

有明海奥部における栄養塩溶出フラックスの時空間変動

Spatial and Temporal Variations of Sediment Nutrient Release and Denitrification in the Head of Ariake Bay

小野澤恵¹・鯉渕幸生²・阿部哲也³・寺田一美⁴・磯部雅彦⁵

Keiichi ONOZAWA, Yukio KOIBUCHI, Tetsuya ABE, Kazumi TERADA and Masahiko ISOBE

The lack of data such as nutrient release rate and denitrification rate in enclosed bays sometimes makes it difficult to grasp the structure of the nutrient budget that is essential to solve the problems in estuaries such as red tides, anoxic events etc. We conducted field observation of the nutrient release rate and denitrification rate in the head of Ariake bay using the nitrogen isotope pairing, for the purpose of figuring out the changes and distributions of those fluxes, and also analyzed the sediment such as carbon stable isotope, quinone profile, carbon content so as to find out the mechanism and the key factor of those nutrient fluxes.

1. 序 論

有明海をはじめとする内湾では、富栄養化が長年に渡って顕在化しており、赤潮や海底の貧酸素化に関して多くの知見が蓄積されつつある。しかし有明海の栄養塩循環については、柳ら (2005) によるボックスモデルを用いた検討などに限られ、有明海の再生に向けた統合的な対策の検討には至っていない。これは底泥からの溶出や、脱窒の時空間変動とその要因に関する知見の不足が障壁となっており、湾内の栄養塩循環を精度よく数値計算することが困難なことが一因となっている。

溶出現象については、中村ら (1996)、井上ら (2002)、今村ら (1997)、細川ら (1984) が、現象を水-底泥間の拡散現象とみなし、実験による拡散係数の推定や、ボックスモデルを用いた湾単位での溶出フラックス算定など試みている。しかし、現地での溶出フラックスの実測データは圧倒的に不足しているのが現状であり、有明海でも有明海海域環境調査報告書 (農林水産省, 2003) において夏季・冬季の平均値が報告されている程度である。さらに脱窒フラックスについては、アセチレン阻害法による計測結果 (鯉渕ら, 2005) を除いてほとんど報告がないのが現状である。

そこで本研究は、有明海奥部において溶出フラックス・脱窒フラックスの多地点・多頻度にわたる現地調査

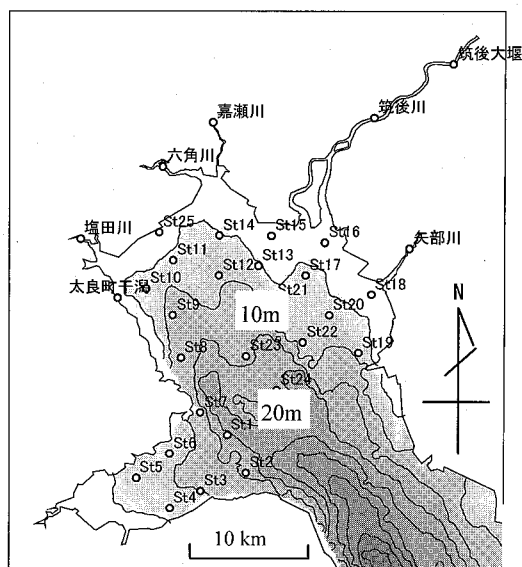


図-1 観測地点および水深

を行い、キノンプロファイル、安定同位体比、炭素含有率などの底質分析結果と比較・考察することによって、溶出フラックス・脱窒フラックスの時空間プロセス実態把握および支配要因の解明を試みた。

2. 観測方法・分析手法

(1) 現地観測・分析の概要

底質分析用サンプル及び実験用コアの採取は、2005年～2006年度にかけて計6回、全31地点において実施した。採泥はダイバーによる採取と、エクマンバージ採泥器の使用を併用した。1地点につき6本のコアを採取することで、溶出速度・脱窒速度、底泥間隙水中の無機態栄養塩濃度、C/N比、安定同位体比、粒径、キノンプロファイル等の分析を行った。

- | | | |
|---------|------|-----------------------------------|
| 1 非 会 員 | 修(工) | 元東京大学大学院工学系研究科 社会基盤学専攻 修士課程 |
| 2 正 会 員 | 博(工) | 東京大学講師 大学院新領域創成科学研究科 社会文化環境学専攻 |
| 3 非 会 員 | 修(環) | 元東京大学大学院新領域創成科学研究科 社会文化環境学専攻 |
| 4 学生会員 | 修(環) | 東京大学大学院 新領域創成科学研究科 社会文化環境学専攻 博士課程 |
| 5 フェロー | 工博 | 東京大学教授 大学院工学系研究科社会基盤学専攻 |

栄養塩等の分析に用いたコアは冷凍保存し、実験室に持ち帰った後、鉛直方向に1 cm ずつ表層から10 cm の深さまで切断し、それぞれの分析に用いた。間隙水中の無機態窒素濃度 ($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$) は、底質試料を遠心分離機にかけて間隙水を抽出した後、ろ過を行いオートアナライザー (ブラン・ルーベ (株) 製 AACS Ⅲ) を使用し分析した。C/N 比の測定は、底質試料を凍結乾燥器で3日間乾燥させた後、乳鉢で細かく砕いてCN コーダー (ヤナコ分析工業 (株), MT-700) を用いて分析した。粒径の分析には無機栄養塩類の測定に用いたサンプルを利用し、分析にはレーザー回折式粒度分布測定装置 (島津製作所, SALD-3000S) を使用した。キノンプロファイル分析の手順は藤田ら (2005) に従った。

(2) 溶出フラックス算定手法

溶出実験は、現地で採取した泥・水をそれぞれ冷蔵状態で実験室へ速やかに持ち帰り、サンプリングから6時間以内に実験を開始した。実験ではまず、底質を巻き上げないよう泥質に現地水を注意深く注いだ後、1時間半間隔で計5回ずつ採水し、無機態窒素濃度 ($\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$) をオートアナライザー (ブラン・ルーベ (株) 製 AACS 3) で分析した。培養にあたっては現場条件に近づけるために、培養水槽に水を入れ、暗幕を用いて暗条件に保ちながら、コアの直上水を底質が巻き上がらない程度にポンプで撹拌した。

(3) ^{15}N トレーサー法

^{15}N トレーサー法とは、現地で採取した泥・水コアに窒素安定同位体で標識した硝酸 $^{15}\text{NO}_3^-$ を添加し培養を行い、脱窒を通じ発生した3種類の窒素ガス ($^{28}\text{N}_2$, $^{29}\text{N}_2$, $^{30}\text{N}_2$) のうち、 $^{29}\text{N}_2$ と $^{30}\text{N}_2$ の増加速度を測定することで硝化に連動した脱窒速度と直上水からの硝酸の拡散に基づ

く脱窒速度をそれぞれ求める手法である。各経路の脱窒速度は、Nielsen ら (1992) を参考に、次のように計算した。

$$D_{15} = P(^{29}\text{N}_2) + 2P(^{30}\text{N}_2) \dots\dots\dots (1)$$

$$D_{14} = D_{15} \frac{P(^{29}\text{N}_2)}{2P(^{30}\text{N}_2)} \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 D_{15} : $^{15}\text{NO}_3^-$ の脱窒速度 ($\mu\text{mol N/m}^2\cdot\text{h}$)、 D_{14} : $^{14}\text{NO}_3^-$ の脱窒速度 ($\mu\text{mol N/m}^2\cdot\text{h}$)、 $P(^{29}\text{N}_2)$: $^{29}\text{N}_2$ の生産速度 ($\mu\text{mol N/m}^2\cdot\text{h}$)、 $P(^{30}\text{N}_2)$: $^{30}\text{N}_2$ の生産速度 ($\mu\text{mol N/m}^2\cdot\text{h}$)。

液相からの NO_3^- の拡散に基づく脱窒速度 D_w は、 D_{15} と液相の NO_3^- の ^{14}N : ^{15}N 比から次式で算出した。

$$D_w = D_{15} \frac{[^{14}\text{NO}_3^-]_w}{[^{15}\text{NO}_3^-]_w} \dots\dots\dots (3)$$

ここで $[^{15}\text{NO}_3^-]$: 液相における $^{15}\text{NO}_3^-$ 濃度、 $[^{14}\text{NO}_3^-]$: 液相における $^{14}\text{NO}_3^-$ 濃度。

一方、間隙水中 $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ の硝化により生産される脱窒速度 D_n は次式を用いて算出した。

$$D_n = D_{14} - D_w \dots\dots\dots (4)$$

$^{29}\text{N}_2$ と $^{30}\text{N}_2$ の増加速度を測定するには、異なる培養時間で最低4回濃度を測定する必要がある。本研究では1地点につき4本のコアサンプル (内径5.5 cm, 長さ25 cm のポリカーボネイト製コア) をダイバーにより採取し実験を行った。添加する $^{15}\text{NO}_3^-$ には昭光通商 (株) 製の規定度1.59 [N] のものを希釈して終末濃縮度で存在度20%以上になるよう調整したものを加えた。添加前に直上水の海水サンプルを採取・分析することにより、添加後の液相における $^{14}\text{NO}_3^-$ 濃度を計算した。培養にあたっては現場条件に近づけるために、培養水槽に水を入れ、暗幕を用いて暗条件に保ちながら、コアの直上水をマグネット式のスターラーで底質が巻き上がらない程度に撹拌を行った。各コアの培養終了時 (培養時間: 1.5時間, 3時間, 4.5時間, 6時間) にコア全体をかき混ぜ間隙水と直上水を混合し、浮遊している底質粒子を沈降させた後、上澄み液を採取した。この際、塩化亜鉛50% w/v を添加することによって微生物活性を阻害し、脱窒がこれ以上進まないようにした。採取した直上水の一部 (4 ml) をヘリウムガスに置換して4分間程度を強く振ることにより、窒素ガスをヘッドスペースに抽出し、ガスクロマトグラフ-質量分析計 (横河アナリティカルシステムズ GC/MS HP5890 + 5972) を用いて窒素安定同位体の増加量を測定することで脱窒速度を算出した。

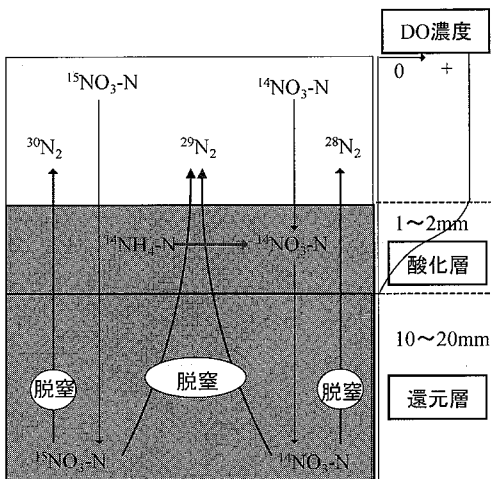


図-2 ^{15}N トレーサー法の原理

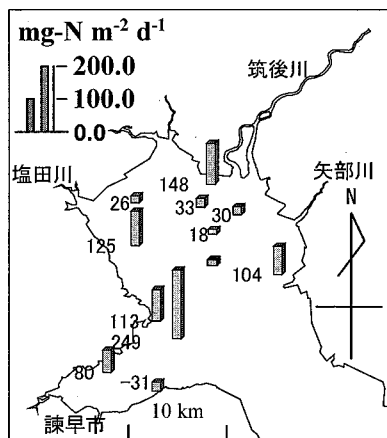


図-3 窒素溶出フラックスの空間分布

3. 結果及び考察

(1) 窒素溶出フラックスと有機物含有量の関係

有明海奥部の溶出フラックスを2005年度～2006年度の2年間、2ヶ月に1回程度の頻度で、図-1の奇数番の測点において調査した。一例として2006年12月における観測結果を図-3に示す。諫早湾口は溶出速度が大きく、特にSt.1において $249.42 \text{ mg-N/m}^2/\text{day}$ と最大値が見られた。一方で筑後川河口域はSt.5を除き溶出速度が小さかった(St.13, 17, 21)。このように溶出速度が場所によって大きく異なる原因を明らかにするため、炭素含有率、CN比および炭素・窒素安定同位対比の観測結果と比較した。図-4に溶出速度と炭素含有率の関係を、図-5に炭素含有率、CN比、炭素安定同位対比の平面分布を示す。まず図-4から両者の間には強い正の相関が見られることから、有機物堆積量が多いほど分解・無機化に伴う間隙水中のアンモニア態窒素濃度が高

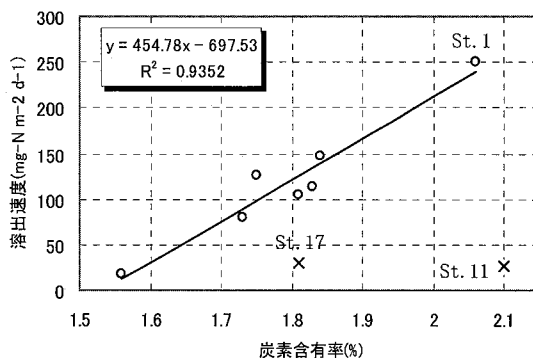


図-4 窒素溶出速度と有機物含有量の関係

くなることに起因しているとみられ、溶出フラックスは基本的には有機物の堆積量に支配されているといえる。

しかし全ての地点においてこの傾向が成り立つわけではなく、図-4中×で示した、筑後河口域St.17及び湾奥部St.11においては、炭素含有率がそれぞれ1.8(%)、2.2(%)と大きい割には、溶出フラックスが小さく(St.11: $25.99 \text{ mg-N/m}^2/\text{day}$, St.17: $29.92 \text{ mg-N/m}^2/\text{day}$)、堆積有機物量のみでは溶出フラックスを必ずしも説明できるわけではないことが分かった。

(2) 有機物起源が溶出フラックスに及ぼす影響

2006年12月における炭素安定同位体比の平面分布を図-5cに示す。低い炭素安定同位体比の値は陸起源有機物の存在を、高い値は藻類(植物プランクトン)起源有機物の存在を示唆していることが一般的に知られている。有明海湾奥部は比較的低い値をとっており、筑後川・六角川・嘉瀬川・塩田川など多数の大河川から流入した有機物が広範囲に渡り堆積していることが分かる。また、諫早湾の南部・北部排水門付近のSt.4およびSt.5においても比較的低い値を示しており陸域起源の有機物堆積が見

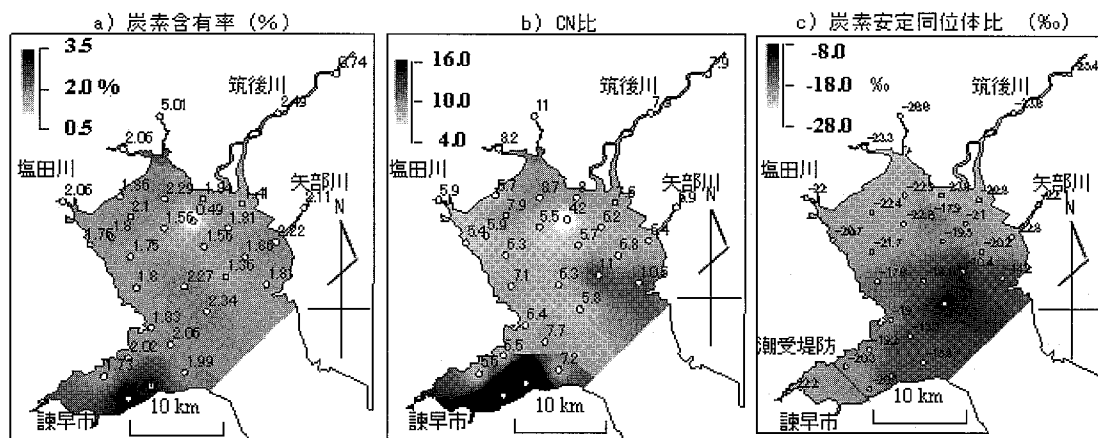


図-5 底質分析結果 (a: 炭素含有率 b: CN比 c: 炭素安定同位体比)

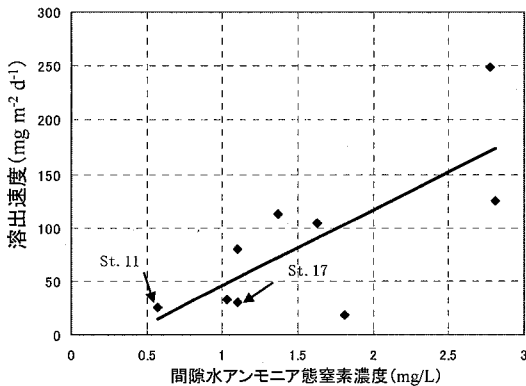


図-6 窒素の溶出速度と間隙水濃度の関係

られるものの、諫早湾中央部・湾口部では大きな値をとっていることから、諫早湾内において陸域起源有機物の堆積範囲は広範に拡がっていないことが分かった。有明海中央部の水深の深い地点においては富栄養化により生じた藻類起源の有機物が堆積していると考えられる。これを踏まえ、有機物含有量と溶出速度の関係を見直すと、St.11 および St.17 は堆積有機物の量が多いが、その起源が陸起源で難分解性であるがために、アンモニア態窒素の溶出フラックスが相対的に小さくなってしまったものと考えられる。図-6 に示す、間隙水中アンモニア態窒素濃度と溶出速度の間にも相関があり、前述の二地点(St.11 および St.17)もこの関係に従うことから、溶出フラックスは、間隙水からの拡散プロセスより前段階である有機物の堆積・分解プロセスが律速であるといえる。

(3) 脱窒フラックス

脱窒速度の算定は¹⁵N トレーサー法を用いたが、この手法は基質である硝酸態窒素の起源ごとの脱窒速度を見積もることができるというメリットがある。図-7 に

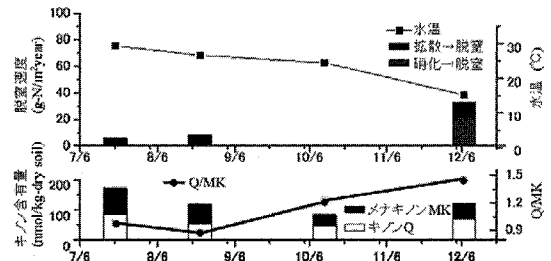


図-7 脱窒速度およびキノン含有量の時系列

示す S1 の 2005 年脱窒フラックスの時系列変化を見ると、夏季(7月・8月)において拡散経由の脱窒が卓越しているのに対して12月においては硝化経由の脱窒速度が卓越している。これは底質の酸化還元状態の季節変化に伴う底質微生物群衆構造の変遷が原因であると考えられる。7月～12月にかけて、好気性の微生物群を表す Q と、嫌気性の微生物群を表す MK の比である Q/MK 比が増加しており、底質の酸化還元状態が嫌気的な状態から好気的な条件に変移したことが明らかになった。夏季には高い日射の連続と河川からの栄養塩流入に伴う植物プランクトン増加、及び底層の貧酸素が近年数多く報告されているが、底層水の貧酸素化が底質の酸化還元電位を下げ、アンモニア態窒素を酸化しにくい環境を形成するに至ったと考えられる。こうした状態では硝酸態窒素の還元という脱窒過程の最終プロセスにおいてその基質は直上水からの拡散に依存する。一方、7月から12月にかけて貧酸素化が解消されるに伴い、底質が好気的に変化した結果、アンモニア態窒素・亜硝酸態窒素の酸化が促進されたものと考えられる。

さらに、季節的な変化のみならず空間分布を図-8 に示す。キノン含有量については St.1, St.12 が他3点(St.10,

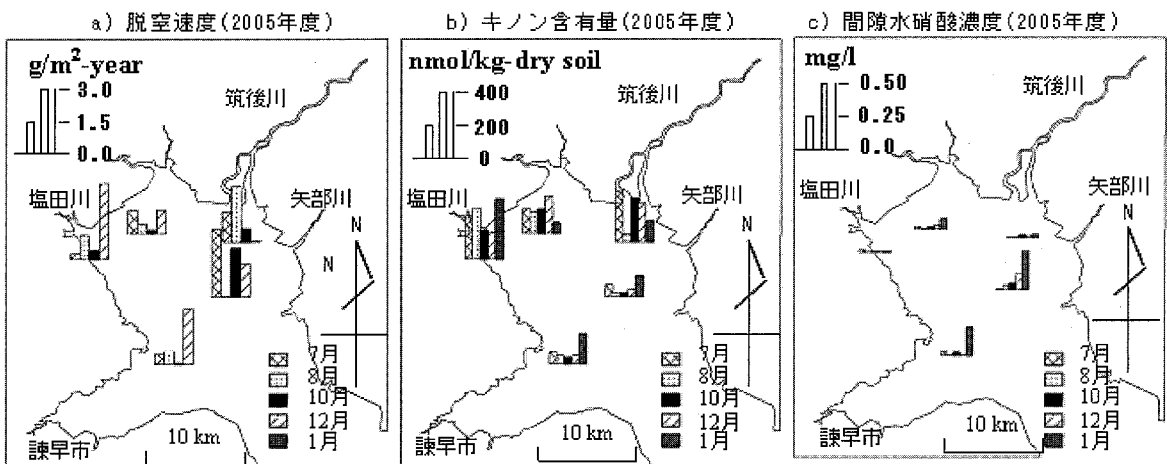


図-8 底質分析結果 (a: 脱窒速度 b: キノン含有量 c: 底泥表層間隙水硝酸濃度)

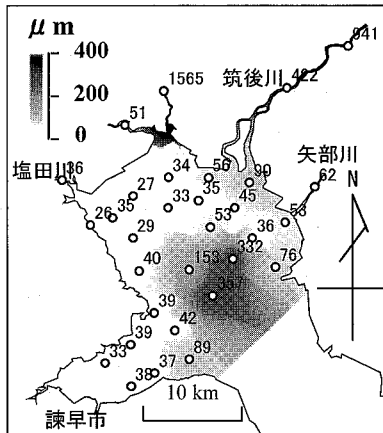


図-9 粒径分析結果 (2006年9月)

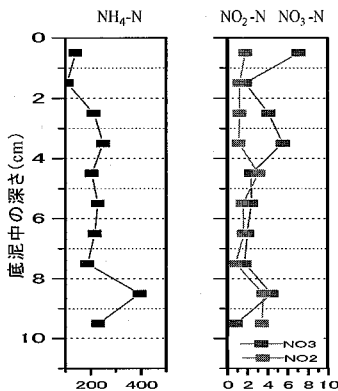


図-10 隙間水の鉛直プロファイル (S2: 05年10月)

11, 17) に比べ年間を通じて明らかに小さいにもかかわらず、脱窒速度は地点間で大きな差は見られなかった(図-8a)。S1, S12は水深が深く、河川からの距離も離れており、また図-9に示す通り、粒径の大きな地点の方が、水深が浅く粒径の小さい地点に比べてキノン含有量が少ない(図-8b)。これは図-8cや図-10に示すように、硝酸・亜硝酸の供給が多いため、泥質に比べ嫌気呼吸を行う細菌が厚い層を形成し、その上を好気細菌が薄く覆うという砂質特有の鉛直構造によるものであると考えられる。

4. まとめと今後の展望

- (1) 溶出フラックスと底質の広域・通年観測によって、溶出フラックスが堆積有機物量に支配されやすいこと、さらには植物プランクトン起源の有機物堆積箇所での溶出速度が速くなることなどが明らかになった。
- (2) 湾内窒素循環、特に溶出フラックスを見積もるにあたっては、植物プランクトン増殖及びその沈降・堆積過程を数値モデルによって再現することが重要である。
- (3) 脱窒反応に使われる硝酸態窒素の経路が季節によって異なることを¹⁵Nトレーサー法によって明らかに

し、その原因が底質の酸化還元状態の季節変化に伴う底質微生物群集構造の変遷であることをキノンプロファイル分析によってつぎとめた。

- (4) 砂質土は泥質に比べ、鉛直方向への硝酸・亜硝酸の供給が多く、嫌気呼吸を行う細菌が厚い層を形成し、その上を好気細菌が薄く覆うという砂質特有の鉛直構造をとることから、泥質と同程度の脱窒活性を有することが明らかになった。

謝辞：キノンプロファイル法による分析では山梨大学大学院医学工学総合研究部の藤田昌史氏に多大なるご協力をいただきました。現地観測に際しては日本クニヤ(株)の浦井氏に大変お世話になりました。なお本研究の一部は、東京大学21世紀COEプログラム「都市空間の持続再生学の創出」の補助を受けて実施いたしました。ここに記して謝意を表します。

参考文献

- 井上徹教・中村由行(2002): 流速が堆積物からの栄養塩溶出速度に及ぼす影響, 海岸工学論文集, 第49巻, pp. 1001-1005.
- 今村正裕・松梨史郎(1997): 湾奥部における水・底泥間の窒素・リンのフラックス, 海岸工学論文集, 第44巻, pp. 1081-1085.
- 鯉淵生・藤田昌史・阿部哲也・磯部雅彦(2005): 有明海奥部の底性微生物群集構造に及ぼす物理環境の影響, 海岸工学論文集, 第52巻, pp. 946-950.
- 中村由行・御子神学・朴崎鎬(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.
- 中村由行・井上徹教・山室真澄・神谷 宏・石飛 裕(1996): 未攪乱底泥コアを用いた連続培養系での酸素消費・溶出実験, 海岸工学論文集, 第43巻, pp. 1091-1095.
- 藤田昌史・芳賀弘和・西田 継・坂本 泰(2005): 山復斜面流出過程におけるキノンバイオマーカーの動態解析, 水工学論文集, 49, pp. 121-126.
- 細川恭史・三好英一・堀江 毅(1982): 沿岸底泥からの栄養塩の溶出過程のモデル化, 第29回海岸工学講演会論文集, pp. 570-574.
- 柳 哲雄・阿部良平(2006): 有明海における1979年と1999年の窒素収支の変化, 海の研究, 15, 67-75.
- Fujita, M., Y. Koibuchi, H. Udin, and K. Fujie (2004): Microbial response to benthic environment in trench and flat seabed sediments in Tokyo bay, Japan, Journal of Coastal Research.
- Lars Peter Nielsen (1992): Denitrification in sediment determined from nitrogen isotope pairing, FEMS Microbiology Ecology, 86: pp. 357-362.
- Pia Nygaard Christensen (2000): Protocol handbook for Nitrates-Nitrogen Cycling in Estuaries, Ministry of Environment and Energy National Environmental Research Institute, Denmark © Department of Lake and Estuarine Ecology.
- Yamamoto, K., R. Murakami and Y. Takamura (1998): Isoprenoid quinone, cellular fatty acid composition and diamino-pimelic acid isomers of newly classified thermophilic anaerobic Gram-positive bacteria, FEMS Microbiology Letters, vol. 161, pp. 351-358.