

# 地下水中硝酸性窒素濃度の時空間分布と形成要因について

— 沖縄県本島南部琉球石灰岩分布地域を例として —

中野拓治\* 安元 純\* 寺澤春菜\*\* 名和規夫\*\*\*

\* 琉球大学農学部, 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原1番地

\*\* 沖縄県宮古農林水産センター, 〒906-0012 沖縄県宮古島市平良字西里1125

\*\*\* 農村工学研究所, 〒305-8609 茨城県つくば市観音台2-1-6

## 要 旨

琉球石灰岩分布地帯である沖縄本島南部地域地下水の硝酸性窒素について、現地観測データ等から時空間的動態を把握し、その形成要因を考察した。調査地域の硝酸性窒素は、正規確率分布によく適合しており、環境基準値 ( $10\text{mgL}^{-1}$ ) を若干超過するような濃度水準となっている。硝酸性窒素には、地下水流動に伴った上流から下流に向けた窒素負荷源が影響しているとともに、地下ダム築造で形成された地下水流動場に起因する流入・混合作用と希釈・脱窒作用が関与していることを確認できた。硝酸性窒素の経年変化には、農地からの窒素負荷による影響が示唆されるとともに、周年濃度変化には地下水位変動が影響していることを明らかにすることができた。

キーワード：硝酸性窒素，地下水，琉球石灰岩，水質形成，影響要因

## 1. はじめに

近年、国内や諸外国で人為的な地下水汚染が生じ深刻な問題となっており (Follett, 1989; Fletcher, 1991; 田淵, 1999; 環境省水・大気環境局, 2008), 畑・樹園地では収益性の高い野菜類・果樹・花卉の栽培面積の増加やハウス栽培の普及に対応した土地利用形態の変化によって、硝酸性窒素による水質汚染の拡大が懸念されている (熊澤, 1999; 小川, 2000; 中西, 2001; 田瀬, 2004; 藪崎, 2010; 兼平, 2012). 硝酸性窒素の多量摂取は、メトヘモグロビン血症や発ガン性の原因として指摘されており (国包, 1996), 我が国では、「人の健康保護に関する環境基準の項目」によって、地下水中の硝酸性窒素と亜硝酸性窒素の合計量を  $10\text{mgL}^{-1}$  以下とする基準値が設けられている。

一方、沖縄本島南部地域 (以下、調査地域という) は、Fig.1 に示すように沖縄県那覇市に近接する畑地農業地域であり、古くから農業用水や生活用水として地下水が利用されている (沖縄総合事務局本島南部農業水利事業所, 2006). 調査地域では、農業用水の確保を図るため、国営沖縄本島南部水利事業 (1992~2005年) を通じて、2カ所の地下ダム (米須・慶座) によって水資源開発が図られ、農業用水に地下水が利用されている (名和ら, 2006). その中で、吉本らは調査地域米須地下ダム流域を対象に、窒素動態モデルの適用を通じて硝酸性窒素動態を検討するとともに、脱窒を含めた窒素収支の推定を行っている (吉本ら, 2007). 一方で、島嶼部地下水の硝酸性窒素に関しては、沖

縄県本島・宮古島・波照間島 (渡久山, 1972; 東田, 1993; 山本ら, 1995; 石田, 2007) や愛媛県興居島 (井上ら, 1988) など研究例は限られており、石灰岩帯水層地下水の実測データに基づいた硝酸性窒素の水質形成に係る影響要因について、十分に検証がなされていないのが現状である。

そこで、本報では、地下水の農業用水への適正な利用に資する観点から、調査地域を事例として地下水硝酸性窒素について、現地観測データ等を用いて時空間的動態を把握するとともに、水質形成への影響要因を考察した。

## 2. 調査地域

調査地域は、琉球石灰岩を表層地質とする段丘地形によって特徴づけられ、地域内には断層が発達し断層崖に沿って長く続くリッジ状の丘が多く点在している (沖縄総合事務局本島南部農業水利事業所, 2006). 調査地域には畑地 (基幹作物: サトウキビ) が広がり、その間に集落が塊状に点在するとともに、農地利用が困難である断層崖付近に沿って森林が分布している。また、調査地域は新第三紀鮮新世の島尻層群を基盤として、第四紀更新世の琉球層群が不整合に覆っているが、この島尻層群は砂岩・泥岩の互層からなる難透水性の地層である一方、琉球層群は隆起サンゴ礁や有孔虫を由来とする堆積岩で空隙に富み極めて高い透水性を有しており、琉球石灰岩と呼ばれている。この琉球石灰岩中に地下水は貯存され、地下水盆が形成されているが、調査地域の地下水盆は、Fig.2 に示すように名城地下水盆

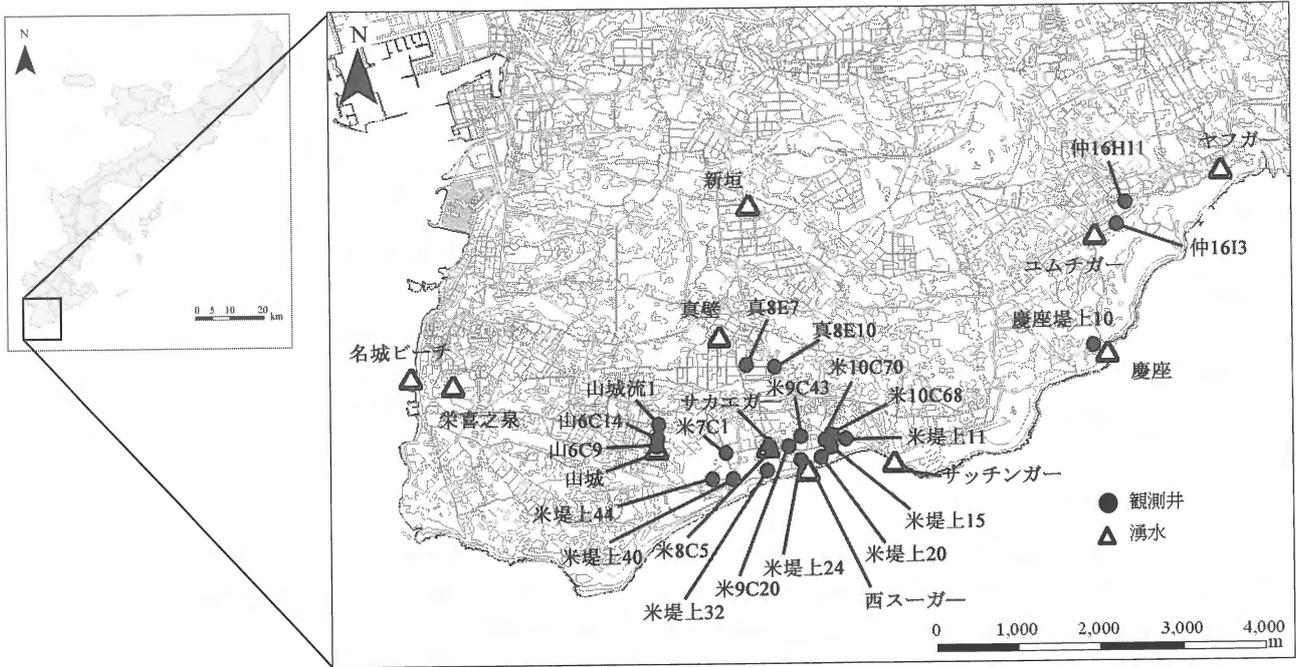


Fig.1 調査地域の概況及び観測地点  
Location map of observation point in the study area

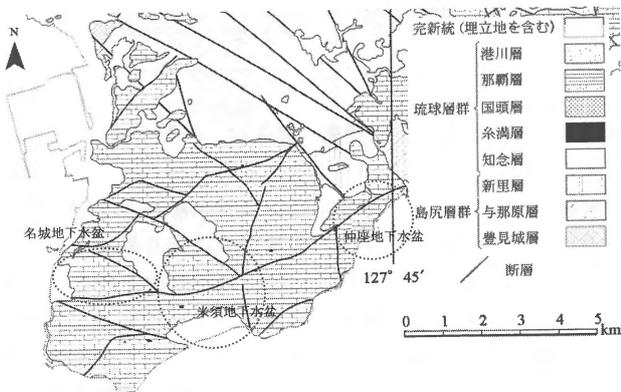


Fig.2 調査地域の水理地質構造 (兼子・氏家 (2006) に一部加筆・修正)  
Hydrogeology of the study area

(喜屋武岬地下水盆群の一部), 米須地下水盆 (喜屋武岬地下水盆群の一部), 仲座地下水盆の 3 つの地下水盆に区分 (以下, それぞれ名城エリア, 米須エリア, 仲座エリアという) できる (沖縄総合事務局農林水産部, 1983). さらに, 調査地域には大小多数の鍾乳洞が断層沿いあるいはその延長上に存在しており, 多くの湧水が点在している (安谷屋ら, 2010).

### 3. 調査内容・方法

本研究では, Fig.1 と Table 1 に示す 32 地点 (湧水: 11 カ所, 観測井 (基盤岩に到達するまで全面的にストレーナーを配置): 21 カ所) において, 2011 年 9 月から 2012 年 11 月まで概ね月 1 回の頻度で水質観測調査を原則 12 回実

施した. なお, 観測井の採水深度は地下水面から - 5m 程度とした. 水質測定項目は, 水温, pH, 溶存酸素 (DO), 重碳酸イオン ( $\text{HCO}_3^-$ ), 及び硝酸性窒素 ( $\text{NO}_3^- - \text{N}$ ) である. 調査日・期間・頻度と測定項目・方法は, それぞれ Table 2 と Table 3 に示すとおりである. 6 カ所の湧水地点 (新垣, 真壁, 山城, 西スーガー, サッチンガー, 及び慶座) については,  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の長期的な変動を把握するため, 沖縄総合事務局で 1993 年 1 月から 2005 年 2 月までの 12 年間に亘って調査された観測データも活用した (沖縄総合事務局本島南部農業水利事業所, 2004).

また, 観測井では, 地下水位を観測するとともに, 調査地域の土地利用状況の把握には 1990~2010 年の農林業センサスによる糸満市及び具志頭村 (現: 八重瀬町) の統計データを使用した (沖縄県企画開発部統計課, 1991a, 1991b, 1996a, 1996b, 2001a, 2001b; 沖縄県企画部統計課, 2006, 2011).

Table 1 調査観測地点  
Observation point

地下水盆	地点名	地点数	
名城	湧水	名城ビーチ, 栄喜之泉	2
	湧水	新垣, 真壁, 山城, サカエガー, 西スーガー, サッチンガー	6
米須	観測井	真 8E7, 真 8E10, 山城流 1, 山 6C14, 山 6C9, 米 7C1, 米 8C5, 米 9C20, 米 9C43, 米 10C68, 米 10C70, 米堤上 11, 米堤上 15, 米堤上 20, 米堤上 24, 米堤上 32, 米堤上 40, 米堤上 44	18
	湧水	慶座, ユムチガー, ヤフガー	3
仲座	観測井	慶座堤上 10, 仲 16H11, 仲 16I3	3
	計		32

**Table 2** 調査日・期間・頻度  
Duration and interval of investigation

調査日		
2011.9.26, 10.27, 11.28, 2012.1.6, 2.28, 3.29, 4.24, 6.6, 8.1, 8.30, 9.23, 11.1	・名城ビーチ, 栄喜之泉は 2011.11.28, 2012.9.23, 11.1, 真壁, 山城, 米 7C1 は 2011.9.26 に観測していない. ・慶座, ユムチガー, ヤフガー, 慶座堤上 10 に関しては, 2012.9.23, 11.1 に観測していない. ・米 10C70 と米堤上 32 は, 2011.10.27, 11.28 に観測していない. ・米 9C20 は, 2011.10.27, 11.28 に測定していないとともに, 米堤上 24 は, 2012.6.6, 8.1, 8.30, 9.23, 11.1 に観測していない.	
地点名	調査期間	調査頻度
新垣, 真壁, 山城, 西スーガー, サッチンガー 慶座	1993.1.25~2005.2.14	1993年: 月1回 1994年: 2ヶ月1回 1995~2004年: 3ヶ月1回 2005年: 年1回

**Table 3** 測定項目・方法

Item of investigation and analyzing methods of water quality		
測定項目	測定・分析方法	
水温, pH, DO	堀場製作所ポータブル pH メータ D-54/D-55	
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> - N	2011.9.26~ 2012.11.1	イオンクロマトグラフ法 DIONEX ICS-1600
	1993.1.25~ 2005.2.14	JIS K 0102 銅・カドミウム還元・ナフチルエチレンジアミン吸光度法
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	アルカリ度滴定法	
地下水位	ミリオン水位計	

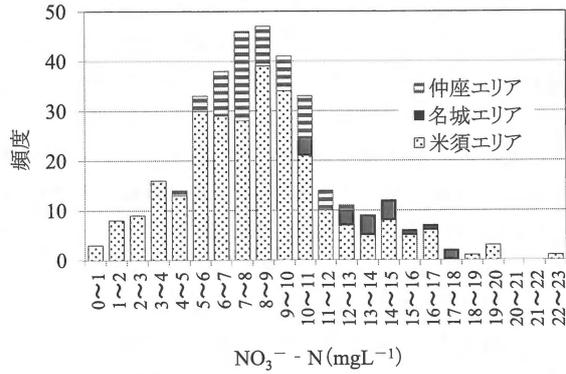
なお, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N 濃度水準に関しては, 公共用水域や汚水処理の水質評価に用いられる非超過確率 75%値により検討した(中野ら, 1999).

4. 結果と考察

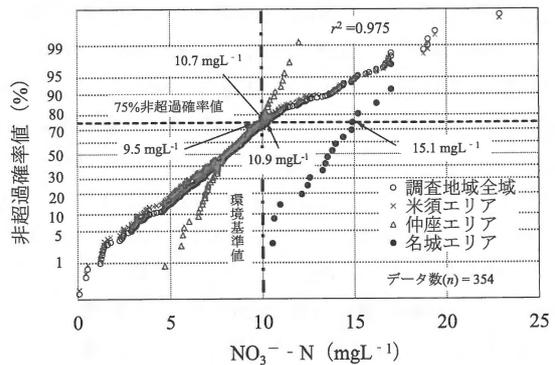
4.1 硝酸性窒素の濃度水準と分布特性

調査地域の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N は, Fig.3 に示すように 0.1~22.9mgL<sup>-1</sup> (平均値: 8.5mgL<sup>-1</sup>) と幅広い範囲に分布している. そこで, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の濃度分布特性を把握するため, 代表的な確率分布である正規確率と対数正規確率に従うものとして実測値をプロットし, Fig.4 に示すように確率分布のあてはめに係る決定係数を求めた(中野ら, 2000). 正規確率分布による回帰近似直線の決定係数は, 対数正規確率分布とした決定係数(0.824)に比べ 0.97 以上の高い値を示しており, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の濃度分布は正規確率分布によく適合している. このため, NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の濃度分布は正規確率分布に従っているものとして, 75%非超過確率値を算定したところ, 10.9mgL<sup>-1</sup> の値が得られ, 環境基準値(10mgL<sup>-1</sup>)を若干超過するような濃度水準であることが確認された.

また, 調査地点は地下ダム築造過程で設けられた観測井と長期観測されている湧水から選定しているため, 名城エリア, 米須エリア, 及び仲座エリアの調査地点数には大きな違いがあり, 地下水流域と支配体積を勘案して調査地点に重み付けしながら評価することは困難であることから,



**Fig.3** 調査地域における NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の濃度分布状況  
Histogram of observed NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N concentration distributions in groundwater of the study area



**Fig.4** 調査地域における NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の確率分布あてはめ  
Evaluation of probability distribution of observed NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N concentration in groundwater of the study area

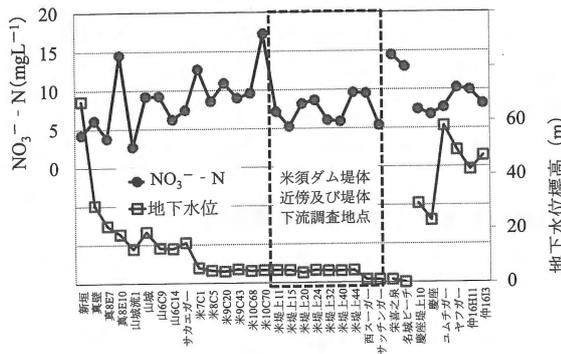
各エリアにおける NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N の範囲と濃度水準について, 相対的な評価を行った. 名城エリア, 米須エリア, 仲座エリア毎に NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N を平均値と比較すると, それぞれ 13.7mgL<sup>-1</sup>, 8.1mgL<sup>-1</sup>, 8.4mgL<sup>-1</sup> と米須エリア, 仲座エリア, 名城エリアの順に高くなっている. 名城エリア, 米須エリア, 仲座エリアの NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N は, それぞれ 10.5~17.0mgL<sup>-1</sup>, 0.1~22.9mgL<sup>-1</sup>, 4.7~12.0mgL<sup>-1</sup> の範囲に分布しており, その範囲は名城エリア, 仲座エリア, 米須エリアの順に大きくなっている. 各エリアの非超過確率 75%値についても, 正規確率分布を前提として算定を行ったところ, 名城, 米須, 仲座の各エリアそれぞれ 15.1mgL<sup>-1</sup>, 10.7mgL<sup>-1</sup>, 9.5mgL<sup>-1</sup> の値が得られ, 米須エリアと仲座エリアの NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N 濃度水準は環境基準値に近い一方で, 名城エリアでは環境基準値を超過するような濃度水準となっていることが確認された.

4.2 硝酸性窒素の空間分布と影響要因

調査地域の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N は, 4.1 で述べたように広い範囲に分布していることから, その空間分布状況を検証した. 調査地域の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> - N は, Fig.5 に図示したように地下水位の高い内陸上流部から地下水位の低い海岸下流部に向かって高くなる傾向にあるものの, 米須地下ダム堤体近傍や堤体下流部に位置する調査地点では上流地点に比較して低い値を示している. 内陸上流部においても, 真 8E7 や山城流 1

のように  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が近傍の調査地点に比べて低い濃度値を示す場所が存在している。また、米須エリアの地下水位は、Fig.6に示すように内陸部の真壁から米須地下ダム貯留域に向かって低くなっており、山城からも米須地下ダムの位置する海岸部に地下水位が向かって低下している。窒素負荷が地下水流動に伴って上流から下流に移動する過程で、新たな窒素負荷源が加わるために、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は内陸部から海岸部に近い米須に向かってその濃度値が上昇していることが示唆された。

そこで、調査地点が最も多い米須エリアを対象に、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と DO の平面分布状況を検討したところ、Fig.6に示すように  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は内陸部から海岸部に向かって高くなる一方で、米須地下ダムの貯留域に入ると堤体近傍エリアで濃度値の低下が認められる。DO についても、堤体近傍で  $3\text{mgL}^{-1}$  以下の低い領域が存在しており、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  濃度の平面分布と対応していることが示唆された。米須地下ダム貯留域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と DO の関係を検討したところ、Fig.7に図示したように両者の間には正の相関(相関係数: 0.642 (5%有意水準に対応する F 値 (4.84) に対して検定値は 7.72 であり、5%以下の水準で有意))が存在しており、DO の低下に伴って  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が低くなる傾向を示している。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は、米 10C70 を除いて DO 値の低下に対応して低くなる傾向を示しており、調査地点での酸化還元状態が  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  に影響しているものと考えられる。地下ダム止水壁直上部に位置する米堤上 15、米堤上 32、及び米堤上 40 においては、DO が  $2\text{mgL}^{-1}$  程度の値を示しており、他の調査地点の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  に比較して低い領域 ( $6\text{mgL}^{-1}$  以下) となっている。柴山らは、洪積台地から沖積低地にかけて分布する茶園-水田において、水田下の沖積土壌を母材とする帯水層で  $\text{NO}_3^-$  濃度が急激に低下し、 $\text{HCO}_3^-$  濃度が増加することを踏まえ、帯水層では有機態炭素を電子供与体とする従属栄養型の脱窒反応が生じていると報告している(柴山ら, 2006)。このため、米須エリアの  $\text{HCO}_3^-$  濃度分布を検証したところ、これら 3 地点では Fig.7 に示すように  $\text{HCO}_3^-$  も他の調査地点に比較して高い濃度 ( $240\text{mgL}^{-1}$  以上) が得られており、従属栄養型の脱窒現象が起こっている可能性が高いと考えられる。地



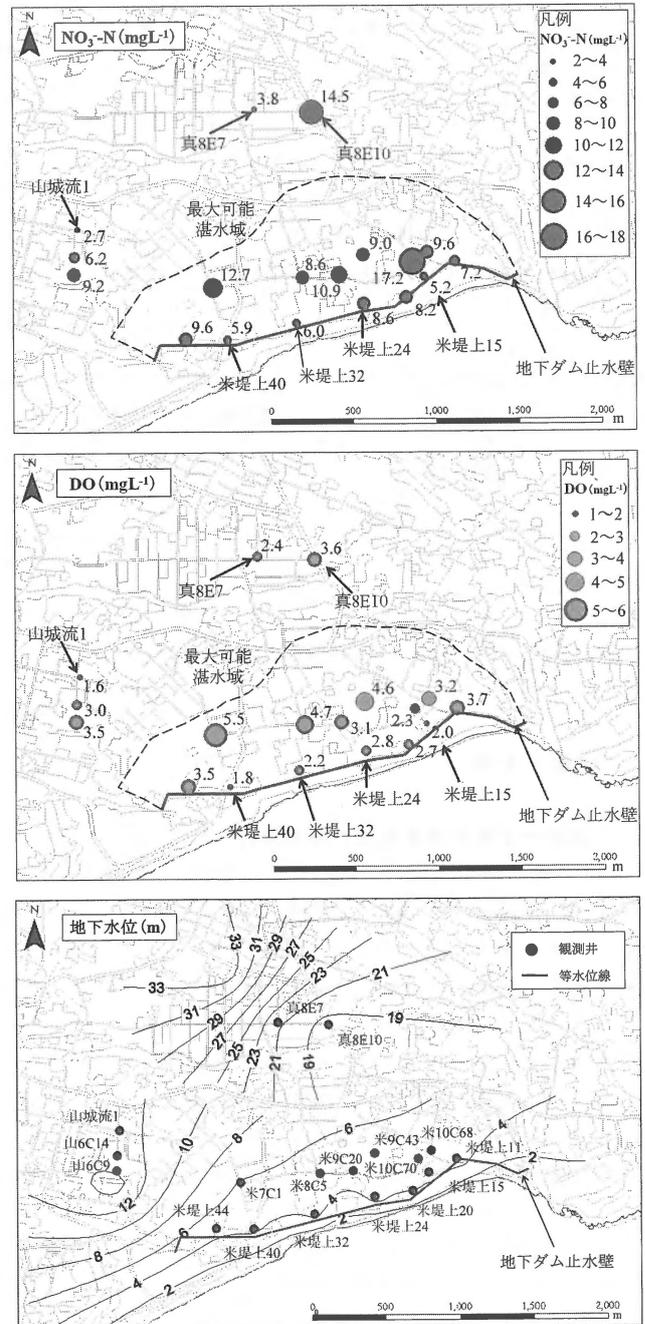
注:  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  濃度と地下水位は、調査期間中の平均値。

Fig.5 調査地域における  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位の関係

Relation between  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration and water level in groundwater of the study area

下ダム止水壁直上部では、Table 4 に示すように  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と DO が他の調査地点に比べて低い濃度水準となっているとともに、 $\text{HCO}_3^-$  の上昇も認められることから、脱窒現象が起こっている可能性が高いと考えられる。これは、地下ダム止水壁によって地下水滞留時間が長くなり、地下ダム貯留域において還元的な環境条件が生じた結果として、地下ダム止水壁直上部エリアで脱窒作用が生じたことによるものと推察される。

このような地下ダム貯留域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  分布状況を踏ま

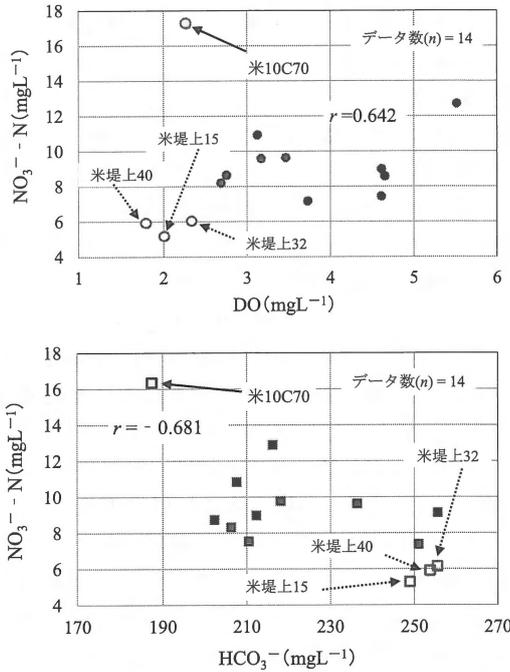


注1:  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ , DO, 及び地下水位は、調査期間中の平均値。

注2: 図中の破線は、米須地下ダム貯留域の範囲を示す。

Fig.6 米須エリアの  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ , DO 及び地下水位の平面濃度分布  
Horizontal distribution of  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration, DO and water level concentration in groundwater of Komesu area

え、米須エリアの  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位変動の関係を検討した。Table 4 に示すように、地下水位の上昇に対応して  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が高くなる地点 (分類 a : 2 地点), その逆に地下水位の上昇に伴って  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が低くなる地点 (分類 b : 6 地点),



注:  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ ,  $\text{HCO}_3^-$ , 及び DO は, 調査期間中の平均値。

Fig.7 米須地下ダム貯留域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と DO 及び  $\text{HCO}_3^-$  の関係 Relation between  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration and DO,  $\text{HCO}_3^-$  concentration in groundwater of Komesu underground dam reservoir area

Table 4 米須エリアの  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位の関係

Relation between  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration and water level in groundwater of Komesu area

地点	$\text{NO}_3^- - \text{N}$ ( $\text{mgL}^{-1}$ )	$\text{HCO}_3^-$ ( $\text{mgL}^{-1}$ )	DO ( $\text{mgL}^{-1}$ )	$\text{NO}_3^- - \text{N}$ と地下水位の相関係数	$\text{NO}_3^- - \text{N}$ と地下水位の対応	分類
真 8E7	3.8	289.3	2.4	-0.147	不明確	c
真 8E10	14.5	210.5	3.6	-0.709	負の相関	b
山城流 1	2.7	287.9	1.6	0.620	正の相関	a
山 6C9	9.2	245.4	3.5	-0.331		
山 6C14	6.2	241.3	3.0	0.119	不明確	c
米 7C1	12.7	216.2	5.5	0.207		
米 8C5	8.6	202.3	4.7	0.440		
米 9C20	10.9	207.6	3.1	-0.673		
米 9C43	9.0	255.6	4.6	-0.914	負の相関	b
米 10C68	9.6	236.4	3.2	-0.729		
米 10C70	17.2	187.5	2.3	-0.319	不明確	c
米堤上 11	7.2	251.0	3.7	-0.094		
米堤上 15	5.2	248.9	2.0	0.778	正の相関	a
米堤上 20	8.2	206.3	2.7	-0.322	不明確	c
米堤上 24	8.6	212.3	2.8	-0.501		
米堤上 32	6.0	255.5	2.2	-0.662	負の相関	b
米堤上 40	5.9	253.8	1.8	-0.661		
米堤上 44	9.6	218.1	3.5	0.098	不明確	c

注 1:  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ ,  $\text{HCO}_3^-$ , 及び DO は, 調査期間中の平均値。  
注 2: 分類欄の a は地下水位の上昇に対応して  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が増加, b は地下水位の上昇に伴って  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が低下, c は地下水位変動と  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の濃度変化に明瞭な対応関係が存在しないことを示す。

地下水位変動と濃度変化に明瞭な対応関係が認められない地点 (分類 c : 10 地点) に分類される。なお、地下水位変動と濃度変化の統計学的な有意性について、両者の相関係数の絶対値が概ね 0.5~0.7 の調査地点として米堤上 24 (相関係数: -0.501), 山城流 1 (相関係数: 0.620), 真 8E10 (相関係数: -0.709) を選定し、その有意水準 (有意水準 5%) を検証した。米堤上 24, 山城流 1, 及び真 8E10 に係る 5%有意水準に対応する F 値 (4.84) の検定値として、それぞれ 3.36, 6.23, 10.13 が得られ、山城流 1 と真 8E10 は 5%以下の水準で有意である一方で、米堤上 24 は地下水位と  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の間には有意性は認められない。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位に係る相関係数の絶対値が 0.6 以下となると 5%有意水準を満足しないことを踏まえ、両者の間の相関係数の絶対値が 0.6 以上を有する調査地点について地下水位変動と濃度変化に対応関係があるものとして判断した。

まず、山城流 1 と米堤上 15 は、地下水位の上昇に対応して  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が高くなっている。両地点の DO は、Table 4 と Fig.8 に示すように概ね  $2\text{mgL}^{-1}$  以下であり、 $\text{HCO}_3^-$  も  $240\text{mgL}^{-1}$  以上の高い値が得られている。このように、脱窒作用に伴って  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が周囲の調査地点の濃度に比べて低くなった結果、地下水位の上昇に対応して周囲からの高い濃度水準の地下水の流入と混合によって  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は地下水位の上昇に伴って高くなっている可能性があると考えられる。また、真 8E10, 米 9C20, 米 9C43, 米 10C68, 米堤上 32, 及び米堤上 40 においては、地下水位の上昇に対応して  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は低下している。これらの地点では、米堤上 32 と米堤上 40 で DO が概ね  $2\text{mgL}^{-1}$  と低く脱窒現象は生じているものの、Fig.8 に示すように真 8E10, 米 9C20, 米 9C43, 米 10C68 の 4 地点と同じように地下水位の上昇に伴って希釈効果が卓越した結果、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が低下したものと推察される。地下水位の上昇に対応して  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の低下する領域は、希釈現象が卓越して現れたものと考えられる。さらに、地下ダム止水壁直上部を含む 7 地点 (米堤上 11, 米堤上 15, 米堤上 32, 米堤上 40, 真 8E7, 山城流 1, 及び山 6C14) では、 $\text{HCO}_3^-$  も他の調査地点に比較して高い濃度 ( $240\text{mgL}^{-1}$  以上) を示していることから、従属栄養微生物

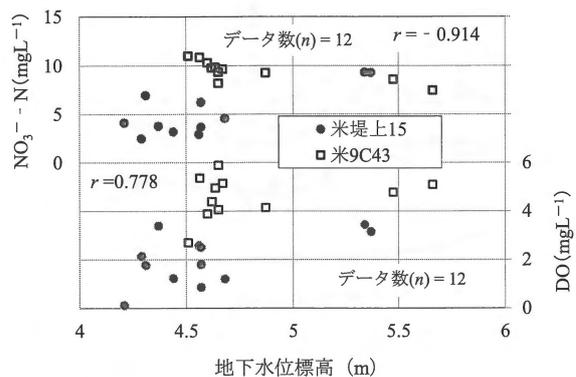


Fig.8 地下水位と  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  及び DO の関係 (米 9C43 及び米堤上 15)

Relation between water level and  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration, DO concentration in groundwater of KOMETEIUE15

物による脱窒作用の可能性を支持しているといえる。

その一方で、調査地点の半数強の10地点では、地下水位と $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の変化に明瞭な対応関係が認められない。これには米須エリアにおいて今泉らが指摘しているように洞くつ網が発達しており(今泉ら, 2002), 調査地点の水理地質構造に起因する地下水の流入・混合作用や希釈・脱窒作用等が複雑に関与していることによるものと推察される。現地観測データから石灰岩帯水層において地下水位の上昇による希釈作用に加え、還元的環境条件下で脱窒現象が生じている可能性が高いと考えられる。調査地域においては、地下ダム築造によって形成された地下水流動場が $\text{NO}_3^- - \text{N}$ に影響しているといえる。調査地域の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ には、地下水流動に伴った上流から下流に向けた窒素負荷源が影響するとともに、地下ダム築造によって形成された地下水流動場に起因する流入・混合作用と希釈・脱窒作用が $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の空間分布に関与していることを明らかにできた。

#### 4.3 硝酸性窒素の経時変化と影響要因

調査地域の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の長期的な経時変化について、新垣, 真壁, 山城, 西スーガー, サッチンガー, 及び慶座の6カ所の湧水地点の観測データを用いて検討した。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ は, 1993年から1997年又は1998年まではほぼ一定で推移し, その後2001年又は2002年まで低下しているが, 2000年代に入ると, 横ばい傾向を示すもの(新垣, 西スーガー, サッチンガー), 上昇に転じているもの(山城), さらに2011年, 2012年で低下するもの(真壁, 慶座)がある(Fig.9)。調査地域の地下水への主な窒素負荷源としては, 農地, 畜産排泄物, 生活排水を挙げることができるが, 吉本らは畜産排泄物と生活排水による地下水環境への影響は小さく, 化学肥料の施用が地下水水質に強く影響を与えていると指摘している(吉本ら, 2007)。

そこで, 化学肥料の施用量に関係する調査地域の作付面積に着目して, その推移(Fig.10)をみると, 工芸農作物(サトウキビ)や飼料用作物の収穫面積の減少に伴って作付面積が大幅に減少する一方で栽培作物の内訳では野菜類はほぼ横ばいのままで, 花卉類・花木が増加している。糸満市

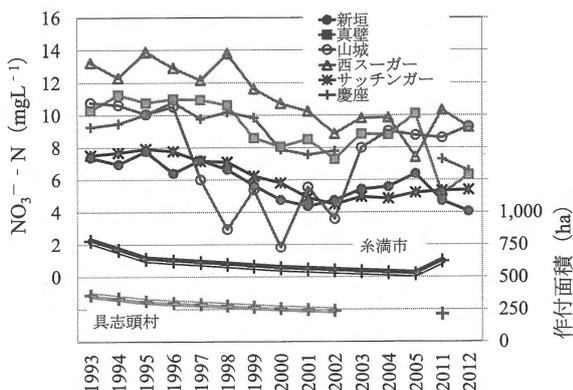


Fig.9 湧水地点 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の経時変化と調査地域作付面積の関係

Relation between long-term observed  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration in spring waters and cultivating area of upland fields in the study area

と具志頭村の1990~2010年の5年毎の作付面積について, 各年の作付面積は線型変化するとした内挿を通じて, 1993~2003年の作付面積を推定するとともに, 2011年の作付面積は2010年と同じ値であると仮定して, 湧水地点の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ との関係を検証した。なお, 慶座は具志頭村に, それ以外の5地点の湧水は糸満市に位置している。Fig.9は $\text{NO}_3^- - \text{N}$ と作付面積の経年変化を示したものであるが, 米須地下ダム下流海岸部の西スーガーとサッチンガーでは $\text{NO}_3^- - \text{N}$ と作付面積の相関係数としてそれぞれ0.684, 0.745が得られ, 両者の間に正の相関(5%有意水準に対応するF値(4.84)に対して検定値はそれぞれ6.82, 9.50であり, 5%以下の水準で有意)が存在する一方で, 上流内陸部の湧水地点(新垣, 真壁, 山城)においては $\text{NO}_3^- - \text{N}$ と作付面積の相関係数(新垣:0.597, 真壁:0.364, 山城:0.501)が低い値となっており, 両者の間に明瞭な対応関係は認められなかった。また, 慶座地下ダム下流海岸部の慶座湧水においても $\text{NO}_3^- - \text{N}$ と作付面積に係る相関係数として0.645が得られており, 両者の間には正の相関(5%有意水準に対応するF値(5.12)に対して検定値は6.43であり, 5%以下の水準で有意)が存在していることが確認された。このように, 米須・慶座の両エリアとも, 農地からの窒素負荷に最も影響されると考えられる地下ダム下流海岸部の湧水地点において,  $\text{NO}_3^- - \text{N}$ は作付面積の長期的変化傾向と一致しており, 化学肥料の施用が $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の時間的な濃度変動に関与していることが示唆される。このことは, 吉本らによる化学肥料が米須エリアの地下水水質に大きな影響を与えているという指摘とも一致する(吉本ら, 2007)。

つぎに, 調査地域 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の周年濃度変化について, 地下水位変動を伴う観測井と湧水に区分して検討した。観測井の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ は, Fig.11に示すように平均値で観測開始時(2011.9.26)に $10.6\text{mgL}^{-1}$ であったものが2011.11.28に $6.2\text{mgL}^{-1}$ まで低下した後, 2012.1.6には再び $9.3\text{mgL}^{-1}$ に上昇し, 観測終了時(2012.11.1)まで $7.1\sim 9.3\text{mgL}^{-1}$ で推移している。また, 湧水と観測井の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の間には正の相関(相関係数:0.918(5%有意水準に対応するF値(4.96)に対して検定値は28.95であり, 5%以下の水準で有意))が存在しており, 湧水の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の周年変化についても, 観測井と同様の变化傾向を示している(Fig.12)。このように

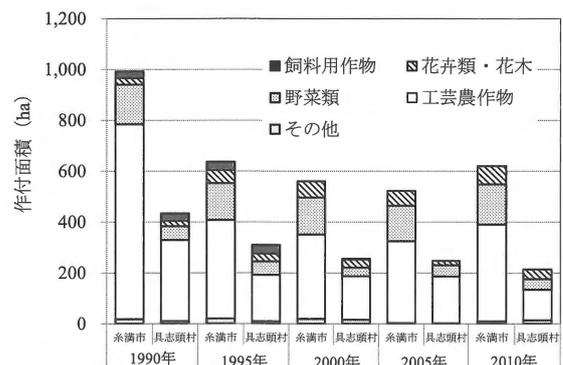


Fig.10 調査地域における作付面積  
Cultivating area of upland fields in the study area

調査地域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は、観測井や湧水の形態にかかわらず、同じ傾向の周年変化を示すことが確認された。

このため、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位の間に正の相関が認められる観測井について、周年変化を検証したところ、地下水位が上昇する 2012.4.24 と 2012.8.30 に  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が高くなっている (Fig.11)。また、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位に負の相関が認められる観測井は、地下水位が上昇する 2011.11.28, 2012.4.24, 及び 2012.8.30 に  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  が低下しており、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位変動に対応関係が認められる地点では、地下水位の変動に伴う混合作用や希釈作用が  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年変化に影響を与えていると考えられる。さらに、観測井の平均  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  濃度と地下水位との間に負の相関が認められる観測井の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年変化は、正の相関 (相関係数: 0.750 (5% 有意水準に対応する F 値 (4.96) に対して検定値は 12.88 であり、5% 以下の水準で有意)) が存在している。観測井の平均  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  濃度と地下水位との間に正の相関が存在している観測井の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年変化には、Fig.12 に示すように明瞭な相関 (相関係数: 0.353 (5% 有意水準に対応する F 値 (4.96) に対して検定値は 1.43 であり、5% 以下の水準で有意でない)) が認められないことから、調査地域  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の全体的な周年濃度変化には、地下水位の変動に伴う混合作用に比べ希釈作用がより強く影響しているものと考えられる。

一方、調査地域の水温は、平均値で観測開始時 (2011.9.26) に 24.6°C であったものが 2012.1.6 に 22.7°C まで低下した後、再び上昇に転じて、2012.9.23 には 25.7°C となっている (Fig.13)。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年濃度変化と水温変化の間には明瞭

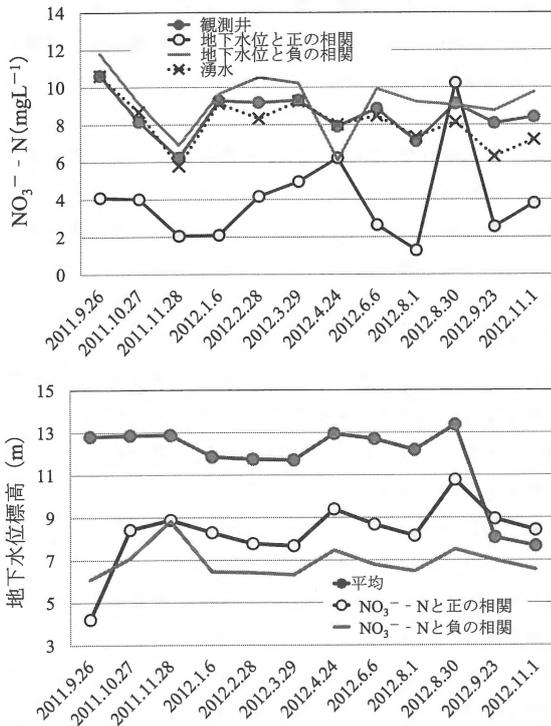


Fig.11 調査地域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位の周年変化の関係  
Relation between annual observed  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration and water level in groundwater of the study area

な関係は認められず、22~26°C 程度の水温変化では  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  に影響していないものと考えられる。また、調査地域の pH は 7.1~7.6 の範囲で周年変化しているが、Fig.13 に示すように  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年変化に明瞭な関与は認められず、pH (脱窒反応の最適 pH 値: 7.0~8.0) 変動による影響は確認されなかった (中野ら, 2002)。このように、調査地域の経年的な  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は、作付面積の長期的な変化傾向と一致しており、農地からの窒素負荷に影響されていることが示唆された。また、調査地域  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の周年変化に関しては、水温や pH による明瞭な影響を認めることはできないとともに、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  は観測井や湧水の形態にかかわらず、同様の周年変化傾向を示すことが確認された。 $\text{NO}_3^- - \text{N}$  と地下水位の間に対

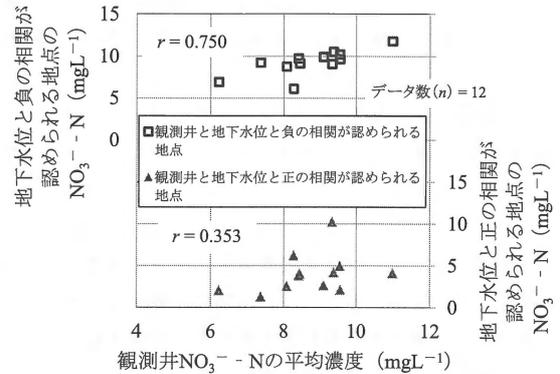
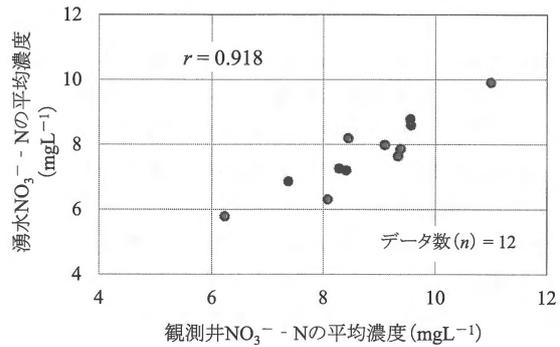


Fig.12 調査地域観測井と湧水の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  の関係  
Relation between observed  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration in observation holes/wells and observed  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration in spring waters of the study area

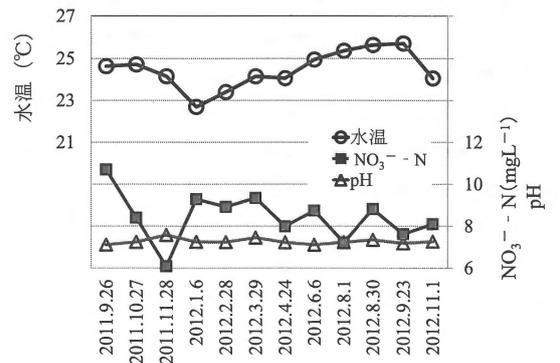


Fig.13 調査地域の  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  濃度と水温・pH の周年変化の関係  
Relation between annual observed  $\text{NO}_3^- - \text{N}$  concentration and water temperature, pH in groundwater of the study area

応関係が認められる観測井では、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の周年変化に地下水位変動に伴う希釈作用や混合作用が影響していることを明らかにすることができた。

## 5. まとめ

本研究は、琉球石灰岩分布域である沖縄本島南部地域の地下水硝酸性窒素の水質形成への影響要因について、現地観測データ等から考察したものであり、得られた結果は以下のとおりである。

① 調査地域の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ は、正規確率分布によく適合しているとともに、75%非超過確率値で $10.9\text{mgL}^{-1}$ と環境基準値( $10\text{mgL}^{-1}$ )を若干超過するような濃度水準であることが確認された。

② 調査地域の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ には、地下水流動に伴った上流から下流に向けた窒素負荷が影響するとともに、地下ダム築造によって形成された地下水流動場に起因する流入・混合作用と希釈・脱窒作用が $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の空間濃度分布に関与していることが確認された。

③ 調査地域の $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の経年変化には、農地からの窒素負荷が影響していることが示唆されるとともに、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の周年変化への水温やpHによる影響は認められず、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ には観測井や湧水の形態にかかわらず、同様の周年変化傾向を示すことが分かった。また、 $\text{NO}_3^- - \text{N}$ の周年濃度変化にも地下水位変動に伴う希釈作用や混合作用が影響していることを明らかにできた。

本研究で得られた検討結果が、琉球石灰岩分布地域の水質管理を含めた適切な地下水利用に活用されることが期待される。

謝辞：本研究に当たっては、東京農業大学中西康博准教授に貴重なご意見とご助言を頂くとともに、内閣府沖縄総合事務局土地改良総合事務所、沖縄県南部農林土木事務所、沖縄本島南部土地改良区の関係各位に多大の御援助と御協力を頂いたことを記し、深甚の感謝を表します。

## 引用文献

- 安谷屋 賢, 武田雅人, 長堂嘉光, 賀数博一, 与那嶺 満 (2010) : 石灰岩地域における鍾乳洞と断層, 第23回沖縄地盤工学研究発表会講演概要集, 1-4.
- Fletcher, D.A. (1991) : A national perspective, In: Follett, R.F., Keeney, D.R. and Cruse, R.M. (Eds.), *Managing Nitrogen for Groundwater Quality and Farm Profitability*, Soil Sci. Soc., 9-17.
- Follett, R.F. (1989) : *Nitrogen Management and Ground Water Protection*, Elsevier.
- 東田盛善 (1993) : 沖縄県波照間島の地下水の水質, 工業用水, **418**, 15-34.
- 今泉眞之, 奥島修二, 塩野隆弘 (2002) : 琉球石灰岩洞くつの空間分布特性, 農土論集, **217**, 89-100.
- 井上国光, 柿沢忠男, 沢 資浩 (1988) : 島しょ部における地下水汚染に関する研究(Ⅱ) - 興居島の自由地下水帯における塩水汚染と肥料汚染 -, 陸水学雑誌, **49**(4), 237-250.
- 石田 聡 (2007) : 沖縄県宮古島における地下水中の硝酸態窒素濃度変化と地下ダム建設の影響, 土と基礎, **595**, 20-23.
- 兼平進一 (2012) : 熊本市における地下水保全の取組み, 第15回日本水環境学会シンポジウム九州支部企画「九州の水環境」講演集, 4-5.
- 兼子尚知, 氏家 宏 (2006) : 糸満及び久高島地域の地質, 地域地質研究報告(5万分の1地質図幅), 産総研地質調査総合センター, p.47.
- 環境省水・大気環境局 (2008) : 平成19年度地下水質測定結果, 1-12.
- 熊澤喜久雄 (1999) : 地下水の硝酸態窒素汚染の現況, 日本土壌肥料学会誌, **70**(2), 207-213.
- 国包章一 (1996) : 硝酸性窒素および亜硝酸性窒素の健康影響, 水環境学会誌, **19**(12), 965-968.
- 中西康博 (2001) : 沖縄県宮古島におけるサトウキビへの施肥実態と地下水窒素濃度との関係, 日本土壌肥料学会誌, **72**(4), 499-504.
- 中野拓治, 川田明宏, 三原達也, 北尾高嶺 (1999) : 農業集落排水施設における流入汚水量の特質と計画流入汚水量に関する考察, 農土論集, **203**, 19-28.
- 中野拓治, 川田明宏, 堀込英司, 北尾高嶺 (2000) : 農業集落排水施設における流入負荷量の特質と計画流入負荷量に関する考察, 農土論集, **207**, 11-19.
- 中野拓治, 糸井徳彰, 北尾高嶺 (2002) : 嫌気ろ床接触ばっ気方式の農業集落排水施設における接触ばっ気槽の窒素除去性能に関する一考察, 農土論集, **222**, 37-46.
- 名和規夫, 青木 進, 中尾 仁 (2006) : 沖縄本島南部地区における地下ダムの役割と効果, 農土誌, **74**(12), 33-36.
- 小川吉雄 (2000) : 地下水の硝酸汚染と農法転換-流出機構の解析と窒素循環の再生(自然と科学技術シリーズ), 農山漁村文化協会, 26-27.
- 沖縄県企画部統計課 (2006) : 2005年農林業センサス農家調査農業集落別結果報告書, 57-62.
- 沖縄県企画部統計課 (2011) : 2010年農林業センサス農家調査農業集落別結果報告書, 52-58.
- 沖縄県企画開発部統計課 (1991a) : 1990年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-市部-, 676-682.
- 沖縄県企画開発部統計課 (1991b) : 1990年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-島尻郡-, 44-45.
- 沖縄県企画開発部統計課 (1996a) : 1995年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-市部-, 277-278.
- 沖縄県企画開発部統計課 (1996b) : 1995年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-島尻郡-, p.49.
- 沖縄県企画開発部統計課 (2001a) : 2000年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-市部-, 527-528.
- 沖縄県企画開発部統計課 (2001b) : 2000年農林業センサス農家調査農業集落別結果表-島尻郡-, p.92.
- 沖縄総合事務局本島南部農業水利事業所 (2004) : 過年度水質データのとりまとめ業務報告書, 1-81, 186-190.
- 沖縄総合事務局本島南部農業水利事業所 (2006) : 沖縄本島南部農

- 業水利事業—技術誌—, 7-12, 45-53.
- 沖縄総合事務局農林水産部 (1983): 沖縄県の地下水—沖縄県水文地質図—, 38-41.
- 柴山浩子, 恒川 歩, 今井克彦, 糟谷真宏, 江口定夫 (2006): 茶園—水田地形連鎖系における土壌構造と浅層地下水の窒素の動態, 土肥学会中部支部第 86 回例会講演要旨集, 53-54.
- 田淵俊雄 (1999): 地下水の硝酸汚染と対策, 農土誌, 67(1), 59-66.
- 田瀬則雄 (2004): 硝酸・亜硝酸性窒素による地下水汚染の現状と動向, 環境管理, 40, 255-263.
- 渡久山 章 (1972): 堆積環境における元素の移動 (第 3 報) 石灰岩地方の下, 琉球大学理工学部紀要 (理学篇), 15, 81-98.
- 藪崎志穂 (2010): 日本の地下水・湧水等の硝酸態窒素濃度とその特徴, 地球環境, 15(2), 121-131.
- 山本洋司, 朴 光来, 中西康博, 加藤 茂, 熊澤喜久雄 (1995): 宮古島の地下水中の硝酸態窒素濃度と  $\delta^{15}\text{N}$  値, 日本土壤肥料学雑誌, 66(1), 18-26.
- 吉本周平, 土原健雄, 石田 聡, 今泉眞之 (2007): 琉球石灰岩分布地帯における地下水硝酸性窒素の動態, 農業農村工学会論文集, 251, 69-82.

[2011. 9. 26. 受稿, 2013. 7. 5. 閲読了]

[この研究論文に対する公開の質疑あるいは討議(4,000字以内, 農業農村工学会論文集企画・編集委員会あて)は, 2014年2月24日まで受付けます.]

## Distribution and Influent Factors of Nitrate Concentration in Groundwater

— Case study on Ryukyu limestone region in southern part of Okinawa, Japan —

NAKANO Takuji\*, YASUMOTO Jun\*, TERASAWA Haruna\*\* and NAWA Norio\*\*\*

\* Faculty of Agriculture, University of The Ryukyus, 1 Senbara, Nishihara, Okinawa-prefecture 903-0213, JAPAN

\*\* Miyako Agriculture, Forestry and Fishery Administration Center, Okinawa Prefecture Office, 1125 Nishizato, Hirara, Miyako-city, Okinawa-prefecture 906-0012, JAPAN

\*\*\* National Institute for Rural Engineering, National Agriculture and Food Research Organization, Kannondai 2-1-6, Tsukuba-city, Ibaraki-prefecture 305-8609, JAPAN

### Abstract

Temporal and spatial dynamics of nitrate ( $\text{NO}_3^-$ -N) in groundwater are investigated in the southern part of Okinawa Main Island, Japan, where Ryukyu limestone is extensively distributed. Influent factors of  $\text{NO}_3^-$ -N formation are also examined on the basis of observed data in groundwater of the study area. It is found that probability distribution of  $\text{NO}_3^-$ -N concentrations agree with normal distribution and the 75 per cent probability of  $\text{NO}_3^-$ -N concentration is a little higher than the upper value ( $10\text{mgL}^{-1}$ ) of environmental quality criteria. It is considered that  $\text{NO}_3^-$ -N concentrations are influenced by nitrogen load accompanied with groundwater flow from the upstream to the downstream of the study area. It is also found that  $\text{NO}_3^-$ -N concentration formation is assumed to depend on two factors, that, mixing-inflow actions and denitrification-dilution actions under conditions of groundwater flow caused by completion of the subsurface dam. It is suggested that nitrogen load from agricultural land in this area influences the long-term fluctuation of  $\text{NO}_3^-$ -N concentrations in groundwater. It is recognized that groundwater level participates annual fluctuation of  $\text{NO}_3^-$ -N concentrations in groundwater.

**Key words** : Nitrate ( $\text{NO}_3^-$ -N), Groundwater, Ryukyu limestone, Formation of nitrate concentration, Effect factors