

土地利用形態が影響を及ぼす流域の窒素フラックスの機構解明とその制御に関する研究

研究期間（平成12年度～14年度）

松尾宏*, 笹尾敦子*, 永淵義孝*, 馬場義輝*, 石橋融子*, 平田健正**, 西川雅高***

要 旨

硝酸性・亜硝酸性窒素の環境基準値達成の方策として、発生源（面源）に対する行政指導を行う場合、窒素施肥量の適量の判断基準、指導後の効果、環境修復のための対策などについて科学的データが必要とされる。本研究は、①日韓8自治体で共同して、各試験地の水収支およびそれを基に計算される窒素収支を推計することによって窒素流動の調査・解析手法の検討を行い、利用可能なことが示された。②浄化装置（電気透析装置＋生物脱窒装置の組み合わせ）を硝酸性窒素汚染井戸に設置して1年間浄化システム技術実証試験（最大処理水量12m³/日）を行い、除去性能について検討した結果、硝酸性窒素42mg/lの処理原水は8.0mg/lまで低下できた。試験井戸の集水域で地下浸透する年窒素負荷量の12%が除去できることが示された。建設費、運転費、冬季の脱窒装置の機能低下などの問題点があることがわかった。③これらの問題点の対応方法として、電解装置を試作し、電解法による硝酸性窒素の除去・濃縮実験を行った結果、硝酸性窒素44mg/lの原水が20V印加電圧1-2時間の通電で、除去・濃縮が可能なが示された。

〔キーワード：硝酸性窒素，解析手法，浄化装置，電気透析，生物脱窒，電解装置〕

1 はじめに

1999年に硝酸性・亜硝酸性窒素が環境基準項目として追加指定され、基準値達成の方策として、発生源に対する行政指導が行われつつある。面源由来の窒素負荷量の削減が重要でかつ難しいことから、行政指導を行う場合、窒素施肥量の適量の判断基準、指導後の効果、環境修復のための対策などについて科学的データが必要とされる。本研究は、①東アジアモンスーン地帯での窒素流動の調査・解析手法の検討（日韓海峡沿岸環境技術交流事業）②神鋼パンテック社浄化装置（電気透析装置＋生物脱窒装置の組み合わせ）を硝酸性窒素汚染井戸に設置して浄化システム技術実証試験を行い、除去性能と問題点について検討（環境省委託）③国立環境研究所などと共同して窒素流出負荷量の大きい畑地において酸性化に伴って流動する物質の機構解明および畑地での硝酸性窒素の除去・再利用システムの構築（地域密着型環境研究）などを目標とするものである。

2 研究方法

①2000年－2001年に山口県・九州北部3県（福岡県、佐賀県、長崎県）と韓国4自治体（釜山廣域市、慶尚南道、全羅南道、済州道）で同一時期に並行して、面源の窒素流動の調査を行い、水収支および窒素収支を推計した。各試験地の気象、地質、植生などを比較し、窒素流動特性を把握した。試験地は果樹園、茶園、水田、森林などを集水域とする流域を対象とした。福岡県は茶園を試験地とした。概ね1水年に20回以上の調査を実施し、流量および水質測定（全窒素などの21項目）を行った。試験地近傍の気象測定局の降水量、気温のデータを基に蒸発散量（ソーンスウェイト法）、地下浸透量を算出し、水収支を推計した。窒素収支について、排出負荷量はLQ回帰式、降水負荷量は降水量と窒素濃度の積、地下浸透窒素負荷量は推計地下浸透水量と実測平均窒素濃度の積、植物への窒素吸収量、施肥量は実測値あるいは文献値に依った。生活系排水および畜産系排水などのある試験地では原単位を用いて窒素負荷量を計算した。

*福岡県保健環境研究所

（〒818-0135 福岡県太宰府市大字向佐野39）

**和歌山大学

（〒640-8510 和歌山県和歌山市栄谷930）

***独立行政法人国立環境研究所

（〒305-0053 茨城県つくば市小野川16-2）

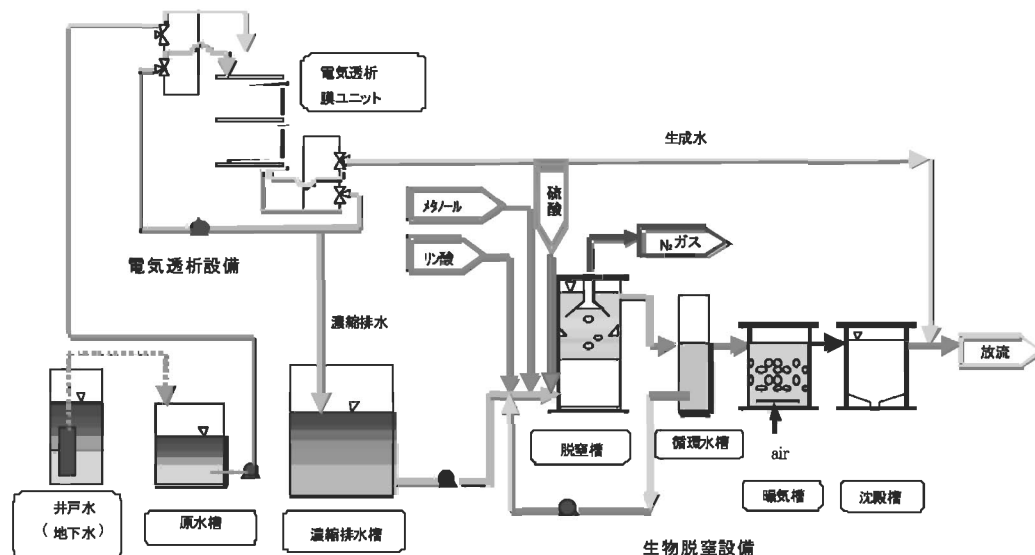


図1 浄化実証実験装置

②硝酸性窒素汚染井戸周辺に、神鋼パントック社の浄化実証実験装置（図1）を設置して1年間運転を行った。汚染井戸から約10m³/日の地下水を貯水タンクに汲み上げ、電気透析装置で処理水約9m³/日と濃縮排水約1m³/日が発生した。濃縮排水はメタノールおよびリン酸を添加した生物脱窒処理槽に送られ、過剰のメタノールは曝気槽で処理した後、沈殿槽の越流水を放流した。試験井戸の集水面積は4.4ha、そのうち畑地面積が80%を占めた。浄化システムの排水は溜池（面積：2500m²、水深2.3m）に放流した。試験地の水収支および窒素収支を調査し、試験地における浄化システムの評価を行った。

③電解槽（有効容量1.5l）、直流安定化電源、陰極および陽極の電極（チタン板に白金をコーティングしたもの）を用い、多孔質膜（ゴアテック社 SGT-100T100-1）

を隔膜とする電解装置（図2）を試作した。供試試料は硝酸性窒素汚染地下水（硝酸性窒素44mg/l）を用い、電極と隔膜間の距離を10mm に設定し、スターラーで攪拌しながら、室温（20℃）で0-20V の印加電圧で5時間通電した。除去・濃縮条件、処理後の液性などを検討した。

3 結果及び考察

①日韓海峡沿岸環境技術交流事業

福岡県の試験地の調査結果は次のとおりであった。水収支については、年降水量2096mm に対して、69.8%が試験地から湧水および表面流出水として流出し、6.3%が地下浸透していると推計された。

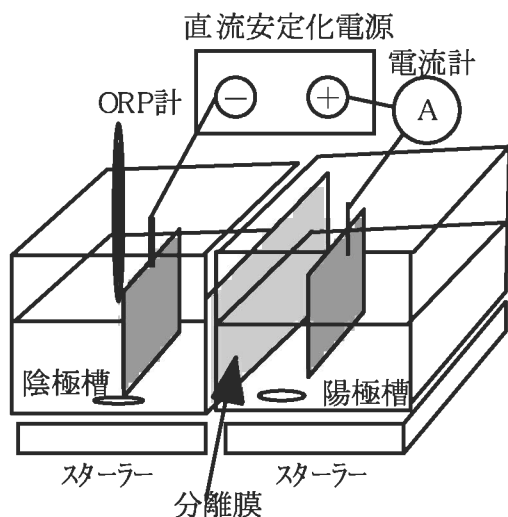


図2 電解装置

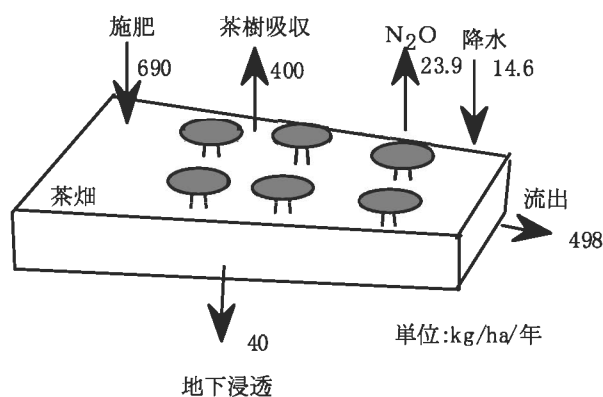


図3 試験地（茶畑）の窒素収支

水収支を基に窒素収支を算定すると、1ha あたりの窒素収支（図3）は、窒素施肥量690kg に対して72%が表面・中間流出し、5.8%が深層に地下浸透しているものと推定された。窒素負荷量の収支を（支出/収入）で表すと1.37となり、支出がかなり高くなった。しかし、全8試験

地で0.92-1.37の範囲を示し、窒素フローの解析手法として利用できるものと考えられた。また、各試験地の窒素施肥量と作物に吸収されなかった窒素溶脱量との間には相関 ($R^2=0.9863$ $P<0.01$) が認められた。このことは、窒素施肥量が大きくなるほど溶脱量が大きくなることを示し、適正施肥量の重要性も示唆された。本調査からは地下浸透量と地質との関連性が明確にできず、今後検討すべき課題となった。

②浄化システム技術実証試験

試験井戸の周辺はボーリングなどによる直接的な地下水の水質測定による評価が困難であったため、集水域の窒素収支から浄化システムの導入効果を評価した。畑地での硝酸性窒素除去対策として、浄化システムを稼動した結果 (図4)、第1調査年の実績窒素除去量は96kg/年となり、これを茶畑1haに換算すると27kg/ha/年となった。したがって、茶畑での平均窒素施肥量620kg/ha/年と作物への吸収量400kg/ha/年の差、220kg/ha/年が畑地から流出することになる。浄化システムで除去できた窒素量27kg/ha/年は、畑地からの年窒素流出量の12%に相当すると推計された。試験地の硝酸性窒素対策をこの浄化システムで行う場合、試験プラントの約8倍の処理能力の装置が必要と考えられた。

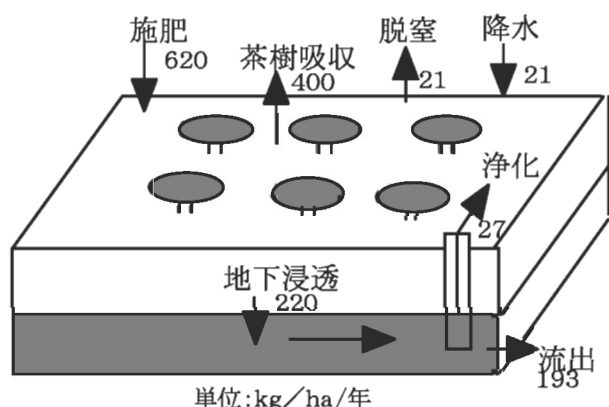


図4 試験井戸集水域の窒素収支

実証試験において、電気透析装置は膜洗浄などの管理を適切に行うことにより、当初の設定能力が安定的に得られた。一方、生物脱窒装置は、気温の低下に伴って処理水の水温も低下し、冬季の脱窒量が夏季の1/3-1/4程度まで低下した。その結果、装置全体の除去効率が生物脱窒装置の水温の影響を大きく受けることになり、この点の改善が今後必要なことが示された。

また、電気透析装置で、硝酸性窒素と共にカルシウムイオンなども濃縮され生物脱窒槽内で、炭酸カルシウムの沈殿が生成することによって、生物脱窒槽の性能を低下させる問題が生じた。これは、硫酸でpHをコントロ

ールすることにより改善することができた。

浄化システムの実績処理水量 (11.1m³/日) 当たりの建設費が778万円/m³、運転費が312円/m³と試算された。運転費には、電力費、薬品費 (メタノール、リン酸、硫酸)、電気透析膜の洗浄費用、生物脱窒槽余剰汚泥処分費などを含んでいる。年間の運転費を茶畑1haに換算すると、36万円/ha/年となり、かなり高額になった。

除去した窒素を再度、肥料として利用するシステムが可能となれば、運転費が肥料代と相殺できることから、経営全体から見たランニングコストは軽減できると考えられた。

③地域密着型環境研究

水の電気分解によって生ずる強酸性電解水は殺菌作用があることから、農薬を減らす目的から農家で電解装置を導入する事例もみられる。電解装置で硝酸性窒素の分離・濃縮が可能になれば、実用性と普及面で期待できる。

多孔質膜を用いた電解装置による汚染地下水の硝酸性窒素の除去・濃縮に関する実験を行った結果 (図5, 6)、加電圧20V、通電1-2時間の条件で環境基準値まで低下することがわかった。2時間の通電で、本実験装置の陰極槽の硝酸性窒素濃度は44mg/l から 1.7mg/l まで減少し、陽極槽でほぼ2倍に濃縮された。

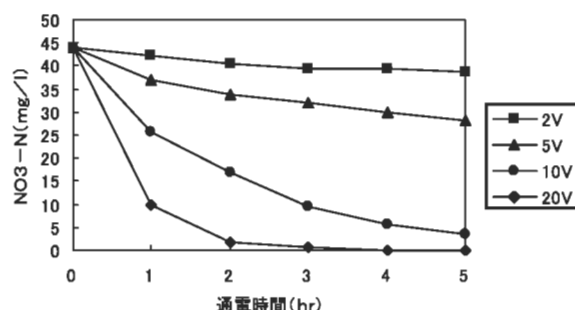


図5 陰極槽の硝酸性窒素の時系列変化

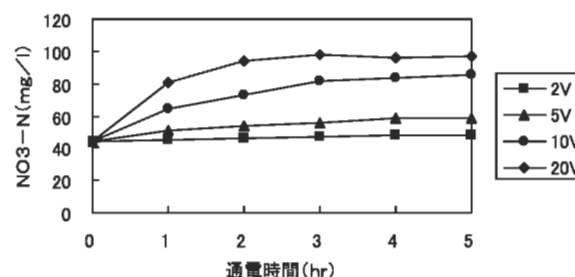


図6 陽極槽の硝酸性窒素の時系列変化

陽極槽のpH (図7) は2.2まで低下し、強酸性となる。この酸性電解水が殺菌作用を有することから、農業で使

用されているが、同時に濃縮された硝酸性窒素を散布することになり、窒素施肥量は減量できることになる。

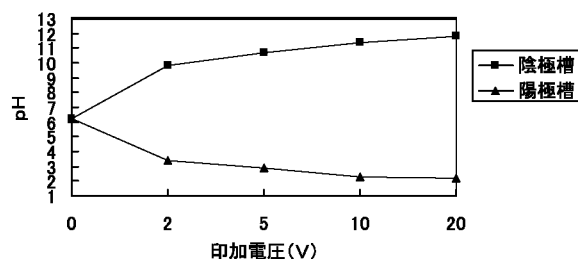
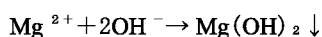
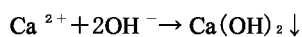


図7 印加電圧と pH の関係 (5時間通電)

電解装置では、陽極槽の酸化還元電位が上昇し、陰極槽で低下する。酸化還元電位の低下によって、硝酸イオンが亜硝酸イオン、アンモニウムイオンへの還元が起こる可能性がある。陰極槽では、5V 以上になると2時間の通電時間で $-800 \sim -1000 \text{ mV}$ の還元的状態に達した。実験では、このような強い還元的条件下でも、硝酸イオンの亜硝酸イオン、アンモニウムイオンへの還元反応は観察されなかった。

陰極槽では白色の沈殿物が生成した。陰極槽の液性が強アルカリ性になるため次ような反応が生じているものと考えられる。



陰極槽の強アルカリ性水は酸性化した茶畑湧水の中和あるいは好アルカリ性の植物の栽培に利用できるものと考えられる。今後の検討課題として、強酸性の硝酸性窒素濃縮排水の液肥としての利用方法など農業面での実証的な検討が必要である。

4 まとめ

①日韓8自治体で共同して、各試験地の水収支およびそれを基に計算される窒素収支を推計することによって窒素流動の調査・解析手法の検討を行い、利用可能ことが示された。

②浄化装置(電気透析装置+生物脱窒装置の組み合わせ)を硝酸性窒素汚染井戸に設置して1年間浄化システム技術実証試験(最大処理水量 $12 \text{ m}^3/\text{日}$)を行い、除去性能について検討した結果、硝酸性窒素 42 mg/l の処理原水は 8.0 mg/l まで低下できた。試験井戸の集水域で地下浸透する年窒素負荷量の12%が除去できることが示された。建設費、運転費、冬季の脱窒装置の機能低下などの

問題点があることがわかった。

③これらの問題点の対応方法として、電解装置を試作し、電解法による硝酸性窒素の除去・濃縮実験を行った結果、硝酸性窒素 44 mg/l の原水が 20 V 印加電圧1-2時間の通電で、除去・濃縮が可能ことが示された。

今後農業における実証的検討が必要である。

5 行政的意義、貢献

窒素フラックスの機構解明の研究成果は、農業における施肥設計に利用できる。また、電気透析装置の実証試験、電解装置などの基礎実験の結果は、将来に向けて新たな施肥技術の進展に繋がるものと考えられる。

今後環境保全型農業を進めるうえで必要な情報提供が行えた。

文 献

- 1) C. W. Thornthwaite : An approach toward a rational classification of climate, Geog. Rev., 38, 55-94 (1948).
- 2) 菅原正巳 : 流出解析法, 共立出版(株), 東京 (1973).
- 3) 松尾宏他 : 福岡県における降下物負荷量の変動特性, 用水と廃水, 37, 12, 5-10 (1995).
- 4) 烏山光昭 : 茶園における肥沃度・肥培管理, 環境保全型農業を巡る土壌肥沃管理, 日本土壌協会, 59-64 (1966)
- 5) 馬場義輝他 : 酸性化した茶畑における N_2O の生成, 第6回地下水・土壌汚染とその防止に関する研究集会講演集, 255-258 (1998).
- 6) ウォーター研究会 : 強酸性電解水の基礎知識, オーム社, 東京 (1997).