

# 施肥による地下水の硝酸性窒素汚染問題とその課題

福岡県保健環境研究所 松尾 宏

## 1. はじめに

我が国で硝酸性窒素が濃度レベルで、一般に認識され始めたのが、水道法の基準項目として導入された1978年頃からである。このとき、硝酸性・亜硝酸性窒素の基準が10mg/Lに設定された。硝酸性窒素は3か月未満の胃酸の分泌が不十分な乳幼児が摂取するとメトヘモグロビン血症を併発し、欧州で2000例程の発症事例があるとの報告<sup>1)</sup>がある。

しかしながら、硝酸性窒素の地下水汚染対策は、岐阜県各務原市のような水道水源を地下水に依存する一部の自治体を除いて殆どの自治体で対策が講じられないまま時間が経過してしまった。我が国では地下水の水道水源としての依存率が欧米と比べて低いこともその背景にあるが、汚染源の特定が難しいこと、畑地のような面源が対象であるため、その対応が難しいことが要因になっている。

1989年以降の硝酸性窒素のモニタリング結果<sup>2)</sup>からも、硝酸性窒素の値が10mg/Lを上回る超過率は監視項目の中で、常に首位にあった。漸く1999年に硝酸性窒素は水質汚濁防止法の環境基準項目に格上げされ、各自治体で本格的に汚染原因調査と浄化対策が検討されるようになった。

筆者の所属する福岡県でも1985年頃から、茶園が分布する県南の丘陵地帯の溜池で梅雨季に溜池のpHが急に低下し魚が斃死するなどの現象が発生するようになり、その原因が、丘陵地帯で栽培されている茶の施肥によることがわかってきた<sup>3)</sup>。溜池の硝酸性窒素濃度は10mg/Lを超えるところも多く、地下水への影響が懸念されるようになった。その後、施肥量の適正化など施肥管理の改善が行われ、硝酸性窒素濃度の低下とともに溜池の酸性化現象は現れなくなった。

地下水の硝酸性窒素の汚染源として、生活排水、

畜産廃棄物、施肥などが挙げられるが、本稿では著者らが取り組んできた施肥問題を対象として説明をしたい。

## 2. 硝酸性窒素問題の背景

硝酸性窒素が過剰に存在する理由は、窒素肥料の工業的生産が可能になったことが挙げられる。窒素の環境問題は、1913年ハーバーによって空気中の窒素と水素からアンモニアの合成に成功したことに始まる。



大量生産できる化学肥料が出現するまでは、窒素肥料はマメ科植物に共生する根粒菌による窒素固定によるか、多くは魚粉、し尿、畜産堆肥などの有機肥料に依存していた。1960年代に入って、工業的に硫酸などの化学肥料の大量生産が可能になり、穀物生産量が急増してゆく。それとともに、世界人口も増加を続けている。そのため、従来よりも地球規模で窒素サイクルのフローが非常に大きくなっていると考えられる<sup>4)</sup>。

土壌は負に帯電しているため、アンモニウムイオンのような陽イオンは吸着が起り移動しない。しかし、アンモニウムイオンは硝化菌の働きにより硝酸イオンに変化し、硝酸イオンは陰イオンであるため、浸透水とともに移動する<sup>5)</sup>。

作物は窒素肥料を吸収するので、作物が施肥量のどの程度を利用するのが重要であり、その割合は窒素利用率で表される。作物の種類によって、窒素利用率は大きく異なり、ホウレンソウなどは窒素利用率が小さいため、溶脱量は大きくなる。溶脱量は施肥量から作物への吸収量を差し引いた値にほぼ等しいので、集約的に溶脱率の大きい作物を栽培する場合、地下水の硝酸性窒素汚染に大きく影響する要

因になると考えられる<sup>4),6)</sup>。

また、窒素施肥量の増大する理由の一つに農産物の商品としての市場ニーズがある。例えば、お茶は嗜好品であり、旨味が価格に大きく影響する。旨味のもとにはアミノ酸であり、アミノ酸の含有量は根から吸収される窒素量に依存している<sup>7)</sup>。過去の10aあたりの窒素施肥量を調べてみると1955年頃30kg、1968年頃に約50kgであったが<sup>8)</sup>、1980年代に入ると約100kgまで増加している。このように市場の要請から、農家で多量の窒素施肥がおこなわれてきたが、環境側面からの制約により、現在では約50kgにまで施肥量の削減がなされている。

### 3. 硝酸性窒素汚染の現状<sup>2)</sup>

環境省の地下水概況調査でも硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素の超過率が他の健康項目と比較してとくに高いことがわかる(表1)。環境基準値に追加指定された1999年(平成11年度)以降も減少していない(表2)。環境省が2003年12月に145自治体に対して行った硝酸性窒素による地下水汚染への取組状況のアンケート調査結果によると、環境基準を超過している地点を除く106自治体のうち95自治体で汚染地域の概況把握をしている、との回答であった。

スポット的な汚染は別として、地域一体の対策が必要な地域は62自治体(180地域)程度に及ぶと考えられる。汚染原因究明調査の実施がされた地域は68で、全体として調査がまだ進んでいないことを示している。そのうち施肥による窒素負荷量低減対策が実施されている地域は41で、事業内容としては、化学肥料の使用量を低減する農業生産方式を導入する農業者(エコファーマー)の育成(具体的例として、肥効調節型肥料による効率的施肥法の試験、養液土耕栽培システムの導入など)の回答が多くみられる。

急激な施肥量の削減は、生産量の減収と作物の品質を低下させる恐れがあることから、実証試験をした後、窒素施肥量の削減が行われており、削減効果が地下水水質に反映するまでに相当な時間を要すると考えられる。また、現在のところ原位置(on

表1 地下水水質測定結果

| 項目              | (平成14年度概況調査) |            |
|-----------------|--------------|------------|
|                 | 調査数<br>(本)   | 超過率<br>(%) |
| カドミウム           | 3,242        | 0          |
| 全シアン            | 2,639        | 0          |
| 鉛               | 3,484        | 0.2        |
| 六価クロム           | 3,308        | 0          |
| 砒素              | 3,520        | 1.5        |
| 総水銀             | 3,253        | 0          |
| アルキル水銀          | 1,020        | 0          |
| PCB             | 1,738        | 0          |
| ジクロロメタン         | 3,635        | 0          |
| 四塩化炭素           | 3,814        | 0.1        |
| 1,2-ジクロロエタン     | 3,360        | 0.1        |
| 1,1-ジクロロエチレン    | 3,771        | 0          |
| シス-1,2-ジクロロエチレン | 3,842        | 0.2        |
| 1,1,1-トリクロロエタン  | 4,270        | 0          |
| 1,1,2-トリクロロエタン  | 3,359        | 0          |
| トリクロロエチレン       | 4,414        | 0.2        |
| テトラクロロエチレン      | 4,414        | 0.2        |
| 1,3-ジクロロプロペン    | 3,085        | 0          |
| チウラム            | 2,494        | 0          |
| シマジン            | 2,547        | 0          |
| チオベルカンプ         | 2,487        | 0          |
| ベンゼン            | 3,563        | 0          |
| セレン             | 2,650        | 0          |
| 硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素   | 4,207        | 5.9        |
| ふっ素             | 4,117        | 0.4        |
| ほう素             | 3,989        | 0.1        |
| 全体(井戸実数)        | 5,269        | 6.7        |

表2 硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素の環境基準超過率の推移

| 年度<br>(平成) | 調査数<br>(本) | 超過数<br>(本) | 超過率<br>(%) |
|------------|------------|------------|------------|
| 6          | 1,685      |            | 2.8        |
| 7          | 1,945      |            | 5.0        |
| 8          | 1,981      |            | 4.9        |
| 9          | 2,654      | 173        | 6.5        |
| 10         | 3,897      | 244        | 6.3        |
| 11         | 3,374      | 173        | 5.1        |
| 12         | 4,167      | 253        | 6.1        |
| 13         | 4,017      | 231        | 5.8        |
| 14         | 4,207      | 247        | 5.9        |

site及びin site)における汚染地下水浄化対策が必要な地域で、汚染地下水の浄化対策が技術的に確立、普及していないことも、地下水水質が改善されない背景にある。

#### 4. 汚染源の把握<sup>2)</sup>

硝酸性窒素による汚染井戸が見つかり、その窒素の汚染源がどこかということになる。窒素は生活排水や畜産廃棄物にも含まれており、その特定にはかなり多角的な調査を要する。硫酸などの肥料が汚染源の場合は、アンモニウムイオンの硝化反応でプロトンが生成し、地下水のpHは酸性側に傾き、重碳酸イオンの濃度は低くなるという傾向にある。土壌が酸性化するのでカルシウム、マグネシウム系の中和剤が用いられる。



地下水の主要化学成分組成をヘキサダイアグラムで表示すると、硝酸イオン、硫酸イオン濃度が大きく、この部分が尖った形になること、カルシウムイオン及びマグネシウムイオン濃度が高くなるのが特徴である(図1)。

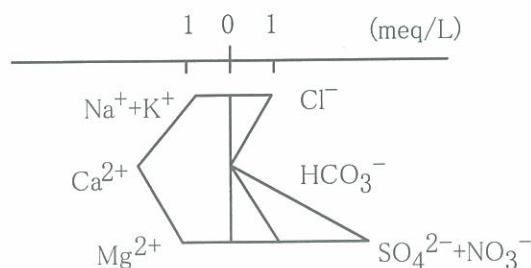


図1 汚染地下水のヘキサダイアグラム

また、生活排水および畜産廃棄物の場合、地下水の糞便性大腸菌の検出状況などが参考になる。

窒素安定同位体比の測定も化学肥料か有機質のものかという判定に役立つ。大気中の窒素を固定し製造する化学肥料の $\delta^{15}\text{N}$ の値は0%に近いが、有機質肥料の場合は、 $\delta^{15}\text{N}$ 値は+3~+15%と比較的高い。実際には、有機質肥料と化学肥料が併用される場合が多いため、汚染源の判断材料の一つとして利用されている。

汚染の全体像を把握するには、汚染井戸を基点とする集水域における発生源の排出負荷量を調査し、原単位から各々の窒素排出量を推計する方法(原単位法)が有効である。原単位法では、作物ごとの原単位の把握が重要であり、畑地、水田、林地などのおおまかな土地利用区分の原単位では、汚染源の判定は難しい。

#### 5. 適正施肥量の検討<sup>3)</sup>

汚染源が明確になり、問題となる作物が特定されると、どの程度まで施肥量の削減が可能かという課題に取り組むことになる。

そのためには、畑地での窒素フローの調査が必要となる。畑地(茶畑)に施用された窒素肥料の窒素フローの概念図を示す(図2)。

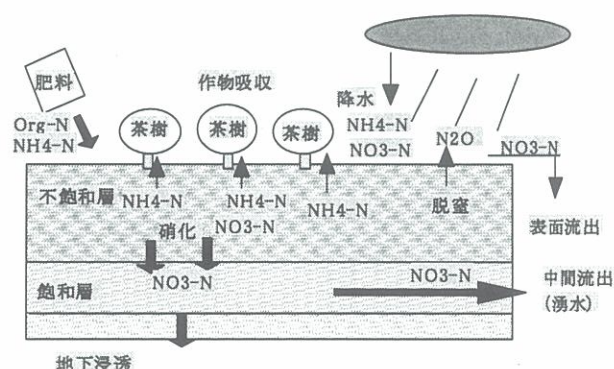


図2 畑地での窒素フロー概念図

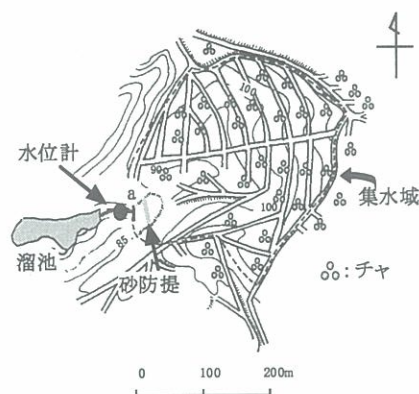


図3 試験地(茶園)

インプットは、降水と施肥である。アウトプットは作物吸収、表面流出、地下浸透及び脱窒などの過程がある。

著者らが茶畑で実施した事例を紹介する。茶畑か

ら流出する窒素フローを把握するために、丘陵地帯に位置する茶園(図3)で窒素フローの調査を1997年~1999年に行った。試験地では砂防堤下から硝酸性窒素濃度の高い湧水が流出しており、集水域の殆どが茶畑で占められている。砂防堤の下流に水位計を設置し、2年間にわたり継続的に流量測定及び水質調査を実施した。

まず、試験地である集水域での水収支の調査を行い、その結果から得られた窒素収支を示す(図4)。水のインプットは降水であり、アウトプットは蒸発散、表面流出および湧水である。水位計設置場所では、表面流出量と湧水量が観測できた。茶畑での窒素施肥量、窒素流出負荷量などに基づき窒素負荷量を推計したものである。

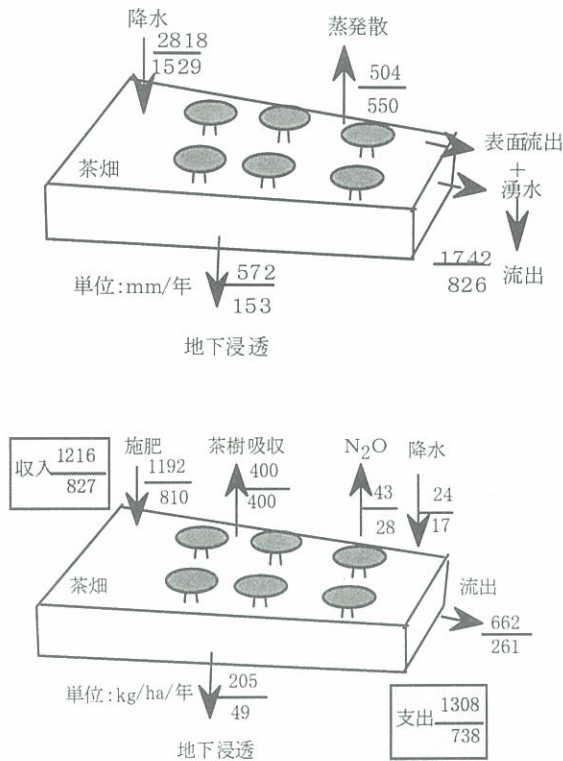


図4 試験地の水収支(上)及び窒素収支(下)  
数値：第1調査年/第2調査年

茶畑の年窒素施肥量は1年目(第1調査年)が1,192kg/haであったが、2年目(第2調査年)には810kg/haに削減された。これに伴って湧水の硝酸性窒素濃度の年平均値も34mg/Lから29mg/Lまで減少した(図5)。

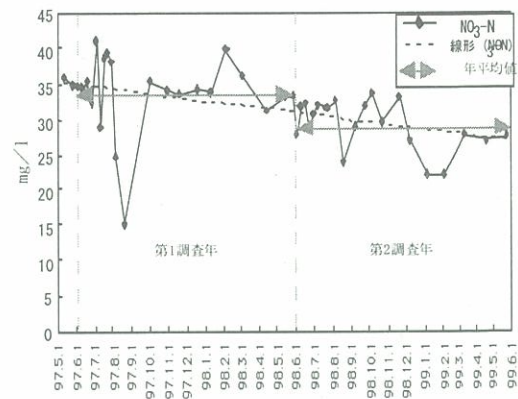


図5 試験地流出水の硝酸性窒素濃度変化

窒素収支の調査結果は、畑地での窒素収入と支出が均衡していることを示しており、このことを利用して、硝酸性窒素の環境基準を達成するために必要な適正施肥量のおおまかな推計が可能になる。年間の窒素溶脱量を浸透水量で除したものが畑地流出水の硝酸性窒素濃度(C mg/L)となり、(1)式で概算できることになる。

$$C = (F - IN) / (P - ET) \times 100 \dots\dots\dots (1)$$

F:窒素施肥量(kg/ha) IN:作物取込み(kg/ha)  
P:降水量(mm) ET:蒸発散高(mm)

環境基準達成(C ≤ 10mg/L)の条件式は(2)式で表現される。

$$F \leq (P - ET) / 10 + IN \dots\dots\dots (2)$$

この地域の年間の降水量を1800mm、蒸発散量を800mmとすると、降水量から蒸発散量を差し引いた値は1000mmとなり、これが表面流出量と浸透量である。茶樹への取り込み量を400kg/haと仮定して、(2)式から計算すると窒素施肥量が500kg/ha以下でないと環境基準10mg/Lを達成できないことになる。全国的に茶の施肥基準として500kg/haを目安にしている栽培地域が多い。しかし、土壌での窒素賦存量なども考慮して、更に低い施肥基準の目標を設定している地域もある。

500kg/haの施肥量に対して、茶樹の窒素利用率は80%ほどになり、生理的限界に達している可能性もある。収穫量の確保、品質保持などの生産面の必要性和環境問題の課題の解決には、減肥だけの対応では難しい状況にある。

## 6. 汚染地下水の浄化方法

硝酸性窒素による地下水汚染の浄化対策として、従来の汚染物質の対応と根本的に異なる点は、汚染源を完全に取り除けないことにある。農産物の生産活動が行われている場所では窒素浸透量の減少はできても、窒素の地下水への流入は継続するからである。

したがって、水道水源として地下水を利用しなければならない地域では、地下水から硝酸性窒素を継続的に除去することが必要になる。硝酸性窒素の除去方法としては、イオン交換樹脂を用いた水処理施設があるが、再生液に高濃度の硝酸性窒素を含む廃液が発生する。

そのほかの硝酸性窒素除去方法として、電気透析法、逆浸透膜法、触媒脱窒法などが物理化学的処理方法として挙げられる。また、生物学的方法としては、水素供与体としてエタノールを用い、従属栄養脱窒細菌によって脱窒させる方法、あるいは独立栄養細菌である硫黄酸化細菌を用いた脱窒法、脱窒細菌の体内に蓄積された有機物を水素供与体として脱窒する内生脱窒法などがある。現在、これらの方法を用いたフィールドでの実証試験が行われている。

ここでは、近年環境省の浄化実証試験を目的として行った公募に応募し、実証試験が行われた2事例<sup>2)</sup>を紹介する。

### (透過性地下水浄化バリア)

1例目は岐阜県各務原市のニンジン耕作地の汚染井戸を対象に行われた大成建設(株)の透過性地下水浄化バリアの浄化実証試験の概要を示す。

この地域では、1作10aあたり30kgを超える窒素施肥が行われていたが、1991年度以降施肥量を15~16kgまで減少させている。汚染地域のモニタリ

ング井戸の硝酸性窒素濃度は減少傾向にはあるものの、依然として環境基準10mg/Lを超える地点が存在する。そこで、畑作地帯での硝酸性窒素の流出を防止する観点から、地下の帯水層にバリアを設け、汚染の広がりを縮小しようとする試みである。

本実証試験における硝酸性窒素による汚染地下水の浄化原理は、従属栄養脱窒細菌による硝酸性窒素の浄化機能を利用し、生物学的脱窒により汚染地下水の浄化を行うものである(図6)。

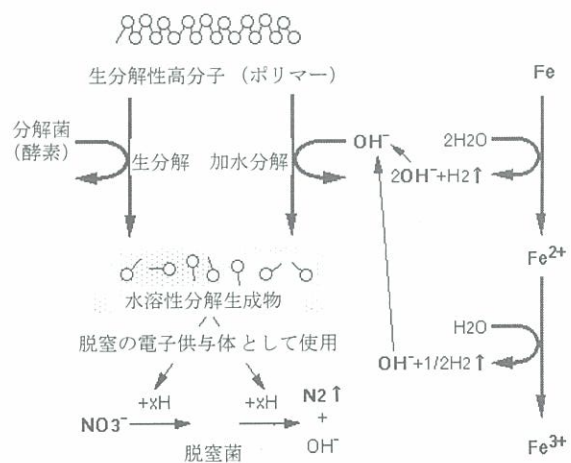


図6 透過性地下水浄化バリアの原理

硝酸呼吸は酸素濃度の低い還元環境下において有機物等を基質として利用し、体内に取り込んだ硝酸を亜硝酸へと順次還元して最終的には窒素ガスの形で体外へ放出する。畑地地下水では、一般に酸化的環境にあるため、鉄粉を用いて鉄と酸素を反応させ還元的環境をつくる。従属栄養脱窒細菌が必要な水素供与体として、ポリ乳酸系生分解性プラスチックを用いる。

透過性浄化壁工法に生物学的脱窒方法を組み込むことにより、汚染地下水の原位置浄化法を可能にしたものである。

砕石と鉄粉と生分解性プラスチックの混合物を帯水層まで掘った井戸に注入し浄化壁を設ける(図7)。地下水が浄化壁を透過する際に硝酸イオンが窒素ガスへと転換されるシステムである。

周囲に監視用井戸を設置し、施工後3年にわたる調査の結果、地下水の流下方向では、継続的に効果

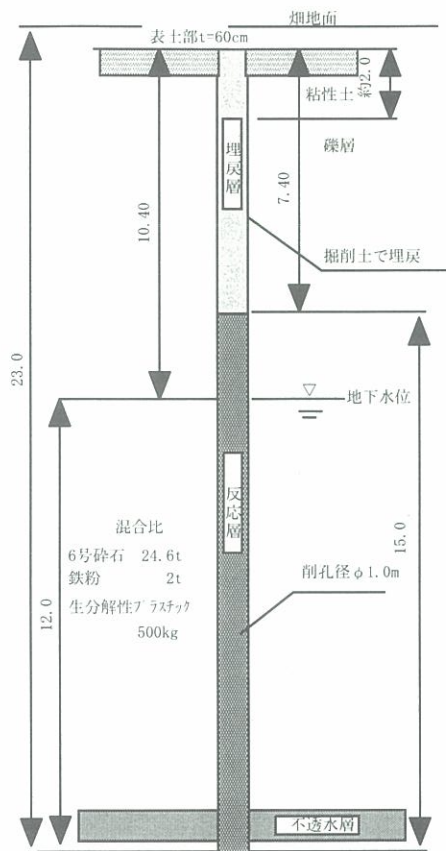


図7 反応バリアの施工断面図(単位:m)

がみられたが、地下水の透過壁の回り込みによって考えられる濃度変動があり、実用面で課題を残している(図8)。

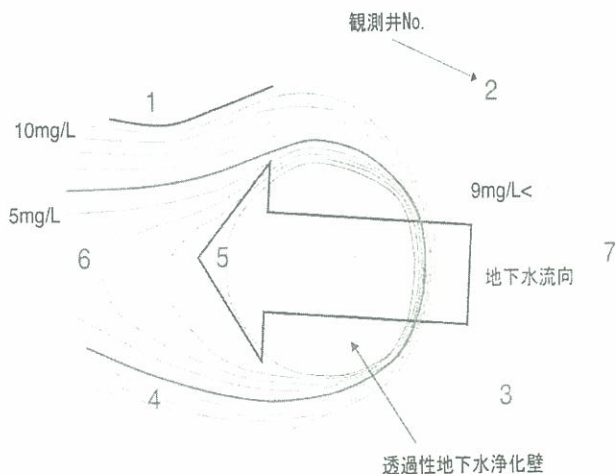


図8 透水性地下水浄化壁周辺の硝酸性窒素濃度予測図

(電気透析と生物脱窒装置による除去システム)

2例目は福岡県の茶畑で著者らが実施した硝酸性窒素浄化実証試験について紹介する。硝酸性窒素濃

度が42mg/Lの汚染地下水を汲み上げながら、その地下水の硝酸性窒素を電気透析装置で濃縮除去し、濃縮廃液を生物脱窒装置で脱窒して、最終的に放流水が10mg/L以下まで浄化する試みである。

本硝酸性窒素浄化システムは神鋼パテック社のシステムで、極性転換方式の電気透析装置とグラニユール方式の生物脱窒装置から構成される。自己造粒化したグラニユール状の従属栄養脱窒細菌を用いて、排水中の硝酸性窒素を窒素ガスに還元除去する方法である。

脱窒槽はグラニユール汚泥が保持されているベクト部と発生ガスの捕集及びグラニユール汚泥の流出を防ぐGSS部(Gas-Solid Separator)で構成されている(図9)。原水は槽下部から流入し、グラニユール汚泥と接触しながら上昇する間に硝酸性窒素は除去され、処理水として上部から流出する。生物脱窒反応には有機物等の水素供与体が必要であり、本装置ではメタノールを使用し、脱窒槽に供給している。

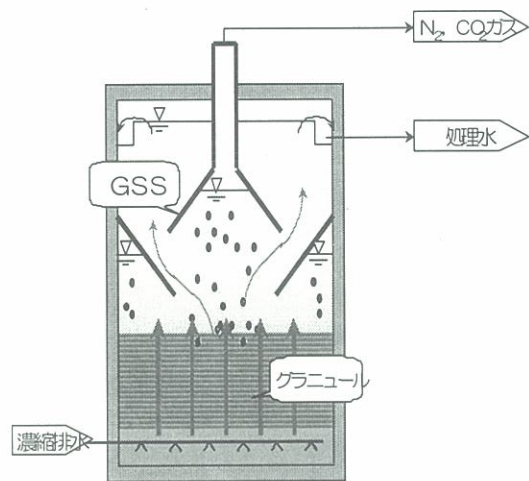


図9 生物脱窒装置

脱窒菌の働きによりメタノールは水と二酸化炭素に分解され、原水中の硝酸性窒素は窒素に還元され、発生ガスとして系外に排出される。所要メタノール量は理論値で1.9g/gNO<sub>3</sub>-Nとなる。地下水の生物脱窒処理ではリンがほとんど含まれていないため、メタノールの他にリン酸を脱窒槽に供給する必要がある。

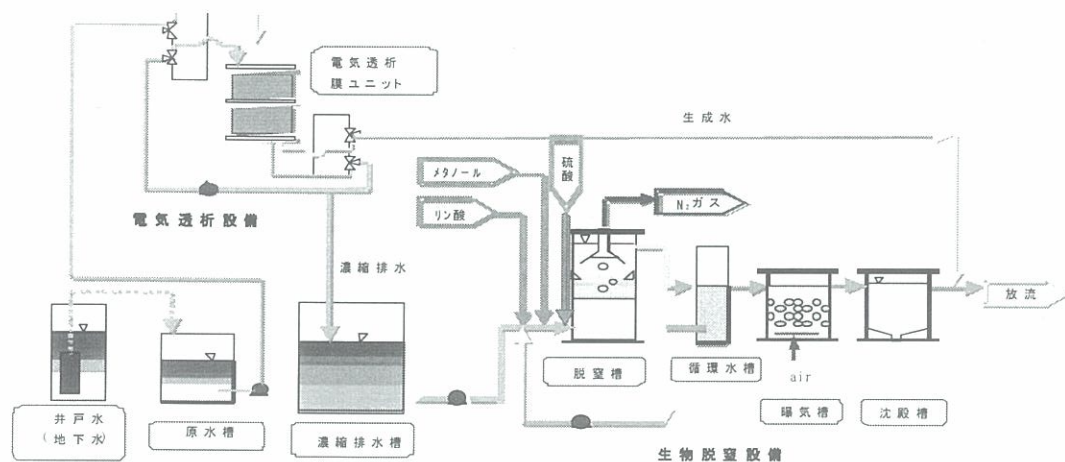


図10 浄化システムのフローシート

浄化システムを試験井戸近傍に設置し、1年間の連続試験を行った。なお、生物脱窒装置の脱窒汚泥の馴化を行うため、連続試験の前に1か月の馴養運転をした。浄化システムのフローシートを示す(図10)。

試験井戸から汲み上げられた地下水は12m<sup>3</sup>の貯水槽に導入され、この貯水槽の水は配管で施設の原水貯水槽に導水され、10μmの保安フィルターでろ過された後、電気透析槽に連続的に供給される。電気透析後、生成水と濃縮排水が排出されるが、生成水は放流水槽に導入され、濃縮排水は濃縮排水槽に導入される。濃縮排水はメタノールとリン酸を添加した後、生物脱窒処理槽で処理される。

脱窒槽のpHコントロールは硫酸を用いる。曝気槽は脱窒過程で過剰となったメタノールを好気生物処理するためのもので中空円筒状担体が充填されている。曝気槽処理水は沈殿槽を経て放流水槽に導入され、電気透析生成水と合流、混合された後、近隣の溜池に放流される。

なお、放流時の硝酸・亜硝酸性窒素濃度が環境基準値の10mg/L以下になるよう留意して浄化システムの運転が行われた。

電気透析装置により、生成水及び濃縮排水の硝酸性窒素濃度はそれぞれ8.53mg/L、361mg/Lに分離された。濃縮排水の硝酸性窒素は生物脱窒装置で脱窒され、脱窒処理水で31.2mg/L、更に沈殿処理水で22.7mg/Lまで減少した。生成水と沈殿

処理水は合流し、硝酸性窒素濃度9.81mg/Lの放流水として溜池に排出された。

浄化システムの稼働により、96kg/年の窒素が除去された。これを集水域の茶畑栽培面積3.5haに換算すると27kg/ha/年の窒素量が除去できたことになる。これは、地下浸透窒素量の220kg/ha/年の12%に相当する(図11)。

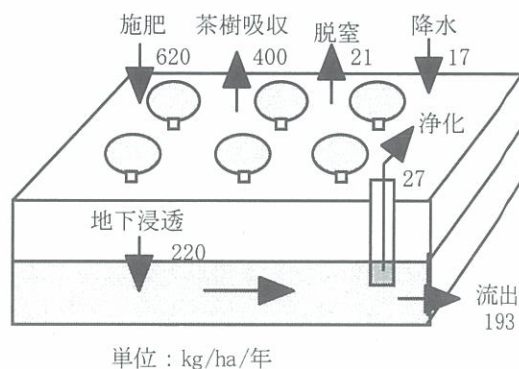


図11 実証試験地の窒素収支

気象データから、試験地の地下浸透量は984mmと推計された。この数値を基に試算すると、地下水の硝酸性窒素の環境基準10mg/L以下のレベルを達成するのに、更に地下浸透窒素量122kg/ha/年の除去が必要になる。これは、実証試験で用いた浄化施設の約5.5倍の規模に相当する。これを茶畑1ha当たりの費用に換算すると、建設費が32,570千円、運転費が627千円/年となる。農家だけでは費用の負担が大きすぎるので、水道水源として生成

水を利用するなど地域全体で費用を分担するなどのシステムづくりが重要となる。

更に、改善すべき点として脱窒槽が気温の影響を受けやすいことが挙げられる。生物脱窒装置での脱窒能は温度の影響を受け、処理能力の季節変化が顕著に現われた（図12）。夏季に比べて冬季に脱窒量が著しく減少した。浄化効率を向上させるために、冬季の脱窒能の低下を防止することが課題として残った。

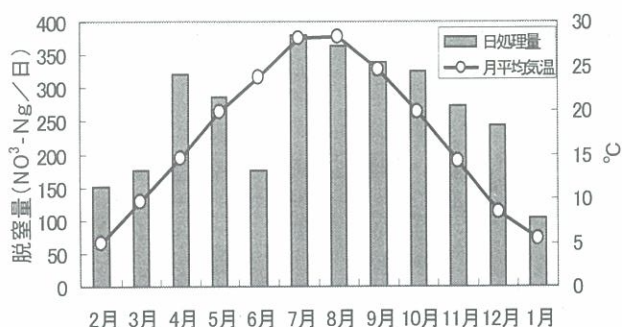


図12 脱窒量の季節変化

## 7. 汚染防止のためのこれからの課題

浄化対策事例から、一度汚染した地下水の浄化には、多額の費用を要することがわかる。そこで畑地では、施肥技術を主体とする改善が進んでいる。きめ細かな施肥方法（分施回数を増やす）、緩効性肥料の使用あるいは点滴施肥法などによる窒素利用率の向上などが挙げられる。また、小型反射型光度計あるいはECメーターなどを用いた精確な土壌診断に基づく施肥管理も適正な施肥を行ううえで重要である。輪作が可能な場合は、過剰な窒素分を回収させるためクリーニングクロープ（トウモロコシ、ソルガム）などの活用も有効であるが、十分な効果を上げるためには地域輪作システムの確立が必要になる<sup>6)</sup>。

広域の汚染地下水浄化対策としては、農業サイドだけでなく、地域全体で面源に対する排出源別窒素負荷量を把握し、対策を協議することが重要である。青森県、静岡県、熊本県、長崎県、都城市、沖縄県宮古島などの地域の窒素負荷量の調査例とともに、水道、環境、農業の関係機関での連絡体制が構築された事例<sup>2)</sup>が参考になる。

かつて、環境庁が農産物、窒素肥料の輸出入量から試算した日本の窒素フロー収支例によると、1980年で17万t、1994年で48万tの窒素負荷量が国内に残存していることを示している<sup>10)</sup>。余剰の窒素の一部は、閉鎖性水域の富栄養化あるいは施肥などの過程を経て地下水の硝酸性窒素汚染を招く恐れがある。余剰の有機性窒素が肥料として農地還元される場合、地域の窒素施肥の総量を増加させないよう特段の配慮をしなければならない。

今後、地域における窒素負荷量の収支の事前評価を行うなどの社会全体の窒素管理システムの構築が硝酸性窒素汚染を未然に防止するために必要になると考えられる。

## 参考文献

- 1) 環境省水環境部地下水・地盤対策室：硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引き、公害研究対策センター、2002
- 2) 環境省環境管理局水環境部：硝酸性窒素による地下水汚染対策事例集、2004
- 3) 松尾宏、笹尾敦子、重江伸也、永淵修、桜木建治：茶畑を集水域とする溜池の酸性化現象について、用水と廃水、34(2)、18-23、1992
- 4) 前田守弘：地下水・土壌汚染8 硝酸性窒素の動態、地下水学会誌、45(2)、189-199、2003
- 5) G.H.Bolt, M.G.M.Bruggenwelt：土壌の化学、学会出版センター、1995
- 6) 小川吉雄：地下水の硝酸汚染と農法転換、農山漁村文化協会、2000
- 7) 山西貞：お茶の科学、裳華房、1995
- 8) 福岡県農政部農業技術課：福岡県茶施肥基準、1-82、1975
- 9) 松尾宏、馬場義輝、中村融子、徳永隆司、北森成治、平田健正、西川雅高：窒素フロー収支からみた畑地施肥量削減の効果、福岡県保健環境研究所年報、27、54-59、2000
- 10) 環境庁編：平成10年版環境白書、1998