

(5) 湯の湖における窒素およびリンの挙動

国立公害研究所 正会員 ○ 細見正明

須藤隆一

1. はじめに

湖の富栄養化現象の機構を解明して、富栄養化を制御していくためには、湖水中の窒素やリンの挙動を把握する必要がある。富栄養化した温帯湖では、夏期に安定した水温躍層の存在によって、水塊の鉛直方向の混合が抑えられ、その結果として、深層水では酸素が欠乏し、高濃度の正リン酸塩 ($\text{PO}_4\text{-P}$) やアンモニア性窒素 ($\text{NH}_4\text{-N}$) が存在する。秋の循環期に入ると、深層水に蓄積されていた窒素やリンは生産層に移行し、藻類に摂取されたり、あるいは、懸濁物質に吸着されたり、不溶性化合物を形成して沈殿したりする。このような窒素やリンの循環をモデル化したものは数多く提出されている¹⁾。

が、これらの数理モデルのほとんどは、定めねばならない数多くの未定係数を含んでいる²⁾。またこれらのモデルの結果から、水-底泥系を含めた鉛直方向における窒素やリンの挙動に関して検討を加えた例は少ない。一方、野外調査データに基づいて窒素やリンの循環について検討したものとして、大竹³⁾は、塩分躍層を通じてのリンのフラックスの解析を行っている。

Pingree⁴⁾は、水温分布から得られた鉛直渦動拡散係数を用いて、水温躍層を通してのリン酸輸送の平均フラックスを見積っている。Eppley⁵⁾やKing⁶⁾は、沿岸水域において植物プランクトンによる硝酸性窒素 ($\text{NO}_3\text{-N}$) の取り込み速度から鉛直拡散係数を見積っている。Hesslein⁷⁾は、鉛直渦動拡散係数を水温分布などから見積り、水温躍層を通しての全炭酸の循環について検討を加えている。しかしながら、現場のデータに基づいて停滞期から循環期にかけて、窒素やリンの循環について検討した例は見当らない。本研究は、湯の湖の停滞期から循環期にかけて、水質および沈殿物の調査を行い、その結果に基づいて水-底泥界面を含めた鉛直方向の窒素およびリンのフラックスに関する解析を行ったものである。

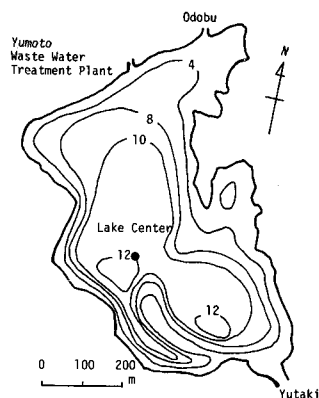


図1 湯の湖の概要

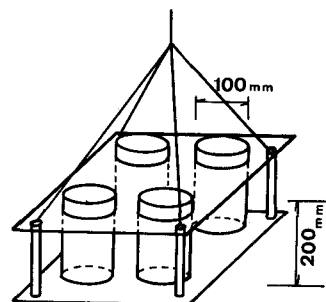


図2 沈殿物捕集器

2. 調査方法

湯の湖の概要を図1に示す。湖心(水深12m)において、1979年7月~10月まで、7~10日毎に水質調査と沈殿物調査とを平行して行った。水質調査では、水深0, 2, 4, 6, 8, 10, 11mにおける全窒素(T-N)や全リン(T-P)などの水質項目を測定した。測定方法の概略を表1に示す。また下向きの沈殿フラックスを求めるために、水深2, 4, 8, 10mに図2に示した沈殿びんを設置した。畑やGardner¹²⁾によれば、円筒形容器の筒長/口径比が2~3のとき最も合理的な捕集量を示すとしている。図2の容器は、この条件に合致している。この沈殿びんの内に捕集された懸濁態窒素(P-N)および懸濁態リン(P-P)を定量して〔それぞれ、T-N, T-Pと溶存態窒素(DTN), 溶存態リン(DTP)との差から求める〕、これを沈殿フラックス ($\text{mg}/\text{m}^2 \cdot \text{日}$) とした。また沈殿物や底泥について、鉄やマンガン等の分析を行った。

表1 各水質項目の測定方法

水 質 項 目	測 定 方 法
SS	ワットマンGE/Cフィルターによる
DO	ウィンクラー法
T-NおよびDTN	アルカリ性過硫酸カリウム法 ¹⁰⁾
T-PおよびDTP	酸性過硫酸カリウム法 ¹⁰⁾
$\text{NH}_4\text{-N}$	テクニコンオートアナライザー
$\text{NO}_3\text{+NO}_2\text{-N}$	"
$\text{PO}_4\text{-P}$	"
Fe, Mn等の重金属	$\text{H}_2\text{O}_2\text{-HNO}_3$ 加熱分解後、ICPにより分析

3. 調査結果および考察

3-1 水質調査結果

停滞期から循環期に至る過程を定性的に示したのが図3である。停滞期では、1.5～3m付近に水温躍層がみられるが、この躍層の位置は、2m水深を中心として測定日によって若干ずれることがある。DOは、水温躍層を含めた表層で過飽和となるが、3～4m付近から急に減少し、8mで1mg/l以下になり、さらに10m以深でゼロとなる。この10m以深では、紅色イオウ細菌と思われる細菌が多数みられた。また、 $\text{PO}_4\text{-P}$ および $\text{NH}_4\text{-N}$ は、DOの減少に伴い、4m以深で急激に増加している。このような停滞期特有の水質分布は、9/26までみられ、特

に11m水深の $\text{PO}_4\text{-P}$ および $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度は、それぞれ0.53mg/l, 180mg/lという高濃度を示した。10/3になると、表層水と深層水との水温差が小さくなり、深層水にもmg/l程度のDOが存在する。しかし、深層部では、 $\text{PO}_4\text{-P}$ や $\text{NH}_4\text{-N}$ の高濃度域が依然存在している。10/12には、水温12℃、DO5～6mg/l, $\text{NH}_4\text{-N}$ 0.2～0.4mg/l, $\text{PO}_4\text{-P}$ 0.1mg/l とほぼ一様の分布を示している。10/23では10/12と同様上下方向に一様となるがDOは飽和で、 $\text{NH}_4\text{-N}$ や $\text{PO}_4\text{-P}$ はほとんど消失している。

次に、湖心において仮想した単位面積あたりの水柱の各水深別のT-NおよびT-P量(g/m^3)の経時変化を図4、図5に示す。窒素、リン

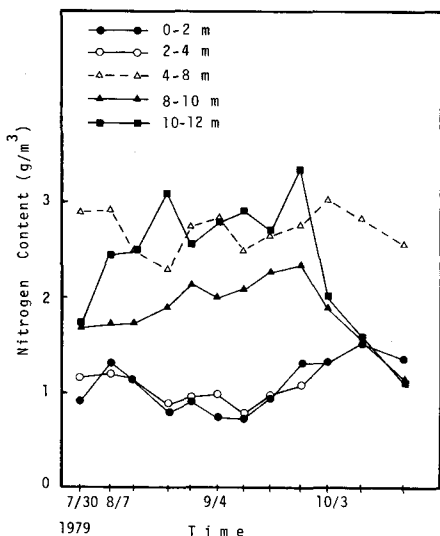


図4 各水深別のT-N量の経時変化

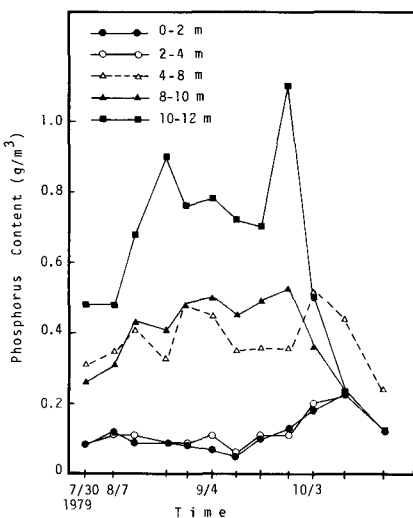


図5 各水深別のT-P量の経時変化

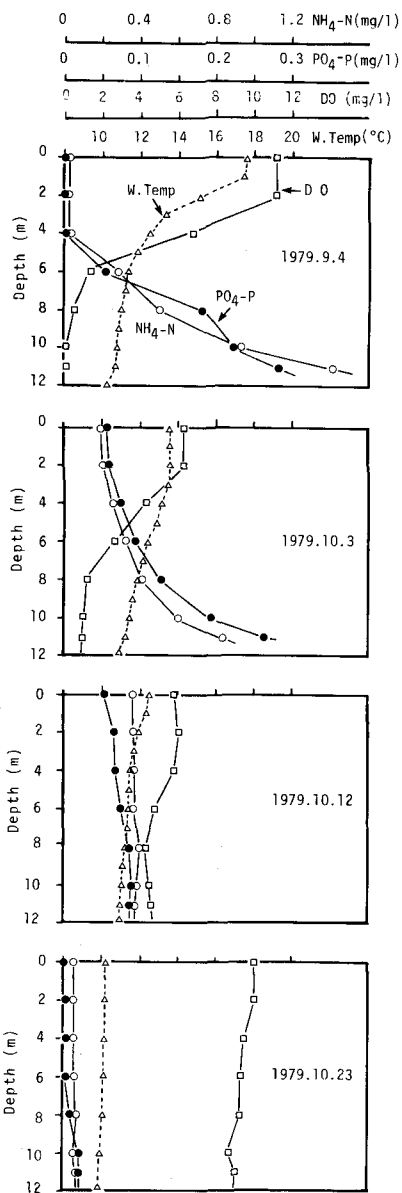


図3 停滞期から循環期に至る水質変化

とは、同様に変化し、停滞期では、おおむね一定値をとるが、水温躍層が次第にこわれる 9/26 から 10/12 まで増加する。4～8 m 層は、10/3 まで増減傾向がはっきりしないが、10/3 から 10/23 まで、窒素、リンいずれも減少している。一方、8～10m 層と 10～12m 層は 9/26 まで増加しており、水温躍層がこわれはじめると、急激に減少する。特に 10～12m 層は、この傾向が顕著である。10/23 には、窒素、リンいずれも各層均一の値となる。これらの結果を踏まえ、解析では 6 月中旬～9 月下旬の 100 日間を停滞期として、それ以降を循環期とした。

3-2 沈殿物調査結果

表 2 に各水深におけるセストン、窒素、リン、鉄、マンガンの沈殿フラックスと沈殿物の組成を示す。停滞期においては、セストンと窒素の沈殿フラックスが深さ方向に大きくなるのに対し、リンは 4 m 水深以下ではほぼ一定のフラックスとなる。マンガンや鉄は、4 m 水深で最大値を示す。沈殿物中のリン、マンガン、鉄含量は、いずれも 4 m 水深で最大値となる。

循環期では、窒素の沈殿フラックスは停滞期とほとんど同じ大きさである。一方、リンのフラックスは水深方向に大きくなり、停滞期のフラックスよりも 1.2～2 倍大きくなっている。リンと同様にマンガンや鉄のフラックスは、停滞期のフラックスよりも大きくなり、特に深層部で著しい。

停滞期では、嫌氣的雰囲気にある深層部で、リン、マンガン、鉄は、底泥から溶出したり、沈降してきた懸濁物質が可溶化して高濃度となる。これらの物質は拡散により上層に移行するが、4 m 水深付近で酸化的雰囲気になり、リンはマンガンや鉄の水和酸化物と共沈し、深層部でマンガンや鉄は再溶解し、リンも一部溶解する。循環期では、全層が酸化的になるので、リンは停滞期に可溶化していたマンガンや鉄の水和酸化物と共沈する。表 2 の結果は、このようなプロセスを支持していると考えられる。

次に沈殿フラックスについて、湖心で仮想した高さ 10 m の水柱(底面積 1 m²)の中で検討した。停滞期において、水柱から出ていくセストンの平均沈殿フラックスは、2.0 g/m²・日で、水柱に現存する平均セストン量は、32.7 g/m²である。これらから水柱に現存するセストンのうち、1 日あたり 6.1% が沈殿することになる。これに水柱高さ 10 m を乗じれば、セストンの平均沈殿速度 61 cm/日を得る。同様に水柱に現存する P-N や P-P のうち、それぞれ 1 日あたり 3.3%、5.1% が沈殿していくことになり、P-N および P-P の沈殿速度はそれぞれ 33 cm/日、51 cm/日となる。これらの値は、セストンが水柱内で沈降する間に、セストンに含まれ

ている窒素やリンは分解を受けるが、窒素の方が分解を受けやすいということを意味している。このことについて、窒素およびリンの組成から検討すると、沈殿物に含まれる窒素およびリン量は、セストンと底泥との中間にある。すなわち、セストンの窒素含量を 100 とすると、沈殿物は 47～57 (平均 54)、底泥は 10 となる。同様にリンの場合は、沈殿物が 68～96 (平均 81)、底泥 18 となり、セ

表 2 各水深における沈殿フラックスおよび沈殿物中の窒素、リン、鉄、マンガン含量

項 目	セ ス ト ン*	窒 素*			リ ン*		鉄**		マンガン**	
		沈殿フラックス (mg/m ² ・日)	沈殿フラックス (mg/m ² ・日)	含 量 (%)	沈殿フラックス (mg/m ² ・日)	含 量 (%)	沈殿フラックス (mg/m ² ・日)	含 量 (%)	沈殿フラックス (mg/m ² ・日)	含 量 (%)
停 滞 期	水深 (m)									
	2	1.0	37	3.2	6.0	0.56	2.0	2.1	1.9	1.9
	4	1.6	61	3.9	14.0	0.79	4.2	3.3	4.0	3.4
	8	1.7	61	3.7	12.2	0.67	3.3	2.2	5	0.4
循 環 期	10	2.0	74	3.8	13.5	0.65	2.3	1.3	5	0.4
	2	2.6	35	1.8	11.7	0.58	11.0	4.7	8.1	4.5
	4	4.2	51	1.4	16.1	0.47	11.0	3.5	10.0	3.9
	8	4.0	49	1.3	18.8	0.51	16.0	4.2	8.5	2.9
	10	5.2	79	1.6	30.3	0.65	22.0	4.6	9.4	2.4

* 停滞期 7/31～9/18 の平均値
循環期 9/26～10/12 の平均値
** 停滞期 8/28～9/18 の平均値
循環期 9/26～10/12 の平均値
注) 湖心底泥(0～2 cm)中の窒素、リン、鉄、マンガン含量はそれぞれ 0.7%、0.15%、3.85%、0.50% である。一方、セストン中の窒素およびリン含量は、それぞれ 6.8%、0.82% である。

ストーンに含まれているリンの方が分解を受けにくいという先ほどの結果と同様の結果を示している。

循環期になると、水柱にあるセストンのうち、1日あたり20%が沈殿し、その沈殿速度は2.0m/日と停滞期のそれよりも3倍大きくになっている。一方、P-Nは、1日あたり沈殿する割合が2.7%と停滞期と同程度となるが、P-PPは1日あたり沈殿する割合が11%と停滞期の2倍になっており、P-Nとかなり異なった挙動を示すことが予想される。

3-3 窒素およびリンの挙動に関する解析

停滞期から循環期において、各水深別の水柱における窒素およびリンの現存量と各水深断面における下向きの沈殿フラックスから、各水深別の水柱内で図6のように物質収支をとり、上向きの浮上フラックスを求めた。具体的には、0～2m層の水柱において浮上フラックスを求め、順次下方の水柱の浮上フラックスを求めていく。そして水-底界面面においては、底泥からの溶出フラックスと底泥への沈殿フラックスとの差を求めた。ここでは、水平方向の対流や拡散を無視している。これは、表層における水平方向のDTPやDTN濃度勾配が鉛直方向の濃度勾配に比べて著しく小さいためである。さらに流入水の影響について検討を行う。水温から判断する限り、湖内へ流入する排水は表層に入り込み、湯滝から流出すると考えられる。そこで、夏期の平均流入量および流出量を求めると¹³⁾窒素については流入56mg/m²・日、流出74mg/m²・日、リンについては、流入7.8mg/m²・日、流出6.8mg/m²・日となる。これらの流入、流出量の差は、表2の沈殿フラックスから考えるとほとんど影響がないと思われる。

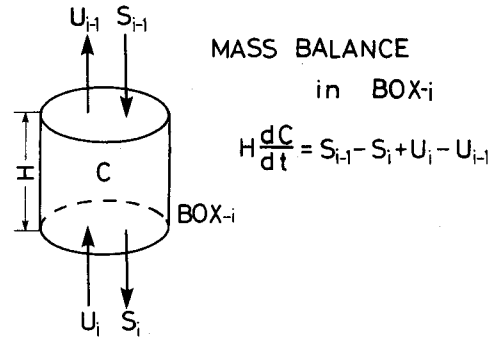


図6 各水柱内での物質収支

表3 窒素のフラックス (mg/m²・日)

期間	停 滞 期		循 環 期			
	7/31～9/18		9/26～10/3		10/3～10/12	
水 深	沈殿フラックス	浮上フラックス	沈殿フラックス	浮上フラックス	沈殿フラックス	浮上フラックス
2m	37	38	29	23	40	59
4m	61	59	65	99	36	77
8m	61	54	44	101	53	72
10m	74	79	86	76	72	43
水-底泥界面		26*	210*		73*	

* Net Flux (mg/m²・日)

表4 リンのフラックス (mg/m²・日)

期間	停 滞 期		循 環 期			
	7/31～9/18		9/26～10/3		10/3～10/12	
水 深	沈殿フラックス	浮上フラックス	沈殿フラックス	浮上フラックス	沈殿フラックス	浮上フラックス
2m	6.0	6.4	10.3	17.4	13.1	18.7
4m	14.0	14.9	18.0	38.0	14.2	22.0
8m	12.2	13.9	17.4	60.2	20.2	19.1
10m	13.5	20.5	26.9	45.4	33.6	16.9
水-底泥界面		11.0*	67.0*		47.7*	

* Net Flux (mg/m²・日)

停滞期から循環期にかけて、水柱の上下方向のフラックスを求めた結果を表3、表4に示す。停滞期においては、窒素、リンいずれも水深2mでの浮上フラックスが最小となる。これは、夏期の湯の湖における水温躍層が2m付近にあることと、0～4m層におけるDTPやDTN濃度勾配が、4m以深での濃度勾配と比べて小さいためと考えられる。夏期の透明度がおおむね2mであるので、0～4m層を生産層とすると、窒素、リンいずれも生産層と分解層との間で、沈殿フラックスと浮上フラックスとがほぼ釣り合っている。分解層において窒素は、水深10mで浮上フラックスが沈殿フラックスを上回り、水-底泥界面でのNetフラックスは、底泥から水中の方へ26mg/m²・日となる。一方、リンは8m水深で浮上フラックスの方が大きくなり、DOがほぼゼロとなる10m水深でのNetフラックスは、上向きで65mg/m²・日となる。窒素と同様水-底泥界面でのNetフラックスは、底泥から水中の方へ11mg/m²・日である。したがって、停滞期には、底泥から溶出した窒素やリンが分解層に蓄積されていく。またこの底泥から水中へのNetフラックスは、先に述べた夏期の平均流入量に匹敵するほど大きなものであることがわかる。

このように夏期に蓄積された窒素やリンは、循環しはじめるとどのような挙動をするのか検討を加える。

まず窒素について述べる。9/26-10/3においては、4mおよび8m水深で浮上フラックスが停滞期と比べ2倍程度大きくNetでみれば上向きのフラックスとなっている。ところが10m水深では、沈殿フラックスが浮上フラックスを上回り、さらに水-底泥界面においては、Netとして底泥の方へ $210\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ という大きな沈殿フラックスがあったことを示している。10/3-10/12においてもほぼ同様で、2m、4m、8m水深で上向きのNetフラックスとなり、10m以深では下向きのフラックスの方が上回る。しかしながら、このように大量の窒素が底泥の方に沈殿していく機構は明確になっていない。Hutchinsonは¹⁴⁾夏期に蓄積された NH_4-N は循環期になると上下方向に均一に分布するようになるが、 NH_4-N のかかなりの量が循環しはじめる前後で、他の形態の窒素が増えないで消失することを指摘している。本調査では、10/3には水柱全体に溶存酸素が認められるので硝化、脱窒作用が起り、窒素が系外に放出したことも考えられる。すなわち、系外への放出を無視していたために、計算上、水-底泥界面でのフラックスにその影響があらわれたためと考えられる。今後、脱窒機構について検討し、物質収支法の精度を上げていく必要があろう。

一方、リンは、9/26-10/3においてNetでみれば、10m以浅ですべて上向きのフラックスとなる。浮上フラックスは停滞期と比べ3倍程度大きくなっている。しかしながら、同時に沈殿フラックスも大きくなっていることは、3-2で述べたとおりである。水-底泥界面では、Netとして $67\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ という大きな沈殿フラックスが生じている。10/3-10/12には、分解層から生産層へ、分解層から底泥へNetとしてそれぞれ、 $8\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ 、 $48\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ のフラックスがある。

停滞期から循環期において、生産層、分解層および底泥間における窒素やリンのNetの移行量についてみる。停滞期を通じて常に窒素の溶出のフラックスが $26\text{mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ であったとすると、分解層に 2600mg の窒素が蓄積されていたことになる。9/26-10/12の間で、分解層から生産層へ 607mg 移行し、底泥の方に 2127mg 沈殿するか、あるいは脱窒されて系外に放出される。同様にリンの場合は、停滞期において底泥から溶出したリンが分解層に 1100mg 蓄積される。9/26-10/12の間で、分解層から生産層へ 210mg 移行し、 898mg のリンが底泥の方に沈殿していく。すなわち、みかけ上、底泥から溶出した窒素やリンの8割が、循環期の初期に底泥の方へ沈殿していくか、もしくは一部系外に放出されたことを意味している。

3-4 鉛直拡散係数の評価

停滞期において底泥から溶出したリ、生産層から沈降して分解層で無機化された栄養塩類が、どのくらい蓄積され、そのうちどのくらい鉛直輸送により生産層へもたらされるのかを評価するために、鉛直拡散係数を算出することが必要である。ここでは、水温の鉛直分布の経時変化から熱フラックスを算出し、(1)式によって拡散係数 K_z を求めた。¹⁵⁾

$$K_z = \frac{\int_t^{t+\Delta t} K_z \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)_{z=0} dt - \int_0^z (T(t+\Delta t) - T(t)) dz}{\left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)_{z=z \cdot \Delta t}}$$

ただし、 $\int_t^{t+\Delta t} K_z \left(\frac{\partial T}{\partial z} \right)_{z=0} dt$ としては、底泥への熱移動がないとして全水深で時間ステップ Δt の水温上昇量とした。

水温が上昇期にある6/18-7/24における水温分布から拡散係数 K_z を評価した。一方、3-3で求めた窒素およびリンの浮上フラックスとその水深の上下層水中のDTNおよびDTPの平均濃度勾配から拡散係数を求めることができる。これらの結果を表5に示す。窒素およびリンの浮上フラックスから求めた拡散係数は、各水深でおおむね一致していることがわかる。水温から熱フラックスを算出して求めた拡散係数は、停滞期前半のもので、窒素やリンの浮上

表5 停滞期における鉛直拡散係数 (cm^2/sec)

水深	リンのフラックスから求めた拡散係数 (cm^2/sec)	窒素のフラックスから求めた拡散係数 (cm^2/sec)	熱フラックスから求めた拡散係数 (cm^2/sec)
2m	0.74	0.44	0.011
4m	0.15	0.12	0.036
8m	0.036	0.054	0.034
10m	0.035	0.051	0.034

フラックスとその濃度勾配から求めた拡散係数と全く同一レベルで比較できないけれど、大まかには8m および10m 水深といった深水層で両者が一致している。したがって深水層において底泥から溶出した窒素やリンの浮上フラックスを、水温の鉛直分布の経時変化から得られる拡散係数を用いて容易に求めることができる。

ところが、2m および4m 水深では、窒素やリンの浮上フラックスから見積った値の方が1 オーダー高くなっている。これは0～4m 層でDTN やDTP の濃度勾配が非常に小さいために拡散係数が大きくなっている。特に、2m 層は水温躍層が存在するので、通常は拡散係数が小さくなる。今までに水温分布等から熱フラックスを算定し、水温躍層における鉛直拡散係数が求められたものは、オンタリオ湖で、 $0.02\sim 0.07\text{ cm}^2/\text{sec}^{16)}$ 実験湖沼227で $0.0034\text{ cm}^2/\text{sec}^{9)}$ 、Castle 湖でおおむね $0.02\text{ cm}^2/\text{sec}^{7)}$ 、海水域であるEnglish Channel では約 $1\text{ cm}^2/\text{sec}^{6)}$ などである。このように今まで湖沼で求められた水温躍層での拡散係数は今回熱フラックスから見積った値に近いことがわかる。窒素やリンの浮上フラックスから求めた拡散係数と熱フラックスから求めた拡散係数との差が大きい理由のひとつとして、生物、特に鞭毛を有した遊泳能力のある藻類自身の上下方向の運動が考えられる。しかしながら、こうした生物自身の運動については未解明の部分が多く、今後の検討課題としたい。

4. お わ り

本研究は、湯の湖の停滞期から循環期(1979)にかけて、水質および沈殿物の調査を行ない、その結果に基づいて水-底泥界面を含めた鉛直方向の窒素およびリンのフラックスに関する解析を行なった。以下その結果を要約する。

- (1) 停滞期において水温躍層がある2m 水深では、窒素、リンいずれも浮上フラックスと沈殿フラックスとが釣り合っている。また生産層(0～4m)と分解層(4～12m)との間でも浮上フラックスと沈殿フラックスとが釣り合っている。一方、水-底泥界面においては、底泥から水中へ窒素が $26\text{ mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ 、リンが $11\text{ mg}/\text{m}^2\cdot\text{日}$ のフラックスがある。これらのフラックスは、流入負荷に匹敵するほど大きなものである。
- (2) 循環しはじめると(9/26～10/12)、分解層から生産層への浮上フラックスは、停滞期と比べ、窒素で1.3～1.7倍、リンで1.5倍～2.7倍大きくなる。また、停滞期において底泥から溶出した窒素やリンのうち、循環期の初期で、みかけ上、2割が生産層に移行し、残りは底泥の方に沈殿していくかあるいは系外に放出される。
- (3) 停滞期において、熱フラックスから求めた拡散係数と窒素およびリンの浮上フラックス等から求めた拡散係数とを比較したところ深層水においてよく一致し、拡散係数 K_z は、 $0.03\sim 0.05\text{ cm}^2/\text{sec}$ の範囲にあった。

参考文献

- 1) Lung W.S. et al., Water Research, Vol.10, 1101-1114 (1976)
- 2) Jørgensen S.E., Ecological Modeling, Vol. 2, 147-165 (1976)
- 3) Imboden D.M. et al., Ecological Modeling, Vol. 4, 77-98 (1978)
- 4) Scavia D., Ecological Modeling, Vol. 8, 49-78 (1980)
- 5) 大竹ら, 環境科学研究報告書 B115-R12-5, 21-33 (1981)
- 6) Pingree R. D. et al., J. Mar. Biol. Ass. U. K., Vol. 55, 261-274 (1975)
- 7) Eppley R. W. al., Limnol. Oceanogr., Vol. 24, 483-494 (1979)
- 8) King F. D. et al., Limnol. Oceanogr., Vol. 24, 645-651 (1979)
- 9) Hesslein R. et al., J. Fish. Res. Board Can. Vol. 30, 1491-1500 (1973)
- 10) 細見ら, 用水と廃水, Vol. 21, 1433-1439 (1979)
- 11) 畑, 海洋科学, Vol. 11, 996-1002 (1979)
- 12) Gardner W. D., J. Marine Research, Vol. 38, 41-52 (1980)
- 13) 細見ら, 土木学会第35回年次学術講演会講演概要集, II, 762-763. (1980)
- 14) Hutchinson G. E., A Treatise on Limnology, Vol. 1, 836-877.
- 15) 村岡ら, 国立公害研究所研究報告, R-6-79, 33-44 (1979)
- 16) Sweers H. E., Limnol. Oceanogr., Vol. 15, 273-280 (1970)
- 17) Jassby A. et al., Limnol. Oceanogr., Vol. 20, 530-543 (1975)