

不均一かつ非特定発生源である農耕地による 水圏汚濁機構の解明

－トレーサーの利用を中心にして－

学位論文内容の要旨

農耕地からの栄養塩流出による水圏汚濁が顕在化している。農耕地は、汚濁物質の排出を特定しにくい非特定発生源であり、土壌を移動する水が、均質媒体を移動する理論を適用できないほど不均一であるという特徴を持つ。このため水圏水質汚濁防止策が立ち遅れている。本研究では農耕地からの汚濁物質、特に窒素の流出機構を明確にすることを目的とした。窒素流出解析のための適切なトレーサーを模索し、地表面流去水や暗渠流出水などの流出経路、肥料や糞尿などの起源の同定を試みるとともに、土壌中の水移動の不均一性についても検討した。

1. 主に道東大規模草地酪農地域のヤウシュベツ川流域(農地率 50%)、標津川流域(同 51%)、静内ケパウ川流域(同 30%)で行った。河川水を構成する森林、農地排水、地下水、降雨時の地表面流去水の水質を測定しその特徴を見ると共に、河川水質への寄与を保存性が高い溶存イオンなどをトレーサーとし、その希釈状態から河川流量への寄与を算出するエンドメンバーズ法の適用を試みた。化学肥料と家畜糞尿で異なる $\delta^{15}\text{N}$ 値を用いて、 NO_3^- -N の起源の同定を試みた。融雪期の窒素の地表面流去の寄与を Si をトレーサーとして見積もる方法、土壌浸透水の移動状態を D_2O により見積もる方法も検討した。

2. ヤウシュベツ川の NO_3^- -N 濃度は、 0.5 mg N L^{-1} 程度であり、森林河川より有意に高かった。草地排水は一部 $2\sim 3 \text{ mg N L}^{-1}$ の比較的高い値、地下水では局所的に飲用水基準 10 mg N L^{-1} 以上の NO_3^- -N 濃度が検出された。これらの NO_3^- -N 濃度は、 $\text{As/At} \left((\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-}) / (\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-} + \text{HCO}_3^-) \right)$ 当量比)と有意な正の関係が示された。 $(\text{Cl}^- + \text{SO}_4^{2-})$ は家畜糞尿、化学肥料に高濃度で含まれることから、 As/At が大きいほど糞尿、肥料の影響を強く受けていることを示す。よって、これらの高濃度の NO_3^- -N は、土壌表面に添加された肥料や糞尿散布に由来すると示唆された。

3. ヤウシュベツ川流域の糞尿由来の NO_3^- -N の $\delta^{15}\text{N}$ 値 $+15.6\text{‰}$ と、肥料の $\delta^{15}\text{N}$ 値 -0.9‰ を用いて、晴天時の河川水、地下水、草地排水の NO_3^- -N の起源を推定した。これら水試料中の NO_3^- -N の $\delta^{15}\text{N}$ 値は、 $-1\sim +12\text{‰}$ であった。河川水では、 NO_3^- -N の $30\sim 54\%$ が、草地排水、地下水では 1 地点を除き、 $20\sim 80\%$ が糞尿由来と推定された。糞尿由来窒素の割合は、 NO_3^- -N 濃度と有意な正の相関関係があった。地下水の 1 地点では NO_3^- -N 濃度は高いものの糞尿割合は $30\sim 45\%$ で、 NO_3^- -N 濃度との関係も他とは異なる

った。これらのことから、地下水や草地排水の NO_3^- -N による汚濁は、主に家畜糞尿によってもたらされていたが、局所的に化学肥料も関与していると思われた。

4. ヤウシュベツ川流域の上、中、下流の3地点で、エンドメンバーズ法を用いて、5〜10月の無積雪期間を対象に窒素流出源の同定、流出量の定量化を試みた。平水時は森林、草地排水、地下水を、降雨時は森林、草地排水、草地地表面流去水をエンドメンバーとし、平水時は肥料の主要成分である NO_3^- -N、 Ca^{2+} を、降雨時は NO_3^- -N と地表面流去水に特徴的であった COD をトレーサーとした。流域が小さく流れが速いことから、 NO_3^- -N や COD の保存性は維持されると判断された。3地点の河川への全窒素 (TN) 流出量における草地由来の寄与率は、晴天時が 5〜25%、降雨時は 32〜56%であり、総 NO_3^- -N 流出量では晴天時が 12〜52%、降雨時は 13〜32%と推定された。単位面積当たりの草地からの窒素流出量は、TN で $8\sim 11\text{kg ha}^{-1}$ 、 NO_3^- -N で $2\sim 3\text{kg ha}^{-1}$ であり、TN は新藤ら (2004) の報告 ($15\text{kg ha}^{-1} \text{y}^{-1}$) に近かった。

5. 標津川流域で2年間の融雪期における窒素流出を調査した。土壌浸透水由来とみなせる Si を用い、融雪期の地表面流去水の寄与を推定した。融雪期の全流出水量 413, 511mm に対し地表面流去水に由来するものは 130, 200mm、31, 39% で年次による大きな差はみられなかった。一方、TN 流出では、融雪期の全流出量 326, 390Mg に対し地表面流去水由来は 184, 280Mg、56, 73% と水量より割合が高く、年次変動も大きかった。 NO_3^- -N については 130, 170Mg に対し、31, 41Mg、24, 28% と水量より割合が低かった。融雪期の地表面流去水は主に TN、すなわち有機物や粒子状の窒素流出が主体をなすことが示された。

6. ケパウ川流域において、降雨や施肥などの要因と窒素流出量の関係把握するため、7月から10月までの4回の降雨時 (総降雨量 12〜54mm、強度 $1.7\sim 5.7\text{mm h}^{-1}$) における河川への窒素流出を測定し、エンドメンバーズ法によりその内訳を求めた。トレーサーとして肥料や糞尿に多く含まれる K^+ 、 Cl^- 、 NO_3^- -N および土壌浸透水由来とみなせる Si を用いた。河川最下流の有機態窒素流出量の計算値は実測値より小さく、河岸崩壊の影響が示唆された。 NO_3^- -N は比較的実測値と良い一致が見られ、流域の面積割合が 2% にすぎない普通畑の暗渠排水が 23〜61% を占めた。地表面流去水による窒素の流出量と、降雨量、強度の間には関係は見られなかったが、草地への施肥から降雨までの日数との間に有意な関係が見られ、窒素流出は人為的要因に強く支配されることが示された。

7. D_2O を水のトレーサーとした現地試験による土壌の水移動の不均一性、流出への影響評価を行った。その結果、水移動は管状粗孔隙、割れ目状孔隙、土層の堆積構造に強く支配されていた。管状粗孔隙による水移動では、浸潤の初期段階でその不均一性が示され、表層の水の 14% 程度を素早く下層へ移動させた。一方、割れ目状粗孔隙による移動は 25% 程度と高く、その後も割れ目状孔隙の連続性に依存し優先流が持続した。このような粗孔隙の迅速かつ多量の水移動が、窒素移動、流出に大きく影響し、ヤウシュベツ川流域での部分的な化学肥料による汚濁や、ケパウ川流域での普通畑暗渠排水の NO_3^- -N が、河川流出の 23〜61% を占める説明になる可能性が示唆された。

8. 土壌との接触時間を示す Si、有機物の指標としての COD、各種溶存イオンは、流出速度が速く保存性が保たれる場合には窒素流出源、流出経路の同定、定量化のためのトレーサーとして有効であり、窒素の同位体は河川・地下水への流出窒素の起源の推定に利用でき、 D_2O は水移動のトレーサーとして有効で

あることが示された。一方、本研究では河岸崩壊や河床物質の巻き上げ等を流出源として考慮しておらず、また、流下過程が長い場合には生物反応の影響が現れ、トレーサーとしての保存性が保たれない可能性があり、今後もその検討を進めていく必要があると指摘された。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 波多野 隆 介
副 査 教 授 長谷川 周 一
副 査 教 授 長 澤 徹 明

学 位 論 文 題 名

不均一かつ非特定発生源である農耕地による 水圏汚濁機構の解明

－トレーサーの利用を中心にして－

本論文は11章からなり図80、表37、写真1、引用文献210を含む125ページの和文論文であり、他に参考論文9編が添えられている。

農耕地からの栄養塩の流出は水圏汚濁を助長してきたが、不均一な土壤中の水移動および地表面流や地下水流、生物的な物質の形態変化や固定、化学反応に関わり、農耕地由来の汚濁物質の排出量が簡単に把握できず、その対策が遅れていた。本研究は、汚濁物質の起源や流出経路をトレーサーを用いて包括的に推定することを目的として行われた。

硝酸態窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)の起源には土壌有機物、化学肥料、家畜糞尿や堆肥がある。酪農流域のヤウシュベツ川流域の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度を調査したところ、森林溪流水<河川<草地排水<地下水であり、地下水では局所的に飲用水基準 10 mg N L^{-1} 以上のものも認められた。これらの $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は、 $(\text{Cl}^{-}+\text{SO}_4^{2-})/(\text{Cl}^{-}+\text{SO}_4^{2-}+\text{HCO}_3^{-})$ 当量比と有意な正の関係があった。一般には $(\text{Cl}^{-}+\text{SO}_4^{2-})/(\text{Cl}^{-}+\text{SO}_4^{2-}+\text{HCO}_3^{-})$ の上昇は塩水の影響を示すが、 $(\text{Cl}^{-}+\text{SO}_4^{2-})$ は家畜糞尿、化学肥料にも高濃度で含まれることから、酪農流域では家畜糞尿、化学肥料に影響を受け $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が上昇する水質形成が進行していることを示した。

窒素代謝では軽い ^{14}N が利用されるため残留物の糞尿中での窒素の安定同位体自然存在比は($\delta^{15}\text{N}$)は基準とする大気($\delta^{15}\text{N}=0\text{‰}$)に比べ高い値をとる。化学肥料は大気窒素を固定するため $\delta^{15}\text{N}$ は 0‰ に近い。ヤウシュベツ川流域の河川水、地下水、草地排水のそれぞれで $\delta^{15}\text{N}$ 値は $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と正の相関関係があった。このような関係は、生物的な反応が無視される単純な混合により生じたものとされている。そこで、比例計算により家畜糞尿由来、化学肥料由来の混合比を求めたところ、河川水では $\text{NO}_3\text{-N}$ の30～54%が、草地排水、地下水では20～80%が家畜糞尿由来と推定された。河川水を除き、糞尿由来窒素の割合は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と有意な正の相関関係があり、とくに地下水では家畜糞尿の混合割合の変化に対する $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の変動が大きく、インパクトが強いことを示した。

農地流域の河川水は、上流からの森林溪流水へ、農地からの排水、地下水が混入して形成さ

れる。これら河川水形成のエンドメンバーの寄与率は、その溶存成分のうち保存性が高い成分をトレーサーとして見つけることにより計算できる(エンドメンバーズ法)。エンドメンバーズ法によりヤウシュベツ川流域の上、中、下流の無積雪期間の窒素流出へのエンドメンバーの寄与を検討した。試行錯誤の結果、トレーサーとして平水時は $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 Ca^{2+} が、降雨時は $\text{NO}_3\text{-N}$ とCODを選択した。見積もられたエンドメンバーの寄与率とトレーサーに用いなかった各種溶存成分のエンドメンバーの濃度から、河川水の濃度を推定したところ、実測値と良く一致することを確認した。降雨時で、平水時より草地からの排水の寄与率が高まることを示した。

静内牧場のケパウ川流域では、森林溪流水、草地地表面流去水、草地暗渠排水、コーン畑の地表面流去水およびコーン畑の暗渠排水をエンドメンバーとして降雨時の河川水へのエンドメンバーの寄与率を推定した。得られたエンドメンバーの寄与率と溶存成分のエンドメンバーの濃度から河川水の濃度を推定したところ、有機態窒素を除き、推定値と実測値は良く一致した。有機態窒素の推定値は実測値を大きく下回った。その理由としてエンドメンバーとして想定しなかった河岸崩壊などの影響が示唆された。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の流出は、コーン畑の暗渠排水と、草地地表面流去水由来のものが主体であったが、コーン畑の暗渠排水の寄与率が夏から秋にかけて低下したのに対して(61 から 23%)、草地地表面流去水は逆に上昇し(12 から 71%)、施肥時期がよく反映されることを示した。

積雪地帯では融雪期にも大きな地表面流去が生じ、これが沿岸域の富栄養化の原因として指摘されている。地表面流の分離には地表に少なく地下に多い物質をトレーサーとして用いれば良いことから、ここでは、地下での岩石の風化に伴い溶出するケイ素(Si)のみを用いて、標津川流域での融雪期の $\text{NO}_3\text{-N}$ および全窒素流出の地表面流去由来の寄与率を求めた。その結果、 $\text{NO}_3\text{-N}$ では全窒素より地表面流去由来の寄与率は有意に小さく、融雪期の地表面流去水は無機態窒素より有機物や粒子状の窒素流出が主体になることを示した。

土壌への水の浸透は地表面流去を抑えることから、土壌を通る水移動の特徴を検討した。水の移動は、土壌構造に強く支配され、割れ目状の亀裂や、根の跡の管状の粗孔隙などは、水の通り道であり、土塊は水を保持する場であることが良く知られている。そこで、管状粗孔隙が主体の土壌と、割れ目状粗孔隙が主体の土壌に水のトレーサーとして重水(D_2O)を表面に与え、その後灌水をして D_2O の下方への動きを見た。灌水後2時間で、いずれの土壌も D_2O は50cmまで達していた。表層10cm以下への D_2O の移動量は割れ目状粗孔隙が主体の土壌のほうが、管状粗孔隙が主体の土壌より有意に多く、粗孔隙の形状も排水に関与していることを示した。

以上のように、本研究は、土壌から水圏への流出の特徴を、トレーサーを用いて定量的に把握していく方法を検討したものであり、関連学会においても高く評価されるとともに、農業環境技術研究所が監修した水質調査マニュアルにも収録され、広く利用されている。よって審査員一同は、倉持寛太が博士(農学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認めた。