

流速が堆積物からの栄養塩溶出速度に及ぼす影響

井 上 徹 教*・中 村 由 行*

流速が堆積物からの栄養塩溶出速度に及ぼす影響について、連続培養系を用いた室内実験により検討した。その結果、巻き上げがおこらない条件下では、流速の増加に伴い $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 溶出速度は増加した。しかし $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 溶出速度は巻き上げ直前付近で極大値をとり、それ以上の流速では減少していく傾向が示された。これに対し、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度は流速の増加に伴い単調に増加した。このような栄養塩溶出速度の増加は、流速の増加に伴う堆積物直上の濃度境界層厚さの減少、即ち水・堆積物界面における濃度勾配の増加が原因であると考えられた。また、 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度と流速との関係は、数値モデルにより定量的な再現が可能であった。

1. はじめに

閉鎖性の強い水域における物質循環を考える上では、水・堆積物界面における物質輸送過程を定量的に把握する事が非常に重要な課題である。従来の水・堆積物界面における物質輸送に関する研究は、堆積物中の微生物活性・酸化還元電位等の生物・化学的な側面からの検討が中心であった。しかし、近年では直上水の流動条件などの物理的な条件が物質輸送に対して大きな影響を与えるものと考えられるようになり、細井ら(1992)、Belanger(1981)、Boyntonら(1981)、Jørgensen・Des Marais(1990)が堆積物による酸素消費速度(SOD)に対する流動の影響について検討を行っている。しかし、水域の富栄養化に非常に重大な影響を与える堆積物からの栄養塩溶出に対する流動の影響については、中村ら(1994)、Inoueら(2000)が数値モデルにより検証しているに過ぎない。東野・神田(1998)は室内実験及び数値モデルにより検討しているが、堆積物材料としてカオリナイト、溶質としてメチレンブルーを用いており、複雑な要因が現象を支配する環境中の堆積物での考察は未だ不十分である。一方、Inoue・Nakamura(2001)は湖沼における現場観測結果から、無酸素条件下での底層流動が栄養塩溶出速度に対して大きな影響を与える可能性について言及している。

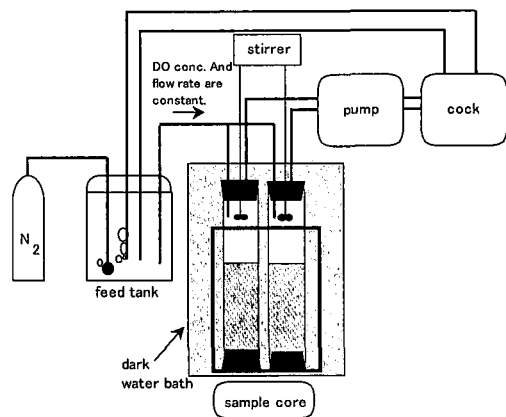
そこで本研究では、無酸素条件下において流速が堆積物からの $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ の溶出速度に及ぼす影響について、連続培養系を用いた室内実験により検討した。また、Inoueら(2000)の数値モデルによる計算結果と本実験結果との比較を行い、現象再現の可否についても検討を行った。

2. 実験概要

(1) 実験装置

室内実験は図一1に示されるような堆積物コアの直上

水を供給タンク内の水と一定流量で置換する連続培養系で行った。本実験系では供給水タンク内の水が、下流に設置されたペリスターポンプ(Technicon, II型)のおこす負圧により一定流量で堆積物コア直上に、連続的に供給される。直上水はコア上部に設置されたプラスチック製のプロペラにより攪拌され、直上水内の物質濃度を均一に保つ。また、プロペラの回転速度を変化させることで、直上水の流速を容易に変化させることが可能である。コア内の3次元的な流速分布はあらかじめ各攪拌条件に対してレーザー流速計により測定しており、この結果からプロペラの回転速度と摩擦速度との関係を定式化している。コア内で十分混合された直上水は、供給水と等量だけコア上部から抜き取られ、供給水タンクへと返送される。供給水タンク及びペリスターポンプの下流側にはサンプリングコックが設けられ、採取されたサンプルは水質分析に用いられる。今回の実験では、供給タンク、堆積物コア、サンプリングコック等はそれぞれ内径3 mm、外径5 mm、壁厚1 mmのガラス管(屈曲部のみ内径4 mm、外径6 mm、壁厚1 mmのビニールチューブ)によって接続され、この中を水が循環するようにした。堆積物直上水は十分に攪拌されており、流出水の溶存



図一1 実験装置概念図

表-1 実験条件

	CORE 1	CORE 2	CORE 3	CORE 4	CORE 5	CORE 6
流量 (ml min ⁻¹)	2.16	2.11	2.11	2.14	2.08	2.12
直上永容量 (l)	1.07	0.86	0.69	1.06	0.94	0.68
滞留時間 (h)	8.2	6.8	5.4	8.2	7.5	5.3

物質濃度は直上水中のそれに等しいと仮定すると、水・堆積物界面における物質移動速度は次式により計算される。

$$V \frac{dC_{out}}{dt} = Q \cdot C_{in} - Q \cdot C_{out} + A \cdot \text{Flux} \cdots \cdots (1)$$

ここで、 V はコア内の直上水の体積、 C_{out} はコアからの流出水の溶存物質濃度、 t は時刻、 Q は供給水流量、 C_{in} は供給水タンク内の溶存物質濃度、 A は堆積物コア断面積、Flux は堆積物からの溶出フラックスを示している。

(2) 実験内容

堆積物コアは、博多湾奥部の和白干潟の堆積物（砂混じりのシルト質）を高き 50 cm、内径 8.5 cm、外径 9.5 cm の円形アクリルパイプを用いて、表層約 30-40 cm を未攪乱で採取した。目視では表層 3-5 mm 程度の範囲で褐色を呈した酸化層が確認された。堆積物採取後は速やかに実験室へ持ち帰り、一晚静置した後、目視により確認されたマクロベントス（主にウミナナ）をピンセットを用いて排除した。その後、30℃に設定された恒温水槽内へ設置し、堆積物コアの温度コントロールを行った。堆積物コアは 6 本用意し、それぞれ CORE 1~CORE 6 としたが、CORE 1 内にはゴカイが 2 匹混入していたため、以後の考察には他の 5 本のコアの結果を用いる。

直上水及び供給水には、堆積物コア採取場所における塩分に合わせるため、外海水 8、精製水（高杉製）2 程度の割合で混合したものを用いた。供給水タンク（ポリエチレン製、容量 10 l）内は常時 N₂ ガスにより曝気する事で、DO 濃度を 0 mg l⁻¹ に保った。供給タンクは 3 個用意し、それぞれ T1、T2、T3 とした。1 つの供給水タンクから 2 つの堆積物コアに水を供給することとし、CORE 1、4 には T1 から、CORE 2、5 には T2 から、CORE 3、6 には T3 から供給した。

採水はサンプリングコックに取り付けた採水用ビニルチューブ、または供給タンク内に一端を浸漬させたビニルチューブに 50 ml のシリンジを取り付けて行った。サンプリングコックからの採水は、ペリスターポンプによる吐出圧によりシリンジのピストン部分が吐出量に応じて押し出される様式で行った。シリンジ内に抜き取られたサンプルは、空気に暴露されないように直接ディスポーザルフィルター（ポアサイズ 0.2 μm）を用いて濾過を行った。1 回のサンプルに対してこれらの工程を 2 回行い、混合してサンプル量を 100 ml 程度確保し、100 ml

のポリ瓶に入れて冷凍保存した。

実験は堆積物コア内の攪拌速度を段階的に変更しながら、約 5 日間継続して行った。目視によると、実験中の堆積物は常に黒色を呈しており、還元的な条件下での実験が行われていたものと判断した。実験条件を表-1 に示す。

3. 実験結果及び考察

(1) NH₄⁺-N

供給水及び堆積物コアからの流出水中における NH₄⁺-N 濃度の時間変化の一例を図-2 に示す。これは CORE 4 に供給されていた T1 内の供給水、及び CORE 4 からの流出水中の濃度を図示したものである。図にはコア内の攪拌速度の時間変化も併記している。堆積物からの NH₄⁺-N 溶出による影響を受け、供給水及び流出水ともに時間の経過に伴い濃度は上昇した。また、常に流出水の濃度は供給水の濃度を上回っているが、この差が堆積物からの溶出速度を直接的に表している。

そこで、式 (1) により計算された NH₄⁺-N 溶出速度と攪拌速度との関係を示したのが図-3 である。巻き上げの生じていない比較的低流速域においては、攪拌速度の増加に伴い NH₄⁺-N 溶出速度は増加している。これは流速の増加に伴い堆積物直上の濃度境界層厚さが減少するため、水・堆積物界面における濃度勾配が増加し、拡散フラックスが増加したためと考えられる。しかし NH₄⁺-N 溶出速度は 100 r.p.m. 付近で極大値をとり、そ

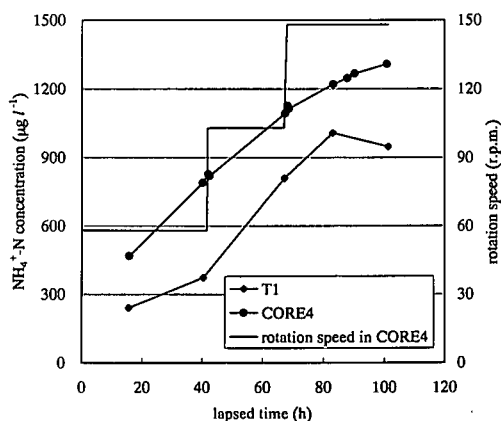


図-2 NH₄⁺-N 濃度の時間変化の様子

れ以上の攪拌速度では減少していく傾向が見てとれた。150 r.p.m.付近では巻き上げが生じていたため、これに伴う生物・化学的反応が NH_4^+-N の溶出フラックスを減少させた可能性が考えられる。以下に、その一つの可能性として堆積物粒子による吸着の影響について考察してみる。

まず、堆積物粒子の巻き上げによって水・堆積物界面における NH_4^+-N 輸送フラックスが減少したとは考えにくい。巻き上げ時の溶出フラックスの減少は直上水中の NH_4^+-N 濃度の低下によるものと考えた。そこで、この NH_4^+-N 濃度の低下は巻き上げられた負に帯電した堆積物粒子が直上水中に溶存している正の電荷を持つ NH_4^+-N を吸着したことによるものと仮定し、図-4

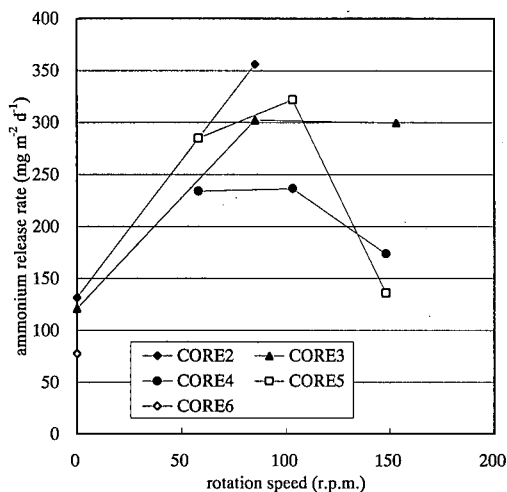


図-3 攪拌速度と NH_4^+-N 溶出速度との関係

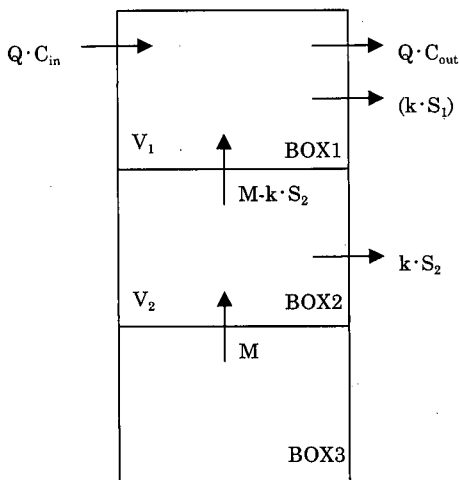


図-4 巻き上げ時の NH_4^+-N 溶出速度減少を考察する概念図

に示す概念に基づき定式化を試みた。即ち、 NH_4^+-N は堆積物深層 (BOX 3) から生分解過程を通して供給され (M)、間隙水中を拡散により上方へ輸送される。堆積物表層 (厚さ 3 cm, BOX 2) の堆積物粒子及び直上水中 (BOX 1) に巻き上げられた堆積物粒子は NH_4^+-N を吸着する ($k \cdot S_1$, $k \cdot S_2$)。吸着速度は堆積物粒子の表面積に比例するものとする。簡単のため、堆積物粒子は直径 30 μm の単一粒径とする。定常状態を仮定すると、直上水中 (BOX 1) における収支式は次式で示される。

$$Q(C_{\text{out}} - C_{\text{in}}) = M - k(S_1 - S_2) \dots \dots \dots (2)$$

ここで、 Q は流量、 C_{in} は供給水中の NH_4^+-N 濃度、 C_{out} は流出水中の NH_4^+-N 濃度、 M は 1 つの CORE の堆積物中での NH_4^+-N 生成速度、 k は NH_4^+-N が堆積物粒子の単位表面積あたりに単位時間あたりに吸着する速度、 S_1 は巻き上げられた堆積物粒子の全表面積、 S_2 は BOX 2 中の堆積物粒子の全表面積である。

式 (2) において Q , C_{out} , C_{in} は実験結果から、 S_1 , S_2 は SS 濃度、堆積物粒子の比重、粒径等を仮定することにより値を求めておくと、未知数は M 及び k の 2 個になる。このため、考察の対象となる条件下での 2 組の C_{out} , C_{in} (例えば、巻き上げ直前と巻き上げ後) を与えることで、 M 及び k の値を求めることができる。実験結果より、巻き上げが無い状況では、 $C_{\text{out}} = 956 (\text{mg l}^{-1})$, $C_{\text{in}} = 610 (\text{mg l}^{-1})$, 巻き上げがある状況では、 $C_{\text{out}} = 1231 (\text{mg l}^{-1})$, $C_{\text{in}} = 968 (\text{mg l}^{-1})$ の値を用いて計算すると、 $k = 0.11 (\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1})$, $M = 1.8 (\text{mg m}^{-2} \text{d}^{-1})$ が得られた。

以上のような簡単なモデル化から、堆積物粒子の巻き上げに起因する直上水中の NH_4^+-N 濃度の低下 (結果として NH_4^+-N 溶出速度の減少) の可能性が指摘された。しかし NH_4^+-N の堆積物粒子への吸着過程は、必ずしも本試算で用いたような単純な過程ではなく、流速の変化及び巻き上げの有無が NH_4^+-N 溶出速度に与える影響も無視できないため、今後はより詳細な検討が必要であると考えられる。

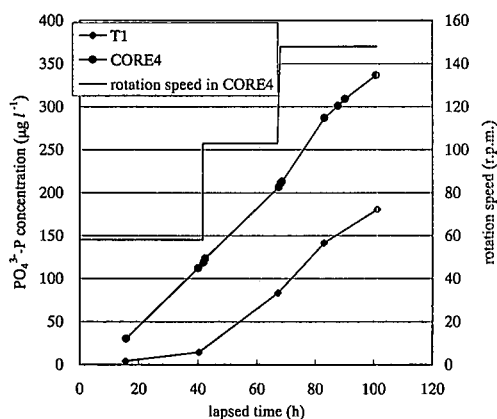
(2) $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$

供給水及び堆積物コアからの流出水中の $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 濃度の時間変化の一例を図-5 に示す。これは図-2 の場合と同様に、CORE 4 に供給されていた T1 内の供給水、CORE 4 からの流出水中の濃度及びコア内の攪拌速度の時間変化を図示したものである。 $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ についても堆積物からの溶出の影響により、常に供給水よりも流出水の濃度が高くなっている。

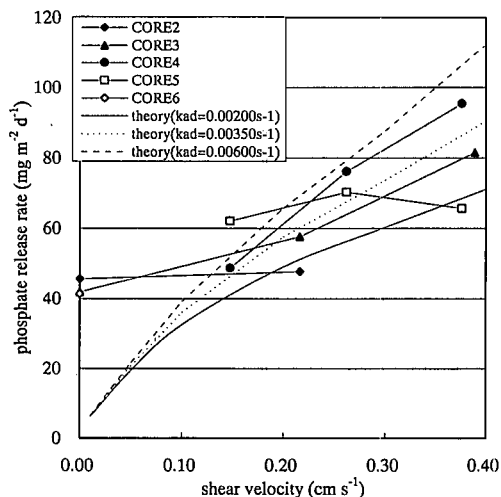
式 (1) により計算された $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 溶出速度と摩擦速度との関係を示したのが図-6 である。 NH_4^+-N の場合と異なり、すべての流速域において摩擦速度の増加に伴い $\text{PO}_4^{3-}-\text{P}$ 溶出速度は増加している。これは、巻き上げ

が無い条件下での $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 溶出速度の場合と同様に、流速の増加に伴い堆積物直上の濃度境界層厚さが減少したため、水・堆積物界面における濃度勾配が増加し、拡散フラックスが増加したためと考えられる。 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ において $\text{NH}_4^+\text{-N}$ のような巻き上げに伴う拡散フラックスの減少が見られなかったのは、一般に堆積物中での $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ の吸着は水酸化第二鉄に対して起こるものであり、本実験のように還元的な条件下では吸着過程は存在しなかったためであると考えられる。

ここで $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出に関する数理モデルとの比較を行ってみる。Nakamura (1994) は堆積物直上の濃度境界層における拡散輸送モデルと堆積物内部の反応過程を水・堆積物界面における連続性を用いてカップリングし、SOD 及び堆積物からの $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度に関する数理モデルを提案している。このモデルでは定常状態を



図一5 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度の時間変化の様子



図一6 摩擦速度と $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度との関係

仮定し摂動解を用いることで解析的に解いているが、Inoue ら (2000) はこれを応用し非定常モデルに拡張し数値的に解いている。それによると、諸反応は以下の各溶存物質に関する物質収支式により表現される。

$$\varepsilon \frac{\partial C_0}{\partial t} = \varepsilon D_{z0} \frac{\partial^2 C_0}{\partial z^2} - \frac{1}{4} \varepsilon k_{OF} C_0 C_F - k_B C_0 \quad \cdots (3)$$

$$\varepsilon \frac{\partial C_P}{\partial t} = \varepsilon D_{zP} \frac{\partial^2 C_P}{\partial z^2} - \alpha \varepsilon k_{OF} C_0 C_F - k_{ad} [C_P - C_P(-\infty)] \quad \cdots (4)$$

$$\varepsilon \frac{\partial C_F}{\partial t} = \varepsilon D_{zF} \frac{\partial^2 C_F}{\partial z^2} - \varepsilon k_{OF} C_0 C_F - \frac{1}{\alpha} k_{ad} [C_P - C_P(-\infty)] \quad \cdots (5)$$

ここで、 $C_0 \cdot C_P \cdot C_F$ はそれぞれ $\text{DO} \cdot \text{PO}_4^{3-}\text{-P} \cdot$ 第一鉄イオンの濃度、 $D_{z0} \cdot D_{zP} \cdot D_{zF}$ はそれぞれ $\text{DO} \cdot \text{PO}_4^{3-}\text{-P} \cdot$ 第一鉄イオンの拡散係数、 t は時刻、 z は鉛直軸(上向きを正、界面を0としている)、 ε は間隙率、 k_{OF} は第一鉄イオンの酸化速度係数、 k_B は微生物による酸素消費速度係数、 k_{ad} はリンの吸着速度定数、 α は $\text{Fe}(\text{OH})_3$ に吸着する PO_4 のモル比、 $C_P(-\infty)$ は堆積物深層における間隙水中 $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 濃度である。

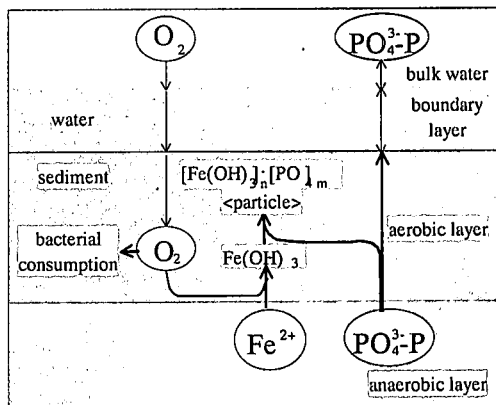
堆積物中における拡散係数は、分子拡散係数を間隙率を用いて修正した値(増沢, 1985)を用いるが、水中における拡散係数は次式により定義している。

$$D_z = D_{zm} + D_{zt} \quad \cdots (6)$$

$$\frac{D_{zt}}{\nu} = \left(A_m \frac{zu_*}{\nu} \right)^m \quad \cdots (7)$$

ここで、 D_z は鉛直方向の拡散係数、 D_{zm} は分子拡散係数、 D_{zt} は乱流拡散係数、 ν は動粘性係数、 u_* は摩擦速度、 $A_m (=0.078) \cdot m (=3)$ は定数を表す(中村ら, 1994)。

このモデル上では、流速の変化を摩擦速度で代表させ、式(7)により拡散係数の鉛直分布を変化させることで



図一7 数理モデル概念図

流速の影響を再現している。本数値モデルの概念を図-7に示す。

今回行った実験ではいずれの条件下においても無酸素条件であり、この場合モデル上有効なパラメーターは k_{ad} のみとなる。そこで3種の k_{ad} に対するモデル計算の結果を図-6に示す。これを見ると、モデル計算の結果からも、流速の増加に伴い $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度は増加する事がわかる。また数値モデルは、パラメーターを適正に設定すれば実験結果を定量的に再現可能である事も示された。しかし、摩擦速度0においては実験結果が計算結果よりも大きくなっている。数値モデルでは、攪拌が無い条件下においては直上水中の物質輸送過程を分子拡散のみを用いて計算している。しかし実験においては、コア直上水に比べ供給水が若干低い水温で推移していたため、コア内への供給水流入に伴う密度対流が攪拌効果を持ったため、直上水中での物質輸送が増強されたものと考えられる。今後は k_{ad} 等のパラメーター評価の手法を改善し、モデル計算による結果の精度向上が必要と考えられる。

4. 結 論

流速が堆積物からの栄養塩溶出速度に及ぼす影響について、室内実験により検討を行った。

その結果、巻き上げの生じていない比較的低流速域においては、攪拌速度の増加に伴い $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 溶出速度は増加することがわかった。これは流速の増加に伴い堆積物直上の濃度境界層厚さが減少するため、水・堆積物界面における濃度勾配が増加し、拡散フラックスが増加したためと考えられる。しかし $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 溶出速度は巻き上げ直前付近で極大値をとり、それ以上の攪拌速度（流速）では減少していく傾向が見て取れた。この減少傾向を説明する仮説として、巻き上げられた堆積物粒子による $\text{NH}_4^+\text{-N}$ 吸着の可能性が考察された。

これに対して $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ の溶出速度は流速の増加に伴い単調に増加することが示された。これは、一般に堆積物中での $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ の吸着は水酸化第二鉄に対して起こるものであり、本実験のような還元的な条件下では吸着過程は存在しなかったためであると考えられる。また、

流速と $\text{PO}_4^{3-}\text{-P}$ 溶出速度との関係は、Inoueら(2000)による数値モデルにより定量的な再現が可能であった。

いずれの場合においても、流速の変動は、流動が無い状況下での溶出速度の1~3倍程度の範囲内で栄養塩溶出速度を変動させることが示された。このため、水・堆積物界面における物質循環過程を考える上で、今後は水理条件の詳細な把握も必須となることが指摘された。

謝辞: 本研究は、著者が九州大学在籍時に行ったものであり、九州大学大学院工学研究院環境都市部門環境流体工学研究室の皆様には大変お世話になりました。深く感謝いたします。

参 考 文 献

- 中村由行・御子神学・朴 崎 稿 (1994): 底層水の流動がリンの溶出フラックスに及ぼす影響, 海岸工学論文集, 第41巻, pp. 1081-1085.
- 東野 誠・神田 徹 (1998): 底泥から流水への溶解性物質の溶出過程, 水工学論文集, 第42巻, pp. 745-750.
- 細井由彦・村上仁士・上月康則 (1992): 底泥による酸素消費に関する研究, 土木学会論文集, No. 456/II-21, pp. 83-92.
- 増沢敏行 (1985): 海水から化学成分が除かれる過程, 海洋の動態 (梶浦欣二郎 編), pp. 264-309.
- Belanger, B. T. (1981): Benthic oxygen demand in Lake Apopka, Florida, Wat. Res., Vol. 15, pp. 267-274.
- Boynton, W. R., W. M. Kemp, C. G. Osborne, K. R. Kaumeyer and M. C. Jenkins (1981): Influence of water circulation rate on in situ measurements of benthic community respiration, Marine Biology, Vol. 65, pp. 185-190.
- Inoue, T., Y. Nakamura, Y. Adachi (2000): Non-steady variations of SOD and phosphate release rate due to changes in water quality of the overlying water, Water Science and Technology, Vol. 42, Nos. 3-4, pp. 265-272.
- Inoue, T., Y. Nakamura (2001): Diel variation of resuspension and effect of resuspension on phosphate release rate from the sediment, The 8th International Symposium on Flow Modeling and Turbulence Measurements Presentation Program and Paper Summaries, pp. 235-236.
- Jørgensen, B. B., D. J. Des Marais (1990): Diffusive boundary layer of sediments: Oxygen microgradients over a microbial mat, Limnol. Oceanogr., Vol. 35, pp. 1343-1355.
- Nakamura, Y. (1994): Effect of flow velocity on phosphate release from sediment, Water Science and Technology, Vol. 30, No. 10, pp. 263-272.