

# 香東川扇状地における不圧地下水の 水質の動態観測

## MEASUREMENT AND ANALYSIS OF UNCONFINED GROUNDWATER QUALITY IN THE ALLUVIAL FAN OF KOTO RIVER

河原能久<sup>1</sup>・橋本美智子<sup>2</sup>・吉川省子<sup>3</sup>

Yoshihisa KAWAHARA, Michiko HASHIMOTO and Seiko YOSHIKAWA

<sup>1</sup>フェロー会員 工博 広島大学大学院教授 工学研究科社会環境システム専攻 (〒739-8527 東広島市鏡山1-4-1)

<sup>2</sup>学生会員 修(工) 玉川大学通信教育部 (〒763-0082 丸亀市土器町東7-163-13)

<sup>3</sup>非会員 近畿中国四国農業研究センター 傾斜地基盤部資源利用研究室 (〒765-0053 善通寺市生野町2575)

Contamination of unconfined groundwater by nitrate nitrogen has been reported at several locations in the Takamatsu plain. To understand the mechanism and the extent of groundwater contamination, a target region in the plain was selected where the nitrate nitrogen has shown high concentration throughout the year. Intensive field measurement of groundwater level, EC, pH and the analysis of major ions in the groundwater were performed seven times in 2004 at twenty four shallow wells. The rate of stable isotope of nitrogen was also analyzed at two different seasons. The obtained data clarified that the nitrogen in the unconfined groundwater from the ground surface has been not only inorganic nitrogen but organic. It was also indicated that the fertilizer in the greenhouses for vegetables and waste water from a cow barn in the target area have been the major sources of the nitrogen.

**Key Words :** *nitrate nitrogen, unconfined groundwater, stable isotope of nitrogen, inorganic fertilizer, organic fertilizer*

### 1. 序論

我が国においても硝酸性窒素による地下水汚染が多く  
の地域で観測されている。その原因として、農地から供  
給される肥料や家畜糞尿、家庭排水等が挙げられている。  
施肥による汚染は広域に影響を及ぼす特徴を有し、特に  
集約的な野菜や果樹栽培、園芸農業が行われている地域  
に顕著な影響が見られる。一方、畜産系の汚染は局地的  
に影響を及ぼすことが多い<sup>1)</sup>。例えば、静岡県の牧之原  
台地では茶畑への施肥が原因で20mg/lもの硝酸性窒素が  
検出されている。また、沖縄県宮古島や埼玉県の大宮  
では農業・畜産由来の硝酸汚染が生じている<sup>2,3)</sup>。さらに、  
岐阜県各務原台地においては肥料が原因となり高濃度の  
硝酸性窒素が検出されたが、その後の対策によって緩和  
されつつある<sup>4)</sup>。

これらの硝酸汚染の防止・浄化対策において、汚染源  
の特定は欠かせない。汚染源の推定方法として、土地利  
用の把握をはじめとして、地下水中の主要溶存成分のう  
ち、塩化物イオンと硝酸イオン濃度の量と比率から肥料  
起源の窒素分を判別する手法<sup>3)</sup>や、硫酸イオンと硝酸・

亜硝酸・アンモニウムイオン濃度の比から汚染源を推定す  
るもの<sup>4)</sup>等が挙げられる。また、環境同位体を用いた汚  
染源の推定も近年では多く行われている<sup>2,3,5)</sup>。

降水量の少ない高松平野では、取水のため、平常時の  
河川の流量は乏しく、地下水は貴重な水資源となってい  
る。平成6年の大洪水後には高松市内に多くの浅井戸が  
掘られたことも、不圧地下水が重要な水資源であること  
を物語っている。しかし、著者らが2001年から継続的  
に行ってきた一斉地下水観測より、高松平野の不圧地下水  
においても硝酸汚染が進行しつつあることが明らかにな  
っている<sup>6,7)</sup>。しかし、その窒素の供給源は必ずしも特  
定されていない。

本研究では、年間を通して硝酸イオン濃度の高い地点  
を含む地区に着目し、地下水の水質の動態と窒素の供給  
源を把握することを目的としている。対象地区に存在す  
る私有の井戸を利用して水位観測と採水を行うとともに、  
水質分析、環境同位体比の分析を行った。

以下では、まず、観測地域の地質の概要、観測項目と  
方法を説明する。次に、浅井戸を用いた調査・分析の結  
果を報告し、それらの結果に基づいて窒素の供給源を考  
察する。

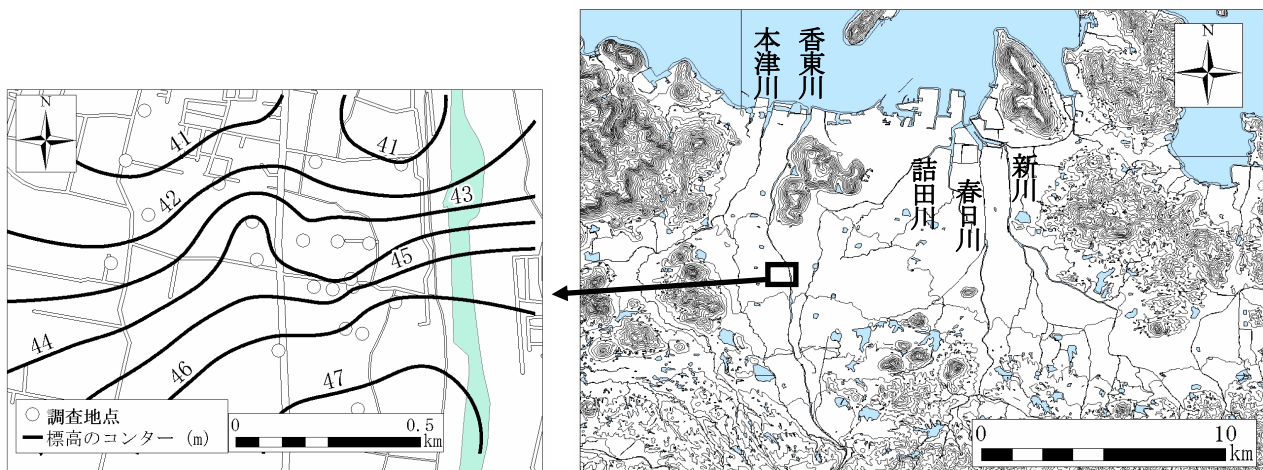


図-1 高松平野と対象地域 (左図の丸印：観測井戸の位置)

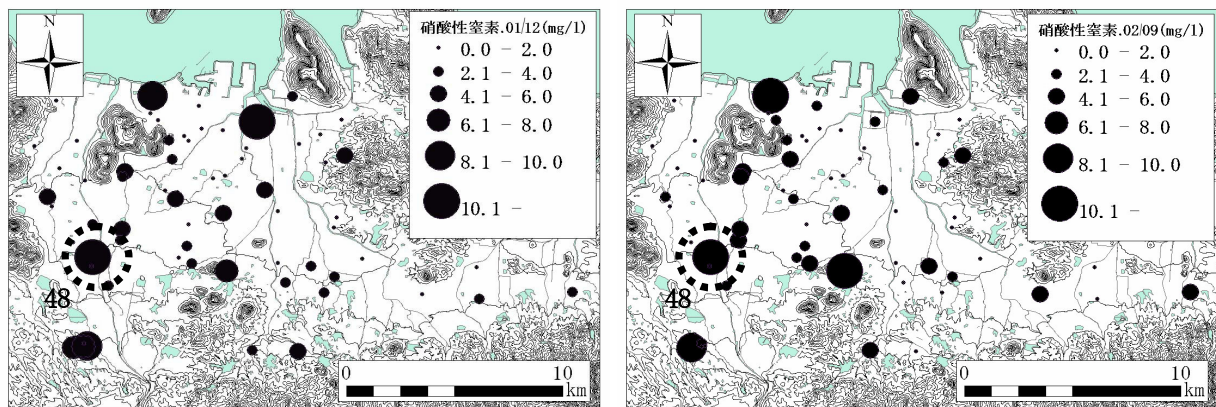


図-2 高松平野における硝酸性窒素濃度 (左：2001年12月，右：2002年9月)

## 2. 対象地域と調査内容

### (1) 対象地域の概要

高松平野の西部を流れる香東川の左岸に位置する地域を対象とする(図-1)。図-2は2001年12月，2002年9月の高松平野全域における硝酸性窒素の濃度分布を示したものである<sup>6,7)</sup>。高い濃度を示す地点が点在しているが，本研究ではその中でも年間を通して高い値を示す地点(破線の丸印の地点)周辺を対象地域とし，地下水の調査・分析を行った。なお，当該地域は香東川によって形成された扇状地であり，旧河道が残っている。

図-3に土地利用の調査結果を示す。この地域では，建物用地の他に水田の占める割合が高く，畑作やビニールハウス栽培がなされている。また，畜産が営まれている。なお，下水道は整備済みであり，灌漑水として，香川用水と香東川周辺の湧水が水路を通して供給されている。

### (2) 観測・分析時期と項目，方法

図-3の観測地点(24地点)において2004年の①7月14日，②8月2日，3日，③8月12日，④8月21日，⑤9月9日，⑥9月20日，⑦12月1日の7回にわたって調査を行った。

図-4に降水量と水田への灌漑用水の供給の有無を示す。例年になく降水量が多く，地下水の水位や水質に影響を及ぼした。灌漑用水の供給については，第1回，第3回目の調査時には断続的に供給されていたが，第2回目の調査時は中干しの時期であった。また，第4回目の調査時には水田は湛水状態にあった。その後には灌漑用水の配水はなかった。

調査内容と計測・分析方法は以下の通りである。

- ・ 地下水位(現地観測)(YAMAYOミリオン水位計)
- ・ 水質(現地観測)：水温，電気伝導度，pH，ORP(堀場製作所D-24)
- ・ 水質(持ち帰り分析)：各種イオン $\text{Na}^+$ ， $\text{K}^+$ ， $\text{Ca}^{2+}$ ， $\text{Mg}^{2+}$ ， $\text{NH}_4^+$ ， $\text{PO}_4^{3-}$ ， $\text{Cl}^-$ ， $\text{SO}_4^{2-}$ ， $\text{NO}_3^-$ ， $\text{NO}_2^-$ (イオンクロマトグラフィー：島津製作所PIA-1000)， $\text{HCO}_3^-$ (4.8アルカリ度法)
- ・ 窒素同位体比(第1回と第7回のみ)(近畿中国四国農業研究センター：PDZ Europa ANCA-NT system)

## 3. 観測結果

### (1) 地下水位

第1回の調査結果を図-5に示す。地表面から地下水面

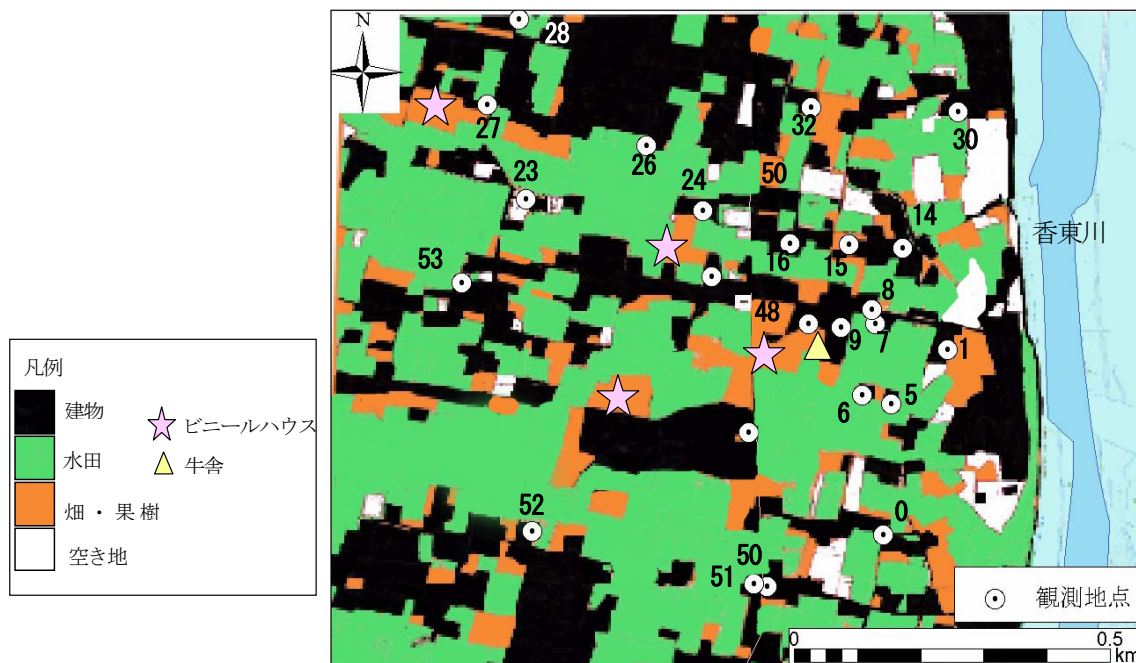


図-3 調査地域の土地利用と調査井戸の位置

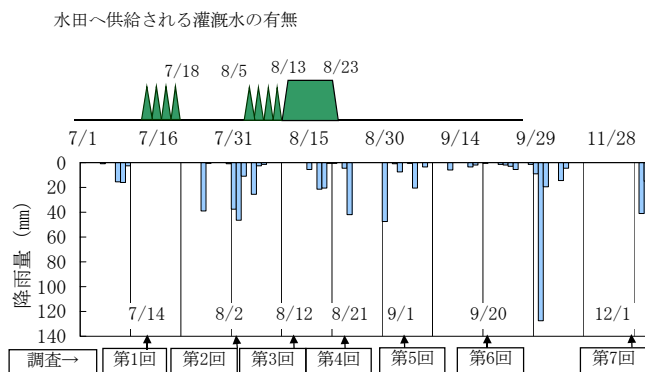


図-4 観測期間中の日降水量と灌漑用水の有無

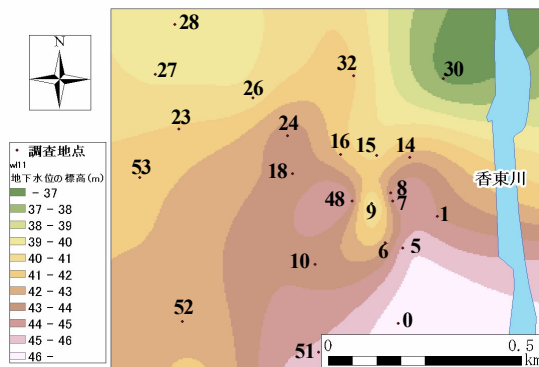


図-5 第1回調査時における地下水位（標高で表示）

までの深さは平均的には1m前後であり、最深で2m、最浅で0.2m程度である。地下水は大略南から北へ向かうが、地点9周辺が谷のようになっており、周辺の地下水を集めている。調査期間を通して、水位の等値線は大まかに類似しているが、詳細は水質データと重ねて後述する。

## (2) 水質

### a) pH

図-6に第1回と第7回のpHの分布を示す。化学肥料の散布によりpHの低下を起こすことがあり、苦土石灰等を用いて土壌の中性化をはかることが行われるが、この地域においても行われていることが後述のイオン分析からも推定されている。夏期よりも冬期において、pHの分布は均一となり、酸性側から中性側に増加している。

### b) 塩化物イオン

図-7は第3回と第5回の調査で得られた、地下水位と塩化物イオン濃度の等値線を描いたものである。これより、地点9と24の周辺で塩化物イオン濃度がピーク値を示し、これらの地点の周辺において地表面からの供給があるこ

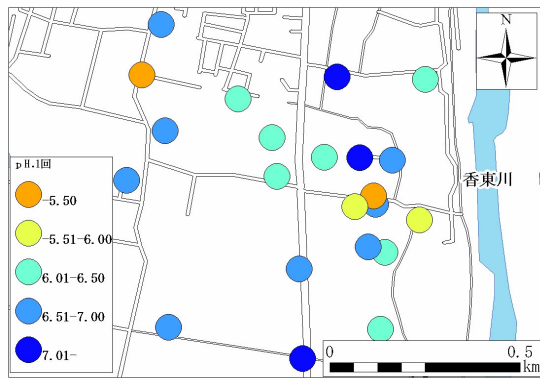
とがわかる。また、他の時期においてもこれらの2地点では塩化物イオン濃度が高いことが判明している。地点9周辺には牛舎とハウス栽培の温室があり、地点24においても温室が存在する。年間を通しての施肥や畜産廃棄物の影響が推測される。

### c) ヘキサダイアグラム

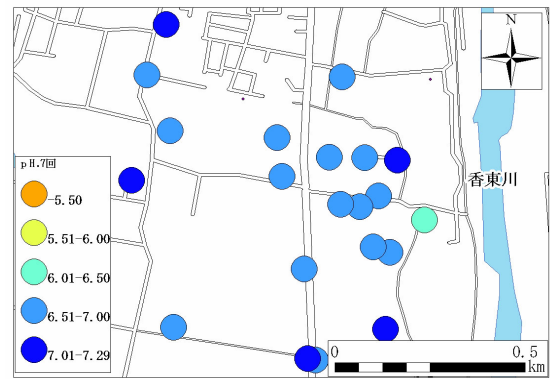
図-8は、全てのヘキサダイアグラムを各調査時の地下水位の等値線図の上に表示したものである。ダイアグラムの下の数字は図に示した井戸番号を表す。時期的な濃度変化は多少あるが、ほとんどの地点でイオンの組成比率、すなわちヘキサダイアグラムの形状は安定している。

$\text{HCO}_3^-$ と $\text{Ca}^{2+}$ の値が高い地点（24, 32, 15, 16等）が存在する。いずれの井戸も浅井戸であり、深さもそれほど変わらないことや、そのような地点が点在することから、 $\text{HCO}_3^-$ と $\text{Ca}^{2+}$ は土壌等からの溶出ではなく、地表からの影響を受けて生じていると考えられる。

図中の中央部付近の地点48, 9, 16周辺では硝酸イオンが高い値を示しており、硝酸性窒素の環境基準である10mg/lを超えている時期も多い。地点48, 9, 16周辺では

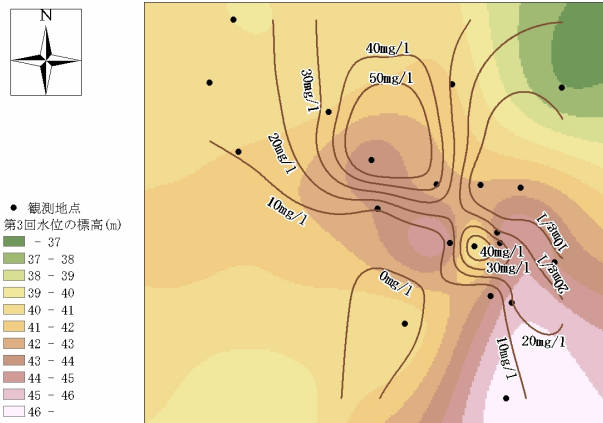


(a) 第1回調査結果 (2004年7月14日)

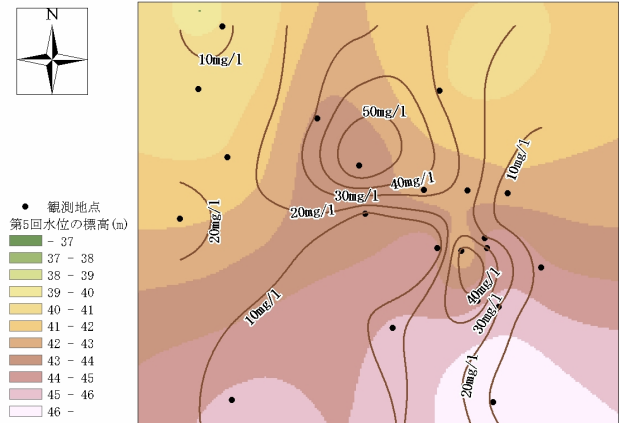


(b) 第7回調査結果 (2004年12月1日)

図-6 pHの分布



(a) 第3回調査結果 (2004年8月12日)



(b) 第7回調査結果 (2004年12月1日)

図-7 地下水位と塩化物イオン

牛舎やビニールハウスがあり、これらが窒素の供給源となっている可能性が高い。

#### d) 濃度相関マトリックス

表-1は各時期の硝酸性窒素濃度が5mg/l以上のサンプルを対象とした濃度相関マトリックスを示したものである。相関係数が0.7以上である場合は赤文字を使用している。これらより次のことが分かる。多くのイオン間で高い相関係数が見られるが、硝酸性窒素に関しては相関の高いイオンが少ない。この原因としては、硝酸汚染源の種類が多く存在すること、あるいは、汚染源の種類がある程度限られており、場所による植物の窒素吸収率の相違等が生じることなどが挙げられる。一般的に、硫酸アンモニウムが有効成分の窒素肥料の溶脱により硝酸汚染が生じた地下水では、 $\text{NO}_3^-$ と $\text{SO}_4^{2-}$ との間に高い相関があることが知られている。今回の結果では、第4回時のみ0.7以上の高い相関を示したが、第1, 2, 3, 7回では0.59~0.61, その他の時期で値は小さく相関が低かった。このことから、代表的な化学肥料である硫酸アンモニウムだけではなく、その他の化学肥料や有機肥料が使用されていることが推測される。

また、 $\text{Ca}^{2+}$ 及び $\text{Mg}^{2+}$ に高い相関が認められる地下水では、土壌の酸性化防止のために散布される苦土石灰の影響が考えられる。本結果でも第1回のもを除き、高い

相関を示しており、その可能性が高い。しかしながら、有機的な要因(特に鶏糞による)により地下水の水質が形成された場合にも、同様に $\text{Ca}^{2+}$ 及び $\text{Mg}^{2+}$ に高い相関が認められる。本結果では、 $\text{Na}^+$ や $\text{Cl}^-$ も $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ と高い相関があることが多く、苦土石灰と有機的な要因の相互の影響によって $\text{Ca}^{2+}$ と $\text{Mg}^{2+}$ が高い相関を示した可能性が考えられる。

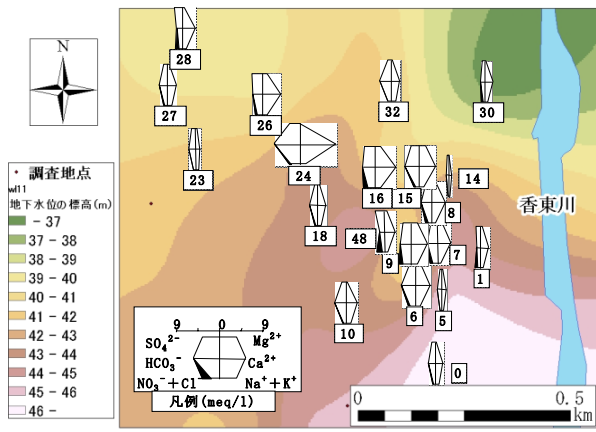
#### e) 窒素安定性同位体比

地下水への窒素の供給源を把握するために窒素同位体比の分析を行った。自然界に存在する質量数14と15の窒素同位体比 $\delta^{15}\text{N}$ は次のように表現される。

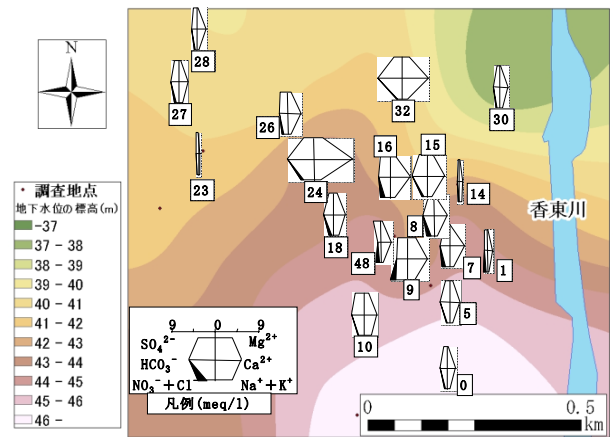
$$\delta^{15}\text{N} = \left( \frac{R_{\text{sample}}}{R_{\text{standard}}} - 1 \right) \times 1000 \quad (\text{‰}), \quad R = \frac{^{15}\text{N}}{^{14}\text{N}} \quad (1)$$

降水: -8~2‰, 化学肥料: 7.4~6.8‰, 有機肥料: 2.7~15.4‰, 水田土壌: 0.1~7.2‰, 家畜糞尿で10~22‰という報告<sup>1)</sup>や、無機化学肥料の影響を強く受けた地下水は~8‰以下, それ以上は生活排水や有機肥料の影響を強く受けた地下水であるという目安<sup>8)</sup>が示されている。

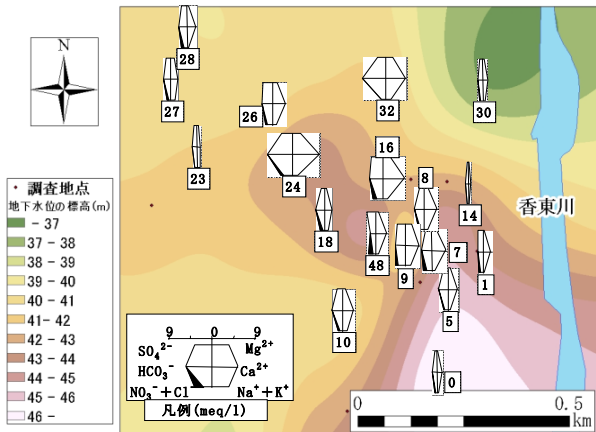
第1回のサンプルのうち、 $\text{NO}_3^-$ 濃度の高かった9検体, 第7回では13検体について窒素同位体比の分析を行った。その結果を図-9に示す。図より、地点が2グループに大別できる。第1グループは地点6, 7, 8, 9, 16, 48である。それらの地点では、多少のばらつきはあるものの同



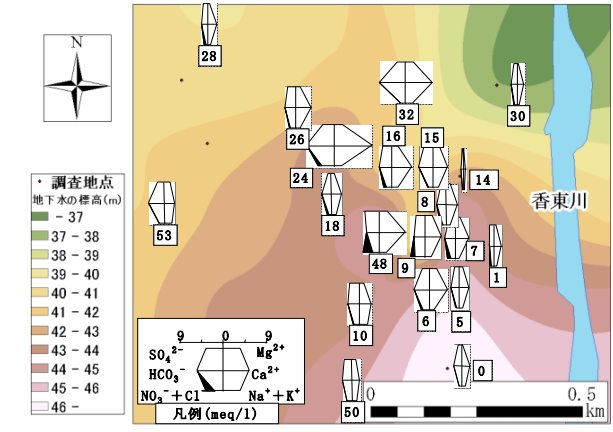
(a) 第1回調査結果 (2004年7月14日)



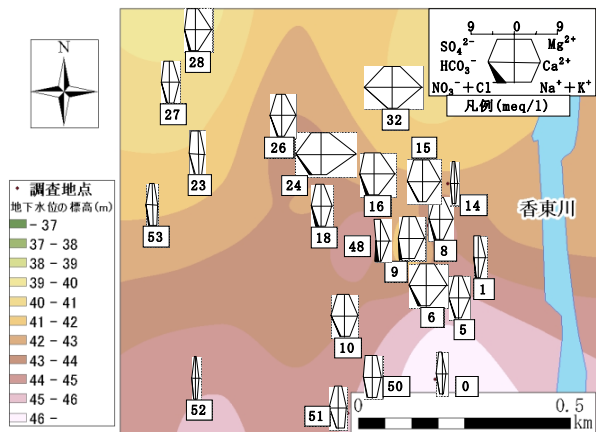
(b) 第2回調査結果 (2004年8月2日)



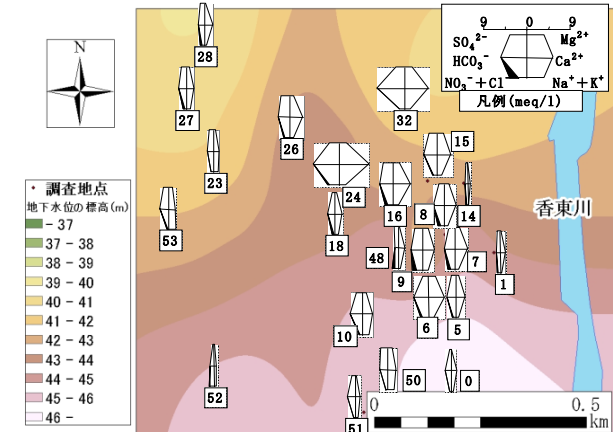
(c) 第3回調査結果 (2004年8月12日)



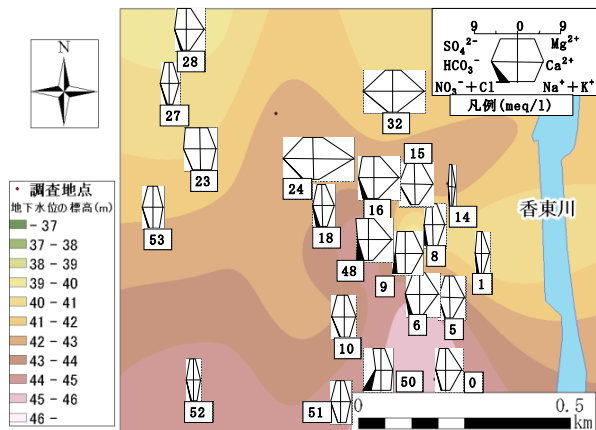
(d) 第4回調査結果 (2004年8月21日)



(e) 第5回調査結果 (2004年9月1日)



(f) 第6回調査結果 (2004年9月20日)



(g) 第7回調査結果 (2004年12月1日) (左図)

図-8 ヘキサダイアグラム

表-1 濃度相関マトリックス

第1回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.52	1					
Cl <sup>-</sup>	0.60	0.83	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.59	-0.36	-0.11	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.15	-0.19	0.25	0.47	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.67	0.97	0.85	-0.20	-0.17	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.60	0.81	0.97	-0.05	0.38	0.81	1
第2回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.62	1					
Cl <sup>-</sup>	0.76	0.70	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.61	0.10	0.63	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.82	0.69	0.90	0.54	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.81	0.95	0.80	0.26	0.81	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.73	0.77	0.89	0.58	0.87	0.78	1
第3回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.74	1					
Cl <sup>-</sup>	0.88	0.75	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.59	0.29	0.63	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.92	0.88	0.93	0.57	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.89	0.91	0.89	0.58	0.95	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.80	0.81	0.76	0.51	0.88	0.80	1
第4回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.47	1					
Cl <sup>-</sup>	0.62	0.76	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.80	-0.06	0.18	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.88	0.59	0.90	0.57	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.79	0.91	0.82	0.35	0.83	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.81	0.63	0.84	0.49	0.90	0.81	1
第5回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.80	1					
Cl <sup>-</sup>	0.84	0.83	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.20	-0.15	-0.08	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.86	0.90	0.86	0.00	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.86	0.99	0.85	-0.07	0.87	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.87	0.85	0.83	0.19	0.96	0.84	1
第6回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.66	1					
Cl <sup>-</sup>	0.74	0.86	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	-0.09	-0.51	-0.25	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.63	0.86	0.92	-0.38	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.80	0.96	0.86	-0.40	0.79	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.54	0.72	0.81	-0.15	0.78	0.63	1
第7回	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Cl <sup>-</sup>	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	Mg <sup>2+</sup>	Ca <sup>2+</sup>	Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>
SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup>	1						
HCO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.44	1					
Cl <sup>-</sup>	0.40	-0.02	1				
NO <sub>3</sub> <sup>-</sup>	0.59	-0.19	0.60	1			
Mg <sup>2+</sup>	0.73	0.63	0.70	0.32	1		
Ca <sup>2+</sup>	0.84	0.82	0.24	0.31	0.78	1	
Na <sup>+</sup> +K <sup>+</sup>	0.25	-0.36	0.78	0.79	0.27	-0.06	1

位体比が同程度であること、第7回の結果が減少していることは共通である。第2グループは地点24, 28から成る。地点24での同位体比は目立って大きく、第7回の結果の方が大きい。地点28は同位体比の大きさは小さいが、増加の傾向は共通である。すなわち、両グループの同位体比の大きさは、有機肥料と無機肥料の影響を判別する目安となる8%を超えるか同程度であるが、時間的な増減の傾向は反対である。したがって、地点24周辺と地点6~9周辺に異なる窒素の供給源が存在していることが示唆される。また、その窒素は、無機態のみならず、有機態である可能性が強いことがわかる。すなわち、供給源としてビニールハウスと牛舎が候補と挙げられる。ただし、同位体比がこれまで報告されている値と比較すると大きいように見受けられ、この点に関してはさらに検討が必要である。

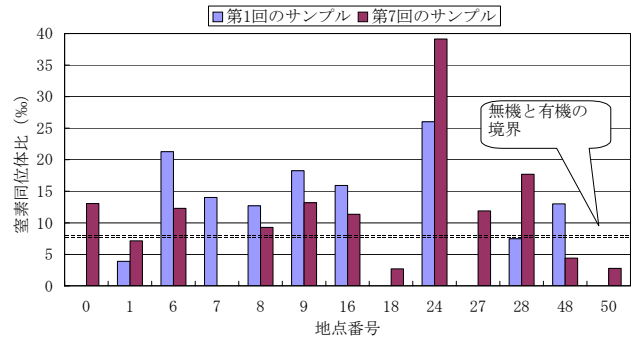


図-9 地点別の窒素同位体比

#### 4. 結論

香東川扇状地の、年間を通して高濃度の硝酸性窒素が観測される地域を対象として、不圧地下水の水位・水質の調査・分析を行った。地下水の水位、主要イオンや窒素同位体比の分析結果より、無機のみならず有機態の窒素が供給されていること、また、その主たる供給源としてビニールハウスと牛舎が推定されることを示した。

謝辞：本研究を遂行するに際し、和歌山大学システム工学部井伊博行教授から有益な助言をいただいた。また、本研究の実施に際して科学研究費補助金基盤研究(C)(2) (代表者：河原能久) の援助を受けた。謝意を表します。

#### 参考文献

- 1) 平田健正：土壌地下水汚染と対策，社団法人日本環境測定分析協会，1996。
- 2) 小川祐美，田瀬則雄，檜山哲哉，嶋田純：埼玉県金子台地付近における不地下水の硝酸性窒素の起源に関する一考察，日本水文科学会誌，Vol. 28, No. 4, pp. 125-134, 1998。
- 3) 近藤洋正，田瀬則雄，平田健正：沖縄県宮古島における地下水中の硝酸性窒素の窒素安定同位体比について，地下水学会誌，Vol. 39, No. 1, pp. 1-15, 1997。
- 4) 寺尾宏：畑作地帯の硝酸性窒素による地下水汚染と軽減対策一岐阜県各務原台地における汚染事例一，水環境学会誌，Vol. 19, No.12, pp. 8-12, 1996。
- 5) Bottcher, J., Strebel, O., Voerkelius, S. and Schmidt, H.-L. : Using isotope fractionation of nitrate-nitrogen and nitrate- oxygen for evaluation of microbial denitrification in a sandy aquifer, Jour. Hydrology, Vol. 114, pp. 413-424, 1990。
- 6) 橋本美智子，河原能久，渡邊健一：高松地域における不圧地下水の水質の空間的・時間的変動の特性，第39回環境工学研究フォーラム講演集，pp. 116-118, 2002。
- 7) 河原能久，渡邊健一，橋本美智子：高松地域の不圧地下水の水位・水質に及ぼす灌漑の影響，水工学論文集，Vol.37, pp. 283-288, 2003。
- 8) 平田健正：硝酸性窒素による地下水汚染，水環境学会誌，Vol.19, No.12, pp. 950-955, 1996。

(2005. 9. 30受付)