

奈良市周辺地域における硝酸性窒素による 地下水汚染に関する研究

Nitrate concentration of Groundwater in Nara basin

細野 義純*

Yoshizumi Hosono

I 研究目的

1980年代後半以降、日本の主として都市近郊の多くの地域で、硝酸性窒素による地下水汚染が確認されるようになってきた。

硝酸性窒素の問題がそれ以前には存在しなかったかという点、決してそうではない。例えば、東京都衛生研究所の三村秀一（1965）は、武蔵野の地下水について洪積台地と沖積低地に分けて考察を行った。これは洪積台地は関東ロームに被覆されており、浸透する雨水はローム層の影響を受けつつ地下水層に達するという過程に注目したのである。これは、当時から、地下水中における窒素化合物はアンモニア（ NH_4^+ ）、亜硝酸（ NO_2^- ）、硝酸（ NO_3^- ）の形態で存在し、地中の微生物の作用等により、 $\text{NH}_4^+ \rightarrow \text{NO}_2^- \rightarrow \text{NO}_3^-$ の方向に変化をすると考えられていた。当時、窒素化合物の起源は、地表における廃棄物や糞尿などで、CやPを伴って検出することが多く、衛生上の見地から定性的な方法の域は出なかったが、 NH_4^+ 、 NO_2^- 、 NO_3^- が検出されることを警戒した。たしか、当時の衛生上の飲料水の基準では、以上の3項目の窒素成分のうち、2項目を検出しないこととされていた。筆者も当時、武蔵野台地の地下水の研究に着手した時期であり、東京都土木研究所の青木 滋氏の厚意を受け、地下水の水質について三村秀一氏の教示を受けるべく、東京都衛生研究所へ検水を搬入し、同氏の判断を頂戴した。その結果は公表したが（細野；1968）、振り返ってそれをみると、ランダムに抽出した検水ではあったが、当時の武蔵野台地の浅井戸の汚染状態が読み取れる。すなわち、検水の数：49で、 NH_4^+ が検出されたもの10検体（20.4%）、 NO_2^- が検出されたもの22検体（44.9%）、 NO_3^- が検出されたもの29検体（59.2%）、となっている。当時の飲料水としての基準に不適格とされる3成分中2成分検出は、49検体中13検体（ NO_3^- と NO_2^- が9検体、 NO_3^- と NH_4^+ が3検体、 NO_2^- と NH_4^+ が1検体、となっている。ほかに、3成分とも検出されたもの5検体加わる。一方で、すべてに検出されなかったものが11検体存在する。以上は1968年当時の記録である。

その後しばらくの間、大きな問題の提起はなかったように記憶しているが、その背景には、比較的容易に、正確な結果が数字で示される適切な分析装置または分析方法が普及されず、前記のような定性的な判断（++，+，-）にとどまっていたことも関係したのではないかと考える。

1984年に当時地質調査所の永井 茂からの私信で、機器分析によって東京付近のある広い範囲での水質分析を扱った結果、ヘキサダイアグラムによって表現すると、無視できないほどに目立って、軒並み、硝酸イオンが検出されたという情報に驚かされた。

その後、行政による法制整備、基準の制定、試験方法に至るまでの体制が整備され、マニュアル化し、硝酸性窒素に関する認識はいつそう深まることとなった。

硝酸性窒素による汚染は、現在、実用的な除去技術システムが未開発であり、米国等外国においてはその浄化技術には生物科学的手法やイオン交換などによる特別な対応が考えられている。

現在、本邦における水道等の公共事業でこのような施設が運用されている例は皆無である。

環境基本法の規定に基づく地下水の水質汚濁に係る環境基準では硝酸性窒素は窒素量換算で10ppm（イオン濃度で表すと NO_3^- ；44.287mg/lに相当する。）が限度とされている。硝酸性窒素の多量の摂取は人体とくに乳幼児の血液に有害（メトヘモグロビン血症）とされている。現在、地域によっては、限度を超えているか、それに近い例が多く認められ、憂慮される事態となっている。このことは一般には良く伝えられていない。

硝酸性窒素の汚染原因は、人蔘等根菜類の野菜および茶畑等における過剰施肥または牧畜等における牛・豚等の家畜排泄物によるものが主因とされているが、実態は未解明な部分が多い。

奈良市周辺での事例は発表された例が見当たらず、現在のところ実態は不明である。今後の汚染の発生と、その広域化・深層化に備え、速やかに現在の実態を知ることが研究の目的である。

Ⅱ 研究経過

奈良市の地形は東部（春日山）と北部（平城山）に分水界を有し、これらの山地から盆地に流れ出る少量の表流水は流下途中から地下に浸透して浅い地下水に転化し、さらに浅い地下水は奈良盆地中南部の深井戸を涵養するといった連続的な水涵養機構にあるものと予想される。このような地域の水文地質構造は他地域から流入の無い一つの独立した地下水域を示すもので、地域にもたらされる物質の挙動、汚染の実態を研究するフィールドとしては最適なものと考えられる。

本研究では、このような条件を踏まえ、水系を意識して、①春日山・平城山等の山地および丘陵の縁辺部。②奈良市市街地の一部で、山地および丘陵に接する河谷底・沖積層中の地下水で、流動系からは涵養域とみなし得る上流の浅層地下水地域。③大和郡山市の位置する盆地底部のように、流動系からは流出域とみなし得る下流域の地下水。について総数106ヶ所から採

水を行った。

分析は本学に供用されている島津製作所製分光光度計UV-1200型と付属する水質測定プログラムパックにより、マニュアルどおりに進行させた。測定原理は「還元+GR変法」とあるが、それ以上の記載はない。試薬も「No. 19」と指定された専用のものを用いる。指定どおりに進行させると検水は無色から淡赤ないし赤色に発色する。これを指定の石英セルに移し、分光光度計の光路に自動的に収まって、結果が測定範囲内ならばディスプレイに数値が表示される。というもので、たいへん便利な機器であるが、過程はまったく判らない。

現在、硝酸イオンの測定に関しては、日本工業規格 JIS-K0101 と JIS-K0102 にそれぞれ規定されているが（JISに関しては平成12年度研究助成概要報告参照「本書 p.180～181）、それによると、K0101-37.2.1, K0102-43.2.1, に還元蒸留-インドフェノール青吸光光度法、K0101-37.2.2, K0102-43.2.2, に還元蒸留-中和滴定法、K0101-37.2.3, K0102-43.2.3, に銅・カドミウムカラム還元-ナフチルエチレンジアミン吸光光度法、K0101-37.2.4, K0102-43.2.4, にブルシン吸光光度法、K0101-37.2.5, K0102-43.2.5, にイオンクロマトグラフ法が採用されている。本研究で用いたところの分光光度計と付属プログラムに盛り込まれた内容は、上記のJISに示されたいずれの方法にも合致しない。そこで、これまでに実施したことのある諸方法を精査したところ、現象的に赤色に発色するものは、JIS-K0101-1966に採用されている酢酸アニリン法に類似している。当時は硝酸イオンの分析には、ほかにブルシン法が採用されているのみであるから、当時では重要な位置を示していたものとみることができる。

現在、環境基本法第16条の規定に基づいて、地下水の水質汚濁に係る環境基準（平成9年環境庁告示第10号）別表。水質汚濁に係る環境基準について（昭和46年環境庁告示第59号）別表1。人の健康の保護に関する環境基準。のそれぞれには、硝酸性窒素の基準値（前出のとおり10mg）とともに測定方法についても示されている。ここでは、前記のJIS-K0102-43.2.1, 43.2.3, または43.2.5に定める方法。と明記されている。

従って環境基準を論ずるような場では、残念ながら本研究のデータは参考データに過ぎないものである。

社会上の位置づけはそこまでとして、本研究によって得られた分析結果を地域別(奈良市および大和郡山市)、地形区分別(沖積低地、扇状地、下位段丘面、中位段丘面、上位段丘面、丘陵地等)に分け、硝酸イオンの濃度分布を階級化したものを表1に整理した。

個々の分析結果の詳細は採水地点も含め、別掲論文（奈良大学総合研究所所報第11号、p.27～40）中に、図1（採水地点）および表1（分析結果）として掲示した。

この結果から、1ヶ所を除き、すべての井戸から硝酸イオンの検出が確認された。その分布は一様性を欠くが、最高は73.88mg/lと驚異的な値を示しており、新たなショックを受けた。

硝酸性窒素の汚染は自然が豊かに残されていると考えられている奈良市にまで及んでおり、このことは従来のように限られた汚染機構の考え方のみからは説明出来ないものもあるのではないかと考える。

分析結果の詳細については、プライバシー等の問題もあるが、今後のために、可能な限り総

合研究所に残しておきたい。

Ⅲ 今後の課題

結果は意外なことであった。研究に入る前は、過剰施肥や家畜の排泄物といった過去に報告された事例の内容に影響を受け、奈良のような自然豊かな地域といった認識のもと、局部的には多少の硝酸イオンが検出される井戸もあるのではないかといた程度に予想はしていたが、その根拠は、前述のように奈良市周辺は水系的には最上流部であって、どこからも汚染された水質の水が流入される可能性はないと考えたからである。

しかしながら、研究の結果はそのようなものではなく、すでに地域全体にわたって汚染は広域化している。その原因を簡単に特定することは、すでに不可能といった状況にある。今後のために考えられる課題のいくつかを書きとどめておきたい。

①汚染の原因はなんであるかということ。このことに関しては過剰施肥、家畜排泄物を代表的なものとして例示したが、肥料起源の汚染が疑われる地域としては、奈良市南部～大和郡山市東部の農業地帯をあげておきたい。この問題に関して決定的な結論を得るためには、現在の技術では質量分析計による窒素の同位体分析が有効であるとされている。残念ながら本学には現在のところそのような設備の用意はない。

②奈良市北部・東部にみられる硝酸性窒素の混入については、別の原因を考えねばならない。そこで、自然の降雨によるものが考えられないかといった問題がある。この場合も決定的な結論は同位体分析による窒素安定同位体比による検討が求められる。

③廃棄された浄化槽が残存し、汚染源となっていないかという問題。

④家庭排水またはその漏洩水を起源とするアンモニア性窒素が好気的条件下でバクテリア(硝化菌)の作用によって硝酸性窒素まで変化することについての生物科学的検討。

⑤すでにある水質相互間の作用によって硝酸性窒素が生じないかといった化学反応系についての再検討。などがある。

Ⅳ 参考文献

- 三村秀一 (1965) ; 地下水中の硝酸性窒素、水道協会誌、34、5
細野義純 (1968) ; 武蔵野台地における地表水および地下水の測水資料、消防研究所技術資料 第1号
細野義純 (2003) ; 奈良盆地北部における浅層地下水の賦存特性について、奈良大学総合研究所所報、第11号、p.27~40

