

倉敷市連島地域の硝酸性窒素による地下水汚染

妹尾 護・浅野 理恵*

倉敷芸術科学大学国際教養学部

*オムロン一宮株式会社

(2002年9月30日 受理)

1. はじめに

1970年代以降、欧米諸国を中心に硝酸性窒素（以下、 $\text{NO}_3\text{-N}$ と略す）による地下水汚染が深刻さを増してきた¹⁾。この $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染は、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の過剰摂取がメトヘモグロビン血症の原因となることから、日本でも大きな社会問題となっている^{2, 3)}。1982年度に行われた環境庁による地下水汚染調査では、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は最も検出率の高かった物質であり、検体数の約10%が水道水の水質基準値（ $\text{NO}_3\text{-N}$ および $\text{NO}_2\text{-N}$ （亜硝酸性窒素）：10mg/l）を超えている。さらに、高屋敷ら⁴⁾の報告によると、水道水の源泉である全国の浅井戸と深井戸中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は経年的に上昇傾向にあり、全国各地で徐々に地下水汚染が進行していることを示している。

地下水は汚染が進むと、回復が困難ばかりでなく、水道水源として地下水に多くを依存している地域では、他の飲料用水源の確保を余儀なくされることにもなる。また、地下水は浸出して河川や湖沼中に流入する場合もあり、地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ が水質汚濁や富栄養化を引き起こす原因にもなりかねない。したがって、 $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染が進行している地域では、汚染の現状と汚染源を詳細に把握すると共に早急な対策が必要である。

私たちは、岡山県南部の地下水の水質調査を進めているが、その一環として倉敷市連島地域の地下水の水質分析を行った結果、水質基準値を超える高い $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の井戸水の存在が明らかになってきた。倉敷市連島地域では、かつて良質な地下水が得られ、現在も多くの井戸が残っている。また、一部の家庭では今でも飲料用に井戸水を使用している。そこで、当地域の $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染の実態とその原因を調べるために、特に土地利用との関係について検討を行ったので、その結果を報告する。

2. 調査地域の概要および地下水試料

(1) 調査地域の概要

調査地域は倉敷市の南西部に位置し、東西約4Km、南北約2Kmの小山塊から成る地域である（図1）。地形的には、標高162mの大平山がある山塊の北側が高く、南側に向かって高度は低下する。土地利用としては、主に山塊の西部および南西部の斜面を利用して柑橘類の果樹栽培が盛んである。一方、山塊の東部では、標高80～50mに新しい住宅地が存在するが、付近には果樹園と共に広葉樹・針葉樹の林も見られる。なお、調査地域は花崗岩質の岩石で構成されてお

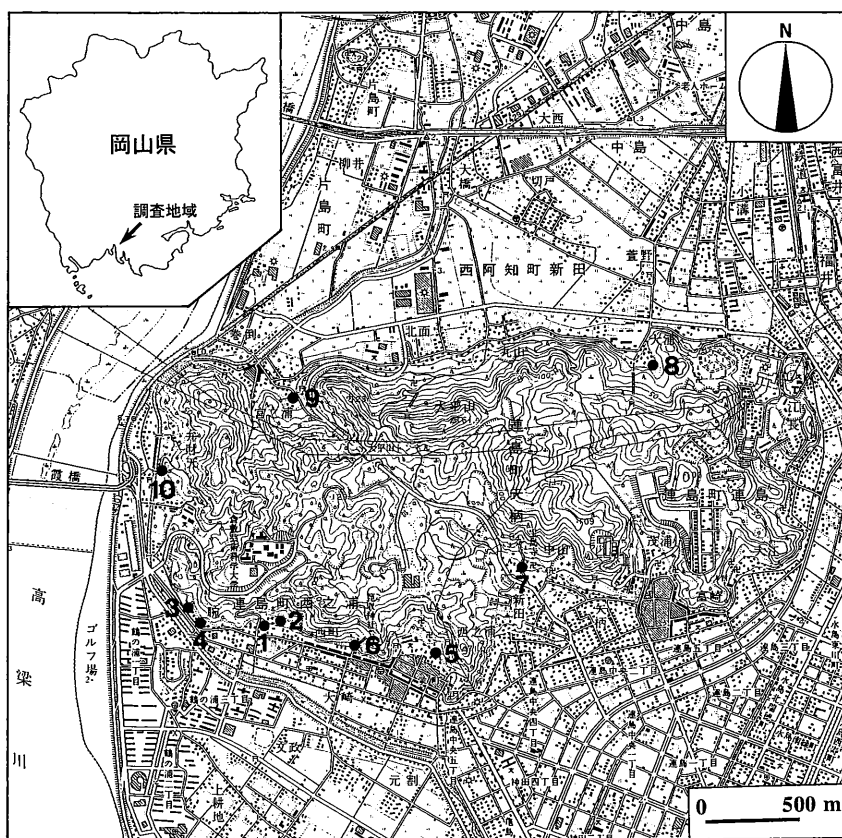


図1 地下水試料の採取地点

図中の数字は試料番号をさす。(国土地理院発行2万5千分の1地形図「玉島」の一部を使用)

表1 地下水採取地点の概況

試料	場所 (倉敷市連島町)	備 考
No. 1	西町	水面まで5.0m, 飲料用には未使用
No. 2	西町	水面まで約30m, 飲料用には未使用
No. 3	腕	水面まで3.2m, 飲料用には未使用
No. 4	腕	水面まで1.3m, 飲料用には未使用
No. 5	西之浦	蛇口から採水 (深さは不明), 現在飲料用に使用
No. 6	西町 (窺取神社下)	水面まで1.5m, 飲料用には未使用
No. 7	中山 (宝島寺近く)	水面まで4.5m, 飲料用には未使用
No. 8	大浦	水面まで1.8m, 最近まで飲料用に使用
No. 9	宮之浦	蛇口から採水 (深さは不明), 現在飲料用に使用
No.10	弁財天	蛇口から採水 (深さは不明), 飲料用には未使用

り、その風化土壌（マサ土）が山塊斜面や山麓部に分布している。

(2) 地下水試料

倉敷市連島地域の地下水の水質を明らかにするために、調査地域の山塊の周辺に存在する井戸から試料を採取した。分析を行った地下水は異なる地点の計10試料である。図1に地下水の採取地点を示す。また、表1には地下水採取地点の概況をまとめた。

本研究で採取された地下水はほとんどが浅層地下水（浅井戸）であり、試料No.2のみが深層地下水（深井戸）である。その中で、現在も地下水を飲料用に使っている井戸が2カ所あった（No.5およびNo.9）。なお、浅層地下水は地表面から浸透した降水によって直接に涵養されたものであり、低地部では数m程度で浅層地下水面に到達する⁵⁾。一方、深層地下水は不透水層を介してより深い所を流れる地下水で、一般に地下20～30mを境にして浅層地下水と深層地下水を区別している⁵⁾。

3. 分析方法

地下水の水温とpHは、採水時に水銀温度計と携帯用ガラス電極pHメーター（HNNA製）を使用してそれぞれ測定した。また、電気伝導度の測定は携帯用電気伝導度計（堀場製作所製）を用いた。一方、地下水中の各イオンについては、試料をポリ瓶に採水して実験室に持ち帰り、メンブランフィルター（0.45 μ m）でろ過した後、イオンクロマトグラフ（Dionex 社製、DX-120）で陽イオン（Li⁺, Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺）と陰イオン（F⁻, Cl⁻, NO₂⁻, Br⁻, NO₃⁻, PO₄³⁻, SO₄²⁻）をそれぞれ分析した。測定に際しては、陽イオンは20mMのメタンスルホン酸溶液を、陰イオンでは0.3mMの炭酸水素ナトリウム溶液と2.7mMの炭酸ナトリウム溶液の混合液を溶離液として使用した。なお、各溶離液の流速は1.0 ml/minである。

4. 地下水の水質

倉敷市連島地域の地下水の水質分析結果を表2に示す。以下、水温、pH、電気伝導度（EC）、および陽イオン・陰イオンについての特徴を述べる。

(1) 水温、pHおよび電気伝導度

水温は13.0～18.9℃の範囲であった。この中で、試料No.2が最も水温が低い。この試料は深層地下水であり、年間を通じてほぼ一定の水温（13～14℃）を示すものと考えられる。

pH値は6.0～6.9で、全般的に弱酸性である。本調査地域では、pH4.5程度の酸性雨が記録されているが（浅野、未公表データ）、地下水ではそのような低いpH値は認められなかった。

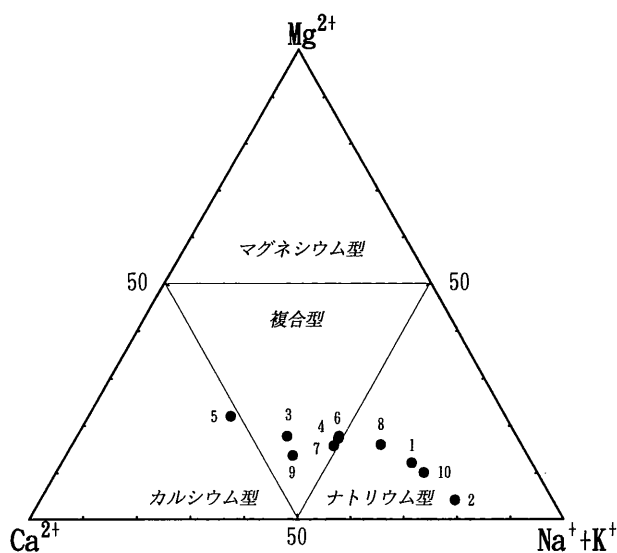
電気伝導度は約100～450 μ S/cmの範囲であり、地下水の採取場所によってその値が大きく異なる。最も低い値をもつ地下水は、調査地域北東部の試料No.8で、付近には針葉樹の林が広がっている地点の井戸水である。一方、最も高い値を示したのは試料No.3で、山頂部～山麓部にかけて果樹園が広く分布する地点の井戸水である。

表2 地下水の水質分析結果

Sample No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
採水日 (1999)	11/18	11/18	11/18	11/18	11/18	11/18	11/18	11/26	11/26	11/26
水温 (°C)	17.0	13.0	17.5	18.0	14.1	18.2	18.9	15.8	14.2	13.5
pH	6.87	6.30	6.46	6.01	6.72	6.93	6.55	6.16	6.00	6.53
EC (μ S/cm)	220	132	445	242	284	404	260	102	240	326
Na ⁺ (mg/l)	27.1	42.3	27.3	19.5	16.4	42.2	21.9	9.40	19.1	38.5
K ⁺	0.42	0.34	7.32	3.71	0.24	3.71	4.00	1.72	0.89	2.18
Mg ²⁺	2.64	1.16	7.50	3.62	7.16	8.41	4.47	1.50	3.31	3.02
Ca ²⁺	8.18	8.74	30.2	13.6	27.9	26.3	14.5	4.15	17.8	10.7
F ⁻	0.29	0.25	0.11	0.07	0.25	0.31	0.20	0.10	0.06	0.16
Cl ⁻	33.5	19.4	32.3	14.3	33.9	38.6	24.8	6.58	7.63	47.3
Br ⁻	0.06	0.72	0.13	-	-	0.08	0.28	-	-	0.08
NO ₃ ⁻ -N	0.69	18.9	16.1	5.40	3.89	10.1	3.63	0.82	6.15	1.24
PO ₄ ³⁻ -P	0.14	0.11	0.55	0.21	0.39	0.42	0.17	-	-	0.16
SO ₄ ²⁻	23.6	12.7	72.4	39.6	14.3	58.2	35.5	17.5	50.2	26.3

(2) 陽イオン・陰イオン濃度

陽イオン・陰イオンの濃度は、Na⁺: 9.40~42.3 (mg/l), K⁺: 0.24~7.32 (mg/l), Mg²⁺: 1.16~8.41 (mg/l), Ca²⁺: 4.15~27.9 (mg/l), F⁻: 0.06~0.31 (mg/l), Cl⁻: 6.58~47.3 (mg/l), Br⁻: 0.72 (mg/l) 以下, NO₃⁻-N: 0.69~18.9 (mg/l), PO₄³⁻-P: 0.55 (mg/l) 以下, SO₄²⁻: 12.7~72.4 (mg/l) である。これらの値は、地理的に限られた地域の中でも各イオンの濃度に大きな差異があることを示している。ここで、特徴的な水質組成をもつ地下水試料についてみると、試料No.8は陽イオン・陰イオン共にその濃度が低く、電気伝導度が102 μ S/cmと低いことと調和的である。また、この試料はPO₄³⁻-Pも検出されない。それに対して、試料No.3はK⁺, Mg²⁺, Ca²⁺, NO₃⁻-N, PO₄³⁻-P およびSO₄²⁻が他の試料と比べて極めて多く含まれている。特に、NO₃⁻やPO₄³⁻は地下水汚染の指標となる成分であり⁶⁾、これらイオンが多く含まれている

図2 Ca²⁺ - Mg²⁺ - (Na⁺ + K⁺) 三角図

図中の数字は試料番号をさす。

ことは地下水の汚染が進行していることを示唆する。なお、本研究において唯一の深層地下水である試料No.2は、他と異なる特徴を示している。すなわち、 Na^+ が多く含まれるのに対し、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Ca^{2+} 濃度が低い。ただし、この深層地下水においても、 NO_3^- -N濃度が高く、本研究において最も大きい値（18.9 mg/l）を示した。

図2は Ca^{2+} - Mg^{2+} - (Na^+ + K^+) 三角図で、各成分を当量百分率で表したものである。この図から、 Ca^{2+} がやや多い試料（No.5）、 Ca^{2+} と(Na^+ + K^+)をほぼ等量含む試料（Nos.3, 4, 6, 7, 9）および(Na^+ + K^+)に富む試料（Nos.1, 2, 8, 10）のグループに分けることができる。これらは水質的には、日下⁷⁾によるカルシウム型、複合型、そしてナトリウム型にそれぞれ相当する。この中で、複合型に属する試料（Nos.3, 4, 6, 7, 9）には、 NO_3^- -Nおよび SO_4^{2-} が多く含まれている。なお、試料No.2は特に(Na^+ + K^+)成分に富むが、これは深層地下水に一般的に認められる特徴^{8, 9)}の1つである。

5. 考察

(1) NO_3^- -Nによる地下水汚染

地下水中に、 NH_4^+ -N（アンモニア性窒素）および NO_2^- -N（亜硝酸性窒素）が検出される場合、下水・し尿などの汚染源が近いと考えられる¹⁰⁾。また、深井戸（深層地下水）の場合、嫌気状態のため、 NH_4^+ -Nおよび NO_2^- -Nが検出されることも多い。しかし、今回の調査では、浅井戸（浅層地下水）、深井戸（深層地下水）の両者において、 NH_4^+ -Nおよび NO_2^- -Nの濃度は共に検出限界（それぞれ0.01mg/l, 0.005mg/l）以下であった。したがって、地下水中に含まれる窒素化合物は NO_3^- -Nのみから成るといえる。

NO_3^- -Nが多量に飲料水中に含まれると、私たちの体内でそれが NO_2^- -Nに還元されて血液中のヘモグロビンと結合し、特に乳幼児に対してメトヘモグロビン血症（酸素欠乏症）などを引き起こしやすいことが知られている（平田¹¹⁾など）。したがって、水道水質基準では NO_3^- -Nおよび NO_2^- -N共に10 mg/l以下と厳しく規定されている。この値を参考にすると、本研究の地下水の中では、試料No.2、No.3およびNo.6が水質基準値を超えている。ちなみに、当地域で現在も飲料用に使用されている井戸水の NO_3^- -N濃度は、試料No.5で3.9mg/l、試料No.9では6.2mg/lで、それぞれ水質基準値以下である。では、 NO_3^- -Nが地下水中に多く含まれるようになった原因は何であろうか。

地下水中の NO_3^- -Nの供給源あるいは汚染源として、以下の要因が指摘されている¹²⁾。①生活排水系、②畜産系（糞尿の土壌・畑地還元、畜舎排水など）、③施肥系（化学肥料、有機肥料など）、④大気汚染—降水系（自動車排ガス、事業場排ガスなど）。ここでは、それぞれの要因についてみる。まず、生活排水系であるが、本調査地域では東部の一部地域を除き、山頂部～中腹部にかけて民家はほとんど存在しないことから、家庭排水などの生活排水の直接的な混入は考えにくい。また、畜産農家も存在しないので、畜舎排水や家畜糞尿の影響も無視できる。一方、調査地域では酸性雨が記録されており、降水中に SO_4^{2-} と共に NO_3^- が含まれている。

降水中の NO_3^- -N濃度は0.3~0.5 mg/l, また NH_4^+ -N濃度は0.8~1.5mg/lの範囲である(浅野, 未公表データ)。しかし, この程度の値では, 降水後の蒸発散による濃縮を考慮しても, 高濃度の NO_3^- -N汚染(10mg/l以上)を引き起こす要因になるとは考えられない。

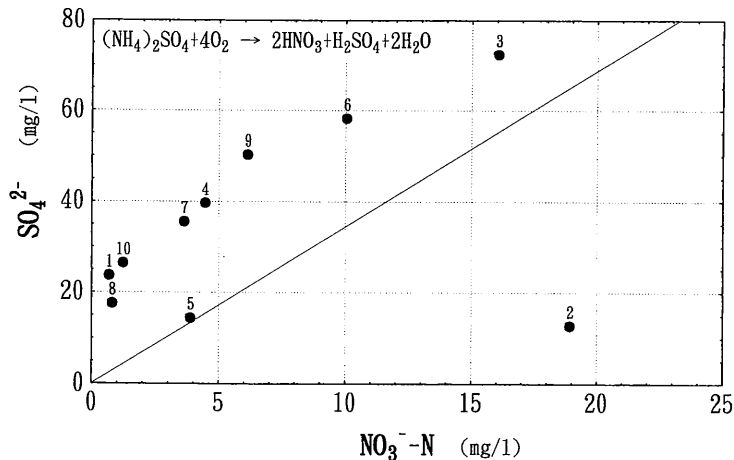
本研究地域の倉敷市連島地域には, 柑橘類を栽培する農家が多く, 土地利用の点では果樹園が圧倒的に多くを占めている。果樹栽培では高い生産性と高品質生産物を得るために, 施肥が一般的である。したがって, 化学肥料などの施肥系による地下水汚染について詳しく検討するために, 当研究地域で施用されている肥料に注目した。

連島地域の施肥聞き取り調査では, 果樹栽培用に天然有機肥料として菜種油粕, 一方, 化学肥料としては高度化成肥料(窒素15%, 燐酸10%, カリ13%)が使用されている。この中で, 化成肥料については, 硝安(硝酸アンモニウム):10%, 燐安(燐酸アンモニウム):3%および硫安(硫酸アンモニウム):2%が窒素成分として含まれている。また, 燐酸成分は燐安, カリ成分は硫酸カリウムとして含まれている(JA倉敷南連島支所, 私信)。そこで, これら肥料中の各成分による地下水への影響をみるために, 地下水の各測定項目についての相関係数を求めた(表3)。ただし, 試料No.2は深層地下水であり, 浅層地下水とは水質形成機構が異なると考えられるため, 相関係数の計算からは除外した。この表から, NO_3^- -Nは SO_4^{2-} (0.91, $p<0.01$), PO_4^{3-} -P (0.89, $p<0.05$) および K^+ (0.84, $p<0.05$) と強い相関をもつことがわかる。このことは, NO_3^- -Nが地下水中に付加されたとすれば, NO_3^- -Nと共に SO_4^{2-} , PO_4^{3-} -Pおよび K^+ の各イオンも同様な挙動をしたことを意味する。このようなイオンの相関関係は, 地下水中の NO_3^- -N汚染が1970年代に報告された岐阜県各務原台地においても認められており¹¹⁾, NO_3^- -Nは SO_4^{2-} , NO_3^- -N, Mg^{2+} および Ca^{2+} と高い相関関係をもつ。各務原台地はニンジンの生産地で, 化学肥料, 特に硫安の多用に起因する地下水汚染が起こった地域である。一般に畑作地帯の土壌は好気性であるため, NH_4^+ -Nや有機態窒素でも容易に NO_3^- に酸化され¹²⁾, 地下水中に溶脱する。そして, 硫安

表3 地下水の各分析項目間の相関係数

	pH	EC	Na^+	K^+	Mg^{2+}	Ca^{2+}	F ⁻	Cl^-	NO_3^- -N	PO_4^{3-} -P	SO_4^{2-}
pH		0.23	0.58	-0.40	0.35	0.18	0.95**	0.92**	-0.05	0.13	-0.12
EC	0.23		0.63	0.68	0.87*	0.83*	-0.01	0.52	0.95**	0.91**	0.84*
Na^+	0.58	0.63		0.27	0.44	0.22	0.48	0.58	0.44	0.32	0.60
K^+	-0.40	0.68	0.27		0.35	0.39	-0.61	-0.17	0.84*	0.52	0.92**
Mg^{2+}	0.35	0.87*	0.44	0.35		0.96**	0.18	0.60	0.73	0.90*	0.50
Ca^{2+}	0.18	0.83*	0.22	0.39	0.96**		-0.01	0.49	0.77	0.96**	0.47
F ⁻	0.95**	-0.01	0.48	-0.61	0.18	-0.01		0.78	-0.31	-0.10	-0.35
Cl^-	0.92**	0.52	0.58	-0.17	0.60	0.49	0.78		0.28	0.49	0.11
NO_3^- -N	-0.05	0.95**	0.44	0.84*	0.73	0.77	-0.31	0.28		0.89*	0.91**
PO_4^{3-} -P	0.13	0.91**	0.32	0.52	0.90*	0.96**	-0.10	0.49	0.89		0.63
SO_4^{2-}	-0.12	0.84**	0.60	0.92**	0.50	0.47	-0.35	0.11	0.91**	0.63	

*: $P<0.05$, **: $P<0.01$

図3 SO₄²⁻濃度とNO₃⁻-N濃度の散布図

図中の数字は試料番号をさす。

の主成分の一つであるSO₄²⁻も同様に地下水中に取り込まれるため、両者に高い相関関係がみられるようになったものと解釈されている¹¹⁾。また、施肥によって酸性化した土壌の中和のために、一般に苦土石灰を加えるが、そのためにMg²⁺およびCa²⁺とNO₃⁻-Nにも相関が認められたものと推測される。

したがって、本研究地域においても、硫安などの化学肥料による影響が地下水に及んでいることが考えられるため、図3のSO₄²⁻濃度とNO₃⁻-N濃度関係図で分析結果を検討した。なお、図中に次の(1)式によるSO₄²⁻とNO₃⁻-Nの化学量論的な関係を示した(図中の直線)。これは、化学肥料中のNH₄⁺-Nとしての硫安(硫酸アンモニウム)がNO₃⁻に変化する反応式である。

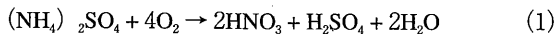
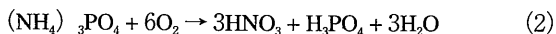


図3では、試料No.5がSO₄²⁻とNO₃⁻-Nの化学量論的な関係を示す直線上に乗るが、他の試料はこの直線から離れてプロットされている。しかし、試料No.2を除くと、試料Nos.1, 3, 4, 6, 7, 8, 9, 10の各点は1つのトレンドを形成しており、図中の直線とほぼ平行とみなせる。これは、施肥された硫安の影響が地下水中のNO₃⁻-NとSO₄²⁻濃度に現れていることを示す。ただし、それらは硫安から生じるNO₃⁻-NとSO₄²⁻の理論値よりもSO₄²⁻が多い領域に位置する。この原因としては、一部であるが土壌や地下水中でアンモニア揮散や硝酸の脱窒が起りやすいこと^{13, 14)}、また、施肥された化成肥料中にカリ成分としての硫酸カリウムが含まれていることに関係があるものと思われる。

図4にはPO₄³⁻-PとNO₃⁻-Nの散布図を示した。図3と同様に、試料No.2およびNo.5を除く他の試料は1つのトレンドを作っている。これは、化学肥料中の窒素および磷酸成分として含まれていた磷安(磷酸アンモニウム)が、次式(2)のように土壌中で酸化され、



その後、NO₃⁻とPO₄³⁻が降雨などを介して地下水中に移行したものと推測される。いずれにして

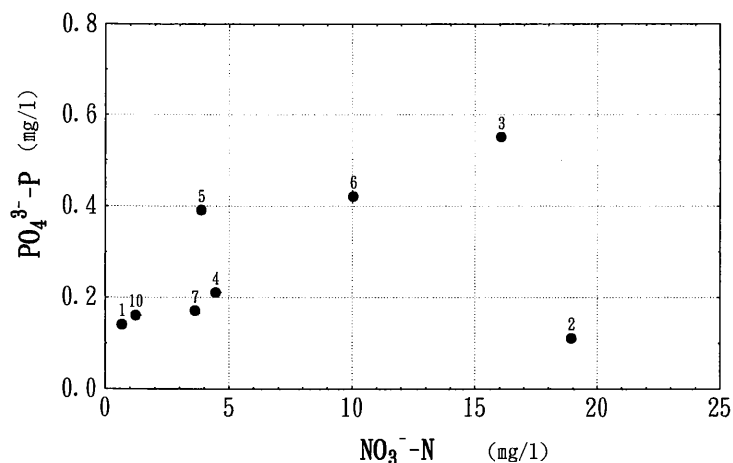


図4 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度と $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ 濃度の散布図

図中の数字は試料番号をさす。試料No.8とNo.9の $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度は検出限界以下である。

も、本研究地域では、硝安・硫安・燐安を含む化成肥料を使用していることから、地下水中の $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ 濃度は施用された化学肥料によるものとみてよい。

表3の相関係数では、 $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ は SO_4^{2-} 、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ および K^{+} との相関が高い。既に述べたように、 $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ と SO_4^{2-} は化成肥料中の硫安、そして、 $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ と $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ は化成肥料中の燐安の影響によるものと推定される。一方、 SO_4^{2-} と K^{+} の高い相関（0.92, $p < 0.01$ ）は、カリ成分として含まれている硫酸カリウムの影響と考えられる。ところで、植物の栄養素としては、窒素・燐酸・カリ以外にマグネシウムとカルシウムが重要で、これらは5大栄養素としてよく知られている。連島地域でも、マグネシウムおよびカルシウム成分として炭酸苦土石灰が施用されている（聞き取り調査による）。これは施肥目的以外に土壌中和剤としての役割も果たす。したがって、表3で Mg^{2+} と Ca^{2+} が特に強い相関関係（0.96, $p < 0.01$ ）を示した理由として、化成肥料とは別に施用された苦土石灰の影響が指摘できよう。

しかしながら、試料No.2とNo.5は SO_4^{2-} と $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ （図3）および $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ と $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ （図4）の各散布図でも明らかなように、他の地下水とは水質を異にしている。この中で、試料No.5は SO_4^{2-} が少なく、一方で Mg^{2+} や Ca^{2+} が多い。また、 $\text{NO}_3^{-}\text{-N}$ が少ないにもかかわらず、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ が多い。これは、化学肥料による影響のみでは説明困難である。試料採取付近には民家が多いことから、地下水中への生活排水の混入など、複合的な要因を考えた方がよい。なお、試料No.2の地下水（深層地下水）の水質については後で触れる。

以上のように、一部の試料を除くと、本研究地域の地下水の水質は施肥された化学肥料による影響を直接的に受けたものであるといえる。これは、果樹栽培が営まれている土壌が花崗岩質の砂質土壌であることに関係があるものと思われる。砂質土壌は降水に対する浸透性が高く、また、より好気的な環境のために、施用された硫安や燐安などの $\text{NH}_4^{+}\text{-N}$ 肥料が比較的速く NO_3^{-} に酸化されて、最終的にそれらが浸透水に含まれて移動しやすいためであろう。実際、北嶋¹⁵⁾

による施肥窒素量の動向を調べたライシメータ試験の結果では（畑作地帯の土壤に準拠）、砂質土壤の方が粘土質土壤よりも窒素の流出率が高く、逆に土壤残存率は低い。例えば、砂質土壤に化成肥料を施用した場合、窒素の流出率は約62%に達し、粘土質土壤よりも10%以上高い。ところで、わが国の作物別化学肥料推定施肥量に関するデータ¹⁶⁾では、果樹（みかん）栽培に対する窒素施肥量は一般に多く（約25kgN/10a/年）、お茶のそれ（約50kgN/10a/年）に次ぐ。これは本研究地域でも同様で、聞き取り調査によると、当地域の果樹園への窒素施肥量は約10～15kgN/10a/年程度で、その量は少なくない。その上、窒素肥料として、緩効性の有機質肥料（油粕など）も使用しているため、実際上はもっと多い施肥量となろう。したがって、地下水中の高いNO₃-N濃度は、多量の施肥と、透水性がよく、保肥力に乏しい砂質土壤であることが関係しているものと結論できる。ちなみに、10a（1000m²）当たりの年間施肥量が窒素にして10kgとすると、この窒素の全量が倉敷市の年間降水量¹⁷⁾に近い1000mm程度の降水で均一に希釈・混合した場合、その濃度は10mg/lになる。実際には作物への吸収などがあるため、この値よりは低くなるものと予想されるが、化学肥料の溶脱が地下水のNO₃-N汚染を考える上で重要であることがわかる。

NO₃-N汚染に伴う水質変化にpHの低下があげられる¹⁸⁾。これは、前述の（1）および（2）式のように、化学肥料として施用されたNH₄⁺-N（硫酸、燐安など）が酸化されて、NO₃⁻と共にSO₄²⁻やPO₄³⁻を生成するからである。平田¹¹⁾によれば、汚染の進んだ井戸ではpHが6.0以下、あるいは井戸によってはpH5.0に近く、水質基準値（pH5.8～8.6）以下の場合も生じている。しかし、本研究地域における地下水では、pH値が全般的に弱酸性を示すものの、NO₃-N濃度との間には明瞭な関係は認められなかった。

なお、国包・真柄¹⁹⁾の試算結果では、わが国の地下水に対する全窒素負荷のうち、約59%は化学肥料、約37%は家畜排泄物によるもので、地下水のNO₃-N汚染の原因については化学肥料による影響が大きいといえよう。

（2）深層地下水におけるNO₃-N汚染

本研究地域においては、試料No.2のみが深層地下水である。一般に深層地下水は、1) Na⁺濃度が高く、一方Cl⁻濃度が低い、2) K⁺、Mg²⁺およびCa²⁺濃度が低い、などの特徴がある^{8, 9)}。これは、地下水と粘土鉱物との陽イオン交換反応によるもので、粘土鉱物中に吸着されていたNa⁺と地下水中のK⁺、Mg²⁺、Ca²⁺などの陽イオンが交換された結果であると解釈されている^{8, 20)}。試料No.2の地下水も特にCl⁻濃度に比較してNa⁺濃度が高いなど、この水質特性と合致している。この試料においても、地下水と粘土鉱物と間で陽イオン交換反応が起こったものとみてよい。

深井戸は浅井戸と異なり、帯水層上部に粘土層などの不透水層があるため、地表からの直接的な人為的汚染を受けにくい。しかし、深井戸においてもNO₃-Nによる汚染を生じている井戸は少なくない²¹⁾。本研究の深層地下水もNO₃-N濃度が18.9mg/lで、水質基準値（10mg/l）を大きく超えている。これは、当地域の深層地下水においてもNO₃-N汚染が進んでいることを示して

いる。しかし、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が本研究の地下水の中では最も高いにもかかわらず、 SO_4^{2-} 濃度は低い(12.7mg/l)。また、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度もそれほど高くない(0.11mg/l)。一般に、地下水中の主要陰イオンは Cl^- 、 NO_3^- および SO_4^{2-} であるが、これらの中では SO_4^{2-} が選択的に鉱物に吸着される傾向が強く、 Cl^- や NO_3^- は実質的に吸着されない²²⁾。また、地下水に含まれる量は少ないが、 PO_4^{3-} も鉱物へ吸着されることが報告されている²³⁾。したがって、化学肥料の影響が深層地下水に及んだ場合、地下水の流路付近に存在する粘土鉱物などへ SO_4^{2-} や PO_4^{3-} が吸着されることが起こるかもしれない。その結果、地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は高く、一方で SO_4^{2-} や $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度が低くなることも有り得るであろう。ただし、このような場合、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が地表から深層地下水まで直接的に浸透しにくいいため、地域的に不透水層が不連続であったり、不透水層の厚さが薄いなど、地表からの $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染の影響を受けやすいような水文地質環境を考えなければならないであろう。

今後、当地域の $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染の原因をより詳しく調査するためには、汚染源の特定に有効である窒素安定同位体存在比($^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$)²⁴⁾などの測定が必要である。

6. おわりに

倉敷市連島地域の地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染は果樹栽培などで施用された窒素肥料の影響によるものと考えられる。本研究地域を含めて、一般的に使用されている無機窒素肥料は主に $\text{NH}_4^+\text{-N}$ を主体とする速効性の肥料であり、既述のように、施肥後、土壤中で比較的早く $\text{NO}_3\text{-N}$ に変化する。また、 $\text{NO}_3\text{-N}$ (NO_3^-)は土壤に吸着されにくいので、降雨などの浸透水に含まれて容易に地下水に移行するものと思われる。このように、速効性肥料は溶脱を起こしやすく、しかも土壤への残存率が低いため、効果も持続せず追肥重視の過剰施肥になりやすい。その結果、環境への負荷も増大し、地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の上昇を招きやすくなる。したがって、地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染の進行に対しては、肥培管理技術の改良が必要である。これには、減肥、緩効性窒素肥料の使用、有機質肥料の使用、あるいは肥料施用法の工夫など²³⁾が含まれるであろう。本研究の連島地域でも緩効性の有機質肥料(油粕など)を併用するなど、施肥方法の改善が進んでいる。これからの農業生産においては、環境に負荷を与えない環境保全型農業への取り組みが必要であろう。

謝辞

本研究は、著者の1人である浅野理恵の卒業論文(倉敷芸術科学大学)の一部をまとめたものであり、地下水調査に際しては、当時4年次生の真壁淳子氏および器楽堂浩氏にご支援いただいた。また、JA倉敷南連島支所の三宅氏には連島地域で施用されている化学肥料の成分をご教示いただいた。ここに深く感謝いたします。

引用文献

- 1) British Geological Survey : The groundwater nitrate problem. BGS Hydrological Report, 86/2, 95p (1986).

- 2) 川西琢也, 川島博之, 尾崎保夫: 地下水の硝酸性窒素濃度の上昇と農業生産. 用水と排水, 33, 725-736 (1991).
- 3) 環境庁: 地下水質保全対策調査一硝酸性窒素地下水汚染基礎調査一. (1991).
- 4) 高屋敷将也, 国包章一, 眞柄泰基: 硝酸・亜硝酸窒素による地下水汚染とその要因. 第44回全国水道研究発表会講演集, 747-749 (1993).
- 5) 地下水を守る会: やさしい地下水の話, 北斗出版, 208p (1993).
- 6) 半谷高久, 小倉紀雄: 水質調査法 (第3版), 丸善, 335p (1995).
- 7) 日下 譲: 名水を科学する. 化学, 40, 159-164 (1985).
- 8) 日下 譲, 福井 要, 辻 治雄, 玉利祐三, 藤原儀直: 第三紀神戸層群地下水の水質一浅層地下水と深層地下水の比較一. 陸水学雑誌, 43, 254-262 (1985).
- 9) 後藤達夫: 地下水中のフッ素の化学的挙動について (1), 水, 37, 22-32 (1995).
- 10) 地下水問題研究会編: 地下水汚染論一その基礎と応用一. 共立出版, 340p (1991).
- 11) 平田健正編: 土壌・地下水汚染と対策. 日本環境測定分析協会, 304p (1996).
- 12) 廣畑昌章, 小笹康人, 杉崎達哉, 藤田一城, 杉田良三, 渡辺征紀: 熊本県U町の硝酸性窒素による地下水汚染機構. 地下水学会誌, 41, 291-306 (1999).
- 13) 平田健正: 硝酸性窒素による地下水汚染. 水環境学会誌, 19, 950-955 (1996).
- 14) 近藤洋正, 田瀬則雄, 平田健正: 沖縄県宮古島における地下水中の硝酸性窒素の窒素安定同位体比について. 地下水学会誌, 39, 1-15 (1997).
- 15) 北嶋敏和: 黒ボク土壌における「にんじん」の効率的施肥. 岐阜県農業総合研究センター研究報告, 4, 1-35 (1991).
- 16) 農林水産省肥料機械課: 肥料要覧. 農林統計協会 (1991).
- 17) 気象業務支援センター編: 理科年表 日本の気象 (CD-ROM), 丸善 (2002).
- 18) 松尾 宏, 笹尾敦子, 重江伸也, 永淵 修, 桜木健治: 茶園を集水域とするため池の酸性化現象について. 用水と廃水, 34, 120-125 (1992).
- 19) 国包章一, 眞柄泰基: 地下水の窒素汚染とその原因に関する基礎的考察. 衛生工学研究論文集, 20, 121-130 (1984).
- 20) Tamari, Y., Inoue, Y., Tsuji, H. and Kusaka, Y.: An analysis of chemical compositions of ground waters utilizing a leaching technique: An application to the Rokko mountains and their surroundings. Bull. Chem. Soc. Jpn., 55, 3760-3765 (1982).
- 21) 永井 茂: 地下水汚染の水文化学的アプローチ. 地下水学会誌, 33, 145-154 (1991).
- 22) 亀和田國彦: 畑地における土壌中陰イオン含量 (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) の垂直分布. 日本土壌肥科学雑誌, 65, 255-265 (1994).
- 23) 日本地下水学会編: 地下水水質の基礎, 理工図書, 189p (2000).
- 24) Kohl, D. H., Shearer, G. B. and Commoner, B.: Fertilizer nitrogen: contribution to nitrate in surface water in a corn belt watershed. Science, 174, 1331-1334 (1971).

Groundwater Pollution by Nitrate-Nitrogen at Tsurajima District in Kurashiki City, Okayama Prefecture

Mamoru SENO, Rie ASANO*

College of Liberal Arts and Science for International Studies

Kurashiki University of Science and the Arts,

2640 Nishinoura, Tsurajima-cho, Kurashiki-shi, Okayama 712-8505, Japan

**Omuron Ichinomiya Co., Ltd.,*

46 Nogoshi, Oku-cho, Ichinomiya-shi, Aichi 491-0201, Japan

(Received September 30, 2002)

The groundwater quality of Tsurajima district in Kurashiki City was investigated. As a result, groundwaters with high concentration of nitrate-nitrogen (NO_3^- -N) were found out.

In the groundwaters, there is an intimate relationship between the concentration of NO_3^- -N and SO_4^{2-} . Also, concentration of NO_3^- -N has a good correlation with PO_4^{3-} -P. In study area, chemical fertilizer such as $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$, $(\text{NH}_4)_3\text{PO}_4$ and NH_4NO_3 , have been spread for high yield in growing fruits. It follows that the concentration of NO_3^- -N in groundwater was originated by chemical fertilizer using as NH_4^+ -N. As the lands used for fruits field comprise mainly of sandy soils, rainfall is likely to penetrate fast into ground under aerobic condition. The component of NH_4^+ -N in chemical fertilizer, therefore, seems to easily oxidize to NO_3^- -N, resulting in high concentration of NO_3^- -N in groundwater. It was concluded that groundwater pollution by NO_3^- -N in Tsurajima district was greatly affected by infiltration of chemical fertilizer into ground.