湖沼の富栄養化に及ぼす底質内栄養塩類の影響 —諏訪湖底質中の栄養塩類の分布特性とその挙動—

The Effects of Nutrients in the Lake Sediment on Eutrophication of Lakes
— Features in the distribution of nutrients in the sediment
of Lake Suwa and their behavior —

長野県衛生公害研究所

河 野 行 雄

Yukio Kono

Nagano Research Institute for Health and Pollution, Nagano

During the period from May 1978 to March 1983, research was conducted on the features of horizontal and vertical distribution of nutrients contained in the sediment of Lake Suwa. Laboratory experiments were also conducted to reveal the behavior of the nutrients in the lake sediment. The following are the findings:

Total phosphorus and nitrogen contents were found to be horizontally distributed in the surface sediment almost uniformly throughout the lake except for the estuary and carp-cultivating areas. Their constituent values are represented by the measurements taken in the surface sediment at the center of the lake. The values of total phosphorus and nitrogen contained in the surface sediment at the center of the lake were 3.7-4.0 mgP/g dry wt. and 5.0-5.5 mgN/g dry wt., respectively.

Total phosphorus contents had rapidly increased during the period from 1972 to 1978. This is considered to have been caused by an increase in the phosphorus load flowing into the lake and its property to accumulate itself. Therefore, the amount of phosphorus contained in the lake sediment is expected to keep increasing in the future in proportion to the load of phosphorus flowing into the lake. However, such property has not been found with the nitrogen contents. It is therefore considered that nitrogen will maintain the current concentration level in the future.

A high correlation was observed between the total phosphorus and the inorganic phosphorus in the surface sediment; 60%-80% of the total phosphorus was found to be inorganic phosphorus. Fe-P contained in the inorganic phosphorus was found to be highly concentrated in the upper layer (0-8 cm) of the sediment. Fe-P showed a tendency to decrease in the 0-2 cm layer after ten weeks of laboratory experiments as some of it had apparently dissolved out into the upper water layer. However, the amount of Fe-P increased in the 2-6 cm layer. From these observations, it became clear that Fe-P had moved up from the lower layer of the sediment to the upper.

A close correlation was found between the density of ammonium in the sediment and the temperature of the sediment. The relationship between the speed at which ammonium is generated and the temperature of the sediment is shown by the following formula:

$$\text{GNH}_4\text{-N} = 0.018 \exp 0.153T + 0.427$$

Key words: Lake pollution, Eutrophication, Lake sediment, Phosphorus, Nitrogen
湖沼汚濁, 富栄養化, 底質, リン, 窒素

緒 言

閉鎖性水域における富栄養化の進行は、環境及び利水状況にさまざまな障害を生ぜしめる。湖水の富栄養化による被害には、観光資源としての価値の低下、水産資源への障害、水道、農業等の水源利水の被害などがあげられる。このように富栄養化現象は、大きな社会問題となり、水質保全の観点から各分野で調査研究が実施されているが、そのメカニズムの解明と防止対策及び汚濁除去方法の樹立にまでは未だ至っていない。

一般に、浅い湖沼では、底質圏とその上層水圏の間で栄養塩の相互移動があり、富栄養化に及ぼす底質の影響が大きいものと考えられている¹⁻³⁾。また湖沼浄化のために、排水の流路変更及び高度処理によって、栄養塩の流入量を削減したとしても、底質から溶出した栄養塩によって予期した水質回復が得られないという報告^{4,5)}があり、湖沼の富栄養化を論ずる場合、底質からの影響を無視することはできない。

底質は、水質よりも不均一で地点間の差が大きく、しかも湖沼の違いによって、その生物、化学及び物理特性が大きく異なる。従って対象とする湖沼の底質による内部負荷の評価あるいは底質の除去対策を行うためには、それぞれの湖沼で底質に関する基礎的な資料を収集し、底質内における栄養塩の挙動について把握する必要がある。また底質内の有機物質の無機化及び無機栄養塩の挙動は温度と密接な関係を持っている。しかし、底質の詳細な温度分布あるいは底質内の栄養塩の生成速度と温度に関する検討は殆どみられない。

本報では、諏訪湖を例にとり、生物活動と密接な関係を持っている底質の温度特性及び底質に存在する栄養塩の水平及び鉛直分布特性を把握すると共に、室内実験により底質内における栄養塩の移動及び生成について検討した。

諏訪湖の概況

諏訪湖は長野県の中央部(東経136度, 北緯36度, 標高759 m)に位置し、流域面積は531.2 km², 湖面積は13.3 km², 貯水量は63.65×10⁶ m³, 平均水深は4.7 m(最大6.8 m)の高地淡水湖である。

湖の周囲には諏訪市、岡谷市及び下諏訪町が位置している。これらの都市には有名な温泉町が含まれており、観光人口も多く、過去においては製糸、現在では時計及びエレクトロニクス等の電子工場群があり、この周辺は県下でも有数の人口密集地を形成している。

流域人口は175,000人(1980年)に達し、1970年頃まではこれらの排水がすべて中小河川を通じて、または直接湖に流入していた。集水域からの流入河川は31河川を数えるが、流出河川は唯一天竜川のみで、湖水の滞留日数はおよそ40~50日と短いのが特徴である。

調査・実験方法

1. 栄養塩類の分布とその季節変動

底質調査は1978年から1983年にかけて行った。1978年から1982年は季節変化をみるために、21地点において *Microcystis* が発生する前の3月, 発生期の5月, 異常増殖している8月及び沈降していると推定される11月の4回, また1980年から1982年は湖心において毎月, 1982年から1983年にかけては湖心において夏期と冬期にそれぞれ調査を実施した。

試料採取は栄養塩類の湖内分布をみるために、河口部(河口から200 m 沖), 湖内部, 湖心及び養鯉のために設置された網いけすの21地点(Fig. 1)について行った。St. 1~7は河口部, St. 8~19は湖内部, St. 20は湖心及びSt. 21は網いけす地点である。

Fig. 1 Sampling station in Lake Suwa.

表層泥の採取はエックマンバージ型採泥器により全地点について行い、St. 11, St. 20及びSt. 21の3地点は底質の堆積状況をみるためにコアサンプラーによる柱状採泥も行った。表層泥は虫、貝殻など夾雑物を2 mmのふるいで除去した後均一に混合、また柱状泥は原形を壊さないように管から押し出し、表面から2 cm層ごとにスライスして分析に供した。底質分析は温度、全リン(T-P), 無機態リン(PO₄-P), 全窒素(T-N), 吸着アンモニア態窒素(吸着NH₄-N), 強熱減量(I.L.)について

行った。T-P、T-N 及び I.L. の試料は60°Cで風乾したものの、 $\text{PO}_4\text{-P}$ 及び吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ は湿泥をそのまま用いた。分析方法は概ね、土壤養分分析法⁶⁾に準拠したが、底質温度は現場において水銀棒温度計、 $\text{PO}_4\text{-P}$ は湿泥 1g に0.2 NH_4Cl 100 ml を加え、煮沸、攪拌、ろ過した後モリブデンブルー法によりそれぞれ測定した。また、一部の試料については各態リン (Ca-P、Fe-P、Al-P) の分画定量を行った。分析方法は細見ら⁷⁾の方法によった。本法では NH_4F 抽出リンを Al-P、NaOH 抽出リンを Fe-P、 H_2SO_4 抽出リンを Ca-P とそれぞれ定義した。

2. リンの移動実験

底質中でのリンの移動可能性を明らかにするため、次の実験を行った。実験装置の概略を Fig. 2 に示した。St. 20 においてコアサンプラーにより柱状泥を採取し、上層水からのリンの沈降を防止するために、上層水を直ちに純水と置換した。また、底質からのリンの溶出を抑制するため純水を空気で曝気し、試料全体を夏期温度の23°Cで保持した。柱状泥は採取直後、2週、10週後に、2 cm ごとにスライスして分画試料とし、それらの各態リンについて分析した。分析方法は細見ら⁷⁾の方法によった。

Fig. 2 An experimental apparatus.

3. 窒素の生成実験

底質中においては、有機物の分解によって $\text{NH}_4\text{-N}$ が生じ、間隙水中に蓄積される。この蓄積された $\text{NH}_4\text{-N}$ が底質上層水に溶出する。従って、 $\text{NH}_4\text{-N}$ 溶出を論じる上で、底質内での $\text{NH}_4\text{-N}$ 生成速度が重要となる。ここで

は、底質内の $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度と温度との関係を室内実験により検討した。実験装置の概略は Fig. 2 と同様である。エックマンバージ型採泥器により採取した底質を均一化し、これをコアサンプラー用アクリルパイプに設置し、静かに純水を注ぎ、これに空気を吹き込んで好気条件を保ち、10°C、20°C 及び 30°C の温度について実験を行った。上層水及び間隙水の採水は設定直後と4週後に行い、2 cm 層ごとに分画した試料を遠心ろ過し、ろ液について $\text{NH}_4\text{-N}$ 、 $\text{NO}_2\text{-N}$ 及び $\text{NO}_3\text{-N}$ について測定した。分析方法は湖沼環境調査指針⁸⁾に準拠した。

結 果

1. 温 度

1978年5月から1980年3月における底質表層の温度変化を Fig. 3 に示した。気象によって各年度の温度推移はわずかであるが異なった。1980年以降においても同様の季節変化を示した。1978年度についてみると、冬期は2.5~4.1°C、夏期は17~26°Cの範囲で変動したが、地域による明確な差は認められなかった。しかし、St. 5 ではいずれの季節も平均より高く、諏訪市市街地からの温泉排水の混入が影響していることを示している。

Fig. 3 Yearly changes of the surface sediment temperature in Lake Suwa.

底質温度の鉛直変化を St. 20 を例にして Fig. 4 に示した。5月と8月は深度が増すにつれて低下し、11月と3月は下層で若干高くなる傾向を示した。表層の泥温は年間を通してみると、5~23°Cの範囲で変化しているが、下層 (50~60 cm) では7~15°Cと変動幅が縮小した。

2. リ ン

(1) リンの水平分布

湖内21地点における底質中の T-P 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の濃度を Table 1, 地域別の値を Table 2 に示した。T-P は網いけす地点 (St. 21) で高濃度を示し, 6.6~45 mg/g dry wt. で湖内平均の 2~13 倍に達した。特に1980年3月に

Fig. 4 Vertical and seasonal profile of the sediment temperature at St. 20.

Table 1 Concentrations of the phosphorus of the sediment in Lake Suwa.

(mg/g dry wt.)				
Component	Date	Concentration ^{a)}	Mean ^{a)}	St. 21
T-P	1979. 5	2.0 ~4.9	3.5	6.6
	8	2.2 ~4.9	3.3	7.6
	11	1.5 ~4.0	3.1	8.3
	1980. 3	0.81~5.4	3.6	45
$\text{PO}_4\text{-P}$	1979. 5	1.3 ~3.3	2.6	4.6
	8	1.3 ~4.3	2.4	6.4
	11	1.7 ~3.4	2.7	6.8
	1980. 3	1.8 ~4.9	3.1	41

a) : Except for the value of St. 21.

Table 2 Comparison of T-P concentration in sediment for each area in Lake Suwa.

		(mg/g dry wt.)			
Area	Date	1979.5	8	11	1980.3
River mouth		2.95	2.52	2.52	2.89
Lake inner		3.76	3.32	3.55	4.20
Lake center		3.77	3.93	4.02	3.72
Ratio (%) ^{a)}		78	76	71	69

a) : Ratio : river mouth / lake inner.

採取した底質はリン濃度が異常に高い値を示した。この時期は網の修理のためいけすを移動させており, 従来の採取地点と異なり, 網いけすのあった場所の直下で採取したことによるものと考えられる。

河口部 (St. 1~7) と湖内部 (St. 8~19) について比較 (Table 2) すると, 両者の平均値には有意差 ($p < 0.01$) がみられ, 河口部における T-P の低さが顕著であった。

各季節の湖内21地点における T-P と $\text{PO}_4\text{-P}$ の相関係数をみると Table 3 に示すようにどの季節も高い相関がみられ, T-P の60~80%が $\text{PO}_4\text{-P}$ として存在した。

Table 3 Correlation coefficient between T-P and PO_4 .

Date	r
1979.5	0.96**
8	0.97**
11	0.97**
1980.3	0.98**

*: $p < 0.05$, **: $p < 0.01$

Fig. 5 Yearly changes of T-P concentrations in sediment at St. 20.

(2) リンの年変化

St. 20 における底質中の T-P の年変化を Fig. 5 に示した。1972年から1973年の調査⁹⁾ では10月及び12月に 3 mg/g dry wt. 以上の値を示したが, その他の月では 1~3 mg/g dry wt. の範囲にあり, 平均2.3 mg/g dry wt. ($n=12$) であった。ところが1978年以降の調査ではいずれの月も 3 mg/g dry wt. 以上あり, 年平均値は1978年が 3.3 mg/g dry wt. ($n=4$), 1979年が 3.8 mg/g dry wt. ($n=4$), 1980年が 3.6 mg/g dry wt. ($n=9$) となった。このように1972年から1978年の間に底質リン濃度の急激な増加がみられた。

Fig. 6 Vertical and seasonal profile of T-P concentrations in sediment at St. 20 and St. 21.

(3) リンの鉛直分布

St. 20 及び St. 21 における底質中の T-P の鉛直分布を Fig. 6 に示した。St. 20 における分布はいずれの季節も、上層部 (0~6 cm) で高濃度を示し、12 cm 以深では 1.7 mg/g dry wt. 前後でほぼ一定値となった。表層 (0~2 cm) での減少はリンが上層水へ拡散し、底質から湖水へ回帰していることを示唆している。St. 11 における鉛直分布も St. 20 と同様であった。しかし St. 21 では 0~2 cm 層の T-P は 5.7~15 mg/g dry wt. で採取時期によりばらつきがあり、また最大濃度の現れる深度も各季節により異なった。1980年3月は 6~8 cm 層において 66 mg/g dry wt. という極めて高い値を示し、養鯉による底質のリン汚染は窒素のそれよりも明確に現れた。養鯉によるリンの汚染深度はおよそ 18 cm までであった。

Fig. 7 に St. 20 のリンの分画定量の結果を示した。ここで、無機態リン (Inorg.-P) は (Al-P) + (Fe-P) + (Ca-P) の和で示されるもので、さきに示した $\text{PO}_4\text{-P}$ と同程度の値を示した。無機態リンのうち Ca-P 及び Al-P は深さ方向に殆ど変化しないが、Fe-P は上層 (2~6

Fig. 7 Phosphorus fractionation in the sediment of St. 20.

Fig. 8 Phosphorus fractionation in the sediment of St. 20 after 0, 2 and 10 weeks in control of temperature at 23°C (1983.8).

cm)で高濃度を示し、下層では Ca-P 及び Al-P と同程度まで減少した。

(4) リンの移動

リンの移動実験の結果を Fig. 8 に示した。2 週後の T-P の鉛直分布は採取直後のものより上層 (2~6 cm) において増加がみられ、この傾向は10週後においても確認された。

Ca-P は上下層ともに2週及び10週後においても殆ど変化はみられなかった。Al-P は下層において増加する傾向がみられたが、その変化量は微量であった。Fe-P は2週後に上層 (2~6 cm) で増加し、下層 (6~12 cm) で減少がみられ、10週後においても同様の傾向がみられた。

3. 窒素

(1) 窒素の水平分布

湖内21地点における底質中の T-N 及び吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度を Table 4 に、各地域の値を Table 5 に示した。T-N は T-P と同様に網いけす地点で高濃度を示し、河口部と湖内部では両者に有意差 ($p>0.01$) が認められ、河口部は湖内部の87%の値を示した。しかし、リンほど

には河口部から湖内に至る減少がみられなかった。

(2) 窒素の年変化

St. 20 における底質中の T-N の年変化を Fig. 9 に示した。1972年から1973年に調査⁹⁾した T-N の変動範囲は 4.0~5.3 mg/g dry wt. ($n=6$) であり、1978年以降の調査でもほぼ同様の範囲 4.3~5.6 mg/g dry wt. ($n=17$) を示し、この5年間に T-N 量に大きな変化はみられなかった。

Fig. 9 Yearly changes of T-N concentration in sediment at St. 20.

Table 4 Concentrations of the nitrogen of the sediment in Lake Suwa.

Component	Date	Concentration ^{a)}	Mean ^{a)}	St. 21
T-N ^{b)}	1979. 5	3.3 ~6.2	5.1	6.1
	8	3.1 ~5.5	4.8	6.7
	11	2.8 ~5.9	5.2	7.1
	1980. 3	4.1 ~6.0	5.2	7.2
$\text{NH}_4\text{-N}^c)$	1979. 5	86 ~180	120	91
	8	84 ~200	130	160
	11	49 ~180	110	100
	1980. 3	62 ~150	100	140

a) : Except for the value of St. 21, b) : mg/g dry wt., c) : $\mu\text{g/g dry wt.}$

Table 5 Comparison of T-N concentration in sediment for each area in Lake Suwa.

		(mg/g dry wt.)			
Area	Date	1979.5	8	11	1980.3
River mouth		4.7	4.1	4.5	4.5
Lake inner		5.1	4.9	5.2	5.2
Lake center		5.1	5.0	5.5	5.3
Ratio (%) ^{a)}		91	85	86	87

a) : Ratio : river mouth / lake inner.

底質中の無機態窒素は吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ が大部分を占め、 $\text{NO}_2\text{-N}$ あるいは $\text{NO}_3\text{-N}$ は定量限界以下であった。その吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ も T-N 量に対して 2~3% にすぎず、窒素の大部分は有機態として存在した。

St. 20 における吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ は、5月と8月において $170 \mu\text{g/g dry wt.}$ であるが、11月と3月は $60\sim70 \mu\text{g/g dry wt.}$ となり、その量は1/2以下に減少した。このように吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ が春夏期に多量に存在するのは温度が主

Fig. 10 Seasonal changes of the sediment temperature and $\text{NH}_4\text{-N}$ adsorbed onto sediment particles at St. 20 in Lake Suwa. ○ : Temperature, ● : $\text{NH}_4\text{-N}$.

要因と考えられる。そこで、St. 20 における底質中の吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ と温度の関係 (Fig. 10) をみると、吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の季節変化は温度のそれと良い一致を示し、両者間における回帰式は $\text{NH}_4\text{-N} = 6.86T + 35.4$ ($r = 0.83$) となった。

(3) 窒素の鉛直分布

St. 20 における底質中の T-N の鉛直分布を Fig. 11 に示した。0～6 cm 層では季節によって若干の濃度差はあってもほぼ一定値をとり、10 cm 以深でも多少減少傾向になるがほぼ一定となった。上層において一定の値を示したことから上層泥 (0～6 cm) は T-N 量に関して同質なものと考えられる。

St. 20 と St. 21 における鉛直分布の比較を Fig. 12 に

Fig. 11 Vertical and seasonal profile of T-N concentrations in sediment at St. 20.

示した。St. 21 の T-N 濃度は 0～10 cm 層までは St. 20 の 10～30% 増となるが、18 cm 以深では同程度の値を示し、Fig. 12 の暗部分が養鯉によって増加したものと考えられる。養鯉による汚染深度はリン同様 18 cm までと推定される。

Fig. 12 Vertical profile of T-N concentrations in the sediment at St. 20 and St. 21. (the mean values during 1979.5 and 1980.3)

St. 20 における吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ の鉛直分布 (Fig. 13) は 0～8 cm 層で季節変化がみられ夏期に多く冬期に減少した。しかし、10 cm 以深ではいずれの季節も下層になるにしたがって増加する傾向を示し、3月を除いた5, 8, 11月の間には明確な季節変化がみられなかった。同様の傾向は間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の濃度分布にもみられた。

(4) 窒素の生成

窒素の生成実験の結果を Fig. 14 に示した。本実験の無機態窒素の移動モデルは Fig. 15 として表される。各層における無機態窒素の物質収支は

$$\frac{\Delta M_i}{\Delta t} = \frac{M_i(t+\Delta t) - M_i(t)}{\Delta t} = G_i W + (D_{i+1} - D_i) S$$

$M_i(t)$: i 層の間隙水中の t 時の無機態窒素量 (mg)

D_i : i 層から $i-1$ 層への $\text{NH}_4\text{-N}$ の移動量 (mg/ $\text{m}^2 \cdot \text{D}$)

S : 面積 (m^2)

G_i : i 層における $\text{NH}_4\text{-N}$ 生成量 (mg/g dry wt. $\cdot \text{D}$)

W : 底質量 (g dry wt.)

で示され、例えば $i=0$ が上層水における物質収支である。なお、底質内は還元状態が保たれているため、間隙水中の無機態窒素の98%以上は $\text{NH}_4\text{-N}$ として存在した

Fig. 13 Vertical and seasonal profiles of $\text{NH}_4\text{-N}$ adsorbed onto sediment particles at St. 20 in Lake Suwa.

Fig. 14 Vertical profile of inorganic nitrogen concentrations in interstitial water after 0 and 4 weeks at 10°C , 20°C and 30°C .

Fig. 15 The diagram of nitrogen transfer in sediment.

Table 6 Effects of temperature on $\text{NH}_4\text{-N}$ generation rates of sediments.

Temperature ($^\circ\text{C}$)	$\text{NH}_4\text{-N}$ generation rates ($\mu\text{g/g dry wt.} \cdot \text{D}$)
10	0.51
20	0.81
30	2.22

ことから、間隙水中の $\text{NO}_2\text{-N}$ 、 $\text{NO}_3\text{-N}$ の移動は無視した。ここで初期条件として

$$G_0=0, G_i=G_{i+1} \quad (i=1, 2, 3)$$

$$D_0=D_5=0$$

とにおいて各温度における G_i を求めると Table 6 の結果が得られた。 G_i と温度 $T(^{\circ}\text{C})$ の関係を数式化すると

$$G \text{ NH}_4\text{-N} = 0.018 \exp 0.153T + 0.427$$

なる関係式が得られた。底質中における $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成は温度の影響が大きく、特に 30°C における生成量が著しいことが明らかとなった。

考 察

底質内の物質代謝にとって温度の影響は重要である。底質温度の季節変化を表層及び柱状泥についてみると、表層は年間を通して、 $5 \sim 23^\circ\text{C}$ の範囲で変化しているが、下層 ($50 \sim 60 \text{ cm}$) では $7 \sim 15^\circ\text{C}$ と変動幅が小さい。諏訪湖のように浅い湖沼では水温の季節変化がそのまま底質表層部まで影響している。しかし 50 cm 以深の下層では季節間の温度差が縮小し、明確な季節変化はみられない。この現象は諏訪湖のように浅い湖沼の特徴と思われる。

湖内21地点における底質中の T-P 及び $\text{PO}_4\text{-P}$ の分布調査からリンは、河口及び網いけす地点を除いた湖内部ではほぼ一様に分布し、湖心の値をその代表値とみて差

し支えないと考えられる。

河口部において、リン濃度が低い原因として次のことが考えられる。底質の中央粒子径は塚間川河口 (St. 1) が $180\ \mu\text{m}$ (砂質)、湖心 (St. 20) が $20\ \mu\text{m}$ (シルト質) となり、河口と湖心では粒径に大きな差がみられた。湖岸では河川の増水時に土砂の流入が多く、これらが河口で沈降堆積し、底質の大部分を形成している。しかし、湖内部はシルト質の細かい泥や湖内に発生したプランクトンの死骸が堆積物の大部分を占めているため、両者は異質な底質と考えられる。有機物含量の指標である強熱減量は St. 1 が 8~14%、St. 20 が 13~18% となり、後者が有機物含量の多いことを示したことから、河口では土砂の流入によって、砂質泥が多くなり、St. 20 の底質と比べてリンの含有量が低くなったものと考えられる。砂質泥は河口において 50 m から 200 m の範囲に分布していた。

網いけす地点においては極めて高濃度のリン蓄積が生じ、特に網いけすの直下ではその傾向が顕著であった。養鯉による底質の汚染は網いけす際より 8 m 地点ではその影響が現れていないとする報告¹⁰⁾があり、今回の調査でも同様の結果が得られた。従って、養鯉によって汚染された底泥は網いけすの直下のみとすると、その総面積は $5.8 \times 10^3\ \text{m}^2$ となり湖内面積の 0.04% である。また、鉛直方向のリン分布をみると、高濃度を示したのは 0~18 cm 層までで、20 cm 以深はいずれの季節も St. 20 と同程度の濃度となり、養鯉によるリンの汚染深度はおおよそ 18 cm までと推定される。

湖内における T-P は 1972 年から 1978 年の間に急激な増加がみられた。この時期は高度経済成長の時代で、全国的にも湖沼、河川の水質汚濁が顕在化しており、諏訪湖においても同様であったと思われる。原単位法による流入負荷量の推定は種々報告^{9,11,12)}されているが、値は推定方法によって異なるため、人為負荷の間接指標として常住人口と観光人口の推移¹³⁾をみると、常住人口は 1960 年から 1980 年まで直線的に増加し、1980 年の人口は 1960 年と比較して 20% 程、また観光人口はこの間にほぼ 2 倍に増加した。リンの流入負荷量もそれに伴って増大していることが伺える。また、1983 年におけるリンの物質収支¹¹⁾をみると、リンの流入負荷量は $615\ \text{kg/D}$ 、流出量は $203\ \text{kg/D}$ となり、流入負荷量の 67% が湖内に蓄積している。霞ヶ浦においても流入負荷量の 65% が蓄積すると報告¹⁴⁾されており、リンは湖内に蓄積する性質を持っている。従って、リンの流入量の増加とその蓄積性が、1972 年から 1978 年における底質中のリン量の増加をもたらした

たものと考えられる。

Mortimer¹⁵⁾、Fillos ら¹⁶⁾ は底質から溶出するリンの主要成分は $\text{PO}_4\text{-P}$ であると指摘していることから、リンの湖水への回帰現象からみれば、底質内における無機態リンの挙動に注目して検討する必要がある。底質中のリンは 60~80% が $\text{PO}_4\text{-P}$ として存在した。St. 20 における無機態リンの分画定量では、Ca-P 及び Al-P の濃度分布は深度方向に差はみられない。また、リンの移動実験からも Ca-P 及び Al-P の濃度分布は 10 週後においても実験前と殆ど変わらない。しかし、Fe-P は上層 (0~6 cm) において高濃度に蓄積されており、同様の傾向が霞ヶ浦の底質でも報告⁷⁾されている。また、リンの移動実験でも、10 週後に、0~2 cm 層では上層水への溶出があり減少傾向になるものの 2~6 cm 層では増加がみられ、Fe-P は下層から上層へ移動していることを示した。リンの移動性については Carignan¹⁷⁾ の間隙水中のリン酸態リンの濃度分布の経時変化によっても確認されている。

今回の調査により、リンの移動は主に湖水に溶出し易い Fe-P によるものと考えられる。浅い富栄養化した湖沼の水質回復に湖沼底質の浚渫の重要性が指摘されているが、浚渫しても Fe-P が下層から上層へ移動し、再び上層の Fe-P が増加するため、効果が定着するまでにはかなりの時間が要するものと考えられる。

窒素の水平分布はリンと同様に網いけす及び河口部を除けばほぼ一様に分布し、湖心がその代表値と考えられる。窒素の年変化をみると 1973 年以前と 1978 年以降に調査した濃度分布には有意差が認められない。これは、窒素の物質収支¹²⁾が、窒素の流入負荷量 $3,384\ \text{kg/D}$ に対して、流出負荷量が $3,075\ \text{kg/D}$ となり、湖内蓄積率が 9% で、窒素にはリンのような蓄積性がなく、流入量と流出量がほぼ平衡状態にあったことによるものと考えられる。

窒素は $\text{NH}_4\text{-N}$ の形で底質から湖水へ回帰することから、底質及び間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の挙動について検討を進める必要がある。底質中の吸着 $\text{NH}_4\text{-N}$ 量は温度と密接な関係があり、温度が上昇する春夏期に増加する傾向を示した。また、底質内における $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成量は温度が上昇することによって増加した。Jones ら¹⁸⁾ は底質中の $\text{NH}_4\text{-N}$ の増加は主に微生物によると報告していることから、春夏期の温度上昇が底質中の生物の活性化を招き、有機態窒素が分解され $\text{NH}_4\text{-N}$ が底質中に生成されていくものと考えられる。

これらの結果から浚渫によって上層泥を除去しても新しく形成される表層泥に温度変化が生じるため、再び生

物活動の活性化をもたらし、間隙水中の $\text{NH}_4\text{-N}$ 量が増加し、底質から湖水への窒素供給が維持されることは十分に考えられる。

ま と め

諏訪湖において1978年から1983年にわたって、底質の温度、栄養塩類の水平、鉛直分布特性及び存在形態等を調査すると共に、室内実験によりリン及び窒素の底質内における挙動を明らかにした。

(1) 底質の温度変化は上層 (0~8 cm) において、明確な季節変化があり、湖心の表層部では5~23°Cで変動した。しかし、下層になるに従ってその変動幅が縮小し、50~60 cm 層では7~15°Cとなり、明確な季節変化はみられない。

(2) T-P、T-N の水平分布はいずれも河口部で低く、網いけす地点で高濃度を示した。河口部と網いけすを除いた地域は T-P、T-N ともにほぼ一様に分布し、湖心の値で代表される。河口と湖内部で差が生じた原因は、河口では河川からの土砂の流入によって砂質泥が多く、一方湖内部ではシルト質の細粒泥やプランクトンの死骸が中心であり、両者の底質は異質なもののから成立していることによるものと考えられる。砂質泥は河口から50~200 m の範囲に分布していた。また網いけす地点の養鯉による汚染深度は18 cm までであった。

(3) T-P は1972年から1978年の間に急激な増加がみられた。これは高度経済成長に伴う流入負荷の増大とリンの蓄積性によるものと考えられる。T-P の湖内への蓄積率は67%であることから、底質中のリン量は、流入リン負荷に応じて今後も増加する。また窒素については蓄積性がみられないため、現状の濃度が維持されていくものと考えられる。

(4) T-P と $\text{PO}_4\text{-P}$ には高い相関がみられ、T-P の60~80%が $\text{PO}_4\text{-P}$ として存在した。 $\text{PO}_4\text{-P}$ のなかで Fe-P は上層 (0~8 cm) で高濃度を示した。室内実験において、Fe-P は10週後に0~2 cm 層では上層水への溶出があり減少傾向になるものの2~6 cm 層では増加がみられ、Fe-P は下層から上層へ移動していることが明らかとなった。

(5) 底質中の $\text{NH}_4\text{-N}$ は泥温と強い相関が認められた。また、底質中における $\text{NH}_4\text{-N}$ の生成速度と温度の関係は $G \text{ NH}_4\text{-N} = 0.018 \exp 0.153T + 0.427$ なる結果が得られた。諏訪湖のように浅い深度では、温度が上昇する夏期には間隙水への供給量が増加し、湖水への供給源となっていることが明らかとなった。

本研究の遂行にあたり、御指導いただいた信州大学医学部釘本完教授、那須祐助教授並びに国立公害研究所細見正明研究員、また現地調査等で終始御協力いただいた長野県衛生公害研究所水質部並びに環境化学部の方々に深く感謝します。本研究の一部は第38回日本公衆衛生学会総会 (1979)、第50回日本衛生学会総会 (1980)、第40回日本公衆衛生学会総会 (1981) にて発表された。

文 献

- 1) Mortimer, C.H.: The exchange of dissolved substances between mud and water in lakes, *Jour. Ecology*, **29**, 280-329 (1941).
- 2) Mortimer, C.H.: The Exchange of Dissolved Substances between Mud and Water in Lakes, *Jour. Ecology*, **30**, 147-201 (1942).
- 3) 菅原健：湖沼に於ける新生沈殿物の研究 (第一報), *陸水学雑誌*, **4**, 115-123 (1935).
- 4) Larsen, D.P., Sickle, J.V., Malueg, K.W., and Smith, P.L.: The effect of wast water phosphorus removal on shagawa lake, Minesota: Phosphorus supplies lake phosphorus and chlorophyll a, *Water Research*, **13**, 1259-1272 (1979).
- 5) Welch, E.B.: Nutrient Diversion; Resulting Lake Trophic State and Phosphorus Dynamics, p. 91, EPA-600/3-77-003 January (1979).
- 6) 土壤養分測定法委員会編：土壤養分分析法, p. 120, 養賢堂, 東京 (1978).
- 7) 細見正明, 須藤隆一：湖沼底泥からのリン溶出に関する研究, *水質汚濁研究*, **2**, 157-162 (1979).
- 8) 日本水質汚濁研究会編：湖沼環境調査指針, p. 131, 公害対策技術同友会, 東京 (1982).
- 9) 西沢節二, 宮島勲, 武田洋一, 川村実, 鈴木富雄：諏訪湖の富栄養化調査, 長野県衛生公害研究所研究報告, 第126号 (1975).
- 10) 林秀綱, 沖野外輝夫, 倉沢秀夫：諏訪湖の網いけす養魚が底質におよぼす影響, 諏訪湖水域生態系研究経過報告, **3**, 81-86 (1979).
- 11) 西沢節二：諏訪湖の富栄養化に関する研究, p. 97, 長野県衛生公害研究所, 長野 (1982).
- 12) 長野県：諏訪湖の有機汚濁予測と処理システムの評価, p. 19, 長野県 (1979).
- 13) 長野県商工部観光課：観光地利用者統計調査結果, 長野県 (1969-1980).
- 14) 安野正之, 相崎守弘, 岩熊敏夫：霞ヶ浦高浜入り生

- 態系における炭素及びリンの循環, 国立公害研究所
報告第51号 (R-51-84), 255-268 (1984).
- 15) Mortimer, C.H.: Chemical exchanges between
sediments and water in the great lakes specula-
tions on probable regulatory mechanisms, *Lim-
nology and Oceanography*, **16**, 387-404 (1971).
- 16) Fillos, J. and Swanson, W.R.: The release rate of
nutrients from river and lake sediments, *Jour. W.
P.C.F.*, **47**, 1032-1042 (1975).
- 17) Carigman, R. and Flett, R.J.: Postdepositional
mobility of phosphorus in lake sediments, *Lim-
nology and Oceanography*, **26**, 361-366 (1981).
- 18) Jones, J.G., Simon, B.M. and Horsley, R.W.:
Microbiological sources of ammonia in fre-
shwater lake sediments, *Jour. Gen. Microbiol.*,
118, 2823-2831 (1982).
- (受付 1985年10月 9 日 受理 1985年12月16日)