

## 硝酸イオンの窒素及び酸素安定同位体比を用いた 茨城県銚田川流域地下水の窒素負荷源の推定

箭田佐衣子<sup>1</sup>, 中島泰弘<sup>1,2</sup>, 松森堅治<sup>3</sup>, 板橋 直<sup>1,4</sup>, 平野七恵<sup>1</sup>, 大内孝雄<sup>5,6</sup>, 吉川省子<sup>1</sup>, 江口定夫<sup>1</sup>

<sup>1</sup>農研機構 農業環境変動研究センター, <sup>2</sup>農研機構 高度解析センター, <sup>3</sup>農研機構 西日本農業研究センター, <sup>4</sup>現 農林水産省 農林水産技術会議事務局, <sup>5</sup>茨城県霞ヶ浦環境科学センター, <sup>6</sup>現 茨城県県民生活環境部環境対策課

キーワード: 霞ヶ浦に係る水質保全計画(第7期), 施設園芸, 水田, 堆肥, 脱窒, 養豚

### 抄録

霞ヶ浦北浦に流入する茨城県銚田川流域(53 km<sup>2</sup>)は、畜産及び施設園芸が盛んで窒素負荷量が多い。銚田川流域内の井戸( $n = 60$ )を対象に硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )濃度を測定したところ、平均値±標準偏差は  $9.4 \pm 4.2 \text{ mg N L}^{-1}$  であった( $\text{NO}_3^-$ 等水質環境基準:  $10 \text{ mg N L}^{-1}$ )。地下水中  $\text{NO}_3^-$ の窒素( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ )及び酸素( $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ )安定同位体比( $7.9 \pm 1.9\text{‰}$ 及び  $1.2 \pm 1.2\text{‰}$ )から、主な N 負荷源は化学肥料及び家畜排泄物の混合物と推定された。三区区分したサブ流域毎の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3} - \delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロットの分布範囲は概ね一致し、流域全体で化学肥料と家畜排泄物が併用されている可能性が示唆された。全データの  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3} - \delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロットの一回帰直線の傾きは 0.42 であり、一部の  $\text{NO}_3^-$  は脱窒の影響を受けたものであることが示された。以上より、 $\text{NO}_3^-$ による地下水汚染を防止する上で、化学肥料と家畜排泄物の両方の削減の必要性が示された。

### 1. はじめに

「泳げる霞ヶ浦・遊べる河川」の実現に向け、霞ヶ浦に係る水質保全計画(第7期)の水質保全目標値(COD:  $7.8 \text{ mg L}^{-1}$ , 全窒素:  $1.1 \text{ mg N L}^{-1}$ , 全りん:  $0.090 \text{ mg P L}^{-1}$ )が策定された[1]。霞ヶ浦(220 km<sup>2</sup>)の主要流入河川のうち、茨城県銚田川は硝酸イオン( $\text{NO}_3^-$ )等の窒素(N)濃度が最も高く、この10年間で水質環境基準( $10 \text{ mg N L}^{-1}$ )の超過がみられるようになった[2]。

この理由として、近年、銚田川流域では畜産及び施設園芸の集約化が進み、流域内における1日あたりN負荷量は畜産が262 kg、畑地が87.5 kg、生活排水が87.6 kgあり(平成17年)、とくに畜産排泄物の適正な管理と利用が推進されてきた[3]ことが挙げられる。これに関連し、銚田川河川水中のNに着目した研究が多くある一方で、銚田市の調査(平成28年)で $\text{NO}_3^-$ 等による地下水汚染例が報告されている[4]にもかかわらず、地下水についての知見が乏しい。銚田川流域では、水田や施設畑の灌漑に主に地下水が使用されていることから、安定的な農業生産の為に地下水Nの実態把握と汚染対策は重要である。

地下水への $\text{NO}_3^-$ 汚染を論じる際には、科学的な根拠に基づく汚染源の特定が必要である。一般的に、Nの起源や脱窒・混合の度合いによって $\text{NO}_3^-$ の酸素とNの安定同位体比( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ )の値が異なることが知られており[5]、試験管から地球規模でのN動態評

価に用いられている。霞ヶ浦流域では、筑波山麓水田集水域でのN動態評価に河川水中の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ 値が用いられた[6]。本研究は、銚田川流域の地下水中 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ 値に基づき、家畜排泄物や化学肥料等の地下水へのN負荷源、ならびに硝化や脱窒等のN動態が当流域内の $\text{NO}_3^-$ による地下水汚染に与える影響を評価することを目的とした。

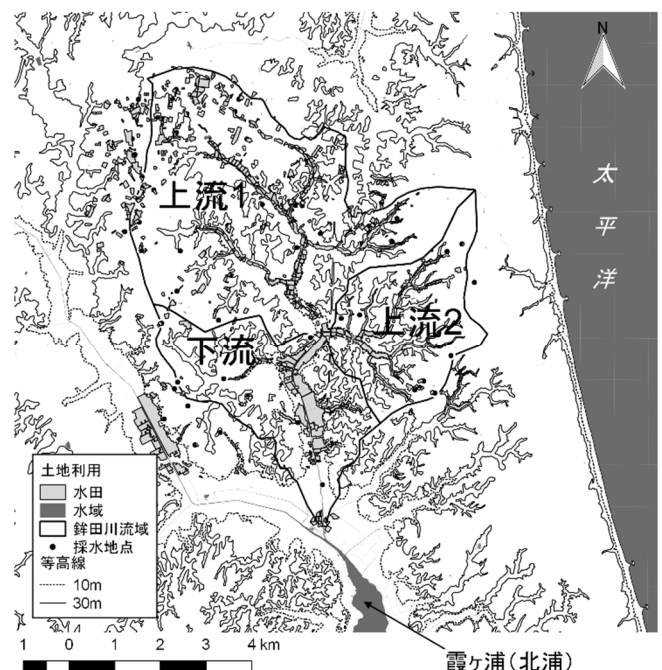


図1: 採水地点

## 2. 方法

茨城県鉾田川流域 (53 km<sup>2</sup>) を 3 つのサブ流域 (上流 1、上流 2、下流) に区分し、計 60 箇所の井戸で地下水を採取した (2014~2016 年) (図 1)。河川水は、2014 年に鉾田川本流 (下流部の飯名橋近傍) で採取した。水試料中の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度はイオンクロマトグラフ法で測定し、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  と  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  値は脱窒菌法 [5] により求めた。

## 3. 結果

全地下水 ( $n = 60$ ) の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は  $9.4 \pm 4.2 \text{ mg N L}^{-1}$ 、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  は  $7.9 \pm 1.9\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  は  $1.2 \pm 1.2\text{‰}$  で、河川水 ( $n = 1$ ) は  $6.5 \text{ mg N L}^{-1}$ 、 $3.4\text{‰}$ 、 $4.4\text{‰}$  だった (図 2)。

各サブ流域の地下水の NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度は、上流 1 が  $9.8 \pm 5.2$  ( $n = 41$ )、上流 2 が  $8.8 \pm 7.6$  ( $n = 8$ )、下流が  $8.5 \pm 5.1 \text{ mg N L}^{-1}$  ( $n = 11$ ) で、水質環境基準超過率はそれぞれ 46%、25%、42% だった。 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  は、上流 1 が  $8.3 \pm 2.3\text{‰}$ 、上流 2 が  $7.2 \pm 1.9\text{‰}$ 、下流が  $6.9 \pm 4.0\text{‰}$  で、 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  はそれぞれ  $1.4 \pm 1.4\text{‰}$ 、 $0.5 \pm 1.4\text{‰}$ 、 $1.2 \pm 3.0\text{‰}$  であり、いずれも有意差は認められなかった。

## 4. 考察

### 4.1 鉾田川流域における N 負荷源

地下水への N 負荷源には大気降下物、化学肥料、畜産排泄物や生活排水等があり、鉾田川流域では人間活動の影響が明らかである。人為的な N 負荷源の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  値は、化学肥料が  $-4 \sim +4\text{‰}$ 、畜産排泄物が  $+10 \sim +20\text{‰}$ 、生活排水が  $+8 \sim +15\text{‰}$  とされる [7] [8]。鉾田川流域の全地下水のうち、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  値  $4\text{‰}$  以下の値は 3 地点 (NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度:  $0.1 \sim 9.6 \text{ mg N L}^{-1}$ ) のみで検出され (図 2)、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の起源が化学肥料 N のみに由来するとは考えにくい。さらに、計 47 地点の地下水が、化学肥料 N と有機物 (家畜排泄物と生活排水) N の間の範囲 ( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ :  $4 \sim 10\text{‰}$ ) に分布した。また、前述のように、畜産由来 N

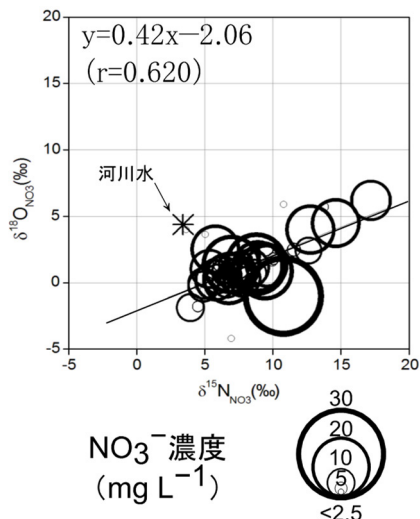


図 2; 地下水の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロット

負荷量は生活排水 N の約 3 倍あり、生活排水が污水处理施設に集められて浄化されるのに対し、家畜排泄物は堆肥化されて農地等に面的に散布される。したがって、これらを考え併せると、化学肥料 N と畜産排泄物 N の混合物に由来する N が鉾田川流域の地下水における主な N 負荷源と考えられる。また上流 1、上流 2 及び下流の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロット分布範囲は概ね一致し、全流域の地下水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の起源は類似と考えられた。

全地下水の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  値のヒストグラムは、 $5.00 \pm 0.73\text{‰}$  ( $n = 14$ , Group 1)、 $7.14 \pm 0.57\text{‰}$  ( $n = 26$ , Group 2)、 $10.7 \pm 2.40\text{‰}$  ( $n = 20$ , Group 3) に三分した (図 3)。Group 2 ( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  値  $6 \sim 8\text{‰}$ ) の度数が突出し、かつ  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  値がほぼ同じ ( $0.61 \pm 1.07\text{‰}$ ) だったことから、鉾田川流域全体で同様の肥培管理 (化学肥料と家畜排泄物の併用率) が実施されていると推察された。グループ別の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロットをみると、Group 3 では傾き 0.59 の直線が得られ、脱窒に伴う同位体分別 ( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  と  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  同位体比増加) の影響が示された (図 3(c))。しかし、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度 ( $10.6 \pm 7.2 \text{ mg N L}^{-1}$ ) は有意差は無いものの他より高く、脱窒による地下水中 NO<sub>3</sub><sup>-</sup>の浄化傾向は認められなかった。

### 4.2 鉾田川流域における N 循環

全地下水の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロットを一次回帰した結果、傾き 0.42 の直線が得られ、流域内における脱窒の傾向が示された (図 2)。サブ流域別にみると、上流 2 と

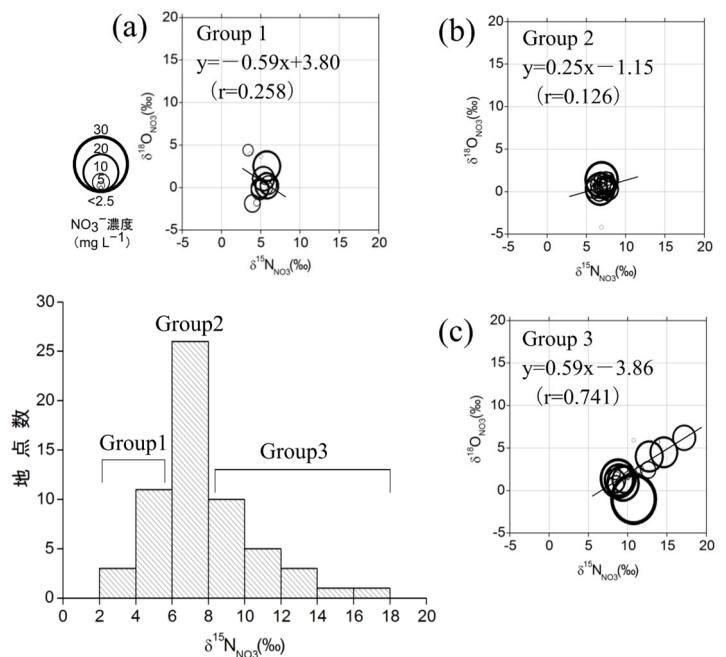


図 3; 地下水の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  値のヒストグラム、及びグループ別の  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ - $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$  プロット (a) Group 1、(b) Group 2 及び (c) Group 3

比較し上流 1 及び下流でより脱窒傾向が示され、各サブ流域の土地利用に占める水田面積率(上流 1:9.7%、上流 2:7.4%、下流:11.3%)と合致した。地下水を採水した井戸の深さが判っているもの ( $n=19$ ) について、深さを海拔標高に換算すると $-26\text{m}\sim+42\text{m}$ であり、 $-21\sim+22\text{m}$ の広範囲に水環境基準値を超過する地下水が分布した(図4)。井戸の深さと $\text{NO}_3^-$ 濃度、ならびに $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ 値との間には統計的に有意な相関関係は認められなかった。銚田川流域は、砂層と粘土層で形成される鹿島台地と関東ローム層からなり透水性が高い[9]。このため、土壤に負荷されたNの

うち、作物が吸収しきれなかった余剰のNが、地層内で顕著な脱窒を受けることなく地下水面に到達する 경우가多くあると考えられた。また、霞ヶ浦(北浦)の周辺地域は地下70m深さで霞ヶ浦基底面の沖積層と連続しており[9]、銚田川流域の地下流動系に到達したNは、霞ヶ浦湖盆の水頭圧を受けて地下水帯に滞留する傾向があると考えられた。

### 5. 結論

銚田川流域の地下水の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ 値から、N負荷源は主に化学肥料と家畜排泄物の混合物であると考えられた。水田等への地下水灌漑によるN浄化(脱窒)の可能性も示唆されたが、顕著な $\text{NO}_3^-$ 濃度低下は認められなかった。銚田川流域における適切な肥培管理の重要性は従来から指摘されてきたが、本研究により、化学肥料と家畜排泄物の両方の削減が必要であることが安定同位体分析結果に基づき初めて明示された。

### 引用文献

- [1] 茨城県・栃木県・千葉県: 霞ヶ浦に係る湖沼水質保全計画(第7期), pp.4-6, 2017
- [2] 茨城県: 公共用水域の水質等測定結果, 2017
- [3] 茨城県: 平成18年度流出水対策モデル計画策定調査事業, pp.31-32, 2006
- [4] 銚田市: 銚田市環境基本計画, pp.37-37, 2016
- [5] Carol Kendall: Tracing nitrogen sources and cycling in catchments, in *Isotope Tracers in Catchment Hydrology*, pp.519-576, 1998
- [6] Saeko Yada, Yasuhiro Nakajima, Sunao Itahashi, Kei Asada, Seiko Yoshikawa and Sadao Eguchi: Procedure for rapid determination of  $\delta^{15}\text{N}$  and  $\delta^{18}\text{O}$  values of nitrate: development and application to an irrigated rice paddy watershed, *Water Science and Technology*, 73(9), 2108-2118, 2016
- [7] Carol Kendall, Emily M. Elliott, and Scott D. Wankel: Tracing anthropogenic inputs of nitrogen to ecosystems, In *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science*, 2nd Edition, pp.375-449, 2007
- [8] 李 盛源, 保坂 亜紀子, 田瀬 則雄: 家畜排せつ物の素掘り廃棄ピットが地下水水質に及ぼす影響, *地下水学会誌*, 51(1), 3-14, 2009
- [9] 井内美郎, 斎藤文紀: 霞ヶ浦, 海跡湖の地史-3, *Urban Kubota*, 32, 56-63, 1993

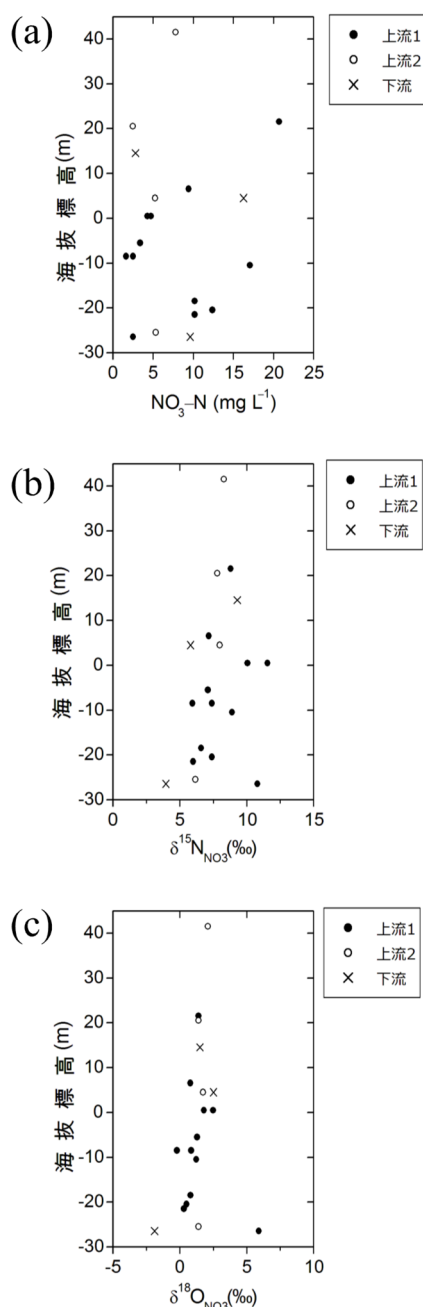


図4;井戸の水面標高別の地下水の(a)  $\text{NO}_3^-$ 濃度、(b)  $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$  及び(c)  $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$