

(64) 北海道中央部における硝酸態窒素の河川への流出と制御に関する研究

Control of Run-Off of Nitrate-Nitrogen to the River from the Agricultural Area in Central Hokkaido, Japan

山本浩一*, 橘 治国**

Koichi YAMAMOTO* and Harukuni TACHIBANA**

ABSTRACT; NO_3^- -N concentration in the river water in farmland basin tends to be higher than in forested basin. We assumed that the source of high concentration of NO_3^- -N in the river water was aerobic groundwater which is contaminated by NO_3^- -N. We applied the End-Members-Mixing-Analysis (EMMA) to calculate the contribution of aerobic groundwater. To use EMMA, we selected Alkalinity (4.3Bx) and NO_3^- -N as tracers. We estimated that the NO_3^- -N concentration in aerobic groundwater by land use, nitrogen load to the ground, and hydrological parameters. Increase of the area of the farmland will raise the NO_3^- -N concentration in the aerobic groundwater and river water. Effect of increasing grassland area will be smaller than that of farmland. Excess manure in the basin also raise the NO_3^- -N concentration in the aerobic groundwater, and it was clarified that application of the excess manure to the grassland reduced the contamination compared to the case of discarding manure to the bare land.

Keywords; nitrate-nitrogen, springwater, groundwater, fertilizer, nutrient, water quality

1 はじめに

乳幼児のメヘモグロビン血症を招く²⁾硝酸態窒素(NO_3^- -N)および亜硝酸態窒素(NO_2^- -N)による汚染が日本においても1980年代から注目されている³⁾。2001年に水質汚濁防止法施行令の改正に伴い、硝酸態・亜硝酸態窒素化合物が有害物質に追加され、環境基準の健康項目にも追加された。なお、2002年の全国地下水水質測定結果⁴⁾によると、環境基準(10mg-N/L)の超過率は5.9%であり、全健康項目中で最も超過率が高い。地下水は地域によっては湧水等により表流水となるため地下水の汚染は河川水の汚染を引き起こす⁵⁾⁶⁾。上水道水源では表流水から取水している水源については NO_3^- -N濃度が10mg-N/Lを超過するものはほとんどないものの、5mg-N/L以上である水源は全体の4.3%にのぼる⁷⁾。

河川の硝酸態窒素濃度上昇の要因を推定するために、河川水の NO_3^- -N濃度と流域の主な土地利用の関係を北海道の主要な河川について整理した(図1)。北海道においては1999年現在、最も平均 NO_3^- -N濃度が高いのは耕地流域の河川(野幌川, 月寒川, 当別川, 平均濃度5.77 mg-N/L), 次いで都市下水が流入する都市河川(新川, 創成川, 発寒川, 伏古川, 平均濃度4.15 mg-N/L)となった。一方、もっとも低濃度であったのは林地河川(真駒内川, 星置川, 忠別川, 留萌川, 鶴川, 沙流川, 後志利別川, 平均濃度0.18 mg-N/L)であった。林地を上流域に持つ混合土地利用の流域は全体的に NO_3^- -N濃度は低いものの, 市街地や耕地が流域に含まれると濃度が上昇する。海外の河川についても農耕地帯を流下する河川は高い NO_3^- -N濃度を示し, ライン川(ドイツ)やモイゼ川(オランダ)で3~4 mg-N/L, テムズ川(イギリス)で6~8 mg-N/Lとなつて

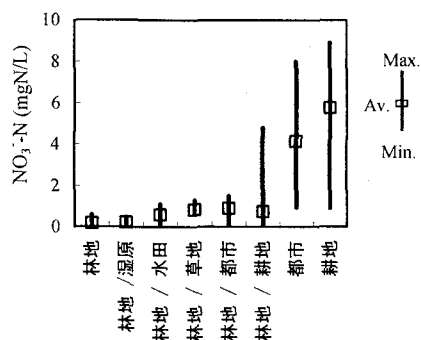


図1 北海道の主要河川における流域の土地利用と河川水の平均硝酸態窒素濃度¹⁾の関係 (1999年, 河川数: 林地-7, 林地/湿原-1, 林地/水田-3, 森林/草地-2 森林/都市-7, 林地/耕地-9, 都市-4, 耕地-3)

*国土交通省国土技術政策総合研究所

(National Institute for Land and Infrastructure Management, Ministry of Land and Transport)

**北海道大学大学院工学研究科

(Graduate School of Engineering, Hokkaido University)

いる⁹⁾。このように、耕地を流域に含む河川では高い NO_3^- -N濃度が認められ、耕地等の寄与や NO_3^- -Nの流出機構についてその究明が必要とされている。また、家畜糞尿の管理状況が河川水質に影響を及ぼす研究例⁹⁾があり、流域の畜産の状況が河川水質に及ぼす影響も明らかにする必要がある。

著者らは、これまで農耕地を流域とする小河川を調査し、 NO_3^- -Nにより汚染された酸化的地下水と還元的地下水が調査対象河川の水質形成に影響を及ぼしていることを明らかにした⁹⁾。さらに酸化的地下水の NO_3^- -N濃度は地表面に投入される窒素負荷量に依存することを明らかにした⁹⁾。本論文ではそれらを応用し、畑作酪農地帯における土地利用や家畜糞尿の発生状況が河川の NO_3^- -N濃度に与える影響について考察した。

2 研究方法

2. 1 調査対象地域

北海道勇払郡早来町の安平川水系フモンケ川およびフモンケ川流域の地下水を調査した。フモンケ川は馬追丘陵を水源とし、農耕地を流下して遠浅川に合流する、流域面積は 25.7 km^2 、流路延長 12.6 km である(図2)。流域は難透水性の第三紀のフモンケ層を基岩とし、第四紀の支笏降下堆積物(Spfa)層、支笏火砕流堆積物(Spfl)層、恵庭降下堆積物(En)層、樽前降下堆積物(Ta)層等の火山灰・スコリア堆積物に厚く覆われており、これら第四紀の堆積物だけで約 30 m の厚さがある¹⁰⁾。これらの火山灰層は透水性が高く地下水の帯水層になっている。主要な帯水層はSpfl層とその下層のSpfa層であるが、ごく表層のEn層やTa層からも地下水が河川に流出する。年間平均気温は 6.46°C (1980-2002年平均、勇払郡厚真アメダス観測地点)、降水量は 1094 mm/yr (1980-2002年平均、安平アメダス観測地点)、蒸発散ポテンシャルは 595 mm/yr (Thornthwaite法、1997-2000年平均、勇払郡厚真アメダス観測地点の平均気温から算出)である。

フモンケ川流域においては豆類等の市場作物、飼料穀物および飼料用牧草の栽培が行われている。また流域では養豚や養鶏などの畜産および酪農が行われている。調査対象地域においては農地への還元が不可能な余剰糞尿は野積みされ、風雨にさらされているのが現状であり、地下水質や河川水質に与える影響が懸念される。表1にフモンケ川の各調査地点における流域面積と土地利用別面積率、家畜飼養頭数¹¹⁾を示す。各調査地点の流域は地形図の起伏から求めた。土地利用面積については森林、畑地、草地に分割するために縮尺 $1/5000$ の早来町都市計画図および国土地理院発行縮尺 $1/25000$ の地図をスキャナで読み込み画像のピクセル数と面積の関係から土地利用面積を算出した。また数回にわたる現地踏査を行い、森林を除く流域の全領域について土地利用の状況(採草地と荒れ地の区別、畑地と草地の区別)を確認している。フモンケ川流域の施肥量の目安として、同様の作物が栽培されている近隣地域(千歳市南東部)において調査された値¹²⁾を表2に示す。畑作は病害の防除や収量確保のため輪作が行われるので施肥量は年々変動する。流域の畑地に対する平均施肥量を推定する際には輪作体系の中での平均施肥量として求める必要がある。一例としてフモンケ川流域のある畑地における輪作に伴う施肥の例を農家へのヒヤリングと平均的な成分値¹³⁾から求めた(表3)。北海道の畑作地帯において、黒ボク土では小麦→ビート→パレイショ→小麦が基本となっており¹⁴⁾、本研究において化学肥料の施肥量はビート(147 kg/ha/yr)、パレイショ(100 kg/ha/yr)、小麦(102 kg/ha/yr) 2シーズンの数値を平均して畑地における化学肥料由来の窒素負荷量は 112.75 kg/ha とした。堆肥による窒素負荷は地力維持のため表3のように二年に一回施用されるものとして 33 kg/ha/yr として計算した。

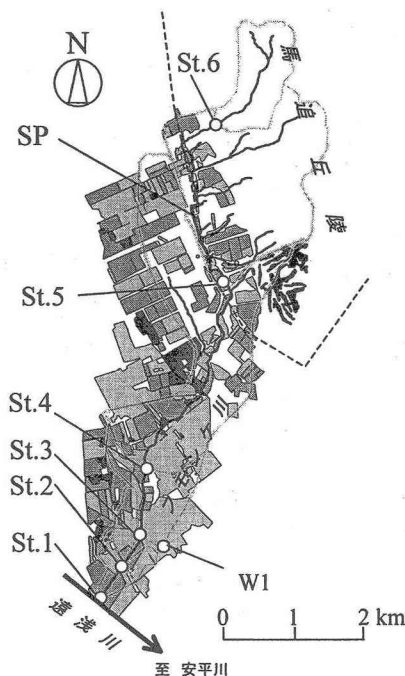


図2 調査対象流域と調査地点(安平川水系フモンケ川)。■：ゴルフ場、■：水田、■：畑地、■：草地、□：森林、—：流域境界、—：丘陵縁辺

表1 フモンケ川の土地利用と家畜飼養頭数¹¹⁾ (1998年現在)

	流域面積 (km ²)	土地利用別面積率(%)						家畜飼養頭数(頭)			
		畑地	草地	山林	平地林	ゴルフ場	その他	肉牛	乳牛	豚	馬
St. 6	2.9	0	0	100	0	0	0	0	0	0	0
St. 5	12.9	6.7	4.5	73.7	15.0	0	0	43	46	1163	0
St. 4	22.4	12.7	17.7	42.5	25.2	0.01	1.9	43	355	1163	25
St. 3	24.2	12.9	21.1	39.3	25.1	0.01	1.6	43	439	1163	25
St. 2	24.3	13.0	21.3	39.1	25.0	0.01	1.6	43	439	1163	25
St. 1	25.7	14.0	23.0	37.2	24.5	0.01	2.9	43	621	1163	25

表2 千歳市南東部における化学肥料の施肥量¹²⁾

作物	N(kg/ha)	P(kg/ha)
牧草	86	114
飼料用コーン	105	144
小豆	40	165
ビート	147	308
パレイショ	100	200
カボチャ	70	196

表3 フモンケ川流域の畑地における輪作に伴う施肥の例

年	作物	N(kg/ha)			P(kg/ha)			K(kg/ha)		
		化学	堆肥	合計	化学	堆肥	合計	化学	堆肥	合計
1993	飼料用コーン	78	66	144	168	23	191	60	57	117
1994	小豆	30	0	30	120	0	120	70	0	70
1995	飼料用コーン	78	66	144	168	23	191	60	57	117
1996	休耕	0	0	0	0	0	0	0	0	0
1997	秋蒔小麦	102	66	168	108	23	131	72	57	129
1998	秋蒔小麦	102	0	102	108	0	108	72	0	72
平均		65	33	98	112	23	125	56	29	84

2. 2 調査方法

フモンケ川の最上流の St.6 から最下流(遠浅川合流地点)の St.1 まで 6 つの観測地点および馬追丘陵の湧水観測地点(SP)を設けた(図2)。St.6は混交林で構成される森林河川である。St.5では丘陵の台地部から農耕地の影響を受けた湧水が合流し、河川水の栄養塩濃度は高くなる。St.4～St.1は酪農地帯を流下するため、さらに農地排水や地下水が混入して栄養塩濃度は高くなる。1999年3月～2000年12月で、月1回から2回、St.1～St.6までの河川水6点およびSP地点の湧水を採水し、同時に電磁流速計やバケツ、ストップウォッチを用いて流量を測定した。地下水についてはW1地点で2000年5月から観測を開始し河川水の採水と同日に採水した。

2. 3 分析項目

水質項目は富栄養化関連成分として全窒素(TN)、溶存態窒素(DN)、硝酸態窒素(NO₃⁻-N)、亜硝酸態窒素(NO₂⁻-N)、アンモニア態窒素(NH₄⁺-N)、全リン(TP)、溶存態リン(DP)、溶存態反応リン(DRP)、全有機炭素(TOC)、溶存態有機炭素(DOC)、懸濁物質(SS)、主要無機成分として塩化物イオン(Cl⁻)、硫酸イオン(SO₄²⁻)、ナトリウムイオン(Na⁺)、カルシウムイオン(Ca²⁺)、アルカリ度(4.3Bx)、溶存態珪酸(SiO₂)について分析を行った。なお、懸濁態窒素(PN)=TN-DN、懸濁態リン(PP)=TP-DP、懸濁態有機炭素(POC)=TOC-DOCとしてそれぞれ求めた。水質分析はStandard Methods¹⁵⁾に基づいて行った。

2. 4 End Members Mixing Analysis (EMMA) 法

河川水に混入している地下水成分の寄与率を、水質成分を用いてEnd Members Mixing Analysis(EMMA)法により算出した。これは河川水質を流域内に存在する、極端な水質の異なる水体の混合により表現し、それぞれの寄与率を推定する手法である⁵⁾¹⁶⁾¹⁷⁾。この解析法を用いるための前提条件としては、End-Membersとしての各水体の水質が

解析時間内で一定値をとっていること、解析対象の水質トレーサが End-Member で構成された濃度散布図の三角形の内部に収まっていることを条件とする(図3)。実測された河川水質を(C_{1r} , C_{2r}), End-Members 1, 2, 3 の水質をそれぞれ(C_{11} , C_{21}), (C_{12} , C_{22}), (C_{13} , C_{23})とし、またそれぞれの寄与率を a_1 , a_2 , a_3 として

$$\begin{pmatrix} C_{1r} \\ C_{2r} \end{pmatrix} = a_1 \begin{pmatrix} C_{11} \\ C_{21} \end{pmatrix} + a_2 \begin{pmatrix} C_{12} \\ C_{22} \end{pmatrix} + a_3 \begin{pmatrix} C_{13} \\ C_{23} \end{pmatrix} \quad (1)$$

$$a_1 + a_2 + a_3 = 1 \quad (2)$$

として a_1 , a_2 , a_3 を求める。

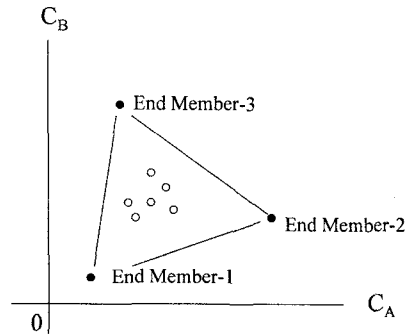


図3 EMMA の概念図, ●: End-Member, ○: 解析対象, C_A : トレーサ物質 A の濃度, C_B : トレーサ物質 B の濃度

3. 研究結果

3. 1 EMMA による河川水の由来解析

(1) 河川水の水質変動要因の解析とモデル化

フモンケ川の平均水質を表4に示す。St.6 は森林河川の水質であるが、それより下流は各態栄養塩濃度が高い。次にフモンケ川の流下過程における水質変化の例を図4に示す。水温が高く、微生物の活性が高くなる夏季においても流下過程における NO_3^- -N や 4.3Bx は Ca^{2+} やClと同様の濃度変化を示していることから、流下過程における藻類や微生物の影響による水質変化は小さいといえ、支流や地下水の流入が水質変化の主たる要因であるといえる。

表4 1999-2000 年のフモンケ川の平均水質 (算術平均値)
St.: 河川の調査地点, 河川: n=23, 地下水 (W1 地点): n=9, 河川水 BOD: n=8

		河川水						地下水	
		St. 6	St. 5	St. 4	St. 3	St. 2	St. 1	Spfa層	Spfl層
EC	$\mu\text{ S/cm}$	75	129	135	137	137	149	154	319
pH		6.9	7.0	7.1	7.1	7.1	6.9	7.2	6.7
DO	mg/l	10.3	10.3	10.8	10.9	10.8	10.2	1.9	9.4
BOD	mg/l	0.9	1.2	1.1	1.5	1.4	1.1		
TOC	mg/l	2.7	2.5	2.2	2.3	2.3	2.4		
POC	mg/l	0.9	0.8	0.6	0.6	0.6	0.5		
DOC	mg/l	1.8	1.7	1.7	1.7	1.7	1.9	1.9	1.1
SS	mg/l	5.1	18.2	12.0	7.0	6.8	7.8		
Chl-a	$\mu\text{ g/l}$	0.31	0.41	0.50	0.43	0.44	0.43		
Phaeo-a	$\mu\text{ g/l}$	0.69	0.73	0.78	0.65	0.68	0.71		
TP	mg/l	0.026	0.032	0.046	0.029	0.027	0.027		
DP	mg/l	0.010	0.008	0.021	0.010	0.008	0.008	0.132	0.005
DRP	mg/l	0.005	0.004	0.014	0.006	0.004	0.004	0.106	0.003
TN	mg/l	1.02	2.70	2.78	2.76	2.72	2.85		
DN	mg/l	0.89	2.51	2.65	2.65	2.62	2.76	0.83	13.90
NO_3^- -N	mg/l	0.69	2.35	2.43	2.50	2.39	2.57	0.03	13.50
PON	mg/l	0.13	0.19	0.13	0.11	0.10	0.09		
NH_4^+ -N	mg/l	0.011	0.036	0.032	0.016	0.018	0.031	0.608	0.013
NO_2^- -N	mg/l	0.002	0.009	0.011	0.013	0.010	0.010	0.003	0.003
4.3Bx	meq/l	0.365	0.569	0.603	0.607	0.614	0.642	1.365	0.772
Cl	mg/l	4.7	6.8	7.1	7.2	7.2	7.6	4.2	28.6
SO_4^{2-}	mg/l	4.6	10.2	10.0	10.6	10.7	11.4	0.2	13.0
Na^+	mg/l	5.7	7.8	8.0	8.0	8.0	8.3	11.2	13.6
K^+	mg/l	1.1	2.1	2.1	2.3	2.2	2.6	2.3	3.2
Ca^{2+}	mg/l	4.7	10.0	10.5	10.8	11.0	11.7	9.9	31.5
Mg^{2+}	mg/l	1.5	3.0	3.0	3.2	3.2	3.3	4.9	6.9
SiO_2	mg/l	31	35	37	37	37	39	46	50

フモンケ川の河川水は森林河川水 (St.6 における河川水) を母体として、流下過程で農耕地の排水や山地森林からの支流、湧水や地下水が混入している。湧水や地下水は溶存酸素を豊富に含有する En, Ta, Spfl 層の酸化的地下水と溶存酸素濃度が低い (2 mg/L 以下) Spfa 層, F_M 層の還元的地下水に大別される。そこで河川水や全ての流入水を

①山地森林河川水, ②酸化的地下水, ③還元的地下水の三成分で構成されていると仮定する。それぞれの流量比は EMMA を用いて推定する。

この考え方に従えば支流や農耕地排水は河川水と同様に ①～③の水体に還元されるから、支流や排水の影響は逐一考慮しなくとも良いことになる。

(2) EMMA のためのトレーサ物質の選定および濃度の決定

トレーサ物質の条件は溶存性であって、流下過程で濃度が変化しにくいことが必要であるから、測定項目のうち反応性の強い $\text{NH}_4^+\text{-N}$ や $\text{NO}_2^-\text{-N}$, DP を除外する。2つのトレーサの候補として、測定対象物質においては Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , 4.3Bx, Cl^- , SO_4^{2-} , $\text{NO}_3^-\text{-N}$, DOC, SiO_2 が残る。End-members 間で濃度変動特性が異なる物質を検索するため、Spfa 層の地下水 (還元的地下水) と Spfl 層の地下水 (酸化的地下水), 森林河川水 (St.6 の河川水) の水質について主成分分析を行った。

主成分得点分布図 (図 5) において Spfa 層の地下水は第 1 象限, 森林河川水については第 3 象限, Spfl 層の地下水については第 4 象限に分布した。第 1 主成分は酸化的地下水の特徴, 第 2 主成分は還元的地下水の特徴を示しているといえる。森林河川水は DOC 以外どの成分も概して地下水よりも低濃度であることが影響している。

主成分負荷量分布 (図 6) において Ca^{2+} , Cl^- , $\text{NO}_3^-\text{-N}$, SO_4^{2-} は第 4 象限に分布するから、これらは酸化的地下水の特徴を示す物質であるといえる。第 1 象限に分布する物質のうち第 1 主成分が大きい Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , SiO_2 は地下水の一般的な特徴を表す物質であるといえ、DOC は第 1, 第 2 主成分ともに小さく、十分に地下水の特徴を表現していない。

図 6 において第 4 象限に分布する項目である酸化的地下水中の Ca^{2+} , Cl^- , $\text{NO}_3^-\text{-N}$, SO_4^{2-} は還元的地下水に比較して濃度が高く、また涵養域に投入される窒素負荷量に濃度が比例する。前報⁶⁾ではフモンケ川上流部における湧水群の水質成分濃度を草地, 畑地面積率を説明変数として重回帰分析を行ったが、このときの決定係数を評価基準として、残るトレーサを決定した。決定係数は、高い順に $\text{NO}_3^-\text{-N}$ (決定係数: 0.951), Ca^{2+} (同 0.773), SO_4^{2-} (同 0.740), Cl^- (同 0.634) であったので、最も決定係数が高い $\text{NO}_3^-\text{-N}$ を第 1 のトレーサとして採用した。

トレーサはそれぞれの水体に関して濃度が安定かつ空間的に一定であることが必要であるが、酸化的地下水の $\text{NO}_3^-\text{-N}$ 濃度は農耕地の影響を受けており、地表面の農耕地の空間

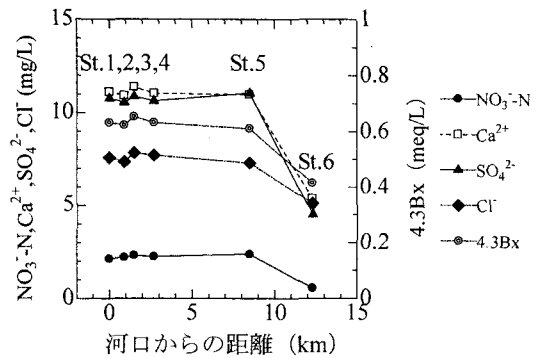


図 4 流下過程における水質変化 (フモンケ川, 2000 年 8 月 23 日, 平均水温 17.0°C)

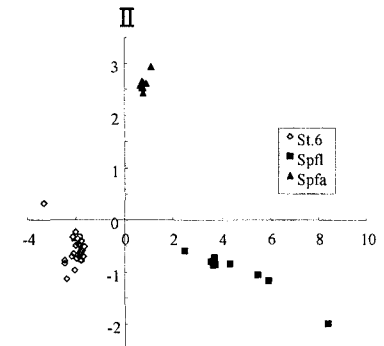


図 5 水質成分の主成分得点分布 (第 1 主成分寄与率: 69.1%, 第 2 主成分寄与率: 17.8%, ■: Spfl 層地下水 (酸化的地下水), ▲: Spfa 層地下水 (還元的地下水), ◇: St.6 河川水 (山地森林河川水))

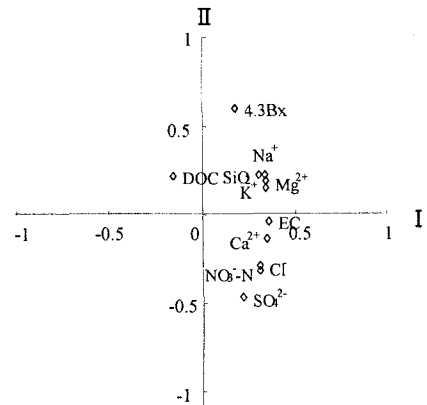


図 6 水質成分の主成分負荷量分布 (第 1 主成分寄与率: 69.1%, 第 2 主成分寄与率: 17.8%, Spfl 層地下水, Spfa 層地下水, St.6 河川水)

分布に依存する。このため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度については以下に示す方法により定量的に評価して流域における平地の平均的な酸化的地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を推定し、EMMA のトレーサ濃度とする。ただし酸化的地下水が何らかの還元的气氛に触れて脱窒された場合、還元的地下水の流入として結果が表示されることになる。

河川流域を山地森林と農耕地および平地林に分割し、河川流域の平地における酸化的地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を求めた。ここで山地森林の基準は明確な集水域があり、かつ流出する河川をもつ森林とした。なお、(4) 式の S については、一年を通じて土壌に貯留される水分は無いとして $S=0$ とした。

$$A = A_{MF} + A_{PL} \quad (3)$$

$$= A_{MF} + (A_1 + A_2 + A_3 + A_4 + A_5 + A_6 + A_7)$$

$$R_{PL} = (P - E - S)A_{PL} \quad (4)$$

$$L = \sum_{i=1}^7 \alpha_i l_i A_i + \sum_{j=1}^m \beta_j L_{sj} \quad (5)$$

$$L_{sj} = k_j a_j \quad (6)$$

$$C = 1000L / R \quad (7)$$

ここで A : 流域面積 (ha), A_{MF} : 山地森林面積 (ha), A_{PL} : 平地面積 (ha), A_1 : 平地林面積 (ha), A_2 : 水田面積 (ha), A_3 : 畑地面積 (ha), A_4 : 草地面積 (ha), A_5 : ゴルフ場面積 (ha), A_6 : 裸地面積 (ha), A_7 : その他の面積 (ha), R_{PL} : 平地への水資源の賦存量 (m^3/yr), P : 年間降水量 (m/yr), E : Thornthwaite 法による蒸発散ポテンシャル (m/yr), S : 貯留量 (m/yr), L : 地下水への窒素移行量 (kg/yr), l_i : 土地利用 i の投入窒素負荷 ($\text{kg}/\text{ha}/\text{yr}$), α_i : 土地利用 i での溶脱率 (-), L_{sj} : 畜舎 j からの家畜糞尿由来の窒素発生量 (kg/yr), k_j : 家畜飼養頭数, a_j : 家畜一頭当たりの排出負荷量 (kg/yr) β_j : 畜舎 j からの溶脱率, m : 畜舎数 C : $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度 ($\text{mg-N}/\text{L}$)。

表5 フモンケ川流域における平地の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度推定のための原単位

要因	地目別窒素負荷量				家畜排出窒素負荷量 ³⁾		
	林地	畑地	草地	ゴルフ場	肉牛	乳牛	豚
	$\text{kgN} \cdot \text{ha}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$				$\text{kg} \cdot \text{capita}^{-1} \cdot \text{yr}^{-1}$		
降雨 ¹²⁾	13	13	13	13			
堆肥	0	33	91 ¹²⁾	0			
化学肥料	0	112.75	86 ¹²⁾	41 ¹⁸⁾			
合計	13	158.75	190	54	23	58.7	13.2
溶脱率 (-)	0.75*	0.55 ¹²⁾	0.16 ¹²⁾	0.50 ¹⁸⁾	0.1**	0.1**	0.1**

(*: 降雨の全窒素濃度平均値 $1.0\text{mg-N}/\text{L}$ に対し、St. 6 における $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度平均値が $0.75\text{mg-N}/\text{L}$ であることによる。

** : 1-農地還元率¹²⁾)

排出負荷、投入負荷に関する原単位を表5に示す。馬に関する排出負荷量が得られていないため考慮できていないが、頭数が乳牛や豚に比較して少なくかつ放牧されているのでその影響は低いと考えられる。1998 年時点における河川流域の平地における土地利用と家畜飼養頭数から求められた河川各地点における平地の酸化的地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は $5.4\text{mg-N}/\text{L} \sim 5.9\text{mg-N}/\text{L}$ であった。実際に W1 の Spfl 層で測定された平均濃度 $13.5\text{mg-N}/\text{L}$ は推定された $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度よりも高いが、これは測定した地点の直近における畜舎の影響を受けているためであると考えられる。地下水流出量の推定結果に最も影響を及ぼすのが畑地の溶脱率である。溶脱率はライシメーターや一区画畑では 0.32 程度である¹⁹⁾といわれているが、畑作の継続年数や施肥された窒素の無機化率等によって異なり、本研究では近隣流域の調査結果である 0.55¹²⁾を用いた。著者らが流域の 19.5%が森林、79.5%が畑地である湧水について湧水の連続観測⁶⁾から求めた畑地面積あたりに換算した流出負荷量 $81 \sim 108\text{kg}/\text{ha}/\text{yr}$ と表5の投入窒素負荷量 ($158.75\text{kg}/\text{ha}/\text{yr}$) との比は $0.51 \sim 0.68$ であったので畑地の溶脱率の設定は妥当であるといえる。

4.3Bx は主成分負荷量分布図において第1象限に位置していて第2主成分が大であり、還元的地下水の特徴を示す物質であるといえ第2のトレーサとして選択した。4.3Bx は土壌間隙水中の CO_2 が土壌鉱物中の炭酸塩

を溶解することにより供給され²⁰⁾、脱窒反応によっても増加する。したがって同じ地質条件の場合、一般的には土壌との接触時間の長短および地下水の酸化還元電位等が地下水の 4.3Bx 濃度に影響を与えているものといえる。地下水から表流水に変化した後、4.3Bx は藻類による光合成や微生物の呼吸や窒素代謝に伴いその濃度が変化するが、調査対象河川の流程は 12.6km と短く、実際の流下過程における変化も小さい(図 4)。4.3Bx に関しては酸化的地下水については Spfl 層の地下水の平均濃度、還元的地下水については Spfa 層の地下水の平均濃度を用いた。なお、酸化的地下水中の 4.3Bx 濃度と地表面の土地利用は無関係である⁶⁾。各 End-Members の寄与率を求める際には表 6 に示した濃度を用いた。なお、河川水のトレーサ濃度は図 3 における、各 End-Members が形成する三角形に収まっていることを確認している。

表 6 EMMA に使用したトレーサ濃度

	①山地森林河川水	②酸化的地下水 (St.5)	②酸化的地下水 (St.3)	②酸化的地下水 (St.1)	③還元的地下水
4.3Bx(meq/L)	実測値(St.6)	0.80**	0.80**	0.80**	1.37*
NO ₃ ⁻ -N(mg-N/L)	実測値(St.6)	5.85	5.50	5.89	0.02*

* : W1 地点の Spfa 層の平均濃度, ** : W1 地点の Spfl 層の平均濃度

(3) 寄与率の推定結果

EMMA の適用の結果得られたフモンケ川の St.5, St.1 での地下水の寄与率の変動を図 7, 寄与流量の変動を図 8 に示す。フモンケ川の年間の傾向として融雪期および降雨増水時に山地森林河川の寄与率が上昇する。地下水は基底流量を形成し、融雪時や降雨時には山地森林から流出する水が大半を占めることを意味している。降雨が降雪に変化する秋から翌春にかけては森林から流出する水は減少し、酸化的地下水の割合が増加する。

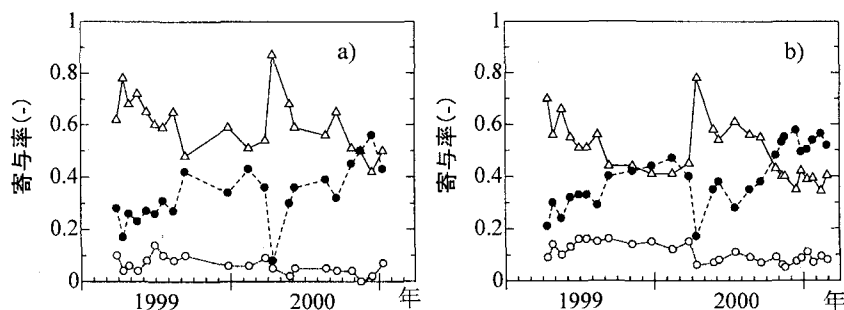


図 7 フモンケ川河川水の寄与率推定結果

a) : St. 5, b) : St. 1, Δ : 山地森林河川水, $\bullet$: 酸化的地下水, $\circ$: 還元的地下水

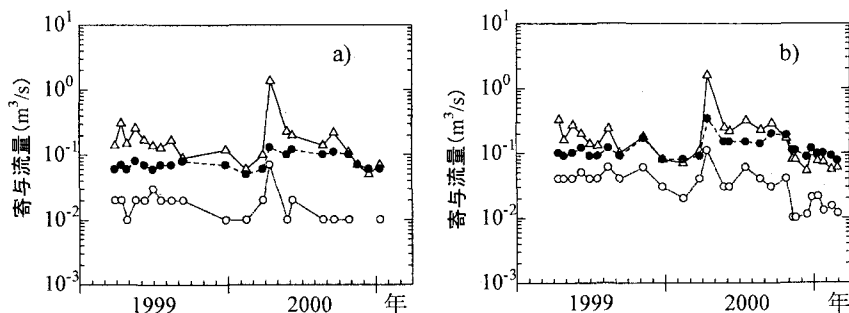


図 8 フモンケ川河川水の寄与流量推定結果

a) : St. 5, b) : St. 1, Δ : 山地森林河川水, $\bullet$: 酸化的地下水, $\circ$: 還元的地下水

従って酸化的地下水が $\text{NO}_3\text{-N}$ によって汚染されていれば冬季に河川水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が増加するが、フモンケ川では年間の最高濃度は融雪期直前の2月に記録されることが多い。

図9に St.5 において推定された酸化的地下水流出量と馬追丘陵に存在する湧水 SP (涵養域面積 0.153 km^2) の流量を示したが、推定された酸化的地下水流量は湧水の流量にほぼ対応する挙動を示した。丘陵部の湧水の流量が河川水の酸化的地下水の混入量をほぼ決定しているといえる。還元的地下水は森林河川流量および河川流量と似た挙動を示す。この原因については河川下流部で Spfa 層 (還元的地下水) の水位が河川水位と連続することが原因として考えられるものの検証には至らなかった。

EMMA による寄与流量推定結果の検証の一環として山地河川の寄与流量と St.6 における実測流量を比較した。その結果、グラフの直線の傾きから、St.5 において推定された山地森林河川の流量は St.6 の流量の 2.57 倍であり、山地森林面積の比率である 3.27 倍とおおむね一致した。また、St.3 においては流量比 3.01 倍、面積比 3.26、St.1 では流量比 2.96 倍、面積比 3.29 倍であることがわかった。図10に St.1 の場合を示す。よって、EMMA によって求められた山地森林河川の流量の推定値はおおむね妥当な結果であるといえる。

3. 2 土地利用や施肥量の変化に伴うフモンケ川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の変化予測

土地利用の変化や施肥量の変化に伴うフモンケ川における将来の河川水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を推定する。河川水における平均濃度と最高濃度を推定するために、土地利用や施肥量に応じた流域の平地における酸化的地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を再計算し、現在の酸化的地下水の寄与率を用いて河川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の平均値と最高値を求めた。以下に2つのシナリオを詳しく示す。

(1) シナリオ A : 平地林の開墾・農地化に伴う地下水・河川水質への影響

平地林の農地化に伴う地下水、河川水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の変化予測について図11に示す。フモンケ川流域では平地林の開墾による農地造成が今なお活発に行われており、平地林面積の減少・農地化による酸化的地下水質・河川水質への影響が現実の問題として存在する。現在の土地利用面積割合と施肥量による最下流の地点(流

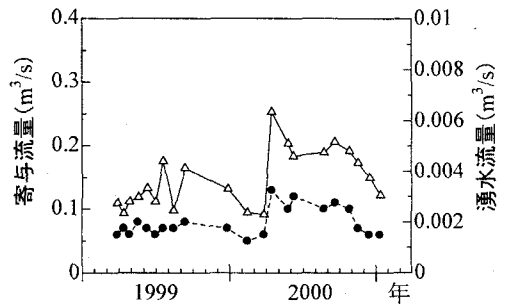


図9 St. 5 における酸化的地下水の寄与流量と湧水 SP の流量の関係 (△: 湧水流量, ●: 寄与流量)

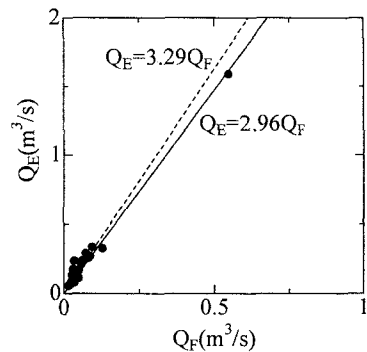


図10 山地森林河川流量の実測値 Q_F (St. 6) と St. 1 における山地森林河川水の寄与流量 Q_E の関係 (破線は St. 1 における山地森林面積比 3.29)

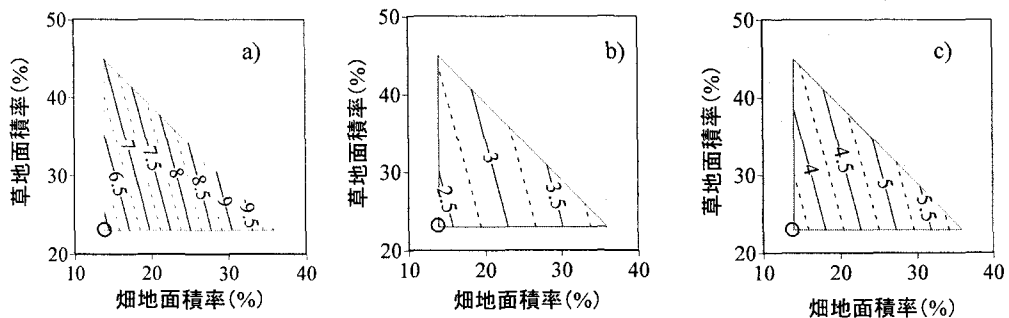


図11 フモンケ川流域の平地林が農地化した場合の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度 (mg-N/L) の試算結果。

○: 現在のフモンケ川の土地利用 (1998 年現在) a): フモンケ川流域の平地における酸化的地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度, b): St. 1 における河川水の年間平均濃度, c): St. 1 における河川水の年間最高濃度

域面積 25.7 km²) における酸化的地下水の推定 NO₃⁻-N 濃度は 5.85 mg-N/L, 河川の NO₃⁻-N 濃度の平均濃度は 2.37 mg-N/L, 最高濃度は 3.67 mg-N/L である。年間降水量や年間蒸発散量などの水文条件や施肥条件, 山地森林面積の比率, 地下水等の平均寄与率, 最大寄与率が変化しないとし, 現在流域に存在する平地林 (5.7 km²) が全て農地化された場合, 酸化的地下水の NO₃⁻-N 濃度は畑地化された場合で 10 mg-N/L, 草地化された場合で 7.0 mg-N/L になると計算される。このとき, St.1 における寄与率の平均値を用いて計算すると St.1 における河川水の NO₃⁻-N の平均濃度は畑地化された場合で 3.7 mg-N/L, 草地化された場合で 2.7 mg-N/L にそれぞれ上昇し, 最高濃度は畑地化で 5.7 mg-N/L, 草地化で 4.2 mg-N/L に上昇する。地下水, 河川水の NO₃⁻-N 濃度増加に対しては草地化より畑地化の影響が大きい。なお, フモンケ川流域における平地林の面積率は 24.5% であり, 農耕地面積の拡大幅はこれを限度とした。逆に農耕地が林地化した場合であるが, この場合の地下水質への影響は不明であるため, 考察の対象から除いた。

(2) シナリオ B : 家畜飼養頭数増加に伴う地下水・河川水質への影響

フモンケ川流域の土地利用の変化が無く, 家畜飼養頭数が増加したときの酸化的地下水質・河川水質への影響を考えた。流域で施肥のために使用される堆肥は流域の家畜の糞尿を処理してまかなわれるものとし, 畜舎からは発生する糞尿中の N の 90% が堆肥化され¹²⁾, 残り 10% は地下水中に漏出すると仮定して計算した。流域の農耕地面積 (表 5) から求められた農耕地に施用される堆肥由来の窒素量は畑地には年間 11.9 t, 草地に 53.7 t であり, 合計 64.8 t が施用されていると推定される。1998 年時点では糞尿の排出負荷量は 65.5 t であるから, 堆肥化した糞尿のほぼ全量を流域の農耕地に施用することができ, 1998 年比で 99% よりも増加した場合は流域全体で余剰糞尿が発生するために, その処理方法によっては地下水質, 河川水質に影響する可能性がある。以下に余剰糞尿をそのまま裸地に野積みした場合と堆肥化した糞尿を草地に還元した場合について試算した結果を示す。

1) 余剰糞尿を裸地に野積みした場合

余剰糞尿をそのまま野積み (放置) した場合, 裸地に野積みした場合は植物による窒素の収奪は発生しないがアンモニアの揮散によって糞尿中の窒素量は減少する。アンモニアの揮散による窒素量の減少はスラリーを草地に施用した場合について 30%~35% が得られている²¹⁾。また脱窒も生じる可能性もあるが, 必ずしも脱窒に理想的な状態で野積みされるとは限らないので, 脱窒分は考慮しなかった。そこで溶脱率を 0.7 と設定する。1998 年比で家畜飼養頭数が家畜構成比を保ったまま仮に 200% に増加した場合, 野積みの場合には NO₃⁻-N 濃度の上昇は顕著で, 地下水の NO₃⁻-N 濃度は 11 mg-N/L, 河川水の最高濃度は 6.5 mg-N/L まで上昇する。家畜使用頭数の増加に伴う NO₃⁻-N 濃度の変化予測を図 1 2 に示した。

2) 余剰糞尿を草地に施用した場合

流域の水環境の保全を目的とした場合, 窒素収奪量の大きい草地に余剰の家畜糞尿を施用することが考えられる。草地の溶脱率は 0.16 であり, 畑地等の 0.55 に比較して小さい。過剰施肥に対しても溶脱率が 0.16 で変化しないと仮定し, 1998 年比で 200% の飼養頭数になったとして余剰糞尿が草地に施用された場合には地下水の NO₃⁻-N 濃度の上昇は 7.8 mg-N/L に抑えられ, St.1 における河川水の最高濃度も 4.7 mg-N/L と計算された。草地施用時のシナリオに基づく家畜使用頭数の増加に伴う NO₃⁻-N 濃度の変化予測を図 1 3 に示した。流域の農地に施用することのできない余剰の家畜糞尿が発生した場合, 河川水の NO₃⁻-N 濃度の上昇を抑制する観点から考えると, 堆肥化した後に草地に還元する方法が考えられる。この場合草地には過剰に施肥されることになるが, 単年度施肥の場合の草地への環境保全上の限界施用量は大村らによれば 500 kgN/ha/yr 以下である²²⁾。ただし大村らは連用については別途検討が必要としている。

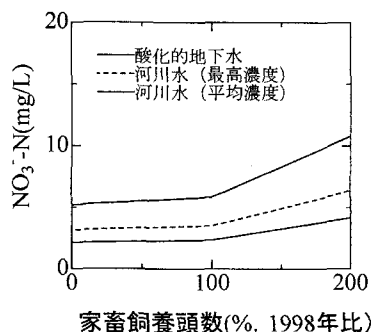


図 1 2 家畜飼養頭数の変化に伴うフモンケ川 St.1 における流域の NO₃⁻-N 濃度に関する試算結果 (余剰糞尿を裸地に施用した場合)

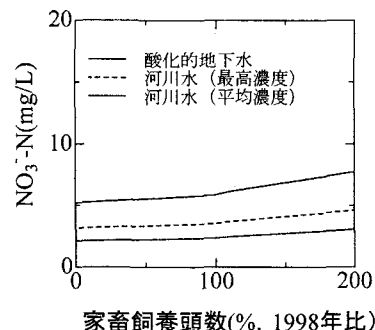


図 1 3 家畜飼養頭数の変化に伴うフモンケ川 St.1 における流域の NO₃⁻-N 濃度に関する試算結果 (余剰糞尿を草地に施用した場合)

4. まとめ

農耕地帯の河川水質は林地の河川水質に比較して NO_3^- -N が高濃度になる傾向があるが、本研究ではこの原因を硝酸態窒素により汚染された酸化了的地下水の流出としてとらえ、EMMA によって河川水に対する酸化了的地下水、還元了的地下水の寄与率を求めた。さらに河川水質管理へ応用するための河川水質変化の試算および考察を行った。

山地森林以外に施用される窒素負荷から流域の酸化了的地下水の NO_3^- -N 濃度を推定した後、EMMA を用いて地下水の寄与流量を推定することが可能であった。この結果を用いて平地林の農地化に伴う影響と家畜飼養頭数の変化に伴うフモンケ川の NO_3^- -N 濃度を試算した。前者については、畑地化した場合で NO_3^- -N 濃度の上昇が顕著であった。また、後者については裸地に野積みした場合の酸化了的地下水・河川水質への影響が大きいとみられた。家畜飼養頭数の変化については、流域に過剰な家畜糞尿が発生した場合、家畜糞尿を堆肥化して流域の草地牧草の品質が悪くならない程度に均等に草地に過剰施肥することで地下水・河川水の NO_3^- -N による汚染を軽減することができる。また、糞尿の農地還元によって上乗せされた窒素分を考慮して化学肥料を減肥することで、さらに地下水・河川水の NO_3^- -N 濃度の上昇を抑制することが可能である。これらを実現するには地方公共団体と関係機関が連携し、流域全体で発生する糞尿の量および堆肥を把握し、適切な処理方針を策定・実行することが必要であり、河川流域ごと、あるいはより適切な地域スケールで余剰糞尿を管理する体制を構築して化学肥料の代替としての堆肥等の輪旋、施肥量の指導を行うことにより地域の水環境に与える影響を少なくすることが重要である。

謝辞:本研究を遂行するにあたり、お世話になった方々をここに記して感謝いたします。早来 JA 金川幹司氏、金川幹夫氏は畑地の施肥量調査、湧水の調査にあたり氏所有の農場での調査にご協力いただきました。早来町役場;農林課高津均氏他農林課、土木課職員の皆様には早来町についてのデータを提供していただきました。北海道開発局石狩川開発建設部千歳川放水路事務所の皆様には地下水位、地下水質、河川水質に関するデータを提供いただきました。北海道大学低温研究所石井吉之氏には湧水の調査に関してご協力いただきました。また独立行政法人 農業技術研究機構北海道農業研究センター早川嘉彦氏には草地の窒素除去能力についてご教示いただきました。調査・分析にあたっては北海道大学大学院工学研究科水環境保全工学分野の学生諸氏の協力をいただきました。

参考文献

- 1)北海道(2001):平成 11 年度公共用水域の水質測定結果
- 2)Comly, H. (1945): Cyanosis in Infants Caused by Nitrates in Well Water. JAMA, 129, pp.112-116.
- 3)国包章一、真柄泰基 (1984):地下水の窒素汚染とその原因に関する基礎的考察, 衛生工学研究論文集, Vol.20, pp.121-132.
- 4)環境省(2003):平成 14 年度地下水質測定結果.
- 5)山本浩一・小林卓也・清水達雄・橘治国(2001):酪農・畑作地帯の河川への地下水流出量推定と河川水質の変動特性, 環境工学研究論文集, Vol. 38, pp. 187-196.
- 6) 山本浩一・小林卓也・橘治国(2003):北海道中央部における湧水涵養域の農業活動が湧水水質に及ぼす影響, 環境工学研究論文集, Vol.40, pp.489-500.
- 7)厚生労働省(2003):平成 14 年度水道統計調査.
- 8)小林康彦編(1994):水道の水源水質の保全, 技報堂出版.
- 9)志村もと子・田淵俊雄(1996):素堀り貯留池を伴う養豚場が河川の窒素濃度に及ぼす影響 I, II, III, 農業土木学会論文集, 182, pp1-23.
- 10)社団法人地盤工学会北海道支部火山灰土の工学的分類委員会編 (1998):北海道火山灰土の性質と利用 pp.50-51.
- 11)早来町(1998):家畜防疫地図.
- 12)大村邦男・黒川春一(1991):畑作酪農地帯における栄養塩類(N,P)の循環, 北海道立農試集報 63, 11-21.
- 13)伊達昇・塩崎尚郎編著(1997):肥料便覧第 5 版, 農文協.
- 14)松崎守夫ら(1994):日本作物学会紀事, 63, pp.15-20.
- 15)APHA, AWWA (1995): Water Environment Federation Standard Methods for the Examination of Water and Wastewater., 19th edition.
- 16)Genereux, D. P., Hemond, H. F. and Mulholland, P. J. (1993): Use of radon-222 and calcium as tracers in a three-end-member mixing model for stream flow generation on the West Fork of Walker Branch Watershed. J. Hydrol.,

142, 167-211.

17) 倉持寛太(1997): 草地酪農地域の水圏水質と草地負荷寄与率の推定, 北海道土壌肥料研究通信第43回シンポジウム, pp.25-35.

18) Kunimatsu, T., Sudo, M. and Kawachi, T. (1999): Loading rates of nutrients discharging from a golf course and a neighboring forested basin. Water Science and Technology, Vol. 39, No.12, pp.99-107.

19) 國松孝男・村岡浩爾編著(1989): 河川汚濁のモデル解析, pp.62-63.

20) 半谷高久・小倉紀雄(1995): 水質調査法第3版, pp.242-244.

21) 松本成夫(1998): 北海道の草地酪農地帯における家畜糞尿の利用と問題点-牧草地に対するふん尿の効果-, 北海道土壌肥料研究通信, 第44回シンポジウム, pp.41-46.

22) 大村邦男・黒川春一(1992): 水質環境から見た牛糞尿の許容限界量, 北海道立農業試験場集報, 64, 1-12.