浦が 8.4 mg/L, 北浦が 9.1 mg/L, 常陸利根川が 10 mg/L で、霞ヶ浦全域では 8.8 mg/L であった。上下層の年平均値に、差はほぼみられなかった。
- ・季節変動は、夏季と春季で増加する傾向がみられた (過去 5 年間の平均と同様の傾向)。
- ・月ごとの値は、本年度前半は過去 5 年間の平均値に近かったが、冬季は平均値を大きく下回った。

(2) TN

- ・各調査地点における年平均は、上流側から下流側にかけて低下する傾向がみられた (図 2 (b))。
- ・上層における年平均濃度は西浦が 1.3 mg/L, 北浦が 1.5 mg/L, 常陸利根川が 0.96 mg/L で、霞ヶ浦全域平均では 1.2 mg/L であった。
- ・下層における年平均濃度は、西浦が 1.3 mg/L, 北浦が 1.7 mg/L, 常陸利根川が 0.99 mg/L で、霞ヶ浦全域では 1.3 mg/L であった。下層のほうが、わずかに年平均濃度は高かった。
- ・各態窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$) の濃度においても、下層のほうが高い傾向がみられた。
- ・濃度の季節変動は、春季から夏季にかけて緩やかに低下した (過去 5 年平均の傾向と同様) が、冬季は平均値よりも高い値となった。

(3) TP

- ・各調査地点別の年平均濃度は、北浦のほうが高い傾向がみられた (図 2 (c))。
- ・上層における年平均濃度は、西浦が 0.090 mg/L, 北浦が 0.12 mg/L, 常陸利根川が 0.095 mg/L, 霞ヶ浦全域平均では 0.099 mg/L であった。
- ・下層における年平均濃度は、西浦が 0.10 mg/L, 北浦が 0.15 mg/L, 常陸利根川が 0.11 mg/L, 霞ヶ浦全域では 0.11 mg/L であった。下層のほうが、わずかに年平均濃度は高かった。
- ・りん酸 ($\text{PO}_4\text{-P}$) の濃度においても、下層のほうが高くなる傾向がみられた。
- ・濃度の季節変動は夏季に増加し、冬季に減少する傾向がみられた。

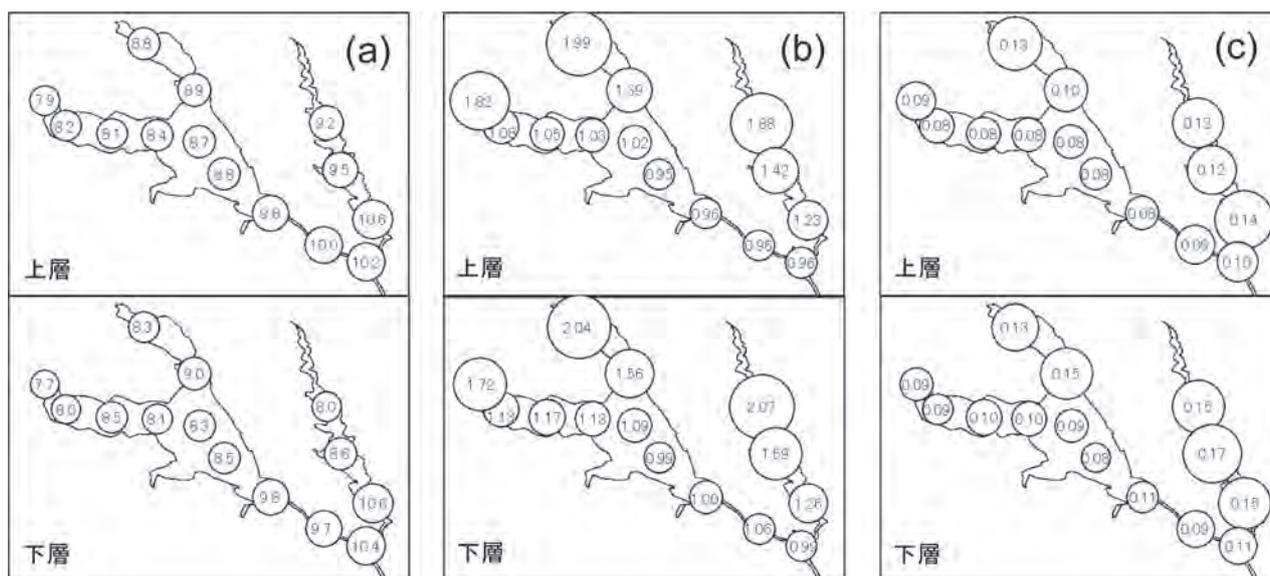


図 2 霞ヶ浦における (a)COD, (b)TN, (c)TP の年平均値の地域分布。上段が上層, 下段が下層。

1-10 湖沼の水質保全に関する調査研究事業 — 2010年における水質の特徴 —

1 目的

湖沼では、水質汚濁が進行していることから、2000年3月に第1期水質保全計画を策定し、水質目標を定めて総合的な水質保全対策を実施してきた。種々の水質浄化対策を講じることによって水質は徐々に改善されてきたが、依然として環境基準の達成には至っていない状況にあった。このため2010年12月には第3期水質保全計画を策定し、新たな水質保全対策が開始された。本調査研究事業は継続的な湖内水質調査及びプランクトン調査等を実施し、水質汚濁機構の解明や水質予測シミュレーションの精度の向上、さらには効果的な水質保全対策の検討を行うための基礎資料を得ることを目的とする。

2 調査方法

(1) 水質調査

湖沼内に設定した8地点において上層水（水面下0.5m）および下層水（湖底上0.5m）をペリスターポンプにより2L採水した（図1）。下流湖沼川に設定した2地点では表層水をステンレス製バケツで2L採水した。調査期間は2010年1月～2011年12月で、1～5月および10～12月は1回/月、6～9月は2回/月、計16回調査した。現地では水深、透明度、水温、pH、ECを測定した。採水した水は霞ヶ浦環境科学センター（以下「センター」という）に持ち帰りDO、COD、DCOD、TOC、DOC、TN、DTN、NH₄-N、NO₃-N、NO₂-N、TP、DTP、PO₄-P、Cl⁻、Chl.aについて分析を行った。

湖沼内8調査地点の上下層で測定および分析した項目のうち水温、塩分、DO、Chl.a、COD、TN、NH₄-N、NO₃-N、TP、PO₄-Pについて2005～09年の標準偏差と比較した。



(2) プランクトン調査

湖沼内に設定した3調査地点（H1、4、7）においての植物および動物プランクトンの採集を行った。調査期間は水質調査と同じで、1回/月、計12回調査した。植物プランクトンの採集は表層水を400ml採水した後、サンプル中の濃度が約4%になるようにグルタルアルデヒドで固定した。サンプルはセンターに持ち帰り、0.1ml中の細胞数を顕微鏡下で同定・計数し、1ml中の細胞数を算定した。

動物プランクトンの採集は表層水15Lを100μmメッシュのプランクトンネットで濾過し、サンプル中の濃度が約4%になるようにグルタルアルデヒドで固定した。サンプルはセンターに持ち帰り、1ml中の個体数を顕微鏡下で同定・計数し、1L中の個体数を算定した。

プランクトン調査のうち水質項目と関連のある植物プランクトンの細胞数について2005～09年と比較した。

3 結果および考察

(1) 水温

水温は、上層下層ともに1～6月は低め～平年並、7～10月は平年並～高め、11～12月は平年並で推移した（図2）。水温は天候に大きく左右され、春季は雨が多く、梅雨明け以降は晴天日が継続することが多かったことにより変動したと考えられた。

(2) 塩分

塩分は、上層下層ともに1～3月は平年並、4～8月は低め～平年並、9月は高め、10～12月は平年並で推移した（図3）。塩分は海からの遡上水と降水量によって左右され、春季は雨が多く、梅雨明け以降は晴天日が継続することが多かったことにより変動したと考えられた。

(3) DO

上層のDOは、3月の低めを除いて概ね平年並で推移した(図4)。下層のDOは、5、11月の高め、10月の低めを除いて概ね平年並で推移した。※8月18日の調査では4地点で $< 3\text{mg/L}$ を示した。

(4) Chl. a

Chl.aは、上層下層ともに概ね1~3月は平年並、4~6月は低め~平年並、7~9月は平年並、10~12月は低め~平年並で推移した(図5)。4~6月および10月の低濃度は、雨が多く、植物プランクトンの増殖が抑制されたためと考えられた。

(5) 植物プランクトン細胞数

藍藻の細胞数は、1~4月までは増殖が抑制され、少なめ~平年並であったが、5月以降は急激に増加して平年を上回り、8月には $1.6 \times 10^6 \text{Cells/ml}$ となった。9~10月は平年並であったが、11~12月は平年を上回った(図6)。珪藻の細胞数は、1~2月は平年を上回ったが、3~10月は増殖が抑制され、少なめ~平年並であった。11~12月は平年を上回った。緑藻の細胞数は、1月は平年を上回ったが、2~8月は増殖が抑制され、少なめ~平年並であった。9~10月は平年を上回った。

(6) COD

CODは、上層下層ともに1~6月は低め~平年並、7~9月は高め、10~12月は平年並~高めで推移した(図7)。CODは植物プランクトンの増殖と関係があり、4~5月の低濃度は植物プランクトンの増殖が天候により抑制されたためと考えられた。7~9月の高濃度は藍藻の増殖、12月の高濃度は珪藻類の増殖によるものと考えられた。

(7) TN

TNは、上層下層ともに1~3月は平年並、4~6月は高め、7~12月は平年並~高めで推移した(図8)。4~6月および11~12月の高濃度は $\text{NO}_3\text{-N}$ の流入が増加したためと考えられた(図9)。また、8月及び10月の高濃度は下層の貧酸素化により、底質から $\text{NH}_4\text{-N}$ が溶出したためと考えられた(図10)。

(8) TP

TPは、上層下層ともに1~7月は概ね平年並、8~9月は高め、11~12月は平年並で推移した(図11)。8~9月の高濃度は下層の貧酸素化により、底質から $\text{PO}_4\text{-P}$ が溶出したためと考えられた(図12)。

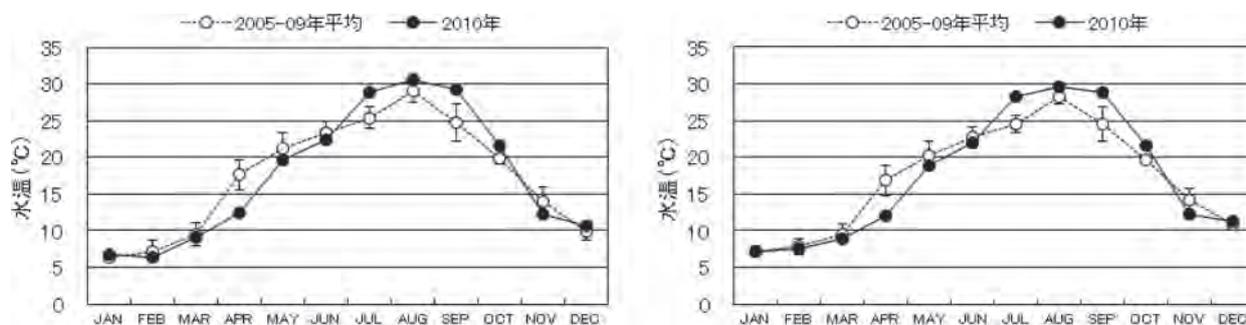


図2 水温の推移(左:上層,右:下層)

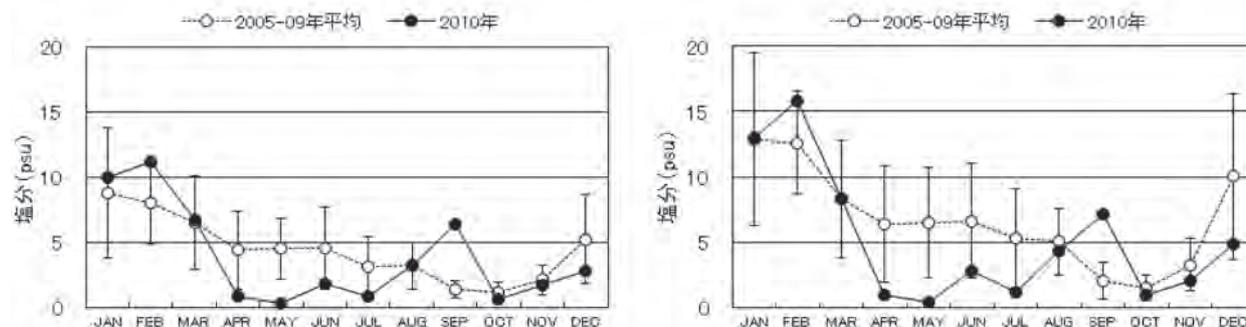


図3 塩分の推移(左:上層,右:下層)

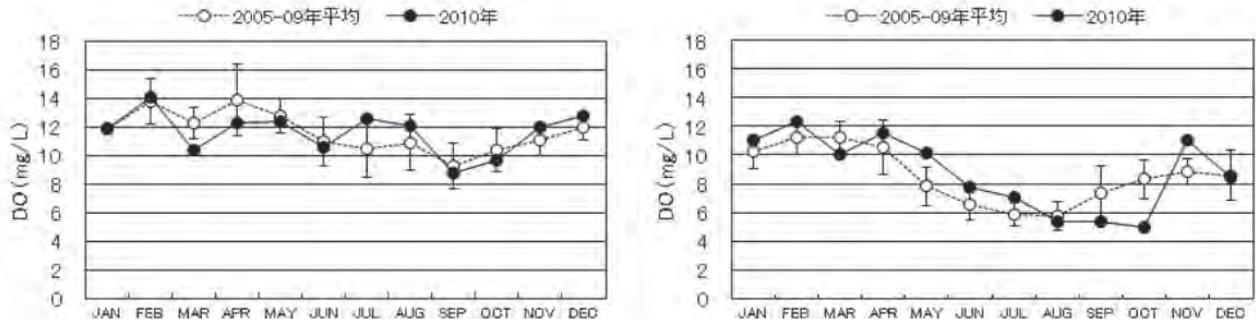


図4 DOの推移(左:上層,右:下層)

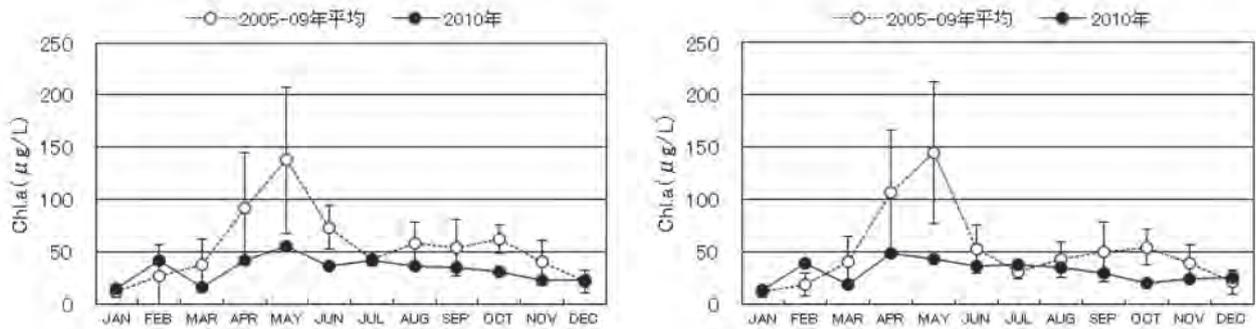


図5 Chl.aの推移(左:上層,右:下層)

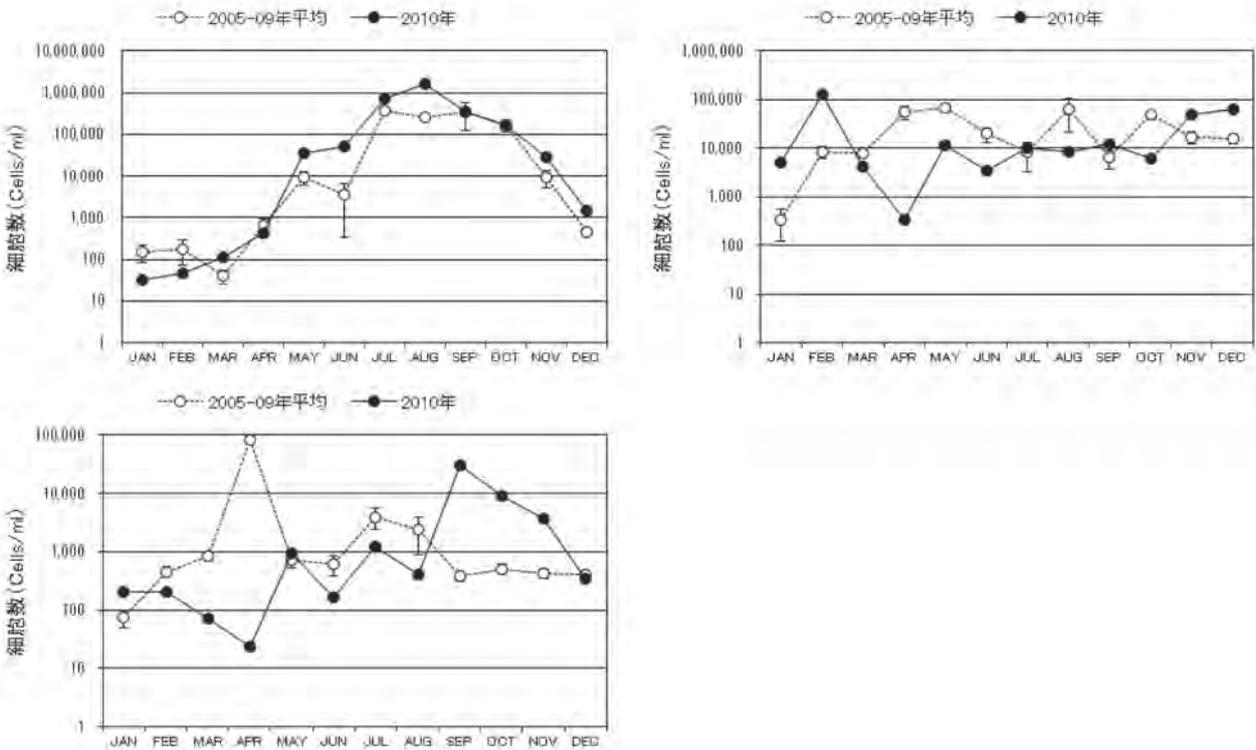


図6 植物プランクトン細胞数の推移

(3調査地点の平均値,左上:藍藻,右上:珪藻,左下:緑藻)

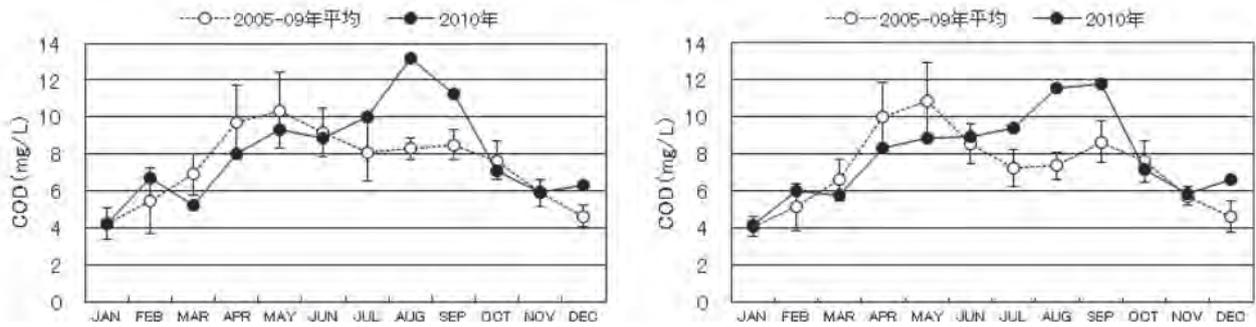


図7 CODの推移(左:上層,右:下層)

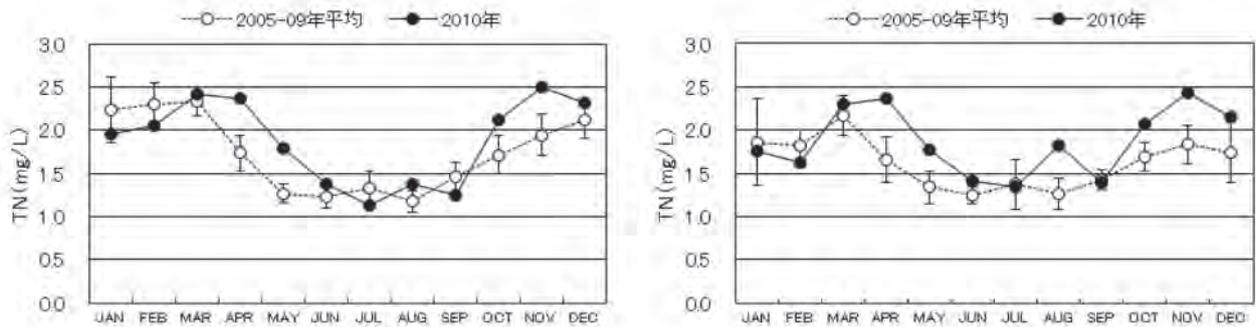


図8 TNの推移(左:上層,右:下層)

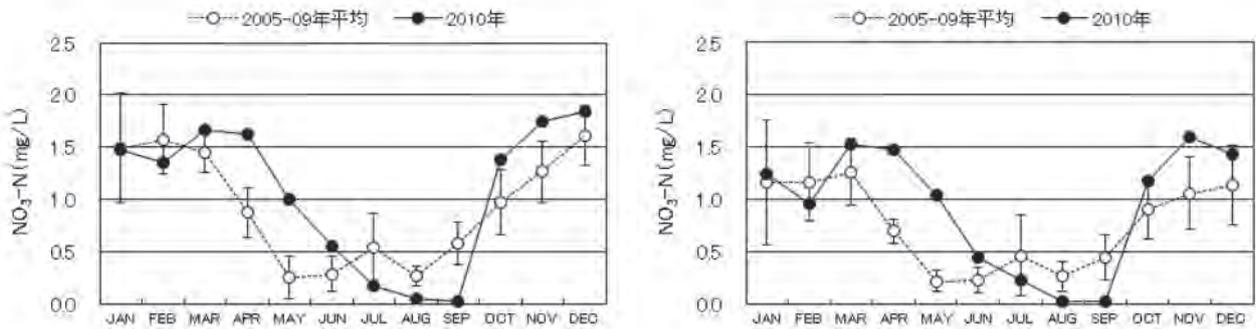


図9 NO₃-Nの推移(左:上層,右:下層)

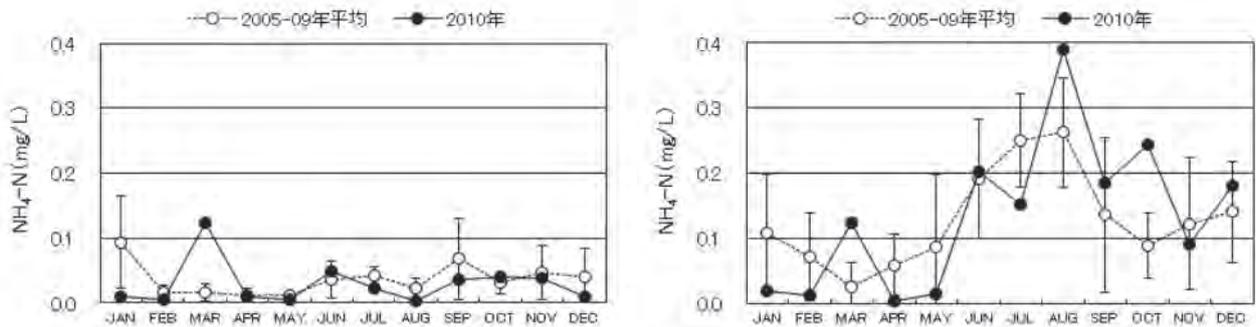


図10 NH₄-Nの推移(左:上層,右:下層)

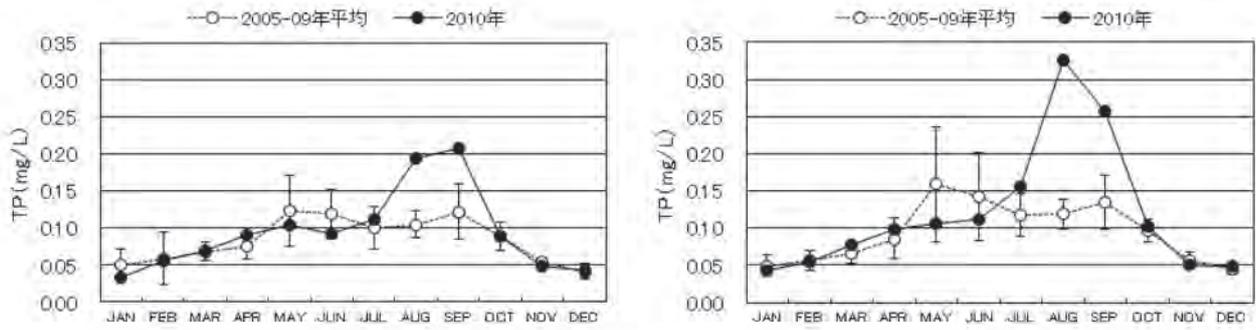


図 11 TP の推移 (左 : 上層, 右 : 下層)

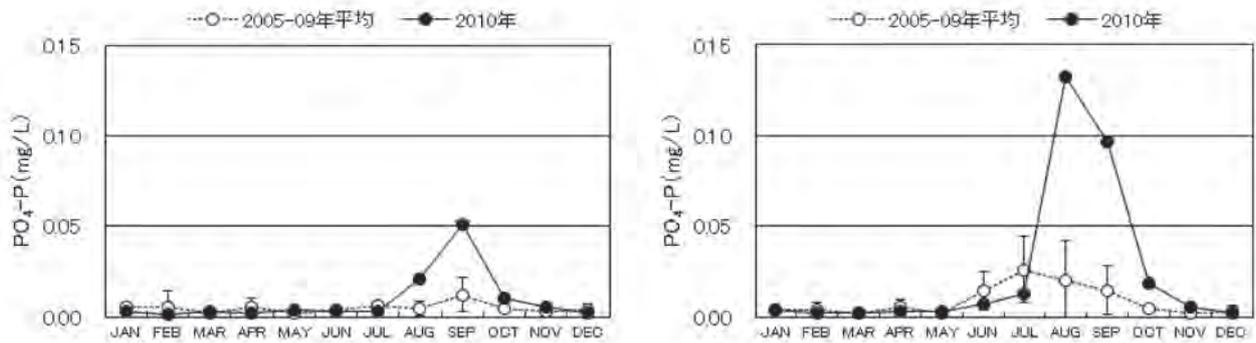


図 12 PO₄-P の推移 (左 : 上層, 右 : 下層)

1-11 牛久沼の水質保全に関する調査事業

1. はじめに

牛久沼は茨城県南部に位置する湖面積 3.4 km^2 、平均水深 1 m の浅い湖沼である¹⁾。主に谷田川、西谷田川、稲荷川から牛久沼に流入し、小貝川を経て利根川に流出する。農業用水として利用されるほか、古くから漁場として親しまれる湖沼であるが、近年つくばエクスプレスや圏央道の建設等により流域において周辺開発が進み、汚濁負荷が増加することが懸念されている。また、以前より水質汚濁に係る環境基準を達成できていない状況にある。そのような牛久沼の実態から、茨城県では平成14年度に第1期保全計画を、平成19年度に第2期保全計画を策定し、総合的な水質保全対策に取り組んでいる。本報告では2002年から2010年のデータを用いて、牛久沼の水質を把握した。

2. 牛久沼の水質

(1) 水質調査方法

平成14年4月から平成23年3月まで月1回（夏期は2回）調査を実施した。地点は湖内8地点（L1-8）、流入河川4地点（R1-4）、流出河川1地点（R5、平成19年より開始）である（Fig. 1）。湖内では水面から50 cmを上層、湖底から50 cmを下層とし、上下層において調査した。調査項目はCOD、窒素、りん、SS、Chl. a等の水質一般項目である。それぞれの項目はJIS K0102に準拠し実施した。

(2) 水質の特徴

(ア) COD

牛久沼は3つの肢節部を有する堰止め湖である。CODに関して上流から濃度変化を追ってみると、Fig. 2のとおり湖中央部ほど濃度が高くなっている。組成をみると、主に増加しているのは懸濁態COD（p-COD）であり、R1では全CODの29%であったが、湖心においては53%を占めている。また、地点ごとのp-CODとChl. aに相関がみられることから（Fig. 3）、p-CODの増加は植物プランクトンの増殖による内部負荷であると考えられる。それに比べて溶存態COD（d-COD）の変動幅は小さく、d-CODは流域由来が大部分を占めていることが伺える。また、p-CODもd-CODも夏期に濃度が増加していた（Fig. 4（a））。

(イ) 窒素

窒素のうち大部分は溶存態窒素であり、その大半を占めるのが硝酸態窒素である（Fig. 4（b））。硝酸態窒素は生物に栄養等として用いられ、湖内では夏期にはほとんどなくなる。また、どの地点でも年間をとおしてアンモニア態窒素や亜硝酸態窒素が高濃度になることはなく、牛久沼では嫌気化することはほとんどないといえる。

(ウ) りん

りんのうち大部分は懸濁態りんである（Fig. 4（c））。湖内において懸濁態りんはChl. aとも相関が高いことから（相関 $r=0.86$, $n=13$ ）大半は植物プランクトンであることが伺える。年間をとおしてりん酸態りんは低濃度であり、牛久沼はりん制限の湖沼であることが予想される。

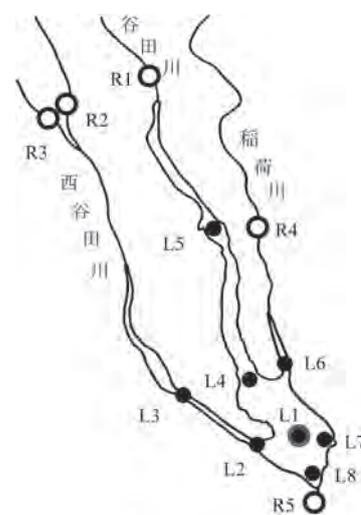


Fig. 1 調査地点図

※L1が湖心

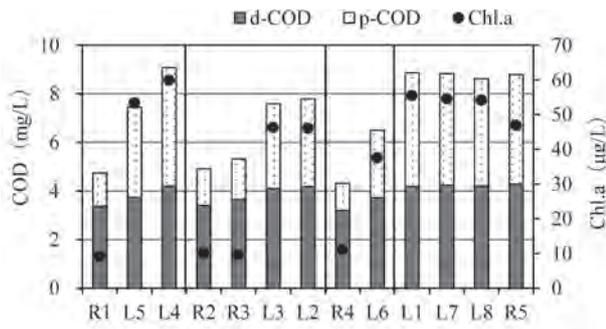


Fig. 2 COD 及び Chl.a の地点変化
(平成 14-22 年の平均)

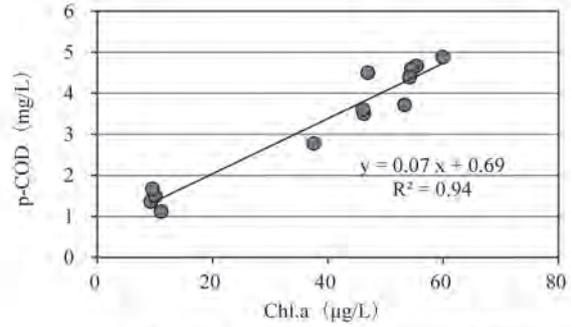


Fig. 3 p-COD と Chl.a の相関図
(平成 14-22 年の平均、n=13)

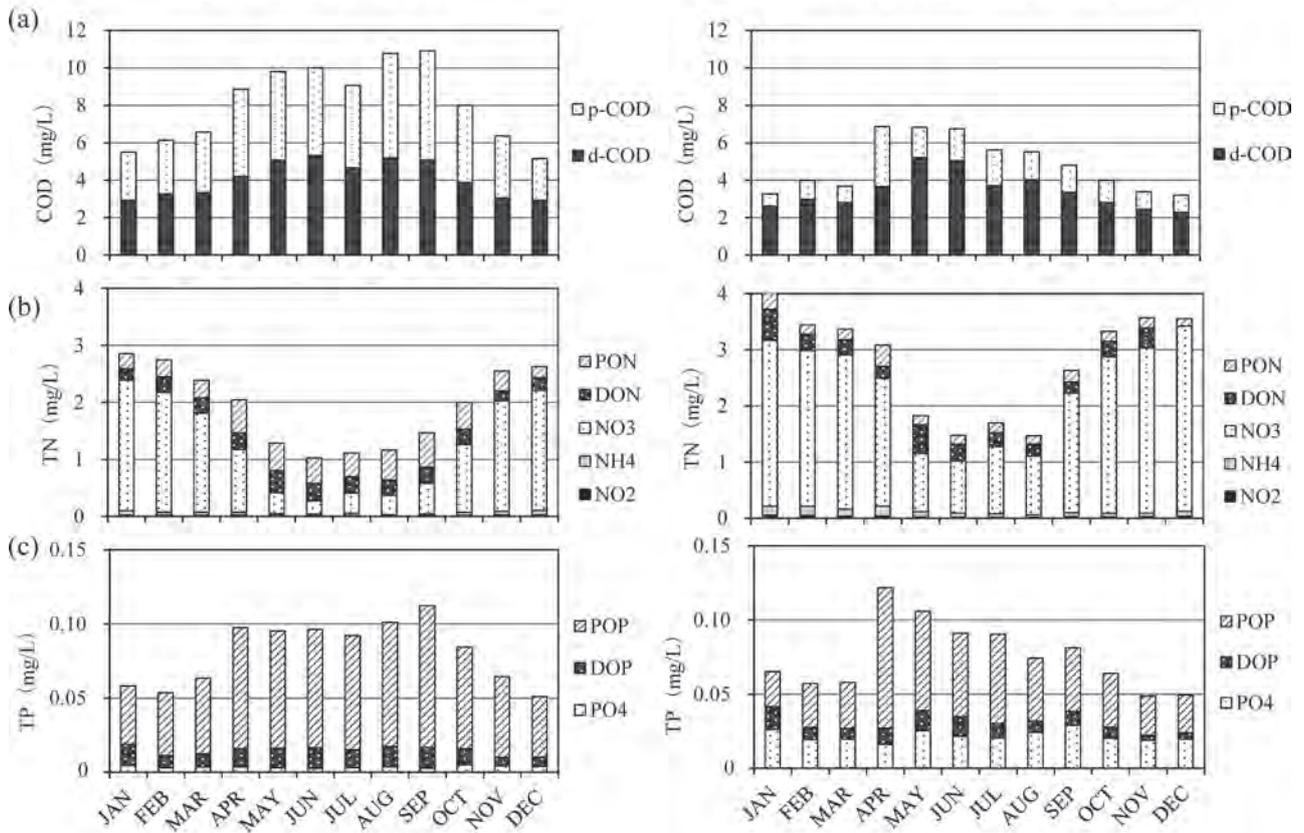


Fig. 4 (a) COD、(b) 窒素、(c) りんの季節変化 (平成 14-22 年の平均)
左：湖内 8 地点上層の平均、右：流入河川 4 地点の平均

(3) 平成 22 年の水質の傾向

平成 14 年から平成 21 年までの平均と平成 22 年の水質を比較し、今年の水質の傾向をみた。なお、湖内の上下層は同様の傾向を示したので、下層の報告は割愛する。

Fig. 5 のとおり湖内の COD、Chl.a、全りんは類似した傾向を示し、4、5 月に低く、夏期に高かった。4、5 月の低濃度は、雨と曇りが多く、植物プランクトンの増殖が抑制されたためと考えられる (Fig. 6)。一方、夏期の高濃度は、雨が少なく晴天日が続いたためと考えられる。窒素はほぼ平年並みであった。河川はほぼ平年並みであったが、窒素とりんの変動が大きかった。

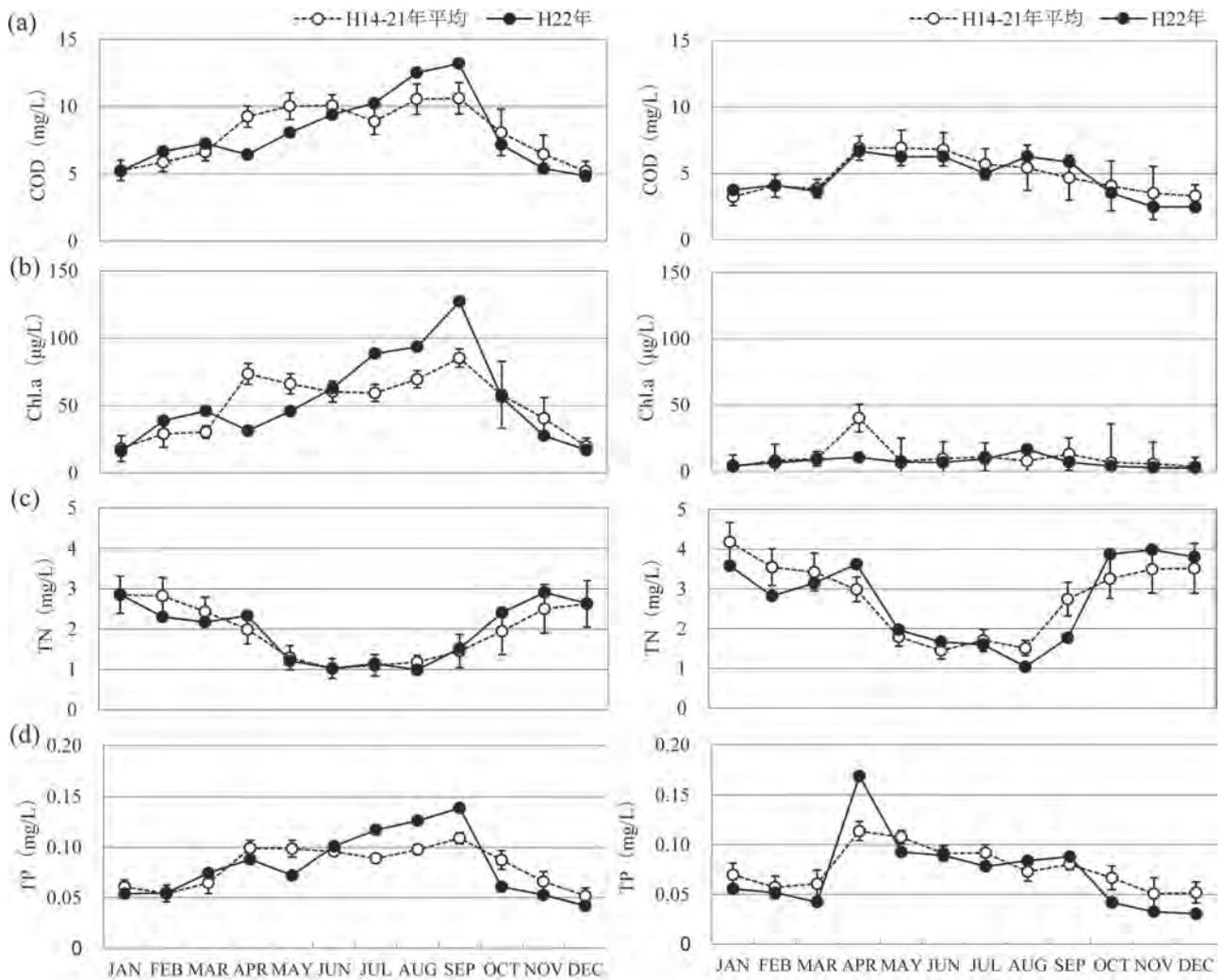


Fig. 5 (a) COD、(b) Chl.a、(c) 全窒素、(d) 全りんphの季節変化の比較

左：湖内8地点上層の平均、右：流入河川4地点の平均

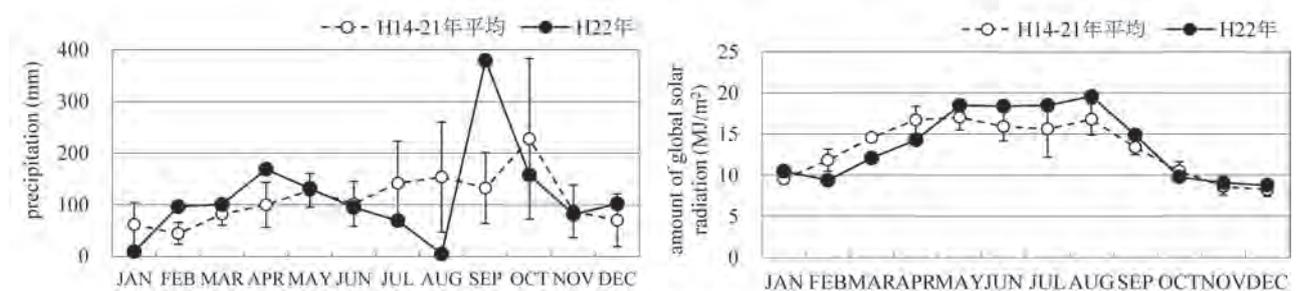


Fig. 6 館野観測所における気象データ²⁾

左：降水量、右：全天日射量

3. 牛久沼の生物

(1) プランクトン

湖心表層において、植物プランクトン及び動物プランクトンの調査を平成17年5月から平成22年3月まで月1回実施した。植物プランクトンは年間をとおして珪藻類が優占しており、なかでも *Aulacoseira* 属が優占種となることが多かった。非灌漑期はクリプト藻類や鞭毛藻類などが増える傾

向が見られた。

動物プランクトンは優占種にばらつきがあるが、輪形動物の *Brachionus* 属の出現が多かった。平成 17 年の甲殻類の優占は、5 月が *Daphnia* 属、8 月が *Bosmina* 属、9 月下旬がカイアシ類のノープリウス幼生であった。平成 18 年の 5 月は甲殻類の *Bosmina* 属が優占した。また、平成 21 年は繊毛虫の *Epistylis* 属が多く出現した。

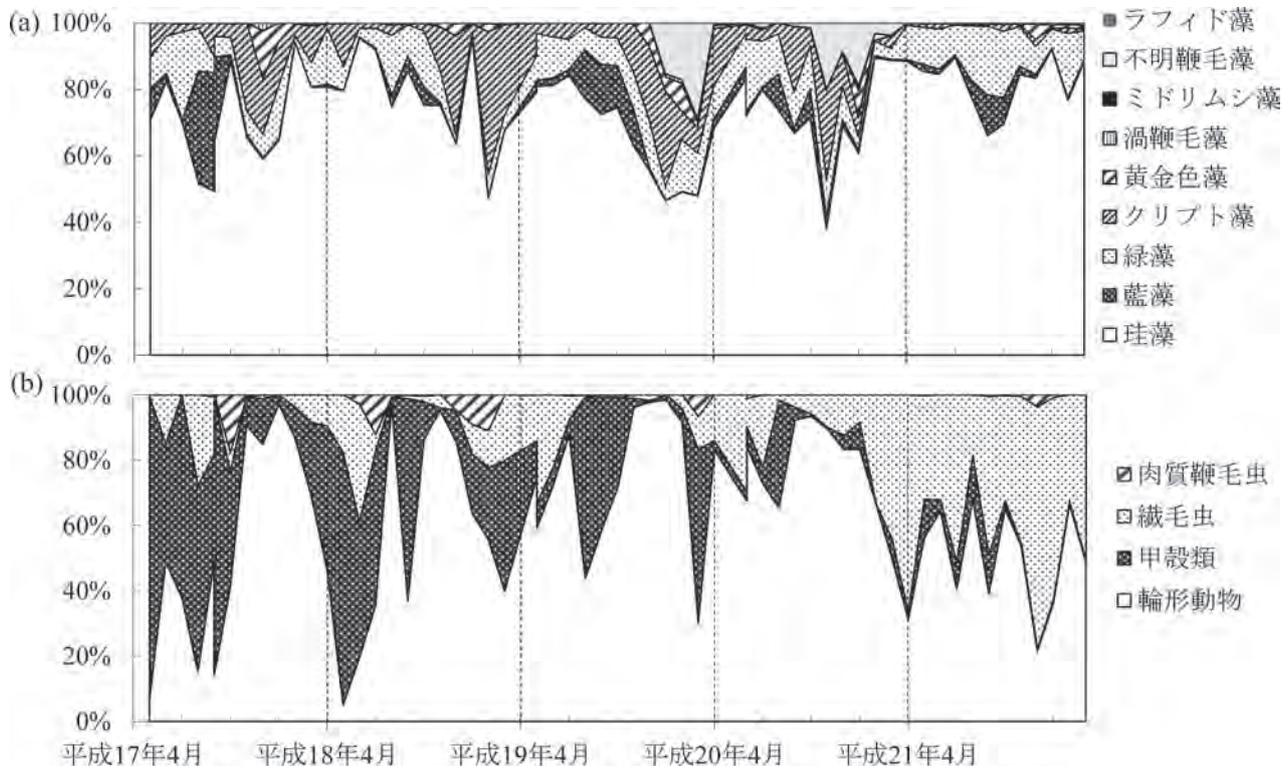


Fig. 7 (a) 植物プランクトン、(b) 動物プランクトンの経年変化

(2) 底生動物

平成 22 年 11 月から茨城大学との共同研究により底生動物の調査を実施した。採集及び同定・計数は茨城大学広域水圏環境科学教育研究センターの中里らによるものである。採集された底生動物はユスリカ科幼虫、ヌカカ科幼虫及び貧毛類であった。ユスリカ科幼虫は 7 分類群が採取された。優占種はオオユスリカ、アカムシユスリカおよびオオカスリモンユスリカの 3 種であった。岸に近い砂混じりの底質である L7 ではクロユスリカ、コナユスリカおよびハモンユスリカも優占種になった。

4. まとめ

牛久沼の水質は植物プランクトンの増殖によって変動する傾向が見られた。年によって季節変動に若干の違いが見られるが、近年で水質はほとんど変化していないと考えられる。

5. 引用

- 1) 日本陸水学会 (2006) : 陸水の事典、講談社
- 2) 気象庁ホームページ : 気象統計情報 (つくば (館野))、<http://www.jma.go.jp/jma/index.html>

1-12 水環境化学物質調査事業

1. 目的

茨城県内の公共用水域において、人の健康の保護に係る要監視項目、水生生物の保全に係る要監視項目及び魚類（メダカ）に内分泌攪乱作用があるとされる物質の実態調査を行い、化学物質による環境汚染の有無を把握する。

2. 調査内容

(1) 実態調査

- ・調査地点 県内の公共用水域のうち 32 河川 32 地点
- ・水質項目 要監視項目 28 項目、ビスフェノール A、4-t-オクチルフェノール等
- ・調査時期 平成 22 年 10 月～11 月に各地点 1 回ずつ実施

(2) モニタリング調査

- ・調査地点 過去に指針値の超過が見られた 3 河川 3 地点
- ・水質項目 全マンガン等
- ・調査時期 平成 22 年 10 月～11 月に各地点 1 回ずつ実施

(3) 追跡調査

- ・調査地点 実態調査により指針値の超過が見られた 1 河川 7 地点
- ・水質項目 全マンガン、溶解性マンガン、全鉄、溶解性鉄、塩素イオン、流量等
- ・底質項目 全マンガン、全鉄、含水量、強熱減量
- ・調査時期 平成 23 年 2 月

なお、各分析は、環境省通達（平成 5 年 4 月 28 日、平成 11 年 3 月 12 日、平成 15 年 11 月 5 日、平成 16 年 3 月 31 日）、外因性内分泌攪乱化学物質調査暫定マニュアル（環境庁平成 10 年）、底質調査方法（環境省平成 13 年 3 月）を参考とした。

3. 結果の概要

(1) 実態調査

項目のほとんどは指針値を超過しておらず、非検出及び検出限界値以下も多かった。しかし、1 河川において全マンガンが指針値である 0.20 mg/L を超過し、0.33 mg/L であった。

(2) モニタリング調査

3 河川すべてから全マンガンが検出されたが、2 河川では指針値以下で、1 河川においてのみ指針値 0.20 mg/L を超過した 0.28 mg/L であった。

(3) 追跡調査

実態調査で全マンガンの指針値を超過した地点から上流部 7 地点を調査した結果、指針値の超過は確認されなかった。実態調査での指針値超過原因は不明であるが、懸濁物質により突発的に高い値となったことが推測された。

2-1 微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の地域特性に関する研究

鴨志田元喜, 森田陽一

Study on Regional Characteristics of Fine Particle Matter (PM_{2.5})
Motoki Kamoshida and Yoichi Morita

キーワード：微小粒子状物質, 浮遊粒子状物質

1 はじめに

平成21年9月、環境省より微小粒子状物質 (PM_{2.5}) の環境基準が告示され、年平均値が 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下、かつ日平均値が 35 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 以下とされた。2001年から環境省によって行われた微小粒子状物質暴露影響調査等の報告¹⁾によれば、人為起源発生源の少ない非都市部では年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を下回る地点があるものの、都市部においては年平均値 15 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ を上回る状況にある。

近年における関東地方での浮遊粒子状物質 (SPM) は年間を通して減少傾向であり、特に冬期は各種自動車規制の効果による濃度減少が顕著となっているが、夏期においては光化学反応による二次生成粒子の影響が大きく、冬期と比べると明確な改善傾向はみられていない²⁾。同じく光化学反応により発生する光化学オキシダント (Ox) の高濃度時には、同時に SPM の高濃度化も見られており、二次生成粒子への Ox の関与が懸念されている。県内では、県西・県南地域で Ox の高濃度化が春から夏にかけてみられるほか、鹿島・神栖地域から内陸部に向かって高濃度の Ox が広がるといった報告もある³⁾。鹿島・神栖地域にはばい煙や揮発性有機化合物 (VOC) の大規模発生源である鹿島臨海工業地帯があり、県内の発源地域が遠方での二次生成に関与している可能性もある。また野焼き等のバイオマス燃焼の PM_{2.5} 濃度への寄与は、初冬季において顕著であるとの報告もあり⁴⁾、農業の盛んな茨城県においても実態を把握すべき課題と考えられる。

これらの課題を抱える本県ではあるが、PM_{2.5} の測定実績がなく、県内における PM_{2.5} の状況について把握できていないのが現状であった。そこで県内での詳細な成分分析による発生源解析と汚染メカニズムの解明を見据え、

PM_{2.5} 実態把握調査としてほぼ県内全域を対象とした PM_{2.5} の質量濃度調査を実施し、県内の PM_{2.5} 濃度分布および季節変動を調査した。

2 調査方法

2.1 調査期間および調査方法

茨城県内の SPM 濃度は県内全域で年々減少傾向にある。既報⁵⁾では、SPM 濃度レベルから、県内を5つのブロック (県北、県央、鹿行、県南、県西) に分割し、その濃度順位は県西>県南>鹿行>県央>県北となっている。

本調査では、この5つのブロックからそれぞれ4地点を選定し、米国標準測定法 (FRM) に準拠した方法で PM_{2.5} の測定を行った。1週間に1ブロックでの調査を基本単位とし、1ブロックあたり4地点、4日間の測定を実施した。1週間の測定が終了後、次のブロックに移動して測定を行い、計5ブロック (20地点)、5週間の調査を実施した。調査は、夏期、秋期、冬期に実施した。表1に調査期間および調査ブロックを示す。

サンプラーは FRM2000 (Thermofischer

表1 調査期間および調査ブロック

季節	調査期間	ブロック
夏期	平成22年7月26日～7月30日	鹿行
	平成22年8月2日～8月6日	県南
	平成22年8月9日～8月13日	県西
	平成22年8月16日～8月20日	県央
	平成22年8月23日～8月27日	県北
秋期	平成22年10月18日～10月22日	鹿行
	平成22年10月25日～10月29日	県南
	平成22年11月1日～11月5日	県西
	平成22年11月8日～11月13日	県央
	平成22年11月15日～11月19日	県北
冬期	平成22年1月17日～1月21日	鹿行
	平成22年1月24日～1月28日	県南
	平成22年1月31日～2月4日	県西
	平成22年2月7日～2月11日	県央
	平成22年2月14日～2月18日	県北

Scientific)を用い、吸引量 16.7L/min で捕集単位は 24 時間とした。フィルターには PTFE を用いた。

また長期固定測定地点として土浦保健所で PM_{2.5} の連続測定を行った。測定期間は平成 22 年 7 月 27 日～平成 23 年 2 月 28 日で、サンプラーは Prtisol Plus 2025(ThermoFischer Scientific)を用いた。吸引量 16.7L/min で 24 時間捕集とし、フィルターの交換は毎日 10 時とした。フィルターは PTFE を用いたが、11 月 26 日～12 月 31 日の間は他調査との兼ね合いで石英フィルターを用いた。

測定項目は重量濃度のみとし、フィルターの恒量は簡易湿度制御チャンバー⁶⁾を用いて温度 21.5 ± 1.5℃、相対湿度 35 ± 5%で行った。秤量は秤量精度 1μg の精密天秤 (Mettler Toledo, MX5) を用いた。

2.2 調査地点

調査を行った地点およびブロック分けを表 2 に、調査地点位置を図 1 に示す。

県北ブロックは、山間部が多く、沿岸部には

表 2 調査地点

ブロック	調査地点名
県北	北茨城中郷, 日立市役所, 常陸太田, 大宮野中
県央	常陸那珂勝田, 東茨城大戸, 水戸石川, 笠間市役所
鹿行	波崎太田, 神栖消防, 鹿島宮中, 鉾田保健所
県南	江戸崎, 竜ヶ崎保健所, 土浦中村南, 石岡杉並
県西	筑西保健所, 下妻, 古河市役所, 常総保健所
固定	土浦保健所



図 1 調査地点位置

日立市を中心とした大規模な工業地帯がある。県央ブロックは、県庁所在地である水戸が中央部にあり、沿岸部には大規模な火力発電所がある。鹿行ブロックは、北部の地域で農業が盛んである他、南部の鹿島・神栖地域には前述のとおり鹿島臨海工業地帯がある。県南・県西ブロックは、大規模な工業地帯などはないが、首都圏と隣接しており、都市部からの汚染物質の移流の影響を強く受けるものと考えられる。土浦保健所については県南ブロックのほぼ中央部に位置している。

3 調査結果

3.1 長期固定測定地点の測定結果

長期固定測定地点 (土浦保健所) の PM_{2.5} 濃度変動および SPM の濃度変動 (常時監視データ) を図 2 に示す。

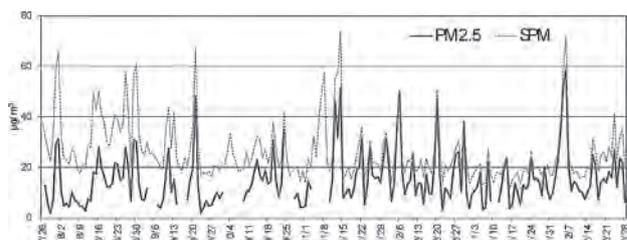


図 2 土浦保健所における PM_{2.5} 日平均値および SPM 日平均値の推移

土浦保健所における調査期間中の PM_{2.5} 平均濃度は 15.2μg/m³、日平均値の最大値は 58.5μg/m³、

日平均値の最小値は 1.9μg/m³であった。PM_{2.5} 日平均値 35μg/m³ 以上の高濃度は調査期間中に 9 日間あり、11 月～12 月の秋から冬期にかけて頻発している。PM_{2.5} と SPM の濃度と比較すると、夏については SPM と PM_{2.5} 濃度の差が大きく、秋から冬にかけては濃度差が小さくなっている。夏に両者の濃度差が大きくなる理由としては、気温が高いことによる PM_{2.5} 捕集面から揮発成分の飛散の影響が考えられる他、海風の影響により粗大粒径に重量のピークをもつ海塩粒子の影響が大きくなる可能性などが考えられる。

土浦保健所での PM_{2.5} 日平均値と Ox の日平

しかしながら、表3のPM2.5の平均濃度をみると、県西は2番目に小さいことがわかる。この期間についてはもともとのPM2.5濃度が小さかったため、絶対値の差に比べて相対比が大きくなり、過大評価になっている可能性がある。県北ブロックについては、SPMの傾向からこれまで清浄地域と考えてきたが、期間中の最大値が $33.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ と日平均値の環境基準値に迫る値も観測された他、県北ブロックの全地点で土浦保健所との相対比の平均が1.0を超えており、県南部とは異なる発生源、汚染メカニズムが存在している可能性がある。夏期の相対標準偏差の平均値は4.2～16.4%で、鹿行ブロックを除いては小さく、同ブロックにおいて地点間の濃度差は小さかった。関東自治体によるSPM合同調査³²によると、夏期の関東地方において、光化学反応により生成した硫酸アンモニウムなどの二次生成粒子が微小粒子の支配的な成分となっており、かつ、これらの粒子は広域にわたって影響を及ぼしているとしている。今回の調査においても、光化学反応による二次生成粒子のような広域に分布する成分が支配的になり、夏期の地点間の差が小さくなったのではないかと考えられる。

秋期について、図5からPM2.5の相対的な濃度順位はおおよそ県西>県南=県央>鹿行=県北となった。県央では最大値が $39.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ となり、環境基準を上回る値も観測された。相対標準偏差の平均値は、14～30%で、どのブロックでも大きく、地域的な発生源の影響により地点間の濃度差が生じているものと考えられる。

冬期について、図5からPM2.5の相対的な濃度順位は、おおよそ県西>県南=鹿行>県央>県北の順となった。相対標準偏差の平均値は10～24%とどのブロックでも比較的大きく、秋期と同様に地域的な発生源の影響を受けたものと考えられる。関東自治体によるSPM合同調査³²によると、関東地方における冬期の微小粒子の主要な成分となる硝酸イオンや塩化物イオンは、地点間の濃度差が大きく、地域的な汚染の影響が強いている。また近年これらの成分は経年的に減少傾向にあり、廃棄物焼却炉や自動車排ガスなどの規制の効果であるともしている。今回の調査においても、廃棄物燃焼や自動車排

ガスといった地域的な発生源の影響を受け、秋期、冬期に相対標準偏差が大きくなったのではないかと考えられる。また秋期、冬期には逆転層形成によって大気が安定化し、拡散が起りにくくなることも、地域的な発生源の影響が大きくなった要因として考えられる。

全期間の結果をまとめると、県北は土浦保健所との相対比で0.38～1.3(平均0.79)、県央は0.67～1.1(平均0.86)、鹿行は0.44～1.3(平均0.84)、県南は0.66～1.3(平均0.96)、県西は0.79～1.9(平均1.2)となった。この結果については、SPMで観測されてきた傾向とほぼ一致するものであった。土浦保健所では日平均値の最大値が $58.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ と環境基準を大きく超えていることを考慮すると、特に県西や県南ではほとんどの地点で環境基準を超過するものと考えられる。

4 まとめ

7ヶ月間のPM2.5長期連続測定を行った土浦保健所では、PM2.5濃度の期間平均値が $15.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、日平均値の最大値が $58.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ と環境基準を超過する値が観測された。夏期に関してはPM2.5とOxとの間に相関が、秋期、冬期にはNOxとの間に相関がみられた。また秋期、冬期に高濃度日が多かった。

県内広域を対象としたPM2.5濃度実態調査の結果、PM2.5の濃度順位はおおよそ県西>県南>県央=鹿行>県北となった。この傾向は、過去にSPMで観測されてきた傾向とほぼ一致している。しかしながら、県北については夏期に土浦保健所を大きく超える濃度が観測されており、県南部とは異なる発生源、汚染メカニズムが存在している可能性がある。また夏期には近接地点でのPM2.5濃度はほぼ同程度の値であり、二次生成粒子等による広域的な汚染が支配的になっていると推察されるが、秋期、冬期には近接地点との濃度差が大きくなり、地域的な発生源の影響が大きくなるものと推察される。

今後は同調査を春期にも実施し、年間のPM2.5変動を評価する予定である。またPM2.5の高濃度要因や対策を考える上では、その発生源を知ることが重要である。発生源推定のためには、PM2.5の成分分析を行い、その結果を元に、レ

セプターモデルや指標元素による解析を行う必要がある。実態調査ののち、高濃度地点や発生源近傍でのPM_{2.5}の成分分析を実施し、県内における主要な発生源および汚染メカニズムを明らかにしていく予定である。

参考文献

- 1) 環境省：微小粒子状物質暴露影響調査報告書(2007)
- 2) 関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議：平成19年度浮遊粒子状物質合同調査報告書(2009)
- 3) 独立行政法人国立環境研究所：国立環境研究所と地方環境研究所とのC型共同研究，光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究，平成19～21年度最終報告(2010)
- 4) 萩野浩之，小瀧美里，坂本和彦，さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分，*J.Aerosol Res.*，**21**(1)，38-44(2006)
- 5) 青柳元喜，森田陽一，茨城県における光化学オキシダント及びSPMの地域特性(2)，第36回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集(2009)
- 6) 鴨志田元喜，森田陽一，簡易湿度制御チャンバーの作製とPM_{2.5}夏季調査結果について，第37回環境保全・公害防止研究発表会講演要旨集(2010)

2-2 茨城県における浮遊粒子状物質（SPM）の総合解析

鴨志田元喜，岡田和則，森田陽一

Integrated Analysis of Suspended Particle Matter (SPM) in Ibaraki Prefecture
Motoki Kamoshida, Kazunori Okada and Yoichi Morita

キーワード：浮遊粒子状物質，レセプターモデル，PMF，微小粒子状物質

1 はじめに

浮遊粒子状物質（SPM）とは，大気中の浮遊する粒子状物質のうち，粒径が $10\mu\text{m}$ 以下のものをいう。SPMの環境基準は日平均値の2%除外値が $0.1\text{mg}/\text{m}^3$ 以下，一時間値が $0.2\text{mg}/\text{m}^3$ 以下とされている。県内においては平成19年度から全ての局で環境基準を達成しており，その濃度は漸減傾向にある。

近年，SPMより粒径が小さく，より健康影響が懸念されている微小粒子状物質（PM_{2.5}）へ注目が集まっている。平成21年にはPM_{2.5}の環境基準が環境省より告示され，常時監視が義務づけられることとなった。

本県では県大気汚染常時監視測定局において，SPMの濃度を常時モニタリングしている。また昭和60年度から平成21年度の間，県内各地点で定期的にSPMの観測，成分調査を行ってきた。本報告では総合解析としてそれらのとりまとめを行い，県内におけるSPMの現状を明らかにし，今後のPM_{2.5}の調査研究および対策への糸口とする。

2 常時間監視データの解析

本県では，現在SPMの常時モニタリングを一般大気環境測定局（以下一般局）35地点，自動車排ガス測定局（以下自排局）4地点で行っている。観測地点を図1に示す。平成7年度から平成21年度までの過去15年間のSPM常時監視データについて解析を行い，県内のSPMの経年変化について考察した。解析にあたっては，表1のとおり一般局を県行政区分により，県北・県央・鹿行・県南・県西に分け，自排局を加えて6つの地域として比較検討を行った。



図1 SPM常時監視測定局配置

表1 SPM常時監視測定局の区分分け

地域	局舎名
県北	北茨城中郷，高萩本町，日立市役所，日立会瀬 日立多賀，日立南部，常陸太田，大宮野中
県央	那珂，常陸那珂東海，常陸那珂勝田，ひたちなか 水戸石川，水戸東部，東茨城大戸，笠間市役所
鹿行	鹿島富中，鹿島高原，神栖下幡木，鹿島事務所 神栖消防，神栖一貫野，神栖横瀬，波崎太田 潮来保健所
県南	石岡杉並，土浦保健所，江戸崎公民館 竜ヶ崎公民館，取手市役所，つくば高野
県西	筑西保健所，下妻，常総保健所，古河保健所 古河市役所
自排局	日立小木津，水戸大工町，土浦中村南，守谷

2.1 SPM年平均值，2%除外値の推移

各地域のSPM年平均值，および2%除外値の推移を図2，図3に示す。県内のSPM濃度は，すべての地域で年平均值，2%除外値ともに年々減少している。平成7年の時点では，県西，県南，自排局で濃度が大きく地域間の差も大きかったが，近年は地域間の差も小さくなってきている。平成21年度におけるSPMの濃度順位は，県西>県南>自排>鹿行>県央>県北となっている。

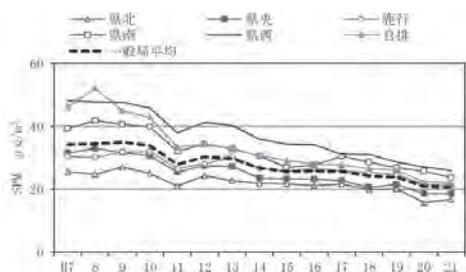


図2 SPM年平均値の推移

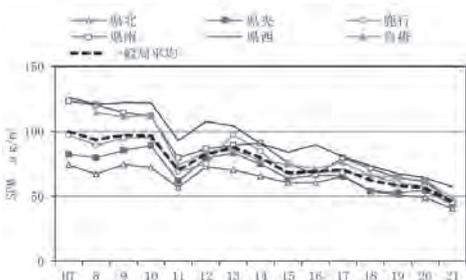


図3 SPM2%除外値の推移

2.2 SPM 月別濃度の推移

図4に平成7～21年の5年間毎のSPM月平均濃度を、図5に一般局における平成7～11年のSPM月平均値と平成17～21年の月平均値の差(減少量)を示す。

平成7～11年について、県北地域を除いた地域ではSPM濃度は7～8月および、12月にピーク

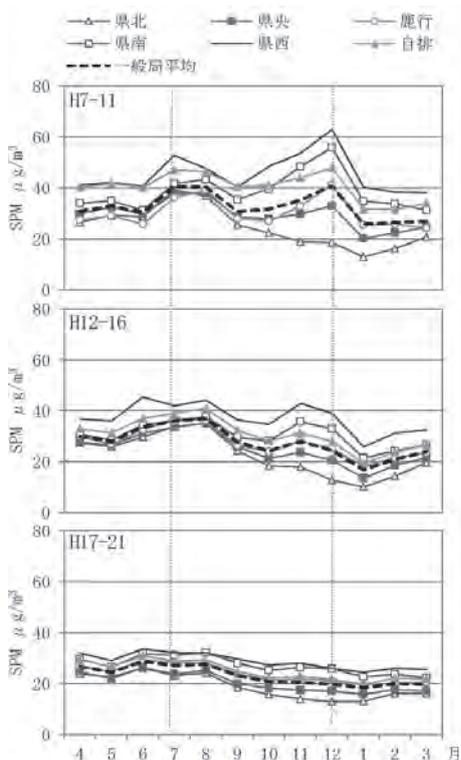


図4 SPM月平均値の5年間平均値

上: H7-11年, 中: H12-16年, 下: H17-21年

を迎える二山型となっていた。平成12～16年では、増加がみられた。冬のピークは特に12月に大きな7月のピークが減少していたが、6月にやや濃度の減少がみられ、春と同程度の濃度まで低下した。平成17～21年になると全ての地域で夏、冬ともに濃度が減少し、春から夏にかけて緩いピークが残る程度となった。

図5の月平均値の減少量をみると、7月、8月、11月、12月の減少量が大きかったが、6月はほとんど減少がみられなかった。関東地方環境対策推進連絡会による関東SPM合同調査¹⁾によれば、特に冬期には自動車からの影響が大幅に減少していることによりSPM濃度の低下が顕著であるが、夏期においては光化学反応による二次生成粒子の影響が大きく、冬期と比べるとその濃度に明確な改善傾向はみられていないとしている。

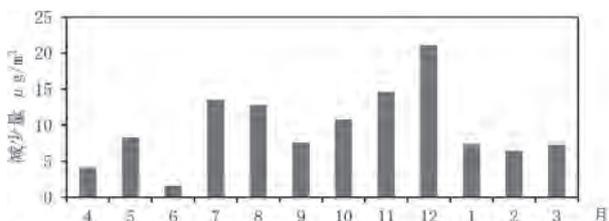


図5 H7-11年のSPM月平均値とH17-21年の月平均値の差(一般局)

3 SPM 成分調査の解析

3.1 調査の変遷

前述のとおり、本県ではSPMの成分調査を、昭和60年から平成21年までの間、採取法、採取地点、分析項目等の見直しを行いながら実施してきた。表2にその変遷をまとめた。

平成12年度以前はローボリュームエアサンプラーで年2～6回、1ヶ月捕集を行い、重量濃度、イオン成分、金属成分の調査を行ってきた。平成13年度以降はアンダーセンローボリュームエアサンプラーを用いて微小粒子(2.1μm以下)と粗大粒子(2.1μm～11μm)に分級して夏期と冬期に捕集を行い、測定項目も重量濃度、イオン成分、金属成分、炭素成分、芳香族炭化水素(B[a]P)として調査を行ってきた。

調査開始当初は、ばい煙等の大規模発生源が存在する日立および鹿島・神栖地域の調査が重点的に行われ、次第に高濃度が顕著な県西・県南地域および自排局へと調査対象が移行していった。

表2 SPM 成分調査の変遷

年度	S60	S61	S62	S63	H1	H2	H3	H4	H5	H6	H7	H8	H9	H10	H11	H12	H13	H14	H15	H16	H17	H18	H19	H20	H21					
採取法	LV+HV*	ローボリュームエアースンプラー															アンダーセンローボリュームエアースンプラー													
捕集粒径	<10µm	<10µm															粗大: 2.1-11µm 微小: <2.1µm													
地点数	9	8	8	7	9	8	8	9	10	9	9	7	7	7	5	5	6	6	5	4	4	5	5	5	4					
調査地点	北茨城中郡	大子保健所	日立駅前	日立会瀬	日立桑ヶ丘中	鶴田三中	大宮野中	水戸石川	土浦保健所	竜ヶ崎保健所	取手市役所	筑西保健所	常総保健所	古河保健所	古河市役所	鹿島下郷	神栖消防	神栖一貫野	波崎太田	土浦中村南										
調査回数	4回/年				4回/年				4回/年(一般) 2回/年(重係・神西)				4回/年				2回/年		4回/年		6回/年		4回/年		4回/年					
吸引期間	1ヶ月															1週間		4日		3日		4日								
イオン成分	NH ₄ ⁺ , SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻															NH ₄ ⁺ , Na ⁺ , K ⁺ , Ca ²⁺ , Mg ²⁺ , SO ₄ ²⁻ , NO ₃ ⁻ , Cl ⁻														
金属成分	Fe, Mn, V, Pb, Cd, Mg, Al, Ni, Zn, Cu, Co, Na							Pb, Cu, Zn, Mn, Fe, Al, Ca, Mg, Na, K								Fe, Mn, Cu, Pb, Zn				Fe, Mn, Cu, Pb, Zn, V, Ni, As, Sr, Al										
炭素成分	-																										EC, OC			
芳香族炭化水素	-																										B(a)P			

*LV(ローボリュームエアースンプラー)、HV(ハイボリュームエアースンプラー)

3.2 解析の概要

蓄積された SPM の成分データを基に、茨城県における SPM 成分の特徴や季節変動等の解析を行い、レセプターモデルによる発生源解析を試みた。

解析対象データは、たびたび調査方法等の見直しが行われていることから、アンダーセンサンプラーでの分級捕集が始まった平成 13 年以降、比較的長期にわたって調査を行った水戸石川、筑西保健所、常総保健所、古河市役所（以上一般局）、土浦中村南（自排局）のデータとした（表 1 網掛け部分）。古河保健所と古河市役所は近接しているため、同一地点のデータとみなした。これらの調査における測定期間は、SPM の高濃度化がみられる梅雨明けの夏期 2 週間と 11 月～12 月にかけての冬期 2 週間であるが、一回あたりのサンプル捕集期間は 3 日～1 週間と年度によりばらつきがある。解析に供した成分は炭素成分 (EC, OC)、多環芳香族炭化水素 (B[a]P)、金属成分 (Mn, Fe, Cu, Zn, Pb)、イオン成分 (Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, Cl⁻, NO₃⁻, SO₄²⁻) の全 16 成分とした。

3.3 SPM 濃度の推移および地点間の差

平成 13 年から平成 21 年までの SPM 成分調査における、夏期の SPM 濃度および微小粒子の割

合の推移を図 6 に、冬期の SPM 濃度および微小粒子の割合の推移を図 7 に示す。地点間の比較にあたっては、水戸石川を「水戸」、筑西保健所、常総保健所、古河市役所の平均値を「県西」、土浦中村南を「自排局」として比較した。

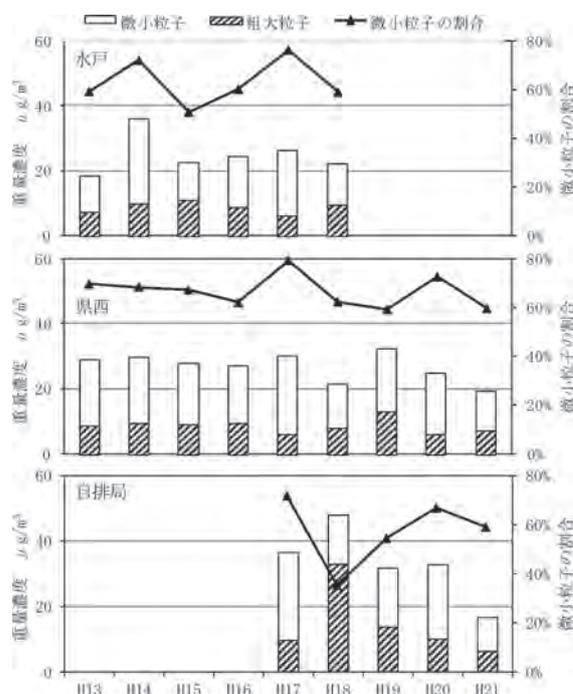


図6 夏期の SPM 濃度推移と微小粒子の割合
上：水戸，中：県西，下：自排局

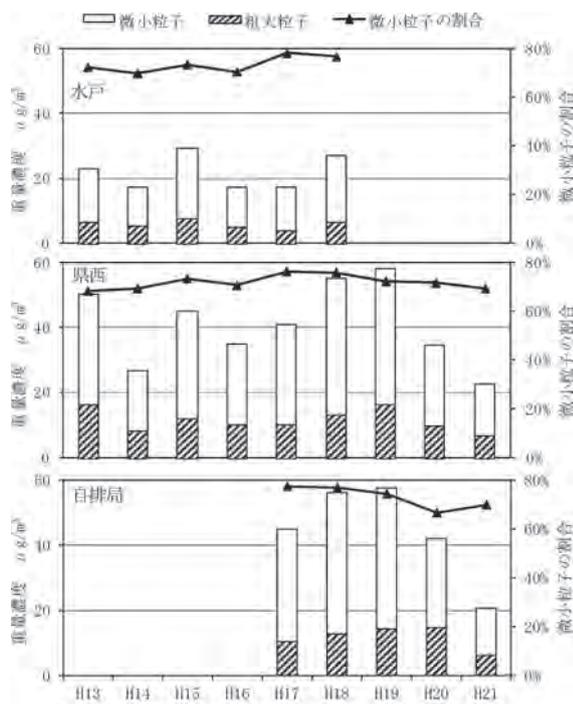


図7 冬期のSPM濃度推移と微小粒子の割合
上：水戸，中：県西，下：自排局

図6の夏期のSPM濃度をみると、自排局でやや濃度が大きく、ついで県西、水戸の順となった。自排局では他地点に比べて粗大粒子の濃度が大きかった。微小粒子の濃度は、水戸でやや小さかったが、地点間の差はほとんどないものと考えられる。微小粒子の割合はばらつきが大きく、地点による差よりも、年度による差が大きかった。経年的には、明確なSPMの減少傾向はみられなかった。

図7の冬期のSPM濃度をみると、水戸で他の地点に比べて明らかに小さく、県西、自排局で大きくなった。夏期のSPM濃度と比較すると、水戸では夏期と冬期でほとんど濃度が変わらないのに対し、県西、自排局では冬期に濃度が大きくなっており、特に微小粒子の増加が著しかった。微小粒子の割合は全地点70～80%と大きな割合で推移しており、年度による差は小さかった。経年的には県西、自排局で近年減少傾向にあるようにもみえるが、明確な傾向について言及することはできなかった。

2週間という短期調査、さらには捕集時間の差もあるため再揮散等の影響を無視できず、本調査においてSPM濃度の長期傾向について言及することは難しい。これについては前述の常時監視データの推移で評価することが妥当である。

3.4 SPM成分の構成割合

微小粒子の季節別の成分構成割合を図8に、冬粗大粒子の季節別の成分構成割合を図9に示す。値は水戸石川、筑西保健所、常総保健所、古河市役所、土浦中村南の平均値である。なお金属成分(Mn,Fe,Cu,Zn,Pb)は、低濃度であるため、「金属」として合計値で示した。

図8の微小粒子の構成割合をみると、夏期には SO_4^{2-} 、OC、EC、 NH_4^+ 、冬期にはOC、EC、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ が大きな割合を占めていた。夏期には光化学反応により生成されると考えられる SO_4^{2-} と、カウンターカチオンである NH_4^+ からなる硫酸アンモニウムの割合が特に大きい。半揮発性の二次生成粒子である硝酸アンモニウム、塩化アンモニウムの構成イオンである NO_3^- 、 Cl^- に着目すると、夏期には割合が小さく、冬期には割合が大きくなっていった。これらの粒子は気温の高い夏期にはガス化し、気温の低下する冬期に粒子化するためと考えられる。 SO_4^{2-} 、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 Cl^- の合計を二次生成粒子と仮定すると、夏期の微小粒子における二次生成粒子の割合は50%、冬期の微小粒子における二次生成粒子の割合は35%となった。EC、OCの合計を全炭素(TC)とするとTCの微小粒子に占める割合は夏期に29%、冬期に40%となった、夏期、冬期とも二次生成粒子とTCで3/4近くを

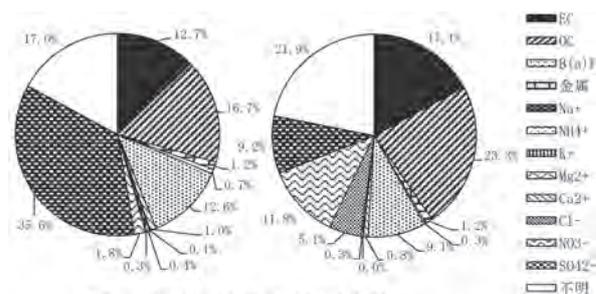


図8 微小粒子成分の構成割合
左：夏期，右：冬期

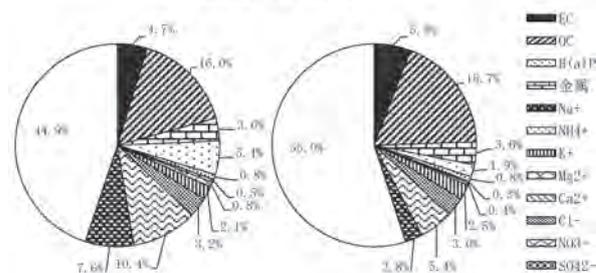


図9 粗大粒子成分の構成割合
左：夏期，右：冬期

占める結果となった。

図9の粗大粒子の構成割合をみると、夏期にはOC,NO₃⁻,SO₄²⁻,Na⁺,冬期にはOC,EC,NO₃⁻が大きな割合となった。粗大粒子では微小粒子に比べて不明分が大きくなっているが、粗大粒子には土壌粒子など無機成分が主要元素の一次粒子が多く、分析していない成分が多いことによるものと考えられる。

3.5 各成分間の相関

微小粒子中の金属成分を除いた各成分間の相関を季節別に表3,表4に示す。

夏期には、SO₄²⁻とNH₄⁺に非常に強い相関があり、そのほとんどが硫酸アンモニウムとして存在していることを示唆していた。またSO₄²⁻とNH₄⁺はSPMとも高い相関があり、硫酸アンモニウムは夏期におけるSPMの支配的な成分となることがわかる。

冬期にはOC, B[a]P, NH₄⁺,K⁺, Cl⁻,NO₃⁻がSPMと相関が高かった。OC, B[a]P, NO₃⁻などの成分から、自動車や燃焼系発生源からの成分が支配的になっていると推察される。K⁺, Cl⁻はバイオマス燃焼や、廃棄物焼却の指標となり、燃焼系発生源の中でも、バイオマス燃焼、廃棄物焼却が冬期のSPM濃度に対して大きな影響を与えているものと考えられる。

表3 夏期微小粒子中の成分間の相関

	SPM	EC	OC	B(a)P	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
SPM	<u>1.00</u>											
EC	0.44	<u>1.00</u>										
OC	0.41	0.44	<u>1.00</u>									
B(a)P	0.33	0.30	0.38	<u>1.00</u>								
Na ⁺	0.04	0.19	0.46	0.11	<u>1.00</u>							
NH ₄ ⁺	<u>0.89</u>	0.28	0.25	0.25	0.03	<u>1.00</u>						
K ⁺	-0.55	0.48	0.74	0.35	0.59	0.42	<u>1.00</u>					
Mg ²⁺	0.15	0.31	0.51	0.13	<u>0.82</u>	0.12	0.71	<u>1.00</u>				
Ca ²⁺	0.06	0.28	0.57	0.25	0.74	-0.01	0.51	0.78	<u>1.00</u>			
Cl ⁻	0.05	0.28	0.42	0.27	0.62	-0.03	0.49	0.63	0.73	<u>1.00</u>		
NO ₃ ⁻	0.25	0.39	0.17	0.16	-0.08	0.10	0.19	-0.02	0.04	0.46	<u>1.00</u>	
SO ₄ ²⁻	<u>0.82</u>	0.19	0.14	0.19	-0.01	<u>0.97</u>	0.29	0.05	-0.06	-0.13	-0.02	<u>1.00</u>

表4 冬期微小粒子中の成分間の相関

	SPM	EC	OC	B(a)P	Na ⁺	NH ₄ ⁺	K ⁺	Mg ²⁺	Ca ²⁺	Cl ⁻	NO ₃ ⁻	SO ₄ ²⁻
SPM	<u>1.00</u>											
EC	0.77	<u>1.00</u>										
OC	<u>0.81</u>	0.53	<u>1.00</u>									
B(a)P	<u>0.84</u>	0.71	0.75	<u>1.00</u>								
Na ⁺	0.52	0.32	0.48	0.39	<u>1.00</u>							
NH ₄ ⁺	<u>0.95</u>	0.74	0.71	<u>0.80</u>	0.52	<u>1.00</u>						
K ⁺	<u>0.82</u>	0.68	0.58	0.64	0.59	<u>0.80</u>	<u>1.00</u>					
Mg ²⁺	0.16	0.29	0.11	0.17	0.13	0.24	0.35	<u>1.00</u>				
Ca ²⁺	0.23	0.23	0.12	0.15	0.16	0.32	0.30	0.60	<u>1.00</u>			
Cl ⁻	<u>0.88</u>	0.72	0.74	<u>0.80</u>	0.47	<u>0.90</u>	<u>0.82</u>	0.37	0.34	<u>1.00</u>		
NO ₃ ⁻	<u>0.90</u>	0.74	0.68	0.72	0.42	<u>0.91</u>	0.70	0.10	0.25	<u>0.83</u>	<u>1.00</u>	
SO ₄ ²⁻	0.73	0.63	0.44	0.59	0.38	<u>0.81</u>	0.61	0.31	0.34	0.60	0.70	<u>1.00</u>

3.6 PMF法による発生源解析

Positive Matrix Factorization (PMF)法はレセプターモデルのひとつで、多成分の変動要素からいくつかのパターン(因子)を抽出する統計モデルである。抽出された因子のプロファイルに着目することで、その因子の由来となる発生源を推定することができ、因子の寄与濃度に着目することで地域に特徴的な発生源や、長期的な傾向を推察することができる。レセプターモデルの一つにChemical Mass Balance (CMB)法という統計手法もあり、本県の調査でも過去にCMB法による発生源解析を行ってきた²⁾。CMB法は化学成分の質量保存を基本とし、環境濃度は与えられた発生源からの寄与の線形和で表される。個々に設定した発生源の寄与を厳密に推定できるが、計算結果は発生源プロファイルの信頼性に大きく依存し、未知の発生源の寄与は評価できないといった問題もある。一方PMF法は、多数の実測データを必要とするが、発生源プロファイルを必要としない点が魅力であり、近年国内においても発生源推定に使用されてきている^{1,3)}。

ここでは、調査によって得られた粒径別のSPMの成分データを基にPMF法による発生源解析を行い、因子(発生源)寄与濃度の地域間の差、および季節変動について考察を行った。

3.6.(1) 因子の抽出と解釈

PMF解析の結果、因子数は6と推定された。抽出された6つの因子プロファイルを因子間の相対比で表5に示す。

Factor1はEC, B[a]Pの振り分けが大きく、自動車に由来する因子と考えられる。Factor2は

表5 PMF解析の因子プロファイル

	Factor1	Factor2	Factor3	Factor4	Factor5	Factor6
EC	<u>42.4</u>	5.3	4.3	33.3	14.3	0.4
OC	0.0	18.3	0.0	<u>77.4</u>	0.0	4.3
B(a)P	<u>42.1</u>	0.0	22.8	26.7	8.4	0.0
Mn	4.1	<u>54.0</u>	24.4	15.3	2.1	0.2
Fe	0.0	<u>87.0</u>	6.9	0.0	0.0	6.1
Cu	29.9	<u>62.9</u>	0.0	0.0	7.2	0.0
Zn	13.7	29.5	21.8	18.8	15.3	0.8
Pb	0.0	2.8	<u>53.4</u>	0.0	<u>41.5</u>	2.3
Na ⁺	0.4	8.6	1.2	2.5	8.7	<u>78.6</u>
NH ₄ ⁺	2.4	0.0	19.9	17.5	<u>60.3</u>	0.0
K ⁺	0.0	2.9	0.0	<u>67.0</u>	22.0	8.1
Mg ²⁺	0.0	23.6	0.0	0.0	7.9	<u>68.5</u>
Ca ²⁺	0.0	<u>67.4</u>	0.9	6.5	0.0	25.2
Cl ⁻	0.0	6.1	<u>81.1</u>	3.8	1.7	7.2
NO ₃ ⁻	35.4	0.0	<u>45.8</u>	0.0	0.0	18.9
SO ₄ ²⁻	0.8	5.1	0.0	0.0	<u>85.5</u>	8.6

Ca²⁺, Fe など金属成分の振り分けが大きく、土壌および道路粉塵に由来する因子と考えられる。Factor3 は Cl⁻, NO₃⁻ の振り分けが大きく、半揮発性の粒子の因子と考えられる。Pb の振り分けも大きく、廃棄物焼却や金属精錬なども寄与していると考えられる。Factor4 は EC, OC, B[a]P, K⁺ などの振り分けが大きく、廃棄物焼却、およびバイオマス燃焼に由来する因子と考えられる。Factor5 は SO₄²⁻, NH₄⁺ の振り分けが大きく、硫酸アンモニウムの因子と考えられる。若干ではあるが EC の振り分けもあり、重油燃焼の寄与も含まれているものと考えられる。Factor6 は Na⁺, Mg²⁺ の振り分けが大きく、海塩に由来する因子と考えられる。

図 10 に、解析に供した 16 成分の観測値の合計と、上記の 6 因子によってモデル計算した値の関係を示す。計算値は、若干観測値よりも小さくなる傾向にはあったが、比較的良好に再現できていた (r=0.98)。

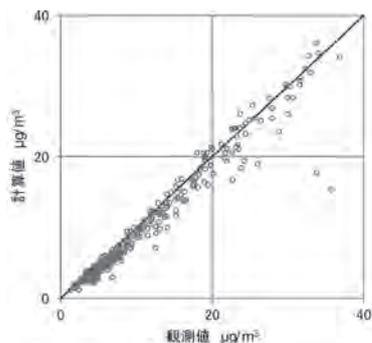


図 10 16 成分の観測値と計算値の関係

3.6. (2) 因子寄与濃度の地点変動と季節変動

図 11 に微小粒子の各地点における因子寄与濃度を、図 12 に粗大粒子の各地点における因子寄与濃度を示す。なお不明分は、微小粒子濃度の観測値から、各因子寄与濃度の合計値を引いたものである。

微小粒子について、夏期には硫酸アンモニウムの因子と、廃棄物・バイオマス燃焼の因子が大きな割合を占めていた。海塩と土壌・道路粉塵の因子は、ほとんど寄与がなかった。特に大きな割合を占めていた硫酸アンモニウムの因子は、地点間の濃度差も小さく、広域的な汚染因子となっているものと考えられる。冬期には自動車、半揮発性粒子、廃棄物燃焼・バイオマス燃焼が大きな割合を占めた。海塩と土壌・道路粉塵の因子は、ほと

んど寄与がなかった。水戸では半揮発性因子の寄与がほとんどない他、自動車、廃棄物・バイオマス燃焼の寄与も他の地点に比べて小さかった。県西の 3 地点と土浦中村南を比較すると、土浦中村南では自動車の因子が大きくなったが、その他の因子の寄与濃度は、ほぼ同等の値であった。粗大粒子について、夏期には海塩、土壌・道路粉塵因子の寄与割合が大きくなった。自動車、半揮発性粒子、硫酸アンモニウムの因子はほとんど寄与がなかった。また地点間の差も認められなかった。冬期には、土壌・道路粉塵因子の寄与が大きくなった。県西の 3 地点と土浦中村南を比較すると各因子の寄与濃度はほとんど差がなかったが、水戸では土壌・道路粉塵の寄与濃度が小さくなった。

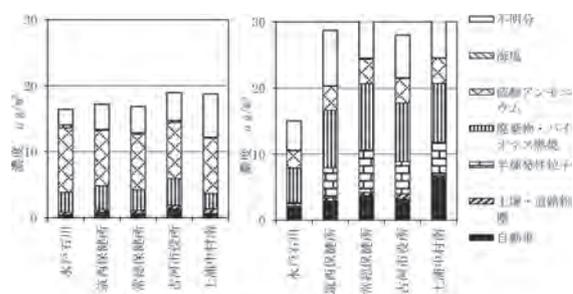


図 11 微小粒子の各地点の因子寄与濃度

左：夏期，右：冬期

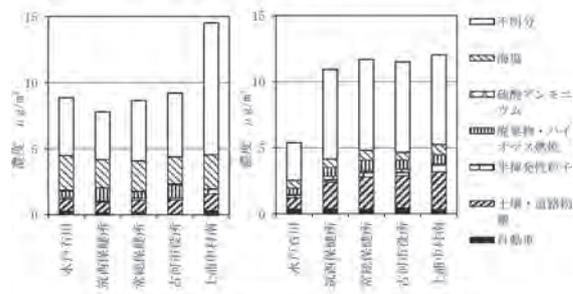


図 12 粗大粒子の各地点の因子寄与濃度

左：夏期，右：冬期

4 まとめ

県内の SPM 濃度は年々減少傾向にあり、地域間の差も小さくなってきている。特に冬期においては、自動車影響の減少によるものと考えられる濃度の改善が著しいが、6 月についてはほとんど改善傾向がみられていない。

夏期については硫酸エアロゾルなどの光化学反応による二次生成粒子が SPM の支配的成分になっており、またそれらの影響は、広域に広

がっているものと考えられる。冬期については自動車の影響が小さくなっている中、廃棄物焼却やバイオマス燃焼といった燃焼系発生源の影響が大きくなっている。バイオマスについては、燃焼系のみならず自然発生の成分についても注目していく必要があるものとする。これらを発生源とする粒子は、微小粒子に偏在しており、今後 SPM から PM2.5 へと観測の対象がシフトしていく中でも、重要な発生源であることには変わりはない。

本県では、平成 22 年度より、常時監視に先立って PM2.5 の研究を開始したところである。PM2.5 は多数の成分からなる複合体であり、その発生源、生成過程も複雑である。まずはその発生源を明らかにする上で、本報でも扱った PMF 法や、CMB 法といったレセプターモデルを使った解析は有効であり、そのためにも成分の観測は欠かせない。また金属濃度比による長距離輸送の解析³⁾や、バイオマス燃焼の指標となるレボグルコサン⁵⁾など、新たな知見として得られてきた指標物質の解析も、レセプターモデルと合わせて有効である。より高い精度でこれらの解析を行うためには、高時間分解能かつ広域による調査が望まれる。同時に、多成分の観測が望まれることから、測定法や分析精度の均質化なども重要な課題となるであろう。

参考文献

- 1) 関東地方環境対策推進本部大気環境部会浮遊粒子状物質調査会議：平成 19 年度浮遊粒子状物質合同調査報告書 (2009)
- 2) 岡田和則，井村久則，野口高明，長谷川博，北和之：浮遊粒子状物質の組成把握及び発生源推定-新しい元素分析手法を用いた解析-，茨城県霞ヶ浦環境科学センター年報第 2 号，130 - 137(2006)
- 3) 岩本真二，松枝隆彦，大野健治，飛石和大，安武大輔，桜木建治：大気中ダイオキシン類の発生源寄与推定方法の検討 - Positive Matrix Factorization 法 及び Chemical Mass Balance 法の適用 - ，環境化学，16(3)，403 - 413(2006)
- 4) 日置正，紀本岳志，長谷川就一，向井人史，大原利眞，若松伸司：松山，大阪，つくばで観測した浮遊粉じん中金属元素濃度比による長距離輸送と地域汚染特性の解明，大気環境学会誌，44(2)，91 - 101(2009)
- 5) 萩野浩之，小瀧美里，坂本和彦：さいたま市における初冬季の微小粒子中のレボグルコサンと炭素成分，*J.Aerosol Res.*，21(1)，38 - 44(2006)

2-3 PM_{2.5} と光化学オキシダントの実態解明と発生源寄与評価に関する研究

1 目的

PM_{2.5} と光化学 O_x^{1) 2)} はともに高い地域依存性を持つと同時に、広域汚染の影響も受けるため全国と地域の両方の視点から研究を進める必要がある。また、その発生機構は極めて複雑であるため、複数の研究機関が共同で研究を進めることが有効である。これまで、C型共同研究として「光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性解明に関する研究」³⁾ (平成 19～21 年度、参加機関 49) において、全国の大気環境時間値データを整備し、解析を進めることにより、光化学 O_x 及び浮遊粒子状物質 SPM などの発生状況、時間変動、地域特性を全国的に把握した。そこで本研究では、これまでの研究を発展させ、①常時測定時間値データや PM_{2.5} 測定データのデータベース化と解析、②粒子成分や VOC 成分の測定と解析、③ PM_{2.5} や光化学 O_x の測定法に関する検討、④モデル解析等による発生源寄与率評価の検討、⑤衛星観測データ解析などを実施して、PM_{2.5} と光化学 O_x の実態を解明し発生源寄与率を評価することにより、地方自治体や国の大気汚染施策に活用することを目的とする。

2 共同研究機関及び役割分担

(1) 共同研究者

51 都道府県市の地方環境研究所、国立環境研究所、愛媛大学、中部大学、九州大学、奈良女子大学、千葉大学、高崎経済大学、(財)電力中央研究所、(財)日本環境衛生センター

(2) 役割分担

地方環境研究所等：大気環境時間値データや PM_{2.5} 測定データなどの提供と地域解析、PM_{2.5} 成分・VOC 成分の観測、各地域における発生源寄与率の評価、PM_{2.5} と光化学 O_x 測定法に関する検討、衛星観測データの解析等

国立環境研究所：測定データベースの整備と全国解析、モデル解析の指導と実施、各種集計解析プログラムの作成・整備、情報交流・共有ツールの提供等

大学等：地域グループのサブリーダーとして研究指導

3 研究内容

全体研究計画

年度	H22	H23	H24
目的	既存測定値データベース整備 測定、評価方法の検討・準備	PM _{2.5} 成分、VOC 成分の観測 汚染特性の解明	汚染特性や発生原因の解明 発生原寄与率の評価
重点研究項目	①データベースの解析による汚染実態把握 ②成分観測計画策定 ③測定法・評価法の検討	①データベースの解析による汚染特性把握 ② PM _{2.5} 成分、VOC 成分観測③ 発生源寄与率の試算	①データベース解析と成分観測による汚染特性解明 ②モデルを利用した発生源寄与率の評価

4 結果

全体研究会 (5 月 13 日～14 日)、研究グループ合同会議 (11 月 25 日～26 日) に参加した。

(1) 成分観測・測定法の検討

各自治体では、環境基準の監視項目として既に PM_{2.5} 成分の測定計画の検討が始まっていることであり、その他の成分観測として VOC の連続観測について検討した。有害大気汚染物質モニタリング調査で用いられている全自動キャニスター濃縮導入システムに GC/MS を接続した測定装置につい

では、外気の直接導入により 1 時間に 1 回程度の測定が可能である。外気の導入には内部を不活性化処理したシリコステールチューブとゴミ防除用フィルターを用いる必要があり、導入管が長くなるため外気の滞留防止に流量制御ポンプで外気を流す必要があるが、キャニスター GC/MS は地方環境研究所に整備されており、多くの自治体で実施可能と考えられた。

ただし、装置は移動できないため設置場所でしか測定ができないこと、有害大気汚染物質モニタリング調査との日程調整、低温濃縮用液体窒素の確保などが課題と考えられた。

(2) 評価方法の検討

PM2.5 の発生源解析に用いられる手法として、レセプターモデルとよばれる観測点での PM2.5 成分データから発生源寄与率を推計するモデルがある。モデル解析グループでは、環境省が実施した微小粒子状物質影響調査の PM2.5 成分データに対してレセプターモデルを適用し、解析方法、および評価方法について検討を行っている。

参考文献

- 1) 若松伸司編：西日本及び日本海側を中心とした地域における光化学オキシダント濃度等の経年変動に関する研究（国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究報告 平成 13 年度～ 15 年度），国立環境研究所研究報告第 184 号（R-184-2004）
- 2) 大原利真編：日本における光化学オキシダント等の挙動解明に関する研究（国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究 平成 16 年度～ 18 年度最終報告），国立環境研究所研究報告第 195 号（R-195-2007）
- 3) 大原利真編：光化学オキシダントと粒子状物質等の汚染特性に関する研究（国立環境研究所と地方環境研究所との C 型共同研究 平成 19 年度～ 21 年度最終報告），国立環境研究所研究報告第 203 号（R-203-2010）

2-4 有害大気汚染物質調査事業

1 目的

大気環境中には多様な発生源からの数多くの物質あるいは元素が含まれている。それらの中には人の健康に影響があるものも含まれており、国においては環境基準や優先取組物質などを定めて、監視やモニタリングをすることとしている。

そこで、環境大気中の有害大気汚染物質濃度を一般環境、発生源周辺等の地域形態別に測定し、県内の有害大気汚染物質の実態を把握することとした。

2 調査方法

(1) 調査内容について

調査は平成22年4月から平成23年3月までの間に月1回の頻度で、図1に示す県内8地点で調査を実施した。

なお、調査地点の形態は、一般環境として水戸石川、日立多賀、土浦保健所、筑西保健所の4地点、固定発生源周辺として神栖消防、神栖下幡木、鹿嶋平井の3地点、幹線道路沿道として土浦中村南の1地点である。

(2) 調査対象物質

大気汚染防止法の優先取組み物質全22物質のうち、測定マニュアル¹⁾が制定されている19物質とし、その物性により次のとおり区分した。

① 揮発性有機化合物：

ジクロロメタン、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエン、酸化エチレン

② 多環芳香族炭化水素：ベンゾ[a]ピレン

③ アルデヒド類：ホルムアルデヒド、アセトアルデヒド

④ 金属類：水銀、ニッケル、ヒ素、ベリリウム、マンガン、クロム

(3) 採取方法及び分析方法

揮発性有機化合物は真空容器（ステンレス製内面不活性化処理済、6L）に約3.3 mL/minの流量で24時間採取した環境大気を捕集管濃縮-ガスクロマトグラフ質量分析法（GC/MS）で分析した。なお、酸化エチレンは臭化水素をコーティングした捕集管に環境大気を約700ml/minの流量で24時間通気し、捕集剤を溶媒で抽出後、GC/MSで分析した。

多環芳香族炭化水素は環境大気を流量700又は750L/minの流量で24時間吸引し、石英ろ紙上に捕集し、その一部を溶媒で抽出後、蛍光検出器付高速液体クロマトグラフ（HPLC）で分析した。

アルデヒド類はオゾン除去能を有する固相カラムの後段にジフェニルヒドラジンを含む固相カラムを装着し約100ml/minの流量で誘導体化しながら捕集し、後段の固相カラムを溶媒で抽出後、紫外可視検出器付HPLCで分析した。

水銀は金をコーティングした捕集管に環境大気を約100ml/minの流量で24時間通気し、捕集管を加熱気化冷原子吸光計に装着し分析した。また、水銀を除く金属類は多環芳香族炭化水素を捕集した石英ろ紙の一部を混酸で分解後、誘導結合プラズマ質量分析計で分析した。



図1 調査地点

3 結果の概要

県内 8 地点の調査結果を環境省から発表された平成 21 年度全国調査の集計結果²⁾とともに表 1 に示す。

(1) 揮発性有機化合物

環境基準値の定められているジクロロメタン、ベンゼン、トリクロロエチレン、テトラクロロエチレンの年平均値は全ての調査地点で基準値以下であった。また、指針値の設定されているアクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、クロロホルム、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエンについても全ての調査地点で指針値を下回った。

(2) 酸化エチレン

環境基準値や指針値は定められていないが、水戸石川と土浦中村南は全国平均値と同程度の値であったが、神栖消防は全国調査結果の最高値と同等であった。

(3) 多環芳香族炭化水素

環境基準値や指針値は定められていないが、水戸石川と土浦中村南は全国平均値と同程度の値であったが、神栖消防は全国調査結果の最高値と同等であった。

(4) アルデヒド類

環境基準値や指針値は定められていないが、ホルムアルデヒド及びアセトアルデヒドとも水戸石川と土浦中村南は全国平均値と同程度の値であったが、神栖消防はそれより高値であった。

(5) 金属類

水銀及びその化合物及びニッケル化合物については、全ての調査地点で指針値を下回っていた。指針値等のない他の金属類については、ヒ素及びその化合物、ベリリウム及びその化合物、クロム及びその化合物については全国平均値と同程度の値であったが、マンガン及びその化合物については、水戸石川を除く神栖消防と土浦中村南において全国平均値を上回った。

4 考察

揮発性有機化合物についてみると、神栖消防の測定値は他の 7 地点と比較し、ベンゼン、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、1,2-ジクロロエタン、1,3-ブタジエン及び酸化エチレンについて高めの値となっている。

この要因を探るため平成 21 年度の PRTR データを見ると、揮発性有機化合物の大気への排出は図 2 に示すようにアクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、1,2-ジクロロエタン及び 1,3-ブタジエンは神栖市内に所在する事業場からが 100%で、ベンゼンと酸化エチレンについては 45.2%と 29.5%であった。

神栖市内の事業場が 100%である物質の排出事業場の多くは、調査地点の北東方向 500 m に所在する石油化学コンビナートにあり、そこからの排出が影響しているものと推察された。

また、ベンゼンや酸化エチレンについては、神栖市以外の事業場からも排出があり、測定結果と PRTR データとの間

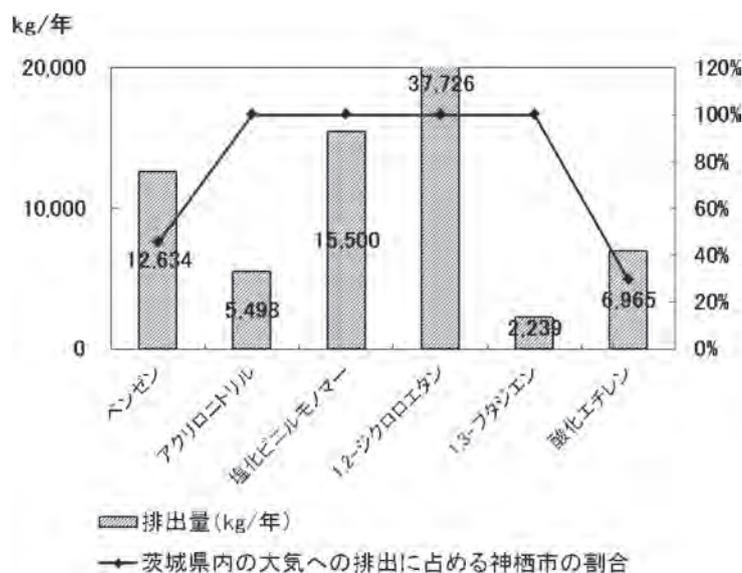


図 2 神栖市内の事業場からの揮発性有機物の排出状況

VI 研究報告等

に相関は明確ではないが、測定地点の近傍に排出源が位置するため、高濃度で検出されたものと考えられる。

また、測定結果が高くなかったトリクロロエチレン、テトラクロロエチレン、ジクロロメタン及びクロロホルムについて PRTR データを見ると、神栖市に所在する事業場からの排出割合は 0%、0%、50.6%、28.9%であり、特に、ジクロロメタンとクロロホルムについては測定結果と排出量に明確な関係は見られなかった。

5 まとめ

県内 8 地点において有害大気汚染物質 19 項目の調査を行ったところ、環境基準又は指針値が設定されている項目については、超過する項目及び地点は見られなかった。また、その他の項目についても、全国調査の範囲内であった。

揮発性有機化合物について、神栖消防の測定結果と PRTR データの排出量の関係を検討したところ、排出事業場が限定される、アクリロニトリル、塩化ビニルモノマー、1,2-ジクロロエタ及び 1,3-ブタジエンについては、測定結果と排出量に関係がみられた。

参考文献

- 1) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル（平成 20 年 10 月改定），環境省（2008），第 2 章
- 2) 平成 21 年度大気汚染状況について（有害大気汚染物質モニタリング調査結果），環境省（2011）

表1 平成22年度調査結果(年平均)

単位：揮発性有機化合物類，アルデヒド類… $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 多環芳香族炭化水素，金属類… ng/m^3

地点名	水戸 石川	日立 多賀	土浦 保健所	筑西 保健所	神栖 消防	神栖 下幡木	鹿嶋 平井	土浦 中村南	県内 調査 地点 平均	全国平均 及び範囲 1)	環境 基準値 及び 指針値	
区分	一般環境				固定発生源周辺			幹線道 路沿道				
測定期間	H22.4~H23.3											
揮発性 有機 化合物	ベンゼン	0.88	0.66	0.89	1.2	1.9	0.95	0.86	0.97	1.0	1.3 (0.52~ 3.5)	3
	トリクロ エチレン	0.25	0.11	0.19	0.39	0.090	0.085	0.081	0.18	0.17	0.53 (0.0052 ~14)	200
	テトラクロ エチレン	0.20	0.084	0.10	0.12	0.10	0.088	0.096	0.11	0.11	0.22 (0.0075 ~2.2)	200
	ジクロロ メタン	0.61	1.3	0.79	1.2	0.79	0.96	0.74	0.79	0.89	1.7 (0.24~ 15)	150
	アクリロニ トリル	0.027	0.027	0.037	0.038	0.084	0.033	0.036	0.033	0.039	0.079 (0.0075 ~1.6)	2 (指針値)
	塩化ビニ ルモノマ ー	0.029	0.029	0.029	0.029	1.4	0.13	0.12	0.032	0.22	0.066 (0.0038 ~4.6)	10 (指針値)
	クロホルム	0.12	0.12	0.12	0.13	0.15	0.12	0.12	0.16	0.13	0.21 (0.0060 ~3.5)	18 (指針値)
	1,2-ジ クロエタ ン	0.15	0.14	0.16	0.17	1.2	0.21	0.18	0.16	0.30	0.17 (0.0045 ~4.1)	1.6 (指針値)
	1,3-ジ ブタジエ ン	0.15	0.096	0.11	0.21	0.54	0.15	0.094	0.18	0.19	0.16 (0.0065 ~1.2)	2.5 (指針値)
	酸化エチ レン	0.052	—	—	—	0.46	—	—	0.072	0.20	0.089 (0.019~ 0.46)	—
多環芳香 族炭化水 素	ベンゾ[a] ピレン	0.20	—	—	—	1.1	—	—	0.27	0.53	0.21 (0.014 ~1.4)	—
アルデヒ ド類	ホルム アルデヒ ド	2.8	—	—	—	5.3	—	—	3.3	3.8	2.7 (0.60~ 8.6)	—
	アセト アルデヒ ド	2.0	—	—	—	3.5	—	—	2.6	2.7	2.2 (0.71~ 8.4)	—
金属類	水銀 及びその 化合物	1.9	—	—	—	0.79	—	—	2.0	1.6	2.0 (0.09~ 4.6)	40 (指針値)
	ニッケル 化合物	2.1	—	—	—	4.1	—	—	2.9	3.0	4.2 (0.53~ 29)	25 (指針値)
	ヒ素 及びその 化合物	1.1	—	—	—	1.6	—	—	1.8	1.5	1.5 (0.27~ 16)	6 (指針値)
	バリウム 及びその 化合物	0.022	—	—	—	0.029	—	—	0.032	0.030	0.034 (0.0035 ~0.80)	—
	マンガン 及びその 化合物	19	—	—	—	49	—	—	34	34	26 (0.92~ 390)	—
クロム 及びその 化合物	3.1	—	—	—	4.3	—	—	4.3	4.0	5.0 (0.15~ 78)	—	

1) 環境省水・大気環境局，平成21年度大気汚染状況について(有害大気汚染物質モニタリング調査結果)

2-5 大気環境中のフロン濃度調査事業

1 目的

オゾン層は地上に照射される有害な紫外線を吸収し、地上の生物を守る働きがあるが、フロンなどの物質と反応し、減少してしまう。一方、フロンに代わる物質の使用が考えられるが、それらの中には赤外線吸収し大気を加熱する性質を示すものもある。

オゾン層の保護¹⁾や地球温暖化防止²⁾の観点から、これらの物質の実態を調査することとした。

2 調査方法

(1) 調査期間及び地点

調査は平成22年5月から平成23年2月の間に4回、図1に示す一般環境5地点（日立市、水戸市、神栖市、土浦市、筑西市）に所在する大気測定局舎で行った。調査地点の概況は、1) 日立多賀局舎は住宅地に囲まれた公園内に位置し、東南方向約200mに国道6号線が走っている、2) 水戸石川局舎は周囲を住宅に囲まれており、南方向約400mに国道50号線が走っている、3) 神栖消防局舎は国道124号線に面した公官庁の駐車場の一角にあり、北東方向約500mから先に石油化学コンビナートが所在している、4) 土浦保健所局舎は保健所の駐車場の一角にあり、付近には雑木林、国立病院及び住宅などがある、5) 筑西保健所局舎は商業地域内に位置する保健所の一角にあり、北方向約100mには国道50号線が走っている。



図1 調査地点

(2) 調査対象物質及び測定方法

調査は特定フロン調査としてCFC-12、CFC-113、CFC-11の3物質を対象に水戸市において、代替フロン調査として四塩化炭素、1,1,1-トリクロロエタン、HCFC-21、HCF-22、HCFC-141b、HCFC-142b、HCFC-123、HCFC-124、HCFC-225ca、HCFC-225cb、HFC-134aの11物質を対象に県内5地点において実施した。また、測定方法は有害大気汚染物質調査マニュアル³⁾に基づき真空容器（ステンレス製内面不活性化処理済、6L）に約3 mL/minの流量で24時間採取した環境大気をガスクロマトグラフ質量分析法で行った。

表1に調査結果として地点毎の年平均値とともに比較のため環境省が行った結果⁴⁾も合わせて記載した。

3 結果の概要

(1) 特定フロン

特定フロンは水戸のみの調査であるため昨年度の測定値と比較するとCFC-11は同程度で、CFC-12とCFC-113は僅かに高値であった（表1）。

図2に平成5年度からの本県と環境省が行った⁴⁾北海道と川崎市の特定フロンの濃度推移を示す。CFC-11の濃度推移は、調査を開始した平成5年度からほぼ横ばいであり、また大気中濃度は県外2地点の範囲内か、それより小さい値で推移している。CFC-12については、過去に県外2地点と比較して本県の濃度が大きくなる年度も見られたが、19年度以降は2地点と同程度の値で推移している。CFC-113の濃度推移は、調査を開始した平成11年度から横ばいあり、また大気中濃度も県外2地点と同程度である。

(2) 代替フロン

代替フロンについて前年度と比較すると、四塩化炭素、1,1,1-トリクロロエタン、HCFC-21、HCFC-22及びHFC-134aは前年度と同程度の測定結果であった。また、HCFC-123、HCFC-141b、HCFC-142b、HCFC-225ca及びHCFC-225cbは前年度よりも低値で、HCFC-124は高値であった(表1)。県外の測定結果⁴⁾と比較すると、四塩化炭素、1,1,1-トリクロロエタン、HCFC-142b及びHFC-134aは同程度であり、HCFC-22とHCFC-141bは高値であった。

図3に調査を開始した平成17年度からの各物質の県平均値の推移を示す。四塩化炭素、HCFC-22、HCFC-141b及びHFC-134aは、他の物質に比較し高値で推移している。

四塩化炭素は環境省の取りまとめた結果では1990年代後半以降、年1%程度で減少しているとされる。茨城県内の大気環境への排出量は平成21年度のP R T R集計結果によると2,550kgあり、全国の排出量(約6,000kg)と比較しても多いことから、低下傾向は認められないものと推察される。

HCFC-22、HCFC-141b及びHFC-134aは、環境省の取りまとめた結果によると1990年代以降、それぞれ3%/年、2%/年及び8%/年の増加が認められる。HCFC-22について茨城県内の大気環境への排出量をみると、平成17年度0t、平成19年度110t、平成21年度0tとなっており、排出と環境中濃度の変動の類似が認められた。HCFC-141bについて茨城県内の大気への排出量をみると、平成17年度130t、平成19年度23t、平成21年度0tと削減されており、それに追随するように環境中濃度も低下傾向にある。HFC-134aについては排出量を把握することはできなかったが、地球温暖化係数が1300あり、今後とも動向を注視する必要がある。

表1 平成22年度調査結果

単位: ppbv

物質名	地点別年平均値					H22年度	H21年度	経年調査結果 ¹⁾	
	水戸	日立	土浦	筑西	神栖	県平均	平均	北海道	川崎
<特定フロン>									
CFC-11	0.25	-	-	-	-	0.025	0.26	0.24	0.26
CFC-12	0.61	-	-	-	-	0.61	0.57	0.54	0.55
CFC-113	0.098	-	-	-	-	0.098	0.071	0.076	0.08
<代替フロン>									
四塩化炭素	0.086	0.090	0.097	0.090	0.086	0.090	0.12	0.092	-
1,1,1-トリクロロエタン	0.008	0.009	0.008	0.009	0.009	0.009	0.012	0.010	-
HCFC-21	0.008	0.008	0.018	0.008	0.015	0.011	0.007	-	-
HCFC-22	0.44	0.41	0.44	0.86	0.38	0.51	0.50	0.21	0.40
HCFC-123	0.001	0.001	0.002	0.001	0.002	0.001	0.014	-	-
HCFC-124	0.012	0.017	0.042	0.080	0.033	0.037	0.017	-	-
HCFC-141b	0.11	0.090	0.11	0.18	0.091	0.12	0.23	0.022	0.043
HCFC-142b	0.021	0.028	0.019	0.018	0.019	0.021	0.031	0.021	0.027
HCFC-225ca	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.002	0.009	-	-
HCFC-225cb	0.002	0.002	0.001	0.002	0.002	0.002	0.015	-	-
HFC-134a	0.13	0.12	0.085	0.12	0.15	0.12	0.097	0.059	0.10

1) 平成21年度オゾン層等の監視結果に関する年次報告書、平成22年8月、環境省

北海道は1,8月(月6試料測定)の平均値、川崎は3月から翌年の2月まで1日12回測定(年間約4000回測定)の中央値

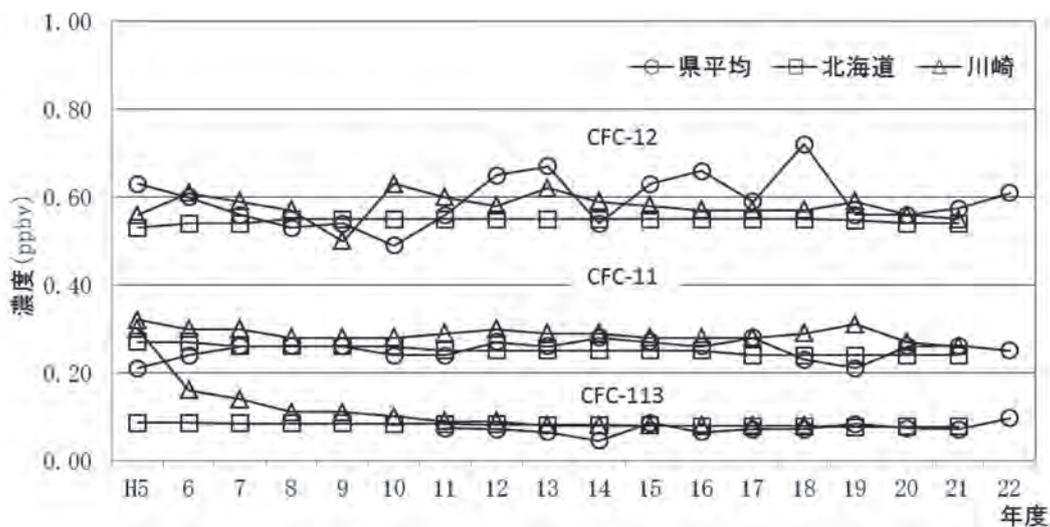


図2 特定フロンの推移

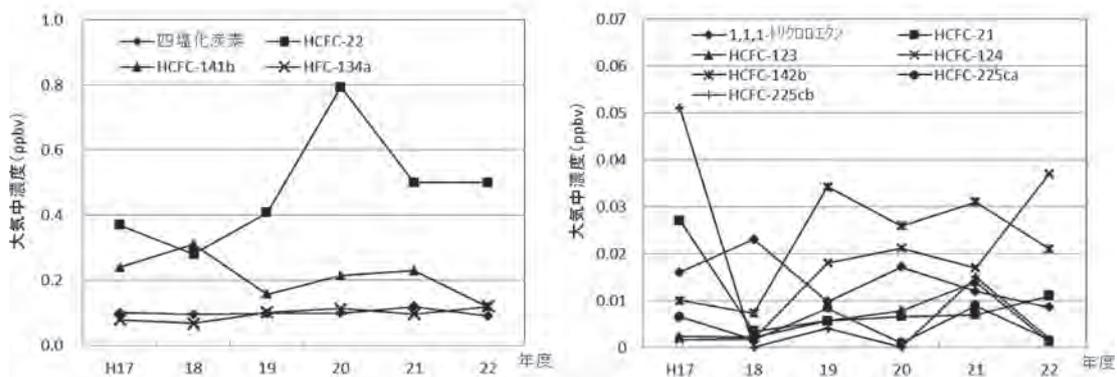


図3 代替フロンの推移

参考文献

- 1) 特定物質の規制等によるオゾン層の保護に関する法律
- 2) 地球温暖化対策の推進に関する法律
- 3) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル（平成 20 年 10 月改定），環境省（2008），第 2 章
- 4) 平成 21 年度オゾン層等の監視結果に関する年次報告書，環境省（2010）

2-6 大気環境中のP R T R対象化学物質調査事業

1 目的

特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律（P R T R法）に基づき集計された結果¹⁾によれば、対象となっている化学物質の排出量は大気環境が最も多いことが示されている。

また、大気環境に排出された化学物質は、浮遊粒子状物質や光化学オキシダントの生成に寄与していることが指摘されており、茨城県内における浮遊粒子状物質と光化学オキシダントの環境基準達成状況²⁾は、浮遊粒子状物質では36観測地点全てにおいて達成されているものの、光化学オキシダントについては30観測地点全てにおいて達成されていない。

このようなことから、P R T R法の対象物質のうち大気環境への排出量の多い物質について、大気環境中における実態を把握するため調査を実施した。

2 調査方法

(1) 調査期間及び地点

調査は平成22年5月から平成23年2月の間に4回、図1に示す一般環境5地点（日立市、水戸市、神栖市、土浦市、筑西市）に所在する大気測定局舎で行った。調査地点の概況は、1)日立多賀局舎は住宅地に囲まれた公園内に位置し、東南方向約200mに国道6号線が走っている、2)水戸石川局舎は周囲を住宅に囲まれており、南方向約400mに国道50号線が走っている、3)神栖消防局舎は国道124号線に面した公官庁の駐車場の一角にあり、北東方向約500mから先に石油化学コンビナートが所在している、4)土浦保健所局舎は保健所の駐車場の一角にあり、付近には雑木林、国立病院及び住宅などがある、5)筑西保健所局舎は商業地域内に位置する保健所の一角にあり、北方向約100mには国道50号線が走っている。



図1 調査地点

(2) 調査対象物質及び測定方法

調査対象物質はP R T R法に基づく集計¹⁾のうち図2に示すように茨城県内において大気環境への排出が多いトルエン、キシレン及び塩化メチルの3物質とした。また、測定方法は有害大気汚染物質調査マニュアル³⁾に基づき真空容器（ステンレス製内面不活性化処理済、6L）に約3.3 mL/minの流量で24時間採取した環境大気をガスクロマトグラフ質量分析法で行った。

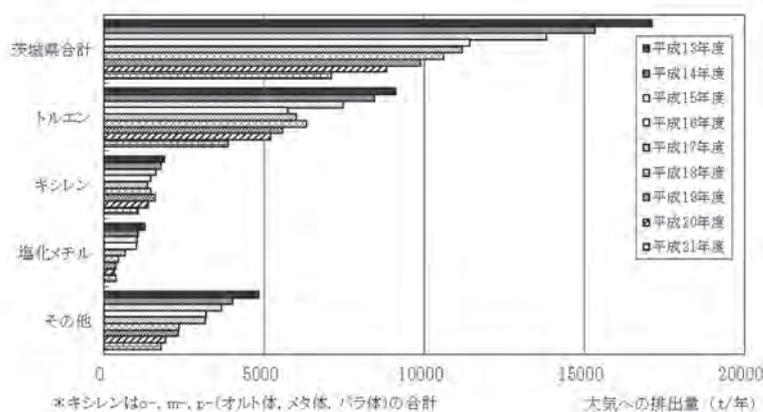


図2 茨城県における大気への排出量が多いPRTR届出対象物質

3 結果の概要

測定結果を表1に示す。トルエンは $1.9 \sim 9.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で検出され、県平均では $4.8 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、調査地点毎の平均値では日立市と筑西市が $5.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、水戸市が $3.4 \mu\text{g}/\text{m}^3$ と低かった。次にキシレンは $0.67 \sim 4.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で検出され、県平均では $1.7 \mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、調査地

点毎の平均値では土浦市が $2.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、水戸市が $1.3\mu\text{g}/\text{m}^3$ と低かった。最後に塩化メチルについては $0.70 \sim 4.0\mu\text{g}/\text{m}^3$ の範囲で検出され、県平均では $1.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ であった。また、調査地点毎の平均値では神栖市が $2.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ と高く、水戸市が $1.1\mu\text{g}/\text{m}^3$ と低かった。

表1 平成22年度測定結果

調査物質	調査地点	5月	8月	11月	2月	平均	最小	最大	単位： $\mu\text{g}/\text{m}^3$	
									県平均	
トルエン	水戸	3.1	2.1	4.7	3.8	3.4	2.1	4.7	4.8	
	日立	8.7	4.1	2.7	7.2	5.7	2.7	8.7		
	土浦	2.0	3.7	4.9	9.4	5.0	2.0	9.4		
	筑西	5.3	3.2	8.2	6.0	5.7	3.2	8.2		
	神栖	1.9	2.7	4.7	7.7	4.3	1.9	7.7		
キシレン	水戸	0.72	0.51	1.3	1.2	0.93	0.51	1.3	1.2	
	m-キシレン 及び p-キシレン	日立	1.9	1.4	0.74	0.46	1.1	0.46		1.9
	土浦	0.83	0.67	1.3	3.5	1.6	0.67	3.5		
	筑西	1.3	0.84	1.4	1.6	1.3	0.84	1.6		
	神栖	0.81	0.76	0.79	1.9	1.1	0.76	1.9		
	o-キシレン	水戸	0.30	0.27	0.50	0.49	0.39	0.27	0.50	0.50
		日立	0.86	0.80	0.31	0.21	0.55	0.21	0.86	
		土浦	0.32	0.33	0.46	1.2	0.58	0.32	1.2	
		筑西	0.54	0.42	0.59	0.63	0.55	0.42	0.63	
		神栖	0.26	0.36	0.30	0.73	0.41	0.26	0.73	
計	水戸	1.0	0.78	1.8	1.7	1.3	0.78	1.8	1.7	
	日立	2.8	2.2	1.0	0.67	1.7	0.67	2.8		
	土浦	1.1	1.0	1.7	4.7	2.1	1.0	4.7		
	筑西	1.9	1.3	2.0	2.3	1.9	1.3	2.3		
塩化メチル	水戸	1.1	1.1	1.1	2.6	1.5	1.1	2.6	1.5	
	水戸	0.73	1.3	1.3	1.1	1.1	0.73	1.3		
	日立	0.70	1.3	1.4	1.6	1.3	0.70	1.6		
	土浦	0.86	1.6	1.6	1.6	1.4	0.86	1.6		
	筑西	0.95	1.6	0.87	2.4	1.5	0.87	2.4		
神栖	4.0	1.5	1.9	1.4	2.2	1.4	4.0			

4 考察

調査対象3物質の調査地点の年平均濃度及び大気環境への届出排出量の推移を図2～7に示す。

平成22年度の調査結果を平成16年度と比較すると、トルエンの大気中濃度は概ね低下傾向を示している(図2)。また、平成21年度の届出排出量は平成16年度と比較すると、筑西市で大きな減少が、土浦市で増加傾向が、他の地点は横ばい又は微減傾向にある(図3)。調査地点毎の大気中濃度と届出排出量の関係は、届出排出量が増加傾向にある土浦市でも大気中濃度は低下傾向にあり、届出排出量が大きく減少した筑西市は期待される程の大気中濃度の低下は示していない。この原因としては、トルエンは家庭用品などにも広く使用されていることから届出外排出が大気中濃度に影響しているものと考えられる。

次にキシレンについては、土浦市においては届出排出量の大きな変動がみられるが、大気中濃度の変動は小さいものとなっている。また、他の4地点の届出排出量の変動は小さいが、大気中濃度は神栖市や筑西市において大きな変動が観察されている(図4、図5)。環境中濃度と届出排出量の変化が同調しないのはトルエンと同じ要因と考えられる。

最後に塩化メチルについてであるが、大気中濃度は神栖市以外の地点では多少の変動はあるものの低いレベルで推移しているが、神栖市においては、平成16年度に $6.5\mu\text{g}/\text{m}^3$ を示し、その後低下傾向にあったが、平成21年度 $1.9\mu\text{g}/\text{m}^3$ 、平成22年度 $2.2\mu\text{g}/\text{m}^3$ と上昇傾向に転じた(図6)。PRT Rデータによれば神栖市に所在する排出源からの排出量は、平成16年度に約500tであったものが、その後減少し一時は約20t程度となり、21年度は約100tまで増加した(図7)。神栖市の大気中濃度は届出排出量の増減と対応するような変動を示した。この原因として、神栖市の塩化メチルの届

出排出源は2か所と少なく、また、調査地点に比較的近いことから、排出の影響が大気中濃度に反映されたと考えられる。

5 まとめ

県内5地点において大気環境への排出量が多いトルエン、キシレン及び塩化メチルの大気中濃度の調査を行ったところ、3物質の大気中濃度は神栖市の塩化メチルを除き、直近5年間では横ばい又は低下傾向にあった。

また、調査対象の3物質の大気中濃度とP R T R法に基づく排出量の推移との関係を検討したところ、家庭用品などにも使用される汎用性の高いトルエンやキシレンについては、排出量と濃度の変動が一致せず、排出源が限定される塩化メチルは排出量と濃度の変動に係性がみられた。

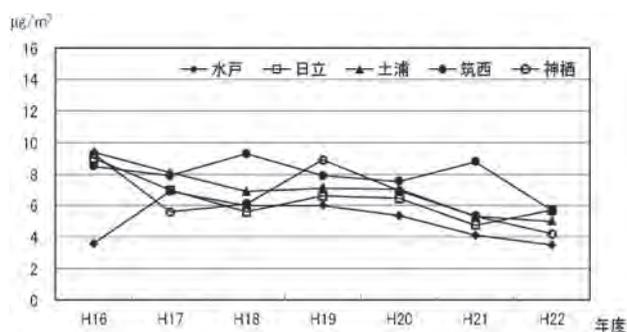


図2 トルエンの大気中濃度の推移

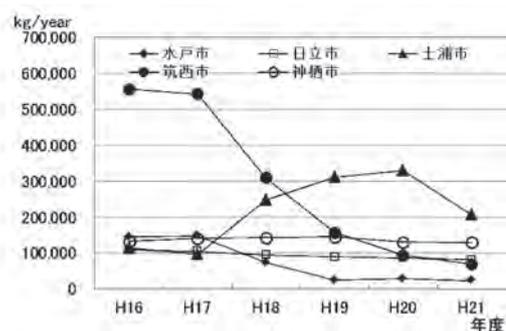


図3 トルエンの届出排出量の推移

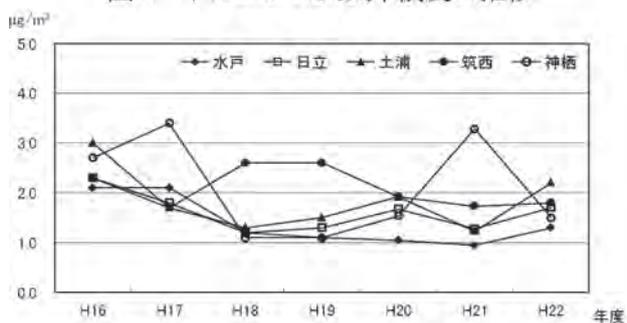


図4 キシレンの大気中濃度の推移

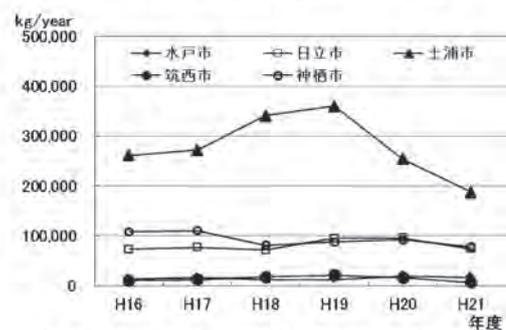


図5 キシレンの届出排出量の推移

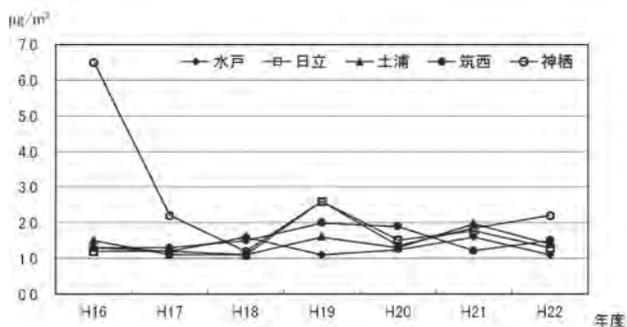


図6 塩化メチルの大気中濃度の推移

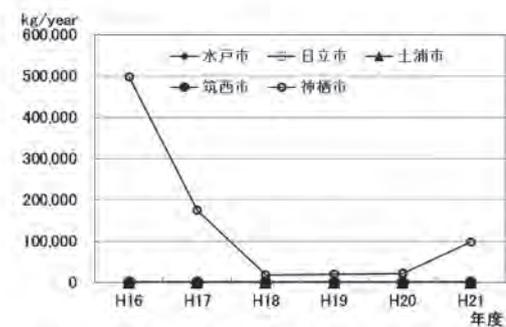


図7 塩化メチルの届出排出量の推移

参考文献

- 1) P R T Rインフォメーション広場, <http://www.env.go.jp/chemi/prtr/result/index.html>
- 2) 平成21年版環境白書, 茨城県(2009), pp25-26
- 3) 有害大気汚染物質測定方法マニュアル(平成20年10月改定), 環境省(2008), 第2章

2-7 酸性雨の実態把握調査事業

1 目的

茨城県内の酸性雨の経年的変化を把握するとともに全国環境研協議会酸性雨広域大気汚染調査研究部会（以下、全環研酸性雨部会という）が実施する酸性雨全国調査に参加し、広域的な降雨の酸性化機構を解明することを目的とする。

2 方法

(1) 調査期間及び試料採取

調査は平成 22 年 4 月 1 日から 23 年 3 月 31 日までの降雨を対象とし、霞ヶ浦環境科学センター（図 1）の敷地内に設置した降水時開放型自動降水捕集装置（小笠原計器製 US-330）で捕集した降雨を約一月分毎に回収し、降雨試料とした。

(2) 測定項目及び測定方法

降水量は、重量法で求めた貯水量を捕集面積で除して算出した。その他の測定項目は、pH（堀場 pH メーター F-52, 電極型式 6377）、電気伝導率（METTER TOLEDO SevenMulti, 電極型式 InLab®720）、イオン成分（ SO_4^{2-} , NO_3^- , Cl^- , NH_4^+ , K^+ , Na^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} ）、DIONEX ICS-2000）とした。なお、測定項目の精度管理は、環境省の湿性沈着モニタリング手引き書¹⁾に従い、イオンバランス又は電気伝導率バランスが基準範囲を超える場合は、再分析を行った他、財団法人日本環境衛生センターアジア大気汚染研究センターが実施する降水インターラボ調査に参加し、分析技術の向上と測定データの信頼性の確保に努めた。

3 結果の概要

(1) 調査結果概要

月毎にまとめた降雨の採取期間を表 1 に、また、月毎の測定結果を表 2 に示す。調査地点の降雨状況を気象庁の土浦観測点の統計値²⁾と比較すると、調査地点の年間降水量は 1,507 mm で統計値 (1,154 mm) の約 1.3 倍程度で、月毎の降水量は月毎の調査日数の違いを考慮しても、7、8 及び 1 月は少なく、9、11 及び 2 月は多い、大きな変動がみられた。

降雨 pH の測定範囲は 4.38 ~ 5.77 の範囲で、年平均 5.07 となり、平成 21 年度³⁾の 5.05 よりも若干高値であった。また、pH と降水量の変動の傾向の関係は明確ではなかった。

(2) 経年変化

当調査の調査地点は、平成 18 年度までは水戸市石川（水戸）としてきたが、平成 17 年度からの霞ヶ浦環境科学センター（土浦）への移転に伴い、17、18 年度の 2 年間の調査で、水戸と土浦の地点間差が小さいことを確認し、19 年度からは調査地点としている。pH の推移は図 2 に示すように上昇傾向にあり、全国の調査結果⁴⁾と比較しても高値である。

参考文献

- 1) 環境省 (2001), 湿性沈着モニタリング手引き書 (第 2 版)
- 2) 気象庁ホームページ, <http://www.data.jma.go.jp/>
- 3) 茨城県霞ヶ浦環境科学センター (2009), 茨城県霞ヶ浦環境科学センター年報 (第 5 号), p64
- 4) 環境省 (2011), 平成 21 年度酸性雨調査結果について (<http://www.env.go.jp/earth/acidrain/monitoring/h21/index.html>)

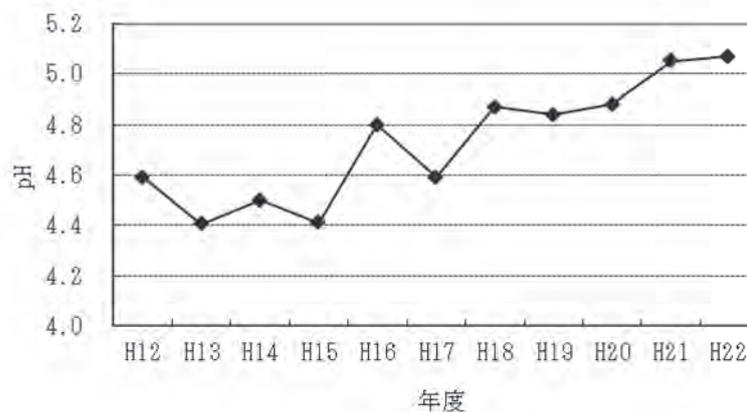


図1 調査地点

図2 茨城県における降水中の pH の推移

表1 試料採取期間

調査月	試料採取期間	調査月	試料採取期間
4月	平成22年3月30日～平成22年4月27日	10月	平成22年9月28日～平成22年10月26日
5月	平成22年4月27日～平成22年6月8日	11月	平成22年10月26日～平成22年12月3日
6月	平成22年6月8日～平成22年7月6日	12月	平成22年12月3日～平成23年1月4日
7月	平成22年7月6日～平成22年8月3日	1月	平成23年1月4日～平成23年2月1日
8月	平成22年8月3日～平成22年8月31日	2月	平成23年2月1日～平成23年3月1日
9月	平成22年8月31日～平成22年9月28日	3月	平成23年3月1日～平成23年3月29日

表2 調査結果一覧

	降水量 (mm)	貯水量 (mL)	pH	EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)										
					SO_4^{2-}	NO_3^-	Cl^-	NH_4^+	Na^+	K^+	Ca^{2+}	Mg^{2+}	nss- SO_4^{2-}	nss- Ca^{2+}
					(mg/L)									
4月	125	3,927	5.34	14.8	1.37	1.13	1.36	0.57	0.79	0.02	0.19	0.11	1.17	0.16
5月	196	6,165	5.29	14.9	1.44	1.10	1.40	0.69	0.83	0.09	0.13	0.11	1.23	0.10
6月	121	3,791	5.14	12.4	1.54	1.20	0.43	0.78	0.24	0.06	0.08	0.05	1.48	0.07
7月	77	2,431	4.38	30.0	2.84	2.33	0.50	0.85	0.28	0.05	0.25	0.07	2.77	0.24
8月	3	83	5.56	18.2	2.13	2.37	1.10	1.06	0.60	0.06	0.48	0.10	1.98	0.46
9月	370	11,633	5.21	7.0	0.50	0.41	0.59	0.19	0.34	0.02	0.05	0.05	0.41	0.04
10月	143	4,481	5.77	8.4	0.81	0.57	0.64	0.23	0.33	0.33	0.12	0.08	0.73	0.11
11月	218	6,841	5.18	10.5	0.78	0.61	1.35	0.22	0.78	0.05	0.08	0.10	0.58	0.05
12月	58	1,807	4.55	19.0	1.50	1.12	1.51	0.27	0.80	0.03	0.11	0.09	1.30	0.08
1月	1	42	5.74	107	18.2	16.7	8.97	2.90	4.46	0.41	0.88	6.86	17.0	0.71
2月	115	3,625	5.03	9.9	0.93	0.80	0.54	0.30	0.32	0.02	0.10	0.06	0.85	0.09
3月	80	2,505	5.20	11.3	1.19	1.06	0.60	0.45	0.36	0.05	0.19	0.09	1.10	0.17
最大	370	11,633	5.77	107	18.2	16.7	8.97	2.90	4.46	0.41	0.88	6.86	17.0	0.71
最小	1	42	4.38	7.0	0.50	0.41	0.43	0.19	0.24	0.02	0.05	0.05	0.41	0.04
平均 ¹⁾	1,507	47,331	5.07	11.9	1.09	0.87	0.90	0.41	0.51	0.07	0.11	0.08	0.97	0.09

1) 平均の欄は降水量で重み付けした平均値。ただし、降水量、貯水量は合計量。

2-8 大気環境中の石綿調査事業

1 目的

県民の健康被害の防止と生活環境の保全を図るため、大気環境中の石綿濃度を測定し、実態を把握する。

2 調査方法

(1) 調査項目

一般環境測定地点における大気中の石綿繊維数濃度（繊維数 本/L）

(2) 調査地点

土浦保健所 1 地点（図 1）

(3) 試料採取期間

夏期と冬期にそれぞれ 1 日 4 時間、3 日間試料を採取した。

表 1 に試料採取期間を示す。

表 1 試料採取期間

区分	採取日
夏期	平成22年8月24日(火)～8月26日(木)
冬期	平成23年1月18日(火)～1月20日(木)



図 1 調査地点

(4) 測定方法

アスベストモニタリングマニュアル第 3 版（環境庁大気保全局，平成 19 年 5 月）による。

3 結果

調査結果を表 2 に示す。なお、風向、風速、湿度等の気象観測データは、土浦保健所局の常時監視データを用いた。石綿濃度の幾何平均値は、夏期 0.088 本/L，冬期 0.17 本/L であった。

図 3 に県内一般環境（住宅地域）における石綿濃度と全国平均値の推移を示す。県内の石綿濃度は平成 17 年以降低濃度で推移している。

表 2 調査結果

測定地点	調査時期	調査日	石綿繊維数濃度 (本/L)		天候	主風向	風速 (m/秒)	気温 (°C)	湿度 (%)
			幾何平均	測定値					
土浦保健所 大気測定局舎	夏期	平成22年8月24日(火) 10:00～14:00	0.41	0.088	晴	南	2.0	34.1	55
		平成22年8月25日(水) 10:00～14:00	0.058		晴	南南西	1.2	32.8	56
		平成22年8月26日(木) 10:00～14:00	0.11		晴	南東	1.3	32.7	57
	冬期	平成23年1月18日(火) 10:05～14:25	0.21	0.17	晴	北西	1.6	8.6	39
		平成23年1月19日(水) 10:05～14:05	0.11		晴	西北西	3.8	10.2	31
		平成23年1月20日(木) 10:10～14:10	0.23		晴	西北西	4.1	9.0	30
		県平均値	0.13						

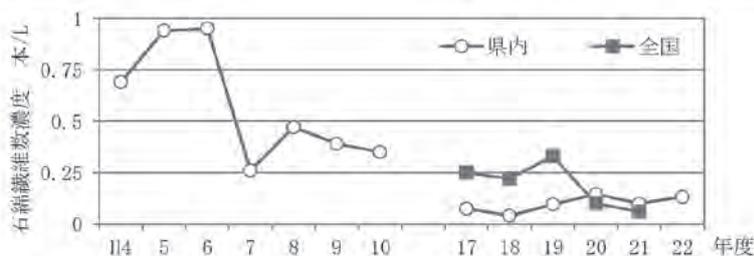


図 2 住宅地域における大気環境中石綿繊維数濃度推移

参考資料

環境省：アスベストモニタリングマニュアル第 3 版，平成 19 年 5 月

環境省：アスベスト大気濃度調査結果について，平成 17 年～平成 21 年

2-9 百里飛行場周辺地域における航空機騒音実態調査事業

1 目的

航空機騒音に係る環境基準の類型が当てはめられた百里飛行場周辺地域の環境基準の達成状況を把握し、航空機騒音を防ぐ各種施策の推進を図るため調査を実施する。

2 調査方法

(1) 調査地点

航空機騒音に係る環境基準のⅠ類型を当てはめた地域（茨城町、小美玉市、鉾田市、行方市、かすみがうら市）及び大洗町に計 10 地点

(2) 調査期間

測定期間

平成 22 年 6 月 3 日～平成 22 年 11 月 18 日の内に 2 週間

年間値推定期間

平成 22 年 4 月 1 日～平成 23 年 3 月 31 日の 1 年間

(3) 測定方法

航空機騒音の測定・評価は環境庁告示¹⁾及び公定マニュアル²⁾に基づき、短期測定地点（2 週間）の WECPNL を年間測定している測定局の測定値で補正し、年間平均 WECPNL 推定値を算出した。

3 結果の概要

各地点の年間平均 WECPNL 推定値を環境基準値（Ⅰ類型：70WECPNL）と照合すると、小美玉市下吉影南原公民館で 79.2WECPNL と 10 地点中 1 地点で環境基準を超過していた。

表 1 平成 22 年度調査結果

調査地点	測定期間	測定期間中の騒音発生回数					最大騒音ピークレベル (dB)	2週間の WECPNL 平均値 (WECPNL)	年間平均 WECPNL 推定値 (WECPNL)
		0時～7時	7時～19時	19時～22時	22時～0時	合計			
消防学校	H22.10.15～10.21 H22.11.12～11.18	0	179	2	3	184	76.4	50.6	47.0
広浦放射能局舎	H22.6.3～6.16	1	227	8	0	236	99.1	66.4	66.9
隠谷公民館	H22.6.3～6.16	1	658	127	1	787	82.1	61.4	60.6
下吉影南原公民館	H22.10.15～10.28	4	912	24	0	940	100.0	73.8	79.2
総合スポーツセンター	H22.10.15～10.28	0	372	2	1	375	98.4	71.4	67.3
当間小学校	H22.6.3～6.16	0	180	4	0	184	94.4	64.9	65.4
小費小学校	H22.6.3～6.16	1	200	2	0	203	100.5	67.4	66.6
手賀小学校	H22.10.15～10.28	0	194	20	1	215	90.7	58.8	64.2
田伏中台集落センター	H22.6.3～6.16	1	280	18	0	299	95.3	66.5	65.7
神山集落センター	H22.10.15～10.28	0	220	2	0	222	95.7	66.9	62.8

下吉影南原公民館における2週間の騒音発生回数は10地点中最大の940回であり、2週間のWECPNL平均値も73.8WECPNLと10地点中最大であった。その他の地点はすべて環境基準以下であった。

4 考察

(1) 経年変化

「年間平均WECPNL推定値」の経年的な状況を図2に示す。各調査地点における「年間平均WECPNL推定値」の変化率は0.08WECPNL/年から-0.34WECPNL/年の範囲であり、平均-0.16WECPNL/年と全体的に僅かに減少傾向を示している。隠谷公民館では変化率が-0.34WECPNL/年と最も強い減少傾向がみられたが、環境基準超過が続く下吉影南原公民館の他、当間小学校および手賀小学校の3地点については、変化率が±0.1WECPNL/年未満と小さくほぼ横ばいの状況である。

(2) 増設された百里飛行場第2滑走路の影響

平成22年3月に共用開始された百里飛行場第2滑走路に近い隠谷公民館の「年間平均WECPNL推定値」を前年度と比較すると2.4WECPNL高くなっているが、標準偏差は3.2WECPNLであり変動の範囲内に収まっている。また、「年間平均WECPNL推定値」の変化率は-0.34WECPNL/年と10地点中で最も強い減少傾向を示している。したがって、今年度の調査結果のみで隠谷公民館における百里飛行場第2滑走路の影響について判断することは尚早であり、今後も継続的に調査を行い、十分データを蓄積して判断する必要があると考えられる。

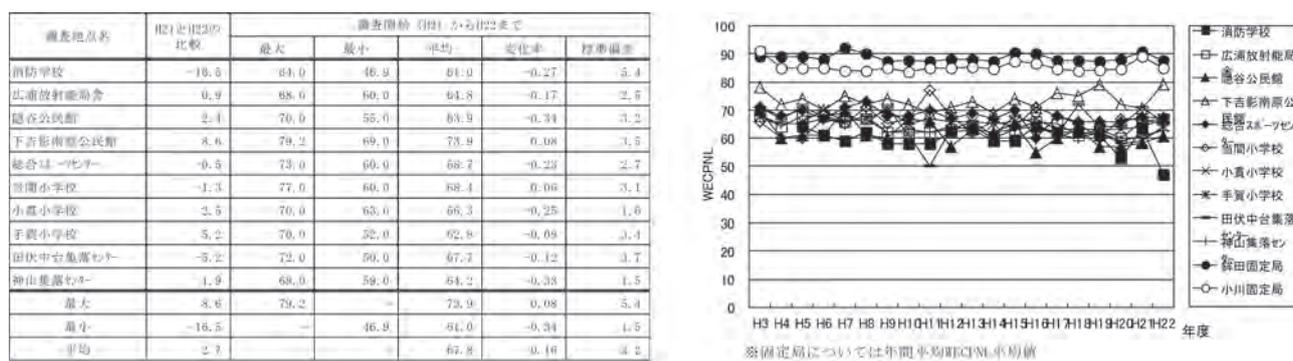


図2 年間平均WECPNL推定値の総括表及び経年変化グラフ

5 まとめ

航空自衛隊百里飛行場周辺の環境基準I類型当てはめ地域内8地点、当てはめ地域外2地点の計10地点において、14日間の短期測定を実施した結果、「年間平均WECPNL推定値」が環境基準値(70WECPNL)を超過したのは1地点であり、下吉影南原公民館(小美玉市)の79.2WECPNLであった。

調査地点全体の「年間平均WECPNL推定値」は、経年的に横ばいから僅かに減少傾向を示している。

参考文献

- 1) 「航空機騒音に係る環境基準について(昭和48年12月27日環境庁告示第54号)」
- 2) 「航空機騒音測定マニュアル(昭和63年7月環境庁大気保全局)」

2-10 成田国際空港航空機騒音実態調査事業

1 調査目的

成田国際空港の航空機騒音に係る環境基準の類型をあてはめた地域（昭和 55 年 2 月 28 日付け茨城県告示第 302 号）について、環境基準の達成状況を把握することを目的とする。

2 調査内容

(1) 調査地点

調査地点は成田国際空港の A, B 滑走路の離着陸コース近隣で、風向きによる運行の違いで特に騒音の影響の変化が大きくなると想定される表 1 の 4 地点とした。調査地点の位置を図 1 に示す。なお、これら 4 地点は平成 22 年 7 月 29 日～8 月 4 日に夏期の航空機騒音実態調査が実施された全 10 地点の中から選定された。

表 1 調査地点

図 1 調査地点

(2) 調査期間

平成 23 年 1 月 27 日～平成 23 年 2 月 2 日までの 1 週間（7 日間）

(3) 調査方法

調査は平成 22 年度成田国際空港航空機騒音実態調査（冬期）実施要領に基づき実施した。航空機騒音の評価は環境庁告示¹⁾及び公定マニュアル²⁾に基づき行った。

3 調査結果

(1) 1 週間の WECPNL 平均値

表 2 のとおり環境基準に照らして評価する値である【1 週間の WECPNL 平均値】の最大は、金江津（A 氏宅）の 67.1WECPNL であった。他は長竿小学校 65.7WECPNL, 南ヶ丘ふれあい会館 63.3WECPNL, 阿波小学校 59.7WECPNL であり、4 地点全てにおいて環境基準値 70WECPNL 以下であった。

(2) 航空機騒音発生回数

1 週間の航空機騒音発生回数の最大は、金江津（A 氏宅）の 1496 回であった。

以下、長竿小学校 1,457 回、阿波小学校 970 回、南ヶ丘ふれあい会館 953 回であった。

(3) 航空機騒音ピークレベル

航空機騒音ピークレベルの最大値は、南ヶ丘ふれあい会館で記録した 83.2dB(A) であった。他の地点の最大値は金江津（A 氏宅）82.5dB(A), 長竿小学校 78.6dB(A), 阿波小学校 77.4dB(A) であった。

表2 調査結果

調査地点	測定期間中の騒音発生回数(回)					騒音ピークレベル(dB(A))		1週間のWECPNL平均値(WECPNL)
	0時～7時	7時～19時	19時～22時	22時～0時	合計	最大	平均	
阿波小学校	1	647	258	64	970	77.4	62.2	59.7
南ヶ丘ふれあい会館	0	637	258	58	953	83.2	65.7	63.3
金江津(A氏宅)	0	1060	359	77	1496	82.5	67.9	67.1
長竿小学校	2	1013	362	80	1457	78.6	66.4	65.7
最小	0	637	258	58	953	77.4	62.2	59.7
最大	2	1060	362	80	1496	83.2	67.9	67.1
平均	0.8	839.3	309.3	69.8	1219.0	80.4	65.5	63.9

4 考察

(1) 離着陸別の航空機騒音発生状況

表3に示すとおり、4地点平均で全体の85.8%が離陸機、13.7%が着陸機、0.5%がその他^{*}であり、特に阿波小学校24.0%と金江津(A氏宅)16.0%では全体に占める着陸機の割合が大きかった。

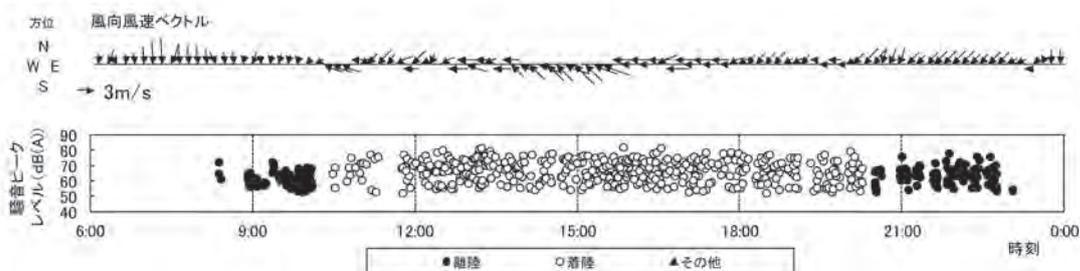
※その他とは成田空港以外を利用する小型プロペラ機と考えられる航空機騒音

図2に例として2月2日の離着陸別の航空機騒音と風向風速との関係を示すが、東風～南風の場合に着陸機が観測された。風速と離着陸との関係は、今回の調査においては明確ではなかった。

表3 離着陸別の航空機騒音

調査地点	騒音発生回数				騒音ピークレベル(dB(A))					
	離陸	着陸	その他	合計	最大			平均		
					離陸	着陸	その他	離陸	着陸	その他
阿波小学校	736 (75.9%)	233 (24.0%)	1 (0.1%)	970	77.4	73.3	55.0	60.4	65.4	55.0
南ヶ丘ふれあい会館	835 (87.6%)	118 (12.4%)	0 (0.0%)	953	83.2	78.1	—	65.4	67.2	—
金江津(A氏宅)	1256 (84.0%)	240 (16.0%)	0 (0.0%)	1496	76.5	82.5	—	62.9	74.5	—
長竿小学校	1356 (93.1%)	78 (5.4%)	23 (1.6%)	1457	78.6	71.1	67.1	66.5	65.2	58.2
4地点平均	1046 (85.8%)	167 (13.7%)	6 (0.5%)	1219	—	—	—	64.6	71.0	58.1

平成23年2月2日(水)



※風向風速はアメダス成田局のデータ¹⁾

図2 風向風速^{*}と離着陸別の航空機騒音発生状況(4地点合計)

※風向風速ベクトル図は早狩氏作成のプログラムを使用して作成した。

(2) 離着陸機の割合がWECPNLに与える影響

航空機騒音ピークレベルを4地点平均でみると、離陸機 64.6dB(A)、着陸機 71.0dB(A)と着陸機の方が高かった。特に金江津（A氏宅）の離陸機と着陸機の差は大きく、図3のとおり騒音レベルの分布が2山に分離していた。離陸機と着陸機の騒音レベル分布は阿波小学校においても若干分かれているが、南ヶ丘ふれあい会館と長竿小学校ではほとんど分かれていなかった。

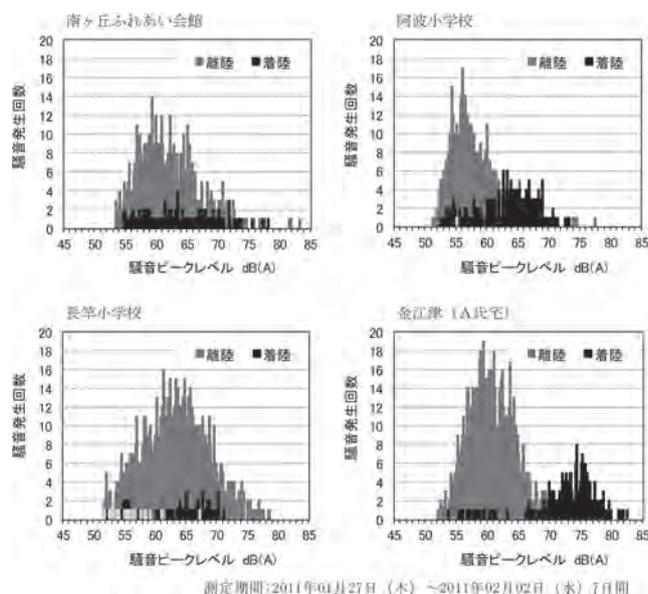


図3 離着陸別の騒音ピークレベルの分布

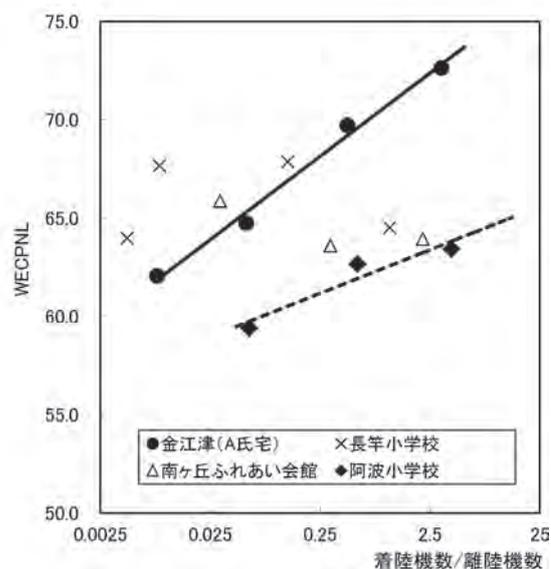


図4 離着陸機数の比とWECPNLの関係

離着陸機数の比とWECPNLとの関係を見ると、図4のとおり離陸機と着陸機の騒音レベルに差がある地点ほど変化が大きくなっており、特に金江津（A氏宅）では着陸機の割合の増加に伴ってWECPNLが大きく増加していた。同様の傾向は阿波小学校でも見られたが、南ヶ丘ふれあい会館と長竿小学校では見られず、この2地点では離着陸の別はWECPNLにほとんど影響していないと考えられる。

5 まとめ

成田国際空港のA、B滑走路の離着陸コース近隣の4地点において、平成23年1月27日～平成23年2月2日までの1週間（7日間）の航空機騒音調査を実施した結果、【1週間のWECPNL平均値】の最大は金江津（A氏宅）の67.1WECPNLであり、【1週間のWECPNL平均値】は4地点全てにおいて環境基準値70WECPNL以下であった。

観測された航空機は離陸機が大半を占めていたが、東風～南風時に着陸機による航空機騒音が観測された。離陸機と着陸機の航空機騒音レベル差が大きい地点では、離着陸機数の比によりWECPNLが大きく変動し、特に金江津（A氏宅）においては着陸機の比の増加に伴って、WECPNLが大きく増加していた。

- 1) 「航空機騒音に係る環境基準について（昭和48年12月27日環境庁告示第54号）」
- 2) 「航空機騒音測定マニュアル（昭和63年7月環境庁大気保全局）」
- 3) 気象庁ホームページ：気象統計情報（成田），<http://www.jma.go.jp/jma/index.html>

2-11 化学物質環境実態調査事業

1 目的

化学物質環境実態調査は、昭和49年から一般環境中における化学物質の残留状況を継続的に把握することを目的に実施されてきた。その調査結果は、P R T R制度の候補物質の選定、環境リスク評価及び社会的要因から必要とされる物質等の環境安全性評価、化学物質による環境汚染の未然防止等に役立てられている。

2 調査内容

この調査は環境省からの委託事業で、初期環境調査、詳細環境調査及びモニタリング調査からなる。

(1) 初期環境調査

「特定化学物質の環境への排出量の把握等及び管理の改善の促進に関する法律」における指定化学物質の指定について検討が必要とされる物質、社会的要因から調査が必要とされる物質等の環境残留状況を把握することを目的とした調査¹⁾。

ア 試料採取

水質：平成22年11月6日に利根川かもめ大橋、平成22年11月13日に那珂川勝田橋の2地点で採取した。

大気：平成22年10月26～29日に茨城県霞ヶ浦環境科学センター屋上、平成22年11月16～19日に神栖消防署敷地内にある大気測定局舎屋上の2地点で採取した。

イ 調査対象物質

水質：アミルケイ皮アルデヒド、イオパノ酸、ジエチルスチルベストロール、L-チロキシン、1,2,4-ベンゼントリカルボン酸トリオクチル、ペンタナール、4-メトキシベンズアルデヒドの7物質。

大気： ϵ -カプロラクタム、*trans*-クロトンアルデヒドの2物質。

(2) 詳細環境調査

「化学物質の審査及び製造等の規制に関する法律」（以下「化審法」という。）における特定化学物質及び監視化学物質、環境リスク初期評価を実施すべき物質等の環境残留状況を把握することを目的とした調査¹⁾。

ア 試料採取

水質：平成22年11月6日に利根川かもめ大橋、平成22年11月13日に那珂川勝田橋の2地点で採取した。

大気：平成22年10月26～29日に茨城県霞ヶ浦環境科学センター屋上、平成22年11月16～19日に神栖消防署敷地内にある大気測定局舎屋上の2地点で採取した。

イ 調査対象物質

水質：*o*-トルイジン、1-メチルナフタレン、2-メチルナフタレンの3物質について試料採取及び分析を行った。酢酸エチル、セリウム及びその化合物（セリウムとして）、2,2',6,6'-テトラ-*tert*-ブチル-4,4'-メチレンジフェノール、*p*-トルイジン、ブタン-2-オン=オキシム、ペルフルオロドデカン酸、ペルフルオロテトラデカン酸、ペルフルオロヘキサデカン酸の8物質は試料採取を行った。

大気：4,4'-ジアミノジフェニルメタン、メチレンビス（4,1-シクロヘキシレン）=ジイソシアネートの2物質。

ウ 分析方法

o-トルイジン、1-メチルナフタレン、2-メチルナフタレンは、水質試料 0.5 L にサロゲート物質を添加し、固相抽出カラムに通水後、ジクロロメタンで溶出し、ジクロロメタン層を脱水、濃縮後、GC/MS-SIM 法で測定した²⁾。

(3) モニタリング調査

「残留性有機汚染物質に関するストックホルム条約 (POPs 条約)」の対象物質及びその候補となる可能性のある物質並びに化審法の特定化学物質及び監視化学物質等のうち、環境残留性が高く環境残留実態の推移の把握が必要な物質を経年的に調査することを目的とした調査¹⁾。

ア 試料採取

水質及び底質：平成 22 年 11 月 6 日に利根川かもめ大橋の 1 地点で採取した。

生物：平成 22 年 12 月 1 日に常磐沖で漁獲したサンマを漁協から購入した。

大気：平成 22 年 9 月 9～16 日及び平成 22 年 12 月 7～14 日に茨城県霞ヶ浦環境科学センター屋上で採取した。

イ 調査対象物質

PCB 類, HCB, DDT 類, クロルデン類, ヘプタクロル類, HCH 類, クロルデコン, ポリブロモジフェニルエーテル類 (臭素数が 4 から 10 までのもの), ヘキサブロモビフェニール, ペルフルオロオクタンスルホン酸, ペルフルオロオクタン酸, ペンタクロロベンゼン, 短鎖塩素化パラフィン, トリブチルスズ化合物, トリフェニルスズ化合物の 15 物質群。



図 1 調査地点

表 1 調査項目

	初期・詳細調査		モニタリング調査			
	水質	大気	水質	底質	生物	大気
霞ヶ浦環境科学センター		○				○
神栖消防		○				
利根川かもめ大橋	○		○	○		
常磐沖					○	
那珂川勝田橋	○					

参考文献

- 1) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課 (2010): 平成 22 年度 化学物質環境実態調査委託業務詳細要領
- 2) 環境省総合環境政策局環境保健部環境安全課 (2010): 平成 21 年度 化学物質分析法開発報告書

2-12 公害事案等処理対策調査事業

1 目的

緊急水質事案，地下水水質汚染事案，廃棄物の不法投棄事案，騒音・振動・悪臭に係る分析又は技術指導をとおして，原因の究明，汚染範囲の確認及び苦情対応に資することを目的とした。

2 調査方法

分析依頼や技術指導した案件について，依頼先及び依頼内容ごとに分類し傾向を把握する。

3 結果の概要

公害事案等の依頼元及び内容別内訳を表1，表2に示す。環境対策課からは地下水水質汚染に関する依頼が1件あった。廃棄物対策課からは不適切に保管されている廃棄物の分析依頼が1件あった。県民センター総室からは騒音に関する技術指導が1件あった。県北県民センターからは地下水水質事案に関する分析依頼が5件と悪臭に関する技術指導が1件あった。県南県民センターからは緊急水質事案に関する分析依頼が1件，騒音に関する技術指導が1件あった。また，市町村等の関係部署からの8件の技術的指導又は相談に応じた。

表1 公害事案等調査依頼者別内訳

依頼元	件数	依頼分析検体数
環境対策課	1	0
廃棄物対策課	1	1
県民センター総室	1	0
県北県民センター	6	38
鹿行県民センター	0	0
県南県民センター	2	1
県西県民センター	0	0
その他(公的機関・市町村など)	8	0
計	19	40

表2 公害事案等調査内容別内訳

依頼内容	件数	依頼分析検体数
緊急水質事案関係	1	1
地下水水質汚染関係	5	38
廃棄物関係	1	1
騒音関係	10 (内10件技術指導)	0
悪臭関係	1 (内1件技術指導)	0
相談	1	0
計	19	40

4 考察

依頼内容では騒音関係の技術指導が10件と多いが，これは騒音，振動，悪臭に関する事務が市町村で行われているため，住民からの苦情に対応する際に技術力を有する県に指導を仰いでいることのためと考えられる。また，依頼分析の多くを地下水水質汚染関係が占めているが，土壌汚染対策法に基づく調査により地下水水質汚染が判明したために，周辺の井戸水について水質調査を実施したものも含まれるためである。今後はこのような案件が増加するものと考えられる。