

令和 3 年 6 月 6 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K05885

研究課題名(和文) 地下浸透に伴う農地土壤中の溶存態リンの動態解明

研究課題名(英文) Dynamics of dissolved-state phosphorus infiltrating agricultural soil

研究代表者

濱 武英 (Hama, Takehide)

京都大学・農学研究科・准教授

研究者番号：30512008

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,400,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、土壌の浸透過程におけるリン濃度の変化を定量的に評価した。農業地区の現地観測では、地下水中に0.5 mg/Lを超える高濃度のリンが確認され、農業地区の地下水が高いリン負荷を受けていることが示された。実験室では、バッチ試験の結果から求めた吸着等温線によって浸透過程の流出濃度の経時変化が再現できるかどうかを検証した。その結果、約0.3 cm/minという大きな浸透速度においても、平衡吸着を仮定して浸透過程のリン動態をほぼ再現できることがわかった。ただし、浸透過程におけるリン動態を再現するためには、初期吸着量の推定精度が重要であることが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

一般的にリンは農地土壌に強く吸着されるため、農地土壌に吸着された懸濁態のリンの移動抑制が従来の水質保全対策の中心であった。しかし近年、海岸部の地下水湧出水に溶存態のリンが高濃度で検出されることが報告され未解明の水質汚染メカニズムとして、土粒子に吸着されずに地下水流動とともに移動する溶存態リンの実態把握が重要になりつつある。本研究は現地観測によって農業地区の地下水にはリンが高濃度で存在することを示した。また、土壌カラムを用いた通水型のリン吸着実験を通じて、土壌浸透過程におけるリンの動態を明らかにし、その数値モデル化を行った。これらの知見は今後の農地からの排出負荷削減対策に有益なものとなる。

研究成果の概要(英文)：In this research, the temporal change of phosphorus concentrations in infiltration process was evaluated. It is confirmed by field investigation that phosphorus concentration of groundwater in agricultural area was high (0.5 mg/L). Therefore, it is suggested that the groundwater received high phosphorus load from the surface land. In addition, the adsorption isotherm of phosphorus, which was estimated from a batch test, was applied to a numerical model to simulate the temporal variations in phosphorus concentration in the effluent of the column test. It is revealed that the dynamics of phosphorus in the infiltration process, even if the infiltration rate was more than 0.3 cm/min, can be simulated on the assumption of the equilibrium adsorption. However, the initial adsorption of phosphorus has large influence on the simulation results of the phosphorus dynamics in the infiltration process.

研究分野：農業水文学

キーワード：リン 浸透 吸着等温線 移流分散方程式 Hydrusモデル

1. 研究開始当初の背景

動植物にとって必要不可欠な栄養素の1つであるリンは、作物生産において管理すべき重要な物質であると同時に、しばしば湖沼・海・河川などの富栄養化をもたらす原因物質となる。一般的にリンは農地土壌に強く吸着されるため、農地土壌に吸着された懸濁態のリンの移動抑制が従来の水質保全対策の中心であった。しかし近年、海岸部の地下水湧出に溶存態のリンが高濃度で検出されることが報告され(例えば、Prouty et al., 2017; Kimberly et al., 2014)、未解明の水質汚染メカニズムとして、土粒子に吸着されずに地下水流動とともに移動する溶存態リンの実態把握が重要になりつつある。

2. 研究の目的

本研究では、土壌構造とリンの吸着・脱着の関係に注目して、マクロスケールの土壌のリン吸着能力を評価する。従来は、土粒子を攪乱した条件でリン吸着能力が評価されてきた。しかし、この方法では最大吸着能力しかわからない。言い換えれば、これまでは土壌のリン吸着能力が過大に評価されていたため、溶存態リンの地中移動に研究の関心が向かなかった。もし溶存態リンが地下水の流動とともに一定の経路を移動するのであれば、経路上の土粒子表面のみがリンの吸着に寄与するため、十分なリン吸着能力を有する土粒子が周辺に多量に存在したとしても、農地(発生源)から地下水帯水層まで高濃度の溶存態リンが到達する可能性がある(図1)。

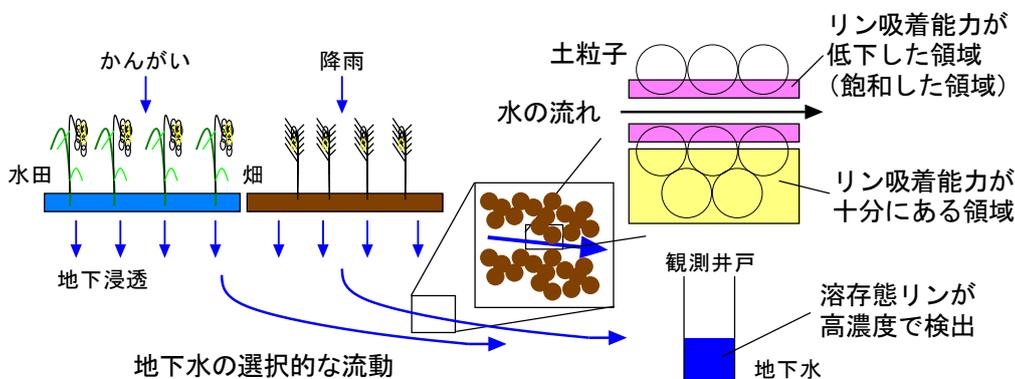


図1 地下水の選択的な流動下での土壌によるリンの吸着能力の低下

このような選択的な地下水流動による溶存態リンの移動については、すでに Simard et al. (2000) がその可能性を指摘した。また、Heathwaite and Dils (2000)は、大型の斜面模型を用いて溶存態リンが土壌層の下流に移動することを確認した。さらに、実際の農地でも、継続的なリンの投与に起因して地下排水に溶存態リンが高濃度で流出することが示唆されている(例えば、Evans and Johnes, 2004; McDowell and Wilcock, 2004)。

しかし、これらの研究は、土壌の流出部における溶存態リン濃度を計測したものであり、土壌への吸着・脱着を繰り返しながら移動すると考えられる溶存態リンの移動過程を直接計測したものではない。つまり、地中の溶存態リンの移動過程は未解明な部分が多い。また、アジアモンスーン地域の主要な農地利用である水田については、溶存態リンの排出負荷を実際に現地計測した報告例(例えば、石川, 1992; 武田ら, 1991)が少ない。

そこで本研究では、主要なリン発生源と想定される農業地区において、農地の地下に存在するリンの実態を把握する。また、室内実験によって、流水条件でのリンの吸着現象および溶存態リンの移動現象を明らかにする。

3. 研究の方法

本研究では、まず水田など各農地において深さ0~5mの土壌を一定間隔で採取し、各層に存在する各リン形態の濃度を計測する[形態分画手法: Iwasaki et al. (2013)]。また、農地周辺に存在する井戸から地下水を採取し、リン濃度を計測する。研究対象地は、熊本県下有数の農業地域である八代干拓地(図2)や玉名干拓地とする。

現地で採取した農地土壌を充填したガラス製円筒カラムに対して流水条件でリンを長期間投入し、土壌カラム通過後の溶存態リンの経時変化を計測する。また、あらかじめ高濃度のリン溶液に浸潤させた農地土壌を充填したカラムに対して、純水を長期継続して投入し、リンの溶脱過程についても調べる。

一方、農地土壌を十分に攪拌する従来型のバッチ試験によって、農地土壌のリン吸着特性（最大吸着能力）を調べる。また、水とリンの移動をそれぞれリチャーズ式と吸着現象を組み込んだ移流拡散方程式によって通水試験結果の解析的な再現を試みる。ただし、土壌構造を考慮しない既存モデルの計算再現性は低いと予想される。①通水試験とバッチ試験の結果の比較と②数値解析の再現性の程度から、リンの吸着における土壌構造の効果を考察する。土壌に対する通水状態での吸着を考慮した溶質輸送計算を行うツールとして、HYDRUS-1D (Šimůnek et al., 2009) および、HYDRUS-1D と PHREEQC (Parkhurst and Appelo, 1999) を組み合わせた HP1 (Jacques and Šimůnek, 2005) を検討した。HYDRUS-1D では、複数種の物質同士の複雑な化学反応の計算を行えないが、HP1 では、PHREEQC を組み込むことにより、それが可能になる。

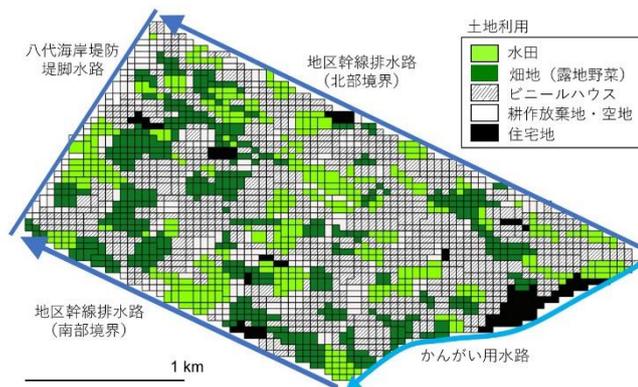


図2 調査対象地の土地利用概況

4. 研究成果

4. 1 農業地区（沿岸干拓地）における水質の特徴

農業地区（熊本県玉名干拓地）内の地下水および地表排水中のリン酸濃度の季節変化を図3に示す。地下水中のリン酸濃度は0.5 mg/Lと高い値を示した。また、季節変動は小さく、安定していた。一方、表面排水中のリン濃度は6月から9月にかけての灌漑期間に高い値がみられた。現地観測結果より、農業地区の地下水が高いリン負荷を受けていることが示された。

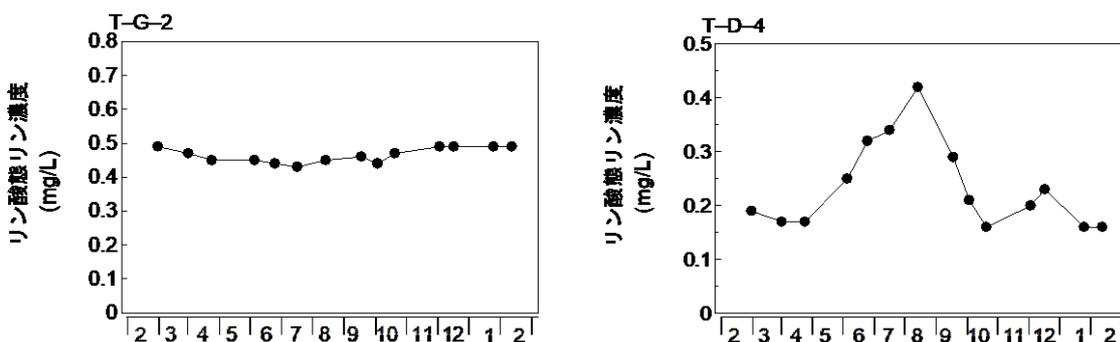


図3 農業地区（玉名干拓地）におけるリン酸態リン濃度の季節変化：地下水中のリン濃度（左）と表面排水中のリン濃度（右）

なお、研究対象地は有明海に隣接しているため、沿岸部では海水の侵入が見られた。地区の上流、中流、下流部における排水の電気伝導度の変動を図4に示す。灌漑期が始まる6月頃から電気伝導度の値が減少していることが確認される。そして、非灌漑期に差し掛かると減少傾向にあった電気伝導度は増加傾向になっていることが確認できる。これは塩分濃度の変動と同様である。灌漑期に灌漑用水が排水路に浸入しているためと推察される。また、上流部は電気伝導度がほとんど上昇していない一方で、下流部は高い値を示した。中流部は、下流部に比べると電気伝導度の値は小さいが、いくつかの地点で時折高い電気伝導度が計測されたため、海水が中流部まで侵入している可能性がある。灌漑期には灌漑用水の流入によってほとんどの地点で排水の塩分濃度が低下することが確認された。一方で、非灌漑期には、中流部だけでなく一部の上流部までも海水が浸入している可能性が示唆された。観測された塩分濃度を用いて、灌漑期と非灌漑期の排水路（表層水）における海水侵入のようすを地図上に示すと図5のようになる。

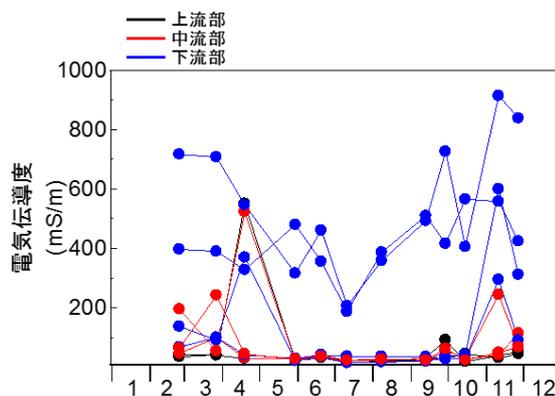


図4 農業地区（玉名干拓地）の排水の電気伝導度の季節変動

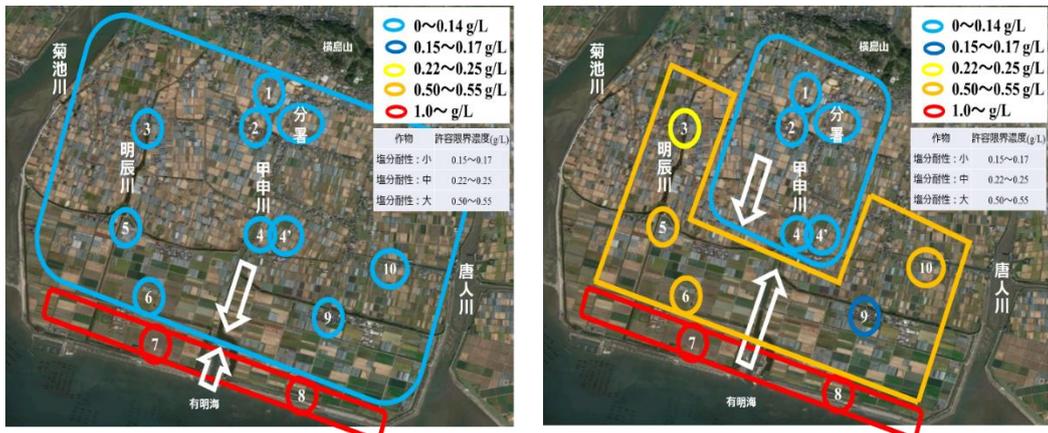


図5 農業地区（玉名干拓地）の海水侵入：灌漑期（左），非灌漑期（右）

4. 2 現地水田土壌を用いた通水型リン吸着実験

図6は、水田土壌を充填したカラムに対する0.5, 1.0, 10.0 mgP/L リン酸溶液通水試験の結果から得られた積算流出水量に対する流出溶液の相対濃度の変化を示している。通水フラックスは、0.286~0.342 cm/minであった。ただし、充填する水田土壌はふるいにより粗粒試料（粒径500~1000 μmの画分）と細粒試料（粒径125~250 μmの画分）に分けた。相対濃度は、通水リン酸濃度 C_0 (mgP/L) に対する流出リン酸濃度 C (mg/L) の比である。

通水させるリン酸濃度が大きいほど、カラム充填土壌とリン酸溶液が平衡状態になる ($C/C_0=1$ になる) のが早いと言える。この結果は、既往研究の Jellali et al.(2010)の結果とは対照的である。この理由としては、Jellali et al.の実験条件では、カラム充填試料のアンモニウム吸着容量が十分大きく、通水アンモニウム濃度を大きくしても吸着サイトが飽和するまでに時間がかかるのに対し、今回の実験では、通水リン酸濃度を大きくすることによって、カラム充填試料の吸着量の限界に達するのが早くなったことが考えられる。

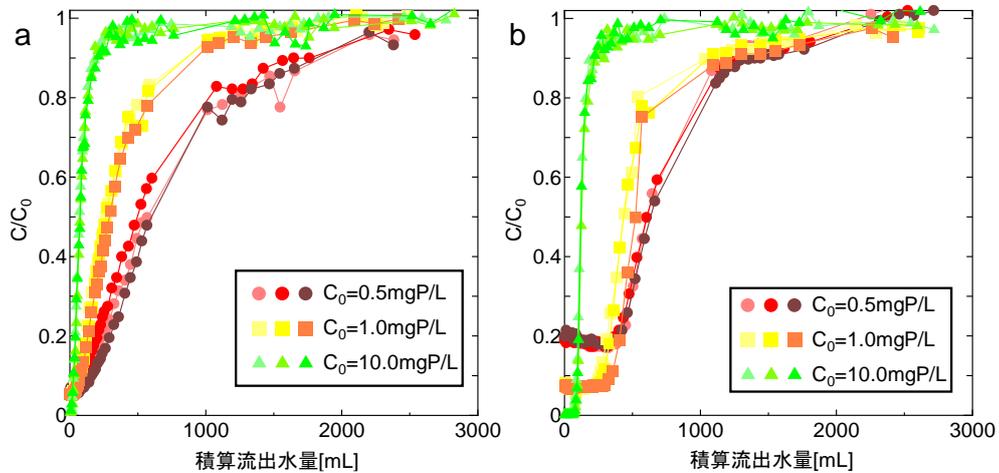


図6 流出溶液のリン濃度測定結果 (a) 粗粒試料, (b) 細粒試料

バッチ試験の結果に対して初期吸着量の補正を行って得られた吸着等温線を図7に示す。95%の信頼区間の幅は、粗粒試料で0.063 mgP/g, 細粒試料 Bで0.065 mgP/gであった。平衡吸着を仮定して、カラム通水試験の流出濃度が再現されるような吸着等温線の吸着パラメータを、試料について、流入濃度条件ごとに逆解析で同定した。得られた吸着等温線を実線で示す。

平衡吸着を仮定して同定された吸着等温線をバッチ試験から得られた吸着等温線と、各流入濃度の濃度領域について比較すると、粗粒試料では、流入濃度0.5 mgP/Lではバッチ試験よりも過大に、1, 10 mgP/Lではバッチ試験の範囲内となっている。したがって、粗粒試料の通水濃度0.5 mgP/Lの場合は、バッチ試験から得られた吸着等温線に基づく平衡吸着では通水状態を表現できないが、通水濃度1, 10 mgP/Lの場合では表現できると考えられる。

一方、細粒試料では、いずれの流入濃度についても、平衡吸着を仮定して同定された吸着等温線がバッチ試験の範囲内にある。したがって、バッチ試験から得られる吸着等温線に基づく平衡吸着で通水状態を表現できると考えられる。

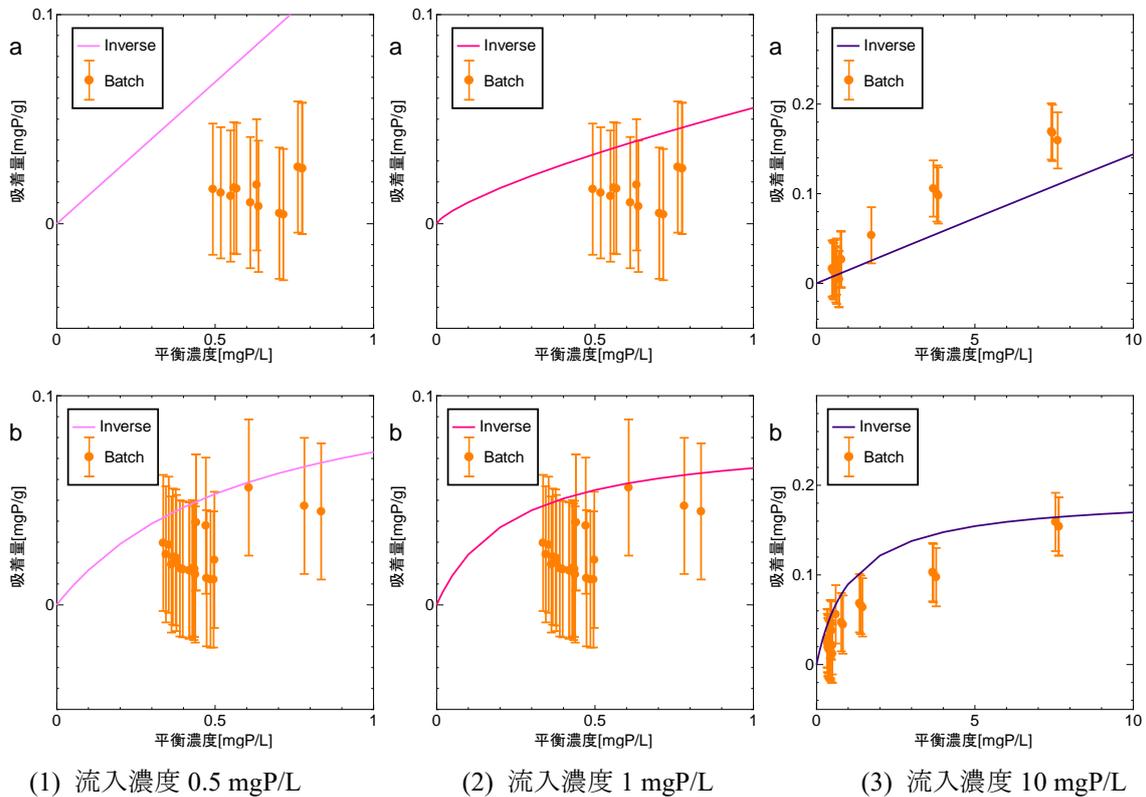


図7 吸着等温線 (a) 試料 A, (b) 試料 B, Batch : バッチ試験, 実線 : 平衡吸着での逆解析

通水条件では、カラムに充填された土壌試料に対する溶液の接触時間が短くなると、吸着が平衡状態に達しない可能性があり、したがって、通水速度に対して吸着反応速度が相対的に遅い場合には、化学的非平衡を考慮して計算する必要があるという報告がある (Jellali et al. 2010)。粗粒試料と細粒試料の吸着等温線は、その粒径の違いに関わらず、大きな違いはなかった。したがって、吸着特性に大きな影響を及ぼす粘土粒子は同様に含まれており、粒径の違いは団粒径の違いと見なせると考えられる。粗粒試料の流入濃度 0.5 mgP/L の条件のときが最も化学的非平衡吸着で近似できる可能性があり、これによって平衡吸着が適応できなかつた可能性がある。

吸着等温線に対して化学的非平衡吸着モデルを適用した。図8に平衡モデルの結果(赤実線)と化学的非平衡モデルでの逆解析によって得られた結果(赤点線)を示す。化学的非平衡モデルでの逆解析の結果、リンの収支(流入, 流出, 固相, 液相)において大きな誤差が計算上で発生した。そこで、リン収支の誤差が大きく発生しない範囲でパラメータの値を調整して計算した結果を図8の青点線に示す。この結果から、粗粒試料の流入濃度 0.5 mgP/L の場合では、化学的非平衡モデルを適用しても、バッチ試験の結果から通水状態を再現することができなかつたと言える。流出濃度の実測値を再現させるためには、化学的非平衡モデルを用いる場合においても、吸着等温線はさらに吸着量が大きくなる方向にシフトさせる必要がある。つまり、バッチ試験から得られる吸着等温線では、カラム通水試験におけるリン酸の吸着量を過小評価したと考えられる。

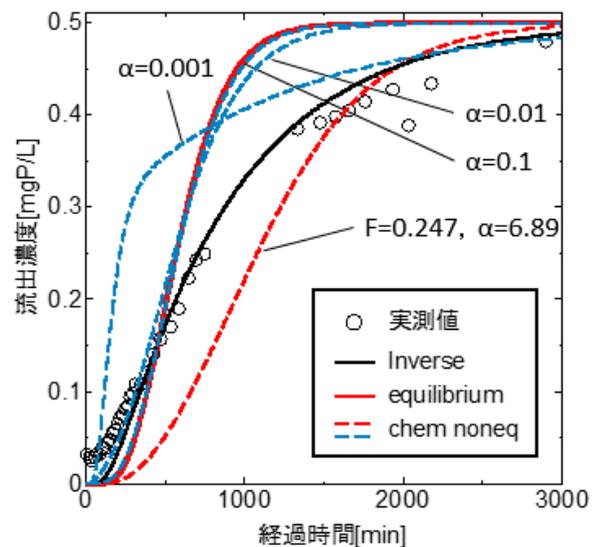


図8 カラム通水型リン吸着試験の流出リン濃度の経時変化: 赤実線=平衡モデル, 赤点線=化学的非平衡モデル, 青点線=赤点線の α の値を変化させた結果

4. 2 まとめ

土壌中のリン酸の動態に着目し、バッチ試験の結果から求めた吸着等温線によって浸透過程の流出濃度の経時変化が再現できるかどうかを検証した。その結果、平衡吸着モデルを仮定して浸透過程のリン動態をほぼ再現できることがわかった。ただし、現地観測によって平面方向にも水質が大きく変化することが示されており、3次元的な移動の再現が今後の課題である。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 3件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Hama T., Fujimi T., Shima T., Ishida K., Kawagoshi Y., Ito H.	4. 巻 -
2. 論文標題 Evaluation of groundwater recharge by rice and crop rotation fields in Kumamoto, Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Water and Climate Change	6. 最初と最後の頁 -
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2166/wcc.2019.045	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Yumioka D., Hama T., Kitamura K., Hatate S., Ito H., Kawagoshi Y.	4. 巻 18
2. 論文標題 Adsorption of Phosphorus Infiltrating Andosol in Aso Caldera, Kumamoto	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Water and Environment Technology	6. 最初と最後の頁 37, 44
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2965/jwet.19-068	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Fujihara, M., Takeuchi, J., Unami, K., Hama, T., Oishi, M., Ima, K., Kimengich, B. K., Ueshiro, H., Shimizu, T., Oda, T	4. 巻 26
2. 論文標題 Phosphorus runoff loads from a group of paddy fields and a forested watershed in the Sengari reservoir basin	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Rainwater Catchment Systems	6. 最初と最後の頁 7, 14
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件／うち国際学会 2件）

1. 発表者名 19)Komura, C., Hama, T., Hirayama, T., Ichinose, Y., Ito, H., Kubota, T., Terada, T., Watanabe, T., Kawagoshi, Y.
2. 発表標題 Arsenic pollution of river by volcanic eruption of Mt. Io.
3. 学会等名 International Conference on Climate Change, Disaster Management and Environmental Sustainability (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takehide Hama, Toshio Fujimi, Kenya Imafuji, Hiroaki Ito, Yasunori Kawagoshi, Kei Ishida
2. 発表標題 Evaluation of groundwater recharge by rice and crop rotation fields in Kumamoto
3. 学会等名 International Conference on Water Resources 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------