信州大学環境科学論集　第6号，1984
〔Bull. Environ. Conserv., Shinshu Univ.〕

諏訪湖底泥中のリンおよび窒素の挙動

——分布と存在形態——

河野行雄*・鹿角孝男*・釘本 完**

Considerations about Phosphorus and Nitrogen of Sediments in Lake Suwa

——Distributions and Forms——

Yukio KONO*, Takao KATSUNO*, Mamoru KUGIMOTO**

緒　言

諏訪湖は流域面積531.2 km^2 [1]，湖面積13.3 km^2 [2]，貯水量63.65×10^6 m^3 [3]，平均水深4.7 m（最大でも6.8 m [4]）の高地淡水湖である。その周囲には岡谷市，諏訪市，下諏訪町および茅野市等が位置している。これらの都市は有名な温泉町であって観光人口も多く，時計およびエレクトロニクス等の精密電子工場群があり，湖の周辺は一大人口密集地を形成している。工業の躍進と観光客の増加に伴い，排出された有機物質および重金属等の汚染物質はかなりの部分が沈積し，底質を形成している。これらの汚染物質は分解および溶出現象を通じてリンおよび窒素等の栄養塩類を水域へ供給し，藻類（*Microcystis* 等）の発生原因ともなっていると考えられている[5]。

底質からの二次汚染と工場および都市下水等の一次汚染との関連を究明していくことは，湖水の浄化と*Microcystis*の防止対策および湖沼汚染の歴史を知るうえで，心要不可欠な問題といえる。我々は，底泥に含まれる栄養塩類の分布および存在形態等について4年間にわたって調査したので，その結果について報告する。

調査方法

調査は1978年から1982年にかけて実施した。底泥試料の採取時期と方法は次のとおりである。

1978年5月，8月，11月，1979年3月の試料採取はエックマンバージ型採泥器により各回とも湖内21地点について行った。なお，採取地点を図1に示した。

1979年5月，8月，11月，1980年3月は前回と同様の採取を行うとともに，あわせて湖心（St. 20），湖心と湖岸の中間点（St. 11）および網いけす（St. 21）についてコアサンプラーにより柱状採泥を行った。

1980年5月，8月，11月，1981年4月の試料採取は St. 11, St. 20 および St. 21 においてエックマンバージ型採泥器およびコアサンプラーにより行った。

1981年5月，8月，11月，1982年3月は St. 20 においてコアサンプラーにより採取した。

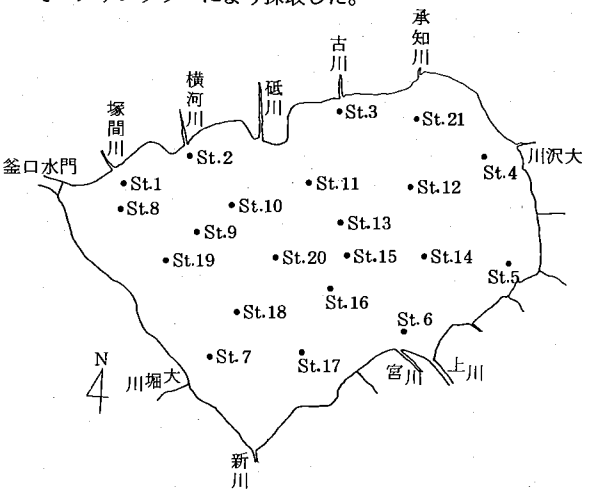

図1. 調査地点

表1. 調査項目と分析方法

調査項目	分析方法
底　泥	
温　度	水銀棒温度計
塩酸抽出リン（HCl−P）	0.2NHCl抽出
全リン（T−P）	硝酸・過塩素酸分解法
アンモニア態窒素（NH_4−N）	10%KCl抽出[6]
全窒素（T−N）	サリチル硫酸分解法[6]
間隙水	
リン酸態リン（PO_4−P）	モリブデン青法
全リン（T−P）	硝酸・過塩素酸分解法
アンモニア態窒素（NH_4−N）	PH7.4 調整後蒸留
全窒素（T−N）	(K−N)+(NO_2−N)+(NO_3−N)

*長野県衛生公害研究所　Nagano Research Institute for Health & Pollution
**信州大学医学部　Shinshu Univ. Sch. Med.

調査項目および分析方法を表1に示した。コアサンプラーの試料は実験室に持ち帰り2cmごとに分画保存した。底泥中のHCl−PおよびNH$_4$−Nは採取後直ちに湿泥試料を分析した。その他の項目は60℃で風乾した試料を用いた。一部の試料については遠心分離(3000rpm, 20分)により間隙水と泥に分け，間隙水について各態リンおよび窒素を分析した。

結果と考察

1. 温度

諏訪湖底泥の温度変化を図2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。しかし，いずれの年も8月に最大となり，結氷期の2月から3月に最低値を示した。各季節の各地点における温度の変動範囲は8月が最も大きく，湖内21地点の最小値と最大値では，いずれの年も4〜5℃の差がみられた。しかし，水温が低下する3月の泥温は地点による温度差が小さく，最小値と最大値の差はいづれの年も1〜1.5℃の範囲であった。

2. リン

2.1 湖内分布と季節変化

湖内21地点における底泥中のT−PおよびHCl−Pの含有量を表2に示した。各季節の湖内21地点におけるT−PとHCl−Pの相関係数をみると表3に示したようにどの季節も良い相関がみられ，T−Pに対し60〜80%がHCl−Pとして存在した。これはリンが酸に溶け易い無機態リンの形で底泥中に存在していることを示している。T−PとHCl−Pは類似した挙動を示したのでT−Pの結果を中心に述べる。

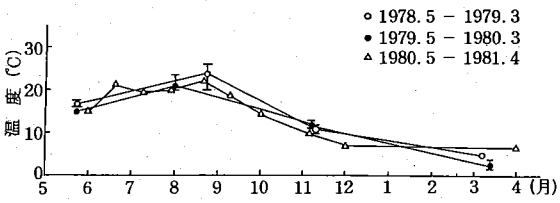

図2. 諏訪湖底泥の温度変化

表2. 底泥中のリン濃度 (pmg/g)

項目	採取年月	含有量a)	平均値a)	網いけす
T−P	1978. 5	1.3 −3.9	2.6	4.3
	8	1.7 −3.9	2.9	4.7
	11	1.6 −4.0	3.1	3.7
	1979. 3	2.0 −4.2	3.1	5.1
	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
PO_4−P	1979. 5	1.3 −3.3	2.5	4.6
	8	1.3 −4.3	2.4	6.4
	11	1.7 −3.4	2.6	6.8
	1980. 3	1.8 −4.9	3.0	45

a) 網いけす(St. 21)を除いた値

1978年5月から1979年3月におけるT−Pの湖内分布を図3に示した。河口部(St. 1, St. 2, St. 3, St. 4, St. 5, St. 6, St. 7)は湖内平均値よりも低い値を示した。

特に塚間川河口(St. 1)では，4回の平均が2.0mg/gとなり，21地点のなかで最も低い値となった。St. 1とSt. 20の粒径加積曲線を図4に示した。中央粒子径(50%値)はSt. 1の底泥が180μm(砂)，St. 20が20μm(シルト)となり，河口と湖心では底泥の性状に差が認められた。この結果から塚間川河口付近でT−Pが少なかったことは，土砂の流入あるいは浚渫によって粗大粒子が多くなり，St. 20

表3. 全リンと塩酸抽出リンの相関係数

採取年月	r
1978. 11	0.97
1979. 3	0.95
1979. 5	0.96
1979. 8	0.97
1979. 11	0.97
1980. 3	0.98

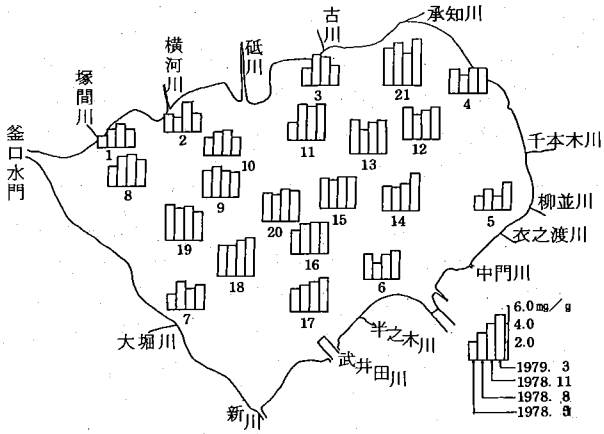

図3. 全リンの湖内分布

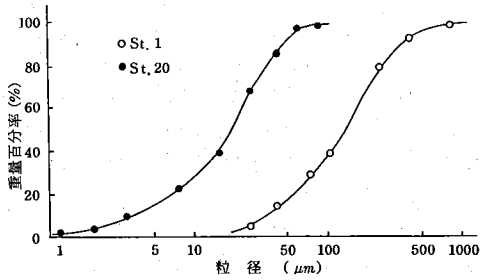

図4. 粒径加積曲線 (1980.8採取)

の底泥と比べて粒子表面積が小さくなったことが原因の一つと考えられる。

St. 21のT−P濃度は45mg/gで湖内平均値(3.6mg/g)の12.5倍に達した。このことは網いけす地点におけるリン濃度は一様でなく，場所によって極めて高濃度のリン蓄積が生じていることを示している。

底泥に含まれるT−Pの各年度における季節変化を図5に示した。1972年から1973年の調査[7]では10月，12月に3mg/g以上の値を示した。しかし，その他の月では1〜3mg/gの範囲にあり，平均2.3mg/g(n＝12)であった。ところが1978年度以降はいずれの月もT−P濃度は3mg/g以上であり，各年度の平均値は1978年度が3.3mg/g(n＝4)，1979年度が3.8mg/g(n=4)，1980年度が3.6mg/g n=9)となり，St. 20においては1972年から1973年よりも1978年以降において高い値を示した。湖心においてはこの5年間に底泥中のT−Pが増加したものと考えられる。

2. 2. 鉛直分布

St. 11, St. 20およびSt. 21における底泥中のT−Pの鉛直分布(1979.5〜1980.3)を図6に示した。St. 20における底泥中のT−P含有量は最上層部(0〜2cm)でいずれの季節も2〜4cm層より低い値を示した。これは最上層部が底泥と水の境界面を形成し，湖水と常に接触しているため，底泥層は上層水と濃度の平衡を保つために，PO_4−Pが水質へ拡散し，T−P濃度が減少したものと考えられる。HCl−Pの鉛直分布(図7)でもその傾向がみられた。T−Pは2〜6cm層に最大値を示し，6〜12cm層で急激に減少し，12cm以深では1.7mg/g前後でほぼ一定値となった。

St. 11におけるT−Pの鉛直分布はSt. 20とほぼ同形であった。しかし，St. 21では，最上層部のT−P濃度は5.7〜15mg/gで採取時期によりかなりの開きがあり，最大濃度の現われる深度も各季節により異なった。1980年3月は6〜8cm層において66mg/gの最大濃度を示し，養鯉による底泥のリン汚染は窒素のそれよりもはっきりとあらわれている。飼料中のリン含有量は窒素のほぼ½であるにもかかわらず，窒素よりもリンの蓄積量が顕著であった。これはリンが窒素と比較して底質に蓄積されやすいことを示すもので，小山[8]の推定によると，流入負荷量に対して底泥に蓄積される割合はリンが75%であるが，窒素は18%と報告されている。

St. 21の鉛直分布で高濃度を示したのは0〜18cm層までで，20cm層以深はいずれの季節もSt. 11およびSt. 20と同程度の濃度となり，養鯉による汚染深度はおおよそ

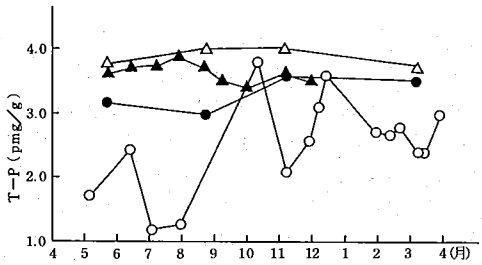

図5. 全リンの季節変化(St. 20)

○1972−1973 ; ●1978−1979
△1979−1980 ; ▲1980−1981

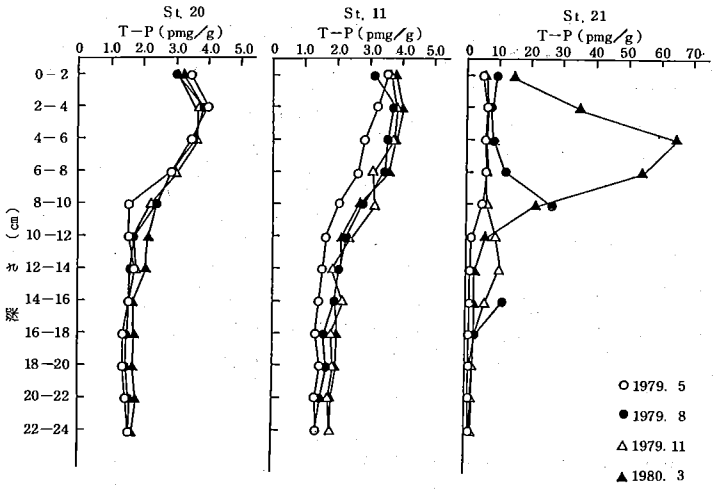

図6. 全リンの鉛直分布

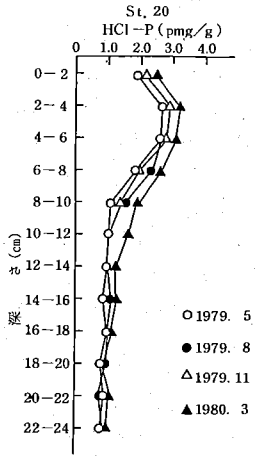

図7. 0.2NHCl 抽出リンの鉛直分布

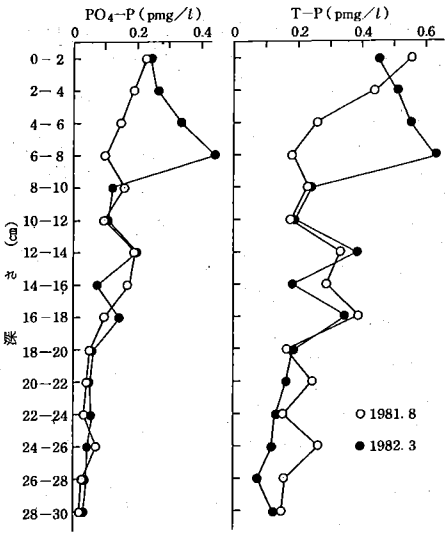

図 8. リン酸態リンおよび全リンの鉛直分布（St. 20）

18cm程度までと推定される。

1981年 8 月(夏期)と1982年 3 月(冬期) に調査(St. 20) した間隙水中のPO_4−PおよびT−Pの鉛直分布を図8に示した。間隙水中のPO_4−PおよびT−Pは上層(0〜8 cm)において，夏期と冬期に差がみられた。直上水の溶存酸素（DO）が豊富にある冬期は，底泥表面において，PO_4−PがFe等の重金属と結合して酸化被膜を形成し，間隙水中のPO_4−Pは湖水へ溶出せず，上層（2〜8 cm）の間隙水中に蓄積されていると考えられる。また，泥温が上昇し直上水中のDOが減少すると，底泥表面の酸化被膜は消滅し，冬期に蓄積されたリンが湖水へ多量に移行していくものと考えられる。

3. 窒 素

3.1 湖内分布と季節変化

湖内21地点における底泥中のT−NおよびNH_4−N の含有量を表 4 に，1978 年 5 月から 1979 年 3 月におけるT−Nの湖内分布を図9に示した。湖内におけるT−N濃度は特に地域差が認められなかった。しかし，網いけす地点で高い値となった。これはリンと同様に養鯉による底泥汚染を示したものと考えられる。

今回の調査では，底泥から硝酸態窒素および亜硝酸態窒素はいずれも検出されなかった。底泥中のNH_4−N 量はT−N量に対して，2.1〜2.7%で無機態窒素の占める割合は極めて低いといえる。従って，窒素は底泥中においてほとんど有機態として存在していると考えられる。

St. 20 における底泥中のT−Nの季節変化を図10に示した。1973年に調査[7]したT−Nの変動範囲は，4.0〜5.3 mg/g (n=6) であり，1978年 5 月以降の調査でもほぼ同様の範囲 4.3〜5.6mg/g (n=18) を示した。また，1973年

表 4. 底泥中の窒素濃度

項 目	採取年月	含有量[a]	平均値[a]	網いけす
	1978. 5	2.3−6.4	4.3	6.7
	8	2.8−5.6	4.7	4.9
	11	2.9−5.9	5.0	5.8
T−N	1979. 3	2.9−6.0	4.9	5.1
(Nmg/g)	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
	1979. 5	86−180	120	91
NH_4−N	8	57−200	130	160
(Nmg/kg)	11	49−180	110	100
	1980. 3	84−150	110	140

a）網いけす（St. 21）を除いた値

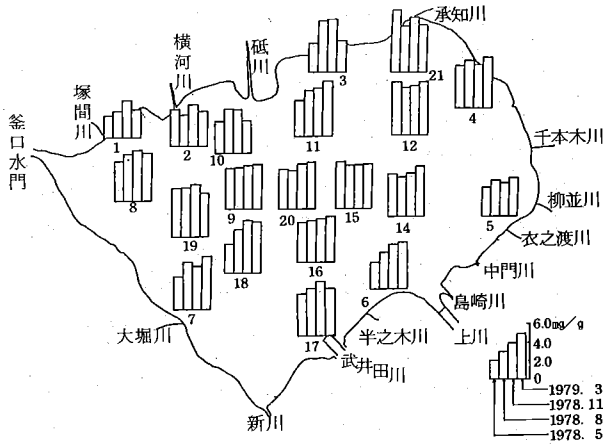

図 9. 全窒素の湖内分布

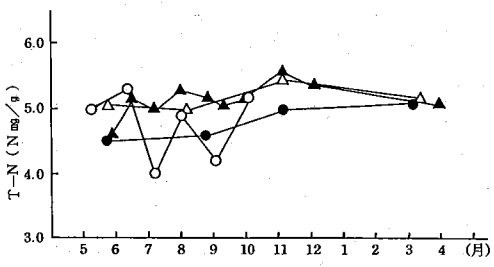

図 10. 全窒素の季節変化（St. 20）

○1973 ; ●1978−1979
△1979−1980 ; ▲1980−1981

と1978年以降の調査結果の間に有意差は認められなかったことから，この 5 年間に底泥中のT−N量は大きく変化しなかったものと考えられる。

St. 20 における底泥中のNH_4−Nと温度の関係を図11

に示した。NH_4−Nは3月から8月にかけて急激に増加し，その季節変化は温度のそれと類似した。諏訪湖は浅い湖であり，水温の変化が底泥まで容易に及ぶものと思われる。従って，4月から8月においては底泥表層部での微生物活動が水温の上昇とともに活発化し，底泥中のNH_4−Nの増加をもたらしたものと考えられる。

3.2　鉛直分布

St.11およびSt.20における底泥中のT−Nの鉛直分布を図12に示した。St.20における底泥中のT−N量の鉛直分布は0〜6cm層では，季節による若干の濃度変化はあっても，ほぼ一定の値を示した。これは0〜6cm層の底泥がT−N量に関してほぼ一様であることを示している。6cm以深で各季節とも減少し，14cm以深で多少減少傾向にはなるが，ほぼ一定の値を示した。

St.11におけるT−N濃度の鉛直分布もSt.20と同様の変化を示したことから，この鉛直分布が湖内におけるT−N濃度の平均的な分布と考えられる。

St.11とSt.21のT−N濃度の比較を図13に示した。St.21のT−N濃度は0〜10cm層でSt.11の1.1〜1.3倍の値を示した。しかし，18cm以深の下層ではSt.11と同程度となったので，St.21の上層における斜線部の窒素の増加量は，養鯉によるものが大部分を占めていると考えられる。

St.20の底泥に含まれるNH_4−Nの鉛直分布を図14に示した。0〜8cm層では，5月と8月が11月と3月よりも高い値を示した。10cm以深では，季節間に多少の濃度差があっても，NH_4−Nは増加傾向を示した。これはT−Nの鉛直分布と逆の現象となった。このように，下層においてT−N量が減少しているにもかかわらずNH_4−Nが増加したことは，有機物が長時間にわたって分解され，無機態窒素に変化しているが，湖水と接していないため，底泥と間隙水中に保持されていたことによるものと考えられる。

1981年8月(夏期)と1982年3月(冬期)に調査した間隙水中のNH_4−Nの鉛直分布を図15に示した。冬期の分布は0〜2cm層で1mg/l，2〜4cm層で0.3mg/l の最小値を示し，12cm以深では8〜9mg/l の範囲でほぼ一定値となった。夏期の分布は0〜4cm層で5.4〜5.6mg/l，6〜10cm層で6〜7mg/l の値を示し，14〜20cm層で急激に増加した。22cm層以深はほぼ14〜15mg/l で一定となった。

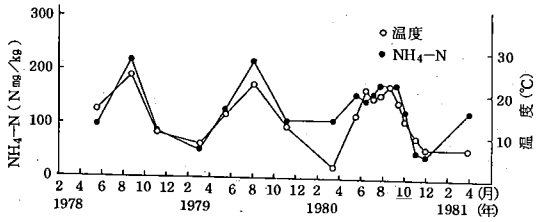

図 11. 底泥中のアンモニア態窒素と泥温の季節変化 (St. 20)

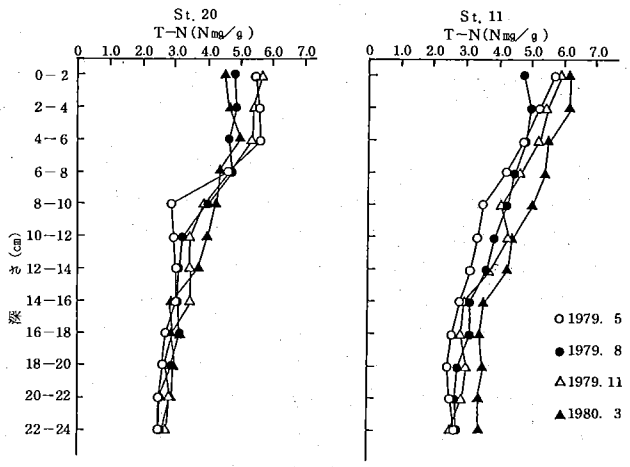

図 12. 全窒素の鉛直分布 (St. 11, St. 20)

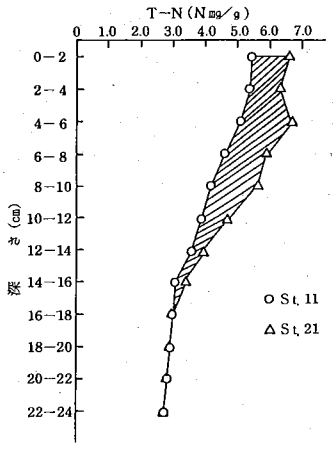

図 13.全窒素の鉛直分布 (1979.5 − 1980.3 の平均値)

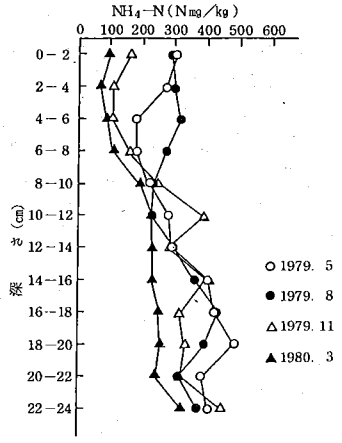

図 14. アンモニア態窒素の鉛直分布 (St. 20)

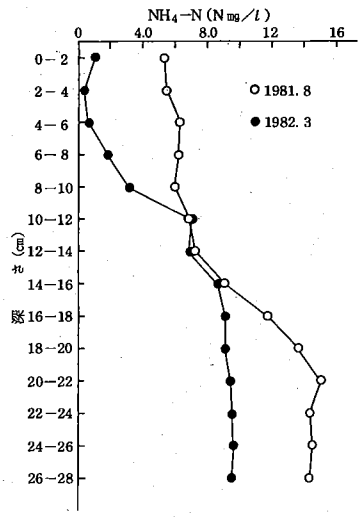

図15. 間隙水中のアンモニア態窒素の鉛直分布 (St. 20)

上層(0～12cm)のNH_4−N 濃度が夏期において高濃度を示したのは，1) 温度の上昇により，底泥粒子に吸着したNH_4−Nが間隙水へ移行していること，2) 下層においてNH_4−N濃度が高いことから，拡散によるNH_4−Nの移動量が冬期と比較して多いこと，3) 微生物による有機物の分解が進み底泥中にNH_4−Nが増大することなどが考えられる。

間隙水中のT−Nの鉛直分布はNH_4−Nと同様の傾向がみられた。T−Nのなかで，NH_4−Nの占める割合は上層(0～6cm)において夏期と冬期に差がみられ，夏期が75～85%，冬期が25～45%となり，夏期はNH_4−Nの比率が高いことを示した。

まとめ

諏訪湖底泥に含まれるリンおよび窒素について調査した結果，表層泥のリンは湖岸および網いけす地点を除いてほぼ一様に分布し，その60～80%が無機態リンとして存在した。鉛直方向では，リンは底泥上層部に多く，深度が増すほど減少した。間隙水中のリンは冬期に上層で増加し，夏期に減少していることから，高温期のリン溶出は十分に考えられる。

養鯉による底泥のリンおよび窒素汚染は著しく，その深度は18cmであった。

窒素の水平分布は網いけす地点を除いてほぼ一様であった。窒素はリンと同様に上層に多く，その97%以上が有機態として存在し，無機態窒素の大部分がNH_4−Nであった。底泥中に含まれるNH_4−Nは温度に強い影響を受け，温度とNH_4−N濃度の季節変化は類似した動きを示した。上層(0～12cm)における間隙水中のNH_4−Nは夏期に高濃度を示し，T−NのなかでNH_4−Nの占める割合は夏期に高いものとなった。

底泥中のリンおよび窒素の挙動は温度に強い影響を受け，温度が高い夏期は，これらが底泥から湖水へ最も移動しやすい時期であることが明らかとなった。

今後は，さらにデータを集積し，諏訪湖におけるリンおよび窒素の物質収支のなかで，底泥の二次汚染源としての位置づけを行うとともに，湖沼の富栄養化現象のなかで底泥の果す役割を解明する必要がある。

終りに，本研究に対して御協力，御助言をいただいた長野県衛生公害研究所の関係者各位に深謝致します。

参考文献

1) 諏訪湖工事事務所：長野県の県単河川調査(1973)
2) 長野県諏訪建設事務所：諏訪湖調査(1978)
3) 長野県諏訪建設事務所，(社) 底質浄化協会：河川環境整備工事に伴う浄化対策調査委託報告書，昭和55年度
4) 長野県諏訪建設事務所：釜口水門改築事業概要
5) 村上彰男："赤潮と富栄養化"，公害対策技術同友会(1976)
6) 石沢修一ほか："土壌養分分析法"，養賢堂(1978)
7) 西沢節二ほか：諏訪湖の富栄養化調査，長野県衛生公害研究所調査研究報告，第126号(1975)
8) 小山忠四郎：底質と富栄養化について，公害と対策，11(1975)