

[原著]

熊本市小河川（井芹川）における硝酸性窒素濃度と その汚染要因

永 野 恵¹⁾, 小 笹 康 人²⁾, 藤 本 貴 大²⁾, 立 切 彩¹⁾*,
石 田 令 奈¹⁾, 永 松 佑 規¹⁾, 龍 久美子¹⁾, 鳥羽瀬 成 美¹⁾*,
平 川 優 太¹⁾*, 岩 根 正 樹¹⁾*, 福 本 航 平¹⁾*,
石 井 萌 美¹⁾*, 小 田 理 恵¹⁾*, 原 田 美 里¹⁾*,
村 山 ゆりか¹⁾*, 中 村 なつき¹⁾*, 原 史 恵¹⁾*,
木 佐 悠¹⁾*, 新 田 美 樹¹⁾*, 水 谷 友 香¹⁾*,
牟 田 侑 加¹⁾*

Nitrate-nitrogen and Related Sources of Pollution in a Small River (Iseri-gawa)
in Kumamoto-City

Megumi NAGANO, Yasuto OZASA, Takahiro FUJIMOTO, Aya TACHIKIRI, Rena ISHIDA,
Yuki NAGAMATSU, Kumiko RYU, Narumi TOBASE, Yuta HIRAKAWA, Masaki IWANE,
Kouhei FUKUMOTO, Moemi ISHII, Rie ODA, Misato, HARADA, Yurika MURAYAMA,
Natsuki NAKAMURA, Fumie HARA, Haruka KISA, Miki NITTA, Yuka MIZUTANI,
Yuka MUTA

1) 熊本保健科学大学保健科学部医学検査学科

2) 熊本県保健環境科学研究所

* 既卒生

(抄録)

2010～2013年に、熊本市北西部を流れる井芹川の硝酸性窒素濃度等の汚染状況とその要因を明らかにする目的で、源流から坪井川合流地点までの9地点で採水を行った。硝酸性窒素と主要イオン等の測定を行うことにより、各採水地点の水質を明らかにし、土地利用形態や住民の生活環境との関係を考察した。その結果、上流の鎧田橋で、現在測定値が報告されている県内の河川で最も高い硝酸性窒素濃度として9.6 mg/lが観察された。原因として、施設園芸に使用される窒素肥料の土壌からの溶脱に加え、採水地点における地下からの自噴水の影響が考えられた。また源流のある集落では公共下水道が普及しておらず、生活排水の河川への流入により溶存化学成分の多い水質を示した。硝酸性窒素濃度は河川の流下とともに低下し、井芹川下流域の硝酸性窒素濃度は、合流先の坪井川よりも低い値となった。4年間で硝酸性窒素の経年変化はみられなかった。水質の継続的観察と流域の汚染要因に関する現地調査により、それぞれの採水地点に特徴的な汚染要因が明らかとなった。井芹川の硝酸性窒素濃度等の継続的モニタリングは、今後の硝酸性窒素削減に向けた対策の効果の評価に役立つ。

キーワード：硝酸性窒素，施肥，生活排水，硝酸性窒素削減計画，井芹川

I. はじめに

硝酸性窒素（以下、 $\text{NO}_3\text{-N}$ とする）は、有機・無機のアンモニア性窒素（ $\text{NH}_4\text{-N}$ ）が土壌の硝化菌や化学的な酸化により亜硝酸性窒素（ $\text{NO}_2\text{-N}$ ）を経て生成される最終酸化物で、土壌や水、植物など自然界のあらゆるところに存在する。近年、日本全国で地下水や河川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染が問題になっている。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の主な汚染源は、肥料、動物のふん尿、生活排水などである。これまで、高濃度の $\text{NO}_3\text{-N}$ を含む水の飲用により、乳児にメトヘモグロビン血症を起こすことが知られており、世界では死亡例も含め多くの症例が報告されている¹⁾。わが国では、1999年に $\text{NO}_3\text{-N}$ （37.8 mg/l）を含む井戸水を新生児の調乳に用い、高度のチアノーゼを呈した中毒事例が1例報告されている²⁾。わが国の水道水の水質基準および河川水などの公共用水の環境基準はいずれも、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 及び $\text{NO}_2\text{-N}$ の合計で10 mg/l以下と規定されている。

熊本県でも地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染が顕在化して久しい³⁾。上水道水源井の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は1980年代に急激に上昇傾向を示し始めたことが報告されている³⁾。熊本県は地下水が豊富で、特に熊本地域と呼ばれる熊本市とその周辺地域では飲料水の100%を地下水で賄っている。このような背景から熊本県では他県に先駆け1989年から県内全域で地下水の水質調査を行い、経年的な定点監視調査により汚染状況を明らかにしてきた。それによると、汚染井戸は県内の生活・経済圏に広く分布している。特に植木台地を含む熊本市北部を含めたいくつかの地域に $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の高い井戸が集中していることが報告されている⁴⁻⁶⁾。この中には中毒を起こしうるレベルの井戸も存在する⁴⁾。

一方、熊本県では河川水を上水道に供する地域は少なく、地下水に比べ河川水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染に関する注目度は必ずしも高くない。井芹川は、熊本市の北西部を流れ坪井川に合流する小河川である。流域の土地利用形態や人々の生活環境が短い流程で変化し、その影響が河川の水質に大きく反映される。しかしこれまで井芹川の水質の観察点や測定項目は限られており、 $\text{NO}_3\text{-N}$ や他の溶存化学成分を含めた水質を全流域で経年的に観察したデータは乏しい。このような河川の $\text{NO}_3\text{-N}$ を経年的にモニタリングし、流域の汚染の実態と汚染要因を明らかにするこ

とは、今後 $\text{NO}_3\text{-N}$ 削減に向けた種々の対策の効果を評価する上で、貴重な情報を提供することに繋がる。このような観点から2010～2013年までに井芹川の全流域を対象に水質調査を行い、その汚染要因の検討を行ったので報告する。

II. 方 法

1. 調査河川の概要

井芹川は熊本市北部の植木町辺田野に源を発する鑑田川に、同じく三ノ岳山麓の木留付近に源を発する木留川が合流し、植木台地南側の斜面を西に流下する。植木駅近くで井芹川と名前を変え、鑑田付近から南下する。その後、高橋町付近で、熊本市街地を南下してきた坪井川に合流し、有明海へと注ぐ全長約17 kmの坪井川系二級河川である。

木留川の源流は金峰山に連なる三ノ岳（標高642 m）の斜面で、辺りはみかんの露地栽培が行われている。一方、鑑田川の上流域は植木台地一帯に広がる県内有数の施設園芸（すいか、メロン）がさかんな地域である。中流域になるにつれ、ビニールハウスが点在するが水田の割合が増える。さらに上熊本付近からの下流域では市街地・住宅地を抜ける。鑑田橋より下流の中流域ではいくつもの堰が設けられ、流域の水田の灌漑用水として使用されている。そのため、中流域では5月中旬から10月初めにかけて川が堰止められ、流量は人為的に調整される。流下途中に、西谷川、西浦川、成道寺川、前川、麴川、平川等の小河川が流入する。

2. 調査方法

1) 採水地点と採水方法

採水地点を図1に示す。井芹川系で9地点（①～⑨）、途中井芹川に注ぐ西谷川の1地点（A）、および井芹川との合流前と合流後の坪井川の2地点（B、C）、計12地点で採水を行った。本稿では、便宜上、採水地点の木留源流から鑑田集落東まで（①～④）を井芹川上流、西谷川合流前から熊本保健科学大学（以下熊本大と略す）まで（⑤～⑦）を井芹川中流、⑧永運橋、⑨池上橋を井芹川下流とする。

調査は、日間変動を考慮し、また季節変動の影響を除くために、2010～2013年の4月中旬から5月初旬に年に3回実施した。採水は原則として採水日前の3日間降雨のなかった日を選んだ。採水は紐をつ

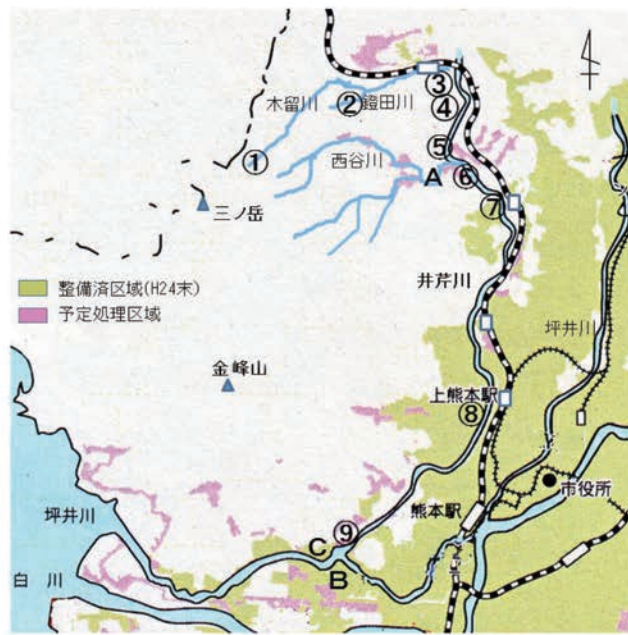


図1 井芹川採水地点および下水道整備状況

出典：熊本市上下水道局のホームページ⁷⁾の図を一部改変

採水地点	北緯	東経
①木留源流 (木留川)	32° 52' 8"	130° 39' 2"
②辺田野 (鑑田川)	32° 52' 24"	130° 40' 3"
③鑑田橋 (鑑田川)	32° 52' 48"	130° 41' 1"
④鑑田集落東 (井芹川)	32° 52' 38"	130° 41' 22"
⑤西谷川合流前 (井芹川)	32° 51' 42"	130° 41' 24"
⑥庄屋口橋 (井芹川)	32° 51' 41"	130° 41' 26"
⑦熊本保健科学大学	32° 51' 16"	130° 41' 55"
⑧永運橋 (井芹川)	32° 48' 51"	130° 41' 45"
⑨池上橋 (井芹川)	32° 47' 14"	130° 39' 39"
A西谷川 (西谷川)	32° 51' 41"	130° 41' 23"
B井芹川合流前 (坪井川)	32° 47' 11"	130° 39' 41"
C高橋稲荷大橋 (坪井川)	32° 47' 6"	130° 39' 28"

けた2 lのポリ容器を用い、川の流心で採取した。採取水は、100mlのポリ容器2～3本に空気が入らないように入れて蓋をし、氷冷下で実験室に持ち帰り試料水とした。

2) 測定方法

試料搬入当日あるいは翌日に、簡易吸光光度法 (Merck NOVA60) により $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度および $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の測定を行った。年に3回の採水日のうち1回の試料の一部を、採水当日に熊本県保健環境科学研究所に搬入し、直ちに pH、電気伝導率 (EC) を電極法で測定し、 HCO_3^- は中和滴定法で測定した。その後、 $0.45 \mu\text{m}$ のメンブレンフィルターでろ過した試料をイオンクロマトグラフ法 (DIONEX ICS-2100) による主要イオンの測定に供した。測定イオンは、 Na^+ 、 NH_4^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、 NO_2^- 、 Br^- 、 NO_3^- 、 PO_4^{3-} 、 SO_4^{2-} である。 $\text{NO}_3\text{-N}$ および $\text{NO}_2\text{-N}$ の濃度はそれぞれ NO_3^- 、 NO_2^- の濃度より算出した。

なお、簡易吸光光度法と公定法であるイオンクロマトグラフ法で得られた値の相関 ($n=48$) は、硝酸イオンで $r=0.990$ 、亜硝酸イオンで $r=0.997$ でいずれも有意 ($p=0.000$) であった。しかし、両測定法によって得られた値を用いて対応のある t 検定を行ったところ、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の測定では平均値に有意差

($p=0.000$) が見られた。よって $\text{NO}_2\text{-N}$ の測定値は全てイオンクロマトグラフ法で得られた値を示す。

3) 聞き取り調査

井芹川の $\text{NO}_3\text{-N}$ の汚染要因とその対策を考察する目的で、流域の下水道敷設状況、浄化槽設置状況、土壌分析の概況、肥料の種類や施肥基準、施肥状況、家畜ふん尿の堆肥化の現状等に関して関係機関・組織を訪問し、あるいは電話やメールにより情報の提供を受けた。また、各耕種農家の方への直接聞き取りを行った。

Ⅲ. 結 果

1. $\text{NO}_3\text{-N}$ および $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の時空分布

表1に簡易吸光光度法による $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の4年間の測定結果を示す。①木留源流では、全測定値の平均は 2.3 mg/l 、鑑田川源流から約650 m下流の②辺田野では 4.2 mg/l であった。両河川合流後の③鑑田橋で 8.7 mg/l (最小値 - 最大値: $8.0\text{-}9.6 \text{ mg/l}$) と全流域で最も高値を示した。その後 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は流下とともに低下し、坪井川合流前の⑧池上橋では 3.2 mg/l で、坪井川本流 (A 井芹川合流前 5.9 mg/l) より低値となった。中流域の⑤西谷川合流前の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の平均値は 7.4 mg/l であったが、A 西

表1 硝酸性窒素 (NO₃-N) 濃度の時空分布 (2010~2013年)

採水地点	2010			2011			2012			2013			mg/l 平均値
	4/24	4/26	5/8	4/18	4/25	5/9	4/17	4/25	5/8	4/15	4/22	5/20	
①木留源流	3.4	2.7	2.5	-	3.2	2.8	1.9	2.1	2.5	1.8	1.9	2.5	2.3
②辺田野	2.9	3.7	3.2	4.7	6.1	3.2	4.5	3.4	5.1	3.0	4.9	5.1	4.2
③鎧田橋	-	8.9	8.2	8.0	8.2	8.5	9.6	9.0	8.3	8.8	8.9	9.1	8.7
④鎧田集落東	7.9	8.1	8.0	9.0	8.2	8.4	8.6	8.5	8.3	8.0	7.6	8.3	8.2
⑤西谷川合流前	7.0	7.0	8.8	7.4	7.3	7.4	7.4	7.9	7.8	7.3	6.4	6.6	7.4
⑥庄屋口橋	-	5.4	6.0	7.4	7.2	7.4	6.4	7.0	6.7	6.8	6.6	6.0	6.6
⑦熊本保健科学大学	4.7	5.5	6.3	6.2	6.1	6.7	6.3	6.3	6.4	6.4	5.2	5.1	5.9
⑧永運橋	3.0	3.1	3.8	3.7	3.3	3.5	3.5	3.6	3.9	4.0	3.5	3.5	3.5
⑨池上橋	3.0	3.0	3.4	2.7	3.3	4.8	2.9	3.3	3.7	3.1	2.9	2.8	3.2
A 西谷川	2.9	3.1	4.1	3.3	3.1	3.2	3.2	4.0	3.6	4.1	3.2	3.2	3.4
B 井芹川合流前	5.1	5.6	6.6	6.5	6.2	6.7	-	7.4	4.3	6.1	5.5	4.4	5.9
C 高橋稲荷大橋	5.2	3.5	5.9	4.9	5.0	5.9	5.1	6.4	4.4	5.3	6.5	4.2	5.2

測定は簡易吸光光度法で行った。- : not determined

2011年4/26, 2011年4/25, 2012年5/8, 2013年5/20の試料は, イオンクロマトグラフ法でも測定した。

谷川 (3.4mg/l) の合流により, 合流後の⑥庄屋口橋では6.6 mg/lに低下した。また, NO₃-N 濃度は上流の①木留源流と②辺田野では最大値と最小値に約2倍の差があったが, それより下流では測定日による日間変動は小さかった。測定日ごとにみると, 流下とともに一定の流程変化を示した。さらに, 2010~2013年までに, 全採水地点で NO₃-N 濃度の増減傾向を示す経年変化は観察されなかった。

2. 主要イオン濃度の時空分布

図2に主要イオン濃度の時空分布 (2010~2013年) を示す。NO₂-N, NH₄-N, PO₄³⁻ 及び SO₄²⁻ の濃度は, 井芹川上流域における採水地点および採水年度間で変動を示した。NO₃-N, K⁺, Na⁺ 及び Cl⁻ の濃度は井芹川上流域で高値を示した後, 流下とともに概ね一定の流程変化を示した。測定した全てのイオンで明らかな増減傾向を示す経年変化は観察されなかった。

採水地点別にみると, NO₂-N は, ②辺田野では毎年検出され, ④鎧田集落東では採水年度によって高い値を示した。

NH₄-N は, ②辺田野では毎年検出された。④鎧田集落東では採水年度により変動した。2010年に1.2 mg/l を超える高い値が観察されたが流下に伴って減少し, 下流の⑧永運橋で不検出となった。2011年以降は井芹川下流域と A 西谷川では定量下限値未満であった。

K⁺ は, ①木留源流では0.5 mg/l 程度の値であっ

たが, ②辺田野では10 mg/l まで上昇し, ⑧永運橋で6 mg/l まで低下した。

Na⁺ および Cl⁻ は②辺田野および③鎧田橋で最も高値を示した。坪井川では両イオンとも井芹川に比べ2~3倍高かった。

PO₄³⁺ は①木留源流と A 西谷川では定量下限値未満であった。②辺田野から④鎧田集落東の井芹川上流で1.0 mg/l 前後と高くなったが, 採水年度間の変動が大きかった。特に2011年, 2012年で高値を示したが流下とともに低下した。PO₄³⁺ は坪井川でも採水年度間で変動があった。

SO₄²⁻ は②辺田野で特異的に高くまた採水年度間で変動を示した。

3. pH, EC と主要イオン濃度

表2に2013年に測定した pH, EC および主要イオン濃度の結果を示す。pH は②辺田野で9.3と河川の環境基準値 (6.5-8.5) を超え, アルカリ性を示した。EC 値は, 井芹川では, ①木留源流で93 μS/cm (最小値 - 最大値: 76-109, 4年平均値, 89, 以下同様) と低く, 高い EC 値を示す鎧田川 (②辺田野: 265 μS/cm (286-529, 403)) と合流することで, ③鎧田橋では271 μS/cm (266-296, 277) となり, 流下とともに⑧永運橋215 μS/cm (208-219, 214) まで減少していた。EC は坪井川 (B 井芹川合流前440 μS/cm (428-465, 444), C 高橋稲荷大橋428 μS/cm (248-428, 367)) で高かった。また, 図2で示したイオン以外で, 上流の辺田野で Ca²⁺

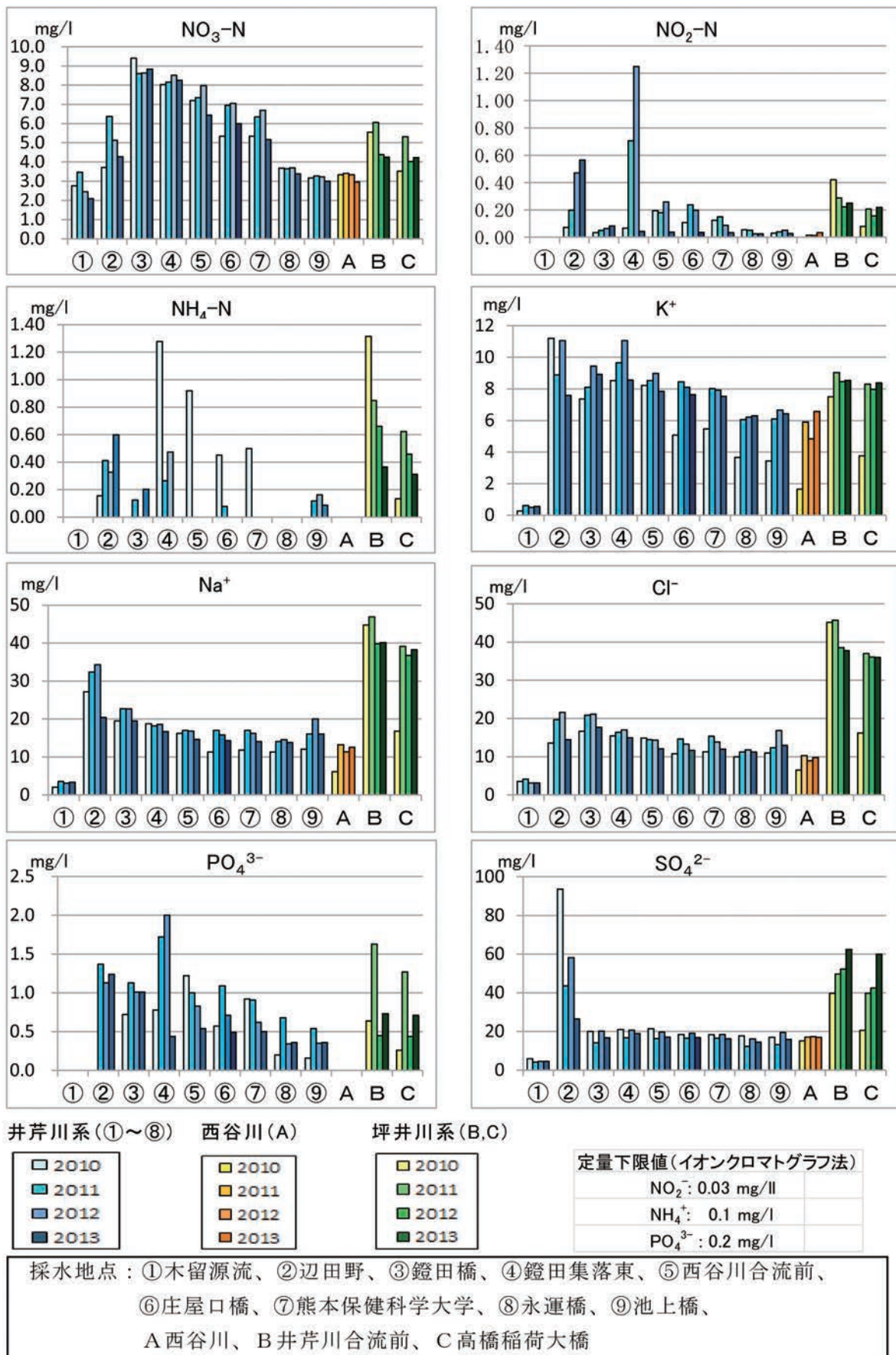


図2 主要イオン濃度の時空分布 (2010~2013年)

表2 井芹川における pH, EC 及び主要イオン濃度

採水地点 (河川名)	pH	EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$)	Na ⁺ NH ₄ ⁺ K ⁺ Ca ²⁺ Mg ²⁺ Cl ⁻ PO ₄ ³⁻ SO ₄ ²⁻ HCO ₃ ⁻ NO ₂ -N NO ₃ -N										
			(mg/l)										
①木留源流(木留川)	6.8	93	3.4	<0.1	0.55	7.2	4.5	3.1	<0.2	4.6	27.1	<0.01	2.1
②辺田野(鎧田川)	9.3	265	20.4	0.77	7.59	22.3	4.4	14.5	1.2	26.5	74.5	0.57	4.3
③鎧田橋(鎧田川)	7.3	271	19.5	0.26	8.91	16.9	5.8	17.7	1.0	16.7	52.4	0.08	8.8
④鎧田集落東(井芹川)	7.9	266	16.7	<0.1	8.56	19.1	6.2	14.9	0.4	18.9	63.2	0.04	8.2
⑤西谷川合流前(井芹川)	8.1	240	14.6	<0.1	7.84	17.6	5.7	12.1	0.5	17.1	61.8	0.04	6.4
⑥庄屋口橋(井芹川)	8.0	235	14.3	<0.1	7.64	17.2	5.6	11.7	0.5	16.8	66.1	0.03	5.9
⑦熊保大(井芹川)	7.8	230	14.1	<0.1	7.23	17.3	5.3	12.0	0.5	16.3	63.3	0.03	5.2
⑧永運橋(井芹川)	8.5	215	13.8	<0.1	6.29	16.8	5.0	11.2	0.4	14.5	71.4	0.02	3.4
⑨池上橋(井芹川)	7.7	243	16.1	0.11	6.43	19.8	5.6	13.0	0.4	15.9	81.2	0.03	3.0
A西谷川(西谷川)	7.4	210	12.6	<0.1	6.56	16.0	5.4	9.8	<0.2	17.0	65.6	0.03	3.0
B井芹川合流前(坪井川)	7.7	440	40.1	0.47	8.54	26.1	9.8	37.8	0.7	62.4	81.9	0.25	4.2
C高橋稲荷大橋(坪井川)	7.6	428	38.2	0.40	8.38	25.4	9.4	36.0	0.7	59.9	78.6	0.22	4.2

①～⑨：井芹川系 A：西谷川 B.C：坪井川系

採水日：2013年5月20日 測定法：イオンクロマトグラフ法

と HCO₃⁻ が他の測定地点より高めであった。

4. 井芹川流域の下水道整備状況

図1に下水道整備状況を示す。調査年度の2010～2013年には井芹川沿い地域の上限として⑦熊保大まで下水道が整備され、西谷川合流地点（⑥庄屋口橋）より上流は未整備地域であった。また、面積は僅かであるが、井芹川中流域および下流域に一部未整備地域（2013年度以降の予定処理区域）がある。上流地域の植木駅の北側では2015年現在整備が進みつつある。

5. 作物別施肥基準

表3に井芹川流域で使用されている作物別施肥基準を示す。10 a 当たりの窒素の施肥量は果樹、施設園芸とも水稻に比べ約2倍であった。なお、井芹川流域における作目別の耕作面積と施肥量は明らかでない。

IV. 考 察

表3 作物別施肥基準

	施肥量 (kg/10a)		
	N	P	K
水稻 ¹⁾	10.2	14.6	8.2
メロン ¹⁾	19.6	24.4	6.0
すいか ¹⁾	21.6	26.4	7.2
みかん ²⁾	21.6	7.2	7.2

¹⁾ JA 熊本市北部支店, ²⁾ JA 鹿本植木支所

井芹川上流の植木台地は、施設園芸、畜産が盛んな地域である。廣畑らは井芹川の源流のあるU町で窒素同位体比を用いた井戸水の汚染機構の解明を行い、NO₃-Nによる汚染源として畜産および施肥からの窒素浸透量が大きく、特に畑作物への化学肥料の影響が大きいことを示している⁵⁾。これまでの井芹川流域の踏査および地図による土地利用状況から、流域には現在豚舎跡地が1件あるのみである。また、地形と河川の関係から、他の畜舎からのし尿の直接の流入はないと思われる。よって、井芹川上流域の窒素負荷は、果樹、施設園芸用の施肥による影響が大きいと考えられる。果樹・施設園芸では窒素施肥量が水田より多く、溶脱した高濃度NO₃-Nを含む湧出水が至る所で河川に流入していた。また、河川の流量が少ないため流入湧出水の影響を受けやすく、希釈作用も小さいことが、上流でNO₃-N濃度が高い要因と考えられた。井芹川中流域では水田が増え、水稻の窒素施肥量はメロンやすいかに比べ約半分程度であること、水田土壌には脱窒作用を含め窒素の浄化作用がある⁸⁾ことから河川へのNO₃-Nの負荷は上流に比べ低いと考えられる。なお、採水時期は水稻の施肥前であった。これより下流では市街地となり、土壌への窒素の負荷量はさらに少なくなる。また、⑦熊保大から下流は下水道が普及していること、河川の流下の過程で、井芹川に注ぐ比較的汚染の小さい小河川によりNO₃-N濃度が希釈されることが、流下にともない川幅も広がり微生物分解、植物の吸収などによる生物学的浄化作用によってもNO₃-N濃度が低下していくことが推察された。

以下に測定地点ごとに明らかになった水質の特徴を示し、さらに水質に影響を及ぼすと考えられる土地利用や人間活動の影響について考察を加える。①木留源流では $\text{NO}_3\text{-N}$ 以外のイオンの検出は僅かである。周囲の三ノ岳中腹は露地植えのみかん畑が広がっており、民家はみられないことから、主な汚染源は施肥と自然に由来する $\text{NO}_3\text{-N}$ と考えられる。②辺田野では、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の平均値（以下4年間の測定の平均値を示す）は4.2 mg/lと比較的高い。また②辺田野では $\text{NO}_3\text{-N}$ の還元体である $\text{NO}_2\text{-N}$ および $\text{NH}_4\text{-N}$ が毎年検出されていることから、辺田野の採水点より上流に生活排水などの流入があることが考えられる。また、ECは井芹川系の測定地点の中で最も高く（平均値は403 $\mu\text{S/cm}$ ）、 K^+ 、 Na^+ 、 Cl^- 、 PO_4^{3-} 、 SO_4^{2-} 、 Ca^{2+} イオンなど、殆どのイオン濃度も高値を示した。しかし、辺田野の採水地点周囲で使用されている施設園芸用の施肥だけでは水質の特徴を説明できない。そこで、辺田野の上流、鐙田川源流の現地調査を行った。源流には古くからの集落がある。主に川沿いの68世帯を戸別訪問し生活排水の処理状況について聞き取り調査を行った。回答の得られた58世帯中10世帯が汲み取り、12世帯が単独浄化槽、36世帯が合併浄化槽で排水処理が行われていた（合併浄化槽のうち11世帯はこの7・8年間に汲み取りあるいは単独浄化槽から熊本市の補助金制度によって新たに合併浄化槽に切りかえていた）。この家庭排水が僅かな流量の源流に流入していた。よって Na^+ 、 Cl^- 、 PO_4^{3-} が高いのはこの生活排水の影響と考えられた。さらに地域ではみかんの栽培が行われており、苗木の肥料として即効性のある硫酸が3月～9月にかけて10日ごとに用いられること、また石灰も使用されていることが鹿本農業協同組合（JA 鹿本）植木支所への聞き取り調査でわかった。よって SO_4^{2-} および Ca^{2+} は肥料由来であることが明らかになった。このような鐙田川源流の生活排水と肥料の影響が下流の辺田野の水質に影響していると考えられた。さらに、辺田野の採水地点は川幅が狭く、流量も少なく、藻が繁殖していた。このこともpHが高く、ECの高い特徴的な水質と関係していることが推察された。③鐙田橋は、測定点の近くに、かつて地域の住民が使用していた自噴水があり、この地下水が採水地点のすぐ上流に多量に流入していた。この地域は地下水が特に豊富な地域で、井戸水を農業用水として使用している。

2013年に自噴水の $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ の濃度を2日間測定したところ、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は9.5 mg/lおよび11.3 mg/lであった。これは2013年の③鐙田橋の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度（8.8～9.1 mg/l）より高値であった。また $\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度は2日間とも0.01 mg/lと低値だった。よって、③鐙田橋で $\text{NO}_3\text{-N}$ が高く $\text{NO}_2\text{-N}$ が低い理由は、施肥により汚染された土壌浸透水の流入に加え、 $\text{NO}_3\text{-N}$ により汚染された地下水が河川水に流入していることが要因として考えられる。なお、③鐙田橋の上流1 kmに団地（2,129人、H25 7.1現在）の污水处理施設（長時間曝気式）がある。この処理水は現在井芹川上流域の鐙田川に放流されている。しかし、この放流水の影響については現在明らかでない。④鐙田集落東の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は③鐙田橋に次いで高いが、測定年度により $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は③鐙田橋より高く、採水地点の上流で、人為的な汚染水が不定期に流入していることが考えられる。なお $\text{NO}_2\text{-N}$ の値は2010、2013年は3回の調査日とも低値で、2011、2012年は3回とも高くこの値は日間変動ではなくある程度継続した汚染であると考えられる。この地点では K^+ と PO_4^{3-} も高い。④鐙田集落東の50 m上流には2010年まで養豚畜舎があったが、現在は閉鎖されている。 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は化学的に不安定で $\text{NO}_3\text{-N}$ に酸化されやすいことから、近くにし尿などの不定期な流入があることが伺える。しかし一方で、し尿汚染の指標となる Na^+ や Cl^- 濃度の増加はなかったことから、この地点ではさらに原因を特定する調査が必要である。⑤西谷川合流前になると施設園芸に加え水田の面積が増えてくる。 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は③鐙田橋から流下に伴い低下するものの約7 mg/lと比較的高値である。この地域まで下水道は普及しておらず、側溝から川に生活排水の流入がみられた。中流域では全てのイオン濃度が上流域より低下していた。中流域では川幅が広がり、生物学的自浄作用も大きいと思われる。これより下流域では、すべてのイオン成分が流下とともに低下した。⑦熊保大に比べ⑧永運橋で $\text{NO}_3\text{-N}$ の低下が大きい、これは両採水地点の距離が比較的長いことによる流程変化によるものと考えられた。⑤西谷川合流前と、合流後の⑥庄屋口橋の採水地点は70 mの距離であるが、井芹川に比べ $\text{NO}_3\text{-N}$ やECが低い西谷川の合流により⑥庄屋口のほとんどのイオン成分が低下したと考えられる。坪井川のB井芹川合流前とC高橋稻荷大橋の測定地点で Na^+

と Cl^- 濃度が高かった。これらの測定地点は、有明海に注ぐ河口から約 5 km 上流にあり、測定地点までに堰もないことから海水の影響が考えられた。しかし、海水の影響では説明のつかない SO_4^{2-} 濃度の増加も見られること、坪井川合流地点から約 100 m 上流の⑨池上橋では Na^+ 、 Cl^- 濃度の上昇は見られないことから、本調査では坪井川の B,C 測定地点で観察された Na^+ と Cl^- 濃度の上昇に海水がどの程度影響しているかは明らかにできなかった。

熊本県は毎年県内の公共用水の測定結果を公表している⁹⁾。それによると、井芹川の測定点は 2004 年までは下流の尾崎橋のみであったが、2007 年に新たに山王橋、北迫橋および釜尾橋が加えられた。さらに、2010 年より新設補助点として鎧田橋が加わった。報告書によると井芹川上流の北迫橋と鎧田橋で $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が高く、鎧田橋での 2010～2012 年の平均値（1 年に 2 回の測定）は 7.8～9.1 mg/l、最高値は 9.8 mg/l である。今回の我々の測定値もほぼ一致する結果であった。これは、現在観測が行われている県内の河川で最も高い値で注目値する。

これまで、河川の環境保全は水質汚濁という観点から捉えられ、その防止対策として、下水道や浄化槽の整備が推進されてきた。有機汚濁物質による汚濁の指標としては BOD や COD 等が用いられている。植木ら¹⁰⁾ は 2005 年に井芹川中流（秋鯉橋）から下流域（尾崎橋）までの水質調査を行い、下流域で BOD、COD が 30 年前に比べ改善していることを示し、下水道普及の効果を観察している。しかし、 Cl^- を除き他の主要化学成分は減少しておらず、より上流の山王橋（⑧永運橋より 600 m 上流）では以前より増加した成分も多いこと、また、 $\text{NO}_3\text{-N}$ も増加していることを報告している。植木らの報告による段山橋（⑧永運橋より 750 m 下流）の結果と、今回の永運橋で得られた結果（2013 年）を比較したところ、2005 年の観察年からさらに 8 年が経過した我々の結果でも、 $\text{NO}_3\text{-N}$ のみが上昇傾向にあり、主要イオンの濃度は殆ど同程度の値か、あるいは若干の減少を示していた（表 4）。さらに、熊本県の水質調査報告書⁹⁾ に公表されている井芹川下流域の尾崎橋（2004～2012 年）と山王橋（2007～2012 年）の $\text{NO}_3\text{-N}$ の経年変化をみると、2 地点とも $\text{NO}_3\text{-N}$ の減少は観察されずどちらかというと緩やかな上昇傾向にある。この原因は明らかではないが、下水道では除去できない汚染源が考えられる。井芹川では上

表 4 井芹川下流域の水質の経年変化

mg/l	段山橋 ¹⁾			永運橋
	1970	1975	2005	2013
Na^+	18.6	18.9	17.2	13.8
K^+	5.9	6.8	7.0	6.3
Ca^{2+}	15.3	16.3	17.5	16.8
Mg^{2+}	6.4	5.8	5.3	5.0
Cl^-	22.9	18.8	14.3	11.2
SO_4^{2-}	11.5	16.7	14.4	14.5
$\text{NO}_3\text{-N}$	—	2.1	2.4	3.4
$\text{PO}_4\text{-P}$	0.47	0.26	0.15	0.12
BOD	—	15.3	4.1	—

¹⁾ 引用：植木ら（2005、文献 10）

段山橋は永運橋より約 750 m 下流地点

流で観察される高い濃度の $\text{NO}_3\text{-N}$ が一定の流程変化で減少していくことから、この 10 年間で上流の $\text{NO}_3\text{-N}$ の濃度が上昇した可能性も考えられる。しかし、今回得られた結果からはそれを裏付けるようなデータは見取れず、さらに継続的なモニタリングが必要である。

熊本県は 2005 年より、また熊本市も 2007 年より熊本県と連携しながら 20 年後の 2024 年までの窒素削減計画を作成し、様々な対策を実施している^{3, 11, 12)}。また、熊本県は中間年度の 2014 年度に、熊本市は 2009 年度とその後 5 年毎に対策の評価および見直しを行うこととしている。これらの対策はおもに地下水汚染に焦点が当てられている。河川水は地下水と異なり、より敏感に汚染が反映されやすく、日間変動、年間変動が生じやすいと考えられるため、結果の解釈には留意が必要である。しかし、場合によっては、狭い範囲の汚染を防止するような有効な対策を実施し、その効果を地下水に比べ早い時期に評価することも可能である。今回の調査では、各測定地点の $\text{NO}_3\text{-N}$ 汚染に各々の要因がどの程度関与しているか定量的な把握はできない。しかし、井芹川のような、流域の土地利用や人々の生活環境の異なる小河川を対象に、継続的なモニタリングと同時に環境調査や聞き取り調査とを合わせて実施することにより、各採水地点の汚染要因が明らかにでき、今後より実効性のある対策の計画と施行に結びつくと考えられる。

V. 結 語

- 1) 井芹川流域の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は、上流の鎧田付近で最も高く、県内で報告されている河川で最も高い値であった。この原因としては、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の土壌の表層水からの流入に加え、主に施肥より汚染された地下水の河川への流入が考えられた。
- 2) 熊本県の硝酸性窒素削減計画に基づく対策が実施されて9年目になるが、井芹川の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の経年変化は観察されなかった。
- 3) 硝酸性窒素削減対策の効果を評価するには井芹川は格好の河川であり、今後特に上流域の水質の継続的なモニタリングが重要である。
- 4) 現場では多くの機関や組織が関与し行政主導型で様々な削減計画が行われている。しかし、現地調査の結果、各々の対策が必ずしも有効に働いているとは限らなかった。硝酸性窒素削減対策をさらに実効性のあるものにするには、今後はいかにして農業従事者や一般住民に理解を求めるか、啓発活動の内容と方法に工夫が必要である。そのためにはそれぞれの地域における汚染要因をより詳細に把握する必要がある。

謝 辞

本調査研究の遂行に際し、熊本市上下水道局計画調整課下水道計画班、熊本市環境局浄化対策課の職員の方々、JA 鹿本農業技術開発センターの清本豊氏、西里堆肥センターの吉田勇熊氏、西里地域農地・水観光保全管理協定運営委員会の境博明氏、山鹿市経済部農業振興課（山鹿バイオマスセンター）、JA 熊本市北部支店、JA 鹿本植木支所の方々に多大なるご協力・ご助言を頂きました。記して心から謝意を表します。

文 献

- 1) Graham Walton: Survey of literature relating to infant methemoglobinemia due to nitrate-contaminated water. Am J Public Health, 41 : 986-996, 1951.
- 2) 田中淳子, 堀米仁志, 今井博則, 他: 井戸水が原因で高度メトヘモグロビン血症を呈した1新生児例. 小児科臨床, 49 : 55-59, 1990.
- 3) 熊本県: 熊本地域硝酸性窒素汚染削減計画. 熊本県, 2005 (平成17) 年3月.
- 4) 小笹康人: 熊本県における地下水質の地域特性 (第2報) — メッシュ地図による硝酸性窒素濃度の視覚化 —. 熊本県保健環境科学研究所報, 34 : 44-49, 2004.
- 5) 廣畑昌章, 小笹康人, 松崎達哉, 他: 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.
- 6) 冨家利男, 糸満尚貴, 松山賢司, 他: 熊本都市域における地下水中硝酸性窒素濃度の現状と地理情報システムおよび窒素安定同位体分析による窒素負荷要因の解明. 水環境学会誌, 34 : 1-9, 2011.
- 7) 熊本市: 熊本市の下水道. 熊本市上下水道局, www.kumamoto-waterworks.jp/, 2013 (平成25) 年4月1日.
- 8) 日高伸: 農業サイドにおける硝酸問題への対応 (公開シンポジウム) 土と水と食品中の硝酸 (NO_3) をめぐる諸問題. 日本土壌肥科学会, 68-75, 1998.
- 9) 熊本県: 平成16年度～平成24年度 水質調査報告書 (公共用水域及び地下水). 熊本県, 2005 (平成17) 年～2013 (平成25) 年10月.
- 10) 植木肇, 出納由美子: 都市小河川 (熊本市井芹川) における水質変動. 熊本県保健環境科学研究所報, 35 : 102-105, 2005.
- 11) 熊本市: 第1次熊本市硝酸性窒素削減計画, 熊本市, 2007 (平成19) 年8月.
- 12) 熊本市: 第2次熊本市硝酸性窒素削減計画, 熊本市, 2010 (平成22) 年3月.
(平成27年1月31日受理)

Nitrate-nitrogen and Related Sources of Pollution in a Small River (Iseri-gawa) in Kumamoto-City

Megumi NAGANO, Yasuto OZASA, Takahiro FUJIMOTO, Aya TACHIKIRI,
Rena ISHIDA, Yuki NAGAMATSU, Kumiko RYU, Narumi TOBASE
Yuta HIRAKAWA, Masaki IWANE, Kouhei FUKUMOTO, Moemi ISHII,
Rie ODA, Misato, HARADA,, Yurika MURAYAMA, Natsuki NAKAMURA,
Fumie HARA, Haruka KISA, Miki NITTA, Yuka MIZUTANI,, Yuka MUTA

From 2010 to 2013 the water quality of a small river (the Iseri-gawa) was monitored to identify the causes of nitrate-nitrogen pollution and to determine what changes, if any, have occurred over the years monitored.

High levels of nitrate-nitrogen - app. 9mg/l - were detected in the upper stream, but at any given monitoring point, the levels had not decreased over the years examined. Sources of pollution from the collecting spots differed depending on the agricultural practices of the area and the types of fertilizers used, as well as other human activities (i.e. domestic effluents). Because small rivers are more sensitive to pollutants in comparison with groundwater, continuous on-site fieldwork greatly contributes to evaluating both the causes of pollution and the effectiveness of pollution counter-measures. Continuous on-site fieldwork will, as well, be necessary for developing corrective measures.