

茶畑施肥に由来する硝酸性窒素と周辺表流水に及ぼす影響 Nitrate nitrogen due to fertilizer application to tea plantation and its effect on ambient surface water

井伊博行*, 平田健正**, 松尾宏***, 田瀬則雄****, 西川雅高*****

by Hiroyuki II, Tatemasa HIRATA, Hiroshi MATSUO,

Norio TASE, and Masataka NISHIKAWA

Large amounts of nitrogen fertilizers were applied into the soil in a tea plantation. The pH values of spring and well water originated from the tea plantation were below 7. Although acidic spring water flowed into a local pond, the pH value of the pond water remained above 7. The increase in pH values within the pond was associated with an increase in DO (dissolved oxygen) and $\delta^{15}\text{N}$ values and the partial disappearance of NO_3^- . As DO values within the pond remained high and nitrogen assimilation was associated with the production of oxygen by the photosynthesis of algae, nitrogen assimilation was concluded to give rise to increases in pH values within the pond.

Key word : $\delta^{15}\text{N}$, tea plantation, NO_3^- , nitrogen assimilation, dissolved oxygen

1. はじめに

硝酸性窒素による地下水汚染が全国的に顕在化している。この硝酸性窒素の供給源として生活排水や畜産廃棄物の地下浸透、畑地への施肥などが挙げられるが、中でも食葉野菜への過剰な施肥が汚染要因の1つと考えられている。特に、茶畑では有機肥料や無機肥料の使用量が多く、平均施肥量が、1トン/haを越えることも希でない。これは、わが国平均で降雨によってもたらせられる窒素負荷量10kg/haの100倍にも達する¹⁾。こうした背景から、本研究では茶畑周辺の表流水の肥料による水質への影響を調べた。

調査地域は茶樹園の広がる九州中部地域で、対象地域は年降水量は約1500mm、年平均気温は16℃である。主に平地は水田、丘陵地は果樹、茶畑に利用され、丘陵地から山地に森林が分布する。また、この地域は、多くの農業用のため池が分布する。図-1に示すように茶畑の肥料による水質への影響を調べるために、茶畑のある谷地と隣接する針葉樹や広葉樹からなる茶畑のない谷地の2ヶ所を選定し、湧水、池水を定期的に採水した。また、調査地域の水質の傾向がこの

* 正会員 理博 和歌山大学助教授 システム工学部 (〒640 和歌山市栄谷930)

** 正会員 工博 和歌山大学教授 システム工学部 (同上)

*** 理修 福岡県保健環境研究所 (〒818-01 太宰府市大字向佐野39)

**** 理博 筑波大学助教授 筑波大学地球科学系 (〒305 つくば市天王台1-1-1)

***** 理博 国立環境研究所 (〒305 つくば市小野川16-2)

地域全体の傾向とどのような関係にあるのかを調べるために、周辺の井戸、沢水、池水も採水した。肥料は茶畑に2月から9月まで毎月施肥されている。茶畑直下流に位置する池は茶畑の湧水が唯一の水源であり、通常は系外に排水されていない。森林地域に設けた対照地の池も同様に常時下流に流出する排水溝はない。

2. 現地観測

調査対象地域と試料採取地点を図-1に示す。この地域内で茶畑からの湧出水①、その直下流にある池水②、さらに対照地として設けた隣接する森林域の直下流に位置する池水③について、1995年1月25日から1995年12月15日までの1年間、月1回の割合で採水を行った。採取した試料のpH、DO(溶存酸素)、温度などは原位置で測定した。さらに試水の溶存成分の内、イオンクロマトグラフィで Ca^{2+} 、 Na^{+} 、 Mg^{2+} 、 K^{+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^{-} 、 Cl^{-} 、 NH_4^{+} を測定し、 HCO_3^{-} は滴定で分析した。 NO_3^{-} の窒素安定同位体

比 $\delta^{15}\text{N}$ 値の分析はケルダール硝化法により NO_3^{-} をアンモニアに置換した後、硫酸でトラップして濃縮し、アルカリ条件で N_2 ガスを発生させ、精製した N_2 ガスを質量分析計で測定した²⁾。

3. 調査結果と考察

3.1 ヘキサダイアグラム及びトリリニアーダイアグラム

1995年11月7日に採取した水のヘキサダイアグラムとトリリニアーダイアグラムを図-2に描いた。同図より茶畑の湧水①は Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^{-} を主体とし、森林からの

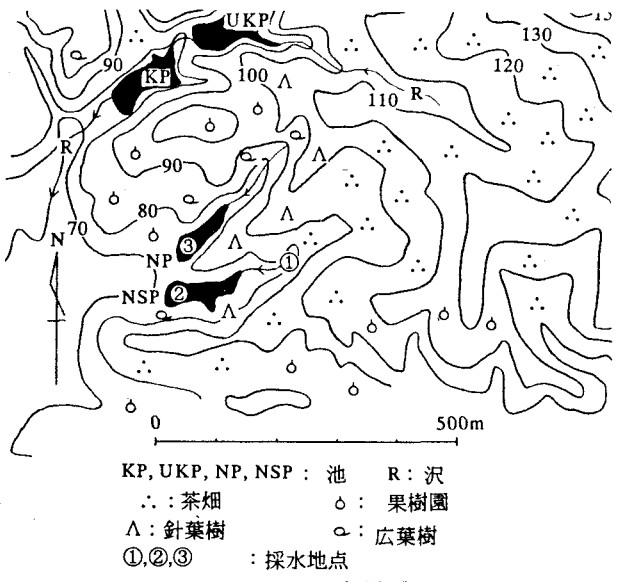
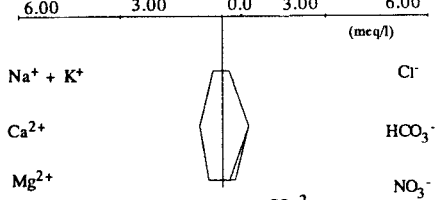
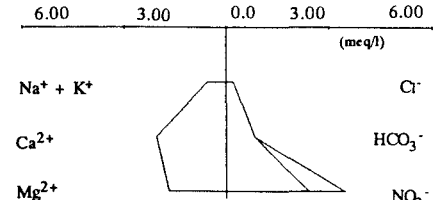


図-1 調査地点

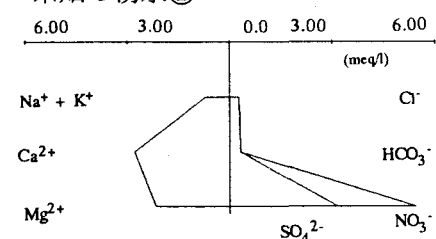
森林の池水③



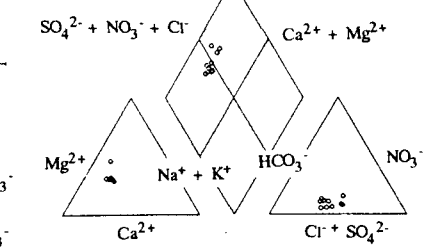
茶畑の池水②



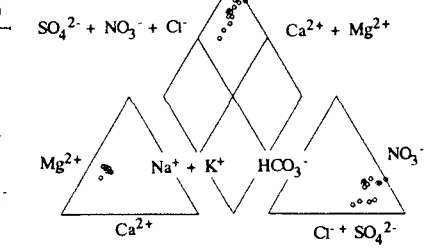
茶畑の湧水①



森林の池水③



茶畑の池水②



茶畑の湧水①

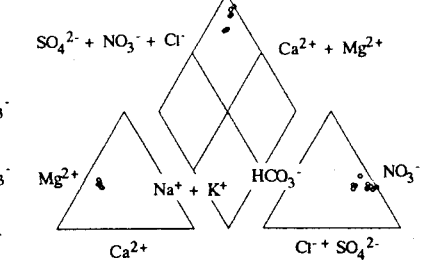
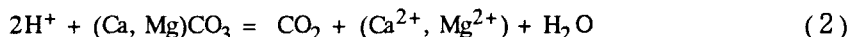
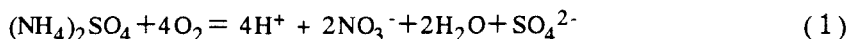


図-2 ヘキサダイアグラムとトリリニアーダイアグラム

池水③は Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 HCO_3^- を主体としていることが判る。茶畑の水質成分が Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- を主体とするのは、肥料中に含まれる硫酸（ $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ）が、(1)式に示す硝化過程で、硝酸や硫酸に変わり、その後、中和剤として茶畑にまかれた炭酸塩鉱物（ドロマイト： $(\text{Ca}, \text{Mg})\text{CO}_3$ ）と酸との(2)式で表される反応によって変化したためと考えられる。



一方、森林からの池水③は溶存イオン量が茶畑からの流出水に比べて少なく、陰イオンの割合も肥料に多く含まれる SO_4^{2-} 、 NO_3^- が少ないことから肥料の影響が少なかったことが判る。

3.2 pHの変化

図-3にpHの変化を示す。同図には、本研究の対象とした試水①、②、③に加えて、比較のため試験地周辺で採取した茶畑下流の池水1、池水2と茶畑の井戸1、井戸2の4地点の季節変動も描いた。茶畑からの湧水①のpHは、常に低く、酸性を示す。しかしながら、この湧水が水源である茶畑の池水②のpHは常に湧水よりも高く、酸性の水が入らない森林の池水③のpHよりも高いこともある。茶畑の池水はこの湧水が唯一の水源であるため、池の中でpHが変化するような現象があったと考えられる。この地域の他の茶畑の池水1と池水2でもpHは高く、逆に茶畑の井戸1、2のpHは低い。

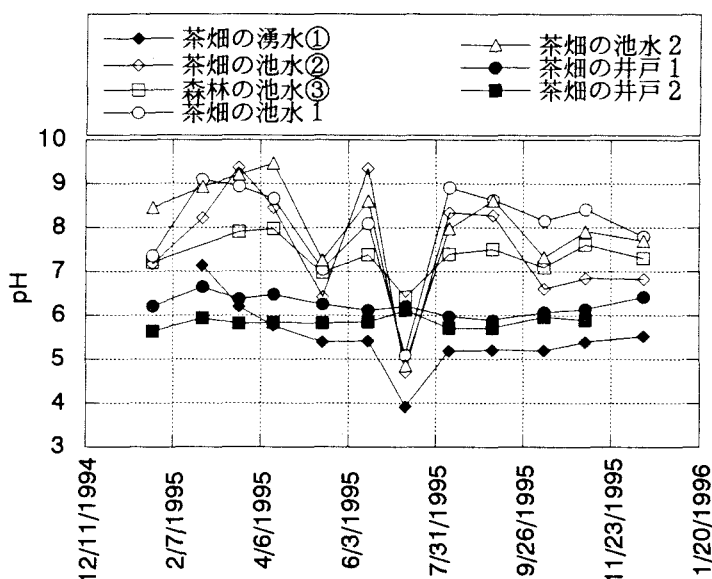


図-3 pHの経時変化

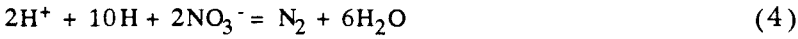
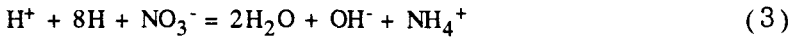
これらのことから、茶畑湧出水の影響を受ける池水の方が湧水や井戸水よりもpHが高いことがこの地域の大きな特徴と考えられる。

5月の初旬と7月の初旬に150と300mmの降雨があり、特にその直後にpHはどの試水でも著しく低下した。これは肥料から生じた酸性の水が土壌中のドロマイトと(2)式で示される中和反応が十分に進行せずに流出したためと考えられる。

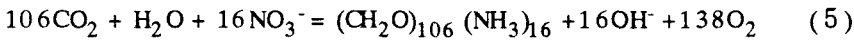
3.3 pHと NO_3^- の関係

茶畑湧出水には主成分として NO_3^- が含まれ、その直下流にある池の中でpHが変化したため、 NO_3^- -N(硝酸性窒素)濃度とpHの関係を図-4に描いた。この図から湧水から池水へpHが増加するにつれて NO_3^- -N濃度は減少することが判る。 NO_3^- 濃度の減少とpHの増加を伴う現象として、

脱窒やNO₃⁻の植物プランクトンによる同化が考えられる。脱窒はバクテリアによって次のような反応で進行する³⁾。



また、藻類などのプランクトンによるNO₃⁻の同化は、次式で表される⁴⁾。



いずれの現象でもNO₃⁻が減少して、水はアルカリ側に变化する。脱窒は還元状態で反応が進みやすく、同化は光合成を伴うため反応が起こると水の溶存酸素濃度が上昇する⁴⁾。なお、NO₃⁻濃度の減少を起こす原因としては、雨水の希釈も考えられる。

3.4 窒素安定同位体比δ¹⁵NとDO（溶存酸素量）の関係

脱窒は溶存酸素が少ない還元状態で反応が進みやすい。一方、同化は光合成を伴うので同化が生じると水の溶存酸素濃度が上昇すると考えられるため、図-5に示すように溶存酸素量を調べた。また、NO₃⁻濃度が雨水の希釈によっても湧水と池の水で変化することと考えられたので、NO₃⁻のδ¹⁵N値も測定した。ここで、δ¹⁵N値は

$$\delta^{15}\text{N} = [(\text{Rsample}/\text{Rair}) - 1] \times 10^3 \tag{6}$$

で定義され、Rは窒素を構成する原子量15と14の比R = ¹⁵N/¹⁴Nである。また、Rsampleは対象試水、Rairは空気中の窒素成分の比であるため、空気中の窒素を固定して製造される無機化学肥料(硫安など)の窒素安定同位体比はδ¹⁵N値は理論上、0‰となる。さらに、生物・化学反応では軽い同位体¹⁴Nが選択的に代謝されるため、例えば脱窒などが生じれば、水に溶解している窒素成分の同位体比は高まることが知られている¹⁾。

したがって、脱窒や同化によってNO₃⁻の一部が分解、吸収されると、池水に残ったNO₃⁻のδ¹⁵N値は増加することになる⁴⁾。雨水による希釈では、雨水中のNO₃⁻濃度は0.13mg/lと非常に低い⁵⁾ので、池のNO₃⁻濃度は減少するが、δ¹⁵N値はほとんど変化しないものと考えられる。図-5から池水②は湧水①に比べてDOが高く、δ¹⁵N値も高いことが判る。森林の池水③のDOは10mg/lで変化が少なく、茶畑の池水②のDOの方が高く、森林の池水③

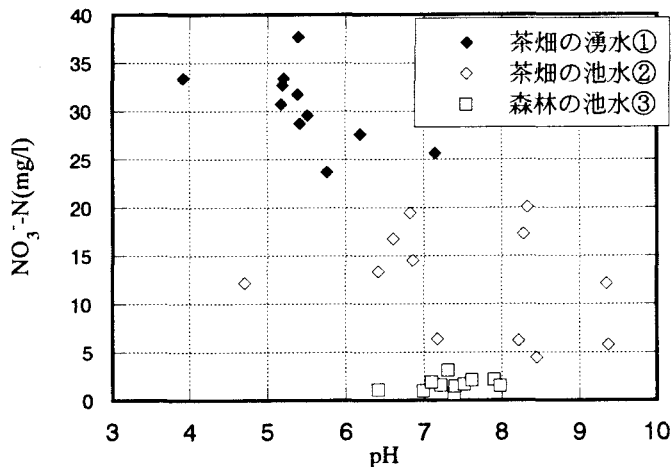


図-4 NO₃⁻-NとpHの関係

の $\delta^{15}\text{N}$ 値は、池水②よりも小さい。

湧水①とその下流にある池水②の NO_3^- の $\delta^{15}\text{N}$ 値に違いがあり、湧水①から池水②へと $\delta^{15}\text{N}$ 値が増加していることから、雨水による希釈以外に脱窒や同化が起きたことが判る。湧水①から池水②へと溶存酸素(DO)は増加している。1996年7月5日に測定した酸化還元電位(Eh)は池水と湧水共に400から500mVであり、水がかなり酸化的な環境にあることを示している。脱窒は酸化還元電

位が約250mV以下⁶⁾で起こると言われており、したがって、湧水から池水への移行に伴う $\delta^{15}\text{N}$ 値の上昇は、還元状態で起こる脱窒現象よりも酸素の発生を伴う光合成による同化現象に起因すると考えられる。このことは、藻類などのプランクトンの発生がpHが著しく酸性になった時は水が澄んでいて見られないものの、その後、夏期に池の表面が緑色に変色するほどよく観察されることとよく一致する。

湧水と池水の NO_3^- の $\delta^{15}\text{N}$ 値は12‰以上で、硫酸の平均の $\delta^{15}\text{N}$ 値は約0‰であるから、湧水などの $\delta^{15}\text{N}$ 値が20‰に達する魚粉などの有機肥料成分の溶脱に影響されていることも判る⁴⁾。

3.5 COD (化学的酸素消費量) の経時変化

NO_3^- が同化によって藻類などのプランクトンに吸収された場合は、池水の有機物量が増えることが考えられる。そこで、有機物及び還元性無機物量の指標となるCODを測定し、図-6に示した。その結果、池水②は湧水①に比べて常にCODが高く、プランクトンの発生する夏期を中心に森林の池水③よりも茶畑の池水の方がCODが高いことなどが判明した。これらの結果は NO_3^- が同化によって減少し、減少した NO_3^- が有機物であるプランクトンに変化したことを示している。以上のことから、茶畑周辺の湧水は酸性で、その酸性の水が池に流入すると、湧水に含まれていた NO_3^- が同化によ

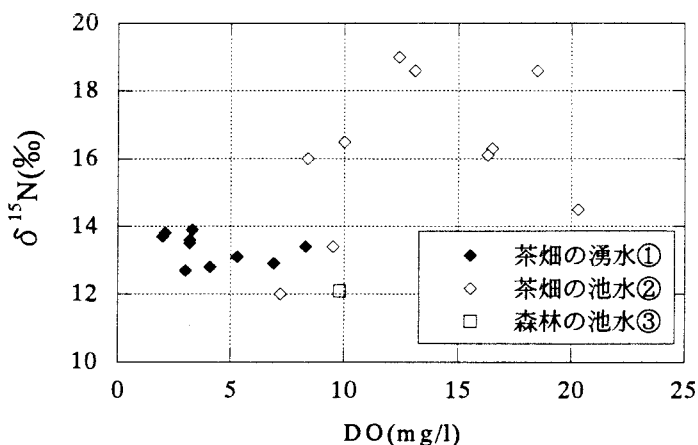


図-5 $\delta^{15}\text{N}$ とDOの関係

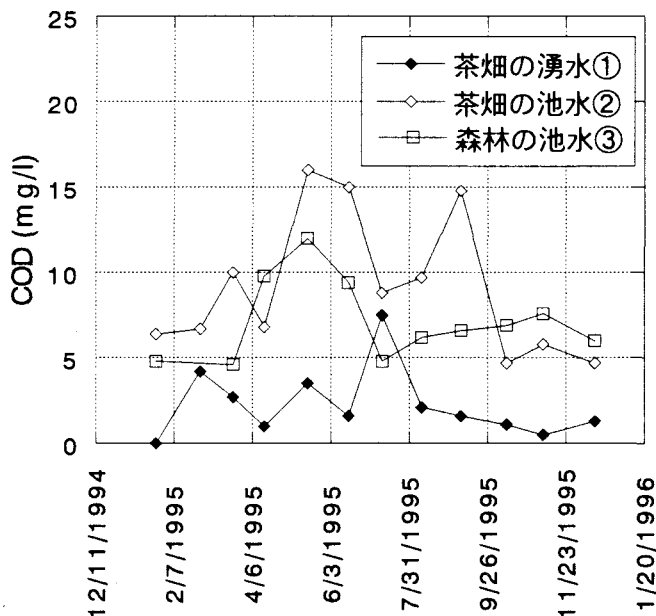


図-6 CODの経時変化

て藻類などに吸収され、その時に発生する水酸基によって池水は中和され、酸性からアルカリ性に変化したと考えられる。

4. まとめ

近年、酸性雨による被害が北欧を中心に報告されている。工場や自動車などから排出される硫黄酸化物、窒素酸化物が酸性雨の原因である。同様に、図-7に示すように茶畑の湧水や地下水も肥料の窒素化合物が硝化され、硝酸が生成されることによって酸性を呈していることが判った。

この地域の茶畑では、肥料と共に土壤に散布されるドロマイト（ $(\text{Ca}, \text{Mg})\text{CO}_3$ ）によって、酸の一部が中和されているものの、湧水や地下水は常に酸性を示す。しかしながら、酸性の湧水が沢を通して池に入ると、植物プランクトンによる同化によって硝酸イオンが吸収され、その時に水酸基が生産されて、アルカリ性に変化する。さらに、多量の降雨後には、一時的に酸性になることもあるが、茶畑のない森林の池水に比べて茶畑の池水はよりアルカリ性を示すことも判明した。これらの結果より、硝化に伴う地下水の酸性化は植物の同化によって一部回復し、さらに、土壤中に炭酸塩鉱物など酸を中和する物質が存在すると、表流水は酸性からアルカリ性に変化することも明らかになった。

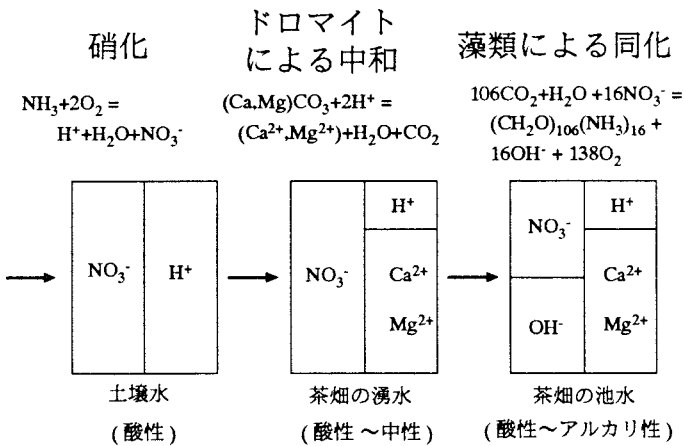


図-7 茶畑の表流水の水質変化

参考文献

- 1)平田健正編：土壤・地下水汚染と対策、社団法人日本環境測定分析協会、304p、1996.
- 2)Wada E., Imaizumi R. and Takai Y. : Geochemical Journal, Vol.18, 109-123, 1984.
- 3)Ii, H. and Misawa S. : Groundwater chemistry within a plateau neighboring Matsumoto city, Japan. J. Environmental Geology. 24(3):166-175, 1994.
- 4)酒井均・松久幸敬：安定同位体地球化学、東京大学出版会、403p、1996.
- 5)北野康：地球環境の化学、裳華房、237p、1986.
- 6)Freeze, R. A. and Cherry J.A. : Groundwater. Englewood Cliffs, Prentice -Hall, 604p, 1979.