

2004–2018 年の夏季における大阪湾の水質特性の変遷： 河川負荷と COD 濃度に焦点を当てて

坂田晴香¹⁾³⁾*・中川耕三²⁾・北澤健二²⁾・山本 滯²⁾・森 航大¹⁾・
高柳和史¹⁾・菊田昌義¹⁾・合田賀彦¹⁾・立花義裕³⁾

Changes in water quality and related environmental conditions of Osaka Bay in summers from 2004 to 2018, focusing on river loads and COD concentrations

Haruka SAKATA¹⁾³⁾* , Kozo NAKAGAWA²⁾, Kenji KITAZAWA²⁾, Rei YAMAMOTO²⁾, Kodai MORI¹⁾,
Kazufumi TAKAYANAGI¹⁾, Masayoshi KIKUTA¹⁾, Yoshihiko GODA¹⁾ and Yoshihiro TACHIBANA³⁾

Abstract: Using data collected from 2004 to 2018, the relationships between fluctuation in water quality and river loads were analyzed in eight areas within Osaka Bay, comprising the A-, B-, and C-type areas as designated by the chemical oxygen demand (COD) environmental quality standards. Different trends were confirmed in each area, related to their location in the bay. Decreasing COD concentrations were observed around the Muko River mouth, while concentrations near the Yodo River mouth, near the Yamato River mouth, and in areas at the center of the bay remained unchanged. These stable trends might be attributable to the high COD concentrations in the inflow water at the inner part of the bay, as well as the in situ COD production in the center of the bay. In summary, changes in water quality reflecting river loads were observed in the inner part of the bay, but the effect decreased toward the center of the bay where in situ production might be greater. Therefore, for the future restoration plan in Osaka Bay, different approaches will be required, depending on the characteristics of the individual sea areas.

Keywords: *Osaka Bay, COD concentrations, river loads, in-situ COD production*

-
- 1) 三洋テクノマリン株式会社
〒103-0012 東京都中央区日本橋堀留町 1-3-17
Sanyo Techno Marine, Inc. 1-3-17 Nihombashi
Horidome-cho, Chuo-ku, Tokyo, 103-0012, Japan
- 2) 国土交通省神戸港湾空港技術調査事務所
〒651-0082 神戸市中央区小野浜町 7 番 30 号
Kobe Research and Engineering Office for Port
and Airport, Ministry of Land, Infrastructure,
Transport and Tourism, 7-30 Onohama-cho,

- Chuo-ku, Kobe-city, 651-0082, Japan
- 3) 三重大学大学院生物資源学研究所
〒514-8507 三重県津市栗真町屋町 1577
Mie University, Graduate School of Bioresources,
1577 Kurimamachiya-cho, Tsu-city, Mie, 514-8507,
Japan
- *連絡著者 (Corresponding author):
sakata@stm.co.jp

1. はじめに

1950年代以降の経済成長に伴い、陸域からの人為的な汚濁負荷が急増し、沿岸海域、とりわけ閉鎖性海域における水質汚濁が深刻な問題となってきた。特に瀬戸内海では、1970年の水質汚濁防止法制定後も赤潮が多発するなど水質汚濁の改善がみられず、1973年には瀬戸内海の環境保全を図ることを目的に瀬戸内海環境保全臨時措置法が時限立法として、1978年には瀬戸内海環境保全特別措置法が恒久法として、相次いで制定された。さらに1979年には、瀬戸内海を含む本邦の閉鎖性海域における有機汚濁や富栄養化を改善する目的で、陸域からの負荷を抑制するための水質総量規制（第1次総量規制）が講じられた。これを契機として、化学的酸素要求量（以下、CODと表す）が有機汚濁の指標とされ、生活環境を保全する上で維持されることが望ましい基準値が定められた。

大阪湾内においても、環境基本法（環境省、1993）に基づく利用目的の適応性に応じた海域別の類型指定がなされ、それぞれにCOD基準値が定められた。すなわち、湾口部から湾奥部に向かってA、B、Cの順で3類型が指定され、それぞれCOD基準値は、水浴、自然環境保全を利用目的としたA類型では 2 mg L^{-1} 、工業用水を利用目的としたB類型では 3 mg L^{-1} 、環境保全を利用目的としたC類型では 8 mg L^{-1} とされた。なお、環境省は総量削減の開始以降全国に環境基準点を設けて水質モニタリングを継続しており、大阪湾でも28基準点でモニタリングが行われている。その結果は水質の改善傾向を示しており、環境基準達成状況は2020年時点で66.7%と報告されている（環境省、2020）。

さらに、2001年の第5次総量規制より、CODに加え、全窒素（以下、TNと表す）、全リン（以下、TPと表す）も指定項目となり、水質総量規制が行われてきた。これについても、CODと同様に湾口部から湾奥部にかけてII、III、IVの3類型が指定され、それぞれ環境基準値が定められ、現在に至っている（Table 1）。

一方、2003年に大阪湾再生行動計画（2014年か

ら第2期）が策定され、その活動の1つとして大阪湾再生水質一斉調査が継続実施されている（大阪湾再生推進会議、2019）。この調査の特徴として以下の3点が挙げられる。

- 1) 河川域、湾奥部、湾央部、湾口部まで連続して広範囲のデータを、調査時期、調査方法を揃えて、年に一度の頻度で毎年継続的に取得していること。
- 2) 調査時期を、水質が悪化する夏期としていること。
- 3) 通常あまり調査されないごく沿岸部の、陸域からの負荷を受けやすい調査地点が充実していること。

この特徴により、大阪湾再生水質一斉調査で得られるデータは、大阪湾内はじめ大阪湾に流入する河川の流域圏において、広範囲かつ長年にわたって実施されている環境施策の効果検証に適したものとなっている。とりわけ、河川負荷とその負荷に対する海域の反応という観点から、河川負荷物質濃度の増減を直接反映するごく沿岸部での現象から、河川負荷物質の海域内における分解、再生を反映する湾央部での間接的な現象までが齊一な方法で捉えられていることが注目される。

これまでも大阪湾内の物質循環に関する種々の検討がなされてきたものの、それらの多くは特定の海域に着目したものであった（星加ほか、1998；中嶋ほか、2007；西田ほか、2012）。星加ほか（1998）および中嶋ほか（2007）では、大阪湾における湾奥から湾口への環境傾斜が明らかに示されているが、流入河川の流域圏における環境負荷とそれぞれの河口周辺海域の環境との関係は論じられていない。そのため、湾内に設定された各類型指定海域や各流入河川河口周辺海域における水質特性の違いは未だ明らかではない。

本研究では、大阪湾再生水質一斉調査によるデータを用いて、類型指定海域や環境基準値を踏まえ、湾奥から湾央にかけての変化とともに、流入河川別に負荷の在り方と海域環境との関連を調べた。本データが河口および湾奥に密集しているという特徴を生かし、環境省によるA、B、C類型指定海域を、流入河川の河口位置を考慮してさら

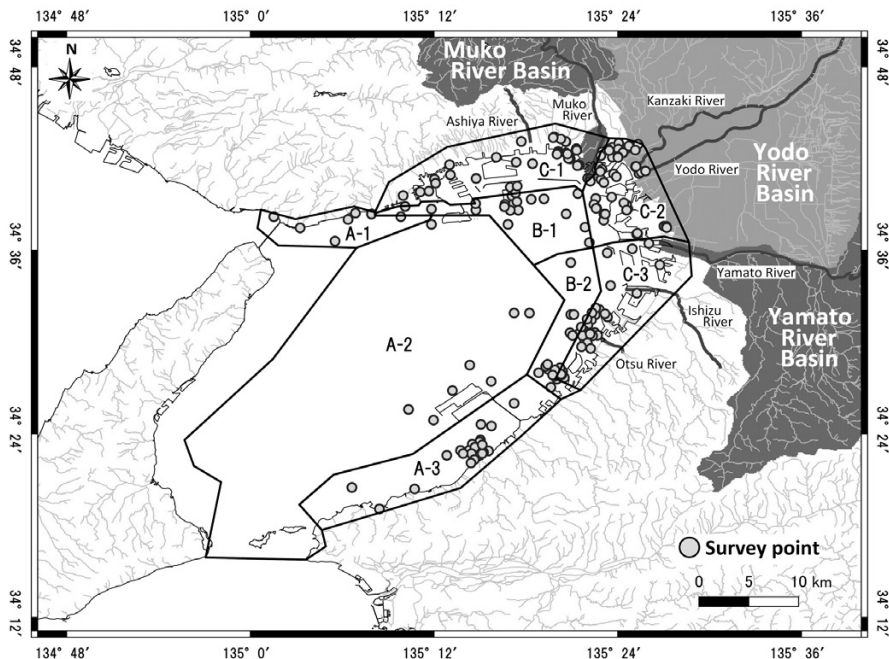


Fig. 1 Eight subdivisions of Osaka Bay demarcated by potential topographical influences of three major river basins (i.e., Muko River Basin, Yodo River Basin, and Yamato River Basin). The open circles indicate the positions of the survey points where the data on nutrients and COD were obtained.

に空間的に細分化し、水質環境の実態把握を試みた。A, B, C という 3 類型だけでなく流入河川に応じて細分化した海域毎の状態を把握することは、今後大阪湾内の水質改善を図る上で重要な知見となると考えられる。なぜなら、湾内の環境は海洋学的な過程にも大きく支配されているが、とりわけ湾奥部では河川からの流入負荷の影響を強く受けるからである。

2. 解析方法

2.1 調査データと解析エリア

本研究では Fig. 1 に示すように、大阪湾の A, B, C 類型指定海域を大阪湾流域別の河川負荷を考慮して地理的に 8 つの海域に細分化した。エリア区分の際には、国土数値情報(国土交通省, 2009)の流域メッシュデータおよび河川ラインデータを参考とした。大阪湾奥部に流れ込む主要な河川の流域である武庫川流域、淀川流域および大和川流

域に焦点をあて、A, C 類型指定海域をそれぞれ 3 区分に、B 類型指定海域を 2 区分に細分化した。結果として、A 類型指定海域は、神戸市沿岸の A-1 海域、湾中部の A-2 海域、泉佐野・泉南沿岸の A-3 海域に、B 類型指定海域は兵庫県東部沖の B-1 海域、大阪府西部沖の B-2 海域に、C 類型指定海域は、武庫川河口周辺の C-1 海域、淀川河口周辺の C-2 海域、大和川河口周辺の C-3 海域に、それぞれ細分された。各海域における COD, TN, TP にかかる環境基準値は Table 1 に示すとおりである。

なお、ここでの流域(武庫川流域、淀川流域、大和川流域)の定義は、解析の便宜上、直接大阪湾に流入する複数の河川を含む広義の流域とし、主要 3 河川以外の小流入河川は近接する主要河川の流域に含めた (Fig. 1)。

使用するデータは大阪湾再生水質一斉調査による過去 15 年間 (2004-2018 年) のデータであり、

Table 1. The environmental standard values for COD, TP and TP (mg L^{-1}) in eight analyzed sea-areas within Osaka Bay

Areas defined in this study	Applicable sea area	Sea area classification and environmental quality standards by the Ministry of the Environment	
		COD	TN and TP
A-1	Around Suma, Tarumi city	Type A COD: 2 mg L^{-1}	Type II
A-2	Central parts of the bay		TN : 0.3 mg L^{-1} ($0.0214 \text{ }\mu\text{M}$)
A-3	Around Izumisano, Sennan city		TP : 0.03 mg L^{-1} ($0.0010 \text{ }\mu\text{M}$)
B-1	Off the Muko and Yodo River	Type B COD: 3 mg L^{-1}	Type III
B-2	Off the Yamato River		TN : 0.6 mg L^{-1} ($0.0428 \text{ }\mu\text{M}$) TP : 0.05 mg L^{-1} ($0.0016 \text{ }\mu\text{M}$)
C-1	Around the mouth of the Muko River	Type C COD: 8 mg L^{-1}	Type IV
C-2	Around the mouth of the Yodo River		TN : 1.0 mg L^{-1} ($0.0714 \text{ }\mu\text{M}$)
C-3	Around the mouth of the Yamato River		TP : 0.09 mg L^{-1} ($0.0029 \text{ }\mu\text{M}$)

このうち、COD, TN, TP, 溶存無機態窒素 (DIN: $\text{NH}_4\text{-N}$, $\text{NO}_3\text{-N}$, $\text{NO}_2\text{-N}$), 溶存無機態リン (DIP: $\text{PO}_4\text{-P}$), クロロフィル a のデータがそろっている 107 地点からのデータセットを抽出した。さらに、TN と DIN との差から有機態窒素 (以下、org-N と表す) を、TP と DIP との差から有機態リン (以下、org-P と表す) の濃度を求めた。したがって org-N と org-P には溶存有機態と粒状有機態のものが含まれ、いずれも微生物やデトリタスを含むものである。

使用した 107 セットのデータが得られた観測点の位置は、調査年によって異なるが、A-1 海域に 7 点、A-2 海域に 4-7 点、A-3 海域に 3-9 点、B-1 海域に 6-15 点、B-2 海域に 3-8 点、C-1 海域に 8-15 点、C-2 海域に 2-29 点、および C-3 海域に 6-17 点であった。

2.2 COD, TN, TP のトレンド解析

2.1 で定義した 8 海域における COD, TN, TP 濃度の水平分布を把握し、その経年変化のトレンド解析をおこなった。また、湾奥海域の COD 濃度と流入河川の COD 濃度との関連性を調べた。

経年変化のトレンドは次のように解析した。まず、各海域内における水平分布の経年変化を把握

するために、過去 15 年のデータにクリギング面補間を施して各年の等値線図を描画し、得られた図より水平分布の経年変化を読み取った。次いで、過去 15 年の年平均変動から LOWESS 平滑化法によりトレンド成分を抽出し、Sen's slope 法よりそのトレンドの傾き (slope 値) を算出した。Slope 値の有意性検定では、水文時系列の傾向変動解析に適した Mann-Kendall 法 (POHLERT, 2015) を用いた。本論では、slope 値で表されるトレンドが有意である場合は減少傾向とし、有意性が確認できなかった場合は横ばい傾向であるとみなした。

湾奥海域と河川における COD 濃度の関連性の解析では、流入河川を次のようにグループ分けした。まず、大阪湾に流入する河川のうち流量の多い 4 河川である武庫川、淀川、神崎川、大和川に注目し、それぞれは近傍にある小河川を含むものとした。次いで、それぞれが流入する海域に注目して、以下の 3 グループに区分した。すなわち、C-1 海域に流入する武庫川、C-2 海域に流入する淀川と神崎川、および C-3 海域に流入する大和川である。そのうえで、各河川 (近傍小河川を含む) の上流、中流、下流における過去 15 年の COD 濃度を大阪湾一斉調査データより引用した。

2.3 内部生産

2.1 節で定義した8海域について、COD変動が内部生産（現場における植物プランクトン生産）に由来するか否かを調べた。まず、海域ごとのクロロフィル a-有機物 (org-N, org-P)、塩分-有機物 (org-N, org-P) および塩分-無機物 (DIN, DIP) の関係により、各海域において内部生産を支配しているはずの栄養塩の状態を示した。これをもとに、河川からの負荷、河口との位置関係および湾内流との関係から、各海域における内部生産とその環境支配のメカニズムを考察した。湾奥部のC類型指定海域では河川負荷の影響が大きく、湾中央部のA, B類型指定海域ではその影響が減衰するはずである（星加ほか, 1998）。CODの起源は海域によって異なると考えられるので、各海域のCODについてCOD濃度が比較的高い（環境基準値を超える）データと低い（環境基準値以下）データに分け、それぞれについてorg-N, org-Pおよびクロロフィル aとの相関分析をおこない、さらにそれぞれに対する河川負荷の影響を見るために塩分との関係を解析することとした。その際、クロロフィル aは内部生産の指標として扱い、有機物 (COD, org-N, org-P) との相関が高いほど内部生産の寄与が大きいと解釈した。

また、河口周辺海域 (C-1, C-2, C-3) におけるTNとTPについて表層と底層のTN/TPモル比を算出した。これは、N, P以外の光合成律速要因が満たされている場合に、相対的にNとPのいずれが制限要因となりやすいかを推察するための指標であり、河口周辺海域における栄養塩バランスを示すものとみなした。

3. 結果

3.1 大阪湾内におけるCOD, TNおよびTPの経年変動性

2004-2018年の各年における表層のCOD, TNおよびTPの等濃度線図をFigs. 2-4に、経年変動のトレンドをFigs. 5-7およびTable 2に示す。大阪湾内におけるCOD, TNおよびTPの経年的な水平分布の変動と濃度変動の傾向をまとめると以下ようになる。

(1) COD

表層におけるCOD濃度の水平分布 (Fig. 2) は、C類型指定海域においては年変動が大きいものの、C-1およびC-2海域の湾奥側で基準値 8 mg L^{-1} を超える高濃度状態にあった。しかし、2013年以降はその範囲が小さくなり、陸側から沖に向かう等濃度線は疎になり、全域で濃度が徐々に減少していく様子を示している。

B類型指定海域においては、基準値 3 mg L^{-1} 以下の値は、従前は2011年にB-2海域で一度だけしかみられなかったが、2016年以降は沖側を中心に広くみられるようになった。B-1およびB-2海域では、それぞれの域内で濃度差がみられた。B-1海域では主に湾北部沿岸側のC-1とC-2海域に隣接する領域で、B-2海域でも同じく湾東部沿岸側のC-3海域に隣接する領域で、ともに高い傾向がみられた。

A類型指定海域においては、ほぼ全期間を通して、A-1海域では東部のB-1に隣接する領域で濃度が高くなる傾向、A-3海域では関西国際空港周辺で濃度が高くなる傾向があった。近年ではほぼ全域において 3 mg L^{-1} 以下におさまっているが、基準値の 2 mg L^{-1} を満たしてはいない。

本研究で表層と底層を別けてそれぞれの経年変動のトレンドを解析した結果 (Fig. 5, Table 2) は、表層と底層における変動の関係は単純ではないことを示していた。表層では、C類型指定海域においては、C-2, C-3海域で横ばい、C-1海域で有意な減少 ($-0.104 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) が確認できたが、底層においては、C-1海域に加えてC-2海域でも有意な減少 (C-1: $-0.059 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, C-2: $-0.075 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) がみられた。B類型指定海域においては、北部のB-1海域では表層および底層ともに有意に減少 (表層: $-0.065 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, 底層: $-0.057 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) していたが、東部のB-2海域では表層および底層いずれも横ばいであった。A類型指定海域においては、依然として基準値 (2 mg L^{-1}) を超える場合が多いものの基準値を超える地点は年々減ってきている。表層ではA-2とA-3の両海域で減少 (A-2: $-0.072 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, A-3: -0.078 mg L^{-1}

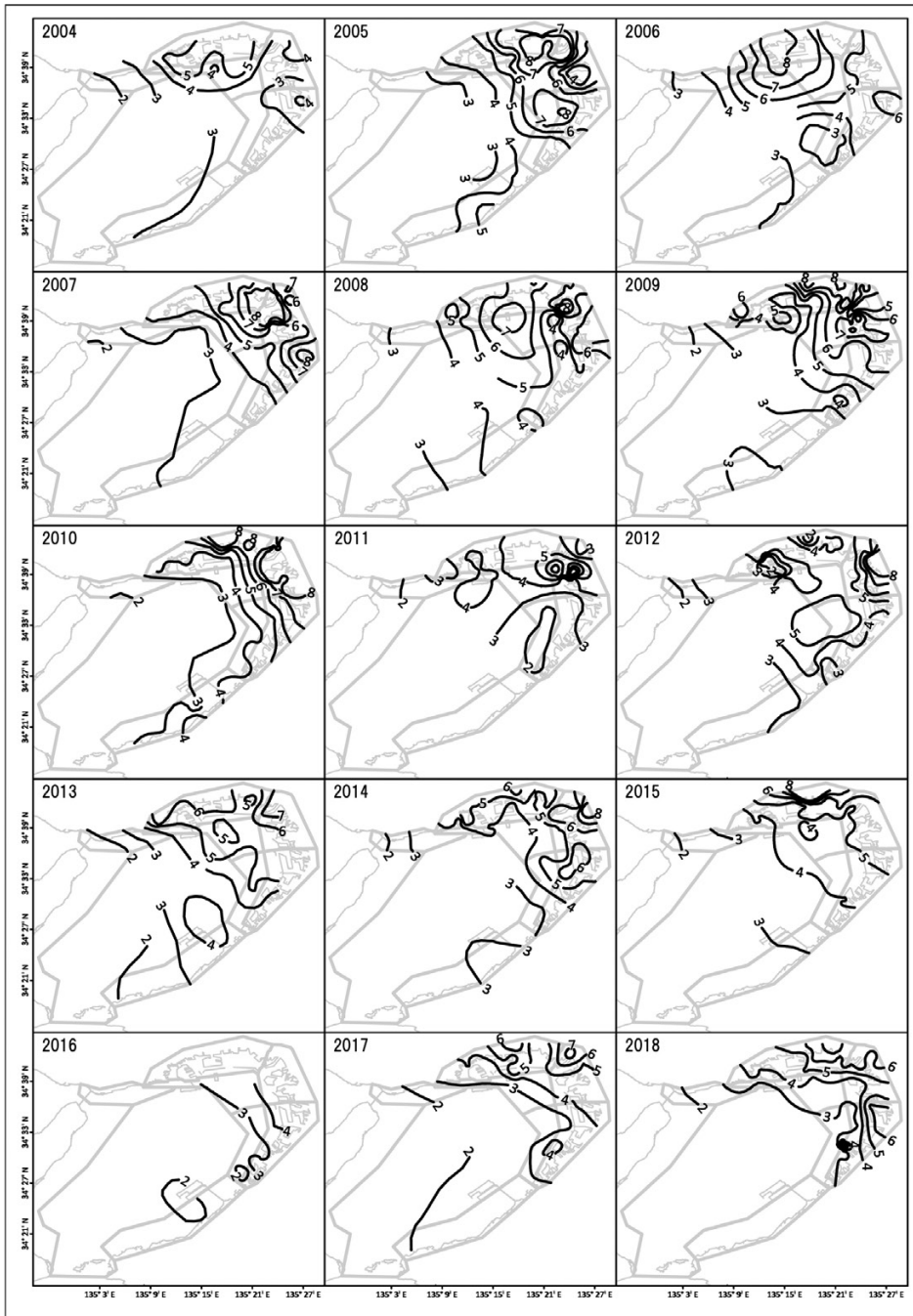


Fig. 2 Distribution of COD (mg L⁻¹) in summer at the surface of Osaka Bay from 2004 to 2018.

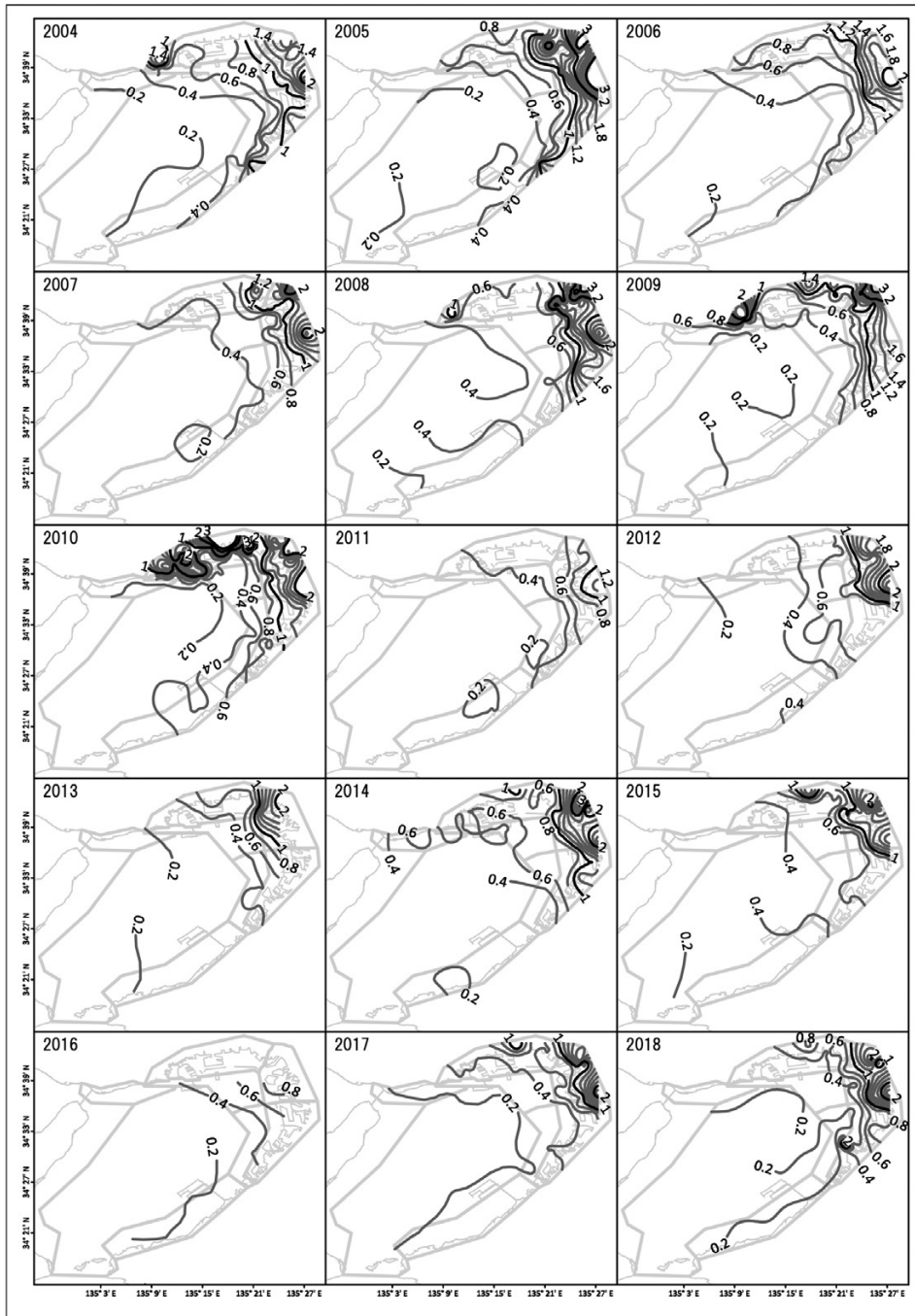


Fig. 3 Distribution of TN (mg L^{-1}) in summer at the surface of Osaka Bay from 2004 to 2018.

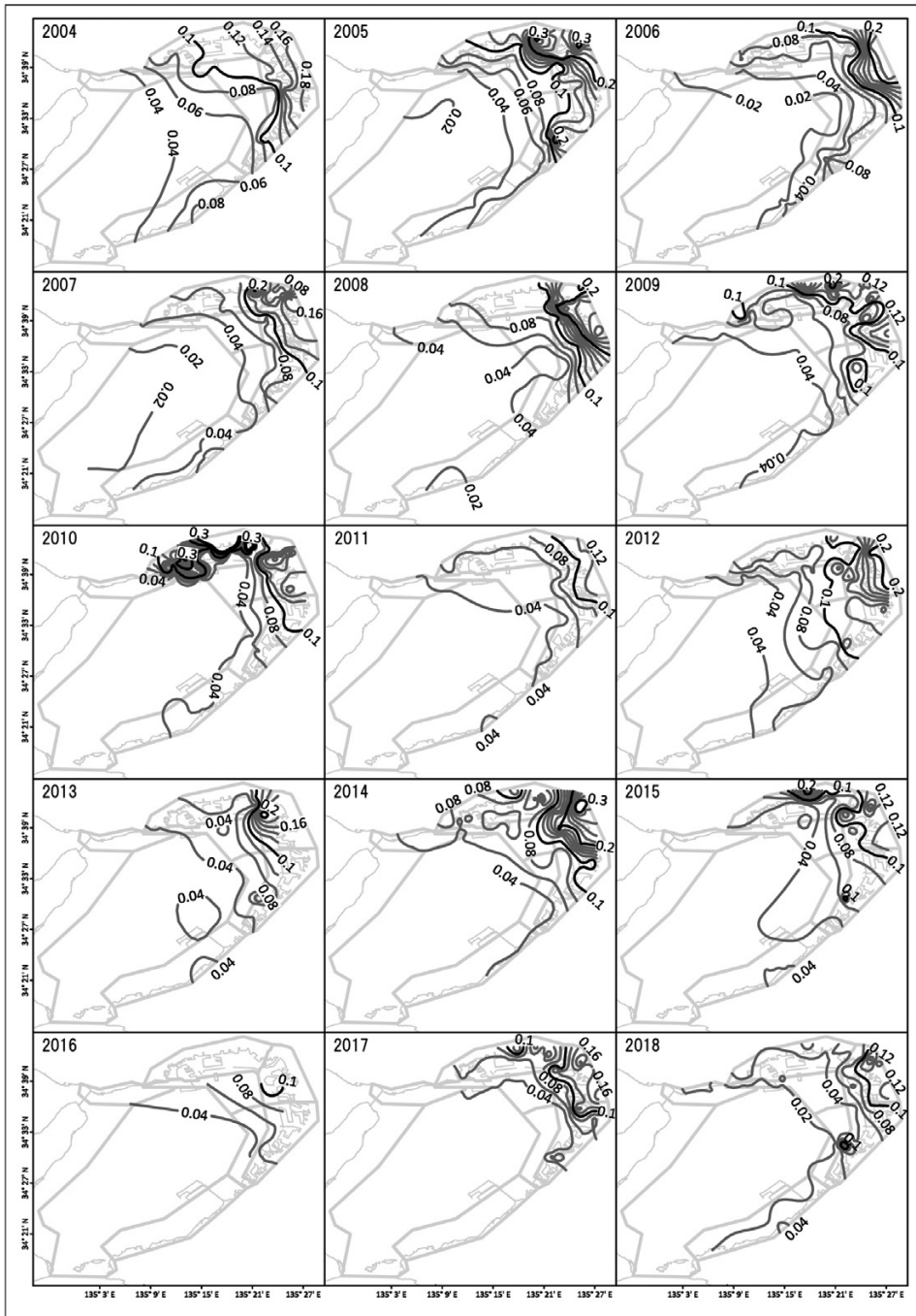


Fig. 4 Distribution of TP (mg L^{-1}) in summer at the surface of Osaka Bay from 2004 to 2018.

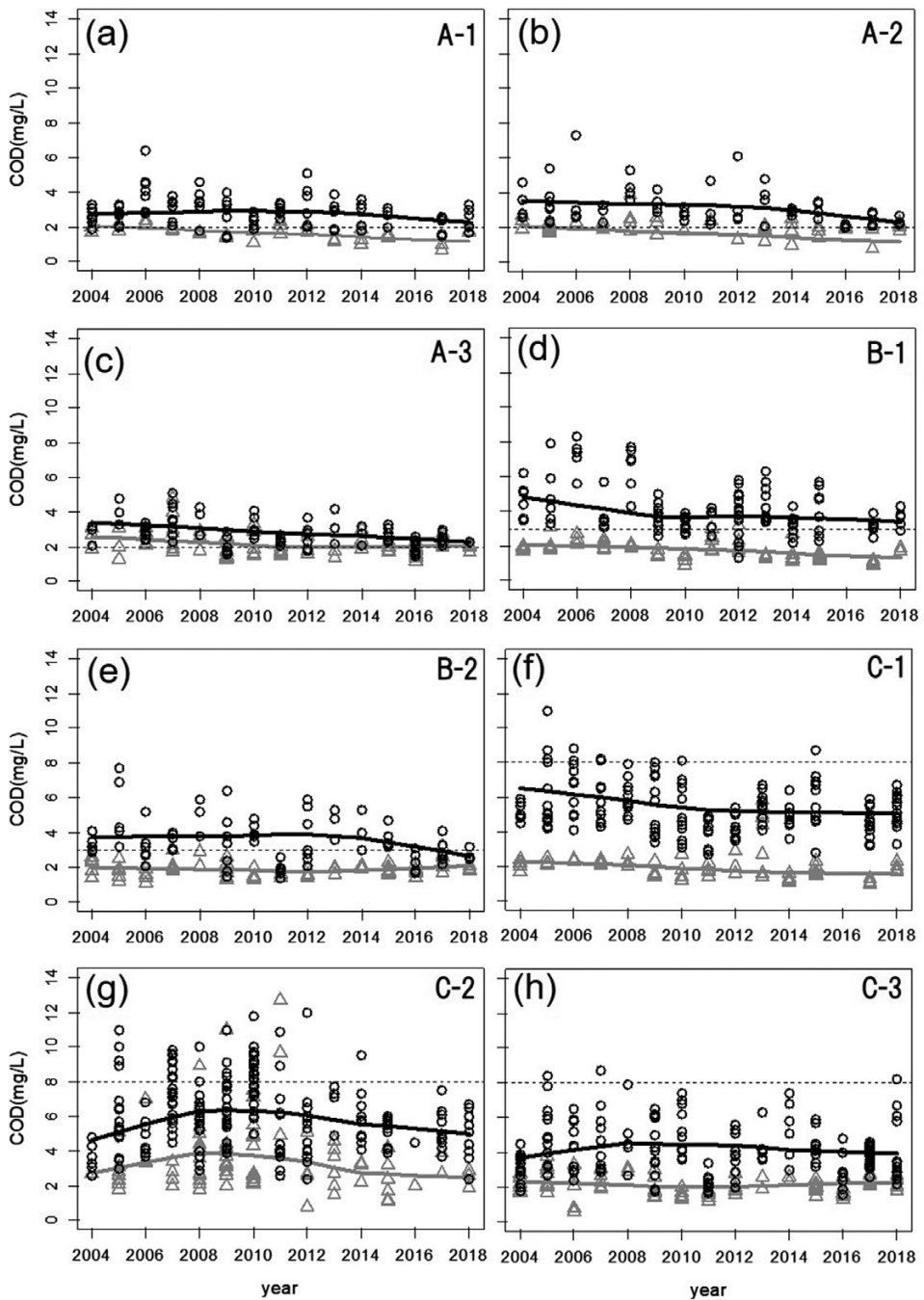


Fig. 5 Temporal changes in COD in the surface (circles) and bottom (triangles) layers in Osaka Bay in summers of 2004–2018. The solid line and grey line show annual trends in the surface and bottom layers, respectively. The broken line indicates environmental standard values in the respective sea area.

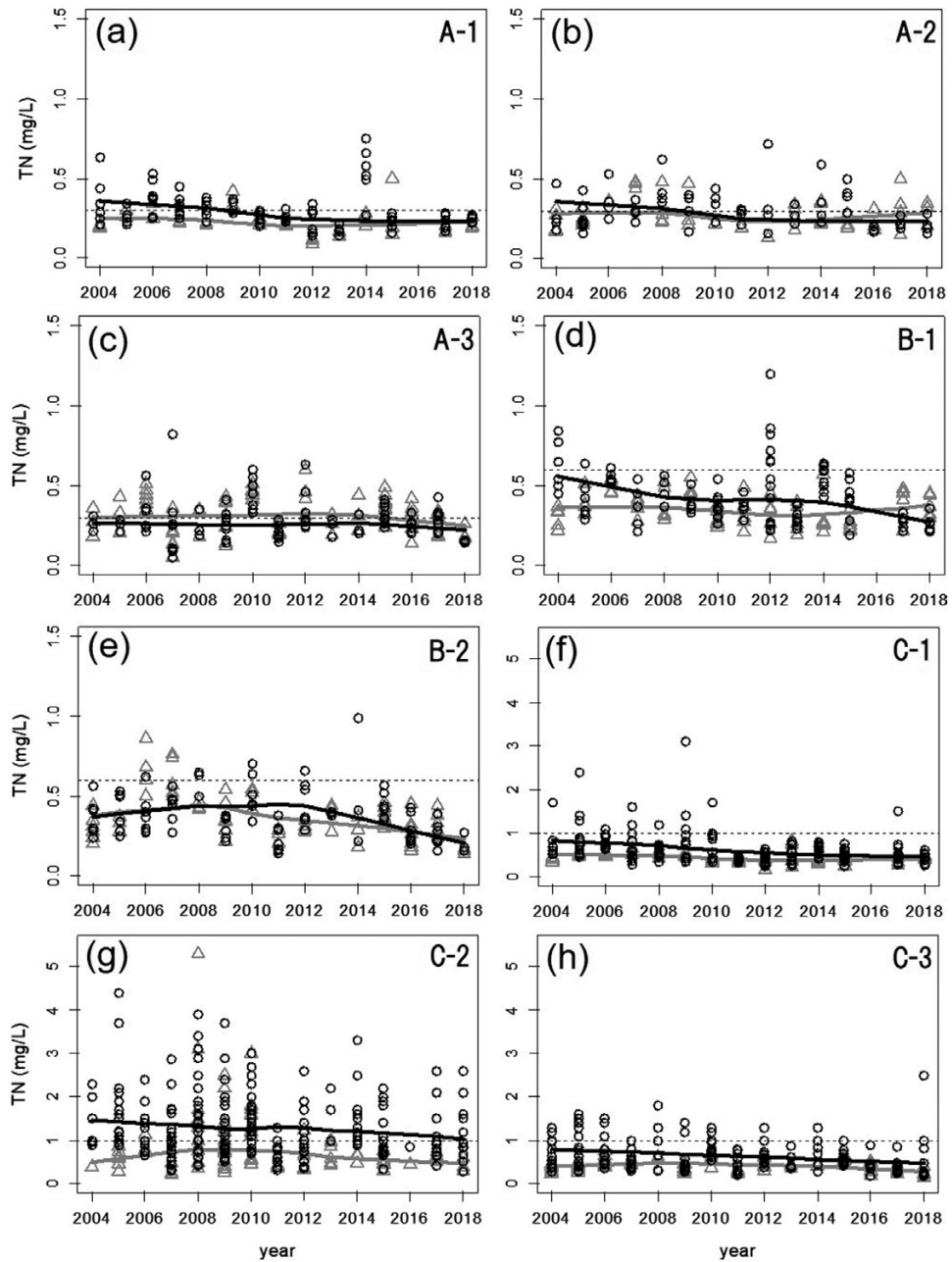


Fig. 6 Temporal changes in TN in the surface (circles) and bottom (triangles) layers in Osaka Bay in summers of 2004–2018. The solid line and grey line show annual trends in the surface and bottom layers, respectively. The broken line indicates the environmental standard values in the respective sea area.

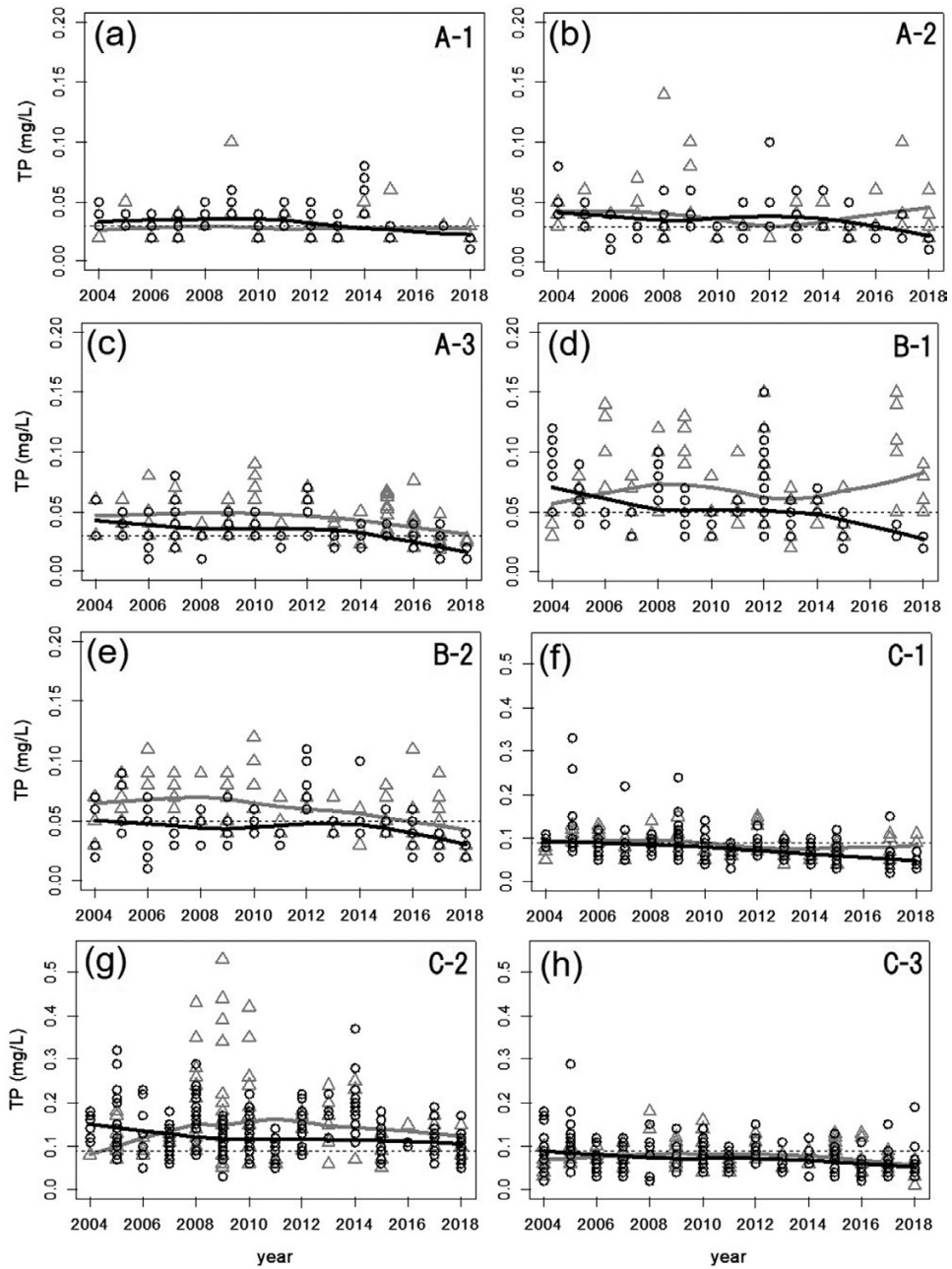


Fig. 7 Temporal changes in TP in the surface (circles) and bottom (triangles) layers in Osaka Bay in summers of 2004–2018. The solid line and grey line show annual trends in the surface and bottom layers, respectively. The broken line indicates the environmental standard values in the respective sea area.

Table 2. Results of trend significance test in COD, TN and TP concentration (mg L^{-1})

	Area	Sen's slope ($\text{mg L}^{-1} \text{year}^{-1}$)	Significance	
COD	Surface			
	C-1	-0.104	**	
	A-3	-0.078	**	
	A-2	-0.072	**	
	B-1	-0.065	**	
	Bottom			
	A-1	-0.063	**	
	C-1	-0.059	**	
	B-1	-0.057	**	
	A-2	-0.032	**	
	A-3	-0.043	**	
	C-2	-0.075	*	
	TN	Surface		
		C-1	-0.028	**
C-3		-0.023	**	
B-1		-0.016	**	
C-2		-0.028	**	
A-1		-0.010	**	
A-3		-0.002	**	
A-2		-0.005	*	
Bottom				
B-2		-0.016	**	
C-1		-0.011	**	
C-3	-0.012	**		
A-1	-0.002	*		
TP	Surface			
	C-1	-0.003	**	
	C-3	-0.002	**	
	B-1	-0.002	**	
	C-2	-0.002	**	
	A-3	-0.001	**	
	A-2	-0.001	**	
	B-2	-0.001	**	
	A-1	-0.001	**	
	Bottom			
	B-2	-0.002	**	
A-3	-0.001	**		
C-1	-0.001	*		

* $p < 0.05$

** $p < 0.01$

year^{-1}) が確認され、底層では A-1 海域を含めた全ての海域で有意な減少 (A-2: $-0.063 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, A-2: $-0.032 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, A-3: $-0.043 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) が認められた。

(2) 全窒素 (TN)

表層における TN 濃度の水平分布 (Fig. 3) は、湾奥の C 類型指定海域 (TN の IV 類型指定海域に相当: 環境基準値が 1 mg L^{-1}) において年変動が大きいものの等濃度線が密であり、陸側から沖に向かい等濃度線が疎になり、濃度が急激に減少していく様子を示している。また、2011 年を除く全期間にわたり、各河口周辺では TN-IV 類型の基準値を超えていることがわかる。

B 類型指定海域 (TN の III 類型指定海域に相当: 環境基準値が 0.6 mg L^{-1}) では、C-2 海域に接する B-1 海域東部で濃度が高い傾向が継続しているものの、全体的に TN-III 類型の基準値を超える地点は年々減ってきており、近年は全海域が基準値以内にあるとみなすことができる。

A 類型指定海域 (TN の II 類型指定海域に相当: 環境基準値が 0.3 mg L^{-1}) では、2004 年から 2010 年にかけて、A-1 海域の B-1 海域に隣接するエリアと A-3 海域の東部陸側の地点で濃度が高い (0.4 mg L^{-1} 程度) 傾向が散見されたが、2017 年以降に高濃度は出現しておらず、A-1 および A-3 海域ともにほぼ基準値以内にある。

トレンド解析 (Fig. 6, Table 2) により、表層 TN 濃度が過去 15 年間に、B-2 を除く全エリアで有意に減少したと認められた。底層でも、湾北部の C-1, A-1 海域、および湾東部の C-3, B-2 海域において有意な減少傾向 (C-1: $-0.011 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, A-1: $-0.002 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, C-3: $-0.012 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, B-2: $-0.016 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) がみられた。また、湾東部にあたる A-3 海域では全期間を通して、湾北側の A-1, B-1 および湾央の A-2 海域では、2015 年以降、底層 TN が表層 TN を上回っていた。

(3) 全リン (TP)

表層における TP 濃度の水平分布 (Fig. 4) は、湾奥の C 類型指定海域 (TP の IV 類型指定海域に相当: 環境基準値が 0.09 mg L^{-1}) の全域では TP-IV 類型の基準値を超える状態が続き、TN 濃度と同様に等濃度線が密であり、陸側から沖に向かい等濃度線が疎になり、濃度が急激に減少して

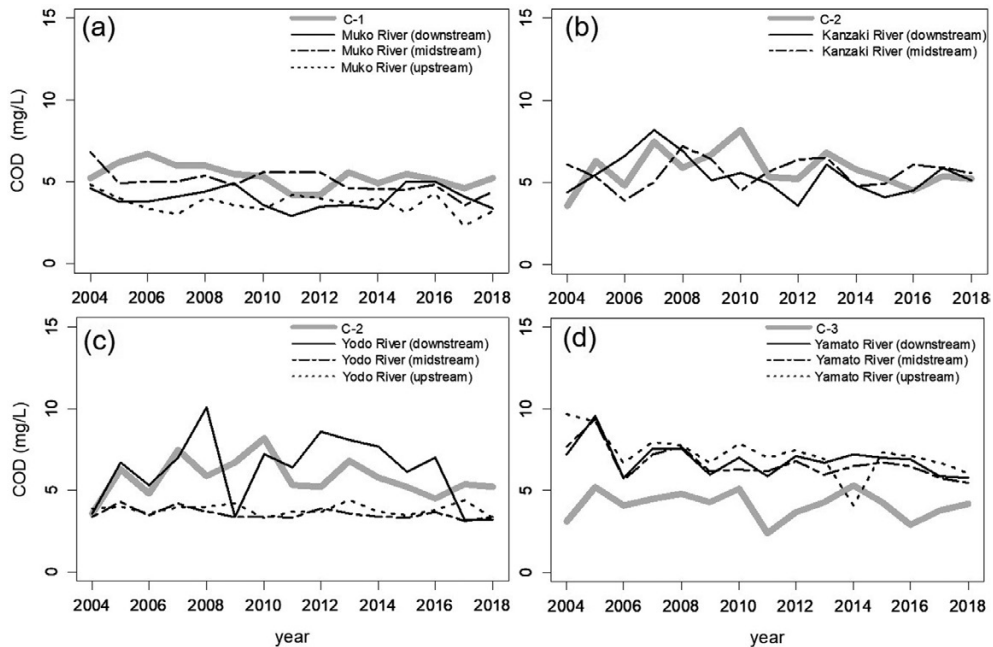


Fig. 8 Time series of the COD concentration in riverine water with a large flow to Osaka Bay and each sea area in 2004–2018. (a) COD concentration in riverine water of Muko River and C-1 sea area. (b) COD concentration in riverine water of Kanzaki River and the C-2 sea area. (c) COD concentration in riverine water of Yodo River and the C-2 sea area. (d) COD concentration in riverine water of Yamato River and the C-3 sea area.

いく様子を示している。近年では C-1 および C-3 海域で基準値以下の地点がみられる。C-1 海域の六甲アイランドや神戸空港の周辺、C-2 海域の淀川河口部では、年によって 0.2 mg L^{-1} 以上の高濃度値が確認できた。

B 類型指定海域 (TP の III 類型指定海域に相当：環境基準値が 0.05 mg L^{-1}) では、B-1 および B-2 海域の湾奥側で TP-III 類型の基準値を超えることがあったが、2017 年以降はほぼ全域が基準値以下であった。

A 類型指定海域 (TP の II 類型指定海域に相当：環境基準値が 0.03 mg L^{-1}) では、TN と同様に A-3 海域の沖側では基準値以下であるものの、岸側では TP-II 類型の基準値を超えることがあった。2018 年以降では A-1 および A-3 海域ともにほぼ全域が基準値以内となっている。

トレンド解析により (Fig. 7, Table 2), C 類型

指定海域では表層と底層の TP 濃度は同程度であり、A, B 類型指定海域では底層 TP 濃度が表層を上回る傾向がみられた。特に B-1 海域における底層の高 TP 濃度が顕著であった。表層 TP 濃度は全ての海域において有意に減少していた。COD, TN と同じく、武庫川流域の河口周辺である C-1 海域での減少が最も大きい ($-0.003 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$)。底層においては、湾東側の A-3, B-2 海域と湾北部の C-1 海域で有意な減少 (A-3: $-0.001 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, B-2: $-0.002 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$, C-1: $-0.001 \text{ mg L}^{-1} \text{ year}^{-1}$) が認められた。

(4) 河川 COD と河口周辺海域の COD との関係

河川と河口周辺海域における COD 濃度の関連性 (Fig. 8) には、次に述べるように、各河口周辺海域 (C-1, C-2, C-3 海域) で異なる傾向が確認できた。

C-1 海域では、河川 COD 濃度よりも海域 COD 濃度が常に高い傾向がみられた。武庫川下流の COD 濃度は $2.9\text{--}5.0\text{ mg L}^{-1}$ であり、海域 COD 濃度 ($4.2\text{--}6.7\text{ mg L}^{-1}$) が河川よりも $1\text{--}2\text{ mg L}^{-1}$ 程度高い。

C-2 海域に流入する淀川では、上流と中流の COD 濃度は約 4 mg L^{-1} で安定しているが下流では変動が大きく、最大 10.1 mg L^{-1} の高濃度の出現がみられる。また、同じく C-2 海域に流入する神崎川では下流の COD 濃度は $3.6\text{--}8.2\text{ mg L}^{-1}$ であり、これら下流域での値は海域 COD 濃度の値 $3.6\text{--}8.2\text{ mg L}^{-1}$ とほぼ等しい。一方、C-3 海域においては、大和川下流の COD 濃度 ($5.8\text{--}9.6\text{ mg L}^{-1}$) が海域 COD 濃度 ($2.4\text{--}5.3\text{ mg L}^{-1}$) よりも $2\text{--}5\text{ mg L}^{-1}$ 程度高い傾向がみられる。

3.2 COD, TN および TP と塩分との関係

クロロフィル a と有機物 (org-N, org-P) との相関分析 (Figs. 9, 10) より、A, B 類型指定海域と C 類型指定海域とではクロロフィル a と有機物との関係の在り方が異なることが明らかになった。すなわち、A, B 類型指定海域では、COD 濃度が比較的高い (A 類型指定海域では 2 mg L^{-1} 以上、B 類型指定海域では 3 mg L^{-1} 以上) データにおいて、org-N および org-P とクロロフィル a との間に有意な正の相関がみられたが、COD 濃度が比較的低いデータにおいては有意な相関がみられなかった (Figs. 9a-e, 10a-e)。これに対して C 類型指定海域では、C-1 および C-3 海域の COD 濃度が 8 mg L^{-1} 以下の地点において、org-N とクロロフィル a との相関関係が有意であった (Fig. 9f, h)。Org-P とクロロフィル a との間には、COD 濃度にかかわらず全ての地点において有意な正の相関が認められた (Fig. 10f-h)。以上の要素につき、河川からの負荷の程度を推定するために塩分との関係を解析した結果は以下のものであった。

Org-N および org-P と塩分との関係では、湾北部と湾東部とで河川負荷の影響の在り方が異なる傾向がみられた。湾北部 (A-1, B-1, C-1, C-2 海域) では、ほとんどのデータが希釈直線より上に位置している (Figs. 11d, 13e)、もしくは、有意な

相関がない (Figs. 11g, 12c, e, 13d, g, h) ことが明らかになった。一方、湾東部 (A-3, B-2, C-3 海域) ではほとんどのデータが希釈直線上に位置し、負の相関関係が比較的高かった (Figs. 11f, 12d, f, 13f, i)。

DIN と塩分との関係は、湾北部 (A-1, B-1, C-1, C-2 海域) で有意な負の相関が認められ、特に A, B 類型指定海域で相関が高かった (Figs. 11d, 12c, 13d, e)。DIP と塩分との関係は、湾北部沿岸の A-1 および B-1 海域においてのみ負の相関が確認できた (Figs. 11g, 12e) が、その他の海域では有意な相関は見いだせなかった。湾奥の C-1, C-2 海域では、塩分が $10\text{--}25$ の陸側汽水域で org-N, org-P, DIN および DIP のすべての濃度が著しく高く、ほとんどのデータが希釈直線より上に位置するという、他の海域とは異なる傾向がみられた (Fig. 13a, b, d, e, g, h)。

3.3 河口周辺海域における TN/TP モル比

C 類型指定海域における表層の TN/TP モル比は、C-1, C-2, C-3 のいずれの海域においても 16 より大きく (Table 3)、Redfield 比に比べて相対的に N が多い。N の割合は、C-2 海域で 21.4 と最も大きく、C-3 海域、C-1 海域の順に小さくなり、C-1 海域で Redfield 比に最も近かった。これに対して、底層における TN/TP モル比は、C 類型指定海域に共通して表層の約半分程度であり、とりわけ C-2 海域で 10.4 と小さかった。すなわち、C 類型指定海域、特に C-2 海域では、底層で P が相対的に多いことが明らかであった。

4. 考察

4.1 COD, TN および TP の変動傾向

大阪湾の沿岸域における水質の変動傾向については、過去約 20 年で TN, TP ともに減少傾向にあるにもかかわらず、COD は低下していないことが報告されている (藤原, 2014; 環境省, 2019; 大阪湾再生推進会議, 2021; 藤原ほか, 2021)。このような現象は総量規制が行われてきた他の沿岸域にもみられる現象であるが、いずれも決定的な原因は明らかになっていない。

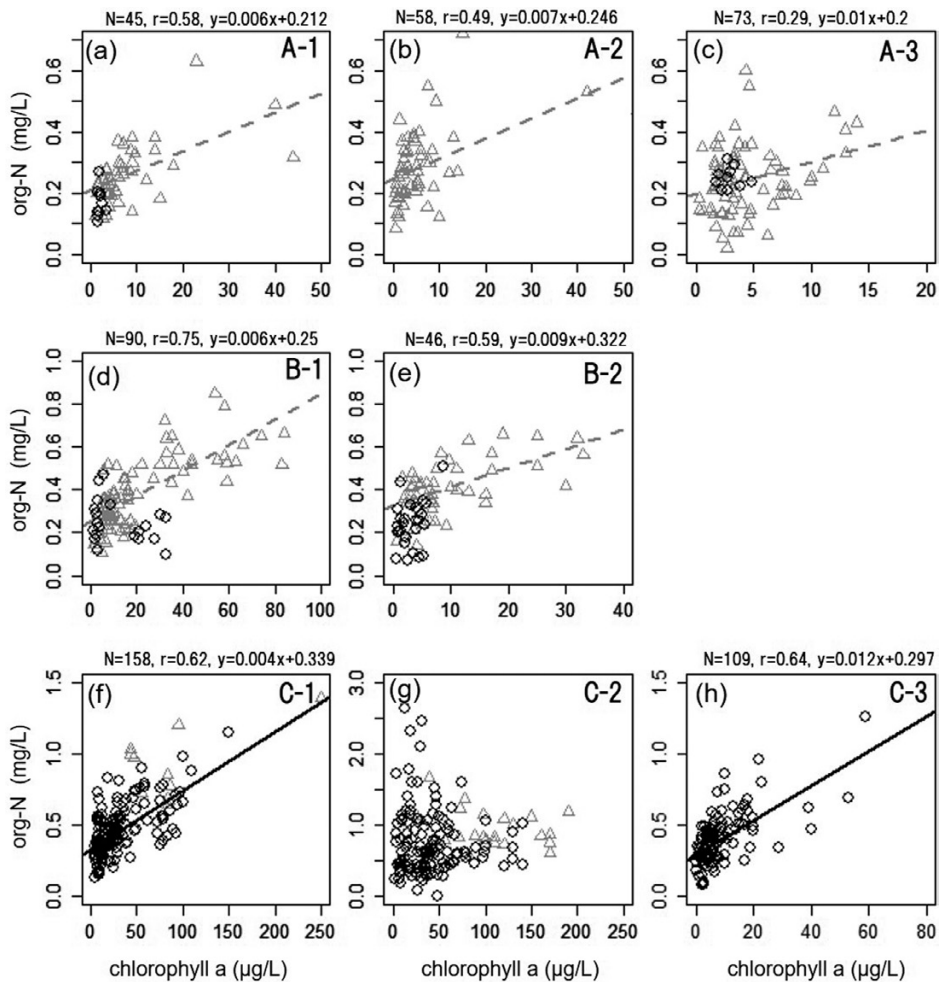


Fig. 9 Correlation between org-N and chlorophyll a in the surface layer of each of eight subdivisions of Osaka Bay (summers of 2004–2018). The triangles indicate the stations where COD exceeded the regulation level, and the circles denote the stations where COD was within the regulation level.

本研究により、COD, TN, TP の経年変動傾向は、湾中央部と河口周辺海域との間だけでなく、湾の北東間や同一海域の表底層間でも異なっていることが示され、今回細分化した海域内においても複雑であることがわかった。これまでの総量規制にかかわる先行研究と同様に、大阪湾におけるCODの環境基準達成度は、湾中央部のA類型指定海域においては、基準値を超える地点は年々減ってきてはいるものの依然として基準値 (2 mg L^{-1})

を超える場合が多く、2018年時点においても、基準値以下の地点は20%に満たなかった。しかし、沿岸寄りのB類型指定海域においては、2018年には80%以上の地点で環境基準値 (3 mg L^{-1}) 以下であったこと、ごく沿岸のC類型指定海域においても、近年は多くの地点で環境基準値 (8 mg L^{-1}) 以下であり、2018年には90%以上の地点で環境基準を達成していたことが確認できた。

河口周辺海域を含むC類型指定海域に着目す

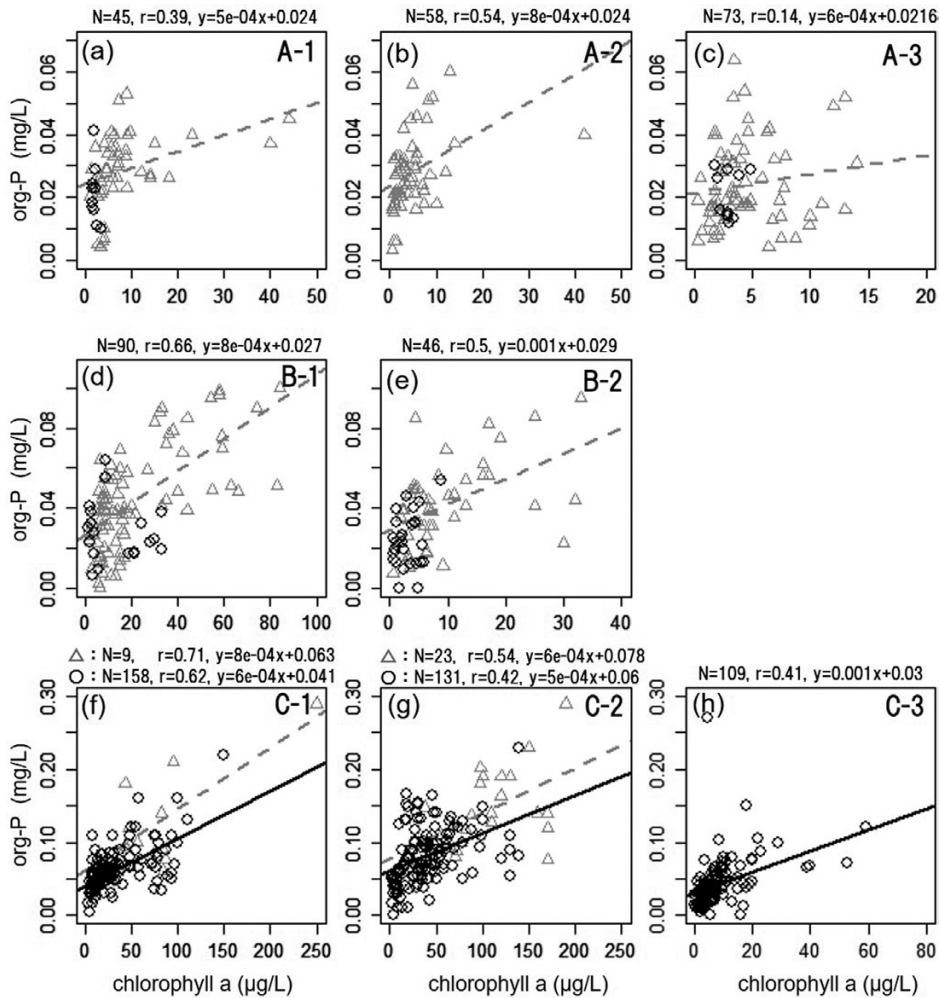


Fig. 10 Correlation between org-P and chlorophyll a in the surface layer of each of eight subdivisions of Osaka Bay (summers of 2004–2018). The triangles indicate the stations where COD exceeded the regulation level, and the circles denote the stations where COD was within the regulation level.

ると、C-1 海域では COD の有意な経年減少傾向が、C-2 海域では COD, TN, TP の持続的な高濃度が、C-3 海域では COD 濃度の不規則な経年変動がみられた。このことは、同じ沿岸域であっても、河川負荷とそれに対する応答が海域で異なっていることを示している。また、海域によって表層と底層における TN, TP 濃度の大小関係が異なることも明らかになった。

C-1 海域で COD が経年的に減少している理由

は、流入する武庫川の下流における COD 濃度が他の河川と比較して低いことにあると考えられる。C-1 海域では、表層と底層における TN および TP のいずれもが有意に減少しており、河川負荷が海域全層で解消されやすいことが窺われる。これに対して、C-2 海域に流入する淀川と神崎川および C-3 海域に流入する大和川の下流の COD 濃度は、河口周辺海域の値とほぼ等しいか、またはそれを上回ることがある。また、C-3 海域では、

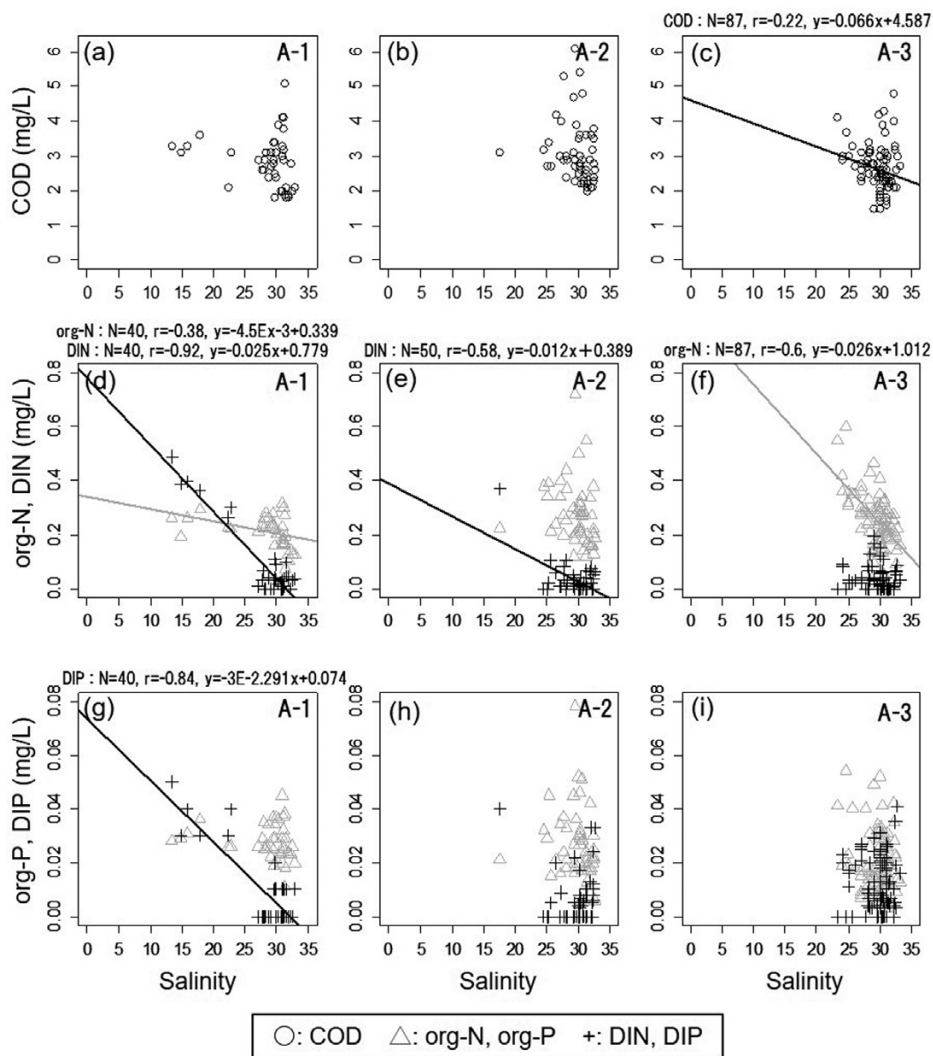


Fig. 11 Correlations between COD, TN, TP, and salinity in the surface layer in each of three subdivisions of Type A area (offshore area) of Osaka Bay in summers of 2004-2018. For Type A area and its subdivisions, see Fig. 1.

org-N, org-P と塩分との負の相関が強く、河川からの COD 負荷が大きく、かつ、海水中濃度に長く反映されやすいことを示唆している。C-2, C-3 海域では、年々の変動が大きくて不規則であるが、その原因も河川負荷が大きだけでなく変動しやすいことにあると考えられる。

TN および TP については、表層ではほぼ全ての海域で濃度が有意に低下していたが、TN と

TP とでは経年変動および供給源が海域および深度によって異なっている可能性も示唆された。表層 TN については、主に湾北部 (A-1, B-1, C-1, C-2 海域) で、DIN と塩分との有意な負の相関が確認できたことから (Figs. 11-13)、主たる起源が河川にあることを示唆していたが、org-N は塩分との相関がない海域 (B-1, C-1 海域) や希釈直線から上方に外れている海域 (C-2 海域) がみられ

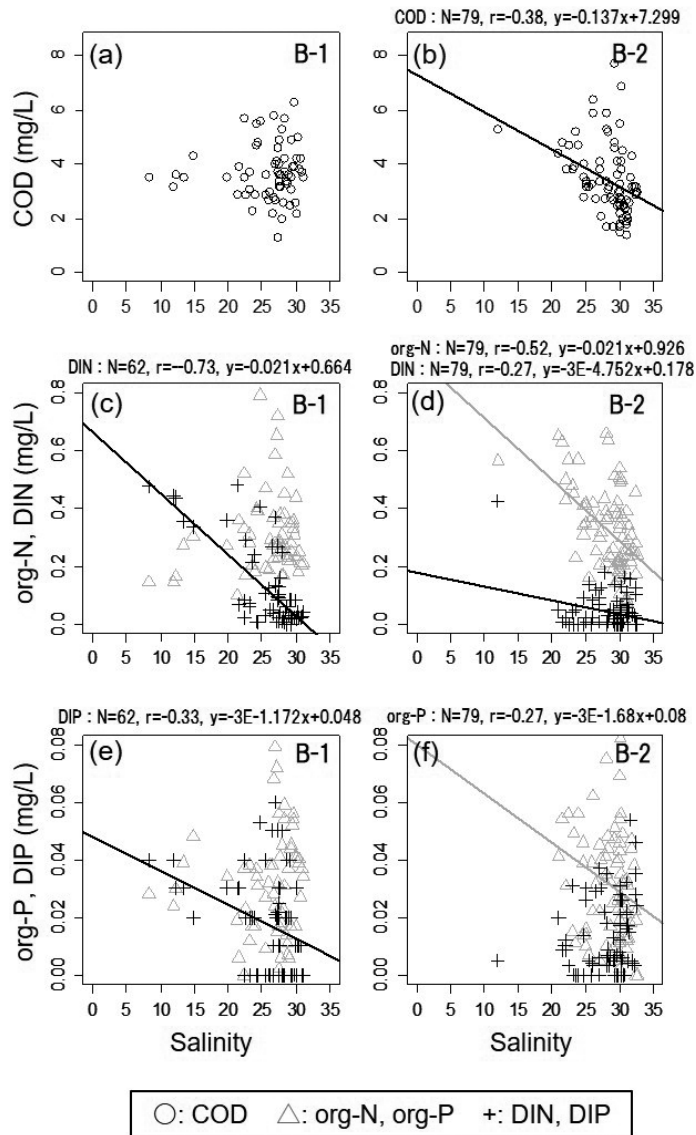


Fig. 12 Correlations between COD, TN, TP, and salinity in the surface layer in each of three subdivisions of Type B area of Osaka Bay in summers of 2004–2018. For Type B area and its subdivisions, see Fig. 1.

たことから、内部生産や底泥溶出の可能性が考えられる。一方で、湾東部（A-3, B-2, C-3 海域）では、DIN と塩分との相関が低い、ないしは、有意な相関が確認できなかったことから（Figs. 11–13）、後述する河川負荷以外の流入が考えられ

る。

表層 TP については、C 類型指定海域（C-1, C-2）や湾東部（A-2, A-3）において DIP と塩分との相関が弱い（Figs. 11–13）。このことは、湾東部における DIN 流入と同様に、表層 DIP の起源

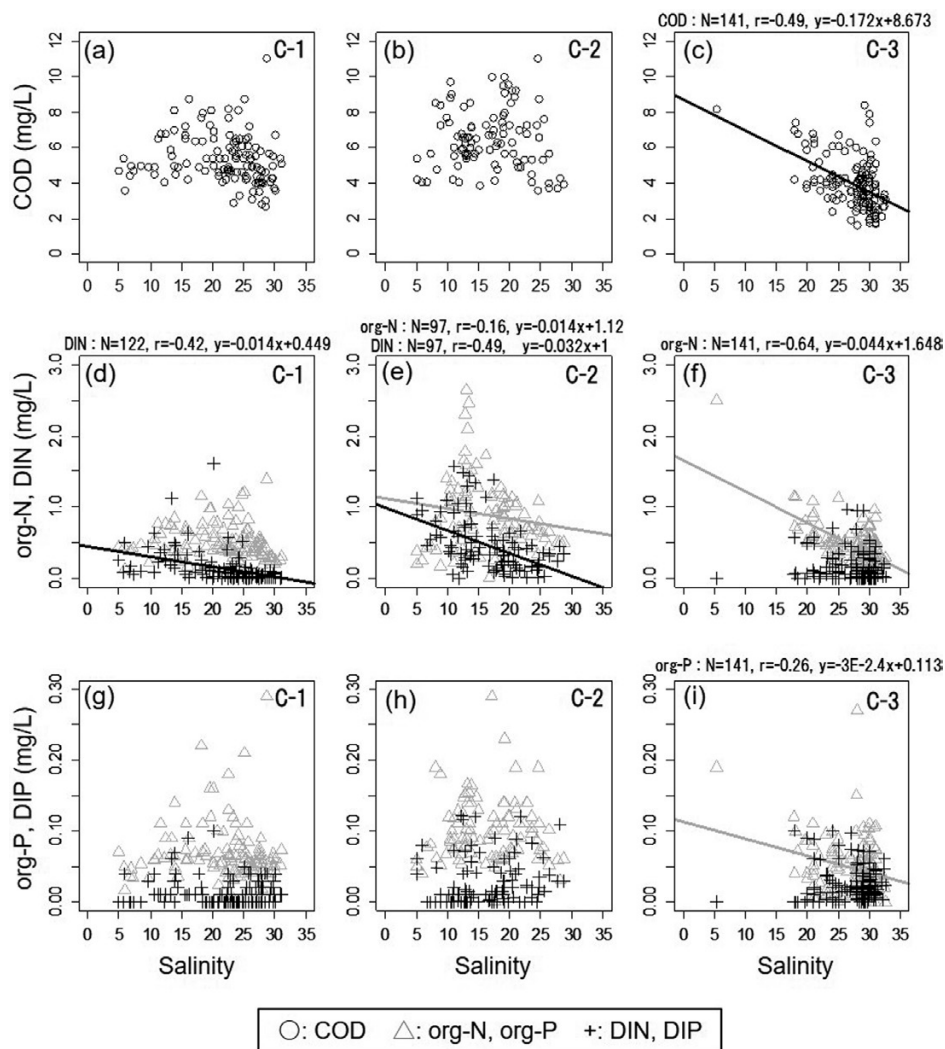


Fig. 13 Correlations between COD, TN, TP, and salinity in the surface layer in each of three subdivisions of Type C area (inner area) of Osaka Bay in summers of 2004-2018. For Type C area and its subdivisions, see Fig. 1.

も河川ではなく、それぞれの海域における底泥ないしは外洋水にある可能性を示唆していると考えられる。これに関連して、西田ほか (2006) や中谷ほか (2012) が、大阪湾南東部における栄養塩の流出入は黒潮の離接岸の影響を受け、栄養塩が海峡底層を通じて湾外から湾内へと流入すると報告していることが注目される。

底層においては、C 類型指定海域では、C-1 海

域で TN と TP ともに減少傾向がみられたが、C-2 海域ではともに横ばい傾向、C-3 海域では TN のみが減少していた。このことは、C-2 および C-3 海域では底層への負荷が経年的に減少しているわけではないことを示している。西田ほか (2006) によると、C 類型指定海域に相当する河道部と沿岸数 km の範囲における底泥は陸起源有機物の影響を受けていると報告している。湾中部で

Table 3. Average TN/TP ratio (mol) in C-1, C-2, and C-3 sea areas and the downstream areas of Muko, Yodo, Kanzaki, and Yamato River in summers of 2004–2018

Area	TN/TP molar ratio (15-year mean value)	
	Surface	Bottom
C-1	18.1	11.7
C-2	21.4	10.4
C-3	20.5	11.8
Muko River downstream	38.8	—
Yodo River downstream	16.4	—
Kanzaki River downstream	25.2	—
Yamato River downstream	18.2	—

は、底層 TN, TP 濃度が表層を上回る傾向がみられたことから、底泥からの溶出 (ELDERFIELD *et al.*, 1981; TAKAYANAGI and YAMADA, 1999) が起こっていると考えられた。

注目すべきことは、星加 (2003) および辻野・玉井 (1996) により、A, B 類型指定海域に相当する沖合海域に同心円状の大きな底泥の堆積が確認され、そこでは有機物濃度が比較的高く、その約 8 割は内部生産に由来することが報告されていることである。この事実、河川負荷がダイレクトには及びにくい A, B 類型指定海域では内部生産に起因する有機物の堆積とその分解が起こっていることを示している。

以上をまとめると、河川負荷については、第 5 次総量規制による持続的な TN, TP 削減の効果が大阪湾においても表れつつあるが、現在の大阪湾はまだ再生の途上にあるといえる。C-2 および C-3 海域では河川負荷のさらなる削減が必要であり、A, B 類型指定海域においては堆積泥への対策が課題となると思われる。

4.2 大阪湾における内部生産の特性

大阪湾における COD に対する内部生産の影響については、湾中部と湾奥部だけでなく、武庫川や淀川の河口周辺海域である湾北部 (C-1, C-2, B-1, B-2, A-1) と大和川河口周辺海域を含む湾東部 (C-3, B-2, A-3) とで様相が異なっていること

が窺われた。すなわち、COD の増加に対する内部生産の寄与の程度は、湾奥部よりも湾中部で、湾東部よりも湾北部で大きいと考えられた。

湾中部の A, B 類型指定海域において、COD 濃度が高い地点では org-N, org-P とクロロフィル a との相関が高く (Figs. 9, 10), COD と塩分とは相関がなかった (Figs. 11a, b, c, 12a, b)。このことは、湾中部では内部生産の寄与度が大きいことを示している。一方で COD 濃度が低いときには、org-N, org-P とクロロフィル a との相関が低かった。このことは、湾中部で COD 濃度が低いときの有機物では難分解性成分の比率が相対的に高いことを示している可能性があり、次に示す既往研究の成果とも符合する。すなわち、仲川 (2009) は、大阪湾の沖合域では生分解を受けにくい有機物の占める割合が高くなることを示しており、さらに中嶋ほか (2012) は、陸域から流入した DIN を用いて湾奥部で生産された有機物は沖へと拡散する間に生物分解を受け、湾口部へ達する頃には難分解性有機物が多くなることを示唆している。ごく最近刊行された藤原ほか (2021) によれば、東京湾と伊勢湾においても、栄養塩削減が有機物の量を減らす (COD を下げる) よりも、有機物の質を難分解性の方向へ変えたと報告されている。

湾奥の C 類型指定海域においては、COD 濃度が比較的低い地点でクロロフィル a と org-N,

org-P との正の相関がみられた。また、COD の海水による希釈傾向がみられた C-3 海域とは異なり、湾北部の C-1, C-2 海域では、有機物および無機物ともに河川側の淡水域ではなく汽水域（塩分 10-25）で濃度が高い傾向を示していた。さらに、COD 濃度が河川よりも海域で大きい一方で、DIN と塩分とは有意な負の相関があることもあった。これらのことから、C-1, C-2 海域では、河川起源の DIN による内部生産が大きく、河川から負荷された栄養塩類が河口域で急速に消費されていると解釈できる。特に C-2 海域では、TN/TP 比が底層では低いのにに対して表層では高いこと、org-P とクロロフィル a が正の相関関係にあることから、P が制限要因になりやすい条件にあり、底泥から溶出する P の相対的重要度が大きいと推察できる。したがって、淀川河口周辺を中心とした湾北部では、河川負荷を受けて富栄養状態となり、植物プランクトンが増殖し、生産物の一部は堆積物となって栄養塩（P が重要）の再供給源となり、結果的に内部生産が高まって有機汚濁を持続させているといえよう。

以上のことから、大阪湾の COD の量と質は内部生産にも大きく影響されていることがわかる。藤原ほか（2021）が指摘するように、このような COD 環境の変化が湾内生態系における栄養物質フローに影響を及ぼしている可能性は大きい。したがって、大阪湾における内部生産の支配要因として、河川負荷だけでなく、河口域での有機物の増加と変質、P の負荷に関しては湾内での再生や外洋からの補給にも留意することが重要である。

結び

中央環境審議会（2020）の水質将来予測では、これまでの負荷削減を続けた場合、海域の COD 環境基準の達成率は向上しないものの TN と TP の濃度は低下するとされている。一方で、大阪湾再生推進会議（2017）は、従来通りの削減を実施した場合には、湾内で栄養塩類の不足が進行する可能性を指摘している。本研究の結果は、これらの変化が大阪湾内全体で一様に進行するのではないことを確認するものであった。河川からの負荷

の影響が海域によって、また、COD, N, P それぞれによっても異なって発現すること、それには湾内における内部生産が影響していることを示している。今後の大阪湾再生行動計画の推進にあたっては、それぞれの海域における特性に応じたきめ細やかな配慮が求められよう。

近年の COD 経年変動が横ばいとなる傾向は大阪湾に限らず総量規制を行っている国内の閉鎖性内湾に共通する現象（藤原，2014；YAMAMOTO *et al.*, 2021；藤原ほか，2021）であるため、湾内を環境特性に応じて細分化し、それぞれの海域毎のプロファイルを明らかにすることは、全国的な共通課題であるといえよう。

謝辞

本研究の解析に使用したデータは「令和元年度大阪湾における環境再生評価検討業務」の一環で収集整理したものを含みます。その評価検討業務の成果取りまとめにあたり大阪市立大学大学院工学研究科の重松孝昌教授および神戸大学大学院工学研究科の中山恵介教授には貴重なご助言を、本稿の執筆に際し東北大学名誉教授の谷口旭博士にご指導を賜り、心より御礼申し上げます。投稿にあたり 2 名の査読者から頂いた数々の有益なコメントは本稿の改善に大きく役立ちました。記して謝意を表します。

引用文献

- ELDERFIELD, H., LUEDTKE, N., MCCAFFREY, R. J. and BENDER, M. (1981): Benthic flux studies in Narragansett Bay. *American Journal of Science*, **281**, 768-787.
- 藤原建紀 (2014): 内湾の貧栄養化—窒素・リン負荷量削減が海域の COD, 栄養塩レベルにおよぼす影響—. *沿岸海洋研究*, **52** (1), 11-27.
- 藤原建紀, 鈴木元治, 大久保慧, 永尾謙太郎 (2021): 窒素・リン削減が海域の有機物量 (COD および TOC) に及ぼす影響. *水環境学会誌*, **44** (5), 135-148.
- 星加章, 谷本照己, 三島康史 (1998): 大阪湾における富栄養化と内部生産有機物. *水環境学会誌*, **21** (11), 765-771.

- 星加章 (2003) : 陸域・流域を意識した瀬戸内海の環境. 陸水学雑誌, **64**, 219-224.
- 環境省 (1993) : 環境基本法 <http://www.env.go.jp/hourei/>
- 環境省 (2019) : 平成 30 年度公共用水域水質測定結果 <https://www.env.go.jp/water/suiiki/h30/h30-1.pdf>
- 環境省 (2020) : 令和元年度公共用水域水質測定結果 https://www.env.go.jp/water/suiiki/r1/r1-1_r.pdf
- 国土交通省 (2009) : 国土数値情報 流域メッシュデータ <https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/datalist/KsjTmplt-W07.html>
- 国土数値情報 (2006-2009) : 河川データ <https://nlftp.mlit.go.jp/ksj/gml/datalist/KsjTmplt-W05.html>
- 仲川直子, 金澤良昭, 梅本諭, 上村育代 (2009) : 大阪湾表層水中有機物の生分解前後における特性変化について. 財団法人ひょうご環境創造協会 兵庫県環境研究センター紀要, **1**, 25-30.
- 中嶋昌紀, 藤原建紀 (2007) : 大阪湾のエスチュアリー循環流と貧酸素水塊. 沿岸海洋研究, **44**, 157-163.
- 中嶋昌紀, 松本弘史, 矢持進 (2012) : 大阪湾および淀川・大和川における難分解性有機窒素の動態について. 土木学会論文集, **68** (2), I_1036-I_1040.
- 中谷祐介, 川住亮太, 西田修三 (2011) : 大阪湾に流入する陸域負荷の実態・変遷と海域環境の変化. 土木学会論文集 B2 (海岸工学), **67** (2), I_886-I_890.
- 西田修三, 入江政安, 中辻啓二 (2006) : 大阪湾奥部沿岸域における懸濁態物質の挙動と底泥特性. 海岸工学論文集, **53**, 991-995.
- 西田修三, 川住亮太, 中谷祐介, 村上雄大 (2012) : 大阪湾流域における栄養塩負荷の変遷と現況調査. 土木学会論文集, **68** (7), III_751-III_760.
- 大阪府 (2018) : 平成 30 年度における公共用水域及び地下水の水質調査結果について <http://www.pref.osaka.lg.jp/attach/5141/00147557/abc.pdf>
- 大阪湾再生推進会議 (2021) : 大阪湾再生行動計画 (第二期)
- 令和二年度の取り組み成果【本論】令和 3 年 8 月 <https://www.kkr.mlit.go.jp/plan/suishin/seika2.pdf>
- 令和二年度の取り組み成果【概要版】令和 3 年 8 月 <https://www.kkr.mlit.go.jp/plan/suishin/seika2gaiyouban.pdf>
- POHLERT, T. (2015): Non-Parametric Trend Tests and Change-Point Detection, R package version 0.0.1.
- TAKAYANAGI, K. and YAMADA, H. (1999): Effects of benthic flux on short term variations of nutrients in Aburatsubo Bay. *Journal of Oceanography*, **55**, 463-469.
- 辻野陸, 玉井恭一 (1996) : 大阪湾の底質環境とメイオベントスの分布. 南西水研研報, **29**, 87-100.
- 中央環境審議会 (2020) : 水環境部会 総量削減専門委員会 (9 次) (第 5 回) 資料 2 将来予測について https://www.env.go.jp/council/09water/y0920-05b/mat02_1.pdf
- 山本民次 (2014) : 瀬戸内海の貧栄養化について (再考). 日本マリンエンジニアリング学会誌, **49**, 71-76.
- YAMAMOTO, T., ORIMOTO, K., ASAOKA, S., YAMAMOTO, H. and ONODERA, S. (2021): A conflict between the legacy of eutrophication and cultural oligotrophication in Hiroshima Bay. *Oceans*, **2**, 546-565.

受付 : 2021 年 3 月 31 日

受理 : 2021 年 11 月 23 日