

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 11 日現在

機関番号：23401

研究種目：若手研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22710014

研究課題名（和文） 河口域生態系における窒素循環プロセスの定量化と人為起源窒素の影響評価

研究課題名（英文） Assessment of human impact on nitrogen dynamics in estuarine ecosystems

## 研究代表者

杉本 亮（SUGIMOTO RYO）

福井県立大学・海洋生物資源学部・助教

研究者番号：00533316

研究成果の概要（和文）：河口・沿岸域における窒素動態に人間活動が及ぼす影響を評価することを目的とし、流入負荷特性の異なる淀川－大阪湾水系と北川－小浜湾水系において、安定同位体比解析を実施した。その結果、人間の生活圏に密接する淀川－大阪湾水系では、陸域からの流入負荷だけでなく、水中で再生産される窒素も大きな影響を及ぼしていた。また、北川－小浜湾水系では、人間生活圏からの影響はほとんど認められなかったものの、越境大気を起源とする硝酸汚染の影響が認められた。

研究成果の概要（英文）：We evaluated the human impact on nitrogen cycle in two contrasting estuarine ecosystems (Yodo River-Osaka Bay and Kita River-Obama Bay) by using stable isotopes. In the Yodo river-Osaka Bay system, not only nitrogen loading from the land but also regenerated nitrogen within the estuary and the bay had a large impact on nitrogen dynamics. Although there was little local anthropogenic nitrogen loading in the Kita River, influence of nitrate deposition from atmosphere was observed in both the river and Obama Bay during winter.

## 交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	700,000	210,000	910,000
2011年度	600,000	180,000	780,000
2012年度	500,000	150,000	650,000
年度			
年度			
総計	1,800,000	540,000	2,340,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：窒素循環、安定同位体比、河口域、硝化、脱窒、貧酸素水塊

## 1. 研究開始当初の背景

人為的富栄養化に伴って発生する酸素欠乏域（貧酸素水塊）を“Dead Zone”とも呼び、世界中の河口沿岸域において深刻な環境問題となっている。海域が人為的に富栄養化する根源的な要因として、陸域からの栄養塩

流出が挙げられ、これは大きく2つのタイプに区分される。1つは、生活・工業排水などによる都市型の富栄養化である。もう1つは、農地から大量の化学合成窒素肥料等が流出することによる非都市型の富栄養化である。我が国においては、高度経済成長期以降に沿

岸域の環境が劇的に悪化したこともあり、前者に対して大胆な流入負荷の規制が行われてきた。さらに、科学的なモニタリング調査なども継続して実施されている。しかしながら、後者に関しては、面源的な負荷特性と環境悪化の因果関係が不明瞭なこともあり、負荷規制・水質モニタリング等はほとんど行われていない。河口・沿岸域が元来備えている高い生産力を持続的に維持・利用していくためにも、栄養塩類の人為負荷による生態系攪乱の影響を的確に評価し、早急に改善策を提示していく必要がある。

## 2. 研究の目的

富栄養化を引き起こす原因物質の一つである窒素に着目し、流入負荷される窒素化合物と海域の富栄養化の関係を明らかにすることを目的とする。そのため、本研究では流入負荷特性の異なる淀川-大阪湾水系(都市型)と北川-小浜湾水系(非都市型)をモデルフィールドとして現地調査を実施した。

## 3. 研究の方法

### (1) 淀川-大阪湾における現地調査

2010年5月30日と2011年5月17日の大潮時(下げ潮)に淀川下流域から大阪湾奥部の縦断線上に6測点を設け、船舶によるCTD観測および多層採水を行った。採水試料は、クロロフィルa濃度、栄養塩濃度( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ )と $\text{NO}_3^-$ の窒素安定同位体比( $\delta^{15}\text{N}$ )を測定した。また季節的な違いを評価するために、同様の観測を、2011年7月、11月、2012年2月にも実施した。

2011年5月から2012年3月にかけて大阪湾奥部の3測点において底層水の採取を毎月実施した。採取した底層水は、各種栄養塩の濃度分析、 $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、懸濁態有機窒素の $\delta^{15}\text{N}$ の分析に供した。

### (2) 北川-小浜湾における現地調査

2010年12月から2011年11月にかけて毎月平水時に小浜湾に注ぐ北川の上流域から下流域において多項目水質計を用いた水温、電気伝導度、pHの測定、また表層水の採水を行った。採水試料を用いて栄養塩濃度( $\text{NO}_3^-$ 、 $\text{NO}_2^-$ 、 $\text{NH}_4^+$ 、 $\text{PO}_4^{3-}$ )、クロロフィルa濃度、および $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ と酸素安定同位体比( $\delta^{18}\text{O}$ )を測定した。

小浜湾の湾奥(北川河口域)から湾口部を結ぶ縦断線上において、2011年3月から2012年4月まで、毎月1回現地調査を行った。全ての測点において、CTDおよび光量子計を用いて水温、塩分、クロロフィルa濃度、溶存酸素濃度(DO)、光量子量を鉛直的に測定した。主要測点においては多層採水を行い、クロロフィルa濃度、栄養塩濃度(溶存無機態窒素、リン、ケイ素)を測定した。

## 4. 研究成果

### (1) 淀川-大阪湾における窒素動態

春季大潮期における淀川河口域内の窒素動態は、塩水侵入強度の違いに応じて大きく変化した。塩水侵入が顕著であった2010年の $\text{NO}_3^-$ 濃度は、塩水侵入が弱かった2011年に比べると著しく高かった。塩分を保存成分とした混合モデルからその濃度変化を予測したところ、高濃度の $\text{NO}_3^-$ は河口域内で供給されていたものであった。一方、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ は、2010年は濃度が減少するにつれて、 $\delta^{15}\text{N}$ も低下する傾向を示したが、2011年は逆の傾向であった。これは、2011年は植物プランクトンの取り込みの影響を強く受けていたが、2010年は硝化反応の同位体効果の影響により $\delta^{15}\text{N}$ が低下していたものと考えられる。そこで、硝化反応によって生成される $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ をレイリーモデルから見積もり、実測の $\delta^{15}\text{N}$ と比較したところ、両者はよく一致した( $r^2 = 0.61$ 、図1)。このことは、2010年5月に感潮域内で実測された $\text{NO}_3^-$ 濃度の約6割は再生産由来の $\text{NO}_3^-$ であったことを意味している。元来、沿岸域の富栄養化は陸域から河川を通じて供給される栄養塩類によって引き起こされていると考えられていたが、本研究結果は、感潮域内での生物化学的作用による有機物の分解と栄養塩の生成および河口循環流による栄養塩の上層への輸送過程が、沿岸海域への新たな栄養塩ソースになっていることを示すものである。

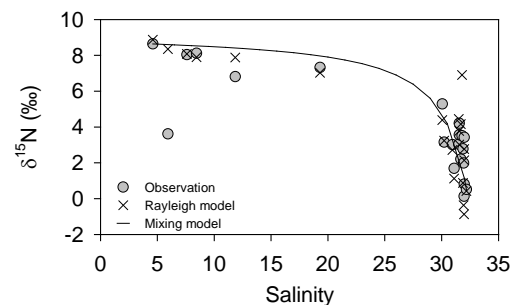


図1. 2010年の塩分と $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ の実測値(●)、レイリーモデルから見積もられる理論値(×)の関係。実線は塩分・濃度を考慮した混合モデル。

成層期の大阪湾では、湾奥部の浅海域に貧酸素水塊が形成され、高濃度の溶存態無機窒素(DIN)が蓄積している。このDINの主形態は $\text{NH}_4^+$ であり、 $\text{NO}_3^-$ が占める割合はわずかであった。形態ごとに安定同位体比を測定したところ、成層期の $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ は淀川河口域のものに比べて著しく低かった(図2)。 $\text{NO}_3^-$ の酸素同位体比( $\delta^{18}\text{O}$ )は0‰と小さく、硝化反応によって生成されたものであることが確認された。

。しかしながら、硝化反応に伴う $\delta^{15}\text{N}$ の分別係数を見積もったところ、15‰程度であった。この値は、硝化反応が卓越して生じる伊勢湾(25‰, Sugimoto et al. 2008)に比べると著しく小さい。また、大阪湾奥部の底層水中の相対照度は1%を頻繁に上回っており、硝化細菌の活性が光などの環境要因によって制限されていたことが示唆される。貧酸素水塊中で生じる硝化反応は、脱窒反応に必要な硝酸イオンを供給する重要なプロセスであるが、大阪湾では硝化・脱窒系の連続的な駆動が生じていない可能性が考えられた。そこで、レッドフィールド比とD0の関係から、貧酸素水塊中で生じている脱窒によって失われている窒素量を推定し、硝化・脱窒系が連続的に駆動している伊勢湾と比較したところ、アンモニア態窒素が最終形態として貧酸素水塊中に蓄積する大阪湾では、脱窒による窒素損失量は、伊勢湾に比べて小さいことも示された。一方、冬季の $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ や $\delta^{15}\text{N}_{\text{NH}_4}$ は、淀川河口域のものと類似しており(図2)、混合期の $\text{NO}_3^-$ 濃度の増加傾向は陸域から負荷されるDINの影響によるものと考えられる。

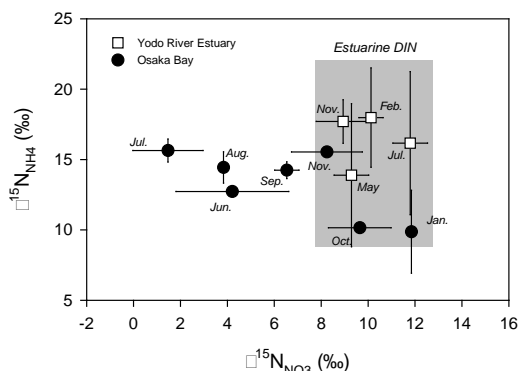


図2. 大阪湾(●)および淀川河口域(□)の硝酸態窒素( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NO}_3}$ )とアンモニア態窒素( $\delta^{15}\text{N}_{\text{NH}_4}$ )の安定同位体比の関係。プロットは地点間の平均値、エラーバーは標準偏差を示す。

## (2) 北川-小浜湾における窒素動態

北川の $\text{NO}_3^-$ 濃度は、時間的にも空間的にも大きく変化した。水田を利用する夏季には、中流以降でその濃度が低下する傾向にあった。この時、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{15}\text{N}$ は上昇傾向にあり、水田内での生物化学的作用(取り込みや脱窒など)の影響を受けていることが示された。また、人為的インパクトがほとんどないと考えられる流域では、冬季に $\text{NO}_3^-$ 濃度が高い傾向にあり、その影響は河口域にまで反映していた。この時、 $\text{NO}_3^-$ の $\delta^{18}\text{O}$ は高い傾向にあり、降水や降雪に由来する $\text{NO}_3^-$ の影響が生じていたものと

考えられる。このことは、冬季の大気由来 $\text{NO}_3^-$ が、北川流域の窒素濃度の上昇に寄与していることを示している。

河川流量の低下する成層期の小浜湾では、栄養塩はほぼ枯渇していた。しかしながら、春季には小浜平野で沈み込んだ地下水が河口から約2kmほど沖合の水深15mあたりで湧出していること、それに伴って植物プランクトンが急増し、一次生産力が非常に高くなっていた。このことは、河川由来の窒素に加え、海底湧水として小浜湾へ流出する窒素も生物生産を支える重要な栄養源であることを示唆している。また、冬季の混合期には、河川から供給される豊富な $\text{NO}_3^-$ が小浜湾全域に高濃度で分布しており、北川から排出される大気由来 $\text{NO}_3^-$ が小浜湾の富栄養化を引き起こす可能性が示唆された。

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

- ① 杉本亮、笠井亮秀、佐藤専寿、富永修、安定同位体比を利用した河口・沿岸域における懸濁態有機物の挙動と物質循環解析、沿岸海洋研究、51、2013、査読有(印刷中)
- ② 佐藤専寿、杉本亮、富永修：安定同位体比およびC/N比から評価した小浜湾における堆積有機物の起源。水産海洋研究 77, 1-9, 2013, 査読有

[学会発表] (計11件)

- ① Ryo Sugimoto、Akihide Kasai: Nitrogen Dynamics in the Yodo River Estuary, Japan. 10th EMECS Global Congress on Integrated Coastal Management: Lessons Learned to Address New Challenges, 2013/10/30-2013/11/3, Turkey(予定).
- ② Hisami Honda、Ryo Sugimoto、Shiho Kobayashi、Yoshitake Takao、Daisuke Tahara、Osamu Tominaga、Makoto Taniguchi: Submarine groundwater discharge in Obama Bay. 10th EMECS Global Congress on Integrated Coastal Management: Lessons Learned to Address New Challenges, 2013/10/30-2013/11/3, Turkey(予定).
- ③ 杉本亮、笠井亮秀、山本圭吾: 大阪湾奥部底層水中における溶存無機態窒素の安定同位体比特性. 2013 日本海洋学会春季大会, 2013/3/22, 東京.
- ④ 本田尚美、杉本亮、小林志保、田原大輔、

富永修、谷口真人：小浜湾における基礎生産過程に地下水湧出が及ぼす影響。2012年度水産海洋学会。2012/11/15-18。東京都。

- ⑤ 本田尚美、杉本亮、田原大輔、富永修：小浜湾における一次生産機構の時空間変化。2012年度日本海洋学会秋季大会。2012/9/13-17。清水市。
- ⑥ 坪井智子、杉本亮、富永修：福井県北川・南川における硝酸態窒素の濃度と起源の時空間変化，日本陸水学会第77回大会，2012/9/16，名古屋。
- ⑦ 杉本亮，笠井亮秀：淀川感潮域における春季大潮時の硝酸態窒素の動態、水産海洋学会、2011/11/12、函館市。
- ⑧ 本田尚美、杉本亮、富永修：小浜湾に形成される底層クロロフィル極大。2011年度水産海洋学会。2011/11/11-13。函館市。
- ⑨ 佐藤専寿、杉本亮、富永修：北川から小浜湾へ供給される懸濁物質および栄養塩類のフラックス。2011/11/11-13。函館市。
- ⑩ 坪井智子・杉本亮・富永修：福井県北川・南川における栄養塩組成の季節変化、水産海洋学会、2011/11/12、函館市。
- ⑪ 杉本亮、笠井亮秀：同位体比を利用した淀川河口域における硝酸態窒素の動態解析。2011年度日本海洋学会春季大会。2011/3/23。柏市。

〔図書〕（計0件）

〔産業財産権〕

○出願状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

○取得状況（計0件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉本 亮 (SUGIMOTO RYO)

福井県立大学・海洋生物資源学部・助教

研究者番号：00533316

(2) 研究分担者

(3) 連携研究者