

大阪湾底質に対する有機物フラックスと その初期続成過程における分解速度

Flux of organic substance for Osaka Bay sediment and its decomposition rate in early diagenesis

山崎 秀夫¹, 小川 喜弘², 石澤 篤³, 横田 喜一郎⁴

¹近畿大学理工学部生命科学科, ²同情報学科, ³同原子炉工学科,

⁴元滋賀県琵琶湖研究所

〒577-8502 大阪府東大阪市小若江 3-4-1

Hideo YAMAZAKI¹, Yoshihiro OGAWA², Atsushi ISHIZAWA³ and Ki-ichiro YOKOTA⁴
*Department of*¹*Life Science,* ²*Infomatics and* ³*Nuclear Engineering, School of Science and*
Engineering, Kinki University, ⁴*Lake Biwa Research Institute,*
3-4-1 Kowakae, Higashi-osaka, Osaka 577-8502, Japan

(Received December 24, 2005)

Abstract

The flux of the organic substance for the Osaka Bay sediment was estimated by the analysis of the vertical distribution of organic carbon (OC), organic nitrogen (ON) and total phosphorus (TP) in the sediment core. The profile of these organic substances in the core evaluated the influence of the mixing using the advection-diffusion model, because it was disturbed by the effect of mixed layer in the sediment surface. The decomposition rate of the organic substance in early diagenesis was also estimated. The flux of early decomposable OC, ON and TP loaded on the Osaka Bay sediment from sea water was 3.00mgC, 0.42mgN and 0.068mgP cm⁻²yr⁻¹, respectively. Then, the decomposition rate of these organic substances that became inorganic in early diagenesis in the upper layer of the core was estimated at 0.0693mgC, 0.0083mgN and 0.0012mgP cm⁻²yr⁻¹. It is significant to clarify flux and decomposition rate of the organic substance in the sediment concerning organic contamination and eutrophication in the coastal zone of Osaka Bay.

Key words: Osaka Bay, Sediment, Organic Substance, Flux, Decomposition Rate, Early Diagenesis, Advection-Diffusion Equation

1 緒 言

全地球的規模で人為的な環境汚染が始まったのは、英国で起きた産業革命に端を発していると考えられることができる。その痕跡は大気を通して北極の氷床中に運ばれた鉛の濃度上昇として検出されている¹⁾。わが国においても、明治維新以降の産業近代化によって環境汚染の歴史が始まったといえる^{2,3)}。人為的に環境に負荷された汚染物質の多くは大気や雨水、河川水、地下水などを經由して、最終的には水圏の底質に移行する。従って、底質は汚染物質の最終シン

クであり、そこに記録された汚染物質の濃度変動をその時系列に従って解析することができれば、人間活動と環境汚染の関係を定量的に評価することができる。環境変遷を底質試料の分析から解明するためには、層準に沿って堆積した乱れないコア試料を採取する必要がある。しかし、湖沼や沿岸海域に堆積した底質は底生生物の活動や底層流によって堆積層が攪乱されている場合も多く、汚染物質の鉛直分布を時系列に従って解析することを難しくしている^{4~7)}。しかも、環境汚染物質の多くは底質中で続成作用を受けるために、その濃度や分布は堆積した時の

状況と異なっている場合も多い⁸⁾。従って、底質の解析から環境汚染を評価するためには、底質中の汚染物質の濃度だけでなく負荷速度(フラックス)など他の時系列情報を得ることも不可欠である。

本研究では、表層部に生物攪乱によると思われる混合層が存在した大阪湾底質コア試料について、海水から底質に負荷する有機物のフラックスとその底質中における分解速度の歴史的変遷を推定することを試みた。底質表層に混合層が定常的に形成されている場合、底質中の目的成分の鉛直分布は混合層による攪乱の影響を受けているので、フラックスや分解速度をその実測された濃度分布から直接算出することはできない。そこで移流拡散モデルを用いて目的成分の鉛直分布に対する混合の効果を定量的に評価する方法について検討を行った。底質中の有機窒素や有機リンの無機化過程は間隙水を通した海水への栄養塩類の供給源となるので、本研究で得られる底質中の有機物分解速度に関する情報は大阪湾の有機汚染や富栄養化の問題に関連して興味深い。

2 試料と方法

2.1 底質コアの採取と前処理

底質コア試料は広島大学練習船豊潮丸の TY84 研究航海によって、Fig.1 に示した大阪湾中央部の Stn.8 地点(水深 19m)から採取した。採泥には内径

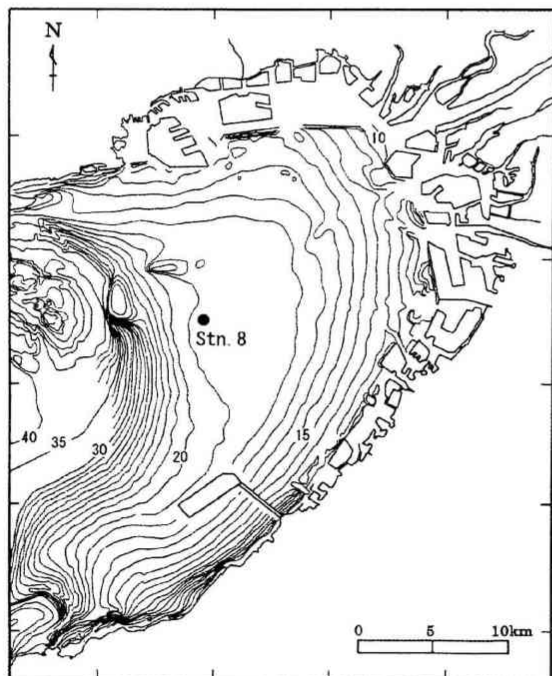


Fig.1 Sampling site in Osaka Bay

20 cm, 長さ 100cm のアクリルパイプ製サンプラーを用いたトライポットコアラーによった。採取されたコアは長さ約 90cm であり、船上で直ちにサンプラーから押し出しながら深さ方向に 2cm の厚さにスライスして PP 製のプラスチック容器に密封し、分析まで冷凍保存した。冷凍試料は室温で解凍し、60°C で恒量になるまで乾燥して含水率を測定した後、メノウ製乳鉢で粉碎して分析用試料を調製した。

2.2 分析方法

底質中の有機炭素及び有機窒素の定量には柳本製 CHN コーダ MT-3 に同社製オートサンプラーを接続して使用した。乾燥、粉碎した底質試料の 10~40mg を白金ボートに精秤し、オートサンプラーを用いて分析装置に導入した。装置の感度校正にはキシダ化学製有機元素分析用標準試料アンチピリン(C₁₁H₁₂N₂O)を用いた。シグナルのピーク面積は付属の解析ソフトで算出し、検量線法で試料中の有機炭素、有機窒素濃度を求めた。

底質中の全リン濃度は理学電機製蛍光 X 線分析装置を用いて定量した⁹⁾。測定用試料は底質をアルミリング法で加圧、成形して調製した。濃度校正のための標準試料には米国 NIST の環境標準試料 SRM1646 (Estuarine Sediment)を用いた。

3 結果と考察

3.1 堆積年代測定法と大阪湾底質の堆積速度

人間活動と関係の深い過去 150 年程度の堆積年代の特定には、天然放射性核種 ²¹⁰Pb(半減期 22.3 年)を用いる年代測定法^{10~14)}が汎用されている。この方法では(1)式で示される放射壊変の原理を時間マーカーとして利用する。底質中に存在する ²¹⁰Pb には、地殻中の ²³⁸U と放射平衡にある ²¹⁰Pb と壊変系列の途中で希ガス核種の ²²²Rn として地殻から大気中に飛散し、壊変する過程で再び地表へ降下して堆積した ^{ex}²¹⁰Pb とが存在する。今、注目している水圏の底質に対して、この ^{ex}²¹⁰Pb が一定速度で負荷していると仮定できれば、堆積層は時間の経過と共に上方に形成されていくので、堆積層中では深さと共に ^{ex}²¹⁰Pb が減衰していくことになる。堆積速度を S (cm yr^{-1}) とすれば、堆積層の深さ z (cm) と底質中の ^{ex}²¹⁰Pb 濃度 A (Bq kg^{-1}) の関係は(1)式の解として(2)式で表せる。従って、^{ex}²¹⁰Pb の鉛直分布を測定すれば、(2)式を用いて底質の堆積速度 S を算出することができる。

$$\frac{dN}{dt} = -\lambda N \quad (1)$$

$$A = A_L \exp^{-\lambda \frac{z}{S}} \quad (2)$$

ここで、 N は ^{210}Pb の原子数、 λ (yr^{-1}) は壊変定数である。また、経過時間 $t = z/S$ 、 $A = dN/dt$ である。

本研究で取り扱う大阪湾の底質には、堆積層の表層部に混合層が存在しているから、(2)式は混合層の下に存在する定常堆積層における ^{210}Pb 濃度の減衰を表していると考えてよい。ここで A_L (Bqkg^{-1}) は混合層の下面と定常堆積層の上面の境界における ^{210}Pb 濃度である。実際には、コア試料の測定によって得られた ^{210}Pb 濃度 A の対数値を堆積層の深さ z に対してプロットすれば、その減衰曲線の傾きとして(2)式から堆積速度 S を決めることができる。但し、堆積層の深さは自重によって時間の経過と共に深さ方向に圧縮されているので、計算にはこの圧密の効果を補正した深さを z として用いる必要がある^{15, 16)}。即ち、この方法で得られる堆積速度 S (cm yr^{-1}) は底質の表層における堆積速度である。

大阪湾 Stn.8 から採取した底質コアの堆積速度を ^{210}Pb 法で決定した結果を Fig.2 に示した。圧密を補正したコア深さに対して ^{210}Pb 濃度をプロットすると、25.5cm 以深において減衰曲線はほぼ直線を示し、この部分が混合の影響を受けていない定常堆積層と考えられた。この曲線の傾きから(2)式を用いて堆積速度を決定した。表層における値に換算したこの底質の堆積速度 S は 0.49cm yr^{-1} と算出された。堆積速度が決まると、底質の含水率と密度を用いて、底質が形成される速度であるマスフラックスを計算することができる。含水率は各堆積層の実測値、密度は実測された平均値 2.5gcm^{-3} を計算に用いた¹⁷⁾。結果を Table 1 に示した。この底質の表層におけるマスフラックスとして $0.15\text{gcm}^{-2}\text{yr}^{-1}$ が得られた。

このコアで表層の ^{210}Pb の分布が減衰曲線から外れるのは底質が物理的攪乱を受けているためである。この問題については次の 3.2 項で議論する。

3.2 移流拡散モデルを用いた混合層の混合係数の推定

水圏の底質では、その表層に底生生物の活動や底層流によって攪乱され、形成された混合層と呼ばれる堆積層が存在することがある。表層に厚さ L (cm) の混合層、その下に混合を受けていない定常堆積層(昔、表層に存在した時には攪乱されていた)が存在する底質の場合、混合層形成の要因が底質の定常的な物理的攪乱のみであると仮定できれば、底質コア中の ^{210}Pb の鉛直分布は(3)式で示される移流拡散方程式を用いて解析することができる^{6, 7, 10, 12)}。

$$\frac{\partial A}{\partial t} = D \frac{\partial^2 A}{\partial z^2} - S \frac{\partial A}{\partial z} - \lambda A \quad (3)$$

ここで、 D は混合層の渦拡散係数 ($\text{cm}^2\text{yr}^{-1}$ 、本論文では混合係数と呼ぶ) である。先に仮定したように底質の堆積速度が時間に対して定常的であり、底質に対する ^{210}Pb の負荷速度が一定であるとすれば、(3)式の左辺は 0 であり、更に混合層に物理的攪乱がない場合には拡散係数 D も 0 である。従って、(3)式は(4)式のように書き換えることができ、その解は(5)式で示される。(5)式は(2)式と同じであり、その定数 A_3 、 β_3 は下記のように表すことができる。

$$-S \frac{\partial A}{\partial z} - \lambda A = 0 \quad (4)$$

$$A = A_3 \exp(\beta_3 z) \quad (5)$$

$$A_3 = \frac{A_1 \exp(\beta_1 L) + A_2 (\beta_2 L)}{\exp(\beta_3 L)}, \quad \beta_3 = -\frac{\lambda}{S}$$

一方、混合がある場合には、その一般解として(6)式を得ることができる。(6)式の定数は以下に示す境界条件(a)~(c)を仮定することで、決めることができる。(a) $z=0$ において海水-底質間の ^{210}Pb フラックスは連続している。(b) $z=L$ における混合層-定常堆積層境界面で ^{210}Pb フラックスは連続している。(c) $z=L$ では ^{210}Pb 濃度も連続している。

$$A = A_1 \exp(\beta_1 z) + A_2 \exp(\beta_2 z) \quad (6)$$

$$A_1 = \frac{SA_s}{V_1 - FV_2}, \quad A_2 = -A_1 F$$

$$\beta_1 = \frac{S + \sqrt{S^2 + 4D\lambda}}{2D}$$

$$\beta_2 = \frac{S - \sqrt{S^2 + 4D\lambda}}{2D}$$

$$V_1 = S - D\beta_1, \quad V_2 = S - D\beta_2$$

$$F = \frac{\beta_1 \exp(\beta_1 L)}{\beta_3 \exp(\beta_3 L)}$$

ここで A_s は底質表面($z=0$)における混合の効果を受けていない真の ^{210}Pb 濃度である。従って、底質コアで実測された ^{210}Pb 濃度の鉛直分布を(6)式にフィッティングさせることで、混合層の混合係数 D を決定することができる。また逆に、 D が決まれば A_s を推定す

ることができる。

本研究に使用した大阪湾底質の圧密を補正した深さ z に対して、 ^{210}Pb と $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の鉛直分布をプロットして Fig.2 に示した。この $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の分布に対して混合層は(6)式、定常堆積層は(4)式を用いてフィッティングを行い、混合係数 D を決定した。ベストフィットする D 値として $25\text{cm}^2\text{yr}^{-1}$ が得られた。この混合層の物理的パラメーターは Table 1 に示した。

3.3 大阪湾底質中の有機炭素, 有機窒素, 全リンの鉛直分布

大阪湾底質中の有機物の指標成分として有機炭素, 有機窒素, 全リンを分析し、その鉛直分布を Fig.3 に示した。その濃度はいずれも表層で高く、深さと共に急激に減少する傾向を示した。 ^{210}Pb 堆積年代が 1780 年代を示す 60cm 層以深では、これら成分はほぼ一定の値を示す。この分布から、大阪湾の底質に負荷した有機物には 200 年程度の比較的短い期間で分解する成分が多く含まれていることが認められた。

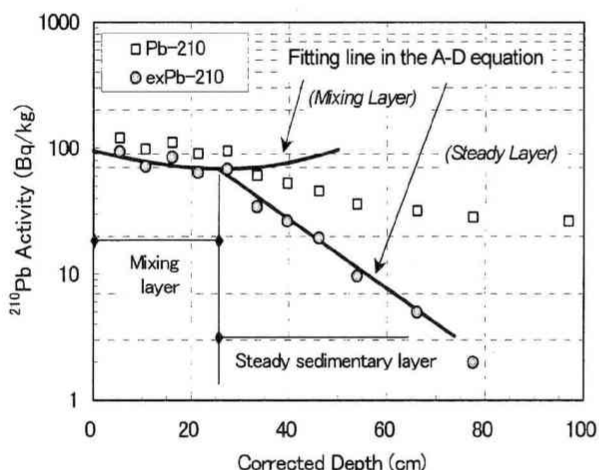


Fig.2 Vertical profile of ^{210}Pb and determination of D value of mixing layer in the Stn.8 core of Osaka Bay

Table 1 Mixing parameter and mass flux of the Stn.8 core of Osaka Bay

Mixing Layer	Depth	20	(cm)
	Corrected Depth (L)	25.5	(cm)
Sedimentation Rate (S)		0.49	(cm/yr)
Mixing Coefficient (D)		25	(cm^2/yr)
Mass Flux		0.150	($\text{g}/\text{cm}^2\text{yr}$)

本研究では、底質中の濃度分布からこのような初期続成過程で容易に分解される有機物のフラックスと分解速度を推定した。このような堆積環境のパラメーターを明らかにすることは、沿岸域における富栄養化などに関連した有機汚染の現況と将来の動向を評価するために、環境科学的に重要である。

既に 3.2 項で述べたように、この底質には混合層が存在しているので、Fig.3 に示した有機物の鉛直分布も混合層による攪乱の影響を受けている。従って、有機物のフラックスや分解速度を議論するためには混混合の効果を受ける前の有機物の鉛直分布を推定する必要がある。200 年以上古い堆積層に残存している成分を難分解性有機物であるとすれば、全濃度

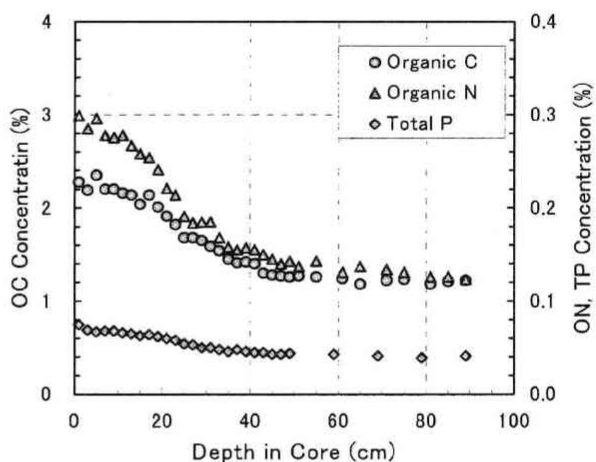


Fig.3 Vertical distribution of organic carbon, organic nitrogen and total phosphorus in the Stn.8 core of Osaka Bay

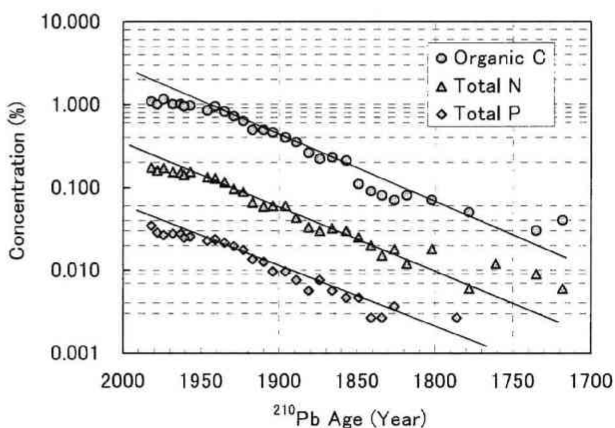


Fig.4 Vertical profile of easily decomposed fraction of organic carbon, organic nitrogen and total phosphorus in the Stn.8 core of Osaka Bay

からその値を差し引いた濃度が初期続成過程で容易に分解される易分解性有機物の濃度である。その鉛直分布を Fig.4 に示した。

底質に対する有機物の負荷の時系列変動が分解速度に対して無視できると仮定できれば、この濃度減少曲線から、堆積の初期続成過程における有機物の分解速度を推定することが可能となる。いずれの成分も定常堆積層において指数関数的に減少しており、易分解性有機物は一次反応速度則に従って分解していることが明らかである。Fig.4 の直線の傾きから、底質中の初期続成過程で分解される有機炭素、有機窒素、全リンの半減期はそれぞれ 30、35、38 年と見積もられた。

3.4 大阪湾底質に対する有機物フラックス

混合層がない底質では、底質に対する目的成分のフラックスはその濃度と底質の堆積速度を用いて簡単に計算することができる。しかし、混合層が存在すると物理的攪乱によって目的成分が混合層内を鉛直方向に輸送されているので、実測される濃度からフラックスを直接計算することはできない。そこで、本研究では 3.2 項で ^{210}Pb の解析に用いた移流拡散方程式で混合による鉛直輸送の効果を見積もり、混合を受けていない底質中における有機炭素、有機窒素、全リンの鉛直分布をシミュレーションした。

今回分析した大阪湾底質の初期続成過程では有機炭素、有機窒素、全リン共に一次反応速度則に従って分解しているので、その鉛直分布を(3)式を使って解析することができる。即ち、実測されたこれら成分の鉛直分布と混合層の混合パラメーターを用いて混合がない場合の底質表面の濃度(A_s)を決めれば、海水から底質に負荷する易分解性有機物のフラックスを計算することができる。各成分に対するシミュレーションの結果を Fig.5 に、得られたフラックスの値を Table 2 に示した。計算結果の詳細は Appendix I ~ III に示した。

底質中の有機炭素、有機窒素、全リンの鉛直分布を Table 1 に示した混合パラメーターを用いて(4)式、(6)式で解析したフィッティング曲線を Fig.5 に細線で示した。両者のプロファイルは全リンの表層部を除いて極めてよく一致し、今回適用した移流拡散モデルによる解析が、これら成分の鉛直分布が受けた混合の効果をも正しく反映していることが示された。全リンの分布が混合層の表層でフィッティング曲線から少し外れるのは、海水-底質境界面における無機態リンの溶脱・固定に伴う濃度変動の効果を考えていないためであると考えられる。

(4)式、(6)式のフィッティングで得られた解析結果から、これら成分が混合を受けなかった場合に予測される底質表面の濃度 A_s とその鉛直分布を決めること

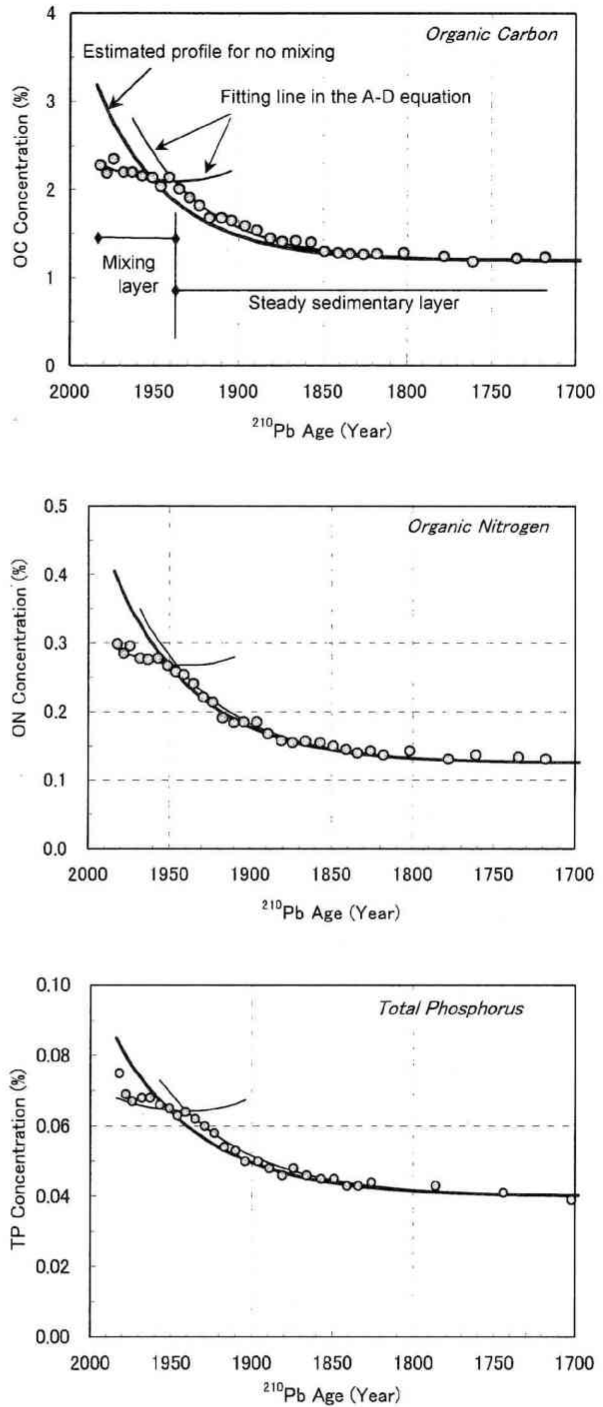


Fig.5 Historical trends of organic carbon, organic nitrogen and total phosphorus in the Stn.8 core of Osaka Bay and its decomposition profile estimated by the A-D equation

Table 2 Flux and decomposition rate of organic carbon, organic nitrogen and total phosphorous in the Stn.8 core of Osaka Bay

	Observed			Estimated by AD model				
	Concentration in Surface (%)			Flux (mg/cm ² yr)				Decomposition Rate (mg/cm ² yr)
	Total	BG	Early Decomposed	Total	Early Decomposed	Total	Early Decomposed	(in Surface)
Organic Carbon	2.28	1.19	1.09	3.19	2.00	4.79	3.00	0.0693
Organic Nitrogen	0.299	0.125	0.174	0.405	0.280	0.608	0.420	0.0083
Total Phosphorus	0.075	0.040	0.035	0.085	0.045	0.128	0.068	0.0012

ができる。その結果を Fig.5 に太線で示した。この底質は 1984 年に採取されているので、ここで得られた底質表面の濃度はその時点における値である。この濃度と底質のマスフラックスを用いて、これら有機成分のフラックスを計算した。結果は Table 2 に示した。大阪湾底質に対する初期続成過程において分解される易分解性有機物のフラックスは有機炭素 3.00 mgC, 有機窒素 0.42mgN, 全リン 0.068mgP cm⁻²yr⁻¹ であり、それぞれ難分解性有機物を含めた全フラックスの 63%, 69%, 53%を占めた。難分解性リン化合物の割合が有機炭素や有機窒素に比べて高いのは、人為的に負荷された有機リン系化合物が影響しているのかもしれない。

3.5 底質中の有機物の分解速度

大阪湾底質中の初期期続成過程で容易に分解される有機物は見かけ上、一次反応速度則に従って分解しているので、移流拡散方程式で計算された混合の効果を受けていない場合に予想される鉛直分布に(1)式を適用すれば、簡単に各堆積層の有機物分解速度を計算することができる。

大阪湾の底質表層で計算された有機物の分解速度を Table 2 に示した。それぞれ有機炭素 0.0693 mgC, 有機窒素 0.0083mgN, 全リン 0.0012mgP cm⁻²yr⁻¹ であった。この値は人間活動の影響をあまり受けていない小さな淡水湖である木崎湖の底質で測定された有機物の分解速度 0.0102mgC, 0.0015mgN cm⁻²yr⁻¹ に比べると 5~7 倍大きい¹⁸⁾。このような、大阪湾底質の初期続成過程における大きな有機物分解速度は、湾岸周辺の市街地から大量に流入している人為起源の有機物質の分解過程が大阪湾の有機物収支に重要な役割を演じていることを示唆している。また、大阪湾の高い生物生産性も有機物分解速度に影響している可能性も指摘することができる。

有機物の分解速度とフラックスの比はそれぞれ有機炭素 0.023, 有機窒素 0.020, 全リン 0.018 であり、その半減期から予測されるのと同様に、有機炭素成分が最も分解されやすく、全リン成分が最も分解され難い有機物を構成していることも明らかになった。しかし、いずれの成分についても 1700 年代にはその分解速度がほぼゼロに収束し、初期続成過程で分解する易分解性有機物は底質中で 200~300 年程度の期間で分解し、自然に消滅すると考えられた。各堆積層について計算した分解速度も Appendix I ~ III に示した。

4 結 語

大阪湾の中央部から採取した底質コア試料中の有機炭素、有機窒素、全リンの鉛直分布を測定して、海水から底質に負荷する有機物のフラックスと底質中の初期続成過程における有機物の分解速度を推定した。この底質の表層部には混合層が存在するので、これら成分の鉛直分布は底質の物理的攪乱による鉛直輸送の影響を受けている。そこで移流拡散方程式を用いて混合の効果を補正して、混合を受けなかった場合に予測されるこれら成分の鉛直分布を推定し、有機物のフラックスと分解速度を算出した。大阪湾の底質では、海水から負荷する有機物の 60~70%が 200~300 年程度の初期続成過程で分解して消滅すると考えられた。その半減期は有機炭素 30 年、有機窒素 35 年と見積もられた。リンについては無機態リンの存在を考慮しなければならないが、全リンの結果から考えて、有機リン化合物は有機炭素、有機窒素化合物より分解され難いと推定された。

本論文で議論した大阪湾底質の初期続成過程で分解する有機物の種類とその起源を特定するためには、有機炭素、有機窒素、有機リンの存在比(レッド

フィールド比¹⁹⁾)やその海域別の時系列変動を比較検討することが必要である。また、レッドフィールド比は海洋における生物活動や有機物の無機化過程を化学量論的に取り扱う際に有用な情報も与えてくれるので²⁰⁾, 底質の有機物汚染が大阪湾の富栄養化に果たしている役割を詳細に議論するために重要である。それらについては改めて報告する。

謝 辞

本研究に用いた底質コア試料は広島大学練習船豊潮丸の研究航海において採取した。採泥作業に協力いただいた乗船研究者並びに乗組員の皆様に深謝いたします。本研究の経費は平成12年度近畿大学理工学部教員研究充実費(課題番号:RK12-28),平成12~14年度環境省廃棄物処理等科学研究費補助金(主任研究者:酒井伸一,国立環境研究所)及び平成16~17年度科学研究費補助金基盤研究C(課題番号:16510012)によった。

引用文献

- 1) M. Murozumi, T. J. Chaw and C. C. Patterson, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **33**, 1247 (1969).
- 2) 山崎秀夫, *ぶんせき*, **2002**, 589 (2002).
- 3) 稲野伸哉, 山崎秀夫, 吉川周作, *第四紀研究*, **43**, 275 (2004).
- 4) W. H. Berger and G. R. Heath, *J. Mar. Res.*, **26**, 134 (1968).
- 5) N. L. Guinasso, Jr. and D. R. Schink, *J. Geophys. Res.*, **80**, 3032 (1975).
- 6) D. J. DeMaster and K. Cochran, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **61**, 257 (1982).
- 7) C. A. Nittrouer, D. J. DeMaster, B. A. McKee, N. H. Cutshall and I. L. Larsen, *Mar. Res.*, **54**, 201 (1983/1984).
- 8) U. Forstner and G. T. W. Wittmann, "Metal Pollution in Aquatic Environment, Chapter D and E", Springer-Verlag (1983).
- 9) 合田四郎, 山崎秀夫, 平田勝, 長澤太朗, *分析化学*, **36**, 199 (1987).
- 10) E. D. Goldberg and M. Koide, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **26**, 417 (1962).
- 11) S. Krishnaswamy and D. Lal, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **11**, 407 (1971).
- 12) J. A. Robbins and D. N. Edgington, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **39**, 285 (1975).
- 13) J. O. Nriagu, ed., "The Biogeochemistry of Lead in the Environment, Chapter 9", Elsevier (1978).
- 14) J. Carroll and I. Lerhe, "Sedimentary Processes: Quantification Using Radionuclides", Elsevier (2003).
- 15) L. F. Ahly, *Bull. Amer. Assoc. Petrol. Geol.*, **14**, 1 (1930).
- 16) E. Matsumoto, *Geochem. J.*, **9**, 167 (1975).
- 17) 寺田幸太郎, "近畿大学大学院化学研究科1996年度修士論文".
- 18) 小山忠四郎, "生物地球化学, 第7章", 東海大学出版会 (1980年).
- 19) A. C. Redfield, B. H. Ketchum and F. A. Richards, "The Sea, Vol.2", Interscience Publ. (1963).
- 20) 角皆静男, 乗木新一郎, "海洋化学—化学で海を解く, 第3章", 産業図書 (1983年).

Appendix I Results of Analyses Using Advection-Diffusion Equation

(Osaka Bay Stn.8, Organic Carbon)

Mixing Layer (L) :	25.5 cm	$A_3 =$	2.6624709	F =	-8.541096939
Sedimentation Rate (S) :	0.49 cm/yr	$A_2 =$	1.001307	$V_1 =$	-0.553528428
Mixing Coefficient (D) :	25 cm ² /yr	$A_1 =$	0.117234	$V_2 =$	1.043528428
Mass Flux:	0.150 g/cm ² yr	$\beta_3 =$	-0.0471529		
Half Life of OC:	30 yr	$\beta_2 =$	-0.0221411		
Decay Constant (OC, λ):	0.0231 /yr	$\beta_1 =$	0.0417411		

Total Flux	4.785 C mg/cm ² yr
Early Decomposed Flux	3.000 C mg/cm ² yr
Decomposition Rate	0.0693 C mg/cm ² yr

²¹⁰ Pb Age	Depth in Core (cm)	Corrected Depth (cm)	OC Concentration		Calculated with A-D Model			
			Total (%)	Net (%)	In Mixing Layer (%)	Under Mixing Layer (%)	Without Mixing (%)	Decomposition Rate (mg/cm ² yr)
1984	0	0.0	-	-	2.31	3.85	3.19	0.0693
1982	1	1.0	2.28	1.09	2.29	3.73	3.10	0.0661
1978	3	3.1	2.19	1.00	2.26	3.49	2.92	0.0599
1974	5	5.3	2.35	1.16	2.23	3.26	2.75	0.0540
1968	7	7.9	2.20	1.01	2.19	3.02	2.57	0.0478
1963	9	10.5	2.20	1.01	2.17	2.81	2.41	0.0422
1957	11	13.3	2.16	0.97	2.14	2.61	2.26	0.0370
1951	13	16.1	2.14	0.95	2.12	2.44	2.13	0.0324
1946	15	18.7	2.04	0.85	2.11	2.29	2.02	0.0287
1941	17	21.4	2.14	0.95	2.10	2.16	1.92	0.0253
1935	19	24.2	2.01	0.82	2.10	2.04	1.83	0.0221
1929	21	27.1	1.91	0.72	2.10	1.93	1.75	0.0193
1923	23	30.0	1.82	0.63	2.12	1.84	1.68	0.0168
1917	25	33.1	1.68	0.49	2.14	1.75	1.61	0.0146
1910	27	36.3	1.68	0.49	2.17	1.67	1.55	0.0125
1904	29	39.6	1.65	0.46	2.22	1.60	1.50	0.0107
1896	31	43.2	1.59	0.40	2.29	1.54	1.45	0.0090
1889	33	46.8	1.54	0.35	2.37	1.48	1.41	0.0076
1881	35	50.5	1.45	0.26	2.48	1.44	1.37	0.0064
1874	37	54.2	1.41	0.22	2.62	1.40	1.35	0.0054
1866	39	58.2	1.42	0.23	2.80	1.36	1.32	0.0045
1857	41	62.3	1.40	0.21	3.02	1.33	1.30	0.0037
1849	43	66.1	1.30	0.11	3.27	1.31	1.28	0.0031
1841	45	70.0	1.28	0.09	3.58	1.29	1.26	0.0026
1834	47	73.8	1.27	0.08	3.94	1.27	1.25	0.0021
1826	49	77.5	1.26	0.07	4.35	1.26	1.24	0.0018
1818	51	81.3	1.27	0.08	4.85	1.25	1.23	0.0015
1802	55	89.1	1.28	0.09	6.16	1.23	1.22	0.0010
1786	59	96.9			8.00	1.22	1.21	0.0007
1778	61	101.0	1.24	0.05	9.24	1.21	1.21	0.0006
1761	65	109.3	1.18	-0.01	12.51	1.21	1.20	0.0004
1744	69	117.6			17.15	1.20	1.20	0.0003
1735	71	122.0	1.22	0.03	20.34	1.20	1.20	0.0002
1718	75	130.3	1.23	0.04	28.23	1.20	1.19	0.0001
1702	79	138.6			39.39	1.19	1.19	0.0001
1693	81	143.0	1.18	-0.01	47.08	1.19	1.19	0.0001
1675	85	151.4	1.21	0.02	66.33	1.19	1.19	0.0001
1659	89	159.6	1.22	0.03	92.90	1.19	1.19	0.0000

Appendix II Results of Analyses Using Advection-Diffusion Equation

(Osaka Bay Stn.8, Organic Nitrogen)

Mixing Layer (L) :	25.5 cm	$A_3=$	0.3083105	$F=$	-7.5394947
Sedimentation Rate (S) :	0.49 cm/yr	$A_2=$	0.148526	$V_1=$	-0.500070553
Mixing Coefficient (D) :	25 cm ² /yr	$A_1=$	0.0196997	$V_2=$	0.990070553
Mass Flux:	0.150 g/cm ² yr	$\beta_3=$	-0.0404167		
Half Life of ON:	35 yr	$\beta_2=$	-0.0200028		
Decay Constant (ON, λ):	0.0198 /yr	$\beta_1=$	0.0396028		

Total Flux	0.608 N mg/cm ² yr
Early Decomposed Flux	0.420 N mg/cm ² yr
Decomposition Rate	0.00832 N mg/cm ² yr

²¹⁰ Pb Age (Year)	Depth in Core (cm)	Corrected Depth (cm)	ON Concentration		Calculated with A-D Model			
			Total (%)	Net (%)	In Mixing Layer (%)	Under Mixing Layer (%)	Without Mixing (%)	Decomposition Rate (mg/cm ² yr)
1984	0	0.0	-	-	0.293	0.433	0.405	0.00832
1982	1	1.0	0.299	0.174	0.291	0.421	0.394	0.00799
1978	3	3.1	0.285	0.160	0.287	0.397	0.372	0.00734
1974	5	5.3	0.296	0.171	0.283	0.374	0.351	0.00671
1968	7	7.9	0.278	0.153	0.279	0.349	0.328	0.00604
1963	9	10.5	0.276	0.151	0.275	0.327	0.308	0.00544
1957	11	13.3	0.278	0.153	0.272	0.305	0.289	0.00486
1951	13	16.1	0.267	0.142	0.270	0.286	0.271	0.00434
1946	15	18.7	0.258	0.133	0.268	0.270	0.256	0.00391
1941	17	21.4	0.254	0.129	0.268	0.255	0.243	0.00350
1935	19	24.2	0.241	0.116	0.268	0.241	0.230	0.00313
1929	21	27.1	0.221	0.096	0.269	0.228	0.219	0.00278
1923	23	30.0	0.214	0.089	0.271	0.217	0.208	0.00247
1917	25	33.1	0.191	0.066	0.275	0.206	0.198	0.00218
1910	27	36.3	0.184	0.059	0.280	0.196	0.190	0.00192
1904	29	39.6	0.185	0.060	0.287	0.187	0.182	0.00168
1896	31	43.2	0.185	0.060	0.297	0.179	0.174	0.00145
1889	33	46.8	0.168	0.043	0.309	0.172	0.167	0.00125
1881	35	50.5	0.158	0.033	0.325	0.165	0.161	0.00108
1874	37	54.2	0.155	0.030	0.344	0.159	0.156	0.00093
1866	39	58.2	0.157	0.032	0.369	0.154	0.152	0.00079
1857	41	62.3	0.155	0.030	0.400	0.150	0.148	0.00067
1849	43	66.1	0.150	0.025	0.435	0.146	0.144	0.00058
1841	45	70.0	0.145	0.020	0.477	0.143	0.142	0.00049
1834	47	73.8	0.140	0.015	0.525	0.141	0.139	0.00042
1826	49	77.5	0.143	0.018	0.581	0.138	0.137	0.00036
1818	51	81.3	0.137	0.012	0.647	0.137	0.135	0.00031
1802	55	89.1	0.143	0.018	0.821	0.133	0.133	0.00023
1786	59	96.9			1.061	0.131	0.131	0.00017
1778	61	101.0	0.131	0.006	1.220	0.130	0.130	0.00014
1761	65	109.3	0.137	0.012	1.636	0.129	0.128	0.00010
1744	69	117.6			2.215	0.128	0.127	0.00007
1735	71	122.0	0.134	0.009	2.608	0.127	0.127	0.00006
1718	75	130.3	0.131	0.006	3.568	0.127	0.126	0.00004
1702	79	138.6			4.902	0.126	0.126	0.00003
1693	81	143.0	0.126	0.001	5.808	0.126	0.126	0.00003
1675	85	151.4	0.126	0.001	8.047	0.126	0.126	0.00002
1659	89	159.6	0.123	-0.002	11.082	0.125	0.125	0.00001

Appendix III Results of Analyses Using Advection-Diffusion Equation

(Osaka Bay Stn.8, Total Phosphorus)

Mixing Layer (L) :	25.5 cm	$A_3=$	0.0542598	$F=$	-7.145170995
Sedimentation Rate (S) :	0.49 cm/yr	$A_2=$	0.0245789	$V_1=$	-0.473361248
Mixing Coefficient (D) :	25 cm ² /yr	$A_1=$	0.0034399	$V_2=$	0.963361248
Mass Flux:	0.150 g/cm ² yr	$\beta_3=$	-0.0372259		
Half Life of TP:	38 yr	$\beta_2=$	-0.0189344		
Decay Constant(TP, λ):	0.0182 /yr	$\beta_1=$	0.0385344		
Surface Conc. (TP, A_s):	0.045 %			Total Flux	0.1275 P mg/cm ² yr
Interface Conc. (TP, A_L):	0.021 %			Early Decomposed Flux	0.0675 P mg/cm ² yr
BG Conc. of TP:	0.040 %			Decomposition Rate	0.0012 P mg/cm ² yr

²¹⁰ Pb Age	Depth in Core	Corrected Depth	TP Concentration		Calculated with A-D Model			
			Total	Net	In Mixing Layer	Under Mixing Layer	Without Mixing	Decomposition Rate
(Year)	(cm)	(cm)	(%)	(%)	(%)	(%)	(%)	(mg/cm ² yr)
1984	0	0.0	-	-	0.0680	0.0943	0.0850	0.00123
1982	1	1.0	0.075	0.035	0.0677	0.0923	0.0834	0.00119
1978	3	3.1	0.069	0.029	0.0671	0.0883	0.0801	0.00110
1974	5	5.3	0.067	0.027	0.0665	0.0845	0.0769	0.00101
1968	7	7.9	0.068	0.028	0.0658	0.0804	0.0735	0.00092
1963	9	10.5	0.068	0.028	0.0653	0.0767	0.0704	0.00083
1957	11	13.3	0.066	0.026	0.0648	0.0731	0.0674	0.00075
1951	13	16.1	0.065	0.025	0.0645	0.0698	0.0647	0.00068
1946	15	18.7	0.063	0.023	0.0643	0.0670	0.0624	0.00061
1941	17	21.4	0.064	0.024	0.0642	0.0645	0.0603	0.00056
1935	19	24.2	0.062	0.022	0.0643	0.0620	0.0583	0.00050
1929	21	27.1	0.060	0.020	0.0645	0.0598	0.0564	0.00045
1923	23	30.0	0.058	0.018	0.0649	0.0578	0.0547	0.00040
1917	25	33.1	0.054	0.014	0.0654	0.0558	0.0531	0.00036
1910	27	36.3	0.053	0.013	0.0663	0.0540	0.0517	0.00032
1904	29	39.6	0.050	0.010	0.0674	0.0524	0.0503	0.00028
1896	31	43.2	0.050	0.010	0.0690	0.0509	0.0490	0.00025
1889	33	46.8	0.048	0.008	0.0710	0.0495	0.0479	0.00022
1881	35	50.5	0.046	0.006	0.0735	0.0483	0.0469	0.00019
1874	37	54.2	0.048	0.008	0.0766	0.0472	0.0460	0.00016
1866	39	58.2	0.046	0.006	0.0806	0.0462	0.0452	0.00014
1857	41	62.3	0.045	0.005	0.0855	0.0453	0.0444	0.00012
1849	43	66.1	0.045	0.005	0.0910	0.0446	0.0438	0.00011
1841	45	70.0	0.043	0.003	0.0976	0.0440	0.0433	0.00009
1834	47	73.8	0.043	0.003	0.1052	0.0435	0.0429	0.00008
1826	49	77.5	0.044	0.004	0.1138	0.0430	0.0425	0.00007
1818	51	81.3			0.1242	0.0426	0.0422	0.00006
1802	55	89.1			0.1511	0.0420	0.0416	0.00004
1786	59	96.9	0.043	0.003	0.1879	0.0415	0.0412	0.00003
1778	61	101.0			0.2122	0.0413	0.0410	0.00003
1761	65	109.3			0.2752	0.0409	0.0408	0.00002
1744	69	117.6	0.041	0.001	0.3623	0.0407	0.0406	0.00002
1735	71	122.0			0.4211	0.0406	0.0405	0.00001
1718	75	130.3			0.5635	0.0404	0.0404	0.00001
1702	79	138.6	0.039	-0.001	0.7597	0.0403	0.0403	0.00001
1693	81	143.0			0.8922	0.0403	0.0402	0.00001
1675	85	151.4			1.2170	0.0402	0.0402	0.00000
1659	89	159.6	0.041	0.001	1.6537	0.0401	0.0401	0.00000