

## 第1節 自然科学的立場からのモニタリング

## 5. 琵琶湖-淀川水系に与える影響

## 5.6 淀川水系の河川水質環境

## —各種安定同位体比を用いた様々な空間スケールに対応する流域診断方法論の構築—

井桁明丈<sup>1)</sup>、陀安一郎<sup>2)</sup>、兵藤不二夫<sup>1)</sup>、由水千景<sup>2)※1)</sup>、梅澤有<sup>1)</sup>、  
神山藍<sup>3)</sup>、今田美穂<sup>4)</sup>、高津文人<sup>2)※1)</sup>、永田俊<sup>2)</sup>、和田英太郎<sup>1)※2)</sup>

1) 総合地球環境学研究所、2) 京都大学生態学研究センター、3) 京都大学大学院工学研究科

4) 国立環境研究所、※1) (現所属) 独立行政法人科学技術振興機構

※2) (現所属) 海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター

## 1. はじめに

日本における河川の水質汚濁に関する基準は、人の健康の保護に関する基準と生活環境の保全に関する基準が制定されており、前者は主に重金属類やダイオキシンなどが指定されており、後者はpH、SS、BOD、大腸菌の4項目が指定されている。しかしこれらは主に人間の健康のための指標であり、河川環境保全にとっての有効な指標であるとはいえない。

現在、河川の水質環境診断には代表的なものとしてBOD、COD（河川水中の有機物量の指標。近年では一部TOCも用いられている）、DO（Dissolved Oxygen：河川水中の溶存酸素量）、T-N、T-P（全窒素、全リン：富栄養化の指標）などが挙げられる。これらの指標は湖沼、海域などの環境基準に用いられている。また、事業所などから排出される排水の総量規制項目としても用いられており、各水域の水質評価に有効な指標であるといえる。しかし、これらの基準はすべて量的評価であり酸化還元状態といった物質循環的視点から見た河川水質の質的状況を評価する情報は持ち合わせていない。また、これらの指標は調査時の状況（季節や時間帯、降雨の有無など）によって値が大きく変動する<sup>注1)</sup>。さらに、各河川において河川流量や規模が異なるため大小様々な河川から構成される複雑な水系において各地点及び河川を同一に評価するのは困難であるため、流域全体の河川環境を考える上で優れた指標とは言えない。

近年、河川環境の診断に各種安定同位体比（炭素、窒素、酸素、硫黄など）が広く用いられており<sup>1~3)</sup>、特に窒素汚染源の特定や水域における環境診断の指標として窒素安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}$ 値）が有効である<sup>4, 5)</sup>。水系内の $\delta^{15}\text{N}$ 値は流域の人間

活動の影響を反映し、下水や生活排水、畜産排水といった人為的汚濁負荷によって高くなる。近年河床堆積物の $\delta^{15}\text{N}$ 値を用いた河川環境診断や富栄養化によって水生生物の $\delta^{15}\text{N}$ 値が高くなるといった報告がなされている<sup>6, 7)</sup>。しかし、これらの指標を用いて河川環境を調査地点ごとの傾向（micro-scale）、支流を含めた水系全体（meso-scale）、さらに複数の水系が1つにまとまった大規模な水系（macro-scale）までを総合的に解析した例は少ない。

本研究では、淀川水系の各種水質濃度とともに各種安定同位体比を測定し、人口密度や土地利用形態といった流域内の人間活動との比較から人為的な汚濁負荷が河川環境に及ぼす影響を空間スケールごとに解析し、河川環境の新たな総合的指標を検討することを目的とした。

## 2. 調査および分析方法

## 2.1 窒素の安定同位体存在比

窒素には質量数の異なる2つの安定同位体<sup>14</sup>Nと<sup>15</sup>Nが存在し、物質によって同位体組成（<sup>15</sup>N / <sup>14</sup>N）は変化する。空気中の存在比は<sup>14</sup>Nが99.634%、<sup>15</sup>Nが0.366%でほぼ一定であり<sup>8)</sup>、2つの安定同位体の比率は空気中の窒素の同位体比を基準としてδ値として千分率（‰）で式(1)のように表される。

$$\delta \text{値 } (\text{‰}) = (R_{\text{SAMPLE}} / R_{\text{AIR}} - 1) \times 1,000 \quad (1)$$

$$R = {}^{15}\text{N} / {}^{14}\text{N}$$

即ち、大気中の窒素ガス（N<sub>2</sub>）を標準（0‰）としており、大気中の窒素と比較して同位体組成が大きい場合 $\delta^{15}\text{N}$ 値は正の値となり、小さい場合は負の値となる。環境中の窒素化合物にはそれぞれ

の特有の同位体比を有しており、この値を利用して河川水や地下水などの水系の窒素起源を推定できる。表1に河川に流入する主な窒素供給源の $\delta^{15}\text{N}$ 値を記す。一般に降水や化学肥料など大気を起源とする窒素の $\delta^{15}\text{N}$ は0‰に近い低い値を示し、下水及び生活排水、有機肥料や畜産排水などは高い値を示す。また、アンモニアの揮散や脱窒作用は反応過程で同位体分別が大きいため $\delta^{15}\text{N}$ 値が高くなることが知られている<sup>9)</sup>。

## 2.2 調査地点及び方法

淀川水系の水系図を図1に記す。淀川水系は流域面積7,857km<sup>2</sup>で大きく4つの河川（桂川、宇治川、木津川、淀川）から形成される<sup>注2)</sup>。桂川は全長107km、流域面積1159km<sup>2</sup>、佐々里峠を水源とし、平均流量は24.0m<sup>3</sup>/sである。上、中流域での人口密度は低く、森林の比率が高い。中流部に大規模ダム（日吉ダム）が1つある。下流部（京都市）で人口密度が急激に高くなる。宇治川（瀬田川）は全長37km、流域面積4354km<sup>2</sup>（琵琶湖流域を含む）、琵琶湖を水源とし、琵琶湖からの

唯一の流出河川である。平均流量は127m<sup>3</sup>/sである。琵琶湖湖水が瀬田川に流入する南湖において近年水質の汚濁が顕著である。中流部に天ヶ瀬ダムがある。流域内的人口密度は滋賀県内においては一定であるが、京都市都市部にて増加する。木津川は全長89km、流域面積1600km<sup>2</sup>、青山高原を水源とし、平均流量は25.7m<sup>3</sup>/sである。木津川水系は木津川本流と名張川の2つの水系から構成されており、木津川中流域にて合流する。名張川流域には4つの大規模ダムが存在する。両水系ともに都市域を流域としているため上中流部の人口密度は高く、中流から下流にかけて若干増加する。淀川は桂川、宇治川、木津川が合流した河川で、全長38km、平均流量は163m<sup>3</sup>/sで、大阪府の中心部を流下し、大阪湾へ流入する<sup>21)</sup>

調査は2003年8月から11月にかけて桂川水系15地点（本流13地点〔ダム湖内1地点含む〕、支流2地点〔2河川：各1地点〕）、宇治川本流6地点、木津川水系10地点（本流8地点、支流2地点〔1河川：ダム湖内1点含む〕）、及び淀川本流3地点で行った。また、2003年12月に桂川水系内の鴨川にて

表1 窒素供給源の $\delta^{15}\text{N}$ 値（‰）の測定範囲

		最頻値	範囲	引用文献
降水	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	-2	-10~4	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2	-6~10	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>		-11~-5	小倉ほか (1981) <sup>11)</sup>
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>		-1~2	小倉ほか (1981) <sup>11)</sup>
肥料	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup>	0	-4~4	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	2	0~6	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
			3~9	廣畠ほか (1999) <sup>12)</sup>
			-4~-1	山本ほか (1995) <sup>13)</sup>
化学肥料			-5~3	田瀬 (2003a) <sup>14)</sup>
	アンモニア系		-3~1	Hubner (1986) <sup>15)</sup>
	硝酸系		1~5	Hubner (1986) <sup>15)</sup>
	尿素系		-1~1	Hubner (1986) <sup>15)</sup>
有機肥料			3~15	Chien et al. (1977) <sup>16)</sup>
	陸上土壤	4	-8~14	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
	水田土壤		0~7	Wada et al. (1984) <sup>17)</sup>
	畑地土壤		2~8	Yoneyama et al. (1986) <sup>18)</sup>
森林土壤（表層）			-4~-3	Wada et al. (1984) <sup>17)</sup>
	下水及び生活排水	16	-10~32	Kendall (1998) <sup>10)</sup>
	下水及び生活排水	11	10~12	廣畠ほか (1999) <sup>12)</sup>
	下水及び生活排水（合併浄化槽）		10~14	Mariotti et al. (1988) <sup>19)</sup>
下水処理水			11~17	新井・田瀬 (1992) <sup>20)</sup>
	生活排水		8~15	田瀬 (2003a) <sup>14)</sup>
畜産廃棄物			10~20	田瀬 (2003a) <sup>14)</sup>

本流5地点、支流1地点において同様の調査を行った。鴨川は全長31km、流域面積240km<sup>2</sup>、平均流量3.0m<sup>3</sup>/sの比較的小さな水系で京都市中心部を通過する河川である。流域内にダムは存在しない。本調査時及び調査前日にまとまった降雨はなかった。

各調査地点で河川水及び堆積物を採取した。水試料は孔径150μmのプランクトンネットでリターなどをとりのぞいた試料をGF/Fフィルター(0.7μm)で吸引ろ過しSS(懸濁態粒子量)濃度を測定した。また、SS試料の無機炭酸塩を除去後、懸濁態粒子(POM)の炭素及び窒素安定同位体比を測定した。ろ液について栄養塩濃度とミネラリイオン濃度及び硝酸イオンの窒素及び酸素安定同位体比を測定した。河床堆積物(表層)は無機炭酸塩を除去後、炭素及び窒素安定同位体比を測定した。栄養塩濃度(NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N, NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N, NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P)は東京大学海洋研究所の栄養塩自動分析装置(AACS III, BRAN+LUEBBE社)にて、ミネラリイオン濃度(Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>)は総合地球環境学研究所のイオンクロマトグラフ(ICS-90, DIONEX社)にて測定した。POM及び堆積物の炭素・窒素安定同位体比は総合地球環境学研究所の質量分析計(Delta plus XP, サーモエレクトロン社)にて、硝

酸イオンの窒素及び酸素安定同位体比は脱窒菌法により硝酸をN<sub>2</sub>Oガスにし、京都大学生態学研究センターの質量分析計(Delta plus XP, サーモエレクトロン社)により測定した。

### 3. 結果

#### 3.1.1 桂川水系：各種水質分析からの検証

桂川水系の調査地点図を図2に、調査結果を表2に記す。

桂川水系の各種水質濃度分布は、源流域は低く(KT\_1: DIN 0.19mg/L, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P 0.01mg/L, Cl<sup>-</sup> 3.91mg/L, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 2.38mg/L)、流下に伴いすべての元素において増加傾向を示した<sup>注3)</sup>。源流域から京都市嵐山(KT\_10)間で栄養塩類は3倍程度、ミネラリイオン濃度は1.5倍(Cl<sup>-</sup>)から4.2倍(Ca<sup>+</sup>)程度の増加であったが、京都市都市部において各項目ともに急激に上昇し淀川合流前地点(KT\_14: 大阪府島本町)では源流域と比較してDINが21倍、PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-Pが38倍、Cl<sup>-</sup>は8.4倍、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>が20倍となった(KT\_14: DIN 4.37mg/L, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P 0.34mg/L, Cl<sup>-</sup> 32.8mg/L, SO<sub>4</sub><sup>2-</sup> 49.0mg/L)。このことから京都市内の都市部において急激に各種濃度が上昇したことが示された。日吉ダム湖内(KT\_6)および前後調査地点にて水質に大きな変動は見られなかった。南丹市八木町(KT\_7からKT\_8の間)にて合流する支流園部川(SO\_1)の水質濃度は桂川本流と比較して高い値であった(SO\_1: DIN 0.53mg/L, PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P 0.03mg/L, Cl<sup>-</sup>

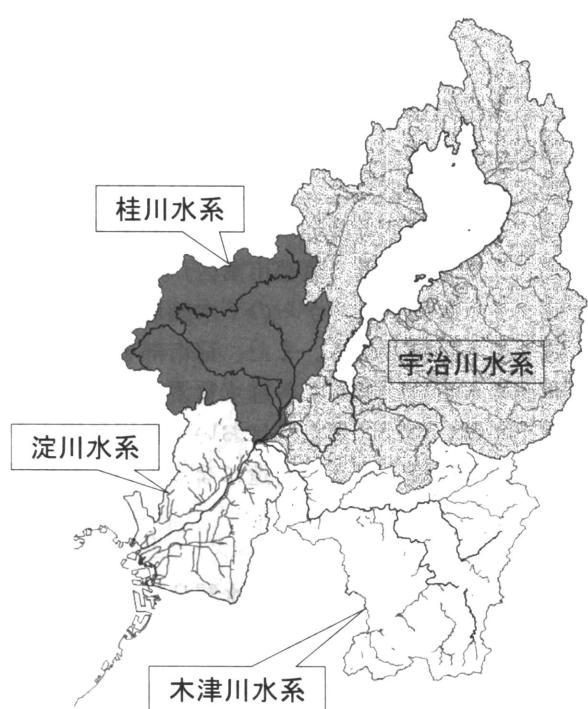


図1 調査水系

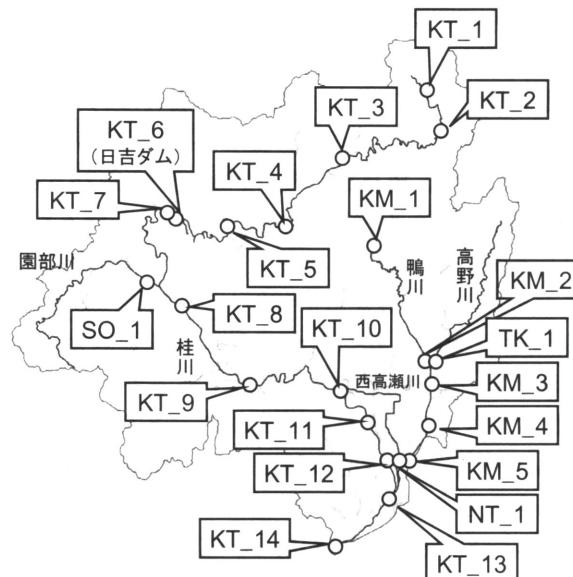


図2

5.97mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  6.78mg/L)。

桂川支流の鴨川の源流域の各種水質濃度は桂川源流域同様に低い値であったが (KM\_1 : DIN 0.16mg/L、 $\text{Cl}^-$  3.25mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  3.96mg/L)、都市部 (KM\_2 : 京都市左京区) に流入すると急激に増加し、特に $\text{Cl}^-$  及び $\text{Na}^+$  が著しく増加した (KM\_2 : DIN 0.52mg/L、 $\text{Cl}^-$  16.7mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  7.49mg/L、 $\text{Na}^+$  11.97mg/L)。支流高野川 (TK\_1) は鴨川 (KM\_2) の $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$  は約半分、他のミネラルイオン濃度は同程度、DINが約2倍であり、両河川の水質組成が大きく異なることが明らかとなつた (TK\_1 : DIN 0.95mg/L、 $\text{Cl}^-$  7.35mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  8.66mg/L、 $\text{Na}^+$  6.73mg/L)。鴨川・高野川合流地点 (KT\_3) より下流においては大きな変動は見られず桂川合流前地点 (KM\_5) は源流域と比較してDINは5.2倍、ミネラルイオン濃度は1.5~3倍程度の増加であった (KM\_5 : DIN 0.85 mg/L、 $\text{Cl}^-$  8.56mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  10.3mg/L)。流域内の76%を建物用地が占め人口が非常に密集している支流西高瀬川では著しい水質汚濁が確認された (NT\_1 : DIN 7.09mg/L、 $\text{Cl}^-$  46.0mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  77.5mg/L、 $\text{Na}^+$  63.8mg/L)。この原因として都市化の影響のほかに、西高瀬川の水源は桂川嵐山付近 (KT\_10 : DIN 0.60mg/L、 $\text{Cl}^-$  5.87mg/L、 $\text{SO}_4^{2-}$  6.11mg/L) であるが、水源が乏しく殆どが吉祥院処理場及び鳥羽処理場 (京都市南区) からの下水処理水であるためと考えられる。

### 3.1.2 桂川水系：安定同位体比からの検証

桂川源流 (KT\_1 : 京都市北区) のPOM、堆積物、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ はそれぞれ1.8‰、0.3‰、1.5‰と低い値であった。この $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ は降水の $\delta^{15}\text{N}$ 値に近い値を示しており、源流域における人為的窒素負荷が少ないことがDIN濃度同様に認められる (表1)。また、POM及び堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ が-28.3‰、-31.1‰と低く、C/N比 (mol) が12.3、18.6と高いことから源流域の有機物負荷は主に陸上植物由来であることが分かる。KT\_4にてPOMの $\delta^{15}\text{N}$ が6.8‰と急激に上昇したがこれは調査地点が下水処理水放流口付近であるためであるが、下流のKT\_5では2.2‰であることから、KT\_4の高いPOMの $\delta^{15}\text{N}$ は一時的な値であり、水系全体で見た場合大きな汚濁負荷ではないと考えられる。日吉ダム (KT\_6) にてPOMの $\delta^{13}\text{C}$ が-23.2‰と上昇し、POM及び堆積物のC/N比がそれぞれ7.3、10.4と低くなった。この結果はダム湖内が止水環

境であるために上流からの陸上植物起源の有機物が蓄積し、分解されることによる栄養塩の供給による一次生産が活発化していることを示している<sup>22)</sup>。また、日吉ダム直下 (KT\_7) では堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ が-24.9‰と桂川水系において最大値を示したが、これはダム湖内で増加した植物プランクトンを含む放流水の蓄積によるものと考えられる。支流園部川のPOM、堆積物、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ は各種水質濃度同様に桂川本流と比較して高く、特に $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ が8.2‰と高い値を示した。この値は一般に生活排水中の $\delta^{15}\text{N}$ と非常に近いことから園部川流域 (南丹市園部町) からの生活排水及び下水処理水の流入が示唆される。

支流鴨川においても源流域のPOM、堆積物、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ はそれぞれ3.4‰、0.7‰、1.8‰と低い値であった。また、POM及び堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ が低く、C/N比が高いことから桂川源流同様に人為的窒素負荷が少なく、源流域の有機物負荷は主に陸上有機物であることが示された。その後、水質濃度同様に都市部 (KM\_2) において上昇を示し、桂川合流前地点 (KM\_5) ではPOM、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ はそれぞれ7.3‰、8.0‰となった。一方で堆積物の $\delta^{15}\text{N}$ は3.9‰と他河川と比較して低いことから鴨川下流での汚濁物質の蓄積は小さいものと考えられる。西高瀬川は各種水質濃度から著しい水質汚濁が確認されたがPOM、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ はそれぞれ6.6‰、11.5‰と水質濃度ほどの上昇は見られなかった。桂川水系における $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ 分布の特徴として源流域で低く、流下に伴い序々に増加し、京都市内都市部 (KT\_11 : 京都市西京区) にて急激に高くなり (10.2‰)、淀川合流地点まで同程度の値で推移した。この急激な上昇は都市部における人口密度の増加に伴う人為的窒素負荷の増大と、鳥羽処理場 (京都市南区) 及び洛西浄化センター (長岡京市) からの下水処理水の流入によるものと示唆される。また、都市部を流れる鴨川が他の水系と比較して各種水質濃度及び安定同位体比が低いのは、都市部において鴨川に排水や他河川からの流入がない構造になっているためである。

### 3.2.1 琵琶湖・宇治川水系：水質分析からの検証

琵琶湖・宇治川水系の調査地点図を図4に、調査結果を表3に記す。

宇治川の各種水質濃度は他河川と比較して上流部から高い値となった (UJ\_1 : DIN 0.31mg/L、

$\text{Cl}^-$  12.6mg/L,  $\text{SO}_4^{2-}$  19.3mg/L)。これは集水域である琵琶湖湖水の水質を反映している。著者らが2004年2月から毎月1回水質調査を行っている琵琶湖北湖の平均水質と比較するとUJ\_1の水質濃度はDINは同程度であり、 $\text{Cl}^-$ や $\text{Na}^+$ 、 $\text{Ca}^{2+}$ といったミネラルイオン濃度は1.1～1.3倍高い。一方で $\text{SO}_4^{2-}$ は約2倍高いがこの原因は不明である。宇治川の上流部 (UJ\_1: 大津市) から下流 (UJ\_5: 京都市伏見区) までDINを除く水質において流下に伴い濃度変動に大きな差は見られなかった。即ち宇治川の水質濃度は流域の多くを占める琵琶湖からの流出水に支配されていることを示している。しかし、淀川合流前地点 (UJ\_6: 八幡市) にて特に栄養塩濃度が著しく高くなったり (DIN 2.26mg/L、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$  0.21mg/L)。UJ\_5から約6kmの間にDINは4.5倍、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ は13.3倍、ミネラルイオン濃度は1.1～1.9倍増加しており、この原因として桂川下流と同様に伏見処理場 (京都市伏見区) 及び洛南浄化センター (八幡市) からの下水処理水の流入によるものと示唆される。

### 3.2.2 琵琶湖・宇治川水系：安定同位体比分析からの検証

宇治川水系のPOMの $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$ はそれぞれ

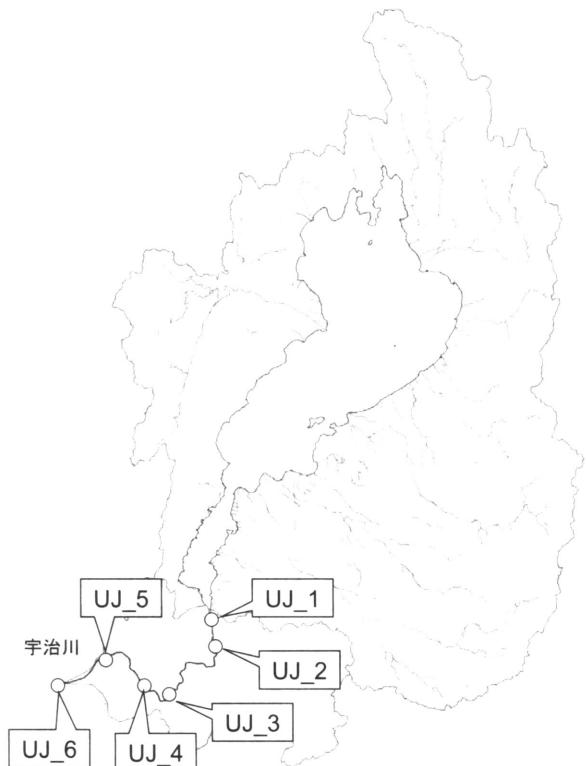


図3 調査地点（宇治川水系）

-28.8～-25.3%、6.1～8.7%となり、C/N比も6.4～7.5と比較的一定であった。この結果は宇治川水系のPOMの多くが植物プランクトンであることを示している。同様に $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ も約9%前後で一定であり、これらの結果からも水質分析結果同様に宇治川水系の河川環境は琵琶湖からの流出水の影響を強く受けていることを示している。また、宇治川は支流河川と比較して流量が多いため流下に伴う水質及び各種同位体比の変動は小さかった。淀川合流前地点 (UJ\_6) にて $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ は10.1%と上流地点 (UJ\_5) より1.2%の上昇を示したが、DINの急激な増加と比較して小さいものであった。

### 3.3.1 木津川水系：水質分析からの検証

木津川水系の調査地点図を図4に、調査結果を表3に記す。

木津川本流のミネラルイオン濃度は上流域 (KD\_1: 名賀郡青山町) は比較的低濃度であったが (KD\_1:  $\text{Cl}^-$  4.72mg/L,  $\text{SO}_4^{2-}$  3.72mg/L) 上野市を通過後KD\_3 (阿山郡島ヶ原村) では $\text{Cl}^-$  8.37mg/L,  $\text{SO}_4^{2-}$  8.71mg/Lに增加了。他のミネラルイオン濃度も同様に約2倍程度增加了。名張市下流 (NB\_1: 名張市) の $\text{Cl}^-$ 、 $\text{SO}_4^{2-}$ はそれぞれ7.98mg/L、9.29mg/Lと高く、上野市同様に市街地を通過することによって濃度が上昇したと考えられる。木津川本流と名張川が合流した地点 (KD\_4: 相楽郡南山城村) ではそれぞれ8.01mg/L、8.83mg/Lとなり、その後、流下に従って序々に增加し、淀川合流前地点 (KD\_8: 八幡市) では11.1mg/L、12.9mg/Lとなったが、桂

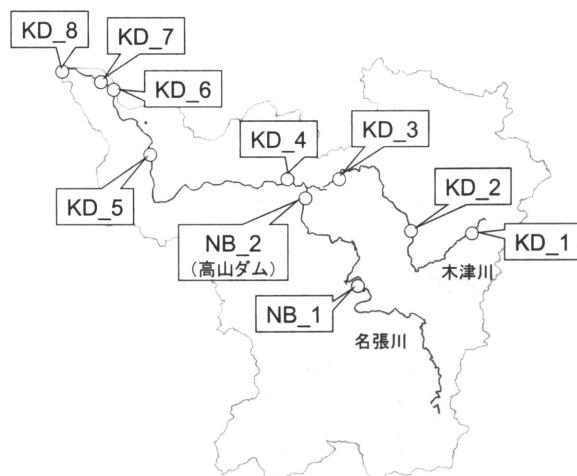


図4 調査地点（木津川水系）

川及び宇治川の淀川合流前地点 (KT\_14 及び UJ\_6) と比較して低濃度であった。

木津川水系の特徴として特に上流域から中流域において窒素濃度が高いことが挙げられる。木津川上流域から中流域 (KD\_1~3) 及び名張川 (NB\_1, 2) の  $\text{NO}_3^-$ -N は 0.73~1.02mg/L で、木津川・名張川合流地点より下流では 0.94~1.30mg/L で推移した。桂川上流域から中流域 (KT\_1~10) の  $\text{NO}_3^-$ -N は 0.19~0.58mg/L であることから木津川水系の上中流域において多量の窒素が負荷されていることが伺える。農地における窒素濃度は茶畠や果樹園への施肥、畜産排水などによって地下水及び周辺水域にて高くなるが、木津川及び名張川流域の耕地の大部分が水田であるため、これらによる窒素濃度の増加の影響はないと考えられる<sup>23)</sup>。淀川合流前地点 (KD\_8) の DIN 及び  $\text{PO}_4^{3-}$ -P はそれぞれ 1.33mg/L、0.04mg/L であり、ミネラルイオン濃度同様に桂川及び宇治川で見られた急激な増加は見られなかった。これは淀川合流地点周辺に木津川に放流する下水処理施設がないためである<sup>注4)</sup>。

### 3.3.2 木津川水系：安定同位体比分析からの検証

木津川本流上流域 (KD\_1) の POM、堆積物、 $\text{NO}_3^-$  の  $\delta^{15}\text{N}$  はそれぞれ 2.1‰、1.9‰、3.1‰ と低い値を示した。また、POM 及び堆積物の  $\delta^{13}\text{C}$  は -29.2‰、-27.7‰ と低く、C/N 比が 15.9、16.6 と高いことからここでの有機物負荷は主に陸上有機物である。上野市周辺 (KD\_2, KD\_3) から POM 及び堆積物の C/N 比がそれぞれ 8.0 と 8.9、10.2 と 12.1 に減少しており、内部生産が活発化していることを示しており、上野市及びその上流の青山町市街地において木津川本流への窒素供給の増加によるものと考えられる。また、支流名張川を流下した地点 (NB\_1) の POM の  $\delta^{13}\text{C}$  は -25.0‰、C/N 比が 8.5 であることから名張市においても上野市下流と同様に流域内での窒素負荷が増加したと考えられる。高山ダム湖内 (NB\_2: 相楽郡南山城村) の POM の C/N 比は 5.9 と著しく低くなり、調査時において一次生産が活発であったことを示しているが、一方で  $\delta^{13}\text{C}$  が -28.7‰ と低い値となつた。これは底泥からの有機物分解によって発生する  $\delta^{13}\text{C}$  の低い炭酸ガスを植物プランクトンが取り込んでいるためと考えられる<sup>24)</sup>。木津川中流 (KD\_4) から淀川合流前地点 (KD\_8) にかけて

の POM 及び堆積物の  $\delta^{15}\text{N}$  は流下に伴いそれぞれ 6.6~10.5‰、4.5~8.2‰ と高くなった。この区間の水質濃度の変動が 1.2~1.5 倍程度であることと比較すると POM 及び堆積物の  $\delta^{15}\text{N}$  は大きく変動した。淀川合流前地点 (KD\_8) の POM 及び  $\text{NO}_3^-$  の  $\delta^{15}\text{N}$  はそれぞれ 9.9‰、9.3‰ となり、POM は桂川及び宇治川と比較して高い値となり、 $\text{NO}_3^-$  は同程度の値となった。

木津川水系の  $\delta^{15}\text{N}$ - $\text{NO}_3^-$  は  $\text{NO}_3^-$ -N 同様に全域において高く、KD\_1 を除いて 6.4~9.6‰ であった。これは木津川及び名張川上流の上野市及び名張市からの（下水及び生活）排水の流入によるものと考えられる。三重県内の下水道普及率は 33.9%（平成 15 年末）と全国平均の約半分程度であり、特に木津川上流域及び名張川流域は高地に存在するため三重県内においても下水処理施設普及率が低いためである。

#### 3.4.1 淀川：水質分析からの検証

淀川水系の調査地点図を図 5 に、調査結果を表 3 に記す。

3 河川合流後の淀川上流 (YD\_1: 枚方市) の水質濃度は合流する 3 河川の水質濃度を反映してすべての元素において高い値となり、特に 3 河川の中でも流量が多い宇治川の水質濃度 (UJ\_6)

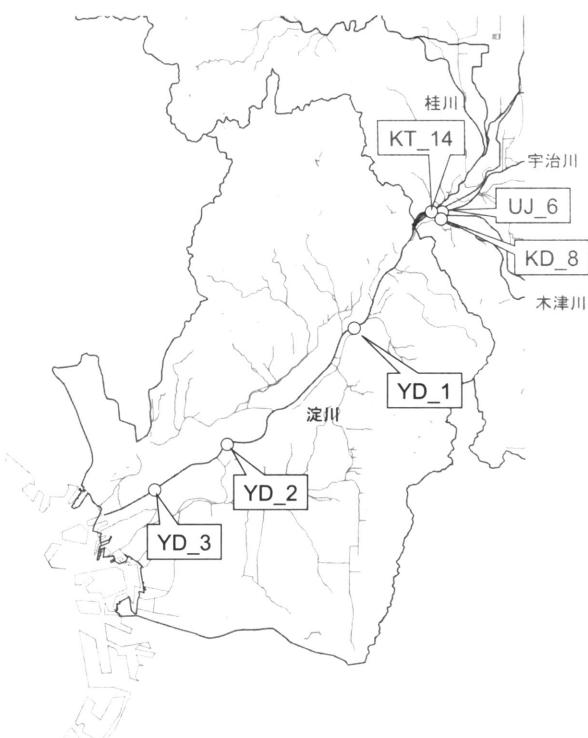


図 5 調査地点 (淀川)

と近い値となった。しかし、中流（YD\_2：大阪市東淀川区）では上流地点（YD\_1）と比較してDIN、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が35%程度、ミネラルイオン濃度が15~20%程度減少した。この原因として淀川は大阪府における用水供給源であり大阪府内において排水の流入は殆どないため、汚濁の進行が緩和され流下に伴う自浄作用によって減少したと考えられる。また、 $\text{NH}_4^+\text{-N}$ と $\text{NO}_2^- \text{-N}$ が大きく減少していることや、地形上河川の流速が緩やかであること、調査地点から1.8km下流に淀川大堰があるため水が滞留しやすいうことからも脱窒が起こっている可能性がある。淀川下流（YD\_3：大阪市西淀川区）では海水の流入によりDIN及び $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が希釈効果により減少した。

### 3.4.2 淀川：安定同位体比分析からの検証

淀川上流（YD\_1）のPOM、堆積物、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ がそれぞれ9.7‰、9.1‰、9.6‰と上流の3河川の影響を受け高い値となった。淀川中流（YD\_2）ではDINは上流より大幅に減少したのに対しPOMは同程度、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ は1‰程度高い値となった。一方、堆積物の $\delta^{15}\text{N}$ は3.4‰と上流より6‰以上低い値となった。この原因は定かではないが採取した堆積物の状態から浚渫により新たな土砂が供給されている可能性がある。淀川中流及び淀川下流（YD\_3）の堆積物の $\delta^{13}\text{C}$ 及び $\delta^{15}\text{N}$ はMishimaらによる大阪湾及び淀川での調査報告の値とほぼ一致していた<sup>25)</sup>。淀川下流（YD\_3）のPOMの $\delta^{15}\text{N}$ は6.2‰と淀川中流と比較して低い値となったが、沿岸域のPOMの多くを占める海洋由来の植物プランクトンの $\delta^{15}\text{N}$ は6‰程度であることから海水の流入によるものであると考えられる<sup>26)</sup>。一方で淀川中流及び下流のPOMの $\delta^{13}\text{C}$ が約-30‰と非常に低い値となった。この原因については未解明である。淀川全域における $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ はDINの挙動と異なり9.6~10.5‰と高い値で推移した。

## 4. 考察

### 4.1 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ を用いた人間活動が水系に及ぼす影響評価

日本国内における地下水調査結果では $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ が6~8‰を境にそれより低い値は自然あるいは化学肥料の影響を受けた地下水、それより高い値を生活排水や有機肥料を起源とする地下水と分類できると報告されている<sup>27, 28)</sup>。これに倣うと

本調査地点において $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ が6‰以上であった地点は桂川水系では（KT\_9~KT\_14）及び支流園部川（SO\_1）、鴨川水系では源流域を除く支流高野川を含む全域（KM\_2~KM\_5、TK\_1）、西高瀬川（NT\_1）、宇治川は全域（UJ\_1~UJ\_6）、木津川水系は木津川上流域を除く全域（KD\_2~KD\_8、NB\_1、NB\_2）、淀川全域（YD\_1~YD\_3）であった。これらの地点の特徴として人口密度が100人/km<sup>2</sup>以上であることから、淀川水系において人間活動に伴う生活排水の流入が河川水質に反映される境界は人口密度が100人/km<sup>2</sup>以上であると言える（図6）。また、人口密度と $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ との関係は、人口密度0~400人/km<sup>2</sup>、 $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$  1~10‰までにおいて強い相関を示した。この関係性は降雨などの大気由来の低い $\delta^{15}\text{N}$ を持つ森林からの溪流水と高い $\delta^{15}\text{N}$ を持つ生活排水（下水処理水）との混合比によって決定されると考えられる（Phase I）。従って、流域の森林比率の高い地点ほど $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ は低くなる（図7）。人口密度が400人/km<sup>2</sup>以上の地点において $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ は10‰程度で安定した。極度の人口密集地であり（14975人/km<sup>2</sup>）、DINが7.09mg/Lと多量の窒素負荷が見られた西高瀬川（NT\_1）においても11.5%であった。これは生活排水によって多量に供給される有機物の殆どが酸化的に分解されるため、 $\delta^{15}\text{N}$ は生活排水及び下水処理水の値近くで安定していると考えられる（Phase II）（表1）。これらの関係はCabana and Rasmussen<sup>9)</sup>による人口密度と一次捕食者の $\delta^{15}\text{N}$ 値との関係性を示したモデルや、和田ら<sup>29)</sup>が考案した水系の人口密度とPOM及び堆積物の $\delta^{15}\text{N}$ 値との関係性を示したモデルの挙動と一致する（図8）。和田らの報告ではさらに人口密度が増加すると（1000人/km<sup>2</sup>以上）、さらなる栄養塩や有機物負荷の増加によって水系での酸化還元状態に乱れが生じ、硝化・脱窒反応を促進することによって $\delta^{15}\text{N}$ が高くなると予測したが（Phase III）、本研究ではそういった傾向は見られなかった。しかし、高津ら（未発表）によるモンゴルでの未処理の生活排水が流入する河川水の $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ は14‰を示し、著者らが別件で調査した宇治川下流（UJ\_6）付近での河川水の $\delta^{15}\text{N}-\text{NO}_3^-$ は下水処理水の放流の影響を受け14.1‰となった。この原因はアンモニアの揮散や脱窒作用の促進によるものと考えられ、和田らが述べた状況（Phase III）は局所的に起こりうるであろう。本研究で示された淀川水系における人口密度400人

/km<sup>2</sup>、 $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$  10‰という値は水系が持続的に維持される上限、即ち一種の環境容量を表していると考えられる。

比較的大規模な流域の場合、河川への窒素負荷量はその流域の人間活動の大小を示し、人口密度と正の相関を示すとされている<sup>30)</sup>。即ち気象状況や植生などの自然環境の違いよりも人間活動が河川水質を決定する主要な要因となっており、本研究からもDIN濃度と人口密度との間には一定の関係性が見られたが、人口密度が低い地点や人口密

度が高い400人/km<sup>2</sup>以上の地点を他の水系と一緒に扱った場合、相関は得られなかった（図9）。これは水源の違いや河川流量の違いなどによるものであり、複数の河川を同列に評価できない。また、河川水中の窒素濃度は流域の人間活動の影響を受け増加するが、人間活動には生活排水や工場排水、農地からの負荷といった様々な負荷形態があり、さらに小規模河川の流入や湖やダムを介するなどと河川形態が様々であることから、大規模な水系において様々な河川の水質汚濁状況を既存の量的

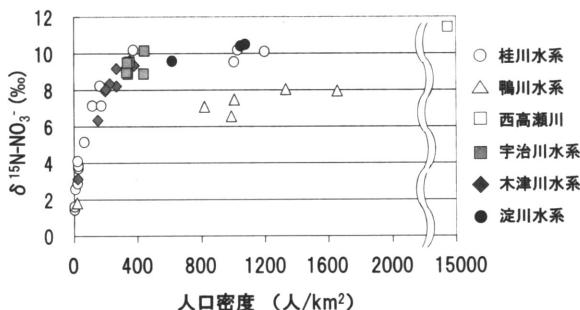


図6 各調査地点の人口密度と $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ の相関図

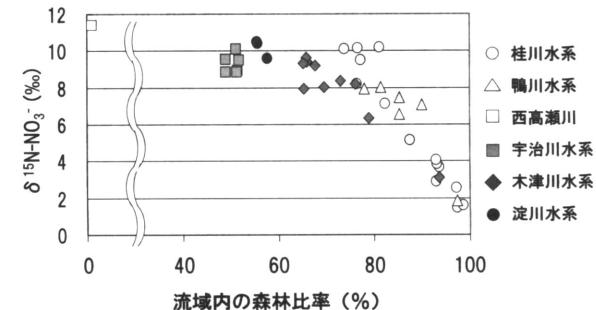


図7 各調査地点の森林比率と $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ の相関図

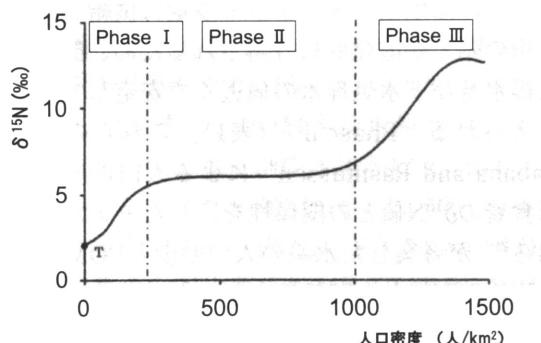


図8 水系の人口密度と河床堆積物及びPOMの $\delta^{15}\text{N}$ 値の関係（和田ら, 2001より引用）

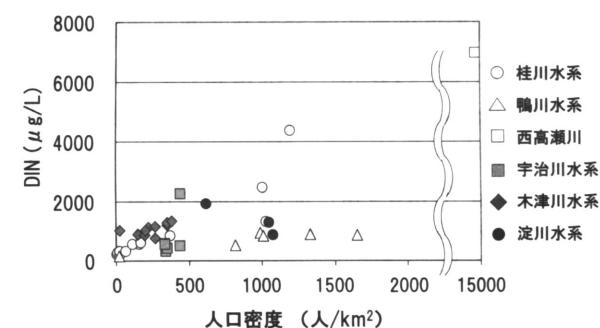


図9 各調査地点の人口密度とDINの相関図

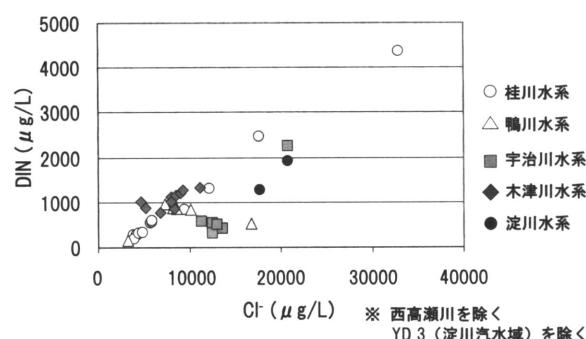


図10 各調査地点のCl<sup>-</sup>とDINの相関図

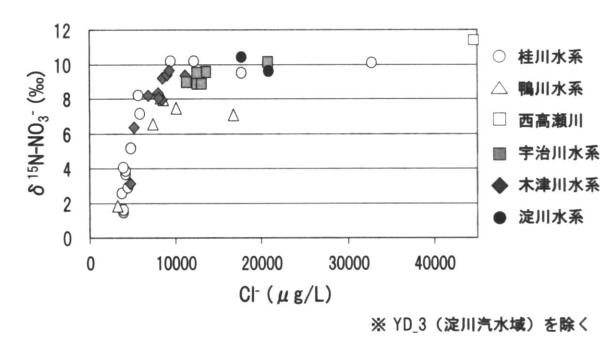


図11 各調査地点のCl<sup>-</sup>と $\delta^{15}\text{N-NO}_3^-$ の相関図

指標（環境基準値濃度など）から同一に解析するのは難しい。具体例として、本調査におけるDINとCl<sup>-</sup>の分布を図10に示す。これらは人間活動の大小を示すパラメータである。窒素（DIN）は酸化還元状況により脱窒などの影響を受け変動するが、Cl<sup>-</sup>は保存性の強いパラメータである。DINとCl<sup>-</sup>の濃度分布は必ずしも相関関係を有するものではないが各調査地点のDIN/Cl<sup>-</sup>比からは一定の相関が見られたが、宇治川及び淀川では他地点と比較して低い値となり、塩素負荷量と比較して窒素負荷量が少なく見積もられる。これを窒素安定同位体比を用いて解析すると本研究において宇治川のδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は約9%であるため、宇治川の水源である琵琶湖南湖のδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>はこれと同等であると考えられる。しかし高津ら（未発表）が季節ごとに5度行った琵琶湖へ流入する主要32河川での調査報告によると各河川のδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は平均5.8%であり、流量の大きな主要河川においては全体的に平均より低い値であるため、琵琶湖のδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は湖内で高くなっていると考えられる。これは湖内での脱窒によってδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が高くなっていると考えられ、大規模な脱窒による窒素の系外への放出が起こっていることを示している。また、Yamadaらによる琵琶湖北湖のδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が他の水系と比較して有意に高く、琵琶湖北湖で最大50%の脱窒が起こっているとの報告からも、宇治川及び淀川における低いDIN/Cl<sup>-</sup>比は脱窒によるものと裏付けられる<sup>6)</sup>。よって宇治川及び淀川の窒素現存量は塩素濃度が同程度の他の水系と比較して少ないが、これらの流域からの窒素流入量が少ないわけではないことが分かる。このように既存のパラメータでは解析できない質的評価をδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>を用いることによって解析することが可能である。またδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は保存性の強いCl<sup>-</sup>と強い相関を示すことから保存性が強く、さらに人間活動に伴う河川水質の質的状況を示す（図11）。

これらの結果からδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は水系における窒素供給源の特定が可能であるとともに、物質循環的視点から見た河川環境の質的状況を評価できることから、流域環境診断における優れた指標であると言える。

#### 4.2 まとめ

桂川水系では流下に伴い、人口密度の増加にしたがって水質濃度及び各種安定同位体比が序々に高い値となり、京都市内より急激に上昇した。宇

治川水系は琵琶湖湖水の影響を強く受けており、水質濃度及びδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>が高く支流河川と比較して流量が多いため、下流まで大きな変動を示さなかった。木津川水系の人口密度は上中流域で比較的高く中下流域で若干増加するが、水質濃度及びδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>も同様な挙動を示した。京都市内から排出される下水及び生活排水の殆どを京都市南部の大型下水処理施設にて処理するため、ここから排出される処理水の影響を受け、桂川及び宇治川の下流域（淀川合流前）にて急激に各種水質濃度が高くなり、δ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>も高い値を示した。淀川の水質及びδ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は3河川の影響を受け高い値となったが、大阪市内において水質濃度は一定の回復を示した。一方δ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は高い値となった。

δ<sup>15</sup>N-NO<sub>3</sub><sup>-</sup>は水系における窒素供給源の特定が可能であるとともに、物質循環的視点から見た河川環境の質的状況を評価できることから流域環境診断における優れた指標であると言える。

#### 注釈

- 注1) 井桁らの報告によると小規模河川では降雨の減少などによる流量の低下により窒素濃度が2倍以上増加する。また、水田を集水域とする河川では代かき時期のリン濃度は非灌漑期の5倍以上になる。DOは時間帯及び天候により大きく変化する。
- 注2) 本研究では淀川水系に猪名川流域は含まれていない
- 注3) DIN：溶存態無機窒素（NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、NO<sub>2</sub><sup>-</sup>-N、NH<sub>4</sub><sup>+</sup>-N）の和
- 注4) 淀川水系内の下水処理施設分布状況及び放流河川についての詳細は別章及びプロジェクト3-1報告書「水質・流入負荷から見た淀川下流域の問題構造（2006）」に記す。

#### 引用文献

- 1) McClelland, J. W., Valiela, I., Linking nitrogen in estuarine producers to land-derived sources. Limnol. Oceanogr., 43 (1998) 577-585.
- 2) Wayland, M., Hobson, K. A., Stable carbon, nitrogen, and sulfur isotope ratios in riparian food webs on rivers receiving sewage and pulp-mill effluents. Can. J. Zool., 79 (2001) 5-15.
- 3) Nakano T, Tayasu I, Wada E, Igeta A, Hyodo F, Miura Y., Sulfur and strontium isotope geochemistry of tributary rivers of Lake Biwa:

- implications for human impact on the decadal change of lake water quality. *Science of the Total Environment.* (2005) 345 : 1-12.
- 4) Lake, J. L., McKinney, R. A., Osterman, F. A., Pruell, R. J., Kiddon, J., Ryba, S. A., Libby, A. D., Stable nitrogen isotopes as indicators of anthropogenic activities in small freshwater systems. *Can. J. Fish Aquat. Sci.*, 58 (2001) 870-878.
  - 5) Cole, M. L., Kroeger, K. D., McClelland, J. W., Valiela, I., Macrophytes as indicators of land-derived wastewater: Application of a  $\delta^{15}\text{N}$  method in aquatic system. *Water Resources Research.* 41 (2005) 1014-1022.
  - 6) Yamada, Y., Ueda, T., Wada, E., Distribution of carbon and nitrogen isotope ratios in the Yodo river watershed. *Jpn. J. Limnology.* 57 (1996) 467-477.
  - 7) Cole, M. L., Valiela, I., Kroeger, K. D., Tomasky, G. L., Cebrian, J., Wigand, C., McKinney, R. A., Grady, S. P., Silva, H. C., Assessment of a  $^{15}\text{N}$  isotopic method to indicate anthropogenic eutrophication in aquatic ecosystems. *J. Environ. Qual.*, 33 (2004) 124-132.
  - 8) Coplen, T. B., Bohlke, J. K., Bievre, P. De., Ding, T., Holden, N. E., Hopple, J. A., Krouse, H.R., Lamberty, A., Peiser, H. S., Revesz, K., Rieder, S. E., Rosman, K. J. E., Roth, E., Taylor, P. D. P., Vocke, R. D. Jr., Xiao, Y. K., Isotope-abundance variations of selected elements (IUPAC Technical Report). *Pure Appl. Chem.*, 74 (2002) 1987-2017.
  - 9) Cabana, G., Rasmussen, J. B., Comparison of aquatic food chains using nitrogen isotope. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 93 (1996) 10844-10847.
  - 10) Kendall, C., Isotope tracers in catchment hydrology. Kendall, C. and McDonnell, J. J. [eds.] (1998) pp. 519-576, Elsevier.
  - 11) 小倉紀雄・石野哲・丹下勲「多摩丘陵表面流出中の硝酸塩の起源」『環境科学研究報告集』B104-R12-6 (1981) 23-28.
  - 12) 廣畠昌章・小笠康人・松崎達哉・藤田一城・松岡良三・渡辺征紀「熊本県U町の硝酸性窒素による地下水汚染機構」『地下水学会誌』41 (1999) 291-306.
  - 13) 山本洋司・朴光来・中西康博・加藤茂・熊澤喜久雄「宮古島の地下水中の硝酸態窒素濃度と $\delta^{15}\text{N}$ 値」『日本土壤肥料学会誌』66 (1995) 18-26.
  - 14) 田瀬則雄「水文学における環境同位体の利用」『化学工業』67 (2003a) 97-99.
  - 15) Hubner, H., Isotope effects of nitrogen in the soil and biosphere. In: Fritz, P. and Fontes, J.[eds] *Handbook of environmental isotope geochemistry*, 2. The terres-trial environment, B. (1986) 361-425, Elsevier, Amsterdam.
  - 16) Chien, S. H., Shearer, G., and Kohl, D. H., The N-isotope effects associated with nitrate and nitrite loss from waterlogged soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 41 (1977) 63-69.
  - 17) Wada, E., Imaizumi, R., and Takai, Y., Natural abundance of  $^{15}\text{N}$  in soil organic matter with special reference to paddy soils in Japan: Biogeochemical implications on the nitrogen cycle. *Geochem. Jour.*, 18 (1984) 109-123.
  - 18) Yoneyama, T., Nkano, H., Kuwahara, M., Takahashi, T., Kanbayashi, I., Ishizuka, J., Natural  $^{15}\text{N}$  abundance of field grown soybean grains harvested in various locations in Japan and estimate of the fractional contribution of nitrogen fixation. *Soil Sci. Plant Nutr.*, 32 (1986) 443-449.
  - 19) Mariotti, A., Landreau, A., Simon, B.,  $^{15}\text{N}$  isotope biogeochemistry and natural denitrification process in groundwater: Application to the chalk aquifer of northern France. *Geochim. Cosmochim. Acta.* 52 (1988) 1869-1878.
  - 20) 新井秀子・田瀬則雄「安定同位体を利用した河川浄化機能の評価」『環境科学会誌』5 (1992) 249-258.
  - 21) 国土交通省河川局『流量年表（平成14年）』(社) 日本河川協会, 東京 (2005) 280-295.
  - 22) Nakatsuka, T., Hanba, N., Wada, E., Wong, C. S., The dynamic changes of stable isotopic ratios of carbon and nitrogen in suspended and sedimented particulate organic matter during a phytoplankton bloom. *J. Mar. Res.*, 50 (1992) 267-296.
  - 23) 田瀬則雄『硝酸・亜硝酸性窒素汚染対策の展望』『水環境学会誌』26 (2003b) 546-550.

- 24) Finlay J. C., Controls of streamwater dissolved inorganic carbon dynamics in a forested watershed. *Biogeochemistry*. 62 (2003) 231-252.
- 25) Mishima, Y. Hoshika, A. Tanimoto, T., Deposition rates of terrestrial and marine organic carbon in the Osaka Bay, Seto Inland Sea, Japan, determined using carbon and nitrogen stable isotope ratios in the sediment. *Journal of Oceanography*. 55 (1999) 1-11.
- 26) Wada, E. Minagawa, M. Mizutani, H. Tsuji, T. Imaizumi, R. Karasawa, K., Biogeochemical studies on the transport of organic matter along the Otsuchi river watershed, Japan. *Estuarine Coastal and Shelf Science*. 25 (1987) 321-336.
- 27) 平田健正「硝酸性窒素による地下水汚染」『水環境学会誌』19 (12) 950-955 (1996)
- 28) 近藤洋正・田瀬則雄・平田健正「窒素安定同位体比を用いた宮古島における硝酸性窒素による地下水汚染の原因究明」『地下水学会誌』39 (1) 1-15 (1997)
- 29) 和田英太郎・西川絢子・高津文人「12. 安定同位体の利用. (1) 環境科学－特に水系について」『RADIOISOTOPES』50 (2001) 158-165.
- 30) Caraco, N. F. Cole, J. J., Human impact on nitrate export: An analysis using major world rivers. *Ambio*. 28 (1999) 167-170.

表2 調査結果（桂川水系）

sta.	SS (mg/L)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N (mg/L)	DIN (mg/L)	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P (mg/L)	Cl <sup>-</sup> (mg/L)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)	Mineral ion Na <sup>+</sup> (mg/L)	Mg <sup>2+</sup> (mg/L)	Ca <sup>2+</sup> (mg/L)	POM δ <sup>15</sup> N (‰)	δ <sup>13</sup> C (‰)	Sediment δ <sup>15</sup> N-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (‰)	C/N ratio (mol)	δ <sup>15</sup> N-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (‰)				
<b>桂川水系</b>																				
KT_1	1.8	0.19	0.00	0.01	0.20	0.01	3.91	2.38	3.21	0.36	0.78	2.03	-28.3	12.3	0.3	-31.1	18.6	1.4	1.0	
KT_2	3.4	0.19	0.00	0.01	0.20	0.01	3.91	2.45	3.24	0.38	0.93	2.14	-28.1	11.4	0.9	-29.0	15.4	1.6	0.7	
KT_3	3.3	0.26	0.00	0.01	0.27	0.01	3.80	2.89	3.37	0.42	1.24	3.32	-27.9	12.6	1.3	-27.3	11.9	2.5	1.1	
KT_4	3.7	0.27	0.00	0.01	0.28	0.01	4.24	3.28	3.75	0.53	1.42	4.15	-27.5	11.5	no data	no data	3.7	1.0		
KT_5	6.0	0.26	0.00	0.01	0.27	0.01	4.18	3.59	3.78	0.55	1.48	4.52	-27.6	12.1	1.7	-28.2	15.1	3.8	1.0	
KT_6 (Dam)	0.7	0.18	0.00	0.01	0.19	0.00	3.92	4.05	3.72	0.59	1.64	5.11	-23.2	7.3	2.7	-28.7	10.4	4.1	3.0	
KT_7	3.9	0.28	0.01	0.02	0.31	0.00	4.43	4.07	4.20	0.78	1.64	5.01	-25.6	8.3	4.3	-24.9	9.3	2.9	1.2	
KT_8	3.5	0.31	0.00	0.01	0.33	0.01	4.83	4.39	4.32	0.77	1.75	5.78	-25.6	8.3	3.9	-26.4	11.6	5.1	-0.2	
KT_9	4.3	0.54	0.01	0.02	0.56	0.03	5.86	6.11	5.22	1.22	2.19	8.13	-25.4	8.1	5.5	-26.4	9.9	7.1	-0.4	
KT_10	5.8	0.58	0.01	0.01	0.60	0.03	5.87	6.87	5.37	1.20	2.33	8.49	-25.9	9.2	5.6	-27.3	11.9	7.1	-0.9	
KT_11	3.5	0.80	0.01	0.02	0.83	0.03	9.43	10.2	8.97	1.84	3.38	12.0	-23.8	7.3	4.5	-28.1	13.1	10.2	-0.9	
KT_12	6.2	1.23	0.01	0.07	1.31	0.08	12.2	15.6	13.6	2.39	3.50	12.8	-28.6	7.5	7.6	-25.5	9.8	10.2	-1.0	
KT_13	2.8	2.35	0.02	0.09	2.46	0.12	17.7	24.4	21.3	3.28	3.14	12.7	6.7	-24.4	7.4	4.1	-26.0	10.5	9.5	-1.3
KT_14	10.0	4.17	0.04	0.17	4.37	0.34	32.8	49.0	42.2	5.88	4.22	17.6	6.7	-26.2	8.9	5.6	-26.5	10.9	10.1	-1.4
<b>南部川（桂川支流）</b>																				
SO_1	6.5	0.51	0.01	0.02	0.54	0.03	5.70	6.78	5.71	1.81	1.76	9.16	-26.1	9.8	6.5	-25.9	9.9	8.2	-0.9	
<b>鴨川水系（桂川支流）</b>																				
KM_1	0.8	0.15	0.00	0.01	0.16	0.02	3.25	3.97	4.01	0.40	1.21	5.14	-27.3	13.2	0.7	-27.8	18.6	1.8	-0.6	
KM_2	1.2	0.50	0.00	0.01	0.52	0.03	16.70	7.49	12.0	1.04	2.11	10.5	3.8	-23.3	8.3	3.4	-25.4	15.1	7.1	0.5
KM_3	1.1	0.83	0.00	0.01	0.84	0.03	10.10	8.57	8.30	1.07	2.26	11.31	6.1	-23.5	8.0	4.2	-25.4	14.3	7.5	0.7
KM_4	16.5	0.86	0.00	0.01	0.88	0.02	8.19	9.59	7.52	1.26	2.35	12.35	7.3	-24.2	8.8	4	-24.7	12.7	8.0	0.9
KM_5	5.0	0.83	0.00	0.01	0.85	0.02	8.56	10.3	7.79	1.36	2.38	12.72	7.3	-23.5	7.7	3.9	-24.5	13.2	8.0	1.3
<b>高野川（鴨川支流）</b>																				
TK_1	1.3	0.94	0.00	0.01	0.95	0.03	7.35	8.66	6.73	1.12	2.23	11.2	5.5	-24.8	8.5	4.5	-26.9	13.1	6.6	0.5
<b>西高瀬川（桂川支流）</b>																				
NT_1	3.9	6.58	0.09	0.42	7.09	0.23	46.0	77.5	63.8	7.99	4.77	16.8	6.5	-27.0	7.5	no data	no data	11.5	-2.6	

表2 (つづき)

sta.	Forest (%)	Farmland (%)	Building (%)	other (%)	population (person)	Population density (person/km <sup>2</sup> )	Watershed area (km <sup>2</sup> )	Data	comment
<b>桂川水系</b>									
KT_1	97.4	1.7	0.0	0.8	80	5	15	2003.8.18	
KT_2	98.5	0.9	0.0	0.5	193	4	45	2003.8.18	
KT_3	97.1	1.4	0.3	1.1	1250	9	134	2003.8.18	
KT_4	93.6	3.6	1.0	1.8	5437	27	200	2003.8.18	
KT_5	93.2	3.8	0.9	2.1	6981	26	270	2003.8.18	
KT_6 (Dam)	93.0	3.6	0.9	2.5	7095	24	291	2003.8.19	日吉ダム(ダム湖付)
KT_7	93.0	3.6	0.9	2.5	7095	24	291	2003.8.19	日吉ダム直下
KT_8	87.5	7.5	1.8	3.2	35743	65	546	2003.8.19	
KT_9	82.4	11.0	2.8	3.8	78307	116	676	2003.8.19	
KT_10	82.5	10.2	3.2	4.1	14179	172	823	2003.8.19	
KT_11	81.3	10.1	4.3	4.4	31980	375	853	2003.9.19	
KT_12	76.7	8.5	9.2	5.6	1121394	1033	1086	2003.9.19	
KT_13	77.3	8.1	9.1	5.5	1298183	1008	1288	2003.12.11	
KT_14	74.0	8.8	10.7	6.6	148735	1201	1181	2003.9.19	
<b>園部川(桂川支流)</b>									
SO_1	76.6	15.0	3.9	4.6	20191	163	124	2003.8.19	KT_7~KT_8に流入
<b>鴨川水系(桂川支流)</b>									
KM_1	97.4	0.0	0.0	2.6	32	20	2	2003.12.11	
KM_2	90.1	2.1	4.7	3.1	58634	820	71	2003.12.11	
KM_3	85.3	3.1	7.6	3.9	196748	1010	195	2003.12.11	
KM_4	81.5	2.7	10.4	5.3	295460	1332	222	2003.12.11	
KM_5	78.1	2.8	12.7	6.3	390670	1653	236	2003.12.11	KT_12~KT_13に流入
<b>高野川(鴨川支流)</b>									
TK_1	85.3	3.7	7.0	4.0	116113	989	117	2003.12.11	KM_2~KM_3に流入
<b>西高瀬川(桂川支流)</b>									
NT_1	0.0	1.5	76.4	22.1	165515	14975	11	2003.9.19	KT_12~KT_13に流入

表3 調査結果(宇治川水系・木津川水系・淀川)

sta.	SS (mg/L)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	NO <sub>2</sub> <sup>-</sup> -N (mg/L)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N (mg/L)	DIN (mg/L)	Inorganic ion (mineral)			POM (mol)	δ <sup>13</sup> C (‰)	C/N ratio (mol)	δ <sup>15</sup> N (‰)	Sediment δ <sup>13</sup> C (‰)	δ <sup>15</sup> N-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (‰)	δ <sup>18</sup> O-NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> (‰)
						PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P (mg/L)	Cl <sup>-</sup> (mg/L)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> (mg/L)							
宇治川水系 (琵琶湖集水域含む)															
UJ_1	3.3	0.29	0.00	0.02	0.31	0.01	12.5	19.3	11.3	1.94	2.68	16.4	6.8	-25.9	6.4
UJ_2	3.7	0.39	0.01	0.02	0.42	0.01	13.6	15.6	11.4	2.23	2.71	14.8	8.7	-26.8	6.4
UJ_3	2.3	0.54	0.01	0.04	0.58	0.01	11.3	15.4	10.0	2.22	2.57	13.5	6.1	-28.8	6.8
UJ_4	3.1	0.51	0.01	0.03	0.55	0.01	12.5	15.4	10.7	2.25	2.61	14.2	6.8	-26.1	7.0
UJ_5	3.5	0.46	0.01	0.04	0.51	0.02	13.0	14.3	11.0	2.44	2.70	14.6	6.5	-25.3	7.0
UJ_6	5.3	2.16	0.01	0.08	2.25	0.21	20.8	20.6	20.5	4.24	3.04	15.4	6.8	-25.4	7.5
木津川水系															
KD_1	7.4	0.99	0.00	0.01	1.01	0.02	4.72	3.72	5.23	1.04	1.61	5.60	2.1	-29.2	15.9
KD_2	4.2	0.85	0.01	0.02	0.88	0.03	5.16	4.74	5.80	1.58	1.53	7.98	4.4	-26.7	8.9
KD_3	5.3	0.79	0.01	0.05	0.85	0.05	8.36	8.71	8.44	2.49	2.32	10.8	4.0	-26.5	8.1
KD_4	5.1	0.94	0.02	0.06	1.02	0.04	8.01	8.83	7.73	2.45	2.36	10.6	6.6	-27.5	8.1
KD_5	3.7	1.14	0.01	0.01	1.16	0.04	8.49	10.5	8.42	2.72	2.34	11.2	7.0	-27.6	7.6
KD_6	6.2	1.18	0.01	0.02	1.21	0.04	9.04	11.6	9.35	2.83	2.47	11.5	9.2	-27.9	7.5
KD_7	5.5	1.26	0.01	0.01	1.28	0.04	9.29	11.8	9.51	2.88	2.45	11.9	10.5	-28.6	8.5
KD_8	8.1	1.30	0.02	0.01	1.33	0.04	11.1	12.9	11.8	3.10	2.82	12.7	9.9	-25.9	7.3
淀川 (木津川支流)															
NB_1	2.4	0.73	0.02	0.03	0.77	0.04	6.79	7.89	6.87	2.14	2.37	10.5	5.9	-25.0	8.5
NB_2 (Dam)	2.6	1.02	0.02	0.08	1.12	0.01	7.98	9.29	7.32	2.49	2.12	10.5	4.5	-28.7	5.9
淀川															
YD_1	4.3	1.78	0.05	0.09	1.92	0.12	20.8	21.9	20.0	3.80	3.50	17.6	9.7	-26.4	7.5
YD_2	4.4	1.24	0.01	0.03	1.28	0.07	17.7	17.2	15.6	3.15	3.34	13.9	9.9	-30.5	6.8
YD_3	4.8	0.81	0.02	0.03	0.86	0.05	>5g/L	>0.1g/L	>0.1g/L	>0.1g/L	>0.1g/L	>0.1g/L	6.2	-30.0	5.3
														-27.3	4.8
														-27.3	12.1
														-27.3	10.5
														-27.3	8.8
														-27.3	2.2

表3 (つづき)

sta.	Land-use Forest (%)	Land-use Farmland (%)	Building (%)	other (%)	population (person)	Population density (person/km <sup>2</sup> )	Watershed area (km <sup>2</sup> )	sampling data	comment
宇治川水系 (琵琶湖集水域含む)									
UJ_1	49.3	19.2	6.1	25.4	1276484	343	3721	2003.11.17	
UJ_2	49.2	19.1	6.2	25.5	1311854	352	3731	2003.11.17	
UJ_3	51.6	18.2	5.9	24.3	1351796	334	4046	2003.11.17	
UJ_4	52.0	18.1	5.9	24.0	1377544	335	4106	2003.11.17	
UJ_5	51.5	18.0	6.7	23.8	1856957	441	4206	2003.11.17	
UJ_6	51.4	18.0	6.7	23.9	1875731	445	4214	2003.11.17	
木津川水系									
KD_1	93.6	5.0	0.5	0.8	157	23	7	2003.9.1	
KD_2	79.1	13.1	2.6	5.3	22402	150	149	2003.9.1	
KD_3	65.5	21.3	4.6	8.6	103961	199	524	2003.9.1	
KD_4	69.7	18.6	4.1	7.5	242018	202	1200	2003.9.1	
KD_5	67.8	19.1	4.6	8.5	428124	267	1606	2003.9.2	
KD_6	66.1	19.3	5.3	9.3	594560	352	1688	2003.9.2	
KD_7	66.0	19.3	5.3	9.3	595432	352	1690	2003.9.2	
KD_8	65.4	19.6	5.5	9.5	652152	381	1710	2003.9.19	
名張川(木津川支流)									
NB_1	76.3	13.9	4.2	5.6	128124	268	478	2003.9.1	
NB_2 (Dam)	73.1	16.7	3.9	6.3	141604	223	634	2003.9.2	高山ダム(ダム湖内) KD_3-KD_4に流入
淀川									
YD_1	57.9	16.8	7.6	17.7	4476852	619	7231	2003.9.18	
YD_2	55.9	16.2	10.3	17.6	8109350	1050	7723	2003.9.18	
YD_3	55.8	16.2	10.4	17.7	8331070	1076	7740	2003.9.18	汽水域