

有明海湾奥部における底泥からの栄養塩類の溶出-I

—溶存態窒素—

首藤俊雄・吉本宗央*

Diffusion of Soluble Nutrients from Mud Sediments in the Innermost Area of Ariake Sound-I —Dissolved Inorganic Nitrogen—

Toshio SYUTO, and Muneo YOSHIMOTO*

まえがき

有明海湾奥部は、全国でも有数のノリ養殖漁場であり、その生産力を支えている要因の一つは、豊富な栄養塩にある。栄養塩の供給源としては、筑後川をはじめ、六角川や矢部川などからの河川水の流入および、河川水を起源とする底泥からの溶出などがあげられる。有明海湾奥部に流入する河川水が栄養塩に及ぼす影響については、村上¹⁾、河辺²⁾が報告している。一方、底泥からの溶出については、河辺²⁾、飯盛³⁾の報告がある。しかし、どちらも溶出の試験方法は、攪拌法によるものであり、底泥中の間隙水の移動による自然界の溶出量を把握するには不十分であると考えられる。

そこで、自然状態に近い条件下で、底泥からの栄養塩類(窒素、磷、珪酸)の溶出量を把握するため、アクリルパイプを用いてコアの状態底泥を採取し、静置法と攪拌法の異なる溶出方法で試験を行った。本報では、その結果のうち窒素について報告する。

材料及び方法

1. 静置法による底泥からの溶存態窒素(DIN)の溶出の季節変動

底泥の採取は、図1に示すSt. A~Dの4地点で行い、採取場所の地盤高は、それぞれ3.0 m, 1.0 m, 0.0 mおよび-2.0 mであった。本試験は1996年5月から1997年2月に行った。St. Aの底泥は、大潮干潮時にアクリルパイプ(長さ500 mm×内径74 mm)を表面から直接差

し込み採取し、泥厚10 cmの層を底質分析(1本)と溶出試験(5本)に供した。泥の入ったアクリルパイプは、両端をゴム栓で密閉して研究室に持ち帰り、ただちに、表面の浸出海水を除去した後、人工海水1.5 lを注ぎ込み、試験温度に設定した恒温室内に試験開始まで静置した。なお、人工海水は表1に示す組成で、塩分濃度を $30.0 \pm 0.1\%$ に調整し、試験温度に設定した恒温室内で十分にエアレーションを行ったものである。

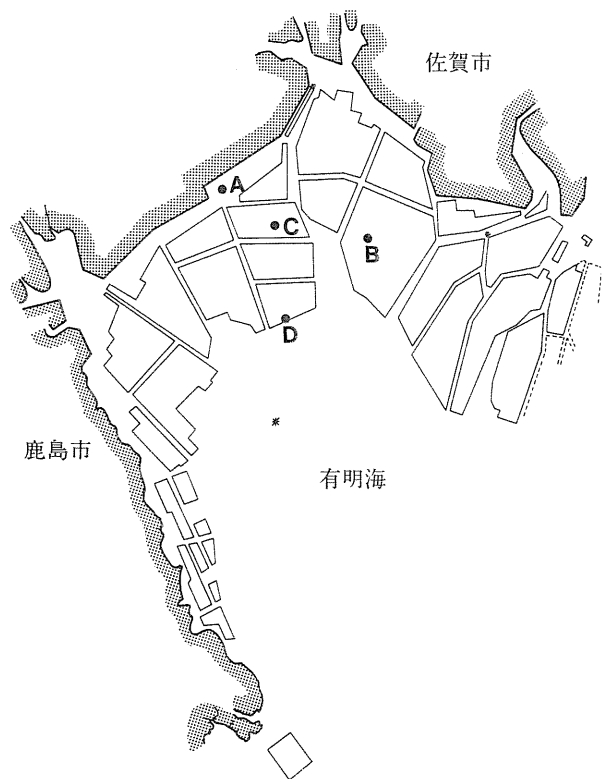


図1 底泥の採取地点

* 現佐賀県水産局漁政課

表1 人工海水の組成 (18ℓ 当たり)

NaCl	422.57 g
MgCl ₂ ·6 H ₂ O	191.26 g
Na ₂ SO ₄	70.51 g
CaCl ₂ ·2 H ₂ O	26.28 g
KCl	11.95 g
NaHCO ₃	3.46 g
KBr	1.73 g
H ₃ BO ₃	0.47 g
SrCl ₂	0.43 g
NaF	0.05 g

St. B, C および D の底泥は、図2に示す方法で、大潮の満潮時に船上から柱状採泥器 (共和共栄会(株)製)⁴⁾ を用い、前述のアクリルパイプを落とし込んで採取し、底質分析 (1本) と溶出試験 (5本) に供した。泥の入ったアクリルパイプは、両端をゴム栓で密閉し、同時に採取される直上海水とともに研究室に持ち帰り、ただちに、直上海水を取り除いてから押し棒を用いて、表面から10 cm までを試験用アクリルパイプに移し替えた。これに前述の人工海水 1.5 ℓ を底泥表面の浮泥を巻き上げないように注ぎ込み、試験温度に設定した恒温室内に試験開始まで静置した。

採取地点の底質の変化をみるために、分析用底泥の0 ~ 5 cm 層を分取してよく混ぜ合わせ、T-S, COD および IL (550°C, 1時間) を常法により分析した。

底泥からの DIN の溶出量の季節変化は、静置法で行うこととし、その試験は、図3に示す装置で、St. C の採泥時水温に設定した恒温室内の暗黒条件下で、エアレー

ションを行って実施した。分析用の採水は、エアレーションを始めてから15分後を0時間後とし、3, 6, 12, 24, 48, 72, 96, 120時間後に行った。海水は、毎回40 ml を採取し、ただちにメンブランフィルター (孔径 0.45 μm) でろ過し、-20°C で凍結保存した。DIN はオートアナライザー (BRAN・LUEBBE 社製 TRAACS 800) を用いて NH₄-N, NO₂-N および NO₃-N を常法により分析し、合計して表した。分析値は、0時間後の溶出量を0とし、以後、所定の時刻に採取した海水中の溶出量を加えて、1 m² 当たりの溶出量に換算し、5本の試験区の平均値で表した。なお、供試した底泥は、試験終了後1 mm メッシュの上で洗い流して、泥中にモガイ等のベントスが確認された場合にはデータとして使用しなかった。また、ブランク試験には人工海水を用い、分析値の補正を行った。

溶出試験中の水質変化をみるため、0, 48, 120時間後に海水 80 ml を採取し、DO と pH を常法により測定した。なお、海水の補充はしなかった。

2. 底泥からの溶存態窒素の溶出の静置法と攪拌法の比較

底泥の採取は、図1に示す St. A で行った。本試験は1997年10月から1997年12月に行い、底泥は、前述と同じように、干潮時の干潟にアクリルパイプを表面から直接差し込み採取し、泥厚 10 cm の層を静置法 (6本) と攪拌法 (1本) に供した。試験の方法は、前述と同様に実施した。試験区は、採泥時の水温に設定した环境温度区 (以下、E区と略す)、および 26°C の一定温度区 (以下、C区と略す) を設け、それぞれ3本を試験に供した。分析用の採水は溶出試験開始後、0, 3, 6, 12, 24, 48時間後に行った。毎回40 ml を採取し、ただちにメン

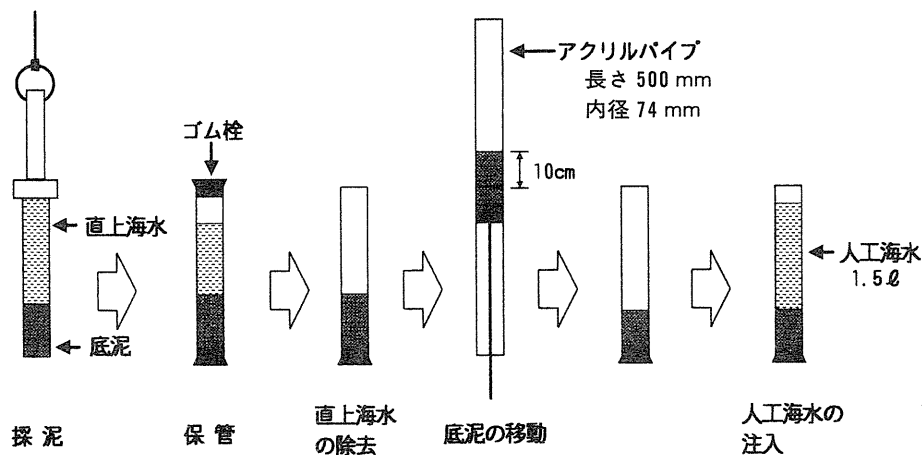


図2 採取の方法

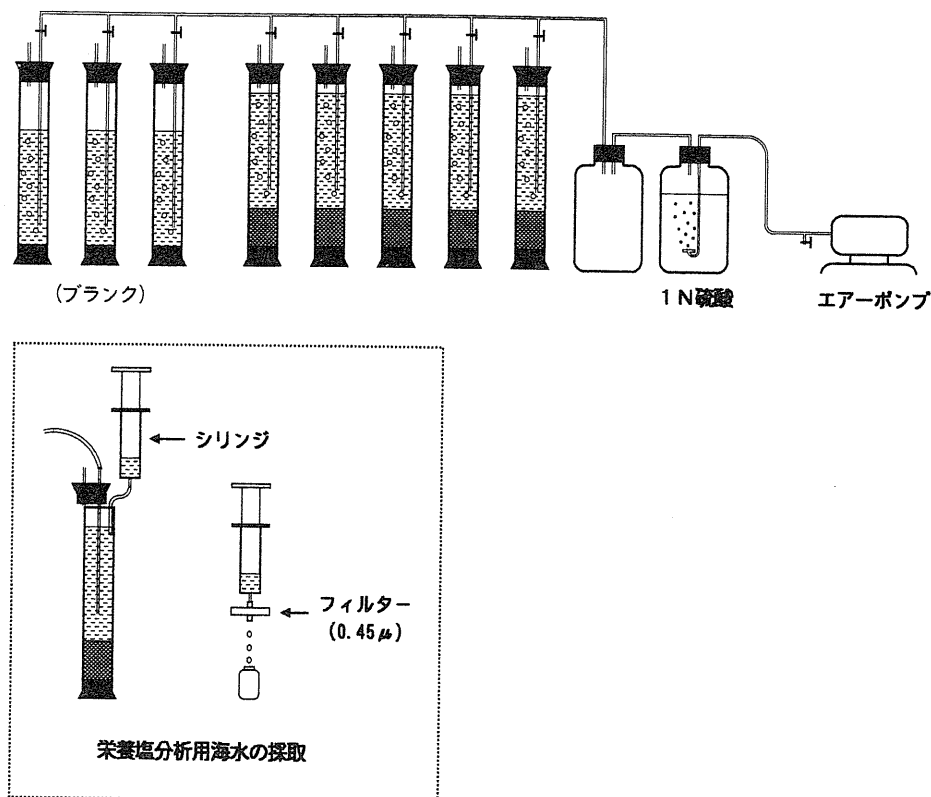


図3 溶出試験の方法（静置法）

ブランクフィルター（孔径 $0.45 \mu\text{m}$ ）でろ過して、分析に供した。分析値は3本の平均値を用いた。

攪拌法による溶出試験には、採取した底泥を $0 \sim 5 \text{ cm}$ 層（上層）および $5 \sim 10 \text{ cm}$ （下層）に分けてよく混ぜ合わせ、それぞれ2本を供した。試験は、試料 20 g を 300 ml の三角フラスコに入れ、人工海水 200 ml を注ぎ込んだ後、マグネチックスターラーで20分間攪拌して行った。また、静置法による溶出試験と同様、水温の影響をみるためにE区とC区を設けた。海水は、攪拌終了後、5分間静置し、上澄み液をただちにメンブランフィルター（孔径 $0.45 \mu\text{m}$ ）でろ過して、分析に供した。分析値は2本の平均値を用い、湿重量から泥の比重を1.7として、 1 m^2 当たりの溶出量に換算した。

3. 間隙水中の溶存態窒素

間隙水の溶存態窒素は、攪拌法による溶出試験と同一の上層および下層の底泥をそれぞれ2本調整し、遠心分離（4,000回転 20分間）して得られた上澄み液を、ただちにメンブランフィルター（孔径 $0.45 \mu\text{m}$ ）でろ過し、分析に供した。分析値は2本の平均値を用い、湿泥 1 kg 当たりに換算した。

結果及び考察

1. 静置法による底泥からの溶存態窒素（DIN）の溶出の季節変動

1) 調査地点における底質の特徴

調査地点の底質の状況は、St. A, C および D の3点は泥質、St. B は砂泥質であった⁵⁾。各調査地点における T-S, COD および IL の季節変動を図4に示した。T-S は、St. C が $0.47 \sim 0.57 \text{ mg/g-乾重}$ と他の地点よりも高く、強い還元状態にあることが明らかである。一方、砂泥質の St. B は $0.03 \sim 0.04 \text{ mg/g-乾重}$ と年間を通して低いレベルで安定していた。COD は、各地点とも5月が高く、以後は低下していく傾向は共通であった。特に、St. B は $6.00 \sim 13.03 \text{ mg/g-乾重}$ と他の3地点よりも低めであった。IL は、各地点とも大きな季節変動はみられないが、St. B は $3.9 \sim 5.2\%$ と低めで推移した。St. B は、各分析値が低いことから、有機物の含量が少ないことが特徴としてあげられた。

2) 底泥からの DIN 溶出量の季節変動

St. A~D における底泥からの DIN ($\text{NH}_4\text{-N}$, NO_2

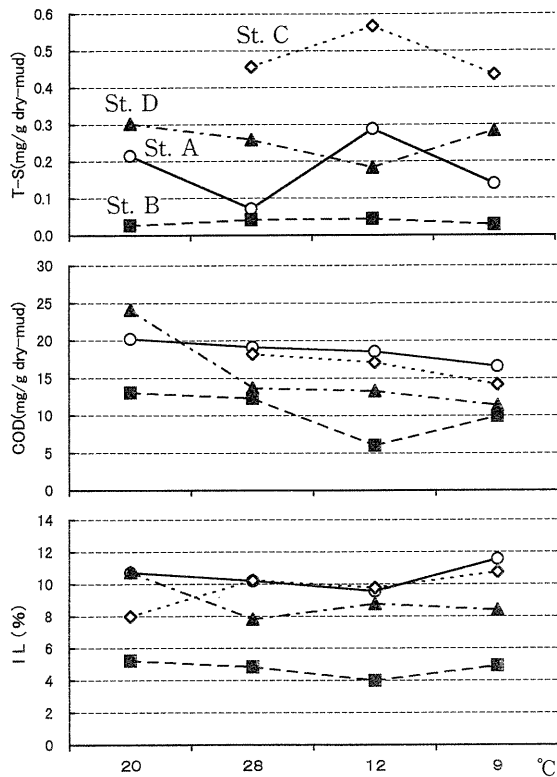


図4 調査地点の底質の変動

-N, $\text{NO}_3\text{-N}$ 溶出量の経時変化を月別に図5に示した。St. Aにおいては、溶出量は試験開始直後から直線的に増加し、120時間後の溶出量は、20 (5月), 28 (8月), 12°C (11月)において、それぞれ149.68, 328.90, 106.43 mg/m^2 で、9°C (2月)ではほとんど溶出が認められなかった。このように、St. Aでは、28, 20, 9°Cにおける溶出量が大きく異なっている。この原因は、夏の干潟においては、干出時に強い日射を受けて泥温が上昇し、有機物の酸化、分解が進むが、冬の干潟においては、気温の影響を受けて、泥温が低下し、酸化、分解が抑制される⁶⁻⁸⁾ためと推測された。DIN組成については、20°Cでは $\text{NH}_4\text{-N}$ がほとんどを占めていたが、28°Cでは最終的にはそれぞれの窒素が均等に存在していた。

St. BとDにおいては、溶出量はSt. A, Cの1/2以下と少なく、また、底質が砂泥質と泥質で条件が異なるが、両者の溶出量の季節変動には大差がなかった。これはSt. Bの底質の粒子が大きいいため、DINを蓄積している間隙水の移動が泥質より速く、また、底泥下層からの補給が速やかに行われる^{2,8-10)}ために、泥質であるSt. Dとの差が表れていないものと思われた。DIN組成では、他の地点より、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の占める割合が低く、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の

割合が大きかった。

St. Cにおいては、溶出量が、20°C (5月)では直線的に増加するのに対し、その他の水温条件では、急増したのち溶出が緩慢になる傾向がみられた。しかし9°C (2月)では他の地点よりも溶出量が多かった。これは本地点がサルボウ養殖場の中にあるため、その排泄物などが蓄積されていること、また、六角川の河口域に位置しているため、泥中のN源となる有機物の流れ込みが多く、蓄積量も多いことが原因と思われた。DIN組成では、72時間後以降は $\text{NH}_4\text{-N}$ の増加が緩慢となり、かわって $\text{NO}_3\text{-N}$ が増加し、120時間後の $\text{NH}_4\text{-N}$ の占める割合が減少した。

St. Cにおける24時間後および120時間後の溶出量の季節変動を図6に示した。28°Cで溶出試験を行った時のDIN溶出量は、120時間後でそれぞれ284.31, 221.34 mg/m^2 であった。11~23°Cおよび24~9°Cで試験を行った120時間後の溶出量は、前者は36.87~67.72 mg/m^2 、後者は80.82~152.62 mg/m^2 で28°Cに比べるとかなり少ない。従って、25~28°Cの範囲に溶出量が急増(急減)する温度域があると考えられた。奥田⁹⁾は、底泥を5~30°Cの範囲で一定期間貯蔵し、底泥中で生産される可溶性無機栄養塩を測定し、栄養塩の生成速度は20°Cで大きくなり、特に25°C, 30°Cでは著しく活発になると述べている。また、河辺²⁾は、ドーナツ型水槽に底泥を敷き詰めて海水を加え、一定の流れを与えて溶出試験を実施しているが、一定流速で温度を変えて行ったところ、30°Cの溶出速度は20°Cの約4倍に急増すると述べている。今回、実施した試験装置は、河辺²⁾や奥田⁹⁾の手法と異なるが、溶出量が急増する温度域については、これらの知見とほぼ一致する。

また、28°C (8月)の溶出量は、同じ溶出温度の7月と比較すると、24時間後以降から若干減少していた。これは、28°C (7~8月)にかけて溶出が進み、底泥中のNの絶対量が減少したためと思われた。一方、11~23°C (4~6月)とほぼ同じ溶出温度で行った24~12°C (9~12月)においては、120時間後における溶出量が11~23°C (4~6月)よりも多かった。村上¹⁾の有明海底泥中の総N分析結果では、秋から冬にかけて泥中の総N量は増加しており、9°C (2月)は28°C (7月)の3.5倍であった。今回の試験でみられた11~23°C (4~6月)と24~12°C (9~12月)の溶出量の差は、梅雨季の河川からの流入や生物活動等によって堆積した有機物の分解が大きく影響しているためと考えられた。

なお、水質については、DO飽和度は、開始直後が

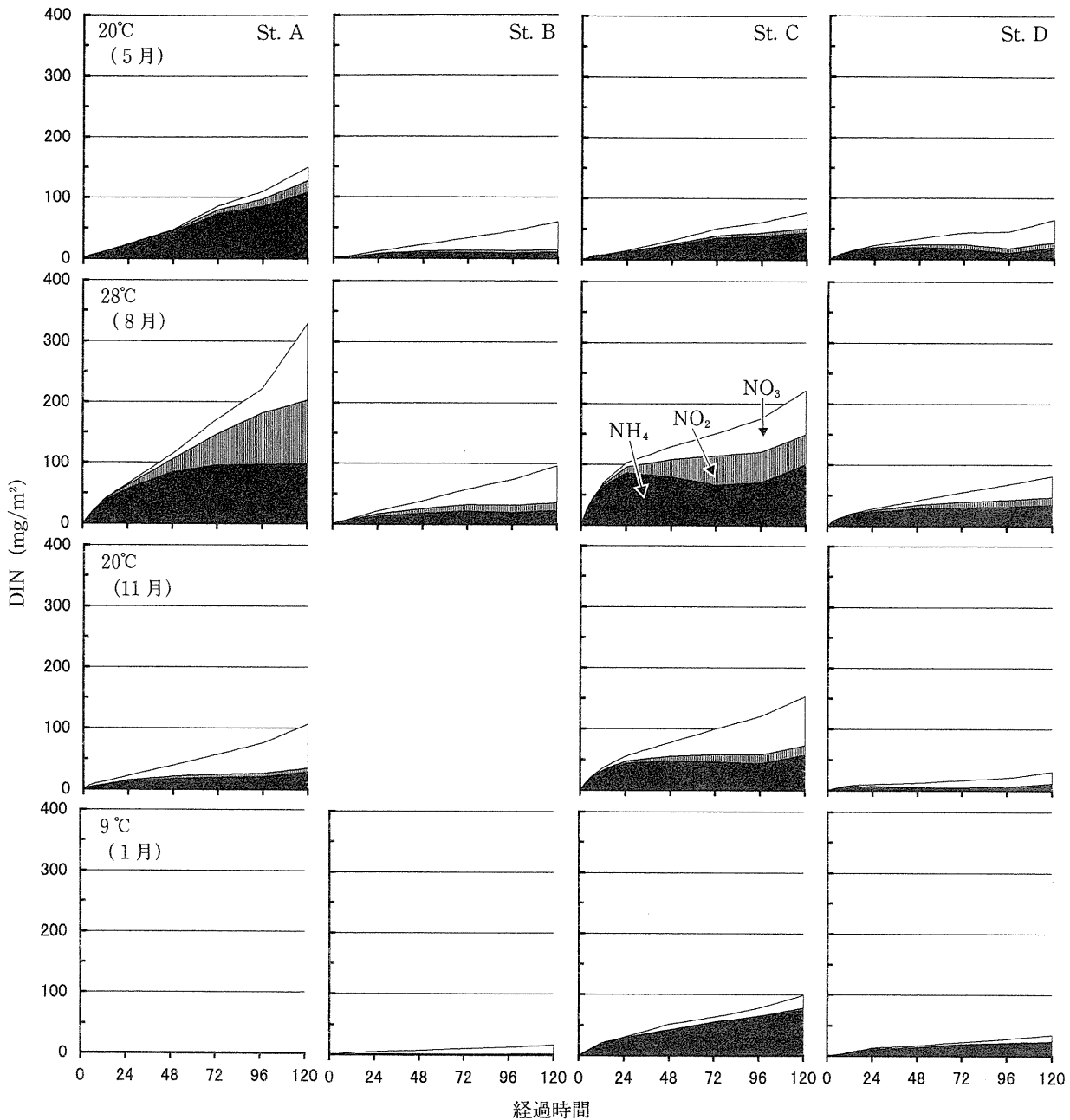


図5 底泥からの溶出量の変動

87.5~97.2%, 終了時が88.5~99.4%でほとんど変化は認められなかった。pHは、開始直後が7.54~8.11, 終了時が8.00~8.25と、若干高くなる傾向がみられた。

3) 地点間の溶出量の比較

地点間の溶出量を比較するため、水温別(月別)にSt. Cの溶出量を1として各地点の溶出量の比を求め、その結果を表2に示した。平均値で比較すると、20°CではSt. A, B, Dがそれぞれ1.72, 0.73, 1.01で、St. DはSt. Cと大差なかった。28°Cでは同様に1.08, 0.35, 0.34

で、干潟域のSt. Aは、St. Cと同等の溶出が認められたが、St. BとSt. DはSt. Cの1/3程度の低い溶出量であった。20°Cでは、St. Bが欠測であるが、St. A, Dが0.56, 0.17で、干潟域でも溶出量が減少した。9°Cでは同様に0.02, 0.16, 0.36となり、特に干潟域の減少が著しく、この時期における干潟域からの溶出によるDINの供給は、ほとんど期待できないと考えられた。

2. 静置法と攪拌法による溶存態窒素の溶出

静置法と攪拌法による底泥からのDIN溶出量を水温

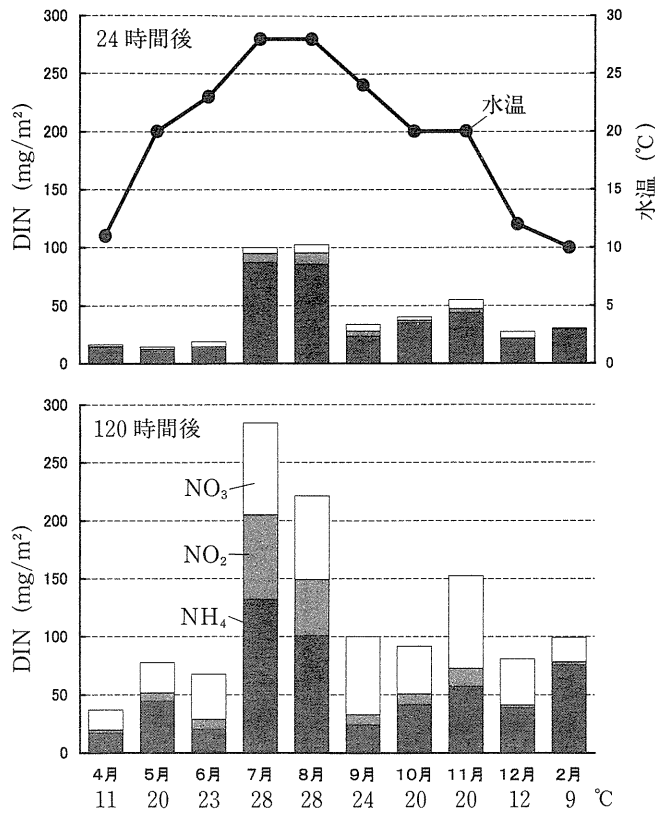


図6 St. CにおけるDIN溶出量の変動

別に表3に示した。静置法のE区においては、22°Cから16°Cまで溶出量は大差はないが、14°C以下になると減少し、最低水温時には22°Cの7%となった。一方、26°Cの恒温での溶出は、水温の低下とともに徐々に溶出量が減少しているものの、最低水温時でも最高水温時の28%に停まっている。このことから、底泥中存在するN量は低水温時でもかなり多く、水温が高ければ溶出する可能性があることが示唆される。攪拌法における22°CのE区

上層区のDIN量は、静置法に比べ10倍ほど多い700 mg/m²を示した。その後、12°Cまでは溶出量に大差はないが、10°Cになると22°Cに比べて47%にまで減少した。ただ、この値は静置法の10°Cに比べると非常に多く、339 mg/m²を示した。下層でも同じ傾向はあるものの、上層に比べ2~3倍ほど溶出量が多く、潜在的なN量は豊富であった。E、C区を比較すると、ほとんど差はなく同じような傾向がみられた。従って、底泥からのDINの溶出には、水温の影響だけでなく、攪拌という物理的作用時の影響が大きいことがうかがえた。つまり、水温が低下した時の溶出は減少するが、これを補うには物理的作用である風や潮汐、波などを与えることが有意であると思われた。

なお、水質については、DOは、試験開始前と終了時とともに90%以上の飽和度を保っており、pHは、開始前が7.83~8.09、終了時は8.07~8.30で若干高くなっていった程度で、大きな変化はなかった。

3. 間隙水中の溶存態窒素

間隙水中のDINの変動を図7に示した。上層の湿泥1 kg当たりのDIN量は、2.58~4.81 mgの範囲で増減を繰り返す、水温との明確な関係はみられなかった。下層は、全体的には上層の変動とよく似ており、下層は上層の約2倍の高い値であった。また、間隙水のDIN組成は、攪拌法による溶出と同様、上層、下層ともに水温にかかわらずNH₄-Nが大部分を占めていた。静置法による実験1でも試験開始直後に増加するのはNH₄-Nであることから、底泥表層の間隙水が海水中に移行することにより、最初にNH₄-Nが増加すると考えられた。海底に堆積した有機物は、大小様々な生物により分解され、NH₄-Nとして再生されて間隙水中

表2 St. Cの溶出量に対する各地点の比率

経過時間	20°C (5月)				28°C (8月)				20°C (11月)				9°C (2月)			
	地点				地点				地点				地点			
	A	B	C	D	A	B	C	D	A	B	C	D	A	B	C	D
24	1.63	0.77	1.00	1.56	0.63	0.21	1.00	0.27	0.40	—	1.00	0.18	0.04	0.15	1.00	0.43
48	1.51	0.71	1.00	1.09	0.88	0.29	1.00	0.32	0.50	—	1.00	0.15	0.02	0.14	1.00	0.32
72	1.71	0.66	1.00	0.86	1.14	0.38	1.00	0.36	0.57	—	1.00	0.16	0.01	0.16	1.00	0.36
96	1.81	0.73	1.00	0.73	1.27	0.42	1.00	0.38	0.63	—	1.00	0.17	0.01	0.16	1.00	0.36
120	1.92	0.77	1.00	0.83	1.49	0.44	1.00	0.37	0.70	—	1.00	0.20	0.01	0.17	1.00	0.35
平均値	1.72	0.73	1.00	1.01	1.08	0.35	1.00	0.34	0.56	—	1.00	0.17	0.02	0.16	1.00	0.36

—, 欠測.

表3 静置法と攪拌法による溶存態窒素の溶出

mg/m²

水温 °C	静置法		攪拌法			
	E区	C区	E区		C区	
	0~10 cm	0~10 cm	0~5 cm	0~10 cm	0~5 cm	0~10 cm
22	71 (100)	87 (100)	717 (100)	1,661 (100)	731 (100)	1,917 (100)
20	48 (68)	64 (74)	604 (84)	1,340 (81)	628 (86)	1,359 (71)
18	31 (44)	59 (68)	562 (78)	1,231 (73)	559 (76)	1,202 (63)
16	40 (56)	44 (51)	574 (80)	1,247 (75)	620 (85)	1,400 (73)
14	20 (28)	35 (40)	696 (97)	1,756 (106)	657 (90)	1,743 (91)
12	25 (35)	55 (63)	824 (115)	1,950 (117)	895 (122)	1,945 (101)
10	5 (7)	24 (28)	339 (47)	973 (59)	319 (44)	987 (51)

(), 22°Cの値に対する割合。

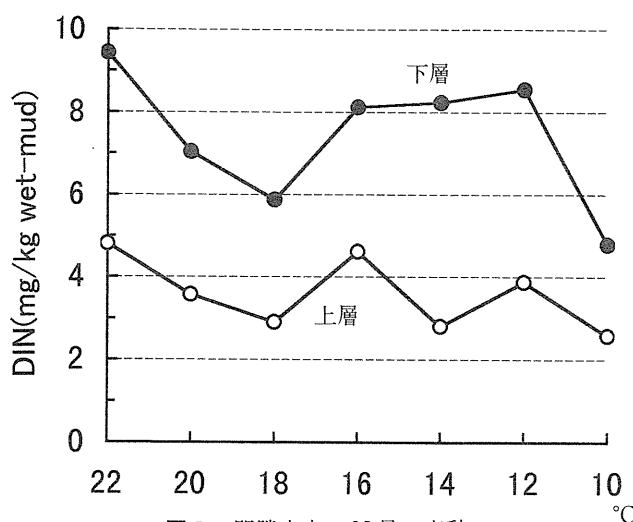


図7 間隙水中のN量の変動

に蓄積される。その後、海水中に溶出したNH₄-Nは、硝化細菌の作用を受けて、NH₄-N → NO₂-N → NO₃-N

-Nへの変化、いわゆる硝化作用が進む^{4,6,7)}ものと思われた。この点について、奥田^{8,9)}は、シリンダーに底泥と海水を入れて静置して行った溶出試験の結果、表層底泥の間隙水のNO₃-N濃度が海水よりもかなり高いことから、NH₄-N → NO₃-Nへの変化は、海水中では短期間にはほとんど進まず、大部分は底泥表面で行われると述べている。従って、実験1でみられた試験開始直後にNH₄-Nが大部分を占め、その後、徐々にNO₃-Nが増加する現象は、まず、底泥表層の間隙水が海水中に移行し、その後、徐々に底泥下層から補充されるNH₄-Nが、底泥表面で硝化されて海水中に溶出するためと思われた。

4. 泥中から溶出する溶存態窒素(攪拌法)と間隙水の溶存態窒素との関係

湿泥1kgに含まれる間隙水中のDIN量と、湿泥1kgから攪拌法により溶出するDIN量を図8に示した。今回の試験結果では、攪拌により溶出するDIN量は、上層

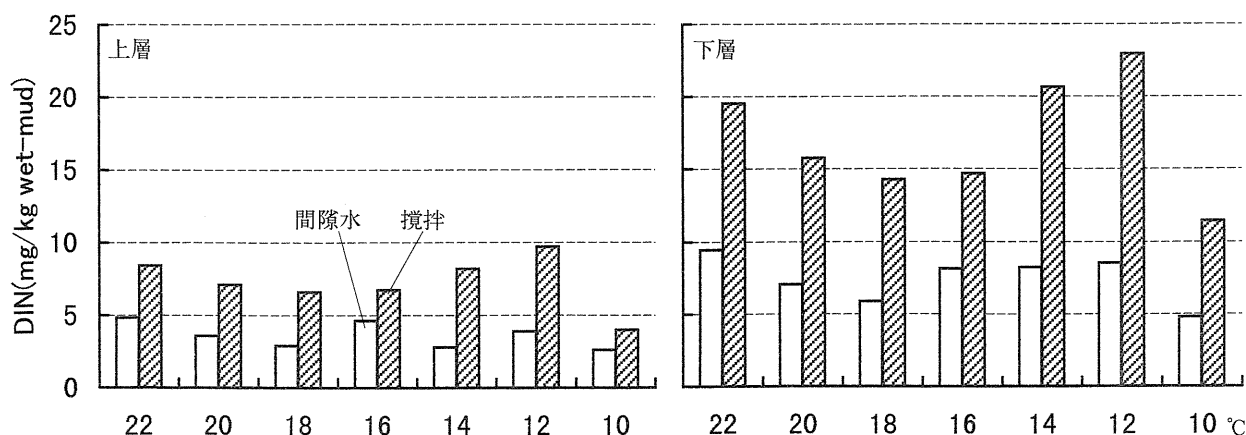


図8 間隙水中のN量と攪拌法によるN溶出量との比較

で3.99~9.69 mg, 下層で11.45~22.94 mg, 間隙水に含まれる量は, 上層で2.58~4.81 mg, 下層で4.79~9.43 mgと溶出量は上層で間隙水の1.5~2.9倍(平均2.1倍), 下層では1.8~2.7倍(平均2.3倍)であった。つまり, 間隙水とほぼ同量のDIN(主に $\text{NH}_4\text{-N}$)が底泥には吸着態として存在している^{4,10)}ことがわかった。このことから, 波浪などによる底泥の巻き上げが起これば, 海水中へのDIN供給が間隙水からだけでなく, 吸着態からも行われ, 海水中のDIN濃度が高くなることを期待できると考えられた。

要 約

1. 24~12°C(9~12月)においては, 120時間後における溶出量が11~23°C(4~6月)よりも高かった。このような11~23°C(4~6月)と24~12°C(9~12月)の溶出量の差は, 梅雨季の河川からの流入や生物活動等によって堆積した有機物の分解が大きく影響しているためと考えられた。
2. 冬季における干潟域からの溶出によるDINの供給は, ほとんど期待できないと考えられた。
3. 底泥からのDINの溶出には, 水温の影響だけでなく, 攪拌という物理的作用時の影響が大きいことがうかがえた。つまり, 水温が低下した時の溶出は確かに減少するが, これを補うには物理的作用である風や潮汐, 波などを与えることが有意であると思われた。
4. 静置法, 攪拌法のいずれでも $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出は, 実験開始時に多く, 時間経過とともに減少することが観察された。これは, 海底に堆積した有機物が大小様々な生物により分解され, まず $\text{NH}_4\text{-N}$ として再生されて間隙水中に蓄積し, その後, 海水中に溶出した $\text{NH}_4\text{-N}$ が, 硝化細菌の作用を受けて, $\text{NH}_4\text{-N} \rightarrow \text{NO}_2\text{-N} \rightarrow \text{NO}_3\text{-N}$ への変化, いわゆる硝化作用が進んでいるた

めと思われた。

5. DIN(主に $\text{NH}_4\text{-N}$)は泥に吸着態として存在していることが推測されたことから, 波浪などによる底泥の巻き上げが起これば, 海水中への $\text{NH}_4\text{-N}$ の供給が, 間隙水からだけでなく, 吸着態からも行われ, 海水中のDIN濃度が高くなることを期待できると考えられた。

文 献

- 1) 村上彰男 1969: 有明海ノリ漁場における窒素収支. 筑後川調査報告付属資料(3), 17-29.
- 2) 河辺克己 1969: 有明海の底土を中心とする窒素源. 筑後川調査報告付属資料(5), 2-31.
- 3) 飯盛喜代春 1985: 有明海海水及び底泥間隙水中の化学成分. 佐賀大学干潟実験施設研究紀要, 241-260.
- 4) K. Kamiyama, S. Okuda and A. Kawai 1977: Studies on the release of ammonium nitrogen from the bottom sediments in freshwater regions II. Ammonium nitrogen in dissolved and adsorbed from in the sediments. *Japan. J. Limnol.*, 38(3), 100-106.
- 5) 古賀秀昭 1991: 有明海北西海域の底質及び底生生物. 佐有水試研報, 13, 57-79.
- 6) 才野敏郎 1985: 河口・沿岸海域における栄養塩類の動態. 沿岸海洋研究ノート, 23(1), 88-103.
- 7) 河合 章 1981: 水域底泥からのアンモニア態窒素などの溶出. 沿岸海洋研究ノート, 18(2), 106-111.
- 8) 奥田泰造 1953: 内湾底土中の可溶性栄養塩について 第1報 底土に含まれている可溶性栄養塩についての一考察. 東北水研報, 2, 109-117.
- 9) 奥田泰造 1953: 内湾底土中の可溶性栄養塩について 第3報 底土に含まれている可溶性栄養塩の海水中への溶出に関する二, 三の考察. 東北水研報, 4, 215-242.
- 10) 山田 久 1983: 堆積有機物の分解・無機化と栄養塩溶出について. 内湾底泥をめぐる物質収支の動態解明に関する研究. 5年間の研究成果, 218-253.