特集：陸水－海水相互作用と沿岸環境

原 著 [Original article]

沿岸農業流域における地下水による 硝酸性窒素流出の季節変動特性

齋藤光代¹⁾・小野寺真一²⁾

Characteristics of seasonal NO_3^- -N discharge by groundwater in a coastal agricultural catchment

Mitsuyo SAITO¹⁾ and Shin-ichi ONODERA²⁾

Abstract

The seasonal variation in the nitrate-nitrogen (NO_3^- -N) discharge by groundwater to the sea was evaluated from the monitoring data of hydraulic potential and NO_3^- -N concentrations in the groundwater of a small coastal agricultural catchment. A large variation in the NO_3^- -N concentration ($<0.05 - 5.3 \text{ mg L}^{-1}$) was found in the shallower groundwater of the coastal area. These results suggest that NO_3^- -N attenuation via denitrification influences the seasonal variation in NO_3^- -N concentrations. Furthermore, significant NO_3^- -N attenuation was confirmed in relatively small Darcy flux ($<1.8 \times 10^{-6} \text{ cm/s}$). The estimated NO_3^- -N flux varied ($0.006 - 0.8 \text{ kg d}^{-1}$) with changes in the NO_3^- -N concentration. Annual groundwater discharge is estimated to be 1.7-fold higher than river discharge, while groundwater NO_3^- -N flux accounts for approximately 70% of river flux owing to the attenuation of NO_3^- -N in coastal areas.

Key words: groundwater, NO_3^- -N discharge, seasonal variation, coastal agricultural catchment

摘 要

本研究では、地下水による海洋への硝酸性窒素 (NO_3^- -N) 流出の季節変動特性を明らかにすることを目的とし、瀬戸内海沿岸部に位置する農業流域を対象とし、深度別観測井における水理水頭および地下水中の NO_3^- -N 濃度のモニタリングデータに基づく NO_3^- -N 流出量の評価およびその変動に及ぼす要因についての考察を行った。その結果、沿岸域の浅部地下水における NO_3^- -N 濃度は、 0.05 以下～ 5.3 mgL^{-1} の間で大きく変動しており、この要因として、地下水流速の変化にともない、脱窒による NO_3^- -N 濃度減

¹⁾ 愛媛大学沿岸環境科学研究センター 〒790-8577 松山市文京町 2-5. Center for Marine Environmental Studies, Ehime University, 2-5, Bunkyo-cho, Matsuyama, 790-8577, Japan

²⁾ 広島大学大学院総合科学研究科 〒739-8521 東広島市鏡山 1-7-1. Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, Kagamiyama 1-7-1, Higashi-Hiroshima 739-8521, Japan

(連絡先 齋藤光代 E-mail: misaito@sci.ehime-u.ac.jp)

衰が変化することが強く影響していると示唆された。また、 NO_3^- -N 濃度の減衰は、地下水流速の変化に対応して変動しており、ダルシー流速が $1.8 \times 10^{-6} \text{ cm/s}$ 以下において急激な濃度低下がみられた。また、 NO_3^- -N 濃度の変動にともない、海洋への NO_3^- -N 流出量は、浅部地下水において $0.006 \sim 0.8 \text{ kgd}^{-1}$ と大きく変動していると推定された。その結果、年間総地下水流出量は、河川流出量の 1.7 倍に相当したのに対し、年間 NO_3^- -N 流出量は、沿岸域における濃度減衰の影響を受けることから、河川経由の負荷量の約 7 割であると見積もられた。

キーワード：地下水，硝酸性窒素流出，季節変動，沿岸農業流域

(2008 年 12 月 26 日受付；2009 年 5 月 25 日受理)

はじめに

沿岸海域の富栄養化問題等に関連し、従来から、陸域から海洋への栄養塩負荷の定量化を試みる研究が盛んに行われてきた（例えば、海老瀬、1981；宗宮、1993 など）。また、近年では、河川のみでなく、地下水による栄養塩供給の重要性が指摘されている（Zektser and Loaiciga, 1993；Taniguchi et al., 2002；Tappin, 2002；Burnett et al., 2006）。Zektser and Loaiciga（1993）や Taniguchi et

al.（2002）等によるグローバルスケールでの評価およびレビューによれば、淡水としての海への地下水流出量は河川の 10% 以下程度であるとされているが、栄養塩負荷量は河川の 50% 以上に及ぶ地域もあることが明らかにされている。これは、一般に、地下水中の栄養塩濃度が、河川水と比較して高いことに起因する。特に、栄養塩の一種である硝酸性窒素（ NO_3^- -N）による地下水汚染は、世界各国の農業地域を中心に大きな問題となっており（Burt et al., 1993；Mueller et al., 1995）、近年、日本に

Fig.1. Study area

図 1. 研究地域概要

においても顕在化してきた（鶴巻、1992; 寺尾、2003; 田瀬、2004）。高濃度の窒素を含む地下水の流出は、沿岸海洋環境に対して重要な影響を及ぼしている可能性があり（Capone and Bautista, 1985; Valiela et al., 1992; Paerl, 1997）、この点に着目し、農業地域の地下水による沿岸海域への窒素流出の評価を試みた研究例もある（Martin et al., 2007）。しかしながら、降水量変化や肥料等による窒素負荷量変化にともなう窒素流出の季節変化を明らかにした例は、これまで殆ど無い。

また、窒素流出の評価にあたっては、化学変化等による形態変化を考慮する必要がある。例えば、Slomp and Cappellen (2004) や Onodera et al. (2007) は、沿岸域の地下水流出域において、酸化還元反応により窒素の形態変化が生じることを明らかにしている。その一例が脱窒であり、硝酸 (NO_3^-) が、還元的環境下で、脱窒菌により最終的に窒素ガス (N_2) に還元される。すなわち、この反応により、地下水中の NO_3^- -N 濃度は低下することになる。Howard (1985) は、イギリスの石灰岩地帯の沿岸域において、また、Uchiyama et al. (2000) は、利根川の沿岸部において、海へ向かう地下水流動にともない、脱窒による NO_3^- -N 濃度の減衰が生じていることを明らかにしている。しかしながら、脱窒による濃度減衰が、海への NO_3^- -N 流出量に及ぼす影響は定量的に評価されていない。

よって、本研究では、農業活動の影響を強く受けた瀬戸内海沿岸の果樹園流域において、地下水による海洋への窒素流出の季節変動と、それに及ぼす要因について明らかにすることを目的とした。

方法

対象流域

研究地域は、瀬戸内海の島嶼の一つである広島県尾道市瀬戸田町（生口島）である（Fig.1）。瀬戸内海は、日本における代表的な閉鎖性海域であり、現在も赤潮等の環境問題を抱えている（環境省、2007）。生口島は、総面積が 32.7 km^2 、最高標高が観音山の 472.3 m で、花崗岩を基盤とする。また、年平均気温は 15.6°C で、年平均降水量は 1100 mm と温暖少雨型の気候である。島の主要産業は、みかんや中晩柑等の柑橘栽培であり、果樹園面積が島の約 40% を占める（池上・中越、1995）。

調査の対象としたのは、生口島の南西部の宮原地区に位置する河川流域である（Fig.1b）。試験流域の基盤は主に花崗岩からなり、河川の流下距離は 1.8 km で、最

高標高は 396 m であり、総流域面積は 44 ha で、そのうちの 45% がみかんや柑橘類などの果樹園で覆われており、主に年間3回（春肥・夏肥・秋肥）の施肥が行われている。また、急勾配な山地流域地形を呈しており、沿岸域の地形勾配は約 $1/50$ で、中流域から下流側には明瞭な扇状地が形成されている。この部分においては、河川水面の標高が地下水面標高よりも高くなっており、結果として河川は失水し、地下水を涵養する傾向を示す（齋藤ほか、2005）。また、果樹園の多くはこの付近（標高 $5 \text{ m} \sim 100 \text{ m}$ の範囲）に集中的に分布する。Fig.2 に、Fig.1c 中の地点 A、B における地表面から深度 30 m までの地質柱状図を示す。2 地点間で若干の違いはみられるものの、概ね5つの異なる地層から成り、表層～深度約 2 m に砂質土層が、約 $2 \text{ m} \sim 14 \text{ m}$ に粘土質土を含む砂礫層が、約 $13 \text{ m} \sim 17 \text{ m}$ に花崗岩の風化土層が、約 $17 \text{ m} \sim 30 \text{ m}$ に花崗岩の風化軟岩がそれぞれ分布しており、約 30 m 付近が風化層と基盤岩層との境界になっている。また、どちらの地点においても、地表面から深度 30 m まで明瞭な難透水層は見受けられないことから、帯水層は主に一層であると考えられる。

Fig.2. Geological structure of the aquifer (a: Observation borehole A, b: Observation borehole B)

図2. 帯水層の地質構造 (a: 観測井 A, b: 観測井 B)

現地調査および水質分析

Fig.1c に、試験流域の土地利用分布および地下水試料の採取地点を示す。また、サンプリング地点名、深度、海岸線からの距離、観測期間および観測頻度を、Table 1 に示す。現地調査は、2006 年 1 月から 2008 年 4 月にかけて行い、中流域から下流域に分布する深度約 2 ～ 12 m の掘抜き井戸（浅井戸）5 箇所および深度約 30 m のボーリング揚水井戸（深井戸）1 箇所においては、約 3 ヶ月間隔で地下水位の測定を行うとともに、真空ポンプとビニールチューブを用いて採水を行った。また、中流域および下流域にそれぞれ位置する浅井戸 2 箇所（SWM, SWD; Fig.1c）においては、2006 年 1 月～2007 年 3 月までの期間、自記記録式水位センサー（HOBO U20 Water level logger; Onset Corporation）を設置し、地下水面の変動を 10 分間隔でモニターした。さらに、既設の揚水ポンプによる地下水の採水を一週間おきに行った。また、海岸線から約 350m 内陸側の地点 A（Fig.1c）においては、深度 15m と 30m、海岸線から約 200m 内陸側の地点 B においては、深度 5m、15m、30m の観測井をそれぞれ設置し、2007 年 4 月～2008 年 4 月までの期間、自記記録式水位センサーを用い、地下水面の変動を 10 分間隔でモニターするとともに、約 3 ヶ月間隔で採水を行った。観測井には、いずれも内径 5 cm の中空の塩化ビニルパイプを用い、3m の観測井には深度 2.5 ～ 3m までの 50cm の区間に、15m および 30m の観測井には、それぞれ深度 14 ～ 15m および深度 29 ～ 30m の 1m の区間にスクリーンを設置している。

採取した試料は、実験室に持ち帰り、0.2 μ m セルロースエステルメンブランフィルターを用いて濾過した後

に塩化物イオン（Cl⁻）および硝酸性窒素（NO₃⁻-N）濃度をイオンクロマトグラフィー（HIC-NS, SHIMADZU）により定量した。なお、NO₃⁻-N 濃度の定量下限は約 0.05mgL⁻¹ である。

 地下水流出量および NO₃⁻-N 流出量の推定

地下水流出量（Q）は、(1) 式に示すダルシー式（Darcy, 1856）で求められた比流束（q）と、(2) 式に示す地下水の通過断面積（A）との積により推定した。

$$q = -K(\Delta h/L) \quad (1)$$

$$Q = qA \quad (2)$$

ここで、K は透水係数、A は地下水の通過断面積、 Δh は二地点間の水理水頭差、L は二地点間の距離を示す。地質情報（Fig.2）に基づき、帯水層を、表層～深度約 9m の S 層（砂礫層）、9 ～ 17m の I 層（風化土層）、17 ～ 30m の D 層（風化軟岩層）の 3 層に分けて評価を行った。但し、S 層については、SWM ～ SWD 間の地下水面の深さから、平均的な不飽和帯の厚さを約 1.5m とし、帯水層厚を約 7.5 ～ 8.5m とした。また、流域幅は地形図から推定し、280 m とし、帯水層の厚さととの積から地下水の通過断面積 A を求めた。透水係数は、室内透水試験および現場揚水試験により推定された飽和透水係数（岡田、2006）を用い、S 層、I 層および D 層について、それぞれ 1.7×10^{-3} 、 6.6×10^{-3} 、 7.5×10^{-4} cm/s とした。また、動水勾配については、S 層を中流域の SWM から下流域の SWD 間で、I 層および D 層を、地点 A と B の

Table 1. 地下水採取地点および観測期間

表 1 Groundwater sampling site and observation period

Site name	Type	Depth (m)	Distance from the coastal line (m)	Observation period (*monitoring period)	Sampling frequency (*monitoring period)
SW1	Dug well	12.3	642	Jan.2006 - Apr.2008	4 times a year
SW2	Dug well	3.7	330	Jan.2006 - Apr.2008	4 times a year
SW3	Dug well	3.1	110	Jan.2006 - Apr.2008	4 times a year
SWM	Dug well	4.1	518	Jan.2006 - Apr.2008 (*Jan.2006 - Mar.2007)	4 times a year (*once a week)
SWD	Dug well	2.5	200	Jan.2006 - Apr.2008 (*Jan.2006 - Mar.2007)	4 times a year (*once a week)
DB1	Production borehole	30	683	Jan.2006 - Apr.2008	4 times a year
A	Observation boreholes	15, 30	350	Feb.2007- Apr.2008 (*Apr.2007 - Apr.2008)	4 times a year
B	Observation boreholes	3, 15, 30	210	Feb.2007- Apr.2008 (*Apr.2007 - Apr.2008)	4 times a year

Fig.3. Distributions of hydraulic potential (a) and NO_3^- -N concentration (b) at the transect line図3. Transect line における水理水頭 (a) および NO_3^- -N 濃度 (b) の分布

深度 15m および 30m の観測井間で、10 分間隔水位データの一週間移動平均値から算出した。また、Fig.2 の地質柱状図より、地表面から約 30m より深い部分には、風化層と比較して非常に透水性の低い、基盤岩層が存在していると考えられるため、地下水は、D 層よりも深部に浸透しないと仮定し、各層 (S, I, D) の地下水流出量 (Q_s, Q_i, Q_d) の合計を、海への流出量と仮定した。

また、地下水流出にともなう海洋への窒素流出量 (F_N) は、以下のように、各層の地下水流出量と地下水中の NO_3^- -N 濃度 (C_s, C_i, C_d) との積算により求めた。

$$F_N = Q_s C_s + Q_i C_i + Q_d C_d \quad (3)$$

ここで、S 層における NO_3^- -N 濃度は、下流域の SWD

において一週間毎に観測された濃度を用い、I 層および D 層については、地点 B の深度 15m と 30m の観測井における年間 4 回の観測結果の平均値を用いた。

結 果

水理水頭および NO_3^- -N 濃度の空間分布

2008 年 1 月の観測値に基づいて作成した、Fig.1c 中の Transect line における、鉛直縦断面での水理水頭分布を Fig.3a に示す。なお、本稿においては、水理水頭を標高値で示している。これらの結果から、深度の違いに関わらず、全体的に山から海へ向かう地下水流動が確認できる。

また、Fig.3b に、地下水の NO_3^- -N 濃度の分布を示す。

Fig. 4. Annual variations in precipitation (a) and hydraulic head in the boreholes A (15m, 30m) (b) and the boreholes B (3m, 15m, 30m) (c)

図4. 降水量 (a) および地点 A (b) および 地点 B (c) の深度別観測井における水理水頭の年間変動

この結果から、鉛直方向での濃度の違いと比較して、水平方向への濃度変化が大きいことが確認でき、海岸線から約 500~700m 内陸側においては、浅部および深部地下水ともに、環境基準値である 10 mgL^{-1} の約 2 倍に相当する 20 mgL^{-1} 以上の高濃度を示すが、地下水流動にともない、下流側へ向かって徐々に濃度は減衰し、海岸線から約 200m 内陸側の地点 B においては、 5 mgL^{-1} 以下となっている。また、地点 B の深度 15m の観測井では、深度 3m および 30m と比較して高い濃度が検出された。

水理水頭の季節変動

Fig.4 に、2007 年 3 月～2008 年 4 月の期間での降水量 (a) および Fig.1c 中の地点 A (b) および B (c) における深度別観測井の水理水頭の季節変化を示す。ここでの降水量は、生口島の林雨量観測所における日降水量データであり、この地点における 2007 年の月降水量変化は、試験流域において観測した値とほぼ対応していたため、長期データとして用いた。水理水頭変化は、一週間の移動平均値で示している。水理水頭は、地点 A および地点 B ともに、全ての深度において、概ね降水量の変動に対応して変化しており、7 月上旬から降水量の増加に

Fig. 5. Annual variations in precipitation (a), hydraulic head in the SWM (b) and the SWD (c), Cl^- and NO_3^- -N concentrations in groundwater of the SWM (d) and the SWD (e)

図5. 降水量 (a)、水理水頭 (b: SWM, c: SWD) および Cl^- 濃度および NO_3^- -N 濃度 (d: SWM, e: SWD) の年間変動

ともない急激に上昇し、7 月中旬に最も高くなっている。各深度間で比較すると、地点 A では、深度 15m において、30m よりも常に高くなっており、下向きの流動方向を示していると考えられる。一方、地点 B においては、深度 15m の水理水頭が最も高く、深度 30m において最も低くなっている。この結果から、深度 15m と 3m の間では上向きの、深度 15m と 30m の間では下向きの流動方向を示していると考えられる。また、地点 B においては、より内陸側の地点 A と比較して、全体的に水理水頭の季節変動幅が小さく、降水量変化に対する応答も小さい傾向を示す。

Fig.5 に、2006 年 1 月～2007 年 4 月の期間での降水量

Fig. 6. Relation between the hydraulic head and Cl^- and NO_3^- -N concentration (a: SWM, b: SWD)図 6. 水理水頭と地下水中の Cl^- 濃度および NO_3^- -N 濃度との関係 (a: SWM, b: SWD)

(a), 中流域および下流域に位置する掘抜き井戸 SWM(b) および SWD (c) (Fig.1c) における水理水頭の変化を一週間の移動平均値で示す。ここで用いた降水量は、試験地である生口島の隣の島である、尾道市因島雨量観測所における日降水量データであり、Fig.4a で示した生口島の林観測所と同様に、2007 年の月降水量変化が、試験流域における観測値とほぼ対応していたため用いた。水理水頭変化は、中流域の SWM および下流域の SWD とともに、概ね降水量変化との対応が確認でき、SWM において 14.4～15.3m の間で推移しており、変動幅は約 0.9m、SWD では 1.4～2.2m の間で推移しており、変動幅は約 0.8m である。また、両地点ともに 2006 年 4 月～8 月にかけて最も高くなる傾向を示す。

NO_3^- -N 濃度の季節変動

Fig.3b において、2008 年 1 月における地下水流動にともない浅部および深部地下水の NO_3^- -N 濃度が急激に低下することを述べたが、同様の傾向は、年間を通してみられ、沿岸部においては、中流域の濃度の 1/3 以下にまで低下することが確認された。また、Fig.5 に、浅井戸 SWM(d) および SWD(e) における地下水の Cl^- および NO_3^- -N 濃度の年間変動を示す。中流域の SWM においては、 Cl^- 濃度は 19～25 mgL^{-1} 、 NO_3^- -N 濃度は 16～33 mgL^{-1} の間で変動しており、ともに降水量の増加 (a) にともない低下する傾向を示す。一方、下流域の SWD では、 Cl^- 濃度は 20～34 mgL^{-1} 、 NO_3^- -N 濃度は 0.05 以下～5.3 mgL^{-1} の間で変動しており、 Cl^- 濃度に関しては、中流域と同様に降水量増加にともない低下するが、

NO_3^- -N 濃度は逆に上昇しており、全く対照的な季節変化を示す。一方、深度約 15m および 30m の観測井における NO_3^- -N 濃度は、地点 A において、それぞれ平均約 8 mgL^{-1} 、9 mgL^{-1} であり、下流側の地点 B においては平均約 6 mgL^{-1} 、2 mgL^{-1} であり、浅部地下水ほどの大きな変動はみられなかった。

考 察

NO_3^- -N 濃度の季節変動に及ぼす要因

Fig.5d, e より、特に、浅部地下水において、 NO_3^- -N 濃度が大きく季節変化することが確認された。ここでは、濃度変化に影響する主な要因として、①肥料由来窒素負荷量、②降水による希釈効果、および③脱窒による NO_3^- -N 減衰に着目して考察を行う。

まず、①に関して、試験地域の果樹園では、主に年間 3 回 (春肥・夏肥・秋肥) の施肥が行われており、JA 広島果樹連のデータに基づくと、平成 9 年～16 年の期間における化学肥料由来の窒素負荷量は、春肥において平均 76 kg/ha 、夏肥で平均 52 kg/ha 、秋肥 (初秋肥を含む) で平均 116 kg/ha であり、秋季において最も負荷量が大きく、夏季において小さくなっている。中流域の SWM においては、窒素負荷量の大きい秋季において、 NO_3^- -N 濃度が高い傾向を示すが、その他の時期については、負荷量との明瞭な対応関係は読み取れない。また、下流域の SWD においては、夏季に明瞭な濃度のピークが存在するが、負荷量との対応は殆どみられない。

次に、②の希釈効果についてであるが、Fig.6 に、中

流域の SWM および下流域の SWD における水理水頭と Cl^- 、 NO_3^- -N 濃度との関係を示す。SWM (Fig.6a) においては、水理水頭の増加に対応して濃度がともに低下するのに対し、SWD (Fig.6b) では、 Cl^- 濃度は同様に低下するものの、 NO_3^- -N 濃度は上昇している。一般に、 Cl^- 濃度は化学反応等により変化しないことから、濃度の減衰は、降水等の Cl^- 濃度が低い水による希釈の影響を反映していると考えられる。よって、SWM においては、 Cl^- および NO_3^- -N とともに、水理水頭の高い豊水期には、降水による希釈の影響を受け、濃度が低下していると考えられる。一方で、SWD においては、 Cl^- 濃度は、SWM と同様、豊水期に希釈されていると考えられるが、 NO_3^- -N 濃度は、対照的に上昇していることから、希釈の影響は反映していないと考えられる。その一方で、渇水期には、 NO_3^- -N 濃度の顕著な低下がみられる。

最後に、③の脱室による影響に関しては、従来の研究において、地下水流出域ないし地下水流動にともない、脱室による NO_3^- -N 濃度減衰が生じるという事例が報告されている (Howard, 1985; Postma et al., 1991; 石塚・小野寺, 1997)。本流域においても、時期によっては、下流域の地下水中の NO_3^- -N 濃度が検出下限 (0.05mgL^{-1}) 以下にまで低下しており (Fig.5e)、これには、希釈効果は強く影響していないと考えられることから (Fig.6b)、脱室作用が寄与している可能性は高いと考えられる。また、濃度減衰は渇水期において顕著であったことから、ここで、地下水流速と NO_3^- -N 濃度減衰との関連について議論を行う。Fig.7 に、下流域の SWD から海岸線までの区間におけるダルシー流束 (q) と NO_3^- -N 濃度減衰率との関係を示す。ここでは、海岸線の標高を 0m とし、動水勾配を算出した。また、 NO_3^- -N 濃度減衰率 (A_N) は、以下に示す式によって求めた。

$$A_N = (C_e - C_a) / C_i \quad (4)$$

(4) 式において、 C_e は SWD における推定 NO_3^- -N 濃度、 C_a は実測 NO_3^- -N 濃度であり、 C_i は SWM における実測 NO_3^- -N 濃度である。ここでは、SWD における地下水が、中流域の SWM の地下水と海水との二成分混合により形成されていると仮定し、 Cl^- 濃度から算出された海水寄与率 (n) から、SWM の寄与率 ($1-n$) を求め、さらに、SWM の実測 NO_3^- -N 濃度 (C_i) から、(5) 式のように SWD の推定 NO_3^- -N 濃度 (C_e) を求めた。

$$C_e = C_i(1-n) \quad (5)$$

Fig. 7. Relation between the darcy flux and NO_3^- -N attenuation ratio between the SWD and the coastal line

図 7. SWD から海岸線までの区間におけるダルシー流束と NO_3^- -N 濃度減衰率との関係

Fig.7 より、ダルシー流束が大きくなるほど、 NO_3^- -N 濃度減衰率は低くなる傾向を示し、特に、 $q=1.8 \times 10^{-6}\text{cm/s}$ 以上で、急激に低下している。以上の結果から、豊水期には、地下水流速が速くなるため、比較的高濃度を保持している可能性がある。また、本流域のような急勾配な流域では、大陸性の緩勾配の流域と比較して、地下水の水頭変化による動水勾配の変化が大きいため、結果的に地下水流速の変化も大きくなり、濃度減衰の変化も比較的大きいということが示唆される。

海洋への NO_3^- -N 流出の季節変動および年間流出量

Fig.8 に、中流域の SWM から下流域の SWD までの区間 (S 層) における、2006 年 1 月～2007 年 1 月の地下水流出量および NO_3^- -N 流出量の変化を示す。その結果、地下水流出量は、約 $130 \sim 150\text{m}^3\text{d}^{-1}$ の間で変化しているのに対し、 NO_3^- -N 流出量は、 $0.006 \sim 0.8\text{kgd}^{-1}$ と、変動幅がより大きいことが明らかになった。この結果は、SWD における NO_3^- -N 濃度の季節変化が大きいに起因しており、前述したように、地下水流速の変化にともなう NO_3^- -N 減衰量の変動が強く影響していると考えられる。また、I 層および D 層における地下水流出量は、それぞれ $260 \sim 330\text{m}^3\text{d}^{-1}$ 、 $55 \sim 70\text{m}^3\text{d}^{-1}$ の間で変動していたが、 NO_3^- -N 濃度の季節変化が小さかったことから、 NO_3^- -N 流出量の変動も小さいと推定された。

ここで、各層について、年間の地下水流出量および NO_3^- -N 流出量を見積もった結果を Table 2 に示す。各

Fig. 8. Annual variations in fluxes of groundwater and NO_3^- -N at the layer S between the SWM and the SWD図 8. SWM から SWD の区間での S 層における地下水流出量および NO_3^- -N 流出量の年間変動

層における値を積算した総地下水流出量は、年間 $1.8 \times 10^5 \text{ m}^3 \text{ y}^{-1}$ であり、年間降水量（1230mm）の 33% と推定された。試験流域における河川流出は、降水量の約 20% であり（吉田、2005）、研究地域における年間蒸発散量は、文献値（榎根、1989；塚本、1992）から、降水量の 50% 程度であると推定されることから、この値はほぼ妥当であると考えられる。また、透水性が最も良い I 層において、地下水流出量が S 層の約 2 倍、D 層の約 5 倍に相当した。また、年間 NO_3^- -N 流出量は、I 層において、S 層の約 13 倍、D 層の約 16 倍に相当すると見積もられ、結果的に、地下水流出量および NO_3^- -N 濃度ともに最も高い I 層において、 NO_3^- -N 流出量も最大となった。また、年間総 NO_3^- -N 流出量は、 766 kgNy^{-1} と推定され、2003 年～2004 年の間で推定された河川経由の流出量（吉田、2005）の約 7 割に相当した。年間地下水流出量が河川の 1.7 倍と推定されたのに対し、沿岸域での濃度減衰の影響により、 NO_3^- -N 流出量は河川と比較して小さくなると見積もられた。但し、これらの結果は、海岸線から約

200m 内陸側の地点 B および約 300m 内陸側の SWD における NO_3^- -N 濃度を用いて算出した値であり、海岸線に至るまでの更なる濃度減衰を考慮していないため、流出量を過大評価している可能性もある。

まとめ

本研究では、地下水による海への NO_3^- -N 流出の季節変動特性を明らかにすることを目的とし、瀬戸内海に流入する果樹園流域を対象とし、現地観測結果に基づき NO_3^- -N 流出量変動を評価するとともに、それに及ぼす要因について考察を行った。その結果、以下のことが明らかになった。

- 1) 沿岸域の地下水における NO_3^- -N 濃度の季節変動は、表層の浅部地下水において最も大きく、 0.05 以下～ 5.3 mgL^{-1} の間で変動しており、豊水期に高く、渇水期に低い傾向を示した。また、濃度変動は、肥料由来の窒素負荷量および希釈効果よりも、むしろ沿岸域にお

Table 2. Estimated annual fluxes of groundwater and NO_3^- -N表 2. 年間地下水流出量および NO_3^- -N 流出量

Layer	Aquifer thickness (m)	Catchment width (m)	A (m^2)	K (10^{-3} cm/s)	i	NO_3^- -N conc. (mg L^{-1})	Q ($10^4 \text{ m}^3 \text{ y}^{-1}$)	NO_3^- -N flux (kg y^{-1})
S	7.5-8.5	280	2100-2370	1.7	0.041-0.043	0.05-5.3	5	53
I	8.0	280	2240	6.6	0.020-0.025	6.0	11	671
D	13.0	280	3640	0.8	0.024-0.030	2.0	2	42
Total							18	766

ける NO_3^- -N 濃度減衰に強く影響を受けていることが示唆された。

- 2) 沿岸地下水での NO_3^- -N 濃度減衰は、地下水流速の変化に対応して変動していると考えられ、地下水流速が遅い時期ほど顕著に生じていることが確認された。特に、ダルシー流速が $1.8 \times 10^{-6} \text{ cm/s}$ 以下で急激な濃度低下がみられた。
- 2) 海洋への NO_3^- -N 流出量は、表層の浅部地下水において、 NO_3^- -N 濃度の変動にともない $0.006 \sim 0.8 \text{ kgd}^{-1}$ と大きく変動していると推定された。また、年間総地下水流出量は河川流出量の 1.7 倍に相当したのに対し、年間 NO_3^- -N 流出量は、沿岸域における濃度減衰による影響を受けるため、河川経由の負荷量の約 7 割程度であると推定された。

謝 辞

本研究は、科学研究費補助金特別研究員奨励費「沿岸流域における地下水流動にともなう浄化機能を考慮した窒素流出の定量化（課題番号：17・5339, 代表者：齋藤光代）」および基盤研究（A）「瀬戸内海流域から海洋への陸域地下起源物質の不均一・非定常な流出機構の定量的評価（課題番号：18201007, 代表者：福岡正人）」による研究成果の一部である。また、本研究を行うにあたり、広島大学大学院総合科学研究科の福岡正人教授および開発一郎教授には貴重な御助言をいただいた。また、総合科学研究科環境地形学研究室の皆さんには、現地調査の際に多々サポートしていただいた。また、JA 広島果樹連の中村氏には、対象地域における肥料散布量データを提供していただいた。最後に、研究対象地域である広島県尾道市瀬戸田町の久松氏、中原氏、大道氏、栗原氏をはじめとする住民の皆様方および JA 三原せとだ南出張所の職員の方々には、現地観測および観測井の設置にあたり快くご協力いただき、多くの便宜を図っていただいた。以上を記し、深く感謝の意を表します。

文 献

Burnett, W. C., P. K. Aggarwal, A. Aureli, H. Bokuniewicz, J. E. Cable, M. A. Charette, E. Kontar, S. Krupa, K. M. Kulkarni, A. Loveless, W. S. Moore, J. A. Oberdorfer, J. Oliveira, N. Ozyurt, P. Povinec, A. M. G. Privitera, R. Rajar, R. T. Ramessur, J. Scholten, T. Stieglitz, M. Taniguchi and J. V. Turner (2006): Quantifying submarine groundwater

discharge in the coastal zone via multiple methods. *Science of the Total Environment*, 367: 498-543.

Burt, T. P., A. L. Heathwaite and S. T. Trudgill (1993): *Nitrate; Processes, Patterns and Management*. John Wiley & Sons Press, Chichester.

Darcy, H. P. G. (1856): *Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon*. Dalmont Press, Paris.

海老瀬潜一 (1981): 霞ヶ浦流入河川の流出負荷量変化とその評価(陸水域の富栄養化に関する総合研究, V). 国立公害研究所研究報告, 21, 130pp.

Howard, K. W. F. (1985): Denitrification in a major limestone aquifer. *Journal of Hydrology*, 76: 265-280.

池上佳志・中越信和 (1995): 広島県瀬戸田地区の景観構造. 広島大学総合科学部紀要Ⅳ理系編, 21: 131-144.

石塚成宏・小野寺真一 (1997): $\delta^{15}\text{N}$ 値による平地林浅層地下水における脱窒の検証—茨城県南西部常総台地の例—. 日本土壌肥料科学雑誌, 68, 1: 1-7.

環境省 (2007): 環境白書. 株式会社ぎょうせい, 東京.

榎根 勇 (1989): 水と気象. 朝倉書店, 東京.

Mueller, D. K., P. A. Hamilton, D. R. Helsel, K. J. Hitt and B. C. Ruddy (1995): Nutrients in ground water and surface water of the United States—An analysis of data through 1992. U.S. Geological Survey Water Resources Investigation Report, 95-4031.

岡田宏一 (2006): 沿岸地下水中の窒素浄化機能. 広島大学総合科学部卒業論文.

Pauwels, H. P. Lachassagne, P. Bordenave, J. C. Foucher and A. Martelat (2001): Temporal variability of nitrate concentration in a schist aquifer and transfer to surface waters. *Applied Geochemistry*, 16: 583-596.

Postma, D., C. Boesen, H. Kristiansen and F. Larsen (1991): Nitrate reduction in an unconfined sandy aquifer: water chemistry, reduction processes, and geochemical modeling. *Water Resources Research*, 27, 8: 2027-2045.

齋藤光代・小野寺真一・竹井 務 (2005): 沿岸農業小流域における硝酸性窒素流出過程. 陸水学雑誌, 66: 1-10.

宗宮 功 (1993): 自然の浄化機構. 技報堂出版, 東京.

Taniguchi, M., W. C. Burnett, J. E. Cable and J. V. Turner (2002): Investigation of submarine groundwater discharge. *Hydrological Process*, 16: 2115-2129.

Tappin, A. D. (2002): An Examination of the Fluxes of Nitrogen and Phosphorus in Temperate and Tropical Estuaries: Current Estimates and Uncertainties.

Estuarine, Coastal and Shelf Science, 55: 885-901.

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 : 47-55.

寺尾 宏 (2003) : 「地下水・土壌汚染」 硝酸性窒素の浄化対策. 地下水学会誌, 45: 335-344.

塚本良則 (1992) : 森林水文学. 文永堂出版, 東京.

鶴巻道二 (1992) : 浅層地下水の硝酸性窒素. 地下水学会誌, 34: 153-162.

Uchiyama, Y., K. Nadaoka, P. Rölke, K. Adachi and H. Yagi (2000) : Submarine groundwater discharge into the sea and associated nutrient transport in a sandy beach. Water Resources Research, 36, 6: 1467-1479.

吉田浩二 (2004) : 瀬戸内海沿岸流域における物質の流出過程－流出物質形態及び非定常流出を考慮して－. 広島大学大学院生物圏科学研究科修士論文

Zektser, I. S. and H. A. Loaiciga (1993) : Groundwater fluxes in the global hydrologic cycle: past, present and future. Journal of Hydrology, 144: 405-427.