

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2007～2009

課題番号：19201016

研究課題名（和文） 高酸素水生成装置を用いる汽水湖貧酸素水塊の水質改善及び湖底の底質改善

研究課題名（英文） Quality improvement of the bottom water and sediment at anoxic water in a brackish lake

研究代表者

清家 泰（SEIKE YASUSHI）

島根大学・総合理工学部・准教授

研究者番号：30243421

研究成果の概要（和文）：

実験区（高濃度酸素水導入窪地）の他に、対照区（高濃度酸素水導入の影響の及ばない窪地）を設け、比較検討した。湖底直上1m層への高濃度酸素水の導入による改善効果として、明らかになった研究成果の概要を以下に示す。

- (1) 対照区では底層水中に高濃度の硫化水素（ H_2S ）が観測されたのに対し、実験区では H_2S が消失した（ $\text{H}_2\text{S} + 1/2 \text{O}_2 \rightarrow \text{H}_2\text{O} + \text{S}^0 \downarrow$ ）。
- (2) 対照区では底層水中の溶存酸素（DO）濃度が無酸素に近い状態で推移したのに対し、実験区では窪地全域の DO が増大した。また、対照区では底層水中の酸化還元電位（ORP）が負の領域で推移したのに対し、実験区では正の領域まで上昇した。
- (3) 湖底堆積物中の H_2S 濃度を鉛直的にみると、対照区では表層部のみで H_2S 濃度の減少が観測されたのに対し、実験区では表層から 5cm 程度の深度まで濃度が激減した。また、メタン CH_4 （温暖化ガス）も H_2S の鉛直分布と同様の傾向を示した。
- (4) 対照区に比べ実験区では、底層水中 PO_4^{3-} に明瞭な減少傾向が観測された。実験区の湖底泥表面に酸化膜の形成が観測されたことから、湖底泥界面における共沈現象及び湖底からの PO_4^{3-} の溶出抑制が示唆された。
- (5) 対照区に比べて実験区では、底層水中の無機態窒素（ $\text{NH}_4^+ + \text{NO}_2^- + \text{NO}_3^-$ ）に減少傾向が観測された。酸素導入により、湖底泥界面における窒素除去機能（硝化・脱窒）が活性化したことを示唆する。湖底堆積物の深度別脱窒活性を観ると、対照区では表層部のみ活性を示したのに対し、実験区では表層から 5cm 程度の深度まで顕著な活性を示した。この結果は、高濃度酸素水の供給により、脱窒部位が大きく拡大したことを意味する。
- (6) 対照区ではベントス（底生生物）が皆無であったのに対し、実験区では、アサリやサルボウガイのような二枚貝の加入は認められなかったものの、多毛類を中心とするベントスの棲息が確認された。

以上のように、松江土建（株）社製の気液溶解装置を用いる WEP システムは、無酸素水塊への酸素供給を起点に、生物に有毒な H_2S の消失、温室効果ガスである CH_4 の消失、栄養塩（N, P）の減少及びベントスの復活等に絶大な効果を発揮した。通常、還元的な湖底堆積物に対する自然任せの酸素供給では、その効果は、精々、湖底泥表層部の数 mm までと云われていることを考えると、本システムによる底質改善効果（泥深 約 0～40 mm）は絶大である。このように WEP システムは、本研究で対象としたような比較的広範囲の窪地に対して有効であり、特に湖底の底質改善に極めて有効であると云える。今後、ランニングコストの低減が図れば、有用性はさらに高まるものと考えられる。

研究成果の概要（英文）：

Hypolimnion water in the dredged area (Water depth: 15 m) of brackish Lake Nakaumi, Japan, has been exposed to anoxic condition for a long term except for winter season. The experiment supplying the high dissolved oxygen water was performed at the dredged area during 2007 to 2009. In this study, we used a new technology (WEP system: MATSUE DOKEN Co., Ltd.) for introducing the high dissolved oxygen water into the dredged area. As a result, the dissolved oxygen concentration in hypolimnion was increased up to 15~29mg/L nearby the outlet of WEP system, and was kept at 5-15mg/L in the whole experimental site, for a 6 month (09May-Oct) in spite of the tidal current.

Monthly variations of hydrogen sulfide (H₂S) and methane (CH₄) were observed at the bottom water in the dredged area. In addition, H₂S concentration and CH₄ producing rate in sediments were also observed at the same area. No accumulations of H₂S and CH₄ were detected in the bottom water during the operation of the WEP system. Moreover, H₂S was almost disappeared at 0-4 cm depth in sediment, and also CH₄ producing rate decreased markedly compared to that at the control area.

In the case of a freshwater lake, generally, the iron (II) is released from the bottom sediment in a reduction state. In brackish Lake Nakaumi, however, it is trapped by the hydrogen sulfide derived from sulfate reducing and cannot be released. In the present study, hydrogen sulfide was oxidized and disappeared, and the environment that iron (II) can be released from the bottom sediment was formed. Thus, the effect of release inhibition from bottom sediment for phosphate phosphorus was observed.

The effect of high dissolved oxygen water on self-purifying function for nitrogen nutrient based on nitrification and denitrification was investigated. An active nitrification was induced by the increase of dissolved oxygen (DO) in the bottom water, followed by induction of denitrifying activity in the sediment-water system. It was also suggested that nitrification was inhibited by high concentration of dissolved oxygen exceeding 200%.

Benthos such as polychaetes, *Paraprionospio patiens*, *Prionospio pulchra* etc. could form their habitat at the dredged area throughout the experimental periods. However, bivalves were not settled during the periods. The captured organisms in the sediment traps (40cm long and 10cm inner diameter pipes) showed that the larvae of Asari clam, *Ruditapes philippinarum* and Asian mussel, *Musculista senhousia*, could reach the bottom layer but could not recruit probably due to low pH less than 8 in deeper than three 3m.

Thus, it was suggested that the present new technology is very useful for an environmental improvement of the bottom water and sediment in lakes.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	16,900,000	5,070,000	21,970,000
2008年度	9,900,000	2,970,000	12,870,000
2009年度	9,100,000	2,730,000	11,830,000
年度			
年度			
総計	35,900,000	10,770,000	46,670,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境技術

キーワード：環境修復技術，貧酸素水塊，水質汚濁，新規な高濃度酸素水供給システム，水質・底質改善，自浄作用

1. 研究開始当初の背景

汽水湖中海の米子湾から安来沖にかけての水域には浚渫窪地（水深 13～15m）が多数存在し、窪地の底には有機質に富む汚濁物質が大量に集積している。バクテリアがその有機物を分解する際、水中の酸素を消費するため、冬期を除く長期間に渡り塩分躍層（3～5m）以深では無酸素状態を呈する。さらに湖底堆積物からは硫化水素やメタンが発生する等の劣悪な状態を呈し、貝類など底生生物が生息できない環境となっている。また、湖底からの栄養塩（窒素・リン）の供給も著しく、赤潮発生の重大な要因になることが指摘されている。

本研究では、高濃度酸素水を導入するための有用なツールとして、気液溶解装置を用いる WEP システム（松江土建(株)社製）を使用した。この装置は、従来のマイクロバブル方式とは異なり、水圧を利用して高濃度の酸素溶解を可能にしている点に特徴がある。この高濃度酸素水は水平方向に同心円状に吐出され、かつ気泡を生じないため上下混合を引き起こさない。したがって、本装置は、無酸素化の進行する層にのみ酸素を供給することが可能なため、上層の生態系に悪影響を及ぼさない点で画期的なものと云える。本研究に本装置を用いた所以である。

2. 研究の目的

水質悪化をきたす元凶である窪地内の酸欠問題を解消する方策を見出すことを第一の目的として調査研究を進めた。

本研究の特色は、不足している酸素を補給するという自然への手助けのみで、あとは自然が本来有する自浄作用に任せて、底層水の水質改善及び湖底泥の底質改善を図ろうとする点にある。したがって本手法には、生態系へのリスクが極めて少なく、かつ酸欠状態の解消を起点とする波及効果によって正常な生態系への変遷が期待できる。本研究の最大のねらいがそこにあり、多様な波及効果について調査研究を行った。

その主な研究課題及び担当者は次の通りである（下線は研究代表者、研究分担者及び連携研究者）。

(1) 増木新悟・戸島邦哲・若林健一・清家

泰： 中海浚渫窪地底層への高濃度酸素水導入新技術。

(2) 矢島 啓・神宮司 仁： 3次元湖沼水理モデル ELCOM を用いた窪地に着目した中海の流れ。

(3) 相崎守弘・木戸健一朗： 中海米子湾の浚渫窪地の水質特性。

(4) 管原庄吾・鮎川和泰・千賀有希子・奥村稔・清家 泰： 砂泥堆積物中溶存硫化物の分析法の開発及びその現場への適用。

(5) 管原庄吾・須山雄介・鮎川和泰・千賀有希子・奥村 稔・清家 泰： 湖底からの H_2S 及び CH_4 の溶出に及ぼす高濃度酸素水導入の影響。

(6) 井上徹教・中村由行： 底層酸素供給に伴う堆積物からのリンの溶出の応答。

(7) 清家 泰・中根 大・奥村 稔： 中海浚渫窪地の無酸素底層水中リン，鉄，マンガンの挙動に及ぼす高濃度酸素水導入の影響。

(8) 清家 泰・小道綾香・緒方秀輔・平尾匡章・千賀有希子・奥村 稔・三田村緒佐武： 汽水湖中海の浚渫窪地における脱窒からみた窒素浄化能に及ぼす高濃度酸素水の影響。

(9) 清家 泰・緒方秀輔・千賀有希子・鮎川和泰・奥村 稔・三田村緒佐武： 高濃度酸素水導入期間中の亜酸化窒素及びヒドロキシルアミンの生成挙動。

(10) 千賀有希子： 中海底層水への酸素供給が有機物分解および窒素動態に与える影響。

(11) 高津 大・山室真澄： 中海におけるアナモクス・脱窒活性。

(12) 今井洋幸・張 光玟・中野伸一： 高濃度酸素水導入下におけるプランクトン群集の動態。

(13) 日向野純也・戸田顕史： 高酸素溶解水試験中による無酸素環境におけるマクロベントス群集の形成ーベントスの生物群集と加入過程ー。

(14) 山口啓子・鈴木秀幸・管原庄吾・清家泰： 高酸素水および無酸素水・硫化水素水への暴露がサルボウガイの成長生残に与えた影響。

(15) 中村由行： 全国の浚渫窪地と梅戻し修復の現況について。

3. 研究の方法

底層水の水質改善及び湖底の底質改善を目的に、高濃度酸素水導入装置(松江土建(株)社製)を安来沖の窪地(300×600 m²;水深15 m)の湖底上約1 mの深度に設置し検討した。2007年には装置1基の使用であったが、2008年及び2009年には装置2基を使用した。装置の設置・稼働期間は、それぞれ8月5日～10月1日(2007年)、5月16日～10月22日(2008年)及び4月16～10月1日(2009年)であった。

4. 研究成果

前述の検討課題「(1)～(15)」(2. 研究目的の参照)の研究成果については、紙面の制約もあり、ここにはその一部「(1), (5), (8)」を示し、詳細はホームページに掲載する。

(1) 松江土建(株)社製の高濃度酸素水導入システム(WEPシステム)により、成層構造を破壊することなく、貧酸素状態にあった中海浚渫窪地の底層の溶存酸素(DO)を10 mgO₂/L程度に改善できた。高濃度酸素水の拡散に、時折、潮流の影響を受けたものの、長期にわたり好気状態を維持することができた。

(5) 富栄養化が進行した汽水湖中海の窪地(硫酸還元とメタン生成が同時に起こる特異的な水域)に、高濃度酸素水を導入し、その湖底直上水の水質および底質に及ぼす影響を3年間にわたり観察した。

装置稼働期間中には、酸化性的雰囲気は維持され、硫化水素とメタンはほとんど検出されなかった。また堆積物の鉛直方向にも影響を及ぼし、0～4 cmの硫化水素をほぼ酸化するとともに、メタン生成菌の活性を抑えた。良好な水質を維持するためには、装置を湖底直上に固定し稼働し続ける必要があるが、直上水の水質改善は底質の改善にもつながることが明らかとなった。

(8) 高濃度酸素水生成装置を貧酸素化している浚渫窪地の湖底上1 mに設置し、湖底堆積物中の脱窒活性に及ぼす高濃度酸素水の影響について、3年間にわたり検討した。

湖底泥界面では、装置による酸素供給を受けて、脱窒活性の向上が観られた。これは、貧酸素化が抑制されて消化が進み、基

質濃度が増加したことを反映するものと考えられた。装置を湖底直上に長期間常駐させると、湖底堆積物表層より約5 cmの深度まで脱窒活性部位が拡大した。また、湖底泥の巻き上げ水中のDIN濃度の減少が観測された。これは、高濃度酸素水の影響を受け、底泥界面における硝化・脱窒の一連の反応が活性化されたことを裏付けるものであり、窒素浄化能から観た本装置の底質改善効果が有効であることを示すものと言える。

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7件)

- ① Senga, Y., M. Okumura and Y. Seike, Seasonal and spatial variation in the denitrifying activity in estuarine and lagoonal sediments, *Journal of Oceanography*, **66**, 155-160, (2010).
- ② Okumura M., A. Anate and Y. Seike, The behavior of iron (II) and hydrogen sulfide in anoxic brackish lake water. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, **30**, 1107-1110 (2009).
- ③ Seike Y., M. Murakami, R. Fukumori, Y. Senga, K. Ayukawa, O. Mitamura, H. Terai, K. Kondo, S. Ueda, and M. Okumura, Behavior of hydroxylamine and nitrous oxide in the stratified brackish Lake Nakaumi, Japan. *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, **30**, 1073-1076 (2009).
- ④ 奥村稔, 塩野貴志, 安東国広, 清家泰, 環境水中溶存酸素の簡便な吸光光度定量法, *分析化学*, **58**, 317-320, (2009).
- ⑤ Senga Y., M. Hirota, M. Hirao, T. Fujii, Y. Seike, S. Nohara, and H. Kunii, Nitrogen dynamics and N₂O emission in restored salt marsh, Lake Shinji, Japan, *Verh. Internat. Verein. Limnol.*, **30**, 907-910 (2009).
- ⑥ 井上明子, 清家泰, 奥村稔, ジルコニウム担持活性炭を用いる環境水中無機態及び有機態リン化合物の簡便な捕集分離と定量, *分析化学*, **57**, 599-604, (2008).
- ⑦ Hirota M., Y. Senga, Y. Seike, S. Nohara and H. Kunii, Fluxes of carbon dioxide, methane, and nitrous oxide in two contrasting fringing zones of a coastal lagoon, Lake Nakaumi, Japan. *Chemosphere*, **68**, 597-603 (2007).

[学会等発表] (計20件)

- ① 清家 泰, 湖沼の水質改善を目指した環境分析化学的アプローチ: 水質悪化の著しい中海浚渫地を例として, 鳥取総合分析研究懇談会 第11回講演会, 鳥取大学医学部, 2010年1月9日. [依頼講演]
- ② 千賀有希子・渡辺泰徳・清家泰, 中海深層水への酸素供給が有機物分解および窒素動態へ与える影響, 日本陸水学会第74回大会, 大分, 2009年9月14~17日.
- ③ 緒方秀輔・三上育英・奥村稔・清家泰, 汽水湖中海におけるヒドロキシルアミンと亜酸化窒素の挙動について, 日本陸水学会第74回大会, 大分, 2009年9月14~17日.
- ④ 小道綾香・奥村稔・清家泰, 汽水湖中海浚渫地の脱窒に及ぼす高酸素水導入の影響, 日本陸水学会第74回大会, 大分, 2009年9月14~17日.
- ⑤ 管原庄吾・鮎川和泰・奥村稔・清家泰, 底泥間隙水中 Free-H₂S からみた直上水改善が底質に及ぼす効果, 日本陸水学会第74回大会, 大分, 2009年9月14~17日.
- ⑥ 今井洋幸・張光弦・中野伸一・鮎川和泰・管原庄吾・清家泰, 高濃度酸素水導入下におけるプランクトン群集の変動, 日本陸水学会第74回大会, 大分, 2009年9月14~17日.
- ⑦ 管原庄吾・鮎川和泰・奥村稔・清家泰・塚本達也・木元克則, 底泥間隙水中硫化水素の定量の重要性について, 第43回日本水環境学会年会, 山口, 2009年3月16~18日.
- ⑧ 鮎川和泰・管原庄吾・清家泰, 湖沼における湧水場所特定調査-GISを利用して, 第43回日本水環境学会年会, 山口, 2009年3月16~18日.
- ⑨ 管原庄吾・塚本達也・須山雄介・奥村稔・木元克則・清家泰, 砂泥における Free-H₂S の定量について, 日本陸水学会第73回大会, 札幌, 2008年10月10~13日.
- ⑩ 須山雄介・管原庄吾・奥村稔・清家泰, 水圏におけるメタンの生成について, 日本陸水学会第73回大会, 札幌, 2008年10月10~13日.
- ⑪ 緒方秀輔・増木新悟・奥村稔・清家泰, ダム湖(三瓶ダム)におけるヒドロキシルアミンと亜酸化窒素の挙動について, 日本陸水学会第73回大会, 札幌, 2008年10月10~13日.
- ⑫ 中根大・奥村稔・清家泰, 汽水湖中海における鉄・マンガン及びリンの挙動について, 日本陸水学会第73回大会, 札幌, 2008年10月10~13日.
- ⑬ 鮎川和泰・須山雄介・管原庄吾・清家泰, 浚渫地底層水の交換: 長期モニタリングの結果から, 日本陸水学会第73回大会, 札幌, 2008年10月10~13日.
- ⑭ 平尾匡章・奥村稔・清家泰, Zn 還元-NEDA 担持 C18 小型カラム法を用いる環境水中硝酸イオンの現場簡易定量, 日本分析化学会第56回年会, 徳島大学, 2007年9月19~21日.
- ⑮ 大石有希子・清家泰・奥村稔, 環境水中リン酸態リンの現場固相捕集に基づく目視簡易分析法の開発, 日本分析化学会第56回年会, 徳島大学, 2007年9月19~21日.
- ⑯ 井上明子・清家泰・奥村稔, ジルコニウム担持活性炭を用いた無機態及び有機態リンの捕集分離法, 日本分析化学会第56回年会, 徳島大学, 2007年9月19~21日.
- ⑰ 平尾匡章・藤井健士・福森亮子・奥村稔・清家泰, 汽水域堆積物(中海・宍道湖・太田川)における窒素浄化能について2, 日本陸水学会第72回大会, 茨城大学, 水戸, 2007年9月10~13日.
- ⑱ 須山雄介・管原庄吾・奥村稔・清家泰, 汽水湖湖底堆積物におけるメタンの生成について, 日本陸水学会第72回大会, 茨城大学, 水戸, 2007年9月10~13日.
- ⑲ 管原庄吾・須山雄介・奥村稔・清家泰, 汽水湖中海における硫化水素及び硫酸イオンの挙動について, 日本陸水学会第72回大会, 茨城大学, 水戸, 2007年9月10~13日.
- ⑳ K. Ayukawa, M. Okumura and Y. Seike, Application of luminescent DO sensor to poor-oxic water in eutrophic brackish area, *SIL XXX Congress*, Montreal, Canada, August 12-18, 2007.

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:
出願年月日:
国内外の別:

○取得状況 (計0件)

名称:
発明者:
権利者:
種類:
番号:

取得年月日：
国内外の別：

[その他]

報道関連情報：新聞掲載2件

1) 毎日新聞鳥取版, 2010年1月25日(月)



2) 山陰中央新報, 2008年7月19日(土)



ホームページ等

<http://www.ipc.shimane-u.ac.jp/enviroanal-chem/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

清家 泰 (SEIKE YASUSHI)

島根大学・総合理工学部・准教授
研究者番号：30243421

(2) 研究分担者

奥村 稔 (OKUMURA MINORU)

島根大学・総合理工学部・教授
研究者番号：30032650

三田村 緒佐武 (MITAMURA OSAMU)

滋賀県立大学・環境科学部・教授
研究者番号：50030458

千賀 有希子 (SENGA YUKIKO)

立正大学・地球環境科学部・助教
研究者番号：30434210

矢島 啓 (YAJIMA HIROSHI)

鳥取大学・工学部・准教授
研究者番号：10283970

井上 徹教 (INOUE TETSUNORI)

独立行政法人港湾空港技術研究所・海洋-水工部・主席研究官
研究者番号：70311850

中村 由行 (NAKAMURA YOSHIYUKI)

港湾空港技術研究所・海洋-水工部・領域長
研究者番号：90172460

相崎 守弘 (AIZAKI MORIHIRO)

島根大学・生物資源科学部・教授
研究者番号：20109911

山口 啓子 (YAMAGUCHI KEIKO)

島根大学・生物資源科学部・准教授
研究者番号：80322220

日向野 純也 (HIGANO JUNYA)

水産総合研究センター・生産システム部・二枚貝増養殖チーム長
研究者番号：80372019

(3) 連携研究者

山室 真澄 (YAMAMURO MASUMI)

東京大学大学院・新領域創成科学研究所・教授
研究者番号：80344208

中野 伸一 (NAKANO SHINICHI)

京都大学・生態学研究センター・教授
研究者番号：50270723