

# 2010 年度 修 士 論 文

東京湾における底質微生物群集が底泥酸素消費に与える影響  
The Impact of Microbial Community Structure on  
Sediment Oxygen Consumption in Tokyo Bay

遠藤 雅実  
Endo, Masanori

東京大学大学院新領域創成科学研究科  
社会文化環境学専攻

# 目次

1. 序論 .....	3
1.1 背景・目的 .....	3
1.2 本研究の概要 .....	4
1.3 酸素消費に関する既往研究 .....	5
2. 現地観測 .....	6
2.1 観測概要 .....	6
2.2 観測手法 .....	9
2.2.1 東京湾内における観測 .....	9
2.2.2 河川河口部 (船橋) における観測 .....	11
2.3 観測結果 .....	12
2.3.1 湾内の観測結果 .....	12
2.3.2 河川河口部 (船橋) の観測結果 .....	20
3. 実験・分析手法 .....	22
3.1 実験手法 .....	22
3.1.1 底泥酸素消費実験 .....	22
3.1.2 栄養塩溶出実験 .....	23
3.2. 分析手法 .....	24
3.2.1 キノンプロファイル法 .....	24
3.2.2 CN 比 .....	26
3.2.3 粒度分析 .....	26
3.2.4 栄養塩 .....	26
3.2.5 硫化物 .....	26
4. 実験・分析結果 .....	27
4.1 実験結果 .....	27
4.1.1 底泥酸素消費機構 .....	27
4.1.2 底泥酸素消費の算出方法 .....	28
4.1.3 底泥酸素消費速度定数 .....	30
4.1.4 栄養塩溶出実験結果 .....	40
4.2 分析結果 .....	42
4.2.1 キノン含有量 .....	42
4.2.2 CN 比 .....	51
4.2.3 粒度分布 .....	54
4.2.4 栄養塩 .....	56
4.2.5 硫化物 .....	67
5. 観測結果の解析 .....	70
5.1 各水質項目の統計処理 .....	70
5.1.1 外れ値の検定 .....	70
5.1.2 主成分分析 .....	72

5.1.3 クラスター分析.....	75
<b>5.2 各水質項目の相関 .....</b>	<b>78</b>
5.2.1 底泥酸素消費速度定数と各水質項目の相関.....	78
5.2.2 底泥酸素消費速度定数と各 UQ の相関.....	83
<b>6. まとめ .....</b>	<b>85</b>
6.1 研究結果のまとめ .....	85
6.2 底泥酸素消費に底質微生物群集との関係 .....	85
<b>参考文献 .....</b>	<b>86</b>
<b>謝辞 .....</b>	<b>88</b>

# 1 序論

## 1.1 背景・目的

東京湾をはじめとする内湾では，長年にわたって富栄養化が問題となっている．これまでも水質汚濁防止法に基づいた水質総量規制により海域への流入負荷削減がなされ，個々の河川においても，水質浄化に関する施設整備やその他様々な取り組みが行われている．これら負荷削減努力により，流入負荷については一定の改善傾向にあるとされているが（二瓶ら，2007），内湾の水質の根本的な改善には至っていない現状にある．これには，過去に堆積した陸域由来の有機汚濁物質や，沈降・堆積した植物プランクトン等のデトライタスが，海底に蓄積・濃縮され，底質微生物群集によって分解・無機化される過程で溶出し，再び湾内の物質循環に回帰していることが一因として挙げられる．また底質微生物群集による分解や無機化が行われる際には，多くの場合は水中内の酸素が用いられて行われる．鉛直混合の弱い，夏季成層時に，底泥直上水中の酸素の消費により，貧酸素化が促進され，湾内の生態系にも様々な悪影響を与えている．内湾の富栄養化に関するこのような一連のプロセスに，底生微生物群集が深く係わっていることは，これまでも報告されているが（藤田ら，2003），その量や構造が底泥の酸素消費に及ぼす影響について十分な知見が得られていない．そこで本研究では，東京湾における底質微生物群集の量や構造が底泥酸素消費との関係を明らかにすることを目的とした．

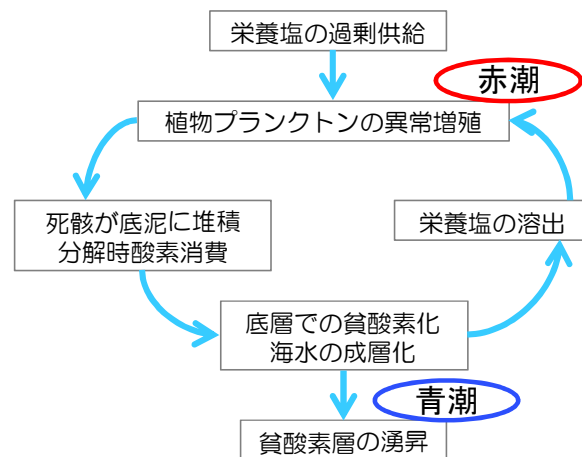


図-1.1 東京湾の現況

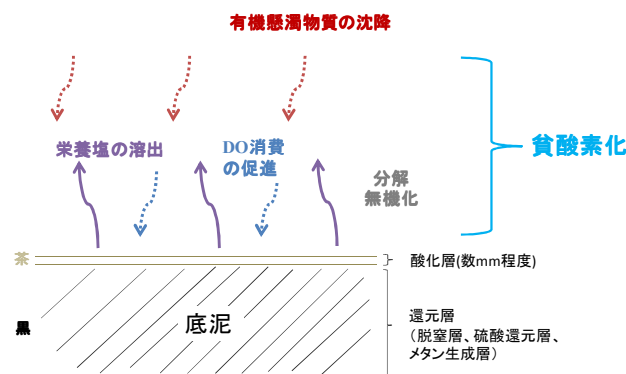


図-1.2 底泥環境の機構

## 1.2 本研究の概要

東京湾における底質微生物群集の量や構造が底泥酸素消費に与える影響を明らかにするため、底泥の微生物群集の分析と底泥の酸素消費実験を軸とする室内実験を実施した。同時に水温、溶存酸素、栄養塩をはじめとする水質と底質の有機物の観測を実施し、酸素消費に関する種々の影響因子や微生物の質や量と水環境の相互関係について考察を行った。

本研究概要のフローを以下に示す。

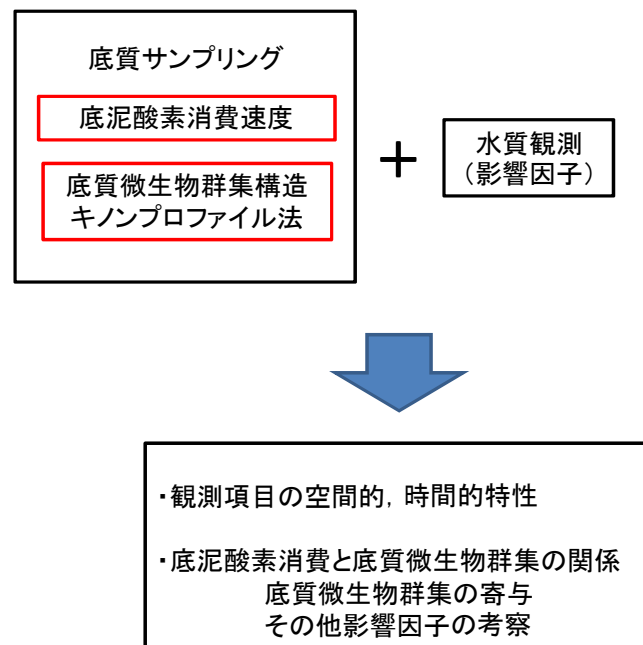


図-1.3 研究概要フロー

### 1.3 酸素消費に関する既往研究

酸素消費に関する研究はこれまでも全国の内湾（東京湾、大阪湾、広島湾、博多湾、有明海等）また海外の同様の問題を抱える内湾（例えばチェサピーク湾）で数多く取り組まれており、各海域の現地特性や酸素消費機構が報告されている。海水中で行われている酸素消費に関しては、各層内に生息する特徴の異なる微生物や化学的酸化機構による水中でのものと、底泥微生物群集が底泥直上水や間隙水を用いて行われるものに大別して扱われる。本研究は底泥直上における現象を対象とする。

さらに酸素消費量また酸素消費速度を求める際の測定手法としては、大きくは不攪乱柱状採泥による室内実験とペルジャー式の現地実験に分けられる。不攪乱柱状採泥による室内実験手法はかつてから用いられ、例えば Tina Miller-Way ら (1994) や 中村ら (1996)、最近でも装置の簡便性や適用範囲の広さから採用されやすく、例えば入江ら (2007) や 遠藤・重松 (2010) というように多くの報告がなされている。本研究においても実験の容易さ等の理由から室内実験による手法を採用した。実験手法の詳細に関しては、研究目的により多少の差異はあるものの、大枠としては変わらないため、後述することとする。

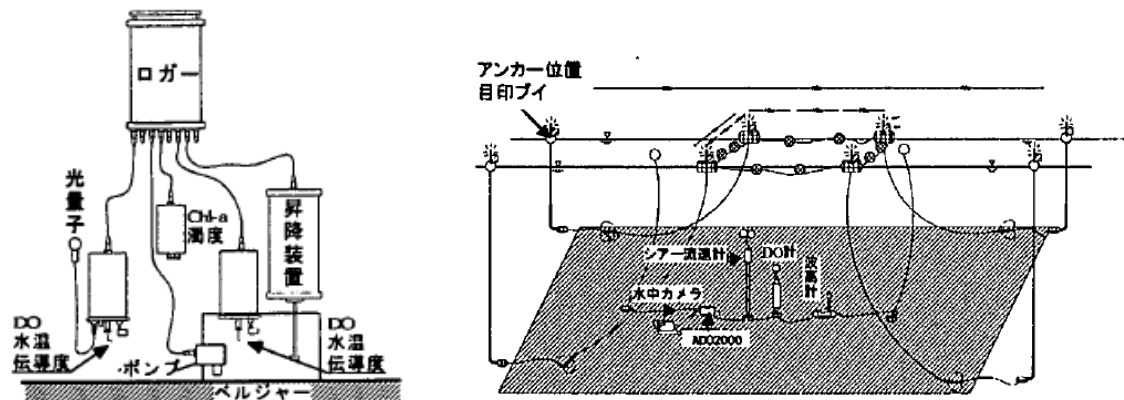


図-1.4 海底酸素消費量測定装置の概観（左）と計測機配置（右）（長尾ら，2000）

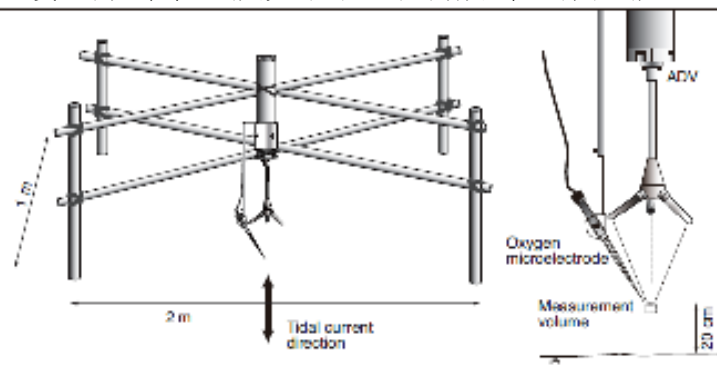


図-1.5 海底境界面における酸素消費フラックスの現場実測システム（渦相関法）（桑江ら，2008）

## 2 現地観測

### 2.1 観測地点の概要

本研究対象である東京湾のうち、図-2.1、表-2.1 に示すそれぞれ特徴の異なる地点を観測地点とした。これら各地点の選定理由また詳細を以下に記す。まず本研究における観測は、主として千葉県環境研究センターの水質環境研究室にて毎月実施されている赤潮・青潮調査に同行し、その規定ルートの観測地点内から選定して実施した。この観測では千葉県の観測船「きよすみ」に乗船した。

- (1) St.99：東京湾で頻繁に見られる青潮の発生に関わる貧酸素水塊が存在する、図-2.3 に示すような幕張沖の浚渫窪地。
- (2) St.8：図-2.4 に示す東京湾内循環流の傾向から、湾内で比較的河川の影響を受けにくいと考えられる湾央
- (3) St.98：荒川河口の延長上に位置し、河川の影響を受けやすいと考えられる羽田沖
- (4) St.97：他地点とは異なり、湾奥ではなく、より湾口寄りに位置する風の塔付近
- (5) St.E：船橋市海老川河口部

海老川河口部である St.E については千葉県水産総合研究センターによる試験場となっており、マイクロバブルを用いた水中への酸素供給試験が施行されている。そのため本研究の主目的に加え、マイクロバブルによる底泥への影響を考察するため、St.E 内でさらに複数地点の観測地点を設けた。観測地点は図-2.5 に示し、マイクロバブル放出口を 0m 地点とし、そこからの距離でそれぞれ 3m, 6m, 9m 地点の 3 地点と、影響がないほど離れた Blank 地点の計 4 地点を設定した。2010 年は 0m と Blank の 2 地点での観測を行った。St.E は 3m 地点に該当する。

観測日は表-2.2 に示す、2009 年と 2010 年の現地で貧酸素化が発生している時期において、月 1 回程度の頻度で行った。

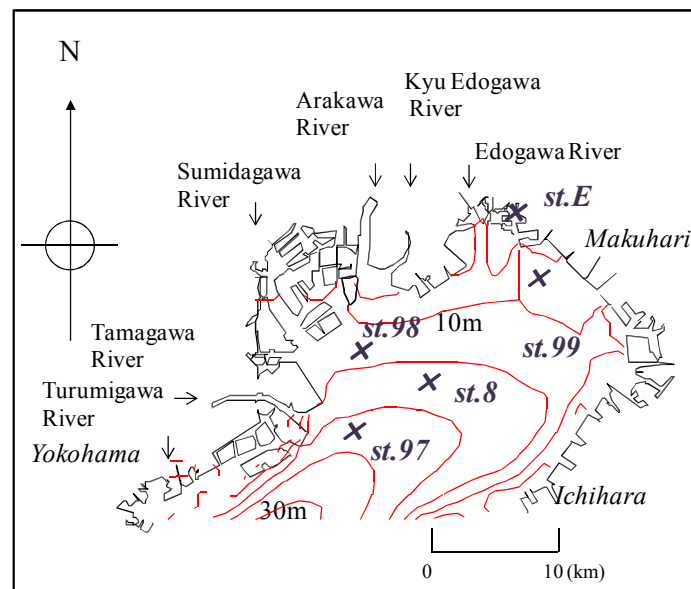


図-2.1 観測地点

表-2.1 観測地点データ

観測地点	緯度	経度
St.99	35° 37' 51"	140° 00' 27"
St.8	35° 36' 38"	139° 53' 49"
St.98	35° 33' 82"	139° 51' 40"
St.97	35° 29' 35"	139° 49' 14"
St.E	35° 41' 00"	139° 59' 11"

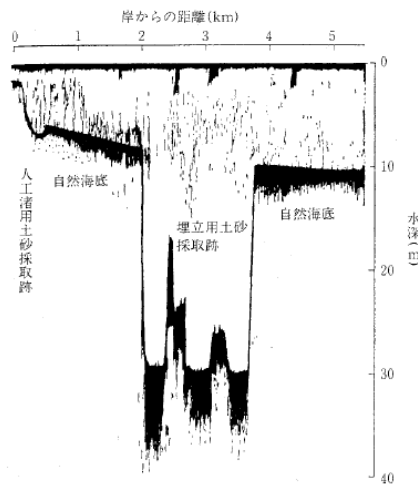


図-2.3 浚渫窪地の例

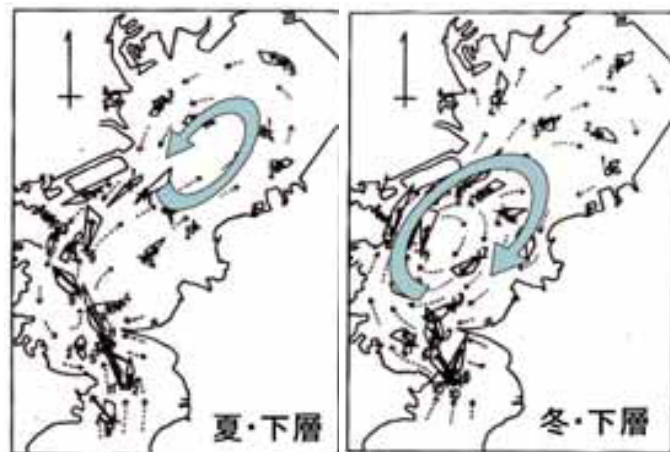


図-2.4 1980年代の循環流の観測結果の例  
(第2港湾建設局, 宇野木ら (1987))



図-2.5 海老川河口部における観測地点



表-2.2 観測日時

	2009年					2010年		
	7月23日	8月7日	9月10日	10月16日	11月9日	8月10日	9月1日	10月4日
St.99	○	○	○	○	○	○	○	○
St.8	○	○	○	○	○	○	○	○
St.98	○		○	○	○			
St.97						○		○

	2009年						2010年
	8月12日	8月20日	8月25日	9月3日	10月1日	10月29日	9月30日
St.E(3m)	○	○	○	○	○	○	
6m			○	○	○	○	
9m			○	○	○	○	
0m							○
Blank			○	○	○	○	○

○は観測実施を表す

## 2.2 観測手法

### 2.2.1 東京湾内における観測

東京湾内における観測に関しては、上述したように千葉県調査に同行して行った。写真-2.1の観測船「きよすみ」に備えられている、写真-2.2、写真-2.3に示す観測機器を用いて、栄養塩、硫化物の水質や底質微生物群集構造、C/N比、粒度分布の分析、底泥酸素消費実験のため、採水・採泥を行った。また同様に備えられている写真-2.4の多項目水質計を用いて、水温、塩分等の水質項目を測定した。

そのうち、底質微生物群集構造、C/N比、粒度分布を分析するためのサンプルに関しては、採泥機により採取した底質サンプルの表層5mm部分をサンプル瓶に採った。

酸素消費実験に用いる柱状コアサンプルに関しては、内径5.5cm、高さ25cmの亚克力製パイプを用いた。先程同様の底質サンプル上から亚克力製パイプを挿し、極力乱さないように、採泥厚が10cm程度となるように詰め、その後現地底層水を直上水として、乱さないように注入した。柱状コアサンプルの両端は、サンプルが漏れないように、シリコン製のふたで密閉した(写真-2.5)。底質の性状はSt.99では浮泥質で黒色を呈し、ほぼ還元層で構成され、観測時は常に硫化水素臭を確認した。St.8、St.98は泥質で黒または茶色で、St.97はより茶色を呈していた。湾奥では浮泥質を呈し、湾口へ行くほど砂泥質へと層の変化が見られた(写真-2.6)。各地点の粒度分布詳細は後述する粒度分析結果にて示す。含水率の高い浮泥を呈していたSt.99は、他地点に比べて乱れが生じやすく、後述する結果にて詳細を示すが、実験結果のばらつきが大きくなる要因に見られた。また幾度か現地にて、各地点底層の硫化物を測定したが、分析手法・結果については後述することとする。

これらそれぞれのサンプルは、氷冷して実験室に持ち帰り、それぞれ後述する実験・分析を行った。



写真-2.1 観測船外観

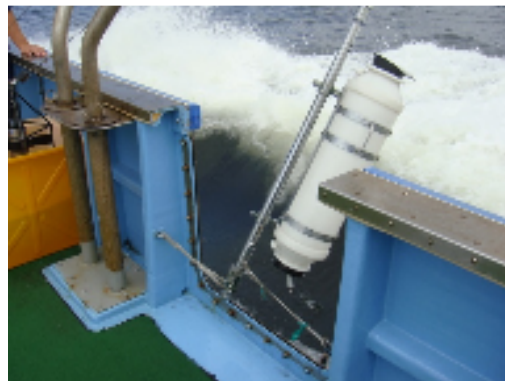


写真-2.2 バンドン採水機

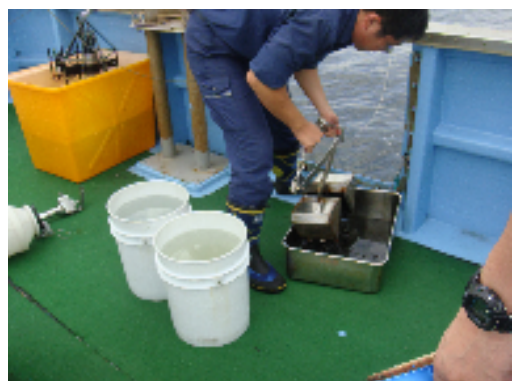


写真-2.3 採泥機



写真-2.4 多項目水質計

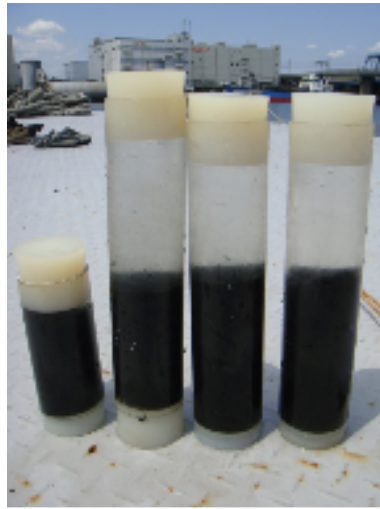


写真-2.5 コアサンプル例

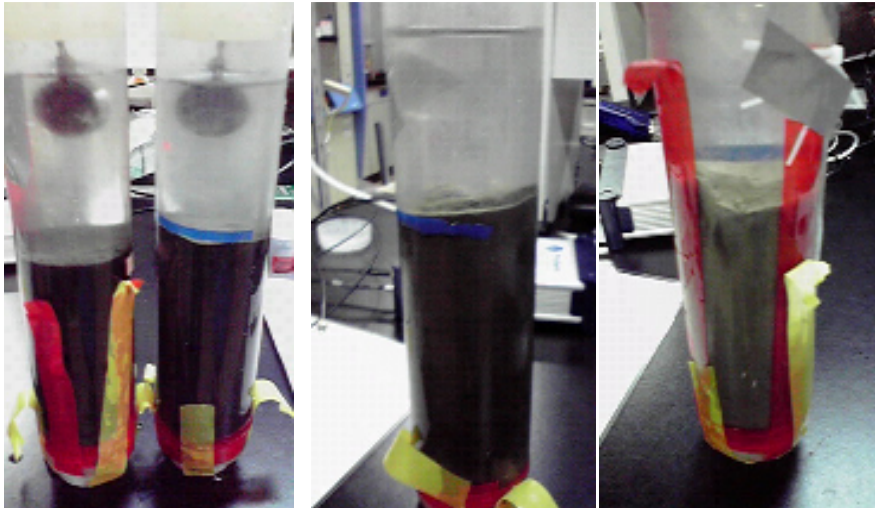


写真-2.6 泥質の違い (左 : St.99, 中 : st.8, 右 : St.97)

## 2.2.2 河川河口部（船橋）における観測

St.E である海老川河口部においても同様の調査目的から、採水・採泥を行った。こちらは船上調査とは異なり、写真-2.6 のようなダイバーによる潜水作業で柱状コアを底質に挿すことにより、直接柱状コアサンプルを作製した。

底質微生物群集構造等を目的とした採泥に関しては、底質が非常に高い含水率をもつ浮泥であるため、直接表層 5mm を採取することは難しく、実験用とは別の柱状コアサンプルを作製し、実験室で冷凍後、表層を採取した。湾内と同様に幾度か硫化物の測定を行った。観測時水深は 3, 4m 程度であった。

また詳細は後述するが、St.E は千葉県の実験場であることから、写真-2.7 の水中内マイクロバブル発生装置による試験が行われており、上記の分析結果を用いることで、その影響について考察した。

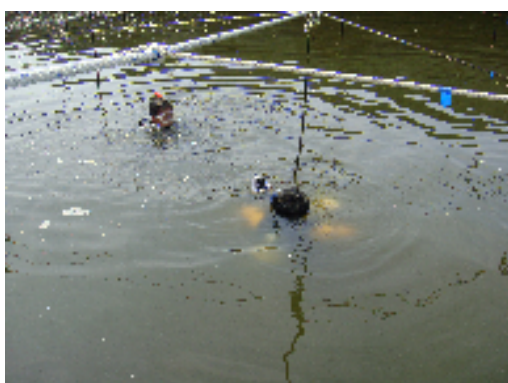


写真-2.6 ダイバーによるサンプリング

マイクロバブル装置概要	
型	ローヤル電機製MB-400
放出口DO (mg/l)	6.7
流量 (l/min)	125
消費電力 (W)	400
設置台数 (台)	2
稼働日	2009年8月20日

表-2.3 マイクロバブル発生装置概要



写真-2.7 マイクロバブル発生装置

## 2.3 観測結果

### 2.3.1 湾内の観測結果

湾内各観測地点の観測結果を以下に示す．また湾内各観測地点における結果には長期連続的な時系列変化を示すものは得られていない．そのため気象庁の気象データや千葉灯標の連続モニタリング結果を，現場を表す参考値として示す．

#### (1) 連続モニタリング結果 (2009 年)

図-2.6 に示した DO, 塩分, 水温の時系列より, 本研究対象期間である 7 月より成層が見られ, 対象期間の多くの底層 DO は貧酸素化, 無酸素化した．南風の連吹により, 海底では湾口方向へ補償流が生じ, 貧酸素水塊の南下が起きる．またその他に大潮や荒天等による海中の攪乱が生じることで, 底層水中にも定期的に酸素供給が行われていた．水温, 塩分差は 9 月初旬に小さくなり, 密度成層は弱化した．

気象に関しては, 秋口より卓越するとされる北風が, 例年に比べ頻繁に, 8 月より連吹していた (図-2.7) ．

千葉県のパラメータ水塊速報によると, 2009 年の青潮の発生は 4 月 18 日, 5 月 29 日より数日, 8 月 31 日～9 月 1 日に確認された．

#### (2) 連続モニタリング結果 (2010 年)

図-2.9 に示した DO, 塩分, 水温の時系列より, 2009 年と同様に 7 月より成層が見られ, 底層 DO は貧酸素化・無酸素化が続いていた．底層水混合による定期的な酸素供給も同様に見られたが, 2009 年に比べ供給量は少なく, 貧酸素, 無酸素となる長期間続いていた．2009 年の表層水温は 30℃を超えることがなかったのに対し, 2010 年は 30℃を超えることもあり, 平均して水温が高く, 密度成層が強かった．9 月下旬に表層, 底層間の水温差がなくなり, 2009 年に対して遅れて密度成層弱化が見られた．

気象に関しては, 夏季はほぼ南風が支配的で, 密度成層を強める要因となっていた．9 月 8 日頃より北風へと切り替わっていた (図-2.10) ．

千葉県のパラメータ水塊速報によると, 2010 年の青潮の発生は 9 月 9 日～10 日, 9 月 15 日～21 日, 9 月 24 日～数日に確認された．

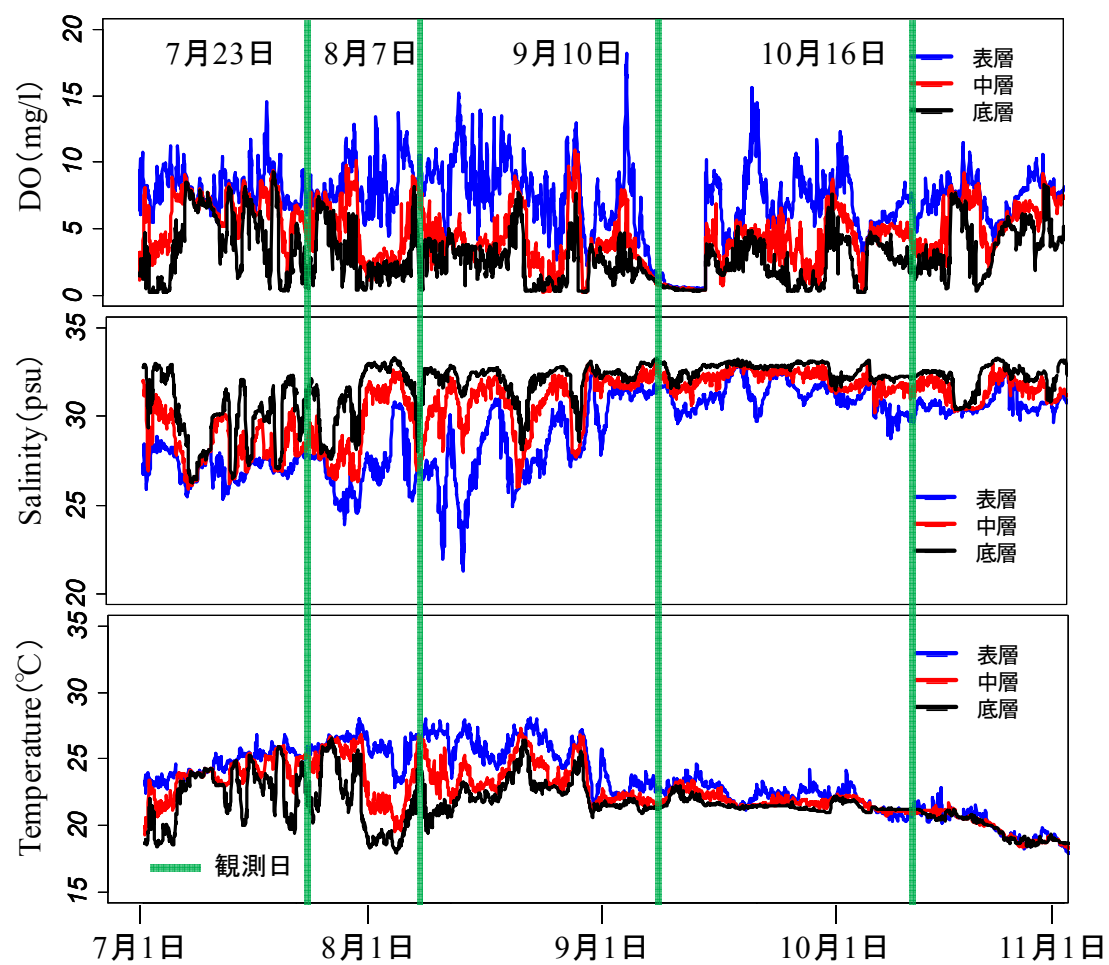


図-2.6 千葉灯標における DO, 塩分, 水温 (2009 年)

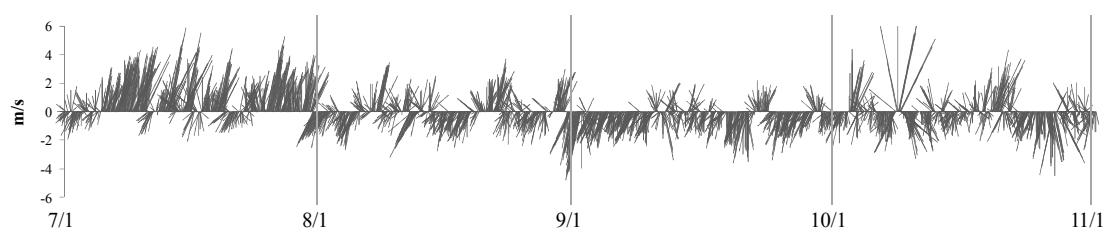


図-2.7 船橋气象台における風速ベクトル (2009 年)

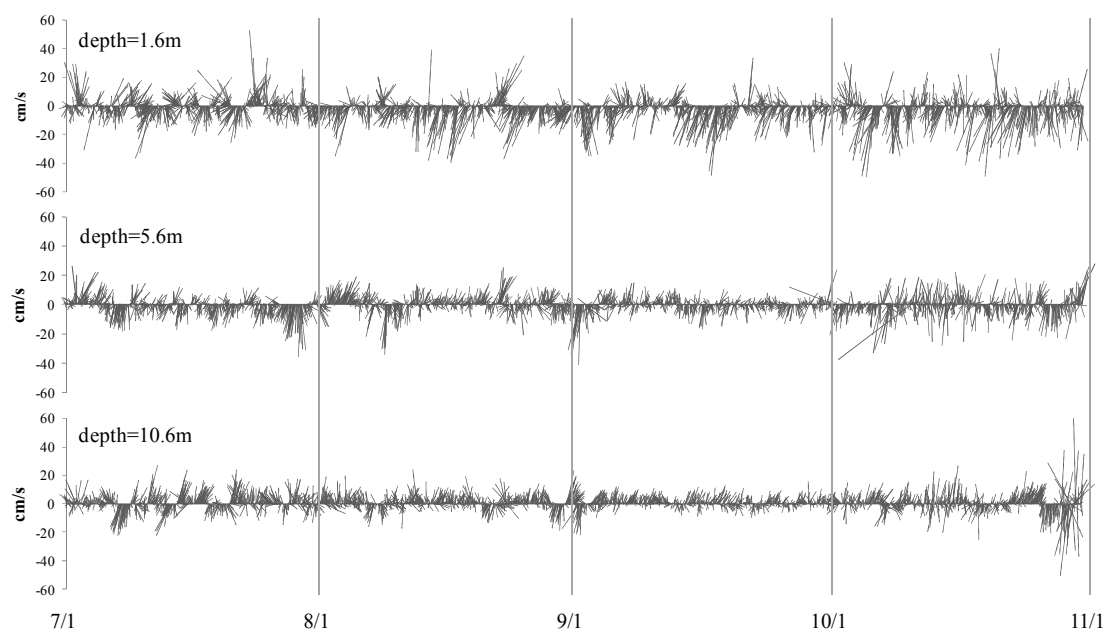


図-2.8 千葉灯標における流速ベクトル (2009 年)



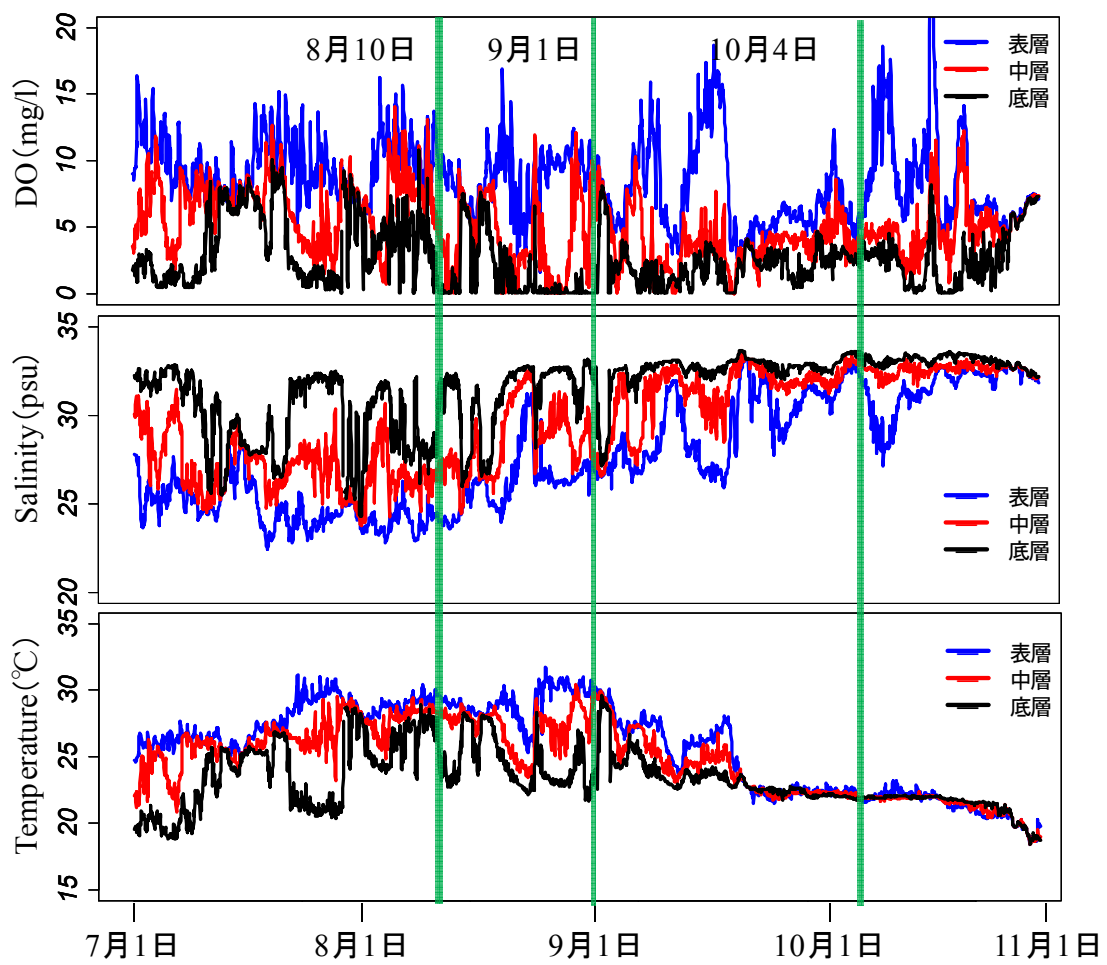


図-2.9 千葉灯標における DO, 塩分, 水温 (2010 年)

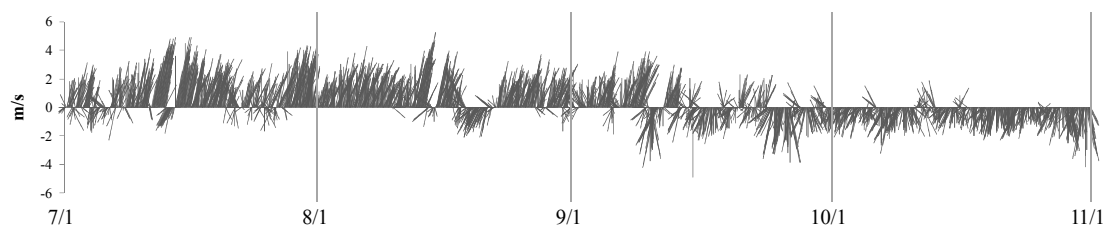


図-2.10 船橋气象台における風速ベクトル (2010 年)



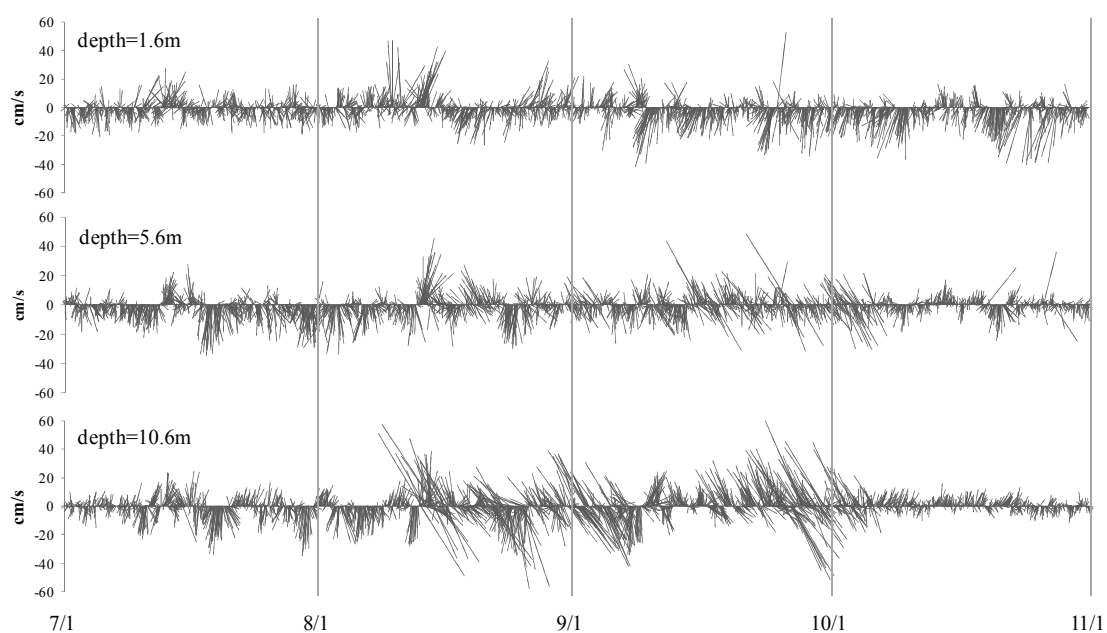


図-2.11 千葉灯標における流速ベクトル (2010 年)

表-2.4 千葉灯標における底層水質の平均値

average	2009			2010		
	7～9	9～11	7～11	7～9	9～11	7～11
DO	3.23	2.55	2.89	3.20	2.16	2.64
Salinity	32.49	31.07	31.77	32.71	30.14	31.52
Temperature	21.06	22.27	21.67	22.65	23.97	23.26

単位: mg/l, ppm, °C

※7月～9月平均DOは0.05の有意水準で、平均は異なると言えない

表-2.5 千葉灯標における表層底層間の水質の平均値差

average difference	2009			2010		
	7～9	9～11	7～11	7～9	9～11	7～11
Salinity	-3.73	-5.04	-2.62	-1.50	-2.70	-3.78
Temperature	3.23	0.69	1.96	3.55	1.30	2.57

単位: mg/l, ppm, °C

average difference =  $\sum (\text{surface-bottom}) / \text{data}$

### (3) きよすみ観測結果

2009 年観測時 DO 鉛直分布から、10 月中旬は貧酸素化解消期となっていた。また 2010 年に関しては、10 月初旬観測時は貧酸素化解消までは至っていないが、St.8、St.97 では DO 回復傾向にあり、より湾口に近い St.97 で回復が先に進行していた。2010 年の千葉灯標モニタリング結果より、2009 年と同様に 10 月中旬頃に貧酸素化が解消されていた。しかし St.99 の浚渫窪地内 (水深約 9~10m 以深) は鉛直混合が弱く、11 月も貧酸素化し続けていた。塩分、水温の鉛直分布から、2009 年の 9 月観測時に成層が弱まっているのに対し、2010 年同時期観測時はより強い成層を確認した。

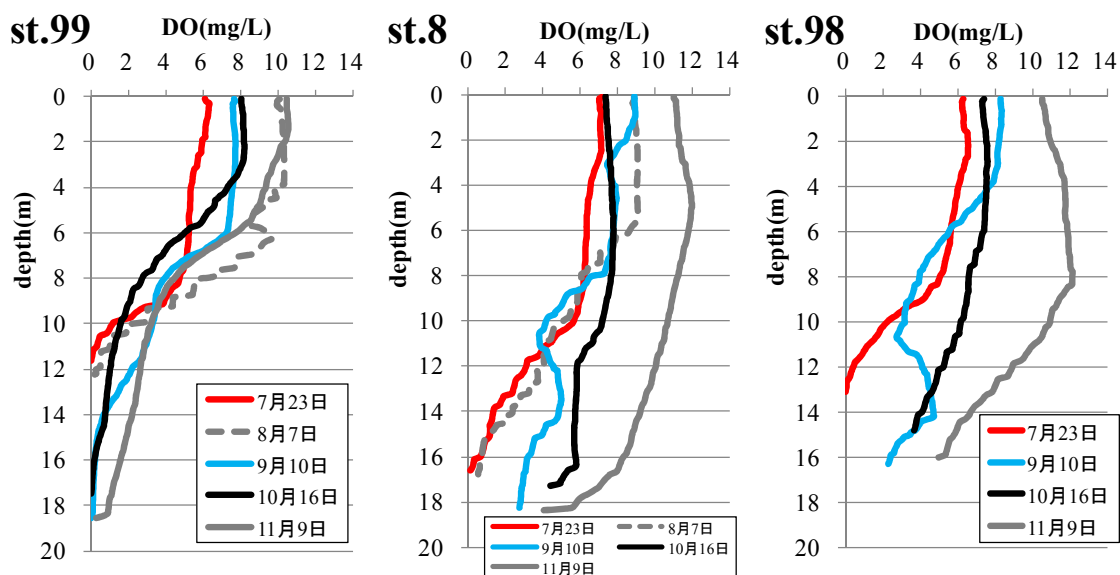


図-2.12 DO 鉛直分布 (2009 年)

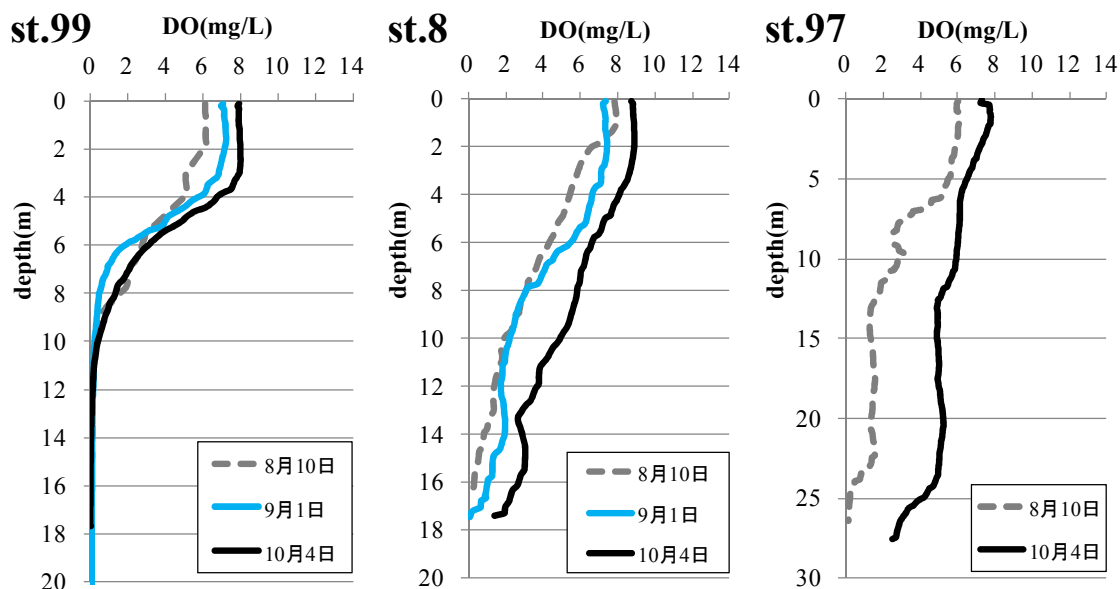


図-2.13 DO 鉛直分布 (2010 年)

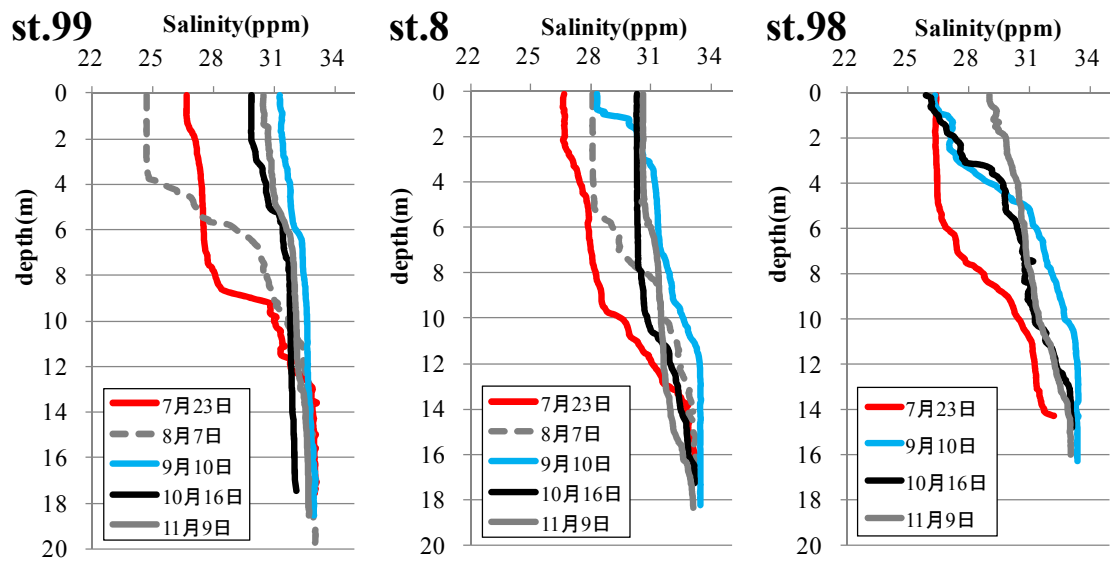


図-2.14 塩分鉛直分布 (2009 年)

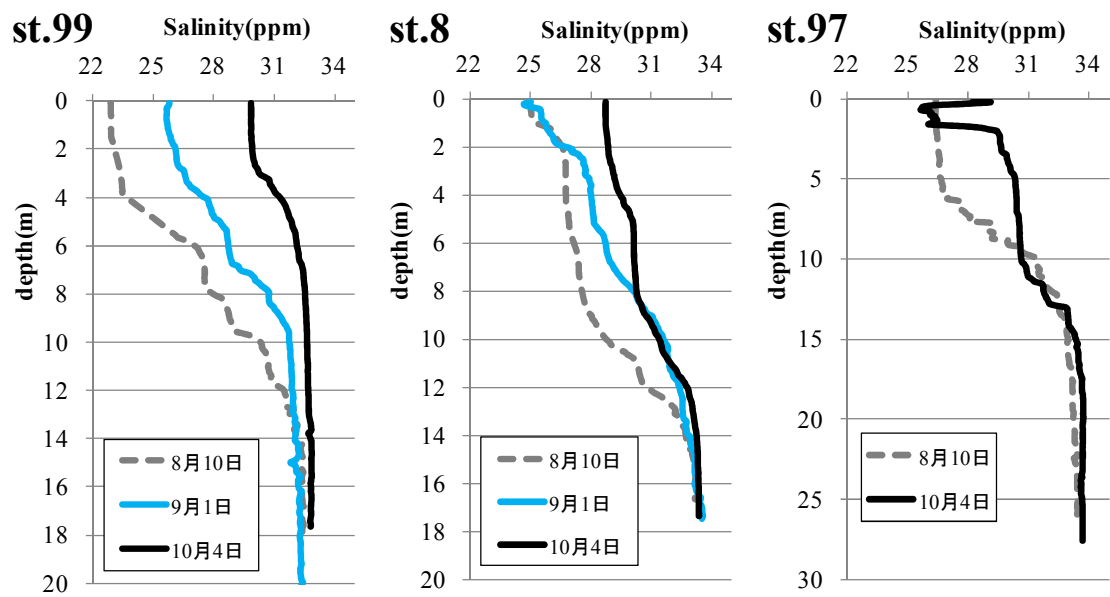


図-2.15 塩分鉛直分布 (2010 年)

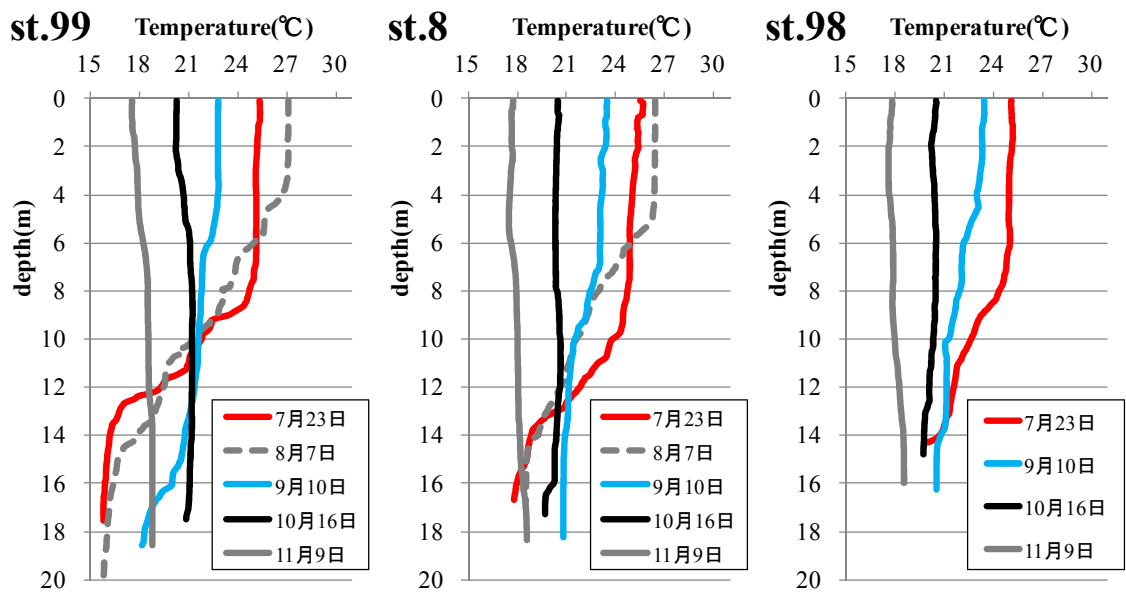


图-2.16 水温鉛直分布 (2009 年)

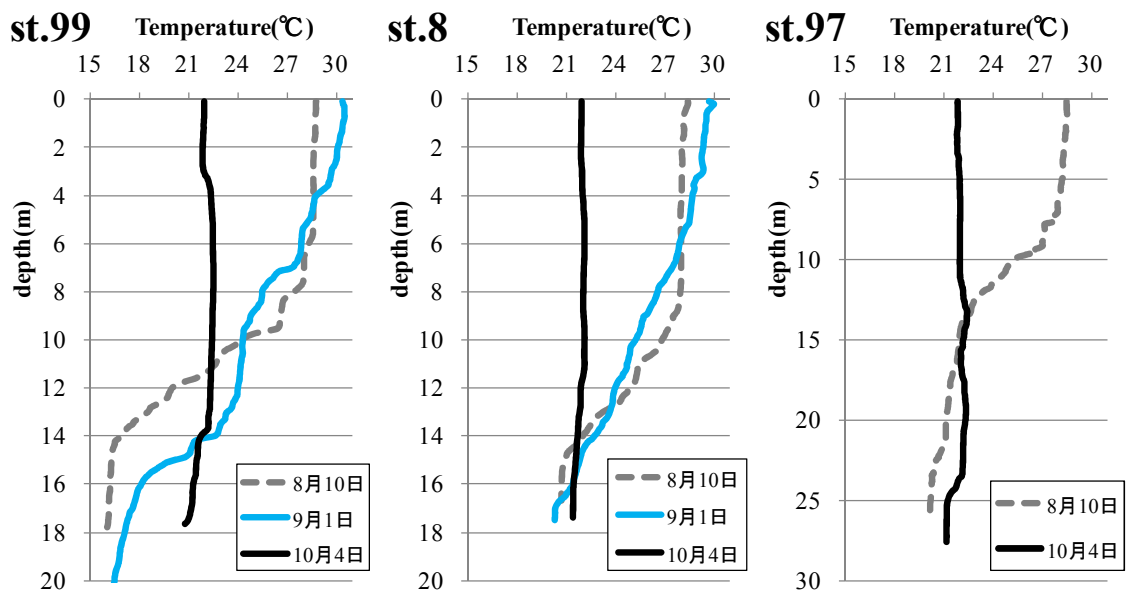


图-2.17 水温鉛直分布 (2010 年)

### 2.3.2 河川河口部（船橋）における観測結果

図-2.18 に底層の水温，DO，水圧の時系列を示す．水温は千葉灯標の観測結果と同様に9月初めに低下していた．DO は夏季に貧酸素化，無酸素化しており，夏季は無酸素化している日が続いていた．9月上旬ごろより，数日間のDO回復傾向にあり，10月初め以降はほぼ無酸素化することはなくっていた．しかしながら十分なDOはなかった．

海老川の流量は他の河川に比べ小さい．水深は3，4m程度と小さいにも関わらず，河川水によるDO供給が少ないため，底層には十分なDOがない状態である．DOの供給源としては湾内からの潮汐や吹き寄せによる水塊の進入，出水時の淡水流入が主であると考えられる．

千葉県により，8月31日～9月1日に青潮発生の確認が報告されたが，写真-2.8に示すように，本研究観測時の9月3日時にもその青潮が確認された．そのとき，そこに生息する魚が表層へと集まり，大きな魚は護岸の方へ逃れ，比較的小さな魚はマイクロバブルの気泡周辺に群がっていた．マイクロバブルはそこに生息する生物の避難所になり得ることが考えられる．また採泥した底泥には，硫酸還元菌の一種と考えられる白い糸状の菌が，普段より確認されることがあったが，目に見えて多く確認できた．同一場での増殖か流入かは断定できないが，短時間での嫌気化における細菌の増加が確認された．

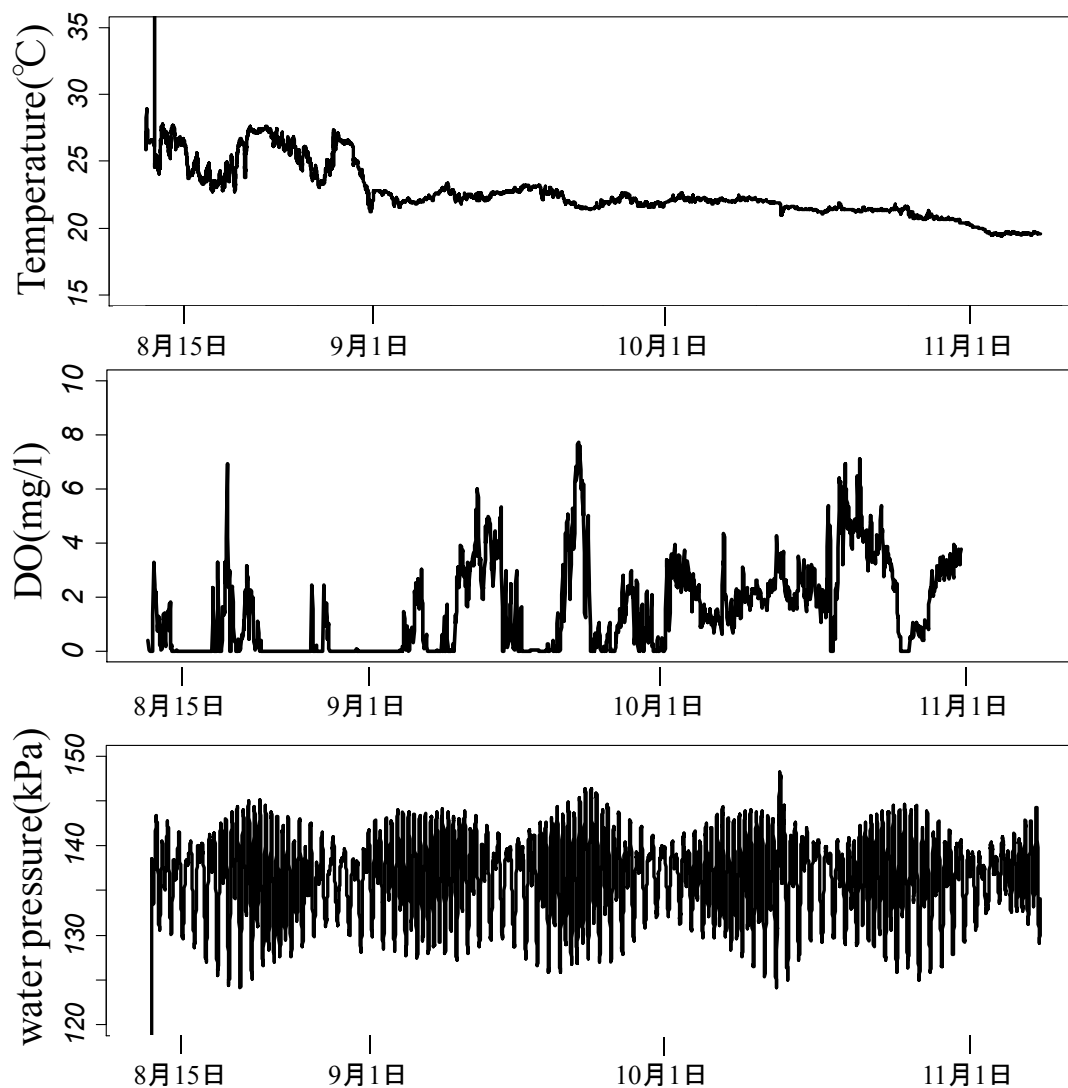


図-2.18 St.Eにおける底層水温，DO，水圧の時系列（2009年）



写真-2.8 青潮発生状況



写真-2.9 9月3日観測時底泥状況

### 3 実験・分析手法

#### 3.1 実験手法

##### 3.1.1 底泥酸素消費実験

上記の観測方法により採取した柱状コアサンプルを用いて、実験室にて酸素消費実験を行った。実験装置概要を図-3.1、写真-3.1 に示すと同時に実験手法詳細を以下に示す。

まず 1 地点につき複数本採取したコアサンプルの直上水は無酸素化しているため、酸素を飽和させ、現地観測時の塩分に調整した人工海水を直上に入れ換え、同時にコア内側に蛍光式 DO 計 (Presens 社, Fibox3-AOT) を採りつけた。また実験中直上水酸素濃度を一様とするために、上部シリコンのふたにマグネットスターラーを取り付けて攪拌できるようにした (写真-3.2)。実験中の攪拌速度は、底泥が巻き上がらない程度に調整している。これらの前処理を行った柱状コアサンプルを観測時水温程度に設定した恒温水槽に設置し、遮光をした状態で、一定時間おきに DO を測定した。

また上記の実験方法に加えて、図-3.1 の実験装置概要の右側の柱状コアで示すように、柱状コアにチューブを接続して、DO を消費し尽くした後で、ポンプで酸素が飽和した人工海水を供給し、繰り返し曝気できるようにした。蛍光式 DO 計 (HACH 社, HQ40d18) を柱状コア内に固定し、1 分から 15 分毎に測定を行い、これを二週間から一ヶ月程度の長期に渡って継続した (以後この実験を観測当日の短期酸素消費実験との対比で長期実験と呼ぶ)。

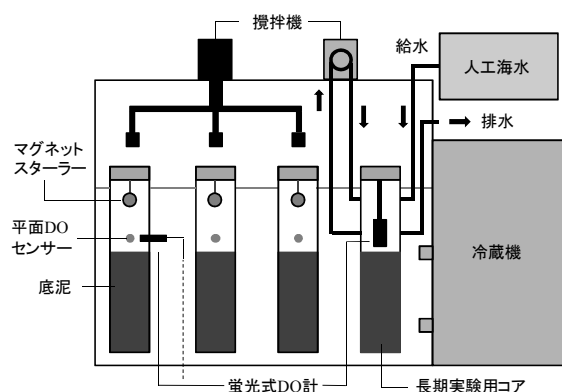


図-3.1 実験装置概要



写真-3.1 実験装置概要

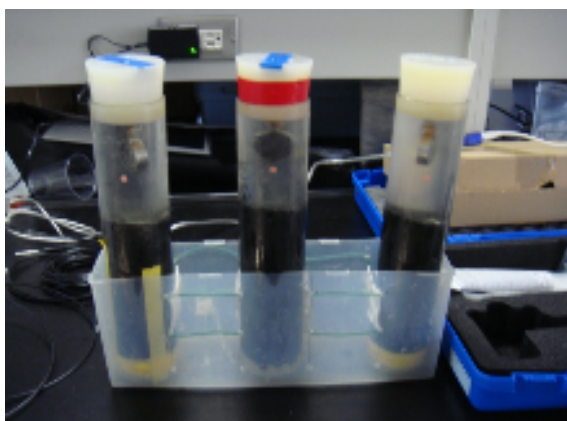


写真-3.2 コアサンプル例(左：短期実験用, 右：長期実験用)



### 3.1.2 栄養塩溶出実験

酸素消費実験時に、同時に栄養塩溶出実験を行った (2010 年 10 月 4 日分のみ) . コアサンプル内の直上水を乱さないようにごく少量の水を採り、溶存態の栄養塩項目の分析をオートアナライザー(ブランルーベ社製, AACs-III) で行った. 採水時間は (1) 直上水中濃度が一樣となる酸素消費実験開始直後, (2) 酸素消費実験中間時, (3) 酸素消費実験終了直後, とした.

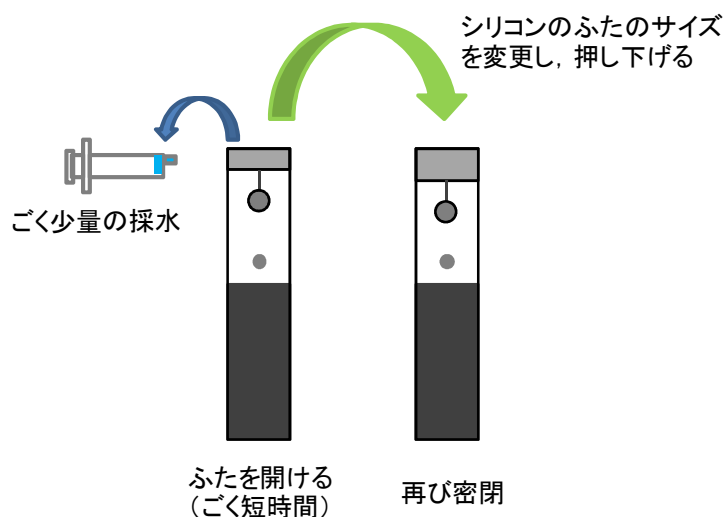


図-3.2 溶出実験概要



## 3.2 分析手法

### 3.2.1 キノンプロファイル法

底泥表層の微生物量や微生物群集構造の酸素消費への寄与を明らかにするため、キノンプロファイル法により、泥中内のキノン含有量とキノン構成比を求めた。ここで呼吸鎖キノン (以下、キノン) とは、細菌の電子伝達において水素キャリアーとして機能する補酵素である。一般的に、一細菌種は一種類の優先キノン種を持っており、好気呼吸に係わるユビキノン (以下, UQ) と嫌気呼吸に係わるメナキノン (以下, MK) に大別できることから、微生物の群集構造が把握できる。UQ, MK はさらに小分類に分けられ、例えば UQ-8, MK-9, や MK-8(H2) (メナキノンのイソプレノイド鎖が 8 個付き、一番端の 2 重結合が水素添加されたもの) のように UQ-n, MK-n と表される。優先キノン種は、環境条件に応じて変化することがなく、遺伝的にも安定していることが知られている。化学分析により 95%以上の収率で回収でき、微生物量あたりの含有率がほぼ一定なため、キノン含有量の変化を微生物量の変化と見なすことが可能である (Hiraishi ら, 1989)。

ここで対象とした底質サンプルは、先述した観測時の表層 5mm の泥 (底泥直上での分解・無機化の作用が影響すると考えられる底泥表面における泥) とした。

採取した底質試料は、凍結乾燥処理後、乾燥重量を測定した。その後、キノンを含む脂溶性成分を抽出するために、クロロホルム・メタノール (2:1, v/v) とヘキサンを順次用い、遠心分離機 (TAITECH 社, ダブルシェーカーNR-30) による振盪抽出 (写真-3.4), 濾過 (写真-3.5), ロータリーエバポレーター (RE400, yamato 社製) による濃縮乾固等作業を行った (写真-3.6)。得られた溶媒抽出物を固相抽出カートリッジ (Waters 社, Sep-Pak@Shilica) に吸着させ、2% (v/v) のジエチルエーテル・ヘキサン溶液を用いてメナキノンを、10% (v/v) の同溶液を用いてユビキノンをそれぞれ分離・精製した (写真-3.7)。アセトンに溶媒置換した後、高速液体クロマトグラフィー (島津製作所, SCL-10A VP) により、各キノン分子種を分離・定量した。検出器は、フォトダイオードアレイ (島津製作所, SPD-M10A VP) を用いた (写真-3.8)。各キノン種の同定には、吸光スペクトルやENIU値 (Hiraishi ら, 1989) を参考にした。底質試料のキノン含有量は、試料の凍結乾燥後の乾燥重量に対するものとした。これら一連の分析手順は、藤田ら (2008) に従った。

$$\text{ENIU} = A + B \log \left( \frac{\text{ETx}}{\text{ETstd}} \right) + C \log \left( \frac{\text{ETx}}{\text{ETstd}} \right)^2 \quad (\text{式 3.1})$$

ETstd : 基準としたキノン分子種の溶出時間

ETx : 未知のキノン種 X の溶出時間

A,B,C : 定数

$$Cq = \text{AREA} \times \frac{V1}{V2} \times \frac{1}{V3} \times \text{Cstd} \quad (\text{式 3.2})$$

$$Cm = \text{AREA} \times \frac{V1}{V2} \times \frac{1}{V3} \times \text{Cstd} \times \frac{14.4}{17.4} \quad (\text{式 3.3})$$

Cq : ユビキノンの濃度 (nmol/L or nmol/kg-dry soil)

Cm : メナキノンの濃度 (nmol/L or nmol/kg-dry soil)

Cstd : 標準物質 (Q-10) のピーク面積あたりのキノン量 (nmol/mAU)

V1 : アセトン抽出量 (μL)

V2 : HPLC への注入量 (μL)

V3 : サンプルの体積 (L or kg)

AREA : ピーク面積 (mAU)

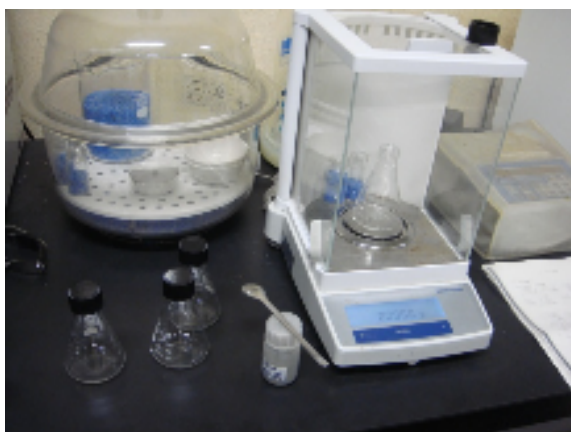


写真-3.3 重量測定



写真-3.4 遠心分離機



写真-3.5 ろ過



写真-3.6 ロータリーエバポレーター

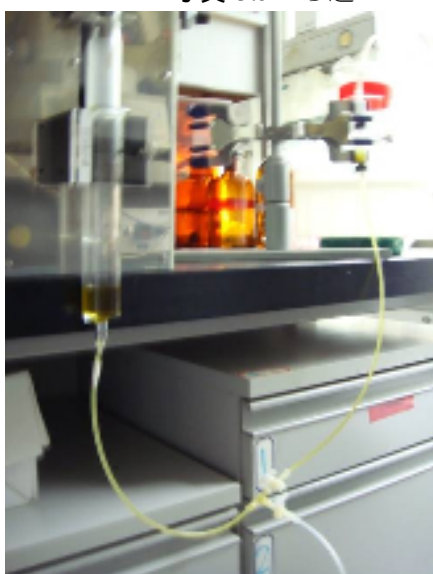


写真-3.7 各キノン種の分離



写真-3.8 高速液体クロマトグラフィーと  
フォトダイオードアレイ

### 3.2.2 CN 比

微生物は ATP 合成のために必要となる栄養を水中または底泥中より摂取している。それら栄養源の存在量により微生物活性は変わり、酸素消費にも影響を与える。よって本研究でも、底泥中の有機物量を測定した。これらの測定には CN コーダ (ヤナコ分析工業製, MT-700)を使用した。

炭素は分解すると最終的に二酸化炭素になるので、測定された炭素のほとんどは (生物起源の) 有機炭素であり、また窒素も無機態窒素の主要部分を占めるアンモニア態窒素も底泥と結合あるいは吸着する部分には有機態窒素と比較すると少ないので大部分は有機態窒素であると考えてよい (リンについては無機態の割合を無視することはできない)。

そこで対象となる底質サンプルの表層 5mm 部分を、本実験室内 CN コーダを用いて全炭素量と全窒素量の分析を行った。しかしながら全有機物量の内、微生物にとってどの程度分解しうる有機物であるかどうか、つまり易分解性、難分解性、非分解性の 3 つに分けられるが、このような特定までは実施しなかった。その中で一般に大きな割合を占めるのが易分解性有機物とされる。易分解性の有機物の存在は植物プランクトン等の生物的要因に依存しており、季節的な変化が大きい。それに対し難分解性有機物は半減期が 1 年以上であるため、海水中での分解はごくわずかで、ほとんどが海底へ沈降する。季節的な影響は平均化されるので、変動要因としては経年的な海水の栄養状態の変化が主である。

また有機物は一般に一定の元素組成があり、植物プランクトンの場合にはレッドフィールド比があり、 $C:N:P = 106:16:1$  で表される。酸素や水素も含めると、植物プランクトンの組成は  $C_{106}H_{263}O_{110}N_{16}P$ 、または  $(CH_2O)_{106}(NH_3)_{16}(H_3PO_4)$  と表される。しかし現地において元素ごとに易分解性、難分解性の各部分の占める割合が異なるため、この分子量論的關係に従うわけではない。

### 3.2.3 粒度分析

粒径の違いは底泥環境の違いを表し、そこに生息する微生物群集にも大きく影響を与える。レーザー回折式粒度分析測定装置 (島津製作所製, SALD-3000S) により、各地点の底泥環境の違いを表すため、粒度分布の測定を行った。

### 3.2.4 栄養塩

栄養塩は湾内水質環境を知る一つの指標であり、例えば微生物群集による分解、無機化の現象が結果の一つとして表されている。その結果から生じる生成物は、微生物にとっての再び新たな栄養源となるように、栄養塩は循環している。それら過程による栄養塩の存在量の変化は酸素消費速度に影響を与えるため、測定を行う必要がある湾内各地点で採取したサンプル (表層, 中層, 下層の 3 層) を オートアナライザー (ブランルーベ社製, AACS-III) で、窒素に関しては全窒素, 硝酸態窒素, 亜硝酸態窒素, アンモニア態窒素, リンに関しては全リン, リン酸態リンの測定を行った。

### 3.2.5 硫化物

観測期間中、嫌気的環境である東京湾底層では、青潮のもととなる多量の硫化水素が発生しており、観測時の底層水や底泥からもその硫化水素臭が感じられた。

各場に存在する硫化物量を明らかにするため、底層海水中内の全硫化物測定を行った。分析機の持ち運びの関係から、観測日より現地測定と実験室とで異なる測定をした。測定には各水質分析計 (HACH 社製, DR/890, DR/2400) により測定した。

## 4 実験・分析結果

### 4.1 実験結果

#### 4.1.1 底泥酸素消費機構

底泥の酸素消費は以下に示すようにいくつかの機構に分けられる。

- (1) 直上水から底泥へ DO が移行して水中の DO が消費される場合
- (2) 底泥から直上水へ DO 消費物質が拡散，溶出して上層中の DO を消費する場合
- (3) 底泥粒子が巻き上がり浮遊物質の形となって DO を消費する場合

(3) に関しては底泥に対して直上での流れによるせん断力が生じた場合である。また静水中であれば長期間の実験により，底泥表面にひび割れが生じ，そこから底泥粒子が巻き上がる場合がある。従って静水として行った本研究内の短期実験には，(1)，(2) の機構のみが当てはまり，長期実験には (1)，(2)，(3) の全てが当てはまると考えられる。

長期実験の模式図を図に示すが，実験初期は底泥表層の酸素消費物質は上層水中へと拡散，溶出して水中の DO を消費する ((a) の期間は (1) 及び (2) の機構が働く)。酸素消費物質の減少や上層水から供給された DO により表層部が酸化されて好気性の層が形成されるため，酸素消費物質は上層水中に拡散，溶出しなくなる ((b) の期間は (1) の機構のみ) という報告がこれまでになされている (東野ら，1997)。

また静水中の場合，(1) の機構による酸素消費速度は，(2) の機構に比べて非常に小さいことが同様の報告でされている (東野ら，1997)。

その他に酸素消費の速度に影響する要因として，水温，塩分，上層水中の水質が挙げられる。本実験では水温，塩分は実験時に直上水を観測値に合わせたものにしており，少なくとも毎実験時のサンプル間に差はない。直上水中の水質に関しても同様に，その影響を除いている。よってサンプル間の差は，底泥における微生物群集，有機物量，底泥層内に含まれる栄養塩量であると考えられ，粒度を含む泥質性状の違いであると言える。

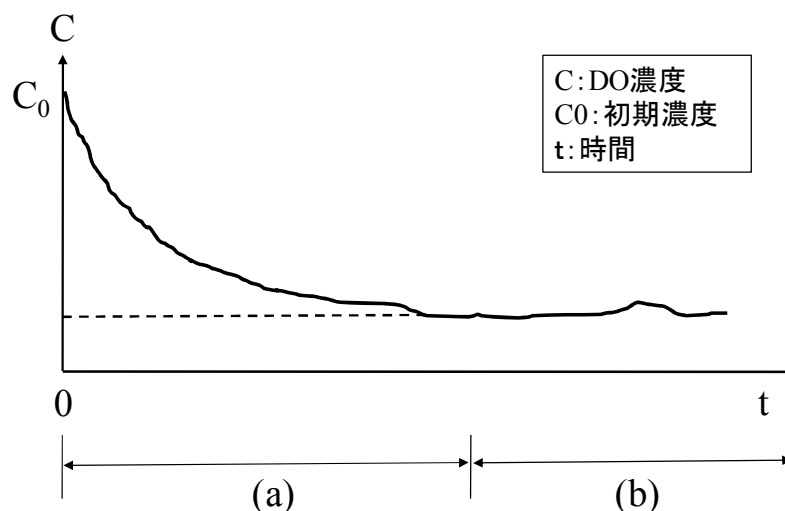


図-4.1 DO の時間変化の模式図 (東野ら，1997)

#### 4.1.2 底泥酸素消費速度の算出方法

上記の実験手法により得られた DO 濃度の時系列変化から酸素消費速度を求めた。酸素消費速度を求めるにはいくつかの算出方法があり、反応を仮定し、算出方法を決定する必要がある。

##### (1) 0 次反応

物質の濃度に関係なく一定の分解が進む場合を考えたものであり、濃度は時間とともに一定量の割合で直線的に減少する。

$$-\frac{dC}{dt} = k \quad (\text{式 4.1})$$

$$C = -kt + C_0 \quad (\text{式 4.2})$$

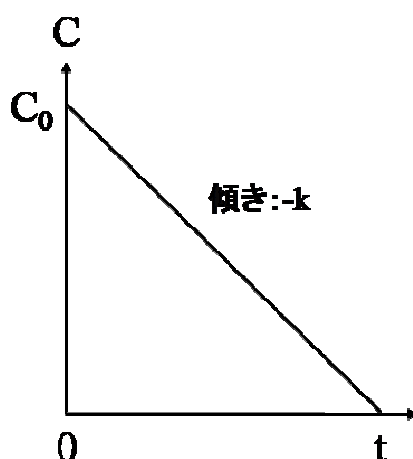


図-4.2 0 次反応模式図

$C_0$  : 初期 DO 濃度 ( $\text{mg l}^{-1}$ )  
 $k$  : 反応速度 ( $\text{mg m}^{-2} \text{ day}^{-1}$ )

$C$  : DO 濃度 ( $\text{mg l}^{-1}$ )  
 $t$  : 経過時間 (min)

##### (2) 1 次反応

反応速度が物質の濃度に依存している場合の反応。濃度の対数をとることにより、時間とともに直線的な減少関係が得られる。

$$-\frac{dC}{dt} = kC \quad (\text{式 4.3})$$

$$\frac{dC}{C} = -kdt \quad (\text{式 4.4})$$

$$\ln C = -kt + \ln C_0 \quad (\text{式 4.5})$$

$$-kt = \ln C - \ln C_0 = \ln \left( \frac{C}{C_0} \right) \quad (\text{式 4.6})$$

$$C = C_0 \exp^{-kt} \quad (\text{式 4.7})$$

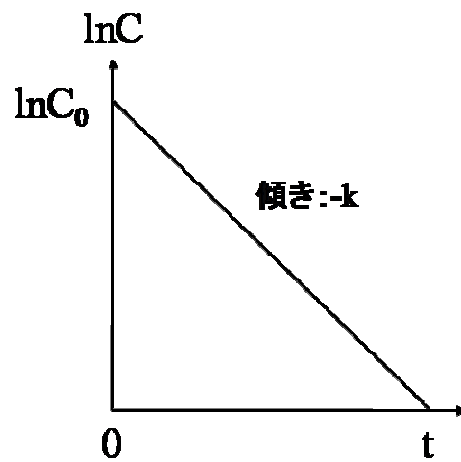


図-4.3 1次反応模式図

$C_0$  : 初期 DO 濃度 ( $\text{mg l}^{-1}$ )  
 $k$  : 反応速度 ( $\text{mg m}^{-2} \text{day}^{-1}$ )

$C$  : DO 濃度 ( $\text{mg l}^{-1}$ )  
 $t$  : 経過時間 (min)

本実験により得られた結果の多くは、図○の例のように指数反応的挙動を示しているため、1次反応として扱うこととし、酸素消費速度定数を求めた。その結果を以下に示す。

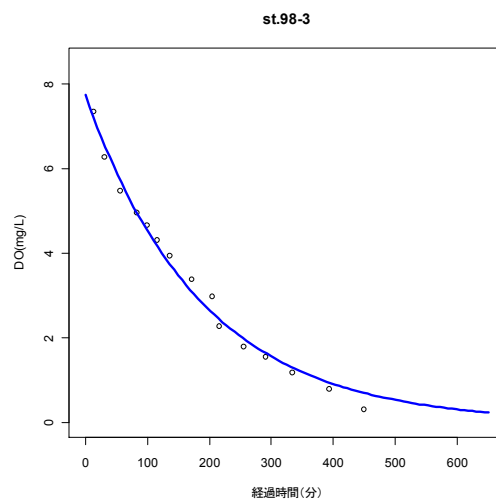


図-4.4 酸素消費実験結果例

### 4.1.3 底泥酸素消費速度定数

#### (1) 短期実験結果

各地点で得られた実験値の平均値を代表値とした時系列変化とコアサンプルの個体差を以下に示す。

酸素消費を行う微生物は温度に依存するため、夏季に比較的大きな値をとった。貧酸素化解消期となる10月上旬頃に酸素消費は低く、その後若干の増加傾向にあった。高含水率の浮泥質である St.99 と St.E は比較的大きな値を示していた。St.97 は小さく安定した値をとった。St.97 の結果は St.8 と同程度の値で、あった。St.98 の河川の影響を受けやすい St.98 における2009年10月16日実験時の突出値は約2日前の降雨による海中環境の変化によるものと考えられ、後の栄養塩、有機物分析結果より詳しく考察することとする。

海老川河口での結果は各観測点での違いはあるが、湾内結果と同様の傾向を示しており、夏季に高い値をとり、10月に一度減少後、再び若干増加していた。本研究観測点から約1km上流の八千代橋において千葉県による測定（公共用水域地点別水質測定）がなされている。図-4.7に示す本研究結果と千葉県によるBOD測定結果を比べたところ、夏季に高く、一度減少した後に増加という傾向は本研究と一致していた。

湾内と河口部の結果から、時間によっても場所によっても酸素消費速度定数は異なることがわかった。本研究は静水時を対象としているため、検証は行っていないが、一般に底泥の巻き上がりが生じた場合、酸素消費は加速するとされている。そのため浮泥質である St.99 と St.E においては、外的要因により容易に酸素消費が加速することが予測される。

実験初期に当たる2009年8月7日、9月10日時実験結果はサンプル数の少なさや乱れ等の実験不備を起こしたため、信頼性が低い。そのため今後のデータ解析では参考値として扱う。

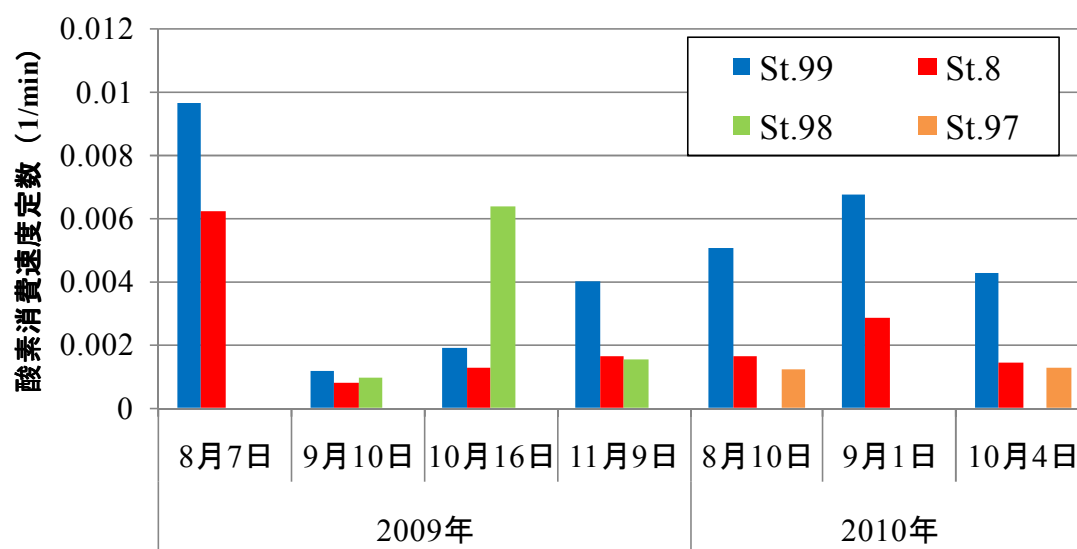


図-4.5 湾内各地点における酸素消費速度定数（平均値）の時系列変化

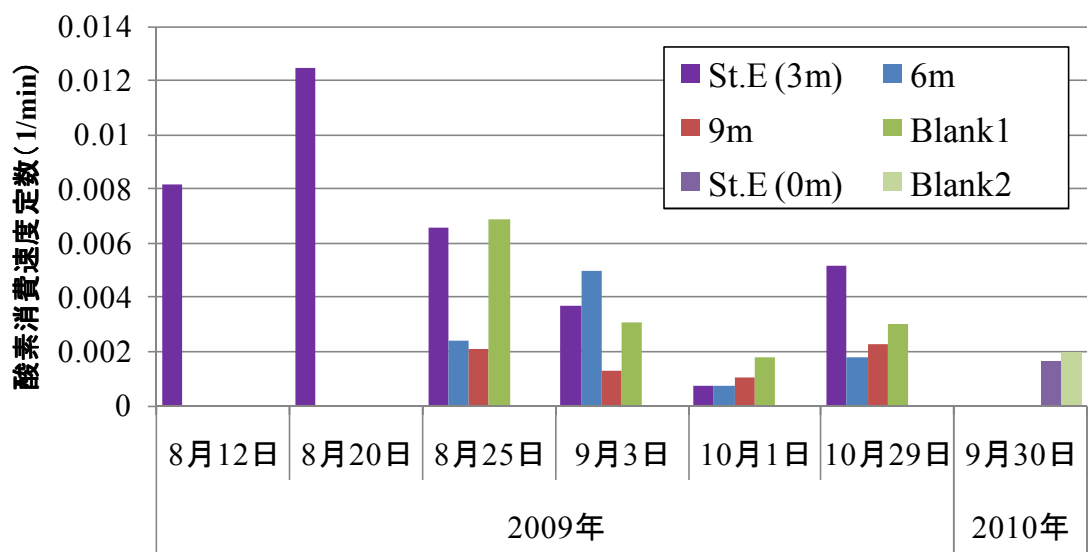


図-4.6 海老川河口部における酸素消費速度定数（平均値）の時系列変化

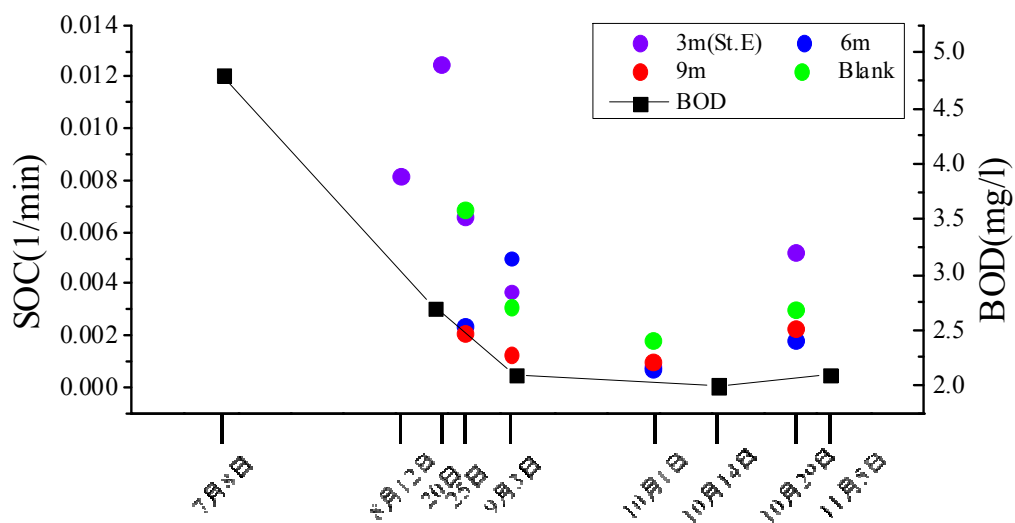


図-4.7 海老川河口部における酸素消費と公共用水域水質データのBOD（2009年）



表-4.1 湾内各地点における酸素消費速度定数

Average		St.99	St.8	St.98	St.97
2009年	8月7日	0.0097	0.0062		
	9月10日	0.0012	0.0008	0.0010	
	10月16日	0.0019	0.0013	0.0064	
	11月9日	0.0040	0.0017	0.0016	
2010年	8月10日	0.0051	0.0017		0.0012
	9月1日	0.0068	0.0029		
	10月4日	0.0043	0.0014		0.0013

単位:  $\text{min}^{-1}$

表-4.2 海老川河口部における酸素消費速度定数

Average		St.E (3m)	6m	9m	Blank1	St.E (0m)	Blank2
2009年	8月12日	0.0082					
	8月20日	0.0125					
	8月25日	0.0066	0.0024	0.0021	0.0069		
	9月3日	0.0037	0.0050	0.0013	0.0031		
	10月1日	0.0008	0.0007	0.0010	0.0018		
	10月29日	0.0052	0.0018	0.0023	0.0030		
2010年	9月30日					0.0017	0.0020

単位:  $\text{min}^{-1}$

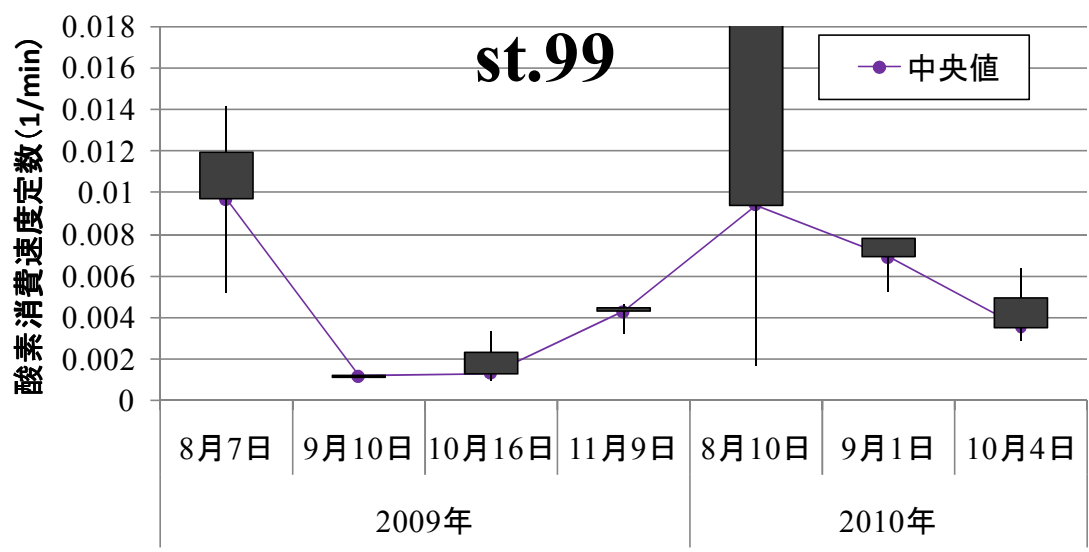


図-4.8 コアサンプルの個体差 (St.99)

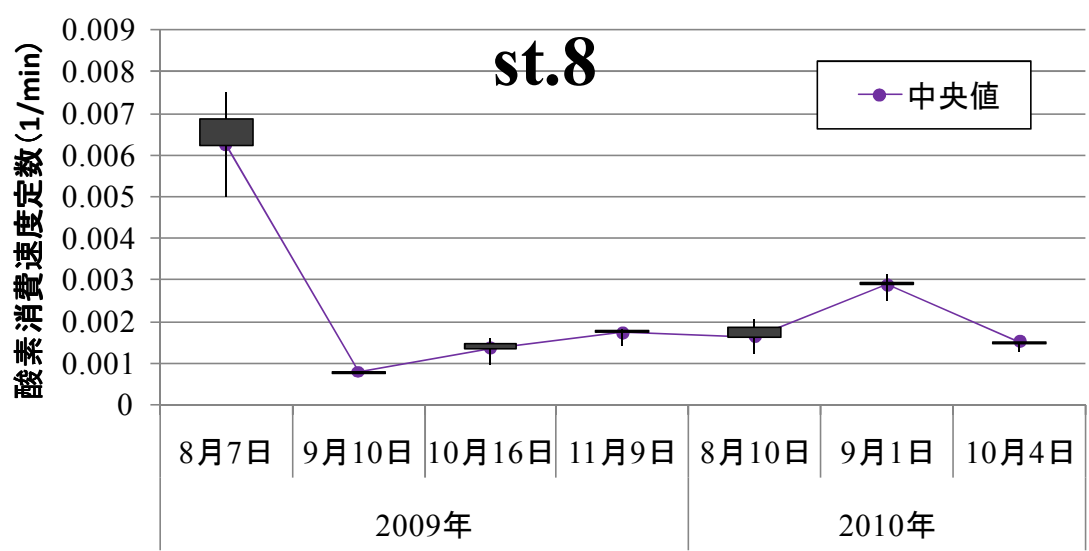


図-4.9 コアサンプルの個体差(St.8)

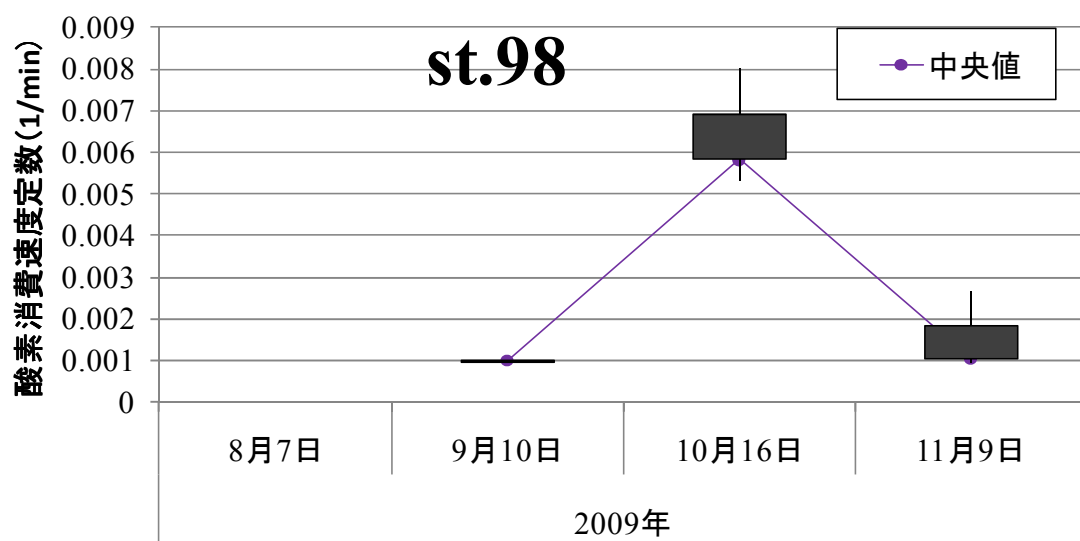


図-4.10 コアサンプルの個体差(St.98)

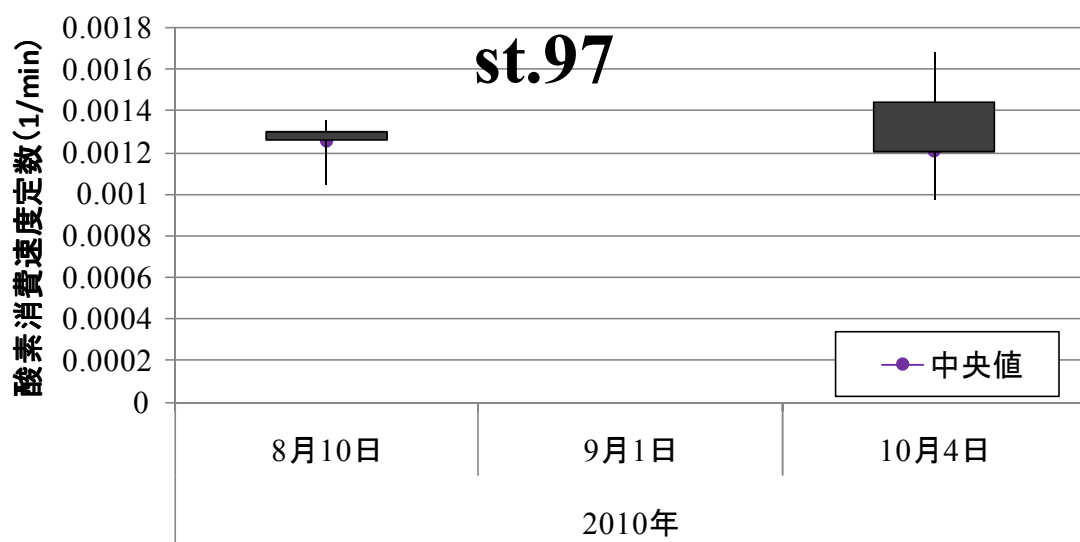


図-4.11 コアサンプルの個体差(St.97)

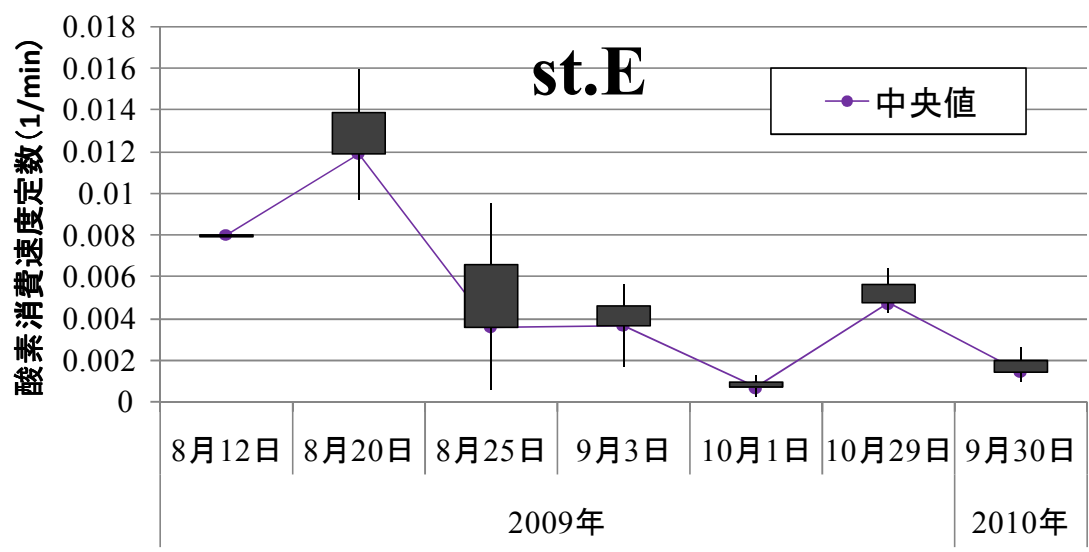


図-4.12 コアサンプルの個体差(St.E)

## (2) 長期実験結果

酸素を消費しつくした後に繰り返しばっ気をして得られた、長期酸素消費実験結果を示す。酸素消費は始め緩やかであるが、2回目以降徐々に速くなり、4日程度で最大をとった。その後、横ばいか減少傾向にある。減少傾向が見られたのは、上記の報告(東野ら, 1997)と同様に底泥表層に酸化層が形成され酸素消費が抑制されたことや、分解しえる表層の有機物量の減少が考えられる。減少後の一時的に見られる増加は、同様の報告から長期実験時に見られる底泥表層のはく離による、消費物質の水中への拡散だと考えられる。またサンプルを動かしてしまったことによる表層面の拡散である。以上の長期間の実験を続けた場合、栄養を豊富に含む東京湾内の底泥では、減少傾向が見られた後も酸素消費は続いていた。

実験により異なるが、実験中で消費の早い時間帯では、約60分程度で6mg/lの酸素消費が見られた。仮にコア内(内径5.5cm)の水柱高さを10cmとすると、DOは $4493\text{mg m}^{-2}\text{ day}^{-1}$ の速さで消費が行われ、深さ5mの底層水柱中に8mg/lのDOが存在した場合、約9日程度で消費されることとなる。

たとえ酸素を底層水中に与えてもその量が十分になれば、すぐに酸素は消費され、再び無酸素状態になることを意味している。マイクロバブル等による酸素供給では、その場の抜本的な環境改善には至らないというこれまでの多くの報告とも一致している。

長時間の実験中、コアサンプルの直上水を完全に密閉することが難しく、実験期間中幾度が空気を侵入させてしまうことがあった。値が小さく出ている部分はそのためである。しかしそのことより、ある程度の時間DOが飽和した状態であれば、その後の酸素消費は一定時間緩やかになり、その後再び消費尽くしてはばっ気を何度か繰り返したところ、再び早い酸素消費へと戻った。

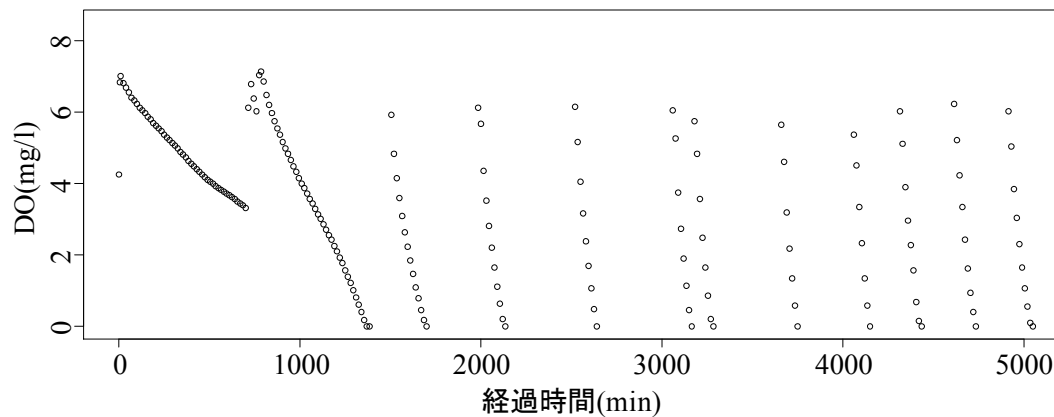


図-4.13 長期実験測定結果例

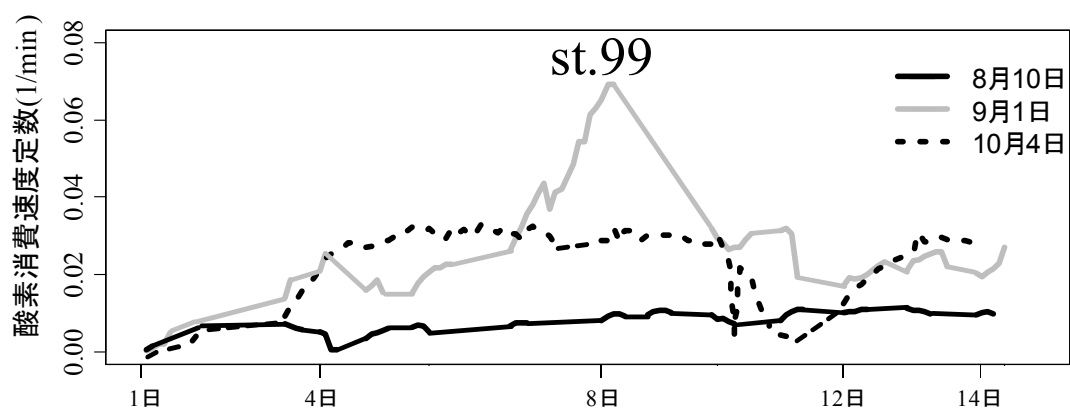
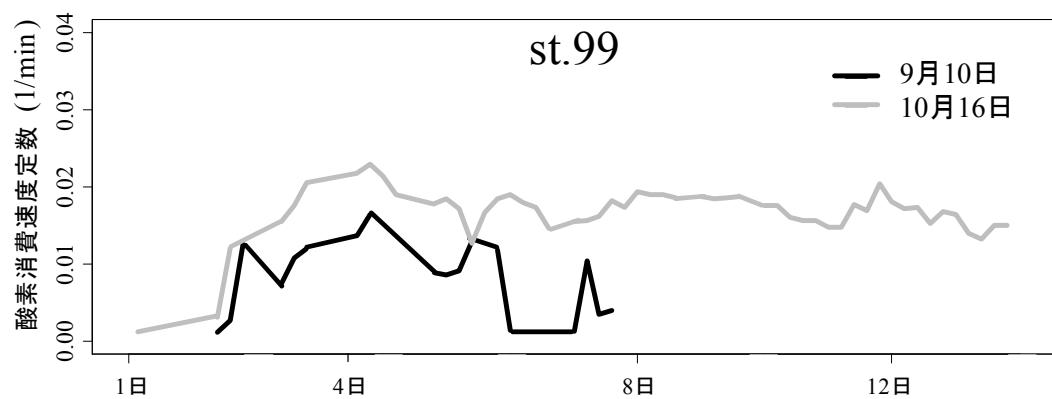


図-4.14 St.99 における長期実験酸素消費速度定数の時系列 (上：2009 年，下：2010 年)

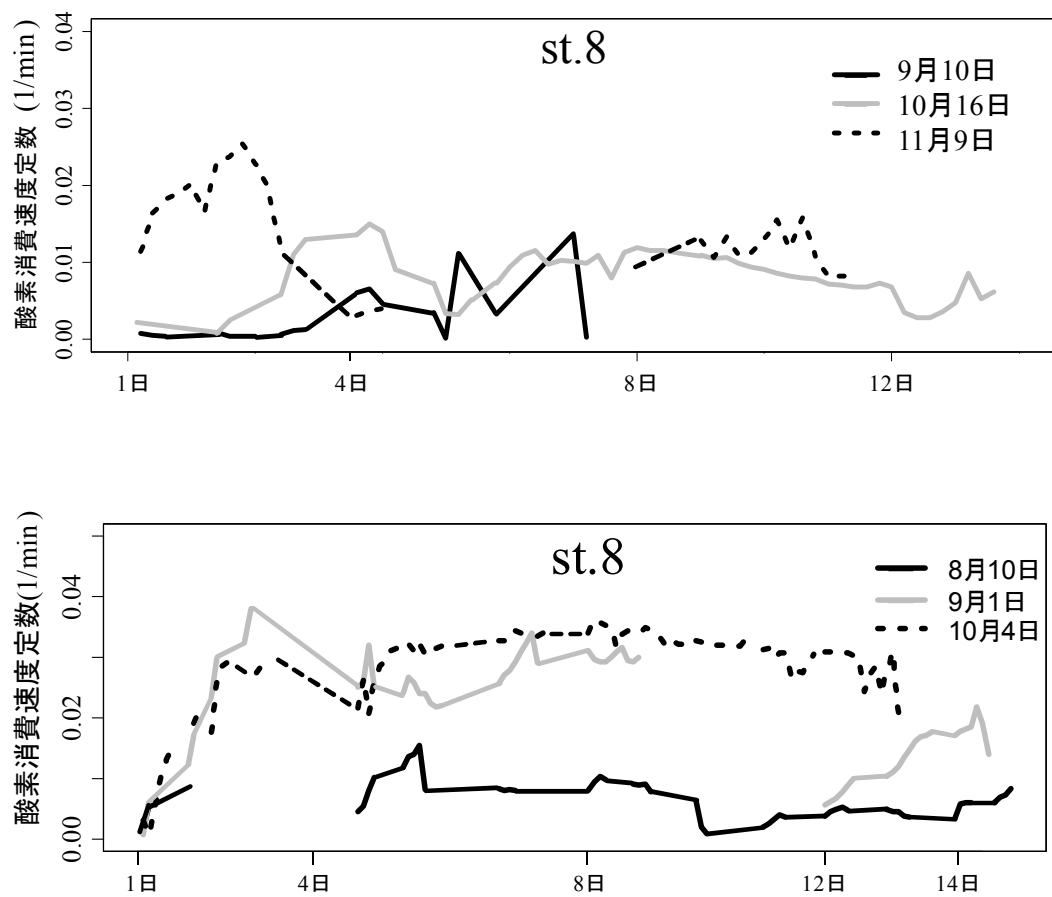


図-4.15 St.8 における長期実験酸素消費速度定数の時系列 (上：2009 年，下：2010 年)

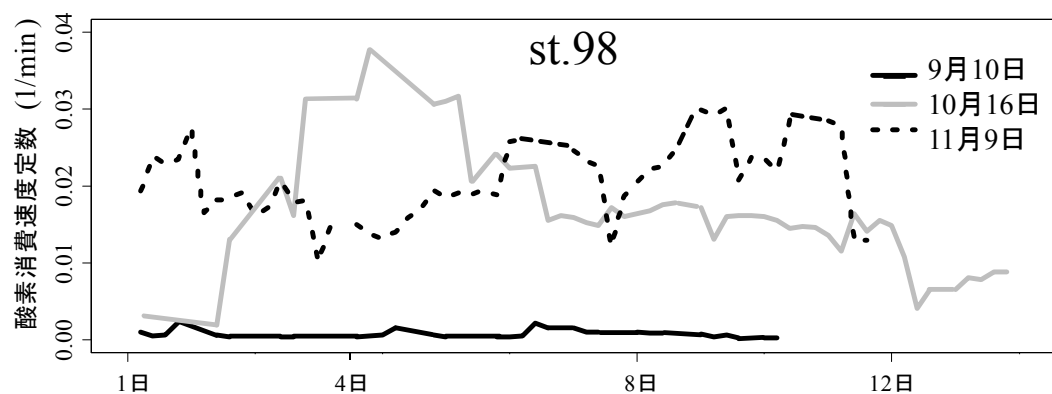


図-4.16 St.98 における長期実験酸素消費速度定数の時系列 (2009 年)

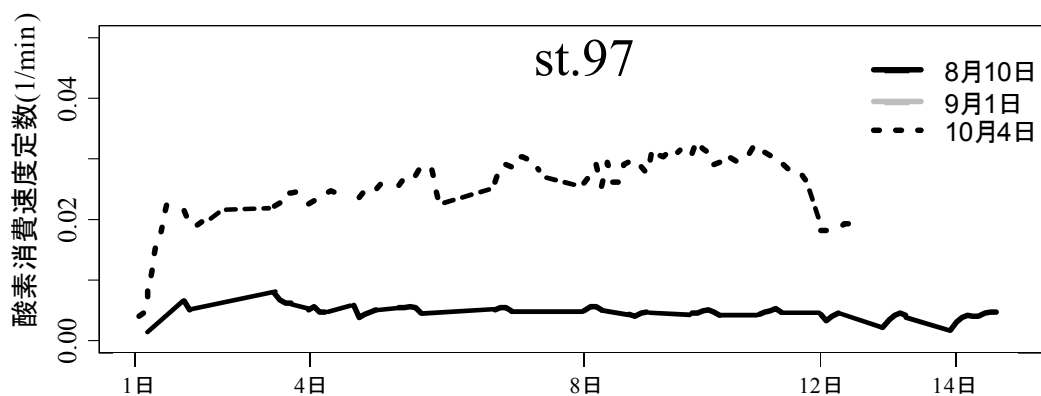


図-4.17 St.98 における長期実験酸素消費速度定数の時系列 (2009 年)

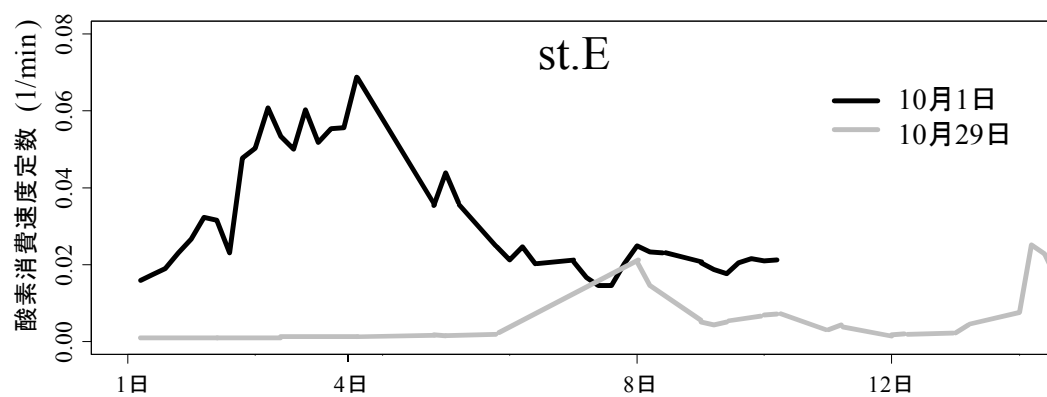


図-4.18 St.E における長期実験酸素消費速度定数の時系列 (2009 年)



#### 4.1.4 栄養塩溶出実験結果

溶出実験より得られた、リン酸態リン、アンモニア態窒素の溶出結果を以下に示す (図-4.19, 図-4.20) . リン、アンモニアともに St.99 で最も大きな溶出が見られ, St.8, St.97 は同程度の値をとった.

これら得られた実験値を直線近似し, 溶出速度を求めた (図-4.21 図-4.22) . その結果, リン酸態リンは St.8, St.97 で同程度の値で, St.99 はそれらの約 2 倍程度であった. アンモニア態窒素は同じく St.8, St.97 で同程度となり, St.97 の方が若干小さい値であった. St.99 は約 5 倍程度であった.

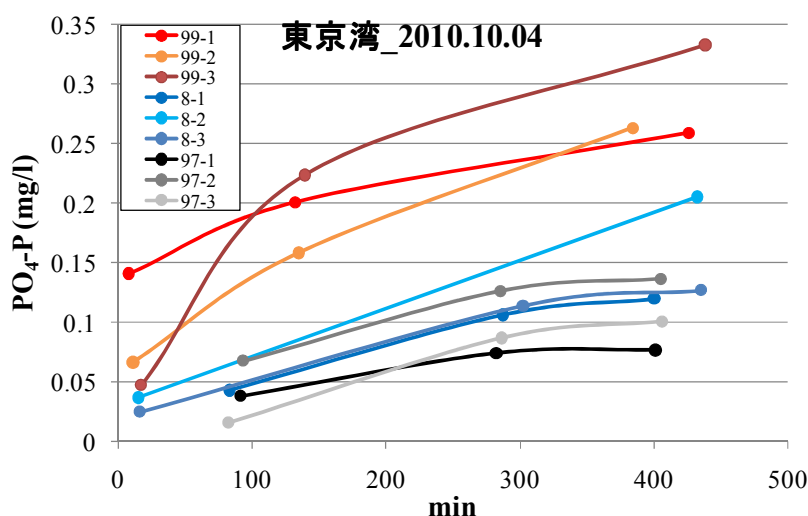


図-4.19 リン酸態リンの溶出 (2010 年 10 月 4 日観測分)

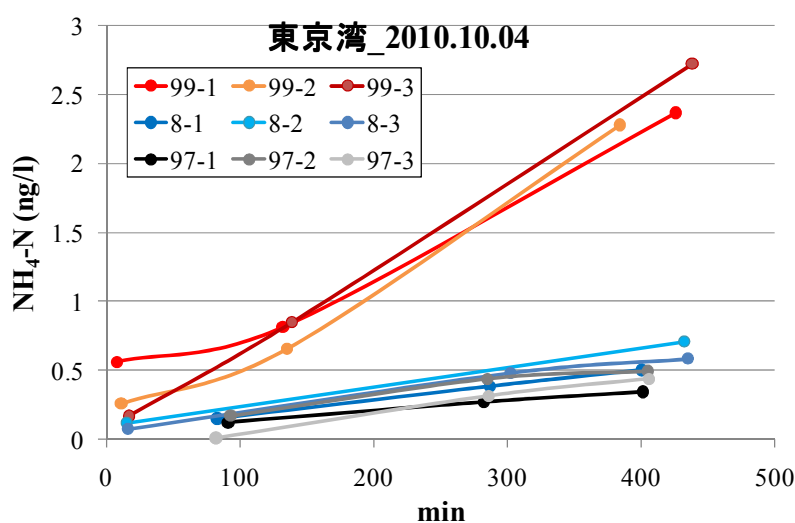


図-4.20 アンモニア態窒素の溶出 (2010 年 10 月 4 日観測分)

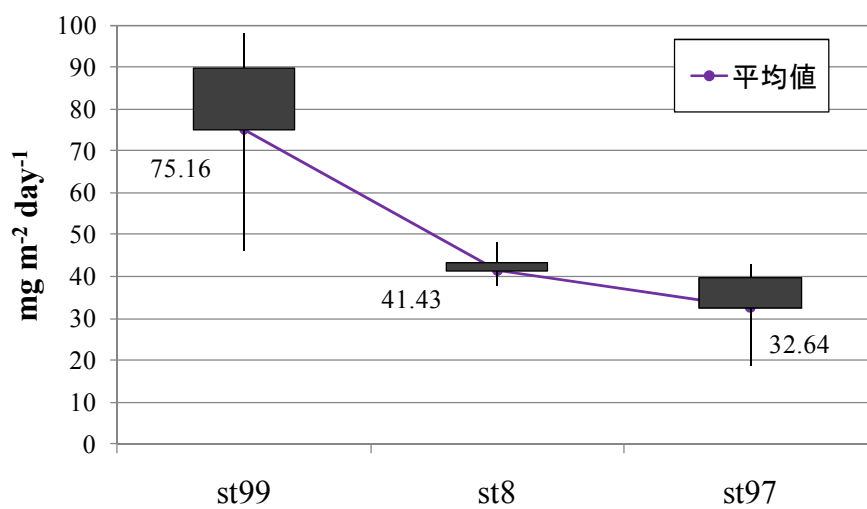


図-4.21 リン酸態リンの溶出速度と個体差 (2010 年 10 月 4 日観測分)

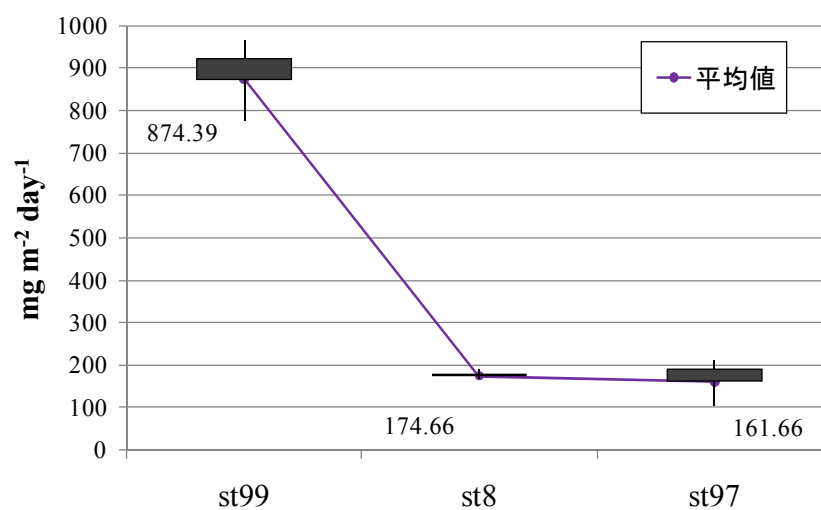


図-4.22 アンモニア態窒素の溶出速度と個体差 (2010 年 10 月 4 日観測分)

## 4.2 分析結果

### 4.2.1 キノン含有量

キノンプロファイル法により得られたキノン含有量を Quinone (UQ と MK の総和) , UQ, MK にそれぞれ分けて, 観測地点ごとに以下に示す. また優先キノン種を示すため, UQ の構成比, Quinone の構成比をそれぞれ示す. またいくつかのデータの MK-8 は, 分析時に検出時間の近いプラストキノンの大きなピークに覆われてしまい欠損となった.

検出された UQ, MK の小分類キノン種は, 一般に表-4.3 に表す細菌種が保有するとされている.  $\alpha$  プロテオバクテリアは光合成属の大部分とそれ以外に C1 化学を代謝する属である.  $\beta$  プロテオバクテリアは好気性や通性の細菌からなり, 大抵非常に多様な化合物を分解できるが, さらに無機化学合成無機栄養性 (アンモニアを酸化するニトロソモナス等) や, 光合成のものも含まれる.  $\gamma$  プロテオバクテリアは腸内細菌科, ビブリオ科, シュードモナス科や一部の光合成細菌 (紅色硫黄細菌) が含まれている.

表-4.3 各キノン種を保有する細菌の大別の一例

UQ-8	$\beta$ -サブクラスのプロテオバクテリア, 一部の $\gamma$ サブクラスの細菌
UQ-9	$\gamma$ -サブクラスのプロテオバクテリア, 糸状菌
UQ-10	$\alpha$ -サブクラスのプロテオバクテリア
MK-6, 7, 8	$\delta$ -サブクラス, $\varepsilon$ -サブクラスのプロテオバクテリア, グラム陽性G+C細菌
MK-6, 7	Cytophaga-Flavobacterium クラスター1に属する菌
MK-9より長いもの及び 水素添加されているもの	グラム陽性高G+C細菌 (Actinobacteria)

# (1) St.99

St.99 はその他の水質項目の観測結果で示したように嫌気的環境下にあるため、MK が支配的であった。MK の量は9月に最大をとった。UQ については全体のキノン量に対して少なく、観測期間を通して MK ほど大きな増減が見られなかった。MK の減少は DO 環境の変化に対応しての増減と考えられる。反対に UQ は貧酸素かが解消された11月とその前の10月に大きな違いは見られなかった。UQ の応答が遅いのは、UQ を含有している好気性細菌の硝化細菌などは、二酸化炭素を炭素源とする独立栄養細菌であるため、有機物を炭素源としている従属栄養細菌である嫌気性細菌と比較して増殖速度が遅いことに起因していると考えられる。2010年8月観測時のUQは比較的多かった。2009年と2010年の水質環境には差が見られたが、年間による明瞭な差はなかった。UQ の優先種を見ると、夏季はUQ-9が優先して存在していた。2009年の秋季で優先種がUQ-8に変化していた。2010年夏季にUQ-10の比は圧倒的に小さいが10月観測時には比が大きくなっていた。

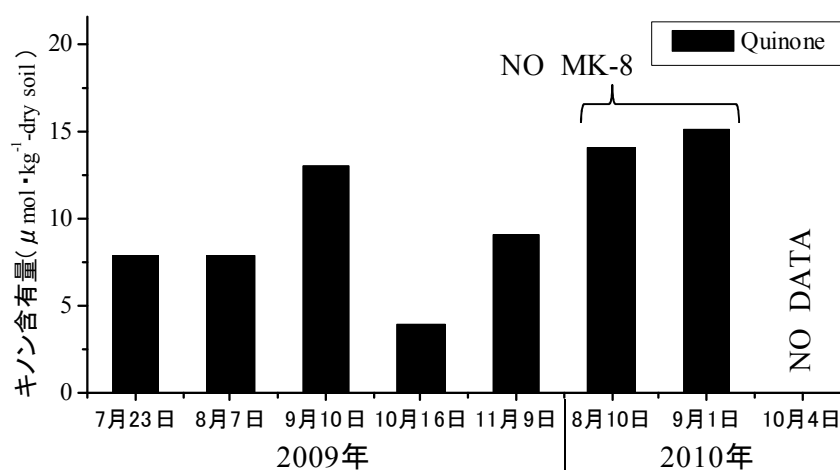


図-4.21 Quinone の時系列 (St.99)

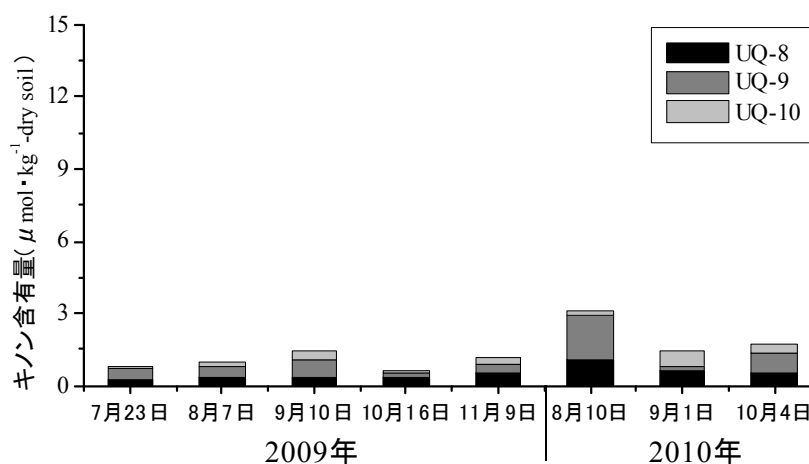


図-4.22 UQ の時系列 (St.99)

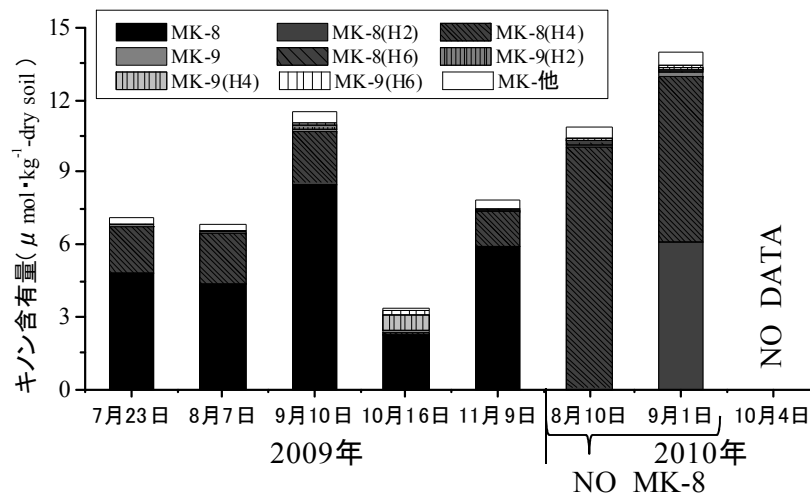


図-4.23 MKの時系列 (St.99)

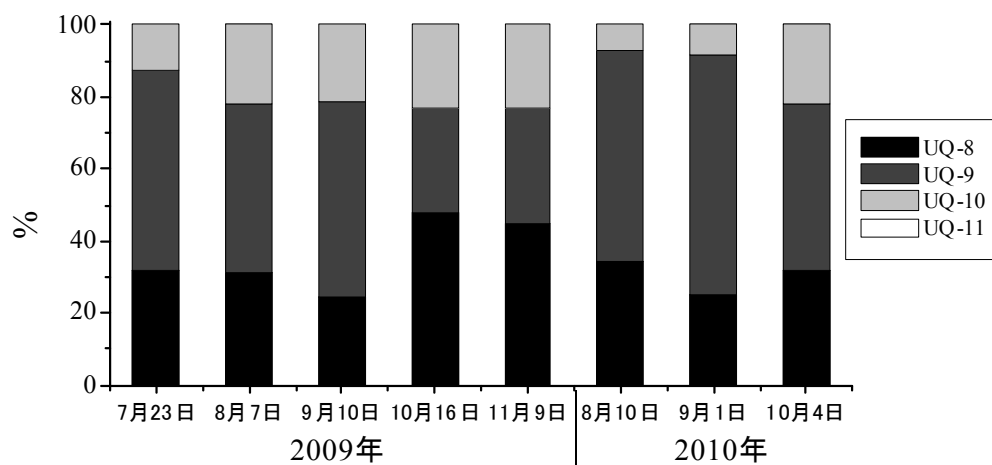


図-4.24 UQの構成比 (st.99)

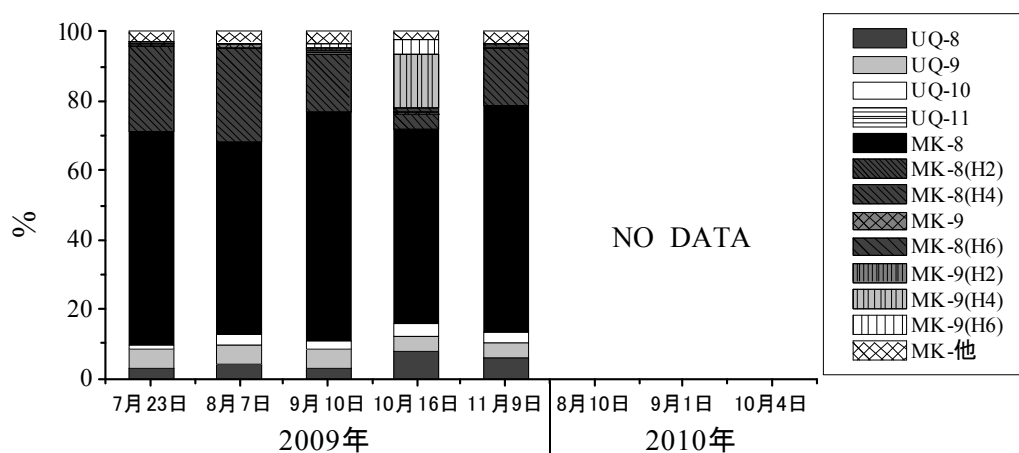


図-4.25 キノン構成比 (st.99)

### (1) St.8

夏季の貧酸素化、無酸素化時を中心として観測しているため、St.8においてもSt.99同様にMKが支配的であった。MKは9月に最大をとっており、2009年では9月以降のMKは遡減していた。UQは2009年10月観測時に急増が見られる。2009年、2010年ともにその急増時を除いては夏季から秋季にかけてUQの遡増が見られた。UQ-8が優先種として存在し、2009年秋季はUQ-9が優先種であった。

UQを含有する好気性細菌の内、二酸化炭素を炭素源とする独立栄養細菌である硝化細菌(アンモニア酸化細菌、亜硝酸酸化細菌)等には、有機物を炭素源とするものがあり、従属栄養細菌である嫌気性細菌と比較して増殖速度が遅く、DO等環境の変化への応答が遅くなると考えられている。以上のことより、例えば2009年10月16日のSt.8に見られる様なUQの急増について見ると、底質における増殖ではなく、底質の移動や上層からの供給が考えられる。

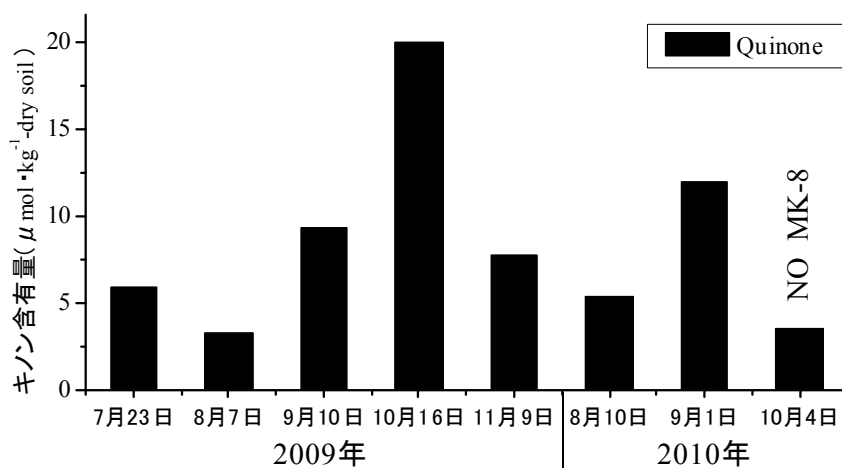


図-4.26 Quinoneの時系列 (St.8)

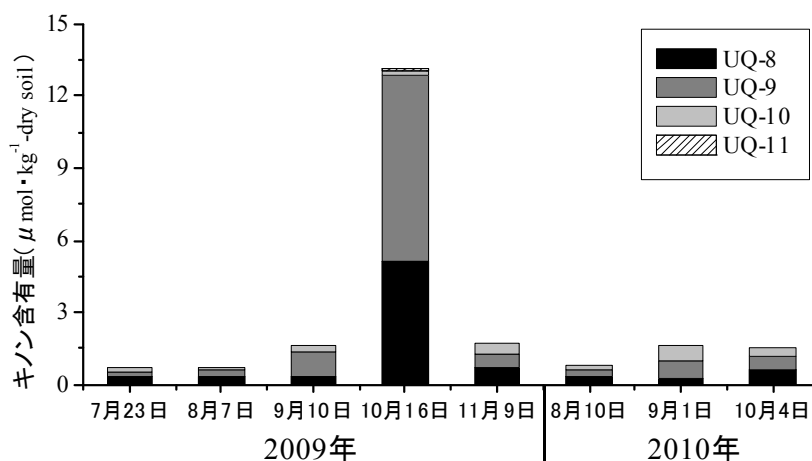


図-4.27 UQの時系列 (St.8)

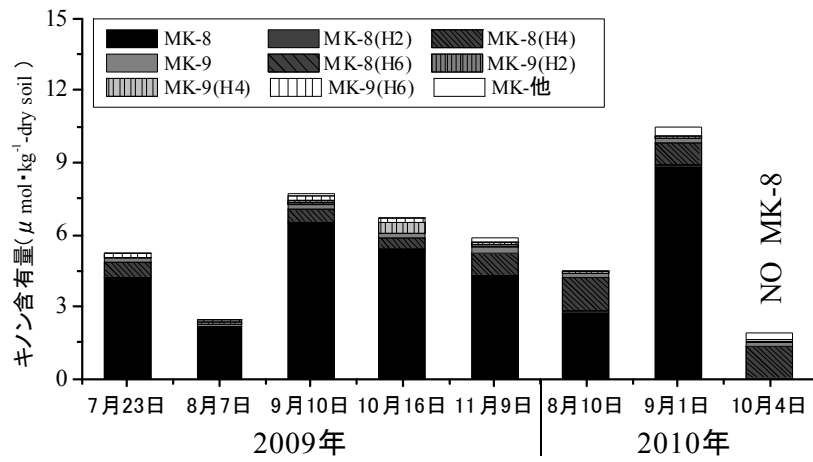


図-4.28 MKの時系列 (St.8)

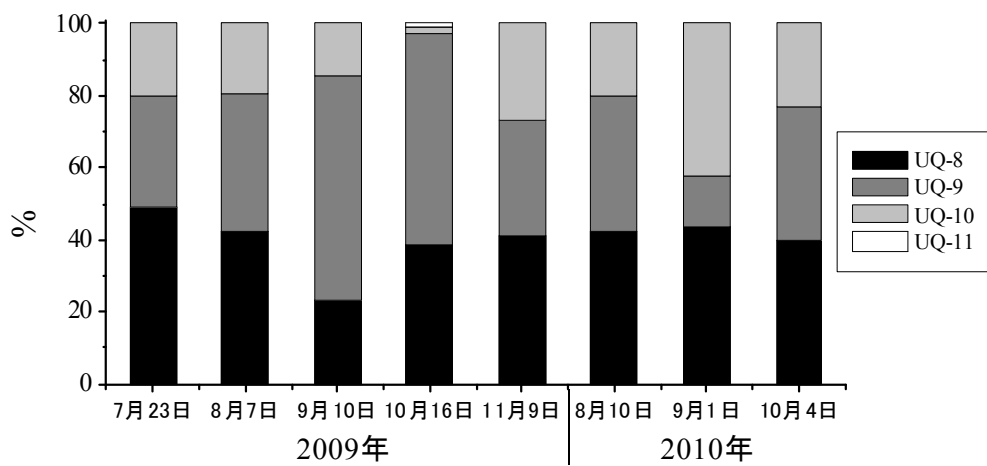


図-4.29 UQの構成比 (st.8)

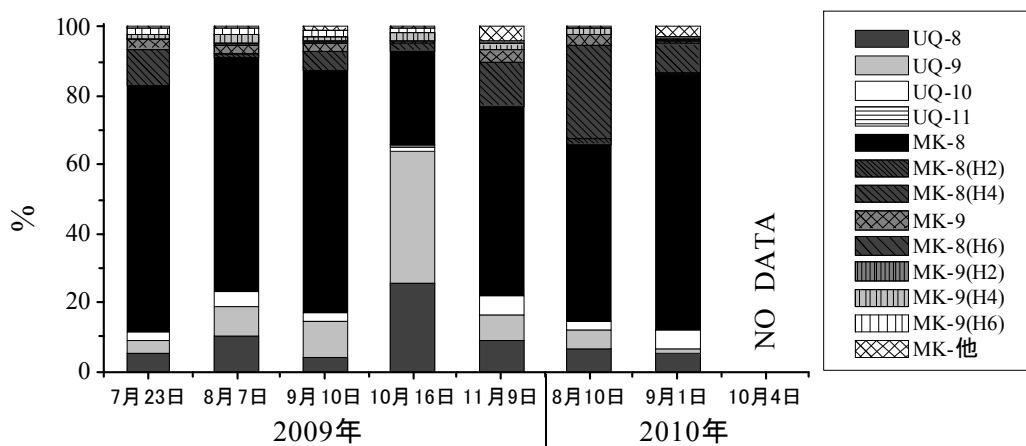


図-4.30 キノン構成比 (st.8)

(1) St.97

St.97 は他地点に比べてキノン量が少なかった。微生物量自体が少ないものと考えられる。UQ では腸内菌等が保有する UQ-9 が検出されなかった。貧酸素化している夏季の MK は他地点と同程度の値であった。しかし DO 回復が進んだ秋季の MK は大きく減少していた。

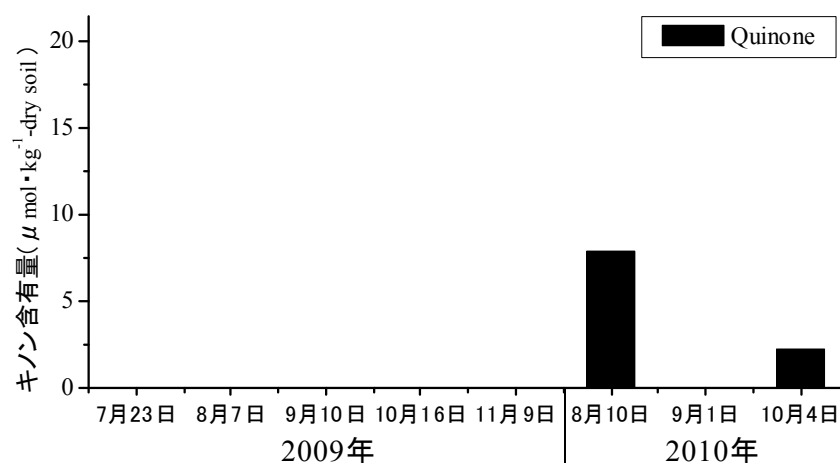


図-4.31 Quinone の時系列 (St.97)

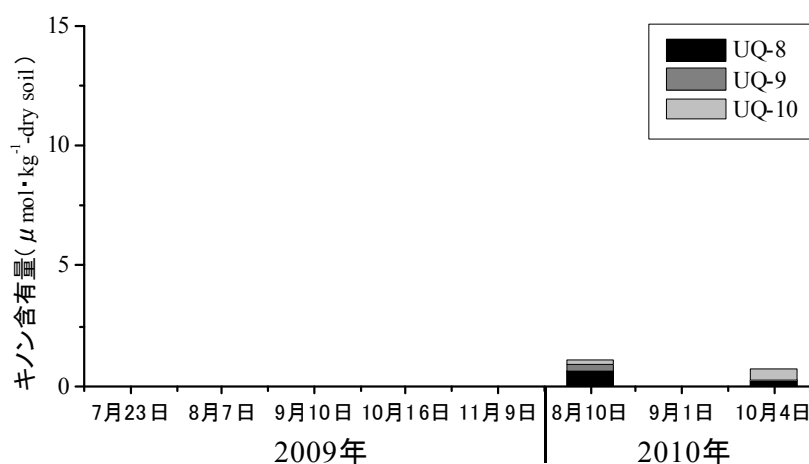


図-4.32 UQ の時系列 (St.97)



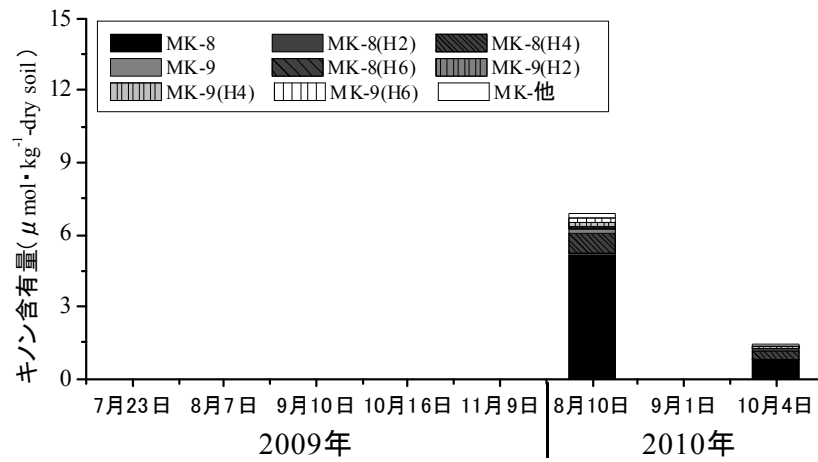


図-4.33 MKの時系列 (St.97)

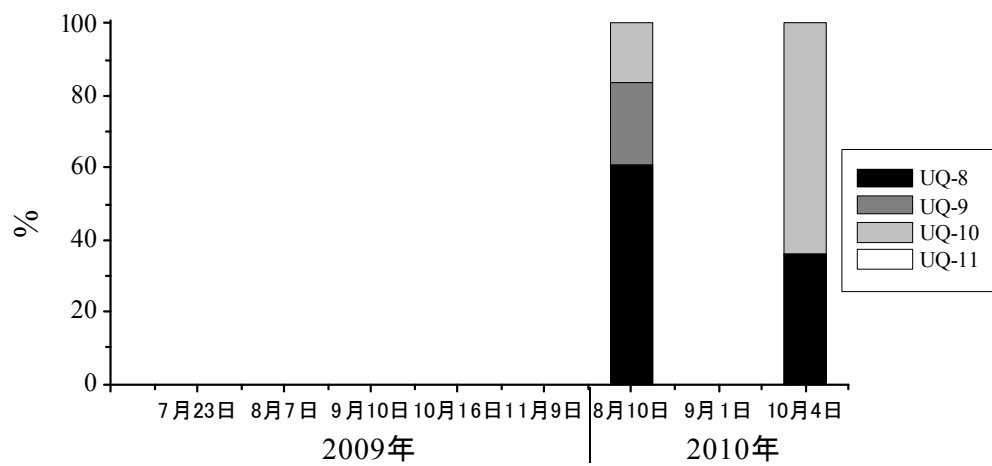


図-4.34 UQ 構成比 (st.97)

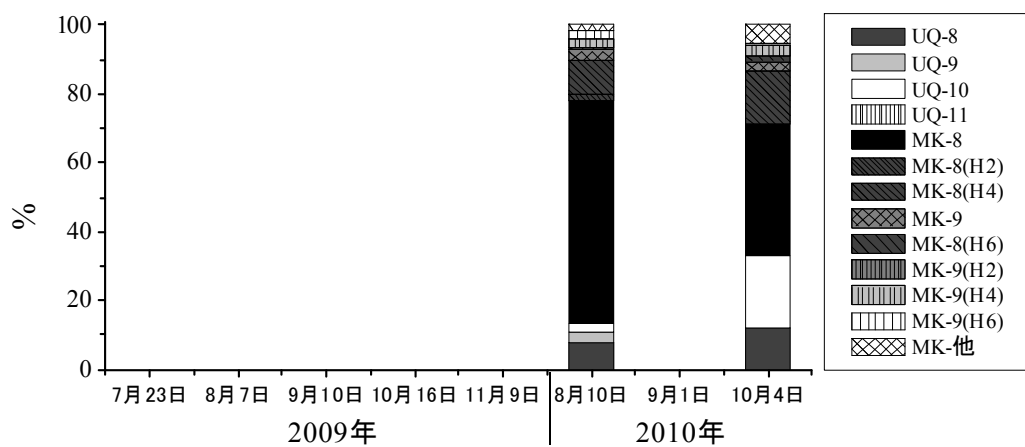


図-4.35 キノン構成比 (st.97)

(1) St.E

他地点に比べて UQ 量が非常に多かった。青潮を確認した 2009 年 9 月 3 日時はそれに対応して UQ 量は急減した。2010 年の観測結果はマイクロバブル放出口 (0m) とその影響を受けない地点 (Blank) の結果である。その結果は似たような地点であるが構成比が異なり、特に UQ-8 の量が大きく異なっていた。その他水質の分析結果から、底質環境の変動の大きい St.E において多少の地点の違いによっても、底質微生物群集構造が違ふことが考えられる。また一回のみのため、かなりの憶測ではあるが、次のようなことも考えられる。UQ-8 は好気性のみならず、通性の細菌種を含んでいるため、マイクロバブルによりつくりだされた微好気的環境に適応できる種が存在または増殖していることが考えられる。

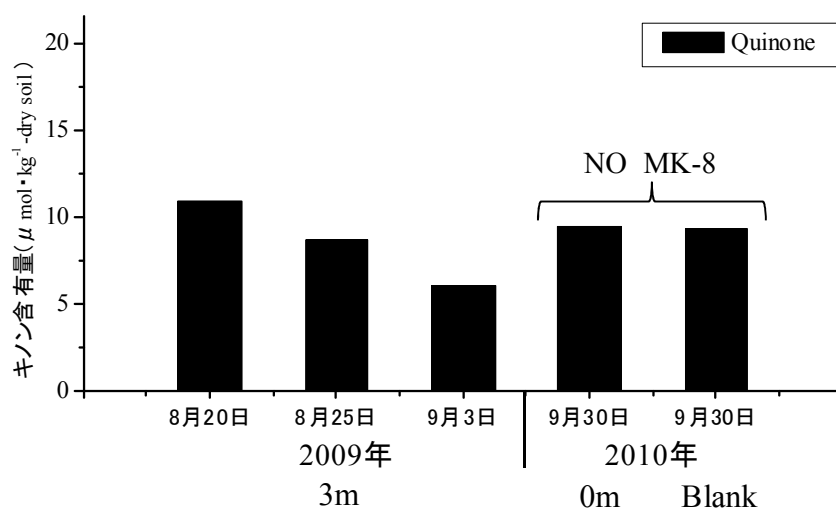


図-4.36 Quinone の時系列 (St.E)

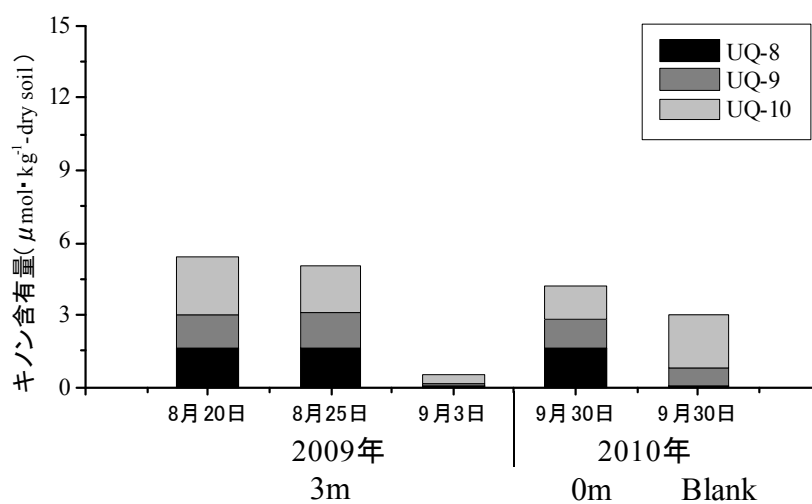


図-4.37 UQ の時系列 (St.E)

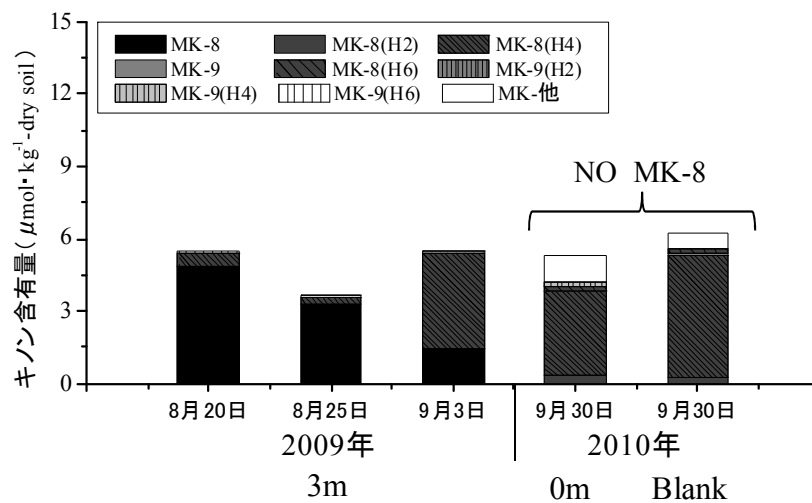


図-4.38 MKの時系列 (St.E)

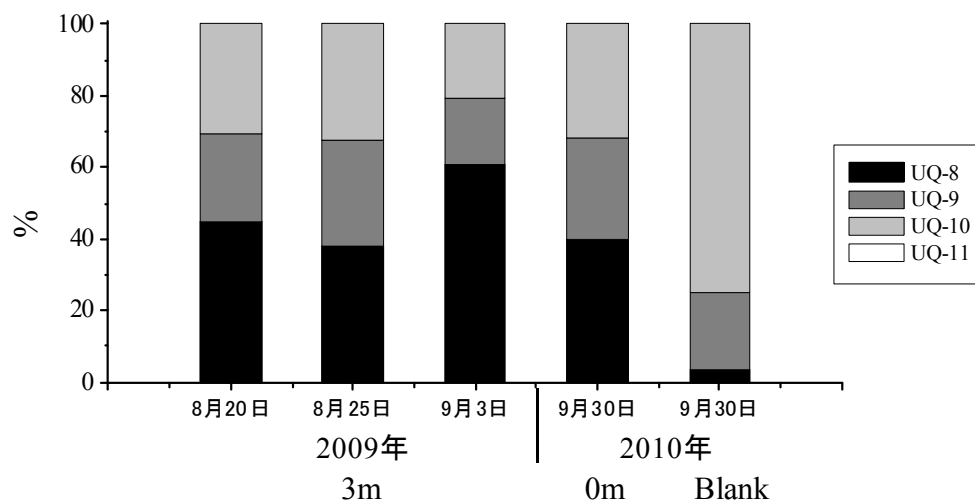


図-4.39 UQ 構成比 (st.E)

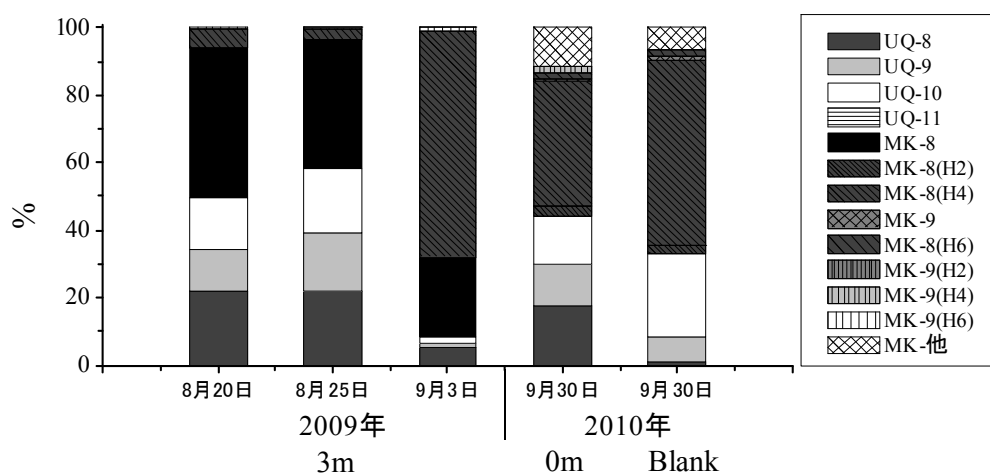


図-4.40 キノン構成比 (st.E)

## 4.2.2 CN比

各観測点で採取した底質サンプルの表層 5mm 部分の有機物量分析結果を以下に示す。

湾内各地点の有機物内全炭素と全窒素に観測期間を通して、大きな差や変化は見られな  
いが、St.E で比較的値が大きく、変化も大きかった。これは底質環境の変化が大きいことを  
表している。反対に対象地点間では St.99 で最も低い傾向を示した。浚渫窪地内の鉛直混合  
は弱く、有機物の供給量が他地点に比べて少ないためであると考えられる。同じ嫌氣的環  
境下であり、浮泥質である St.99 と St.E に有機物量での差が見られた。また湾内 3 地点の全  
炭素と河川河口部 (St.E) の平均値はそれぞれ 2.64, 3.99 と差があった。分散分析を行った  
結果、P 値は  $4.67 \times 10^{-6}$  でこの差は有意であった。

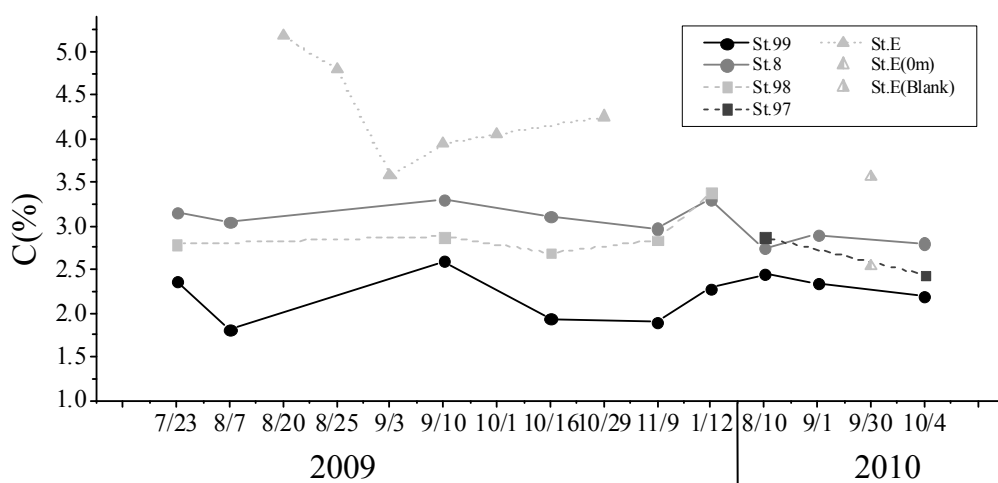


図-4.41 各観測点における全炭素有機物の時系列変化

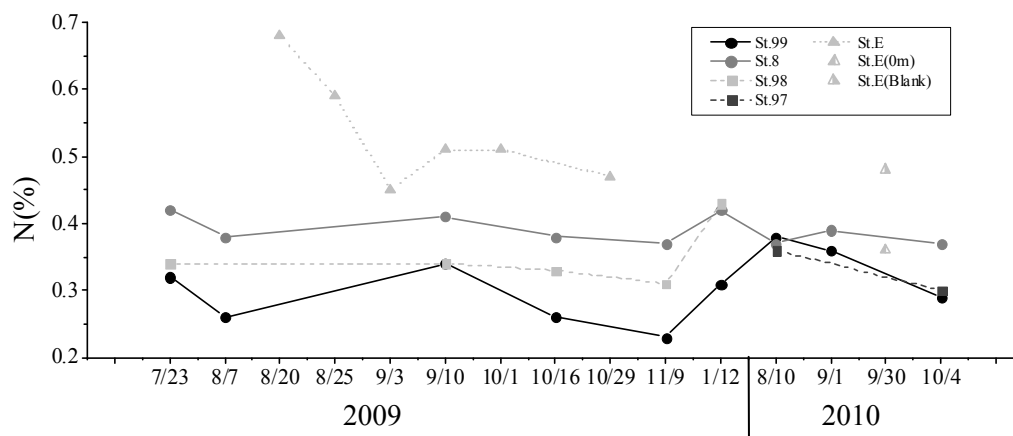


図-4.42 各観測点における全窒素有機物の時系列変化

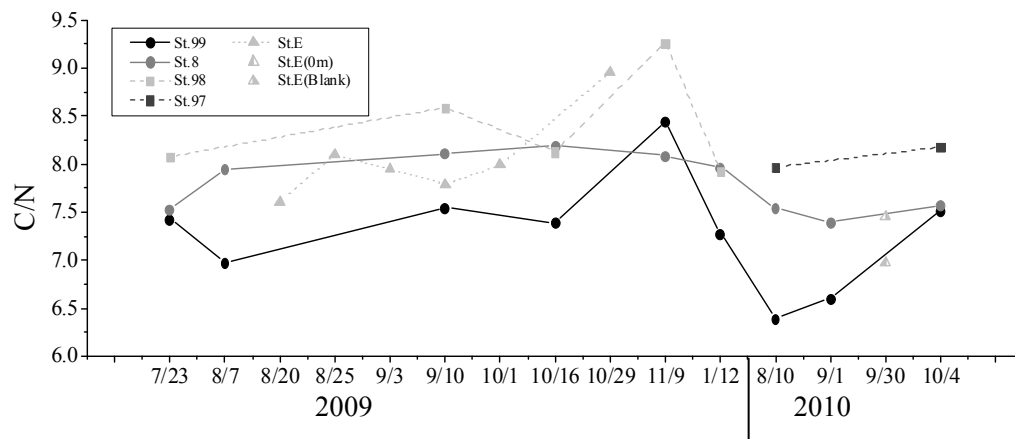


図-4.43 各観測点における CN 比の時系列変化

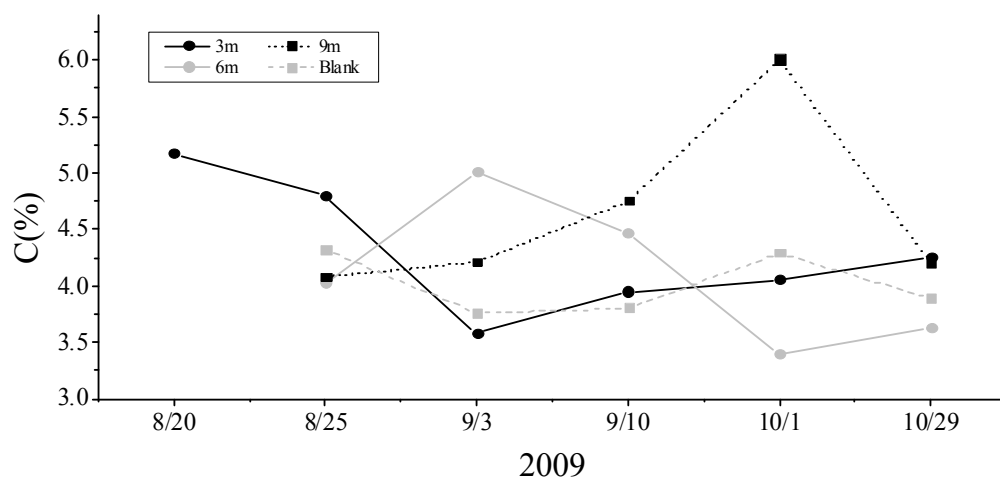


図-4.44 海老川河口における全炭素有機物の時系列変化

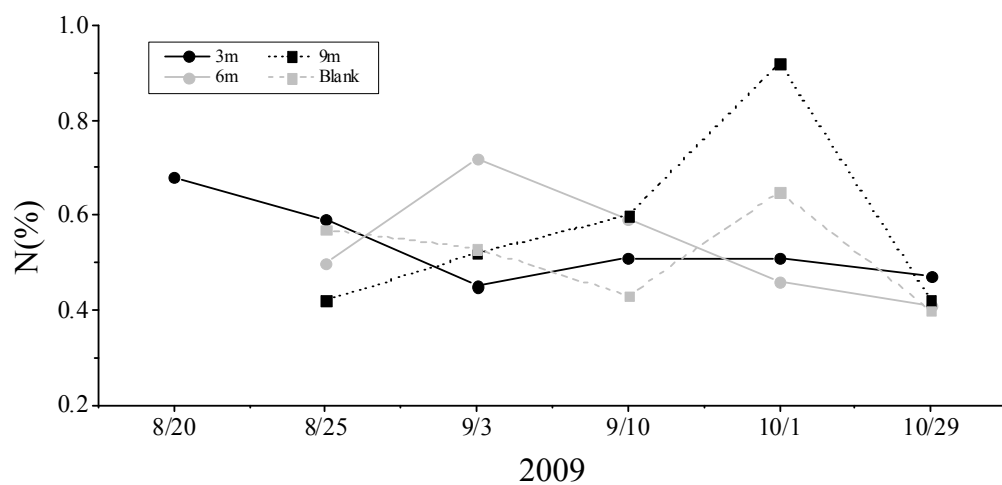


図-4.45 海老川河口における全窒素有機物の時系列変化

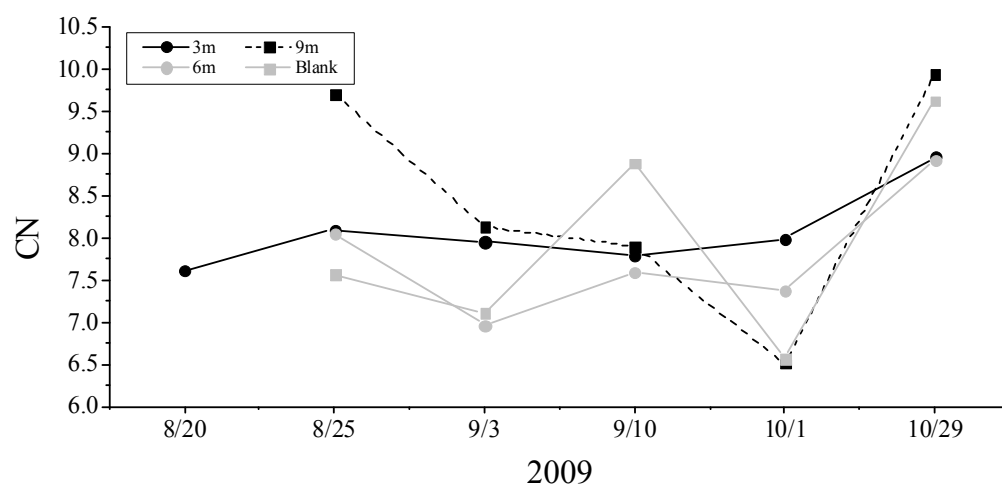


図-4.46 海老川河口における C/N 比の時系列変化

### 4.2.3 粒度分布

湾内各地点の粒度分析結果を以下に示す。湾内の粒度分布の傾向は、どの地点においてもほぼシルト質で構成され、大きな違いは見られなかった。St.98 は他地点に比べて、わずかながらより細かな成分が見られることがあった。

表-4.4 粒径定義表

d(mm)	16	8	4	2	1	1/2	1/4	1/8	1/16	1/32	1/64	1/128	1/256	1/512
φ	-4	-3	-2	-1	0	1	2	3	4	5	6	7	8	9
堆積物	礫				極粗	粗	中	細	極細	シルト			粘土	
					砂					泥				

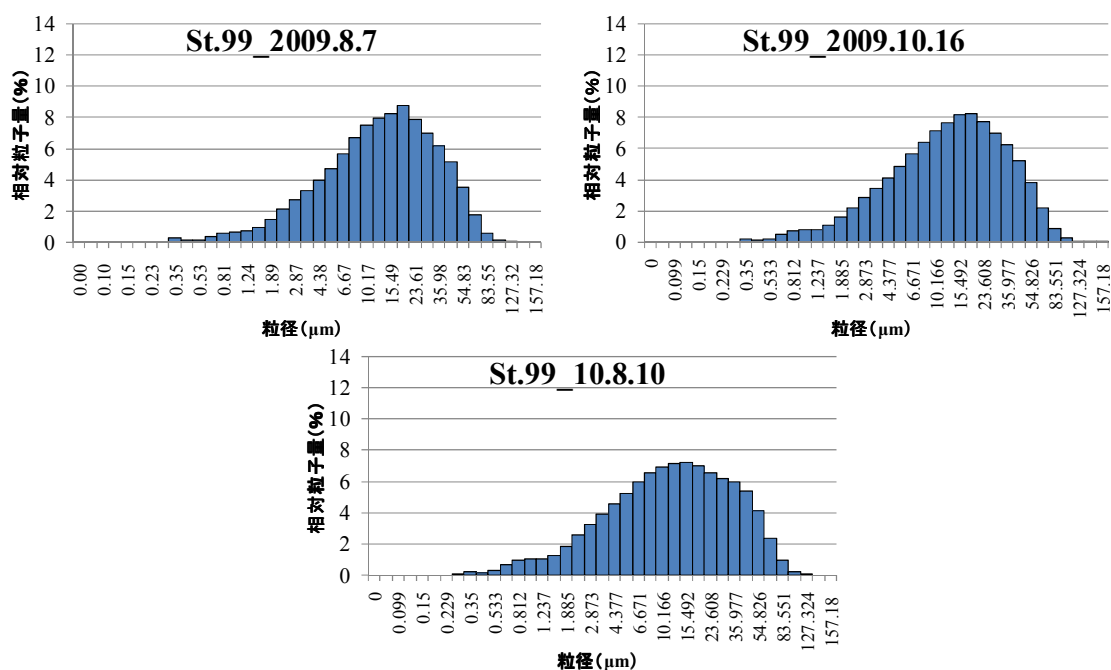


図-4.47 St.99 の粒度分布図

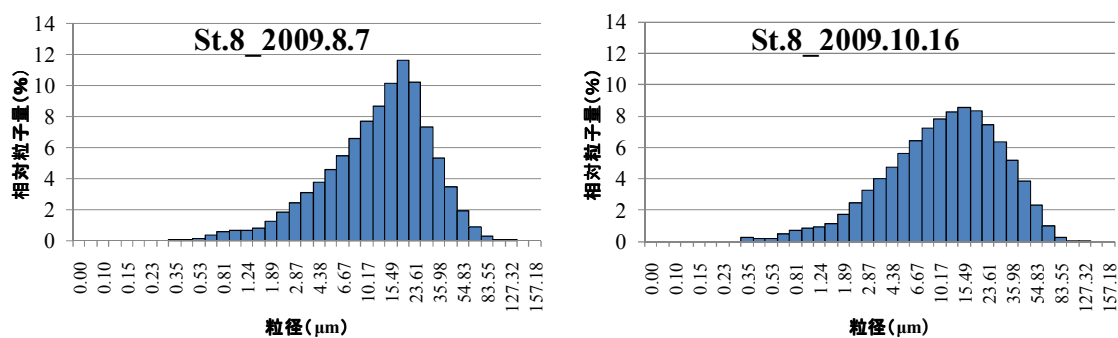


図-4.48 St.8 の粒度分布

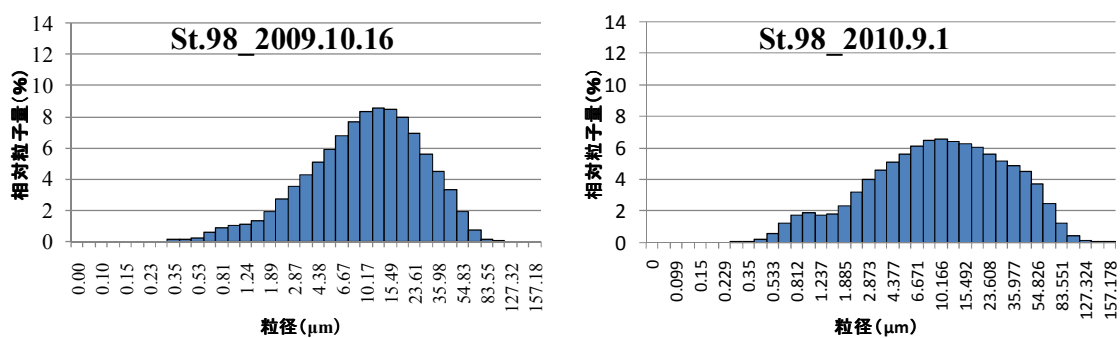


図-4.49 St.98 の粒度分布

表-4.5 中央粒径

		2009		2010	
		8月7日	10月16日	8月10日	9月1日
st.99	φ	6.34	6.33	6.48	
	D <sub>50</sub>	12.37	12.43	11.20	
st.8	φ	6.28	6.56		
	D <sub>50</sub>	12.91	10.61		
st.98	φ		6.68		7.47
	D <sub>50</sub>		9.73		5.64

φ : メディアン径

D<sub>50</sub> : μmm



## 4.2.4 栄養塩濃度

### (1) 各栄養塩濃度分布

各地点の栄養塩濃度の分布を以下に示す。

硝酸態窒素、亜硝酸態窒素はどの地点においても、貧酸素化、無酸素化している夏季の底層ではほぼ無であるか、ごくわずかな量でしか存在しなかった。特に2010年の各地点の硝酸態窒素は、2009年に比べ約10分の1とごく微量であった。成層弱化解期の遷移過程では、夏季に比べわずかに高い濃度が確認された。

反対に底層におけるアンモニア態窒素はどの地点においても2009年に比べ、2010年が高い濃度を示していた。より大きな溶出が起きていると考えられた。存在量の高い9月までのSt.8, St.98, St.97底層におけるアンモニア態窒素濃度は0.1mg/lから高くても0.3mg/lであるのに対し、St.99底層では、0.5mg/lから1.8mg/l程度とかなりの差が見られた。溶出実験では5, 6倍程度の差が見られたことと一致していた。St.99は鉛直混合の弱さから希釈されずに蓄積していること要因のひとつである。

St.8では2009年10月観測時に上層から特に底層にかけて比較的高濃度硝酸塩が確認された。しかし11月観測時には再び低い濃度であった。

St.98では2009年10月観測時に上層から底層にかけての溶存態、懸濁態窒素ともに高い濃度分布が見られ、全窒素については底層で高濃度を示していたため、上層から底層への混合が見られた。

2010年のSt.99の中層における全窒素、全リンは欠測である。

### ①St.99 (2009年)

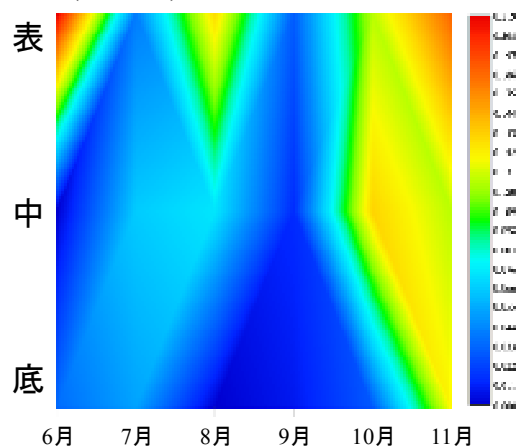


図-4.50 硝酸態窒素の時系列 (St.99)

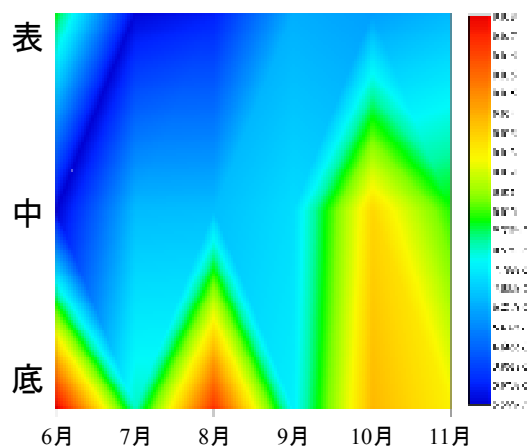


図-4.51 亜硝酸態窒素の時系列 (St.99)

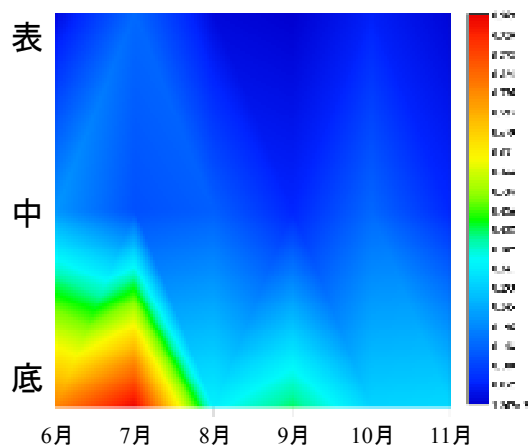


図-4.52 アンモニア態窒素の時系列 (St.99)

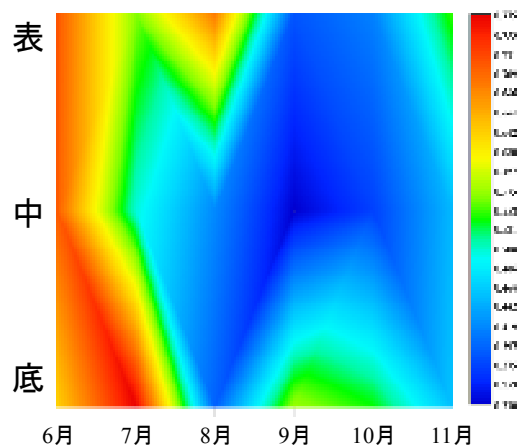


図-4.53 全窒素の時系列 (St.99)

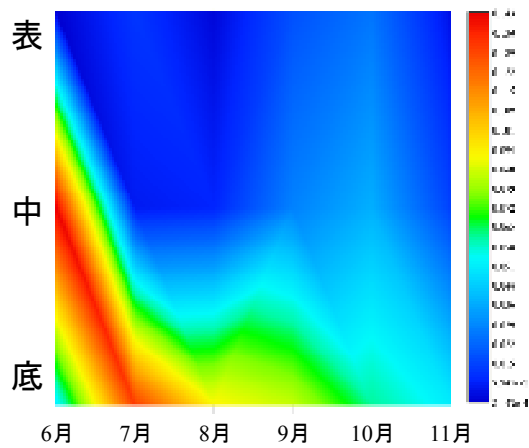


図-4.54 リン酸態リンの時系列(St.99)

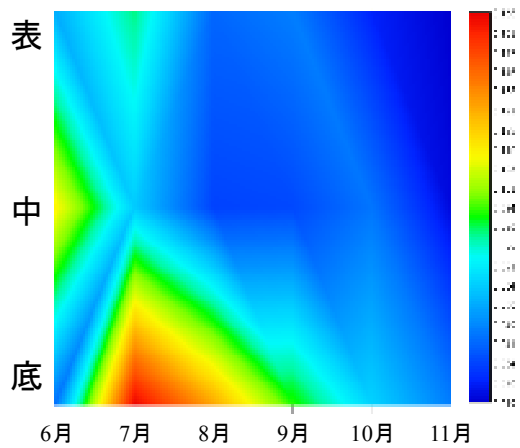


図-4.55 全リンの時系列 (St.99)

②St.99 (2010 年)

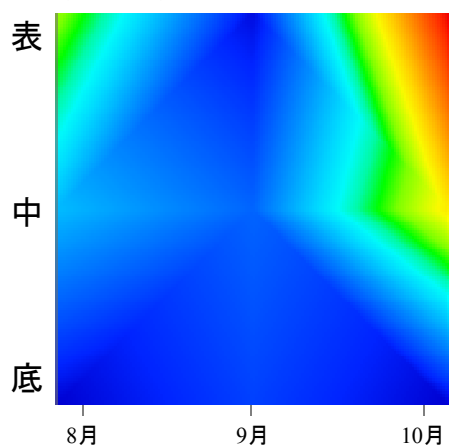


図-4.56 硝酸態窒素の時系列 (St.99)

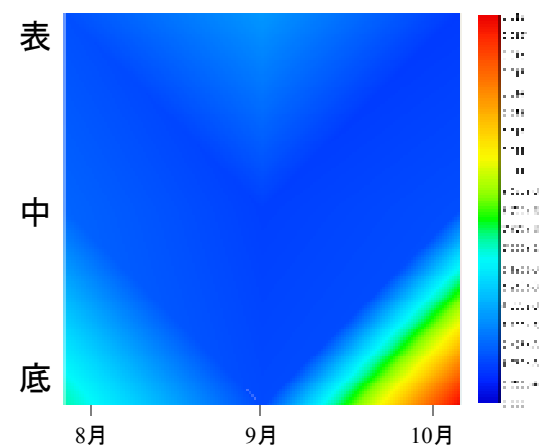


図-4.57 亜硝酸態窒素の時系列 (St.99)

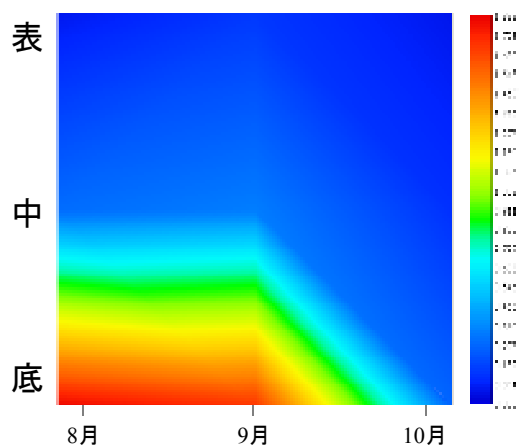


図-4.58 アンモニア態窒素の時系列 (St.99)

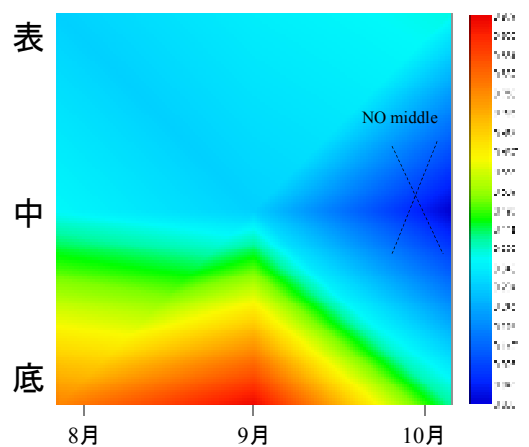


図-4.59 全窒素の時系列 (St.99)

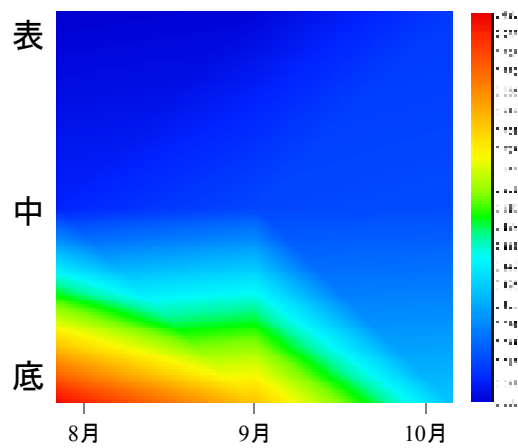


図-4.60 リン酸態リンの時系列 (St.99)

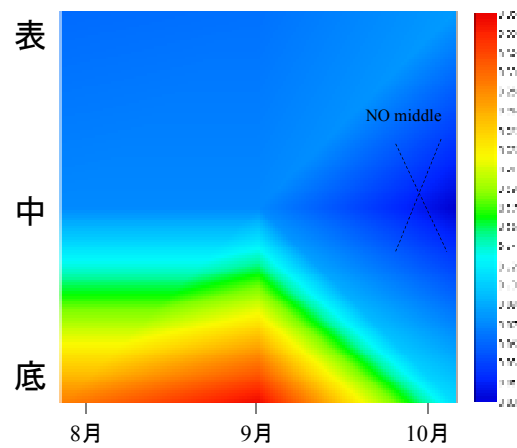


図-4.61 全リンの時系列 (St.99)

③St.8 (2009 年)

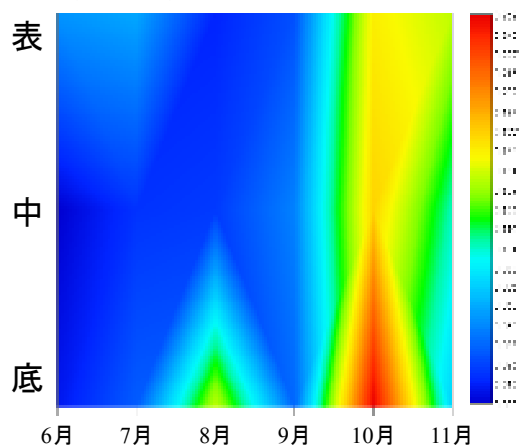


図-4.62 硝酸態窒素の時系列 (St.8)

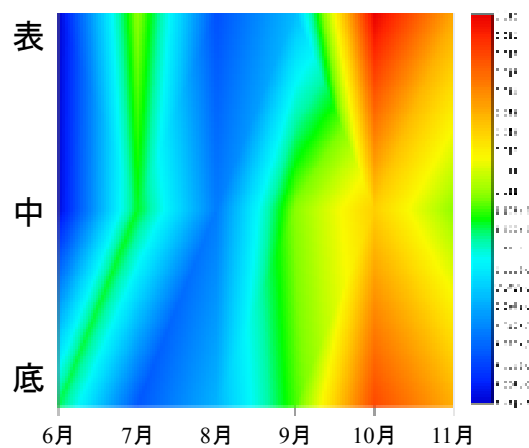


図-4.63 亜硝酸態窒素の時系列(St.8)

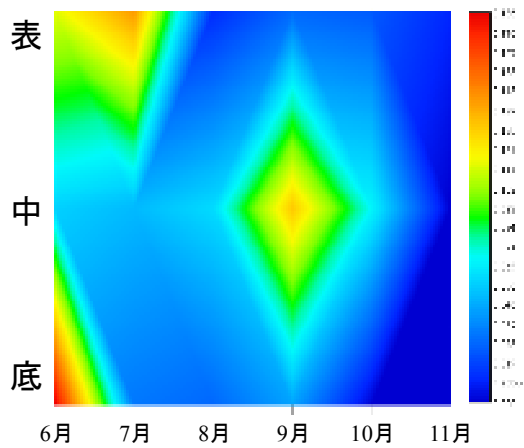


図-4.64 アンモニア態窒素の時系列 (St.8)

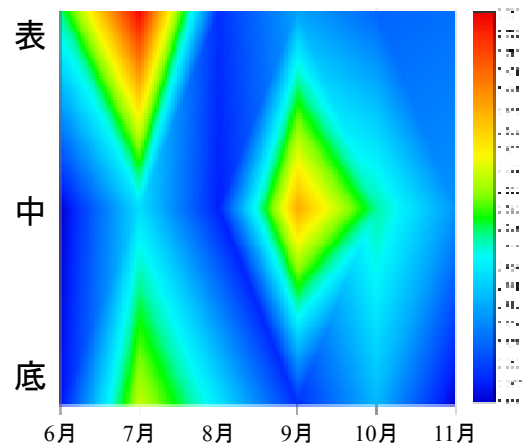


図-4.65 全窒素の時系列 (St.8)

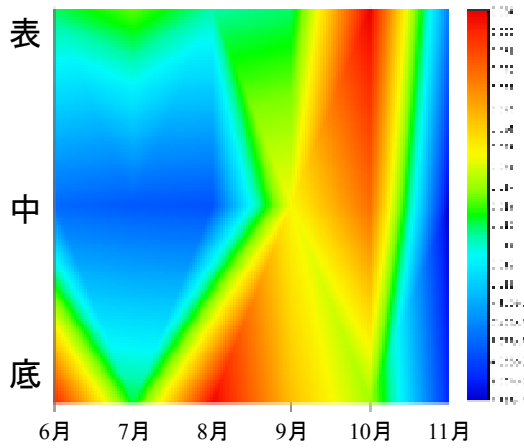


図-4.66 リン酸態リンの時系列 (St.8)

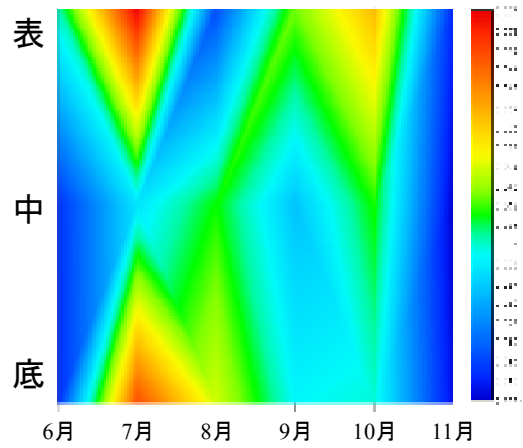


図-4.67 全リンの時系列 (St.8)

④St.8 (2010 年)

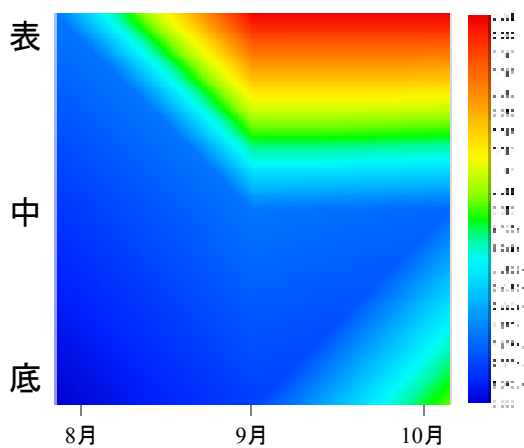


図-4.68 硝酸態窒素の時系列 (St.8)

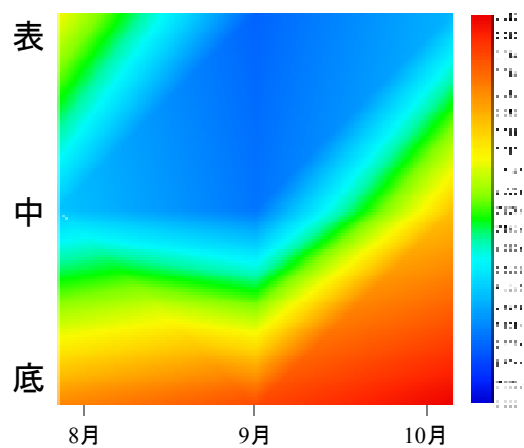


図-4.69 亜硝酸態窒素の時系列 (St.8)

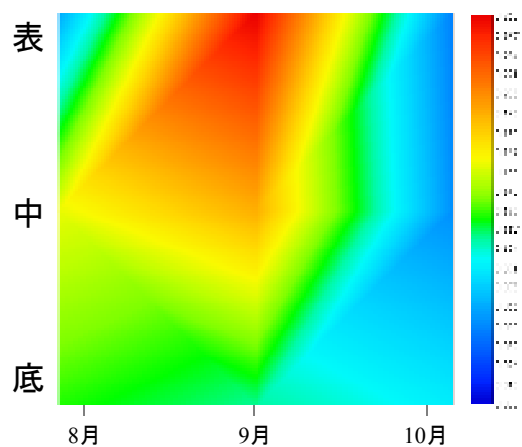


図-4.70 アンモニア態窒素の時系列 (St.8)

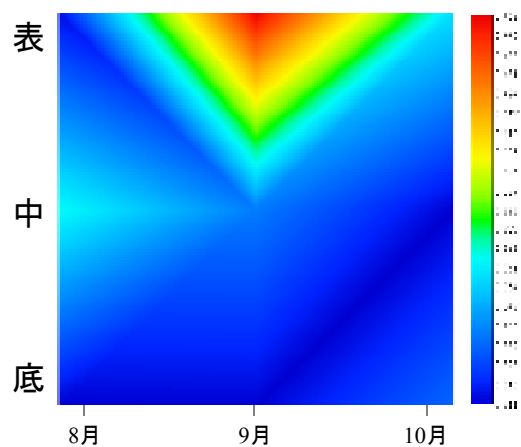


図-4.71 全窒素の時系列 (St.8)

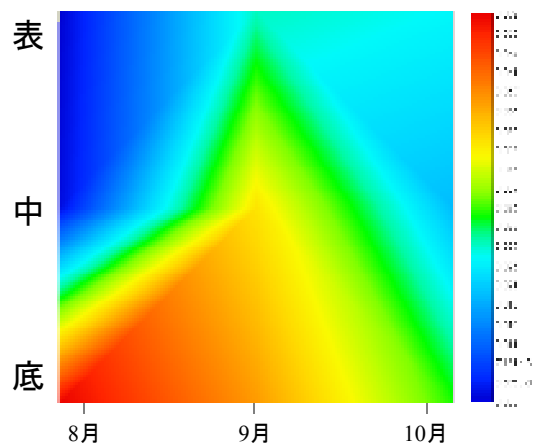


図-4.72 リン酸態リンの時系列 (St.8)

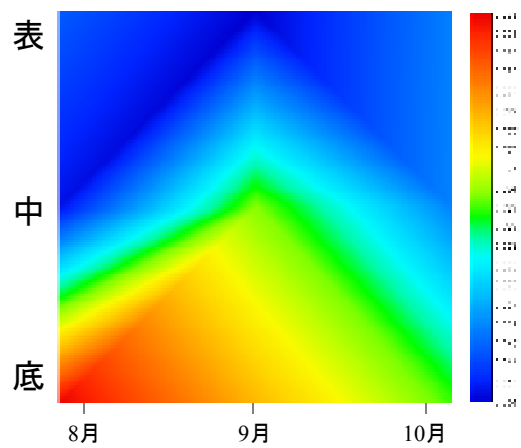


図-4.73 全リンの時系列 (St.8)

⑤St.98 (2009 年)

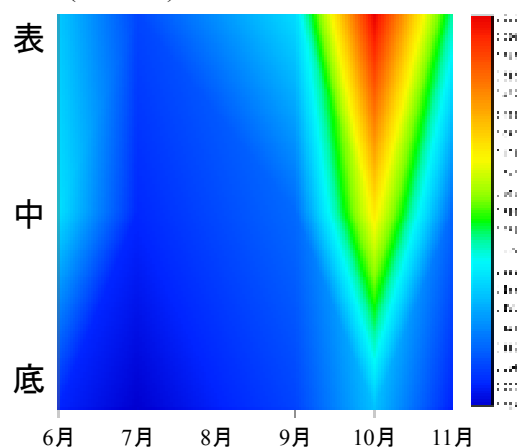


図-4.74 硝酸態窒素の時系列 (St.98)

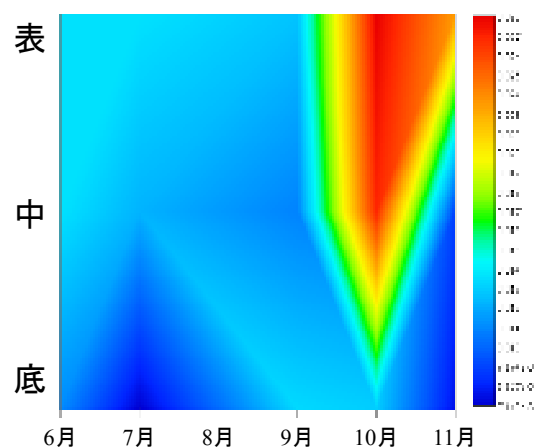


図-4.75 亜硝酸態窒素の時系列 (St.98)

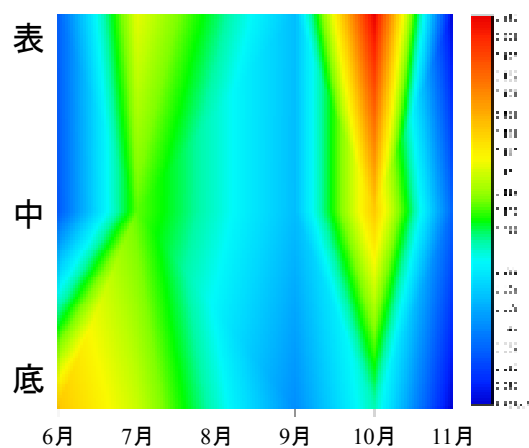


図-4.76 アンモニア態窒素の時系列 (St.98)

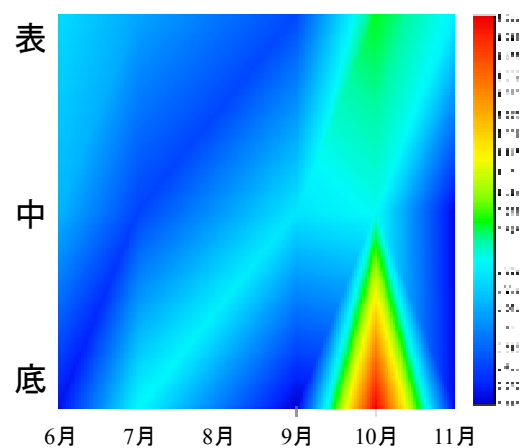


図-4.77 全窒素の時系列 (St.98)

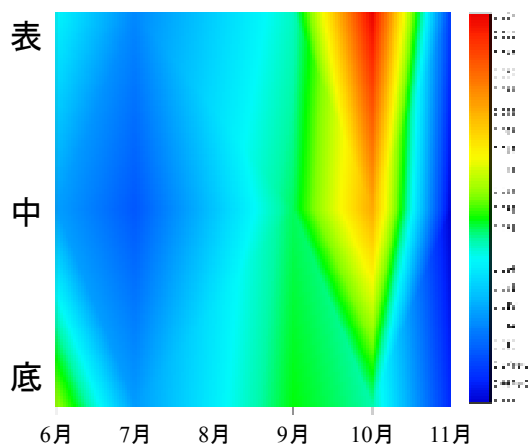


図-4.78 リン酸態リンの時系列 (St.98)

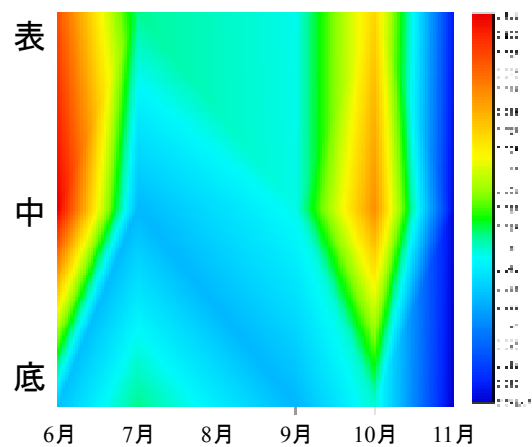


図-4.79 全リンの時系列 (St.98)

⑥St.97 (2010 年)

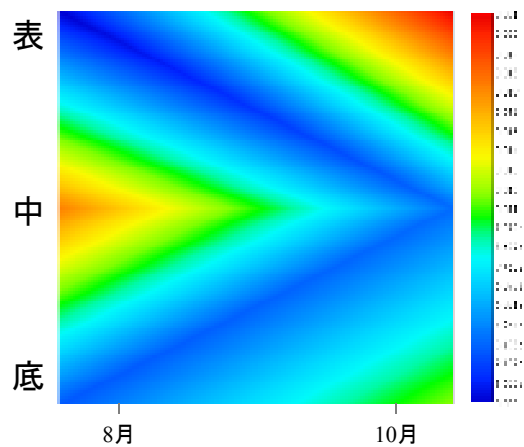


図-4.80 硝酸態窒素の時系列 (St.97)

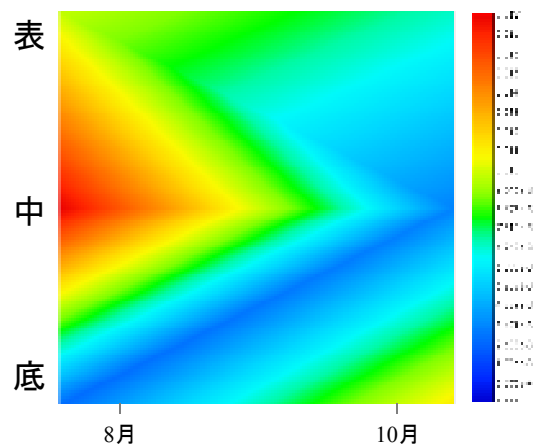


図-4.81 亜硝酸態窒素の時系列 (St.97)

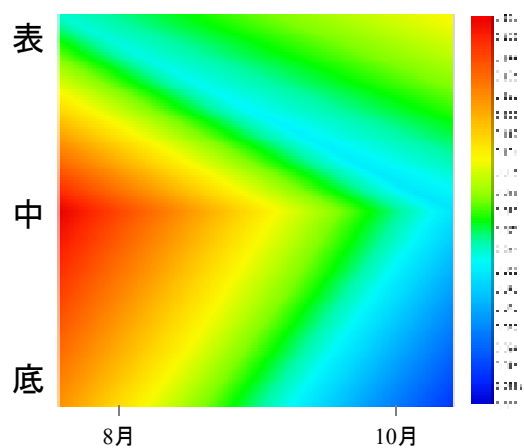


図-4.82 アンモニア態窒素の時系列 (St.97)

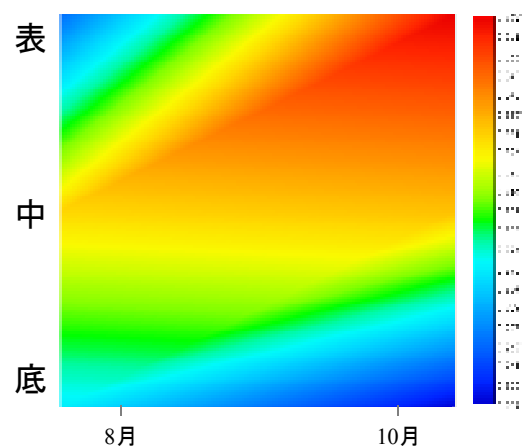


図-4.83 全窒素の時系列 (St.97)

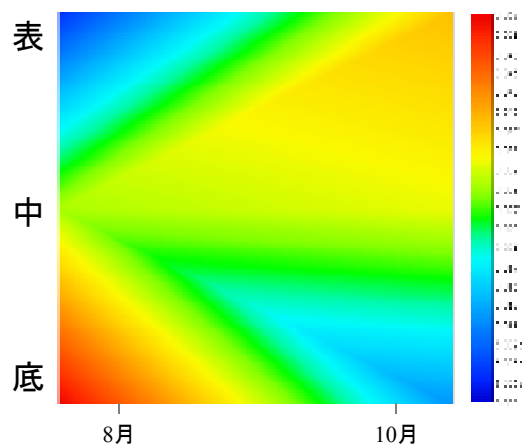


図-4.84 リン酸態リンの時系列 (St.97)

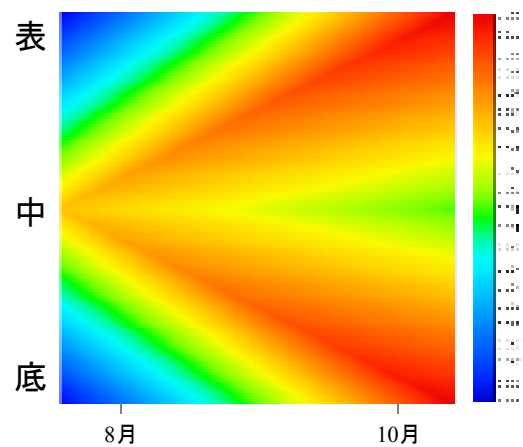


図-4.85 全リンの時系列 (St.97)

## (2) 底層における栄養塩濃度

海水中栄養塩濃度分析結果を以下に示す。

St.99 では底層水中におけるリン酸態リンやアンモニア態窒素が高い割合を占めており、溶出実験結果も踏まえ、底泥直上水中への溶出が非常に大きいことが推察される。2010 年は2009 年よりも強い成層が見られたこともあり、夏季は2 倍以上の濃度であった。

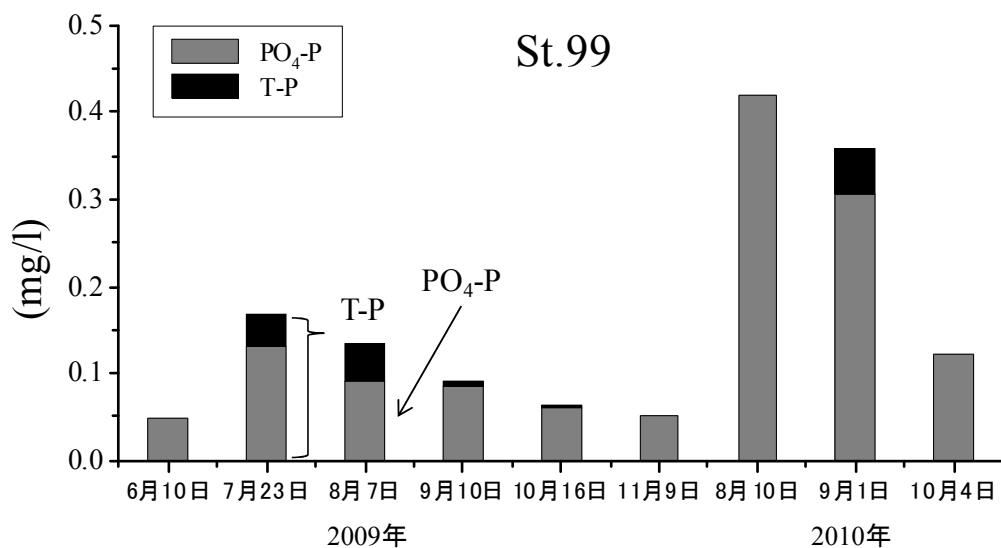


図-4.86 底層のリン酸態リンと T-P の時系列変化 (St.99)

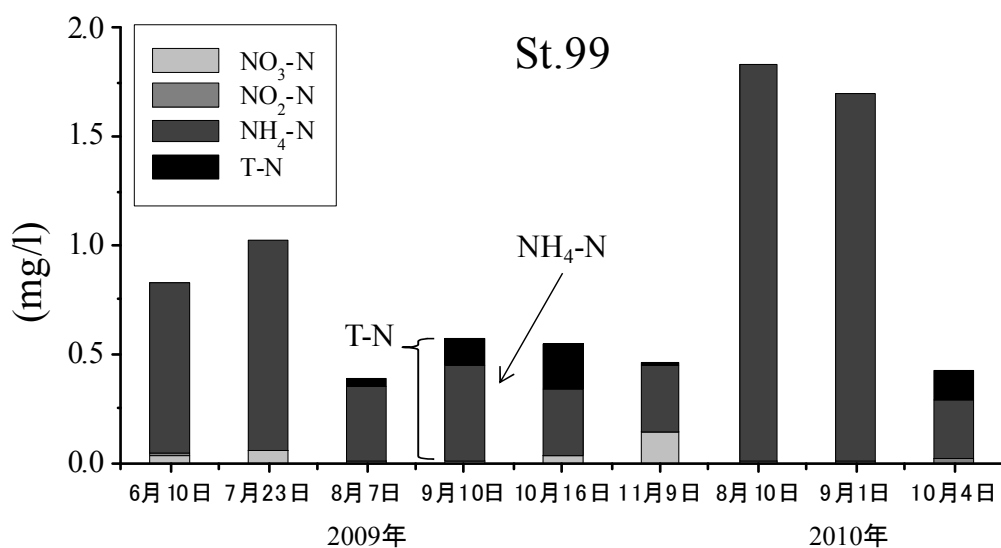


図-4.87 底層の各溶存態窒素項目と T-N の時系列変化 (St.99)



St.8 は St.99 と同様に、2009 年に比べて高いリン酸態リン濃度が見られた。窒素に関しては、2009 年に見られた硝酸態窒素が 2010 年ではほぼ存在しなく、アンモニア態窒素が高い割合で存在していた。窒素総量に大きながなく、他地点 (St.99 の底層を除く) に比べ傾向にあった。

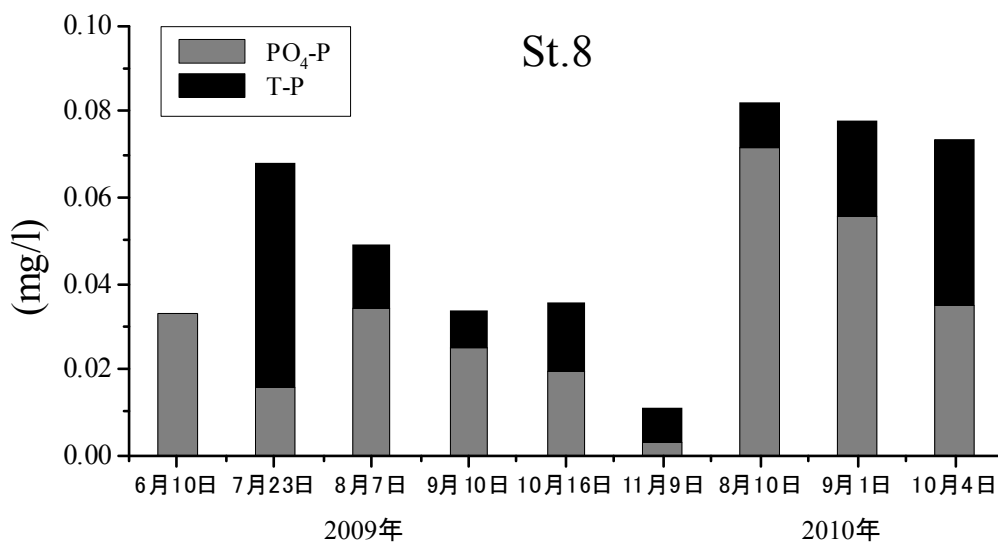


図-4.88 底層のリン酸態リンと T-P の時系列変化 (St.8)

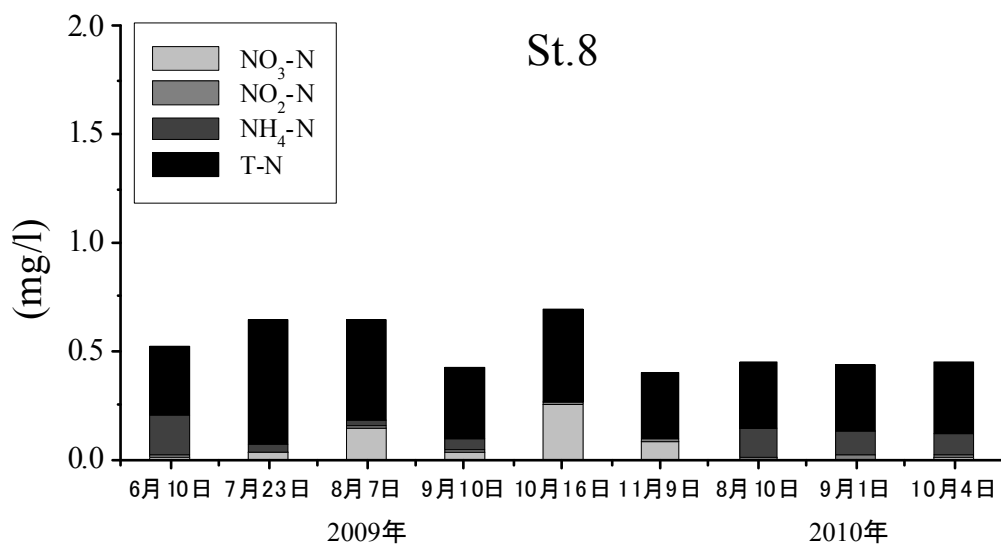


図-4.89 底層の各溶存態窒素項目と T-N の時系列変化 (St.8)

St.98 の溶存態の栄養塩は St.8 と同程度の値を示した。密度成層解消期である 2009 年 10 月観測時に見られる懸濁態窒素の急増は、2 日前の降雨に対応しており、河川起源のものが考えられる。この変動は St.8 よりも底層への供給され易さを表している。

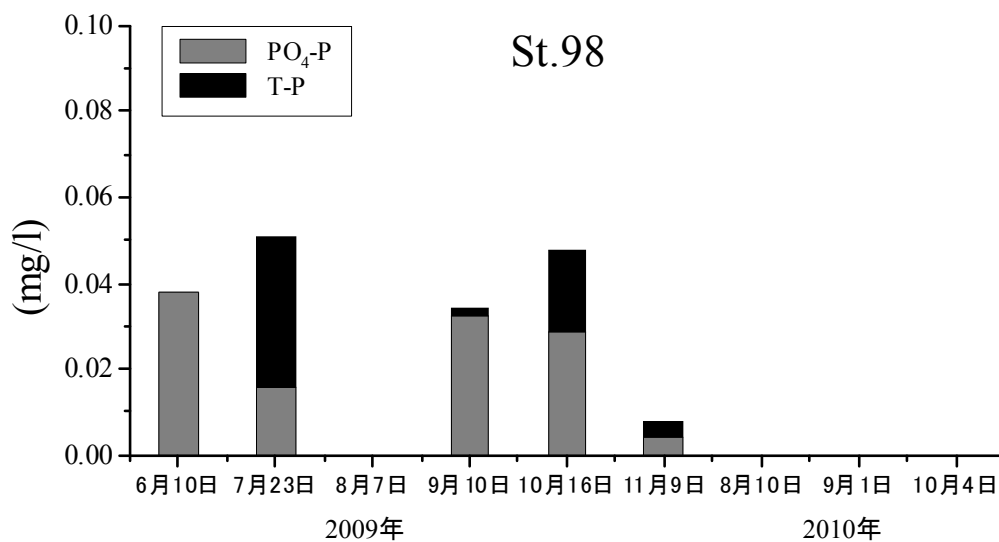


図-4.90 底層のリン酸態リンと T-P の時系列変化 (St.98)

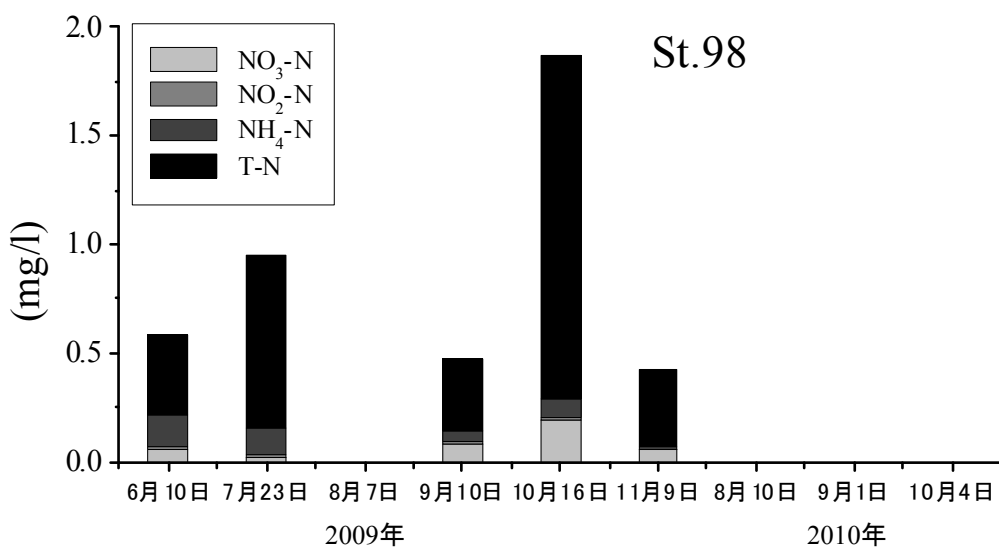


図-4.91 底層の各溶存態窒素項目と T-N の時系列変化 (St.98)

St.97 は同時期のお他地点に比べ、若干低い値を示したが、2009 年時の他地点と比較すると高濃度の傾向を示していた。

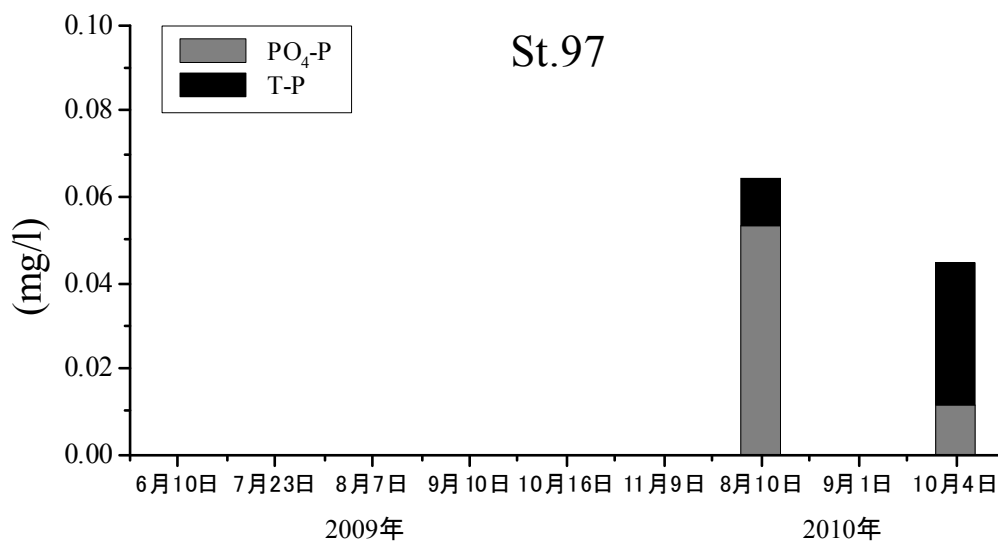


図-4.92 底層のリン酸態リンと T-P の時系列変化 (St.97)

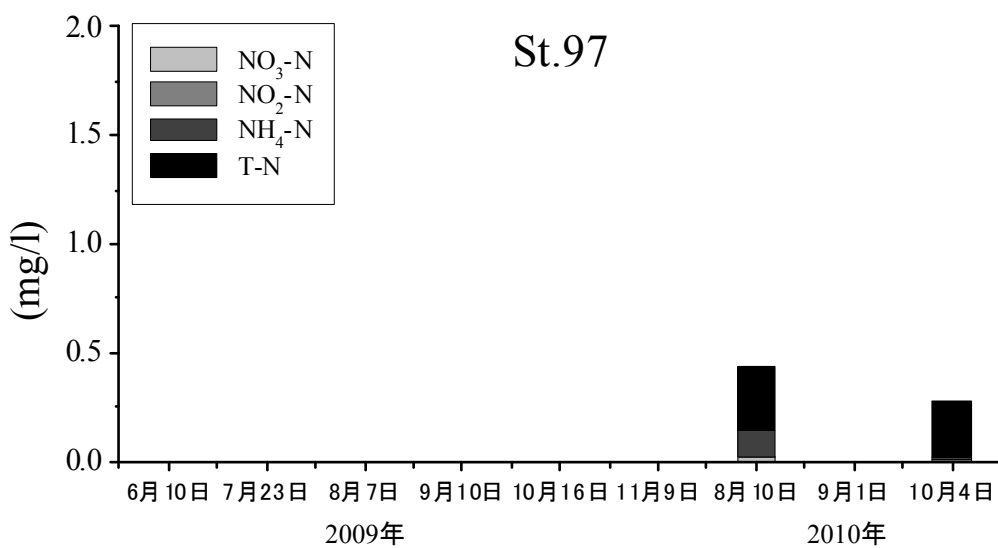


図-4.93 底層の各溶存態窒素項目と T-N の時系列変化 (St.97)

#### 4.2.5 硫化物濃度

底層中内の全硫化物の測定結果を以下に示す．現地測定時に比べ，実験室内測定結果は低い値をとった．これは観測時に硫化水素臭を感じていることから，サンプル採取直後より底層水から時間経過とともに硫化物が揮発し続け，大学内に持ち帰った頃には硫化物量が大きく減少していたことが考えられる．2009年の9月10日，10月16日，10月29日，11月9日，2010年の10月4日は現地測定を行った．

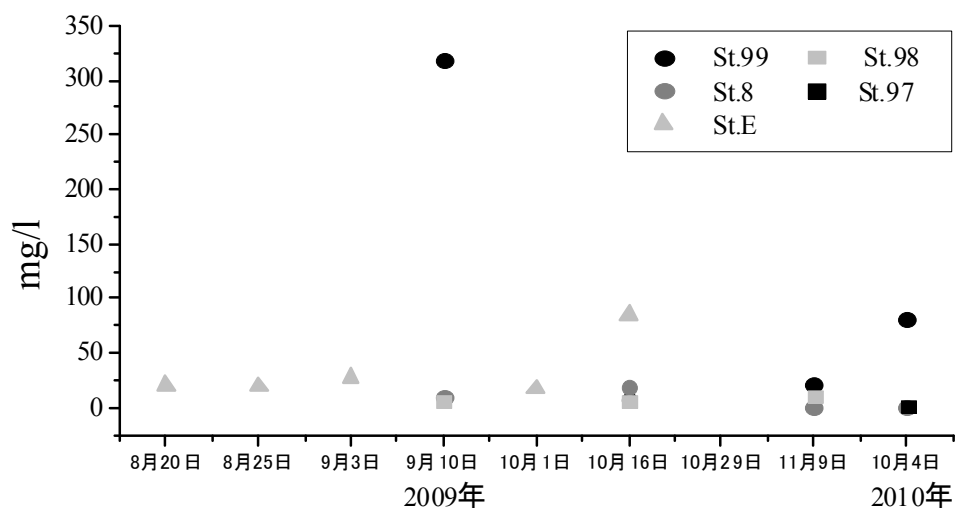


図-4.94 各地点底層水中における全硫化物量

#### 4.2.6 キノンを用いた長期酸素消費実験への考察

長期酸素消費実験に対し、微生物群集がどのように影響を与えているかを考察するため、観測時の底泥表層と長期酸素消費実験後の終了後の底泥表層とキノン種分析し、比較を行った。分析したサンプルは2010年8月10日のSt.97のサンプルである。長期酸素消費実験は2週間程度行い、繰り返しばっ気を行い、底泥に酸素を供給した。

このときのSOCは一度急上昇した後に、減少傾向にある。長期実験結果にて記述した、よく見られる傾向をとっていた。キノン含有量を調べたところ好氣的微生物を表す、UQに量に特に変化が見られなかった。UQの構成比も変わらずであった。一方MKには減少がみられた。好氣的環境へと変わり嫌気性細菌が死滅したことが考えられる。MKは環境の変化によりUQに比べて短時間で大きく変化することが確認された。SOCが減少していく過程はUQの増減によるものではなく、嫌氣的環境の改善により、例えば嫌気下において溶出する栄養塩の化学的酸化による酸素消費等が抑制されつつあると考えられる。

これは長期実験の結果から酸素消費は続けられるため、環境の抜本的な改善は難しいが、嫌氣的環境改善に対し、多少なりと影響を与えていたと考えられる。

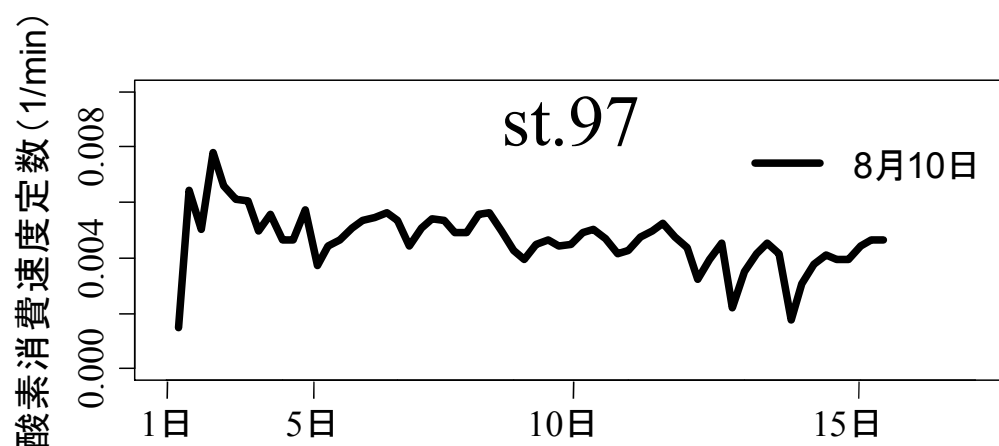


図-4.95 St.97 における長期酸素消費実験結果(2010年8月10日)

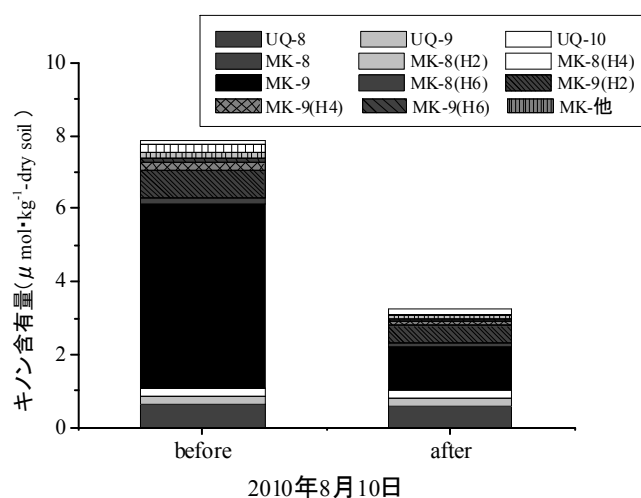


図-4.96 酸素消費実験前後でのキノン変化 (St.97)

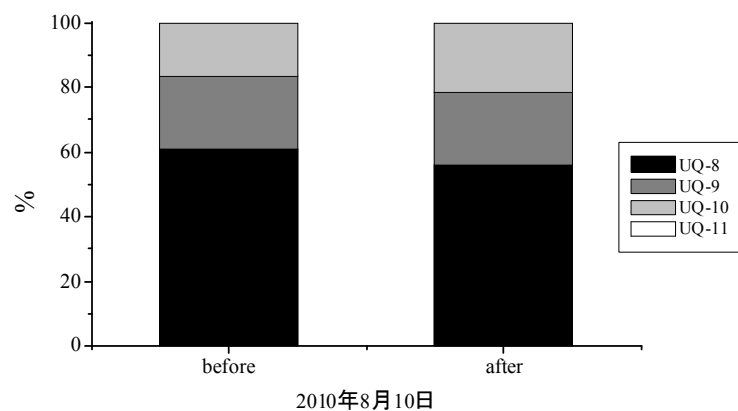


図-4. 97 酸素消費実験前後での UQ 構成比 (st.97)

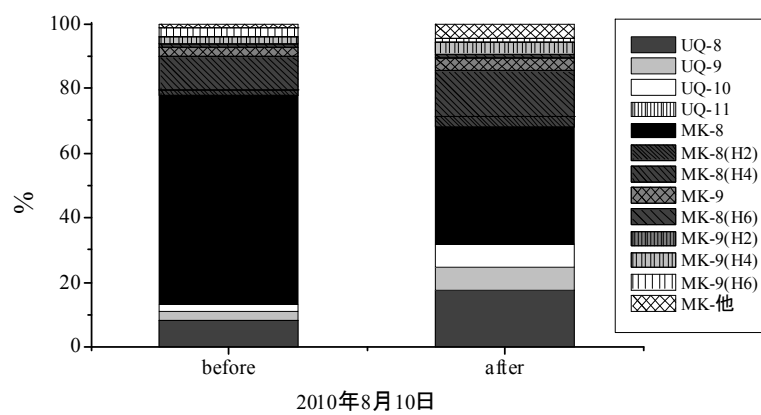


図-4. 98 酸素消費実験前後でのキノン構成比 (st.97)

## 5 観測結果の解析

### 5.1 各水質項目の統計処理

#### 5.1.1 外れ値の検定

キノン分析結果から 2009 年 10 月 16 日の St.8 において UQ-8, UQ-9 急増が見られた。密度成層解消期であることから上層からの供給や他地点からの底質移動、またのその他要因や偶然等考えられるが、原因はわからない。しかしその他結果にこのような急増が見られないため UQ について外れ値の検定を行った。この検定法として、スミルノフ・グラブス検定を用いた。検定条件、手法、結果は以下に示す。

##### (1) 前提と条件

帰無仮説  $H_0$  : 全てのデータは同じ母集団からのものである

対立仮説  $H_1$  : サンプル中の最大値は外れ値である

開始時の自由度 (サンプル数) は 23 で、5%有意水準 ( $\alpha=0.05$ ) とし、片側検定を行った。

##### (2) 手法

式 5.1 とスミルノフ・グラブス検定の有意点を比較し、外れ値かどうかを検定する。帰無仮説が採択されれば、その値を除いた後にもう一度検定を行う。この検定は帰無仮説を棄却するまで繰り返し行う。

$$T_i = \frac{|X_i - \bar{X}|}{\sqrt{U}} \quad (\text{式 5.1})$$

$T_i$  : 検定値

$X_i$  : サンプルの最大測定値

$\bar{X}$  : 標本平均

$U$  : 不偏分散

$T_i \geq t$  のとき、帰無仮説を採択する (外れ値である)。

$T_i < t$  のとき、帰無仮説を棄却する (外れ値でない)。

$t$  : スミルノフ・グラブス検定の有意点

表-5.1 スミルノフ・グラブス検定の有意点

自由度	有意水準 $\alpha$				自由度	有意水準 $\alpha$			
	0.1	0.05	0.025	0.01		0.1	0.05	0.025	0.01
3	1.148	1.153	1.154	1.155	14	2.213	2.372	2.507	2.658
4	1.425	1.463	1.481	1.493	15	2.248	2.409	2.548	2.705
5	1.602	1.671	1.715	1.749	16	2.279	2.443	2.586	2.747
6	1.729	1.822	1.887	1.944	17	2.309	2.475	2.620	2.785
7	1.828	1.938	2.020	2.097	18	2.336	2.504	2.652	2.821
8	1.909	2.032	2.127	2.221	19	2.361	2.531	2.681	2.853
9	1.977	2.110	2.215	2.323	20	2.385	2.557	2.708	2.884
10	2.036	2.176	2.290	2.410	21	2.408	2.580	2.734	2.912
11	2.088	2.234	2.355	2.484	22	2.429	2.603	2.758	2.939
12	2.134	2.285	2.412	2.549	23	2.449	2.624	2.780	2.963
13	2.176	2.331	2.462	2.607	24	2.468	2.644	2.802	2.987

## (2) 結果

この結果から、UQ-8、UQ-9において2009年10月16日のSt.8の結果は外れ値と検定された。また検定が続いたとき、キノン量としては比較的高い値である河口部の結果が外れ値となった。河口部の結果は、有光層、DO、有機物量、その他多くの環境の違いにより、それら影響が顕著に反映されて微生物群集構造に表れており、環境が大きく異なることを示している。そこでこれ以降の解析では、全対象から外れ値を除いた結果だけでなく、海域、河川河口部を区別した場合の解析をそれぞれ行う必要があると考えられる。しかし河川部のサンプルは少ないため、外れ値一点のみを除いた分析を行った。

表-5.2 UQ-8 における検定

T <sub>i</sub>				1回目	2回目	3回目	4回目	5回目	6回目
sea	St.8	2009年	7月23日	0.466	0.531	0.507	0.473	0.467	0.412
			8月7日	0.474	0.545	0.526	0.498	0.505	0.464
			9月10日	0.428	0.461	0.417	0.355	0.281	0.166
			10月16日	3.883					
			11月9日	0.122	0.100	0.313	0.599	1.215	1.825
		2010年	8月10日	0.462	0.524	0.498	0.461	0.448	0.388
			9月1日	0.207	0.055	0.111	0.336	0.802	1.275
			10月4日	0.201	0.045	0.125	0.354	0.830	1.313
	St.99	2009年	7月23日	0.546	0.678	0.699	0.723	0.860	0.935
			8月7日	0.480	0.556	0.540	0.516	0.534	0.502
			9月10日	0.454	0.509	0.478	0.435	0.407	0.334
			10月16日	0.492	0.578	0.569	0.553	0.593	0.580
			11月9日	0.273	0.177	0.048	0.128	0.476	0.842
		2010年	8月10日	0.206	0.702	1.096	1.624	2.821	
			9月1日	0.513	0.617	0.619	0.619	0.696	0.718
			10月4日	0.254	0.141	0.001	0.189	0.572	0.970
	St.97	2010年	8月10日	0.187	0.018	0.159	0.399	0.900	1.406
			10月4日	0.524	0.637	0.645	0.653	0.750	0.789
river	St.E	2009年	8月20日	1.436	2.959				
			8月25日	0.966	2.097	2.910			
			9月3日	0.493	0.581	0.573	0.559	0.601	0.591
		2010年	9月30日	0.753	1.706	2.402	3.331		
			9月30日	0.671	0.908	0.997	1.114	1.473	1.751

表-5.3 UQ-9 における検定

T <sub>i</sub>				1回目	2回目
sea	St.8	2009年	7月23日	0.466	0.860
			8月7日	0.416	0.700
			9月10日	0.053	0.810
			10月16日	4.371	1.288
			11月9日	0.246	0.154
		2010年	8月10日	0.408	0.674
			9月1日	0.471	0.877
			10月4日	0.221	0.073
	St.99	2009年	7月23日	0.328	0.415
			8月7日	0.301	0.330
			9月10日	0.103	0.307
			10月16日	0.482	0.910
			11月9日	0.351	0.490
		2010年	8月10日	0.581	2.509
			9月1日	0.117	0.262
			10月4日	0.078	0.387
	St.97	2010年	8月10日	0.449	0.806
			10月4日	0.599	1.288
river	St.E	2009年	8月20日	0.246	1.430
			8月25日	0.344	1.744
			9月3日	0.540	1.098
		2010年	9月30日	0.155	1.137
			9月30日	0.171	0.090

表-5.4 UQ-10 における検定

T <sub>i</sub>				1回目	2回目
sea	St.8	2009年	7月23日	0.616	0.611
			8月7日	0.596	0.587
			9月10日	0.458	0.412
			10月16日	0.542	0.518
			11月9日	0.087	0.058
		2010年	8月10日	0.579	0.565
			9月1日	0.154	0.362
			10月4日	0.241	0.137
	St.99	2009年	7月23日	0.682	0.695
			8月7日	0.474	0.432
			9月10日	0.344	0.267
			10月16日	0.600	0.592
			11月9日	0.379	0.312
		2010年	8月10日	0.464	0.420
			9月1日	0.684	0.698
			10月4日	0.190	0.073
	St.97	2010年	8月10日	0.556	0.536
			10月4日	0.061	0.090
river	St.E	2009年	8月20日	1.906	2.580
			8月25日	1.868	2.533
			9月3日	0.675	0.686
		2010年	9月30日	1.382	1.917
			9月30日	2.916	0.898



### 5.1.2 主成分分析

本研究の SOC と底質微生物群集の関係を明らかにする場合、酸素消費を行う底質微生物群集の寄与やその際の活性に対する影響因子を考慮しなければならない。そこで主成分分析を行うことで、その場の環境の主成分として存在しているものを明らかにした。

分析対象としては、SOC に影響を与える底質微生物群集 (各キノン種) を対象とし、分析を行った。しかしその結果は、MK の変数が多く、解釈が複雑であった。そのため酸素消費に直接的に関わる好氣的微生物を表す UQ のみによる分析を行った。またその他水質項目に対しても上記の理由より分析を行った。

#### (1) 主成分分析

主成分分析は多くの量的変数が存在する場合に、合成変数 (主成分) を構成し、より低い次元でデータのばらつきを解釈するための方法である。

主成分分析には、①相関係数から始める場合と ②分散共分散から始めた場合がある。

分散共分散から始めた場合、単位とは無関係に数字の大きさをそのまま反映する。本研究に適用する場合、単位、絶対値が大きく異なるキノンと SOC を変数としているため、相関係数から始めた場合を適用した。

#### (2) 各 UQ の結果

主成分の累積寄与率が 80%前後得られればよく、第 2 成分までで説明できる。

主成分負荷量は主成分得点と変数の相関係数を示しており、

第 1 主成分の寄与率は約 65%あり、UQ-8 と UQ-9 が主因子であった。

UQ-10 は第 2 主成分の主因子であり、寄与率は約 33%であった。

#### (3) 各水質項目の結果

主成分の累積寄与率から第 3 成分までを考える。第 1 主成分の寄与率は約 47%あり、水温、塩分、有機物が主因子であった。

第 2 主成分の寄与率は 24%あり、DO、UQ が主因子であった。

表-5.5 主成分得点(各 UQ)

			PC1	PC2	PC3
St.99	2009年	7月23日	-0.754	-0.489	-0.077
		8月7日	-0.722	-0.481	-0.034
		9月10日	-0.343	-0.449	0.277
		10月16日	5.656	-1.565	0.197
		11月9日	-0.271	-0.028	-0.096
	2010年	8月10日	-0.705	-0.466	-0.035
		9月1日	-0.445	0.256	-0.158
		10月4日	-0.335	-0.183	-0.044
St.8	2009年	7月23日	-0.726	-0.582	0.066
		8月7日	-0.626	-0.386	0.066
		9月10日	-0.449	-0.303	0.203
		10月16日	-0.780	-0.470	-0.068
		11月9日	-0.499	-0.288	-0.102
	2010年	8月10日	0.467	-0.584	0.192
		9月1日	-0.558	-0.630	0.188
		10月4日	-0.265	-0.163	0.099
St.97	2010年	8月10日	-0.535	-0.441	-0.256
		10月4日	-0.792	0.083	-0.052
St.E	2009年	8月20日	1.505	1.775	-0.584
		8月25日	1.235	1.727	-0.189
		9月3日	-0.834	-0.530	-0.117
	2010年	9月30日	0.872	1.298	-0.236
		9月30日	-0.096	2.898	0.760

表-5.6 主成分負荷量(各 UQ)

	Q.8	Q.9	Q.10
PC1	0.984	0.961	0.236
PC2	-0.022	-0.216	0.971
PC3	-0.179	0.174	0.035

表-5.7 標準偏差，寄与率，累積寄与率 (各 UQ)

	PC1	PC2	PC3
Standard deviation	1.395	0.995	0.252
Proportion of Variance(%)	0.649	0.330	0.021
Cumulative Proportion(%)	0.649	0.979	1.000

表-5.8 主成分得点(各水質項目)

			PC1	PC2	PC3	PC4	PC5	PC6
St.99	2009年	7月23日	-1.612	-0.501	-0.076	0.194	-0.688	-0.130
		8月7日	-1.926	-0.419	0.066	0.598	-0.432	-0.450
		9月10日	-1.317	-0.546	-1.246	-0.255	0.276	0.154
		10月16日	-0.512	-0.547	1.276	0.739	0.463	-0.357
		11月9日	-1.320	-0.336	-0.053	0.371	0.424	-0.369
	2010年	8月10日	-1.489	-0.188	-1.474	0.301	-0.380	-0.094
		9月1日	-1.953	-0.677	-1.972	-0.401	0.142	-0.277
St.8	2009年	7月23日	-0.621	-0.522	0.420	-0.119	-0.775	0.498
		8月7日	-0.307	-0.446	1.193	0.225	-0.833	0.457
		9月10日	-0.064	1.097	0.035	-1.277	0.375	0.176
		10月16日	0.927	4.314	-1.310	0.978	-0.177	0.167
		11月9日	-0.464	1.936	0.548	-1.325	-0.239	-0.555
	2010年	8月10日	-0.270	-0.405	0.856	0.117	0.176	0.348
		9月1日	-0.722	-0.492	-0.855	-0.380	0.621	0.585
St.97	2010年	10月4日	0.192	0.500	1.603	0.074	0.105	0.220
		8月10日	-0.494	-0.426	0.160	-0.110	0.210	0.497
	2010年	10月4日	-0.181	1.027	2.011	-0.272	0.285	-0.251
St.E	2009年	8月20日	4.405	-0.729	-0.947	-0.246	-0.251	-0.133
		8月25日	4.108	-0.706	-0.263	0.097	-0.194	-0.101
		9月3日	1.456	-1.232	0.118	-0.399	-0.152	-0.567
	2010年	9月30日	0.847	-0.200	0.091	1.020	0.733	-0.186
		9月30日	1.319	-0.500	-0.184	0.071	0.311	0.366

※PC1 は第 1 主成分を指し，順次第 2，第 3 となる。

表-5.9 主成分負荷量(各水質項目)

	Temperature	Salinity	DO	UQ	MK	C
PC1	0.912	-0.871	0.033	0.481	-0.436	0.903
PC2	-0.066	0.335	0.937	0.663	-0.107	-0.049
PC3	0.182	0.218	0.129	-0.426	-0.861	-0.166
PC4	-0.016	-0.023	-0.297	0.378	-0.186	-0.286
PC5	0.356	0.074	0.029	-0.033	0.153	-0.198
PC6	0.059	0.276	-0.125	0.057	0.000	0.181

表-5.10 標準偏差，寄与率，累積寄与率 (各水質項目)

	PC1	PC2	PC3	PC4	PC5	PC6
Standard deviation	1.682	1.203	1.024	0.591	0.443	0.362
Proportion of Variance(%)	0.471	0.241	0.175	0.058	0.033	0.022
Cumulative Proportion(%)	0.471	0.713	0.887	0.945	0.978	1.000

### 5.1.3 クラスター分析

これまでの観測結果は時間、各場の環境によって異なり、それぞれの場で卓越する様々な影響因子が相互に関係し合っていた。そのためデータを個々に直接見比べるだけでは評価が難しい。そこで各地点、各観測時での類似性や違いを定性的に評価するため、各観測の水質項目に対して、クラスター分析を行った。その結果を以下に示す。観測日によっては SOC に欠損や信頼性の低いデータがあり、SOC を考慮した場合、比較対象となるサンプルが減ってしまう。そのため SOC を含んだ水質項目と SOC を除いた水質項目の分析結果を示す。またキノン種の類似性を比較するため UQ とキノン総量における分析もそれぞれ行った。

#### (1) クラスター分析のストーリー

- ①個々の対象間の近さを測るための距離、およびクラスターを併合する際の距離を決める。
- ②個々の対象間の距離を全て計算し、距離が最小となる対象を結合して最初のクラスターとする。
- ③新しく形成されたクラスターと対象間の距離を全て計算し、対象間の距離を含めて最小のものを統合する。これを全てのクラスターが統合されるまで繰り返す。
- ④クラスターの統合過程を示すデントグラム (樹形図) を描き、適当な距離で切断することによりいくつかのグループに分ける。各グループに含まれる対象を調べ、グループの特徴を把握する。

#### (2) 算出方法

本研究では対象間の距離の算出方法としてはユークリッド距離を用い、手法は一般的に用いられるウォード法を採用し、分析を行った。

#### (3) 結果

それぞれ分析した結果は大きく 3 つから 4 つのグループに大別された。

各水質項目についての分析結果は、河口部の St.E はと湾内地点で大きく分かれた。湾内地点ははっきりと分かれてはいないが、それぞれの地点にある程度分かれていた。2010 年 2010 年 10 月観測時の St.97 と St.8 においては最も近くにあり、似た環境であるとされた。

UQ の分析結果については、河口部の St.E, St.8, St.97 はそれぞれ地点ごとのまとまりが見られた。St.8 は夏季、秋季に分かれてまとまりを見せ、UQ は季節性をもつことを示していた。St.97 は 2 サンプルのみであるが、夏季と秋季で近くに存在しており、湾奥となる他の地点に比べ、変動が小さいと考えられる。St.99 は季節性はあまり関係なく、まとまりが見られなかった。

キノン総量の分析結果は明瞭なグループ化は見られなかった。これは MK が支配的であるため、MK について強く示している。MK は時間や場所が変化すれば大きく変化することを意味している。

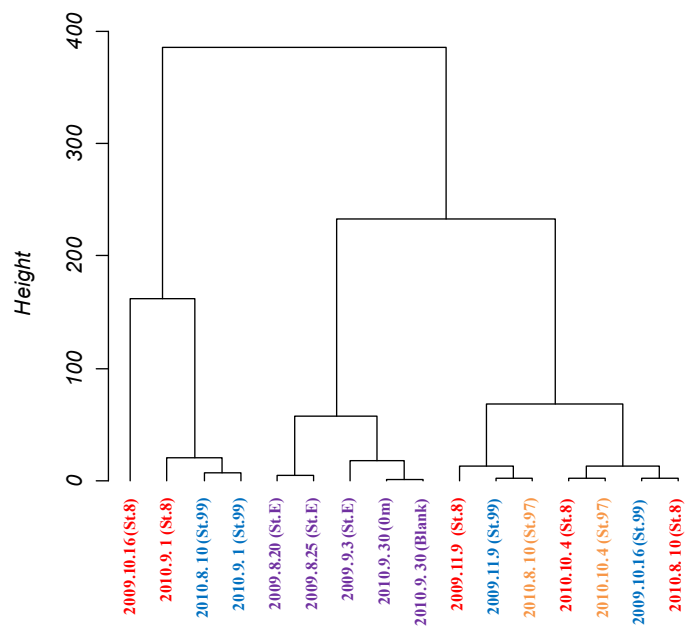


図-5.1 各水質項目の類似度

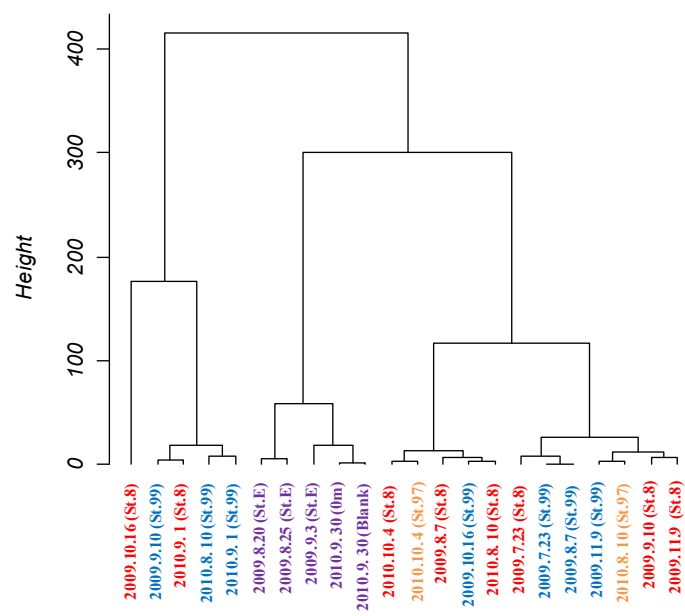


図-5.2 各水質項目の類似度(SOC なし)

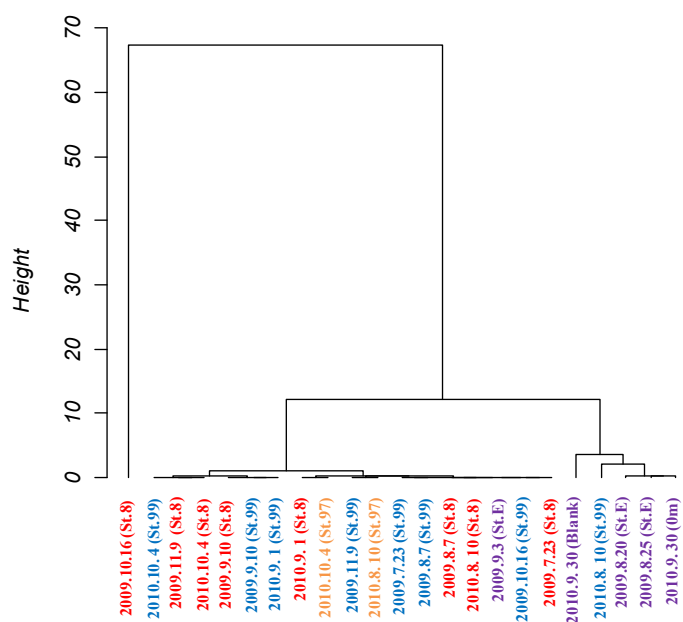


図-5.3 UQ の類似度

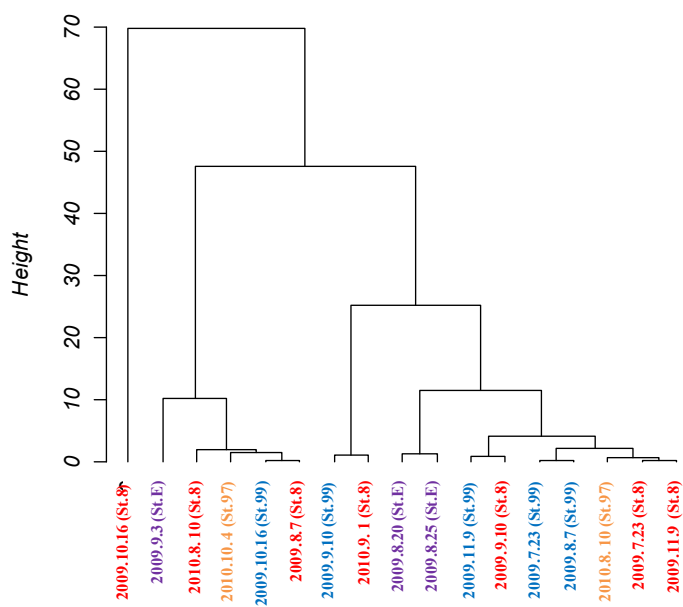


図-5.4 Quinone の類似度

## 5.2 各水質項目の相関

### 5.2.1 底泥酸素消費速度定数と各水質項目の相関

表-5.11 に SOC と各水質項目の相関係数を示す。この表から SOC は水温、キノン、UQ、有機物と正の相関が見られ、塩分と負の相関が見られる。UQ は水温と有機物に正の相関、塩分と負の相関が見られる。MK は硫化物と正の相関が見られるが、これには嫌気的環境に存在する MK の増加と同時に、それら微生物による生成物である硫化物が増加する定説に当てはまるが、この値は統計的に有意ではない。

以上のことより、SOC は水温、塩分に加え、UQ とよく対応することがわかる。これは底泥の SOC が、従来考えられてきた水温や DO に加えて、微生物の量や質の関係により変動することを意味する。また SOC と DO の相関が低く出ているのは、夏季の湾内の底層が無酸素化した状態であったことや、河口部の DO が日内にも変化し、観測時の代表性が低いとみられる。

河川に UQ を含有する好気性細菌が多く存在しており、UQ は水温が高く、塩分が低いほど高い値をとった。

表-5.11 SOC と各水質項目の相関係数

	SOC	Temperature	Salinity	DO	Sulfide	Quinone	UQ	MK	C	N
SOC	1									
Temperature	<b>0.406</b>	1								
Salinity	<b>-0.539</b>	<b>-0.711</b>	1							
DO	-0.264	-0.062	0.233	1						
Sulfide	0.262	-0.289	0.063	-0.263	1					
Quinone	<b>0.542</b>	-0.236	-0.142	-0.241	0.611	1				
UQ	<b>0.609</b>	<b>0.588</b>	<b>-0.765</b>	-0.060	-0.080	0.398	1			
MK	0.285	-0.497	0.163	-0.181	<b>0.712</b>	<b>0.910</b>	-0.019	1		
C	0.451	0.745	-0.808	0.120	-0.111	0.023	<b>0.653</b>	-0.287	1	
N	0.515	0.701	-0.815	-0.065	-0.087	0.141	<b>0.705</b>	-0.187	0.960	1

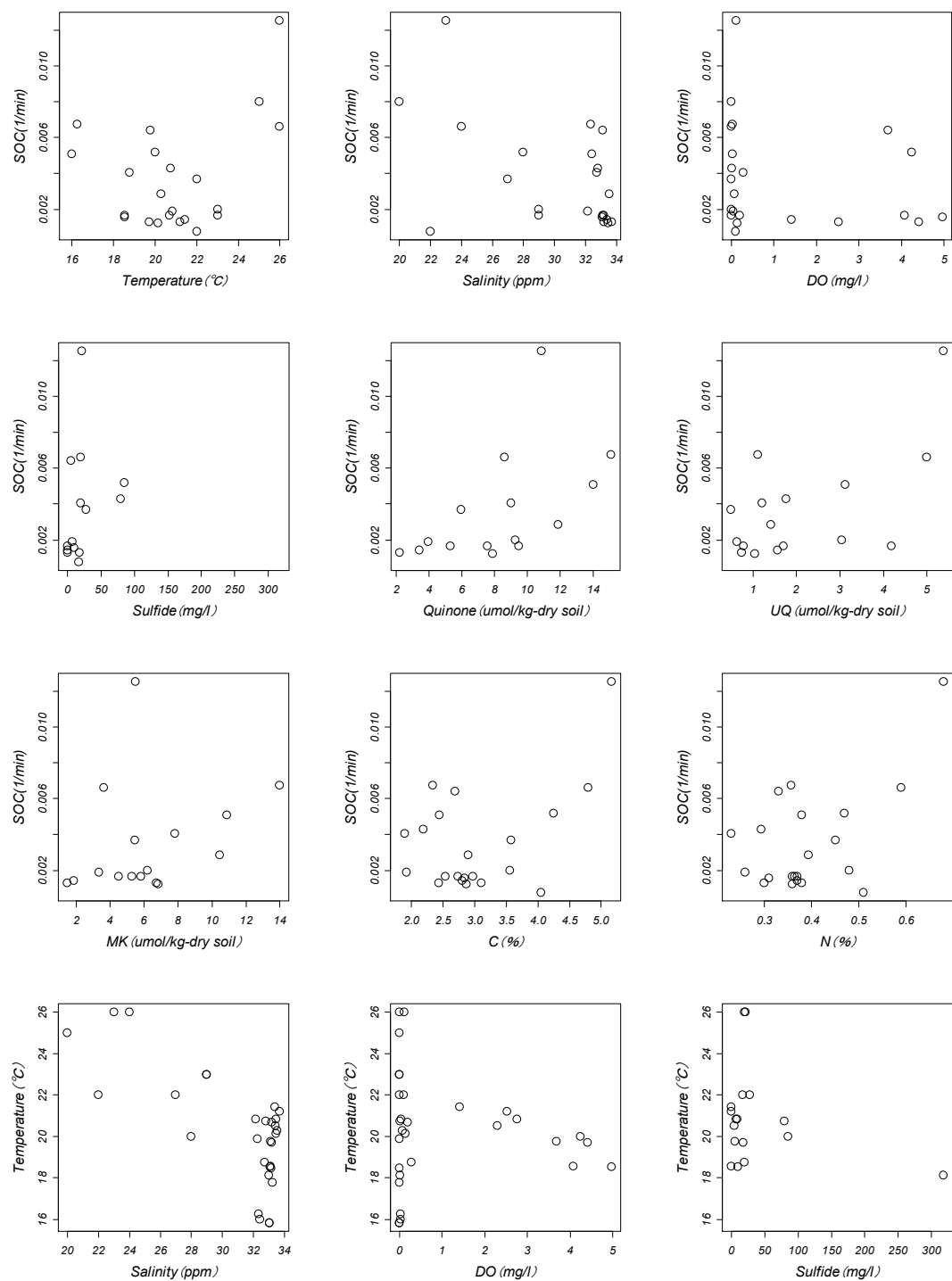


図-5.5 各水質項目の散布図(1)



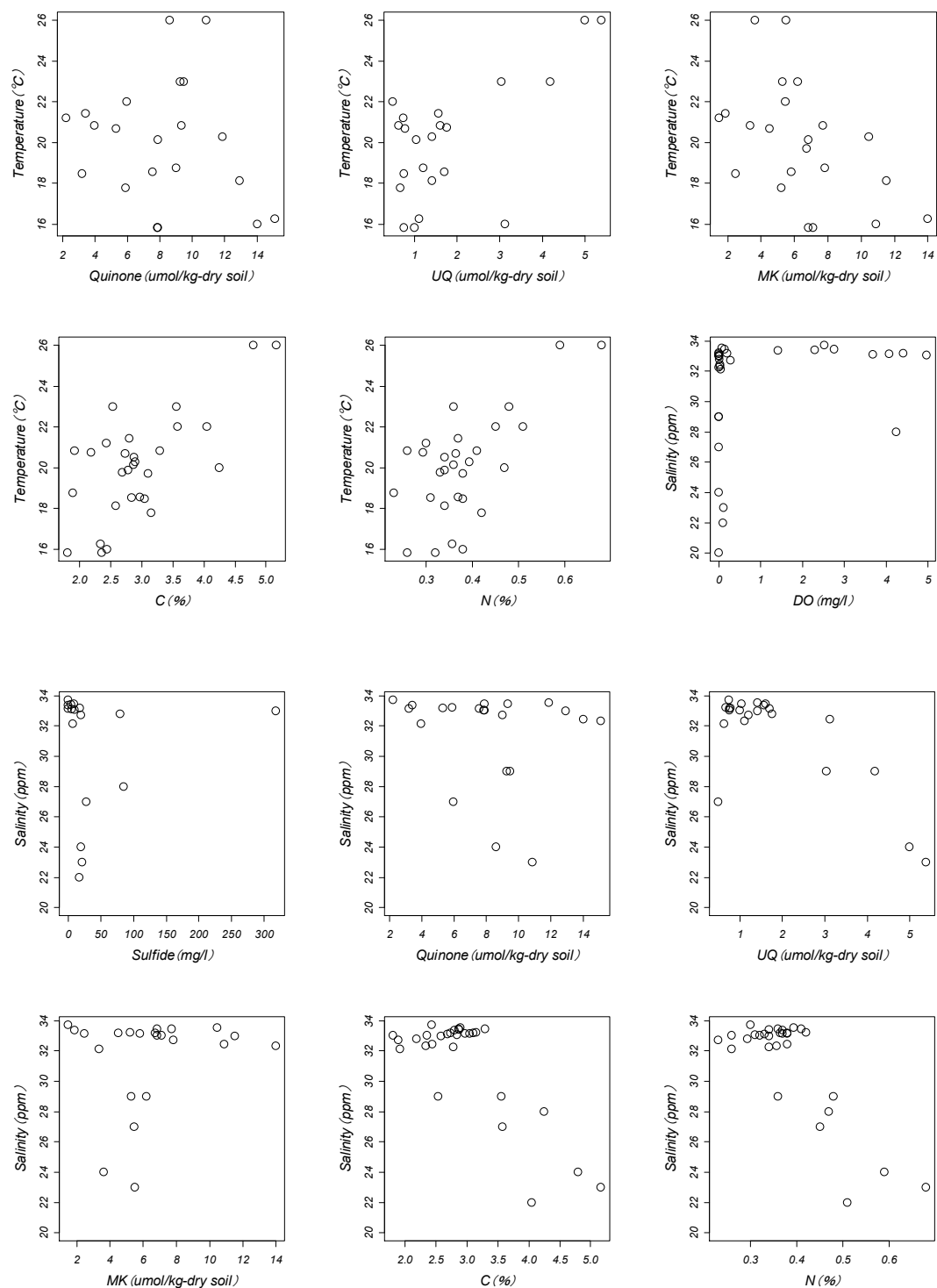


図-5.6 各水質項目の散布図(2)

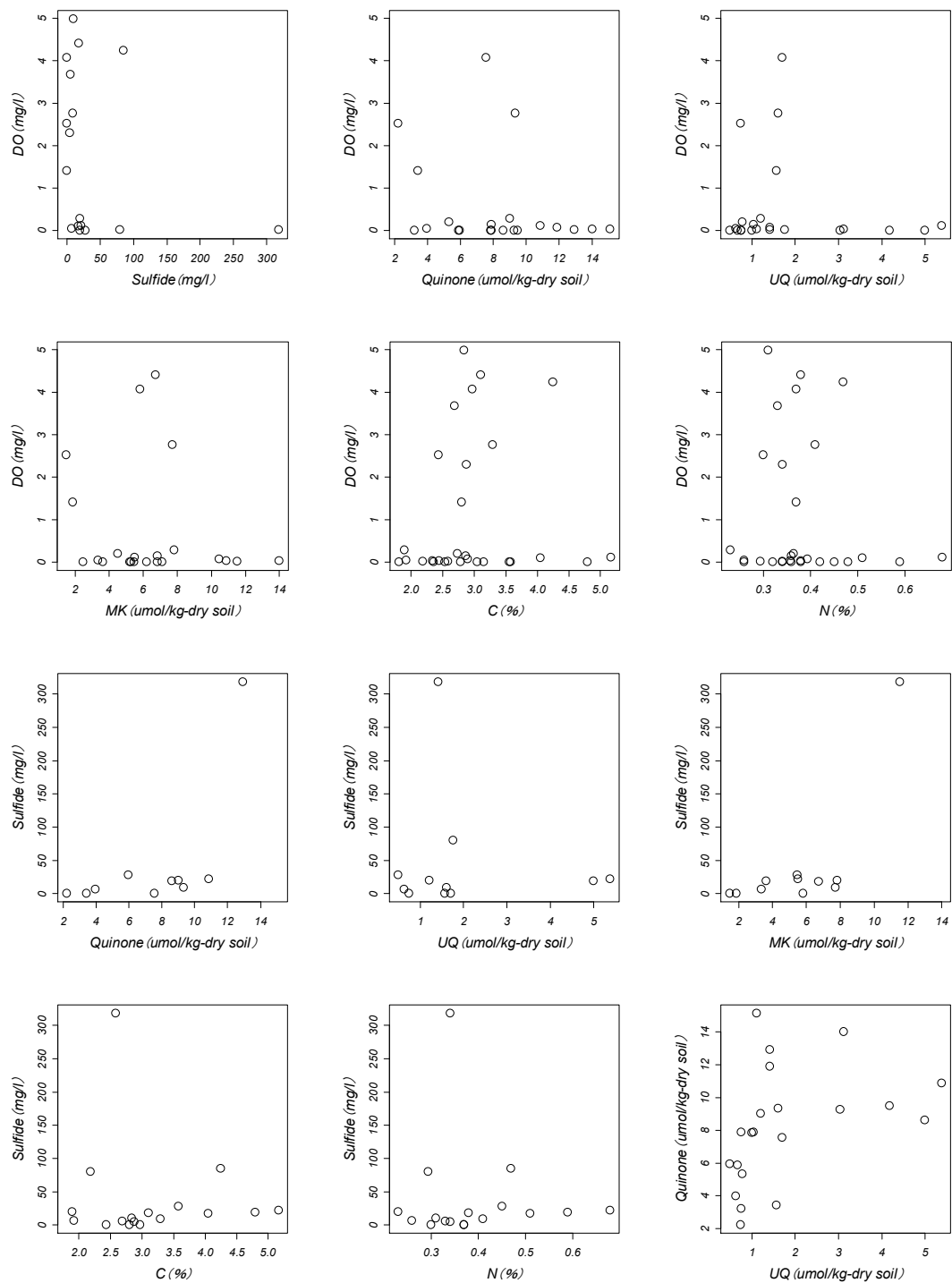


図-5.7 各水質項目の散布図(3)

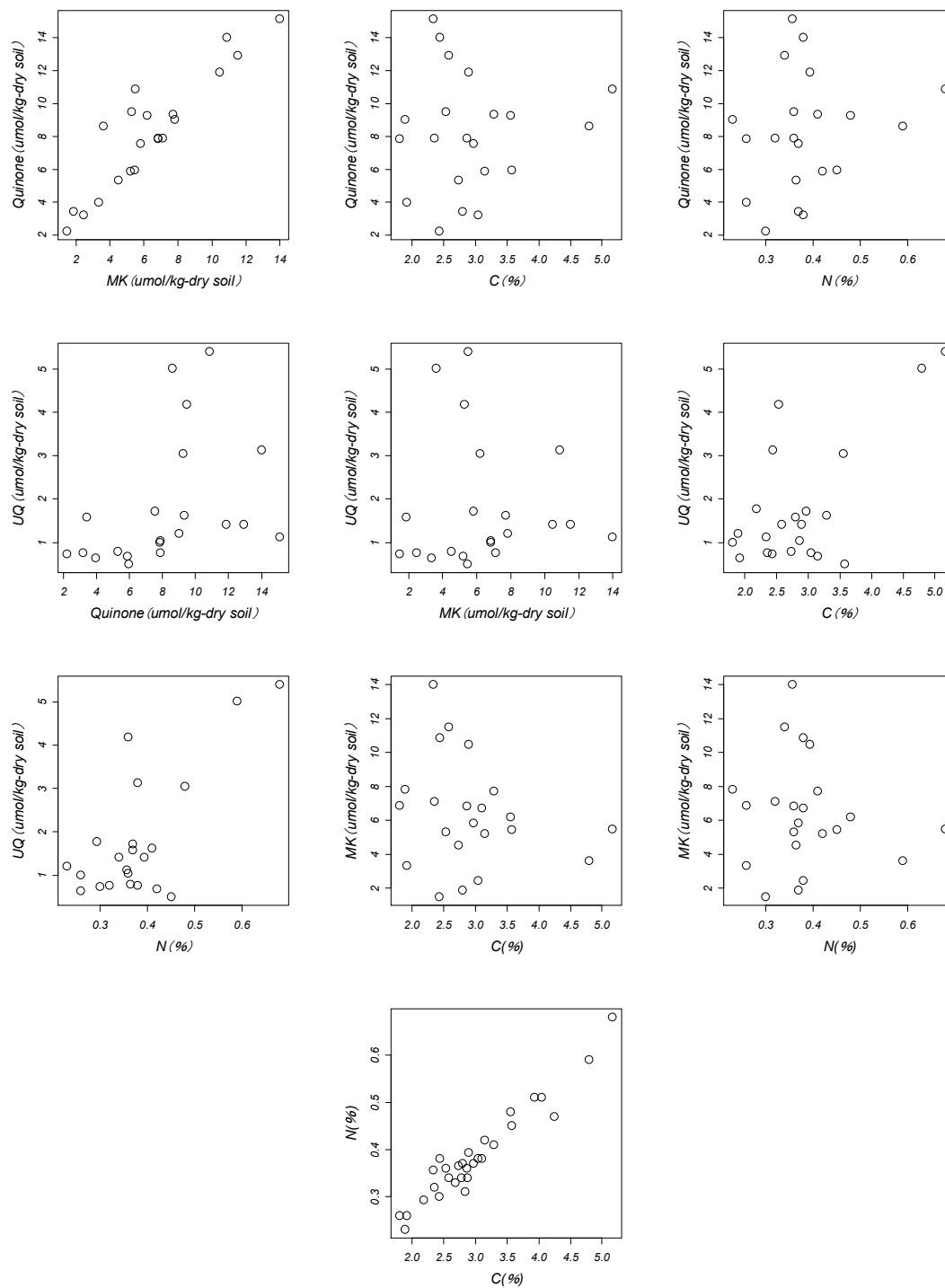


図-5.8 各水質項目の散布図(4)

### 5.2.2 底泥酸素消費速度定数と各 UQ の相関

SOC と相関の見られた UQ のうち、どのキノン種がどの程度また優先的に寄与しているかを明らかにするため、SOC と各 UQ での相関をとった。その結果、表に示すように UQ-8 と UQ-9 で相関が見られ、UQ-8 が最も寄与しているように見える。しかし散布図を見ても完全に直線関係にあるわけではないので、優先種かどうかの断定、また現段階での定量化は難しい。UQ-10 に関しては有意な相関は見られなかった。本研究は各地点とも環境の異なる場を対象としている。SOC またその機構源である微生物の活性に関する影響因子の寄与は地点ごとに異なるため、SOC とキノンの一対では素直に対応はしない。St.E では近くで複数地点の観測結果があるが、これを見るとばらつきが大きい。これは St.E(3m)は夏季に観測したもので、もう一方の St.E(0m, Blank)では秋季に観測したものである。水温の低い秋季に観測したものは、微生物の活性を下げ、UQ が比較的存在していても、SOC に対応していないものと思われる。季節の違いによる微生物活性の違いを表していた。St.8 と St.97 は上記の水質項目で示したが、同程度の値をとっており、ここでも似たような傾向を示していた。St.8 が St.97 に比べて嫌気的環境下にあるという違いから、若干大きな値を示していた。各地点では異なるものの、散布図や統計結果からある程度のまとまりは見られた。今後のデータの蓄積により、影響因子を評価できれば、地点ごとに酸素消費に関する定量化ができる可能性があると考えている。

表-5.12 SOC と各 UQ との相関係数と p 値

	UQ-8	UQ-9	UQ-10
R	0.661	0.578	0.315
p-value	0.005	0.019	0.234

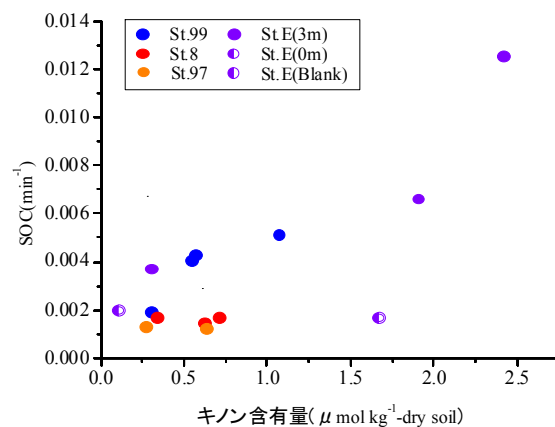


図-5.9 SOC と UQ-8 の関係

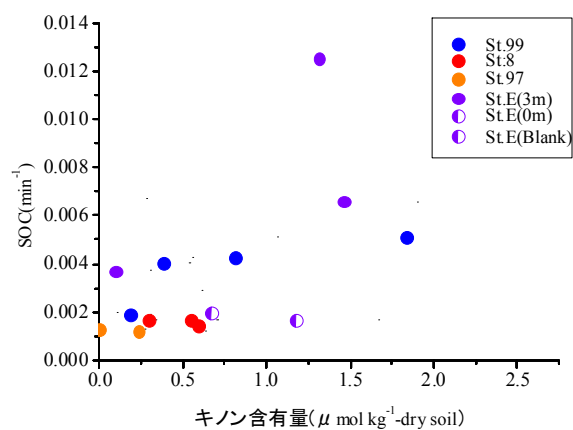


図-5.10 SOC と UQ-9 の関係

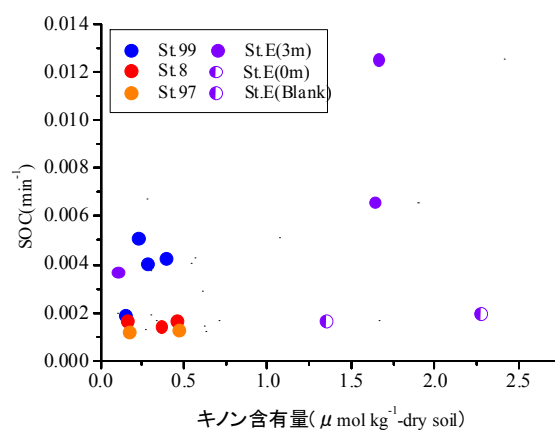


図-5.11 SOC と UQ-10 の関係

## 6 まとめ

### 6.1 研究結果のまとめ

本研究により以下のことが明らかになった。

酸素消費に関しては時間によっても場所によっても異なっていた。これまでの報告と同様に、高含水率の浮泥質土では他の地点に比べて酸素消費速度定数が大きかった。湾内の観測地点においては、同程度の値を示していた。

底質微生物群集構造の指標となるキノンに関しては、嫌気的環境下である夏季東京湾の底泥は MK が支配的であった。MK は環境や時間の違いにより、底質内の含有量が大きく異なっていた。MK に対し、UQ は通常、短時間での大きな変動が見られなかった。しかし青潮発生時の河口部での観測結果では大きな減少や密度成層弱化期に湾内での UQ 急増を確認した。経緯は今回調べていないため、わからないが、イベントにより底質環境が大きく変化する可能性があると考えられる。

マイクロバブルについては、エアレーションに関するこれまでの多くの報告から、嫌気的環境下にある底泥に酸素を供給しても、すぐに底泥が消費つくしてしまい、十分な酸素を供給しなければその場の改善には至らないという結果が示されている。本研究内の長期間酸素消費実験においても底泥は酸素を消費し続けており、同様のことを意味する結果となった。しかし実験前後での底泥表層のキノン含有量を調べたところ、UQ に大きな変化はなかったが、MK の減少が確認できた。嫌気的環境下の底泥では、好気的環境はすぐには形成されないが、嫌気的環境からの改善に対し、ある一定の効果が確認された。またマイクロバブルは場の改善には至らずとも、生態系への避難場所になり得ると考えられる。

### 6.2 底泥酸素消費に底質微生物群集との関係

SOC は水温、塩分に加え、好気的微生物群集 (UQ) とよく対応していた。UQ の中でどのキノン種がどのように対応しているかを確認するため、UQ を小分類に分け SOC との対応を見た。その結果 UQ-8, UQ-9 に相関が見られ、UQ-10 では有意な相関が見られなかった。地点により傾向が異なっていたが、各地点でのそれぞれの影響因子の違いからくるものであると考えられる。これら関係の一般性を本研究では見出せていないが、SOC は微生物の量や質との関係で変動することは表れていた。この事実は、湾内の物質循環に重要となる底泥酸素消費の算定に、従来用いられてきた水温や DO の関数のみでは不十分で、微生物群集影響を考慮する必要があることを意味している。

DO については特に湾奥部底層において、4 月から 10 月までの間ほぼ 0mg/l となり、混合期に急増するので、現地 SOC との対応は小さい。また河口部では一日の中で貧酸素から過飽和まで急激な変化をするため、採取時の DO と SOC が必ずしも対応しないことは十分起こり得る。

底質の移動や上層からの流入やその他外的要因と考えられるキノンの急増 (または急減) が見られることがあり、それが何かは今回特定できなかった。しかし一度急変時原因を明らかにし、ある一定の観測間隔で連続観測を行えば、底質の履歴を反映させるキノンは、湾内の微生物群集構造の指標として有用であると考えられる。

## 参考文献

- [1] 阿部淳・松永信博・児玉真史・徳永貴久・安田秀一(2003): 有明海西部海域における高濁度層の形成と酸素消費過程, 海岸工学論文集, pp.966-970.
- [2] 入江政安・窪田勇輝・中辻啓二・西田修三(2007): 都市海浜における底質の非一様性を考慮した酸素消費量の推定, 海岸工学論文集, 第 54 巻, 1026-1030.
- [3] 遠藤徹・水田圭亮・重松孝昌(2008): 貧酸素化した港湾海域における底質の酸素消費特性に関する研究, 海岸工学論文集, 第 55 巻, pp.1066-1070.
- [4] 遠藤雅実, 鯉渕幸生, 藤田昌史, 鈴木準平, 小倉久子, 飯村晃, 大畑聡, 磯部雅彦(2010): 東京湾における底泥酸素消費と微生物群集構造の関係, 第 66 巻, pp.1036-1040.
- [5] 片山新太(2000): 土壌中の農薬分解に関与する微生物群集の構造と挙動, 日本農薬学会誌, 第 25 巻, pp.300-309.
- [6] 國弘忠生, 藤田昌史, 胡洪営, 藤江幸一(2004): キノンプロファイル法と PCR-DGGE を併用した汚染修復細菌の特定と微生物群集の挙動解析, 統計数理, 52 巻, pp.329-342.
- [7] 桑江朝比呂・神尾光一郎・井上徹教・三好英一・内山雄介(2006): 堆積物による酸素消費と生成一渦相関法を適用した新たな測定手法の開発一, 海岸工学論文集, 第 53 巻, pp.1411-1415.
- [8] 桑江朝比呂・中川康之・三好英一(2008): 海底境界面における酸素消費速度一渦相関法による現地連続観測一, 海岸工学論文集, 第 55 巻, pp.1001-1005.
- [9] 国分秀樹・奥村宏征・上野成三・高山百合子・湯浅城之(2006): 酸素消費速度からみた浚渫ヘドロを用いた人工干潟の生産力の検討, 第 40 回日本水環境学会要旨集, 第 40 巻, pp.185.
- [10] 佐々木淳・前田周作(2006): 酸素消費速度に着目した干潟・浅瀬の環境評価, 海岸工学論文集, 第 53 巻, pp.1046-1050.
- [11] 相馬明郎・桑江朝比呂・関口泰之・中村由行(2009): 干潟・浅海域における酸素の生成・消費メカニズム一生態系モデルによる解析一, 海岸工学論文集, 第 56 巻, pp.1146-1150.
- [12] 竹脇博(1986): 東京湾における底泥の酸素消費量と全硫化物(遺稿), 千葉県水産試験場研究報告, 第 44 号
- [13] 徳永貴久・磯野正典・松永信博(2006): 熊本県沿岸における干潟の底泥環境と酸素消費, 海岸工学論文集, 第 53 巻, pp.1066-1070.
- [14] 徳永貴久・児玉真史・木本克則・芝原芳一(2009): 有明海湾奥西部海域における貧酸素水塊の形成特性, 海岸工学論文集, 第 56 巻, pp.1011-1015.
- [15] 徳永貴久・児玉真史・松永信博(2003): 干潟の底泥生態系が水質環境に及ぼす影響評価, 海岸工学論文集, 第 50 巻, pp.1076-1080.
- [16] 永田靖, 棟近雅彦(2001): 多変量解析法入門, ライブラリ新数学大系 E20
- [17] 長尾正之・橋本英資・朱小華・吉田みゆき・高杉由夫(2000): 広島湾における海底酸素消費量の連続測定, 土木学会論文集, No.663/II-53, pp.109-117.
- [18] 中村好宏, 胡洪営, 藤江幸一, 馬場康維(2004): クラスタ分析によるキノンプロファイルデータのスクリーニング, 統計数理, 52 巻, pp.343-352.
- [19] 中村由行(1993): 底質の酸素消費過程における濃度境界層の役割, 水環境学会誌, 第 16 巻, 第 10 号, pp.732-741.
- [20] 中村由行・井上徹教・山室真澄・神谷宏・石飛裕(1996): 未攪乱底泥コアを用いた連続培養系での酸素消費・溶出実験, 海岸工学論文集, 第 43 巻, pp.1091-1095.
- [21] 中村由行・御子神学・H.G.ステファン(1993): 閉鎖性水域における底質の酸素消費速度一流れの影響のモデル化一, 海岸工学論文集, 第 40 巻, pp.986-990.
- [22] 東野誠・神田徹(1997): 底泥による静水中での溶存酸素消費に関する基礎実験, 水工学論文集, 第 41 巻, pp.439-444.
- [23] 細井由彦・村上仁士・上月康則(1992): 底泥による酸素消費に関する研究, 土木学会論

文集, No.456/II-21, pp.83-92.

- [24] 松藤明(2002): 博多湾における底泥の酸素消費に関する研究, 福岡大学卒業論文, pp.52-61.
- [25] 道奥康治・金井健史・東野誠(2004): 傾斜堆積面からの嫌氣的溶出により発生する化学成層流と栄養塩溶出・酸素消費の解析, 土木学会論文集 No.754/II-66, pp.75-90.
- [26] 溝口佑輔・山崎惟義・渡辺亮一・上田晋也・楠田哲也: 流れ場における底泥の酸素消費に関する研究, 土木学会西部支部
- [27] Jean L. W. Cowan・Walter R. Boynton(1996): Sediment-Water Oxygen and Nutrient Exchanges Along the Longitudinal Axis of Chesapeake Bay: Seasonal Patterns, Controlling Factors and Ecological Significance
- [28] Tina Miller-Way・Gregory S. Boland・Gilbert T. Rowe・Robert R. Twilley(1994): Sediment Oxygen Consumption and Benthic Nutrient Fluxes on the Louisiana Continental Shelf A Methodological Comparison, Estuaries, Vol.17, No.4, pp.809-815.
- [29] <http://ja.wikipedia.org/wiki/プロテオバクテリア>



## 謝辞

本研究の方針や研究への取り組み方，論文の書き方等，基本的なことから，いつも丁寧にご指導くださいました指導教官の鯉渕幸生講師に，深く御礼申し上げます。

普段のゼミナールから助言していただきました磯部雅彦先生，黄光偉先生に深く感謝を致します。

本論文の副指導教官の佐藤弘泰先生には有用な助言をいただき，また実験機材に関しても快くお貸ししていただきありがとうございました。

本研究における分析のため，学外者である私を度々指導をしていただきました茨城大学の藤田先生，鈴木さんには心より感謝致します。

千葉県の飯村さん，ならびにきよすみの船長さん，忍足さん，また大畑さんにはサンプル採取に協力していただきました。大変お世話になりました。感謝致します。

秘書の室園さんにはいつも気づかせていただき，ありがとうございました。

研究室内の皆さんには普段からお世話になりました。感謝致します。

私もここで学んだことを活かし，次年度より社会へ貢献していけるよう努めて参ります。ありがとうございました。