

静岡県中部地域での茶畑由来の 湧水・池水・河川水の水質について

SPRING, POND AND RIVER WATER CHEMISTRIES DERIVED FROM A TEA PLANTATION IN CENTRAL SHIZUOKA PREFECTURE

井伊博行¹・平田健正²・田中豊和³・西川雅高⁴・中島二夫⁵・梅原鎬一⁶

Hiroyuki II, Tatemasa HIRATA, Toyokazu TANAKA,
Masataka NISHIKAWA, Tsugio NAKAJIMA and Koichi UMEHARA

¹正会員 博(理) 和歌山大学教授 システム工学部 (〒640-8510 和歌山県和歌山市栄谷930)

²正会員 工博 和歌山大学教授 システム工学部 (同上)

³和歌山大学学生 システム工学部 (同上)

⁴理博 国立環境研究所 (〒305-0053 茨城県つくば市小野川16-2)

⁵静岡県環境衛生科学研究所 (〒430-0915 静岡県浜松市東田町87)

⁶静岡県環境衛生科学研究所 (同上)

To investigate the influence of chemical fertilizers on groundwater and surface water neighboring tea plantations in central Shizuoka prefecture, a time series of chemical compositions and nitrogen isotopic ratios within local wells, springs, rivers and ponds were studied. The pH of spring and pond water in some areas maintained basic acidity with neither any noticeable changes in nitrogen isotopic ratios nor any disappearance of nitrate within the ponds and low concentrations of chlorophyll and phosphorus. Therefore, the activities of photosynthesis in the ponds of this area were very low due to low concentrations of phosphorus. However, the pH of spring water in the other areas maintained basic neutrality to alkali with high concentrations of Ca^{2+} and SO_4^{2-} and low concentrations of NO_3^- because of soil and fertilizer improvement. Concentrations of Al, Co, Ni, Zn and Mn ions in the groundwater and surface water increased with the decrease of pH values. Then, soil and fertilizer improvement is important.

Key Words : Nitrogen isotope, fertilizer, tea plantation, water chemistry, Al, Co, Ni, Zn, Mn, P, photosynthesis, pond

1. はじめに

茶畑など畑地栽培では、多量の窒素肥料の使用が最近問題になっている。窒素肥料が最終的に変化した硝酸イオンは酸素欠乏症(メトヘモグロビン血症)を引き起こす原因物質で、地下水や河川水から飲料水に取り込まれる可能性があるためである¹⁾。特に、茶畑では窒素肥料の使用量が多く、窒素量としての平均施肥量が、1トン/haを越えることもある。このような背景から、井伊ら^{2,3,4)}が肥料による水質への影響を九州北部の茶畑周辺の湧水や池水について調べた。その結果、茶畑の湧水には、硝酸イオン、硫酸イオンなどの酸性物質と共にリンやアルミニウムが含まれていた。酸性下では肥料に含まれるリンや土壌中のアルミニウムは、イオンとして水中に溶

解していた。茶畑からの酸性湧水が池に流れ込んでも、池内に豊富に存在する窒素、リンを用いて、短期間にプランクトンが光合成を行い、池水は湧水の酸性から中性またはアルカリ性に変化することが判った^{2,3)}。さらに、池水が中和されることで、湧水に含まれていたアルミニウムイオンは水酸化物として沈殿し、池水から除去されたと考えられた⁴⁾。一方、静岡地域の茶畑周辺の池では、酸性化によって魚が死滅する被害がマスコミ等によって報道されており、九州北部の茶畑にみられる光合成による中和は生じていないように思われた。また、硝酸性窒素による水質汚染を防ぐために、窒素肥料の制限を静岡県下では行っており、肥料中の窒素量は平成9年度の130kg/10aから平成10年度の80kg/10aへと減少している。そこで、静岡県中部地域において茶畑周辺の表流水を採水し、窒素による酸性化現象について調べた。

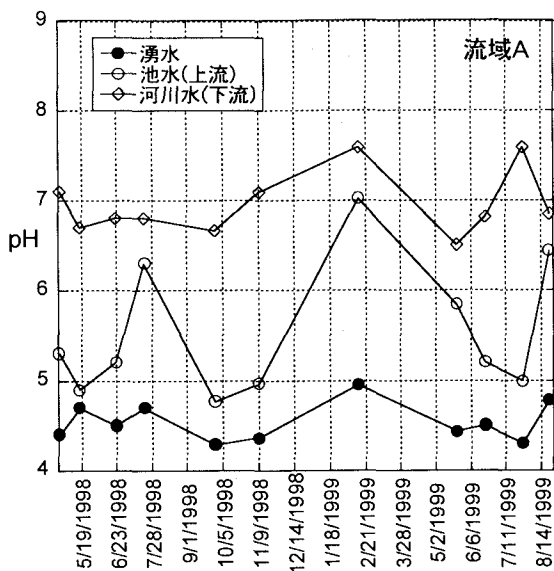


図-1 pHの経時変化 (流域A)

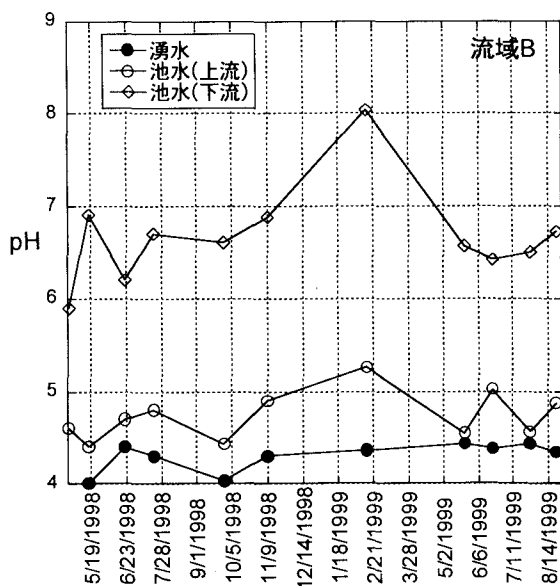


図-2 pHの経時変化 (流域B)

2. 現地観測

調査地域は茶樹園の広がる静岡県中部地域で、年降水量約2000mm、年平均気温16℃である。主に平地は水田、台地から丘陵地が茶畑に利用されている。また、この地域は、多くの農業用のため池が分布する。茶畑の肥料による水質への影響を調べるために、1998年4月から1999年8月まで、3流域において茶畑から由来する湧水、その湧水が起源の池水、河川水を定期的に採水した。流域Aは、台地上に茶畑が分布し、台地から流れる湧水、湧水が集まって形成された池、その池水が流れた河川水で採水した。池は長さ350m、幅100mのダムの貯水池で、河川の採水地点は池から7kmほど下流の水田地帯

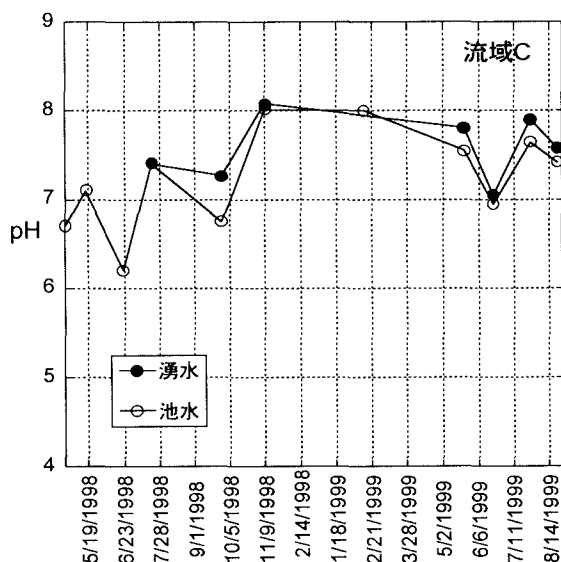


図-3 pHの経時変化 (流域C)

にある。流域Bも、台地上に茶畑が分布し、台地から流れる湧水、湧水が集まって形成された池、その池水が流れた池水で採水した。2つの池の間は、河川で結ばれ、250mほど離れている。上流の池も下流の池も大きさは、幅、長さが100mほどのため池である。下流の池の水源は上流の池水である。流域Cは、丘陵地に茶畑が分布し、丘陵地からの湧水、湧水が流れ込んだ池で採水した。池は長さ100m、幅50mのため池である。流域A、B、Cは、いずれも隣接してはいないが、4km以内にあり、地形（起伏、標高）、地質条件などが大きく変わる場所ではない。茶畑では主に2月から8月に施肥されている。

採取した試料の温度、pHをポータブルのpH計を用いて原位置で測定した。さらに、0.45 μ mのメンブランフィルターで濾過した後、試水の溶存成分の内、イオンクロマトグラフィでカルシウムイオン、ナトリウムイオン、マグネシウムイオン、カリウムイオン、硫酸イオン、硝酸イオン、塩素イオン、アンモニアイオンを測定して、重碳酸イオンは滴定で分析した。しかしながら、アンモニアイオンは検出されなかった。アルミニウムイオン、コバルトイオン、マンガンイオン、ニッケルイオン、亜鉛イオンおよび全リンはICP発光分光分析装置で測定した。クロロフィル-aの量は、吸光光度法により行った。河川水の硝酸イオンを構成する窒素の同位体比は質量分析計で測定を行った。

3. 調査結果と考察

(1)pHの経時変化

図-1から3に各流域でのpHの変化を示す。流域Aと流域Bでは、茶畑からの湧水のpHは、4から5と常に低く、酸性を示す。この酸性水が直接流れ込む池水は、

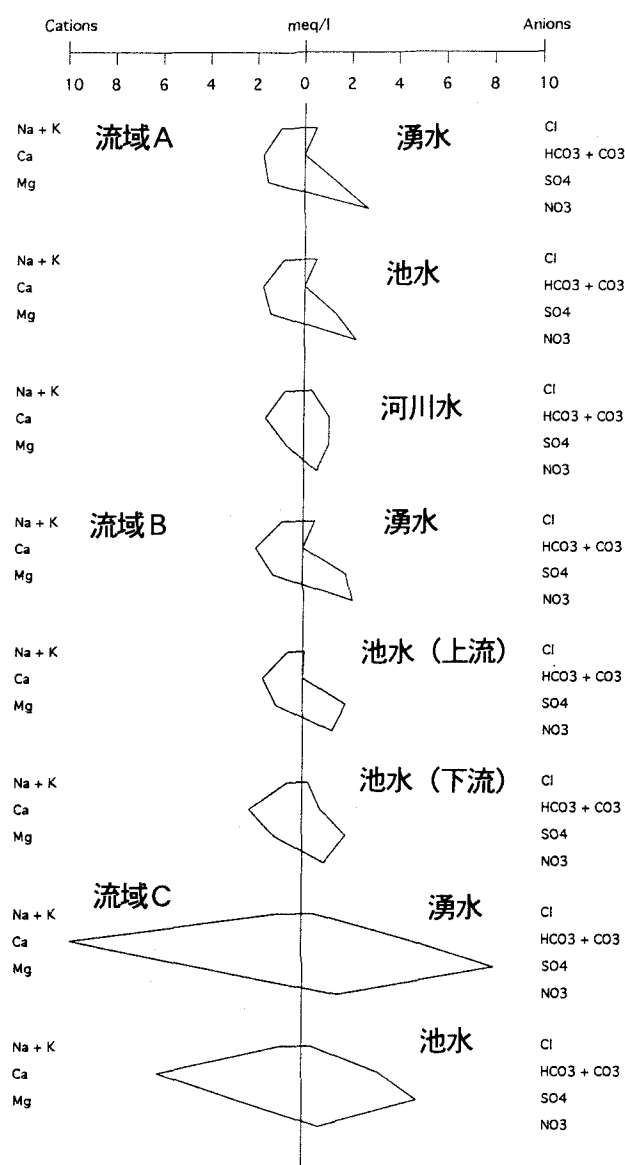
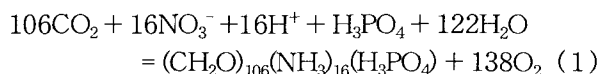


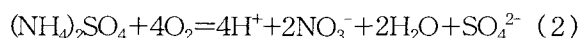
図-4 ヘキサダイアグラム

両流域ともに低く、5前後か、または、5から7である。この酸性水も、さらに下流の池水や河川水では、7前後の中性になっている。同一条件の九州北部の茶畑のため池では、光合成が原因と考えられるpHの上昇が起こり、ため池のpHは7から9と高かった⁴⁾。ここで、藻類などのプランクトンによる光合成は、次式で表される⁴⁾。



光合成によって、池内では、硝酸イオンの減少、pHの上昇が起こることが判る。九州に比べると、直接湧水が流れ込む池水のpH上昇は、顕著ではないが、下流に向かうほどpHは上昇している。一方、流域Cでは、湧水およびその下流の池水も7以上のアルカリ性である。流域Cは、茶畑しか存在せず、茶畑以外の施設はない。また、茶畑の直下60cmにある排水口から湧出する水も

7.5とアルカリ性であった。そのため、このアルカリ性の水は茶畑由来である。一般に、茶畑に施肥される窒素肥料の硫酸は、以下の反応をとおして酸性水になる²⁾。

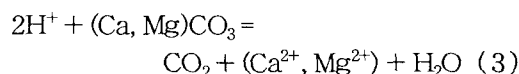


したがって、通常、茶畑由来の水は4前後の酸性である。流域Cのアルカリ性の原因を考える場合に、地質条件と共に近年、茶畑からの酸性水がマスコミに報道されてから、窒素肥料の見直しが農協や農家ごとに行われてきており、場所によって肥料、中和剤、土壌改良剤などが様々に変化していることも考慮される。実際、流域Cの農家では、酸性物質の硝酸化を抑制する石灰窒素肥料も使用されている。

(2)ヘキサダイアグラム

図-4に1998年11月のヘキサダイアグラムを示す。流域Cは、流域Aと流域Bとは著しく異なっていることが判る。流域Cの湧水は、溶存成分が多く、カルシウムイオン、マグネシウムイオン、重炭酸イオン、硫酸イオン濃度が高く、特にカルシウムイオン、硫酸イオン濃度が高い。その湧水由来の池水では、溶存成分が小さくなっている。著しく硫酸イオン、カルシウムイオンが含まれていることから、土壌改良剤として石膏（硫酸カルシウム）の投与や、アルカリ性の原因として、生石灰（酸化カルシウム）の投与も考えられる。

流域Aおよび流域Bの茶畑由来の湧水では、硝酸イオン、マグネシウムイオン、カルシウムイオン、ナトリウムイオン、硫酸イオンが高い。茶は、短期間に葉を成長させるために、光合成に必要な窒素と同様に、クロロフィルに含まれるマグネシウムイオンが必要で、苦土石灰が加えられる。その反応式は以下に表される²⁾。



この結果、酸性下では、炭酸ガスは空气中に放出され、カルシウムイオン、マグネシウムイオンが水中に残る。流域Bでは、下流に向かうにつれて、カルシウムイオン、硫酸イオンに比べて硝酸イオンが減少していることが判る。そこで、硝酸イオン濃度の経時変化を以下に示す。

(3)硝酸イオン濃度の経時変化

図-5, 6, 7に流域A, B, Cの硝酸イオン濃度を示す。流域Aの湧水と池水の硝酸イオン濃度は、100から150mg/lに集中し、ほぼ同じか時期によって池水の方が小さくなっている。7km下流にある河川水には、他の流域の水も混合しており、かなり硝酸イオン濃度は小さくなっているが、それでも50mg/lに達する場合もある。

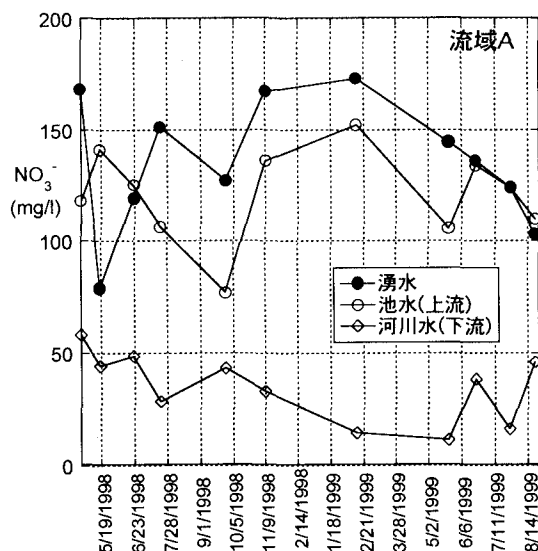


図-5 NO₃⁻の経時変化 (流域A)

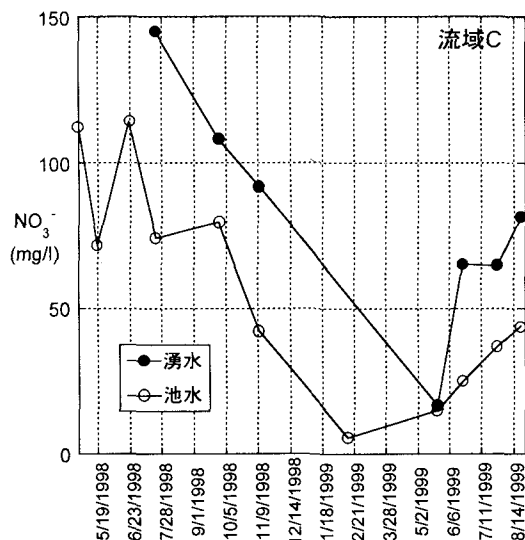


図-7 NO₃⁻の経時変化 (流域C)

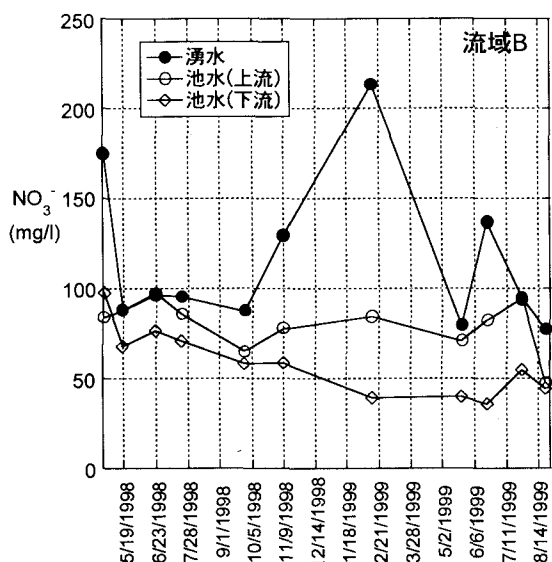


図-6 NO₃⁻の経時変化 (流域B)

流域Bの湧水と池水は、下流に向かうほど硝酸イオン濃度が低くなっている。茶畑の湧水は、100から150mg/lである。流域Bの池水は、茶畑湧水が起源であり、上流の池水が唯一の下流の池水の水源である。そのため、硝酸イオン濃度の変化は、希釈か池や河川中での硝酸イオンの消失が起きたことが考えられる。

流域Cでは、1998年に比べて1999年は、湧水や池水の濃度が減少しており、ここは、農家が肥料の削減を行っている地域で、施肥時期が2月から8月であることを考えると、現在のところ肥料の削減効果がみられる。1999年の池水の濃度は、他の地域の池水に比べて低い。したがって、流域Cは、酸性化抑制と共に硝酸イオン濃度の減少も起きている。また、茶畑湧水が唯一の池水の水源であり、下流ほど硝酸イオン濃度が減少している。

表-1 硝酸イオンの窒素同位体比と全リン濃度

サンプル名	$\delta^{15}\text{N}(\%)$	全リン濃度(mg/l)
流域A(湧水)	8.1	0.004~0.007
流域A(池水)	8.3	0.003~0.006
流域B(湧水)	5.5	測定結果なし
流域B(上流の池水)	8.2	0.03
流域B(下流の池水)	8.6	0.012
流域C(湧水)	9.5	測定結果なし
流域C(池水)	16.1	0.015
九州北部の茶畑(湧水)	13~14	0.01~5.0
九州北部の茶畑(池水)	16~19	0.5~2.0

(4)窒素同位体比

硝酸イオンが下流ほど小さくなっている場合に、希釈の効果か光合成などによる硝酸イオンの消失かを調べるために硝酸イオンの窒素同位体比を測定した。窒素には、重さの異なる¹⁴Nと¹⁵Nの同位体が存在し、その割合を示す $\delta^{15}\text{N}$ は、次式のように示される^{2,3)}。

$$\delta^{15}\text{N} = [(R_{\text{sample}}/R_{\text{standard}}) - 1] \times 1000 \quad (4)$$

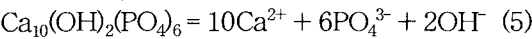
ここで、Rは¹⁵Nと¹⁴Nの比であり、Rsampleは対象試水、Rstandardは標準物質の同位体比である。

表-1に硝酸イオンの窒素同位体比を示す。一般に光合成や脱窒などが池内部で起こると、選択的に窒素の¹⁴Nから同化したり、分解するのに利用される。したがって、残りの池水中では¹⁵Nが濃縮され、 $\delta^{15}\text{N}$ 値は大きくなる。九州北部の茶畑では、湧水と池水を比較すると、光合成のため、池水はpHの上昇と共に窒素同位体比が3から5%ほど増加している^{2,3)}。流域B、流域Cでは、池水の水源は湧水であり、他の窒素の供給が考えられないので、 $\delta^{15}\text{N}$ 値が湧水から池水へと下流ほど大きくなっていることは、光合成などにより硝酸イオンの一部が消失したと考えられる。一般に、脱窒作用は、

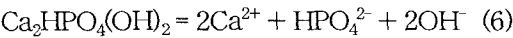
pHが5以下では停止するので、酸性から中性への変化は光合成によるものと考えられる⁵⁾。しかしながら、流域Aでは、湧水と池水の $\delta^{15}\text{N}$ 値の差が小さく、pHや硝酸イオン濃度の変化が少ないことから、光合成などにより硝酸イオンの一部が分解していないことが判る。したがって、特に、流域Aで、なぜ、九州北部でみられた光合成が起きていないか、その原因について考察する。

(5)リン濃度

(1)式の光合成の反応式から判るように、光合成では、窒素の他にリンが必要である。そこで、表-1に全リン濃度を示す。光合成が池内部で活発に行われていた九州北部の茶畑に比べて、特に、流域Aの全リン濃度は、0.01mg/lよりも低く、窒素に比べるとリンが著しく欠乏していることが判る。流域B、Cの全リン濃度も、九州に比べると小さく、流域Aよりは高いことが判る。そのため、流域Aで、光合成がみられないのは、全リン濃度が低いことが原因と考えられる。また、流域B、Cの全リン濃度は、流域Aと九州の中間で、光合成や脱窒の活動で窒素同位体比が湧水と池水の間で変化したことが考えられる。茶畑では、茶が光合成ができるように、リン肥料が十分に投与されている。リン肥料は、リン酸カルシウムを含む魚粉として供給されるので、次のような反応式でリン酸カルシウムは水に溶解する⁴⁾。



リン酸カルシウムの表面では次のような反応も起こる⁴⁾。



式(5)、(6)から酸性になるほど、リン酸カルシウムが溶解することが判る。したがって、茶畑に投与されたリン肥料は、土壌水は酸性であるから、容易に地下水に溶出できる環境にあることが判る。しかしながら、リンは容易に土壌物質に吸着されることが知られており⁵⁾、流域A、B、Cの湧水や池水のリン濃度が低いことから、リンが土壌中で固定されていると考えられる。静岡県中部の茶畑は、段丘堆積物が地表を覆っており、粘土分の多いシルト層やシルトの砂礫が含まれ、これらの粘土鉱物がリンを固定しているものと考えられる。

(6)クロロフィル量

光合成が行われていれば、水中の植物プランクトンの量が増えるはずである。そこで、植物プランクトン量の指標として、水中のクロロフィル-a量を測定した。その結果、流域Aの池水で0から1.0mg/m³、九州北部の茶畑周辺の池水で20から200mg/m³とクロロフィル-a量からも九州北部で光合成が活発に起こり、流域Aの池水では、光合成が不活発であることが判る。また、流域B、

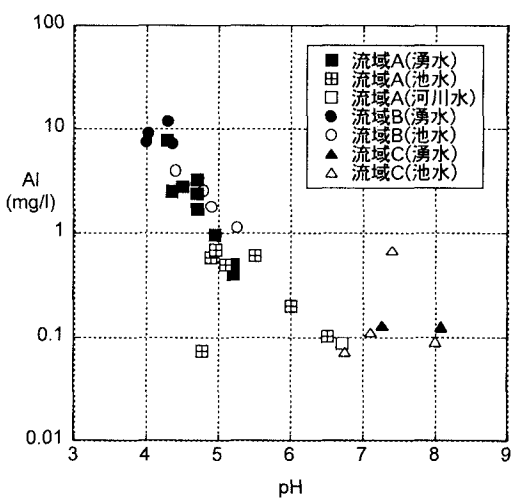
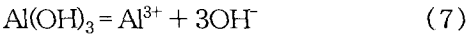


図-8 pHとアルミニウムイオンとの関係

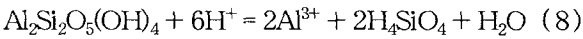
Cでは、クロロフィル量の測定結果がないので、湧水と池水との間の窒素同位体比の変化は、光合成や脱窒も考えられ、現時点では、光合成、脱窒の効果がどの程度寄与しているのか判らない。

(7)pHとアルミニウムイオンとの関係

岩石中に存在する珪酸アルミニウムや水酸化アルミニウムの溶解度は、中性で小さく、アルカリ性、酸性で大きくなる。酸性雨による陸水の酸性化では、pH変化と共にアルミニウムイオン濃度の増加も水生生物にとって致命的であることが知られている。特に、アルミニウムイオン濃度が0.2mg/lを越えると、魚の異常が報告されている⁶⁾。水酸化アルミニウムはカオリナイトなどの珪酸アルミニウムが分解する過程で生成され、溶解反応は次式で示され、酸性条件で水に溶解する⁴⁾。



カオリナイトなどの粘土鉱物も酸性になるとアルミニウムイオンが溶解する⁴⁾。



そこで、pHと溶解性のアルミニウムイオン濃度の関係を図-8に示した。その結果、pHが6以下の流域A、Bの湧水や池水は、酸性になるほどアルミニウムイオン濃度は増加していることが判る。しかしながら、流域Cの池水や湧水はほぼ検出限界の濃度しかみられず、酸性抑制の効果がみられる。

(8)地下水中の重金属について

一部の地域では、土壌の改良や肥料の配合を変えることで、酸性化の軽減がみられるが、多くの井戸水はいぜんとして酸性を呈している。酸性化に伴いアルミニウム

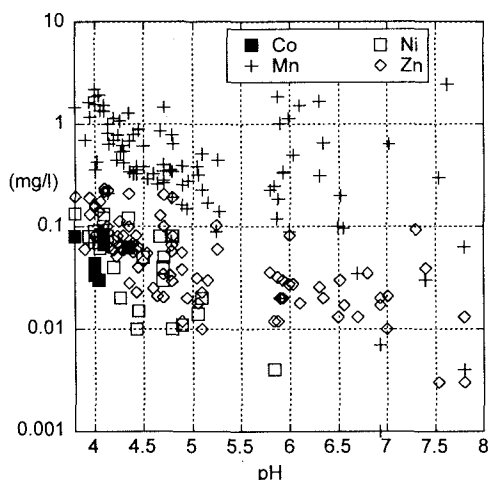


図-9 pHと重金属イオンとの関係

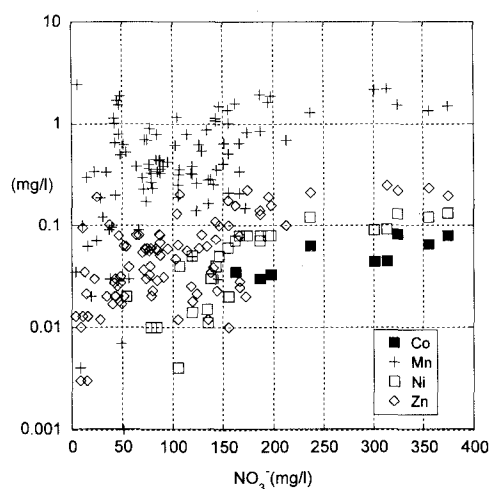


図-10 硝酸イオンと重金属イオンとの関係

イオン濃度が高くなっていることから、他の重金属についても測定した。ここでは、特に、流域A、B、C周辺の酸性化が著しい井戸水の重金属物質を測定した。図-9にpHと重金属イオン濃度の関係を示す。pHが小さくなると重金属イオン濃度も高くなり、ニッケル、亜鉛、コバルトイオンは、pHが4付近に達すると、0.1mg/lも含まれていることが判る。一方、マンガンイオンはpHが大きくなると、低濃度のサンプルがみられるようになるが、高濃度のサンプルも存在する。これは、重金属は基本的には式(7)のアルミニウムと同様に、中性からアルカリ性で水酸化物として沈殿物を作り、酸性条件下でイオンとして存在するため、pHが小さくなるにつれて重金属イオンの濃度が高くなるためと考えられる⁷⁾。しかしながら、中性付近でマンガンのように高濃度のサンプルが存在するのは、微粒子の金属酸化物の混入等が考えられる。また、図-10の硝酸イオンと重金属イオン濃度の関係から、肥料起源の硝酸イオン濃度が増加するにつれて、金属イオンの濃度も増加していることが判る。ここでも、マンガンイオンが低硝酸イオン濃度でも高濃度を示すのは、微粒子の混入等が考えられる。土壌改良

剤や苦土肥料には微量の重金属が含まれているものがあるので、金属の起源はもともとの土壌や地層だけとは考えられない⁸⁾。したがって、現時点では重金属の起源は判らないが、いずれにしても、窒素肥料の添加が引き金になって、水中に重金属イオンが溶出したと考えられる。

4. まとめ

九州北部の茶畑起源の湧水には、硝酸イオンや硫酸イオンなどの酸性物質が含まれ、常に酸性を呈し、この水がため池等に貯えられると、光合成や脱窒等によって、中和される現象が観察された。しかしながら、静岡県中部の茶畑においては、湧水の性質が異なり、九州とは異なる現象が観察された。茶畑からの湧水中のリン濃度が低いために、光合成が十分に起こらず、酸性を呈するため池が観察された。また、茶畑からの湧水がすでに、中性からアルカリ性にあるものもあり、これは、酸性物質となる窒素の削減や土壌改良剤の効果と考えられる。このような努力によって、硝酸イオンやアルミニウムイオン濃度の低下など環境への負荷が小さくなっている場所もある。しかしながら、茶畑周辺の井戸水から観察される地下水中のpHは低いために、酸性条件下で溶出しやすいコバルト、マンガン、ニッケル、亜鉛等の重金属イオンの濃度は高く、肥料による酸性化による地下水への影響は硝酸イオンだけではない。今後、これらの重金属の起源や溶出のメカニズムを明らかにする必要がある。

参考文献

- 1) 平田健正編：土壌・地下水汚染と対策，社団法人日本環境測定分析協会，1996
- 2) 井伊博行，平田健正，松尾宏，田瀬則雄，西川雅高：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，土木学会水工学論文集，41，pp.575-580，1997.
- 3) Ii, H., Hirata, T., Matsuo, A., Nishikawa, M., and Tase, N.: Surface water chemistry, particularly concentrations of NO_3^- and DO and $\delta^{15}\text{N}$ values, near a tea plantation in Kyushu, Japan, *Journal of Hydrology*, Vol.202, pp.341-352, 1997.
- 4) 井伊博行，平田健正，松尾宏，田瀬則雄，西川雅高：茶畑施肥周辺の池水中のpH変化と窒素，リン，硫酸，アルミニウムの挙動について，土木学会論文集，No.594/VII-7，pp.57-63，1998.
- 5) 岩田進午，三輪睿太郎，井上隆弘，陽捷行：土壌の化学，学会出版センター，1980.
- 6) 溝口次夫編著：酸性雨の科学と対策，社団法人日本環境測定分析協会，1994.
- 7) 鹿園直建：地球システムの化学，東京大学出版会，1997.
- 8) 伊達昇編：肥料便覧，農文協，1996.

(1999.9.30受付)