原著 [Original article]

沿岸扇状地小流域における硝酸性窒素流出過程

齋藤 光代¹⁾・小野寺真一²⁾・竹井 務¹⁾

Nitrate transport process in a small coastal alluvial fan catchment

Mitsuyo SAITO¹⁾, Shin-ichi ONODERA²⁾ and Tsutomu TAKEI¹⁾

Abstract

In order to demonstrate the nitrate transport process from land to the sea, variations in the NO_3^- -N flux of river water were investigated, and the NO_3^- -N flux of groundwater was estimated in a small coastal alluvial fan catchment covered by orange groves. The results are summarized as follows: 1) In the base-flow period, the NO_3^- -N flux of river water decreased from the midstream to the downstream area with the deduction in runoff; 2) At the peak of a storm event with 11 mm of total rainfall, the NO_3^- -N flux increased up to about 16 times that in the base-flow period. The total discharge of NO_3^- -N during that event was estimated to be equal to that of 4 days during the base-flow period; 3) The NO_3^- -N concentration in groundwater was more than 20 mg L^{-1} at the midstream area, whereas it had declined to less than 2.0 mg L^{-1} in the downstream area. Based on these results, we estimated the NO_3^- -N discharge by groundwater to the sea to be about 2.4% of the annual nitrogen input from fertilizer application, suggesting that NO_3^- -N was removed from groundwater by denitrification in the downstream area.

Key words : nitrate, transport process, alluvial fan, river water, groundwater

摘 要

本研究では、硝酸性窒素 (NO_3^- -N) の陸域から海洋への流出過程を明らかにするため、沿岸扇状地の果樹園の広く分布する小流域において、洪水流出時を含めた河川の上流から下流への NO_3^- -N 負荷量の変動を確認するとともに、地下水としての NO_3^- -N 流出量の見積もりを行った。その結果、以下のことが明らかになった。1) 平水時には、河川の中流から下流に向かって河川流量が減少し、それにともない NO_3^- -N 負荷量も減少した。2) 総雨量 11 mm の降雨イベント時には、河川流量の増加にともない NO_3^- -N 負荷量が増加し、流量のピーク時には平水時の約 16 倍に達した。また、イベント全体を通しては、河川からの NO_3^- -N 流出量が、平水時約 4 日分の量に相当した。3) 地下水の NO_3^- -N 濃度は中流域で 20 mg L^{-1} を上回る高濃度を示したが、最下流域では 2.0 mg L^{-1} 以下に減少した。その結果、地下水としての海洋への NO_3^- -N 流出量は、施肥としての年間窒素インプット量の約 2.4 % 程度であると推定された。また、下流域における NO_3^- -N の消失は脱窒反応によるものである可能性が示唆された。

キーワード：硝酸性窒素，流出過程，河川水，地下水

(2004年6月8日受付；2004年12月2日受理)

¹⁾ 広島大学大学院生物圏科学研究科 〒739-8521 広島市鏡山 1-7-1. Graduate School of Biosphere Sciences, Hiroshima University, 1-7-1 Kagamiyama, Higashi-Hiroshima 739-8521, Japan (E-mail: misaito@hiroshima-u.ac.jp)

²⁾ 広島大学総合科学部 〒739-8521 広島市鏡山 1-7-1. Faculty of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University, 1-7-1 Kagamiyama Higashi-Hiroshima 739-8521, Japan

はじめに

閉鎖性海域の富栄養化は依然として解決されない世界的な環境問題の一つであり、その原因となる陸域から海洋への栄養塩負荷が問題視されている。その一方で、近年多くの農業地域では、過剰施肥にともなう地表水および地下水の硝酸性窒素 (NO_3^- -N) 汚染が顕在化しており (鶴巻, 1992; Burt et al., 1993; 田瀬, 2003), 海洋への窒素負荷の評価および軽減が求められている。従来から、農業地域における窒素流出の定量化に関する研究は多く行われてきた (海老瀬, 1985; 宗宮, 1993; 竹内, 1995)。しかし、河川水と地下水という流出経路、洪水流出時を含めた窒素負荷量の時間的・空間的变化および窒素循環に関連する化学プロセスを考慮した陸域から海洋への窒素流出過程については、これまで十分に明らかにされてきたとはいえない。地下水に関しては、近年、多くの研究において地下水による栄養塩流出が海洋環境に大きな影響を及ぼすことが明らかにされている (Marsh, 1977; Johannes, 1980; D'Elia et al., 1981; Capone and Bautista, 1985; McLachlan and Illenberger, 1986; Simmons, 1992)。また、Zektser and Loaiciga (1993) は、世界の大規模河川流域において地下水による栄養塩流出量が河川からの流出量の 50% 以上に及ぶと推定しており、海洋への栄養塩流出を評価する際の地下水の重要性を指摘している。しかし、農業活動の影響の強い特定の河川流域において河川水と地下水双方の影響を考慮し、窒素流出を評価した例は少なく、特に、河川水の地下水涵養や地下水の河川流出にともなう流域内での窒素流出経路の変化に関しては、十分に明らかにされていない。また、洪水流出時は一般に河川流量の増加にともない基底流出時と比較して窒素流出量は増加すると想定される (中曽根・中村, 1984) が、流出経路の変化に関してはあまり言及されていない。

一方、化学過程に関しては、近年地下水中で脱窒反応による NO_3^- -N の消失が起こるという事例がいくつか報告されており (Postma et al., 1991; Böhlke and Denver, 1995; 石塚・小野寺, 1997), Howard (1985) や Uchiyama et al. (2000) などは、沿岸域の地下水中において地下水流動にともない脱窒反応が起こる現象を明らかにしている。しかし、従来の研究では窒素浄化機能を考慮に入れた窒素流出量の評価は十分に行われていない。

本研究では、沿岸扇状地小流域において、海洋への NO_3^- -N 流出過程を明らかにすることを目的とする。特に、基底流出時および洪水流出時における河川の上流から下流への NO_3^- -N 負荷量の変動を確認し、 NO_3^- -N の流

出経路を明らかにするとともに、浄化機能を考慮したうえで地下水としての NO_3^- -N 流出量の見積もりを行った。

調査地域概要と方法

試験流域

試験流域は、瀬戸内海の島嶼の一つである広島県豊田郡瀬戸田町 (生口島) に位置する (Fig. 1)。閉鎖海域である瀬戸内海の富栄養化は、日本を代表する環境問題の一つであり、1970 年代を境に改善に向かっていているものの、現在も完全な解決には至っていない。瀬戸内海沿岸地域は、温暖かつ少雨型の気候であり (生口島で年平均気温 15.6°C 、年平均降水量 1100 mm)、花崗岩が広く分布するとともに、柑橘系の果樹園栽培が盛んである。生口島においては、主にみかんを中心とした果樹園が島全体に様に分布し、島の総面積の約 40% を占める (谷口ら, 1978; Nakagoshi and Ohta, 1992; 池上・中越, 1995)。しかし、近年では施肥などにともなう河川水及び地下水の NO_3^- -N 濃度の上昇が報告されており (熊沢, 1994), 瀬戸内海の富栄養化問題とも関連して、海洋への窒素負荷が危惧されている。

試験流域の基盤地質は花崗岩から成り、流域面積は 44.3 ha 、流下距離は 1.8 km である。また、急勾配な山地河川地形を呈し、流域の中流から下流にかけては明瞭な扇状地地形がみられ、みかんの果樹園が広く分布しており、水田の分布はほとんどみられない。また、中流域から下流では民家が点在するが、下水道の整備はなされていない。

現地調査および水質分析

試験流域では、河川水及び地下水の調査を行った。試験河川では、流域の上流から下流にかけて約 $100\sim 300\text{ m}$ おきに計 5 箇所の採水地点 (A~E) を設定し、河川水の採水と流量測定を行った (Fig. 1, Table 1)。河川流量の測定は、すべて浮子法 (Hewlett, 1964) で行った。平水時 (Base-flow period) は、2002 年 6 月、10 月、12 月の計 3 回調査を行った。また、洪水流出時の調査として、2002 年 7 月 9~10 日にかけて発生した総雨量 11 mm の降雨イベント時 (Storm-flow period) に集中観測を行い、1~3 時間おきに採水と流量観測を計 6 回行った。ただし、降雨イベント時は採水地点を A, C, D, E の 4 地点に限定し、採水地点間を移動しながら観測を行った。そのため、1 回の観測につき最上流 (A) と最下流 (E) の地点では観測時間に約 $10\sim 15$ 分の差があった。地下水については、

Fig. 1. Location of study area and sampling points in the study catchment.

図1. 研究地域の位置と試験流域での採水地点.

Table 1. Geographic information on the study catchment.

表1. 試験流域の地理情報.

Sampling point	Altitude (m)	Longitudinal distance (km)	Catchment area (ha)	Plantation area (ha)	Plantation ratio (%)	Streambed gradient
A	34.0	0.55	29.3	10.2	34.8	0.37
B	18.0	0.40	36.6	15.1	41.3	0.09
C	9.5	0.24	40.0	16.7	41.8	0.05
D	5.0	0.15	42.0	17.5	41.6	0.05
E	3.0	0.02	44.3	19.5	44.0	0.01

2002年9月～10月（Low-flow season）及び2003年6月～7月（High-flow season）に中流域から下流域に分布する掘抜き井戸（計13地点）において採水と水位の測定を行った。また、High-flow seasonには各井戸につき3～4深度に分けて地下水を採水し、ポータブルメーター（RM-20P, DKK・TOA）を用いて地下水の酸化還元電位（ORP）を測定した。

採水した河川水、地下水は実験室に持ち帰り、5 mmol L⁻¹ 硫酸を滴定用標準溶液とし、指示薬としてメチルレッド・ブロムクレゾールグリーンを用い、pH4.8アルカリ度硫酸滴定法によりHCO₃⁻濃度を定量した。また、0.20 μmメンブランフィルターを用いて試料を濾過した後、NO₃⁻

Cl⁻濃度をイオンクロマトグラフ（HPLC, SHIMADZU）により定量した。なお、NO₃⁻-N濃度の定量下限は約0.1 mg L⁻¹である。

結果と考察

河川水の流下にともなうNO₃⁻-N負荷量の変動

Fig. 2に、試験河川における平水時の流量（a）、河川水のNO₃⁻-N濃度（b）、及びNO₃⁻-N負荷量（c）の上流（A地点）から下流（E地点）にかけての変動を示す。NO₃⁻-N負荷量（F_N）は、以下の式に示すように、各採水地点において観測された河川流量（Q_r）と河川水のNO₃⁻-N濃度

(C_N) との積で算出した。

$$F_N = Q_r C_N \quad (1)$$

Fig. 2-a より, 全体的にみて流量は上流から中流に向かって増加し, その後下流で減少する傾向を示した。本流域においては, 中流域から河口に至るまで支流は存在せず, この区間は扇状地地形であり河川水面の標高が地下水面の標高よりも高いことから, 河川水が地下水へ涵養していると考えられる。一方, NO_3^- -N 濃度に関しては, 流量変化のように上流から下流にかけての一貫した傾向はみられなかったが, 流量が最も小さかった 10 月において最も濃度が高く, 流量が多かった 6 月および 12 月においては比較的低濃度を示した (Fig. 2-b)。このことから, 流量が多い時期においては, 河川水中の NO_3^- -N が希釈されていると考えられる。また, NO_3^- -N 負荷量は流量にほぼ依存して変動し, 中流域で最も大きく, 下流に向かって減少する傾向を示した (Fig. 2-c)。ここで, 最下流の採水地点 E で観測された NO_3^- -N 負荷量を河川からの NO_3^- -N 流出量であると仮定すると, (1) 式より平水時の平均流出量は, 1.04 kg N d^{-1} と見積もられる。本流域では, 前述したように中流域から下流にかけて河川水の地下水涵養にともない NO_3^- -N 負荷量が減少していると推定されることから, 平水時においては, 河川を経由して海洋へ流出する NO_3^- -N 量は比較的小さいと考えられる。

Fig. 2. Variations in: (a) runoff, (b) NO_3^- -N concentration, and (c) NO_3^- -N flux of river water with down flow.

図2. 河川の流下にもなう (a) 河川流量, (b) 河川水の NO_3^- -N 濃度, (c) NO_3^- -N 負荷量の変動。

洪水流出時における河川からの NO_3^- -N 流出

Fig. 3 に 2002 年 7 月 9 ~ 10 日にかけて発生した降雨イベント時の降水量 (a), 及び C 地点における流量と河川水の NO_3^- -N 濃度の時間変化 (b) を示す。また, Fig. 4 に河川が最も増水した 7 月 9 日の 21 時 50 分 ~ 22 時 03 分, 及び平水時の流量 (a), NO_3^- -N 濃度 (b), NO_3^- -N 負荷量 (c) の上流から下流への変動を示す。平水時の変動については, Fig. 2 に示した 3 回の調査結果の平均値を示す。Fig. 3 より, 採水地点 C では降雨にともない流量は速やかに増加し, 対照的に NO_3^- -N 濃度は低下しており, 他の採水地点 (A, D, E) においても同様の傾向がみられた。また, Fig. 4-a より, 降雨時は D 地点で流量が最大となり, 平水時の約 70 倍に増加している。一方, NO_3^- -N 濃度は平水時の約 1/6 に低下しており (Fig. 4-b), NO_3^- -N 負荷量は, 7 月 9 日の 22 時に D 地点で最大となり, 平水時の約 16 倍となっている (Fig. 4-c)。今回観測を行ったイベントにおいては, 河川水中の NO_3^- -N が希釈されたため, 流量の増加率に対し NO_3^- -N 負荷量の増加率が小さくなったと考えられる (Fig. 3, Fig. 4)。しかし, 総雨量 11 mm と小規模なイベントであったにもかかわらず, 約 10 時間のイベント期間での総 NO_3^- -N 流出量は平水時約 4 日分に相当した。一般的に, 窒素成分については増水時期における流出量が年間流出量の大部分を占めることが知られ

Fig. 3. Temporal variations in: (a) rainfall, (b) runoff and NO_3^- -N concentration during a rainfall event at site C.

図3. 降雨イベント期間中の (a) 降水量および (b) C 地点における河川流量と河川水の NO_3^- -N 濃度の変化。

Fig. 4. Variations in: (a) runoff, (b) $\text{NO}_3^- \text{N}$ concentration, and (c) $\text{NO}_3^- \text{N}$ flux of river water with down flow at peak of rainfall event and at base flow.

図4. 降雨イベント期間中の河川流量ピーク時及び平水時における (a) 河川流量, (b) 河川水の $\text{NO}_3^- \text{N}$ 濃度, (c) $\text{NO}_3^- \text{N}$ 負荷量の流下にともなう変動.

ており (Burt et al., 1993), 栄養塩類の流出は, まとまった降水量のイベント時に集中的に起こる (平田・村岡, 1988; Moldan and Cerny, 1994; 勝山ら, 1998) ことも報告されている。瀬戸内海沿岸地域は, 前述したように年間を通じて降水量が非常に少なく, 年間降水量の 50 % 以上が日降水量 20 mm 以上のイベントで占められる (小野寺・成岡, 2002) ことから, 発生頻度の少ない大規模イベント時の流出によって年間流出量の大半が占められている可能性がある。また, Fig. 4-a より, 平水時には扇状地のほぼ扇頂部にあたる C 地点で流量が最大となるのに対し, イベント時はそれより一つ下流側の D 地点で最大となっており, $\text{NO}_3^- \text{N}$ 負荷量も同様の傾向を示す (Fig. 4-c)。これは, 降水や地表流などが河川へ流入し, 河川流量を増加させたためであると考えられる。以上の結果から, 降雨イベント時には, 河川を經由して直接海洋へ流出する $\text{NO}_3^- \text{N}$ 量が増加し, 河川流出型の流出形態になると推定される。

地下水による $\text{NO}_3^- \text{N}$ 流出

試験流域における 2002 年 9 月～10 月 (以下 Low-flow season) 及び 2003 年 6 月～7 月 (以下 High-flow season) の地下水面図を Fig. 5 に示す。ここでは, 地下水面のポテンシャルを標高値で示す。また, Fig. 6 に地下水の $\text{NO}_3^- \text{N}$ 濃度分布図を示す。これらの結果から, 本流域においては全体的にみて地下水は山側から海側へ流動しており (Fig. 5), それにともない地下水の $\text{NO}_3^- \text{N}$ 濃度が減少する傾向

Fig. 5. Contour map of groundwater level in the study catchment: (a) low-flow season, (b) high-flow season.

図5. 試験流域の地下水面分布図: (a) 渇水期 (2002年9～10月), (b) 豊水期 (2003年9～10月).

Fig. 6. Distribution of NO_3^- -N concentrations in groundwater: (a) low-flow season, (b) high-flow season.

図6. 地下水の NO_3^- -N濃度分布図：(a) 渇水期（2002年9～10月）、(b) 豊水期（2003年9～10月）。

にあることが分かる (Fig. 6)。特に、Low-flow seasonにおいてはその変化が顕著であり、中流域では約 30 mg L^{-1} と環境基準 (10 mg L^{-1}) をはるかに超える高濃度を示すが、最下流の井戸では 0.1 mg L^{-1} 以下となっている。ここで、ダルシーの式 (Darcy, 1856) を用いて試験流域における地下水流量を算出し、地下水の NO_3^- -N濃度との積から、地下水の NO_3^- -N負荷量の見積もりを行う。ダルシーの式は以下のように示される。

$$Q = KA(h_1 - h_2) / l \quad (2)$$

(2) 式において、 Q は地下水流量、 K は透水係数、 A は地下水の通過断面積、 l は地下水の流動距離、 $h_1 - h_2$ は l の区間における水理水頭損失を示す (山本, 1986)。最下流部の井戸から海岸線までの平均動水勾配は、潮位変動にともなう変化を考慮しない場合、Low-flow seasonで0.015、High-flow seasonで0.02である。また、過去に行われたボーリング井戸掘削時の地質データから、本流域では地表から約20 m下からは基盤であり、難透水層は分布していないことから、不飽和帯の厚さを考慮し、帯水層の厚さをLow-flow (以下LF) およびHigh-flow (以下HF) seasonでそれぞれ18 m, 19 mとした。また、下流部の流域幅は約375 mであることから、地下水の通過断面積 A は、 $A_{LF} = 6750 \text{ m}^2$ 、 $A_{HF} = 7125 \text{ m}^2$ となる。また、海岸部で行った透水試験の結果から、透水係数を $K = 5.0 \times 10^{-3} \sim 1.0 \times 10^{-2} \text{ cm s}^{-1}$ の範囲内であるとした。ここで、地下水位の季節変化より、Low-flowおよびHigh-flow seasonが年間で半年ずつを占めているとし、地下水流出量 Q_{LF} および Q_{HF} を見積もった。 $K = 1.0 \times 10^{-2} \text{ cm s}^{-1}$ とした場合、

$Q_{LF} = 364 \text{ mm}$ 、 $Q_{HF} = 509 \text{ mm}$ となり、年間総流出量 ($Q_{LF} + Q_{HF}$) は873 mmで年間降水量 (1100 mm) の約80%と見積もられる。しかし、試験地域は比較的少雨であり、水収支的に蒸発散量が降水量の40%以上を占めると推定される (塚本, 1992) ことから、この値は妥当ではないと考えられる。一方、 $K = 5.0 \times 10^{-3} \text{ cm s}^{-1}$ とした場合は、 $Q_{LF} = 182 \text{ mm}$ 、 $Q_{HF} = 255 \text{ mm}$ となり、年間総流出量は437 mmで年間降水量の約40%となり、水収支的には妥当な値であると考えられる。また、Fig. 6より、最下流の地下水の NO_3^- -N濃度は、Low-flowおよびHigh-flow seasonにおいてそれぞれ約 0.1 mg L^{-1} 、約 2.0 mg L^{-1} であることから、(1) 式より、地下水による NO_3^- -N流出量を見積もると、Low-flowおよびHigh-flow seasonにおいてそれぞれ8.0 kgN, 224 kgNとなり、年間で232 kgNと見積もられる。また、調査地域の果樹園では年間約 2400 kg ha^{-1} の化学肥料が散布されており、肥料の成分を全て硫安 (窒素含有率約21%) であると仮定すると、窒素量は 504 kg ha^{-1} となる。また、試験流域内の果樹園面積は19.5 haであり (Table 1)、施肥による窒素インプット量は年間で9828 kgNと見積もられる。この結果から、地下水による年間 NO_3^- -N流出量は、果樹園起源の窒素インプット量のわずか2.4%程度であるという計算になる。以上の結果をまとめたものをTable 2に示す。本流域においては、中流域では地下水の NO_3^- -N濃度は高濃度を示すものの、地下水が流域単位での窒素流出に及ぼす影響は比較的小さいと推定された。従来の研究の多くでは、地下水による海洋への窒素流出量は小さくないと見積もられていたが (Johannes, 1980;

Table 2. Groundwater discharge and NO_3^- -N discharge by groundwater.

表2. 試験流域における地下水流出量および地下水による窒素流出量.

	Groundwater discharge (mm)	NO_3^- -N discharge (kgN)	NO_3^- -N discharge ratio (%)
Low-flow season (6 months)	182	8.0	0.08
High-flow season (6 months)	255	224	2.28
Total (1 year)	437	232	2.36

Zektser and Loaiciga, 1993), 本研究では異なる結果を得た。

また, Low-flowおよびHigh-flow seasonともに, 下流域において NO_3^- -N 濃度の急激な減少がみられたことから (Fig. 6), 地下水中で何らかの形で NO_3^- -N が除去されている可能性が考えられる。従来から流出域ないし地下水流動にともない地下水の NO_3^- -N 濃度が低下するという例がいくつか報告されており (Howard, 1985; Postma et al., 1991; 石塚・小野寺, 1997), これらの現象は, いずれも脱窒反応によるものであると説明されている。鶴巻 (1989) は, 脱窒反応を以下のように示している。

また, Trudell et al., (1986) による脱窒の反応式は以下のものである。

生物化学的脱窒は, 嫌気的環境下で有機物が存在する場合, 微生物により NO_3^- 及び NO_2^- が還元され, N_2 となって大気中に放出される反応である。また, (4) 式においては反応が進行すると HCO_3^- 濃度が高くなることが示されており, 脱窒が HCO_3^- 濃度の増加要因の一つであることを示す。Fig. 7にFig. 5中のExperimental profile line上に分布する井戸について, 地下水流動にともなう NO_3^- -N, HCO_3^- -C, Cl^- 濃度の変化を示す。 Cl^- 濃度は下流域で比較的高い傾向にあり, 特にLow-flow seasonにおいては最下流で 133 mg L^{-1} と高濃度を示す (Fig. 7-a)。しかし, 地下水と同時期に採水した海水の Cl^- 濃度は約 20000 mg L^{-1} であり, 海水寄与率を算出するとわずか 0.7% 程度であることから, NO_3^- -N の消失は海水の希釈作用のみでは説明できないと考えられる。一方で, HCO_3^- -C 濃度は NO_3^- -N 濃度と対照的に下流域で高濃度を示すことから (Fig. 7-a, b), 脱窒反応が起こっている可能性が示唆される (式4)。また, Fig. 8にHigh-flow seasonにおける中流域から下流域にかけての地下水の酸化還元電位 (ORP)

の分布を示す。なお, ここで用いたのは標準水素電極に対する電位である。この図より, 下流域における ORP 値は $100 \sim 200 \text{ mV}$ と相対的に低い傾向を示すが, 完全な還元状態ではないことが分かる。しかし, 従来の研究において, 土壌中では空隙率が 20% 以下 (飽和領域が 80% 以上) になると有意な脱窒反応が起こることが明らかにされており (Stewart, 1992), 下流域では, 脱窒が起こりうる環境が形成されていると考えられる。

以上の結果をまとめた概念図として Fig. 9 を示す。平水時は, 中流域から下流域に向かって河川水の地下水涵養にともない河川流量が減少し, それに依存して NO_3^- -N 負荷量も減少した。このため, 河川から海洋への NO_3^- -N

Fig. 7. Variations in NO_3^- -N, HCO_3^- -C and Cl^- concentrations with groundwater flow: (a) low-flow season, (b) high-flow season.

図7. 地下水流動にともなう地下水中の NO_3^- -N, HCO_3^- -C および Cl^- 濃度変化: (a) 渇水期 (2002 年 9 ~ 10 月), (b) 豊水期 (2003 年 6 ~ 7 月).

Fig. 8. Distribution of ORP in groundwater.
図8. 地下水の酸化還元電位の分布。

Fig. 9. Schematic diagram of NO_3^- -N transport process in the study catchment.

図9. 試験流域における NO_3^- -N 流出過程の模式図。

流出量は比較的小さいと考えられ、なおかつ下流域の地下水中では NO_3^- -N 濃度が減少したことから、流域単位での NO_3^- -N 流出量は比較的小さいと見積もられる (Fig. 9-a)。一方、降雨イベント時は河川流量の増加にともない NO_3^- -N は河川流出型となるため、流域単位での NO_3^- -N 流出量は平水時と比較して格段に大きくなると考えられる (Fig. 9-b)。

まとめ

本研究では、果樹園の分布する扇状地小流域において陸域から海洋への NO_3^- -N 流出過程を明らかにすることを目的とし、河川水と地下水の採水、河川流量の測定および採取した水試料についての NO_3^- -N、 HCO_3^- -C、 Cl^- の定量分析を行った。その結果は、以下のようである。

- 1) 平水時における河川水の NO_3^- -N 負荷量は、中流域から下流域の扇状地において河川の失水にともない減少した。また、この傾向は3回の観測において同様に確認された。したがって、平水時における河川からの NO_3^- -N 流出量は比較的小さいと見積もられた。
- 2) 降雨イベント時は、流量の増加にともない NO_3^- -N 負

荷量が増加し、ピーク時で平水時の約16倍に達した。また、イベント全体を通しては、 NO_3^- -N 流出量が平水時約4日分の量に相当した。このことから、流域における NO_3^- -N 流出形態が、降雨時には河川流出型となることが明らかになった。

- 3) 地下水の NO_3^- -N 濃度は、中流域では 20 mg L^{-1} 以上の比較的高濃度を示したものの、下流域では 2.0 mg L^{-1} 以下にまで低下した。結果として、地下水による海洋への NO_3^- -N 流出量は、肥料起源の年間窒素インプットのわずか2%程度であると見積もられた。また、地下水の HCO_3^- -C 濃度および ORP の変化から、下流域において生物化学的脱窒反応による NO_3^- -N の除去が起きている可能性が示唆された。

謝 辞

本研究は、文部科学省科学研究費補助金基盤研究 A (2) 「瀬戸内流域における自然物質循環速度を考慮した環境劣化の影響評価—岩石—水—生物相互作用の速度論的解析—」(課題番号: 13308030, 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、

広島大学総合科学部開発一郎教授、福岡正人教授および成岡朋弘氏（当時、広島大学生物圏科学研究科院生）には貴重な御助言をいただいた。また、広島県瀬戸田町の住民の皆様および瀬戸田町役場の職員の方々には現地調査にご協力いただき、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

- Böhlke, J. K. and J. M. Denver (1995): Combined use of groundwater dating, chemical, and isotopic analyses to resolve the history and fate of nitrate contamination in two agricultural watersheds, Atlantic coastal plain, Maryland. *Water Resources Research*, 31: 2319-2339.
- Burt, T. P., A. L. Heathwaite and S. T. Trudgill (1993): Nitrate; Processes, Patterns and Management. John Wiley & Sons Press, Chichester.
- Capone, D. G. and M. F. Bautista (1985): A groundwater source of nitrate in nearshore marine sediments. *Nature*, 313: 214-216.
- Darcy, H. P. G. (1856): *Les Fontaines Publiques de la Ville de Dijon*. Dalmont Press, Paris.
- D'Elia, C. F., K. L. Webb and J. W. Porter (1981): Nitrate-rich groundwater inputs to Discovery Bay, Jamaica: A significant source of N to local reefs? *Bulletin of Marine Science*, 31: 903-910.
- 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, 130 pp.
- 海老瀬潜一 (1985): 降雨による土壌層から河川への NO_3^- の排出. 衛生工学研究論文集, 21: 48-59.
- Hewlett, J. D. (1964): *Principles of Forest Hydrology*. The University of Georgia Press, Georgia.
- 平田健正・村岡浩爾 (1988): 森林域における物質循環特性の溪流水質に及ぼす影響. 土木学会論文集, 399: 131-140.
- 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: 1-7.
- Johannes, R. E. (1980): The ecological significance of the submarine discharge of groundwater. *Marine Ecology Progress Series*, 3: 365-373.
- 勝山正則・大手信人・浅野友子・小橋澄治 (1998): 森林流域からの流出水質に降雨イベントが影響を与えるメカニズム. 京都大学農学部附属演習林報告, 69: 26-37.
- 環境省 (2003): 環境白書. 株式会社ぎょうせい, 東京.
- 熊沢喜久雄 (1994): 環境保全型農業における土壌肥料研究の展望. 環境保全型農業シンポジウム「暖地農業における養分循環の問題点と技術的展望」, 第12回土・水研究会: 1-16.
- Marsh, J. A. and Jr. (1977): Terrestrial inputs of nitrogen and phosphates on fringing reefs on Guam. *Proceedings of 3rd International Coral Reef Symposium*: 331-336.
- McLachlan, A. and W. Illenberger (1986): Significance of groundwater nitrogen input to a beach/surf zone ecosystem. *Stygologia*, 2: 291-296.
- Moldan, B. and J. Cerny (1994): Biogeochemistry in Small Catchments. John Wiley & Sons Press, Chichester.
- Nakagoshi, N. and Y. Ohta (1992): Factors affecting the dynamics of vegetation in the landscapes of Shimokamagari Island, southwestern Japan. *Landscape Ecology*, 7: 111-119.
- 中曽根英雄・中村良太 (1984): 降雨時における烏川の水質変動と汚濁負荷量の流出について. 農業土木学会論文集, 111: 35-42.
- 小野寺真一・成岡朋弘 (2002): 広島県瀬戸内海沿岸域の降雨特性—降雨時間帯, 季節性, 降雨強度—. 広島大学総合科学部紀要IV理系編, 28: 61-68.
- 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: 2027-2045.
- Simmons, G. M. and Jr. (1992): Importance of submarine groundwater discharge (SGWD) and seawater cycling to material flux across sediment/water interfaces in marine environments. *Marine Ecology Progress Series*, 84: 173-184.
- 宗宮 功 (1993): 自然の浄化機構. 技報堂出版, 東京.
- Stewart, B. A. (1992): *Advances in Soil Science*, vol.18. Springer-Verlag Press, New York.
- 竹内 誠 (1995): 流域における水質保全機能の評価. 農林交流センターシンポジウム「農耕地における浅層地下水等の汚染状況と今後の対策」: 87-114.
- 谷口澄夫 (1978): 瀬戸内の風土と歴史, 後藤陽一・石田 寛 (編著): 295-297. 山川出版社, 東京.
- 田瀬則雄 (2003): 硝酸・亜硝酸窒素汚染対策の展望. 水環境学会誌, 26: 546-550.
- Trudell, M. R., R.W. Gillham and J. A. Cherry (1986): An in-situ study of the occurrence and rate of denitrification in a shallow unconfined sand aquifer. *Journal of Hydrology*, 83: 251-268.
- 塚本良則 (1992): 森林水文学. 文永堂出版, 東京.
- 鶴巻道二 (1989): 地下水の挙動を水質から診る—地盤を観る・視る・診る. 中世古幸次郎教授退官記念論文集: 29-45.
- 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: 1467–1479.

山本莊毅 (1986) : 地下水学用語辞典. 古今書院, 東京.

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