

大阪湾における有機懸濁物質の沈降分解過程に伴う栄養塩の鉛直輸送

Vertical Nutrient Transport by Decomposition and Settling Process of POM in Osaka Bay

中谷祐介¹・西田修三²・森川知波³

Yusuke NAKATANI, Shuzo NISHIDA and Chinami MORIKAWA

Particulate organic matter (POM) plays a significant role in nutrient cycle in waters by decomposition and settling process. In this study, the decomposition and settling characteristics of POM sampled in the head of Osaka Bay are investigated in laboratory experiments. As a result, decomposition and settling rate were formulated, respectively. Furthermore, based on their experimental results, we make an analysis to clarify nutrient vertical transport by POM using 1D vertical diffusion model. The calculation result showed that POM generated in surface layer was decomposed (or dissolved) or sink into sea bottom in 10 days, and about 32.1%, 58.0% and 29.9% of N, P and Si, respectively, in the settling particle were regenerated in the water column.

1. はじめに

閉鎖性内湾における適切な水質管理を行うためには、水質予測の精度向上に向けた栄養塩動態の的確なモデル化が重要である。既往の研究により、溶存態物質の動態については比較的良好な予測が可能になりつつある一方で、懸濁態物質については生物化学的過程に加え物理過程が大きく関わり複雑な動態を示すため、精度の高い予測は難しい。

内部生産由来の有機懸濁物質は、微生物による分解・無機化作用を受けながら沈降することにより、海水中に無機溶存態栄養塩を供給している。特に、密度成層が発達する夏季には鉛直混合が抑制されるため、有機懸濁物質による栄養塩輸送は海域の栄養塩循環においてより重要な役割を果たしている。夏季の大阪湾を対象にボックスモデルを用いた谷本ら（2001）の解析によると、表層におけるPONとPPの生成量に対し、それぞれ約65%、約51%に相当する栄養塩が分解によって水中に回帰する結果が示されている。

懸濁物質の沈降過程に関する研究としては、セジメントトラップによる現地調査や沈降筒を用いた室内実験による沈降速度の測定がなされている（細川ら、1982；堀江ら、1986）。また、有機懸濁物質の分解特性については植物プランクトンを対象とした相崎・高村（1986）やT. Seikiら（1991）による室内実験の他、広島湾の有機泥を対象とした日比野ら（2008）の研究例がある。大阪湾奥部では西田ら（2006）によりセジメントトラップを用いた現地調査が実施され、有機懸濁態栄養塩の沈降フラックスの算定がなされている。しかし、沿岸域では巻き

上げや水平移流の影響が大きいため、沈降速度の精度について十分な検証はなされていない。

本研究では、有機懸濁物質の沈降・分解過程に着目し、大阪湾奥部で採取した現地海水試料を用いた室内実験により特性を定式化するとともに、実験結果を基に、有機懸濁物質による栄養塩の鉛直輸送の実態を明らかにする。

2. 有機懸濁物質の分解特性

（1）実験方法

実験に用いる海水試料を採取するために、赤潮発生時に大阪湾奥部（武庫川河口または西宮防波堤）において表層1mの海水を採水した。採水・実験は計4回行った。採水時における現地海水の水質を表-1に示す。C/N比がRedfield比に近いことから、海水試料中の懸濁物質は一次生産起源の成分が主であると考えられる。海水試料中の植物プランクトン種の組成を表-2に示す。実験1、2、4ではいずれも珪藻類が約9割を占めていた。ただし、優占種はそれぞれ異なり、実験1ではThalassiosiraceaeが全体の97%、実験2ではSkeletonema costatumが44%、Nitzschia spp. が24%、Thalassiosira spp. が13%、実験4で

表-1 採水時の水質

	実験1	実験2	実験3	実験4
採水日	2008/8/13	2008/9/24	2008/11/14	2009/3/18
水温 (°C)	30.7	25.9	20.7	14.3
塩分	24.2	23.9	27.6	17.9
pH	7.87	8.49	—	8.02
SS (mg/L)	8.6	8.6	11.8	4.2
Chl-a. (μg/L)	11	27	21	10
Pheao. (mg/L)	3	5.2	4.1	4.5
POC (mg/L)	3.7	2.1	2.3	1.2
C/N (mol/mol)	—	6.4	7.1	5.2
N/P (mol/mol)	17.8	15.8	17.6	18.9

1 学生会員 修(工) 大阪大学大学院 地球総合工学専攻
2 正会員 工博 大阪大学大学院教授 地球総合工学専攻
3 非会員 奈良県(当時大阪大学地球総合工学科)

表-2 優占植物プランクトン種

(cell/L)	実験1	実験2	実験3	実験4
クリプト藻	9,600	280,800	2,860,470	43,800
渦鞭毛藻	52,720	269,430	5,552,850	94,850
珪藻	30,223,120	24,519,990	2,647,920	7,169,890
ラフィド藻	0	0	259,800	0
ミドリムシ藻	2,400	43,200	194,400	24,000
ブラシノ藻	139,200	108,000	849,600	183,600
その他	0	5,400	109,800	4,900
合計	30,427,040	25,226,820	12,384,840	7,521,040

は *Skeletonema costatum* が93%を占めていた。また、実験3では渦鞭毛藻 *Peridinales* の他、クリプト藻 *Cryptophyceae* や珪藻 *Skeletonema costatum* が混在していた。

採水した海水は冷蔵・暗条件下で実験室に持ち帰り、恒温槽内で複数の水温条件下（15～30℃）に維持した。実験1において、攪拌の有無による分解過程への影響を調べたところ、明確な違いはみられなかったため、その他の実験では静置条件とした。いずれも好気・暗条件とし、約1ヶ月にわたって栄養塩（ $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、TDN（全溶存態窒素）、TN、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 、TDP（全溶存態リン）、TP、 $\text{SiO}_2\text{-Si}$ ）濃度の分析（AACS V Auto Analyzer (BLTEC)）を行い、その経時変化を調べた。また、有機懸濁濃度と有機溶存濃度については、それぞれ、全濃度－全溶存濃度、全溶存濃度－無機溶存濃度の差し引きから求めた。

(2) 実験結果

有機懸濁物質（PON、POP）は微生物の作用により

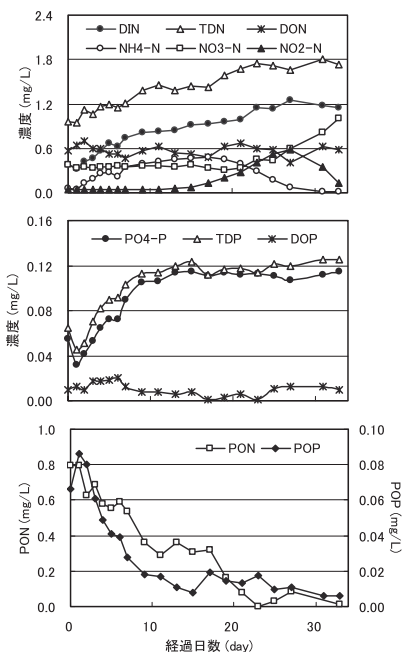


図-1 窒素、リン濃度の経時変化（実験3、20℃条件）

分解されて有機溶存態物質（DON、DOP）となり、さらに無機化作用により無機溶存態物質（ $\text{DIN} (= [\text{NH}_4\text{-N}] + [\text{NO}_2\text{-N}] + [\text{NO}_3\text{-N}])$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ ）へと変化する。一例として、実験3の20℃条件下における窒素、リン濃度の経時変化を図-1に、実験2、3、4の25℃条件下における無機溶存濃度の経時変化を図-2に示す。ここで、TN、TPは実験系内で保存されるため、本来その濃度は変化しないはずであるが、それぞれTDN、TDPと似た増加傾向を示した。これは分析の際、ペルオキシ二硫酸カリウム分解法による懸濁態成分の分解効率が低かったためと考えられる。そこで今回は、TN、TPの値が変化しなくなった時点の濃度、または、その後の平均濃度を固定値として与えた。

窒素、リンともに、有機懸濁濃度の低下に応じて無機溶存濃度の上昇がみられた。有機懸濁物質が枯渇する時期と無機溶存濃度が一定値を取り始める時期はほぼ一致しており、この時点で易分解性有機物の分解が終了したと考えられる。また、DONおよびDOPにほとんど変化がないことから、有機懸濁物質の分解により生じた有機溶存態物質は、直ちに無機溶存態物質に変化していると考えられる。これより、有機懸濁物質の分解速度は無機溶存態物質の生成速度と等しいと言える。

溶存態リンは実験開始から5～10日の間に急激な濃度上昇を示し、窒素に比べて早く収束する傾向がみられた。溶存態窒素をみると、まず $\text{NH}_4\text{-N}$ が増加した後、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ へと順に硝化反応が進行していることがわかる。また、実験開始直後にみられる無機溶存濃度の低下は植物プランクトンの呼吸によるものと考えられ、死滅分

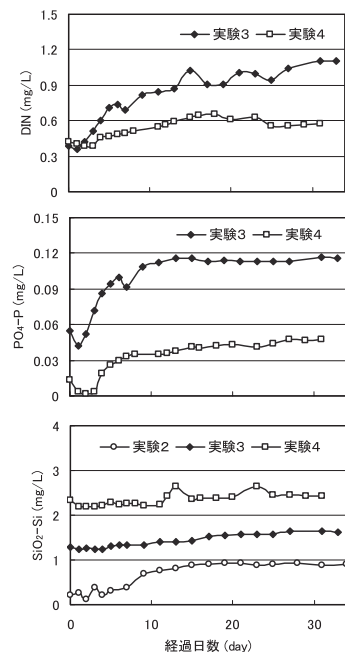


図-2 無機溶存濃度の経時変化（25℃条件）

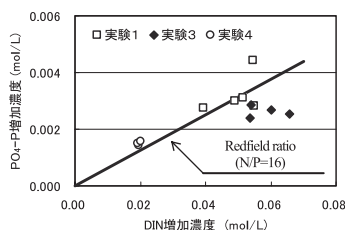


図-3 窒素, リンの総回帰量の比

解が始まるまでの日数はプランクトン組成により若干異なるものの、相崎・高村 (1986) の結果と同じく1~4日の範囲にあった。

SiO₂-Siについては実験開始から数日間は変化がなく、5~8日後から上昇傾向がみられた。ただし、実験2では明確な濃度上昇が確認されたものの、実験3、4では試料に含まれる珪藻の細胞数が少なかったことから有意な変化を捉えることはできなかった。生物ケイ酸の溶解過程は温度への依存性が極めて大きいことが知られているが、その他の要素の影響も受け、実態の解明に向けて議論の余地が多く残されている (鎌谷・武田, 2007)。

窒素, リンの無機溶存態物質の最終的な総回帰量の比を図-3に示す。図中にはRedfield比 (N/P=16) を表す直線も合わせて示している。総回帰量のN/P比は実験1では14.4~19.4, 実験3では18.8~22.4, 実験4では12.9~13.7と若干の違いはあるが、いずれもRedfield比に近い比率で回帰していた。

ここで、PO₄-P濃度の変動には無機懸濁物質による吸着過程の影響も考えられる。吸着態リンは周囲水に溶存するPO₄-Pと吸着平衡を保つような緩衝作用を有している (田中, 1995; 西田・中谷, 2007)。そのため、POPの分解により生成したPO₄-Pの一部は、溶存することなく無機懸濁物質に吸着している可能性も否定できない。SS濃度が比較的高かった実験3において、最終的に回帰した無機溶存態物質のN/P比がその他の実験に比べて大きいことは、吸着過程の影響が現れているとも考えることができる。ただし、実験に用いた有機懸濁物質が一次生産起源であることはその元素構成比がRedfield比に近いことから明らかであるが、吸着の影響の有無を議論するためには、有機懸濁物質の性状や無機懸濁物質の特性・存在量を調べる必要がある。今後、実験方法の改良を含め、さらなる検討が必要と考えられる。

(3) 無機溶存態物質の生成速度

図-2に示すようなDIN, PO₄-P, SiO₂-Siのそれぞれについて濃度上昇が開始した日のプロットが原点と重なるようにグラフを平行移動し、0日目からの濃度変化量C(t) (mg/L) を示す (1) 式の係数a, bを最小二乗法により決定した。

$$C(t) = a(1 - \exp(-bt)) \quad \dots\dots\dots (1)$$

表-3 20℃における無機溶存態物質の生成速度と温度補正係数

		R (20℃)	θ
実験1	N	0.080	1.059
	P	0.236	1.014
実験2	Si	0.064	1.047
実験3	N	0.101	1.025
	P	0.150	1.072
実験4	N	0.108	1.047
	P	0.157	1.042

ここで、t:経過日数 (day) である。これより無機溶存態物質の生成速度R (day⁻¹) を算出するとともに、水温条件別の実験結果から20℃を基準とした温度補正係数 θ を求めることで、最終的に (2) 式の温度依存型の生成速度式を構築した。各実験から得られた20℃における生成速度R (20℃) および温度補正係数 θ を表-3に示す。

$$R(T)_{N,P,Si} = R(20^\circ\text{C})_{N,P,Si} \times \theta^{T-20} \quad \dots\dots\dots (2)$$

3. 有機懸濁物質の沈降特性

(1) 実験方法

静水中における単一粒子の沈降速度w (m/sec) は一般に次式のストークス則に従うことが知られている。

$$w = \frac{(\rho_s - \rho)gd^2}{18\mu} \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 μ :海水の粘性係数 (Pa・sec), ρ_s および ρ :粒子および海水の密度 (kg/m³), g:重力加速度 (m/sec²), d:粒子径 (m) である。このうち、粒子径はレーザー回折・散乱式の粒度分布測定装置を用いることにより、直接測定することができる。また、海水の粘性係数と密度については種々の算定式が提案されている。しかしながら、懸濁粒子の密度については直接測定することが難しい。そこで、有機懸濁物質 (デトリタス態) を含んだ現地海水試料を用いた室内実験を行い、粒子の沈降速度および粒径を直接測定し、その結果をストークス則に適用することにより、逆算的に粒径別の粒子密度を算定した。

海水には分解実験2, 3で用いたものと同一の試料を使用し、それぞれを実験A, Bとする。実験Aと実験Bでは、海水試料に含まれる植物プランクトン種の組成とSS濃度、塩分の条件が異なる。塩化ビニル製の円筒 (直径11cm, 高さ150cm) に海水試料を入れ、水温一定 (20℃) の下、数時間おきに水深110cmに位置する小孔から筒内に乱れが生じないように一定水量を採水した。各時刻に採取したサンプルについてSS濃度と粒度分布 (LA-920 (HORIBA)) を計測し、各粒径粒子の濃度の経時変化から、粒径ごとに沈降速度を算出した。ただし、粒子が沈降する際には一様に拡散すると仮定した。実験開始時には筒内全体の粒子濃度が均一になるように、一様に攪拌

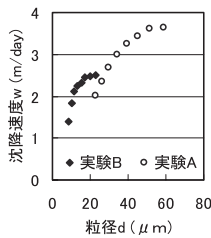


図-4 粒径と沈降速度の関係

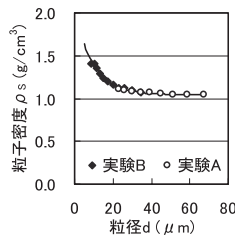
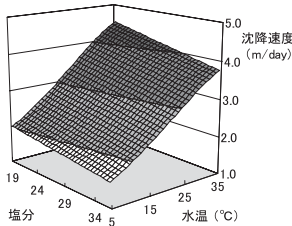


図-5 粒径と粒子密度の関係



した後に実験を開始した。

(2) 実験結果

実験Aで用いた試料に含まれる粒子径は2～80μmであり、20μm以下の粒径成分が大半を占めていた。実験Bの試料でも20μm以下の粒径が9割以上を占め、最大粒径も39μmと比較的小さな粒子で構成されていた。得られた沈降速度は1～4m/dayの範囲にあった。粒径と沈降速度の関係を図-4に示す。実験Aと実験Bの結果は概ね連続しており、粒径の増大に伴い沈降速度は大きくなる傾向にあった。実験により求めた粒径ごとの沈降速度をストークス則に代入することにより、粒径ごとに粒子密度を算出した。その関係を図-5に示す。2つの実験から得られた結果がほぼ連続的であったことから、粒子密度は粒径の関数として近似的に一意に表現することができた。

(3) 沈降速度

実験により得られた粒径と粒子密度の関数に加え、海水の粘性係数 μ について水温依存性を考慮し、これらをストークス則に代入することにより、以下に示す海水密度、水温、粒径に依存する沈降速度式を構築した。

$$w = \frac{\left\{ \exp(-0.1052d \times 10^6) \times 10^3 + 1044 \right\} - \rho}{18 \times (0.0007T^2 - 0.054T + 1.799) \times 10^{-3}} g d^2 \quad \dots (4)$$

海水密度は塩分と水温によって決定されるため、最終的には塩分、水温、粒径によって表現される。一例として、30μmの粒径粒子に関する塩分-水温-沈降速度の関係を図-6に示す。海水密度 ρ の算定には簡単のため、Millero and Poissonの状態方程式を適用した。図より、沈降速度は塩分に比べて水温への依存性が高いことがわかる。

4. 鉛直一次元拡散モデルを用いた数値解析

実験結果を基に、鉛直一次元拡散モデルを用いて、表層に発生した有機懸濁物質が分解（溶解）しながら栄養

塩を回帰し、海底まで沈降していく現象を再現する。

(1) 解析モデルの概要

鉛直一次元拡散モデルの基礎式を以下に示す。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(K_z \frac{\partial C}{\partial z} \right) + \sum S(C) \quad \dots (5)$$

ここで、 C ：物質濃度、 K_z ：渦動拡散係数、 $S(C)$ ：物質の生成項である。渦動拡散係数については、尹ら(1993)によって提案されたものを採用し、風と密度成層の効果を取り込んでいる。海表面における熱交換プロセスには全熱収支式を用いた。大阪湾奥部を想定し、鉛直層分割は15層、層間隔は1m（第1層および第15層は0.5m）とした。横流入はないものとし、水位変動は考慮していない。今回の解析では、一連の生物化学反応のうち、デトリタス態の有機懸濁物質の沈降・分解（溶解）過程のみを抽出して捉えた。

(2) 計算条件

計算期間は10日間とし、大阪湾奥部における夏季の成層期を想定した解析を行った。気象条件には2005年9月の気象データを平均した夏季の日変動を繰り返し与えた。水温、塩分、DO、CODについては、西田ら(2006)によって2005年9月21日に実施された大阪湾北部港湾域における水質調査結果を参考に初期分布を設定した（図-7）。ただし、DO、CODに関しては時間変化を与えず、計算期間を通して一定の値を与えた。また、上述の観測結果において密度躍層が水深3m付近にみられたことを踏まえ、有機懸濁物質の初期濃度は表層第1～3層のみに均一に与えた。

有機懸濁物質には珪藻類を想定し、窒素とリンについては実験1、ケイ素については実験2から得られた生成速度式を与えた。有機物の分解過程には好気分解のみを考慮し、窒素とリンについてはDOに対する依存性をミカエリス-メンテン型の制限関数によって与えた。また、今回は一例として30μmの粒径粒子に着目し、沈降過程中に粒径は変化しないという仮定の下で沈降速度式(4)を適用した。

(3) 計算結果

図-8にPONの鉛直分布の経時変化を示す。このグラフの最深部（水深14m）の値は有機懸濁物質が海水中で分

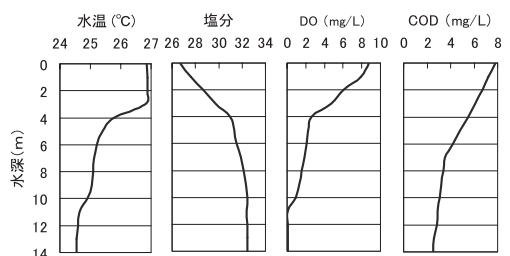


図-7 水質分布の初期設定

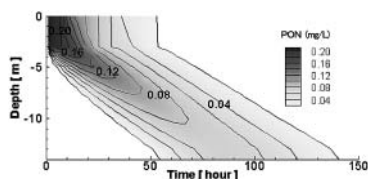


図-8 PON濃度の経時変化

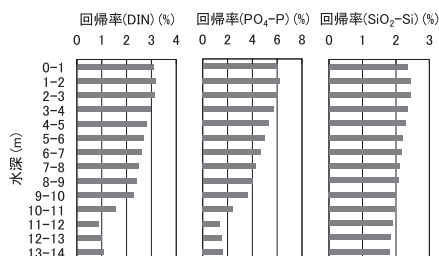


図-9 各水深への回帰量（初期存在量を100とする）

表-4 分解（溶解）・堆積割合

	窒素	リン	ケイ素
分解(溶解)割合(%)	32.1	58.0	29.9
堆積割合(%)	67.9	42.0	70.1

解されずに、底面に到達したことを示している。表層に存在したPONは、そのほとんどが10日以内には沈降過程で分解もしくは海底に堆積した。水深3m付近に密度躍層が存在するため、躍層以浅ではPONは沈降しにくく滞留している一方で、躍層以深では速やかに沈降している。これらの傾向はリン、ケイ素にも共通してみられた。初期存在量を100とした場合の各水深への10日間のDIN、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{SiO}_2\text{-Si}$ の総回帰量を図-9に示す。このうち、それぞれ9.4%、18.4%、7.2%が躍層以浅で回帰しており、これらは有光層で再び一次生産に用いられると考えられる。窒素とリンでは水深11m以深で回帰量が急激に減少するが、これは無酸素状態において分解速度が低下したためである。表-4に初期存在量のうち、未分解のまま海底に到達した割合と水中に回帰した割合を示す。生成速度の大小を反映し、窒素やケイ素に比してリンは水中に回帰する割合が大きいことがわかった。

5. おわりに

本研究では、室内実験および数値解析を行い、大阪湾奥部を対象に有機懸濁物質による栄養塩の鉛直輸送の実態を明らかにした。本研究で得られた主たる結論は以下の通りである。

- (1) 分解（溶解）実験の結果、有機懸濁物質からの無機溶存態物質の生成速度はリン>窒素>ケイ素の順であった。20℃条件下においては $0.080 \sim 0.236 \text{ day}^{-1}$ の範囲にあり、最終的に温度依存型の生成速度式を構築した。
- (2) 2～80 μm のデトリタス粒子を対象にした沈降実験の

結果、沈降速度は1～4m/dayの値を示した。また、粒径と沈降速度はほぼ一意の関係にあった。

- (3) 得られた沈降速度からストークス則に従って粒子密度を算出したところ、粒子密度は粒径の関数として表現が可能であった。ただし、他の水域においても同様の表現が可能であるかは、今後検証していく必要がある。
- (4) 沈降実験の結果と、海水の粘性係数と密度に関する既往の知見をストークス則に適用することで、粒径、塩分、水温のみに依存する有機懸濁物質の沈降速度式を構築した。
- (5) 室内実験結果を基に、粒径30 μm の有機懸濁物質の沈降・分解（溶解）過程について次元鉛直拡散モデルを用いて解析を行った。その結果、夏季の表層に発生した有機懸濁物質は10日以内に沈降過程で水中に回帰もしくは海底に堆積し、初期存在量のうち窒素は32.1%、リンは58.0%、ケイ素は29.9%が海水中に回帰されることがわかった。

謝辞：粒度分析にあたっては、大阪大学環境安全研究管理センターに設備を利用させて頂いた。ここに感謝の意を表するとともに、本研究の一部は科学研究費補助金（基盤研究（C）No.19560512）により行われたことを付記する。

参考文献

- 相崎守弘・高村典子（1986）：植物プランクトンの分解による栄養塩の回帰，国立公害研究所研究報告，第96号，pp. 29-44.
- 鎌谷明善・武田重信（2007）：生物ケイ酸の溶解度と溶解速度について，海の研究，16（6），pp.471-512.
- 田中勝久（1995）：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.
- 谷本照巳・星加 章・三島康史・柳 哲雄（2001）：大阪湾における懸濁物質・窒素・リンの収支と循環，海の研究，10（5），pp.397-412.
- 西田修三・入江政安・中辻啓二（2006）：大阪湾奥部沿岸域における懸濁物質の挙動と底泥特性，海工論文集，第53巻，pp.991-995.
- 西田修三・中谷祐介（2007）：淀川河口域における河川懸濁物質のリン吸着特性，海工論文集，第54巻，pp.1101-1105.
- 日比野忠史・永尾謙太郎・松永康司（2008）：有機泥の分解を考慮した沈降と堆積過程のモデル化，土木学会論文集B，Vol.64，No.3，pp.202-213.
- 細川恭史・堀江 毅・三好英一・加藤道康（1982）：沿岸域におけるけん濁粒子の沈降速度測定法について－数種の測定法の比較－，港湾技術研究資料，No.433，26 p.
- 堀江 毅・三好英一・関根好幸・宮原祐二（1986）：微細有機懸濁物の沈降特性について，第33回海講論文集，pp.337-341.
- 尹 鐘星・中辻啓二・伊藤 渉・村岡浩爾（1993）：閉鎖性水域における鉛直次元水温成層モデルに関する一考察，水工論文集，第37巻，pp.325-330.
- Seiki, T., E. Date, and H. Izawa (1991) : Decomposition Characteristics of Particulate Organic Matter in Hiroshima Bay, Journal of the Oceanographical Society of Japan, Vol.47, pp. 207-220.