

地下ダム流域における石灰岩帯水層中の硝酸と脱窒の変動特性 Variability characteristic of nitrate and denitrification in limestone aquifer

聖川 健斗*, 安元 純*, 細野 高啓**, 中野 拓治*

HIJIKAWA Kento*, YASUMOTO Jun*, HOSONO Takahiro**, 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. 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. 著者らは, これまで, 沖縄本島南部地域において, 石灰岩帯水層における硝酸性窒素の変動特性について検討してきた. その中で, 琉球石灰岩帯水層中の比較的地下水の滞留しやすい地点にて, 硝酸性窒素濃度も低く脱窒が起きていることを確認している. しかし, 琉球石灰岩帯水層の地下水中の硝酸性窒素と脱窒の長期的な時間変動については不明確である.

そこで本報では, 地下ダムが築造されている沖縄本島南部地域において, 今後の水質管理を含めた地下水の適正な利用に資する観点から, 月に1度の頻度で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と脱窒の時間的な変動特性について検証した.

2. 調査方法

現地調査では, 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2013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 ($\text{Na}^+, \text{NH}_4^+, \text{K}^+, \text{Mg}^{2+}, \text{Ca}^{2+}$), 陰イオン ($\text{Cl}^-, \text{NO}_2^-, \text{NO}_3^-, \text{SO}_4^{2-}, \text{PO}_4^{3-}, \text{HCO}_3^-$) を選定した. また, 硝酸イオン中の窒素・酸素安定同位体比

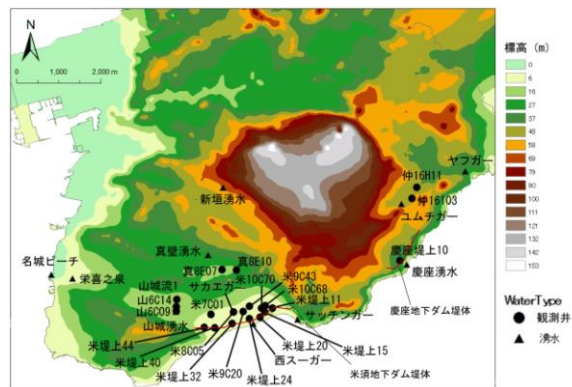


図-1 調査地域概要

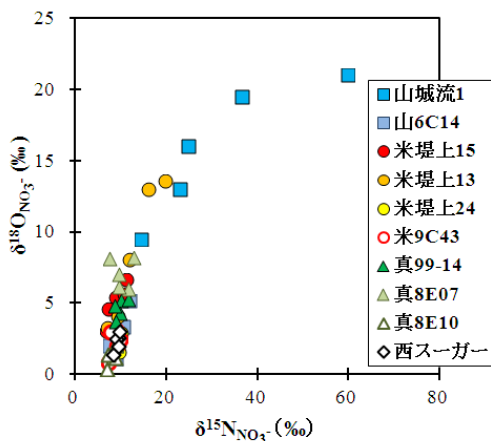


図-2 硝酸イオン中の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ と酸素安定同位体比 $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$ との関係

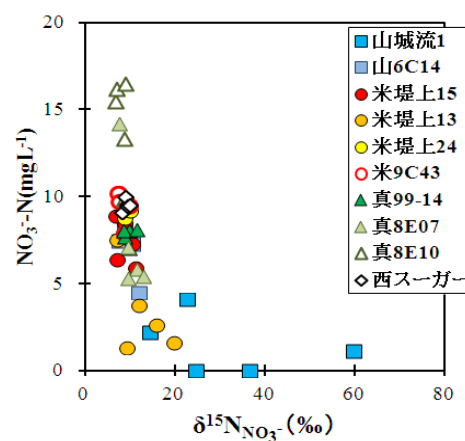


図-3 地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度と硝酸イオン中の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ との関係

($\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}, \delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$) および溶存有機炭素 (DOC) に関しては2013年5月から2013年12月に測定を実施した.

*琉球大学農学部地域農業工学科 Faculty of Agriculture University of The Ryukyus, **熊本大学大学院先端機構, キーワード: 琉球石灰岩帯水層, 硝酸性窒素, 地下水, 脱窒

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。

3. 結果及び考察

図-2 および図-3 に示すように、地下水中の硝酸イオン中の窒素・酸素安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$, $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$) の関係から地下水中の脱窒の有無を確認した。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)値へと進化することが知られている (Kendall et al., 2007)。図-2 をみると、採水した 10 地点に含まれる $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ は 5~60‰ の広い範囲に分布している。特に、山城流 1 および米堤上 13 の 2 地点においては、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ がそれぞれ 14.4~59.7‰, 7.1~19.7‰ と比較的高い値を示している。さらに、図-3 で、地下水中の $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 濃度と硝酸イオン中の窒素安定同位体比 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ の関係を調べたところ、硝酸イオン中の窒素安定同位体比が高い値を示した山城流 1 および米堤上 13 の地点においては、 $\text{NO}_3^- \text{-N}$ 濃度もそれぞれ定量下限値以下~ 4.08mgL^{-1} , $1.34\sim 7.49\text{mgL}^{-1}$ と低い値を示しており、これらの地点では地下水中で脱窒が起こっているものと思われる。脱窒が確認された観測地点の位置的特徴をみると、山城流 1 および米堤上 13 の地点は、米須地下ダム堤体直上や断層に比較的近く、地下水が滞留することにより還元的な環境条件が生じ脱窒が生じている。

次に、図-4 に米堤上 13 および真 8E10 地点において、2011 年 9 月~2013 年 12 月における地下水位および硝酸性窒素の経時変化を示す。図より、脱窒が起こっている米堤上 13 において、地下水位と硝酸性窒素が正の相関を示しており、降雨が少なく地下水位が低くなると脱窒による影響が強くなりみられるようになり地下水中の硝酸性窒素濃度も 2mgL^{-1} 程度に減少している。地下水位が高かった 2013 年 5 月における $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ および $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$ の値をみると、 $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3^-}$ が 7.07‰, $\delta^{18}\text{O}_{\text{NO}_3^-}$ が 3.26‰ と低く、脱窒に伴う同位体分別は確認できなかった。一方、真 8E10 においては、地下水位と硝酸性窒素が負の相関を示しており、通常、硝酸性窒素は平均 15.0mgL^{-1} と比較的高く値を推移しているが、降雨時には周りの比較的低い地下水に希釈されていると考えられる。明確に脱窒が起こっていると推定される地点では米堤上 13 と同様の傾向がみられ、他の地点は、真 8E10 に近いが、あるいは地下水位と硝酸性窒素との相関は不明瞭であった。

4. まとめ

沖縄本島南部地域の地下ダム流域において、石灰岩帯水層中の地下水中の硝酸と脱窒の時間変動特性に関して検討したところ、地下水中の硝酸性窒素は地下水位の変動による影響が比較的強く、脱窒が確認された地点では、脱窒が起こる還元的環境が降雨に伴う地下水位の上昇により酸化的環境に変化していることが明らかとなった。

5. 参考文献

Kendall, C., Elliott, E.M., and Wankel, S.D. (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 Publishing, 375-499

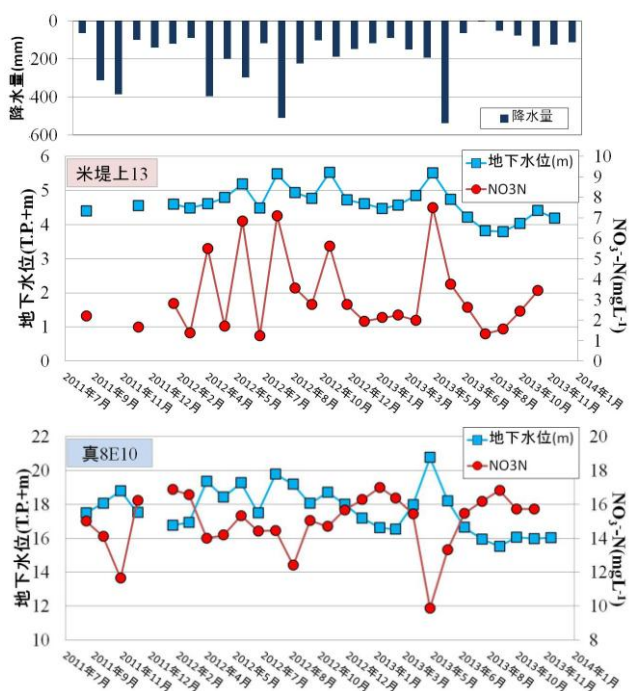


図-4 米堤上 13/真 8E10 における地下水位および硝酸性窒素の経時変化