

## 水田および浅層地下水中の脱窒による環境浄化

江口定夫<sup>1</sup>

Denitrification in paddy fields and shallow aquifers for environmental water purification

Sadao EGUCHI<sup>1</sup>

**Abstract** : Denitrification in soil and groundwater systems forms the largest black box in the global nitrogen cycle, functioning as the largest sink of nitrogen with highest uncertainty. Quantification and modeling of in situ denitrification in soil and groundwater systems under various environmental conditions are needed for obtaining more reliable estimates of denitrification. This paper reviews the characteristics and controlling factors of denitrification in paddy fields and shallow aquifers, and the needs of soil physics-based approach for quantifying and modeling in situ denitrification. Direct measurement of in situ denitrification under field conditions is very difficult; alternatively, nitrate removal rate is often measured. In paddy fields, nitrate removal data have been accumulated under various environmental conditions, and practical modeling of nitrate removal has been going on. On the contrary, in shallow aquifers, nitrate removal is merely measured based on the determination of three-dimensional groundwater flow and nitrate transport. Soil physics should play much more significant role in determining and modeling in situ denitrification rate in soil and groundwater systems, and in elucidating the global nitrogen cycle.

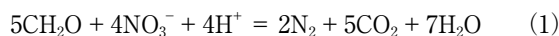
**Key words** : labile organic carbon, anaerobic condition, nitrate ion, denitrifier, soil physics

## 1. はじめに

## 1.1 脱窒とは

脱窒は、1) 嫌気的条件下で、2) 通性嫌気性の従属栄養生物である脱窒菌の居る場所で、3) 電子受容体(硝酸イオン  $[\text{NO}_3^-]$ )と4) 電子供与体(易分解性の有機態炭素  $[\text{OC}]$  やパイライト  $[\text{FeS}_2]$  等)が出会うことによって生じる、嫌気的呼吸(エネルギー獲得反応)の一種である。脱窒は、巨視的にも微視的にも、 $\text{NO}_3^-$ を含む好気的環境と酸素( $\text{O}_2$ )を含まない嫌気的環境の境界付近で、局所的に進行する。脱窒により、 $\text{NO}_3^-$ は

亜硝酸イオン( $\text{NO}_2^-$ )を経て、気体状分子である一酸化窒素( $\text{NO}$ )、一酸化二窒素( $\text{N}_2\text{O}$ )及び窒素分子( $\text{N}_2$ )まで還元される。脱窒菌は、嫌気的条件下では、脱窒によって土壌・地下水中から $\text{NO}_3^-$ を除去する能力を発現する。脱窒反応は、例えば易分解性OCである炭水化物を電子供与体として、次のように表される(Beauchamp et al., 1989)。



これは、有機物を消費することから従属栄養型の脱窒(heterotrophic denitrification)と呼ばれ、 $\text{FeS}_2$ 等の無機物を電子供与体とする場合は、独立栄養型の脱窒(autotrophic denitrification)と呼ばれる(Hiscock et al., 1991; Korom, 1992)。一方、好気的条件下では、脱窒菌は次式のような好気的呼吸を行い、脱窒による $\text{NO}_3^-$ 除去は生じない。



すなわち、脱窒の化学反応式(1)には直接関与しない $\text{O}_2$ の有無が、土壌・地下水中における脱窒による $\text{NO}_3^-$ 除去能の発現を強く規定している。

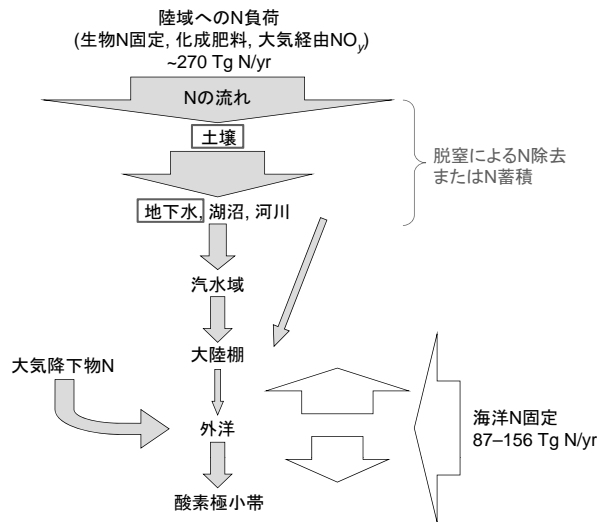
環境中には、冒頭の一文で定義できるような「脱窒」とは異なる好気的条件下での脱窒(Robertson and Kuenen, 1984; Wrage et al., 2001; Kool et al., 2011)、独立栄養細菌である嫌気性アンモニア酸化(anammox, anaerobic ammonium oxidation)細菌による脱窒(Schubert et al., 2006; Burgin and Hamilton, 2007)、ダイズ根粒菌による脱窒(Sameshima-Saito et al., 2006)等が存在する。また、植物・微生物による $\text{NO}_3^-$ 吸収・同化や異化的硝酸塩還元によるアンモニウム塩生成(DNRA, dissimilatory nitrate reduction to ammonium)のように、系内での $\text{NO}_3^-$ 収支のみに着目していると、見かけ上、脱窒を過大評価してしまうような過程も存在する(Tiedje, 1981; Burgin and Hamilton, 2007)。本稿では、脱窒と呼ぶことのできる経路のすべてを網羅することはせず、冒頭の一文で定義できる「脱窒」のみについて述べる。また、系内での $\text{NO}_3^-$ -N収支(またはN収支)から求められるN除去量・速度は、脱窒だけでなく、 $\text{NO}_3^-$ 吸収・同化やDNRAを含みうる値と定義して、議

<sup>1</sup>National Institute for Agro-Environmental Sciences, Kannondai 3-1-3, Tsukuba, Ibaraki 305-8604, Japan.

Corresponding author : 江口定夫, 農業環境技術研究所

2012年1月11日受稿, 2012年2月29日受理

土壌の物理性 120号, 29-38 (2012)



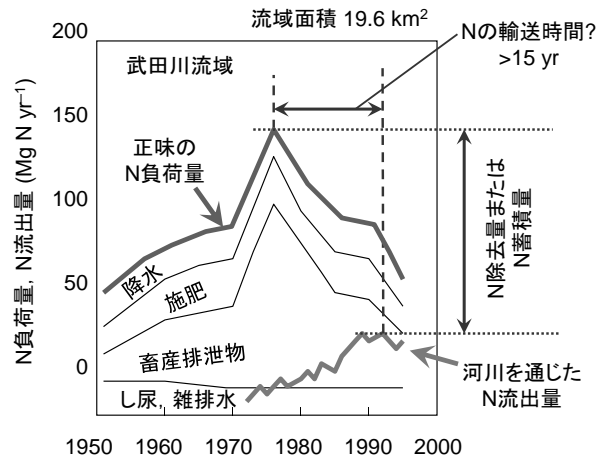
**Fig. 1** 陸域-淡水域-海域連続体を通じた地球規模での窒素の輸送 (Seitzinger et al. [2006] を一部改変).  
Global scale nitrogen transfer through terrestrial-freshwater-marine continuum (modified from Seitzinger et al. [2006]).

論を進める。

## 1.2 地球規模の窒素循環と脱窒

地球規模の N 循環において, 大気中の N<sub>2</sub> は, 自然または人為的な無機 N または有機 N 合成反応を経て, 陸域へ負荷される。1860 年から 1990 年代初めまでに, 生物に利用できないいわゆる「反応性窒素 (reactive nitrogen)」の陸域への N 負荷量は, 140 から 270 Tg yr<sup>-1</sup> へとほぼ倍増した (Galloway et al., 2004; Seitzinger et al., 2006)。一方, 陸域から淡水域及び海水域へと向かう地球規模での N の流れ (Fig. 1) は, 土壌・地下水系を通過する過程で大きく減少する (Galloway et al., 2003; Seitzinger et al., 2006)。この過程は, 主に脱窒による N 除去または系内における有機 N 等の蓄積によるものと考えられる。しかし, 両者を区別するために必要となる十分な実測値の蓄積や簡便な推定手法がないために, この過程は地球規模の N 循環における最大のブラックボックスとなっている。集水域スケールの N 収支研究では, しばしば, ある期間内での N 蓄積量は他の N 収入・支出項目に比べて相対的にずっと小さいこと (定常状態) が推定または仮定され, 脱窒による N 除去の重要性が強調される。例えば, Howarth et al. (1996) は, 南米, 中米, 北米, 欧州及びアフリカ大陸から北大西洋へ注ぐ合計 14 の流域 (面積: 0.3 ~ 6.5 × 10<sup>6</sup> km<sup>2</sup>) を対象とした長期間 (~10 年程度) の N 収支に基づき, 流域への正味の人為起源 N 負荷の約 75% が水畔域 (riparian zone) 等での脱窒により除去されると推定した。この著者らは, 土壌中の N 存在量変化については全く言及せず, 地下水中の N 存在量変化についても一部の流域を除いて重要でないとの推定結果を示している。

水畔域は, 河川・湖沼等の表面水体の周縁部に, しばしば帯状に発達する湿性陸域環境であり, 流域全体の面



**Fig. 2** 集水域スケールの窒素負荷と河川を通じた窒素流出 (板橋・竹内 [2005] を一部改変).  
Watershed scale nitrogen load and discharge via stream (modified from Itahashi and Takeuchi [2005]).

積に占める割合はごく僅かだが, 農業活動等に由来する N を脱窒によって効果的に除去し, 水域への環境負荷を軽減する機能を持つと考えられている (Naiman and Décamps, 1997; Martin et al., 1999; McClain et al., 2003; 江口, 2008)。ただし, 水畔域の脱窒による NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 除去効率は, 台地から表面水体までを包含する地形水文系列 (topohydrosequence, hydrocatena) 全体の水文地質環境によって強く規定され (Hill, 1996; Gold et al., 2001; Vidon and Hill, 2004), ほとんど脱窒が生じない場合 (Böhlke et al., 1995; Pinay et al., 1998) から 90 ~ 100% が除去される場合 (Gilliam, 1994; Fennessy and Cronk, 1997) まで大きく変動する。これには, 脱窒が水畔域内のごく一部のみで局所的に生じる (脱窒のホットスポット) ことが深く関係しており, 台地由来の NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 濃度の高い地下水が, 低地の易分解性 OC に富む嫌気的な表層に, 十分に接することが出来るかどうか NO<sub>3</sub><sup>-</sup> 除去効率を大きく左右する (Vidon and Hill, 2004; 江口, 2008)。このような変動の大きさは, 流域内での脱窒量を正確に見積もることを困難にする大きな要因の一つとなっている。Table 1 は, Seitzinger et al. (2006) による様々な系内における地球規模での脱窒量の推定結果である。土壌・地下水系内での脱窒量は最大であると共に, その不確実性の大きさもまた, 最大値を示している。

地球規模での N の流れが土壌・地下水系を通過する過程で大きく減少する (Fig. 1) 原因が, 主に脱窒による N 除去であり, それが今後も半永続的に機能するのであれば, 現在の陸域への正味の N 負荷を維持するだけで, 水域へのこれ以上の N 負荷は今後も長期にわたって免れることが出来るだろう。しかし, もし N 蓄積が主体であるとする, たとえ今すぐ陸域への正味の N 負荷をゼロにしたとしても, 陸域から水域への N 流出は今後も長期間にわたって継続することになる。板橋と竹内 (2005) は, 面積わずか 20 km<sup>2</sup> の流域を対象として,

河川を通じたN流出のピーク時期が、流域内での正味のN負荷量のピーク時期に比べて15年以上遅れることを示した (Fig. 2)。この時間遅れは、流域内での正味のN負荷量の変化が河川からのN流出量の変化として現れるまでの時間を表しており、他の流域では、10年以上 (松森・板橋, 2009), 10年以内 (Hirono et al., 2009; 高橋ら, 2009), 流域によってほぼゼロから10年以上まで変動 (Takeuchi et al., 2005; Itahashi et al., 2006; Itahashi et al., 2007) 等、様々である。このような時間遅れは、多孔質体である土壤・地下水系内をNO<sub>3</sub><sup>-</sup>が輸送されるのに要する時間と、土壤中に蓄積された有機態Nが少しずつ無機化される時間の両方の影響を含むと考えられる。しかし、深さ1m程度までの作物根域内におけるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>輸送時間が1~数年にも達する (江口, 2006a) ことを考えると、10年前後程度の時間遅れは主に前者の影響であり、後者の影響は、前者よりもずっと長期間にわたって継続するだろう。やはり、土壤・地下水系内のN循環に定常状態を仮定すること (N蓄積を無視すること) には無理があり、より妥当な方法で脱窒量を推定する必要がある。圃場スケールにおいても、既存のモデルを用いた推定ではモデル間差が非常に大きく (David et al., 2009), 不確実性を小さくすることが出来ない。

以上のように、流域 (Fig. 2) あるいは地球規模 (Fig. 1) でのN循環系内からのN支出項目として最大の要因が、最も不確実性の大きいブラックボックスとして扱われたまま (Table 1), 将来予測の見積もり (Galloway et al., 2004) が進められることには大きな危険がある。陸域へのN負荷が急増したのは、わずか1世紀余り前からの話である。今後、水域へのN負荷が長期間にわたって継続するとき、それが水域生態系にどのような影響を及ぼすかについて、まだ確実なことは何も言えない。地球規模のN循環を将来予測する上で、様々な土壤・地下

水系における脱窒の定量化と、これをより精度良く推定する簡便な手法の開発が強く求められている。本稿では、特に水田および浅層地下水中の脱窒とその支配要因について概括すると共に、それらの定量化および簡易モデル化へ向けての土壤物理学的アプローチの必要性について述べる。

## 2. 水田における脱窒

### 2.1 水田土壌表層における酸素生成・消費と脱窒

脱窒から見た水田土壌表層の大きな特徴は、易分解性OCに富む嫌気的環境と、O<sub>2</sub>生成の盛んな好気的環境が、非常に狭い空間領域内で隣接しているという点である。湛水条件下では、土壤中の易分解性OCは、その分解過程で溶存O<sub>2</sub>を消費するため嫌気的環境の形成に寄与するほか、脱窒の電子供与体としても利用される。一方、田面水は、夜間 (Mowjood and Kasubuchi, 2002) や易分解性OC投入後 (中山ら, 2002) 等を除けば、一般に溶存O<sub>2</sub>濃度が高く、好気的である。晴天日の日中、田面水中の溶存O<sub>2</sub>濃度は過飽和状態 (13~14mg L<sup>-1</sup>) となり (Mowjood and Kasubuchi, 1998), 田面水は、O<sub>2</sub>を21%も含む大気へのO<sub>2</sub>供給源となるほど、極めて好気的な環境—地球上で最もO<sub>2</sub>濃度が高い場所の一つ (粕淵, 2010) —となる。これは、水田土壌表面に棲息するシアノバクテリアの光合成によってO<sub>2</sub>が豊富に供給されるためである。したがって、除草剤の添加により、田面水中の溶存O<sub>2</sub>濃度は大きく低下する (Usui and Kasubuchi, 2011)。田面水中の溶存O<sub>2</sub>濃度は、田面水の非常に大きな対流速度 (~0.14cm s<sup>-1</sup>) により (Fujimaki et al., 2000), 鉛直方向にほぼ均一化する。一方、湛水条件下の土壌表層中における溶存O<sub>2</sub>濃度の鉛直分布は、深さ方向に大きく減少し、地表面下わずか数mmの深さでほぼゼロとなる (Ratering and Schnell, 2000)。これは、水田土壌表層では易分解性OCの酸化分解が非常に速やかに進行し、O<sub>2</sub>が急速に消費されることを示している。

明条件下での水田土壌表面付近 (例えば、深さ0~1mm程度) では、硝化が速やかに進行し、NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度が上昇する (Liesack et al., 2000)。硝化が活発なほど、土壤中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>輸送の駆動力となるNO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度勾配は増大し、脱窒は、表層の厚さ1~2mm程度の酸化層 (oxic layer) とそのわずか1~2mm下に発達する還元層 (anoxic layer) との境界付近で、局所的に進行する (脱窒のホットスポット)。すなわち、この境界付近へのNO<sub>3</sub><sup>-</sup>供給フラックス (= 移流項 + 拡散・分散項) が、水田土壌表層における脱窒速度の大きな規定要因の一つとなっている。なお、田面水中NO<sub>3</sub><sup>-</sup>濃度の低下に寄与するのは、拡散・分散項のみである。

### 2.2 水田における脱窒の定量化と簡易モデル化

水田における脱窒は、田面水中のNO<sub>3</sub>-Nまたは全N収支から算出されるN除去速度として定量されることが多い。これは、脱窒そのものを現場で直接定量できる簡便な手法がないことによる。このNO<sub>3</sub>-N除去速度は、

**Table 1** 様々な水文学的系内における地球規模の脱窒量 (Seitzinger et al. [2006] を一部改変).  
Global scale denitrification in various hydrologic systems (modified from Seitzinger et al. [2006]).

系	脱窒 (不確実性の範囲) Tg N/yr
陸域	
土壤	124 (65-175)
淡水域	
地下水	44 (>0-138)
湖沼, 貯水池	31 (19-43)
河川	35 (20-35)
海域	
汽水域	8 (3-10)
大陸棚	46 (>0-70)
外洋	25 (>0-30?)

例えば  $0.02 \sim 1.0 \text{ g N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  (田淵ら, 1983; 田淵・高村, 1985) という広い範囲内で報告されている (Fig. 3). 水田における  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度は, 高温時に高く, 低温時に低いという明瞭な季節変動 (田淵ら, 2001; Tabuchi, 2002) 及び日変動 (田淵ら, 2005) を示す. また, 高橋ら (2006) は, 田面水中だけでなく, 降下浸透水中の N 除去速度も定量し, 田面水中の N 除去効率が明瞭な温度依存性を示すのに対して, 水田土壌中を降下浸透する過程での  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去効率は, 温度依存性がほとんどなく, 常に  $90 \sim 100\%$  に近いことを示した. 田淵ら (2001) と Tabuchi (2002) によれば, 水田への通年灌漑を継続すると, 水田の  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度は年と共に漸減し, 10 年間でおよそ半減した. しかし, 易分解性 OC の投入により, 再び増大した (黒田, 2001). Takahashi et al. (2010) によれば, 稲わら堆肥よりも, 易分解性 OC の多い稲わらを施与した方が, 水田土壌表層の N 除去効率及び脱窒活性が高まる. シアノバクテリアや藻類による光合成は, 易分解性 OC の供給源として重要であり, 暗条件を長期的に設定した遮光区では,  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度が年と共に低下する (田淵ら, 2001). 不耕起水田では, 耕起水田よりも土壌表層の OC 含量が高まり, 脱窒活性が長く持続する (今井ら, 2006). 田面水中からの  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度は, 水田への流入水中  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度が高いほど (田淵ら, 1983) (Fig. 3), また,  $\text{NO}_3\text{-N}$  を含む流入水の流量が大きいほど増大する (田淵ら, 2005). これは, いずれの条件も田面水と酸化層-還元層境界付近との間の  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度勾配を増大させる効果があることから, この濃度勾配の増大が脱窒のホットスポットへの  $\text{NO}_3\text{-N}$  供給

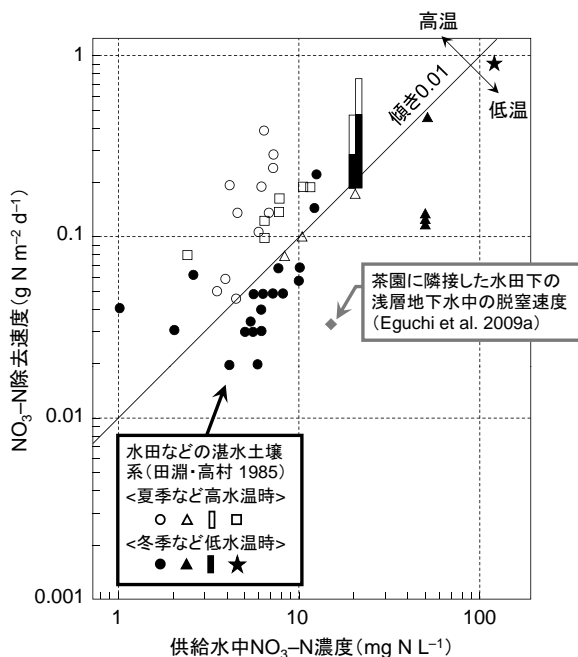


Fig. 3 湛水土壤系における硝酸態窒素除去速度と流入する硝酸態窒素濃度の関係 ([田淵・高村, 1985] を一部改変). Relation between nitrate nitrogen removal rate in submerged soil-ponded water systems and nitrate nitrogen concentration of irrigated water (modified from Tabuchi and Takamura [1985]).

フラックスを増加させた結果として脱窒速度が高くなった, と考えられる.

水田における  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度の簡易モデル化は, 田淵 (2006) と高橋ら (2006) によって進められている. 表面水の流入・流出流量が一定の湛水土壤系において, 流出水中の  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度は, 流入水中  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度の一次反応式で近似される (田淵, 2006)

$$C_{\text{out}} = C_{\text{in}} \exp\left(-\frac{a_0}{q}\right) \quad (3)$$

ここで,  $a_0$  は除去係数 ( $\text{L T}^{-1}$ ),  $q$  は流速 ( $\text{L T}^{-1}$ ),  $C_{\text{in}}$  及び  $C_{\text{out}}$  は流入及び流出水中  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度 ( $\text{M L}^{-3}$ ) である. このとき, 田面水中からの  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度  $R_0$  ( $\text{M L}^{-2} \text{ T}^{-1}$ ) は,

$$R_0 = qC_{\text{in}} \left[1 - \exp\left(-\frac{a_0}{q}\right)\right] \quad (4)$$

式 (3) と (4) の除去係数  $a_0$  は, 実験的に求められる値であり, 土壌表面上の湛水深 ( $L$ ) で割ると一次反応速度定数になる. 除去係数  $a_0$  は, 明瞭な温度依存性を示すだけでなく, 室内恒温実験においても土壌の種類により 1 オーダー以上の違いがある (田淵ら, 1996). すなわち,  $a_0$  値は, 乾田など乾湿を繰り返す土壌では小さく ( $0.001 \text{ m d}^{-1}$ ), 常時湛水田やハス田など常に湿った条件下にある土壌で大きい ( $0.014 \text{ m d}^{-1}$ ). 高橋ら (2006) のモデルは, 基本構造は田淵 (2006) と同じだが, 式 (3) と (4) では考慮されなかった降下浸透過程での  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度を含めた式を提案し, 実測値が良く再現できたことを示している.

田淵 (2006) は, さらに, 水稻等の植生の有無の影響を表現するための植生係数 ( $F=1 \sim 3$ ), 圃場内における田面水の不均一な流れを表現するための田面効率係数 ( $P=0.5 \sim 1$ ) など経験的パラメータを組み入れることにより, 実際の圃場条件下における水田の  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度  $R$  ( $\text{M L}^{-2} \text{ T}^{-1}$ ) を簡易に推定するための実践的・汎用的なモデルを構築している.

$$R = PFqC_{\text{in}} \left[1 - \exp\left(-\frac{a_0}{q}\right)\right] \quad (5)$$

式 (5) によって計算された  $R$  の値と実測値がおおよそ一致することが, 田淵 (2006) によって示されている. このような簡易モデルは, メカニスティックなモデルではないが, 例えば日本の水田全体でどれだけの  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去量があるのかを概算するとき等に, 非常に有用なツールとなる. これよりもさらに簡易な概算方法としては, Fig. 3 に示した傾き 0.01 の水田の  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度ラインを利用する方法もある (田淵ら, 1993). 即ち, 水田への供給水中  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度が  $10 \text{ mg L}^{-1}$  のとき, 脱窒や植生吸収により  $0.1 \text{ g N m}^{-2} \text{ d}^{-1}$  ( $=1 \text{ kg N ha}^{-1} \text{ d}^{-1}$ ) の  $\text{NO}_3\text{-N}$  が田面水中から除去される. ただし, 1 桁以上のバラつき (Fig. 3) があることには十分に注意する必要がある.

以上のように、水田における脱窒については、少なくとも  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度については、現場での定量的な実測データが比較的多く蓄積され、様々な圃場条件にも対応可能な簡易モデル化が進められている。ただし、長期的に見た場合、この  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去量をほぼ脱窒量とみなして良いかどうか、即ち、水田土壌において N 蓄積が重要でないと考えて良いかどうかについては、別途、他の手法で検証することも必要だろう。今後、土壌型の違い、中干しや間断灌漑等の水管理の影響、田畑輪換など土地利用履歴の影響等を考慮した上で、現場での定量的な実測データのさらなる蓄積と簡易モデルの構築が望まれる。

### 3. 浅層地下水中の脱窒

#### 3.1 地質条件の重要性

脱窒から見た浅層地下水帯の大きな特徴は、堆積物からの易分解性 OC 供給の違いが強く影響し、帯水層中における嫌氣的環境の形成が、地表面の土地利用等の影響を受けにくいという点である。糟谷ら (1994) は、愛知県内 465 地点の農業用地下水を対象とした水質調査結果に基づき、主に洪積台地等に分布する酸化 ( $>250\text{mV}$ ) な浅層地下水中の  $\text{NO}_3^-$  濃度は地上の土地利用による N 負荷の大小の影響を反映して増減するが、主に沖積低地に分布する還元 ( $<250\text{mV}$ ) な浅層地下水では、土地利用に関わらず  $\text{NO}_3^-$  濃度が低いことを示した。糟谷ら (2007) によれば、沖積低地に分布する茶園下の浅層地下水中  $\text{NO}_3\text{-N}$  濃度は、深さ 2m 付近では  $30\sim 40\text{mg L}^{-1}$  であったが、降下浸透過程での脱窒により深さ 3m 付近では常にほぼゼロであった。柴山ら (2006) は、洪積台地上の茶園と沖積低地の水田群から成る地形水文系列の浅層地下水帯において、台地から低地へ向かって分布する洪積層から成る砂礫質帯水層は酸化であり、水田下であっても脱窒はほとんど生じないこと、脱窒は主に沖積低地の水田下に分布する還元的な沖積層とその下の洪積層の境界付近で局所的に生じることを示した。恒川ら (2006) 及び Eguchi et al. (2009a) は、同じ集水域内の台地上の茶園に隣接した水畔域水田下の深さ 2m 付近の還元的沖積層／酸化洪積層境界付近において、脱窒のホットスポットが形成されていることを示した。一般に、沖積層は洪積層よりも OC 含量が高く、堆積年代が新しいことから、易分解性 OC をより多く含むと考えられる。このことが、沖積層での速やかな  $\text{O}_2$  消費を促し、 $\text{NO}_3^-$  を電子受容体とする嫌氣的呼吸すなわち式 (1) の脱窒反応の発現に寄与していると考えられる。地質条件以外にも、地上植生や土地利用・管理の違いが、浅層地下水中の脱窒に影響するとの報告もあるが (Haycock and Pinay, 1993; Bedard-Haughn et al., 2005)、これらの影響は小さいとする報告が多い (Haycock and Burt, 1993; Devito et al., 2000; Clément et al., 2002)。浄化槽排水 (Aravena et al., 1993) や豚糞 (Wassenaar, 1995) の影響を強く受けた浅層地下水帯でも、ほとんど脱窒が生じていなかったとの報告もあ

る。また、浅層地下水面上の不飽和帯について、Kamewada (2007) は、化学肥料及び異なる種類の堆肥を 20 年間連用した黒ボク土畑において深さ 5m までの脱窒活性鉛直分布を測定し、深さ 1m 以下の脱窒活性は、施肥の影響をほとんど受けておらず、どの施肥区でも表層に比べて非常に低いことを示した。一方、Hashimoto and Niimi (2001) は、スラリーを 13～14 年間連用した黒ボク土畑下層の不飽和帯では、深さ 1.2m においても脱窒活性が非常に高まっていることを示した。脱窒活性への施肥の影響がどの深さまで到達するかについては、施肥の量・質及び時間に大きく依存すると考えられる。地質条件が、常に浅層地下水中の嫌氣的環境の形成や脱窒活性に影響する最大の要因であるかどうかについては、さらに検討する必要がある。

#### 3.2 浅層地下水中の脱窒の定量化と簡易モデル化

浅層地下水における脱窒もまた、水田と同様、系内の  $\text{NO}_3\text{-N}$  収支から算出される N 除去速度として定量される。しかし、現場での定量データは国内ではほとんど見当たらない。海外での報告は多いが、非反応性のトレーサー ( $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$  等) と  $\text{NO}_3^-$  の濃度比を利用する場合がほとんどである (Trudell et al., 1986; Nelson et al., 1995; Hedin et al., 1998; Mengis et al., 1999)。また多くの場合、不飽和帯から浅層地下水帯への浸透水及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  流入や、浅層地下水帯から鉛直下方への地下水及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  流出は、計算で考慮されない。トレーサー法は、簡便であり、ある一時点における  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度を推定するには適した手法と考えられる。しかし、一度トレーサー法を適用した帯水層では、地下水滞留時間が非常に小さい場合を除いて、連続してトレーサー法を適用することが出来ない。したがって、 $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度の変化を時系列的に追うことは出来ないという欠点がある。また、黒ボク土のように陰イオン吸着能の高い土壌の帯水層では、トレーサーである  $\text{Cl}^-$  または  $\text{Br}^-$  と  $\text{NO}_3^-$  との間で競合吸着 (Katou, 2004) が生じ、 $\text{NO}_3^-$  輸送過程が人為的に攪乱される可能性が高い。

これらの問題を解決するには、トレーサーに頼ることなく、浅層地下水中の物質収支を求める必要がある。まず、帯水層の土層構成や水理学的性質を把握した上で、調査対象領域 (圃場スケール程度) 内の地下水位・水質の面的分布等をモニタリングする (江口, 2006b)。そして、不飽和帯から浅層地下水帯への浸透水及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  流入、浅層地下水帯よりも鉛直下方への地下水及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  流出、そして水平方向の地下水及び  $\text{NO}_3\text{-N}$  流入・流出を Darcy 式等を利用して定量化し、物質収支によって帯水層中の  $\text{NO}_3\text{-N}$  除去速度を算出する。土層構成では、特に、浅層地下水帯の下端境界面を形成する難透水層の面的分布 (Eguchi et al., 2009b) を把握することが重要となる。しかし、このような時間と労力が多大にかかる方法で、三次元的な不飽和・飽和水移動及び溶質輸送を現場で定量または推定した例は、国内外を問わず、ほとんど見当たらない。一方、Eguchi et al. (2009a) は、水畔域水田下の深さ 2m 付近 (脱窒のホットスポット)

の地下水を、鉛直上方から流入する不圧地下水と鉛直下方から流入する被圧地下水の混合物とみなし、その混合割合を水の水素 ( $\delta D$ ) 及び酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}O$ ) を用いて推定した。さらに、物質収支に基づき、 $NO_3-N$  除去速度を  $33mgNm^{-2}d^{-1}$  ( $120kgNha^{-1}yr^{-1}$ ) と算出した。なお、この深さで脱窒が生じていることは、 $NO_3^-$  の窒素 ( $\delta^{15}N$ ) 安定同位体比が上昇していること、重炭酸イオン ( $HCO_3^-$ ) 濃度が上昇していること、この深さから採取した新鮮土壌の脱窒活性が非常に高いこと等により、別途確認している。

この深さ2m付近へ、被圧及び不圧地下水から供給される  $NO_3^-$  濃度を計算すると、約  $16mgNL^{-1}$  であった。したがって、水田の  $NO_3-N$  除去速度のライン (Fig. 3) と比較すると、水畔域水田下の浅層地下水に形成された脱窒のホットスポットの脱窒速度 ( $0.033gNm^{-2}d^{-1}$ ) は、水田におよそ匹敵するかやや小さい値といえるかもしれない。一般に水畔域の浅層地下水帯は、流域内では最も脱窒活性の高い地下水帯であり、流域内の他の浅層地下水帯の脱窒速度は、Fig. 3の水田の  $NO_3-N$  除去速度ラインよりもずっと下方に位置すると考えられる。したがって、浅層地下水中の脱窒は、恐らく、水田のように  $NO_3^-$  濃度だけではほとんど説明できないだろう。ただし、これについては、今後、実測値の蓄積によって明らかにしていく必要がある。

物質収支法は、原理的には、 $NO_3-N$  除去速度の経時・経日変化を追うことが可能な手法だが、現状では、それだけの高精度で水及び  $NO_3-N$  存在量の変化を定量することは困難である。一方、少なくとも水の存在量変化が相対的に小さくなる年単位など、ある程度長期間での水収支・ $NO_3-N$  収支を算出し、長期的な年次変動を追跡することは可能と思われる。モデル化を進める前に、まずは様々な浅層地下水帯における  $NO_3-N$  除去速度の実測データの蓄積が必要である。現場の浅層地下水における  $NO_3-N$  除去速度の定量化 (物質収支法) には、三次元的な不飽和・飽和水移動及び溶質輸送を現場で定量または推定するための土壌物理学的なアプローチが必要不可欠である。

#### 4. おわりに

水田および浅層地下水中の脱窒による環境浄化を評価する上で、特に土壌物理学的アプローチが必要となるのは、これらの系内における現場脱窒速度の定量化とモデル化に関する部分である。水田では、少なくとも  $N$  除去速度 (脱窒以外に、 $N$  同化・吸収等も含む) については、定量的データが蓄積されており、簡易モデル予測値と現場実測値の比較・検討が行われている。一方、浅層地下水中の脱窒は、 $N$  除去速度について見ても特に国内では現場条件下での実測値がほとんどなく、まだ簡易モデル化を検討できるレベルにない。まずは様々な土壌・地下水系を対象として、 $N$  除去速度の現場実測データの蓄積が必要である。

現場条件下における土壌・地下水系での脱窒を実験的

に定量することは非常に困難であり、この状況は、半世紀以上も前から基本的に全く変わっていない (Allison, 1955; Knowles, 1982; Davidson and Seitzinger, 2006)。Davidson and Seitzinger (2006) は、「脱窒研究の進展の謎」と題した論文の最後のまとめの中で、「土壌・地下水を通じた水の流れは、集水域内の脱窒を理解する鍵である。台地土壌から河川へと至る連続体上のあちこちで、脱窒を測定するための集約的研究を行うべきである。ただし、水文学的性質が既に良く分かっている場所かつ／または単純な場所で、(一部、省略及び意識)」と述べている。これは、土壌・地下水系内の水移動研究を最も専門とする土壌物理学分野が、地球規模での生物地球化学分野の問題を解くための鍵として必要とされていることを示していると思う。環境中で生じる様々な微視的～巨視的現象を、現場条件下でできるだけ正確に定量的に測定し (測定する手法を開発し)、さらにそれを定量的に予測できる簡易な、あるいはより詳細でメカニスティックなモデルを構築していくという作業は、土壌物理学分野の研究者が最も得意とする仕事である。実際、現場条件下での脱窒の定量化 (Rolston et al., 1978; Eguchi et al., 2009a) やモデル化 (Molz et al., 1986; Ma et al., 1999; 中村・取出, 2007) について、これまでに多くの役割を果たしてきている。しかし、それでもなお、現場条件下で  $N$  除去速度ではなく脱窒速度のみを定量的に測定できる手法はいまだに開発されておらず、モデル化では、広域評価の部分、すなわち流域あるいは地球規模での脱窒速度を比較的簡便に概算・予測できるようなモデルがない。地球規模での  $N$  循環過程を解明する上で、土壌物理学は、これまでよりもさらに重要な役割を果たす必要がある。

#### 引用文献

- Allison, F.E. (1955) : The enigma of soil nitrogen balance sheets. *Advances in Agronomy*, 7: 213-250.
- Aravena, R., Evans, M.L. and Cherry, J.A. (1993) : Stable isotopes of oxygen and nitrogen in source identification of nitrate from septic systems. *Ground Water*, 31 (2) : 180-186.
- Beauchamp, E.G., Trevors, J.T. and Paul, J.W. (1989) : Carbon sources for bacterial denitrification. *Advances in Soil Science*, 10: 113-142.
- Bedard-Haughn, A., Tate, K.W. and van Kessel, C. (2005) : Quantifying the impact of regular cutting on vegetative buffer efficacy for nitrogen-15 sequestration. *Journal of Environmental Quality*, 34 (5) : 1651-1664.
- Böhlke, J.K. and Denver, J.M. (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 (9) : 2319-2339.
- Burgin, A.J. and Hamilton, S.K. (2007) : Have we overemphasized the role of denitrification in aquatic ecosystems? A

- review of nitrate removal pathways. *Frontiers in Ecology and the Environment*, 5 (2) : 89-96.
- Clément, J.-C., Pinay, G. and Marmonier, P. (2002) : Seasonal dynamics of denitrification along topohydrosequences in three different riparian wetlands. *Journal of Environmental Quality*, 31 (3) : 1025-1037.
- David, M.B., Del Grosso, S.J., Hu, X., Marshall, E.P., McIsaac, G.F., Parton, W.J., Tonitto, C., Youssef, M.A. (2009) : Modeling denitrification in a tile-drained, corn and soybean agroecosystem of Illinois, USA. *Biogeochemistry*, 93 (1-2) : 7-30.
- Davidson, E.A. and Seitzinger, S. (2006) : The enigma of progress in denitrification research. *Ecological Applications*, 16 (6) : 2057-2063.
- Devito, K.J., Fitzgerald, D., Hill, A.R. and Aravena, R. (2000) : Nitrate dynamics in relation to lithology and hydrologic flow path in a river riparian zone. *Journal of Environmental Quality*, 29 (4) : 1075-1084.
- 江口定夫 (2006a) : 黒ボク土畑圃場における水移動と硝酸塩の溶脱. 土壌の物理性, 102 : 19-30.
- 江口定夫 (2006b) : 浅層地下水流量調査法. 水環境保全のための農業環境モニタリングマニュアル改訂版 斉藤雅典ら編, pp. 107-112. 農業環境技術研究所, つくば.
- 江口定夫 (2008) : モデルによる土壌, 農耕地, 流域における窒素動態の理解. 3. 地形連鎖系スケールの窒素動態—調査技法とモデル化手法—. *日本土壌肥科学雑誌*, 79(2) : 213-227.
- Eguchi, S., Nakajima, S., Yabusaki, S., Kasuya, M., Shibayama, H., Tsunekawa, A. and Imai, K. (2009a) : Denitrification during vertical upwelling at an alluvium-diluvium interface below the upland perimeter of a riparian paddy. *Journal of Environmental Quality*, 38 (6) : 2198-2209.
- Eguchi, S., Sawamoto, M. and Shiba, M. (2009b) : Field scale determination of the aquifer-aquitard boundary in Joso Clay by cone penetrometry. *Soil Science and Plant Nutrition*, 55 (3) : 337-348.
- Fennessy, M.S. and Cronk, J.K. (1997) : The effectiveness and restoration potential of riparian ecotones for the management of nonpoint source pollution, particularly nitrate. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 27 (4) : 285-317.
- Fujimaki, Y., Mowjood, M.I.M. and Kasubuchi, T. (2000) : Measurement of convective velocity of ponded water in a paddy field. *Soil Science*, 165 (5) : 404-411.
- Galloway, J.N., Aber, J.D., Erisman, J.W., Seitzinger, S.P., Howarth, R.W., Cowling, E.B. and Cosby, B.J. (2003) : The nitrogen cascade. *BioScience*, 53 (4) : 341-356.
- Galloway, J.N., Dentener, F.J., Capone, D.G., Boyer, E.W., Howarth, R.W., Seitzinger, S.P., Asner, G.P., Cleveland, C.C., Green, P.A., Holland, E.A., Karl, D.M., Michaels, A.F., Porter, J.H., Townsend, A.R. and Vörösmarty, C.J. (2004) : Nitrogen cycles: past, present, and future. *Biogeochemistry*, 70 (2) : 153-226.
- Gilliam, J.W. (1994) : Riparian wetlands and water quality. *Journal of Environmental Quality*, 23 (5) : 896-900.
- Gold, A.J., Groffman, P.M., Addy, K., Kellogg, D.Q., Stolt, M. and Rosenblatt, A.E. (2001) : Landscape attributes as controls on ground water nitrate removal capacity of riparian zones. *Journal of the American Water Resources Association*, 37 (6) : 1457-1464.
- Hashimoto, T. and Niimi, H. (2001) : Seasonal and vertical changes in denitrification activity and denitrifying bacterial populations in surface and subsurface upland soils with slurry application. *Soil Science and Plant Nutrition*, 47 (3) : 503-510.
- Haycock, N.E. and Burt, T.P. (1993) : Role of floodplain sediments in reducing the nitrate concentration of subsurface run-off: a case study in the Cotswolds, UK. *Hydrological Processes*, 7 (3) : 287-295.
- Haycock, N.E. and Pinay, G. (1993) : Groundwater nitrate dynamics in grass and poplar vegetated riparian buffer strips during the winter. *Journal of Environmental Quality*, 22 (2) : 273-278.
- Hedin, L.O., von Fischer, J.C., Ostrom, N.E., Kennedy, B.P., Brown, M.G. and Robertson, G.P. (1998) : Thermodynamic constraints on nitrogen transformations and other biogeochemical processes at soil-stream interfaces. *Ecology*, 79 (2) : 684-703.
- Hill, A.R. (1996) : Nitrate removal in stream riparian zones. *Journal of Environmental Quality*, 25 (4) : 743-755.
- Hirono, Y., Watanabe, I. and Nonaka K. (2009) : Trends in water quality around an intensive tea-growing area in Shizuoka, Japan. *Soil Science and Plant Nutrition*, 55 (6) : 783-792.
- Hiscock, K.M., Lloyd, J.W. and Lerner, D.N. (1991) : Review of natural and artificial denitrification of groundwater. *Water Research*, 25 (9) : 1099-1111.
- Howarth, R.W., Billen, G., Swaney, D., Townsend, A., Jaworski, N., Lajtha, K., Downing, J.A., Elmgren, R., Caraco, N., Jordan, T., Berendse, F., Freney, J., Kudeyarov, V., Murdoch, P. and Zhao-Liang, Z. (1996) : Regional nitrogen budgets and riverine N & P fluxes for the drainages to the North Atlantic Ocean: Natural and human influences. *Biogeochemistry*, 35 (1) : 75-139.
- 今井克彦, 野々山利博, 恒川歩, 柴山浩子 (2006) : 水稲の不耕起V溝直播栽培は移植栽培より脱窒活性が長く持続する. 関東東海北陸農業研究成果情報, pp. 520-521.
- Itahashi, S., Komada, M. and Takeuchi, M. (2006) : Methods for estimating the nitrogen load on a catchment scale. *Japan Agricultural Research Quarterly*, 40 (2) : 131-142.
- Itahashi, S., Seo, M.C. and Takeuchi, M. (2007) : Estimation and comparison of nitrogen loads and attenuation in agricultural catchments of Japan and Korea. *Water Science and Technology*, 56 (1) : 105-113.
- 板橋直, 竹内誠 (2005) : 窒素負荷算定モデルを用いた地目連鎖

- 系評価. 続・環境負荷を予測する 波多野隆介・犬伏和之編, pp. 80-94. 博友社, 東京.
- Kamewada, K. (2007) : Vertical distribution of denitrification activity in an Andisol upland field and its relationship with dissolved organic carbon: Effect of long-term organic matter application. *Soil Science and Plant Nutrition*, 53 (4) : 401-412.
- 粕淵辰昭 (2010) : 土と地球 土は地球の生命維持装置. p. 172. 学会出版センター, 東京.
- 糟谷真宏, 小竹美恵子, 寺井久慈, 松尾敬子, 豊田一郎 (1994) : 愛知県の農耕地および農村集落における地下水の硝酸イオン濃度とその支配因子. *水環境学会誌*, 17 (9) : 578-586.
- 糟谷真宏, 恒川歩, 前田美恵子 (2007) : 矢作川下流域沖積地帯の茶園地下水における脱窒による硝酸イオンの消失. *愛知県農業総合試験場研究報告*, 39 : 89-94.
- Katou, H. (2004) : Determining competitive nitrate and chloride adsorption in an Andisol by the unsaturated transient flow method. *Soil Science and Plant Nutrition*, 50 (1) : 119-127.
- Knowles, R. (1982) : Denitrification. *Microbiological Reviews*, 46 (1) : 43-70.
- Kool, D.M., Dolfing, J., Wrage, N., Van Groenigen, J.W. (2011) : Nitrifier denitrification as a distinct and significant source of nitrous oxide from soil. *Soil Biology and Biochemistry*, 43 (1) : 174-178.
- Korom, S.F. (1992) : Natural denitrification in the saturated zone: a review. *Water Resources Research*, 28 (6) : 1657-1668.
- 黒田久雄 (2001) : 水田土壌の窒素除去持続性について. *応用水文*, 14 : 92-101.
- Liesack, W., Schnell, S. and Revsbech, N.P. (2000) : Microbiology of flooded rice paddies. *FEMS Microbiology Reviews*, 24 (5) : 625-645.
- Ma, L., Lindau, C.W., Hongprayoon, C., Burhan, W., Jang, B.C., Patrick, W.H. and Selim, H.M. (1999) : Modeling urea, ammonium, and nitrate transport and transformations in flooded soil columns. *Soil Science*, 164 (2) : 123-132.
- Martin, T.L., Kaushik, N.K., Trevors, J.T. and Whiteley, H.R. (1999) : Review: denitrification in temperate climate riparian zones. *Water, Air, and Soil Pollution*, 111 (1-4) : 171-186.
- 松森堅治, 板橋直 (2009) : 霞ヶ浦流域の主要河川の窒素濃度変化とその要因解明. *農村工学研究所技報*, 210 : 61-73.
- McClain, M.E., Boyer, E.W., Dent, C.L., Gergel, S.E., Grimm, N.B., Groffman, P.M., Hart, S.C., Harvey, J.W., Johnston, C.A., Mayorga, E., McDowell, W.H. and Pinay, G. (2003) : Biogeochemical hot spots and hot moments at the interface of terrestrial and aquatic ecosystems. *Ecosystems*, 6 (4) : 301-312.
- Mengis, M., Schiff, S.L., Harris, M., English, M.C., Aravena, R., Elgood, R.J. and MacLean, A. (1999) : Multiple geochemical and isotopic approaches for assessing groundwater  $\text{NO}_3$  elimination in a riparian zone. *Ground Water*, 37 (3) : 448-457.
- Molz, F.J., Widdowson, M.A. and Benefield, L.D. (1986) : Simulation of microbial growth dynamics coupled to nutrient and oxygen transport in porous media. *Water Resources Research*, 22 (8) : 1207-1216.
- Mowjood, M.I.M. and Kasubuchi, T. (1998) : Dynamics of dissolved oxygen (DO) in ponded water of a paddy field. *Soil Science and Plant Nutrition*, 44 (3) : 405-413.
- Mowjood, M.I.M. and Kasubuchi, T. (2002) : Effect of convection on the exchange coefficient of oxygen and estimation of net production rate of oxygen in ponded water of a paddy field. *Soil Science and Plant Nutrition*, 48 (5) : 673-678.
- Naiman, R.J. and Décamps, H. (1997) : The ecology of interfaces: riparian zones. *Annual Review of Ecology and Systematics*, 28 : 621-658.
- 中村公人, 取出伸夫 (2007) : 形態変化を1次反応式により考慮した土中の窒素移動モデル. *土壌の物理性*, 105 : 83-97.
- 中山幸則, 北野順一, 牛木純一 (2002) : 米ぬかの水田雑草に対する除草効果. 第41回日本雑草学会講演要旨集, p. 118-119.
- Nelson, W.M., Gold, A.J. and Groffman, P.M. (1995) : Spatial and temporal variation in groundwater nitrate removal in a riparian forest. *Journal of Environmental Quality*, 24 (4) : 691-699.
- Pinay, G., Ruffinoni, C., Wondzell, S. and Gazelle, F. (1998) : Change in groundwater nitrate concentration in a large river floodplain: denitrification, uptake, or mixing? *Journal of the North American Benthological Society*, 17 (2) : 179-189.
- Ratering, S. and Schnell, S. (2000) : Localization of iron-reducing activity in paddy soil by profile studies. *Biogeochemistry*, 48 (3) : 341-365.
- Robertson, L.A. and Kuenen, J.G. (1984) : Aerobic denitrification: a controversy revived. *Archives of Microbiology*, 139 (4) : 351-354.
- Rolston, D.E., Hoffman, D.L. and Toy, D.W. (1978) : Field measurement of denitrification. I. Flux of  $\text{N}_2$  and  $\text{N}_2\text{O}$ . *Soil Science Society of America Journal*, 42 (6) : 863-869.
- Sameshima-Saito, R., Chiba, K. and Minamisawa, K. (2006) : Correlation of denitrifying capability with the existence of nap, nir, nor and nos genes in diverse strains of soybean bradyrhizobia. *Microbes and Environment*, 21 (3) : 174-184.
- Schubert, C.J., Durisch-Kaiser, E., Wehril, B., Thamdrup, B., Lam, P. and Kuypers, M.M.M. (2006) : Anaerobic ammonium oxidation in a tropical freshwater system (Lake Tanganyika). *Environmental Microbiology*, 8 (10) : 1857-1863.
- Seitzinger, S., Harrison, J.A., Böhlke, J.K., Bouwman, A.F., Lowrance, R., Peterson, B. and Tobias, C. (2006) : Deni-



- trification across landscapes and waterscapes: a synthesis. *Ecological Applications*, 16 (6) : 2064-2090.
- 柴山浩子, 恒川歩, 今井克彦, 糟谷真宏, 江口定夫 (2006) : 茶園-水田地形連鎖系における土層構造と浅層地下水の窒素の動態. 日本土壤肥科学会中部支部第86回例会講演要旨集, pp. 53-54.
- Tabuchi, T. (2002) : Nitrate removal in the flooded paddy field. pp. 81-90. In *The Organizing Committee for International Workshop of Riparian Buffer Zones (ed.) Proceedings of the International Workshop on Efficiency of Purification Process in Riparian Buffer Zones: Their Design and Planning in Agricultural Watersheds*, 5-9 November 2001, Kushiro. National Agricultural Research Center for Hokkaido Region, Sapporo.
- 田淵俊雄 (2006) : 水田窒素除去機能の定量化への試み. 農業土木学会誌, 74 (8) : 703-706.
- 田淵俊雄, 黒田久雄, 池野辺明子, 平野真弓 (2005) : 流量が湛水流下過程の硝酸性窒素除去機能に及ぼす影響. 土壌の物理性, 99: 73-83.
- 田淵俊雄, 黒田久雄, 志村もと子 (2001) : 休耕田を活用した長期窒素除去試験. 土壌の物理性, 87: 27-36.
- 田淵俊雄, 志村もと子, 尾野充彦 (1996) : 休耕田における窒素除去試験の結果と実用性の検討. 農業土木学会誌, 64 (4) : 345-350.
- 田淵俊雄, 篠田鎮嗣, 黒田久雄 (1993) : 休耕田を活用した窒素除去の試み. 農業土木学会誌 61 (12) : 1123-1128.
- 田淵俊雄, 高村義親 (1985) : 集水域からの窒素・リンの流出. 東京大学出版会, 東京.
- 田淵俊雄, 高村義親, 鈴木誠治 (1983) : 非稲作期の谷津田における畑地流出水中の  $\text{NO}_3\text{-N}$  の除去について. 農業土木学会論文集, 104: 9-15.
- Takahashi, T., Inagaki, H., Fukushima, T., Oishi, T. and Matsuno, K. (2010) : Increasing nitrate removal at low temperatures by incorporating organic matter into paddy fields. *Soil Science and Plant Nutrition*, 56 (1) : 163-167.
- 高橋智紀, 新良力也, 前田守弘, 杉浦秀治, 渥美和彦, 宮地直道 (2006) : 冬期掛け流し灌漑を行う場合の水田の硝酸性窒素除去能力の推定式. 農業環境研究成果情報 22: 64-65. 農業環境技術研究所, つくば.
- 高橋智紀, 新良力也, 宮地直道, 戸田任重, 村中康秀, 廣野祐平, 渥美和彦, 福島務, 杉浦秀治 (2009) : 施肥削減が進行する牧之原台地を集水域とした小河川, 湧水および井水の硝酸性窒素濃度の推移. 静岡県農林技術研究所研究報告 2: 17-26.
- Takeuchi, M., Itahashi, S. and Saito, M. (2005) : A water quality analysis system to evaluate the impact of agricultural activities on N outflow in river basins in Japan. *Science in China Series C*, 48 (Suppl. I) : 100-109.
- Tiedje, J.M. (1981) : Use of nitrogen-13 and nitrogen-15 in studies on the dissimilatory fate of nitrate. pp. 481-497. In J.M. Lyons et al. (ed.) *Genetic engineering of symbiotic nitrogen fixation and conservation of fixed nitrogen*. Plenum Press, New York.
- Trudell, M.R., Gillham, R.W. and Cherry, J.A. (1986) : An in situ study of the occurrence and rate of denitrification in a shallow unconfined sand aquifer. *Journal of Hydrology*, 83 (3-4) : 251-268.
- 恒川歩, 今井克彦, 柴山浩子, 糟谷真宏, 江口定夫 (2006) : 矢作川流域の水田下層土における脱窒. 日本土壤肥科学雑誌, 77 (2) : 207-211.
- Usui, Y. and Kasubuchi, T. (2011) : Effects of herbicide application on carbon dioxide, dissolved oxygen, pH, and RpH in paddy-field ponded water. *Soil Science and Plant Nutrition*, 57 (1) : 1-6.
- Vidon, P.G.F. and Hill, A.R. (2004) : Landscape controls on nitrate removal in stream riparian zones. *Water Resources Research*, 40, W03201, doi:10.1029/2003WR002473.
- Wassenaar, L.I. (1995) : Evaluation of the origin and fate of nitrate in the Abbotsford Aquifer using the isotopes of  $^{15}\text{N}$  and  $^{18}\text{O}$  in  $\text{NO}_3$ . *Applied Geochemistry*, 10 (4) : 391-405.
- Wrage, N., Velthof, G.L., Beusichem, M.L. and Oenema, O. (2001) : Role of nitrifier denitrification in the production of nitrous oxide. *Soil Biology and Biochemistry*, 33 (12) : 1723-1732.

## 要 旨

土壌・地下水系内の脱窒は、地球規模の窒素 (N) 循環において最も大きなブラックボックスを形成すると共に不確実性が非常に大きく、様々な環境中における現場実測値の蓄積とこれを定量的に推定するための簡易モデルの開発が強く求められている。環境中では、脱窒の定量は困難であり、代わりに N 除去量が測定される。水田の N 除去速度は、これまで多くの実測値が蓄積され、実践的・汎用的な簡易モデルが開発されつつある。一方、浅層地下水では、現場の三次元的な不飽和・飽和水移動及び溶質輸送を定量あるいは推定した上で N 除去を定量した例はほとんど無い。今後、水田ではさらに様々な条件下での実測値の蓄積とその簡易モデル化が必要であり、浅層地下水ではまず現場実測値の蓄積が必要である。これらの場面で、水移動・溶質輸送の測定・解析を専門とする土壌物理学が果たすべき役割は大きい。

キーワード：易分解性有機態炭素，嫌気的条件，硝酸イオン，脱窒菌，土壌物理学