

第1節 自然科学的立場からのモニタリング

3. メソ視点より一濁水の行方

3.1 水田から流出する濁水中の窒素の形態変化

山田佳裕¹⁾、三戸勇吾²⁾、中島沙知²⁾

1) 香川大学農学部、2) 愛媛大学大学院連合農学研究科

1. はじめに

人間活動に伴う流域への窒素の過剰な供給は、水質汚濁の主要な要因となっている。近年、下水処理場の普及および下水処理能力の向上や、流域への窒素・リンの総量規制により生活廃水や工場廃水からの窒素・リンの負荷量は減少しつつある^{1,2)}。しかしながら、流域への窒素・リンの重要な供給源の一つである農業廃水については廃水の管理が難しい等の理由から具体的な対策が取られていないのが現状である。

稲作は国内における主要な農業の一つであり、灌漑期には水田から多量の窒素が河川へと流入する³⁾。灌漑期の中でも、特にしろかき期には、水田から懸濁物を多く含んだ濁水が流入する⁴⁻⁷⁾。そして、濁水に含まれた窒素は無機化や硝化・脱窒といった様々な生物地球化学的变化を経ながら、下流域の物質循環系へと組み込まれていく。よって、水田からの濁水が流域の物質循環や生態系に与える影響を評価していく上で、窒素やリンの供給量に加えて、その形態変化の過程を把握することが重要と考えられる。

本研究では、琵琶湖集水域有数の水田地帯である湖東平野の水田地帯において、しろかき期に水田から流出する濁水の培養を行い、水田から流出する濁水中の窒素の形態変化を明らかにすることを目的とした。

2. 方法

2004年5月に湖東平野の水田地帯においてしろかき時に水田から流出する濁水を採取した(35°12'00", 136°11'51")。採取した濁水試料は孔径150 μ mの網を用いて夾雑物を除去した後、その300mlを遮光したガラス瓶に分取した。これに硝化抑制剤(ニトラピリン)15mgを添加した検体および硝化抑制剤無添加の検体(コントロール)をそれぞれ5検体ずつ作成した。また、蒸留水300mlを遮光したガラス瓶に分取した検体を3検体作成した。調整した各検体に回転子を入れ、

スターラーで攪拌しながら、人工気象器を用いて現場水温(23℃)で培養し、培養開始から7日、14日、21日、28日後に濁水の採取を行った。27日後の濁水採取時には、同時に溶存酸素計(YSI-model95)を用いて濁水中の溶存酸素量(DO)を測定した。

水田から流出していた濁水および培養実験で得られた濁水試料は、孔径0.2 μ mのメンブレンフィルター(GD/X, Whatman)でろ過を行い、ろ液について硝酸態窒素(NO_3^- -N)、亜硝酸態窒素(NO_2^- -N)、アンモニア態窒素(NH_4^+ -N)を測定した。また、水田から流出していた濁水および培養開始から13日、27日後の濁水試料は、全窒素(TN)についても測定した。

NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -NはTRAACS 2000(BRAN+LUEBBE)を用いて測定した。また、TNについては試料水をアルカリ性ペルオキシ二硫酸カリウム分解法⁸⁾で分解後、ろ液についてTRAACS 2000(BRAN+LUEBBE)でそれぞれ測定した。

また、 NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -Nの総和をDINとして算出した。

3. 結果および考察

水田から流出していた濁水中のTN濃度は5.03mg l⁻¹であった(図1)。硝化抑制剤を添加した実験区のTN濃度の平均値は13日後では4.95±0.518mg l⁻¹、28日後では5.27±0.151mg l⁻¹であった(図1)。また、硝化抑制剤を添加していない実験区では14日後で4.77±0.292mg l⁻¹、28日後で5.40±0.147mg l⁻¹であり、両実験区において培養期間中のTN濃度の増減はほとんどなかった(図1)。さらに、蒸留水のTN濃度は14日後で0.022±0.004mg l⁻¹、28日後で0.026±0.005mg l⁻¹と低かったことから培養期間中における窒素の外部からの汚染は無視できるレベルであったといえる(図1)。

培養終了時(28日後)におけるDOは硝化抑制剤を添加した実験区では、10.0±0.4mg l⁻¹であり、

硝化抑制剤を添加していない実験区では $10.1 \pm 1.1 \text{ mg l}^{-1}$ であったことから、培養期間中、実験に用いた濁水は酸化条件下にあったと考えられる(図2)。

水中における無機態窒素には NO_3^- -N、 NO_2^- -N、 NH_4^+ -Nの3つの主要な形態が存在する。 NH_4^+ -Nは自然水域中では、主に有機窒素の無機化によって生成される。そして、酸化的环境下では NH_4^+ -Nは硝化細菌により、 NO_2^- -N、 NO_3^- -Nへと形態が変化する。 NO_3^- -Nは溶存酸素が欠乏した環境下では脱窒細菌により還元され、窒素(N_2)ガスとして水中から除去される。硝化抑制剤の添加によって、硝化反応を阻害された濁水中では、培養期間中 NO_3^- -N、 NO_2^- -Nはそれぞれ 0.05 mg l^{-1} 、 0.02 mg l^{-1} 程度の値から変動しなかったのに対して、 NH_4^+ -N濃度は、培養開始時の 0.257 mg l^{-1} か

ら培養終了時(28日後)には $1.33 \pm 0.067 \text{ mg l}^{-1}$ まで増加している。これは、水中に含まれる懸濁態および溶存態の有機窒素が無機化されたためと考えられる(図3)。一方で、硝化抑制剤を添加していないコントロールの濁水では、 NH_4^+ -N濃度の増加は見られず、培養開始時の 0.257 mg l^{-1} から7日後には $0.018 \pm 0.002 \text{ mg l}^{-1}$ と減少し、以後同程度の濃度で推移した(図3)。しかしながら、培養開始から7日後には NO_2^- -N濃度は $0.969 \pm 0.083 \text{ mg l}^{-1}$ と著しく増加しており、無機化された NH_4^+ -Nが NO_2^- -Nへと硝化されたことを示している(図3)。そして、培養開始から14日後には、 NO_2^- -Nは $0.012 \pm 0.002 \text{ mg l}^{-1}$ と培養開始時と同程度まで濃度が減少し、逆に NO_3^- -N濃度が $0.860 \pm 0.067 \text{ mg l}^{-1}$ が増加したことから、無機化された NH_4^+ -Nのほとんどが約2週間後には NO_3^- -Nまで硝化されたも

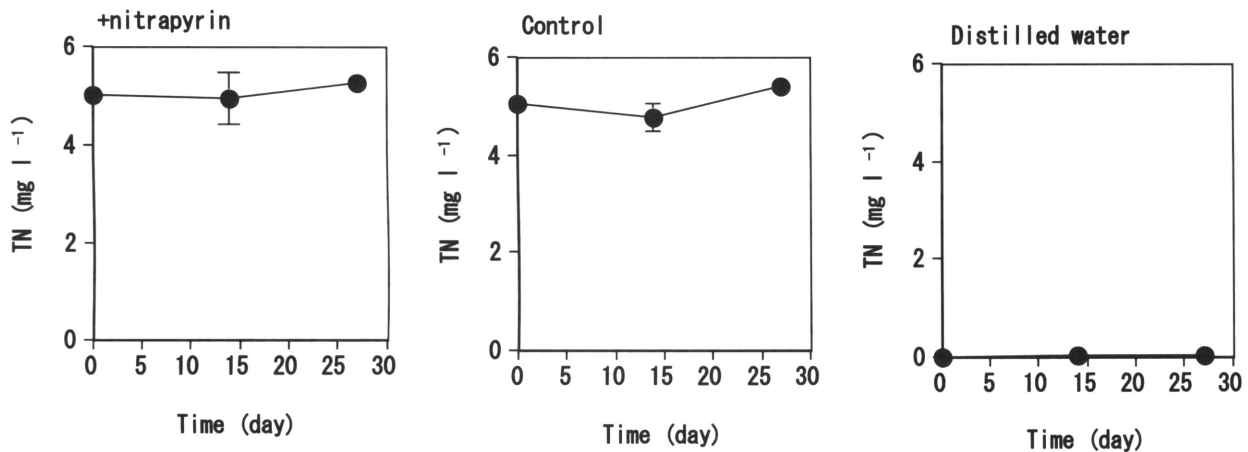


図1 培養期間中における硝化抑制剤添加区(+nitrapyrin)、無添加区(Contral)、蒸留水(Distilled Water)中における全窒素(TN)濃度の変化

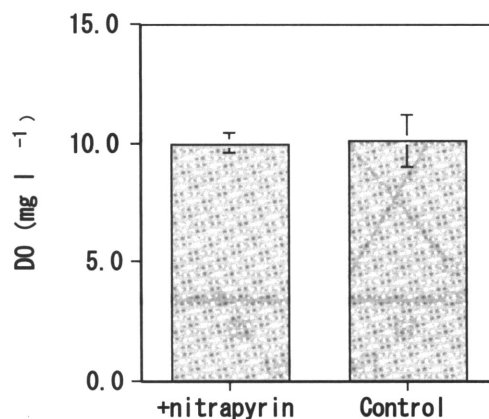


図2 培養終了時(28日後)における硝化抑制剤添加区(+nitrapyrin)、無添加区(Contral)の溶存酸素量(DO)

のと考えられる(図3)。培養開始から21日後には、DINおよび NO_3^- -N濃度は、若干の低下が見られ、脱窒が生じていた可能性がある(図3)。培養期間中においては、濁水は酸化的な条件下にあったものの(図2)、懸濁粒子の隙間といった微細な空間では還元的な環境が形成されており、このような空間で脱窒が進んだ可能性が考えられる。

以上のことから、自然界中では濁水中のTNの約30%が約1ヶ月で分解され、 NO_3^- -Nにまで硝化されていると考えられる。

山田らは、しろかき期に流出する窒素の70~90%程度が懸濁態を主体とした有機窒素であり、琵琶湖北湖集水域において、農業用水を比較的豊富に用いることができる水田(約277 km^2)が粗放的な水管理によるしろかきを行った場合、そのTN負荷量は最大54.3 tonになると見積もっている⁹⁾。本実験の結果より、しろかき時の濁水中のTNの約30%が NO_3^- -Nになると考えられる(図1, 4)。琵琶湖集水域における水田全てが粗放的な水管理

によるしろかきを行った場合、16 tonの NO_3^- -Nが濁水中の有機窒素の無機化によって負荷されることとなる。これは、Miyajima¹⁰⁾によって見積もられた琵琶湖北湖における成層期(6月~10月)の深水層での NO_3^- -Nの回帰速度567 $\text{mg}/\text{m}^2/\text{month}$ と琵琶湖北湖の面積614 km^2 から算出される琵琶湖北湖の成層期の深水層での NO_3^- -Nの1ヵ月当たりの回帰量(348ton)の5%に相当する。

分解されなかった約70%は堆積物中へ移行し、長時間湖底に蓄積されることになる。稲わら等の難分解性の有機物が主要な要因であると考えられるが、このような堆積物へ移行する分画が水域の窒素循環にどのような影響を及ぼすか、明らかにしていく必要がある。いずれにせよ、水田の水管理が粗放化した場合、このように短期間に琵琶湖への窒素負荷が増大することになる。水管理の適正化を行なうことが、琵琶湖の富栄養化を抑制する上で必要である。

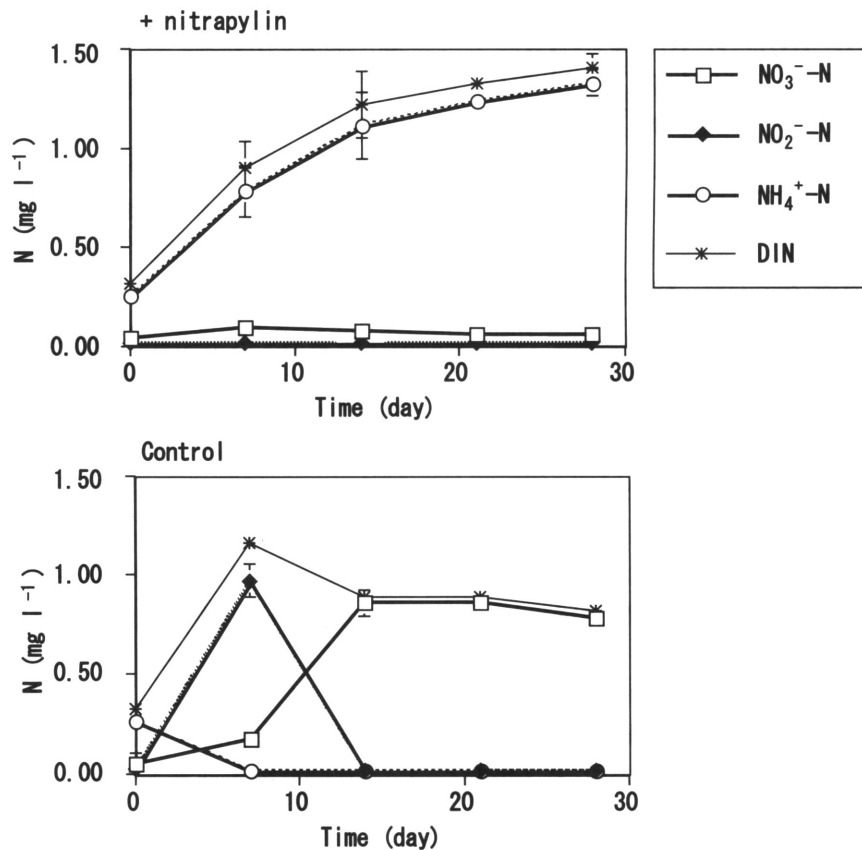


図3 培養期間中における硝化抑制剤添加区 (+nitrapylin)、無添加区 (Control) における硝酸態窒素 (NO_3^- -N)、亜硝酸態窒素 (NO_2^- -N)、アンモニア態窒素 (NH_4^+ -N)、溶存無機態窒素 (DIN) 濃度の変化

参考文献

- 1) 中村栄一「琵琶湖の水質改善と下水道」『用水と廃水』(1996) 38: 36-40.
- 2) 平山公明・平山けい子・今岡正美・金子栄廣「下水道の普及に伴う小河川での水質変化に関する検討」『下水道協会誌』(2002) 39: 151-166.
- 3) 國松孝男「農地からのN, P負荷(その2)」『環境技術』(1985) 14: 195-202.
- 4) 武田育郎・国松孝男・小林慎太郎・丸山利輔「水系における水田群の汚濁物質の収支と流出負荷量」『農業土木学会論文集』(1991) 153: 63-72.
- 5) 近藤正・三沢真一・豊田勝「代掻き田植時期のN, P成分の流出特性について」『農業土木学会論文集』(1993) 164: 147-155.
- 6) 宇土顕彦・竺文彦・大久保卓也・中村正久「灌漑期の水田における水量収支と栄養塩収支」『水環境学会誌』(2000) 23: 298-304.
- 7) 村山重俊・駒田充生・馬場浩司・津村昭人「農業集水域小河川の平常流量時の水質とその時期的変動」『日本土壤肥料学雑誌』(2001) 72: 409-419.
- 8) D'Elia C. F., Stendler P. A. and Corwin N., Determination of total nitrogen in aqueous samples using persulfate digestion. *Limnology and oceanography*. (1977) 22: 760-764.
- 9) 山田佳裕・井桁明丈・中島沙知・三戸勇吾・小笠原貴子・和田彩香・大野智彦・上田篤史・兵藤不二夫・今田美穂・谷内茂雄・陀安一郎・福原昭一・田中拓弥・和田英太郎「しろかき期の強制落水による懸濁物、窒素とリンの流出—圃場における流出実験—」『陸水学雑誌』(2006) 67: 105-112.
- 10) Miyajima, T., Decomposition activity and nutrient regeneration rates in the hypolimnion of the north basin of Lake Biwa. *Jpn. J. Limnology*. (1992) 52: 65-73.
- 11) 農林水産省統計部「平成16年耕地及び作付面積統計」(財)農林統計協会. 東京(2005).
- 12) 農林水産省統計部「2000年世界農林業センサス」(財)農林統計協会. 東京(2001).
- 13) Mentzel D.W. and Corwin N., The measurement of total phosphorus in seawater based on the liberation of organic bound fractions by persulfate oxidation. *Limnology and oceanography*. (1965) 10: 280-282.
- 14) Parfitt, R. L., Anion adsorption by soils and soil materials. *Advance in Agronomy*. (1978) 30: 1-50.
- 15) 田中勝久「沿岸・河口域のリン循環過程におよぼす土壌物質の影響」『南西水研研報』(1995) 28: 73-119.