大和川河口干潟における有機物と栄養塩濃度の変動特性 に関する現地調査

Field Surveys on the Characteristic of Changes in Concentrations of Organic Substance and Nutrient Salt at the Tidal Area of the Mouth of the Yamato River

白居 諒¹・坪井 研²・矢持 進³

Ryo USUI, Kiwamu TSUBOI and Susumu YAMOCHI

Changes in concentrations of organic substances of the sediment and nutrient salts in the pore water of the riverbed were examined at a tidal area of the mouth of the eutrophic Yamato River in 2009-2010. TOC and TN contents of the sediment, together with $\text{NH}_4\text{-N}$ and $\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N}$ concentrations in the pore water drastically changed depending on time, month and station. Production rate of $\text{NH}_4\text{-N}$ in the pore water of the Yamato River was ca.10-100 times higher than that of laboratory experiments. These results suggest the importance of tidal change and wave in evaluating dynamics of organic substances and nutrients at the tidal area of the mouth of a river.

1. はじめに

閉鎖性内湾における赤潮や貧酸素化といった富栄養化問題は、一時期に比べ栄養塩濃度などが改善した海域でもいまだ解決には至っていない。近年では、干潟や浅場が持つ水質浄化機能や生物生息機能が注目され、その効果が定量的に評価されつつある（矢持ら，2003）。また、河口域における有機物の堆積や分解、栄養塩の溶出といった現象は沿岸海域の富栄養化に大きな影響を与えると指摘されている。このような観点から、有機浮泥の循環や分解に関する研究（長戸ら，2007；中谷ら，2009）、河川感潮部や砂浜海岸における地下水循環の研究（駒井ら，2009；内山，2001）などが行われている。しかし、河口域の物質動態はその複雑さゆえに研究の歴史は浅い。また、河川流量や流入汚濁負荷量などは河川によって異なり、河川や海域ごとの地域性を考慮しなければならない。

大和川の河口域は富栄養大阪湾奥部に位置し、大阪湾に現存する数少ない干潟の一つを有する。大和川は水質汚濁の進んだ河川として知られるが、その感潮域での汚濁物質の動態に関する研究はほとんど行われていない。また、大和川は最下流域においても河床勾配が大きいため河口付近まで水深が浅く流速が大きい。そのため、河口干潟周辺の流況は潮汐による水位変化の影響を受け、短い周期で大きく変わると考えられる。そこで、流

況の変化の影響を受けやすいと考えられる河床間隙水の栄養塩濃度に着目した。本研究では、大和川の河口干潟を対象として、河床堆積物の有機物濃度、間隙水の栄養塩濃度の現況を明らかにすることを目的とし、その季節変化、地点による変化などの特性について考察する。また、現地で測定することが困難な堆積物中の栄養塩の生成速度について室内実験により推定し、現地調査における間隙水の栄養塩濃度の変化速度と比較した。

2. 河床堆積物の有機物濃度と間隙水の栄養塩濃度

(1) 調査地点および調査日の概要

河口域の底質・間隙水栄養塩濃度の把握を目的として、大和川感潮域の干潟周辺において2009年9月から2010年9月に毎月1回定期調査を行った（図-1；St.1, St.5）。また、季節毎に地点を増やし定期調査同様の調査を行った（図-1；St.2-St.4）。さらに、2010年10月、11月の干潮時に、St.1において間隙水の栄養塩濃度を約2時間おきに調査した。調査地点の選定にあたり、事前の踏

図-1 調査地点と調査期間における各地点の地盤高

1	修(工)	大阪市立大学大学院工学研究科都市系専攻
2		大阪市立大学大学院工学研究科都市系専攻
3	正会員 農博	大阪市立大学教授 大学院工学研究科都市系専攻

査でSt.1からSt.5にかけて底質が砂泥質から砂礫質に変化していたこと、St.1からSt.3周辺が干出しやすいことを考慮した。また、St.5における水位変化が大阪湾の潮位変化とほぼ等しいことが確認されたため、調査時の大阪湾の潮位と各調査地点の水位から、およそ地盤高を算定した。

調査時の大阪湾の潮位、潮相、調査日前1週間の堺市の降水量を表-1に示す。大和川は、流域における降雨によって河川流量が大きく増加し、感潮域の流況も変化する。調査期間中で最大の日降水量を示した2009年10月9日の降雨後、約1週間で平水時の状態に戻ったため、ここでは調査日前1週間の降水量を示した。

(2) 調査項目および分析方法

堆積物は、コアサンプラーを用いて表面から約15cmを柱状採取し、その0-2cm、2-5cm、5-10cmの3層を分析試料とした。試料は冷蔵保存して持ち帰り、TOC・TN、粒度組成を測定した。TOC・TNの測定にはCHNコーダー（ヤナコ分析工業製、MT-6型）を用いた。間隙水のサンプリングは、採水装置を堆積物表面から20cm（以後20cmとする）まで差し込み、シリンジで吸引し採水した。2010年11月以降は、10cmでも採水を行った。試水は冷蔵保存して持ち帰り、ただちにガラス繊維ろ紙（ワットマンGF/F）を用いてろ過し、栄養塩濃度の分析に供した。分析項目は $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{+NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{PO}_4\text{-P}$ とした。 $\text{NH}_4\text{-N}$ はインドフェノール吸光光度法、 $\text{NO}_3\text{+NO}_2\text{-N}$ はナフチルエチレンジアミン吸光光度法、 $\text{PO}_4\text{-P}$ はモリブデン青吸光光度法により、オートアナライザー（ビーエルテック社製、SwAAn5.0型）を用いて分析した。

表-1 調査日の概要

調査年月日		大阪湾潮位 (O.P.上, cm)	潮相	降水量(mm)
2009年	9月7日	134－150	大潮	0.5
	10月14日	101－110	長潮	82.5
	11月10日	89－96	小潮	0.0
	12月8日	92－143	中潮(小潮前)	7.5
2010年	2月18日	89－89	中潮(大潮後)	28.0
	3月20日	83－98	中潮(大潮後)	29.5
	4月27日	98－103	中潮(若潮後)	43.5
	5月28日	53－66	大潮	67.0
	6月25日	63－78	中潮(若潮後)	75.5
	7月26日	88－91	大潮	0.0
	8月10日	55－67	大潮	19.0
	9月7日	101－114	中潮(大潮前)	0.0
	10月27日	64－140	中潮(大潮後)	33.5
	11月12日	106－157	中潮(小潮前)	0.0

(3) 結果および考察

a) 堆積物の粒度組成と有機物濃度

図-2にSt.1とSt.5における中央粒径の変化を示す。St.1の中央粒径は、調査期間を通してほぼ変化しなかったのに対し、St.5は大きく変化した。2009年9月は、全てのサンプリング層で粗砂が主であったが、2010年9月には砂泥質となり、中央粒径は0.15~0.16mmを示した。堆積物表層の0-2cm層ほど早期に細粒化し、深度が深くなるにつれて細粒化が遅れている傾向が見られた。St.5では、調査期間を通して地盤高が高くなった。堆積物表層ほど粒度が小さいことから、調査期間を通して細粒分が堆積傾向であったと推察された。

図-3(a)に全ての調査日における各地点のTOCと泥分の関係を示す。有機物の起源が泥分に由来する場合、有機物濃度と泥分は正の相関関係を持つことが知られている。本調査では、St.3からSt.5においてTOCと泥分の間に関連関係が見られたことから、これらの地点では泥分の堆積によって河床表層の有機物濃度が増加したと考えられる。

図-3(b)に全ての調査日における各地点のTOCとTNの関係を示す。直線は、植物プランクトンの組成比とされるレッドフィールド比(C:N=106:16, C/N=6.6, モル比)を表す。また、破線でC/N=10.0を表す。このC/N比は、永尾ら(2005)が易分解性を除く難分解性・非分解性の有機物がすべて存在していると仮定したものである。地点別にC/N比を見てみると、St.2ではレッドフィールド比と同等かそれより小さい値をとっていたが、他の地点ではほぼレッドフィールド比より高い値をとった。特にSt.3では、C/N=10.0以上の値を多くとっており、他の地点より分解が進んだ有機物が堆積していたことが示唆された。St.5では、St.3と同等かやや低くなった。また、全体的にTOC・TN濃度が大きくなるほどC/N比も大きくなる傾向が見られた。感潮域における有機物の供給源は主に河川であり、未分解の有機物が多く含まれるためそのC/N比は堆積物中よりも低いと考えられる。つまり、新鮮な有機物の供給が多い地点ほど、C/N比は低

図-2 St.1およびSt.5における中央粒径の経月変化

図-3 全ての調査日における各地点のTOCと泥分またはTNの関係 (a) TOCと泥分, (b) TOCとTN

くなくなると考えられる。地点の特徴を見てみると、St.5は調査点の中で最も上流に位置し、河川の影響を強く受け、St.1やSt.2は、海側に位置し地盤高が高いため、上げ潮や波による巻上げの影響が大きいと考えられる。St.3は、St.1やSt.2と同様に攪乱が大きい、河岸に近いことから巻上げと堆積を繰り返す過程で分解が進み、C/N比が高くなったと考えられる。本調査域における有機物濃度を変化させる要因として、潮汐や波による流れ、河川中下流からの供給が錯綜すると推察された。

b) 河床間隙水の栄養塩濃度

図-4にSt.1とSt.5の-10cm, -20cmにおける間隙水の $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度の変化を示す。St.1, St.5ともに調査期間を通して値が大きく変化した。 $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ はSt.1の-10cmにおいて2010年2~4月に高かった。逆に、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は同時期にSt.1の-10cm, -20cmともに低い値を示した。これは、水温が低く $\text{NO}_3\text{-N}$ や $\text{NO}_2\text{-N}$ の還元反応が進まなかったことが大きく影響していると考えられる。また、干潮時に継続的に採水した2010年10月および11月においては、わずか数時間で調査期間全体を通しての濃度変化と同程度の変化が見られた。

次に、St.1とSt.5の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度それぞれの-10cmと-20cmの関係を図-5に示す。ここでのプロットは約1年を通じた調査のデータであり、線形近似の相関が高いということは、季節を問わず-10cmと-20cmの間隙水における栄養塩の濃度比が同じであったことを意味する。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は、St.1で $r = 0.75$ とやや相関関係が見られ、St.5で $r = 0.96$ と高い相関関係が見られた。 $\text{PO}_4\text{-P}$ は、St.1で $r = 0.54$ と相関が弱く、St.5で $r = 0.80$ とやや相関関係が見られた。どちらの項目でも、St.1よりSt.5の方が高い相関関係が見られた。

間隙水中の栄養塩の輸送過程は、移流拡散現象として扱われる。移流に比べ拡散のメカニズムによる栄養塩の輸送量が多い場合、栄養塩の生成や消失によりある深度の栄養塩濃度が変わると、周囲の栄養塩濃度はその濃度勾配によって変化し、一定の関係が保たれる。しか

図-4 St.1とSt.5における間隙水の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ 濃度 (a) St.1の-10cm, (b) St.5の-10cm, (c) St.1の-20cm, (d) St.5の-20cm

※図中のN.D.は未調査、バーは $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の最大と最小を表す

図-5 St.1とSt.5の $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度における-10cmと-20cmの関係 (a) $\text{NH}_4\text{-N}$, (b) $\text{PO}_4\text{-P}$

し、移流による栄養塩の輸送量が拡散に比べて大きい場合、その関係にズレが生じることになる。つまり、-10cmと-20cmの間隙水の栄養塩濃度に相関が見られない場合、どちらかの層あるいはその両方の層において、拡散のメカニズムによる栄養塩の輸送量より移流による輸送量が卓越していた可能性を示唆する。よって相関の弱いSt.1では、拡散による濃度変化以上に移流の影響が強く働い

ていたと推察された。逆に、高い相関関係が見られた St.5 では、拡散に比べ移流による栄養塩の輸送量は小さかったと推察された。堆積物の有機物量の変化からも、St.5 より St.1 の方が砂の巻き上げなどの攪乱が大きいと考えられたが、間隙水の栄養塩濃度の変化からも同様のことが推察された。

3. 有機物の分解による栄養塩の生成速度

(1) 実験方法および条件と分析項目

現地 (St.1, 堆積物表層の 0-5cm) で採取した砂泥質の堆積物を実験室に持ち帰り、コアサンプラー管 (内径 12cm, 長さ 35cm) に移し入れ希釈海水で満たした水槽内 (250l) に静置した後、一定時間ごとにサンプリングを行い、実験砂泥間隙水の栄養塩濃度の時系列変化を測定した。実験水槽の概要を図-6 に示す。実験は水温 20℃, 塩分 20psu, DO 濃度 99% 以上, 暗条件で行った。水槽内の水は、連続的に曝気し循環させることで高 DO 濃度を維持した。実験は、2010 年 11 月 15-29 日の 14 日間で行い、サンプル回収日は実験開始から 0, 1, 3, 5, 7, 10, 14 日後とした。コアサンプラー管は、水槽から取り出し直上水をシリンジで静かに抜き取った後、間隙水採水装置を実験砂表層から 5cm, 12.5cm, 20cm の 3 層に順番に差し込み、それぞれの層で 15-20ml の間隙水を採水した。分析方法は 2.(1) に準じた。試水は、ろ過後に冷凍保存した後日まとめて分析した。全ての栄養塩濃度の分析は、実験 0 日目のサンプリングから 20 日以内に行った。

(2) 間隙水における栄養塩の生成速度の推定方法

コアサンプラー管の間隙水における有機物の分解による $\text{NH}_4\text{-N}$ のおおよその生成速度を求めるため、間隙中での現象を以下のように整理する。 $\text{NH}_4\text{-N}$ は間隙水中および水槽水へ拡散のメカニズムによってのみ輸送されると仮定し、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の酸化反応や $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$ の還元反応は無視する。また、酸化層はないものとして扱う。さらに、-5cm, -12.5cm, -20cm で測定した $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度がそれぞれの層で均一だったとする。フラックスは上向きを正とする。以上の条件で図-7 のような $\text{NH}_4\text{-N}$ 収支を考えると、式 (1) ~ (6) が成り立つ。ここで、添字 0, 1, 2, 3 はそれぞれ直上水, -5cm が代表する層, -12.5cm が代表する層, -20cm が代表する層を表す。 θ : 体積含水率であり、実験砂泥では一様と考え本実験では $\theta = 0.4$ 程度である。

間隙中の拡散係数 K_{12} , K_{23} は、ほぼ均一な実験砂泥では一定だと考えられ表面の拡散係数を用いて以下の式が提案されている。

$$K_{12} = K_{23} = K_{01} \cdot a\theta^3 \quad \dots\dots\dots (7)$$

a は定数であり、本研究では 2.8 とする。以上より、表

図-6 実験水槽の概要

水槽水 濃度: C_0

図-7 $\text{NH}_4\text{-N}$ 収支の概要

面の拡散係数 K_{0i} を与えると、各サンプリング層間の濃度勾配から式 (4) ~ (6) よりフラックスが求まり、濃度変化から式 (1) ~ (3) より $\text{NH}_4\text{-N}$ 生成速度が求められる。本研究では、千葉 (2004) を参考に

$$K_{01} = (9.76 + 0.368T) \times 10^{-6} \quad (\text{cm}^2/\text{sec}) \quad \dots\dots\dots (8)$$

とした。 T は温度で本実験では $T=20$ (℃) である。

(3) 結果および考察

a) $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化と $\text{NH}_4\text{-N}$ 生成速度の推定

表-2 にコアサンプラー管の間隙水の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の時系列変化、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化速度、推定された $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度を示す。 $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ は、各サンプリング層の間隙水において 0 日後は 2.19-2.72mgN/l の値を示したが、1 日後にはほとんど検出されなかった。この間に $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ の還元反応による $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成が進み、間隙水中の $\text{NO}_3+\text{NO}_2\text{-N}$ は全て反応したと考えられる。よって有機物の分解による $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度を推定する際は、実験開

始1日以降のデータを用いた。サンプリング層別に $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化を見ると、-5cmでは7日目までに10.4mgN/lと大きく増加し、その後14日目までに13.2mgN/lと緩やかに増加した。-12.5cm、-20cmの栄養塩濃度は、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{+NO}_2\text{-N}$ ともに-5cmとほぼ同様の増減傾向を示した。また、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は5日以降-20cm、-12.5cm、-5cmの順に高くなり、実験砂泥表層から深くなるほど高濃度になった。-12.5cmや-20cmにおいて、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度は $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化速度と同じ値となり、与えた条件では間隙水中において拡散により輸送される $\text{NH}_4\text{-N}$ が微量であることがわかった。

b) 現地の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化速度

2010年10月および11月のSt.1における $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の時系列変化、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の変化速度を表-3に示す。約2時間という短い期間に、値は大きく変化した。特に10月は変化が大きく、-10cmで1.10-11.94mgN/l、-20cmで4.26-16.72mgN/lの値を示した。11月はそれに比べ緩やかに変化し、-10cmで0.69-1.93mgN/l、-20cmで1.31-9.79mgN/lの値を示した。現地における1サンプルのみの測定なので、値にばらつきや分析誤差などが含まれると考えられるが、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度から変化速度を求めると、10月の-10cmでは-1.09-4.37mgN/l/h、-20cmでは-8.37-5.89mgN/l/h、11月の-10cmでは-1.09-4.37mgN/l/h、-20cmでは-8.37-5.89mgN/l/hだった。これは、実験における生成速度と比べると10-100

倍近く大きかった。現地では、有機物の無機化や拡散現象が栄養塩濃度の変化を支配している実験系とは異なり、潮位変化に伴う間隙水の移動、上げ潮や波による堆積物の巻上げといった要因により、栄養塩濃度が大きく変化しているものと推察される。河口干潟において堆積物からの栄養塩の溶出を正しく評価するには、季節変化だけでなく干満や潮相も考慮する必要があると言える。

4. まとめ

大和川感潮域における堆積物の有機物濃度および間隙水の栄養塩濃度の測定を行った。海側のSt.1において、調査期間を通して堆積物表層の有機物、栄養塩濃度ともに河川側のSt.5より変化が小さかった。St.5において泥分の堆積による有機物濃度の増加が見られたことから、St.1の方がSt.5より攪乱作用が大きく、有機物濃度は安定して低い値を示したと考えられた。

室内実験より、大和川河口干潟の河床堆積物の有機物の分解による $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度を推定した。求められた値に比べ、現地で測定された変化速度は10-100倍大きく、実際の河口干潟においては、潮汐や波など河口干潟特有の物理的な要因が間隙水の栄養塩濃度を大きく支配していると考えられた。河口干潟において堆積物からの栄養塩の溶出量などを考える際には、潮汐といった短い期間の変化まで考慮する必要があると言える。

表-2 コアサンプラー管の間隙水における $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度、変化速度ならびに生成速度推定値

		1日後	3日後	5日後	7日後	10日後	14日後
	濃度 (mgN/l)	3.38	7.50	8.55	10.44	10.65	13.24
-5cm	変化速度 (mgN/l/h)	0.08	0.02	0.04	0.00	0.03	
	生成速度 (mgN/l/h)	0.09	0.03	0.05	0.02	0.04	
	濃度 (mgN/l)	3.89	7.29	10.09	12.82	14.15	16.32
-12.5cm	変化速度 (mgN/l/h)	0.07	0.06	0.06	0.02	0.02	
	生成速度 (mgN/l/h)	0.07	0.06	0.06	0.02	0.02	
	濃度 (mgN/l)	4.03	7.43	10.79	13.38	15.06	17.58
-20cm	変化速度 (mgN/l/h)	0.07	0.07	0.05	0.02	0.03	
	生成速度 (mgN/l/h)	0.07	0.07	0.05	0.02	0.03	

表-3 2010年10月および11月のSt.1における $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度、変化速度

		0時	2時	4時	6時	8時	10時	
10月	-10cm	濃度 (mgN/l)	6.93	2.70	11.94	3.26	1.10	N.D.
	-10cm	変化速度 (mgN/l/h)	-2.99	4.37	-4.27	-1.09	N.D.	
	-20cm	濃度 (mgN/l)	16.11	4.26	16.72	6.97	5.52	N.D.
	-20cm	変化速度 (mgN/l/h)	-8.37	5.89	-4.80	-0.73	N.D.	
11月	-10cm	濃度 (mgN/l)	0.69	0.89	0.79	1.03	1.93	1.18
	-10cm	変化速度 (mgN/l/h)	0.12	-0.05	0.13	0.41	-0.50	
	-20cm	濃度 (mgN/l)	1.31	1.35	3.52	4.68	9.79	2.75
	-20cm	変化速度 (mgN/l/h)	0.02	1.15	0.64	2.34	-4.75	

参 考 文 献

- 内山雄介 (2001)：砂浜海岸帯水層における潮位変動に伴う循環流の形成機構，土木学会論文集，No.670/II-54，pp.37-48。
- 駒井克昭・中下慎也・トウナロン・日比野忠史 (2009)：河川感潮域における河床間隙水と広域地下水の循環機構に関する研究，土木工学論文集B2 (海岸工学)，Vol.65，No.1，pp.1156-1160。
- 千葉 賢 (2004)：海底堆積物内の物質循環モデルに関する基礎的研究，四日市大学環境情報論集，8 (1)，pp.29。
- 永尾謙太郎・日比野忠史・松本英雄 (2005)：広島湾における有機物の変動解析と栄養塩生成形態の把握，海岸工学論文集，第52巻，pp.916-920。
- 長戸宏樹・越智達郎・日比野忠史・福岡捷二 (2007)：太田川河口域における有機泥の循環に関する基礎的研究，水工学論文集，第63巻，pp.1195-1200。
- 中谷佑介・西田修三・森川知波 (2009)：大阪湾における有機懸濁態物質の沈降分解過程に伴う栄養塩の鉛直輸送，土木工学論文集B2 (海岸工学)，Vol. 65，No.1，pp.996-1000。
- 矢持 進・平井 研・藤原俊介 (2003)：富栄養浅海域における生態系の創出—人工干潟現地実験場での生物と窒素収支の変遷—，海岸工学論文集，第50巻，pp.1246-1250。