

令和 4 年 6 月 16 日現在

機関番号：82101

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19K04629

研究課題名(和文)塩分上昇に伴う底泥から溶出する有機態リンフラックスの定量化

研究課題名(英文)Quantification of organic phosphorus release from sediment with salinity changes

研究代表者

篠原 隆一郎 (Shinohara, Ryuichiro)

国立研究開発法人国立環境研究所・地域環境保全領域・主任研究員

研究者番号：00610817

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では気候変動に伴う底泥におけるリン溶出現象を明らかにするため、以下の研究テーマについて研究を行った。(1) 湖沼における気候変動の影響に関する研究 特に日射量増加に伴う湖沼水温上昇解析；(2) 水温上昇に伴う底泥リン溶出速度の変動解析；(3) 湖沼底泥間隙水中における硫酸イオン・硝酸イオンと栄養塩溶出に関する研究。これらの結果、(1) 1992年から2019年までの間に特に春季に水温が上昇しており、日射量の増加が湖沼水温に与える影響が大きい。(2) 底泥におけるリン溶出速度は、20℃を超えると非線形的に上昇する。(3) 硫酸イオンが極めて重要な役割を果たしていることが明らかになった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

気候変動は、気温の上昇や、日射量の増加に代表される現象であるが、我が国の貯水池の管理に大きく影響を与える。例えば水温の上昇によって、植物プランクトンの増殖もあると考えられるが、それには極めて複雑なプロセスを経ていると考えられる。底泥からのリン溶出はそのうちの一つである。気候変動の現象の一つとして、海面上昇がある。海水に含まれる硫酸イオンや塩化物イオンは有機物の動態に影響を与えるものとして知られている。本研究はこれらの気候変動に伴う湖沼環境変化を明らかにするため、水温上昇の影響及び硫酸・硝酸イオンによる底泥リン溶出現象について総合的に解析した。

研究成果の概要(英文)：We analyzed P release from the bottom sediment with the climate change. We conducted the following three themes: (1) The water temperature increase with the climate change - in particular by the increase in solar radiation; (2) P release from sediments with the increase in the water temperature; and (3) changes in the P release from sediments with changes in the concentrations of sulfate and nitrate ions. Consequently, we attained the following results: (1) The water temperature increases with the increase in solar radiation, which was greater than the effects of air temperature increase; (2) P release from sediments is accelerated when the sediment temperature exceeds 20 degree Celsius; (3) Sulfate is more important for P release from sediments rather than nitrate. Nitrate was almost completely disappear at the sediment depth of 2.25 cm, which may be caused by denitrification.

研究分野：応用生態工学

キーワード：底泥リン溶出 気候変動

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

気候変動は、湖沼環境においても極めて重要な環境変動であることが明らかになってきている。気候変動によって、近年、気温が上昇していることが実感としてあるが、湖沼においても水温が上昇してきている。一方で、近年、気温のみならず日射量も増加傾向にあることが知られており、一般的な温帯湖沼の熱収支においては気温の上昇・日射量の増加が主たる水温上昇ファクターであると考えられる(図1)。また、今後気候変動が進むと、海面上昇が発生し、海水中に含まれる塩化物イオンや硫酸イオンなどの濃度上昇が推測される。これらの気候変動による湖沼環境への影響を洗い出し、明らかにしていくことが、湖沼の保全においては、今後必要不可欠なことであると考えられる。一方で、気温と水温の上昇率とを比較すると、湖沼によっては水温の上昇率が気温の上昇率よりも大きいこともある。この水温上昇率が気温上昇率より大きい現象は、水温上昇の直接的な要因は気温のみではなく、短波放射、長波放射、潜熱、顕熱などの熱収支の変動が複雑に関係していることを示している。これらの変動は、日射量・気温も含めて、風などの影響も考慮する必要がある。

一方で、気候変動によって今後海面が上昇すると、特に汽水域においては海水フラックス上昇などの影響なども考えられるであろう。塩化物イオンや、硫酸イオンが流入した場合には、リンなどの栄養塩が底泥固相から液相へと放出され、それが植物プランクトンの増殖につながる可能性がある。これら一連の気候変動による湖沼環境への影響評価を行おうと考えたのが、本研究の背景である。

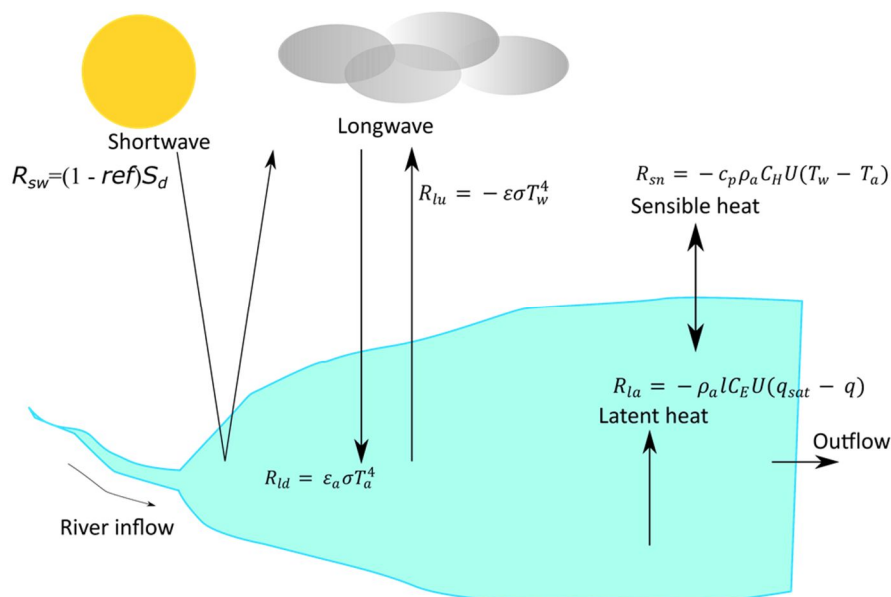


図1. 湖沼における水面熱収支

2. 研究の目的

本研究では、茨城県の霞ヶ浦を対象に、気候変動に伴う底泥中のリン動態を詳細に把握することを目的とし、以下のサブテーマについて研究を行った。霞ヶ浦は指定湖沼の一つである。本プロジェクトでは以下の課題について研究を行った。

- 湖沼における気候変動の影響に関する研究 特に日射量増加に伴う湖沼水温上昇解析
- 水温上昇に伴う底泥リン溶出速度の変動解析
- 湖沼底泥間隙水中における硫酸イオン・硝酸イオンと栄養塩溶出に関する研究

3. 研究の方法

3-1. 湖沼における気候変動、特に日射量上昇の影響に関する研究

風向・風速、湿度、気温、水温データは国立環境研究所の臨湖実験施設で観測したものを利用した。日射量及び雨量のデータは気象庁電子閲覧室から一時間毎のデータをダウンロードした。これらのデータを月毎に平均し、28年間のトレンド解析に利用した。

特に日射量及び、気温上昇の影響を解析するため、以下の式を用いて解析を行った。

$$R_n = R_s + R_l + R_{la} + R_{sn} + R_{prec} \quad (1)$$

ここで、 R_n は正味の熱収支、 R_s は短波放射、 R_l は長波放射、 R_{la} は潜熱輸送、 R_{sn} は顕熱輸送、 R_{prec} は降雨に伴う熱輸送である。短波放射についてはアルベド(ref)を用いて以下の式で表される：

$$R_{sd} = (1 - ref)S_d \quad (2)$$

ここで S_d は観測された日射量である．長波放射については：

$$\text{下向き} : R_{ld} = \varepsilon_a \sigma T_a^4 \quad (3)$$

$$\text{上向き} : R_{lu} = -\varepsilon \sigma T_w^4 \quad (4)$$

ここで $\varepsilon_a, \varepsilon$ は下向き，上向きの放射率， σ は Stefan-Boltzmann 定数， T_a, T_w は気温，水温である．潜熱・顕熱輸送は以下の式で表される：

$$R_{la} = -c_p \rho_a C_H U (T_w - T_a) \quad (5)$$

$$R_{sn} = -\rho_a l C_E U (q_{sat} - q) \quad (6)$$

ここで c_p は定圧比熱， ρ_a は空気の密度， l は潜熱， C_H, C_E は潜熱，顕熱のバルクの輸送係数， q_{sat}, q は飽和比湿及び比湿である．これらについて図 1 のように熱収支を計算することで，日射量の増加による湖沼水温への影響を明らかにした．

3-2. 水温上昇に伴う底泥リン溶出速度の変動解析

気候変動に伴い，湖沼水温が上昇した場合には底泥を温めることが考えられるため，以下の熱の拡散を考慮した泥温モデルを構築した：

$$\frac{\partial T_s}{\partial t} = \frac{\lambda}{\rho_s c_s} \frac{\partial^2 T_s}{\partial z^2} \quad (7)$$

ここで T_s は泥温， λ は底泥の熱伝導率， ρ_s は底泥の密度， c_s は底泥の比熱である．このモデルを用いることで水温が上昇した際の，泥温への影響を明らかにできるはずである．また，底泥からのリン溶出速度に関しては，実測した間隙水中のリン濃度を用いて，以下の式で表される：

$$J = -\phi D \frac{\partial C}{\partial z} \quad (8)$$

ここで J は底泥から水中へと放出されるリンのフラックス， ϕ は空隙率， D は分子拡散係数， C はリン濃度である．分子拡散係数に関しては Stokes-Einstein 則を用いて温度換算した．

3-3. 湖沼底泥間隙水中における硫酸イオン・硝酸イオンと栄養塩溶出に関する研究

2013 年 1 月から 2015 年 12 月まで，霞ヶ浦湖心で月一度，底泥柱状コアを採取した．サンプリングには重力式コアサンプラー（= 11cm）を用いた．堆積物コアを実験室において 4°C 以下の温度で冷蔵保存し，その後 24 時間以内に N₂ 雰囲気下で 10 層に分けた：0-1.5 (0.75) cm, 1.5-3.0 (2.25) cm, 3.0-6.0 (4.5) cm, 6.0-9.0 (7.5) cm, 9.0-12.0 (10.5) cm, 12.0-15.0 (13.5) cm, 15.0-18.0 (16.5) cm, 18.0-21.0 (19.5) cm, 21.0-24.0 (22.5) cm, 24.0-27.0 (25.5) cm とした．各区画の堆積物を 3500rpm で 15 分間遠心分離（~ 2278g）し，間隙水から固形物を分離した．処理はすべて N₂ 雰囲気下で行った．

オートアナライザー（Quattro-2HR, BLTEC, Tokyo, Japan）を用いて間隙水の栄養塩濃度を測定した．分析はすべてマニュアルに従って行った．硫酸濃度はイオンクロマトグラフ（ICS-2100A, Thermo Fisher Scientific, Waltham, USA）で測定した；AS17C イオンクロマトカラム（Thermo Fisher Scientific）を分離に使用し，溶離液には KOH を使用した．また，ICP-AES（ICPE-9820，島津製作所，京都）を用いて間隙水中の鉄濃度を測定した．

4. 結果

3-1. 湖沼における気候変動，特に日射量上昇の影響に関する研究について

1992 年から 2019 年までの月平均水温を解析した．統計的に有意な上昇率を示した月は 3 月，5 月，6 月であった．最も有意な上昇率を示した 5 月の水温上昇率は 0.74°C/10 年であった．また，6 月には上昇率が 0.56°C/10 年であり，気温も同時に上昇していた．しかし，6 月の気温の上昇率は，0.40°C/10 年程度であり，水温の上昇率が気温の上昇率よりも高かった．一方でつくばにおける日射量の増加率を見ると，5 月の上昇率は 13W/m²/10 年であり，28 年間で 19% 増加していた．5 月，6 月においては水温上昇していたにもかかわらず，風や湿度はさほど 29 年間で変動していなかった．

これらの気温，日射量の上昇率を用いて，熱収支式に基づく感度解析を行った．気温の上昇率の影響より，日射量の上昇率の影響が 2 倍以上大きかった．これらの結果は近年の日射量増加が霞ヶ浦の水温の長期変動に大きく影響を与えていることを示している．実際の熱収支は河川や地下水の流入や，底泥への熱伝導なども加味する必要があるが，それらの影響は，霞ヶ浦における 200 日程度の滞留時間を考えるとさほど大きくないものと考えられる．日射量増加の影響は水面における熱収支に対して，無視することができず，また，気温の上昇よりも強く影響を与えることが明らかになった．

3-2. 水温上昇に伴う底泥リン溶出速度の変動解析

3-1 においては水温の長期的な変動を明らかにしたが、本研究においてはその底泥溶出速度への影響を明らかにした。5月においては平均水温が20°Cを超過する程度の水温であった。開発した泥温モデルを検証した結果、極めて良好な再現結果であった($r=0.99$, $p<0.001$)。開発したモデルを用いることで、2013年~2015年5月の間で泥温が18.3°C~21.6°Cまで変動していることを明らかにした。

一方で、これらの温度上昇による、底泥溶出速度への影響を解析したところ、底泥溶出速度は20°Cを越えると非線形的に急上昇しているが、2.7°Cの違いではさほど大きく変化しないことが明らかになった。これは、底泥を対象に行った底泥におけるリンの溶出速度を求める実験と同様の結果であった。現状では春季の温度上昇に対して、さほど大きく底泥溶出速度は変化していないが、今後気候変動が継続的に進むと、底泥の溶出速度が急上昇する可能性があることを示している。特に3-1に示したように日射量増加による影響は今後も進む可能性があり、その影響を今後考慮する必要がある。

3-3. 湖沼底泥間隙水中における硫酸イオン・硝酸イオンと栄養塩溶出に関する研究

水温上昇による底泥リン溶出速度への影響は明らかになったが、底泥リン溶出現象には、硝酸・硫酸などの影響もあると考えられた。そこで、本研究では底泥間隙水中における硝酸・硫酸イオン濃度と PO_4^{3-} 濃度との関係を明らかにした。間隙水では、 PO_4^{3-} 濃度は堆積物表面(0cm)から深さ7.5cmまで直線的に増加した一方、間隙水の NO_3^- 濃度は、堆積物表面より下の深さでは測定限界未満であったが、底泥直上水では平均0.57 mg N L⁻¹であった。堆積物間隙水の NO_3^- 濃度と PO_4^{3-} 濃度は、深度0.75-4.5cmで NO_3^- 濃度が極めて低いため、有意な相関は認められなかった($r = -0.008$, $p=0.92$)。

堆積物間隙水中の SO_4^{2-} 濃度は0.26~33 mg L⁻¹で、季節的に変動していた。また、夏期は冬期に比べ、濃度が低くなっていた。 SO_4^{2-} 濃度が高い場合でも、Fe濃度は高かった。 PO_4^{3-} 濃度は SO_4^{2-} 濃度と負の相関があった($r = -0.56$, $p<0.01$)。

NO_3^- は底泥中のリン濃度に大きく影響を与えることがセオリーとなっている。それは NO_3^- が酸化剤であり、それが存在することによって、底泥間隙水中の鉄(II)が酸化され、そこに PO_4^{3-} が吸着するからである。しかし、霞ヶ浦においては、 NO_3^- による酸化の影響は小さいものと推察された。一方で、 PO_4^{3-} の濃度は、霞ヶ浦においては SO_4^{2-} と負の相関が得られた。また間隙水中のFe濃度と PO_4^{3-} の濃度も負相関が得られており、一方で、Fe濃度とDOP濃度とは正の相関が得られた。これらのことから、硝酸イオンと硫酸イオンとでは硫酸イオンが PO_4^{3-} の濃度により強く影響を与えている可能性が示された。一方で、間隙水中の鉄濃度と、 PO_4^{3-} との関係は不明な点が多く、より詳細な分析が必要であろう。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計4件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 0件/うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 篠原隆一郎	4. 巻 81
2. 論文標題 浅い湖沼における富栄養化研究のこれまでと将来展開	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 陸水学雑誌	6. 最初と最後の頁 19-31
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3739/rikusui.81.19	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shinohara R., Tanaka Y., Ariyo Kanno, Matsushige K.	4. 巻 52
2. 論文標題 Relative impacts of increases of solar radiation and air temperature on the temperature of surface water in a shallow, eutrophic lake.	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Hydrology Research	6. 最初と最後の頁 916-926
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2166/nh.2021.148	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Shinohara R., Tsuchiya K., Kohzu A.	4. 巻 12
2. 論文標題 Warming of water temperature in spring and nutrient release from sediment in a shallow eutrophic lake	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Journal of Water and Climate Change	6. 最初と最後の頁 3187-3199
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.2166/wcc.2021.145	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Hafuka A., Tsubokawa Y., Shinohara R., Kimura K.	4. 巻 228
2. 論文標題 Phosphorus compounds in the dissolved and particulate phases in urban rivers and a downstream eutrophic lake as analyzed using 31P NMR	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Environmental Pollution	6. 最初と最後の頁 117732
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.envpol.2021.117732	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計2件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 Tsubokawa, Y., Hafuka A., Shinohara R., Kimura K.
2. 発表標題 Changes in phosphorus species in inflow urban rivers and downstream shallow eutrophic Lake: A case study of Lake Barato in Japan.
3. 学会等名 The Water and Environment Technology Conference Online (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 篠原隆一郎, 田中陽二, 神野有生, 松重一夫
2. 発表標題 霞ヶ浦ではいつ水温が上昇しているのか？
3. 学会等名 日本陸水学会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------