JAEA-Research 2008-008



# 水素同位体比を利用した分布型水流出モデルの検証と 硝酸態窒素の河川流出機構の解析 (共同研究)

Verification of Distributed Rainfall-Runoff Model using a Hydrogen Isotopic Ratio, and Analysis of Nitrate Nitrogen Transport to a Stream (Joint Research)

都築 克紀 松永 武 井上 隆信\*

Katsunori TSUDUKI, Takeshi MATSUNAGA and Takanobu INOUE\*

原子力基礎工学研究部門 環境動態研究グループ

Research Group for Environmental Science Nuclear Science and Engineering Directorate K PSC 

**March 2008** 

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。 なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ(<u>http://www.jaea.go.jp/index.shtml</u>) より発信されています。このほか財団法人原子力弘済会資料センター\*では実費による複写頒布を行っ ております。

**〒319-1195** 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構 研究技術情報部 研究技術情報課 電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920

\*〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2番地4 日本原子力研究開発機構内

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to Intellectual Resources Section, Intellectual Resources Department, Japan Atomic Energy Agency 2-4 Shirakata Shirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan

Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920

© Japan Atomic Energy Agency, 2008

# 水素同位体比を利用した分布型水流出モデルの検証と 硝酸態窒素の河川流出機構の解析 (共同研究)

日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 環境・放射線工学ユニット 都築 克紀、松永 武、井上 隆信\*

(2008年1月16日 受理)

森林集水域からの硝酸態窒素の流出を水流出モデルを用いて解析した。まず、国内ならびに 東アジアの酸性雨モニタリング地点の1つである岐阜県伊自良川の上流域において、2006年11 月に降雨時の観測を行った。観測を行った流域に対し分布型水流出モデルにより地下水・降水 の河川流出シミュレーションを行った。その合理性を観測した流量データならびに雨水・河川 水の水素同位体比で検証した。そして、観測された2回の連続降水時の河川水中硝酸イオン濃 度の変動を、水流出モデルから計算される河川流出水の流域滞留時間と比較した。この結果、 この集水域では、降水時に増加する河川水中の硝酸イオンは土壌表層部から当該降水の側方流 と深部地下水の上昇流により運ばれることが推定された。また、降水条件と連動する土壌中水 分の滞留時間が硝酸態窒素の流出量に関わることが推定された。本研究は、集水域におけるダ イナミックな水動態が硝酸態窒素の収支を考察する上で重要であることを示唆している。

本研究は日本原子力研究開発機構と豊橋技術科学大学との共同研究に基づいて実施したものである。 原子力科学研究所(駐在):〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

\* 豊橋技術科学大学

## Verification of Distributed Rainfall-Runoff Model using a Hydrogen Isotopic Ratio, and Analysis of Nitrate Nitrogen Transport to a Stream (Joint Research)

Katsunori TSUDUKI, Takeshi MATSUNAGA and Takanobu INOUE<sup>\*</sup>

Division of Environment and Radiation Science Nuclear Science and Engineering Directorate Japan Atomic Energy Agency Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received January 16, 2008)

The discharge of nitrate nitrogen from a forested catchment was analyzed using a distributed rainfall-runoff model. Observation in rainfall events was carried out in November, 2006 in the upper region of the Ijira River in Gifu Prefecture which is one of the acid rain monitoring points in Japan and East Asia. The distributed rainfall-runoff model carried out runoff simulation of ground water and rain water at the catchment. The model was verified using observed flow rate, and isotope hydrograph separation by the hydrogen isotopic ratio of rain water and river water. The nitrate ion concentration in river water was shown as a function of the residence time of discharge water in the catchment calculated by the model. As a result, in this catchment, it was estimated that the nitrate ion in the river water, which increased at the rain event, was transported by the lateral flow of the rain water at the subsurface and the up-flow of ground water. Moreover, it was estimated that the residence time of the soil moisture, which interlocked with the conditions of rainfall, influenced the discharge of nitrate nitrogen. In this study, it was suggested that dynamic behavior of water in catchment was important when considering the balance of nitrate nitrogen in catchment.

Keywords: Distributed Rainfall-runoff Model, Hydrogen Isotopic Ratio, Isotope Hydrograph Separation, Forested Catchment, Nitrate Nitrogen

This work has been performed in JAEA as a joint research with Toyohashi University of Technology.

<sup>\*</sup> Toyohashi University of Technology

## 目 次

1. 研究の目的 ······	1
2. 現地観測 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2
2.1 観測地点 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	2
2.2 観測方法 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	2
2.2.1 雨量·流量の観測 ······	2
2.2.2 水試料の採取 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	2
2.3 分析方法 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	3
2.3.1 硝酸イオン濃度 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
2.3.2 水の同位体比 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	3
2.4 観測結果 •••••••••••••••••	4
2.4.1 雨量·流量 ·····	4
2.4.2 硝酸イオン濃度 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	4
2.4.3 水の同位体比 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	5
3. モデルの検証 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
3.1 水流出モデル ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
3.1.1 モデルの概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
3.1.2 モデルの構造 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	13
3.1.3 移行式 •••••••	14
3.1.4 入力データ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	16
3.1.5 粒子追跡計算 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	16
3.2 水素同位体比による流量分離 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	16
3.2.1 流量分離方法 ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	16
3.2.2 流量分離結果 ••••••	17
3.3 モデルの検証結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	18
3.3.1 流量再現計算 •••••••	18
3.3.2 流量分離計算結果 ••••••	18
4. 硝酸態窒素の流出機構 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
4.1 モデルによる降水の流域内滞留時間の推定 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
4.2 硝酸態窒素濃度と滞留時間との関係 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	23
4.3 従来研究との関係 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	24
5. まとめ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	29
謝辞 ••••••	29
参考文献 •••••••	30

## Contents

1. Purpose of study	1
2. Observation ·····	2
2.1 Observed point ·····	2
2.2 Observation approach	2
2.2.1 Observation of rainfall and flow rate	2
2.2.2 Water sample collection ••••••	2
2.3 Analytical method ·····	3
2.3.1 Nitrate ion concentration	3
2.3.2 Isotopic ratio of water	3
2.4 Observation results	4
2.4.1 Rainfall and flow rate	4
2.4.2 Nitrate ion concentration	4
2.4.3 Isotopic ratio of water	5
3. Verification of model	13
3.1 Distributed rainfall-runoff model	13
3.1.1 Outline of model	13
3.1.2 Model structure	13
3.1.3 Equation of model	14
3.1.4 Input data ·····	16
3.1.5 Particle tracking method ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	16
3.2 Isotope hydrograph separation	16
3.2.1 Approach	16
3.2.2 Results	17
3.3 Verification result	18
3.3.1 Flow rate calculation •••••••	18
3.3.2 Hydrograph separation calculation ••••••••••••••••••••••••••••••••••••	18
4. Discharge scheme of nitrate nitrogen	23
4.1 Estimation of residence time by model	23
4.2 Relation between nitrate nitrogen and residence time	23
4.3 Relation with prior study	24
5. Conclusion ·····	29
Acknowledgements	29
References	30

## 図 目 次

図 2.1	伊自良川流域図と観測地点 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	7
図 2.2	雨量・流量ならびに河川水中硝酸イオン濃度の観測結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	9
図 2.3	雨水・河川水の水素・酸素同位体比ダイアグラム ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	11
図 3.1	モデル化の概要 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
図 3.2	モデルの構造と移行経路 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	19
図 3.3	水素同位体比の詳細変動と流量分離結果(第1降水) ・・・・・・・・・・・・	20
図 3.4	観測流量およびモデルによる再現流量 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21
図 3.5	観測流量と計算流量との比較 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	21
図 3.6	流量分離計算の結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22
図 4.1	解析対象期間中の降水が河川水に占める割合 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25
図 4.2	降水の流域内平均滞留時間の推定結果 ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	25
図 4.3	流域内平均滞留時間および各層との平均接触時間と	
	硝酸イオン濃度との関係 ・・・・・	26

## 表 目 次

表 3.1	地理情報データ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22
表 3.2	モデルの主要パラメータ ・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・・	22

#### 1. 研究の目的

酸性降下物による森林衰退・陸水の酸性化影響に対し、国内においても多くの研究機関・行 政機関により長期的な調査が継続されている。この影響解析の要をなす研究の1つは、森林集 水域における窒素の循環である。窒素の流域収支評価の上では、もっぱら硝酸イオンとして河 川に流出する窒素の発生場・流出機構・流出フラックスの解明が急がれている。

筑波山麓の渓流水中の硝酸イオン濃度は降水時には、流量の増加とともに減少する<sup>1)</sup>。これ は、降水による希釈効果と解釈されている。この事例では、流量低減期に硝酸イオン濃度の増 加期間があり、土壌水が保持していた高濃度の硝酸イオンが流出したためと考えられている。 一方、呉羽丘陵の場合では、降水時の流量増加と同期して、硝酸イオン濃度が増加し、"流量増 加時に土壌内部での流出経路が変化して、渓流水中の高濃度の硝酸が土壌の浅いところから供 給されている"と解釈されている<sup>2)</sup>。いずれの場合も土壌中の水の流出経路の変化が、硝酸イ オン濃度の変化に影響を及ぼしていると考えられる。また、雨水の土壌中での滞留時間と渓流 水中の硝酸イオン濃度との関連も指摘されている<sup>3)</sup>。このため、集水域全域での水の流出経路 や土壌中の滞留時間の時空間変化を把握することが、硝酸イオンの河川への流出機構を明らか にするために必要となる。しかしながら、集水域全体の土壌中の水の流出経路の変化を現地に おいて観測することは難しい。

そこで、本研究では、分布型水流出モデルにより観測することの難しい集水域における雨水 の流出経路と滞留時間を推定し、降雨時の連続観測結果と連携させて硝酸態窒素の河川流出過 程を明らかにすることにより、集水域における窒素収支の理解に寄与することを目的とした。

#### 2. 現地観測

#### 2.1 観測地点

野外試験データを岐阜県伊自良川の研究サイトで取得した。伊自良川(流路延長 22km、流 域面積 44km<sup>2</sup>)は木曽川水系の1つ長良川(流路延長 166km、流域面積 1985km<sup>2</sup>)の支流であ る(図 2.1)。伊自良川が流入する伊自良湖は環境省の酸性雨対策モニタリング地点に指定され て、1980年代から湖水や流入河川の観測が行われた。その結果、伊自良川の伊自良湖上流部の 観測地点において、国内の観測地点では唯一、酸性化の兆候が見いだされた。そこで平成 15 年度(2003年度)から開始された「酸性雨長期モニタリング計画」、降水・大気降下物成分の 連続観測、河川水水質の定期観測が行われるとともに、伊自良湖重点調査が実施されている。

伊自良湖集水域に設けられている研究サイトでは、平成 12 年(2000 年)から井上らが水質の自動観測と定期採水を行い、pH・電気伝導度・硝酸イオン濃度等の時系列変化を把握し、長期的な pH 変化の把握と機構解明を進めてきた<sup>4),5)</sup>。

研究サイトは、伊自良川の上流、伊自良湖への流入地点から約1.7km 上流の地点である。研 究サイトにおける流域面積は0.92km<sup>2</sup>である。研究サイトでの流れは勾配の大きな岩床を流れ る渓流である。付近での平水時の流れの幅はおよそ1m~2m、深さはおよそ0.2m~0.6mで、そ れぞれ河床の形状、勾配に大きく依存する。また、降水時には、深さ・幅ともに顕著に増大す る。

研究サイト集水域の地質はジュラ紀-白亜紀最前期の美濃帯堆積岩コンプレックスに属する 根尾メランジ(複合地層あるいは層状堆積物)のチャートに分類される<sup>5</sup>。砂岩・粘板岩・チ ャート・苦鉄質火山岩・礫岩から成り、一部は古生代ないし時代未詳である<sup>6</sup>。地形は急峻で、

「釜ヶ谷」(標高 696m)を山頂とする森林相である。土壌層は薄い。また、集水域を一巡して 登山道があるが、人為的な汚染源はない<sup>5)</sup>。

#### 2.2 観測方法

#### 2.2.1 雨量·流量の観測

雨量については、研究サイト集水域に近接した地点で時間雨量が取得された。流量について は、採水地点で、圧力検知式の水深計で水深を連続計測し、これから流量に換算した。換算式 には過去約 20 回の区間水深と流速測定から得られた経験式を用いた。

#### 2.2.2 水試料の採取

降水時を選んで、河川水の連続採水を行った。観測対象に選んだ降水は、2006年11月19日 ~20日と同26日~27日の2回の降水である。以後、11月19日~20日の降水を第1降水、同 26日~27日の降水を第2降水と記す。採水には観測サイトに設置された自動採水装置(6700型、ISCO社)を用いた。出水のピーク流量を過ぎるまでは1時間間隔で、その後は2~24時 間間隔で河川水が採取された。河川水はポリエチレンボトル(容量1L)に保存され、採取後、 1~7日以内に回収された。雨水の採取にはA:簡易型の雨水採取器(AR-II、堀場製作所)、B: プラスチック円筒容器(直径23cm、高さ35cm)を用いた。これらの採取器を研究サイト集水 域の林内2カ所と林外1カ所に設置した。採取した雨水試料に乾性沈着は含まれていない。雨水採取器Aは、雨が降ってから採取が始まる工夫がされている。雨水採取器Bについては雨の開始を見計らって人手で設置した。

2.3 分析方法

2.3.1 硝酸イオン濃度

実験室において河川水試料を孔径 0.45 µm のフィルターにより濾過した後、その硝酸イオン 濃度を定量した。硝酸イオンの定量は、イオンクロマトグラフィーと紫外吸光度測定(測定波 長 220nm)により行った。濾過後の河川水試料約 20mL をガラスボトルに分取して、分析まで 凍結保管した。

2.3.2 水の同位体比

1) 表式

水分子の水素同位体比ならびに酸素同位体比を、本報告では便宜的に水の同位体比と総称する。水素同位体比( $\delta$ D)は、<sup>1</sup>Hに対する<sup>2</sup>Hの存在比を示し、次式で定義される千分率(‰)で表示する<sup>7)</sup>。酸素同位体比( $\delta$ <sup>18</sup>O)は、<sup>16</sup>Oに対する<sup>18</sup>Oの存在比を示し、次式で表示される。

$$\delta D(\delta^{18}O) = \left[ (R_{sample} - R_{SMOW}) / R_{SMOW} \right] \times 1000$$
(2-1)

ここで、*R<sub>sample</sub>、R<sub>SMOW</sub>* はそれぞれ試料水、標準試料の同位体比(原子数比率)である。試料 水が重い同位体をより多く含めば、上式の値は正となり、少なければ負となる。本研究では国 際原子力機関が調製した標準平均海水(VSMOW)(Vienna Standard Mean Ocean Water: SMOW) <sup>8)</sup>の同位体比を上式における標準試料の同位体比とした。

2) 測定手順

水素同位体比については、同位体比測定用質量分析装置(MAT252、Finnigan 社)により測定 を行った。まず、凍結保管試料を冷蔵庫内に移して解凍した。試料溶液 1mL を液体クロマトグ ラフィー自動分析用の汎用ガラスバイアル(容量 1.5mL)に入れて、測定試料とした。以後の 分析は自動化されている。前処理部分では、金属クロム粉末が充填され、840℃に加熱されたカ ラムに、バイアル内の試料 1.2 μ L が注入され、還元される。生じた水素ガスは質量分析装置内 部に導かれて、その水素同位体比が決定される。二次標準として VSMOW により値づけた高純 度純水を試料と共に測定して、必要な補正を行った。

酸素同位体比については、同位体比測定用質量分析装置(Isoprime、GV 社)により測定を行った。この測定には、二酸化炭素平衡法と呼ばれる方法<sup>9)</sup>を用いた。試料溶液 200 µ L をガラス バイアル(容量 4.7mL)に入れた後、ガスバッグを用いてバイアル内部の室内空気を高純度の 二酸化炭素ガス(濃度 3.0%、ヘリウム希釈)に置換した。これを温度 40℃に保たれたアルミ ニウム製ブロックに収めて、7 時間静置した。この静置操作で、水相の水分子の酸素と気相の 二酸化炭素の酸素が交換反応をして同位体平衡になる。以後は自動化された分析となる。バイ アル気相の一定量が採取され、ガスクロマトグラフィーによって二酸化炭素相が選別される。 ついで、質量分析装置内部に導かれて、その酸素同位体比が決定される。この自動化部分は連 続フロー型質量分析法と呼ばれるものである。酸素同位体比分析においても、二次標準として VSMOWにより値づけた高純度純水を試料と共に測定して、必要な補正を行った。また、水素・ 酸素の両分析装置において、VSMOWに加え、同位体比の異なる他の標準試料(GISP、SLAP) <sup>8)</sup>を用いて、装置の校正を行った。

#### 2.4 観測結果

2.4.1 雨量·流量

雨量・流量の観測データを図 2.2(a)、(b)に示す。第1降水(2006年11月19日~20日の降水) では、雨は19日8時頃から降り出して、19日17時から22時付近を中心にして継続し、20日 4時にほぼ終了した。最大の時間雨量は19日19時の6.5mm/hであった。降水量の合計は46.5mm であった。河川の流量は、降水直前には0.010m<sup>3</sup>/s(19日6時)であり、累積雨量が7.5mm に とどまっていた19日17時頃までほとんど増大はなかった。そして、降水が本格化した18時頃 から急激に増加し、23時頃にピーク流量0.067m<sup>3</sup>/sを記録した。

この後、およそ6日間の無降雨期間を経て、総降水量30.5mmの降水があった(第2降水、2006年11月26日~27日)。流量は第2降水直前で0.010m<sup>3</sup>/s(26日12時)であった。この流量は第1降水直前と等しく、流量に関しては、上述の無降雨期間に降水前のレベルに復帰したといえる。第2降水では、26日16時頃から降り始めて、27日1時頃から2時頃にかけて最も強い雨(4.0mm/h)となり、同10時頃に、ほぼ終了した。ただし、同15時~16時にも、あわせて降水量4mmの雨があった。第2降水による流量増加は、26日22頃から明確となり(0.012m<sup>3</sup>/s, 26日22時)、27日5時40分頃に、この降水イベントでの最大流量0.035m<sup>3</sup>/sを記録した。流量のはじめの減少は速やかで、その9時間後の同14時40分頃には0.018m<sup>3</sup>/sとほぼ半減した。以後の流量低下は緩やかであり、2日以上が経過して、ほぼ降水前のレベル0.012m<sup>3</sup>/s(29日18時)となった。

2.4.2 硝酸イオン濃度

硝酸イオン濃度の分析データを図 2.2(c)に示す。第1、第2の2つの降水イベントで河川水中 の硝酸イオンの濃度は増加を示した。第1降水において、雨は19日8時頃から降り出している が、最も初期の採水試料としては、19日9時の試料である。この極めて初期では、硝酸イオン 濃度は48.6  $\mu$  M であった。この濃度は、この研究サイトにおいて平水時に通例見いだされるレ ベルである<sup>6</sup>。この後、中心的な降水の始まりだした19日17時頃まで、微減をしていった(47.0  $\mu$  M、19日17時)。19日20時から急激に増加し、20日3時に、この降水イベントでの最高値 83.1  $\mu$  M に達した。以後は減少に転じた。ただし、その減少速度は、流量に比較して緩やかで あった。数値的に調べると、つぎのようになる。第1降水において、最大流量 0.067m<sup>3</sup>/s での 流量増加分は降水前流量 0.010m<sup>3</sup>/s に比較して 0.057 (=0.067-0.010) であった。この増分が半減 した時点の流量は 0.038m<sup>3</sup>/s, (=0.057×0.5+0.010) である。最大流量時点(19日23時)から、 この流量になった 11月20日6時 30分までの経過時間は7時間 30分であった。一方、同様に、

-4 -

硝酸イオン濃度について最大濃度での増加分 34.5 μ M (=83.10-48.6) が半減する濃度 65.9 μ M (=34.5×0.5+48.6) になるまでの時間を調べると、11 月 20 日 3 時 (83.1 μ M) から、11 月 22 日 6 時 (66.2 μ M) 頃までの 51 時間であった。

第2降水では、その降水直前の硝酸イオン濃度は55.5µMであり、6日間の無降雨期間に第 1降水以前の濃度にまでは復帰していない。26日16時頃から降水が始まった以後、11月27日 2時頃に51.4µMを示すまで硝酸イオン濃度は微減を示した。その時刻以後は、増加に転じた。 流量は、27日5時40分頃にピークを迎え、このとき、硝酸イオン濃度は、60.2µMであった。 流量と異なって、第2降水イベントでの硝酸イオン濃度増加は流量ピークの以後も緩やかに継 続した。硝酸イオン濃度は27日12時には63.8µMとなった。

2.4.3 水の同位体比

全体的な分析結果を図 2.3 (a)に示す。この図は横軸に酸素同位体比、縦軸に水素同位体比を 取って、本研究で採取された河川水試料(■)と雨水試料(○)すべてについて、プロットし たものである。河川水試料は、自動採水器で採取された試料である。雨水試料は、簡易型の時 間分割型採取器(AR-II)試料ならびに円筒容器による一括採取試料の両者を含んでいる。また、 林外雨・林内雨どちらも含んでいる。破線は、日本国内の河川水・浅層地下水における報告値 の統計処理により得られた変動範囲を示している<sup>10)</sup>。通例の環境条件では、水分子をつくる水 素・酸素原子それぞれの同位体分別係数の比が一定であるので、同位体分別が進むと、水分子 の水素・酸素の同位体比は一定の比で変化する<sup>7)</sup>。観測試料の酸素同位体比、水素同位体比は、 ほぼ同じ直線上に分布し、勾配も日本の一般値に一致する。また、河川水試料は雨水試料の同 位体比変動範囲の間に分布している。観測機会が2回だけの結果であるが、以上から観測地域 では、この地域への降水が河川を涵養する単純な系であることが示唆される。このことから、 「地下水」と「降水」の2成分を仮定した同位体比によるハイドログラフ分離<sup>11)</sup>がこの地域で 原則的に適用可能であると考えられる。

図 2.3 (b)、図 2.3 (c)は、観測した 2 つの降水それぞれについて、水の同位体比分析結果を、 より詳しく示している。雨水(林外雨)について、雨量 1mm ごとに分割採取した試料(通算 8mm 以降は合併試料)、そして一括採取試料の分析結果を河川水の分析結果と比較した。第 2 降水(11/19~20)では、河川水よりも小さな同位体比(「軽い」)の雨が降ったことが分かった (図 2.3 (b))。その平均値は、一括試料の値(図中、青い〇記号)に、ほぼ一致した。この「軽 い」雨のために、河川水の同位体比(赤い■記号)は、降水前(赤い□記号)よりも小さな方 向にシフトした。(ただし、この図では雨の同位体比範囲をカバーした広いスケールを用いたた めに、そのシフトは明確でない。後出の図 3.3 参照)。図 2.3 (c)は、第 2 降水の状況を示してい る。雨量記録を参照すると、11/26 の 16 時から降り出した雨は、初期には河川水よりも大きな 同位体比であった(「重い」雨。図中、青い●)。そして、同 22 時に降った雨以降、一転して、 河川水よりも小さな同位体比の雨(緑の●)となった。前者の「重い」雨は、第 2 降水の総降 水量 30.5mm の内、7.5mm を、後者の「軽い」雨は、残り 23mm を占めたと推定された。河川 水の同位体比が変動したためと推定される。同位体比の異なる雨水の影響が拮抗して、河川 水の同位体比変動を小さくしたと考えられる。



国土交通省河川局資料 http://www.mlit.go.jp/river/jiten/nihon\_kawa/85054/85054-2\_ex.html (a) 伊自良川流域



(b) 観測地点図 2.1 伊自良川流域図と観測地点



図 2.2 雨量・流量ならびに河川水中硝酸イオン濃度の観測結果



図 2.3 雨水・河川水の水素・酸素同位体比ダイアグラム (2006 年 11 月 17 日~28 日採水試料)

#### 3. モデルの検証

#### 3.1 水流出モデル

3.1.1 モデルの概要

本モデルは、計算対象地域を水平方向はグリッド状に、鉛直方向は層で分割したグリッド型 多層分布型モデルである。以下では、グリッドと層で区切られた部分をコンパートメントと呼 ぶこととする。計算対象地域をモデル化する際の手法の概略を図 3.1 に示す。まず、流域を構 成する分布情報(例えば土地利用)の種別(例えば森林・水田など)ごとにモデル化を行う。 種別ごとのモデル化では、対象となる物の挙動に対応した移行式と種別に応じたパラメータ(例 えば透水係数)を設定する。こうすることによりパラメータを流域に関係なく決定できること となる。種別ごとをモデル化したものを以下ではモジュールとする。次に、標高データから算 出した落水線から水平方向のコンパートメント間の接続を決定し、モデルの基本構造とする。 最後に各層に対応した地理情報を基に各コンパートメントにモジュールを配することで対象域 全体のモデル化を行う。

本研究におけるモデル検証のための計算の流れを示す。最初に、上述の手法により対象域の モデル化を行う。水流出モデルでは、降水量と蒸発散量を入力値とし、各コンパートメント内 の水分量および水平・鉛直方向の水の移行量を算出する。水素同位体比を利用した降水流出成 分を用いたモデルの検証は、粒子追跡計算により行う。

#### 3.1.2 モデルの構造

モデルの鉛直方向の構造は、 植生層、5 層からなる陸地部分および河道を表す1 層で構成さ れる。以下では、植生層を V 層、陸地部分の5 層を上から順番に第0層、第1層、第2層、第 3 層、第4層とし、河道部分を第5層と記す。第0層および第1層は土地利用に対応する層で あり、第0層は地表面を表す層である。第2層および第3層は土壌を、第4層は地質を表す。 また、河道である第5層は第0層から第3層までと側面で接し、第4層とは底面で接する。た だし、第5層は地理情報から河川があるとされたグリッドのみに存在する。グリッド内の鉛直 方向の構造と移行経路を図 3.2 に示す。図 3.2 中の記号は以下の通りである。A [m<sup>2</sup>] : グリッドの表面積、 $A_{l}[m<sup>2</sup>]$  :陸地部分の面積、 $A_{r}[m<sup>2</sup>]$  :河川部分の面積、 $q_{ij}[m<sup>3</sup>/s]$  :単位時間当た りの水の移行量である。添え字 *i* は流れの種類を表し、*d*:下方向の流出、*u*:上方向の流出、 *t*:横への流出、*r*:河川(第5層)への流出、*o*:近隣コンパートメントからの流入、*a*:大 気からの流入(降水)、*e*:大気への流出(蒸発散)、また、添え字 *j* は流れの基点となる層 を表す。

モデル構築の際に利用する地理情報を表 3.1 にまとめて示す。落水線作成のための標高デー タは、国土地理院数値地図の 50m メッシュ(標高)を使用した。土地利用は、国土地理院数値 地図の 1/10 細分区画土地利用データ(KS-202-1)を使用し、土地利用種別を 5 種類に再分類し ている。再分類した 5 種類の土地利用の内訳は、建物用地(建物用地、幹線交通用地)、水田、 森林、農業用地(畑、果樹園、樹木畑)およびその他(荒地、河川敷)である。土壌および地 質は、国土地理院数値地図の表層地質、地形分類、土壌(KS-156-1)を使用した。土壌につい ては土壌群ごとに再分類し、地質については、泥、砂、礫、その他未固結堆積物、固結堆積物、 火山性岩石、深成岩類および変成岩類に再分類をした。また、グリッド内の河川の有無の判定 には、国土地理院数値地図の流路位置(KS-272)を利用した。

3.1.3 移行式

各コンパートメントの水分量は、マスバランスを保つように計算される。 移行式は、層また は土地利用種別により異なる。

∨層は、樹幹による降水の貯留を再現する層である。この層は、土地利用が森林の場合のみ 存在する。この層の移行式は以下のように表される。

$$q_{da} = PA_l \tag{3-1}$$

$$q_{dv} = \begin{cases} (h_v - H_v) A_l / dt & (h_v > H_v) \\ 0 & (h_v \le H_v) \end{cases}$$
(3-2)

ここに、 P[m/s]:降水量、  $h_v[m]$ : V 層の水位、  $H_v[m]$ : V 層の貯留高、および dt[s]: 時間間隔である。 土地利用が森林以外の場合は  $H_{v=0}$  となる。

第0層の水平方向の移行式は土地利用が水田とそれ以外の場合で異なる。水田は畦に囲われており、また、その一部に排水用の堰が設けられている。堰の高さ(*H<sub>p</sub>*)は、稲の生長にあわせて調整される。水田の移行式は、全幅越流公式<sup>12)</sup>により与えられる。

$$q_{t0} = (1 - rf') \times (q_{t0}^{1} + q_{t0}^{2})$$

$$q_{t0}^{1} = \begin{cases} C^{1}L(h_{0} - H_{0})^{3/2} & (h_{0} > H_{0}) \\ 0 & (h_{0} \le H_{0}) \end{cases}$$

$$q_{t0}^{2} = \begin{cases} C^{2}b(h_{0} - H_{p})^{3/2} & (h_{0} > H_{p}) \\ 0 & (h_{0} \le H_{p}) \end{cases}$$

$$C^{1} = 1.785 + 0.00295/(h_{0} - H_{0}) + 0.237(h_{0} - H_{0})/H_{0}$$

$$C^{2} = 1.785 + 0.00295/(h_{0} - H_{p}) + 0.237(h_{0} - H_{p})/H_{p}$$
(3-3)

$$q_{r0} = rf \times (q_{t0}^1 + q_{t0}^2) \tag{3-4}$$

ここに、 $q_{t0}^{1}$  [m<sup>3</sup>/s] : 畦からの越流量、 $q_{t0}^{2}$  [m<sup>3</sup>/s] : 堰からの越流量、L [m] : グリッドの幅、 b [m] : 堰の幅、 $h_{0}$  [m] : 第0層の水位および $H_{0}$  [m] : 畦の高さである。rf は河川の有無を 表し、グリッド内に河川がある場合は1、ない場合は0となる。水田以外の土地利用種別の場 合は、マニングの式を基礎式として、以下のようになる。

$$q_{r0} = (1 - rf) \times vLh_{0}$$

$$v = \frac{1}{n} I^{1/2} R^{2/3}$$

$$R = \frac{h_{0}L}{2h_{0} + L}$$
(3-5)

-14 -

$$q_{r0} = rf \times vLh_0 \tag{3-6}$$

ここに、*n*[s/m<sup>1/3</sup>]:マニングの粗度係数および*I*[m/m]:動水勾配である。本モデルでは、*I*は 簡単に斜面勾配に置き換えている。下方への浸透量は以下のようになる。

$$q_{d0} = \begin{cases} ks_{n,1}A_l & (h_0 > 0) \\ 0 & (h_0 = 0) \end{cases}$$
(3-7)

ここに、*ks<sub>n,1</sub>*[m/s]:飽和透水係数であり、添え字*n,1*は第1層の土地利用種別を表す。 第1、2、3および4層は地下部分である。土地利用、土壌および地質の種別によりパラメータ は異なるが、移行式は同じであり、ダルシー則を基礎式とする。

$$q_{dj} = k_{n,j} A_l \tag{3-8}$$

$$q_{d4} = \beta k_{n,j} A_l \tag{3-9}$$

$$q_{ij} = (1 - rf) \times k_{n,j} ILH_j \tag{3-10}$$

$$q_{rj} = rf \times k_n ILH_j \tag{3-11}$$

ここに、 $k_{n,j}$  [m/s] :透水係数、添え字 n,j は第j層の種別を表す、 $H_j$  [m] :第j層の層厚お よび $\beta$  :補正係数。透水係数( $k_n$ )は以下の式<sup>13)</sup>で計算される。

$$k_{n,j} = k s_{n,j} \left( \frac{\theta - \theta_{r,n,j}}{\theta_{s,n,j} - \theta_{r,n,j}} \right)^{3.0}$$

$$\theta = h_j / H_j$$
(3-12)

ここに、 *θ*<sub>s</sub> [m<sup>3</sup>/m<sup>3</sup>] : 飽和水分量、*θ*<sub>r</sub> [m<sup>3</sup>/m<sup>3</sup>] : 残留水分量および *h*<sub>j</sub> [m] : 第 *j* 層の水位で ある。 上方への移行量は以下の式で定義する。

$$q_{uj} = \begin{cases} (h_j - \theta_{s,n,j} H_j) A_l & (h_j > \theta_{s,n,j} H_j) \\ 0 & (h_j \le \theta_{s,n,j} H_j) \end{cases}$$
(3-13)

第5層(河川)の側方流出は、マニングの式を基礎式とする。

$$q_{t5} = vBh_{5}$$

$$v = \frac{1}{n}I^{1/2}R^{2/3}$$

$$R = \frac{h_{5}B}{2h_{5} + B}$$
(3-14)

ここに、 B[m]:河川幅である。鉛直方向の流れは以下のように定義する。

$$q_{ra} = PA_r \tag{3-15}$$

-15-

$$q_{d5} = \begin{cases} ks_{n,4}A_r & (h_5 > 0) \\ 0 & (h_5 = 0) \end{cases}$$
(3-16)

3.1.4 入力データ

降水量は、レーダアメダス解析雨量を使用する。だたし、レーダアメダスが欠測の場合は、 アメダス観測年報の雨量データをティーセン法により各グリッドに降水量を与える。

各グリッドの蒸発散量は、上述の降水量とアメダス観測年報の気温・風速・日照時間および 気象庁年報の気圧・水蒸気圧の観測データを用いて地表面の熱収支から求める<sup>14)</sup>。降水量およ び蒸発散量は計算の事前に計算を行い、入力値とする。

#### 3.1.5 粒子追跡計算

流量分離計算では、粒子追跡法<sup>15)</sup>を用いて計算を行う。水の動きを対象とした計算のため 粒子は、土壌への吸着および土壌中で拡散しないものとし、粒子の移行のみ計算する。粒子の 移行速度は以下の計算式で表される。

$$v_{ij} = \begin{cases} q_{ij} / A & (i = 0, 5) \\ q_{ij} / (\theta_s A l_e / l) & (i = 1, 2, 3, 4) \end{cases}$$
(3-17)

ここに、 *v<sub>ij</sub>* [m/s] : 粒子の移行策度、 *l* [m] : 直線経路長および *le* [m] : 有効経路長である。 *l/le* の値は 0.56 から 0.80 の幅<sup>16)</sup>を持つ。ここでは *l/le* の値は 0.68 とした。粒子は、ある体積 の降水 (*pv* [m<sup>3</sup>])が第 0 層または第 5 層の表面に降った時に生成されるものとした。また、粒 子の水平方向の初期位置はグリッド内にランダムに配置する。

#### 3.2 水素同位体比による流量分離

#### 3.2.1 流量分離方法

集水域から河川への硝酸イオンの移動に関して、本研究では河川流出水の滞留時間に着目した。本研究では、降水時の河川流量の中の降水流出成分比率を観測に基づいて推定し、この推 定結果を滞留時間評価のための流出モデルの検証に用いた。当該降水の河川流出成分は、集水 域滞留時間がゼロ集水域と見なした。降水流出成分比率の推定方法と推定結果を以下に記す。

水素同位体比を利用して河川水の流量分離を行い、降水流出成分比率(以下、f と記す)を 求めた。水素同位体比を利用したのは、われわれの用いた装置では、水素同位体比の方が酸素 同位体比よりも測定精度が高いためである。流量分離では、降水と降水前地下水の2つの起源 の水の混合で河川水が形成されるという2成分混合仮定を用いた<sup>11),17),18)</sup>。この仮定の下で、比 率f と両成分の流量寄与は次式の関係になる。

$$f(t) = Q_p(t) / Q_r(t)$$
(3-18)

$$Q_{r}(t) = Q_{p}(t) + Q_{e}(t)$$
(3-19)

$$C_{p}Q_{p}(t) = C_{p}Q_{p}(t) + C_{e}Q_{e}(t)$$
(3-20)

ここに、 $Q_r(t)$  [m<sup>3</sup>/s] :時間 t における河川水流量、 $Q_p(t)$  [m<sup>3</sup>/s] :時間 t における地下水流出寄 与、 $Q_e(t)$  [m<sup>3</sup>/s] :時間 t における降水流出寄与、 $C_r(t)$  :時間 t における河川水の同位体比、 $C_p$  : 降水前の地下水流出成分の同位体比、 $C_e$  :降水流出成分の同位体比である。以上の関係から、 次式でf(t)を求めた。 $C_p$  は降水直前の河川水の同位体比とした。

$$f(t) = (C_r(t) - C_p) / (C_e - C_p)$$
(3-21)

3.2.2 流量分離結果

1) 第1降水

「観測結果」(2.4) で述べたように、第1降水では河川水に比較して水素同位体比( $\delta$ D)の小さな雨がほぼ一貫して降った。林内雨の一括採取試料では、その $\delta$ Dは-84.4±0.1‰であった。 降水直前(19日10:00)に-47.33±0.1‰であった河川水の $\delta$ Dは降水が進むにつれて小さな方向に変動した。-53.3‰(11/203:00)まで小さくなった後、降水前の値に近づいていった(図3.3(a)前半、11/19-11/24)。このデータに、(3-21)式を適用して、f(t)を求めた(図3.3(b))。この計算による推定では、f(t)は累積降水量が7.5mmとなった19日17頃から目立ち始め(0.02)、20日3時に最大値となった。その後、ゆるやかに減少したが、11/24の16時に至っても、0.03であった。 $\delta$ Dの時間変化(図3.3(a))からも明らかであるが、降水終了から4日経過した11/24においても、当該降水の流出が継続していることが示唆された。第1降水における比率fの最大値は0.16と推定された(図3.3(b))。

#### 2) 第2降水

第2降水の初期では、雨水のδDは河川水のδD(-48.7±0.1‰、26日14時)に比較して大き かった(+0.18~-45.8‰、累積降雨量7mmまでの変動範囲)。第2降水の中期から後半では、河 川水より小さな値に転じた(たとえば、-55.6~-62.6‰、27日15時~16時)。このように、雨 水のδDが降水前の河川水のδDをはさんで変動すると、降水全体の平均値は降水前の河川水 の値に接近する。実際、降り始めから27日10時までの一括採取雨水試料では、-48.3±0.04‰(林 外雨)、-47.1±0.1‰(林内雨)と、降水前河川水(-48.7‰)に近い値であった。

河川水のδD の変動を詳しく見ると、降水前の-48.7±0.1‰(26 日 14 時)から出発し、降水 開始後は、-47.5±0.1‰(26 日 22 時)まで増加した。その後、減少傾向になり、-49.3±0.1‰(27 日 9 時)まで小さくなった。そして、降水前のδD 値にほとんど戻った(-48.7±0.2‰、27 日 14 時)。直後に、15 時~16 時の雨の影響と考えられる低下が起こった。-49.6±0.1‰(27 日 18 時)になった後、降水前のδD 値に再び復帰した(-48.6±0.4‰、28 日 1 時)。

このように、雨の δ D の変動と河川水の δ D の変動は極めて良好に対応していると考えられる。しかしながら、降水全体の δ D 値は、河川水の値に非常に近くなってしまった。このため、(3-21)式の分母はゼロに近づくので、*f* の算出は困難であった。以上の理由から、水素同位体比を用いた流量分離を第 2 降水について行うことはできなかった。

3.3 モデルの検証結果

3.3.1 流量再現計算

上述の水流出モデルを用いて研究対象集水域を対象とした流量の再現計算を行った。流量再 現の検証期間は、観測期間を含む 2006 年 11 月 17 日から 11 月 30 日までとした。国土地理院の 数値地図情報から研究対象集水域である伊自良川上流域全域は、土地利用は森林、土壌は褐色 森林土壌、地質は固結堆積物から構成される。グリッドの幅は 100m とし、この結果、集水域 は 90 個のグリッドから構成されモデル上の集水域面積は 900m<sup>2</sup> となった。モデルパラメータ は、森林、褐色森林土壌および固結堆積物の飽和透水係数と各層の層厚を流量を再現するよう に調整した。ただし、流量を再現しうるパラメータの組み合わせは複数存在するため、後述の 流量分離計算の結果が良好なパラメータを採択した。流量の再現結果、観測流量と計算流量と の比較をそれぞれ図 3.4 と図 3.5 に示す。また、表 3.2 に採択したパラメータを示す。第1 降水 の流量低減期に流量が減少しきらないため、後半部分でやや過大評価となっているが、おおむ ね良好な流量の再現結果を得られた。

3.3.2 流量分離計算結果

流量分離結果の再現計算を観測値による流量分離ができた第1降水を対象に行った。粒子1 個あたりの降水体積(*pv*)は0.05m<sup>3</sup>とし、約80万個の粒子を追跡計算した。計算結果を図3.6 に示す。降雨初期および11月21日以降は過小評価、降水時は過大評価となったが、ほぼ降水 流出成分比率の変化を再現できている。この結果から、モデルは流量および流量分離を精度良 く再現可能であると判断できる。



図 3.1 モデル化の概要



図 3.2 モデルの構造と移行経路



図 3.3 水素同位体比の詳細変動と流量分離結果(第1降水) (ここで示した降水流出成分比率は観測データに2成分混合仮定を適用して推定した値である。 水流出モデルによる算出値と照合して、モデルの検証に用いた。)



図 3.4 観測流量およびモデルによる再現流量



図 3.5 観測流量と計算流量との比較



図 3.6 流量分離計算の結果

表 3.1 地理情報データ

種別	ファイル名	データ形式
集水域	1/10細分方眼流域・非集水域(KS-617)	100mメッシュ
河川位置	流路位置(KS-272)	ライン
標高	50mメッシュ(標高)	50mメッシュ
土地利用	1/10細分区画土地利用データ(KS-202-1)	100mメッシュ
土壌・地質	表層地質,地形分類,土壤(KS-156-1)	1Kmメッシュ
	国十十世	1腔数值地図信報

国工地理阮叙恒地凶情報

表 3.2 モデルの主要パラメータ

	$\theta$ s	$\theta$ r	ks[m/s]	平均層厚[m]
第1層(森林)	0.56	0.29	2.00 $\times$ 10-3	0.06
第2·3層(褐色森林土壤)	0.54	0.28	1.00 $\times$ 10-3	0.13
第4層(固結堆積物)	0.27	0.14	$5.00 \times 10 - 5$	5.42

#### 4. 硝酸態窒素の流出機構

4.1 モデルによる降水の流域内滞留時間の推定

2006 年 6 月から 11 月の 6 ヶ月間を解析対象期間とし、降水の流域内滞留時間を推定した。 解析期間中の積算降水量は 1286mm であった。流量分離結果の再現計算の場合よりも降水量が 多く、解析期間が長いため、粒子 1 個あたりの降水体積(*pv*)は 0.2m<sup>3</sup>とし、約 578 万個の粒 子を追跡計算することにより、降水の流域内滞留時間の推定を行った。

解析で得られた 2006 年 11 月 19 日から 11 月 30 日までの河川水に 2006 年 6 月から 11 月まで の降水が占める割合を図 4.1 に示す。図 4.1 から、平水時の河川水は 2006 年 6 月以降の降水の 占める割合は 2 割程度であり、残りの部分は 2006 年 6 月以前の降水成分と考えられる。ただし、 降水時では 5 割から 7 割程度の降水成分を計算することができている。計算結果は、河川水に 流出するすべての過去の降水成分を推定したものではない。しかしながら、対象集水域では冬 季に積雪があり、春先には融雪による流量の増加が見られるが、本モデルでは積雪および融雪 過程が組み込んでいないために、現状ではこれ以上の長期の計算を実行することができない。 しかし、2006 年 6 月の降水成分で、2006 年 11 月において流域内に貯留している成分のほとん どは最下層(第4層)に存在する。このことから 2006 年 6 月以前の降水成分についても同様な 状態と考えられるため、以下の考察で使用する流域内平均滞留時間と第 4 層との平均接触時間 以外の第 1 層から第 3 層までの平均接触時間には大きな影響を及ぼさないと考えられる。以下 では、この計算結果を用いて考察を行う。

2006年6月からの降水の流域内平均滞留時間の推定結果の内2006年11月19日から11月30 日までの期間について図4.2に示す。降雨時に流域内平均滞留時間は小さくなるが、その他は ほぼ2500時間(約100日程度)前後で推移している。ただし、さらに古い水が加わることにな ると考えられるため、流域内平均滞留時間はさらに大きくなると考えられる。

4.2 硝酸態窒素濃度と滞留時間との関係

流域内平均滞留時間および各土壌層との平均接触時間と観測された硝酸イオン濃度との関係 を図 4.3 に示す。最も重要な結果として、降水の第1層との平均接触時間と硝酸イオン濃度と の関係(図 4.3(b))では、接触時間が長いほど硝酸イオン濃度が高くなる傾向が見出された。 第1層(0~6cm)は、最も地表面に近い層であり、森林域では硝酸イオンの供給源である有機 物が最も豊富な部分に対応する。河川中の硝酸イオン濃度は、降水と有機物との接触時間が長 いほど高くなる傾向があると推測される。

さらに、観測した2回の降水を区別した検討も、この推測を明確にしている。図4.3(b)に示 すように、第1降水に属する水は第2降水に比較し、平均接触時間が概して長いという計算結 果が得られた。第1降水(11月19日~20日)に先行する10mm以上の大きな降水は28日前ま で遡るが(10月23~24日,71mm)、第2降水では第1降水からの経過期間が6日間に過ぎない。 そこで、第1降水と第2降水との比較結果は、先行晴天期間が長いほど、第1層における水と 土壌との接触時間が長くなり、このことが流出水の硝酸イオン濃度の増加(図2.2(c)、図4.3(b)) につながっていることを示唆している。 一方、流域内平均滞留時間(図 4.3(a))、第2層(図 4.3(c))、第3層(図 4.3(d))、第4層(図 4.3(e))との平均接触時間と硝酸イオン濃度との間には、関連性は見出されなかった。しかしながら、本計算で用いた計算期間(6月から11月)は過去の水の滞留時間をより正当に算出するためには十分でない。もし、さらに過去の期間を含めた計算を行えば過去の水の滞留時間は、正当に、より長く計算されると推察される。そうすると第4層での滞留時間と硝酸イオン濃度との関係(図 4.3(e))において、第4層に浸透した硝酸イオン濃度の低い水のプロットは左下ではなく右下に移動する。すなわち計算期間を過去に延ばしてすべての降水を評価するならば、滞留時間が長いほど硝酸イオン濃度が低くなるという脱硝反応モデル<sup>3)</sup>を支持する結果を得る可能性がある。

#### 4.3 従来研究との関係

渓流への硝酸態窒素の流出は、森林集水域における窒素の循環を構成する要素の一つである。 そして、森林衰退に至ることが懸念される窒素供給量の過大、いわゆる "窒素飽和"の進行を 知る手がかりが、渓流水中の硝酸イオンの濃度変化にあると考えられている<sup>19</sup>。特に、降水時 は硝酸態窒素流出量の変動が大きいので着目される。

筑波山麓の渓流水中の硝酸イオン濃度は降水時には、流量の増加とともに減少することが報告されている<sup>1)</sup>。これは、降水による希釈効果と解釈されている。その事例では、土壌水が保持していた高濃度の硝酸イオンの流出のために、流量低減後に硝酸イオン濃度の増加期間があることも報告されている。一方、降水時の流量増加と同期して、硝酸イオン濃度が増加するケースが見いだされ、窒素供給量の過大の可能性のある地域として、それぞれ研究が進められている。富山市の呉羽丘陵の渓流では平水時に 50  $\mu$  M 程度の硝酸イオン濃度が、降水時には 200~500  $\mu$  M まで流量とともに増大することが報告されている<sup>2)</sup>。また、Konohira ら<sup>3)</sup>は、降水時に硝酸イオン濃度が 100  $\mu$  M 以下から増加し、最大で 400  $\mu$  M 越えることを八王子市の演習林内渓流について報告している。

流量と同期した硝酸イオン濃度増加の機構として、呉羽丘陵の場合には"流量増加時に土壌 内部での流出経路が変化して、渓流水中の高濃度の硝酸が土壌の浅いところから供給されてい る"と解釈されている<sup>2)</sup>。また、八王子市の演習林では、降水時には土壌水が渓流に短時間で 運ばれて、土壌水中の硝酸イオンが脱硝反応を経る時間がないため、高濃度の硝酸イオンが渓 流に流出することを示唆している<sup>3)</sup>。

土壌中の硝酸態窒素の供給源が、動植物体排出物・分解物、大気沈着物、施肥等の土壌表層 に与えられる窒素化合物の循環過程<sup>20)</sup>にあることを考慮すれば上記の解釈は合理的である。本 モデル計算で推定した集水域土壌中の水移動経路ならびに各層における滞留時間についての結 果は、上記解釈を肯定している。

一方、筑波山<sup>1)</sup>や他の渓流での研究<sup>2),3),21)</sup>を含めると、降水に対する渓流中硝酸イオン濃度の 応答には増加と減少の両者があり、様々である。降水時に土壌表層から硝酸イオンが渓流に流 出することは、どの地域でも起きていると考えられるので、このプロセスの指摘だけでは硝酸 濃度の「増加」を真に説明してはいない。渓流に流出する硝酸態窒素の供給源を具体的に把握 することが必要である。



図 4.1 解析対象期間中の降水が河川水に占める割合



日時(2006年)

図 4.2 降水の流域内平均滞留時間の推定結果



(a) 流域内平均滞留時間と硝酸イオン濃度との関係



(b) 第1層との平均接触時間と硝酸イオン濃度との関係

図 4.3 流域内平均滞留時間および各層との平均接触時間と 硝酸イオン濃度との関係(その1)



(c) 第2層との平均接触時間と硝酸イオン濃度との関係



(d) 第3層との平均接触時間と硝酸イオン濃度との関係

図 4.3 流域内平均滞留時間および各層との平均接触時間と 硝酸イオン濃度との関係(その 2)



(e) 第4層との平均接触時間と硝酸イオン濃度との関係

図 4.3 流域内平均滞留時間および各層との平均接触時間と 硝酸イオン濃度との関係(その3)

### 5. まとめ

本研究では、渓流河川における硝酸イオン濃度の変化機構を考察した。研究を行った地域は、 岐阜県伊自良湖に流入する河川、伊自良川の上部である。自動採水装置を設置した研究サイト を用いた。2006年11月の降雨時に河川水を連続採取して、その硝酸イオン濃度変化を詳細に 追跡した。また、雨水および河川水の水素同位体比を測定し、河川水中の降水成分の割合を推 定した。観測流量および河川水中の降水成分割合の推定結果を用いて独自に開発した分布型の 水流出モデルの検証を行い良好な結果を得た。この分布型水流出モデルを用い、観測6ヶ月前 からのすべての降水を対象として、研究集水域の水流動をシミュレーションした。この結果に 基づいて、観測時の河川流出水の集水域内滞留時間を推定した。この結果、土壌最上層(0~6cm) における水の滞留時間が長い水の流出と硝酸イオン濃度の流出には相関が見いだされた。この 結果は、滞留時間が硝酸態窒素の流出を決定する因子の一つであることを示唆している。また、 集水域スケールでの水移動解析の有効性を示している。

#### 謝 辞

本研究における野外観測の実施では、宮田章史氏(豊橋技術科学大学(当時))をはじめとす る豊橋技術科学大学建設工学系衛生工学研究室の学生諸氏に協力いただきました。また、本研 究の一部は、(財)河川環境管理財団の河川整備基金助成事業の助成を受けて実施しました。記 して、感謝致します。

#### 参考文献

- 1) 平田建正,村岡浩爾:"山林からの汚濁負荷,水の移動過程と水質",「河川汚濁のモデル解 析」(國松孝男,村岡浩爾編著),技報堂出版, pp.40-49 (1989).
- 2) 富山県立大学 短期大学部 環境工学科ホームページ: http://www.pu-toyama.ac.jp/ET/kawalab/kawakami.htm (2007.6.25 アクセス)
- Konohira, E., Yoh, M., Kubota, J., Yagi, K., Akiyama, H. : "Effects of riparian denitrification on stream nitrate-residence from isotope analysis and extreme nitrate leaching during rainfall", Water, Air and Soil Pollution, <u>130</u>, pp.667-672 (2001).
- 4) 井上隆信: "渓流河川の水質変化特性と降水の酸性化との関係",環境技術,<u>32</u>, pp.906-911 (2003).
- 5) 井上隆信,松下 拓,山田俊郎,松井佳彦: "渓流河川における pH・電気伝導度の自動連続 観測",水文・水資源学会誌,<u>18</u>, pp.681-687 (2005).
- 6) 工業技術院: "50万分の1地質図、「金沢」"(1974).
- 7) 酒井 均, 松久幸敬: "安定同位体地球化学", 東京大学出版会, pp.29-142 (1996).
- National Institute of Standards & Technology : Report of Investigation, Reference Materials 8535, 8536, 8537, RM 8535, 8536, 8537, NIST (2001).
- 9) Horita, J. Kendall, C.: "Stable isotope analysis of water and aqueous solutions by conventional dual-inlet mass spectrometry", In: "Handbook of Stable Isotope Analytical Techniques" (Ed. P.A. de Groot), Elsevier B. V., pp.1-37 (Chapter 1) (2004).
- 10) 町田 功,近藤昭彦: "わが国の天然水における水素・酸素安定同位体比-環境同位体デー タベースを用いた解析-",水文・水資源学会誌,<u>16</u>, pp.556-569 (2003).
- Genereux, D.P., Hooper, R.P.: "Oxygen and hydrogen isotopes in rainfall-runoff studies", In: "Isotope Tracers in Catchment Hydrology" (eds. C. Kendall and J.J. McDonnell), Elsevier Science B.V., pp.319-346(Chapter 10) (1998).
- 12) Schoder, E.W., & Turner, K.B. : "Precise weir measurements", Trans. ASCE, <u>93</u>, pp.999-1108 (1929).
- 13) Brooks, R. H. and Corey, A. Y. : "Properties of porous media affecting fluid flow", J. Irrigation and Drainage Div., Proc. ASCE, <u>92</u>, pp.61-88 (1966).
- Motoya, K., Yamazaki, T., Yasuda, N. : "Evaluating the spatial and temporal distribution of snow accumulation, snowmelts and discharge in a multi basin scale: an application to the Tohoku Region, Japan", Hydrol. Process., <u>15</u>, pp.2101-2129 (2001).
- 15) Zheng, C. & Bennett, G. D. : "Applied contaminant transport modeling", John Wiley and Sons, Inc., New York. (2002).
- 16) Bear, J. : "Dynamics of fluid in porous media", Amer. Elsevier, New York. (1972).
- 17) 日野幹雄,太田猛彦,砂田憲吾,渡辺邦夫: "洪水の数値予報",森北出版, pp.33-36 (1989).
- 18) 松永 武, 柳瀬信之,半澤有希子,都築克紀,上野 隆,長縄弘親: "水素・酸素同位体を用いた降 水時水質形成機構の研究",平成 15 年度河川整備基金助成事業報告書, 15-1-①-7 (研究代表

者 松永 武), 44 p. (2004).

- 19) 馬場光久,岡崎正規: "森林への窒素負荷をモニタリングする",「環境負荷を予測する」 (日本土壌肥料学会監修、長谷川周一,波多野隆介,岡崎正規編),博友社, pp193-210 (2002).
- 20) Martin, T., Kaushik, N. K., Trevors, J. T., Whiteley, H.R.: Review: "Denitrification in temperate climate riparian zones", Water, Air and Soil Pollution, <u>111</u>, pp.171-186 (1999).
- 21) 松永 武, 柳瀬信之, 半澤有希子, 都築克紀, 長縄弘親: "有害性金属元素の降雨時河川流出 機構", JAEA-Research 2007-036 (2007).

表1. SI 基本単位				
THE SI 基本単位				
本平里	<sup>半里</sup> 名称 記号			
長さ	メートル	m		
質 量	キログラム	kg		
時 間	秒	S		
電 流	アンペア	А		
熱力学温度	ケルビン	Κ		
物質量	モル	mol		
光 度	カンデラ	cd		

如去早	B SI 基本単位	
和1.12.里	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立法メートル	m <sup>3</sup>
速 さ , 速 度	メートル毎秒	m/s
加 速 度	メートル毎秒毎秒	$m/s^2$
波 数	毎 メ ー ト ル	m-1
密度(質量密度)	キログラム毎立法メートル	$kg/m^3$
質量体積(比体積)	立法メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	$A/m^2$
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
<ul><li>(物質量の) 濃度</li></ul>	モル毎立方メートル	$mo1/m^3$
輝 度	カンデラ毎平方メートル	$cd/m^2$
屈 折 率	(数の) 1	1

#### 表5. SI 接頭語

X 0. 01 放填阳					
乗数	接頭語	記号	乗数	接頭語	記号
$10^{24}$	<b>Э</b> 9	Y	$10^{-1}$	デシ	d
$10^{21}$	ゼタ	Z	$10^{-2}$	センチ	с
$10^{18}$	エクサ	E	$10^{-3}$	ミリ	m
$10^{15}$	ペタ	Р	$10^{-6}$	マイクロ	μ
$10^{12}$	テラ	Т	$10^{-9}$	ナノ	n
$10^{9}$	ギガ	G	$10^{-12}$	ピョ	р
$10^{6}$	メガ	М	$10^{-15}$	フェムト	f
$10^{3}$	+ 1	k	$10^{-18}$	アト	а
$10^{2}$	ヘクト	h	$10^{-21}$	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デ カ	da	$10^{-24}$	ヨクト	у

#### 表3. 固有の名称とその独自の記号で表されるSI組立単位 SI 組立畄位

			31 和고무교	
組立量	夕敌	記早	他のSI単位による	SI基本単位による
	2日 1小	記与	表し方	表し方
平 面 角	ラジアン <sup>(a)</sup>	rad		$\mathbf{m} \cdot \mathbf{m}^{-1} = 1^{(b)}$
立 体 角	ステラジアン <sup>(a)</sup>	$\mathrm{sr}^{(\mathrm{c})}$		$m^2 \cdot m^{-2} = 1^{(b)}$
周 波 数	、ヘルツ	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	Ν		$m \cdot kg \cdot s^{-2}$
压力, 応力	パスカル	Pa	$N/m^2$	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
エネルギー,仕事,熱量	ジュール	J	N•m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
工率,放射束	ワット	W	J/s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
電荷,電気量	フーロン	С		s•A
電位差(電圧),起電力	ボルト	V	W/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-3} \cdot A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2} \cdot kg^{-1} \cdot s^3 \cdot A^2$
磁東	ウェーバ	Wb	V•s	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
磁束密度	テスラ	Т	$Wb/m^2$	$kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	Н	Wb/A	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(d)</sup>	°C		K
光東	ルーメン	1m	$cd \cdot sr^{(c)}$	$m^2 \cdot m^{-2} \cdot cd = cd$
照度	ルクス	1x	$1 \text{m/m}^2$	$m^2 \cdot m^{-4} \cdot cd = m^{-2} \cdot cd$
(放射性核種の)放射能	ベクレル	Bq		s <sup>-1</sup>
吸収線量, 質量エネル	HIZ	Cu	T/kg	22
ギー分与, カーマ		Gy	J/ Kg	m•s
線量当量,周辺線量当				
量,方向性線量当量,個	シーベルト	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> • s <sup>-2</sup>
人禄量当量, 組織線量当				

(a) ラジアン及びステラジアンの使用は、同じ次元であっても異なった性質をもった量を区別するときの組立単位の表し方として利点がある。組立単位を形作るときのいくつかの用例は表4に示されている。
 (b) 実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号"1"は明示されない。
 (c) 測光学では、ステラジアンの名称と記号srを単位の表し方の中にそのまま維持している。
 (d) この単位は、例としてミリセルシウス度m℃のようにSI接頭語を伴って用いても良い。

表4. 単位の中に固有の名称とその独自の記号を含むSI組立単位の例

	SI 組立単位		
組工重	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	モパスカル秒	Pa•s	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N•m	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2}$
表 面 張 九	リニュートン毎メートル	N/m	kg • s <sup>-2</sup>
角 速 度	ミラジアン毎秒	rad/s	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-1} = s^{-1}$
角 加 速 度	ミラジアン毎平方秒	$rad/s^2$	$m \cdot m^{-1} \cdot s^{-2} = s^{-2}$
熱流密度,放射照度	E ワット毎平方メートル	$W/m^2$	kg • s <sup>-3</sup>
熱容量、エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量熱容量(比熱容量), 質量エントロピー	ジュール毎キログラム 毎ケルビン	$J/(kg \cdot K)$	$m^2 \cdot s^{-2} \cdot K^{-1}$
質量エネルギー (比エネルギー)	ジュール毎キログラム	J/kg	$\mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{K}^{-1}$
熱伝導率	<sup>E</sup> ワット毎メートル毎ケ ルビン	₩/(m•K)	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{K}^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メート ル	$J/m^3$	$m^{-1} \cdot kg \cdot s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} \cdot \mathbf{A}^{-1}$
体 積 電 荷	クーロン毎立方メート ル	$C/m^3$	$m^{-3} \cdot s \cdot A$
電気変位	クーロン毎平方メート ル	$C/m^2$	$m^{-2} \cdot s \cdot A$
誘 電 幸	ミファラド毎メートル	F/m	$m^{-3} \cdot kg^{-1} \cdot s^4 \cdot A^2$
透磁率	国ヘンリー毎メートル	H/m	$\mathbf{m} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-2} \cdot \mathbf{A}^{-2}$
モルエネルギー	・ジュール毎モル	J/mol	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot mol^{-1}$
モルエントロピー, モル 熱 容量	ジュール毎モル毎ケル ビン	$J/(mo1 \cdot K)$	$m^2 \cdot kg \cdot s^{-2} \cdot K^{-1} \cdot mo1^{-1}$
照射線量 (X線及びv線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> • s • A
吸収線量率	ミグレイ 毎 秒	Gy/s	m <sup>2</sup> · s <sup>-3</sup>
放射强度	モワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4 \cdot m^{-2} \cdot kg \cdot s^{-3} = m^2 \cdot kg \cdot s^{-3}$
放射輝 度	ワット毎平方メートル	W/(m <sup>2</sup> · sr)	$\mathbf{m}^2 \cdot \mathbf{m}^{-2} \cdot \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3} = \mathbf{kg} \cdot \mathbf{s}^{-3}$

表6. 国際単位系と併用されるが国際単位系に属さない単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60s
時	h	1h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86400 s
度	0	$1^{\circ} = (\pi / 180)$ rad
分	,	1' = $(1/60)^{\circ}$ = $(\pi/10800)$ rad
秒	"	1" = $(1/60)$ ' = $(\pi/648000)$ rad
リットル	1, L	$11=1 \text{ dm}^3=10^{-3}\text{m}^3$
トン	t	1t=10 <sup>3</sup> kg
ネーパ	Np	1Np=1
ベル	В	1B=(1/2)1n10(Np)

表7.国際単位系と併用されこれに属さない単位で SI単位で表される数値が実験的に得られるもの						
名称	記号	SI 単位であらわされる数値				
電子ボルト	eV	$1 \text{eV}=1.60217733(49) \times 10^{-19} \text{J}$				
統一原子質量単位	u	1u=1.6605402(10)×10 <sup>-27</sup> kg				
天 文 単 位	ua	1ua=1.49597870691(30)×10 <sup>11</sup> m				

表8. 国際単位系に属さないが国際単位系と 併用されるその他の単位

併用されるその他の単位					
	名称		記号	SI 単位であらわされる数値	
海		里		1 海里=1852m	
1	ツ	F		1 ノット=1 海里毎時=(1852/3600)m/s	
P		ル	а	$1 \text{ a=} 1 \text{ dam}^2 = 10^2 \text{m}^2$	
ヘク	ター	ル	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>	
バ	_	ル	bar	1 bar=0.1MPa=100kPa=1000hPa=10 <sup>5</sup> Pa	
オンク	「ストロ・	- 4	Å	1 Å=0. 1nm=10 <sup>-10</sup> m	
バ	-	$\sim$	b	$1 \text{ b}=100 \text{ fm}^2=10^{-28} \text{m}^2$	

表9 固有の名称を含むCGS組立単位

	名称		記号	SI 単位であらわされる数値				
工	N	グ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J				
ダ	イ	$\sim$	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N				
ポ	ア	ズ	Р	1 P=1 dyn⋅s/cm²=0.1Pa・s				
ス	トーク	ス	St	1 St =1cm <sup>2</sup> /s=10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> /s				
ガ	ウ	ス	G	1 G 110 <sup>-4</sup> T				
T.	ルステッ	F	0e	1 Oe 🛔 (1000/4π) A/m				
7	クスウェ	ル	Mx	1 Mx #10 <sup>-8</sup> Wb				
ス	チル	ブ	sb	$1 \text{ sb} = 1 \text{ cd/cm}^2 = 10^4 \text{ cd/m}^2$				
朩		ŀ	ph	$1 \text{ ph}=10^4 1 \text{ x}$				
ガ		ル	Gal	$1 \text{ Gal} = 1 \text{ cm/s}^2 = 10^{-2} \text{m/s}^2$				

表10. 国際単位に属さないその他の単位の例						
名称					記号	SI 単位であらわされる数値
キ	ユ	j	J	ĺ	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
$\mathcal{V}$	$\sim$	ŀ	ゲ	$\sim$	R	$1 \text{ R} = 2.58 \times 10^{-4} \text{C/kg}$
ラ				ĸ	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
$\mathcal{V}$				Д	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
Х	線	详	Ĺ	位		1X unit=1.002×10 <sup>-4</sup> nm
ガ		$\sim$		7	γ	$1 \gamma = 1 \text{ nT} = 10^{-9} \text{T}$
ジ	ャン	/ ス	キ	-	Jу	$1 \text{ Jy}=10^{-26} \text{W} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{Hz}^{-1}$
フ	I.	Ĭ	2	3		1 fermi=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メー	ートル	系力	ラッ	ット		1 metric carat = 200 mg = $2 \times 10^{-4}$ kg
ŀ				N	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標	準	大	気	圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
力		ļ	J	-	cal	
Ξ	ク	E	1	$\sim$	u	$1 \text{ u} = 1 \text{ um} = 10^{-6} \text{ m}$

この印刷物は再生紙を使用しています