

17 降水中の窒素とリンについて

前 川 勉 八 木 光 行 青 木 啓 子
正 通 寛 治 塩 谷 勝 夫

I 緒 言

われわれは、北潟湖の富栄養化について調査をしてきたが、¹⁾²⁾³⁾湖の有機物汚濁を考える場合に、湖水のプランクトンによる有機物生産を考慮する必要がある、その無機栄養塩である窒素とリンの負荷について検討している。昭和51年度には、水田からの負荷について調査を行なったが、⁴⁾本報告では、降水中の窒素とリンについて調査を行なった結果を報告する。

II 調 査 方 法

調査は、昭和52年度において、降雨の経時変化については、四季を考慮して5、7、8、10、11、1、2月に行ない、地域別の調査は9月に2回、降雪の調査を2月に1回行なった。

1. 採 水 法

(1) 降雨の経時的な分画の採水

当センター敷地内の北東端にある大気汚染監視局舎（高さ約3m）上に、採水器を設置し、各降雨ごとに、採水器のふたをはずして採水した。採水器は、内部が全部ガラス製で、降り始めから、降雨量1mmずつ自動的に分画され（1分画は100mlで、降雨量が1mmとなるようにロートの径が設計してある）、降雨量5mm以降は一括して最後のガラスビン（5ℓ又は10ℓ）に貯えられる。

(2) 地域別の採水

嶺北地方の6市町の市街地の6ヶ所 — 福井市福井保健所・武生市中央公民館・鯖江市市民会館・芦原町芦原小学校・大野市役所・勝山市教育福祉会館 — と公害センターの7ヶ所の屋上に、ポリエチレン製のロートとびんを降雨前に設置して採水した。

(3) 降雪の採取

昭和53年2月17日～18日の降雪（福井气象台積雪21cm、降水量25mm）を採取し、これを圧雪にして底から3cmずつの7分画に分け、各分画をぬるま湯に浸して、静かにゆっくりとかした。

2. 分 析 法

各試料水は、東洋ろ紙（No5c）でろ過したあと、アンモニア性窒素、硝酸性窒素、亜硝酸性窒素、全リンについて分析した。分析方法は以下のとおりである。

アンモニア性窒素（ $\text{NH}_3\text{-N}$ ）……インドフェノール法（衛生試験法）

硝酸性窒素（ $\text{NO}_3\text{-N}$ ）……サリチル酸ナトリウム法（衛生試験法）

亜硝酸性窒素（ $\text{NO}_2\text{-N}$ ）……G.R.試薬による方法

全リン（ T-P ）…… $\text{Mg}(\text{NO}_3)_2$ を加えて乾式灰化した後、リンモリブデン青法

全窒素（ T-N ）…… $(\text{NH}_3\text{-N}) + (\text{NO}_3\text{-N}) + (\text{NO}_2\text{-N})$ とした。有機態窒素は、試料の量が少ないために分析できなかった。

降雨量……採水器での採水量および自記雨量計とから求めたが、両者の差は殆んどみられなかった。尚、降水中の他の成分については、同一試料について分析した結果を正通らが報告した。⁵⁾

Ⅱ 結果と考察

1. 降水量と調査をした降水の量

福井市における昭和52年度(昭和52年4月～昭和53年3月)の年降水量は2,018mmであったが、これは、平年値(2,489mm)より低い値であった。これは、梅雨および秋季9月、10月に雨量が少なかったことによる。この福井市の月降水量の変化と、調査を行なった降水の量を図-1に示した。

調査を行なった降水の量は、降水量0.5mm以上の降雨を43回調査して、その合計量は、降水量668mmであり、年降水量の33.1%である。月降水量の変化から見ると、春期と冬期の調査量が、夏期と秋期のそれに比較して少ないが、後述のように、季節ごとの降水中の窒素とリンの濃度が特異的に変化が見られないことから、年間の降水中の窒素とリンの挙動を把握することができたと考えられる。

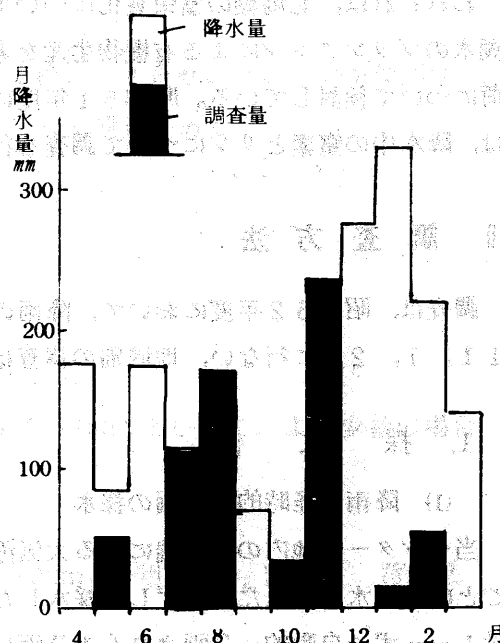


図-1 月降水量の変化(福井市S. 52.4～53.3)と、調査した降水の量

2. 降雨中の窒素とリンの濃度分布とその降下量の分布および降雨中の窒素とリンの平均濃度

調査を行なった降雨の量の分布は、図-2に示したように対数正規分布をしており、降雨量8～16mmが最も多く現われた。

次に、各降雨の分画の窒素とリンの濃度から、降雨中の濃度を求め、更に、降水量から面積1m²の窒素とリンの降下量(mg/m²)を求めて、その度数分布を図-3に示した。

各項目とも、濃度と降下量の分布は、一部にかけ離れた値があるが、いずれも、ほぼ対数正規分布を示しており、その分布の中心は、概略的に

NH ₃ -N	濃度 0.5 ppm	降下量 4 mg/m ²
NO ₃ -N	0.2 ppm	2 mg/m ²
NO ₂ -N	0.01 ppm 以下	
T-N	0.8 ppm	7 mg/m ²
T-P	0.15 ppm	0.1 mg/m ²

である。

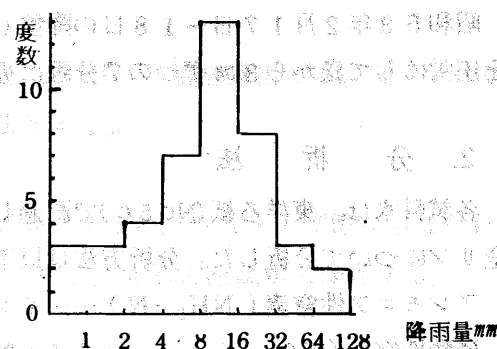


図-2 調査した降雨の降雨量の分布

次に、降雨中の窒素とリンの平均濃度を求めた。降雨

中の濃度の平均値と、全降下量を全降水量で割って求めた濃度を表1に示した。濃度の平均値は、濃

度が対数正規分布に近いために、分布の中心からはずれて、やや高い値を示している。

表-1 降雨中の窒素とリンの平均濃度 (ppm)

	NH ₃ -N	NO ₃ -N	NO ₂ -N	T-N	T-P
濃度の平均値 (min~max)	0.66 (0.11~2.3)	0.31 (0.05~1.5)	0.01> (0.01>~0.03)	0.97 (0.17~3.8)	0.028 (0.01>~0.19)
降下量から求めた濃度	0.55	0.17	0.01>	0.72	0.018

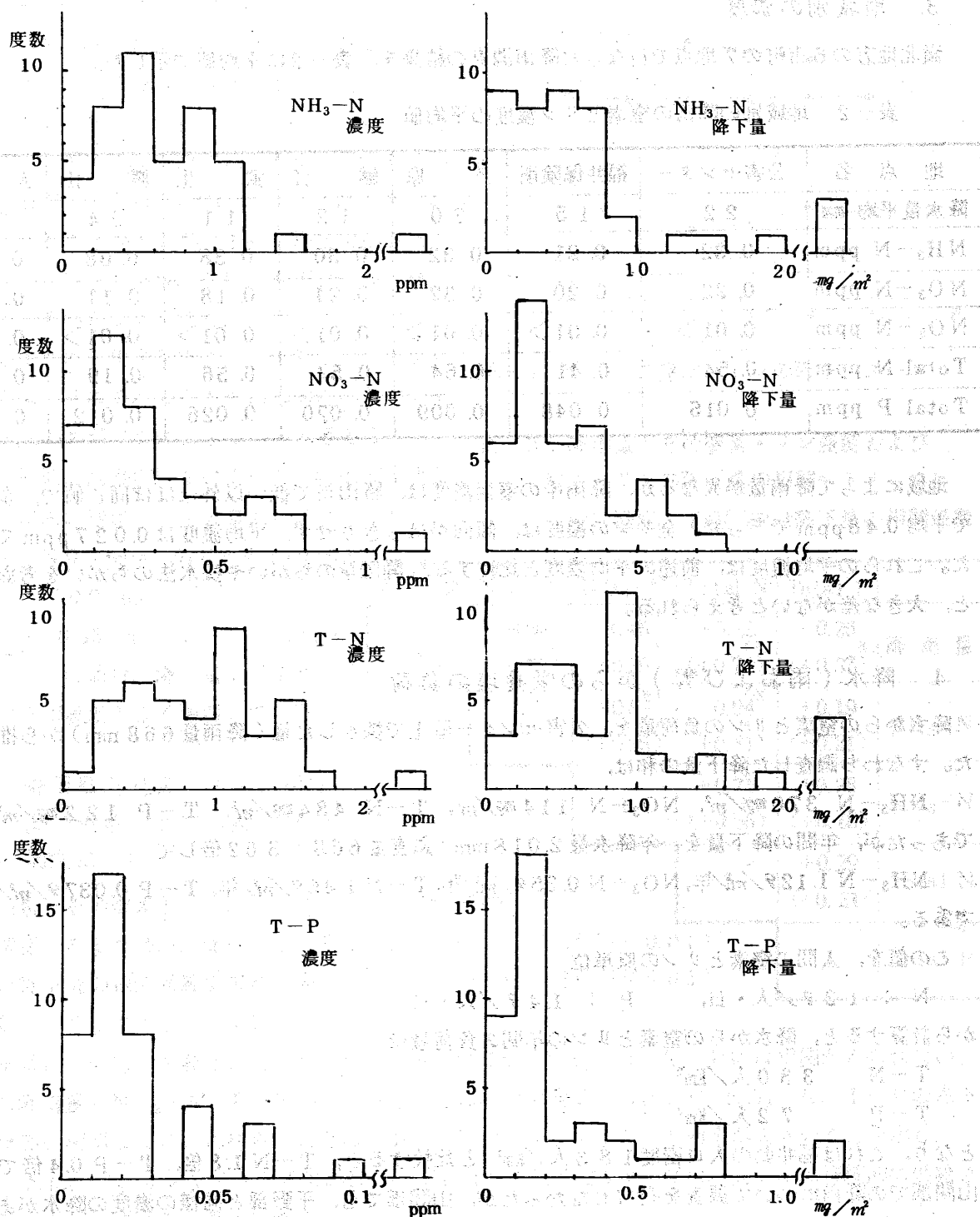


図-3 降雨中の窒素とリンの濃度の分布と、降下量の分布

降水量から求めた濃度は、いずれも分布の中心に近いので、降雨中の窒素とリンの濃度は、この値を採用した方がよいと考えられ、

T-N 0.72 ppm

T-P 0.018 ppm

である。この値は、富栄養化の限界濃度であるT-N 0.2 ppm・T-P 0.015 ppmや、河川水中の濃度と比較すると、かなり高濃度であり、特に窒素の濃度が高い。

窒素の濃度は、その70%がアンモニア性窒素であり、残りは硝酸性窒素で、亜硝酸性窒素は1%以下である。

3. 地域別の濃度

嶺北地方の6市町の7地点で行なった降雨調査の結果を、表-2に平均値で示した。

表-2 地域別の降雨の窒素とリン濃度の平均値

地 点 名	公害センター	福井保険所	芦 原	鯖 江	武 生	勝 山	大 野
降水量平均 mm	22	15	20	12	11	24	20
NH ₃ -N ppm	0.32	0.21	0.32	0.30	0.38	0.08	0.34
NO ₃ -N ppm	0.22	0.20	0.32	0.24	0.18	0.11	0.11
NO ₂ -N ppm	0.01>	0.01>	0.01>	0.01>	0.01>	0.01>	0.01>
Total N ppm	0.54	0.41	0.64	0.54	0.56	0.19	0.45
Total P ppm	0.016	0.048	0.009	0.020	0.026	0.012	0.063

地域によって降雨量が異なるが、降雨中の窒素濃度は、勝山市で低い以外はほぼ同じ値で、全窒素で平均0.48 ppmであった。全リンの濃度は、傾向がはっきりせず、平均濃度は0.027 ppmであった。これらの平均濃度は、前述の平均濃度と比較すると、降雨量のちがいや採水法のちがいを考慮すると、大きな差がないと考えられる。

4. 降水（雨および雪）からの栄養塩の負荷

降水からの窒素とリンの負荷量を、公害センター屋上で採水した量（降雨量668 mm）から推定した。すなわち調査した降水量の和は、

NH₃-N 370 mg/m², NO₃-N 114 mg/m², T-N 484 mg/m², T-P 12.2 mg/m²

であったが、年間の降水量を 年降水量2,018 mm/調査量668 = 3.02倍して

NH₃-N 1.12 g/m²/年, NO₃-N 0.35 g/m²/年, T-N 1.46 g/m²/年, T-P 0.037 g/m²/年である。

この値を、人間の窒素とリンの原単位

N : 12 g/人・日, P : 1.4 g/人・日

から計算すると、降水からの窒素とリンの年間の負荷量は、

T-N 330 人/Km²

T-P 72 人/Km²

となり、これは福井県の人口密度183 人/Km²と比較すると、T-N 1.8倍、T-P 0.4倍である。山間部での降雨について調査を行なわなかったが、山間部でも、平野部と同様の濃度の降水があると仮定すると、流域への窒素とリンの負荷量において、降水からの負荷はかなり大きな値となることが予測される。

5. 降雨中の窒素とリンの降下パターン

降雨中の窒素とリンの濃度は、降雨量や降雨の強度とその変化など、気象条件などで変化する⁶⁾。調査した降雨の場合にも、濃度変化は、下降型、上昇型、中間で上昇又は下降する型などに大別された。そこで、降雨量5mm以上の降雨について、降り始めからの1mmずつの分画の濃度の平均値を求め、その変化の仕方を図-4に示した。

すなわち、降り始め1mmにおいて、窒素とリンはそれぞれ大きく濃度が低下する。その後、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は次第に低下してゆくが、 $\text{NH}_3\text{-N}$ はあまり変化せず、更に5mm以降では、わずかであるが高くなる傾向がみられた。 $\text{NO}_2\text{-N}$ は、降り始めに検出されることがあるが、1mm以後は検出されなかった。一方全リンは、初期に低下した後、再び上昇する傾向が認められた。

このように、化学形態によって降下の仕方が異なるのは、それぞれの雨水への溶解性のちがいや、発生状況のちがい等によっていると考えられる。

降雨初期の高濃度時をのぞいた比較的安定化した後の雨水の窒素、リンの濃度はグラフより

$\text{NH}_3\text{-N}$ 0.5 ppm $\text{NO}_3\text{-N}$ 0.15 ppm

$\text{NO}_2\text{-N}$ 0.01 ppm以下

T-N 0.65 ppm T-P 0.02 ppm

であり、この値は、降下量から求めた降雨中の平均濃度とよく類似している。

6. 降雨量と窒素、リンの濃度 および窒素・リンの降下量の 相関性について

降雨量とその窒素とリンについて、相互の関係をみるために、降雨ごとの濃度および降下量の相関係数を求め、表-3に相関マトリックスとして示した。

降雨量は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と負の高い相関がみられるが、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、T-Pには相関がみられない。しかし降雨量と $\text{NH}_3\text{-N}$ 、T-Nの降下量と、正の高い相関がみられるが、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、T-Pの降下量とは高い相関はない。これらのことは、 $\text{NO}_3\text{-N}$ はウォッシュアウト効果が大いことを示し、 $\text{NH}_3\text{-N}$ は、ウォッシュアウト効果が $\text{NO}_3\text{-N}$ に比較して小さいか、又は、大気中に持続的に供給されることを示していると考えられる。

窒素とリンの相関については、窒素では、濃度および降下量で正の相関があるが $\text{NO}_3\text{-N}$ と $\text{NH}_3\text{-N}$

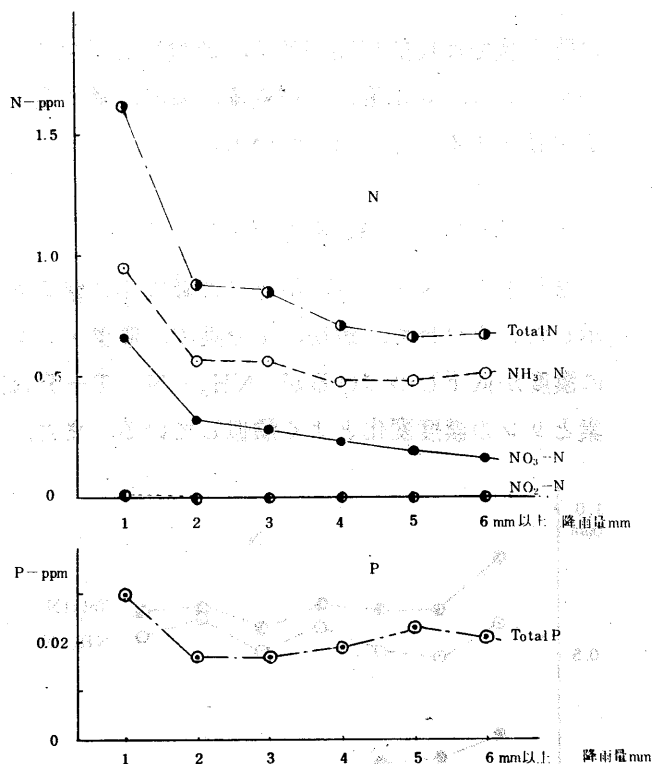


図-4 降雨中の窒素とリンの降下パターン

表-3 降雨量とその窒素・リン濃度および

窒素・リンの降下量の相関マトリックス

上段は濃度、下段()内は降下量の相関係数

降 雨 量	$\text{NH}_3\text{-N}$	$\text{NO}_3\text{-N}$	Total N	Total P	
1	-0.20 (+0.76)**	-0.46 (+0.36)**	-0.32 (+0.72)**	-0.26 (+0.37)*	降 雨 量
	1	+0.63 (+0.35)**	+0.94 (+0.81)**	+0.19 (+0.21)	$\text{NH}_3\text{-N}$
		1	+0.71 (+0.56)**	+0.28 (+0.18)	$\text{NO}_3\text{-N}$
			1	+0.29 (+0.21)	Total N
				1	Total P

r の検定

** $r > 0.39$ ($P < 0.01$)

* $r > 0.30$ ($P < 0.05$)

の降下量で比較的相关が低く、硝酸根とアンモニアの挙動のちがいを示している。

全リンは、降雨量および窒素の濃度、降下量と相関がみられず、これは、リンが窒素とは全く異なる挙動を示すことを示している。

7. 降雪中の窒素とリン

2月17日～18日にかけての降雪中の窒素とリンの濃度と降雪順の7分画の間の関係を図-5に示した。すなわち、最初の1分画で、窒素・リンともに濃度が低下するが、その後 $\text{NO}_3\text{-N}$ は次第に濃度が低下しつづけるが、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、T-Pは大きな変化がみられない。これは、降雨における窒素とリンの濃度変化とよく類似している。また、この濃度も、降雨中のそれとよく類似している。

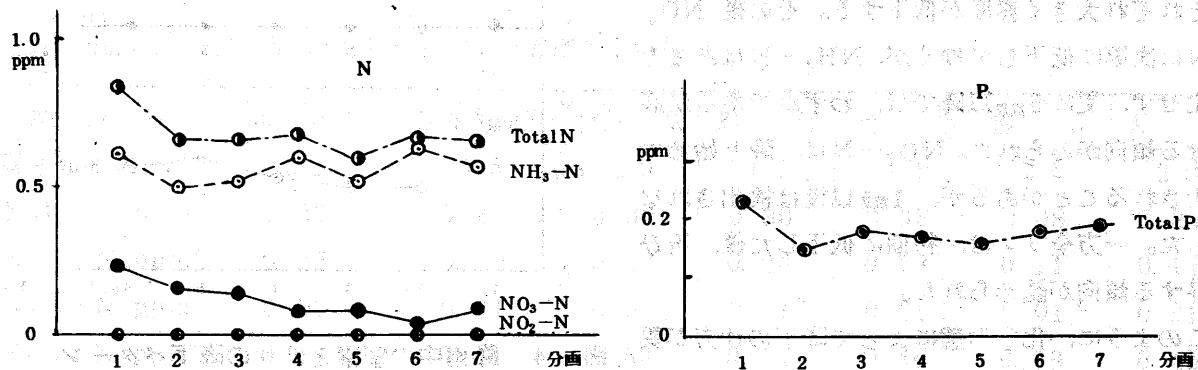


図-5 降雪中の窒素とリンの濃度変化

IV 結 語

北潟湖の富栄養化の原因を調査するために、降水中の窒素とリンについて調査を行なった。

1. 年降水量の約1/3量について調査を行ない、降雨中の窒素とリンの平均濃度を推定した。この値は降下量から T-N 0.72 ppm T-P 0.018 ppm であり、これは、富栄養化の限界濃度や、河川水の濃度と比較すると、かなり高い濃度であり、特に窒素濃度が高い。
2. 地域別には、勝山市で少し低い濃度であったが、その他は大きな差はみとめられなかった。
3. 降水からの窒素・リンの年間の降下量を求め、これを人間の窒素・リンの原単位から計算すると、その降下量は T-N 330 人/Km²、T-P 72 人/Km² となり、これは福井県の人口密度の窒素で1.8倍、リンで0.4倍に相当する。
4. 窒素とリンの濃度の降下パターンは、降雨強度や降雨量のちがいで異なるが、降雨量5mm以上の降雨では、降り始めの1mmで大きく減少し、その後 $\text{NO}_3\text{-N}$ は更にひきつづき減少するが、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 、T-Pは変化が少なく、特にT-Pはやや増加する傾向がみられた。
5. 降雨量と窒素・リンの濃度および降下量の相関マトリックスによって、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は降雨量とは負の高い相関がみられ、 $\text{NH}_3\text{-N}$ 降下量は降雨量と正の高い相関がみられた。これは、 $\text{NO}_3\text{-N}$ はウォッシュアウト効果が大きいことを、又 $\text{NH}_3\text{-N}$ はその効果が小さいか又は、大気中への供給が持続的に行なわれていることを示すと考えられた。リンは、降雨量および窒素と濃度においても降下量においても相関がほとんどみられず、リンは、窒素とは全く異なる挙動を示した。
6. 降雪中の窒素とリンの濃度は、降雨の場合と同様の変化を示し、その濃度も類似していた。

参 考 文 献

- 1) 前川 勉他 : 本報, 3, 112 (1973)
- 2) 前川 勉他 : 同上, 4, 107 (1974)
- 3) 前川 勉他 : 同上, 5, 146 (1975)
- 4) 前川 勉他 : 同上, 6, 252 (1976)
- 5) 正通寛治他 : 同上, 7, 135 (1977)
- 6) 小林 隆 : 公害と対策, 12(11), 1231 (1976)