

物質界面近傍における酸素の動態に対する
流速の影響の実験的解析

左山 幹雄*・相馬 明郎**・高杉 由夫***

水深の浅い沿岸域では、海底境界層における物質循環は、海域の富栄養化に深く関わっている。本研究では、実験水槽に未攪乱堆積物コアを取り付けて界面近傍の酸素濃度プロファイルを測定し、上層水の流速の変化が界面近傍における酸素の動態に与える影響を実験的に解析した。その結果、上層水の流速が速くなると、酸化層の厚さは変化しないが、拡散境界層の厚さは薄くなり、堆積物最表層での酸素消費速度 (R_{surface}) が大きくなることが明らかになった。流速が R_{surface} に影響を与えるメカニズムは、現時点では明らかではない。しかし本研究の結果は、海底境界層における流動場の変動が物質循環に大きな影響を与えていることを示している。

1. はじめに

水深の浅い沿岸域では、堆積物による酸素の消費が、底層水の貧酸素化の原因となっていることは広く認識されている (Jørgensen, 1996)。そして、堆積物直上水の流速の変化が、水-堆積物間の酸素フラックスに影響を与えることは、これまでも実験的に明らかにされており (Gundersen・Jørgensen, 1990)、その理論的考察も試みられている (Nakamura・Stefan, 1994)。

富栄養化海域では、堆積物は泥質で透水性が低く、底生動物の現存量が小さく生物攪拌の影響を無視できる場合が多い。そのような堆積物では、水-堆積物間の酸素の輸送過程として、分子拡散が主要な役割を果たしていると考えられる。そのような系では、流速と水-堆積物間の酸素フラックスとの関係は、境界層の概念を応用することで定性的に説明される。すなわち、堆積物と直上水と

の界面には拡散境界層 (Diffusive Boundary Layer, DBL) が形成されており (図-1 参照), DBL 内部では酸素の主要な輸送過程は分子拡散である。流速の増加とともに, DBL の厚さ (Z_δ) は薄くなり, DBL 内部での酸素の濃度勾配は大きくなる。拡散フラックスは濃度勾配に比例するので, 流速が速くなると水-堆積物間の酸素フラックスは大きくなる (Jørgensen, 2001)。

しかし、流速の変化が堆積物内部の物質代謝過程に与える影響については、実験的検討もほとんどなされていない。ここでは、直上水の流速を一定に制御できる実験水槽に未攪乱堆積物コアを取り付け、異なる流速での水-堆積物界面近傍の酸素濃度プロファイルを測定し、流速の変化が水-堆積物間の酸素フラックスや堆積物の単位体積当たりの酸素消費速度に与える影響について実験的に検討した結果について報告する。

2. 実験方法

実験には広島湾湾央部 Stn. A (長尾ら, 2000) においてダイバーにより採取した未攪乱堆積物コア (内径 82 mm) を用いた。同時に、堆積物直上水 ($B+10$ cm) を水中ポンプを用いて採水した。現場直上水の水温は 22.4°C 、塩分濃度は 32.2、酸素飽和度は 84% air sat. であった。採取した堆積物コアは直ちに実験室に持ち帰り、現場直上水温度、暗条件下で水-堆積物界面近傍の酸素濃度プロファイルを測定した。測定終了後、用いた堆積物コアを中性ホルマリンで固定し、底生動物の種類、個体数、現存量を層別に測定した。また別途採取した堆積物コアについて、層別に密度と含水率の測定を行い空隙率 (ϕ) を計算し、有機態炭素含量 (酸処理後) 及び有機態窒素含量を測定した。また別途採取した堆積物コアについて、層別に粒径組成を測定した。

2.1 酸素濃度プロファイルの測定方法

水-堆積物界面近傍の酸素濃度プロファイルの測定は、直上水の流速を一定に制御できる実験水槽を用いて行った(図-2)。実験には、堆積物直上水($B+10\text{ cm}$)をガラス繊維ろ紙(Whatman, GF/C)でろ過し、高純度空気

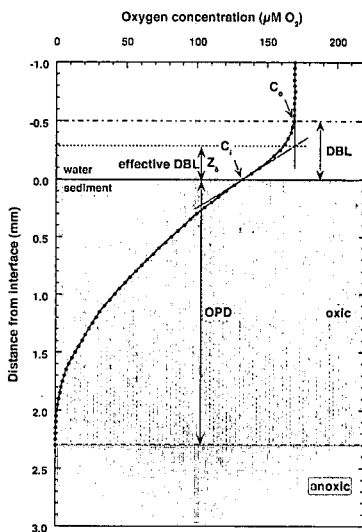


図-1 沿岸域の水-堆積物界面近傍における酸素濃度プロファイル（模式図）

- ・ 理博 (独法)産業技術総合研究所
- ・ 正会員 理修 (株)富士総合研究所
- ・ 員博 (独法)産業技術総合研究所

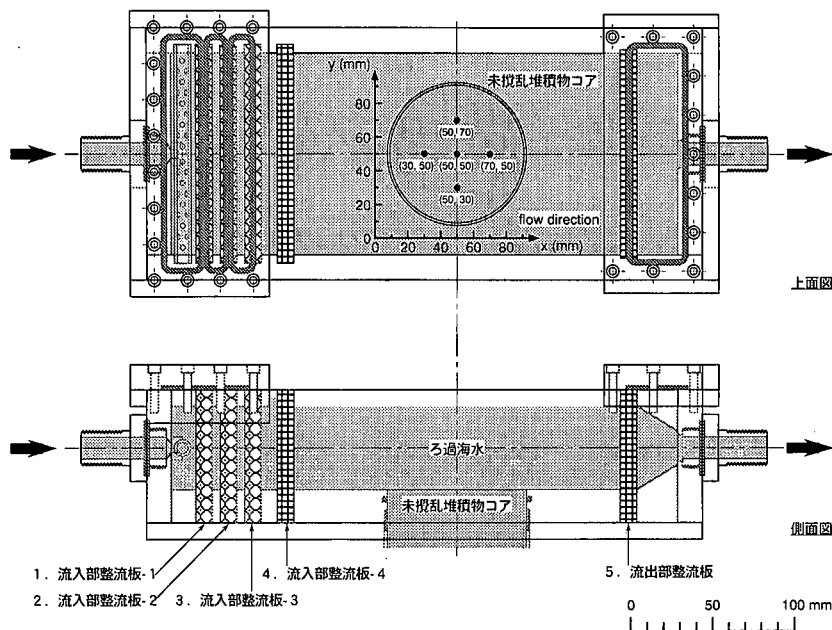


図-2 酸素濃度プロファイルの測定に用いた実験水槽

表-1 実験水槽に使用した整流板

整流板	空孔径 (μm)	連続孔径 (μm)	空孔率 (%)	品 番
流入部整流板-1	70	—	38	パールコン・UHE-680
流入部整流板-2	70	—	38	パールコン・UHE-680
流入部整流板-3	30	—	35	パールコン・UHE-680
流入部整流板-4	300	600	70	セラミックフィルター** A-600
流出部整流板	500	1000	70	セラミックフィルター** A-1000

*ダイセン・メンブレン・システムズ, **カネボウ

で曝気して空気飽和に調整したろ過海水を用いた。ろ過海水を、マグネットポンプ(イワキ, MD-70 RZM)を用いて、整流板を通して水槽内を循環させた。用いた整流板を表-1に示した。

直上水の流速は、断面流量を制御することにより、断面平均流速を0.5, 1.0, 2.0 cm/sの3段階に変化させた。この流速の範囲では、堆積物粒子の巻き上がりは全く観察されなかった。直上水が循環している流路の一部を外から冷却することにより、直上水の水温を現場直上水温度に保った ($23.0 \pm 1.0^\circ\text{C}$)。酸素濃度プロファイルの測定中は、直上水の酸素濃度を一定に保つために、空気飽和に調整したろ過海水を20 ml/minでかけ流した。また、無脈流のシリンジポンプ(日本精密化学, MINICHEMI PUMP, NP-JX-18 U)を用いて直上水の一部を酸素分析計(Orbisphere laboratories, Switzerland, MOCA 3600)を経由して循環させ、直上水の溶解酸素濃度を常時測定した。

直上水の酸素濃度が一定になったことを確認したのち、微小酸素電極(Unisense, Denmark, tip OD 5-10 μm)

を用いて、水-堆積物界面近傍の酸素濃度プロファイルを測定した。最初に断面平均流速0.5 cm/sで測定を行い、続いて1 cm/s, 最後に2 cm/sの流速で測定を行った。各流速において、堆積物コア内の図-2に示した5地点で、酸素濃度プロファイルを鉛直方向に50 μm 間隔で測定した。一回のプロファイルの測定に要した時間は約10分間であり、流速を変化させた後は、濃度プロファイルが定常になるまで30分以上間を置いて次の測定を行った(中村ら, 1996; Güss, 1998)。

測定は、2本の堆積物コア(A1及びA2)について行った。採取した未攪乱堆積物コアは、測定に用いるまでは、現場で採水した堆積物直上水を満たしたバケツに完全に水没させた状態で、現場直上水温度以下で保存した。

2.2 酸素濃度プロファイルの解析方法

得られた酸素濃度プロファイルについて、一定のアルゴリズムに基づき解析を行い、水-堆積物界面の位置、DBLの厚さ、effective DBLの厚さ(Z_e)、酸化層の厚さ(OPD)を計算した(図-1参照)。DBL内部の酸素濃度プロファイルと分子拡散係数から、DBLを通過する拡散フラックス(DBL flux)を計算した。また堆積物内部の酸素濃度プロファイルについては、酸素の輸送過程は分子拡散のみであると仮定して、Berg et al. (1998)が開発したコントロール・ボリューム法による解析プログラム(PROFILE Ver. 1.0)を用いて、堆積物の単位体積当たりの酸素消費速度(R)の鉛直プロファイルを計算した。そして、 R を深さ方向に積分することにより、堆積物の単位面積当たりの酸素消費速度(ΣO_2 consumption)

を計算した。

酸素濃度プロファイルの解析に用いたアルゴリズムについて概説する。酸素濃度プロファイルの測定では、水-堆積物界面と電極先端との位置関係は、長焦点実体顕微鏡を用いて観察した。しかし、実体顕微鏡による観察から推定される界面の位置には、 $\pm 200 \mu\text{m}$ 前後の誤差があると考えられた。界面の位置に誤差があると、DBLの厚さ、 Z_0 及びOPDを正確に求めることはできない。

乱流境界層との境界領域を除いて、DBL内部では酸素濃度は直線的に減少し、濃度勾配は一定である(図-1)。しかし水-堆積物界面では、空隙率の変化にともない分子拡散係数も変化する。また、単位体積当たりの酸素消費速度も、DBL内部と堆積物最表層とは大きく異なると考えられる。そこで、得られた酸素濃度プロファイルから濃度勾配の変化率を計算し、実体顕微鏡により界面と推定された位置の近傍において、濃度勾配の変化率が最大となる位置を、最終的な界面とした。

DBLの上端は、直上水中の酸素濃度の変化を上から下に向かって調べ、濃度が有意(t 検定, $p < 0.05$)に変化し始める位置をDBLの上端とした。DBL上端での酸素濃度(図-1の C_0)とDBL内部での酸素濃度プロファイルから、 Z_0 を計算した。

酸化層の下端は、堆積物内部の酸素濃度の変化を下から上に向かって調べ、濃度が有意(t 検定, $p < 0.05$)に

変化し始める位置を酸化層の下端とした。

DBLを通過する拡散フラックス(DBL flux)は、界面での酸素濃度(C_i)と測定温度での純水中の分子拡散係数(D_0)を用いて、 $\text{DBL flux} = D_0 (C_0 - C_i) / Z_0$ として計算した。また、堆積物中の酸素の分子拡散係数(D_s)は、 D_0 と空隙率(ϕ)を用いて、 $D_s = D_0 / (1 + 3(1 - \phi))$ として求めた(Rasmussen・Jørgensen, 1992)。

3. 結果と考察

堆積物表層0-5 mmのsily-clay含有率は98.5% ($n=3$)と非常に高かった。堆積物の密度、含水率及び空隙率の鉛直プロファイルは、泥質の堆積物で一般的に見られるプロファイルを示し、表層から深層へなめらかに変化していた。有機態炭素含量及び有機態窒素含量の鉛直プロファイルは、表層0-10 mmでの含量がそれより深い層での含量よりも低いという傾向が見られ、有機物の堆積過程には何らかの攪乱の影響があることを示唆していた。ただし、有機態炭素含量及び有機態窒素含量の鉛直方向での変化は、統計的には有意ではなかった。

酸素濃度プロファイルを測定した堆積物コアの表層0-5 mmには、両コアともに $500 \mu\text{m}$ 以上のマクロベントスは全く生息していなかった。5 mm以深でもマクロベントスの密度は低く($4 \text{ 個体}/\text{cm}^2$)、その種類も活発に堆積物を攪拌したり巣穴を形成したりする種ではないの

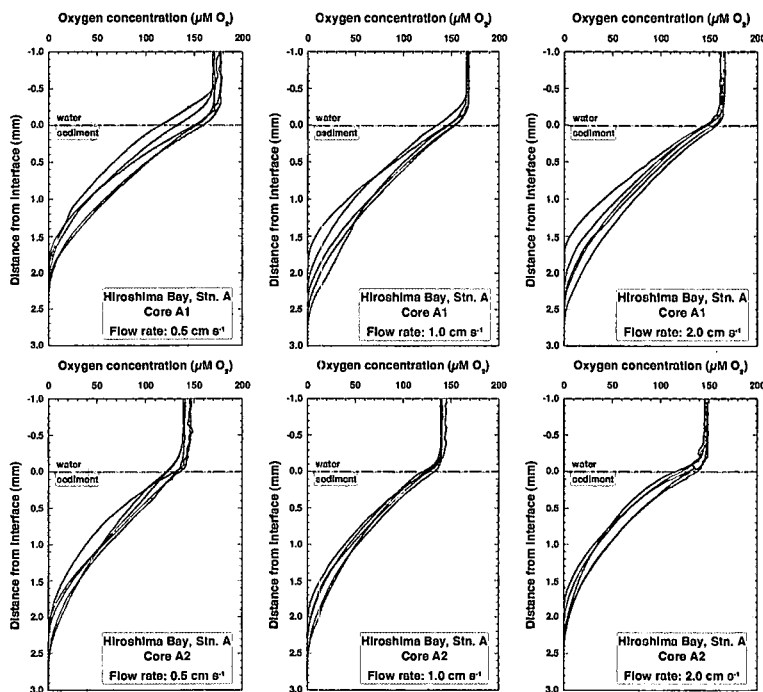


図-3 2本の未攪乱堆積物コア(A1及びA2)について、断面平均流速を0.5, 1.0, 2.0 cm/sの3段階に変化させた場合の酸素濃度プロファイルの測定結果

で、生物攪拌の影響を考慮する必要はないと考えられた。

30-500 μm サイズのメイオベントスの密度は、両コアともに表層 0-1 mm 層で最も高く (40-70 個体/ cm^3)、1-5 mm 層では約 3 個体/ cm^3 であり、深くなるとともに密度は著しく低下した。これらの密度は、広島湾の堆積物中のメイオベントスの密度としては、大変低い値であった (板岡ら, 1993 年)。

3.1 酸素濃度プロファイルの解析結果

ΣO_2 consumption と DBL flux との関係を図-4 に示した。両者の間には極めて高い相関があり、このことは酸素濃度プロファイルの解析に用いた一連のアルゴリズムの正当性を強く支持している。

図-4 で * 印を付けて示した 2 回の測定では、 ΣO_2 consumption と DBL flux との差が大きかった。これらはいずれも、断面平均流速が 2.0 cm/s での測定結果であり、DBL の厚さが極めて薄く、また DBL 内部で酸素濃度が不規則に変化していたために、DBL flux の計算値に問題があった可能性も考えられる。また、この解析では考慮していないが、水平流速から派生する乱れの効果 (乱流拡散など) により、水-堆積物間の酸素フラックスが分子拡散のみを仮定して計算した DBL flux よりも実際に大きかった可能性もある (Güss, 1998)。

長尾ら (2000) は、同時期の広島湾湾央部 Stn. A において、フラックスチャンバーを用いて水-堆積物間の酸素フラックスを測定し、90-130 $\text{nmol O}_2/\text{cm}^2 \text{ hr}$ という値を報告している。酸素の輸送過程は分子拡散のみであると仮定して計算した ΣO_2 consumption 及び DBL flux の値は (図-4)、長尾ら (2000) の測定値とよく一致している。このことは、酸素濃度プロファイルの解析に用いた一連のアルゴリズムの正当性を強く支持している。そして、今回測定を行った広島湾湾央部 Stn. A の堆積物コアでは、酸素の主要な輸送過程は分子拡散であると仮定

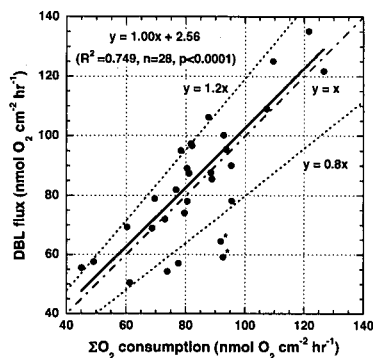


図-4 堆積物中の酸素消費速度 (R) の積分値 (ΣO_2 consumption) と DBL を通過する拡散フラックス (DBL flux) との関係。回帰直線 (実線) は、* 印を付けた 2 点を除いて計算した

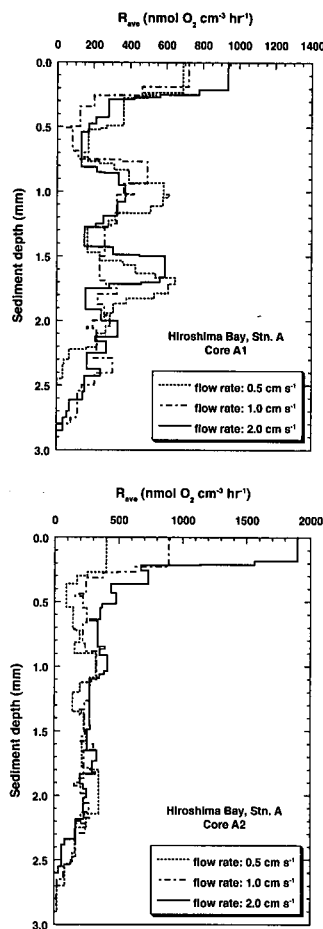


図-5 上層水の流速が、堆積物の単位体積当たりの酸素消費速度 (R) の鉛直プロファイルに与える影響の実験的解析結果

することが妥当であることを示している。

堆積物の単位体積当たりの酸素消費速度 (R) については、それぞれの断面平均流速において、堆積物の各深さでの R の平均値 (R_{ave}) と標準偏差を計算した ($n=5$)。各流速における R_{ave} の鉛直プロファイルを、図-5 に示した。 R_{ave} の鉛直プロファイルは、堆積物最表層 (0-200-300 μm) を除いて、各堆積物コアで、流速にかかわらず非常に一致していた。コア A1 では、堆積物最表層以外に、深さ 1 mm 前後及び 1.6 mm 前後の層で R_{ave} が高くなる傾向が見られた。コア A2 では、堆積物最表層以外では、 R_{ave} は一様に低かった。

3.2 酸素の動態に対する流速の影響

酸素濃度プロファイル測定時の、各流速での直上水の水温、直上水中の酸素濃度 (C_0) 及び界面での酸素濃度 (C_i) の平均値を表-2 に示した。各堆積物コアで考えると、これらの平均値には流速による有意な違いは見られなかった。

表一3 沿岸域の水-堆積物界面近傍における酸素の動態に対する流速の影響の実験的解析結果

Core	flow rate (cm/s)	DBL thickness (mm)			sffective DBL (Z _δ) (mm)			OPD (mm)			DBL flux (nmol O ₂ /cm ² hr)			ΣO ₂ consump- tion (nmol O ₂ /cm ² hr)			R _{surface} (nmol O ₂ /cm ² hr)		
		mean	SD	n	mean	SD	n	mean	SD	n	mean	SD	n	mean	SD	n	mean	SD	n
A 1	0.5	0.410	0.129	5	0.25	0.11	5	2.34	0.16	5	94.3	7.7	5	85.7	6.1	5	689	391	5
	1.0	0.350	0.117	5	0.19	0.05	5	2.57	0.40	5	80.2	12.3	5	76.6	5.6	5	721	382	5
	2.0	0.300	0.041	4*	0.14	0.02	4*	2.57	0.34	5	77.6	18.8	4*	86.8	9.3	5	939	364	5
A 2	0.5	0.340	0.089	5	0.16	0.07	5	2.65	0.18	5	64.5**15.8	5	62.2**19.8	5	402**	444	5	5	
	1.0	0.260	0.065	5	0.14	0.03	5	2.68	0.17	5	80.0**14.5	5	78.9**	7.1	5	893**	299	5	
	2.0	0.363	0.149	4*	0.15	0.04	4*	2.50	0.17	5	122.7**10.8	4*	111.5**13.3	5	1900**	796	5	5	

* ΣO₂ consumption と DBL flux との差が大きい測定結果 (図一4 で*印を付けて示した測定結果) を除いて計算した。
** これらの測定結果は、 $p < 0.05$ で統計的 (ANOVA) に有意に異なる。

表一2 酸素濃度プロファイルの測定条件

Core	flow rate (cm/s)	temperature (°C)			Oxygen concen- tration in over- lying water (C _o) (μM)			Oxygen concen- tration at inter- face (C _i) (μM)		
		mean	SD	n	mean	SD	n	mean	SD	n
A 1	0.5	22.6	0.7	5	173.6	3.6	5	142.3	18.1	5
	1.0	22.3	0.2	5	167.2	1.2	5	150.9	10.4	5
	2.0	23.1	0.7	5	164.3	2.2	5	150.8	5.2	5
A 2	0.5	22.7	1.1	5	143.5	4.8	5	126.0	11.0	5
	1.0	22.8	1.0	5	141.6	2.8	5	126.5	4.3	5
	2.0	24.6	0.7	5	148.4	1.2	5	127.3	8.8	5

各流速での DBL の厚さ、Z_δ、OPD、DBL flux、ΣO₂ consumption、及び堆積物最表層 (0~200-300 μm) での酸素消費速度 (R_{surface}) の平均値を表一3 に示した。

Z_δ、OPD、及び R_{surface} については、それらの平均値に対する流速の影響は、堆積物コア A1 と A2 で同じ傾向を示した。すなわち、流速が速くなるにしたがい、Z_δ については薄くなる傾向が見られ、R_{surface} については大きくなる傾向が見られた。しかし、OPD については流速との対応は見られなかった。またコア A2 では、流速が速くなるにしたがい、ΣO₂ consumption と DBL flux は統計的 (ANOVA) に有意に大きくなった。この ΣO₂ consumption の増加は、流速が速くなるにしたがい、R_{surface} が大きくなったためである (図一5)。

沿岸域の堆積物では、酸素消費速度 (R) は酸素濃度には依存していない (0 次反応) と考えられる (Rasmussen・Jørgensen, 1992)。したがって、今回の実験で、R_{surface} が増加した理由として考えられるのは、流速が速くなると酸素と反応する基質の濃度が堆積物最表層 (0~200-300 μm) で高くなった可能性である。

堆積物中で酸素が消費される主要な過程は、有機物の好気的無機化 (酸素呼吸)、硝化、及び還元層で生成された嫌気的代謝産物 (マンガン (II) や還元鉄及び硫化物など、Oxygen Demand Units, 略して ODU と呼ぶ) が酸化層で生物学的あるいは非生物学的に酸化される過程である。ODU は間隙水に溶存しており、還元層から酸化層を通り直上水へ拡散している。例えば、流速が速くなることにより、還元層から酸化層への ODU フラックスが増加し、堆積物最表層 (0~200-300 μm) での ODU 濃度が

高くなれば、それに反応して R_{surface} が大きくなる可能性も考えられる。

流速の変化が R_{surface} に影響を与えるメカニズムの詳細については、現時点では明らかではない。しかし本研究で得られた実験的解析結果は、海底境界層における流動場の変動が、水-堆積物間の溶存物質のフラックスや界面近傍における物質循環に対して大きな影響を与えていることを示している。

謝辞：酸素濃度プロファイルの解析手法の開発では佐藤達明氏 (アルファ水工コンサルタンツ㈱) にご尽力頂いた。酸素濃度プロファイルの測定では三浦俊一氏・難波正明氏 (東和科学㈱) にご協力を頂いた。実験水槽に用いる整流板は真野稔正氏 (カネボウ㈱) から提供して頂いた。以上、ここに記して深甚なる謝意を表する。

参 考 文 献

板岡 睦・玉井恭一 (1993): 広島湾におけるメイオセントスの群集構造と富栄養化、日本ベントス学会誌, 45 巻, pp. 19-28.
中村由行・井上徹教・F. Kerciku・左山幹雄 (1996): 微小酸素電極を用いた濃度境界層の微細構造の把握, 海岸工学論文集, 第 43 巻, pp. 1081-1085.
長尾正之・橋本英資・朱 小華・吉田みゆき・高杉由夫 (2000): 広島湾における海底酸素消費量の連続測定, 土木学会論文集, No. 663/II-53, pp. 109-117.
Berg, P., N. Risgaard-Petersen, and S. Risgaard (1998): Interpretation of measured concentration profiles in sediment pore water, Limnol. Oceanogra., Vol. 43, pp. 1500-1510.
Gundersen, J. K. and B. B. Jørgensen (1990): Microstructure of diffusive boundary layers and the oxygen uptake of the sea floor, Nature, Vol. 345, pp. 604-607.
Güss, S. (1998): Oxygen uptake at the sediment-water interface simultaneously measured using a flux chamber method and microelectrodes: Must a diffusive boundary layer exist?, Estuar. Coast. Shelf. S., Vol. 46, pp. 143-156.
Jørgensen, B. B. (1996): Material flux in the sediment, Eutrophication in Coastal Marine Ecosystems, American Geophysical Union, pp. 115-135.
Jørgensen, B. B. (2001): Life in the diffusive boundary layer, The Benthic Boundary Layer: Transport Processes and Biogeochemistry, Oxford University Press, pp. 348-373.
Nakamura, Y. and H. G. Stefan (1994): Effect of flow velocity on sediment oxygen demand: Theory, ASCE Journal of Environmental Engineering, Vol. 120, pp. 996-1016.
Rasmussen, H. and B. B. Jørgensen (1992): Microelectrode studies of seasonal oxygen uptake in a coastal sediment: role of molecular diffusion. Mar. Ecol. Prog. Ser. Vol. 81, pp. 289-303