

## 第1節 自然科学的立場からのモニタリング

## 4. マクロ視点より一琵琶湖集水域一

4.3 河川の富栄養化に伴う河川の各種窒素プールの窒素同位体比の変動  
—琵琶湖一周調査、琵琶湖一周委託調査および流程調査から—

高津文人<sup>1)※1)</sup>、陀安一郎<sup>1)</sup>、由水千景<sup>1)※1)</sup>、兵藤不二夫<sup>2)</sup>、  
井桁明丈<sup>2)</sup>、中野孝教<sup>2)</sup>、和田英太郎<sup>2)※2)</sup>、竹門康弘<sup>3)</sup>、永田俊<sup>1)</sup>

1) 京大大学生態学研究センター、2) 総合地球環境学研究所、3) 京都大学防災研究所水資源研究センター

※1) (現所属) 独立行政法人科学技術振興機構、※2) (現所属) 海洋研究開発機構地球環境フロンティア研究センター

## 1. はじめに

河川や湖沼の水質環境の診断は水質基準や環境基準の水質パラメーターによって行われてきた。BOD (Biological Oxygen Demand) やCOD (Chemical Oxygen Demand) に加えて、DO (Dissolved Oxygen), TN (Total Nitrogen), TP (Total Phosphate),  $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{PO}_4^{3-}$ , TOC (Total Organic Carbon) などが富栄養化の判断基準として用いられてきた水質パラメーターである<sup>1-3)</sup>。こうしたパラメーターがすぐれた環境指標であることは間違いないが、同時に調査地点と調査日時に強く影響されるため、調査時以外の水環境や、調査地点を含む集水域全体の環境を評価するには多時点、多地点の情報を必要とする。その意味で、こうした水質パラメーターと高い相関を持ち、時間変化を統合した形での富栄養化診断指標が求められている。また、これからの富栄養化診断は単に富栄養化の程度を評価することだけではなく、富栄養化によって食物網構造や物質循環がどのように変化したかや今後どのように変化するかを予測し、その対策を模索することが重要になる<sup>4)</sup>。安定同位体自然存在比はこうした診断指標として求められている特質を備えており、今後の水環境の評価に必要不可欠となると考えられる。

近年、富栄養化の診断に窒素安定同位体比 ( $\delta^{15}\text{N}$ ) が広く用いられ始めている。硝酸塩やアンモニウム塩などの窒素化合物は水域の富栄養化を引き起こす原因物質である。 $\delta^{15}\text{N}$ は汚染物質の起源や生態系における様々な化学反応や生物代謝(脱窒などの浄化プロセス、生物による取込み、食物連鎖)を反映することから、生態系環境を診断する上での有益な情報を与えてくれる。<sup>15</sup>Nが窒素汚染の指標となりうることは1970年代はじめから報告されてきた<sup>5,6)</sup>。その理由としては、1)

人為負荷される窒素の内、畜産排水、生活排水由来の無機態窒素、有機態窒素の $\delta^{15}\text{N}$ が雨水や窒素固定により負荷される窒素に比べて有意に高くなっている点<sup>6-8)</sup>、2) 高濃度の無機態窒素が存在する富栄養な環境下では、アンモニアの揮散や脱窒といったプロセスが進行しやすい。これにともない、生態系の $\delta^{15}\text{N}$ が上昇する傾向にある<sup>9,10)</sup>、などが挙げられる。近年、湖沼や河口から内湾にかけての生態系を中心に無機態窒素や各種有機物、生物体の $\delta^{15}\text{N}$ と富栄養化との強い関連性についての報告が相次いでいる<sup>10-16)</sup>。

河川や湖沼の富栄養化は集水域からの栄養塩や有機物負荷によって引き起こされる。したがって、集水域の人口密度の増大や土地利用の変化にともない河川や湖沼の富栄養化が促進される傾向にある。ただし、下水道整備率や各種排水のリサイクル率、また、集水域間での物資の移入や移出といった経済・社会的な要因も考慮する必要があるが、そうした人間活動を大きく組み込んだ $\delta^{15}\text{N}$ の変動モデルが作られているわけではない。Cabana & Rasmussen<sup>11)</sup>は湖沼の集水域の人口密度と一次消費者の $\delta^{15}\text{N}$ の間に強い正の相関が認められることを示している。また、集水域での宅地や農地といった土地利用の増大と人口密度の増加が湖沼の生産者および一次消費者(二枚貝、巻貝、大型藻類など)の $\delta^{15}\text{N}$ を上昇させている現象は多くの北米の湖沼で報告されている<sup>14,17-19)</sup>。Mayer et al.<sup>20)</sup>は北米の16河川を対象に、その土地利用と硝酸塩の $\delta^{15}\text{N}$ の関係を調査し、農地及び宅地の集水域に占める割合が増えるに従い、硝酸塩の $\delta^{15}\text{N}$ が上昇することを報告している。

本調査では硝酸イオン、堆積泥、礫上付着物、ツルヨシといった河川生態系内の重要な窒素無機/有機物プールの窒素安定同位体比を集水域面

積、集水域の土地利用様式や人口密度に関して大きく異なる32の琵琶湖流入河川で測定することで、人為窒素負荷という河川への人為インパクトが河川の各種窒素プールの $\delta^{15}\text{N}$ をどのように上昇させたかを報告する。

## 2. 材料と方法

サンプリング地点は滋賀県琵琶湖に流入する32河川の河口から0.5から4.0kmほど上流に設定し、2003年の8月と9月、2004年の1月と7月と11月、2005年の2月と5月の計6回の調査を行った(図1a)。また、流程に沿った調査も行い、琵琶湖に流入する主要な3河川については、野洲川(23地点)、安曇川(14地点)、高時川(14地点)の順にそれぞれ、2004年の5月、9月、2005年の5月に上流から下流までの調査を行った(図1b)。各地点は直接

琵琶湖からの逆流の影響を受けない地点である。河口を調査地とした32河川の土地利用の特性および水質に関しては4.2「富栄養化に伴う河川食物網構造の変化」の附表1を参照されたい。流程調査の各調査地点より上流の集水域の土地利用、人口密度に関しては本節の附表1を参照されたい。各河川の流域の人口密度および土地利用に関しては、平成12年国勢調査の人口データおよび平成9年国土数値情報の土地利用データを滋賀県GISの流域界データにより加工し、解析に供した。河川水の各種栄養塩濃度に関しては、総合地球環境学研究所のイオンクロマト(ICS-90, DIONEX co., Sunnyvale, USA)により分析した(附表1)。

窒素同位体比を分析した物質及び生物は以下の通り；

- 1) 生物：ツルヨシ (*Phragmites japonica*)

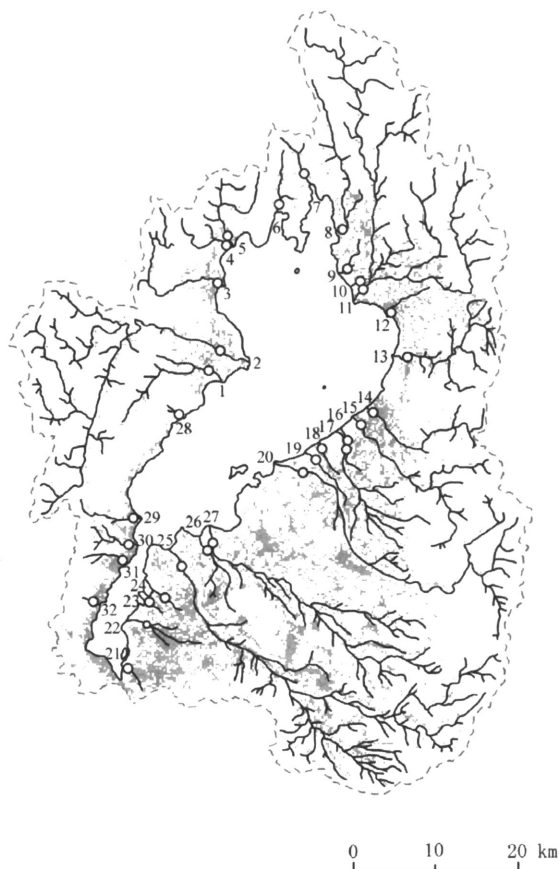


図1a 調査地として選択した琵琶湖流入32河川の本川と主な支流を実線でしめした。調査地点は各河川の琵琶湖流入点の少し上流に白丸で囲った場所である。各河川の河口に記した番号は4.2「富栄養化に伴う河川食物網構造の変化」の附表1の河川名の最初に付けられた番号に対応する。琵琶湖集水域全体は灰色の点線で囲った地域である。琵琶湖集水域内の宅地の集中した地域は灰色の点で示した。

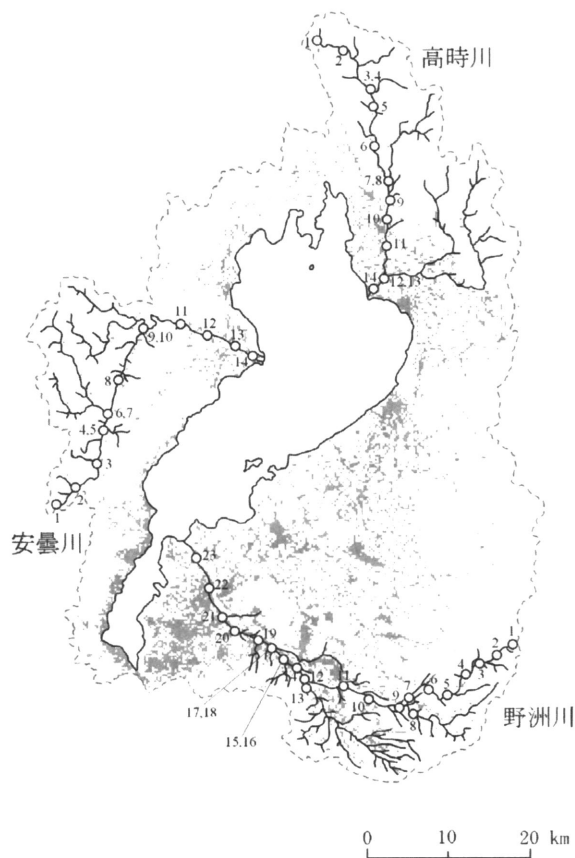


図1b 調査地として選択した3河川(野洲川、安曇川、高時川)の本川と主な支流を実線でしめした。各河川の流程に沿った白丸で囲った場所が調査地点である。各調査地点のそばに記した番号は附表1のsite No.に付けられた番号に対応する。琵琶湖集水域全体は灰色の点線で囲った地域である。琵琶湖集水域内の宅地の集中した地域は灰色の点で示した。

2) 有機物：礫上付着物 (Epilithon)、堆積泥 (Sediment)

3) 無機物：硝酸イオン

生物および有機物の窒素安定同位体比の分析は、京都大学生態学研究センターの質量分析計 (CF/IRMS; delta Sもしくはdelta plus XP, Thermo Electron Co., Germany) により行った。硝酸の窒素同位体比は脱窒菌法により硝酸を $N_2O$ ガスにし<sup>21)</sup>、同センターの質量分析計 (Precon, GasBench, Delta plus XP) により測定した。測定精度は、 $\delta^{13}C$ および $\delta^{15}N$ ともに $\pm 0.2\%$ 以下であった。 $\delta^{13}C$ 、 $\delta^{15}N$ の定義式に関しては4.2「富栄養化に伴う河川食物網構造の変化」を参照されたい。

### 3. 結果

#### 3.1 硝酸イオンの窒素安定同位体比

硝酸イオンの濃度は非保存量的に変化するが、硝酸イオンの窒素同位体比は各種土地利用から供

給される硝酸イオンの起源の窒素同位体比を比較的保存量に近い形で保持している可能性が高い。32河川の河口に近い場所の硝酸イオンの窒素同位体比は、人為影響の少ない河川で低く、人為影響の少ない河川で高くなった (図2a)。具体的には、集水域の森林%が100%から60%へ減少する過程で有意に+2から+6%へと増加した。逆に集水域の宅地%および水田%がそれぞれ0%から10%、0%から20%へ増加する過程で有意に増加した。季節ごとでみると冬季の2月が他の季節より有意に低くなっていた。

3河川の流程に沿った硝酸イオンの窒素同位体比も、人為影響の少ない河川や上流で低く、人為影響の少ない河川の下流で高くなった (図2b)。具体的には、集水域の森林%が100%から70%へ減少する過程で有意に0から+6%へと増加した。逆に集水域の宅地%および水田%がそれぞれ0%から4%、0%から10%へ増加する過程で有

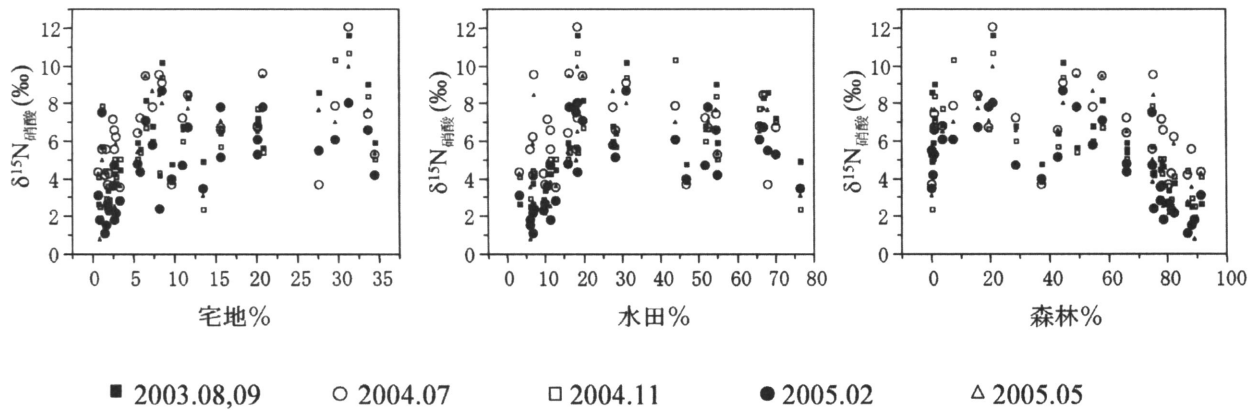


図2a 2003年から2005年にかけての5回分の琵琶湖流入32河川の河口での硝酸イオンの窒素同位体比を各河川の集水域における3種類の土地利用割合 (宅地%、水田%、森林%) に対してプロットした。採水時期の違いによって異なる印で示した。

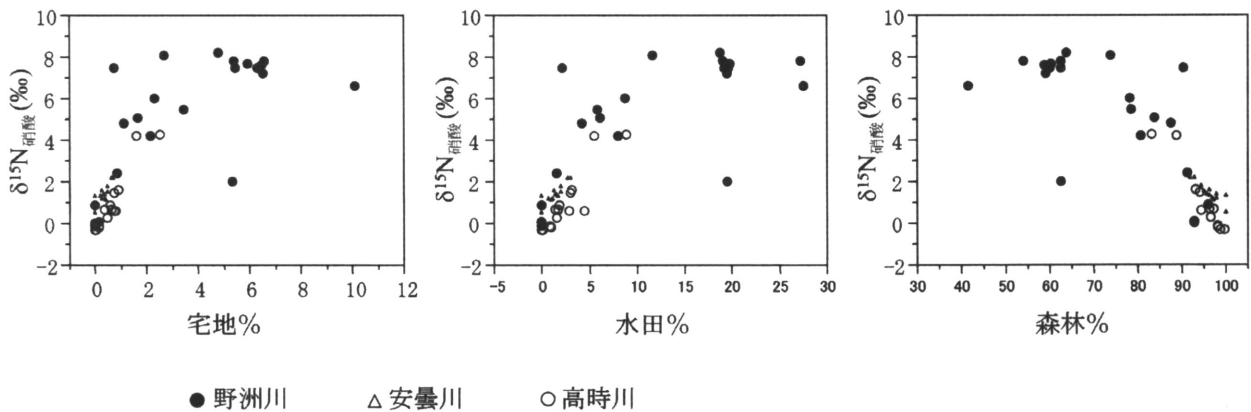


図2b 3河川 (野洲川、安曇川、高時川) の流程に沿った硝酸イオンの窒素同位体比を各調査地点より上流の集水域における3種類の土地利用割合 (宅地%、水田%、森林%) に対してプロットした。異なる河川の流程のデータは異なる印で示した。

意に増加した。野洲川のいくつかの地点ではこうしたパターンから少なからず外れる場合もあった。

### 3.2 堆積泥の窒素安定同位体比

堆積泥の窒素同位体比は各種土地利用から供給される土壌の窒素同位体比を比較的保存量に近い形で保持している可能性が高い。32河川の河口に近い場所の堆積泥の窒素同位体比は、人為影響の少ない河川で低く、人為影響の少ない河川で高くなった(図3a)。具体的には、集水域の森林%が100%から60%へ減少する過程で平均2%ほど増加した。逆に集水域の宅地%および水田%がそれぞれ0%から10%、0%から20%へ増加する過程で有意に増加した。しかしながら、堆積泥は採取時期による変動も大きく、2005年の5月が有意に低くなるのに対して、2003年や2004年の夏のサンプルは高くなった。

3河川の流程に沿った堆積泥の窒素同位体比も、人為影響の少ない河川や上流で低く、人為影響の少ない河川の下流で高くなった(図3b)。しかしながら、人為影響の少ない安曇川では有意に高時川より同位体比が高く、その理由は不明である。安曇川を除外した場合、具体的には、集水域の森林%が100%から60%へ減少する過程で有意に-1から+6%へと増加した。逆に集水域の宅地%および水田%がそれぞれ0%から6%、0%から20%へ増加する過程で有意に増加した。

### 3.3 礫上付着物の窒素安定同位体比

礫上付着物の窒素同位体比は各種土地利用から供給される硝酸やアンモニウム起源の窒素同位体比を比較的保存量に近い形で保持している可能性が高い。3河川の流程に沿った礫上付着物の窒素同位体比も、人為影響の少ない河川や上流で低く、人為影響の少ない河川の下流で高くなった

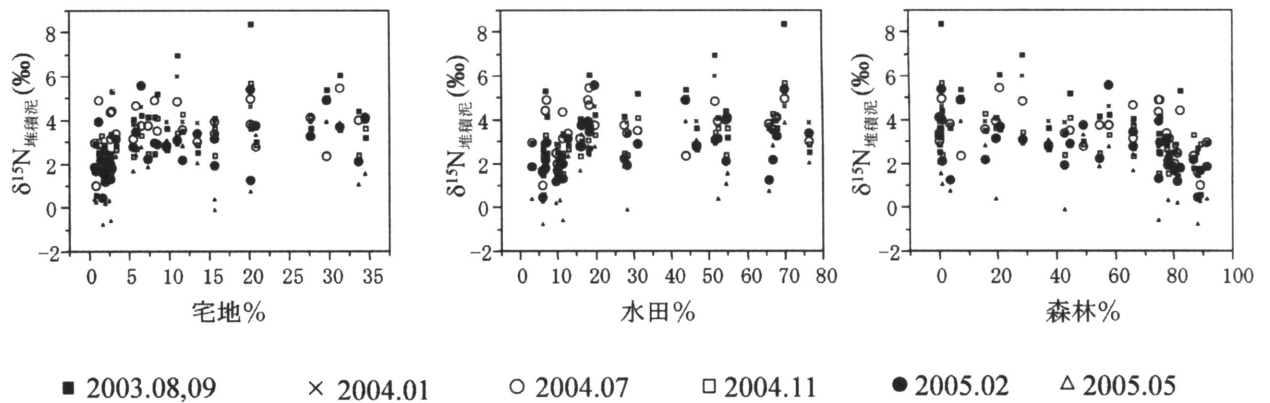


図3a 2003年から2005年にかけての6回分の琵琶湖流入32河川の河口での堆積泥の窒素同位体比を各河川の集水域における3種類の土地利用割合(宅地%、水田%、森林%)に対してプロットした。採取時期の違いによって異なる印で示した。

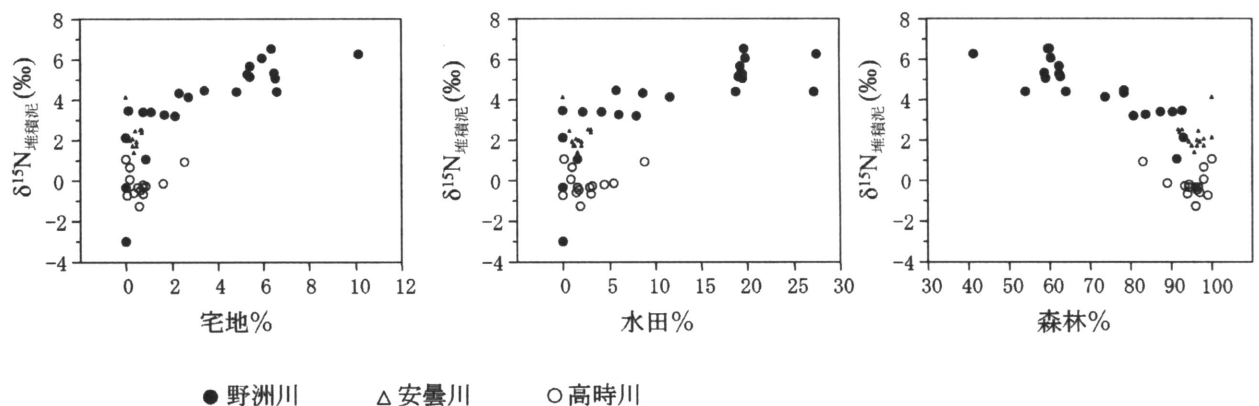


図3b 3河川(野洲川、安曇川、高時川)の流程に沿った堆積泥の窒素同位体比を各調査地点より上流の集水域における3種類の土地利用割合(宅地%、水田%、森林%)に対してプロットした。異なる河川の流程のデータは異なる印で示した。

(図4)。しかしながら、人為影響の少ない安曇川では有意に高時川より同位体比が高く、その理由  
は不明である。安曇川を除外した場合、具体的には、集水域の森林%が100%から60%へ減少する  
過程で有意に-4から+7%へと増加した。逆に集水域の宅地%および水田%がそれぞれ0%から  
6%、0%から20%へ増加する過程で有意に増加した。

### 3.4. ツルヨシの窒素安定同位体比

ツルヨシの窒素同位体比は各種土地利用から供給される硝酸やアンモニウム起源の窒素同位体比  
をツルヨシの生育時間で平均化した比較的保存量に近い形で保持している可能性が高い。3河川の  
流程に沿ったツルヨシの窒素同位体比も、人為影響の少ない河川や上流で低く、人為影響の少なく  
ない河川の下流で高くなった(図5)。しかしながら、人為影響の少ない安曇川では有意に高時川よ

り同位体比が高く、野洲川の下流で低めの値を取  
る場所が見られた。安曇川や野洲川のこうした場  
所を除外した場合、具体的には、集水域の森林%  
が100%から60%へ減少する過程で有意に-5か  
ら+7%へと増加した。逆に集水域の宅地%およ  
び水田%がそれぞれ0%から4%、0%から15%へ  
増加する過程で有意に増加した。

### 4. 考察

人為由来の窒素源が流入しているかどうかは、  
硝酸態やアンモニウム態といったDIN (Dissolved  
Inorganic Nitrogen) 濃度が直接的な指標である  
ことから、DIN濃度と水生植物、有機物もしくは  
硝酸塩の $\delta^{15}\text{N}$ との関連性をみた研究が多い。北米  
の湖沼ではTDN (Total Dissolved Nitrogen) や  
DINもしくは硝酸塩の濃度と有機物、生物、硝酸  
塩の $\delta^{15}\text{N}$ の間の正の相関を議論している<sup>14, 20, 22,</sup>  
<sup>23)</sup>。一般に硝酸塩やアンモニウム濃度の低い水

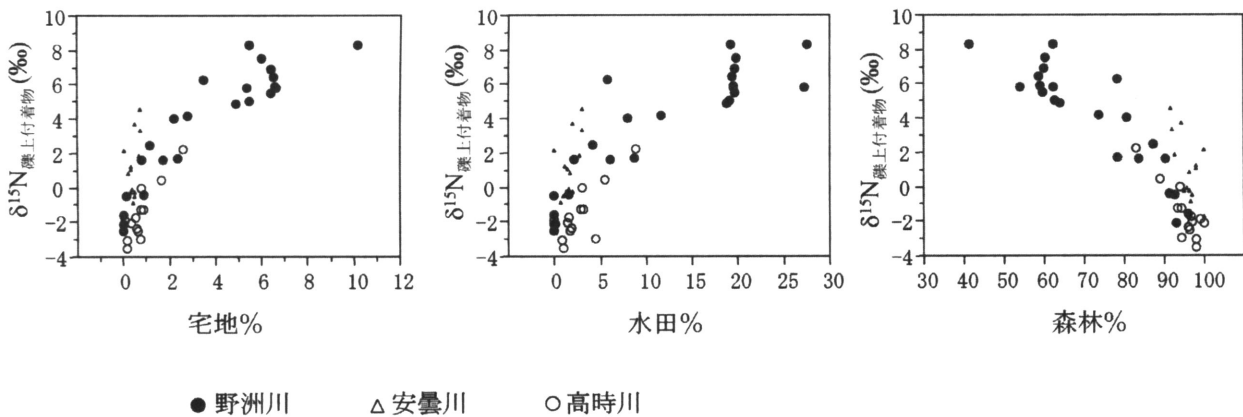


図4 3河川(野洲川、安曇川、高時川)の流程に沿った礫上付着物の窒素同位体比を各調査地点より上流の集水域における3種  
類の土地利用割合(宅地%、水田%、森林%)に対してプロットした。異なる河川の流程のデータは異なる印で示した。

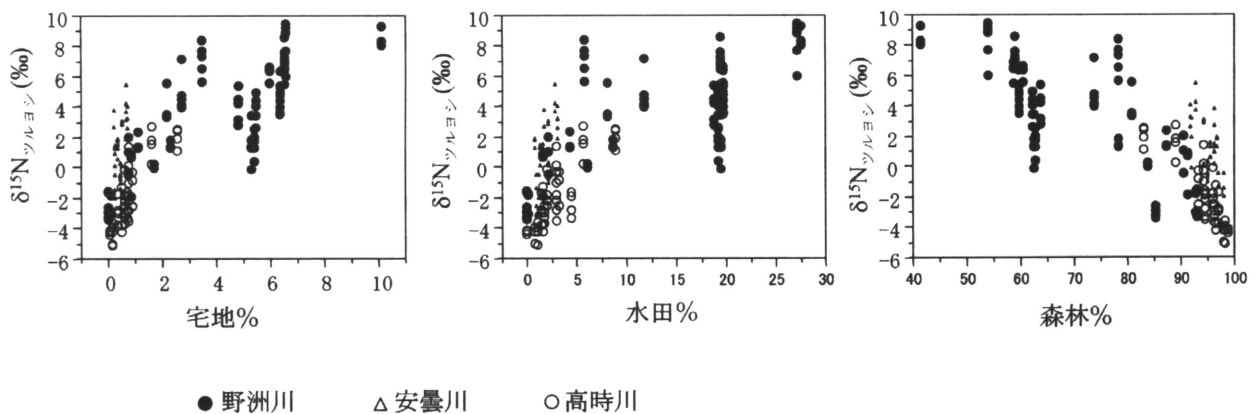


図5 3河川(野洲川、安曇川、高時川)の流程に沿ったツルヨシの窒素同位体比を各調査地点より上流の集水域における3種  
類の土地利用割合(宅地%、水田%、森林%)に対してプロットした。異なる河川の流程のデータは異なる印で示した。

系では硝酸塩、有機物、植物の $\delta^{15}\text{N}$ は $-5$ から $+5$ ‰と低いのに対し、無機態窒素濃度の高い湖沼では $\delta^{15}\text{N}$ は $+2$ から $+16$ ‰と高くなっていた。本節ではこうしたDIN濃度と窒素プールの $\delta^{15}\text{N}$ については示さなかったが、logスケールのアンモニウム塩濃度と各種窒素プールの $\delta^{15}\text{N}$ は強い正の相関を示した。また、Valiela et al.やCarmichael et al.<sup>22, 24)</sup>は集水域の土地利用や人口、各種経済パラメータを入れることで、人為起源の窒素の割合を各水系で算出し、その割合の上昇に伴い水系内の有機物、生物の $\delta^{15}\text{N}$ が上昇することも示している。人為起源の窒素の割合までは見積もれていないが、今回の琵琶湖流入河川で行った調査結果からも生活排水を通して人為窒素負荷のより大きな宅地は集水域に占める割合が5%以下でも河川の硝酸や礫上付着物の $\delta^{15}\text{N}$ を十分に上げることが分かった(図2~5)。また、人為窒素負荷の指標化を考える場合には、 $\delta^{15}\text{N}$ の時間変化や同一場所での試料間の $\delta^{15}\text{N}$ ができるだけ少なく、人為負荷に伴い $\delta^{15}\text{N}$ が大きく変化する窒素プールを選択すべきである。その意味から言えば、硝酸や礫上付着物やツルヨシなどの $\delta^{15}\text{N}$ が有望であると言える。大型藻類や水草など野外で容易に採取できるものに関しては、その $\delta^{15}\text{N}$ と土地利用や人為起源由来の窒素の割合との関係についての知見が得られている<sup>16, 25)</sup>。Cole et al.<sup>19)</sup>は沈水性水草(底泥への根の伸長の有無で2つに分割)の $\delta^{15}\text{N}$ は、人為起源の窒素割合と相関がよく、長期間の人為影響を評価するのに適していると議論している。しかしながら、生産者の $\delta^{15}\text{N}$ は彼らの生息場所の

微環境や取込みの際の同位体分別に強く影響されるため、同じ採集地点でとった個体間の $\delta^{15}\text{N}$ が非常に大きくなることも多い<sup>16, 19, 26)</sup>。水深や流速、付着基質の違いが生産者の $\delta^{15}\text{N}$ に影響する可能性もある。また、河川の場合、増水後の堆積物や増水時の懸濁粒子の $\delta^{15}\text{N}$ は低水時のそれとは全く違ったものとなる可能性もあるため、注意が必要である。我々の調査結果からも2005年の5月の堆積泥は他の季節に採取した場合より $\delta^{15}\text{N}$ が低く、土地利用との関係も明瞭ではなかったが、出水直後であった可能性もあるため、採取する時期には注意を要する。

窒素安定同位体比による生態系解析の分野は近年分析技術の向上に伴い、急激に拡大し、深化している<sup>27, 28)</sup>。硝酸塩の $\delta^{15}\text{N}$ の測定が半自動化され、多地点、多時点での同位体比や分子レベルでの同位体分析がより一般化すれば、従来の富栄養診断手法(栄養物質濃度や酸素濃度を指標とした診断)のみでは十分に明らかにできなかった、物質循環プロセスや、食物網のエネルギー基盤、また、食物連鎖の長さ、といった重要な生態系の特性の把握が大きく進むと思われる。これにより、これまでよりも、一歩踏み込んだ生態系環境の診断ができるようになる期待される。

### 謝辞

総合地球環境学研究所(当時)の上田篤史氏には地理情報システム(GIS)の解析に尽力していただいた。ここに深謝いたします。なお、本研究の一部は、独立行政法人科学技術振興機構戦略的

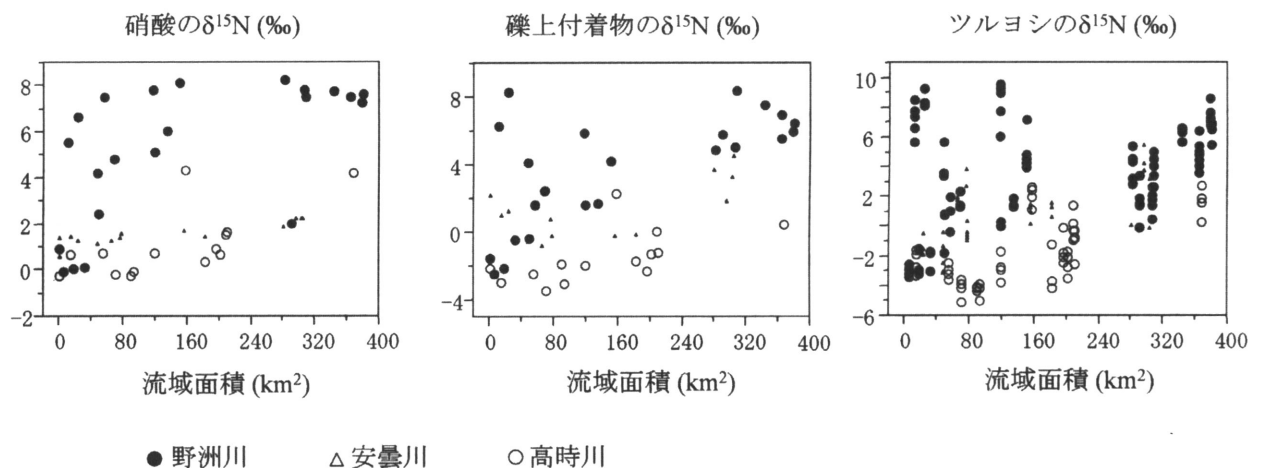


図6 3河川(野洲川、安曇川、高時川)の流程に沿った硝酸イオン、礫上付着物、ツルヨシの窒素同位体比を各調査地点より上流の集水域面積に対してプロットした。異なる河川の流程のデータは異なる印で示した。

創造研究推進事業「水の循環系モデリングと利用システム」の研究課題「各種安定同位体比に基づく流域生態系の健全性/持続可能性指標の構築」(研究代表者 京都大学生態学研究センター 永田 俊)との連携のもとに実施した。

### 引用文献

- 1) 宗宮 功『自然の浄化機構』技報堂 (1990)
- 2) 山田 佳裕, 中西 正巳「7章 地域開発・都市化と水・物質循環の変化」『岩波講座 地球環境学 水・物質循環系の変化』岩波書店 (1999)
- 3) Kalff, J., *Limnology*. (2001) Prentice-Hall, NJ
- 4) 中村 太士「河川・湿地における自然復元の考え方と調査・計画論ー釧路湿原および標津川における湿地、氾濫原、蛇行流路の復元を事例としてー」『応用生態工学』(2003) 5: 217-232
- 5) Kohl D.H., Shearer G.B. & Commoner B., Fertilizer nitrogen: contribution to nitrate in surface water in a corn belt watershed. *Science*. (1971) 174: 1331-1334.
- 6) Heaton T. H. E., Isotopic studies of nitrogen pollution in the hydrosphere and atmosphere: A review, *Chemical Geology*. (1986) 59: 87-102.
- 7) Aravena, R.M., Evans, M.L. & Cherry, J.A., Stable Isotopes of oxygen and nitrogen in source identification of nitrate from septic systems. *Ground Water*. (1993) 31: 180-186.
- 8) Fog G. E., Rolston D. E., Decker D. L., Louie D. T. & Grismer M. E., Spatial variation in nitrogen isotope values beneath nitrate contamination sources. *Ground Water*. (1998) 36: 418-426.
- 9) Macko, S.A. & Ostrom, N.E., Pollution studies using stable isotopes. In: Lajtha, K. & Michener, R.H. [eds.], *Stable isotopes in ecology and environmental studies*. (1994) p.45-62. Blackwell Scientific.
- 10) McClelland, J.W., Valiela, I. & Michener, R.H., Nitrogen-stable isotope signatures in estuarine food webs: A record of increasing urbanization in coastal watersheds. *Limnol. Oceanogr.* (1997) 42: 930-937.
- 11) Cabana, G. & Rasmussen, J., Comparison of aquatic food chains using nitrogen isotopes. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA*. (1996) 93: 10844-10847.
- 12) Tucker, J., Sheats, N., Giblin, A.E., Hopkinson, C.S. & Montoya, J.P., Using stable isotopes to trace sewage-derived material through Boston Harbor and Massachusetts Bay. *Mar. Envir. Res.* (1999) 48: 353-375.
- 13) Jones, A.B., O'Donohue, M.J., Udy, J. & Dennison, W.C., Assessing ecological impacts of shrimp and sewage effluent: biological indicators with standard water quality analyses. *Estuarine, Coastal and Shelf Sci.* (2001) 52: 91-109.
- 14) Lake, J.L., McKinney, R.A., Osterman, F.A., Pruell, R.J., Kiddon, J., Ryba, S.A. & Libby, A.D., Stable nitrogen isotopes as indicators of anthropogenic activities in small freshwater systems. *Can. J. Fish Aquat. Sci.* (2001) 58: 870-878.
- 15) Umezawa, Y., Miyajima, T., Yamamuro, M., Kayanne, H. & Koike, I., Fine-scale mapping of land-derived nitrogen in coral reefs by  $\delta^{15}\text{N}$  in macroalgae. *Limnol. Oceanogr.* (2002) 47: 1405-1416.
- 16) Jones, R.I., King, L., Dent, M.M., Maberly, S.C. & Gibson, C.E., Nitrogen stable isotope ratios in surface sediments, epilithon and macrophytes from upland lakes with differing nutrient status. *Freshwater Biol.* (2004) 49: 382-391.
- 17) McKinney, R.A., Lake, J.L., Allen, M. & Ryba, S., Spatial variability in mussels used to assess base level nitrogen isotope ratio in freshwater ecosystems. *Hydrobiologia*. (1999) 412: 17-24.
- 18) Vander Zanden, M.J. & Rasmussen, J.B., Primary consumer  $\delta^{13}\text{C}$  and  $\delta^{15}\text{N}$  and the trophic position of aquatic consumers. *Ecology*. (1999) 80: 1395-1404.
- 19) Cole, M.L., Kroeger, K.D., McClelland, J.W. & Valiela, I., Macrophytes as indicators of land-derived wastewater: application of a  $\delta^{15}\text{N}$  method in aquatic systems. *Water Resources Res.* (2005) 41: W01014.
- 20) Mayer, B., Boyer, E., Goodale, C., Jaworski, N.A., Breemen, N.V., Howarth, R., W., Seitzinger, S., Billen, G., Lajtha, K., Naedelhoffer, K., Dam D.V., Hetling, L.J., Nosal, M. & Paustian, K., Sources of nitrate in

- rivers draining sixteen watersheds in the northeastern U.S.: Isotopic constraints. *Biogeochemistry*. (2002) 57/58: 171-197.
- 21) Sigman D.M., Casciotti K.L., Andreani M., Barford C., Galanter M., & Bohlke J.K., A bacterial method for nitrogen isotopic analysis of nitrate in seawater and freshwater. *Analytical Chemistry*. (2001) 73: 4145-4153.
- 22) Valiela I., Geist, M., McClelland, J. & Tomasky, G., Nitrogen loading from watersheds to estuaries: Verification of the Waquoit Bay nitrogen loading model. *Biogeochemistry*. (2000) 49: 277-293.
- 23) McKinney, R.A., Lake, J.L., Charpentier, M.A. & Ryba, S., Using mussel isotope ratios to assess anthropogenic nitrogen inputs to freshwater ecosystems. *Envir. Monit. Assess.* (2002) 74: 167-192.
- 24) Carmichael, R.H., Annett, B. & Valiela, I., Nitrogen loading to Pleasant Bay, Cape Cod: application of models and stable isotopes to detect incipient nutrient enrichment of estuaries. *Mar. Pollution Bull.* (2004) 48: 137-143.
- 25) McClelland, J.W. & Valiela, I., Changes in food web structure under the influence of increased anthropogenic nitrogen inputs to estuaries. *Mar, Ecol. Prog. Ser.* (1998) 168: 259-271.
- 26) O'Reilly, C.M. & Hecky, R.E., Interpreting stable isotopes in food webs: recognizing the role of time averaging at different trophic levels. *Limnol. Oceanogr.* (2002) 47: 306-309.
- 27) Lajtha, K. & Michener, R.H., *Stable Isotopes in Ecology and Environmental Science*, (1994) Blackwell Sci. Pub., London.
- 28) Clark, I. & Fritz, P., *Environmental Isotopes in Hydrogeology*. (1997) Lewis Pub., Florida.



附表1

Geographic parameters and water qualities along three rivers. Site number increase from source to mouth.

RiverSite No.*	Geographic parameters						Water quality								
	Basin area (km <sup>2</sup> )	Human population density (pop./km <sup>2</sup> )	Paddy field%	Residential area%	Forest %	Human impact area%**	Electric conductivity (μS/cm)	Major ion					Nutrient		
								Cl <sup>-</sup> (ppm)	SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> -S (ppm)	Na <sup>+</sup> (ppm)	Mg <sup>2+</sup> (ppm)	Ca <sup>2+</sup> (ppm)	NO <sub>3</sub> <sup>-</sup> -N (ppb)	PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> -P (ppb)	NH <sub>4</sub> <sup>+</sup> -N (ppb)
Y1	1.2	0.0	0.0	0.0	95.9	1.8	32	2.6	5.2	2.5	0.5	3.5	524	1.4	1.3
Y2	6.0	0.0	0.0	0.0	85.3	0.4	45	2.5	8.4	2.7	0.6	5.7	410	0.3	1.8
Y3	18.4	0.0	0.0	0.0	92.9	0.1	50	2.8	7.6	2.9	0.9	6.2	419	2.2	1.0
Y4	33.2	3.6	0.0	0.1	92.8	0.2	54	3.1	8.6	3.1	1.0	7.3	480	0.6	2.1
Y5	50.8	26.6	1.5	0.9	91.4	2.5	63	3.6	8.8	3.7	1.1	7.8	602	4.0	4.3
Y6	57.0	23.7	2.1	0.8	90.5	3.0	73	3.9	10.4	3.9	1.3	8.8	1042	16.8	4.3
Y7	69.5	34.4	4.2	1.1	87.4	6.1	86	4.7	13.2	4.3	1.7	10.5	946	4.1	6.3
Y8	47.5	66.5	8.0	2.1	80.8	15.0	134	5.7	22.4	7.6	3.8	13.5	1160	7.6	4.4
Y9	119.2	52.4	6.1	1.7	83.8	10.4	108	5.1	16.0	5.9	2.5	11.0	1145	5.2	3.3
Y10	135.9	74.5	8.6	2.3	78.2	15.4	114	5.1	18.7	6.1	2.7	12.0	1206	4.8	2.4
Y11	151.9	96.4	11.7	2.7	73.8	19.5	134	7.0	17.6	7.1	3.4	13.0	1088	18.0	20.3
Y12	283.0	204.9	18.8	4.8	63.8	28.7	121	7.7	13.8	8.0	3.2	12.7	1241	10.6	4.9
Y13	117.4	289.3	27.2	6.6	54.0	39.0	138	8.4	22.3	8.7	3.3	15.5	677	24.0	13.8
Y14	291.2	232.7	19.5	5.3	62.4	29.8	134	7.6	16.9	7.9	3.0	14.4	550	1.0	7.7
Y15	11.2	197.8	5.8	3.4	78.3	16.9	93	5.7	9.4	7.9	1.3	9.9	944	33.9	39.0
Y16	306.9	241.5	19.1	5.4	62.6	29.6	142	7.9	18.0	8.1	3.0	14.6	954	17.4	6.1
Y17	308.2	243.2	19.2	5.4	62.4	29.7	129	8.0	17.8	8.1	3.0	14.8	1008	18.6	4.3
Y18	23.4	540.2	27.5	10.1	41.4	43.0	496	107.4	21.0	67.1	3.4	22.8	1057	42.0	54.7
Y19	343.8	277.7	19.7	6.0	60.4	30.7	206	24.0	20.6	18.5	3.1	15.6	924	21.4	5.4
Y20	364.2	308.2	19.7	6.3	59.9	30.9	230	28.6	22.2	21.1	3.1	15.5	819	19.9	5.5
Y21	365.7	308.0	19.7	6.3	59.6	30.9	220	28.6	21.1	21.3	2.9	16.1	783	18.2	4.2
Y22	378.1	321.1	19.5	6.5	59.1	31.0	211	26.9	20.8	20.7	2.9	15.2	751	19.7	6.1
Y23	380.1	319.9	19.4	6.5	58.8	30.8	213	25.6	20.8	20.2	2.9	15.3	765	16.3	8.4
A1	0.3	42.8	0.0	0.0	100.0	0.0	21	3.0	1.8	2.2	0.7	0.9	279	18.3	6.6
A2	14.4	42.3	1.4	0.3	97.9	1.7	31	2.3	2.1	2.1	0.8	2.1	228	17.9	2.1
A3	24.5	42.8	1.1	0.3	97.9	1.6	63	2.8	5.0	3.1	1.5	6.2	359	8.4	10.2
A4	48.5	31.3	0.9	0.4	97.1	1.7	61	2.6	5.9	2.9	1.5	5.9	327	11.7	1.9
A5	1.8	42.8	0.0	0.0	100.0	0.0	35	2.5	2.3	3.2	0.5	2.4	484	4.1	0.8
A6	65.7	34.3	0.7	0.4	96.8	1.3	59	2.7	5.1	3.2	1.3	5.7	403	9.7	1.9
A7	76.1	4.0	1.6	0.2	96.3	1.9	46	3.1	2.2	3.1	1.1	2.2	454	8.3	1.9
A8	156.1	20.2	1.3	0.3	96.2	1.8	55	4.2	2.4	3.8	1.3	2.5	441	9.1	1.9
A9	183.3	23.5	1.6	0.3	95.5	2.2	55	3.8	3.5	3.7	1.4	4.2	476	8.9	2.9
A10	77.8	13.1	2.1	0.4	94.9	2.6	59	3.9	3.5	3.8	1.4	4.2	675	8.2	1.9
A11	281.1	22.3	2.1	0.5	94.3	2.9	59	5.4	2.8	4.5	1.8	3.4	576	9.3	10.8
A12	296.0	24.7	2.7	0.6	92.8	3.9	59	4.5	3.2	4.2	1.4	3.7	594	11.0	7.2
A13	304.5	25.2	3.0	0.7	91.9	4.4	60	4.4	3.3	4.0	1.5	4.3	584	11.4	10.4
A14	305.1	25.3	3.0	0.7	91.7	4.4	60	4.7	3.3	4.2	1.6	4.1	529	12.3	7.3
T1	1.1	55.1	0.2	0.0	99.8	0.2	42	6.0	3.5	4.7	0.9	1.9	357	13.9	4.2
T2	14.6	55.1	4.4	0.7	94.4	5.2	74	6.4	4.5	4.9	1.9	6.2	428	15.3	5.3
T3	70.3	98.1	1.0	0.2	98.2	1.3	79	5.1	4.7	4.5	2.2	7.2	398	7.6	3.2
T4	90.9	83.4	0.0	0.0	98.8	0.0	79	4.3	5.0	3.8	2.2	8.0	385	13.8	3.5
T5	93.8	83.5	0.8	0.1	98.1	1.0	80	4.9	4.8	4.3	2.3	7.5	367	10.4	2.8
T6	120.1	80.5	1.4	0.3	97.1	2.0	91	5.2	5.0	4.6	2.6	8.5	343	8.3	10.8
T7	183.8	89.9	1.6	0.5	96.6	2.3	85	5.2	5.0	4.5	2.6	8.5	373	7.4	3.5
T8	56.0	39.7	1.7	0.6	96.3	2.8	117	4.5	9.3	5.0	3.7	12.2	417	27.5	4.5
T9	196.5	89.9	1.9	0.6	95.9	3.0	96	5.1	6.1	4.8	2.8	9.3	361	15.1	8.1
T10	202.5	100.2	2.9	0.8	94.5	4.2	100	5.8	6.3	5.0	2.8	9.4	342	14.7	20.7
T11	209.4	111.5	3.0	0.8	94.1	4.4	98	5.9	6.1	5.0	2.8	9.4	381	8.5	9.1
T12	211.4	124.8	3.2	0.9	93.3	4.9	101	5.6	6.2	5.0	2.7	9.5	250	9.5	8.8
T13	157.7	201.9	8.8	2.5	83.1	12.5	132	5.3	8.4	4.4	2.7	17.4	352	12.9	6.7
T14	368.7	188.8	5.6	1.6	88.9	8.2	135	5.3	8.3	4.4	2.8	16.8	310	7.7	4.9

\*The number in front of the site number corresponded to the site number in Fig. 2. \*\*Human impact area corresponded to the sum of the paddy field, other farm, residential area, area for traffic, and golf course.