茶畑施肥を起因とする地下水の硝酸汚染防止に向けた 陰イオン交換樹脂を用いた土壌カラム試験による 硝酸イオンの吸着

石橋 融子¹⁾, 森山 紗好¹⁾, 熊谷 博史²⁾, 藤川 和浩¹⁾, 古閑 豊和¹⁾, 今任 稔彦³⁾

¹⁾福岡県保健環境研究所 (〒818-0135 福岡県太宰府市向佐野39)

²⁾福岡県庁環境部環境保全課 (〒812-8577 福岡県福岡市博多区東公園7-7)

³⁾九州大学工学研究院応用化学部門 (〒819-0395 福岡県福岡市西区元岡744)

[平成26年 8 月26日受付, 平成26年12月10日受理]

Adsorption of Nitrate on Anion Exchange Resin in the Soil Column for Preventing Groundwater Contamination due to Nitrate with Application of Fertilizer and Manure on Tea Field

Yuko ISHIBASHI¹⁾, Sayo MORIYAMA¹⁾, Hiroshi KUMAGAI²⁾, Kazuhiro FUJIKAWA¹⁾,
Toyokazu KOGA¹⁾ and Toshihiko IMATO³⁾

¹⁾Fukuoka Institute of Health and Environmental Sciences
(39 Mukaizano, Dazaifu, Fukuoka 818-0135)

²⁾Environmental Preservation Division, Fukuoka Prefecture
(7-7 Higashikouen, Hakata, Fukuoka, Fukuoka 812-8577)

³⁾Kyushu University
(744 Motoooka, Nishi, Fukuoka, Fukuoka 819-0395)

[Received August 26, 2014; Accepted December 10, 2014]

Summary

To prevent groundwater pollution with NO_3^- from fertilizer and manure used in tea field, we evaluated the performance of anion exchange resins A-D by examining whether they adsorb NO_3^- in soil water from tea field using a soil column test. Anion exchange resin A, which gave the best results, was selected for the soil column test. Low concentrations of NO_3^- and SO_4^{2-} were detected in eluates when 185 mL of NO_3^- aqueous solution was passed through a column packed with 30 g of soil from tea field and 10 g of anion exchange resin A. Similarly, low concentrations of NO_3^- and SO_4^{2-} were detected in eluates when 185 mL of spring water from a catchment area of tea field was passed through a column.

Key words: nitrate, groundwater contamination, adsorption, anion exchange resin

1. はじめに

硝酸性窒素 (NO_3^- -N) および亜硝酸性窒素 (NO_2^- -N) は、地下水概況調査 (環境省) において地下水環境基準値 (10 mg/L) を超過する事例が最も多い項目である¹⁾。高濃度の NO_3^- -N および NO_2^- -N を含む水の摂取により乳幼児にチアノーゼが発症することが知られている^{2,3)}。自治体などでは上水道への切り替えなどにより基準値超過水の摂取をひかえるよう指導しているが、飲料水を地下水に依存している地域も少なくない⁴⁾。

硝酸イオン (NO_3^-) による地下水汚染の要因として、畑地への多量施肥、畜産排水、生活排水などがあげられており³⁾、これまで多くの報告がなされている^{5,6)}。福岡県南部地域においても地下水の NO_3^- による汚染が確認された事例がありその要因の一つとして

茶畑への多量施肥があげられている⁷⁾。他県でも畑地への多量施肥が問題となっており、全国で施肥量削減、施肥方法の検討、浄化技術の開発などが試みられている⁸⁻¹¹⁾。環境省でも地下水の NO_3^- による汚染対策技術は検討されておりいくつかの技術が開発されている^{12,13)}が、未だ有効な解決策は見いだされていない。そのため、本研究では茶畑への施肥による NO_3^- 地下水汚染を防止すること目的としてその技術を確立するための基礎的検討をおこなう。

NO_3^- 除去方法の一つとして陰イオン交換樹脂を用いる方法がある。陰イオン交換樹脂は NO_3^- で汚染された地下水を飲用するための浄水器に用いられている¹⁴⁾。他の用途としては土壌に陰イオン交換樹脂を添加しイオン類の溶脱を抑制する試みを検討した事例がある^{15,16)}。その事例では弱塩基性の陰イオン交換樹脂より強塩基性の方がイオン類の溶脱に効果があること、陰イオン交換樹脂の添加は

植物の成長に影響がないことなどが確認された^{15, 16)}。この方法はイオン類の溶脱を防ぎ肥料吸収効率を高めるためのものであり、 NO_3^- による地下水汚染対策に効果があるかどうかについては議論されていない。また、今回、 NO_3^- による地下水汚染を防止することを目的としているため、茶畑土壌に陰イオン交換樹脂を添加する方法より茶畑土壌中に陰イオン交換樹脂を埋設し NO_3^- を吸着除去する方が NO_3^- の地下水への移行を抑制するには効果的であると考えられたため、陰イオン交換樹脂を埋設する方法を検討することとした。しかし、陰イオン交換樹脂による吸着除去ではイオン交換容量が飽和した場合、埋設した陰イオン交換樹脂を全て交換する必要がある。陰イオン交換樹脂を頻繁に掘り起こし再度新しい樹脂を埋め戻すことは、植物体の移動や土壌を掘り起こすための工事を伴うためコストや労力などを考慮すると困難な作業であると考えられる。そのため、これまで陰イオン交換樹脂を茶畑土壌中に埋設し NO_3^- を除去する方法はほとんど検討されていない。ところが、吸着した NO_3^- を脱窒により除去することが可能であるならば長期間使用できるため、この方法は新たな地下水汚染防止技術となり得る可能性がある。また、茶樹の入れ替えのときに埋設した劣化した陰イオン交換樹脂を掘り起こし再生などをおこなうことができるため、埋設した陰イオン交換樹脂が使用できなくなった場合にも対応することができる。よって、将来的には脱窒までおこなうことを念頭に、まず、陰イオン交換樹脂を茶畑土壌に埋設し NO_3^- を効率よく吸着できることを確認する必要がある。本報告では、4種の陰イオン交換樹脂の NO_3^- および SO_4^{2-} 吸着量を求め、その中で茶畑土壌中の NO_3^- を除去するのに最も適した陰イオン交換樹脂を選択した。また、その陰イオン交換樹脂を用いて茶畑土壌中に埋設することを想定した土壌カラム試験をおこない NO_3^- の吸着量を確認したので報告する。

Fig. 1 Structure of anion exchange resin

2. 方法

2. 1 陰イオン交換樹脂および試験試料

陰イオン交換樹脂は弱塩基性の樹脂より強塩基性の樹脂の方が NO_3^- の吸着能力が高いため^{15, 16)}、4級アンモニウム基をもつ強塩基性（I型）の陰イオン交換樹脂4種（A～D）について検討した。4級アンモニウム基をもつ強塩基性（I型）の陰イオン交換樹脂の構造をFig. 1に示す。また、陰イオン交換樹脂A～Dの物性についてTable 1に示す。Aは住化ケムテックス社製のIMAXHP555でB～Dはダウ・ケミカル社製のDOWEXTM 1×8で粒度範囲がそれぞれ異なる。Aは主に NO_3^- を除去することのできる浄水器に使用される陰イオン交換樹脂として販売されている。陰イオン交換樹脂A～Dは全てCl型である。含水率は湿試料の重量から105℃の乾燥器で加熱乾燥した試料の重量を差し引くことによって求めた。

集水域の丘全体が茶畑になっている福岡県八女市の湧水を試験に使用した¹⁷⁾。湧水は2014年4月24日にひしゃくで採水しポリ容器に保存した。湧水の性状を把握するため、電気伝導度（EC）、pH、全有機炭素（TOC）およびイオン類（ナトリウムイオン（ Na^+ ）、アンモニウムイオン（ NH_4^+ ）、カリウムイオン（ K^+ ）、マグネシウムイオン（ Mg^{2+} ）、カルシウムイオン（ Ca^{2+} ）、塩化物イオン（ Cl^- ）、 NO_2^- 、 NO_3^- 、硫酸イオン（ SO_4^{2-} ）および重炭酸イオン（ HCO_3^- ）を測定した。pHおよびECはpH/ION/EC/DOメーター（TOA DKK:MM-60R）、TOCはTOC計（島津製作所:TOC-L）で測定した。 HCO_3^- は滴定で求めた。 HCO_3^- を除くイオン類はイオンクロマトグラフィーで測定した。測定結果をTable 2に示す。湧水は酸性で、TOCから有機物は多くは含まれていないことがわかった。陽イオンでは Ca^{2+} が、陰イオンでは肥料成分である SO_4^{2-} が多く含まれていた。

茶畑土壌は2013年8月に福岡県八女市の丘にある茶畑畝間のA層を移植ごてで採取したものを用いた。採取した茶畑土壌は森林褐色土壌であった。ピンセットで枝葉などを取り除き、風乾後2 mmメッシュのふるいでふるったものを試験に使用した。茶畑土壌のpH（KCl）は、土壌10 gに1 M塩化カリウム溶液を25 mL加え軽くかき混ぜて1時間放置後pHメーター（TOADKK:HM-7J）で測定した。含水率は陰イオン交換樹脂と同様に測定した。炭素（C）および窒素（N）含有量はCHNコーダー（Yanaco:MT-5）で測定した。測定結果をTable 3に示す。茶畑土壌は酸性であった。CおよびN含有量から、一般的な土の元素組成と同じであった¹⁸⁾。こ

Table 1 Physical property of anion exchange resins

	Size range (μm)	Total exchange capacity (eq/L)	Counter ion	Water content (%)
A	300–1200	0.9	Cl型	43.7
B	50–100	1.2	Cl型	40.6
C	100–200	1.2	Cl型	48.3
D	200–400	1.2	Cl型	39.4

Table 2 EC, pH, TOC and ion concentrations of spring water

Item	Unit	Value	Item	Unit	Value
EC	μS/cm	500	TOC	mg/L	0.79
pH	–	5.5	Cl^-	mg/L	10
Na^+	mg/L	12	NO_2^-	mg-N/L	<0.02
K^+	mg/L	3.9	NO_3^-	mg-N/L	18
NH_4^+	mg/L	<0.1	SO_4^{2-}	mg/L	100
Mg^{2+}	mg/L	19	HCO_3^-	mg/L	24
Ca^{2+}	mg/L	42			

Table 3 Property of tea field soil

pH(KCl)	Water content (%)	C content (%)	N content (%)
4.6	1.6	2.1	0.21

の茶畑土壌を用い土壌カラム試験をおこなった。

2. 2 陰イオン交換樹脂の NO_3^- 吸着量試験方法

陰イオン交換樹脂0.1 g および NO_3^- 濃度を 0, 10, 50, 100 および 500 mg-N/L に調製した NO_3^- 水溶液 20 mL を 50 mL 遠沈管に加え、陰イオン交換樹脂 A ~ D の NO_3^- 吸着量を確認した。室温 20℃, 振とう器で 24 時間, 200 rpm で振とうした。振とう後, 上澄み液を採取し, 0.20 μm メンブランフィルター (ADVANTEC : DISMIC25CS020AS) でろ過後, イオンクロマトグラフィー (DIONEX : ICS-1100) により NO_3^- 濃度を測定した。

また, 茶畑では硫酸が多量に施肥されることから地下水中に NO_3^- 以外の陰イオン類として SO_4^{2-} が高濃度に含まれると考えられる。そのため, SO_4^{2-} が陰イオン交換樹脂への NO_3^- の吸着を妨害すると考えられる。よって, NO_3^- を 100 mg-N/L および SO_4^{2-} を 0, 10, 50, 100 または 500 mg/L を含む NO_3^- 水溶液 20 mL についても同様に試験した。上澄み液を採取し, 0.20 μm メンブランフィルターでろ過後 NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度をイオンクロマトグラフにより測定した。

さらに陰イオン交換樹脂 A を 0, 0.01, 0.025, 0.05, 0.1 および 0.5 g とり湧水 20 mL を加えて同様に振とうし, 湧水中に含まれる NO_3^- および SO_4^{2-} の除去率を求めた。

2. 3 土壌カラム試験方法

カラムはガラス製で内径は 20 mm, 長さは 200 mm である。充填した土壌などの流出を防ぐためガラスビーズをカラム下部に充填した。通水速度は 1 mL/min である。実験は全て室温 20℃ に制御された室内でおこなった。

茶畑土壌からの陰イオン類の溶出を確認するため, 茶畑土壌 30 g をカラムに充填し, カラム上部からミリ Q 水を通水しカラム下部からの溶出水を採取した。

茶畑土壌 30 g を上部に, 陰イオン交換樹脂 A 10 g を下部に充填し, カラム上部から NO_3^- を 20 mg-N/L に調製した NO_3^- 水溶液を通水し溶出水を採取した。陰イオン交換樹脂 A における脱窒素速度は吸着速度より遅いため, 実際に現場で用いられた場合には, NO_3^- の樹脂への吸着量が次第に増加していくものと考えられる。そのため, 茶畑土壌に対し過剰量の樹脂を充填することとした。また, 比較のため茶畑土壌 30 g のみを充填したカラムについても同様に試験した。

さらに, 茶畑土壌 30 g を上部に, 陰イオン交換樹脂 A 10 g を下部に充填し, カラム上部から湧水を通水し溶出水を採取した。また, 比較のため茶畑土壌 30 g のみを充填したカラムについても同様に試験した。

溶出水は一定量たまると受水容器を入れ替えた。本試験では 4 回受水容器を入れ替えた。1 回目のみ 25 mL 採取し, 2 ~ 5 回目はそれぞれ 40 mL 採取した。採取した溶出水は 0.20 μm メンブランフィルターでろ過し, イオンクロマトグラフィーで NO_3^- , SO_4^{2-} および Cl^- 濃度を測定した。

3. 結果および考察

3. 1 陰イオン交換樹脂による NO_3^- および SO_4^{2-} の除去率

陰イオン交換樹脂 A ~ D それぞれ 0.1 g と NO_3^- 水溶液 20 mL を振とうし, 陰イオン交換樹脂 A ~ D の NO_3^- 除去率を求めた。陰イオン交換樹脂 A ~ D の除去率は初期 NO_3^- 濃度が 10 mg-N/L のとき 97% 以上, 50 mg-N/L のとき 87 ~ 91%, 100 mg-N/L のとき 72 ~ 78%, 500 mg-N/L のとき 20 ~ 26% で, NO_3^- 除去率について陰

イオン交換樹脂による差はほとんどみられなかった。

次に NO_3^- を 100 mg-N/L および SO_4^{2-} を 0 ~ 500 mg/L を含む水溶液を加えた場合の陰イオン交換樹脂 A ~ D の NO_3^- および SO_4^{2-} 除去率を求めた。陰イオン交換樹脂 A, B および D の NO_3^- 除去率は, SO_4^{2-} 濃度が 10 mg/L および 50 mg/L のとき 77 ~ 78% および 74 ~ 77% でほとんど差はなかった。 SO_4^{2-} 濃度の上昇とともに B および D の NO_3^- 除去率は低下し, SO_4^{2-} が 500 mg/L のときの陰イオン交換樹脂 A の NO_3^- 除去率が 66% であるのに対し B および D は 52 ~ 55% であった。陰イオン交換樹脂 C は全ての初期 SO_4^{2-} 濃度範囲において他の 3 種の陰イオン交換樹脂よりも NO_3^- 除去率が低かった。これは陰イオン交換樹脂 C が他の 3 種の陰イオン交換樹脂より含水率が高い (Table 1) ことが要因であると考えられる。Fig. 2 に陰イオン交換樹脂 A ~ D の SO_4^{2-} 除去率を示す。陰イオン交換樹脂 B ~ D を用いたときの SO_4^{2-} 除去率は陰イオン交換樹脂 C が B および D と比較して 1 ~ 9% 低かったが, 陰イオン交換樹脂 A の SO_4^{2-} 除去率は全ての濃度範囲において B ~ D より 15 ~ 35% 低く, 陰イオン交換樹脂 A が最も選択的に NO_3^- を除去することができると考えられる。よって, これより以降の試験には陰イオン交換樹脂 A を用いて試験することとした。

陰イオン交換樹脂 A に湧水を加え振とうした際の NO_3^- および SO_4^{2-} 除去率を Fig. 3 に示す。陰イオン交換樹脂 A が 0.1 g のとき

● : Anion exchange resin A, ■ : Anion exchange resin B
▲ : Anion exchange resin C, ◆ : Anion exchange resin D

Fig. 2 SO_4^{2-} removal ratio by anion exchange resins in NO_3^- aqueous solution

● : NO_3^- , ○ : SO_4^{2-}

Fig. 3 NO_3^- and SO_4^{2-} removal ratio by anion exchange resin A in spring water

NO_3^- -除去率は92%、 SO_4^{2-} -除去率は90%で、0.5 g のとき両イオンともに99%の除去率であった。

3. 2 土壌カラムを用いた陰イオン交換樹脂による NO_3^- および SO_4^{2-} の除去率

土壌のみを充填した土壌カラムにミリ Q 水を通水したときの溶出水中の NO_3^- -N、 SO_4^{2-} および Cl^- 濃度を Fig. 4 に示す。X 軸は溶出水量、Y 軸は NO_3^- -N、 SO_4^{2-} および Cl^- の濃度を示す。

溶出水量が 0 ~ 25 mL のとき NO_3^- -N、 SO_4^{2-} および Cl^- 全てのイオン濃度が高かったが、その後濃度は低下した。これは、茶畑土壌中で水によって簡単に溶出する NO_3^- -N、 SO_4^{2-} および Cl^- が通水初期段階でほとんど溶出してしまったためであると考えられる。

湧水には約 20 mg-N/L の NO_3^- が含まれていることから、20 mg-N/L の NO_3^- 水溶液を用いて試験した。茶畑土壌および陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムに NO_3^- 水溶液を通水した結果および茶畑土壌のみを充填した土壌カラムに NO_3^- 水溶液を通水した結果を Fig. 5 に示す。茶畑土壌のみの場合、 SO_4^{2-} および Cl^- については茶畑土壌にミリ Q 水を通水した場合と同様に溶出水量が 0 ~ 25 mL のとき濃度は高かったがその後低下した。 NO_3^- については溶出水量が 0 ~ 25 mL のとき茶畑土壌にミリ Q 水を通水した場合と同様に高い値を示し、その後、通水した NO_3^- 水溶液中の NO_3^- と同じ濃度の 20 mg-N/L を示したことから、加えた NO_3^- 水溶液の NO_3^- がそのまま溶出水として採取されたと考えられる。土壌カラムに茶畑土壌および陰イオン交換樹脂 A を充填した場合、溶出水量が 25 ~ 185 mL のとき NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度はそれぞれ 0.01 ~ 0.02 mg-N/L および 0.03 mg/L であったことから、 NO_3^- および SO_4^{2-} のほとんどが陰イオン交換樹脂 A に吸着したと考えられる。 Cl^- については溶出水量が 0 ~ 25 mL のとき濃度が 230 mg/L で特に高かった。これは陰イオン交換樹脂 A に含まれる Cl^- が溶出したことが要因と考えられる。その後、 Cl^- 濃度は低下し、溶出水量が 65 ~ 185 mL のとき Cl^- 濃度は 55 ~ 62 mg/L であった。

茶畑土壌および陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムから溶出した Cl^- について、茶畑土壌に含まれる NO_3^- 以外の有機酸などのイオン類が Cl^- と置き換わって溶出することが考えられる。 NO_3^- 以外の陰イオン類による NO_3^- の陰イオン交換樹脂への吸着妨害は NO_3^- 除去効果に大きな影響を与えることになる。そのため、土壌カラム内の陰イオン交換樹脂 A に吸着された NO_3^- と溶出水から検出された Cl^- の収支を算出することにより他のイオン類による妨害の程度を算出した。Fig. 5 より溶出水中の NO_3^- および Cl^- 濃度は溶出水量が 65 ~ 185 mL のとき値にほとんど差はなかったことから、今回、溶出水量が 145 ~ 185 mL について算出することとした。茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムの溶出水量が 145 ~ 185 mL のとき Cl^- 濃度は 55 mg/L (=1.6 meq/L) であった。茶畑土壌のみを充填した土壌カラムの溶出水量が 145 ~ 185 mL のときの Cl^- 濃度は 0.15 mg/L (=4.2×10⁻³ meq/L) であったことから、茶畑土壌からも Cl^- がわずかに溶出しているが、茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムで溶出水量が 145 ~ 185 mL のとき Cl^- の大半は上述のように、陰イオン交換樹脂 A に含まれる Cl^- が溶出したことが要因と考えられる。陰イオン交換樹脂 A に吸着された NO_3^- の起源は茶畑土壌から溶出した NO_3^- と通水した NO_3^- 水溶液に含まれる NO_3^- である。茶畑土壌のみを充填した土壌カラムで溶出水量が 145 ~ 185 mL のときの NO_3^- 濃度は 20 mg-N/L (=1.4 meq/L) であったことから 1.4 meq/L の NO_3^- が陰イオン交換樹脂 A に吸着したと考えられる。ここで、 NO_3^- の主な妨害イオンとして SO_4^{2-} が想定されるため陰イオン交換樹脂 A 内で Cl^- と置き換わった SO_4^{2-} 濃度を求める。茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムについて、 SO_4^{2-} は通水した NO_3^- 水溶液には含まれていないため、陰イオン交換樹脂 A に供給される SO_4^{2-} は茶畑土壌からの溶出水に含まれる SO_4^{2-} のみである。よって、茶畑土壌のみを充填した土壌カラムで溶出水量が 145 ~ 185 mL のときの SO_4^{2-} 濃度 1.0 mg/L (=5.2×10⁻³ meq/L) が陰イオン交換樹脂 A 内で Cl^- と置き換わった SO_4^{2-} と考えられる。以上のことから、茶畑

Fig. 4 NO_3^- -N, SO_4^{2-} and Cl^- concentrations in effluents from the soil column packed with tea field soil when Milli-Q water was passed through the column

Fig. 5 NO_3^- -N, SO_4^{2-} and Cl^- concentrations in effluents from the soil column packed with tea field soil or tea field soil and anion exchange resin A when NO_3^- aqueous solution was passed through the column

土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムについて、陰イオン交換樹脂 A に供給される NO_3^- と SO_4^{2-} の合計は 1.4 meq/L と算出され、溶出水量が $145 \sim 185 \text{ mL}$ のときの Cl^- 濃度 1.6 meq/L は NO_3^- と SO_4^{2-} の合計より 0.2 meq/L 大きな値となった。この要因として、茶畑土壌に陰イオン交換樹脂 A 内の Cl^- と置き換えることのできる SO_4^{2-} 以外の妨害物質がわずかに含まれていること、陰イオン交換樹脂 A 内の余分な Cl^- が徐々に溶出していることが考えられる。

よって、茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムによって NO_3^- 水溶液を通水したときの NO_3^- 除去について茶畑土壌からの妨害はほとんどないことがわかった。

湧水を土壌カラムに通水したときの溶出水中の NO_3^- 、 SO_4^{2-} および Cl^- 濃度変化を Fig. 6 に示す。溶出水中の NO_3^- 濃度については NO_3^- 水溶液を通水した場合と同様に、茶畑土壌のみ充填した土壌カラムで溶出水量が $0 \sim 25 \text{ mL}$ のときの NO_3^- 濃度は高く、溶出水量が $25 \sim 185 \text{ mL}$ のときは湧水の NO_3^- 濃度と同じであった。茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムの場合も同様に、溶出水量が $25 \sim 185 \text{ mL}$ のときの NO_3^- は 0.02 mg/L であった。 SO_4^{2-} 濃度については、茶畑土壌と陰イオン交換樹脂 A を充填した土壌カラムの場合 NO_3^- 水溶液と同様に $0.02 \sim 0.03 \text{ mg/L}$ であったが、茶畑土壌のみの土壌カラムで溶出水量が $65 \sim 185 \text{ mL}$ のときは、湧水の SO_4^{2-} 濃度 100 mg/L に茶畑土壌からの溶出水濃度 $1.6 \sim 3.9 \text{ mg/L}$ (Fig. 4) を加えた値が検出された。 Cl^- 濃度についても SO_4^{2-} と同様の結果であった。 NO_3^- 、 SO_4^{2-} および Cl^- は、土壌カラム中で茶畑土壌に捕捉されることなくそのまま溶出することがわかった。また、茶畑土壌を通過した NO_3^- および SO_4^{2-} は、両イオンとも陰イオン交換樹脂 A に吸着しほとんど溶出しなかった。以上のことから、茶畑土壌に陰イオン交換樹脂を埋設することにより SO_4^{2-} が高濃度に共存している場合においても、陰イオン交換樹脂を十分な量埋設することによって NO_3^- の除去が可能であることが示された。

今後、茶畑土壌中に埋設した陰イオン交換樹脂が長期間使用できるように陰イオン交換樹脂に吸着した NO_3^- を脱窒する方法を検討する。

謝 辞

本研究は JSPS 科研費 25340081 の助成を受けたものです。

要 約

茶畑への施肥による NO_3^- の地下水汚染の防止を目的として、陰イオン交換樹脂の使用が可能であるか確認するため、土壌カラム試

験方法を用いて陰イオン交換樹脂が茶畑土壌浸透水中に含まれる NO_3^- を吸着するか検討した。 SO_4^{2-} が 500 mg/L および NO_3^- が 100 mg-N/L を含む水溶液 20 mL に陰イオン交換樹脂 4 種 (A ~ D) をそれぞれ 0.1 g 加えたときの各陰イオン交換樹脂の NO_3^- 除去率は、陰イオン交換樹脂 A が 66% 、B ~ D が $52 \sim 55\%$ であったことから NO_3^- を最も選択的に吸着することのできる陰イオン交換樹脂 A を選択し土壌カラム試験をおこなった。茶畑土壌 30 g と陰イオン交換樹脂 A 10 g を充填したカラムに NO_3^- 水溶液を 185 mL 通水した場合、溶出水中の NO_3^- および SO_4^{2-} はほとんど検出されなかった。また、茶畑を集水域とする湧水を 185 mL 通水した場合も同様に溶出水中の NO_3^- および SO_4^{2-} はほとんど検出されなかった。

文 献

- 1) 環境省：平成23年度地下水調査結果，<http://www.env.go.jp/water/report/h24-02/01.pdf>，2014年4月21日現在
- 2) 日本水道協会：9 硝酸性窒素及び亜硝酸性窒素，pp278-285，「上水試験方法解説編」，(社)日本水道協会編，東京（2001）
- 3) 環境省水環境部地下水・地盤環境室：II-ii 硝酸性窒素等によるメトヘモグロビン血症報告例，pp35-36，「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，東京（2002）
- 4) 松崎達哉，廣畑晶章，藤田一城，松下 裕，松岡良三：9) 飲用地下水からの硝酸性窒素除去の実験－イオン交換樹脂を用いた家庭用浄水器の検討－，熊本県保健環境科学研究所報第26号，91-93（1996）
- 5) 中村融子，松尾 宏，馬場義輝，徳永隆司，北森成治，大霜公美，松尾義之：浄水器による硝酸性窒素の除去事例，福岡県保健環境研究所年報第26号，67-71（1999）
- 6) 郡山益実，田中 明：上場台地と背振山地における地下水の硝酸イオンについて，佐賀大学農学部技報第87号，133-139（2002）
- 7) 松尾 宏：施肥による地下水の硝酸性窒素汚染問題とその課題，環境管理，34，21-28（2005）
- 8) 福岡県：茶の点滴かん水施肥モデル現地実証調査実績資料，「茶の施肥コスト低減対策事業報告書」，福岡（2012）
- 9) 白井一則，辻 正樹，樋江井清隆，辻 浩孝，木下忠孝：てん茶園における点滴施肥の長期継続栽培の可能性，愛知農業総合試験所報，42，163-170（2010）
- 10) 松尾 宏，馬場義輝，中村融子，徳永隆司，北森成治，平田健正，西川雅高：窒素フロー収支からみた畑地施肥量削減の効果，福岡県保健環境研究所年報第27号，54-59（2000）
- 11) 大林みどり，河合孝枝，片山新太：硝酸性窒素による地下水汚染に対する浄化法の検討，愛知県環境調査センター所報，40，39-45（2012）

Fig. 6 NO_3^- -N, SO_4^{2-} and Cl^- concentrations in effluents from the soil column packed with tea field soil or tea field soil and anion exchange resin A when spring water was passed through the column

- 12) 馬場義輝, 松尾 宏, 石橋融子, 永淵義孝, 高橋洋子, 野中信一, 平田健正, 西川雅高: 電気透析装置と生物脱窒装置による硝酸性窒素汚染地下水のオンサイト浄化, 水環境学会誌, **26**, 361-367 (2003)
- 13) 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)
- 14) 寺尾 宏: 第 9 章 硝酸性窒素汚染の浄化技術, pp. 203-222, 「地下水・土壤汚染の基礎から応用」, 日本地下水学会編, 理工図書, 東京 (2006)
- 15) 嶋田典司, 高橋直和: 陰イオン交換体による塩類の溶脱抑制に関する研究 (第 1 報), 日本土壤肥料科学雑誌, **50**, 5-9 (1979)
- 16) 嶋田典司, 高橋直和: トマトの養分吸収に及ぼす陰イオン交換樹脂の影響, 日本土壤肥料科学雑誌, **51**, 229-233 (1980)
- 17) Ishibashi, Y., Matsuo, H., Baba, Y., Nagafuti, Y., Imato, T. and Hirata, T.: Association of manganese effluent with the application of fertilizer and manure on tea field, *Water Res.*, **38**, 2821-2826 (2004)
- 18) 日本化学会: 3 土の平均組成, pp4-5, 「土の化学」, 学会出版センター, 東京 (1993)