

脱窒反応を伴う硝酸態窒素の不飽和輸送のカラム実験とその数値解析

宮崎大学大学院 学生員○山下 直紀  
宮崎大学工学部 正 員 杉尾 哲

1. はじめに

宮崎県南西部の都城盆地で発生している硝酸態窒素による地下水汚染の原因の一つは、畑地に施用される窒素肥料の溶脱であると考えられている。したがって、窒素肥料から溶脱した硝酸性窒素が不飽和土壤中を輸送される種々の過程について検討することが重要となる。土壤中における窒素動態として重要なものに、脱窒反応がある。脱窒反応が起こる条件としては嫌気的環境であることが挙げられるが、一般には好気的環境にあると考えられる不飽和土壤中においても適切な有機性炭素があれば反応が起こることが報告されている<sup>1)</sup>。そこで本研究では、都城盆地の畑地に分布する黒ボク土壌を用いて、硝酸性窒素と有機性炭素を土壌表面から供給する不飽和カラム実験とその数値解析を行って、不飽和黒ボク中における脱窒反応について検討を行った。

2. 実験方法

畑地から採取した黒ボク土壌を4.76 mm のふるいで均質にした後、図-1に示すように内径14.5 cm の塩化ビニール製カラムに充填した。カラム上部には降雨発生装置を取り付け、カラム底部には粗粒砂を充填した。土壌表面から155 cm 下方の位置には、一定水位を維持するように水面を設定した。さらに、間隙水を採水するために土壌表面から10, 30, 50, 100 cm の位置に土壌溶液採取器を埋設した。

実験では、降雨発生装置により蒸留水を240時間滴下し、その後、硝酸ナトリウムと有機性炭素(メタノール)を蒸留水に溶解させた溶液(以下、実験溶液と呼ぶ)を480時間滴下した。降雨条件を表-1に示す。脱窒細菌がメタノールを基質にして脱窒反応を起こす場合、化学量論的にC/N比0.93の割合でそれぞれの物質が消費される<sup>2)</sup>。今回のカラム実験では、脱窒細菌の過剰な増殖が間隙水の不飽和浸透に目詰まりなどの影響を及ぼさないようにするために、実験溶液のC/N比を0.57と小さく設定した。

3. 数値解析モデル

土壤中における溶質輸送の計算には①式の移流分散方程式を用い、不飽和浸透流の計算には②式を用いた。不飽和浸透特性は、van-Genuchten式で表した。また、③式の生物化学反応項の計算は、有機性炭素と溶解性酸素との相互作用を表現したモノモデルを適用するものとし、その反応式については前報<sup>3)</sup>で示している。なお今回の解析では、その反応式に含まれている脱窒細菌濃度については、④式を適用して増殖と死滅によって変化する変数とした。

4. 実験と解析の結果と考察

実験と解析の結果を図-2に示す。図では、横軸の経過時間

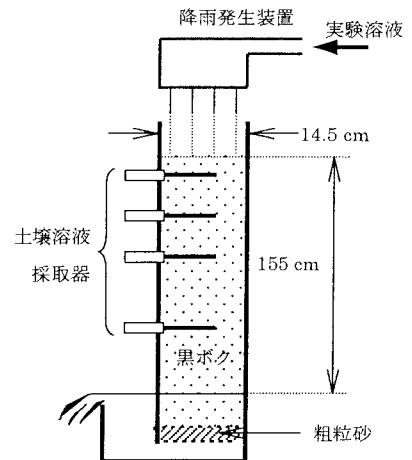


図-1 カラム実験装置図

表-1 カラム実験の降雨条件

項目	値
降雨強度 (mm/h)	9.1
硝酸性窒素濃度 (mg/L)	60.5
溶解性酸素濃度 (mg/L)	4.0~7.0
有機性炭素濃度 (mg/L)	34.5
C/N 比	0.57

は実験溶液の滴下開始時刻を 0 にし、縦軸の濃度は実験溶液の硝酸性窒素濃度を最大値にして示している。

土壌表面から 10 cm の位置の測定結果をみると、実験溶液滴下後 24 時間目には実験溶液とほぼ同じ硝酸性窒素濃度となり、72 時間目以降は徐々に低下している。何も反応が起こらなければ、濃度は 72 時間目以降も実験溶液と同じ濃度を示すはずであるので、72 時間目以降の濃度の低下は脱窒反応によるものと考えられる。次に 30 cm 以深の測定結果をみると、50 cm の位置の 360 時間目以降でいくらか濃度の低下が大きく、深さ方向に脱窒反応が進行することが推察される。しかし、100 cm の位置で 50 cm の位置よりも高い濃度が測定されていて、全体的には 10 cm の位置における測定結果と類似の分布になっている。このことから、脱窒反応は土壌表面から 10 cm までの間で主に発生していると考えられる。

解析は、生物化学パラメータの初期値に文献値を適用してその感度を調べ、その後、パラメータを逐次修正することによって最終的に測定値と解析値の差の 2 乗和が最小になるようにして行った。解析結果は測定された全体的な硝酸性窒素濃度の変動傾向をよく再現しており、実験初期の硝酸性窒素濃度の急激な上昇と、その後の緩やかな濃度の低下をよく表現している。なお、有機性炭素と溶解性酸素については測定していないが、生物化学パラメータの値が文献値の範囲内であったことを考慮すると、これらの解析結果は実現象をよく再現しているものと考えられる。この解析結果から、溶解性酸素と有機性炭素の濃度は硝酸性窒素濃度の変動傾向と同じように変動することが分かる。また、脱窒細菌濃度は時間とともに上昇し、土壌表面に近い位置ほど脱窒細菌濃度の増殖率が高いことが分かる。

参考文献) 1)山口登志子ほか：衛生工学論文集，23，pp.211-216，1987。2)合田健：水質工学一応用編一，丸善，pp.123，1976。3)山下直紀ほか：土木学会西部支部研講，第 II 部門，pp.164-165，2000。

$$\frac{\partial \theta C_{w,i}}{\partial t} + \frac{\partial}{\partial x} (q C_{w,i}) - \frac{\partial}{\partial x} \left( \theta D(v) \frac{\partial C_{w,i}}{\partial x} \right) = S_i, \quad i = 1, 2, 3 \quad \dots ①$$

$C_{w,i}$  : 溶質濃度,  $q (=v\theta)$  : 流速フラックス,  $v$  : 表流速 (cm/s),  $\theta$  : 体積含水率,  $D (=av + d_m)$  : 分散係数,  $a$  : 分散定数 (cm),  $d_m$  : 分子拡散定数 (cm<sup>2</sup>/s),  $S_i$  : 生物化学反応項,  $i = 1, 2, 3$  : それぞれ硝酸態窒素, 溶解性酸素, 有機性炭素

$$C_s(\varphi) \frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( k_u(\varphi) \frac{\partial \varphi}{\partial z} - k_d(\varphi) \right) \quad \dots ②$$

$\varphi$  : サクシオン (cm),  $C_s$  : 比水分容量,  $k_u$  : 不飽和透水係数 (cm/s)

$$S_i = -\alpha (C_{w,i} - C_{bio,i}), \quad i = 1, 2, 3 \quad \dots ③$$

$\alpha$  : 交換係数 (s<sup>-1</sup>),  $C_{bio,i}$  : bio-phase 中の化学種の濃度 (mg/L)

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \left[ \frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} + \left[ \frac{\partial X}{\partial t} \right]_{den} - \left[ \frac{\partial X}{\partial t} \right]_{dec} \quad \dots ④$$

$X$  : 脱窒細菌濃度 (mg/L),  $aer$  : 好気的環境で増殖する細菌,  $den$  : 嫌気的環境で増殖する細菌,  $dec$  : 死滅する細菌

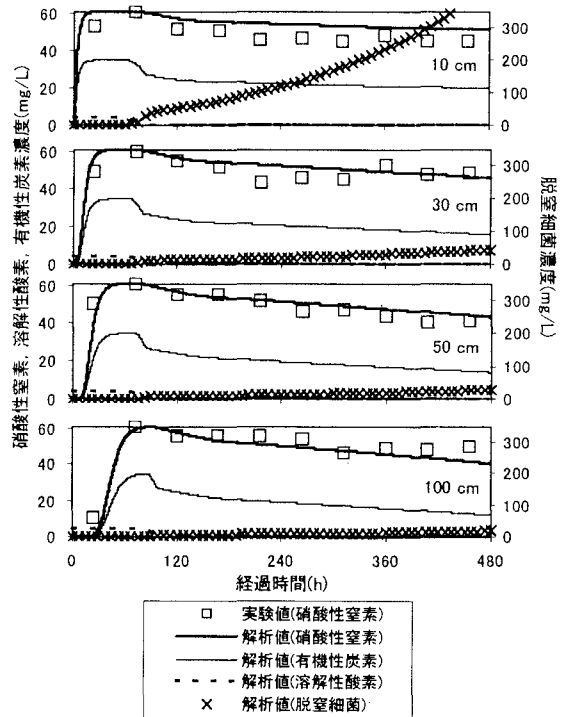


図-2 実験結果と解析結果の比較