フェリーにより得られた栄養塩の時空間変動とシリカ欠損

原島省[1)], 紀本岳志[2)], 田中祐志[3)], 若林孝[4)], 利安忠夫[4)], 太田英介[4)]

1) 国立環境研究所
2) (財)海洋化学研究所
3) 東京水産大学
4) (財)日本気象協会

要旨：フェリーで得られた、DIP(溶存態無機リン)、DIN(溶存態無機窒素)、DSi(溶存態ケイ素あるいはシリカ）の時系列が海域によってどのような差異を示したかを調べた。3 種栄養塩とも、春季ブルーム時に植物プランクトンに吸収されるため減少し、初夏には３種栄養塩のどれかが枯渇する。その後、下層で有機物が分解され、これが鉛直強制混合または海面冷却による混合で上層に回帰してくるため、夏以降には栄養塩濃度が回復するという季節サイクルが基調になる。ただし、このサイクルには空間的な差異が顕著にあらわれ、A 類型（夏季に DIN が主に枯渇する)、B 類型（夏季にも鉛直混合により、３種栄養塩が下層から補給される)、C 類型（夏季に DIN が残留し、DSi が枯渇する傾向がある)。D 類型（火山性土壌等によりシリカの溶出の多い河川の流入海域）に分けられる。この中で、C 類型の特性は、大阪湾でみられるが、「人間活動活動が N と P の負荷を増やす一方、自然の風化により陸域から補給されるシリカを減少させる」という(N,P)/Si 仮説、あるいは具体的に「シリカ欠損」が上流に富栄養化した停滞水域を持つ河川が流入する海域で発現している点で重要である。

キーワード：レッドフィールド比, シリカ欠損、DIN:DIP:DSi 比, 季節サイクル

１．はじめに

炭素の循環に対する人為介入がどのような影響をもたらすかには地球温暖化に関連して議論されているが、同じく親生物元素である窒素(N)とリン(P)の循環への人為影響、特にそれらが流入する沿岸海域への影響はどのような形で発現するだろうか？

N と P の問題は、すでに海域の富栄養化問題から議論が進んできた。さらに近年、世界中の人口と消費水準の増大による地球環境問題としての要素と、他の元素、特にはケイ素（Si）との相互作用の要素に関わると考えられる生態系基盤の変質の問題が生まれてきた（Smetacek *et al.*, 1991[1)])。

その例として、ドイツがエルベ河口沖の北海南部の固定点で 23 年間継続したモニタリング結果があげられる（Radach *et al.*, 1990[2)])。60 年代には、春にケイ藻からなる植物プランクトンのスプリングブルーム（春季増殖）が起こって N と P が使い尽くされ、ブルームが終了するのが普通だった。ところが、人為影響によって N と P の負荷が増大するとともに、ブルーム終了時に N と P が残留し Si が枯渇するようになってきた。こうなると、殻をつくるために Si を必要とするケイ藻類よりも、必要としない渦鞭毛藻などの非ケイ藻類が有利になる。この結果、非珪藻類によるブルームが頻発するようになり、このブルームが有害性

をもつことがしばしば報告された。また、これらの海域での栄養塩比の変質が、流入する河川の N, P が増大し Si が減少したことによると考えられる（Smayda, 1990[3]）。

さらに、現今において経済成長の盛んなアジアでは同様の傾向が進行中であると考えられ（Vörösmarty *et al.*, 1998[4]）、そのモニタリングおよび研究体制が必要となっている。

なお、植物プランクトンの増殖には、レッドフィールド比という一定の割合（C: N: P (: Si) = 106: 16: 1 (:16～50) ）で各親生物元素が必要になる。カッコ内は Si に関する部分であり、Redfield *et al.* (1963)[5]では明示されていない。この部分はケイ酸質の殻を持つ植物プランクトンにのみ適用されるものであるため、その種類によって差異があるとともに、環境水中の Si の存在量によっても卓越する種が変わってくるという要素もあるため、C, N, と比較するとその幅が大きい。現在は、概ね N の 2 倍程度の値が採用されているようである。また、Si の栄養塩としての形態は、シリカ、溶存ケイ素（DSi）、溶存ケイ酸などと呼ばれ、化学式としては（$Si(OH)_4$）と表現される。

Egge and Aksnes (1992)[6] はシリカ欠損の植物プランクトン種組成への影響を調べるために、メゾコズム（隔離生態系）実験を行い、シリカの濃度が 2 μM 以上ではケイ藻類が卓越するがそれ以下になると、他の種の割合が増えてくるという結果を示した。

これらの問題は、基本的に陸と海の相互作用の結果といえる。また、世界中の沿岸海域のので同様に進行したのか、あるいは進行しつつあるのかを把握する必要がある。また、ブルームの時間スケールに対応できる時間分解能を備えながら長期に海域の栄養塩およびプランクトン属性を計測する必要があり、これがフェリーによる海洋モニタリングの 1 つの目的であった(Harashima *et al.* (1997)[7])。以下の各項で、1991 年からの瀬戸内海の栄養塩の時系列変動と空間的差異について、DIN: DIP: DSi の存在比に着目しながらとりまとめる。

2. 基本的な物理場とその季節変動

該当する海域の物理構造を説明するために、フェリーによる連続センサー計測による表層の水温、塩分、クロロフィル蛍光の水平分布を、夏季と 冬季からそれぞれ 1 航海分を選び、Fig.1 と Fig.2 に示す。

まず夏季を見ると、3 種のデータに空間スケールの小さい分布構造が現れ、瀬戸内海が均一でないことがみてとれる。水温については、東経 132 度付近（速吸瀬戸）、133 度の西側（来島海峡）、134 度の西側（備讃瀬戸）、135 度付近（明石海峡）で相対的に低くなる。これらの海域は海峡部あるいは瀬戸部と呼ばれ、潮汐流が強いため、低層との摩擦で海水鉛直混合がさかんに行われているところにあたる。このために表層海水の水温が低くなっている。また、それら以外の、伊予灘、燧灘、播磨灘などの灘部では、比較的潮汐流が弱く、安定成層が維持されやすいことが見て取れる。成層域と混合域の境界は、潮汐前線（tidal front）となり、瀬戸内海が、灘部（成層域）－潮汐前線－瀬戸部（鉛直混合域）並列した数珠つなぎ構造を示すことがわかる（例えば柳, 1997[8] 等の文献参照）。また、図右端の大阪湾側では、低塩分の河口域水塊が形成され、この末端は河口前線と呼ばれる。

また、夏季には、表層の水温と塩分が負の相関を示すことがわかる。物理的には、塩分成層（上層ほど低塩分）による安定度と水温成層（上層ほど高水温）による安定度が相互に正のフィードバックを与え、結果的に表層をさらに低塩分・高水温にする。

これに対し、Fig.2 に示されるように、冬季には潮汐前線が目立たなくなり、また、表層

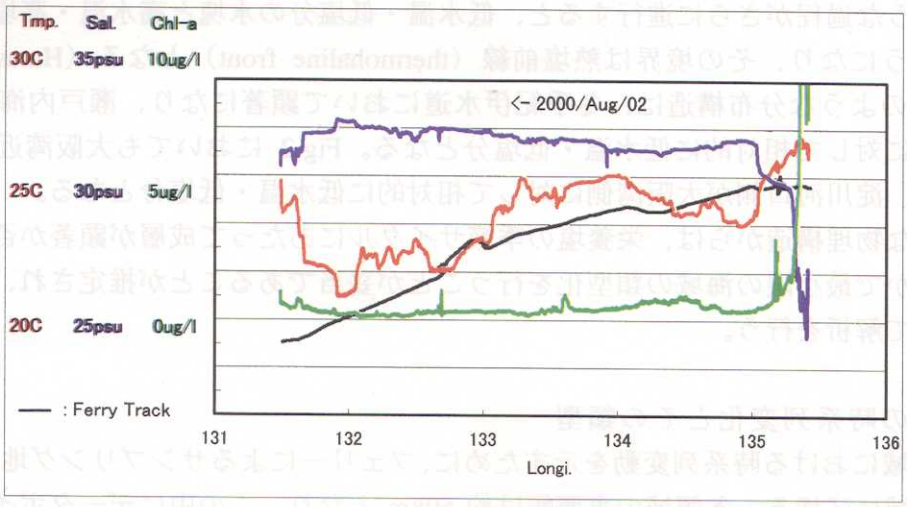


Fig.1 A sample of sensor measurement of salinity (blue), water temperature (red) and flourometric chlorophyll-a by Aquatracka-fluorometer(green) in summer along the ferry track between Beppu (left) and Osaka (right).

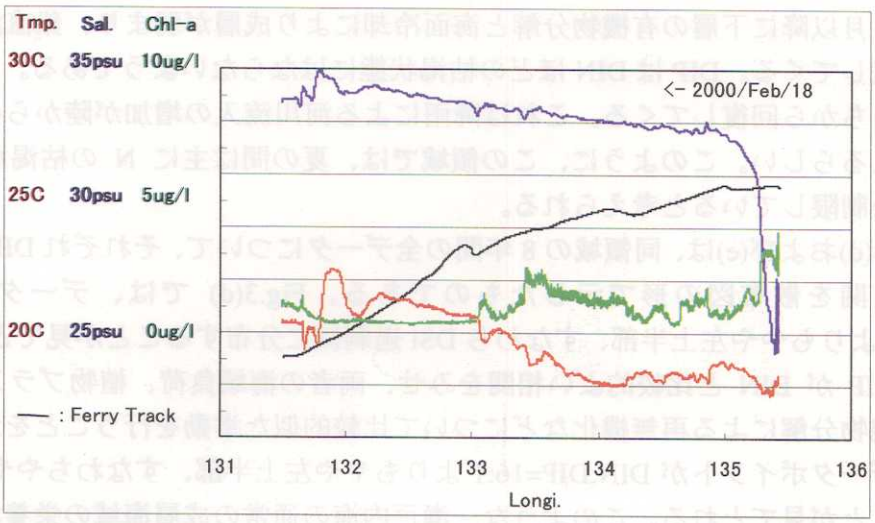


Fig.2 A sample of sensor measurement in summer shown in the same way as Fig.1.

の水温と塩分が負の相関を示すようになる。この理由は次のようである。海面が冷やされて水温が逆転するため、密度不安定による鉛直混合が起こる。この時、表層の塩分成層が弱いと鉛直混合が深部まで及ぶため、表層水温はそれほど冷えず、相対的に高水温・高塩分となる。このような過程がさらに進行すると、低水温・低塩分の水塊と高水温・高塩分の水塊が並列するようになり、その境界は熱塩前線（thermohaline front）となる（Harashima *et al.*, 1978[9]）。このような分布構造は、冬季紀伊水道において顕著になり、瀬戸内海側水塊が太平洋側水塊に対して相対的に低水温・低塩分となる。Fig.2 においても大阪湾近傍でその傾向が見られ、淀川河口側が大阪湾側に対して相対的に低水温・低塩分となる。

このような物理構造からは、栄養塩の季節サイクルにあたって成層が顕著か否か、河口部に近いか否かで最小限の海域の類型化を行うことが妥当であることが推定され、次項ではこれに基づいて解析を行う。

3. 栄養塩の時系列変化とその類型

個々の海域における時系列変動を示すために、フェリーによるサンプリング地点を経度 0.5 度ごとの領域に区切る。各領域の東西幅は約 50km となり、この中にデータポイントが 2～地点、1 年間にほぼ 24 回の計測回数が含まれる。1993 年以前は、分析方法に問題があり、3 種栄養塩とも高めに出ていたので参考データとする。

夏季に安定成層ができる海域として燧灘（平均水深: 20m 内外）を選び、これにほぼ対応する東経 133.0～133.5 度の領域に含まれる DIN(=NO_3+NO_2+NH_3), DIP(=PO_4), DSi(=$Si(OH)_4$) の値をそれぞれ Fig.3-(a), (b), (c)に時系列の形で示した。これによれば、DIN, DIP, DSi ともに、2 月から 4 月にかけて減少する。これは前述のように、植物プランクトンの春季ブルームによって吸収されるためであり、DIN については経年変化はあるものの、夏の間は枯渇状態が続く。9 月以降に下層の有機物分解と海面冷却により成層が弱まり、鉛直混合が強まるとともに回復してくる。DIP は DIN ほどの枯渇状態にはならないようである。DSi については、初夏のうちから回復してくる。これは降雨による河川流入の増加が陸からの DSi 補給を促すことによるらしい。このように、この領域では、夏の間は主に N の枯渇が植物プランクトン増殖を制限していると考えられる。

また、Fig.3(d)および(e)は、同領域の 8 年間の全データについて、それぞれ DIN と DSi, DIN と DIP の相関を散布図の形で示したものである。Fig.3(d) では、データポイントが DIN:DSi=1:2 よりもやや左上半部、すなわち DSi 過剰側に分布することが見てとれる。Fig.3 (e)からは、DIP が DIN と比較的よい相関をみせ、両者の海域負荷、植物プランクトンによる吸収、有機物分解による再無機化などについて比較的似た挙動を行うことを示す。より詳しくみればデータポイントが DIN:DIP=16:1 よりもやや左上半部、すなわちやや DIP 過剰側に分布することが見てとれる。このような、瀬戸内海の通常の成層海域の栄養塩の季節変動サイクルを A 類型とする。そして、このような海域では N-制限が基調と考えてよいようである。

Fig.4 は、潮汐流による鉛直混合がより顕著な備讃瀬戸に注目し、これに対応する東経 133.0～133.5 度の領域のデータを同様の形式で示したものである。春季ブルームで 3 種の栄養塩が減少するところまでは同様である。ところが 3 種ともに回復してくるのが 7 月ころと比較的はやく、夏の枯渇期間も短い。これは夏季に下層で有機物の分解により無機態の栄養塩が

作られ、鉛直混合で上層に回帰してくるためと考えられる。このことは、この領域で海水に溶けているCO_2の分圧が高いこと（本報告書の紀本らの報告、およびHarashima *et al.*, 1997[7]）からも裏付けられる。Fig.4(d)からは、データポイントのの回帰直線の切片が縦軸（DSi軸）にあり、DINが枯渇してもDSiが残ることを示している。これはFig.3と同様である。このような海域の季節変動サイクルをB類型とする。

これに対し、Fig.5は大阪湾にほぼ対応した東経135.15度以東の領域のデータについて同じ形式で示したものである。前の2つの類型と異なり、季節変動サイクルがはっきりしない。また、(d)と(e)の散布図では、右下半にデータポイントが分布し、DSiやDIPよりもDINの濃度が高いことがわかる。そして、DSiやDIPが枯渇してもDINが残ることが多い。このような海域の季節変動サイクルをC類型とする。

C類型と対照的なのが、Fig.6に示した東経131.5度～132度の区画で、ほぼ別府湾～伊予灘西部に対応した領域である。（Fig.6中1993年以前は日韓航路の一部の周防灘東部に対応しており、別府湾ではない。）この海域では、夏にDINとDIPの濃度が低くなるという季節変化はあるが年間を通じて低い。DSiの濃度はこれに対して年間を通じて高い。このような季節サイクルをD類型と呼ぶことにする。

また、A類型（Fig.3）とB類型（Fig.4）の散布図(d)と(e)では、データポイントが楕円領域に分布している。これらのデータには、一時的な陸水の流入などの影響も含まれているが、この楕円の主軸の傾きから、春季ブルームの際の大まかな栄養塩の吸収量の比、すなわち実質的なレッドフィールド比が推定される。これによればほぼDIN: DIPが=16: 1程度であり、従来のレッドフィールドとほぼ一致する。また、NとSiの吸収量の比はDSiがDINの2倍程度であった。

また、上記の季節変動の他に、各年の間の差異もみられた。顕著な例として、1994年には他の年に比べて全般的に栄養塩レベルが低かったことがあげられる。これは同年の夏が高温小雨で陸からの栄養塩負荷が少なかったためと、晴天が続いて安定成層が維持され、鉛直混合による下層からの補給も抑制されたためと考えられる。

4. 考察および結論

前項で述べたように、瀬戸内海の各栄養塩の季節変化においては、A～Dの４つの類型が見られた。この中で特に重要なのは、C類型、すなわち「シリカ欠損」の傾向が序で引用した北海南部だけでなく、大阪湾でも発現していることである。この原因についての考察は以下のようである。

現在、瀬戸内海への発生負荷量（生活系、産業系、その他込み）は、NとPについてそれぞれ１日当たり、700ton（50×10^6mol）と45ton（1.5×10^6mol）であると見積もられている（瀬戸内海環境保全資料集[10]）。Siについてはこれに対応する見積もりはない。ただし、小林(1971)[11]や森井(1991)[12]による、高度成長期前（1942～59、以下I期と呼ぶ）と後（1972～75、以下II期）の詳細な河川水分析データがあり、その中にDSiも含まれているのでこれから類推する。

近畿、中国、四国、九州各地方より瀬戸内海に流入する主要な４、６、４、４本の河川を選び、それぞれ年平均のシリカ濃度と年平均流量を乗じて加算すれば、I期、II期についてそれぞれ１日あたり1.34×10^3トン（22.4×10^6mol）、1.14×10^3トン（19.0×10^6mol）と推定

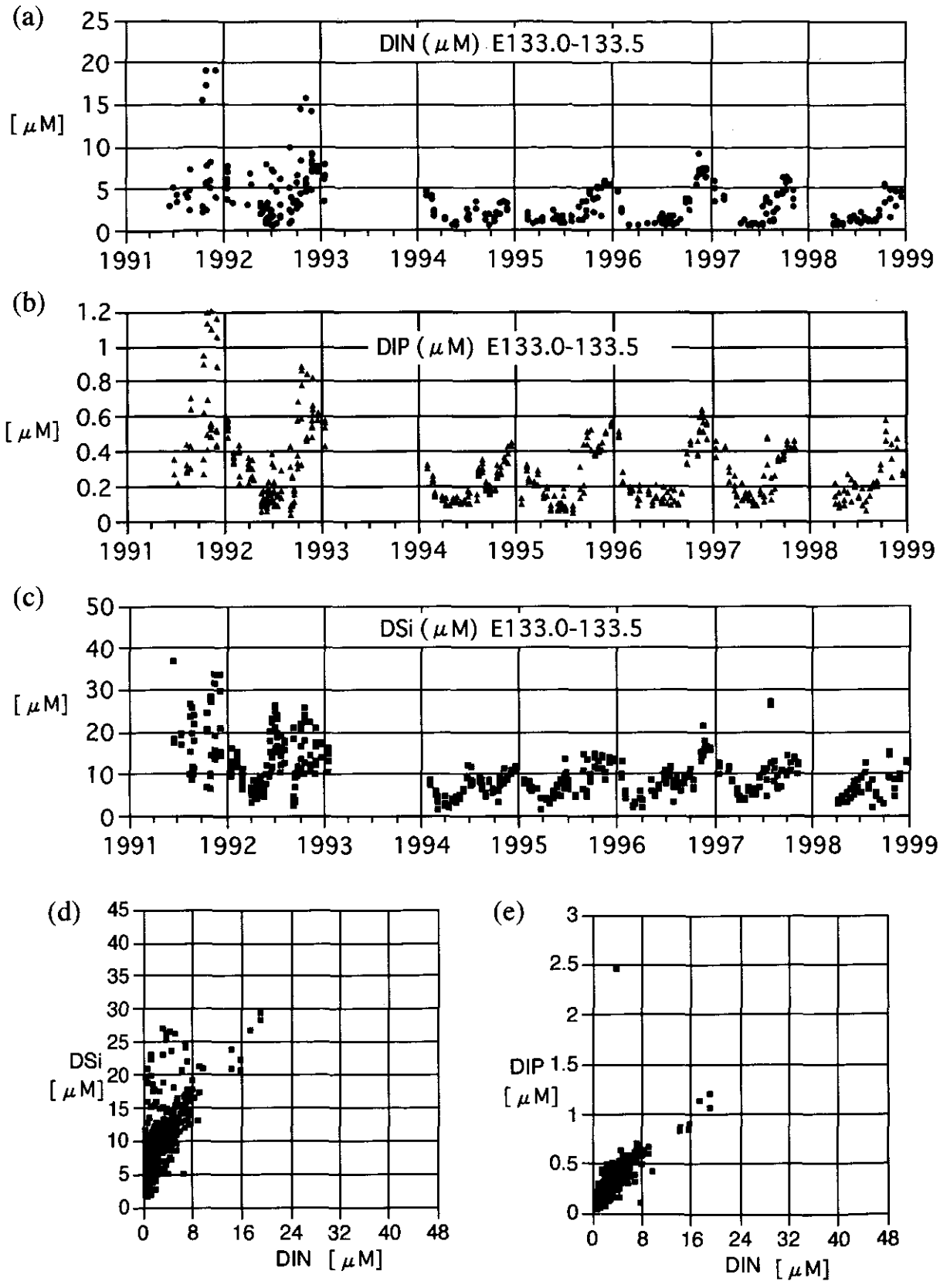


Fig.3 Time series of (a)DIN, (b)DIP and (c)DSi for the partition [133.0-133.5E] along the ferry track. Scatter diagram of (d) DSi vs DIN and (e) DIP vs DIN.

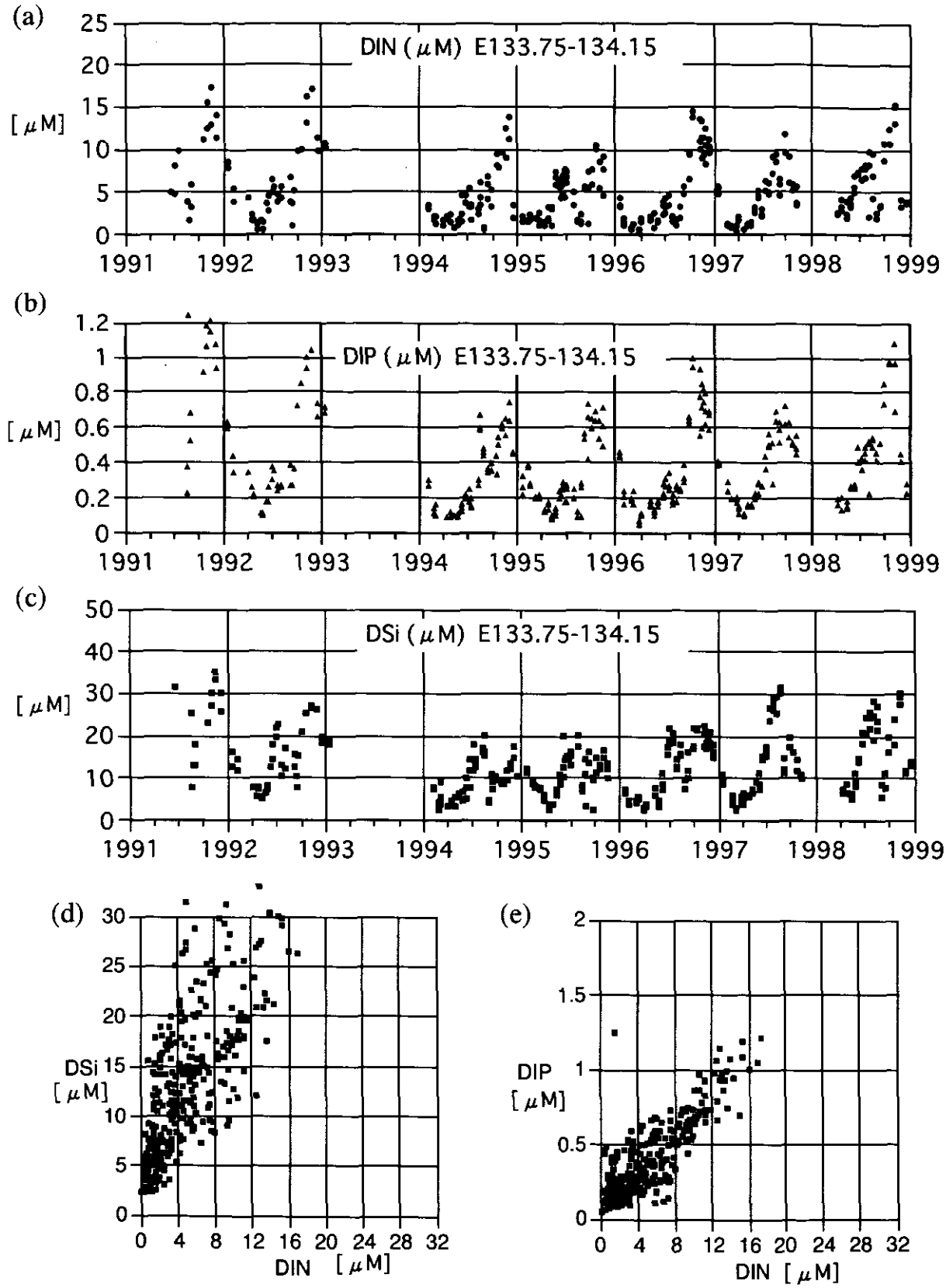


Fig.4 Time series of (a) DIN, (b) DIP and (c) DSi for the partition [133.75-134.15E] along the ferry track. Scatter diagram of (d) DSi vs DIN and (e) DIP vs DIN.

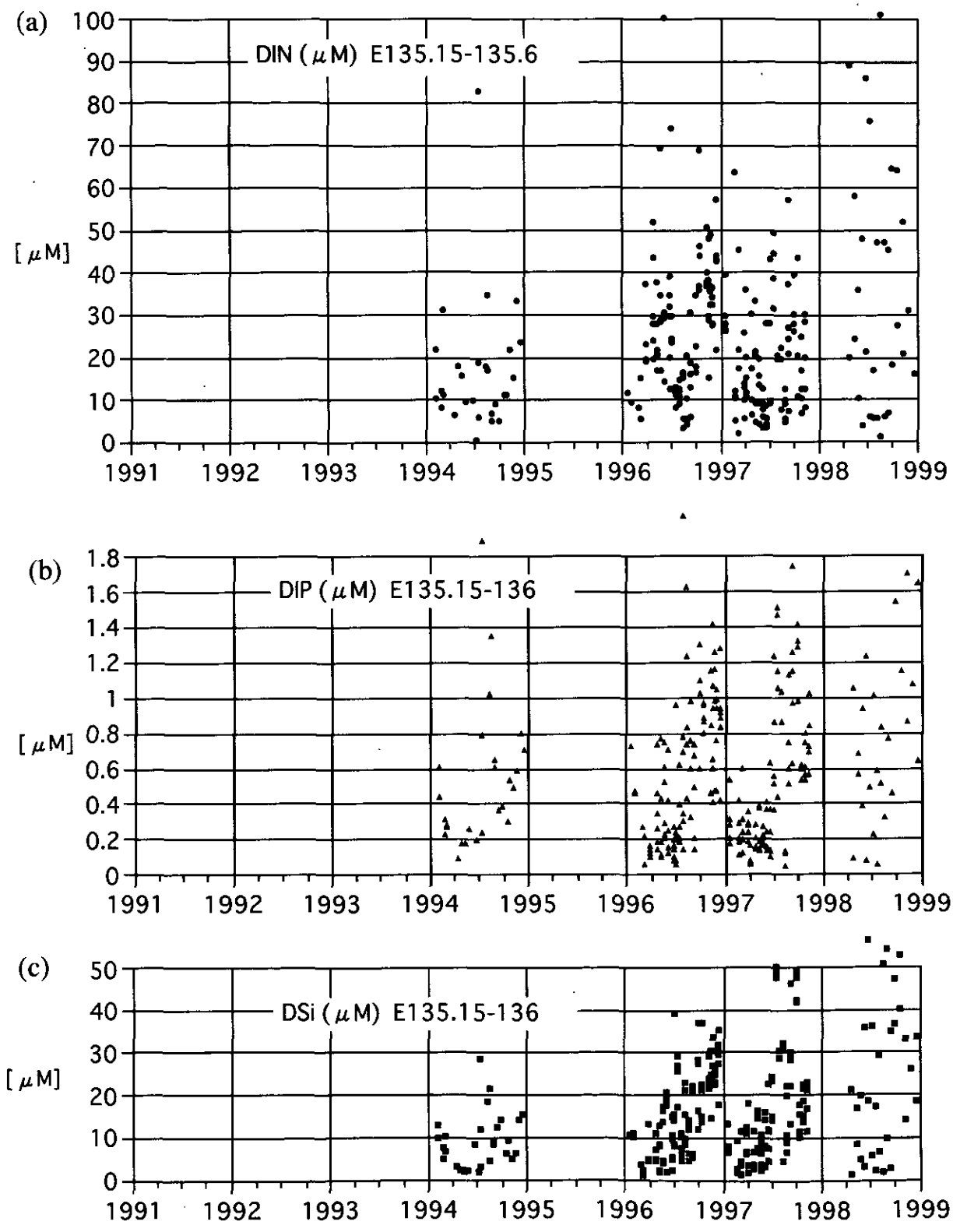


Fig.5 Time series of (a) DIN, (b) DIP and (c) DSi for the partition [135.15E -] along the ferry track. .

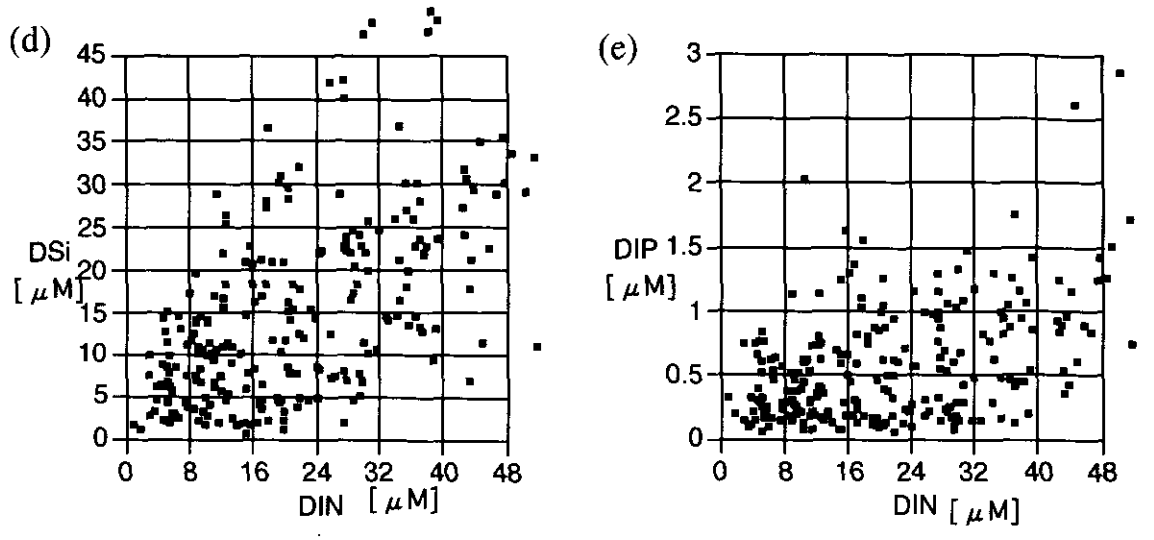


Fig.5 (Continued). Scatter diagram of (d) DSi vs DIN and (e) DIP vs DIN for the partition [135.15E -] along the ferry track. .

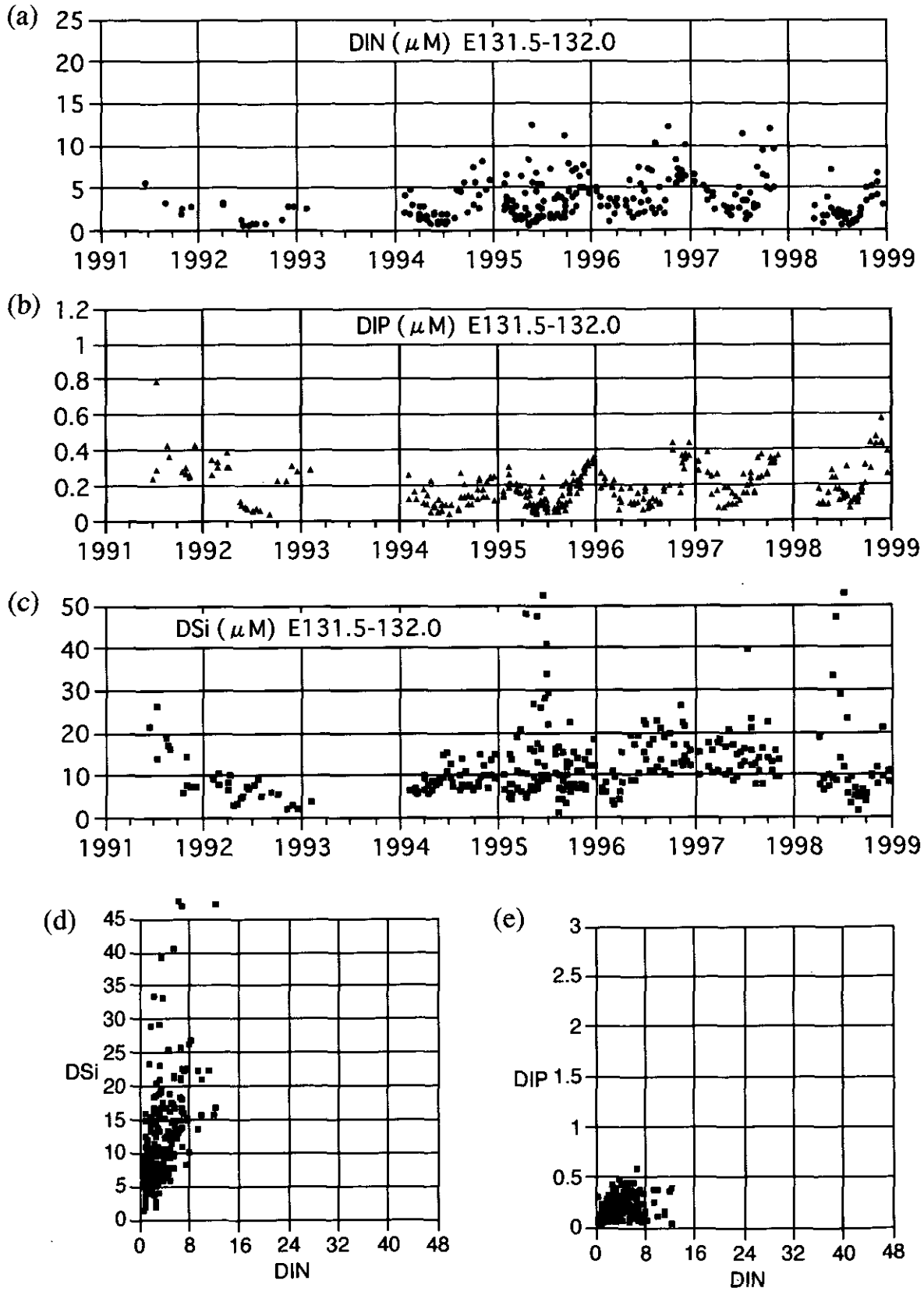


Fig.6 Same as Fig.3 for the area [131.5E-132.0E].

される。したがって、II 期の負荷量の TN:TP:DSi のモル比は 33: 1: 13 と見積もられる。この比は、前述のレッドフィールド比あるいはケイ藻の元素要求比（16:1:(16～50)）よりも、かなり N 負荷量過剰あるいはシリカ補給欠損であるといえよう。DSi 流入以外に、淡水性ケイ藻の殻などのような生物性粒子による Si（BSi），シルトなど非生物粒子態流入分が海域で DSi に転換される分の寄与などもあるため、33: 1: 13 という比の Si 部分を上方修正すべきかもしれない。反対に、1970 年代よりも河川の DSi 減少という傾向がさらに進行した可能性もある。これらを勘案すると、少なくとも瀬戸内海への陸域影響は N 過剰 Si 欠損の方向へと働いており、特に大阪湾でそれが顕著に発現したということはできるだろう。

さらに淀川水系の DSi 濃度をみてみると、II 期において、淀川のシリカ濃度は 130 μM 前後で、全国平均よりもだいぶ低い。この理由を調べるため、現今の河川データで DSi を含むものをみてゆくと（水質年表 [13]）、琵琶湖上流の野洲川では 200 μM 程度のシリカが存在するのであるが、琵琶湖の表層水では約一桁小さくなっていることがわかる。これは、主に淡水性のケイ藻が、Si を吸収し沈降することによると思われる。このような結果、DSi の相対日の小さい河川水が流入することが、上記の大阪湾でのシリカ欠損につながっていることが考えられる。

このように、流入河川に大規模な湖沼の存在することが基本的にはシリカの減少基調を形成し、そこに人為起源の N,P が湖沼に加わることによってこの傾向はさらに助長される。また、人造湖の建設もその傾向を顕著にすると考えられる。事実、前述の河川データについて注目すべきことには、I 期から II 期までの間に河川のシリカ供給量が減っている。

瀬戸内海のうちで特に大阪湾で赤潮の発生率が高いことが示されている（水産庁瀬戸内海漁業調整事務所 [14]）。その原因として、DIN, DIP の個々の栄養塩の絶対濃度レベルが高いことが一因であることの他に、シリカ欠損がその一助となっていることが考えられる。

反対に、小林・森井らのデータでは、I 期、II 期をとわず、九州および北海道ブロックでは、火山起源の酸性土壌が多く、このため風化溶出するシリカ濃度が高いことが示されている。別府湾に流入する大野川についてみれば、シリカ濃度は年平均が 900 μM 程度であり、これが D 類型で示された、年間を通じて DSi 濃度を高くすることにつながると考えられる。このように、沿岸海域においては、基本的な地球化学的要因も影響してくることが考えられる。

本報告では、リンについては詳述しなかったが、大阪湾で、時期に依存して、Si 制限だけでなく P 制限になる傾向もみられた。このことは、一般的に陸水系や河口域では P 制限になっているが、外洋や沖合いでは N 制限に遷移するという報告と合致する。1 つの原因としては、沖合い部では、脱窒により NO_2-N が不活性の N_2 や N_2O の気体として抜けて行く分が、窒素固定で入ってくる分よりも多いためと考えられる。基礎的な生化学の分野では、窒素固定反応を駆動する酵素が 1 種（ニトロヒドロゲナーゼ）に限定されるのに対し、脱窒反応を働かせる酵素は多様であるため、海洋全体では活性窒素が活性リンよりも不足気味になる（Falkowski *et al.*, 1997[15]）という考えと合致する。

大気の CO_2 の増大のような長期的なトレンドが N, P, Si にもいえるだろうか。この点については、降水や日照の年較差があるため、Fig.3～6 からだけでは判断が難しいという要素もある。また、大気の CO_2 の増減が、光合成・生物分解による C がほぼ単独で吸収・放出されるのに対し、海洋の N, P, Si については、植物プランクトンが、いずれかの元素が枯渇し

て制限要因になるまで吸収するため、どの元素も単独で長期トレンドを示すことはない。本解析と関連データから考察されることは、1950 年代から 1970 年代にかけて、陸水域・海域ともに N, P の負荷量が増大し、これがそのまま DIN と DIP としては増大せず、基礎生産量が増大し、結果として DSi の減少となって現れたことである。しかも、海域が大気と比べて空間的異質性が強く、大阪湾で顕著に発現したといえよう。上記のように、現今では、海域への N, P の負荷は横這い状態であるが、Si 補給との相対量でみると、依然としてシリカ欠損を顕在化させるような状態であるといえるだろう。

参考文献

1) Smetacek, V., Bathmann, U. and Scharek, R. (1991): Coastal eutrophication: causes and consequences, In Mantoura, R.F.C. *et al.* (eds.) Ocean Margin Processes in Global Change, 251-280,.

2)Radach, G., Berg, V. and Hagmeier, E. (1990): Long-term changes of the annual cycles of meteorological, hydrographic, nutrient and phytoplankton time series at Helgoland and at LV ELBE 1 in the German Bight, Continental Shelf Research, 10, 305-328.

3) Smayda, T. J. (1990): Novel and nuisance phytoplankton blooms in the sea: evidence for a global epidemic, In Granéli, E. *et al.* (eds.) Toxic Marine Phytoplankton, Elsevier, 29-40.

4) Vörösmarty, C. J., Li, C. and Dai, Z. (1998): Drainage basins, river systems, and anthropogenic change: the Chinese example, in Galloway, J. N. *et al.* (eds.) Asian Change in the Context of Global Climate Change, Cambridge Univ. Press.

5) Redfield, A. C., Ketchum, B. H. and Richards. F. A. (1963): The influence of oraganisms on the chemical composition of sea-water, In Hill, M. N. (ed.), The Sea, 2, 26-77.

6) Egge, J. K. and Aksnes, D. L. (1992): Silicate as regulating nutrient in phytoplankton competition, Marine Ecology Progress Series, 83, 281-289.

7) Harashima, A., Tsuda, R., Tanaka, Y., Kimoto, T., Tatsuta, H. and Furusawa, K.(1997): Monitoring algal blooms and related biogeochemical changes with a flow-through system deployed on ferries in the adjacent seas of Japan, In Kahru, M. and Brown, C. B. (eds.) Monitoring Algal Blooms -New technique for Detecting Large-scale Environmental Change-, Springer, 85-11.

8) 柳哲雄(1997) : 潮目の科学, 厚生社厚生閣, 169 pp.

9) Harashima, A., Oonishi, Y. and Kunishi, K. (1978): Formation of water masses and fronts due to density-induced current system, J. Oceanogr. Soc. Jpn., 34, 57-66.

10) 環境庁水質保全局 (監修) 瀬戸内環境保全協会(編) (各年刊)瀬戸内環境保全資料集.

11) 小林純(1971): 水の健康診断, 岩波新書 777, 207pp.

12) 森井ふじ(1991): 水圏無機成分の分析とともに, 海洋化学研究, 5, 34-52.

13) 建設省河川局 (各年刊): 水質年表.

14) 水産庁瀬戸内海漁業調整事務所 (各年刊): 瀬戸内海の赤潮.

15) Falkowski, P. G., Barber, R. T. and Smetacek, V. (1998): Biogeochemical controls and feedbacks on ocean primary production, Science, 281, 200-206.

Temporal/spatial variation of nutrients and silica deficit revealed by the monitoring on ferry boats

Akira HARASHIMA[1], Takashi KIMOTO[2], Yuji TANAKA[3], Takashi WAKABAYASHI[4], Tadao TOSHIYASU[4] and Eisuke OHTA[4]

1) National Institute for Environmental Studies
2) Research Institute of Oceano-Chemistry (Foundation)
3) Tokyo University of Fisheries
4) Japan Weather Association (Foundation)

Abstract: We report the spatial difference in the characteristics of the seasonal cycles of DIN (dissolved inorganic nitrogen), DIP(dissolved inorganic phosphorus), and DSi (dissolved silicate or silica) in the upper layer from the time series obtained from ferry since 1991. Above three nutrients decrease during spring bloom and one of the three depletes in summer. Three nutrients are recovered by the biodecomposision of organic matter in the lower layer and the vertical transport by the mixing caused by tide, wind and coolong from above after autumn. Spatial heterogeneity is as follows; Type A: (DIN depletes in summer); Type B: (vertical supply of three nutrients are maintained through summer by tidal mixing); Type C (DIN remains and DSi depletes in summer). The last type may approve the (N, P)/Si hypothesis, *i.e.*, the human activity tends to enhance the discharge of nitrogen and phosphorus and interrupt the natural supply of silica, and its consequence appears "silica deficit" in the coastal sea receiving the river water with large eutrophicated lake in the upstream.

Keywords: Redfield ratio, silica deficit, N:P:Si ratio, seasonal cycle, long-term trend, Osaka Bay