

有明海奥部の干潟・浅海域底泥における窒素・リンの季節変化

Seasonal Variations of Nitrogen and Phosphorus in Bottom Sediment of Tidal Flat and Shallow Water Areas in the Interior Parts of the Ariake Sea

郡山益実¹・瀬口昌洋²・古賀あかね³・アリム イスナンセテヨ⁴
速水祐一⁵・山本浩一⁶・濱田孝治⁷・吉野健児⁸

Masumi KORIYAMA, Masahiro SEGUCHI, Akane KOGA, Alim ISNANSETYO
Yuichi HAYAMI, Koichi YAMAMOTO, Takaharu HAMADA and Kenzhi YOSHINO

The seasonal variations of nitrogen and phosphorus in bottom sediments of tidal flat and shallow water areas in the interior parts of the Ariake Sea were investigated during August, 2007-July, 2008. The supply amount of organic matter to sea bottom and sediment temperature had important effects on the seasonal variations of $\text{NH}_4\text{-N}$ in porewater. $\text{NO}_3\text{-N}$ in porewater was significantly influenced by denitrification and $\text{NH}_4\text{-N}$ in porewater that is substrate of nitrification. The seasonal variations of $\text{PO}_4\text{-P}$ in porewater were strongly dependent on those of redox environments in bottom sediment. The release rates of $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{PO}_4\text{-P}$ were estimated by the diffusion equation. It was found that bottom sediment was an important supply source of $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{PO}_4\text{-P}$ during summer-autumn.

1. はじめに

内湾沿岸域に供給される栄養塩の中で、海底から海水中に供給される窒素とリンの量は、基礎生産要求量の11～40%と言われ（Hopkinson, 1987）、海底堆積物中の栄養塩の動態は、海域の基礎生産を考える上で重要な因子である。特に、閉鎖性の強い有明海奥部浅海域では、海底から溶出した栄養塩の水質環境に及ぼす影響は大きいものと考えられる（徳永ら, 2007）。したがって、浅海域底泥における栄養塩の動態を明らかにすることは、沿岸域の物質循環、さらには生態系を考慮する上で不可欠である。

ところで、有明海奥部西岸域に形成された広大な泥質干潟は、重要な物質循環の場であり、沈降・堆積した有機物は、底泥に生息する多種多様な微生物の働きにより分解・無機化される（広木ら, 2003）。したがって、泥質干潟～浅海域における底泥は、栄養塩の生成及び供給の場として重要な役割を果たすものと考えられる。しかし、有機物の沈降・堆積から底泥内での栄養塩の生成・溶出に至るまでの一連の過程は、今だ十分明らかにされ

ておらず、さらに、年間を通した泥質干潟～浅海域における底泥中の栄養塩動態に関する報告例も少ない。

本研究では、有明海奥部泥質干潟からその沖合いの浅海域を対象に、1年間現地調査を行い、底泥中の窒素及びリンの時空間的な季節変動を明らかにする。次いで、対象域における底泥からの窒素及びリンの溶出量を定量的に評価することを目的とした。

2. 現地調査及び分析の概要

2007年8月～2008年7月に毎月1回、佐賀県白石町沖に設定した測線上の7地点（図-1）で調査を行った。調査は基本的に朔の大潮の満潮を挟んで実施した。複数の底泥コア（内径56mm、長さ50cm）をダイバーによって採取後、直ちにサイフォンによりコア内から底泥直上の海水を採取した。そして、船上で底泥コアを層別（表層～2cmは1cm間隔、2～10cmは2cm間隔、15～16cm及び20～21cmの計8層）に切り分け、各層の酸化還元電位（Eh）及び泥温を測定した。残りの底泥コアについては、密栓して持ち帰り、速やかに実験室において層別（表層～2cmは1cm間隔、2～10cmは2cm間隔の計6層）の底泥サンプルを採取し、水質及び底質分析に供した。

底泥間隙水は、各層の底泥サンプルを遠心分離（4000 rpmで5分間）にかけ上澄み液を抽出した。抽出した上澄み液は0.45 μm のメンブランフィルターで濾過し冷凍保存した。底泥直上水に関しても同様に0.45 μm のメンブランフィルターで濾過し冷凍保存した。後日、これらを解凍しオートアナライザー（SWAAT, BLTEC）を用いて $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 、TN及びTPの定量分析を行った。

1 正会員	農博	佐賀大学助農学部生物環境科学科
2 正会員	農博	佐賀大学教授農学部生物環境科学科
3	農修	鹿児島大学大学院連合農学研究科
4	農博	佐賀大学研究機関研究員有明海総合プロジェクト
5	農博	佐賀大学准教授有明海総合研究プロジェクト
6 正会員	博(工)	山口大学准教授工学部社会建設工学科
7 正会員	博(工)	佐賀大学研究機関研究員有明海総合プロジェクト
8	博(水)	佐賀大学研究機関研究員有明海総合プロジェクト

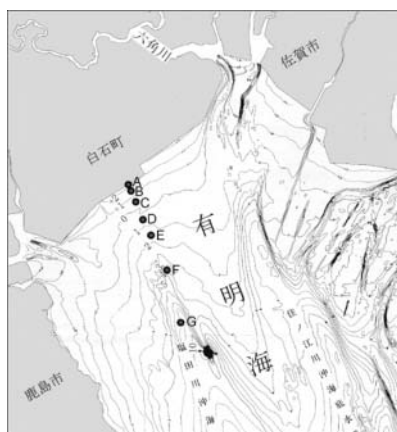


図-1 調査水域の海底地形と測点

底質は、有機態炭素 (TOC)、全窒素 (TN) 及び全リン (TP) の分析を行った。ここで、底質中の TOC の前処理として、採取した底質試料を乾燥後メノウ乳鉢で磨碎し、1N の HCl を添加して試料中の炭酸カルシウムを処理した。前処理した底質の TOC 及び TN の測定は、CHN コ

ーダ (JM-10, J-Science LAB) を用いて分析を行った。一方、底質の TP に関しては、底質調査方法 (環境庁, 1988 年) にない、硫酸-硝酸分解法による前処理後、抽出した溶液の TP をオートアナライザーにより定量分析した。

3. 結果及び考察

(1) 底質環境の季節変動

図-2 及び 3 は、2007 年 8 月、10 月、2008 年 1 月及び 4 月における Eh と泥温の鉛直分布を示したものである。8 月における底泥の Eh は $-121 \sim +63 \text{ mV}$ (表層 $\sim 20 \text{ cm}$ の平均値) で、干潟域の地点 A, B 以外の底泥では全体的に還元状態の層が卓越した。しかし、10 月以降、底泥表層部において酸化状態の層が徐々に発達した。1 月の地点 A $\sim$ G における表層 $\sim 10 \text{ cm}$ の Eh は $+84 \sim +212 \text{ mV}$ となり、底泥はほぼ酸化状態の層となった。この酸化状態の層は、7 月まではほぼ継続して見られた。一方、8 月における泥温は、干潟域で高く、沖側ほど低くなった。しかし、10 $\sim$ 3 月の期間、泥温は沖側で高く、干潟域で低くなり、4 月以降、再び干潟域で泥温が高くなる季節

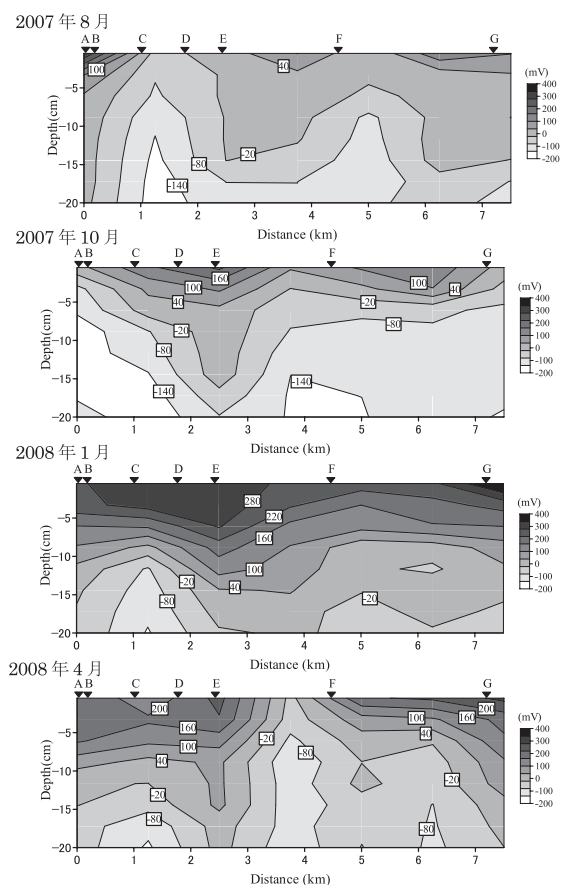


図-2 底泥 Eh の鉛直分布

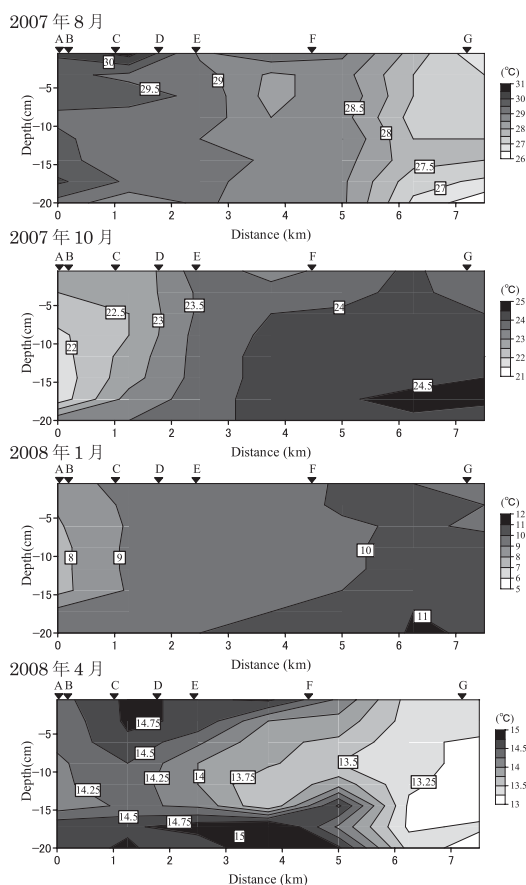


図-3 泥温の鉛直分布

変動が見られた。

(2) 底泥間隙水中の窒素及びリンの季節変動

図-4～6は、各地点における底泥間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の季節変動を表したものである。なお、これらの値は、表層～10cmの平均値である。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は、9月前後をピークに減少し、11～12月で枯渇した。その後、再び増加し、初夏に減少する変動パターンを示した。 $\text{NO}_3\text{-N}$ は、夏季で枯渇するが、11～12月に大きく増加し、その後急減して再び3～5月で増加する変動を示した。 $\text{PO}_4\text{-P}$ は、全体的に夏～秋季に増加し、冬季に減少する季節変動を示した。

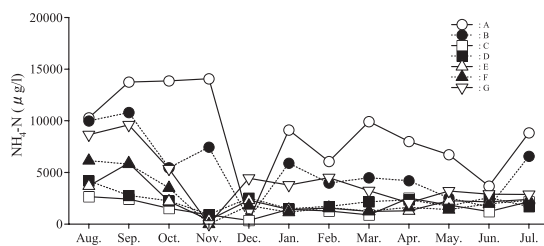


図-4 底泥間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の季節変動

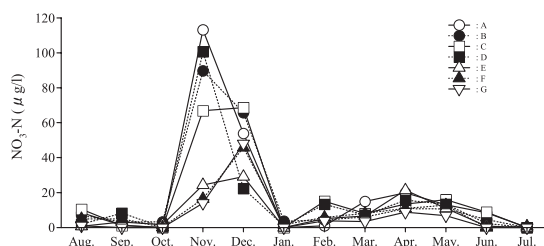


図-5 底泥間隙水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ の季節変動

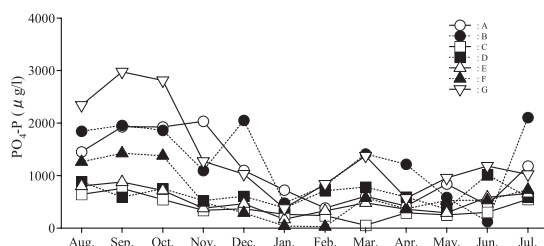


図-6 底泥間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ の季節変動

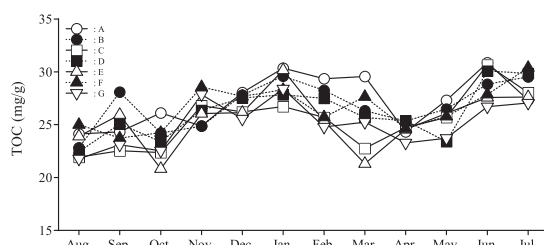


図-7 底質TOCの季節変動

ここで、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の季節変動は、底質のTOCのそれと密接に関連した(図-7)。すなわち、TOCが増加する7月と1月を中心に $\text{NH}_4\text{-N}$ は増加した。これは、河川流入量の増加とノリ養殖により、海底への有機物供給量が増加し、有機物から $\text{NH}_4\text{-N}$ が生成・蓄積されたためと考えられた。なお、冬季の枯渇時を除いて、干潟域(地点A, B, C)と沖側の地点Gにおける $\text{NH}_4\text{-N}$ は深さと共に増加し、下層ほど高かったが、それ以外の地点では比較的一様な分布であった。

夏季における $\text{NO}_3\text{-N}$ の枯渇は、図-2及び3から明らかに、泥温が高く底泥が還元的状態であるため、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の大部分は脱窒により消費されたためと考えられた(古賀ら, 2009)。また、底泥表層が酸化的状態である1月の $\text{NO}_3\text{-N}$ の枯渇は、11～12月に底泥から $\text{NO}_3\text{-N}$ が溶出し、さらに硝化の基質である $\text{NH}_4\text{-N}$ が12月付近で枯渇するためと考えられた。なお、11～12月と3～5月における $\text{NO}_3\text{-N}$ の増加は、底泥表層部が酸化的状態であるため硝化により生成されたものと考えられた。特に、11～12月の $\text{NO}_3\text{-N}$ は地点A～Dで高いが、3～5月におけるそれには顕著な地域差は見られなかった。11～12月に地点A～Dで $\text{NO}_3\text{-N}$ が増加する要因の1つに、8～10月の期間、硝化の基質となる $\text{NH}_4\text{-N}$ が豊富であったことに加え、地点A～Dは干潟域であるため、海底が周期的に干出し底泥がより酸化的状態になる環境であったためと考えられた。一方、3～5月において $\text{NO}_3\text{-N}$ の顕著な地域差が見られない要因の1つに、夏～秋季と比較して1～2月の $\text{NH}_4\text{-N}$ は低く、さらに干潟域地点A～Dの泥温は7～10℃と低いため、底泥内の硝化活性が低下したためと考えられた。

$\text{PO}_4\text{-P}$ の季節変化は、底泥のEhのそれと密接に関連した(図-2)。すなわち、夏～秋季の底泥は全体的に還元的層であるため、水酸化第二鉄に吸着していたリンがイオン化し間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ が増加する。しかし、冬～春季の底泥表層部は酸化的状態であるため、間隙水中の第一鉄イオンが酸化されることで生じる水酸化第二鉄にリンがほとんど吸着され、その結果、間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ が減少するものと考えられた(神山ら, 1998)。なお、 $\text{PO}_4\text{-P}$ の鉛直構造は $\text{NH}_4\text{-N}$ と同様で、地点A～D及びGは下層ほど高くなる分布であり、それ以外の地点は一様な分布であった。

4. 窒素及びリンの溶出速度

(1) 溶出速度の推定法

底泥からの栄養塩の溶出は、底泥直上水と間隙水の間の物質拡散過程において起こる物理化学的反応であると考えられる。底泥では沈降、堆積した有機物が分解・無機化されるので、間隙水中の栄養塩濃度は直上

水と比較して高い。そのため、直上水-底泥間に濃度勾配が生じ、それにより底泥から直上水へ物質が拡散される。本研究では、底泥から直上水へ溶出する窒素及びリンの溶出速度を次式で表されるような拡散方程式より算出した(山本ら, 1998)。

$$J = \phi D' \left(\frac{\Delta C}{\Delta Z} \right) \dots \dots \dots (1)$$

ここに、 J は溶出速度 ($\mu\text{g-N}$ あるいは $\text{Pcm}^{-2} \text{s}^{-1}$)、 ϕ は空隙率、 D' は堆積物全体に対する拡散係数 (cm^2/s)、 $\frac{\Delta C}{\Delta Z}$ は間隙水-直上水間 ($Z\text{cm}$) の栄養塩の濃度 (C) 勾配である。

空隙率は、次式より求めた。

$$\phi = \frac{\rho}{\rho + (1 - w)w} \dots \dots \dots (2)$$

ここに、 ρ は底泥の乾燥密度、 w は底泥の含水比である。

ここで、全ての地点における ρ の実測データを得ないため、数地点のサンプルで実測した ρ と w の関係式より ρ を求めた(図-8)。なお、調査期間における w は $285.7 \pm 72.7\%$ であるため、 ρ は(3)式の回帰式で近似できるものと考えられる。

$$\rho = -1.1801 w + 666.97 \dots \dots \dots (3)$$

堆積物全体に対する分子拡散係数は、次式から求められる。

$$D' = D_0' \cdot \left(\frac{1}{F \cdot \phi} \right) \dots \dots \dots (4)$$

ここに、 F はFormation factor、 D_0' は $t^\circ\text{C}$ における分子拡散係数であり、 F は近似的に次式で表される。

$$F = \phi^{-n} \dots \dots \dots (5)$$

海洋堆積物では $n=2 \sim 4$ であり、その中で泥質堆積物では $n=2.5 \sim 3.5$ であるので(増沢, 1986)、ここでは山本ら(1998)にならい $n=3$ とした。

また、 D_0' は近似的に次式で表れる。

$$D_0' = D_0^0 (1 + \alpha t) \dots \dots \dots (6)$$

ここに、 D_0^0 は 0°C における分子拡散係数、 α は定数であり、 0°C における分子拡散係数は、Li・Gregory (1974)

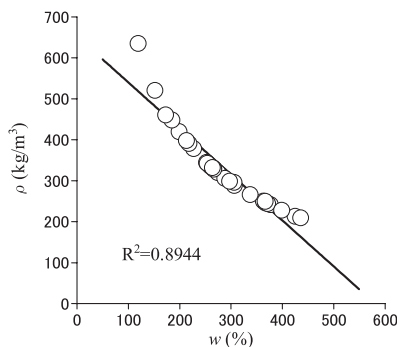


図-8 ρ と w の関係

及び中島・西村(1986)にならい、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は $0.98 \times 10^{-5} \text{cm}^2/\text{s}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ は $6.1 \times 10^{-6} \text{cm}^2/\text{s}$ とした。さらに、定数 α については、陽イオンを0.048、陰イオンを0.040とした(Li・Gregory, 1974)。

ここで、(5)及び(6)式を(4)式に代入すると、(7)式となる。

$$D' = D_0^0 (1 + \alpha t) \cdot \phi^2 \dots \dots \dots (7)$$

したがって、(1)、(2)及び(7)式より $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出速度を推定することができる。

(2) 溶出速度の季節変動

図-9は、(1)式より算出された $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出速度(J_{NH_4} 、 J_{PO_4})の季節変動を表したものである。ここで、 J_{NH_4} 及び J_{PO_4} が正の場合、底泥から直上水への溶出を、負の場合、直上水から底泥への取り込みを示している。図示されるように、 J_{NH_4} は $\text{NH}_4\text{-N}$ の枯渇期を除き年間を通して底泥からの $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出を示し、夏季(8月)に $1.2 \sim 9.8 \text{mg-N m}^{-2} \text{d}^{-1}$ と高く、冬季~初夏(12~6月)に $0.1 \sim 2.2 \text{mg-N m}^{-2} \text{d}^{-1}$ と低かった。また、 J_{NH_4} は年間を通して沖側の地点F及びGで比較的高かったが、その他の地点においては顕著な差異は見られなかった。

一方、 J_{PO_4} は夏~秋季(8~10月)に $0.1 \sim 1.6 \text{mg-P m}^{-2} \text{d}^{-1}$ と高く、冬季(1~2月)では $-0.2 \sim -0.1 \text{mg-P m}^{-2} \text{d}^{-1}$ と低かった。また、 J_{PO_4} は J_{NH_4} と同様に年間を通して沖側の地点F及びGで比較的高かったが、他の地点では明確な地域差が見られなかった。

吉村ら(2004)は、宇土市から大牟田市三池港沖の海域を調査し、熊本市沖における $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出速度を拡散方程式より求めた。その結果、同海域の両溶出速度は季節的な変動はなく、それぞれ $0.25 \sim 0.35 \text{mg-N m}^{-2} \text{d}^{-1}$ 、 $0.04 \sim 0.07 \text{mg-P m}^{-2} \text{d}^{-1}$ の範囲で推移することを示した。本研究で得られた J_{NH_4} 及び J_{PO_4} は、熊本市沖のそ

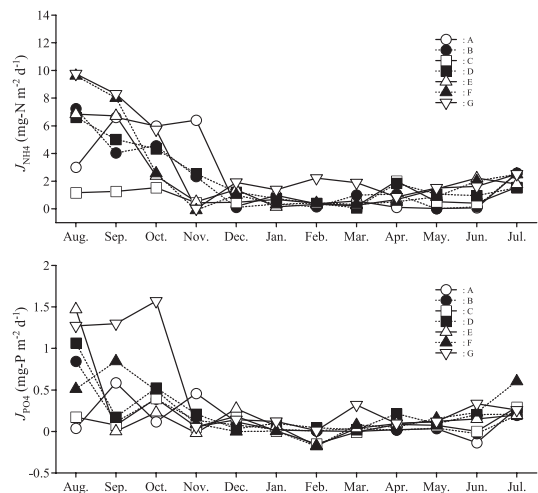


図-9 J_{NH_4} 及び J_{PO_4} の季節変動

れよりそれぞれ1オーダー高く、さらに、夏～秋季に高くなり、冬～春季に低くなるという季節変動が見られた。これは、対象海域と熊本市沖における底質間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の動態の差異が起因するものと考えられた。すなわち、熊本市沖における $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ は、それぞれ年間を通して $100\sim 250\mu\text{g-N/l}$ 、 $15\sim 45\mu\text{g-P/l}$ 程度で推移し、季節変化は見られなかった。しかし、対象海域における $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ は、夏～秋季に高く、また、それらの年平均値は熊本市沖のそれより1オーダー高かった。

図-10は、対象海域における $\text{NH}_4\text{-N}$ 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の総溶出量(R_{NH_4} , R_{PO_4})と筑後川からのDIN及びDIPの供給量(L_{DIN} , L_{DIP})の季節変動を表したものである。ここで、 R_{NH_4} 及び R_{PO_4} は、調査水域の測線上の平均溶出速度と湾奥部における測線と同じ標高の泥質領域の面積より算出した。また、 L_{DIN} 及び L_{DIP} は、筑後川(瀬ノ下)の2001～2005年における各月の平均日流量を用いて、瀬ノ下で得られたL-Q式(山本, 私信)より算出した。図示されるように、8～10月における R_{NH_4} 及び R_{PO_4} は、 $0.58\sim 1.22\text{ton-N/d}$ 及び $0.11\sim 0.15\text{ton-P/d}$ と高い。これは、それぞれ L_{DIN} 及び L_{DIP} の12～16%及び35～57%に相当する $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ が海底から溶出したことを示している。このことより、夏～秋季において底泥は $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ の重要な供給源の1つであることが明らかにされた。

5. まとめ

本研究によって得られた主な知見は、以下のように要約される。

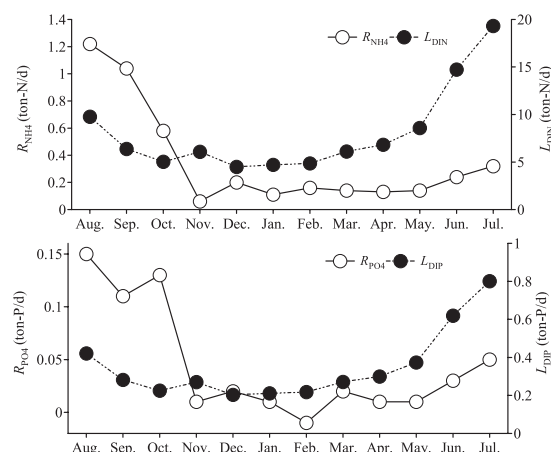


図-10 対象海域における R_{NH_4} 及び R_{PO_4} と筑後川からの L_{DIN} 及び L_{DIP} の季節変動

- (1) 対象海域における底泥間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の季節変動は、底質TOCの増減と対応することから、海底への有機物供給量と泥温が大きく影響するものと考えられた。
- (2) 底泥間隙水中の $\text{NO}_3\text{-N}$ は、夏～秋季(7～10月)と冬季(1月)に枯渇した。これは、前者は脱窒が、後者は硝化の基質である $\text{NH}_4\text{-N}$ の枯渇が主な原因の1つと考えられた。
- (3) 底泥間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ の季節変動は、底泥の酸化還元環境の変動と密接に関連するものと考えられた。
- (4) 拡散方程式より $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出速度を推定した。その結果、 J_{NH_4} 及び J_{PO_4} は夏～秋季に高く、冬～春季に低くなる季節変動を示した。また、夏～秋季の R_{NH_4} 及び R_{PO_4} は高く、それぞれ L_{DIN} 及び L_{DIP} の12～16%及び35～57%に相当する $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ が海底から溶出した。このことから、対象海域では、特に夏～秋季において底泥は $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ の重要な供給源の1つであることが明らかにされた。

謝辞：本研究を実施するに際し、佐賀大学有明海総合研究プロジェクトより、多大な支援を受けた。

参考文献

- 広木幹也, 矢部 徹, 野原精一, 宇田川弘勝, 佐竹 潔, 古賀庸憲, 上野隆平, 河地正伸, 渡辺 信 (2003): 加水分解酵素活性を用いた日本各地の干潟底泥の有機物分解機能評価, 陸水学雑誌, 第64号, pp. 113-120.
- 神山孝史, 玉井恭一, 辻野 睦 (1998): 海底堆積物からの栄養塩再生過程に及ぼす底質・溶存酸素条件, 南水研報, 30, pp. 209-218.
- 環境庁水質保全局水質管理課編 (1988): 底質調査方法 (S63. 環水管第127号), pp. 45-48.
- 古賀あかね, 瀬口昌洋, 郡山益実 (2009): 有明海奥部干潟域における脱窒菌群の生息分布と脱窒活性, 農業農村工学会論文集, 第260号, pp. 15-22.
- 増沢敏行 (1986): 海洋の動態, 恒星社厚生閣, pp. 79-91.
- 中島光敏, 西村 肇 (1986): 沿岸環境調査マニュアル【底質・生物編】, 恒星社厚生閣, pp. 79-91.
- 徳永貴久, 高橋 篤, 松永信博 (2007): 有明海湾奥部干潟底泥の NH_4^+ 吸着特性, 水工学論文集, 51, pp. 1309-1314.
- 山本民治, 松田 治, 橋本俊也, 妹背秀和, 北村智顕 (1998): 瀬戸内海底泥からの溶存無機態窒素およびリン溶出量の見積り, 海の研究, 3, pp. 151-158.
- 吉村直見, 黒木善之, 吉田雄一, 小山長久 (2004): 有明海における溶存酸素の季節変化と底泥からの栄養塩溶出, 熊本県水産研究センター研究報告, 6, pp. 51-57.
- Hopkinson, C.S. (1987): Nutrient regeneration in shallow water sediments of the estuarine plume region of the nearshore Georgia Bight, USA., Mar. Biol., 94, pp. 127-142.
- Li, Y. H. and S. Gregory (1974): Diffusion of ions in sea water and in deep-sea sediments., Geochim. Cosmochim. Acta., 38, pp. 703-714.