

## 硝酸態窒素による地下水汚染に関する研究動向 —汚染の状況と要因および対策—

川越保徳\*

キーワード：硝酸態窒素，地下水汚染，窒素安定同位体，窒素処理技術，窒素削減対策

### 要 旨

表題について執筆者の研究例を交え紹介した。硝酸態窒素による地下水汚染は、欧米をはじめ世界的な懸念事項となっている。汚染要因には地域差があるが、事例の多くは農業によるもので、安定同位体比の利用による窒素源の特定や脱窒反応に関する先進的研究が進んでいる。汚染対策は、飲用水確保としての浄水処理から抜本的対策である窒素負荷削減技術・施策にわたるが、抜本的解決には長期にわたる息の長い取り組みが必要である。

### 1. はじめに

地下水の水質は河川や湖などの表流水と異なり、濁度や色度が低く清澄で、年間を通して温度変化は小さく、イオンやケイ酸等の溶存成分は豊富、というのが教科書的な記述である。事実、地下水は世界的に重要な水資源であり、世界の大都市の多くは豊かな地下水に恵まれた地域に位置する<sup>1)</sup>。一方、表流水に恵まれた我が国では、飲用水源としての地下水のイメージは薄い。ちなみに我が国の生活用水源の約80%はダム貯留水や表流水で賄われ、地下水の割合は20%弱となっている<sup>2)</sup>。

我が国で熊本は特異的な地域である。熊本市の人口は2013年現在で約70万人、さらに近隣の市町村を含めた約100万人の飲用水は全て地下水で賄われている。また、熊本の地下水は良好な水質を誇り<sup>3)</sup>、かつ自治体行政による地下水の保全体制が高いレベルで整っている。今年3月には、国連の“生命(いのち)の水(Water for Life)”最優秀賞(水管理部門)が熊本市に対して贈られてお

り、これは日本で初めての快挙となった。しかし熊本の地下水も、近年は涵養地面積の減少による地下水位の低下と硝酸態窒素による水質影響が懸念されるようになり、対策が模索されているところである。

本稿では、これまでの筆者自身の研究知見を交えながら、「硝酸態窒素による地下水汚染の現状と要因および対策に関する研究動向」に関する国内外の研究動向を紹介する。

### 2. 硝酸態窒素を含む地下水による健康への影響

地下水や土壤汚染ですぐに思い当たるのはトリクロロエチレン等のNAPL(Non-Aqueous Phase Liquid)、ヒ素等の金属類によるもので、硝酸態窒素は有害性や汚染メカニズムの点でこれらの汚染物質とは異なる。上記の化学物質では地表へ負荷される以前に有害物質といえるが、硝酸態窒素の場合は肥料のように有用物質として地表に施されることが多い。また、地表への負荷時には有機態窒素やアンモニア(アンモニウムイオン)等の別形態であったものが、地下帯水層に至るまでに硝化(酸化)され、硝酸態窒素に変化するといった代謝を考慮しなければならない。さらに、硝酸態窒素の毒性や健康リスクについても明確とはいえない<sup>4)</sup>。一般的には、硝酸態窒素自身の急性毒性は小さく、むしろその還元形態である亜硝酸態窒素の毒性が問題となる。硝酸態窒素に汚染された地下水の摂取による重篤な健康被害に関する最初の事例は、浅井戸の水で溶かしたミルクによって乳幼児がメトヘモグロビン血症を発症したというものである<sup>5)</sup>。これは、乳児は胃液酸度が低く

胃の中の脱窒細菌などによる硝酸の還元性が高いことから容易に亜硝酸イオンが生じ、これがヘモグロビンに結合してメトヘモグロビンとなり酸素欠乏症を引き起こしたと説明されている<sup>6)</sup>。また、乳児ではメトヘモグロビンをヘモグロビンに戻すための還元酵素が不足していることも乳児に被害が出やすい一因とされる<sup>7)</sup>。この報告以降、飲用地下水に含まれる硝酸態窒素とメトヘモグロビン血症との因果関係についての発表が相次いでなされ、WHO（世界保健機関）は飲用水の硝酸イオン濃度のガイドライン値を50 mg/L（窒素としては11.3 mgN/L）とした<sup>6)</sup>。我が国でもこれらの経緯を踏まえ、水道水質基準を硝酸態窒素と亜硝酸態窒素の合算濃度として10 mgN/Lと定め、地下水水質基準も同じ値とされた。なお、一例だけではあるが、我が国においても井戸水の硝酸態窒素が原因とされる新生児のメトヘモグロビン血症例が報告されており、当該新生児のメトヘモグロビン還元酵素活性の未熟さと井戸水中の硝酸態窒素が高濃度（36 mgN/L）であったことが示されている<sup>8)</sup>。

一方、硝酸イオンによる発がん物質のニトロソアミン生成、および硝酸イオンや亜硝酸イオンと発がんリスクとの間の関係については、現在のところ可能性は低いと評価されている<sup>6)</sup>。また、ラットによる亜硝酸イオンについての複数の研究で、副腎球状帯の肥大が確認されているが、他の動物種での発現可能性は明確にされていない<sup>6)</sup>。

### 3. 硝酸態窒素による地下水汚染の現状と要因

地下水は大きく、不圧帯水層と被圧帯水層に分けられる。前者では、地面直下の土壤層と地下水帯水層の間に透水性の小さいシルト質等からなる難透水層が存在せず、上からの圧力影響が小さい帯水層となる。一方、後者では帯水層の上に難透水層が存在し被圧されている。定義から明らかのように、不圧帯水層は一般に浅い地下水層であることが多く、被圧帯水層は深いことが多い。また、地下水と呼ばれるものの中に伏流水がある。伏流水は不圧地下水の一つとも言えるが、河川やその支流が土壤層など浅い地下に潜り込んで流動しているもので、扇状地や河川近くで多く見られる<sup>9)</sup>。

地下水への窒素の負荷には、土壤等に含まれる

自然由来と、地表からの人的由来があり、陰イオンである硝酸・亜硝酸態窒素は水とともに移動しやすい。対して、陽イオンとなるアンモニア態窒素は土壤粒子等に付着しやすい。よって、窒素による地下水汚染は、そのほとんどが硝酸態窒素によるもので有機態窒素やアンモニア（アンモニウムイオン）態窒素による汚染の報告事例は少ない。有機態窒素については通常、地表や表層土壤にてアンモニア態窒素に分解された後、好氣的雰囲気下にある土壤内で硝化細菌によって容易に酸化（硝化）され、硝酸態窒素に変化する。硝化反応は、地表からわずか50 cmまでの土壤層で起きているとの報告例<sup>10)</sup>もあり、地下水に窒素が移動するまでの極めて早い段階で硝酸態窒素の生成は進行、終了する。すなわち、地下水から高濃度のアンモニア態窒素が検出される場合には、手堀井戸など数十cmから、せいぜい数mの深さにある“土壤間隙水”とも呼ぶべきもの<sup>11, 12)</sup>や、前述した伏流水<sup>13, 14)</sup>、あるいは土壤の透水性が非常に高く地表からの流入水が短時間で帯水層に達するなどの状況が考えられる<sup>15)</sup>。したがって、アンモニア態窒素が検出されるような水の健康リスクは非常に高く、特に飲用を想定するならば、窒素よりむしろ病原性細菌や有害化学物質による汚染に目を向けるべきである。その意味では、硝酸態窒素による地下水汚染とは区別して考えるべきかも知れない。

一方、硝酸態窒素による地下水の汚染実態とその原因、および汚染メカニズム等に関する研究事例は、南北アメリカ<sup>13, 16-20)</sup>、ヨーロッパ・中近東<sup>21-30)</sup>、アジア<sup>12, 31-36)</sup>、オセアニアやアフリカ<sup>37, 38)</sup>等、多数の国にまたがっており、まさに世界的な問題となっている。

上記の報告例で見られるように、窒素の負荷源は化成肥料と堆肥などの有機肥料を含む施肥、家畜排せつ物の不適当な処理（野積み、素掘りなど）など、農業活動を主な原因とする事例が多い。それ以外では、廃棄物処分場廃水（浸出水）<sup>39)</sup>や下水、生活雑排水が主たる負荷源<sup>25)</sup>となっており、中には、養魚池<sup>13)</sup>や原子力発電所との関係を調べた例<sup>40)</sup>があるなど、様々な要因が調査、検討されている。一方、我が国においても詳細な研究例は農業県や農業地域で多く、主な窒素負荷源も施

肥や畜産排せつ物といった農業活動が挙げられている<sup>14, 41-45)</sup>。ただし、廣畑らの報告例<sup>42)</sup>のように、住宅地と農地が混在する地域では、当然ながら生活雑排水等との複合汚染が推定される。ここで、地下水中の硝酸態窒素濃度の実態に関する筆者らの研究事例を図1に示す。

図1は、熊本市とその近隣地域における地下水中硝酸態窒素濃度について近年の推移を示したものである。本地域では過去数十年にわたる硝酸態窒素濃度の上昇が認められ、地下水環境基準の10 mg/Lを超えるところもみられる。後述するように、当地域では地下水涵養域に農地が広がり、かつ畜産業も存在することからこれらの影響が推定される。

硝酸態窒素の起源や汚染メカニズムの解明に関しては、特に1990年以降、窒素や酸素の安定同位体存在比を利用した窒素起源推定に関する研究例が多くみられる<sup>16, 30, 36, 40, 43)</sup>。大気中の窒素の約99.6%は質量数が14であるが、残り約0.4%の窒

素は質量数15の安定同位体として存在する。この存在割合は自然界での生物・化学反応や化学合成によって窒素の形態が変換される際に変化する。そこで、存在割合の変化量を大気中の窒素存在割合を基準に相対値として求め、この変化量を指標として窒素起源を推定しようとするものである。この指標は窒素安定同位体比、またはデルタ15エヌ ( $\delta^{15}\text{N}$ ) と呼ばれ、次式で計算される。

$$\delta^{15}\text{N} = 1000 \left( \frac{R_{\text{sample}}}{R_{\text{air}}} - 1 \right)$$

( $\delta^{15}\text{N}$ : 窒素安定同位体比 (%),  $R_{\text{sample}}$ : 水試料の窒素安定同位体比 ( $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ ),  $R_{\text{air}}$ : 空気中の窒素安定同位体比 ( $^{15}\text{N}/^{14}\text{N}$ ))

同様に、酸素についても質量数16と18の安定同位体の存在割合にもとづいた $\delta^{18}\text{O}$ が利用される。ただし、安定同位体比による窒素起源の推定には慎重が必要である。これは、分析方法の違いに

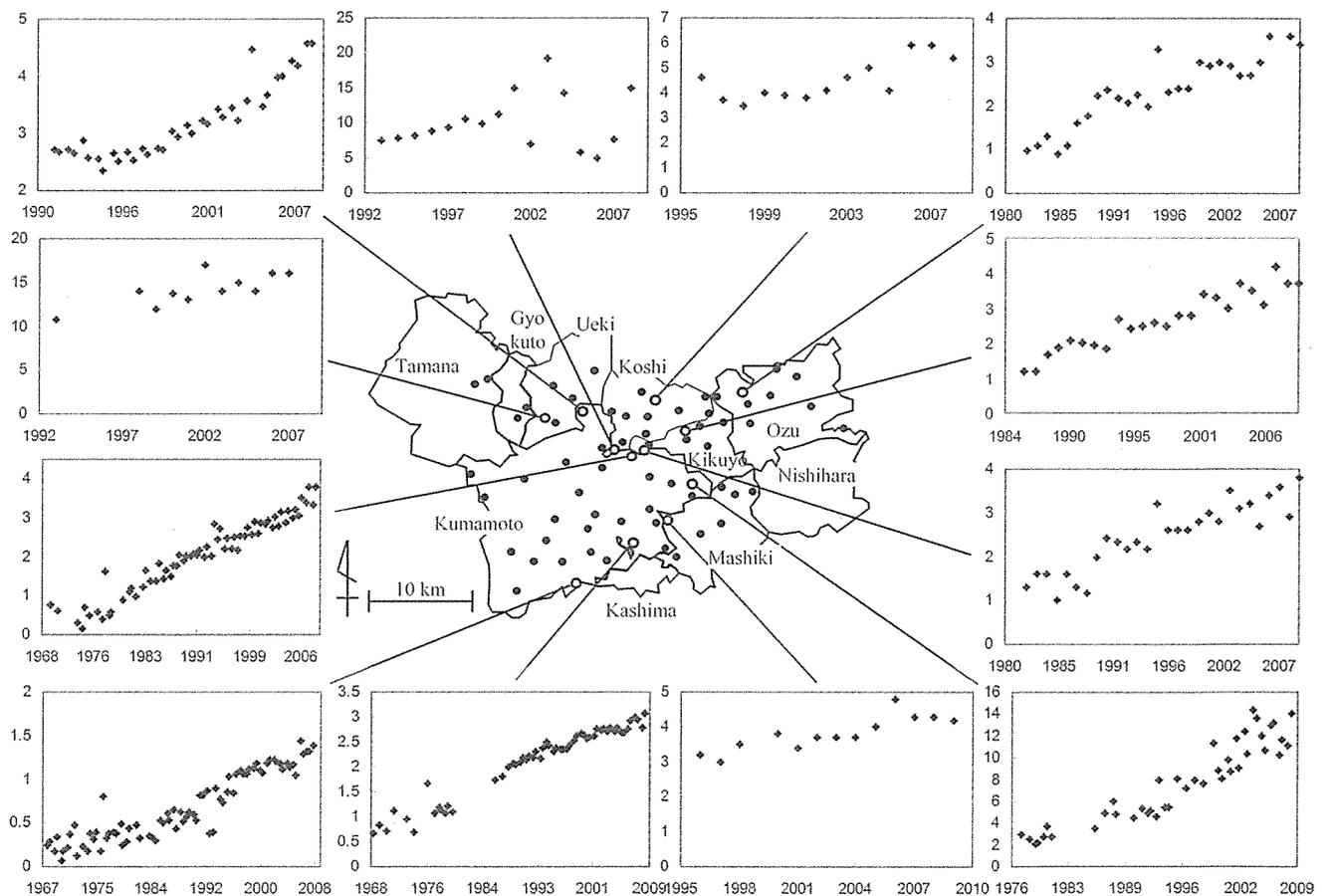


図1 熊本市近郊地域における地下水中硝酸態窒素濃度の経年変化<sup>45)</sup>  
横軸は年度(西暦)、縦軸は硝酸態窒素濃度: mgN/L

よって大きく値が異なる可能性があることや、文献等の  $\delta^{15}\text{N}$  と窒素起源の関係はあくまでケーススタディによるもので、安易な参照は判断を誤る可能性があるためである。あくまでも、窒素起源を推定するための状況証拠の一つととらえるべきであろう。筆者らの研究でも既往の文献<sup>41, 46)</sup>を参照し、 $\delta^{15}\text{N}$ の値が-7.4-6.8%であれば化成肥料由来、8-22%の範囲ならば下水処理水や家畜糞尿といった有機態窒素由来とみなし、窒素起源の推定を行った<sup>45)</sup>。しかしながら、同じ地下水試料であっても分析方法(濃縮などの前処理を含む)の違いによって、4.0%もの差がある試料がみられた。また、一般に有機態窒素は化成肥料よりも高い $\delta^{15}\text{N}$ 値を有するが、その値にはばらつきがあり、例えば堆肥で7.5-11.9%、下水汚泥で4.6-7.4%、化成肥料では0.2-1.0%であるとの報告<sup>29)</sup>もあり、上記の範囲とは大きく異なっている。さらに最近では、窒素と酸素以外に、イオウ( $^{34}\text{S}$ )や炭素( $^{13}\text{C}$ )、ホウ素( $^{11}\text{B}$ )、ストロンチウム( $^{87}\text{Sr}$ )等の同位体を用いるマルチ安定同位体法と呼ばれるアプローチにて主に脱窒などの窒素代謝に関する研究が盛んに行われている<sup>23, 47)</sup>が、これらについても上記と同様、結果の解釈には十分な慎重さが求められよう。

地下水汚染要因の解明については、安定同位体比の利用以外にも様々なアプローチがなされており、硝酸態窒素汚染に関しては、田畑の造成、営農、土地改良、土地利用、地下水水文、土壌・地質構造などの情報に基づく流域モデル・シミュレーションの研究事例が多い<sup>17, 26, 37, 48)</sup>。近年は情報処理能力の飛躍的な向上もあって、完全3次元モデルの利用<sup>49)</sup>や、不飽和層までの栄養塩の動態モデルと飽和層での流動モデルを組み合わせた汚染シミュレーションの研究例がみられる<sup>50)</sup>。最近では、地理情報システム(GIS:Geographical Information System)の利用も一般的となり<sup>22, 45)</sup>、シミュレーション結果の視覚化も容易に行えることで行政的な対策にも反映させやすくなっている。ただし、信頼性の高いシミュレーション結果を得るためには、調査対象における適切な時空間の設定と地道で長期にわたる水質、地質、気象データなどの測定といった情報収集が必要なのは言うまでもない。

#### 4. 硝酸態窒素による地下水汚染の対策

汚染対策や処理技術の具体例については、他執筆者の方々が詳説されると思うので、ここでは地下水の硝酸態窒素汚染対策に関わる熊本での状況と筆者の私見、および種々対策についての知見紹介にとどめたい。

地下水汚染対策にあたっては、1) 飲用水確保を目的とする浄水処理、2) 土壌あるいは地下帯水層での原位置処理、3) 窒素負荷源での負荷削減対策、の大きく3つの方策が考えられる。ここで、1) は対症療法ではあるが比較的短期で実施可能、3) は抜本的対策(解決)だが長い時間を要する、2) はその中間的処置といえる。地下水水質について硝酸態窒素以外の問題がないのであれば、1) の浄水処理は技術的に困難ではない。海水淡水化などに用いられる逆浸透膜処理、イオン交換膜・交換繊維等による物理化学処理を必要供給量の水に適用すればよい。筆者らも実際に熊本市の井戸水に対してパイロットスケールでのイオン交換膜施設を適用し、水質基準を容易にクリアできることを確認している<sup>51)</sup>。問題は処理コストであり、さらに厄介なのは高濃度の塩分を含む濃縮水の発生である。濃縮水の処置も含めた総合的な処理フロー・マネジメントが必要となる。2) の原位置処理については、上記の物理化学的方法に加えて、生物学的脱窒反応を利用する方法が知られており<sup>52)</sup>、従属栄養性細菌の利用では鉄や生分解性プラスチックを材料とする浄化壁工法<sup>53)</sup>、独立栄養細菌の場合には電子供与体としてイオウや水素を使う方法<sup>52)</sup>がある。ただし原位置処理もやはり対症療法的な方法であり、実施にあたっては費用対効果の適切な分析・評価がなされるべきである。

抜本的対策である3) の排出源対策においては、まずは窒素の負荷源と汚染要因を明らかにすることから始まる。筆者らは、熊本市近隣地域における窒素負荷の発生量を、下水処理に関する行政データと農林業センサスデータを用いて推定した<sup>45, 54)</sup>。下水処理データでは処理方法ごとに窒素発生量原単位から推定を行った。農林業センサス資料では、市町村区(旧市町村界を含む)ごとの各種作物の作付面積や家畜頭数が集計されている

ことから、作物の基準（推奨）施肥量や家畜の種類ごとの排せつ物発生量原単位をベースに、各市町村区での窒素発生量を推定した。また、これと同時に、対象地下水の窒素安定同位体比分析を実施した。誌面の都合上、図表や具体的な結果、考察は引用文献<sup>45, 54)</sup>に譲るが、上記から得られた小地域毎の窒素発生推定量と当該地域地下水の窒素安定同位体比を合わせて分析することで、本地域窒素家畜排せつ物と施肥による複合的な窒素負荷の詳細を比較的小さな地域単位で明らかにすることができた。

次に、汚染源対策にあたってはシミュレーションモデルの構築が望まれる。これは特に汚染要因が農業と密接に関わる場合に重要となる。なぜなら、例えば適正施肥の奨励や施肥量の削減が必要な場合、施肥量と硝酸態窒素濃度との定量的関係が明確になることで、(削減に対する)努力目標に客観的な根拠を与えられる。すなわち、汚染と対策の効果に関する将来予測(シナリオ)を示すことで、より定量的で効果的な計画の策定が可能となり、やみくもに努力を強いることを避けられる。鍵となるのは、いかに信頼性の高いシミュレーションモデルが構築できるかだが、その判断は非常に重く難しい。

窒素の負荷源と汚染要因が明らかになれば対策の具体案を検討できる。ただし熊本の例のように地下水流域が複数の市町村にまたがる場合、対策の成否は行政間の連携にかかっている。汚染源がポイントソースのみであれば排水・廃棄物処理により技術的には対応できる。我が国の場合、下水、生活排水については下排水処理施設の整備が進んでいる。また、地下水汚染のみならず、水環境への窒素負荷削減という意味では、一般の活性汚泥法に硝化-脱窒プロセスを導入する、あるいは曝気槽を工夫することで擬似的な硝化-脱窒過程を設けて窒素除去率を上げるといった方法が考えられる。なお、窒素除去技術としては、亜硝酸化-Anammox(嫌気性アンモニウム酸化)なども条件に応じて検討できるかも知れない。一方、開発途上国など下排水処理施設の整備に長期を要する場合には、まずは飲料水確保を目的とする簡便・低コストの浄水処理を検討すべきであり、学術的新規性よりもむしろ、現状に応じた既往技術の応

用や工夫が重要な研究課題になるのではないだろうか。

次に、畜産農家・事業所からの家畜排せつ物・排水であるが、これはポイントソースであると同時にノンポイントソースの性格を合わせ持つ。平成11年の「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)の施行により、比較的規模の大きな農家では補助金制度等を利用し、自前で回分式の好気-嫌気排水処理施設や堆肥化施設を整備している例を知っている。しかし、小規模畜産農家にとって処理施設の導入と維持にかかる費用は大きな負担であり、現在でも農地還元という形でスラリー状の排せつ物が散布される例があることも聞く。また、たとえ堆肥化されたとしても、施肥の名目で多量の堆肥が限られた場所、地域に集中的に投下されれば、過剰な窒素負荷となる。この点で、家畜排せつ物による窒素負荷は、局所的なノンポイントソースとなり、我々はこれをオンサイトソース(On-site Source)と呼んでいる。したがって、家畜排せつ物については要素技術的な解決法だけでは不十分で、排せつ物や堆肥の適切な利用と一定地域外への移動(排出)などの地域マネジメントが非常に重要になる。

最後に、過剰施肥等による農地からの窒素負荷、いわゆるノンポイントソースへの対策は、土壌分析にもとづく施肥管理の徹底やキャッチクロープの使用<sup>27, 28)</sup>、水田等を利用する地形連鎖といった営農や環境修復による技術的対策<sup>55)</sup>を推進し、環境共生型農業の実践への地道な取り組みが基本である。その上で、EUのような施肥規制の厳格化<sup>46)</sup>も検討する余地があろう。

## 参考文献

- 1) Robin Clarke 他、沖大幹他(訳)：水の世界地図、丸善、2006。
- 2) 日本水道協会：水道統計「平成23年度」、2013。
- 3) 川越保徳、岩佐康弘、湯之上勉、前田香織、富家和男、柿本竜治：熊本市飲用地下水水質の特徴とおいしい水としての評価に関する考察、水環境学会誌、32、383-388、2009。
- 4) J. L. リロンデル、越野正義訳：硝酸塩は本当に危険か、(社)農山漁村文化協会、2006。
- 5) Comly, H.H.: Landmark article Sept 8, 1945: Cyanosis in infants caused by nitrates in well-water, JAMA, 257, 2788-2792, 1987。
- 6) 日本水道協会：WHO 飲料水水質ガイドライン第3版、

- 2004.
- 7) Lukens, J.N.: Landmark perspective: The legacy of well-water methemoglobinemia, *JAMA*, **257**, 2793-2795, 1987.
  - 8) 田中淳子, 堀米仁志, 今井博則, 森山伸子, 齊藤久子, 田島静子, 中村了正, 滝田斉: 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**, 1661-1665, 1990.
  - 9) 水収支研究グループ: 地下水資源・環境論, 共立出版, 1993.
  - 10) S Sher, Y., Baram, S., Dahan, O., Ronen, Z. and Nejidat, A.: Ammonia transformations and abundance of ammonia oxidizers in a clay soil underlying a manure pond, *FEMS. Microbiol. Ecol.*, **81**, 145-155, 2012.
  - 11) Zhao, X., Chen, L. and Zhang, H.: Nitrate and ammonia contaminations in drinking water and the affecting factors in Hailun, northeast China, *J. Environ. Health*, **75**, 28-34, 2013.
  - 12) Cam, P.D., Lan, N.T., Smith, G.D. and Verma, N.: Nitrate and bacterial contamination in well waters in Vinh Phuc province, Vietnam, *J. Water Health*, **6**, 275-279, 2008.
  - 13) Lu, H. and Yin, C.: Shallow groundwater nitrogen responses to different land use managements in the riparian zone of Yuqiao Reservoir in North China, *J. Environ. Sci.*, **20**, 652-657, 2008.
  - 14) Maekawa, T., Omura, N., Fujita, K., Zhang, Z.Y., Suzuki, K., Ihara, I. and Morioka, R.: River and groundwater nitrogen contamination caused by livestock production, *Environ. Technol.*, **22**, 157-164, 2001.
  - 15) Tayfur, G., Kirer, T. and Baba, A.: Groundwater quality and hydrogeochemical properties of Torbali Region, Izmir, Turkey, *Environ. Monit. Assess.*, **146**, 157-169, 2008.
  - 16) Reynolds-Vargas, J., Fraile-Merino, J. and Hirata, R.: Trends in nitrate concentrations and determination of its origin using stable isotopes ( $^{18}O$  and  $^{15}N$ ) in groundwater of the Western Central Valley, Costa Rica, *Ambio*, **35**, 229-236, 2006.
  - 17) De Jong, R., Drury, C.F., Yang, J.Y. and Campbell, C.A.: Risk of water contamination by nitrogen in Canada as estimated by the IROWC-N model, *J. Environ. Manage.*, **90**, 3169-3181, 2009.
  - 18) Somers, G.H. and Savard, M.M.: Considerations for the mitigation of nitrate contamination: stable isotopes and insights into the importance of soil processes, *Water Sci. Technol.*, **64**, 1254-1260, 2011.
  - 19) Cruz, M.C., Cacciabue, D.G., Gil, J.F., Gamboni, O., Vicente, M.S., Wuertz, S., Gonzo, E. and Rajal, V.B.: The impact of point source pollution on shallow groundwater used for human consumption in a threshold country, *J. Environ. Monit.*, **14**, 2338-2349, 2012.
  - 20) Chaudhuri, S., Ale, S., Delaune, P. and Rajan, N.: Spatio-temporal variability of groundwater nitrate concentration in Texas: 1960 to 2010, *J. Environ. Qual.*, **41**, 1806-1817, 2012.
  - 21) Benes, V., Pekny, V., Skorepa, J. and Vrba, J.: Impact of diffuse nitrate pollution sources on groundwater quality-some examples from Czechoslovakia, *Environ. Health Perspect.*, **83**, 5-24, 1989.
  - 22) de P.J., Ramos: Linkage of a geographical information system with the gleams model to assess nitrate leaching in agricultural areas, *Environ. Pollut.*, **118**, 249-258, 2002.
  - 23) Widory, D., Kloppmann, W., Chery, L., Bonnin, J., Rochdi, H. and Guinamant, J.L.: Nitrate in groundwater: an isotopic multi-tracer approach, *J. Contam. Hydrol.*, **72**, 165-188, 2004.
  - 24) Fytianos, K. and Christophoridis, C.: Nitrate, arsenic and chloride pollution of drinking water in Northern Greece. Elaboration by applying GIS, *Environ. Monit. Assess.*, **93**, 55-67, 2004.
  - 25) Wakida, F.T. and Lerner, D.N.: Non-agricultural sources of groundwater nitrate: a review and case study, *Water Res.*, **39**, 3-16, 2005.
  - 26) Masetti, M., Poli, S., Sterlacchini, S., Beretta, G.P. and Facchi, A.: Spatial and statistical assessment of factors influencing nitrate contamination in groundwater, *J. Environ. Manage.*, **86**, 272-281, 2008.
  - 27) Sonneveld, M.P., Schroder, J.J., de Vos, J.A., Monteny, G.J., Mosquera, J., Hol, J.M., Lantinga, E.A., Verhoeven, F.P. and Bouma, J.: A whole-farm strategy to reduce environmental impacts of nitrogen, *J. Environ. Qual.*, **37**, 186-195, 2008.
  - 28) Hooker, K.V., Coxon, C.E., Hackett, R., Kirwan, L.E., O'Keefe, E. and Richards, K.G.: Evaluation of cover crop and reduced cultivation for reducing nitrate leaching in Ireland, *J. Environ. Qual.*, **37**, 138-145, 2008.
  - 29) Shomar, B., Osenbruck, K. and Yahya, A.: Elevated nitrate levels in the groundwater of the Gaza Strip: distribution and sources, *Sci. Total Environ.*, **398**, 164-174, 2008.
  - 30) Mattern, S., Sebilio, M. and Vanclooster, M.: Identification of the nitrate contamination sources of the Brusselian sands groundwater body (Belgium) using a dual-isotope approach, *Isotopes. Environ. Health Stud.*, **47**, 297-315, 2011.
  - 31) Shrestha, R.K. and Ladha, J.K.: Nitrate pollution in groundwater and strategies to reduce pollution, *Water Sci. Technol.*, **45**, 29-35, 2002.
  - 32) Mourabit, F., Ouassini, A., Azman, A. and Muelle, R.: Nitrate occurrence in the groundwater of the Loukkos perimeter, *J. Environ. Monit.*, **4**, 127-130, 2002.
  - 33) Kundu, M.C., Mandal, B. and Sarkar, D.: Assessment of the potential hazards of nitrate contamination in surface and groundwater in a heavily fertilized and intensively cultivated district of India, *Environ. Monit. Assess.*, **146**, 183-189, 2008.
  - 34) Majumder, R.K., Hasnat, M.A., Hossain, S., Ikeue, K. and Machida, M.: An exploration of nitrate concentrations in groundwater aquifers of central-west region of Bangladesh, *J. Hazard. Mater.*, 2008.
  - 35) Reddy, D.V., Nagabhushanam, P. and Peters, E.: Village environs as source of nitrate contamination in groundwater: a case study in basaltic geo-environment in central India, *Environ. Monit. Assess.*, **174**, 481-492, 2011.
  - 36) K Koh, E.H., Kaown, D., Mayer, B., Kang, B.R., Moon, H.S. and Lee, K.K.: Hydrogeochemistry and isotopic tracing of nitrate contamination of two aquifer systems on Jeju Island, Korea, *J. Environ. Qual.*, **41**, 1835-1845, 2012.
  - 37) McLay, C.D., Dragten, R., Sparling, G. and Selvarajah, N.: Predicting groundwater nitrate concentrations in a region of mixed agricultural land use: a comparison of

- three approaches, *Environ. Pollut.*, **115**, 191-204, 2001.
- 38) Wick, K., Heumesser, C. and Schmid, E.: Groundwater nitrate contamination: factors and indicators, *J. Environ. Manage.*, **111**, 178-186, 2012.
- 39) North, J.C., Frew, R.D. and Peake, B.M.: The use of carbon and nitrogen isotope ratios to identify landfill leachate contamination: Green Island Landfill, Dunedin, New Zealand, *Environ. Int.*, **30**, 631-637, 2004.
- 40) Singleton, M.J., Woods, K.N., Conrad, M.E., Depaolo, D.J. and Dresel, P.E.: Tracking sources of unsaturated zone and groundwater nitrate contamination using nitrogen and oxygen stable isotopes at the Hanford site, Washington, *Environ. Sci. Technol.*, **39**, 3563-3570, 2005.
- 41) 近藤洋正, 田瀬則雄, 平田健正: 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**, 1-15, 1997.
- 42) 廣畑昌章, 小笹康人, 松崎達哉, 藤田一城, 松岡良三, 渡辺征紀: 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.
- 43) Mohamed, M.A., Terao, H., Suzuki, R., Babiker, I.S., Ohta, K., Kaori, K. and Kato, K.: Natural denitrification in the Kakamigahara groundwater basin, Gifu prefecture, central Japan, *Sci. Total Environ.*, **307**, 191-201, 2003.
- 44) Tomiie, Kazuo, Iwasa, Yasuhiro, Maeda, Kaori, Otuzuki, Michiko, Yunoue, Tsutomu, Kakimoto, Ryuji and Kawagoshi, Yasunori: Contamination by Nitrate-nitrogen in Kumamoto City, *J. Water Environ. Technol.*, **1**, 19-28, 2009.
- 45) 富家 和男, 糸満尚貴, 松山賢司, 柿本竜治, 川越保徳: 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, *日本水環境学会誌*, **34**, 1-9, 2011.
- 46) 環境省水環境部地下水・地盤環境室: 硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引, 公害研究対策センター, 2005.
- 47) Koh, D.C., Mayer, B., Lee, K.S. and Ko, K.S.: Land-use controls on sources and fate of nitrate in shallow groundwater of an agricultural area revealed by multiple environmental tracers, *J. Contam. Hydrol.*, **118**, 62-78, 2010.
- 48) Orban, P., Brouyere, S., Batlle-Aguilar, J., Couturier, J., Goderniaux, P., Leroy, M., Maloszewski, P. and Dassargues, A.: Regional transport modelling for nitrate trend assessment and forecasting in a chalk aquifer, *J. Contam. Hydrol.*, **118**, 79-93, 2010.
- 49) 久保田富次郎: 流域管理を目的として農林業環境対策シミュレーターの開発—三次元分布型水物質モデルの恋瀬川流域への適用, 農における自然との共生 III, (独)農研機構 農村工学研究所, 2007.
- 50) Kim, N.W., Chung, H. M., Won, Y.S. and Arnold, J.G.: Development and application of the integrated SWAT-MODFLOW model, *J. Hydrology*, **356**, 1-16, 2008.
- 51) 富家 和男, 川越保徳, 東軍三, 前田香織, 湯之上勉, 松本泰道: 電気透析による実地下水からの硝酸態窒素除去における各種イオンの挙動, *水道協会雑誌*, **80**, 10-17, 2011.
- 52) 細見 正明: 硝酸性窒素の除去技術, *水環境学会誌*, **19**, 969-973, 1996.
- 53) 副島敬道, 寺尾宏, 伊藤雅子, 今村聡: 硝酸性窒素汚染地下水に対する浄化壁の浄化効果の長期持続性—浄化壁設置8年後の地下水水質調査結果—, *地下水学会誌*, **54**, 139-150, 2012.
- 54) 川越保徳, 柿本竜治, 糸満尚貴, 富家 和男: 窒素安定同位体とGISを用いた行政データの調査解析による地下水中硝酸態窒素の負荷要因解明, *用水と廃水*, **53**, 951-960, 2011.
- 55) 田淵俊雄, 志村もと子, 尾野充彦: 休耕田における窒素除去試験の結果と実用性の検討, *農業土木学会誌*, **64**, 345-350, 1996.

