

# 岡山県笠岡市真鍋島の硝酸性窒素による地下水汚染

妹尾 護・永世 真司\*

倉敷芸術科学大学国際教養学部

\*日本郵政公社

(2003年9月30日 受理)

## 1. はじめに

硝酸性窒素（以下、 $\text{NO}_3\text{-N}$ と略す）はトリクロロエチレンなどの揮発性有機塩素化合物と並んで、高濃度、高頻度で地下水から検出される物質である。 $\text{NO}_3\text{-N}$ の健康影響に関する研究によれば<sup>1)</sup>、 $\text{NO}_3\text{-N}$ を含む水を長期間飲料した場合、メトヘモグロビン血症や発ガンの可能性がある」と指摘されており、地下水の $\text{NO}_3\text{-N}$ による汚染は、飲料水を地下水に依存する割合の高い欧米で深刻な事態となっている。日本においても、環境庁による地下水調査では<sup>2)</sup>、 $\text{NO}_3\text{-N}$ は最も検出率の高い物質であり、約10%の地下水が水道水質基準値である10mg/lを超えている。また、水道水の源水である全国の浅井戸と深井戸中の $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度は、経年的に上昇傾向にあることが報告されており<sup>3)</sup>、全国各地で徐々に地下水汚染が進行していることを示している。地下水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の汚染源は、農業系、畜産系、生活排水系など多様であり、それらが複合していることもある。このため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ による汚染の現状を把握すると共に、その汚染源を特定あるいは同定することが重要で、汚染源対策を講じる上でも必要不可欠なものとなる。

私たちは岡山県南部の地下水の水質調査を進めているが、その過程で水質基準値を超える高い $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の井戸水の存在が明らかになってきた。既に一部の地域については、 $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染の実態を報告し<sup>4)</sup>、果樹園や畑地に施肥された硫酸などの化学肥料がその汚染源であることを指摘した。岡山県南部には現在も飲料水として井戸水に依存する地域が多く、今回は岡山県南西部の瀬戸内海の島々の地下水調査を実施した。その結果、笠岡諸島の真鍋島において極めて高濃度の $\text{NO}_3\text{-N}$ を含む井戸水が多数確認された。そこで、同島の $\text{NO}_3\text{-N}$ による地下水汚染の現状とその原因を調べるために、水質特徴と一部の試料について窒素安定同位体比( $\delta^{15}\text{N}$ )による検討を行ったのでここに報告する。

## 2. 調査地域の概要と地下水試料

### (1) 調査地域の概要

調査地域の真鍋島は、岡山県南西部の瀬戸内海に位置し、白石島・北木島などから成る笠岡諸島南端の周囲約7.5kmの島である。標高は最も高いところで約130mで、全体的になだらかな地形を呈している。標高の高い場所では針葉樹林が多いが、集落の周辺では畑作や果樹栽培が営まれている。真鍋島の地質としては、島の西部～南西部に花崗岩類が分布しており、その風

化土壌（マサ土）が集落周辺や山の斜面に広く認められる。一方、島の北東部には泥岩・砂岩から成る堆積岩類（一部変成）が分布している。

## (2) 地下水試料

真鍋島の地下水の水質を明らかにするため、集落周辺に認められる井戸から地下水試料を採取した。水質調査は1999年12月と2003年6月に行われ、一部の地下水においては経年変化をみるために同一地点で試料を採取した。図1に地下水採取地点を示す。また、表1には地下水採取地点の概況をまとめた。この中で、試料No.1～No.11は1999年12月に、試料M-1～M-4は2003年6月に採取したものである。

採取された地下水は、すべてが浅層地下水（浅井戸）であり、かつては全島で飲料水を井戸水に依存していた。しかし、水道の普及と共に井戸が使用されなくなり、試料採取地点で現在も地下水を飲料用に使用している井戸は3カ所であった（試料No.9, M-1, M-2）。

## 3. 分析方法

地下水のpHと電気伝導度（EC）は、採水時に携帯用ガラス電極pHメーター（HANNA製）と携帯用電気伝導度計（堀場製作所製）を用いた。一方、地下水中の主要な各イオンについては、試料をポリ瓶に採取して実験室に持ち帰り、メンブランフィルター（ $0.45\mu\text{m}$ ）でろ過した後、イオンクロマトグラフ（Dionex社製、DX-120）で陽イオン（ $\text{Na}^+$ ,  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{K}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ）と陰イオン（ $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{NO}_2^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ ,  $\text{SO}_4^{2-}$ ）をそれぞれ分析した。測定に際しては、陽イオンは20mMのメタンスルホン酸溶液を、陰イオンでは0.3mMの炭酸水素ナトリウム溶液と2.7mMの炭酸ナトリウム溶液の混合液を溶離液として使用した。

また、地下水中の $\text{NO}_3^-$ の起源を明らかにする目的で、2試料について窒素安定同位体比（ $\delta^{15}\text{N}$ 値）を測定した（試料M-1, M-4）。分析は、昭光通商（株）安定同位体（SI）分析センターに依頼し、同位体質量分析計（Thermo Finnigan社製）で $\delta^{15}\text{N}$ の測定が行われた。なお、地下水中の重金属元素を含む微量成分についても、カナダのActlabs社に依頼し、ICP-MSで一部の試料（M-1, M-4）を分析した。

## 4. 地下水の水質

岡山県笠岡市真鍋島の地下水の水質分析結果を表2に示す。また、2つの試料について測定された $\delta^{15}\text{N}$ の値を同表に付記した。さらに、表3には重金属元素を含む微量成分の分析結果を示した。以下、pH、電気伝導度（EC）、主要陽イオン・陰イオン、 $\delta^{15}\text{N}$ 値および微量元素についての特徴を述べる。

### (1) pHおよび電気伝導度

pHは6.1～7.4で、弱酸性を示す試料が多い。本研究の真鍋島の北に位置する北木島ではpH4.7の酸性を示す地下水が報告されているが<sup>5)</sup>、調査地域ではこのような酸性の地下水は確認されなかった。また、地下水採取地点の標高や採取場所の岩石種の違いによるpH値の変化について

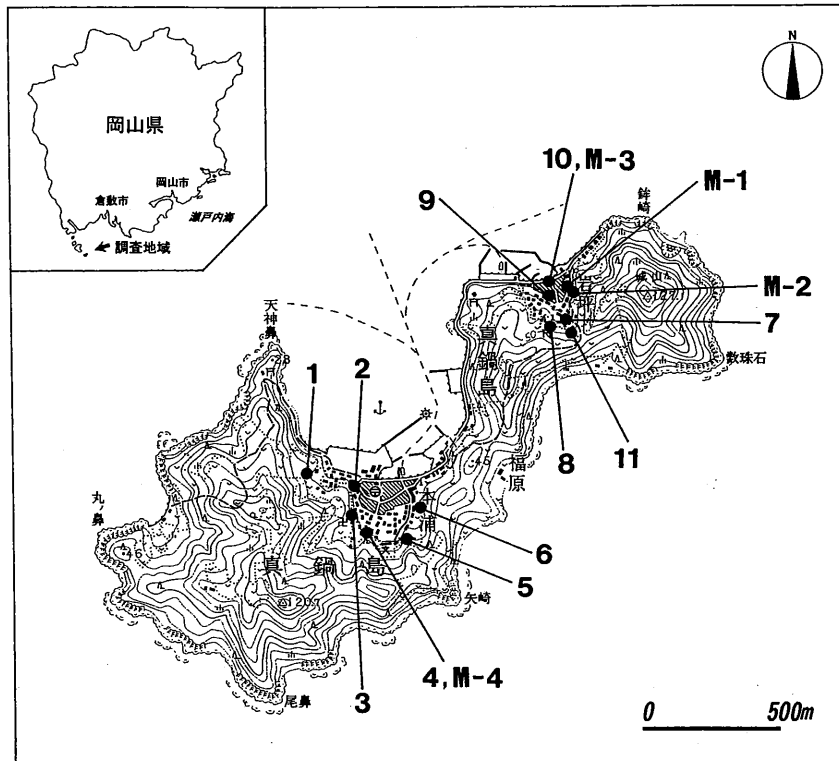


図1 地下水試料の採取地点

図中の数字は試料番号をさす。(国土地理院発行2万5千分の1地形図「白石島」の一部を使用)

表1 地下水採取地点の概況

試料No.	場所(笠岡市真鍋島)	備 考
1	本浦	民家の井戸，水面まで約1.8m，現在未使用
2	本浦	民家の井戸，水面まで約15m，現在未使用
3	本浦	民家の井戸，水面まで約1.1m，現在未使用
4	本浦	共同井戸，水面まで約1.1m，現在未使用
5	本浦	民家の井戸，水面まで約2.0m，現在未使用
6	本浦	民家の井戸，水面まで約1.7m，現在未使用
7	岩坪	民家の井戸，水面まで約2.6m，洗い物などに使用
8	岩坪	民家の井戸，水面まで約4m，現在未使用
9	岩坪	民家の井戸，蛇口から採水（深さは不明），飲料用に使用
10	岩坪	共同井戸，水面まで約1.5m，現在未使用
11	岩坪	共同井戸，水面まで約4m，現在未使用
M-1	岩坪	民家の井戸，蛇口から採水（深さは不明），飲料用に使用
M-2	岩坪	民家の井戸，蛇口から採水（深さは不明），飲料用に使用
M-3	岩坪	No.10と同一場所
M-4	本浦	No.4と同一場所

表2 地下水の水質分析結果

Sample No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	M-1	M-2	M-3	M-4
pH	6.6	6.1	6.7	7.1	7.1	7.0	6.8	6.7	6.3	6.6	7.4	6.1	6.6	6.5	7.0
EC (mS/cm)	0.55	0.48	0.53	0.54	1.21	0.87	0.28	0.59	0.73	0.62	0.56	0.55	0.60	0.56	0.46
Na <sup>+</sup> (mg/l)	18.7	52.8	21.2	49.6	52.9	37.7	20.3	22.2	86.6	53.0	44.4	69.6	62.2	57.4	36.7
K <sup>+</sup>	6.46	5.95	5.65	4.97	28.2	9.04	1.48	3.25	10.4	3.83	4.30	7.82	7.77	2.87	4.68
Mg <sup>2+</sup>	8.24	5.77	12.9	10.3	22.2	17.2	1.79	9.83	11.3	7.30	9.95	8.17	8.22	11.4	8.05
Ca <sup>2+</sup>	27.6	17.2	44.8	37.1	117.8	71.5	14.8	26.1	24.2	10.1	39.0	15.8	17.9	17.2	30.8
F <sup>-</sup>	0.12	0.19	0.09	0.26	0.33	0.14	0.21	0.12	0.15	0.10	0.30	0.19	0.14	0.07	0.38
Cl <sup>-</sup>	38.5	61.7	37.7	60.6	175.5	74.2	17.5	37.9	83.1	49.3	32.4	50.5	67.6	43.2	52.0
Br <sup>-</sup>	0.13	0.18	0.13	0.10	0.36	0.23	0.01	0.14	0.22	0.16	0.12	0.18	0.18	0.14	0.09
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N	23.8	7.86	25.1	7.32	44.7	30.0	5.04	19.4	16.5	16.1	15.0	13.0	16.6	16.8	11.8
PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P	0.63	0.30	0.90	0.22	1.65	1.33	0.17	0.19	0.61	0.32	0.29	0.52	0.65	0.26	0.25
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	57.6	48.3	55.6	46.4	102.5	80.7	15.1	53.3	87.4	66.2	61.7	78.2	85.2	61.0	60.0
δ <sup>15</sup> N-Air (‰)												12.9			13.3

も特に傾向は認められなかった。

電気伝導度は0.28～1.21 mS/cmの範囲であり、地下水の採取場所によってその値が大きく異なる。最も低い値をもつ地下水は、島の北東に位置する岩坪の集落の上部の試料No.7で、付近には比較的急な斜面に針葉樹が広がっている。一方、最も高い値を示したのは島の中央部付近の本浦の集落上方の試料No.5で、畑が広く分布する地点の井戸水である。

## (2) 陽イオン・陰イオン濃度

陽イオン・陰イオンの濃度は、Na<sup>+</sup>:17.7～86.6 (mg/l), K<sup>+</sup>:1.48～28.2 (mg/l), Mg<sup>2+</sup>:1.79～22.2 (mg/l), Ca<sup>2+</sup>:14.8～117.8 (mg/l), F<sup>-</sup>: 0.07～0.38 (mg/l), Cl<sup>-</sup>:17.5～175.5 (mg/l), Br<sup>-</sup>:0.36 (mg/l) 以下, NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N:5.04～44.7 (mg/l), PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P: 0.11～1.65 (mg/l), SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>:15.1～102.5 (mg/l) であ

る。これらの値は、地理的に限られた地域の中でも各イオンの濃度に大きな差異があることを示している。ここで、特徴的な水質組成をもつ地下水試料についてみると、試料No.7は陽イオン・陰イオン共にその濃度が低く、電気伝導度が0.28 mS/cmであることと調和的である。それ

表3 地下水中の微量元素濃度

	M-1	M-4	基準値
Mn (μg/l)	0.9	1.2	50 <sup>1)</sup>
Fe	<10	17	300 <sup>1)</sup>
Cu	8.2	3.7	1000 <sup>1)</sup>
Zn	28.2	14.2	1000 <sup>1)</sup>
As	3.72	1.7	10 <sup>2)</sup>
Se	1.1	0.4	10 <sup>2)</sup>
Cd	<0.01	0.01	10 <sup>2)</sup>
Hg	<0.2	<0.2	0.5 <sup>2)</sup>
Pb	0.27	<0.01	10 <sup>2)</sup>
Al	7	4	200 <sup>3)</sup>
B	158	70	1000 <sup>4)</sup>
Ni	22.1	1.2	10 <sup>4)</sup>
Mo	0.3	0.5	70 <sup>4)</sup>
Sb	0.12	0.16	2 <sup>4)</sup>
U	0.004	0.045	2 <sup>4)</sup>

<sup>1)</sup> : 水道水が有すべき性状に関連する項目 (基準値)

<sup>2)</sup> : 水道水の健康に関連する項目 (基準値)

<sup>3)</sup> : 水道水の快適水質項目 (目標値)

<sup>4)</sup> : 水道水の監視項目 (指針値)

に対して、試料No.5には $K^+$ 、 $Mg^{2+}$ 、 $Ca^{2+}$ 、 $NO_3^-$ -N、 $PO_4^{3-}$ -Pおよび $SO_4^{2-}$ が他の試料と比べて極めて多く含まれている（電気伝導度:1.21 mS/cm）。一般に、 $NO_3^-$ や $PO_4^{3-}$ は地下水汚染の指標となる成分であり<sup>6)</sup>、これらイオンが多く含まれていることは、地下水汚染が進行していることを示唆する。図2には、地下水中の $NO_3^-$ -N濃度の頻度

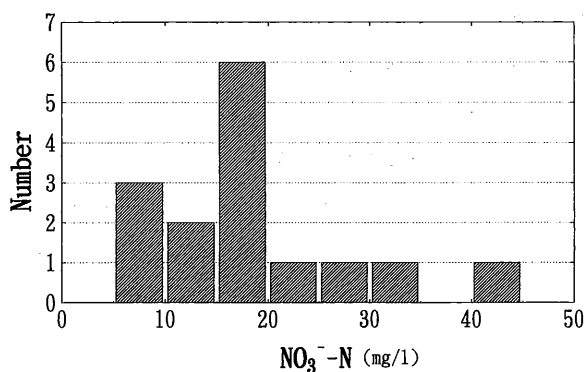


図2  $NO_3^-$ -N濃度の頻度分布

分布を示した。ほとんどの試料が、水道水質基準値（ $NO_3^-$ -N:10mg/l以下）を大きく越えていることがわかる。なお、地下水中の窒素化合物としての $NH_4^+$ や $NO_2^-$ は検出限界以下であった。また、地下水の水質の経年変化をみるために、1999年12月に採取した地点と同一場所で、2003年6月に試料M-3（1999年採取試料No.10）およびM-4（同No.4）を採取した。それらの水質については、 $Na^+$ 、 $Cl^-$ および $SO_4^{2-}$ 濃度に相違はみられるものの、大きな変化は認められなかった。

### (3) $\delta^{15}N$ 値

窒素には $^{14}N$ と $^{15}N$ の二つの安定同位体が存在し、その大気中の存在比はほぼ一定であるが、物質によってその存在比は変化する<sup>7)</sup>。この二つの同位体の比は、空気中の窒素同位体比を基準とし、 $\delta$ 値として千分率（‰）で（1）式のように表される<sup>7)</sup>。

$$\delta^{15}N (\text{‰}) = \left[ \left( \frac{R_{\text{Sample}}}{R_{\text{Air}}} \right) - 1 \right] \times 1000 \quad (1)$$

ここで、 $R = ^{15}N / ^{14}N$ である。

今回測定を行った2つの地下水試料の $\delta^{15}N$ は、それぞれ+12.9‰および+13.3‰である。これらの地下水は島の北西と中央部付近の集落から採取されたものであるが、両者の $\delta^{15}N$ 値は約+13‰で、ほぼ一致した値を示している。これまでに報告されている窒素供給源別の $\delta^{15}N$ 値を参考にすると<sup>7, 8, 9)</sup>、無機化学肥料（-8‰～+3‰）よりも下水処理水（+8～+15‰）に近い値といえる。

### (4) 微量元素濃度

真鍋島の地下水の中で、M-1とM-4の2試料について微量元素濃度を測定し、水道水質基準値と比較した（表3）。両試料とも健康に関連する項目（As, Se, Cd, Hg, Pb）および水道水が有すべき性状に関連する項目（Mn, Fe, Cu, Zn）については基準値以下である。また、水道水の快適水質項目（Al）についても、目標値以下である。しかし、現在も飲料用に使用されている試料M-1は、水道水監視項目（B, Ni, Mo, Sb, U）中のNi値（暫定）が指針値を超えている。

## 5. 考察

岡山県笠岡市真鍋島の地下水の水質調査において、多くの試料の $\text{NO}_3^-$ -N濃度が水道水の水質基準値(10mg/l以下)を越えていることが明らかになった。 $\text{NO}_3^-$ -Nが多量に飲料水中に含まれると、ヒトの体内でそれが $\text{NO}_2^-$ -Nに還元されて血液中のヘモグロビンと結合し、特に乳児に対してメトヘモグロビン血症(チアノーゼ、窒息症状)を引き起こすことが知られている(平田<sup>9)</sup>など)。このために、水質基準値として $\text{NO}_3^-$ -Nおよび $\text{NO}_2^-$ -N共に10mg/l以下と規定されている。この値を参考にすると、本研究では試料No.2, No.4, No.7以外の12試料が水質基準値を超えている。真鍋島で現在も飲料用に使用されている井戸水の $\text{NO}_3^-$ -N濃度は、試料No.9で16.5mg/l, M-1では13.0mg/l, そしてM-2で16.6mg/lとなり、それぞれ水質基準値を超えている。では、 $\text{NO}_3^-$ -Nが地下水中に多く含まれる原因は何であろうか。

地下水中の $\text{NO}_3^-$ -Nの供給源あるいは汚染源として、次の要因が指摘されている<sup>9)</sup>。①生活排水系、②畜産系(糞尿の土壌・畑地還元、畜舎排水など)、③施肥系(化学肥料、有機肥料など)、④大気汚染-降水系(自動車排ガス、事業所排ガスなど)。この中で、本研究地域では、畜産農家は存在しないので、畜舎排水や家畜糞尿の影響は無視できる。また、大気汚染-降水系については、調査地域の北に位置する北木島で酸性降下物の影響が地下水にも現れているが、最もpH値の低い試料(pH:4.7)でも $\text{NO}_3^-$ -N濃度は約0.4mg/lと低い<sup>5)</sup>。真鍋島の降水については水質測定を行っていないが、この程度の $\text{NO}_3^-$ -N濃度では、地下水の蒸発散による濃縮を考慮しても高濃度の $\text{NO}_3^-$ -N汚染(10mg/l以上)を引き起こす要因になるとは考えられない。一方、真鍋島では畑作や果樹栽培が営まれており、聞き取り調査によると、硫安などの化学肥料の施肥が行われている。このことは、化学肥料による地下水の $\text{NO}_3^-$ -N汚染の可能性を示唆している。また、同島では下水道の設備が整っておらず、家庭排水の地下水への混入も考えられる。した

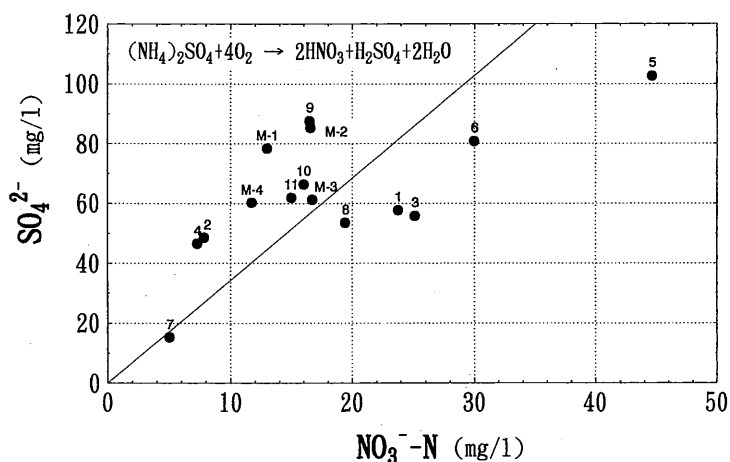
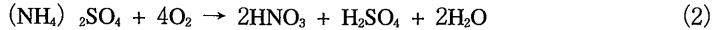


図3  $\text{SO}_4^{2-}$ 濃度と $\text{NO}_3^-$ -N濃度の関係

図中の数字は試料番号をさす。

がって、これらの点について詳しくみてみることにする。

図3は地下水の $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ -N濃度の関係図である。この図には窒素肥料として一般的に用いられている硫安（硫酸アンモニウム）が、(2)式のように土壤中で硝酸イオンに変化する場合の $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ -Nの化学量論的な関係を示した（図中の直線）。



各分析値は図中の直線上にはプロットされず、全体的には地下水の $\text{NO}_3^-$ -Nと $\text{SO}_4^{2-}$ 値は正の相関をもつが、化学量論の関係よりも $\text{NO}_3^-$ -Nが少ないグループ（試料Nos.2, 4, 9, 10, 11, M-1, M-2, M-3, M-4）と多いグループ、（試料Nos.1, 3, 5, 6, 8）の2つに分けることができる（ここでは、それぞれ第Ⅰおよび第Ⅱグループとする）。畑地などに施肥された硫安などの窒素系肥料は、土壤中でアンモニアの揮散や一部硝酸の脱窒が起こる場合もあり得るが<sup>10, 11)</sup>、前者の第Ⅰグループでは、 $\text{NO}_3^-$ -N値の増加と共に $\text{Na}^+$ 、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{K}^+$ などの濃度も急激に増加することから（例えば、図4）、し尿を含む生活排水を特徴づけるこれら成分の関与が大きいものと推定される。したがって、硫安などの化学肥料による影響も完全には無視できないが、生活排水の地下浸透の影響によって、 $\text{SO}_4^{2-}$ と共に $\text{NO}_3^-$ -Nが多く含まれるようになったものと推測されよう。その中でも、試料No.9, M-1, M-2は集落の下部に位置する井戸からのもので、 $\text{SO}_4^{2-}$ と共に $\text{Na}^+$ の値も他の試料より高い。これら地下水は、生活排水の混入の程度が特に大きかったのであろう。

それに対して、後者の第Ⅱグループは $\text{NO}_3^-$ -N値に対する $\text{Na}^+$ の増加割合が低く（図4）、一方で図5の $\text{PO}_4^{3-}$ -Pと $\text{NO}_3^-$ -Nの関係図にみられるように、両者は強い相関をもつ。この事実は、肥料として一般的に使用されるリン酸の影響が地下水に現れていることを示唆している。これら地下水は、図3に示されている硫安の $\text{SO}_4^{2-}$ と $\text{NO}_3^-$ -Nの化学量論的な関係よりも $\text{NO}_3^-$ -Nが多く含

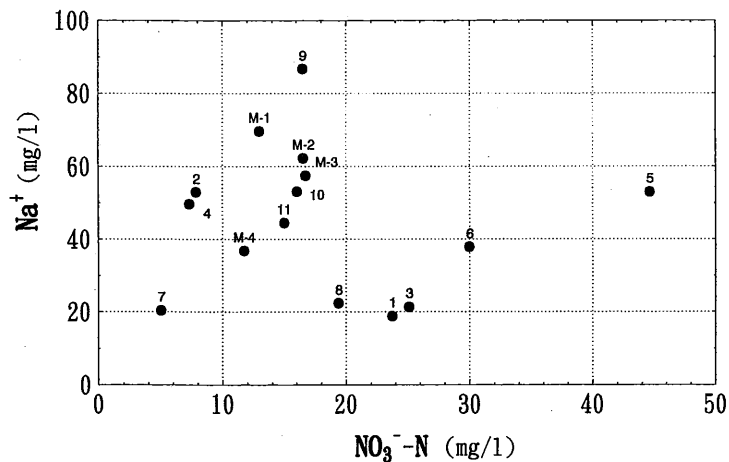


図4  $\text{Na}^+$ 濃度と $\text{NO}_3^-$ -N濃度の関係

図中の数字は試料番号をさす。

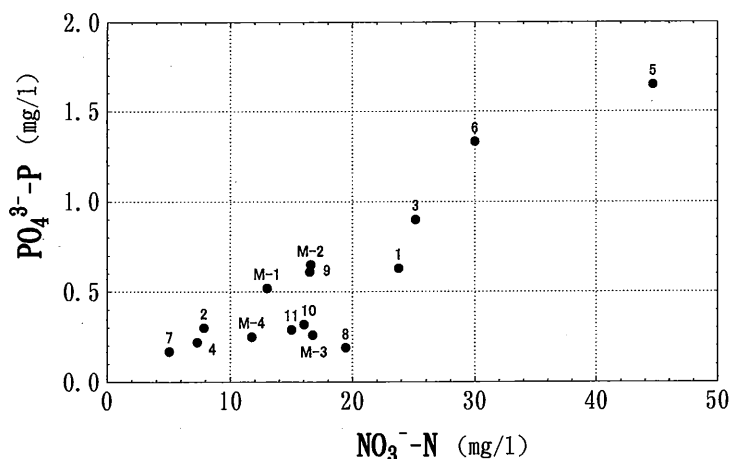


図5 PO<sub>4</sub><sup>3-</sup>-P濃度とNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N濃度の関係

図中の数字は試料番号をさす。

れていることから、燐安（リン酸アンモニウム）のような窒素成分を含む化学肥料の施肥が指摘できよう。また、このグループの地下水にはMg<sup>2+</sup>やCa<sup>2+</sup>も多く含まれている（表2）。窒素やリン酸肥料の施肥は、(2)式のように結果として土壌や地下水の酸性化を引き起こすため、中和のために苦土石灰などのアルカリが投入されたものと推定される。一般に、化学肥料の施肥によってNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nが高くなった地下水は、Mg<sup>2+</sup>やCa<sup>2+</sup>も多いことが指摘されており<sup>9, 12)</sup>、本研究においても同様な傾向を示している。したがって、第Ⅱグループの地下水組成は施肥された化学肥料の影響を直接的に反映しているものとみてよい。なお、試料No.7については、第Ⅰグループおよび第Ⅱグループのどちらにも含めていない。この地下水は、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>-N、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>、Na<sup>+</sup>などの濃度が最も低く、汚染をほとんど受けていないと考えられるからである。

地下水中のNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nについては様々な供給源に由来することが指摘されているが<sup>9)</sup>、その窒素の供給源を調べる方法としてδ<sup>15</sup>N値が注目されている<sup>13, 14)</sup>。このδ<sup>15</sup>N値は、窒素供給源ごとにほぼ一定の値をとることから、供給源を特定することが可能になるためである。一般にδ<sup>15</sup>N値は降雨で-8～+2‰、化学肥料では-7.4～+6.8‰、生活排水および家畜糞尿では+10～+22‰程度の値が報告されている<sup>15)</sup>。この中で、化学肥料は空中の窒素から製造されるためマイナスの値をとるものが多く<sup>16, 17)</sup>、それに対して有機肥料や堆肥のδ<sup>15</sup>N値は高く、+10‰以上の場合が多い<sup>18)</sup>。

本研究では、第Ⅰグループに属する2つの地下水試料のδ<sup>15</sup>Nが測定された。その値は+12.9‰（試料M-1）および+13.3‰（試料M-4）で、共に高い値を示している。このように、δ<sup>15</sup>N値が+10‰を越える場合、生活排水、家畜糞尿、有機肥料、堆肥などがNO<sub>3</sub><sup>-</sup>-Nの汚染源として推測可能である。しかし、既に述べように、これら第Ⅰグループの地下水はし尿を含む生活排水の影響を受けたものである。得られた高いδ<sup>15</sup>N値もこの結論と矛盾しない。なお、家庭排水や



下水についての $\delta^{15}\text{N}$ 値の測定例は多くないが、フランスの家庭排水では+10.5~+13.5‰<sup>19)</sup>、玉川上水の放流水（下水処理水）で+11.3~+17.4‰<sup>20)</sup>の値が報告されている。また、近藤ら<sup>11)</sup>による沖縄県宮古島の地下水では、農地（肥料系）と市街地（生活排水系）では $\delta^{15}\text{N}$ 値が大きく異なり、市街地では最高で約+14‰と高い値を示している。このように、窒素安定同位体比を利用して $\text{NO}_3\text{-N}$ の起源について定性的に考察することは十分可能であるが、本研究では、化学肥料の影響を受けたものと推定される第Ⅱグループの地下水の $\delta^{15}\text{N}$ 値は未測定である。それらの $\delta^{15}\text{N}$ 値は+10‰以下の低い値を示す可能性が高いが、これについては、今後測定を行う予定である。

## 謝辞

本論文は、著者の1人である永世真司の卒業研究（倉敷芸術科学大学）の一部と新たに分析を行った地下水の水質データを加えてまとめたものである。この研究を進めるにあたり、倉敷芸術科学大学小林祥一教授には地下水試料の採取にご協力いただいた。また、地下水の $\delta^{15}\text{N}$ 測定については、昭光通商（株）安定同位体（SI）開発グループの諸町信行氏に分析試料の前処理方法などをご教示いただいた。ここに深く感謝いたします。

## 引用文献

- 1) 米国環境保護庁：飲料水中の各種化学物質の健康影響評価－健康に関する勧告集－。（水質問題研究会訳）、日本水道協会、388-399（1988）。
- 2) 環境庁水質保全局：昭和57年度地下水汚染実態調査結果、30p（1983）。
- 3) 高屋敷将也，国包章一，眞柄泰基：硝酸・亜硝酸窒素による地下水汚染とその要因。第44回全国水道研究発表会講演集，747-749（1993）。
- 4) 妹尾 護，浅野理恵：倉敷市連島地域の硝酸性窒素による地下水汚染。倉敷芸術科学大学紀要，第8号，123-134（2003）。
- 5) 妹尾 護：岡山県北木島の地下水の水質－地下水の酸性化現象－。基盤研究（C）代表者小林祥一，「酸性雨の岩石鉱物に与える影響に関する実験的研究」，99-107（2003）。
- 6) 半谷高久，小倉紀雄：水質調査法（第3版），丸善，335p（1995）。
- 7) 田瀬則雄：水環境研究における安定同位体の利用と有効性。水環境学会誌，20，2-7（1997）。
- 8) 田瀬則雄：地下水中の硝酸性窒素濃度と窒素安定同位体比－汚染源の特定は可能か－。水，38，70-78（1996）。
- 9) 平田健正編：土壌・地下水汚染と対策。日本環境測定分析協会，304p（1996）。
- 10) 平田健正：硝酸性窒素による地下水汚染。水環境学会誌，19，950-955（1996）。
- 11) 近藤洋正，田瀬則雄，平田健正：窒素安定同位体比を用いた沖縄県宮古島における硝酸性窒素による地下水汚染の原因究明。地下水学会誌，39，1-15（1996）。
- 12) 永井 茂：地下水汚染の水文学的アプローチ。地下水学会誌，33，145-154（1991）。
- 13) Kohl, D. H., Shearer, G. B. and Commoner, B.: Fertilizer nitrogen: Contribution to nitrate in surface water in a Corn Belt watershed. Science, 174, 1331-1334（1971）。
- 14) 中西康博，山本洋司，朴 光来，加藤 茂，熊澤喜久雄： $\delta^{15}\text{N}$ 値利用による地下水硝酸起源推定法の考案と検証。日本土壌肥科学雑誌，66，544-551（1995）。
- 15) Heaton, T. H. E.: Isotopic studies of nitrogen pollution in the hydrosphere and atmosphere: A review. Chemical Geology (Isotope Geoscience Section), 59, 87-102（1986）。

- 16) Kreitler, C. W. : Nitrogen-isotope ratio studies of soils and ground-water nitrate from alluvial fan aquifer in Texas. *Jour. Hydrology*, 42, 147-170 (1979).
- 17) Hübner, H. : Isotope effects of nitrogen in the soil and biosphere. Fritz, P. and Fontes, J. eds. *Handbook of Environmental Isotope Geochemistry*, 2. The terrestrial environment, B, Elsevier, Amsterdam, 361-425 (1986).
- 18) Chien, S. H., Shearer, G. and Kohl, D. H. : The N-isotope effects associated with nitrate and nitrite loss from waterlogged soils. *Soil Sci. Soc. Am. J.*, 41, 63-69 (1977).
- 19) Mariotti, A., Landreau, A. and Simon, B. :  $^{15}\text{N}$  isotope biogeochemistry and natural denitrification process in groundwater: Application to the chalk aquifer of northern France. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 52, 1869-1878 (1988).
- 20) 新井秀子, 田瀬則雄 : 安定同位体を利用した河川浄化機能の評価. *環境科学会誌*, 5, 249-258 (1992).

## Groundwater Pollution by Nitrate-Nitrogen at Manabe Island in Kasaoka City, Okayama Prefecture

Mamoru SENO, Shinji NAGASE\*

*College of Liberal Arts and Science for International Studies*

*Kurashiki University of Science and the Arts,*

*2640 Nishinoura, Tsurajima-cho, Kurashiki-shi, Okayama 712-8505, Japan*

*\*Japan Post*

(Received September 30, 2003)

The groundwater quality of Manabe Island in Kasaoka City, Okayama Prefecture, was investigated. As a result, groundwaters with high concentration of nitrate-nitrogen ( $\text{NO}_3^-$ -N) were found out.

Groundwaters can be classified into two types on the water quality (Group I and Group II). Group I is characterized by high concentrations of  $\text{SO}_4^{2-}$ ,  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$  and  $\text{Cl}^-$ . On the other hand, Group II is characterized by higher values of  $\text{NO}_3^-$ -N,  $\text{PO}_4^{3-}$ -P,  $\text{Mg}^{2+}$  and  $\text{Ca}^{2+}$ , in which the concentrations of  $\text{Na}^+$ ,  $\text{K}^+$  and  $\text{Cl}^-$  are lower. In addition, there is a positive correlation between the concentrations of  $\text{NO}_3^-$ -N and  $\text{PO}_4^{3-}$ -P in Group II groundwaters. Therefore, it follows that Group I groundwaters were influenced by sewages, and that Group II groundwaters affected by commercial inorganic fertilizers including of nitrogen and phosphate.

Nitrogen isotope values of nitrate ( $\delta^{15}\text{N}$ ) were measured on two Group I groundwaters. The values are 12.9‰ and 13.3‰, which are much higher than those of chemical fertilizer. Consequently, the high  $\delta^{15}\text{N}$  values also suggest that the nitrogen of Group I groundwaters were derived from sewages.