

## (12) 底泥からの窒素の溶出について

### NITROGEN RELEASE FROM LAKE SEDIMENTS

○細見 正明<sup>\*</sup>・須藤 隆一<sup>\*</sup>  
Masaaki HOSOMI<sup>\*</sup>, Ryuichi SUDO<sup>\*</sup>

ABSTRACT; The contribution of nitrogen release from sediment to total nitrogen loading into lakes were studied in Lake Yunoko and Lake Kasumigaura. Nitrogen flux at the sediment-water interface was estimated by a mathematical model based on the Fick's law. There observed little differences in  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux from sediments of Lake Yunoko throughout the year.  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux in the profoundal zone was greater than that of the littoral zone.  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux at the lake center ranged 45 to 65  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ , whereas  $\text{NO}_x\text{-N}(\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N})$  flux from water to sediment was negligible. It was estimated that internal nitrogen loading in Lake Yunoko ranged from 7.3 to 11  $\text{kgN}\cdot\text{d}^{-1}$  and was equivalent to 15-36% of external nitrogen loading. In Lake Kasumigaura  $\text{NH}_4\text{-N}$  and  $\text{NO}_x\text{-N}$  concentrations in interstitial water changed seasonably. Maximum  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux was observed (69-134  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) during summer and early autumn.  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux decreased with water temperature (-2 - 8  $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ).  $\text{NO}_x\text{-N}$  flux from water to sediment in Takahamairi Bay was comparable to  $\text{NH}_4\text{-N}$  release flux except summer. Internal/external nitrogen loading ratio during summer in Takahamairi Bay was 0.5. This ratio in the lake center area ranged from 0.5(winter) to 3.0(summer).

KEYWORDS: nitrogen, release flux, lake, sediment, interstitial water,

#### 1. はじめに

湖沼における富栄養化機構を解明して効果的な富栄養化対策を講ずるためには、窒素やリンなどの物質収支を明らかにしておく必要がある。この物質収支を明らかにする過程において底泥からの窒素やリンの溶出による内部負荷の評価が問題となる。一般に底泥は、水質よりも不均一で地点間の差が大きく、しかも湖沼の違いによって、その生物・化学的および物理的特性が大きく異なる。したがって対象とする湖沼の底泥による内部負荷の評価、さらにはその将来予測をするためには、それぞれの湖沼で栄養塩溶出に関する基礎的な資料を収集していく必要がある。本研究の目的は、水深が浅く底泥表層温度がかなり変化する霞ヶ浦と、水温躍層が形成されて深い湖の特性をも有している湯の湖を対象として、水-底泥界面における $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2+\text{NO}_3\text{-N}$ (以下 $\text{NO}_x\text{-N}$ と略す)のフラックスを求め、これから算定される底泥による内部負荷と窒素の流入負荷とを比較し、底泥が窒素収支に占める役割を明らかにすることにある。

湖沼底泥からの溶出フラックスを求める方法には、現場あるいは室内での湖水-底泥系において水中の栄養塩濃度の変化量から求める実測法と、フィックの法則を基本とした数学モデルを使う数理モデル法とがある。本研究では、上記の目的を達成するためにフィックの法則を基本とした数理モデル法を用いた。この数理モデル法は、現場あるいは室内で水-底泥系をある期間incubateする必要がなく、労力が少なくすむ。まず、数理モデル法に必要な底泥間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_x\text{-N}$ の鉛直分布についてその季節変化を明らかにし、これらのデータから数理モデル法により、水-底泥界面における $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスを求めた。さらに得られた窒素のフラックスから内部負荷を算定し、窒素の流入負荷と比較検討した。なお、数理モデル法による窒素のフラックスの妥当性について実測法と比較検討した。

\* 国立公害研究所 National Institute for Environmental Studies

## 2. 実験方法

### 2.1 数理モデル法

本法は底泥間隙水と直上水との濃度勾配から、窒素の溶出フラックス  $F(\text{mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1})$  を求める方法である。水-底泥界面におけるフラックスは、

$$F = -\phi \cdot D \cdot \frac{\partial C}{\partial Z} \Big|_{z=0} \quad \dots\dots(1)$$

ここで、 $\phi$  ; 空隙率 (—),  $D$  ; 拡散係数 ( $\text{L}^2 \cdot \text{T}^{-1}$ ),  $C$  ;  $\text{NH}_4\text{-N}$  あるいは  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度 ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-3}$ ),  $Z$  ; 水-底泥界面から底泥

への距離 ( $\text{L}$ ) となる。本法では拡散係数  $D$  を評価しなければならない。これまで多くの研究者により、いろいろな手法に基づいて拡散係数が求められてきたが、その値は求める方法によってかなり異なる ( $2 \times 10^{-4} \sim 10^{-7} \text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )。<sup>1)~7)</sup> ここでは、測定が容易でいくつかの湖沼に適用されたものとして、<sup>8)~10)</sup> Lerman<sup>7)</sup> が Manheim<sup>6)</sup> のデータを整理して得た関係式を使用した。すなわち、空隙率  $\phi$  と拡散係数  $\bar{D}$  との間には次のような関係がある。

$\bar{D} = D_0 \cdot \phi^2 \quad \dots\dots(2)$  ここで、 $D_0$  ;  $\phi=1$  における拡散係数 ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  とともに  $9.8 \times 10^{-6} \text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )<sup>7)</sup> ( $\text{L}^2 \cdot \text{T}^{-1}$ ) さらに、 $t$  °C における  $\text{NH}_4^+$  および  $\text{NO}_3^-$  の拡散係数  $D_t$  は、 $D_t = \bar{D} (1 + \alpha t) \quad \dots\dots(3)$

ここで、 $\alpha$  ; 温度補正係数 ( $\text{NH}_4^+$ ,  $\text{NO}_3^-$  とともに  $0.04 \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ )<sup>7)</sup> ( $1/^\circ\text{C}$ ) である。また、(1) 式中の  $\frac{\partial C}{\partial Z} \Big|_{z=0}$  を正確に評価することが困難なので、ここでは近似的に底泥最表層間隙水と直上水との濃度勾配とした。すなわち、底泥最表層を 0~1 cm とした。また直上水は底泥間隙水と比べると鉛直方向に均一なので、水-底泥界面より数 cm 上方のものを採用した。以上より、溶出フラックスを求める(1)式は、

$$F = \phi \cdot D_t \cdot \frac{C_{in} - C_{ov}}{\Delta \ell} \quad \dots\dots(4)$$

ここで、 $C_{in}$  ; 底泥最表層 (0~1 cm 層) の間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  および  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度 ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-3}$ ),  $C_{ov}$  ; 直上水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  および  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度 ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-3}$ ),  $\Delta \ell$  ; 底泥最表層の泥深、すなわち水-底泥界面から間隙水採取層の中心までの距離 ( $\text{L}$ ),  $D_t$  ;  $t$  °C における拡散係数 (ここでは、直上水の水温を採用した) ( $\text{L}^2 \cdot \text{T}^{-1}$ ) と近似できる。

### 2.2 間隙水の採取方法と水質項目の測定方法

打込型コーサンプラーを用いて底泥を採取し、直上水のサンプリングを行った。その後、直上水を注意深く抜き取り、底泥コーサンプラーを 1~2 cm ごとに切断した。これを Fig. 1 の遠沈濾過管に入れ、泥温に近い温度で 3000rpm, 15 分間遠沈した。濾過管底部にたまった試料を直上水と同様に水質分析に供した。水質項目および測定方法については、Table 1 に示したとおりである。

### 2.3 実測法

数理モデル法によって求めた水-底泥界面における窒素のフラックスを実測法によって検証した。実測法として、<sup>9) 11)</sup> ①底泥コーサンプラーをできる限り自然環境条件に近い室内に設置するコーサンプラー

現場法、②底泥コーサンプラーを湖沼底泥付近につり下げるコーサンプラー現場法、③底層水と底泥とを人工的に隔離するチャンバーを現場に設置するチャンバー法、④湖沼において物質収支をとる物質収支法がある。これらのうち①、②、③では、直上水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  と  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度の変化速度を求めた。増加する場合を溶出フラックスとし、減少する場合を消失フラックスとした。④では、物質収支式

$$V \frac{C_t - C_0}{\Delta t} = N_{in} - N_{out} + A (R - S) \quad \dots\dots(5)$$

ここで、 $V$  ; 湖沼の体積 ( $\text{L}^3$ ),  $\Delta t$  ; 時間 ( $\text{T}$ ),  $C_0$  および  $C_t$  ; 湖水中の初期窒素濃度および  $\Delta t$  時間後の窒素濃度 ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-3}$ ),  $N_{in}$  および  $N_{out}$  ; 流入および流出窒素量 ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-3}$ ),  $A$  ; 湖面積 ( $\text{L}^2$ ),  $R$  ; 底泥からの溶出フラックス ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-2} \cdot \text{T}^{-1}$ ),  $S$  ; 底泥への沈殿フラックス ( $\text{M} \cdot \text{L}^{-2} \cdot \text{T}^{-1}$ )

Table 1. Methods for chemical analysis of water

| Item                                                               | Method                                             |
|--------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------------|
| SS                                                                 | Glassfiber filter(Whatman GF/C)                    |
| T - N & DTN(TDN)*                                                  | Alkaline persulfate digestion method <sup>2)</sup> |
| $\text{NH}_4\text{-N}$                                             | Automated colorimetric phenate method              |
| $\text{NO}_x\text{-N}$<br>( $\text{NO}_2 + \text{NO}_3\text{-N}$ ) | Automated cadmium reduction method                 |

\* DTN(TDN) denotes Dissolved Total Nitrogen.

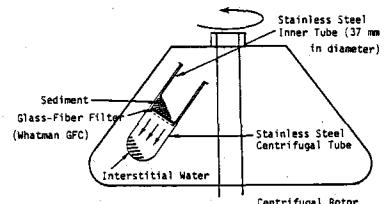


Fig.1. The centrifuge-filter system for sampling interstitial water in sediments

・ $T^{-1}$ ) から、 $R$ を未知数として、他の項目を実測し底泥からの溶出フラックスを求めた。

## 2.4 調査地点および調査期間

湯の湖は夏と冬の結氷期に水温躍層が形成され、夏期には底層水のDOがゼロになる。また底層の水温は3～10℃の範囲で変化する。霞ヶ浦は平均水深が4 mと非常に浅く、水温躍層がほとんど形成されない。夏期の底層水中のDOは、ときどき $1\sim 3\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ になることがあるが、嫌氣的になることはない。水温は冬期に2～4℃となり、7月下旬～8月上旬にかけて30℃近くなる。湯の湖および霞ヶ浦における主な調査地点をFig. 2, Fig. 3に示す。湯の湖では、1978年10月から1982年5月まで湖心を中心として底泥コアを採取した。また数理モデル法を検証するための実測法は、1981年8月に湖心地点とゆたき地点で行われた。物質収支法は、同年6月～8月にかけて調査を行った。一方、霞ヶ浦では、1981年4月から1982年7月まで毎月1回、St. 1からSt. 9において底泥コアを採取した。湯の湖と同様に1981年11月、St. 3で数理モデル法と実測法との調査を同時に行った。その他に、一部の底泥コアサンプルについて、数理モデル法とコア擬似現場法とにより、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスを求めた。

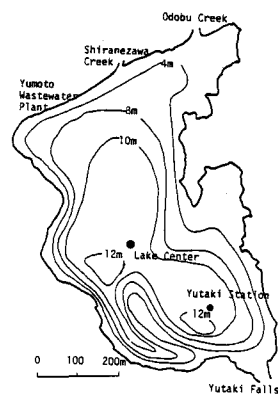


Fig.2. Study sites for Lake Yuno

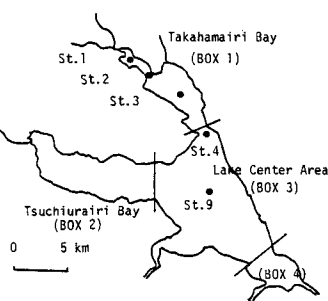


Fig.3. Study sites for Lake Kasumigaura

## 3. 結果および考察

### 3.1 底泥直上水および間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ と $\text{NO}_x\text{-N}$

Fig.4に湯の湖湖心における間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の鉛直分布を示す。このように1978年10月から1981年8月まではほとんど季節変動がみられず、一定の鉛直分布を示した。これは湯の湖湖心の底泥表層が年間を通じて10℃を越えることがなく、3～10℃の範囲にあり、微生物などによる分解活性が大きく変化しないことによると考えられる。また間隙水中には春・夏・秋を通じて、 $\text{NO}_x\text{-N}$ がほとんど検出されなかった( $0.02\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 以下)。間隙水中のDTNに対して、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は95～110%であった。したがってDTNは、ほとんど $\text{NH}_4\text{-N}$ によって占められていると考えられる。一方、直上水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ は、春と秋の循環期で、 $0.1\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度、夏の停滞期で $1\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度であった。 $\text{NO}_x\text{-N}$ は、春と秋において、 $0.1\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後検出されたが、夏にはゼロになった。

次に霞ヶ浦のSt. 1の底泥表層(0～5 cm)における間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の鉛直分布と直上水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度の季節変化をFig.5に示す。湯の湖湖心と異なりSt. 1では明瞭な季節変動がみられた。冬～春期には、鉛直方向にはほぼ均一で $1\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 程度と年間を通じて最低となった。また水-底泥間の物質交換も重要となる底泥最表層(0～1 cm)においても、1月～4月上旬には、 $0.2\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 前後で年間を通じて最低値を示した。3月8日には、底泥最表層より直上水の方が高くなった。8月になると急激に間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ が増加した。最表層で $2\sim 3\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ 、2～5 cm層で $3\sim 5\text{ mg}\cdot\text{l}^{-1}$ と鉛直方向に濃度差が生じた。このような分布は10月まで続いた。St. 1における $\text{NH}_4\text{-N}$ の分布特性は、St. 2, St. 3においても同様にみられた。St. 4の結果を

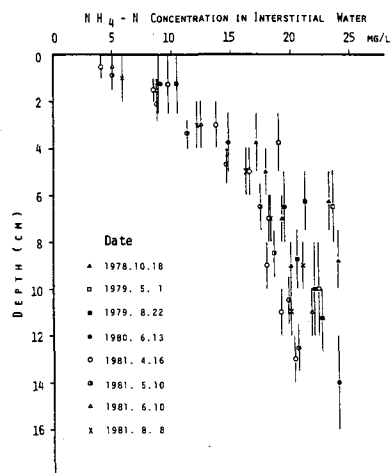


Fig.4.  $\text{NH}_4\text{-N}$  concentrations in sediment interstitial water at lake center of Lake Yuno

Fig 6 に示す。水深が 6 m ある St. 4 や St. 9 でも間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  は冬～春期に低濃度を示し、夏期に急激に増加して、秋まで高濃度が続くという季節変化がみられる。しかし鉛直方向における濃度差は、水深が 2 m の St. 1 などと比べ大きく、しかも間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度が高い。水深が大きくなるにつれてこうした傾向がみられた。また直上水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  濃度はいずれの地点においても冬から春にかけて低く、夏に高くなる傾向がみられた。

底泥間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  の季節変化に関する詳細な報告例はほとんどないが、<sup>12,13</sup> 神山らは琵琶湖底泥間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  の鉛直分布について調査を行い、次のような結果を示した。泥温が季節変動を示す底泥間隙水中の  $\text{NH}_4\text{-N}$  は夏期に増加し、冬期に減少したが、このような季節変動は底泥の表面に近い部分で顕著であったとしている。霞ヶ浦においても同様な結果であった。夏期の  $\text{NH}_4\text{-N}$  の急激な増加は泥温の上昇に伴い底泥中の有機態窒素が分解されて  $\text{NH}_4\text{-N}$  の生成が促進されるためと考えられる。浮田らはこの分解生成速度が温度に強く依存していることを示した。

次に、St. 1 および St. 4 における底泥間隙水中の  $\text{NO}_x\text{-N}$  の鉛直分布を直上水中の  $\text{NO}_x\text{-N}$  濃度の季節変化を Fig. 7, Fig. 8 に示す。St. 1 の冬～春期にかけては、直上水中で  $1\sim 1.5\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、底泥最表層部で  $0.5\sim 1\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 、さらに深くなるにつれて  $\text{NO}_x\text{-N}$  は減少し、5 cm 泥深ではほとんどゼロになった。こ

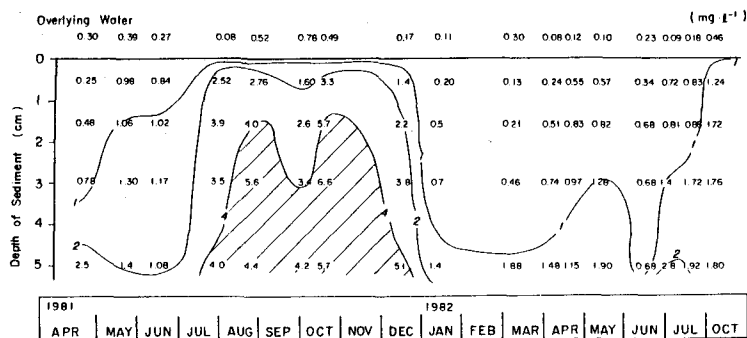


Fig. 5. A seasonal change of  $\text{NH}_4\text{-N}$  concentrations in overlying water and interstitial water at St.1 (Takahamairi Bay).

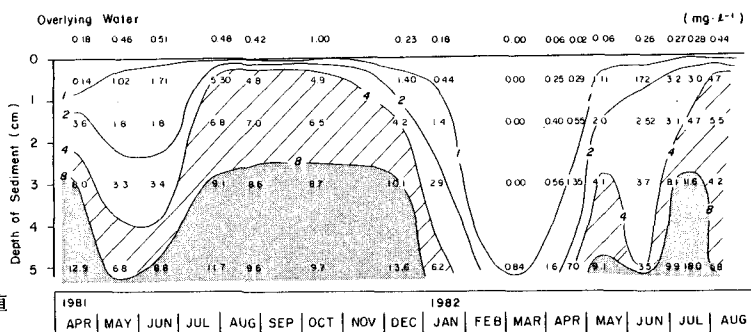


Fig. 6. A seasonal change of  $\text{NH}_4\text{-N}$  concentrations in overlying water and interstitial water at St.4.

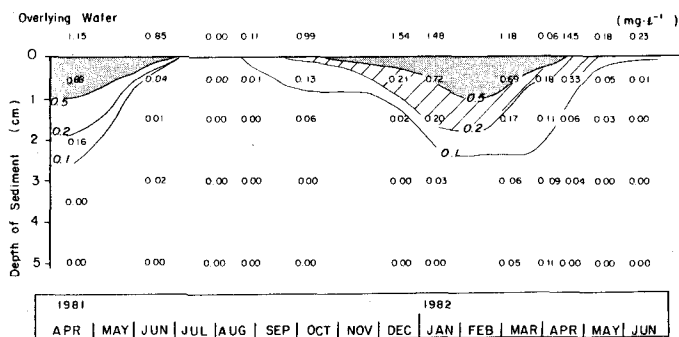


Fig. 7. A seasonal change of  $\text{NO}_x\text{-N}$  concentrations in overlying water and interstitial water at St.1 (Takahamairi Bay).

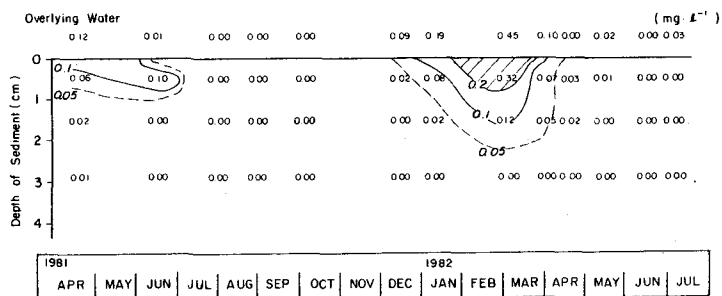


Fig. 8. A seasonal change of  $\text{NO}_x\text{-N}$  concentrations in overlying water and interstitial water at St.4.

のように底泥が最も酸化的な時期においても、直上水から底泥間隙水への $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度勾配がみられた。夏期には、間隙水ばかりでなく、直上水中にもほとんど $\text{NO}_x\text{-N}$ が存在しなかった。このような分布の季節変動は、St. 4でも同様であったが、間隙水中に $\text{NO}_x\text{-N}$ の存在しない期間がSt. 1よりも長く、また冬～春期にかけての底泥最表層には $0.1\sim0.2\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ とSt. 1に比べかなり低濃度であった。St. 2はSt. 1と、またSt. 3とSt. 9はSt. 4と似た季節変動を示した。またいずれの地点においても、 $\text{NO}_x\text{-N}$ は春期のごく一部を除けば、ほとんど年間を通じて直上水の方が間隙水よりも高くなった。

3.2 水-底泥界面における $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックス

湯の湖湖心の底泥最表層の間隙水(Fig.4 参照)と直上水との $\text{NH}_4\text{-N}$ 濃度勾配から求めた $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスをTable 2に示す。湖心底泥からの $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスは明確な季節変化を示さず、 $45\sim65\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ の範囲にあった。また、1982年春期にコアサンプルを湯の湖の各地点で採取して数値モデル法により、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスを推定したのがFig.9である。このように地点によって、溶出フラックスがかなり異なる。水深の浅い地点では $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスが $5\sim20\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ と小さいが、水深が10m以深では、 $32\sim56\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ と深くなるにつれて溶出フラックスが大きくなる傾向を示した。 $\text{NO}_x\text{-N}$ については、直上水に $0.1\text{mg}\cdot\text{L}^{-1}$ 程度検出される春や秋においてのみ、直上水から底泥へのフラックスが認められた。その値は $2\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ 程度と $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスと比べ、はるかに小さい。

霞ヶ浦では、3.1で得られた直上水と間隙水の $\text{NH}_4\text{-N}$ および $\text{NO}_x\text{-N}$ 濃度から数値モデル法によって各フラックスを求めた。Table 3は各フラックスを各季節ごとに整理したものである。

$\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスについては、各地点とも7月～9月に $69\sim134\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ と最大値を示した。10月～12月には、夏期の約半分に減少した。さらに1月～3月には、急激に減少して1ヶ台の溶出フラックスとなった。特にSt. 1では、直上水から底泥へのフラックスが認められた。平城らは $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出速度の季節変化を未分解有機物の分解速度を考慮してシミュレートし、夏期に溶出速度が大きくなることを示した。

地点別にみると、水深が6m余りあるSt. 4は、いずれの期間においても $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスが最大となった。湯の湖では水深が大きいほど溶出フラックスが大きくなる傾向がみられたが、霞ヶ浦では、水深が浅いこともあって、St. 4を除けば、溶出フラックスにそれほど大きな差がみられなかった。

直上水から底泥への $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスについては、各地点とも夏期にゼロになる以外はつきりとした季節的な変化は認められなかった。地点別にみると、いずれの期間においても、 $\text{NO}_x\text{-N}$ の底泥へのフラッ

Table 2.  $\text{NH}_4\text{-N}$  release fluxes from sediment at lake center of Lake Yunoko

| Date         | Release Flux *<br>( $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) |
|--------------|-----------------------------------------------------------------------|
| Oct. 18 1978 | 47 **                                                                 |
| May 1 1979   | 60 **                                                                 |
| Aug. 22 1979 | 56 **                                                                 |
| June 13 1980 | 45 **                                                                 |
| Apr. 16 1981 | 62 ***                                                                |
| May 10 1981  | 45 ****                                                               |
| June 10 1981 | 65 ***                                                                |
| Aug. 8 1981  | 55 ****                                                               |

\* porosity  $\phi=0.98$   
\*\*  $\Delta z=1.25\text{ cm}$   
\*\*\*  $\Delta z=0.5\text{ cm}$   
\*\*\*\*  $\Delta z=1.0\text{ cm}$   
Hosomi *et al* (9) showed that there was no significant difference between the mean values calculated from the mathematical model methods of  $\Delta z=0.5\text{ cm}$  and  $\Delta z=1.0\text{ cm}$ .

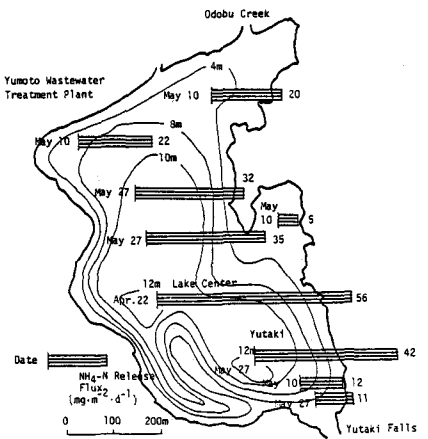


Fig.9.  $\text{NH}_4\text{-N}$  release fluxes in Lake Yunoko (1982)

Table 3.  $\text{NH}_4\text{-N}$  and  $\text{NO}_x\text{-N}$  fluxes at the sediment-water interface of Lake Kasumigaura

| Period    |                        | Nitrogen Flux ( $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) + |        |        |        |        |
|-----------|------------------------|---------------------------------------------------------------------|--------|--------|--------|--------|
|           |                        | St.1*                                                               | St.2** | St.3** | St.4** | St.9** |
| 1981      | $\text{NH}_4\text{-N}$ | 10                                                                  | 14     | 15     | 16     | 16     |
| Apr.-June | $\text{NO}_x\text{-N}$ | -14                                                                 | -6     | -1     | 0      | -1     |
| 1981      | $\text{NH}_4\text{-N}$ | 68                                                                  | 83     | 69     | 134    | 87     |
| July-Sep. | $\text{NO}_x\text{-N}$ | 0                                                                   | 0      | 0      | 0      | 0      |
| 1981      | $\text{NH}_4\text{-N}$ | 34                                                                  | 37     | 41     | 53     | 25     |
| Oct.-Dec. | $\text{NO}_x\text{-N}$ | -15                                                                 | -6     | -5     | 0      | -1     |
| 1982      | $\text{NH}_4\text{-N}$ | -2                                                                  | 3      | 4      | 3      | 8      |
| Jan.-Mar. | $\text{NO}_x\text{-N}$ | -12                                                                 | -8     | -6     | -5     | -4     |
| 1982      | $\text{NH}_4\text{-N}$ | 8                                                                   | 22     | 3      | 29     | 19     |
| Apr.-June | $\text{NO}_x\text{-N}$ | -7                                                                  | -3     | 0      | 0      | -2     |

+ Negative values denote nitrogen fluxes from overlying water to sediment.

\* porosity  $\phi=0.94$

\*\* porosity  $\phi=0.95$

クスがSt. 1からSt. 2, St. 3にかけて順次減少する。St. 4およびSt. 9では、1月～3月を除けばほとんど $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスが無視できる。

水一底泥間における物質移動の観点から、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスと底泥への $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスを比較した。夏期には $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出が重要なフラックスであるが、冬期にはSt. 9を除けばいずれの地点とも $\text{NO}_x\text{-N}$ の底泥へのフラックスが $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスを上回り、無視できないフラックスとなった。流入河川からの $\text{NO}_x\text{-N}$ の影響を強く受けるSt. 1とSt. 2においては、夏期を除けば、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出だけでなく $\text{NO}_x\text{-N}$ の底泥へのフラックスもかなり大きなフラックスとしてとらえることができる。

### 3.3 数理モデル法と実測法との比較

数理モデル法による窒素のフラックスについて実測法と比較検証した。まず、1981年夏の湯の湖で行った調査結果をTable 4に示す。調査期間中、底層水は嫌氣的で $\text{NO}_x\text{-N}$ が検出されず $\text{NH}_4\text{-N}$ がDTNの大半を占めていた。このように手法の違いによって溶出フラックスに若干差がみられるが、おおむね一致していると考えられる。また湯の湖では、好氣的な条件下にあるとき各手法による $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスの精度が検討された。その結果、数理モデル法は、コアー擬似現場法、チャンパー法とも有意な差が認められなかった。

次に霞ヶ浦St. 3(1981年11月)において、各手法による $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスの結果をTable 5に示す。湯の湖と同様、数理モデル法は実測法とおおむね一致した。またSt. 1～St. 9において、コアー擬似現場法と数理モデル法による $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスの比較をみたのが、Fig.10である。両者の間には良い相関が認められた。さらに、St. 3において直上水中の $\text{NO}_x\text{-N}$ の消失フラックスと数理モデル法による $\text{NO}_x\text{-N}$ の底泥へのフラックスとの比較

Table 4. A comparison of nitrogen fluxes estimated by the mathematical model method, the laboratory core method, the *in-situ* core method, the *in-situ* chamber method, and the mass balance method in Lake Yunoko (1981)

| Method         | Flux ( $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) |                            |                                |                                     |                                |
|----------------|----------------------------------------------------------|----------------------------|--------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------|
|                | Mathematical model* (Aug.8)                              | Laboratory core (Aug.8-11) | <i>In-situ</i> core (Aug.6-12) | <i>In-situ</i> chamber** (Aug.6-12) | Mass Balance*** (Jun.1-Aug.12) |
| Lake Center    | 55                                                       | 50                         | 40                             | 30, 38, 48                          | 28 - 42                        |
| Yutaki Station | 40                                                       | 28                         | 36                             | 28, 38, 48                          |                                |

\*  $\text{NH}_4\text{-N}$  release fluxes were calculated from  $t=10^\circ\text{C}$ ,  $\phi=0.98$ , and  $\Delta z=0.5$  cm.  
 \*\* Data of three *in-situ* chambers are shown.  
 \*\*\* Total nitrogen flux is estimated in the mass balance method and denotes the mean nitrogen flux from whole lake sediment to lake water.

Table 5. A comparison of  $\text{NH}_4\text{-N}$  fluxes estimated by the mathematical model method, the laboratory core method, the *in-situ* core method, the *in-situ* chamber method at St.3 of Lake Kasumigaura (1981)

| Method                                                                          | Mathematical model* (Dec.4) | Laboratory core** (Dec.4-11) | <i>In-situ</i> core*** (Nov.30-Dec.2) | <i>In-situ</i> chamber**** (Nov.30-Dec.2) |
|---------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|------------------------------|---------------------------------------|-------------------------------------------|
| $\text{NH}_4\text{-N}$ Flux ( $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 26                          | 18,19,22                     | 18,18,20,20                           | 27,30                                     |

\*  $\text{NH}_4\text{-N}$  flux was calculated from  $t=10^\circ\text{C}$ ,  $\phi=0.95$ , and  $\Delta z=0.5$  cm.  
 \*\* Data of three cores are shown.  
 \*\*\* Data of four cores are shown.  
 \*\*\*\* Data of two *in-situ* chambers are shown.

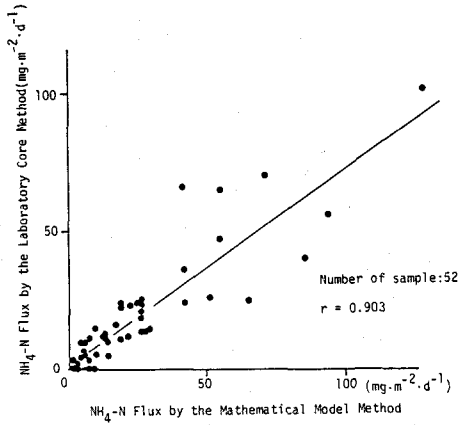


Fig.10. A comparison of  $\text{NH}_4\text{-N}$  fluxes estimated by the mathematical model method and the laboratory core method in Lake Kasumigaura

Table 6. A comparison of  $\text{NO}_x\text{-N}$  fluxes estimated by the mathematical model method, the laboratory core method, the *in-situ* core method, the *in-situ* chamber method at St.3 of Lake Kasumigaura (1981)

| Method                                                                          | Mathematical model* (Dec.4) | Laboratory core** (Dec.4-11) | <i>In-situ</i> core*** (Nov.30-Dec.2) | <i>In-situ</i> chamber**** (Nov.30-Dec.2) |
|---------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------|------------------------------|---------------------------------------|-------------------------------------------|
| $\text{NO}_x\text{-N}$ Flux ( $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ ) | 14                          | 11,11,13                     | 9,10,10,11                            | 19,22                                     |

\*  $\text{NO}_x\text{-N}$  flux was estimated by the same way as  $\text{NH}_4\text{-N}$  flux in Table 5.  
 \*\* Data of three cores are shown.  
 \*\*\* Data of four cores are shown.  
 \*\*\*\* Data of two *in-situ* chambers are shown.

をTable 6 に示す。数理モデル法による $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスは、実測法の $\text{NO}_x\text{-N}$ 消失フラックスの範囲にあった。

吉田<sup>19</sup>らは、霞ヶ浦底泥表層は脱窒活性が高いことを示した。また中島<sup>17</sup>らが霞ヶ浦高浜入で求めた脱窒速度を換算すると $12.5 \sim 175 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ となる。Tiren<sup>18</sup>らは、室内でのコア実験で直上水中の $\text{NO}_x\text{-N}$ 消失量の80~90%が脱窒によることを確認した。また中嶋<sup>19</sup>らは、過栄養湖である手賀沼でも同様の結果を得ている。Billen<sup>20</sup>も有機物含量が多い底泥では、直上水から間隙水への $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスを認めており、さらにこういう状態では、硝化が起ったとしても、表層数mmで脱窒の方が卓越すると考えた。本実験では、実測法の実験前後で間隙水中の $\text{NO}_x\text{-N}$ が増加しておらず、ほとんどゼロであった。したがって、実測法で得られた $\text{NO}_x\text{-N}$ の消失フラックスの大部分は脱窒によると考えられる。そこで数理モデル法による $\text{NO}_x\text{-N}$ の底泥へのフラックスを脱窒速度として、とらえることができる。

以上の結果から、水-底泥間の物質移動速度( $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出と脱窒)を推定する方法として、数理モデル法は実測法と比べ大きな差がないといえる。

### 3.4 窒素収支に占める底泥の役割

湯の湖では $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスの季節変動は少ないが、地点によって異なること、また $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスはほとんど無視できることから、Fig 9の結果よりここでは、4 m以浅で $10 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 、4 m~10 m水深で $20 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ 、10 m以深で $30 \sim 60 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ として、湯の湖全域の底泥からの平均的な溶出フラックスを評価した。その結果、平均的な溶出フラックスは $21 \sim 31 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ で底泥からの溶出による内部負荷は、 $7.3 \sim 11 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ となった。3.3の物質収支法で求めた底泥からの溶出フラックスは、湖全域の平均値と考えられる。したがって、これから湖全域底泥による内部負荷は、 $9.9 \sim 14.8 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ となり、数理モデル法から求めた値とおおむね一致する。1981年春季および夏期における窒素の平均流入負荷量現存量、底泥による内部負荷および流出量をFig.11に示す。湧水による窒素の流入負荷量は、湯滝一(大ドブ+処理場)の水量を湧水の流入水量とし、また湖岸付近の湧水中のT-N濃度を湧水の平均濃度として、これから求めた。内部負荷/流入負荷の比率は、春期で22~33%、夏期で14~21%となる。流出量と流入負荷とがおおむねつり合っているので、流出量に対する内部負荷の比率も同様となる。また物質収支法において、沈殿びんによって実測された1981年夏期の平均沈殿速度は、 $28 \sim 45 \text{ mg} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。これから得られる窒素の沈殿量は、 $10 \sim 16 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ で、底泥による内部負荷よりも若干大きな値を示した。

霞ヶ浦は湯の湖と比べ流域面積が大きく、また流入河川が多いので、流入負荷量の算定は求め方によってかなり異なるが、ここでは福島<sup>21)</sup>がまとめた結果を用いる。1978年から1980年におけるBOX 1 (Fig.3参照)での窒素の平均流入負荷は、 $2520 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。また夏期および冬期の流入負荷は、それぞれ $2600 \sim 3300 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ 、 $2000 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。同様にBOX 3では、春、夏、秋を通じて $2600 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ であるが冬になると $1300 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ と半減した。平均流入負荷は $2330 \text{ kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ であった。

一方、Table 3の結果に各調査地点が代表する湖面積をかけ合わせて、BOX 1およびBOX 3における底

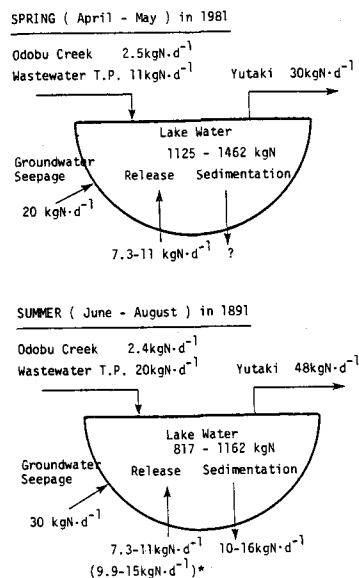


Fig. 11. Nitrogen Budgets in Lake Yunoko  
(\* Values were estimated by the mass balance method.)

Table 7. Internal nitrogen loading in Lake Kasumigaura

| Period         | Internal Nitrogen Loading ( $\text{kgN} \cdot \text{d}^{-1}$ ) |                             |
|----------------|----------------------------------------------------------------|-----------------------------|
|                | BOX 1<br>(Takahamairi Bay)                                     | BOX 3<br>(Lake Center Area) |
| Apr.-June 1981 | 340                                                            | 1400                        |
| July-Sep. 1981 | 1600                                                           | 8100                        |
| Oct.-Dec. 1981 | 930                                                            | 2500                        |
| Jan.-Mar. 1982 | 80                                                             | 620                         |
| Apr.-June 1982 | 110                                                            | 1800                        |

泥からの $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出による内部負荷を求めたのがTable 7である。

流入負荷が求められた期間と溶出による内部負荷を評価した本調査期間とは一致しないので、ここでは、おおまかな比較を行った。BOX 1の冬期には、流入による影響が大きく溶出による内部負荷は無視できるが、夏期には内部負荷/流入負荷の比率が50~60%になる。また湖心部であるBOX 3では、この比率が夏期で300%、冬期で50%と非常に高い。これらの結果は、窒素収支の中で、底泥からの窒素の溶出による内部負荷が、BOX 1では夏期に、またBOX 3では年間を通じて重要な位置にあることを意味している。

#### 4. まとめ

本研究は、窒素収支に占める底泥の役割を明らかにするために、湯の湖と霞ヶ浦を対象として、数理モデル法により水-底泥界面における窒素のフラックスを求めたものである。以下にその結果を要約する。

(1)  $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスや脱窒速度を推定する方法として、数理モデル法は実測法と比べ、大きな差がなかった。

(2) 湯の湖湖心における間隙水中には、DTNのうち $\text{NH}_4\text{-N}$ が大半を占めていた。 $\text{NH}_4\text{-N}$ の鉛直分布は、季節変動が認められず一定値を示した。数理モデル法による $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスは、湖心で45~65 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ と季節変動が少ないが、地点によって異なった。 $\text{NO}_x\text{-N}$ のフラックスは、ほとんど無視できる程度であった。湯の湖底泥による内部負荷は、7.3~11 $\text{kgN}\cdot\text{d}^{-1}$ で流入負荷や流出量の15~36%にあたる。

(3) 霞ヶ浦では湯の湖と異なり、間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ や $\text{NO}_x\text{-N}$ は季節変動が認められた。特に底泥表層部における変動は著しかった。水-底泥界面における窒素のフラックスは、この変動に対応して変化した。すなわち、夏~秋の初めにかけて、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出フラックスが最大となり(69~134 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ )、冬から春にかけて最低値となった(-2~8 $\text{mg}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{d}^{-1}$ )。St. 1やSt. 2では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ の溶出だけでなく脱窒も重要なフラックスとなった。内部負荷/流入負荷の比率が高浜入(BOX 1)では、夏期に50%と高くなり、湖心部(BOX 3)では年間を通じて、50~300%であった。

#### 参 考 文 献

- 1) Bender, M. L. : Journal of Geophysical Research, 76, 4214-4215 (1976)
- 2) Kamiyama, K. et al : Jap. J. Limnol., 38, 62-69 (1977)
- 3) 寺島 泰ら:保健物理, 3, 261-272 (1968)
- 4) 茂庭竹生:水質汚濁研究, 1, 63-69 (1978)
- 5) 寺島 泰ら:水質汚濁研究, 2, 89-96 (1979)
- 6) Manheim, F. T. : Earth Plant. Sci. Lett., 9, 307-309 (1970)
- 7) Lerman, A. : Geochemical Processes Water and Sediment Environments, Jhon Wiley & Sons, p. 481 (1979)
- 8) Freedman, P. L. et al : Journal of the Environmental Engineering Division, ASCE, 103, 233-244 (1977)
- 9) Hosomi, M. et al : 8th U. S. /Japan Experts Meeting on Management of Bottom Sediments Containing Toxic Substances (1982)
- 10) 市本繁和:私信
- 11) 日本水質汚濁研究協会編:湖沼環境調査指針, 161-166 (1982)
- 12) Kamiyama, K. et al : Jap. J. Limnol., 39, 176-180 (1978)
- 13) Kamiyama, K. et al : Jap. J. Limnol., 40, 169-175 (1979)
- 14) 浮田正夫ら:用水と廃水, 21, 807-817 (1979)
- 15) 平城高志ら:第16回衛生工学研究討論会講演論文集, 147-152 (1980)
- 16) 吉田富男ら:陸水学雑誌, 40, 1-9 (1979)
- 17) 中島拓男ら:国立公害研究所研究報告, 第22号, 89-97 (1981)
- 18) Tiren, T. et al : Acta Agriculture Scandinavia, 26, 175-184 (1977)
- 19) 中嶋光敏:ケミカル・エンジニアリング, No. 7, 45-51 (1982)
- 20) Billen, G. et al : Biogeochem. Estuarine Sediments Proc., 154-165 (1976)
- 21) 福島武彦:国立公害研究所調査報告, 第22号, 3-19 (1982)