

河川に流出する粒子態物質の粒度と 富栄養化に及ぼす影響

STUDY ON EUTROPHICATION POTENTIAL OF PARTICLE MATTERS SUPPLIED BY RUNOFF

史 承煥¹・増田貴則²・細井由彦³

Seung-Hwan SA, Takanori MASUDA, and Yoshihiko HOSOI

¹ 正会員 理修 鳥取大学教務職員 工学部社会開発システム工学科(〒680-8552 鳥取市湖山町南4丁目)

² 正会員 博士(工学) 鳥取大学講師 工学部社会開発システム工学科

³ 正会員 工博 鳥取大学教授 工学部社会開発システム工学科

The Particulate matters washed out from watershed as non-point source is considered to have great effects on eutrophication. In this study, the characteristics of particulate matter as a potential were examined. The soil samples were collected from watershed of Lake Koyama in Tottori that has a problem of eutrophication. Phosphorus, especially bio-available phosphorus, supply potentials from those soil samples were examined.

- 1) Phosphorus was supplied fur more by the soil from farm and paddy field than by that from forest.
- 2) Small soil particles contained more phosphorus than larger ones.
- 3) Bio-available phosphorus release from particles was stimulated under the conditions of lower pH, particle movement, anaerobic condition.
- 4) Algal growth potential test also indicated that smaller particle has greater potential of algal growth.

Key Words : *Runoff, Bioavailable phosphorus(BAP), Particle matter, Watershed*

1. はじめに

閉鎖性水域の水質管理において、比較的人為的な管理が容易な点汚染源に対しては、種々の対策が行われてきている。一方、相対的に管理が難しい非点汚染源に対しては、いまだに十分有効な対策が見いだされず、多くの湖において水質汚染の主原因であることが指摘されている^{1), 2), 3)}。

閉鎖性水域の水質管理に多くの努力が傾けられているにもかかわらず、水質改善の効果が見られない理由の一つとして、汚染物質が吸着されている粒子態物質が沈澱した水底の堆積層から、有機物の分解やそれによる物理化学的環境の変化によって、吸着されていた汚染物質が、長期的に水層へ移動することが報告されている^{4), 5)}。

これらの粒子態物質は、主として雨天時に流域から雨水とともに河川に流出し、閉鎖性水域に流入する。このように非点汚染源から流出し、水系に堆積した粒子態物質は水系内で長期的な内部汚染源として作用するため⁶⁾、その流出特性や栄養塩類の含有量などの特性を把握する

ことが、長期的な湖沼の水質を予測し、水質保全対策を考える上で重要であると考えられる。しかし調査が困難なこともあり、いまだにほとんど明らかにはなっていない。

懸濁態物質が実際にどの程度水中に栄養塩を溶出し、藻類の増殖に影響を与えているのかという点に関して、より具体的に評価するために、近年生物利用可能なリン(Bioavailable phosphorus, BAP)を評価しようとする研究が進められている。BAPの指標としては、Changら⁷⁾による NH_4Cl 、 NH_4F 、 NaOH 、 HCl (あるいは H_2SO_4)などの溶液で抽出したリンの合計値、あるいは NaOH か HCl 溶液で抽出した NaOH-P か HCl-P が適当な指標であると考えられている^{8), 9)}。しかしどの抽出方法で得られたリンが生物利用可能リンとして最も適切であるかということに関してはまだ議論が多い。

そこで本研究では、雨天時における粒子態物質の流出源として山林、畑、水田を対象として、それらの土壌によるリンの供給可能性を検討するために、粒度とリン、とくにBAPの溶出や、藻類の増殖に及ぼす影響を検討した。また、雨天時の河川中の懸濁態物質についても、粒

表 - 1 研究の対象とした河川とその流域の土地利用

	三山口川流域		枝川流域		長柄川流域		大畑川流域		福井川流域	
	ha	%	ha	%	ha	%	ha	%	ha	%
水田	76.8	21.9	79.2	28.2	179.1	16.3	66.4	20.9	49.6	14.3
畑	1.5	0.4	5.2	1.9	4.2	0.4	8.4	2.6	4.9	1.4
山林	262.3	74.7	166.3	59.2	883.6	80.6	171.3	53.9	261.5	75.6
幹線建物用地	2.0	0.6	2.0	0.7	0.0	0.0	1.7	0.5	3.0	0.9
建物用地	8.7	2.5	28.2	10.0	22.4	2.1	10.3	3.2	4.6	1.4
ゴルフ場	0.0	0.0	0.0	0.0	7.6	0.7	60.0	18.9	22.2	6.4
合計	351.3	100.0	280.9	100.0	1096.9	100.0	318.0	100.0	345.9	100.0

度やリンの含有量を考察した。

2. 研究方法

鳥取県鳥取市にある湖山池の流域を対象とし、流入河川である三山口川、枝川、長柄川、大畑農業水路、福井川で調査を行った。

それぞれ流域の土地利用の状況を表 - 1 に示す。長柄川は湖山池中で最も流域面積が大きく、全流域の約3分の1の広さがある。枝川流域は下流部に市街地が集中しているほか、宿泊・観光施設がある吉岡温泉がその中流域にある。大畑と福井川の流域は流域面積の多くは山林であるが、いずれの流域も最上流部にゴルフ場があるのが特徴である。

土壌の採取は三山口川、枝川、長柄川、大畑、福井川のそれぞれの流域において行った。2001年11月29日に土地利用目的別に水田、畑、山林で普遍性を考えて5ヶ所以上複数の場所を選び、それぞれの場所において3地点で表面から約10cmの土壌を採取した。土地利用による違いを一般的に評価するため土地利用ごとに混ぜ合わせた。表 - 1 に各流域の土地利用を示した。

採取した土壌はポリ袋に入れ運搬し、アルミバットに広げて風乾した。

雨水流出時の河川の粒子態物質を調べるために、雨天時の河川水 20L から遠心分離機 (3000rpm) を用いてSSを取り出した。SSは105~110℃で2時間乾燥させた。

土壌の場合は風乾後、ゴムハンマで碎きながら2mm~355 μ m、355 μ m~212 μ m、212 μ m~106 μ m、106 μ m~45 μ m、45 μ m~20 μ m、20 μ m以下にふるいをを用いてふるいわけた。

本研究ではBAPとしてNaOH-Pを測定することとし、試料1gを0.1NのNaOH溶液500mlに添加した。17時間、振とう(200rpm)した後、Whatman GF/Cろ紙を用いてろ過をし、ろ水中のPO₄-Pを測定してNaOH-Pとした。

3. 雨天時における河川水中の濁質の粒度分布

2001年8月21日と、12月12日のいずれも雨天時に対象とする5河川の水を採取し、レーザー粒度分析装置 (SHIMAZU SALD2000A)により分析した結果を図 - 1 に示す。全般的には数 μ mから100 μ m程度の間に多くの粒子が分布している。8月に比べて12月の方が河川ご

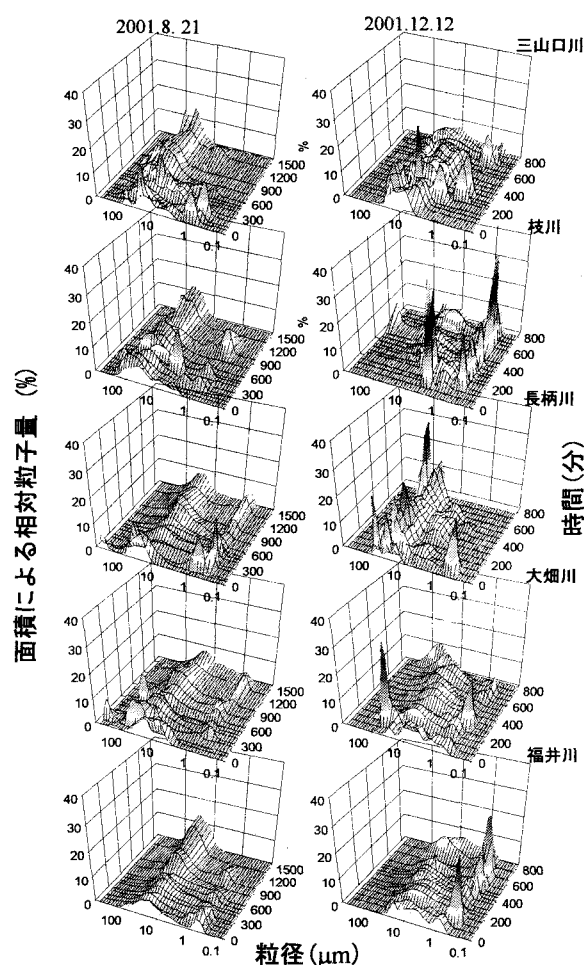


図 - 1 雨天時における河川のSSの粒度分布

との粒度分布の差異が顕著である。また分布にも偏りが見られる傾向にある。詳細は不明であるが、一つの理由として水田が利用されておらず、また畑作も少ない冬季の方が流域土壌の流出が起こりやすく、そのために河川ごとに流域の特性がより顕著に現れ、粒度分布の違いにつながっていることが考えられる。

このように濁質の流出もこれまでは SS 濃度としてのみの扱いが主であったが、流域の特性や季節により流出する内容が異なっていることが推定される。

4. 流域の土壌粒子によるリンの溶出

(1) 土壌の生物利用可能リン(BAP)の供給可能性

各河川流域の畑、水田、山林の土壌における粒径別の BAP(NaOH-P)を図-2に示す。ほとんどの場合、土壌の粒子径が小さくなると土壌重量当りの NaOH-P の含有量が増加する傾向が見られた。

山林に比べて畑、水田の土壌の NaOH-P 含有量がかなり多かった。これは、畑と水田では化学肥料の使用を含んだ人為的な行動が影響をしているためと考えられる。また、従来畑の方が水田よりリンの含有量や流出負荷が大きいと報告されていたが、流出する前の土壌で見ると、水田と畑に顕著な差異は見られない。

雨天時の河川水中のSSから抽出したBAPと流域の畑面積の割合との関係を図-3に示す。畑面積の割合が増えるとBAPが大きくなる傾向にある。水田面積の割合とBAPとの間には、これほど顕著な相関は見られなかった。図-2において土壌自身のBAPにおいては水田と畑に差がなかったことと考えると、雨天時には、水田より畑や山林からのSSの流出が多く、したがって山林よりはるかにBAPの含有量の多い畑の面積が多いと、河川中のSSに含まれるBAPも多くなると考えられる。

(2) 懸濁物質の流下環境とリンの溶出

a) pH による影響

大畑流域の畑で採取した土壌においては、雨天時流出水中の SS 濃度を参考にし、SS 濃度が 200mg/l の条件で粒子態物質からのリンの溶出実験を行った。その結果から各粒子径および pH による $PO_4\text{-P}$ の溶出量の検討を行った。1 時間溶出させた後、Whatman GF/C ろ紙を用いてろ過をし、 $PO_4\text{-P}$ の測定を行った。

図-4に土壌粒子からの pH によるリンの溶出量を粒子径別に示した。pH の値が低いほどリンの溶出量が多く、他の研究^{10), 11), 12)}と同様な結果が見られた。pH が 2~3 でリンの溶出量が急激に増加し、pH が 4 以上の値においてはあまり変化がなかった。粒子径が小さくなるほどリンの含有量が多くなる傾向が見られた。

pH の変化によって Fe, Al などに結合しているリンの溶解度が変化する事や ligand exchange などの作用で結合

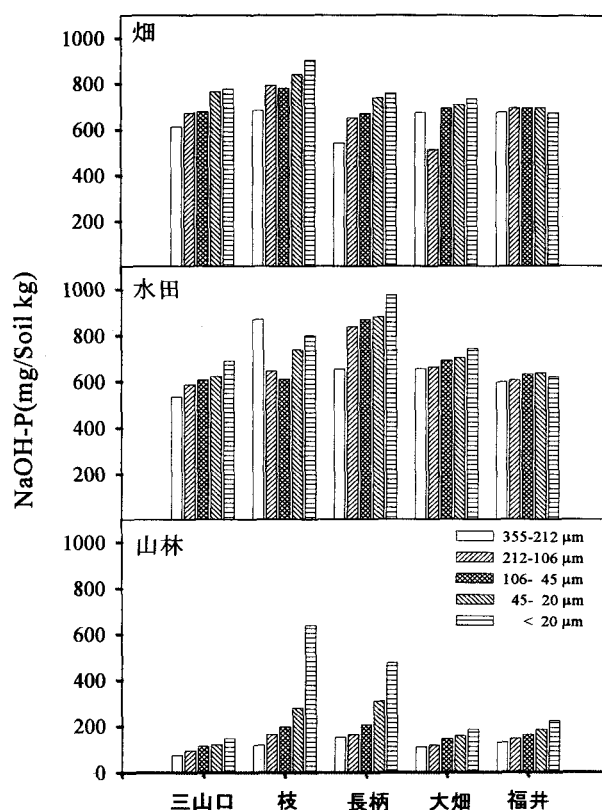


図-2 土地利用及び粒度分布による BAP 分布

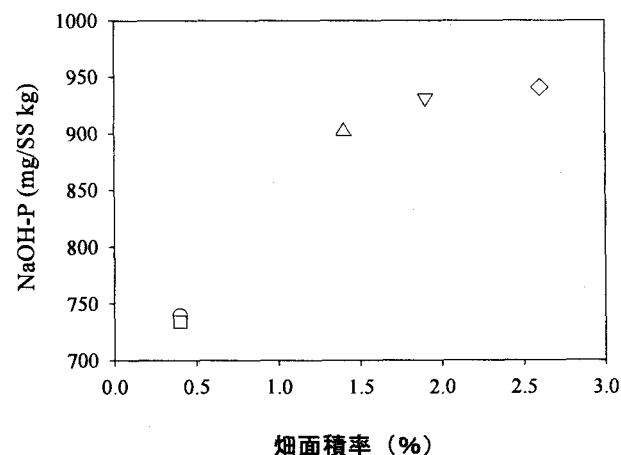


図-3 畑の面積の割合と流出水中の濁質からの BAP

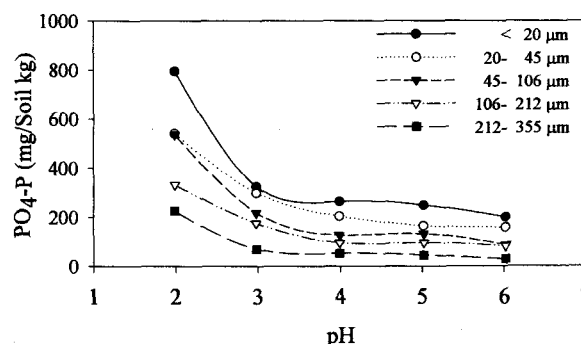


図-4 pHの違いによるリン溶出の違い

力を少しずつ喪失して¹³⁾、水中に溶出すると考えられる。金属水酸化物の pH による溶解度を考えると、pH3 ~4 以下から Fe^{3+} イオンが増える。pH3 以下になると鉄と結合していたリンが、鉄が Fe^{2+} から Fe^{3+} になることによって解離するために、図-4 において、リンの濃度が高くなっていると考えられる。

b) SS 濃度とリンの溶出

濁流の SS 濃度の違いが BAP の溶出に及ぼす影響を検討するために、大畑流域の畑の土壌を粒子径別にわけ、種々の濃度で浮遊させて実験を行った。図-5 に土壌の粒子径ごとに土壌の添加量をかえて溶出した NaOH-P の結果を示した。

SS の濃度の変化によって、粒子径でわけられた土壌の NaOH-P の含有量に違いが見られた。

Sharpley ら⁹⁾が提案した濁水から直接 NaOH で抽出する方法では、SS 濃度の変化によって粒子態物質のリンの含有量には差が無いと報告している。一方で、SS 濃度が低い方が抽出される量が多くなるという報告⁴⁾もあり、本研究においてもその傾向が認められる。

実河川中における SS のリンの生物利用可能性から考えると、SS が 100mg/l 以下では、SS 濃度が低くなるほど、水中へ出てくるリンが増加するために、SS 濃度が低下しても、その低下ほどには溶出するリンの生物利用可能性は減少しないと考えられる。

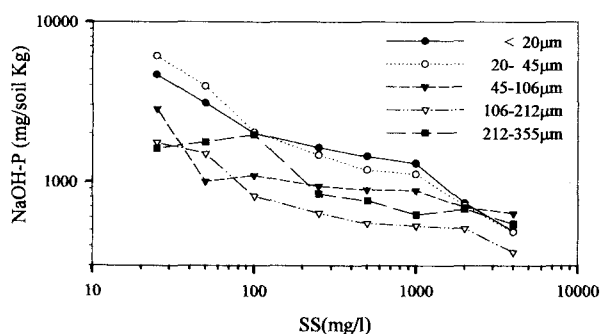


図-5 土壌の浮遊濃度と溶出するBAPの関係

c) 粒子の流動によるリンの溶出

雨天時に流域から流出した土壌が河川を流下中にも、リンが溶出すると考えられる。流動によるリンの溶出の検討を行うための実験を行った。大畑流域の畑の土壌を粒子径別に蒸留水に SS 濃度が 200mg/l になるように添加した。振とう器を用いて 200rpm で 1 時間振とうさせたものと、超音波(40KHz)を 1 分間作用させたものにつき、水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ の測定を行った。

結果を図-6 に示す。振とうの場合は、土壌の粒子径が小さくなるにつれて、土壌からの $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出量が増加する傾向が見られたが、超音波による場合には、 $106\mu\text{m}$ 以下ではあまり顕著な差ではない。また、粒子径が $20\mu\text{m}$ 以下の粒子は、粒子径が $212\mu\text{m}$ ~ $355\mu\text{m}$ の

粒子と比べて $\text{PO}_4\text{-P}$ の溶出量が約 6 倍となった。やはり粒子径が小さいほど溶出が大きかった。

これはリンがイオン交換、静電的引力などによる粒子態物質の表面への吸着形態が異なることと、粒子態物質の表面面積が異なることが起因していると考えられる。また超音波のような高周波の作用よりも振とう装置の作り出す低周波の流動の方が、粒径の異なる粒子への作用に差があり、溶出効果にも差が現れると考えられる。

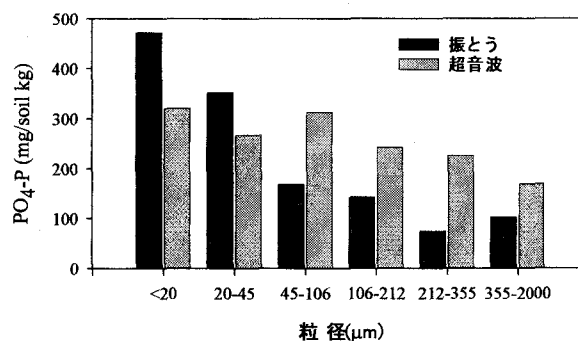


図-6 流動によるリンの溶出の影響

5. 藻類の増殖に及ぼす影響

粒子態物質によるリンの溶出と生物利用可能性を検討してきたが、それが実際に藻類の増殖にどのように影響を及ぼすかを検討する。検討方法として藻類増殖試験を行った。対象としている流域の水が流れ込む湖山池において発生するアオコの優占種である藍藻類の *Microcystis aeruginosa* を、同池より単離したものをを用いた。土壌により供給されるリンの影響を調べるために、この藻類の培養に用いられる M11 培地において、リンの代わりに土壌を 400mg/l の濃度で加えて藻類培養試験を行った。

図-7 は藻類増殖試験の結果得られた最大増殖量を示したものである。コントロールとして、M11 培地及び同培地からリンを取り去ったものについても試験を行った。土壌を用いた場合、藻類はコントロールの有リン及び無リンの試料の間の増殖量を示し、土壌がリンを供給することが分かる。

畑の土が最も増殖が多く、つづいて水田土壌、山林土壌の順であった。これは図-2 で示された BAP の結果と同じ傾向である。

粒径別に見た場合、山林土壌では粒径による増殖量の違いは顕著ではなかったが、水田土壌、畑土壌となるにつれ細かい土壌の方が増殖量が多い結果となった。図-2 の粒径別 BAP の測定結果と合わせて考えると、山林土壌では BAP 含有率が少なすぎて粒径の影響は現れなかったが、水田、畑それぞれの土壌においては、藻類培養試験を行った $106\mu\text{m}$ 以下の粒径の範囲で、細かい粒子の方が BAP の含有率が高いことと藻類増殖の結果

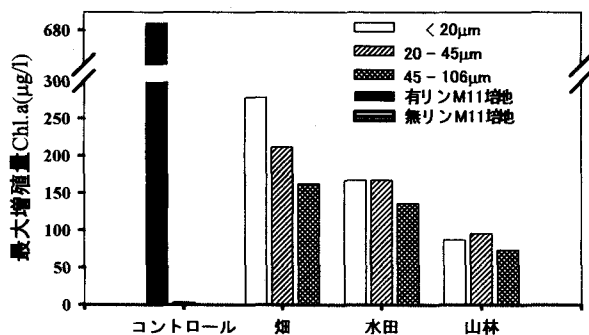


図-7 流域土壌の土地利用による最大藻類増殖量

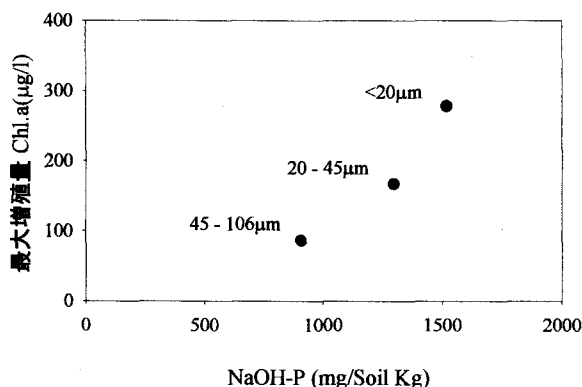


図-8 NaOH-Pの推定溶出量と最大増殖量

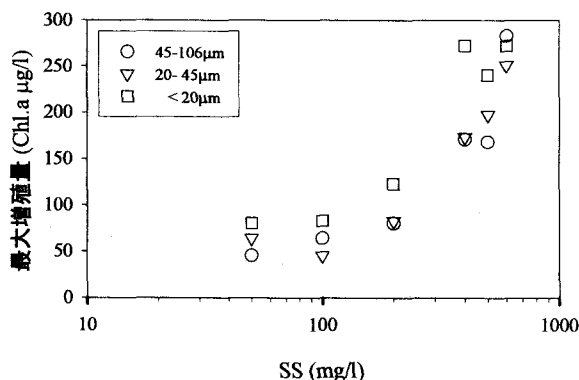


図-9 SS濃度別の藻類の増殖量

が一致している。

粒径の影響をより詳しく見るために、畑の土壌の粒径別 NaOH-P を検討した結果である図-5において、本藻類培養試験の SS 濃度である 400mg/l のときの NaOH-P の溶出量を求め、この値と図-7の最大増殖量との関係を示したものが図-8である。両者の間には明確な相関関係を認めることができる。すなわち小粒径の粒子からの方が BAP がより多く溶出し、それが藻類の増殖をより促進している。

図-9はリンを除いた M11 培地に、畑の土壌を6つの異なる濃度にして加えたものを用いて、*Microcystis aeruginosa* を培養した結果を示している。3つの粒径範囲別に実験を行った。小粒径の方が増殖が多いのはこれまでと同じ傾向であるが、SS 濃度 100mg/l 付近までは SS 濃度に関わらずほぼ一定の増殖量を示し、100mg/l を超えると SS の増加に応じて増殖量も増加する。

図-5を見ると SS が 100mg/l 付近までは SS と SS あたり NaOH-P 溶出量との間に両対数紙上ではほぼ-1の関係が見られる。このことは両者の積がほぼ一定、すなわち SS 濃度に関わらず水中の NaOH-P 濃度が一定であることを示している。これは図-9において藻類の増殖量がこの範囲でほぼ一定となっていることと一致している。

図-5で SS が 100mg/l を超えると SS あたり NaOH-P 溶出量は一定に近づいていく。すなわち水中へ溶出する NaOH-P は SS 濃度に比例するようになる。このことが図-9において SS が 100mg/l を超えると最大増殖量は SS の増加に応じて増加している理由であると考えられる。

以上のように、理化学的試験で示された結果が藻類培養試験においてもほぼ矛盾無く検証された。

6. あとがき

本研究では粒子態物質の富栄養化に及ぼす潜在的な影響について検討した。

リンが流出する場所の土地利用によって富栄養化に影響を及ぼす可能性が異なり、肥料の使用されている畑や水田の土壌の方が、山林の土壌より富栄養化に影響及ぼす潜在力を持つリンが多かった。

土壌の粒径別には粒子径が小さいほどリンの溶出が大きく、富栄養化に影響を及ぼす潜在力が大きいと考えられた。

このような土壌のリンの溶出特性は、藻類の増殖に緊密な影響を及ぼすことが藻類増殖試験からも明らかになった。

本研究では限られた実験ではあるが、これまであまり明らかにされていなかった、流域からの土壌の降雨による流出が、閉鎖性水域における藻類の増殖に影響を及ぼすメカニズムの一端を、理化学的試験及び生物学的試験により示すことができた。今後は土地利用や土壌採取時期をより広範なものとするとともに、定量的な評価も加えて精度の高い流域管理を進めることができるようにしていきたい。

謝辞：本研究の一部は「(財)クリタ水・環境科学振興財団」の研究助成を受けて実施したことを付記し、謝意を表する。

参考文献

- 1) Water National Quality Inventory, <http://www.epa.gov/OWOW/NPS/facts/point1.htm>, 1994.
- 2) 大槻 均, 琵琶湖の水質と面源負荷, 環境技術, Vol.29, NO.7, pp.502-508, 2000.
- 3) 須藤隆一, 小沼和博, 霞ヶ浦の水質と面源負荷, 環境技術, Vol.29, NO.7, pp.509-515, 2000.
- 4) Hakanson, L., Jansson M., Principles of lake sedimentology, Springer Verlag, Berlin, p.316, 1983.
- 5) Forstner, U., Wittmann, G.T.W., Metal pollution in the aquatic environment, Springer Verlag, Berlin, pp. 486, 1979.
- 6) Abrams, M.M. & Jarrell, W.M., Soil Phosphorus as a Potential Nonpoint Source for Elevated Stream Phosphorus Levels, J. Environ. Qual., Vol.24, pp.312-328, 1995.
- 7) Chang, S.C., and M.L. Jackson, Fractionation of soil phosphorus. Soil Sci. Vol.84, pp.133-144, 1957.
- 8) 大久保卓也, 懸濁態リンの生物利用可能性, 用水と廃水, Vol.38, No.3, pp.34-46, 1996.
- 9) Sharpley, A.N, Troeger, W.W., and Smith, S.J., The measurement of bioavailable phosphorus in agricultural runoff, J. environ. Qual., Vol.20, pp.235-238, 1991.
- 10) 大久保俊治, 松本順一郎, 土への栄養塩類の吸着特性, 工業用水, No.275, pp.16~22, 1981.
- 11) Kim, L.H., Choi, E.S., Kim, J.K., Jang, S.S., Hoa, K., Phosphorus release characteristics of sediments with environmental changes, Symposium of KSWQ, pp.225-230, 1996.
- 12) Macpherson L.B., Sinclair N.R. and Hayer F.R., Lake water and Sediment III. The effect of pH on the partition of inorganic phosphate between water and oxidized mud or its ash, Limnol. Oceanogr., Vol.3, No.3, pp. 318-326, 1958.
- 13) Stumm, W., Morgan, J.J, 一般水質化学(安部善他, 半谷高久訳), p547, 共立出版, 東京, 1970.
- 14) 中島 淳, 粒子態リンの動態と生物利用可能性-土壌, 底泥のBAPの測定方法の検討-, 琵琶湖研究所プロジェクト研究報告書01・A01, pp60-69, 2002.

(2002. 9. 30受付)