

(6) 土地利用形態の変遷による 硝酸性窒素濃度の増大

横田久里子^{1*}・永淵 修²・大西克弥³

¹豊橋技術科学大学建設工学系 (〒441-8580愛知県豊橋市天伯町蛸雀ヶ丘1-1)

(旧 千葉科学大学危機管理学部 (〒288-0025千葉県銚子市潮見町3))

²滋賀県立大学環境科学部 (〒522-8533 滋賀県彦根市八坂町2500)

株式会社ミヤマ (〒305-0053長野県長野市丹波島1-1-12)

* E-mail: yokota@tutrp.tut.ac.jp

1999年に環境基準に硝酸性窒素および亜硝酸性窒素が加えられて以来、唯一基準を超過している利根川水系の高田川について、高濃度な硝酸性窒素の起源を明らかにするため高田川の環境基準点において2007年1月から12月の毎日2回の連続調査及び流域調査を行った。その結果、高田川の高濃度な硝酸性窒素は流域内の農業生産高と相関があり、1978年に国からキャベツの産地指定を受けてから河川中の硝酸性窒素濃度が劇的に増加していったことが明らかになった。また、窒素安定同位体比の結果から畜産あるいは畑地に散布される肥料成分によることが示唆された。

Key Words : *NO₃-N fertilizer, manure, cabbage, nitrogen stable isotope*

1. はじめに

わが国において硝酸性窒素および亜硝酸性窒素が環境基準の健康項目として定められたのは、1999年である。一方、水道水質基準では早くからその基準は取り入れられていた。そして、その基準は両者とも10 mg/Lである。しかし、その対象は水道水質基準が水道水であり、環境基準は環境水である。硝酸性窒素による地下水汚染は国の内外を問わず多く報告されているが、表流水の汚染はそれほど多くはない^{1,2)}。表流水の窒素による汚染としては、工場排水、生活排水あるいは畜産廃水の直接流入が考えられる。この場合、窒素の形態は主に有機態窒素やアンモニウム態窒素など、酸化の進んでない形態で現れることが多い。一方、地下に浸透した窒素が土壌細菌等により酸化され地下水層に到達し、その地下水が湧水や染み出し水として表流水の水質を形成することが考えられる。この場合の窒素の形態は硝酸性窒素である。千葉県の北総台地を流下する高田川はまさに後者の例である。さらに同台地から流出する忍川も環境基準点に制定されて以来、毎年基準を超過している。なお、我が国におい

て毎年環境基準を超過しているのはこの二河川以外にない。千葉県の農業産出額は約4,319億円(2003年)と北海道に次いで2位と上位に位置する。中でも野菜は1962年以降トップを走り続け、産出額は約1,711億円に登る。このような中で銚子市は千葉県北東部に位置し年間平均15℃と温暖な気候風土に恵まれ、首都圏から100 km圏内に位置する好条件から、指定産地にもなっており、千葉県農業産出額の11%を占める県内有数の産地を形成している。特に野菜、畜産が盛んでそれぞれの県内シェアは14%と17%である。キャベツは県内生産の約65%、ダイコンは36%、メロンは67%、カブが16%を占める。2002年度ではキャベツ畑だけで1,880 haも存在し、キャベツの収穫量だけで83,300 tに及ぶ。本研究の目的は銚子市の特産品であるキャベツの出荷量の変遷と高田川及び忍川の硝酸性窒素濃度の変遷について検討することである。すなわち高田川流域の土地利用形態の変遷と、高田川河川中の硝酸性窒素濃度の増大について、その関連性を明らかにするための調査を行った。

2. 方法

(1) 調査地概要

千葉県北東部に位置する北総台地地域は、広域な台地に低地部の小さな谷が樹枝状に無数に入り組んだ関東特有の谷津地帯と、その境界である斜面には雑木林が広がっている。地質は、比較的堅い泥である飯岡層、帯水層である下総層群（香取層）そして、関東ローム層からなり、浸透した雨水は粘土層の上から湧水として湧き出し、高田川や忍川を形成している。この地域は、首都圏の食料基地として、畑地農業及び畜産業が盛んであり、台地上部に広域に畑地が広がっており、畜産施設が散在している。また、谷津地帯は谷津田と呼ばれる水田地帯であるが休耕田に伴う荒地も多数存在している。

本研究の調査河川である高田川は、この台地を東西に緩やかに流れ、利根川に流入している。流域面積 2062 ha、延長約 2.5 km の小規模な 2 級河川であり、毎年 9 月～翌年 4 月の非灌漑期に白石貯水池へポンプにて送水し、水道原水として利用されている。土地利用の割合は、市街地 21 %、山林 33 %、畑地 37 %、水田 9 % と畑地が約 4 割を占めている。また、人口 4,000 人に対して、牛 3,952 頭、豚 7,643 頭、鶏 388,400 羽（2001 年銚子市データ）と畜産業も盛んな地域である。

(2) 定点調査

河川中の硝酸性窒素及び T-N の現状を把握するため、高田川白石取水場（図-1）に米国 HYDROLAB 社 DataSonde 多項目水質計を設置し、水温、電導度、pH、ORP、濁度、水深、硝酸イオン及びアンモニウムイオンを 10 分毎に自動測定し、データはテレメータにより回収した。また、自動採水器（ISCO）を設置し、1 日 2 回、1 時及び 13 時に採水した。試料は冷蔵して実験室に持ち帰り、pH、EC、T-N、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、TP、COD、SS の分析を行った。調査期間は 2007 年 1 月から 12 月までの 1 年間である。

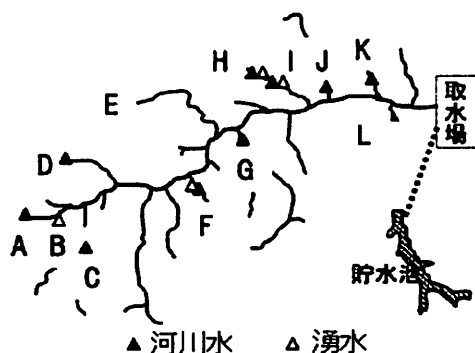


図-1 高田川流域及び調査地点

(3) 降雨時調査

2007 年 3 月 5 日～3 月 7 日、12 月 22 日～26 日の期間に降雨時調査として、1 時間に 1 回採水した。分析項目は定点調査と同じ項目である。

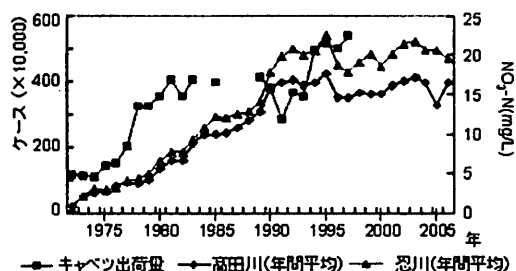
(4) 流域調査

2007 年 4 月 26 日、7 月 31 日、2008 年 3 月 11 日～12 日に、高田川流域調査として、図-1 に示す地点の河川水及び湧水を採水した。負荷量を算出するため、流量の測定も行った。試料は冷蔵して実験室に持ち帰り、分析項目は T-N、硝酸性窒素及び窒素の起源推定のため窒素安定同位体を測定した。

3. 結果・考察

(1) キャベツの出荷量の変遷と硝酸性窒素濃度の変化

図-2 にキャベツの出荷量³⁴⁾と高田川及び忍川の硝酸性窒素濃度⁵⁾の変遷を示す。1976 年に、キャベツの畝間に更にキャベツを作付けする「二番ざし」を導入後、出荷量が増加し、1978 年に冬キャベツの指定産地となり出荷量が激増した。現在、冬春栽培としては日本一の栽培面積を誇り、夏場を除くほぼ年間を通して生産している。河川中の硝酸性窒素濃度の年間平均値は、1972 年では 0.76 mg/L であったが、キャベツの出荷量の増加に伴い濃度は上昇し、1984 年には環境基準の 10 mg/L を超過し、1992 年には忍川で 20 mg/L、高田川では 16.8 mg/L と硝酸性窒素汚染が深刻となっており、一時水道原水と指定使用されていた忍川は、現在、取水が停止され



ている。

図-2 キャベツの出荷量と
高田川及び忍川の硝酸性窒素濃度の変遷

(2) 高田川の硝酸性窒素濃度

(a) 高田川の硝酸性窒素濃度の現況

2007 年における降水量と T-N 及び硝酸性窒素濃度の年間の変遷を図-3 に示す。年間平均値は T-N で 19.2 mg/L、硝酸性窒素で 17.5 mg/L であり、T-N に占める硝酸性窒素の割合は、約 9 割とほとんどが硝酸性窒素として存在していた。

2～3月には降雨初期に畑地土壌からの浸透流出により、T-Nの濃度が33 mg/L、硝酸性窒素濃度が30 mg/Lを超える値を示すこともあった。しかし、降雨が継続すると濁流が発生し、T-N濃度は上昇するものの硝酸性窒素

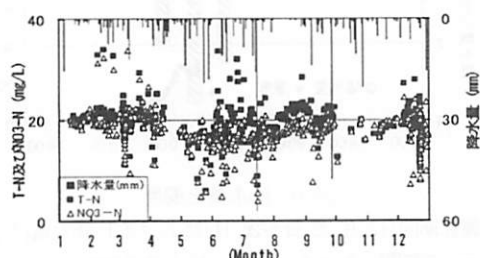


図-3 2007年における降水量とT-N及びNO₃-N濃度の年間の変遷

は希釈され、一時的に10 mg/Lを下回ることもあった。つまり、硝酸性窒素濃度は、降雨の影響を受けやすい事が分かった。そこで、降雨の影響を受けたと思われる期間を除いて、キャベツの作付けを行わない5～8月とそれ以外の期間の硝酸性窒素濃度を比較すると明らかに硝酸性窒素濃度が異なる事がわかった。すなわち、1月～4月までの硝酸性窒素の平均濃度は19.5 mg/L、5月から8月前半までは15.3 mg/L、8月～12月では17.5 mg/Lであった。

5月～8月の低濃度の原因を考察してみる。この時期、降水量の増加に伴い土壌中に蓄積された窒素化合物が環境中にすべて排出され、硝酸性窒素濃度が減少したと仮定すると、降雨後の濃度は低下したままで推移するはずである。しかし、降雨後、濃度はこの時期の平均値である約15 mg/Lに戻っている。さらに、7月14～15日の226 mm (134.5+92 mm)の降雨二日後にも平均値に戻っている。さらに、降水量及び流量と硝酸性窒素濃度には明瞭な相関が得られなかった。つまり、この時期の河川中の硝酸性窒素濃度が減少するのは、降雨によって一時的に希釈されるだけでなく、この時期の環境中の窒素化合物自体が減少しているのではないかと考えられる。

また、一般的に夏場は付着藻類などの生物活動が活発になるため、河川中の硝酸性窒素濃度は減少する傾向がある。2005年の3月から11月までの高田川の定点のpH変動を図-4に示すように、5月～8月と9月ではそれほど大きな差はない。つまり、夏季と秋季では付着藻類による生物活性に差がないことが示唆される。これらのことから、T-N及び硝酸性窒素ともに夏場に減少するに何か別の理由が考えられる。

この地域一帯はキャベツの指定産地を受けており、栽培に不適な夏季を除いて、表-1に示すようにほぼ一年を通して、キャベツの栽培を繰り返している。8月

から9月にかけて、秋取りキャベツの追肥と冬取りキャベツの元肥の時期が重なり、河川中の硝酸性窒素濃度の増加を促している事が示唆される。また、春取りキャベツは12月頃に元肥を入れて定植し、2月頃追肥する。この時期にも、河川中の硝酸性窒素濃度が上昇が見られる。これらのことにより、キャベツの作付け状況が河川中の硝酸性窒素濃度に影響を与える事が示唆された。

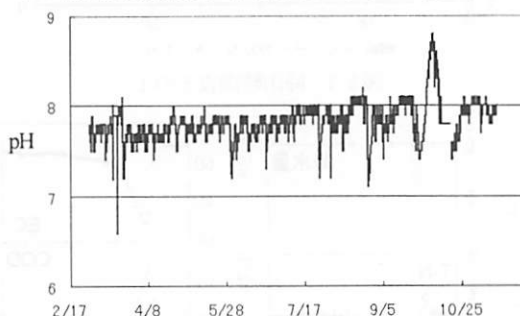


図-4 2005年における高田川のpH変動

表-1 キャベツの生産スケジュール

4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	1月	2月	3月
■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■
■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■	■

■施肥・耕作 ■種まき ■植付 ■収穫

また、夏季はこの地域は、休耕畑又はトウモロコシの栽培を行っている。トウモロコシは2月から3月頃に元肥を入れ、4月から6月にかけて追肥し、5月から7月にかけて収穫される。キャベツに比べてトウモロコシは養分吸収がよく、施肥窒素の利用率は31%と、冬キャベツの17% (千葉県：主要農作物等施肥基準) よりも高い値を示している。これらのことにより、河川中の硝酸性窒素濃度が他の時期と比較して低い値を示す事が示唆された。

b) 降雨時調査

図5-1に示すように、3月5～7日の総降水量は8.5 mmであった。この時期は、水門を堰き止め、白石貯水池へ注水している。降雨による濁流の発生が予想される時は降雨前から水門を開放し、取水を一次取りやめる。T-Nのピークはこの門の開閉操作によるものと推察される。0.5 mmの降水では硝酸性窒素濃度に変化は見られなかったが、22時に2.5 mm、23時に3.5 mm、24時には2 mmの降水があると硝酸性窒素の濃度は11.5 mg/Lにまで減少し、降雨により希釈される事がわかった。

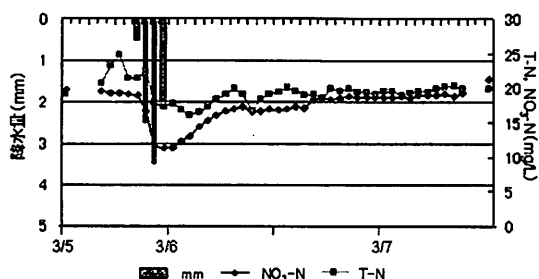


図 5-1 降雨時調査その 1

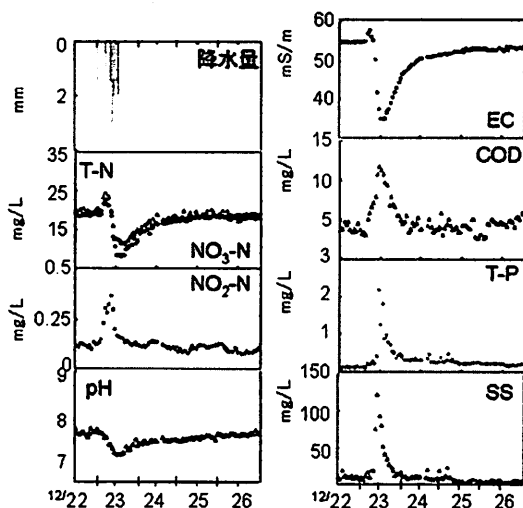


図 5-2 降雨時調査その 2

12 月 22 日から 26 日までの期間、降雨時調査として、1 時間に 1 回採水し、その分析結果を図 5-2 に示す。この期間の総降水量は 17.5 mm であった。T-N 及び硝酸性窒素濃度は、降雨前は共にほぼ変動は見られず (T-N 19.8 mg/L, 硝酸性窒素 18.9 mg/L), 降雨開始直後に T-N 及び硝酸性窒素の濃度が上がり始め、5 時間後をピーク (24.4 mg/L, 22.7 mg/L) として急激に減少し (11.7 mg/L, 8.4 mg/L), 降雨後、徐々に元の濃度まで上昇した。参考までに、降雨中の硝酸性窒素濃度は 0.4 mg/L であった。電気電導度も、硝酸性窒素濃度と同じような挙動をしており、高田川の総イオン量の支配は硝酸性窒素によるものと推察された。15~20 mm の日降水量は 2007 年で 16 日観測されており、いずれの降水も白石貯水池への導水期間である。また、今回観測された浸透流出が見られたのは降水 5 mm と少雨の期間である。2~5 mm の日降水量は 2007 年において 39 日観測され、白石貯水池への注水期間内での約 67 % であった。

T-N 濃度は、降雨直後の浸透流出時は硝酸性窒素に起因すると考えられる。しかし、降雨に伴い希釈されているときは、T-N に占める硝酸性窒素の割合は 64 % にま

で減少し、濁流に伴う SS 成分が増加している事がわかった。

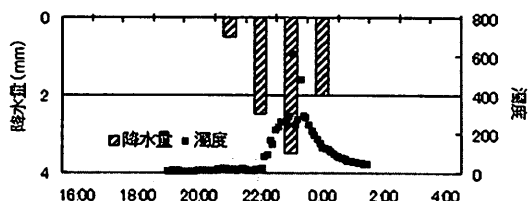


図-6 降水量と濁度

調査期間 (12 月 22 日~26 日) における日降水量は 2~20 mm の範囲であった。この日降水量の範囲は日数に換算して、高田川流域では年間日数の 59 % に相当し、頻繁に濁流が発生している可能性を示している。図-6 に降雨と濁度の関係を示す。降雨 2 mm でも濁度の値が上昇する事が分かる。すなわち 2 mm 以上の降雨で台地上部に広がる畑地の土壌等が直接河川へ流入しやすいことを示唆している。

高田川では取水した水は全国的に珍しい手法すなわち、ポンプアップにて白石貯水池へ導水している。したがって、濁流発生等導水に障害が発生すると予想される時は、手動にて導水を一次停止している。これらの結果は、降雨時に土壌等が簡単に環境中へ流出しないよう、畑地を適切に管理する必要性を示している。

c) 流域調査

高田川の硝酸性窒素汚染の起源を解明するため、流域調査を行った。地点 B は湧水のみ、地点 F と H は湧水と河川水、それ以外の地点は河川水について調査した。表-2 に各採水地点での硝酸性窒素濃度を示し、図-7 に地点 H の詳細な図を示す。

表-2 高田川流域の硝酸性窒素濃度及び窒素安定同位体比

	A	B(湧水)	C	D	E
NO ₃ -N(mg/L)	15.1	6.3	16.9	11.9~22.5	15.1~29.3
δ ¹⁵ N(‰)	13.9		11.3	11.3	13.9

	F	G	H	H(湧水)	I
NO ₃ -N(mg/L)	7.8~13.7	13.7	4.9	0.6	4.8
δ ¹⁵ N(‰)	14.7	11.1	11.8	6.6	11.8

	J(湧水)	K	L
NO ₃ -N(mg/L)	9.7	9.3	15.5
δ ¹⁵ N(‰)	7.3		16

河川水は上流域である地点 A で既に 15.1 mg/L と非常に高い値を示し、流入してくる支流では、流量は少ないものの、4.8~29.3 mg/L と非常に高い値を示した。支流に流入する台地斜面の粘土層の上から湧き出す湧水の中の硝酸性窒素濃度は、地点 H を除いて、4.4~7.8 mg/L と高い値を示した。また、流域外ではあるがこの地帯から

の湧水で 120 mg/L という極めて高い濃度が検出された地点があった。これらのことにより、高田川流域は、ポイント汚染源があるのではなく、流域全体が高濃度な硝酸性窒素に汚染されている事がわかった。

高田川流域は台地上部に広域に畑地が広がり、低地部は水田、台地斜面には雑木林が広がる典型的な谷津田地形である。図-7 に示すようにこの地点には住居は無く、畑地と雑木林そして畜産施設がある。地点Hの湧水中の硝酸性窒素濃度は 0.5mg/L であった。この値は、2007 年 4 月から 2008 年 3 月にかけて 6 回採水し分析しても、0.4~0.6mg/L と他の地点に比べて極めて低い値であった。この地点は、台地斜面だけでなく、台地上部にも雑木林が広がっており、この流域では珍しい地点である。対照地点として、地点Hに隣接する台地からの湧水Iについても同様の調査を行ったところ、硝酸性窒素濃度は 4.4~9.8mg/L という高い値であった。この地点は、台地斜面には雑木林が広がっているものの、台地直上には畑地が広がっていた。



図-7 地点H、Iに広がる谷津田地形

このように、高田川は流域に広大な畑地が広がっており、畜産施設も点在している。そのため、流域全体が高濃度な硝酸性窒素に汚染されており、支流だけでなく、源流部も汚染されていることがわかった。また、湧水調査を行ったところ、直上に雑木林が広がる地点の湧水にはほとんど硝酸性窒素は含まれないが、台地上部に畑地が存在する地点の湧水は高濃度な硝酸性窒素が検出され、土地利用により硝酸性窒素濃度は変化することが示唆された。

d) 窒素安定同位体比からみた硝酸性窒素の起源

高田川流域の高濃度な硝酸性窒素の起源を明らかにするために高田川本川および支川さらに流域内の土地利用形態別に土壌を採取し、これらの窒素同位体比を測定した。その結果を表-2及び図-8に示す。

通常、降雨は-8~2 ‰、化学肥料では-7.4~6.8 ‰、水田耕作土では 0.1~7.2 ‰、家畜糞尿では 10~20 ‰、

下水処理水では 11.3~17.4 ‰、有機肥料では 2.7~15.4 ‰を示すとされている^{7~12)}。まず、今回調査した高田川では 10~15 ‰と高い値を示した。この値は有機肥料、家畜糞尿及び下水処理水の値の範囲内である。この地域には下水処理施設は存在しないため、この結果から高田川の硝酸性窒素の起源は有機肥料又は家畜糞尿由来であることが示唆された。また、湧水中の値は、6.3~8.2 ‰と高田川本流と異なる値を示した。硝酸性窒素濃度が高くて低くてもほぼ同じ値を示したため、この流域の湧水中の硝酸性窒素は同じ起源であると推察され、値から化学肥料又は有機肥料由来であることを示唆している。このことから、台地からの湧水は畑地の影響を強く受けているものと考えられる。

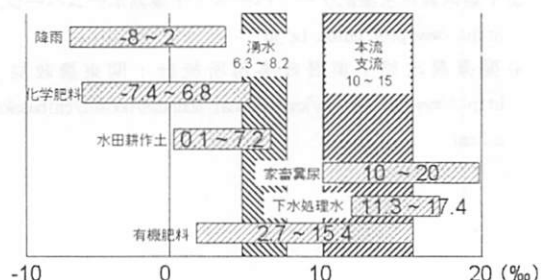


図-8 窒素安定同位体比の分類

このことは、高田川本流の硝酸性窒素汚染の起源と湧水の汚染起源は異なることが示唆され、今後詳細な調査研究が必須と考えられる。

5. まとめ

(1) 高田川の硝酸性窒素濃度は、流域内の農業生産高と相関があり、1978 年に国からキャベツの産地指定を受けてから河川中の硝酸性窒素濃度が劇的に増加していた事がわかった。

(2) 2007 年年間平均値は 17.5 mg/L であり、5 月から 8 月のキャベツを栽培しない夏季に減少するため、河川中の硝酸性窒素濃度は、キャベツの栽培、畑地への作付け状況と関係がある事が明らかとなった。

(3) 高田川流域の地下水や河川水は、家畜糞尿や有機肥料に由来する硝酸性窒素に汚染されていることが明らかとなった。ただし、台地上部の土地利用により、湧水中の硝酸性窒素の動態が異なる事が示唆された。

(4) 窒素安定同位体比を用いた解析により、高田川流域の硝酸性窒素汚染は、畜産糞尿由来又は、畑地への施肥によるものと示唆された。

謝辞

本研究は文部科学省科学研究費補助金（基盤C19510013）、平成19年度財団法人双葉電子記念財団自然科学研究助成金及び2005～2007年度銚子市研究助成を受けて遂行したものである。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 飯村兄，宇野健一，平間幸雄，山中隆之：高田川の硝酸性窒素および亜硝酸性窒素追跡調査，千葉県環境研究センター年報，第1号，200-205，2001。
- 2) 飯村兄，清水明，小林廣茂，平間幸雄，小倉久子：高田川の硝酸性窒素および亜硝酸性窒素汚染について，千葉県環境研究センター年報，第2号，186-187，2002。
- 3) 千葉県農林水産部データベース：千葉県ホームページ，<http://www.pref.chiba.lg.jp>
- 4) 関東農政局千葉農政事務所統計：関東農政局，<http://www.maff.go.jp/kanto/annai/address/nousei/chibasakura.html>
- 5) 環境省水・大気環境局：平成12年～19年度公共用水域水質測定結果，<http://www.env.go.jp/water/suiiki/h16/index.htm>
- 6) 千葉県公共用水域地点別水質測定結果データベース：千葉県ホームページ，<http://www.pref.chiba.lg.jp>
- 7) 環境省水環境部地下水・地盤環境質：硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引き，pp. 359，公害研究対策センター，2002。
- 8) 日本環境測定分析協会：土壌・地下水汚染と対策，pp. 305，丸善，1996。
- 9) 日本地下水学会地下水・土壌汚染小委員会：地下水・土壌汚染の基礎から応用，理工図書，2006。
- 10) 西尾道徳：農業と環境汚染，pp. 438，農山漁村文化協会，2005。
- 11) 永田俊，宮島利弘：流域環境評価と安定同位体，pp. 476，京都大学学術出版会，2008。
- 12) 井伊博行：地下水の硝酸性窒素汚染起源推定の新指標，地下水技術，Vol. 47，pp. 16-21，2005。

(2009. 5. 22 受付)

Increase of nitrate nitrogen concentration by transition of land use

Kuriko YOKOTA¹, Osamu NAGAFUCHI², Katuya Ohnishi³

¹Department of Architecture and Civil Engineering, Toyohashi University of Technology

²Department of Ecosystem Studies, School of Environmental Science, University of Shiga Prefecture

³Miyama Inc.

Takada river flows in the field in the east part of Chiba Prefecture in the second class river in the Tonegawa River water system, becomes the drinking raw water of Choshi City. However, the nitrate nitrogen of the River has not cleared environmental standards. The yearly mean value of the nitrate nitrogen in the regular observation point in 2007 was 17.5mg/L. In our country, the pollution by the nitrate nitrogen becomes a problem by the underground water in the tea field and the field basins. However, there are few rivers that become problems by the surface water pollution of nitrate nitrogen. In this study, to investigate the cause of high concentration nitrate nitrogen, the regular observation point was installed and we have been observed continuously water quality. Moreover, to estimate the origin, we have been measured the nitrogen stable isotope ratio in each observation point.