

不飽和黒ボク土壤中における脱窒反応を伴う 硝酸性窒素の浸透輸送解析

NUMERICAL SIMULATION OF NITRATE NITROGEN TRANSPORT
WITH DENITRIFYING CONDITION IN UNSATURATED ANDO SOIL

山下直紀¹・杉尾哲²
Naoki YAMASHITA and Satoru SUGIO

¹ 学生会員 工修 宮崎大学大学院生 工学研究科博士後期課程 (〒889-2192 宮崎市学園木花台西 1-1)

² 正会員 工博 宮崎大学教授 工学部土木環境工学科 (〒889-2192 宮崎市学園木花台西 1-1)

Nitrate nitrogen transport with denitrifying conditions in unsaturated Ando soil was investigated. At first, the experiment of nitrate nitrogen transport was carried out in the artificial rain using the vertical column filled up with Ando soil. Simulated rainfall dissolving nitrate nitrogen and organic carbon was sprayed on the top of column and nitrate nitrogen concentrations of soil solution at some depth points were measured. From the experimental results, denitrification process was detected. Next, the experimental results were simulated using one-dimensional numerical model, which described denitrification process based on Monod type kinetics. Simulated results of denitrification process had good agreements with experimental results. Moreover, it was distinct that the activity of denitrifying bacteria from soil surface up to the 10 cm depth point was the highest in the Ando soil column.

Key Words : groundwater contamination, numerical simulation, denitrification,
unsaturated seepage flow

1. はじめに

宮崎県南西部に位置する都城盆地では、浅層地下水を中心に硝酸性窒素による地下水汚染が発生している¹⁾。これまでに実施されてきた調査によれば、畑地からの窒素肥料の溶脱が地下水汚染の原因の一つになっていることが推察された²⁾。したがって、窒素肥料から溶脱した硝酸性窒素が不飽和土壤中を輸送される過程の種々の現象について検討することが重要となる。

地下水汚染の将来予測などを行うためには、土壤中における汚染物質の輸送特性を考慮しながらモデル化を行う必要がある。一般に、土壤中における物質の輸送は移流分散方程式を用いてモデル化され、その物質が吸着や溶脱などを伴う場合には、反応項を導入して計算される。このような地下水物質輸送のモデル化は、種々検討されている。例えば、舩井ら³⁾や広城ら⁴⁾は、陽イオン交換反応を考慮したモデルにより飽和帯中の陽イオン成分の輸送を解析し、カラム実験における輸送現象に対して良い再現性を得ている。また、江種ら⁵⁾は、ガス拡散を考慮した有機塩素系化合物の輸送を飽和-不飽和領域を含めて定式化し、解析によってその挙動を明らかにしている。

一方、本研究で検討する硝酸性窒素の輸送については、硝酸性窒素が環境中で比較的安定な窒素形態であるので、硝化反応によって生成された硝酸性窒素に対しては反応項を考慮せずにモデル化が行われている⁶⁾。しかし、土壤内に適切な有機性炭素がある場合には、脱窒反応が起こる⁷⁾。また、脱窒反応が起こるための条件として嫌気的環境であることが挙げられるが、一般には好気的環境にあると考えられる不飽和帯においても適切な有機性炭素があれば脱窒反応が起こることが報告されている^{8),9)}。また、降雨時に溶脱した硝酸性窒素は不飽和帯を輸送されるが、不飽和帯での硝酸性窒素の輸送を解析した例はあまり見られない。

そこで本研究では、都城盆地の畑地に分布する黒ボク土壌を用いて、硝酸性窒素と有機性炭素を土壌表面から供給する不飽和土壌カラム実験を行って、そのときに起こる脱窒反応について検討を行った。次に、脱窒反応の計算にモノー式を導入している数値モデルNITRAT^{10),11)}を不飽和土壌を対象とした輸送過程の計算コードに変更し、上記のカラム実験について解析して、その解析の妥当性を確認した上で、黒ボク土壌中における脱窒反応の現象について検討した。

表-1 黒ボク土壌の理化学特性¹²⁾

土壌	粒径組成 (%)			全窒素 (%)	全炭素 (%)
	砂	シルト	粘土		
黒ボク	73.1	14.3	12.6	0.25	3.8

2. 硝酸性窒素輸送の不飽和カラム実験

(1) 実験方法

実験に使用する黒ボク土壌は、都城盆地内の畑地から採取した。都城盆地に分布する黒ボク土壌の理化学特性を表-1に示す¹²⁾。採取した黒ボク土壌を4.76 mmのふるいで均質にした後、図-1に示すように内径14.5 cmの塩化ビニール製カラムに充填した。カラム上部には降雨発生装置を取り付け、カラム底部には粗粒砂を充填した。土壌表面から155 cm下方の位置には、一定水位を維持するように水面を設定した。さらに、間隙水を採水するために土壌表面から10, 30, 50, 100 cmの位置に土壌溶液採取器(DIK300A, 大起理化工業)を埋設した。また、10 cmと50 cmの位置に温度計(TR71-S, T&D)を取り付けた。供給する有機性炭素にはメタノールを使用した。

実験では、降雨発生装置により蒸留水を240時間滴下し、その後、硝酸ナトリウムとメタノールを蒸留水に溶解させた溶液(以下、実験溶液と呼ぶ)を480時間滴下した。降雨条件を表-2に示す。脱窒細菌がメタノールを基質にして脱窒反応を起こす場合、化学量論的にC/N比0.93の割合でそれぞれの物質が消費される¹³⁾。今回のカラム実験では、脱窒細菌の過剰な増殖が間隙水の不飽和浸透に目詰まりなどの影響を及ぼさないようにするために、実験溶液のC/N比を0.57と小さく設定した。

間隙水は各採水位置から実験溶液滴下後24時間目に採水し、その後は48時間毎に採水して、その試料水について硝酸性窒素濃度を測定した。一回の採水量は5~8 mlとした。また、溶解性酸素濃度を実験開始直前に降雨発生装置内の溶液について測定した。各水質は、硝酸性窒素は分光光度計(DR2000, HACH)、溶解性酸素は溶存酸素計(U10, 堀場製作所)、有機性炭素は有機性炭素分析装置(TOC5000, 島津製作所)により測定した。なお、脱窒反応過程ではアンモニア性窒素と亜硝酸性窒素の生成が考えられるが、過去の黒ボク土壌中における測定¹⁴⁾で、これらの濃度は1 mg/L以下の微量であったこと、さらに間隙水の採水量を極力抑えたいことにより、本実験では測定しなかった。

(2) 実験結果

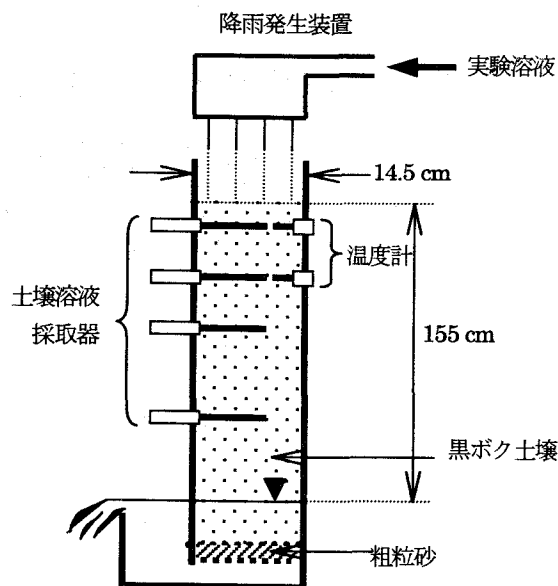


図-1 カラム実験装置図

表-2 カラム実験の降雨条件

項目	値
降雨強度 (mm/h)	9.1
硝酸性窒素濃度 (mg/L)	60.5
溶解性酸素濃度 (mg/L)	4.0~7.0
有機性炭素濃度 (mg/L)	34.5
C/N 比	0.57

実験結果を図-2に示す。図では、横軸の経過時間は実験溶液の滴下開始時刻を0にし、縦軸の濃度は実験溶液の硝酸性窒素濃度を最大値にして示している。10 cmの位置の測定結果をみると、実験溶液滴下後72時間目に実験溶液とほぼ同じ硝酸性窒素濃度となり、その後は徐々に低下している。何も反応が起これなければ、濃度は72時間目以降も実験溶液と同じ濃度を示すはずである。したがって、72時間目以降の濃度の低下は脱窒反応によるものと考えられる。次に30 cm以深の測定結果をみると、50 cmの位置の360時間目以降でいくらか濃度の低下が大きく、深さ方向に脱窒反応が進行することが推察される。しかし、100 cmの位置で50 cmの位置よりも高い濃度が測定されていて、全体的には10 cmの位置における測定結果と類似の分布になっている。このことから、脱窒反応は土壌表面から10 cmまでの間で主に発生しているものとみなすことができる。この点については、飽和帯と不飽和帯において窒素ガス等の測定を含めて実施されたカラムによる脱窒実験^{9), 15), 16)}でも、有機性炭素を含む溶液の供給位置から5~20 cmまでの位置で脱窒活性が高いこ

とが報告されており、その現象と一致している。

土壌内温度については、図-3 に示すように昼夜の気温変化に応じて変動し、実験期間中の平均温度は土壌表面から 10 cm の位置が 29.1 °C、50 cm の位置が 29.0 °C であった。一般に、土壌細菌の生育適温は 25 ~ 35 °C¹⁷⁾ であるので、脱窒反応が起こるための温度条件は満足されていたことが分かる。

3. 不飽和カラム実験の数値解析

(1) 数値モデル

NITRAT^{10), 11)} は、飽和地下水中における硝酸性窒素、溶解性酸素および有機性炭素の相互作用を伴う物質輸送過程を解析する数値モデルである。このモデルは、生物化学反応項にモノ一式を適用して脱窒細菌の増殖速度を計算し、その増殖に伴う脱窒反応過程を解析することができる。本研究では NITRAT の物質輸送の基礎式を不飽和状態の基礎式に変更し、これに 1 次元の不飽和浸透流の計算を導入して(以下、これを不飽和 NITRAT と呼ぶ)、カラム実験の解析に適用した。以下に不飽和 NITRAT の概略を記す。

反応項を含む不飽和状態の土壌中における 1 次元物質輸送の基礎式は次の式で表される¹⁸⁾。

$$\frac{\partial(\theta C_{w,i})}{\partial t} + \frac{\partial(q C_{w,i})}{\partial z} - \frac{\partial}{\partial z} \left[\theta D(v) \frac{\partial(\theta C_{w,i})}{\partial z} \right] = S_i, \quad i=1,2,3 \quad (1)$$

ここに、 $C_{w,i}$ は流動水領域の物質濃度(mg/L)、 θ は体積含水率、 $D (= av + d_m)$ は分散係数(cm^2/s)、 $q (= v\theta)$ は流速フラックス、 v は実流速(cm/s)、 a は分散定数(cm)、 d_m は分子拡散定数(cm^2/s)である。また、 $i=1,2,3$ はそれぞれ硝酸性窒素、溶解性酸素、有機性炭素を示している。 S_i は生物化学反応項であり、次のように表現している。

$$S_i = -\alpha(C_{w,i} - C_{bio,i}), \quad i=1,2,3 \quad (2)$$

ここに、 α は移動係数($1/\text{h}$)、 $C_{bio,i}$ は不動水領域の物質濃度(mg/L)である。 $C_{bio,i}$ は次式で表される。

$$\frac{\partial C_{bio,1}}{\partial t} = -\frac{1}{Y_1^{den}} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{den} - \frac{1}{Y_1^{aer}} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} + \alpha(C_{w,1} - C_{bio,1}) \quad (3)$$

$$\frac{\partial C_{bio,2}}{\partial t} = -\frac{1}{Y_2} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} + \alpha(C_{w,2} - C_{bio,2}) \quad (4)$$

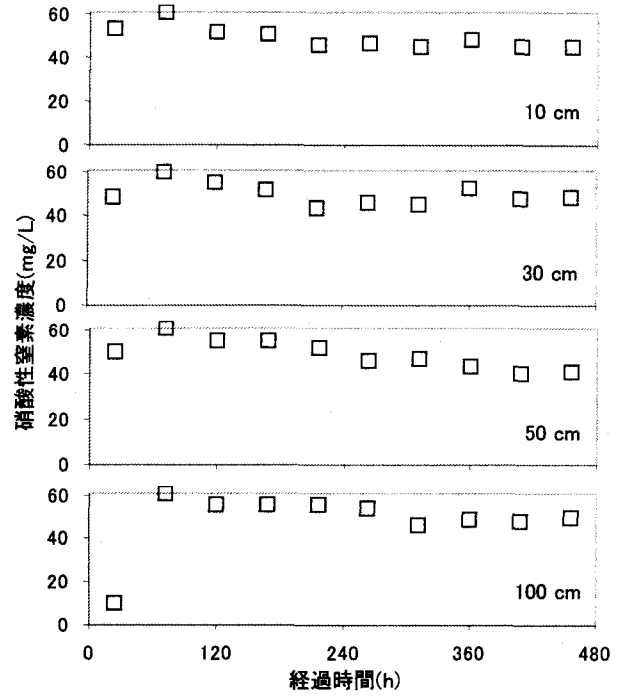


図-2 カラム実験結果

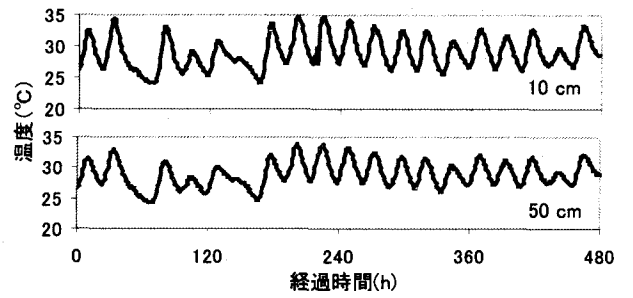


図-3 土壌内の温度変化

$$\frac{\partial C_{bio,3}}{\partial t} = -\frac{1}{Y_3^{den}} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{den} - \frac{1}{Y_3^{aer}} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} + f_{use} \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{dec} + \alpha(C_{w,3} - C_{bio,3}) \quad (5)$$

ここに、 Y は増殖収率、 f_{use} は死滅した脱窒細菌の利用率である。また、添字 *aer*、*den* および *dec* は、それぞれ好気的環境と嫌気的環境における脱窒細菌の増殖速度および脱窒細菌の死滅速度であることを示している。脱窒細菌の増殖速度と死滅速度は次の式で表現される。

$$\left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} = \mu_{max}^{aer} X [1 - F(C_{w,2})] \prod_{i=1}^3 \frac{C_{bio,i}}{K_{bio,i}^{aer} + C_{bio,i}} \quad (6)$$

$$\left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{den} = \mu_{max}^{den} X F(C_{w,2}) \prod_{i=1}^2 \frac{C_{bio,i}}{K_{bio,i}^{den} + C_{bio,i}} \quad (7)$$

$$\left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{dec} = \lambda X \quad (8)$$

ここに、 $\mu_{\max}$ は脱窒細菌の最大比増殖速度(1/h)、 X は脱窒細菌濃度(mg/L)、 K は飽和定数(mg/L)、 λ は内生分解係数である。脱窒細菌濃度の変化速度は、次式で表現される。

$$\frac{\partial X}{\partial t} = \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{aer} + \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{den} - \left[\frac{\partial X}{\partial t} \right]_{dec} \quad (9)$$

(6)、(7)式の $F(C_{w,2})$ は酸素従属重み関数であり、次式で表される。

$$F(C_{w,2}) = 0.5 - \frac{1}{\pi} \arctan \left[(C_{w,2} - C_T) f_{sl} \right] \quad (10)$$

ここに、 C_T は $F(C_{w,2}) = 0.5$ となるときの溶解性酸素濃度(mg/L)、 f_{sl} は勾配である。

鉛直 1 次元の不飽和浸透流の基礎式は次式で表される¹⁸⁾。

$$C_s(\psi) \frac{\partial \psi}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(k_u(\psi) \frac{\partial \psi}{\partial z} - k_u(\psi) \right) \quad (11)$$

ここに、 ψ はサクション(cm)、 C_s は比水分容量、 k_u は不飽和透水係数(cm/s)である。不飽和浸透特性は、次の van-Genuchten 式で表現した¹⁹⁾。

$$S_e = \left[1 / \left(1 + |\beta \psi|^n \right) \right]^m \quad (12)$$

$$\frac{k_u}{k_s} = S_e^{1/2} \left[1 - \left(1 - S_e^{1/m} \right)^m \right]^2$$

$$S_e = (\theta - \theta_r) / (\theta_s - \theta_r), \quad m = 1 - 1/n \quad (13)$$

ここに、 k_s は飽和透水係数(cm/s)、 θ_s は飽和体積含水率、 θ_r は残留体積含水率、 β 、 m 、 n は土壌によって決まる定数である。

(2) 計算方法と物理パラメータ

NITRAT では、移流分散方程式の解法は差分法を採用しており、陰形差分近似式で離散化してガウス法に

表-3 物理パラメータ

パラメータ	値
a (cm)	2.5
k_s (cm/s)	1.12×10^{-3}
θ_s	0.66
θ_r	0.36
β	0.037
n	3.8

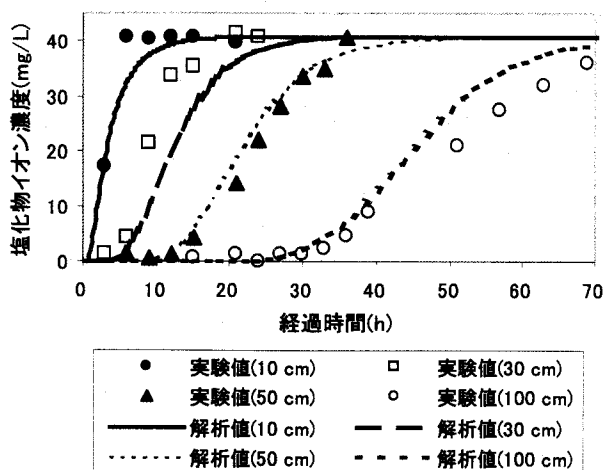


図-4 塩化物イオン濃度の実験値と解析値の比較

より解を求めている。不飽和 NITRAT では、(1)式の差分近似式は数値解の安定性が確かめられている(14)式を用いた²⁰⁾。また、(11)式の差分近似式も(14)式と同様に離散化した。計算では、不飽和浸透流と物質輸送の解を別々に求めて繰り返し計算によって連成させて解くこととした²¹⁾。

$$\frac{\theta_k^{j+1} C_k^{j+1} - \theta_k^j C_k^j}{\Delta t} = \frac{\theta_{k-1/2}^{j+1/2} D(v)_{k-1/2}^{j+1/2} (C_{k-1}^{j+1} + C_k^j - C_k^{j+1} - C_k^j)}{2\Delta z^2} - \frac{\theta_{k+1/2}^{j+1/2} D(v)_{k+1/2}^{j+1/2} (C_k^{j+1} + C_{k+1}^j - C_{k+1}^{j+1} - C_{k+1}^j)}{2\Delta z^2} - \frac{q_{k+1/2}^{j+1/2} (C_k^{j+1} + C_k^j) - q_{k-1/2}^{j+1/2} (C_{k-1}^{j+1} + C_{k-1}^j)}{2\Delta z} \quad (14)$$

$$\theta_{k+1/2}^{j+1/2} = \frac{\theta_k^{j+1} + \theta_k^j + \theta_{k+1}^{j+1} + \theta_{k+1}^j}{4} \quad (15)$$

ここに、添字 k と j はそれぞれ空間座標を表す差分格子点と時間ステップである。また、 $D(v)_{k+1/2}^{j+1/2}$ 、 $q_{k+1/2}^{j+1/2}$ についても(15)式と同様に離散化している。

解析においては、差分格子間隔 Δz は土壌表面から水面位置までを 1 cm 間隔で分割し、時間ステップ Δt は 1/6 時間とした。また、境界条件と初期条件については、実験の測定濃度と測定水頭を用いて設定した。

表-3 に黒ボク土壌の物理パラメータの値を示している。このパラメータは過去に実施した都城盆地内の黒ボク畑地での不飽和浸透特性の原位置試験²²⁾で測定した値を参考にして適用した。塩化物イオンは土壌吸着などの影響が少なく、その輸送は土壌水の浸透過程を表すと考えることができる⁴⁾。そこで、この物理パラメータの妥当性を検証するため、硝酸性窒素輸送のカ

ラム実験を行う前に塩化物イオン輸送のカラム実験を表-2に示す降雨強度で実施し、生物化学反応項を除いて単一物質輸送の計算コードにした不飽和 NITRAT で解析した。図-4に示すように、解析結果は塩化物イオンの浸透輸送過程を概ね再現している。このことから、表-3の物理パラメータの値はほぼ適切であることが分かる。なお、分子拡散定数 d_m は $0.056 \text{ cm}^2/\text{s}$ を用いており、硝酸性窒素輸送のカラム実験の解析では硝酸性窒素、溶解性酸素および有機性炭素の分子拡散定数も同じ値とした。

(3) 解析結果

図-5に硝酸性窒素輸送のカラム実験に対する不飽和 NITRAT の解析結果を示す。また、同定した生物化学パラメータの値を表-4に示す。パラメータの同定においては、初期値に文献値^{11),23)}を適用して解析して、各パラメータの感度を調べた後²⁴⁾、パラメータを逐次修正することによって最終的に測定値と解析値の差の2乗和が最小になるようにして同定作業を行った。図-5より、解析結果は測定された全体的な硝酸性窒素濃度の変動傾向をよく再現しており、実験初期の硝酸性窒素濃度の急激な上昇と、その後の緩やかな濃度の低下をよく表現している。したがって、不飽和 NITRAT の妥当性が確かめられたものとする。なお、有機性炭素と溶解性酸素については実験と解析の結果を比較していないが、生物化学パラメータの値が文献値の範囲内であったことを考慮すると、これらの解析結果は実現象をうまく再現しているものとする。この解析結果によると、溶解性酸素と有機性炭素の濃度は硝酸性窒素濃度の変動傾向と同じように変動している。また、脱窒細菌濃度は時間とともに上昇し、土壌表面に近い位置ほど脱窒細菌濃度の増殖率が高くなっている。

解析結果を用いて描いた実験溶液滴下から 240 時間後の硝酸性窒素、溶解性酸素および有機性炭素の濃度の鉛直分布を図-6に示す。図-6の横軸の濃度は実験溶液の各成分濃度を最大値にしている。図-6から、硝酸性窒素と有機性炭素の濃度は土壌表面から 10 cm の位置までの区間で急速に低下し、10 cm 以深では緩やかな低下傾向を示している。このことは、脱窒反応が主に土壌表面から 10 cm までの区間で活発に起っていることを示している。一方、溶解性酸素濃度は 10 cm の位置まで急速に減少して 20 cm 以深ではほぼ 0 に近い濃度になっている。好気的環境と嫌気的環境の中間を示す濃度に相当する C_p は、表-4に示すように 0.2 mg/L と同定している。したがって、図-6では 5 cm の位置の溶解性酸素濃度がその濃度に相当することから、5 cm 以浅では好気的環境での増殖が支配的で、5 cm

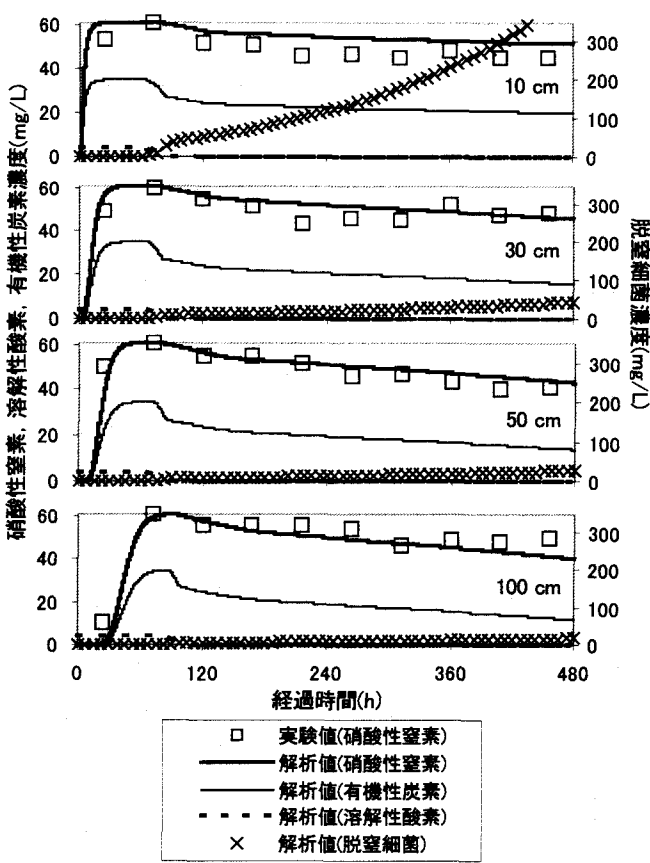


図-5 実験値と解析値との比較

表-4 生物化学パラメータ

パラメータ	値	パラメータ	値
α (1/h)	0.03	K_1^{aer} (mg/L)	0.4
Y_1^{aer}	2.37	K_1^{den} (mg/L)	0.8
Y_1^{den}	0.1	K_2^{aer} (mg/L)	0.2
Y_2^{aer}	0.86	K_3^{aer} (mg/L)	0.4
Y_3^{aer}	0.58	K_3^{den} (mg/L)	0.8
Y_3^{den}	0.58	λ (1/h)	0.006
f_{use}	0.001	C_T (mg/L)	0.2
μ_{max}^{aer} (1/h)	0.16	f_{sl}	50
μ_{max}^{den} (1/h)	0.01		

以深では嫌気的環境での増殖が支配的になっていると推察される。

4. おわりに

都城盆地の畑地から採取した黒ボク土壌について、土壌表面から硝酸性窒素と有機性炭素が供給される場合の土壌中での脱窒反応を、カラム実験と数値解析により検討した。

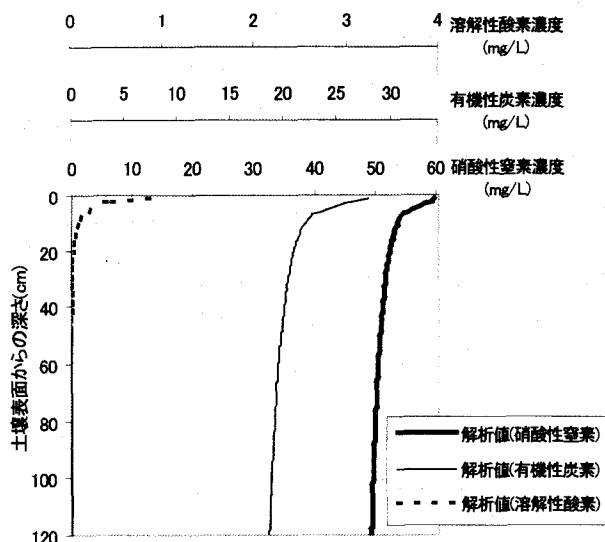


図-6 240 時間後の各成分濃度の鉛直分布

カラム実験の結果から、C/N 比 0.57 に調整した溶液を不飽和状態の黒ボク土壤中に供給したとき、土壤内で脱窒反応が起こることが分かった。また、本研究で構築した不飽和 NITRAT により、その硝酸性窒素が脱窒反応を伴いながら不飽和土壤中を輸送される過程を再現できることが分かった。本カラム実験における設定条件のもとでは、脱窒細菌の増殖は土壤表面付近が最も活発で、脱窒反応は土壤表面から 10 cm の位置までの区間で特に起っていると推察された。また、不飽和 NITRAT の解析結果から、土壤表面から供給される溶解性酸素と有機性炭素の不飽和土壤中における濃度は、硝酸性窒素濃度の変動傾向と同じように変動することが分かった。

謝辞：本研究は、都城盆地地下水保全対策連絡協議会との共同研究として行ったものであり、ここに記して感謝の意を表します。

参考文献

- 1) 都城市環境部：都城市地下水保全推進計画，1994。
- 2) 都城盆地地下水保全対策研究会，都城盆地地下水保全対策連絡協議会：都城盆地の地下水保全に関する研究，平成 7・8・9 年度調査研究成果報告書，1999。
- 3) 初井和郎，神野健二，塩崎功，和田信一郎：化学反応を考慮した地下水における物質輸送解析—数値モデル開発と室内実験への適用—，地下水学会誌，第 38 巻，第 2 号，pp.113-125，1996。
- 4) 広城吉成，神野健二，初井和郎，横山拓史，和田信一郎：陽イオン交換容量の空間分布を考慮した不攪乱土壌中の陽イオン輸送解析，土木学会論文集，No.579/II-41，pp.15-27，1997。
- 5) 江種伸之，神野健二，鷺見栄一：ガス拡散を考慮した有機塩素化合物の不飽和一飽和領域における輸送特性解析，土

木学会論文集，No.503/II-29，pp.167-176，1994。

- 6) 日高一成，国包章一，眞柄泰基，伊藤光明：水道水源地下水の硝酸・亜硝酸性窒素による汚染に関する事例解析，地下水・土壌汚染とその防止対策に関する研究集会，第 4 回講演集，pp.269-272，1995。
- 7) Bolt, G. H. and Bruggenwert, M. G. M. (岩田進午ほか訳)：土壌の化学，学会出版センター，pp.219-233，1980。
- 8) Starr, J. L., Broadbent, F. E. and Nielsen, D. R. : Nitrogen transformations during continuous leaching, Soil Sci. Soc. Am. Proc., 38, pp.283-289, 1974。
- 9) 山口登志子，寺西靖治：不飽和浸透流における脱窒過程，衛生工学論文集，第 23 巻，pp.211-216，1987。
- 10) Kinzelbach, W. and Schäfer, W. : Coupling of chemistry and transport, Proc. of the Benidorm Symposium, IAHS, 188, pp.237-259, 1989。
- 11) Kinzelbach, W. and Schäfer, W. : Numerical modeling of natural and enhanced denitrification processes in aquifers, Water Resour. Res., 27-6, pp.1123-1135, 1991。
- 12) 小林義之，大嶋秀雄，長谷川功，新美洋：暖地多雨地帯の飼料作物畑における施肥窒素の動態，九州農業試験場報告，第 29 号，pp.109-162，1995。
- 13) 合田健：水質工学—応用編—，丸善，pp.123，1976。
- 14) 杉尾哲，今村拓也：黒ぼく畑地に施肥された肥料成分の溶出，地下水学会誌，第 33 巻，第 3 号，pp.155-164，1991。
- 15) 山口登志子，井藤壯太郎，益本正憲，寺西靖治：土壌カラムを用いた 2 次処理下水中の窒素除去，水質汚濁研究，第 14 巻，第 10 号，pp.747-754，1991。
- 16) 山口登志子，寺西靖治：下水の土壌処理における脱窒過程，下水道協会誌，第 23 巻，第 231 号，pp.28-35，1983。
- 17) 土壌微生物研究会編：土の微生物，博友会，pp.12-14，1980。
- 18) Charbeneau, R. J. and Daniel, D. E. : Handbook of hydrology, Mc-GRAWHILL, Chapter 15, 1992。
- 19) Van Genuchten, M. Th. : A closed-form equation for predicting the hydraulic conductivity of unsaturated soils, Soil Sci. Am. Jour., 44-5, pp.892-898, 1980。
- 20) Bresler, E. : Simultaneous transport of solutes and water under transient unsaturated flow conditions, Water Resour. Res., 9-49, pp.975-986, 1973。
- 21) 西垣誠，菱谷智幸，橋本学，河野伊一郎：飽和・不飽和領域における物質移動を伴う密度依存地下水流の数値解析手法に関する研究，土木学会論文集，No.511/III-30，pp.135-144，1995。
- 22) Yamashita, N. and Sugio, S. : *In situ* measurements and numerical simulation of nitrate leaching from farm soil, Proc. of the ModelCARE 99 conference, IAHS Publ. no.265, pp.495-501, 2000。
- 23) Purtschert, I. and Gujer, W. : Population dynamics by methanol addition in denitrifying wastewater treatment plants, Water Sci. Tech., 39-1, pp.43-50, 1999。
- 24) Yamashita, N. and Sugio, S. : Numerical simulation of nitrate transport with unsaturated flow condition in volcanic soils, Proc. of International Symposium 2000 on Groundwater, IAHR, pp.147-152, 2000。

(2000. 10. 2 受付)