地下水中での脱窒速度の評価手法に関する研究

A method for evaluation of denitrification rate in groundwater

柳川瀬賢幸¹,山辺敬介²,宮内秀幸³,藤原 拓⁴,大年邦雄⁴

Yoshiyuki Yanagawase, Keisuke Yamabe, Hideyuki Miyauchi, Taku Fujiwara, Kunio Ohtoshi

1. はじめに

環境基準項目の中で硝酸性窒素による地下水汚染は最も高い基準超過率となっており, 汚染地域での原因究明および対策が求められている。対策の検討にあたり,地下水中での 脱窒速度の推定は自浄作用の評価の観点から重要であるが,従来は鉛直方向の濃度分布の 測定を行っている場合を除いてその推定は困難であった。本研究では,定点における時系 列水質データを用いた脱窒速度の推定手法を検討したので報告する。

2. 調査概要

調査は高知県中部の沿岸施設園芸地域で 2000 年 6 月 7 日から 2002 年 6 月 5 日にかけて 9 地点を対象として行った。 2001 年 5 月 23 日まで (2000 年度と定義)は概ね 1 週間に 1 回,以後 2002 年 6 月 5 日まで (2001 年度と定義)は 2 週間に 1 回の頻度で農家の灌漑用の井戸から採水した。 なお,調査地域・地点の詳細は文献 1)を参照されたい。

3. 脱窒速度の推定手法

対象地域ではハウスの湛水にともない施肥に由来する $NO_3^{-}N$, $SO_4^{2^-}$, Ca^{2^+} 等の濃度が急増することが著者らの研究より明らかになっている。そこで,本研究では湛水後の濃度低減期の $NO_3^{-}N$ および $SO_4^{2^-}$ 濃度の時系列データを用いて脱窒速度を推定した。推定に際して対象物質の分解と周囲の地下水による希釈を考慮し,井戸のストレーナー直近の土壌中での物質収支式を構築した。簡略化のため以下の 5 点を仮定した。 解析期間中の対象物質の上部からの供給は無視, ストレーナー直近の流動は完全混合モデルで表現可能,

反応速度は1次式で表現可能, 吸着は無視, 対象地域では CT は海水のみに由来

$$\frac{dC}{dt} = -(k_1 + k_2) \left(C - \frac{k_2}{k_1 + k_2} C_{in} \right) \tag{1}$$

ここで,C は対象物質濃度, C_{in} は周囲の汚染されていない地下水中の対象物質濃度, k_I は分解速度係数, k_2 は希釈率(対象土塊への流入流量/水相部容積)である。 NO_3^- -N 濃度の減少を考える場合,汚染されていない地下水中の NO_3^- -N 濃度は 0 とみなせるため, C_{in} を 0 として扱いうる。一方,本調査での ORP の最小値は -50mV であり硫酸還元は生じていないと考えられることから SO_4^{2-} 濃度の減少を考慮する場合は $k_I=0$ とみなせる。それゆえ, NO_3^- -N 濃度を N, SO_4^{2-} 濃度を S で表すと次式を得る。

$$\frac{dN}{dt} = -(k_1 + k_2)N, \quad \frac{dS}{dt} = -k_2(S - S_{in})$$
(2)

表-1 解析地点	および期間	Table 1	Sampling	well and	the duration	for the analysis
----------	-------	---------	----------	----------	--------------	------------------

V	V5	W	10	W19			W22		W68		W69	
2000	2001	2000	2001	2000	'01-1	'01-2	'01-3	2000	2001	2000	2001	2000
9/27-	10/25	9/27-	7/19-	7/24	8/22	9/29	3/16	8/23	4/25	9/13	10/25	8/23
4/4	-6/5	3/28	4/2	-9/27	-9/12	-11/7	-6/5	-1/5	-7/4	-10/10	-12/10	-11/17

¹ 愛媛大学連合農学研究科(Ehime Univ.), 2 四国土建 (Shikoku doken co., LTD), 3 ネオス,

⁴高知大学農学部(Kochi Univ.), キーワード:地下水,水質,硝酸,脱窒

N および S の時系列データより,各々 (k_1+k_2) および k_2 を算出し,その差より脱窒速度係数 k_1 を求めた。なお,算出に際して S_{in} の与え方が重要となるが,調査地域は沿岸部に位置し地下水水質への海水侵入の影響も見られるため,次式で計算される海水由来の SO_4^{2-} 濃度で S_{in} を与えた。ここで,($[SO_4^{2-}]/[Cl]$)sea は海水中の濃度比である。

 S_{in} = [CI^-] $_{sample}$ × ([SO_4^{2-}]/[CI^-]) $_{sea}$ (3)解析地点および期間を表-1に示した。 4. 結果および考察

図-1 に解析例を示した。図より, 片対数紙上で直線関係が得られている ことから,上記のモデル化が妥当であ ったと評価できる。回帰式の係数より 算出した k_1 および k_2 値を図-2 に示し ているが, W19 および W68 は k_1 およ びk₂値が他の井戸と比較して極めて 大きい。2000年度の解析期間中の ORP 平均値と k₁の関係を図-3 に示したが, ORP が低いほど脱窒速度係数 k」が大 きくなっていることから,本推定結果 の妥当性が傍証された。 k_2 値に関して は, W19 および W68 は共同井戸であ り揚水量が多かったために大きくなっ たと判断できる。また, W68 を除けば 2000年度と 2001年度で同程度の k₁・ k₂値を得ており,自浄作用は同地点 であれば時期的に大差ないといえる。 図-4 に各地点・年度について(k₁+k₂) 値と平均 NO3-N 濃度の関係を示した。 ここで,2001年度のW19では3期間 の平均値を用いた。図より(k₁+k₂)値

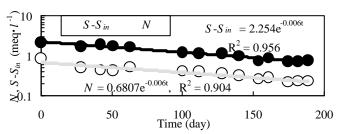


図-1 解析例(W5,2000年度) Fig.1 An example of the analysis (W5,2000)

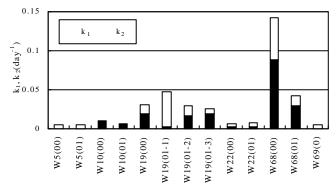


図-2 k₁ および k₂ 値 Fig. 2 k₁ and k₂ value

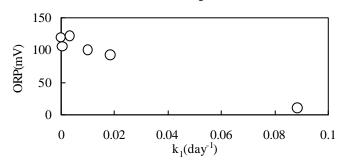


図-3 k₁とORPの関係 Fig.3 k₁ value and ORP

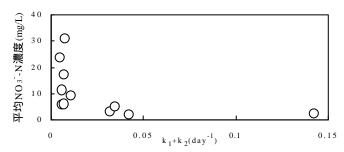


図-4 平均 NO_3 -N 濃度と k_1+k_2 値の関係 Fig.4 Avarage NO_3 -N conc. and (k_1+k_2) value

が大きいほど NO_3^- -N 濃度が低く,地下水中の NO_3^- -N 濃度には自浄作用が大きく影響するといえる。また, (k_1+k_2) 値が $0.01d^{-1}$ 程度以下の場合は NO_3^- -N 濃度に大きな幅があり,地表面からの供給フラックスの差に起因すると考えられる。

5. おわりに

本研究では地下水中の脱窒速度の評価手法を提示し,ORP値との比較によりその妥当性を示した。また,この手法により推定した (k_1+k_2) 値が $0.01d^{-1}$ 程度以下と小さい場合には次年度以降も (k_1+k_2) 値が大きく変化しないと考え,施肥量等に十分注意する必要がある。参考文献:1)W.S.T, **45**, (12), 53-61,2002, 謝辞:日本生命財団による研究助成に謝意を表す。