## — 2021年度日本海洋学会岡田賞受賞記念論文 —

# 東京湾における二酸化炭素収支の解明を主とした 沿岸域の物質循環研究:

流域の下水整備に伴う炭素・栄養塩循環変化\*

## 久保 篤史†

#### 要 旨

東京湾は大都市である東京を流域に持っており、人間活動の影響,特に下水処理水の影響 を強く受けている。本稿では、筆者がこれまでに行ってきた東京湾における炭素循環・栄 養塩類循環研究の成果を紹介する。東京湾における二酸化炭素収支は世界の沿岸海域と異 なり二酸化炭素の吸収域となっていた。東京湾では植物プランクトンの光合成による二酸 化炭素消費が陸域起源有機物の分解による二酸化炭素供給を上回った結果だと考えられる。 これは、流域での下水処理により易分解性有機炭素や粒状有機炭素の大部分が除去され、 主に難分解性有機炭素が東京湾に供給されていることに由来する。同様に東京湾流域の下 水処理場における高度処理開始は東京湾に流入する栄養塩負荷量を低下させ、東京湾内の 栄養塩濃度を低下させていた。流域の下水整備・処理効率の上昇や高度処理の開始により、 東京湾の有機炭素・栄養塩類濃度は減少していた。それに伴い東京湾は二酸化炭素の放出 域から吸収域へと変化していた。すなわち、栄養塩類濃度の減少を上回る易分解性有機炭 素や粒状有機炭素除去の寄与が相対的に大きい結果と考えられる。

キーワード:炭素収支,栄養塩類,二酸化炭素分圧,都市化,下水処理

### 1. はじめに

大気中の二酸化炭素濃度増加による気候変動の影響を 検討するためには海洋における二酸化炭素吸収・放出の 評価が必要不可欠である。外洋域では1950年代から二

 静岡大学理学部地球科学科
 〒 422-8529 静岡県静岡市駿河区大谷 836

 e-mail: kubo.atsushi@shizuoka.ac.jp

酸化炭素分圧の観測が開始され、データが蓄積してきて いる(e.g., Takahashi, 1961)。その結果、現在では年間 約2.0 PgC の二酸化炭素が大気から海洋に吸収されてい ると報告されている(Takahashi *et al.*, 2009; Wanninkhof *et al.*, 2013)。しかし、これまでの海洋における二酸 化炭素収支推定において、沿岸海域における二酸化炭素 吸収・放出の効果は含まれてこなかった。これは、沿岸 海域における二酸化炭素分圧の変動は活発な生物活動や 陸域起源有機物供給・分解の影響を受け外洋域での変動 に比べ非常に大きく、時空間変動を詳細にカバーした研 究例は非常に限られているためだと考えられる。

<sup>\* 2021</sup>年11月10日受領 2022年1月17日受理 著作権:日本海洋学会,2022年

沿岸海域における二酸化炭素分圧の観測結果は, 1990 年代にヨーロッパ河口域で初めて報告された (e.g., Wollast, 1991; Frankignoulle et al., 1996; Frankignoulle et al., 1998)。その結果,沿岸海域の二酸化炭素分圧(最大 9,425 µatm)は大気の二酸化炭素分圧(約400 µatm)に 比べて非常に高く、大量の二酸化炭素が大気へと放出さ れていることが明らかとなった。この結果は、西ヨー ロッパの人間活動による大気への人為起源二酸化炭素放 出量の約10%に相当する量であった (Frankignoulle et al., 1998)。Frankignoulle et al. (1998)の報告以降,沿 岸海域における二酸化炭素収支研究には注目が集まり, 2000年代後半以降には総説論文がいくつか出されるほど にデータは蓄積してきた (Borges, 2005; Chen and Borges, 2009; Borges and Abril, 2011; Chen et al., 2013)。そ の結果、沿岸海域は大気への二酸化炭素の放出域である と結論付けられている。そして、全球規模における二酸 化炭素収支推定を行うと年間の放出量は 0.26-0.50 PgC で あり、外洋域における吸収量の10-20%程度をキャンセ ルする可能性があることがわかってきた (Borges, 2005; Chen and Borges, 2009; Borges and Abril, 2011; Chen et al., 2013)。しかし、これまでの観測は大河川河口域が中 心で大都市沿岸海域での報告はほとんど行われていな い。大都市沿岸海域では、河川水の流入に加え流域での 人間活動の影響を強く受けており、特に下水処理場を通 した生活排水の流入がある (e.g., Kuwae et al., 2016; Kuwae et al., 2017)。また, これまでは大気-海洋間の二酸 化炭素放出量・吸収量を評価したものが多く, 水柱全体 の炭素収支に踏み込んで研究が行われた例はほとんどな 620

現在人類の約50%は沿岸域で生活をしており、人口 1,000万人以上の都市と定義されているメガシティは世界 で20都市ある。これらのうち3分の2は沿岸域に位置し ており、今後も増加していくと推定されている(Nelleman et al., 2008)。そのため、メガシティに隣接した沿 岸域というのは、現在の炭素循環を考えるだけではなく、 将来の沿岸域における炭素循環を予測するうえでも非常 に重要な海域であると考えられる。東京湾は世界最大の メガシティである東京を流域に持っており、流域人口は 約3,000万人と日本の全人口の約25%を擁している。東 京湾には下水処理場を通した大量の処理水(生活排水) の流入があり,淡水流入量の約半分が下水処理水と言わ れている。そのため,下水整備が十分ではなく未処理の 下水が流入している都市沿岸海域に比べ,有機物供給量 が減少し,炭素循環に変化が起きている可能性がある。 また,東京湾流域の一部の下水処理場では1995年から 高度処理を行っており,栄養塩類の直接除去を行ってい る。そのため,炭素循環のみならず栄養塩環境にも大き な影響を及ぼしていると考えられる。本稿では,前半に 東京湾における二酸化炭素収支を含む炭素収支につい て,後半に東京湾における栄養塩類の変動について紹介 する。

### 2. 東京湾の炭素循環

東京湾における観測は,東京海洋大学練習船「青鷹丸」 と「ひよどり」を用いて行った。東京湾における二酸化 炭素収支研究は平衡器にガス透過膜(三層複合中空繊維 膜 MHF304EED,三菱レイヨン)を用いた自作の二酸化 炭素分圧連続測定装置を用いて行った(前田,2008; Kubo *et al.*,2017)。

東京湾における二酸化炭素分圧も海外の沿岸海域同様,低塩分域では大気の二酸化炭素分圧に対して過飽和であり非常に高い値となっていた(最大7,218 $\mu$ atm)。しかし,塩分が増加するにつれ二酸化炭素分圧は低下し,東京湾の大部分で大気の二酸化炭素分圧に対して未飽和となっていた(21,076 データ中16,345 データが未飽和)。これらのデータから東京湾の二酸化炭素収支を推定すると,東京港付近では二酸化炭素の放出域(15.2 mmolC m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup>)であるが,その他の大部分が二酸化炭素の吸収域(-10.6 mmolC m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup>)であることが明らかとなった(Fig. 1)。東京湾全域における年間の二酸化炭素吸収量は5.2 × 10<sup>10</sup> gC year<sup>-1</sup>と推定することができた。

東京湾の湾中央部・湾口部の二酸化炭素分圧の季節変 化は、春季から夏季にかけて非常に低い値をとり(70-336 atm),秋季から冬季にかけて大気の二酸化炭素分圧 に近い値となっていた(264-449 atm)。クロロフィル *a* 濃度は春季から夏季にかけて非常に高く,秋季から冬季 にかけて低くなっていた(Fig. 2)。クロロフィル *a* 濃度 と二酸化炭素分圧の結果には逆相関関係があったため



Fig. 1. Map of (a) sea-air flux (mmol C m<sup>-2</sup> day<sup>-1</sup>) and (b) salinity, binned into a 500 m×500 m horizontal resolution grid. Positive flux values (red) represent the outgassing of  $CO_2$  to the atmosphere, and negative values (blue) represent uptake. This figure is modified from Kubo *et al.* (2017).

 $(R^2 = 0.64, P < 0.001, n = 77), 植物プランクトンの光$ 合成による二酸化炭素消費によって二酸化炭素分圧が大 気より低い値になっていると考えられた。一方、東京港 入口では、二酸化炭素分圧は 93-1,932 atm の範囲で変動 しており,明瞭な季節変化は見られなかった。塩分が低 い時に高い二酸化炭素分圧が観測されたが、観測期間を 通して有意な相関関係はみられなかった。東京港入口で も非常に高いクロロフィル a 濃度の時に大気の二酸化炭 素分圧より低くなっている時もあった。しかし、塩分と 同様にクロロフィル a 濃度が高くても二酸化炭素分圧が 高い場合があり、有意な相関関係はみられなかった。東 京港入口でも、湾中央部・湾口部同様に、植物プランク トンの光合成による二酸化炭素消費が起こっていたと考 えられる。しかし、東京港入口は陸域から近い場所に位 置しており、淡水流入の影響を強く受けている。そのた め、下水処理水などから流入する粒状有機炭素や易分解 性有機炭素の分解による二酸化炭素生成の影響をより強 く受けていたと考えられる。その結果、年間を通して見 れば大気への二酸化炭素放出域となっていた。

世界の沿岸海域における二酸化炭素分圧の観測結果と は異なり,東京湾では二酸化炭素の吸収域となっていた。

これまで、淡水流入量の少ない塩分の高い沿岸海域は、 淡水流入量の多い海域に比べて二酸化炭素の放出量が少 ないことが報告されている (Jiang et al., 2008)。これは, 流入する陸域起源有機物の供給量が相対的に少なく、そ の結果、分解してできる二酸化炭素が少ないためだと考 えられている。同様に、東京湾も淡水流入量の少ない沿 岸海域に該当する。さらに、東京湾流域では下水処理場 における大量の有機物除去が行われている。東京湾流域 下水処理場での有機物除去量を推定すると7.7× 10<sup>10</sup> gC year<sup>-1</sup> と見積もることができ(日本下水道協会, 2020), 東京湾における二酸化炭素吸収量とほぼ同等で あった。その結果、流域の下水整備率がほぼ100%の東 京湾では陸から供給される有機物量が一層低下し、二酸 化炭素の吸収域となっていたと考えられる (Kubo et al., 2017)。東京湾の二酸化炭素分圧の観測を行っていた 2010年頃は、下水処理場で除去された汚泥は55%が燃 焼処分されていた。しかし、近年では27%が燃焼処分さ れているものの,多くがエネルギーや農業利用にリサイ クルされており、この割合は年々増加している(日本下 水道協会, 2020)。このまま汚泥処理が適切に管理され, リサイクルが進んでいくことで大気への二酸化炭素排出

久保 篤史



**Fig. 2.** Seasonal variations of (a, d) pCO<sub>2</sub> and atmospheric pCO<sub>2</sub> (the dotted line), (b, e) salinity, and (c, f) Chl *a* at the Bay Mouth (35.19N, 139.70E), Central Bay (35.42N, 139.79E), and Tokyo Port Entrance (35.59N, 139.79E). This figure is modified from Kubo *et al.* (2017).

量削減と海洋における二酸化炭素吸収の両方のメリット を得ることができる (Kuwae *et al.*, 2016; Kuwae *et al.*, 2019)。

次に、東京湾全域における表層から底層にかけての全 炭酸,溶存有機炭素,粒状有機炭素濃度を分析し、東京 湾の炭素収支をボックスモデルから推定した(Kubo and Kanda, 2020)。ボックスモデルは松村ら(2002)が行った 方法と同様の条件設定で行った。その結果、東京湾にお ける一次生産速度と有機炭素堆積速度はそれぞれ414 gC m<sup>-2</sup> year<sup>-1</sup>, 3.1 × 10<sup>10</sup> gC year<sup>-1</sup> と見積もることが出来 た(Kubo and Kanda, 2020)。測定方法は異なるものの、 1970-1980 年代の一次生産速度(>1,000 gC m<sup>-2</sup> year<sup>-1</sup>; 船 越ら、1974; Shibata and Aruga, 1982; Yamaguchi *et al.*, 1991)と比べて3分の1以下であった。一次生産速度は 大きく減少していたにも関わらず、1970 年代の有機炭素 堆積速度は現在と同程度であった( $4.2 \times 10^{10}$  gC year<sup>-1</sup>; Matsumoto, 1985)。また、堆積物中の炭素安定同位体比

と有機炭素/有機窒素比から有機炭素の起源推定を行っ たところ、東京湾表層堆積物の約70%が東京湾での一次 生産起源,約30%が陸域起源有機炭素であった(Kubo and Kanda, 2017)。これは、東京湾に流入する陸域起源 有機炭素  $(4.9 \times 10^{10} \text{ gC year}^{-1})$ の約 20%が東京湾内で 堆積していることを示している。また、東京湾流入河川 水の有機炭素の分解実験から,陸域起源有機炭素の約 40%は湾内で分解し、残りの約40%が難分解性有機炭素 として東京湾・東京湾外へ輸送されていた (Kubo et al., 2015; Kubo and Kanda, 2020)。この陸域起源難分解性有 機炭素の湾外への輸送は、東京湾表層の蛍光性溶存有機 物観測からも支持できる結果が得られている (Kubo et al., in prep.) 一方, 東京湾内における生物活動による難 分解性有機炭素生成の寄与はわずかであった(Kubo et al., 2015)。過去に東京湾流域河川・東京湾で行われた有 機物の分解実験の結果(Ogura, 1975)とKubo et al. (2015) で行った分解実験の結果を比較すると河川・

東京湾ともに易分解性有機炭素は80%程度,難分解性有 機炭素は30%程度が減少していた。この有機炭素濃度の 減少も流域での下水整備率の増加や下水処理効率の増加 によるものだと考えられる。

現在の東京湾における炭素循環像をまとめると,東京 湾は陸域からの栄養塩と難分解性有機炭素が主に供給さ れており,相対的に少量の易分解性有機炭素が供給され ている。そのため,有機物分解による二酸化炭素供給を 上回る光合成による二酸化炭素消費が起こり,二酸化炭 素の吸収域となっていた(Fig. 3)。一方,1970年代の東 京湾の炭素循環像は栄養塩と難分解性有機炭素に加え, 現在より大量の易分解性有機炭素が流入していた。ま



Fig. 3. Carbon cycling model in Tokyo Bay in (a) 2011–2012 and (b) the 1970s. The illustration was created by the image library, which was free material provided by Integration and Application Network, University of Maryland Center for Environmental Science (ian.umces.edu/imagelibrary/). This figure is modified from Kubo and Kanda (2020).

た,現在と有機炭素堆積速度に大きな変化は見られな かった。そのため、活発な生物活動を上回る有機物分解 が起こり二酸化炭素の放出域となっていた(Fig. 3)。 1970年代の東京湾における炭素循環像は,現在世界の多 くの沿岸海域で報告されている炭素循環像と一致してい る(e.g., Brauko *et al.*, 2020)。そのため、東京湾流域の 下水整備に伴う炭素循環変化は、今後世界の下水整備に 伴い同様の変化が起こる可能性が考えられる。

静岡県西部に位置する浜名湖は、東京湾同様に富栄養 化し流域の一部が都市化されている。浜名湖流域の浜松 市における下水整備率は政令指定都市の中では非常に低 く、令和2年度現在で約80%となっている。そのため、 現在下水整備を進めており,浜名湖では東京湾で起こっ た炭素循環変化が今まさに起こっている可能性がある。 しかし、浜名湖全域における年間を通した観測結果から 浜名湖全域における二酸化炭素分圧は284±136 µatm (平均±標準偏差;n = 336)となっており、年間を通し て大気の二酸化炭素分圧に対して未飽和であった。ま た, 溶存酸素飽和度は108±19%であり年間を通して過 飽和となっていた (Fig. 4)。そのため、浜名湖は東京湾 同様に活発な植物プランクトンの光合成による二酸化炭 素消費が、下種処理場などの陸域からの有機物供給・分 解による二酸化炭素生成の効果を上回っていた。その結 果,浜名湖もすでに二酸化炭素の吸収域となっているこ とが明らかとなった (Kubo et al., 2021)。近年, 流域の 下水整備率の高い大阪湾(藤井ら, 2013; 遠藤ら, 2017) や伊勢湾 (Tokoro et al., 2021) でも東京湾や浜名湖と同 様に二酸化炭素の吸収が報告されている。そのため、日 本の大都市・都市沿岸海域は大部分がすでに二酸化炭素 の吸収域になっていると考えられる。これは、日本の沿 岸海域は淡水流入量が少なく陸域起源有機炭素の流入が 少ないことに加えて、流域での下水処理による結果だと 考えられる。また、二酸化炭素の吸収が報告されている 日本の沿岸海域では、海外の沿岸海域に比べ下水処理場 から流入する化学的酸素要求量(有機炭素量の指標)と 全窒素の比が低くなっている。そのため、沿岸海域に流 入する窒素に比べ相対的に炭素が少ないことが二酸化炭 素の吸収域となる一つの要因と考えられる(Kubo et al., 2021)



Fig. 4. (a) DO%-pCO<sub>2</sub>-Salinity and (b) DO%-pCO<sub>2</sub>-Chl *a* relationship. The color of the plot indicates (a) Salinity and (b) Chl *a*, respectively. Circles in the map are the sampling stations. This figure is modified from Kubo *et al.* (2021).

#### 東京湾の栄養塩循環

東京湾流域から東京湾への窒素・リン負荷は高度経済 成長期に急増し,1970年代前半に増加は一段落した。ア ンモニウム塩濃度は1970年代後半から1980年代前半に かけて再び上昇し,その後は2000年代前半まで減少傾 向であった。硝酸塩濃度は,1980年代後半まで増加を続 け,その後2000年代前半まで横ばいであった。これは, 1970年頃までは流域での下水処理が十分ではなく,未処 理の下水が直接東京湾に流入していた。そのため有機物 から分解して生じたアンモニウム塩が多く含まれており, 濃度が上昇していたと考えられる。その後,下水処理場 が整備されるとともに酸化された硝酸塩が湾内に流入す るようになり濃度が上昇したと考えられる(野村,1995)。 一方,リン酸塩濃度は1970年代前半のピーク以降,2000 年代前半まで減少傾向であることが報告されている(江 角,1979;小川・小倉,1990;神田ら,2008)。これは,合 成洗剤の無リン化により流域からの負荷が大きく減少し たためだと考えられる。1980年代から2000年代前半ま で,窒素・リンともに流域からの負荷量は漸減している と推定されているものの,東京湾の水質改善に反映され ているとする見解は未だに少ない。

東京海洋大学(旧東京水産大学)では1989年1月から 東京湾の2定点[観測点F3(多摩川河口沖;35.51N, 139.82E)および観測点F6(木更津沖;35.42N,139.79E)] で継続して観測を行っている(e.g.,松村ら,2001;神田 ら,2008)。本稿では,1989年1月から2015年3月まで の栄養塩類(アンモニウム塩,硝酸塩,亜硝酸塩,リン 酸塩,ケイ酸)濃度,クロロフィルa濃度の観測結果を 解析に用いている。また,溶存有機態窒素(DON)・リ ン(DOP)測定用サンプル採取は2006年11月から行っ ている。

東京湾の観測点 F3 の表層水における水温,塩分,栄 養塩類,クロロフィル a 濃度,DON,DOPの経年変動 を Fig. 5 に示した。また,全ての観測結果に対して Seasonal Mann-Kendall 傾向検定を行い,増減傾向の有無 を検定した (Table 1, 2; Kubo *et al.*, 2019a)。アンモニウ ム塩と硝酸塩は全ての観測点・観測深度で減少傾向で あった。一方,リン酸塩は表層で減少傾向であった。湾 中央部の観測点 F6 では底層でも減少傾向であった。 リ ン酸塩濃度は 2000 年以降,春~夏の表層水ではしばし ば検出限界以下 (< 0.05  $\mu$ mol L<sup>-1</sup>)であった。クロロ フィル a 濃度は鉛直積算値では減少傾向であったが表層 では有意な増減傾向はみられなかった。DON 濃度は有 意な増減傾向はみられなかったものの,DOP は表層で減 少傾向であった。12 か月移動平均を行った表層の溶存無 機窒素 (DIN)とリン酸塩濃度比は観測期間を通して レッドフィールド比より高かった。TDN (DIN+DON)/ TDP (リン酸塩+DOP) 比も同様にレッドフィールド比 より高く,観測点 F3 表層では有意な増加傾向がみられ た。

これらの結果から、東京湾の栄養塩類濃度は1990年 代前後を転換点として低下に向かい始めた可能性があ る。特に、東京湾流域で1995年から開始された下水の 高度処理が東京湾における栄養塩類濃度減少の要因だと 考えられる。観測期間を通して東京湾流域での下水処理 水量に有意な増減傾向はみられなかったが、高度処理水 量は有意に増加していた。さらに東京湾表層の年平均 DIN 濃度とリン酸塩濃度は東京湾流域での年間高度処 理水量と有意な負の相関関係がみられた(Fig. 6)。1995 年以降、東京湾流域下水処理場における高度処理水量は 年間約  $5.0 \times 10^7 \text{ m}^3$  増加している。DIN・リン酸塩濃度 と高度処理水量から得られた回帰直線から DIN とリン 酸塩濃度の減少率はそれぞれ-1.5 µmol L<sup>-1</sup> year<sup>-1</sup>と  $-0.025 \,\mu$ mol L<sup>-1</sup> year<sup>-1</sup> と求めることができた。これは, Sen's slope (Seasonal Mann-Kendall 傾向検定で有意な 増減傾向が認められた場合に求められる減少率)と概ね 一致していた (DIN;  $-1.2 \mu \text{mol } \text{L}^{-1} \text{ year}^{-1}$ , リン酸塩; -0.019 µmol L<sup>-1</sup> year<sup>-1</sup>)。また、東京湾流域の下水処理 場における全窒素・全リンの処理効率は、1995年にはそ れぞれ 40%・60% であったが 2014 年には、61%・65% に 上昇していた。そのため、東京湾流域の下水処理場にお ける高度処理水量の増加や処理効率の増加に伴う東京湾 への栄養塩類負荷量の減少が東京湾における栄養塩類濃 度減少に大きく寄与していると考えられる(Kubo et al.. 2019a)

一方,光合成量の増加によって表層の栄養塩類濃度が 低下した可能性も考えられる。しかし,植物プランクト ンの現存量を示すクロロフィル a 濃度は表層では有意な 増減傾向はなかったものの,水深 5 m や 10 m 及び鉛直 積算クロロフィル a 濃度は有意に減少していた(Table 1, 2)。このクロロフィル a 濃度の減少は,東京湾における 一次生産量の長期的減少傾向と一致している。そのため, 光合成量の増加により栄養塩類の消費量が増加するとい う説明とは矛盾する。

東京湾における高い DIN/ リン酸塩比より,東京湾の 一次生産は窒素よりもリンが不足する場合が多いと考え



Fig. 5. Long-term changes in water temperature, salinity, nutrients, Chl *a*, and DOM during the 27-yr period at the surface water of Station F3. Solid and dotted lines indicate the 12-month running means and original data, respectively. This figure is modified from Kubo *et al.* (2019a).

**Table 1.** Results of the Mann-Kendall tests for the temporal trends of nutrients, chlorophyll *a*, and DIN/phosphate from January 1989 to December 2015, DON, DOP, and TDN/TDP from June 2006 to December 2015 at station F3. The test was applied to concentrations at each depth and the vertically integrated concentrations. Decreasing and increasing trends with significance are shown as "-" and "+", respectively. "\*\*\*" indicate significance level at  $\alpha$ =001, "\*" at  $\alpha$ =0.01, "\*" at  $\alpha$ =0.05. "±" indicates that no significant trends are detected. This table is modified from Kubo *et al.* (2019a).

Depth	$\mathrm{NH4}^{+}$	NO3 <sup>-</sup>	NO2 <sup>-</sup>	DIN	PO4 <sup>3-</sup>	Si(OH)4	DON	DOP	Chl a	DIN/PO4 <sup>3-</sup>	TDN/TDP
0	_***	_***	_***	_***	_***	_***	±	_**	±	±	+**
5	_***	_***	_***	_***	_***	_***	±	±	_***	±	+**
10	_***	_***	_***	_***	±	±	±	±	_***	±	+*
15	_***	_***	_**	_***	±	±	±	±	±	±	±
20	_***	_***	±	_***	±	±	±	±	±	±	±
Integrated	_***	_***	_***	_***	±	_**	±	±	_**	±	+*

Table 2. Results of the Mann-Kendall tests for the temporal trends of nutrients, chlorophyll *a*, and DIN/phosphate from January 1989 to December 2015, DON, DOP, and TDN/TDP from June 2006 to December 2015 at station F6. The test was applied to concentrations at each depth and the vertically integrated concentrations. Decreasing and increasing trends with significance are shown as "-" and "+", respectively. "\*\*\*" indicate significance level at  $\alpha$ =0.001, "\*\*" at  $\alpha$ =0.01, "\*" at  $\alpha$ =0.05. "±" indicates that no significant trends are detected. This table is modified from Kubo *et al.* (2019a).

Depth	$\mathrm{NH4}^{+}$	NO <sub>3</sub> -	NO <sub>2</sub> -	DIN	PO4 <sup>3-</sup>	Si(OH)4	DON	DOP	Chl a	DIN/PO43-	TDN/TDP
0	_***	_***	_***	_***	_***	_***	±	_***	±	±	±
5	_***	_***	_***	_***	_**	_***	±	±	_***	±	±
10	_***	_***	_***	_***	±	±	±	±	_***	±	±
15	_***	_***	_***	_***	±	±	±	±	_***	±	±
20	_***	_**	±	_***	±	±	±	±	_**	±	±
25	_**	_**	±	_**	_**	±	±	±	±	±	±
Integrated	_***	_**	_**	_**	_**	_**	±	±	_***	±	±

られる。TDN/TDP 比は有意な増加傾向を示しており, 観測点 F3 においてリン酸塩濃度は 2000 年代以降検出限 界以下になることが複数あった。さらに表層水中の DOP 濃度は 2006 年から 2015 年の間に減少したが, DON 濃 度は変化していなかった (Table 1, 2)。DOP は DON と 比べて分解されやすいため, DOP の利用はリン酸塩が枯 渇した春と夏の間に重要になる可能性がある。リン酸塩 枯渇環境では、微生物はアルカリフォスファターゼを使 用して DOP 化合物を利用することができる。東京湾で は、1970 年代 (Taga and Kobori, 1978) から 1980 年代 (Hashimoto *et al.*, 1985) に比べて 10 倍以上高いアルカ リフォスファターゼ活性が 2013 年夏季に検出された



Fig. 6. The relationship between the annual mean volume of advanced treatment effluent and annual mean concentrations of (a) dissolved inorganic nitrogen and (b) phosphate in the surface waters of stations F3 and F6. This figure is modified from Kubo *et al.* (2019a).

(Sim, 2013)。そのため、植物プランクトンの成長はリン 酸塩によって強く制限されていると考えられる。

リン酸塩濃度は観測点 F6 の底層水でも減少していた (Table 2)。東京湾では貧酸素水塊は成層化の進む5月 から9月に主に発生する。その結果,この時期に湾内の 堆積物から大量のリン酸塩が放出される(e.g., 鈴村ら, 2003; Yasui *et al.*, 2016)。東京湾の貧酸素水塊の規模は, 1984年から2002年の間には有意な増減傾向はみられな かった(安藤ら, 2005)。しかし,東京湾の南部(35.458 N 以南)や東部(139.98 E 以東)の貧酸素水塊の規模はその 後の10年間で減少傾向であることが報告されている(安 藤ら、2005: 安藤ら、2014: Ando *et al.*, 2021)。また,東 京湾底層の溶存酸素濃度と全リン濃度の間に逆相関があ ることを示されている(安藤ら, 2005)。そのため,観測 点 F6の底層水中のリン酸塩濃度の有意な減少は,貧酸 素水塊の減少に伴う堆積物中からのリン酸塩溶出量の減 少によるものだと考えられる。東京湾では秋季に成層構 造が崩れ,表層水と底層水が混合する。そのため,夏季 に堆積物から溶出するリン酸塩が減少すると表層・中層 へのリン酸塩の供給が減少する。その結果,水柱全体の リン酸塩濃度の低下を引き起こし,一次生産に対するリ ン制限がより一層加速する可能性がある。

ケイ酸濃度も東京湾表層で減少傾向が見られた (Table 1, 2)。しかし、東京湾のケイ酸濃度と下水の高度処 理水量には有意な相関関係は見られなかったため減少要 因は不明であった (Kubo *et al.*, 2019a)。陸水域・沿岸 海域における物質循環研究は人間活動の影響を強く受け る窒素・リン循環研究に着目したものが多くあるが、ケ イ酸に着目したものは少ない。我が国においてもケイ酸 は天然鉱物から溶け出し供給・輸送されるものと考えら れており、人間活動によって影響を受けないものとされ ている。そのため、各自治体が行っている公共用水域調 査にもケイ酸は分析項目として含まれておらず (e.g., Kubo *et al.*, 2020a),過去のケイ酸濃度のデータはほとんど 蓄積されていない (古米ら, 2012)。

近年、人間活動がケイ酸循環にも影響を与えていることが危惧されている(Tréguer and De La Rocha, 2013)。 その原因は、土地利用変化(Struyf and Conley, 2009) やダムの建設が考えられる(Humborg *et al.*, 1997)。 Humborg *et al.*(1997)はダム建設前後のドナウ川におけ るケイ酸濃度が約14 $\mu$ mol L<sup>-1</sup>から5.4 $\mu$ mol L<sup>-1</sup>へと減少 したことを明らかにした。この変化はダムで水が堰き止 められることにより滞留時間が増加し、珪藻が増殖・沈 降・堆積することにより下流への供給量が減少するため に引き起こされると考えられている。そのため、これま で自然環境の影響によってのみ変動すると考えられてい たが、人為起源による変動も考慮する必要がある。

また,気候変動の影響により降水量や台風の増加に伴う河川水の出水は増加傾向であると予測されている (Scavia *et al.*, 2002; Touma *et al.*, 2019)。従来の気候変 動に伴う降水量増加により陸域からの溶存無機窒素・リ

ン酸塩供給量は現在の推定量のそれぞれ約20% (Sinha et al., 2017),約 3.3 ~ 16% (Jeppesen et al., 2009) 增加 するといわれている。一方,ケイ酸供給量についてはダ ムで除去されるもののほとんど変化しないと報告されて いるが (Seitzinger et al., 2010), これはケイ酸の変動要 因をダムによる減少しか考慮していないためだと考えら れる。これまで降雨・出水後は河川水が雨水に希釈され ケイ酸濃度が低下するという報告 (e.g., Su et al., 2018) があるが、出水時に伴うケイ酸供給量の推定はほとんど なされておらず不明な点が多い。また、近年では気候変 動に伴う海水温の高温化や大気中の熱と水蒸気の増加に 伴い極端気象の悪化が報告されている (Staten et al., 2018; Chauvin et al., 2020)。さらに、このまま温暖化が 進行すると大気循環の変化に伴い、日本上空の偏西風が 北上し台風の移動速度が低下することが予想されている (Yamaguchi et al., 2020)。そのため、出水頻度の増加や 出水規模の増大化が起こる可能性がある。

東京湾におけるケイ酸濃度減少要因を明らかにするた め、東京湾流入河川である荒川の上流から下流にかけて 年間を通した観測を行い、ケイ酸の供給源推定を行っ た。また、2019年10月に日本に上陸した台風19号・21 号による出水時の東京湾へのケイ酸供給量を評価した (Kubo and Yamahira, 2020)。

ケイ酸濃度は年間を通して上流域で低く(130 μmol L<sup>-1</sup> 程度), 中流域・下流域で増加 (240 µmol L<sup>-1</sup> 程度) する 傾向を示していた (Fig. 7)。 荒川上流のダム湖内では少 し下流の観測点に比べケイ酸濃度が低かったため、従来 考えられている通り荒川上流のダム湖内でも活発な生物 活動によりケイ酸が減少していたと考えられる。しかし, 減少量は10 µmol L<sup>-1</sup>程度であったため中流域・下流域 へのダムでのケイ酸除去の影響は小さいと考えられる。 一方, 観測月に関わらず荒川中流域でケイ酸濃度の上昇 がみられた (Fig. 7)。上昇傾向がみられた観測点の上流 側には流域最大の新河岸水再生センターがある。上水道 や工場用水の一部は地下水をくみ上げて利用している。 最終的にこれらの排水は下水処理場に流入し,処理水が 河川に放流されることで下流のケイ酸濃度が増加するこ とが報告されている (井上・赤木, 2006)。これは、一般 的に地下水には高濃度のケイ酸が含まれているためであ る。また、荒川上流からの河川流量と流域からの下水処

理放流水量は約1:1であることが知られている (Kubo et al., 2015)。実際に, 荒川中流域のケイ酸濃度は荒川上 流水と下水処理放流水 (300 μmol L<sup>-1</sup> 程度) における平





均濃度と同程度であった。そのため, 荒川中流域におけ る河川水中のケイ酸濃度の増加は下水処理水の流入で説 明することができる。

地下水流入量の増減により河川や東京湾のケイ酸濃度 が変化する可能性がある。しかし、東京都内では1990 年代から地下水のくみ上げ量はほぼ横這い状態にあり、 近年の東京湾のケイ酸量に対する影響は小さいと考えら れる(東京都環境局,2006)。そのため、東京湾流域にお けるケイ酸の主要な供給源は下水処理場であることが分 かったが、東京湾での長期的な減少要因はいまだに不明 である。

出水時のケイ酸濃度は平水時に比べ20%程度低い値で あり、雨水によって河川水が希釈されるため濃度が低下し ていたと考えられる (Fig. 7)。年間 (2018年10月1日から 2019年9月30日)と出水時(2019年10月12~26日の15 日間)のケイ酸負荷量推定を層別抽出における比推定 (Beal's unbiased ratio estimator; Fulweiler and Nixon, 2005) を用いて行った結果,年間で1.5×10<sup>8</sup> mol year<sup>-1</sup>, 出水時が 1.2×10<sup>8</sup> mol 15days<sup>-1</sup> となり 15 日間で年間の負 荷量に匹敵する量となっていた (Kubo and Yamahira. 2020)。Su et al. (2018)は、出水期間はケイ酸塩鉱物の 風化に伴うケイ酸供給より土壌水流出によるケイ酸供給 の寄与が大きくなることを報告している。そのため、出 水による風化の促進や土壌水の流出が大きかったと考え られる。大規模出水時における物質輸送データは、今後 世界中で起こりうる大規模出水に伴う沿岸海域における 物質循環変化推定のために今後も継続して行いデータの 蓄積を行っていく必要がある。

#### 4. まとめ

東京湾や流域河川では流域の下水整備・下水処理効率 の増加に伴い粒状有機炭素・易分解性溶存有機炭素の供 給量が大幅に減少していた。一方,難分解性溶存有機炭 素には大きな変化が見られなかった。流域下水処理場で 1995年から開始された高度処理に伴い栄養塩類濃度(溶 存無機窒素・リン酸塩濃度)の減少も起こっていた。現 在の東京湾は世界の沿岸海域とは異なり二酸化炭素の吸 収域となっていた。これは、下水処理場による栄養塩類 除去を上回る粒状有機炭素・易分解性有機炭素の除去の 寄与が相対的に大きい結果だと考えられる。また,1970 年代の東京湾における大気-海洋間の二酸化炭素収支 は,現在の世界の沿岸海域同様大気への放出域となって いた。そのため,東京湾流域の下水整備に伴い起こった 二酸化炭素の放出域から吸収域への炭素循環変化は,流 域での下水整備進行に伴い世界の都市沿岸海域で起こる 可能性がある。

### 謝 辞

この度は、日本海洋学会岡田賞という大変名誉ある賞 をいただきまして、誠にありがとうございました。それ と同時に、今後もますます海洋学の発展のために精進し ていきたいと、身の引き締まる思いです。賞受賞にあた り、学会賞選考委員の先生方、推薦してくださった先生 をはじめ関係の先生方に心より感謝申し上げます。この ような伝統ある賞を頂けたのは、学部生時代から現在ま でに研究を実施した東京海洋大学ならびに静岡大学に所 属される方々をはじめとした多くの方々のご指導、ご助 力のおかげです。

東京海洋大学・神田穣太先生には学部4年生の研究室 配属以降,博士研究員時代までの9年間大変お世話にな りました。研究指導だけではなく沿岸海域における物質 循環研究を行っていく楽しさを教えていただきました。 東京海洋大学・川合美千代先生,橋濱史典先生には修士 論文・博士論文・投稿論文を書くにあたり多くの研究指 導をしていただきました。東京海洋大学の化学海洋学研 究室・浮遊生物学研究室・生物海洋学研究室の皆様には 乗船調査航海で大変お世話になりました。特に、前田洋 作氏(現・JAMSTEC)には二酸化炭素分圧や pH の連続 測定方法について教えていただきました。東京海洋大学・ 船舶海洋オペレーションセンターの皆様には観測機器や シップタイムの調整など大変お世話になりました。静岡 大学の宗林留美先生には静岡大学着任後から研究室運営 に対して非常にお世話になっています。また、学生時代 は学内の練習船を使って学内の方々と一緒に観測・研究 を行うことが多かったですが、港湾空港技術研究所・桑 江朝比呂先生に誘っていただいた共同研究は非常に良い 刺激となりました。桑江先生をはじめ、東京大学・小川 浩史先生や産業技術総合研究所・鈴村昌弘先生にご意見 をいただき,ディスカッションができたのは非常に楽し かったです。また,博士研究員時代から現在まで,北海 道大学・山下洋平先生には蛍光性溶存有機物の分析・解 析で大変お世話になっています。

本稿に詳細は記述していませんが,2011年の東日本大 震災に伴う福島第一原子力発電所事故以降は,福島県沖 や東京湾で放射性セシウムの分布や動態について研究を 行ってきました (Kubo *et al.*, 2018; Kubo *et al.*, 2019b; Kubo *et al.*, 2020b)。研究を行うにあたり東京海洋大学・ 石丸隆先生や伊藤友加里技術専門職員には放射性セシウ ムの分析や研究の取りまとめで大変お世話になりました。

全ての研究成果において練習船・研究船での調査航海 は必要不可欠でした。東京海洋大学練習船「青鷹丸」「ひ よどり」「海鷹丸」「神鷹丸」,北海道大学水産学部練習船 「おしょろ丸」や静岡県「はまな」の船長並びに乗組員の 皆様に感謝申し上げます。特に学部4年生から約7年間 ほぼ毎月乗っていた「青鷹丸」には本当にお世話になり ました。2021年10月で約35年の歴史に幕をおろしてし まうことは非常に残念ですが、「ひよどり」でも継続して 東京湾の観測が行われていくことを願っています。

また,私の研究は現在の東京湾と過去の東京湾の結果 を比較して,物質循環変化を推定したものが多くありま す。これは,今まで東京湾で物質循環研究を行ってきて くださった皆様のおかげです。私のとってきたデータも 将来の沿岸海洋学研究を行っていく人々に貢献できれば と思っています。

最後に、長い学生生活を文句も言わずに見守り支えて くれた妻と両親には大変感謝しています。そして、現在 の私の生活のモチベーション・癒しである愛犬(紬;バー ニーズマウンテンドッグ)に感謝しています。

#### References

- 安藤晴夫・柏木宜久・二宮勝幸・小倉久子・川井利雄 (2005): 1980年代以降の東京湾の水質汚濁状況の変遷について.東京都環境科学研究年報, 141-150.
- 安藤晴夫・柏木宜久・和波一夫・石井裕一 (2014):東京湾における底層DO データの解析.東京都環境科学研究年報,94-95.
- Ando, H., H. Maki, N. Kashiwagi, and Y. Ishii (2021): Long-term change in the status of water pollution in Tokyo Bay: recent trend of increasing bottom water dissolved oxygen concentrations. J. Oceanogr., 77, 843-858.
- Borges, A. V. (2005): Do we have enough pieces of the jigsaw to integrate

CO<sub>2</sub> fluxes in the coastal ocean? Estuaries, 28, 3-27.

- Borges, A. V., and G. Abril (2011): Carbon dioxide and methane dynamics in estuaries. p.119–161. In *Treaties on estuarine and coastal science*. 5, edited by E. Wolanski, E. and D. McLusky, Academic Press.
- Brauko, K. M., et al. (2020): Marine heatwaves, sewage and eutrophication combine to trigger deoxygenation and biodiversity loss: A SW Atlantic case study. Front. Mar. Sci., 7, 590258.
- Chauvin, F., R. Pilon, P. Palany, and A. Belmadanl (2020): Future changes in Atlantic hurricanes with the rotated-stretched ARPEGE-Climat at very high resolution. *Clim. Dyn.*, 54, 947–972.
- Chen, C. T. A., and A. V. Borges (2009): Reconciling opposing views on carbon cycling in the coastal ocean: Continental shelves as sinks and near-shore ecosystems as sources of atmospheric CO<sub>2</sub>. *Deep Sea Res. Part II*, 56, 578-590.
- Chen, C. T. A., T. H. Huang, Y. C. Chen, Y. Bai, X. He, Y. Kang (2013): Air-sea exchanges of CO<sub>2</sub> in the world's coastal seas. *Biogeosciences*, 10, 6509–6544.
- 江角比出郎 (1979): 東京湾の水質 (1972-76). 沿岸海洋研究ノート, 16, 101-105.
- 遠藤徹・嶋野純平・酒井大樹・藤原隆一 (2017): 大阪湾奥部における pCO<sub>2</sub> の鉛直分布と大気海水間のCO<sub>2</sub>交換の関係. 土木学会論文集B2(海岸 工学), **73**, I\_1231-I\_1236.
- 藤井智康・藤原建紀・中山浩一郎 (2013): 大阪湾東部の二酸化炭素の放出・ 吸収量、土木学会論文集B2(海岸工学), 69, 1111-1115.
- 船越真樹・中本信忠・宝月欣二 (1974):東京湾の基礎生産と赤潮の役割.人間生存と自然環境,115-128.
- 古米弘明・佐藤和明・山本晃一 (2012): ケイ酸ーその由来と行方. 技報堂出版, 194 pp.
- Frankignoulle, M., I. Bourge, C. Canon, and P. Dauby (1996): Distribution of surface seawater partial CO<sub>2</sub> pressure in the English Channel and in the Southern Bight of the North Sea. Cont. Shelf Res., 16, 381-395.
- Frankignoulle, M., G. Abril, A. Borges, I. Bourge, C. Canon, B. Delille, E. Libert, and J.-M. Theate (1998): Carbon dioxide emission from European estuaries. *Science*, 282, 434–436.
- Hashimoto, S., K. Fujiwara, and K. Fuwa (1985): Relationship between alkaline phosphatase activity and orthophosphate in the present Tokyo Bay. J. Environ. Sci. Health Part A, 20: 781-809.
- Humborg, C., V. Ittekkot, A. Cociasu, and B. Bodungen (1997): Effect of Danube River dam on Black Sea biogeochemistry and ecosystem structure. *Nature*, 386, 385-388.
- 井上直也・赤木右 (2006): 多摩川におけるケイ素収支にあたえるダムおよ び下水処理場の影響, 地球化学, 40, 137-145.
- Jeppesen, E., B. Kronvang, M. Meerhoff, M. Søndergaard, K. M. Hansen, H. E. Andersen, T. L. Lauridsen, L. Liboriussen, M. Beklioglu, A. Özen, and J. E. Olesen (2009): Climate change effects on runoff, catchment phosphorus loading and lake ecological state, and potential adaptations, J. Environ. Qual., 38, 1930-1941.
- Jiang, L. Q., W. J. Cai, and Y. Wang (2008): A comparative study of carbon dioxide degassing in river- and marine-dominated estuaries. *Limnol. Oceanogr.*, 53, 2603–2615.
- 神田穣太・チョムタイソンパチャラー・堀本奈穂・山口征矢・石丸隆 (2008): 東京湾2定点における栄養塩類濃度の経年変動.水環境学会誌, 31, 559-564.
- Kubo, A. and J. Kanda (2017): Seasonal variations and sources of sedimentary organic carbon in Tokyo Bay. Mar. Poll. Bull., 114, 637-643.

- Kubo, A., and J. Kanda (2020): Coastal urbanization alters carbon cycling in Tokyo Bay. Sci. Rep., 10, 20413.
- Kubo, A., and N. Yamahira (2020): Super typhoon induced high silica export from Arakawa River, Japan. *Environ. Sci. Poll. Res.*, 27, 36838-36844.
- Kubo, A., M. Yamamoto-Kawai, and J. Kanda (2015): Seasonal variations in concentration and lability of dissolved organic carbon in Tokyo Bay. *Biogeosciences*, **12**, 269–279.
- Kubo, A., Y. Maeda, and J. Kanda (2017): A significant net sink for CO<sub>2</sub> in Tokyo Bay. *Sci. Rep.*, 7, 44355.
- Kubo, A., K. Tanabe, G. Suzuki, Y. Ito, T. Ishimaru, N. Kasamatsu-Takasawa, D. Tsumune, T. Mizuno, Y. W. Watanabe, H. Arakawa, and J. Kanda (2018): Radioactive cesium concentrations in coastal suspended matter after the Fukushima nuclear accident. *Mar. Poll. Bull.*, 131, 341-346.
- Kubo, A., F. Hashihama, J. Kanda, N. Miyazaki-Horimoto, and T. Ishimaru (2019a): Long-term variability of nutrient and dissolved organic matter concentrations in Tokyo Bay between 1989 and 2015. *Limnol. Oceanogr.*, 64, S209-S222.
- Kubo, A., K. Tanabe, Y. Ito, T. Ishimaru, H. Arakawa, and J. Kanda (2019b): Spatial variation in sedimentary radioactive cesium concentrations in Tokyo Bay following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Chemosphere*, 235, 550–555.
- Kubo, A., R. Imaizumi, and S. Yamauchi (2020a): Lake water phosphate reduction with advanced wastewater treatment in watershed, at Lake Hamana, Shizuoka Prefecture, Japan, from 1995 to 2016. *Environ. Sci. Poll. Res.*, 27, 2120–2130.
- Kubo, A., K. Tanabe, Y. Ito, T. Ishimaru, M. Otsuki, H. Arakawa, W. Y. Watanabe, H. Miura, D. Tsumune, and J. Kanda (2020b): Changes in radioactive cesium concentrations from 2011 to 2017 in Fukushima coastal sediments and relative contributions of radioactive cesium-bearing microparticles. *Mar. Poll. Bull.*, 161, 111769.
- Kubo, A., K. Yoshida, and K. Suzuki (2021): Seasonal and spatial variations in the partial pressure of carbon dioxide in a eutrophic brackish lake, Lake Hamana, Japan. J. Oceanogr., doi: 10.1007/s10872-021-00621-6
- Kubo, A., Y. Yamashita, F. Hashihama, and J. Kanda (in prep)
- Kuwae, T., J. Kanda, A. Kubo, F. Nakajima, H. Ogawa, A. Sohma, and M. Suzumura (2016): Blue carbon in human-dominated estuarine and shallow coastal systems. *AMBIO*, 45, 290–301.
- Kuwae, T., J. Kanda, A. Kubo, F. Nakajima, H. Ogawa, A. Sohma, and M. Suzumura (2019): CO<sub>2</sub> uptake in the shallow coastal ecosystems affected by anthropogenic impacts. p. 295–319. In *Blue Carbon in Shallow Coastal Ecosystems*. Chapter 11, edited by T. Kuwae, and M. Hori, Springer, Singapore.
- 前田洋作 (2008): 貧栄養海域表層および東京湾表層の溶存 CO<sub>2</sub> に関する研 究,東京海洋大学修士学位論文, 91 pp.
- Matsumoto, E. (1985): Budgets and residence times of nutrients in Tokyo Bay. p. 127-136. In *Marine and Estuarine Geochemistry*. Edited by A. C. Sigleo, and A. Hattori, Lewis Publishers, Chelsea, UK.
- 松村剛・堀本奈穂・許耀霖・石丸隆 (2001): 東京湾における栄養塩の動向 (1989-1998年), La mer, 39, 19-32.
- 松村剛・石丸隆・柳哲雄 (2002): 東京湾における窒素とリンの収支. 海の研 究, 11, 613-630.
- Nellemann, C., S. Hain, and J. Alder (2008): In dead water: merging of climate change with pollution, over-harvest, and infestations in the

world's fishing grounds. United Nations Environment Programme GRID-Arendal, **64**, 61 pp.

- 日本下水道協会 (2020): 下水道全国データベース. https://portal.g-ndb.jp/ portal/
- 野村英明 (1995): 東京湾における水域環境構成要素の経年変化, La mer, 33, 107-118.
- 小川浩史・小倉紀雄 (1990): 東京湾における水質変動 (1980-1988年). 地球 化学, 24, 43-54.
- Ogura, N. (1975): Further studies on decomposition of dissolved organic matter in coastal seawater. *Mar. Biol.*, **31**, 101-111.
- Scavia, D., J. C. Field, D. F. Boesch, R. W. Buddemeier, V. Burkett, D. R. Cayan, M. Fogarty, M. A. Harwell, R. W. Howarth, C. Mason, D. J. Reed, T. C. Royer, A. H. Sallenger, and J. G. Titus (2002): Climate change impacts on U. S. coastal and marine ecosystems. *Estuaries*, 25, 149–164.
- Seitzinger, S. P., E. Mayorga, A. F. Bouwman, C. Kroeze, A. H. W. Beusen, G. Billen, G. Van Drecht, E. Dumont, B. M. Fekete, J. Garnier, and J. A. Harrison (2010): Global river nutrient export: A scenario analysis of past and future trends. *Global Biogeochem. Cycles.*, 24.
- Shibata, Y., and Y. Aruga (1982): Variations of chlorophyll a concentration and photosynthetic activity of phytoplankton in Tokyo Bay. La mer, 20, 75-92.
- Sim, S. (2013): Seasonal variation in alkaline phosphatase activity in Tokyo Bay. Master Thesis at Tokyo University of Marine Science and Technology, 80 pp.
- Sinha, E., A. M. Michalak, and V. Balaji (2017): Eutrophication will increase during the 21st century as a result of precipitation changes, *Science*, 357, 405-408.
- Staten, P. W., J. Lu, K. M. Grise, S. M. Davis, and T. Birner, T. (2018): Re-examining tropical expansion. *Nat. Clim. Change*, 8, 768-775.
- Struyf, E., and D. J. Conley (2009): Silica: An essential nutrient in wetland biogeochemistry. *Front. Ecol. Environ.*, 7, 88–94.
- Su, N., S. Yang, and X. Xie (2018): Typhoon-Enhanced Silicon and Nitrogen Exports in a Mountainous Catchment. *Journal of Geophysical Re*search: Biogeosciences, **123**, 2270–2286.
- 鈴村昌弘・國分治代・伊藤学 (2003): 東京湾における堆積物一海水間のリ ンの挙動. 海の研究, 12, 501-516.
- Taga, N., and H. Kobori (1978): Phosphatase activity in eutrophic Tokyo Bay. Mar. Biol., 49: 223–229.
- Takahashi, T. (1961): Carbon dioxide in the atmosphere and in Atlantic Ocean water. J. Geophys. Res., 66, 477-494.
- Takahashi, T., *et al.* (2009): Climatological mean and decadal change in surface ocean pCO<sub>2</sub>, and net sea-air CO<sub>2</sub> flux over the global oceans. *Deep Sea Res. Part II*, **56**, 554-577.
- Tokoro, T., S. Nakaoka, S. Takao, T. Kuwae, A. Kubo, T. Endo, and Y. Nojiri (2021): Contribution of biological effects to carbonate-system variations and the air-water CO<sub>2</sub> flux in urbanized bays in Japan. J. Geophys. Res. Oce., **12**, e2020JC016974. https://doi.org/ 10.1002/ essoar.10505162.1.
- 東京都環境局 (2006):東京都の地盤沈下と地下水の現状検証について一地 下水対策検討委員会検討のまとめ,東京都環境局自然環境部,1-75.
- Touma, D., S. Stevenson, S. J. Camargo, D. E. Horton, and N. S. Diffenbaugh (2019): Variations in the intensity and spatial extent of tropical cyclone precipitation. *Geophys. Res. Lett.*, 46, 13992–14002.
- Tréguer, P., and C, L. De La Rocha (2013): The world ocean silica cycle.

Annu. Rev. Mar. Sci., 5, 477-501.

- Wanninkhof, R., et al. (2013): Global ocean carbon uptake: magnitude, variability and trends. Biogeosciences, 10, 1983-2000.
- Wollast, R. (1991): The coastal organic carbon cycle: fluxes, sources and sinks. p. 365-382. In *Ocean margin processes in global change*. Edited by R. F. C. Mantoura, J. M. Martin, and R. Wollast, Wiley.
- Yamaguchi, M., J. C. L. Chan, I. Moon, K. Yoshida, and R. Mizuta (2020) Global warming changes tropical cyclone translation speed. *Nat. Commun.*, **10**, 1–7.
- Yamaguchi, Y., H. Satoh, and Y. Aruga (1991) Seasonal changes of organic carbon and nitrogen production by phytoplankton in the estuary of river Tamagawa. *Mar. Poll. Bull.*, 23, 723–725.
- Yasui, S., J. Kanda, T. Usui, and H. Ogawa (2016) Seasonal variations in pore water dissolved organic matter and nutrients in inner part sediments in Tokyo Bay. J. Oceanogr., 72, 851-866.

## The carbon and nutrient dynamics in Tokyo Bay: sewage maintenance alters carbon and nutrient cycling

## Atsushi Kubo<sup>†</sup>

#### Abstract

This article summarizes results of the study conducted on the cycling of carbon and nutrients in Tokyo Bay. Extensive surveys on the partial pressure of  $CO_2$  in the bay showed that the bay acts as a strong net sink for atmospheric  $CO_2$ , as a result of active photosynthesis driven by nutrient loading from the land, which overwhelms the decomposition of terrestrial organic matter. This is because sewage treatment plants in the watershed remove most of the labile organic carbon and provide mainly recalcitrant organic carbon to the bay. Furthermore, nutrient concentrations in the bay significantly decreased from January 1989 to December 2015. These reflect the reduced loading of nutrients into the bay due to the implementation of advanced wastewater treatment techniques.

Key words: Carbon budget, nutrients, pCO2, urbanization, sewage treatment plant

(Corresponding author's e-mail address: kubo.atsushi@shizuoka.ac.jp) (Received 10 November 2021: accepted 17 January 2022) (doi: 10.5928/kaiyou.31.1\_23) (Copyright by the Oceanographic Society of Japan, 2022)

† Shizuoka University, Faculty of Science, Department of Geoscience, 836 Ohya, Suruga-ku, Shizuoka 422-8529, Japan e-mail: kubo.atsushi@shizuoka.ac.jp