

浦の内湾におけるリンの形態別濃度とその収支に関する研究

宗景志浩*・大原 聡**・長谷川 浩***

1. はじめに

浦の内湾は閉鎖性が強いいため、養殖により富栄養化が急速に進行した海域である。現在、養殖魚の生産調整や餌料の改善が行われているものの、水質悪化は治まらず夏季には貧酸素化が発達して、時には大規模な赤潮が生じることもある(宗景ら, 1998)。

リンは陸上からの供給が少ないためプランクトン増殖の制限因子になり易く、浦の内湾でも赤潮の直後や差し込みが続けば急減する場合も見られる(宗景ら, 1998)。一般的に、溶存態無機リンはプランクトンに取り込まれて懸濁化するが、海水中の炭酸塩や金属などと吸着・結合することによっても懸濁態に変換される(Ruttenberg, 1992; 川嶋ら, 1983; 小林ら, 1988)。現場試料中の金属結合態及び底泥吸着態リンの形態別分画を行った研究(城, 1987; 田中, 1994)もあるが、これに加えてさらにプランクトンに吸収されたリンを定量するにはかなり複雑な処理と時間を要する。

そこで本研究では、新たに懸濁物の形態別分画を行い、溶存態無機リンの消費の内訳を調べてリン収支解析の精度を高め、リンの輸送過程と富栄養化の要因を明らかにしようとした。

2. 方 法

2.1 観測と試料採取

1997年4月から1998年12月にかけて、図-1に示す浦の内湾の湾内7点、湾外1点において水温、塩分、溶存酸素、クロロフィル a 等の観測と採水を行った。海水 1 l を数枚の 0.2 μm メクレポアフィルターを用いて濾過し、濾液と懸濁物を得た。濾液は溶存態栄養塩を定量し、懸濁物は形態別分画処理に用いた。

2.2 分析方法と懸濁物の形態別分画法

溶存態無機リン(DIP)は濾過海水を、全リン(TP)と溶存態全リン(DTP)は未処理の原海水と濾過海水を5% (w/v) ペルオキシ二硫酸カリウムを加えて加熱分解

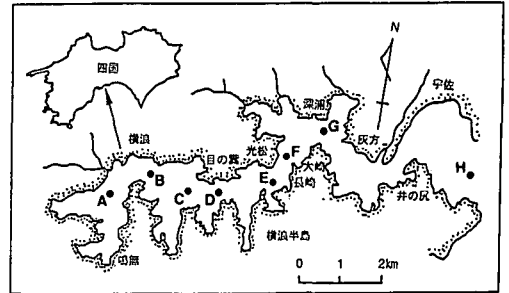


図-1 浦の内湾の地形と観測点

した後、それぞれモリブデンブルー法で測定した。アンモニア態窒素はインドフェノール法、硝酸態及び亜硝酸態窒素はカドミウム・銅カラム還元ナフチルエチレンジアミン法を用いた。

懸濁物は Tessier *et al.* (1979) 及び Noriki *et al.* (1997) の方法に準じて形態別に分画した(図-2)。懸濁物をフィルターとともにポリプロピレンチューブに入

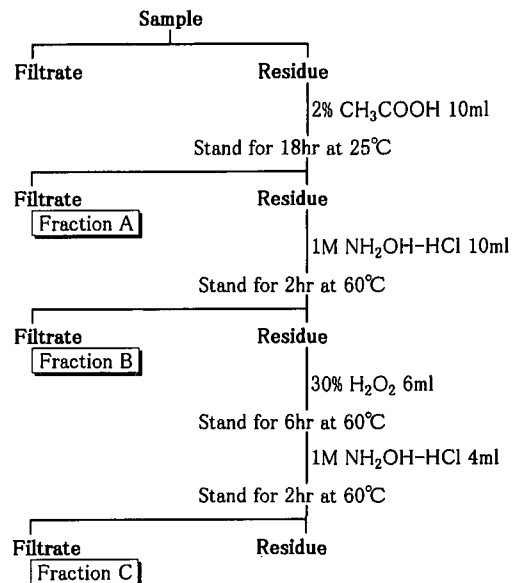


図-2 懸濁物の分画方法

* 正会員 農博 高知大学助教授 農学部生産環境工学科
** 理修 高知大学大学院 理学研究科化学専攻
*** 理博 京都大学助手 化学研究科

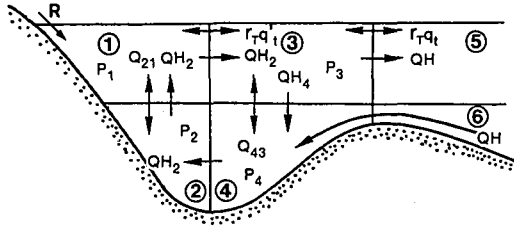


図-3 物質輸送モデル

表-1 溶存態リンと窒素の平均負荷量 (1997年)

| | 負荷量 (kmol/year) | |
|-------------------------|-----------------|-------|
| | リン | 窒素 |
| BOX-1 (P ₁) | -2267 | -8532 |
| BOX-2 (P ₂) | 831 | 3696 |
| BOX-3 (P ₃) | -946 | -6726 |
| BOX-4 (P ₄) | 2770 | 11750 |

れ、抽出溶液を加えて濾過する操作を繰り返した。濾液をそれぞれ Fraction A, B, C とすると、これらの溶液中にはそれぞれ炭酸塩に吸着するリン、鉄・マンガン水酸化物に吸着するリン及びプランクトンに吸収されるリンが含まれる。これらの溶液中のリンをモリブデンブルー法により定量した。

2.3 物質輸送の推算法

湾内における物質の輸送と循環を明らかにするために6ボックスモデルを作成した。図-3に示すように湾内を水深10mで上下に、さらにSt. CとSt. D及びSt. GとSt. Hの間で分割し、それぞれ湾奥、湾央、湾口側とする。各ボックスを①, ②, ③, ④, ⑤, ⑥とすると、湾内における物質収支は以下ようになる。

$$QH_2 = QH + QH_4 \dots\dots\dots (1)$$

$$V_1 \frac{dC_1}{dt} = QH_2(C_2 - C_1) + Q_{21}(C_2 - C_1) + r_{r1}q'_1(C_3 - C_1) + R(C_0 - C_1) + P_1 \dots\dots (2)$$

$$V_2 \frac{dC_2}{dt} = QH_2(C_4 - C_2) - Q_{21}(C_2 - C_1) + P_2 \dots\dots (3)$$

$$V_3 \frac{dC_3}{dt} = Q_{43}(C_4 - C_3) + r_{r1}q'_1(C_5 - C_3) - QH_2(C_3 - C_1) - r_{r1}q'_1(C_3 - C_1) + R(C_1 - C_3) + P_3 \dots\dots (4)$$

$$V_4 \frac{dC_4}{dt} = QH_2(C_6 - C_4) - QH_4(C_6 - C_3) - Q_{43}(C_4 - C_3) + P_4 \dots\dots\dots (5)$$

ここで、*t* は時間、*C* は指標物質平均濃度、*P* は負荷量(生産+消費)、*V* は体積、数字(1~6)はボックス番号である。*R*、*C*₀はそれぞれ淡水流入量と淡水中の指標物質平均濃度である。*QH*は差し込み流量、*Q*₂₁は湾奥側の、*Q*₄₃は湾口側の鉛直混合量である。*QH*₂は湾央断面での差し込み流、*QH*₄はボックス③④での差し込みに伴う連行流(下降流)を表す。*q*_{*t*}及び*q*'_{*t*}は湾口及び湾央部断面での潮汐流量で、各断面以奥の水面積と潮位差で与える。*r*_{*r*}は潮汐による海水交換率である。

3. 懸濁態リンの濃度と輸送量

3.1 物質収支から求めた栄養塩の生産及び消費量

表-1にはボックスモデルから求めた1997年の溶存

態のリンと窒素の平均負荷量(生産+消費)を示した。湾内下層(BOX-2及び4)では、リン及び窒素負荷量(*P*₂, *P*₄)はいずれも正值をとっており底泥から溶出している。BOX-4には水深の最も深い海域を含むため貧酸素化しやすく、栄養塩の溶出量がBOX-2よりも多い。

一方、上層(BOX-1及び3)では、負荷量(*P*₁, *P*₃)はいずれも負値をとっておりプランクトンなどに吸収・消費されている。BOX-1における消費量がBOX-3よりも多く、プランクトンの主な増殖場は湾奥側であることを示している(宗景ら, 1998)。

上層におけるリン及び窒素の消費量がすべてプランクトンによる吸収であると仮定すると、*P*:*N*=1:5.3となり、レッドフィールド比(*P*:*N*=1:16)の消費割合に比べるとリン消費量が3.5倍程度多い。この理由として、収支から求めたリン消費の中には海水中的他の物質と吸着または結合することによって懸濁化し、沈降・堆積する溶存態リンが含まれるからである。従って、実際にプランクトンに吸収されるリンの量を算出するためには、懸濁態リンを形態別に分画定量する必要がある。

3.2 懸濁態リンの形態別濃度と構成比

図-4にはSt. Aのクロロフィルa最大値とSt. Dの底泥直上における溶存酸素濃度を示した。図-5(左)には湾奥上層における懸濁態リンの形態別濃度と溶存態無機リン濃度を示した。陸水からのリン供給量が少ない浦の内湾では、海水中的の溶存態リン濃度は底泥からの溶出に依存して増加する。これらはすみやかにプランクトン

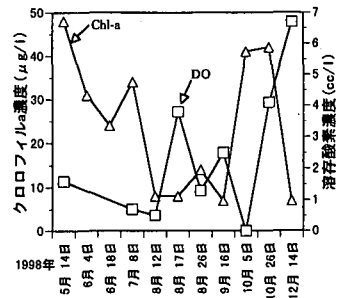


図-4 クロロフィルaと溶存酸素濃度の推移 (1998年)

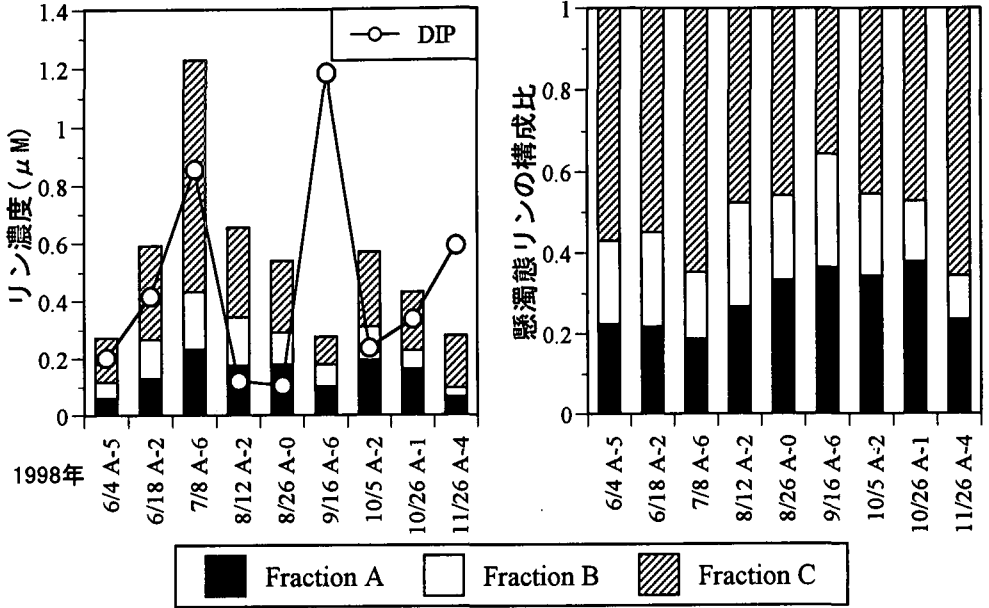


図-5 DIPと懸濁態リンの推移 (左) 及び懸濁態リンの構成比 (右)

に吸収されるため懸濁態リンも増加する。例えば6～8月にかけて、貧酸素化の進行とともに溶解態及び懸濁態リン濃度が上昇している。7月8日にはプランクトン密度が増大したため Fraction C 中の濃度が上昇し、懸濁態リン濃度も 1.23 μM にまで増加した。

図-5(右)には湾奥上層における懸濁態リンの形態別濃度の構成比を示した。Fraction C (プランクトンによる吸収)の割合が最も高く、次いでFraction A, Bの順であった。図-6には Fraction C 濃度と懸濁態リン濃度の相関を示した。Fraction C 濃度は懸濁態リン濃度に比例している。全サンプルについて Fraction C の占める割合を平均すると約40%となり、残りの60%は炭酸塩や鉄・マンガン水酸化物との吸着に利用されることが分かった。

3.3 栄養塩消費量比とレッドフィールド比

溶解態リン消費量の約40%がプランクトンに吸収さ

れたことを考慮して1997年のリンと窒素の消費量の比を再計算すると、P:N=1:13.5となりレッドフィールド比にかなり近づいた。レッドフィールド比は外洋における元素組成比であり、浦の内湾のような沿岸域での濃度比はやや小さいようである(門谷, 1988)。

3.4 懸濁態リンの流出と堆積

湾内で生成された懸濁物は大部分が沈降し、一部は湾外へ流出すると考えられる。特に鞭毛藻プランクトンは鉛直移動するため、移動性のない(吸着・結合性の)懸濁物よりも長く海中を浮遊することができる。そのため、プランクトン態として移流に乗って湾外へ流出するリン量は溶解態リンの流出量に比べると少ないものの、吸着・結合性の懸濁態リンよりも多いと考えられる。こ

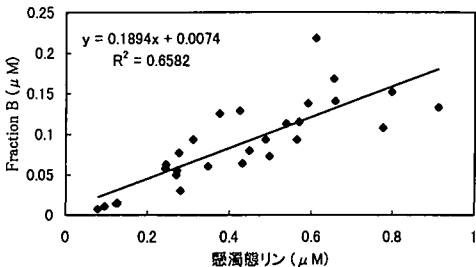


図-6 Fraction C と懸濁態リンの相関

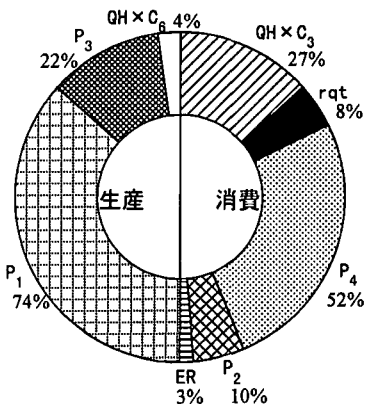


図-7 クロロフィル a の収支内訳 (1997年)

ここでは、吸着や結合による化学的懸濁物はすべて沈降・堆積するものとし、プランクトンの吸収による生物的懸濁物は、ボックスモデルによるクロロフィル a の収支解析から推算した湾外への流出率に等しいと仮定した。

図-7 にはトレーサーとしてプランクトン量の代わりにクロロフィル a を用いた 1997 年の収支結果を湾内全体で平均化して示した。消費要因として最も大きいのは湾口側下層での死滅 (P_4) で 52% を占めた。次いで、移流 ($QH \times C_3$)、湾奥側下層での死滅 (P_2)、潮汐交換 ($r_i q_i$) がそれぞれ 27%、10%、8% であった。このうち湾外へ流出するプランクトンは移流と潮汐交換によるもので全生産量の 35% を占め、残りの 65% は湾内に沈降堆積することが分かった。

4. リン収支と富栄養化

4.1 リンの供給及び消費量

湾内を一つのボックスにまとめると、リンの供給には①差し込みに伴う湾外からの流入、②陸水からの流入、③底泥からの溶出、④養殖負荷 (F) などがある。このうち差し込み、陸水及び溶出による供給量はボックスモデルによる収支結果を用いて、それぞれ $QH \times C_6$ 、 $R \times C_0$ 及び $P_2 + P_4$ として求めた。養殖によるリンの供給量は、高知県 (1988) 及び香川県水産試験場 (1985) による試験結果 (投餌量の約 1%) を参考にした。

一方、消費には、⑤潮汐交換及び⑥移流に伴う溶存態としての流出、⑦プランクトン (の体内に蓄積された懸濁) 態としての流出、⑧漁獲 (U)、⑨堆積 (B) などがある。

潮汐交換及び移流による流出量はボックスモデルによる収支結果を用いて、それぞれ $r_i q_i (C_5 - C_3)$ 及び $QH \times C_3$ として求めた。プランクトン態としての流出量は、湾内上層における溶存態リンの消費量とプランクトンによる吸収率及びプランクトン流出率の積 ($P_1 + P_3$) $\times 0.4 \times$

0.35 として求めた。堆積量 B は養殖負荷 F 、漁獲 U 、吸着・沈降 ($P_1 + P_3$) $\times 0.6$ 及びプランクトン態沈降量 ($P_1 + P_3$) $\times 0.4 \times 0.65$ の和から $B = F - U + (P_1 + P_3) \times 0.86$ として求めた。湾内における供給量 S 及び消費量 D は次式となる。

$$S = QH \times C_6 + R \times C_0 + (P_2 + P_4) + F \dots\dots\dots (6)$$

$$D = r_i q_i (C_5 - C_3) - QH \times C_3 + (P_1 + P_3) \times 0.4 \times 0.35 - U - B \dots\dots\dots (7)$$

以上をまとめてリンの年間収支を図-8 に模式図で示した。湾内上層における溶存態リンの全消費量は 100 ton/year であり、このうちプランクトンによる吸収量は溶存態リン消費量の 40% (40 ton/year) となる。プランクトン態リンの 35% (14 ton/year) は湾外に流出する。

海水交換による輸送も含めて、リンの供給及び消費の年間総和の内訳を図-9 に示した。総供給量及び総消費量はそれぞれ 174, 172 ton/year となり、その差 1% は推算誤差といえる。これによると、供給の主な要因は湾底層からの溶出と養殖負荷であり、年間総供給量のそれぞれ 64% (112 ton)、30% (52 ton) を占めた。一方、消費の最大要因は堆積によるもので、消費全体の 75% (130 ton) を占めた。海水輸送による供給量はわずかであることから、多量に溶出するリンは毎年過剰に供給され続けている養殖負荷に起因すると考えられる。

4.2 養殖負荷による底泥へのリン蓄積量

浦の内湾の底泥悪化の現状を評価するためリンの純蓄積量を算出する。ここで純蓄積量 A は、湾口部以奥の海底からの溶出量 $P_2 + P_4$ と堆積量 B の差である。(6) 式と (7) 式の両辺の和をとり、4.1 項の結果から

$$S + D = QH \times C_6 + R \times C_0 + (P_2 + P_4) + F + r_i q_i (C_5 - C_3) - QH \times C_3 + (P_1 + P_3) \times 0.4 \times 0.35 - U - B = 0$$

となる。整理して次式を得る。

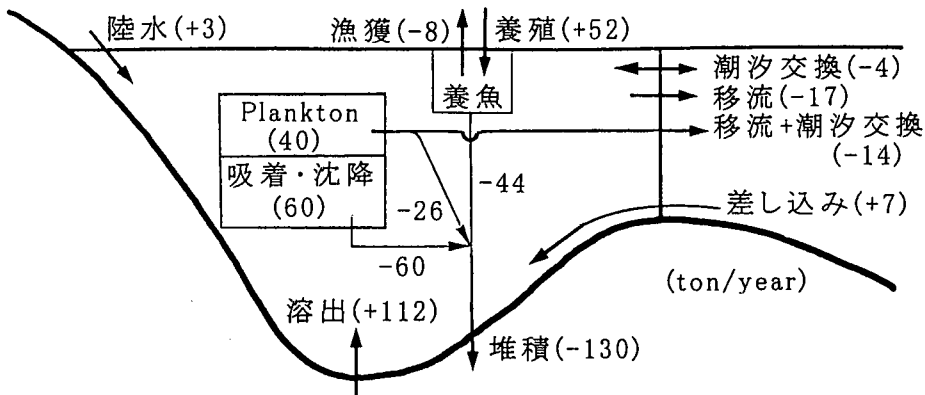


図-8 リンの年間収支 (1997年)

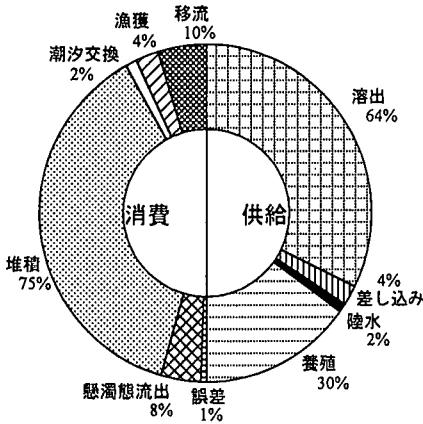


図-9 リンの供給及び消費の内訳 (1997年)

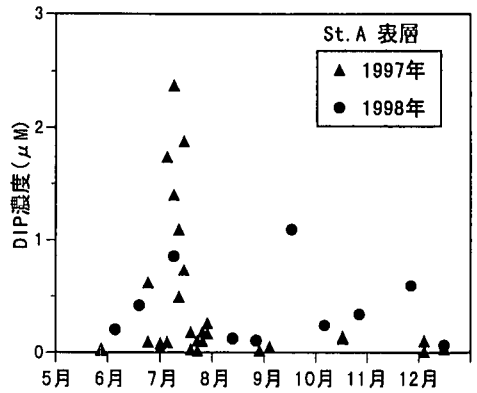


図-10 湾内表層におけるリン濃度の推移

$$A = B - (P_2 + P_4) = QH \times C_6 + R \times C_0 + F + r_{qt}(C_5 - C_3) - QH \times C_3 + (P_1 + P_3) \times 0.4 \times 0.35 - U \dots (8)$$

浦の内湾におけるリンの純蓄積量は 20 ton/year と推算され、この割合で底泥の悪化が進行していることになる。リンの蓄積は養殖による負荷が原因である。養殖によるリンの負荷がない (F=0) と仮定すると、25 ton/year の割合で湾内は浄化される結果となった。

4.3 差し込みの頻発とリン濃度

図-10 には 1997 及び 1998 年の湾内表層 (水深 5 m 以上) におけるリン濃度の推移を示した。1997 年は 6 月下旬から 7 月 10 日頃にかけて高い栄養塩濃度を示して赤潮が発生した。その後もプランクトン濃度は一年を通して比較的高かった。一方、1998 年は 5 月頃から差し込みが頻発したため貧酸素化が弱くて栄養塩濃度も低く、プランクトン発生量が例年になく少なかった。陸水からの供給の少ない浦の内湾では、底泥からの溶出が最大の供給源であるから、1998 年のように差し込みが頻発すればリンの溶出が抑えられ、水中の栄養塩濃度が低下することもある。しかし、海底に蓄積された栄養塩が減少し、富栄養化が改善されたことにはならない。

5. 結 論

1997 年、1998 年において浦の内湾内の栄養塩濃度と物質収支を解析した結果、浦の内湾のリン濃度は貧酸素化に伴う底泥からの溶出によって決まり、差し込みの有無がこれを支配していることが分かった。特に多量のリンの溶出は養殖による負荷が堆積したもので、水質を改善

するためには養殖規模の縮小や差し込みを促進せたり、底泥を改善し貧酸素化を防止するための工法の開発が必要である。

参 考 文 献

香川県水産試験場(1985): 昭和 59 年度赤潮対策技術開発試験報告書, pp. 1-65.
 川嶋宗継・原 博一・板坂 修・堀 太郎・高松武次郎・小山睦夫 (1983): 琵琶湖における水質変動, 滋賀大学教育学部紀要自然科学, No. 33, pp. 67-101.
 高知県水産試験場(1988): 昭和 62 年度赤潮対策技術開発試験報告書, pp. 1-146.
 小林節子・西村 肇 (1988): 富栄養湖の金属錯化容量, 水質汚濁研究, 第 11 巻, pp. 647-653.
 城 久 (1987): 大阪湾におけるリンの循環, 沿岸海洋研究ノート, 第 24 巻, pp. 158-168.
 田中勝久 (1994): 沿岸・河口域のリン循環過程におよぼす土壌物質の影響, 南西水研研報, No. 28, pp. 73-119.
 宗景志浩・大原 聡・長谷川 浩・岩崎 望・福家英乗 (1998): 浦の内湾の成層期における栄養塩の生産・消費と循環について, 海岸工学論文集, 第 45 巻, pp. 1066-1070.
 門谷 茂・岡市友利 (1988): 大阪湾・播磨灘の C・N・P 循環におけるプランクトンの役割, 沿岸海洋研究ノート, 第 25 巻, pp. 158-164
 Noriki, S., T. Shiribiki, H. Yokomizo, K. Harada, and S. Tsunogai (1997): Copper and nickel in settling particle collected with sediment trap in the western North Pacific, *Geochem. J.*, 31, pp. 373-382.
 Redfield, A. C., B. H. Ketchum, and F. A. Richards (1963): The influence of sea water, *The sea*, 2, pp. 76-77.
 Ruttenberg, K. C., (1992): Development of a sequential extraction method for different forms of phosphorus in marine sediments, *Limnol. Oceanogr.*, 37, pp. 1460-1482.
 Tessier, A., P. G. C. Campbell, and M. Bisson (1979): Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals, *Anal. Chem.*, 51, pp. 844-851.