

熊本都市域における地下水中硝酸性窒素濃度の現状と地理情報システムおよび窒素安定同位体分析による窒素負荷要因の解明

富 家 和 男* 糸 満 尚 貴** 松 山 賢 司***
柿 本 竜 治* 川 越 保 徳*¹

Nitrate-Nitrogen Concentration in Groundwater of Kumamoto Urban Area and Determination of Its Contributors Using Geographical Information System and Nitrogen Stable Isotope Analysis

Kazuo TOMIIE*, Naotaka ITOMITSU**, Kenji MATSUYAMA***,
Ryuji KAKIMOTO* and Yasunori KAWAGOSHI*¹

* Graduate School of Science and Technology, Kumamoto University, 2-39-1 Kurokami, Kumamoto 860-8555, Japan

** Oita Cable Telecom Co., Ltd., 59-12 Matsugaoka, Oita 870-1193, Japan

*** Water Conservation Section, City of Kumamoto, 1-1 Tetorihoncho, Kumamoto 860-8601, Japan

Abstract

Kumamoto city and its neighboring municipalities, which is more than 1,000 km² in area and have almost 1 million people, are considered a mesoscale region. This region is a special area in Japan and in the world because of the fact that all drinking water demand by most of its population is met using only groundwater. However, recently, nitrate-nitrogen (NO₃-N) contamination has been a source of concern. The goal of this study is to examine the groundwater contamination by NO₃-N in this area and to determine the factors of nitrogen load. NO₃-N concentration was higher than 4 mg·L⁻¹ in many wells, it was even higher than 10 mg·L⁻¹ in some wells in upstream areas of groundwater. In addition, most groundwater samples showed an upward trend in NO₃-N concentration in recent years. The Geographical Information System (GIS) technique using agricultural census data revealed that nitrogen emission from domestic animal waste significantly increased in the upstream areas of groundwater, which was coincident with the NO₃-N contamination of groundwater. The nitrogen stable isotope ratios ($\delta^{15}\text{N}$) of NO₃-N in groundwater were relatively high (9.6 to 15) in most of the wells, and especially higher (10<) in the upstream areas of groundwater. From these results, domestic animals waste and the application of organic fertilizers were identified by the effective combination of the GIS technique and $\delta^{15}\text{N}$ analysis as the main contributors to NO₃-N contamination.

Keywords: Groundwater contamination; Nitrate-Nitrogen; Geographical information system (GIS); Agricultural census; Nitrogen stable isotope ratio ($\delta^{15}\text{N}$)

1. はじめに

熊本市と近隣市町村を含む地域は、1,000 km²を超える面積を有し、約100万人の人口に必要な飲用水のすべてを地下水で賄う世界的にも類をみない地下水流域圏である^{1,2)}。この豊富な地下水の涵養域は、主として阿蘇山西麓の台地とさらにその西側に広がる白川中流域と呼ばれる地域と考えられている。一方で熊本市は地下水の流出域にあたることから湧水や自噴井戸が多く、熊本市民は水質が良好でおいしい水としても知られる^{3,4)}熊本の地下水の恵みを享受してきた。しかし近年、地下水中の硝酸性窒素(NO₃-N)濃度が水道水質基準の10 mg·L⁻¹を超えるものがみられるなど、地下水のNO₃-N汚染が懸念されはじめた⁵⁾。

熊本市内での地下水中NO₃-N濃度の実態については、市内の水質観測井戸のデータがまとめられている他、水道水源井においてもNO₃-N濃度の上昇傾向が指摘されている^{2,5)}。また、熊本市以外の地域については、小笹らが県内全域にわたる地下水のNO₃-N汚染実態を明らかにしており⁶⁾、その原因として過剰施肥などの農業活動や生活排水との関係が疑われている⁷⁾。しかし、窒素の発生源や負荷要因に関する研究事例は、一部の市町村に関するもの⁸⁾以外になく不明な点が多い。これは、農業関係データ等の収集が難しいことに加え、熊本都市域の地下水が複数の市町村にわたる広大な流域となっていることによる。上述したように、熊本市の地下水は、その近隣市町村に広がる地下水涵養域および流動域を通じて集水されたものであり、水量、水質ともにそれら地域

* 熊本大学大学院自然科学研究科 〒860-8555 熊本市黒髪2-39-1

** 大分ケーブルテレコム株式会社 〒870-1193 大分市松が丘59-12

*** 熊本水環境保全局環境保全部水環境課 〒860-0808 熊本市手取本町1-1

〒 連絡先: goshi@kumamoto-u.ac.jp

の影響を受けることになる。すなわち、熊本都市域での窒素負荷源、要因の同定や対策にあたっては、地下水流域全体にわたる広域を対象とする包括的な調査研究が不可欠となる。

そこで本研究では、広域地下水流域を対象に現地調査を実施して地下水のNO₃-N汚染実態を明らかにするとともに、農林業センサスデータを利用したGIS解析と窒素安定同位体分析などの手法を活用することにより窒素の負荷要因を解明した。

2. 調査・研究方法

2.1 調査対象地域における地下地質・地下水流動

熊本市（図中ではKumamotoと記載、他の市町村も同様にアルファベットで示す）と近隣市町村の玉名市（Tamana）、玉東町（Gyokuto）、合志市（Koshi）、大津町（Ozu）、菊陽町（Kikuyo）、西原村（Nishihara）、益城町（Mashiki）、旧植木町（Ueki）、旧城南町（Jonan）、旧富合町（Tomiai）、嘉島町（Kashima）における地質および地下水流動の概要をFig. 1に示す¹⁾。なお、Fig. 1中で地下水の流れをあらわす矢印は地下水量を定量的に示したのではなく、また、熊本市は2009年10月に旧富合町、2010年3月に旧植木町および旧城南町を合併

して新熊本市となっている。本地域における主な地下水涵養域は、阿蘇山西麓に広がる台地および白川中流域と称される地域とされる^{1,9)}。白川中流域を含む阿蘇山西側から有明海にかけての一带は、先阿蘇火山岩を基盤とし、その上に極めて透水性の高い阿蘇火砕堆積物が堆積する特殊な地質構造を有しており、これが本地域の巨大な地下水帯水層や貯留層を形成している^{1,9)}。中でも、とくに白川中流域では、水田が“ザル田”と呼ばれるほど水の浸透能が高く、場所によっては1日で0.1 m以上の減水深を示す¹⁰⁾。本地域の地下帯水層は大きく二つに分けられ、表層に近い不圧帯水層は第一帯水層、その下層は第二帯水層と称されている。Fig. 1に示したように、合志市や旧植木町では花房層、益城町等では布田層と呼ばれる粘土層が上記の帯水層間に存在するとされる。ただし、これら粘土層の実際の分布にはいまだ不明な点も多い。一方、涵養域である白川中流域や阿蘇から有明海に注ぐ一級河川である白川沿いの地域では、そのような粘土層はなく、第一帯水層の浸透水は容易に第二帯水層に達する。このことが白川中流域を巨大な涵養地帯としている理由でもある。しかし一方でこれら帯水層は地表や台地層からの影響を直接的かつ速やかに受けることになる。白川中流域で第一帯水層～第二帯水層に涵養され

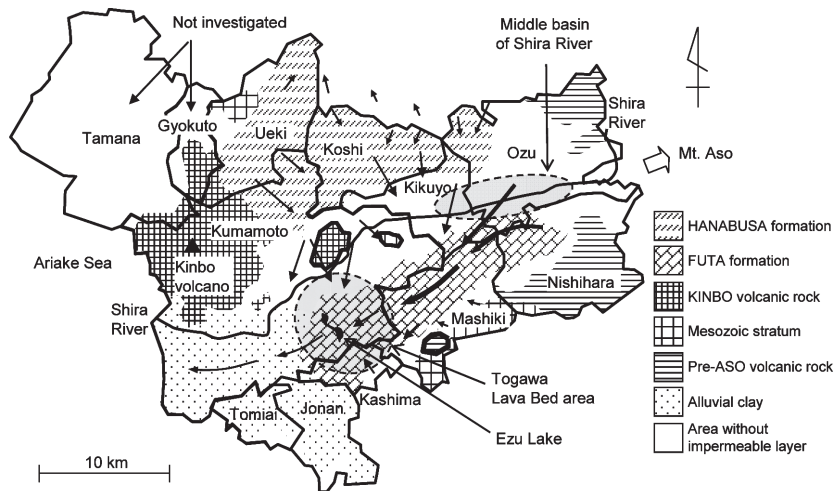


Fig. 1 Subsurface geology and groundwater flow in Kumamoto urban area ¹⁾.

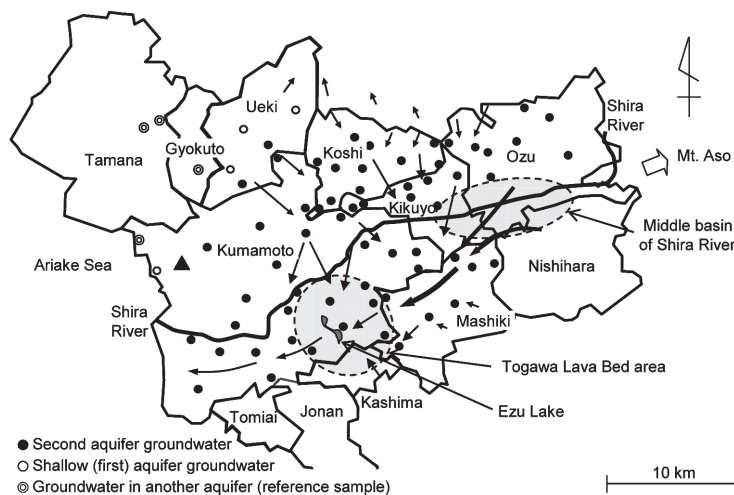


Fig. 2 Groundwater flow in Kumamoto urban area and sampling points ¹⁾.

た地下水は南西方向に向かって流れ、これに北～北北東に位置する旧植木町、合志市、菊陽町などからの地下水が加わり、熊本市の主要な地下水貯水層である砥川溶岩層に集水される。一方、砥川溶岩層の西側は透水性の悪い沖積層となっていることから、砥川溶岩層内の地下水は被圧され地表に噴出する。これが本地域で江津湖や水前寺成就園に代表される豊富な湧水や自噴井がみられる所以である。一方、熊本市の北西から玉東町の一部にかけては、金峰山火山岩類で形成された地質が広がっており、これら地域の地下水流動は上記とは異なるものとされている^{1,9)}。

本研究では、熊本市への主な流入地下水地域である旧植木町、合志市、大津町、菊陽町、益城町を調査対象地域として、現地調査を実施した。Fig. 2 に地下水試料の採取地点を示す。Fig. 2 中の黒点 (●) は第二帯水層と推定される地下水を採取した地点、旧植木町および金峰山西側の白点 (○) は自治体の地下水水質観測井になっている浅層地下水 (深度は不明) である。また、二重丸点 (◎) で示した金峰山西側の深井戸地下水と玉東町および玉名市の水道水源地下水は、流動系が異なる試料であり参考試料とした。また、NO₃-N の過去のデータは当該地域の水道事業体に協力を求めて収集した。

2.2 農林業センサスデータによる窒素負荷発生量および地下浸透水中 NO₃-N 濃度の推定

本研究では、施肥や家畜排せつ物からの窒素負荷発生量推定のため、農林業センサスデータを利用した。農林業センサス調査は、1960年から2005年までの5年毎に実施されているが、1965年と1990年のデータには一部欠落がみられたことから、それらの年度以外のデータを対象とした。熊本県の農林業センサスデータと Geographical Information System (GIS) 用の旧市町村界 Shape データは、ともに九州農政局から入手した。旧市町村ごとに施肥および家畜排せつ物による単位面積あたりの窒素負荷発生量を求め、それらをもとに地下浸透水中 NO₃-N 濃度を推計した。計算式を以下に示す。

$$C_c = 100 \frac{\sum F_c A_c R_{ni}}{A_m P R_{in}} \dots\dots\dots(1)$$

$$C_a = 100 \frac{\sum W_a N_a R_{ni}}{A_m P R_{in}} \dots\dots\dots(2)$$

ここで、C_c：基準施肥量から推計される各(旧)市町村の地下浸透水中 NO₃-N 濃度 (mg・L⁻¹)、C_a：家畜排せつ物から推計される各(旧)市町村の浸透水中 NO₃-N 濃度 (mg・L⁻¹)、A_m：各(旧)市町村の面積 (ha)、A_c：各(旧)市町村における作物毎の耕地面積 (ha)、N_a：各(旧)市町村における家畜頭数(-)である。F_c：各農作物の耕地面積あたりの施肥量 (kg・N・ha⁻¹・year⁻¹) は Table 1 に示した熊本県の農作物施肥基準¹¹⁾を、W_a：各家畜の窒素排出原単位 (kg・N・head⁻¹・year⁻¹) は Table 2 の値¹²⁾を用いた。また、P：降水量 (mm・year⁻¹) には熊本市の1970年～2005年までの降水量平均値 (約 2,000 mm・year⁻¹) を用い、R_{in}：地下浸透率(-)は 0.34 と仮定した。土壌への浸透水量については地域によって異なることが推定されるが、ここでは窒素負荷源での土地

Table 1 Standard amount of applied fertilizer in Kumamoto prefecture.

Crop	N amount*	Crop	N amount*
Rice	60	Carrot	120
Wheat	70	Aroid	190
Soybean	20	Sweet potato	50
Tomato	250	Onion	180
Eggplant	400	Green onion	250
Napa	200	Orange	250
Cabbage	240	Pear	220
Spinach	120	Peach	120
Radish	140	Plum	120

* kg-N・ha⁻¹・year⁻¹

Table 2 Basic unit of nitrogen discharge from domestic animals.

Livestock	Nitrogen amount*		
	Feces	Urine	Total
Cow	51	27	99
Beef cattle	23	33	50
Pig	2.8	8.2	11
Chicken (broiler)	0.46	-	0.46

* kg-N・year⁻¹

利用が主に農地であるとして地下への浸透率を一律と仮定し、降雨の約 1/3 (34%) が地下に浸透するものとした。R_{ni}：窒素溶脱率(-)については、文献など¹³⁾を参考に、水田で 0.05 (5%)、畑および畜産排出物で 0.35 (35%) と仮定した。

2.3 NO₃-N 濃度の測定および窒素安定同位体分析

NO₃-N の測定は、イオンクロマトグラフ法にて行った。また、水道事業体などが過去に行った NO₃-N 測定は、上水試験方法に準じて実施された。窒素安定同位体分析は以下の手順に準じて行われた。1) 1.5 mg 以上の NO₃-N を含む水試料を pH 10～11 に調整して濃縮、凍結乾燥する、2) すずコンテナに凍結乾燥試料を入れて超高純度酸素とともにガス化前処理装置の燃焼炉内で燃焼、ガス化し、酸化触媒により完全酸化する、3) 還元カラムで窒素酸化物を N₂ に還元して分離カラムで分離後、安定同位体比質量分析計により質量測定を行う。ガス化前処理は Flash EA1112 (Thermo Fisher Scientific 社)、質量測定は DELTA V (Thermo Fisher Scientific 社) にて行い、測定精度は ±0.15 ‰であった。また、窒素安定同位体比 (δ¹⁵N) は次式にて算出した。

$$\delta^{15}N = 1000 \left(\frac{R_{sample}}{R_{air}} - 1 \right)$$

ここで、δ¹⁵N：窒素安定同位体比 (‰)、R_{sample}：水試料の窒素安定同位体比 (¹⁵N/¹⁴N)、R_{air}：空気中の窒素安定同位体比 (¹⁵N/¹⁴N) である。

3. 結果および考察

3.1 熊本都市域地下水における NO₃-N 濃度の実態と近年のトレンド

Fig. 3 に地下水試料中の NO₃-N 濃度を、Fig. 4 には NO₃-N 濃度が比較的高い、あるいは上昇傾向が顕著な

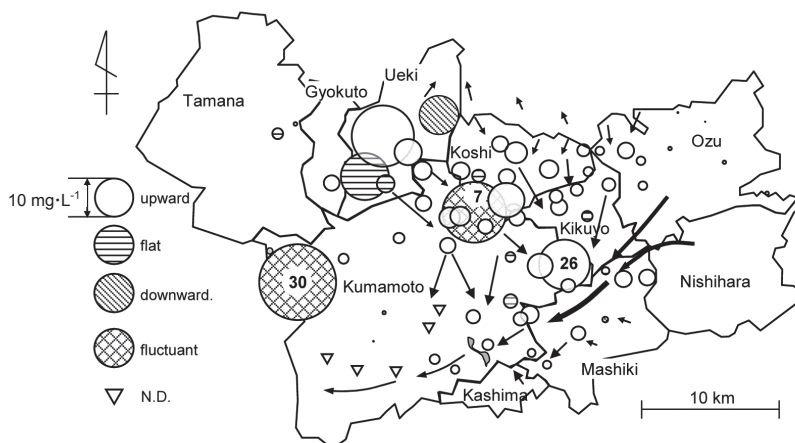


Fig. 3 NO₃-N concentration (in 2009) of groundwater and its trend in recent years in Kumamoto urban area.

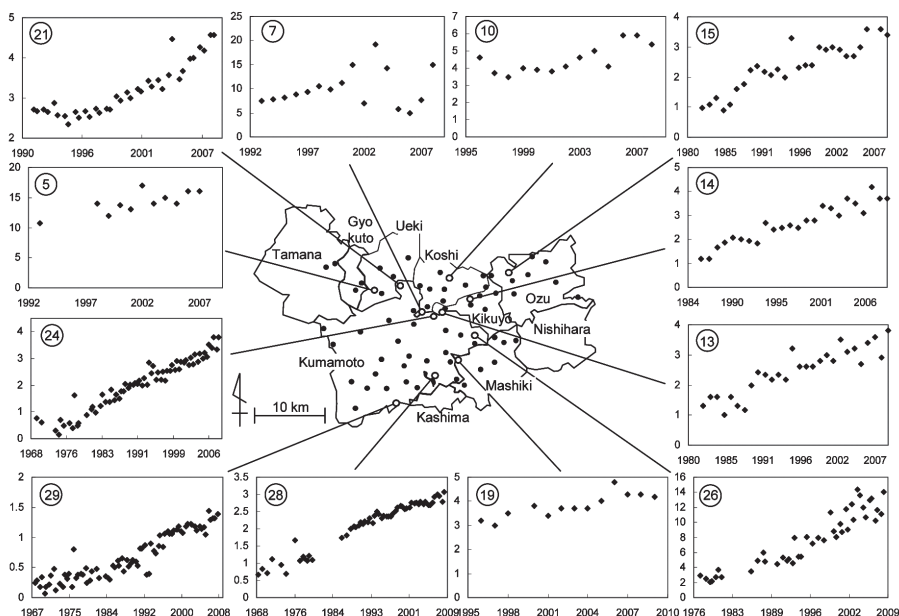


Fig. 4 Change in the NO₃-N concentration (mg·L⁻¹) of representative groundwater samples showing upward trend in recent years in Kumamoto urban area (horizontal axis: year, vertical axis: NO₃-N concentration).

地下水における NO₃-N 濃度の経年変化を示す。Fig. 3 では NO₃-N 濃度を円の直径であらわし、近年における変化傾向を円内のハッチングで区別して示した。濃度変化傾向の判定は、経年変化を直線近似し、得られた近似式の妥当性を p 値 <0.005 で評価した。有意であるものを上昇あるいは低下傾向にあるとみなし、有意差が認められない場合は横ばい傾向とした。また、Fig. 3 中の試料⑦と試料⑩は、過去 5 年間で各年の濃度変動が 30% 以上であったため、濃度変動の著しいものとして他と区別した。NO₃-N が未検出の場合は逆三角形で示した。

Fig. 3 に示すように、本地域では NO₃-N 濃度が 4 mg·L⁻¹ を超える地下水が多くみられ、10 mg·L⁻¹ を超えるものもあった。筆者らはこれまでも、熊本市内の地下水について水質の特徴付けを行い⁴⁾、NO₃-N 濃度の実態把握を進めてきた¹⁴⁾。その結果、熊本市北部～東部～南東部の地下水で高い NO₃-N 濃度が認められること、また、NO₃-N が検出される地下水のほとんどで、濃度の経年変化に上昇傾向がみられることを明らかにした¹⁴⁾。これらの傾向は、Fig. 4 に示した北部の試料⑫、東部の試料⑮、南東部の試料⑲でも確認できる。また、試

料⑮と⑲は熊本市の水道水源井の水であり、とくに試料⑲は熊本市の主要帯水層である砥川溶岩層から取水された水である。さらに、濃度が 10 mg·L⁻¹ を超えている水質監視井戸の試料⑮は水道水源に近いことから、将来的な水道水源への影響が懸念される。熊本市では、西北部においても極めて高い NO₃-N 濃度を示す地下水がみられた (Fig. 3 中の試料⑩)。この試料は、熊本市が水質観測井としている個人宅の井戸水であるため井戸深度や構造の詳細は分からないが、この地区の深層地下水中 NO₃-N 濃度は、他地域に比べて低い (3 mg·L⁻¹ 未満)⁵⁾ ことから、地表からの影響を受けやすい浅層の地下水と考えられる。

Fig. 3 で明らかなように、地下水涵養域や上流域である菊陽町や合志市など、熊本市の北東部に位置する地域においても NO₃-N 濃度が高く、中には 10 mg·L⁻¹ を超える地下水が確認された。同じく地下水流域と考えられる旧植木町では非常に高い NO₃-N 濃度を示すものがあり、小笹らの知見⁶⁾ に一致した。また、熊本市東部～南東部へ流入する地下水の通り道にあたる益城町においても NO₃-N 濃度が比較的高く、菊陽町や熊本市東部と同

等であることが分かった。一方、大津町の北東部や、熊本市とは異なる地下水流域と考えられる¹⁾玉名市などの地下水は比較的低いNO₃-N濃度であった。

Fig. 4には、旧植木町からは一つ(試料⑤)、合志市からは二つの試料(試料⑦、⑩)について経年変化を示した。旧植木町の地下水については、NO₃-N濃度が高い反面、近年は濃度が横ばいあるいは下降傾向を示すものもあり、窒素負荷量の減少が期待される。一方、水道水源水である合志市の試料⑦は濃度の変動が激しく、土壌層や他帯水層からの影響を受けやすい可能性がある。また、試料⑩については、2007年以降については濃度の上昇傾向が鈍化しており、今後の推移に注意する必要がある。大津町の試料⑬、菊陽町の試料⑬と⑭、益城町の試料⑯についてはいずれも濃度の上昇傾向が認められ、地表からの窒素負荷や上流域からの汚染地下水の流入が推定される。

3.2 農林業センサスデータによる地下浸透水中NO₃-N濃度の推計と窒素負荷要因の推定

上記より、地下水流域の地下水についても熊本市と同様にNO₃-N濃度が高く、かつ上昇傾向にあることが明らかになった。そこでこれら熊本市都市域の市町村について、窒素負荷発生に関わる下水道や農業関連の情報収集を行ったところ、生活排水やし尿の処理に関しては1970年代から施設整備が進んでおり、とくに今回調査した地下水域での窒素負荷を増加させる要因は見いだせなかった。また、農業に関しては、廣畑らの研究事例^{8,15)}などから施肥や畜産廃棄物の寄与が推定されるものの、近年の窒素負荷変化を定量的に推定できるような資料はなかった。さらに、熊本市域の範囲は大きく、局所的に施肥量や畜産廃棄物発生量を把握することは困難であることが分かった。そこで本研究では、農業から発生する窒素負荷量の推計に際し、1960年から5年ごとに実施されてきた農林業センサス調査に着目した。センサス調査では、面積の比較的小さな旧市町村単位で農作物別の耕地面積や家畜別の頭数などの情報が得られている。これらのデータをもとに、基準施肥量や家畜からの窒素排出量、降水量、窒素溶脱率などを設定し、土壌浸透水におけるNO₃-N濃度を2.2に示した(1)式と(2)式に

従って推定し、その結果をGISマップ上に統合して解析を行った。

3.2.1 畑および水田への施肥量から推計される窒素負荷量とNO₃-N濃度

Fig. 5に畑および水田での基準施肥量から推計されたNO₃-N濃度を示す。なお、NO₃-N濃度の範囲は5段階で設定し、濃度が高いほど黒色が濃くなるようにあらわした。施肥量から推計される浸透水中NO₃-N濃度については、1960年時点では熊本市の北部～東部と南西部や旧植木町などで比較的高い濃度となり、地域東部に位置する西原村などで比較的低い濃度と推定された。しかしその10年後の1970年には、熊本市の北西部で推定値が30 mg・L⁻¹を超える高濃度の地域が現れた。一方、それ以外の地域では全体的に低下傾向がうかがえる。さらに1980年には濃度レベルの低下する地域が増え、それ以降はほぼ同様の傾向が続いた。結局、2005年時点では、上記の熊本市北西部など一部地域を除いて1960年当時の1/2～1/10の値となった。以上より、熊本市北部～東部、および地下水流域の合志町、菊陽町などにおける近年の地下水の高いNO₃-N実測値や濃度上昇傾向と、施肥による窒素負荷との間には明確な関係は認められなかった。しかし、熊本市北西部地域に限っては、1960年から1970年の間で10倍以上のNO₃-N濃度の上昇が推定され、2005年時点でも10 mg・L⁻¹以上の高い推計値が得られた。すなわち、この地域はFig. 3に示したように現在も地下水中NO₃-N濃度が特異的に高い地域であり、施肥による影響がNO₃-N濃度の上昇に大きく寄与した可能性が高いと考えられる。

3.2.2 家畜排せつ物量から推計される窒素負荷量とNO₃-N濃度

Fig. 6に、家畜(肉牛、乳牛、豚、鶏、馬)頭数とそれらの窒素排出原単位に基づいて推計されたNO₃-N濃度を示す。Fig. 5と同様にNO₃-N濃度の範囲は5段階で設定し、濃度が高いほど黒色が濃くなるようにあらわした。1960年ではいずれの地域も3.0 mg・L⁻¹未満と推定され、とくに濃度が高い地域はなかった。しかし1970年以降、濃度の上昇を示す地域が急激に増加しており、家畜排せつ物の廃棄、あるいは堆肥など有機肥料の施肥に

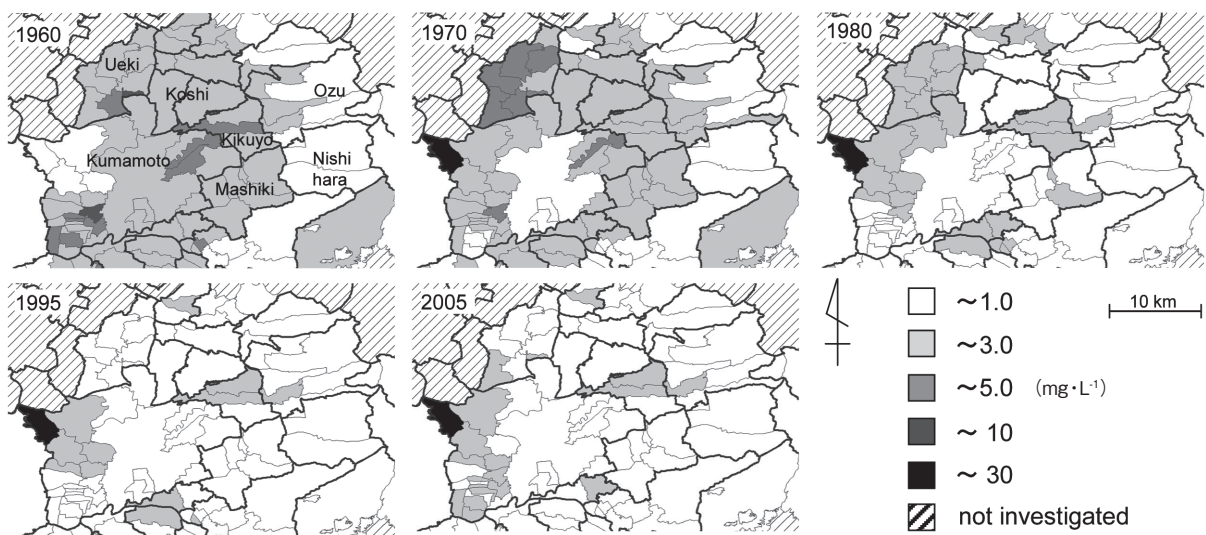


Fig. 5 Estimated NO₃-N concentration in percolating groundwater from the amount of applied fertilizer in individual municipality.

よる窒素負荷の増大が推定される。中でもとくに著しい濃度上昇が推定される熊本市東部、合志市南部、菊陽町などの地域はまさに地下水の上流域や涵養域であり、地下水中 NO₃-N 濃度が高く濃度上昇も顕著な地域であった。また、1970 年代当時では、家畜排せつ物の処分に関する法律、規制は存在せず、素堀りや野積みといった処理が一般的に行われていた。以上から、近年の地下水中 NO₃-N 濃度上昇の主要因の一つが、家畜排せつ物や堆肥など有機態窒素による窒素負荷の増大であることはほぼ間違いないと考えられる。本地域は、地下水の上流域や涵養域にあたり、今後、NO₃-N 濃度が飲料水基準である 10 mg・L⁻¹ を超える可能性も否定できないことから、飲料水源を地下水に依存している熊本都市域にとって深刻な問題である。本研究では、窒素負荷のトレンドから負荷要因を把握することを主目的としたため、土壌中の窒素蓄積などは考慮しなかったが、今後の NO₃-N 汚染対策にあたっては、土壌蓄積窒素量や地下水流動、地下水収支などを踏まえた窒素動態シミュレーションモデルの早急な構築と、想定シナリオにもとづく政策の立案、実施が不可欠と考えられる。

3.3 窒素同位体比 (δ¹⁵N) による窒素負荷要因の推定

環境中の NO₃-N など窒素の負荷要因推定については、窒素や酸素、炭素などの安定同位体分析が一つの有用なツールとされている¹⁶⁻¹⁹。そこで、農林業センサスデータによる結果の検証も含め、30 点の地下水試料について窒素安定同位体比 (δ¹⁵N) 分析を行った。Fig. 7 に、試料採水地点と δ¹⁵N を、Fig. 8 に NO₃-N 濃度と δ¹⁵N との関係を示す。

窒素源と δ¹⁵N 関係については、一般に降雨で -8~2 ‰、化学肥料で -7.4~6.8 ‰、家畜ふん尿で 10~22 ‰、下水処理水で 8~15 ‰という値^{13,19}が目安となる。Fig. 7 から明らかなように、計 30 点の内、8.0 ‰未満は 3 試料にとどまり、降雨など自然由来および化学肥料が窒素源と推定されるものは少ないことが分かった。この中の一つは、参考試料とした玉名市の地下水 (試料①) で、NO₃-N 濃度は 2.9 mg・L⁻¹ と比較的高いものの濃度の上昇傾向は見られずとくに問題はないと考えられる。また、残りの 2 試料はいずれも旧植木町の地下水 (試料⑤と⑫) であるが、ともに 7.8 ‰と 7.9 ‰と 8.0 ‰に近く、堆肥など有機態窒素の影響を同時に受けている可能性がある。

δ¹⁵N が 10 ‰以上の高い値を示したものが 11 試料

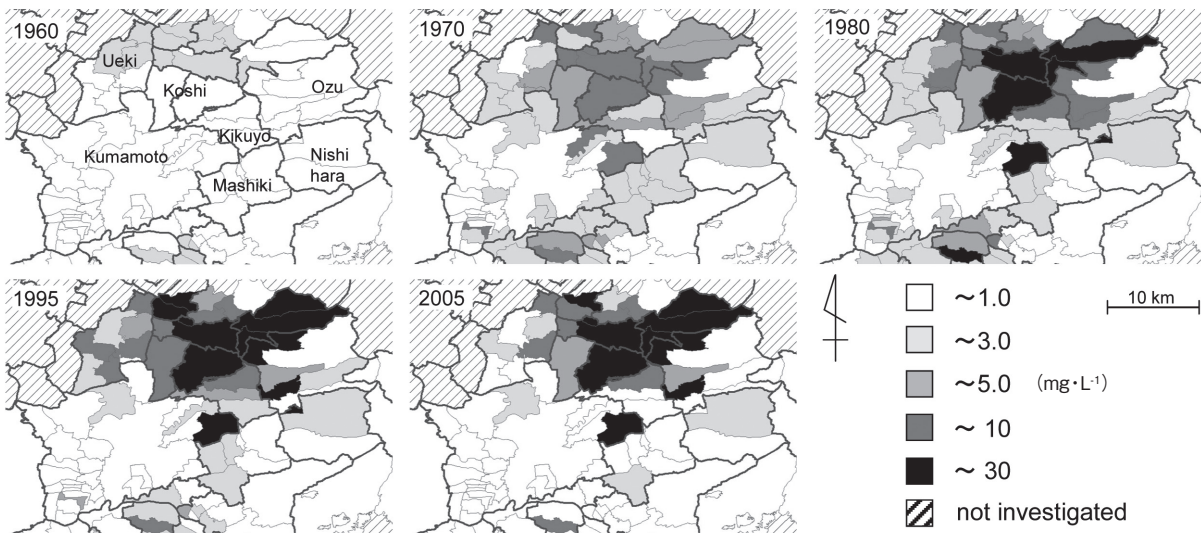


Fig. 6 Estimated NO₃-N concentration in percolating groundwater from the amount of animal waste in individual municipality.

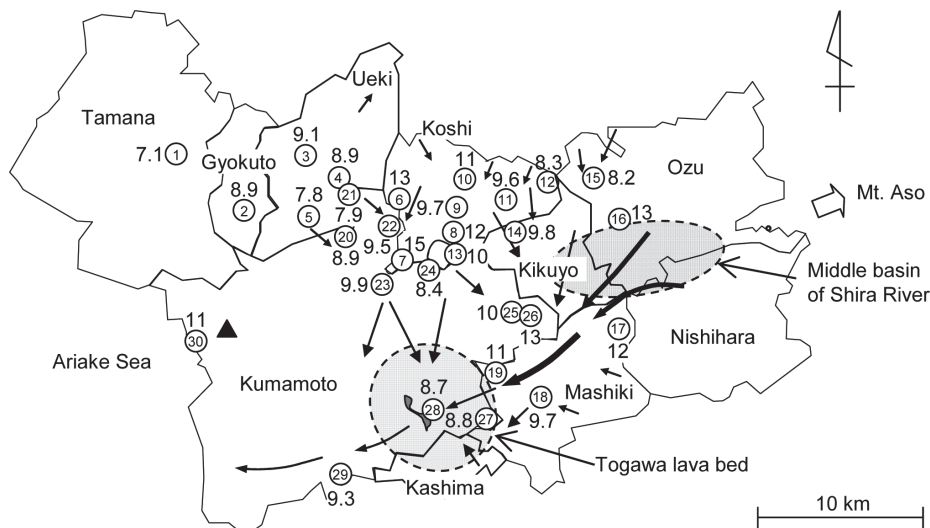


Fig. 7 Nitrogen stable isotope ratio (δ¹⁵N) of NO₃-N of representative groundwater samples in Kumamoto urban area.

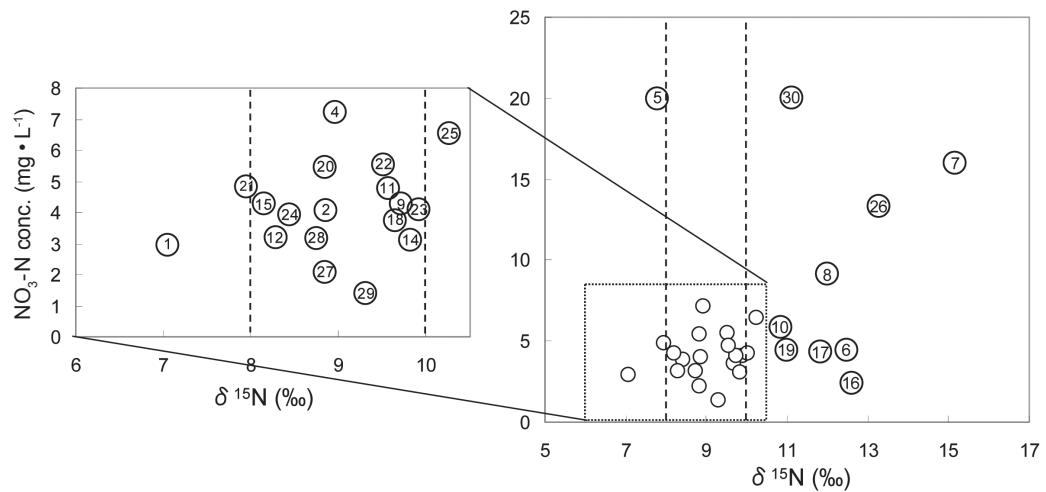


Fig. 8 Relationship between $\text{NO}_3\text{-N}$ concentration and $\delta^{15}\text{N}$ of representative groundwater samples in Kumamoto urban area.

あった。この内、熊本市北西部と益城町北東部の試料(17)と(30)以外は、農林業センサデータの解析により家畜排せつ物など有機態窒素による高い窒素負荷が推定された地下水流域の試料であった。さらに Fig. 8 から明らかのように、 $\delta^{15}\text{N}$ の高い試料は $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度も高い(試料7, 8, 25, 26等)傾向が認められ、農林業センサによる解析結果を支持した。

残りの 16 試料については $\delta^{15}\text{N}$ が 8.0~10 ‰ の範囲にあり、家畜排せつ物などの有機態窒素と化学肥料などが複合的に寄与しているものと考えられる。また、試料採取井戸の直上表層に窒素負荷源がない場合には、地下水流入や降水からの浸透水の合流によって $\delta^{15}\text{N}$ が変化している可能性がある。さらに、 $\text{NO}_3\text{-N}$ が N_2 に還元脱窒される際には同位体分別が起こり、残存 $\text{NO}_3\text{-N}$ の $\delta^{15}\text{N}$ は増加する¹⁹⁾とされているが、これについては、Fig. 7 に示すように試料27や28の $\delta^{15}\text{N}$ に対し、地下水流域に位置する試料29の $\delta^{15}\text{N}$ が高いことがそれに該当すると思われる。試料29の周辺地質は有明沖積粘土層と呼ばれ、かつては干潟であった比較的高い有機物分を含む。また、地下水中の溶存酸素濃度も地下水流域での値(7~9 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)に比べて低く(4 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 前後)、本地点は脱窒反応が起こりやすい条件が整っていると推定される。同様に、試料6, 16および17についても、窒素濃度が比較的低い(2.2~4.4 $\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$)にも関わらず同位体比は高く同位体分別の可能性が推定された。しかし、これら地点の場合は周辺地下水での同位体比も高いことから、表層からの $\text{NO}_3\text{-N}$ による汚染を受けにくい地下地質構造になっているために $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が高いと考えるのが妥当であろう。これらとは逆に、同位体比は 8.0 ‰ と低い、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が高いもの(試料5)もみられた。この試料は、旧植木町の比較的浅い井戸(ストレーナー深度: 50 m)から採取されたものであり、本地域ではスイカやメロンなど果実栽培が盛んなことから、化学肥料の施肥による影響を強く受けているものと考えられる。

農林業センサデータの解析とは異なる興味深い結果も得られた。熊本市北西部の地下水試料(試料30)は $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度が高く、センサデータによる解析では施肥がその主要因と考えられたが、 $\delta^{15}\text{N}$ は 11 ‰ と高い値を示した。今後の検証が必要ではあるものの、本結果は、この地域で堆肥など有機性肥料の施肥が盛んであること

を推定させる。このように、 $\delta^{15}\text{N}$ 分析は同位体分別などの影響を考慮すべきことなど慎重を要するものの、窒素負荷源を特定する上で極めて強力なツールとなる。とくに本研究においては、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の高い地下水では $\delta^{15}\text{N}$ も高いことが明らかとなり、家畜排せつ物や堆肥などの有機態窒素による地下水汚染は深刻な事態に陥りやすいことを示しているとも考えられる。すなわち、 $\delta^{15}\text{N}$ 等の同位体分析は、窒素汚染要因を特定するだけでなく、汚染の深刻度を評価し、対策立案にあたっての有用な根拠を提供できる可能性がある。したがって今後、とくに畜産や堆肥による施肥が盛んな地域においては、地下水汚染調査、解析への同位体分析のさらなる利用による知見の集積が強く望まれる。

以上、農林業センサデータ解析と安定同位体分析の結果から、熊本市域における地下水中 $\text{NO}_3\text{-N}$ の負荷要因は、主に家畜排せつ物や堆肥などの有機態窒素であるとの結論が得られた。しかし一方で、家畜排せつ物の処理については 1999 年に「家畜排せつ物の管理の適正化及び利用の促進に関する法律(家畜排せつ物法)」が施行され、すでに 10 年が経過している。すなわち、野積みや素堀り、垂れ流しといった家畜排せつ物の野放図な処理が今なお続いているとは考え難い。熊本県においても、ほとんどの事業所で堆肥舎や廃水処理施設の設置がなされている。それにもかかわらず、本地域では 1999 年以降も地下水中 $\text{NO}_3\text{-N}$ 濃度の上昇は続いており、家畜排せつ物の不適切な管理がその原因であるとするには疑問が残る。これについて、筆者らが自治体などに行った聞き取り調査では、畜産農家にて堆肥化された家畜排せつ物は、ほとんどが自家や近隣の田畑などに施されていることが分かった。この場合、たとえ堆肥化の過程で窒素量の減少が起こったにせよ、大部分が当該地域に負荷されることに変わりはない。したがって、家畜排せつ物については、処理、未処理に関わらず、最終的に当該地域へ負荷される窒素量を見極め評価すべきである。また、農林業センサデータ解析では、田畑への施肥に由来する窒素負荷を基準施肥量から計算したが、自家の家畜排せつ物由来の堆肥等の量はそこには含まれない。よって、施肥による窒素負荷量推定にあたっては、堆肥などの使用状況を鑑みた上で評価する必要がある。

熊本市域は熊本県の都市機能の中心を担うと同時

に、果樹や畜産業など農業の重要拠点でもある。一方、水資源の確保と維持が世界的な問題になってきている現在、豊富で良好な水質を有する地下水は、まさに貴重な戦略資源の一つといえる。本地域の地下水は、水田や畑作地帯が重要な涵養域になっていることなど、その量と質がともに農業と深く結びついていることが特徴であるが、それは逆に地下水への人為的な関与が比較的容易であるともいえる。したがって、NO₃-N 汚染の問題を含め、将来的な地下水資源の保全と維持にあたっては、水環境保全のみの観点にとどまらず、農業との協調、共生を踏まえた上で調査研究や対策技術、マネージメントの構築が必要であろう。とくに畜産排せつ物による窒素負荷については、たとえ堆肥化されたとしても特定地域に負荷が集中する限り、事態の改善は難しいことが分かった。これを解決するには、排水処理などの事後処理、要素技術による対応だけでなく、例えば堆肥の流通システムを構築し分散させる、場合によっては焼却する。また廃水についても下水道などとの連携を模索するなどといった、広域的で異分野融合型の政策マネージメントにもとづく、行政界を超えた取り組みの一層の強化が不可欠と考えられる。

4. まとめ

本研究では、広域地下水流域である熊本都市域における地下水の NO₃-N 汚染実態を明らかにするとともに、窒素負荷要因の解明を試みた。得られた結論を示す。

1) 本地域では、NO₃-N 濃度が 4 mg·L⁻¹ を超える地下水が多く、10 mg·L⁻¹ を超えるものもあった。また、ほとんどの地下水で、過去 10~30 年間にわたる NO₃-N 濃度の上昇が認められた。

2) 農林業センサスデータから、施肥や家畜からの窒素排出量を推定した結果、近年における家畜排せつ物による窒素負荷の増加傾向が明らかとなり、そのトレンドは地下水涵養域や上流域の地下水 NO₃-N 濃度の上昇傾向に合致することが分かった。

3) δ¹⁵N 分析の結果、多くの地下水は高い δ¹⁵N を示し、とくに NO₃-N 濃度の高い地下水や地下水涵養域、上流域の地下水で δ¹⁵N が高い傾向が見られ、家畜排せつ物や堆肥などの有機態窒素が NO₃-N の主な窒素源であることが分かった。

4) GIS を活用した農林業センサスデータ解析と安定同位体分析の結果から、熊本都市域地下水における NO₃-N の主な負荷要因は家畜排せつ物や堆肥などの有機態窒素であるとの結論を得た。

謝 辞

本研究を遂行する上で、熊本都市域市町村の水道事業関係各位、および水環境保全行政関係各位には多大なる

ご協力を賜りました。ここに記して深く感謝申し上げます。また、本研究の一部は、熊本大学政策創造研究教育センタープロジェクト研究助成、および(財)国土技術研究センターの平成 21 年度研究開発助成を受けて行われました。ここに記して謝意をあらわします。

(原稿受付 2010 年 7 月 22 日)

(原稿受理 2010 年 11 月 1 日)

参 考 文 献

- 1) 熊本県, 熊本市 (2005) 熊本地域地下水保全対策調査報告書, 86pp., 熊本市, 熊本.
- 2) 津留靖尚, 赤星博興, 宮本裕美 (2006) 熊本市における地下水中の硝酸性窒素について, 熊本市環境総合研究所報, **14**, 59-68.
- 3) 小島貞夫 (1985)「おいしい水の探求」, pp.60-61, 日本放送出版協会, 東京.
- 4) 川越保徳, 岩佐康弘, 湯之上勉, 前田香織, 富家和男, 柿本竜治 (2009) 熊本市飲用地下水水質の特徴とおいしい水としての評価に関する考察, 水環境学会誌, **32**, 383-388.
- 5) 熊本市水道局 (2008) 平成 19 年度水質試験年報 (第 20 集), 熊本市水道局, 246pp., 熊本市, 熊本.
- 6) 小笹康人 (2004) 熊本県における地下水質の地域特性 (第 2 報) メッシュ地図による硝酸性窒素濃度の視覚化, 熊本県保健環境科学研究所報, **34**, 44-49.
- 7) 熊本市 (2009) 第二次硝酸性窒素削減計画, 59pp., 熊本市, 熊本.
- 8) 廣畑正章, 小笹康人, 榮田智志, 藤田一城, 永村哲也, 松下裕, 松岡良三 (2000) 熊本県にみられた硝酸性窒素による地下水汚染, 用水と廃水, **42**, 19-28.
- 9) 熊本県, 熊本市 (1995) 平成 6 年度熊本地域地下水総合調査報告書, 122pp., 熊本市, 熊本.
- 10) Ichikawa, T., Naitoh, T. and Hoshida, Y. (1995) Observation and water balance of flow rate in springs of an urban area, Bulletin of School of Engineering, Kyushu Tokai University, **21**, 143-151.
- 11) 農林水産省ホームページ (2000) 熊本県農作物施肥基準, <http://www.maff.go.jp/sehikijun/08kyuusyu/0843kumamoto/084301sehizantei/08430100contents.html> (2010 年 7 月現在).
- 12) 徐開欽, 全恵玉, 須藤隆一 (1997) 畜舎廃水の性状と原単位, 用水と廃水, **39** (12), 13-21.
- 13) 環境省水環境部地下水・地盤環境室 (2005)「硝酸性窒素による地下水汚染対策の手引」, 公害研究対策センター, 359pp., 東京.
- 14) Tomiie, K., Iwasa, Y., Maeda, K., Otuzuki, M., Yunoue, T., Kakimoto, R. and Kawagoshi, Y. (2009) Contamination by nitrate-nitrogen in Kumamoto City, *Journal of Water and Environment Technology*, **7**, 19-28.
- 15) 廣畑昌章, 小笹康人, 松崎達哉, 藤田一城, 松岡良三, 渡辺征紀 (1999) 熊本県 U 町の硝酸性窒素による地下水汚染機構, 地下水学会誌, **41**, 291-306.
- 16) Showers, W. J., Genna, B., Mcdade, T., Bolich, R. and Fountain J. C. (2008) Nitrate contamination in groundwater on an urbanized dairy farm, *Environmental Science and Technology*, **9**, 4683-4688.
- 17) Shomara, B., Osenbrückb, K. and Yahya, A. (2008) Elevated nitrate levels in the groundwater of the Gaza Strip: Distribution and sources, *Science of the Total Environment*, **398**, 164-174.
- 18) 中西康博 (1995) δ¹⁵N 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.
- 19) 近藤洋正, 田瀬則雄, 平田健正 (1997) 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, **39**, 1-15.

[論文要旨]

熊本市とその近隣市町村からなる熊本都市域は、1,000 km²を超える面積を有し、100万人市民の飲用水のすべてを地下水で賄う世界的にも珍しい広大な地下水流域であるが、近年、硝酸性窒素 (NO₃-N) による水質汚染が懸念されている。そこで本研究では、NO₃-N 汚染の実態と窒素負荷要因の解明を目的に調査研究を行った。本都市域では、NO₃-N 濃度が 4 mg・L⁻¹ を超える地下水が多くみられ、10 mg・L⁻¹ を超えるものもあった。また、ほとんどの地下水で NO₃-N 濃度の上昇が認められた。地理情報システム (GIS) を用いた農林業センサスデータ解析から、地下水流域で家畜排せつ物からの窒素負荷が近年著しく増加していた可能性が示され、窒素安定同位体 ($\delta^{15}\text{N}$) 分析より、主な窒素源は有機態窒素であることが分かった。以上より、本都市域での主な窒素負荷要因は家畜排せつ物や堆肥等の有機態窒素であると結論した。

キーワード：地下水汚染；硝酸性窒素；GIS；農林業センサス；窒素安定同位体比 ($\delta^{15}\text{N}$)