

## (54) 有明海における底質の物理的・化学的分布特性

伊豫岡 宏樹<sup>1\*</sup>・楠田 哲也<sup>1</sup>・門上希和夫<sup>2</sup>・上田 晋也<sup>3</sup>・土屋 大輔<sup>4</sup>

<sup>1</sup>九州大学大学院工学研究院 (〒819-0395 福岡市西区元岡744番地W2-1023号室)

<sup>2</sup>北九州市立大学国際環境工学部 (〒808-0135北九州市若松区ひびきの1-1)

<sup>3</sup>株式会社オリエンタルコンサルタンツ (〒150-0036東京都渋谷区南平台町16-28)

<sup>4</sup>株式会社建設技術研究所 (〒300-2651茨城県つくば市鬼ヶ窪1047-27)

\* E-mail:iyooka@civil.kyushu-u.ac.jp

有明海全域を網羅するように368地点から底質を採取分析し、粒度組成、含水比、強熱減量、重金属濃度、有機化学物質濃度を求めた。1980年代の調査結果と較べると湾奥部の細粒化が認められる。漁獲量が低下した2000年以降の底質に大きな変化は見られない。重金属濃度は湾奥部、熊本沖の干潟部で比較的高くなっていた。水銀は湾奥部と八代海の近傍で高くなっていた。多くの重金属、有機化学物質濃度と強熱減量とは強い相関を示した。重金属と有機化学物質の濃度はいずれも環境基準値以下であり、急性毒性を引き起こす物質も検出されなかった。従って、これら重金属や有機化学物質による有明海の生物生息環境の劣化の可能性は低いと考えられ、海水面の上昇、干潟の減少、流速の低下に由来する底質粒度の細粒化、および水温上昇による可能性が考えられる。

**Key Words :** Ariake Bay, sediments, heavy metal, chemical substances

### 1.はじめに

近年、有明海環境問題に関する検討が重ねられ、有明海再生へ向けて様々な取り組みが行われている。顕在化している有明海環境問題の中で、二枚貝等の水産資源の減少は漁業従事者にとって深刻な問題である。漁獲量における貝類の割合が高い有明海では、1970年代に10万トンを超えた漁獲量が最近は2万トンを下回っている<sup>1</sup>（図1）。これら水産資源を含めた底生生物の減少要因として、潮流の変化や河川砂利採取等による物理的要因、水質や底質の変化に伴う化学的要因、赤潮や高次捕食者に視点を置いた食物連鎖の変化による生物的要因等、様々な原因が考えられている。堤ら<sup>2</sup>は荒尾・緑川河口干潟において底質間隙水中のMnのアサリへの影響を指摘している。また底質の細粒化は、陸域負荷による化学物質や重金属の蓄積を促進し、蓄積した化学物質や重金属は、着床から稚貝期における生存率の低下を招く阻害要因の一つであると考えられている。これらの要因は相互に影響し合い、この阻害の原因を分かりにくくしている。この阻害原因の解明のために、有明海の底質の物理的・化学的特性が湾奥部や熊本沖で調査されているが、反時計回りの残差流を持つ有明海ではこれらの地域を超えて物質輸送が行われていると考えられ、有明海全域に及ぶ

生物生育阻害の原因が明確にされていない。

そこで本研究では、生物減少を明らかにするための基礎となる有明海の底質の物理・化学特性を明らかにすることを目的とした。そして、過去の調査結果と比較することで、近年の有明海底質の物理環境の変化について検討した。

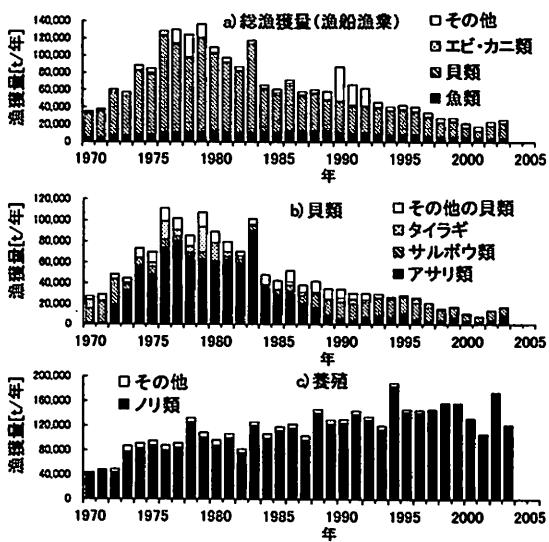


図1 有明海における漁業生産の推移(農林水産統計)

## 2. 調査概要

調査期間は2005年11月から2007年3月である。調査地点は、有明海全域を網羅できるように全368地点とした(図2)。調査方法は、「底質調査方法(環境省、平成13年改訂)」<sup>3)</sup>に従い、底質表面から約10cm程度の底質を3回採取し、それらを混合したものを分析試料とした。分析試料を粒度試験用と重金属分析用に分け、ポリエチレン製の袋に入れ、空気に触れないように密閉した。化学物質については、表層2cm程度を約100g採取し、ガラス瓶に入れ、空気に触れないように密閉した。調査に用いた採泥器は主として、泥質沿岸域では、エクマンバージ型採泥器、水深の深い砂質域は、スミス・マッキンタイヤ型採泥器である。持ち帰った試料は、含水比および強熱減量を測定したのち、すぐに分析できない試料は冷凍保存し、分析は随時解凍後速やかにおこなった。また、有明海の湾奥および沿岸域では、有害物質(TBT、アルキル水銀)も分析した。

## 3. 分析方法

### (1) 含水比・強熱減量

採取試料を約5gをるつぼにはかり取り、110°Cにて24時間以上乾燥後再度計量し含水比を測定した。この乾燥試料を引き続き650°Cで1時間強熱し強熱減量を測定した。

### (2) 粒度組成

粒度組成分析は粒度試験(JIS A 1204)によった。まず、定量した採取試料を2mmふるいに通過させ、残留分については乾燥後ふるい分析を行った。2mmふるい通過試料については、沈降分析を行った。沈降分析に用いる試料は、そのままでは塩分を多く含むため透析膜内に試料を封入後蒸留水に浸し塩分除去をおこなった。定期的に曝露水を交換しながら1日～3日後、透析膜内の水を滴定し塩素濃度が十分低下していることを確認したうえで、沈降試験に用いた。沈降分析終了後のサンプルは、75μmのふるい通し、残留分について乾燥後ふるい試験をおこなった。分析終了後、φスケール中央粒径(Mdφ)および泥分率(粘土およびシルトの含有率)を算出した。

### (3) 重金属

分析の前処理として採取サンプルを湿润状態で用い、EPA Method 3051で規定されている方法によって試料を分解した。解凍した試料を均一になるよう十分混合し、貝殻を避けて1g程度分解容器にはかり取り、超高

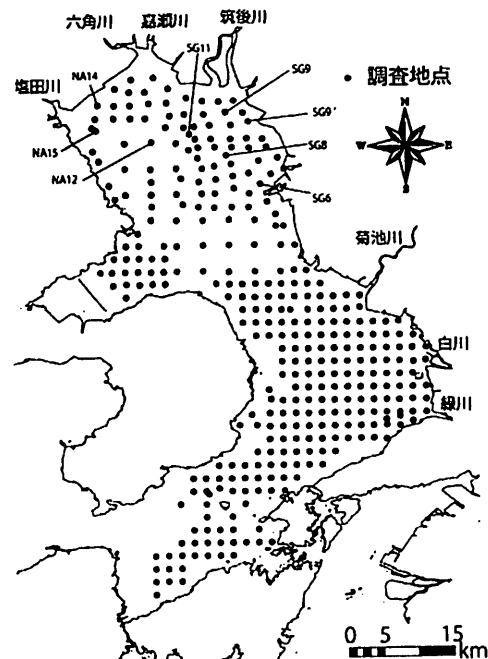


図2 調査地点

純度硝酸を10ml加え、マイクロウェーブ分解装置にて分解し、放冷後に純水で50mlに定容したものを分析試料とした。分析は、Cr、Ni、Cu、Zn、As、Cd、Pb、Mn、THgの9項目について行い。水銀の分析には水銀分析計(日本インスツルメント RA-3000)、その他の重金属の分析にはICP-MS(Agilent 7500c)を用いた。検量線の作成には内標準法を用いた。

### (4) 化学物質

湿泥20gをアセトン30mLで3回抽出後、抽出液を5%食塩水に加えてジクロロメタンで2回振とう抽出した後、抽出液を無水酢酸ナトリウム脱水後、ヘキサンを加えて約1mLまで濃縮した。シリカゲルカラムクロマトグラフィー(Waters VAC12cc)を用いて三分画した後、各分画を1mLまで濃縮し、内標準を添加後GC/MS測定(島津QP-2010Plus)した。測定は全自动同定・定量システム(AIQS-DB)用のスキャニング測定に加えて、PCB及びDDT類などは選択イオン検出法で測定した。AIQS-DBでは、データベースに登録された900種を超える化学物質の定量を行った<sup>4,5)</sup>。また、海底質の環境標準試料(NIST 1941a)10gを同様に処理して測定した。

### (5) TBT、R-Hg

トリプチルスズ(TBT)は試料に同位体標識した有機スズ化合物(トリプチルスズ-d27)をサロゲート物質として添加後、塩酸酸性メタノール-酢酸エチル混合溶媒で抽出し、さらに酢酸エチル-ヘキサンで再抽出後、陰

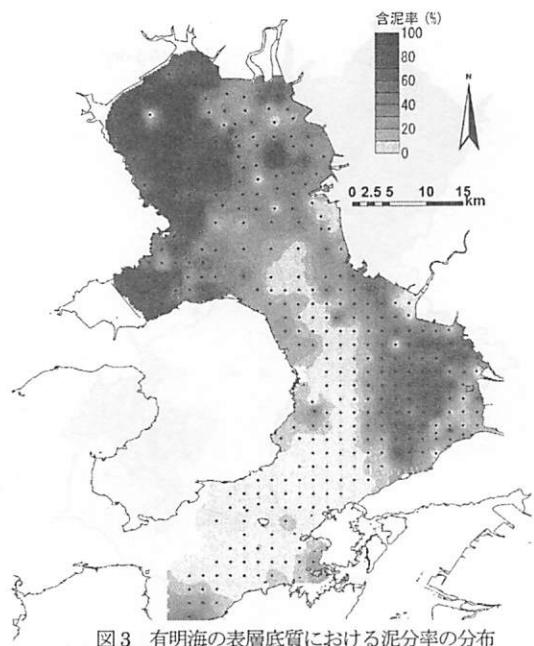


図3 有明海の表層底質における泥分率の分布

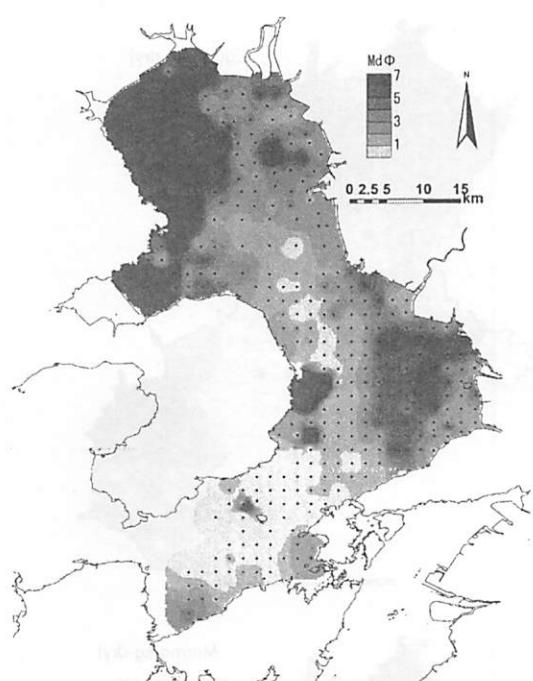


図4 有明海の表層底質におけるMdφの分布

イオン及び陽イオン交換樹脂を用いてクリーンアップを行った。次いで臭化プロピルマグネシウムでプロピル化し、プロピルトリプチルスズをGC/MSで測定した。アルキル水銀(R-Hg)は試料を水酸化カリウム・エタノール溶液で処理した後、酸性にしてトルエンで抽出し、中和後L-システィンで逆抽出し、再びトルエンで抽出したものをガスクロマトグラフ(GC/ECD)で測定した。測定対象はメチル水銀及びエチル水銀である。

#### 4. 分析結果

##### (1) 強熱減量・粒度組成

泥分率および $\phi$ スケール中央粒径(Mdφ)をみると、湾奥部西岸および熊本沖の値が高くなっている。主要流入河川(筑後川、白川、緑川、菊池川)河口部は比較的泥分率は低い(図3、図4)。強熱減量については、同様に湾奥部西岸および熊本沖にて高い値を示している(図5)。泥分率と強熱減量の相関係数を計算すると0.71と高い。これは、JIS規定の沈降試験による測定法では、鉱物に比べ密度の低い有機物が粒径の小さい粘土・シルト質とみなされたためであると考えられる。

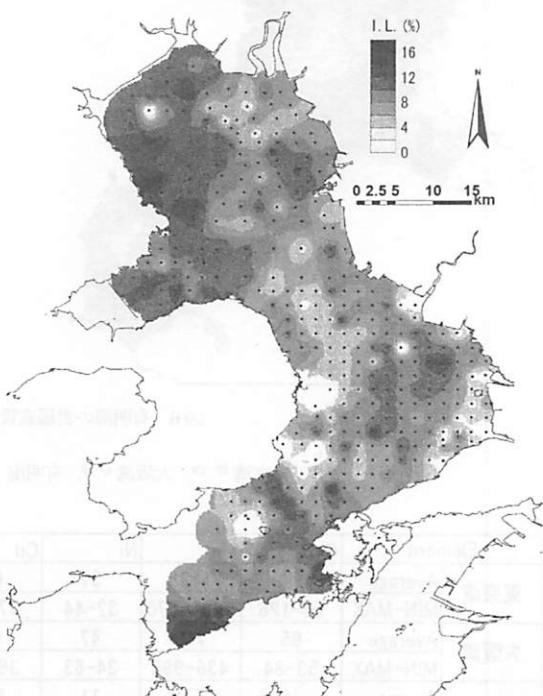


図5 有明海の表層底質における強熱減量の分布

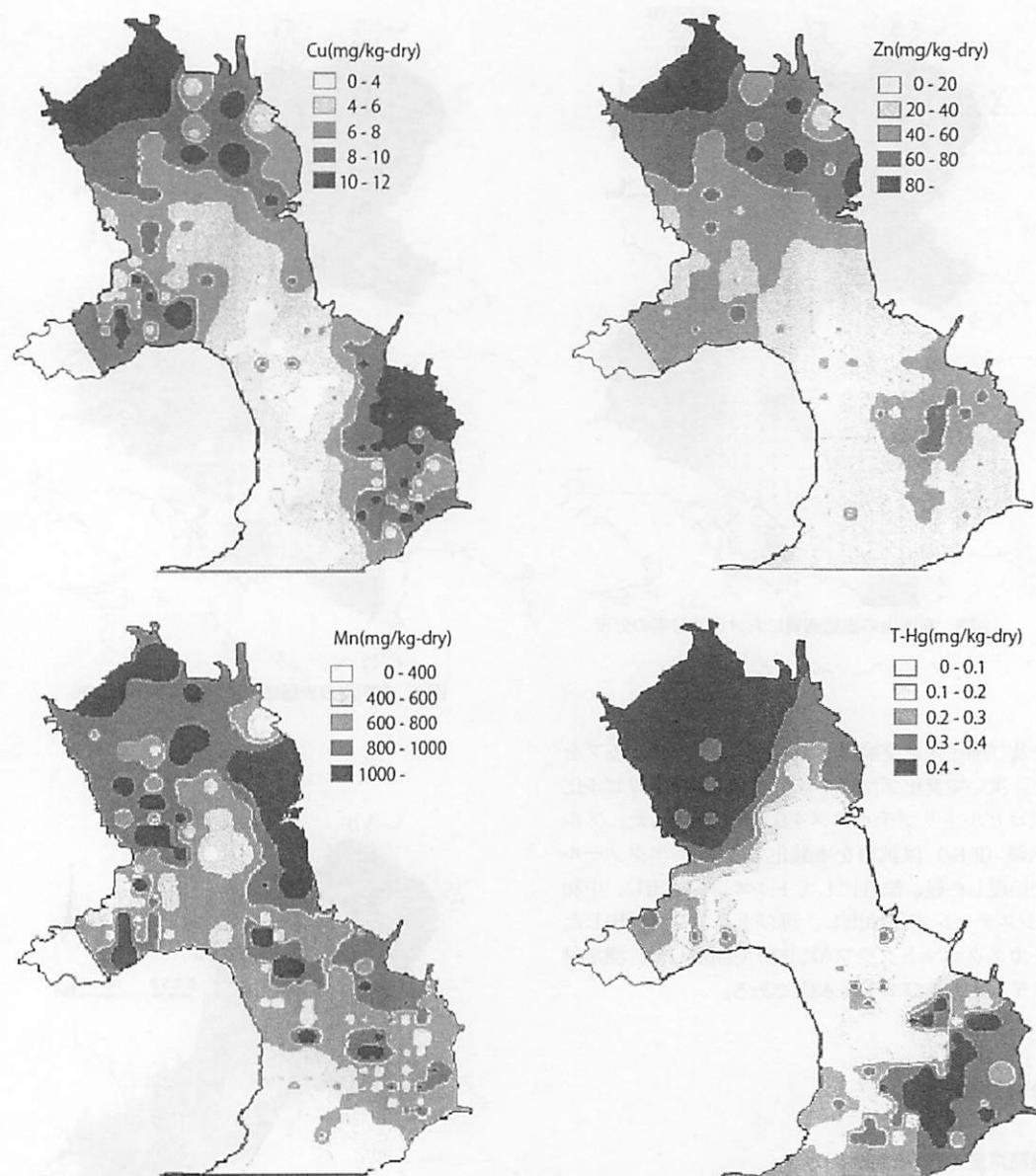


図6 有明海の表層底質における重金属濃度の分布

表1 東京湾<sup>6~10</sup>, 大阪湾<sup>6~9</sup>, 有明海(本研究)における底質の重金属濃度の比較

mg/kg-dry

Element	Cr	Mn	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb	T-Hg	
東京湾	Average	94	1128	37	64	354	-	1.1	54	-
	MIN-MAX	60-126	540-1670	32-44	47-80	265-405	-	0.53-1.4	47-58	-
大阪湾	Average	65	740	47	62	341	-	1.8	74	0.5
	MIN-MAX	53-84	436-990	34-63	38-95	234-436	-	0.83-2.40	53.1-95	0.2-0.85
有明海	Average	16	777	11	9.6	54	3.1	0.12	6.4	0.42
	MIN-MAX	9.2-34	330-2140	5.3-20	4.3-20	22-115	1.6-12	ND-0.68	2.7-18	0.06-0.78

## (2) 重金属

図6に重金属分析結果の一部を示す。底質の重金属濃度は、おおよそ泥分率と比例関係にあり、東京湾や大阪湾と比較すると比較的低い値であった(表1)<sup>6~10)</sup>。ただしMnは、有明海全域で比較的高い値を示しており、東京湾・大阪湾と大差ないかそれ以上の値を示す箇所も見受けられた。水銀は、湾奥部および熊本干潟で高濃度に蓄積していたが、島原半島から荒尾市を結ぶ地域では検出限界以下かごく低濃度であった。

## (3) 化学物質

測定結果、調査地点間では検出物質数に差が無く、検出濃度も有機物量にはほぼ比例していた。また、発生源を3分類(化学物質原料およびその中間体をはじめとする工業系、生物由来のステロール類をはじめとする生活系及び農薬などの農業系)すると、有明海底質に含まれる化学物質は、主に生活由来であり、農業・工業系の化学物質の寄与は少なかった(図7)。底質における化学物質の水生生物への影響を防止するための多環芳香族炭化水素(PAHs)などに関する底質ガイドライン<sup>11)</sup>と比すると、有明海では特に問題となる物質は検出されなかつた。

## (4) 有害物質(TBT)

熊本県北部沿岸域から佐賀県大浦沿岸にかけての湾奥部についてのTBT濃度の測定結果を、図8に示す。泥分が多い湾奥西部と三池沖の地点で高めの値が検出される傾向がみられた。

## 5. 考察

緑川、白川周辺では、河川からの土砂供給により泥分も高く保たれ、現在もアサリの漁場として活用されている。一方、湾奥部では、河口部にも関わらず比較的泥分の高い場所が見受けられる。湾奥部の泥分分布については、有明海における底質の細粒化傾向は、既存の調査結

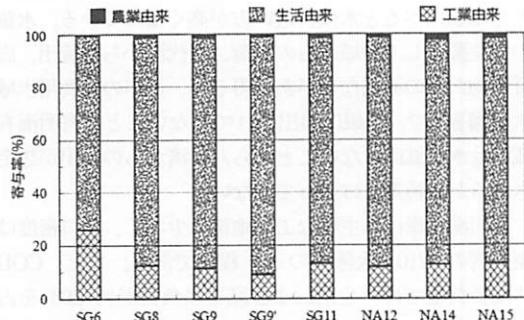


図7 底質中化学物質の発生源寄与率

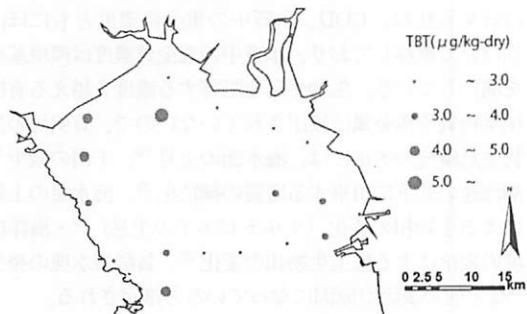


図8 湾奥部の表層底質におけるTBT濃度の分布

果<sup>13,14)</sup>においても多くの報告されているように1989年の調査結果<sup>12)</sup>と比べるとやや東部にむけて細粒化しており、筑後川河口部までこの影響がおよんでいる。しかしながら、2000年以降の調査結果<sup>15, 16, 17)</sup>と比べるとそれほど大きな変化はなく、ここ10年ほどでは底質の顕著な細粒化の傾向は見られない。

表2に底質分析結果の相関係数を示す。重金属・化学物質ともに泥分率や強熱減量と強い相関が認められる。濃度については、クロムやカドミウム、鉛などの生物に有害とされる金属については有明海では東京湾、大阪湾の値の10分の1程度であった。これは、工場排水、船舶の出入りなどによる人的汚染が有明海ではあまり進んで

表2 重金属、泥分、強熱減量の相関

	Cr	Ni	Cu	Zn	As	Cd	Pb	Hg	Mn	silt clay rate	I. L
Cr	1.000	0.873	0.698	0.689	0.653	0.590	0.610	0.152	0.320	0.363	0.311
Ni		1.000	0.601	0.534	0.589	0.457	0.413	0.167	0.287	0.150	0.117
Cu			1.000	0.802	0.615	0.443	0.590	0.369	0.318	0.636	0.519
Zn				1.000	0.572	0.394	0.572	0.373	0.354	0.540	0.470
As					1.000	0.645	0.786	0.094	0.229	0.213	0.150
Cd						1.000	0.700	-0.045	0.185	0.057	0.110
Pb							1.000	0.007	0.396	0.265	0.288
Hg								1.000	0.132	0.551	0.332
Mn									1.000	0.220	0.110
silt clay rate										1.000	0.711
I. L											1.000

いないことを示している。水銀の濃度分布は他の重金属の分布と比べると水俣に近い方が高くなっている。水銀の発生源として陸域からの負荷、八代湾からの流出、底質鉱物からの流出などがあり得るが、近年の公共用水域水質調査<sup>23</sup>で、水銀は検出されていないこと、有明海海域には水銀鉱床はないことから八代湾からの流出が想定されるが、特定には至っていない。

有明海沿岸には主要な工場地帯は少なく、人口密度は東京湾の1/10、大阪湾の1/6程度である。また、COD汚濁負荷量では、生活および産業系負荷が約80%を占める東京湾に対して、有明海は約20%であり、自然系の割合が大半を占める<sup>19 20 21</sup>。有明海における陸域負荷の経年変化は、COD、水質中の重金属濃度ともにほぼ横ばいで推移しており、水質中の重金属濃度は環境基準を満たしている。生物生息を阻害する濃度を越える有機化学物質や重金属は検出されていないので、有明海の生物生息環境の劣化には、海面の上昇<sup>22</sup>、干潟の減少<sup>23</sup>、潮流速の低下に由来する底質の細粒化<sup>24</sup>、海水温の上昇による生物相の変化（ナルトビエイの生息）<sup>25</sup>・海洋環境の変化による底生生物相の変化<sup>26</sup>、貧酸素水塊の発生<sup>27</sup>など他の要因が原因になっていると推定される。

## 6. 有明海問題の解決に向けて

いわゆる有明海問題に対する正確な知見を得るには生物生息に影響のある環境因子について、正確な情報を集めるとともに、環境因子間の影響についても十分に検討することが必要である。すでに、有明海・八代海総合評価委員会にて因果関係は取りまとめられているが<sup>28</sup>、本研究で得られた重金属と有機化学物質に関する知見により、不確定さを減少させることができた。さらに、湾奥部や中央部東部における生物生息環境の回復には、1980年代から1990年にかけて生じた底質の細粒化を回復させることが重要な因子の一つと推定されるので、今後現地調査を続け検討していきたい。

**謝辞：**本研究は、科学技術振興調整費「有明海生物生息環境の俯瞰型再生と実証実験」（代表：楠田哲也）によるものである。また、研究を進めるにあたって、分析装置等を利用させて頂いた北九州市環境科学研究所、調査分析に協力して頂いた（財）九州環境管理協会の仲島賛氏、分析を行う際にご助言頂いた九州大学中央分析センター渡辺様に深く感謝致します。

## 参考文献

- 1) 環境省, 有明海・八代海総合調査評価委員会：委員会報告書, pp3-4, 2006.
- 2) 日本海洋学会編, 有明海の生態系再生をめざして, 恒星社厚生閣, pp.137-143, 2005.
- 3) 環境庁水質保全局, 底質調査方法, 2001.
- 4) 門上希和夫, 棚田京子, 種田克行, 中川勝博, 有害化学物質一斉分析用ガスクロマトグラフィー/質量分析法データベースの開発, 分析化学, 53, pp581-588, 2004.
- 5) 門上希和夫, 陣矢大助, 包括分析による北部九州海域の底質中化学物質(888種)調査, 第16回環境化学討論会 ポスター発表, 2007.
- 6) 海上保安庁水路部, 海洋汚染調査報告, 第32号, 2004.
- 7) 海上保安庁水路部, 海洋汚染調査報告, 第33号, 2005.
- 8) 海上保安庁水路部, 海洋汚染調査報告, 第34号, 2006.
- 9) 海上保安庁水路部, 海洋汚染調査報告, 第35号, 2007.
- 10) Fukushima, K., T. Saito and Y. Kodama, Trace metal contamination in Tokyo Bay, Japan, The Science of the Total Environment, 125, pp373-389, 1992.
- 11) Long et al, Environmental Management, NOAA, 19(1), pp81-97, 1995.
- 12) 古賀秀昭, 有明海北西海域の底質および底生生物, 佐賀県有明水産振興センター研究報告書, 第13号, pp57-79, 1991.
- 13) 環境省, 有明海海域環境調査結果, 2002.
- 14) 滝川清, 第14回有明海・八代海総合評価委員会 資料3, 有明海・八代海の底質環境について, 2005.
- 15) 大隈斎, 江口泰蔵, 川原逸朗, 伊藤史郎, 有明海湾奥部の底質およびマクロベントス, 有明水産振興センター研究報告書, 第20号, pp55-62, 2001.
- 16) 藤崎博, 大隈斎, 山口忠則, 有吉敏和, 有明海湾奥部の底質, 有明水産振興センター研究報告書, 第23号, pp37-40, 2007.
- 17) 近藤寛, 東幹夫, 西ノ首秀之, 有明海における海底堆積物の粒度分布とCN特性, 長崎大学教育学部紀要自然科学, 68, 1-14, 2003
- 18) 国立環境研究所, 環境数値データベース,  
<http://www.nies.go.jp/igreen/index.html>
- 19) 滝川清, 第14回有明海・八代海総合評価委員会 資料3, 有明海・八代海の底質環境について, 2005.
- 20) 環境省, 有明海・八代海総合調査評価委員会：委員会報告書, pp3, 2006.
- 21) 東京湾再生推進会議事務局, 東京湾再生のための行動計画, 2003.
- 22) 環境省 有明海・八代海総合調査評価委員会, 委員会報告, pp41-77, 2006.
- 23) 武岡英隆, 有明海におけるM2潮汐の変化に関する論議へのコメント, 沿岸海洋研究, 第41巻第1号, pp61-64, 2003
- 24) 佐々木克之, 稲木義邦, 村上哲生, 諸早湾調整池からのCOD・全窒素・全リンの排出量および失われた浄化量の推定, 海の研究, 第12巻, pp573-591, 2003.
- 25) 日本海洋学会編, 有明海の生態系回復を目指して, 恒星社厚生閣, pp49-104, 2005.

- 26) 川原逸朗, 伊藤史郎, 山口敦子, 有明海のタイラギ資源に及ぼすナルトビエイの影響, 佐有水研報, Vol.22, pp29-33, 2004.
- 27) 日本海洋学会編, 有明海の生態系回復を目指して, 恒星社厚生閣, pp118-128, 2005.
- 28) 速水祐一, 有明海東部の貧酸素水塊形成機構と長期変動, 海洋, Vol.39, No.1, pp22-28, 2007.
- (2009.5.22 受付)

### Chemical and physical characteristics of sediment distribution in Ariake Bay

Hiroki IYOOKA<sup>1</sup>, Tetsuya KUSUDA<sup>1</sup>, Kiwao KADOKAMI<sup>2</sup>,  
Shinya UEDA<sup>3</sup>, Daisuke TSUCHIYA<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Kyushu University

<sup>2</sup>The University of Kitakyushu

<sup>3</sup>Oriental Consultants Co., Ltd.

<sup>4</sup>CTI Engineering Co., Ltd.

Sediment samples of 368 were collected all over Ariake Bay. Grain size distribution, ignition loss, water content, heavy metal concentrations and chemical substance concentrations were measured on the samples. Fine sediments are accumulated northeast area of the bay and offshore the Kumamoto area. The areas with high silt-clay ratio expanded from 1980s to 1990s, but not from 2000 to 2005. The concentrations of heavy metals and organic chemical substances are correlated with the ignition loss of sediments, which are lower than the environmental quality standards. Mercury is high in concentration in northeast area of the bay and offshore the Kumamoto area. There is no substance which gives acute poisoning to biota. Degradation of environment for biota could be due to sea level rise, decrease in tidal flats, lowering of water flow velocity and temperature rise.