

2021 年度日本海学研究グループ支援事業 報告書

研究課題名：海底湧水による富山湾沿岸の溶存 CO₂ 供給とその長期変化 ～富山県の少雪・多雨化に着目して

片境 紗希（富山大学大学院 理工学教育部 地球生命環境科学専攻 博士課程 3 年）代表

北澤 唯佳（富山大学 理学部 生物圏環境科学科 学部 4 年）

張 芸馨（富山大学大学院 理工学教育部 生物圏環境科学専攻 修士課程 1 年）

【はじめに】

年間降水量（2000 mm 以上）が全国トップクラスである富山県は、冬季の降雪が年間降水量の 3～5 割を占める。その豊富な降雨・降雪は、河川水や地下水の形で、富山の豊富な水資源として存在している。しかし、近年の地球温暖化の進行に伴い、現在の富山県の平均降雪量は 1970-1980 年代と比較して半減した一方、冬季降雨量は倍増していることが明らかにされている。これらの陸上の気候変化を考慮したモデル計算結果によると、富山県東部の片貝川扇状地では、少雪・多雨化によって河川流量と淡水性海底湧水の湧出量が最大 3 割増加したことが示されている（Zhang et al., 2017）。この富山の陸水の量的変化は、地下水や河川水の水質変化をもたらすことが想定され、特に、降水量中の降雨量の割合の増加は、地下水中の溶存 CO₂ 濃度の増加と酸性化を引き起こし、その水が海へ流入することで海洋酸性化や沿岸生態系への悪影響を及ぼすことが危惧される。本研究の目的は、海底面から湧き出る陸上地下水（海底地下水湧出；以下、海底湧水）を、海水が混ざることなく“純粋な地下水”として海底から採取可能でかつそれらの過去の観測データが豊富に有る富山県東部片貝川扇状地とその沿岸海域を対象とし、海底湧水と河川からの炭素供給量を明らかにすることである。具体的に以下の観点で研究を遂行し、最終的には、富山の少雪・多雨化に伴う陸から富山湾沿岸への炭素供給量、特に溶存 CO₂ 供給量の長期変化を評価する。

- ① 陸上の地下水・河川水の水質形成と流動状況を把握する
- ② 潜水調査（水深 10 m）による海底湧水の直接採取と湧出量算出のための現場観測を実施し、海底湧水による物質供給量の把握と陸上からの湧出経路を可視化する。

【試料採取・分析項目】

1. 研究対象地域および試料採取

本研究の対象地点を図 1 に示す。海底湧水の存在が確認されている片貝川扇状地において、浅層地下水および観測井（図 1 (d) : A 層）と河川上流域（扇頂部）を対象とし、海底湧水は魚津市青島沖水深約 10 m で湧出しているものを調査対象とした（図 1 (c)）。また、富山県の陸域から富山湾への水・物質輸送状況の全体像を把握するために、1 級河川の黒部川、常願寺川、神通川、庄川、小矢部川の各河口についても調査を実施した（図 1 (b)）。淡水性海底湧水の採取は、2021 年 5 月に魚津漁港より「睦丸」に乗船し、ダイビングにて海底の潜水調

査および淡水性海底湧水の直接採取を実施した（図 2 (a)；代表者）。採取方法は図 2 (b)に示した装置（徳永ら，2001）に付属するシリンジにて吸引することで約 1L の採取に成功した。この方法で採取した海底湧水試料は、約 99.7%が淡水であった。

2. 試料分析

採取した地下水、河川水、淡水性海底湧水の試料は現場でただちに水温、pH、電気伝導度を測定し、採取日のうちに HCO_3^- 濃度の分析（pH 4.8 酸滴定法）および口径 $0.2\mu\text{m}$ のメンブレンフィルターを用いて濾過をした。ろ過後の試料の分析項目と分析方法は次の通りである。主要イオン成分である陽イオン (Na^+ , K^+ , Mg^{2+} , Ca^{2+})、陰イオン (Cl^- , NO_3^- , SO_4^{2-}) 濃度分析はイオンクロマトグラフ（陽イオン：Metrohm 883 Basic IC plus、陰イオン：Metrohm 861 Advanced Compact IC）を用い、 SiO_2 および PO_4 は分光光度計（SHIMADZU UVmini-1240）を用いてモリブデンブルー法で分析を実施した。各溶存成分の分析精度は $\pm 5\%$ 以内であった。また、試料の水素・酸素安定同位体比 (δD ・ $\delta^{18}\text{O}$) は総合地球環境学研究所と当研究室所有のレーザー分光同位体比分析装置（Picarro 社製・L2120-i）を用いて測定し、分析精度は $\delta\text{D}=\pm 1.0\text{‰}$ 、 $\delta^{18}\text{O}=\pm 0.5\text{‰}$ であった。

3. 観測井の長期水質モニタリングデータ収集

片貝川扇状地の観測井（図 1 (c)：FSGDS-G3）における 2005～2015 年の水質モニタリングデータは魚津市よりご提供いただいた。

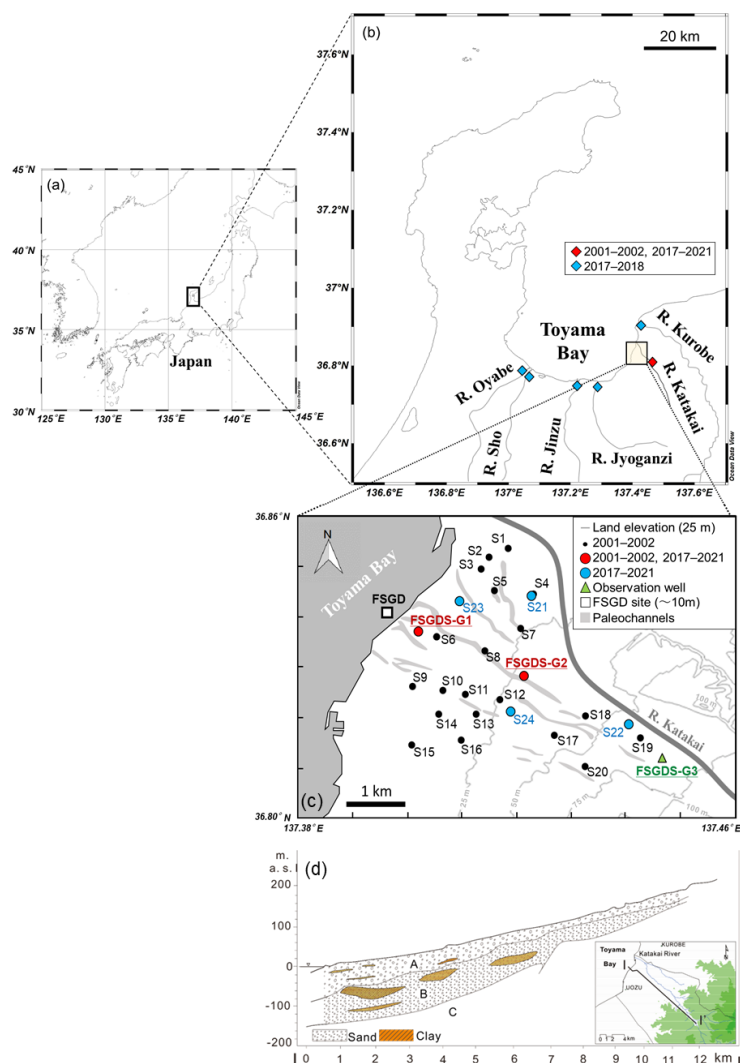


図 1 試料採取地点と地質断面図

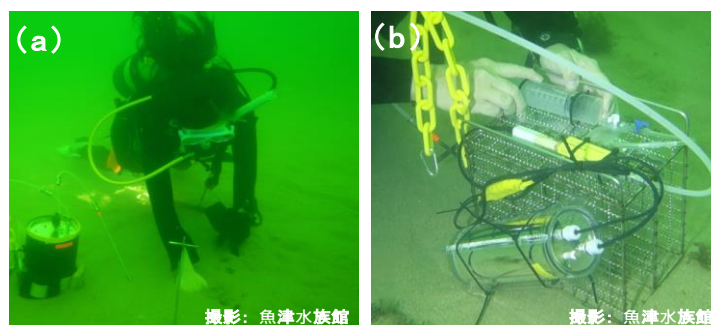


図 2 海底湧水採取
(a) 潜水調査風景、(b) 海底湧水採取

【結果・考察】

1. 水素・酸素安定同位体比を用いた淡水性海底湧水の起源評価

一般的に陸上の地下水および河川水の水素・酸素安定同位体比は降水がとりうる天水線 ($\delta D = 8\delta^{18}O + d$) 上にプロットされる。さらに、富山県においては、夏季は太平洋由来の雨雲、冬季は日本海側（大陸由来）の雨雲によって降水がもたらされるため、夏季の降水は $d=10$ の直線上、冬季の降水は $d=30$ の直線上にプロットされることが知られている（佐竹ら 1983 ; Okakita et al., 2019）。図3に本研究と先行研究（2001-2003年）における分析結果を示す。どちらの期間も中間の $d=20$ の直線上にプロットされたことから、夏季と冬季の降水が十分に混合して浅層地下水、淡水性海底湧水、河川水を形成していることが示された。また、淡水性海底湧水の同位体組成は、河川上流域（扇頂部）や平野部の旧河道上に位置する浅層地下水と類似していた。このことから、片貝川扇状地沿岸の淡水性海底湧水は、片貝川上流域から涵養した水が、平野部の旧河道を通過した後湧出していることが考えられた。

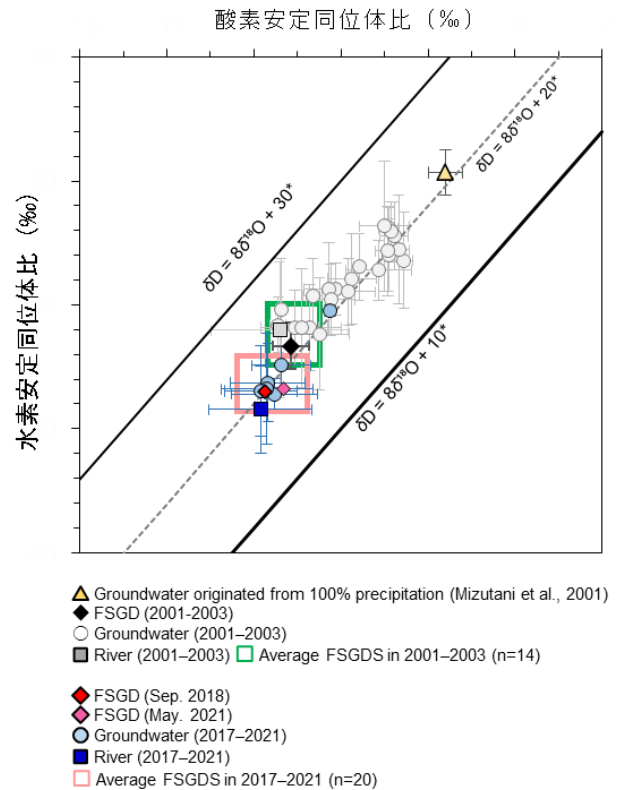


図3. 水素・酸素安定同位体比の分析結果

2. 少雪・多雨化に伴う淡水性海底湧水の起源の変化

淡水性海底湧水の起源（涵養標高）を推定するために、水素・酸素同位体比の分析値から下記の経験式（水谷・佐竹，1984）を用いて涵養標高（ h, m ）を算出した。

$$\delta D = -(0.0193 \pm 0.017)h - (4.84 \pm 2.3)$$

$$\delta^{18}O = -(0.00236 \pm 0.00016)h - (8.68 \pm 0.22)$$

その結果、淡水性海底湧水は標高約 700-1000 m が起源であることが明らかとなり、先行研究の Zhang and Satake (2003) で片貝川集水域の平均標高から推定された涵養標高とほぼ一致していることを確認した。さらに、先行研究が実施された 15 年前と比較して、現在の淡水性海底湧水の涵養標高は、100-250 m 程度上昇していることが明らかとなった。この変化の要因として考えられたのが、降雨量・降雪量の変化である。しかし、淡水性海底湧水の起源として推定された標高帯には気象観測地点が存在しないため、本研究では降雨・降雪状況の指標として冬季の融解高度に着目した。融解高度とは、降水が固体降水（雪）となる目安の標高であり、北陸地域ではこの発生確率が 50%となる地上気温 T_{50} が 2~3℃であると報告されている（飯田，2001；松尾，2001）。今回は、気象庁魚津観測所の日平均気温に対

し、富山市の気温減率（0.6°C/100m；飯田，2001）を考慮することで、雨から雪に変化する判別気温域の標高を試算した。その結果、試算された融解高度は同位体比から見積もった涵養標高と類似しており、かつその上昇の程度は、ほぼ一致していることが示された。したがって、本研究で確認された涵養標高の上昇は、気温上昇に伴う融解高度の上昇、つまり降雪標高の下限の上昇に起因する可能性が高いことが示唆された。

3. 淡水性海底湧水の起源変化に伴う溶存成分濃度の変化

前節で明らかになった涵養標高の上昇が水質へ与える影響を評価するために、酸素同位体比と各起源要素との関係を確認した。本研究では、高度効果の指標（安田ら，1991）として塩化物イオン濃度、肥料等の地表からの付加の指標として硝酸とリン（中口ら，2005）、地下水の滞留時間の指標としてシリカ濃度（Haines and Lioyd, 1985）を用いた。淡水性海底湧水とその関連地点における4成分濃度は、先行研究と比較して本研究が約3割低下していることが分かった。さらに、それらの観測値のpH、重炭酸濃度および経験式（Lueker et al., 2000）より推定した溶存CO₂濃度の3成分は、pH、重炭酸濃度が低下した一方で、溶存CO₂濃度が上昇していることが明らかとなった。加えて、淡水性海底湧水とその関連地点のシリカ濃度の低下が確認されたことから、淡水性海底湧水の滞留時間が短くなっていることが考えられたため。この仮説を確認するために、滞留時間の指標として使用され、かつ先行研究（Zhang and Satake, 2003）でも観測された放射性同位体のトリチウム濃度を用いて淡水性海底湧水の滞留時間を算出した。その結果、現在における淡水性海底湧水の浸透から湧出までの時間は選先行研究と比較して1/3程度短縮していることが明らかとなった。以上のことから、少雪・多雨化に伴う淡水性海底湧水の涵養標高の上昇は、溶存成分の希釈および地下水の酸性化、そして滞留時間の短縮をもたらしていることが考えられた。

4. 淡水性海底湧水の起源変化に伴う溶存成分濃度の変化

溶存成分濃度の変化は、結果的に陸から沿岸海域への物質供給量も変化させると考えられる。そこで、本研究と先行研究の観測値を用いて、栄養塩（溶存態無機窒素：N，溶存態無機リン：P）と溶存無機炭素（DIC）の各期間の物質供給量を算出した。計算の結果、河川水および淡水性海底湧水からの溶存無機炭素供給量は約2～4割増加した一方で、栄養塩供給量は3～5割減少していることが明らかとなった。このような溶存無機炭素供給量の増加と栄養塩供給量の減少は、沿岸海域におけるDICの存在量に影響を与えると考えられる。沿岸海域表層のDICの存在量は、主に、陸からの直接流入と沿岸域の植物プランクトンなどの純一次生産による炭素固定のバランスによって決定されることから、今回は海洋植物プランクトン群集の平均値を意味するレッドフィールド比を用いて、固定されずに沿岸域に残る陸起源DICを本研究では過剰DICと称して試算した。ここで、富山湾沿岸はリン制限（八田ら 2008；Katazakai and Zhang 2021）であることが示されているため、計算時は陸から富山湾沿岸へのリン供給量（河川＋淡水性海底湧水）を用いて沿岸海域の純一次生産による炭素固定量を推定した。その結果、約20年前と比較して、沿岸海域表層の炭素固定量は2～3割減少した一方で、陸由来の過剰DICは1.2倍～2倍になっていることが明らかとなった。

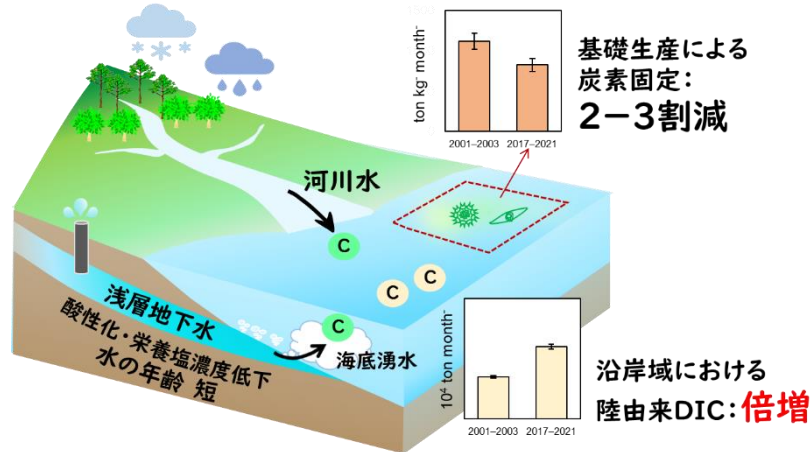


図4. 少雪・多雨化に伴う陸から富山湾沿岸への陸起源物質供給量の変化

【まとめ】

地球温暖化および気候変化（少雪・多雨化）の気候変化がみられる富山県東部片貝川扇状地でのモデル研究にて、2021年度は以下のような結果が得られた。

- 淡水性海底湧水を中心とする陸水システムにおける涵養標高の上昇と地下水の酸性化および滞留時間が3分の1短縮していることが確認された。
- 陸から沿岸海域への物質供給量は、20年前と比較してDIC供給量が3割増加した一方で、栄養塩供給量は3～5割減少しており、その結果として沿岸海域の炭素固定量が2～3割減少した。最終的に、陸起源の過剰DICが最大2倍になっていると考えられた。

2021年度は、新型コロナウイルス感染の影響により淡水性海底湧水の潜水調査の規模・期間を縮小し、直接採取のみ実施した。次年度以降は、2021年度計画していた湧出量実測や比較対象地として北海道利尻島における淡水性海底湧水の調査も行う予定である。

【本研究における2021年度成果物】

原著論文

1. **Katazakai, S.**, Zhang, J. A Shift from Snow to Rain in Midlatitude Japan Increases Fresh Submarine Groundwater Discharge and Doubled Inorganic Carbon Flux over 20 Years *Environ. Sci. Technol.* (2021). (査読有) <https://doi.org/10.1021/acs.est.1c05108>
2. **Katazakai, S.**, Zhang, J. A quarter-century of nutrient load reduction leads to halving river nutrient fluxes and increasing nutrient limitation in coastal waters of central Japan. *Environ Monit Assess* 193, 573 (2021). (査読有)

学会等発表

1. **片境 紗希**, 張 勁, **張 芸馨**, **北澤 唯佳**, 中易 佑平, 野嶋 航太, 松本 碧人(2022): 過去20年間の日本中緯度地域の少雪・多雨化に伴う陸から沿岸海域への水・物質供給量の変化, 第5回富山湾研究会, 3月. (口頭発表)

2. 北澤 唯佳, 張 芸馨, 花村 虎太郎, 山口 圭一, 片境 紗希(2022): SDGs の視点で富山の地下水を科学する～地下水年齢の把握と持続的地下水利用方法の検討～, 令和3年度学生による地域フィールドワーク研究 成果発表, 2月. (口頭発表) **優秀賞受賞**
3. 北澤 唯佳, 片境 紗希, 張 勁(2021): 溶存成分と酸素・水素安定同位体比からみる富山県片貝川扇状地における過去20年間の地下水流動状態と水質の変化, 第11回同位体環境学シンポジウム, 12月. (ポスター発表)
4. 片境 紗希, 張 勁(2021): 過去20年間の日本中緯度地域の少雪・多雨化による淡水性海底湧水の湧出量増加と溶存無機炭素供給量の倍増, 日本地下水学会2021年秋季講演会, 12月. (口頭発表) **若手優秀講演賞受賞**
5. 片境 紗希, 野嶋 航太, 松本 碧人, 張 勁(2021): 栄養塩負荷削減による陸からの栄養塩供給量の減少と沿岸域での栄養塩制限状態の強化～富山湾での事例～, 2021年度日本海洋学会秋季大会, 9月. (口頭発表)
6. 片境 紗希 (2021): 高低差4,000mの富山～森-里-富山湾の物質循環像～, 2021年海洋若手研究集会, 9月. (口頭発表) **優秀発表賞受賞**

【引用文献】

1. Zhang, B., Zhang, J., & Yoshida, T. (2017). Temporal variations of groundwater tables and implications for submarine groundwater discharge: a 3-decade case study in central Japan. *Hydrology and Earth System Sciences*, 21(7), 3417-3425.
2. 徳永朋祥, 浅井和見, 中田智浩, 谷口真人, 嶋田純, & 三枝博光. (2001). 沿岸海底下での地下水採取技術の開発とその適用 黒部川扇状地沖合での例. *地下水学会誌*, 43(4), 279-287.
3. 佐竹洋, 向井利明, & 水谷義彦. (1983). D, T, $\delta^{18}O$ から見た北陸地方の降水と河川水の水文学的特徴. 富山大学トリチウム科学センター.
4. Okakita, N., Iwatake, K., Hirata, H., & Ueda, A. (2019). Contribution of precipitation to groundwater flow systems in three major alluvial fans in Toyama Prefecture, Japan: stable-isotope characterization and application to the use of groundwater for urban heat exchangers. *Hydrogeology Journal*, 27(1), 345-362.
5. Zhang, J., & Satake, H. (2003). The chemical characteristics of submarine groundwater seepage in Toyama Bay, Central Japan. *Land and Marine Hydrogeology*, 45-60.
6. 飯田肇 (2001).
7. 松尾敬世. (2001). 雪と雨をわけるもの. *天気*, 48(1), 33-37.
8. 安田洋, 藤井國博, & 岡本玲子. (1990). 富山県における降水中の酸性降下物質の特徴. *森林立地*, 32(2), 59-64.
9. 中口讓, 山口善敬, 山田浩章, 張勁, 鈴木麻衣, 小山裕樹, & 林清志. (2005). 富山湾海底湧水の化学成分の特徴と起源-栄養塩と溶存有機物-. *地球化学*, 39(3), 119-130.
10. Haines, T. S., & Lloyd, J. W. (1985). Controls on silica in groundwater environments in the United Kingdom. *Journal of Hydrology*, 81(3), 277-295.
11. Lueker, T. J., Dickson, A. G., & Keeling, C. D. (2000). Ocean pCO₂ calculated from dissolved inorganic carbon, alkalinity, and equations for K₁ and K₂: validation based on laboratory measurements of CO₂ in gas and seawater at equilibrium. *Marine chemistry*, 70(1-3), 105-119.
12. 八田真理子, 張勁, 佐竹洋, 石坂丞二, & 中口讓. (2005). 富山湾の水塊構造と河川水・沿岸海底湧水による淡水フラックス. *地球化学*, 39(3), 157-164.