短 報 [Note]

沖縄島米軍中部訓練場内における河川水の化学的研究

伊敷 牧¹⁾・渡久山 章¹⁾

Chemical study of river waters in U.S. military central training area of Okinawa Island

Maki ISHIKI¹⁾ and Akira TOKUYAMA¹⁾

Abstract

Many U.S. military bases are located in the central and northern parts of Okinawa Island. A study on the river waters in such military training areas has been difficult to conduct until now. However, through the Legacy Project with University of Hawaii, the authors had the opportunity to collect water samples from the central training area (CTA) in the island. The CTA is uniquely situated to gathering data on the chemical composition of unpolluted river waters, since the forest in the CTA has been designated to supplying timber and water. The purpose of the present study is to determine the chemical characteristics of river waters in the CTA.

Our results showed that the chemical composition of river water in the CTA was intermediate between those of the groundwaters in limestone areas and the river waters in silicate rock areas of Okinawa Island. This finding reflects the overall geology of the CTA and of Okinawa Island. The total concentration of chemical components supplied from the ocean as sea spray was 2.73 meq L^{-1} , which was about 7 times larger than that of average river water throughout Japan, and accounted for over 50% of the total concentration in the rivers. The total amount of rocks chemically weathered in the CTA was almost the same as that in the northern training area (NTA) of the U.S. military. However, the amount of dissolved CaCO_3 differed between the two areas due to the dissolution of limestone in the CTA. The fact that the amount of suspended sediment in the effluent was larger than the formed clay minerals in the CTA may cause serious environmental problems by eroding soil from the forest and polluting the river and ocean by the weathered soil such as red soils.

Keywords: U.S. military base, river water, chemical composition, sea spray, chemical weathering, Okinawa Island.

摘 要

沖縄島に置かれた米軍施設、中部訓練場（CTA）内河川水は水質汚濁が少なく、化学組成に関する基礎データの収集に適している。本研究では、CTA内河川水の溶存成分濃度を測定し、沖縄島の他地域と比較することによって、その化学像を明らかにすることを目的とした。

その結果、CTA内の河川水は沖縄島北部ケイ酸塩岩石地域（北部訓練場、NTA）の河川水と、沖縄島南部石灰岩地域の地下水との中間的な化学組成を持つことが明らかになった。これは沖縄島の地質を反

¹⁾ 琉球大学大学院理工学研究科 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町千原 1 番地 Graduate School of Engineering and Science, University of the Ryukyus, 1, Senbaru, Nishihara-cho, Okinawa 903-0213, Japan (渡久山 章 E-mail : atoku@sci.u-ryukyu.ac.jp)

映した結果だと考えられる。全溶存成分濃度 (4.75 meq L^{-1}) のうち、海塩起源が平均 2.73 meq L^{-1} であった。これは日本の河川水におけるその濃度の約 7 倍であった。ほとんどの河川で海塩起源濃度が全濃度の 50% 以上を占めていた。岩石の化学的風化反応式に基づいて計算した風化量は CTA と NTA でほぼ同じくらいであったが、そのうちの CaCO_3 溶解量には差があった。CTA 内河川流域に存在する石灰岩の影響があることを示している。CTA 内河川では、懸濁物流出量 > 粘土生成量の関係がみられ、森林土壌の損失やそれによる河川・海洋の汚染も問題である。

キーワード：米軍基地・河川水・化学組成・海洋の寄与・化学的風化・沖縄島

(2006 年 3 月 15 日受付；2006 年 11 月 1 日受理)

はじめに

北緯 $24^\circ 02' - 27^\circ 52'$ 、東経 $122^\circ 55' - 131^\circ 19'$ に位置する沖縄地方は琉球列島の中にあつて、東西約 1000 km、南北約 400 km の広い海域に点々と連なる大小 160 余の島々からなっている。それらの中で沖縄島は最大で 1182 km^2 である。沖縄島は地形・地質の特徴から A：北部地域、B：本部地域、C：南部地域に分けられる（林・木崎, 1985; 前門, 1998）(Fig. 1)。島の気候は亜熱帯

海洋性気候で、年平均気温は 22.3°C 、年平均降水量は 2118 mm である（沖縄気象台, 1998）。

このような沖縄島には米軍基地が数多く存在し、島面積の 19.3% を占めている。米軍専用施設では、全国の 75% が沖縄県に集中している。それらの中で北部地域には北部訓練場（以下 NTA）と呼ばれる県内最大の演習場と、中部訓練場（以下 CTA）と呼ばれる米軍基地が置かれている（沖縄県総務部知事公室基地対策室, 1998）(Fig. 1)。

Fig. 1. Location of U.S. military bases and rivers in the central training area (CTA) of Okinawa Island.

(○ : Meteorological observatories. ①—⑧ : Rivers in the CTA. ■ : U.S. military bases. : Boundary of geology. A: Hokubu area. B: Motobu area. C: Nanbu area)

図 1. 沖縄島における米軍基地と中部訓練場内における河川の位置。

これまで沖縄島の陸水の化学組成に関する研究は、兼島（1965）、渡久山（1972, 1981a, b）、遠山（1981 a, b）、野間（1989）らによって報告されている。NTA 内の陸水については東田・渡久山（1999）、東田ら（2001）によって報告されているが、CTA 内の陸水については東田・渡久山（1999）によるわずかな試料についての報告のみがある。軍事訓練場内にある河川の研究を行うことは容易ではないが、今回ハワイ大学との共同研究（レガシープロジェクト）に参加することでその機会が得られた。調査対象とした CTA 区域一帯は、沖縄島有数の森林地帯となっており、木材等生産、水源涵養林としての機能を果たしている。CTA 内は訓練地区と居住地区に分けられており（沖縄県総務部知事公室基地対策室、1998）、今回対象とした河川は上部山地側に位置する訓練地区であった。そのため水質汚濁は少なく、同地域の河川水質に関する基礎データを収集するには適当である。本研究では CTA 内河川水の化学成分濃度を測定し、他の地域とも比較して、CTA 内河川水の化学像を明らかにすることを目的とした。

方 法

地形・地質および流域特性

北部地域の主な地形は、島軸北東－南西方向に与那覇岳（503m）を最高とする山岳が連なり、それを囲む丘陵によって構成されている。これらの山地は国頭層群と呼ばれる名護層と嘉陽層から形成されている。名護層は黒色頁岩・千枚岩を主体とする泥質岩からなり、砂岩、片状砂岩、石灰岩、緑色岩を含み、嘉陽層は砂岩を主体として、千枚岩、粘板岩、片状砂岩、礫質砂岩を含んでいる（林・木崎、1985; 前門、1998）。研究対象河川の流域面積と流程を Table 1 に示した。各河川とも、平均深度は 50 cm 程度であった。対象河川は流域面積が小さく、流程が短い典型的な沖縄島の河川であった（遠山、1983）。

採水地点と試料に対する降雨の影響

試料採取地点を Fig. 2 に示した。CTA は主にキャンプハンセン、キャンプシュワブと呼ばれる米軍基地からなる（沖縄県総務部知事公室基地対策室、1998）。試料は 1997 年の 9 月 26 日、10 月 7 日、11 月 6 日および 9 日に 8 つの河川（Figs. 1, 2）から計 36 個採取された。試料は比較的清澈であったが、No. 19－22 の久志大川はダム建設工事の最中で、樹木の伐採が進行している状況

Table 1. Watershed characteristics of the rivers.

表 1. 試料採取河川の流域特性.

	Drainage area	Length
	km ²	km
Kankawa	2.99	1.92
Kisenbaru	2.39	1.12
Inbugawa	0.574	1.96
Kushiokawa	7.92	7.36
Akamagawa	1.25	2.39
Shikazagawa	1.60	3.44
Kushiokawashiryu	5.01	3.48
Shimonokawa	4.12	4.12

下での採水であった。

CTA に近い金武観測所によると 1997 年の平均気温は 22.6℃（平年値 22.3℃）、降水量は 1753 mm で、降水量は平年値（1853 mm）よりも少なかった（沖縄気象台、1998）。試料採取期間（9－11 月）の降水量は 541 mm で、平年値（960 mm）よりも少なかった。試料採取日 1 週間前から採取日までの降水量は、9 月 26 日と 11 月 9 日には 0 であった。10 月 7 日には 6 日前に 52 mm、5 日前に 12 mm の降雨があった。11 月 6 日には 7 日前に 16 mm の降雨があった。しかし、沖縄では 63 mm の降雨があっても、25－30 時間後には通常流量に戻ると報告されている（遠山、1983）ので、今回の試料に対する降雨の影響は考えなくてよいと思われる。

採水と測定方法

試料は河川中央部で 10 cm 以浅から直接 1 L ポリエチレンビンに採取された。現場で水温を測定し、溶存酸素の固定を行なった。試料を実験室に持ち帰り、電気伝導度を伝導度計（電気化学計器株式会社 MODEL PK-5）、pH をガラス電極 pH メーター（東亜電波工業株式会社 MH-10 型）で測定後、0.45 μm メンブランフィルターでろ過した。ろ過後の試料について、BCP（ブロモクレゾールパープル）を指示薬とする 0.02N HCl 滴定法（終点の pH は 5.2）でアルカリ度を測定した（三宅・北野、1964）。固定した溶存酸素をウィンクラー法で測定し、NH₄⁺をインドフェノール青法、NO₂⁻をジアゾ化法、PO₄³⁻をモリブデン青法で測定した（日本海洋学会、1970）。以上の測定及び前処理は、採水当日に行なった。陽イオン（Na⁺、K⁺、Ca²⁺ および Mg²⁺）と溶存ケイ酸測定用試料には、6N HCl を 1% の割合で加え、陰イオン（Cl⁻、SO₄²⁻ および NO₃⁻）測定用には何も加

Fig. 2. Map showing sampling points in the CTA. (①—⑧ : Same rivers shown in Fig. 1)

図2. 中部訓練場内の試料採集地点.

えずそれぞれ4℃で保存した。試料採取日から3ヵ月以内に、Na⁺, K⁺を炎光光度法、Ca²⁺, Mg²⁺を原子吸光法（日本ジャーレル・アッシュ社製原子吸光炎光分光分析装置 AA-782 型）で測定し（日本分析化学会北海道支部, 1997）、陰イオンはイオンクロマトグラフ法（Dionex 社製イオンクロマト測定装置）で測定した。溶存ケイ酸も3ヵ月以内にモリブデン青法で測定した（Parsons et al., 1989）。比色計は平間式光電比色計 4C 型を用いた。

岩石の化学的風化量および粘土生成量の計算

試料の化学成分濃度と北野（1973）による計算方法を用いて、岩石の化学的風化量（ケイ酸塩岩石の風化量+CaCO₃溶解量）および粘土生成量を求めた。計算には次の（1）－（5）の風化反応式を使用した（Garrels and Mackenzie, 1967; 例えば北野, 1973 等）。反応に用いた鉱物は、東田ら（2001）、渡久山ら（2003）を参考にした。

結 果

分析結果を Table 2 に示した。測定の精度を検討した結果、89%の試料が適正範囲内にあった（日本分析化学会北海道支部, 1997）。全陰イオン（x）と全陽イオン（y）の当量関係は $y = -0.162 + 1.04x$ （R（相関係数）= 0.988）とほぼ 1 対 1 の関係が得られたので、以下の議論には

すべての試料の分析結果を用いた。なお河川水の pH は 6.37 – 7.78 の範囲にあった（Table 2）ので、アルカリ度は HCO_3^- に等しいとした。

河川水の化学組成

当量濃度をもとにした Langelier-Ludwig ダイアグラム（Fig. 3）において CTA の河川水は、アルカリ非炭酸塩型からアルカリ土類炭酸塩型に分布した。アルカリ非炭酸塩型に分類された伊武部川は Na⁺ + K⁺ が 58 – 75%, Cl⁻ + SO₄²⁻ が 66 – 85% であった。一方、アルカリ土類炭酸塩型に分類された喜瀬武原は Ca²⁺ + Mg²⁺ が 43 – 69%, HCO₃⁻ は 41 – 67% の範囲にあった。これらの中間型には、久志大川、下の川が位置した。さらに、沖縄島北部のケイ酸塩岩石主体の地域（東田・渡久山, 1999）と、沖縄島南部の石灰岩主体と泥灰岩主体の地域（江本, 未発表）、および琉球諸島の 1 つでほとんど石灰岩だけから成る宮古島（兼島ら, 1979）を加えて比較した（Fig. 4）。アルカリ非炭酸塩型には北部地域の陸水が、アルカリ土類炭酸塩型には南部地域と宮古島の陸水が分布した。CTA 内の試料はその中間に位置した。このことは、CTA が沖縄島北部と南部の中間に位置し、そこでは両地域に特徴的な岩石が出現していることを示している。

CTA 内陸水の電気伝導度は、21.0 – 46.3 mS m⁻¹（Table 2）であるのに対し、ケイ酸塩岩石地域では 7.6 – 19.8 mS m⁻¹（東田・渡久山, 1999）、石灰岩地域では 41.0 – 85.5 mS m⁻¹、泥灰岩地域では 46.0 – 165.5 mS m⁻¹（江本, 未発表）であった。これらの値からも CTA における河川水の化学成分濃度が北部地域と南部地域の間にあるといえる。

岩石の化学的風化量と粘土生成量

岩石の化学的風化量と粘土生成量の計算には河川の流出量が必要である。ここでは流出量を降水量から見積もった。CTA における降水量としては、前述の金武観測所の値（1753 mm）を用いた。沖縄島における蒸発散量と河川流出量は、藤枝ら（1995）によってそれぞれ 50% とされている。従って、河川流出量は 877 mm に相当する。この流出量を各河川に適用し、化学的風化量および粘土生成量を計算した（Table 3）。なおここでの計算は、化学成分濃度が減少する高水流出時の濃度を考慮していないため、計算結果は最大の見積もりとなっている。

その結果、ケイ酸塩岩石風化量は、志嘉座川 > 喜瀬武原 > 加武川 > 赤間川 > 伊武部川 > 下の川 > 久志大川支流 > 久志大川の順に多かった。粘土生成量は、ケイ酸

Table 2. Chemical composition of river waters in the central training area (CTA) of Okinawa Island.

表 2. 沖縄島中部訓練場内の河川水の化学組成.

No.	River	Date	WT	pH	EC	DO	Na ⁺	K ⁺	Ca ²⁺	Mg ²⁺	Cl ⁻	SO ₄ ²⁻	Alkalinity	Dissolved	NO ₃ ⁻	NH ₄ ⁺	NO ₂ ⁻	PO ₄ ³⁻
			SiO ₂															
1997			°C															
				mS m ⁻¹	mg-O ₂ L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	meq L ⁻¹	mmol L ⁻¹	μ eq L ⁻¹	μ eq L ⁻¹	μ eq L ⁻¹	μ eq L ⁻¹
01	Kankawa	26th Sep.	24.0	7.36	25.6	7.00	1.04	0.022	0.572	0.383	0.924	0.276	0.948	0.548	n.d.	0.24	n.d.	0.02
02			25.0	7.22	24.5	6.92	1.09	0.018	0.341	0.500	1.18	0.123	0.700	0.338	n.d.	0.18	n.d.	n.d.
03			23.5	6.37	22.8	6.21	0.979	0.014	0.164	0.567	0.944	0.297	0.638	0.506	n.d.	0.07	n.d.	0.42
04			24.0	7.35	25.6	7.38	1.05	0.021	0.717	0.353	0.877	0.281	0.936	0.426	6.31	0.16	n.d.	0.54
05			23.8	7.74	27.7	7.72	0.993	0.010	0.984	0.450	0.899	0.223	1.21	0.366	n.d.	0.11	n.d.	0.04
06			25.2	7.59	32.4	6.98	1.26	0.017	0.975	0.566	1.22	0.213	1.45	0.423	6.80	0.25	n.d.	n.d.
07			24.1	7.35	45.9	6.11	2.03	0.031	1.15	0.681	2.44	0.096	1.39	0.313	7.34	0.21	n.d.	n.d.
08			25.2	7.57	29.9	6.26	1.20	0.018	0.781	0.566	1.13	0.158	1.26	0.298	n.d.	0.11	n.d.	n.d.
09	Kisenbaru	7th Oct.	21.0	7.41	32.3	8.02	1.11	0.029	1.02	0.447	1.03	0.161	1.34	0.381	n.d.	0.10	n.d.	n.d.
10			21.8	7.49	30.1	8.07	1.08	0.030	0.992	0.396	1.00	0.181	1.31	0.489	5.17	0.19	n.d.	n.d.
11			23.2	7.30	22.9	7.69	1.03	0.034	0.514	0.284	0.929	0.160	0.774	0.379	n.d.	0.16	n.d.	n.d.
12			21.8	7.61	37.7	8.11	1.19	0.027	1.46	0.547	1.12	0.183	1.99	0.426	n.d.	0.08	n.d.	n.d.
13			21.8	7.78	46.3	7.36	1.27	0.026	2.22	0.712	1.17	0.190	2.78	0.491	9.06	0.09	n.d.	n.d.
14	Inbugawa	7th Oct.	22.2	6.71	37.3	7.23	2.17	0.083	0.195	0.545	2.35	0.191	0.435	0.516	6.47	0.09	n.d.	n.d.
15			22.2	7.19	28.8	8.12	1.26	0.031	0.434	0.479	1.41	0.194	0.638	0.320	6.47	0.15	n.d.	n.d.
16			22.3	7.13	33.0	7.39	1.59	0.052	0.367	0.557	1.67	0.162	0.696	0.356	6.8	0.28	n.d.	n.d.
17			22.6	7.31	29.0	7.63	1.61	0.091	0.159	0.411	1.60	0.140	0.468	0.586	6.08	0.19	n.d.	n.d.
18			24.0	6.87	26.6	6.12	1.27	0.081	0.541	0.427	1.37	0.165	0.774	0.416	6.34	0.28	n.d.	n.d.
19	Kushiokawa	6th Nov.	20.0	7.55	25.8	7.91	1.25	0.018	0.494	0.468	1.24	0.183	0.890	0.458	5.27	0.05	n.d.	1.53
20			19.2	7.77	33.2	8.60	1.10	0.029	0.828	0.524	1.31	0.203	1.20	0.240	7.06	0.13	n.d.	0.52
21			19.2	7.62	32.1	9.29	1.08	0.026	0.701	0.528	1.36	0.189	1.05	0.240	8.85	0.21	n.d.	n.d.
22			19.8	7.67	31.6	9.98	1.12	0.035	0.850	0.438	1.36	0.163	1.12	0.305	10.6	0.29	n.d.	n.d.
23	Akamagawa	6th Nov.	19.4	7.01	30.8	7.38	1.44	0.032	0.396	0.523	1.54	0.192	0.667	0.331	11.6	0.10	0.58	n.d.
24			19.2	7.38	29.8	7.95	1.30	0.029	0.495	0.495	1.39	0.203	0.812	0.411	6.02	0.20	0.58	n.d.
25			20.1	6.98	39.2	1.21	1.51	0.041	1.00	0.861	1.54	0.161	1.60	0.320	n.d.	0.08	0.66	n.d.
26	Shikazagawa	6th Nov.	19.4	6.89	26.2	7.58	1.35	0.027	0.253	0.504	1.29	0.221	0.638	0.408	n.d.	0.12	3.28	n.d.
27			19.0	6.88	26.5	7.60	1.39	0.029	0.226	0.457	1.24	0.226	0.654	0.393	n.d.	0.26	0.81	n.d.
28	Kushiokawa-	9th Nov.	19.3	6.92	26.3	8.57	0.986	0.026	0.602	0.347	0.995	0.173	0.927	0.283	6.75	0.06	n.d.	n.d.
29	shiryu		19.3	7.24	27.4	7.27	0.986	0.026	0.645	0.377	1.02	0.173	0.985	0.275	n.d.	0.15	n.d.	n.d.
30			19.6	6.71	23.8	7.57	1.04	0.029	0.206	0.448	1.26	0.195	0.476	0.301	5.73	0.10	n.d.	n.d.
31			20.2	7.34	22.4	8.24	0.881	0.025	0.436	0.368	0.922	0.192	0.712	0.280	7.35	0.07	n.d.	n.d.
32			20.6	7.53	33.2	6.87	1.00	0.033	1.46	0.462	0.991	0.184	1.90	0.350	n.d.	0.15	n.d.	n.d.
33	Shimonokawa	9th Nov.	19.6	6.85	21.0	8.37	0.788	0.024	0.356	0.233	0.726	0.167	0.601	0.283	n.d.	0.06	n.d.	n.d.
34			20.0	7.38	22.1	8.55	0.814	0.024	0.489	0.312	0.839	0.147	0.733	0.181	n.d.	0.22	n.d.	n.d.
35			20.3	7.48	25.1	8.03	0.874	0.018	0.811	0.333	0.897	0.171	1.03	0.265	n.d.	0.11	n.d.	n.d.
36			19.2	7.63	22.9	8.62	0.807	0.024	0.517	0.275	0.807	0.175	0.778	0.228	n.d.	0.06	n.d.	n.d.

n.d. = not detected

Fig. 3. Langelier-Ludwig diagram of river waters in the CTA of Okinawa Island (meq L⁻¹).

- Kankawa △ Shikazagawa
- ▲ Kisenbaru □ Kushiokawashiryu
- Inbugawa ▢ Shimonokawa
- × Kushiokawa ◇ Seawater (Holland, 1978)
- Akamagawa — Seawater-(Ca²⁺+Mg²⁺)(HCO₃⁻)₂ line

図 3. 中部訓練場内河川水の化学組成 (meq L⁻¹).

塩岩石風化量に比例するので、同様の傾向がみられた。CaCO₃ 溶解量は、喜瀬武原>久志大川>加武川>久志大川支流>赤間川>下の川>伊武部川>志嘉座川となった。

Fig. 4. Langelier-Ludwig diagram of fresh waters in some areas of Okinawa and Miyako Islands (meq L⁻¹).

- CTA in Okinawa Is. (this study)
- NTA in Okinawa Is. (Agata and Tokuyama, 1999)
- Southern part of Okinawa Is. (limestone) (Emoto, in preparation)
- Southern part of Okinawa Is. (marlstone) (Emoto, in preparation)
- △ Miyako Is. (Kaneshima et al., 1979)
- ▢ Seawater (Holland, 1978)
- Seawater - (Ca²⁺+Mg²⁺)(HCO₃⁻)₂ line

図 4. 沖縄島における各地域と宮古島における陸水の化学組成 (meq L⁻¹).

同じ計算を CTA と NTA の基地全体について行なった (Table 3)。NTA は北部地域の広範囲に渡っているので、

Table 3. Estimated amounts of weathered silicate rock, dissolved calcium carbonate and formed clay minerals.

表 3. ケイ酸塩岩石の風化量と CaCO₃ の溶解量および粘土生成量.

	Total area ^a	n ^b	Silicate weathered	CaCO ₃ dissolved	Amounts of chemical weathering ^d	Clay minerals formed	Runoff
	km ²		t km ⁻² y ⁻¹	t km ⁻² y ⁻¹	t km ⁻² y ⁻¹	t km ⁻² y ⁻¹	mm y ⁻¹
Kankawa		8	99	24	123	40	877
Kisenbaru		5	111	44	155	45	877
Inbugawa		5	72	8	80	29	877
Kushiokawa		4	32	26	59	12	877
Akamagawa		3	75	21	96	31	877
Shikazagawa		2	128	0	128	52	877
Kushiokawashiryu		5	51	22	73	20	877
Shimonokawa		4	56	16	72	23	877
NTA in Okinawa Is. ^c	78.3	15	104	8	112	52	1567
			69	6	74	35	1037
CTA in Okinawa Is.	71.8	36	78	20	98	32	877

a: Military Base Affairs Office Executive Office of the Governor, Department of General Affairs
Okinawa Prefectural Government (1998).

b: Number of samples.

c: Based on data from Agata and Tokuyama (1999).

d: Silicate weathered + CaCO₃ dissolved.

降水量は東観測所で測定された 2073 mm と与那覇岳観測所で測定された 3133 mm (沖縄気象台, 1998) の 2 つの値を考慮した。河川流出量はそれぞれの 50% に相当する 1037 mm と 1567 mm として計算した (Table 3)。

NTA での岩石の化学的風化量は $74 - 112 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ と、河川流出量の違いによって約 1.5 倍の差がみられ、CTA (平均 $98 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$) より多い場合と、少ない場合が考えられた。 CaCO_3 の溶解量は両訓練場で約 2 - 3 倍の差がみられ、CTA で石灰岩の影響が大きかった。

考 察

化学種の起源について

北野 (1973) によると河川水中の溶存化学成分の起源として、降水・降下物、岩石・土壌、人間活動および温鉱泉が考えられている。これらのうち CTA 内には、温鉱泉の存在は知られておらず、今回の調査でも見つからなかったもので、その寄与は無視できる。また前述したとおり、試料採取地点である訓練地区は居住地区の上部に位置しており、生活排水の影響はみられなかった。このことは、 NH_4^+ 、 NO_3^- 、 NO_2^- と PO_4^{3-} の値が、都市河川の値 (渡久山・小原, 1983) と比較して低濃度であることからいえる (Table 2)。ところで降水と降下物には、海塩粒子と人為起源の大気エアロゾル、および岩石・土壌の微粒子が含まれる (渡久山, 1981a; Berner and Berner, 1987)。そこで、溶存化学成分の起源としては、海洋、人為起源の大気エアロゾル、および岩石・土壌を検討した。

海洋からの寄与

Na^+ と Cl^- の関係図 (Fig. 5) からほとんどの試料で、海水比を示す線よりも Na^+ が過剰であった。Sakihama and Tokuyama (2005) によると、沖縄島の降水は海塩の影響を受け、 Cl^-/Na^+ 比 (1.165) が、海水比とほぼ一致する。これらのことを考慮すると、Fig. 5 における Na^+ 過剰はクロリンロスの影響ではなく、岩石・土壌からの溶出によるものと考えられる。さらに、渡久山ら (2003) や Vuai et al. (2003) によると、CTA 内に産する砂質千枚岩や酸性赤色土などから溶出してくる Cl^- は岩石・土壌に付着した海塩由来のものである。したがって、試料中の Cl^- を全て海塩起源とし、各成分について海塩起源濃度を次の (6) 式で計算した。

$$M_{(\text{海塩起源})} = (M/\text{Cl}^-)_{(\text{海水比})} \times \text{Cl}^-_{(\text{測定値})} \quad \dots (6)$$

Fig. 5. Relationship between equivalent concentrations of Na^+ and Cl^- .

- Kankawa △ Shikazagawa
- ▲ Kisenbaru □ Kushiokawashiryu
- Inbugawa ▢ Shimonokawa
- × Kushinokawa — Seawater ratio
- Akamagawa

図 5. Na^+ と Cl^- の当量濃度の関係。

ここで $M_{(\text{海塩起源})}$ は試料中の化学種 M の海塩起源濃度、 $(M/\text{Cl}^-)_{(\text{海水比})}$ は海水中的の化学種 M と Cl^- の濃度比、 $\text{Cl}^-_{(\text{測定値})}$ は試料中の Cl^- 濃度を表している。

計算の結果 CTA 内河川水の見塩起源全濃度は、 $1.81 - 3.72 \text{ meq L}^{-1}$ の間にあり、ほとんどの河川で溶存全濃度の 50% 以上 (当量比) が海洋からの寄与を受けていた (Fig. 6)。前述した沖縄島北部地域と南部地域の陸水についても同様の計算を行なった。北部地域では 50% 以上 (当量比) が海塩起源、南部地域では石灰岩および泥灰岩溶出の影響が大きく、20 - 25% 以下 (当量比) であった。日本の河川水の平均値 (小林, 1961) では、海塩起源の全濃度は 0.363 meq L^{-1} となり、その寄与は 20% (当量比) であった。CTA 内における海塩起源の平均濃度は 2.73 meq L^{-1} となり、日本の河川水の平均値より約 7 倍も高かった (Fig. 6)。本州の河川水の Cl^- 濃度は、日本海側では冬の季節風、太平洋側では夏の台風によって高くなる (Tsunogai, 1975)。沖縄島は島幅が最大約 25 km (平均約 12 km, CTA 域は約 8 km)、南北の長さが約 125 km と細長いため、夏は台風、冬は季節

Fig. 6. Concentrations of chemical components originated from ocean, rocks and soils. (Based on data from the following references.

*Agata and Tokuyama (1999) ** Limestone area (Emoto, in preparation) *** Marlstone area (Emoto, in preparation)

****Kobayashi (1961))

図 6. 海塩起源成分と岩石・土壌起源成分濃度.

風の影響を受け、本州の河川水よりも Cl^- 濃度が高く、海塩起源濃度も高くなっていると思われる。

大気エアロゾルからの寄与

本研究で取り上げている主要成分の中では、 Ca^{2+} と SO_4^{2-} が非海塩起源大気エアロゾルの影響を受けていると思われる (Sakihama and Tokuyama, 2005)。このうち、非海塩起源 Ca^{2+} は試料採集地域の岩石・土壌に由来しているので (Sakihama and Tokuyama, 2005), SO_4^{2-} について起源を検討した。CTA 内試料の SO_4^{2-} は平均 0.186 meq L^{-1} 、海塩起源濃度は平均 0.126 meq L^{-1} であった。崎浜 (未発表) によると、2004 年 11 月から 1 年間採集した沖縄島の降水・降下物中 SO_4^{2-} の海塩起源濃度は、平均 0.014 meq L^{-1} 、非海塩起源濃度は、平均 0.028 meq L^{-1} であった。このことは非海塩起源濃度が約 2 倍高いことを示している。それに、 SO_4^{2-} は岩石・土壌からの溶出も少ないこと (北野, 1973) を考慮すると、本研究における非海塩起源 SO_4^{2-} は全て人間活動起源の大気エアロゾルに由来しているといえる。

岩石・土壌からの寄与

(6) 式から求めた海塩起源濃度を、測定値から引いた値を全て岩石・土壌起源とし、その濃度を *M (M は化学種) と表わした。

試料の岩石・土壌起源濃度の平均値は、陽イオンでは

$*\text{Ca}^{2+} (0.630 \text{ meq L}^{-1}) > *\text{Mg}^{2+} (0.229 \text{ meq L}^{-1}) > *\text{Na}^+ (0.151 \text{ meq L}^{-1}) > *\text{K}^+ (0.010 \text{ meq L}^{-1})$, 陰イオンでは $*\text{HCO}_3^- (1.01 \text{ meq L}^{-1})$ であった。 HCO_3^- の場合、海塩による寄与は最大でも 2.3% (No.14) であったが、ここでは正確を期するため岩石・土壌起源濃度を計算して $*\text{HCO}_3^-$ とした。

岩石・土壌起源の主要イオンである $*\text{Ca}^{2+}$ と $*\text{HCO}_3^-$ の関係はほぼ 1:1 であった。このような関係はケイ酸塩岩石、石灰岩どちらの溶出でもみられる (Kitano et al., 1969)。さらに $*\text{Mg}^{2+}$ を加えた関係では、より 1:1 に近い直線関係が得られた (Fig. 7)。Langelier-Ludwig ダイアグラム (Figs. 3, 4) においてアルカリ非炭酸塩型からアルカリ土類炭酸塩型にかけて分布していることから、 Ca^{2+} , Mg^{2+} と HCO_3^- の溶出にはケイ酸塩岩石、石灰岩両方の影響が考えられる。

$*\text{Na}^+$ は溶存 SiO_2 と有意な相関 ($R=0.606$, Fig. 8) がみられたため、ケイ酸塩岩石からの供給が考えられる。渡久山ら (2003) によると、砂質千枚岩の主要鉱物には長石が存在するので、Na 長石と他の鉱物等との反応をもとに本試料水の安定領域を計算した。その結果、Na 長石からカオリナイトが生成する反応と、Na 長石から Na モンモロロナイトが生成する反応が起こっているといえる。他地域の陸水についても同様な計算を行なった結果、同じような風化反応が起こっていることがわかった (Fig. 9)。

渡久山ら (2003) によると、砂質千枚岩の溶出実験の

Fig. 7. Relationships between equivalent concentrations of $^*\text{Ca}^{2+}$ and $^*\text{HCO}_3^-$, and $^*\text{Ca}^{2+} + ^*\text{Mg}^{2+}$ and $^*\text{HCO}_3^-$.
 図 7. $^*\text{Ca}^{2+}$ と $^*\text{HCO}_3^-$, $^*\text{Ca}^{2+} + ^*\text{Mg}^{2+}$ と $^*\text{HCO}_3^-$ の当量濃度の関係.

Fig. 8. Relationship between concentrations of $^*\text{Na}^+$ and dissolved SiO_2 .

図 8. $^*\text{Na}^+$ と溶存ケイ酸濃度の関係.

結果, CO_2 をばっ気した系で $0.015 - 0.61 \text{ meq L}^{-1}$ の K^+ が溶け出してくる。 $^*\text{K}^+$ の供給源として, 岩石が考えられるが, 36 試料中ほとんどの試料 (27 試料) で $^*\text{K}^+$ は $0 - 0.01 \text{ meq L}^{-1}$ の範囲にあった。 K^+ は植物の生長に欠かせない元素 (Xu et al., 1998) であり, 沖縄島有数の森林地帯である CTA 内河川では植物に吸収されて, 濃度が低くなったのではないかとと思われる。

Fig. 9. Mineral stability diagram in some areas of Okinawa and Miyako Islands (at 25°C , 1 atm).

(Na-Feldspar : $\text{NaAlSi}_3\text{O}_8$, Kaoline : $\text{Al}_2\text{Si}_2\text{O}_5$, Na-Montmorillonite : $\text{Na}_{0.33}\text{Al}_{2.33}\text{Si}_{3.67}\text{O}_{10}(\text{OH})$, Gibbsite : $\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$)

○ CTA in Okinawa Is. (this study)

● NTA in Okinawa Is. (Agata and Tokutama, 1999)

□ Southern part of Okinawa Is. (limestone) (Emoto, in preparation)

■ Southern part of Okinawa Is. (marlstone) (Emoto, in preparation)

△ Miyako Is. (Kaneshima et al., 1979)

図 9. 沖縄島における各地域と宮古島における鉱物安定図.

粘土生成量と浮遊懸濁物流出量

CTA 内には米軍の廃弾処理場や、演習の着弾地点等の裸地が広がり、それらの周辺には未舗装道路も広がっている。そのため米軍基地内から河川への土砂流出がみられる(満本, 2002)。そこで、演習の着弾地点である恩納連山を源流とする加武川について、1996 - 1998 年の 3 年間に観測された土壌流出量の一部である、浮遊懸濁物(SS)値(満本ら, 1999)と河川流出量をもとに浮遊懸濁物の流出量を計算し、先に求めた粘土生成量(Table 3)と比較した。その結果、浮遊懸濁物流出量は平均 $74 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ ($21 - 655 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$) となり、粘土生成量 ($40 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$) を上回った。土砂流出の一部でしかない浮遊懸濁物流出量が、粘土生成量よりも多いということは、土壌確保の面からも問題である。

現在沖縄県では民間の農地やその他の開発事業に対して、赤土流出防止条例が適用され(1995 年施行)、土砂流出が改善されつつある。にもかかわらず、米軍基地へは適用されない。今後とも米軍基地内の土砂流出や、それによる河川・海洋汚染という問題は続くと思われる。早急に解決されなければならない課題である。

まとめ

沖縄島 CTA 内河川水の化学組成に関する研究を通して次のことが明らかにされた。

1. CTA 内河川水は、Langelier-Ludwig ダイアグラム上でアルカリ非炭酸塩型からアルカリ土類炭酸塩型にかけて分布した。これは、CTA 内河川水の化学組成が、沖縄島北部のケイ酸塩岩石主体の地域と、南部の石灰岩主体と泥灰岩主体の地域との間にあり、地質上の特性を反映していることを示している。
2. CTA 内河川水の高塩起源全濃度は、 $1.81 - 3.72 \text{ meq L}^{-1}$ で、平均 2.73 meq L^{-1} であった。これは日本の河川水における同種濃度の平均値 0.363 meq L^{-1} よりも約 7 倍高かった。CTA 内ほとんどの河川で溶存成分の 50% 以上が海洋からの寄与を受けていることもわかった。島幅が狭いため夏期も冬期も海洋からの影響が大きいことに起因していると思われる。
3. CTA 内における岩石の化学的風化量は、最大が喜瀬武原流域の $155 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ 、最小は久志大川の $59 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ で、平均は $98 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であった。NTA 内と比較すると、

化学的風化量はほとんど同じであったが、そのうちの CaCO_3 溶解量には差があった。CTA の方が石灰岩の影響を大きく受けているといえる。加武川を例に、計算で求めた粘土生成量と、SS に基づいて計算した浮遊懸濁物流出量を比べると、生成量が $40 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ であるのに対して、流出量は平均 $74 \text{ t km}^{-2} \text{ y}^{-1}$ となり、生成量を上回った。このことは、土壌確保の面からも憂慮すべきである。

謝 辞

本論文の原稿を読んで、適切なコメントを下さいました名古屋大学名誉教授北野康先生、琉球大学理学部准教授新垣雄光先生に厚くお礼申し上げます。査読下さった 2 名の先生方にも深くお礼申し上げます。試料採取等に協力いただいた大学院生 M. K. Maalim さん、本論文の原稿を読んで、適切なコメントを下さいました大学院生崎濱秀明さんをはじめ研究室のメンバーに厚くお礼申し上げます。なお本研究は Legacy Project の援助を受けて行なったものです。ハワイ大学の K. Y. Kaneshiro 教授、琉球大学風樹館の学芸員佐々木健志さんをはじめ、関係してくださった方々に厚くお礼申し上げます。

文 献

- 東田盛善・渡久山章(1999): 沖縄島北部の米軍訓練場の陸水の水質. 工業用水, 485: 2 - 15.
- 東田盛善・佐竹洋・渡久山章(2001): 沖縄島の湧水と河川水の化学的特徴と同位体組成. 地球化学, 35: 27 - 41.
- Berner E. K. and R. A. Berner (1987): The global water cycle: 47-140. Prentice Hall, Inc. U.S.A.
- 藤枝基久・志水俊夫・金城勝・寺園隆一(1995): 沖縄本島の水源地帯における水文環境. 日本林学会誌, 77 (2): 145 - 152.
- Garrels, R. M. and F. T. Mackenzie (1967): Origin of the chemical composition of some springs and lakes. Equilibrium Concepts in Natural Water Systems. American Chemical society: 222-242
- 林大五郎・木崎甲子郎(1985): 沖縄島中・北部, 琉球弧の地質誌. 木崎甲子郎(編): 93 - 106. 沖縄タイムス社. 沖縄.
- Holland H. D., (1978): The chemistry of the oceans. In The chemistry of the atmosphere and oceans.: 153-155, John Wiley and Sons, Inc., U.S.A.

- 兼島清 (1965) : 沖縄の河川および地下水の水質. 工業用水, 81 : 30 - 37.
- 兼島清・平良初男・渡久山章・大森保 (1979) : 琉球諸島の島嶼の水質. 琉球大学理学部紀要, 28 : 79 - 118.
- Kitano Y., S. Kanamori, K. Kato., N. Kanamori, R. Yoshioka, L. I. Knowles, G. W. Kunze and D. W. Hood (1969) : Migration of chemical elements through phases of the atmosphere, hydrosphere and lithosphere in the Juneau Glacier area I. *Geochemical Journal*, 3 : 99-115.
- 北野 康 (1973) : 土木工学と地球化学. 施工技術, 6 (7) : 12 - 24.
- 小林純 (1961) : 日本の河川の平均水質とその特徴に関する研究. 農学研究, 48 : 63-106.
- 前門晃 (1998) : 沖縄本島の土壌と自然. 沖縄の地形・地質, 前門晃・横田昌嗣・喜名景秀・生沢均・渡嘉敷義浩 (共著). : 7 - 88. ペドロジスト懇談会. つくば.
- 満本裕彰・大見謝辰男・比嘉栄三郎・仲宗根一哉 (1999) : 米軍基地を流れる河川の赤土流出状況について. 沖縄県衛生環境研究所報, 33 : 77 - 82.
- 満本裕彰 (2002) : 米軍基地による赤土汚染について. 沖縄県衛生環境研究所報, 35 : 173 - 184.
- 三宅泰雄・北野康 (1964) : 水質化学分析法 : 38 - 42. 地人書館. 東京.
- 日本分析化学会北海道支部 (1997) : 水の分析. 化学同人. 京都.
- 日本海洋学会 (1970) : 海洋観測指針 : 145 - 209. 気象庁編. 東京.
- 野間泰二 (1989) : 島々の地下水. 工業用水, 374 : 32 - 43.
- 沖縄气象台 (1998) : 沖縄の気候解説 (琉球列島の気候風土) : 97 - 110. (財) 日本気象協会沖縄支部. 沖縄.
- 沖縄県総務部知事公室基地対策室 (1998) : 沖縄の米軍基地. 米軍基地の概要. : 沖縄広報センター. 沖縄.
- Parsons T. R., Y. Maita and C. M. Lalli (1989) : Nutrients. In *A Manual of Chemical and Biological Methods for Sea water Analysis*. Pergamon press: 25-28.
- Sakihama H. and A. Tokuyama (2005) : Effect of typhoon on chemical composition of rainwater in Okinawa Island, Japan. *Atmospheric Environment*, 39: 2879-2888.
- 渡久山章 (1972) : 堆積環境における元素の移動 (3 報) 石灰岩地方の水 (1). 琉球大学理学部紀要 (理学篇), 15 : 81 - 98.
- 渡久山章 (1981a) : 沖縄における陸水の化学的特性と物質循環 I. 工業用水, 271 : 23 - 35.
- 渡久山章 (1981b) : 沖縄における陸水の化学的特性と物質循環 II. 工業用水, 275 : 2 - 15.
- 渡久山章・小原浩 (1983) : 沖縄における都市河川の化学的研究 (I). 工業用水, 299 : 31-40.
- 渡久山章・石山義仁・東昭宏 (2003) : 沖縄島北部河川水の化学組成に対する砂質千枚岩の影響. 工業用水, 538 : 2 - 10.
- 遠山英一 (1981, a) : 沖縄島の河川水質とその起源 (第 1 報). 工業用水, 268 : 13 - 27.
- 遠山英一 (1981, b) : 沖縄島の河川水質とその起源 (第 2 報). 工業用水, 277 : 7 - 14.
- 遠山英一 (1983) : 陸水の溶存化学種が指示する岩石風化量 - 沖縄島泥灰岩地域 -. 陸水学雑誌, 44 (3) : 173-183.
- Tsunogai S. (1975) : Sea salts particles transported to the land. *Tellus*, XX VII (1) : 51-58
- Vuai S. A., M. Ishiki and A. Tokuyama (2003) : Acidification of freshwater by red soil in a subtropical silicate rock area, Okinawa, Japan. *Limnology*, 4: 63-71.
- Xu X., T. Enoki, Y. Tokashiki and E. Hirata (1998) : Litterfall and nutrient returns in evergreen broadleaved forests in northern Okinawa Island. *Sci. Bull. Fac. Agr. Univ. Ryukyus*, 45: 195-208.