

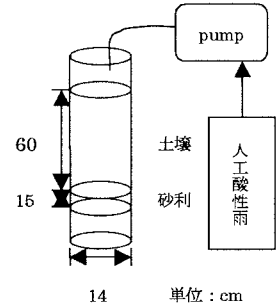
VII-287

酸性雨降雨条件下での農耕土壌内の脱窒反応に関する研究

石川高専 谷欣也 金沢大学大学院 高野典礼
金沢大学工学部 小森友明 池本良子 石飛隆司

1.はじめに

近年、土壌への施肥の多投により農耕地からの硝酸流出による地下水汚染が顕在化しており、微生物活性を高めて硝酸の流出を抑制する有機農法が見直されている。一方、近年の降雨は酸性化しており、酸性雨は農耕土壌微生物の生態系に影響を及ぼすと考えられる。そこで本研究では酸性雨降雨条件下での農耕土壌からの硝酸流出について、長期のカラム実験により検討すると共に、土壌内の脱窒反応について調べた。



2.実験装置および実験方法

図1に示すカラムを2本用意し、畑から採取した農耕土壌を13kg詰め、カラム1の上層15cmに有機肥料40gを混合した。カラム上部から表1に示す人工酸性雨1を30日間5mm/hrで滴下した後、週に2回、5mm/hr降雨量で6時間滴下する間欠条件にした。降雨開始から170日後に酸性雨2に変更した。これからカラムからの流出水を採取し、水質分析を行った。降雨開始から600日後にカラム1の土壌を15cm毎に4層に分けて取り出し、土壌水の水質を測定すると共に回分実験により脱窒活性を測定した。脱窒活性の測定は他栄養性脱窒活性試験と硫黄脱窒活性試験を行った。各層毎に土40gを遠沈管に詰め、濃度7.22g/lの硝酸カリウム(KNO_3)水溶液5mlと基質を加え、遠沈管内の空気を窒素で置換し嫌気状に保ち、37℃の恒温槽にて放置した。基質として、他栄養性脱窒活性試験では濃度4.08g/lのクエン酸ナトリウム($\text{Na}_3\text{C}_6\text{H}_5\text{O}_7$)水溶液を5ml用い、硫黄脱窒活性試験では濃度3.87g/lのチオ硫酸ナトリウム($\text{Na}_2\text{S}_2\text{O}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$)と濃度7.00g/lの炭酸水素ナトリウム(NaHCO_3)との水溶液5mlを用いた。そして、それぞれの時間に恒温槽から取り出し、蒸留水200mlで抽出し分析を行った。

図1 実験装置概

		酸性雨1	酸性雨2
NaCl	(mg/l)	5.0	5.0
KNO_3	(mg/l)	1.0	10.0
CaSO_4	(mg/l)	5.0	5.0
$\text{Mg}(\text{NO}_3)_2 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	(mg/l)	3.0	30.0
$(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$	(mg/l)	5.0	5.0
HNO_3	(ml/l)	0.0038	0.0038
HCl	(ml/l)	0.00265	0.00265

表1 人工酸性雨組成

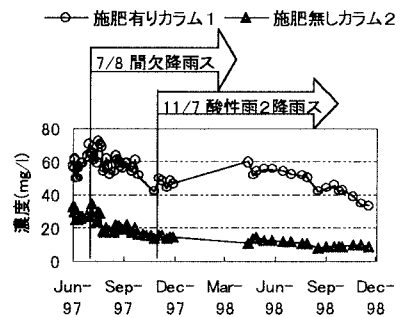


図2 IC 経日変化

3.実験結果

図2に無機炭素(IC)の経日変化を示す。流出水中のICはカラム1の方が多く、徐々に減少している。施肥により、有機物が供給された事によってカラム1の方が微生物反応が起こり易い事が分かる。

図3に NO_3^- の経日変化を示す。降雨条件を間欠にした直後から硝酸濃度が急激に上昇した。これはカラム内が好氣的になり硝化が進行した事を示している。150日後より硝酸の流出が急激に減少し始めたが、こ

地下水汚染、硝酸流出、酸性雨、脱窒、硫黄脱窒

れは脱窒の進行もしくは温度低下による硝化の抑制の両者が働いたと推測できる。600 日後でも硝酸濃度は降雨中の硝酸濃度よりもやや高く、カラム内では脱窒よりも硝化が進行していると考えられる。

図4に土壌水の分析結果を示す。TOC、IC、 NO_3^- 、 SO_4^{2-} の全てで、施肥を行った上層（D1層）で高い値を示している。施肥による有機物の供給により、上層の好気域で特に有機物分解と硝化が進行したと考える事ができる。中層以下でも TOC が存在し、IC の生成も行われているが、 NO_3^- や SO_4^{2-} が減少している事から脱窒や硫酸塩還元も進行している事が示唆された。

図5にD4層の他栄養性脱窒活性試験の結果を示す。24hr までは、硝酸塩の減少に伴い、有機物（TOC）が減少している事から他栄養性脱窒が主に進行していたと分かる。6~24hr の硝酸の減少速度から他栄養性脱窒速度を求めた。24~48hr でも硝酸塩は減少しているが有機物は消失し、硫酸塩が検出されている事から硫酸脱窒反応が起こっていると考えられる。硫酸脱窒反応に必要な還元型硫黄は、酸性雨中の硫酸が還元され、土壌内に蓄積されていたものと考えられる。

D4層の硫酸脱窒活性試験の結果を図6に示した。硝酸塩、チオ硫酸塩が減少し、硫酸塩が増加していることから、硫酸脱窒反応が起こっていることが分かる。実験結果から各層ごとの硫酸脱窒速度と硫酸蓄積量を表2に示す。他栄養性脱窒活性は $1.1 \sim 1.6 (\times 10^{-2})$ と高く、下層の方がやや高い傾向にあった。一方、還元型硫黄を供給していないカラムであるにも係わらず、硫酸脱窒活性は他栄養性脱窒活性の 1/4 程度を示しており、層内で差異は認められなかった。土壌内の硫酸蓄積量は下層で多く、下層の方が硫酸塩還元が活発に起こっているが、上層での硫酸脱窒活性が高かったことにより、上層でも硫酸塩還元が起こり、還元型硫黄を供給していたと考えられる。

4.まとめ

- 1) 間欠降雨条件では硝化が脱窒より進行し、降雨よりも高い濃度の硝酸が流出した。
- 2) 土壌水中の硝酸、硫酸が中層から下層で減少していることから脱窒および硫酸脱窒が起こっている事が示された。
- 3) 他栄養性脱窒活性は下層で高く、硫酸脱窒活性は全ての層で他栄養性脱窒活性の 1/4 程度を示した。硫酸還元活性は下層で高いと推定された。

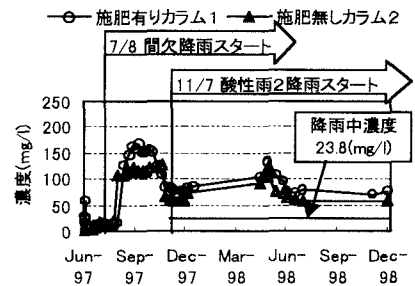


図3 NO_3^- 経日変化

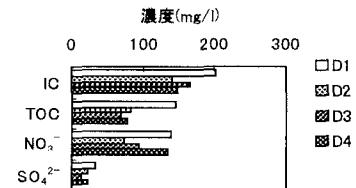


図4 土壌水濃度

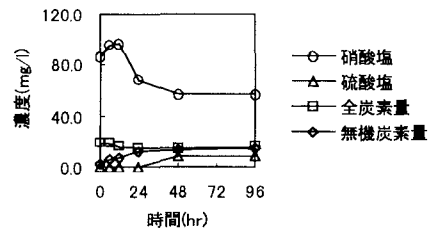


図5 D4層脱窒活性試験結果

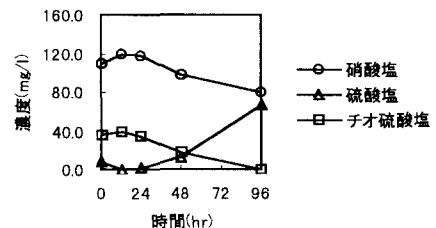


図6 D4層硫酸脱窒活性試験結果

	他栄養性脱窒活性 ($\text{mgNO}_3^-/\text{g}\pm\text{hr}$)	硫酸脱窒活性 ($\text{mgNO}_3^-/\text{g}\pm\text{hr}$)	硫酸蓄積量 ($\text{mgS}/\text{g}\pm$)
D1層	1.13×10^{-2}	0.363×10^{-2}	0.09×10^{-2}
D2層	1.59×10^{-2}	0.352×10^{-2}	0
D3層	1.65×10^{-2}	0.308×10^{-2}	1.32×10^{-2}
D4層	1.64×10^{-2}	0.327×10^{-2}	1.82×10^{-2}

表2 脱窒活性と硫酸蓄積量