

# 沿岸地下水流出域におけるリン動態

Behavior of phosphorus in coastal groundwater discharge areas

齋藤 光代<sup>1\*</sup>・小野寺 真一<sup>2</sup>

Mitsuyo SAITO<sup>1\*</sup> and Shin-ichi ONODERA<sup>2</sup>

<sup>1</sup>岡山大学大学院 環境生命科学研究科

<sup>2</sup>広島大学大学院 総合科学研究科

<sup>1</sup>Graduate School of Environmental and Life Science, Okayama University

<sup>2</sup>Graduate School of Integrated Arts and Sciences, Hiroshima University

## 摘 要

本稿では、沿岸地下水流出域におけるリンの動態について、酸化還元状態に加え淡水から塩水への塩分変化の影響に着目し、従来の研究結果に基づく総括を試みた。リンは酸化的条件下で鉄酸化物への吸着やカルシウム等との共沈により水中から除去され、対照的に還元的条件下あるいは塩分の高い環境では脱着により溶存態に変化する性質をもち、一般に地表水よりも相対的に還元的状態にある地下水中には、生物にとって利用効率の高い溶存無機態リン (Dissolved Inorganic Phosphorus; DIP) が主要な存在形態であると考えられる。しかしながら、その多くは地下水が地表水と接する流出域付近で吸着及び共沈により水中から除去される傾向にあると考えられる。そのため、陸から海へ向かう地下水流出域では、潮位変化や波浪にともなう海水の再循環が顕著な汀線付近において、地下水由来の DIP が鉄結合態及び鉍物態のリンとして地下に蓄積されている可能性がある。一方で、塩淡水境界より沖側においては海水の再循環にともない、有機物の無機化等で生じる DIP の輸送が生じている可能性がある。また、還元的な深い地下水の流出も海域への DIP の輸送経路となりうる。今後の課題として、地下水流出域のリン動態を制御する酸化還元状態、塩分及び pH 等の条件の定量化があげられ、最終的には地下水流速や滞留時間等の物理条件によって流出域のリン動態を定量化していくことが重要であると考えられる。

キーワード：沿岸域、塩分、酸化還元状態、地下水流出、リン

Key words : coastal areas, salinity, redox conditions, groundwater discharge, phosphorus

## 1. はじめに

リン (P; Phosphorus) は、淡水域及び塩水域のさまざまな生物地球化学過程にとって重要な元素であり<sup>1)</sup>、水域生態系においては窒素 (N) とともに植物プランクトンの増殖を制御する栄養塩の一つであるとされる<sup>2), 3)</sup>。一般に、沿岸海域に対するリンの主要な供給経路は河川であるが<sup>4)</sup>、河川由来のリンの主要な形態は鉍物態あるいは鉄 (Fe) との結合態からなる粒子状無機態リン (Particulate Inorganic Phosphorus; PIP) である<sup>5)</sup>。一方で、近年は河川以外の供給経路として海底地下水湧出 (Submarine Groundwater Discharge; SGD) が指摘されており<sup>6)-8)</sup>、その重要性は、河川水と異なり主要な供給形態が溶存無機態リン (Dissolved Inorganic Phosphorus; DIP) であるという特徴にある。前述したように、リンは

窒素と並び生物にとって必須の栄養塩であり、特に低次生態系に属する植物プランクトン等に最も効率良く利用されるのは DIP である。すなわち、地下水によるリン輸送は最終的な流出域である海域や湖沼等の沿岸生態系に影響を及ぼす可能性が高く、その定量的な評価は陸水学、沿岸海洋学、生態学といった分野における重要な課題の一つであるといえる。

しかしながら、地下水流出域におけるリンの動態は、酸化還元過程に加え塩分の変化等による影響を受け複雑なものとなることから、これまで必ずしも十分に総括されてきたとはいえない。そこで本稿では、沿岸地下水流出域におけるリンの動態に関する近年の研究動向についてレビューを行うとともに、今後考えられる課題について言及することを目的とした。なお、沿岸海域及び湖沼におけるリン循環の詳細については、それぞれ別途本特集号内で総括さ

受付：2015年2月17日、受理：2015年5月8日

\* 〒700-8530 岡山県岡山市北区津島中3-1-1, e-mail: misaito@okayama-u.ac.jp

れているため<sup>9), 10)</sup>, 本稿では, 特にそれらの流出域に対する地下水経路のリン輸送, 及び地下水と地表水との境界域におけるリン動態に焦点を絞って述べることとする。

## 2. 地下水による沿岸域へのリン輸送

地下水は, 涵養域からの流動を経て最終的に海域, 湖沼及び河川へ流出する。SGD については, 沿岸生態系への栄養塩供給経路としての重要性<sup>6)</sup>が指摘されて以降, 世界各地で数多くの研究が行われており, それらの結果はいくつかの論文によって総括されている<sup>7), 8), 11), 12)</sup>。例えば, グローバルスケールで河川水及び SGD による海域への溶存物質輸送量を比較した例<sup>13)</sup>では, SGD 経由の量が河川の 50% 以上に及ぶ地域もあると推定されており, この結果は地下水に含まれる溶存物質の濃度が河川水と比較して高いことに起因すると考えられている。また, 海域に対する溶存態リン(Dissolved Phosphorus; DP)の輸送については, SGD 経由の量が河川より圧倒的に小さいという報告(例えば, 日本の利根川沿岸域の例<sup>14)</sup>

等)がある一方で, 地域によっては SGD 経由の輸送量が河川とほぼ同等<sup>15) - 18)</sup>あるいはその数倍~数十倍に及ぶ<sup>19) - 24)</sup>という推定結果もあり, 特にハワイの Kahana Bay<sup>21)</sup>や韓国南部の Yeoja Bay<sup>23)</sup>及び Yeongil Bay<sup>24)</sup>の沿岸域においては河川経由の量の約 5~24 倍と非常に大きな値を示している(図 1(a))。ここで, 図 1(a)に示す地域における河川水, 海底湧出水及び地下水の DP 濃度を図 1(b)に示す。ただし, SGD には大きく分けて陸域の動水勾配で駆動される淡水性の SGD(Submarine Fresh Groundwater Discharge; SFGD)あるいは Fresh Submarine Groundwater Discharge; FSGD)と海域の潮汐や波浪等によって駆動される再循環性の海水流出(Recirculated Saline Groundwater Discharge; RSGD)あるいは Recirculated seawater)の 2 種類が存在する<sup>11), 12), 25)</sup>。そのため, ここでは Kroeger<sup>19)</sup>の基準に沿って塩分が 2 未満を淡水性湧出水, 2 以上を上記 2 種類の SGD が混合した汽水~塩水性湧出水とし, それぞれの濃度を分けて示した。これらの結果から, 湧出水及び地下水の DP 濃度は河川水とほぼ同等あるいは比較的高い傾向を示し, 特に, いくつかの地域においては汽水~塩水性湧出水

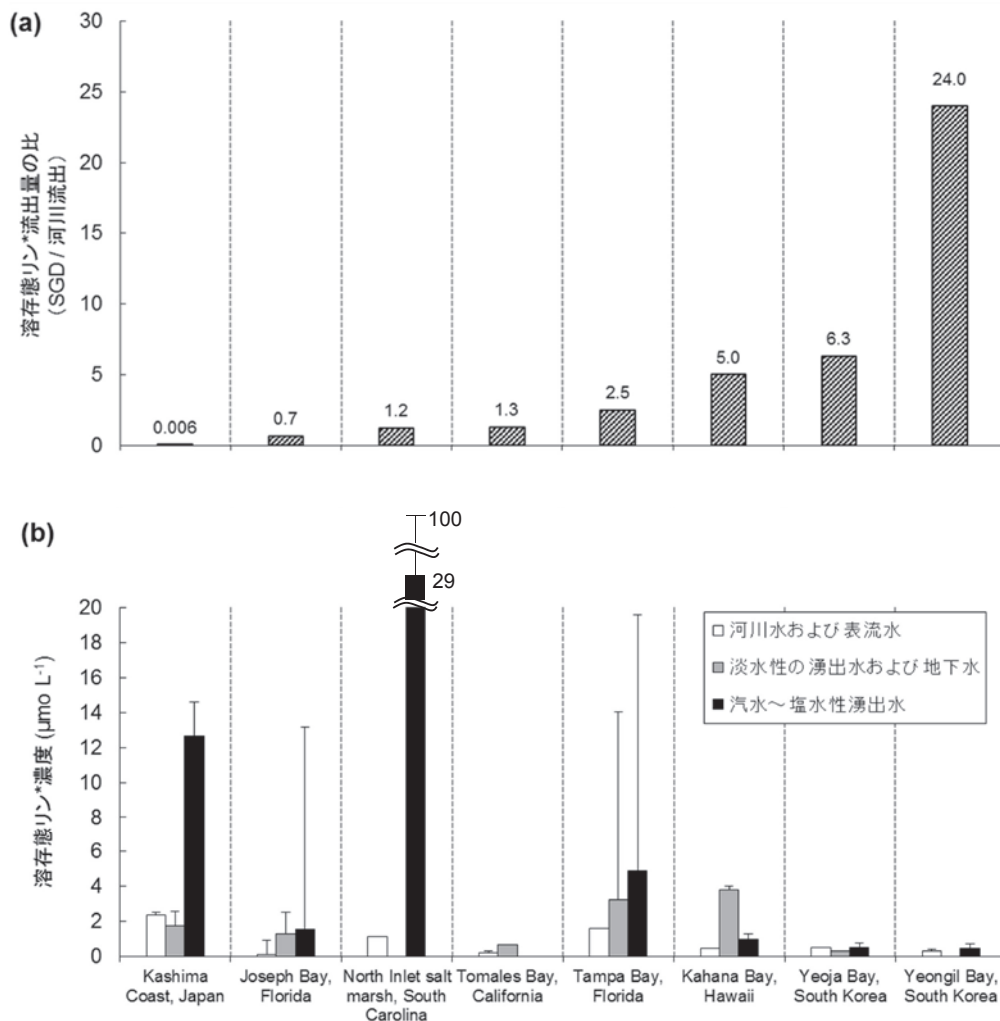


図 1 既存の研究結果<sup>14) - 24)</sup>に基づく海底地下水湧出(Submarine Groundwater Discharge; SGD)由来と河川水由来の溶存態リン流出量の比(a)及び河川水, 海底湧出水, 地下水中の溶存態リン濃度(b). (\* Garrison ら<sup>21)</sup>については総溶存態リン濃度, それ以外は溶存無機態リン濃度)

の濃度が顕著に高い値を示している。この原因の一つとしては、後述する還元環境下及び塩水環境で生じる DIP の脱着が影響していると考えられる。また、図 2 に既存の研究結果<sup>19), 26), 27)</sup>に基づく汽水～塩水性 SGD 及び淡水性 SGD による DIP 流出量の比を示す。この結果から、前者によるリン流出量のほうが比較的大きい傾向にあり、特に火山島である韓国の済州島沿岸域では淡水性 SGD の約 30 倍という大きな値となっている<sup>27)</sup>。

以上を踏まえると、韓国南部やハワイの沿岸域といった火山性の地質からなる帯水層が発達する地域<sup>21), 23), 24), 27)</sup>においては、湧出水の DP 濃度は河川水と大差は無いものの(図 1(b))SGD 自体の量が大きいこと、DP 輸送量も顕著に大きくなると考えられる(図 1(a))。ただし、DP の輸送に寄与している SGD の大部分は汽水～塩水性である可能性が高い(図 2)。ちなみに、ここで認識しておくべきことは、淡水性 SGD が河川と同様に海域に対する新規の(いわゆる外部由来の)リン輸送経路であるのに対し、再循環性の海水流出によるリンの供給は、海水中の DP 及び海底に蓄積した粒子状有機態リン(Particulate Organic Phosphorus; POP)等を起源とする、いわゆる内部生産由来であるという点である。また、後者は潮位変化や波浪にともない海水が一旦地下へ侵入し流出することによる移流過程であり、拡散による輸送とは区別して考える必要がある。ただし、厳密には海底に蓄積した POP の分解で生成される DP の寄与を含むため、正味の DP 輸送量としては過剰に評価されている可能性がある。しかしながら、一般に移流過程による物質のフラックスは拡散過程によるそれよりもはるかに大きいと考えられる<sup>28), 29)</sup>ため、SGD は沿岸海域における重要なリン供給経路の一つになっている可能性がある。なお、沿岸海域におけるリン循環の詳細については、

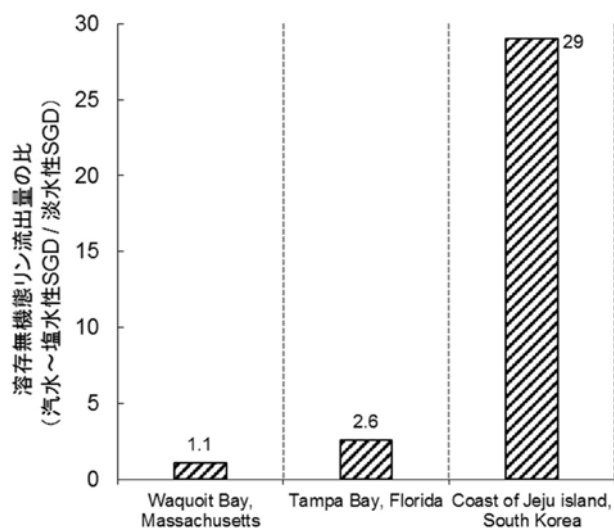


図 2 既存の研究結果<sup>19), 26), 27)</sup>に基づく汽水～塩水性 SGD 及び淡水性 SGD による溶存無機態リン流出量の比。

本特集号の梅澤ら<sup>9)</sup>を参照していただきたい。

一方で、沿岸生態系に及ぼす影響という点では、特に温帯域に分布する湖沼等の淡水生態系の基礎生産はリンによって制限を受けるケースが多いため<sup>30), 31)</sup>、古くから湖への地下水流出<sup>32) - 36)</sup>に伴うリン供給の評価もいくつか試みられており(例えばカナダ・アルバータの Narrow Lake<sup>37)</sup>、スウェーデン南部の Lake Bysjön<sup>38)</sup>及びアメリカ・フロリダ州の Lake Persimmon<sup>39)</sup>等)、地下水流出が重要な供給経路の一つとなっている可能性が指摘されてきたものの、その事例は SGD と比較して極めて限られており、湖沼の富栄養化に及ぼす影響等の評価は十分進んでこなかった<sup>40)</sup>。しかしながら、近年その評価の重要性が改めて指摘されており、このような湖への地下水流出は、LGD(Lacustrine Groundwater Discharge)と定義され、ドイツの Lake Arendsee<sup>41)</sup>等をはじめとした定量的な評価や既存研究を踏まえた総括<sup>40), 42)</sup>が進められている。なお、湖沼におけるリン循環の詳細については本特集号の杉山・望月<sup>10)</sup>を参照していただきたい。

### 3. 地下水中のリンの動態

地下水によるリン輸送を議論するうえで何より重要な点は「地表水による輸送プロセスとの違い」である。前述したように、河川水に代表される地表水中のリンは通常その大部分が粒子状リン(Particulate P; PP)として存在し輸送されるが、地下水では主に DIP として輸送される。また、その輸送過程は基本的に他の物質と同様に移流・拡散により支配されるが、酸化還元状態や塩分及び pH の変化にともない生じる吸脱着及び沈殿により、水中から除去あるいは水中に付加されることが大きな特徴である<sup>7), 43)</sup>。まず、酸化的な条件下では DIP の鉄酸化物への吸着あるいはカルシウム(Ca)、アルミニウム(Al)及び鉄(Fe)との共沈によるヒドロキシアパタイト( $\text{Ca}_5(\text{PO}_4)_3(\text{OH})$ )、バリサイト( $\text{AlPO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )及びストレンジサイト( $\text{FePO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ )等の鉱物の形成が生じる<sup>44) - 46)</sup>。すなわち、酸化的条件下ではリンは水中から除去される傾向にある。一方で、還元的な条件下では鉄酸化物からの脱着が生じ DIP の形態で水中に放出されるが<sup>47)</sup>、共沈によるヒドロキシアパタイト及びビビアナイト( $\text{Fe}_3(\text{PO}_4)_2 \cdot 8\text{H}_2\text{O}$ )の形成も生じる<sup>7)</sup>。ただし、DIP の脱着は還元状態のみでなく塩分の上昇によっても生じ<sup>48) - 50)</sup>、特に淡水から塩水への遷移域(塩淡水境界の先端部)において顕著であることが報告されている<sup>51), 52)</sup>。

### 4. 沿岸地下水流出域におけるリンの動態

淡水環境での地下水流出域は主に河川や湖沼等であり、その近傍の河畔域、氾濫原、湿地、及び河

床、砂州、湖底等においては地下水と地表水(河川水・湖水)との交流にともなう非定常な酸化還元状態の変化が生じ、結果的にそこでのリンの動態に影響を及ぼす<sup>53) - 56)</sup>。例えば、カナダ・オンタリオ南部 Boyne River の氾濫原においては、地下水が河道に向かって流動する過程で酸化的状態から還元的状態に変化し DIP 濃度の上昇が生じている<sup>47)</sup>ことや、イギリス南部 Lambourn River の河川水-地下水交流域(ハイポレイックゾーン, hyporheic zone)においては、DIP の吸着、カルシウムとの共沈及び微生物による取り込みにともないコロイド状及び PP の形成が生じていること<sup>57)</sup>等が確認されている。

一方で、Slomp と Van Cappellen<sup>7)</sup>は海域への地下水流出にともなう塩淡水境界付近のリンの動態を、地下水-海水間の相対的な酸化還元状態(①地下水・海水ともに酸化的、②地下水は酸化的・海水は還元的、③地下水は還元的・海水は酸化的、④地下水・海水ともに還元的)によってパターン化し、概念的な図を示している。まず、双方が酸化的な条件下(①)では、前述したようにリンは水中から除去される傾向にあるため、例えば、堆積物のリン吸着能を上回るようなリンの負荷(継続的な化学肥料の負荷等)が存在するようなケースを除き DIP の形態での輸送は生じにくいと考えられる。次に、酸化的な地下水が還元的な海水と接する場合(②)は、海水中に含まれていた DIP の鉄及びカルシウムとの結合が生じ、還元的な地下水が酸化的な海水に接する場合(③)は、②とは逆に地下水中に含まれていた DIP が鉄及びカルシウムと結合する。ちなみに、DIP と鉄酸化物と

の結合についてはアメリカ・マサチューセッツの Waquoit bay 沿岸域<sup>58), 59)</sup>等で確認されている。また、これらの反応には地下水中の  $Fe^{2+}$  (鉄(II)イオン)/  $PO_4$  (リン酸イオン)比や、淡水-塩水遷移域での pH の変化が影響するという報告もある<sup>60), 61)</sup>。また、③の条件に相当するケースとして Onodera ら<sup>62)</sup>は、瀬戸内海沿岸の陸から海へ向かう地下水流動場において淡水性の地下水中で比較的高濃度であった DP が、地下水の流動が上向きを示す満潮時の汀線付近で減少し(図 3(a), (b)の(1))、その後沖側で再び増加する傾向(図 3(a), (b)の(2))を確認している。また、(2)の領域における濃度上昇は陸域の浅い地下水(図 3(a)の相対距離がゼロの地点)と海水との混合のみでは説明ができないことから、別のプロセスが寄与していると考えられる。ここで、Robinson ら<sup>63), 64)</sup>による準定常状態を仮定した沿岸帯水層中の二次元の流動解析によれば、汀線近傍では潮位変化や波浪によって駆動される滞留時間が数日以内の短いタイムスケールでの海水の再循環が、塩淡水境界より沖側では密度差に駆動される滞留時間が数年オーダーの長いタイムスケールでの海水の再循環がそれぞれ生じ、その二つの再循環ゾーンの間を通過する形で淡水性の地下水流出が生じることが明らかにされている。これらの流動の概念に従えば、相対的に還元状態にある地下水が酸化的な海水と接する(1)の領域において、DIP の吸着あるいは共沈<sup>44) - 46)</sup>が生じていると考えられる。さらに、(2)の塩淡水境界より沖側の領域では、海水の侵入に伴う有機物の無機化あるいは DIP 濃度の高い深い流動の地下水の寄与にとも

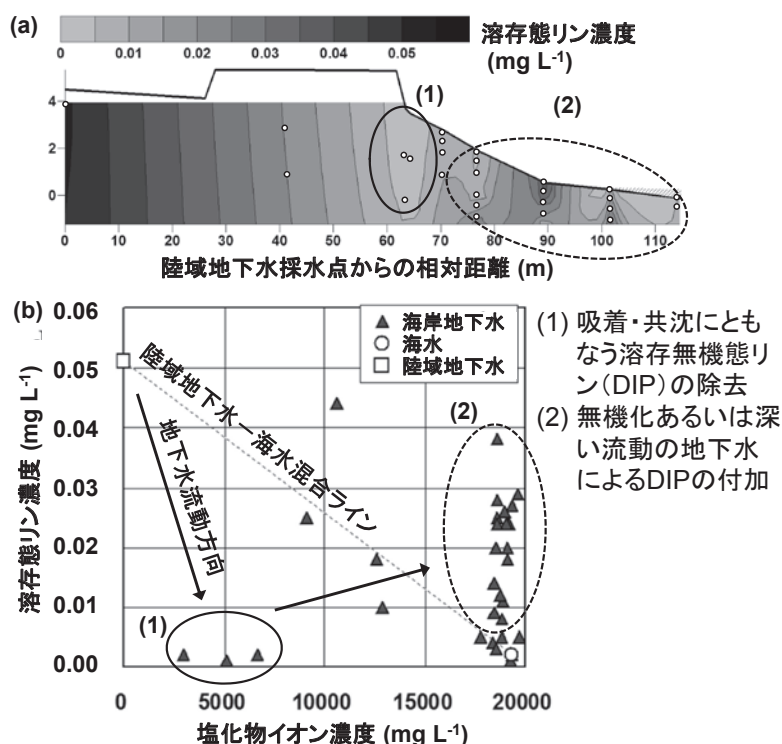


図 3 瀬戸内海沿岸の地下水流出域における溶存態リンの濃度変化(a)及び塩化物イオン濃度と溶存態リン濃度との関係(b). (Onodera ら<sup>62)</sup>に一部加筆, 図 3(a)中の白丸は地下水採取地点)

なう濃度上昇が生じている可能性が考えられる。有機物の無機化にともなう DIP 濃度の上昇については、Spiteri ら<sup>59)</sup>による Waquoit bay 沿岸域の例でも確認されている。最後に、④の双方が還元的なケースでは、DIP の形態での輸送が生じる一方で、炭酸塩からなる帯水層(例えば、フロリダ沿岸の石灰岩帯水層<sup>66)</sup>など)では、一部 DIP とカルシウムとの結合が生じることも確認されている。

以上を踏まえると、地下水及び海水の双方が還元状態である場合(ケース④)を除き、地下水によって輸送されてきた DIP の多くは塩淡水境界付近で吸着及び共沈により水中から除去される傾向にあると考えられ、以上のケース①~④を想定したリンの動態については、二次元での反応輸送解析による検証も行われている<sup>67)</sup>。しかしながら、Onodera ら<sup>62)</sup>や Spiteri ら<sup>59)</sup>の例のように、塩淡水境界の沖側では比較的長いタイムスケールでの海水の再循環<sup>63), 64)</sup>にともなう DIP の輸送が生じている可能性がある。さらに、より流動の深い地下水の流出<sup>63), 64)</sup>が生じる場合も海域への DIP 輸送経路となりうる。

また、海域への地下水流出域では、酸化還元状態だけでなく前述したように塩分の変化もリンの動態に大きく影響する。例えば、塩分の上昇により鉄酸化物等に吸着された DIP の脱着が生じる<sup>48)-52)</sup>ほか、硫酸イオン(SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>)濃度の増加にともなう硫酸還元促進に付随して有機物分解(無機化)が促進され、DIP 濃度が増加することも報告されている<sup>67), 68)</sup>。したがって、塩淡水境界付近で DIP の形態での輸送が最も生じやすいのは、還元的かつ塩分の高い地下水の流出域であるといえる。具体的には Slomp と Van Cappellen<sup>7)</sup>によるケース④に相当し、塩性湿地の例<sup>18)</sup>等が、それに該当すると考えられる。また、以上の既存研究結果に基づき、図 4 に陸から海への地下水流出域近傍の流動とリン輸送のパターンを模式

的に示す。ここでは、地下水及び海水の流動量の大きさを線の太さで表している。Onodera ら<sup>62)</sup>のケースで言及したように、海水の再循環が顕著で滞留時間が比較的短い汀線の近傍では、地下水経由で輸送されてきた DIP が鉄結合態及び鉱物態のリンとして地下に蓄積されている可能性がある(図 4: リン蓄積ゾーン)。一方で、淡水性であっても還元的な深部の地下水中では DIP が高濃度で存在している可能性があり、このような地下水の流出は海域へのリン輸送経路となりうる。また、塩淡水境界より沖側では滞留時間が数年オーダーの海水の再循環にともない、有機物の無機化等で生じた DIP の輸送が生じている可能性がある。

## 5. おわりに

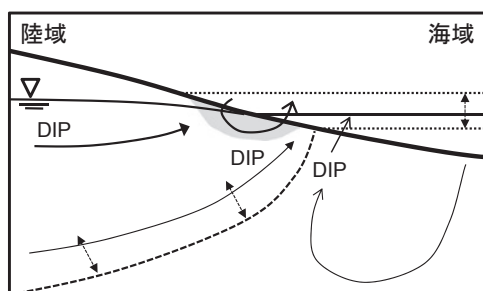
本稿では、沿岸地下水流出域に存在するリンの中でも特に生態系における利用効率が高い DIP の輸送に着目し、既存研究結果の整理を行った。しかしながら、海域等の塩水環境への地下水流出域では、酸化還元状態や塩分といった複数の条件によってリンの動態がコントロールされており、現場スケールでそれらの影響を分離して評価するには至っていない。したがって、今後の課題の一つとして、DIP の吸・脱着過程や無機化によるリンの生成過程における酸化還元状態、塩分及び pH 等の各条件の定量化が重要であると考えられる。また、これらの条件はいずれも地下水流出域における流速や滞留時間等に依存して変化すると考えられるため、最終的には、非定常性も考慮に入れた物理的な流動条件によってリンの動態を定量化していくことが課題であると考えられる。

## 謝 辞

本稿は、独立行政法人日本学術振興会科学研究費補助金基盤研究(A)(研究課題番号: 25241014, 代表: 福岡正人)の支援のもとで執筆された。また、本稿の掲載に当たり多くの有益なコメントをいただいた 2 名の査読者の方々に謹んで謝意を表す。

## 引用文献

- 1) Jahnke, R. A. (1992) The phosphorus cycle. *In*: S. S. Butcher, R. J. Charlson, G. H. Orians and G. V. Wolfe, eds., *Global Biogeochemical Cycles*, 301-315, Academic Press.
- 2) Tyrrell, T. (1999) The relative influence of nitrogen to phosphorus on oceanic primary production. *Nature*, 400, 525-531.
- 3) Conley, D. J., H. W. Paerl, R. W. Howarth, D. F. Boesch, S. P. Seitzinger, K. E. Havens, C. Lancelot



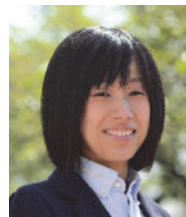
- DIP : 溶存無機態リン (Dissolved Inorganic Phosphorus)  
 ■ : リン(鉄結合態, 鉱物態)蓄積ゾーン  
 → : 淡水性の地下水流出  
 → : 再循環性の海水流出  
 ↔ : 潮位変化, 波浪などにともなう変化  
 - - - : 塩淡水境界

図 4 海域への地下水流出にともなう溶存無機態リン(DIP)輸送の模式図。

- and G. E. Likens (2009) Controlling eutrophication: nitrogen and phosphorus. *Science*, 323, 1014-1015.
- 4) Jickells, T. D. (1998) Nutrient biogeochemistry of the coastal zone. *Science*, 281, 217-221.
  - 5) Slomp, C. P. (2011) 5.06- Phosphorus cycling in the Estuarine and coastal zones: sources, sinks, and transformations. In: E. Wolanski and D. McLusky, eds., *Treatise on Estuarine and Coastal Science*, 5, 201-229, Academic Press, Waltham.
  - 6) Johannes, R. E. (1980) The ecological significance of the submarine discharge of groundwater. *Marine Ecology Progress Series*, 3, 365-373.
  - 7) Slomp, C. P. and P. Van Cappellen (2004) Nutrient inputs to the coastal ocean through submarine groundwater discharge: controls and potential impact. *Journal of Hydrology*, 295, 64-86.
  - 8) Moore, W. S. (2010) The effect of submarine groundwater discharge on the ocean. *Annual Review of Marine Science*, 2, 59-88.
  - 9) 梅澤 有, 鈴村昌弘, 塚崎あゆみ, 尾崎健史, 牟田直樹, 山口 聖 (2015) 沿岸域生態系のリン循環. *地球環境* 20, 63-76.
  - 10) 杉山雅人・望月陽人 (2015) 湖におけるリンの分布と循環. *地球環境* 20, 35-46.
  - 11) Taniguchi, M., W. C. Burnett, J. E. Cable and J. V. Turner (2002) Investigation of submarine groundwater discharge. *Hydrological Processes*, 16, 2115-2129.
  - 12) Burnett, W. C., P. K. Aggarwal, A. Aureli, H. Bokuniewicz, J. E. Cable, M. A. Charette, E. Kontar, S. Krupa, K. M. Kulkarni, A. Loveless, W. S. Moore, J. A. Oberdorfer, J. Oliveira, N. Ozyurt, P. Povinec, A. M. G. Privitera, R. Rajar, R. T. Ramessur, J. Scholten, T. Stieglitz, M. Taniguchi and J. V. Turner (2006) Quantifying submarine groundwater discharge in the coastal zone via multiple methods. *Science of the Total Environment*, 367, 498-543.
  - 13) Zektser, I. S. and H. A. Loaiciga (1993) Groundwater fluxes in the global hydrologic cycle: past, present and future. *Journal of Hydrology*, 144, 405-427.
  - 14) Uchiyama, Y., K. Nadaoka, P. Rölke, K. Adachi and H. Yagi (2000) Submarine groundwater discharge into the sea and associated nutrient transport in a sandy beach. *Water Resources Research*, 36, 1467-1479.
  - 15) Rutkowski, C. M., W. C. Burnett, R. L. Iverson and J. P. Chanton (1999) The Effect of Groundwater Seepage on Nutrient Delivery and Seagrass Distribution in the Northeastern Gulf of Mexico. *Estuaries*, 22, 1033-1040.
  - 16) Fu, J. M. and J. W. Winchester (1994) Inference of nitrogen cycling in three watersheds of northern Florida, USA, by multivariate statistical analysis. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 58, 1591-1600.
  - 17) Krest, J. M., W. S. Moore L. R. Gardner and J. T. Morris (2000) Marsh nutrient export supplied by groundwater discharge: Evidence from radium measurements. *Global Biogeochemical Cycles*, 14, 167-176.
  - 18) Oberdorfer, J. A., M. A. Valentino and S. V. Smith (1990) Groundwater contribution to the nutrient budget of Tomales Bay, California. *Biogeochemistry*, 10, 199-216.
  - 19) Kroeger, K. D., P. W. Swarzenski, W. J. Greenwood and C. Reich (2007) Submarine groundwater discharge to Tampa Bay: Nutrient fluxes and biogeochemistry of the coastal aquifer. *Marine Chemistry*, 104, 85-97.
  - 20) Flock, M., S. M. Deitche, L. K. Hammer and C. Meyer (2005) Ambient monitoring program annual report 2003-2004. Draft Report of the Water Resources Management Section, Pinellas County Department of Environmental Management.
  - 21) Garrison, G. H., C. R. Glenn and G. M. McMurty (2003) Measurement of submarine groundwater discharge in Kahana Bay, O'ahu, Hawai'i. *Limnology and Oceanography*, 48, 920-928.
  - 22) Hoover, D. J. and F. T. Mackenzie (2009) Fluvial Fluxes of Water, Suspended Particulate Matter and Nutrients and Potential Impacts on Tropical Coastal Water Biogeochemistry: O'ahu, Hawai'i. *Aquatic Geochemistry*, 15, 547-570.
  - 23) Hwang, D. W., G. Kim, Y. Lee and H. S. Yang (2005) Estimating submarine inputs of groundwater and nutrients to a coastal bay using radium isotopes. *Marine Chemistry*, 96, 61-71.
  - 24) Kim, G., J. W. Ryu and D. W. Hwang (2008) Radium tracing of submarine groundwater discharge (SGD) and associated nutrient fluxes in a highly-permeable bed coastal zone, Korea. *Marine Chemistry*, 109, 307-317.
  - 25) Peterson, R. N., W. C. Burnett, C. R. Glenn and A. G. Johnson (2009) Quantification of point-source groundwater discharges to the ocean from the shoreline of the Big Island, Hawaii. *Limnology and Oceanography*, 54, 890-904.
  - 26) Kroeger, K. D. and M. A. Charette (2008) Nitrogen biogeochemistry of submarine groundwater discharge. *Limnology and Oceanography*, 53, 1025-1039.
  - 27) Kim, G., K. K. Lee, K. S. Park, D. W. Hwang and H. S. Yang (2003) Large submarine groundwater discharge (SGD) from a volcanic island. *Geophysical Research Letters*, 30, OCE3-1-4.
  - 28) Santos, I. R., B. D. Eyre and M. Huettel (2012) The

- driving forces of porewater and groundwater flow in permeable coastal sediments: A review. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, 98, 1-15.
- 29) Huettel, M. P. Berg and J. E. Kostka (2014) Benthic exchange and biogeochemical cycling in permeable sediments. *Annual Review of Marine Science*, 6, 23-51.
- 30) Schindler, D. W. (1977) Evolution of phosphorus limitation in lakes. *Science*, 195, 260-262.
- 31) Hecky, R. E. and P. Kilham (1988) Nutrient limitation of phytoplankton in freshwater and marine environments: A review of recent evidence on the effects of enrichment. *Limnology and Oceanography*, 33, 796-822.
- 32) Sonzogni, W. C. and G. F. Lee (1974) Nutrient sources for Lake Mendota – 1972. *Transactions of the Wisconsin Academy Sciences Arts and Letters*, 62, 133-164.
- 33) Winter, T. C. (1978) Ground-water component of lake water and nutrient budgets. *Verhandlungen der Internationalen Vereinigung für Theoretische und Angewandte Limnologie*, 20, 438-444.
- 34) 小林正雄(1983)びわ湖湖底漏出地下水の直接測定による漏出量と水質について. *ハイドロロジー*, 日本水文科学会誌, 13, 51-59.
- 35) 福尾義昭(1991)琵琶湖湖底地下水の漏出に関する研究. *ハイドロロジー*, 日本水文科学会誌, 21, 93-102.
- 36) Taniguchi, M. and Y. Fukuo (1993) Continuous measurements of ground-water seepage using an automatic seepage meter. *Ground Water*, 31, 675-679.
- 37) Shaw, R. D., J. F. H. Shaw, H. Fricker and E. E. Prepas (1990) An integrated approach to quantify groundwater transport of phosphorus to Narrow Lake, Alberta. *Limnology and Oceanography*, 35, 870-886.
- 38) Vanek, V. (1991) Riparian zone as a source of phosphorus for a groundwater-dominated lake. *Water Research*, 25, 409-418.
- 39) Kang, W. J., K. V. Kolasa and M. W. Rials (2005) Groundwater inflow and associated transport of phosphorus to a hypereutrophic lake. *Environmental Geology*, 47, 565-575.
- 40) Lewandowski, J., K. Meinikman, G. Nützmann and D. O. Rosenberry (2015) Groundwater – the disregarded component in lake water and nutrient budgets. Part 2: Effects of groundwater on nutrients. *Hydrological Processes*, DOI: 10.1002/hyp.10384.
- 41) Meinikman, K., J. Lewandowski and G. Nützmann (2013) Lacustrine groundwater discharge: Combined determination of volumes and spatial patterns. *Journal of Hydrology*, 502, 202-211.
- 42) Rosenberry, D. O., J. Lewandowski, K. Meinikman and G. Nützmann (2015) Groundwater – the disregarded component in lake water and nutrient budgets. Part 1: effects of groundwater on hydrology. *Hydrological Processes*, DOI: 10.1002/hyp.10403.
- 43) Enell, M. and S. Löfgren (1988) Phosphorus in interstitial water: methods and dynamics. *Hydrobiologia*, 170, 103-132.
- 44) Weiskel, P. K. and B. L. Howes (1992) Differential transport of sewage-derived nitrogen and phosphorus through a coastal watershed. *Environmental Science & Technology*, 26, 352-360.
- 45) Robertson, W. D. (1995) Development of steady-state phosphate concentrations in septic system plumes. *Journal of Contaminant Hydrology*, 19, 289-305.
- 46) Zanini, L., W. D. Robertson, C. J. Ptacek, S. L. Schiff and T. Mayer (1998) Phosphorus characterization in sediments impacted by septic effluent at four sites in central Canada. *Journal of Contaminant Hydrology*, 33, 405-429.
- 47) Carlyle, C. G. and A. R. Hill (2001) Groundwater phosphate dynamics in a river riparian zone: effects of hydrologic flowpaths, lithology and redox chemistry. *Journal of Hydrology*, 247, 151-168.
- 48) Caraco, N., J. Cole and G. E. Likens (1990) A comparison of phosphorus immobilization in sediments of freshwater and coastal marine systems. *Biogeochemistry*, 9, 277-290.
- 49) Sundareshwar, P. V. and J. T. Morris (1999) Phosphorus sorption characteristics of intertidal marsh sediments along an estuarine salinity gradient. *Limnology and Oceanography*, 44, 1693-1701.
- 50) Jordan, T. E., J. C. Cornwell, W. R. Boynton and J. T. Anderson (2008) Changes in phosphorus biogeochemistry along an estuarine salinity gradient: The iron conveyor belt. *Limnology and Oceanography*, 53, 172-184.
- 51) Fox, L. E., S. L. Sager and S. C. Wofsy (1986) The chemical control of soluble phosphorus in the Amazon estuary. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50, 783-794.
- 52) Suzumura, M., S. Ueda and E. Sumi (2000) Control of phosphate concentration through adsorption and desorption processes in groundwater and seawater mixing at sandy beaches in Tokyo Bay, Japan. *Journal of Oceanography*, 56, 667-673.
- 53) Triska, F. J., V. C. Kennedy, R. J. Avanzino, G. W. Zellweger and K. E. Bencala (1989) Retention and transport of nutrients in a third-order stream in Northwestern California: Hyporheic processes. *Ecology*, 70, 1893-1905.
- 54) Williams, D. D. (1993) Nutrient and flow vector dynamics at the hyporheic/groundwater interface and

- their effects on the interstitial fauna. *Hydrobiologia*, 251, 185-198.
- 55) Reddy, K. R., R. H. Kadlec, E. Flaig and P. M. Gale (1999) Phosphorus Retention in Streams and Wetlands: A Review. *Critical Reviews in Environmental Science and Technology*, 29, 83-146.
- 56) Vidon, P., C. Allan, D. Burns, T. P. Duval, N. Gurwick, S. Inamdar, R. Lowrance, J. Okay, D. Scott and S. Sebestyen (2010) Hot spots and hot moments in riparian zones: potential for improved water quality management. *Journal of the American Water Resources Association*, 46, 278-298.
- 57) Lapworth, D. J., D. C. Gooddy and H. P. Jarvie (2011) Understanding phosphorus mobility and bio-availability in the hyporheic zone of a chalk stream. *Water, Air, & Soil Pollution*, 218, 213-226.
- 58) Charette, M. A. and E. R. Sholkovitz (2002) Oxidative precipitation of groundwater-derived ferrous iron in the subterranean estuary of a coastal bay. *Geophysical Research Letters*, 29, 85-1-85-4.
- 59) Spiteri, C., C. P. Slomp, M. A. Charette, K. Tuncay and C. Melie (2008) Flow and nutrient dynamics in a subterranean estuary (Waquoit Bay, MA, USA): Field data and reactive transport modeling. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72, 3398-3412.
- 60) Griffioen, J. (1994) Uptake of phosphate by iron hydroxides during seepage in relation to development of groundwater composition in Coastal Areas. *Environmental Science & Technology*, 28, 675-681.
- 61) Spiteri, C., P. Regnier, C. P. Slomp and M. A. Charette (2006) pH-Dependent iron oxide precipitation in a subterranean estuary. *Journal of Geochemical Exploration*, 88, 399-403.
- 62) Onodera, S., M. Saito, M. Hayashi and M. Sawano (2007) Nutrient dynamics with groundwater – seawater interactions in a beach slope of a steep island, western Japan. *A New Focus on Groundwater-Seawater Interaction*, 312, 150-158. International Association of Hydrological Sciences Publication.
- 63) Robinson C., B. Gibbes and L. Li (2006) Driving mechanisms for groundwater flow and salt transport in a subterranean estuary. *Geophysical Research Letters*, 33, L03402, 1-4.
- 64) Robinson C., L. Li and D. A. Barry (2007) Effect of tidal forcing on a subterranean estuary. *Advances in Water Resources*, 30, 851-865.
- 65) Cable, J. E., D. R. Corbett and M. M. Walsh (2002) Phosphate uptake in coastal limestone aquifers: a fresh look at wastewater management. *Limnology and Oceanography Bulletin*, 11, 29-32.
- 66) Spiteri, C., C. P. Slomp, K. Tuncay and C. Melie (2008) Modeling biogeochemical processes in subterranean estuaries: Effect of flow dynamics and redox conditions on submarine groundwater discharge of nutrients. *Water Resources Research*, 44, W02430, 1-18.
- 67) Lamers, L. P. M., S.-J. Falla, E. M. Samborska, I. A. R. van Dulken, G. van Hengstum and J. G. M. Roelofs (2002) Factors controlling the extent of eutrophication and toxicity in sulfate-polluted freshwater wetlands. *Limnology and Oceanography*, 47, 585-593.
- 68) Smolders, A. J. P., L. P. M. Lamers, E. C. H. E. T. Lucassen, G. van der Velde and J. G. M. Roelofs (2006) Internal eutrophication: How it works and what to do about it – a review. *Chemistry and Ecology*, 22, 93-111.



齋藤 光代 / Mitsuyo SAITO

岡山大学大学院環境生命科学研究科特任助教。現在の専門は水文科学、生物地球化学。地下水や河川水といった淡水の輸送が物質循環や生態系に及ぼす影響について興味をもっており、陸域–海域を含む流域スケールを対象とした研究を行っている。近年は特に、陸水と海水とが接する淡水–塩水境界域における栄養塩(リン、窒素等)の輸送・循環プロセスに注目している。



小野寺 真一 / Shin-ichi ONODERA

広島大学大学院総合科学研究科教授。1992年に千葉大学で博士(理学)を取得。現在の専門は水文化学、流域環境学。地下水や河川の流出とそれらの物質循環や生態系に及ぼす影響について、陸域–海域を含む流域スケールを対象とした研究を行っている。近年は、特に地表水(海水を含む)と地下水が接する境界域における水輸送とそれにともなる栄養塩(リン、窒素など)の動態に注目している。著書は「Forest Hydrology and Biogeochemistry」(分担執筆, Springer)など。