

科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 3 月 31 日現在

機関番号：15401

研究種目：基盤研究（A）

研究期間：2009～2011

課題番号：21241011

研究課題名（和文）瀬戸内海流域での地下水流動及び河川作用を考慮したリン循環の解明とその資源的評価

研究課題名（英文）Determination of phosphorus cycles with groundwater and river discharge processes for evaluating the resource potential of them in Seto Inland Sea Watersheds

研究代表者

福岡 正人（FUKUOKA MASATO）

広島大学・大学院総合科学研究科・教授

研究者番号：70117232

研究成果の概要（和文）：

本研究では、地下水流動及び河川作用（堆積作用）を考慮した短期的～長期的なリン循環の解明を行うとともに、その資源的評価を行うことを目的とした。特に、富栄養化によりリン総量規制対象となった瀬戸内海一級河川流域（芦田川、旭川、大和川）とその沿岸域を対象とし、①沖積平野堆積物および地下水中での数千年スケールでの長期的なリン循環、②農業用堰（小規模ダム）内における数年～数十年スケールでの短期的なリン循環および③沿岸におけるリン再生産及び資源的評価を行った。

研究成果の概要（英文）：

In order to evaluate the potential phosphorus resource on the watershed scale, this research aimed to determine the short to and long terms of phosphorus cycles with groundwater and river discharge processes in Seto Inland Sea watersheds. Especially, we conducted the detailed field investigations in watersheds of Ashida river of Hiroshima Prefecture, Asahi river of Okayama Prefecture and Yamato river of Nara and Osaka Prefectures. Based on the results, we evaluated 1) long term (millennial-scale) phosphorus cycles in the sediment of coastal plain and the groundwater, 2) short term (years to decades) phosphorus cycles in an agricultural dam, and 3) reproduction of phosphorus in the coastal area and its potential for reusable resource.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	22,700,000	6,810,000	29,510,000
2010 年度	6,100,000	1,830,000	7,930,000
2011 年度	6,000,000	1,800,000	7,800,000
年度			
総計	34,800,000	10,440,000	45,240,000

研究分野：環境学

科研費の分科・細目：環境学・環境影響評価・環境政策

キーワード：陸水学・環境変動・リン資源・循環・瀬戸内海・地下水・河川・沖積層

1. 研究開始当初の背景

食糧増産を目指す今世紀において、肥料としてのリンの需要は非常に高い（FAO,2007）。しかしながら、その資源（リン鉱石）は不足し、枯渇の危機に瀕している。一方で、農業

流域においては、肥料由来や生活排水由来の大量なリンの流出が報告されている(図 1)。すなわち、肥料として散布したリンを、浸食などにより下流に流さないように効率的に利用する農学的視点からの研究に加え、水・物質

循環研究、及び新たな資源創出の観点からの資源学的や地球化学的研究が必要である。



図1 リン循環

2. 研究の目的

本研究では、地下水流動及び河川作用（堆積作用）を考慮した短期的～長期的なリン循環の解明を行うとともに、その資源的評価を行うことを目的とした（図2）。特に、富栄養化によりリン総量規制対象となった瀬戸内海一級河川流域（芦田川、旭川、大和川）とその沿岸域を対象とした。

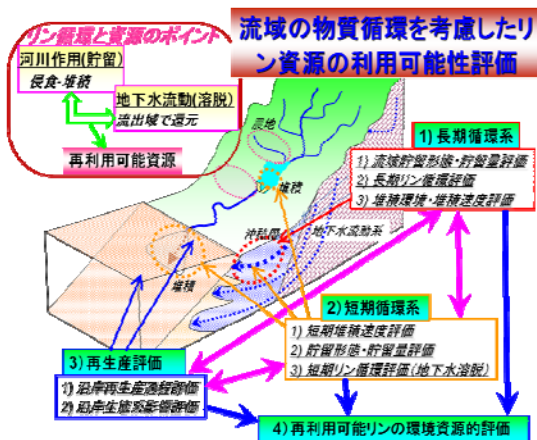


図2 研究目的、計画、内容

3. 研究の方法

①長期的（数千年スケール）なリン循環解明

岡山平野の旭川本流沿いに掘削した4つの地点において採取した、深度6～19mの5つのボーリングコアについて、乾燥減量・強熱減量、帯磁率、XRD分析およびXRF・CNコーダーを用いた化学分析を実施し、堆積物中の粘土鉱物から自然由来のリンについて推定を行った。また、採取後のコアサンプルから間隙水を遠心分離により抽出し、それに加えて、旭川河川水およびコア採取地点に設置された観測孔より採取された地下水の水素・酸

素安定同位体比の測定とイオンクロマトグラフィによる化学成分の分析を行った。

②短期的（1～数十年スケール）なリン循環

ここでは、芦田川水系高屋川中流に位置する農業用堰（新早田堰）を対象とした。この堰は、川幅40m、停滞区間距離875m、平均深度1.2mで貯水量42000m³程度の大きさを持つ農業水利施設である。堰内の水理機構およびリンの動態を把握するため、隔月での水柱の鉛直観測、堆積物中間隙水の水圧モニタリング、堆積物コアの採取を実施した。また、それらの結果を基に水理-生態系物質輸送連結モデルDYRESM-CAEDYM（西オーストラリア大開発）によるリン収支解析を行い、堰へのリン蓄積量および資源量の評価を行った。

③沿岸におけるリン再生産及び資源的評価

沿岸域（内湾、干潟、感潮域）における現地観測（栄養塩・ラドントレーサ・酸化還元イオンモニター、ADCP流速計測など）を行うとともに、ボックスモデル等による栄養塩収支解析に基づく評価を行った。

児島湾・湖では、エクマンバージ採泥器による表層堆積物および押し込み式採泥器による柱状堆積物を採取し、粒度とSEDEX法による5つの形態のリンの分析を行った。また、肉眼による岩層記載、軟X線写真撮影、粒度、²¹⁰Pb年代の分析を行った。

広島湾では、底泥に堆積した有機泥中のリンの存在量を観測によって見積もることを目的とし、音波探査およびコア採泥調査を行った。2010年冬（2/22-24）および秋（10/5-8）の2回にわたり、前者では広島湾北部、後者では広島湾全域を対象に海域調査を行った。

4. 研究成果

①長期的（数千年スケール）なリン循環解明

(1)岡山平野沖積層における自然由来のリンの輸送について鉱物化学的に分析した結果、黒雲母からパーミキュライトへの変質過程とリン含有量との関係が示唆された（表1）。リンを含む黒雲母粒子の変質過程でパーミキュライトが生成される場合は土壤中に吸着されているが、さらに風化が進むまたはパーミキュライトが生成せず黒雲母粒子が分解される場合、リンは溶出し、結果として土壤中のリン含有量は小さくなると考えられる。岡山平野の堆積物中のリン含有量は有機物と相関を有し、またパーミキュライト中に吸着され、およそ1万年前後にそのピークが確認できた。

(2)岡山平野に広く分布する約10mの沖積粘土間隙水中の水素・酸素安定同位体比とCl濃度の関係では、水素の同位体比は地下水と海水の混合線上にほぼ位置するが、酸素の同位体比はその混合線よりも明らかに高いところに位置した。間隙水のClが海水由来と仮定すると、図3より海水と混合する淡水の $\delta^{18}O$ は約

-5.5‰となり、それに対応する天水線上の δD は-29‰であった。これを古陸水とすれば間隙水の δD 値はその混合線よりも低い傾向を示した。粘土間隙水の δD が低い理由として、陸水と海水が出会う過程において、粘土粒子表面でのイオン交換に由来することが示唆されると同時に、この結果は、粘土間隙水に堆積当時の情報が含まれていることを示し、堆積後層間水が安定でその後の時間に比例した反応をしていることが確認できた。

表 1 リン含有量とパーミキュライト含有量の関係

地点・深度 (m)	強度比
P_2O_5 値が高い試料	パーミキュライト : 雲母粘土鉱物
No.A -1.5	2.0 : 1.0
No.B -1.5	1.8 : 1.0
No.B -2.0	2.2 : 1.0
P_2O_5 値が低い試料	
No.C -10.5	1.0 : 1.1
No.C -11.0	1.0 : 1.1
No.C -11.5	1.0 : 1.0

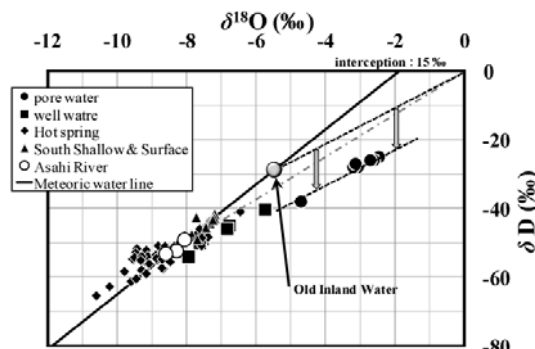


図 3 ボーリングコア間隙水中の δD - $\delta^{18}O$

(3)瀬戸内海沿岸地下水中で認められる高濃度の無機態リンは、人為由来ではなく過去堆積したリン由来であることが示唆された。また、これらのリンの地下水による輸送に関しては、堆積物等が風化・分解し特に還元環境下で溶出するような場合には、高濃度の状態がスポット的に確認されることがあり、結果として、地下水による海域へのリン流出量が河川に匹敵するケースもあることが示唆された。

②短期的 (1~数十年スケール) なリン循環

農業用堰 (小規模ダム) 内のリン蓄積量・速度及び流出速度を分布型流出モデルおよび生態系モデルによって確認した。その結果、10年経過した堰内には流域内への年間リン施肥量の約2年半分に相当するリンが蓄積され、さらに10年経過すると蓄積できなくなる傾向を明らかにした。堰内の水理機構およびリンの動態を明らかにするために行った現地調査の結果、停滞水域内の水質は基本的に上流から流入してくる河川水によって規定されて

いるが、水柱—堆積物間の水・物質交換プロセスによって、堆積物間隙水中に高濃度のリン酸塩が存在することが明らかになった。また、貯水池水理—生態系モデルによる解析結果から、リンの多くは停滞水域内に蓄積したものが堆積と再懸濁を繰り返す、洪水時にその一部が下流へ流されるといった動態であることが示された。正味の負荷量としては、流入量の23%が停滞水域にトラップされ、残りの77%が下流へと流出しており、堰の停滞水域においてリンがトラップされやすいことが明らかになった。さらに、リンの再利用に向けた農業用堰活用の可能性を検証した結果、現在までに堰内に堆積している土砂量を、川幅 40 m×停滞水域区間 866 m×堆積物の層厚 1.2 m×比重 1.5 と仮定して推定すると 62352 t と見積もられ、さらに芦田川の河川堆積物の粘土粒子のリン含有量は 0.068%であったことから、現在の停滞水域内の堆積物中には 42.4 t のリンが蓄積されていると試算された。貯水池水理—生態系モデルによる計算では堰内に堆積する年間の土砂量は 3950 t となり、現在の土砂堆積量はおよそ 15.8 年分と見積もられ、堰が改築されてから 11 年であることを考慮すると、計算結果は概ね一致していた。堰に蓄積した 42.4 t は、高屋川流域内の農地に散布される年間リン肥料量 16.1 t の約 2 年半分に相当することが明らかとなった (図 4)。農業用堰は本来、貯水することを目的として作られているため、堰内が土砂で満杯になる前に浚渫や掘削などの維持管理が必要である。大規模ダムと比較すると堆積物の回収に要する費用面で有利であることから、農業用堰はリンの回収元として有用であると考えられる。

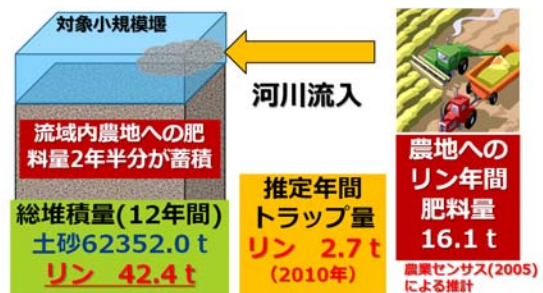


図 4 農業用堰におけるリン収支

③沿岸におけるリン再生産及び資源的評価

(1)児島湖は後背地から供給された栄養塩や有機物が堆積物に蓄積されやすいため、全リン濃度が児島湾よりも高い傾向を示した。また児島湖堆積物表層の Redox sensitive P と Oxide Metal bound P は児島湾よりも高く、貧酸素状態で海底からリンが溶出していることが示唆された (図 5)。また、児島湾・湖の堆積物堆積構造、粒度、 ^{210}Pb 年代にもとづくリン蓄積の長期的変遷を明らかにした (図 6)。

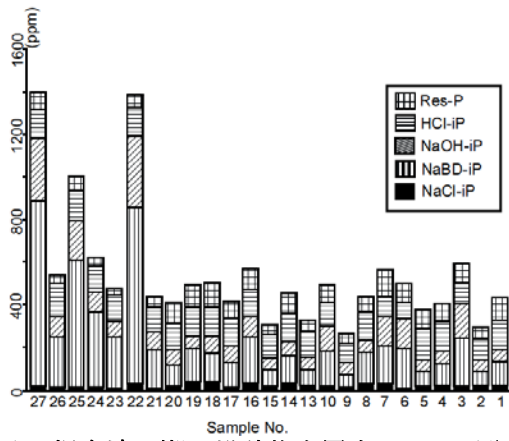


図5 児島湾・湖の堆積物表層中のリン画分 (1~21:児島湾, 22~27:児島湖)

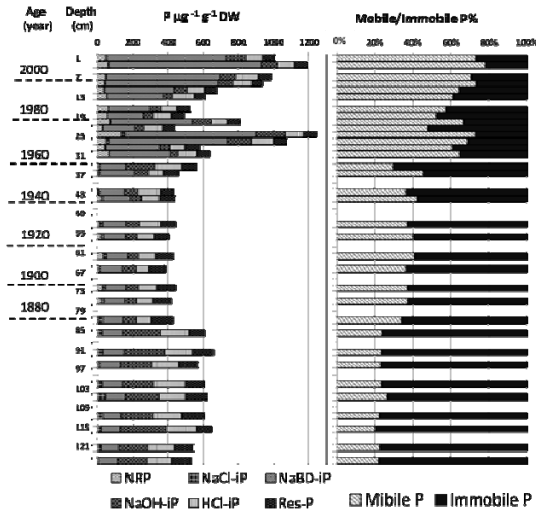


図6 児島湖における堆積物中のリン含有量と推定堆積年代

(2)感潮河川及び大型干潟での観測により、堆積物中からのリン再生産が顕著に起こっていることを確認した(図7, 8). 特に、感潮河川においては、地下水の寄与がわずかに2%程度であるにもかかわらず、リンの地下からの再生産寄与率は50%を超え、その生産には干満にともなう海水の地下への浸透-流出という再循環も大きく寄与することが確認できた。

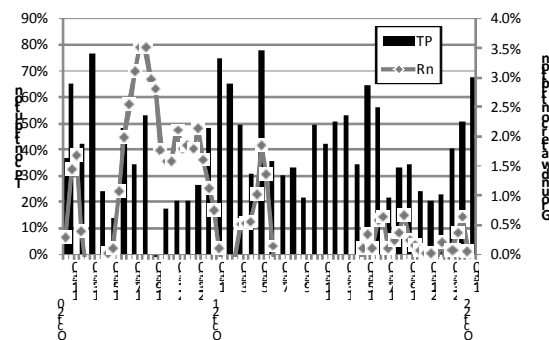


図7 感潮河川における地下水流出寄与 (Rn) 及び地下由来リン再生産寄与率

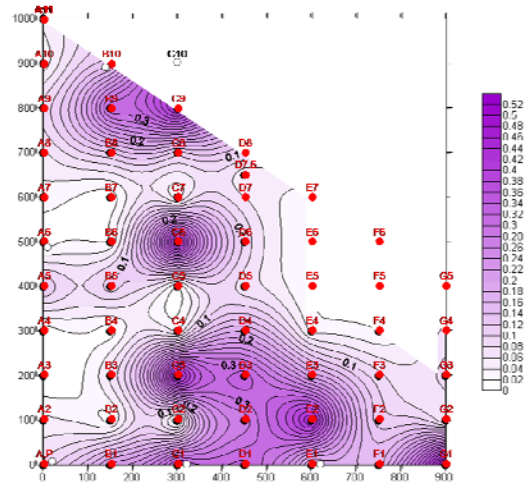


図8 西条市大型干潟(1000m×900m)における間隙水中リン酸濃度分布

(3) 大河入江(広島湾奥部)におけるリン収支解析結果を図9に示す。陸域から大河入江へ流入するDIPの流入負荷は2.4 mol/dayであったのに対し、大河入江の隣に位置する海田湾から流入するDIP量は12 mol/dayと陸域からの5倍に相当した。また、大河入江に流入したDIPの大半がPMA-P, すなわち植物プランクトンの増殖につながり、それらが流入時の2倍の量になって隣の海田湾や広島湾へ流出し、海田湾の有機物負荷の一因となっていると推定された。DOP 負荷は底泥からの溶出、ポンプ場からの流入、植物プランクトンの枯死・分解などによる内部循環の順に大きく、植物プランクトンの死細胞の分解が水柱へのDOP 溶出フラックスの増加に寄与しており、大河入江は DOP においても海田湾や広島湾に対してソースとして働いていることが明らかになった。

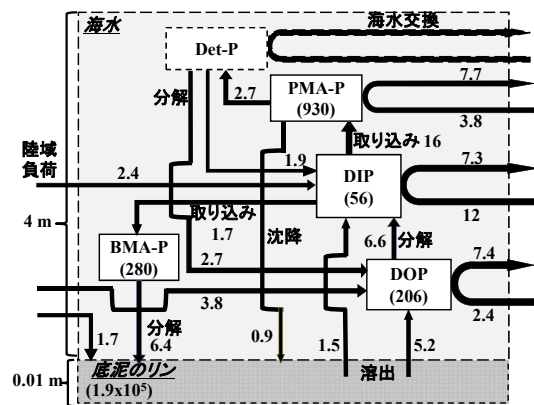


図9 大河入江(広島湾奥部)のリン収支 (ストック: mol; フロー: mol/日)

また、瀬戸内海全域を対象としたリン収支解析の結果、解析期間中の平均DIP 現存量は 10.4×10^3 t Pであり、それに対するDIP 負荷は、

陸域から $6.74 \times 10^3 \text{ t P yr}^{-1}$, 降水により $0.33 \times 10^3 \text{ t P yr}^{-1}$, 底泥からの溶出により $5.17 \times 10^3 \text{ t P yr}^{-1}$ であり, 底泥からのリン供給率が比較的大きいことが示された (図 10).

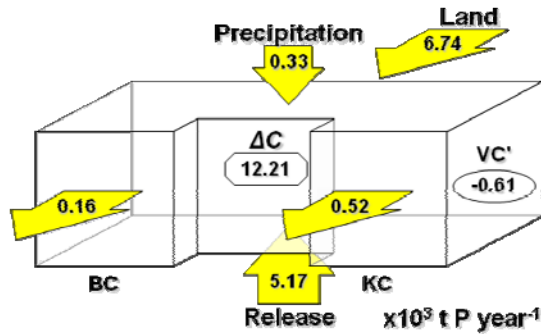


図 10 瀬戸内海全域におけるリン収支

広島湾の底泥に堆積した有機泥中のリンの存在量を観測結果に基づき見積もることを目的とし, 2 回の調査を行った. その結果, 広島湾全域に堆積した有機泥は約 0.28 km^3 (東京ドーム約 230 個分) あり, そこに含まれるリンの総量は約 18 万 t であると推定された (図 11). これは, わが国で肥料として用いられるリンの年間使用量 35 万 t の約 50% に相当する. 広島湾以上に有機物が大量に蓄積していると考えられる東京湾, 大阪湾, 伊勢湾などについても同様の調査に基づく評価が望まれる. さらに, 海底堆積物中のリンを新たな資源として利用するための技術開発が望まれる.

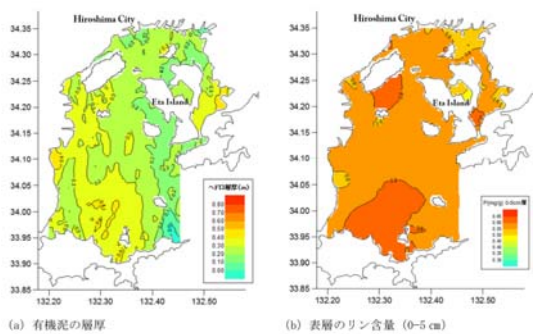


図 11 広島湾の有機泥層厚(a)とリン濃度(b) (2010 年秋季調査結果)

(4) 世界のリン需給におけるリン鉱石と流域自然系資源 (地下水や河床堆積物) のバランス及び今後のリユースの重要性について検討した. 肥料の大部分 (8-9 割) および生活排水から, 合わせて全量の大部分 (8-9 割) が河川へ流出しており, また土壌へは全量の $2/3$ に相当する量が蓄積していると推定されている. 特に生活排水からの汚泥中のリンを効率良く回収できれば, これも国産資源となる可能性がある. リン資源という視点に限定してみれば, 現在～近い将来に大きな問題が発生する

可能性は低い. ただし, 輸入に頼る日本としては, レアメタルの例のように資源保有国の政策の影響を蒙る可能性は残されている. 基本的に, 将来において持続可能な自給自足体制を確立するためには, 一つは国内での未利用分 (製鉄スラグおよび生物廃棄物など) を有効に利用する方策により重点的に取り組むことに加え, 消費の効率化 (農業における改革) を目指すことが必要である.

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 49 件) * 全て査読あり

1. Asaoka, S. ら: Phosphorus mass balance in a highly eutrophic semi-enclosed inlet near a big metropolis: a small inlet can contribute towards particulate organic matter production. *Mar.Poll.Bull.*63, 237-242, 2011.
2. 山本民次ら: 貧栄養化によってもたらされる食物連鎖構造の変化, *水環境学会誌*, 34, 51-53, 2011.
3. 山本裕規ら: 浮遊系-底生系カップリング・モデルによる広島湾北部海域の貧酸素水塊形成に関する動態解析, *水環境学会誌* 34, 19-28, 2011.
4. 齋藤光代ら: 地下水流動は脱窒過程の制御要因か? -現状と今後の課題-, *日本水文学会誌*, 41, 45-52, 2011.
5. Shimizu, Y. ら: Effect of climate change on nutrient discharge in a coastal area, western Japan. *IAHS Publication*, 348, 172-177, 2011.
6. Onodera, S. ら: Effects of intensive urbanization on the intrusion of shallow groundwater into deep groundwater. *Science of The Total Env.*, 407, 3209-3217, 2009.

[学会発表] (計 141 件)

1. 山本民次ら: 広島湾底泥に堆積したリン量の見積もり, 第 76 回陸水学会, 2011 年 9 月 25 日, 島根大学.
2. Shimizu, Y. ら: Nutrient exchange between surface water and subsurface water in ponded shallow agricultural reservoirs of a suburban river. *IUGG*, 2011 年 7 月 5 日, Melbourne Convention and Exhibition Centre, Melbourne, Australia.
3. Jin, G. ら: 100 years variation in nutrient discharge reconstructed, using vertical nutrient profile of sediment in an artificial river mouth lake of Seto Inland Sea, Japan. *IUGG*, 2011 年 7 月 4 日, Melbourne Convention and Exhibition Centre, Melbourne, Australia.
4. Onodera, S. ら: Effect of groundwater discharge and river topography on nutrient component of rivers in Southern Korea. *AGU Fall Meeting*, 2010 年 12 月 17 日, San Francisco, U.S.A.

5. Saito, M. 氏: Characteristics of seasonal NO₃-N discharge by groundwater in a coastal agricultural catchment. AGU Fall Meeting, 2010年12月15日, San Francisco, U.S.A.

〔図書〕(計14件)

1. Onodera, S. 氏: Springer, Effect of Forest Fires on Hydrology and Biogeochemistry of Watersheds, "Forest Hydrology and Biogeochemistry", 2011, 740p
2. Onodera, S.: Springer, Subsurface pollution in Asian megacities, "Groundwater & Subsurface Environment in Asia", 2011, 312p.
3. 福岡 正人: 技術評論社, 『なぞの金属・レアメタル—知らずに語れないハイテクを支える鉱物資源—』, 2011, 231p.

〔その他〕

1. 研究プロジェクトホームページ; 陸域環境研究会管理

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/mtcatwg/big-hands/index.html>

2. シンポジウム, 学会セッション, 研究会の主催・開催

- 1) 地球惑星合同大会スペシャルセッション『流域の水文地質と物質循環』2009年-2011年5月(毎回30件程度), 千葉市幕張
- 2) 2011年9月24日-25日, 日本陸水学会課題講演会『流域圏の物質輸送に及ぼす人間活動の影響』(25件), 島根大学
- 3) 2010年2月20日-21日, 国際シンポジウム『流域環境を探る～過去から未来へ～』, 広島市
- 4) 2010年11月27日, 公開シンポジウム『瀬戸内海流域資源の持続可能性』(陸水物理研究会と共催), 広島大学
- 5) 陸域環境研究会, 毎年5回~10回開催(上記ホームページ)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

福岡 正人 (FUKUOKA MASATO)
広島大学・大学院総合科学研究科・教授
研究者番号: 70117232

(2) 研究分担者

小野寺 真一 (ONODERA SHIN-ICHI)
広島大学・大学院総合科学研究科・准教授
研究者番号: 50304366

佐藤 高晴 (SATO TAKAHARU)
広島大学・大学院総合科学研究科・准教授
研究者番号: 90196246

於保 幸正 (OHO YUKIMASA)
広島大学・大学院総合科学研究科・教授

研究者番号: 80152560

山本 民次 (YAMAMOTO TAMIIJI)
広島大学・大学院生物圏科学研究科・教授
研究者番号: 40240105

地下 まゆみ (JIGE MAYUMI)
千葉科学大学・危機管理学部・講師
研究者番号: 20406804

(3) 連携研究者

清水 裕太 (SHIMIZU YUTA)
広島大学・大学院総合科学研究科・研究員
研究者番号: 50625829

浅岡 聡 (ASAOKA SATOSHI)
広島大学・環境安全センター・研究員
研究者番号: 60548981

天野 敦子 (AMANO ATSUKO)
独立行政法人産業技術総合研究所・研究員
研究者番号: 20467848

大八木 英夫 (OYAGI HIDEO)
日本大学・文理学部地球システム科学科・助教
研究者番号: 50453866

(4) 研究協力者

齋藤 光代 (SAITO MITSUYO)
愛媛大学・沿岸環境科学研究センター・日本学術振興会特別研究員 PD
(2009~2010: 連携研究者)

山本 裕規 (YAMAMOTO HIRONORI)
広島大学・大学院生物圏科学研究科/復建調査設計株式会社

金 広哲 (JIN GUANGZHE)
広島大学・大学院総合科学研究科・博士課程大学院生

大西 晃輝 (ONISHI KOKI)
広島大学・大学院総合科学研究科・修士課程大学院生

吉川 昌志 (YOSHIKAWA MASASHI)
広島大学・大学院総合科学研究科・修士課程大学院生