

下水再生水由来窒素の土壌中における動態解析への 窒素安定同位体比の利用

京都大学 流域圏総合環境質研究センター 学生会員 ○重松 賢行 Neetha Dayanthi

正会員 山下 尚之 田中 宏明

内閣府沖縄総合事務局 土地改良総合事務所

加藤 浩一 岩元 裕作

独立行政法人 土木研究所

対馬 孝治 天野 邦彦

1. はじめに

沖縄本島南部島尻地区において下水処理場の二次処理水を再生し畑地での灌漑用水として利用する日本で初めて且つ本格的な計画が進められている¹⁾。窒素除去が進んでいない（アンモニア性窒素で平均 18 mgN/L）当該地区の下水再生水が灌漑利用された場合に硝酸性窒素などの物質が土壌や地下水などの周辺環境に及ぼす影響が懸念されている。しかしながらこれまで島尻地区での調査・実証試験においてこれらの窒素動態は明確にされていないため、我々は下水再生水の灌漑利用を想定した土壌カラム試験系を作成し、アンモニア性窒素・硝酸性窒素をはじめとする窒素の動態を調査した。さらに窒素動態把握のために窒素安定同位体比という新しい指標を導入し、カラム試験系のサンプルの測定を行い、結果をもとに分析の有効性についても検討を行った。

2. 土壌カラム試験の概要

本研究では、島尻地区で採取した塩基物含有量に富み、透水性が低いジャーガル土壌(石灰岩質台地土)を用いた。試験前には、純水による洗浄を行い残留肥料などの影響を除去した。また模擬下水再生水は近隣の A 処理場の二次処理水に NH_4Cl を添加して島尻地区と同じ NH_4^+ 18 mgN/L に調整して使用した。

土壌カラムは、周囲を 20℃ の恒温水が循環する内径 200 mm 高さ 850 mm のプラスチック製カラムを 2 基作成した。土壌の表面は開放系となっており上部のシャワーにより均一に散水される。またカラム内の浸透水は下部の流出口以外に、側面 6 箇所の高さの異なる採水口から間隙水として採取が可能となっている。

カラムの散水条件は、島尻地区での計画灌漑水量 31.5mm/week を参考に、安全係数を考慮して 57.3 mm/week (1800 ml/week) とした。これらの水量を週に 28.6 mm/hr×2 時間で散水する「間欠系」、連続的に散水する「連続系」を設定して 6 ヶ月以上に及ぶ試験を行った。

3. 窒素濃度の変化

図 1 に連続系、図 2 に間欠系における流出水中の窒素濃度を示す。

経過日数は、下水再生水による散水開始後の経過日数を表す。

連続系において NO_3^- ・ NO_2^- のピークが現れ、最高濃度がそれぞれ 51mgN/L (59 日後)、12mgN/L (82 日後) となり、低下ののちに濃度が安定している。同様の現象は NO_3^- の 6 箇所の間隙水において確認され、時間の推移と共に溶脱しながら、カラム下層で濃度低下を起こしていることが明らかとなった。一方の NH_4^+ は、間隙水・流出水共に 1-3mgN/L と流入水に比べて非常に低かった。

間欠系においては、通水速度の変化が大きいことから日ごとの濃度変化が大きかったが、流出水・間隙水の全体的な傾向として NO_3^- は徐々に上昇し、30-40mgN/L で安定している。 NO_2^- は検出されたものの最高濃度 1.2mgN/L と非常に低くなっている。 NH_4^+ については、連続系同様に最高濃度 2mgN/L の範囲内での変動となった。

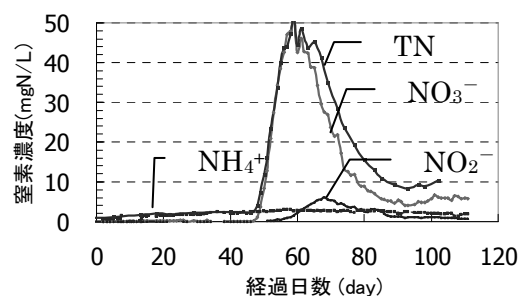


図 1 連続系流出水における窒素濃度

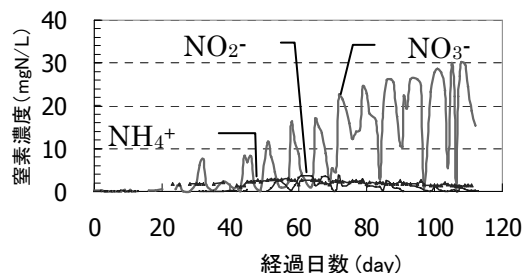


図 2 間欠系流出水における窒素濃度

キーワード： 下水再生水 灌漑利用 アンモニア性窒素 硝酸性窒素 窒素安定同位体比

連絡先：〒520-0811 大津市由美浜 1-2 京都大学大学院工学研究科 附属流域圏総合環境質研究センター TEL077-527-6329

4. 窒素安定同位体比

$$\delta^{15}\text{N} = \left[\frac{{}^{15}\text{N}/{}^{14}\text{N} (\text{sample})}{{}^{15}\text{N}/{}^{14}\text{N} (\text{standard})} - 1 \right] \times 1000 \quad (\text{式 1})$$

窒素には、 ${}^{14}\text{N}$ ・ ${}^{15}\text{N}$ という安定同位体が自然界に存在する。窒素安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}$ 値）は(式 1)のように標準物質である対流圏の大気中窒素とサンプルとの同位体存在比との差を千分率で表したものである。

$\delta^{15}\text{N}$ 値の特徴として、雨水-8～+15‰、化学肥料-8～+8‰、家庭排水+8～+15‰などと窒素の起源によってその値が異なる²⁾。また、物理化学的・生化学的な作用により窒素の形態が変化する際に、同位体分別と呼ばれる各安定同位体の構成比が変化する反応が発生する。特に土壌浸透過程での同位体分別が起こりやすい反応として、 NH_4^+ から NO_3^- への硝化反応、脱窒による NO_3^- ・ NO_2^- のガス化、 NH_4^+ のガス揮散が考えられる。本研究では硝化と脱窒による同位体分別に着目した。硝化の過程において軽い窒素 ${}^{14}\text{N}$ が優先的に細菌に取り込まれて NO_3^- に変換されるため、残った NH_4^+ の $\delta^{15}\text{N}$ 値が上昇する。一方で生成した NO_3^- の $\delta^{15}\text{N}$ 値は低下する。また脱窒過程でも同様のメカニズムで生成した N_2O ・ N_2 ガスでは ${}^{14}\text{N}$ の割合が高く、残った NO_3^- における $\delta^{15}\text{N}$ 値が上昇することが考えられる。

5. 安定同位体比測定結果

流出水の NO_3^- および NH_4^+ の安定同位体比測定のための前処理は、 NO_3^- を水蒸気蒸留(セミマイクロケルダール法)によって NH_4^+ の還元した後にテトラフェニルホウ酸塩沈殿として捕集する SAKATA の方法³⁾に準拠した手法で行った。測定は元素分析計(Thermo Electron 社製、Flash EA)を前処理装置として接続した安定同位体比測定用質量分析装置(Thermo Electron 社製、Delta Plus XL)を用いて行った。

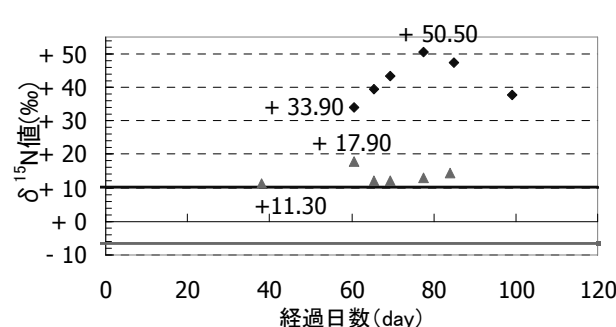


図3 連続系流出水における $\delta^{15}\text{N}$ 値

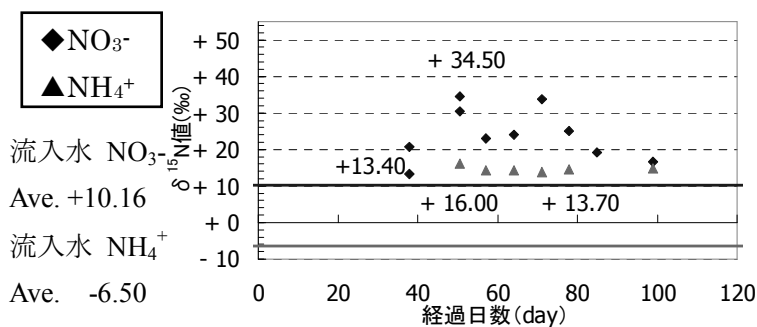


図4 間欠系流出水における $\delta^{15}\text{N}$ 値

流入水平均 $\delta^{15}\text{N}$ (NO_3^-) +10.16、 $\delta^{15}\text{N}$ (NH_4^+) -6.50 に対して、図3のように連続系流出水のサンプルにおいては $\delta^{15}\text{N}$ (NH_4^+) 値が+11.30～+17.90と値が上昇した。一方の $\delta^{15}\text{N}$ (NO_3^-) は NO_3^- が検出され始めてからのサンプルで+33.90～+50.50とさらに高い値が測定され、測定日による変動が大きかった。間欠系流出水においては、図4のように $\delta^{15}\text{N}$ (NH_4^+) +13.70～+16.00と連続系と同様の傾向を示したのに対し、 $\delta^{15}\text{N}$ (NO_3^-) は+13.40～+34.50と値が上昇したものの、連続系と比較して変動幅が小さい結果となった。

6. 窒素の動態に関するまとめ

濃度測定結果により NH_4^+ は吸着や硝化により土壌中での濃度低下を起こしていることが考えられる。また $\delta^{15}\text{N}$ 値の測定結果においても $\delta^{15}\text{N}$ (NH_4^+) 値の上昇により硝化反応と考えられる同位体分別の発生が確認された。一方で間隙水・流出水の NO_3^- の濃度変化により、特に連続系カラム下層部において NO_3^- の除去が進んでいることが確認された。同位体分別による $\delta^{15}\text{N}$ (NO_3^-) 値の上昇の結果から推察しても、間欠系と比較して連続系カラムにおいて脱窒による NO_3^- の除去がより進行していることが考えられる。

窒素安定同位体比の導入により、濃度変化のみでは確証が持てない硝化や脱窒の反応の存在がより確実となった。間隙水なども含めた多くのサンプルの分析を行うことでより詳細な動態解析が可能となることが期待される。

参考文献

- 1) 沖縄総合事務局 土地改良総合事務所 ・(社)地域資源循環技術センター (2005)
島尻地区再生水検討委員会 これまでの検討経緯と今後の課題
- 2) 長谷川周一ら (2002) 環境負荷を予測するーモデリングからモニタリングへー 博友社
- 3) MASAHIRO SAKATA (2001) A Simple and rapid method for $\delta^{15}\text{N}$ determination of ammonium and nitrate in water samples, *Geochemical Journal*, 35