千葉県九十九里浜の天然ガス(上ガス)の湧出する潮溜まりの白濁現象

Formation mechanism of cloudy water in a tidal pool on the foreshore, Kujukuri-hama, Chiba, central Japan

Abstract

吉田 剛* 風岡 修* 竹内美緒**
楠田 隆* 古野邦雄* 香川 淳*
酒井 豊*

Takeshi Yoshida*, Osamu Kazaoka*,
Mio Takeuchi**, Takashi Kusuda*,
Kunio Furuno*, Atsushi Kagawa* and
Yutaka Sakai*

2011年2月17日受付.

2011年11月17日受理.

* 千葉県環境研究センター地質環境研究室
Research Institute of Environmental Geology,
Chiba Prefectural Environmental Research
Center, 3-5-1 Inagekaigan, Mihama-ku, Chi-
ba City 261-0005, Japan

** 産業技術総合研究所 地圏資源環境研究部門
Institute for Geo-resources and Environment,
National Institute of Advanced Industrial Sci-
ence and Technology, 16-1 Onogawa, Tsuku-
ba, Ibaraki 305-8569, Japan

Corresponding author; T.Yoshida,
t.yshd61@pref.chiba.lg.jp

In the Kujukuri-hama area of Chiba, Japan, Holocene series unconformably overlie the Pleistocene Kazusa Group, which was deposited mainly in a deep-sea environment and contains natural gas (methane) dissolved in water. These conditions allow gas to emerge from the ground as it moves upward through faults and sandy layers.

In May and August 2007, water in tidal pools at central and southern Kujukuri-hama became cloudy. A field survey revealed that methane gas was seeping into the pools where the cloudiness occurred and that bluish gray sand, the color of which indicates reducing conditions, occurs within the area of the gas seep. Yellow groundwater was found immediately beneath the area of bluish gray sand, and the groundwater became cloudy as it emerged into the tide pools.

Analyses of the pool water revealed a state of sulfate reduction (anoxic diagenesis) and that the cloudiness resulted from the presence of elemental sulfur. Therefore, the water in the tidal pools became yellow or cloudy in the presence of polysulfide ions or due to irregular reflections of sunlight induced by colloidal sulfur.

The 16S rRNA genes of anaerobic methanotrophic archaea belonging to ANME-1 were detected from yellow groundwater near the surface of a sandy beach, raising the possibility that anaerobic oxidation was involved in the reduction of the sulfate ions. Based on these findings, it is proposed that ANME-1 are active within methane gas seeping from the Kazusa Group to the surface, resulting in reducing conditions.

Keywords: tidal pool, yellow groundwater, methane gas, seepage, anaerobic methanotrophic archaea-1

はじめに

2007年5月に千葉県の九十九里浜の南部に位置する長生村の一松海岸南方(Fig. 1c)で大潮の干潮時に潮溜まりが白濁する現象が住民により発見された(吉田ほか, 2007, 2008c). 潮溜まりが乳白色となることや、硫化水素臭がすることから、住民が不安に感じたことによる通報であった. また、同年8月、同様の現象が大網白里町の海岸(Fig. 1b)においても大潮の干潮時に確認された(Fig. 2; 2009年4月撮影). これらの通報から直ちに行った現地調査の中で、白濁現象の起こった海浜にガスの湧出があることがわかった(吉田ほか, 2008a, b).

千葉県東部の九十九里平野には、三浦層群や上総層群に含有するかん水から遊離した天然ガス(メタンガス)が地表まで上昇している. このため、この地域の水田や河川ではガスの発生しているところを泡によって確認できる. この地域の

人々は地表に湧出するガスを「上ガス」と呼んでおり、家庭で燃料として使用しているところもある. 一方、水田にこの天然ガスが湧き出すところでは、稲の実が成長しない現象や、稲が枯れてしまう現象が起こり、経済的な被害が出ており、土壌層が青灰色を呈していることも確認されている(楡井ほか, 1976). 上ガスの発生するところに気密性のよい建造物がある場合、空気よりも軽いメタンガスが建物内に充満し、引火による爆発事故も報告されている.

このように、今回発見された潮溜まりの白濁現象は、海岸における上ガスの影響の可能性があるため、その現象の把握とメカニズムの解明を目的に調査研究を行った.

調査地の地質

調査地は、千葉県大網白里町の九十九里平野から太平洋に注ぐ真亀川の河口から南に約900 mの地点(東経140°25'34", 北緯35°29'28")である(Fig. 1b).

Fig. 1. Index and locality maps of the study area. (a) Map of the study area and geological map of Chiba prefecture (modified from Nirei et al., 1987). (b) Topographic map of the study area in Ooamishirasato Town. (c) Topographic map showing the study site of Yoshida et al. (2008a) in Chosei village. Gray circles indicate gas seeps. Topographic maps are from the 1:25,000 “Shitengi” and “Torami” maps published by the Geospatial Information Authority of Japan.

Fig. 2. Cloudy water in a tidal pool on the foreshore at Ooamishirasato Town (ebb tide on April 27, 2009). Arrow shows cloudy water in a tidal pool.

千葉県の地下数百 m～千数百 m には天然ガス(メタンガス)を含む地下水が存在する。この地下水を含有する地層は、中期中新世–後期鮮新世の三浦層群と前期更新世–中期更新世のタービダイトを主体とする上総層群である。

千葉県の九十九里地域は、南関東ガス田の東縁部に位置し、天然ガスを含有する上総層群を直接完新統が覆っている。このため、多くの場所で天然ガスが地表に出やすい条件にある。地下水中の天然ガスは、上総層群に発達する断層や砂層中を移動して地表に湧出していると考えられている(楡井・矢田, 1978)。

この調査地の地質層序は調査地より約 200 m 西に位置する地点の深度約 1500 m におよぶ地質柱状図(旭硝子株式会社, 1980)によると、上総層群は下位より浪花層、大原層、黄和田層、大田代層、梅ヶ瀬層、国本層が重なり、不整合面をもって完新統が重なる(Fig. 3)。この地域の層群は北西方向に傾斜し、東京湾にむけて出現深度が深くなる。調査地付近では、この上総層群の走向は北北東–南南西であり、傾斜は 2°~4°である(旭硝子株式会社, 1980)。

この地域の沖積層の厚さは、17.5~20 m と考えられている(風岡ほか, 2006a, 風岡ほか, 2006b)。この地域では黄和田層、大田代層、梅ヶ瀬層が天然ガスの包含層として開発されている。

調査方法

調査は、2008 年 5 月 22 日、6 月 19、20 日、7 月 2、3、4 日、12 月 12 日、2009 年 1 月 11 日、2 月 9 日、3 月 30 日、4 月 27、28 日、5 月 26 日、7 月 22 日、2010 年 1 月 29 日に行った。大潮の一日に二度ある干潮時の中でもっとも潮が引く、3、4、5、6、7 月は新月の日に近い日中、12、1 月は満月の日に近い深夜に行った。ただし、2008 年 9 月と 11 月は調査地の見学調査のみを行い、2010 年 1 月は微生物の定性分析用試料の採取を行った。

Fig. 3. Columnar section of the stratigraphy in the study area (modified from AGC, 1980). The location of the columnar section is shown in Fig. 1(b).

1. 構成地層と潮溜まりの観察

ガス湧出地点等の分布域を調査する際や観測井作成時に、海浜を構成する地層を調査し、潮溜まりの観察も行った。吉田ほか(2008a, b, 2009a, b)でガス湧出域付近の表面や地下には還元色を呈する濃青灰色砂が存在することがわかっており、これらの地層の様子を観察した。2009 年 4 月 28 日の調査では、打撃によって掘削し地層のサンプリングを行う HD サンプラー(東邦地下鋼機)を用いて、濃青灰色砂の分布する一地点の深度 1.5~2.0 m の試料を採取し観察を行った。

2. ガス湧出地点・濃青灰色砂・黄色地下水の分布・地形測量調査

ガス湧出地点・濃青灰色砂・黄色地下水の分布域とその変化を求めるために測量調査を行った。2008 年 5 月はこの調査を歩測で行い、その他の調査日は TOPCON のトータルステーション(CS-101F)で求めた。潮が引いている時間が短い迅速に調査せねばならないことから、これらの分布は主に外縁部を測定した。濃青灰色砂と黄色地下水の分布は、スコップによって深度 0.5 m 程度を掘削し、その深度までに濃青灰色砂や黄色地下水が現れた場合に分布域としてプロットした。ただし、2008 年 5、6、12 月の調査では濃青灰色砂の分布域の測量は省略した。

これらの分布域の測量と同時に分布域以外の地形の測量も行った。さらに、地形・地下水面の標高(東京湾中等潮位 T.

P.)と潮汐による海水面の標高を比較するために、大網白里町にある水準点番号 77(Fig. 1b)の標高 T. P. 2.2076 m (2008 年 1 月 1 日)から調査地の基準杭(BM-1, 2)まで測量し標高を求めた。

3. メタンガスの定性・定量・湧出量の測定

湧出するガスの定性・定量分析を行った。機器はポータブルコンピネーション HC/O₂ 測定器(RIKEN KEIKI MODEL RX-415)を使用した。この機器は、非分散型赤外線式により可燃性ガス(メタン)を volume % で測定できる。

ガスの湧出量は、メスシリンダーによる水上置換で湧出孔一つ当たりのガス流量を求めた。ガスの湧出している箇所を地下水面まで掘削し、メスシリンダー 200 ml に水上置換で捕集し求めた。

4. 水質調査

黄色地下水と海水の水質を比較するために各分析を行った。

酸化還元電位(ORP)、電気伝導度(EC)、pH、塩分濃度、水温、溶存酸素濃度(DO)の測定を行った。使用した機器は、酸化還元電位(ORP)の測定には HORIBA の pH メータ(D-55)を用い、電気伝導度(EC)、pH、塩分濃度、水温、溶存酸素濃度(DO)の測定には東亜 TDK のポータブル多項目水質計(WQC-24)を用いた。

陽イオン(Na⁺, NH₄⁺, K⁺, Mg²⁺, Ca²⁺)、陰イオン(Cl⁻, NO₂⁻, Br⁻, NO₃⁻, PO₄³⁻, SO₄²⁻)については、イオンクロマトグラフィー分析を行った。手法は、検液を孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過し、陽イオンは DIONEX (DX-120, カラム IonPac[®]CS16, プレカラム CG16)を使用し、溶離液 36 mM CH₃SO₃H を用いた。陰イオンは DIONEX (DX-120, カラム IonPac[®]AS12A, プレカラム AG12A)を使用し、混合溶離液は 2.7 mM Na₂CO₃ および 0.3 mM NaHCO₃ を用いた。

総アルカリ度については、メチルレッド 0.02 g およびブロムクレゾールグリーン 0.1 g をエチルアルコール(95v/v%) 100 ml に溶かした MR 混合指示薬を検液に滴下し、0.02 n 硫酸で中和測定した。

また、前浜と砂丘の境界付近の地下水位と地下水質を求めるために観測井(W-200807)を設置し、電気伝導度(EC)、pH、塩分濃度、水温、溶存酸素濃度(DO)の測定を行った。機器は東亜 TDK のポータブル多項目水質計(WQC-24)を用いた。

5. 白濁物質の元素分析

潮溜まりの白濁物質の組成を求めるために元素分析を行った。孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターを用いて白濁水をろ過し、そのフィルター上の残渣をエネルギー分散型蛍光 X 線分析装置(JEOL JSX-3100R II)にて元素分析を行った。測定条件は、管電圧 30.0 kV、管電流 1.0 mA、ライプタイム 300 秒、チャンバーの雰囲気は大気で測定を行った。定量は FP 法で行った。

6. 黄色地下水・海水・地下水の微生物の定性分析

メタンが湧出していると考えられたことから、メタンの消費に関わる微生物が白濁等に関与している可能性が考えられた。

海水やガス湧出域の中でも濃青灰色砂の分布の有無によってメタン酸化微生物の存在の有無や種類が異なることが予測されるため、黄色地下水、海水、ガス湧出域であるが濃青灰色には変化していない淡い褐灰色の砂層中の無色の地下水についてメタン酸化細菌ならびにメタン酸化古細菌の定性分析を行った。

水試料 200 ml を孔径 0.2 μm のフィルターを用いて現場でろ過し、菌体を捕集した。冷蔵にて持ち帰ったフィルターは冷凍保管した。フィルター上の菌体を 50 ml の遠心管内で 25 ml の水に懸濁させ、遠心分離(5,000 rpm × 20 分)で回収した。菌体からの DNA 抽出は、FastDNA Spin Kit For Soil (Q-BIO gene, Carlsbad, CA, USA) を用いて行った。好氣的メタン酸化細菌の検出はメタン酸化酵素遺伝子(*pmoA* 遺伝子)の検出により行い、A189f (Holmes et al., 1995), mb661r (Costello and Lidstrom, 1999)のプライマーセットを用いた。嫌氣的メタン酸化古細菌として、ANME-1 の検出には ANME1-395F, ANME1-1417R のプライマーセット(Miyashita et al., 2009), ANME-2 の検出には古細菌特異的プライマー A1F (Embley et al., 1992) と EelMS932 (Boetius et al., 2000) を用いた。PCR には TaKaRa Ex Taq HS (タカラバイオ株式会社, 京都)を用いた。サーマルサイクラー条件は、98 °C 10 秒, 56 °C (*pmoA* と ANME-1 の場合, ANME-2 には 59 °C) 30 秒, 72 °C 1 分を 37 サイクルである。

7. 海浜砂層中および大気中の硫化水素濃度

海浜の安全性を調査するため、海浜の砂層中と大気中の硫化水素濃度を測定した。測定には硫化水素用の検知管(ガステック: 気体検知管 No.4H 硫化水素)を使用した。砂層中の濃度は、黄色地下水の分布する地下水面直上まで検知管を刺し測定を行い、また、大気中の濃度は、無風時において地表面より上位 10 cm, 70 cm, 150 cm の高さの大気中の硫化水素濃度の測定を行った(2009 年 7 月)。

8. 白濁する潮溜まりについての聞き取り調査

白濁する潮溜まりの過去の様子(少なくとも 2007 年より前)を知るために聞き取り調査を行った。九十九里浜は春から夏の大潮の干潮時には多くの人が訪れ潮干狩りにぎわう地域であるため、潮溜まりの白濁現象の目撃事例がある可能性が高いと考えられる。このため、潮溜まりが白濁する大潮の調査時に砂浜で出会う漁師や近隣の住民の 30 名程度に聞き取りを行った。

確認できた現象および結果

1. 構成地層と潮溜まりの観察

砂丘は細粒砂主体で構成され、前浜は中粒砂～粗粒砂で構成されている。前浜には、貝破片の密集する層も挟まっている。海浜の砂は淡い褐灰色であるが、ガス湧出分布域では、濃青灰色を呈する砂が表層または表層近く(深度<50 cm)より下位に認められる。

ガスの湧出している点では、直径 5 cm ほどの砂を盛り上げた火山のような形態を作り、濃青灰色砂がガスによるエアリフト効果によって地表に噴き上げられている箇所も認めら

Fig. 4. Schematic model showing the relationship between sand color and grain size. The bluish gray area either expands (a) or contracts (b) in the layer containing shell fragments.

れる。この砂火山の断面をみるとガス流路の周囲が濃青灰色となっている(吉田ほか, 2009a)。貝破片の密集する層に含まれる貝破片は直径が数ミリメートルのものが多く、上位や下位の中粒砂～粗粒砂層よりも粒径が粗くなっている。このような貝破片の密集する層では、濃青灰色の範囲が上位や下位の地層よりも側方に広がっている場合(Fig. 4a)や、その逆に、上位や下位の地層よりも側方への範囲が減少している場合(Fig. 4b)が認められた。

2009年4月28日に行った打撃式コア試料採取の結果は、濃青灰色砂の分布する地点の深度1.5～2.0 mのコアは、濃青灰色から黒色を呈する中粒砂～粗粒砂であった。

深度0～50 cmまでに濃青灰色砂が認められなかった2009年1月は海浜の砂を掘削する際に砂の締まり具合が非常に柔らかく感じ、ゆる詰まりであることがわかった。

潮溜まりの観察によって、濃青灰色砂から湧出する黄色地下水が白濁することがわかった。黄色地下水をビーカーで採取ししばらく放置しておくとき白濁したことから、黄色地下水が大気に触れた場合に白濁することがわかった。また、黄色の潮溜まりに波によって海水が流入したときに白濁する現象も認められたことから、海水との混合によっても白濁が起きることがわかった。

2. ガス湧出地点・濃青灰色砂・黄色地下水の分布・地形測量調査

2008年5月、6月、7月、9月、11月、12月、2009年1月、2月、3月、4月、5月すべてにガスの湧出が認められた(Figs. 5, 6)。濃青灰色砂は2009年1月以外で認められた。黄色地下水は2009年1月、3月、5月以外で認められた。これらの分布域の関係は、ガス湧出の分布範囲の内側に濃青灰色砂が分布し、黄色地下水の分布は濃青灰色砂の分

布範囲の内側に収まり局所的な分布を示す場合が多い。また、潮溜まりの形成場所と黄色地下水の分布が重なるという条件が揃えば、一年を通して白濁現象が認められることがわかった。

2008年5月から2009年5月までのガス湧出の分布域を重ねると、そのガス湧出は南北約85 m、東西約45 mの範囲に収まることがわかった(Fig. 7)。

3. メタンガスの定性・定量・湧出量の測定

測定の結果、湧出しているガスは可燃性ガスであることがわかった。また、その濃度は90 volume %以上の値を示した。

ガスは湧出量の多い孔一つで毎分約270 ml湧出していた。ガス湧出孔が多く分布するところでは、2 m四方の範囲に6個のガス湧出孔が存在した。

4. 水質調査

黄色地下水は非常に強い還元状態(溶存酸素: 0 mg/L, 酸化還元電位: -300 mV以下)であり、白濁した水も強い還元状態(-200～-300 mV)であった。

陽イオンと陰イオンの分析結果では、黄色地下水と海水の水質は、 Na^+ 、 K^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 Br^- 濃度に大きな差は認められなかった。一方、黄色地下水の Ca^{2+} 濃度は海水の約70%であり、 SO_4^{2-} 濃度は約30%であった。また、海水からは検出されなかった PO_4^{3-} が黄色地下水からは検出された(Table 1)。

総アルカリ度の分析結果では、黄色地下水のアルカリ度は400 mg as CaCO_3/L であり、海水のアルカリ度は130 mg as CaCO_3/L であった(Table 1)。

砂丘と前浜との境界付近に設置した観測井(W-200807)の地下水はECと塩分濃度の結果から、淡水と塩水の境界

Fig. 5. Plan view of exposed areas of gas seepage, where there occurs bluish gray sand and yellow groundwater below the surface (depth < 50 cm).

Fig. 6. Distributions of gas seepage (g), bluish gray sand (b), and yellow groundwater (y) shown in cross-sections through the beach face. The locations of section lines are shown in Fig. 5. High and low tide were recorded at the Choshi Fishery Port observatory (see Fig. 1a).

面が存在することがわかった。2008年7月3日に測定したW-200807の地下水面は地表より下位0.95 mであり、そ

の地下水の塩水-淡水境界は地表より下位1.0~1.25 mの間に存在した (Table 1)。

Fig. 7. Plan view map showing the area of gas seepage that occurred from May 2008 to May 2009.

5. 白濁物質の元素分析

白濁物質を構成する元素は、硫黄(S)が 54.4 wt.%, 塩素(Cl)が 43.0 wt.%, カリウム(K)が 1.1 wt.%, カルシウム(Ca)が 0.9 wt.% であった (Table 2).

6. 黄色地下水・海水・地下水のメタン酸化微生物の定性分析

海水およびガス湧出域内の褐色砂層中の無色の地下水からは好氣的メタン酸化細菌・嫌氣的メタン酸化古細菌のいずれも不検出であった。

一方、黄色地下水から嫌氣的メタン酸化古細菌の ANME-1 が検出された (Table 3)。ANME-1 プライマーで増幅した産物については、クローン解析を行い、ANME-1 の 16S rRNA 遺伝子であることを確認した。

7. 海浜砂層中および大気中の硫化水素濃度

濃青灰色砂は硫化水素臭がする。この濃青灰色砂層中の地下水面の直上の硫化水素濃度は 400 ppm (14 °C) の値を示した。また、地表面より上位 10 cm は 0.5 ppm, 70 cm と 150 cm では 0.1 ppm 未満の値を示した。

8. 白濁する潮溜まりについての聞き取り調査

聞き取り調査の結果、少なくとも 2007 年より前に本調査地において潮溜まりの白濁現象の目撃者はいなかった。数名の方からは、約六十年前から比較すると砂浜の面積が減少しているとの報告も受けた。

近年、径 5 cm ほどの火山状の形態のガス湧出孔と、ハマグリのような生息姿勢による砂の盛り上がり様子が似ていることから、潮干狩りをする一般者がハマグリと間違えガス湧出孔を掘削する様子も認められ、この失敗の報告も数例あった。

考 察

ガスの湧出する砂浜の断面はガスの流路に沿って濃青灰色となっているが、貝破片などの粗粒な層が挟まる場合、粗粒な層を通じるガス量が多いときにこの層の濃青灰色の範囲が側方に拡大し、また、粗粒な層を通じて空気が流入してくるときにこの層の濃青灰色の側方への範囲が縮小するものと考えられる (Fig. 4)。

水質測定の結果、黄色地下水は、Cl⁻ 濃度が海水と同程度であるものの、海水よりも DO が極めて少なく ORP がマイナスであること、SO₄²⁻ が減少していること、アルカリ度が上昇していることから、黄色地下水は硫酸還元状態にあることがわかる。また、潮溜まりの白濁物質は ED-XRF 分析結果より硫黄が主な成分であった (Tables 1, 2)。

このことからガスの湧出する前浜の地下水中には、硫酸還元によって、硫化水素、硫化物イオン、多硫化物イオン(Sx²⁻)が生成し、この多硫化物イオンによって地下水が黄色化した

Table 1. Chemical properties of yellow groundwater, seawater, and groundwater in an observation well (W-200807).

	Na ⁺ (g/L)	K ⁺ (g/L)	Mg ²⁺ (g/L)	Ca ²⁺ (g/L)	NH ₄ ⁺ (g/L)	Cl ⁻ (g/L)	Br ⁻ (mg/L)	SO ₄ ²⁻ (g/L)	NO ₂ ⁻ (mg/L)	NO ₃ ⁻ (mg/L)	PO ₄ ³⁻ (mg/L)	alkalinity (as CaCO ₃ mg/L)	pH	ORP (mV)	EC (S/m)	DO (mg/L)	Salinity
Yellow groundwater	11	0.35	1.3	0.29	0.0	20	57	0.9	0	0	45	405	7.8	-377	4.21	0 to 0.12	26
Sea water	11	0.40	1.3	0.44	0.0	21	63	2.5	0	0	0	128	8.2	128	4.44	6.5 to 8.6	29
Groundwater of depth 1.00m in W-200807	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	7.8	—	0.01	8.9	0
Groundwater of depth 1.25m in W-200807	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	8.1	—	3.73	5.2	23

Table 2. Chemical composition of cloudy substance in a tidal pool.

	S (wt %)	Cl (wt %)	K (wt %)	Ca (wt %)
cloudy substance in tide pool	54.4±0.3	43.0±0.5	1.2±0.2	0.9±0.1

Table 3. Results of tests for the presence of methanotrophic archaea and bacteria in yellow groundwater, colorless groundwater, and seawater.

	<i>pmoA</i>	ANME-1 16S rRNA	ANME-2 16S rRNA
Yellow groundwater	Not detected	Detected	Not detected
Colorless groundwater in gas seepage area	Not detected	Not detected	Not detected
Sea water	Not detected	Not detected	Not detected

Fig. 8. Schematic model of a hypothesis regarding the mechanism by which ANME-1 is active within methane gas rising from the Kazusa Group to the ground surface.

と考えられる。この硫化水素や多硫化物イオンを多量に含む黄色地下水は潮溜まりに湧出し、大気や海水中の酸素と反応し、微細な硫黄のコロイドとなり乱反射によって白濁したように見えると考えられる。

この硫酸還元後の白濁のメカニズムは東京湾等で発生する青潮と同様である。青潮の場合は、浚渫窪地のような海水の循環が悪い場所に有機物の非常に多いヘドロなどが溜まり、貧酸素状態となった海水が硫酸還元状態となり、それが湧昇することによって起こる(富永ほか, 1987; 山本ほか, 1987)。しかし、九十九里浜の潮溜まりの白濁の場合、ヘドロのような泥とは無縁の淘汰のよい砂層にできる潮溜まりで白濁が起

こっているため珍しい現象であるといえる。

硫酸還元に至るまでの過程の考察としては、今後、同位体などの生物地球化学的データに基づく証拠が必要となるが、一つの仮説として、潮溜まりの黄色地下水から嫌氣的メタン酸化古細菌のANME-1が見つかった結果から、高濃度のメタンガスの供給により、嫌氣的メタン酸化古細菌と硫酸還元菌との共役による嫌氣的メタン酸化反応が起こっている可能性が考えられる(Barnes and Goldberg, 1976)。

また、千葉県茂原市の天然ガス取水井戸(深度 347–

Fig. 9. Schematic model of gas seepage at a tidal pool due to reduced beach area resulting from sand erosion and land subsidence (a), or due to gas seepage that newly occurred on the beach (b).

759 m)からガスと地下水(かん水)とがともにくみ上がるガス包含層の堆積物から ANME-1 と ANME-2 が検出されたことが報告されており (Miyashita et al., 2009), 上ガスの発生がこれらのガス包含層から砂泥互層中の砂層や断層を通りながら地表まで上昇してくる機構(楡井・矢田, 1978)と合わせると, 嫌氣的メタン酸化が地下から地表まで起こっている可能性も考えられる (Fig. 8).

調査中に行った漁師等への聞き取り調査により, 近年になって潮溜まりの白濁現象が発生しはじめた可能性があることがわかった. 近年の九十九里浜は砂の侵食による海浜の面積の減少が問題となっている. 白濁現象が見つかった大網白里町の海岸や一松海岸南方においても砂浜侵食による汀線の陸側への移動(砂浜面積の減少)が報告されている(星上ほか, 2005).

この砂浜侵食の発生を考えると, 近年になって白濁現象が

発見された原因は, この数年の間に海浜の上ガスの発生している地域と潮溜まりの発生個所が重なり, 白濁現象を引き起こす条件が揃ったことが考えられる (Fig. 9a). この砂浜侵食の原因には地盤沈下や砂浜に砂の供給を断つヘッドランド工法の影響が挙げられている(星上ほか, 2005).

そして, 白濁現象が近年発生したもうひとつの理由の可能性としては, ガスの湧出そのものが近年海浜に発生し始めたとも考えられる (Fig. 9b). どちらの場合も今後の九十九里浜の状況の変化に注視する必要がある.

謝 辞

本研究を進めるにあたり, 大網白里町役場・長生村役場の関係者にはお世話になった. 現地調査中には近隣の住民の方々から貴重な情報を提供していただいた.

また, 査読では, 坂田 将氏, 匿名の査読者の方および編

集委員の高野 修氏からは大変丁寧なご教示をいただき、本稿を改善することができた。千葉県環境研究センター廃棄物・化学物質研究室の栗原正憲氏には機器分析について有益な助言をいただいた。以上の方々に心からお礼申し上げます。

文 献

- 旭硝子株式会社 (Asahi Glass CO., LTD), 1980, 東金ガス田. 水溶性天然ガス総覧 (*Conspectus of Natural Gas Dissolved in Water*), 228–235.
- Barnes, R. O. and Goldberg, E. D., 1976, Methane production and consumption in anoxic marine sediments. *Geology*, **4**, 297–300.
- Boetius, A., Ravensschlag, K., Schubert, C., Rickert, D., Widdel, F. and Gieseke, A., et al., 2000, A marine microbial consortium apparently mediating anaerobic oxidation of methane. *Nature*, **407**, 623–626.
- Costello, A. M. and Lidstrom, M. E., 1999, Molecular characterization of functional and phylogenetic genes from natural populations of methanotrophs in lake sediments. *Appl. Environ. Microbiol.*, **65**, 5066–5074.
- Holmes, A. J., Costello, A. M., Lidstrom, M. E. and Murrell, J. C., 1995, Evidence that particulate methane monooxygenase and ammonia monooxygenase may be evolutionarily related. *FEMS Microbiol. Lett.*, **132**, 203–208.
- Embley, T. M., Finlay, B. J., Thomas, R. H. and Dyal, P. L., 1992, The use of rRNA sequences and fluorescent probes to investigate the phylogenetic positions of the anaerobic ciliate *Metopus palaeformis* and its archaeobacterial endosymbiont. *Jour. Gen. Microbiol.*, **138**, 1479–1487.
- 星上幸良・小林昭男・宇多高明・熊田貴之 (Hoshigami, Y., Kobayashi, A., Uda, T. and Kumada, T.), 2005, 近世における九十九里浜の形成と変形. 沿岸域学会誌 (*Jour. Coastal Zone Studies*), **17**, 47–56.
- 風岡 修・風戸孝之・笠原 豊・楠田 隆 (Kazaoka, O., Kazato, T., Kasahara, Y. and Kusuda, T.), 2006a, 九十九里地域における上ガスの分布形態：九十九里・東金市・大網白里町における最近の調査から. 第16回環境地質学シンポジウム論文集 (*Proc. Sympo. Geo-envir. Geo-tech.*), **16**, 169–174.
- 風岡 修・風戸孝之・笠原 豊・楠田 隆 (Kazaoka, O., Kazato, T., Kasahara, Y. and Kusuda, T.), 2006b, 九十九里地域中部における上ガスの発生状況：上ガスに関する地質環境調査結果. 地質汚染-医療地質-社会地質学会誌 (*Jour. Geo-poll. Medic. Urban Geol.*), **2**, 82–91.
- Miyashita, A., Mochimaru, H., Kazama, H., Ohashi, A., Yamaguchi, T., Nunoura, T., Horikoshi, K., Takai, K. and Imachi, H., 2009, Development of 16S rRNA gene-targeted primers for detection of archaeal anaerobic methanotrophs (ANMEs). *FEMS Microbiol. Lett.*, **297**, 31–37.
- 楡井 久 (Nirei, H.), 1981, 堆積盆中の地下水流動史と地殻変動 (南部関東構造盆地を例として). 堆積盆中の流体移動 (*Fluid Dynamics in a Deep Sedimentary Basin*), 東海大学出版会 (Tokai Univ. Press), 151–174.
- 楡井 久・樋口茂生・矢田恒晴・石井 皓・古野邦雄 (Nirei, H., Higuchi, S., Yada, T., Ishii, A. and Furuno, K.), 1976, 天然ガス生産にともなう上ガス被害と上ガス発生メカニズムについて. 千葉県公害研究所研究報告 (*Bull. Chiba Pref. Res. Inst. Envir. Poll.*), **6**, 1–26.
- Nirei, H., Kusuda, T., Mitsunashi, T. and Kikuchi T., 1987, Stratigraphic studies of the Pleistocene in the Boso Peninsula Facing the Pacific, Central Japan. *Proc. the 1st Intern. Colloquium on Quatern. Stratigraphy of Asia and Pacific Area, Osaka*, 1986, 32–42.
- 楡井 久・矢田恒晴 (Nirei, H. and Yada, T.), 1978, 天然ガス生産に伴う天然ガス (上ガス) 湧出被害と天然ガス湧出現象のメカニズムについて (その2). 全国公害研究所会誌 (*Jour. Envir. Lab. Assoc.*), **2**, 53–55.
- 富永 衛・木村 明・寒川 強・太田一之・鬼塚正光・北村 博 (Tominaga, M., Kimura, A., Samukawa, T., Oota, K., Onitsuka, M. and Kitamura, H.), 1987, 東京湾の青潮に関する研究 その4 光学特性, 1987年度日本海洋学会春期大会講演要旨 (*Abstr. Spring Meet. Oceanograph. Soc. Japan*), 246.
- 山本雅洋・北村 博・寒川 強・松尾 信・太田一之・木村 明・富永 衛・鬼塚正光 (Yamamoto, M., Kitamura, H., Samukawa, T., Matsuo, S., Oota, K., Kimura, A., Tominaga, M. and Onitsuka, M.), 1987, 東京湾の青潮に関する研究 (Ⅲ), オートオキシデーションによるイオウ生成に関する共存成分の影響 (2), 1987年度日本海洋学会秋期大会講演要旨 (*Abstr. Fall Meet. Oceanograph. Soc. Japan*), 303.
- 吉田 剛・風岡 修・古野邦雄・香川 淳・楠田 隆・酒井 豊 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kagawa, A., Kusuda, T. and Sakai, Y.), 2009a, 天然ガスの湧出する潮溜まりの白濁と色調変化. 第19回環境地質学シンポジウム論文集 (*Proc. Sympo. Geo-enviro. Geo-tech.*), **19**, 191–196.
- 吉田 剛・風岡 修・古野邦雄・楠田 隆・香川 淳・酒井 豊 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kusuda, T., Kagawa, A. and Sakai, Y.), 2008a, 千葉県大網白里町の海岸における潮溜まりの白濁について. 千葉県環境研究センター年報 (*Ann. Rep. Chiba Pref. Envir. Res. Cent.*), **8**, 148–149.
- 吉田 剛・風岡 修・古野邦雄・楠田 隆・香川 淳・酒井 豊 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kusuda, T., Kagawa, A. and Sakai, Y.), 2009b, 天然ガス (上ガス) の噴出する海浜の潮溜まりの白濁現象の機構解明. 日本地質学会第116年学術大会講演要旨 (116th Ann. Meet. Geol. Soc. Japan, Abstr.), 275.
- 吉田 剛・風岡 修・古野邦雄・楠田 隆・酒井 豊 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kusuda, T., Sakai, Y., Kato, A., Yamamoto, M. and Kasahara, Y.), 2007, 千葉県長生村一松海岸で起きた潮溜まりの白濁現象. 千葉県環境研究センター年報 (*Ann. Rep. Chiba Pref. Envir. Res. Cent.*), **7**, 154–155.
- 吉田 剛・風岡 修・古野邦雄・楠田 隆・酒井 豊・香川 淳・加藤晶子・山本真理 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kusuda, T., Sakai, Y., Kato, A., Yamamoto, M.), 2008b, 千葉県で起きた潮溜まりの白濁現象の機構解明 その1：地下水流動について. 第18回環境地質学シンポジウム論文集 (*Proc. Sympo. Geo-envir. Geo-tech.*), **18**, 89–94.
- 吉田 剛・風岡 修・酒井 豊・古野邦雄・楠田 隆・山本真理・加藤晶子・笠原 豊・飯村 晃・西川順二 (Yoshida, T., Kazaoka, O., Sakai, Y., Furuno, K., Kusuda, T., Yamamoto, M., Kato, A., Kasahara, Y., Iimura, A. and Nishikawa, J.), 2008c, 千葉県長生村一松海岸で起きた潮溜まりの白濁現象. 第17回環境地質学シンポジウム論文集 (*Proc. Sympo. Geo-envir. Geo-tech.*), **17**, 41–46.

(要 旨)

吉田 剛・風岡 修・竹内美緒・楠田 隆・古野邦雄・香川 淳・酒井 豊, 2012, 千葉県九十九里浜の天然ガス(上ガス)の湧出する潮溜まりの白濁現象. 地質雑, 118, 172–183. (Yoshida, T., Kazaoka, O., Takeuchi, M., Kusuda, T., Furuno, K., Kagawa, A. and Sakai, Y., 2012, Formation mechanism of cloudy water in a tidal pool on the foreshore, Kujukuri-hama, Chiba, central Japan. *Jour. Geol. Soc. Japan*, 118, 172–183.)

2007年5月, 8月に千葉県九十九里浜において潮溜まりが白濁する現象が起こった. この周囲には, メタンガスが湧出していた. そのガス湧出範囲の内側には, 還元色を呈する濃青灰色砂が分布し, さらにその内側には黄色地下水が存在することがわかった. 黄色地下水が潮溜まりに湧出したときに白濁することがわかった.

化学分析から, 白濁物質は硫黄が主成分と判明した. 白濁のメカニズムは青潮と同様に多硫化物イオンや硫黄のコロイドによる乱反射が示唆された.

黄色地下水からは嫌氣的メタン酸化古細菌の ANME-1 が検出されたことから, 黄色地下水が硫酸還元状態にいたる過程の仮説として, 水溶性天然ガスを包含する上総層群から砂層や断層を通じて地表へ上昇するメタンガスに沿って, 嫌氣的メタン酸化古細菌と硫酸還元菌が活動し, 嫌氣的メタン酸化反応を生じ, 地下の還元環境が海浜まで達しているメカニズムを提案した.