

6.2 農業面源対策

(1) 生態系における硝酸の挙動

水質環境基準健康項目のなかで、硝酸はとくに日常性が高い物質である。陸上生態系における窒素の存在量は、有機態のものが 772,000Tg、無機態のものが 140,000 Tg で、ここから年間およそ 70Tg の窒素が水圏と大気圏に流出し、同量が流入する (Delwiche,1970)。単純計算では陸上生態系における窒素の平均滞留時間は 13,000 年である。しかし、有機態窒素の交換が無機態窒素に比べて著しく遅ければ、無機態窒素の滞留時間は最短でも約 2,000 年となる。一方、土壌水の平均滞留時間は 2 ~ 50 週 (Skinner,1982) で、しかも土壌固相は有酸素環境でもっとも安定な無機態窒素である硝酸イオンをほとんど吸着しない。したがって、その下にある地下水は陸水のシンクであると同時に、陸域における最大の硝酸性窒素のシンクとなる宿命を背負っている。

土壌中では硝酸は土壌溶液中に陰イオンとして存在し、水とともに移動する。陸生植物の多くは窒素源として硝酸を利用する。硝酸が最初に植物根の表面に到達するのは、植物の水分吸収に伴う土壌溶液の流れ(マスフロー)による。しかし、根毛の表面は負電荷をおびているので、硝酸イオンはそのままでは吸収されない。植物体内の無機態窒素濃度の低下によって、硝酸トランスポーターが誘導されると、硝酸は根毛の細胞内に取り込まれる。その後は、硝酸濃度が低下した根圏に向けて周辺土壌からの拡散によって硝酸が移動する。したがって、土壌溶液中にある程度の濃度で硝酸が存在しないと植物は連続して窒素を吸収できない。また、土壌が乾燥して土壌中の水移動速度が低下すると、植物に吸われない多量の硝酸が土壌に残ることになる。しかも、硝酸イオンは土壌に吸着されないので、施肥土壌で降雨や灌漑による降下浸透が起これば、必然的に硝酸の溶脱が起こる。

畑地浸透水中の硝酸性窒素濃度について、次のような日本全体を対象としたマクロスケールの試算がある¹⁾。

日本の山岳部を除く地域の年平均降水量	1,500 mm
浸透率(中間流出もすべて地下水面に達すると仮定)	1/3
年間浸透量	500 mm = 5,000 m ³ /ha
畑地平均窒素施肥量	135 kg/ha
溶脱率	25 %
溶脱量	34 kg/ha
浸透水中窒素濃度	3,400/5,000 7 mg/L

これがわが国の平均的な畑地浸透水中の窒素濃度である。

もし、浸透水中の窒素濃度を 10 mg/L 以下に管理するとすれば、それに対応する面積当たりの窒素負荷量は、

$$10 \text{ mg/L} \times 5,000 \text{ m}^3 = 50 \text{ kg/ha}$$

となる。この試算の中でもっとも不確かなパラメータは溶脱率(施肥窒素が硝酸性窒素に転換し、植物に吸収されなかった割合)である。ここにあげた 25%は茨城県の黒ボク土畑で行われた圃場試験²⁾からの推定であるが、最も小さい場合と考えた方がよい。

(2) 面源と排水規制

環境基準が設定されれば、その基準値を担保するために、水質汚濁防止法に基づく排水規制が行われることになる。従来、この規制値(排水基準)には河川における希釈を考慮して環境基準の 10 倍の数値が当てられてきた。平成 12 年 12 月に設定された排水基準では、硝酸性窒素と亜硝酸性窒素それにアンモニア性窒素に 0.4 を乗じた三者の合計で 100mg/L となっている。ここではアンモニアを硝酸及び亜硝酸の前駆物質と捉え、日本の平均的な河川の環境条件ではアンモニア性窒素の約 40%が硝酸性窒素に変わるとみて、それに 10 倍則を適用したものである。しかし、硝酸性窒素は前述のように生態系にとってきわめて普遍的な物質であり、農業生産活動に付随して必然的に排出される物質である。しかも、農地は面源であり、排出規制にはなじまないが、非意図的な浸透が起こる場である。その起源は窒素肥料であり、人間が生産し、使用した物質であることは間違いない。したがって、硝酸性窒素の排水基準が定められても、農地については排水・浸透規制ではなく、施肥基準の見直しを含む硝酸性窒素の排出・地下浸透を減らすための何らかの地域的な対策指導體制を確立する行政措置を必要とすることとなった。

このような措置に対しては、排水基準を守らない排出者には直罰が科せられるという農業以外の排出源との公平を保つ意味から、何らかの強制的(矯正的)規制を行う一方、環境保全型農業に対する支援とリンクさせる提案もある。また、EU に比べて日本の対策の遅れを指摘する意見も多い。

EU では早くから硝酸による地下水汚染の進行に対して手を打ってきている。EU の硝酸塩指令(Nitrate Directive,1991)に基づく行動計画では、家畜系有機肥料の投入限度を 2002 年 11 月までは 210kgN/ha、2002 年 12 月以降は 170kgN/ha とする行動計画が決められ、加盟国には指令遵守状況の報告が義務づけられている。オランダでは 1998 年から Mineral Accounting System が導入され、ミネラルのインプット(肥料・飼料)とアウトプット(家畜排せつ物や作物等の生産量)を記録し報告する義務が課せられ、ミネラルロス(インプットのうちアウトプットとして回収されなかった分)が許容量(耕地では 2000 年までは一律 150 kgN/ha、2001 年以降は細粒土と粗粒土に差をつけて厳しくする)を越えると罰金の対象になる(環境庁資料より)。他のヨーロッパの多くの国でも肥料に対して一率の付加価値税(10%以下)または一定量以上の窒素施肥量に対して罰金的な税金(400%)をかけることによって、施肥削減を誘導している。

EU が 2002 年に出した硝酸汚染に関する報告³⁾では、1996~98 年のモニタリング調査で、EU 全体の地下水観測地点の約 20%が硝酸として 50mg/L(硝酸性窒素としては 11.3mg/L)を超えており、デンマーク、オランダ、ベルギー、フランス、スペイン、ギリシャにおいて濃度の高い地点が多い。加盟国から出された行動計画では、家畜排せ

つ物の散布については比較的規制が行き届いているが、化学肥料の使用規制は不十分であり、施肥量の削減によって作物が減収したとする報告はないとしている。

日本の水田以外の農耕地への化学肥料による窒素の施用量は、平成7年以降ほぼ120kg/haで横ばいとなっており、オランダの1/3、ベルギー、イギリスの1/2にすぎない。さらに日本はEU諸国地域の2.5倍程度の年降水量があり、降水量あたりの施肥量では、日本はEUの中の肥料を多用する国に比べてはるかに少ない。また、日本の耕地の約半分は、硝酸を窒素ガスとして脱窒させる能力をもつ水田である。すなわち、地形上の畑・水田の土地利用連鎖にしたがって、水涵養域で負荷した硝酸を流出域で脱窒させるという水と窒素の共役的な循環が行われている。このことは、関東の台地上の畑とそれに続く低平地水田の大きな地形連鎖上で確かめられている⁴⁾。しかし、局地的に見れば、茶園や葉菜類の栽培では500kg/haを越す窒素施肥も行われており、そこからの水と窒素の循環経路上には地域住民の生活空間があり、そこでは地下水利用も行われている。これが日本の硝酸汚染問題の特質である。

(3) 汚濁寄与の推定

1) 汚濁寄与推定方法

汚濁対策を考える場合には、まず汚濁源の寄与を明確にしなければならない。このためには次のような調査方法が知られている⁵⁾。

水質解析法

安定同位体比法

原単位法

数値シミュレーション法

このうち水質解析法は汚濁源から窒素とともに排出される成分が、もともとの地下水水質組成をかく乱する程度から汚濁源を推定するもので、水質ダイヤグラムによる視覚的判断は本法の大きな特徴である。この場合、窒素肥料に由来する水汚染に特有の保存性指標として硫酸アンモニウム(硫安)の成分である硫酸イオン(SO_4^{2-})に着目することが多い。硫酸根を含まない塩化アンモニウムや尿素が窒素肥料として使われることも多いが、硫酸根は硫安以外にもリン酸肥料やカリ肥料に含まれ、これらの非窒素肥料が窒素肥料と関係なく使われることはほとんどないので、硫酸イオンを肥料由来窒素の指標とする合理性はある。しかし、硫酸イオン濃度と硝酸イオン濃度との相関が高い場合は肥料由来の汚染が疑われるが、相関がないからといって窒素肥料と無関係の汚染であるとはいえない。条件がそろわないと寄与率の定量的判定は困難である。

二番目の安定同位体比法以下の方法は、ある程度の定量性をもつ方法である。ここでは、近年は測定法の進歩によって多用されるようになった同位体比法について留意点を述べておく。

2) 同位体比法について

天然に存在する窒素の同位体は、 ^{14}N 、 ^{15}N の2種で、同位体の存在比(R)は、

$$R = {}^{15}\text{N} / {}^{14}\text{N}$$

で表される。環境中で窒素がもっとも多量に存在するのは大気であるが、その大気中窒素の ^{15}N の存在比は、0.00367である。同位体比法ではこれを標準とする。 ^{15}N 存在比の試料と標準との存在差分比($\delta^{15}\text{N}$)は次式で表される(単位は‰)。

$$\delta^{15}\text{N} = \{(\text{試料の } R - \text{標準の } R) / (\text{標準の } R)\} \times 1,000$$

したがって、 $\delta^{15}\text{N}$ の値は大気よりも ^{15}N の多い試料では(+)に、大気よりも ^{15}N の少ない試料では(-)になる。

重い同位体と軽い同位体が混合した元素が反応する場合、軽い同位体の方がわずかに早く反応する。これを同位体効果と呼んでいる。窒素循環の中でも同位体効果は認められ、反応前の窒素に比べ生成した物質の窒素の方が $\delta^{15}\text{N}$ の値は小さくなり、その分反応せずに残存した窒素の $\delta^{15}\text{N}$ は大きくなる。このことが同位体比によって窒素の由来を推定する原理となっている。しかしこの原理は、後述するようにこの方法で汚染源寄与率の推定精度をあげようとした場合の問題点にもなっている。

1960年代アメリカ、イリノイ州デカトール市で水道水中の硝酸性窒素濃度が上昇して問題となった。イリノイ州では、肥料としての無機態窒素の施用量は1945年には1万トン以下であったのが、1966年には60万トンまで増加していた。その間トウモロコシの生産は2倍近くまで上昇した。このことはトウモロコシの収穫によって持ち出されず、地下に浸透する窒素量は年々増加することを意味している。この時、この水道水源中の硝酸イオン濃度の上昇の原因が肥料にあることが上記の同位体比によってはじめて明らかにされた⁶⁾。

デカトール周辺農地の暗渠排水中の $\delta^{15}\text{N}$ を測定したところ、硝酸性窒素濃度が高い排水は $\delta^{15}\text{N}$ 値が低く、逆に硝酸性窒素濃度が低い排水は $\delta^{15}\text{N}$ 値が高かった。この地域で使われていた化学肥料の $\delta^{15}\text{N}$ 値は、ほとんど大気のそれと同じであった。これは化学肥料の窒素は大気中の窒素を固定したものであるので当然と考えられる。それに対して、土壌、堆肥および下水の $\delta^{15}\text{N}$ 値は高い値を示した。このことから、暗渠排水の $\delta^{15}\text{N}$ 値が低いのは、低い $\delta^{15}\text{N}$ 値をもつ化学肥料由来の窒素が多く溶存しているためであり、暗渠排水の $\delta^{15}\text{N}$ 値が高いのは、化学肥料以外に由来する窒素の存在を示している。硝酸性窒素濃度は前者が高く、後者が低いので、暗渠排水中の硝酸性窒素は化学肥料による寄与が高いと結論された。さらに詳細な調査によって、デカトール湖水中の硝酸性窒素の少なくとも60%は化学肥料に由来すると推定された。

わが国では、並木ら⁷⁾による沼田段丘地下水や、山本ら⁸⁾による宮古島地下水中の硝酸イオンの起源の同定に $\delta^{15}\text{N}$ 値による解析が行われ、化学肥料の寄与の程度が推定された。朴ら⁹⁾は埼玉県櫛引台地の野菜畑の浅層地下水の硝酸性窒素濃度とそ

の $\delta^{15}\text{N}$ 値から窒素起源の由来を説明し、さらに、朴ら⁴⁾は埼玉県榑引台地地下水が流入する水田田面水と水田暗渠排水中の硝酸性窒素濃度とその $\delta^{15}\text{N}$ 値を比較し、両方の水の水文的起源が異なること、水田田面水では脱窒による硝酸性窒素の消失が大きいことを明らかにしている。

中西ら¹⁰⁾は地下水中硝酸性窒素濃度とその $\delta^{15}\text{N}$ 値の測定から、硝酸性窒素の起源別寄与率をある程度定量的に推定できる以下のような方法を考案した。

硝酸性窒素の起源を3つに要約することによって、地下水中硝酸性窒素濃度と $\delta^{15}\text{N}$ 値について、質量保存則から次の連立式が成立する。

$$W = X + Y + Z$$
$$aW = bX + cY + dZ$$

ここで、

W : 地下水の硝酸性窒素濃度 (mg/L)

X : 化学肥料由来の硝酸性窒素 (mg/L)

Y : 家畜排せつ物および生活排水由来の硝酸性窒素 (mg/L)

Z : 土壌由来の硝酸性窒素 (mg/L)

a : 地下水の硝酸性窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値 (‰)

b : 化学肥料の窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値 (‰)

c : 家畜排せつ物および生活排水中の窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値 (‰)

d : 土壌由来の硝酸性窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値 (‰)

このうち、 Z と d に、当該地域周辺で人為的影響を受けていないと思われる地下水または湧水の実測値を代入すれば、 X と Y 以外はすべて実測可能であり、 X と Y は上式を解くことによって求められる。中西らはこの方法によって宮古島の22流域の地下水中硝酸性窒素の起源別構成比を算出し、土地利用、家畜などのフレーム数量に窒素排出原単位を乗じて求める原単位法による推定値とよく一致することを認めた。

以上のように、同位体比法は汚濁源の寄与率を明らかにする有力な手法であることは確かである。しかし、その適用にはいくつか注意しなければならない点もある。

上式で b は化学肥料の $\delta^{15}\text{N}$ 値で、化学肥料は大気中の N_2 を固定したものであるため、その $\delta^{15}\text{N}$ 値は0となるはずであるが、工業的窒素固定でも同位体効果は存在し、化学肥料の $\delta^{15}\text{N}$ 値は - 2 ‰程度になる。しかし、土壌に施用された化学肥料中のアンモニアの一部は大気に拡散する。このとき再び同位体効果が働くので、化学肥料中の窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は0とみなす場合が多い。しかし、酸性土壌ではアンモニアの気散はほとんどないので、 $\delta^{15}\text{N}$ 値は - (マイナス)のままである。

c は堆肥または生活排水に由来する窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値である。過去の文献値から12~15とする場合が多いが、堆肥には家畜排せつ物、パーク、わらなどその材料は多様であり、同じ地域で使われている堆肥でも $\delta^{15}\text{N}$ 値は異なる。また、堆肥と生活排水

でも異なる。これらの平均的な値として 12~15 程度の数値を採用している。 cY の項を有機質肥料の種類や生活排水など複数の項に分解して解析の精度を上げようとするれば、それぞれの窒素源のみの影響を受けた地下水試料が必要となり、現実の調査はかなり困難になる。

Z と d となるデータの測定場所の選定も問題である。現地で家畜排せつ物や肥料の影響を受けていないと思われる地点は、多くの場合林地である。林地土壌中の窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値はかなり変動している場合がある。自然土壌窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は7前後となる場合が多いが、降水の $\delta^{15}\text{N}$ 値は-1~+1付近を示すことが多く、林地から流出する水中の窒素成分が、ほとんど降水に由来する場合は、その $\delta^{15}\text{N}$ 値も低くなる。

さらに基本的問題は、この方法は、土壌中における脱窒や生物吸収などのように、硝酸イオンが形態変化して系外に除かれる場合に起こるのであろう同位体分別を無視していることである。それがいつでも無視できるかどうかについてはまだ結論が得られていない。

以上のことから、 $\delta^{15}\text{N}$ 値法による硝酸性窒素の起源の定量的推定は、その概略を把握するに過ぎないことに留意する必要がある。

(4) 対策の手法

畑地からの浸透水中の硝酸性窒素の濃度を一定レベル以下とする手法としては次のようなものが考えられる。

土壌への負荷量の削減

作物・品種の選定（少肥栽培の可能なものを選択する）

施肥量の節減（過剰施肥の防止）

土壌からの浸透抑制

施肥法の改善（分施など、窒素利用率の向上）

肥効調節型肥料の使用（被覆肥料、硝化抑制剤の利用）

有機物の施用（緩効性、C/N調整による無機態窒素の有機化）

過剰灌漑の防止（浸透抑制、窒素利用率の向上）

マルチ栽培（浸透抑制）

生態系での浄化

水田での脱窒促進（畑地・施設排水の水田への導入）

樹園地での下草利用（土壌中硝酸濃度の低下、窒素の緩効化）

野菜栽培跡地での緑肥作物栽培（土壌残存窒素の吸収）

浄化施設

アシ原など水田にかわる還元ゾーンの設置（土地利用型脱窒）

排水路内への脱窒プラントの設置

1) 施肥対策

肥料の施用対策は、肥料として施用した窒素の作物による回収率（=利用率）を向上して、作物に吸収されずに土壌に残る窒素を減らすことである。ここで検討すべ

き事項は、肥料の施用量、形態、施用時期、施用方法である。

一般に窒素施用量の多い野菜作においては、各県ごとに設定されている施肥基準に比べて多量の施肥が行われている実態がある。その理由は上に述べたように作物の窒素吸収には土壌中にある程度の硝酸の存在が必要であり、作物にとって過剰とならない限り土壌中の硝酸濃度を高く保つ方が生産の上からは安全と考えられるからである。また、葉菜類の減農薬栽培では、農薬散布の回数を減らすため、短期間に作物を成長させることを目的として窒素肥料を増加することも行われている。多くの場合、施肥基準自体がすでにこの「保険的施肥量」の水準となっており、ある程度の減肥を行っても、収量は減少せず、収穫物の品質面でも問題のないことが確かめられている。

岐阜県各務原市のニンジン生産では、かつては慣行で 300 kgN/ha を超える施肥が行われ、県の標準は 260 から 160kg/ha へと下げられてきた経過があるが、堀内¹¹⁾は、120kg/ha まで減肥してもニンジン生産には全く影響がなく、有機物の継続的施用によってさらに減肥の可能性があると述べている。

窒素肥料の形態にかかわる対策は、土壌溶液中に溶解しにくい形態を用いることと土壌中における硝化菌の活性を抑制することである。溶解しにくい形態としては物理的に肥料の粒径を大きくし、かつ表面をフェノール系またはオレフィン系合成樹脂膜で覆った被覆肥料がある。被覆肥料の窒素の初期溶出率（静止水中に 24 時間おいた場合の溶出率）は 50% 以下である。物理化学的に溶解度の低い形としては、尿素誘導体、ジシアンジアミド誘導体、オキザミドなどが用いられている。これらは一括して緩効性肥料と呼ばれる。また、化学肥料に添加する硝化抑制剤としてわが国では、チオ尿素、ジシアンジアミドなど 10 種類の物質が認められており、これらを配合した肥料は肥効調節肥料と呼ばれる。緩効性肥料も肥効調節肥料ももともとは作物生産からみた肥料の利用率を上げるために開発された肥料であるが、それはそのまま硝酸の流出を防ぐ効果をもつ低拡散性肥料として注目される。

北嶋¹²⁾のライシメータ試験では、化成肥料と被覆肥料の浸透流出率はそれぞれ 52% と 21% であった。中西¹³⁾は宮古島のサトウキビに対して慣行の基肥を施用しなくても、被覆肥料を用いることによって、窒素施肥量を 30% 減としても標準施肥と同等の収量がえられることをみている。野菜茶業試験場におけるキャベツを用いた試験では、硝化抑制剤の効果は土壌によって異なり、黄色土ではある程度の溶脱抑制効果がみられるが、黒ボク土ではあまり効果は認められない。これに対して、被覆尿素ではどちらの土壌でも溶脱量は 1/2 以下に低下し、作物の窒素吸収量も増加した¹⁴⁾。

有機質肥料の使用によっても硝酸の流出が抑制されることが知られている。ひとつには有機質肥料は土壌微生物による分解無機化を経て硝酸まで酸化されるので、化学肥料に比べて緩効的であり、窒素利用率を向上させることができるからであり、もうひとつは畑土壌でも局部的に低酸素状態となった部分では脱窒が行われるからである。畑地からの脱窒について、小川¹⁵⁾による茨城県の黒ボク土畑の測定例では、化学肥料窒素 370kg/ha を施用した区とそれに堆肥（窒素 292kg/ha 相当）を上乗せして施用した区の溶脱窒素量は、前者が 85kg/ha、後者が 66kg/ha で堆肥施用区で 19kg 少なかった。作物が吸収した窒素量はそれぞれ 179kg/ha と 185kg/ha で後者が 6 kg 多いだけであり、土壌残留窒素量からは脱窒による窒素の消失が想定された。

堆肥が電子供与体となる易分解性有機物を供給するとともに、脱窒菌に嫌氣的な生息空間を提供した結果であろう。

また、無機態窒素が多量に残っている土壤に C/N 比の高い有機物を施用すると、窒素の有機化（窒素が微生物の体内に取り込まれる）が起こって、一時的に硝酸の溶脱を抑制すると考えられる。有機物の種類や地温によって効果は異なり、C/N 比の異なる有機物資材の組み合わせによる溶脱抑制は今後の検討課題である。

一方、袴田と藤井¹⁶⁾はライシメータ試験で化学肥料と下水汚泥施用土壤からの硝酸イオンの流出を比較したところ、土壤の種類によって流出パターンに違いがあり、川砂では化学肥料区、汚泥区とも施用直後に浸透水中の硝酸濃度が急上昇するが、その後の濃度低下は化学肥料区では急激であり、汚泥区では緩慢であった。灰色低地土では化学肥料区ではほぼ一定濃度の排出を続けるが、汚泥区では濃度が徐々に上昇する傾向を示した。この実験は無植生状態で行われており、必ずしも有機質肥料の硝酸流出抑制効果を否定するものではない。

大嶋ら¹⁷⁾の黒ボク土における牧草のライシメータ試験では、化学肥料区の窒素溶脱率 27～31% に対してきゅう肥区では 17% であった。きゅう肥に化学肥料を増施した場合は牧草収量は大幅に増加するものの窒素溶脱量も増加し、浸透水の平均窒素濃度は 17 mg/L になると計算される。

家畜排せつ物の農地利用については、一時期家畜排せつ物の大量土壤処理のようなことも行われた。その後作物に対する影響の少ない範囲で、どれだけ多くの家畜排せつ物を畑で処理できるかが研究課題であった。しかし、作物生育からみても有機物の過剰施用による窒素過多、養分バランスの変調は明らかであり、近年では環境保全の面からの適正使用量が一般的な考え方になってきた。農林水産省¹⁸⁾は地表水および地下水の水質汚濁につながる危険性のほとんどないものと考えられる適正使用基準を示している。しかし、実際には施肥基準は都道府県ごとに定められており、その時点では地下水への影響は考慮されていなかった。しかも生産者は収量品質確保への懸念からこの基準を上回る施肥を行うことが慣例となっていた。

2) 栽培技術的対策

栽培技術的対策としては、多肥栽培となる野菜の連作を避け、施肥量の少ない普通作物（ムギ類、イモ類など）や窒素施肥を行わないマメ類を入れた輪作とし、野菜作で土壤に蓄積した硝酸を後作で吸収させる方式が提案されている²⁾。このような目的で導入される作物をクリーニングクロープと呼んでいる。

茶園からの窒素の溶脱量を低下させる目的で行ったライシメータ試験では、茶樹の下草に白クローバーを栽培したところ、硝酸性窒素の溶脱量を 10～60% 低下させることができた¹⁸⁾。

中西¹³⁾によるサトウキビの試験では、窒素固定能をもつマメ科の緑肥作物の導入によって、化学肥料の基肥を省略しても 30% の増収となり、サトウキビの窒素利用率が高まることをみている。

3) 土壤生態系における浄化対策

日本では段丘上に畑や樹園地が、低地に水田が立地する地域が多い。畑に施用された窒素は、酸化されて硝酸となり、水の降下浸透に伴って下層に浸透する。下層に溶脱された硝酸は、浅層地下水に入り、中間流出に伴って水田下層に流入し、還元条件の水田土層に拡散する。還元土層中では硝酸は窒素ガスにまで還元され脱窒する。小川ら¹⁹⁾によれば水田土層中の脱窒菌数は表層0～5cmの深さで最も多く、この部位での脱窒能が最も高い。従属栄養細菌による脱窒反応では、土壤中に存在する易分解性有機物が電子供与体となるので、有機物に富む表層が脱窒能が高いことになる。さらにわら等の収穫残渣を炭素源として加えることによって脱窒は促進される。長谷川ら²⁰⁾の窒素源として重窒素標識硝酸性窒素を、炭素源として稲わら粉末を添加して、たん水状態に保ったポット試験では、23日間に重窒素の84%が脱窒したが、稲わら無添加区の脱窒率は0.4%に過ぎなかった。高村ら²¹⁾は、ライシメータと現地水田においてイネの収穫後の9～11月に田面水中の硝酸性窒素濃度が50mg/Lになるように硝酸塩溶液を添加し、50日間の硝酸性窒素の消失を測定した。この結果では、1日当りの窒素消失量は0.035～0.42g/m²の範囲であった。

長谷川ら²²⁾によれば、滋賀県の茶園排水が流入する水田の1日あたりの脱窒量は、灌漑期で950g/ha、非灌漑期で140g/haで、灌漑期における脱窒能は、この時期の同面積の茶園からの窒素流出量にほぼ等しかった。

4) 営農的・土地利用的対策

わが国における既往の研究やイギリス南部における畑作物から牧草への作付転換を主な内容とする硝酸溶脱防止のガイドラインを参考にして、一般的な農業的面源対策を要約すると次のようである。

営農的対策

畑作では施肥量の少なくすむ作目への転換を進め、過剰な施肥を行わない。なるべく豆類の入った輪作体系を導入する。

家畜排せつ物のたい肥化と利用のための組織を確立し、たい肥に置き換えた分は、忘れずに化学肥料を減肥する。

畑のマルチ栽培、樹園地の草生栽培など浸透を抑制する栽培法を取り入れる。葉菜類栽培後にはエンバクなどのクリーニングクロップを導入し、緑肥として利用する。

肥料の溶脱を起こしやすい畑地灌漑方式（うね間灌漑やスプリンクラー灌漑）を避け、点滴灌漑によって蒸発散量のみを補給する方式とする。

水かん養、土壤保全機能を有する平地林と斜面植生を保全する。

林地や永年草地の年間改植面積は、流域におけるその土地利用面積の1/10以下に制限する。

5) 水処理対策

土壤浸透水を地下水面に到達する前に集水して処理する方式である。水処理対策

は処理設備の管理を農家が行うことを前提にすれば、処理コストの少ないこと、維持管理負担の軽いことが必要条件となる。現在採用可能な硝酸性窒素除去技術は表 6-2-1 のようである。圃場排水の量と質は降雨に左右されるので負荷の変動に強い方式を選択しなければならない。養液栽培では極端な排水量の変動はなく、間欠的に排出される場合は貯留槽を設けることもできるので、その点はあまり問題にならない。いずれの方式でも自然流下でなければ揚水のための電力が必要となる。

農業排水の硝酸性窒素除去システムについては土地利用型と水処理施設型の 2 方式が考えられる。

表 6-2-1 硝酸性窒素除去方式 (文献 23)より 一部改変)

処理技術	原理	特徴	問題点
従属栄養脱窒	有機物を電子供与体として脱窒菌により硝酸性窒素を還元除去	低ランニングコスト 電子供与体の種類豊富、土地利用に組み込むことも可能	処理効率は水温に依存 冬季は加温が必要 残存有機物の処理
独立栄養脱窒	硫黄を電子供与体として硫酸化細菌により硝酸性窒素を還元除去	低ランニングコスト 維持管理労力が少ない 電子供与体は固体 S、チオ硫酸溶液も使用可	温度問題は上と同じ 硫酸が生成する
イオン交換	陰イオン交換樹脂による吸着	設備費高い 維持管理は容易 反応速度早い	再生に多量の NaCl 必要 高濃度廃液の処理必要
逆浸透	逆浸透膜による硝酸イオンの濃縮	設備費・維持費高い 維持管理は容易	他の塩類も除去される 高濃度廃液の処理必要
電気透析	電気透析膜による硝酸イオンの濃縮	副生成物なし 薬剤使用量少ない	高濃度廃液の処理必要

土地利用型：

最上位帯水層への周辺からの流入を制限し、浸透水は暗渠を通して集中排水できるようにする。排水は水田または脱窒用還元ゾーン (reed bed など) に導水して脱窒させる。冬季の低温で脱窒能が低下する問題があるが、冬期間の降水量が少なく、浸透水の発生しにくい地帯では問題にならない。親水空間のビオトープとして設計することも可能である。

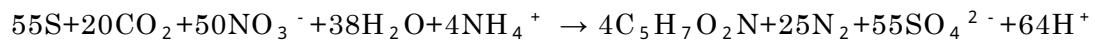
水処理施設型：

排水からの硝酸除去システムとしては、現在表 6-2-1 に示すようなものが使われている。しかし、生活排水の高度処理に使われるような方式は、コストや維持管理面から、農業排水には適用困難である。硫酸化菌を利用した脱窒システム ((5) 項で解説) の可能性は高い。施設栽培排水は集中した排出口から排出されるので、日排水量が一定量以上であれば排水基準が適用される。これに対しては水処理施設方式が採用しやすい。

(5) 硫酸化菌による脱窒システム

固体硫黄を電子供与体とした独立栄養細菌である硫酸化細菌を用いる方法 (sulfur-limestone autotrophic denitrification process の頭文字をとって SLAD 法と

称される)は、脱窒効率の高さと操作の簡便性から農業面源対策に適した処理法といえる。硫黄酸化細菌 *Thiobacillus denitrificans* は土壌や底質中に普遍的に存在する独立栄養細菌であり、無酸素状態では硫黄またはチオ硫酸を電子供与体とし、NO₃からN₂Oに至る一連の窒素酸化物を電子受容体として炭酸同化を行っている。その結果として硝酸は最終的に窒素ガスに還元される。その反応は次式で表される。



生物による脱窒過程では、地球温暖化ガスである一酸化二窒素(N₂O)の放出が懸念されるが、硫黄酸化細菌による脱窒が起こる強還元状態においてはその大部分がN₂にまで変換されるとする報告²⁴⁾がある。

施肥に由来する地下水の硝酸汚染問題への硫黄脱窒の応用は、硫黄-石灰石ろ過法としてすでにKruithofら²⁵⁾により報告されている。その方法は、粗粒硫黄と石灰岩粒を用い、両者のほぼ同量を脱窒槽に充填し、さらに脱窒効率を維持するため、原水の脱気を行っている。しかし、維持管理の煩雑さから農業排水用としては実用的でない。

これらの問題点を改善するため、電子供与体、中和材および微生物担体の三者の機能を併せ持つ新たな硫黄脱窒用資材が開発されている。この資材による脱窒システムは、すでに畑地暗渠集水機構に組み合わせたほ場サイトでの脱窒処理²⁶⁾、イチゴ養液栽培排水の脱窒処理²⁷⁾、豚尿を主体とする畜産排水の高度処理²⁸⁾、茶園地帯のため池の水処理²⁹⁾などにおいて有効性が確認されている。

硫黄脱窒用資材は、熔融硫黄と同重量の石灰岩粉を混合し、冷却破碎したもので、硫黄マトリクス中に石灰石粉が固体分散系を形成しており、SC11と仮称されている(P3430364-2003.5.23)(図6-2-1)。この資材を処理槽に充填後、*T. denitrificans* 微生物源として、土壌または水域底質をチオ硫酸培地で培養した培養液を接種し、一定時間馴養後処理を開始する。原水の脱気は必要ない。脱窒の温度条件は20~30℃が望ましい。カラム試験による在来法(硫黄と石灰岩の混合充填、または硫黄(下層)と石灰岩(上層)の層別充填)との比較では、硫黄質量に対して同一の硝酸負荷量において、本資材は在来法の2~5倍程度の脱窒能力を示した³⁰⁾。



図 6-2-1 硫黄-石灰石脱窒資材 SC11 (5-20mm)

畑地暗渠集水の現地脱窒試験（図 6-2-2）では、硝酸性窒素の平均濃度 75mg/L の暗渠排水について、1 日資材重量当たり 2 倍量以下の流速（滞留時間約 6 時間）で脱窒処理を行えば、99%以上の硝酸性窒素（NO_x）除去率が得られ、6 ヶ月の連続運転において、特別の維持管理なしに、脱窒能力の低下はなかった。また、処理水の pH は全期間を通してほぼ 7.0±0.5 の範囲に保たれ、硫酸カルシウムの析出は認められなかった。

この資材を硝酸汚染地下水の処理に適用する場合は、地下水では土壌の浅層からの浸透水に比べて脱窒菌の必須元素とくにリンと銅の供給が不足することに注意する必要がある。純溶液による実験では、脱窒能を発現するためには原水中に 0.2mg/L の PO₄-P と 0.05mg/L の Cu の共存が必要である。しかし、原水に常時必須元素のすべてを添加する必要はなく、処理開始前のリン・銅を含む培養によって、資材表面に生物群が確立できれば、そこに取り込まれた無機要素が循環利用されるとみられる実験結果が得られている³¹⁾。これによって窒素以外は貧栄養である硝酸汚染地下水浄化への本資材の適応が期待される。



図 6-2-2 暗渠排水脱窒テストプラント（SC11 充填量 80kg、埼玉県深谷市）

【参考文献】

- 1) 日本土壌肥料学会：窒素・リンの土壌流出機構等解明調査，平成 2 年度環境庁委託調査報告書 71(1991)
- 2) 小川吉雄：地下水の硝酸汚染と農法転換，農文協（2000）
- 3) 西尾道徳：EU の硝酸塩指令実施状況 2000 年報告の概要，日土肥誌 73, 840 (2002)
- 4) 朴 光来ほか：埼玉県櫛引台地の湧水により灌漑されている水田表面水の硝酸態窒素濃度および δ¹⁵N 値，日土肥誌 69, 287-292 (1998)
- 5) 環境省地下水・地盤環境室監修：硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引，公害研究対策センター 37-61 (2002)
- 6) B.コモナー（安部・半谷訳）：なにが環境の危機を招いたか，ブルーバックス B-189，講談社（1972）
- 7) 並木則和ほか：¹⁵N による地下水の硝酸塩の起源の同定について - 沼田段丘の事例，筑

- 波大学水利実験センター報告(13) 77-80 (1989)
- 8) 山本洋司ほか：宮古島の地下水中の硝酸態窒素濃度と $\delta^{15}\text{N}$ 値，日土肥誌 66,18-26 (1995)
 - 9) 朴 光来ほか：埼玉県における露地野菜畑土壌からの浸透水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と $\delta^{15}\text{N}$ 値，日土肥誌 66, 146-154 (1995)
 - 10) 中西康博ほか： $\delta^{15}\text{N}$ 値利用による地下水硝酸起源推定法の考案と検証，日土肥誌 66, 544-551 (1995)
 - 11) 堀内孝次：地下水汚染防止のための施肥改善に関する研究，平成2～7年度受託研究，岐阜大作物栽培学研 84 (1996)
 - 12) 北嶋敏和：黒ボク土における「にんじん」の効率的施肥，岐阜県農業総合センター研究報告(4) 1-35 (1991)
 - 13) 中西康博：沖縄県宮古島における農業が地下水汚染に及ぼす影響とその対策に関する研究，東京農業大学学位論文 p.203 (1997)
 - 14) 芝野和夫：野菜畑土壌中の窒素・リンの動態，昭和61年度排水処理の高度化に関する研究(32) 1-33 (1986)
 - 15) 小川吉雄：火山灰畑地からの肥料成分の流出とその軽減対策に関する研究，東京農業大学学位論文 (1984)
 - 16) 袴田共之・藤井国博：ライシメータ浸透水中の無機成分濃度の経時変化，国公研報 (94) 119～126 (1986)
 - 17) 大嶋秀雄ほか：都城盆地における飼料作土壌の養分収支(ライシメータ試験)，九州農試報告(26) 238-310 (1990)
 - 18) 農林水産省草地試験場：家畜排せつ物の処理利用研究会資料 (1983)
 - 19) 小川吉雄・酒井 一：畑地から水田内へ流入した硝酸態窒素の動向，土肥誌 55, 533 -538 (1984)
 - 20) 長谷川清善ほか：水田における有機物施用が水質におよぼす影響(第2報)，滋賀農試研究報告(23) 30-37 (1981)
 - 21) 高村義親ほか：湛水土壌ライシメーターにおける硝酸態窒素および塩素イオンの動向と収支について，土肥誌 54(1) 37-44 (1983)
 - 22) 長谷川清善ほか：茶園・水田地形連鎖における富栄養化成分の行動，滋賀農試研究報告(26) 37-41 (1985)
 - 23) 平田健正ほか：硝酸性窒素による地下水汚染(2)汚染の修復技術，地下水技術 42(10) 38-46 (2000)
 - 24) 長谷川聖ほか：土壌への硫黄添加型脱窒過程における亜酸化窒素の生成に対する影響因子の評価，日本水環境学会第33回年会講演集 368 (1999)
 - 25) Kruithof J. C. et al.: Nitrate removal from ground water by sulphur/limestone filtration, Water Supply 6, 207-217 (1988)
 - 26) 河原塚琢磨ほか：硫黄-石灰石粉混合造粒物を用いた畑地暗渠排水の脱窒処理，東京農業大学農学集報 46(1) 7-12 (2001)
 - 27) 河田智明ほか：硫黄酸化菌を利用したイチゴ高設栽培廃液の硝酸除去，日土肥誌 73 445-447 (2002)

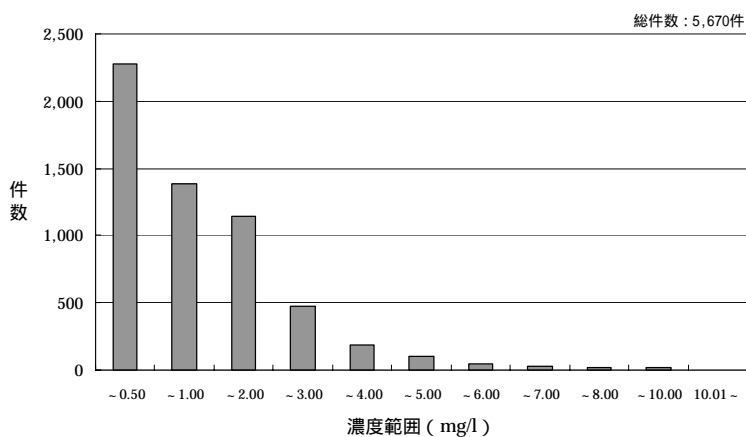
- 28) 陳 昌淑ほか：硫黄酸化反応による畜舎汚水の窒素除去と脱色，用水と排水
43,1053-1059 (2001)
- 29) 新日鐵化学(株)総合研究所ほか：農業生産に起因する硝酸性窒素汚染地下水,河川及び湖
沼の修復技術の開発,環境省技術開発等推進事業報告書(2003)
- 30) 谷田貝敦ほか：硫黄-石灰石混合造粒物を用いた農業排水の硝酸除去，第9回世界湖沼会
議発表文集，第3分科会 465-468 (2001)
- 31) 萩原達也：独立栄養脱窒による水処理条件の解明，東京農業大学修士論文 (2003)

6.3 家庭用浄水器

(1) 背景

近年、わが国において硝酸性窒素による地下水の汚染の拡大が問題となっている。硝酸性窒素は、幼児への血中症を引き起こすことが指摘されている。

一般の水道水中に含まれている硝酸性窒素濃度は図 6-3-1 に示すように環境基準を下回っており、飲用には問題がないと思われる。しかし、地下水を主に飲用に用いる地域においては、硝酸性窒素による汚染の問題は深刻である。



出典：水道水質データベース(財団法人 日本水道協会)

図 6-3-1 浄水中に含まれる硝酸性窒素濃度平均値 (平成 13 年)

図 6-3-2 に熊本県で実施されている硝酸性窒素対策の体系図を示す。硝酸性窒素対策としては汚染の未然防止のための「汚染防止対策」と既に汚染してしまった地下水に対する健康リスクの低減措置である「飲用水対策」が挙げられる。

汚染防止対策は発生源対策、窒素流通対策及び啓発対策等、硝酸性窒素の排出者を対象とした発生量を抑制しようとする根本的な対策である。

一方、既に汚染してしまった地下水に対する健康リスクの低減措置としては、飲用水対策があり、上水道普及啓発、飲用指導及び浄水器の利用等がある。

地下水の硝酸性窒素による汚染が確認された場合、その改善には長期を要する。このため、地下水を飲用している地域においては、対処療法的ではあるが、硝酸性窒素除去能力を有する家庭用浄水器の普及を促進する施策が図られている。

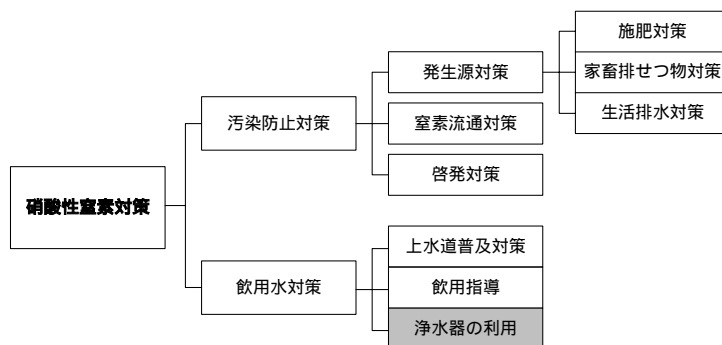


図 6-3-2 硝酸性窒素対策の体系図 (熊本県報告より)

(2) 硝酸性窒素除去能力を有する家庭用浄水器

家庭用浄水器は、普及が一段と進んでいる状況であり、普及率は平成 15 年度調査において全国で 31%、およそ 1,513 万世帯が使用しているという報告がある（浄水器協会調べ）。浄水器の多くは活性炭や中空糸ろ紙等を用いているが、これはカビ臭、細菌、塩素及び発がん性物質であるトリハロメタン等を対象としているものが多い。これらの浄水器では硝酸性窒素に対する除去効果が期待できず、硝酸性窒素を除去するためには、イオン交換や逆浸透膜などの高度処理が必要となる。

また、全国の自治体の中には家庭用浄水器購入に当たって補助金交付の制度を設けているところもあり、飲用水対策としての浄水器の利用普及が図られている（表 6-3-1）。しかし、浄水器の利用にあたっては、フィルターやろ紙等の交換やイオン交換樹脂の再生処理等のメンテナンスが必要であり、これらの経済的負担についても検討が必要である。

表 6-3-1 浄水器に対して補助を実施している例

自治体	補助の主な条件	補助金額	対象製品
A 市	<ul style="list-style-type: none"> ・上水道給水区域外に居住し、飲用水用の井戸を使用している個人。 ・引用する井戸水が水質基準に適合していないもの。 ・硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素の数値が 5 mg/L 以上検出されているもの。 	浄水器等の 1 個当たりの設置費の 3 分の 2 以内とし、補助限度額を 20 万円とする。	省令に定められた水質基準の水及び硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素の数値が 5 mg/L 未満の水を供給できる浄水器
B 町	飲料水として使用している地下水（井戸水）から砒素、硝酸性窒素が水質基準を上回っている世帯。	浄水器の購入及び設置に要する費用（消費税及び地方消費税相当額を除く）の 2 分の 1 に相当する額又は 75,000 円のうちのいずれか低い額。	対象物質を除去可能な浄水器
C 市	<ul style="list-style-type: none"> ・井戸水を日常生活の飲料用として使用しており、「硝酸性窒素」の値が基準値に適合していないこと。 ・住んでいる家の敷地に隣接する道路に上水道配管が敷設されておらず地下水の他に飲料水の確保が困難なこと。 	浄水器購入設置費の 3 分の 1（10 万円上限）。ただし、生活保護法による生活扶助を受けている方については 20 万円を限度として購入設置費の金額を補助する。	<p>「硝酸性窒素」を基準内に除去できる機器で次の要件を満たすもの</p> <ul style="list-style-type: none"> ・飲料水を供給する給水装置に接続できること。 ・浄水性能が 1 時間当たり 5 リットル以上あること。 ・耐用年数が通常の使用方法で 5 年以上あること。 ・性能の保証期間が 1 年以上あること。

1) 硝酸性窒素の除去原理

硝酸性窒素の処理技術として、イオン交換法、逆浸透膜法、電気透析法、生物的脱窒法等がある。表 6-3-2 にその一覧を示す。このうち、商業的に実用化されているものは、イオン交換法や逆浸透膜法等である。家庭用の浄水器についても、主にこれらの技術が利用されている。

表 6-3-2 硝酸性窒素の除去技術

分類	処理法	原理
物理学的方法	イオン交換法	強塩基性陰イオン交換樹脂を用いて、陰イオンである硝酸イオンを分離除去する。
	電気透析法	陰イオン交換膜を介して陰イオンを電氣的に移動させ、陰イオンである硝酸を分離除去する。
	逆浸透膜法	半透膜の片側の被処理水に機械的な圧力を加えることによって、不純物を含まない水を半透膜の反対側に得る方法。
	触媒脱窒法	水素供与体として水素ガスを直接用いて、触媒の存在下で硝酸性窒素を窒素ガスにまで還元する。
生物学的方法	生物処理法 (従属栄養性脱窒法)	従属栄養脱窒素細菌が付着増殖した粒状層でろ過し、硝酸性窒素を窒素ガスにまで還元する。水素供与体としてエタノールを用いる場合が多い。
	生物処理法 (独立栄養性脱窒法)	独立栄養細菌である硫黄脱窒細菌が付着増殖した粒状層でろ過し、硝酸性窒素を窒素ガスにまで還元する。
	内生脱窒法	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、硝酸イオンを窒素ガスに還元する。

2) 市販の家庭用浄水器

表 6-3-3 に硝酸性窒素除去能力を有する市販の家庭用浄水器の例を示す。除去原理としては、逆浸透膜法やイオン交換法を用いたものが一般的である。また、カビ臭や塩素なども同時に除去するために、活性炭吸着法やろ過等を組み合わせた製品もある。その除去能力は設置初期において 90% 以上である(メーカー発表値)。製品自体の価格は 15 万円から 30 万円程度であるが、実際にはイオン交換樹脂や浸透膜の交換等のメンテナンスにより年に 3 万円程度の維持費が必要である。

ア) イオン交換法

イオン交換法は、イオン交換体のイオンと水中のイオンを交換することにより、目的とするイオンを除去する方法である。この方式は処理能力が高く安定しており、ほとんどの硝酸性窒素を除去することが可能である。ただし、イオン交換が進行し交換能を失うと、それまで除去されていた硝酸イオンが流出し始め、安定的な除去が行えなくなるため、メンテナンスを含めたイオン交換樹脂の再生処理を年数回実施する必要がある。

イ) 逆浸透膜法

半透膜の片側の被処理水に機械的な圧力を加えることによって、不純物を含まない水を半透膜の反対側に得る方法である。得られる処理水は純水に近く、無機イオンや有機物の除去も可能である。海水の淡水化にはこの方式がよく用いられているが、設置及びランニングコストが高く、家庭用浄水器では、浸透膜の交換を3年に1度程度行う必要がある。

表 6-3-3 硝酸性窒素除去能力を有した市販の家庭用浄水器の例

製品名	除去原理	硝酸性窒素除去率 (メーカー発表)	価格(円)	メンテナンス費用(円)
A	逆浸透膜方式 (活性炭ろ過) (微粒子ろ過) (活性炭吸着ろ過)	98～92% 実験条件の記載なし	295,000	・フィルター類 53,000/3年 ・逆浸透膜 37,500/3年
B	逆浸透膜方式	92% 220mg/L 試料水通水時 18mg/L 検出(流量は記載なし)	299,250	・フィルター類 28,000/年 ・逆浸透膜 20,000/4年
C	イオン交換 ろ過 吸着	100% 4,000L 通水時(流入試料水 2.5mg/L) 検出せず	175,000	・イオン交換樹脂カート リッジ 12,500 円/年 ・活性炭カートリッジ 22,500 円/年
D	逆浸透膜方式 ろ過 活性炭吸着 最活性炭吸着	未記載	152,000	・フィルター類 22,000/年 ・逆浸透膜 30,000/4年

