

4. 底泥からの栄養塩溶出特性

第3章においては、貯水池水から底泥への物質移動量を把握するために行った沈降物に関する調査について記述した。これに対して、本章では底泥から水柱への物質移動量を把握するために行った底泥からの溶出量調査について述べる。

底泥からの栄養塩溶出に関しては、底層水が嫌氣的になり還元的な状況の下で底泥からリンや窒素が溶出してくることが知られているが、これには鉄が酸化環境では非溶解性の水酸化鉄(Ⅲ)化合物となり、底泥表層に薄い酸化層を形成し底泥中から上昇してくるリンの溶出を阻害し、また無機態リンを吸着して蓄積していたものが、還元的環境では可溶性の水酸化鉄(Ⅱ)になることに関係していると考えられている(例えば西条、三田村、1995)。

しかし渡良瀬貯水池におけるリンの収支を見ると、2. 2. 1に述べたように例年7月から9月にかけての低水位時に底泥からのリン回帰が顕著に見られるものの、この期間中の貯水池底層は還元的(嫌氣的)環境にはなっていない(図2-1-4)。また、貯水池底層が最も嫌氣的になる5月下旬から6月上旬(図2-1-4)には貯水池内のリン濃度の上昇は見られず(図2-1-6)、底層の酸化還元条件とリンの回帰量との間には直接的な関係がないため、上記の仮説では本貯水池における底泥からの栄養塩溶出特性を説明することができない。

そこで本章では、本貯水池における底泥からの栄養塩溶出特性の解明を目指して現地での栄養塩溶出量測定結果について述べ、定量的評価も含めた検討を行うことにする。

4. 1 溶出量の現地測定

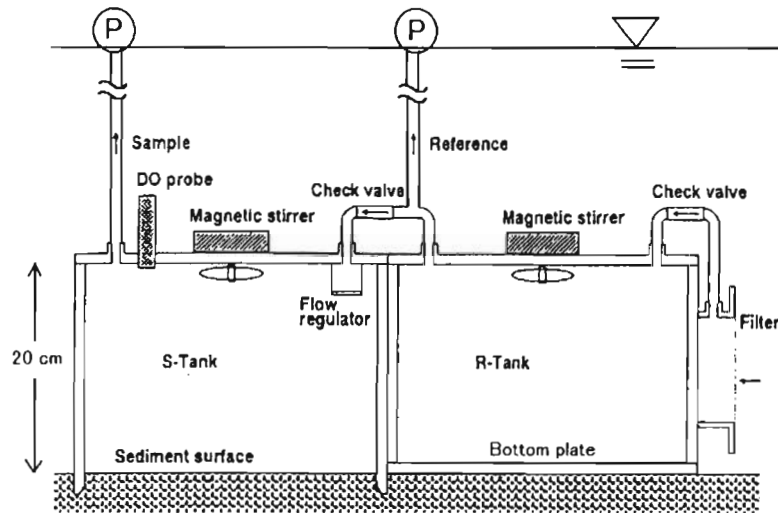
現地における溶出量測定方法は底泥に蓋をかぶせて行うチャンバー実験法がいくつか考案されている(日本海洋学会、1986)が、ここでは、木幡(1997)により開発された直列多槽式溶出測定装置を現地底泥上に設置することで現地における栄養塩の溶出速度を直接測定することを試みた。

4. 1. 1 調査方法

平成11年6月及び8月の2回、木幡により開発された直列多槽式溶出測定装置を渡良瀬貯水池の水底に2台設置し、装置周辺の直上水、槽内の水質変化を測定し、底泥からの栄養塩溶出速度を算定した。図4-1-1に直列多槽式溶出測定装置の模式図を示す。

以下に木幡(1997)に従い、本装置の概略説明を行う。本装置は、チューブで連結された検体槽(図中 S-Tank)、対照槽(図中 R-tank)、ろ過槽の3つの部分からなっている。検体槽は通常のベルジャーと同じように底部が開いたアクリル製筒状容器で、内径29.6cm、厚さ1.2cm、高さ約20cm、内容積は約13.76lである。この容器は底泥上に被せて底泥からの溶出を測定する。検体槽には試料採水用のチューブが取り付けられていて地上で採水ができる。対照槽は検体槽と同様の容器であるが、底部は蓋で閉じられていて、底泥の影響を受けない。対照槽は検体槽と直接チューブで連結されると共に槽内水採取のためのチュ

ープが取り付けられている。ろ過槽は対照槽とチューブで連結されていて、外界の直上水をろ過しながら対照槽や検体槽に連続的に取り入れるためのフィルターをつけた開口部があり、対照槽とチューブで連結されている。また、本装置には検体槽、対照槽から試料を採取する際に槽間の逆流を防ぐため検体槽と対照槽の間と対照槽とろ過槽の間に逆止弁が設けられている。また各槽内水質を均一に保つため槽上部に攪拌子を有する。



図—4-1-1 直列多槽式溶出測定装置概念図（木幡、1997）

本装置による実験では、装置を現場に設置する際に生じた攪乱を受けた直上水を測定実験には使用しない。設置後、底泥環境が安定した後に検体槽に取り付けた採水用チューブから吸引することで外界の直上水をろ過槽、対照槽を経由して検体槽に導入する。十分な量の吸引を行えば、検体槽、対照槽とも外界の直上水とほぼ同様のものに置き換えることができる。この時を測定実験の初期状態とする。この後、数時間毎あるいは1日ごとに検体槽、対照槽の採水口から吸引により試料を採取し、その水質変化から底泥からの栄養塩、有機物などの溶出速度を測定する。

実際の実験では、装置設置後、攪乱された底泥を沈降させるために1日静置した後、検体槽より槽体積の数倍の水をポンプで排出することで、フィルターを通った直上水が検体槽及び対照槽両方を満たす様にした。対照槽は底面が密閉されているため、その水質は実験期間中、底泥の影響を受けない。これに対して、検体槽は、底泥と接触しているため、溶出の影響を受ける。このため、これら2槽の水質変化の差分が溶出量として算出できる。

時刻 t_0 に系を閉鎖して実験を開始し、時刻 t_b に採水を行うまで続けた場合、実験期間 $t_f(s)$ における溶出速度 $f(mg/m^2/d)$ は、それぞれの時刻における検体槽の栄養塩濃度 $C_S(g/m^3)$ 及び対照槽の濃度 $C_R(g/m^3)$ が直接測定されれば次式により求めることができる。

$$f = \frac{V_S \{ (C_S(t_b) - C_S(t_0)) - (C_R(t_b) - C_R(t_0)) \}}{A_S \cdot t_f} \quad (4.1.1)$$

$$t_f = t_b - t_0$$

ここで、 $V_S(m^3)$ 、 $A_S(m^2)$ は、それぞれ検体槽の体積、底面積を表し、また添字 S は検体槽を、

Rは対照槽を表す。

しかし、本装置では対照槽から試料を採取するときには外界水を、検体槽から採水するときには対照槽からも水が流入することを考慮する必要がある。すなわち実際に測定された水質は、この希釈と試料吸引中の溶出の影響を受けている。このため、溶出速度 f は測定された検体槽の濃度 C_m と吸引速度 $Q(\text{m}^3/\text{s})$ を用いて、次式(木幡、1997)で求められる。

$$f = \frac{V_s \{F_s^{dil} (\overline{C_m} - C_R(t_b)) - (C_S(t_0) - C_R(t_0))\}}{A_s \{f_f + V_s (F_s^{dil} - 1) / Q\}} \quad (4.1.2)$$

$$F_s^{dil} \equiv \frac{V_m / V_s}{\{1 - \exp(-V_m / V_s)\}} \quad (4.1.3)$$

ここで、 F_s^{dil} は試料採取量 V_m と検体槽体積 V_s とから定義される無次元値で、希釈率と呼ぶ。上式の誘導については巻末資料(4章分)に記載する。

第1回目の測定は平成11年6月22日より25日までの3日間、1日ごとに採水を行った。6月の実験では、水入れ換え後3日間実験を行ったが、溶存酸素の消費が激しく検体槽において1日で溶存酸素濃度がゼロになったため、8月の実験では水入れ換えを1日ごとに行った。また、入れ換える水の量についても6月には検体槽の入れ替えのために約30lしか吸引しなかったが、検体槽の溶存酸素濃度が周囲の底泥直上水での濃度に比べて低かったことから、8月の実験では入れ換え量を2倍以上に増加させた。表4-1-1に調査日程を示す。2回の調査とも1日目にダイバーにより測定装置を貯水池底泥上に設置し、一晩静置後に水上からポンプを用いて検体槽から水を吸入して装置内の水を入れ換えて実験を開始した。

表4-1-1 調査日程一覧

6月21日	6月22日	6月23日	6月24日	6月25日	6月28日
機器設置	水交換、実験開始	1日経過後採水	2日経過後採水	3日経過後採水、採水後、水交換	3日経過後採水、撤収
8月9日	8月10日	8月11日	8月12日	8月13日	
機器設置	水交換、実験開始	1日経過後採水、採水後、水交換	1日経過後採水、採水後、水交換	1日経過後採水、採水後、撤収	

採水に際しては、まず対照槽から水質分析に必要な水量を採取した後、検体槽から同様に採水を行った。採水の際に現地において透視度、外観、臭気、水温、pH、濁度、DO、ECを計測すると共に、試料を実験室に持ち帰り、全リン(T-P)、オルトリン酸態リン($\text{PO}_4\text{-P}$)、溶存態全リン(D-T-P)、全窒素(T-N)、アンモニア態窒素($\text{NH}_4\text{-N}$)、亜硝酸態窒素($\text{NO}_2\text{-N}$)、硝酸態窒素($\text{NO}_3\text{-N}$)、溶存態全窒素(D-T-N)、懸濁物濃度(SS)、溶存態有機炭素(DOC)及び全有機体炭素(TOC)について測定を行った。

4. 1. 2 調査結果

(1) 栄養塩濃度変化

6月、8月の両調査とも、2台の直列多槽式溶出測定装置を用いて同一条件において観測を行った。6月の実験における水質測定結果を図4-1-2に示す。リン関連、窒素関連、炭素関連の項目について分けてプロットしている。6月の実験では、1号機の設置に問題があったことが分かったため、2号機の結果のみを表示している。図には、計算で求めた溶存態有機リン(D-O-P;=(D-T-P)-(PO₄-P))、懸濁態リン(P-P;=(T-P)-(D-T-P))についての変化も合わせて表示している。リン関連の指標について見ると(図4-1-2(1))、PO₄-P、D-T-Pが検体槽で連続的に濃度上昇していることが分かる。D-T-PのほとんどはPO₄-Pで占められており、溶出したリンの形態はPO₄-Pであると考えられる。また、P-Pの変化を見ると検体槽で高い傾向が見られるものの、変化の方向は一定でなく、採水時の状況により変化が生じたものと考えられる。リンに関しては、槽外、対照槽とも実験期間中の変化は少なく、理想的な実験条件となっていたことが示された。

窒素については両槽および槽外それぞれにおいてT-Nとしては大きな変化は見られなかった。対照槽において、NO₂-N及びNO₃-N濃度の上昇が見られるが、NH₄-Nに比べて濃度の絶対値が低く、顕著な変化とは考えられない(図4-1-2(2))。また、有機炭素については、大きな変化は見られなかった(図4-1-2(3))。

前述したように8月の実験では、1日の実験毎に槽内の水を入れ換えて実験を行った。6月の実験同様にリンに関しては検体槽においてPO₄-P濃度の上昇に伴うD-T-P、T-P濃度の上昇が1号機(図4-1-3(1))、2号機(図4-1-4(1))共に観測された。窒素に関しては、NH₄-N濃度の上昇が2号機の検体槽で見受けられた(図4-1-4(2))。1号機では実験開始時の検体槽におけるNH₄-Nが高かったため、2号機ほど顕著な濃度上昇は見られなかった(図4-1-3(2))。また槽外のNO₃-N濃度が最終日の8月13日に大幅に上昇しており、この影響で対照槽の測定値も上昇している他(図4-1-3(2)、図4-1-4(2))、対照槽において1号機、2号機共にNO₂-N濃度の上昇が見られた点が特徴的であった(図4-1-3(2)、図4-1-4(2))。有機炭素濃度については、6月同様大きな変化は見られなかった(図4-1-3(3)、図4-1-4(3))。

実験において測定された栄養塩濃度等の結果一覧を6月の実験については巻末表4-1-1に、8月の実験については巻末表4-1-2にそれぞれ示した。また、溶出速度の計算に必要な採水時の吸引速度等の一覧を6月の実験については巻末表4-1-3に、8月の実験については巻末表4-1-4に示した。さらに参考資料として実験期間中に現地で計測された水温、pH、濁度、溶存酸素濃度(DO)、電気伝導度(EC)の貯水池鉛直分布測定結果を巻末表4-1-5及び4-1-6に示すと共に、現地において機器計測で求めたDOと実験室において分析したDOの比較を巻末表4-1-7及び4-1-8に示した。

(2) 溶出速度の算定及び考察

式(4.1.2)を用いることで、リン及び窒素の溶出速度を求めることが出来る。検体槽における水質濃度変化から、リンについてはPO₄-P、窒素についてはNH₄-Nが溶出に関与していると考えた。算定された溶出速度の推定値一覧を表4-1-2(PO₄-P)及び表4-1-3(NH₄-N)

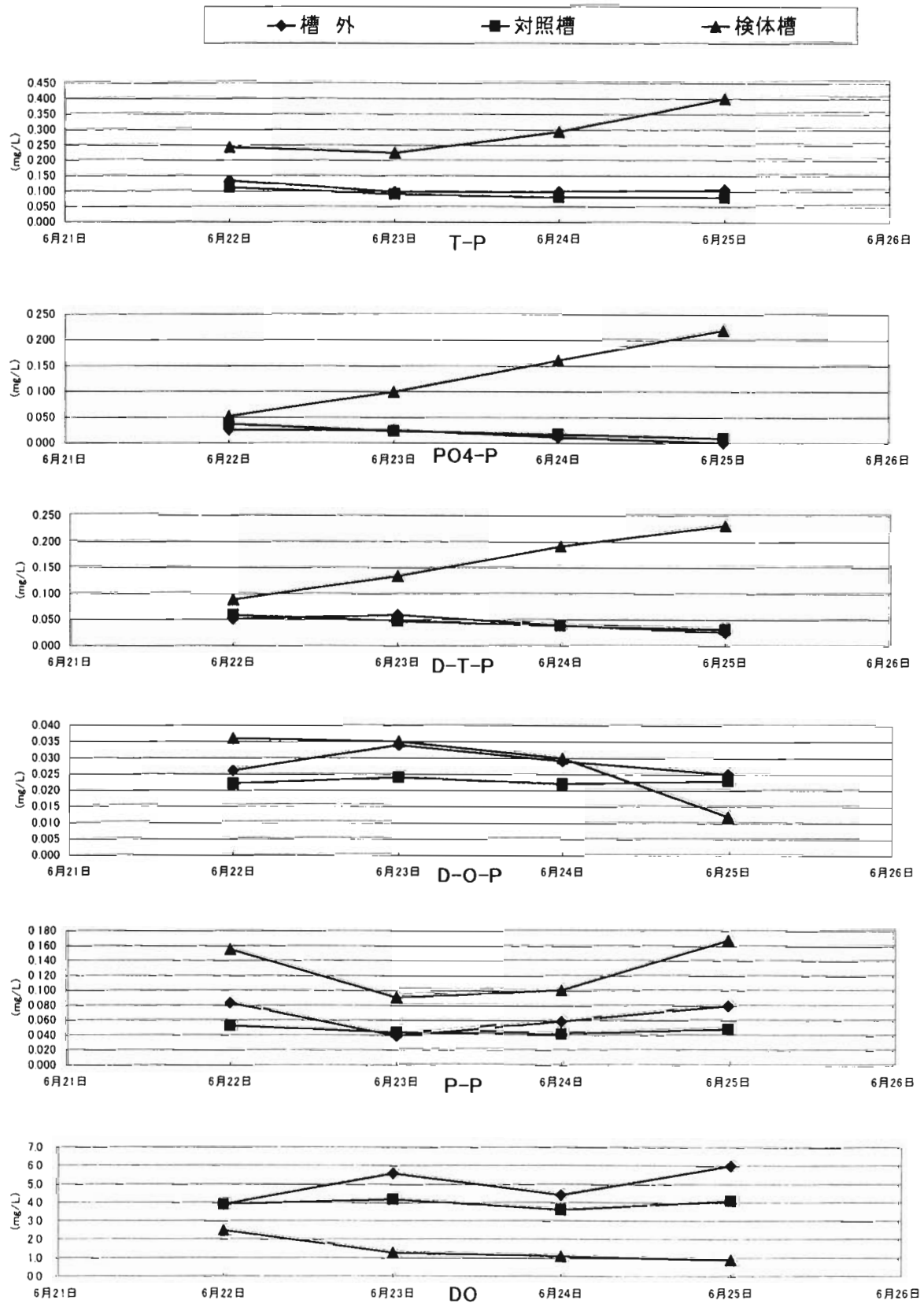


図 4-1-2 (1) リン関連濃度変化(平成11年6月、2号機)

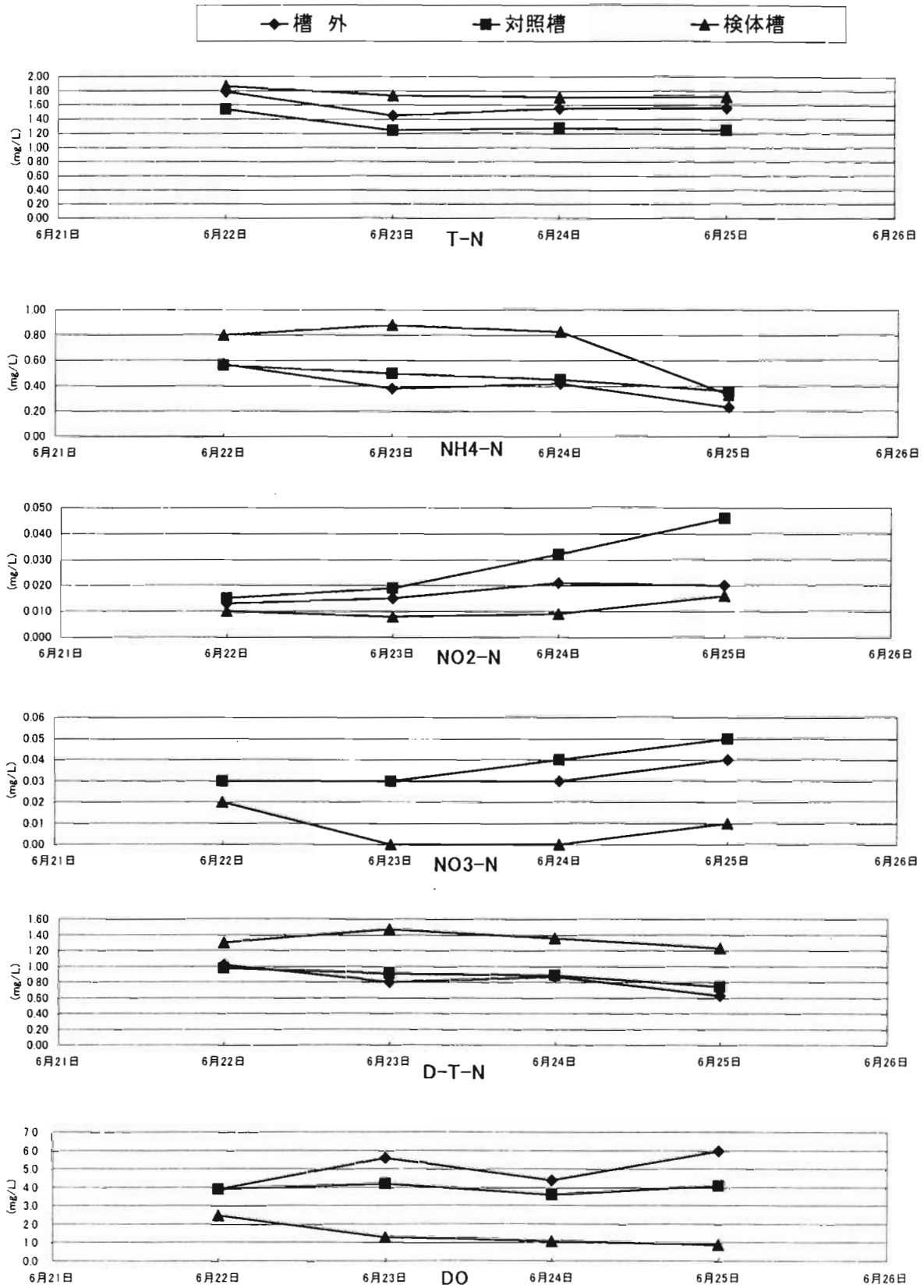


図 4-1-2 (2) 窒素関連濃度変化(平成11年6月、2号機)

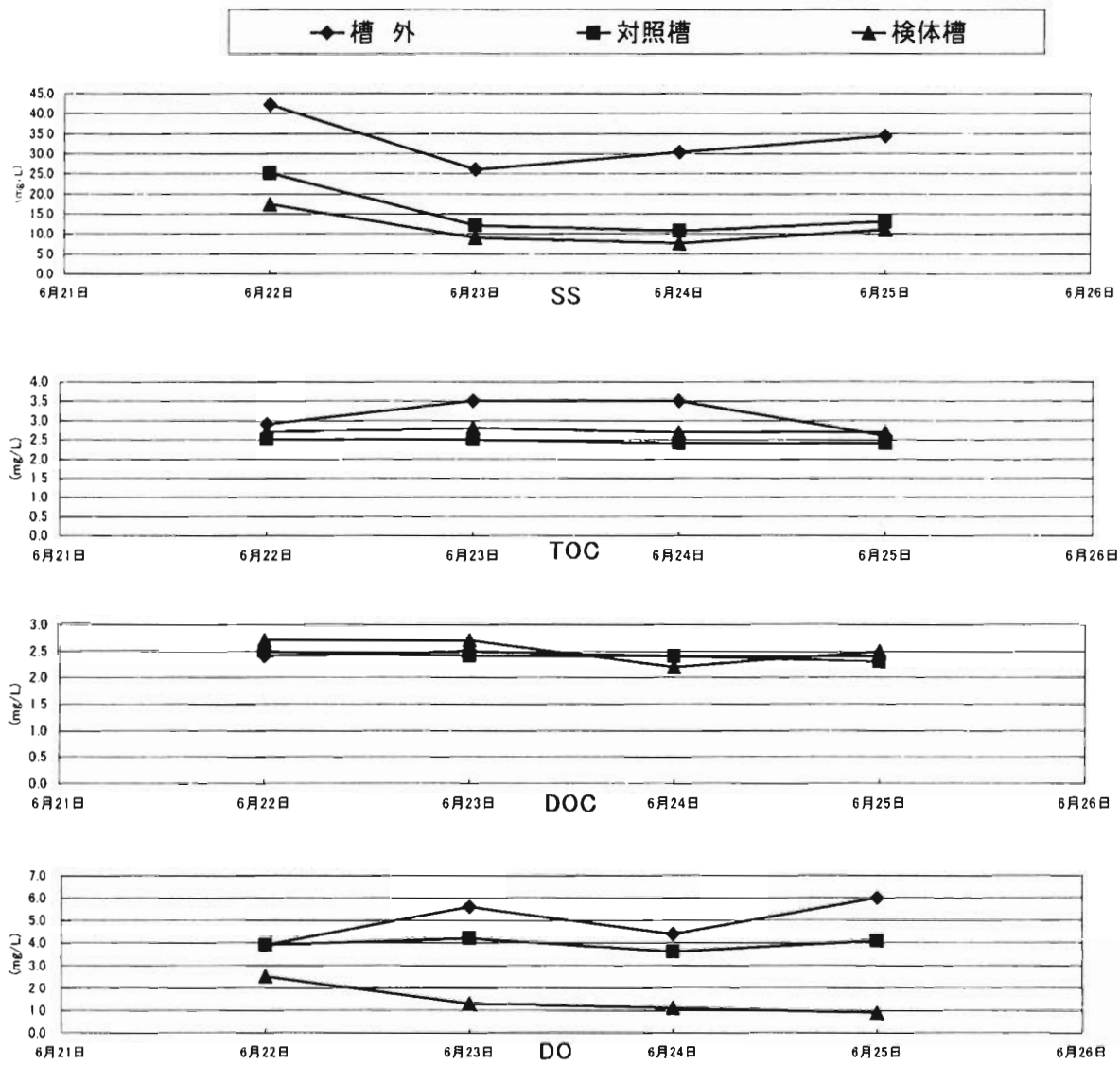


図 4-1-2 (3) 炭素関連濃度変化(平成11年6月、2号機)

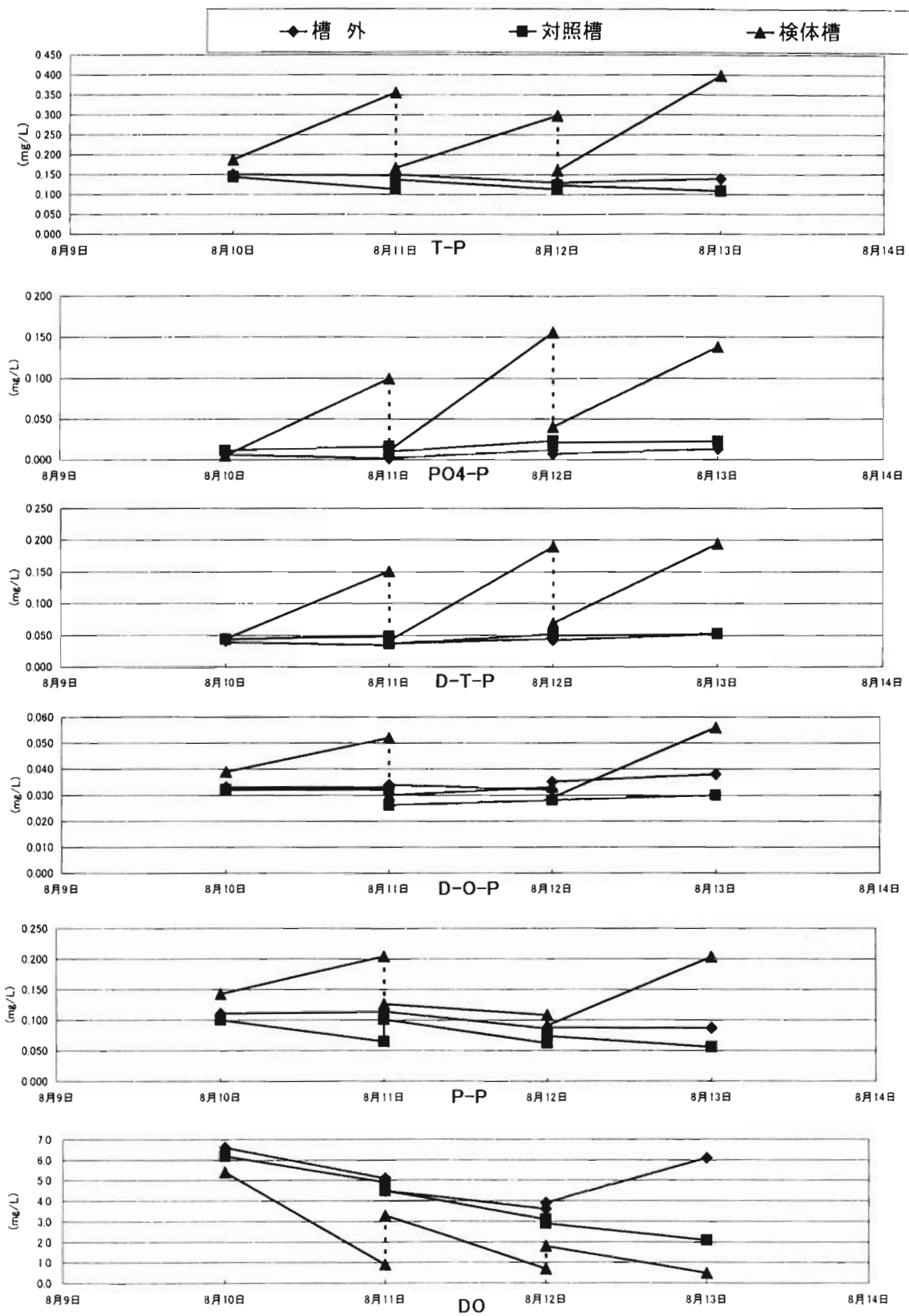


図 4-1-3 (1) リン関連濃度変化(平成11年8月、1号機)

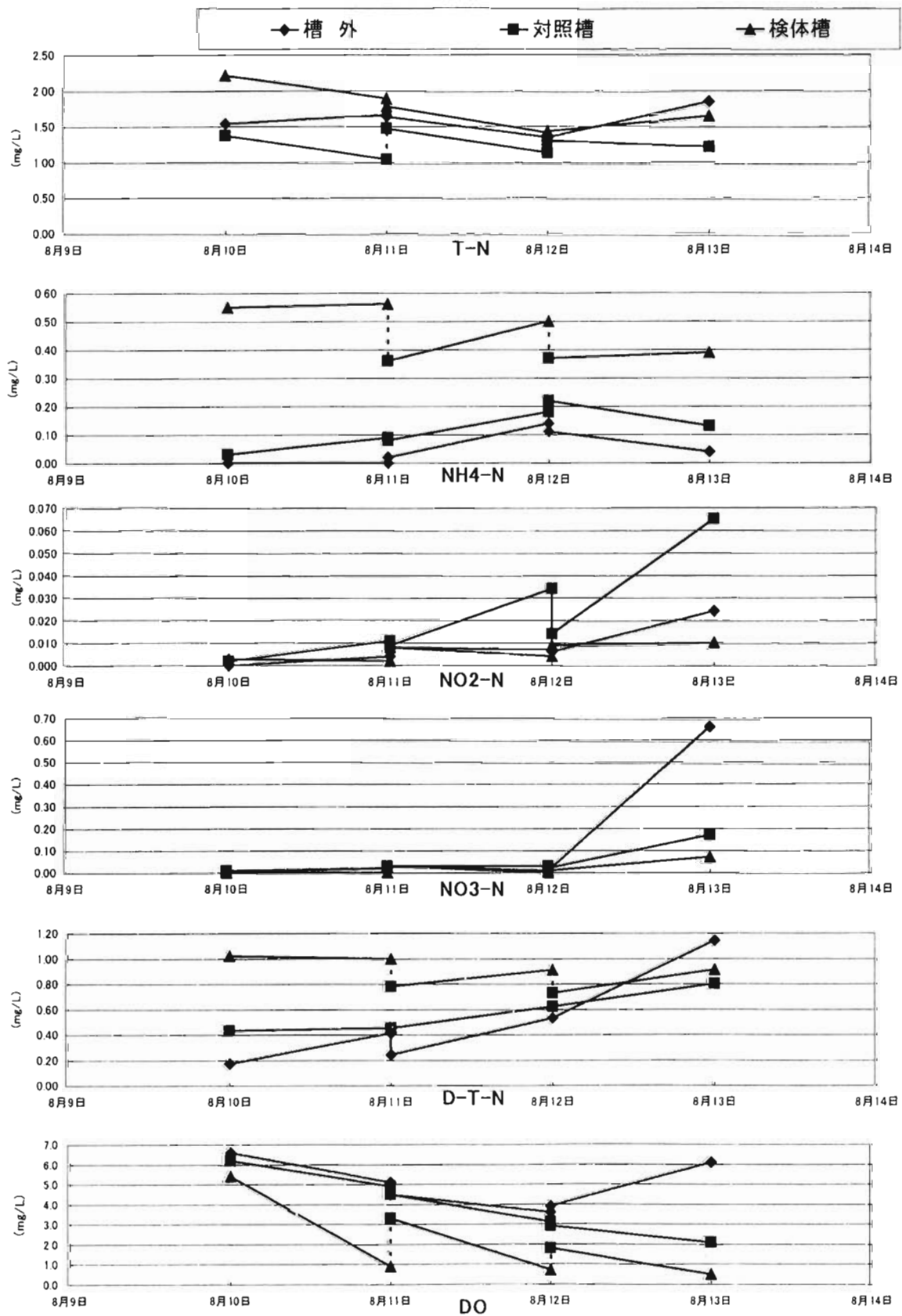


図 4-1-3 (2) 窒素関連濃度変化(平成11年8月、1号機)

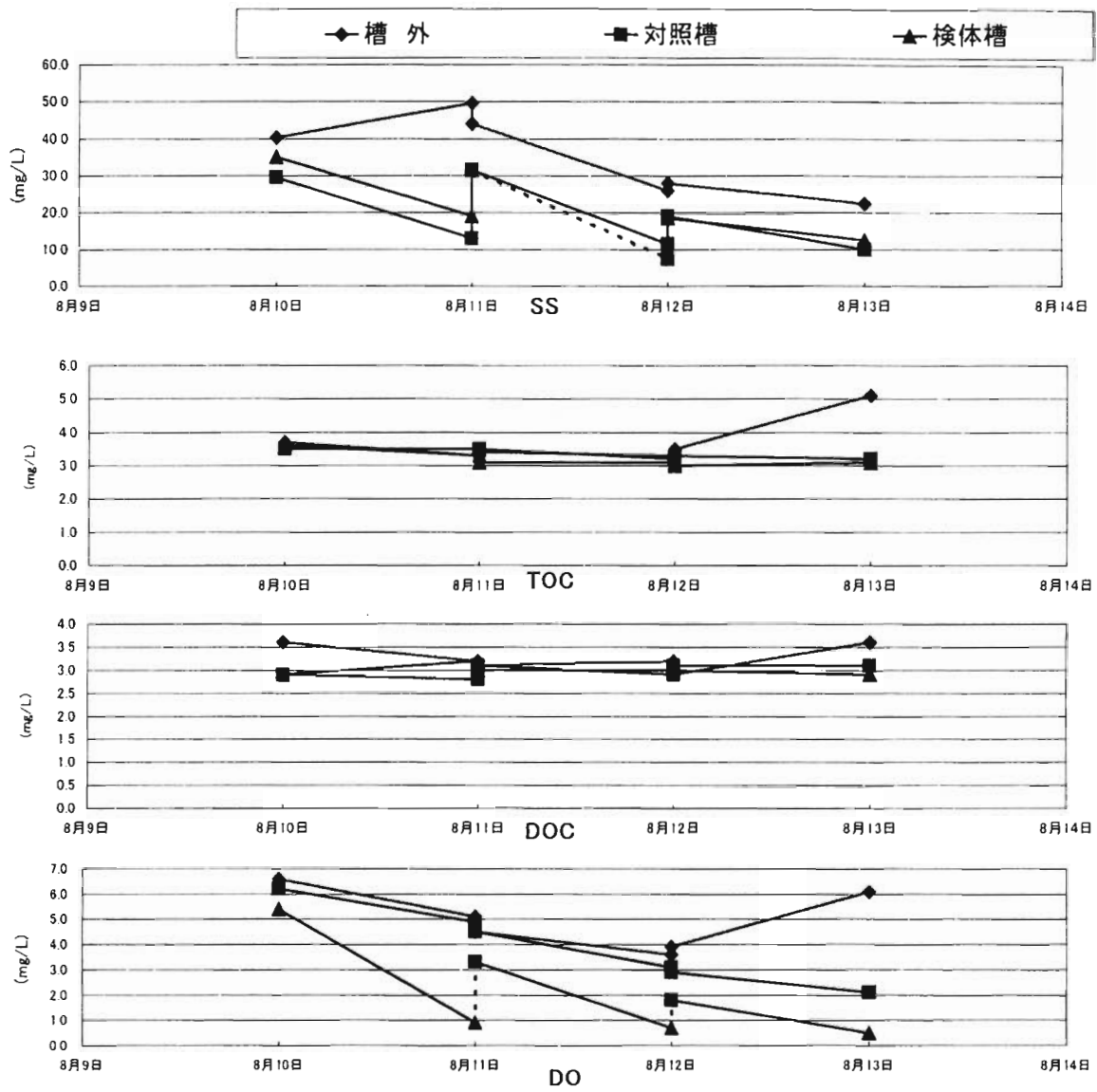


図 4-1-3 (3) 炭素関連濃度変化(平成11年8月、1号機)

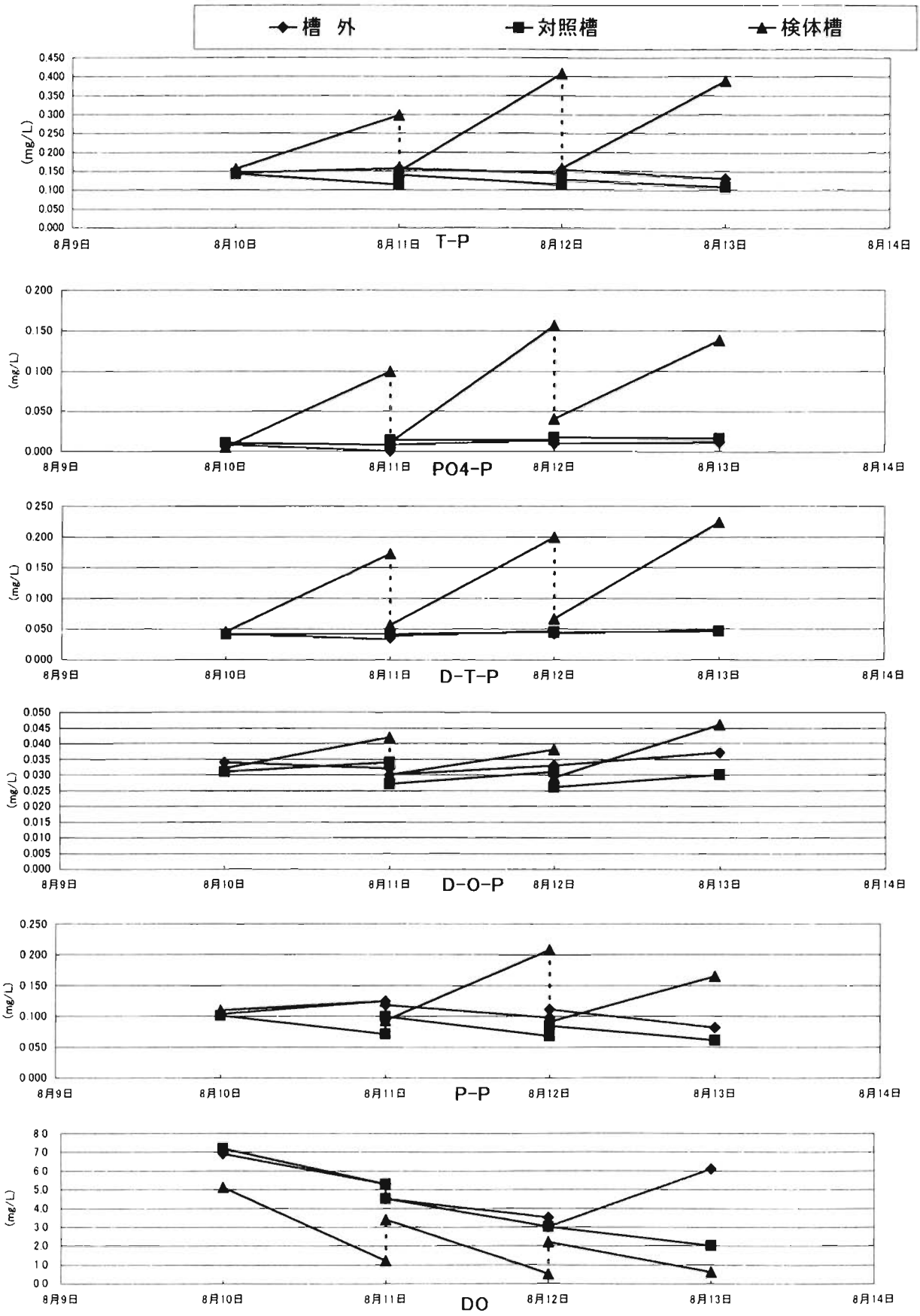


図 4-1-4 (1) リン関連濃度変化(平成11年8月、2号機)

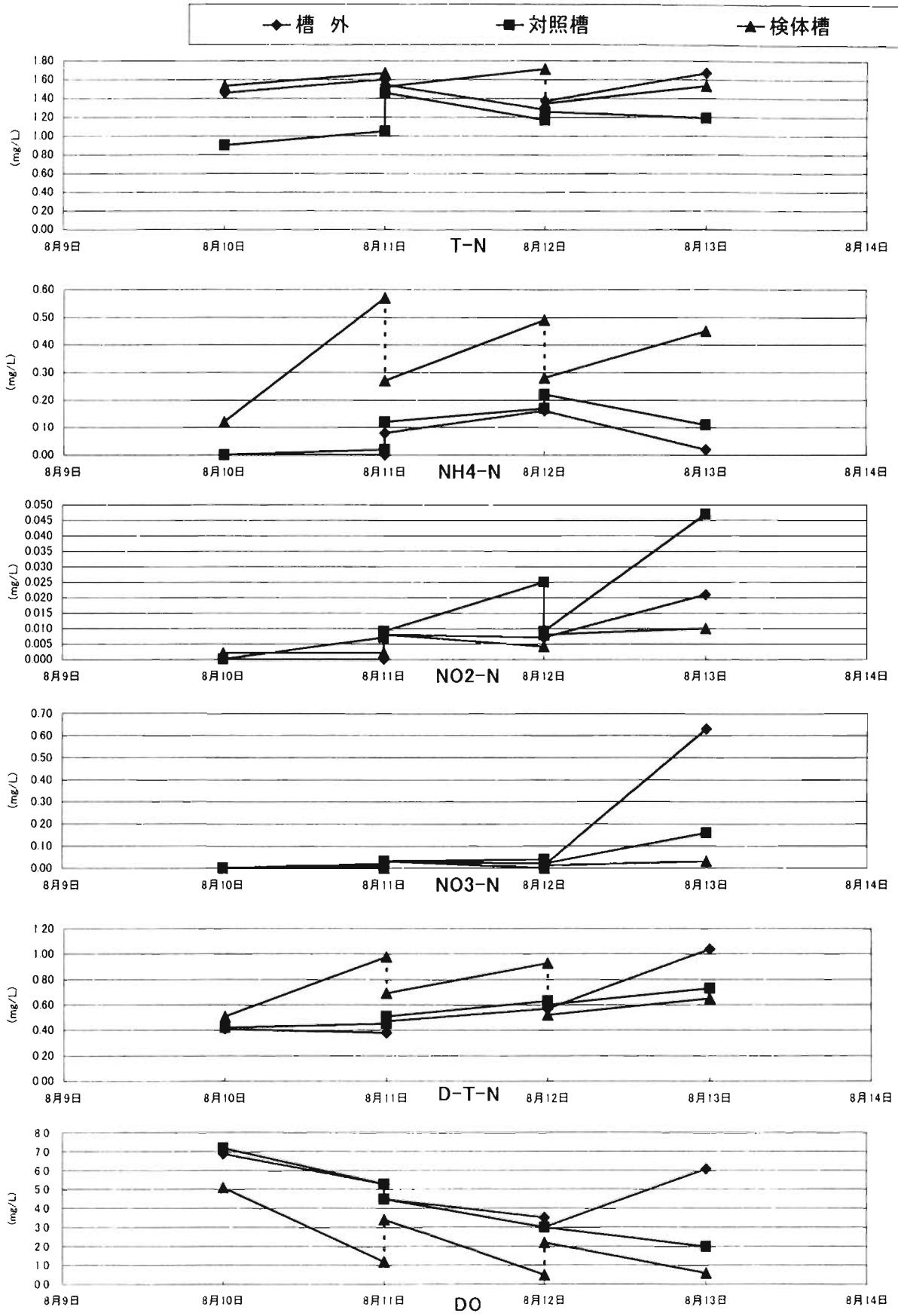


図 4-1-4 (2) 窒素関連濃度変化(平成11年8月、2号機)

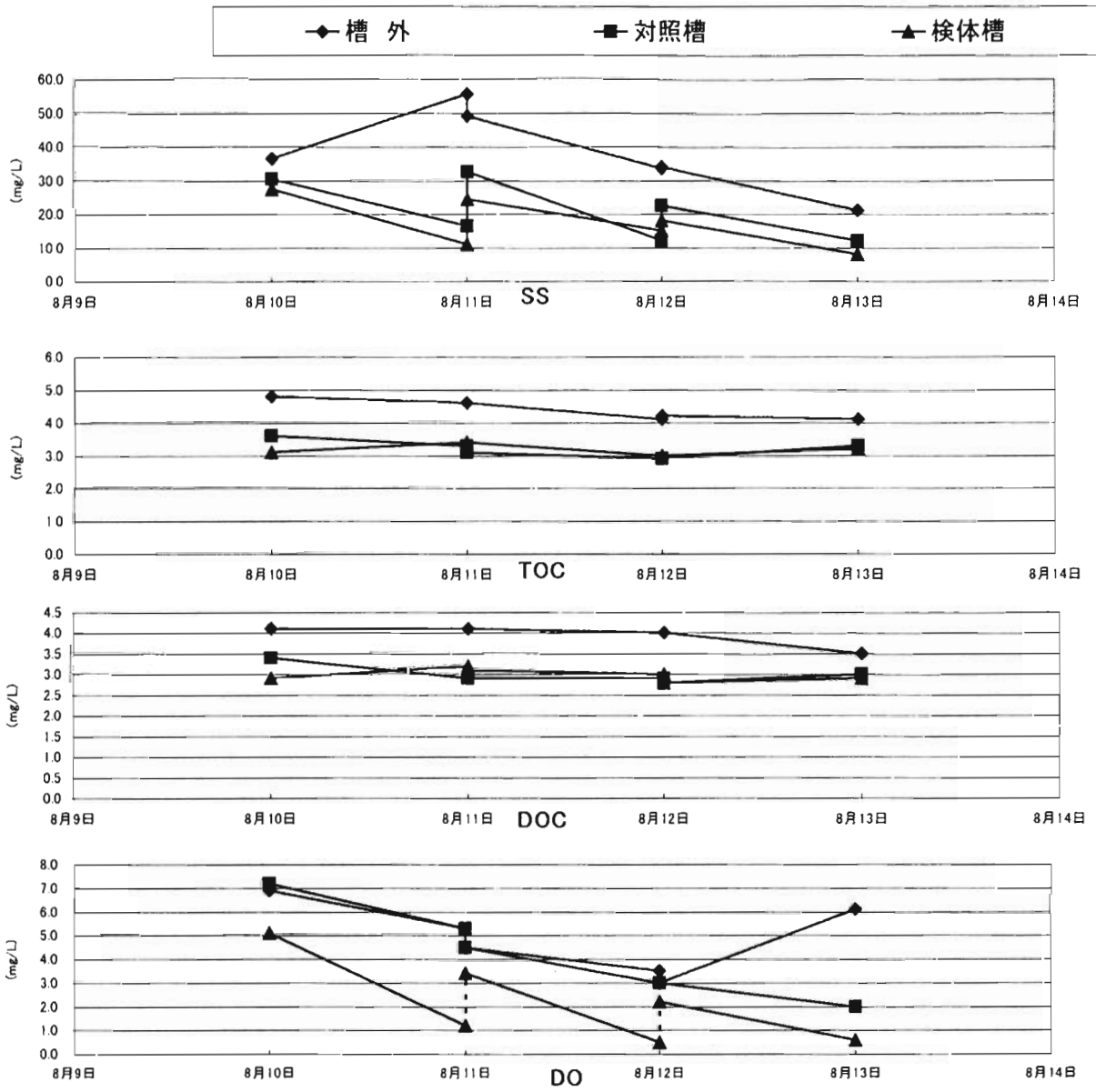


図 4-1-4 (3) 炭素関連濃度変化(平成11年8月、2号機)

に示す。なお、NH₄-N については6月の実験においては溶出が認められなかったため、8月の実験結果のみを対象に計算を行った。

表 4-1-2 PO₄-P の溶出速度算定結果一覧

単位(mg/m ² /d)	平均	最大	最小
6月	18.6	20.4	15.6
8月1号機	26.8	33.6	22.4
8月2号機	36.6	38.2	35.0

表 4-1-3 NH₄-N の溶出速度算定結果一覧

単位(mg/m ² /d)	平均	最大	最小
8月1号機	19.7	32.4	6.23
8月2号機	85.9	130.9	53.6

PO₄-Pについては、安定した実験結果が得られたことから、機差も少なかったが(表4-1-2)、NH₄-Nについては、同様の実験を行った2台の装置間の機差及びそれぞれの装置において3回行った実験の間での差が大きく、ここで求めたNH₄-Nに関する溶出速度の算定結果の取り扱いには慎重に行う必要がある(溶出速度の算定経過について巻末表4-1-9に示す)。

検体槽において6月の実験中に5分間隔で、8月の実験では1分間隔で測定したDO変化を図4-1-5に示す。この図から分かるように、底泥の酸素消費速度は速く、検体槽内は実験開始から比較的すぐに嫌気的環境になっていたことが分かる。底泥の酸素消費速度は8月の実験で135(mg/m²/h)と算定された。酸素消費速度の算定方法については、巻末資料(4章分)及び巻末図4-1-1に記述する。

表4-1-2に示したPO₄-Pの溶出速度は、実験条件から現地において底層水が嫌気的環境となった時の底泥への攪乱がない静置溶出による溶出速度であると考えられる。このため実験環境が好気的であれば、この溶出速度は、はるかに少なくなっていたと考えられる。利根川上流工事事務所による室内実験の結果からは同一条件で採取された試料を用いた溶出速度は、好気的条件下で溶出実験を行った場合、嫌気的条件下での実験に比べて1/10程度に減少することが認められている。

夏季の現地貯水池の底層環境は嫌気的ではないので、底泥への攪乱がなければPO₄-Pの溶出速度は、室内実験の結果を現地に適応可能だとすれば、表4-1-2に得られた溶出速度の1/10程度すなわち1.9~3.2(mg/m²/d)と考えられる。ただし、この値は底泥への攪乱が無い場合の推定値であり、実際の現場では夏季には水位が低下しており底泥への攪乱は強くなっていると考えられるため、実際の溶出速度(回帰速度)は違ったものになると考えられる。

現場におけるT-P濃度の変化は河川との間に水のやりとりがなければ、底泥からの溶出による増加と懸濁態の沈降による減少が相殺された結果と考えられるため、以下に貯水池を単純化したモデルを用いて現場におけるT-P濃度変化と3章で求められた懸濁態の沈降速度をもとに溶出速度を逆算して、上記の溶出実験から得られた値と比較することにする。

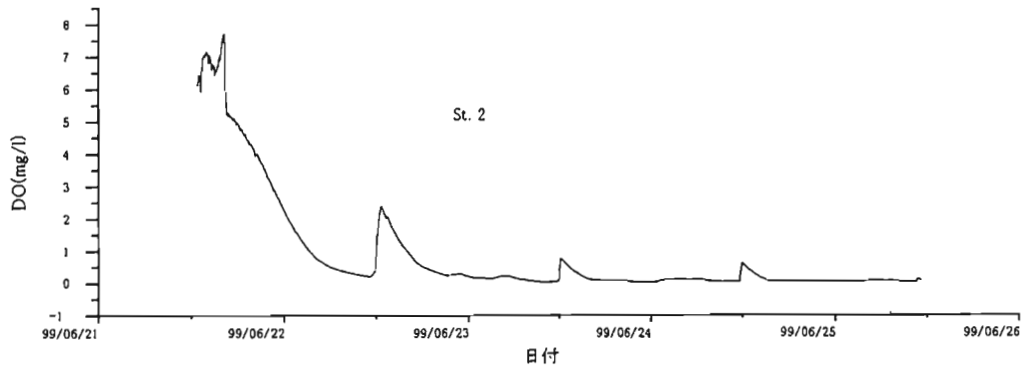


図 4-1-5 (1) 検体槽中の DO 変化 (平成 11 年 6 月、2 号機)

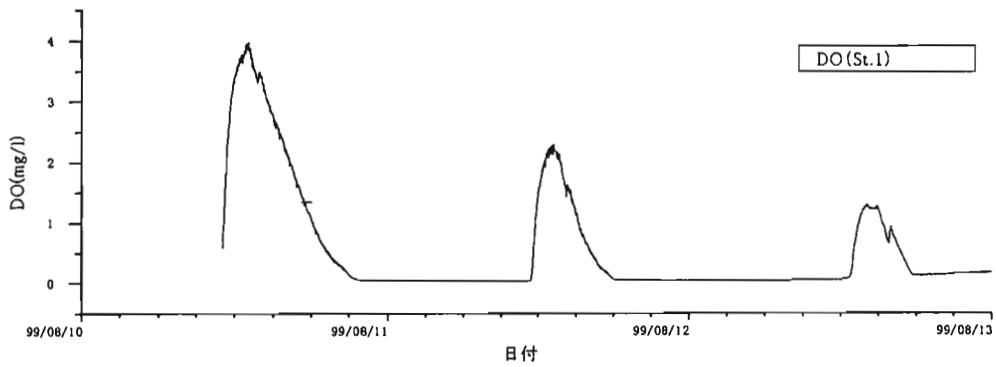


図 4-1-5 (2) 検体槽中の DO 変化 (平成 11 年 8 月、1 号機)

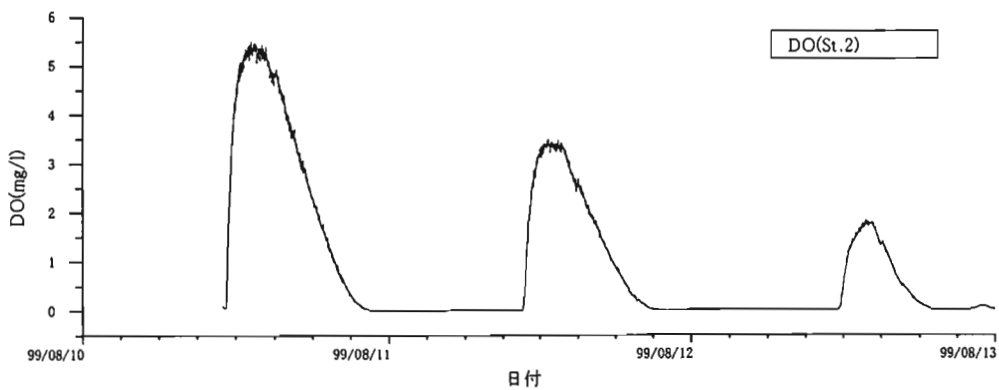


図 4-1-5 (3) 検体槽中の DO 変化 (平成 11 年 8 月、2 号機)

沈降物の測定を行った平成11年の秋期から冬期において、貯水池への河川水の流入がなくなり水質的に変化が緩慢になった11月下旬から、逆に放流が始まった平成12年の1月中旬にかけては、栄養塩類（特にリン）に関して外部との物質のやりとりがほとんどなく、貯水池水質変化は貯水池水及び底泥との間での変化に支配されると考えられる。

リンについては、この期間中溶存態リンが検出限界以下のレベルであり、T-P濃度は懸濁態のリン濃度にほぼ等しいと考えられる。期間中河川との水のやりとりが無い場合、この間に観測されたT-P濃度の減少は懸濁物の沈降と溶存態として底泥から回帰したリンを植物プランクトンが摂取して新規に生産される懸濁態リンとの差に起因するものと考えられる。ここでは、貯水池を一つよく混ざった水塊と仮定して物質収支式を立てて、今回の現地観測から得られた新生懸濁物沈降速度の値により、上記の期間における本貯水池における水質変化が説明しうるかについて考察する。本貯水池の水質特性は強い成層が形成されず、混合が進んだものであり、完全混合型のモデルでも一次的な検討としては有効である。

水中に存在するPについては、上記期間中、懸濁態がほとんどであることから、T-Pの値は懸濁態濃度に等しいとすると、貯水池水柱に存在するリン濃度の変化は、次式で与えられる。

$$V \frac{dC}{dt} = R \cdot A - C \cdot w \cdot A \quad (4.1.4)$$

ここで、 $V(\text{m}^3)$:貯水池容量、 $C(\text{g}/\text{m}^3)$:リン濃度、 $R(\text{g}/\text{m}^2/\text{d})$:底泥からの平均リン溶出量、 $A(\text{m}^2)$:貯水池底面積、 $w(\text{m}/\text{d})$:懸濁態リン平均沈降速度

上の式は、 V, R, A , 及び w が一定であれば解析的に解くことができる。平成11年11月24日から平成12年1月12日にかけては貯水池水量の変化がほとんどなかったため、 V 及び A については一定と見なすことができる。ここでは、計算の簡単化のために平均回帰量、沈降速度も一定という仮定をおいて式(4.1.4)を解く。変数分離法によって式(4.1.4)は次式のように変形される。

$$\frac{dC}{R - C \cdot w} = \frac{A}{V} dt \quad (4.1.5)$$

この両辺を積分することで、この解は初期濃度を C_0 として式(4.1.6)で表される。

$$C = \frac{R + (C_0 \cdot w - R) \cdot \exp(-w \cdot t/h)}{w} \quad (4.1.6)$$

ここで $h(\text{m})=V/A$:平均水深である。

平成11年11月24日を初期値として、 w については、今回の現地観測から推定された新生懸濁物の沈降速度 $0.62(\text{m}/\text{d})$ を、 h については、計算対象期間の水深 $6.5(\text{m})$ を代入し、 R については $0, 20, 25, 30(\text{mg}/\text{m}^2/\text{d})$ の4通りの値を代入して計算した。これらの計算値と実測されたT-Pの変化を比較したのが図4-1-6である。

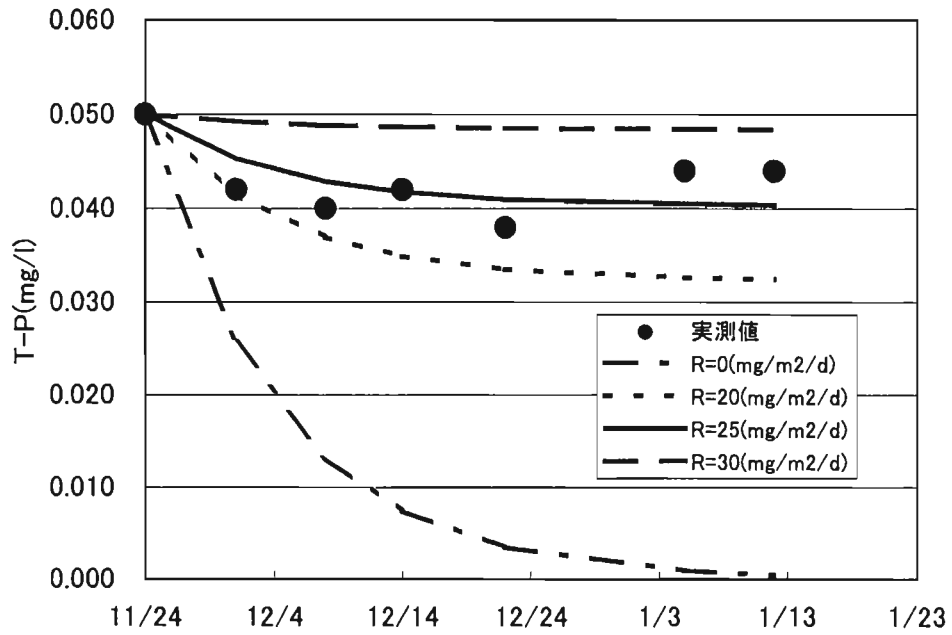


図 4-1-6 冬季の T-P 変化の実測値と計算値の比較

この図から新規生産物の沈降速度が 3 章での検討から得られた $0.62(\text{m}/\text{d})$ を用いると $25(\text{mg}/\text{m}^2/\text{d})$ 程度の回帰が起こらない限り実測値の変化を説明し得ないことが分かる。計算対象とした期間が冬期で微生物の活性が余り高くなく、底層環境が好氣的であったことを考えると、底泥からのリン回帰速度として $25(\text{mg}/\text{m}^2/\text{d})$ という値は、現地における攪乱を受けた底泥からの溶出速度と考えるべきであると思われる。

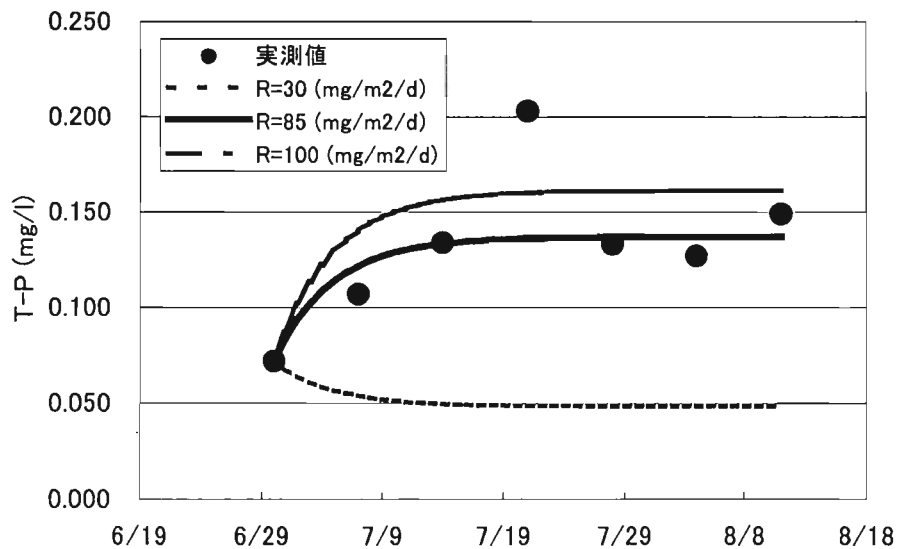


図 4-1-7 夏季の T-P 変化の実測値と計算値の比較

また、平成 11 年は 6 月初旬に放流による水位の低下が始まっている。水位低下は 6 月の終わりに完了し、8 月中旬まで水深は 3m に維持されていた。平成 11 年 6 月 30 日から 8 月 4 日の間には貯水池と河川との間の水のやりとりはほとんどなく、この間の貯水池 T-P

濃度は 0.07 から 0.13(mg/l)に上昇していた。上記と同様の計算を行った結果、新規生産物の沈降速度 0.62(m/d)を仮定すると夏季の水位低下時に貯水池 T-P 濃度が上昇する期間における底泥からのリン回帰量は約 85(mg/m²/d)程度なければならないことが示された(図 4-1-7)。

R については、平成 11 年 6 月の現地試験で求められた嫌気的環境における静置溶出による値として 18.6(mg/m²/d)、同 8 月に求められた値が 31.7(mg/m²/d)という推定値があるが、好気的環境での静置溶出は上記の様にさらにこれらの 1/10 程度と推定されて 1.9~3.2(mg/m²/d)と推定される。現地の T-P 濃度の変化から逆算した R は 85(mg/m²/d)であり、好気的環境における静置溶出速度の推定値 1.9~3.2(mg/m²/d)の 30 ないし 40 倍の値を示す結果となった。

Søndergaard ら(1992)は、デンマークにおける富栄養化した湖沼における巻き上げに伴う底泥からのリンの負荷は 60~70(mg/m²/d)で、これは攪乱を受けない底泥からの 20~30 倍の量であるという研究結果を示している。今回の検討で求められた夏季のリン回帰速度 85(mg/m²/d)は彼らの求めた巻き上げに伴う底泥からのリン回帰速度と近い値であり、また攪乱を受けない場合の 30~40 倍であるという推定も彼らが求めた比と類似の結果となった。ここでの考察から、現場における底泥からのリン負荷量は、静置溶出の形ではなく、巻き上げなどの物理的攪乱に大きく左右されている可能性が示された。

現地における水中懸濁物(SS)の定期調査結果について、式(3.2.1)を用いて新規生産物と巻き上げ由来の成分に分離して貯水位変動と比較した結果を、クロロフィル-a 濃度の変化と共に図 4-1-8 に示す。水位低下時に巻き上げ由来の懸濁物が増える傾向を示しており、特に 6 月下旬から 7 月初旬にかけて巻き上がりが激しく、この期間はクロロフィル-a 濃度が下がっている。この期間中、底泥から供給されたと考えられる水柱栄養塩濃度は PO₄-P で 0.01~0.02(mg/l)、NH₄-N で 0.2~0.4(mg/l)と高い値を示しており(図 2-1-6, 2-1-7)、巻き上げによる栄養塩供給と濁りが上昇することによる植物プランクトン成長に対する光制限の複雑な影響を示唆するものであった。6 月下旬から 7 月初旬にかけては水位低下に伴い底泥の巻き上げが盛んに起こり、これにより水柱に溶存態の栄養塩が大量に供給されると考えられる。一旦クロロフィル-a 濃度は下がるものの、この栄養塩は植物プランクトンに摂取されて夏季のクロロフィル-a 濃度の最大値の原因となると考えられる。

この期間中に見られた急激な栄養塩濃度の上昇は Hamilton and Mitchell(1997)により指摘されている間欠的という巻き上げに伴うリン供給の特徴を示すものと思われる。このため、6 月下旬から 7 月初旬にかけての水柱における無機溶存態栄養塩濃度(特に PO₄-P と NH₄-N)は、底泥への物理的攪乱により引き起こされたものと考えるのが妥当と考えられる。

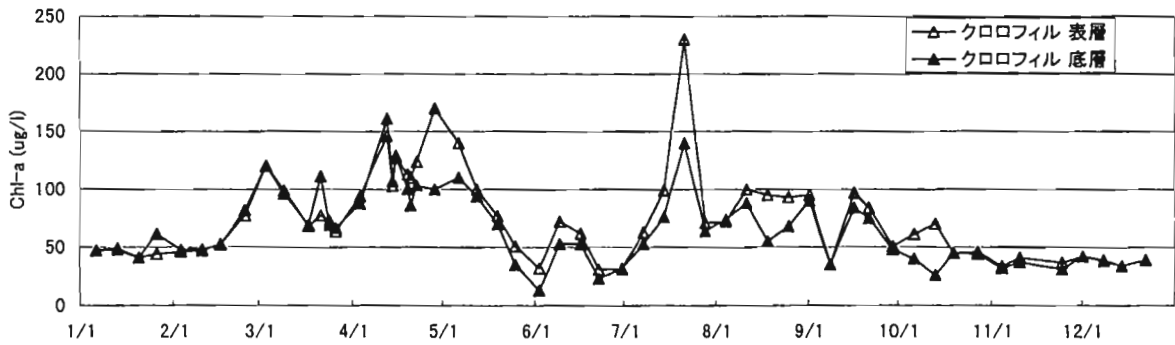
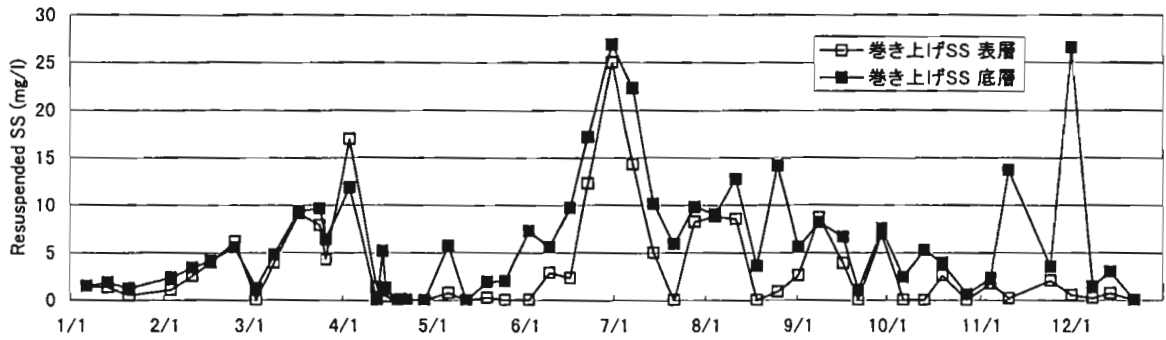
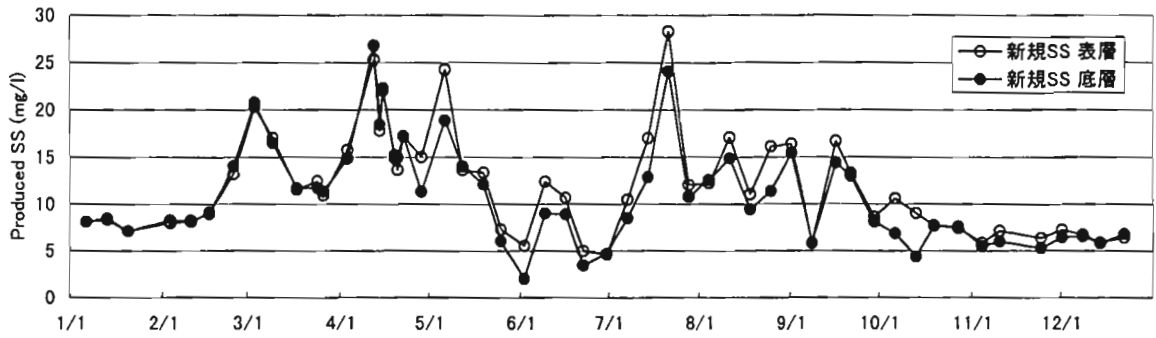
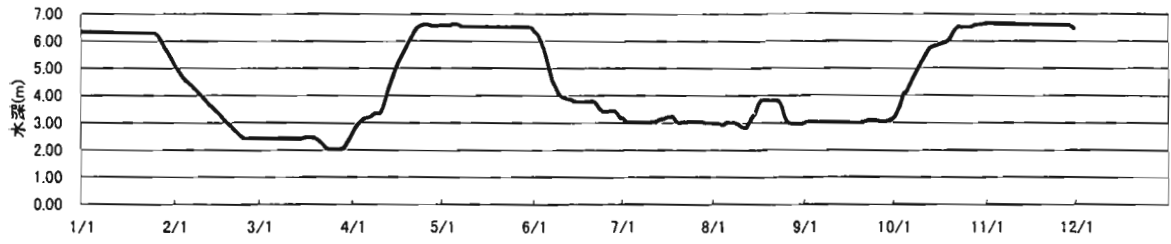


図 4-1-8 年間を通しての懸濁物濃度とクロロフィル-a濃度の変動(平成11年)