

2. 窒素の循環

(1) 窒素の循環推測値

地球上の窒素の循環については、これまで多くの研究者^{4,5)}により量的に評価されているが、Gallowayほか⁶⁾は1959年のErikssonから2013年のFowlerほか⁷⁾までの9つの推定を比較している。推測値には依然として大きな誤差が伴うが、最新の値⁷⁾では、陸上での窒素固定について、自然界で58TgN/年、耕地で60 TgN/年、また海洋では140TgN/年となっている(Tg=10¹²g=10⁶t(100万トン))。

(2) 反応性の高い窒素の影響

これに対し、この50年で急増しているハーバー・ボシュ法による人工的な窒素固定は120 TgN/年となり、陸上での固定量と同等で、陸上では反応性の高い窒素が二倍になったことを意味している。

一方、脱窒は、陸上で109 TgN/年、海洋で100-280TgN/年となっている。大量に環境へもたらされた反応性の高い窒素は、いろいろな経路(システム)を、窒素の形態を多様に変化させながら循環し(図1)、窒素カスケード(nitrogen cascade)²⁾を形成している。ただし、単に循環しているのでなく、その量を増やしながら循環している加速的循環と表現するのが正しいかもしれない。

地球規模での循環量の詳細については、Fowlerほか⁷⁾などを参照していただきたい。また、循環量の増加に伴うひずみは、海洋での蓄積に来ており、国際的な対応の必要性が指摘されている。地球の温暖化が騒がれているが、地球の人為的壊変として最も大きな影響は今後も続くこの窒素問題とってよいかもしれない。

(3) EUの窒素収支

なお、2011年にSuttonほか⁸⁾の編集による「The European Nitrogen Assessment」(ヨーロッパにおける窒素アセスメント)が出版され、インターネットでダウンロードできるようになっている。副題となっているSource, Effects and Policy Perspectives(窒素源、影響と政策的展望)にあるように、EUを中心に窒素問題に多面的、総合的にアプローチしており、参考となる。

水域への環境影響など現実の問題を考えるためには、地球規模より狭い国や地域、流域、あるいは圃場などのレベルで窒素の収支、流れを把握する必要がある。たとえば、EUについては、前述したSuttonほかの報告⁸⁾に詳細に記載されている。

(4) 日本における窒素収支

日本については、国レベル⁹⁾、県レベル¹⁰⁾、流域レベル¹¹⁾で数多くの調査事例がある。圃場レベルではさらに多くの事例¹²⁾がみられる。この中で、岩手県の事例¹⁰⁾は、県、地区、流域、圃場レベルでの窒素収支が示されている。

日本の窒素収支については、農業環境技術研究所¹³⁾が食料生産・消費を通じた窒素の循環に基づいて、環境への窒素の流出による水質影響を推定するモデル(窒素循環モデル)を作成している。この詳細はShindoほか¹⁴⁾に英文であるがとりまとめられている。

現在、日本の国土への窒素の流入量は約200万トンN/年(2TgN/年)でここ数十年ほぼ一定である。1980年代後半が流入量、流出量のピークで、食料・飼料の輸入、肥料の投入量が主要であるが、最近の後

者が減少し、前者が大きな部分を占めるようになっている。なお、2005年での作物・飼料輸入量は68万トンN、施肥量は55万トンNで、食料消費量は132万トンNである。そして環境(地下水及び河川)への負荷量は84万トンNと見積もられ、地下水の汚染、河川や湖沼、さらには海域の富栄養化を引き起こしている。

以上の収支は、窒素の全体的な流れを把握することはできるが、時空間的な偏り、ひずみを見ることはできない。たとえば、日本全体で家畜排せつ物を考えると、面積的には堆肥として全量を還元すること(その分の化学肥料の削減)が可能となる算定ができる¹⁵⁾が、実際には排せつ物を大量に発生する地域は限られており、輸送等の問題を考えると堆肥として供給可能な地域が限られ、その結果として供給量も限られ、何らかの処理が必要となるという現実がある。

したがって、どこで、どの程度の環境影響が発生するのかなどを具体的に考えるには、集中系での収支も重要であるが、分布系での窒素の流れ・動態の理解・認識が必要となるのは言うまでもない。

3. 窒素に関する環境基準

(1) 水質汚濁に関する環境基準

ここで、窒素に関する環境基準を簡単に整理してみる。なお、定義や数値の記載には、日本水環境学会編集「日本の水環境行政改訂版」¹⁶⁾、環境情報センターのEIC ネット¹⁷⁾などの情報を利用している。

水質汚濁に関する環境基準には、人の健康を保護するための環境基準(健康項

目)と生活環境の保全に関する環境基準(生活環境項目)があり、前者は人の健康の保護のために定められる環境基準で、全国一律で公共用水域に適用される。生活環境項目は、生活環境を保全するうえで維持することが望ましい基準として設定された項目で、全窒素および全燐の基準は、植物性プランクトンの著しい増殖のおそれのある海域および湖沼について水域類型を指定して適用される。

窒素は健康項目と環境項目の両方に定められている唯一の物質である。人の健康を保護するための環境基準(健康項目)では水道水基準と同じ「硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素」で10mg/Lである。生活環境の保全に関する環境基準は、湖沼と海域で定められており、利用目的により類型化され、最も厳しい自然環境保全に該当する類型Iでは、全窒素で0.1mg/L以下、最も緩い水産3種・工業用水・農業用水・環境保全を目的とする類型Vでは1mg/L以下となっている。なお、公共用水域でない地下水の環境基準は、同様に「硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素」として10mg/Lが設定されている。

(2) 亜硝酸性窒素の有害性

有害化学物質として、硝酸性窒素は、胃酸の弱い乳幼児の胃などではその一部が還元されて、亜硝酸性窒素となる。この亜硝酸性窒素が赤血球のヘモグロビンを酸化し、メトヘモグロビンに変化する。このメトヘモグロビンは酸素と結合できず、血液中の酸素が欠乏して、チアノーゼ、メトヘモグロビン血症を発症する。海外では死亡事例などが報告されているが、日本では発症事例が一例報告¹⁸⁾され

ている。また、体内でアミンやアミドと反応して、発がん性が疑われているニトロソアミンを生成することも報告されている。一方、生活環境項目では、窒素は富栄養化を促進する栄養塩とみなされている。上述のように窒素は本来不足する元素であり、湖沼の基準では1mg/L以下であるが、近年源流域では窒素飽和¹⁹⁾と呼ばれる渓流水濃度が1mg/L以上の状況が出現し始めている。

(3) 健康項目と環境項目の基準値

以上のように、窒素は有害物質であると同時に、栄養塩ともみなされていて、それぞれの視点からのみそれらの基準値が設定されている。健康項目と環境項目の基準値には、10～100倍の違いがある。さらに、公共水域への排水基準(120mg/L)は環境での希釈効果を考慮してほぼ10倍に設定されているので、1000倍の違いが出ることになる。1000倍の濃度差は、環境中のシームレスな窒素の循環(カスケード)の中では調和的でなく、悪影響が出ることは避けられない。整合的に決められるべきコンセプトなり政策が必要であろう。

4. 窒素循環における地下水の役割

(1) 地下水の役割

地下水汚染を取り上げる前に、窒素循環における地下水、地下水帯の役割を考えてみる。

地下水は、地表にもたらされた降水が最終的に海域へ流出するまでのプロセスにおいて、地下・地中での水の流動、貯留、そして水質の変質に関与する水体である。地下水は溶脱した窒素の運搬者であり、

貯留の場でもある。地下水は容量が大きく、滞留時間も長く、汚染されると窒素の貯留庫となり、汚染濃度は他の水体に対し高い状態となる。生物の生存場でもあり、地質条件なども関係して反応場になっている。水体での反応は、硝化と脱窒が中心となるが、地下水帯内では好氣的、あるいは嫌氣的条件が形成され、急激な反応が起こるホットスポット²⁰⁾が見られる。とくに、地下水は河川、湖沼、湿地、海域などの水体と相互に水および物質の交換を行っている境界域で、このホットスポットが形成されることが多く、自然の浄化機能が働く場である。

水循環系を閉じた系と考えられる流域単位でとらえることが重要であると言われるが、それは水の流れを連続体として認識する必要性からである。すなわち、河川、湖沼、地下水、海域が相互に直接的・間接的に連結²¹⁾し、水そして物質を下流(水理ポテンシャルの低い方)へ輸送していく。その間に窒素の形態変化が周辺環境に応じて生起する。

(2) 硝酸性窒素の変化

硝酸イオン(NO_3^-)は、一般に酸化的、好氣的条件下の水中では、保存性物質として安定である。浅層地下水あるいは不圧地下水は、通常は好氣的で、窒素は硝酸イオンの形態で存在し、水とともに移動する。しかし、還元的、嫌氣的な条件下では、有機物(炭素)や硫化物などを電子供与体として、脱窒菌による脱窒により N_2 (一部は N_2O)へ変化する。日本の場合、有機物を電子供与体とする反応が多いが、北米やヨーロッパでは硫化物である場合も多い^{22,23)}。

5. 地下水汚染の実態と対策

(1) これまでの経緯

硝酸性・亜硝酸性窒素による地下水汚染問題は必ずしも新しい問題ではなく、すでに1960年代にはかなりの地域で深刻な状況になっていたものと推測される。たとえば、1969年に行われた茨城県の調査²⁴⁾では、全6,525地点のうち、36.4%が水道水基準値を超過していた。また、1982年に行われた環境庁の全国実態調査²⁵⁾でも都市域を中心とした全1,083地点の10.7%が超過していた。このような背景の中、茶や果樹・野菜栽培地帯で、また

畜産や養豚地域で、急激な濃度上昇が顕在化し、大きな問題となり、社会的にも大きな関心を持たれるようになった。筆者はこれまでにいくつかのレビュー^{26,27,28)}をしているので、実態、特徴などはそちらを参照していただきたい。

(2) 汚染の実態

硝酸性窒素による地下水汚染は全国的なスケールで発生しており、汚染原因として窒素肥料の溶脱、家畜排せつ物および生活排水の不適切な処理が主要なものとしてあげられている²⁹⁾。まさに、窒素循環、収支変化の弊害として発生している(図1)。

表1 環境省の概況調査²⁹⁾による硝酸性窒素による地下水汚染の超過率の経年変化

平成 年度	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18	19	20	21	22	23	24	合計
調査数(本)	1,685	1,945	1,918	2,654	3,897	3,374	4,167	4,017	4,207	4,288	4,260	4,122	4,193	4,232	3,830	3,895	3,361	3,238	3,240	66,523
超過数(本)	47	98	94	173	244	173	253	231	247	280	235	174	179	172	167	149	144	117	117	3,294
超過率(%)	2.8	5	4.9	6.5	6.3	5.1	6.1	5.8	5.9	6.5	5.5	4.2	4.3	4.1	4.4	3.8	4.3	3.6	3.6	5.0

(注) 平成6年度から10年度までは要監視項目として行われた測定結果をまとめたもので、超過率は現在の環境基準値を超過した数である。

表1は環境省が取りまとめている全国概況調査³⁰⁾の19年間の結果を集計したものである。硝酸性窒素が環境基準に設定された1999年(平成11年)前後は大体6%前後の超過率で推移しており、最近では3%後半となっている。全期間の平均は5.0%である。また都道府県別のデータが掲載されている平成12~24年度の累計の超過率の状況を図2に、農林水産省の耕地面積当たりの家畜排せつ物発生量分布¹⁵⁾を図3に示したが、環境省が掲載している市町村別の汚染状況(最近の5年間の超過数)の分布図³¹⁾や、さらにはShindoほかの窒素収支モデルより8km×8kmメッシュで推定した河川水の全窒素濃度の分

布図¹⁴⁾(河川水の推定であるが、地下水についても同じ収支結果の配分なので、状況は同じとの私信)を参照・比較すると汚染の状況をよりよく理解できる。

都道府県全体での値なので、同県内でも集中している地域がある場合など数値として現れないこともある。概況調査は都道府県(市町村)により調査方法、調査数などは異なるので、現状を必ずしも反映していないところもあるが、超過率の高い都道府県は、それぞれの状況を反映している。首都圏の畑地面積が広く、野菜など集約農業が行われている、また畜産業も盛んであるなど、汚染源となるような活動が盛んな群馬、茨城、千葉、埼

玉は高い超過率である。果樹栽培、茶栽培、あるいは畜産業などが盛んな地域を含む府県は概して高い。しかし、静岡県、宮崎県、鹿児島県などは他のデータから想定されるより低い結果となっている。九州の県が低い理由の一つとして、降水量が多いこと、逆に香川県が高いのは降水量が非常に少ないことも水系汚染の場

合では挙げられる³²⁾。

(3) 汚染源対策

汚染源の同定・判別は、汚染源対策や修復に不可欠であるが、係争でなければ、必ずしも明確に汚染源の位置や汚染原因者を示す必要はないと筆者は考えている。これまでの各種の調査研究により、窒素肥料の溶脱、家畜排せつ物の不適切な処

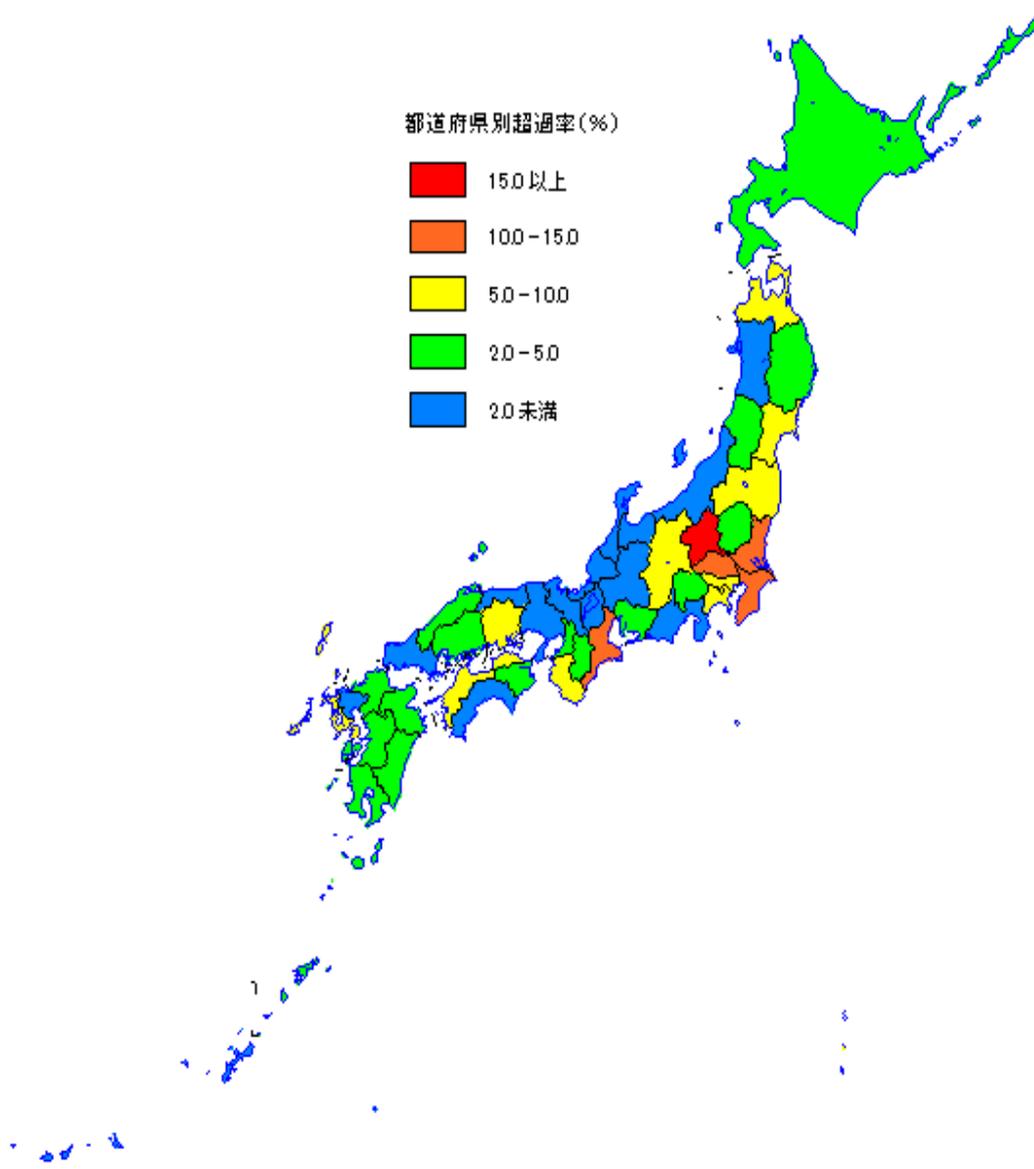


図2 概況調査に見る都道府県別の地下水の硝酸性窒素の超過率
(環境省の「地下水質測定結果」平成12~24年度のデータ³⁰⁾より筆者作成)

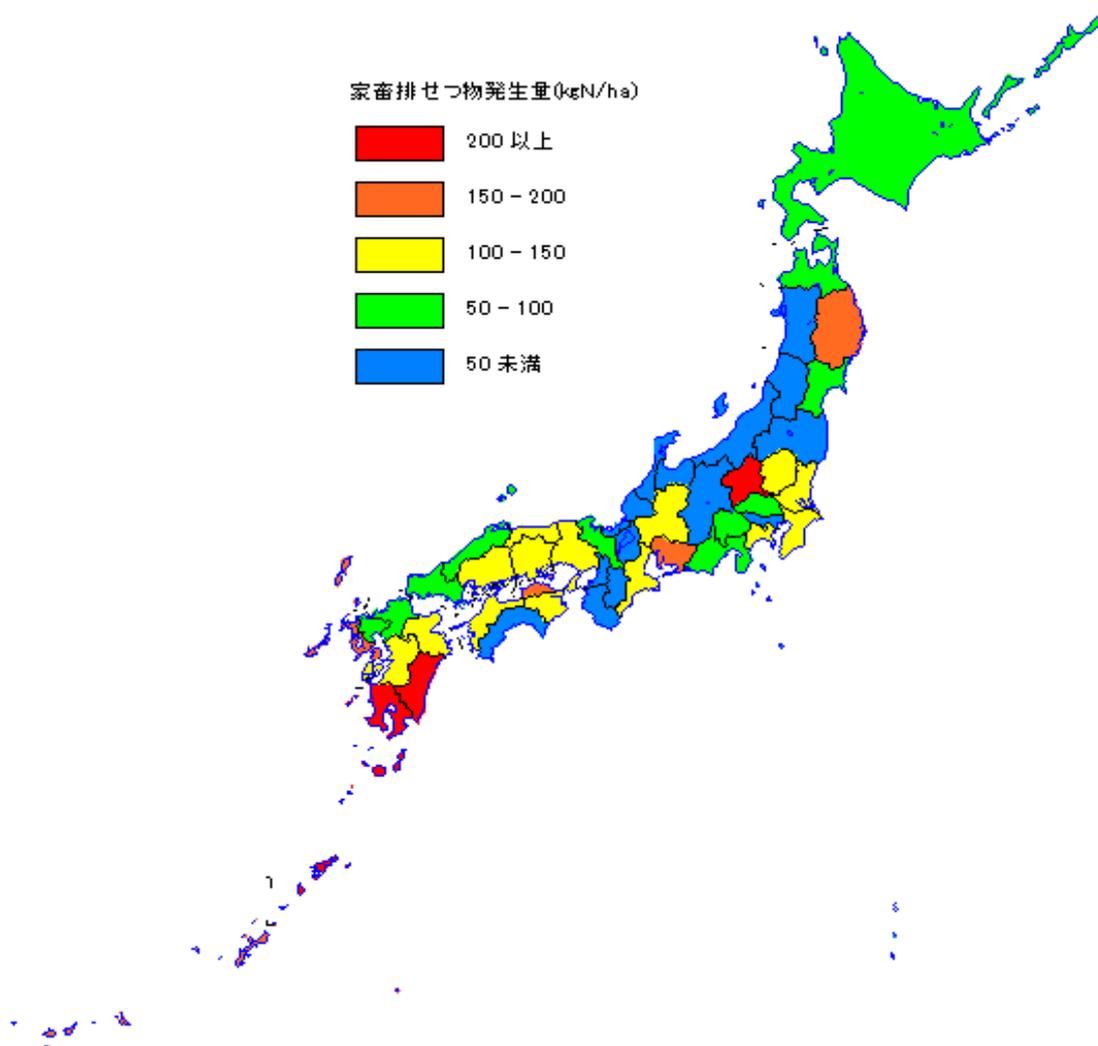


図3 耕地面積あたりの家畜排せつ物発生量（農林水産省のデータ¹⁵⁾より筆者作成）

理、生活排水の不適切な処理が主なる汚染源となることが明らかになっているので、汚染原因の判定は、周辺の土地利用状況と履歴、汚染地下水の水質組成の特徴、窒素（硫黄）などの安定同位体の値³³⁾などを検討することにより、かなりの確度で3つの主要汚染源の状況を判断・判別できると考えられる。そして多くの場合、汚染原因者は単独でないこと、汚染行為が面的であることが多い。畑作地域では、複数の農家や農業法人が同様な生

産活動を行っている。畜産についても、多くの畜産農家や企業が集積し、畑地還元なども周辺で行っており、地域として対応しなければ解決、あるいは改善できない状況がある。

硝酸性窒素による地下水汚染においての基本対策は未然防止、汚濁負荷源の削減であり、施肥基準の見直しや遵守、野積みや素掘りの禁止、高度処理合併浄化槽の導入・転換などが、産官学民一体となり、かなり推進されてきている。ただ

し、後述する負の遺産があること、土壌・地下水を介するため対策と効果の時間差が大きいこと、施肥基準を遵守しても溶脱を完全に止めることはできないという現実など、改善が急激に現れないかもしれないが、地道な努力が求められる。長年総合的な対策を行ない、成果を出している岐阜県各務ヶ原市での事例³⁴⁾はこのことを示している。しかし、地下水の硝酸性窒素濃度を基準値以下にすれば、他の水域への影響がなくなるとは言いがたく、窒素汚染問題の難しい点を認識する必要がある。

(4) 地下水の浄化処理技術

汚染した地下水を浄化・修復することは可能であろうか？これまで環境省³⁵⁾などが支援してきたプロジェクトで、いくつかの浄化技術が提案・試験されてきた。ほとんどの技術は水処理技術としては評価できるが、汚染した地下水を浄化する技術としては十分でないと思われる。すなわち、環境要素として面的に広がっている地下水汚染をいかに浄化するかという視点が足りないと思われる。コストなども含め、点的な浄化でなく、面的(立体的)な浄化技術を確立する必要があるからである。一部は、資金の都合から面的試験ができないという事情もあるが、少なくとも100m幅くらいの領域で浄化ができるようなコンセプトで検討されることを期待したい。

窒素の浄化は、生物化学的に硝酸イオンを窒素ガスへ変換する脱窒であるか、硝酸イオン(アンモニウムイオン)を植物に吸収してもらい、除去(収穫・伐採)するかである。前述のように地下水帯に

は、還元的な粘土層が存在すること、地下水の流出域、他の水域との境界域などは還元的な条件が成立することが多く、脱窒により硝酸イオンがほぼ完全に消失することもある³⁶⁾。いわゆる地形連鎖、あるいは土地利用-地形連鎖(畑地である台地と谷地である湿地・水田の組み合わせ)は、地形・地質を利用して、水と窒素の流れをうまく制御するシステムである。ただし、これは自然条件なので、どこにでもあるのではなく、偏在しているので、その場やゾーンを特定する必要がある。また、当然ながらそれを移動したり、簡単に創造することは基本的にできない。しかし、汚染地下水を創造した(人工)湿地や水田へ導水し、浄化を進めている事例はある。

植生による浄化(bioremediation)は、湖沼の沿岸帯や湿地で、ヨシや水草を利用して、窒素を吸収し、収穫・除去などで行われているが、地下水については、深根性の樹木を利用して、毛管水縁付近の汚染地下水を吸収させるなどが検討されている。樹木を利用する最大の利点は安価にできることであるが、汚染地域の下流側に樹木帯をつくる土地が必要である。樹種としては成長が早く、深根性のユーカリは筆者らの調査では有望である³⁷⁾。

6. 地下水汚染に関わる課題

今後、地下水汚染を改善していくために、次の3つの課題は、検討あるいは解決しておかなくてはならないと考えている。

(1) 土壌中での窒素の蓄積

一つ目は、土壌中の窒素の蓄積、すなわち溶脱につながる窒素の土壌中での蓄積を定量的に評価することが、時間スケールを導入して防止対策などを実効的に行うために必要である。農学関係の分野では、作土層など表層1 m深くらいまでの窒素収支の調査研究¹²⁾が数多くなされているが、数m以深の地下水面までの蓄積量を評価した例は少ない。筆者らが調査した埼玉県入間市の茶畑の例³⁸⁾では、表層より12mのローム層に1,000kg/10aの硝酸性窒素が蓄積していた。茶畑での地下水の溶脱量は36kg/10aであり、土壌中には30年分あまりの窒素量が蓄積していることになる。ちなみに、17年間無施肥であった同地区の栗林は、蓄積量が110kg/10a、溶脱量は1.1kg/10aであった。このように長年の農業活動などの結果は、土壌中あるいは地下水質に履歴として残っており、単に施肥量を削減するだけでは、短期間で改善を期待することができないケースもある。全国的なレベルでの実態の把握が必要であり、いずれ必要となる窒素の土壌環境基準の設定のための基礎情報にもなると考えられる。

(2) 家畜排せつ物

二つ目は負の遺産としての素掘り処理跡の除去である。「家畜排せつ物の管理の適正化及び利用の促進に関する法律」(家畜排せつ物法)が成立する1999年以前は、家畜排せつ物発生量の10%が、野積み・素掘りなどで不適切に処理され、法律施行後は大きく改善され、一定規模以上の施設では、適切に処理されるようになった³¹⁾。

しかし、これまでに行われた素掘り跡

は基本的に存続しており、素掘りが流域の硝酸性窒素濃度に大きな影響を与えていること³⁹⁾、また筆者らの調査⁴⁰⁾のように小さな素掘りでも使用埋設後20年を経ても大きな汚染源となっていることを考えると何らかの対策を行う必要がある。農林水産省³¹⁾によると、1999年時点で約900万トンの家畜排せつ物が野積み・素掘りで処理されていたとのことであるので、その半分が素掘りとしても、それまでの数千万トンが依然として地中に蓄積していることになり、大いなる負の遺産である。小規模な素掘り跡については、埋設物の掘削除去が最も効果的で、経済的であると筆者は考えている。できれば、掘削したものを廃棄物として処理をするのではなく、堆肥として利用できれば、処理も容易になる。

(3) 浄化槽

負の遺産はもう一つあり、浄化槽である。浄化槽は、下水道未整備地区のトイレの水洗化を促進するため導入された。し尿のみを処理する単独浄化槽はBOD処理を目的にしており、窒素やリンの処理は想定されていなかった。単独浄化槽は2001年4月1日以降は新設が禁止され、既設単独浄化槽の合併浄化槽への転換の努力が求められている。

現在(平成24年度末)でも450万基あまりの単独浄化槽が存在し⁴¹⁾、1基の使用人数を1.4人、窒素排出原単位9g/人/日とすると、年間約2万トンの窒素が依然として環境へ負荷されていることになる。ただし、旧型の合併浄化槽も窒素についてはほとんど浄化できないこと、単独浄化槽を利用している家庭は、家庭雑排水

も垂れ流しにしていると考えると、年間約5万トンの窒素が依然として環境へ負荷していることとなる。地下水汚染に対しては、相対的にその寄与は少ないと考えられるが、宮古島⁴⁴⁾など特殊な条件下では、主要な汚染源となる可能性がある。浄化槽の排水は公共水域へ排出されることが多く、河川や湖沼の富栄養化などに寄与している可能性は否定できないと思われる。

(4) 地下深層

三つ目の課題と考えられるのは汚染メカニズム、特に深層への汚染経路の問題である。窒素の汚染源は基本的に地表あるいは地表近くの地中であるので、浅層の不圧地下水が汚染される。しかし、実際には100mに達するような深井戸、被圧地下水にも汚染が見つかることがある。

図4に示すように深層への経路としては、地表付近で溶脱した硝酸イオンが地下水の流れに沿って深層まで輸送される(a)、あるいは難透水層が不連続でその隙間を経由して透過浸透する(b)などが、自然の状況で想定される経路である。この場合、汚染の範囲はある程度広がっていることが考えられる。ただし、硝酸イオンが深層で酸化還元状態の変化に伴い変質を受ける可能性があるので、高濃度の硝酸イオンがそのまま深層へ到達するかは十分な検討が必要である。

他方、自然の経路以外に考えられるのは、井戸を介しての拡散である。その一つは、使用中の井戸のケーシング・遮水の不備(c)により、汚染されている浅層地下水と取水している深層地下水が水理的に連続し、揚水とともに汚染地下水を吸

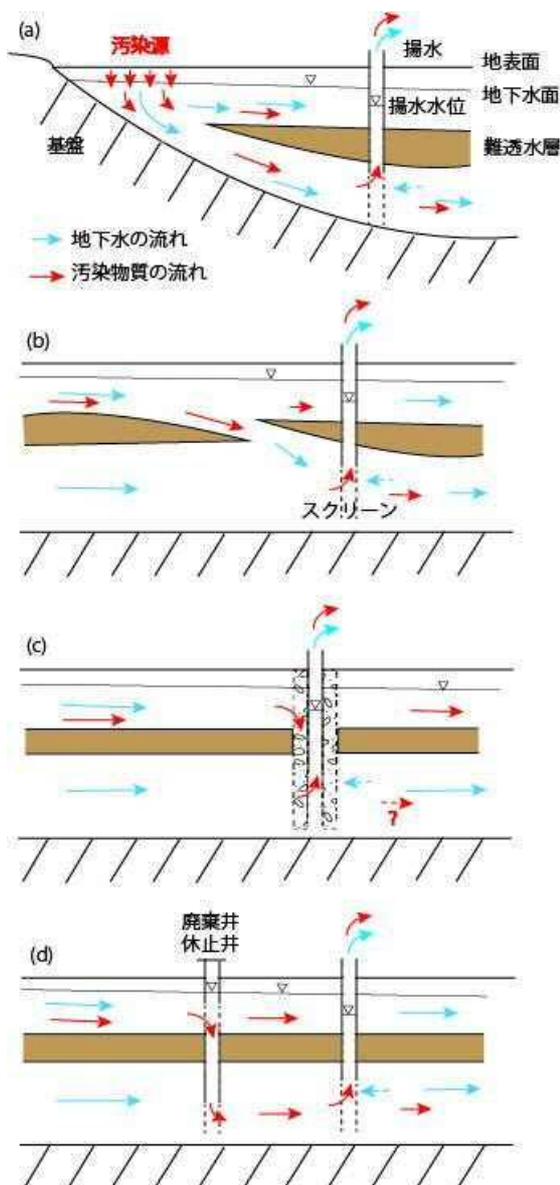


図4 汚染経路の模式
(田口⁴³⁾を参考に筆者作成)

引することになる。また、多層取水(とくに汚染している浅層地下水と深層地下水を取水するために複数のスクリーンを設置)している休止井戸あるいは廃棄井戸が輸送経路となる場合(d)があり、ケーシング・遮水が不備な場合はその効果はさらに顕著になると想定される。筆者の経験からすると、同じ地域でも民家の深

井戸での汚染は、公共の水源井に比べて多く、施工の不備が推察される場合がある。(c)の場合、揚水しているので、汚染のメカニズムは当該井戸近傍で閉じている可能性が高く、周辺への拡散は大きくない可能性が高い。

休止井・廃止井の場合は、現在の取水・揚水井との関係で、密度、揚水量、水位低下量などにより、影響範囲、拡散範囲が決まるものと考えられる。この問題は窒素だけでなく他の物質にも同様であるので、今後の検討が必要である。

汚染機構の解明そして予測にシミュレーションがよく使われるが、深層地下水の汚染をどのように評価するかは課題である。シミュレーションで汚染状況を再現しようとする、上記の状況をどのように考えるかにより、結果は左右されることになるが、現実では井戸の影響を考慮したシミュレーションはなされていないので、負荷源、負荷量の逆推定は難しいこととなる。むしろ浅層地下水の汚染状況(濃度、負荷源など)に整合させ、深層地下水については、汚染の範囲、散在性などから検討すればよいと考えられる。

7. おわりに

窒素ガスが人工的に固定できるようになって、まだ100年しか経っていないが、「反応性の高い窒素」の急激な増加、とくにこの50年間の増加は、地球上の窒素の循環を大きく変化させた。食料の増産など多大な恩恵をもたらしたが、一方で、多様で深刻な環境問題が生起しており、硝酸性窒素による地下水汚染はその一断

面であるに過ぎない。

恐らく、環境中を循環する「反応性の高い窒素」は地球規模では今後も増加し、一部は蓄積して行くと予測されるので、長期的な視点に立った国際的な協働が求められることになるであろう。

日本国内では、窒素の投入量が減少傾向にあるとは言え、使用や排出には地域的な偏りがあり、一部の地域では今後も環境の悪化、汚染の発生あるいは継続を防止できない懸念がある。

地下水汚染に関してはこれまでの経験、対策により改善の可能性は十分ある。すなわち、環境基準を超過する事例を減少させていくことはできる。しかし、地下水汚染を含めた環境中の窒素問題を根本的に解決するためには、一歩高い視点からの政策、対策が求められる⁴⁴⁾。

参考文献

- 1) Mackenzie, F.T. (1998): Our Changing Planet: An Introduction to Earth System Science and Global Environmental Change, (変わりゆく我が惑星: 入門 地球のシステム科学と地球環境変化) 2nd ed. Prentice-Hall, Upper Saddle River, NJ.
- 2) Galloway, J.N. et al. (2003): The nitrogen cascade. (窒素カスケード) *BioScience* **53**, 341–356. (doi:10.1641/0006-3568(2003)053[0341:TN]2.0.CO;2)
- 3) 新藤純子(2004): 人間活動に伴う窒素負荷の増大と生態系影響. *地球環境*, **9**(1), 3-10.
- 4) Galloway J.N. et al. (2004): Nitrogen

- cycles: past, present, and future. (窒素循環：過去・現在・未来) *Biogeochemistry* **70**, 153-226.
(doi:10.1007/s10533-004-0370-0)
- 5) Gruber, N., Galloway J.N. (2008): An Earth-system perspective of the global nitrogen cycle. (地球の窒素循環—地球システムとしての展望) *Nature* **451**, 293-296.
(doi:10.1038/nature06592)
- 6) Galloway J.N. et al. (2013): A chronology of human understanding of the nitrogen cycle. (人類は窒素循環をどのようにとらえてきたか—その歴史) *Phil. Trans. R. Soc. B* **368**, 20130120.
(doi:10.1098/rstb.2013.0120)
- 7) Fowler, D., et al. (2013): The global nitrogen cycle in the twenty-first century. (21世紀における地球の窒素循環) *Phil. Trans. R. Soc. B*. **368** 20130164;
doi:10.1098/rstb.2013.0164
- 8) Sutton, M.A., et al.(ed) (2011): The European Nitrogen Assessment - Source, Effects and Policy Perspectives-. (ヨーロッパにおける窒素アセスメント—窒素源、影響と政策的展望) Cambridge Univ. Press, 664p.
<http://www.nine-esf.org/ENA-Book>
- 9) 三輪睿太郎・織田健次郎・松本成夫 (2006)：わが国の食飼料供給に伴う窒素の動態に基づく環境負荷発生構造の解析. 日本土壌肥科学雑誌, **77(6)**, 627-634.
- 10) 岩手県環境生活部環境保全課(2006)：『平成17年度 岩手県窒素・リン環境許容量将来予測調査報告書概要版』(株式会社 日水コン、平成18年2月)
<http://www2.pref.iwate.jp/~hp031501/dojo-tikasui/np/h17houkoku.pdf> 2014.8.3 参照
- 11) 森 邦広・青井 透・阿部 聡・池田 正芳(2002)：谷川岳を含む利根川最上流から利根大堰までの栄養塩濃度の推移と流出源の検討. 環境工学研究論文集, **39**, 235-246.
- 12) 小川吉雄(2000)：地下水の硝酸汚染と農法転換, 農文協, 200p.
- 13) 農業環境技術研究所 HP:
<http://www.niaes.affrc.go.jp/techdoc/press/090818/press090818.html>, 2014.7.26 参照
- 14) Shindo, J., Okamoto, K., Kawashima, H. and Konohiro, E. (2009): Nitrogen flow associated with food production and consumption and its effect on water quality in Japan from 1961 to 2005. (1961~2005年の日本における食料生産・消費と関連した窒素の流れと水質に与える影響) *Soil Sci. Plant Nutr.*, **55**, 532-545.
- 15) 農林水産省 生産局 畜産部 畜産企画課 畜産環境・経営安定対策室(2014)：畜産環境をめぐる情勢
http://www.maff.go.jp/j/chikusan/kankyo/taisaku/pdf/meguru_jousei.pdf, 2014.7.26 参照
- 16) 日本水環境学会編集(2009)：日本の水環境行政 改訂版. ぎょうせい, 288p.
- 17) EIC ネット. <http://www.eic.or.jp/>
- 18) 田中淳子ほか(1996)：井戸水が原因で高度の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(7)**, 1661-1665.
- 19) 古米弘明・川上智規・酒井憲司編著

- (2012): 森林の窒素飽和と流域管理. 技法堂出版, 144p.
- 20) 田瀬則雄(2006): 地下水流動系からみた地下水汚染問題ーホットスポット, ホットパス, ホットパスゾーンー. 筑波大学陸域環境研究センター 電子モノグラフ No.2, 17-23.
http://www.ied.tsukuba.ac.jp/wordpress/wp-content/uploads/pdf_papers/terc_em02/terc_em02_04.pdf
- 21) 中山忠暢・渡辺正孝(2005): 霞ヶ浦流域での地下水が水・物質収支に及ぼす影響の再評価. 水工学論文集, **49**, 1231-1236.
- 22) 井岡聖一郎・田瀬則雄(2004): 茨城県筑波台地、斜面-湿地プロットでの地下水帯における硝酸イオンの還元場, 地下水学会誌, **46**(2), 131-144.
- 23) Böhlke, J.K., et al.(2002): Denitrification in the recharge area and discharge area of a transient agricultural nitrate plume in a glacial outwash sand aquifer, Minnesota. (ミネソタ州の融氷流水性砂質帯水層内の一過性農業系窒素プルームの流入域における脱窒) *Water Resources Research*, **38**(7), 10-1~10-26.
- 24) 斎藤功ほか(1972): 茨城県の生活用水の調査. 茨城県衛生研究所年報, 8号, 109-190.
- 25) 環境庁水質法令研究会編(1997): 地下水の水質保全. 100p, (社)土壌環境センター.
- 26) 田瀬則雄(2003): 硝酸・亜硝酸性窒素による水質汚染の現状と動向. 水環境学会誌, **26**(9), 546-550.
- 27) 田瀬則雄(2004): 硝酸・亜硝酸性窒素による地下水汚染の現状と動向. 環境管理, **40**(3), 255-263.
- 28) 田瀬則雄(2006): 硝酸性窒素による地下水汚染. 地下水技術, **48**(1), 31-44.
- 29) 環境省 水・大気環境局: 硝酸性窒素対策に関するパンフレット「未来へつなごう私たちの地下水〜気づいてますか? 硝酸性窒素汚染〜」
http://www.env.go.jp/water/chikasui/no3_taisaku/pamph/pamph_1.pdf
- 30) 環境省水・大気環境局(〜2014)地下水質測定結果.
<http://www.env.go.jp/water/chikasui/index.html>
- 31) 環境省水・大気環境局 (2014): 平成24年度地下水質測定結果.
- 32) 寶示戸雅之ほか(2003): 我が国農耕地における窒素負荷の都道府県別評価と改善シナリオ. 日本土壌肥料学雑誌, **74**, 467-474.
- 33) 三上英敏・高田雅之・三島啓雄(2009): 地下水硝酸汚染に係わる汚染源簡易判定の手順. 北海道環境科学研究センター所報, **35**, 27-34.
- 34) 各務原地下水研究会(1994): よみがえる地下水ー各務原市の闘いー. 京都自然誌研究会, 311p.
- 35) 環境省水・大気環境局 (2009): 硝酸性窒素による地下水汚染対策手法技術集.
http://www.env.go.jp/water/chikasui/no3_taisaku/tech.html
- 36) 菅原洋平・田瀬則雄 (2004): 台地末端部における硝酸イオン浄化ゾーンの3次元分布. 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会第10回講演集, 383-390.

- 37) Tase, N. et al. (2014): Dynamics of water and nutrients around border of eucalyptus forest and sugar cane field in Rio Claro, São Paulo. (サンパウロ州リオクラールのユーカリ林とサトウキビ畑の境界付近における水および栄養塩類の動き) Workshop on “Water, Nitrogen, and Agriculture in the State of São Paulo, Brazil”, Univ. Tsukuba, Japan.
<http://samerica.envr.tsukuba.ac.jp/kaken/Proceedings.pdf>
- 38) Okada, R., Tase, N., Tamura, K., Negishi, M. and Takagi, K. (1999): Fate of fertilizer from surface to groundwater —How much does it accumulate in the soil? —. (地表水から地下水への肥料成分の行方—その成分はどのくらい土壌に蓄積しているのか?)
 In Proceedings of the International Symposium on Groundwater in Environmental Problems, Chiba University, 57–62.
- 39) 加藤 亮・志村もと子・黒田久雄・中曾根英雄(2005): 素掘貯留池からの窒素排出負荷に関する考察. 農業土木学会論文集, **238**, 61-67.
- 40) 李 盛源・保坂亜紀子・田瀬則雄(2009): 家畜排せつ物の素掘り廃棄ピットが地下水水質に及ぼす影響. 日本地下水学会誌, **51**(1), 3-14.
- 41) 環境省(2014): 平成24年度末における浄化槽の設置状況等について(お知らせ). 報道発表資料, 平成26年1月31日
<http://www.env.go.jp/press/press.php?serial=17689>
- 42) 近藤洋正・田瀬則雄・平田健正(1997): 沖縄県宮古島における地下水中の硝酸性窒素の窒素安定同位体比について. 地下水学会誌, **39**(1), 1-15.
- 43) 田口雄作(1989): 深刻化する地下水汚染. 地質ニュース, **422**号, 63-65.
- 44) 田瀬則雄(2014): 流域スケールから見る窒素汚染対策—窒素の統合的管理に向けて—. 日本水文科学会誌, **44**(3), 147-154.