

琉球石灰岩帯水層における地下水中の硝酸性窒素と脱窒

Denitrification and Distribution of Nitrate in Ryukyu Limestone Aquifer

安元 純*, 聖川健斗*, 細野高啓**, 嘉森裕史***, 真謝孝正****, 中野拓治*

YASUMOTO Jun, HLIJIKAWA Kent, HOSONO Takahiro, KAMORI Hiroshi,
MAJA Kosei and NAKANO Takuji

1. はじめに

近年、硝酸性窒素による地下水汚染が日本を含む世界各地で問題となっている (Trudell et al., 1986). 特に、既往研究によると、琉球石灰岩分布地域における地下水中の硝酸性窒素濃度は高く、沖縄本島南部地域 (以下、調査地域という) では国内の水道水質基準である 10mgL^{-1} を超える地点も確認されている. その一方で、複数の観測地点における地下水中の硝酸性窒素濃度が周りの地下水に比べ低い値を示しており、脱窒の可能性が示唆されている (安元, 2013).

石灰岩帯水層における脱窒に関する研究は、アメリカやドイツなどでいくつかの報告がなされているもの (例えば、Heffernan et al., 2012), 琉球石灰岩帯水層における報告例はない.

そこで本研究では、地下ダムが2機築造されている沖縄本島南部地域において定期的に地下水調査を実施し、琉球石灰岩帯水層の地下水中の硝酸性窒素の実態把握を行うとともに、脱窒メカニズムについて検討した.

2. 研究方法

調査方法は、調査地域に分布する湧水や地下水観測井戸において、2011年9月から2012年12月にかけて、原則毎月1回の定期採水調査を実施した. 現場測定項目は水温、pH、電気伝導度 (EC)、酸化還元電位 (ORP)、溶存酸素 (DO) とし、水質分析項目には、陽イオン (Na^+ , NH_4^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+}), 陰イオン (Cl^- , NO_2^- , NO_3^- , SO_4^{2-} , PO_4^{3-} , HCO_3^-) を選定した. また、硝酸イオン中の窒素・酸素安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$, $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$) に関しては2011年9月、2012年9月、溶存有機炭素 (DOC) については2012年9月、さらに浮遊懸濁物質 (SS) については2012年8月から2012年12月において測定を実施した.

硝酸イオン中の窒素・酸素安定同位体比分析に関しては、安定同位体比測定用質量分析計 Delta V (Thermo electron 社製) を用いて行った. 分析方法には脱窒菌法を使用し、試料水に含まれる硝酸イオンを微生物反応により亜酸化窒素ガスに変え、そのガスを液体窒素で捕集し、質量分析計に導入することで測定した.

3. 結果と考察

調査地点が最も多い米須エリアを対象に、 NO_3^- -N と DO の平面分布状況を検討したところ、Fig.2 に示すように NO_3^- -N は内陸部から海岸部に向かって高くなる一方で、米須地下ダムの貯留域に入ると堤体近傍エリアで濃度値の低下が認められる. Fig.3 に示した DO についても、堤体近傍で 3mgL^{-1} 以下の低い領域が存在しており、 NO_3^- -N 濃度の平面分布と対応していることが示唆された. そこで、米須地下ダム貯留域の NO_3^- -N と DO の関係を検討したところ、DO の低下に伴って NO_3^- -N が低くなる傾向を示しており、調査地点での酸化還元状態が NO_3^- -N に影響していると推測される. 特に、地下ダム止水壁直上部に位置する米堤上 15、米

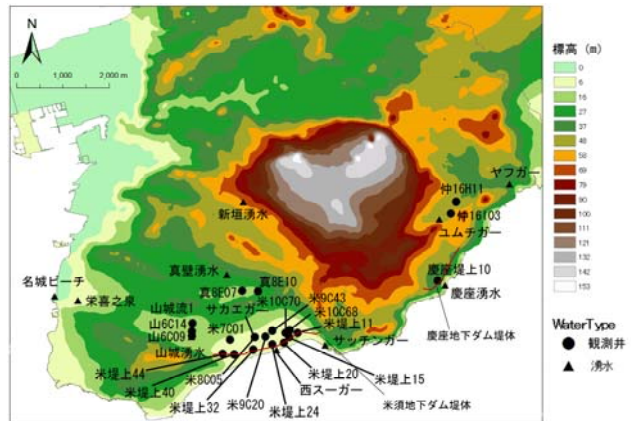


Fig.1 調査地域の概要

*琉球大学農学部地域農業工学科 Faculty of Agriculture University of The Ryukyus, **熊本大学大学院先導機構, ***新日鉄住金エンジニアリング(株), ****(株)名建産業, キーワード: 琉球石灰岩帯水層, 硝酸性窒素, 地下水, 脱窒

堤上 32, 及び米須上 40 においては, DO が 2mgL^{-1} 程度の値となっており, 他の調査地点の $\text{NO}_3\text{-N}$ に比較して低い領域となっている。これは, 地下ダム止水壁近傍のように地下水が滞留しやすい場所で, 地下水が還元的环境になり, 地下水中で脱窒が生じ, $\text{NO}_3\text{-N}$ が減少した可能性が考えられる。

そこで, Fig4 に地下水中の硝酸イオン中の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と酸素安定同位体比 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ との関係を地下水と湧水別に示した。図をみると, 地下水に含まれる $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ は 5~20‰の範囲に分布されており, 湧水に含まれる $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ は 5~10‰と, 地下水に比べ狭い範囲に分布している。特に, 地下水に着目すると, 4 つの地点で $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ が 15~20‰と高い値を示している。地下水が還元環境下に置かれ脱窒反応が進むと, 地下水溶液中には質量数の重い硝酸性窒素ならびに酸素が濃縮し, 結果, 同位体比も重い(高い)値へと進化する事が知られている (Kendall et al., 2007)。これらの地点では, $\text{NO}_3\text{-N}$ が小さくなるに従って $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ も増加しており, 琉球石灰岩帯水層中で脱窒が起こっていることを裏付けるはじめての結果となった。

4. 今後の予定

今後は, 琉球石灰岩帯水層における脱窒メカニズムについて, 継続して地下水調査を実施すると共に, 地下水中に存在する微生物の遺伝子解析や, 室内カラム試験及び数値シミュレーションを通じて解明していきたい。

参考文献

安元純ほか (2013) : 多変量解析を用いた石灰岩帯水層における地下水水質の統計的分類, 土木学会論文集 B1(水工学) Vol.69, No.4, I_595-I_600. Heffernan et al. (2011):

Denitrification and inference of nitrogen sources in the karstic Floridan Aquifer, *Biogeosciences Discussions*, 8: 10247 - 10294. Kendall et al. (2007) : Tracing anthropogenic input of nitrogen to ecosystems, in

Michener, R.H., and Lajtha, K., eds., *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science*, 2, Blackwell.

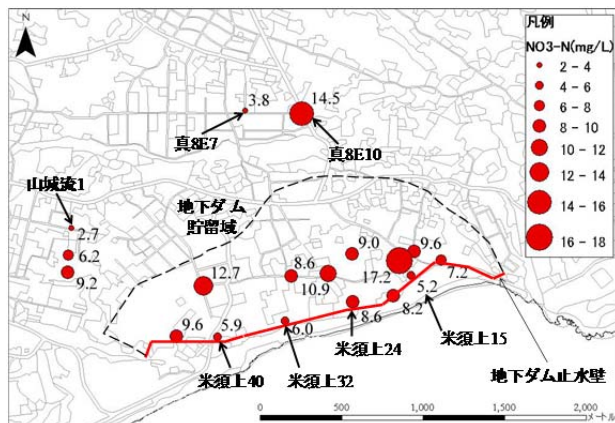


Fig.2 調査地域の $\text{NO}_3\text{-N}$ の分布

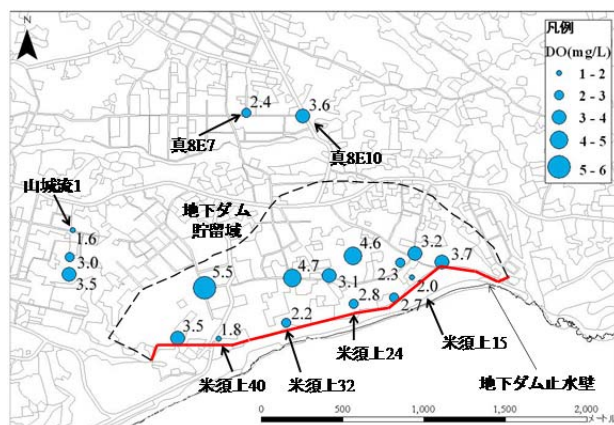


Fig.3 調査地域の DO の分布

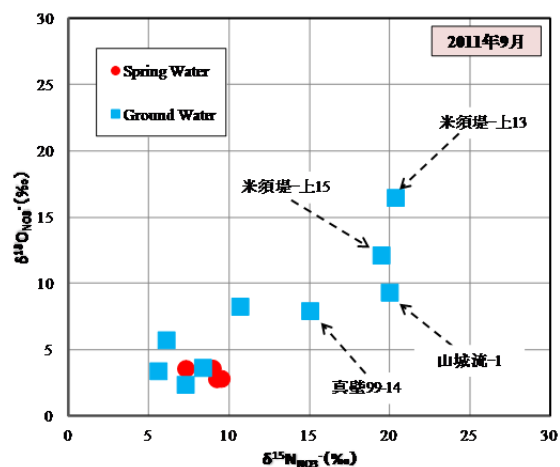


Fig.4 硝酸イオン中の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ と酸素安定同位体比 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3}$ との関係