

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 6 月 13 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2014～2016

課題番号：26281039

研究課題名(和文) ポリミクティックな湖沼での底質中物質動態の高解像度観測、モデル化と浄化対策

研究課題名(英文) Observation, modeling and restoration of sediments in polymictic lakes

研究代表者

福島 武彦 (FUKUSHIMA, Takehiko)

筑波大学・生命環境系・教授

研究者番号：90124354

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 12,700,000円

研究成果の概要(和文)：ポリミクティックな湖沼の代表的存在である霞ヶ浦の底質表層での栄養塩類を中心とした物質動態を観測、モデリングすることから、特にリン溶出に関わる物理化学的環境、底質深度、化学形態を明らかにした。また、そうした底質上に石炭灰造粒物を散布することによる栄養塩溶出の抑制効果を、秋期、夏期それぞれ6か月程度の長期にわたる実験で評価し、夏期に嫌気性状態となる淡水湖沼での有効性を確認するとともに、その抑制メカニズムを明らかにした。また、福島第一原子力発電所由来の放射性セシウムの鉛直分布の経年変化を5湖沼で測定し、その変化を再現する表層底質混合モデルを作成した。

研究成果の概要(英文)：Through the observation and modeling of nutrient dynamics, particularly related to phosphorus, in the surface sediments of Lake Kasumigaura (representative of polymictic lakes), we elucidated the physicochemical characteristics of water/sediment environment and the depth and chemical properties corresponding to the nutrient release. Based on the long-term experiments (around 6 months) during fall and summer periods, the effectiveness of granulated coal ash on nutrient suppression from anoxic sediments, i.e., its applicability to freshwater lakes, was confirmed and the suppression mechanism was clarified. The yearly changes in the vertical profiles of radioactive cesium derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in the surface sediments of five lakes were monitored and simulated with sediment advection-diffusion model.

研究分野：水環境科学

キーワード：ポリミクティック 湖沼 底質 石炭灰造粒物 モデリング 栄養塩溶出

1. 研究開始当初の背景

日本の多くの湖沼では有機物、栄養塩の負荷削減対策を実施しているにもかかわらず、依然として水質改善の進んでいない湖沼が多く、社会的に大きな問題となっている。特に浅い湖沼で富栄養化の改善されない湖沼が多く、その原因としては底質からの栄養塩回帰が指摘されているが、科学的には未解明の部分が多く残されているとともに適切な改善策がないのが現状である。

2. 研究の目的

底質からの栄養塩回帰が原因で富栄養化の改善されていない湖沼が多い。ここでは、霞ヶ浦など polymictic な湖沼（湖水完全循環が不定期に年数回以上ある湖沼）を対象に、底質表層（数 10cm）での biogeochemical な過程を考慮した観測、モデル化を行う。このため、底質での微生物活動、酸化・還元反応、沈殿・溶解反応を時間的・空間的な高解像度観測結果をベースに数理モデル化し、パラメータを決定するとともに、それらの反応を支配する因子との関係をモデル化することから、底質 - 水相互関係の長期変化を予測する。また、海域底質改善材として注目されている石炭灰造粒物を用いた湖沼底質浄化について、実験でその現象解明、モデル化等を行い、実用化を目指す。

3. 研究の方法

(1) 現地採取底質サンプルを用いた室内実験

霞ヶ浦数地点で底質コアサンプルを採取し、表層約 10 cm の酸化還元電位と溶存酸素の鉛直分布を上下昇降装置に取り付けた電極で測定した。測定条件の影響の確認、水塊条件や季節変化による鉛直分布特性の変化、間隙水濃度との関係、などを解析した。また、底質コアサンプルを多数採取し、泥厚を様々に変化させ、溶出量の違いを測定するとともに、実験期間前後での分画したリン濃度変化を測定した。なお、霞ヶ浦と中沼で底質サンプルの採取方法を様々に変化させ、放射セシウムの鉛直分布を測定することから、その分布を的確に捉えられるかどうかの検討も行った。

(2) 石炭灰造粒物を用いた実験

霞ヶ浦環境科学センターの屋外実験槽を借用して、2014 年 9 月-2015 年 2 月（以降、秋期実験と呼ぶ）、2015 年 5 月-11 月（夏期実験）、それぞれ約半年間の 2 回、実験を行った。まず、直径約 50 cm、深さ約 80 cm の容器を 7 つ用意し、霞ヶ浦底質、石炭灰造粒物（以降 GCA）、ろ過水を異なる条件で積み重ね、上層水の水質などを定期的に採取し、栄養塩、無機イオン、重金属濃度などを測定した。好気、嫌気状態による栄養塩や重金属の溶出量の違いなどを解析した。また、実験開始と終了時の底質性状（酸化還元状態、酸素

消費速度、燃焼特性、および有機元素分析）を分析し、その変化から GCA の効果の機構を調べた。さらに、小型の容器を用いて、石炭灰造粒物の溶出抑制効果の要因解析、粒径の違いによる効果への影響解析、上層水を淡水、海水とした場合の栄養塩抑制効果の比較などを行った。

(3) モデリング

霞ヶ浦、北浦、涸沼、曾原湖、小野川湖で底質コアサンプルを採取し、放射性セシウムの鉛直分布の経年変化を測定することから、底質表層での堆積、混合状況を推定した。また、底質中化学成分の移流分散モデルを作成し、混合に関わるサブモデルを開発して、鉛直分布の再現を試みた。また、こうした物理モデルにリンの物質動態モデルを組み合わせることから、霞ヶ浦、琵琶湖の長期水質変化をモデル化し、実測値との比較検討を行った。

4. 研究成果

(1) 現地採取底質サンプルを用いた室内実験

様々に底質厚を変化させて水塊に溶出するリン濃度を比較した実験から、最表層である底質 0-2 cm 層からリンの溶出が主に生じ、溶出に関わったリンの形態が CDB-TP（Citrate-dithionite-bicarbonate extractable total phosphorus：鉄態リンに相当するとされる画分）と NaOH-NRP（NaOH extractable non-reactive phosphorus：有機態リンに相当するとされる画分）であることを確認した。このことから、霞ヶ浦湖心では底層水の嫌気化と有機物の無機化により底質表層からリンが溶出すると推測された。CDB-TP は NaOH-NRP の約 10 倍減少していたことから、Fe-P が主な溶出の起源であると考えた。また、短期間であっても、異なる時期に採取した底質の TP（全リン）濃度および形態別リン濃度の比較から底質からのリンの溶出量を推定できる可能性を示した。以上をもとに、霞ヶ浦のようなポリミクティックな湖沼では、底層水が嫌気状態になり底質表層から Fe-P や Org-P が溶出する。しかし、これらのリンは植物プランクトンの死滅・沈降や直上水の好気化に伴う沈降により Fe-P や Org-P として底質表層に堆積し、再度、底層水が嫌気条件になった時に溶出する。このように短期間のうちに底質表層と湖水の間でリンが循環しているのではないかと推測された。このため、湖水リン濃度を減少させるためには、底質への Fe-P や Org-P の供給を抑制することや底層水の貧酸素化を防止することが重要である。

また、放射性セシウムの底質中鉛直分布をいくつかの採泥器で比較することから、その内のいくつかは表層部の正確な採取が困難であることがわかった。すなわち、底質状況にあわせて底質サンプラーを選ばないといけないため、その評価に放射性セシウムの鉛

直分布の測定が有効であることがわかった。

(2) 石炭灰造粒物を用いた実験

長期実験の概要

GCAを散布したケースでは窒素及びリンの溶出を大幅に抑制することが確認された。底質を被覆したことにより物理的に栄養塩を溶出しにくくした効果と、GCAから溶出する成分による効果だと推測された。また、GCA自体への吸着も観察された。ただし、リンに関しては底質が嫌気的な雰囲気下である場合のみ溶出が起こるため、栄養塩濃度の増加を抑制できたのは嫌気条件に設定したケースのみであり、好気条件のケースではGCAによる効果は確認できなかった。GCAから溶出する成分としては K^+ 、 Ca^{2+} 、 SO_4^{2-} が挙げられ、GCAを入れた量が多いほど水中での濃度も高くなった。溶出した Ca^{2+} がリンと結合して不溶化することでリンを削減する効果が期待されていたが定量的に実証することはできなかった。また、重金属であるCd、As、Seが石炭灰造粒物から溶出していることが観察されたが、溶出試験法の固液比に基づいて計算した結果、水質基準値以内であった。これらの結果より、(ア) GCAは淡水域においても海水域や汽水域と同様に栄養塩の溶出を低減することができる。特に底質が嫌気状態であるような場所や時期でその効果が高い。(イ) 淡水の水質基準値も達成できたが、現地への適用の際は水界の規模を考慮してGCAの使用量を決定しなければならない。

GCAの効果メカニズム

(ア) 石炭灰造粒物による堆積泥酸化還元状態の改善

GCAを散布しない底質では、実験前後でpHやORPの変化は見られないが、GCAが散布された底質のpH~ORP関係は酸化方向に移動することが確認された。さらに、GCA散布底質では酸素消費速度の低下が見られた。以上から、GCAは嫌気性分解で生成される還元物質を吸着(固定)し、底質の還元的環境を改善する。また、GCAの溶解によるpHの上昇が底質酸性化の抑制に効いている。

(イ) GCAによる堆積泥有機組成の変化

GCA散布底質の燃料特性(温度を変えた時の燃焼減量)の変化があることから、底質の有機組成が変化することがわかった。GCA無散布と比較してGCA散布底質の IL_{200}/IL_{600} (不安定有機物の指標)が小さく、 $(IL_{600}-IL_{200})/IL_{600}$ (腐植性有機物の指標)が大きいことから、GCAから溶解したミネラルや酸化物は有機物の腐植化を促進させる可能性が高い。この変化は有機元素分析結果からも支持された。

(ウ) GCAの物理・化学特性の把握

石炭灰の混合比率が70~80%程度において、細孔容積が最大となることを明らかにした。この混合比率において、フライアッシュ

とセメントによるポズラン反応の反応率は最大となっており、GCA細孔の発達とポズラン反応率に関連性があることがわかった。この微細な細孔は有機泥油脂類を吸着する機能を有することが確認された。GCAに吸着した油脂類を集積因子として、油分分解菌がGCA表層にバイオフィームを形成し、油脂分解を促進させることがわかった。

(3) モデリング

霞ヶ浦、澗沼、曾原湖において、ある年度に測定された放射性セシウム鉛直分布を再現するように鉛直混合に関わる係数を決定(キャリブレーション)した。次に、そうして得られた係数と風波による底面せん断力、底質中の含水率鉛直分布との関係をサブモデル化した。キャリブレーションに用いていない北浦、小野川湖でサブモデルにより、鉛直混合に関わる係数を推定し、それを用いて放射性セシウム鉛直分布を予測することから、実測値を再現しうるものであることを確認した。また、霞ヶ浦、澗沼、曾原湖のキャリブレーションに用いていない年度の鉛直分布についても、良好に再現することが可能であることを示した。すなわち、底質特性、風波特性がわかれば、底質中での物質の移流分散過程を再現する数理モデルの構築が可能となった。

また、(1)から得られた底質中のリン動態に関わる諸過程をモデル化し、上層水の生物物理化学モデルに組み込むことから、霞ヶ浦、琵琶湖等の水質長期変化予測を行った。底質におけるゆっくりとした物質動態を考慮することで、水質変化の再現性が高まることを確認した。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計30件)

K. Kamiya, T. Fukushima, T. Ouchi and M. Aizaki: Phosphorus budgetary analysis of sediment-water interface in a short-term anoxic condition in shallow Lake Kasumigaura, Japan. *Limnology*, 18, 131-140, 2017. DOI: 10.1007/s10201-016-0496-5 査読有

T. Fukushima, B. Matsushita, Luki Subehi, Fajar Setiawan, and Hendro Wibowo: Will hypolimnetic waters become anoxic in all deep tropical lakes? *Scientific Reports* 7:45320, 2017. DOI: 10.1038/srep45320 査読有

荒居博之、福島武彦、恩田裕一: 湖沼における底質コア採取に係る評価方法: 福島原発事故起源の放射性セシウムを指標として. *陸水学雑誌*, 78, 67-74, 2017. 査読有

福島武彦: 湖沼底泥研究の現状と今後の

課題 .水環境学会誌, 39(A), 266-269, 2016. 査読無

福島武彦: 海外の湖沼環境問題とわが国の湖沼管理の課題 . 用水と廃水, 58-1, 35-43, 2016. 査読無

TOUCH NARONG, 金城信隆, 日比野忠史, 中本健二: 堆積泥を燃料とする微生物燃料電池における石炭灰造粒物の有効利用, 土木学会論文集 B2(海岸工学), 72-2, 1327-1332, 2016. 査読有

中本健二, 仁科晴貴, 松尾 陽, 樋野和俊, 日比野忠史: 還元有機泥覆砂材に活用される石炭灰造粒物の土壌反応特性と底質安定化機構, 土木学会論文集 B1(水工学), 71, 1027-1032, 2016. 査読有

中本健二, 井上智子, 松尾 暢, 樋野和俊, 日比野忠史: 河川感潮域におけるヤマトシジミ生息基盤への石炭灰造粒物の適用性評価, 土木学会論文集 B1(水工学), 71, 1021-1026, 2016. 査読有

中本健二, 仁科晴貴, 樋野和俊, 日比野忠史: 還元有機泥覆砂材に活用される石炭灰造粒物の油脂類吸着性能と底質改善効果, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 72-2, 934-939, 2016. 査読有

中本健二, 松尾 暢, 樋野和俊, 日比野忠史: 海砂代替材に活用される石炭灰造粒物の長期的な物理化学特性評価, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 72-2, 940-945, 2016. 査読有

中本健二, 井上智子, 松尾 暢, 渡辺健一, 樋野和俊, 日比野忠史: 石炭灰とセメント混合率を調整した海砂代替材の化学組成評価, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 72-2, 420-425, 2016. 査読有

中本健二, 井上智子, 仁科晴貴, 樋野和俊, 日比野忠史: 還元有機泥堆積干潟で覆砂材に活用される石炭灰造粒物のアサリ生息基盤への適用性評価, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 72-2, 1099-1104, 2016. 査読有

森本優希, 中本健二, 中下慎也, 日比野忠史: 堆積泥への灰分(ミネラル)の供給と消費機構, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 72-2, 658-663, 2016. 査読有

森本優希, 三戸勇吾, 中本健二, 日比野忠史: 堆積泥への底生藻類の発生と種の遷移, 土木学会論文集 B2(海岸工学), 72-2, 1345-1350, 2016. 査読有

中本健二, 廣中伸孝, 樋野和俊, 日比野忠史: ヘドロ堆積干潟での石炭灰造粒物による大規模底質改善施工技術の開発, 土木学会論文集 B3(海洋開発), 71-2, 808-813, 2015. 査読有

中下慎也, 中本健二, 中澤 泉, 福嶋正博, 日比野忠史: 石炭灰造粒物層内における地下水流動と濁質の輸送, 土木学会論文集 B3(海洋開発), 71-2, 1089-1094, 2015. 査読有

正田武, 卜部憲登, 平田正浩, 三戸勇吾, 中本健二, 日比野忠史: 過栄養な内港域における再生資源を用いた底質改善手法の提案, 土木学会論文集 B3(海洋開発), 71-2, 880-885, 2015. 査読有

中本健二, 及川隆仁, 樋野和俊, 日比野忠史: 還元有機泥が堆積した海域の底質改善に用いられる石炭灰造粒物の生物親和性評価, 土木学会論文集 B2(海岸工学), 71-2, 1459-1464, 2015. 査読有

日比野忠史, 中本健二, 廣中伸孝, 樋野和俊: アルカリ剤造粒物により浄化された河岸ヘドロの有機物特性評価, 土木学会論文集 B3(海洋開発) 特集号, 70-2, 1110-1115, 2014. 査読有

日比野忠史, 太刀内紘平, TOUCH NARONG, 中下慎也: 沿岸域に堆積する有機泥に含まれる有機物の分類法, 土木学会論文集 B2(海岸工学), 70-2, 1071-1075, 2014. 査読有

(学会発表)(計 19 件)

T. Fukushima: Lake environments under stress and their restoration challenges. The 16th World Lake Conference, Bali, Indonesia, Nov. 10, 2016. (Plenary lecture)

神谷航一, 福島武彦, 相崎守弘: 霞ヶ浦湖心における夏季の底層 DO 濃度の推移とリンの動態, 日本陸水学会第 81 回大会, 琉球大学, 那覇, 沖縄県, 11/6, 2016.

T. Fukushima, E. Komatsu, H. Arai, K. Kamiya and Y. Onda: Shift of radiocesium vertical profiles in sediments and their modelling in Japanese lakes. 33th Congress of the International Society of Limnology, Torino, Italy, Jul. 31- Aug. 4, 2016.

E. Komatsu, T. Fukushima and K. Kamiya: Modeling approach to describe the water quality and aquatic ecosystems in lake with different eutrophication levels. The International Society for Ecological Modelling Global Conference 2016, Baltimore, USA, May 12, 2016.

岡部成子, 福島武彦, 神谷航一, 日比野忠史, 中本健二, TOUCH NARONG: 淡水域を対象とした石炭灰造粒物による水質改善効果の検証, 第 50 回水環境学会年会, アステイ徳島, 徳島, 徳島県, 3/16-3/18, 2016.

神谷航一, 福島武彦, 相崎守弘: 霞ヶ浦における底泥リン濃度の 6 年間の変化について, 第 50 回水環境学会年会, アステイ徳島, 徳島, 徳島県, 3/16-3/18, 2016.

T. Fukushima, B. Matsushita, Y. Oyama, K. Yoshimura, W. Yang, M. Terrel, S. Kawamura and A. Takegahara: Semi-analytical prediction of Secchi depth using remote-sensing reflectance for lake with a wide range of turbidity. 4th European Large Lakes Symposium, Yoensuu, Finland,

Aug. 24-28, 2015.

神谷航一, 福島武彦, 相崎守弘: 霞ヶ浦における底泥リン濃度の6年間の変化について, 第49回水環境学会年会, 金沢大学, 金沢, 石川県, 3/18, 2015.

小松英司, 福島武彦, 荒居博之, 神谷航一, 佐藤祐一, 岡本高引, 桐山徳也: 底泥中の diagenetic process のモデル研究と今後の課題について, 第49回水環境学会年会, 金沢大学, 金沢, 石川県, 3/18, 2015.

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福島 武彦 (FUKUSHIMA, Takehiko)

筑波大学・生命環境系・教授

研究者番号: 90124354

(2) 研究分担者

日比野 忠史 (HIBINO, Tadashi)

広島大学・工学(系)研究科・准教授

研究者番号: 50263736