

〈寄稿〉

夏季の七尾湾西湾における地下水流出が 底層水中の栄養塩濃度に及ぼす影響

杉本 亮^{1†}, 本田尚美², 鈴木智代³, 落合伸也⁴, 谷口真人⁵, 長尾誠也⁴

Effects of submarine groundwater discharge on nutrient concentrations in the western part of Nanao Bay in summer

Ryo SUGIMOTO¹, Hisami HONDA², Tomoyo SUZUKI³, Shinya OCHIAI⁴,
Makoto TANIGUCHI⁵ and Seiya NAGAO⁴

近年、陸域における地下水が海底湧水として沿岸海域に多くの栄養塩類を供給していることが報告されており、沿岸海域の物質循環研究においても、地下水が及ぼす影響を明らかにする必要がある。本研究では、地下水トレーサーである²²²Rn濃度を用いて七尾湾西湾における地下水湧出の実態を評価し、底層水中の栄養塩環境に及ぼす影響を検討した。²²²Rn濃度は浅海域で高い傾向にあった。溶存無機態窒素 (DIN) およびリン (DIP) 濃度も全体的に浅海域で高い傾向にあったが、²²²Rnとは明瞭な関係は認められなかった。DINおよびDIP濃度は溶存酸素 (DO) 濃度と明瞭な関係が認められ、再生産DINとDIPが主な起源であると推察された。しかしながら、地下水からの栄養塩供給の影響は無視できず、地下水湧出によるDIP供給は底泥からのDIP溶出とともに底層水中のDIP濃度を上昇させる働きをする一方、DIN供給は脱窒による底層水中の窒素除去を軽減させる働きがあることが示唆された。

Nutrient input through submarine groundwater discharge (SGD) may play a significant role in nutrient cycling in coastal seas. In this study, we have evaluated the effects of SGD-derived nutrients on benthic nutrient concentrations in the western part of Nanao Bay by using ²²²Rn isotope as a geochemical SGD tracer. Distribution of ²²²Rn concentration in the bottom waters showed clear spatial pattern, which was higher in the shallower region but lower in the deeper region. Mixing plot of salinity and ²²²Rn concentrations showed that ²²²Rn in the bottom layer was supplied from groundwater. Although nutrient concentrations were higher in the shallower region, there was no clear relationship between ²²²Rn and nutrient concentrations. Concentrations of dissolved inorganic nitrogen (DIN) and phosphorous (DIP) in the bottom layer were mainly controlled by dissolved oxygen (DO) concentrations. This means that major nutrient sources in the bottom layer were not SGD-derived nutrients but *in situ* regenerated nutrients. However, there were non-negligible effects of SGD on the benthic nutrient concentrations. We found that SGD-derived nutrients into the hypoxic bottom waters may promote DIP accumulation as well as DIP release from the sediments and mitigate DIN deficit due to denitrification.

Key words: Nutrients, ²²²Rn, Submarine groundwater discharge, Hypoxia

2014年1月27日受付, 2014年4月2日受理

¹ 福井県立大学海洋生物資源臨海研究センター

Research Center for Marine Bioresources, Faculty of Marine Biosciences, Fukui Prefectural University, 49-8-2 Katsumi, Obama, Fukui 917-0116, Japan

² 福井県立大学大学院生物資源学研究所

Graduate School of Biosciences and Biotechnology, Fukui Prefectural University, 49-8-2 Katsumi, Obama, Fukui 917-0116, Japan

³ 金沢大学大学院自然科学研究科

Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, Kakuma-machi, Kanazawa, Ishikawa 920-1192, Japan

⁴ 金沢大学環日本海域環境研究センター

Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Wake, Nomi, Ishikawa 923-1224, Japan

⁵ 総合地球環境学研究所

Research Institute for Humanity and Nature, 457-4 Motoyama, Kamigamo, Kita-ku, Kyoto 603-8047, Japan

† sugiryu@fpu.ac.jp

はじめに

沿岸域における高い基礎生産力は、河川を通して陸域表層から供給される栄養塩類によるところが大きいと考えられてきた。しかしながら近年、地下水も沿岸域に多くの栄養塩類を供給し、沿岸生態系の維持に寄与している可能性が報告されている (Paerl, 1997; Taniguchi et al., 2002)。地下水は底層水中に栄養塩類を直接供給する点において、表層水を主な栄養塩類の供給場所とする河川水と異なる特性を持つ (Slomp and Van Cappellen, 2004)。特に、沿岸域の底層生態系の維持に大きな影響を及ぼしていることが指摘されているが⁵ (Waska and Kim, 2011)、河川水と異なり、流出箇所の特長が困難な地下水が沿岸域の基礎生産過程や物質循環機構に及ぼしている影響の実態はよくわかっていない。

沿岸域における海底地下水流出の実態把握や定量評価を行うために、放射性同位元素である²²²Rn (ラドン) が有効なトレーサーとして用いられている (Burnett and Dulaiova, 2003; Hosono et al., 2012; 塩川ほか, 2013)。²²²Rnはウラン系列に属し、²²⁶Raを親核種とする不活性な希ガスである。水中に溶解している²²²Rnは自身の放射壊変、もしくは大気への散逸のみによって失われるため、地表水に比べ、²²⁶Raを多く含む岩石に接している時間の長い地下水中に2-3桁多く含まれることが多い。そのため、沿岸域への淡水の寄与を見積もる場合、塩分のみでは区別できなかった河川水と地下水の割合を分離することが可能である。また、²²²Rnは半減期が3.82日と短く、リアルタイムでの地下水流出評価に適したツールである。

本研究が対象とする七尾湾は、能登半島に位置する閉鎖性の強い内湾であり、北湾・西湾・南湾の3つからなる (Fig. 1)。最も奥部に位置する西湾は、日本海側最大のカ

キの養殖産地として知られ、熊木川をはじめとした陸域からの栄養塩類の供給が高い生産力を支えていると考えられている。また、七尾湾西湾の周辺では地下水の自噴帯が形成される等、地下水資源が豊富な場所である (野間・後藤, 1970)。また、西湾南部における二宮川等が形成する扇状地付近では、河川からの地下水涵養が生じ、浅層地下水が形成されている (野間・後藤, 1970)。この浅層地下水は、七尾湾西湾に流出しているものと推測されるが、その実態は分かっていない。そこで本研究では、成層が発達する夏季の七尾湾西湾において、地下水トレーサーである²²²Rn濃度から地下水湧出の実態を空間的に評価し、底層水中の栄養塩濃度に及ぼす影響を検討した。

観測および分析

2012年9月6日に、七尾湾西湾を網羅するように11測点設け (Fig. 1)、CTD (RINKO-Profler ASTD102, JFE Advantech) を用い、0.1 m 間隔で表層から海底までの水温、塩分、溶存酸素濃度 (DO)、クロロフィル蛍光を測定した。底層水は、水平型の6 L バンドン採水器を用いて採取した。また、西湾に流入する最大の河川である熊木川および西湾周辺の湧水と地下水に関しても、²²²Rnと栄養塩用の試料を同様に採取した。採取した試水は、²²²Rn濃度測定用として250 mlのガラス容器に分注した。試水の一部は、採取後すぐに0.8 μmのセルロースアセテートフィルターで濾過をし、その濾水を栄養塩濃度測定用として酸処理済みの50 mlのポリプロピレン (PP) 容器ならびに30 mlの褐色PP容器にそれぞれ分注した。

硝酸態窒素 (NO₃⁻)、亜硝酸態窒素 (NO₂⁻)、リン酸態リン (PO₄³⁻) は、オートアナライザー (TRAACS 800, Bran Luebbe) を用いた自動分析を行った。アンモニア態窒素

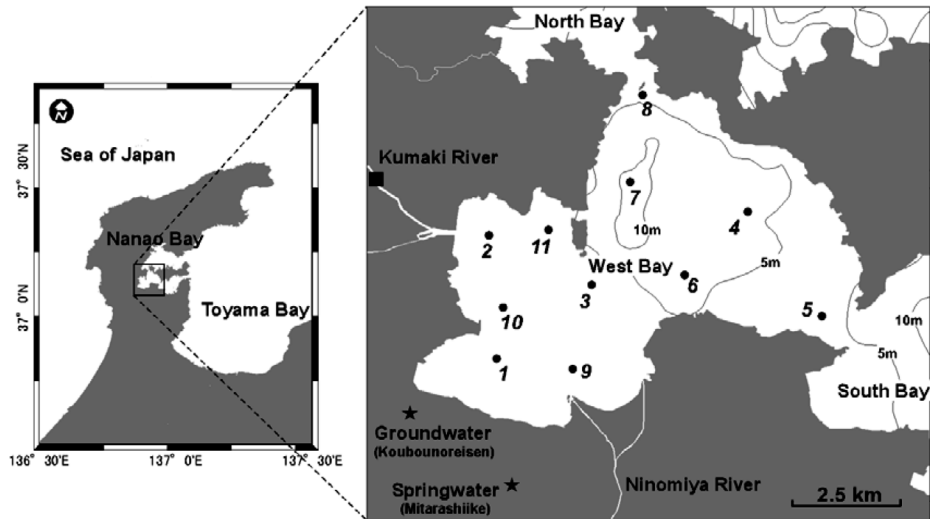


Figure 1. Bathymetry and sampling locations (circles) in the western part of Nanao Bay. Square and stars are sampling locations for river water and spring water/groundwater, respectively.

(NH_4^+) は, Holmes et al. (1999) に従い蛍光光度計 (Trilogy, Turner Design) を用いて測定した. 本報では, NO_3^- , NO_2^- , NH_4^+ の合計を溶存態無機窒素 (Dissolved inorganic nitrogen: DIN), PO_4^{3-} を溶存態無機リン (Dissolved inorganic phosphorous: DIP) としている.

ガラス容器中の ^{222}Rn 濃度は, 採取から 24 時間以内に以下の通り測定した. 実験室にて室温に調整した試水を, 気液平衡装置 (RAD H₂O, DurrIDGE) を用いて試料水中の ^{222}Rn 濃度と閉鎖系である気層中の ^{222}Rn 濃度とに平衡状態を作り, 気相中の ^{222}Rn 濃度をシリコン半導体検出器 (RAD7, DurrIDGE) によって測定した. 測定結果は, 気体から液体への溶解平衡ならびにサンプル採取時刻からの放射壊変の影響を考慮して ^{222}Rn 濃度の補正を行っている.

結果

陸水中の ^{222}Rn 濃度および栄養塩濃度を Table 1 に示す. 表流水である熊木川の ^{222}Rn (69.6 Bq m^{-3}) に比べ, 湧水 (9309.2 Bq m^{-3}) や地下水 (5595.1 Bq m^{-3}) の ^{222}Rn 濃度は 100 倍ほど高かった. 熊木川の DIN 濃度は $73 \mu\text{M}$ と高かつ

たが, 湧水と地下水の DIN 濃度は, $5 \mu\text{M}$ 以下と低かった. 一方, DIP 濃度は熊木川が $0.7 \mu\text{M}$ 程度であったが, 湧水・地下水は $2 \mu\text{M}$ 以上と高かった. そのため, 表流水の熊木川はリンに比べ窒素が豊富 (DIN : DIP=99.1) なのに対し, 西湾周辺の湧水・地下水は窒素に比べリンが豊富 (DIN : DIP=1.2-1.7) であった.

七尾湾西湾の底層水中における水温, 塩分, DO, ^{222}Rn および栄養塩濃度の水平分布を Fig. 2 に示す. 観測日の水温は, 28.7°C から 30.8°C と全体的に高い傾向にあり, 特に湾奥部の浅海域で 30°C を上回っていた. 西湾奥部および東部 (南湾との境界付近) で塩分は 33 以下と低かったが, 北湾から西湾中央部にかけての深部 (>5 m) で塩分 33 以上と高い傾向にあった. DO 濃度は西湾全域で 5 mg L^{-1} 以下と低く, 特に奥部の浅海域で 3 mg L^{-1} 以下の貧酸素水塊が広がっていた. また, 湾奥部は水深が比較的浅いが, 水深 1.5-2.0 m 付近に明瞭な密度躍層が形成されており, 底層水は孤立水塊となっていた.

底層水中の ^{222}Rn 濃度は 23.3 から 172.9 Bq m^{-3} の範囲を示し, 西湾全域の平均値 (96.6 Bq m^{-3}) は熊木川 (69.6 Bq m^{-3})

Table 1. ^{222}Rn and nutrients concentrations in river water, spring water, and groundwater.

	^{222}Rn (Bq m^{-3})	NH_4^+ (μM)	NO_2^- (μM)	NO_3^- (μM)	DIP (μM)
River Water (RW)	69.6	2.44	0.31	70.04	0.73
Spring Water (SW)	9309.2	0.01	0.51	3.53	2.32
Ground Water (GW)	5595.1	<0.01	0.32	2.90	2.65

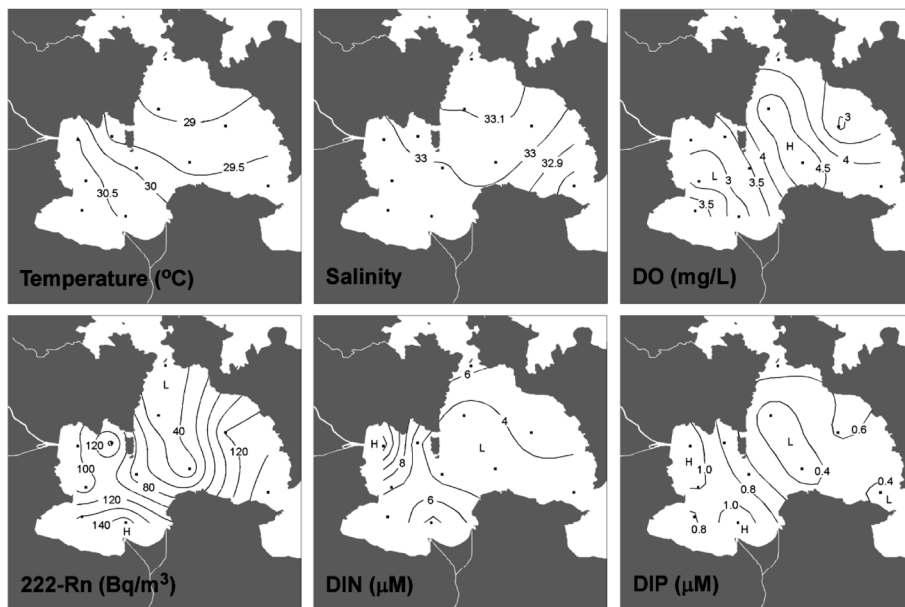


Figure 2. Spatial distributions of temperature, salinity, dissolved oxygen (DO), ^{222}Rn , dissolved inorganic nitrogen (DIN) and phosphorous (DIP) in the bottom waters.

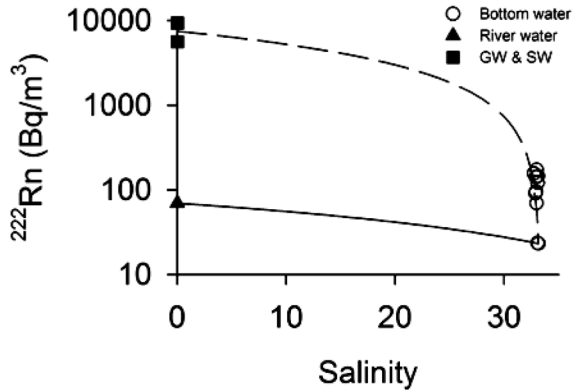


Figure 3. ^{222}Rn concentrations plotted versus salinity. Dashed and solid lines are the conservative mixing lines from groundwater to oceanic water (Stn. 8) and river water to oceanic water (Stn. 8), respectively.

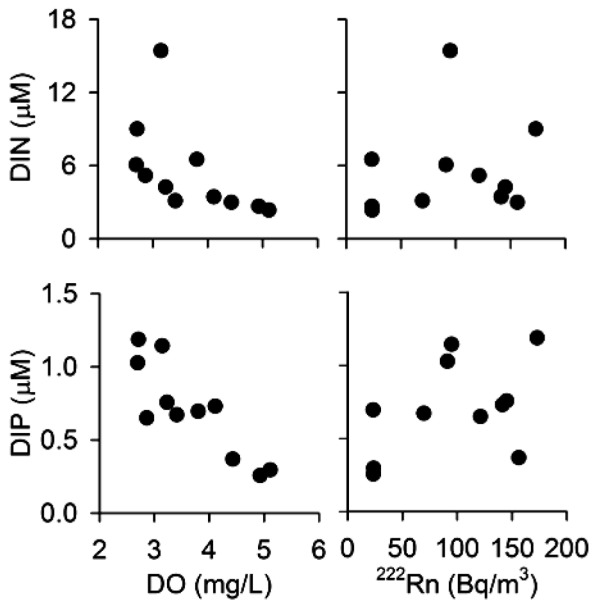


Figure 4. Relationships among nutrients, DO and ^{222}Rn concentrations.

のものよりも高かった。 ^{222}Rn 分布は、塩分33以下の低塩分領域に対応するように高濃度となっており、湾奥部の二宮川の沖合で最も高い値を示した。Fig. 3に塩分と ^{222}Rn 濃度の関係、および塩分勾配に応じた理論的な ^{222}Rn の保存的混合直線を示す。底層水中の ^{222}Rn 濃度は、地下水・湧水と高塩分水 (Stn.8の底層水) のミキシングライン上にプロットされており、河川水ではなく、地下水が七尾湾西湾の底層水中に ^{222}Rn を付加していることを示している。

DIN濃度は、 $2.3\ \mu\text{M}$ から $15.4\ \mu\text{M}$ の範囲で分布しており、湾奥を中心とした浅海域で高い傾向にあった (Fig. 2)。DIP濃度は $0.3\ \mu\text{M}$ から $1.2\ \mu\text{M}$ の範囲を示し、湾奥部で $1\ \mu\text{M}$ 以上と高濃度であった (Fig. 2)。DO濃度の高い湾中

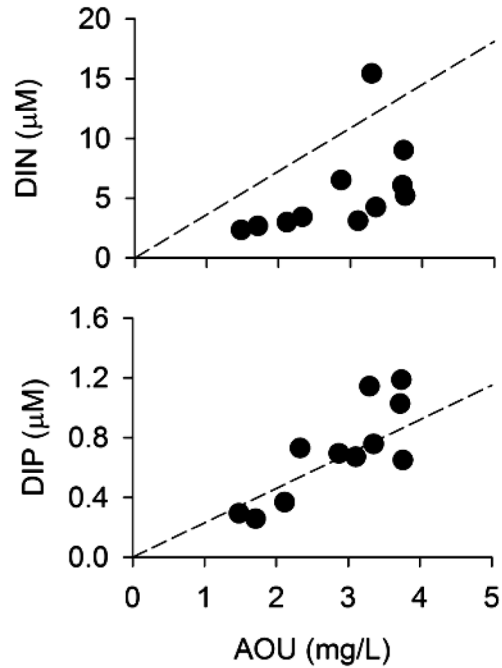


Figure 5. Apparent oxygen utilization vs. DIN and DIP concentrations. Dashed lines are nutrient/AOU ratio of Redfield stoichiometry.

央部の深部では、DIN、DIPともに低濃度であった。また DIN : DIPは、4.6–13.5であり、レッドフィールド比 (RF比、DIN : DIP=16) よりも著しく低かった。Fig. 4に栄養塩濃度とDOおよび ^{222}Rn 濃度の関係を示す。栄養塩濃度は、DO濃度の減少に伴って増加する傾向にあった。特にDIPは、DO濃度と強い負の相関関係 ($r^2=0.74$) が認められた。一方、栄養塩濃度と ^{222}Rn 濃度との間には明瞭な関係性は認められなかった (Fig. 4)。

考察

成層が発達する七尾湾西湾の底層水中には、河川水よりも高濃度の ^{222}Rn が含まれており、周辺部の地下水からの ^{222}Rn 付加の影響が認められた (Figs. 2 and 3)。特に二宮川の河口からその西部海域を中心とする湾奥部の浅海域でその値は高い傾向にあった。野間・後藤 (1970) は、二宮川等が形成する扇状地付近で、河川からの地下水涵養が生じていることを報告しており、このような浅層地下水が西湾奥部に流出しているものと推察される。また、地下水湧出の形態として、「スプリング型 (spring)」と「滲み出し型 (seepage)」の2パターンが存在するが (石飛ほか, 2007)、 ^{222}Rn 分布が局所的なものではなく、広い分布パターンを示していることから「滲み出し型」によるものと推察される。この「滲み出し型」については、「スプリング型」のように狭い範囲で目に見えるほど多くの流量はないが、その湧出範囲が広く無視できない水量と溶存物質が海洋へ

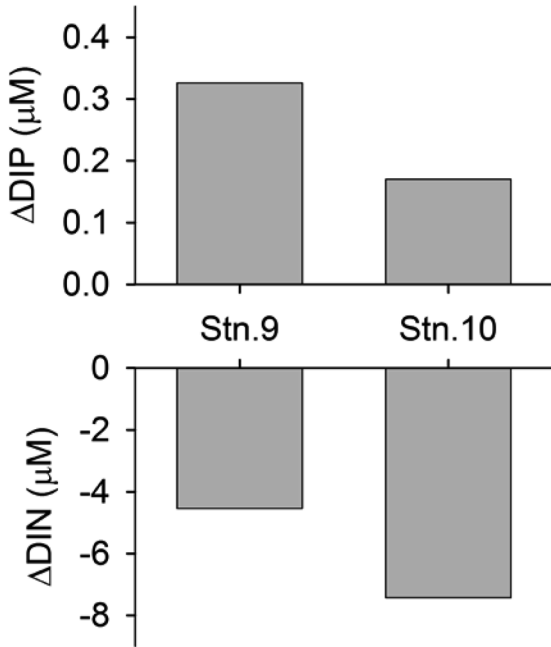


Figure 6. Deviations of DIN and DIP concentrations from the nutrient/AOU ratio at Stn. 9 and Stn. 10.

と流出していると推測されている (Taniguchi et al., 2002). それゆえ, 西湾への地下水流出は底層水中の栄養塩濃度にも影響を及ぼしている可能性がある. しかしながら, 湾奥部底層水中のDO濃度は低く, DO低下に伴う栄養塩濃度の増加傾向が認められることから, DO消費に伴う栄養塩類の再生産の影響が無視できない.

Fig. 5に見かけ上の酸素消費量 (Apparent oxygen utilization: AOU) とDINおよびDIP濃度の関係を示す. 図中の破線は, 有機物 (植物プランクトン) がRF比に従って分解されると仮定した時に, 理論的に生成される栄養塩濃度の値であり, 1 mg L^{-1} の酸素消費でDINは $3.62 \mu\text{M}$, DIPは $0.23 \mu\text{M}$ 増加する (筧・藤原, 2007). この理論値と実測値を比較すると, DINは理論値よりも低い傾向があるのに対し, DIPは理論値と同等, もしくはそれよりも高い傾向があった (Fig. 5). このようなRF比から推定される理論値と実測値の差 (非RF比成分) は, 脱窒や溶出・吸着といったプロセスの結果として一般には説明されている (例えば, 筧・藤原, 2007). また, 七尾西湾は水深が浅く, 日中は植物プランクトンによる栄養塩取り込みが生じていることも想定されるが, この効果はRF比成分に含まれるため, 非RF比成分を考える場合には, その影響は無視できる. 七尾西湾の場合, DINは理論値よりも低い傾向にあることから脱窒による除去, DIPは理論値よりも高い傾向にあることから底泥からの溶出による影響が強いことが示唆される. 脱窒や溶出は還元環境下で主に生じるプロセスであり, DO濃度が低い (AOU濃度が高い) ほど, その

影響が大きい (城ら, 1984; 筧・藤原, 2007). つまり, DO濃度に明瞭な違いが認められないにも関わらず, 非RF比成分に違いが認められた場合, 脱窒や溶出以外の何らかのプロセスが栄養塩濃度に影響を及ぼしていることが示唆される. 実際, 西湾奥部のStn. 9とStn. 10では, DO濃度 (Stn. 9= 2.71 mg L^{-1} , Stn. 10= 2.69 mg L^{-1}) に違いがないにも関わらず, 非RF比成分に大きな違いが認められる (Fig. 6). これらの2測点には ^{222}Rn 濃度 (Stn. 9= 172.9 Bq m^{-3} , Stn. 10= 91.1 Bq m^{-3}) に明瞭な違いがあることから, 非RF比成分に地下水による栄養塩供給の影響が及んでいるものと推察される. ^{222}Rn 濃度の高いStn. 9ほど, 非RF比成分はDIPで大きく, DINで小さかった. このことは, 地下水によるDINおよびDIP供給が, 脱窒等による水中からの窒素の除去を軽減させる一方で, リンの溶出とともに貧酸素水塊中でのDIP蓄積を促進する効果があることを示唆している. 特に, 七尾湾西湾周辺の湧水や地下水はDIPに富んでおり (Table 1), 窒素に比べてリン供給の効果が大きかったものと推察される.

まとめ

本研究では, 七尾湾西湾における地下水湧出が, 底層水中の栄養塩濃度に及ぼす影響を, 地下水トレーサーである ^{222}Rn から評価したところ, 西湾奥部 (特に, 二宮川河口付近) を中心に地下水湧出の影響が認められた. また地下水流出が貧酸素化した底層水中の栄養塩動態に及ぼす影響を, 窒素・リン・酸素の化学量論から検討したところ, 海底地下水湧出によるDIP供給は底泥からのDIP溶出とともに底層水中のDIP濃度を上昇させる働きをする一方, DIN供給は脱窒による底層水中の窒素除去を軽減させる働きがあることが示唆された. 今後は, より高精度な ^{222}Rn 濃度分析手法を取り入れ, 地下水湧出量の定量ならびに栄養塩動態への影響評価を行っていく必要がある.

引用文献

- Burnett, W. C. and H. Dulaiova (2003) Estimating the dynamics of groundwater input into the coastal zone via continuous radon-222 measurements. *J. Environ. Radioactivity*, **69**, 21–35.
- Holmes, R. M., A. Aminot, R. Kerouel, B. A. Hooker and B. J. Peterson (1999) A simple and precise method for measuring ammonium in marine and freshwater ecosystems. *Can. J. Fish. Aquat. Sci.*, **56**, 1801–1808.
- Hosono, T., M. Ono, W. Burnett, T. Tokunaga, M. Taniguchi, T. Akimichi (2012) Spatial distribution of submarine groundwater discharge and associated nutrients within a local coastal area. *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 5319–5326.
- 石飛智稔・谷口真人・嶋田 純 (2007) 沿岸海底湧出量測定による塩淡水境界変動と地下水流出の評価. *地下水学会誌*, **49**, 191–204.
- 城 久・矢持 進・安部恒之・河合 章 (1984) 大阪湾の貧酸素底層水における無機栄養塩濃度について. *水産海洋研究*, **50**, 1693–1700.
- 筧 茂穂・藤原建紀 (2007) 伊勢湾の栄養塩動態: 非保存的变化

- の季節変動. 海の研究, **16**, 437–453.
- 野間泰二・後藤隼次 (1970) 石川県邑知潟平野の地下水. 地質調査所月報, **21**, 513–522.
- Paerl, H. W. (1997) Coastal eutrophication and harmful algal blooms: Importance of atmospheric deposition and groundwater as “new” nitrogen and other nutrient sources. *Limnol. Oceanogr.*, **42**, 1154–1165.
- 塩川麻保・山口 聖・梅澤 有 (2013) 有明海西岸域への地下水由来の栄養塩供給量の評価. 沿岸海洋研究, **50**, 157–167.
- Slomp, C. and P. Van Cappellen (2004) Nutrients input to the coastal ocean through submarine groundwater discharge: Controls and potential impact. *J. Hydrology*, **295**, 64–86.
- Taniguchi, M., W. C. Burnett, J. E. Cable, and J. V. Turner (2002) Investigations of submarine groundwater discharge. *Hydrol. Processes*, **16**, 2115–2129.
- Waska, H. and G. Kim (2011) Submarine groundwater discharge (SGD) as a main nutrient source for benthic and water-column primary production in a large intertidal environment of the Yellow Sea. *J. Sea Res.*, **65**, 103–113.