

安曇野わさび田湧水群・まつもと城下町湧水群でみられる硝酸態窒素の起源

北林美帆・戸田任重
信州大学理学部物質循環学科

Nitrate Nitrogen Sources in Spring Waters in Azumino and Matsumoto

M. Kitabayashi, H. Toda
Faculty of Science, Shinshu University

(要旨) 松本市, 安曇野市周辺には湧水が多くみられ, 古来より地元の人々に親しまれ利用されてきた。昭和 60 年に安曇野わさび田湧水群は「日本の名水百選」に選ばれており, 平成 20 年には松本市街地の湧水群が「まつもと城下町湧水群」として「平成の名水百選」に選ばれている。しかし, これらの湧水には飲用水の水質基準以下ではあるものの, 数 mgN/L の硝酸態窒素が含まれている。硝酸態窒素は, 雨水や土壌にも多少は含まれるが, 山岳地域の渓流水では 0.2~0.3 mgN/L であり, それらに比べるとこれらの湧水の硝酸態窒素濃度は 10 倍ほど高い。本研究では, この硝酸態窒素の起源を窒素安定同位体比を用いて推定した。

2009 年 8 月~9 月に掛けて, 安曇野市のわさび田 15 地点, その上流部にあたる扇頂部の河川 4 地点, 松本市内の井戸 18 地点で, 湧水・地下水・河川水を採水した。調査地域の硝酸態窒素濃度は, 安曇野わさび田湧水群で平均 2.3 mgN/L (n=15, sd=2.0), まつもと城下町湧水群で平均 2.5 mgN/L (n=18, sd=0.8), 扇頂部河川水で平均 0.2 mgN/L (n=4, sd=0.03) であった。窒素安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$ 値) は, 安曇野わさび田湧水群+5.3‰ (n=15, sd=0.7), まつもと城下町湧水群+6.5‰ (n=18, sd=0.9) で, 化学肥料, 畜産堆肥の中間的な値となっており, 化学肥料, 畜産堆肥両方の寄与が示唆された。窒素安定同位体比から算出した硝酸態窒素の起源は, 安曇野わさび田湧水群においては, 化学肥料 53.9% (n=15, sd=6.0), 畜産堆肥 32.3% (n=15, sd=4.0), 土壌 13.8% (n=15, sd=8.6), まつもと城下町湧水群においては, 化学肥料 51.9% (n=18, sd=5.7), 畜産堆肥 39.2% (n=18, sd=5.3), 土壌 8.9% (n=18, sd=4.4) と推定された。両湧水群でみられる硝酸態窒素は, 主として農耕地への化学肥料や畜産堆肥などの施肥に由来していると考えられる。

キーワード：湧水, 硝酸態窒素, 窒素安定同位体比, 安曇野, 松本

Keywords: spring water, nitrate nitrogen, nitrogen stable isotope ratio, Azumino, Matsumoto

1. はじめに

安曇野市, 松本市周辺には湧水が多くみられ, 古来より地元の人々に親しまれ利用されてきた。安曇野わさび田湧水群は昭和 60 年に「日本の名水百選」に, 「まつもと城下町湧水群」は平成 20 年に「平成の名水百選」に選ばれている。安曇野では, 北アルプスの雪解け水を集めた清流を利用して, 古くから新田の開墾や用水・堰の開削を行い, 広大で豊かな田園風景が形成されてきた。また伏流水は豊富な湧水となっており, 大正時代からわさびの栽培, ニジマス養殖に使われるなど, 水が循環利用されてきた。松本市は梓川や奈良井川によってできた扇状地であり, 湧水が豊富で, 「源智の井戸」をはじめ市民生活

と結びついた水場が多い。井戸水は飲料水だけでなく, 酒造り, そば打ちなどにも利用されている。しかし, これらの湧水には, 水質基準 (10 mgN/L) 以下であるものの, 数 mgN/L の硝酸態窒素が含まれている。硝酸態窒素は雨水や土壌にも多少は含まれているが, 山岳地域の渓流水では 0.2~0.3 mgN/L であり (戸田ほか, 2006), それらと比較すると, これらの湧水では約 10 倍の濃度となっている。

本研究の目的は, これらの湧水に含まれる硝酸態窒素の由来を推定することである。硝酸態窒素は, 大気や地質などの自然起源, 施肥にともなう農耕地起源, 事業所排水や生活排水による人為起源など様々な起源に由来する。ところで, 自然界の窒素原

子には、質量の異なる窒素原子が存在し(^{14}N と ^{15}N), それらの存在比率は、植物や動物、あるいは肥料などの物質ごとに異なる。例えば、化学肥料に由来する硝酸態窒素の同位体比は低い値を示し、畜産排泄物や生活排水など動物由来の硝酸態窒素の同位体比は高い値を示す (Macko and Ostrom, 1994)。これらの特徴を利用し、硝酸態窒素態の同位体比を計測することにより、地下水の硝酸態窒素の起源を推測することが可能である。

2. 方法

2009年7月～8月に、安曇野市では、穂高川、万水川周辺のわさび田15地点とその上流にあたる扇頂部の河川4地点で採水した。扇頂部より上流には民家や農耕地はないため、地表の人為的影響はほとんどないと考えられる。松本市では、松本城周辺の湧水18地点で採水した。採水時にEC計を用いて電気伝導度と水温を測定し、湧水を1Lまたは5Lポリタンクに採水した。

試水はガラス濾紙(Whatman GF/C)で濾過した後、その一部を用いて硝酸態および亜硝酸態窒素濃度をイオンクロマトグラフ(DIONEX, DX-120)で測定した。その後、硝酸態窒素濃度に応じた適当量の試水を、ロータリーエバポレーターで濃縮し、凍結乾燥後、錫コンテナに入れ、窒素同位体比($\delta^{15}\text{N}$)を測定した。窒素同位体比は、元素分析計(Thermo Fisher Scientific, Flush EA 1112)を直結した質量分析計(Thermo Fisher Scientific, Delta V Advantage)で計測し、ワーキングスタンダードにはグリシン($\delta^{15}\text{N} = -0.2\text{‰}$)を用いた。 $\delta^{15}\text{N}$ 値は、大気窒素を基準として、 δ 値として千分率(‰)で表した。

$$\delta^{15}\text{N}(\text{‰}) = (\text{R}_{\text{試料}}/\text{R}_{\text{大気}} - 1) \times 1000$$

$$\text{R} = ^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$$

各窒素源の寄与率の算定には、中西ら(1995)の算定方法を用いた。

$$\text{W} = \text{X} + \text{Y} + \text{Z}$$

$$\text{aW} = \text{bX} + \text{cY} + \text{dZ}$$

W: 地下水の硝酸態窒素濃度 (mgN/L)

X: 化学肥料由来の硝酸態窒素濃度 (mgN/L)

Y: 畜産排泄物および生活排水由来の硝酸態窒素濃度 (mgN/L)

Z: 土壌窒素由来の硝酸態窒素濃度 (mgN/L)

a: 地下水の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値(‰)

b: 化学肥料由来の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値(‰)

c: 畜産排泄物および生活排水由来の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値(‰)

d: 土壌窒素由来の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値(‰)

本研究では、W, aは実測値、Z, dは汚染のない土壌の値として扇頂部河川水の平均値、b, cには齊藤(2007)において測定された化学肥料および畜産堆肥由来の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値(化学肥料: $-0.6 \pm 0.8\text{‰}$, 畜産堆肥: $+17.2 \pm 4.2\text{‰}$)を代入し、化学肥料の寄与率X/Wと畜産堆肥の寄与率Y/Wを求めた。2008年度末における污水处理人口普及率は、松本市では公共下水道95.5%, 農業集落排水施設0.6%, 浄化槽・コミュニティプラント2.9%で計99.0%であり、安曇野市では、公共下水道83.8%, 農業集落排水施設3.2%, 浄化槽・コミュニティプラント4.9%で計91.8%となっている(長野県環境部, 2009)。これらの状況から、両地域において生活排水由来の硝酸態窒素は極めて少ないと考えられる。両地域では、畜産排泄物および生活排水由来の硝酸態窒素(Y)は、主に畜産堆肥に由来すると考えられる(考察参照)。

3. 結果

安曇野扇頂部河川水の硝酸態窒素濃度は0.2 mgN/L ($n=4$, $sd=0.03$)であった(表1)。安曇野わさび田湧水群における硝酸態窒素濃度は0.6～7.0 mgN/Lであり、平均は2.3 mgN/L ($n=15$, $sd=2.0$)となった。まつもと城下町湧水群における硝酸態窒素濃度は0.9～3.7 mgN/Lであり、平均は2.5 mgN/L ($n=18$, $sd=0.8$)であった。両湧水群の硝酸態窒素濃度に有意な差は見られなかった(t-test, $P>0.05$)。両湧水群では亜硝酸態窒素濃度は安曇

表1 安曇野わさび田およびまつもと城下町湧水群における硝酸態窒素濃度と窒素安定同位体比

	硝酸態窒素濃度 (mgN/L)	窒素同位体比 (‰)
扇頂部	0.2 ($n=4$, $sd=0.03$)	-0.3 ($n=4$, $sd=1.1$)
安曇野わさび田 湧水群	2.3 ($n=15$, $sd=2.0$)	+5.3 ($n=15$, $sd=0.7$)
まつもと城下町 湧水群	2.5 ($n=18$, $sd=0.8$)	+6.5 ($n=18$, $sd=0.9$)

野の1地点(0.3 mgN/L)を除き、検出限界以下(<0.03 mgN/L)であった。

扇頂部河川水の硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は、-0.9~+1.3‰で、平均は-0.3‰(n=4, sd=1.1)であった。安曇野わさび田湧水群における硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は+4.2~+6.6‰で、平均は+5.3‰(n=15, sd=0.7)であり、まつもと城下町湧水群における硝酸態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ 値は+4.0~+8.7‰で、平均は+6.5‰(n=18, sd=0.9)であった。両湧水群の $\delta^{15}\text{N}$ 値に有意な差はみられなかった(t-test, P>0.05)。

上記の値に基づいて算出した各窒素源の寄与率は、安曇野わさび田湧水群では、化学肥料 44.5~63.0%(平均 53.9%, n=15, sd=6.0), 畜産堆肥 25.5~40.6%(平均 32.3%, n=15, sd=4.0), 土壌 2.7~30.0%(平均 13.8%, n=15, sd=8.6)であった(図1)。まつもと城下町湧水群では、化学肥料 34.9~58.7%(平均 51.9%, n=18, sd=5.7), 畜産堆肥 24.9~51.6%(39.2%, n=18, sd=5.3), 土壌 5.1~21.2%(8.9%, n=18, sd=4.4)であった。両湧水群ともに化学肥料による寄与率が最も大きく、畜産堆肥がそれに次いで大きな寄与率を示した。

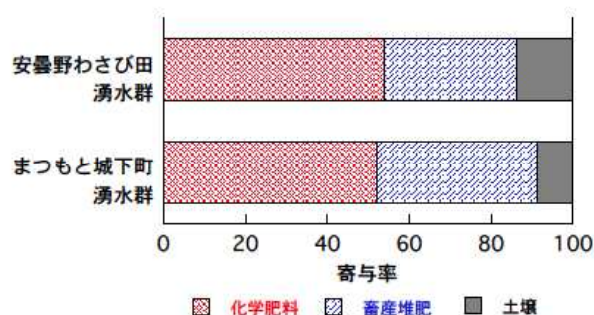


図1 安曇野わさび田およびまつもと城下町湧水群でみられる硝酸態窒素の起源

4. 考察

安曇野わさび田湧水群、まつもと城下町湧水群ともに、飲用水の水質基準以下ではあるものの、数 mgN/L の硝酸態窒素が検出された。硝酸態窒素は、雨水や土壌にも多少は含まれるが、山岳地域の渓流水の濃度(0.2~0.3 mgN/L)に比べると、両湧水の硝酸態窒素濃度は 10 倍ほど高い。両湧水群ともに、複数河川により形成された扇状地の扇端部に位置している。松本盆地中・南部は、沖・洪積世の砂礫岩が 400m 以上堆積し、帯水層は砂礫層が主体で、透水性は比較的大きく、湧水の元に

なる浅層地下水は各河川系に平行して流動しているものと考えられる(小宮ら, 2003)。湧水上流にあたる扇中央部には、水田や畑地が分布し、稲、野菜、麦や果樹(リンゴやブドウ)が栽培されている(安曇野市の農作物作付割合: 稲 56.3%, 野菜 11.5%, 麦類 10.7%, 果樹 9.4%, 松本市(合併前)の農作物作付割合: 稲 46.2%, 野菜 20.4%, 果樹 12.0%, 麦類 9.1%; 関東農政局長野農政事務所, 1999, 2007)。農耕地では、化学肥料や畜産堆肥が施肥されている。農作物による窒素肥料利用効率は 50%以下のことが多く(川島, 1995)、農耕地(特に畜産地帯、野菜・果樹・茶栽培地帯)周辺の地下水や河川水ではしばしば高濃度の硝酸態窒素が検出されている(熊沢, 1999)。一方、安曇野市、松本市ともに、汚水処理普及率は高く(ともに 90%以上: 長野県環境部, 2009)、生活排水や人尿尿は、下水処理場や尿尿処理場で処理され、処理水は河川に放流されており、それらが対象地域の地下水に流入する可能性は低い。また、両地域には、窒素化合物を含む排水を出している大規模な工場や畜産施設は見当たらない。以上の状況から、安曇野わさび田湧水群、まつもと城下町湧水群でみられる硝酸態窒素は、扇中央部の農耕地で使われた化学肥料と畜産堆肥に由来している可能性が高い。

本研究では、窒素安定同位体比を用いて、化学肥料、畜産堆肥、および土壌に由来する窒素の寄与率を算出した。その結果、両湧水群ともに、化学肥料の寄与率が 52~54 %で最も大きく、畜産堆肥が 32~39 %, 土壌由来は 9~14 %と推定された。天竜川沿いの下伊那地域でも、地下水の硝酸塩汚染がみられ(5~10 mgN/L)、そこでの窒素源も化学肥料が主で(54~61 %), 次いで有機資材(畜産堆肥: 32~40 %)の寄与が大きいとされている(斉藤, 2007)。

両湧水群でみられる硝酸態窒素濃度は、飲用水の水質基準以下であり、直ちに健康被害等が懸念されるレベルではない。また、「メトヘモグロビン血症(貧血症の一種)は、体外からの亜硝酸塩の取り込みが原因であり、硝酸塩そのものに毒性はない」との指摘もある(リロンデル・リロンデル, 2007)。亜硝酸態窒素は、両湧水群のほとんどの地点で検出限界以下である。しかし、農業活動に起因する窒素が地下水・湧水に流入している可能性は高い。両湧水群の上流にあたる扇中央部の農業活動を含む人間活動は、両湧水群の水質と

密接に関連している。安曇野わさび田湧水群、まつもと城下町湧水群は、農業用水、憩いの場、観光スポット、また一部は飲用水としても利用されている。今後もそのような利用を持続するためには、水質の継続的な監視が必要であろう。

5. まとめ

名水百選にも選ばれている、安曇野わさび田湧水群、まつもと城下町湧水群ともに、飲用水の水質基準以下ではあるものの硝酸態窒素が検出された。硝酸態窒素濃度は、安曇野わさび田湧水群で平均 2.3 mgN/L (n=15, sd=2.0), まつもと城下町湧水群で平均 2.5 mgN/L (n=18, sd=0.8) であり、扇頂部河川水の濃度 (0.2 mgN/L, n=4, sd=0.03) よりも 1 桁高かった。

湧水の硝酸態窒素の安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$ 値) は、安曇野わさび田湧水群+5.3‰ (n=15, sd=0.7), まつもと城下町湧水群+6.5‰ (n=18, sd=0.9) で、化学肥料、畜産堆肥の中間的な値となった。窒素安定同位体比から算出した硝酸態窒素の起源は、両湧水群で同様であり、化学肥料が 52~54 %, 畜産堆肥が 32~39 %, 土壌由来は 9~14 % と推定された。両湧水群で見られる硝酸態窒素は、主として農耕地への化学肥料や畜産堆肥などの施肥に由来していると考えられる。

謝辞

安曇野わさび田湧水の採水では、吉田澄司さんに大変お世話になりました。本研究は、信州大学平成 21 年度環境 ISO プロジェクト研究「身近な環境研究」の助成を受けて実施しました。

参考文献

関東農政局長野農政事務所 (1999) 長野県農林業市町村別データ (平成11年度版), 長野農林統計協会, 58-59pp
関東農政局長野農政事務所 (2007) 長野県農林業市町村別データ (平成19年度統合版), 長野農林統計協会, 54-55pp
川島博之 (1995) 食料の生産と水質汚濁, 用水と廃水, 37 (11), 5-9.
小宮洋行・中屋眞司・益田晴恵・日下部実 (2003) 酸素および水素の安定同位体比と水質から見た長野県松本盆地中・南部地域の広域地下水流動系, 地下水学会誌, 45(2), 145-168.

熊澤喜久雄 (1999) 地下水の硝酸態窒素汚染の現況, 日本土壤肥料科学雑誌, 70(2), 207-213.

リロンデル, J.・リロンデル, J.-L.著, 越野正義訳 (2006) 「硝酸塩は本当に危険か」農山漁村文化協会, 256pp.

Macko, S. A. and N. E. Ostrom (1994) Pollution studies using stable isotopes. In: K. Lajtha and R. H. Michener (Editors), Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science, Blackwell Scientific, Oxford, pp. 45-62.

長野県環境部 (2009) プレスリリース: 汚水処理人口普及率 (公共, 農集, 浄化槽: 平成20年度末)

中西康博・山本洋司・朴光来・加藤茂・熊澤喜久雄 (1995) $\delta^{15}\text{N}$ 値利用による地下水硝酸起源推定法の考案と検証, 日本土壤肥料科学雑誌, 66(5), 544-551.

齊藤あゆみ (2007) 天竜川・下伊那地域における地下水の硝酸塩汚染の原因解明, 信州大学大学院工学系研究科地球生物圏科学専攻修士論文, 69pp.

戸田任重・椎名未季枝・山崎未月・菅野万理子・今井響子 (2006) 長野県における渓流水・河川水の窒素濃度に及ぼす人間活動の影響, 日本水文学会誌, 36(3), 117-122.

(原稿受付 2011. 3. 14)