

# 【5-1304】 湖沼のブラックボックス負荷 「底泥溶出」の定量評価に関する研究

研究代表者：今井章雄 国立研究開発法人国立環境研究所

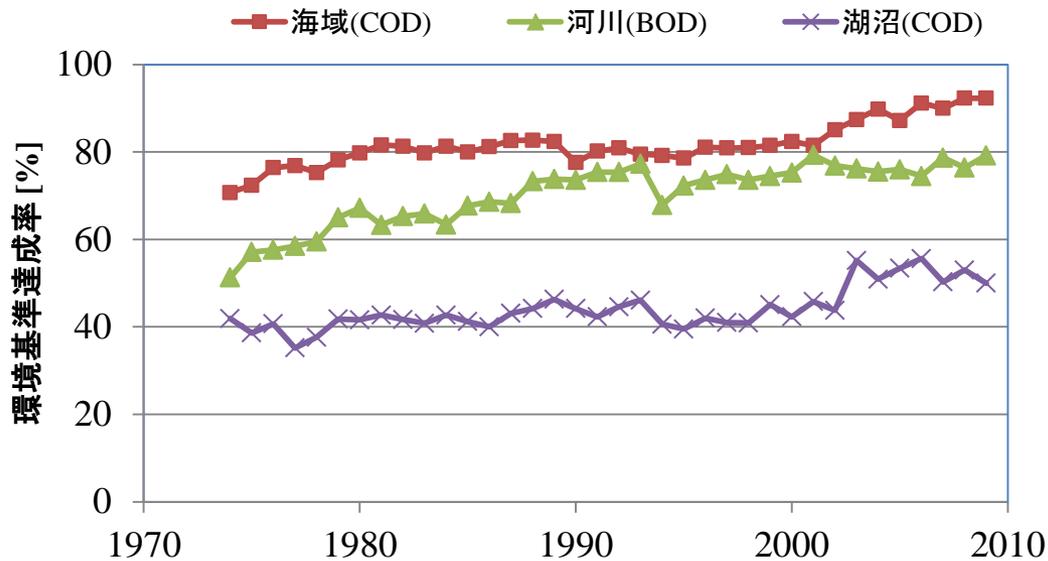
研究実施期間：平成25年度～平成27年度

累積予算額：96,368千円

研究分担者：小松一弘，高津文人，富岡典子，篠原隆一郎，  
霜鳥孝一、佐藤貴之、中山忠暢

国立研究開発法人国立環境研究所

# 研究背景



- ✓ 湖沼の環境基準達成率(COD)は50%; 流域発生源対策の効果が見えない
- ✓ 国内外の湖沼で溶存有機物(DOM)濃度が上昇(十和田湖, 野尻湖, 琵琶湖, 霞ヶ浦, 印旛沼, 八郎湖等)
- ✓ 浅い湖ではCOD, N, P上昇、アオコ大発生(霞ヶ浦, 宍道湖, 八郎湖等)

## 行政的評価(総務省2004, 中環審答申2005)

- 湖沼での汚濁機構(**底泥溶出**や面源流出等)の解明や実態の把握が不十分
- **モニタリングデータ**に基づいた汚濁**メカニズム**の実証的かつ**定量的な解明**を強く提言

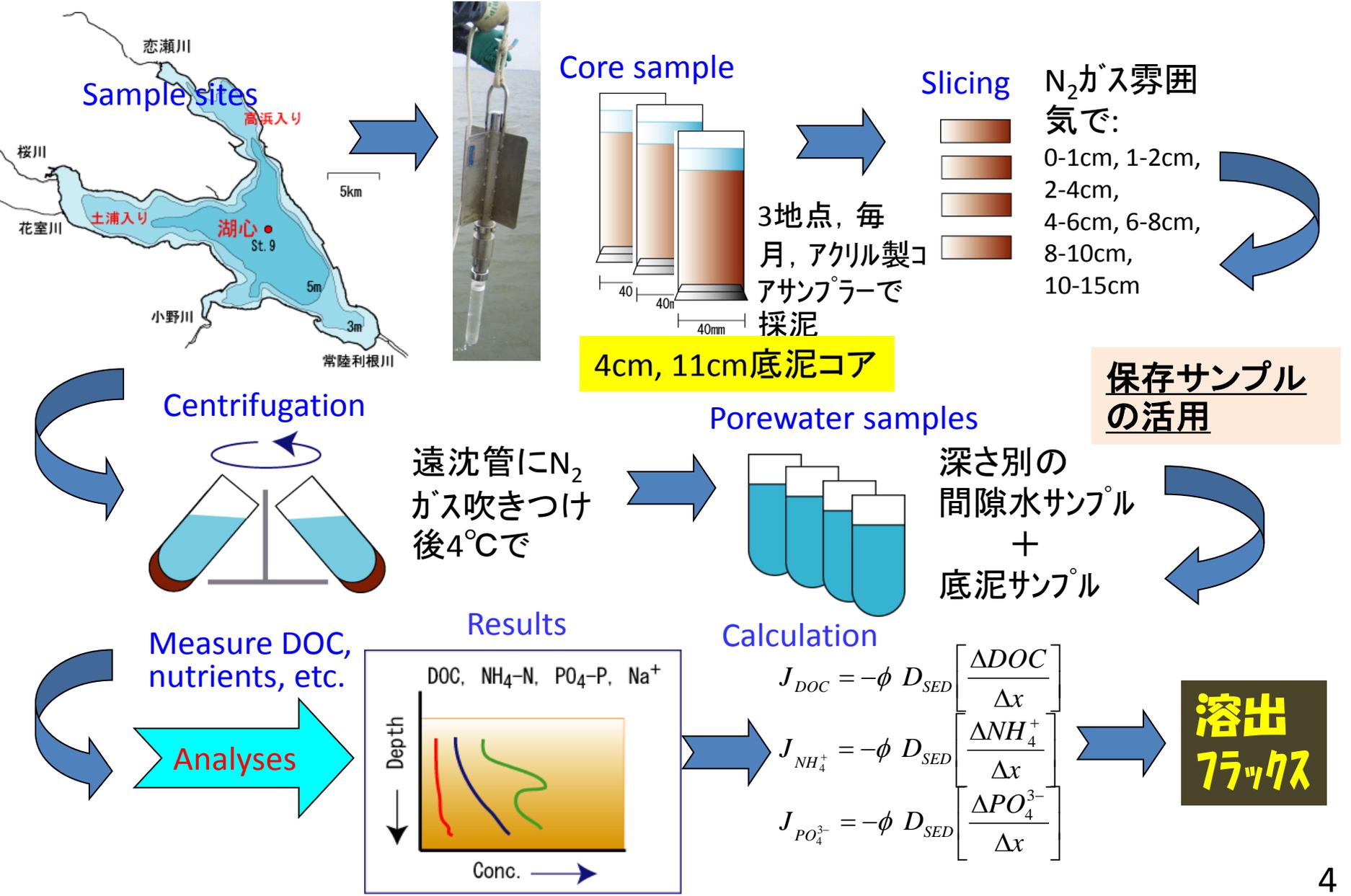


- 底泥溶出はブラックボックス的、定量性がとても低い。
- 湖沼, 特に浅い湖沼において、有機物、窒素、リンの底泥溶出を定量評価することが**必須**である。

# 研究開発目的

1. 霞ヶ浦等を対象として、有機物、窒素およびリンの底泥溶出量(フラックス)を定量的に算定する。
2. フィールド調査や室内実験等を駆使して、底泥溶出メカニズムを明らかにする。
3. モデル解析により底泥溶出の寄与を定量評価する。
4. 底泥溶出に係る効果的な対策シナリオを構築・提言する。

# 研究アプローチ: 底泥溶出フラックスの算定法

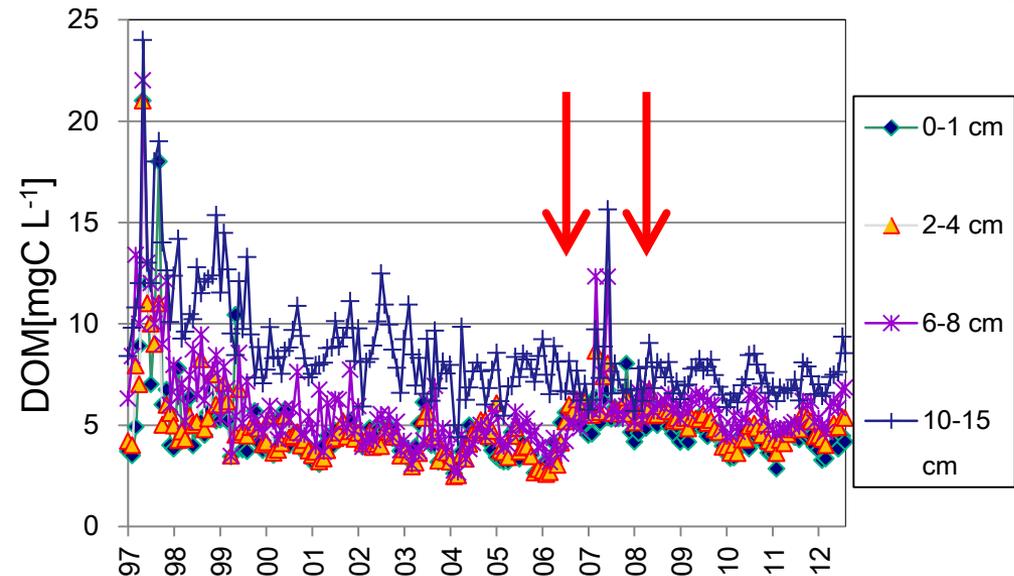
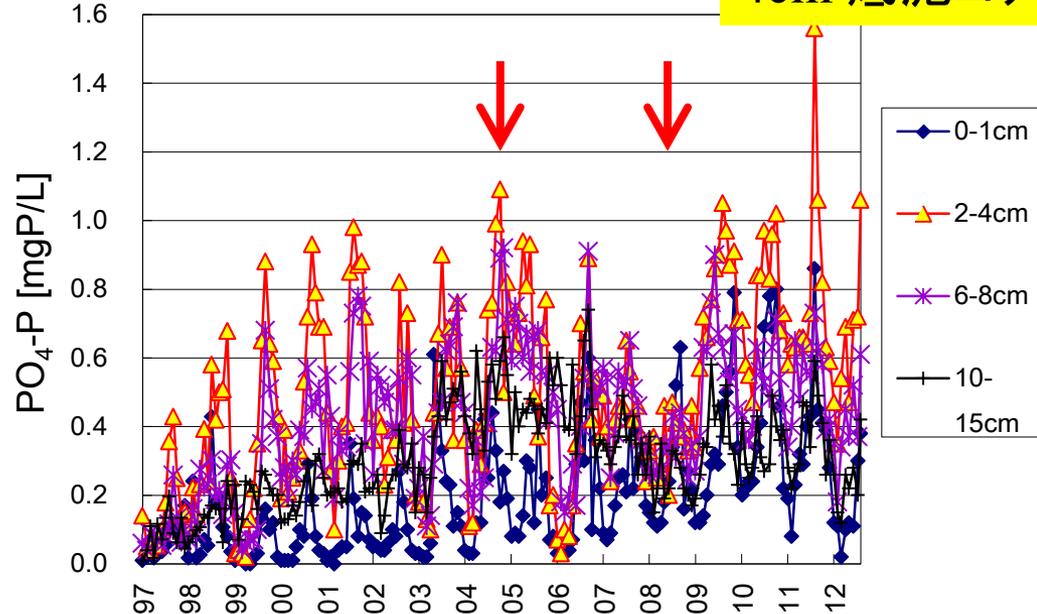
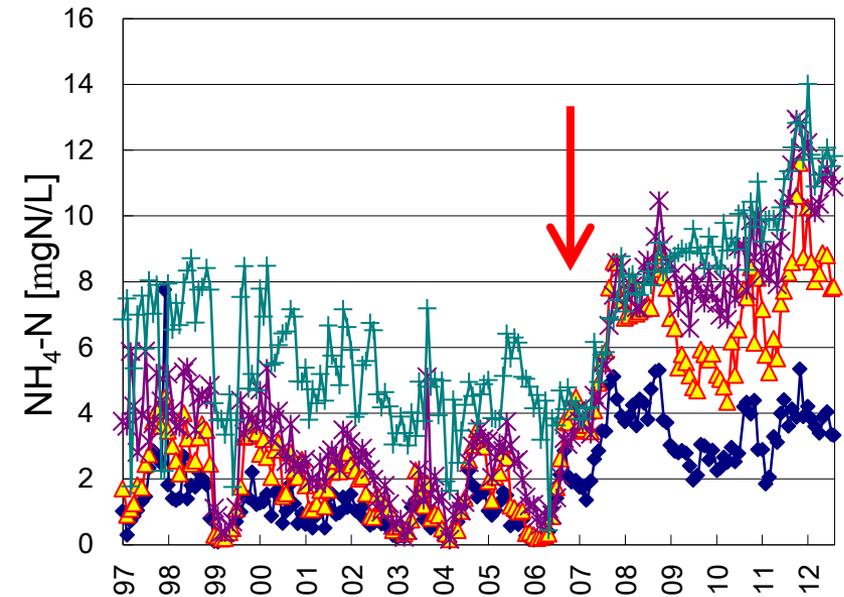


目的1:

霞ヶ浦等を対象として、有機物、窒素およびリンの底泥溶出量(フラックス)の季節的・地点別の長期的変動を定量的に算定する。

# 間隙水NH<sub>4</sub>-N, PO<sub>4</sub>-P, DOM濃度の長期トレンド（湖心）

4cm 底泥コア

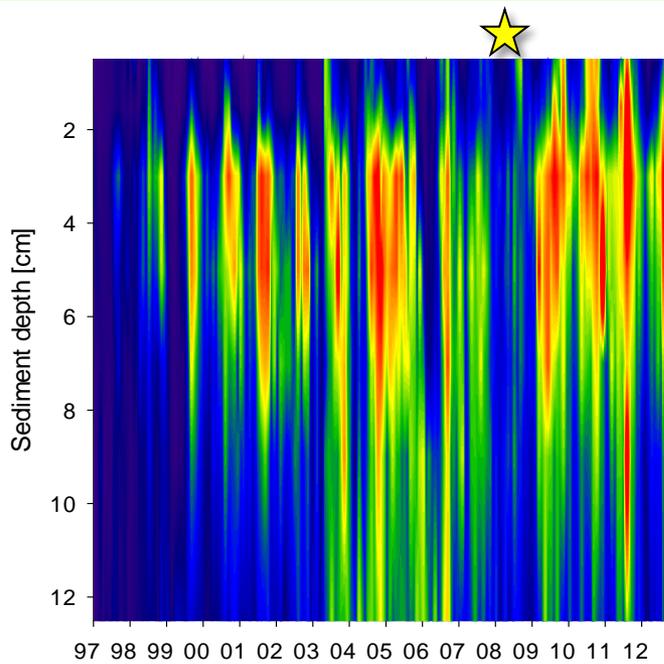


- ✓ NH<sub>4</sub>-Nは05年まで減少、06～07年に劇的に増大、それ以降、高い値に止まった。
- ✓ PO<sub>4</sub>-Pは05年まで増大傾向、その後、減少したが、09年に増大し始めた。表層間隙水(0-1cm)は97年から上昇し続けている。
- ✓ DOMは05年まで減少、06～07年に増大に転じ、その後、減少しつつほぼ一定の値。

- NH<sub>4</sub>-N、PO<sub>4</sub>-P、DOMは各々特徴的な長期トレンドを示した。
- 05～07年に何か起きた。

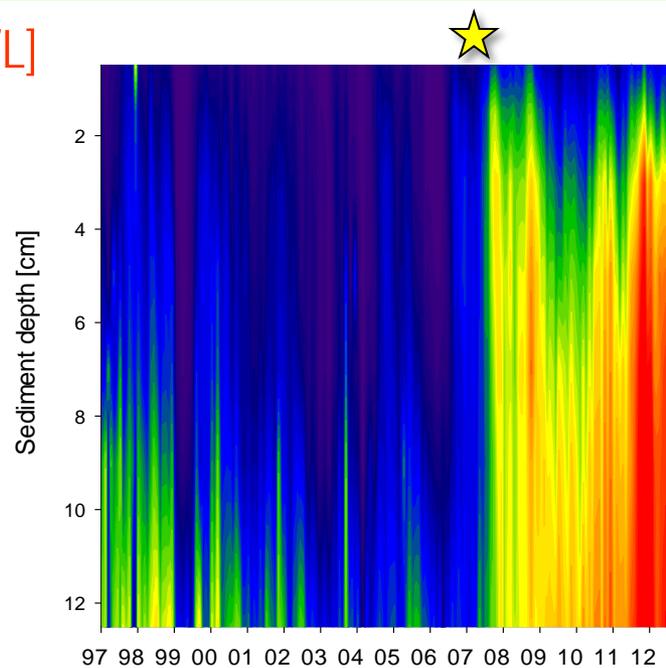
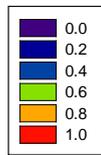
# 間隙水 $\text{PO}_4\text{-P}$ , $\text{NH}_4\text{-N}$ , DOMの濃度等高線表示 (湖心)

4cm 底泥コア



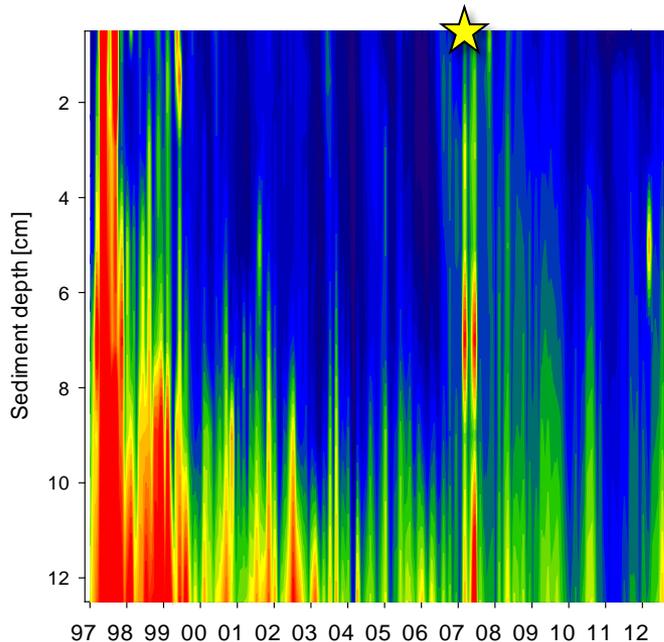
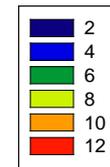
$\text{PO}_4\text{-P}$  [mg/L]

$\text{PO}_4\text{-P}$  [ $\text{mgL}^{-1}$ ]



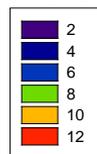
$\text{NH}_4\text{-N}$  [mg/L]

$\text{NH}_4\text{-N}$  [ $\text{mgL}^{-1}$ ]



DOM [mg/L]

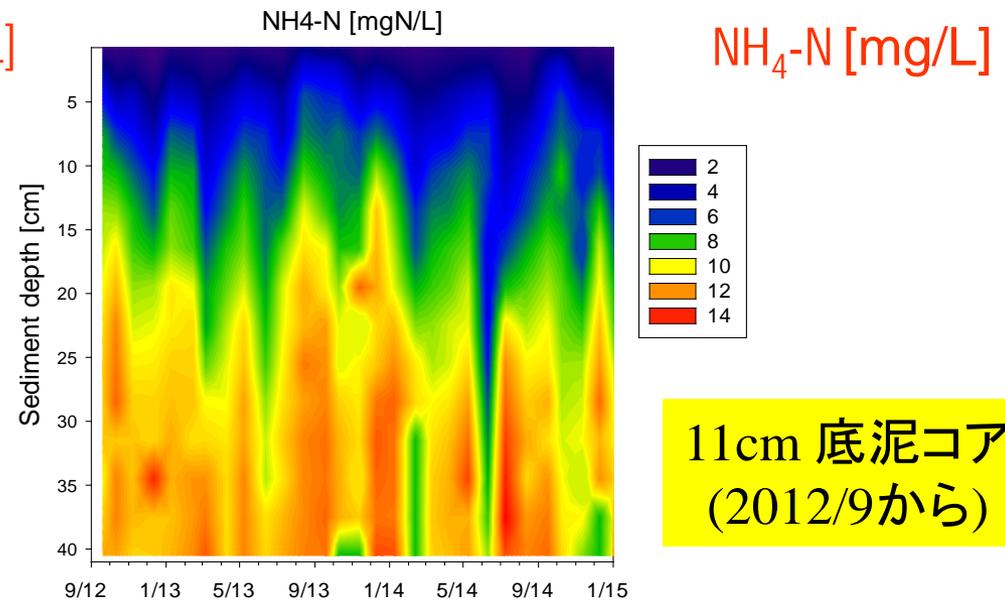
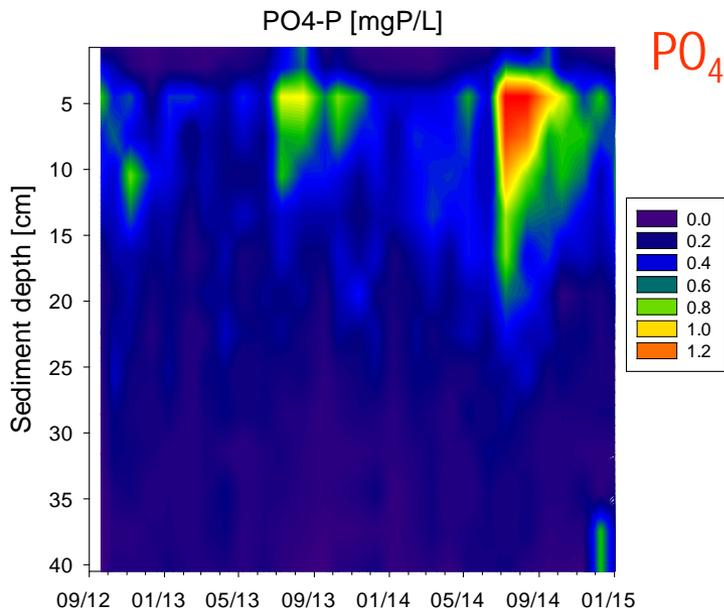
DOM [ $\text{mgC/L}$ ]



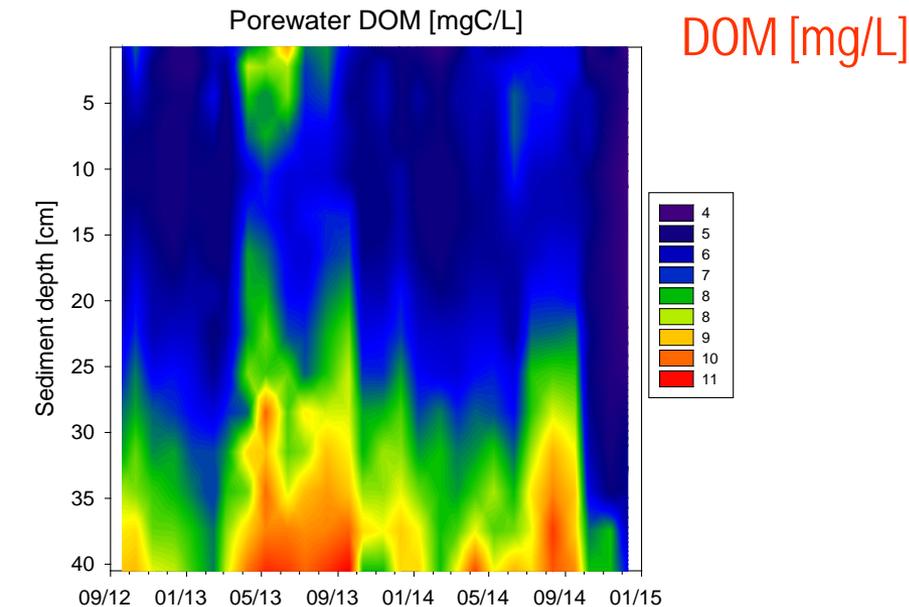
- ✓ [最大値深度]  $\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、DOMで最大値が発現する深さが異なる。 $\text{PO}_4\text{-P}$ は2-6cmでピーク。 $\text{NH}_4\text{-N}$ とDOMは最下層(10-15cm)。
- ✓ [表層濃度]  $\text{PO}_4\text{-P}$ は8、9月、 $\text{NH}_4\text{-N}$ は9、11月、DOMは6月で年間最大。
- ✓ [06-07年]  $\text{NH}_4\text{-N}$ 劇的増加の際に、 $\text{PO}_4\text{-P}$ ピーク発現せず、DOMはパルス的に急激に増大。

$\text{PO}_4\text{-P}$ 、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 、DOMの鉛直分布は顕著に異なる。従って、生成・消失メカニズムも異なる。

# 間隙水 $\text{PO}_4\text{-P}$ , $\text{NH}_4\text{-N}$ , DOMの濃度等高線表示 (湖心)

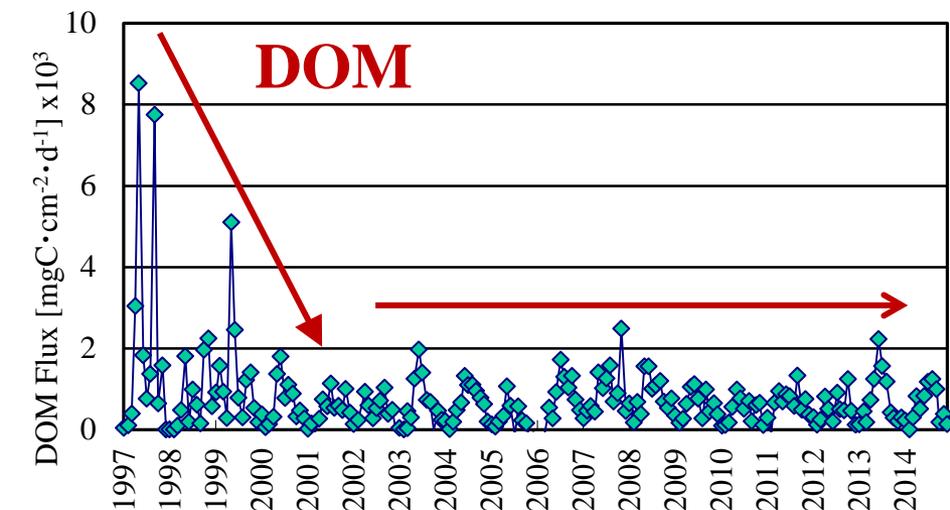
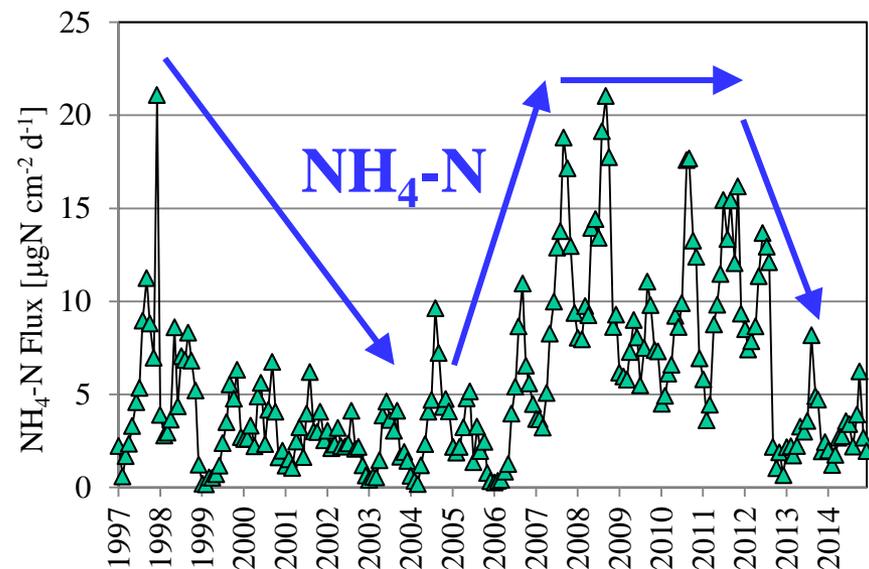
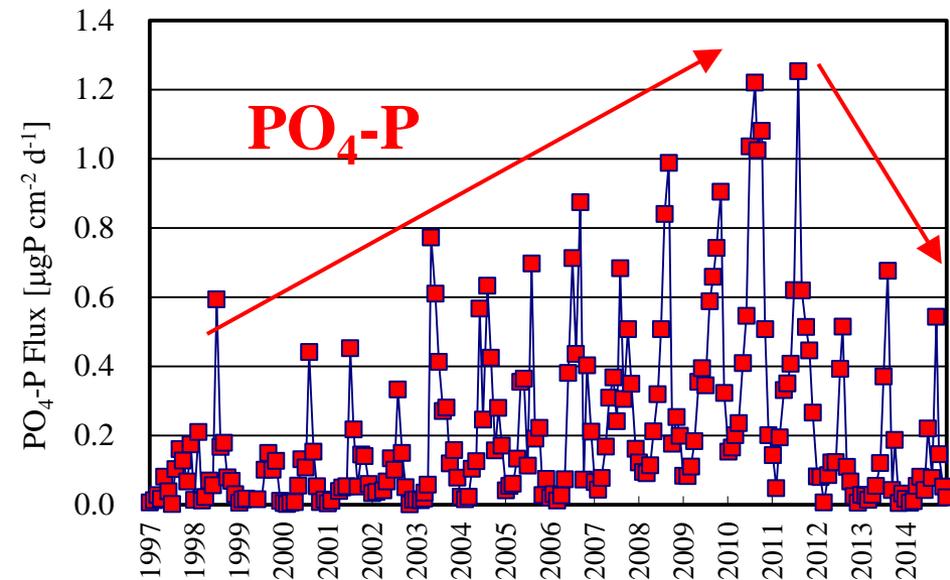


11cm 底泥コア  
(2012/9から)



- ✓ [最大値深度]  $\text{PO}_4\text{-P}$ は5-10cmでピーク。 $\text{NH}_4\text{-N}$ とDOMは最下層でMAXの傾向。
- ✓ [ $\text{NH}_4\text{-N}$ ]  $\text{NH}_4\text{-N}$ は依然として高濃度。しかし、近年、低減傾向。
- ✓ [11cmコア] 4cmコアの場合とほぼ同様な傾向。鉛直方向の濃度分布がより詳細に見える。

# PO<sub>4</sub>-P, NH<sub>4</sub>-N, DOM の溶出フラックス(霞ヶ浦湖心)

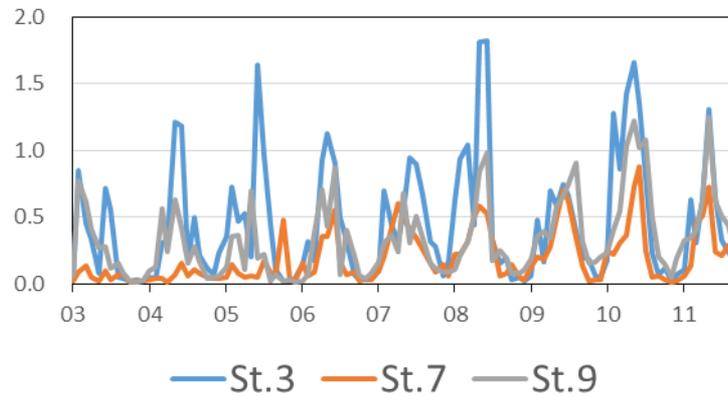


- ✓ [長期トレンド] PO<sub>4</sub>-Pのフラックスは99-11年まで単調増加、その後激減。NH<sub>4</sub>-Nは05年まで減少、06-11年まで急激に増大、その後急減。DOMは97-02年まで顕著に減少、その後低い値。
- ✓ [フラックス最大月] PO<sub>4</sub>-PとNH<sub>4</sub>-Nは夏季・秋季に、DOMは春季(5月、6月)に最大傾向。

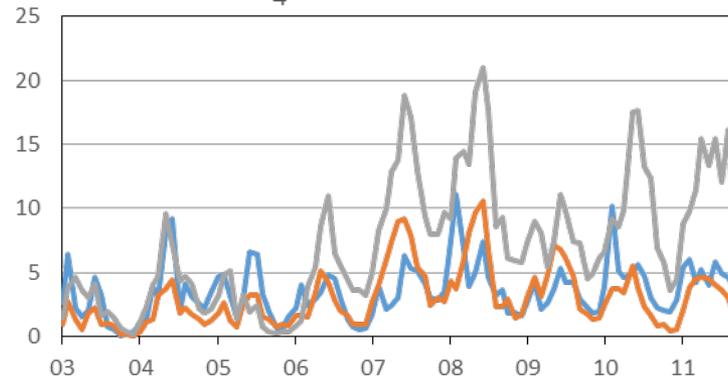
■ 溶出フラックストレンドも各々特徴的。  
 ■ N、Pで急激な増減を捉えたことは重要。  
 ■ 溶出メカニズムの解明に繋がる。

# 霞ヶ浦、地点別の溶出フラックスの比較 (2003～2011)

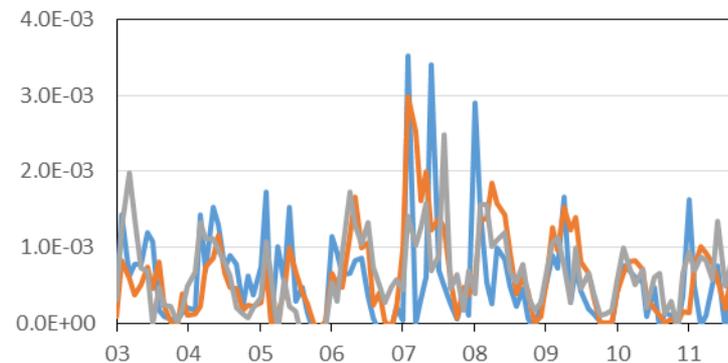
PO<sub>4</sub>-P Sediment Flux



NH<sub>4</sub>-N Sediment Flux



DOM Sediment Flux



## ■ PO<sub>4</sub>-P Flux:

- St.9 > St.7 (p<0.05)
- St.3 > St.7 (p<0.05)
- St.9 vs. St.3 有意差なし

## ■ NH<sub>4</sub>-N Flux:

- St.9 > St.3 (p<0.05)
- St.9 > St.7 (p<0.05)
- St.3 vs. St.7 有意差なし

## ■ DOM Flux:

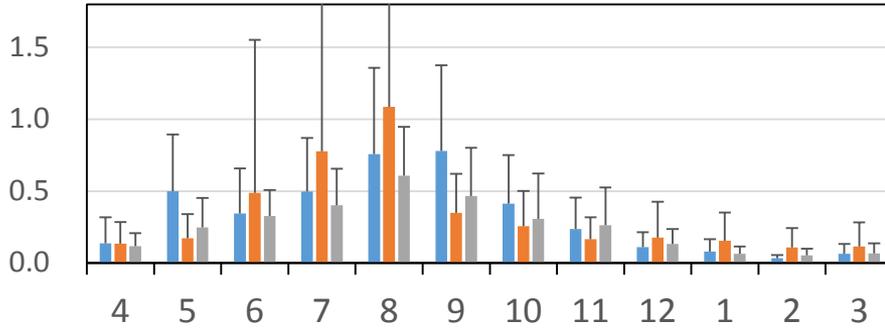
- 地点別有意差なし



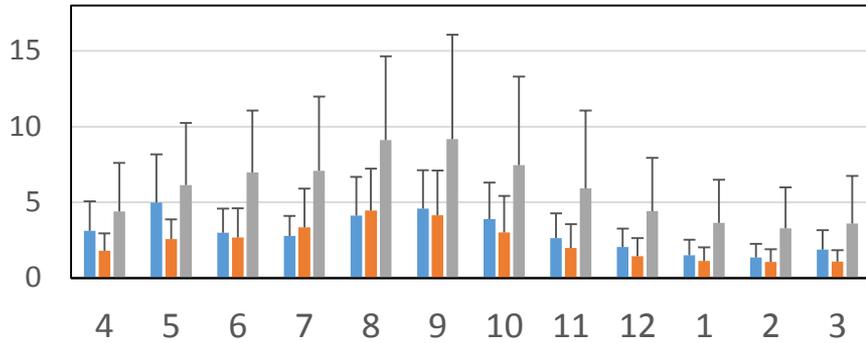
- ✓ 湖心 (St.9) で高い値。
- ✓ St.7(浚渫済)は低い。

# 霞ヶ浦、月別の溶出フラックスの比較 (2003~2011)

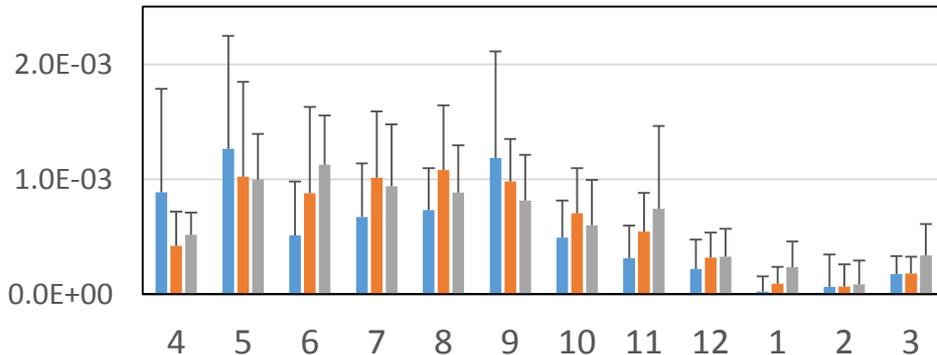
PO4-P Flux [ $\mu\text{g cm}^{-2} \text{d}^{-1}$ ]



NH4-N Flux [ $\mu\text{gN cm}^{-2} \text{d}^{-1}$ ]



DOM Flux [ $\text{mgC cm}^{-2} \text{d}^{-1}$ ]



- St.3
- St.7
- St.9

■ PO4-P Flux:

- 最大月、St.3:9月、St.7 & St.9:8月
- 最小月、2月

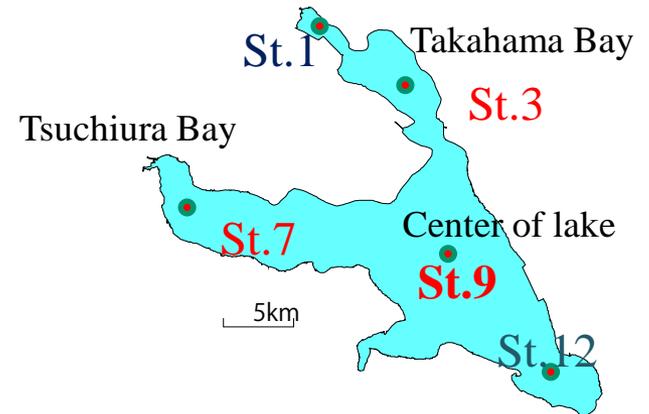
■ NH4-N Flux:

- 最大月、St.3: 5月、St.7: 8月、St.9: 9月
- 最小月、2月

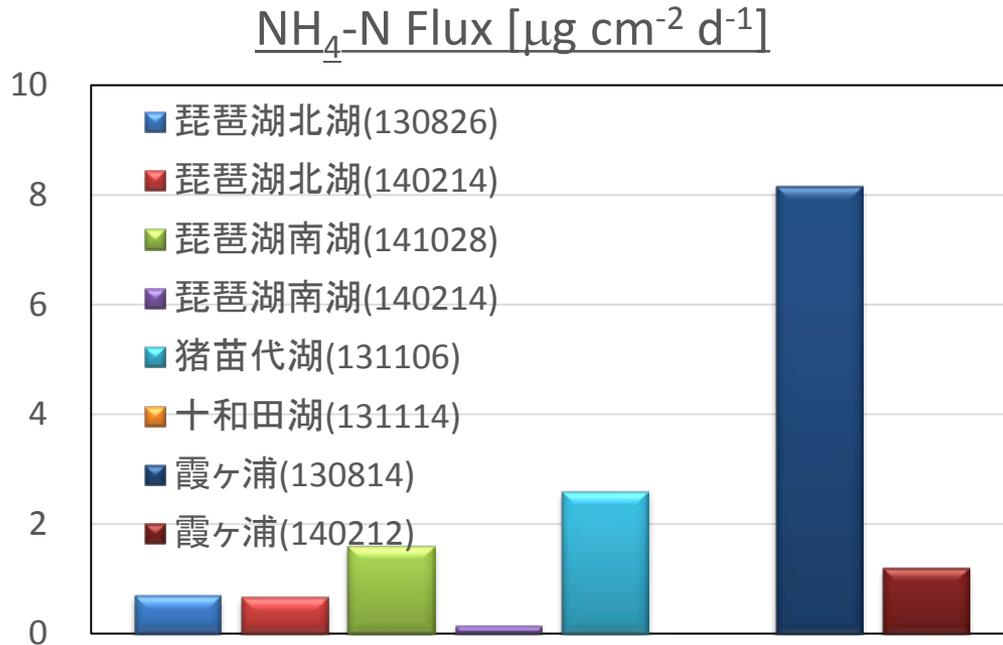
■ DOM Flux:

- 最大月、St.3: 5月、St.7: 8月、St.9: 6月
- 最小月、St.3: 1月、St.7 & St.9: 2月

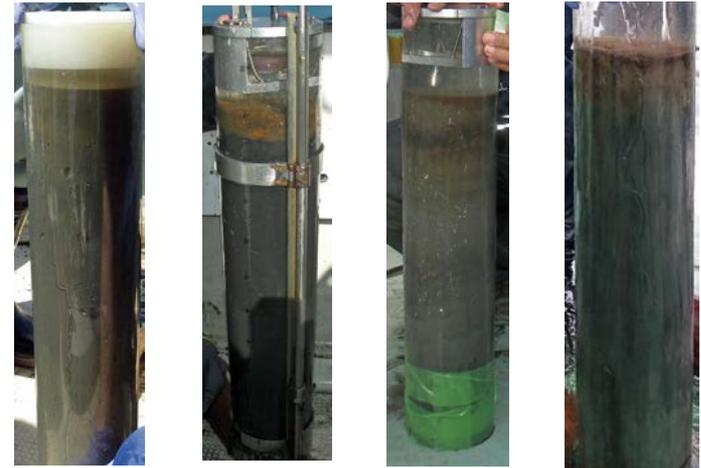
- St.3
- St.7
- St.9



# 他の湖沼との比較



霞ヶ浦 猪苗代湖 十和田湖 琵琶湖北湖



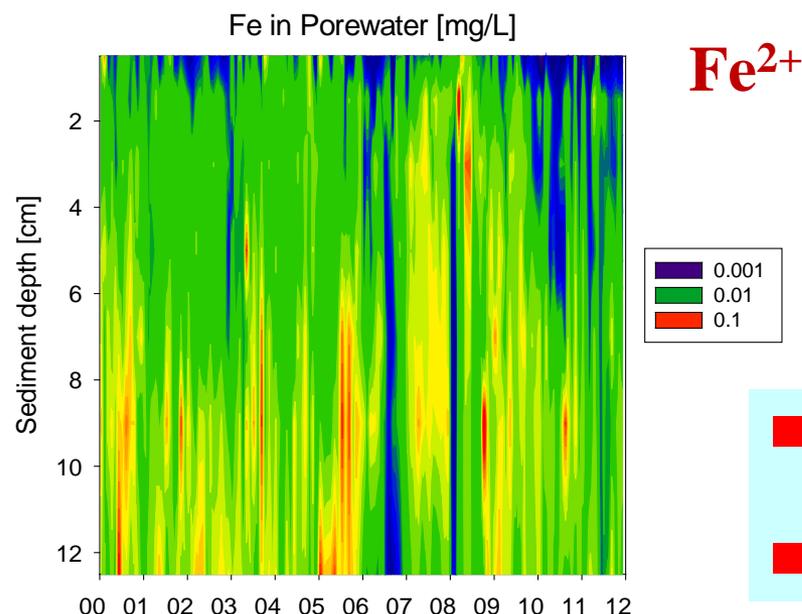
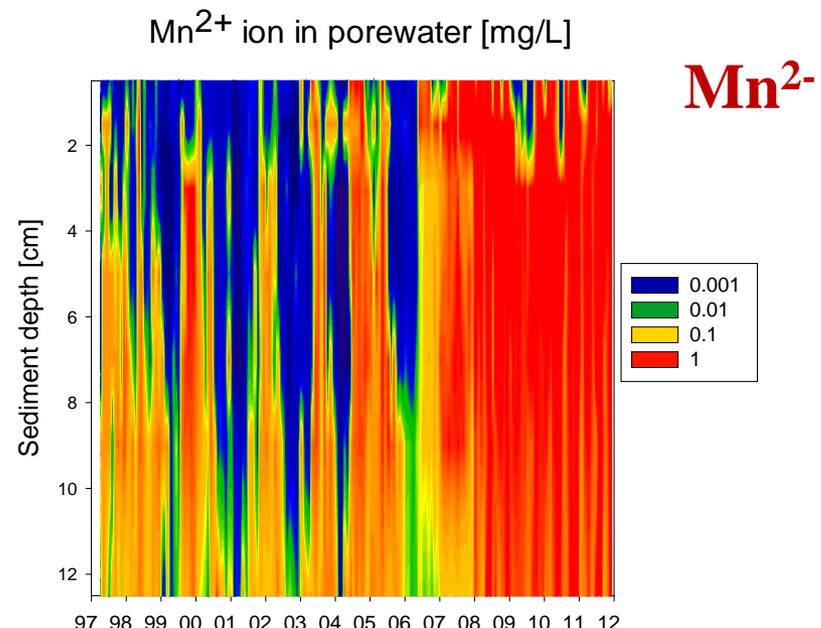
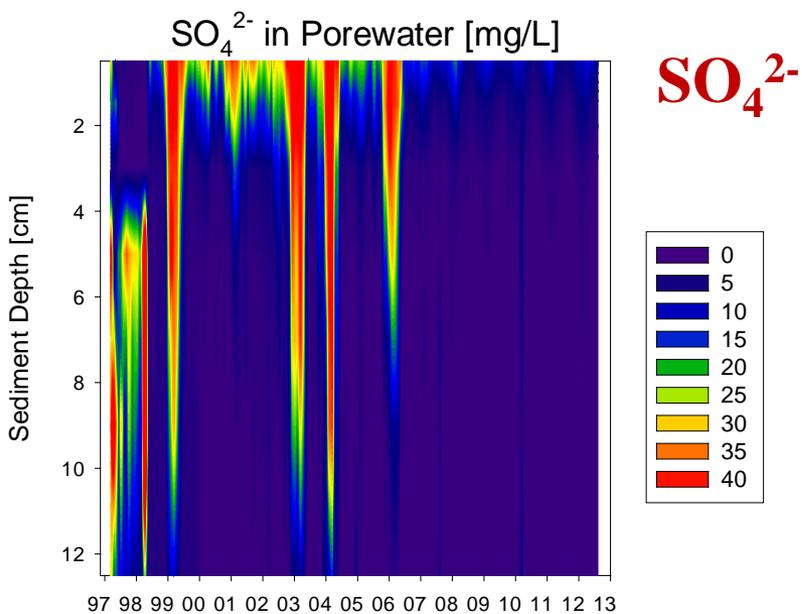
- 琵琶湖北湖は $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスは夏季・冬季で違いが無く、かつ低い。
- 琵琶湖南湖、霞ヶ浦では夏季の値が冬季よりも顕著に高い。
- 十和田湖、猪苗代湖では $\text{NH}_4\text{-N}$ フラックスは、冬季で顕著に低い。
- Note: 霞ヶ浦以外では間隙水中の $\text{PO}_4\text{-P}$ 濃度が検出できなかった。

浅い湖沼では、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出フラックスの値は大きく、その季節変動も大きい。

目的2:

溶出フラックスと底泥での物質濃度・組成、  
微生物群集構造等の関係を評価することにより、  
底泥溶出メカニズムを明らかにする。

# 底泥の酸化還元状態を表すパラメータ



$$p\varepsilon = p\varepsilon^\circ - \frac{1}{8}pH + \frac{1}{8}\log[SO_4^{2-}] - \frac{1}{8}[HS^{-1}]$$

$$p\varepsilon = p\varepsilon^\circ - 2pH - \frac{1}{2}[Mn^{2+}]$$

$$p\varepsilon = p\varepsilon^\circ - 3pH - [Fe^{2+}]$$

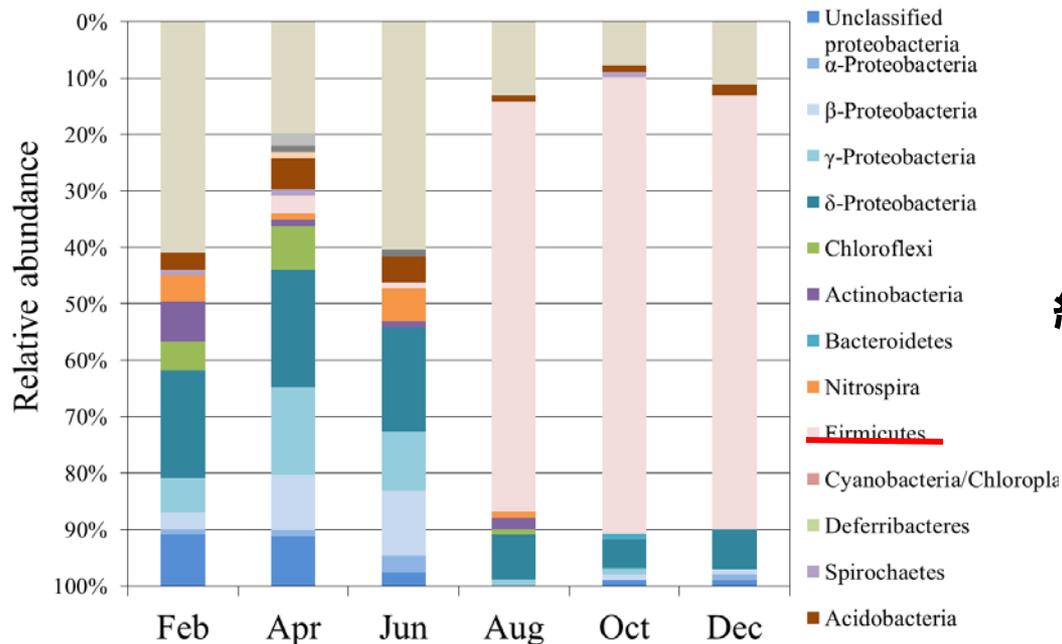
$$p\varepsilon = -\log[e^{-1}] = E_H/(2.3RTF^{-1})$$

$$E_H = (2.3RTF^{-1})p\varepsilon = 0.059p\varepsilon [V]$$

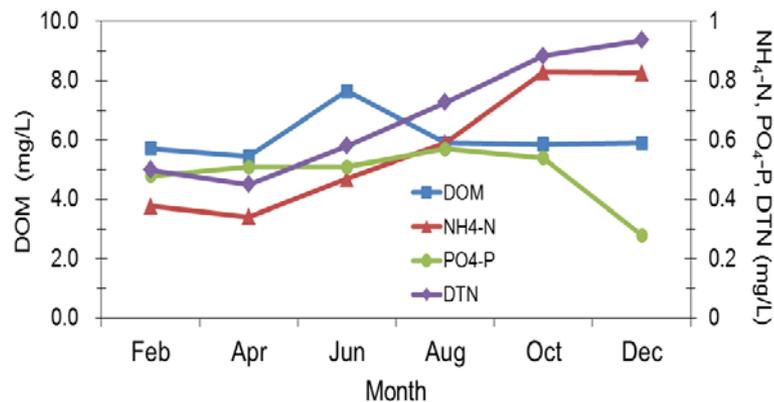
- SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>とMn<sup>2+</sup>は底泥の酸化還元状態を表す良い指標である。特にMn<sup>2+</sup>。
- 2006年以降、還元状態が卓越している。

# 底泥細菌群集構造解析とNH<sub>4</sub>-N増大

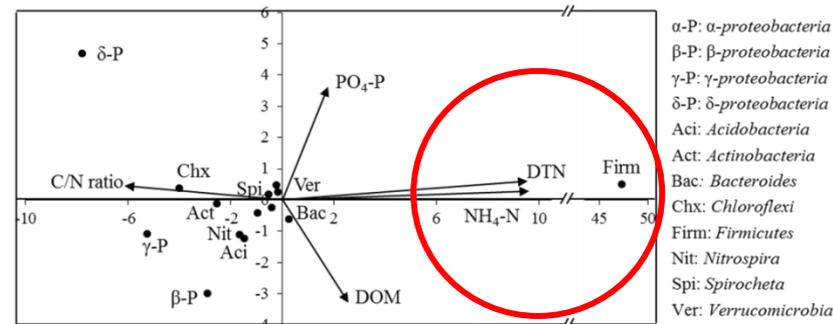
## 2007年底泥 4-6 cmの経月的変動



*Proteobacteria*門 → *Firmicutes*門



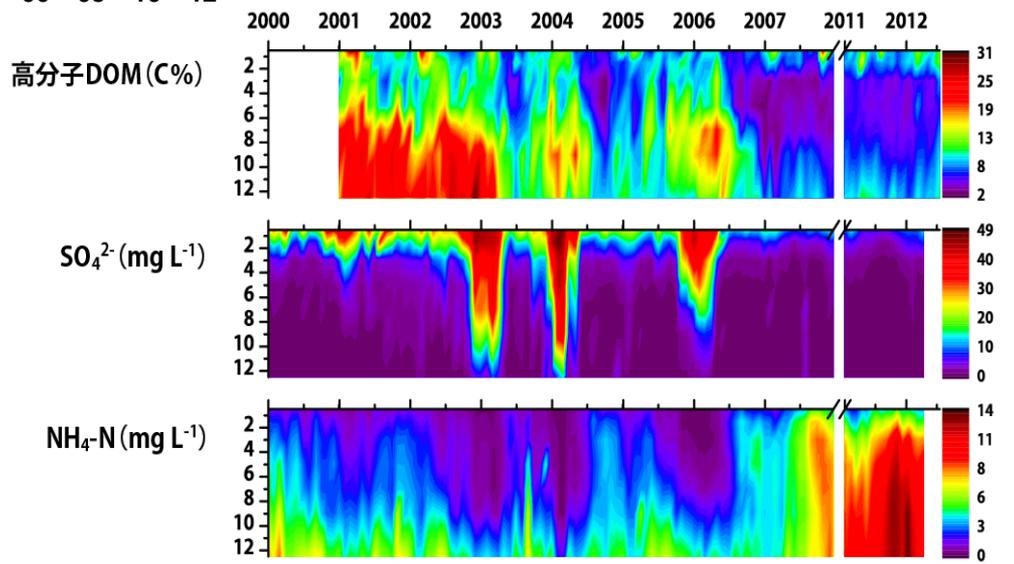
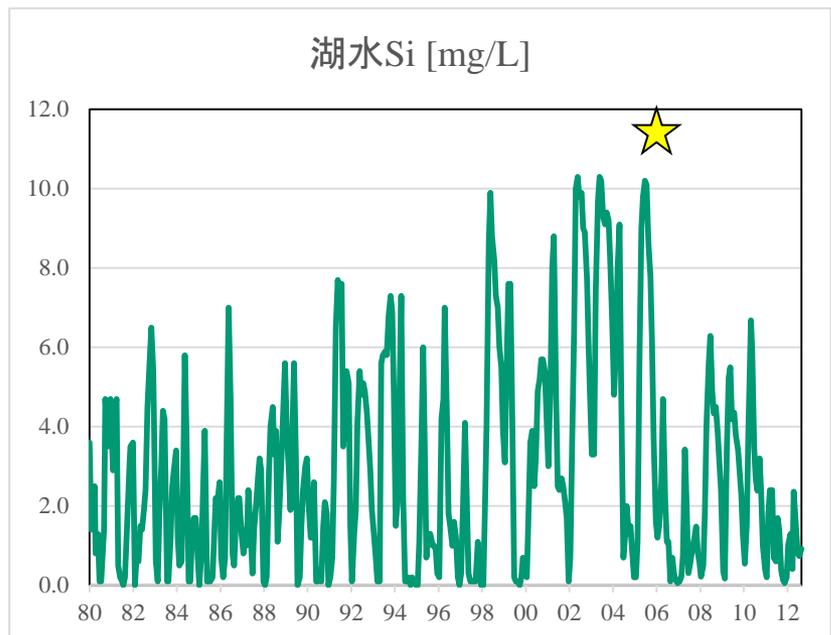
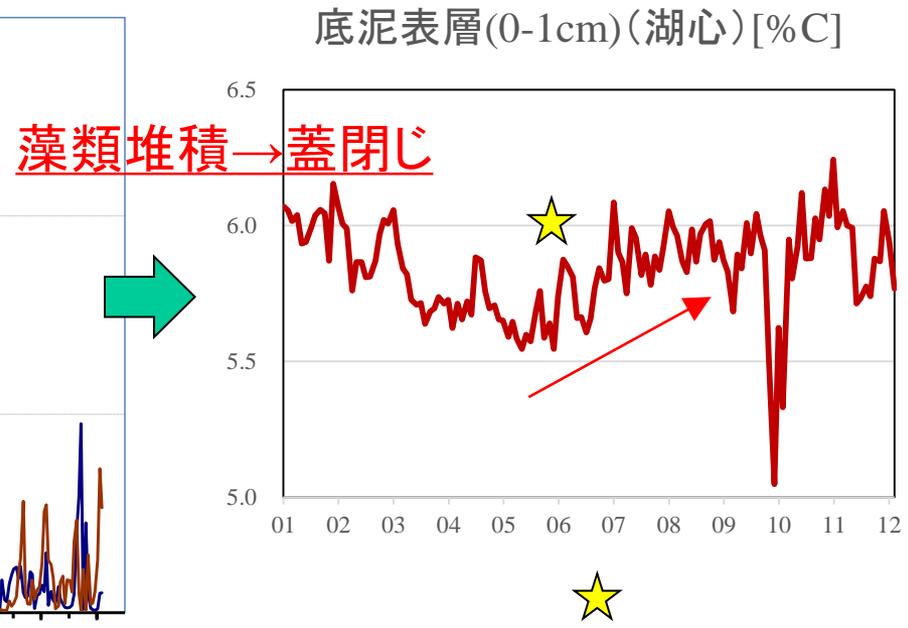
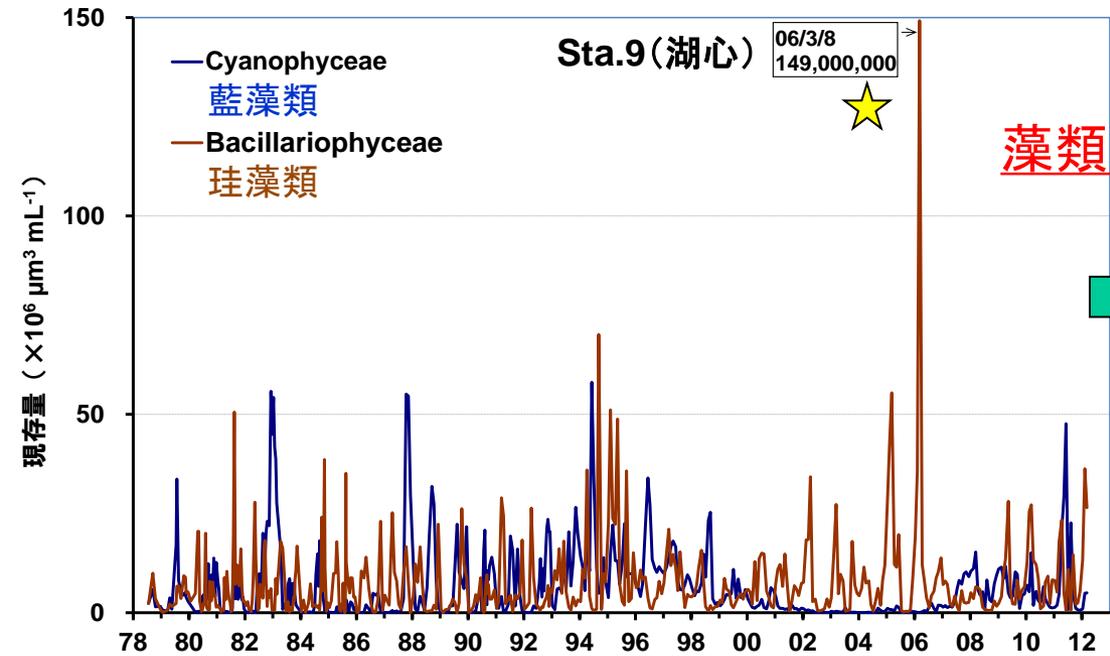
## 細菌群集構造と化学的変数の関係性



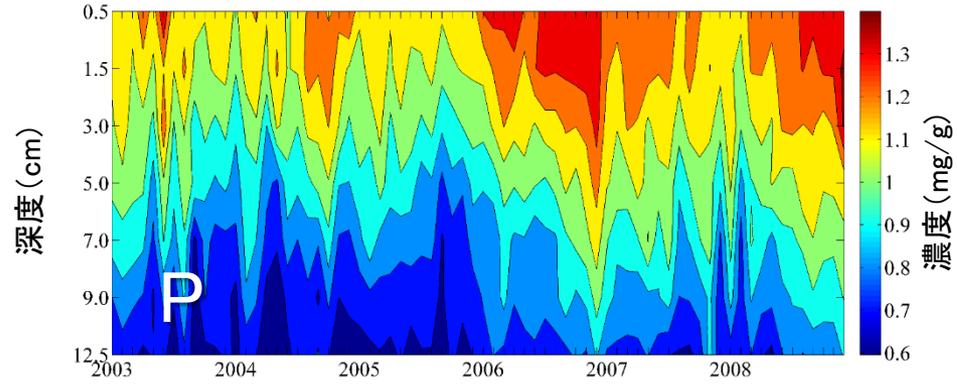
Distance-based Redundancy analysis

- 6月と8月を境に底泥細菌群集が大きく異なった。
- 8月以降のNH<sub>4</sub>-N増加と*Firmicutes*門の優占化が関係 (*Bacillus*属: 80%以上)。
- NH<sub>4</sub>-N増加は*npr*(中性メロプロテアーゼ) 遺伝子による蛋白質分解が主な原因。

# 珪藻類大増殖が底泥環境に及ぼす影響



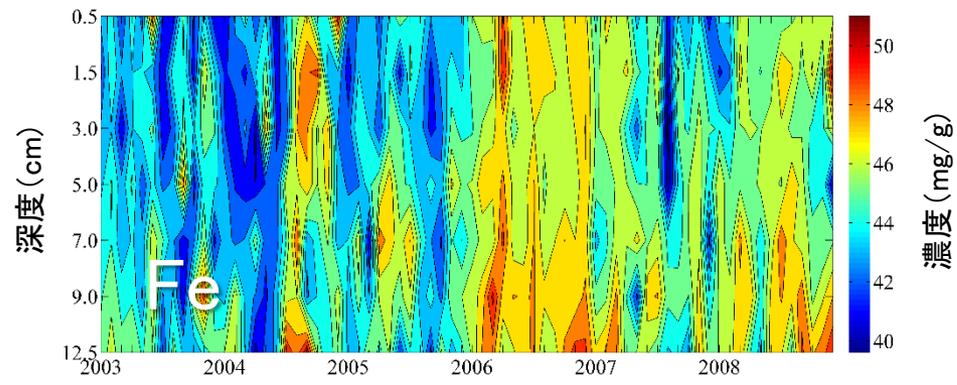
# 霞ヶ浦底泥中のP, Fe, Mnの関連性 (0-1cm, 4-6cm, 8-10cm)



0-1cm	標準化係数
(Intercept).	-0.253
Al*	0.009
Fe***	0.027
S***	-0.096

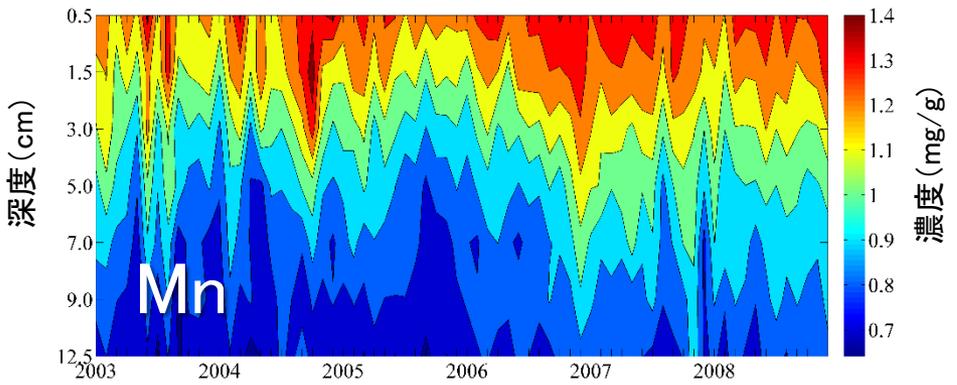
Multiple R<sup>2</sup> : 0.707  
Adjusted R<sup>2</sup> : 0.694

\* : p<0.05, \*\* : p<0.01, \*\*\* : p<0.001



4-6cm	標準化係数
(Intercept)	0.140
Al***	0.008
Mn***	0.565
S**	-0.045

Multiple R<sup>2</sup> : 0.758  
Adjusted R<sup>2</sup> : 0.748



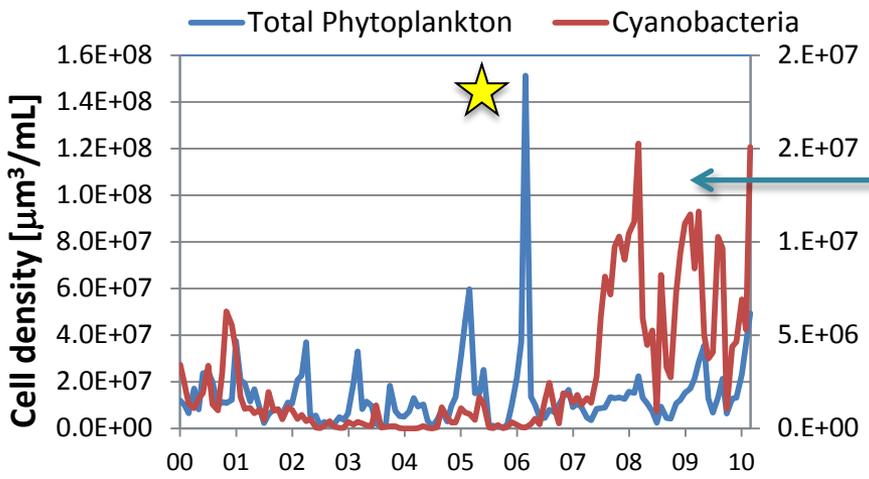
8-10cm	標準化係数
(Intercept)**	-0.378
Fe**	0.011
Mn***	0.591
S***	0.032

Multiple R<sup>2</sup> : 0.748  
Adjusted R<sup>2</sup> : 0.736

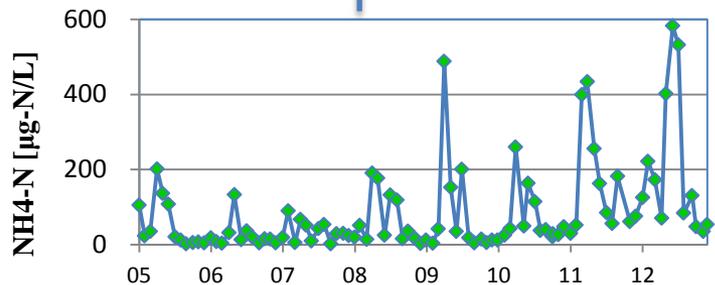
\* : p<0.05, \*\* : p<0.01, \*\*\* : p<0.001

# 底泥溶出メカニズムとその影響(2006年以降): 珪藻の大增殖 → 細菌群集構造変化 → 溶出増大 → アオコ大発生 → 負のスパイラル

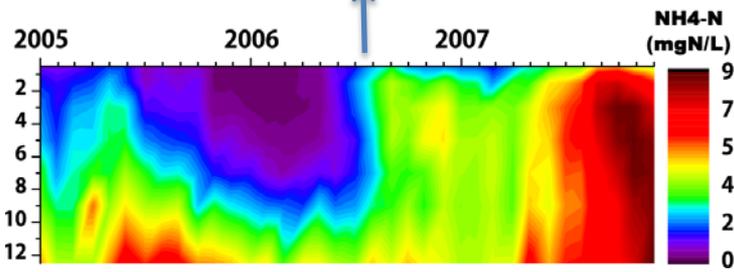
アオコ発生, 底泥細菌群集, 景観, 水道水異臭味



2007年: アオコ発生, *Microcystis* 優占化

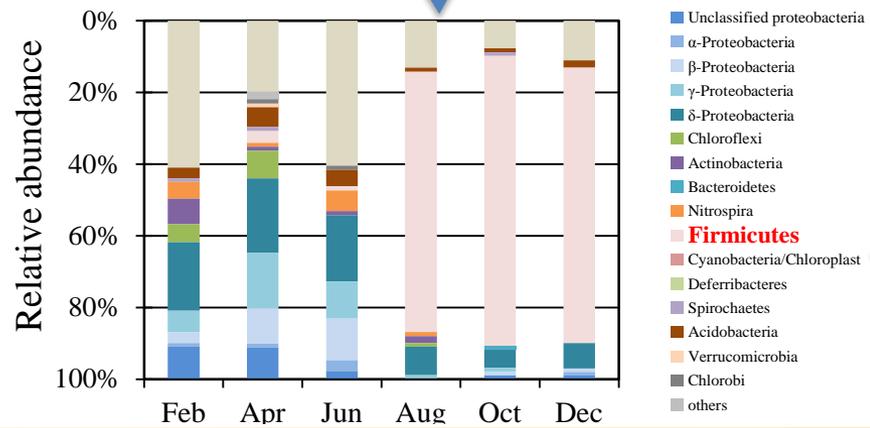


2007年: 溶出増大 → 湖水NH<sub>4</sub>-N濃度上昇



2007年: 間隙水NH<sub>4</sub>-N濃度の急上昇

2006年: 藻類生産・堆積量増大 → 底泥嫌気化



2007年: *Firmicutes* 門 *Bacillus* 属 優占 → タンパク質分解活性増大



目的3:

熱収支モデルを構築して、気温上昇等の影響が底泥温に及ぼす影響を評価する。

モデル解析により、底泥溶出の寄与を定量評価する。

底泥溶出に係る効果的な対策シナリオを構築・提言する(環境行政への貢献)。

# 底泥層を組み込んだ熱拡散モデルの構築

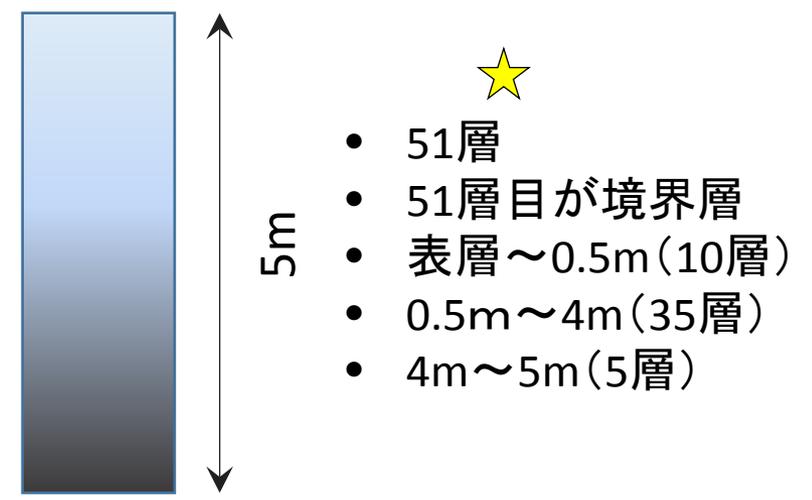
$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( k \frac{\partial T}{\partial z} \right)$$

$\rho$ : 底泥密度 [g/cm<sup>3</sup>]  
 $c$ : 比熱 [cal/g<sup>o</sup>C]  
 $k$ : 熱伝導率 [cal/cm/s/<sup>o</sup>C]

$$T(t, 0) = A_0 + \sum_{i=1}^n A_i \cos i\omega(t - t_{0i})$$

$$T(t, z) = A_0 + \sum_{i=1}^n A_i e^{-\frac{z}{D}} \cos \left( i\omega(t - t_{0i}) - \frac{z}{D} \right)$$

$A_0$ : 平均温度 [°C]  
 $D$ : 減衰深さ (=  $\sqrt{2\alpha/\omega}$ ) [m]  
 $\alpha$ : 温度伝搬率 (=  $k/(\rho c)$ ) [m<sup>2</sup>/s]  
 $t$ : 調査年1月1日からの日数 ( $\omega = 2\pi/365$ )



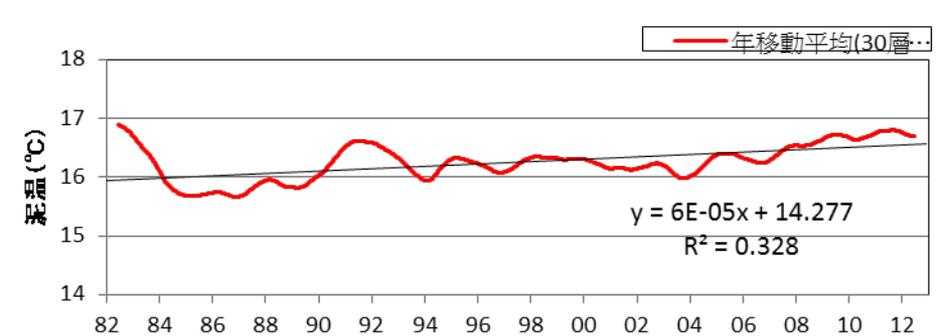
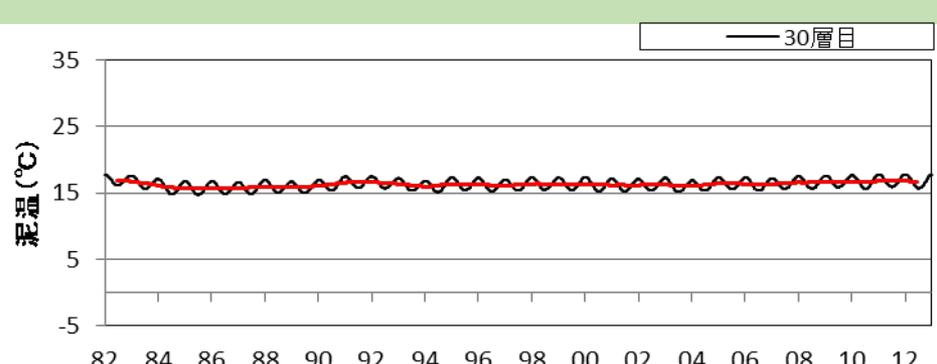
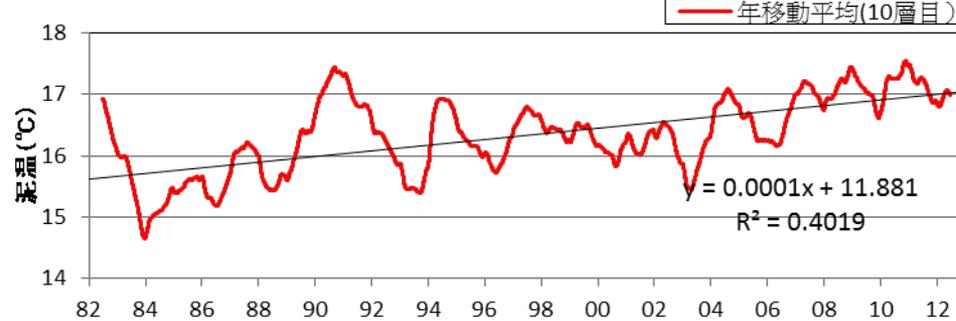
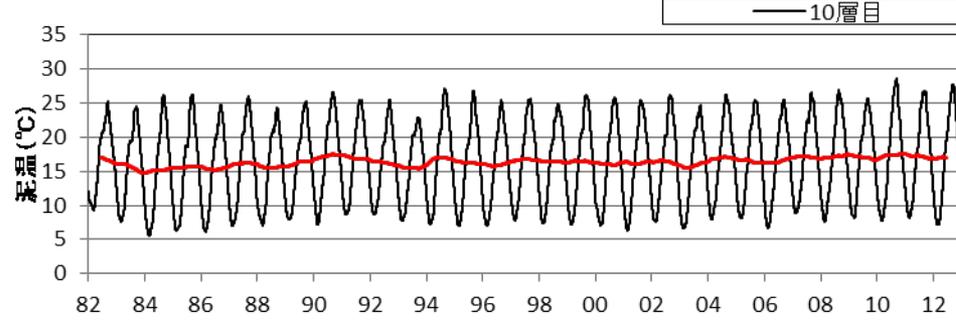
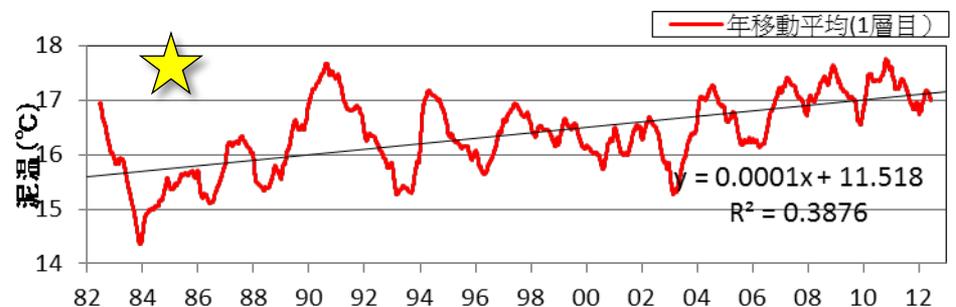
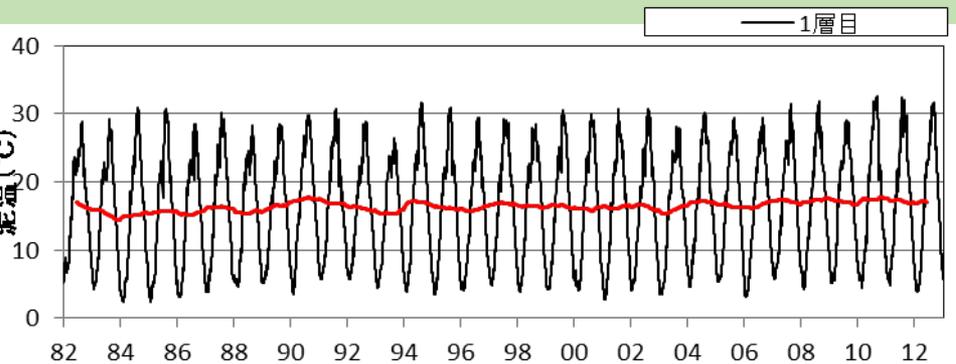
測点	k(cal/cm/sec/ <sup>o</sup> C)	$\rho c$ (cal/cm <sup>3</sup> / <sup>o</sup> C)
St.3	$1.847 \times 10^{-3}$	0.937
St.7	$1.968 \times 10^{-3}$	0.933
St.9(湖心)	$1.534 \times 10^{-3}$	0.934

底泥最上層の泥温調査結果を境界条件として、各パラメータ  $A_0, A_i, t_{0i}, D$  を求めた。

## 2010-2011年で数値計算を実施

- 流量、風向・風速、雲量、湿度、降水量は2010-2011年
- 日射量と気温は2012-2013年、泥温観測値があるため

# 霞ヶ浦底泥層の長期泥温トレンド解析



- 表層(0-5cm)、10層(45-50cm), 30層(240-250cm)で泥温上昇トレンドを確認。
- 気候変動の影響は大きい。表層、30年で1.2°C上昇。この影響は、2014年のNH<sub>4</sub>-Nフラックス平均値の約10%に相当?

NOTE: 51層以下で泥温一定の仮定。

# 霞ヶ浦(高浜入り)におけるNO<sub>3</sub>-N動態のモデル解析

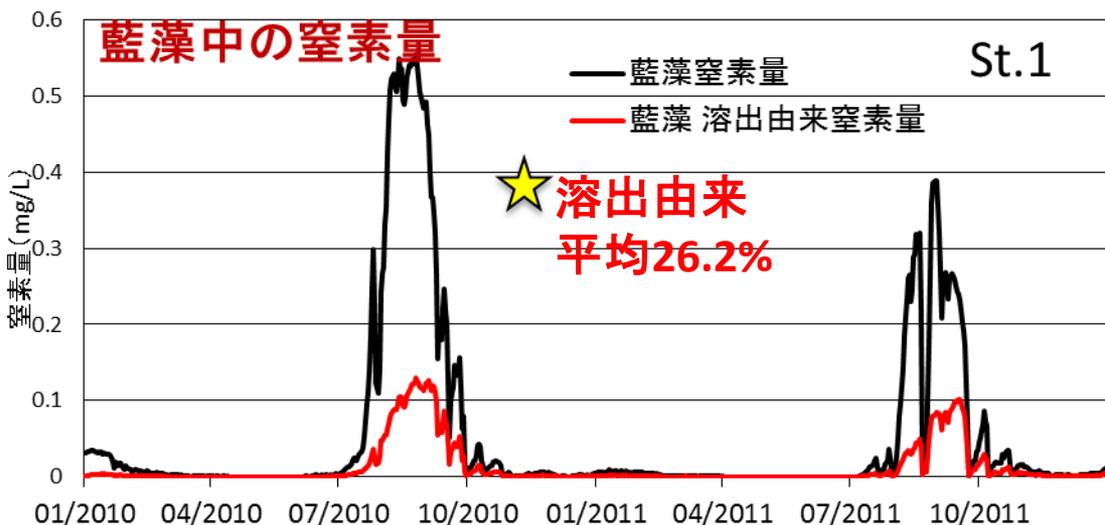
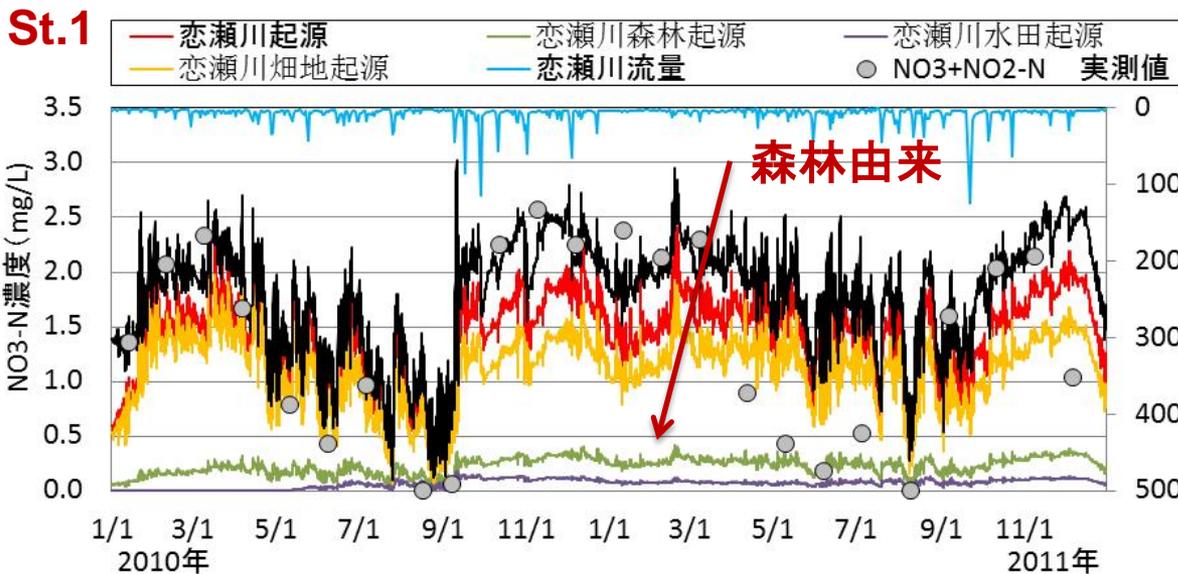
大気降下物(CMAQ)－森林生態系(VISIT)－河川－湖沼流動生態系(POM+CE-QUAL-ICM)でのモデル解析



恋瀬川



恋瀬川からのNO<sub>3</sub>-N



## 解析結果：

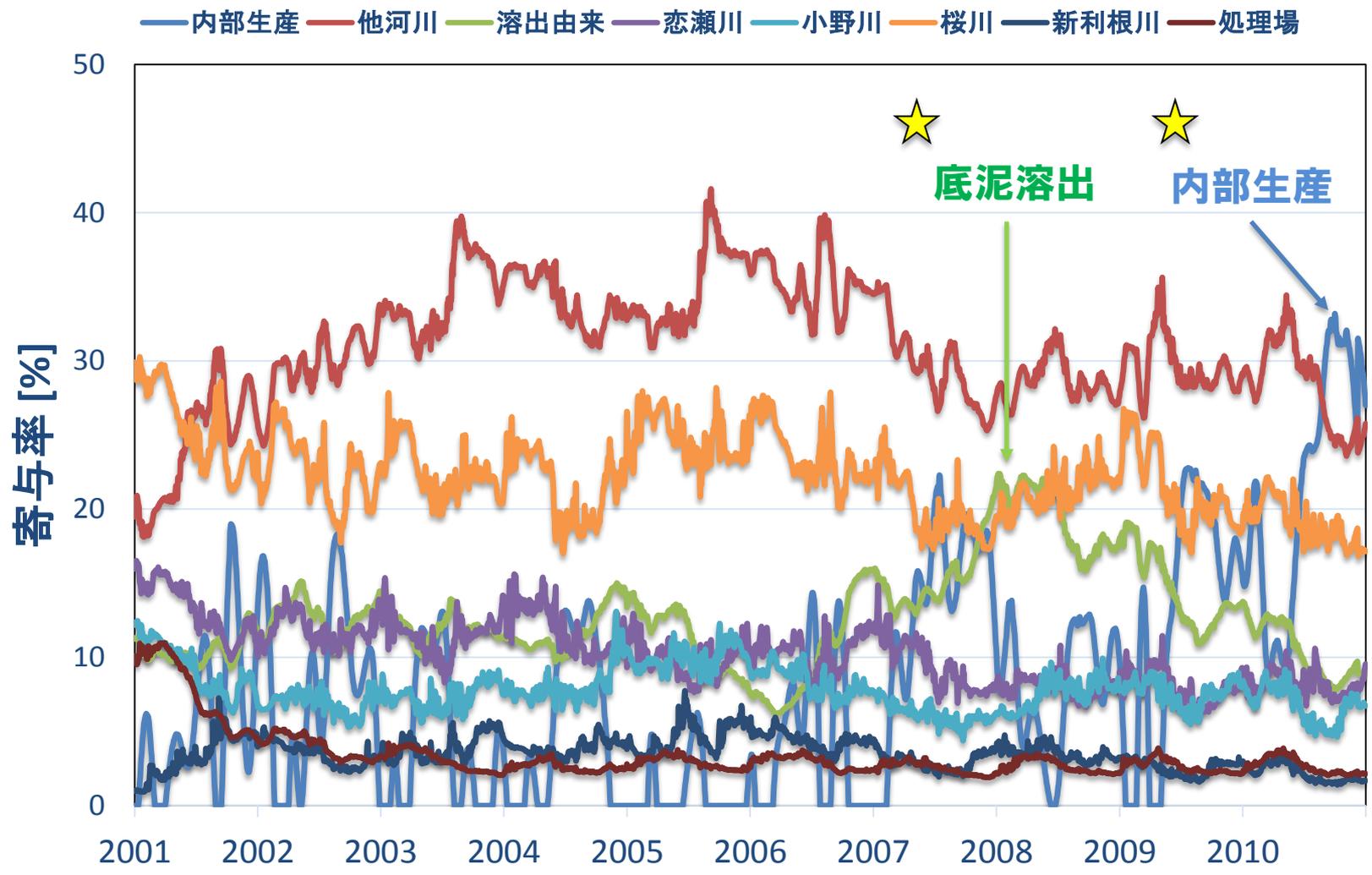
- 森林（筑波山）由来の湖沼NO<sub>3</sub>-N濃度への寄与はとても小さい。

## 改善への提言：

- 湖沼NO<sub>3</sub>-N濃度削減対策は、集中的な畑地対策が効果的。
- 底泥対策を実施すれば、藍藻類ブルームを約3割抑制できる？

# 難分解性溶存有機物 (DOM)の起源解析(湖心)

湖沼3次元流動モデル(POM) + 実測データ



# 成果の最大化、環境行政への貢献

- 新たな水環境基準、底層DOの管理に貢献する、底泥酸素消費量(SOD)の簡易現場型測定法の開発(非接触型蛍光DOセンサー)
- 新たな底泥溶出抑制対策の開発、堆積物微生物燃料電池(SMFC)による溶出低減対策手法の開発(電極を入れるだけ)

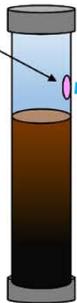
# 簡易的現場型底泥酸素要求量(SOD)測定の概要



船上、小型恒温培養庫で多連で実験

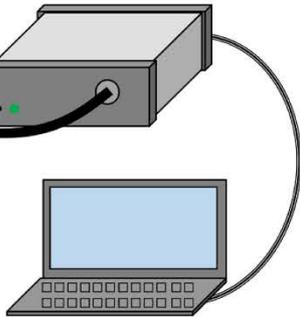
蛍光式酸素センサー  
光ファイバーを通してDO測定用蛍光をセンサーチップへ照射

DO測定用センサーチップ  
蛍光式酸素センサーからの蛍光を当てる

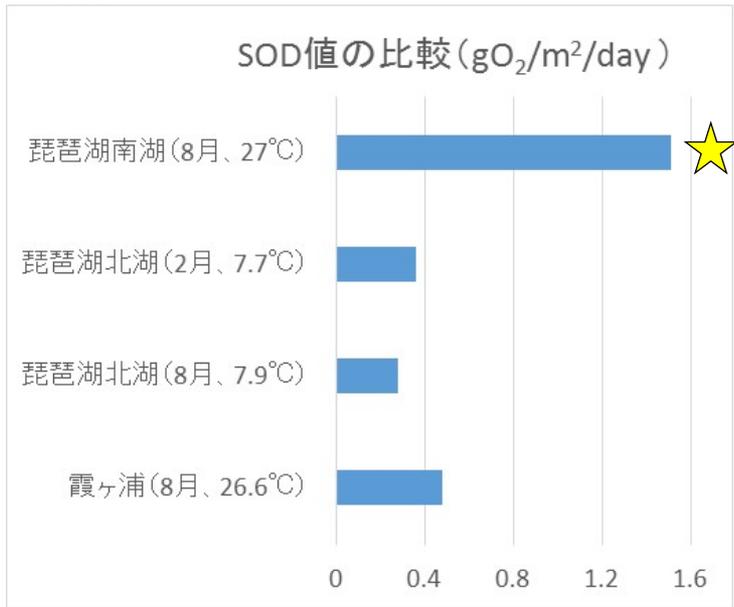


内径: 12.8mm  
長さ: 125mm

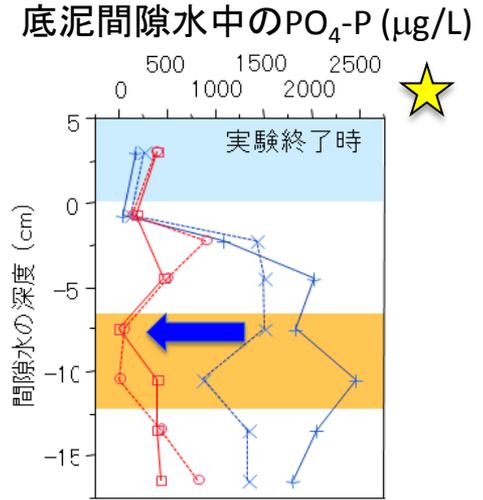
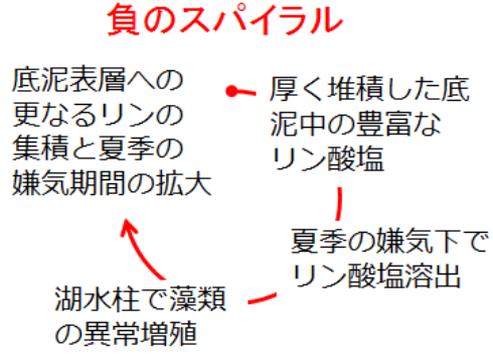
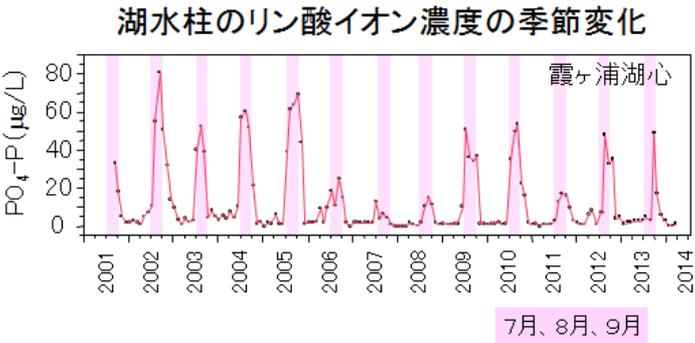
SOD用ガラスバイアル  
採泥後両端をブチルゴム栓とアルミシールを用いて密閉



PC  
測定したDOをリアルタイムでモニター可能



# 堆積物微生物燃料電池 (SMFC) による底質環境の原位置改善メカニズムの評価



## 持続可能な原位置改善手法に求められる条件

- 安価で設置でき、自然条件下で堅牢なこと
- 改善効果が持続すること
- 維持費が安く、簡便なこと

環境負荷の大きな現行の底質環境改善策(伏砂、浚渫、底層曝気)に依らない手法開発



炭素繊維の電極を底泥中に挿すだけで酸化的な底泥表層環境を維持でき、好ましい底質環境を作り出せることが分かってきた。



説得力のある底質環境データを揃えて、社会実装可能な底質改善手法を提示していく



# 主な成果：科学的意義

- 霞ヶ浦における有機物、リンおよび窒素に係る底泥溶出量(フラックス)の長期変動(12-19年間)、季節的、場所的変動を定量算定した (in preparation)。
- 底泥間隙水DOM、 $PO_4$ -P、 $NH_4$ -Nおよび底泥中のP、Fe、Mnは顕著に変動することが明らかとなった (in submission)。
- 湖水柱と底泥との相互作用により、底泥溶出が顕著に変動することが明らかになった。珪藻類ブルーム・堆積(蓋閉じ)が栄養塩溶出増大、次いでアオコ(藍藻類)発生を引き起こした。
- 底泥中の優占細菌群集構造の変動・機能等を明らかにした：*Firmicutes*門の優占化とタンパク質由来 $NH_4$ -N増加、等 (Tsuboi et al. 2014, 2015)。
- 気候変動等が浅い湖沼の底泥温に及ぼす影響、湖水中の $NO_3$ -N濃度や難分解性DOMの起源を、モデル解析で定量評価した。

# 主な成果：科学的意義

## ■ 新規性の高い測定法・評価法の開発

- TOC検出DOMの分子サイズ分布測定(海水は世界初)(L&O: Method, conditional acceptance, 2016; 別論文in preparation)
- MRI撮影による底生動物巣穴構造解析、CT撮影によるガス泡構造解析(世界初)(in preparation)
- 特異的プライマーによる湖水中および底泥中のアオコ形成藍藻 *Microcystis aeruginosa* の細胞密度定量法 (in preparation)
- 放射性同位体を使わない現場型藻類一次生産速度測定法(FRRF法)の開発(土木学会論文集, 2015)
- 放射性同位体を使わない細菌二次生産速度測定法 (*J. Oceanography*, 2015)
- 簡易的現場型底泥酸素要求量(SOD)の測定法 (in preparation)
- $^{31}\text{P}$ -NMR法による懸濁物質・底泥中のリンの存在形態解析 (in re-submission)
- 簡易的携帯型セジメント・トラップ装置の開発 (in preparation)、等

# 主な成果：環境政策への貢献

- 霞ヶ浦の溶出負荷量(栄養塩＋有機物)に係る定量的データ
  - 浅い湖沼の水質保全計画・対策策定(霞ヶ浦、八郎湖、琵琶湖南湖等)(公開シンポ、招待講演、学会発表等)。開発したモデルの提供。
- 溶出に係る知見に基づく新たな対策方針
  - 湖沼窒素削減対策(窒素飽和に係る)は畑地由来に集中。
  - 冬季・春季での対策実施を提案(底泥の酸化、珪藻増殖制御)。
  - 堆積物微生物燃料電池(SMFC)による底質改善(局所的な対策)、等。
- 底泥の酸化還元状態に係る知見
  - 新たな水環境基準、底層DOの制御に関する方法論へ → 底泥酸素消費速度(SOD)による制御(全国環境研究所交流シンポ、招待講演、環境省水環境課との交流、等)
  - 簡易で精度良いSOD測定法の開発 → 地方環境研究所＋民間コンサルへ(企画シンポ、等)
- 気候変動の泥温への影響
  - 浅い湖、気候変動の泥温への影響が顕著。底泥表層水温上昇により溶出が増大する可能性。底泥酸化還元境界層の深度を下げる工夫。