

排水基準の強化と河川水中の全亜鉛濃度の変遷(2)

熊谷 禎晃 山田 晃司

本研究では、排水基準を定める省令の改正(平成18年環境省令第33号)が、愛知県内の河川水中における全亜鉛(Zn)濃度に与えた影響について検討した。愛知県内の69地点における1991～2022年度の公共用水域調査データを用いて、時間に対するZnの傾きについて窓を移動させながら求めるローリング回帰によりZnの減少傾向が概ね収まった時期を推定し、対応のあるt検定によりその前後での濃度変化を確認した。

ローリング回帰の結果、2009年4月を中心とする窓においてZnの有意な減少地点数と増加地点数が概ね等しくなったことから、2009年4月を基準年月とし、前後各2年間におけるZn濃度の比較を行ったところ、69地点中22地点で有意な濃度減少が認められ、とりわけ、木曾川、庄内川、境川、矢作川、豊川の本川下流側で有意な濃度減少が確認された。また、2007年4月～2009年3月の段階で 0.03 mg L^{-1} を超えていた12地点のうち7地点で有意な濃度減少が認められた。

この結果は、省令改正による排水基準強化がZnの減少に一定の効果をもたらした可能性を示唆している。

キーワード 水質汚濁防止法, 全亜鉛, 打ち切りデータ, 対応のあるt検定

1 はじめに

前報¹⁾において、筆者らは、報告下限値(Reporting Limit, RL)未満のデータの比率、すなわち打ち切りデータ*比率の小さい地点を解析対象候補地点とし、その中から庄内川等水域の4地点(地点番号022, 023, 016, 014)を選定した上で、工場等に対する亜鉛含有量の排水基準強化(平成18年省令改正²⁾**、 $5 \text{ mg L}^{-1} \rightarrow 2 \text{ mg L}^{-1}$)に伴い、河川水中のZnに変化が生じているか解析を行った。

以下の6つの状態空間モデルについて比較検討を行ったところ、AICの値からは4地点ともにModel 5が最も適切なモデルと考えられた。この結果から、省令改正ダミー変数を用いたモデルよりもCODとの関係を考慮したモデルによりZnの変動について説明できることが明らかになり、有機汚染物質対策が結果的にZnの低減に寄与してきた可能性が示唆された。

- Model 1 : 水準成分
- Model 2 : 水準成分 + 季節成分
- Model 3 : 水準成分 + 回帰成分(省令改正)
- Model 4 : 水準成分 + 季節成分 + 回帰成分(省令改正)
- Model 5 : 水準成分 + 回帰成分(COD)
- Model 6 : 水準成分 + 季節成分 + 回帰成分(COD)

* < 0.01 のように、範囲は $[0, 0.01]$ と定まっているが、値がどこにあるのかは特定できないデータのことをいう。

** 水質汚濁防止法第3条第1項の規定に基づく排水基準を定める省令(昭和46年総理府令第35号)の改正。

しかし、ここでの回帰成分は、Znの変化点を省令改正の既存施設への適用日(2007年6月11日)としたダミー変数を用いて検討したものであるため、変化点が適用日以外の日であった場合については検討していない。実際、事業者が対策を講じる時期については、中央環境審議会等における検討段階～省令公布～施行～施行後のいずれの可能性も考え得る。

また、既報の方法では、CODを説明変数とするモデルが最適とされたが、これは省令改正の効果を否定するものではない。

更には、庄内川等水域の4地点のデータに基づく解析結果を以って、他の水域における効果を推測することはできない。

そこで本研究では、回帰を行う際の窓(時間)を変化させながら回帰係数を求め、係数(Znの減少率)の変化から省令改正の効果が見られる時期について推定した。

その上で、打ち切りデータに対応した対応のあるt検定(paired t-test for censored data)を用いて、各地点におけるZnの減少の有無を確認した。

2 方 法

2.1 解析環境及びデータの前処理

データ解析にはR(4.4.3)³⁾及びRStudio(2024.04.1+768)⁴⁾を用いた。Rで使用した主なパッケージは以下のとお

りである。

- tidyverse(2.0.0)⁵⁾ : データの前処理や作図

- NADA2(1.1.8)⁶⁾ : 打ち切りデータの回帰, 検定

地図の描画にはRを用い, GISデータは国土数値情報ダウンロードサイト⁷⁾及び基盤地図情報ダウンロードサービス⁸⁾から入手した。

データセットには, 愛知県公共用水域水質調査結果⁹⁾のうち1991年4月～2023年3月におけるZnを用い, Znの環境基準点のうち省令改正のあった2007年頃にモニタリング調査が行われていた74地点(図1)を解析対象とした。ただし, 3.1項に述べるとおり5地点に関しては詳細な解析から除外し, 3.2項以降では69地点について解析した。

Znについて, 1991年4月～2007年3月は小数点以下2桁まで報告(小数点以下3桁目切捨て)されており, RLは 0.01 mg L^{-1} であった。2007年4月～2023年3月は小数点以下3桁まで報告(小数点以下4桁目切捨て)されており, RLは 0.001 mg L^{-1} であった。

環境省通知¹¹⁾において, 報告値の有効数字は2桁で, 3桁目以下は切り捨て, RLの桁数を下回る桁については切り捨てることとされている。また, 平均値の算出にあたっては, 個別の測定値がRL未満の数値について, RLの数値として取扱うこととされている。以降, 本報において特に記述のない箇所については通知を準用している。

外れ値が各種計算に大きく影響することを避けるため, 外れ値を除外する基準を設けた。外れ値の基準は, 5パーセンタイル値と95パーセンタイル値との間の範囲(IPR : Interpercentile range)を用いて, 以下に該当する場合にはNA(Not Available)に置き換えた(附表1参照)。

- 5パーセンタイル値 $-3 \times \text{IPR}$ 未満

- 95パーセンタイル値 $+3 \times \text{IPR}$ を超過

ある月に測定がされず翌月に2回測定がされている場合, 気象条件・測定機器不良等による順延の可能性が高いため, 翌月1回目のデータを当月分データとして扱うことにより, 月毎データとして整理した。

2.2 ローリング回帰によるZnの減少時期の推定

固定された窓サイズを用いて時間に対するZnの傾きを窓を移動させながら求めるローリング回帰^{*}により, Znの濃度減少が生じている時期の推定を試みた。

^{*} 一定期間の窓を設定し, そのウィンドウを少しずつずらしながら繰り返し回帰分析を行うことをいう。

Zn濃度の経時的な変化パターンを把握するため, 24か月(2年)を窓サイズとするローリング回帰分析を実施した。解析期間は2007年4月から2011年3月までの4年間とし, 窓の開始位置を1か月ずつずらしながら(2007年4月開始から2009年4月開始まで), 各窓において地点ごとに時系列回帰分析を行った。これにより, 県内各地点における濃度減少傾向の把握を試みた。なお, 省令施行(2007年12月)より前の年度(例えば2006年度)からのローリング回帰を行うことも検討したが, RL変更前と後とはデータの性質が異なりそれらを合わせて用いることで適切な解析ができなくなる可能性があるため, 最初の窓を2007年4月からの2年間としている。また, 後述の図2のとおりZnに季節変動があることから, 1年単位での窓を作成することが適当と考えられ, 一定のデータ数を確保する観点から2年間の窓とした。

各窓における回帰分析では, 窓の開始日からの経過日数を説明変数, Zn濃度を応答変数とした線形回帰を実施した。打ち切りデータを含む場合はNADA2::cencorregを用い, 打ち切りデータが存在しない場合は通常の線形回帰(base::lm)を用いた。得られた回帰係数の統計的有意性は両側検定($\alpha = 0.05$)により判定した。

ローリング回帰により得られた各窓における回帰係数の時系列変化をヒートマップにより可視化し, 全測定地点における全般的な傾向として濃度減少が生じている時期を視覚的に推定した。

2.3 基準年月の前後各2年におけるZnの変化

基準年月(2.2項の方法に基づき3.2項により推定した年月。2009年4月。)より前の2年間(2007年4月～2009年3月。前期。)と後の2年間(2009年4月～2011年3月。後期。)に差異が見られるかを対応のあるt検定により確認した。

まず, 地点毎にデータセットの前処理を行った。

前期と後期のデータを対にするにあたっては, 基準年月を挟んで2年間の間隔があるデータを選択することにした(例えば, 2007年8月と2009年8月のデータ)。これにより, 同月どうしを比較することで季節性を排除でき, また, すべてのペアが2年間隔であることにより短期的変動の影響を概ね均等にすることができる。

次に, NADA2::cen_paired()関数を用いて打ち切りデータに対応した対応のあるt検定を行った。なお, 2007年4月以降のデータのみを取り扱うため, 検定で扱うZnのRLは 0.001 mg L^{-1} である。NADA2::cen_paired()は, 打ち切りデータ(RL未満データ)を0からRLまでの区

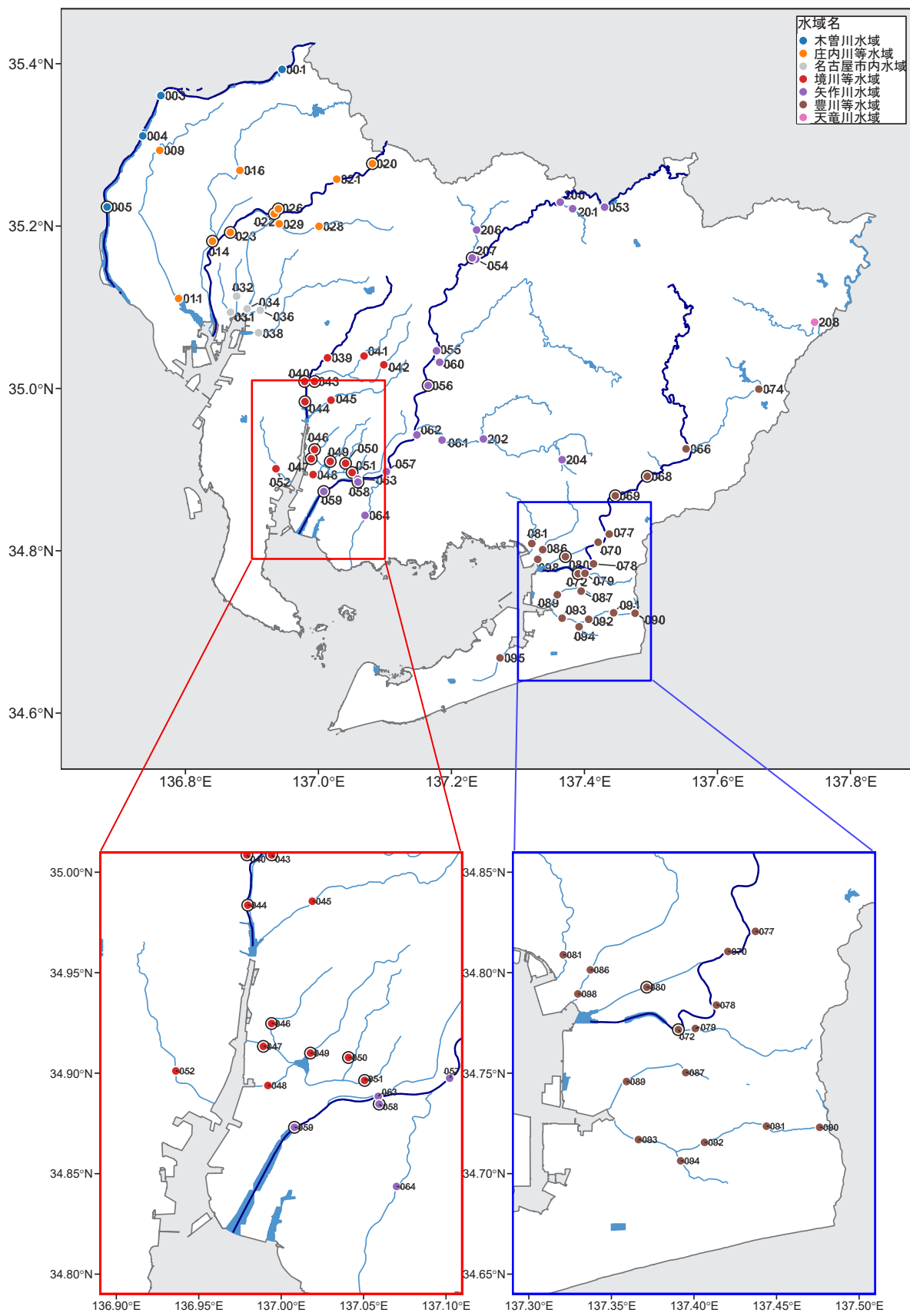


図1 測定地点の位置

間内のいずれかの値として扱う。その上で、観測された検出値と打ち切りデータの情報を統合し、母集団の平均と分散を最尤法により推定する。更に、打ち切りデータの存在を考慮して修正された t 統計量を算出する。

Znの濃度分布は対数正規分布に従うと仮定し、対数変換後の差分($\ln(\text{後期Zn}) - \ln(\text{前期Zn})$)について検定を実施した。対数差分($= \ln(\text{後期Zn}/\text{前期Zn})$)は濃度比の対数を表し、正規分布に従うと仮定した。

検定の有意水準は $\alpha = 0.05$ とし、帰無仮説と対立仮説を以下のとおりとした。

$H_0 : \mu_D = 0$ ($\ln(\text{前期Zn})$ と $\ln(\text{後期Zn})$ で差がない)

$H_1 : \mu_D < 0$ ($\ln(\text{前期Zn})$ より $\ln(\text{後期Zn})$ で減少)

ここで μ_D は対数差分の平均であり、 $\mu_D < 0$ は前期/後期の濃度比が1より小さい(すなわち後期に減少する)ことを意味する。

検定の実行及び結果の解釈については成書¹²⁾を参考にした。

3 結果と考察

3.1 Znに係る経時変化の概要

まず、1991年4月～2023年3月におけるZnの変化を、地点間の差異が分かるようリッジプロット*を用いて概観した(図2)。

図の中央付近にある赤線はRLが変更となった2007年4月1日を表している。比較的低濃度で推移している地点(例えば木曾川水域の001, 004, 005, 矢作川水域の053, 054, 055等、豊川水域の069, 070, 072等、天竜川水域の208)では、RLの変更前には報告下限値またはそれ未満である測定値が多く概ね平坦に推移しており、変更前のRL(0.01 mg L^{-1})ではZnの変動を捉えきれないことを表している。

省令改正頃における濃度の変化が特に目立つのは庄内川等水域の3地点(022, 023, 026)で、1990年代後半に濃度のピークがあり、2000年代頃から減少し、2010年代以降は減少した状態で概ね安定している。

水域別にみると、庄内川等水域(黄色)と境川等水域(赤色)において相対的に濃度が高い。境川等水域の中で相対的に高濃度の地点(043, 044)では、022, 023及び026と比較すると明確な差異ではないが、2010年頃までと比べそれ以降に濃度減少があるように見える。

名古屋市内水域について、2007年4月頃から数年の

* 複数群の測定値の分布を連ねて描画することにより比較する手法。

間のみ、他の期間と比べてZnの濃度レベルが低い。特定の測定機関による測定データのうち特定の時期にのみ値が低いことから、何らかの系統的な誤差が存在する可能性も考えられることから、同水域5地点については3.2以降の解析から除外することにした。

なお、名古屋市内水域の各河川は本報の対象河川の中では相対的に河川長が短く流域面積が小さい。また、名古屋市は一部地域を除き下水道が敷設されており(2008年3月末現在の人口普及率98.5%¹³⁾)、下水道法又は名古屋市下水道条例の規定に基づき事業場についても必要な除害施設を通した上で排水を下水道へ放流している¹⁴⁾。このため、この水域において省令改正の影響は限定的と考えられる。また、名古屋市内水域では合流式を採用している区域も多い¹⁵⁾ことから、各流域への非点源からの影響も限定的と考えられる。

3.2 ローリング回帰によるZnの減少時期の推定

2.2項の方法に基づき、各地点について24か月の窓によるローリング回帰を実施した。図3-1に、各地点における回帰係数(傾き)の時系列変化をヒートマップにより示す。また各窓における減少地点数を集計し、図3-2に示す。

既報では、省令改正による既設施設への新基準適用猶予期間の翌日(2007年6月11日)に改正の効果が現れることを仮定したモデリングを行った。この仮定のとおりであれば、窓番号4(2007年7月～2009年6月)以降において濃度減少は観測されないはずである。しかしながら実際には図3-1の左側半分では青色の画素が目立っている。各窓における増加地点数及び減少地点数をまとめた図3-2を見ると、窓13(2008年4月～2010年3月)において有意な減少地点と有意な増加地点とがほぼ同数になっている。このため、以降の解析では、窓13(2008年4月～2010年3月)の中間にあたる2009年4月を減少傾向が収束した基準の年月として扱う。

水域別に見ると、境川等水域(039-051)では、窓1-13において他の水域と比較して有意な減少がある地点が多い。

庄内川等水域(009-029)では窓番号13以降で有意に減少している窓が多かったが、これは022, 023, 026において2009年以降になって濃度減少している(図2)ことを反映したものである。

ただし、ローリング回帰による推定結果には以下の限界がある。第一に、変化点が明確に特定できたわけではなく、傾きが変化する過程を捉えたに過ぎない。とりわ

水域名 ■ 木曽川水域 ■ 庄内川等水域 ■ 名古屋市内水域 ■ 境川等水域 ■ 矢作川水域 ■ 豊川等水域 ■ 天竜川水域

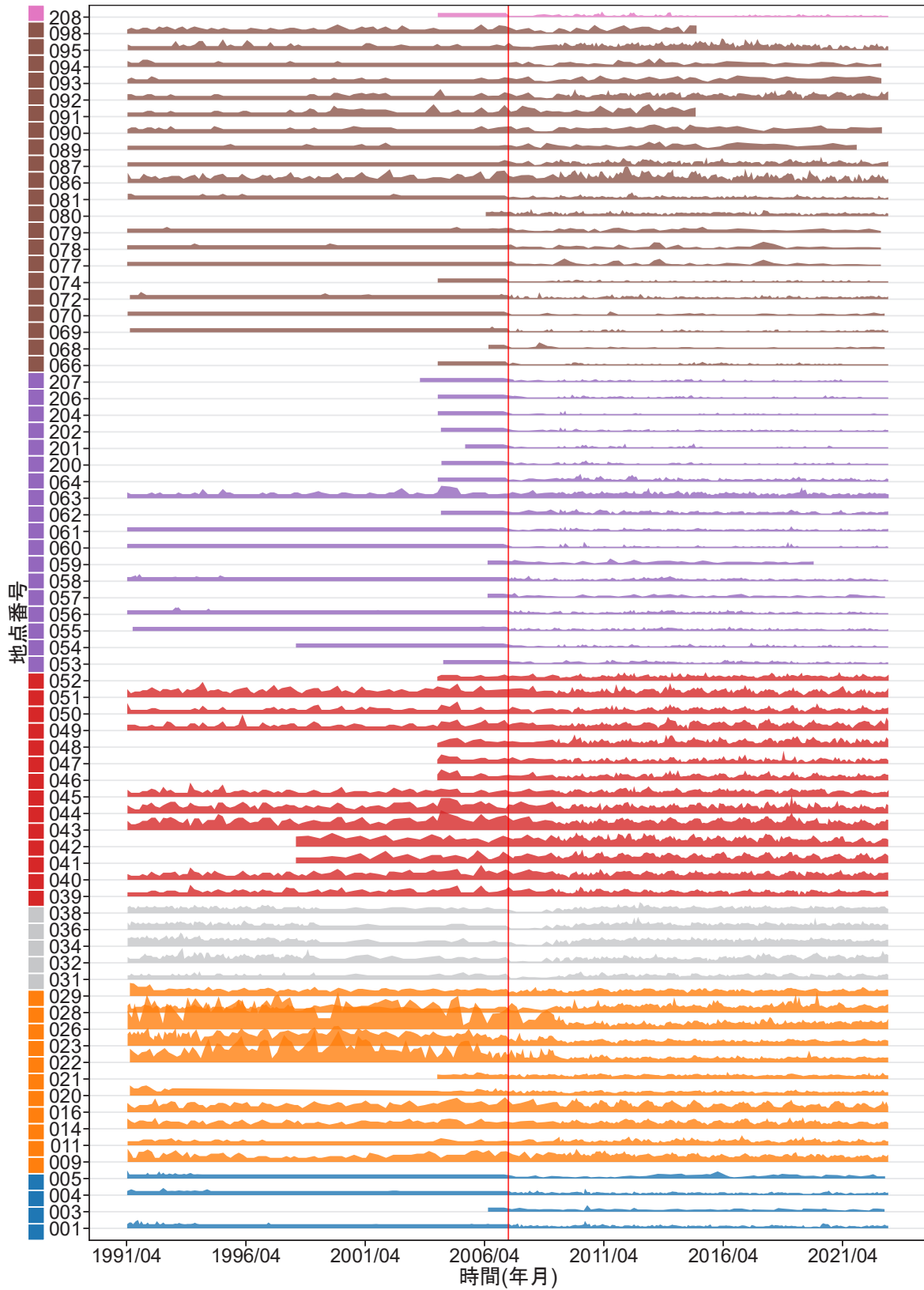


図2 Znのリッジプロット(74地点)

け地点別で見たときには変化の時期や傾向は相互に一致・類似しておらず、本報の方法では全般的な傾向を概観できたに過ぎない。第二に、窓のサイズを選択により結果が変わる可能性がある。窓を小さくすれば回帰係数の変動を敏感に反映することができるが、サンプルサイズは小さくなる。窓を大きくすれば、省令改正以外の変動要因を含めて解析してしまう可能性が増す。2年とい

う窓のサイズは、これらのバランスから筆者が任意に選んだにすぎない。第三に、2007年4月～2011年3月の4年間に省令改正以外の要因がZnに影響を与えた可能性を完全には排除できない。

これらの限界を踏まえつつ、本研究では2009年4月を基準年月として、その前後におけるZn濃度の統計的な比較を行うこととした(2.3項及び3.3項参照)。

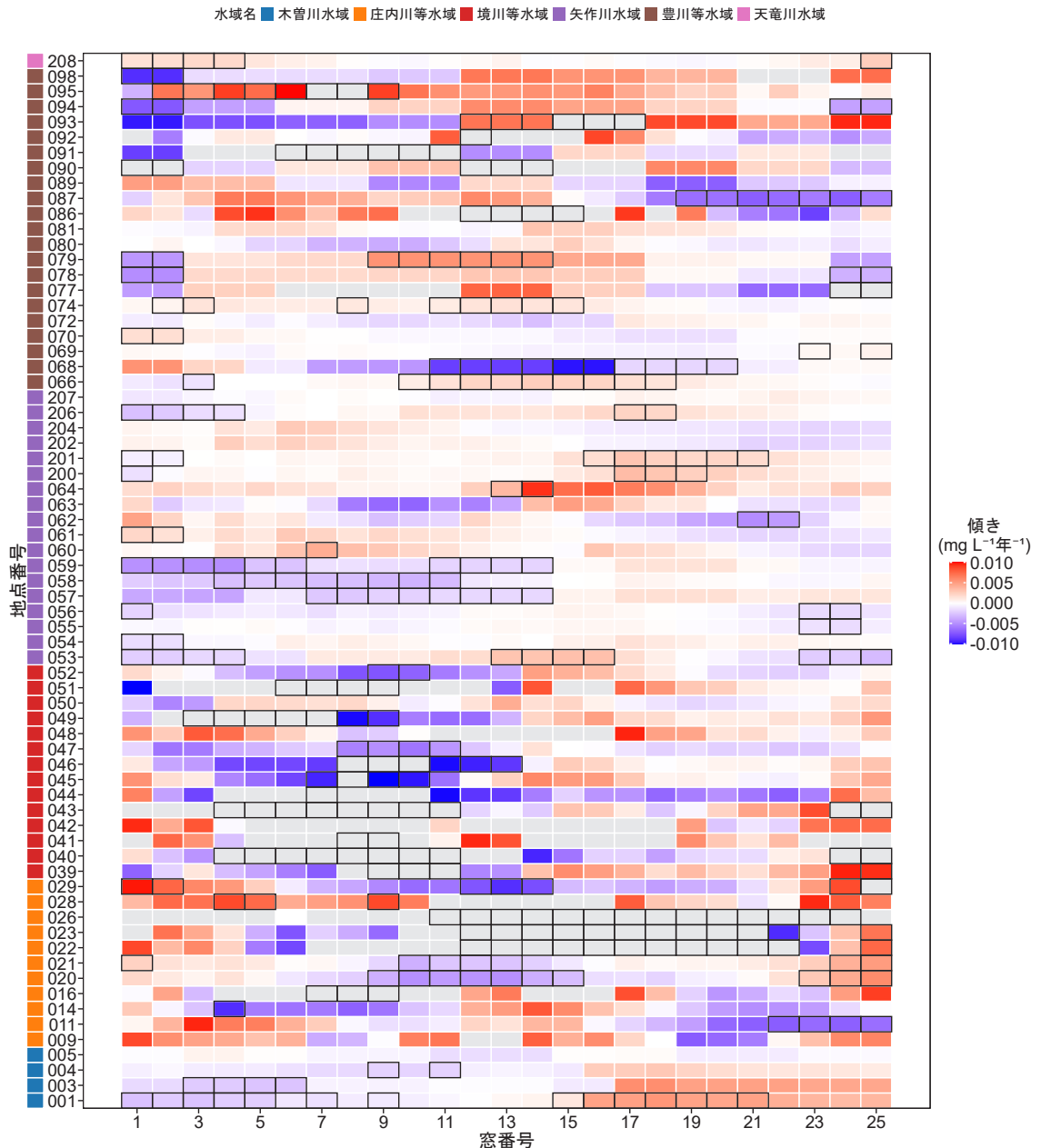


図3-1 Znの経時変化についてローリング回帰を行ったときの回帰係数の変化

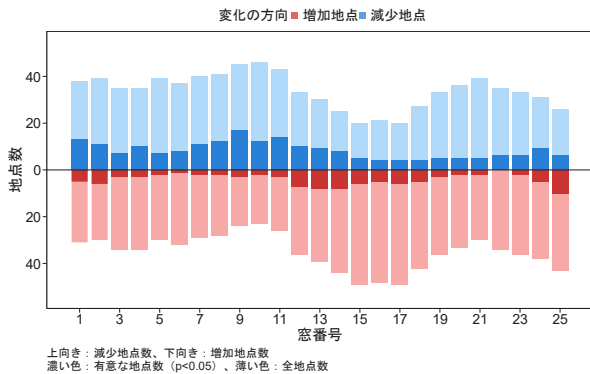


図3-2 回帰係数の増加・減少地点数

3.3 2009年4月の前後各2年におけるZnの濃度変化

3.2項で求めた基準年月(2009年4月)より前の2年間(前期)と後の2年間(後期)において、Znについて前期と比較し後期に減少があるかを確認した。

図2の増減の様子から、Znの濃度分布は高濃度側に裾の重い分布を示していると考えられる。また、経験的にも、多くの水質汚濁物質の濃度分布は非対称で高濃度側に裾が厚く対数正規分布の当てはまりがよい。このため、分布の形状には対数正規分布を仮定した。

まず、前期・後期でペアになっているZn(2.3項参照)のMAプロット*を示す(図4)。MAプロットでは、縦軸に対数スケールでの前期と後期の濃度差を、横軸に対数スケールでの前期と後期の平均を表す。図4において、庄内川等水域(黄色)及び境川等水域(赤色)のプロットの多くは、図の右側に位置しており、また中心線より下側に位置している。すなわち、これらの水域では相対的にZnが高く、後期にZnの減少が見られる傾向にある。

次に、地点別にペアの差分をプロットすると(図5)、前期と後期の差分が負の値をとっている地点、すなわち後期にZnが減少している地点には、庄内川等水域の地点(黄色: 026, 022, 023, 016, 014。), 境川等水域の地点(赤色: 043, 044, 051, 040, 049, 046, 047, 039。)が多かった。両水域ほど前後の差が顕著ではないが、矢作川水域(紫色: 063, 058, 056。)でも後期にZnが減少している地点が確認された。

更に、対応のあるデータの差分について差がある($\ln(\text{後期Zn}) - \ln(\text{前期Zn}) < 0$)という対立仮説を立て、有意水準 $\alpha = 0.05$ としてt検定(片側検定)を行ったところ

* 2群の測定値の差を視覚化する手法。対数をとるため低濃度側での差異についても確認が容易であり、また、差がない状態を恒等線($y = x$)で表す両対数プロットと比べ水平線($y = 0$)を基準とするため差異の視認が容易である。

ろ、69地点のうち22地点において有意であった(表1参照)。

木曾川等水域に関し、一級河川木曾川(流域面積5275 km² 16)の本川の4地点のうち最も下流側にある005では後期において有意な減少が見られた。4地点のZn濃度レベルは他の河川の地点と比較して小さく、前期平均、後期平均がともに10⁻³ mg L⁻¹オーダーであるが、下流側において濃度減少を検出できた。

庄内川等水域に関し、一級河川庄内川(流域面積1010 km² 16)の本川の中流にある020及び022、下流にある023では後期における有意な減少が見られた。022、023及び026(庄内川1次支川の八田川)では濃度比の幾何平均が0.5を下回り(すなわち半減しており)、他地点と比べ相対的に大きな濃度比の変化が確認された。また、庄内川の1次支川新川の上流側にある016では有意差が認められなかった($p = 0.12$)が、下流側にある014では有意な減少があった。

境川等水域に関し、二級河川境川(流域面積264 km² 17)の本川について、上流側(039)では有意な減少は認められなかった($p = 0.09$)が、下流側(040)では有意な減少があった。040では濃度比の幾何平均が0.5を下回り、濃度が半減するような大きな変化が確認された。また、境川1次支川の逢妻川では、上流側(043)、下流側(044)ともに有意な減少であった。更に、二級河川高浜川(流域面積68.2 km² 18)の測定点(047)や、高浜川(油ヶ淵を含む)に流入する稗田川、長田川、半場川、朝鮮川の各測定点(046, 049, 050, 051)においても有意な減少があった。これらの減少に関しては油ヶ淵の水環境改善を図る清流ルネッサンスII¹⁹に基づき各種施策がとられていた時期であることから、同施策の効果も含まれる可能性が考えられる。

矢作川水域に関し、一級河川矢作川(流域面積1830 km² 16)の本川の上流側にある055では有意差が認められなかった($p = 0.34$)が、その下流側にある056、更にはその下流側にある058、059では有意な減少があった。矢作川本川の濃度レベルは前期平均、後期平均ともに10⁻³ mg L⁻¹オーダーと小さい値であったが、微小な変化を確認することができた。

豊川等水域に関し、一級河川豊川(流域面積724 km² 16)本川の中流(068, 069)及び下流(072)では有意な減少が認められた。豊川本川の濃度レベルは前期平均、後期平均ともに10⁻³ mg L⁻¹オーダーで低いものの、濃度比の幾何平均で見ると0.5を下回る減少があったことを確認できた。また、豊川から分岐し三河湾に向かう豊川放水

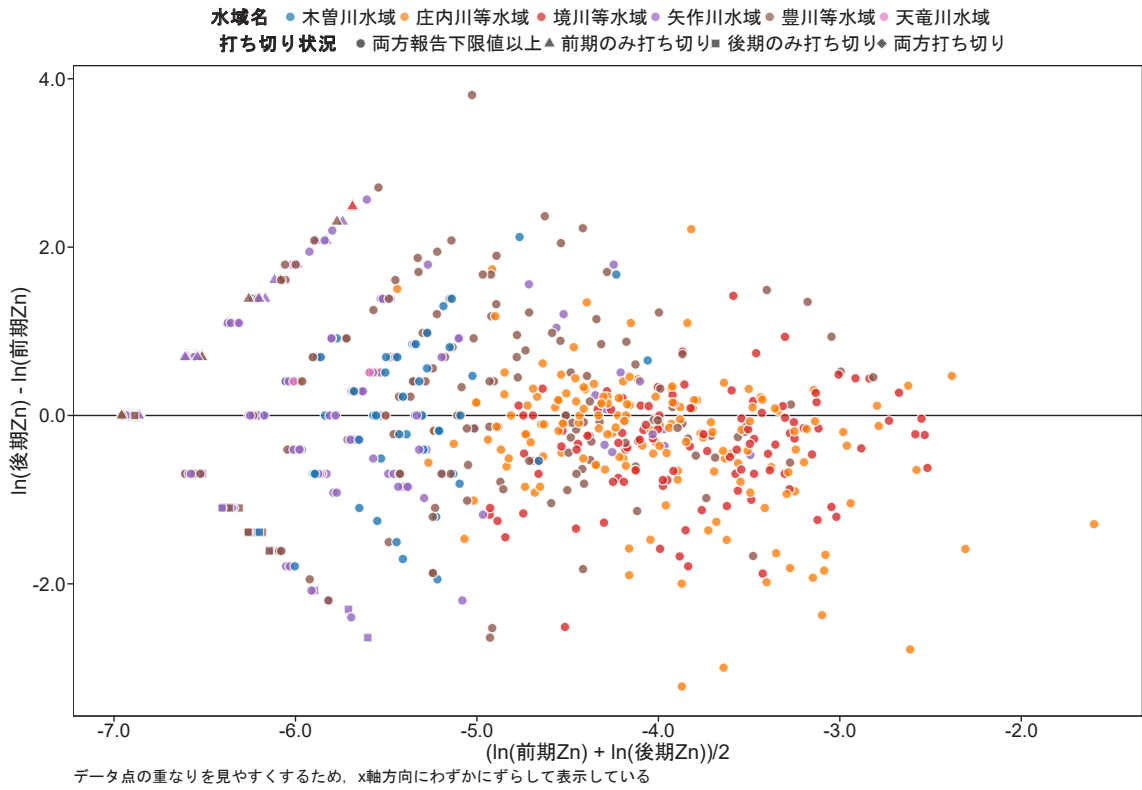


図4 MAプロット(69地点)

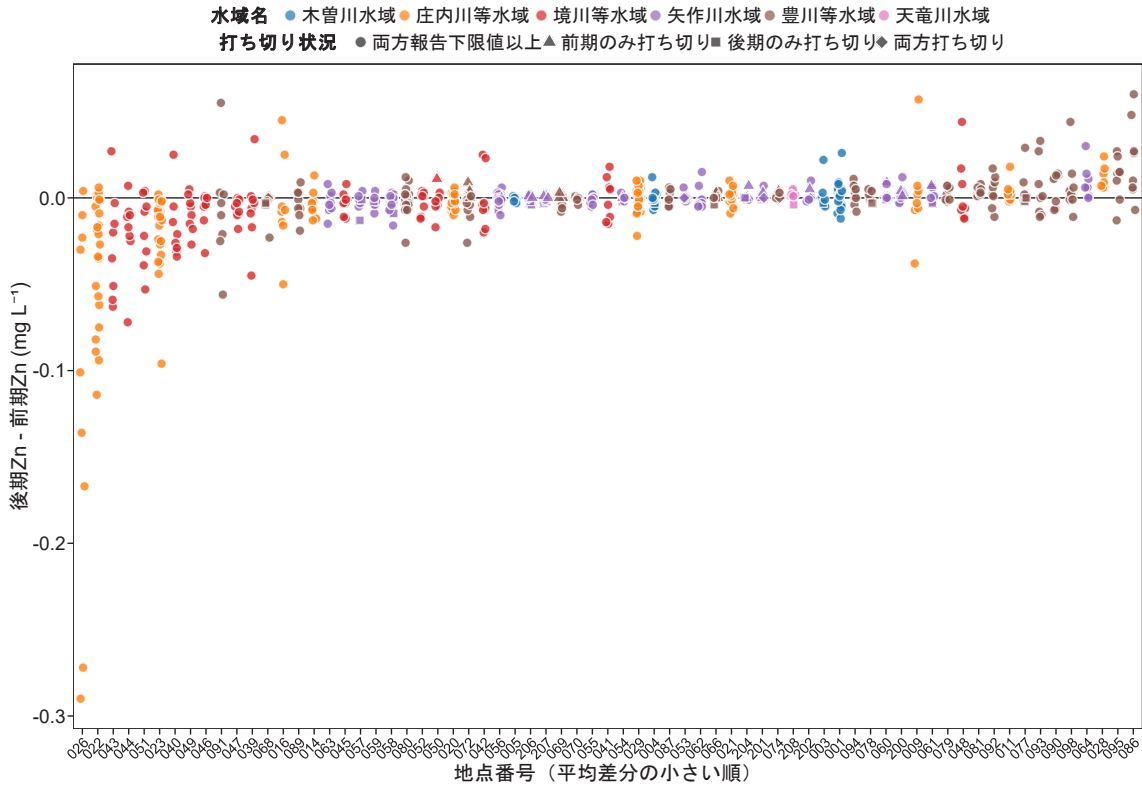


図5 地点別濃度差分プロット(69地点)

表1 対応のあるt検定の結果(69地点)

地点 番号	地点名	水域詳細	ペア 数n ¹	p値	対数差 の平均 ²	濃度比の 幾何平均 ³	参考	
							前期平均 ⁴	後期平均 ⁵
木曽川水域								
001	犬山橋	木曽川中流	24	0.79	0.17	1.18	0.0049	0.0064
003	木曽川橋(笠松)	木曽川下流	8	0.55	0.05	1.05	0.0048	0.0061
004	濃尾大橋(起)	木曽川下流	24	0.26	-0.08	0.92	0.0053	0.0050
005	東海大橋(成戸)	木曽川下流	8	0.03	-0.27	0.76	0.0030	0.0021
庄内川等水域								
009	北今橋	日光川	8	0.69	0.15	1.16	0.0375	0.0395
011	日光大橋	日光川	8	0.97	0.25	1.29	0.0121	0.0159
014	萱津橋	新川下流	8	0.03	-0.17	0.84	0.0297	0.0264
016	待合橋	五条川下流	8	0.12	-0.16	0.85	0.0574	0.0536
020	城嶺橋	庄内川中流(1)	24	0.01	-0.20	0.82	0.0110	0.0093
021	大留橋	庄内川中流(2)	24	0.67	0.03	1.03	0.0096	0.0101
022	水分橋	庄内川中流	24	0.00	-0.97	0.38	0.0490	0.0158
023	枇杷島橋	庄内川下流	24	0.00	-0.70	0.50	0.0328	0.0152
026	御幸	八田川	9	0.00	-1.26	0.28	0.1500	0.0361
028	大森橋	矢田川上流	8	1.00	1.02	2.77	0.0084	0.0196
029	天神橋	矢田川下流	24	0.45	-0.01	0.99	0.0191	0.0188
境川等水域								
039	新境橋	境川上流	8	0.09	-0.38	0.69	0.0278	0.0220
040	境大橋(境川)	境川下流	8	0.00	-0.80	0.45	0.0418	0.0249
041	御乗替橋	逢妻川上流(逢妻女川)	8	0.27	-0.09	0.92	0.0379	0.0375
042	宮前橋	逢妻川上流(逢妻男川)	8	0.44	-0.02	0.98	0.0491	0.0479
043	境大橋(逢妻川)	逢妻川上流	8	0.00	-0.56	0.57	0.0658	0.0384
044	市原橋	逢妻川下流	8	0.01	-0.51	0.60	0.0538	0.0340
045	三ッ又橋	猿渡川	8	0.08	-0.14	0.87	0.0230	0.0204
046	稗田橋	稗田川	8	0.01	-0.47	0.63	0.0184	0.0112
047	高浜橋	高浜川	8	0.00	-0.68	0.51	0.0150	0.0082
048	水門橋	新川	8	0.45	-0.03	0.97	0.0194	0.0229
049	潭水橋	長田川	8	0.00	-0.39	0.68	0.0267	0.0179
050	坂下橋	半場川	8	0.02	-0.25	0.78	0.0138	0.0118
051	坂下小橋	朝鮮川	8	0.00	-0.67	0.51	0.0394	0.0205
052	半田大橋	阿久比川	8	0.14	-0.20	0.82	0.0156	0.0135
矢作川水域								
053	矢作ダム	矢作川上流(1)	10	0.60	0.06	1.06	0.0027	0.0030
054	新富国橋	矢作川上流	8	0.35	-0.11	0.89	0.0019	0.0015
055	明治用水頭首工	矢作川上流	24	0.34	-0.06	0.94	0.0026	0.0022
056	岩津天神橋	矢作川下流	24	0.04	-0.31	0.73	0.0037	0.0026
057	木戸	矢作川下流	7	0.22	-0.32	0.72	0.0050	0.0024
058	米津大橋	矢作川下流	24	0.01	-0.42	0.66	0.0044	0.0021
059	中畑橋(伏見屋)	矢作川下流	7	0.04	-0.51	0.60	0.0057	0.0033
060	細川頭首工	巴川	8	0.66	0.24	1.27	0.0013	0.0031

地点 番号	地点名	水域詳細	ペア 数 ¹	p値	対数差 の平均 ²	濃度比の 幾何平均 ³	参考	
							前期平均 ⁴	後期平均 ⁵
061	岡崎市上水道取入口	乙川上流	8	0.96	0.51	1.66	0.0027	0.0048
062	占部用水取入口(六名)	乙川下流	8	0.27	-0.17	0.84	0.0084	0.0088
063	米津小橋	鹿乗川	8	0.19	-0.10	0.90	0.0195	0.0166
064	古川頭首工	矢作古川	8	1.00	1.07	2.92	0.0039	0.0131
200	小渡新橋	介木川	8	0.67	0.26	1.29	0.0018	0.0036
201	万町浄水場取入口	介木川	8	0.60	0.18	1.19	0.0013	0.0023
202	学校橋	男川	8	0.68	0.23	1.25	0.0018	0.0031
204	ツノジ橋	雨山川及び乙女川下流	8	0.20	-0.24	0.78	0.0013	0.0019
206	堀越橋	木瀬川及び犬伏川下流	8	0.67	0.16	1.17	0.0021	0.0014
207	犬伏橋	木瀬川及び犬伏川下流	8	0.00	-0.55	0.58	0.0020	0.0014
豊川等水域								
066	長篠橋	豊川上流	8	0.58	0.09	1.09	0.0015	0.0020
068	石田	豊川中流	7	0.01	-1.28	0.28	0.0057	0.0011
069	江島橋	豊川中流	24	0.00	-0.89	0.41	0.0019	0.0013
070	当古橋	豊川中流	7	0.10	-0.50	0.61	0.0017	0.0011
072	吉田大橋	豊川下流	22	0.00	-0.75	0.47	0.0040	0.0024
074	鳳来橋	宇連川	8	0.88	0.26	1.30	0.0011	0.0024
077	六盃橋	間川	8	0.99	0.82	2.27	0.0037	0.0085
078	神田川橋	神田川	8	1.00	0.73	2.08	0.0045	0.0063
079	境橋	朝倉川	8	0.93	0.40	1.49	0.0044	0.0073
080	小坂井大橋	豊川放水路	24	0.05	-0.26	0.77	0.0079	0.0057
081	剣橋	音羽川	8	1.00	0.67	1.95	0.0040	0.0078
086	柳橋	佐奈川	8	1.00	0.51	1.66	0.0290	0.0509
087	下立合橋	柳生川	8	0.82	0.23	1.26	0.0081	0.0080
089	市場橋	柳生川	8	0.41	-0.07	0.93	0.0135	0.0101
090	飛越橋	梅田川	8	1.00	0.91	2.48	0.0107	0.0168
091	沢渡橋	梅田川	8	0.20	-0.26	0.77	0.0304	0.0235
092	御厩橋	梅田川	8	0.95	0.58	1.78	0.0119	0.0156
093	植田橋	梅田川	8	0.89	0.51	1.67	0.0110	0.0160
094	佐久良橋	浜田川	8	0.96	0.59	1.81	0.0070	0.0087
095	船倉橋	汐川	8	1.00	0.75	2.12	0.0131	0.0245
098	浜田橋	佐奈川	8	0.90	0.74	2.09	0.0089	0.0160
天竜川水域								
208	常盤橋	大千瀬川	8	0.99	0.64	1.90	0.0019	0.0031

¹ 同一地点における前期(2007年4月-2009年3月)と後期(2009年4月-2011年3月)のZnについてペアを形成している

² $\Sigma\{\ln(\text{後期Zn}/\text{前期Zn})\}/n$

³ 式を個別に記載

⁴ 前期Znの算術平均 (mg L⁻¹)

⁵ 後期Znの算術平均 (mg L⁻¹)

路の地点(080)においても有意な減少が認められた。

天竜川水域に関しては、調査対象とした天竜川支川の1地点(208)では有意な減少は認められなかった。なお、天竜川の下流は静岡県内にある。

環境基準値(0.03 mg L^{-1})*との関係では、前期Znが 0.03 mg L^{-1} を超過していた12地点(庄内川等水域の009, 016, 022, 023, 026, 境川等水域の040, 041, 042, 043, 044, 051, 豊川等水域の091)のうち7地点において有意な減少が見られた。

以上のとおり、一級河川である木曾川、庄内川、矢作川、豊川や二級河川境川の下流側、すなわち比較的流域規模の大きい河川の本川下流側では有意な結果が得られた。各河川流域に存在する工場等からの公共用水域への直接的な放流水あるいは下水道処理施設経由での排水が最終的に流入する下流側において有意差が認められたことから、省令改正が少なくとも部分的に河川水中のZn低減に寄与した可能性が考えられた。ただし、2009～2011年度の間省令改正以外の何らかの要素がZnに影響を与えた可能性は排除できない。前期において環境基準値(0.03 mg L^{-1})よりも高い濃度レベルにあった12地点のうち7地点で有意な減少が見られたことは、排水基準の目的である環境基準の達成という観点においても意義深い結果であった。

4 ま と め

本研究では平成18年省令改正による亜鉛の排水基準強化が河川水中のZn濃度に与えた影響について、愛知県内69地点のモニタリングデータを用いて検討したところ、以下の知見を得た。

- 1) ローリング回帰により、2007年4月から2011年3月までの期間について24か月窓により回帰係数を求めたところ、省令改正によるZn減少の効果は概ね2009年4月頃まで続いたと考えられた。このことは省令改正の時点以降も県全体ではZnの減少が続いてきた可能性を示唆するものであるが、長期的な時間スケールで見れば省令改正の時期と大きくずれはない。
- 2) 打ち切りデータに対応した対応のあるt検定により、

* 環境基準値は年間平均値として定められている。庄内川等水域では2013年12月に、境川等水域では2009年3月に類型指定された。なお、本報においては、類型指定の時期を考慮せず、また年間平均値ではなく個々の測定値について 0.03 mg L^{-1} とを比較している。

2009年4月を基準年月とした前後各2年間(前期・後期)の比較を行ったところ、69地点中22地点で統計学的に有意なZn濃度の減少が確認された。

- 3) 比較的流域規模の大きい河川の本川下流側において、後期に濃度減少が観測された。これは、流域内の工場等からの排水が最終的に集約される地点で効果が顕在化することを示している。
- 4) 前期において 0.03 mg L^{-1} を超過していた12地点中7地点において、後期に有意な濃度減少が確認された。これは、環境基準値の達成という観点において重要な結果であった。
- 5) 油ヶ淵周辺の地点において後期に有意な減少があった。このことは省令改正の効果以外に、時期を同じくして実施されていた清流ルネッサンスIIによる改善対策の効果の可能性も考えられた。

本研究では、打ち切りデータに対応した対応のあるt検定を用いることにより、打ち切りを含む低濃度域での微小な変化も一定程度検出でき、これにより河川モニタリング結果に基づく法規制の効果の評価が可能であることを示した。

一方、Znが相当に低いレベル($10^{-3} \text{ mg L}^{-1}$ オーダー)で推移している地点では測定データの有効数字が1桁しか得られないことから、サンプルサイズの小ささに基づく検出力の低さと合わせ、打ち切りに対応したt検定によってもなお差異の検出は困難であった可能性がある。また、効果の有無の検証をt検定に依存しており、省令改正以外の要因の影響を排除できていないため、因果関係の特定には限界があり、省令改正以外の要因が有意な減少と関係している可能性も排除できない。

また、Zn濃度の変化の起こった時期の推定に関しては明確な変化点の特定ができておらず、規制強化を始めた施策の効果が生じる時期についての推定に関しては、手法の更なる改善が必要と考えられる。

本研究で用いた統計的手法は、打ち切りデータを含む様々な環境測定データの解析に適用可能と考えられるため、今後適用分野を広げていきたい。

謝 辞

本研究は過去に蓄積されてきた公共用水域調査の結果を活用したものであり、同調査に御尽力されてきた調査機関の皆様、行政機関の皆様、その他関係の皆様に深謝申し上げます。

文 献

- 1) 熊谷禎晃, 山田晃司 排水基準の強化と河川水中の全亜鉛濃度の変遷, 愛知県環境調査センター所報, 52, 1–24 (2024)
- 2) 環境省 平成18年環境省令第33号, <https://www.env.go.jp/press/files/jp/8700.pdf> (2025.9.24)
- 3) R Core Team R : A language and environment for statistical computing , <http://www.R-project.org> (2026.2.24)
- 4) Posit RStudio Desktop, <https://posit.co/download/rstudio-desktop/> (2026.2.24)
- 5) Hadley Wickham, Mara Averick, Jennifer Bryan, Winston Chang , Lucy D’Agostino McGowan , Romain François, Garrett Golemund, Alex Hayes, Lionel Henry, Jim Hester, Max Kuhn, Thomas LinPedersen, Evan Miller, Stephan Milton Bache, Kirill Müller, Jeroen Oom, David Robinson, Dana Paige Seidel, Vitalie Spinu, Kohske Takahashi, Davis Vaughan, Claus Wilke, Kara Woo and Hiroaki Yutani Welcome to the tidyverse, *Journal of Open Source Software*, 4 (43), 1686 (2019), <https://doi.org/10.21105/joss.01686>
- 6) Paul Julian and Dennis Helsel NADA2: Data Analysis for Censored Environmental Data (2024), [https://CRAN.R-project.org/src/contrib/Archive/NADA2\(2026.2.24\)](https://CRAN.R-project.org/src/contrib/Archive/NADA2(2026.2.24)) (注 : 最新バージョンはCRANの外で配付されている)
- 7) 国土交通省 国土数値情報ダウンロードサイト, <https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/> (2026.2.24)
- 8) 国土地理院 基盤地図情報ダウンロードサービス <https://service.gsi.go.jp/kiban/app/> (2026.2.24)
- 9) 愛知県環境局環境政策部水大気環境課 公共用水域及び地下水の水質調査結果, 1991年度～2022年度(1993–2024)
- 10) 愛知県環境局環境政策部水大気環境課 愛知県の河川, 湖沼, 海域, 地下水などの状況, <https://www.pref.aichi.jp/soshiki/mizutaiki/0000063715.html#koukyouyousuiiki> (2026.2.24)
- 11) 環境省水・大気環境局長 環境基本法に基づく水質環境基準及び水質汚濁防止法に基づく常時監視等の処理基準(平成13年5月31日付け環水企第92号)(最終改正:令和7年2月14日付け環水大管発第2502142号) (2025)
- 12) Dennis R. Helsel Statistics for Censored Environmental Data Using Minitab and R, WILEY (2011)
- 13) 名古屋市上下水道局 平成20年度版 なごやの水道・下水道 (2008)
- 14) 名古屋市下水道条例 (昭和22年条例第35号) <https://www.water.city.nagoya.jp/file/54974.pdf> (2026.2.24)
- 15) 名古屋市上下水道局 名古屋市公共下水道排除方式(合流式・分流式)の区分について, <https://www.water.city.nagoya.jp/category/11002haisuisetsubi/12220.html> (2026.2.24)
- 16) 国土交通省 日本の川, https://www.mlit.go.jp/river/toukei_chousa/kasen/jiten/nihon_kawa/index.html (2026.2.24)
- 17) 愛知県建設局河川課 境川流域 総合治水対策/流域の概要 <https://www.pref.aichi.jp/site/ryuikichisui/sakaigawa-gaiyou.html> (2026.2.24)
- 18) 愛知県 高浜川水系河川整備計画, <https://www.aichi-river.jp/i15-R1.htm> (2026.2.24)
- 19) 油ヶ淵水質浄化促進協議会 第二期水環境改善緊急行動計画, https://www.pref.aichi.jp/kasen/kasen/kasen_seibi/runessansu2/rena2.htm (2026.2.24)

附 録

附表1 各調査地点(74地点)におけるZnの要約統計量

地点 番号	地点名	水域詳細	平均 値 ¹	標準 偏差	最小値	P5 ²	P50 ²	P95 ²	最大値	閾値 (上限)	閾値超 過数 ³
木曾川水域											
001	犬山橋	木曾川中流	0.008	0.005	0.001	0.002	0.010	0.012	0.058	0.042	1
003	木曾川橋(笠松)	木曾川下流	0.004	0.003	0.001	0.002	0.004	0.010	0.025	0.034	0
004	濃尾大橋(起)	木曾川下流	0.006	0.004	0.001	0.001	0.005	0.010	0.030	0.037	0
005	東海大橋(成戸)	木曾川下流	0.009	0.008	0.001	0.002	0.010	0.016	0.090	0.060	1
庄内川等水域											
009	北今橋	日光川	0.036	0.110	0.007	0.010	0.026	0.065	1.700	0.230	1
011	日光大橋	日光川	0.016	0.036	0.004	0.006	0.010	0.030	0.580	0.100	1
014	萱津橋	新川下流	0.039	0.150	0.008	0.012	0.028	0.056	2.400	0.190	1
016	待合橋	五条川下流	0.050	0.140	0.010	0.013	0.038	0.084	2.300	0.300	1
020	城嶺橋	庄内川中流(1)	0.011	0.007	0.003	0.005	0.010	0.021	0.060	0.068	0
021	大留橋	庄内川中流(2)	0.010	0.004	0.002	0.005	0.010	0.016	0.030	0.049	0
022	水分橋	庄内川中流	0.060	0.092	0.005	0.008	0.018	0.270	0.620	1.100	0
023	枇杷島橋	庄内川下流	0.046	0.045	0.003	0.010	0.022	0.140	0.230	0.530	0
026	御幸	八田川	0.130	0.250	0.004	0.011	0.033	0.510	3.000	2.000	1
028	大森橋	矢田川上流	0.034	0.067	0.002	0.010	0.021	0.073	0.800	0.260	3
029	天神橋	矢田川下流	0.024	0.017	0.006	0.010	0.021	0.039	0.200	0.130	2
名古屋市内水域											
031	荒子川ポンプ所	荒子川	0.012	0.006	0.001	0.005	0.010	0.022	0.040	0.074	0
032	東海橋	中川運河	0.023	0.016	0.001	0.006	0.020	0.050	0.130	0.180	0
034	港新橋	堀川	0.028	0.013	0.001	0.010	0.027	0.050	0.110	0.170	0
036	道徳橋	山崎川	0.020	0.011	0.001	0.008	0.020	0.039	0.097	0.130	0
038	千鳥橋	天白川	0.019	0.008	0.001	0.010	0.020	0.031	0.070	0.095	0
境川等水域											
039	新境橋	境川上流	0.027	0.098	0.001	0.008	0.016	0.038	1.300	0.130	2
040	境大橋(境川)	境川下流	0.038	0.120	0.003	0.010	0.028	0.053	1.600	0.180	2
041	御乗替橋	逢妻川上流(逢妻女川)	0.036	0.020	0.007	0.012	0.031	0.074	0.110	0.260	0
042	宮前橋	逢妻川上流(逢妻男川)	0.046	0.035	0.007	0.014	0.039	0.091	0.410	0.320	1
043	境大橋(逢妻川)	逢妻川上流	0.070	0.220	0.010	0.020	0.050	0.110	3.600	0.380	1
044	市原橋	逢妻川下流	0.048	0.150	0.006	0.015	0.032	0.080	2.400	0.280	1
045	三ッ又橋	猿渡川	0.028	0.081	0.005	0.010	0.020	0.046	1.300	0.150	1
046	稗田橋	稗田川	0.016	0.011	0.003	0.005	0.013	0.038	0.070	0.140	0
047	高浜橋	高浜川	0.012	0.010	0.001	0.002	0.010	0.027	0.100	0.100	1
048	水門橋	新川	0.027	0.023	0.006	0.009	0.022	0.060	0.250	0.210	1
049	潭水橋	長田川	0.032	0.070	0.001	0.010	0.022	0.062	1.100	0.220	1
050	坂下橋	半場川	0.020	0.050	0.001	0.006	0.013	0.040	0.790	0.140	1
051	坂下小橋	朝鮮川	0.039	0.120	0.003	0.009	0.028	0.070	1.900	0.250	1
052	半田大橋	阿久比川	0.015	0.008	0.005	0.007	0.013	0.033	0.045	0.110	0
矢作川水域											
053	矢作ダム	矢作川上流(1)	0.004	0.006	0.001	0.001	0.003	0.010	0.069	0.037	1
054	新富国橋	矢作川上流	0.003	0.003	0.001	0.001	0.002	0.010	0.014	0.037	0

地点番号	地点名	水域詳細	平均値 ¹	標準偏差	最小値	P5 ²	P50 ²	P95 ²	最大値	閾値(上限)	閾値超過数 ³
055	明治用水頭首工	矢作川上流	0.005	0.004	0.001	0.001	0.003	0.010	0.012	0.037	0
056	岩津天神橋	矢作川下流	0.007	0.004	0.001	0.001	0.010	0.010	0.030	0.037	0
057	木戸	矢作川下流	0.004	0.003	0.001	0.001	0.003	0.010	0.014	0.037	0
058	米津大橋	矢作川下流	0.007	0.004	0.001	0.001	0.010	0.010	0.030	0.037	0
059	中畑橋(伏見屋)	矢作川下流	0.006	0.004	0.001	0.002	0.005	0.011	0.022	0.037	0
060	細川頭首工	巴川	0.004	0.004	0.001	0.001	0.001	0.010	0.023	0.037	0
061	岡崎市上水道取入口	乙川上流	0.005	0.004	0.001	0.001	0.003	0.010	0.016	0.037	0
062	占部用水取入口(六名)	乙川下流	0.006	0.004	0.001	0.001	0.005	0.013	0.021	0.047	0
063	米津小橋	鹿乗川	0.021	0.062	0.004	0.008	0.014	0.033	1.000	0.110	1
064	古川頭首工	矢作古川	0.005	0.005	0.001	0.001	0.004	0.013	0.036	0.049	0
200	小渡新橋	介木川	0.013	0.150	0.001	0.001	0.001	0.010	2.000	0.037	1
201	万町浄水場取入口	介木川	0.002	0.002	0.001	0.001	0.001	0.010	0.015	0.036	0
202	学校橋	男川	0.002	0.003	0.001	0.001	0.001	0.010	0.012	0.037	0
204	ツノジ橋	雨山川及び乙女川下流	0.002	0.002	0.001	0.001	0.001	0.010	0.013	0.037	0
206	堀越橋	木瀬川及び犬伏川下流	0.002	0.002	0.001	0.001	0.001	0.010	0.010	0.037	0
207	犬伏橋	木瀬川及び犬伏川下流	0.002	0.003	0.001	0.001	0.001	0.010	0.010	0.037	0

豊川等水域

066	長篠橋	豊川上流	0.002	0.002	0.001	0.001	0.001	0.010	0.010	0.037	0
068	石田	豊川中流	0.002	0.004	0.001	0.001	0.001	0.010	0.025	0.037	0
069	江島橋	豊川中流	0.005	0.004	0.001	0.001	0.002	0.010	0.020	0.037	0
070	当古橋	豊川中流	0.004	0.004	0.001	0.001	0.002	0.010	0.011	0.037	0
072	吉田大橋	豊川下流	0.006	0.005	0.001	0.001	0.004	0.010	0.050	0.037	1
074	鳳来橋	宇連川	0.002	0.002	0.001	0.001	0.001	0.010	0.010	0.037	0
077	六盃橋	間川	0.010	0.019	0.001	0.001	0.010	0.016	0.200	0.061	1
078	神田川橋	神田川	0.008	0.005	0.001	0.001	0.010	0.015	0.034	0.058	0
079	境橋	朝倉川	0.009	0.007	0.001	0.003	0.010	0.014	0.069	0.050	1
080	小坂井大橋	豊川放水路	0.006	0.004	0.001	0.001	0.005	0.014	0.031	0.052	0
081	剣橋	音羽川	0.007	0.004	0.001	0.002	0.006	0.012	0.031	0.043	0
086	柳橋	佐奈川	0.033	0.026	0.001	0.007	0.024	0.080	0.160	0.300	0
087	下立合橋	柳生川	0.012	0.007	0.001	0.004	0.010	0.027	0.054	0.095	0
089	市場橋	柳生川	0.012	0.007	0.002	0.005	0.010	0.025	0.040	0.086	0
090	飛越橋	梅田川	0.015	0.008	0.002	0.010	0.010	0.030	0.045	0.091	0
091	沢渡橋	梅田川	0.022	0.018	0.006	0.010	0.012	0.061	0.093	0.210	0
092	御厩橋	梅田川	0.018	0.011	0.001	0.006	0.016	0.038	0.070	0.130	0
093	植田橋	梅田川	0.013	0.007	0.002	0.006	0.010	0.029	0.037	0.098	0
094	佐久良橋	浜田川	0.011	0.006	0.001	0.004	0.010	0.020	0.044	0.068	0
095	船倉橋	汐川	0.018	0.013	0.001	0.005	0.014	0.046	0.083	0.170	0
098	浜田橋	佐奈川	0.017	0.011	0.001	0.004	0.012	0.040	0.050	0.150	0

天竜川水域

208	常盤橋	大千瀬川	0.003	0.005	0.001	0.001	0.001	0.010	0.050	0.037	1
-----	-----	------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	-------	---

¹ 単位は(mg L⁻¹)。報告下限値未満の数値について報告下限値の数値とした上で算出した。また、有効数字を2桁にした後に表示を小数点以下3桁目までに統一した。文献1)附表1と本附表では、報告下限値未満の値及び報告下限値変更前の小数点以下第3位の扱いに違いがあるため、値が一致していない箇所がある。他の統計量についても同様。

² 5, 50, 95パーセンタイル値

³ 文献1)附表1と本附表では、報告下限値未満の値及び報告下限値変更前の小数点以下第3位の扱い並びにIPRの範囲に違いがあるため、値が一致していない箇所がある。閾値(下限)の超過数はすべて0であるため、記載を省略した。