

香川の水（第12報） 水道水源地下水の硝酸性窒素濃度の動向

小島 俊男・須崎千寿子・黒田 弘之

I 諸 言

昭和58年8月に環境庁¹⁾は、全国主要都市の地下水のテトラクロロエチレン等による汚染状況を明らかにし、その中で硝酸性および亜硝酸性窒素の検出状況もあわせて報告している。

一方、国包²⁾らは、地下水の窒素汚染について、水道水源の全国的な汚染状況を検討し、その原因について考察を加えている。その中で全国の硝酸性および亜硝酸性窒素濃度は、昭和45、50、55年度で経年的により高濃度の出現頻度が高くなっており、特に浅井戸で顕著に認められている。またその原因として化学肥料による窒素負荷の寄与率が大きいことを考察している。

香川県において、地下水を水道水源とするところは、地表水を水道水源とするところよりも硝酸性および亜硝酸性窒素濃度が全般的に高く、一部の水源では高濃度を示すところがある。また地下水源では、同一水源でも経年的にかなりの濃度変動がみられる。さらに地下水は一度汚染されると表流水とは異なり回復が困難であること、また通常の浄水処理では除去し難いことから硝酸性窒素濃度について、その動向を把握しておくことは重要であると考えられる。そこで、われわれは県下の水道地下水源について過去10数年間の硝酸性窒素濃度の長期的動向を調べ、さらに個々の水源の硝酸性窒素濃度変化と化学肥料が及ぼす地下水への窒素負荷の推移との関係を調べたので、その結果を報告する。

II 方 法

1. 調査方法

昭和45年度から59年度までの間に、水道法に定められた全項目検査を行うために当所に依頼された浅井戸水源51か所、深井戸水源14か所の水道原水について、その検査結果を解析した。ここで深井戸水源とは第1不透水層以下にまで達する井戸であって、本県では約30～50m以上の深さをもっている。

各年度の肥料量、降水量については香川県統計年鑑³⁾に記載されているデータを使用した。なお肥料入荷数量に

ついては、肥料年度（同年7月～翌年6月）として統計数値が出ているので、各水源の硝酸性窒素濃度および降水量は肥料年度にそろえてデータを取りまとめた。

窒素質肥料について、単肥の窒素含有量は、硫酸アンモニア21%、石灰窒素21%、尿素46%、硝酸アンモニア34%、塩酸アンモニア25%として計算した。複合肥料（化成、配合、固形肥料）の窒素含有量は、県農業改良課の資料に基づき計算した。これらの合計量をその肥料肥料年度の窒素量として算出した。

2. 検査方法

硝酸性窒素濃度等の測定は、水道法に基づく水質基準に関する省令により分析した。ただし、昭和53年の省令改正により、昭和53年度以前はブルシン・スルファニル酸法による硝酸性窒素濃度の測定であったものが、昭和54年度以降はカドミウム・銅カラム還元法による硝酸性および亜硝酸性窒素濃度の測定に変更されている。またアンモニア性窒素濃度の測定は、省令改正により、ネスラー法（定性）による測定から、インドフェノール法（定量）による測定に変更した。亜硝酸性窒素濃度の分析は「上水試験方法」に基づき、スルファニルアミド・ナフチルエチレンジアミン法により測定した。

III 結果および考察

1. 硝酸性窒素濃度の推移

香川県内の浅井戸を水道水源とする49か所について、過去15年間（昭和45肥料年度～59肥料年度）の硝酸性窒素濃度の動向を調べてみた。これらの水源は、過去15年間ほぼ毎年継続して依頼してきた所を選定した。各年度について硝酸性窒素濃度の平均値を求めた結果について図1に示す。ただし、アンモニア性窒素については49か所中の一部の浅井戸水源を除いて、0.1 mg/ℓ以下がほとんどであるので原因の解析には考慮しなかった。図1より、県下の浅井戸水源の硝酸性窒素濃度の平均値は、この15年間で1.5 mg/ℓから3 mg/ℓへとゆっくりとした上昇傾向を示していることがわかった。

ただし、昭和54年度から水質基準に関する省令改正に

より、試験法がブルシンスルファニル酸法からカドミウム・銅カラム還元法に改正され、さらに硝酸性窒素濃度の測定から硝酸性および亜硝酸性窒素濃度の含量を求める方法に変更された。しかしブルシン法とカドミウム・銅カラム還元法との相関性は高く、また県下の地下水源における亜硝酸性窒素濃度の検出は 0.01 mg/l 未満の微量で硝酸性窒素濃度に比較して極めて低濃度であった。それらの関係を任意の試料（水道地下水源の原水）について調べたので、その結果を図2、表1に示す。これらのことから、省令改正による硝酸性および亜硝酸性窒素濃度の測定は、水道水源地下水については硝酸性窒素濃度に等しいと考えてよく、またブルシン法からカドミウム・銅カラム還元法への分析方法の変更も硝酸性窒素濃度の解析に影響を与えないことがわかった。

一方、深井戸を水道水源とする14か所について過去13

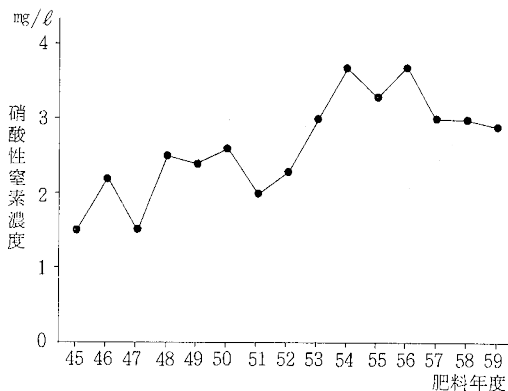


図1 浅井戸水源における硝酸性窒素濃度の経年変化

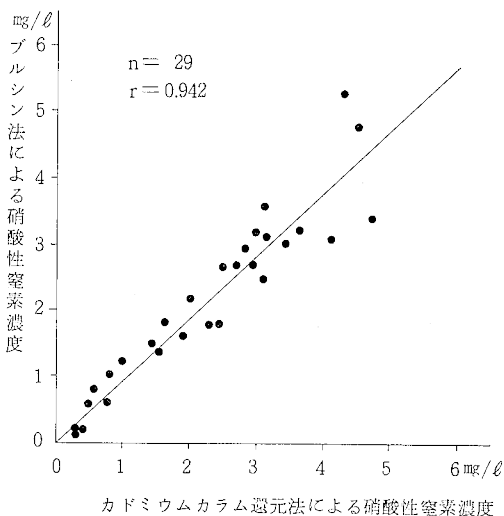


図2 カドミウム・銅カラム還元法とブルシンスルファニル酸法の関係

表1 地下水源における硝酸性窒素濃度と亜硝酸性窒素濃度の検出状況

水源別	試料数	硝酸性窒素濃度 検出範囲(mg/l)	亜硝酸性窒素濃度 検出範囲(mg/l)
浅井戸	39	0.15~10.2	0.01 未満
深井戸	5	0.19~2.18	0.01 未満

年間（昭和47肥料年度から59肥料年度）の硝酸性窒素濃度の動向を調べてみた。深井戸水源も浅井戸水源と同様に、過去13年間継続して依頼してきた箇所を選定した。各年度の平均値を図3に示す。ただし、深井戸は還元状態となり、硝酸性窒素が還元されることによってアンモニア性窒素がかなり高濃度で検出される所があるので、アンモニア性窒素濃度も含めた窒素濃度もあわせて図3に示した。ただし、昭和53年度以前は定性的な結果しか出しておらず、このため定性的目安となった最大濃度であるとして加算した。図3より、硝酸性窒素濃度の平均値は、0.1~0.6 mg/lと低濃度で、ほとんど経年的な変化を示していなかった。またアンモニア性窒素濃度も含めて考えた場合についても0.1~0.9 mg/lとほとんど変化はみられなかった。表1に示した様に深井戸水源においても亜硝酸性窒素濃度は0.01 mg/l未満の微量で硝酸性窒素濃度に対しては無視できる濃度であった。

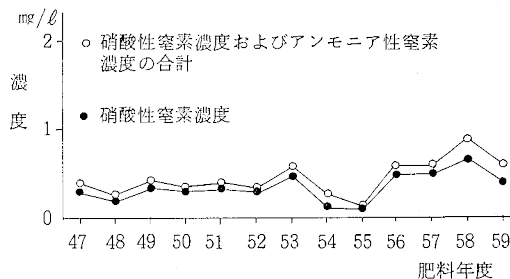


図3 深井戸水源における硝酸性窒素およびアンモニア性窒素濃度の経年変化

過去13ないし15年間の硝酸性窒素濃度の推移をみて、平均値で浅井戸水源は 1 mg/l から 3 mg/l へとゆっくりとした上昇傾向を示し、深井戸水源は 1 mg/l 以下でほとんど変化を示していない。このことは、浅井戸水源は何らかの経路で地下水が窒素汚染を受けており、一方の不透水層以下の深井戸水源は窒素汚染を受けにくいと考えられることができる。

2. 浅井戸水源の硝酸性窒素濃度の推移と窒素肥料による地下水への窒素負荷率との対応

国包ら³⁾は、土壌に対する窒素負荷を検討し、主要な要因として家庭排水、化学肥料、家畜排せつ物を取り上げこれらを原単位計算の手法で求めた結果、化学肥料が土

壤に対する窒素負荷量の約60%を占めることを示した。

香川県下において、施肥される化学肥料によって起こされる地下水に対する窒素負荷率は、1年間に消費された窒素肥料に含有される窒素量を1年間の降水量で除した値に比例すると考えられる。そこで県内の窒素肥料の入荷量(肥料年度)³⁾を調べ、この入荷量を消費量とし、³⁾その数量から窒素量を算出した。また各年の月別降水量を調べ、これを肥料年度に合わせて合計したものを年間降水量とした。

一方、水田と畑地では大きく違う点があり、水田についてはかんがい用水を考慮する必要がある。このかんがい用水は水稻栽培において普通1200mm⁴⁾とされる。また香川県の経営耕地面積の比率は、昭和45, 50, 55年で大きく変化しておらず、それらの平均値をとると水田面積が73%、畑と樹園地を合計した面積が27%を占めている。そこで1年間における県全体の地下水に対する窒素負荷率に対応する量を、 $N / \{ (R + 1200) \times 0.73 + R \times 0.27 \} = N / (R + 876)$ (単位: t/mm) とした。ここで、N(単位: t)を県下の1肥料年度において消費された窒素肥料量に含有されている窒素量とし、R(単位: mm)をその1肥料年度間の降水量とする。各肥料年度におけるこれらの計算結果を表2及び図4に示した。図4から、消費肥料の窒素量は、長期的には減少傾向にあることがみられた。これに対し、地下水に対する窒素負荷率に対応する $N / (R + 876)$ の値は、全体的にはほぼ横バイであるが、大きな変動を示す3つのピークI、II、IIIがみられる。これらの年はいずれも年間降水量が700~800mmの渇水年に相当し、地下水に対する負荷が大きく変化した時期とみなすことができる。

表2 入荷窒素肥料の窒素含有量と地下水に対する窒素負荷率の推移

肥料年度	窒素量(t)	$N / (R + 876)$ (t/mm)
43	7935	3.85
44	7978	4.13
45	7888	3.99
46	6599	2.99
47	6875	3.25
48	7459	4.45
49	5120	2.30
50	5543	2.54
51	5955	2.52
52	6542	3.25
53	7150	4.08
54	7145	3.46
55	4880	2.22
56	6449	4.01
57	6743	3.41
58	6302	3.32

そこで51か所の浅井戸水源について個々の浅井戸水源の硝酸性窒素濃度の変化と地下水に対する窒素負荷率の推移との対応を調べてみた。その結果3通りの対応の仕方をするものに分類することができた。1番目は、硝酸性窒素濃度の変化と窒素負荷の推移とが、きわめてよく一致する水源で、ピークI、II、IIIに対応する硝酸性窒素濃度のピークの出現があるもの(分類A)。2番目は、かなりよく一致する水源として、3つのうち2つまでがよく対応する水源(分類B)。3番目は、はっきりした対応がみられないもの、あるいはまったく対応のないもの(分類C)。ただし、硝酸性窒素濃度が1肥料年度遅れで3つないし2つの対応するピークがみられる水源があったが、パターンがよく一致する6か所については、分類A、Bの中に含めた。これは、採水時期によってこのようなズレが起こるものと考えられる。分類A、B、Cの各々について2、3の例を図5、6、7に示す。このようなA、B、Cに分類した場合の各々の水源数とその比率を表3に示した。表3より、浅井戸を水源とする51か所について、硝酸性窒素濃度の変化が、地下水に対する窒素負荷率の推移ときわめてよく一致する分類Aが15%、かなりよく対応する分類Bが22%、はっきりした対応がみられないか、まったく対応がみられない分類Cが63%であった。分類A、Bを合計すると37%がよい対

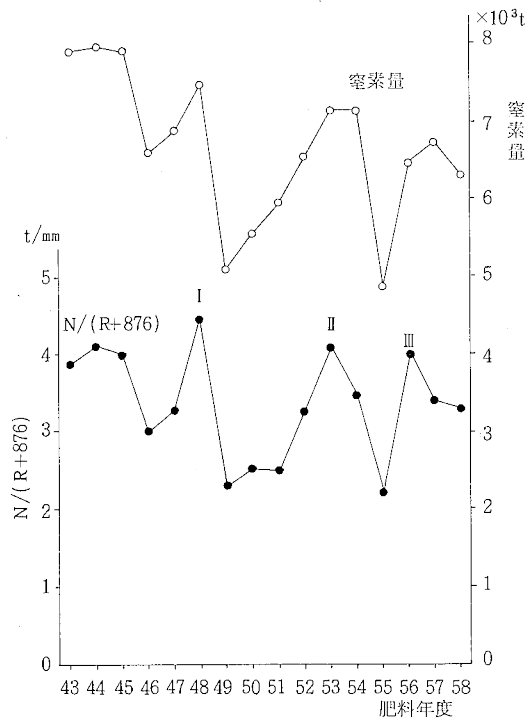


図4 施肥窒素量と地下水に対する窒素負荷率の経年変化

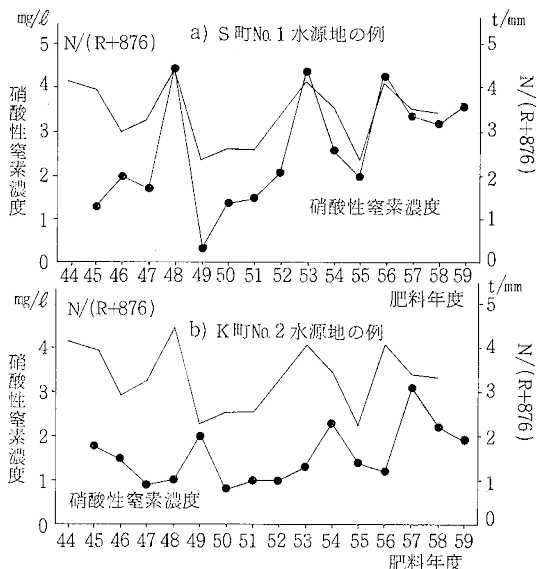


図5 地下水に対する窒素負荷率と硝酸性窒素濃度変化の対応関係 (分類A)

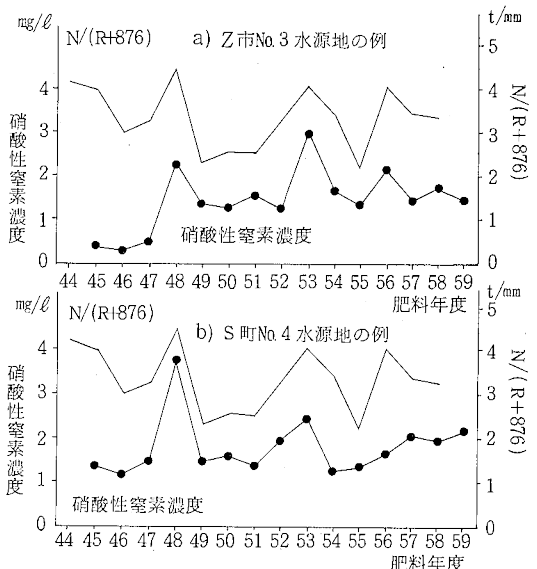


図6 地下水に対する窒素負荷率と硝酸性窒素濃度変化の対応関係 (分類B)

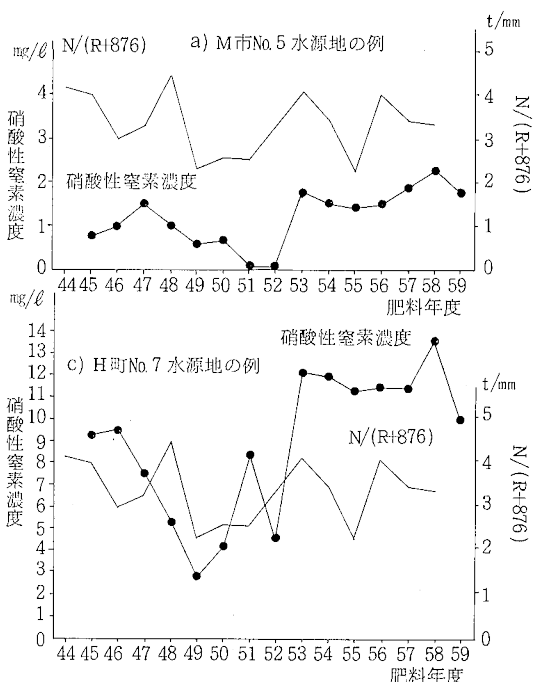


図7 地下水に対する窒素負荷率と硝酸性窒素濃度変化の対応関係 (分類C)

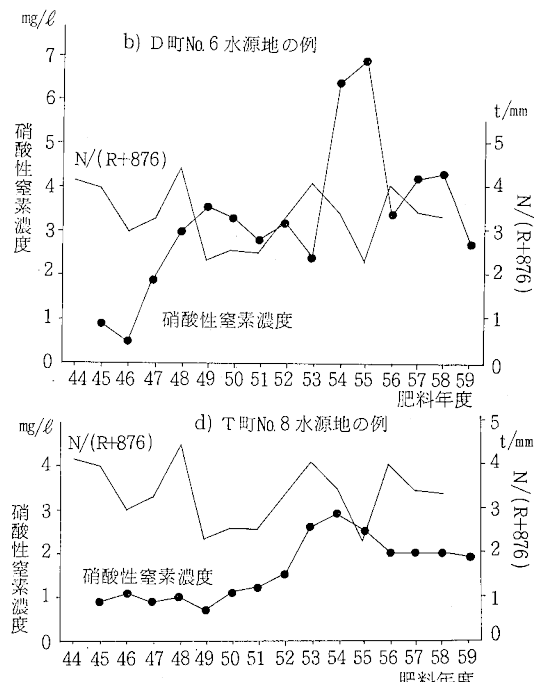


表3 地下水に対する窒素負荷率と硝酸性窒素濃度変化の関係の分類

分類	水源数 (箇所)	比率 (%)
A	8	15
B	11	22
C	32	63

(全水源数 51か所)

応を示した。

そこで水源の位置と土地利用等の関係について調べてみた。土地利用については、香川県統計年鑑の経営耕地面積を参考にした。この結果、分類A、Bに属する水源は、水田地帯にありしかもその上流あるいは上方に広く水田が広がっている所が多かった。一方分類Cは、市街

化地域に位置する水源(図7 a)参照)や、水田面積に対して樹園地面積の比率が高い西讃地方の水源(図7 b)参照)、および畑面積の比率が高い離島の浅井戸水源(図7 c)参照)、さらに林地に位置する水源(図7 d)参照)が多かった。この中で畑、樹園地面積の比率が高いところに位置する水源(図7 b) c)参照)は、硝酸性窒素濃度が高かった。これは、一般に水田では窒素肥料の施用量は一定しているが、畑や樹園地では、作物の種類によっては、水田の数倍の窒素肥料量が使われることに関係しているかもしれない。また図7 c)における離島S島の浅井戸水源(原水)は、硝酸性窒素濃度がきわめて高く、図7 c)に示された様に、地下水に対する窒素負荷率との対応はまったくなかった。これは島の耕地のほとんどが畑であり、地質的な基盤が花こう岩からできていることに関係していると考えられる。

ここで分類Aに属する8か所の水源について、硝酸性窒素濃度の平均値をとって、15年間の推移をみた結果を図8に示す。図8から、この平均値の変化パターンは当然のことながら地下水に対する窒素負荷率のパターンとよく対応するが、さらに硝酸性窒素濃度は経年的にゆっくりとした上昇傾向を示していることがわかる。このことは、浅井戸を水道水源とする地下水の硝酸性窒素濃度をゆっくりと上昇させる要因として、窒素肥料の寄与率が高いことを示唆している。

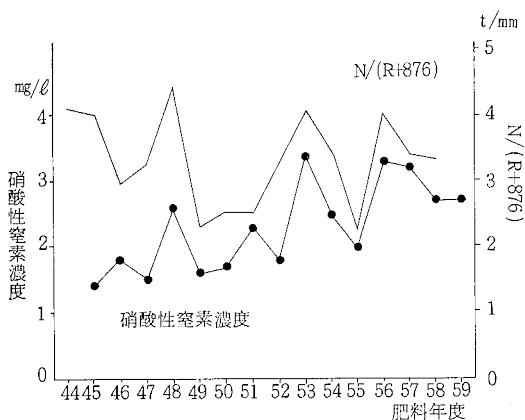


図8 分類Aにおける硝酸性窒素濃度の経年変化

3. 深井戸水源の硝酸性窒素濃度の推移と窒素肥料による地下水への窒素負荷率との対応

1. で述べた様に、深井戸水源の硝酸性窒素濃度の平均値はほとんど変化がみられないが、個々の水源について推移をみると3つのタイプがみられた。浅井戸水源と同様に、各々について例を図9に示しておく。1つは

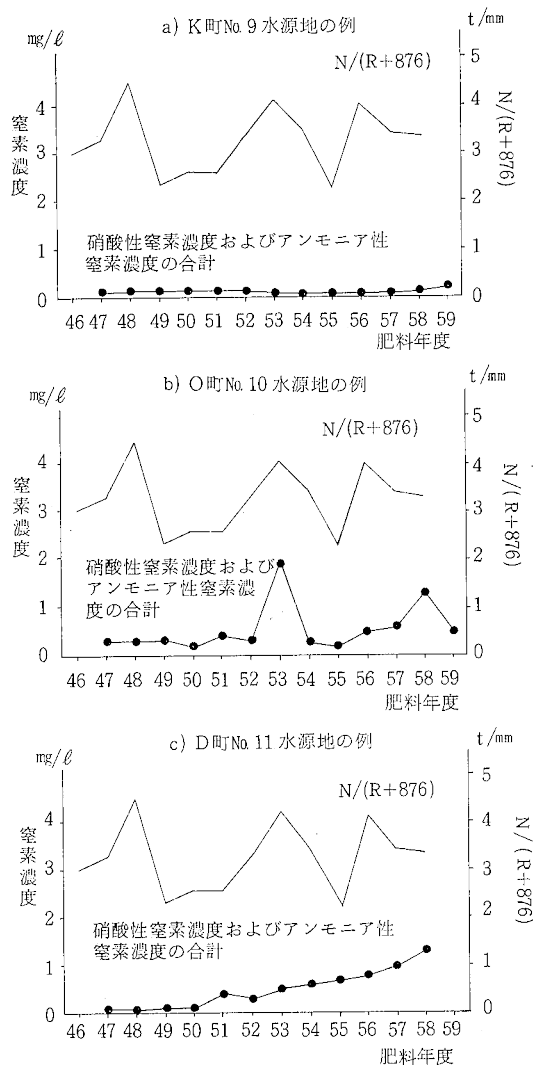


図9 地下水に対する窒素負荷率と窒素濃度変化の対応関係

図9 a)の様にまったく硝酸性窒素濃度の変化がない水源で一番多くみられる。もう1つは図9 b)の様に、硝酸性窒素濃度が急激に変化するピークが出現しながらも全体として大きな濃度変化を示さない水源がある。3つめは、図9 c)の様にアンモニア性窒素も含めた濃度が長期的に上昇傾向を示している水源である。深井戸を水源とする地下水の硝酸性窒素濃度もアンモニア性窒素濃度を含めて今後の動向を見守る必要がある。

IV 結 論

1. 浅井戸を水源とする49か所の地下水について昭和45年度から59年度(肥料年度)までの15年間の硝酸性窒

素濃度の推移をみたところ、それらの平均値は1mg/lから3mg/lへとゆっくりとした上昇傾向にあることが認められた。しかし、水道法の水質基準である10mg/lの値よりは大幅に下回っていた。

2. 県下で1年間に消費された窒素量を年間降雨量で除した値を地下水に対する窒素負荷率とみて、その経年的な推移と、51か所の浅井戸水源について個々の硝酸性窒素濃度の変化との対応をみてみた。この結果、両者のパターンがよく一致した水源は8か所15%、かなりよく対応する水源が11か所22%、一方ははっきりした対応がみられないか、まったく対応がみられない水源が63%あった。
3. これらの水源の位置と土地利用等の関係について調べたところ、両者のパターンがよく一致した水源は水田地帯にあり、しかもその上方に広く水田地帯が広がっている所が多かった。一方、両者のパターンが一致しない水源は、市街化地域に位置する所、水田面積に対して樹園地面積の比率が高い西讃地方の水源、畑面積の比率が高い離島の水源、および林地に位置する水源が多かった。
4. このことは、浅井戸を水道水源とする地下水が何らかの経路で窒素汚染を受けていることを示しており、水田地帯ではその要因として窒素肥料の寄与率が高いことが示唆された。しかし、このまま硝酸性窒素濃度の上昇傾向が続くかどうかについては、窒素化学肥料

の消費量の推移が減少傾向にあることから、今後の動向を見守らなければならない。

5. 深井戸を水源とする14か所の地下水については、昭和47年度から59年度までの13年間の硝酸性窒素濃度の推移をみたところ、それらの平均値は経年的に変化がみられず1mg/l以下の低濃度であった。深井戸は還元状態になることも考慮してアンモニア性窒素濃度も含めて推移をみたが、同様に経年的な変化はみられず、1mg/l以下の低濃度であった。このことから不透水層以下の深井戸については、香川県では窒素汚染を受けにくいことが示された。

以上、地下水に対する窒素負荷については、多くの仮定の基に算出したので、今後長期的に詳細な検討が必要であると考え。なお本研究をするにあたり、窒素肥料について御助言いただいた県農業改良課片山哲治係長に深謝いたします。

文 献

- 1) 環境庁水質保全局：昭和57年度地下水汚染実態調査結果(1983)。
- 2) 国包章一、真柄泰基：衛生工学研究論文集，20，121～130(1984)。
- 3) 香川県：香川県統計年鑑，昭和45年～昭和60年刊。
- 4) 石橋豊他編：かんがい，コロナ社(1970)。