

高濃度の窒素を含む地下水の海岸への流出過程

林 政輝*・小野寺真一*・竹井 務**・峯 孝樹**・齋藤 光代**
・重枝 豊実**・吉田 浩二**

*広島大学総合科学部

**広島大学大学院生物圏科学研究科

Discharge process of groundwater with highly concentrated nitrogen to the beach

Masaki HAYASHI*, Shin-ichi ONODERA*, Tsutomu TAKEI**, Takaki MINE**,
Mitsuyo SAITO**, Toyomitsu SHIGE-EDA** and Koji YOSHIDA**

**Faculty of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University*

***Graduate School of Biosphere Sciences, Hiroshima University*

Abstract: To clarify discharge process of groundwater with highly concentrated nitrogen into the sea, we observed subsurface flow and nitrate flux with tidal variation, using piezometer method. We installed a pair of piezometers with various depths at 3 plots on a relatively slopy beach in Ikuchijima Island, measured hydraulic head and collected water at all piezometers and a well at distance of 100m to landward from the shoreline inland area at two hours interval from 6-am to 6-pm on June 6, 2004. Water samples were analyzed for Cl⁻ and DN(Dissolved Nitrogen), respectively. Groundwater discharge was confirmed at the vicinity of shoreline, mixing with seawater. Because it stopped during the high tide, groundwater contribution ratio increased below the shoreslope. Nitrogen concentration in groundwater at the landward well was high, whereas, it declined in the subsurface water below the shoreline. We estimated the DN concentration of beach subsurface water, based on the mixing process of inland groundwater with seawater. The calculated one was extremely higher than actual one. These results suggest denitrification on the beach. In addition, based on this research, the difference between calculated and actual ones was large in stagnant subsurface water with high groundwater contribution ratio during the high tide. We confirmed the dynamics of nitrate decline and two types of water mixing processes with tidal variation.

Keywords: discharge process, dissolved nitrogen, groundwater, slopy beach

I. はじめに

現在、世界的に海洋汚染の進行が深刻化してきている。その中でも閉鎖性水域や内湾での富栄養化

にともなう赤潮や青潮の発生は、水産業に重大な被害を与えるだけでなく、生態系に及ぼす影響も極めて大きい。一般に、沿岸域、内湾、閉鎖性水域などの富栄養化は、栄養塩類が陸から過剰に流入することで引き起こされることが報告されている (Burt et al., 1993)。栄養塩類の物質輸送過程は、水量の点から河川による流出が重要であるが、地下水の栄養塩類の濃度が河川水よりも高濃度であることから、地下水が海洋へもたらす栄養塩類の量が河川に比べて少なくない地域もあり、その重要性が指摘されている (Zektser and Loaiciga, 1993)。そのため物質輸送に関する地下水の役割を明らかにしていくことが必要である (谷口, 2000; Burnett et al., 2001; Taniguchi, 2002)。最近では、河川による流出量と地下水による流出量のバランスが再検討されている (Onodera et al., 2004a; 齋藤ら, 2004など)。

一方、近年緩やかな勾配を呈する沿岸域の地下水中では硝酸性窒素の自然浄化(脱窒)が起き、また、海岸での脱窒は、淡水と海水との混合域において顕著であることが報告されている (Howard, 1985; Uchiyama et al., 2000; Ueda, 2003; Saito et al., 2004)。海岸での地下水流動は、潮位変化によって淡水-海水の混合が大きく起こることが数値計算によって報告されており (Ataie-Ashtiani, 1999)、それによって一時的に地下水の停滞が起きることが予想される (小野寺ら, 2003)。すなわち、この物理過程の影響で、海岸域において脱窒が生じやすくなると考えられる。しかし、この潮位変動という非定常な混合過程に注目した、脱窒過程の検討はこれまで行なわれていない。これは、沿岸域において高濃度の硝酸性窒素が保持されている場合が少なく、そのようなことを検証することが難しかったためである。しかし、急勾配な斜面をもつ海岸において硝酸性窒素は減衰しながらも流出していることが確認されている (Onodera et al., 2004b)。すなわち潮位変動が大きく、背後に急勾配な斜面をもち地下水の動水勾配が大きい海岸においては地下水-海水混合域においてもある程度の高濃度の硝酸性窒素が保持されている可能性があり、物質収支などから潮位変動にともなう脱窒過程の変動を確認することが可能であるといえる。

そこで本研究では、潮位変化が大きく背後に急勾配な斜面をもつ海岸において、陸域起源の地下水(陸域地下水)に含まれる高濃度の窒素の流出過程、及びそれらに対する潮汐の影響(非定常過程)を明らかにすることを目的とした。

II. 試験地及び調査方法

試験地は、広島県豊田郡瀬戸田町(生口島)の南東に位置する急勾配な斜面(起伏比0.38)に面した海岸である(図1)。基盤岩は、花崗岩からなる。瀬戸内海は干満の差が非常に大きく、大潮の時には干満の差が4 m近くに達し、小潮でも2.5 mある。竹井ら(2004)の本島における扇状地海岸での観測の結果は、潮間帯での地下水の直接流出はほとんどなく、海水が90%以上混合した状態で流出していることを示している。すなわち、海水が沿岸域の地下水に与える影響が非常に大きいと考えられる。また、試験地の背後には、果樹園が広く分布している。果樹園では毎年多量の窒素肥料を散布するため、地下水中の溶存窒素濃度が高く、地下水とそれにともなう窒素の流出過程を明らかにすることに適した場所といえる。

本研究では、地下水の流動を把握するために、帯水層中に多深度のピエゾメーター群を設置する、直接測定法(Freeze and Cherry, 1979)を用いた。ピエゾメーターとは上端が大気圧開放された底のない中空の管のことで、帯水層に打ち込んで管内に現れる水面から、その管底の圧力ポテンシャル(圧力水頭)を知ることができる。観測では干潮時の汀線から内陸側におよそ13 m間隔で、3箇所、ピエゾメーター群(P1~P3地点)を設置した(図2)。本地域の基盤岩は花崗岩であるため、堆積

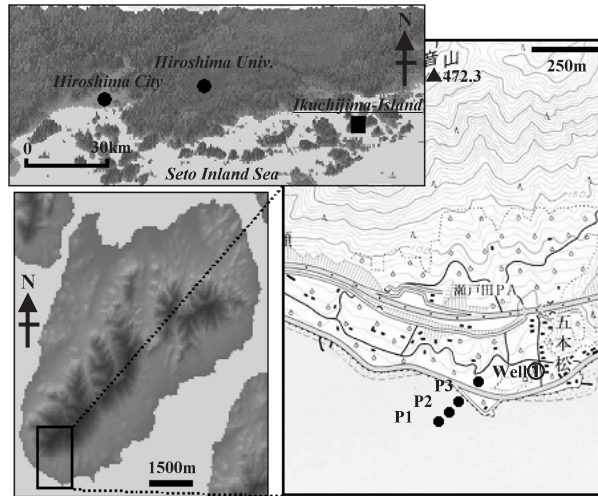


図1 試験地および採水地点

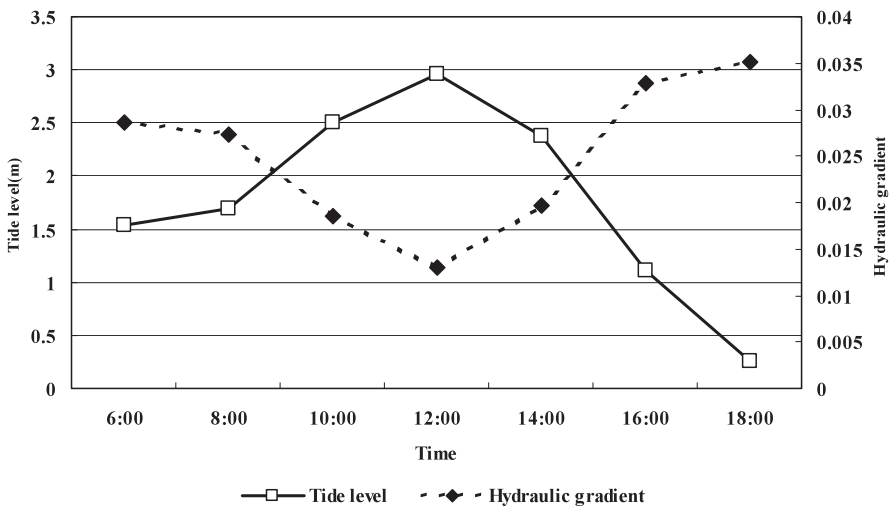


図2 潮位—地下水勾配変化

物はおおむね砂からなっているが、海よりのP1では粘土質砂からなっている。各地点には外径17mm（内径13mm）の塩化ビニールパイプを深度50cmと100cmに各2本、それぞれ圧力ポテンシャル測定用と採水用に設置した。観測を行うにあたって、潮汐にともない海水面が上下するため、常にパイプの上端が水面上に出るようにパイプの継ぎ足しをおこなった。パイプの接続は事前に水漏れがないことを確認した市販の塩化ビニールパイプ用のジョイントを用いた。

観測は、2004年6月の大潮、9月の大潮・小潮に行なった。竹井ら（2004）によれば、大潮の観測結果が平均的傾向を示すことから、ここでは6月の結果を示す。なお、全体の傾向は3回とも同様であった。観測の日時は2004年6月6日の6:00（干潮）～18:00（干潮）にかけてで、2時間おきに各地点で圧力ポテンシャルの測定と同時に採水を行い、また試験地点から100m斜面側に位置する井戸（井戸①、図2）では地下水の採水を行った。

測定した圧力ポテンシャルと地面標高をもとに、水理ポテンシャルを算出し、地下水の流動を推定した。また、採水した水試料は0.20 μm メンブレンフィルターを用いて濾過した後、100倍希釈し、イオンクロマトグラフ（島津製作所）を用いて塩化物イオン濃度を測定し（誤差 $\pm 10\text{mg l}^{-1}$ 以内）、海水との塩化物イオン濃度の比から陸域地下水寄与率を求めた。ここで、測定誤差を最大として見積もっても、寄与率の誤差範囲は0.1%の範囲となり、結果を議論する際には無視できるものとした。同時に10倍希釈した試料を用いて全有機体炭素計（TOC-V、島津製作所）で溶存窒素濃度（DN値）の定量（誤差 $\pm 0.01\text{mg l}^{-1}$ ）も行った。

Ⅲ. 結果と考察

Ⅲ-1 海岸への地下水流出過程

背後斜面から汀線にかけての地下水面勾配の変化とその時の潮位変動を図2に示す。ここで、地下水面勾配は、背後斜面の井戸で求めた地下水面標高と海水面標高の差を井戸の地点と汀線との距離で除したものである。潮位上昇によって地下水面勾配が低下、また逆に潮位下降によって地下水面勾配が上昇していることが確認できる。地下水面勾配は満潮から干潮にかけて0.013から0.035と大きく変化し、最小と最大で3倍に達する。以上のように潮位変動が地下水流出に影響を与えていることが示された。

次に、水理ポテンシャル分布の変動と、陸域地下水寄与率の分布の変動をそれぞれ図3、及び図4に示した。ここで図3中の矢印は地下水の流動方向を示したものである。なお、半日潮の潮位変動を考慮する上で、二度目の干潮（18:00）は一度目の干潮（6:00）と同様の傾向を示すことから割愛した。P1～P3の範囲に汀線がある時（6:00、8:00、14:00、16:00）は、汀線付近のポテンシャルは上向きで、地下水は汀線付近で流出していることが確認できる。また陸側から海に向かって陸域地下水寄与率が低くなっていることから、陸域地下水は海水と混合しながら海岸へ流出していることが確認できる。なお、16:00にP1で大きな上向きが示されている。これは、この地点は透水性が悪いために、動水勾配が大きくなっているためであると考えられる。

干潮から満潮にかけて（6:00～12:00）、海面下に位置する地点ではポテンシャルは下向きの流動を示している。潮位の上昇によって海水が海底に浸入していると考えられる8:00には、陸域地下水寄与率はそれ以前に比べて下がっている、これに反して10:00から14:00までは、陸域地下水寄与率は10%から44%へと上昇傾向を示している。ここで、P3では、10:00には急激に動水勾配が小さくなり、海に向かう流動は停滞傾向を示す。そのため、陸側からの地下水がこの付近に停滞することで満潮を過ぎた14:00まで、陸域地下水寄与率が上昇したのと考えられる。

Ⅲ-2 溶存窒素流出過程

表1に、各地点及び各時刻における溶存窒素濃度、及び推定した溶存窒素濃度を示す。ここで、採水した試料から実際に測定した溶存窒素（DN）濃度を実測DN濃度とし、Cl濃度比から求めた陸域地下水寄与率（%）と井戸①のDN濃度（ 21.2mg l^{-1} ）から推定した濃度を推定DN濃度とする。なお、海水のDN濃度はほぼ0とし、推定DN濃度は、 $21.2 \times \text{地下水寄与率} \div 100$ と計算できる。推定DN濃度は0～ 9.43mg l^{-1} であるのに対し、実測DN濃度は検出限界値（ 0.01mg l^{-1} ）以下～ 2.63mg l^{-1} と低い値を示し、全体的に実測濃度が推定濃度を下回っている。これは、地下水中の溶存窒素が海水との混合による希釈以外の作用を受けて低下していることを示している。

従来、緩やかな勾配をもつ海岸域において、海水と地下水との混合域（ハイポレーイックゾーン）

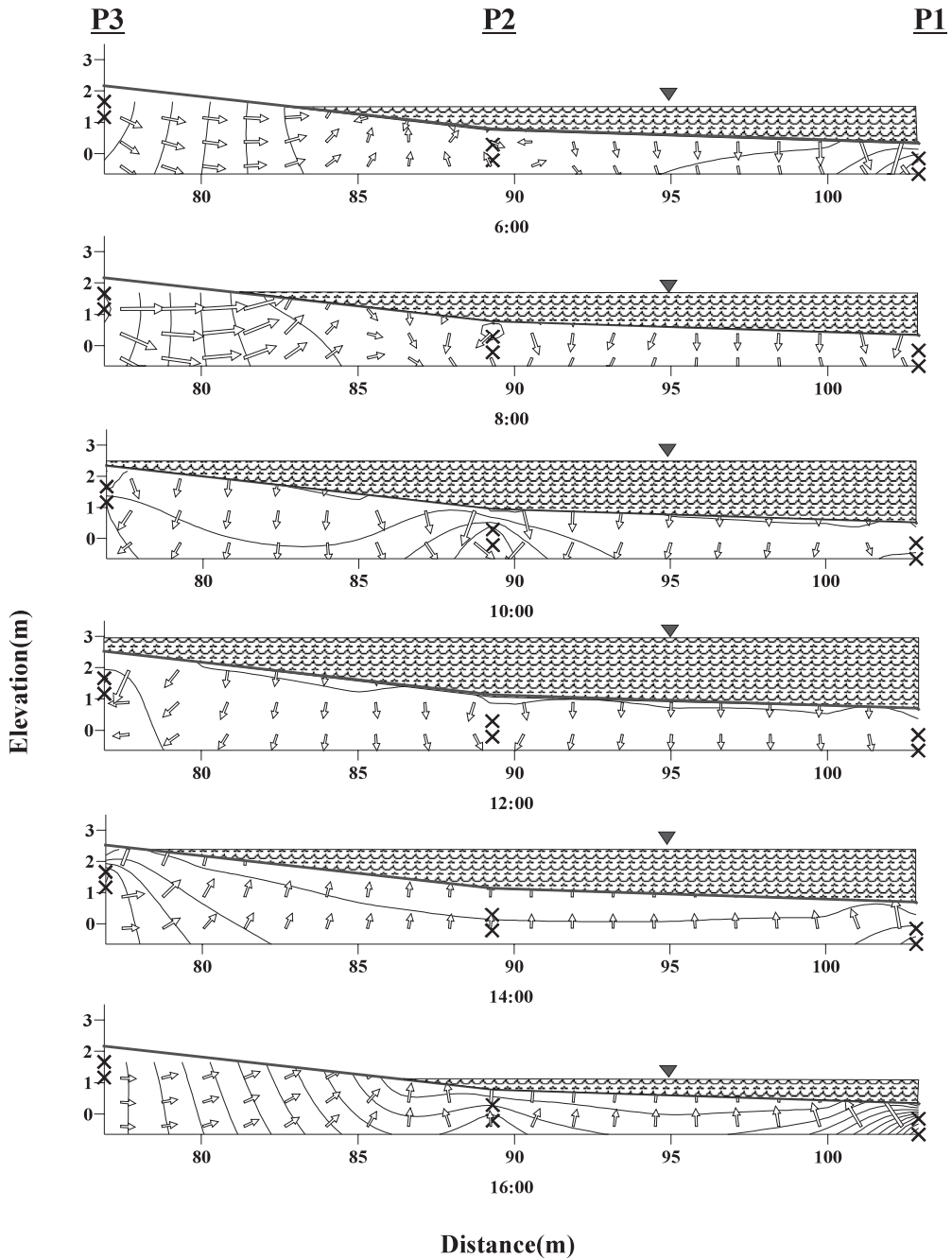


図3 水理ポテンシャル分布
 ×はピエゾメーター埋設地点
 横軸は井戸①を基準とした水平距離
 コンターの間隔：ポテンシャル10cm

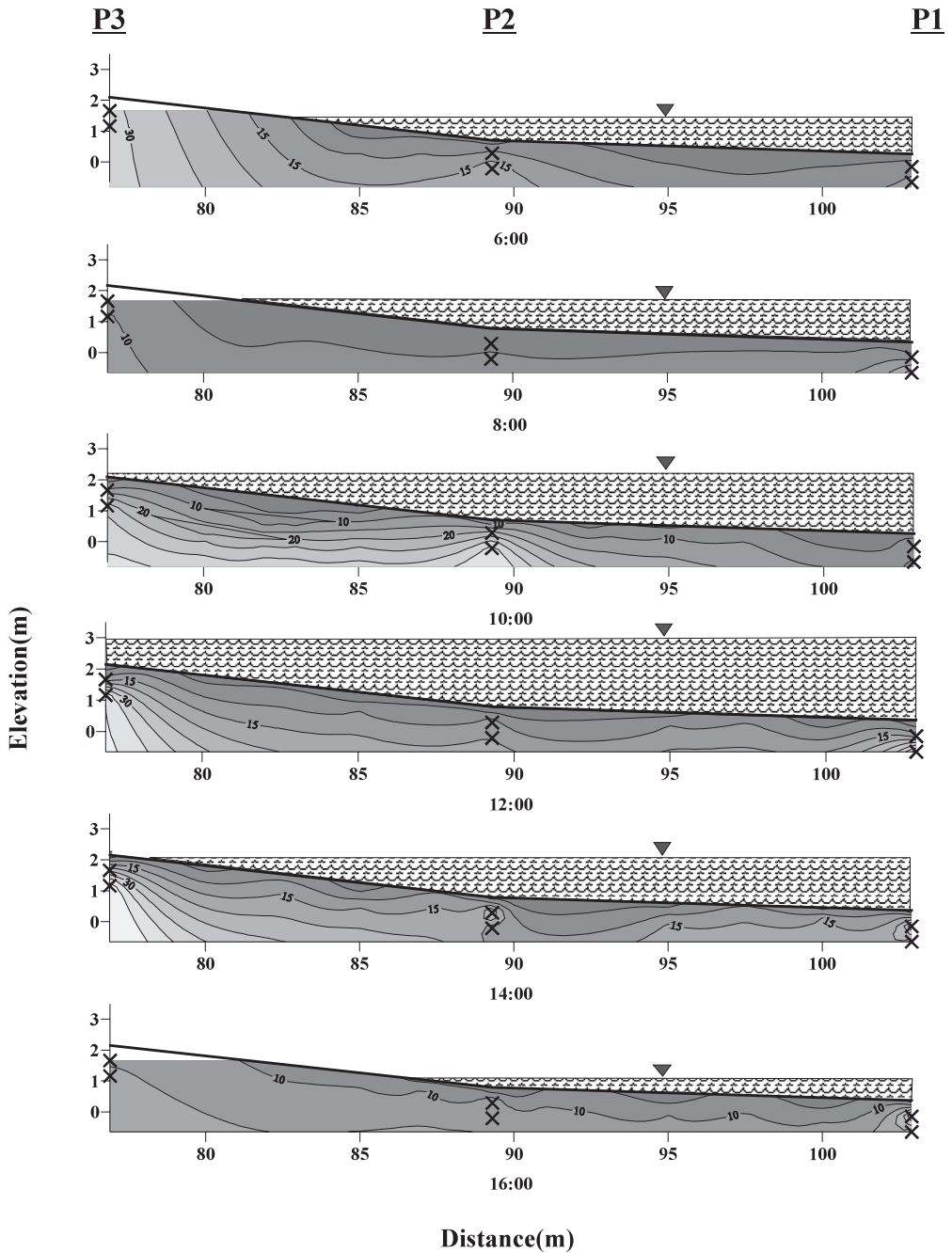


図4 陸域地下水寄与率分布
 ×はピエゾメーター埋設地点
 横軸は井戸①を基準とした水平距離
 コンターの間隔：寄与率5%

表1 各地点・時刻における溶存窒素濃度、及び推定した溶存窒素濃度

Sampling point	Depth(cm)	DNmes. concentration(mg ^l ⁻¹)					
		6 : 00	8 : 00	10 : 00	12 : 00	14 : 00	16 : 00
Well①					21.2		
P3	50	—	—	—	0.2	—	—
	100	※	—	—	0.42	—	—
P2	50	0.29	—	—	1.33	2.63	—
	100	0.73	0.05	0.36	1.23	0.72	—
P1	50	1.23	—	0.26	0.25	0.05	—
	100	—	—	—	0.22	0.48	—
		DNcal. concentration(mg ^l ⁻¹)					
		6 : 00	8 : 00	10 : 00	12 : 00	14 : 00	16 : 00
P3	50	6.72	1.66	2.28	2.57	5.13	2.99
	100	※	2.26	6.08	8.46	9.43	3.46
P2	50	2.46	0.55	4.65	2.8	6.06	3.37
	100	3.9	1.5	7.96	3.1	2.28	2.65
P1	50	1.8	1.44	2.39	2.65	7.47	7.73
	100	2.32	4.94	0.64	9.16	3.37	3.39

※は採水不可、—は検出限界 (0.01mg/L) 以下を表す

で、硝酸性窒素の自然浄化(脱窒)が起きる例が報告されており、今回の試験地においても混合域で同様の作用が起きていると推測できる。海水との混合による希釈以外の作用によって減少したDN濃度は、推定DN濃度と実測DN濃度の差で表すことができる。推定DN濃度と実測DN濃度の差の分布を図5に示す。6:00から8:00は潮位上昇によって、汀線とともに濃度差の大きい範囲が陸側に移動し、同様に14:00から16:00は潮位下降によって海側に移動しており、潮位変動によって脱窒域が移動することを示している。

また、P1地点では、12:00~16:00に推定濃度と実測濃度の差は大きくなっている。試験地ではP2-P1地点の間(井戸①から約95m地点)を境に堆積物が砂質から粘土質に変化しており、比較的透水性が悪く、水の置き換わり過程も遅いため、より還元環境ができやすく脱窒も生じやすいと考えられる。

図6に、P3(陸側)の深度100cmにおける陸域地下水寄与率と窒素消失量(推定DN濃度-実測DN濃度)の時間変化を、潮位変動とともに示す。図から、満潮時の前後(10:00~14:00)に推定濃度と実測濃度との差が最も大きくなっていることが分かる。また、推定濃度と実測濃度の差が大きい時間は地下水寄与率の高い時間とほぼ一致している。潮位の上昇によって、海底に停滞した陸域地下水寄与率の高い地下水が還元環境下において、脱窒反応によってDN濃度を低下させたと考えられる。以上、本研究では、潮位変動という極めて短時間の間に起きる、脱窒過程によると思われる溶存窒素の消失過程(浄化過程)が明らかになった。

今後、より詳細な窒素濃度減少のプロセスを明らかにするために、脱窒過程そのものを実証するとともに、より正確に地下水流出・窒素流出を把握するために海底の透水係数や地下水流出量の不均一性や、詳細な濃度分布の把握を行なうことが必要である。

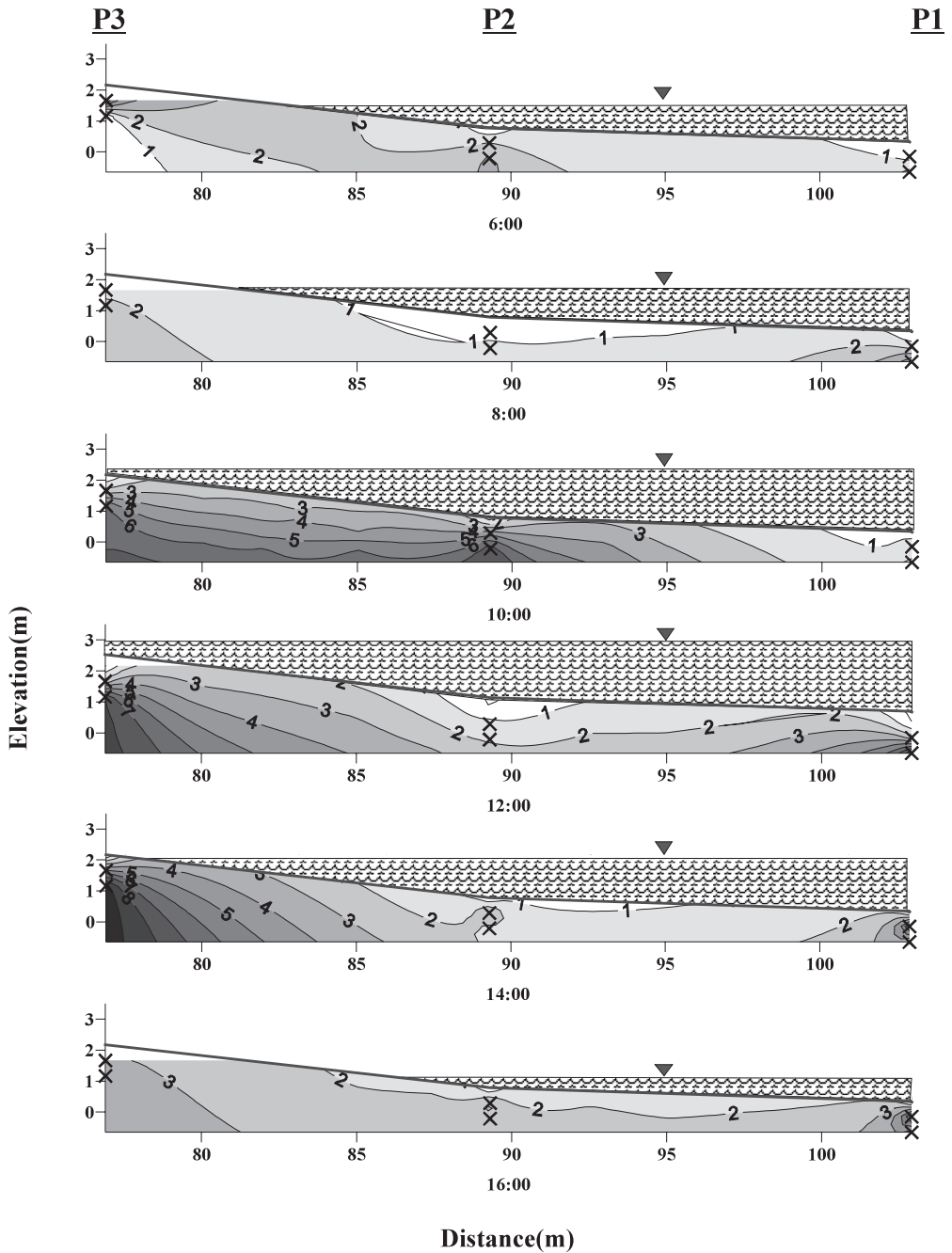


図5 推定-実測DN濃度差分布
 ×はピエゾメーター埋設地点
 横軸は井戸①を基準とした水平距離
 コンターの間隔：1 mg^l⁻¹

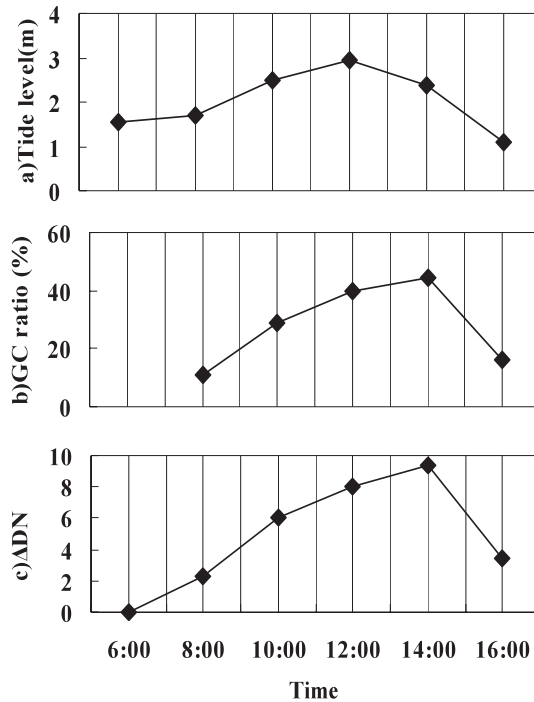


図6 P3地点100cm深度における陸域地下水寄与率と窒素消失量、潮位変動の時間変化
 a) 潮位 (m)
 b) 陸域地下水寄与率 (Groundwater Contribution ratio) (%)
 c) 窒素消失量 (DNcal.-DNmes.) (mg l⁻¹)

IV. まとめ

本論では、潮位変動が大きく、背後に高濃度の窒素を含む地下水が存在する急勾配な海岸において、ポテンシャル測定及び採水した試料の溶存窒素の定量を行い、地下水流出と溶存窒素流出について以下のことを明らかにした。

- 1) 測定地点のある潮間帯では満潮時前後に、海底で高い陸域地下水寄与率を示した。これは、潮位の上昇にともない流出域が陸側に移動しながら、最終的に満潮時には、陸側から流動してきた地下水が海底に停滞させられることを示唆している。
- 2) 各地点の溶存窒素濃度は、陸域地下水の溶存窒素濃度と寄与率より推定した濃度より低く、海岸への地下水流出過程において海水による希釈以外の窒素消失過程が確認された。特に満潮前後の時間帯において高い陸域地下水寄与率を示した停滞域で窒素消失量が大きいという、非定常な窒素消失過程を明らかにした。現在のところ、この溶存窒素濃度の低下は脱窒によるものと考えられる。

引用文献

Ataie-Ashtani, B., Volker, R.E. and Lockington, D.A. (1999): Tidal sea water intrusion in unconfined aquifers, *J. Hydrol.*, 216, 17-31.

- Burnett, W.C., Taniguchi M. and Oberdorfer, J. (2001): Measurement and significance of the direct discharge of groundwater into the coastal zone, *J. Sea Res.*, 46, 109-116.
- Burt T.P., Heathwaite A.L. and Trudgill S.T. (1993): *Nitrate: Processes, Patterns and Management*, John Wiley & Sons.
- Freeze R.A. and Cherry, J.A. (1979): *Groundwater*, John Wiley and Sons, 604.
- Howard K.W.F. (1984): Denitrification in a major limestone aquifer, *J. Hydrol.* 76, 265-280.
- Onodera, S., Saito, M., Shige-eda, T. (2004a): Nitrate load in various coastal catchments of seto inland sea in western Japan: Effects of topography and rainfall, *Proceedings of Nitrate Conference*, (in press).
- Onodera, S., Saito, M., Takei, T., Hayashi, M., Shimada, J. (2004b): Effects of rainfall and land use on nitrate transport of coastal groundwater in western Japan, *Proceedings of 33th IAH Congresses*.
- 小野寺真一, 齋藤光代, 加藤成子 (2003) : 瀬戸内流域における水資源の質的再評価ー将来の利用のための指標としてー, *日本研究*, 特集号 2, 29-36.
- Saito, M., Onodera, S. (2004): Biogeochemical process in groundwater of a sloppy rural catchment in a temperate-humid island, sw-Japan, *Proceedings of 33th IAH Congresses*, 1-4.
- 齋藤光代, 小野寺真一, 竹井務 (2004) : 沿岸農業小流域における硝酸性窒素流出過程, *陸水学会誌* (投稿中).
- 竹井務, 小野寺真一, 西宗直之, 齋藤光代 (2004) : 瀬戸内海沿岸域における潮汐にともなう再循環水の挙動, *地下水学会誌* (投稿中).
- 谷口真人 (2000) : グローバルな観点からの地下水研究の現状と課題ー地下水研究の時空間方向へのスケールアップ, *水文・水資源学会誌* 13, 476-485.
- Taniguchi, M. (2002): Tidal effects on submarine groundwater discharge into the ocean, *Geophysical Res. Let.*, 29, 12.
- Ueda, S., Chun-sim U.Go., Suzumura, M. and Sumi, E. (2003): Denitrification in a seashore sandy deposit influenced by groundwater discharge, *Biogeochemistry*, 63, 187-205.
- Uchiyama, Y., Nadaoka, K., Rölke, P., Adachi, K., and Yagi, H. (2000): Submarine groundwater discharge into the sea and associated nutrient transport in a sandy beach, *Water Resources Research*, 36, 1467-1479.
- Zektser, I.S. and Loaiciga, H.A. (1993): Groundwater fluxes in the global hydrologic cycle: past, present and future. *J. Hydrol.*, 144, 405-427.