

## 福岡県の河川と硝酸汚染：御笠川と釣川の事例

辰本，拓也  
九州大学大学院生物資源環境科学府

江頭，和彦  
九州大学大学院農学研究院

<https://doi.org/10.15017/4338>

---

出版情報：九州大学大学院農学研究院学芸雑誌. 59 (2), pp.197-202, 2004-10-01. 九州大学大学院農学  
研究院  
バージョン：  
権利関係：

## 福岡県の河川の硝酸汚染 — 御笠川と釣川の事例 —

辰本 拓也<sup>1</sup>・江頭 和彦\*

九州大学大学院農学研究院植物資源科学部門植物生産科学講座土壌学研究室  
(2004年6月30日受付, 2004年7月13日受理)

### Nitrate Pollution of River Water in Fukuoka Prefecture — Case Study on the Mikasa and Tsuru Rivers —

Takuya TATSUMOTO<sup>1</sup> and Kazuhiko EGASHIRA\*

Laboratory of Soil Science, Division of Soil Science and Plant Production,  
Department of Plant Resources, Faculty of Agriculture,  
Kyushu University, Fukuoka 812-8581, Japan

#### 緒 言

高濃度の硝酸性窒素が人体に摂取されると、乳幼児にメタヘモグロビン症を引き起こし問題となる。硝酸は農地(熊澤, 1999)や工場から排出される他、生活排水としても広く排出され、近年河川や地下水の硝酸汚染の進行が甚だしい。そのような状況を受けて、硝酸性窒素は1999年2月に公共用水域の健康項目に追加され、亜硝酸性窒素との含量として $10\text{mg L}^{-1}$ 以下という基準が設定され、国による監視がなされている。しかしながら、測定回数の規定がなく、年2回程度しか測定されないケースもある。よって現状では、公表結果のみから詳細な硝酸汚染状況を把握するのは困難である。

以上のことから、本研究では、福岡県の2つの河川、即ち御笠川と釣川を対象として、硝酸性窒素汚染の把握を目的とした。そのため、高頻度かつ継続的な硝酸性窒素のモニタリングを実施して、水系を通しての汚染状況を調べ、硝酸汚染源の推定を目的として、硝酸性窒素の $\delta^{15}\text{N}$ を測定した。

なお、 $\delta^{15}\text{N}$ の測定に際しては、九州大学大学院農学研究院植物資源科学部門山川武夫助教授および熊本

県農業研究センター農産園芸研究所土壌肥料部長郡司掛則昭氏に便宜をいただいた。記して謝意を表する。

#### 対象河川および方法

##### 1. 対象河川

対象とした御笠川と釣川は都市中級河川であり、水質に何らかの問題を抱えていることが予想された。図1と2に、それぞれ御笠川と釣川の水系図を示す。御笠川は宝満山に発し、太宰府市、大野城市、福岡市を南北に流れ、博多湾に注ぐ。全長は22km、流域面積 $90\text{km}^2$ であり、典型的な中級河川と言える。釣川は宗像市吉留の山地に水源を有し、玄界灘に流入する。釣川は総延長16km、流域面積 $99\text{km}^2$ であり、宗像市の主水源として利用されている。両河川の共通点として、二級河川であること、終末処理場を有していることが挙げられる。

採水地点は、図1と2に示すように、御笠川5地点、釣川は7地点であり、環境基準点を基本として水系全体を把握できるように選択した。河川水質に大きな影響を及ぼすと予想される終末処理場は、両河川とも本流にあり、御笠川ではm-4のすぐ上流、釣川ではt-5とt-6の間、t-5のやや下流に位置する。流域の土地利

<sup>1</sup>九州大学大学院生物資源環境科学府植物資源科学専攻植物生産科学講座土壌学研究室

<sup>1</sup>Laboratory of Soil Science, Division of Soil Science and Plant Production, Department of Plant Resources, Graduate School of Bioresource and Bioenvironmental Sciences, Kyushu University

\*Corresponding author (E-mail: kegashi@agr.kyushu-u.ac.jp)

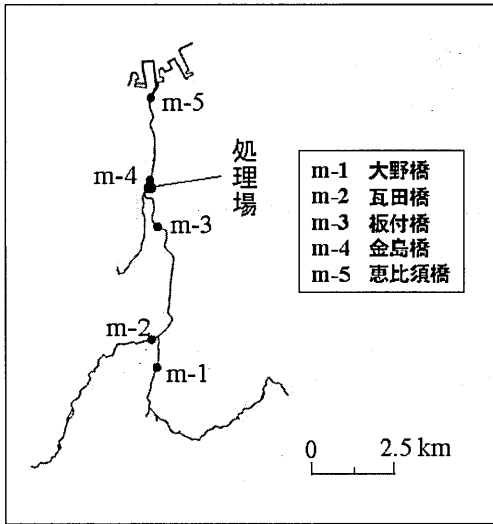


図1 水系と採水地点 (御笠川).

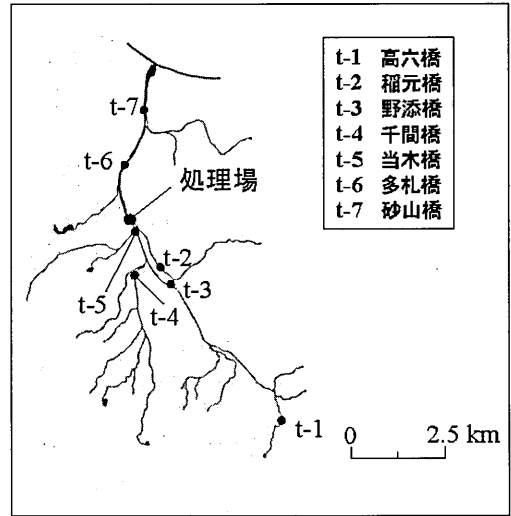


図2 水系と採水地点 (釣川).

用形態は、御笠川は上流から中流にかけて低密度市街地、下流域は高密度市街地と、ほぼ全域が市街地となっている。一方、釣川は、中流域に一部高密度市街地が見られる他は森林が多く分布する。加えて、それほど広域とは言えないけれども、河川周辺に農地が分布する。これらの情報は、土地利用図 (1/150,000土地利用・植生現況図 (土地保全図)「福岡県」(昭和62年))から読み取った。

## 2. 採水

本研究では詳細な硝酸汚染状況を調べることを目的としたため、採水は基本的に2週間おき、最低でも月2回の頻度で1年間実施した。採水は流心の表層部から、ポリエチレン製容器を用いて行った (半谷・小倉, 1995)。採水日は以下の通りである。

御笠川：

2002年 7/31, 8/9, 8/28, 9/12, 9/26, 10/10, 10/24, 11/8, 11/22, 11/29, 12/6, 12/13, 2003年 1/8, 1/17, 1/30, 2/12, 2/25, 3/13, 3/28, 4/10, 4/25, 5/9, 5/30, 6/12, 6/26, 7/10

釣川：

2002年12/20, 2003年 1/10, 1/24, 2/5, 2/25, 3/13, 3/28, 4/10, 4/25, 5/9, 5/30, 6/12, 6/26, 7/10, 7/28, 8/11, 8/28, 9/11, 9/25, 10/9, 10/23, 11/6, 11/21, 12/4

## 3. 硝酸イオン濃度測定

採水試料を0.45 μm メンブレンフィルターで吸引る過後、陰イオンクロマトグラフにより NO<sub>3</sub><sup>-</sup>イオン濃度を測定した。測定は、採水から24時間以内に行った。

## 4. 硝酸性窒素の δ<sup>15</sup>N の測定

δ<sup>15</sup>N は窒素安定同位体 <sup>15</sup>N の存在比であり、次式で表される。

$$\delta^{15}\text{N} = \left[ \frac{R_{\text{(試料)}}}{R_{\text{(標準)}}} - 1 \right] \times 1000 (\%)$$

標準物質 = 大気 N<sub>2</sub>, R = <sup>15</sup>N/<sup>14</sup>N

窒素化合物は同化、硝化、窒素固定、分解、還元など様々な反応を通して他の形態へ変換される。その際、それぞれの反応系で窒素同位体の分別係数が違うため、窒素源によって δ<sup>15</sup>N 値に異なる分布が見られる。従って、既知の δ<sup>15</sup>N 分布との対比により、窒素源の推定を試みることができる。

δ<sup>15</sup>N の測定は、m-1, m-4, t-3, t-4, t-7 の5地点から、2003年2月12日に採水した試料について1回のみ行った。採水試料の δ<sup>15</sup>N 測定には、安定同位体トレーサー用質量分析計を用いた。分析は、昭光通商株式会社に委託した。以下にその方法を示す。水試料 2L に 500 mg L<sup>-1</sup> NaOH 溶液を添加して pH を 10~11 に調整した後、ホットプレート上で 80℃ 以下に保ちながら 100 mL 位になるまで濃縮した。次に、約 0.7

mol L<sup>-1</sup>HCl 溶液を用いて pH を6.5~7.0に調整し、同様の条件で40mL 位になるまで濃縮した。この溶液をロータリー・エバポレーターで2mL 程度に濃縮した後、安定同位体トレーサー用質量分析計に供試した。

結果および考察

1. 硝酸性窒素のモニタリング

図3に、御笠川全採水地点の測定期間中の平均NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度を示す。図に示すように、m-3よりも上流の3地点では、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度は1mg L<sup>-1</sup>前後と低く、地点間の差も見られなかった。一方、m-4よりも下流の2地点は、m-1~m-3よりも明らかに高いNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度を示した。その濃度は飲料水水質基準の10mg L<sup>-1</sup>付近にあり、環境面から無視できないほど

の水質汚染が起きていると言える。m-4のすぐ上流に終末処理場からの放流口が開口していることから、m-4とm-5における高濃度の硝酸は終末処理場からの放流水によると考えられた。

図4に、m-1、m-3、m-4のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度の経時変化を示す。御笠川の上流に位置するm-1と中流に位置するm-3のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度は、年間を通していずれも1mg L<sup>-1</sup>程度で推移し、互いに類似した増減傾向を示した。一方、m-4のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度は1~14mg L<sup>-1</sup>の間で大きく変動し、不規則な増減を示した。このことは、m-4のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度が終末処理場からの放流水の影響を受けていることを示唆しており、濃度の変動は、終末処理場からの放流水の水量やNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度の変動によって引き起こされたと考えられる。加えて、

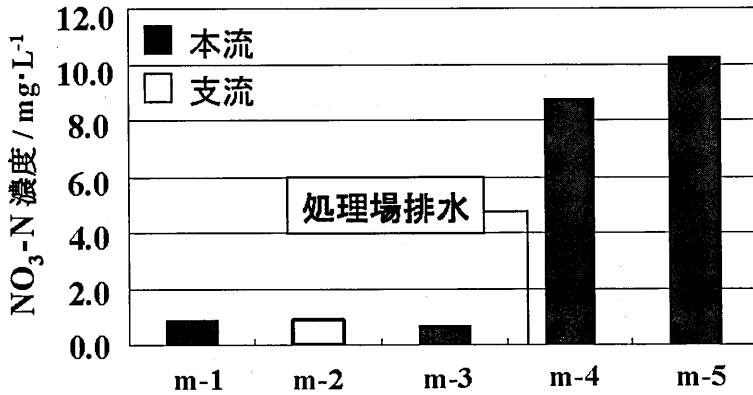


図3 各地点の平均硝酸態窒素濃度 (御笠川)。

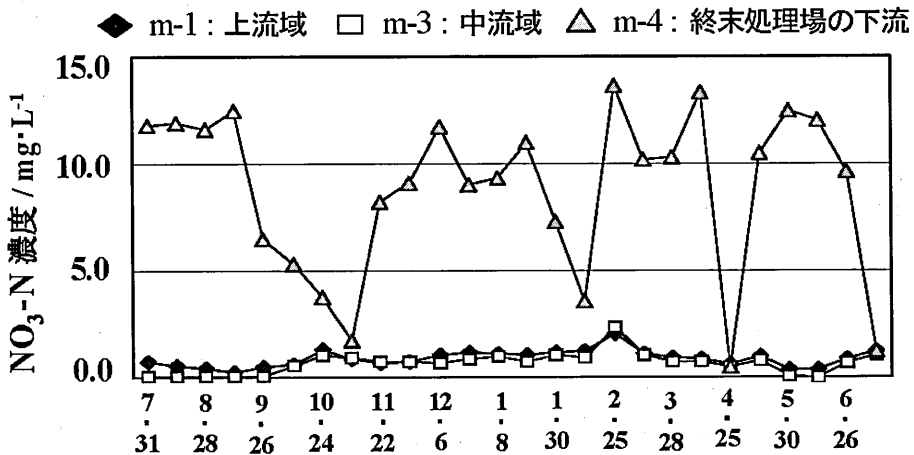


図4 硝酸態窒素濃度の経時変化 (御笠川)。

このような大きな経時変動は、年2回程度の測定では、河川の硝酸汚染状況を必ずしも的確には把握できないことを示唆する。

図5は、釣川の全採水地点について、測定期間中の平均  $\text{NO}_3^-$ -N 濃度を示す。最も高い濃度を示したのは、終末処理場の下流に位置する t-6 であった。このことから、御笠川同様、釣川においても終末処理場が硝酸汚染の要因となっていると考えられる。しかし、その濃度は  $3 \text{ mg L}^{-1}$  以下で、御笠川の終末処理場下流の地点に比べて低かった。釣川は宗像市の主水源となっており、取水口が終末処理場の放流口よりも下流にあるため、宗像終末処理場では硝化脱窒プロセスを導入した高度廃水処理を行っている。このことから、釣川では、終末処理場からの放流水が硝酸汚染に与え

る影響が小さかったと考えられる。t-6よりも下流に位置する t-7 では、 $\text{NO}_3^-$ -N 濃度が t-6 の半分程度であった。t-7 は河口に位置し、海水による希釈効果と考えられる。

図6は、それぞれ釣川の上流域、中流域、終末処理場下流に位置する t-1, t-3, t-6 の  $\text{NO}_3^-$ -N 濃度の経時変化を示す。t-1 と t-3 は互いに類似した濃度の増減傾向を示し、明確な季節変動は見られなかった。前述のように、釣川では流域に農地が見られるため、灌漑期間中の  $\text{NO}_3^-$ -N 濃度増加が予測された。結果は予測に反したのとなり、釣川では農地からの硝酸流出が河川水質に与える負荷は小さいと言える。終末処理場の下流に位置する t-6 では、 $\text{NO}_3^-$ -N がより高濃度で推移し、不規則な増減を示した。このことは、

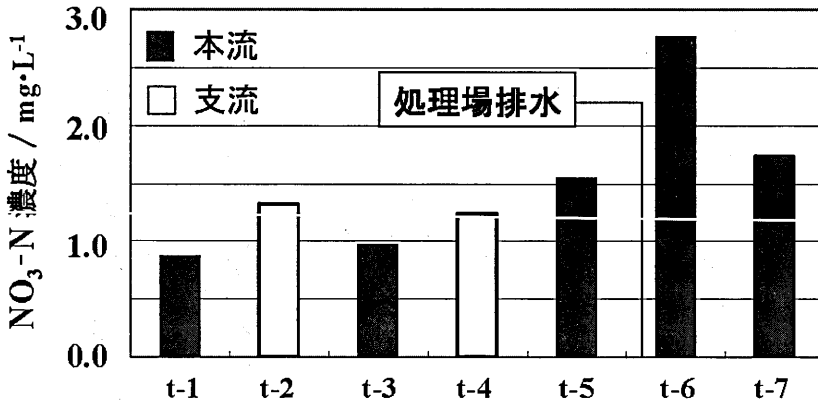


図5 各地点の平均硝酸態窒素濃度 (釣川)。

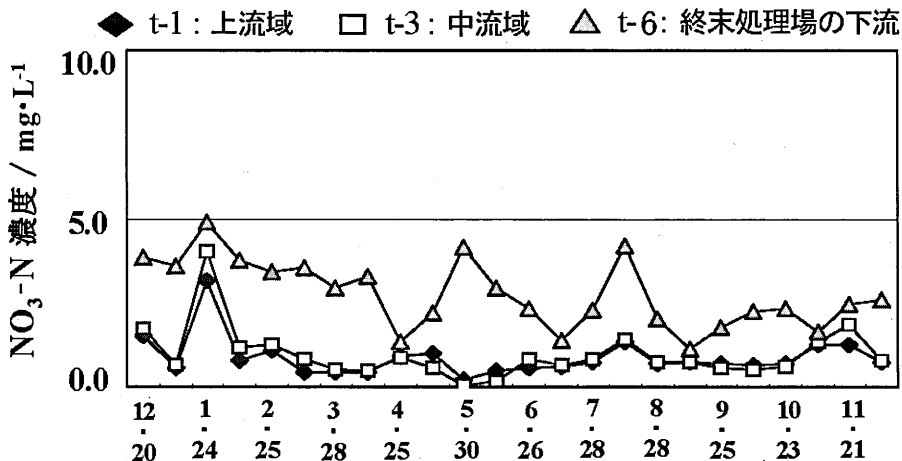


図6 硝酸態窒素濃度の経時変化 (釣川)。

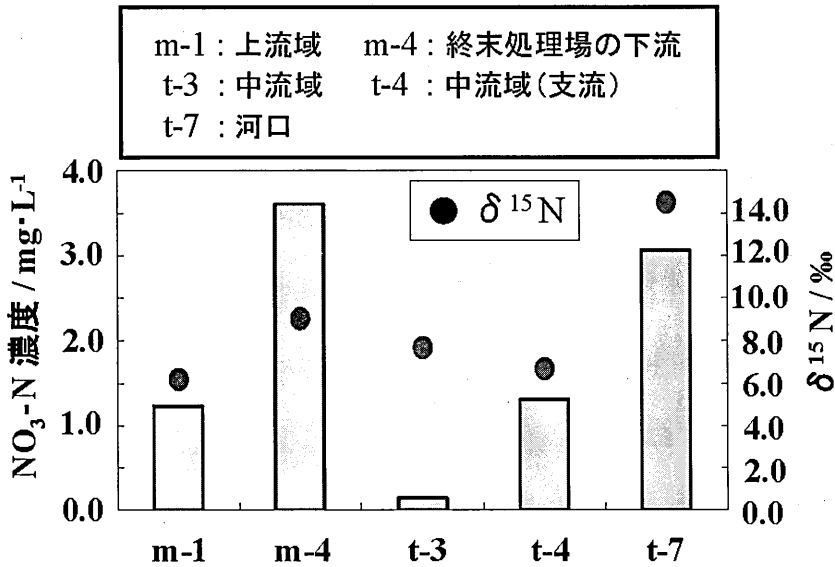


図7 各地点の硝酸態窒素の濃度とδ<sup>15</sup>N値.

t-6では、終末処理場からの放流水が多少とも硝酸汚染の要因となっているという考えを支持する。

### 2. 硝酸性窒素のδ<sup>15</sup>N

図7に、硝酸性窒素のδ<sup>15</sup>Nの測定結果を示す。左側の軸はNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度を、右側の軸はδ<sup>15</sup>N値を表す。汚染源についての推定を行うため、起源別窒素の同位体比の分布を表1に示す(熊澤ら, 2000)。δ<sup>15</sup>Nの分布値は地域によって変動し易く、そのため絶対値としてよりも、分布の傾向の比較として掲載する。

御笠川について、上流に位置するm-1では6.2%のδ<sup>15</sup>Nを示したのに対し、終末処理場下流に位置するm-4では9.0%と、より高い値が見られた。この結果は、m-4の硝酸汚染が終末処理場からの放流水の影響を受けていることを示唆する。しかし、9.0%は表1に示した下水由来の同位体比の分布値と比べるとやや低い。このことは、m-4の採水試料のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度が3.6mg L<sup>-1</sup>と、平均濃度の半分以下だったことも多少影響していると思われる。しかしながら、表1に示した同位体比はあくまでも目安であり、m-1とm-4のδ<sup>15</sup>N値の比較から、m-4の硝酸性窒素は、終末処理場からの放流水に起源していると考えられる。

釣川についてみると、t-3とt-4はそれぞれ7.6、6.7%のδ<sup>15</sup>Nを示したのに対し、終末処理場下流に位置するt-7では14.5%と、明らかに高い値となっている。

表1 窒素同位体比δ<sup>15</sup>Nの分布.

|          |              |
|----------|--------------|
| 雨水由来     | : 0%付近       |
| 生物学的窒素固定 | : 0%付近       |
| 化学肥料由来   | : -5~0%程度    |
| 土壌有機物    | : +6~+8%程度   |
| 下水由来     | : +15~+20%程度 |

t-7の14.5%は、表1に示す下水由来の同位体比とほぼ同じレベルにあり、t-7の硝酸性窒素は終末処理場からの放流水に起源したことが推定された。

### ま と め

NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度のモニタリングから、御笠川、釣川ともに、終末処理場からの放流水が硝酸汚染の主要因となっていることが推測された。このことは、δ<sup>15</sup>Nの測定からも裏付けられた。しかし、硝酸汚染の程度は両河川で異なり、御笠川がより深刻な汚染状況にあることが認められた。御笠川では、年間平均濃度が飲料水水質基準を上回った地点があり、御笠川浄化センターの廃水処理方法については、改善がなされる必要があると言える。一方、釣川に関しては、水質基準を超えた地点は見られず、このことは、宗像終末処理場で高度廃水処理が行われていることを反映したものと考え

られる。

## 文 献

半谷高久・小倉紀雄 1995 水質調査法  
熊澤喜久雄 1999 地下水の硝酸態窒素汚染の現況。

日本土壌肥科学雑誌, 70: 207-213  
熊澤喜久雄・山本洋司・朴光来・田村幸美 2000 多  
摩川流域河川における硝酸態窒素濃度および  
 $\delta^{15}\text{N}$  値について. 日本土壌肥科学雑誌, 71: 216-  
224

## Summary

The  $\text{NO}_3^-$ -N concentration of the Mikasa and Tsuru Rivers, both flowing in and around Fukuoka city and being the second-class river, was monitored every two weeks during one year: from July 2002 to July 2003 for the Mikasa River and from December 2002 to December 2003 for the Tsuru River. The present monitoring clearly indicated that discharge from the plant for final sewage treatment was a main source of the  $\text{NO}_3^-$ -N pollution of river water in both rivers. This indication was supported by the measurement of  $\delta^{15}\text{N}$ . However, the extent of pollution was more severe in the Mikasa River; the average annual concentration of  $\text{NO}_3^-$ -N was in the level of  $10\text{mg L}^{-1}$ , the WHO standard for drinking water, with a large temporal variation at the sites down the river from the plant for final sewage treatment, while the corresponding concentrations at the sites up the river from the plant was around  $1.0\text{mg L}^{-1}$ . In the Tsuru River, on the other hand, the average annual concentration of  $\text{NO}_3^-$ -N was below  $3.0\text{mg L}^{-1}$  at the site just down the river from the plant for final sewage treatment. These differences in the extent of  $\text{NO}_3^-$ -N pollution of river water between the Mikasa and Tsuru Rivers can be ascribed to the differences between the established plants of the both rivers in the capability of sewage treatment.