茨城県筑波台地、斜面-湿地プロットでの 地下水帯における硝酸イオンの還元場

井岡聖一郎*・田瀬則雄**

Nitrate reduction zone in groundwater at a slope-wetland plot in Tsukuba upland, Ibaraki Prefecture

Sei-ichiro IOKA* and Norio TASE**

Abstract

More than 50 piezometers and observation wells were installed in about 210 m² slope-wetland plot in the Tsukuba upland, Japan to clarify whether NO₃⁻ reduction zone in groundwater locates in the marginal slope of wetland or not. The result showed that NO₃⁻ reduction zone was located locally in the Younger Loam Formation near the interface between the sand and gravel layer and the Younger Loam Formation, where water table gradient dramatically deceased. As shown in Figure 7, the NO₃⁻ reduction zone (③) in the observed vertical cross-section ranged within about 20 cm in vertical and about 100cm in horizontal direction. Additionally, groundwater geochemistry in the NO₃⁻ reduction zone demonstrated that SO₄²⁻ concentration decreased and Mn concentration increased in the zone.

Key Words: nitrate, reduction zone, groundwater, slope-wetland plot

要 旨

湿地に隣接した斜面の地下水帯において、NO₃⁻の還元場が存在するかどうか明らかにするために、筑波台地に面積約210m²の斜面-湿地プロットを設けて地下水の観測を実施した。観測結果は、地下水面勾配が減少した斜面末端部の礫混じり砂層に近接した新期関東ローム層中で局所的にNO₃⁻の還元場が存在することを示した。観測断面におけるピエゾメータの設置状況から、図7に示したNO₃⁻の還元場(③)は、礫混じり砂層に近接した新期関東ローム層中で鉛直方向に約20cm、水平方向に約100cm以内である。また、NO₃⁻の還元場ではSO₄²⁻濃度の減少およびMn濃度の増加が認められた。

キーワード: 硝酸イオン、還元場、地下水、斜面-湿地プロット

* 筑波大学陸域環境研究センター (現 核燃料サイクル開発機構 博士研究員)

(Terrestrial Environmental Research Center, University of Tsukuba

** 筑波大学生命環境科学研究科地球環境科学専攻 ()

Graduate School of Life and Environmental Sciences, University of Tsukuba, Ibaraki 305-8572

1. はじめに

日本における地下水の硝酸汚染に関する報告は古くから存在し（例えば、長沢、1958；永井ほか、1975；桜井、1975；小倉・宇田川、1978）、また同時に地下水帯における硝酸汚染に関する総説も数多く存在している（例えば、永井、1991；鶴巻、1992；田口、1995；田瀬、1995；田淵、1999；熊沢、1999；平田ほか、2000）。この中で、平田ほか（2000）は、地下水の硝酸汚染を解決するためには、原位置で実施可能な対策を考える必要性があることを述べている。このような状況下において、欧米、日本では原位置での浄化対策として地下水帯に透過性浄化壁などを設置し、汚染物質を微生物に分解させた例が多数報告されている（例えば、Robertson and Cherry, 1995; Robertson *et al.*, 2000; Schipper and Vojvodić-Vuković, 1998, 2000; Smith *et al.*, 2001; Tartakovsky *et al.*, 2002；副島ほか、2002）。しかしながら、透過性浄化壁では耐久性の問題など明らかにしなければならない問題が存在している（例えば、Blowes *et al.*, 2000）。一方、田瀬・井岡（2002）は、地下水が広域に硝酸イオンに汚染された場では自然の浄化機能を最大限に生かすことが有効であると指摘している。

地下水帯における硝酸イオンの還元場に関する研究は、海外においてすでに多数報告されている。流域規模の研究では、Böhlke and Denver (1995) や Böhlke *et al.* (2002) などを挙げることができる。また、流域の地形や地質条件から、地下水帯の NO_3^- の浄化帯として重要な役割を果たしている氾濫原（例えば、Fustec *et al.*, 1991; Tesoriero *et al.*, 2000）や河畔湿地（例えば、Hill *et al.*, 2000; Böhlke *et al.*, 2002）などの河畔域では、多くの研究例が存在する。

しかしながら、上述した氾濫原や河畔湿地だけが地下水帯における NO_3^- の還元場として機能しているのか、それとも地形的に氾濫原や河畔湿地に連続している斜面部においても NO_3^- の還元場が存在し、地下水帯の硝酸イオン濃度が減少しているかどうかを明らかにした研究は存在しない。

一方、日本では地下水の硝酸汚染が、広範囲で確認されているにも関わらず地下水帯における

NO_3^- の自然浄化に関する研究はあまり多くはない。小川・酒井（1984）が茨城県行方郡玉造町において谷津田が地下水帯の NO_3^- に対して浄化帯として機能していることを明らかにし、特に谷津田の表層部分が重要であることを指摘した。石塚・小野寺（1997）は、茨城県稲敷郡の平地林において関東ローム層中における地表面下 2 m 付近の浅層地下水帯で、また鷺見・上田（1997）や Uchiyama *et al.* (2000) は海岸砂地において脱窒が生じていることを指摘した。対馬ほか（2002）は、東京都多摩川氾濫原の地下水帯において脱窒が生じていることを示した。

氾濫原や湿地（谷地）に連続している斜面部が、地下水帯の NO_3^- に対してどのような役割を果たしているかを明らかにした研究は日本では存在しない。したがって、本研究では特に斜面-湿地の地形的連続性に着目し、調査地域として農業活動が盛んであり、また湿地（谷地）が発達している茨城県つくば市筑波台地の一流域を選定した。そして、本研究の目的を湿地に連続した台地斜面部の地下水帯において NO_3^- の還元場が存在するかどうかを明らかにすることとした。

さらに、本研究では地下水帯における SO_4^{2-} 濃度についても詳細な観測結果を示した。 SO_4^{2-} 濃度は、 NO_3^- の自然減衰過程（脱窒反応生成物（例えば、Böhlke *et al.*, 2002））においても生じることから SO_4^{2-} 濃度分布についても詳細に明らかにする必要があると考えた。

2. 地域の概観

調査地域は霞ヶ浦の北西約 15 km に位置し、標高は 18 m から 30 m である。調査地域における主要な土地利用は芝畑と畑地である。観測を実施した斜面-湿地プロットは休耕地であり、現在斜面ではササとセイタカアワダチソウが、湿地ではヨシが繁茂している（図 1）。本研究の観測実施区域は約 210 m² である（図 2 (a)）。

台地面上における芝畑への肥料の散布は、例年 4 月から 10 月の間に 3 回行われ、芝畑で使用されている化学肥料の年間施肥量は 10 a あたり約 200 kg である（聞き取り調査を実施）。このうち窒素は 10 a あたり約 30 kg 散布された。

図1 調査地域における地形と土地利用

Fig. 1 Map of the topography and land use in the study area.

図2 調査地域における観測井とピエゾメータの位置

Fig. 2 Map of the study area showing the location of observation wells and piezometers.

筑波台地に位置する調査地域は、多層構造を有し（例えば、新藤、1975；宇野沢ほか、1988；嶋田ほか、1990）、難透水層が何層も存在する。更新世中期・後期の下総層群が筑波台地を構成し、その下総層群は、地蔵層、藪層、上泉層、上岩橋層、木下層そして常総層の6累層からなる（宇野沢ほか、1988）。下総層群における木下層と常総層は氷河性海水準変動によって形成された（岡崎・増田、1992）。最表層部は火山灰起源の新时期関東ローム層からなっている（宇野沢ほか、1988）。

つくば市館野の気象庁観測施設における、1990年から2000年までの観測結果に基づく、筑波台地の年平均降水量は1238.5mmであり、年平均気温は14.0℃である。

3. 方法

3.1 調査地域における観測井等の設置

ハンド・ボーリング器（SK-8300、 $\phi 18$ ：サンケイ理化株式会社）を使用して地質調査を実施した後、地下水面観測井やピエゾメータを設置するために、ハンドオーガー（DIK-100A-B1、 $\phi 70$ ：大起理化工業株式会社）とハンド・ボーリング器（SK-8300、 $\phi 32$ ：サンケイ理化）で、掘削を実施した。

斜面・湿地プロットにおいて設置した地下水面観測井とピエゾメータの位置および番号を図2（<>：地下水面観測井、（）：地下水位測定用ピエゾメータ、[]：地下水水質用ピエゾメータ、{ }：地下水位と水質測定用ピエゾメータ）に示す。地下水面観測井やピエゾメータを作成するために使用したのはポリ塩化ビニール製（以下、PVC製と呼ぶ）の内径40と20mmのパイプとPVC製の先端コーンである（図3）。地下水面観測井では、PVC製の内径40mmのパイプだけを使用し、スクリーンはドリルでPVCパイプの側面に孔を開け、網戸用の網を巻いた。スクリーンの長さは地下水面標高の季節変化より大きくなるようにした。ピエゾメータは、先端コーンを棒で打ち抜いて完成させた（例えば、梶根ほか、1984）。湿地では地表水の水位を測定するために杭を設置した。本研究において設置した地下水面観測井

(a) Observation well (b) Piezometer

図3 観測井とピエゾメータ

Fig. 3 Observation well and piezometer.

(O.) とピエゾメータ (P.) に関して、使用した PVC パイプの内径 (P.I.D.)、地表面からスクリーンまでの深度 (O.L.1と P.L.1)、そしてスクリーンの長さ (O.L.2と P.L.2) を表1に示した。

3.2 採取・分析

地下水の採水は、内径2mmのナイロンチューブとシリンジを使用して行った。採水の前に、ピエゾメータ内の地下水を排水し、新しくピエゾメータ内に流入してきた地下水を採水した。シルト、粘土層中（図2に示したピエゾメータ番号：[5]：[9]：[10]：[14]：[15]：[18]：[19]）と新时期関東ローム層中（{6}）に設置されたピエゾメータでは、地下水の流入、すなわち排水後の水位の回復が遅かったのでピエゾメータ内の地下水の排水は実施せず採水を行った（例えば、Remenda and van der Kamp, 1997）。

現地では、地下水を採水し、ろ過をせずに pH 計（Yokogawa Model SC82）と電気伝導度計（Yokogawa Model PH81）を用いて pH と電気伝導度の測定を行った。また、アルカリ度測定用に、未ろ過の地下水を50mL容量のポリエチレンビン（以下、ポリビンと呼ぶ）に入れて実験室に持ち帰った。Ca²⁺、Na⁺、Mg²⁺、K⁺、Mn 分析用サンプルは、現地で0.20 μ mメンブレンフィルター

表1 設置した観測井およびピエゾメータの情報

Table 1 Information of observation wells and piezometers installed.

Observation well			Piezometer				Piezometer			
Num.	O.L.1	O.L.2	Num.	P.I.D.	P.L.1	P.L.2	Num.	P.I.D.	P.L.1	P.L.2
<1>	30cm	270cm	[1]	2cm	450cm	1.5cm	[1]	2cm	150cm	1.5cm
<2>	30cm	70cm	[2]	2cm	450cm	1.5cm	[2]	2cm	200cm	1.5cm
<3>	30cm	270cm	[3]	2cm	400cm	1.5cm	[3]	2cm	250cm	1.5cm
<4>	50cm	200cm	[4]	2cm	180cm	1.5cm	[4]	2cm	300cm	1.5cm
<5>	20cm	110cm	[5]	2cm	190cm	1.5cm	[5]	2cm	350cm	1.5cm
<6>	20cm	100cm	[6]	4cm	200cm	6cm	[6]	2cm	150cm	1.5cm
<7>	50cm	220cm	[7]	4cm	150cm	3cm	[7]	2cm	200cm	1.5cm
<8>	40cm	260cm	[8]	2cm	175cm	1.5cm	[8]	2cm	250cm	1.5cm
<9>	50cm	180cm	[9]	2cm	185cm	1.5cm	[9]	2cm	300cm	1.5cm
<10>	50cm	100cm	[10]	2cm	230cm	1.5cm	[10]	2cm	350cm	1.5cm
<11>	50cm	120cm	[11]	2cm	360cm	1.5cm	[11]	2cm	145cm	1.5cm
<12>	50cm	180cm	[12]	2cm	50cm	1.5cm	[12]	2cm	175cm	1.5cm
<13>	50cm	230cm	[13]	2cm	200cm	1.5cm	[13]	2cm	200cm	1.5cm
<14>	50cm	200cm	(1)	4cm	200cm	17cm	[14]	2cm	250cm	1.5cm
<15>	70cm	165cm	(2)	4cm	250cm	14cm	[15]	2cm	300cm	1.5cm
<16>	50cm	110cm	(3)	4cm	300cm	14cm	[16]	4cm	390cm	3cm
<17>	50cm	100cm	(4)	4cm	350cm	20cm	[17]	2cm	225cm	1.5cm
<18>	50cm	170cm	(5)	4cm	200cm	16cm	[18]	2cm	250cm	1.5cm
<19>	50cm	200cm	(6)	4cm	250cm	16cm	[19]	2cm	300cm	1.5cm
<20>	70cm	150cm	(7)	4cm	300cm	14cm	[20]	4cm	380cm	3cm
<21>	50cm	170cm	(8)	4cm	350cm	14cm				
<22>	50cm	140cm	(9)	4cm	200cm	5cm				
<23>	50cm	170cm	(10)	4cm	250cm	6cm				
<24>	50cm	180cm	(11)	4cm	300cm	4cm				
<25>	0cm	80cm	(12)	4cm	350cm	4cm				
<26>	0cm	125cm	(13)	4cm	250cm	5cm				
<27>	0cm	120cm	(14)	4cm	300cm	5cm				
			(15)	4cm	350cm	5cm				

でろ過後、30mL 容量ポリビンに入れ、硝酸を添加して持ち帰った。Cl⁻、NO³⁻と SO₄²⁻分析用のサンプルは0.20 μm メンブランフィルターでろ過後、24mL 容量のガラス瓶にいれて持ち帰った。なお、地下水の採水を実施したピエゾメータのうち、地下水面近傍のピエゾメータ（図2に示したピエゾメータ番号：[11]：[4]：[5]：[8]：[9]：[12]）では上述したすべての成分用の地下水を採水することは不可能であった。また、ピエゾメータ番号 [7] では、地下水の採水が全く不可能であった。

プラズマ発光分光分析法（ICP-AES; Nippon Jarrell-Ash Model ICAP-757/757V）で陽イオンの分析を実施した。陰イオンの測定には、イオンクロマトグラフ法（DIONEX QIC ANALYZER）を

用いた。アルカリ度は、メチルレッド-ブロムクレゾールグリーンを指示薬とし、0.02N 硫酸を使用して滴定で求めた。

土壌の採取は、ハンド・ボーリング器（SK-8300、φ18：サンケイ理化学株式会社）を用いた。分析に供した試料は60℃ で1昼夜炉乾し、デシケータで放冷した。全炭素含量の分析は、CNコーダー（MT-700、ヤナコ分析工業株式会社）および全自動元素分析装置（Perkin-Elmer 2400 II CHN Elemental Analyzer）を用いた。

4. 結果

4.1 地下水流動

斜面-湿地プロットにおいて2002年2月9日と

4月2日に測水調査を実施した。その結果を図4に示す。観測プロットにおける地下水面は、斜面の地形に沿った形態をしている。しかしながら、台地斜面と湿地の境界付近では、地下水面は非常に複雑な形態を示している。また、斜面末端部では、地下水面の等値線の間隔が大きくなっている。これは、地下水面の勾配が斜面末端部において小さくなっていることを示唆している。

斜面における地形および地下水面の形態を考慮して、本研究における観測断面（図4において一で表示している断面）を選定した。選定した断面の地質は、表層から新期関東ローム層、粘土層、礫混じり砂層、シルト・粘土層、砂層の順である（図5）。ただし、粘土層はN3からFNにかけては認められない。

図5に観測断面における地下水の等ポテンシャル線を表示する。地下水の等ポテンシャル線は、礫混じり砂層中では地下水流動は水平方向が卓越し、新期関東ローム層中では、N4地点から湿地にかけて地下水が水平流動していることを表している。また、シルト・粘土層中では、地下水の鉛直成分が存在し、N1地点付近から湿地にかけては地下水の鉛直上向き成分が認められる。

地下水の等ポテンシャル線から、図5の矢印で示したように斜面-湿地プロットにおける地下水の流動経路は次のように考えることができる。新期関東ローム層中をN4地点から湿地にかけて流動する経路、N4地点からN1地点にかけて礫混じり砂層中を水平方向に流動する経路、N3地点付近で礫混じり砂層からシルト・粘土層中に流動する経路、そしてN1地点から湿地においてシルト・粘土層中を上昇する地下水の流動経路である。

4.2 地下水帯における NO_3^- 濃度と SO_4^{2-} 濃度

図6(a)に観測断面での地下水帯における NO_3^- 濃度の等値線を示した。地下水面観測井およびピエゾメータからの地下水の採水は、2002年2月14日から16日および4月4日から6日にかけて実施した。2002年2月と4月の地下水帯における NO_3^- 濃度の等値線は、N3地点からN1地点の砂層とシルト・粘土層中で NO_3^- 濃度が急激に減少することを示している。また、N3地点における標高約19.0m付近のシルト・粘土層中において

も NO_3^- 濃度が急激に減少している点（図2に示したピエゾメータ番号：[10]）が存在している。さらにN2地点とN1地点の間での礫混じり砂層との境界近傍の新期関東ローム層中にも地下水帯の NO_3^- 濃度の減少する局所的なゾーン（図2に示したピエゾメータ番号：[4]：[5]）が確認できる。一方、2002年2月と4月の地下水帯における NO_3^- 濃度の等値線には、相違点も存在する。2002年2月の結果では、新期関東ローム層中のN4地点からFN地点にかけて、 NO_3^- 濃度は0.10から0.30mMであるが、2002年4月では新期関東ローム層中に埋設されたN2地点における最上部のピエゾメータ（図2に示した番号：[11]）を除いてすべて0.10mM以下であった。そのため、4月のN4地点からN2地点にかけての礫混じり砂層中上層部において、 NO_3^- 濃度の等値線は急激な濃度勾配の存在を表している。また、この結果地下水の最表層流動経路である新期関東ローム層中の地下水の NO_3^- 濃度は、かなり変動することが明らかである。

地下水帯における SO_4^{2-} 濃度の等値線を図6(b)に表示した。 SO_4^{2-} 濃度の等値線は、 NO_3^- 濃度の等値線と逆の関係を表している。すなわち、N3地点からN1地点の砂層とシルト・粘土層中の NO_3^- 濃度が急激に減少するゾーンにおいて SO_4^{2-} 濃度の増加を認めることができ、N3地点における標高約19.0m付近のシルト・粘土層中の NO_3^- 濃度が急激に減少している地点でも同様に SO_4^{2-} 濃度の増加が確認できる。しかしながら、N2地点とN1地点の間での礫混じり砂層との境界近傍の新期関東ローム層中における地下水帯の NO_3^- 濃度の減少する局所的なゾーンでは、 SO_4^{2-} 濃度は減少している。

上述した結果から、斜面-湿地プロットでの地下水帯における NO_3^- の還元場の可能性として、N3地点からN1地点の砂層とシルト・粘土層中の NO_3^- 濃度が急激に減少して SO_4^{2-} 濃度が増加するゾーン（図7①：5角形は密に並んでいる等値線の形状を示している）、N3地点における標高約19.0m付近のシルト・粘土層中において NO_3^- 濃度が急激に減少、 SO_4^{2-} 濃度の増加が確認できる点（図7②：図2に示したピエゾメータ番号：[10]）、そしてN2地点とN1地点の間における礫

図4 調査地域における地下水面

Fig. 4 Map of water table in the study area.

図5 鉛直断面における地下水の等ポテンシャル線

Fig. 5 Vertical cross-section along transect showing equipotential line.

混じり砂層との境界近傍の新期関東ローム層中で鉛直方向に約20cm、水平方向に約100cmの NO_3^- 濃度と SO_4^{2-} 濃度が減少する局所的なゾーン(図7③:図2に示したピエゾメータ番号:{4}:{5})を挙げることができる(図7)。なお、図7の②は、井岡・田瀬(2004)で、①は別稿で取り上げる予定であるのでここでは取り扱わない。

5. 考察

5.1 地下水流動と NO_3^- 減少帯との関係

図5に示した地下水の等ポテンシャル線から推定される地下水流動を考慮すると、礫混じり砂層から新期関東ローム層中へ上向きに流動して新期関東ローム層中で急激に NO_3^- 濃度と SO_4^{2-} 濃度が減少しているのが図7の③である。したがって、高濃度の NO_3^- と SO_4^{2-} を含む地下水が、図7の③に NO_3^- と SO_4^{2-} を輸送し、そして③では NO_3^- と SO_4^{2-} が還元されている可能性が考えられる。また、図7における③は地下水面勾配が急激

に減少した場において認めることができる。しかしながら、地下水面勾配が減少した場での新期関東ローム層全体ではなく、礫混じり砂層との境界近傍に位置する新期関東ローム層のみである。

次に図7③が実際に還元的な状況下にあるか、地下水帯における他の水質成分を含めて考察を行う。

5.2 マンガン濃度と NO_3^- 減少帯との関係

図7の③(図2に示したピエゾメータ番号:{4}:{5})とその上流側(ピエゾメータ番号:[13])における地下水帯の NO_3^- 、 SO_4^{2-} 、MnそしてpHを図8に表示する。一般的に、地下水帯におけるMn濃度は、pHが低いときや嫌気的な条件下において確認することがきる(例えば、Bourg and Bertin, 1993; 田中ほか, 2001)。図8から地下水帯における NO_3^- および SO_4^{2-} 濃度が減少する場(ピエゾメータ番号:{4}:{5})において、Mn濃度が増加していることを明瞭に認めることができる(ピエゾメータ番号:[13]では定量限界以下であった)。図8に示された地下水

図6 断面に沿った地下水帯における硝酸イオン濃度 (a) と硫酸イオン濃度 (b) の分布
Fig. 6 Distribution of NO_3^- (a) and SO_4^{2-} (b) concentrations along transect.

図7 地下水帯における硝酸イオンの減少帯
Fig. 7 Nitrate decrease zone in groundwater.

帯のpHが6.0から7.0の値であることから、 NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の減少場におけるMn濃度の増加は、地下水帯の酸性化によってもたらされたものではなく、嫌気的な条件下によって生じたものであることを示唆している。すなわち、図7の③における NO_3^- と SO_4^{2-} 濃度の減少場は、 NO_3^- の還元場であり、また SO_4^{2-} の還元場でもあると考えられる。したがって、図7③の地下水帯における NO_3^- の減少場は、嫌気的な条件下で生じる過程によってもたらされた NO_3^- の還元場であると考えられる。

5.3 土壌中の全炭素含量と NO_3^- 減少帯との関係

地下水帯における NO_3^- の還元場においては、一般的に電子供与体としての有機物や硫化物などの存在が必要である (Korom, 1992)。特に、表層環境においては有機物の存在が重要である (例えば, Starr and Gillham, 1993; 戸田・日高, 1996)。そこで、 NO_3^- の還元場 (図7③) が、深度1.8~1.9mに位置していることから、その還元場近傍において深度2.3mまで堆積物を採取し、全炭素含量の測定を行った。

土壌中の全炭素含量は、表層において4%以上で深層に向かって減少している。しかし、深度1.6m下では全炭素含量は深層にむかって増加し、

図8 硝酸イオンの減少帯 (③) における水質特性
Fig. 8 Groundwater geochemistry in NO_3^- decrease zone (③).

1.8m付近で4.7%の最大値を示した (図9)。深度2.0m以下に存在する礫混じり砂層中の全炭素含量は、0.1%以下であったので図9には示していない。過去に行われた筑波台地における土壌中の全炭素含量の測定結果は、いくつか存在するが深度2.3mまで実施されたものは確認できない

(永塚・大羽, 1982; 永塚, 1997)。永塚・大羽 (1982) は、採取した土壌の最深部0.85~1.0m 中に、全炭素含量が6.03%存在していたことを示した。しかしながら、その他の結果は深度1.0m 前後における土壌中の全炭素含量は2~3%であった (永塚・大羽, 1982; 永塚, 1997)。これらの結果から図9に示した深度1.8m 付近の全炭素含量は、比較的高い値であると考えることができる。

したがって、深度2.3m までの堆積物の全炭素含量は、深度1.8~1.9m に位置している図7③の NO_3^- の還元場の存在を支持するものであると考えられる。また、深度1.8m 付近に比較的高い全炭素含量を示す成因として、永塚・大羽 (1982) が指摘しているように筑波台地の谷周辺に発達する再積成黒ボク土の可能性が示唆される。

NO_3^- に関する自然減衰過程は脱窒を含めいくつか存在し (例えば、Haycock *et al.*, 1997; Robertson *et al.*, 2000)、自然減衰過程を定量的に評価するためにはさらなる研究が必要である。

さらに NO_3^- 還元場が、斜面末端部の地下水面勾配が減少した、礫混じり砂層との境界に近接し

た新时期関東ローム層中に局所的に認められたことから、今後は他の斜面においてもこのような NO_3^- 還元場が生じているかどうか明らかにすることが重要である。特に、斜面末端部において新时期関東ローム層の層厚が本調査地域より厚くなれば、再積成黒ボク土層も厚くなり NO_3^- 還元場が、さらに大きくなるのかなど明らかにしなければならないと考えている。

6. おわりに

茨城県筑波台地における斜面-湿地プロットにおいて詳細な地下水の観測を実施した結果、斜面末端部における地下水面勾配が急激に減少した礫混じり砂層との境界に近接した新时期関東ローム層中において局所的に NO_3^- 還元場および SO_4^{2-} 還元場が存在することが明らかになった。その局所的な場は、図7の③ (灰色の部分) に示したように観測断面におけるピエゾメータの設置状況から NO_3^- の還元場は、礫混じり砂層に近接した新时期関東ローム層中で最大鉛直方向に約20cm、水平方向に約100cm 以内であった。今後は、このような還元場を生じさせる過程、還元場の浄化容量、そして筑波台地における他の斜面においても地下水帯に NO_3^- 還元場が存在するか明らかにする必要があると考える。

謝 辞

本研究は、萌芽研究 (13878095: 地下水帯における硝酸性窒素の消失プロセスの解明-自然浄化は可能か-)、基盤研究B(2) (14380030: 台地・谷地境界域における地下水流動系、湧出形態と硝酸性窒素の自然浄化ゾーン) (研究代表者 田瀬則雄) の補助のもとに行われた。また、池田宏先生 (筑波大学地球科学系) と目代邦康博士 (筑波大学陸域環境研究センター) には、筑波台地の地形発達史について多くの助言を頂いた。さらに、岡崎浩子博士 (千葉県立中央博物館) には、筑波台地における地質構造に関する資料を頂いた。そして、本研究を行うにあたり鈴木秀和氏、野原大輔氏 (当時、筑波大学地球科学研究科院生)、岡田亮介氏、野村佳範氏 (当時、筑波大学環境科学研

図9 NO_3^- の還元場 (③) 付近から採取した堆積物の全炭素含量

Fig 9 Carbon content (weight percent) of sediments near the NO_3^- reduction zone (③).

究科院生)ら多くの同僚らに、観測井の設置に協力していただいた。地形測量では小花和宏之氏と八反地剛氏(筑波大学生命環境科学研究科院生)に手伝っていただいた。池田智氏(筑波大学分析センター)には、水質分析の助言・補助をしていただいた。大津正一氏(当時、筑波大学環境科学研究科院生)には、TCの分析および研究に関連して多くの補助をしていただいた。鈴木秀登氏(筑波大学分析センター)にはTCの分析をしていただいた。ここに、記して感謝の意を表します。最後に、研究のために土地を貸していただいた、地主の方々に感謝いたします。

参考文献

- 井岡聖一郎・田瀬則雄(2004): 地下水中の硝酸イオンに対するシルト、粘土層の役割ー水理学的バリアか生物化学的バリアかー, 地下水学会誌、**46**(1)、37-50.
- 石塚成宏・小野寺真一(1997): $\delta^{15}\text{N}$ 値による平地林浅層地下水における脱窒の検証: 茨城県南西部常総台地の例, 日本土壤肥料学会誌、**68**(1)、1-7.
- 宇野沢昭・磯部一洋・遠藤秀典・田口雄作・永井 茂・石井武政・相原輝雄・岡 重文(1988): 2万5千分の1筑波研究学園都市及び周辺地域の環境地質図説明書, 特殊地質図(23-2)、地質調査所、139p.
- 岡崎浩子・増田富士雄(1992): 古東京湾の堆積システム, 地質学雑誌、**98**(3)、235-258.
- 小川吉雄・酒井 一(1984): 畑地から水田内へ流入した硝酸態窒素の動向, 日本土壤肥料学会誌、**55**(6)、533-538.
- 小倉紀雄・宇田川隆男(1978): 青柳段丘の浅層地下水質ーとくに硝酸塩についてー, 水道協会雑誌、**529**、32-41.
- 樫根 勇・小林正雄・小松田精吉・平田洋一(1984): 琵琶湖へ流入する地下水の流向、流速測定, 地下水と井戸とポンプ、**26**(7)、2-10.
- 熊澤喜久雄(1999): 地下水の硝酸性窒素汚染の現況, 日本土壤肥料学雑誌、**70**(2)、207-213.
- 桜井善雄(1975): 農地排水による河川および地下水の汚染, 農業土木学会誌、**43**(8)、518-524.
- 嶋田 純・谷口真人・川村隆一(1990): 筑波台地における地下水涵養の実態, 筑波大学水理実験センター報告、**14**、75-79.
- 新藤静夫(1975): 常総台地の地下水, 東洋大学工学部研究報告、**11**、53-71.
- 鷺見栄一・上田眞吾(1997): 地下水中栄養塩の砂浜から沿岸海域への流入過程, 地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会、第5回講演集、85-90.
- 副島敬道・今村聡・伊藤雅子・寺尾 宏(2002): 反応性地下水浄化壁による硝酸性窒素汚染地下水の原位脱窒, 環境科学会誌、**15**(4)、305-309.
- 田口雄作(1995): 窒素による地下水汚染と水文学の課題, ハイドロロジー、**25**(2)、51-56.
- 田瀬則雄(1995): 地下水の硝酸性窒素の現状と対策, 第27回日本水環境学会セミナー講演資料集、67-82.
- 田瀬則雄・井岡聖一郎(2002): 地下水帯における硝酸性窒素の消失と水文地質条件について, 社団法人環境科学会2002年会、一般講演・シンポジウムプログラム、90-91.
- 田中豊和・井伊博行・平田健正・西川雅高・中島二夫・梅原鎬一・小川祐美(2001): 静岡県中部地方の茶畑周辺の地下水について, 水工学論文集、**45**、355-360.
- 田淵俊雄(1999): 地下水の硝酸汚染と対策, 農業土木学会誌、**67**(1)、59-66.
- 対馬孝治・上田眞吾・小倉紀雄(2002): 多摩川永田地区河川敷地下水における無機態窒素の動態, 地球化学、**36**(1)、15-22.
- 鶴巻道二(1992): 浅層地下水の硝酸態窒素, 地下水学会誌、**34**(3)、153-162.
- 戸田任重・日高 伸(1996): 高濃度硝酸態窒素含有地下水の流入する水田下層土における脱窒活性, 水環境学会誌、**19**(2)、170-175.
- 永井恭三・村岡真智子・老田 実(1975): 茨城県阿見町における飲料用井戸水の無機態窒素含量の年間の変化について, 茨城大学農学部学術報告、**23**、59-63.
- 永井 茂(1991): 地下水汚染の水文化化学的アプローチー無機汚染の実態と問題点ー, 地下水学会誌、**33**(3)、145-154.
- 永塚鎮男・大羽 裕(1982): 筑波台地における土壌の分布様式と成因的特徴, 日本土壤肥料学会誌、**53**(5)、457-464.
- 永塚鎮男(1997): 『原色日本土壤生態図鑑』フジ・テクノシステム、218p.

- 長沢幹雄 (1958): 畑地灌漑地の地下水と塩害除去. 地理学評論, **31**(8), 465-476.
- 平田健正・副島敬道・寺尾 宏 (2000): 硝酸性窒素による地下水汚染— (2) 汚染の修復技術. 地下水技術, **42**(10), 38-46.
- Blowes, D.W., C.J. Ptacek, S.G. Benner, C.W.T. McRae, T.A. Bennett and R.W. Puls (2000): Treatment of inorganic contaminants using permeable reactive barriers. *Journal of Contaminant Hydrology*, **45** (1-2), 123-137.
- Bourg, A.C. and C. Bertin (1993): Biogeochemical processes during the infiltration of river water into an alluvial aquifer. *Environmental Science & Technology*, **27**(4), 661-666.
- Böhlke, J.K. and J.M. Denver (1995): Combined use of groundwater dating, chemical, and isotopic analyses to resolve the history and fate of nitrate contamination in two agricultural watersheds, Atlantic coastal plain, Maryland. *Water Resources Research*, **31** (9), 2319-2339.
- Böhlke, J.K., R. Wanty, M. Tuttle, G. Delin and M. Landon (2002): Denitrification in the recharge area and discharge area of a transient agricultural nitrate plume in a glacial outwash sand aquifer, Minnesota. *Water Resources Research*, **38**(7), 10-1-10-26.
- Fustec, E., A. Mariotti, X. Grillo and J. Sajus (1991): Nitrate removal by denitrification in alluvial ground water: role of a former channel. *Journal of Hydrology*, **123**(3-4), 337-354.
- Haycock, N.E., T.P. Burt, K.W.T. Goulding and Pinay (1997): *Buffer zones: their processes and potential in water protection*, Quest Environmental, 326p.
- Hill, A.R., K.J. Devito, S. Campagnolo and K. Sanmugas (2000): Subsurface denitrification in a forest riparian zone: Interactions between hydrology and supplies of nitrate and organic carbon. *Biogeochemistry*, **51**(2), 193-223.
- Korom, S.F. (1992): Natural denitrification in the saturated zone: A review. *Water Resources Research*, **28** (6), 1657-1668.
- Remenda, V.H. and G. van der Kemp (1997): Contamination from sand-bentonite seal in monitoring wells installed in aquitards. *Ground Water*, **35**(1), 39-46.
- Robertson, W.D. and J.A. Cherry (1995): In site denitrification of septic-system nitrate using reactive porous media barriers: field trials. *Ground Water*, **33** (1), 99-111.
- Robertson, W.D., D.W. Blowes, C.J. Ptacek and J.A. Cherry (2000): Long-term performance of in situ reactive barriers for nitrate remediation. *Ground Water*, **38**(5), 689-695.
- Schipper, L. and M. Vojvodić-Vuković (1998): Nitrate removal from groundwater using a denitrification wall amended with sawdust: field trial. *Journal of Environmental Quality*, **27**(3), 664-668.
- Schipper, L. and M. Vojvodić-Vuković (2000): Nitrate removal from groundwater and denitrification rates in a porous treatment wall amended with sawdust. *Ecological Engineering*, **14**(3), 269-278.
- Smith, R.L., D.N. Miller and M.H. Brooks (2001): In situ stimulation of groundwater denitrification with formate to remediate nitrate contamination. *Environmental Science & Technology*, **35**(1), 196-203.
- Starr, R.C. and R.W. Gillham (1993): Denitrification and organic carbon availability in two aquifers. *Ground Water*, **31**(6), 934-947.
- Tartakovsky, B., D. Millette, S. Delisle and S.R. Guiot (2002): Ethanol-stimulated bioremediation of nitrate-contaminated ground water. *Ground Water Monitoring & Remediation*, **22**(1), 78-87.
- Tesoriero, A.J., H. Liebscher and S.E. Cox (2000): Mechanism and rate of denitrification in an agricultural watershed: electron and mass balance along groundwater flow paths. *Water Resources Research*, **36**(6), 1545-1559.
- Uchiyama, Y., K. Nadaoka, P. Rolke, K. Adachi and H. Yagi (2000): Submarine groundwater discharge into the sea and associated nutrient transport in a sandy beach. *Water Resources Research*, **36**(6), 1467-1479.

(受付: 2003年6月11日、受理: 2004年3月13日)