

硝酸性窒素汚染からヒ素汚染へ、山陰地域弓ヶ浜砂州の例

道前香緒里¹⁾*・石賀 裕明*

Groundwater pollution from nitrate-N to arsenic of Yumigahama sand-bar, San'in district, Japan

Kaori Dozen¹⁾* and Hiroaki Ishiga*

Abstract

Nitrate-N pollution has been widely observed in groundwater of Japan which was caused by agricultural practice and increasing amounts of domestic wastes. This paper describes present situation of groundwater of the Yumigahama sand-bar, San'in district, Japan. The results show severe contamination of nitrate-N and arsenic occurrences in many tubewells suggesting variation of the redox condition within aquifers. Arsenic solution has been inferred to occur under reducing condition which is not concordant to the oxic condition for the nitrate-N occurrences. High COD values are characteristic in groundwaters of arsenic contamination which may be related to bacterial deterioration of organic matter. This fermentation results in release of arsenic species from sediments and in nitrate reduction. Iron oxyhydroxides (FeOOH) adsorbing As species are not necessary for this reaction, thus iron was not always detected in arsenic contaminated water in Yumigahama.

はじめに

硝酸性窒素による地下水汚染が大きな社会問題となっている(永井, 1996)。それは硝酸性窒素が多量に摂取されると体内で還元され亜硝酸性窒素となり、血液中ではヘモグロビン血症を引き起こし易いためである。水道水質基準では硝酸性窒素、亜硝酸性窒素ともに 10 mg/L 以下と決められているが、自家用の浅井戸や自治体で使用されている上水道の源水にはこれ以上の濃度が含まれていることがある。このような傾向は全国的に広がっている。硝酸性窒素汚染の汚染源は農業や畜産などにあると考えられるが、規制や対策が難しいのが現状である。とくに地表からの汚染の影響を受けやすい浅井戸では硝酸性窒素汚染が生じやすい。浅井戸はもともと人家や農地の近くにあり、人間活動の影響を直接受けやすい。

鳥取県西部の弓ヶ浜は汽水湖の中海と日本海を境する砂州である。ここには豊富な地下水が存在して、灌漑用水として利用され、今日では農業の拡大、とくに白ネギの栽培の隆盛をみた(昭和 50 年代から年間を通じて生産、境港市, 1986 b)。また一方では、宅地開発が急速に進展し、家庭排水も増加した。そのため現在では飲用水は水道に切り替えられている。調査を行うと地下水は汚染が進行していることが判明した(伊藤ほか, 2000)。その後も継続して弓ヶ浜のほぼ全域の地下水の調査を進めるなかで、ヒ素汚染が多数の地点で認められた。もともと硝酸性窒素は有機物の酸化的環境下での

分解や、アンモニウムの酸化によって形成されると考えられる。一方、ヒ素は還元的環境で鉄とともに溶出するので、両者が同時に生じることはないといえる。しかし、弓ヶ浜においては両方の汚染の分布域が重なったり、1つの地下水でも硝酸性窒素、ヒ素が共存することがあり、帯水層中でも異なる酸化還元状態にあることが示唆される。本論では伊藤ほか(2000)で報告した結果とあわせ約 100 本の井水の測定結果をもとに硝酸性窒素汚染とヒ素汚染の関係について考察する。弓ヶ浜の地下水の現状を知ることは、今後の汚染対策や水利用にも役立つ。

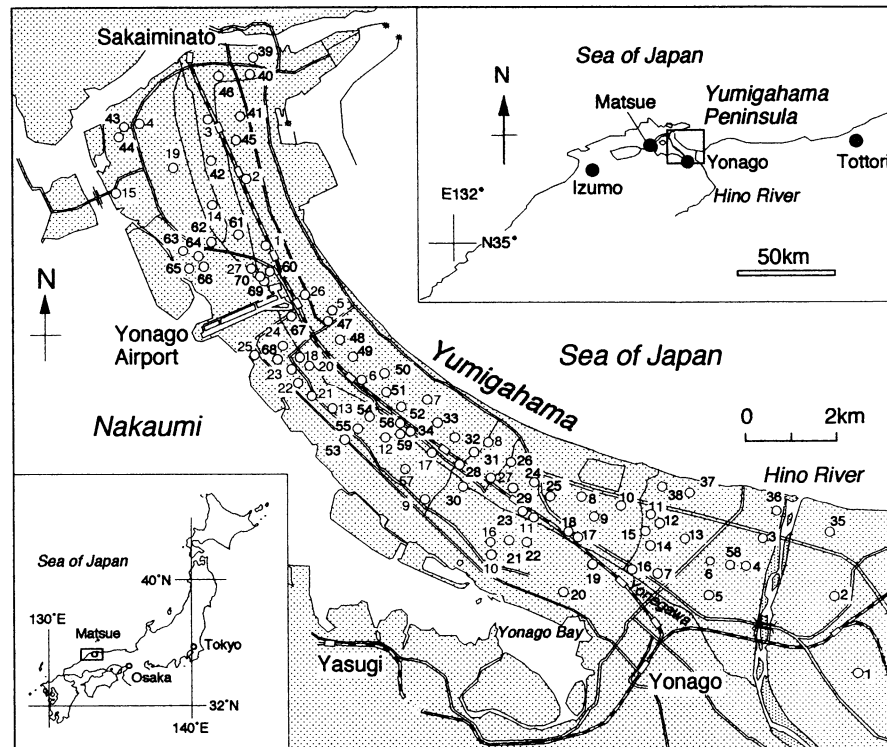
弓ヶ浜の地史概説

弓ヶ浜は現在では中海と美保湾(日本海)を境する砂州であり、北西-南東延長は 18 km、幅は約 4 km である。その形成には完新世の海面変動と人間活動(おもに、たたら製鉄)が大きく関わっている。最終氷期以降、海面は上昇し(太田ほか, 1990)、現在の中海は古中海湾として存在し(徳岡ほか, 1990)、そこには主として海成粘土層が堆積した。その後、弥生時代の海退によって砂嘴として発達する(徳岡ほか, 1990)。たたら製鉄の鉄穴(かんな)流しと、木炭の生産のための広葉樹林の伐採により土砂流出を引き起こした(高橋, 1989)。その結果、日野川を通して多量の土砂が日本海に流入するようになった(高橋, 1989; 貞方, 1985)。そして、弓ヶ浜砂州が完成して、中海は閉鎖的環境へと変化したとされている。特に 19 世紀中盤にはたたら操業による土砂流出量がピークに達し(17 世紀頃の 3.6 倍)、弓ヶ浜の砂州は急速に発達したと考えられる(徳岡ほか, 1990; 貞方, 1985)。

¹⁾ 日本学術振興会特別研究員 (PD)

* 島根大学総理工学部地球資源環境学科
690-8504 松江市西川津町 1060

Department of Geoscience, Shimane University, Matsue 690-8504, Japan



第1図 鳥取県西部弓ヶ浜の位置図および試料採集位置を示す図。太字は今回の調査位置。その他は伊藤ほか(2000)の調査位置を示す。

第1表 1999年調査地点における鳥取県弓ヶ浜の地下水の分析値(伊藤ほか, 2000より)。-: 検出せず。Bac, Fecalはそれぞれ一般細菌, 大腸菌である。これらは試料1ml中に含まれる細菌の数を示すが, 数えられないほど非常に多くの菌を検出したものについては+で示す。Bac, Fecalの空白は検出されず。

| sample | T (°C) | pH | EC ($\mu\text{S}/\text{cm}$) | DO (mg/l) | COD (mg/l) | NO ₃ ⁻ (mg/l) | NH ₄ ⁺ (mg/l) | FeT (mg/l) | AsT (mg/l) | PO ₄ ³⁻ (mg/l) | Bac | Fecal |
|------------|-----------|-----|-----------------------------------|--------------|---------------|--|--|---------------|---------------|---|------|-------|
| no.1 July | 19.6 | 6.5 | 832 | 2.1 | 1 | - | - | - | - | - | 0.15 | - |
| no.1 Nov | 16.3 | 6.6 | 492 | 2.9 | 5 | >45 | - | - | - | - | 0.25 | - |
| no.2 July | 18.4 | 7.2 | 102 | 3.3 | - | - | 0.6 | - | - | - | - | - |
| no.2 Nov | 18.0 | 6.9 | 292 | 5.6 | 2 | 30 | 0.1 | 1.5 | - | - | 0.15 | - |
| no.3 July | 21.2 | 6.6 | 281 | 1.1 | 2 | 5 | >5 | >5 | - | - | 0.07 | - |
| no.3 Nov | 18.5 | 6.6 | 330 | 1.6 | 5 | 5 | >5 | >5 | - | - | 0.15 | - |
| no.4 July | 21.4 | 6.4 | 467 | 2.9 | 2 | 3 | 0.4 | 0.2 | - | - | 0.07 | 4 |
| no.4 Nov | 17.7 | 6.2 | 550 | 2.4 | 3 | >45 | 2.5 | 0.2 | - | - | 0.15 | - |
| no.5 July | 19.5 | 7.1 | 428 | 1.4 | 10 | 0.4 | 0.6 | 0.01 | 0.4 | - | 0.15 | 2 |
| no.5 Nov | 18.4 | 7.0 | 365 | 2.5 | 8 | 0.3 | 0.1 | - | - | - | 0.25 | - |
| no.6 July | 19.7 | 7.1 | 254 | 2.1 | 10 | 0.3 | 0.2 | - | - | - | 0.15 | 2 |
| no.6 Nov | 16.1 | 7.0 | 329 | 3.4 | 30 | 30 | 0.4 | 0.1 | - | - | 0.08 | - |
| no.7 July | 19.9 | 7.1 | 307 | 2.5 | 10 | - | - | - | - | - | 0.85 | - |
| no.7 Nov | 17.5 | 6.4 | 323 | 3.1 | 1 | 45 | - | - | - | - | 0.7 | - |
| no.8 July | 21.5 | 7.0 | 270 | 1.5 | 1.5 | 0.9 | - | - | - | - | 0.05 | - |
| no.8 Nov | 17.7 | 6.4 | 262 | 2.4 | 1 | 15 | 0.6 | - | - | - | - | - |
| no.9 July | 19.5 | 6.8 | 511 | 1.3 | 5 | - | - | - | - | - | - | - |
| no.9 Nov | 18.1 | 6.7 | 492 | 2.5 | 5 | >45 | 0.1 | - | - | - | 0.08 | - |
| no.10 July | 21.6 | 7.0 | 331 | 2.2 | 5 | - | - | - | - | - | 3 | - |
| no.11 July | 20.1 | 7.0 | 362 | 1.5 | 5 | - | 2.5 | 0.2 | - | - | 0.05 | - |
| no.11 Nov | 19.5 | 6.1 | 338 | 3.6 | 1 | 20 | 0.2 | 2.5 | - | - | 0.25 | - |
| no.12 July | 18.5 | 7.0 | 325 | 1.0 | 100 | - | 1.5 | - | - | - | 0.07 | - |
| no.12 Nov | 16.5 | 6.4 | 373 | 2.8 | 30 | 30 | 0.1 | 0.1 | - | - | 0.08 | - |
| no.13 July | 20.0 | 6.5 | 260 | 2.0 | 1 | - | 0.2 | - | - | - | 0.15 | + |
| no.13 Nov | 16.7 | 6.9 | 240 | 3.2 | 2 | 10 | - | 0.1 | - | - | 0.08 | - |
| no.14 July | 18.2 | 6.8 | 564 | 2.0 | 1 | - | 0.2 | - | - | - | 0.4 | + |
| no.14 Nov | 18.1 | 6.8 | 553 | 2.3 | 2 | 15 | 0.2 | - | - | - | 0.15 | 29 |
| no.15 July | 22.6 | 7.2 | 639 | 1.4 | 10 | - | 1.5 | - | - | - | 0.6 | 5 |
| no.15 Nov | 19.0 | 6.7 | 359 | 3.1 | 2 | >45 | 0.1 | 1.5 | - | - | 0.08 | 2 |
| no.16 Nov | 19.6 | 6.7 | 158 | 2.6 | 5 | 1.5 | - | 0.4 | - | - | 0.08 | 18 |
| no.17 Nov | 17.0 | 6.7 | 380 | 2.9 | 1000 | - | >5 | >5 | 0.02 | 0.05 | - | - |
| no.18 Nov | 16.4 | 7.0 | 91 | 5.4 | 1 | 2 | 0.1 | 0.1 | - | - | 0.08 | 1 |
| no.19 Nov | 16.6 | 6.7 | 714 | 2.3 | 3 | 45 | - | - | - | - | 0.25 | - |
| no.20 Nov | 17.1 | 7.2 | 256 | 1.9 | 3 | 5 | - | - | - | - | 0.1 | - |
| no.21 Nov | 17.1 | 6.8 | 222 | 3.5 | 1 | 5 | - | 0.4 | - | - | 0.4 | - |
| no.22 Nov | 17.9 | 6.7 | 285 | 2.2 | 2 | 10 | 0.2 | 0.3 | - | - | 0.15 | - |
| no.23 Nov | 18.3 | 6.4 | 220 | 1.8 | 50 | - | 0.1 | 1.5 | - | - | 0.25 | - |
| no.24 Nov | 18.4 | 6.9 | 332 | 1.9 | 1 | 2 | - | - | - | - | 3 | - |
| no.25 Nov | 18.5 | 6.4 | 463 | 1.4 | 10000 | - | >5 | >5 | 0.02 | 0.6 | - | - |
| no.26 Nov | 18.1 | 6.4 | 340 | 1.5 | 5000 | 2 | 4 | >5 | - | - | 0.5 | - |
| no.27 Nov | | | | | | | | | | | | |

弓ヶ浜は深度20mまでは細粒砂を主とする層で, これより以深では泥層が発達する(鳥取県地盤図, 1995)。この泥層が不透水層となり, 不圧地下水の帯水層がこの砂層に発達している(山本, 1959)。地下水位は降雨と灌漑用水の通水の影響を受け, 弓ヶ浜を縦断する米川および米川からの支流は, 弓ヶ浜に豊富な地下水を供給している(境港市, 1986a)。そのため地下水位は季節的な変化を伴うが, 水位面は高い。

試料採集と測定方法

弓ヶ浜には灌漑用に井戸(ハンドポンプ)が多数設置されている。調査地点(○印, 第1図, 太字数字が今回調査した地点。それ以外は伊藤ほか, 2000による地点)を第1図に示す。井水は数分間排水を行い, 水温が一定となるようになった後に採水し, 現地で以下に示す項目の測定を行った。

測定項目は水温(T°C), pH, 電気伝導度(EC), 溶存酸素(DO), COD, NO₃⁻, NO₂⁻, NH₄⁺, FeT(全鉄), AsT(全ヒ素), Ca²⁺, PO₄³⁻, 全バクテリア, 大腸菌である。このうちpH, 電気伝導度(EC), 溶存酸素(DO)はポータブル測定器(堀場製), OM-12, ES-14, D-14をそれぞれ用いた。CODはアルカリ性過マンガン酸カリウム法, NO₃⁻は還元とグリース改良法, NO₂⁻はグリース改良法, NH₄⁺はネスラー法, FeTは1, 10-オルトフェナンスロリン法, AsTは改良グトツアイト法, Ca²⁺はフタレインコンプレクソン法により, そしてPO₄³⁻はモリブデン酸アンモン法によりそれぞれ測定した。一般バクテリア, 大腸菌は培地を含浸, 乾燥させた試験紙(共立理化学研究所製, TPA-BG, TPA-CG)を用いた。

第2表 2000年調査地点における鳥取県弓ヶ浜の地下水の分析値。－：検出せず。Bac, Fecal はそれぞれ一般細菌，大腸菌である。これらは試料1ml中に含まれる細菌の数を示す。

| sample | T (°C) | pH | EC (μS/cm) | DO (mg/l) | COD (mg/l) | NO ₃ ⁻ (mg/l) | NO ₂ ⁻ (mg/l) | NH ₄ ⁺ (mg/l) | FeT (mg/l) | AsT (mg/l) | Ca ²⁺ (mg/l) | PO ₄ ³⁻ (mg/l) | Bac | Fecal |
|--------|--------|------|------------|-----------|------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|------------|------------|-------------------------|--------------------------------------|-----|-------|
| 1 | April | 14.2 | 6.2 | 172 | 3.4 | - | 7.5 | - | 0.1 | 1.5 | - | 5 | 0.3 | - |
| 2 | April | 15.4 | 6.4 | 192 | 2.2 | - | 5 | - | 0.6 | - | 5 | 0.1 | - | - |
| 3 | April | 17.1 | 6.5 | 163 | 2.0 | 1 | 3 | 0.05 | - | - | 10 | 0.2 | - | - |
| 4 | April | 14.6 | 6.8 | 196 | 3.4 | 1 | 4 | - | - | 0.15 | - | 5 | 0.1 | 15 |
| 5 | April | 14.0 | 5.7 | 152 | 1.7 | 50 | - | - | 0.5 | 4 | - | 10 | 0.1 | - |
| 6 | April | 14.6 | 6.2 | 311 | 1.8 | 1000 | - | - | 5 | >10 | 0.01 | 10 | 0.2 | - |
| 7 | April | 15.1 | 6.5 | 206 | 1.9 | 1 | 9 | 0.05 | 0.1 | 0.3 | - | 10 | 0.1 | 10 |
| 8 | May | 16.5 | 7.0 | 229 | 2.5 | 1 | 10 | - | - | - | - | 5 | - | - |
| 9 | May | 16.3 | 6.8 | 325 | 1.5 | 10000 | - | - | 0.3 | >10 | 0.03 | 10 | 0.1 | - |
| 10 | May | 17.0 | 6.7 | 196 | 1.3 | 10000 | - | - | 0.1 | >10 | 0.02 | 5 | 0.1 | - |
| 11 | May | 15.6 | 7.2 | 177 | 2.9 | - | 8 | - | - | 0.2 | - | 5 | - | - |
| 12 | May | 17.2 | 7.1 | 281 | 5.7 | - | 15 | - | 0.1 | - | - | 10 | 1.0 | - |
| 13 | June | 17.7 | 7.0 | 186 | 0.8 | 10 | 3 | 0.05 | - | 3 | - | 5 | - | - |
| 14 | June | 15.8 | 6.6 | 340 | 1.3 | 10000 | - | - | >5 | >10 | 0.03 | 30 | - | - |
| 15 | June | 16.5 | 7.8 | 277 | 0.9 | 10000 | - | - | >5 | >10 | 0.03 | 30 | 1.0 | - |
| 16 | June | 17.3 | 8.1 | 154 | 4.8 | - | 15 | - | - | - | - | 10 | - | - |
| 17 | June | 17.3 | 8.0 | 169 | 1.1 | 10000 | - | - | >5 | 10 | 0.03 | 10 | 0.2 | - |
| 18 | June | 18.8 | 8.1 | 147 | 1.8 | - | 15 | 0.15 | 0.2 | - | 1 | 0.1 | - | - |
| 19 | June | 16.1 | 8.3 | 298 | 4.7 | - | >45 | - | 0.15 | - | 0.01 | 1 | - | - |
| 20 | June | 16.6 | 8.1 | 349 | 4.4 | - | - | - | 0.15 | 0.5 | - | 10 | - | - |
| 21 | July | 16.9 | 7.0 | 404 | 0.8 | 2 | >45 | - | - | - | - | 5 | - | - |
| 22 | July | 16.4 | 7.9 | 257 | 1.3 | 2 | >45 | 0.5 | 5 | 0.1 | - | 5 | - | - |
| 23 | July | 17.6 | 8.3 | 98 | 1.8 | - | 2 | - | - | - | - | 5 | - | 17 |
| 24 | July | 15.6 | 7.7 | 293 | 1.8 | - | 30 | - | - | - | - | 5 | 0.4 | - |
| 25 | July | 16.4 | 7.3 | 409 | 3.9 | 10000 | - | - | >5 | 10 | 0.02 | 1 | - | 14 |
| 26 | July | 18.6 | 7.7 | 344 | 3.1 | - | 5 | 0.7 | 0.1 | - | 5 | 0.1 | 5 | - |
| 27 | July | 17.7 | 7.8 | 191 | 1.0 | 2 | 4 | - | 0.6 | 0.2 | - | 5 | - | - |
| 28 | July | 20.3 | 7.8 | 202 | 1.7 | 3 | - | - | >5 | 3 | - | 5 | 0.1 | - |
| 29 | July | 21.0 | 7.8 | 95 | 1.1 | 3 | - | - | 0.3 | 0.2 | - | 10 | - | - |
| 30 | July | 17.9 | 7.9 | 91 | 2.6 | - | 3 | - | - | - | - | 5 | - | 10 |
| 31 | July | 15.1 | 7.1 | 356 | 1.8 | 2 | >45 | 0.4 | - | 0.1 | - | 10 | - | 8 |
| 32 | July | 15.9 | 7.2 | 263 | 0.8 | 2 | 7 | 0.1 | - | 0.03 | 5 | - | - | - |
| 33 | July | 16.4 | 7.3 | 584 | 1.6 | 2 | >45 | 0.1 | 1.5 | - | - | 5 | - | - |
| 34 | July | 15.7 | 6.8 | 671 | 1.9 | 10 | >45 | 0.2 | - | 0.2 | 0.2 | 1 | - | - |
| 35 | July | 15.8 | 7.3 | 207 | 2.8 | 1 | 10 | - | - | 0.01 | 10 | 2.0 | - | - |

| sample | T (°C) | pH | EC (μS/cm) | DO (mg/l) | COD (mg/l) | NO ₃ ⁻ (mg/l) | NO ₂ ⁻ (mg/l) | NH ₄ ⁺ (mg/l) | FeT (mg/l) | AsT (mg/l) | Ca ²⁺ (mg/l) | PO ₄ ³⁻ (mg/l) | Bac | Fecal |
|--------|--------|------|------------|-----------|------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|------------|------------|-------------------------|--------------------------------------|-----|-------|
| 36 | July | 16.9 | 7.2 | 338 | 1.3 | 6 | 15 | 0.2 | 0.2 | 0.5 | - | 5 | - | - |
| 37 | July | 18.6 | 7.5 | 179 | 3.9 | - | 15 | - | - | - | - | 5 | - | - |
| 38 | July | 18.8 | 7.6 | 205 | 4.2 | 1 | 20 | - | - | - | 0.01 | 5 | - | - |
| 39 | Oct | 17.9 | 8.0 | 368 | 1.2 | - | 5 | 0.1 | - | - | - | 10 | - | - |
| 40 | Oct | 17.1 | 7.9 | 720 | 1.4 | - | - | - | 0.1 | - | 0.2 | 20 | 0.4 | - |
| 41 | Oct | 18.1 | 8.0 | 468 | 2.1 | - | 20 | 1 | 0.2 | - | - | 15 | 0.5 | - |
| 42 | Oct | 18.1 | 7.9 | 296 | 2.2 | - | 10 | - | 0.2 | - | - | 7 | 0.2 | - |
| 43 | Oct | 18.4 | 7.4 | 302 | 6.6 | - | 30 | - | 0.1 | 0.1 | - | 10 | - | - |
| 44 | Oct | 18.1 | 7.5 | 197 | 5.2 | - | 10 | - | - | 0.1 | - | 10 | - | - |
| 45 | Oct | 18.1 | 7.3 | 461 | 1.7 | 4 | 10 | 0.2 | - | 0.2 | - | 10 | 0.1 | 5 |
| 46 | Oct | 19.7 | 7.6 | 135 | 3.8 | - | 5 | - | 0.1 | 0.1 | - | 5 | - | - |
| 47 | Oct | 19.0 | 7.3 | 292 | 2.7 | 1 | 7 | 0.2 | - | 0.1 | - | 10 | - | 12 |
| 48 | Oct | 18.1 | 7.5 | 359 | 1.9 | 3 | - | - | 0.5 | 0.2 | 0.01 | 15 | 1.0 | - |
| 49 | Oct | 19.6 | 7.7 | 262 | 4.1 | 3 | 7 | 0.2 | 0.1 | 0.3 | - | 5 | 0.1 | - |
| 50 | Oct | 19.8 | 7.7 | 464 | 1.8 | 3 | 5 | 0.1 | 0.2 | 0.2 | 0.02 | 10 | 0.5 | - |
| 51 | Oct | 19.0 | 7.8 | 384 | 1.9 | 7 | 20 | 0.08 | - | 0.2 | 0.01 | 10 | - | - |
| 52 | Oct | 19.4 | 7.7 | 300 | 1.9 | 1000 | 15 | 0.02 | 0.5 | 0.3 | 0.01 | 5 | - | - |
| 53 | Oct | 19.0 | 7.9 | 211 | 1.9 | - | 8 | - | 0.3 | 0.1 | - | 10 | - | - |
| 54 | Oct | 19.6 | 7.2 | 496 | 2.8 | 5000 | 45 | - | 0.1 | 0.2 | 0.01 | 10 | - | - |
| 55 | Oct | 18.3 | 7.2 | 800 | 2.0 | 10000 | 45 | 0.4 | 0.1 | 0.2 | 0.02 | 10 | - | - |
| 56 | Oct | 17.1 | 7.3 | 366 | 3.0 | - | 35 | 0.05 | - | 0.3 | - | 15 | - | - |
| 57 | Oct | 19.2 | 7.2 | 174 | 2.1 | - | 15 | - | 0.3 | 0.1 | - | 5 | - | - |
| 58 | Nov | 6.2 | 148 | 2.8 | - | - | - | - | 0.5 | 0.7 | - | 7 | - | - |
| 59 | Nov | 18.1 | 6.9 | 139 | 7.1 | 100 | 10 | - | - | 0.2 | - | 2 | - | - |
| 60 | June | 16.0 | 7.3 | 460 | 1.6 | - | 15 | 0.3 | - | - | - | - | - | 0.1 |
| 61 | June | 15.7 | 7.6 | 741 | 1.4 | 2 | - | - | 0.8 | 0.8 | - | - | - | - |
| 62 | June | 17.2 | 7.7 | 205 | 1.9 | - | 7 | 0.07 | - | - | - | - | - | - |
| 63 | June | 16.2 | 7.8 | 419 | 1.0 | 7 | - | - | - | - | - | - | - | - |
| 64 | June | 17.0 | 8.0 | 239 | 1.6 | 1 | - | - | 0.8 | 0.1 | - | 15 | 0.7 | - |
| 65 | June | 16.7 | 7.9 | 695 | 1.1 | 4 | - | - | 1.5 | - | - | 40 | 0.2 | - |
| 66 | June | 17.4 | 8.4 | 305 | 2.4 | - | 10 | - | - | - | - | 20 | 0.7 | - |
| 67 | June | 15.4 | 8.3 | 261 | 1.5 | 7 | 30 | - | - | - | - | 15 | - | - |
| 68 | June | 16.7 | 8.5 | 202 | 5.0 | - | 7 | - | - | - | - | 15 | - | - |
| 69 | June | - | - | - | - | - | 15 | - | - | - | - | - | - | - |
| 70 | June | - | - | - | - | - | - | 0.4 | - | - | - | - | - | - |

測定結果

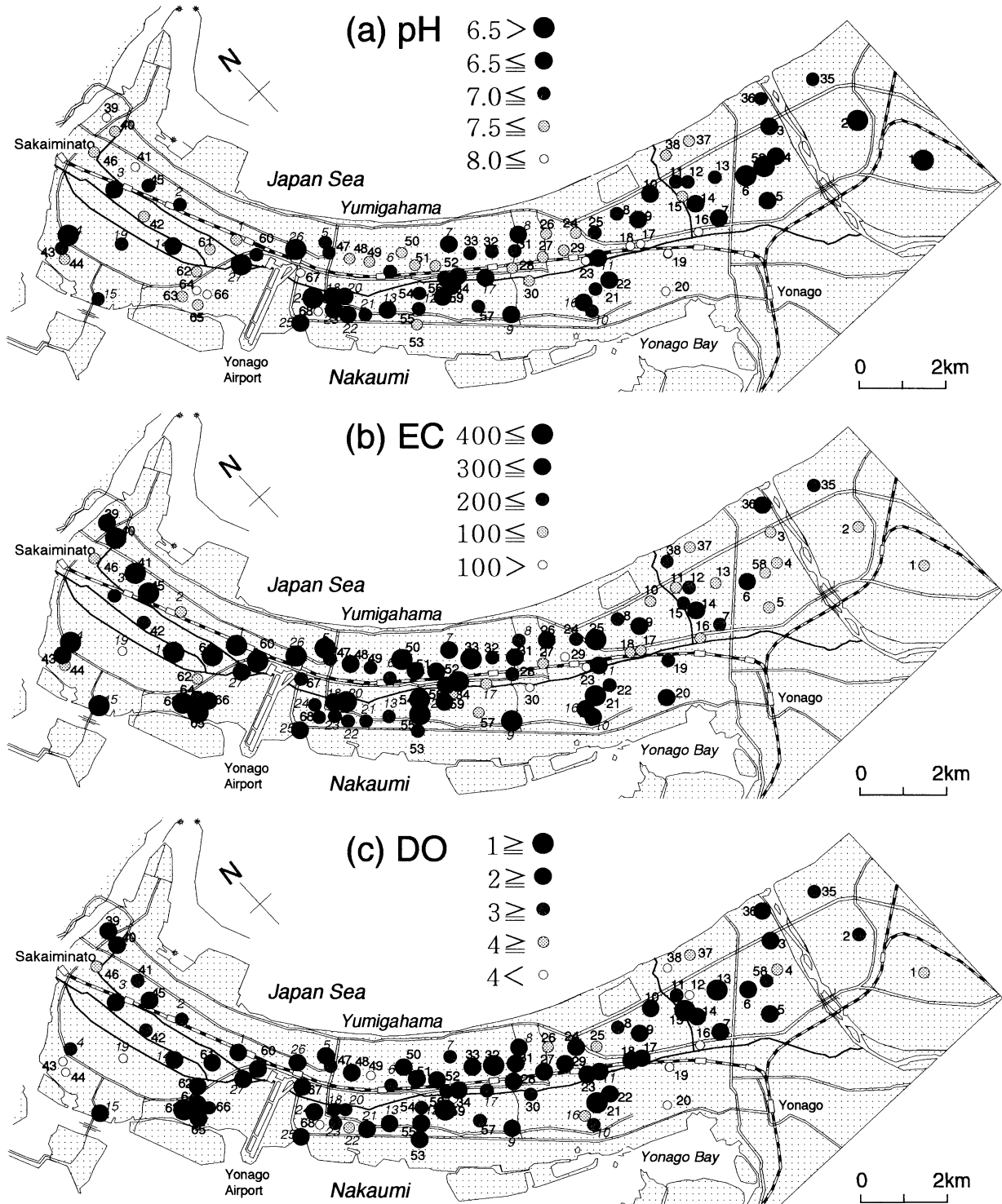
測定結果を第1, 2表に示す。第1表は伊藤ほか(2000)による。それにより7月と11月の2回測定した13地点での結果を比較すると、(1)水温は7月は18.2~21.5℃(平均値19.8℃)であるが、11月は16.1~19.5℃(平均値17.6℃)で低くなる。(2)pHは7月は6.4~7.2(平均値6.8)で、11月は6.1~7.0(平均値6.6)で低くなる。(3)ECは7月は100~830μS/cm(平均値380μS/cm, 標準温度補正值)で、11月は240~550μS/cm(平均値380μS/cm)で、7月の方が変化に富むが、平均値としては同じである。(4)DOは7月は1.0~3.3mg/L(平均値1.9mg/L)で、11月は1.6~5.6mg/L(平均値2.9mg/L)で全体として高くなっている。(5)CODは5mg/L以上のものについては、7月の方が高い値を示すものが多い(no.5, 7, 11, 12), 等の季節変化(特に地下水位と関係した変化)が示されている。今回は同じ井戸を繰り返し測定してないが、NO₃⁻(>10mg/L)が45地点で認められ、半島全体に汚染が進行していることを示す。また、CODが極端に高いもの(>1000mg/L)やヒ素が検出される地点(22地点)が増えた。

地域と水質の特徴を以下に簡単にまとめる。pHはほとんどが中性ないし弱酸性である(第2図a)。ECは400μS/cm以上のものは半島の中中部から北部、境港にかけて存在する(第2図b)。DOは多くの地点で2mg/L以下であるが、地域的な傾向は小さい(第2図c)。半島の中中部から南部に低いもの(<1mg/L)がある。NO₃⁻は半島の中中部から南部で高く45mg/L以上のものが14地点ある(第3図a)。NH₄⁺は米子空港近くや半島の南部で高い(>45mg/L)(第3図b)。NH₄⁺は一般に尿尿や家庭排水中の有機物の分解や工場排水に起因するもの

が多いとされている。また、NO₃⁻の還元によってNH₄⁺を生じることがある。NH₄⁺の起源を特定することは難しいとしても、米子空港周辺と半島南部地域の多くの地点で還元的な環境の帯水層が形成されていると予想される。FeTはNH₄⁺と類似した分布の特徴を持つ(第3図c)。鉄化学種のうち第二鉄は中性の水にはほとんど溶解せず、第一鉄として存在するのでこれらはほとんどがFe²⁺による。CODは米子空港から半島の中中部にかけて、また半島南部において高い値を示す(第4図a)。高いCOD値は帯水層一般に有機物が存在することを示唆する。AsTはCODと類似した分布の特徴を持つが、例外的に境港付近で1地点高い濃度を示す(第4図b)。PO₄³⁻は特に高い地点が中中部にあるが、全域にわたり0.5mg/L以上の値を示す地点が多い(第4図c)。以上まとめると半島の中中部から南部にかけてCOD, AsTおよびNH₄⁺の高い地点があり、中中部には同時にNO₃⁻の高い地点もある。

堆積物の元素組成とヒ素溶出

弓ヶ浜の砂州を構成する砂質堆積物のヒ素を含む微量元素および一部の主元素組成を測定した。分析はメノウ自動乳鉢で磨砕した試料を粉末プレス法(小笠原, 1987)により定量した。試料は伊藤ほか(2000)の地点27と今回測定した地点15において採集した土壌を用いた。どちらの試料も農地として使用されているところで採取した。地点27では表層から5cm, 30cm, 50cmの深さまで掘り下げ採取した。地点15は表層の試料である。分析結果からは特別なヒ素濃縮や重金属濃縮は認められない(第3表)。ただし、どちらの地点でも表層試料で全炭素, 全窒素, 全イオウやリン濃度が高

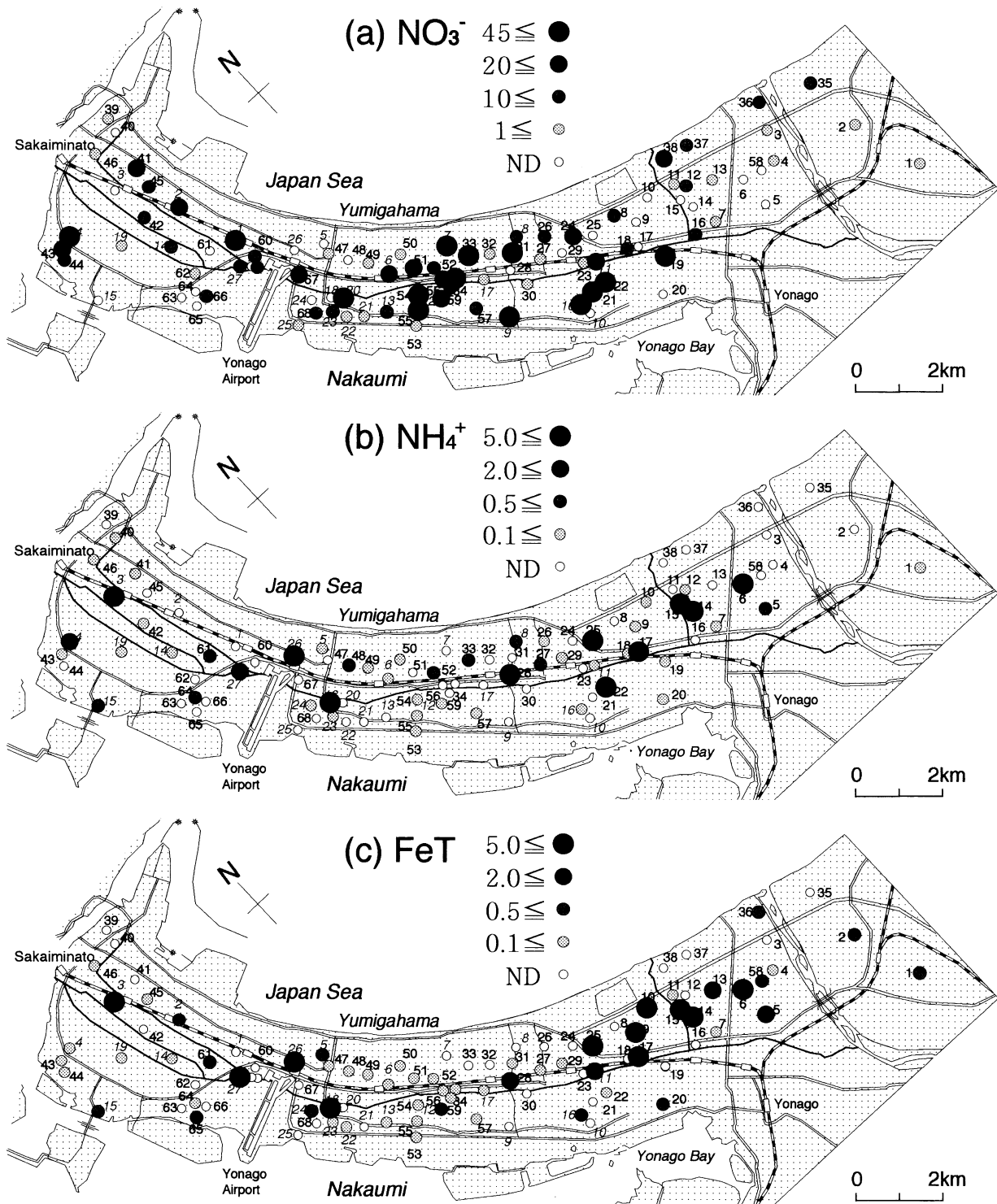


第2図 鳥取県西部弓ヶ浜の地下水のpH (a), EC (b), およびDO (c) 濃度を示す図。伊藤ほか(2000)の結果(斜体字地点番号)も示す。今回の結果は太字番号で示す。地点番号の表記は第3図, 第4図も同様。

く、地表からの肥料や農薬の影響を示唆している。カルシウムも一般の堆積物(<1.0 wt)に比べ高く、石灰の散布の影響を示す。地点15においてPb, Zn, Crなどが地点27に比べ高くなっているのは何らかの人為的な影響が相対的に大きいことを示唆するが今後の検討課題である。

硝酸性窒素汚染とヒ素汚染

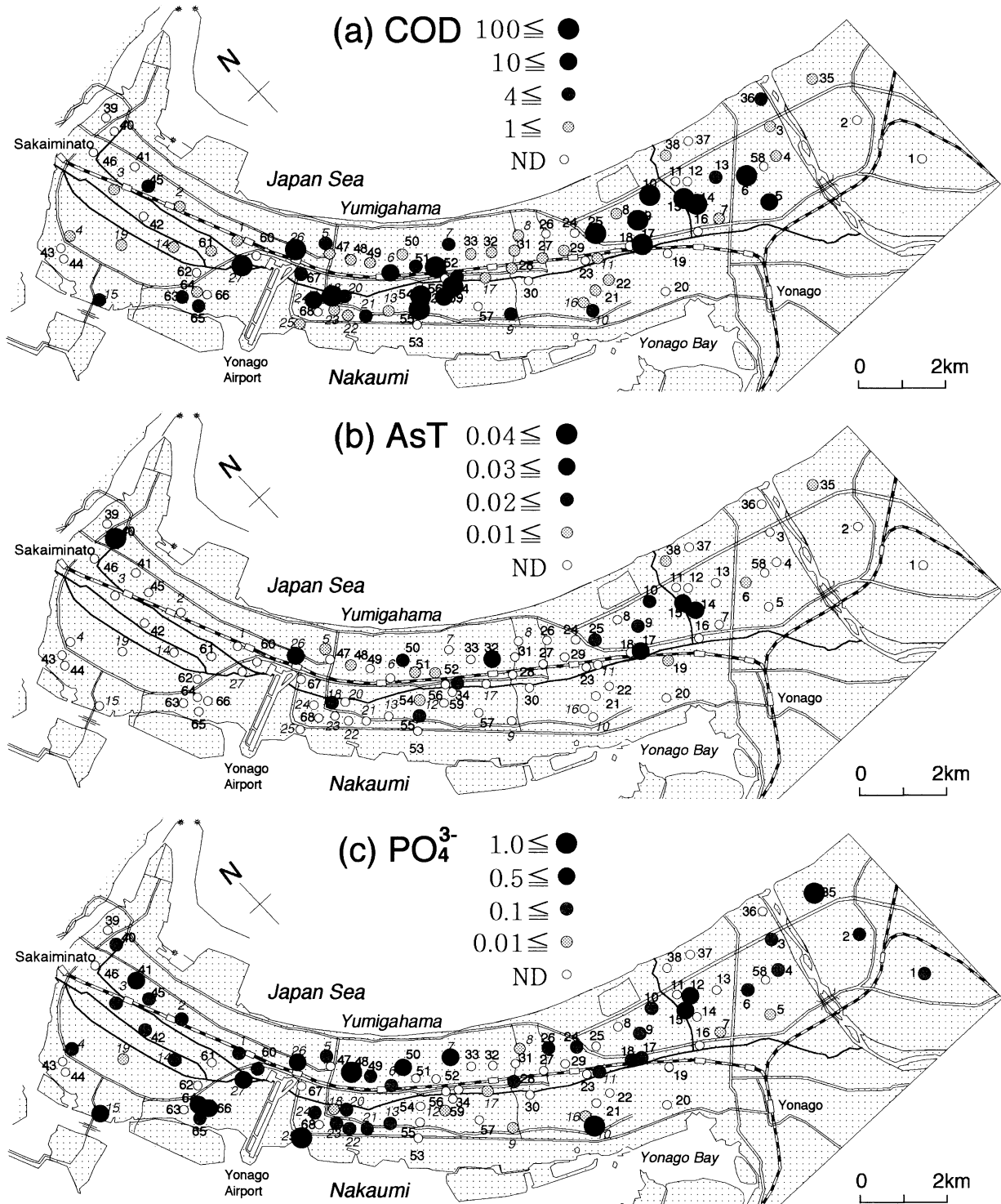
近年、地下水の硝酸性窒素汚染とともにヒ素汚染も日本においても広がってきた。弓ヶ浜においてもヒ素を含む地下水が認められ(伊藤ほか, 2000), 今回の調査においてその広



第3図 鳥取県西部弓ヶ浜の地下水の NO_3^- (a), NH_4^+ (b), および FeT (c) 濃度を示す図。

がりが認められた。ヒ素化学種をとまなう地下水は一般に Fe^{2+} が共存し、これらの試料の水質は還元的な状態にあるとされている (Pierce and Moore, 1982; 島田, 1997)。しかし、弓ヶ浜ではヒ素を含む地下水に必ずしも鉄が含まれるとは限らない (第5図)。CODが1000 mg/L以上の地下水ではほとんど例外なくヒ素が検出される。このような地下水には鉄やアン

モニウムなども含まれ還元的な帯水層が形成されているといえる。しかし、硝酸が含まれる場合 (52, 54, 55 など) もある。一方、ヒ素が検出されるものでCODが検出されないか低く、硝酸が含まれるもの (19, 32, 35, 38, 40, 48, 50) がある。これらはおそらく帯水層の一部が酸化的であり、その他が還元的でヒ素の溶出が生じているのもであろう (第6



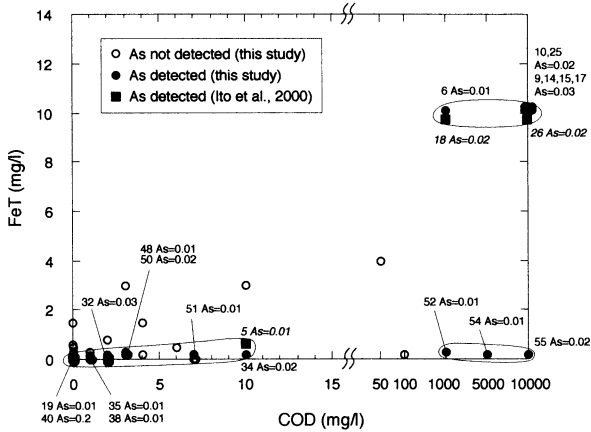
第4図 鳥取県西部弓ヶ浜の地下水のCOD (a), AsT (b) および PO₄³⁻ (c) 濃度を示す図。

図b). このような帯水層にさらに有機物が供給され還元になると前記のようなCODが高く (>1000 mg/L), 鉄やアンモニウムに富み, 硝酸を含まない地下水(6, 9, 10, 14, 15, 17, 25)が形成されると予想される(第6図c). したがって, 地下水を通しての有機物の供給と帯水層での還元的(嫌氣的)環境の形成はヒ素溶出にとって重要な条件であるといえる.

土壌(堆積物)の元素組成から見ても伊藤ほか(2000)の地点27(CODが高いが硝酸性窒素が含まれヒ素を含まない)と今回検討した地点15(CODが高く, ヒ素を含む)を比較すると, 人為的汚染が進行していること(全炭素, 全窒素, 重金属の濃度の高さ)がより強い還元状態の形成とヒ素の溶出を起因しているように見える.

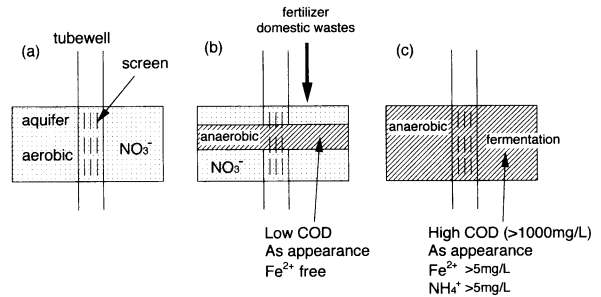
第3表 弓ヶ浜の土壌の元素組成の例。伊藤ほか(2000)のno.27と今回の調査の地点15(地下水にはヒ素が含まれる)における分析結果。

| ppm | As | Pb | Zn | Cu | Mo | Ni | Cr | V | U | Sr | Y | Nb | Zr | Th | wt% | | wt% | | | | | | |
|-----------------|------|-----|------|----|----|-----|----|----|----|-----|-----|----|-----|----|-----|------|------|------|-------|------|------|------|--|
| | | | | | | | | | | | | | | | TS | TOC | TN | TiO2 | Fe2O3 | CaO | P2O5 | | |
| Yumigahama soil | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| Loc. 27 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | Yu-1 | 4.3 | 12.3 | 74 | 20 | 2.0 | 9 | 27 | 40 | 2.1 | 708 | 11 | 4.7 | 40 | 4.8 | 0.07 | 0.78 | 0.08 | 0.26 | 3.11 | 3.78 | 0.74 | |
| | Yu-2 | 3.8 | 11.7 | 40 | 11 | 2.1 | 7 | 25 | 45 | 2.0 | 746 | 11 | 5.4 | 32 | 3.5 | - | 0.06 | 0.01 | 0.27 | 3.33 | 3.83 | 0.13 | |
| | Yu-3 | 5.0 | 14.1 | 55 | 14 | 2.6 | 7 | 29 | 50 | 2.2 | 694 | 12 | 5.6 | 44 | 5.3 | - | 0.32 | 0.03 | 0.32 | 3.45 | 3.43 | 0.29 | |
| | - 15 | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | | |
| | Yu15 | 3.6 | 20.9 | 89 | 16 | 2.0 | 9 | 81 | 46 | 3.5 | 263 | 18 | 4.9 | 92 | 4.5 | 0.10 | 1.43 | 0.12 | 0.26 | 2.19 | 3.42 | 1.13 | |



第5図 鳥取県西部弓ヶ浜の地下水のCOD (mg/L)とFeT (mg/L)の関係を示す図。FeTに無関係にヒ素を含む地下水が存在することを示す。CODが高くなっても同じように鉄が溶出せずヒ素が含まれる。さらに有機物の供給が多くなり、還元環境が進めば鉄も溶出し始めることを示唆する。

このような要因とは別にバングラデシュの地下水ヒ素汚染では地層中のピートに高濃度のヒ素(50~262 ppm)が含まれ、ヒ素溶出の起源物質となっていることが指摘されている(山崎ほか, 2000)。McArthur et al. (2001)はヒ素溶出の要因の一つとして細菌による発酵にともなう有機物の分解によることを指摘している。しかし、この反応では鉄の酸化水酸化物(FeOOH)の分解をともない、鉄が溶出するか、鉄の一部は発酵によって形成される炭酸塩と結びつくとしている。これまで多くの研究者によって提唱されてきたヒ素が鉄2価と類似した挙動を持つことから常にヒ素の濃縮は鉄の水酸化物や酸化水酸化物、または硫化物にともない、逆に溶出にはこのような鉱物の分解がともなわれると考えられてきた。しかし、弓ヶ浜の例が示すように鉄の溶出をともなわない場合があること、しかもCODが高く(>1000 mg/L)なっても鉄をともなわない場合があることは、ヒ素溶出は鉄の酸化水酸化鉱物や硫化物とは無関係であることを示唆する。おそらく地層中の有機物に関係して存在し、この有機物の分解によってヒ素が溶出すると考えられる。鉄やアンモニウムを含む地下水は有機物の分解が強く進んだ段階に形成された地下水であろう(第6図c)。バングラデシュではこのようなヒ素(>0.1 mg/L)、鉄(>10 mg/L)、アンモニウム(>10 mg/L)が高濃度で溶解した地下水が普遍的に存在しており、有機物による地下水汚染の強さを示す。もとを正せば肥料や農薬の



第6図 鳥取県西部弓ヶ浜の地下水における水質変化を模式的に示す図。(a)では帯水層は酸化的環境にあり硝酸性窒素が井水に含まれる。(b)では地表からの有機物の供給が多くなり、帯水層の一部に還元的状態が生じる。それにより有機物の分解に伴う地層からのヒ素溶出が生じる。(c)過度の地表からの有機物汚染により帯水層は還元的な状態となる。そのためヒ素溶出とともに、アンモニウムイオンの付加および硝酸性窒素の還元によるアンモニウムイオンの発生、鉄イオンの溶出が生じる。

増加にともない硝酸性窒素汚染が進行していたと考えられるが、バングラデシュでは地層自身が有機物に富んだ砂や泥からなり、特にピートが存在する(山崎ほか, 2000)など帯水層が還元的になりやすい条件がそろっていたといえる。弓ヶ浜の地下水は宙水によって形成され、酸化的な環境にある。それが還元的環境へ変化している現状は地表からの過剰な農薬や肥料の供給によるであろう。少しでもこれらの地下水汚染を回復するためには施肥の適正化、減量化、遅効性肥料の導入などの検討も必要であろう(藤縄, 1990)。一方、弓ヶ浜にはEC>100μS/cmのほとんど汚染されていない地下水(伊藤ほか, 2000のno.19および今回の23, 29, 30)も存在し、地下水の水質の維持管理のために都市排水や農業排水の浄水施設を整備していくことが必要であろう。

謝 辞

本研究は鳥根大学徳岡隆夫教授から弓ヶ浜には米川があり先人の知恵で灌漑用水が完備されていること、また、淡水レンズの発達がこの地域の特産である白ネギの栽培に重要であることを示唆いただき、地下水の現状に関心を持ったことによる。それにより、伊藤ほか(2000)に1999年の結果をまとめたが、今回は半島の広い地域において多数の井水調査を行った。同学、山内靖喜教授からは弓ヶ浜の地質についてご教示いただいた。同学、生物資源科学部の山本廣基教授、

森 也寸志博士にはヒ素溶出について討論いただいた。現地調査では山田周作君に協力してもらった。TOC, TN の測定は山崎静子氏にお願いした。本研究の一部には文部省科学研究費補助金（代表者，道前香緒里）を使用した。記して感謝する。

文 献

- 藤縄克之，1990. 汚染される地下水，地学ワンポイント 2，共立出版，120 p.
- 稲本 暁・和田温之，1987. 水資源．日本の地質 7，中国地方：218-219. 共立出版.
- 伊藤 静イザベル・道前香緒里・石賀裕明，2000 鳥取県西部，弓ヶ浜の地下水の水質分析．地球科学，54,159-166.
- McArthur, J. M., Ravenscroft, P. Safiulla, S., and Thirlwall, M. F., 2001. Arsenic in groundwater: testing pollution mechanisms for sedimentary aquifers in Bangladesh. *Water Resources Research*.
- 永井 茂，1996. 第 8 章，硝酸性窒素による汚染と問題点，環境庁水質保全局水質管理課・土壤農薬課監修・平田健正編著，土壤・地下水汚染と対策：131-147. 社団法人 日本環境測定分析協会，東京.
- 日本土壤肥科学会編，1997. 土壤の有害金属汚染—現状・対策と展望—，博友社. 135 p.
- 小笠原正継，1987. Rh 管球を用いたけい光 X 線分析による岩石中の微量成分の定量．地質月報，38, 57-68.
- 太田陽子・海津正倫・松島義章，1990. 日本における完新世相対的海面変動とそれに関する問題．第四紀研究，29, 31-48.
- Pierce, M. L. and Moore, C. B., 1982. Adsorption of arsenite and arsenate on amorphous iron hydroxide. *Water Res.*, 16, 1247-1253.
- 貞方 昇，1985. 山陰地方における鉄穴流しによる地形改変と平野形成．第四紀研究，24, 167-176.
- 境港市，1986 a. 第 1 章，地形. 境港市史：109-140. 境港市，鳥取県.
- 境港市，1986 b. 第 3 章，第 2 節，主要作物の変遷. 境港市史：899-941. 境港市，鳥取県.
- 鳥田充亮，1997. 砒素含有地下水の地質環境—福岡県南地域を例にして—，砒素をめぐる環境問題．地質環境と地球環境シリーズ 4. 湊秀雄監修・日本地質学会環境地質研究会編，95-116. 東海大学出版会，東京.
- 高橋一郎，1989. 奥出雲斐伊川水系における近世企業たたらなたら吹き操業と砂鉄採取の盛衰について—それに伴う流出土砂量の推定—．山陰地域研究（鳥根大学），5, 25-35.
- 徳岡隆夫・大西郁夫・高安克己・三梨 昂，1990. 中海・宍道湖の地史と環境変化．地質学論集，36, 15-34.
- 鳥取県地盤図，1995. 日本地盤工学会，中国支部. 鳥取大学工学部，194 p.
- 山本莊毅，1959. 海岸地下水とくに砂州の地下水について．地理学評論，32, 579-594.
- 山崎静子・石賀裕明・道前香緒里・東 直子・Faruque Ahmed・三瓶良和・Md. Hamidur Rahman・Md. Badrul Islam，2000. バングラデシュ，ガンジスデルタ堆積物の元素組成—ヒ素はピートから溶出する？—．地球科学，54, 81-93.

（受付：2000 年 11 月 15 日，受理：2000 年 12 月 1 日）